

原 著 論 文 (4)

テレビカメラとマイクロコンピュータを利用した 低速電子の回折強度の迅速測定装置

西片 一昭・松本 益明・遠藤陽一郎・重川 秀実・河津 璋

東京大学工学部 〒113 東京都文京区本郷 7-3-1

(1988年10月21日受理)

A Fast Intensity Measurement Device for Low Energy Electron Diffraction using a TV Camera and a Micro Computer

Kazuaki NISHIKATA, Masuaki MATSUMOTO, Youichiro ENDO,
Hidemi SHIGEKAWA and Akira KAWAZU

Faculty of Engineering, The University of Tokyo
7-3-1, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113

(Received October 21, 1988)

This system was designed by us for the intensity-voltage curve measurements at the TV rate and for the analysis of the shape diffraction images. A frame memory was employed and it was connected through the bus line to the microcomputer. A scheme of this intensity measurement is described.

This system was applied to the analysis of Al overlayers on Si(111).

1. はじめに

薄膜、表面の構造を知ることは、表面科学の主要な目的の一つである。表面の電子状態、仕事関数、吸着現象など表面上の物理現象を正確に理解するには、構造に関する知識が不可欠なことからもうなずける。

低速電子回折 (Low Energy Electron Diffraction : LEED) は、表面の並進対称性の観察手段としてだけでなく、表面構造の決定手段としても有力である。現在までに知られている表面構造の多くは、LEED によって決定されたものである。

LEED による表面構造決定においては、まず、複数列の回折斑点について、回折斑点の強度 (Intensity) の入射エネルギー (Voltage) 依存性 (I-V 曲線) を測定する。一方、実験と同一の入射方位である構造模型について多重散乱、吸収などを考慮した動力学的計算を行う。実験と理論の両 I-V 曲線が、多くの回折斑点について一致したときの構造模型を正しい表面構造とする^{1,2)}。

以上のように LEED による表面構造解析では、構造模型のパラメータを変えて I-V 曲線を計算し、実験の I-V 曲線と比較するので、正しい実験値を得ることが第一に重要である。

LEED の I-V 曲線の測定は、一般に容易であると思われるが、入射電子のエネルギーが増加するにつれ各回折斑点が鏡面反射点の方に移動するのでそれを追跡しながら強度を測定する必要があり、また回折斑点の強度は比較的弱いので、信頼性のある I-V 曲線を短時間で測定するのは意外に難しい。

I-V 曲線の測定法として従来は、入射電子のエネルギーを一定の間隔で変えて写真を取りマイクロデンシトメータにより各回折斑点の強度を得る方法や、スポットフォトメータを回折斑点の動きに合わせて機械的に自動追跡しながら強度を得る方法などが行われていた。正確な I-V 曲線を得るには、回折斑点の回りに存在するバックグラウンドの除去が必要であるが、上に述べた方法では、バックグラウンドを差し引いた回折斑点の強度を得るのに手間がかかり、信頼性の高い I-V 曲線を得るに

は多大の時間を要した。

近年、高感度テレビカメラが比較的安価で利用可能になったことから、蛍光スクリーン上に現れた LEED 像をテレビカメラで撮影し、そこから強度を測定する I-V 曲線測定法が報告され、従来法より短時間に信頼性が高い I-V 曲線が測定できるようになった³⁾。

またテレビカメラ法によると、スクリーン上の回折強度の角度分布を容易に得ることができる。従って、特定のエネルギーの強度分布解析による表面周期の正確な把握や、回折斑点の形状分布解析による試料表面のトポロジやエピタキシャル成長に関する情報取得⁴⁾ も行うことが可能になる。また短時間で測定できることから温度変化による表面構造の変化や吸着過程などの動的過程の研究にも応用可能である。

我々はこうした応用範囲の広いテレビカメラを利用した LEED 回折像の強度測定装置をフレームバッファとマイクロコンピュータを用いて実現し、Si(111) 表面上に Al を蒸着したときに現れる超構造の研究に応用し、十分な性能を得たのでこれを報告する。また本装置は、反射高速電子回折 (RHEED) 装置等にもそのまま応用できる。

2. テレビカメラによる強度測定法

高感度のテレビカメラにより、蛍光スクリーン上の LEED 像を撮影する。その映像信号を A/D 変換して、コンピュータ内で処理することで回折斑点の強度が得られる。1つのフレームの処理が終わった後に、入射電子の加速電圧を一定値分増し、次のフレームの映像を撮影、強度計算する。入射電子のエネルギーの範囲、すなわち 20 eV から 300 eV 程度にわたってこの測定を繰り返すことにより I-V 曲線を得る。

撮影した映像信号の全てをリアルタイムで処理するには、それをデジタル化して直接コンピュータに転送、処理しなければならない。それには 10 MB/s という大きな転送速度のインターフェースをもつコンピュータが必要である。このようなコンピュータは、画像処理専用として現在市販されているが非常に高価である。

そこで2つの方法が考えられる。第1の方法では、加速電圧を変えて得られた LEED 像の映像のすべてを、一旦ビデオテープレコーダ、ビデオディスクレコーダもしくは光ディスクレコーダに格納する。格納した信号の読み出し、強度を得る処理などは実験終了後行う。この方法では完全なビデオレートで LEED 像を取り込める。しかし実験中その場で I-V 曲線を観察することができない。例えば、低指数面に垂直に電子を入射させる必要がある場合、垂直入射条件の確認は対称な関係にあ

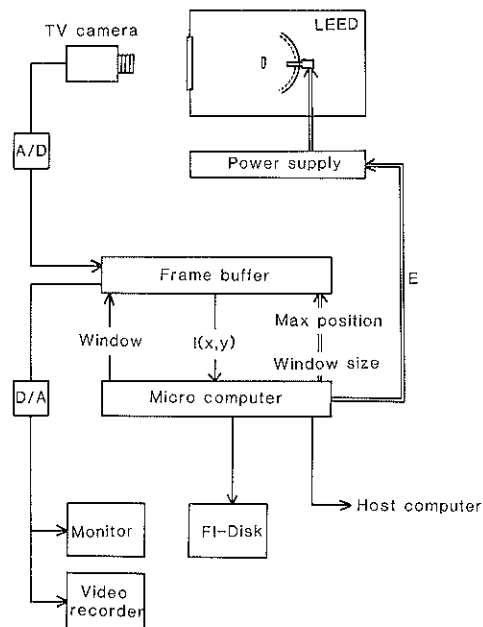


Fig. 1 Block diagram for the system.

る回折斑点の I-V 曲線が互いに一致するかどうかにより行われる。しかし、この測定方式では、このような垂直入射の確認を実験中に直ちに行うことができない点に大きな不満がある。

第2の方式は、必要なデータだけを転送して、インターフェースの負担を軽減しながら、リアルタイム処理を行う方法である。この方法は得られたデータを、ただちに現在行っている実験に反映できるなどの利点をもつ。

我々は、第2の方法をとった。すなわち、回折斑点を含む適当な画素数のウィンドをスクリーン上の1個または複数個の回折斑点について設定し、ウィンド内の情報のみをコンピュータに転送、強度の積分など必要な処理をし、すぐさま I-V 曲線を得る方法である。

3. 装 置

Fig. 1 に、測定装置のブロックダイアグラムを示す。1画面 8 bit 256×240 画素の安価なフレームバッファ (アストロデザイン社 CC-409) をマイクロコンピュータにバス直結でつなぐことにより、高速転送を実現している。図中には示していないがフレームバッファとマイクロコンピュータの間にはバスコンバータ (アストロデザイン社 IB-506) が入っている。これはマイクロコンピュータのバスが独自の 20 bit のもので、フレームバッファは 24 bit のマルチバスを使用しているのでバス信号をシフトして連結する役目をしている。バス直結のデータ転送は高速であるが、バスコンバータ部で若干遅延

している。またバス直結方式では、コンピュータ側からみるとフレームバッファと主メモリとが同等である。このため計測プログラミングは容易である。プログラムは、実行速度を考慮して主要部をアセンブリ言語で、他はベーシック言語で書いてある。

I-V 曲線の迅速測定では電子の加速電圧を階段状に増し、その各電圧ごとに蛍光スクリーン上の LEED 像をテレビカメラで撮影して、1 フレームの映像を得る。次のフレーム撮影時に前のフレームの影響が入っては正確な強度が得られない。蛍光スクリーン上の蛍光物質の蛍光寿命、テレビカメラの残像特性、入射電子の加速電圧の電源部の立ち上がり時間は、その要求を満たすものが必要である。

特にテレビカメラとしては、残像特性の他に高感度であることが必要である。LEED ではスクリーン上で蛍光を発するために、回折電子を第4グリッドと蛍光スクリーン間で加速するが、バックグラウンドをできるだけ減らすために加速電圧は2 kV 程度にする。この程度の電圧で加速された電子の発する蛍光は非常に弱く、カメラはその弱い発光を十分なダイナミックレンジで撮影する必要がある。我々はこの2つの要求を満たすテレビカメラとして、SIT (Silicon Intensifire Target) の撮像管を用いたカメラ (浜松ホトニクス C2400) を使用している。このテレビカメラは LEED 像撮影用としても十分な感度があり残像特性の点も満足できる。また γ 値が1、すなわち入射光量と出力電流が比例しているので補正の必要がない。蛍光物質としては蛍光寿命が垂直帰線消去期間 (約 1 ms) より短いものを使用する。入射電子の加速電圧の電源部はコンピュータにより、GP-IB インタフェースで制御する。我々の用いている電源では、1 V ずつ階段状に電圧を増すときの電圧の立ち上がり時間は、0.4 ms と十分高速であり上記の要求を満たす。

フレームバッファ中のデジタル信号は再度アナログ化し、モニターで観察するとともに市販のビデオテープレコーダに記録する。これは実験データの実験終了後の確認に役立つ。

4. I-V 曲線の測定法

I-V 曲線を測定する手順としては、スクリーン上の LEED 像をテレビカメラで撮影し、その映像信号を A/D 変換器でデジタル化し上記のフレームバッファに取り込む。フレームバッファ内の1画面のデータ中、コンピュータによって指示された位置にあるウインド内のデータのみをコンピュータに転送し、後述する強度の積分処理をする。これで1つのエネルギーに対する1つの強度が得られた。データの信頼性を増すために同一のエ

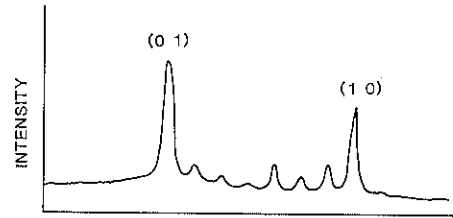


Fig. 2 Line profile of diffraction intensity from Si(111) 7×7 between integral spots at normal incidence with an energy of 37 eV.

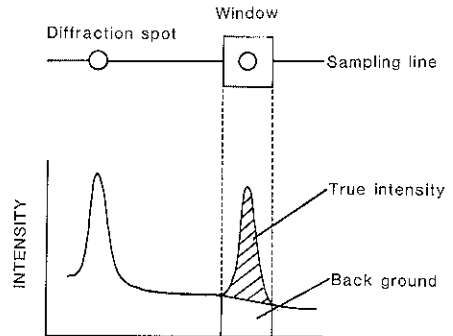


Fig. 3 Procedure for setting true intensity.

ネルギで数回測定を繰り返したのち、コンピュータの指示により、電子の加速電圧を一定値 (任意に設定可能であるが本研究では 0.5 eV か 1.0 eV) だけ増し、撮影、強度処理をする。この手順を指定されたエネルギー範囲で自動的に繰り返し I-V 曲線を得る。得られた I-V 曲線はすぐさま CRT 上に表示され、複数の I-V 曲線の比較がその場で可能である。

電子回折の実験では強度の定義の仕方が重要である。Fig. 2 は、加熱によって清浄化した Si(111) 表面上の 7×7 構造の 37 eV における (1 0), (0 1) 回折斑点を結ぶ線上の強度分布を測定した例である。縦軸 256 階調のうち 1/8 程度は、カメラの暗電流と電子の非弾性散乱成分、位相のそろわない弾性散乱成分、グリッドからの2次電子などの蛍光によるバックグラウンドである。この部分を除去しないと正しい I-V 曲線が得られない。そのため我々は Fig. 3 の様に強度を定義している。すなわち定められたウインド内の先ず列の足し算を行い、ウインドの端点で指示した領域をバックグラウンドと定義し、見かけ上の強度から引く。横の行についても同様のことを行い、その平均を真の強度とする。

ウインドの大きさは LEED 像の回折斑点の分布の仕方に対応して、4~24 画素程度の大きさにプログラム上から変えられる。バックグラウンドは十分滑らかであるため、ウインドの大きさの変化による強度の変化はな

い。

自動的に I-V 曲線を得るためには、電子の入射エネルギーの増加に連れて移動する回折斑点を、ウインドが自動的に追跡できなければならない。これは行の和と列の和のバックグラウンドを除いた状態で最大値がウインドの中心となるようマイクロコンピュータにより自動設定することで実現している。

実行速度に関して例を示すと、ウインドが 18×18 画素のときに、ある 1つのエネルギー値で 1画面撮影して強度を得るのに約 40 ms かかる。同一のエネルギーで 5 回繰り返し、1.0 eV 刻みで 200 eV の範囲の I-V 曲線を 1つの回折斑点について測定するには 40 秒かかる。対称な 3 点の回折斑点について同時に測定するときには 3 倍の時間がかかる。

5. 測定結果

Fig. 4 に加熱によって清浄化した Si(111) 7×7 表面上に、Al 700°C で $1/3$ 原子層蒸着したとき現れる $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -R 30° 超構造の 4つの回折斑点 (1 0), (0 1), ($1/3$ $1/3$), ($2/3$ $2/3$) の I-V 曲線を示す。この超構造は変化し易く、正しい I-V 曲線を得るには短時間で測定する必要があるため、本装置の利点が生かされる。理論計算と比較して構造解析を行うために 10 種類程度の回折斑点の I-V 曲線の測定を行う。Si 基板を清浄に

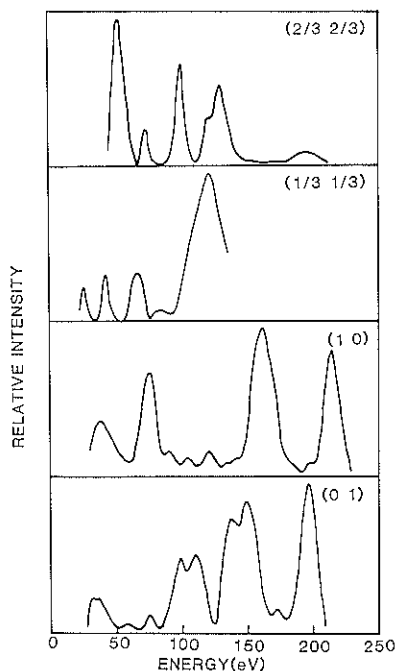


Fig. 4 LEED I-V curves of Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ R 30°-Al at normal incidence.

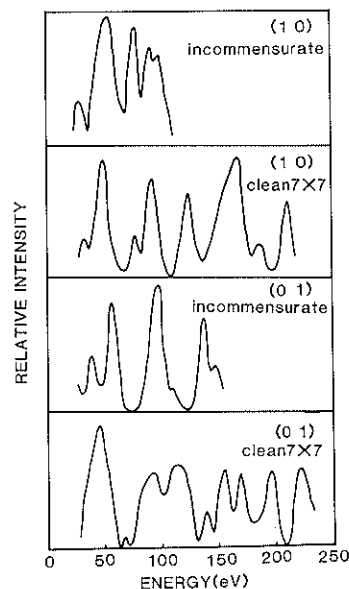


Fig. 5 Comparison between I-V curves from clean Si(111) 7×7 surface and Si(111)-Al incommensurate surface at normal incidence.

してから測定し終るまで、各回折斑点ごとに 3つの対称な回折斑点の測定を同時に行って、0.5 eV ごとの精密な測定で、30 分程度かかった。

Fig. 5 に清浄な Si(111) 表面の 7×7 構造とその表面上に 700°C で Al を 1 原子層蒸着したときに現れる不整合相が存在する表面からの整数次の回折斑点の I-V 曲線の比較を示す。不整合相とは吸着原子の周期が基板の周期と通常の有理数の関係を持たない相である。Fig. 4 と Fig. 5 を比較すれば、 7×7 相、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 相、不整合相は全く異なる I-V 曲線を持つことが分かる。この様に、異なる相の I-V 曲線は全く異なる。従って、特に構造は異なっても、その周期が等しいような相に関しても I-V 曲線を比較すれば、それらが相異なる相であることをすぐさま明確に判断できる。同様なことは、基板の清浄法の違いや、蒸着条件、すなわち基板温度や蒸着速度等、により構造自体あるいはその完全性に変化がある場合についても言える。

Fig. 2 と同様な line profile を比べることにより、表面構造の区別をすることができる。Fig. 6 に、清浄な Si(111) 表面の 7×7 構造と、その上に微量 ($1/3$ 原子層以下) の Al を、500°C で蒸着したときに現れる 7×7 構造についての、(0 1) と (0 -1) 回折斑点をむすぶ線上の強度分布を示す。Al を蒸着したとき現れる 7×7 構造は、Lander と Morrison により観察された⁵⁾ α - 7×7 構造であるとおもわれる。図中の真中に矢印で示した強度の低い部分は、試料保持機構が存在するため

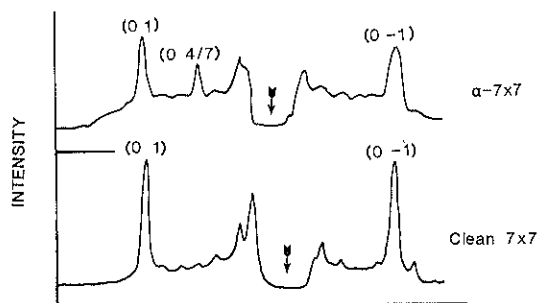


Fig. 6 Comparison between line profiles of diffraction intensity from clean Si(111) 7×7 surface and Si(111) α - 7×7 -Al surface at normal incidence with an energy of 41 eV.

回折像が欠けているところである。この部分にもわずかながら強度電流が存在しているが、これはカメラの暗電流である。図中にみられるように Al を蒸着したときの 7×7 構造には、清浄な 7×7 構造にはみられない $(0\ 4/7)$ の強い回折がみられる。清浄な Si(111) 表面の 7×7 構造上に金属をごく微量蒸着したときに見られる 7×7 回折像については、清浄な Si の 7×7 構造が残っているため 7 倍の回折像が観察される場合と、蒸着された金属原子により実際に新たな 7 倍構造が形成される場合があるとされている。この Al の場合には、Al の吸着により $(0\ 4/7)$ の顕著な強度増加がみられ、従って Al 原子の吸着により新たな 7×7 構造が形成されたと考えられる。

6. ま と め

テレビカメラとマイクロコンピュータを利用した、

LEED の回折強度の測定装置を製作し、Si(111) 7×7 表面上に Al を吸着させたときに出現する種々の超構造に応用した。本装置はきわめて安価で、I-V 曲線をほぼテレビレートで精度よく測定でき、また回折強度の空間分布も測定できるので、表面構造の解析からエピタキシャル成長の研究といった分野まで幅広く応用可能である。本実験で得られた I-V 曲線を用いて表面構造の動力学的研究が進行中である。

今後の課題として、試料のマニピュレータの方位をパルスモータで制御し、コンピュータによって対称的な回折斑点の I-V 曲線を比較してそれらの差がないように、マニピュレータを自動操作して入射条件を決定できるような装置の開発が考えられる。

本装置は、RHEED の回折斑点の強度の振動測定といった測定にもそのまま応用可能であり、表面における薄膜形成過程の微視的な研究に利用できる。

文 献

- 1) J. B. Pendry: "Low Energy Electron Diffraction" (Academic, London, 1974).
- 2) M. A. van Hove and S. Y. Tong: "Surface Crystallography by LEED" (Springer-Verlag Berlin, 1979).
- 3) K. Heinz and K. Muller: "LEED Intensities-Experimental Progress and New Possibilities of Surface Structure Determination" (Springer-Verlag, Berlin, 1982).
- 4) M. Henzler: Appl. Surf. Sci. 11/12, 450(1982).
- 5) J. J. Lander and J. Morrison: Surf. Sci. 2, 553 (1964).