



Title	高速イオン散乱法による表面近傍原子変位の検出
Author(s)	綿森, 道夫; 尾浦, 憲治郎
Citation	大阪大学低温センターだより. 1991, 74, p. 10-15
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/4012
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

高速イオン散乱法による表面近傍原子変位の検出

低温センター 綿森道夫（吹田4106）

工 学 部 尾浦憲治郎（吹田4156）

高速イオン散乱法（ここではchanneling法）は格子位置から変位した原子の検出に威力を発揮します。ここではSi(111)7×7表面超構造と、7×7表面に400℃でAgを蒸着した時にできるSi(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}(R30^\circ)$ -Ag（略して $\sqrt{3}$ -Ag）超構造における、変位した表面Si原子の、その変位の絶対量を求めるという過程を通して、高速イオン散乱法の利用法の一つである、原子変位検出を易しく解説してみたいと思います。どうぞ最後までおつき合下さい。

1. 高速イオン散乱法の用途と特徴

最初に高速イオン散乱法について少し解説し、その用途と特徴について列挙してみたいと思いますので、詳しい方は次の項目に進んで下さい。

一般に数MeV程度に加速されたイオン（研究目的であればほとんどがヘリウムイオン）を試料に照射し、散乱された粒子を解析する方法を高速イオン散乱法といい、これはラザフォードによる例の金の原子核の存在を示した実験に端を発しています。そのためRBS法（Rutherford Backscattering Spectrometry）とも呼ばれますが、その大きな特徴は、原子核あるいは原子の位置と存在量がわかることです。ここで原子の位置を知るためには入射イオンビームを結晶軸方向に合わせて（アラインして）やる必要が生じ、このことからchanneling法とも呼ばれます。すなわち、

channeling法……………原子の位置や変位がわかる ⇒ 構造解析用

RBS法 ……………原子の存在量がわかる ⇒ 組成分析用

となり、それぞれの精度は位置で0.1Å程度、組成比で0.5～5%程度と極めて精度良い分析法となっています（組成分析の際には標準線源などで較正する必要がないことも挙げておきます）。さらによいことは、非破壊で同時に深さ分析ができることです。すなわち、横軸を深さとして組成比の変化や位置の変化などを求めることができます（深さ分析できる距離は、入射イオンのエネルギーによって変わりますが、およそ1μm程度です）。これらの特徴を用いて、

- ① 表面層及び表面近傍の構造解析や組成分析
- ② 内部領域の構造解析や組成分析
- ③ 界面層における構造解析や組成分析

などと①～③までを組み合わせると同時に分析することなどが行えますが、今回は①の表面層の構造解析としてSi(111)7×7表面とAgを蒸着したときに生じる $\sqrt{3}$ -Ag超格子構造における表面Si原子の変位解析¹⁻³⁾を選び、易しく解説したいと思います。最近明らかになり始めたSi(111)7×7表面超構造⁴⁻⁶⁾は、バルク構造から大きく変位した複雑な表面構造を呈していて、まさにうってつけの題材だと思います。

なお、高速イオン散乱法における以上の特徴は超構造のみならず、多元素物質である高温超伝導薄膜の組成分析や結晶評価にも簡単に応用され、成果をあげています^{7,8)}。

2. 表面ピーク

表面近傍の原子の変位の絶対量を求めるためには表面ピークと呼ばれるものを使います。これは入射イオンビームを結晶軸方向にアラインして、検出器であるSSDを結晶面すれすれに配置するとき（散乱角 $\theta \cong 90^\circ$ ）、表面近傍の情報のみが選択して得られるもので、図1にSi(111)7×7表面から実際に得られた表面ピークを示します。図中の挿入図から幾何学的な配置関係もわかってもらえると思います。図1の三角形の部分、垂直軸（ $\langle 111 \rangle$ 軸）方向から入射するイオンビームによって見える原子の総量を表し、1層目の原子は必ず見えるから1コ、2層目の原子*は1層目の原子の影に完全に隠れていれば0コ、別の位置を閉めていれば1コ、普通は0から1の間の値をとります。以下、3層目の原子、4層目の原子、……の寄与が合わさって表面ピークを構成しますが、10層目位から奥の原子になりますともはやそれ以前の原子の影に隠れ、寄与は0になります。このことから表面ピークは表面下20層程度の情報のみを表しているといえるでしょう。

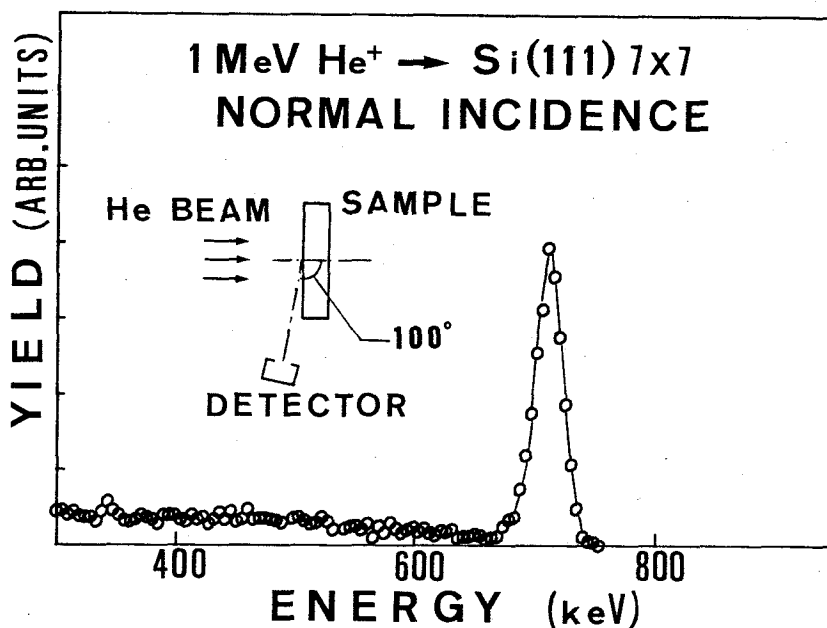


図1 Si(111)7×7の表面ピーク

図1の表面ピークの面積から、1原子列当たり何個の原子が見えるか求めますと、3.9個となり、3.9atoms/rowと表します。この時、同様の表面ピークを数回測定することによって、誤差は±6%以内となります（詳しい誤差見積もりは文献1を参照してください）。後は10層目程度までの原子列に適

*ここでのいう2層目とは各原子列の2番目の原子のことで、Si(111)であれば3本の原子列、1層目、2層目、4層目を先頭とする原子列に対して、それぞれ6層目、3層目、5層目をいいます。

当な変位を与え、構造モデルをつくり、モンテカルロシミュレーションで表面ピークの値を復元してやります。これと先程の実験値を比較することによって構造の決定を行います。実験結果は極めて精度良く得られ、シミュレーションも一般に正確であると言われているので、かなり信頼のおける構造モデルが得られます。表面ピークは原子がビームと垂直方向に変位する時、大きく変化し、それらの方向に対しては0.1Å程度の精度で位置を決定できますが、ビームと平行方向の変位に対しては鈍感なので、試料に対して垂直軸方向入射で横方向変位を求め、斜め軸方向入射で縦方向変位を求める2段階解析となります。また、格子振動も一種の変位と見なされ、格子振動の大きさによって変位量が異なる、パラメータとなります。以上のことをふまえて超格子構造の解析を行ってみましょう¹⁻³⁾。

3. 実験結果

図2と図3にSi(111)7x7表面に連続的にAgを蒸着していく時の垂直軸方向(<111>入射)と斜め軸方向(<110>入射)から見たSi表面ピークの変化を示します。Agは室温と400℃で蒸着され、室温蒸着ではSi(7x7)からSi(1x1)へ、400℃では $\sqrt{3}$ -AgのLEEDパターンが得られます。(7x7)からの変化はAgの蒸着量が0.5~1 MLの間で起こっています。図2を見ると、Agを蒸着することによってSi(111)7x7構造から横方向への原子移動は(表面的には)見られない様ですが、ここで基準となる(7x7)構造の横方向変位について考えてみます。図2の実験曲線のすぐ下に矢印で"BULK"と描かれた線がありますが、これは再配列してしない理想的なSi(111)結晶をもってきて(すなわちダイヤモンド構造)、バルクと同じ熱振動振幅を与えたときに得られる表面ピークの値(計算値)を示しています。

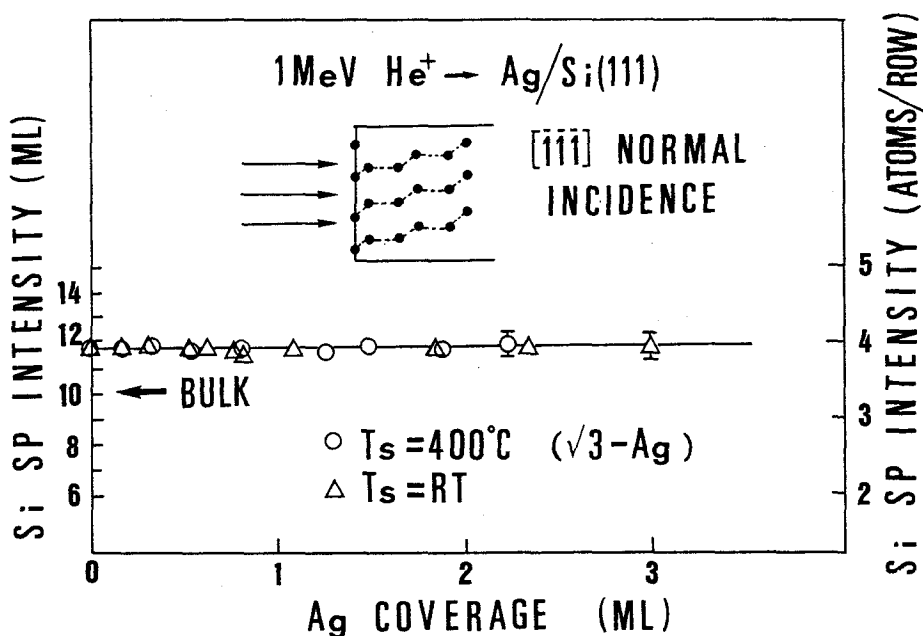


図2 Si(111)7x7表面にAgを蒸着する時の表面ピークの変化(<111>垂直軸入射, ○室温, △400℃)

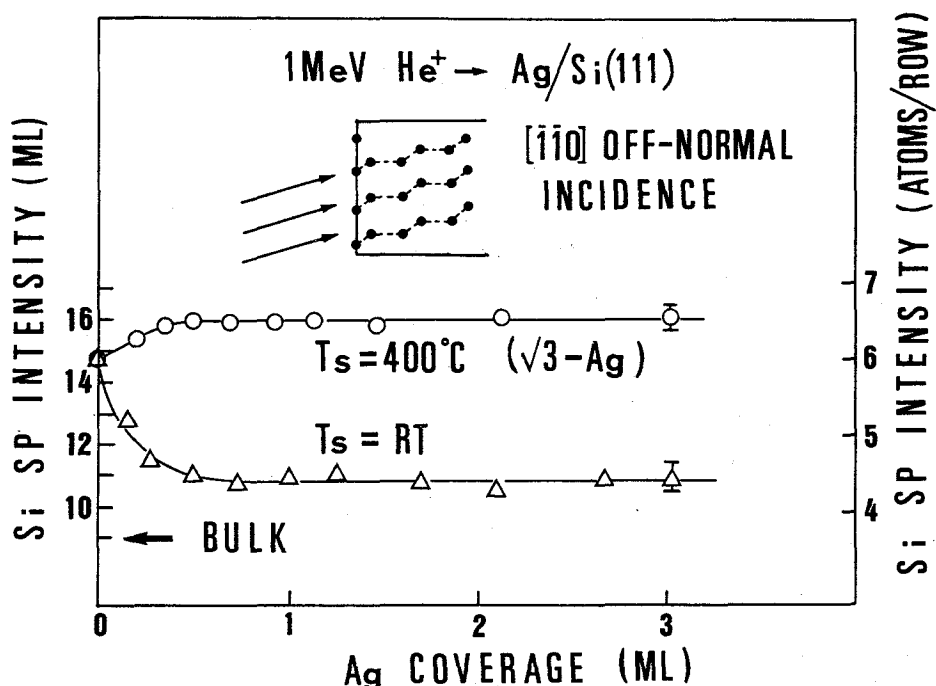


図3 Si(111)7×7表面にAgを蒸着する時の表面ピークの変化 (<110>斜め軸入射, ○室温, △400℃)

す。Si(111)7×7表面の表面ピークはバルクの表面ピークの値 (3.3atoms/row) と極めて近く、Si原子はほとんど横方向には変位していないことが特徴です。変位の大きさを求めるために、第1層目のSi原子を横方向に変位させて表面ピークの大きさの変化を見ますと、第1層目のSi原子のみが横方向に変位しているのであれば、いくら変位しても実験で得られる値まで達せず、より深い層の変位が必要となります。そこで最初の1, 2層、すなわち表面の第1ダブルレイヤーを変位させると、変位量に上限が現れ、最大0.14Åとなります (この詳しい導出は文献1, 3を参照)。このことは実際の7×7表面では、1, 2層のSi原子は0.14Åよりも少なく変位して、3層目以下のSi原子が横方向に変位していることも起こり得ますが、とにかく3層目以下のSi原子が横方向に変位しているようがいまいが、1, 2層のSi原子が等しく横方向に変位しているのであれば、その変位の大きさは0.14Å以下でなければならないことを保証しているのです。振り返って考えれば7×7表面構造としてはほぼ定着してきたDASモデル^{4,5)}は、stacking faulted layerのSi原子は別のSi原子列の上に乗っているので変位していない原子とみなされ、横方向に変位しているSi原子はdimer chainのみとなり、上記の条件を十分に満たします⁶⁾ (斜め軸から見るとstacking faultは変位原子となり、識別できます)。室温でAgを蒸着した時も、Si原子の横方向最大変位量は同じです。もう一度繰り返しますと、(7×7)構造と室温でAgを蒸着した構造のSi表面の横方向の最大変位量は第1, 2層原子で横方向に0.14Å以内となります。

√3-Ag構造は、モデルによってAg原子がSi原子列を覆う (shadowする) 可能性がありますので、図4に各モデルに対する1, 2層原子の熱振動振幅と最大変位量の関係を示します。一般に最大変位量

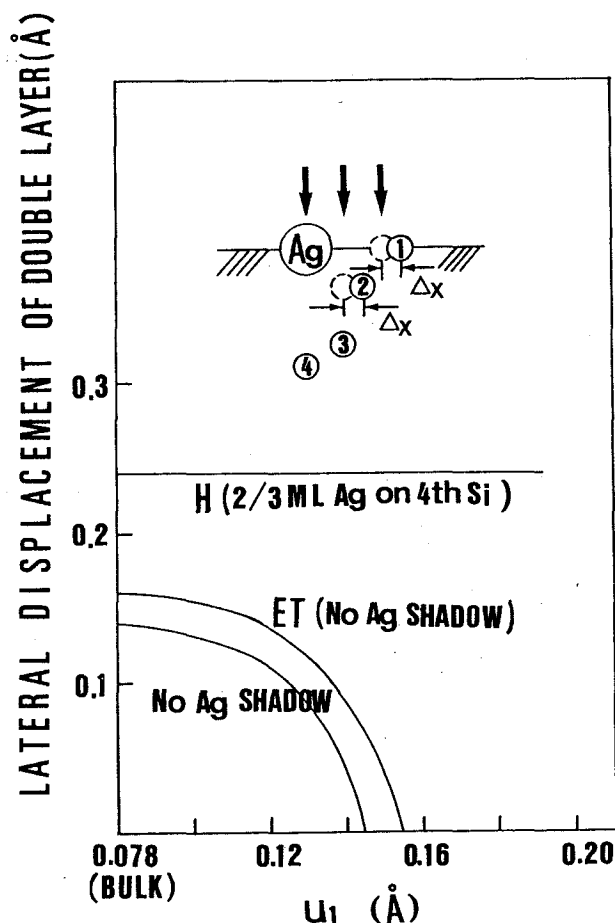


図4 各モデルに対する存在領域

は熱振動振幅の関数となり、図中のHはHoneycombモデルで最大0.26 Å、ETはEmbedded Trimerモデルで0.16 Å、Agのshadowがない場合は0.14 Åとなります。ここではのせていませんがMissing-Top-Layerモデルは第1層目が存在しませんので、第2層目だけの変位であれば無制限となります。

同様な解析を斜め軸方向の結果(図3)に対して行くと、今度は(7×7)表面の実験値が“BULK”構造値より大きく離れていますので、かなり深い変位が導かれ、変位は表面下5～6層まで及んでいることがわかります。√3-Ag構造では7×7よりも表面ピークが増加し、さらに大きな変位を有している(表面下5～6層程度)ことがわかります。室温でAgを蒸着すると表面ピークは減少し、BULKの値に近づいていきます。このことから縦方向に緩和が起こっていることがわかり、その大きさは最初の1, 2層の変位で十分補えることがわかります。この様に、異なった温度でAgを蒸着することによってSi表面が縦方向に緩和したりしなかったりする様子は(理由は全然わかりませんが)十分興味あるものと言えるでしょう。

4. 終わりに

この稿では高速イオン散乱法の用い方ということに力点をおいて、実際のSi(111)7×7表面の構造解析についてはほとんど述べませんでした。キチンとした解析を行うには入射エネルギーを変えて表面ピークを求め、それからDASモデル等を当てはめる必要があります。基礎工学部の吉森研でこの計算を行っています⁶⁾ので、興味のある方はそちらを参照して下さい。また√3-Ag構造に対する詳しい解析は文献1～3を見て下さい。これを期に高速イオン散乱法が比較的簡単に超格子構造の解析に適用できることを認識していただければこれに携わっている者の一人として望外の幸せです。

最後になりますが、本研究は「イオンビーム表面解析装置」を用いて実施されたものです。在任中設置に尽力された塙輝雄先生（大阪大学名誉教授，大阪工大教授）はじめ、関係者の方々に感謝いたします。

参考文献

- 1) 綿森道夫、大阪大学工学博士論文、1990.
- 2) K. Oura, M. Watamori, F. Shoji and T. Hanawa, Phys. Rev. B38 (1988) 10146.
- 3) M. Watamori, F. Shoji, T. Hanawa and K. Oura, Surf. Sci. 226 (1990) 77.
- 4) K. Takayanagi, Y. Tanishiro, M. Takahashi and S. Takahashi, J. Vac. Sci. Technol. A3 (1985) 1502.
- 5) G. Binning, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weiber, Phys. Rev. Lett. 50 (1983) 120.
- 6) J. Yanagisawa and A. Yoshimori, Surf. Sci. 231 (1990) 297.
- 7) M. Watamori, K. Oura, F. Shoji, T. Yotsuya, S. Ogawa and T. Hanawa, Jpn. J. Appl. Phys. 28 (1989) 346.
- 8) M. Watamori, F. Shoji, H. Itozaki, T. Hanawa and K. Oura, Jpn. J. Appl. Phys. 29 (1990) 252.