結晶格子を基準とする微小長さ測定 (第3報)*

— 熱ドリフト誤差の抑制と測定範囲の数 μm レベルへの拡大 —

明田川正人** 高田孝次** 野呂昌良*** 小林慶子†
山田和敏†† 竹島信人††† 李 鍾 斗** 中山義則*

Small Length Measurement Using Regular Crystalline Lattice for Reference (3rd Report)
— Suppression of Thermal Drift Error and Extension of Measurement Range to Micrometers —

Masato AKETAGAWA, Koji TAKADA, Masayoshi NORO, Keiko KOBAYASHI, Kazutoshi YAMADA, Nobuhito TAKASHIMA,
Jong-Doo LEE and Yoshinori NAKAYAMA

This paper describes a suppression of the thermal drift error and an extension of a measurement range to micrometers in the comparative length measurement using a regular crystalline lattice as a reference scale and a dual tunneling unit scanning microscope (DTU-STM) as a detector. A thermo-stabilized cell, in which the DTU-STM can be set, was developed to reduce the temperature fluctuation to less than 0.05 K. In order to assess the thermo-stabilized cell, direct length comparison between the certified scanning electron microscope (SEM) standard grating with a average pitch of 240 nm and highly oriented pyrolytic graphite (HOPG) lattice spacing, which is 0.246 nm, was performed using the DTU-STM, whose main body is made from Super-Invar. Images of the grating and the HOPG were simultaneously obtained in the range of 1 μm . To shorten the measurement time and thus reduce the thermal drift error, the lengths of 1 μm for the two samples were measured along the fast scanning axis. A new ultra-low thermally drifted DTU-STM, whose body is fabricated from ultra-low linear expansion glass, was also developed to extend a measurement range to micrometers in the comparative length measurement. Long atomic image of HOPG crystal over a 5- μm -long region along the fast scanning axis was obtained using the new DTU-STM in the thermo-stabilized cell. The experimental results show the possibility of the comparative length measurement in micrometers range with sub-nanometer resolution using the HOPG crystal and the DTU-STM.

Key words : STM, crystalline lattice, length measurement, sub-nanometer, thermal drift, ultra-low linear expansion glass ceramics

1. 序 論

結晶格子の原子間隔は約 0.2 nm であり、結晶自体が無応力状態であれば、その間隔は長周期にわたって安定している。一方、走査型トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscope: 以下 STM と略す)¹⁾ は結晶格子表面の原子像を実時間でかつ大気中でとらえることが可能である。従って、STM と結晶格子を組み合わせた測長法で、分解能がサブ nm 以下のスケールを構築できるものと考えられる。現在、nm から 10 μm にかけての範囲で、信頼性の高い測長手段がない。もし、結晶格子と STM を組み合わせた測長法で測定範囲をおよそ 5 ~ 10 μm まで拡大できれば、この領域での一つの測長手段になりうる。

以上の背景を基に、STM と結晶格子を組み合わせた測長法の研究が行われている^{2~4)}。以前の報告⁴⁾で紹介したとおり、我々のグループは、Kawakatsu と Higuchi の提唱した Dual Tunneling Unit STM (以下 DTU-STM と略す)⁶⁾を用いた、結晶

格子を基準とする比較測長法の開発を進めている。DTU-STM は 1 個の共通 XY ステージ (スキャナ) と、Z 軸が互いに独立に制御される 2 個のトンネリングユニットで構成されている。この装置で、一方のユニットで測長すべき試料表面を、他方のユニットで基準となる既知結晶格子表面を同時に測定することにより、被測定試料と結晶格子の STM 画像を比較し、試料の横 (XY) 方向の長さを測定できる。この装置での実用化への最大の開発課題はおおよそ 5 ~ 10 μm 長さの原子像を安定に取得し、これを比較測長に利用することである。

この測定法での誤差要因のうち最大のものは、第 1 報⁴⁾で指摘したとおり、STM 探針と試料間の熱変形に伴う相対変位 (以下熱ドリフトと呼ぶ) である。また熱ドリフトは測定範囲の拡大化 (すなわち 5 ~ 10 μm 長さの原子像取得) を阻む主要因でもある。結晶格子と DTU-STM を用いた比較測長において原子分解能を保持し測定範囲を μm 以上とする場合、現在のところ、画像データ容量の制限から図 1 に示すような 1 方向のみを μm 以上の走査範囲にするしかない。この場合、測定方向 (図 1 での画像の長手方向) とラスタ走査の関係は、測定方向をラスタ走査の Slow 軸とする場合 (図 1(a)) と Fast 軸とする場合 (図 1(b)) に分けられる。熱ドリフトは測定時間と熱ドリフト速度の積と考えられるので、測定時間の短縮と熱ドリフト速度の抑制が、熱ドリフト誤差の低減に効果的である。図 1(b) に示すように、測定方向 (画像の長手方向) をラスタ走査の Fast 軸とすると、探針速度が仮に図 1(a) の場合と同じでも、測定時間は Fast 軸の 1 ライン走査時間と同じになるので劇的に短縮し有効である。しかし、この走査法で結

* 原稿受付 平成 10 年 7 月 27 日

** 正 会 員 長岡技術科学大学工学部 (長岡市上富岡町 1603-1)

*** 長岡技術科学大学 (現 (株) コスモス・コーポレーション; 三重県度合郡小俣町明野 319)

† 長岡技術科学大学大学院 (現、(株) ソキア; 東京都渋谷区富ヶ谷 1-1-1)

†† 長岡技術科学大学大学院 (現、(株) Sankyo; 東京都台東区上野 2-11-8)

††† 長岡技術科学大学大学院 (現 (株) 日平トヤマ; 富山県東砺波郡福野町 100)

* (株) 日立製作所中央研究所 (国分寺市東恋ヶ窪 1-280)

Fig. 1 Relationship between "fast- and slow-" scanning axes and a measurement direction

晶格子像を観察する場合、Fast 軸に平行な隣り合った走査ライン間の熱ドリフトに伴う画像上の相対ずれが結晶格子の原子間隔以上となると、それらライン同士の相関が無くなり、2次元的な原子情報が失われる可能性がある。従って、この場合には熱ドリフト速度そのものを抑制する必要がある。さらにこの走査法で原子像の長さを μm 以上まで拡大する場合、その測定長さに比例してFast 軸に平行な隣り合った走査ライン間の時間間隔が増加するので、一層の熱ドリフト速度の抑制に注意を払う必要がある。これが測定範囲の数 μm までの拡大化を阻むゆえんである。熱ドリフト速度そのものを抑制するためには、STM 本体/周辺の温度環境を制御し、STM 本体を低熱膨張部材で構成することが有効であると考えられる。

本報では、熱ドリフト誤差を抑制し、 $5 \sim 10 \mu\text{m}$ 長さの原子像取得（すなわち測定範囲の拡大化）を目指し、以下の検討を行ったので報告する。

- (1) 熱ドリフト速度そのものの抑制のために精密恒温セルを試作し評価した。
- (2) 精密恒温セルと第1報で試作したDTU-STMを用い、測定方向がラスト走査のFast 軸となる走査法で、走査型電子顕微鏡（Scanning Electron Microscope：以下SEMと略す）用の標準長さ回折格子（平均ピッチ 240 nm ）と高配向焼結グラファイト（Highly Oriented Pyrolytic Graphite：以下HOPGと略す）結晶格子を $1 \mu\text{m}$ 程度の領域で比較測定した。
- (3) $5 \sim 10 \mu\text{m}$ までの比較測定を行うため、熱ドリフト誤差の一層の低減を図り、極低熱膨張ガラスセラミックスを用いて新たにDTU-STMを試作し評価した。

2. 精密恒温セルの試作とその評価

DTU-STMを内部に収めることが出来、その周囲環境温度を精密に制御する恒温セルを試作した。図2にその概要を示す。恒温セルはセル本体と、外部に設けられた恒温水循環装置（ヤマト科学：BH-300）からなる。恒温水循環装置は、 0.05K の精度で水温を制御し、外部の機器（この場合は恒温セル本体）に水を循環させる装置である。恒温セル本体は円筒形をしており、3層の銅板シェルと2層の断熱材壁からなる。2～3層目の銅板シェルの内部に銅パイプが巻き付けられており、そのパイプ内を恒温水が循環する。銅板の高い熱伝導度のために2層目の銅板シェル表面の温度は全面にわたって恒温水の温度とほぼ等しくなる。セル本体の内部中心では、セル本

Fig. 2 Schematic of the thermo-stabilized cell

Fig. 3 Relationship between temperature variation and thermal drift velocity before thermal equilibrium

Fig. 4 Atomic STM images of HOPG obtained after thermal equilibrium in the thermo-stabilized cell. Scanned area: $4\text{nm} \times 4\text{nm}$

体の対称性と2層の断熱壁によって時間・空間的な温度変動が抑制され、精密な温度環境が予想される。

試作した恒温セルの評価のため、第1報で報告した低熱膨張材のスーパインパールで構成されたDTU-STM⁹⁾を内部に入れ、HOPG 結晶格子を観察して熱ドリフト速度と、セル内外の温度を測定し比較を行った。DTU-STMを入れた恒温セルは温度管理をしない室内に約1日放置した。酸化の影響を排除するために機械加工したPt/Ir 探針を用いた。バイアス電圧と目標トンネル電流は、それぞれ 50mV 、 2nA とした。（以後の実験でもこれらの条件は同一。）図3に温度変化と熱ドリフト速度の時間変化を示す。時刻0において、恒温水循環装置を作動させ、DTU-STMの片方のトンネリングユニットでHOPG 原子像の観察を開始した。熱ドリフト速度の横(XY) 方向成分は、第1報で報告したFFT パワースペクトラムを用いる方法⁹⁾と、後述する1ライン走査で原子の流れを見る方法を併用して決定した。縦(Z) 成分はZ ピエゾ素子に加えた電圧そのものから読みとった。温度は 0.05K 精度のサーミスタ（テク

Fig. 5 STM image of the SEM standard grating deposited with a Pt/Pd alloy. Scanned area: $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$

ノセブン：ZL-64, 0.05K級）で測定した。測定開始直後はセル内外の温度と熱ドリフト速度は大幅に変動している。約5.5時間後に、セル内の温度はほぼ一定となったが、熱ドリフト速度は定常状態とならなかった。この図では記載していないが、約24時間後に熱平衡に達し、セル内の温度変動と熱ドリフト速度はそれぞれ0.05 K, 5 nm/h以下となった。熱平衡に達した後、ほぼ同時に同一個所を走査して得られた2個のグラファイト原子像を図4に示す。走査範囲は約4nm四方で、走査時間は図4(a), (b)でそれぞれ256秒, 8.4秒である。走査時間の大幅な差異にもかかわらず、2個の原子像は良く似ており、このことは熱ドリフトが非常に小さいことを示す。2個の画像より、熱ドリフト速度は約5nm/h以下と推定された。特に図4(a)ではラスタ走査のFast軸に沿った隣り合った走査ラインの時間間隔は1秒と比較的長いが、原子像を明りょうにとらえることが出来、このことは試作した精密恒温セルがDTU-STMの周囲環境の精密温度制御に有効であることを示している。

3. 精密恒温セル内での μm レベルの比較測長

第2節で用いたDTU-STMの2個のトンネリングユニットの基にHOPG結晶格子とSEM用の標準長さ回折格子を配置し、同時に画像化し比較測長を行った。この回折格子は回折法で校正され、平均ピッチが240 nm, ばらつきが 3σ で12nmと測定されている⁷⁾。この回折格子はSiで作製されているので、STM観察を容易にするためPt/Pd合金を薄く蒸着し導電性を確保した。図5にそのSTM像を示す。DTU-STM全体を20℃に設定した精密恒温セルに入れ、熱平衡に達するように両トンネリングユニットで試料を5 nm四平方程度の微小領域で走査し、約2日間放置した。また測定方向がラスタ走査のFast軸(X軸)となる走査法を用い、探針速度は $1\ \mu\text{m/s}$ とした。このとき同時に得られた $1\ \mu\text{m}$ までのHOPG原子像の一部と回折格子の断面図を図6に示す。Fast軸に沿った1ラインの走査時間と画像全体の走査周期は、それぞれ1s及び512sである。HOPG原子像の全体にわたって、格子欠陥と原子ステップは見えなかった。測定前後の横方向の熱ドリフト速度は3~6nm/hであり、測定方向の熱ドリフトによる誤差は最大1.7 pm($= (6\text{ nm/h}/3600) \times 1.0\text{s}$)であり、ほぼ無視できる。試料の取付け傾斜誤差を補正したのち、回折格子のピッチをHOPG原子像の原子数から求めた。HOPGの格子定数を0.246nmと

Fig. 6 Part of a long atomic STM image of HOPG (a) and cross section of the SEM standard grating (b). Scanned area: $1\ \mu\text{m}(X) \times 5\text{nm}(Y)$. Scanned period: 512 s. The pitch of the grating determined from the atomic image of HOPG for 1-2, 2-3, 3-4 shown in (b) was 226.7, 236.5, 248.1 nm, respectively

した場合に⁸⁾、図6(b)の断面図1-2, 2-3, 3-4に対するピッチはそれぞれ226.7, 236.5, 248.1 nmとなった。平均ピッチは237.1nmとなり、回折法で得た値とおよそ2%の差異があった。この差異の原因は、回折格子のうねりとSTM探針による格子の破壊等が挙げられるが、今回の測定ではわずか3ピッチしか観察しておらず、誤差を議論する段階ではない。統計的な判定を行うには少なくとも20ピッチ(走査範囲で $5\ \mu\text{m}$)以上観察する必要がある。このため、ラスタ走査のFast軸を測定方向とする $5\ \mu\text{m}$ 以上の原子像取得を試みたが、熱ドリフトの影響で格子を計数出来る良好な画像を得るには至っていない。このことは、 $5 \sim 10\ \mu\text{m}$ 程度に測定範囲を拡大するためには、より熱ドリフトの影響を排除する必要があることを示している。なお、走査を2日間継続したため、回折格子はSTM探針で削られ、原形を失った。これは回折格子の導電性が予想以上に低かったためであり、絶縁物も測定できる原子間力顕微鏡の導入などの対策が必要である。

4. 極低熱膨張ガラスを用いたDTU-STMの試作と評価

4.1 極低熱膨張ガラスを用いたDTU-STMの試作

熱変形の影響をさらに低減させ $5 \sim 10\ \mu\text{m}$ までの比較測長を行うために、スーパインバルより線膨張率の低い極低熱膨張ガラスセラミックス(オハラ製：クリアセラムZ, 線膨張率 $0.3 \times 10^{-7}/\text{K}$)を用いてDTU-STMを試作した。図7にその概略を示す。同図(a), (b)はそれぞれ平面図, 正面図を示す。同図において、STMベースとVブロックガイド(図中斜線部)はガラスセラミックス製であり、相互に接着してある。2個のトンネリングユニットは低熱膨張鋳鉄(榎本鋳工所：ノビナイト)で構成され、Vブロックと精密ねじによって固定され、さらに剛性を確保するためにスーパインバルのサポート板とばねによって補強されている。Z軸の粗動は精密ねじを回転し、トンネリングユニットをVブロックガイドに沿って上下させることで行う。平滑な上下動を行うために、トンネリングユニットのしゅう動部の一部は切り取った。共通XYステージの駆動には第1報と同様に、剛性が高く、高速走査可能なチューブ型PZTを用いた。2個のトンネリングユニットのZ軸

Fig. 7 Top and side schematic views of the DTU-STM employed with ultra-low linear expansion glass ceramics

微動にもチューブ型PZTを使用した。10 μm までの原子像取得のために、最大512MBまでの大容量画像データを取得しパソコンのRAMに格納できる高速A/Dコンバータ(エルメック社：EC-2397B)を新たに採用した。精密なラスター信号を得るために、ラスター信号増幅回路に平滑化回路を増設した。

4.2 熱ドリフト測定と5 μm 長さ原子像の取得

試作した極低熱膨張ガラスを用いたDTU-STMの性能を評価するために、20℃に設定した精密恒温セルにこれを入れ、熱ドリフト速度の測定と5 μm 以上の長さの原子像を取得し評価を行った。HOPG結晶を片方のトンネリングユニットの基に配置し、熱平衡状態にするために恒温セル内で、5 nm四方の走査を継続させ約2日放置した。このとき、熱ドリフト速度が最低になった場合の測定結果を図8(a), (b)に示す。同図(a), (b)は走査方向をそれぞれXとY軸のみの1ライン走査とし、熱ドリフトに伴う原子の流れを示したもので、横軸はXまたは

Fig. 8 One-line scanned images of HOPG obtained with the DTU-STM employed with ultra-low linear expansion glass ceramics after thermal equilibrium. Scanned length: 5 nm. Scanned period: 512 s.

Fig. 9 Parts of long atomic image of the HOPG after a 5 nm $\times$ 5 nm-area scanning continued for 24 hours. Scanned area : (a) 1 μm (X) $\times$ 5 nm (Y) (b) 5 μm (X) $\times$ 5 nm (Y).

Table 1 Lateral thermal drift velocity before/after the measurement shown in Fig. 9

Figures	Thermal drift velocity before imaging (nm/h)	Thermal drift velocity after imaging (nm/h)
Fig. 9(a)	X: 13.0 Y: 9.7	X: 19.0 Y: 15.0
Fig. 9(b)	X: 4.0 Y: 6.0	X: 75.0 Y: 68.0

Y軸の走査長さ、縦軸は走査時間を示す。走査長さとして全体の走査時間は、それぞれ約5 nm, 512 sである。熱ドリフトがある場合には原子の流れは、斜線となりその傾きから熱ドリフト速度を求めることができる。図8においては、走査時間が大きいにもかかわらず原子の流れは斜めとならず、熱ドリフトが小さいことを示している。この図よりXY方向の熱ドリフト速度は、0.2 nm/h以下となった。Z方向の成分は、Zピエゾに印加した電圧変化から読みとり、2 nm/h以下であった。

上の実験に引き続き、5 nm四方の走査を約1日継続し、その後5 μm 以上の長さの原子像を取得した。図9(a), (b)に測定方向をラスタ走査のFast軸(X軸)とし、探針走査速度を2 $\mu\text{m/s}$ と設定したときの1 μm (X) $\times$ 5 nm (Y), 及び5 μm (X) $\times$ 5 nm (Y)の原子像を示す。HOPG結晶は純度の高いグレード(Advanced Ceramics社：ZYA-S)を用いた。なお、5 nm四方の走査を中止した直後に、1 μm $\times$ 5 nmまたは5 μm $\times$ 5 nmの走査と画像取得を行った。1ラインの走査時間は図(a), (b)でそれぞれ0.5 s, 2.5 s, 全体の走査時間はそれぞれ256 s,

Fig.10 Part of a long atomic image of the HOPG after a $5\mu\text{m} \times 5\text{nm}$ -area scanning continued for 24 hours. Scanned area: $5\mu\text{m}$ (X) $\times$ 5nm (Y)

1280 sであった。DTU-STM周辺の温度変化は $20^\circ\text{C} \pm 0.05^\circ\text{C}$ であった。測定前後の熱ドリフト速度の変動を表1に示す。同図(a)においては原子頂点を明りょうに判別でき、画像の長さ(すなわち測定長さ)を格子点を数えることで簡単に得ることが可能である。一方、同図(b)においては原子頂点が明りょうでなく、格子を計数することは困難である。この原因は、走査範囲を急激に拡大したことによるPZTの発熱、またはクリープが原因と考えられる。表1において $5\mu\text{m}$ 走査時の熱ドリフト速度は、走査後に大きな変動が見られこれらの原因を間接的に示している。

PZTの発熱またはクリープの影響を低減するために走査開始直後に画像取得することをやめ、約24時間、 $5\mu\text{m} \times 5\text{nm}$ の走査を継続してから $5\mu\text{m}$ までの長さの原子像取得を試みた。実験条件は上の実験と同じである。結果を図10に示す。原子頂点を明りょうにとらえ、格子計数が可能である。また $5\mu\text{m}$ 長さのHOPG原子像の全体にわたって、格子欠陥と原子ステップは観察できなかった。

5. 結論と今後の課題

結晶格子を基準としてDTU-STMを用いた比較測長での測定範囲拡大のための阻害要因、及び測定誤差要因は、STM探針と試料間に生ずる熱ドリフトである。本報では熱ドリフトの抑制と比較測長範囲の $5 \sim 10\mu\text{m}$ 領域までの拡大のために、以下の事項の検討を行った。

- (1) 銅板シェルと断熱壁が交互に組み合わさった複層構造で恒温水循環装置を用いた精密恒温セルを試作した。セル内部の温度変動は、 0.05K 以下となった。第1報で試作したDTU-STMでHOPG結晶格子を観察し、熱ドリフト速度を測定したところ横方向成分が 5nm/h 以下となった。
- (2) (1)で試作した精密恒温セルに同じDTU-STMを入れ、 $1\mu\text{m}$ までの領域で、SEM標準長さ試料(平均ピッチ 240nm)とHOPG結晶格子との比較測長を行った。HOPG原子像から平均ピッチを算出したところ、回折

法での校正値に対して約2%の差異があった。同じDTU-STMで $5\mu\text{m}$ までの長さのHOPG原子像の取得を試みたが、品質の良い画像は得られなかった。

- (3) 熱変形の影響を極力低減するため極低熱膨張ガラスセラミックスを用いたDTU-STMを試作した。(1)で試作した精密恒温セルにこのDTU-STMを入れ、HOPG結晶を観察して熱ドリフトを評価したところ、横方向成分が最小 0.2nm/h となった。また熱的に安定すれば、 $5\mu\text{m}$ までのHOPG原子像を取得できた。

以上の結果により、結晶格子を基準とした最大 $5\mu\text{m}$ 領域での測長の可能性が確認された。結晶格子間隔を基準とする微小長さ測定の実用化の今後の課題として次の事項が挙げられる。

- (1) $10\mu\text{m}$ までの比較測長と、レーザ干渉測長器との直接比較校正。
- (2) 運動誤差の小さいXYステージの採用。
- (3) 導電性のない試料も観察できること。

謝 辞

装置を製作していただいた本学の黒三郎技官と修士2年生岡有希君に感謝します。恒温セルの構造に関して議論していただいた計量研究所の中山貫主席研究官に感謝します。この研究の一部は平成7年度と平成8年度の文部省の科学研究費補助金の助成を受けました。ここに謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) G.Binning, H. Rohrer, CH. Gerber and E. Weibel : Tunneling Through a Controllable Gap, Appl. Phys. Lett., **40**, (1982) 178.
- 2) H. Kawakatsu and T. Higuchi : Design of a Positioning Table Using a Crystalline Lattice and Surface Topography as a Reference Index, SEISAN-KENKYU, **40**, (1988) 45.
- 3) C. Teague : The National Institute of Standards and Technology Molecular Measuring Machine Project: Metrology and Precision Engineering Design, J. Vac. Sci. Technol., **B7**, (1989) 1898.
- 4) 明田川正人ほか：結晶格子を基準とする微小長さ測定(第1報) - 2次元FFTによるSTM画像のゆがみ成分の抽出とその補正, 精密工学会誌, **63**, 1 (1997) 108.
- 5) 明田川正人ほか：結晶格子を基準とする微小長さ測定(第2報) - 逆格子ベクトルを用いた自動格子計数法, 精密工学会誌, **63**, 8 (1997) 1091.
- 6) H. Kawakatsu and T. Higuchi : A Dual-Tunneling-Unit STM - Application as a nm Order Measuring Machine and a Positioning Table -, SEISAN-KENKYU, **41**, (1989) 548.
- 7) Y. Nakayama, S. Okazaki and A. Sugimoto : Proposal for a New Submicron Dimension Reference for a Electron Beam Metrology System, J. Vac. Sci. Technol., **B6**, (1988) 1930.
- 8) A. Bryant, D. P. E. Smith and C. F. Quate : Imaging in Real Time with Tunneling Microscope, Appl. Phys. Lett., **48**, (1986) 832.