

# 反射高速電子回折 (RHEED) の実験

齋藤研究室

平成 26 年 10 月 1 日

## 1 はじめに

結晶の表面 (或いは異なる物質との界面) の原子配列は一般に結晶内部 (バルク) とは異なることが知られている。物質の性質は (グラファイトとダイヤモンドのように) 構成元素よりもその並び (結晶構造) によって大きく支配されているため、表面とバルクでは異なる性質を示すことも多い。最近の電子デバイスの高集積化により、表面或いは界面の結晶構造を正確に知ること、或いは所望の構造に制御することは非常に重要な課題となってきた。また、多層の複合材料 (人口超格子など) の成長プロセスや、触媒化学反応も全て表面における反応であり、このような観点でも表面構造の解析は工業的に必須の技術である。更に、最近注目されているカーボンナノチューブやグラフェンといったナノ材料は全て表面でできた物質と見做すことができ、表面分析技術はナノテクノロジーとも密接な関係がある。

本実験では、表面構造解析の基礎を学ぶことを目的に、超高真空中に配置した結晶表面 (Si(111) 表面) の構造を、反射高速電子線回折 (Reflection High-Energy Electron Diffraction; RHEED) を用いて調べる。また、結晶表面に他の物質 (Ag/Au) を蒸着したときの構造変化についても調べる。

## 2 実験概要

- データの解析に電卓、定規、コンパスが必要であるので、必ず各自で持参する。
- 実験ではグループを 2 つに分け、それぞれ A、B とする (但し、人数が 5 人以下の場合にはグループ分けしない)。
- 実験装置は 1 台しかないので同時には実験はできないが、互いに協力し合って進めること。
- 討論では実験データについて、自信を持って答えられるように準備しておく。
- レポートの考察には他グループの実験結果も考慮する必要があるため、他グループの実験内容についても把握しておくこと。
- 作業上の注意事項および実験手順は別紙の実験手順書を参照すること。

全 5 回の実験計画は以下に示す通りである。

- 第 1 回
  - 講義 1 (超高真空、結晶表面構造、逆格子)
  - 既存の Si(111) 表面の観察
  - Si 基板の温度校正
- 第 2 回
  - Si(111) 清浄表面の観察
  - 清浄表面の基板温度依存性
  - 講義 2 (電子回折、RHEED 図形解析方法)
  - カメラ長の決定と RHEED 図形解析実習
- 第 3 回
  - Ag 蒸着 Si(111) 表面の観察 (室温、500 °C)
  - Au 蒸着 Si(111) 表面の観察 (室温、500 °C)
- 第 4 回
  - ここまでの実験の討論
- 第 5 回
  - 自由実験
  - グループ毎に蒸着物の組み合わせや基板温度等を自由に変えて、表面がどのように変化するか調べる

## 3 講義

### 3.1 超高真空の基礎

#### 3.1.1 超高真空の定義と意義

常温常圧において、1 モル (22.4 リットル) 中の気体分子の数はアボガドロ数  $N_A = 6.02 \times 10^{23}$  個である。従って、大気圧 ( $1.013 \times 10^5$  Pa) では  $2.7 \times 10^{19}$   $\text{cm}^{-3}$  もの密度で気体分子が存在している。環境中に気体分子が存在すると結晶表面は常に気体分子の衝突を受け、これら気体分子が表面に吸着したり反応したりすることになる。結晶表面の状態を正しく知るためには、結晶表面が清浄であること、すなわち他の分子が表面に到達することがない真空環境が必要である。

真空はその程度によって、低真空 ( $1 \times 10^2 \sim 1 \times 10^{-2}$  Pa)、高真空 ( $1 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^{-6}$  Pa)、超高真空 (UHV:  $1 \times 10^{-6} \sim$

$1 \times 10^{-10}$  Pa)、極高真空 (XHV:  $< 1 \times 10^{-10}$  Pa) に分類される<sup>1</sup>。次節で説明するように、実験中に表面を十分清浄な状態に保つためには少なくとも超高真空程度の真空が必要となる。現時点の技術では、実験室レベルで比較的容易に達成できる真空度は  $1 \times 10^{-9}$  Pa 程度までであり、極高真空を得るには特殊な装置と技術が必要である。

### 3.1.2 真空中の壁をたたく分子数

真空の圧力が  $P$  のとき、真空中の壁に単位面積、単位時間当たり衝突する分子の数  $n$  は、

$$n = \frac{P}{\sqrt{2\pi mkT}} \quad (1)$$

で表される。 $m$  は分子の質量、 $k$  はボルツマン定数、 $T$  は温度である。気体分子を窒素分子とすると  $m = 4.64 \times 10^{-26}$  kg であるので、 $k = 1.38 \times 10^{-23}$  J/K、 $T = 300$  K を用いて計算を行うと、例えば  $10^{-4}$  Pa の場合で壁に衝突する窒素分子の数  $n$  はおよそ  $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  となる。ここで Au(100) 表面を例にとると、格子定数 0.4 nm の単位格子に 2 個の原子が存在するので、 $1 \text{ cm}^2$  当たり  $2/(4 \times 10^{-8})^2 \sim 1.3 \times 10^{15}$  個の原子が表面にある。従って、衝突した分子が全て表面に吸着する (吸着確率 100%) と考えると、 $10^{-4}$  Pa では約 4 秒で 1 分子層が表面に形成されることになる。

清浄表面を調べるためには少なくとも実験を行っている時間は表面が吸着物質で覆われないでいることが必要である。一般的に真空中に残っている気体分子の室温における吸着確率は比較的低い (数%以下) ので、 $n$  が  $P$  に比例することを考えると、 $10^{-8}$  Pa であれば 1 日程度はほぼ清浄な表面を保つことができる。今回の実験で用いる真空度は  $10^{-6}$  Pa 程度であるが、この真空でも数時間程度であれば概ね清浄表面を保つと考えてよい。但し、試料の加熱中など反応が促進される条件下では急速に表面の汚染が進行する可能性もあるので注意が必要である。

## 3.2 結晶表面と再配列構造

### 3.2.1 清浄な結晶表面の構造

バルク結晶を単純に切り出したとき (bulk truncated) の表面構造は、例えばダイヤモンド構造の (001) 面を断面方向から見ると図 1(a) のようになる。しかし、このような構造では不対電子 (ダングリングボンド) が多く余ってしまうため、エネルギー的に不利である。そこで、実際の表面では図 1(b) のように隣接したダングリングボンド同士が結合し、より安定な構造を作る (但し、結合に歪みが生じた

<sup>1</sup>真空の単位は公式には SI 単位系の Pa (パスカル) が用いられるが、真空を扱う研究者の間では Torr (トル=トリチェリに由来; mmHg も同じ) や mbar (ミリバール) を用いることもある。それぞれの単位で大気圧 (1 気圧=1 atm) は、 $1.01325 \times 10^5$  Pa、760 Torr、1013.25 mbar である。また、Torr と Pa との関係はおよそ  $1 \text{ Torr} = 133 \text{ Pa}$  である。

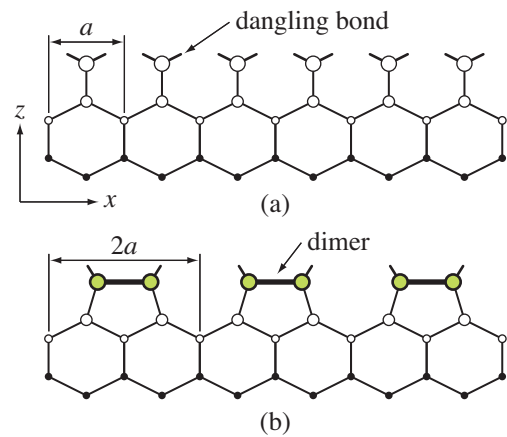


図 1: (a) 単純にバルク結晶を切り出したとき (bulk truncated)、および (b) 二量体 (dimer) を形成して表面再配列したときのダイヤモンド構造 (001) 面の断面図。図 2 との対応を分かりやすくするため、円の大きさは表面に近い方が大きくなるように描いてある。

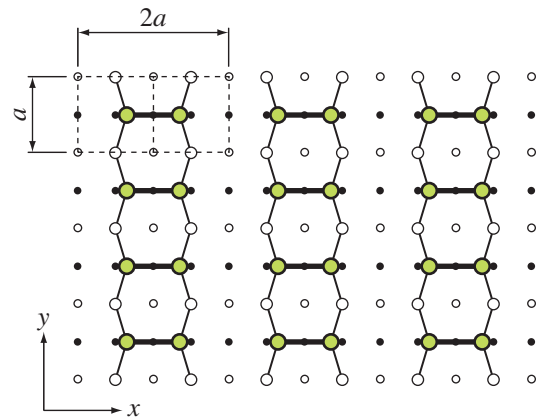


図 2: 再配列したダイヤモンド構造 (001) 面を上から見た図。表面に近い方が大きな丸で示してある。結合は表面第一層のみを示している。図中の点線で示した正方形はバルクを切り出したときの表面単位胞 ( $1 \times 1$  単位胞) である。 $x$  方向には  $2a$ 、 $y$  方向には  $a$  の周期であることが分かる。

めに歪みエネルギーは増加する)。このような表面特有の構造のことを表面再配列構造という。図からもわかるように、表面再配列 (surface reconstruction) を生じると、元々 (再配列前) は  $a$  の周期性を持っていた表面が、 $2a$  の周期性を持つようになる。

この表面を上から見ると図 2 のようになる。図から明らかかなように、 $x$  方向には  $2a$  の周期、 $y$  方向には元の周期  $a$  を持つ新しい単位胞が形成されている。このような表面構造を  $2 \times 1$  構造と呼ぶ。ここで注意すべき点は、基準になる長さ ( $1 \times 1$ ) はバルクを切断したときの表面での二次元の単位胞 (図 2 中の点線の正方形) であり、3 次元結晶の単位胞ではないということである。

図 3 は Si(111) 面 (本実験で使用する表面) の清浄表面構

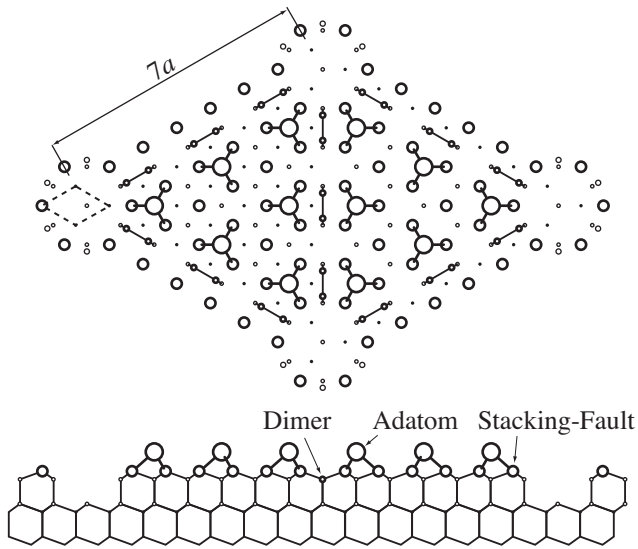


図 3: Si(111) 面の構造モデル。上図は表面上から見た図、下図は側面図。ダイマー、アダトム、積層欠陥を含む構造であるため、7×7 DAS 構造と呼ばれる。K. Takayanagi et al., Surface Science **164** (1985) p.367.

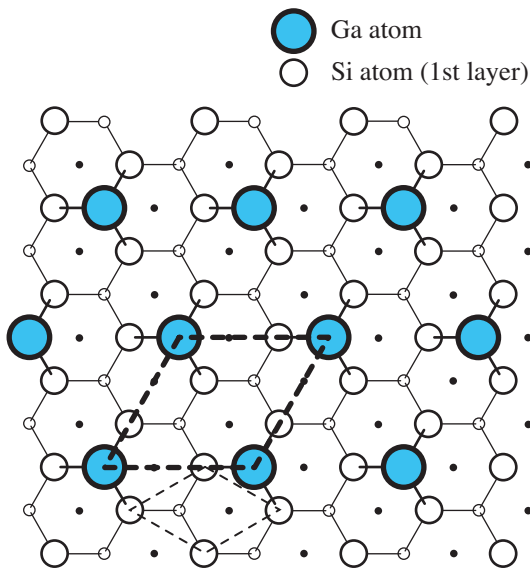


図 4: Ga が 1/3 層吸着した Si(111) 面の構造モデル。図中細い点線で示した菱形が、Si(111) 表面の基本格子、太い点線で示した菱形が Ga 吸着時の単位格子である。J. Nogami et al., J. Vac. Sci. Technol. B **6** (1988) p.1479.

造として知られている 7×7DAS 構造モデルである。この構造は表面第 1 層のみではなく、第 3 層の原子位置もバルク位置から大きく移動しているという特異な構造である。

### 3.2.2 物質の吸着と表面構造

結晶表面に異種の物質が吸着すると、結晶表面は清浄表面とは異なる再配列構造に変化する。図 4 は Ga が吸着した Si(111) 表面の構造モデルである。この構造では、再配

列構造の単位胞は Si(111) 基本格子の  $\sqrt{3}$  倍の長さになっており、またその方向が  $30^\circ$  回転したものになっている。そこでこのような表面構造のことを  $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -R $30^\circ$  と呼ぶ。この他にも物質が吸着した場合の構造にはさまざまなものがあり、基板元素と吸着元素とが置換して上下が入れ替わることもある。また、表面構造には準安定なものも多く、複数の構造が同時に表面に存在することも珍しくない。

## 3.3 電子回折

### 3.3.1 回折条件と逆空間・逆格子

周期構造に単一波長の平面波を入射すると特定の方向に散乱が得られる。これは波の回折と干渉によって起こる現象である。図 5 に示すように、波が散乱される時異なる反射面から散乱された波の位相が揃うためには、行路差が波長の整数倍である必要がある。すなわち、Bragg 条件

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (2)$$

を満たす必要がある。ここで  $\lambda$  は波の波長、 $d$  は反射面の面間隔、 $\theta$  は反射面に対する視射角 (入射角の補角)、 $n$  は任意の整数である。Bragg 条件を考えるときに、入射波と回折波の波長が等しいこと、結晶面は無限に周期的に連なっていること、多重散乱 (回折波が再び散乱されること) は無視していることが、暗黙の仮定として入っていることに注意が必要である。

ところで、Bragg 条件の表記は回折現象の直感的な理解には適しているが立体的な周期構造を持つ結晶に適用するには向いていない。そこで複雑な系に対しても数学的な取り扱いが容易となるように逆空間の概念を導入する。逆空間とは周期 (波数) 空間であり、数学的には実空間 (長さの空

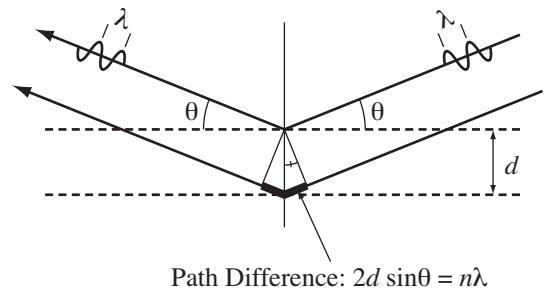


図 5: Bragg 条件を示す概略図 (実空間)。

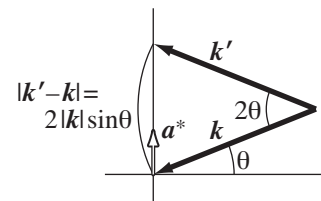


図 6: Laue 条件を示す概略図 (逆空間)。

間)をフーリエ変換したものに对应する。音を例に採ると、オーディオ機器等で音を周波数軸で表現しているのを知っている人は多いであろう。音を周波数に分解することがフーリエ変換であり、音の逆空間に対応する。立体的な逆空間では、ある方向の周期は一つのベクトルで与えられる。すなわち、実空間で周期的な構造を持つ結晶の場合、その周期の方向(間隔  $d$  で並ぶ面の法線方向)を持つ逆格子ベクトル  $\mathbf{a}^*$  を定義することができ、その大きさは  $|\mathbf{a}^*| = 2\pi/d$  となる。同様に、波長  $\lambda$  で進行する平面波は、波の進行方向を持つ波数ベクトル  $\mathbf{k}$  として与えられ、その大きさは  $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$  である。この考え方で実空間表現である Bragg 条件を逆空間に置き換えてみる。  $2d \sin \theta = n\lambda$  の  $d$  と  $\lambda$  を  $\mathbf{a}^*$  と  $\mathbf{k}$  に置き換えると、

$$2 \frac{2\pi}{|\mathbf{a}^*|} \sin \theta = n \frac{2\pi}{|\mathbf{k}|} \quad (3)$$

すなわち、

$$2|\mathbf{k}| \sin \theta = n|\mathbf{a}^*| \quad (4)$$

となる。図5に相当する逆空間を作図したものが図6であり、上式左辺の  $2|\mathbf{k}| \sin \theta$  は斜辺が  $|\mathbf{k}|$  で頂角が  $2\theta$  の二等辺三角形の底辺の長さになり、これが逆格子ベクトル ( $|\mathbf{a}^*|$ ) の整数倍になれば波が強め合う条件であることがわかる。二等辺三角形の上の辺 ( $\mathbf{k}'$ ) は反射(回折)波に相当するので、(4)式をベクトル表現すると、

$$\mathbf{k}' - \mathbf{k} = n\mathbf{a}^* \quad (5)$$

となる。入射波と回折波の差分ベクトル ( $\mathbf{k}' - \mathbf{k}$ ) は散乱ベクトルと呼ばれる。(5)式は Laue の回折条件と呼ばれる。図5および図6では単一の周期(面間隔  $d$ )のみが存在する場合を示しているが、現実の結晶は3次元方向に周期的な構造を持つ。このため、周期の基本となる逆格子ベクトルも各々の軸の方向に存在 ( $\mathbf{a}^*$ 、 $\mathbf{b}^*$ 、 $\mathbf{c}^*$ ) する。3次元結晶を考えた場合の Laue 条件は

$$\mathbf{k}' - \mathbf{k} = h\mathbf{a}^* + k\mathbf{b}^* + l\mathbf{c}^* \quad (6)$$

と書くことができる(ここで、 $h$ 、 $k$ 、 $l$  は整数であり、この組み合わせ  $hkl$  を指数(index)と呼ぶ)。

### 3.3.2 表面(二次元)の逆格子

RHEED は表面すなわち二次元の結晶からの回折を得る手法である。一例として、矩形の単位胞を持つ二次元格子について実空間の原子配置と逆空間の逆格子点分布を図7に示した。矩形の単位胞を持つ結晶は逆空間上でも矩形の単位胞を持つ逆格子を形成する。逆格子を構成する各逆格子点は指数によって区別される。二次元の場合の指数は、原点を00、原点から  $\mathbf{a}^*$  離れた点を10、原点から  $2\mathbf{b}^*$  離れた点を02のように表記する。負の場合には  $\bar{1}0$  のように、上に線を引く(図7(b)参照)。原点から各逆格子点に向かって

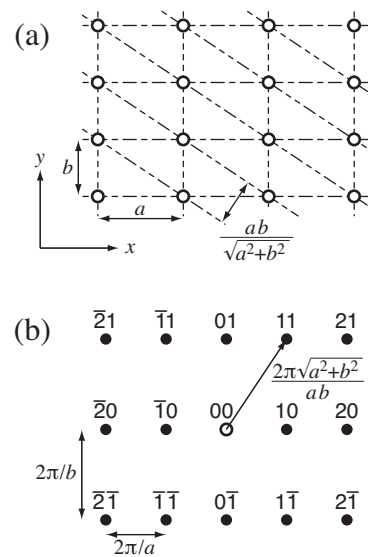


図7: 二次元結晶とその逆格子。(a) 実空間、(b) 逆空間。

引いたベクトルは  $h\mathbf{a}^* + k\mathbf{b}^*$  ( $hk$  は逆格子点の指数)、すなわち Laue 条件の右辺を表しており、このベクトルが散乱ベクトル ( $\mathbf{k}' - \mathbf{k}$ ) と一致すれば、回折が起こることになる。なお、表面再配列構造によって新たな逆格子点ができるとき、例えばそれが2倍周期のものであった場合には  $1/2$  といった分数次の指数を持つことになる。

基本ベクトルが直交していない場合には多少の計算が必要である。ベクトル  $\mathbf{a}$ 、 $\mathbf{b}$  を基本ベクトルを持つ二次元結晶の場合には<sup>2</sup>、逆空間の二つの基本ベクトル  $\mathbf{a}^*$  および  $\mathbf{b}^*$  は、

$$\begin{cases} \mathbf{a}^* = \frac{2\pi(\mathbf{b} \times \hat{\mathbf{z}})}{\mathbf{a} \cdot (\mathbf{b} \times \hat{\mathbf{z}})} \\ \mathbf{b}^* = \frac{2\pi(\hat{\mathbf{z}} \times \mathbf{a})}{\mathbf{b} \cdot (\hat{\mathbf{z}} \times \mathbf{a})} \end{cases} \quad (7)$$

と書くことができる。ここで、 $\hat{\mathbf{z}}$  は表面垂直方向の単位ベクトルである。(7)式から、 $\mathbf{a}^*$  の方向は  $\mathbf{b}$  に直交しており、その長さが  $2\pi/(|\mathbf{a}| \cos \theta)$  (この  $\theta$  は  $\mathbf{a}$  と  $\mathbf{a}^*$  の成す角) となることがわかる。

次に、二次元格子を三次元空間で見た状態を考える。図7(b)で示した逆格子点は逆空間を表面垂直方向から見たものである。二次元結晶は  $z$  方向に厚さを持たないため、その逆格子は  $z$  方向に  $2\pi/0$  すなわち無限大に伸びる。この結果、二次元格子の逆空間を三次元的に見ると、図8のようになっており、逆格子はロッド(幅のない棒状)になっている。

ところで、逆空間と実空間の扱いで気を付ける点がある。実空間で原点は原子の位置であっても原子と原子の間の位置であっても構わない。しかし逆空間は周期空間であり、原点は周期0(=波長無限大)を表す特殊点であるので、原点を任意の位置にとることはできない。このことは、回

<sup>2</sup>ここでは、単位格子は1つの原子のみ含む単純格子と考え、消滅則は考慮しない。

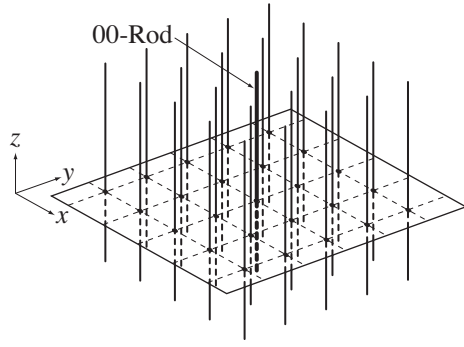


図 8: 三次元空間内の二次元結晶の逆格子。

折の実験を行う場合に試料位置や方向を変化させても原点が変化しないことで確かめることができる。試料を拡大して観察する顕微鏡法では試料の振動を原子レベル以下にしないと原子と原子の間隔を観察することはできないが、回折法は試料位置に依存せずに周期を観察できるため、原子間隔を正確に求めるのに適している。

### 3.3.3 波としての電子線

電子線は粒子線であるとともに波長

$$\lambda = \frac{h}{p} \quad (8)$$

を持つ波動としての性質を持つ。ここで、 $h$  はプランク定数、 $p$  は電子の運動量である。波長と電子の運動エネルギー  $E_k$  との関係は、非相対性理論が適用できる範囲では、

$$E_k = \frac{p^2}{2m_e} \quad (9)$$

但し、 $m_e$  は電子の質量である。(9) 式を (8) 式に代入して、

$$\lambda = \sqrt{\frac{h^2}{2m_e E_k}} = \sqrt{\frac{150.4}{E_k [\text{eV}]}} [\text{\AA}] \quad (10)$$

が得られる。したがって、 $E_k = 150 \text{ eV}$  の場合  $\lambda = 1 \text{ \AA}$ 、 $E_k = 15 \text{ KeV}$  の場合  $\lambda = 0.1 \text{ \AA}$  となる。

電子の運動エネルギーが大きくなると、その速度は特殊相対性理論の領域に入ってくる。この場合、電子の全エネルギー  $E$  はディラックの関係式及びアインシュタインの関係により、

$$E^2 = m_0^2 c^4 + p^2 c^2 = m_e^2 c^4 \quad (11)$$

と書くことができる。ここで  $m_0$ 、 $c$  はそれぞれ電子の静止質量および光速である。運動エネルギー  $E_k$  は

$$E_k = m_e c^2 - m_0 c^2 \quad (12)$$

であるから、(11) 式と (12) 式とを用いて、(8) 式は

$$\lambda = \sqrt{\frac{150.4}{E_k \{1 + (E_k/2m_0 c^2)\}}} \quad (13)$$

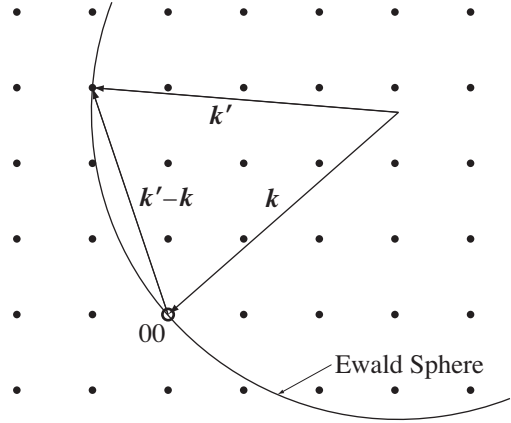


図 9: 逆空間内での逆格子、入射ベクトル、散乱ベクトル、回折ベクトルの関係。

となる。特殊相対論効果が無視できる条件は  $E_k \ll m_0 c^2 \sim 511 \text{ KeV}$  であることを考えると、電子線のエネルギーが数十 KeV 以下であれば (10) 式を用いてよいことがわかる。

波数  $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$  を用い (8) 式をベクトル表示で書き直すと

$$\mathbf{p} = \hbar \mathbf{k} \quad (14)$$

となる ( $\hbar = h/2\pi$ )。ここで  $\mathbf{p}$ 、 $\mathbf{k}$  はそれぞれ運動量ベクトル、波数ベクトルであり、波数ベクトルの方向は電子の運動量ベクトルの方向 (電子が移動している方向) と一致している。

### 3.3.4 逆格子と回折

3.3.1 節において Bragg 条件の逆空間表記として Laue 条件を示した。結晶に対する入射条件が定まっているとき、回折波が観察される方向は Laue 条件から簡単に求めることができる。これを図解したものが Ewald の作図法 (図 9) と呼ばれる。図中、入射電子線の波数ベクトルは  $\mathbf{k}$ 、回折波の波数ベクトルは  $\mathbf{k}'$  である。入射条件 (入射波の波数、進行方向) と結晶の周期 (逆格子点の位置) は与えられているとする。まず、逆空間内の原点に向かって  $\mathbf{k}$  を描く。Laue 条件においても  $|\mathbf{k}'| = |\mathbf{k}|$  すなわち弾性散乱条件は仮定されているので、回折波  $\mathbf{k}'$  の終点は  $\mathbf{k}$  の始点を中心とする半径  $|\mathbf{k}|$  の球 (Ewald 球) 上に存在する。先に述べたように Laue 条件は  $\mathbf{k}' - \mathbf{k}$  が逆格子点と一致していることを求めているので、実際に観察される回折波  $\mathbf{k}'$  は、Ewald 球の中心から Ewald 球と逆格子点とが重なった点に向かって引いたベクトルとなる。図 9 では 1 点のみ重なっているが、複数の逆格子点が Ewald 球と重なった場合には複数の回折波が観察されることになる。

### 3.3.5 二次元結晶による反射電子回折

二次元結晶による反射電子回折は Ewald の作図法を図 8 で示した逆格子ロッドに適応することで説明できる。図 10

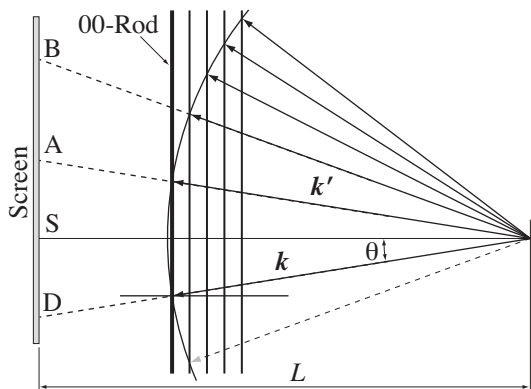


図 10: 逆格子ロッドと Ewald 球。

は表面を横から見たときの逆格子ロッドと Ewald 球との関係を示す図である。入射電子線  $k$  は表面に対して視射角  $\theta$  で入射しているものとする。図の左側に蛍光板を配置してあるとすると、図中 A、B 等で示した点が光ることになる。回折波のうち下向きものは結晶表面から内部へ向かう波であり、結晶に吸収されて観察できない。このため、図中 S で示した位置から下には回折波は観察できない(ここより下は試料の陰になる)。この S の位置を Shadow Edge と呼ぶ(Shadow Edge は試料表面をスクリーンまで延長した場所に一致する)。また、00-ロッドからの回折波 A(00 スポット) はちょうど入射波が鏡面反射(出射角=入射角)した位置に相当するので、鏡面反射スポットとも呼ぶ。D で示した点は入射波が直接蛍光板に達した位置であり、ダイレクトスポットと呼ぶ(これは試料を通過したものではなく、試料に当たらずに蛍光板に達した電子線によるものである)。なお、電子線の入射位置(試料の位置)から蛍光板までの距離をカメラ長(図中  $L$  で示した長さに相当)と呼び、回折パターンの拡大率を決定するパラメータになる。カメラ長は、既知(あるいは標準)試料の回折図形の大きさ(回折点の間隔)から逆算して求めるのが一般的である。

対称性の良い方位から電子線を入射すると、回折スポットはいくつかの同心円上に点が並ぶパターンになる。この同心円のうち 00 スポットを通るものを 0 次ラウエゾーン、その外側の 10 或いは 01 スポットを通る円を 1 次ラウエゾーンと呼ぶ。また、2 倍周期の表面再配列構造による 0 次と 1 次の間ゾーンは  $1/2$  次ラウエゾーンとなる。

### 3.3.6 現実の結晶における反射電子回折

上で示した電子回折は理想的な二次元結晶を前提としたものである。しかし、現実の結晶には理想からのさまざまなずれがある。以下に代表的な相違点とその回折に与える影響を簡単に紹介する。詳細は参考文献を参照のこと。

#### • 結晶表面は実際には二次元ではない

一般的な反射電子回折条件(入射視射角  $\sim 4^\circ$ )では電子

線は基板表面から十数Å程度まで侵入する。このため、表面近傍の三次元構造( $z$ 方向の周期性)を反映して逆格子ロッドの  $z$  方向の強度分布が生じる。この結果、電子線の入射視射角を変化させると Ewald 球がロッドを切る場所が変わり、回折強度が変化する。

#### • 結晶の周期性は有限である

結晶が無限に周期性を保っていることはあり得ない。途中に位相ズレの領域(位相境界)があれば、周期性はそこで途切れてしまう。一つの連続した完全結晶領域のことをドメイン(分域)と呼び、その大きさをドメインサイズという。ドメインサイズが  $A$  であったとすると逆格子点(ロッド)は  $2\pi/A$  の広がりを持つ。RHEED 図形では逆格子の広がりがストリーク(縦に伸びる線状のパターン)として観察される。

#### • 電子線の可干渉距離は有限である

電子線は位相が無限に連続した波ではないため、コヒーレント長(可干渉距離)も有限である。一般的には電子線のコヒーレント長は数千Åであるので、結晶がこれ以上の範囲で完全であれば、コヒーレンシー制限による逆格子の広がりが無視できなくなる。また、電子線の広がり角も 1 mrad 以下に抑えることは容易ではない。このため、Ewald 球の原点位置が幅を持つことになり、結果としてスポットの広がりにつながる。

#### • 結晶は一方向に揃っているとは限らない

表面が複数の方位を持つ結晶で構成されていると、逆格子も各々の逆格子を足し合わせた状態(原点を共有して重ねた状態)になる。このため、複数の領域からの回折波が重なって見える。もし、 $z$  軸に対して様々に回転した多数のモザイク状の結晶があったとすると、逆格子は原点を中心に逆格子ロッドを回転した状態すなわち、同心円筒状になる。このような状態になると、電子線の入射方位を回転しても反射電子回折パターンは変化しない。

#### • 表面が平らであるとは限らない—その 1(微傾斜面)

表面が、例えば(111)面からわずかに傾斜していたとすると、傾斜のために表面は階段状になる。この間隔がほぼ一定になっていたとすると、この階段の幅を持つ格子が存在しているのと同じことになり、それによる回折が発生する。一般にこの間隔は原子の間隔と比較してかなり大きいので、逆格子ロッド内部の微細構造として観察されることになる。

#### • 表面が平らであるとは限らない—その 2(凹凸表面)

表面に細かな凹凸が発生していると、その凹凸の先端部分を通り抜けて来た電子線による透過電子回折が発生する。透過電子回折は反射電子回折とは異なり、その凹凸部分のバルク結晶(すなわち三次元)の情報を持

つ。同心円上に並ぶ反射電子回折パターンとは異なり、格子状のパターンを呈するのが大きな特徴である。また、凹凸が特定の傾斜面を持っている場合、屈折効果によってその形状を反映したスポット形状を持つ。

#### ・表面が結晶であるとは限らない

表面がアモルファス状態になっているとき、逆格子は原点付近を強度の山とする広がった分布になる(より厳密には、第一近接原子間隔や第二近接原子間隔に相当する位置にやや強い強度分布を持つ)。このため、アモルファス表面の反射電子回折はシャドウエッジから上全体がぼんやりと明るくなる。アモルファス層の厚さが数Å以下と薄いときにはアモルファス層を突き抜けて下の結晶による回折パターンが重なって見えることがある。

#### ・非弾性散乱も発生する

非弾性散乱はエネルギー交換を伴う散乱であるが、交換するエネルギーは高々数eVであることがほとんどである。高速電子線の場合、非弾性散乱の影響は入射方位の記憶を失う効果として顕著に現れる。入射方位の記憶を失うと言うことは、波数を保ったままEwald球の原点を回折条件を満たす任意の位置に移動できるということである。この結果、電子回折にはパターン全体に無数に走る対を成す線(菊地線)が現れる。RHEEDの場合、菊地線を観察することで表面近傍のバルク結晶に関する情報を得ることが可能である。RHEED図形中で顕著に観察される非弾性散乱には菊地線の他に原子の熱振動(フォノン散乱)に起因する熱散漫散乱もある。

上記の他、実際の実験に当たっては、不可避な不純物の影響やさまざまな外部要因のノイズなどの影響を考慮した解析が必要になる。

## 4 レポートについて

### 4.1 レポート作成上の注意

- 当然であるが、自分の文章を書くこと。他人の文章を無断で取り込む(類似の場合を含む)行為は、原文が著作権保護下にあるかどうかに関わらず剽窃とよばれ、論文においては厳しく禁止されている行為である。他人の文章を読んで参考にすることは勉強の一環であるが、内容を咀嚼・理解した上で自分の文章にすることが必須である。レポートの文章が剽窃と判断される場合には、不合格とすることがあるので、注意すること。
- レポートは与えられた表紙を付け、印刷した状態で提出すること。電子版は認めない。

- レポートは少なくとも

1. 実験目的
2. 実験方法・手順
3. 実験結果および解析結果
4. 考察

の各項目を含むこと。また、これらの項目を明確に分けて記載すること。なお、考察は実験全体を横断的に捉えて記載すること(各実験毎に考察するだけでなく、全体の実験を通じての考察を書く)。

- 事実(実験結果から直接的に断定できること)と自分の意見(考察)、他人の意見(文献などの情報も含む)を明確に分けること。また引用などを行う際は、必ず出典を明記すること。

- 誤差の評価は定量的に行うこと。

- 実験方法に関して

1. 手順書の手順ではなく、実際に行った手順を書く。
2. 具体的な実験条件(加熱温度、撮影条件など)を書く。

- 実験結果に関して

1. 数値の羅列や長い文章は情報を伝えるのに適していない。グラフや表、箇条書きなどを活用して、視覚的に伝える努力をすること。
2. 温度校正のグラフは各人で作成し、補間・外挿曲線も入れること。また対数グラフは対数目盛りで作成する。グラフ軸の単位記入も忘れないこと。
3. RHEED → 逆格子変換はグループ内で分担しても構わない。この場合自分が担当したデータ以外はコピー添付でもよい。
4. 逆格子変換図は縦横比が1:1になるように作図する。
5. 逆格子の図には主要な点に必ず指数をつけ(指数の基準の取り方は統一すること)、再配列構造の単位胞を明示すること。
6. RHEED → 逆格子変換に際しては、スポットの強度を3段階程度に分類し、逆格子図上で○の大きさを変える等して表現すること。また、解析の都合で追加した逆格子点があれば、他の点と区別できるように表現すること。

- 考察に関しては基本的な内容は実験中に行った討論をベースにして構わないが、以下に示した点にも留意して欲しい。

- 既存の基板はどのようになっていたのか。
- フラッシングで何が起こったのか。
- 格子定数 (基板は本当に Si であるのか、Ag/Au を蒸着したときにどのように変化するのか)。
- 高温の清浄基板表面はどうなっているのか。
- Ag/Au の蒸着条件による比較。
- Ag と Au の共通点と違う点、その原因。
- ストリーク図形からドメインサイズを推計し、その原因を考察する。
- 自由実験の事前予想との比較と考察。

● その他

1. 実験・解析等に関する質問があれば担当教員 (3 号館南棟 465 号室) が随時受け付ける。
2. 実験レポートは原則として担当教員に直接手渡すこと。担当教員が不在の時には 465 号室前の指定ポストに提出する。また、レポート提出時には必ず受領証を受け取ること。
3. レポート提出が無い場合には本実験の点数は 0 点になる。出席が半分以下のときはレポート提出を認めない。

## 参考文献

以下の文献は、全て名古屋大学図書館所蔵の書籍である。

- A. Ichimiya and P.I. Cohen, “*Reflection High Energy Electron Diffraction*”, Cambridge University Press, 2004 (ISBN 0-521-45373-9).
- 小間篤 他編 “表面科学入門 (表面科学シリーズ)”, 丸善, 1994 (ISBN 4-621-07633-7).
- 曾根純一 編, “表面・界面の物性 (シリーズ 物性物理の新展開)”, 丸善, 1996 (ISBN 4-621-04148-7).
- M. Prutton (川路神路 訳), “表面の物理 (オックスフォード物理学シリーズ)”, 丸善, 1977 (ISBN 4-621-02246-6).
- 田中通義 他, “やさしい電子回折と初等結晶学”, 共立出版, 1997 (ISBN 4-320-03342-6).
- C. Kittel (宇野良清 他訳), “固体物理学入門 第 7 版”, 丸善, 1998 (ISBN 4-621-04423-0)
- 三宅静男, “X 線の回折”, 朝倉書店, 1969 (ISBN 4-254-13042-2).
- B.D. Cullity (松村源太郎 訳), “X 線回折要論 新版”, アグネ, 1980 (ISBN 4-900-50857-8).

以下の文献は、名古屋大学図書館の電子ジャーナルアクセスサービス (<http://sfx.nul.nagoya-u.ac.jp/nagoya/az/>) から入手可能である。

- 一宮彪彦, “RHEED 図形の読み方 (1)”, 表面科学, **10** (1989) 573.
- 一宮彪彦, “RHEED 図形の読み方 (2)”, 表面科学, **10** (1989) 908.
- S. Hasegawa, X. Tong, S. Takeda, N. Sato and T. Nagao, “*Structures and Electronic Transport on Silicon Surfaces*”, Prog. Surf. Sci. **60** (1999) 89.
- N. Sato, T. Nagao and S. Hasegawa, “*Two-Dimensional Adatom Gas Phase on the Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag Surface Directly Observed by Scanning Tunneling Microscopy*”, Phys. Rev. B **60** (1999) 16083.
- S. Yamazaki, I. Matsuda, H. Okino, H. Morikawa and S. Hasegawa, “*Electrical Conduction on Various Au/Si(111) Surface Superstructures*”, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **3** (2005) 497.
- A. Ichimiya, H. Nomura, Y. Horio, T. Sato, T. Sueyoshi and M. Iwatsuki, “*Formation of  $\sqrt{21} \times \sqrt{21}$  Structure by Gold Deposition on Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag Surface and the Wavering Behaviour*”, Surf. Rev. Lett. **1** (1994) 1.