

反射高速電子回折法で複雑な表面構造をモデルフリーに決定

青山大晃 〈東北大学多元物質科学研究所 hiroaki1999@aol.jp〉

虻川匡司 〈東北大学 SRIS, 東北大学多元物質科学研究所 abukawa@tohoku.ac.jp〉

物質の性質を根本から理解するためには、原子の配列、すなわち構造を解明することが研究の第一歩であることは疑いの余地のないところである。ところが結晶の表面の原子配列は、現代の最新の計測技術を持ってしても、そう簡単には決めることができない。

超高真空技術が開発されて表面物理学が発達した50年ほど前から、表面の原子配列を決めるために様々な手法が開発されてきた。結晶の場合、構造解析にはもっぱらX線回折が用いられるが、残念ながらX線は透過率が高いため厚さ1 nm程度の**表面領域の構造**を解析するためには、強く平行性の高い放射光X線を表面すれすれに入射するなど工夫が必要である。

それに対して、電子は物質との相互作用が大きく表面感度が高いので表面構造解析には電子回折が用いられることが多い。しかしながら、高い表面感度と引き換えに、電子は結晶中で強く散乱されるために多重散乱が支配的になり、1回散乱で記述できるX線回折のように簡単に解析できない。そのため、実験パターンと計算シミュレーションの一致度を指標にして解析することになり、構造を直接的に得ることはできず、全く未知の構造を解析する場合に見通しが立たない。

半導体として重要なSiの表面は古くから研究され、表面に複雑な再配列構造を持った超周期構造ができることや、異種原子が吸着/成長した界面でも多様な超周期構造が現れることが知られている。近年のトランジスタの立体構造化に伴い様々な方位のSi表面・界面をより深く知る必要が出てきているが、その理解はまだ不十分である。立方晶ダイヤモンド構造をとるSi結晶の基本的な低指数面として(001)面、

(111)面、(110)面が挙げられるが、特にSi(110)面の理解が進んでいない。例えば、清浄なSi(110)表面では 16×2 と呼ばれる大きな単位格子を持つ表面超周期が知られているが、30年以上の研究にもかかわらず構造は未だに分かっていない。Si(110)表面では異種原子が吸着した界面の構造や、表面を構成する構造の要素すらもほとんど知られていない。

真空中で成膜中の結晶などをその場で評価するために使われることが多い**反射高速電子回折法 (RHEED)**であるが、高速電子のエネルギーの高さゆえ、波数空間を広く観察できるという特長を持っている。本研究で使用した**ワイゼンベルグRHEED**は、試料を回転しながら回折データを3次的に大量に測定できる手法である。そのため、回折データを短時間で大量に測定できる特徴を活かすことで運動学的解析が可能とされる。

本研究では、Si(110)表面上にBiを吸着させた表面の構造解析が行われた。その結果、パターン図形を解くという非常に古典的な解析にもかかわらず、Bi原子4個を含め表面から約1 nmの深さまでの5原子層を構成する62個の全ての原子位置が高い精度で決定された。それぞれの原子間の結合長や結合角は、原子半径や電子軌道から予想される妥当な範囲に収まり、表面は完全に終端されダングリングボンドのない安定な表面構造であった。今回の結果は、構造モデルを試行錯誤で検討していたのでは到底たどり着けるものではなく、ワイゼンベルグRHEED法の運動学的な解析が有効であることを立証したものである。本手法は、SiやBiに限らず、より興味深い未知の表面構造への適用が期待できる。

用語解説

表面構造：

結晶は原子が周期的に繰り返されたものであるが、表面ではその繰り返し突然途切れるために、単純に結晶を切ったものとは原子の位置が異なったものとなる。特に共有結合結晶では、原子の位置が大きく移動して結合の組み替えを含む複雑な再配列構造をとり安定化する場合が多い。このとき元々の表面格子を単位として大きな格子(表面超格子)を形成する場合が多い。例えば、超格子のサイズが面内のひとつの軸方向に3倍、他方の軸方向に2倍の場合、 3×2 超格子と呼ぶ。一般的に、原子位置が大きく変化するものは表面から数原子層の1 nm程度の領域である。

反射高速電子回折法 (RHEED)：

10 kVから30 kV程度の電子線を表面にすれすれに入射し、前方に反射された電子の回折パターンをスクリーンで観測する手法である。ブラウン管とほぼ同じ構造であり、様々な真空槽に組み込みやすく、分子線エビタキシーなどで成長膜の結晶性を確認するモニターなどに多く使われている。

ワイゼンベルグRHEED：

試料面を法線軸に対して回転しながらRHEEDパターンを多数計測する手法。X線回折で使用されるワイゼンベルグカメラと類似の回折パターンが3次的に得られる。