ガス雰囲気中の FIM ティップ・ループ内の温度分布*

森川 浩志**・岩津 文夫**・寺尾 光身**

(昭和61年2月17日 受理)

On the Temperature Distribution in a Tip and a Loop
of FIM under the Influence of Gas Molecules

Hiroshi MORIKAWA, Fumio IWATSU and Terumi TERAO

(Nagoya Institute of Technology, Showa-ku, Nagoya 466)

(Received February 17, 1986)

The temperature of a loop with a tip mounted in an FIM has been measured by a four terminal method under the influence of gas molecules. The temperature distribution in the tip and the loop has been calculated by taking into account Joule's heat, the thermal conductance through the tip and the loop, the heat radiation from these surfaces and the heat taken away by the impinging gas molecules. The gas effect is appreciable at pressures higher than 10^{-2} Pa of He, Ne and H_2 . By making a tip with Ni, Au or Al, the loop temperature at an instance the tip melts has been measured. The calculated temperature agrees pretty well with the respective melting point.

1. 緒 論

電界イオン顕微鏡 (FIM), 電界放射顕微鏡 (FEM) は, 金属や半導体の表面構造や表面反応の観察に多く利用されてきた。FEM による吸着の観察¹⁾, FIM による規則—不規則変態²⁾や蒸着膜^{3,4)}の観察など, 試料のその場加熱を必要とする研究も多い。またそのため, その針状試料 (ティップ) の温度に関する報告^{5~8)}も多い。しかし, FIM, FEM のティップの観察している領域であるその先端 (ティップ・エンド) の温度を直接測定した例は非常に少ない⁹⁾。特にティップの加熱処理中における, そのティップ・エンドの温度を直接測定した例はない。

我々は, すでに, 真空中においてティップを点熔接したタングステンループの平均温度を四端子法によるループ自身の抵抗測定から求め, ループ内の温度分布を計算することにより, ティップの根元の温度を99%以上の精度で決定した¹⁰⁾。さらに, このようにループ内の温度分布の計算について妥当性が確かめられたその同じ計算方

法を, ティップ内の温度分布の計算にも適用し, ティップ先端の温度を求めた。今回は, 化学蒸着法 (CVD) のように, ガスの存在下でティップを加熱する場合のティップ・ループ内の温度分布について検討した。

現状では, 必ずしも温度分布に対するガスの影響を正確に見積れるまでには至っていないが, その代わり実験による測定値を用いることにより, ガス存在下のティップの温度が推定できた。

2. 実験方法

FIM, FEM の試料であるティップは, Fig. 1 のように点熔接によりループに取りつけられており, ループへの直接通電によりティップの加熱処理ができる。その際四端子法によりポテンシャルリード間の電圧を測定し, その間の抵抗すなわち平均温度を求めることができる。まず, ループの温度が上昇しない程度の微弱電流により, ループの基準抵抗として室温での抵抗値を測定する。そして, この基準抵抗値と, 試料加熱中の電流・電圧測定により求めた抵抗値とを比較することにより, ループのポテンシャル・リードの間の平均温度を求める。本研究では, まず, 上記のように高真空中で加熱中の

* 昭和60年3月29日 第32回応用物理学関係連合講演会で講演

** 名古屋工業大学 (名古屋市昭和区)

Fig. 1 A tip and a loop mounted on a cold finger. The loop, the coiled receptacles and the potential leads are all made of tungsten.

ループの抵抗を測定した後、同じ電流で加熱しながら、所定の圧力の He, Ne または H_2 を FIM 容器内に導入し、その温度の低下を測定した。FIM の到達圧力は、 $\sim 1 \times 10^{-6}$ Pa 以下で、He はバイコールガラスを、 H_2 は Pd を通して、また Ne はガラスボンベからグリースコックを 2 段階通して、FIM 容器内へ導入した。

さらに、計算されたループ温度の精度を確かめるため、ティップを Ni, Au または Al で作り、ループの温度をゆっくり上昇させ、ティップが熔融した瞬間のループの抵抗を測定した。ここで得られた抵抗値を基に計算されたティップの根元の温度を、それぞれの金属の融点と比較した。測定は、すり合せ付きのガラス製の FIM を用い、液体窒素トラップを経由して、ヒックマン型の油拡散ポンプで排気した。ループには直径 0.15 mm の、ポテンシャルリードには直径 0.1 mm の市販の純度 99.95% のタングステン線を用い、FIM での通常の使用条件に合わせ、焼鈍していない線引きしたままのものを用いた。そのため、試料加熱中に、ループのタングステン線は焼鈍され、残留抵抗は減少する。その減少量をあらかじめ温度の関数として求めておき、ループの温度分布を計算する際に、残留抵抗の算定に用いた。なお、測定中コールドフィンガーは液体窒素で冷却した。

3. 計算方法

計算方法は、基本的には前報¹⁰⁾と同じであるが、ガスの影響をも考慮した部分とともに、全体の概略を説明する。Fig. 2 に示すように、ティップ・ループをそれぞれ、厚さ 0.01 mm, 0.025 mm の多数のディスクに分割し、それぞれのディスクの熱収支を計算することにより順次各ディスクの温度が求まる。ループはティップを中心に左右対称とし、その片側だけを計算した。各ディ

Fig. 2 The schematic diagram of the shapes and sizes of a tip and a loop, which are divided into many disks to calculate the temperature distributions in them.

スクは、Fig. 2 のように、ティップ・ループ共、ティップの根元から始めて、それぞれティップエンドまたはポテンシャルリードへ向けて順次番号づけをする。ここで、例えば、 $(N-1)$ 番目のディスクから、温度 $T(N)$ の N 番目のディスクに流れ込む熱量を $Q(N)$ 、そのディスク表面からの輻射熱を Q_r 、ガス分子により表面から取り去られる熱量を Q_g 、ループを流れる電流により発生するジュール熱を Q_c とすると、次の $(N+1)$ 番目のディスクへ流れる熱量は、

$$Q(N+1) = Q(N) + Q_c - Q_r - Q_g \quad (1)$$

で表わされる。 $Q(N+1)$ が求まると、

$$Q(N+1) = K \cdot S_d \cdot \frac{T(N+1) - T(N)}{D} \quad (2)$$

により、 $(N+1)$ 番目のディスクの温度 $T(N+1)$ が求まる。ここで、 K は熱伝導度、 S_d はティップまたはループの断面積、 D はディスクの厚さである。 Q_c 、 Q_r 、 $Q_g^{(1)}$ は、

$$Q_c = I^2 \cdot R(T) \quad (3)$$

$$Q_r = \sigma \cdot E(T) \cdot T^4 \cdot S \quad (4)$$

$$Q_g = \frac{\alpha}{2} \cdot \left(\frac{\gamma+1}{\gamma-1} \right) \cdot \sqrt{\frac{R}{2\pi M T}} \cdot p \cdot S \cdot (T - T_g) \quad (\text{分子流}) \quad (5)$$

$$Q_g = C \cdot S \cdot \frac{T - T_g}{L_d} \quad (\text{粘性流}) \quad (6)$$

で与えられ、 I は電流、 $R(T)$ は温度 T の時の各ディスクの抵抗、 σ はステファンボルツマンの定数、 $E(T)$ は輻射率、 S は円板状のディスクの円周部分の表面積、 α はガス分子のディスク表面温度への適応係数、 γ は定圧比熱と定容比熱の比、 R は気体定数、 M はガス分子の分子量、 p はガスの圧力、 T_g はガスの温度、 C は粘性流

状態のガスの熱伝導度, L_d はその拡散距離である. ガスにより奪われる熱量は, その周囲のガスの圧力により扱いが異なる. すなわち, 圧力の低い時はいわゆる分子流として扱い, 圧力が高くなると, ガス分子同士の衝突がはげしくなり, 粘性流として扱わなければならない. 分子流の状態では, ガス分子の平均自由行程は大きく, ループから奪われる熱量は, 各ディスク表面への入射粒子数と, ガス分子とディスクとの温度差に比例し, 式(5)で与えられる. しかし, ガスの圧力が高くなると, ディスク表面から熱を得たガス分子は, すぐに他のガス分子と衝突し熱の交換を行ない, いわゆる酔歩による熱伝導状態となる(式(6)). その熱伝導度は, ガス分子の圧力には依存せず, ほぼ一定の値となる¹²⁾(He: 34.4 cal/cm·sec·K, Ne: 11.04 cal/cm·sec·K, H₂: 41.6 cal/cm·sec·K). 一般に, $10^{-2} \sim 10$ Pa の領域で分子流から粘性流へと変化し, 本研究において丁度ループ温度に対するガスの影響が出始める圧力範囲である. 本研究において, 圧力 1 Pa のネオンガスに対しては, ガスの状態を分子流と考えても粘性流と考えても, 計算によるガスの影響は小さく, 得られるループ・ティップの温度に対して目立った違いを与える程の影響はなかった. 今回の結果は, 取りあえず, すべて分子流として扱ったが, ガスの状態の違いについては現在検討中である.

なお, Fig. 1 から想像できるように, ループでの発熱量の多くは, タングステンコイルを通してコールドフィンガーへ熱伝導により流れ出る. しかし, ループとコイルの間の熱伝導およびループの形状は, ループを交換する度に変わり, 再現性の良い放熱状態を確保することは不可能に近い. そのため, 例えば, ループとコイルの熱接触が良ければ同じ電流で加熱しても, ティップの温度は低くなる. 結局, ループ中の温度分布を計算する際にポテンシャルリード間の抵抗値だけでなく, ループを通電加熱している電流値をも用いることにより, 初めて熱伝導によるコールドフィンガーへの放熱の状態を考慮に入れた, より正確な温度を得ることができる.

4. 結 果

一定の電流で加熱中の同じループを, いろいろな圧力の He, Ne または H₂ にさらすと, ループの温度が変わり, その抵抗も変化する. それぞれの状態での電流・電圧測定値を用いてループ内の温度分布を計算した(Fig. 3). 3種類のガス, 3つの温度領域について, それぞれの圧力に対するループ内の温度分布を示している. ガスの影響は 10^{-3} Pa 以下の圧力ではほとんどなく, 10^{-1} Pa あたりから顕著になり, 1000K 近辺が最も著しい. (3)式によると, ループの温度が高い程ガスの

Fig. 3 The temperature distributions in loops are calculated for three different temperature ranges in various pressures of three kinds of gases.

影響が大きい, 1500K 程度の高温になると, ジュール熱および, 特に輻射熱が非常に大きくなり, それに比べて, ガスの影響が相対的に小さくなっているものと考えられる. また, ガスの存在により, ループ内の温度分布はゆるやかになり, 温度勾配は小さくなる. さらに, ガスの影響は, H₂ が最も大きく, He と Ne では差がない. この違いは, この圧力でのガスを分子流として扱う方が妥当であることを示している. すなわち, ガス分子のタングステン表面への適応係数を He, Ne, H₂ について, それぞれ 0.020, 0.055, 0.165¹³⁾ とすると, (5)式による Q_g は, 相対的に 4:5:7 (He:Ne:H₂) となり, H₂ の影響が最も大きく, He と Ne の差は少ないことが推測できる. 一方, 粘性流とした場合には, その影

Fig. 4 The calculated temperature distribution in a tip and a loop at an instance the tip melts in the presence of 1.3 Pa of Ne, along with the melting point of each tip material.

響は(6)式により熱伝導度の比となり、ほぼ3.5:1:4 (He:Ne:H₂)となり、測定結果を説明しない。

以上の結果の正確さを確かめるには、ループ内のどこか一点の温度を実際に測定し、Fig. 3の結果と比べてみれば良い。そこで、ティップ材料としてNi, AuまたはAlを用いて、それぞれのティップの溶けた瞬間の電流・電圧測定値から計算されたティップの根元の温度と、それぞれの金属の融点とを比較してみた (Fig. 4)。その違いは2%以下で、どの金属の場合も、その融点よりも測定値の方がわずかに低い。これは、計算によるループ内の温度勾配が、実際より小さいことを示している。なお Fig. 4には、計算によるティップ内の温度分布は点線で示されているが、表面からの輻射熱は T^4 に比例するので、高温では非常に大きくなり、ティップ内の温度勾配が大きくなる。すなわち、ティップ・エンドの温度は、その根元に比べて非常に低くなることが注目され

Fig. 5 The calculated temperature distributions in a tip and a loop under high vacuum and 1.3 Pa of Ne (solid lines). The gas effect on the temperature distribution in a loop is estimated only from the data obtained under high vacuum condition (dashed line).

る。

5. 考 察

もし、同じループを同じ電流で加熱する場合、真空中に比べて、ガスが存在することによりそのガスが奪う熱量の分だけループの温度は下がる。Fig. 3の温度分布を計算する際には、ガス存在下でループ加熱中の電流・電圧値を使用した。しかし、それでは、ガスの影響を計算で見積ったことにはならない。今回の計算方法の妥当性を確かめるには、真空中での状態のみから、ガスの導入後の状態を予測し、それと実験値との一致を調べる必要がある。そこで、ループからそれを支持しているタングステンコイルへの放熱がガス分子の存在には影響されず、それらの間の温度勾配にのみ依存すると仮定し、ループの温度に対するガスの影響を計算により予測してみた (Fig. 5)。すなわち、ループからコールドフィンガーへ流れ出る熱量 Q_0 が、ループにポテンシャルリードを取りつけた位置の温度と液体窒素温度 (コールドフィンガーの温度) との差に比例すると仮定した。これによると、ガスの影響は非常に小さく、ループの温度の下がり方は測定値の1/4以下となる。これは、この計算の仮定に問題があり、ループとコールドフィンガーの間の熱の流れもガスの存在により影響を受け変化していることを暗示している。一方、ティップとループの各ディスクでの発熱量・放熱量の、1 Paのネオンガス存在下におけるおよその大きさを、それぞれのティップ金属の融点に対して、Table 1にまとめてみたが、ここでもループからコールドフィンガーへの熱伝導による放熱が一番大

Table 1 The roughly estimated heats at an instance the tip melts.

Tip Material	Ni	Au	Al
Q_c (J/sec·disk)	0.004	0.002	0.001
Q_r (J/sec·disk)	0.001	0.00025	0.00005
Q_g (J/sec·disk)	0.00002	0.000015	0.00001
Q_o (J/sec)	0.05	0.0025	0.002
Q_n (J/sec)	0.14	0.12	0.09

Q_c : Joule's heat generated in a disk

Q_r : the heat radiated from a disk surface

Q_g : the heat taken away by gas molecules from a disk surface

Q_o : the heat flow from the loop to the tip

Q_n : the heat flow to the coldfinger

きく、この部分の状態が最も強くループの温度分布に影響しそうである。温度分布を計算する際にガス存在下の電流・電圧の実測値を用いることにより、特にその電流値を通して、ガスの影響は計算に取り入れることができる。そのため、ガス存在下の測定値を用いて計算すれば (Fig. 3, 4), その結果は真の温度勾配に近いものを与えると考えられる。

以上、ティップ・ループの温度分布を計算する際に、ガス存在下の電流・電圧値を用いることにより、かなり良い結果が得られたが、まだまだ問題点も多く、いくつかの誤差の原因が考えられる。ここで、我々の計算方法のモデル・仮定について誤差の原因となりそうなものを検討してみる。

i) ティップ・ループは Fig. 1 と Fig. 2 に示されたようなサイズの金属で、左右対称であると仮定した。すなわち、ループ内の温度分布も、ティップの根元を境に左右対称とした。しかし、ループからコールドフィンガーへの放熱状態を厳密に左右対称に設定することはほとんど不可能に近い。今回の実験では、ループとタングステンコイルの間に細いタングステン線をさし込むことにより、ループとコイルの熱接触を確保し、目で見える限りはループが左右対称に赤く熱せられていることを確認している。

ii) ティップの形状は、Fig. 2 のように仮定したが、これは、実際のティップ形状とは異なる。その平均温度が1500 K 近辺のループ内の温度分布を計算すると、ティップをつけた場合はつけない場合より、ティップの根元の温度でほぼ10 K 余り低くなる。これから推測すると、一般に使用されているティップ形状の範囲内での変化は、大きく見積っても5 K 以下であろう。また1000 K 近辺のループ温度では、輻射熱が非常に少なくなるので、ティップ形状の影響はほとんど無視して良い。しかし、ティップ形状はティップ・エンドの温度に対して

Fig. 6 The temperature distribution in a loop estimated by using the reduced heat radiation from the disk surface, i.e. the temperatures, 1.0, 0.9 or 0.8 times the disk temperatures, are used to calculate the distributions.

は大きな影響を与える可能性があり、できれば、個々のティップ形状について計算する必要がある。

iii) 普通、FIM, FEM の試料保持用ループには、市販のタングステンまたはモリブデン線をそのまま使うので、それぞれの観察温度で焼鈍され、いわゆる残留抵抗が減る。今回使用したタングステン線の場合、高真空中で充分焼鈍すると、約3%程抵抗が減少した。この残留抵抗は、各ループ毎に異なるが、そのばらつきは、全抵抗値の1%以下である。充分焼鈍したループについて今回と同様の測定を行ない、データ数は少ないが、やはり1%以下の誤差でティップの根元の温度が求められることが確かめられている。

iv) 温度分布を計算する際、ティップ・ループを分割した小さなディスク内の温度分布はないものとしたが、それらの表面は、熱輻射や気体分子の衝突により温度が下がり、内部より温度は低いはずである。すなわち、Fig. 3~5 の計算においては、表面からの熱輻射を過大評価している可能性が高い。そこで、温度分布の計算において、輻射熱を計算する際、ディスクの表面温度をデ

イスクの温度の1.0倍, 0.9倍, 0.8倍として計算してみた結果が Fig. 6 である。表面温度を低く取ったほうが, ティップの根元の温度が上昇し, ティップ金属の融点に近づいていることがわかる。このような, ティップ・ループの金属線中の半径方向の温度分布についての詳細は現在検討中である。また, 今回の計算では, 輻射熱による放熱のみを考慮したが, その周囲からの輻射熱を受け取ることも検討する必要がある。

以上の外にも, ガスの金属表面への適応係数, 金属表面の輻射率, 金属の純度, ティップとループの接触, 等々, さらに精度を上げるには問題点も多いが, 現在のところ, 今回および前回¹⁰⁾報告した方法で, 真空中では1%の, ガス存在下では1~2%の誤差で, 熱処理中のティップ温度が推定できると考えられる。さらに, 現在検討中のいくつかの因子を考慮することにより, より正確なティップ温度が推定できるものと期待している。なおティップの温度がほぼ1000 K以下では, ティップ内での温度分布はほとんど無視できる程小さいことも忘れてはならない。

謝 辞

今回の実験は, 榊原俊作氏(名工試)のガラス細工に負うところが大きく, お礼申し上げる。また, 実験に協力いただいた曾根伸広氏に感謝する。

〔文 献〕

- 1) J. Hren and G. L. Kellogg: Surface Sci. **147** (1984) 349.
- 2) T. Kingetsu, M. Yamamoto and S. Nenno: Surface Sci. **103** (1981) 13.
- 3) H. Morikawa, T. Suzuki, T. Terao and Y. Yashiro: Surface Sci. **75** (1978) 538.
- 4) T. Suzuki, H. Shimizu, H. Morikawa and Y. Yashiro: Surface Sci. **86** (1979) 42.
- 5) D. N. Seidman and R. M. Scanlan: Phil. Mag. **23** (1971) 1429.
- 6) K. D. Rendulic: J. Phys. D: Appl. Phys. **8** (1975) L18.
- 7) M. Pichaud, A. Müller and M. Drechsler: Surface Sci. **26** (1971) 14.
- 8) G. Barnes and M. L. Johnson: J. Phys. D: Appl. Phys. **12** (1979) 1761.
- 9) Vu Thien Binh, P. Heyde, M. Drechsler and R. Uzan: J. Phys. E: Instrum. **14** (1981) 719.
- 10) H. Morikawa, M. Kozakai, T. Terao and Y. Yashiro: J. Vac. Sci. Technol. **21** (1982) 95.
- 11) A. Roth: *Vacuum Technology* (North-Holland Publishing Company, Amsterdam-New York-Oxford, 1982) 2nd ed., p. 59.
- 12) 谷田和雄: 真空システム工学(養賢堂, 東京, 1977) p. 28.
- 13) E. W. Müller and T. T. Tsong: *Field Ion Microscopy* (Elsevier, New York-London-Amsterdam, 1969) p. 35.