

Title	透過電子顕微鏡内その場分光装置の開発とその応用
Author(s)	大野, 裕
Citation	大阪大学低温センターだより. 2008, 143, p. 22-26
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/4123
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

透過電子顕微鏡内その場分光装置の 開発とその応用

東北大学金属材料研究所・材料設計研究部・結晶欠陥物性学研究部門

大野 裕

(元 大阪大学大学院理学研究科・物理学専攻)

東北大学に異動してはや1年半が経過しました。大阪大学在職中に引き続き、電子励起状態における格子欠陥の特性を調べております。電子励起効果を定量解析するには熱的效果を減少させるために低温での実験が必須であり、その点で低温センターの皆様には大変お世話になりました。この場をお借りして御礼申し上げます。表題にある在職中の研究を紹介する機会を頂きましたので、簡単に紹介させていただきます。

1. はじめに

半導体バルク結晶の表面や内部に形成される格子欠陥やナノ構造体（広義では格子欠陥の一種）は、バルク結晶と異なる固有の電子状態を形成します。そのような欠陥が存在する結晶に外場を加える（たとえば電場の引加、電磁波や粒子（電子・イオン）の照射など）と、外場のエネルギーの一部が固有電子状態を介して吸収され、電子的に励起された非平衡状態となります。その状態からの緩和の過程で、フォトン・フォノンの放射や少数キャリアの散乱などが生じ、欠陥近傍はバルク結晶と異なる光学的・電気的特性を示します。また同時に、大規模な原子移動を伴う構造変化が欠陥近傍で生じてバルク結晶と異なる光学的・電気的特性を発現することがあります。このような電子励起状態における格子欠陥の静的・動的特性は、既知機能の改良と局所領域における新機能探索などの応用的観点および基礎物理に対する学術的興味から、広く研究されています。

特性の起源および発現機構を解明するには、個々の欠陥の形状・構造・組成および形成過程の評価に加えその欠陥の特性を直接評価することが必須です。その評価に向けて、大阪大学・竹田精治教授と共同で、透過電子顕微鏡内に設置された試料の顕微鏡観察領域に任意波長の光を照射し、電子顕微鏡（TEM）観察下でフォトルミネセンス分光、ラマン散乱分光およびカソードルミネセンス（CL）分光測定ができる新しい研究手法を開発してきました^[1]（図1）。この手法のユニークな点は、電子あるいは光の照射により局所的に電子励起状態となった試料に対し、顕微鏡観察によってマクロな結晶構造をとらえながら、顕微鏡では調べにくい、その内部における微小格子欠陥の

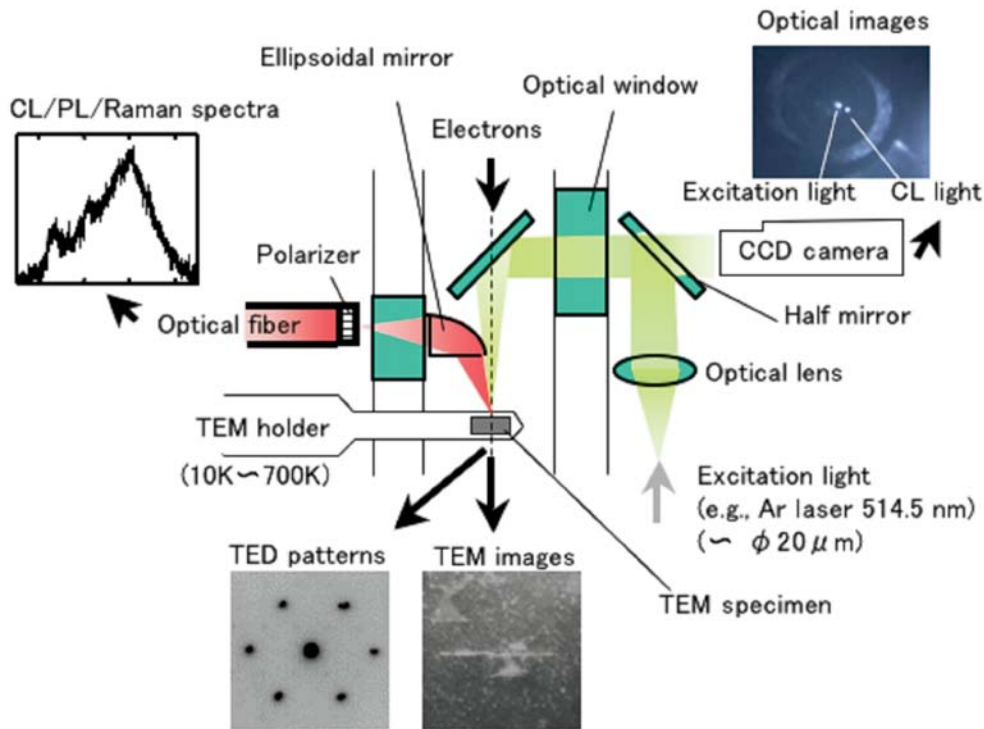


図 1 透過電子顕微鏡内その場合分光装置の概念図。TEM観察（電子照射）領域からはCL光が放射されます。顕微鏡外部から内部の試料に光照射すると、照射領域からの散乱光に加えてCL光が観察されます（右上の挿入図）。光学レンズの位置調整により2つの輝点を一致させることで、光照射領域を顕微鏡観察領域と一致させます。試料から放射された光の一部は楕円型ミラーで集光され、光ファイバーで顕微鏡外に取り出し、分光測定されます。これらの動作は通常のTEM観察と同時に Rowe れます。

生成・消滅・移動などの挙動を光学的測定により直接調べられることです。大阪大学在職中になされた、本手法に関連するいくつかの研究を以下に紹介します。

2 . 電子励起状態における格子欠陥の動的挙動 電子励起誘起構造変化

上記装置を応用して、GaAs基板上に成長したZnSeエピタキシャル膜中の線状格子欠陥（転位）があるエネルギーの光照射下で運動し、それとともに転位周辺から放射される光のエネルギーと偏光が変化することを見いだしました。高分解能透過電子顕微鏡法および第一原理計算による構造解析の結果もふまえて、転位に付随した局在電子準位を介して光が吸収され、そのエネルギーによる転位の運動にともない転位近傍の歪みが非等方的に緩和され、結果として放射光のエネルギーおよび偏光度が変化することを明らかにしました^[2]（図2）。この手法により、これまで困難であった、非発光準位として働く局在電子準位のエネルギーを直視的に評価できました。

電子照射誘起構造変化の研究への応用としてCuPt型構造をもつGaInP膜を調べました。この試料は、照射により形成された空格子点の拡散を介し閃亜鉛鉱構造に変化することが知られています。試料から放射される光の強度とエネルギーが照射とともに変化することを見だし、その解析から電子照射下での空格子点の拡散過程が評価されました^[3]。電子照射にともなう発光強度変化はGaPやAlGaInPなどでも観測されました。透過電子顕微鏡を用いた解析から照射により形成されたIII族とV族の格子間原子が対形成することを明らかにしましたが^[4]、発光強度変化はその格子間

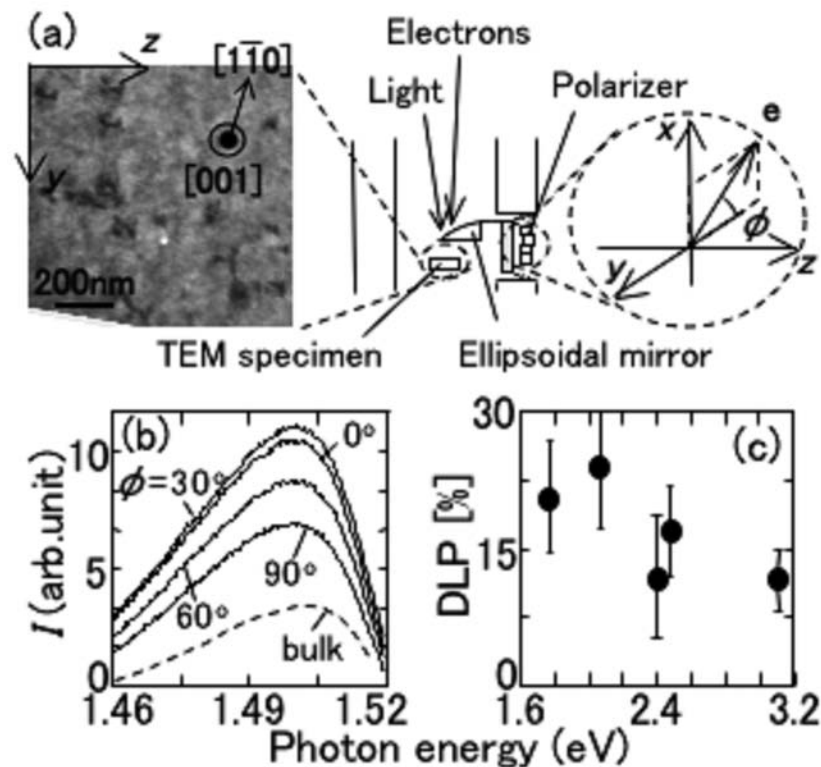


図2 (a) 偏光CL測定配置。CL光がyまたはz軸に平行に直線偏光しているとき、それぞれ、偏光板の電場透過方向eを定義する ϕ が0°と90°のとき観測強度が最大となります。(b) 実線：光照射前のZnSe薄膜からの偏光CL光強度Iの ϕ 依存性（測定温度35 K）。バルク試料（点線）と異なり、不均一な膜内応力によりCL光のエネルギーが低エネルギー側にシフトし、かつ偏光特性を持つことが分かります。強度の最大値 I_{\max} と最小値 I_{\min} の比 $DLP = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$ は約20%です。(c) DLPの照射光エネルギー依存性。エネルギーが約2.4 eV以上だと転位の運動の結果として膜内応力が変化しDLPが変化することから、転位に関連する局在電子準位の深さが約2.4 eVと見積もられます。

原子対またはその集合体に付随する局在電子準位に起因すると解釈されました^[5]。これらの手法は後に半導体レーザーの光劣化現象の解析にも応用されました。

3. 格子欠陥の電子励起状態における静的挙動 格子欠陥による光放射

半導体の表面、界面・内部に形成される局所構造体の光学的特性を直接的に原子・電子レベルで理解するため、上記装置をもちいて、原子構造を可視的に調べられる透過電子顕微鏡法と、その観察領域の電子状態を調べられるカソードルミネセンス発光分光法の複合測定法を発展させてきました。たとえば、発光の偏光方向を定量的に評価すると、低次元の欠陥に期待される光学異方性が検知できます^[6]。この手法を応用し、AlGaAs膜中に形成された面状格子欠陥（多重双晶）が超格子として働き、双晶面と平行に偏光した単色光（波長は双晶間隔に依存する）を放射することを見いだしました^[7]（図3）。また、CuPt型構造をもつGaInP膜に形成される面状格子欠陥（反位相境界）の一部が量子井戸として働き、欠陥面に平行に偏光した光を放射することを見いだしました^[8]。

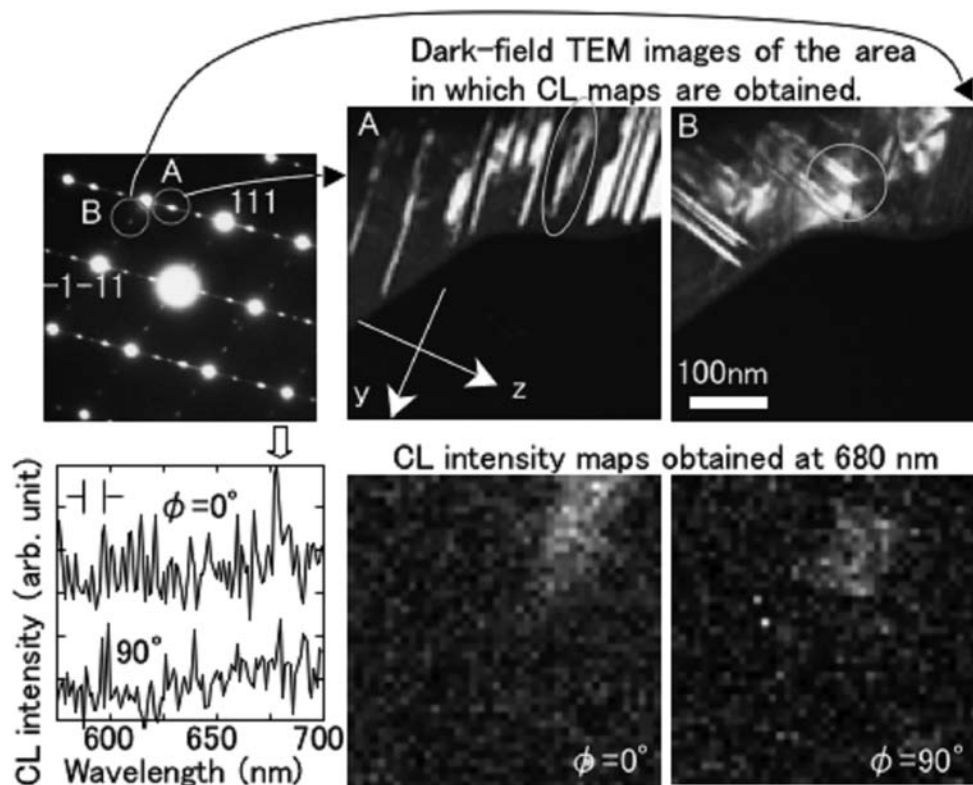


図3 双晶が存在するAlGaAs薄膜のTEM像と同領域における偏光CL強度マッピング（測定温度約100 K、測定配置は図2と類似）。TEM像AおよびBで白く見えている領域は、それぞれ、(111)および(-1-11)双晶面を挟んで母結晶に対し双晶関係にある結晶です。狭い間隔で複数の双晶面が並んだ領域（TEM像中で丸く囲った領域）から双晶面と平行に偏光した光が放射されていることが分かります。

4. おわりに

光および電子照射下における格子欠陥のユニークな静的・動的挙動を、透過電子顕微鏡内その場分光装置を用いて明らかにしてきました^[9]。紹介した手法は光照射できる領域が広く（最小プローブ径が数10 μm）、個々の格子欠陥を選択的に電子励起させるのは不可能でした。東北大学に異動後、新規ナノ機能探索のための透過電子顕微鏡観察下におけるより狭い領域（プローブ径100 nm以下）での光照射実験を目指し、新しい装置開発を進めております。

謝辞

大阪大学で本研究を進めるにあたり、研究室スタッフ（竹田精治教授、河野日出夫博士）および学生の皆様に多大なご協力・ご支援を頂きました。また、装置開発および実験に際し、日本電子の近藤行人氏、東北大の関口隆史博士（現：産総研）、寺内正己教授、津田健治博士および佐藤二美氏、阪大の音賢一博士（現：千葉大）、東工大の山本直紀博士、三菱化学の藤井克史博士（現：東北大）、NEC基礎研の市橋鋭也氏および飯島澄男博士、奈良先端大の金光義彦教授（現：京大）および石墨淳博士、京大の義家敏正教授にご協力いただきました。ここに御礼申し上げます。

参考文献

- [1] Y. Ohno and S. Takeda, Rev. Sci. Instrum. 66 (1995) 4866-4869.
- [2] Y. Ohno, Appl. Phys. Lett. 87 (2005) 181909/1-3.
- [3] Y. Ohno, Y. Kawai and S. Takeda, Phys. Rev. B 59 (1999) 2694-2699.
- [4] Y. Ohno, S. Takeda and M. Hirata, Phys. Rev. B 54 (1996) 4642-4649.
- [5] Y. Ohno and S. Takeda, J. Electron Microsc. 45 (1996) 73-78.
- [6] Y. Ohno and S. Takeda, J. Electron Microsc. 51 (2002) 281-290.
- [7] Y. Ohno, N. Yamamoto, K. Shoda, and S. Takeda, Jpn. J. Appl. Phys. Part2. Express Letter 46 (2007) L830-L832.
- [8] Y. Ohno, Phy. Rev. B. 72 (2005) 121307 (R) /1-4.
- [9] 研究略歴 <http://lab-defects.imr.tohoku.ac.jp/ohno/ohno.html>