23. 低エネルギー電子顕微鏡と光電子顕微鏡による動的観察と構造解析

越 川 孝 範* 安 江 常 夫**

【低エネルギー電子顕微鏡と光電子顕微鏡の原理】⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾ 低エネルギー(数-数10 eV)の電子を固体表面に照射し、反射や回折してくる弾性散乱電子を電子レンズで拡大して像を得る顕微鏡を低エネルギー電子顕微鏡(LEEM)(図1)という。像の形成は主に回折コントラストと干渉コントラストにより説明できる(図2)。干渉コントラストには幾何学的位相コントラスト(単原子ステップ等によるコントラスト)と量子サイズコントラスト(超薄膜による干渉コントラスト)に分けることができる。一方光電子顕微鏡(PEEM)は光やX線を試料に照射し、放出される光電子をレンズで拡大して像を得る顕微鏡である(図1)。低エネルギー電子により形成されるPEEM像のコントラストは主に表面の仕事関数の変化により生じる。エネルギーフィルターを用いて光電子の特定のエネルギーの像を得ると、XPS(X線光電子分光)顕微鏡像(XPEEM像またはSPELEEM像)を得ることができる。

【特色】LEEMおよびPEEMの共通の特徴：(1)投影型の電子顕微鏡である。(2)像に寸詰まりがない(試料に対し垂直に放出された電子を使用しているため)。(3)平均自由行程が短い低エネルギー電子を使用するために表面付近の情報を得ることができる。(4)表面の現象を実時間(ビデオレート)で観察することができる。(5)高温(1770 K程度)から低温(液体窒素温度)の試料を容易に実時間観察ができる。

LEEMの特徴：(1)低エネルギー電子回折(LEED)スポットから表面の構造解析が可能。制限視野を用いると約0.2-1 μm の領域からの回折スポットが得られる。(2)電子線源をスピニ偏極電子線源(GaAs)に変えると表面の磁区観察ができる(SPLEEM)。

PEEMの特徴：(1)放射光等による高輝度の光源を用いるとXPSの高分解能像が得られる(XPS顕微鏡像)。(2)放射光の円偏光を利用してX線磁気円二色性(XMCD)を使うと磁区構造を観察でき、磁気モーメントを電子スピンと軌道角運動量にわけて得ることができる。

図1 低エネルギー電子顕微鏡(LEEM)と光電子顕微鏡(PEEM)の概略図⁽²⁾。

LEEMとPEEMは同じ光学系を共有することができるので、共有した顕微鏡は多機能性を有する。

【性能、限界】現在得られているLEEMの像分解能は、電界放射型電子銃を用いた場合5 nm、LaB₆を用いた場合7 nmである。PEEM像の場合はほとんど0 eVの光電子も入ってくるため像分解能は15 nm程度になる。XPS顕微鏡像を得た場合の現在の最高の像分解能は70 nmである。電子光学系では凹レンズが存在しないため、原理的に取れないとされている球面収差と色収差を除去して分解能をあげる試みが行われている。実現すればLEEM像で2 nm、PEEM像で5 nmの像分解能が期待されている。

【応用範囲】LEEMは像形成の原理から考えて、現在まではほとんど半導体や金属単結晶試料をベースにした表面の現象ならびに結晶成長の観察や構造解析に用いられてきた。走査プローブ顕微鏡(SPM)より広い範囲を実時間で観察できるメリットがある。しかし、林等は最近多結晶である鉄鋼試料の観察に成功した⁽⁵⁾。相変態、粒界の成長、粒界のピーニング現象、アニーリングツインの成長ならびに消滅等の様子を实時間で観察した。このことは今後LEEMが実用試料に使用される可能性ができたことを示している。このような観察のときに最も大きな特徴は試料を薄膜化しなくてもよい点で、薄膜化によるバルク試料の性質を削ぐことなく観察できる。PEEM観察に関しては単結晶であるという制限はない。そのために種々の試料の観察が可能である。

【試料調整法および観察のポイント】LEEMならびにPEEMは表面顕微鏡であるため、超高真空中で表面を清浄化してから観察を行う。また、像を得ようとするとき表面に突起があると大きな問題になる。突起は試料と対物レンズの間にかかっている高電圧のため放電をおこす原因になる。そのために一般的には表面を鏡面に仕上げた試料を使用する。鉄鋼材料を観察した例では、試料を鏡面に仕上げ、表面の酸化物や汚れを取り除くために、Arイオンスパッターとアニーリング(試料の状態が変化しない温度を使用)を行った。

【測定手法等に関する文献】

- (1) W. Teliaps and E. Bauer: Ultramicroscopy, **17**(1985), 57-66.
- (2) E. Bauer: Rep. Prog. Phys., **57**(1994), 895-938.
- (3) 越川孝範: 表面科学, **23**(2002), 262-270.

図2 LEEM像でコントラストが生じるメカニズム⁽²⁾。(a), (b), (c) 回折コントラスト((a), (b) 明視野像, (c) 暗視野像), (d), (e) 干渉コントラスト, ((d) 幾何学的位相コントラスト, (e) 量子サイズコントラスト)。

* 大阪電気通信大学工学研究科長、教授；エレクトロニクス基礎研究所・学術フロンティア推進センター(〒572-8530 寝屋川市初町18-8)

** 大阪電気通信大学教授；エレクトロニクス基礎研究所・学術フロンティア推進センター

Dynamic Observation and Structure Analysis with Low Energy Electron Microscopy and Photo-Electron Emission Microscopy; Takanori Koshikawa, Tsuneo Yasue(Fundamental Electronics Research Institute and Academic Frontier Promotion Center, Osaka Electro-Communication University, Neyagawa)

Keywords: low energy electron microscopy, photo electron emission microscopy, surface microscopy, SPLEEM, XPEEM, SPELEEM, low energy electron diffusion(LEED), dynamic observation

2002年9月4日受理

4μm

5μm

3μm

図3 Si(111)7×7上のCuの成長．試料温度は653 K．(a) Si 清浄表面，(b) Cuの被覆率0.2原子層，(c) 0.7原子層．

図4 Si(111)7×7上のCuの成長．試料温度は873 K．(a) 水素終端Si(111)表面，(b) 0.1原子層，(c) 0.9原子層．

図5 水素終端Si(111)上のCuの成長．((a) 試料温度623 K, Cuの厚さ4.4原子層，入射エネルギー4.2 eV, (b) 653 K, 5.5原子層，4.5 eV, (c) 723 K, 4.4原子層，7.5 eV)．623 Kと653 KではCuシリサイドの三次元ナノドットが生じている．

(4) 越川孝範，安江常夫：電子顕微鏡，**37**(2002)，121-124.

(5) 林 俊一等：日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会第108回研究会資料，(2002年5月)，p. 71-78.

【使用装置】

【応用例】 Si(111)7×7 清浄表面ならびに水素終端Si(111)上にCuを蒸着した場合の結果を示す．Si(111)7×7表面上で試料温度により成長の様子が大きく変わる．図3は試料温度が380℃の場合，Cuが成長する様子を実時間観察したスナップショットである．Cu原子が十分な表面拡散距離を持っていないため，テラス上に多くのクラスター状の“5×5”不整合二次元層が成長している．温度を873 Kに上げると拡散距離が大きくなり，図4に示すように二次元層のほとんどが単原子ステップと7×7のドメイン境界に形成される．特にそれらの接点では成長が促進される．Si(111)7×7上に原子上水素を用いて水素終端を行った場合，反応性に富むSiの未結合手が水素で終端されるため表面の反応性が低下する．そのためCu原子の拡散距離が長くなる．各温度でCuを蒸着した場合，Cuシリサイドの三次元ナノドットが生じていることを示している(図5)．温度が高くなるとステップやドメイン境界に優先的に成長することがわかる．温度が673 Kを超えると水素が脱離するために清浄表面と同様な成長をする．LEEDの回折パターンから解析したナノドットの構造を図6に示す．高指数のファセット面によって形成されていることがわかる．

【試料の調整と実験条件】 Si(111)を約1470 Kでフラッシングを行いSi(111)7×7の清浄面を得た．CuはKセル(Knudsenセル，一種のルツボ)で蒸着を行った．水素終端は真空容器内に導入した水素分子をWフィラメントにより熱解離した原子状水素をSi(111)上に暴露した．像は(00)の

図6 LEEDで解析したCuシリサイドナノドット．

明視野像である．

【観察例に関する文献】

- (6) T. Yasue, T. Koshikawa, M. Jalochoowski and E. Bauer: Surf. Rev. Lett., **7**(2000), 595-599.
- (7) T. Yasue, T. Koshikawa, M. Jalochoowski and E. Bauer: Surf. Sci., **480**(2001), 118-127.
- (8) T. Yasue, T. Koshikawa, M. Jalochoowski and E. Bauer: Surf., Sci., **493**(2001), 381-388.
- (9) 安江常夫，越川孝範：表面科学，**23**(2002)，271-276.