

サイクロトロン運動を利用した  
ラザフォード後方散乱分光法に関する研究

2008 年

一原主税

# 目次

第1章 序論	1
1.1 研究の背景	1
1.2 ラザフォード後方散乱分光法の現状	3
1.3 論文の構成	4
参考文献	6
第2章 ラザフォード後方散乱分光法(RBS)の原理と各種 RBS 分析装置	7
2.1 ラザフォード後方散乱分光法(RBS)の原理	7
2.1.1 弾性散乱因子	7
2.1.2 散乱断面積	10
2.1.3 阻止能	12
2.1.4 エネルギー・ロス・ストラグリング	15
2.1.5 RBS による膜組成分析	17
2.1.6 チャネリング	19
2.2 RBS 法に基づく各種分析装置	20
2.2.1 標準 RBS 分析装置	21
2.2.2 静電型検出器を用いた中エネルギー散乱装置(MEIS)	22
2.2.3 高分解能 RBS 分析装置(HRBS)	23
2.2.4 飛行時間測定型検出器を用いた RBS 分析装置	25
2.3 まとめ	25
参考文献	26
第3章 サイクロトロン運動を利用したラザフォード後方散乱分光法(CRBS)	29
3.1 サイクロトロン運動を利用したラザフォード後方散乱分光法(CRBS)の基本原 理	29

3.2	CRBS スペクトロメータの性能	34
3.2.1	エネルギー分解能	34
3.2.2	立体角	37
3.2.3	質量分解能	38
3.2.4	深さ分解能	45
3.3	スペクトル・シミュレータの開発	52
3.4	CRBS の特徴と各種 RBS 分析装置との比較	55
3.5	まとめ	55
	参考文献	56

<b>第4章</b>	<b>CRBS 分析装置の開発</b>	<b>57</b>
4.1	設計概念	57
4.2	装置構成	57
4.2.1	PIG 型イオン源システム	59
4.2.2	500kV 円筒縦型高圧電源	61
4.2.3	加速器	63
4.2.4	ビーム収束デバイス	65
4.2.5	無冷媒超電導磁石	67
4.2.6	検出器系	69
4.2.7	真空排気系およびイオン源原料ガス供給系	69
4.2.8	漏洩 X 線遮蔽	70
4.3	CRBS スペクトロメータの特性評価	70
4.3.1	スペクトロメータ内磁場分布の測定	72
4.3.2	軌道計算による散乱イオンの評価	76
4.3.3	軌道計算による入射イオンビームの評価	78
4.4	入射イオンビームの特性試験	80
4.5	まとめ	81
	参考文献	82

第5章	CRBS 分析装置を用いた薄膜試料の測定	83
5.1	検出器の動作確認実験	83
5.1.1	MCP システムの磁場中動作確認	87
5.1.2	1次元半導体位置検出器の動作確認	90
5.2	原理実証実験	93
5.2.1	High- <i>k</i> 薄膜試料	93
5.2.2	CRBS 分析装置による測定	95
5.2.2.1	長方形半導体検出器によるエネルギースペクトルの取得	95
5.2.2.2	スリット付半導体検出器による位置スペクトルの取得	98
5.3	まとめ	103
第6章	結論	104
	謝辞	105
	研究発表一覧	107

## 第1章 序論

### 1.1 研究の背景

1965年に Gordon Moore が発表した、2年ごとにトランジスタの集積度が2倍になっていくとの観測は Moore の法則として知られ[1.1]、トランジスタサイズの縮小化はほぼ彼の予測通りに進んできた。スイッチングの高速化、低消費電力化の要求はこれを後押しし、とどまるどころを知らない勢いでトランジスタは縮小化されてきた。

中でも MOS(metal-oxide-semiconductor)トランジスタのゲート絶縁膜はとりわけ重要で、その厚みは2 nm 以下まで薄膜化されてきている。しかしながら、ゲート絶縁膜として長い間用いられてきた SiO<sub>2</sub> は、数原子層まで薄くなるとトンネル現象による漏れ電流の増加により使用できなくなり、厚み 1.2 nm が限界と言われている。物理的薄膜化の緩和策として、SiO<sub>2</sub> に替わり、より誘電率の高い SiON 膜を用いて実効的膜厚を薄くする方法がとられてきたが、既にこれにも限界が見えている。2007年版半導体ロードマップ(ITRS: international technology roadmap for semiconductors) [1.2]によれば、SiON 膜が用いられるのも DRAM ハーフピッチで 65 nm 世代までであり、45 nm 世代から(2010年頃)はさらに誘電率の高い、ハフニウム(Hf)やランタン(La)の酸化膜をベースとしたいわゆる high-*k* 膜が用いられるとされている。中でも HfO<sub>x</sub> は最も可能性の高い代替材料とされ、すでに実用化されチップとして市場に出ているものの、未だ改良開発は精力的に行われている。これらの材料は、本質的に Si 基板との界面で電気的特性が悪く、また、相互拡散するなどの問題があるため、バリア層や多層化などオングストローム(Å)スケールの複雑な膜構造の設計と製作プロセスの開発が必要である。これらの開発は、試行錯誤的な条件出しが大半の作業であるが、迅速な分析結果のフィードバックと条件を変えた再実験の繰り返しのスピードが成果を左右する。そのため前処理不要な効率的で信頼性の高い物理分析技術が重要である。

また、トランジスタサイズの縮小に伴い、接合部も 10 nm を切るような浅いものが求められてきている。同接合部への不純物注入は、その正確なドーズ量・深さ制御性から長年イオン注入法が用いられてきたが、要求される注入領域が浅くなるとともに注入イオンの低エネルギー化が求められており、注入装置の電流性能が追従できていないのが現状である。分子や化合物を用いて飛程を小さくした注入や、プラズマドーピングなど、浅い接合に対する技術開発は進められているものの、未だ途上である。ここでも、表面数 nm を分析できる、高い深さ分解能を持った、高速な分析技術が望まれている。

他方、素材分野においても、半導体分野で開発された各種プロセス技術を材料の表面技術に応用し、摺動性、耐摩耗性、耐腐食性など特殊機能を付与する技術も開発されつつある。また

近年、ダイヤモンド薄膜、磁性多層膜に代表される新機能材料の開発も盛んであるが、いずれも表面から数十 nm の極表面領域が観察対象となっている。

これまで薄膜の元素分布分析には、2 次イオン質量分析分光法(SIMS: secondary ion mass spectrometry)や、オージェ電子分光法(AES: Auger electron spectroscopy)が多用されてきた。SIMS は、数 ~ 数十 keV のセシウム Cs や酸素 O のイオンビームを試料に照射して、表面をスパッタリングで削り取りながら 2 次イオンの質量分析を行うもので、その検出感度は他手法を凌駕している。しかしながら、スパッタリングを用いるが故に起こる、表面のランジエント効果やマトリックス効果のため表面極近傍(<3 nm)の分析に大きな問題を抱えている[1.3, 1.4]。また、AES は、表面を Ar イオンなどによるスパッタリングで削り取りながら、数 ~ 数十 keV の電子ビームを試料に照射し、放出されるオージェ電子のエネルギーを分析することで、表面元素の組成を調べる手法であるが、SIMS と同様スパッタリングを用いるため選択スパッタリングや、入射イオンによる表面損傷(アモルファス化、ミキシング等)などの問題がある。近年、スパッタリングを用いない分析手法として、角度分解型 X 線光電子分光法(AR-XPS: angle-resolved X-ray photoelectron spectroscopy)が実用化されており、試料表面の化学結合状態を測定する手段として利用されはじめている。しかしながら、光電子の脱出深さや測定スペクトルの解釈における不確かさは本質的なものであり、高精度な深さ分布を求める手段としての認識は低い。また、Ar プラズマによる面スパッタリングを利用したグロー放電分光法(GDS: glow discharge spectroscopy)は、スパッタリングの速度が速いことから近年普及が進んできたが、プラズマ立ち上げの不安定性により極表面の測定には信頼性が低く、不平行なスパッタ形状により高精度な深さ方向分析は困難である。透過電子顕微鏡(TEM: transmission electron microscopy)は、エネルギー分散分光法(EDX: energy dispersive X-ray spectroscopy)と組み合わせて、試料断面の像を原子レベルの分解能で観察しながらの組成分析が可能であるが、そもそも試料断面の作製(数百 nm の薄片にする必要がある)に半日以上の時間とコストを要しスピード感のある分析にはほど遠い。原子 1 個 1 個を検出する原子プローブ顕微鏡(AP: atom probe)が最近開発され、その究極の深さ分解能から注目されているが、本手法も試料の作製(先端数 nm の針状に加工する必要がある)に時間とコストを要する。

本研究で対象としたラザフォード後方散乱分光法(RBS: Rutherford backscattering spectrometry)は、非破壊性、定量性、高効率といった特長を有し、組成の深さ分布を得るために古くから広く用いられてきた。しかしながら、1 ~ 2 MeV のイオンビームを用い、エネルギー分析器として半導体検出器を用いた標準的な RBS の深さ分解能は 10 nm 程度であり、上で述べた極薄膜化された試料分析の要求には応えきれなかった。そこで本研究では、深さ分解能が高く、測定速度の向上も図ることが可能な新しい分光法を提案し、上記要求に応える性能を確認することを目的とした。

## 1.2 ラザフォード後方散乱分光法の現状

前節で述べたように、従来の標準的な RBS では、エネルギー分析器として用いる半導体検出器のエネルギー分解能が制約となり、深さ分解能は 10 nm 程度であった。これを改善すべく、半導体検出器に替えてエネルギー分解能の高い電場型や磁場型の分析器(分析エネルギーの 0.1 ~ 0.2 %程度の分解能を持つ)を用いた高分解能 RBS 装置が各地で開発された。これらはそれぞれ、中エネルギーイオン散乱(MEIS: medium ion scattering)分析装置、高分解能 RBS(HRBS: high-resolution RBS)分析装置として、ここ 25 年の間に開発され実用化されてきた。MEIS や HRBS を用いると、サブ nm の高い深さ分解能での RBS 分析が可能になったが、その立体角が犠牲になり( $< 1$  msr)、測定時間の増大に加え、試料へのプローブイオンビーム照射量の増大から試料ダメージが懸念されている。

従来から高い分解能の分析性能を維持しながら大立体角を実現する RBS が望まれており、可能性のある手法として磁場中の荷電粒子のサイクロトロン運動を利用したアイデアが 1995 年に井上らから公開されたが[1.5](図 1-1 参照)、一様な強磁場(~2 T)を得る技術が未確立であり、詳細な検討や装置開発には至っていなかった。

本研究では、図 1-2 に示すように、高分解能な分析性能を維持しながら大立体角を実現する可能性のあるサイクロトロン型 RBS 分析装置(CRBS: cyclotron RBS)について、理論的な研究と装置開発を行うことにより、その原理実証を行い、実用化のための指針を得ることを目指した。

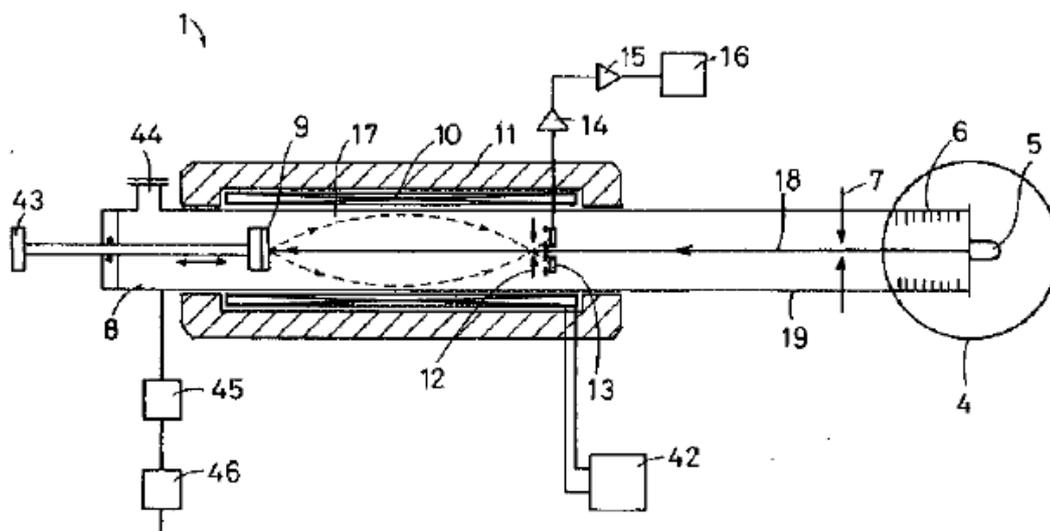


図 1-1 井上らが提案した CRBS 分析装置[1.5]。イオン源 5 から出たイオンビームは強磁場中に設置された試料 9 に照射される。散乱イオンの一部は、アパーチャ 12 を通過し検出器 13 により検出される。磁場の走査もしくは試料-アパーチャ間の距離の変更により RBS エネルギースペクトルが取得される。

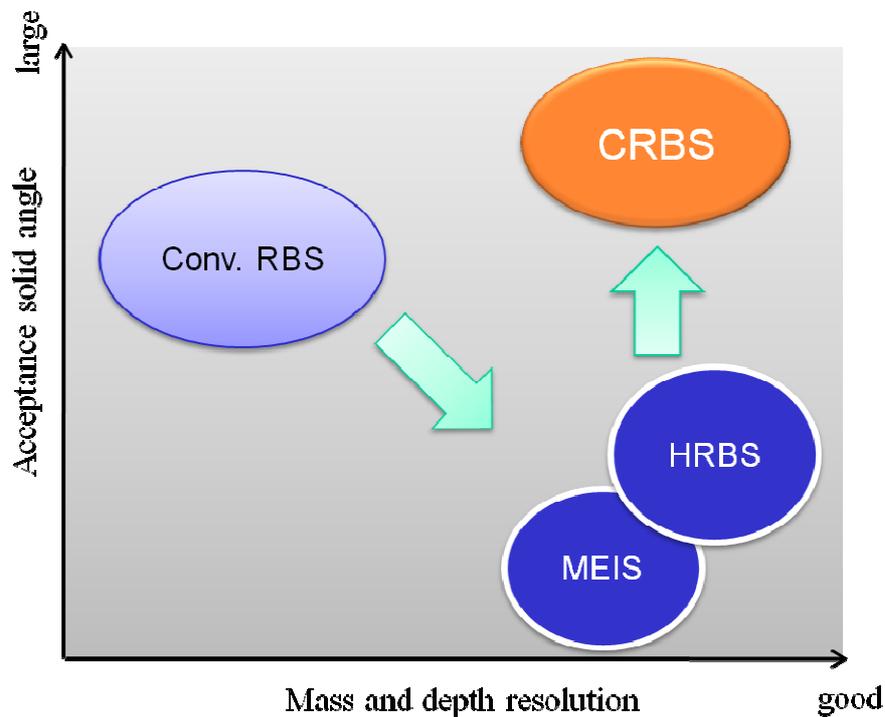


図 1-2 各種 RBS の性能。横軸は質量分解能および深さ分解能を、縦軸は分析器の立体角を示した。CRBS は高い分解能と大きな立体角を同時に実現できる。

### 1.3 論文の構成

本研究では CRBS に関する 3 つの課題、(i) 性能の理論的評価、(ii) 実験機の開発、(iii) 実験機による原理実証、に取り組んだ。

第 1 章は序論であり、本研究の技術的背景としてエレクトロニクス分野・素材分野における分析対象の極薄膜化・複雑化の動向と、それら进行评估するための高分解能かつ高速な分析手法への要求について示し、現状の各種表面分析法と RBS の特徴について概観した上で、CRBS の可能性と目指す方向を明確にする。

第 2 章では、RBS の基本原理・特徴について述べた後に、RBS に基づいた各種分析装置、特に中エネルギー(数百 keV)のプロブイオンと分解能の高いエネルギー分析器を用いた各種装置を示し、長短を整理する。

第 3 章では、まず、CRBS 分光の原理を示す。CRBS では、鉛直縦方向の中エネルギー入射ビームを用い、鉛直縦方向の一様強磁場(最高 2 T)中に設置した試料とエネルギー分離アパーチャと 2 次元の位置検出器により試料で散乱されたイオンのエネルギー分析を行う。次に、CRBS

スペクトロメータの特性として、エネルギー分解能、立体角、質量分解能、深さ分解能を解析的に評価する公式を導く。これらの性能は、試料-エネルギー分離アパーチャ間の距離 $L$ やアパーチャの直径 $\phi_a$ などの値に依存し、概して $L$ や $\phi_a$ を小さくすることによりエネルギー分解能、質量分解能、深さ分解能ともに高くなるが、立体角は小さくなることを示す。また、実用的な $L$ や $\phi_a$ の例を示し、これらを適切に選択すれば、10 msr以上の大きな立体角と、高分解能RBSと同等のサブnmでの深さ分解能での測定が同時に実現可能であることを明らかにする。

さらに、散乱イオンのスペクトルを計算するための基礎公式を導出し、スペクトル・シミュレータの開発を行う。シミュレータで得られたCRBSスペクトルは、通常のRBSスペクトルと類似していることを示し、スペクトルの直感的な解釈が可能であることを明らかにするとともに、試料内の軽元素に対する感度が通常RBSよりも高いという特長について示す。

第4章では、加速器部と、超電導磁石を用いたスペクトロメータ部とから成るCRBSシステムの機器開発について述べる。イオン源、イオンの速度フィルタ、高圧電源、加速管など、加速器部各機器の小型化により、スペクトロメータ部の上に搭載できる大きさとなり、全体で幅1.8 m、奥行き1.4 m、高さ2.5 mとコンパクトなCRBSシステムを完成させたことについて示す。また、各機器の特性評価を行い、プローブとして中エネルギー $\text{He}^+$ ビームが安定に十分な電流を持って得られること、均一度の高い磁場空間が得られることなど、分光に必要な性能を有すること示す。磁場均一度については、3次元で測定した磁場分布を用いて散乱イオンおよび入射イオンの軌道計算を行って評価する。サイクロトロン運動が理想に近い状態、すなわち散乱イオンがほぼ中心軸に戻りエネルギー分離アパーチャを通過することを確認するとともに、試料上で収束ビームを得るためにはスペクトロメータ内に最適な試料位置が存在することを示し、50  $\mu\text{m}$ 以下のビームが得られることを計算で示す。

第5章では、第4章で開発したCRBS分析装置を用いて、昨今薄膜化が進んでいるMOSFETのHigh- $k$ ゲート絶縁膜を想定した、 $\text{HfO}_2$ 試料(膜厚約2 nm)を測定した結果について述べる。検出面に設置した半導体検出器でエネルギースペクトルを測定し、測定したエネルギースペクトルがHfのスペクトルであることの確認として、入射ビームのエネルギーに応じてHfからの散乱イオンの信号がスペクトル上でシフトすることを示す。また、Hfスペクトルの信号量の解析から、10 msr以上の大きな立体角を示唆する結果が得られることを明らかにする。

次に、幅1 mmの微小検出スリットを半導体検出器に設置し、入射ビームのエネルギー走査によるHf信号の収量の変化から、スペクトル上のHfピークの幅を評価した結果について詳述し、表面における深さ分解能が約4.3 nmであることを明らかにする。

第6章は結論であり、各章の研究より得られた結論をまとめるとともに、CRBSの実用化への課題と展望を述べる。

## 参考文献

- [1.1] G. E. Moore, Proceedings of the IEEE **86** (1998) 82.
- [1.2] International technology roadmap for semiconductors 2007 edition.
- [1.3] W. Vandervorst, and F. R. Shepherd, Appl. Surf. Sci. **21** (1985) 230.
- [1.4] G. E. Hammer, J. Vac. Sci. Technol. **20 (3)** (1982) 403.
- [1.5] 井上憲一、古川行人、横山和志、特開平 7-190963.

## 第2章 ラザフォード後方散乱分光法(RBS)の原理と各種 RBS 分析装置

ラザフォード後方散乱分光法(Rutherford backscattering spectrometry: RBS)は、表面領域の元素組成の測定や原子構造の決定に古くから広く用いられている[2.1, 2.2, 2.3]。プローブとなる入射イオンは、通常1~4 MeVに加速された水素(H)やヘリウム(He)のイオンが用いられる。1 MeV以下のエネルギーの入射イオンを用いる場合は、イオンエネルギーの大きさに応じて中エネルギーイオン散乱法: MEIS(medium energy ion scattering)と低エネルギーイオン散乱法: LEIS(low energy ion scattering)あるいはISS(ion scattering spectroscopy)に分けられるが、原理はRBSと同じである。本開発研究で扱うプローブは300~500 keVの $\text{He}^+$ イオンであるから、エネルギーから言うと中エネルギーのMEISに相当する。本章では、RBSの原理を説明した後、RBSに基づく各種分析装置、特に半導体検出器(SSD: solid state detector)を用いた標準RBS(エネルギー1~4 MeV)と、中エネルギー(数百 keV)のプローブイオンと分解能の高いエネルギー分析器を用いた各種装置を示し、長短を整理する。

### 2.1 ラザフォード後方散乱分光法(RBS)の原理

RBSは以下のような4つの物理概念にその基礎を置いている。4つとは、(1)弾性散乱因子、(2)散乱断面積、(3)阻止能、(4)エネルギー・ロス・ストラグリングであり、本節では、これらについて順次説明した後、RBSによる膜組成分析、RBS分析においてよく利用されるチャネリングについても簡単に示す。

#### 2.1.1 弾性散乱因子

図2-1のように、速度 $v_{in}$ 、エネルギー $E_{in}$ を持った質量 $M_1$ のイオンが、試料中で静止した質量 $M_2$ の原子によって弾性散乱されたとき、次のようなエネルギーと運動量の保存則が成立する。

$$\frac{1}{2}M_1v_{in}^2 = \frac{1}{2}M_1v_{out}^2 + \frac{1}{2}M_2v_2^2 \quad (2-1)$$

$$M_1v_{in} = M_1v_{in} \cos \theta + M_2v_2 \cos \varphi \quad (2-2)$$

$$0 = M_1v_{out} \sin \theta - M_2v_2 \sin \varphi \quad (2-3)$$

ここで、 $v_{out}$ 、 $v_2$ はそれぞれ散乱後のイオンと原子の速度、 $\theta$ は散乱角、 $\phi$ は反跳角である。これら3つの式から $\phi$ と $v_2$ を消去することにより、散乱後のイオンのエネルギー $E_{out}$ を求めることができる。散乱前後のイオンのエネルギーの比 $K$ は弾性散乱因子(kinematic factor)と呼ばれ、

$$K \equiv \frac{E_{out}}{E_{in}} = \left( \frac{\sqrt{M_2/M_1^2 - \sin^2 \theta} + \cos \theta}{1 + M_2/M_1} \right)^2 \quad (2-4)$$

となる。図2-2に、いくつかの散乱角に対する弾性散乱因子を $M_2/M_1$ の関数として示す。散乱イオンのエネルギーは、試料原子の質量 $M_2$ が増加すると単調に増加するため、散乱イオンのエネルギーを測定することにより試料原子の質量を同定することができる。

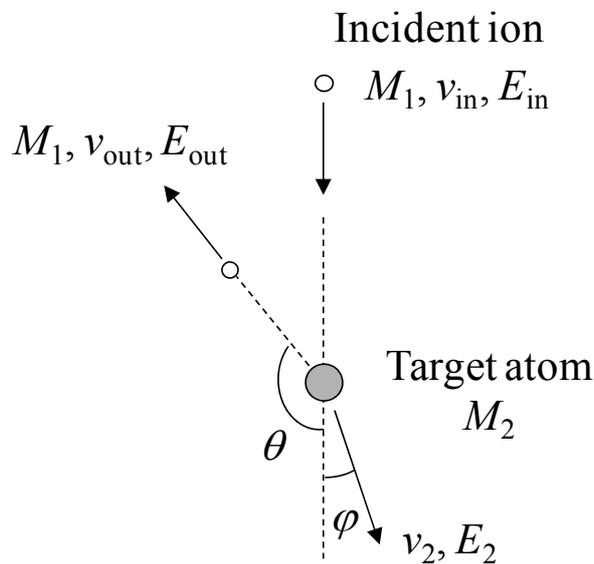


図2-1 速度 $v_{in}$ 、エネルギー $E_{in}$ を持った質量 $M_1$ のイオンが、試料中で静止した質量 $M_2$ の原子によって弾性散乱された場合の模式図

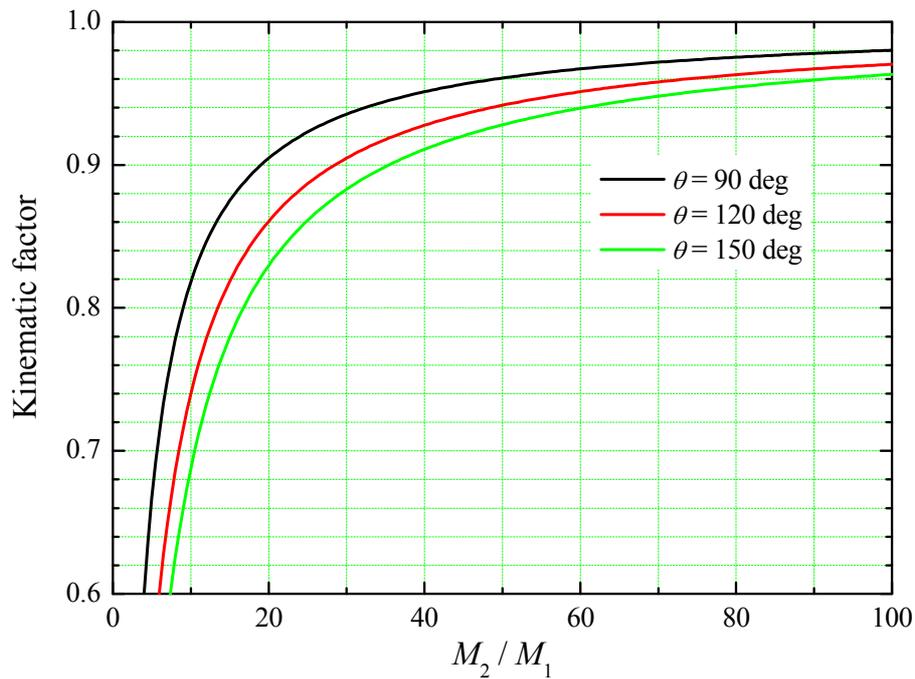


図 2-2 いくつかの散乱角に対する弾性散乱因子。横軸は標的原子の質量と入射イオンの質量の比  $M_2 / M_1$ 。

質量の分解能は、検出器のエネルギー分解能を  $\delta E$  とすると、

$$\delta M_2 = \left( \frac{\delta E}{E} \right) \left( \frac{dK}{dM_2} \right)^{-1} \quad (2-5)$$

で与えられる。RBS で使用される典型的な 2 MeV の He イオンに関して、質量分解能を試料原子の質量数の関数として図 2-3 に示す。エネルギー分解能  $\delta E$  は、He に対する半導体検出器の典型値である 15 keV を使った。散乱角を 150° とした場合、質量数が 40 程度以下の軽い元素に対して 1 amu 以下の分解能が可能であるが、重い元素に対しては質量分解能が低下することがわかる。また、散乱角をより前方の 120° や 90° とした場合も質量分解能は低下する。質量分解能を向上させるためには、 $\delta E/E$  を向上させると良く、電場型や磁場型のスペクトロメータを用いた MEIS や高分解能 RBS では、典型的な相対エネルギー分解能  $\delta E/E$  は 0.1~0.2% 程度と良いため、RBS に比べると質量分解能が数倍良くなる。

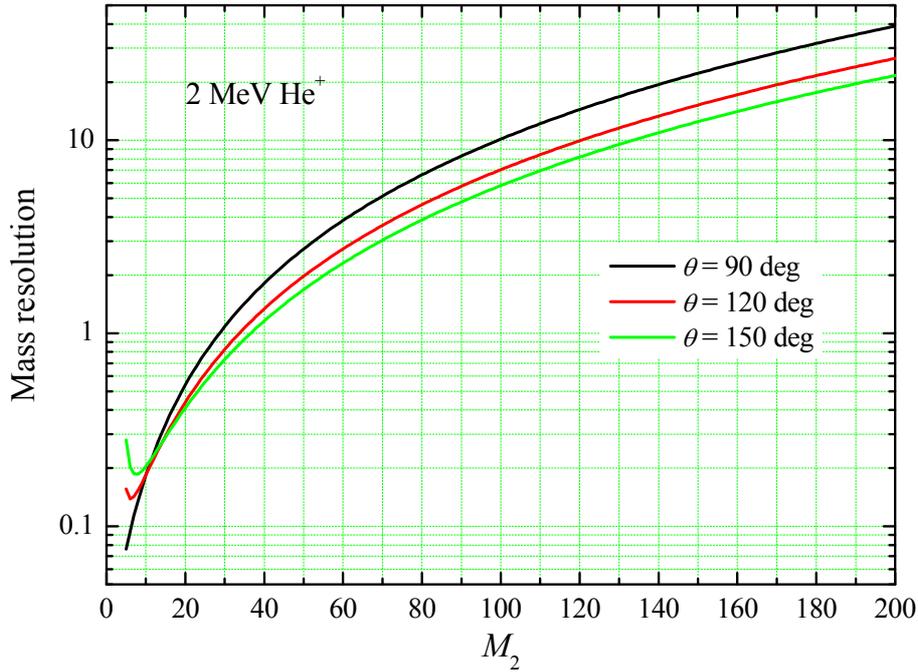


図 2-3 いくつかの散乱角に対する RBS の質量分解能。横軸は標的原子の質量数、入射イオンは 2 MeV He<sup>+</sup>。エネルギー分解能  $\delta E$  は、He に対する半導体検出器の典型値である 15 keV を使った。

### 2.1.2 散乱断面積

RBS において組成の定量分析を行うためには散乱の起こる確率を元素ごとに知る必要がある。散乱確率は、散乱を生じさせる原子の有効な面積である散乱断面積で表される。原子数密度  $N$  で厚さ  $t$  の試料に入射角  $\alpha$  で  $Q$  個のイオンが入射した場合、検出されるイオンの数  $Y$  は、微分散乱断面積  $d\sigma/d\Omega$  と検出器の立体角  $\Delta\Omega$  を用いて、

$$Y = \frac{NtQ}{\cos\alpha} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \Delta\Omega \quad (2-6)$$

で与えられる。RBS で使用するような MeV オーダの He イオンの大角(大 $\theta$ )散乱では、イオンは試料原子核の極近傍まで近づいてから散乱するため、イオンと原子の相互作用をクーロンポテンシャルで近似することにより微分散乱断面積を十分精度良く計算できる。その結果、微分散乱断面積は以下のようなラザフォードの公式で与えられる。

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_R = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E} \right)^2 \frac{\left( \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta} + M_2 \cos \theta \right)^2}{M_2 \sin^4 \theta \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta}} \quad (2-7)$$

ここで  $Z_1$ 、 $Z_2$  はイオンと試料原子の原子番号である。 $\theta = 150^\circ$  として計算した結果を図 2-4 に示す。RBS の定量性はこの式(2-7)により裏付けられており、散乱断面積は  $Z_2$  の 2 乗に比例する。すなわち、原子番号の大きな元素ほど感度が高いが、逆に、原子番号の小さな元素は、散乱強度が小さいため精密な分析は困難である。

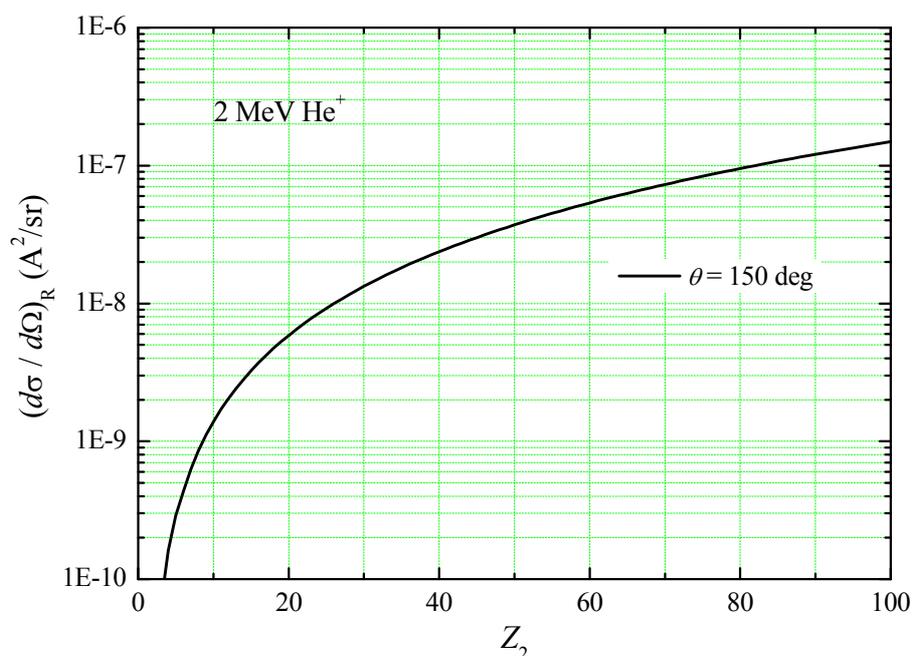


図 2-4 散乱角  $150^\circ$  に対するラザフォードの微分散乱断面積。横軸は標的原子の原子番号、入射イオンは  $2 \text{ MeV He}^+$ 。

MEIS や高分解能 RBS のように中エネルギーの場合や、RBS で用いられる MeV オーダの He イオンでも小角散乱の場合、イオンは試料電子殻の内側まで入り込まないため、原子内電子の遮蔽は無視することができない。この場合、次式のような遮蔽されたクーロンポテンシャルを用いて断面積を計算する。

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi(r/a) \quad (2-8)$$

ここで、 $a$  は遮蔽半径、 $\Phi(r/a)$  は遮蔽関数であり、これらに対していくつかの近似式が提案されている。たとえば、次式に示すような Thomas-Fermi のポテンシャルを近似した、Molière の関数[2.4]がよく使われている。

$$\Phi(z) = \sum_i \alpha_i \exp(-\beta_i z) \quad (2-9)$$

ここで、 $a_B$  はボーア半径 ( $0.528 \text{ \AA}$ ) であり、 $\{\alpha_i\} = \{0.1, 0.55, 0.35\}$ 、 $\{\beta_i\} = \{6.0, 1.2, 0.3\}$ 、 $a = 0.8853 a_B (Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{-2/3}$  で与えられる。この電子遮蔽を考慮すると散乱断面積は解析的に求める

ことはできず、数値計算が必要となるが、これを短時間で計算するためのアルゴリズムも提案されている[2.5]。図 2-5 に同アルゴリズムを用いた散乱断面積の計算結果と式(2-7)のラザフォードの式による計算結果の比 $\sigma_M/\sigma_R$ をエネルギーの関数としてプロットした。遮蔽の効果は重い原子ほど大きく、小角になるほど大きい。たとえば金の場合、入射 He イオンのエネルギー1 MeV、散乱角 150°でラザフォードの公式の 97%程度である。このように RBS においても精密な組成分析を行う必要があるときには、遮蔽効果による散乱断面積の減少は無視することができない。

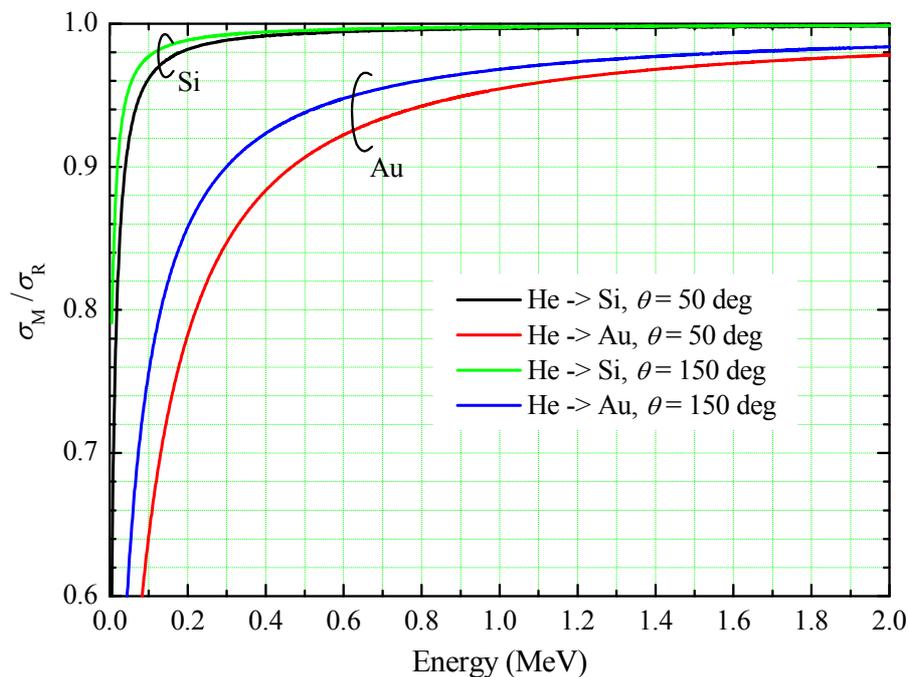


図 2-5 散乱角 50°, 150°に対するラザフォードの散乱断面積に対する Molière の散乱断面積の比。横軸は入射 He イオンのエネルギーで試料は Si と Au とした。

### 2.1.3 阻止能

イオンが試料中を進むとき、試料内の電子を励起したり、試料原子と弾性散乱したりすることによってエネルギーを徐々に失っていく。このとき、イオンが単位距離を進むときに失う平均のエネルギーを阻止能と呼ぶ。RBS や MEIS で使用する高 ~ 中エネルギー領域では、電子の励起により生じる電子的阻止能が主であり、原子との弾性散乱による核的阻止能は無視できる。試料内の電子に比べて十分高速のイオンに対しては、電子的阻止能は Bethe-Bloch の公式[2.6, 2.7]で良く表されるが、RBS や MEIS のエネルギー領域では、信用できる結果を与えないため、実験データに基づいた半経験式が Ziegler らにより提案され[2.8, 2.9]広く用いられている。阻止能  $S$  に対する半経験式は、入射イオンが He の場合次式のような形で表される。

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_{\text{low}}} + \frac{1}{S_{\text{high}}}$$

$$S_{\text{low}} = A_1 E^{A_2}$$

$$S_{\text{high}} = \left( \frac{A_3}{E/1000} \right) \ln \left[ 1 + \left( \frac{A_4}{E/1000} \right) + \left( \frac{A_5 E}{1000} \right) \right]$$
(2-10)

ただし、 $E$ はイオンのエネルギー(keV)、 $A_1 \sim A_5$ は元素ごとに与えられる定数である。この半経験式は0.5 ~ 3 MeVのエネルギー領域で多くの実験結果と5%以内で一致しているため広く用いられている。また、水素の場合、

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_{\text{low}}} + \frac{1}{S_{\text{high}}}$$

$$S_{\text{low}} = A_2 E^{0.45}$$

$$S_{\text{high}} = \left( \frac{A_3}{E} \right) \ln \left[ 1 + \left( \frac{A_4}{E} \right) + A_5 E \right]$$
(2-11)

で表される。図2-6に、彼らの半経験式で計算した阻止能の例をエネルギーの関数として示した。Heイオンに対しては、阻止能は1 MeVあたりに、数十 eV/Å程度の緩やかなピークを持っている。Hイオンの阻止能の大きさはHeと比べると低く、Heイオンの方が深さ分解能が優れていることを示している。

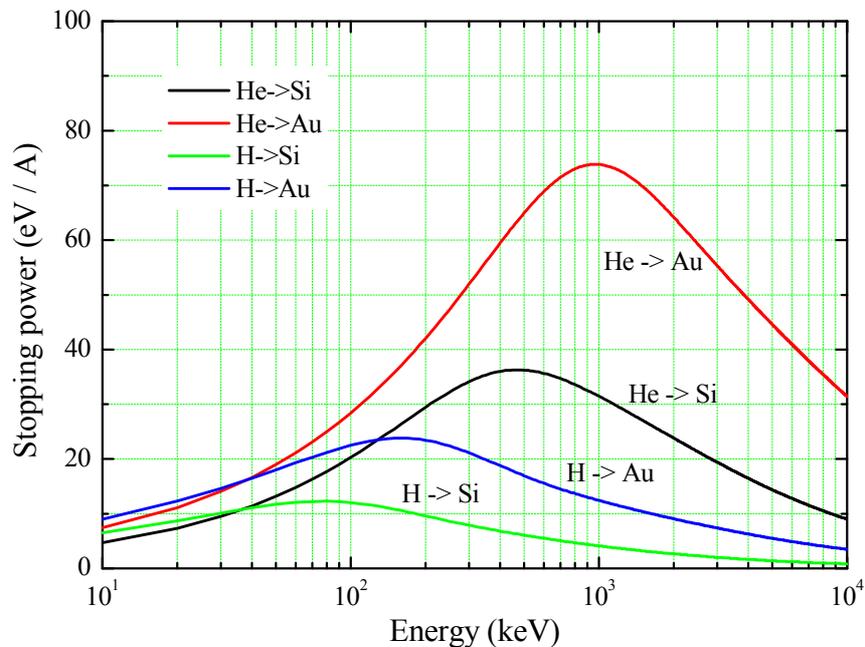


図2-6 Zieglerらの半経験式によるHeとHイオンのSiとAuに対する阻止能。横軸は入射イオンエネルギー。

化合物の阻止能を評価するためには、各成分元素の阻止能を組成比で案分して計算する Bragg 則が用いられる。その際に  $N$  を原子密度として次式

$$\varepsilon = \frac{1}{N} S \quad (2-12)$$

で定義する阻止断面積の概念を用いる。Bragg 則により化合物  $A_m B_n$  の阻止能は構成元素の阻止断面積を  $\varepsilon(A)$ 、 $\varepsilon(B)$  として、

$$S_{A_m B_n} = N_A \varepsilon(A) + N_B \varepsilon(B) \quad (2-13)$$

で与えられる。ここで  $N_A$  と  $N_B$  は構成元素の原子密度である。Bragg 則は、化学結合の効果を無視しているが、高～中エネルギー領域では十分良い近似となっている。

検出器で測定される散乱イオンのエネルギーと、その散乱が起こった深さ  $D$  の関係は

$$E = K \left\{ E_{in} - S_{in} \frac{D}{\cos \alpha} \right\} - S_{out} \frac{D}{\cos \beta} \quad (2-14)$$

と近似的に表すことができる(模式図 2-7 参照)。ここで  $E_{in}$  は入射イオンのエネルギー、 $\alpha$  と  $\beta$  は入射角と出射角であり、入射軌道と出射軌道における阻止能、 $S_{in}$  と  $S_{out}$  はそれぞれ一定値で近似している。このとき、深さ分解能  $\delta D$  とエネルギー分解能  $\delta E$  との関係は

$$\delta E = \left\{ S_{in} \frac{K}{\cos \alpha} + S_{out} \frac{1}{\cos \beta} \right\} \delta D \quad (2-15)$$

となる。ここで、 $K S_{in} / \cos \alpha + S_{out} / \cos \beta$  はエネルギー損失因子と呼ばれ、 $[S]$  で表される。 $[S]$  を使えば、上式は  $\delta E = [S] \delta D$  と書き直せる。図 2-8 に、2 MeV の He イオンが Si と Au に入射した場合の深さ分解能をプロットした。 $\delta E$  は半導体検出器の典型的なエネルギー分解能の値 15 keV を用いた。たとえば、散乱角  $\theta = 150^\circ$  で、Au に  $\alpha = 0^\circ$  で入射した場合、 $[S] = 135 \text{ eV/\AA}$  となり、深さ分解能  $\delta D$  は 11 nm となる。これが RBS の代表的な深さ分解能である。

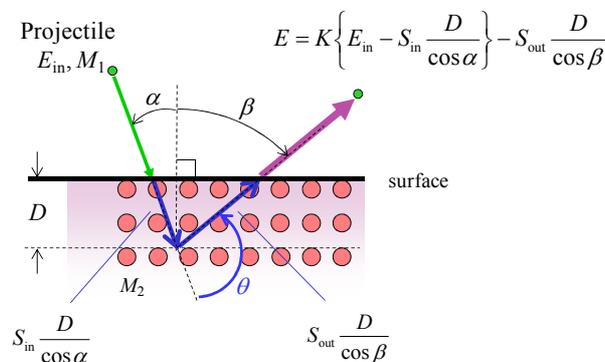


図 2-7 深さ  $D$  で散乱された重さ  $M_1$ 、エネルギー  $E_{in}$  の入射イオンが試料中で失うエネルギー。

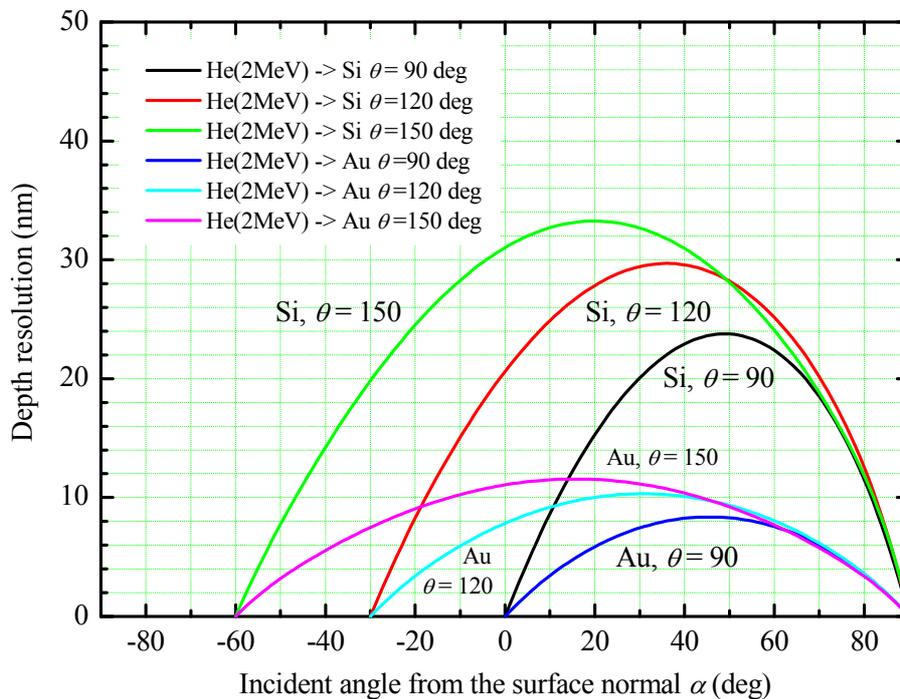


図 2-8 2 MeV のヘリウムイオンを Si と Au に入射した場合の、いくつかの散乱角に対する深さ分解能。横軸は入射角 $\alpha$ で、検出器のエネルギー分解能 $\delta E$ は 15 keV とした。

RBS で深さ分解能を上げるためには、半導体検出器に替えてエネルギー分解能の良い静電型あるいは磁場型のエネルギー分析器を使う方法と、 $\alpha$ あるいは $\beta$ を  $90^\circ$ に近づける方法がある。後者の方法では、たとえば上の Au の例で $\alpha=85^\circ$ または $\beta=85^\circ$ ( $\alpha=-55^\circ$ )とすると深さ分解能は 2.0 nm 程度まで向上する。このとき、十分平滑な表面が必要であるのは当然であるが、検出器の受け角(検出器表面に垂直方向の受け角)も十分小さくしなければ、分解能は計算通りには向上しないことに注意する必要がある。

一方、前者の例としては、静電型のエネルギー分析器を使用する MEIS がある。MEIS の場合、 $\delta E/E$ は 0.2 %程度まで向上し、入射ビームに中エネルギーの H や He を用いると深さ分解能は原子層レベルまで向上する。ただし、ここでの深さ分解能は試料表面(近傍)における値であり、深い位置では次節で述べるエネルギー・ロス・ストラグリングの影響による深さ分解能の劣化を考慮する必要がある。

#### 2.1.4 エネルギー・ロス・ストラグリング

前節で見た阻止能は電子励起などのエネルギー損失によるが、この過程は統計現象であるためエネルギー損失の値は平均値のまわりに分布を持つ。これをエネルギー・ロス・ストラグリ

ングと呼び、このため、同じ深さの同じ原子によって散乱された場合でも、散乱イオンのエネルギーにばらつきが生じて、深さ分解能を劣化させる。

イオンのエネルギーの分布は、ある程度長い距離進んだ場合、ガウス分布で近似することができ、その標準偏差は次式で与えられる[2.10]。

$$\Omega_B^2 = 4\pi Z_1^2 Z_2 e^4 NL \quad (2-16)$$

ここで  $N$  は試料の原子数密度であり、 $L$  はイオンが試料中を進んだ距離である。この Bohr のモデルは、試料原子内の電子を自由電子として扱っているため、電子の速度より十分速いイオンの場合にのみ正しい結果を与える。これに対し、原子の統計モデルを用いて、電子が原子核に束縛されている効果を取り入れた計算が Lindhard らによって行われ、以下の結果が得られている[2.11]。

$$\frac{\Omega^2}{\Omega_B^2} = 0.68\chi^{1/2} - 0.008\chi^{3/2} \quad \text{for } \chi < 3$$

$$= 1 \quad \text{for } \chi > 3 \quad (2-17)$$

ここで  $\chi = (V/v_B)^2/Z_2$  であり、 $V$  はイオンの速度、 $v_B$  はボーア速度 ( $2.2 \times 10^8$  cm/s) である。ほかに、イオンの荷電変換の効果を取り入れた半経験式なども提案されている[2.12]。

化合物に対するストラグリングは、阻止能と同じく Bragg 則を使って計算できる。化合物  $A_m B_n$  のストラグリングは、 $\omega^2 = \Omega^2/NL$  でストラグリング断面積を定義することにより、次式で得られる。

$$\Omega^2 = (N_A \omega_A^2 + N_B \omega_B^2) L \quad (2-18)$$

ここで、 $N_A$  と  $N_B$  は構成元素の原子密度である。エネルギー・ロス・ストラグリングによる深さ分解能は

$$\delta D = \frac{\sqrt{8 \ln(2) (K^2 \Omega_{in}^2 + \Omega_{out}^2)}}{[S]} \quad (2-19)$$

と表される。ここで、 $\Omega_{in}$ 、 $\Omega_{out}$  はそれぞれ入射軌道と出射軌道におけるエネルギー・ロス・ストラグリングの標準偏差を表し、 $8 \ln(2)$  はガウス分布の標準偏差から半値全幅(FWHM)への変換係数である。

2 MeV の He イオンが Si および Au に  $\alpha = 0^\circ$  で入射した場合のエネルギー・ロス・ストラグリングにより生じる深さ分解能を、文献[2.12]に与えられている Yang らの半経験式を用いて計算し、深さ  $D$  に対してプロットした結果を図 2-9 に示す。たとえば、標的が Au で散乱角  $\theta = 150^\circ$  の場合、 $D = 75$  nm でエネルギー・ロス・ストラグリングにより生じる深さ分解能は約 11 nm となり、前節で見た半導体検出器のエネルギー分解能により生じる深さ分解能と同程度の大きさとなる。

エネルギー・ロス・ストラグリングは  $D^{1/2}$  に比例するので、深い領域ほど深さ分解能に大きく影響する。Au で  $\theta = 150^\circ$  の場合の例で見たように、試料表面数十 nm 付近までは、深さ分解能は主に検出器のエネルギー分解能で決まるが、それより深い領域ではエネルギー・ロス・ストラグリングの効果が大きく、深さ分解能は深さとともに劣化する。エネルギー分解能に起因する深さ分解能は、エネルギー分解能の改善により向上させることが可能であるが、エネルギー・ロス・ストラグリングにより生じる深さ分解能は避けることができず、これが本質的に深さ分解能の上限を与えることになる。

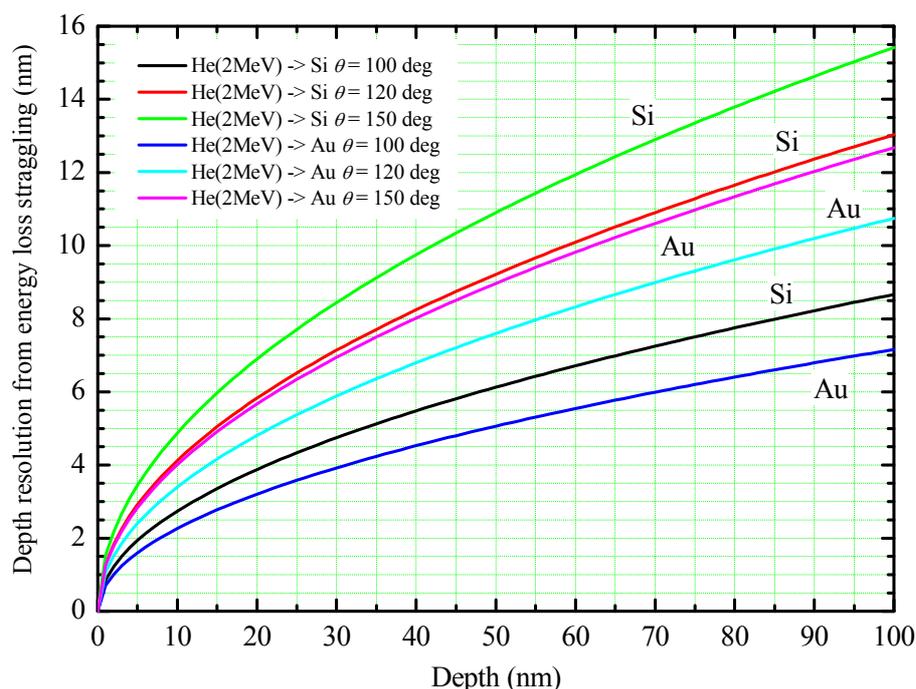


図 2-9 エネルギー 2 MeV のヘリウムイオンを Si と Au に入射した場合の、いくつかの散乱角に対する、エネルギー・ロス・ストラグリングにより生じる深さ分解能。横軸は試料深さで、入射イオンの試料への入射角は  $0^\circ$  とした。

### 2.1.5 RBS による膜組成分析

図 2-10 は、基板上に元素 A と B から組成比  $A_m B_n$  で成る薄膜(両元素の質量数は、 $M_A > M_B$  の関係であるとする)が存在する試料と、この試料に対する RBS スペクトルの一例を示している。このように各元素に対するピークが分離している場合、式(2-6)を用いることにより、各元素に対するピークの面積(カウント数、 $Y_i$ )から、試料中の各元素の単位面積当たりの原子数  $n_i$  を次式

$$n_i = N_i t = Y_i \cos \alpha / \left\{ \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_i \Delta\Omega Q \right\} \quad (2-20)$$

で求めることができる。そのためには入射イオンのエネルギー $E$ や検出器の立体角 $\Delta\Omega$ 、入射イオンの個数 $Q$ などを正確に知る必要がある。一方、試料薄膜の組成を求める場合には、各元素の相対的な量を知るだけで良い。たとえば、元素 $i$ と元素 $j$ の組成比は、

$$\frac{N_i}{N_j} = \frac{Y_i \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_j}{Y_j \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_i} \approx \frac{Y_i \left( \frac{Z_j}{Z_i} \right)^2}{Y_j} \quad (2-21)$$

で求めることができる。試料中の各元素の単位面積当たりの原子数に戻ると、 $n_i$ は次式のように、下地(基板)物質の信号を利用して求めることもできる。

$$n_i = N_i t = \frac{Y_i \delta E_{ch} N_s \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_s}{y_s [S]_s \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_i} \approx \frac{Y_i \delta E_{ch} N_s Z_s^2}{y_s [S]_s Z_i^2} \quad (2-22)$$

ここで、 $\delta E_{ch}$ は1チャンネルに対応するエネルギーであり、 $y_s$ は下地物質の立ち上がりの位置でのスペクトルの高さである。また、 $Z_s$ は下地元素の原子番号、 $[S]_s$ は下地に対する阻止能因子である。図2-10の例で言うと、 $i$ をAとして式(2-22)により元素Aの $n_A$ を求めることができる。

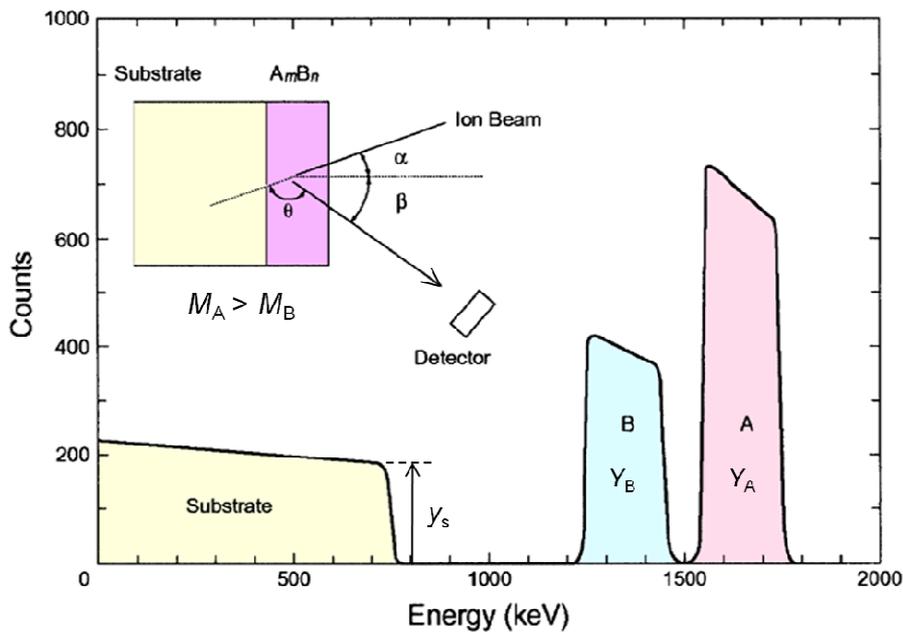


図2-10 基板上に元素AとBから成る薄膜が存在する試料と、この試料に対するRBSスペクトルの一例。

一方、エネルギースペクトル上で複数の元素の信号が重なっている場合には、各元素の寄与を分けることは一意的ではなく、上式の方法では組成分布を求めることは一般に困難である。そのような場合、コンピュータシミュレーションにより RBS スペクトルを解析することが可能である。多くのシミュレーションプログラム(たとえば、RUMP[2.13]、GISA[2.14]など)が開発されているが、基本的には、(i)ある組成分布を仮定する、(ii)仮定した組成分布に対する RBS スペクトルを計算する、(iii)測定スペクトルと(ii)を比較する、(iv)両者がずれている場合適当な一致が得られるまで、自動あるいは手動で組成分布の変更を行う、という手順を繰り返すことにより組成分布を決定する。その際、局所的な極小値に落ち込まないように注意が必要で、模擬アニール法と呼ばれるアルゴリズムも開発されている[2.15]。

## 2.1.6 チャネリング

試料が単結晶で、イオンの入射方向が低指数の結晶軸や結晶面に平行である場合、イオンは結晶原子と近接衝突をせずに結晶深くまで進入する。この現象をチャネリングと呼ぶ。チャネリングするイオンの割合は、イオンのエネルギーやイオンと結晶の組み合わせ、軸や面の指数などに依存するが、軸チャネリングでは90%以上となる。チャネリングイオンは、結晶原子に臨界距離(~ 0.1 Å)以上近づくことができないので、大角に散乱される確率は無視できるほどにまで減少するため、これまで述べた解析方法は適用できなくなる。このため、単結晶の RBS 測定においては、チャネリング現象を避けるため、試料結晶を回転させながら測定することが良く行われている。

このようにチャネリング現象は、RBS 測定においては一般に避けるべき現象であるが、結晶中の欠陥を評価するために有効に利用することができる。結晶内の欠陥によってチャネリング現象は乱され、ディチャネリング(チャネリングできなくなる現象)や欠陥からの直接散乱が生じる。たとえば不純物原子の場合にはその格子内の位置とチャネリングの方向によって、チャネリングイオンが不純物原子に衝突する場合とそうでない場合が生じるため、いくつかの結晶軸でチャネリングの測定を行うことにより、不純物原子の格子内の位置を決定することができる。

チャネリング現象の RBS 測定における有効な利用法に、単結晶基板からの散乱を減少させることによる軽元素不純物の感度向上がある。2.1.2 節で見たように、RBS は重元素に対して感度が高いが、軽元素に対してはあまり高くない。しかし、チャネリング現象を利用して RBS 分析を行うことにより、単結晶基板の散乱量を大幅に減らすことができる。通常の RBS エネルギースペクトルでは基板からの信号に重なり分析が困難になる軽元素のピークが、チャネリングを利用したスペクトルではほぼ重ならない状態で得られるため、結果的に高精度な軽元素分析が

可能となる場合がある。たとえば、Si 基板の信号高さがランダムスペクトルに対してどの程度低減されるかを見積もる。両者の比は $\chi_{\min}$ として次式で表される。

$$\chi_{\min} = 18.8 N d u_1^2 (1 + \zeta^{-2})^{1/2} \quad (2-23)$$

ここで、 $N$ は体積密度、 $d$ は格子間距離、 $u_1$ は1次元の熱振動幅、また、 $\zeta$ は臨界角 $\psi_{1/2}$  (deg)を用いて

$$\zeta \cong 126 u_1 / \psi_{1/2} d \quad (2-24)$$

で表される。Si 単結晶基板に $\langle 111 \rangle$ 軸方向から 1 MeV  $\text{He}^+$ を照射した場合を考えると、 $\chi_{\min}$ は 2.5%まで低減される。ただし、 $N = 4.99 \times 10^{22}$  atoms/cm<sup>3</sup>、 $d = 4.70$  Å、 $u_1 = 0.075$  Å、 $\psi_{1/2} = 0.75^\circ$ を用いた。

## 2.2 RBS 法に基づく各種分析装置

RBS 法には各種の分析装置が存在するが、いずれの装置の場合も大別して、イオン源、加速器、質量分離器、ビームコリメータ、ゴニオメータ周辺部および計測器を含む実験槽から構成される(図 2-11 参照)。イオン源には、陰極放電を用いる PIG(penning ionization gauge)イオン源や、高周波放電を用いる RF(radiofrequency)イオン源、デュオプラズマトロン型イオン源などが用いられる。数百 keV ~ 10 MeV のエネルギー用の加速器としては、電荷を回転絶縁ベルトで運ぶ Van de Graaff 型[2.16]や、ペレットチェーンによって電荷を運ぶ Pelletron 型加速器[2.17]がよく用いられるが、これらは高電圧絶縁のため数 m 以上の大きさとなり、場合によっては 10 m 以上となることも多い。これらは、イオン源を高電圧部に搭載してイオンを加速するシングルエンド型の加速器として用いられるが、高電圧部で負イオンから正イオンに荷電変換を行うことにより高い加速エネルギーを得るタンデム型加速器も良く用いられている。タンデム型加速器用の負イオン源としてはセシウムイオンによるスパッタ型の負イオン源などもある。1 MeV 以下の中エネルギー加速器には多段の倍圧整流回路により高電圧を発生させる Cockcroft-Walton 型加速器[2.18]もよく用いられる。

加速器から出た高エネルギーの H や He イオンビームは不純物除去のための偏向電磁石でフィルタリングされ、ビームラインの途中に設置されたスリット系を通過して実験槽内の試料へと導かれる。試料上における入射イオンビームは、通常 0.1 ~ 1 mm 程度、1 ~ 100 nA 程度であり、チャネリング測定を行うために発散角 1 mrad 以下と十分コリメートされる。試料は、通常 5 軸のゴニオメータ上の試料ホルダに固定され、入射角の変更やチャネリングの軸出しが可能となっている。

以下では、各種 RBS 分析装置をエネルギー分析器(スペクトロメータ)に着目し 4 つに分類して述べる。4 つとは、古くからある標準的な RBS 分析装置、100 keV 程度の  $\text{H}^+$ と静電型スペク

トロメータを用いた MEIS、磁場型のスペクトロメータを用いた高分解能 RBS(HRBS: high-resolution RBS)、飛行時間測定(TOF: time of flight)法を用いた分析装置であり、順次説明する。

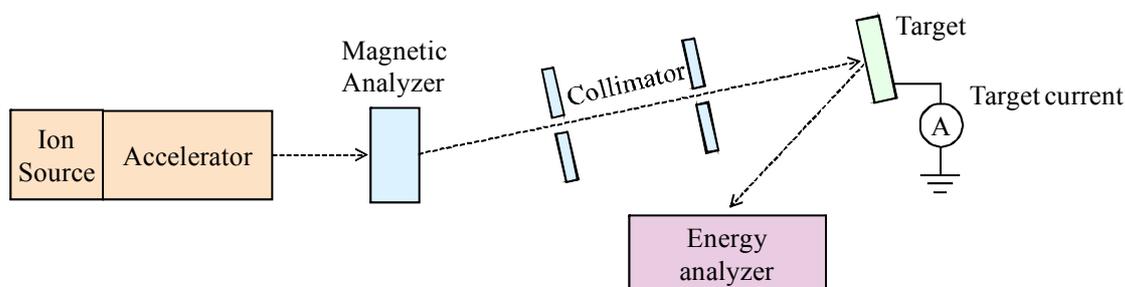


図 2-11 RBS 分析装置の装置構成を示す模式図。

## 2.2.1 標準 RBS 分析装置

実験槽内には図 2-12 に示すように試料に対向して SSD が設置され、実験槽は  $10^4$  Pa 以下程度の真空度に保たれている。エネルギースペクトルは表面障壁型あるいは不活性化プレナ型の SSD を用いて得られる。SSD にイオンが入射するとイオンはエネルギーを失うが、その際半導体内ではそのエネルギーに応じた電子・正孔対が発生する。半導体材料が Si の場合は、エネルギー 3.6 eV あたり 1 対の電子・正孔対が生じる。生じた電子・正孔対は内部電界により電極に収集され、電気パルスとして取り出されるが、このパルスの波高が散乱イオンのエネルギーに相当する。パルスは微小であるため電荷型の前置増幅器で増倍され、さらに整形増幅器により整形される。整形されたパルスは多重波高分析(MCA: multi-channel analyzer)で波高分析が行われ、波高すなわち散乱イオンのエネルギーに対するスペクトルが得られる。SSD のエネルギー分解能は検出する粒子によって変わるが、He に対しては約 15 keV である。2.1.1 ~ 2.1.3 節で見たように、典型的な 2 MeV の  $\text{He}^+$  ( $\theta = 150^\circ$ ) に対しては、質量分解能  $\delta M_2 < 1$  ( $M_2 < \sim 40$ )、深さ分解能  $\delta D \sim 11$  nm (試料 Au に垂直入射の場合)、立体角  $\Delta\Omega \sim 7$  msr での測定が可能である。

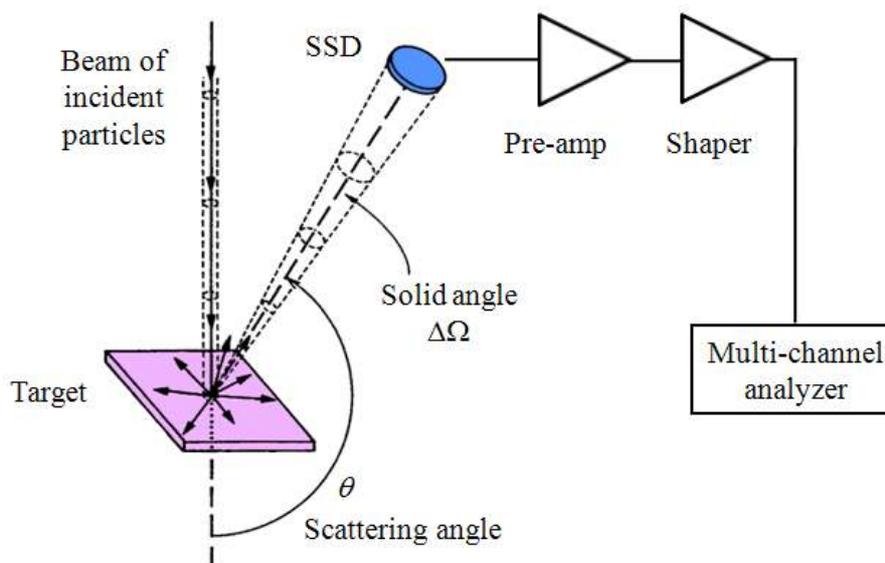


図 2-12 試料に対向して設置される半導体検出器および前置増幅器、整形増幅器、多重波高分析器の模式図。

### 2.2.2 静電型検出器を用いた中エネルギー散乱装置(MEIS)

エネルギー分析器のエネルギー分解能を上げるため、標準 RBS 分析装置で用いられる SSD に替えて、トロイダル型静電エネルギー分析器を用いた MEIS 分析装置が開発されている[2.19-22]。文献[2.20]の MEIS 装置を図 2-13 に示す。100 keV 程度の水素イオンを試料に照射し、散乱イオンのエネルギースペクトルをトロイダル型スペクトロメータにより測定することにより、散乱角度分布を一度に測定することができるため、ブロッキング法により表面の原子構造を調べることが可能である。最近では、従来用いられていた 1 次元の位置検出器に替えて 2 次元の位置検出器[2.22]が用いられるようになり、散乱角度分布に加えてエネルギースペクトルも(中心軌道の数%程度のエネルギー範囲で)電場の掃印なしに一度に測定できるようになっている。スペクトロメータの相対エネルギー分解能は、0.2 %程度と SSD に比べて優れているため、サブ nm の深さ分解能が得られる。MEIS での典型的な測定条件、100 keV の  $H^+$ ( $\theta=120^\circ$ )の場合、質量分解能  $\delta M_2 < 1$  ( $M_2 \sim 75$ )、深さ分解能  $\delta D \sim 0.31$  nm(試料 Au に垂直入射の場合)、立体角  $\Delta\Omega \sim 0.04$  msr(文献[2.22]のスリットサイズから求めた)が得られる。

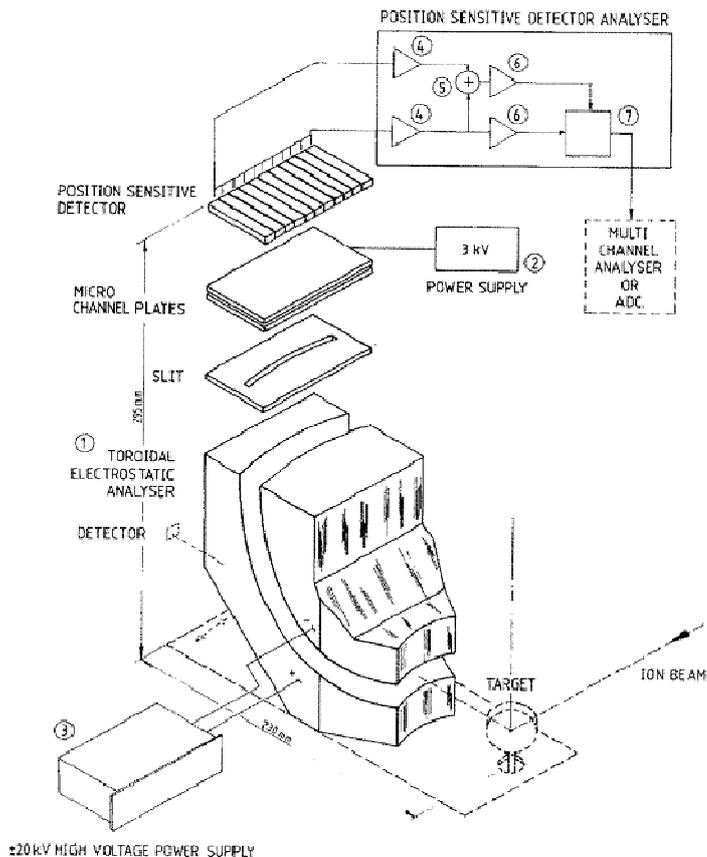


図 2-13 トロイダル型静電エネルギー分析器を用いた MEIS 分析装置[2.20]。

### 2.2.3 高分解能 RBS 分析装置(HRBS)

エネルギー分解能を向上させるため、磁場型スペクトロメータを用いた HRBS 分析装置が各地で開発され利用されている[2.23 - 28]。よく知られているように、一様磁場  $B$  中の荷電粒子の軌道半径は、粒子の質量  $m$ 、速度  $v$ 、電荷  $e$  として  $mv/eB$  と粒子速度に比例するから、一様磁場を用いてエネルギーを分析することが可能である。各地の HRBS は、大小さまざまであり、用いるエネルギーも数百 keV ~ 数十 MeV と広範囲にわたっている。ここでは、300 ~ 500 keV の中エネルギーの  $\text{He}^+$  を採用する HRBS について取り上げるが、中エネルギーであるが故に加速器もスペクトロメータも標準 RBS 分析装置に比べて小型なものを用いることができる。このエネルギー帯の  $\text{He}^+$  は、図 2-6 で見たように阻止能が大きいいため深さ分解能が高く、また、散乱  $\text{He}$  の荷電分布は 1 価の  $\text{He}^+$  が 65 % 程度と主であり[2.29]、 $\text{He}^+$  の割合はエネルギーにほとんど依存しないことから、 $\text{He}^+$  のみの測定によって定量性の良い分析が可能になる。スペクトロメータは、文献[2.28]の例(図 2-14 参照)では、半径 150 mm の  $90^\circ$  扇形電磁石と、長さ 80 mm の 1 次元位置検出器(MCP: micro channel plate と PSD: position sensitive detector の組み合わせ)から構

成されている。MCPは直径10～25 μmの微小なガラス管が面上に多数並べられた薄板で、板の上下に電圧を印加することでガラス管一本一本が二次電子増倍管の役割を果たす。イオンが1個MCPに入射すると、発生二次電子は増倍されMCPにより約 $10^7$ 個の電子が放出される(3段MCPの場合)。放出された電子群は、位置検出器に入射し抵抗による電荷分割により1次元入射位置がわかる。二重収束型の扇形電磁石は、その焦点面が中心軌道に垂直となるように設計されており、中心軌道を通るイオンのエネルギーの約25%のエネルギー範囲のスペクトルを1度に取り得ることが可能である。また、このスペクトロメータは、立体角 $\Delta\Omega \sim 0.4$  msrで、相対エネルギー分解能 $\delta E/E$ は0.1%以下となるように設計されており、HRBSにおける典型的な測定条件、400 keVの $\text{He}^+(\theta = 120^\circ)$ 、の場合、質量分解能 $\delta M_2 < 1$  ( $M_2 < \sim 100$ )、深さ分解能 $\delta D \sim 0.23$  nmが実現される。

MEISやHRBSは小型中エネルギー加速器を含めた分析システムとして商品化されており、また、近年の半導体をはじめとする分野の薄膜試料に対して、高い深さ分解能で組成分析を行うことが可能であり、普及が進み始めている[2.30-2.34]。

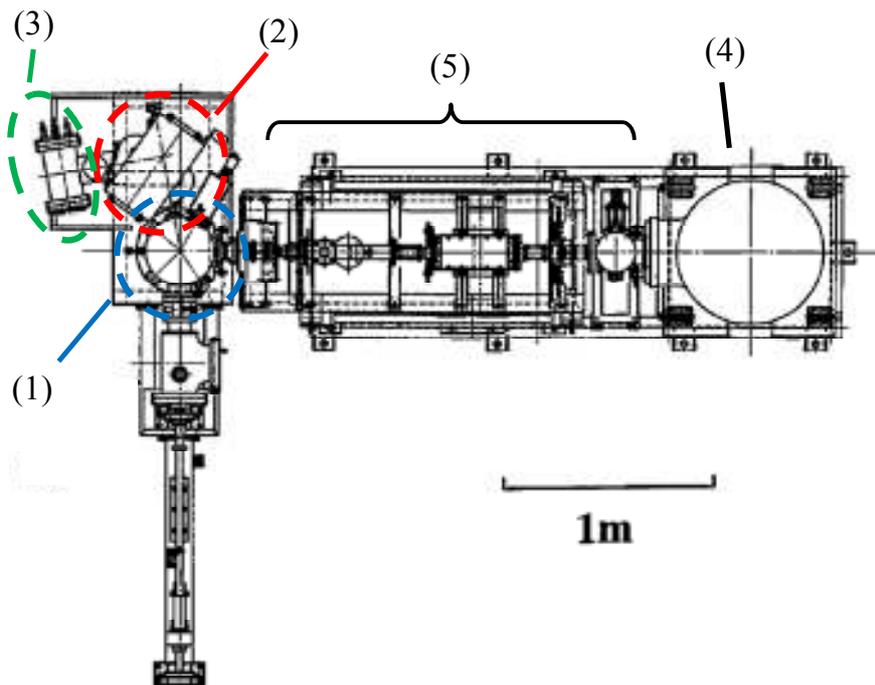


図 2-14 HRBS 分析装置の全体図[2.28]。(1)は散乱槽、(2)は磁場型スペクトロメータ、(3)は PSD チェンバ、(4)は加速器、(5)はビームラインを示す。

## 2.2.4 飛行時間測定型検出器を用いた RBS 分析装置

上で見た MEIS や HRBS では、エネルギー分解能の高いスペクトロメータと中エネルギーの  $H^+$  や  $He^+$  を用い、高い質量分解能や深さ分解能を達成したが、試料からの散乱粒子のうち特定の電荷数のイオンしか検出できない。そこで、散乱中性粒子も検出できるスペクトロメータとして、飛行時間測定 (TOF: time of flight) 型検出器が開発されている [2.35 - 37]。散乱イオンの速度とエネルギー  $E$  の関係から、 $E = (1/2)m(d/t)^2$  と表されるから、飛行時間  $t$  を測定することにより散乱イオンエネルギーを求めることができる。ここで、 $m$  は散乱粒子の質量、 $d$  はドリフト空間の長さである。図 2-15 は文献 [2.36] の TOF-RBS システムであるが、このシステムでは、270 keV の  $He^+$  をプローブとして用い、 $\theta = 150^\circ$  に設置された TOF スペクトロメータで散乱イオンのエネルギー分析を行う。散乱イオンのビームライン中に設けられた炭素極薄膜を通過する際に発生する二次電子信号を飛行時間計測の開始時間とし、112 cm 先の検出器で検出されるまでの時間  $t$  を測定することにより、RBS スペクトルを得る。このシステムでは、相対エネルギー分解能 1%、質量分解能  $\delta M_2 < 1$  ( $M_2 < \sim 30$ )、深さ分解能  $\delta D \sim 2.7$  nm (試料 Au に垂直入射の場合)、立体角  $\Delta\Omega \sim 0.5$  msr での測定が可能である。

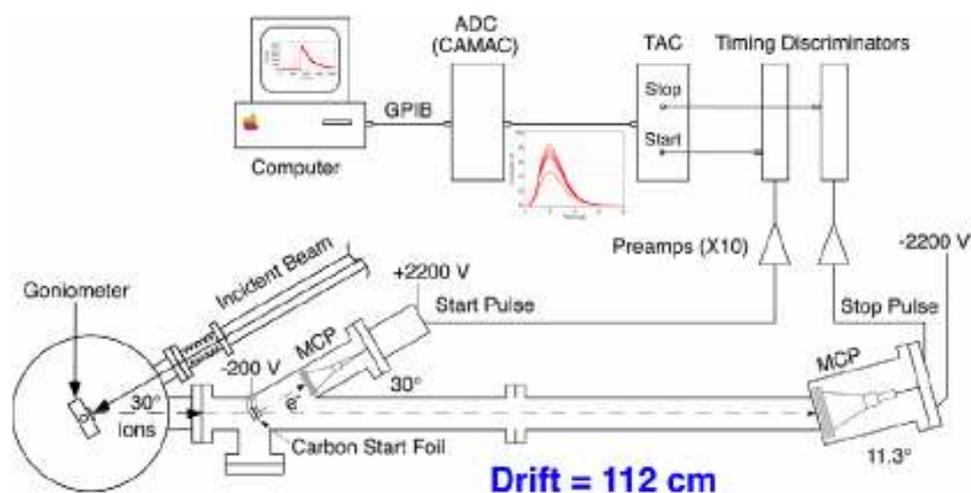


図 2-15 中エネルギーイオン用 TOF-RBS システム [2.36]。

## 2.3 まとめ

本章では RBS の簡単な原理と、RBS に基づいた各種分析装置について、特に中エネルギー (数百 keV) の  $H^+$  や  $He^+$  をプローブとして用いたものをエネルギー分析手段で分類して現状を示した。上で挙げた各分析装置の典型的な性能を表 2-1 に示す。中エネルギーイオンを用いた分析

装置のうち MEIS や HRBS は、その大きな阻止能と高分解能エネルギー分析器を利用して高い深さ分解能を達成したが、標準 RBS の特徴のひとつであった立体角が失われた。TOF-RBS はイオンだけではなく散乱中性粒子も合わせて測定できる長所があるが、分解能は MEIS や HRBS ほどは高くない。これに対して、本開発研究で開発する CRBS 分析装置は、同じ中エネルギー帯の  $\text{He}^+$  をプローブとして用い、かつ、新しい光学系を採用することにより大きな立体角と高い分解能を達成することを第一目的とした。

表 2-1 RBS に基づく各種分析装置の典型的な性能。深さ分解能  $\delta D$  は、入射イオンが入射角  $0^\circ$  で Au 試料に入射した場合を計算した。散乱角は標準 RBS および TOF-RBS の場合は  $150^\circ$  とし、MEIS および HRBS の場合は  $120^\circ$  とした。

	Probe	$\delta E/E$ (%)	$\delta E$ (keV)	max. $M_2$ ( $\delta M_2 < 1$ )	$\delta D$ (nm)	$\Delta\Omega$ (msr)
Conv. RBS	2 MeV $\text{He}^+$	0.75	15	40	11	7
MEIS	100 keV $\text{H}^+$	0.2	0.2	75	0.31	0.04
HRBS	400 keV $\text{He}^+$	0.1	0.4	100	0.23	0.4
TOF-RBS	270 keV $\text{He}^+$	1	2.7	30	2.7	0.5

## 参考文献

- [2.1] W. K. Chu, J. W. Mayer and M-A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, (Academic Press, New York), (1978)
- [2.2] L. C. Feldman, and J. W. Mayer, *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*, North-Holland, Amsterdam, 1986.
- [2.3] K. Kimura, *Rutherford Backscattering Spectroscopy in Encyclopedia of Analytical Chemistry*, (John Wiley & Sons Ltd, Chichester), (2000) 12809.
- [2.4] G. Molière, and Z. Naturforsch, A: Phys. Sci. **2** (1947) 133.
- [2.5] M. H. Mendenhall, and R. A. Weller, Nucl. Instr. Meth. B **58** (1991) 11.
- [2.6] H. A. Bethe, Ann. Phys. **5** (1930) 325.
- [2.7] F. Bloch, Ann. Phys. **16** (1933) 285.
- [2.8] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, (Pergamon Press, New York), Vol.1 (1985).
- [2.9] H. H. Andersen, and J. F. Ziegler, *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, (Pergamon Press, New York), Vol. 3 (1977).
- [2.10] N. Bohr, Kgl. Danske Videnskab. Selskab. Mat-Fys. Medd., **18** (8) (1948).
- [2.11] J. Lindhard, and M. Scharff, Kgl. Danske Videnskab. Selskab. Mat-Fys. Medd. **27** (15) (1953).
- [2.12] Q. Yang, D. J. O'Connor, and Z. Wang, Nucl. Instr. Meth. B **61** (1991) 149.

- [2.13] L. R. Doolittle, Nucl. Instr. Meth. B **15** (1986) 227.
- [2.14] J. Saarihahti, and E. Rauhala, Nucl. Instr. Meth. B **64** (1992) 734.
- [2.15] N. P. Barradas, C. Jeynes, and R. P. Webb, App. Phys. Lett. **71** (1997) 291
- [2.16] R. J. Van de Graaff, K. T. Compton, and L. C. Van Atta, Phys. Rev. **43** (1932) 149.
- [2.17] R. G. Herb, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-**18** (1971) 71.
- [2.18] J. D. Cockcroft, and E. T. S. Walton, Proc. R. Soc. London Ser. A **136** (1932) 619.
- [2.19] J. F. van der Veen, Surf. Sci. Rep. **5** (1985) 199.
- [2.20] R. M. Tromp, H. H. Kersten, E. Granneman, F. W. Saris, R. Koudijs, and W. J. Kilsdonk, Nucl. Instr. Meth. B **4** (1984) 155.
- [2.21] P. Bailey, T. C. Q. Noakes, and D. P. Woodruff, Surf. Sci. **426** (1999) 358.
- [2.22] R. M. Tromp, M. Copel, M. C. Reuter, M. Horn von Hoegen, J. Spidell, and R. Koudijs, Rev. Sci. Instrum. **62** (1992) 2679.
- [2.23] T. Enders, M. Rilli, and H. D. Carstanjen, Nucl. Instr. Meth. B **64** (1992) 817.
- [2.24] G. Dollinger, T. Faestermann, and P. Maier-Komor, Nucl. Instr. Meth. B **64** (1992) 422.
- [2.25] K. Kimura, K. Ohshima, and M. Mannami, Appl. Phys. Lett. **64** (1994) 2232.
- [2.26] W. M. Arnoldbik, W. Wolfswinkel, D. K. Inia, V. C. G. Verleun, S. Lobner, J. A. Reinders, F. Labohm, and D. O. Boerma, Nucl. Instr. Meth. B **118** (1996) 566.
- [2.27] W. A. Lanford, B. Anderberg, H. Enge, and B. Hjorvarsson, Nucl. Instr. Meth. B **136** (1998) 1177.
- [2.28] K. Kimura, M. Kimura, Y. Mori, M. Maehara, and H. Fukuyama, *Applications of Accelerators in Research and Industry*, (The American Institute of Physics, 1999), 500.
- [2.29] J. C. Armstrong, J. V. Mullendore, W. R. Harris, and J. B. Marion, Proc. Phys. Soc. **86** (1965) 1283.
- [2.30] J. Kim, W. N. Lennard, C. P. McNorgan, J. Hendriks, I. V. Mitchell, D. Landheer, and J. Gredley, Curr. Appl. Phy. **3** (2003) 75.
- [2.31] D. P. Woodruff, Nucl. Instr. Meth. B **256** (2007) 293.
- [2.32] C. Ichihara, N. Kawakami, S. Yasuno, A. Hino, K. Fujikawa, A. Kobayashi, M. Ochi, H. Gotoh, and T. Kugimiya, Micron (2008) (in press).
- [2.33] C. Ichihara, A. Kobayashi, and Kenji Kimura, Journal of Surface Analysis (2008) (in press).
- [2.34] M. Zhao, K. Nakajima, M. Suzuki, K. Kimura, M. Uematsu, K. Torii, S. Kamiyama, Y. Nara, H. Watanabe, K. Shiraishi, T. Chikyow, and K. Yamada, Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 133510.
- [2.35] M. H. Mendenhall, and R. A. Weller, Nucl. Instr. Meth. B **40/41** (1989) 1239.
- [2.36] R. D. Geil, B. R. Rogers, Z. Song, and R. A. Weller, J. Vac. Sci. Tech. A **22** (2004) 1129.

- [2.37] R. D. Geil, *Analysis of high-k dielectric thin film with time-of-flight medium energy backscattering*, Dissertation of Vanderbilt University (2005).

### 第3章 サイクロトロン運動を利用したラザフォード後方散乱分光法(CRBS)

従来のRBS分析装置はいずれも、高分解能と大立体角の両立が困難である。この理由は、散乱イオンの一部しか検出できない光学系にある。試料への垂直入射( $\alpha = 0$ )を仮定すれば、入射ビーム軸を基準とする散乱角 $\theta$ はあらゆる方位角方向に存在し、どの方位角方向で測定しても(チャネリングやブロッキングを無視すれば)同じエネルギースペクトルが得られる。しかしながら従来のRBS分析装置では、設定した散乱角における限られた方位角に対してしか測定が行われていない。

一方、CRBSのスペクトロメータは、後述するように軸対称・強磁場空間を有する新しい光学系を用いており、同一散乱角をもつ散乱イオンをすべての方位角にわたって捕集できるため、大きな立体角を得ることができると同時にサブ nm の深さ分解能での測定が可能である。

本章では、まず、CRBSの基本原理を述べた後、CRBSスペクトロメータを用いて測定を行った場合に得られるエネルギー分解能、立体角、質量分解能、深さ分解能について、理論的に考察する。さらに、CRBSに適用できるスペクトル・シミュレータを開発して、得られるスペクトルをHRBSスペクトルと比較するとともに、試料内の軽元素に対する感度が通常RBSよりも高いことを示す。最後に、得られたCRBSの特徴を従来のRBSと比較しまとめとする。

#### 3.1 サイクロトロン運動を利用したラザフォード後方散乱分光法(CRBS)の基本原理[3.1]

CRBSでは、試料表面に垂直に入射イオンビームを照射し、同時にビーム入射方向と平行に強磁場 $B$ を発生させることにより、試料から散乱してきたイオンをサイクロトロン運動させる。このCRBSスペクトロメータの模式図を典型的な散乱イオンの軌道とともに図3-1に示す。スペクトロメータ内には、上から順に開口付2次元位置検出器(2D-PSD: two-dimensional position-sensitive detector)、エネルギー分離アパーチャ、および試料を設置する。試料に入射したイオンはその一部が試料で後方に散乱されて、入射イオンビームと平行な磁場中でサイクロトロン運動を行う。さらにそのうちの一部は、試料から距離 $L$ だけ離れた位置に設置した円形のエネルギー分離アパーチャを通過する。これらのイオンはアパーチャ通過後もサイクロトロン運動を続けて、スリットから距離 $l$ だけ離れた位置にある2D-PSDで検出される。このようにして測定された散乱イオンの位置スペクトルから、試料の組成分析を行う。

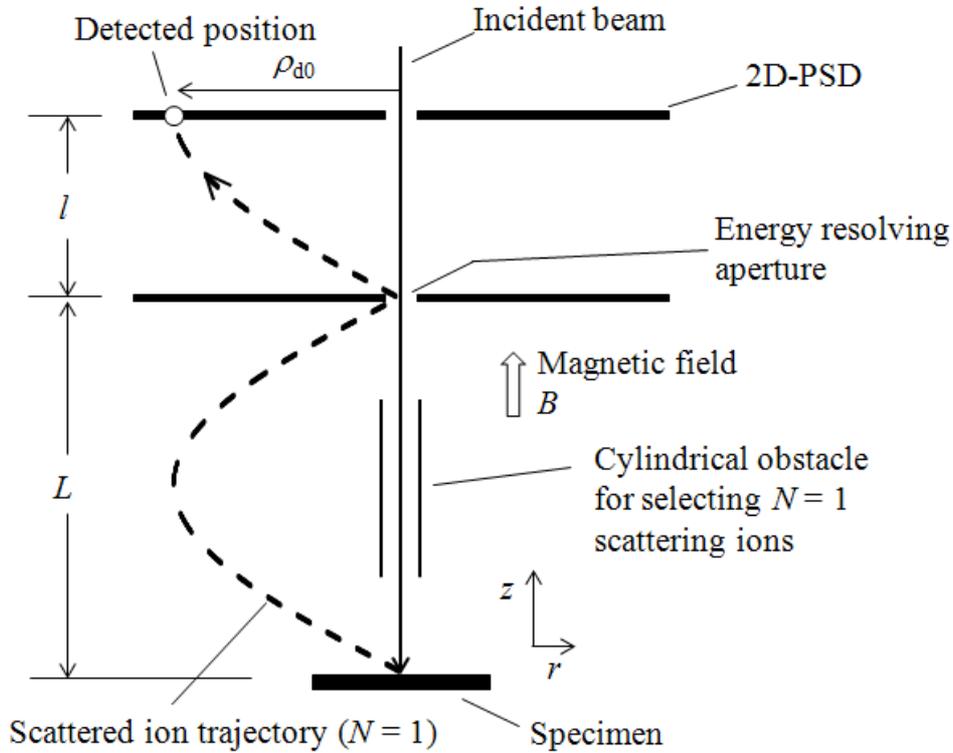


図 3-1 CRBS スペクトロメータ内における、典型的な散乱イオンの軌道を示す模式図。

ここで、一様磁場中のイオンの軌道について考察する。図 3-2 に示すように、 $z$  軸方向の一様磁場  $B$  におけるイオンの軌道は、入射イオンと逆方向、すなわち散乱角  $180^\circ$  の方向に散乱されるイオン以外は、サイクロトロン軌道を描く。このときイオンの軌道は、図示した  $(x, y, z)$  座標系を用いて、

$$x = R \sin(\omega_c t) \quad (3-1)$$

$$y = R \{1 - \cos(\omega_c t)\} \quad (3-2)$$

$$z = v_z t = -vt \cos \theta \quad (3-3)$$

と表される。ただし、 $\theta$  は散乱角、 $v$  はイオンの速度、 $v_z$  は  $v$  の  $z$  軸方向の速度成分を表し、イオンのサイクロトロン運動の角周波数  $\omega_c$  と軌道半径  $R$  は、イオンの電荷を  $qe$ 、イオンの質量を  $M_1$  として次式で与えられる。

$$\omega_c = \frac{qe}{M_1} B \quad (3-4)$$

$$R = \frac{v_r}{\omega_c} = \frac{v \sin \theta}{\omega_c} \quad (3-5)$$

ここで、 $v_r$  は  $v$  の  $z$  軸に垂直な径方向の速度成分である。式(3-1)および(3-2)から、イオン軌道と  $z$  軸(入射イオンビーム軸)との距離  $\rho$  は、

$$\begin{aligned} \rho &= 2R \left| \sin\left(\frac{\omega_c}{2} t\right) \right| \\ &= 2 \frac{v_r}{\omega_c} \left| \sin\left(\frac{\omega_c}{2} t\right) \right| = 2 \frac{v \sin \theta}{\omega_c} \left| \sin\left(\frac{\omega_c}{2} t\right) \right| \end{aligned} \quad (3-6)$$

となる。式(3-6)はすべてのイオンは時間  $t = 2N\pi / \omega_c$  において  $z$  軸上に戻ってくることを意味している。ただし、 $N$  はイオンが  $z$  軸に戻ってくるまでの回転数を示しており整数である。すなわち、

$$L = \frac{2N\pi}{\omega_c} v_z = -\frac{2N\pi}{\omega_c} v \cos \theta \quad (3-7)$$

の位置にエネルギー分離アパーチャを設置すれば、速度成分  $v_z$  を持つイオンだけを通過させることができる。したがって、同アパーチャを通過する散乱イオンの  $z$  軸に垂直な方向の速度成分  $v_r$  がわかれば、散乱イオンの速度  $v$ 、すなわち散乱イオンのエネルギーだけではなく、イオンが試料から散乱された時点での散乱角  $\theta$  を知ることができる。速度成分  $v_r$  は、式(3-6)よりエネルギー分離アパーチャの上部に設置する 2D-PSD で  $\rho$  を測定することによりわかるから、図 3-1 に示したようなスペクトロメータで散乱イオンのエネルギーおよび散乱角を測定することができる。

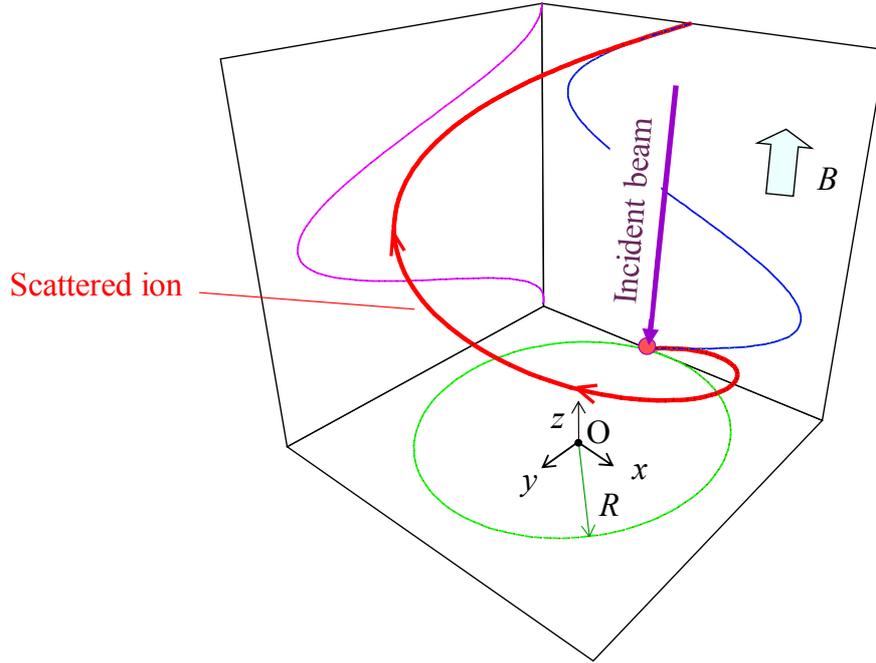


図 3-2 入射ビームと平行な(z 軸に平行な)一様磁場  $B$  中における散乱イオンの典型的な軌道(赤線)とその各平面への投影図。緑線は  $xy$  平面、紫線は  $yz$  平面、青線は  $xz$  平面への投影を示す。O は座標原点、 $R$  はサイクロトロン運動の半径。

2D-PSD 上におけるイオン検出位置と  $z$  軸(入射イオンビーム軸)との距離  $\rho_d$  は、図 3-1 に示すようにエネルギー分離アパーチャと 2D-PSD との距離を  $l$  とおくと、

$$\rho_d = 2R \left| \sin \left( \frac{l}{L} N\pi \right) \right| \quad (3-8)$$

と表される。式(3-8)は、 $l=L/2$  のとき  $\rho_d$  は最大値をとり、水平方向の速度  $v_r$  の分解能が最も上がることを示している。したがって、以下では  $l=L/2$  として議論を進める。このとき  $v_r$  は、

$$v_r = \frac{\omega_c}{2} \rho_d \quad (3-9)$$

となる。散乱イオンのエネルギーと散乱角は、2D-PSD で検出される位置  $\rho_d$  を用いて、次式のように表すことができる。

$$E(\rho_d) = \frac{M_1}{2} (v_r^2 + v_z^2) = \frac{M_1 \omega_c^2}{8} \left( \rho_d^2 + \left( \frac{L}{N\pi} \right)^2 \right) \quad (3-10)$$

$$\theta(\rho_d) = \frac{\pi}{2} + \arctan \left( \frac{v_z}{v_r} \right) = \frac{\pi}{2} + \arctan \left( \frac{L}{N\pi \rho_d} \right) \quad (3-11)$$

図 3-3 は、 $B=2\text{ T}$  の場合に、1 価の散乱  $\text{He}^+$  イオンに対してエネルギー  $E$  と散乱角  $\theta$  を  $\rho_d$  の関数として式(3-10)、(3-11)を元にプロットしたものである。計算において、 $L=200, 300\text{ mm}$  ( $l=100, 150\text{ mm}$ ) と  $N=1$  と  $3$  をパラメータとして用いた。ここで、 $l=L/2$  としているため、 $N$  が偶数の場合は  $\rho_d=0$  となり、検出されないことを注意しておく。図からわかるように、 $\rho_d$  に対して  $E$  は単調に大きくなり、 $\theta$  は単調に小さくなる。また、測定できるエネルギー範囲は、たとえば  $L=300\text{ mm}$ 、 $N=1$  の場合、 $\rho_d < 160\text{ mm}$  において  $120\sim 400\text{ keV}$  であり、散乱角の範囲は  $120\sim 180^\circ$  であることがわかる。しかしながら、このままでは、同じ  $\rho_d$  で検出しても  $N$  の違うイオンが検出されてしまうが、 $N$  の違いを区別できず、散乱イオンのエネルギーと散乱角を一意的に決定することができない。そこで実際の装置では、図 3-1 や図 3-4 の(4)に示すような円筒型の障害物を設置して  $N$  が 2 以上の散乱イオンを除去し、 $N=1$  のイオンのみを検出する。これにより、 $N=1$  以外の不要なイオンを取り除くことが可能となり、2D-PSD 上の検出位置  $\rho_d$  から一意的に散乱イオンのエネルギーと散乱角を決定することができる。なお、図 3-4 において、(1)、(2)、(3)はそれぞれ距離  $L$  に対する  $N=1, 2, 3$  のイオン軌道を示している。

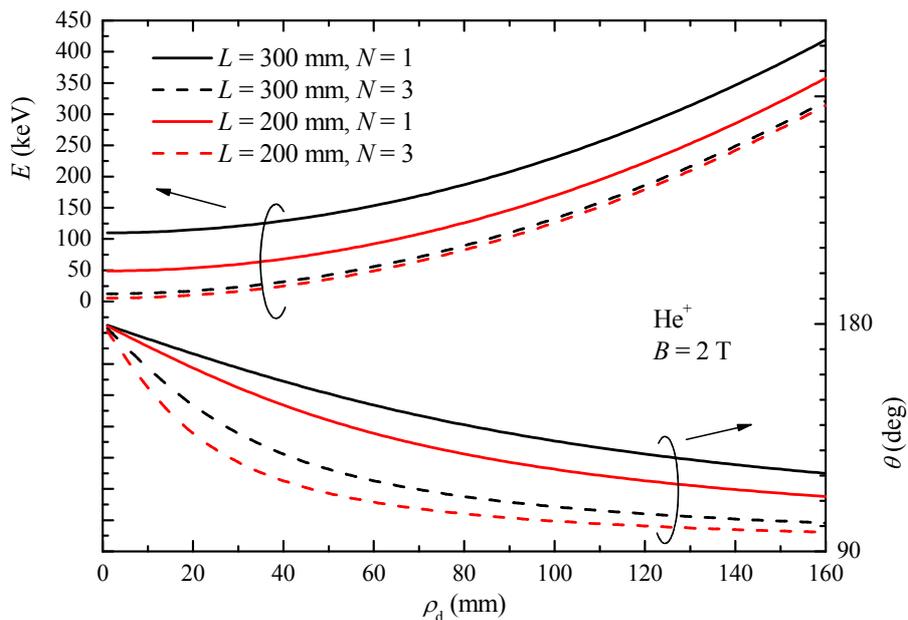


図 3-3 2D-PSD 上  $\rho_d$  の位置で検出される散乱  $\text{He}^+$  イオンのエネルギーと散乱角散乱角について、 $L=200, 300\text{ mm}$ 、 $N=1, 3$  として計算した結果。計算に用いた磁場強度  $B$  は  $2\text{ T}$  とした。 $l=L/2$  としているため  $N=2$  の散乱イオンは検出されない。

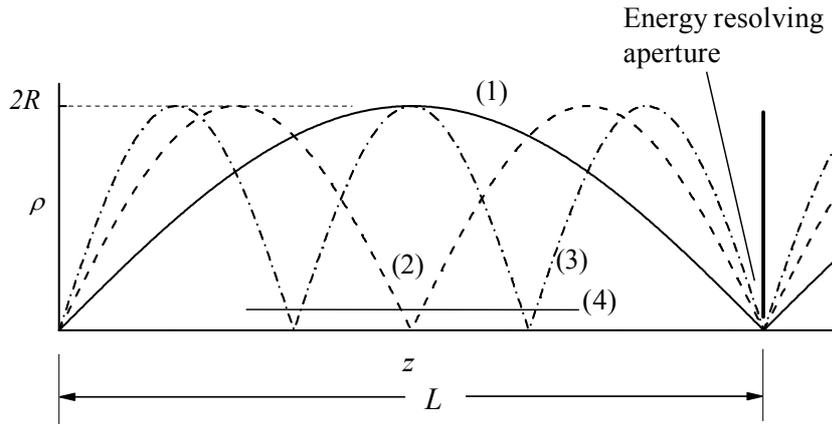


図 3-4  $z$  軸方向に磁場が存在する場合のイオン軌道の  $z$ - $\rho$  平面図。(1)、(2)、(3)はそれぞれ、 $z=L$  の位置にあるエネルギー分離アパーチャを通過する、 $N=1, 2, 3$  のイオン軌道、(4)は  $N \geq 2$  のイオンを除去し  $N=1$  のイオンのみを通過させるための円筒型障害物。

## 3.2 CRBS スペクトロメータの性能

### 3.2.1 エネルギー分解能[3.1]

まず、エネルギー分離アパーチャの直径  $\phi_a$  が無限小の場合を考える。この場合、スペクトロメータのエネルギー分解能は 2D-PSD の空間分解能  $\delta\rho_d$  で決定され、式(3-10)から次式が得られる。

$$\delta E_d = \frac{\partial E(\rho_d)}{\partial \rho_d} \delta\rho_d = \frac{M_1 \omega_c^2}{4} \rho_d \delta\rho_d \quad (3-12)$$

実際にはアパーチャは有限のサイズを有するから、2D-PSD 上の同じ位置  $\rho_d$  で検出された散乱イオンのエネルギーは一意に決定することはできず、そのエネルギーは幅をもつ。図 3-5 にイオンのエネルギーと  $\rho_d$  の関係を模式的に示す。図中太線(1)は  $\phi_a = 0$  の場合の両者の関係を、(2)と(3)はアパーチャを通るイオンの最大と最小のエネルギーと  $\rho_d$  の関係を示しており、ハッチングした領域の関係を満たすイオンが 2D-PSD で検出される。アパーチャが有限サイズを持つことによるエネルギー分解能  $\delta E_a$  を見積もるために、まず、同じエネルギーを持つイオンの 2D-PSD で検出される位置の広がり  $\Delta\rho_d$  を求める。

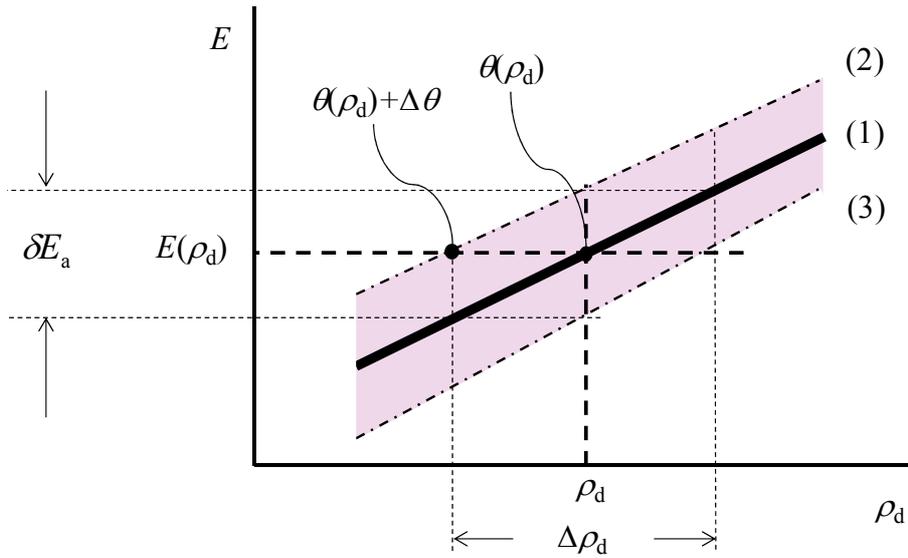


図 3-5 アパーチャが有限サイズを有する場合に 2D-PSD で検出される位置 $\rho_d$ とエネルギーの広がり関係を示す模式図。(1)の太線はエネルギー分離アパーチャの中心を通るイオンのエネルギーと $\rho_d$ の関係、(2)と(3)はアパーチャを通るイオンの最大と最小のエネルギーと $\rho_d$ の関係、 $\delta E_a$ はエネルギー分解能、 $\Delta\rho_d$ は同一エネルギーを持つイオンの検出位置の広がりを示している。

エネルギー分離アパーチャのサイズが無限小の場合、検出器上 $\rho_d$ で検出されるイオンのエネルギーと散乱角は式(3-10)と(3-11)で一意に与えられるため、検出される位置とイオンのエネルギーは1対1で決定される。一方、アパーチャサイズが有限の場合、エネルギーが同一で微小量異なる散乱角を持つイオンもアパーチャを通過するため、その結果微小量異なる位置で検出される。異なる微小散乱角を $\Delta\theta$ とおくと、 $z = L$ のアパーチャ面( $z$ 軸に垂直な面)におけるイオン軌道と $z$ 軸との距離は、式(3-6)に $\theta(\rho_d) + \Delta\theta$ を代入し、 $N=1$ として式(3-7)を用いることにより次式で得ることができる。

$$\begin{aligned}
 \rho_L &= \frac{2v \sin(\theta(\rho_d) + \Delta\theta)}{\omega_c} \left| \sin \left( \frac{\cos \theta(\rho_d)}{\cos(\theta(\rho_d) + \Delta\theta)} \pi \right) \right| \\
 &\cong \frac{2v \{ \sin \theta(\rho_d) + \Delta\theta \cos \theta(\rho_d) \}}{\omega_c} \left| \sin \left( \frac{1}{1 - \Delta\theta \tan \theta(\rho_d)} \pi \right) \right| \\
 &\cong \frac{2v}{\omega_c} \sin \theta(\rho_d) \times \pi |\Delta\theta \tan \theta(\rho_d)| \tag{3-13}
 \end{aligned}$$

$|\rho_L|$ がアパーチャの半径 $\phi_a/2$ より小さい場合に

$$\theta(\rho_d) - \delta\theta < \theta < \theta(\rho_d) + \delta\theta \tag{3-14}$$

の範囲の散乱角をもつイオンはアパーチャを通過することができ、検出器で検出される。ただし、

$$\delta\theta = \frac{\omega_c \phi_a}{4v\pi \sin\theta(\rho_d) \tan\theta(\rho_d)} \quad (3-15)$$

である。散乱角  $\theta = \theta(\rho_d) + \delta\theta$  をもつイオンの検出位置は、

$$\begin{aligned} \rho_d' &= \frac{2v \sin(\theta(\rho_d) + \delta\theta)}{\omega_c} \left| \sin \left( \frac{\cos\theta(\rho_d)}{\cos(\theta(\rho_d) + \Delta\theta)} \cdot \frac{3}{2} \pi \right) \right| \\ &\cong \frac{2v}{\omega_c} \sin\theta(\rho_d) + \frac{2v}{\omega_c} \Delta\theta \cos\theta(\rho_d) \\ &= \rho_d + \frac{2v}{\omega_c} \delta\theta \cos\theta(\rho_d) \end{aligned} \quad (3-16)$$

であるから、検出位置の広がり は次式で得られる。

$$\Delta\rho_d = \frac{4v}{\omega_c} \delta\theta \cos\theta(\rho_d) = \frac{\phi_a}{\pi \tan^2\theta(\rho_d)} \quad (3-17)$$

したがって、アパーチャが有限のサイズを有することに起因するエネルギー分解能は、

$$\delta E_a = \frac{dE(\rho_d)}{d\rho_d} \Delta\rho_d = \frac{M_1 \omega_c^2 \rho_d \phi_a}{4\pi \tan^2\theta(\rho_d)} \quad (3-18)$$

と表される。

このエネルギー分布は、エネルギー分離アパーチャのサイズが  $R$  に対して十分小さいとした場合、 $E$  に関する矩形関数で表すことができる。一方、2D-PSD の位置分解能に起因するエネルギー分布はガウス関数で表されるから、トータルエネルギー分解能は、幅  $\delta E_a$  の矩形関数と半値幅  $\delta E_d$  のガウス関数との畳み込みによって見積もることができる。この関数  $F(E)$  は、誤差関数の差で表される次式で評価した。

$$F(E) = \frac{1}{\delta E_a} \left\{ \operatorname{erf} \left( \frac{E(\rho_d) - \delta E_a/2}{\sqrt{2}\sigma} \right) - \operatorname{erf} \left( \frac{E(\rho_d) + \delta E_a/2}{\sqrt{2}\sigma} \right) \right\} \quad (3-19)$$

ただし、 $\sigma$  はガウス関数の標準偏差で、誤差関数は、Hastings[3.2]の近似関数

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{1}{2 \cdot (1 + a_1 \cdot x + a_2 \cdot x^2 + a_3 \cdot x^3 + a_4 \cdot x^4)^4} \quad \text{if } x \geq 0 \quad (3-20)$$

$$\operatorname{erf}(x) = 1 - \frac{1}{2 \cdot (1 + a_1(-x) + a_2(-x)^2 + a_3(-x)^3 + a_4(-x)^4)^4} \quad \text{if } x < 0 \quad (3-21)$$

を用いた。ここで、 $a_1 \sim a_4$  は  $a_1 = 0.278393$ 、 $a_2 = 0.230389$ 、 $a_3 = 0.000972$ 、 $a_4 = 0.078108$  で与えられる係数である。関数  $F(E)$  の半値幅を数値的に求め、トータルエネルギー分解能  $\Delta E$  とした。

磁場強度  $B=2\text{ T}$ 、エネルギー分離アパーチャの直径  $\phi_a=1\text{ mm}$ 、検出器位置分解能  $\delta\rho_d=0.1\text{ mm}$ 、 $N=1$ 、試料と分離アパーチャとの距離  $L$  を  $100\sim 300\text{ mm}$  とした場合に  $E$  の関数として計算した相対エネルギー分解能  $\Delta E/E$  (%) を図 3-6 に示す。図には比較のため HRBS の典型的な相対エネルギー分解能  $0.15\%$  もプロットした。 $\rho_d < 10\text{ mm}$  となる範囲の計算結果については式(3-13)、(3-16)における近似が成り立たなくなるので示していない。図からわかるように相対エネルギー分解能は  $E$  とともに減少し、 $E$  が  $400\text{ keV}$  以下のとき  $\Delta E/E$  は  $0.12\sim 6\%$  の範囲で変化する。また、 $L=300\text{ mm}$  の場合、 $140\text{ keV}$  以上の  $E$  で  $1\%$  以下の相対エネルギー分解能を有すること、 $L$  が小さいほど高いエネルギー分解能が得られることがわかる。

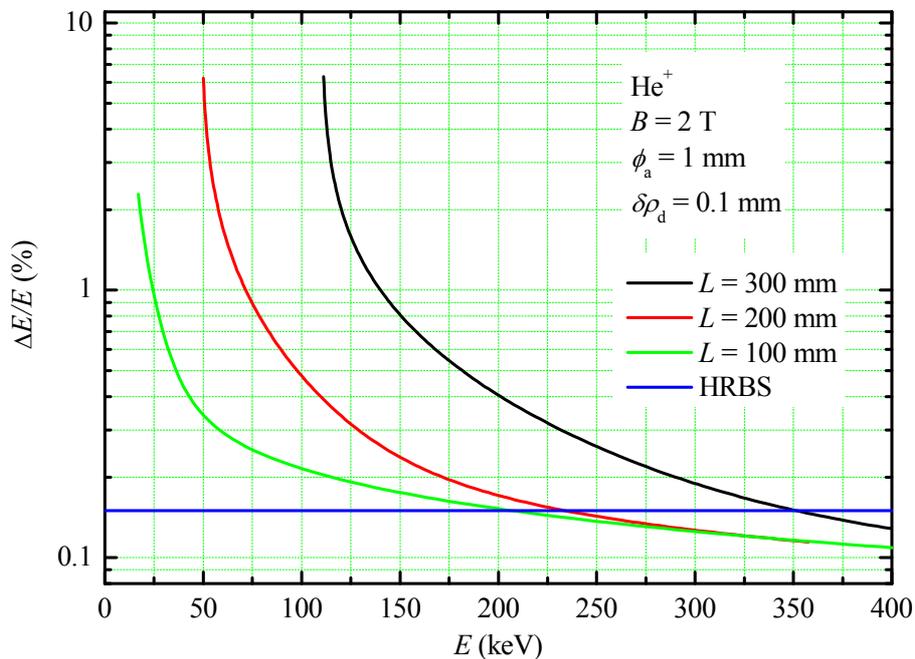


図 3-6 CRBS スペクトロメータにおいて磁場強度  $B=2\text{ T}$ 、エネルギー分離アパーチャの直径  $\phi_a=1\text{ mm}$ 、検出器位置分解能  $\delta\rho_d=0.1\text{ mm}$  とした場合の検出エネルギー  $E$  (keV) に対する相対エネルギー分解能。試料とアパーチャ間の距離  $L$  は  $100\sim 300\text{ mm}$  とした。青線は HRBS の典型的な相対エネルギー分解能  $0.15\%$ 。

### 3.2.2 立体角[3.1]

イオンの散乱角が式(3-14)を満たすとき、エネルギー分離アパーチャを通過し 2D-PSD で検出されるから、立体角  $\Omega$  は、次式で与えられる。

$$\Omega = 2\pi \sin \theta \cdot 2\delta\theta = \frac{2\phi_a}{\rho_d} |\cos \theta(\rho_d)| \quad (3-22)$$

図 3-7 は、図 3-6 のエネルギー分解能を評価した場合と同条件：磁場強度  $B = 2 \text{ T}$ 、エネルギー分離アパーチャの直径  $\phi_a = 1 \text{ mm}$ 、検出器位置分解能  $\delta\rho_d = 0.1 \text{ mm}$ 、 $N = 1$ 、試料と分離アパーチャとの距離  $L$  を  $100 \sim 300 \text{ mm}$  とした場合の立体角をプロットしたものである。図には比較のため HRBS の典型的な立体角  $0.4 \text{ msr}$  も示した。立体角は  $\rho_d$  とともに減少し、 $2.3 \sim 200 \text{ msr}$  の範囲で変化する。HRBS と比較すると 5 倍以上の立体角を有するが、 $L$  が小さくなるほど立体角は小さくなるため、高いエネルギー分解能と大立体角との両立を図る場合は注意が必要となる。

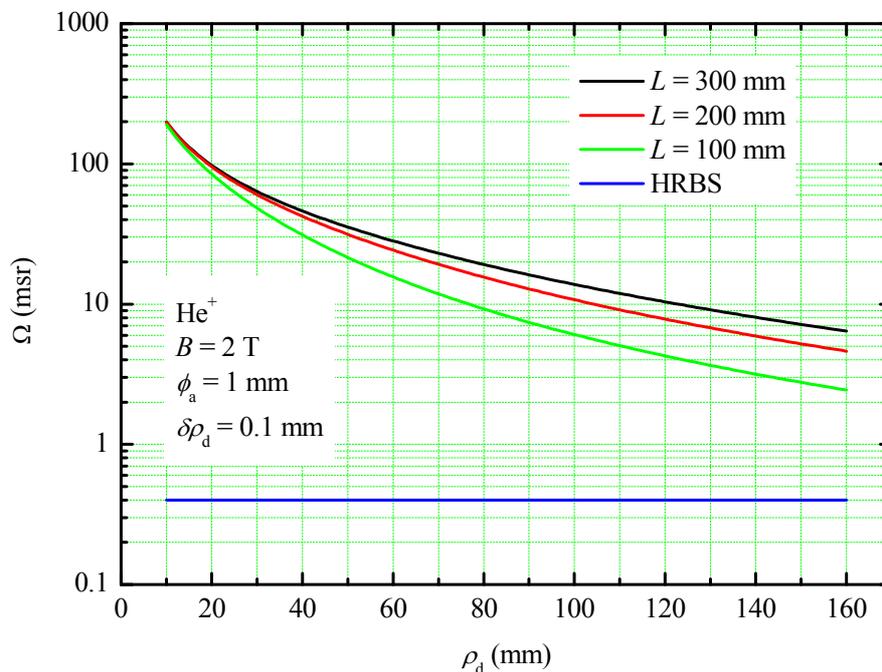


図 3-7 CRBS スペクトロメータにおいて磁場強度  $B = 2 \text{ T}$ 、エネルギー分離アパーチャの直径  $\phi_a = 1 \text{ mm}$ 、検出器位置分解能  $\delta\rho_d = 0.1 \text{ mm}$  の場合の検出器位置  $\rho_d$  (mm) に対する立体角。試料とアパーチャ間の距離  $L$  は  $100 \sim 300 \text{ mm}$  とした。青線は HRBS の典型的な立体角。

### 3.2.3 質量分解能[3.3]

前節までは CRBS スペクトロメータの性能として、相対エネルギー分解能と立体角について議論したが、ここでは、イオンと試料表面原子の散乱における運動学から CRBS における質量分解能を見積もる。まずはじめに、エネルギー分離アパーチャが無限小の場合について議論を進め、後にアパーチャが有限のサイズを有する場合について研究する。

図 3-8 は、質量  $M_1$ 、速度  $v_{in}$ 、エネルギー  $E_{in}$  を持った入射イオンが、静止している質量  $M_2$  の標的原子に衝突した様子を模式的に示した図である。散乱後、イオンは動径方向および  $z$  軸方向の速度成分  $v_r$  と  $v_z$  を持ち、標的原子は  $v_2$  の速度を持って反跳角  $\varphi$  の方向に反跳されるとする。エネルギーと運動量の保存則から次の 3 式が得られる。

$$\frac{1}{2}M_1v_{in}^2 = \frac{1}{2}M_1(v_r^2 + v_z^2) + \frac{1}{2}M_2v_2^2 \quad (3-23)$$

$$0 = -M_1v_r + M_2v_2 \sin \varphi \quad (3-24)$$

$$M_1v_{in} = -M_1v_z + M_2v_2 \cos \varphi \quad (3-25)$$

これらから  $\varphi$  と  $v_2$  を消去して次式を得ることができる。

$$v_r^2 = \frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2}v_{in}^2 - v_z^2 - \frac{2M_1}{M_1 + M_2}v_{in}v_z \quad (3-26)$$

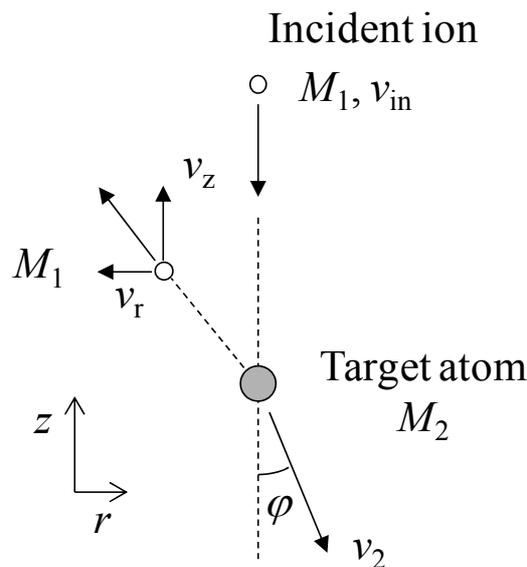


図 3-8 質量  $M_1$ 、速度  $v_{in}$ 、エネルギー  $E_{in}$  を持った入射イオンが、静止している質量  $M_2$  の標的原子に衝突した様子を示す模式図。散乱後、イオンは動径方向および垂直方向の速度成分  $v_r$  と  $v_z$  を持ち、標的原子は  $v_2$  の速度を持って反跳角  $\varphi$  の方向に反跳される

次に、図 3-1 に示すように試料から距離  $L$  の場所に無限小のエネルギー分離アパーチャを設置した場合に、アパーチャから  $L/2$  だけ離れた場所に設置した 2D-PSD で検出される散乱イオンの検出位置について考える。アパーチャを通過するイオンの  $z$  軸と平行な方向の速度は、式 (3-7) を  $N=1$  として書き直すことで得られる。

$$v_{z0} = \frac{\omega_c L}{2\pi} \quad (3-27)$$

ここで、左辺の添字0は、アパーチャ中心を通るイオンに対応していることを意味する。ここで、CRBSにおける特性エネルギーとして

$$E_c \equiv \frac{M_1}{8} \left( \frac{\omega_c L}{\pi} \right)^2 \quad (3-28)$$

を定義する。これは、 $N=1$ でエネルギー分離アパーチャの中心を通過するイオンの $z$ 軸方向の速度に対応する運動エネルギーを意味しており、この $E_c$ を用いると、式(3-27)は、

$$v_{z0} = \sqrt{\frac{2E_c}{M_1}} \quad (3-29)$$

と書き直すことができる。また、これに対応する $z$ 軸に垂直な方向の速度成分は、式(3-29)を式(3-26)に代入することによって得られ、

$$v_{r0} = \frac{\omega_c L}{2\pi} \sqrt{\frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \frac{E_{in}}{E_c} - 1} - \frac{2M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \quad (3-30)$$

となる。したがって、式(3-5)や(3-8)と同様に、イオンのサイクロトロン半径 $R_0$ と2D-PSD上の検出位置( $z$ 軸からの距離) $\rho_{d0}$ をそれぞれ

$$R_0 = \frac{v_{r0}}{\omega_c} \quad (3-31)$$

および

$$\rho_{d0} = 2R_0 = \frac{L}{\pi} \sqrt{\frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \frac{E_{in}}{E_c} - 1} - \frac{2M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \quad (3-32)$$

と書くことができる。入射イオンとして400 keVの $\text{He}^+$ イオンを使用し磁場が2 Tのときの、 $\rho_{d0}$ と試料原子の質量 $M_2$ の関係を図3-9に示す。試料原子の質量が大きいくほど2D-PSDにおいて中心から離れた位置で検出されることがわかる。すなわち、検出位置からそのイオンが散乱されてきた試料原子の質量を一意に決定することができる。また、図から、同じ質量の原子を見る場合でも $L$ が小さいほど大きな検出器が必要なことがわかる。

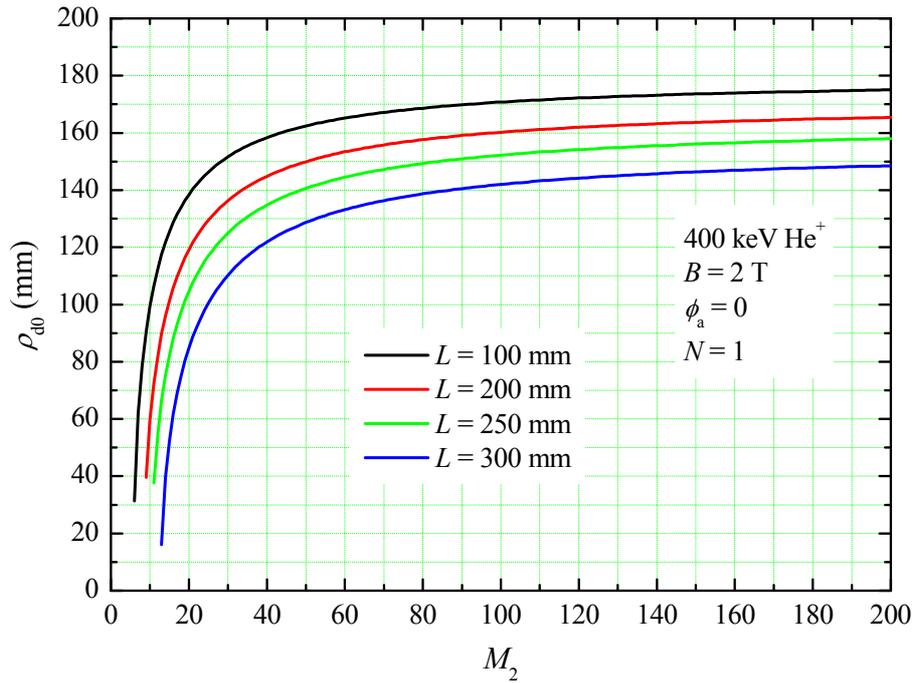


図 3-9 入射イオンとして 400 keV の  $\text{He}^+$  イオンを使用し磁場が 2 T のときの、 $\rho_{d0}$  と試料原子の質量  $M_2$  の関係。  $L$  は 100 ~ 300 mm とした。

ここまでは、エネルギー分離アパーチャの大きさが無限小として話を進めてきたが、以降ではアパーチャサイズが有限として議論を進め、CRBS の質量分解能を求める。アパーチャの直径が有限である場合、同一原子から散乱したとしても  $z$  方向の速度成分が  $v_{z0}$  に比べて微小量  $\Delta v_z$  異なるイオンもアパーチャを通過することができる。図 3-10 はこの様子を模式的に示したもので、 $v_{z0}$  および  $v_{z0} + \Delta v_z$  の  $z$  方向速度を持つ 2 つのイオンの軌道を  $xy$  平面に投影した図である。速度  $v_{z0}$  を持つイオンの軌道は点線で表され、 $z$  軸に垂直なアパーチャ平面 ( $z = L$ ) に到達したとき、イオンの位置はアパーチャの中心にあり、回転角は  $2\pi$  である。一方、図中実線で表した速度  $v_{z0} + \Delta v_z$  を持つイオンがアパーチャ平面に到達したとき、その回転角は  $2\pi + \Delta\alpha$  である。ここで両者の回転角の差は  $\Delta\alpha = -2\pi\Delta v_z / v_{z0}$  で表される。 $\Delta\alpha$  を用いて散乱イオンがエネルギー分離アパーチャを通過する条件は、

$$2R \left| \sin \frac{\Delta\alpha}{2} \right| < \frac{\phi_a}{2} \quad (3-33)$$

で表すことができるから、

$$|\Delta\alpha| < 2 \arcsin \left( \frac{\phi_a}{4R} \right) \quad (3-34)$$

となり、式(3-33)式は

$$|\Delta v_z| < \frac{v_{z0}}{\pi} \arcsin\left(\frac{\phi_a}{4R}\right) \equiv \delta v_z \quad (3-35)$$

と書き直すことができる。そしてこのイオンが2D-PSDに到達したとき、回転角は $3\pi + \Delta\beta$  ( $\Delta\beta = 3\Delta\alpha/2$ )となるが、 $|\Delta\beta|$ の最大値は次式で与えられる。

$$\delta\beta = 3 \arcsin\left(\frac{\phi_a}{4R}\right) \quad (3-36)$$

また、このイオンは、サイクロトロン半径も $R_0$ と少しだけ異なり、その差異は、式(3-5)から求め、また、式(3-26)を微分した式を使うことにより、

$$\begin{aligned} \Delta R &= R - R_0 = \frac{\Delta v_r}{\omega_c} \\ &\cong -\frac{1}{\omega_c} \left( \frac{v_{z0}}{v_{r0}} + \frac{M_1}{M_1 + M_2} \frac{v_{in}}{v_{r0}} \right) \Delta v_z = -\frac{L}{2\pi\omega_c R_0} \left( 1 + \frac{M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \right) \Delta v_z \end{aligned} \quad (3-37)$$

と計算される。ここで、 $\Delta v_r$ は $z$ 軸に垂直な方向の速度成分の式(3-30)からのずれを表す。式(3-35)を用いて、 $|\Delta R|$ の最大値は、次式で表される値をとる。

$$\delta R \cong \frac{L}{2\pi\omega_c R_0} \left( 1 + \frac{M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \right) \delta v_z \quad (3-38)$$

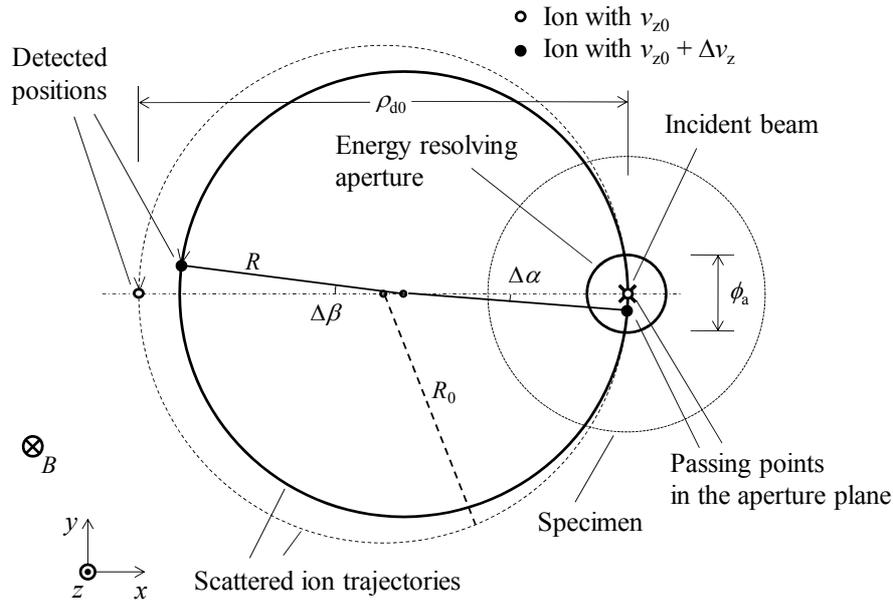


図 3-10  $z$  軸方向の速度成分  $v_{z0}$  および  $v_{z0} + \Delta v_z$  を持つ 2 つのイオンのサイクロトロン軌道を  $xy$  平面に投影した模式図。入射ビームは  $z$  軸に平行に試料に照射される(図の右側)。2 つのイオンの軌道は破線および実線で示されており、アパーチャ平面( $z = L$ )に到達したときの回転角はそれぞれ  $2\pi$ 、 $2\pi + \Delta\alpha$  であり、2D-PSD に到達した(図の左側の検出位置で検出される)ときの回転角は、 $3\pi$ 、 $3\pi + \Delta\beta$  である。

次に、この  $v_{z0} + \Delta v_z$  を持つイオンが 2D-PSD で検出される位置を求めると、

$$\rho_d = 2(R_0 + \Delta R) \cos\left(\frac{\Delta\beta}{2}\right) \quad (3-39)$$

となるから、同じ標的原子から散乱されても検出器上では異なる半径位置で検出されることがわかる。この式から、エネルギー分離アパーチャを通ることができるイオンの検出位置の最大値および最小値は、上の  $\delta R$  と  $\delta\beta$  を用いて

$$\rho_{d\max,\min} = 2(R_0 \pm \delta R) \cos\left(\frac{\delta\beta}{2}\right) \cong 2(R_0 \pm \delta R) \quad (3-40)$$

と書ける。ただし、 $\phi_a/R$  に関して高次の項は無視している。したがって、同一標的原子から散乱されたイオンの検出位置の広がり、

$$\delta\rho_a \cong 4\delta R \cong \frac{\phi_a L^2}{\pi^3 \rho_{d0}^2} \left(1 + \frac{M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}}\right) \quad (3-41)$$

と表すことができる。この広がり分布は、アパーチャのサイズが  $R$  に対して十分小さいとした場合、半径方向の検出位置に関する矩形関数で近似できる。一方、2D-PSD の位置分解能  $\delta\rho_a$

はガウス分布で表されるから、トータル径方向検出位置の広がり $\delta\rho_{ad}$ は、エネルギー分解能を評価したときと同様、幅 $\delta\rho_a$ の矩形関数と半値幅 $\delta\rho_d$ のガウス関数との畳み込みによって見積もることができる。

質量分解能は上記で見積もった $\delta\rho_{ad}$ を用いることにより、次式で求めることができる。

$$\delta M_2 = \delta\rho_{a,d} \left( \frac{\partial\rho_{d0}}{\partial M_2} \right)^{-1} \quad (3-42)$$

入射イオンとして 400 keV の  $\text{He}^+$  イオンがシリコン(Si)と金(Au)に入射し、磁場  $B$  が 2 T、 $\delta\rho_d = 0.1\text{mm}$  のときの、質量分解能 $\delta M_2$ と $\phi_a$ の関係を図 3-11 に示す。質量分解能は $\phi_a$ が大きくなると劣化し、劣化の割合は $L$ が大きくなるほど急激になる。図 3-12 は質量分解能を標的元素の質量 $M_2$ の関数としてプロットしたものである。計算において、入射イオンとして 400 keV の  $\text{He}^+$  イオンを使用し、 $B=2\text{T}$ 、 $\phi_a=1\text{mm}$ 、 $\delta\rho_d=0.1\text{mm}$  を使用した。また、図には、比較のため 2 MeV  $\text{He}^+$ 、 $\theta=150^\circ$ 、エネルギー分解能 $\Delta E = 15\text{keV}$ 、の条件における標準 RBS の質量分解能および、 $\text{He}^+$ 、 $\theta=120^\circ$ 、相対エネルギー分解能 $\Delta E/E = 0.15\%$ 、の条件における HRBS の質量分解能も示した。図から、CRBS の質量分解能は $M_2$ が 90 amu 以下の元素に対して 1 amu 以下の質量分解能を有し、これは標準 RBS のそれに比べて約 5 倍良い値であり、HRBS のそれと同等であることがわかる。

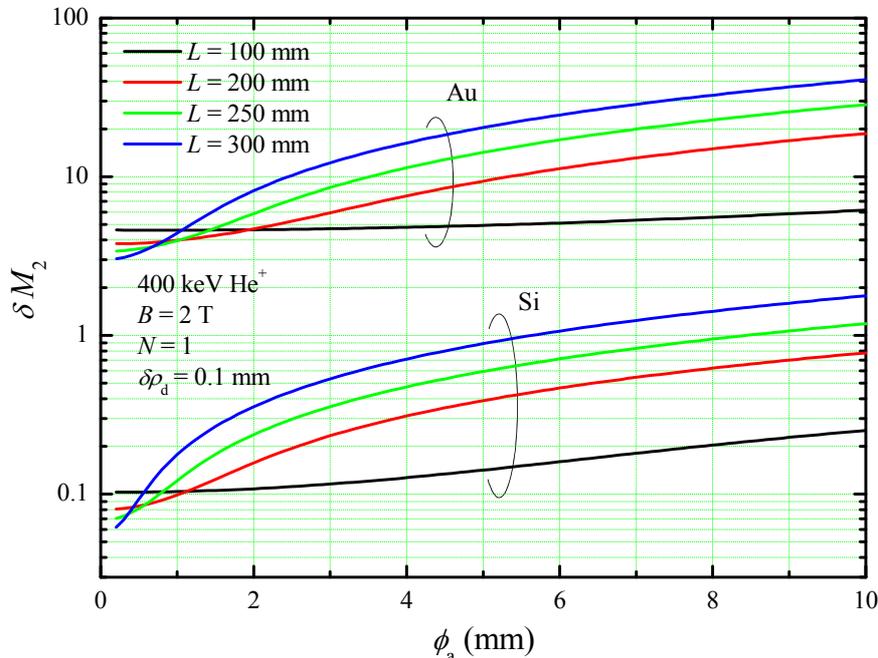


図 3-11 エネルギー分離アパーチャの直径 $\phi_a$ に対する質量分解能。入射イオンビーム 400 keV  $\text{He}^+$ を Si および Au の表面に照射した場合を計算した。また、磁場強度  $B = 2\text{T}$ 、検出器の位置分解能 $\delta\rho_d = 0.1\text{mm}$ とした。

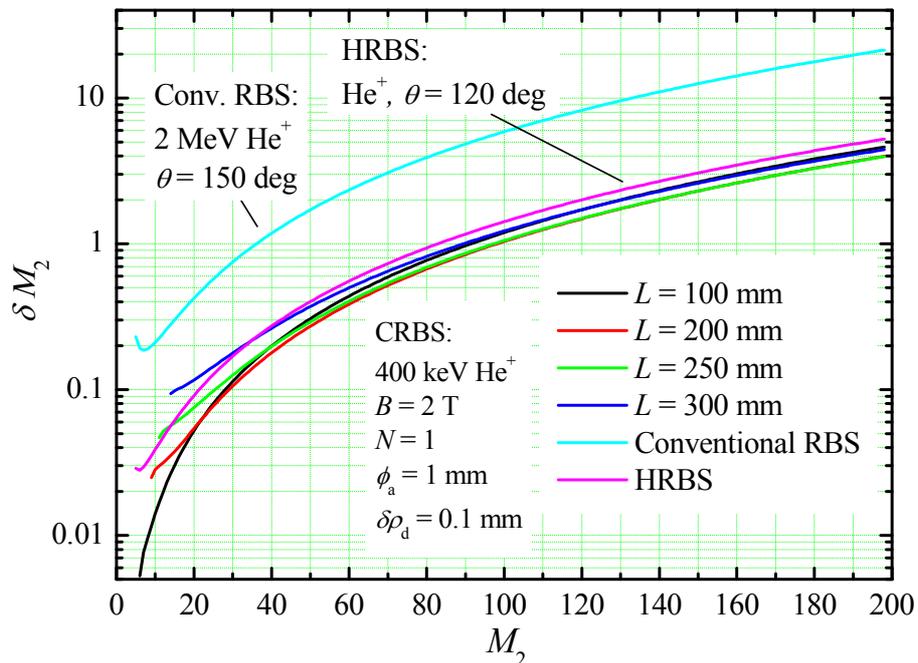


図 3-12 標的原子の質量  $M_2$  に対する質量分解能。入射イオンビーム  $400 \text{ keV He}^+$  を Si および Au の表面に照射した場合を計算した。また、磁場強度  $B = 2 \text{ T}$ 、エネルギー分離アパーチャの直径  $\phi_a = 1 \text{ mm}$ 、検出器の位置分解能  $\delta\rho_d = 0.1 \text{ mm}$  とした。

### 3.2.4 深さ分解能 [3.3]

前節では、試料表面からの散乱を議論したが、本節では、試料内部における散乱事象を取り扱い、深さ分解能を求める。まず、深さ  $D$  で散乱されたイオンが 2D-PSD 上で検出される位置を導出し、エネルギー・ロス・ストラグリングを無視した場合の深さ分解能を見積もる。

試料内におけるエネルギー損失が入射エネルギーに対して十分小さいと見なせる比較的浅い深さ  $D$  での散乱を考える。入射イオンが衝突するまでの試料内での軌道が直線で近似できるとすると、入射時  $V_{in}$  だったイオン速度は、入射軌道に沿って深さ  $D$  まで達する間に受けるエネルギー損失  $\Delta E_{in}$  により、

$$v_{in} \cong V_{in} \left( 1 - \frac{\Delta E_{in}}{2E_{in}} \right) \quad (3-43)$$

に減速される(図 3-13 参照)。ただし、 $\Delta E_{in} / E_{in}$  に関する高次の項を無視している。エネルギー損失  $\Delta E_{in}$  は、入射イオンに対する阻止能  $S_{in}$  を使って、

$$\Delta E_{in} = S_{in} D \quad (3-44)$$

と表せる。散乱直後のイオンの動径方向および $z$ 軸方向の速度成分をそれぞれ $v_r, v_z$ とすると、これらは、試料から飛び出すまでの間にやはりエネルギーを損失し、 $V_r, V_z$ となり、それぞれの関係は、

$$v_r \cong V_r \left( 1 + \frac{\Delta E_{\text{out}}}{2E_s} \right), \quad (3-45)$$

$$v_z \cong V_z \left( 1 + \frac{\Delta E_{\text{out}}}{2E_s} \right), \quad (3-46)$$

となる。ただし、 $\Delta E_{\text{out}}$ は試料内出射軌道におけるエネルギー損失、 $E_s$ は散乱直後のイオンのエネルギーであり、 $\Delta E_{\text{out}}/E_s$ に関する高次項を無視した。また、エネルギー損失 $\Delta E_{\text{out}}$ は、出射イオンの阻止能 $S_{\text{out}}$ を用いて、

$$\Delta E_{\text{out}} = S_{\text{out}} \frac{D}{|\cos \theta|} \quad (3-47)$$

で与えられる。式(3-43)、(3-45)、(3-46)を式(3-26)に代入することにより、試料の外に飛び出した直後の $V_r$ が次式のように得られる。

$$V_r^2 = \frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} V_{\text{in}}^2 \left( \frac{1 - \frac{\Delta E_{\text{in}}}{2E_{\text{in}}}}{1 + \frac{\Delta E_{\text{out}}}{2E_s}} \right)^2 - V_z^2 - \frac{2M_1}{M_1 + M_2} V_{\text{in}} V_z \left( \frac{1 - \frac{\Delta E_{\text{in}}}{2E_{\text{in}}}}{1 + \frac{\Delta E_{\text{out}}}{2E_s}} \right) \quad (3-48)$$

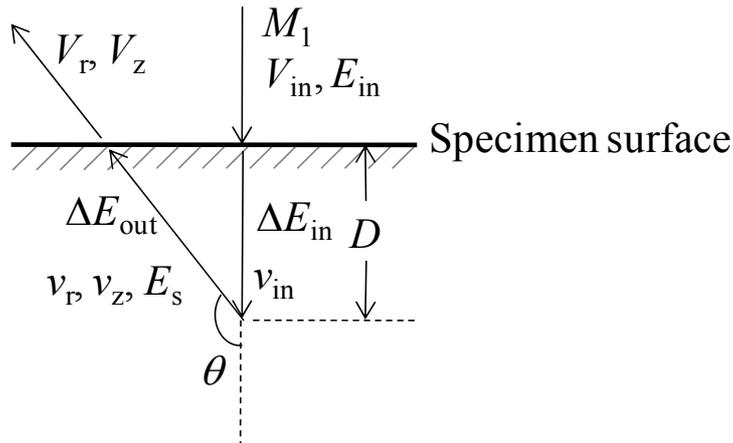


図 3-13 試料表面から深さ $D$ における散乱を説明する模式図。

深さ $D$ で散乱し、かつ無限小のエネルギー分離アパーチャを通るイオンを考えると、その $z$ 軸方向の速度成分は、式(3-27)、(3-29)から

$$V_{z0} = \frac{\omega_c L}{2\pi} = \sqrt{\frac{2E_c}{M_1}} \quad (3-49)$$

である。この  $V_{z0}$  を式(3-48)の  $V_z$  として代入して計算することにより、このイオンの速度の  $r$  成分

$$V_{r0} = \frac{\omega_c L}{2\pi} \sqrt{\frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \frac{E_{in}}{E_c} \left( \frac{1 - \frac{\Delta E_{in}}{2E_{in}}}{1 + \frac{\Delta E_{out}}{2E_s}} \right)^2 - 1 - \frac{2M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \left( \frac{1 - \frac{\Delta E_{in}}{2E_{in}}}{1 + \frac{\Delta E_{out}}{2E_s}} \right)} \quad (3-50)$$

が得られる。さらに、サイクロトロン軌道半径  $R_0$  は、式(3-31)において  $v_0$  の代わりに  $V_{r0}$  を用いることにより得られるから、 $2R_0 = 2V_{r0}/\omega_c$  で与えられる 2D-PSD 上の検出位置は、次式のようになる。

$$\rho(D) \cong \frac{L}{\pi} \sqrt{\frac{M_2 - M_1}{M_1 + M_2} \frac{E_{in}}{E_c} \left( 1 - \frac{\Delta E_{in}}{E_{in}} - \frac{\Delta E_{out}}{E_s} \right) - 1 - \frac{2M_1}{M_1 + M_2} \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \left( 1 - \frac{\Delta E_{in}}{2E_{in}} - \frac{\Delta E_{out}}{2E_s} \right)} \quad (3-51)$$

ただし、 $\Delta E_{in}/E_{in}$  と  $\Delta E_{out}/E_s$  に関する高次項は無視している。ここで、位置変化因子、

$$\begin{aligned} [S_\rho] &= \frac{\partial \rho(D)}{\partial D} \\ &\cong \frac{1}{2\rho_{d0}(M_1 + M_2)} \left( \frac{L}{\pi} \right)^2 \left( \frac{S_{in}}{E_{in}} + \frac{S_{out}}{E_s |\cos \theta(D)|} \right) \left\{ (M_2 - M_1) \frac{E_{in}}{E_c} - M_1 \sqrt{\frac{E_{in}}{E_c}} \right\} \end{aligned} \quad (3-52)$$

を導入すると、深さ分解能は前節で見積もった検出位置の広がり  $\delta\rho_{ad}$  を用いて次式で与えられる。

$$\delta D = \delta\rho_{ad} [S_\rho]^{-1} \quad (3-53)$$

ただし、式(3-52)における  $\theta(D)$  は、深さ  $D$  で散乱され、エネルギー分離アパーチャを通過するイオンの散乱角であり、式(3-46)を変形して得られる  $V_z \approx v_z(1 - \Delta E_{out}/2E_s)$  を式(3-49)に代入して得られる方程式を解くことにより求めた。

式(3-53)から、入射イオンに 400 keV の  $\text{He}^+$  を使用し、 $B = 2 \text{ T}$ 、 $\delta\rho_{ad} = 0.1 \text{ mm}$  の条件で、Si と Au に対して深さ分解能を計算した結果を図 3-14 に示す。阻止能は Ziegler らの半経験式[2.6]を用い、 $\phi_a = 0, 1, 3 \text{ mm}$  の場合に  $L$  の関数として計算した。この結果はストラグリングの効果は無視しているので表面における深さ分解能に相当する。図からわかるようにアパーチャが有限の値を持つと  $L$  とともに深さ分解能は劣化し、特に、 $L$  が大きいところでは劣化は激しくなる。

次にアパーチャサイズが深さ分解能および立体角(式(3-22))を用いて計算)に与える影響を調べた。図 3-15 は、 $\phi_a$  の関数として計算した CRBS における深さ分解能と立体角であるが、概して、 $\phi_a$  が大きくなると立体角は大きくなるが深さ分解能は劣化することがわかる。図 3-14 および 3-15 の結果から、 $L$  も  $\phi_a$  もともに小さい方が深さ分解能が向上するものの、立体角が小さく

なる、大きな検出器が必要となる(図 3-9 参照)、というデメリットが生じることがわかる。ここで、高い深さ分解能を維持しながら大きな立体角を得ることができる実用的な  $L$  および  $\phi_a$  を見積もる。すなわち、次章で示す実際のシステムのスペクトロメータ内径の制限から  $\rho_{d0} < 150 \text{ mm}$  という条件の下、立体角  $10 \text{ msr}$  以上で、かつ、表面でサブ nm の深さ分解能での測定が可能な  $\phi_a$  と  $L$  の条件を探してみる。Au など重元素の場合、上記  $\rho_{d0}$  の制限から  $L > 300 \text{ mm}$  が必要であり、たとえば  $L = 300 \text{ mm}$  とすると、 $1.4 < \phi_a < 3.3 \text{ mm}$  の範囲で上記条件を満たす。一方、Si など軽元素を観察する場合の  $\rho_{d0}$  は、重元素を観察する場合の  $\rho_{d0}$  に比べ小さいため(図 3-9 参照)、深さ分解能向上のため  $L$  を小さくしても  $\rho_{d0}$  の条件を満たすため、たとえば、 $L = 100 \text{ mm}$  とし、 $3.7 < \phi_a < 10 \text{ mm}$  と広い範囲で上記条件を満たす。

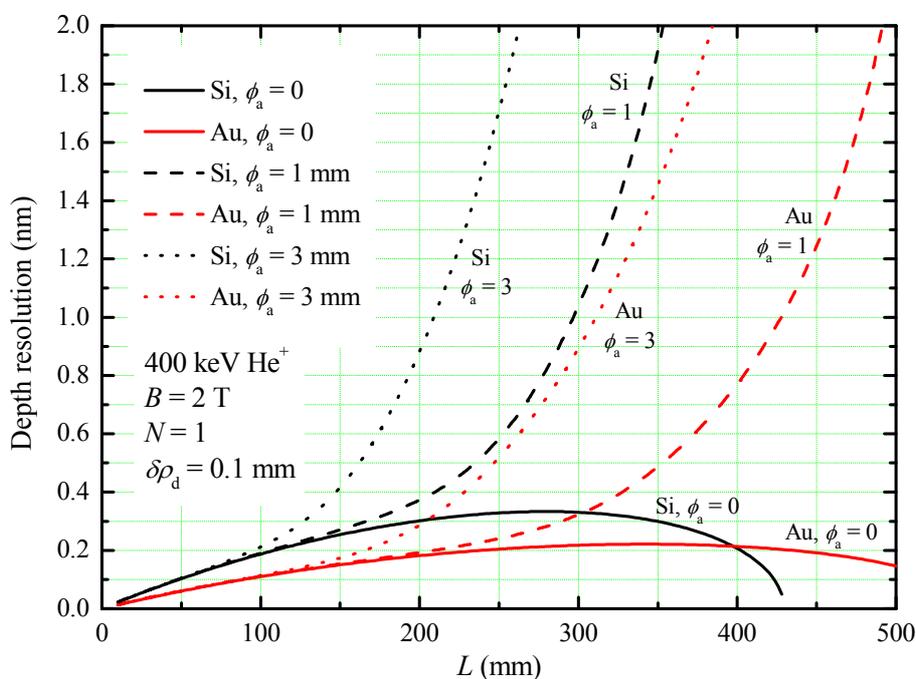


図 3-14 エネルギー・ロス・ストラグリングを無視して計算した、 $L$  の関数としての深さ分解能。アパーチャ直径  $\phi_a$  は 0、1、3 mm とし、400 keV  $\text{He}^+$  が Si および Au に入射した場合を計算した。磁場強度  $B = 2 \text{ T}$ 、検出器の位置分解能  $\delta\rho_d = 0.1 \text{ mm}$  とした。

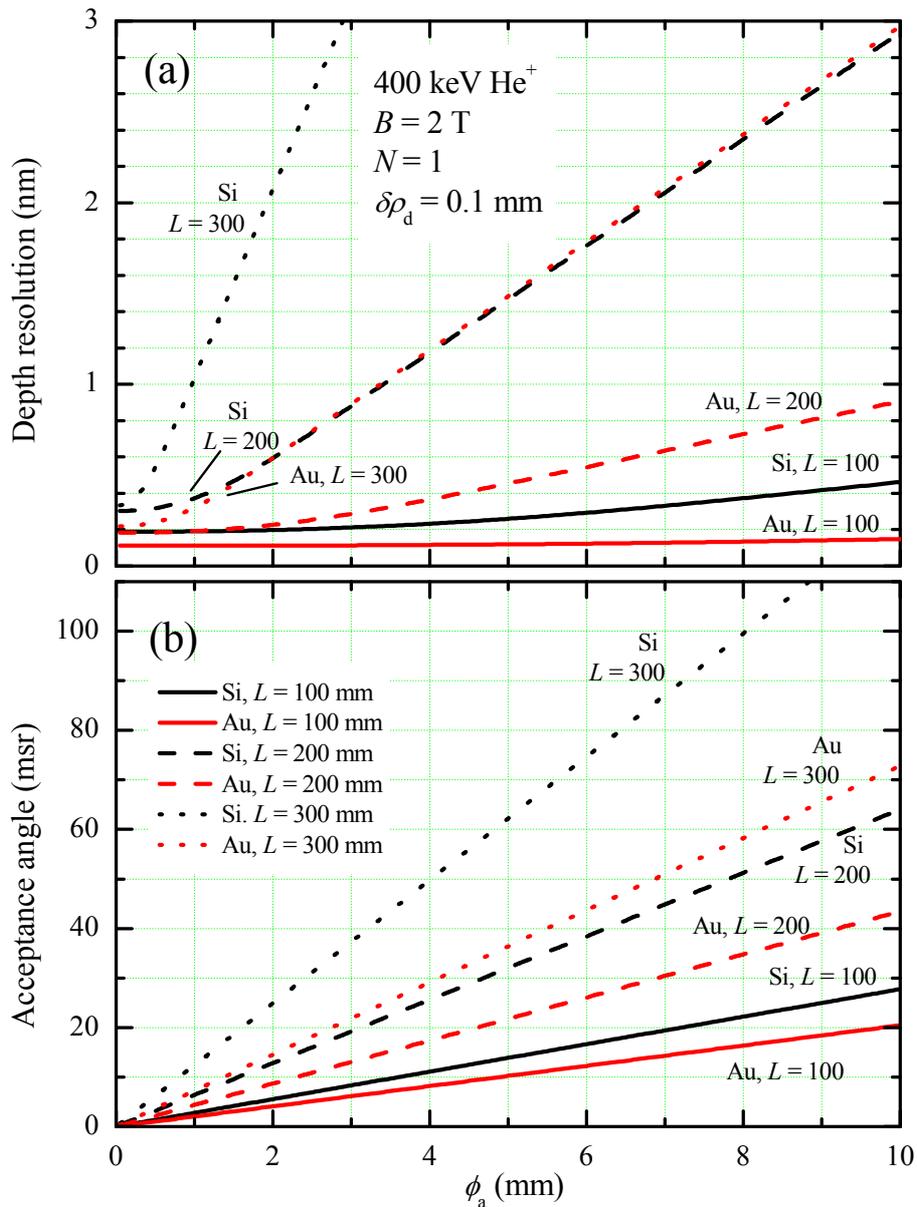


図 3-15 エネルギー・ロス・ストラグリングを無視して計算した、 $\phi_a$  の関数としての深さ分解能。試料とアパーチャとの距離  $L$  は 100、200、300 mm とし、 $400 \text{ keV He}^+$  が Si および Au に入射した場合を計算した。磁場強度  $B = 2 \text{ T}$ 、検出器の位置分解能  $\delta\rho_d = 0.1 \text{ mm}$  とした。

次に、深さ分解能に対するエネルギー・ロス・ストラグリングの影響を考える。イオンが試料中を進む場合、エネルギー損失を起こすが、同一エネルギーを持ったイオンが同じ距離進んだとしても、その損失量はエネルギー・ロス・ストラグリングの統計的な揺らぎにより一定ではなく、ガウス分布で近似されるエネルギー広がりを持つ。イオンが試料の同じ深さの同じ原子から散乱された場合でも、このエネルギー広がりにより 2D-PSD における検出位置の広がりを引き起こし、前節で考えた有限のアパーチャサイズによる検出位置の広がりに加わった形と

して現れる。入射軌道におけるエネルギー・ロス・ストラグリングによる検出器位置の広がり  
は、

$$\begin{aligned}\delta\rho_{\text{in}} &= \frac{\partial\rho(D)}{\partial\Delta E_{\text{in}}}\delta E_{\text{in}} \cong \frac{\partial\rho_{\text{d0}}}{\partial\Delta E_{\text{in}}}\delta E_{\text{in}} \\ &= \frac{1}{2\rho_{\text{d0}}(M_1+M_2)}\left(\frac{L}{\pi}\right)^2\frac{\delta E_{\text{in}}}{E_{\text{in}}}\left\{(M_2-M_1)\frac{E_{\text{in}}}{E_c}-M_1\sqrt{\frac{E_{\text{in}}}{E_c}}\right\}\end{aligned}\quad (3-54)$$

で与えられる。ただし、 $\delta E_{\text{in}}$  は入射軌道においてイオンが失うエネルギーのエネルギー広がり  
である。同様のことは出射軌道においても生じ、損失エネルギー広がりをも  $\delta E_{\text{out}}$  として、検出位  
置広がり、

$$\begin{aligned}\delta\rho_{\text{out}} &= \frac{\partial\rho(D)}{\partial\Delta E_{\text{out}}}\delta E_{\text{out}} \cong \frac{\partial\rho_{\text{d0}}}{\partial\Delta E_{\text{out}}}\delta E_{\text{out}} \\ \delta\rho_{\text{out}} &= \frac{1}{2\rho_{\text{d0}}(M_1+M_2)}\left(\frac{L}{\pi}\right)^2\frac{\delta E_{\text{out}}}{E_s}\left\{(M_2-M_1)\frac{E_{\text{in}}}{E_c}-M_1\sqrt{\frac{E_{\text{in}}}{E_c}}\right\}\end{aligned}\quad (3-55)$$

となる。これらの現象は独立であるため、エネルギー・ロス・ストラグリングにより生じる検  
出位置の広がり、

$$\delta\rho_{\text{str}} = \sqrt{\delta\rho_{\text{in}}^2 + \delta\rho_{\text{out}}^2}\quad (3-56)$$

と書ける。これに、2D-PSD の位置分解能(ガウス関数で表される)を含めると、深さ  $D$  での散  
乱に対する検出位置広がり、

$$\delta\rho_{\text{d,s}} = \sqrt{\delta\rho_{\text{d}}^2 + \delta\rho_{\text{str}}^2}\quad (3-57)$$

となる。さらに、エネルギー分離アパーチャのサイズによる効果を含めると、トータルを検出  
位置広がり  $\delta\rho_{\text{total}}$  は、 $\delta\rho_{\text{a}}$  の幅をもつ矩形関数と、 $\delta\rho_{\text{d,s}}$  の半値幅をもつガウス関数の畳み込みで  
評価できる。したがって、深さ  $D$  におけるエネルギー・ロス・ストラグリングの効果を含んだ  
深さ分解能は、次式で与えられる。

$$\delta D = \delta\rho_{\text{total}}[S_{\rho}]^{-1}\quad (3-58)$$

条件  $B=2\text{ T}$ 、 $\delta\rho_{\text{a}}=0.1\text{ mm}$  において、 $400\text{ keV}$  の  $\text{He}^+$  イオンが  $\text{Si}$  および  $\text{Au}$  に入射した場合の  
深さ  $D$  に対する深さ分解能を計算した。エネルギー分布の半値全幅(FWHM)で定義される、入  
射および出射軌道における損失エネルギー広がり、単位長さあたりのストラグリングの標準  
偏差  $\sigma_{\text{in}}$  および  $\sigma_{\text{out}}$  を用いてそれぞれ、

$$\delta E_{\text{in}}^2 = 8\ln 2 \cdot K^2 \sigma_{\text{in}}^2 D\quad (3-59)$$

$$\delta E_{\text{out}}^2 = 8\ln 2 \cdot \sigma_{\text{out}}^2 \frac{D}{|\cos\theta|}\quad (3-60)$$

と表される。ただし、 $K$  は式(2-4)で見た、イオンと原子の散乱における弾性散乱因子である。これら標準偏差の計算には Yang らの半経験式[2.12]を用いた。図 3-16 に、いくつかの $\phi_a$ と $L$ に対して計算した、深さ $D$ の関数としての深さ分解能を示す。深さ分解能は深さとともに劣化するが、Si に対しては、 $L=100$  mm、 $\phi_a=10$  mm とすれば、3.5 nm より浅い表面近傍ではサブ nm の深さ分解能で測定可能なことがわかる(このとき立体角は 28 msr である)。Au に対しては、 $L=300$  mm、 $\phi_a=3$  mm とすれば、1.8 nm より浅い領域でサブ nm の深さ分解能が得られる(このとき立体角は 22 msr である)。

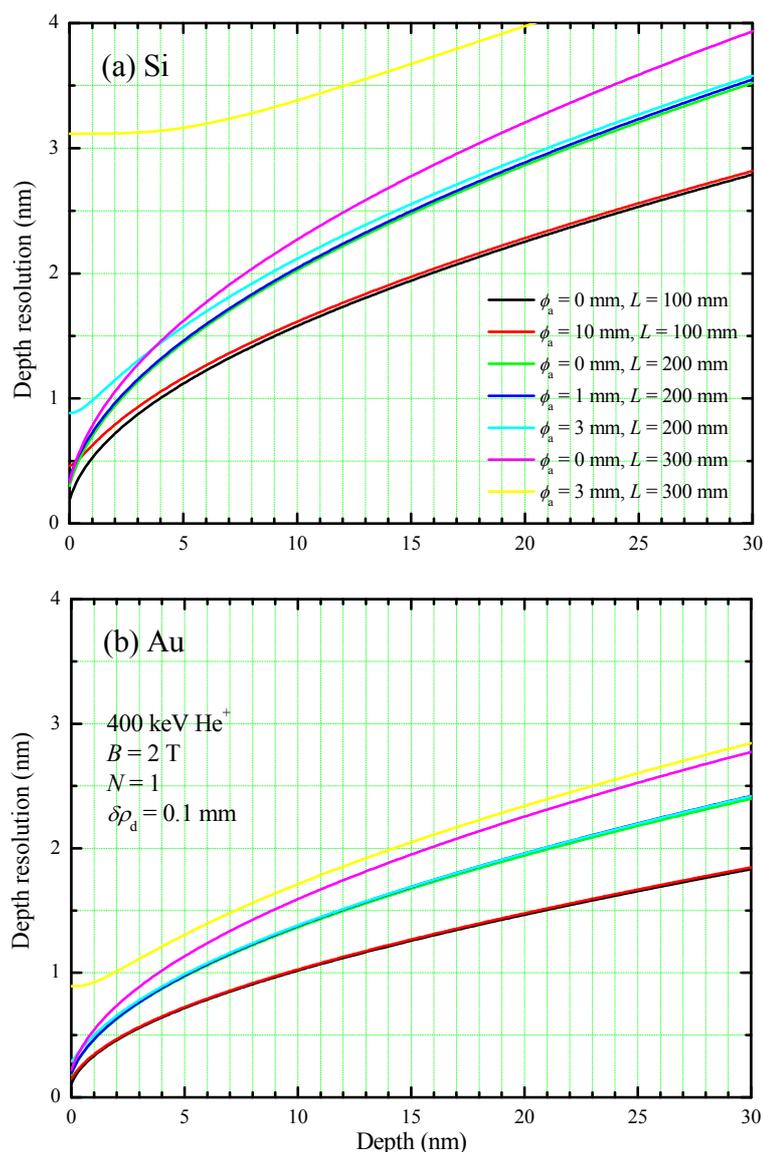


図 3-16 いくつかの $\phi_a$ と $L$ に対して計算した、深さの関数としての深さ分解能。(a)は標的原子が Si の場合、(b)は Au の場合で、入射イオンは 400 keV  $\text{He}^+$ 、 $B = 2$  T、 $\delta\rho_d = 0.1$  mm として計算した。

### 3.3 スペクトル・シミュレータの開発

図 3-3 で見たように CRBS では、2D-PSD 上の径方向の検出位置に対して散乱イオンのエネルギーと散乱角が変化する。このため CRBS では、従来の RBS に比べより多くの情報量が一度に得られる可能性を有する反面、データの直感的な理解が困難になると考えられ、スペクトル・シミュレータの利用が必須となる。本節では、従来の RBS におけるスペクトル・シミュレータをベースに CRBS 用のスペクトル・シミュレータを開発し、CRBS で観測される位置スペクトルを得る。

シミュレータ開発のベースとした、従来の RBS のスペクトル・シミュレータの計算手順は次のようになる。

- (i) ある組成分布を仮定する。
- (ii) 仮定分布を深さ方向に薄いスラブに分割する。
- (iii) 各スラブからの散乱エネルギーと散乱量を計算する。
- (iv) 各スラブの寄与を総和してエネルギー Spektrum  $F_{\text{RBS}}(E_{\text{out}}, \theta)$  を得る。

また、従来 RBS のシミュレータ内部の計算における阻止能の計算には Ziegler らの半経験式 [2.8] を、電子遮蔽の効果を考慮した微分散乱断面積の計算には Mendenhall らのアルゴリズム [2.5] を、エネルギー・ロス・ストラグリングの計算には Yang らの半経験式 [2.12] を用いている。

従来 RBS のスペクトル・シミュレータで得られるエネルギー Spektrum  $F_{\text{RBS}}(E_{\text{out}}, \theta)$  に対して、引数の変換およびエネルギーから位置への変換、立体角の変換を行うことにより、CRBS システムにおける位置 Spektrum が次式のように表現される。

$$F_{\text{CRBS}}(\rho_d) = F_{\text{RBS}}(E_{\text{CRBS}}, \theta_{\text{CRBS}}) \frac{\Delta\Omega_{\text{CRBS}}}{\Delta\Omega_{\text{RBS}}} \frac{\partial E_{\text{CRBS}}}{\partial \rho_d}, \quad (3-61)$$

ただし、 $\theta_{\text{CRBS}}$  は式(3-11)で与えられる CRBS における散乱角、 $\Delta\Omega_{\text{CRBS}}$  は式(3-22)で与えられる CRBS の立体角である。最後の項  $\partial E_{\text{CRBS}}/\partial \rho_d$  に式(3-10)の結果を用い、CRBS における特性エネルギー  $E_c$  を用いて式(3-61)を書き直すと、

$$F_{\text{CRBS}}(\rho_d) = \frac{1}{\Delta\Omega_{\text{RBS}}} \cdot F_{\text{RBS}}(E_{\text{CRBS}}, \theta_{\text{CRBS}}) \cdot \frac{8\pi^2 E_c \phi_d}{L\sqrt{L^2 + \pi^2 \rho_d^2}} \quad (3-62)$$

となる。したがって、従来の RBS のスペクトル・シミュレータにおいて、CRBS システムにおけるエネルギー  $E_{\text{CRBS}}$  と散乱角  $\theta_{\text{CRBS}}$  を用いて計算を行い、他の係数を乗算することにより、CRBS における位置 Spektrum を得ることができる。ここで、エネルギー  $E_{\text{CRBS}}$  は、式(3-10)を  $E_c$  を用いて表した、

$$E_{\text{CRBS}} = E_c \left( 1 + \left( \frac{\pi \rho_d}{L} \right)^2 \right) \quad (3-63)$$

を使えばよい。

基板 Si の上に厚み 3 nm の HfO<sub>2</sub> 層が存在する試料構造を仮定して CRBS スペクトルを計算した結果を図 3-17 に示す。計算に用いた入射イオンは 400 keV He<sup>+</sup> とし、 $B = 2$  T、 $Q = 10 \mu\text{C}$ 、 $L = 300$  mm、 $\phi_a = 3$  mm とした。ただし、散乱ヘリウムの 1 価のイオン化効率と検出器の検出効率はともに 100 % としている。図の横軸は 2D-PSD 上における  $z$  軸からの距離  $\rho_d$ 、縦軸は単位距離あたりのカウント数である。検出半径  $\rho_d = 148$  mm 付近のピークは Hf 元素からの散乱 He<sup>+</sup> による信号を示しており、Si の基板信号の立ち上がりは 109 mm 付近に、O のピークは 62 mm 付近に現れている。重元素からの信号は大きな  $\rho_d$  に、軽元素からの信号は小さな  $\rho_d$  に現れており、図 3-9 の結果と合う。また、軽元素からの信号は相対的に弱いことがわかる。シリコンの立ち上がり付近の 2 つの小さなステップ(107 mm と 109 mm)が見えているが、これは Si の同位体である <sup>29</sup>Si と <sup>30</sup>Si に対応している。

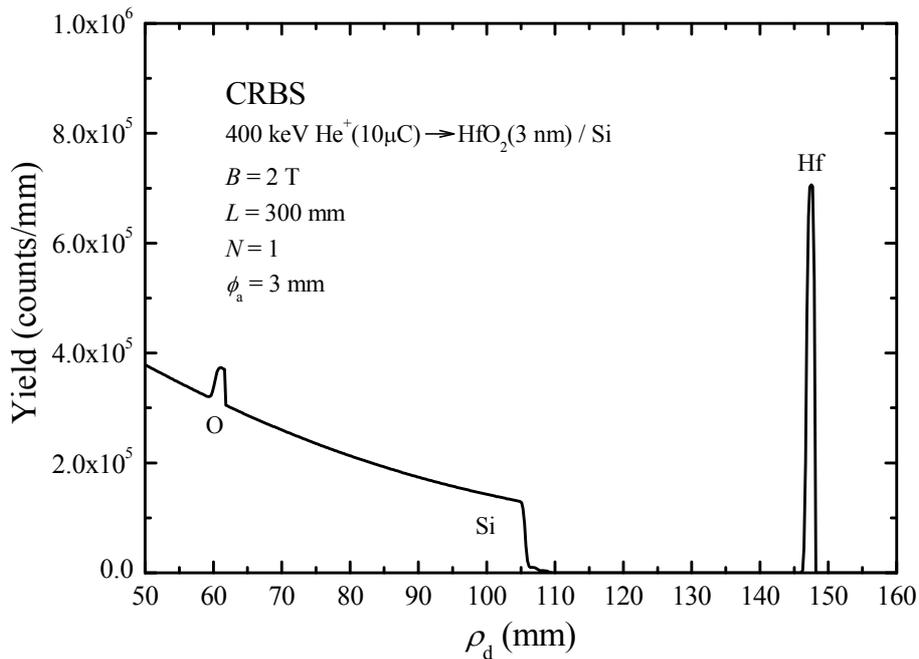


図 3-17 基板 Si の上に厚み 3 nm の HfO<sub>2</sub> 層が存在する試料構造を仮定して計算した CRBS スペクトル。入射イオンは 400 keV He<sup>+</sup>、 $B = 2$  T、 $Q = 10 \mu\text{C}$ 、 $L = 300$  mm、 $\phi_a = 3$  mm の条件で計算した。

比較のため、同じ照射量で立体角を 0.4 msr とし、散乱角を図 3-17 の表面 Hf から散乱されて検出される場合と同じ散乱角 123°を用いて HRBS スペクトルを計算した結果を図 3-18 に示す。

両者のスペクトル形状は類似しており、CRBS スペクトルから直感的に試料構造が推測できることがわかる。同じ照射量で、同様の散乱角における比較であるが、CRBS における収量は HRBS の約 50 倍であり、これは、同じ統計誤差でスペクトルを得る場合、50 倍の速度で測定が可能であることを示している。また、両スペクトルの Si や O の信号強度を比較してわかるように、CRBS は軽元素の相対強度が HRBS のそれに対して高い。これは、軽元素を取得する  $\rho_d$  の小さな領域では立体角が大きくなるためであり、この、軽元素に対する感度が高いという特長は CRBS を用いる際の利点と言える。さらに、HRBS では磁場型スペクトロメータのエネルギーウィンドウが限られているため、図 3-18 で示したようなエネルギー範囲のスペクトルを取得するには 4 段階以上の磁場強度の変更が必要であるが、CRBS では 1 段階の磁場強度設定で図 3-17 のスペクトルを取得することができるため、実際の測定速度は上記 50 倍よりさらに 4 倍以上速くなる。

ただし、本 CRBS スペクトル・シミュレータでは、エネルギー分離アパーチャのサイズに起因する分解能の劣化については考慮していないので注意が必要である。

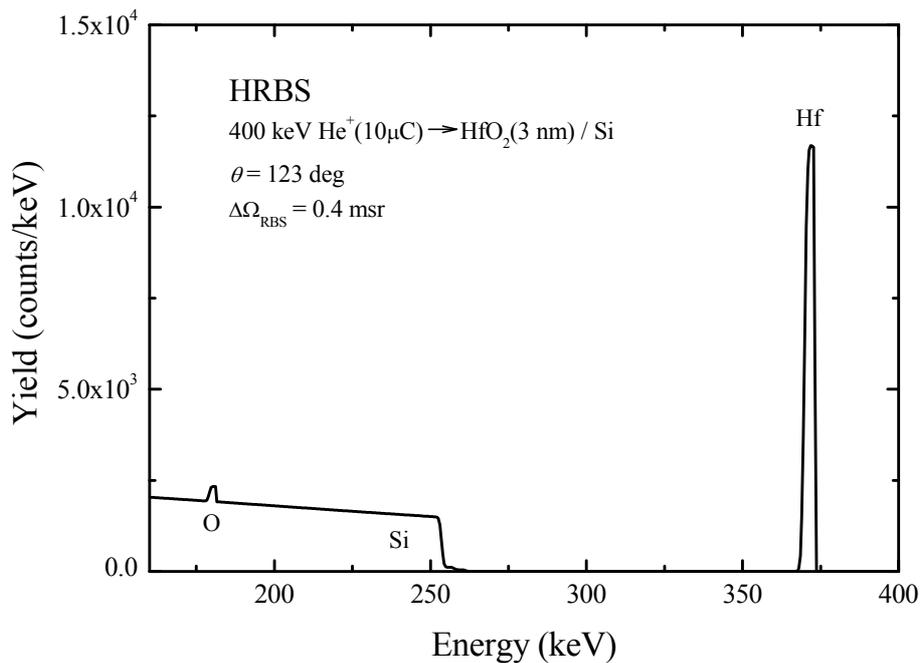


図 3-18 基板 Si の上に厚み 3 nm の HfO<sub>2</sub> 層が存在する試料構造を仮定して計算した HRBS スペクトル。入射イオンは 400 keV He<sup>+</sup>、 $Q = 10 \mu\text{C}$ 、 $\theta = 123^\circ$ 、 $\Delta\Omega_{\text{RBS}} = 0.4 \text{ msr}$  の条件で計算した。

### 3.4 CRBS の特徴と各種 RBS 分析装置との比較

3.1~3.3 節で明らかになった CRBS 分析装置の特徴について、第 2 章で見た各種 RBS 分析装置と比較してまとめると次のようになる。

- エネルギー分解能：検出器で検出されるイオンのエネルギー  $E$  とともに高くなり、 $E$  が 400 keV 以下のとき、相対エネルギー分解能は 0.12% まで向上する。 $L$  が小さいほど高いエネルギー分解能が得られるが、 $L = 300$  mm の場合、140 keV 以上のエネルギーで 1% 以下と MEIS や HRBS と同等の高い相対エネルギー分解能を有する。
- 立体角：検出半径位置  $\rho_d$  に依存して変化し、 $10 < \rho_d < 160$  mm の範囲で 2.3~200 msr の値をとるが、ほとんどの  $\rho_d$  の範囲で 5 msr 以上であり、MEIS の 100 倍、HRBS の 10 倍以上、標準 RBS と同等の大きな立体角を有する。
- 質量分解能：質量数 90 amu 以下の元素に対し、1 amu 以下の質量分解能で分析可能であり、MEIS や HRBS と同等の高い質量分解能を有する。
- 深さ分解能：試料表面の Si に対し、0.2 nm の深さ分解能を有し、MEIS や HRBS と同等である。また、深さ 3.5 nm まではサブ nm の深さ分解能で分析可能である。
- 得られるスペクトル：従来の各種 RBS で得られるエネルギースペクトルと類似した形状の位置スペクトルが得られる。CRBS のスペクトルは従来 RBS に比較して、軽元素に対する感度が高い。

さらに、チャネリング測定やブロッキング測定の可能性について触れておく。CRBS の光学系では、同一散乱角について方位角方向全ての散乱イオンを捕捉することが可能であるため、検出器に現れるスペクトルは結晶構造をそのまま反映したものが得られる。すなわち、複数の方向のブロッキングパターンを一度に得ることが可能であり、結晶構造の解析にも有用な情報を与える。

### 3.5 まとめ

CRBS の性能としてエネルギー分解能、立体角、質量分解能、深さ分解能を解析的に評価する公式を導いた。概して、試料-エネルギー分離アパーチャ間の距離  $L$  やアパーチャの直径  $\phi_a$  を小さくするとエネルギー分解能、質量分解能、深さ分解能ともよくなるが、立体角は小さくなる。 $L$  や  $\phi_a$  を適切に選択すれば、10 msr 以上の大きな立体角と、HRBS や MEIS 並みの分解能を同時に実現できることを明らかにした。

次に、散乱イオンのスペクトル・シミュレータのためのスペクトル計算の基礎公式を導出し、プログラムコードを完成させた。シミュレータで得られた CRBS スペクトルは、通常の RBS スペクトルと類似していることがわかった。

## 参考文献

- [3.1] C. Ichihara, A. Kobayashi, K. Inoue, and K. Kimura, Nucl. Instr. Meth. B **229** (2005) 527.
- [3.2] Hasting Jr, *Approximations for digital computers* (1955) Princeton Univ. Press. Princeton, NJ.
- [3.3] C. Ichihara, A. Kobayashi, K. Inoue, and K. Kimura, submitted to Nucl. Instr. Meth. B.

## 第4章 CRBS 分析装置の開発

本章では、中エネルギー(数百 keV)の散乱 He イオンを適当なサイクロトロン半径で捉えるための一様強磁場(2 T)を発生させる無冷媒超電導磁石と、イオン源、500 kV 小型加速器、ビーム収束デバイスとを組み合わせで構築した CRBS システムについて述べる。また、実際に製作した装置の特性試験から装置各コンポーネントの性能を評価する。

以下 4.1 節では、装置の設計概念について説明し、4.2 節では、CRBS 分析装置の装置構成と主なコンポーネントについて述べる。4.3 節では、CRBS スペクトロメータの特性評価として、均一度が要求される磁場分布の測定と結果の評価を行い、4.4 節ではプローブとして用いる加速 He<sup>+</sup>ビームの特性について示す。

### 4.1 設計概念

設計にあたっては、従来の各種 RBS 装置に比べ、高分解能、大立体角を両立する性能が実験室レベルのコンパクトさで実現できることを目指した。実際には、鉛直方向の強磁場を発生させる超電導磁石の上に加速器を搭載する構造となるため、装置全体の高さが 2.5 m 以内に収まり、かつ、メンテナンスなどのため容易に加速器がスペクトロメータから分離できるような構成を目指した。本システムのウェハ検査装置としての適用をねらい、TEG(test element group)測定のための収束ビーム( $\phi$  50  $\mu$ m)を得ること、6 インチウェハを導入するための改造ができるような設計とした。また、管理区域不要となるよう加速器内外の効果的な放射線遮蔽によって装置表面から 10 cm 地点における漏洩 X 線量を 0.6  $\mu$ Sv/hr 以下に抑えることとした。

### 4.2 装置構成

本研究で開発したシステムは加速器部、スペクトロメータ部を上下に組み合わせ、他に制御・信号処理部と、測定・制御用 PC で構成される。図 4-1 に製作した装置の構成図を、図 4-2 に外観写真を示すが、装置全体の大きさは、幅 1.8 m、奥行き 1.4 m、高さ 2.5 m とコンパクトである。加速器部は、ヘリウムガスをイオン化する PIG 型イオン源(図 4-1(1))、不純物イオン除去のためのウィーンフィルタ(図 4-1(2))、イオンを加速するため最大 500 kV の高電圧を発生する Cockcroft-Walton 型高電圧電源(図 4-1(3))、イオンを高電圧で加速する加速管(図 4-1(4))から構成されており、図 4-2 に示すような架台に固定され架台ごとスペクトロメータ上に搭載される。スペクトロメータ部は、主に無冷媒超電導磁石(図 4-1(6))、上下 2 つの特殊形状の磁極(図 4-1(7))、中心に開口を有する 2D-PSD、エネルギー分離アパーチャ、試料ホルダからなり、後者 3 つはすべて強磁場中に設置される特殊な光学系が実現される。無冷媒超電導磁石は、 $\phi$  340 mm  $\times$  770 mm の空間に最高 2 T の鉛直方向の磁場を発生させることができ、システムは 3 台のターボ分子ポンプ(図 4-1(8))によりベース真空度  $1 \times 10^{-5}$  Pa まで到達する。

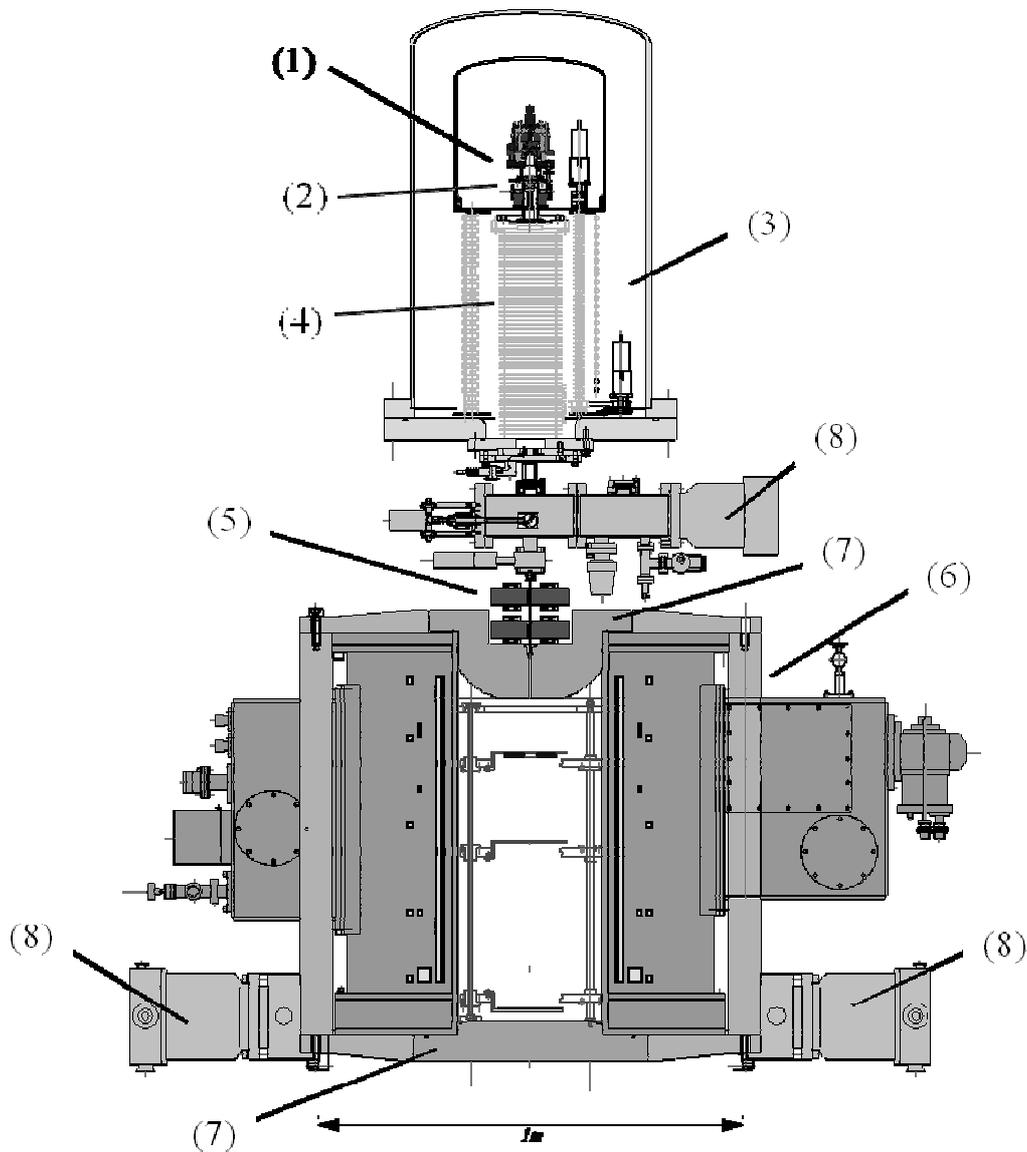


図4-1 CRBS 分析装置の構成図。全体のサイズは、幅 1.8 m、奥行き 1.4 m、高さ 2.5 m であり、主に、加速器部とスペクトロメータ部にわかれる。(1)はイオン源、(2)ウィーンフィルタ、(3)Cockcroft-Walton 型高電圧電源、(4)加速管、(5)二連四重極磁石、(6)無冷媒超電導磁石、(7)上下2つの磁極、(8)ターボ分子ポンプ、をそれぞれ示す。

加速器で加速された 1 価の He ビームは、鉛直方向の強磁場と平行にスペクトロメータに入射する。ビームは 2D-PSD の中心開口とエネルギー分離アパーチャを順に通過し、試料に照射される。試料からの散乱  $\text{He}^+$  イオンは、軸対称磁場空間の中でサイクロトロン軌道に沿った運動を行う。3 章で導いた、エネルギーと散乱角の関係を満足する散乱イオンだけがエネルギー分離アパーチャを通過し、2D-PSD で検出されることになる。そして、それらのイオンのエネルギーと散乱角は 2D-PSD 上の検出半径位置  $\rho_d$  で決定することができる。

以下では、装置を構成する各コンポーネントについて詳述する。



図 4-2 CRBS システムの外観写真。左側に、制御・測定系機器用の 2 台のラックが設置されている。

#### 4.2.1 PIG 型イオン源システム

ヘリウムガスをイオン化させるため小型 PIG 型イオン源システムを開発し用いた。全体をコンパクトにするため、PIG 放電によるプラズマ生成のための磁場形成用永久磁石を放電室内に設置した(通常のイオン源では放電室の外側に設置される)。また、通常は加速後に設置するウィーンフィルタを、高電圧ターミナル上のイオン源直下に設置することで、加速前の低エネルギー

ギーの段階でフィルタリングが可能となり、さらなる小型化と、また、不要イオンの加速を防ぐ効果から漏洩 X 線の低減を目指した。

図 4-3 に構造を示す本イオン源システムの全体サイズは $\phi 130 \text{ mm} \times 240 \text{ mm}$  であり、最大 10 kV の引き出し電圧で、数 $\mu\text{A}$  のヘリウムイオンビームを発生させることができる。イオン源下流部に、アインツェルレンズ(図 4-3(3))を設け加速器に入射するビームを平行化し、永久磁石を用いたウィーンフィルタ(図 4-3(4))において、 $\text{He}^+$ イオンのみが選別される。

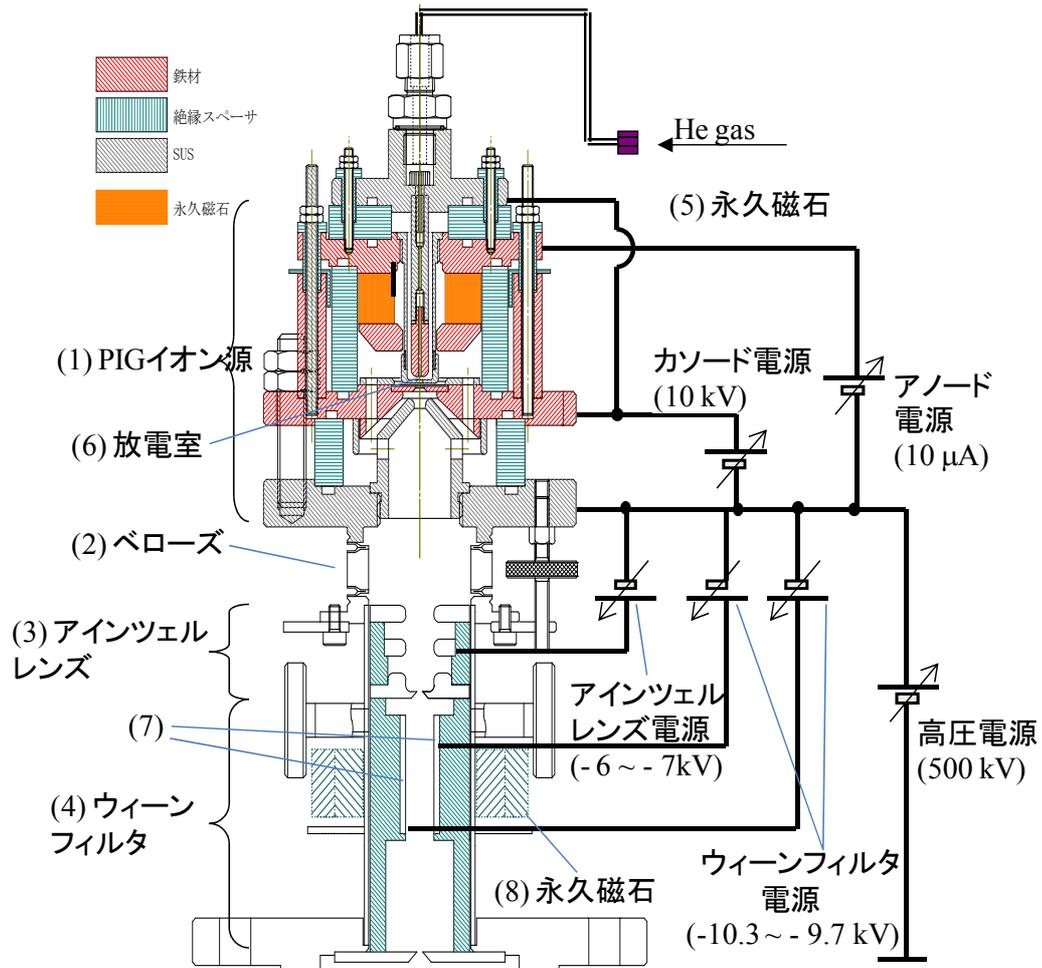


図 4-3 PIG 型イオン源システムの構成図。(1)PIG 型イオン源、(2)ビームアライメント用ベローズ、(3)アインツェルレンズ、(4)質量分離用ウィーンフィルタ、(5)PIG プラズマ生成用永久磁石、(6)PIG 放電室、(7)ウィーンフィルタ用平行平板電極、(8)ウィーンフィルタ用円環状永久磁石。

PIG イオン源単体(加速器に搭載してない状態)によるウィーンフィルタ動作試験結果を図 4-4 に示す。約 380 V の電圧を印加することにより、 $\text{He}^+$ が分離できることが確認できる。このときの He ガス供給量は 0.1 sccm、アノード電流 0.1 mA、引出電圧 10 kV、アインツェルレンズ電圧 6.1 kV であった。

また、後で述べる加速器に本イオン源を搭載して、 $\text{He}^+$ イオン電流 400 nA、発散角 0.5 mrad、ビームサイズ $\phi 1.5$  mm の 400 keV  $\text{He}^+$ ビームが得られることを確認した。

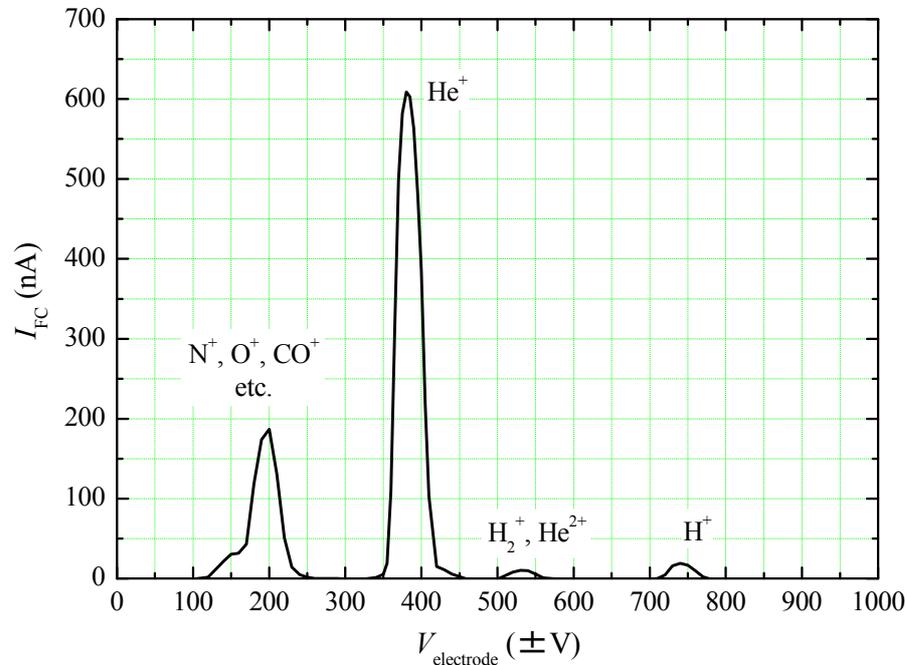


図 4-4 PIG イオン源単体(加速器に搭載してない状態)によるウィーンフィルタ動作試験結果。横軸はウィーンフィルタ電極に印加する電圧、縦軸はファラデーカップで測定したイオンビーム電流である。約 380 V の電圧印加で  $\text{He}^+$  に相当する電流ピークが、他の不純物イオンから分離されて測定されていることが確認できる。このとき、He ガス供給量は 0.1 sccm、アノード電流 0.1 mA、引出電圧 10 kV、アインツェルレンズ電圧 6.1 kV であった。

#### 4.2.2 500 kV 円筒縦型高圧電源

500 kV の直流高電圧(最大電流 100  $\mu\text{A}$ )を発生する高電圧電源は、各昇圧段を円環状とし、中心部に加速管を設置できるようになっている。図 4-5 に示すように、回路は、高耐圧のコンデンサとダイオードで構成された 40 段の通倍回路からなる Cockcroft-Walton 型であり、円環の半円部分が一段分に相当する。左右交互に下から上へと昇圧されるため、中に設置される、上から下へとイオンを加速する加速管との電位勾配をほぼ同一とすることが可能となり、異常放電を抑制することができる。各段は高耐圧コンデンサの並列接続で容量を増大させており(1 nF  $\times$  8 = 8 nF と十分大きく、リップル低減にも寄与している)、ダイオードの直列接続により耐圧性を高めた。この方法により、汎用の小型素子を用いることが可能となったため電源全体として $\phi 190 - \phi 340 \times 530$  と従来に比べ格段に小さなサイズとすることができ、小型化と低コストを実現した。本電源の内側に加速管を組み込んだ写真を図 4-6 に示す。図中赤線で示したのはイオン

源への原料ガス供給用ガラス管であり、絶縁性を増すため螺旋状に巻き付けたものである。この電源の昇圧安定性について測定した結果を図 4-7 に示す。400 kV 昇圧後 30 分から 8 時間の間の電圧変動は $\pm 38$  V と、 $\pm 10^{-4}$  以下の安定度で動作することを確認した。発生電圧リップルも $\pm 5 \times 10^{-4}$  以下( $\sim 200$  kHz)と他報告に対して遜色のない低いレベルを達成している。



図 4-5 最大 500 kV、100  $\mu$ A の Cockcroft-Walton 型高電圧電源の外観写真。ただし、電位勾配安定化のためのフープをはずした状態。電源回路は円筒状に形成されており、写真下側から左右交互かつ上に向かう 40 段の逡倍回路となっている。写真上側の高圧ターミナル部にイオン源を搭載し、イオンは円筒の内側の加速管(図示してない)を通過して上から下へと加速される。



図 4-6 円筒型高圧電源の内側に加速管を配し、また、イオン源へのガス供給のためのガラス管(赤線で図示)を巻き付けて設置している。青色の素子が高耐圧コンデンサ、黒色の素子が高耐圧ダイオード。

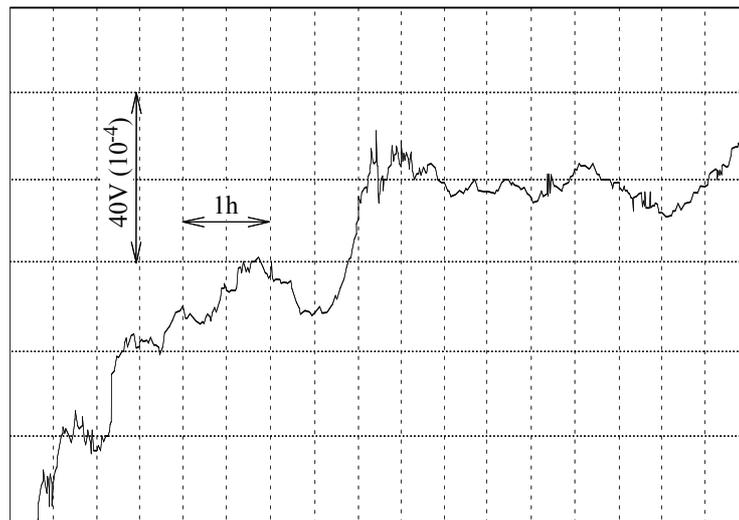


図4-7 電圧安定度の8時間測定。400 kV 出力状態において $\pm 10^{-4}$ 以下の安定度を維持している。

### 4.2.3 加速器

加速器は、イオン源とウィーンフィルタ、高電圧電源、加速管、内部制御システム、絶縁タンクから構成される。このうち、内部制御システムと絶縁タンクを除いた加速器の写真を図 4-8 に示す。加速器は2気圧の絶縁ガス(六フッ化硫黄(SF<sub>6</sub>)ガス)で満たされた絶縁タンクの中に納

められる。イオン源(図4-8(2))やガスコントロールなどの高圧ターミナル上における機器制御は横河電機製 PLC(programmable logic controller)で行われ、タンク外部との通信は光ファイバを介して行われる。また、それらへの電力供給(24 V、1.1 A)は、駆動側および発電側の2台のブラシレスモータを用いた発電機でなされる。

通常、イオン源への原料ガス導入は高圧ターミナルに設置される小型ガスポンペから行われるが、本加速器ではタンク内の省スペース化のため、ポンペをタンク外に設置することとした。そのために、接地電位部から高圧部へ螺旋状に加工した全長約7mのガラス管を用いて原料ガスを供給することで絶縁性を保つ(図4-6参照)構造としている。また、万が一の加速器内の放電による高圧ターミナル部の電気機器の破損に備え、サージアブソーバなどの保護回路を組み込んでおり、100回以上にわたる強制放電試験を実施して放電耐性を確認している。

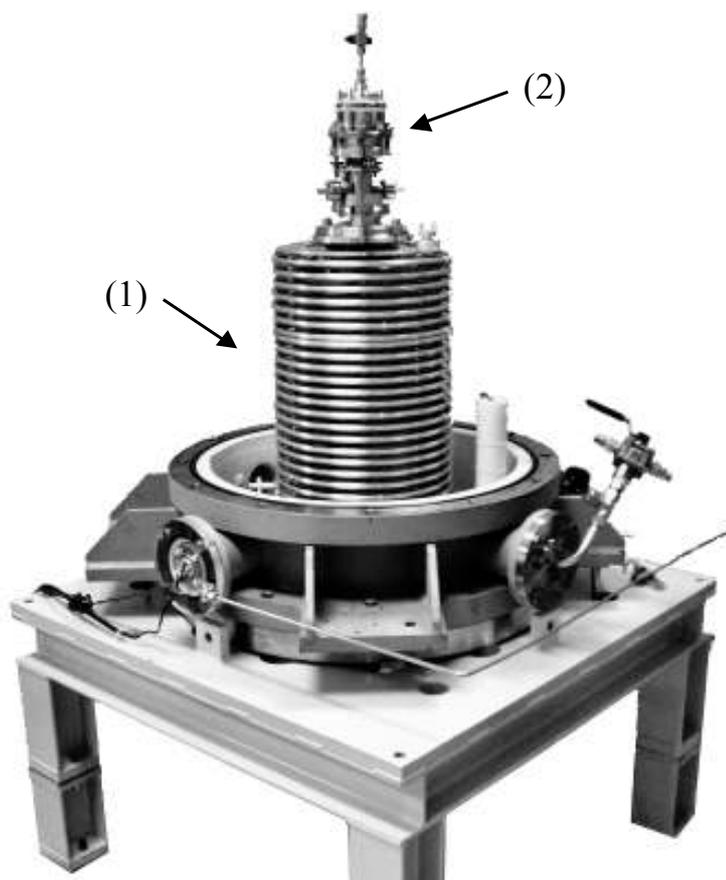


図4-8 加速器システムの外観写真。内部制御システムと絶縁タンクを除いた状態。(1)は、高電圧電源と加速管が一体となった部分、(2)はイオン源システム。

#### 4.2.4 ビーム収束デバイス

100  $\mu\text{m}$  角程度のウェハ上の TEG 測定を念頭に、試料上で  $\phi 50 \mu\text{m}$  の収束ビームを得るため、スペクトロメータ上部に二連の四重極磁石を設置した。本デバイスは  $\text{He}^+$  ビーム収束の実績があるタイプと同じ設計・サイズ[4.1, 4.2]とした。すなわち、図 4-9 に示すように、磁極長 40 mm、磁極間距離 40 mm、磁極あたりのコイル巻き数 150 ターン、ボア直径 6.5 mm、ビームダクト内径 6 mm の四重極磁石を用いた。

収束軌道の計算は輸送行列式を用いて行った。四重極磁石の輸送行列を下に示す。ここで、 $x$ 、 $y$  はイオンの座標、 $x'$ 、 $y'$  はイオンの進行方向に対する角度であり、 $s$  は磁極長である。

$$\begin{pmatrix} x \\ x' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(ks) & \frac{1}{k} \sin(ks) \\ -k \sin(ks) & \cos(ks) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x'_0 \end{pmatrix} \quad (4-1)$$

$$\begin{pmatrix} y \\ y' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cosh(ks) & \frac{1}{k} \sinh(ks) \\ -k \sinh(ks) & \cosh(ks) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ y'_0 \end{pmatrix} \quad (4-2)$$

これは、1つのレンズでは、 $x$  方向を収束させると  $y$  方向は発散する非対称なレンズであることを意味し、したがって、2つ以上組み合わせて  $x$  方向：収束(上流レンズ) + 発散(下流レンズ)、 $y$ ：発散 + 収束のような条件で用いて全体で収束効果を得るものである。ここで、電荷  $e$ 、イオンの質量  $m$ 、イオンの速度  $v$ 、集束レンズの磁場勾配  $g$ 、イオンの加速電圧  $\Phi$  とすると、 $k$  は

$$k^2 = \frac{eg}{mv} = \sqrt{\frac{e}{2m\Phi}} g \quad (4-3)$$

である。ビームが収束する条件を計算して上記  $g$  を求め、次式を用いて必要な励磁電流  $I$  を得ることができる。

$$g = \frac{2\mu_0 NI}{r_B^2} \quad (4-4)$$

ただし、 $\mu_0$  は真空の透磁率を、 $N$  はコイルの巻き数、 $r_B$  は磁極のボア半径を表している。磁極以外の磁場の存在しない部分(ドリフト空間)についても、輸送行列を定義することができる。

$$\begin{pmatrix} x \\ x' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & L_D \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x'_0 \end{pmatrix} \quad (4-5)$$

$$\begin{pmatrix} y \\ y' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & L_D \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ y'_0 \end{pmatrix} \quad (4-6)$$

ここで、 $L_D$  はドリフト空間の長さを表す。式(4-1)、(4-2)、(4-5)、(4-6)の輸送行列を順次変換していくことによってイオン軌道を求めることができる。イオン源をビーム起点として計算したビーム軌道を図 4-10 に示す。図はビーム軸方向を  $Z$  軸にとり、 $Z = 0$  をイオン源出口とし、 $Z$  軸に垂直な方向を  $X$ 、 $Y$  軸にとって表示している。両磁極コイル電流をそれぞれ 0.99 A、1.26 A

とすることにより、スペクトロメータ内超電導磁場の開始点( $Z = 1260 \text{ mm}$ )において  $\text{He}^+$ ビームを  $\phi 50 \mu\text{m}$  に絞ることができる。

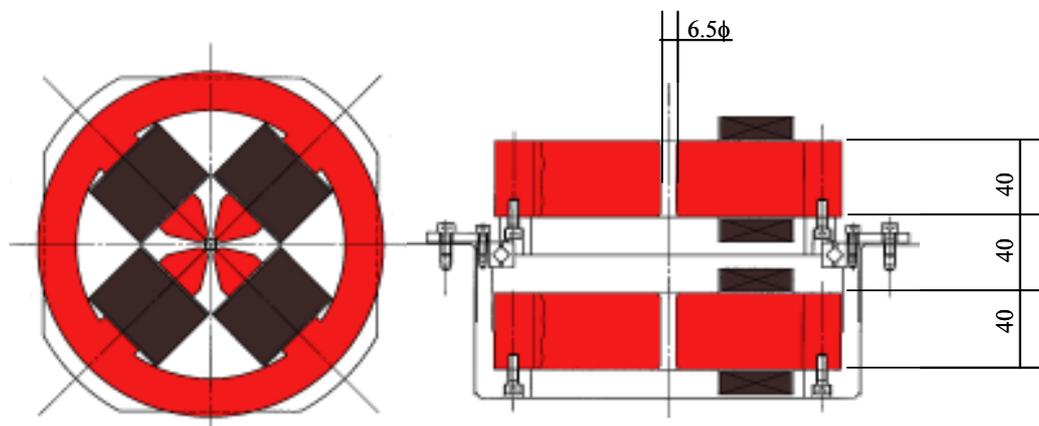


図 4-9 本システムで用いた二連の四重極磁石。磁極長 40 mm、磁極間距離 40 mm、磁極あたりのコイル巻き数 150 ターン、ボア直径 6.5 mm、ビームダクト内径 6 mm。

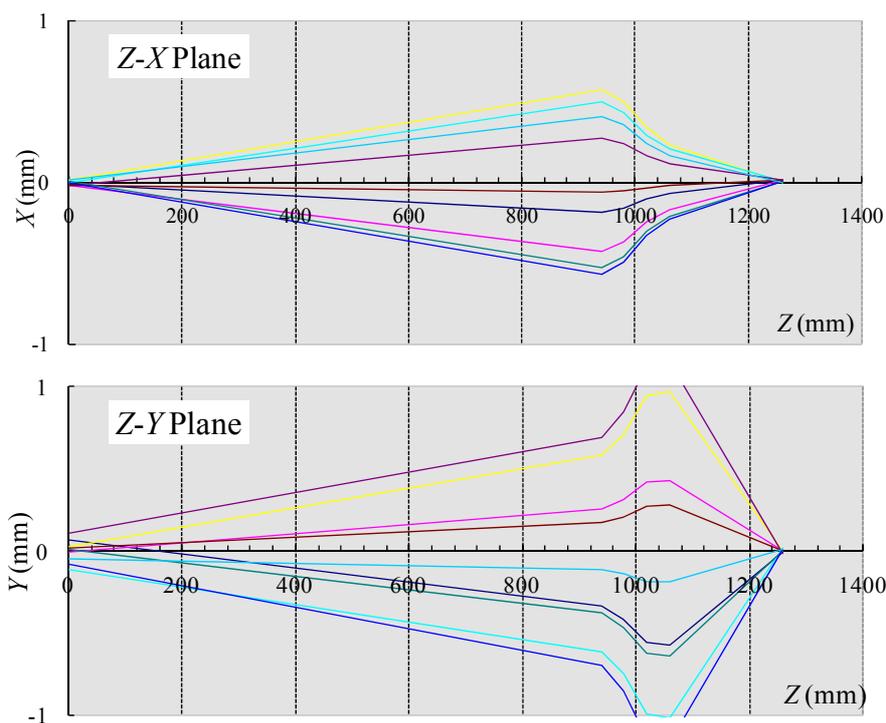


図 4-10 四重極磁石を用いたビーム軌道計算結果。両磁極のコイル電流をそれぞれ 0.99 A、1.26 A とすることにより、スペクトロメータの上側磁極の下端から 20 mm の地点( $Z = 1260 \text{ mm}$ )で  $\text{He}^+$ ビームを  $\phi 50 \mu\text{m}$  に絞ることができる。

#### 4.2.5 無冷媒超電導磁石[4.3]

超電導磁石は、散乱イオンを $\phi 340 \text{ mm} \times 770 \text{ mm}$ のチェンバ内で高精度にサイクロトロン運動させるため、均一な磁場分布を発生させる必要がある。そのため、コイルの構成としては、図4-11および表4-1に示すように主たる磁場を発生させるロングソレノイド型のメインコイルに加え、磁場均一度を向上させるため4本の補正コイルと5本の補助コイルを設置している。メインコイルと補正コイルは直列に接続された一本の、巻数約17000ターンのコイルとなっており、最大80 A(0.9 V)流すことができる。5本の補助コイルの巻数はそれぞれ400ターンであり、各々に最大20 A流すことが可能である。また、いずれのコイルも超電導材はNbTiを用いている。

磁極の材質には、飽和磁化が大きく、磁気特性がより線形であるパーメンジュール(FeCo)を用いた。超電導コイルの冷却には無冷媒のG-M(Gifford-McMahon)冷凍機を用いており、ディスプレイサの往復運動による断熱膨張により最高4 Kまで冷却可能である。実際の運転においてはメインコイル電流80 A(2 T相当)において4.8 Kを実現している。真空封止は、磁極とチェンバの接触面でOリングを用いて行っており、中に何も入れてない状態で $3.0 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ までの真空度を確認している。

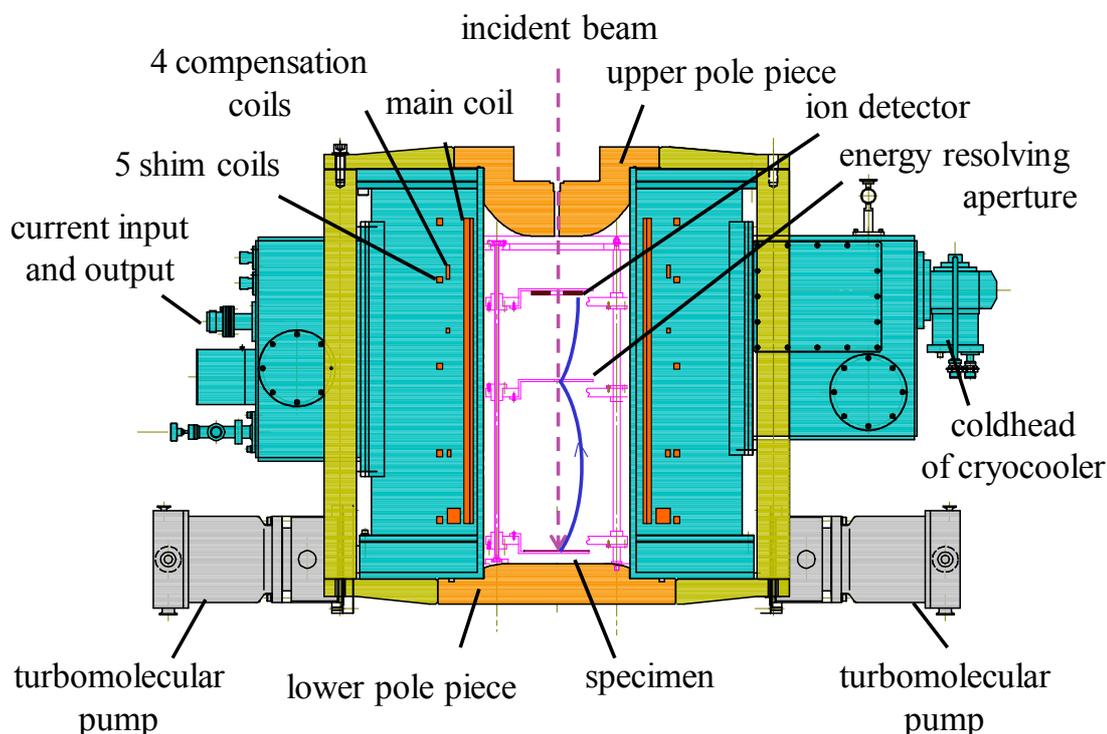


図4-11 無冷媒超電導磁石の構造。チェンバ内部空間 $\phi 340 \text{ mm} \times 770 \text{ mm}$ に縦方向の磁場を発生させる。

上下の磁極の形状は、スペクトロメータ内に突き出すなめらかな形状になっており、磁場均一化のため磁場シミュレーションコード(ELF/MAGIC、株式会社エルフ)[4.4]を使用して決定した。上側の磁極の上部には窪みを設けてあり、ここに上述した二連四重極磁石を設置する。下側の磁極は、コイル群の最適配置が可能なスペースを確保するため、およびウェハサイズの試料搬送のスペース確保のため比較的薄い形状となっている。さらに、この磁極 + リターンヨークを用いた磁気回路構造は漏れ磁場の低減にも貢献している。この効果を示したのが図4-12であり、左図が超電導コイルのみで磁場を発生させた場合の空間磁場分布(計算)、右図が磁極とリターンヨークを設置した場合の空間磁場分布(計算)である。図中白い部分が50 Gauss以上の領域で、色の付いている領域が50 Gauss以下の領域であるが、このように、磁極とヨークを設置することにより、50 Gauss以上の領域が水平距離で0.3 m小さくなっている。

表 4-1 超電導磁石の仕様。

Bore diameter	$\phi$ 340 mm
Superconducting material	NbTi
Pole piece metal	FeCo alloy (permendule)
Cooling system	4K G-M refrigerator
Field compensation system	Compensation & shim coils
Main and compensation coils	17000 turns
Shim coils	400 turns each
Maximum magnetic field	2 Tesla
Temperature in operation	4.8 K
Main coil current in operation	80 A (0.9 V)
Maximum shim coil current	up to 20 A each

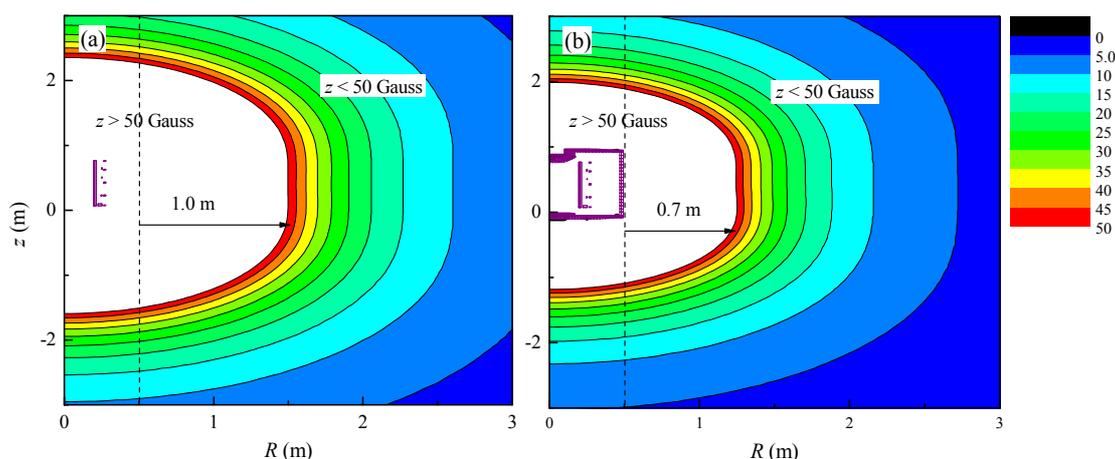


図 4-12 軸対称座標で見た空間漏れ磁場分布。(a) 空芯超電導コイルに 80 A 流した場合と磁極および、(b) リターンヨークを設置して 80 A 流した場合を示す。磁極 + リターンヨークを併用することにより漏れ磁場が減少する。

## 4.2.6 検出器系

CRBS の特徴を最大限に活かし、大立体角で散乱イオン検出を行うためには、スペクトロメータの内径( $\phi$  340 mm)ぎりぎりまでの大きな 2 次元位置検出器を用いるのが望ましい。しかしながら、このような大きさの検出器は現状存在しないため、市販で入手できるレベルで比較的大きな有効面積を有する、ディレイライン型の MCP システム(RoentDek 製 DLD80)[4.5]を準備した。本検出器は、有効径 $\phi$  80 mm の円形 MCP(3 段)と縦横に張ったワイヤによる位置検出器の組み合わせからなり 2 次元の位置検出が可能である。検出システムは約 100  $\mu\text{m}$  の位置分解能と約 1 MHz の高速カウントレートを有しており、CRBS に好適と考えられた。強磁場中で MCP の増幅率が落ちることはよく知られており、これによる検出感度の低下が懸念された[4.6, 4.7]が、磁場分布の方向が MCP 面に対し垂直であり MCP 内の電子加速を遮るものではないため、MCP のバイアス電圧増加による増幅率の向上や、パルス信号増幅器の増幅率の向上を図ることによりカバーできると考えられた。

しかしながら、次章で詳述するように、上記 MCP 増幅率の低下に加え、MCP から放出された電子群の広がりも極小になってしまい、同 MCP システムで採用しているワイヤ検出型の PSD では検出できないことが判明し、CRBS における散乱イオン検出は困難であることが分かった。

## 4.2.7 真空排気系およびイオン源原料ガス供給系

真空排気系およびイオン源原料ガス供給系の構成図を図 4-13 に示す。イオン源、加速管からビームファイндаまでのビームダクトまでは、1 台の磁気浮上型ターボ分子ポンプ(300 l/s)およびロータリーポンプにより  $1.0 \times 10^4$  Pa 以下まで排気される。高圧ターミナル上のイオン源への原料ガス供給は、絶縁耐圧を確保しながらガラス細管を螺旋状に巻くことで、絶縁タンク外部にガスポンベを設置できるようになっている。高圧ターミナル上には、原料ガス供給用マスフローコントローラ、イオン源用冷陰極放電のための各種電源、レンズやウィーンフィルタ用の電源が搭載されており、モータ発電により電力供給される。

加速器とスペクトロメータを接続するビームダクトには二次電子逆流サプレッサ、サイズ可変アパーチャ、ビームファイндаを設置している。ゲートバルブ下流にはビームアライメントのためのベロー、および、ベローの周囲には回転可能な磁気偏向器、そして、四重極磁石、スペクトロメータと続き、これらは、2 台の磁気浮上型ターボ分子ポンプ(700 l/s)とドライスクロールポンプ(250 l/m)によりベース真空度  $1.0 \times 10^5$  Pa まで到達する。

真空系や、CRBS 測定については手動操作を基本としたが、加速器内高圧ターミナル部の機器制御は、光ファイバを介した PLC 制御とし、制御 PC およびタッチパネルから操作できるようにした。

ターボ分子ポンプは、超電導磁石が励磁している間、渦電流のため高速回転できなくなる。これを避けるため、ビームラインのターボ分子ポンプには厚み 11 mm の、スペクトロメータの

ターボ分子ポンプには厚み 4.5 mm の鉄板を周囲に設置して磁気シールドを行った。これにより、ターボ分子ポンプの通常運転が可能となった。

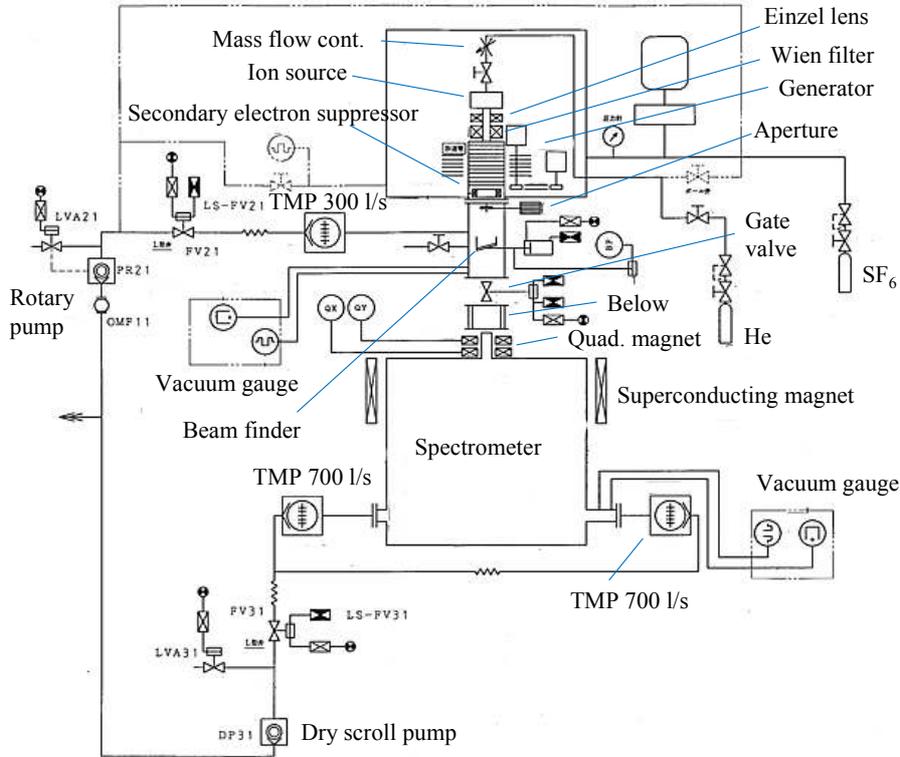


図 4-13 真空排気系およびイオン源原料ガス供給系。

#### 4.2.8 漏洩 X 線遮蔽

加速器における X 線発生の主たる原因は、加速ビームがビームライン中のアパーチャや他の箇所へ衝突して発生した二次電子の逆流加速である。逆流して来た電子はイオン源部分まで到達し、部材に衝突して X 線を発生する。本システムでは、これまで述べた、(i)ビーム加速前のウィーンフィルタによる不純物の除去、(ii)二次電子逆流サプレッサ、に加え、(iii)あらかじめ測定した漏洩 X 線発生箇所への効率的な鉛板設置、および、(iv)絶縁タンク周囲への鉛板設置、を施すことにより装置表面 10 cm の線量当量率を 0.6  $\mu\text{Sv/hr}$  未満とし、放射線発生装置の枠外での取り扱いを可能とした(管理区域不要)。

#### 4.3 CRBS スペクトロメータの特性評価[4.3]

CRBS スペクトロメータの性能は、磁場均一度に大きく影響を受ける。不均一な磁場の場合、散乱イオンは理想的なサイクロトロン軌道からずれ、エネルギー分離アパーチャを通過できなくなってしまうだけでなく、アパーチャを通過したイオンも計算で予想される 2D-PSD 上の

検出位置からずれてしまい、結果分解能の劣化を招く。したがって、散乱イオンの運動空間(最大 $\phi 340 \times 770$  mm)において均一度の高い磁場を形成する必要がある。200 - 400 keV の  $\text{He}^+$  イオンを限られたスペクトロメータ内でサイクロトロン運動させるため、2 T の強磁場を超電導磁石を用いて形成するが、通常空芯型の超電導磁石では均一磁場発生空間が小さいという短所がある。そこで、本スペクトロメータにおいては、パーメンジュール( $\text{FeCo}$ )磁極とリターンヨーク( $\phi 75 \times 965$  mm の Fe 製ロッド 16 本、図 4-14 参照)を設けることで、大空間で効率の良い磁場発生が可能となり、また、磁極形状およびコイル配置を最適化することで均一度の高い磁場を発生することが可能となった。以下では、CRBS スペクトロメータ内の磁場分布を均一化する方法とその評価結果について説明する。

まず、スペクトロメータ内の磁場分布が軸対称であることから、全体の空間磁場分布が軸上磁場分布のみを用いて表すことができることを示す。円筒座標系  $\{r, \theta, z\}$  における軸対称磁位  $\Phi(r, z)$  は  $a_n$  を係数として次式で表される。

$$\Phi(r, z) = \sum_{n=0}^{\infty} \{a_n(z)r^n\} \quad (4-7)$$

ただし、軸対称性から  $n$  が偶数の項のみで考える。次に、軸対称磁位  $\Phi(r, z)$  は、ラプラス方程式  $\nabla^2 \Phi(r, z) = 0$ 、すなわち、

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial \Phi}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} = 0 \quad (4-8)$$

を満たすから、

$$\Phi(r, z) = \sum_{n=0}^{\infty} \left\{ (-1)^n \frac{1}{(n!)^2} \left( \frac{r}{2} \right)^{2n} \Phi(0, z)^{(2n)} \right\} \quad (4-9)$$

を得る。ただし、式中右肩の  $(2n)$  は  $2n$  回の偏微分を示している。また、 $z$  軸を磁石の中心軸とし、 $z = 0$  を下側磁極の上面と定義しており、軸対称性から  $\partial \Phi / \partial \theta = 0$  を用いている。式(4-9)に対し、変数  $z$  と  $r$  に関する偏微分をとると、高次項を無視することにより、磁場分布は、

$$B_z(r, z) = B_z(0, z) - \left( \frac{r}{2} \right)^2 \frac{\partial^2 \{B_z(0, z)\}}{\partial z^2} + \frac{1}{4} \left( \frac{r}{2} \right)^4 \frac{\partial^4 \{B_z(0, z)\}}{\partial z^4} \quad (4-10)$$

$$B_r(r, z) = -\frac{r}{2} \frac{\partial \{B_z(0, z)\}}{\partial z} + \frac{1}{2} \left( \frac{r}{2} \right)^3 \frac{\partial^3 \{B_z(0, z)\}}{\partial z^3} \quad (4-11)$$

となる。ここで、 $B_r(0, z) = 0$  を用いた。式(4-10)、(4-11)から、任意座標の磁場分布は  $B_z(0, z)$  および  $B_r(0, z)$ 、すなわち中心軸( $z$  軸)上の磁場分布のみで決定され、中心軸上磁場分布が均一であるほど、全体の磁場分布も均一となることがわかる。

したがって、まず、専用の磁場分布測定装置を製作し、メインコイル(+ 補助コイル)のみに通電した場合のスペクトロメータ内の磁場分布を測定した後、中心軸上磁場分布が均一となるように補助コイル電流値を決定する、という手順で磁場の均一化を図った。

### 4.3.1 スペクトロメータ内磁場分布の測定

スペクトロメータ内の磁場分布を測定するため、専用の磁場分布測定装置を製作した。本測定装置は、ホール素子が固定されたステージが移動することによりスペクトロメータ内の任意の $\{r, \theta, z\}$ 座標における磁場成分 $B_z, B_r$ の自動測定が可能であり、磁場を乱すことのないよう非磁性材(主にアルミニウム)で構成されている。CRBS スペクトロメータと磁場分布測定装置の外観を図 4-14 に示す。プローブを支持するための棒は入射ビーム用に設けられた上側磁極の開口から導入するようになっており、各軸の駆動系はすべてスペクトロメータの上に設置されたワイヤにより行われる。各軸の測定可能ピッチは、 $r$  方向 : 0.2 mm、 $\theta$  方向 : 0.5 deg、 $z$  方向 : 0.1 mm であり、精度の高い測定が可能である。

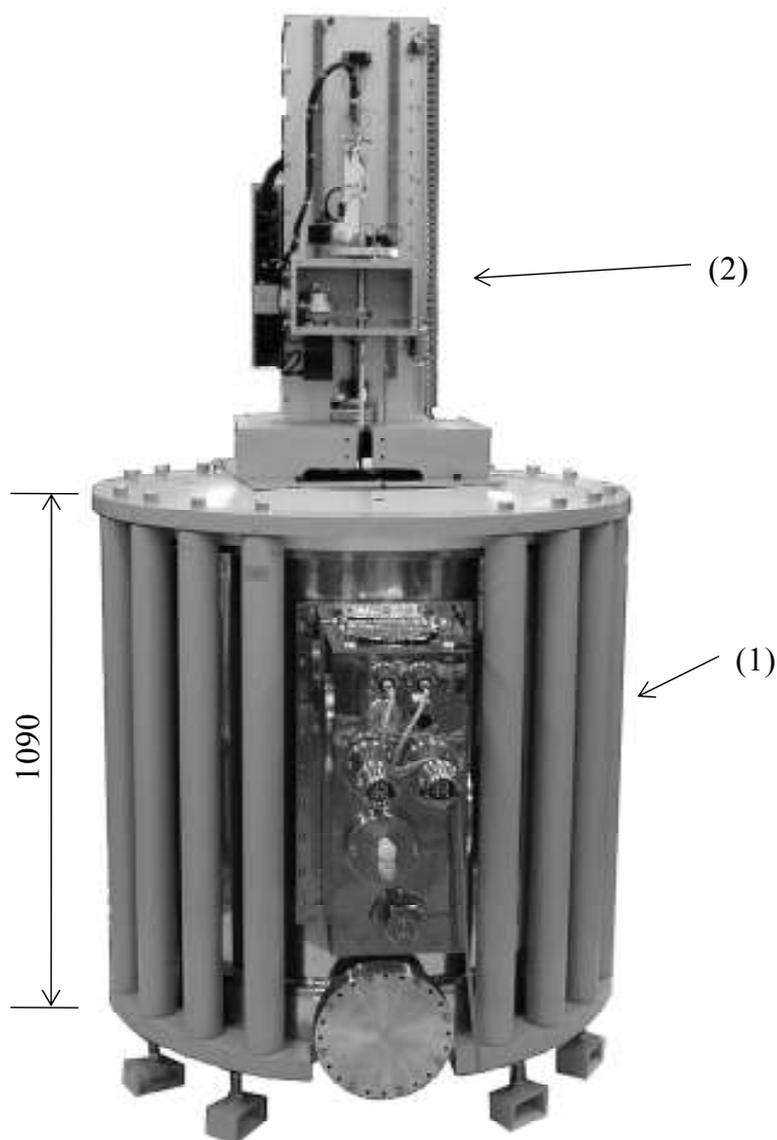


図 4-14 (1)CRBS スペクトロメータと、(2)磁場分布測定装置の外観写真。CRBS スペクトロメータの外側に設置されている長さ約 1 m のロッド(片側 8 本が見えている)はリターンヨーク。磁場分布測定装置のプローブ(ホール素子)を支持するための棒は、入射ビーム用に設けられた上側磁極の開口から導入するようになっており、ワイヤで駆動する。各軸の測定可能ピッチは、 $r$  方向 : 0.2 mm、 $\theta$  方向 : 0.5 deg、 $z$  方向 : 0.1 mm である。

メインコイル(+補正コイル)のみに 10 ~ 80 A 流した場合に、磁場分布測定装置を用いて  $z$  軸上の  $B_z$  の測定を行った結果を図 4-15 に示す。図は、 $B_z$  を  $z$  に対してプロットしており(黒丸)、磁場シミュレーションによる計算結果(赤線)とともに示してある。 $B_z$  は、70 A 付近まで電流にほぼ比例して上昇するが、70 A 以上では上昇は緩やかになる。測定と計算結果は、 $140 < z < 700$  mm の範囲において  $\pm 0.02\%$  以内で一致しており、計算および測定の信頼度が確認された。

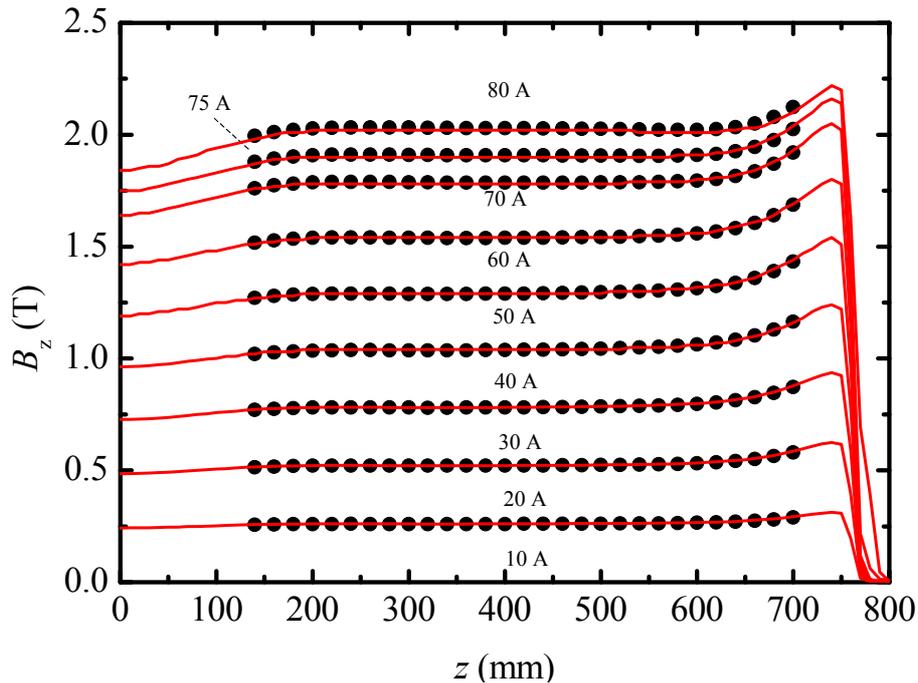


図 4-15 メインコイル(+補正コイル)のみに 10~80 A 流した場合の  $B_z(0, z)$  の測定結果(黒丸)と、計算結果(赤線)。両者は、 $140 < z < 700$  mm の範囲において  $\pm 0.02\%$  以内で一致した。

5 本の補助コイルの電流は、磁場解析により、メインコイルによる発生磁場との総和が均一となるように決定した。両コイルによる  $z$  軸上の磁場の総和は次式で表すことができる。

$$B(0, z) = B_{\text{main}}(0, z) + \sum_{i=1}^5 \{F_i I_i (I_{\text{main}})\} \quad (4-12)$$

ただし、 $F_i$  は補助コイル  $i$  に 1 A 流した場合に  $z$  軸上に生じる磁場強度(T/A)であり、 $I_i$  は補助コイル電流である。シミュレーションにより求めた  $F_i$  を図 4-16 に示す。図には参考のため、各補助コイルの  $z$  軸方向の位置も四角で示してある。これを用いて  $I_{\text{main}} = 80$  A の場合に、 $210 < z < 620$  mm の範囲で磁場強度が最も均一となるように、Microsoft Excel のソルバー機能を用いて  $I_i$  を求めた結果、補助コイル電流は、補助コイル 1( $z = 70$  mm)から順に、+9.760、-6.809、+5.494、+9.855、+2.340 A となった。補助コイル電流  $I_i$  を流した場合と流さない場合の磁場測定結果および計算結果を図 4-17 に示す。補助コイルの効果は明瞭に表れており、補助コイル電流を流すことにより、 $z$  軸上磁場均一度は  $\pm 0.29\%$  から  $\pm 0.098\%$  (両者の差の最大値で評価)まで改善された。同じ条件における 2 次元( $r, z$ )の磁場分布を図 4-18 に示す。図 4-18(a)は、メインコイルのみの場合の測定磁場分布、図 4-18(b)は、補助コイルを援用した場合の測定磁場分布である。2 次元で見ても、補助コイル電流を流した効果は表れており、 $\Delta B / B < \pm 0.1\%$  の最も均一度の高い白色の領域が拡大していることが分かる。

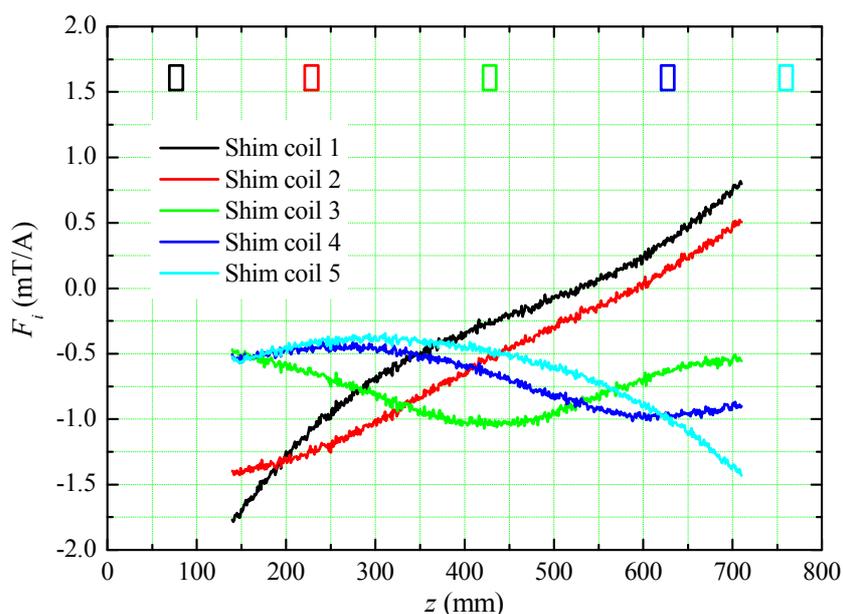


図4-16 補助コイル $i$ に1 A 流した場合に $z$ 軸上に生じる磁場強度(mT/A)を $z$ 座標に対してプロットした。図上側にある5個の四角は各補助コイルの $z$ 方向の位置を示している。

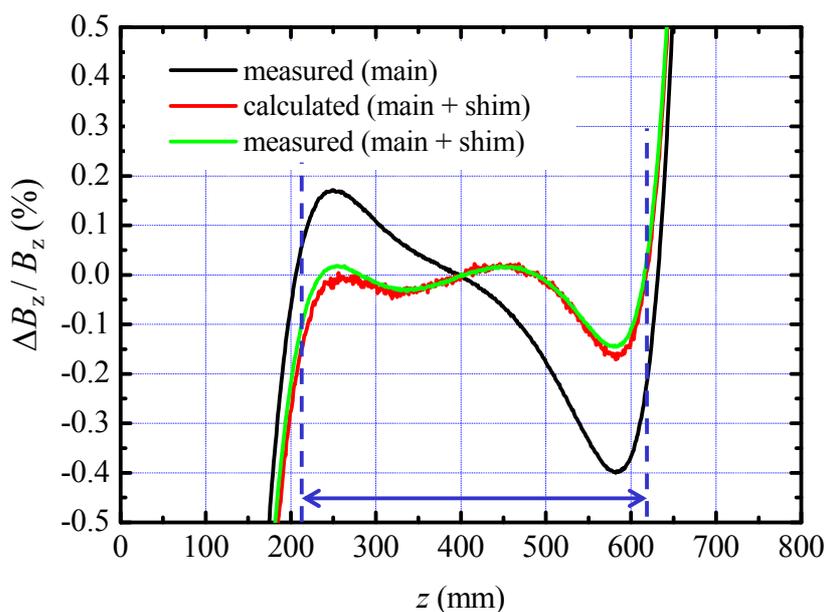


図4-17 補助コイル電流を流さない場合と流した場合の、 $z$ 軸上の $z$ 方向の磁場成分の均一度 $\Delta B_z / B_z$ の測定値と計算値の比較。黒線は補助コイル電流を流さない場合の測定結果を、赤線と緑線は、補助コイル電流を流した場合の、それぞれ計算値と測定値を示している。補助コイル電流は、青破線の範囲で磁場分布が均一となるように決定し、補助コイル1( $z=70$  mm)から順に、+9.760、-6.809、+5.494、+9.855、+2.340 A とした。

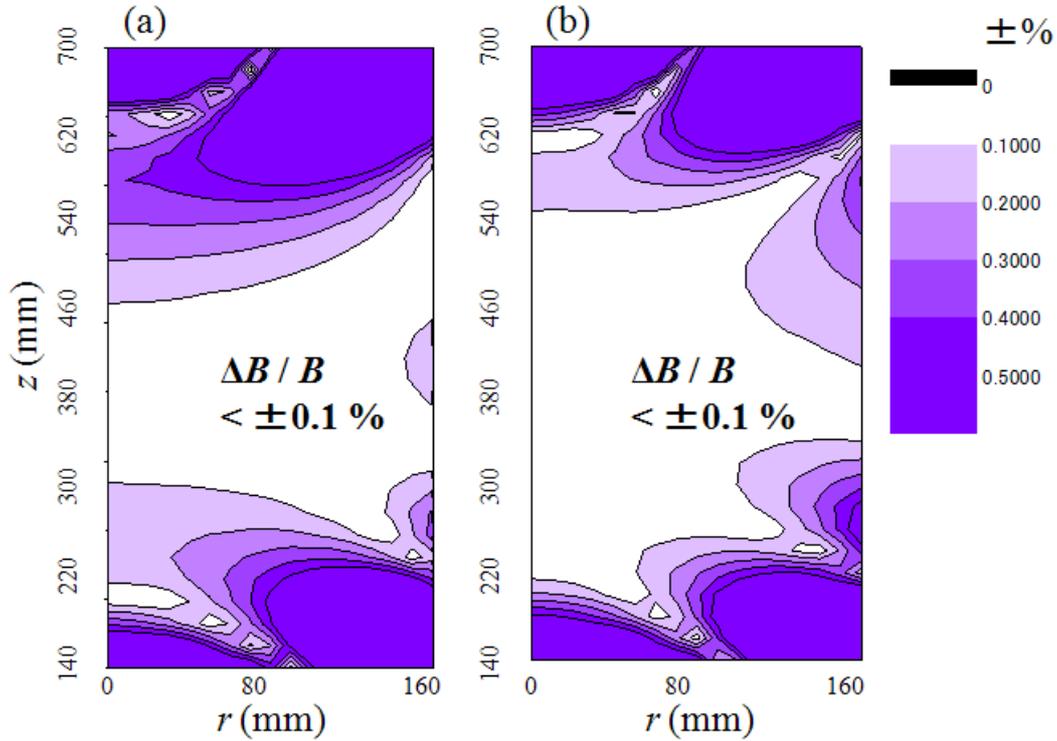


図 4-18 (a)補助コイル電流を流さない場合と、(b)流した場合の、磁場強度の均一度 $\Delta B/B$ の測定結果。補助コイルを使用したことにより、 $\Delta B/B < \pm 0.1\%$ の白色の領域が拡大している。

### 4.3.2 軌道計算による散乱イオンの評価

測定した磁場分布を評価するために、イオン軌道シミュレータを作成した。軌道計算は、磁場中の運動方程式

$$\frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} = \frac{q}{m} (\vec{v} \times \vec{B}) \quad (4-13)$$

を3次までのテイラー近似式

$$\vec{x}_{(t_0+\Delta h)} = \vec{x}_0 + \Delta h \left. \frac{d\vec{x}}{dt} \right|_{t_0} + \frac{1}{2} \Delta h^2 \left. \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} \right|_{t_0} + \frac{1}{6} \Delta h^3 \left. \frac{d^3 \vec{x}}{dt^3} \right|_{t_0} \quad (4-14)$$

を用いた差分法により行った。ただし、 $\vec{x}$ はある時間におけるイオンの座標を、 $q$ 、 $m$ 、 $\vec{v}$ はそれぞれイオンの電荷、質量、速度を、 $\vec{B}$ は $\vec{x}$ における磁場を表している。また、 $\Delta h$ は微小時間、 $\vec{x}_{(t_0+\Delta h)}$ 、 $\vec{x}_0$ はそれぞれ時間 $t_0 + \Delta h$ および $t_0$ におけるイオンの座標を表している。

本軌道シミュレータの精度は、磁場分布が均一とした場合にイオン軌道が $z$ 軸に重なることを条件に検証した。その結果、差分 $\Delta h$ を2 psec以下とすることにより十分な計算精度が得られることがわかった。

測定磁場分布を用いた軌道計算では、イオンの各座標の磁場強度として、測定結果を2次元で内挿したものを用いた。また、磁場が分布を持つ場合、軌道が最も入射軸( $z$  軸)に近くイオンの散乱角は、均一磁場の場合のそれとは異なるため、散乱角を最適化した上で軌道の計算を行った。

図4-18(b)で示した、補助コイルを使用した測定磁場データを用いて1価のヘリウムイオン軌道を計算した結果を図4-19に示す。なお、より均一な磁場領域を用いるため、試料、エネルギー分離アパーチャ、2D-PSDの $z$ 座標は、それぞれ242.4、492.4、617.4 mmとして(試料-アパーチャ間距離 $L=250$  mm)計算した。イオンのエネルギーを350、275、200 keVと3種類計算した結果、それぞれの散乱角は118.12°、122.12°、128.57°であり、磁場が均一(図4-18(b)の場合の平均磁場2.02 T)な場合の散乱角118.15°、122.16°、128.62°に対し0.05°以下のずれが生じていることがわかった。しかしながら、いずれのエネルギーのイオンもエネルギー分離アパーチャ( $z=492.4$  mm)付近ではほぼ中心軸付近(最大で0.19 mmのずれ)を通過し、 $\phi_a=1$  mmのエネルギー分離アパーチャを問題なく通過することがわかった。

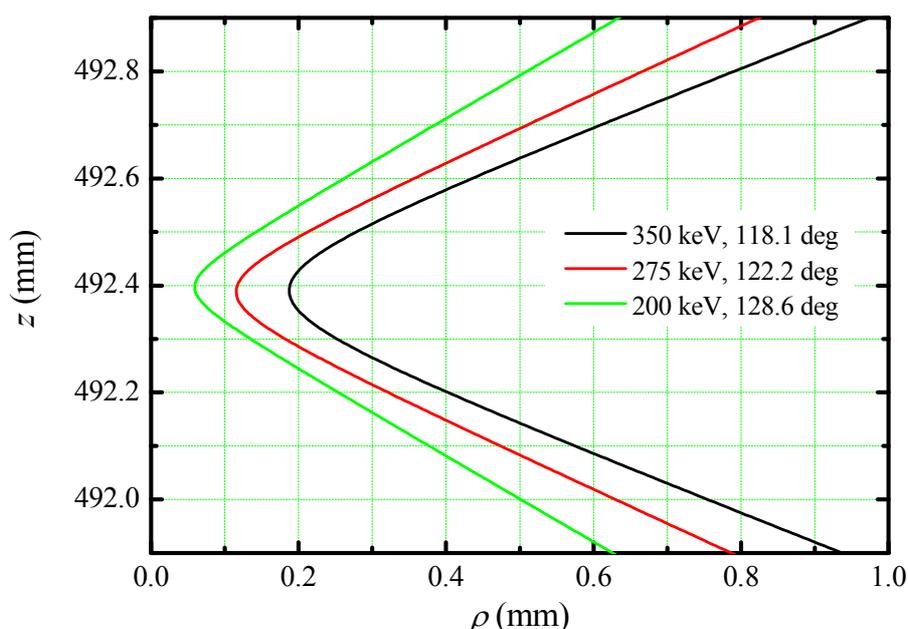


図4-19 試料表面位置を $z=242.4$  mm、 $L=250$  mmとした場合に、図4-18(b)の磁場分布を用いて計算したヘリウム1価のイオン軌道のエネルギー分離アパーチャ( $z=492.4$  mm)付近の拡大図。イオンのエネルギーは350、275、200 keVとし、磁場分布を考慮して散乱角を求めた結果、それぞれ118.12°、122.12°、128.57°であった。350 keVのイオンが $z$ 軸から最も離れた位置で収束し、0.19 mm ずれるが、 $\phi_a=1$  mmのアパーチャを仮定した場合、問題なく通過する。

さらに、これら3つのエネルギー350、275、200 keVの散乱イオンが2D-PSD上で検出される半径位置を見積もった結果、均一分布の場合のそれに対するずれは、+0.40、+0.43、+0.37 mmであった。これらは、いずれも半径検出位置が大きくなる方向へのずれであるため、位置スベ

クトルが動径方向へシフトしたものと考えることができる。したがって、これを考慮し、得られたスペクトルをシフトさせて解析を行えば、ずれの分解能への影響を小さく考えられる。たとえば、図 4-19 で計算した例の場合、得られるスペクトル全体を+ 0.40 mm シフトさせて考えれば、磁場が不均一であることによるずれは、最大 0.03 mm 程度と考えることができる。

### 4.3.3 軌道計算による入射イオンビームの評価

次に上記軌道シミュレータを用いて入射ビームの軌道評価を行った。縦方向磁場が存在する場合、入射ビームが少しでも横方向の速度成分を持つとサイクロトロン運動を生じる。さらに磁場が均一ではなく分布を持つ場合、これによる収束ビームサイズに対するぼけが懸念される。ここでは、ウェハ上の TEG 測定を念頭に目標とした、試料上ビームサイズ $\phi 50 \mu\text{m}$  が達成できるかどうかを評価基準とした。

加速器からのイオンビームは四重極レンズで収束効果を受けてスペクトロメータ内に導かれる。したがって、ビームは水平方向の速度成分を持つ。四重極レンズによる収束角 1.5 mrad を仮定すると、350 keV のヘリウムイオンの軌道は 2 T の磁場中で約  $120 \mu\text{m}$  のサイクロトロン半径を持って運動する。これはプローブサイズを最大  $480 \mu\text{m}$  大きくしてしまうことを意味するが、逆にサイクロトロン運動の収束作用を利用して収束ビームを得ることを考える。すなわち、入射ビームの四重極レンズによる収束点を磁場空間の入口に設定し、ビームの収束面に試料を設置することにより、試料上のビームサイズを磁場空間入口のビームサイズと同等にする。

図 4-18(b)に示した測定磁場分布を用いて、350 keV の  $\text{He}^+$  ビームが 0.5、1.5、5.0 mrad の角度で磁場空間に入射した場合の軌道計算結果を図 4-20 に示す。図には参照のため  $z$  軸上の  $B_z$  磁場分布も示した。各収束角を持つイオンは  $z = 242.4 \text{ mm}$  付近で再収束し、そのサイズは磁場空間入口のそれと同等の  $50 \mu\text{m}$  以下であることがわかる。さらに、この再収束点が入射ビームエネルギーに応じてどのように変化するかを計算した結果を図 4-21 に示す。ビームエネルギーが大きくなると再収束点は下方に変化するが、入射ビームエネルギーに応じて試料位置を適切に設定する(エネルギー分離アパーチャと 2D-PSD の位置も決定した試料位置に応じて設定する)ことにより  $50 \mu\text{m}$  のプローブを得ることができる。なお、磁場分布が均一である場合でも入射ビームは  $z$  軸方向のほぼ同じ( $\pm 0.5 \text{ mm}$  以下の範囲)地点に再収束することを確認している。

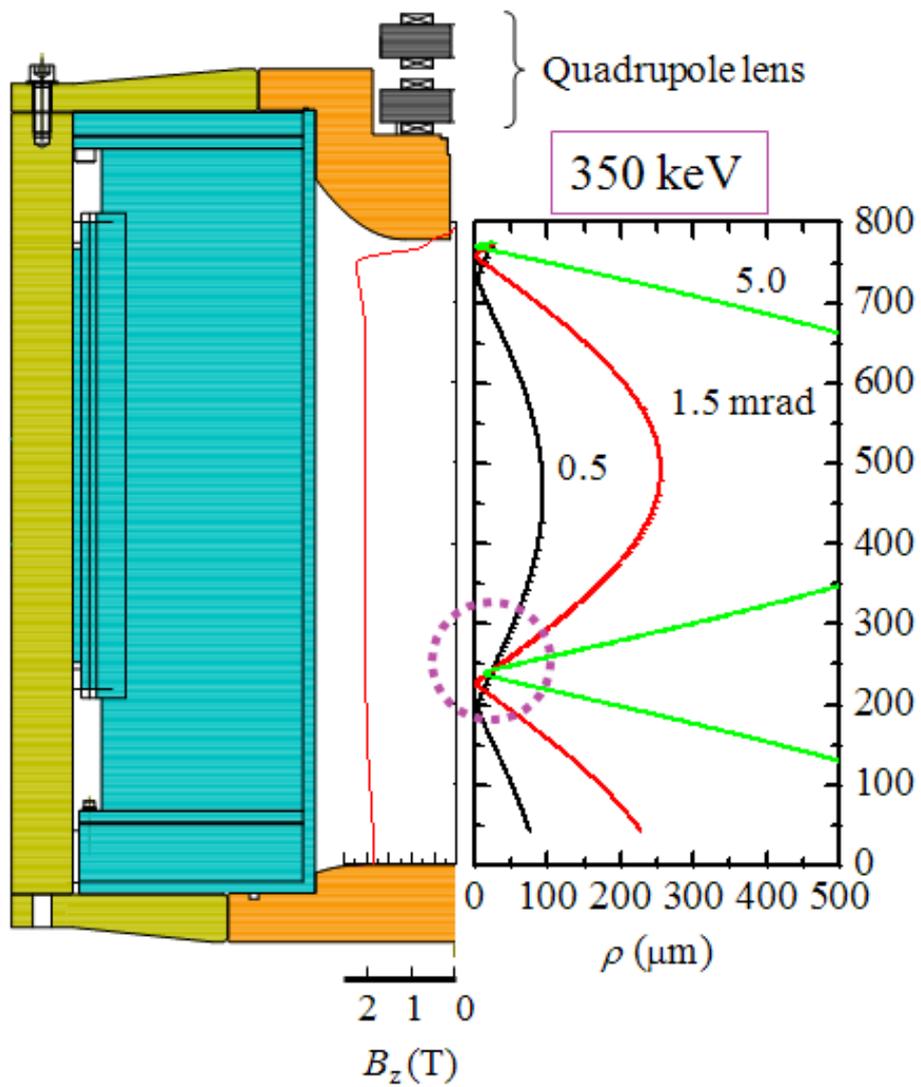


図 4-20 図 4-18(b)に示した測定磁場分布( $z$  軸上の  $B_z$  磁場分布を左側赤線で示す)を用いて、350 keV の  $\text{He}^+$  ビームが 0.5、1.5、5.0 mrad の角度で磁場空間に入射した場合の軌道計算結果。 $z = 242.4$  mm の地点でビームは再収束( $< 50 \mu\text{m}$ )する。

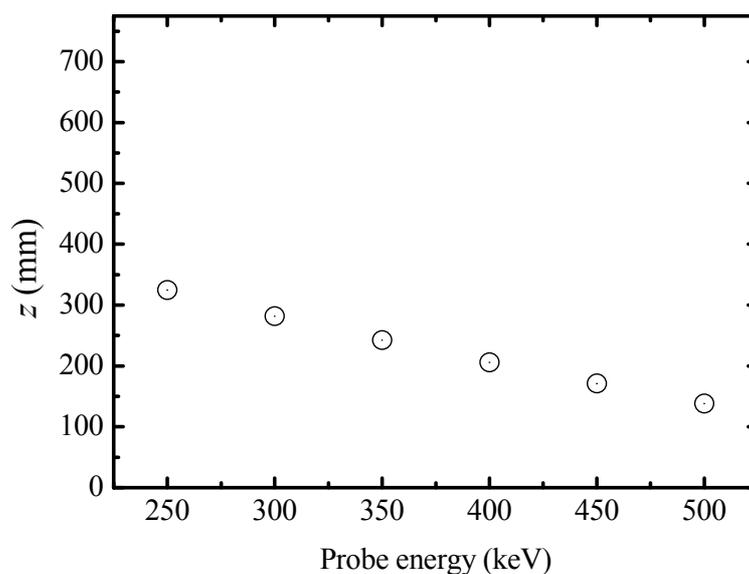


図 4-21 磁場空間入口に収束角を持って入射した  $\text{He}^+$  イオンビームの収束面の  $z$  座標。横軸はビームエネルギー。

#### 4.4 入射イオンビームの特性試験

加速器を CRBS スペクトロメータ上に搭載し、スペクトロメータ下部に図 4-22 に示すようなファラデーカップおよび直交する  $x$  方向、 $y$  方向に  $10 \mu\text{m}$  ピッチで駆動する幅  $20 \text{ mm}$  のナイフエッジを設置して、加速ビームのサイズ、電流量を調べた。イオン源単体試験で得られた条件、 $\text{He}$  ガス供給量  $0.1 \text{ sccm}$ 、アノード電流  $0.1 \text{ mA}$ 、引出電圧  $10 \text{ kV}$ 、アインツェルレンズ電圧  $6.1 \text{ kV}$  を用い、また、ビームラインに設けた磁場型偏向器を用いてビームアライメントを施して評価した。その結果、四重極磁石による収束を行わない状態で、 $400 \text{ keV He}^+$  のイオン電流  $400 \text{ nA}$ 、ビームサイズは  $x, y$  方向ともにほぼ同じ  $1.5 \text{ mm}$  が得られることを確認した。次章で説明する実際の分析の際は、アノード電流を下げてイオン電流が数十  $\text{nA}$  になるようにコントロールして実施した。

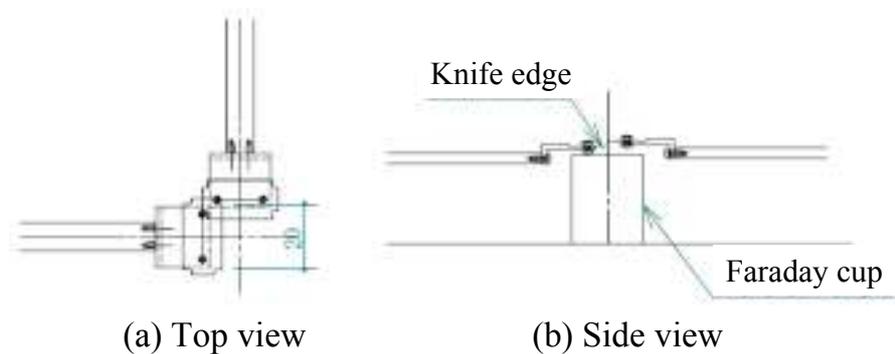


図4-22 CRBS スペクトロメータ底面部に設置した直交するナイフエッジおよびファラデーカップ。電流量、ビームサイズを測定する。

#### 4.5 まとめ

本章では、主に加速器部と超電導磁石を用いたスペクトロメータ部から成る CRBS システムについて述べた。安定した  $\text{He}^+$  イオンビームを得るため、PIG 型イオン源、小型高安定な縦型加速器、四重極磁石等から成る加速器部を開発した。また、均一度の高い磁場(2 T)発生を実現する無冷媒超電導磁石を用いたスペクトロメータを開発し、各コンポーネントの特性評価を行った。本章の内容をまとめると以下ようになる。

- ・ 各構成機器の小型化に成功し、全体のサイズとして幅 1.8 m、奥行き 1.4 m、高さ 2.5 m のコンパクトなシステムを開発した。
- ・ 小型の PIG 型イオン源を開発し、好適な運転条件を見出した。イオン源単体で数  $\mu\text{A}$  の  $\text{He}^+$  ビームが得られることを確認し、400 keV に加速したビームとして、ビーム径 1.5 mm、ビーム電流 400 nA が得られることを確認した。
- ・ 超小型の Cockcroft-Walton 型 500 kV 円筒高電圧電源を開発し、 $\pm 10^{-4}$  以下の安定度での動作を確認した。
- ・  $\phi 340 \text{ mm} \times 770 \text{ mm}$  のチェンバ内に均一度の高い磁場(2 T)を発生させるスペクトロメータを開発した。空間磁場を測定してイオン軌道を計算することにより、CRBS に使用するために必要な高い均一度の磁場が得られることを確認した。
- ・ ビーム加速前のウィーンフィルタによる不純物の除去、二次電子逆流サプレッサ、に加え、効率的な鉛板を設置することで規制の線量当量率  $0.6 \mu\text{Sv/hr}$  未満を実現した。
- ・ スペクトロメータ内の強磁場による入射ビーム径の広がりを評価した結果、一旦スペクトロメータ入口を収束点とすることと、試料位置をビームエネルギーに応じて適切に設定することにより、広がりを低減できることを示した。

なお、開発した縦型加速器は、市販の HRBS 分析装置用の加速器として搭載されており、高い実用レベルにあるものである。

## 参考文献

- [4.1] K. Inoue, M. Takai, K. Ishibashi, Y. Kawata, and S. Namba, Japn. Jour. App. Phys. **28** (1989) 1307.
- [4.2] K. Inoue, K. Ishibashi, Y. Kawata, N. Suzuki, A. Arai, H. Fukuyama, M. Kimura, S. Adachi, K. Tokushige, and K. Yamada, Nucl. Instr. Meth. B **54** (1991) 518.
- [4.3] C. Ichihara, M. Hamada, A. Kobayashi, K. Inoue, Y. Wasa, and K. Inoue, Nucl. Instr. Meth. B **249** (2006) 261.
- [4.4] <http://www.elf.co.jp/index.html>
- [4.5] <http://www.roentdek.com/>
- [4.6] T. Hayashi, Nucl. Instr. Meth. **196** (1982) 181.
- [4.7] E. Morenzoni, K. Oba, E. Pedroni, and D. Taqqu, Nucl. Instr. Meth. A **263** (1988) 397.

## 第5章 CRBS 分析装置を用いた薄膜試料の測定

本章では、開発した CRBS 分析装置を用いて、薄膜試料を測定した結果について説明する。CRBS は、一様磁場中において、エネルギー分離アパーチャと 2D-PSD を用いて 2D-PSD 上に現れる位置スペクトルを解析することにより RBS 分析を行う手法である。CRBS の大立体角性を最大限に引き出すためには、中心に開口を設けた大面積( $\phi$  340 mm)の 2D-PSD を用いるべきであるが、このような大きさのイオンの位置検出器は市販されていないため、エネルギー分離アパーチャを通過する散乱イオンのうち一部の方位角に向かうイオンを検出する系を構築することとした。2D-PSD としては、有効直径 $\phi$ 80 mm の MCP ディレイラインシステムを用い、測定試料としては昨今薄膜化が進んでいる MOSFET の High- $k$  ゲート絶縁膜を想定して約 2 nm の  $\text{HfO}_2$  膜を準備した。

しかしながら、MCP システムの磁場中におけるイオン検出感度の低下により位置スペクトルを取得することができなかつたため、SSD によるエネルギースペクトルの取得および、検出スリットを設置した SSD を用い、入射ビームのエネルギーを掃引して間接的な位置スペクトルの取得を行うことにより、CRBS の原理実証を行った。以下では、最初に MCP を含めたイオン検出器の動作確認実験について説明した後、準備した薄膜材料とその CRBS による測定結果について示す。

### 5.1 検出器の動作確認実験

本節では、スペクトロメータ内の機器配置と、検出器の動作確認実験について説明する。スペクトロメータ内上部に配置する機器は、エネルギー分離アパーチャを通過した散乱イオンの軌道空間を確保しながら、限られた空間内に配置することに注意した。図 5-1 に示すように、エネルギー分離アパーチャより上側に配置する機器は、すべて上側磁極からつり下げて固定する構造をとった。主な機器は、MCP 支持台、エネルギー分離アパーチャ支持板、エネルギー分離アパーチャ調整部品、MCP 上下駆動用非磁性超音波モータ、入射ビーム保護筒(図示してない)、0 次元および 1 次元半導体検出器支持台(図示してない)、半導体検出器用プリアンプ(図示してない)、などである。これらの機器は散乱イオンの軌道を遮らないよう検出面より上側に設置されている。すべての金属部品は、アルミニウムを中心とした非磁性材料で製作されており、SUS304 も用いられていない。電気配線は磁極に配線用の穴を設けて装置外の制御・信号処理機器と接続している。図 5-2、5-3 にスペクトロメータ内上部の外観写真を示す。

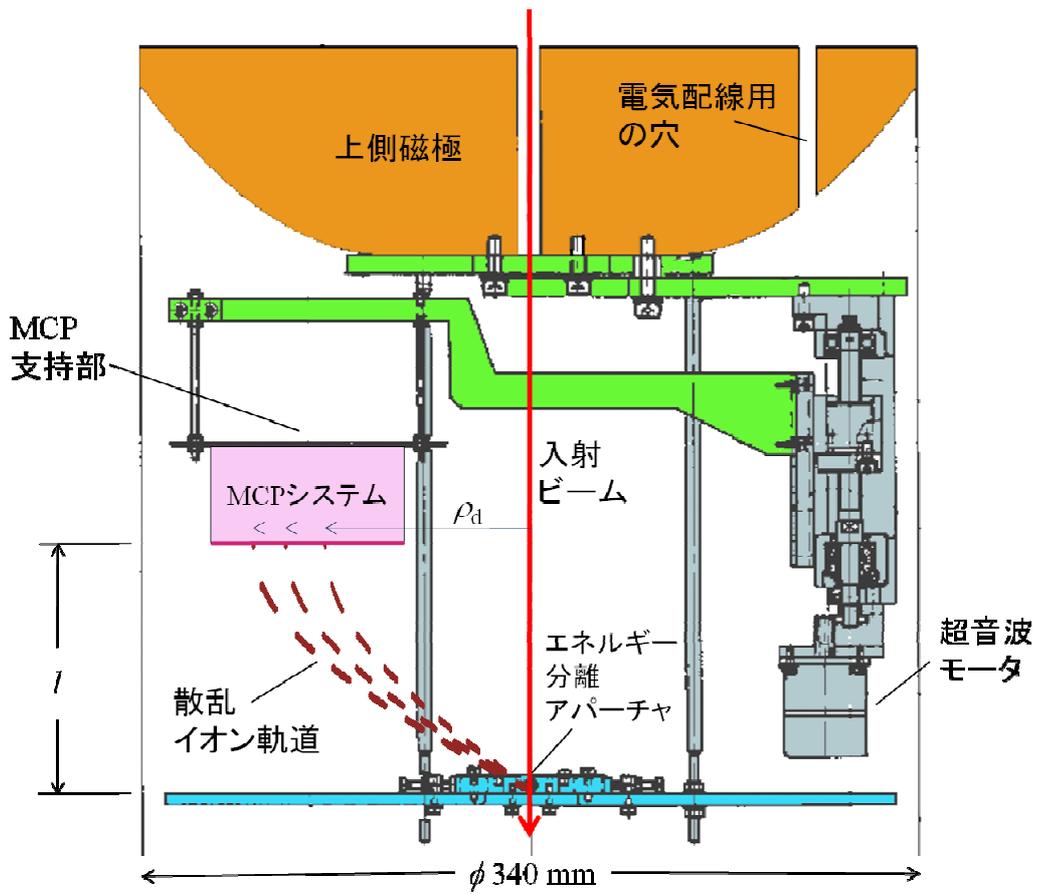


図 5-1 CRBS スペクトロメータ内上部の機器配置側面図。

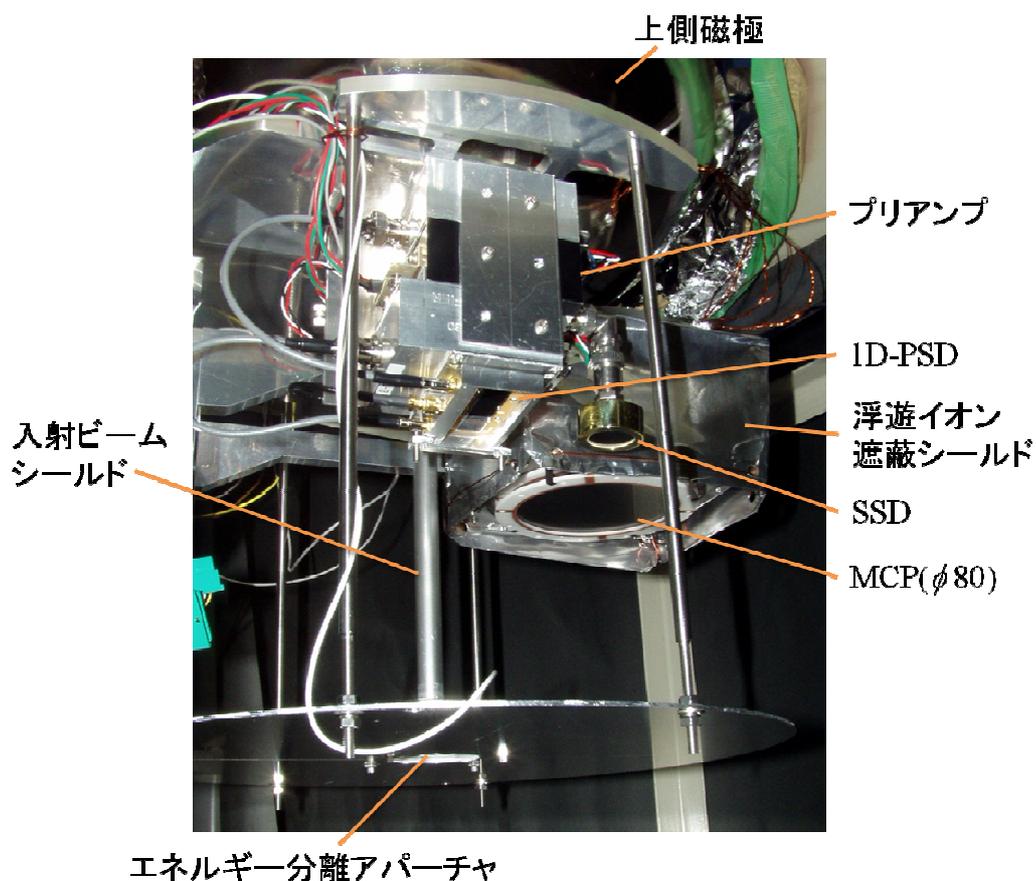


図 5-2 スペクトロメータ上部に配置した機器を斜め下方から見た外観写真。MCP と 0 次元および 1 次元半導体検出器の検出面はすべて同一の高さになるように設置してある。

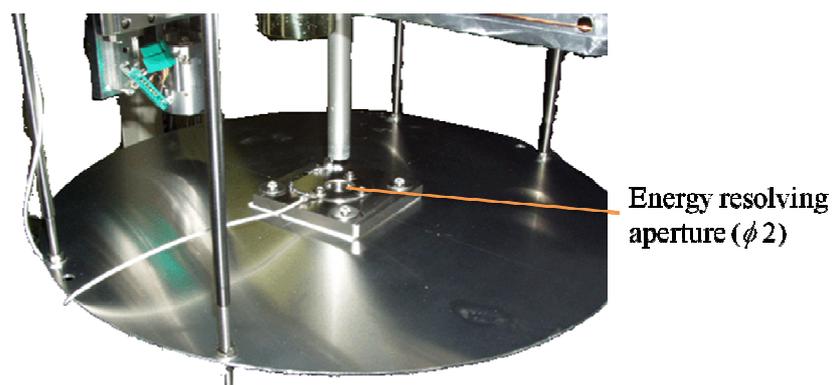


図 5-3 エネルギー分離アパーチャを斜め上方から見た外観写真。

3つの検出器、MCP、半導体検出器(SSD)および1次元半導体位置検出器(1D-PSD)の検出面は、下方から入射する散乱イオンを捉えるため下方を向いており、すべて同じ高さになるように設置されている。半導体検出器用のプリアンプは、検出器との接続距離を短くするため真空内に設置した。このために非磁性で、かつ、真空対応の素子を用いたプリアンプを製作し用いた。

MCP 表面には、表面にイオンが衝突した際に発生する二次電子の再入射を防ぐため、負の電圧 (-3 kV 前後) を印加する。しかしながらこの負電位は、機器からの散乱イオンなど浮遊イオンを引き込んでノイズとなるおそれがあるため MCP システムの周囲にアルミ板による接地シールドを設けてこれを防いだ。

スペクトロメータ下部の機器配置は下側磁極からの 3 本の支持柱に取り付けた水平の中間板を利用した。中間板の上には水平方向に 1 軸駆動可能な試料ホルダを設置し、また、試料から約 100 mm の位置に SSD とプリアンプを設置して、散乱粒子を捉えることにより試料に入射ビームが照射がされていることを確認できるようにした。また、2 回以上 z 軸に収束してエネルギー分離アパーチャを通過する散乱イオンを除去するための遮蔽筒(図 3-1、3-4 参照)を、柱の 1 本からアームを出して固定した。SSD やプリアンプ、アームは、図 5-4 の外観写真に示すように、検出器群に入射する散乱イオンの軌道を遮らない方位角方向に設置した。図 5-4 で言えば、検出器群は図の下側にあり、検出器に入射する散乱イオンは下側の空間のみを運動する(図 3-1 参照)ため、上記スペクトロメータ下側の SSD 等は、図の上側に設置した。試料電流測定や SSD 測定用の電気配線は、スペクトロメータ側面に取り付けた ICF253 のフランジを介して外部の制御・信号処理機器と接続した。

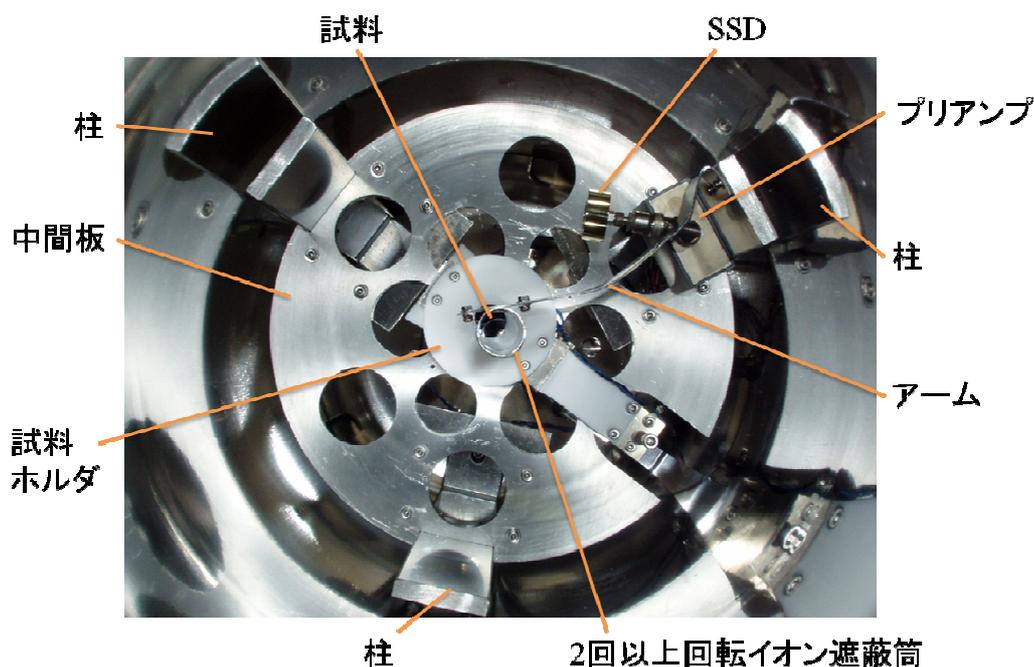


図 5-4 スペクトロメータ下部の機器配置を上部方向から見た外観写真。

### 5.1.1 MCP システムの磁場中動作確認

CRBS の位置スペクトル取得のために設置した MCP ディレイラインシステムは、直径 80 mm の MCP 3 枚と  $x, y$  方向の 2 次元に 0.5 mm ピッチで張り巡らされた 2 組のワイヤによる位置検出器から構成される。その外観とワイヤ型検出器の模式図を図 5-5 に示す。イオンが MCP に入射して発生した二次電子は、MCP 中で加速・増幅され電子群となってワイヤ型検出器に入射する。ワイヤ端には TDC(time to digital converter)が接続されており、MCP 出力信号(スタート)と両端で計測される信号(ストップ)の時間差から位置が算出される。磁場が存在しない場合、MCP から出てくる電子群はワイヤピッチより十分大きく広がり、必ず  $x, y$  方向の両方のワイヤに入射するため、2 次元位置を求めることができる。



図5-5 CRBS 位置スペクトル取得のために設置したMCPディレイラインシステムの外観(左)と、ワイヤ型検出器の模式図(右)。

これに対し、強磁場における本検出器の動作を検証するため、以下のような試験を行った。放射性同位元素アメリシウム( $^{241}\text{Am}$ )による $\alpha$ 線源(5.5 MeV, 500 Bq)をMCP前面部に直径3.5 mmのアパーチャを有するアルミ板を介して固定し、スペクトロメータ内に設置した。超電導磁石のメインコイル電流を0から60 A(約1.5 Tに相当)まで上昇させ、同じ測定時間による積算カウンターの2次元画像を取得した。磁場強度が0, 1.25 T, 1.5 Tの場合の取得画像を図5-6に示すが、明るい部分が線源からの $\alpha$ 粒子が直径3.5 mmのアパーチャを通過して入射している部分であり、磁場が強くなるほど取得カウント数が減少し、信号強度が低下していくことがわかる。図5-7はこの領域の総カウント数を積分し磁場強度に対してプロットしたもので、磁場強度とMCPシステムで得られる信号強度の関係を表している。図の縦軸は磁場0の場合の信号強度を1と規格化して示した。この結果から、磁場を強くすると検出効率が著しく低下することがわかる。なお、測定はMCPに印加するバイアス電圧を変化させて行ったが、バイアス電圧を上げることで信号強度の低下はいくらか抑えられるものの、その効果は大きくないことがわかった。

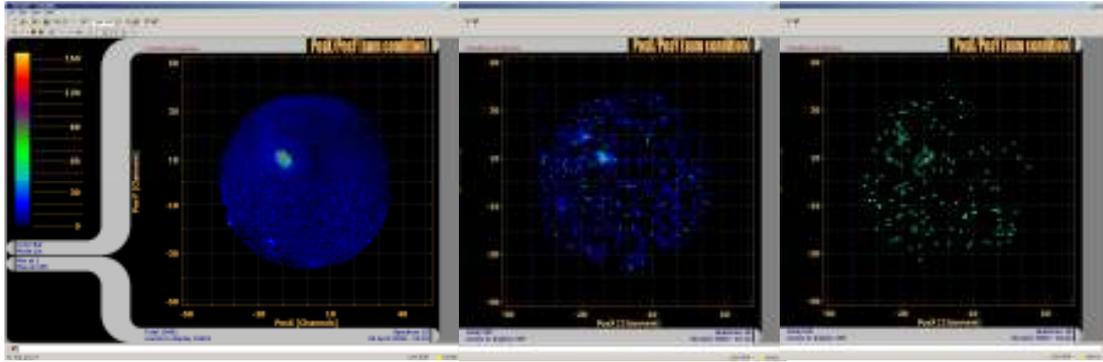


図 5-6 磁場強度の違いによる $\alpha$ 線源からのMCPシステムによる積算カウントの2次元画像の変化。明るい部分が線源からの $\alpha$ 粒子が入射している部分。それぞれの場合の磁場強度は、左から0、1.25、1.5 T。

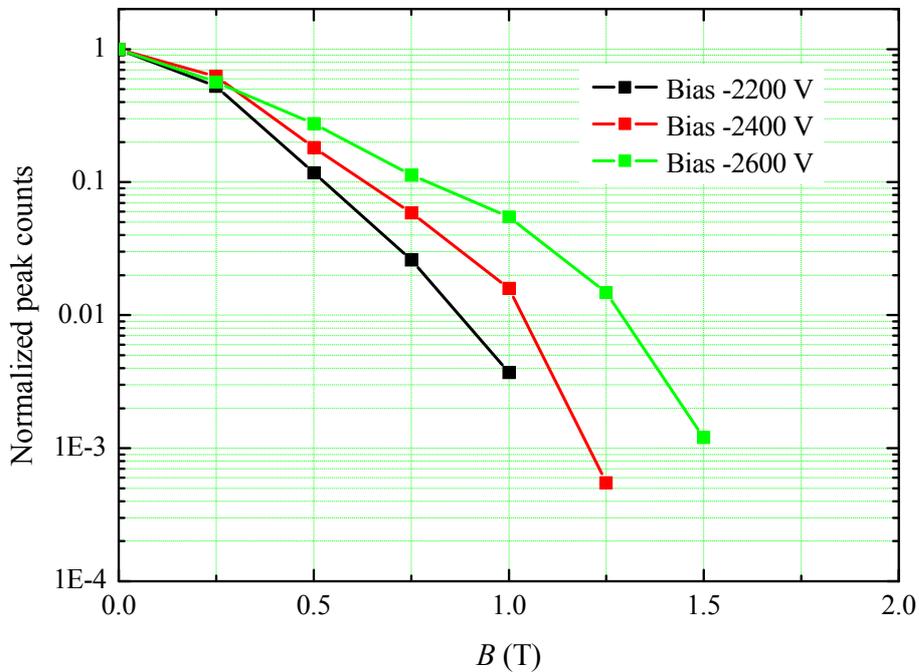


図 5-7 磁場強度に対する MCP システムで得られる信号強度。 $\alpha$ 線源からの信号を一定時間積分したカウント値を対数目盛で縦軸にとっている。磁場が強くなるほど得られる信号強度は降下するが、MCP に印加するバイアス電圧を上昇させることにより、信号強度の若干の改善が見られる。

磁場中における MCP 信号強度の低下の原因は、MCP 内のキャピラリ壁面から発生する二次電子が磁場にトラップされることにより、バイアス電圧で加速され壁面へ繰り返し衝突して起こるはずの電子増幅が抑えられているためであると考えられる。そこで、二次電子のキャピラリ内壁への再衝突量の増大を狙い、キャピラリ内径(ポア径)を 25  $\mu\text{m}$  から 10  $\mu\text{m}$  の MCP に変更して試験を行った。図 5-8 にその結果を示す。図の縦軸は磁場 0 の場合の信号強度を 1 とし、換算した積算カウント値である。ポア径 10  $\mu\text{m}$  としたことにより 25  $\mu\text{m}$  の場合に対して信号

強度は約 2.5 倍に上がったが、装置の動作磁場として考えている 2 T にすると、無磁場の場合の 100 分の 1 程度まで効率が落ちてしまうことが予想され、測定に用いるのは困難であることがわかる。

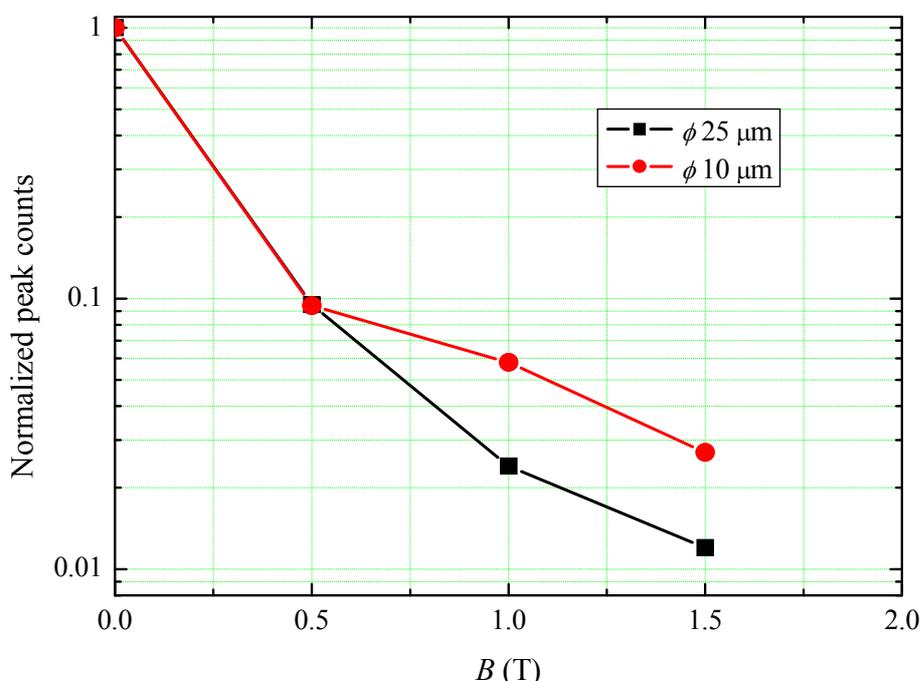


図 5-8 磁場強度に対する MCP システムで得られる信号強度。 $\alpha$ 線源からの信号を一定時間積分したカウント値を、磁場 0 の場合の強度を 1 として換算したものを対数目盛で縦軸にとっている。磁場による信号強度の降下は、MCP ポア径を 10  $\mu\text{m}$  とすると若干抑えられる。

さらに、ディレイラインシステムのパルス信号波形を観察した。その結果、磁場を上げていくと、パルス時間計測のための MCP からのスタート信号は出力されているものの、それに対応するワイヤの  $x$  信号や  $y$  信号は観測されなくなっていくことがわかった。これは、磁場が存在する場合イオン入射により MCP が十分な電子増幅を行っている場合でも、ワイヤではその電子群を捉えてないことを意味する。すなわち、図 5-9 の模式図に示すように MCP からの電子群はサイクロトロン運動を生じて 0.5 mm のワイヤピッチ間(ワイヤ径は 0.2 mm)をすり抜けているのである。たとえば、磁場強度 2 T で MCP から 3 keV の電子が横方向の速度成分のみを持って放出されたとしても、その回転半径は 10  $\mu\text{m}$  しかなく、1 T でも 20  $\mu\text{m}$  程度であるためワイヤに触れずにすり抜ける確率が高い。したがって、このワイヤ検出方式では強磁場中におけるイオン検出は困難であると結論づけられた。

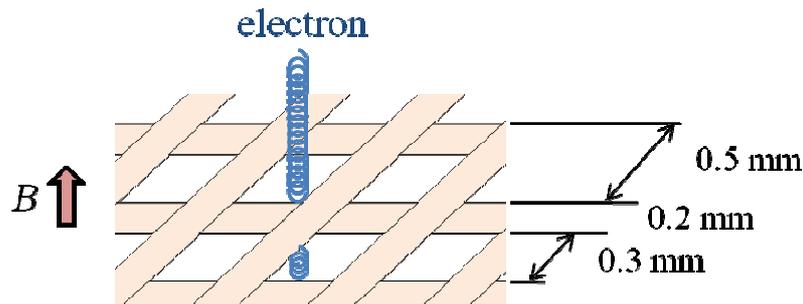


図 5-9 上方の MCP で増幅された電子群が、縦方向の磁場に巻き付きながら x、y 方向 2 次元のワイヤ間をすり抜けて行く様子。

### 5.1.2 1次元半導体位置検出器の動作確認

1次元半導体検出器(1D-PSD)の仕様と外観を表 5-1 および図 5-10 に示す。1次元の位置演算は、入射位置に応じて左右に分割される電荷量が変わる、すなわち、左右両端に現れるパルス信号の高さが変わるため、両者の比をとることで行われる。半導体検出器は、磁場の影響で感度が低下したり動作が不良になったりすることはないが、本システムで想定している中エネルギーの位置検出が問題なく行えるかどうかを確認しておく必要がある。本節では、本検出器が CRBS システムにおけるイオン位置検出器として適当かどうか、すなわち、ヘリウムイオン(200~450 keV)を位置分解能よく検出できるかどうかについて評価した結果について示す。

表 5-1 1D-PSD(Micron 社製)の仕様。

Type	Totally depleted planar
Position sensitive	1 axis
Active area	50 x 10 mm <sup>2</sup>
Inter anode resistance	4 - 10 kohm
Position resolution	100 - 300 μm



図 5-10 1D-PSD の外観。

本検出器にアパーチャを介して  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線を入射し、位置およびエネルギーの検出を試みた。実験の配置図およびブロック図を図 5-11 および 5-12 に、このときの両端の信号のプリアンプ出力波形を図 5-13 に示す。これから、 $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線(5.5 MeV)に対する信号(図 5-13 左図)は、十分な S/N で得られており、約 700 mV のパルス波高をもつことがわかる。このときノイズ高さ(同右図)は 50 mV 程度であった。しかしながら、信号の波高は入射エネルギーに比例するため、本システムで用いる最低エネルギー 200 keV に対しては、 $700 \text{ (mV)} / 5500 \text{ (keV)} \times 200 \text{ (keV)} = 25 \text{ mV}$  となることが予想され、ノイズに埋もれてしまう。ここで観察されたノイズは、検出器が低抵抗な抵抗性検出器であるために熱雑音(ジョンソン雑音)の影響を大きく受けていることによると考えられ、本質的にこれを取り除くことは難しい。したがって、本 1D-PSD は CRBS システムにおいて位置検出器として用いるのは困難であることがわかった。

一方、左右両端のノイズ波形は反転しているため、これらを加算することにより得られるエネルギー信号(パルス波高値で表される)においては、本ノイズの影響は非常に小さいものになることが予想される。図 5-14 は、プリアンプに疑似パルスを同時に入力した場合の  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線に対するエネルギースペクトル( $V_x + V_y$ )である(ここで  $V_x$  は検出器左端から出力される信号パルスの波高値、 $V_y$  は右端のそれ)が、予想されたとおりエネルギースペクトルは比較的よい分解能で取得できることがわかる。

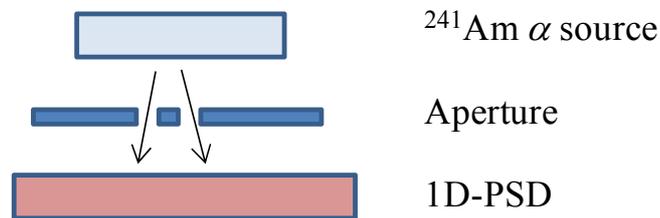


図 5-11 1D-PSD 評価のための実験配置図。

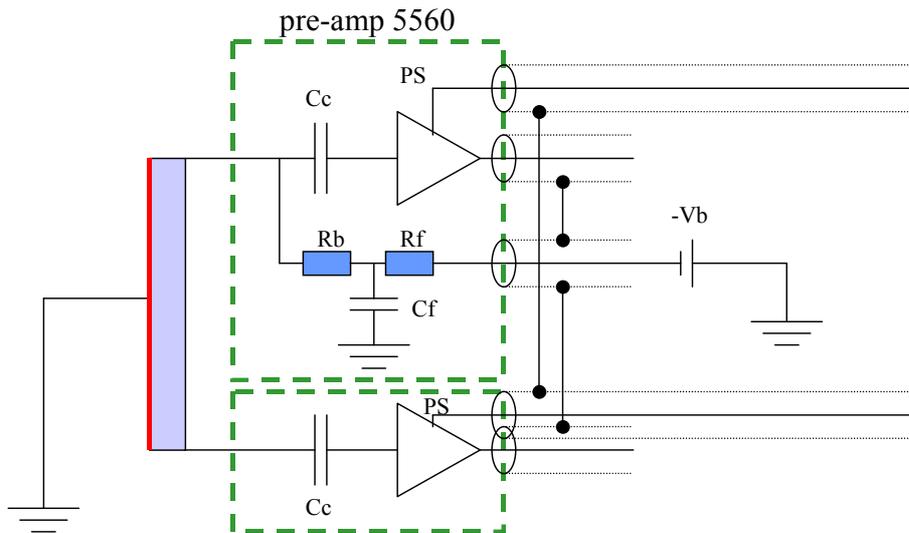


図 5-12 1D-PSD 評価のための実験ブロック図。検出器左右両端からのパルス信号を 2 台のプリアンプ(clear pulse 製 5560)で検出する。 $V_b$  は検出器に印加するバイアス電圧。

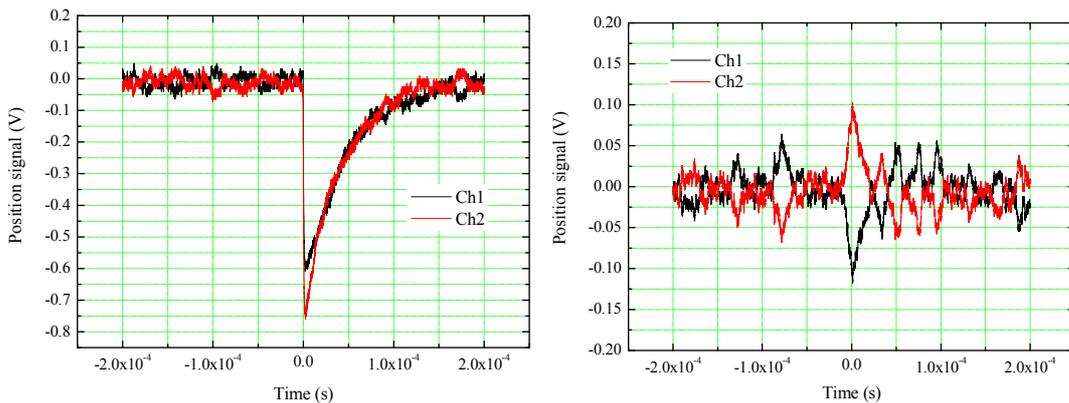


図 5-13 5.5 MeV  $\alpha$  線を入射した場合の 1 次元半導体検出器両端からのプリアンプ出力波形。横軸は時間(秒)で縦軸は電圧(V)。右図はノイズ部分の拡大図。

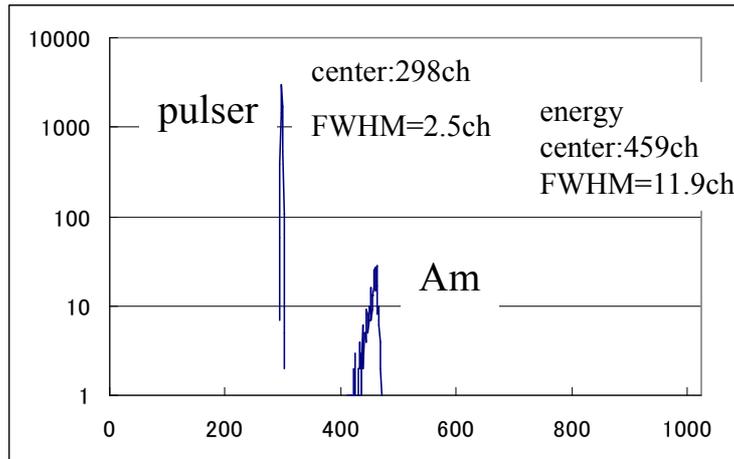


図 5-14 同時に疑似パルスを入力した場合の、 $^{241}\text{Am}$  の $\alpha$ 線に対して取得したエネルギースペクトル。横軸はチャンネルで、縦軸はカウント数(対数目盛)。

## 5.2 原理実証実験

前節で見たように、MCP システムによる CRBS 位置スペクトルの測定は困難なため、1D-PSD を用いて、High- $k$  薄膜試料からの散乱イオンのエネルギースペクトルを取得した。また、検出スリットを設置した SSD を用い、入射ビームのエネルギーをして間接的な位置スペクトルを取得した。以下では実験結果の詳細について述べる。

### 5.2.1 High- $k$ 薄膜試料

測定した試料は、スパッタリングにより Si 基板の上に成膜した膜厚設計値 3 nm の  $\text{HfO}_2$  薄膜である。詳細な膜構造を把握するため、HRBS と断面 TEM によりその組成分布や膜厚を確認した。まず、HRBS の測定条件および測定結果をそれぞれ表 5-2、図 5-15、16 に示す。測定から、試料構造は  $\text{HfO}_2$ (~2 nm) /  $\text{SiO}_x$ (~4 nm) / Si となっており、Hf は  $\text{SiO}_x$  内にも若干含まれていることがわかった。また、測定された Hf の面密度は  $4.5 \times 10^{15}$  (atoms/cm<sup>2</sup>) であった。

表 5-2  $\text{HfO}_2$  / Si 試料の HRBS 測定条件

ビームエネルギー	450 keV
イオン種	$\text{He}^+$
散乱角	55 度
ビーム入射角	試料面の法線に対し 45 度
試料電流	25 nA
ビーム照射量	40 $\mu\text{C}$
測定エネルギー範囲	325 ~ 450 keV

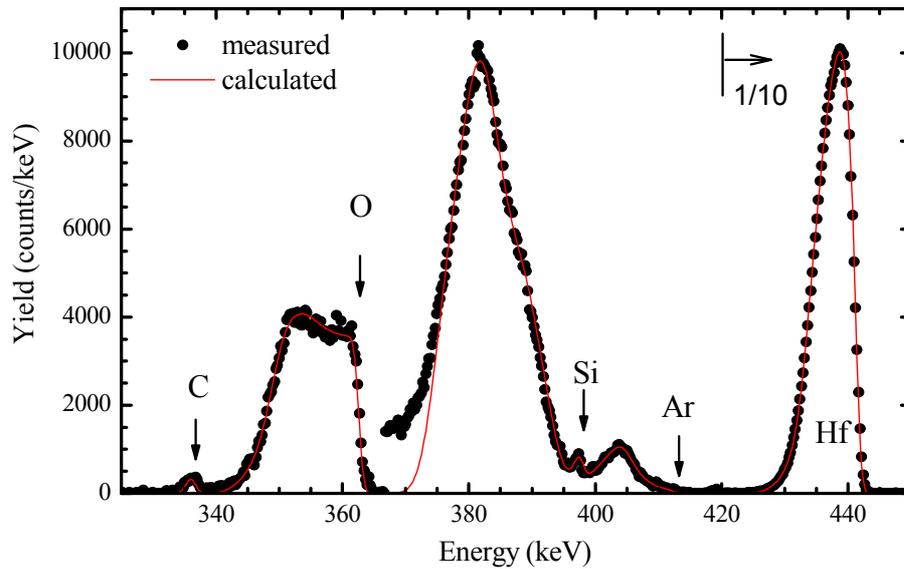


図 5-15 HfO<sub>2</sub>(3nm)/Si(設計値)試料の HRBS スペクトル。黒点は測定値を、赤線はフィッティングシミュレーション結果を示す。

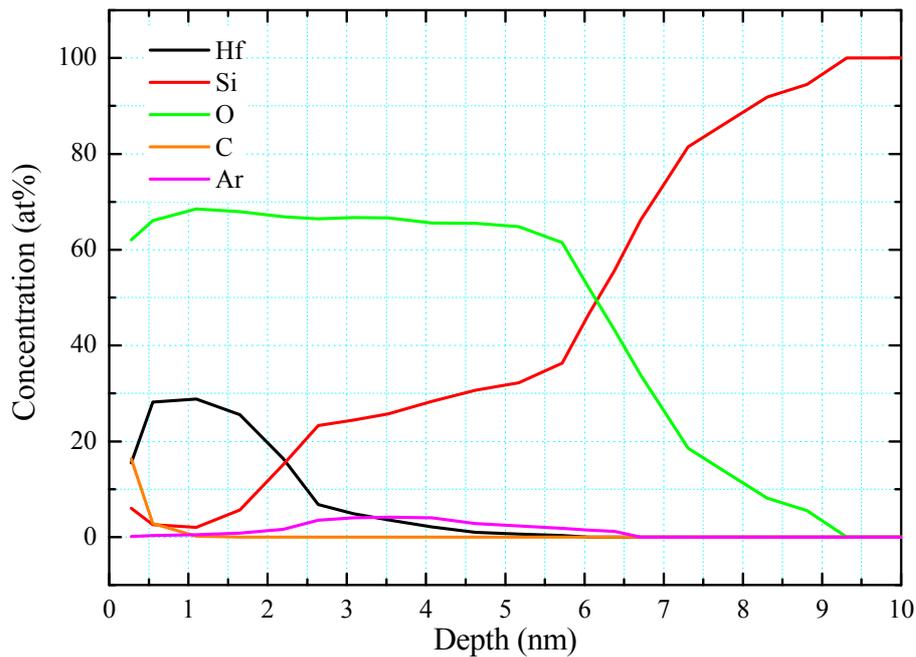


図 5-16 HfO<sub>2</sub>(3nm)/Si(設計値)試料の HRBS による元素組成の深さ分布。

次に、TEM による観察結果を図 5-17 に示す。試料構造はやはり HfO<sub>2</sub> / Si ではなく、HfO<sub>2</sub>(2.2nm)/SiO<sub>2</sub>(4.5nm)/Si と観察され、HRBS による結果とほぼ一致した。

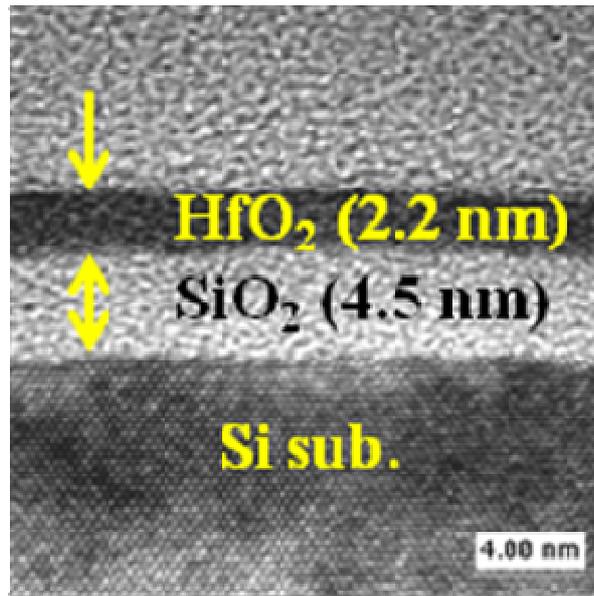


図 5-17 HfO<sub>2</sub>(3nm) / Si(設計)試料の断面 TEM 像。

## 5.2.2 CRBS 分析装置による測定

HRBS および TEM 観察で構造を確認した HfO<sub>2</sub>(2.2nm) / SiO<sub>2</sub>(4.5nm) / Si 試料について CRBS スペクトロメータを用いて 2 つの方法により測定・評価した。1 つは、50 mm×10 mm の 1D-PSD を用いた(前節で述べたように位置検出器としては精度が悪いため、長方形の SSD として用いた)エネルギースペクトル取得による評価、もうひとつは、SSD 前面に検出スリットを設置し、入射エネルギーを変化させることによって測定される収量の変化から間接的な位置スペクトルを取得することによる評価である。

### 5.2.2.1 長方形半導体検出器によるエネルギースペクトルの取得

長方形の SSD(50 mm×10 mm)を図 5-19 挿入図(右上)にあるように、スペクトロメータ内の動径方向に SSD の長手方向をそろえて設置してエネルギースペクトルを測定した。重元素 Hf からの CRBS シグナルを捉えるため、試料からエネルギー分離アパーチャまでの距離  $L$  は 350 mm、磁場強度  $B = 1.85$  T とした。検出器を設置した半径範囲は、 $70 < \rho < 120$  mm であるから、この範囲で Hf からの散乱イオン信号を取得する入射エネルギーの条件を図 5-18 を用いて 245 keV と 260 keV に決定した。図は、 $L = 350$  mm、 $B = 1.85$  T の条件で、試料表面の Hf、Si、O 原子から散乱され、エネルギー分離アパーチャを通るイオンの半径検出位置を、式(3-30)を用いて計算し、入射 He<sup>+</sup>エネルギーの関数として実線(左縦軸)で示したものである。また、図中破線(右縦軸に対応)は検出器で検出されるエネルギーである。図中赤丸で示した 4 つの点は、用いた入射エネルギー 245 keV と 260 keV に対応する半径検出位置と検出されるエネルギーを示している。

エネルギー分離アパーチャ径 $\phi_a=2\text{ mm}$ とし、上記2つのエネルギーの $\text{He}^+$ イオンで試料を照射した場合に取得されたエネルギースペクトルを図5-19に示す。入射エネルギーを245 keVから260 keVへと大きくすると、エネルギースペクトルは高エネルギー側へ移動しており、移動量は、計算で予想される14 keVとほぼ一致した。このことと、図5-18からこの半径位置(青実線で図示)では、SiやOなどの他元素からのピークは現れないことから、このエネルギースペクトルはHf原子からの散乱イオンによるものと結論される。

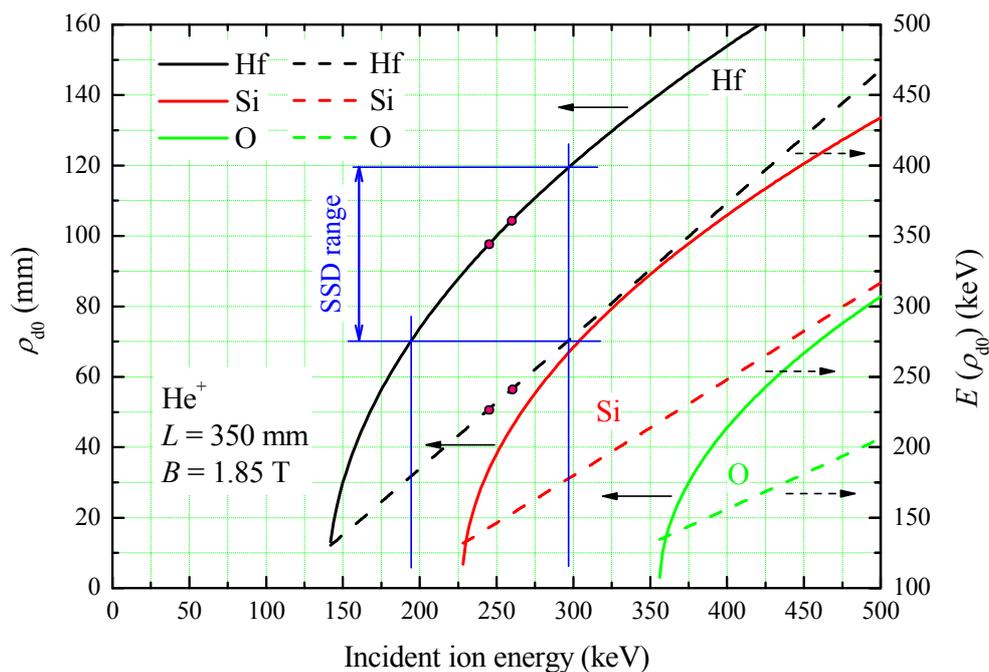


図5-18 条件 $L=350\text{ mm}$ 、 $B=1.85\text{ T}$ で、試料表面のHf、Si、O原子から散乱され、エネルギー分離アパーチャを通るイオンの半径検出位置(実線：左縦軸)とそのときのエネルギー(破線：右縦軸)。横軸は入射 $\text{He}^+$ エネルギー。入射エネルギーを200～300 keV程度にすると、設置したSSDの半径範囲 $70 < \rho < 120\text{ mm}$ にはSi、Oからの散乱イオン信号は来ない。赤丸は、測定に用いた入射エネルギー245 keV、260 keVの場合のHfからのイオンの検出半径位置と対応する散乱イオンエネルギー。

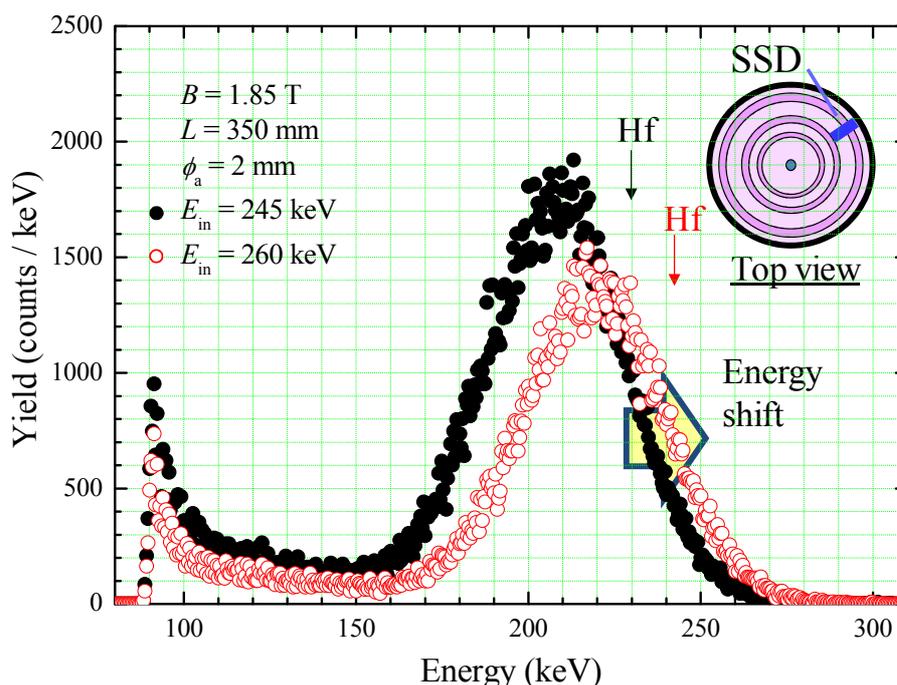


図 5-19 半径位置  $70 < \rho < 120$  mm に設置した長方形 SSD で得られたエネルギースペクトル。黒丸は試料への入射  $\text{He}^+$  のエネルギーが 245 keV の場合、赤丸は 260 keV の場合のエネルギースペクトル。両スペクトルのシフト量は、計算で予想される 14 keV とほぼ一致した。

図 5-19 の入射エネルギー 245 keV の場合の結果を用いて、Hf ピークの面積から収量の評価を行った。収量  $Y$  (Hf ピークの面積) は、式(2-6)に、中性、1 価、2 価全ての価数のヘリウム散乱粒子 ( $\text{He}^0$ ,  $\text{He}^+$ ,  $\text{He}^{2+}$ ) のうち、1 価のヘリウム  $\text{He}^+$  が生成する確率  $\varepsilon$  を乗じたもので表され、

$$Y = \varepsilon \frac{NtQ}{\cos \alpha} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \Delta\Omega \quad (5-1)$$

で与えられる。ここで、 $Nt$  は膜中の Hf の面密度、 $Q$  はスペクトルを得るのに要した入射粒子数、 $\alpha$  は試料法線から測定した入射角(この場合 0)、 $d\sigma/d\Omega$  は微分散乱断面積、 $\Delta\Omega$  は立体角である。前節で見た HRBS の結果から Hf の面密度は  $4.5 \times 10^{15}$  (atoms/cm<sup>2</sup>) であり、また、散乱角は、式(3-11)に  $L = 350$  mm と、試料表面 Hf からの散乱イオンが検出される  $\rho_d = 98$  mm を代入して得られる  $139^\circ$  とし、微分散乱断面積は Molière ポテンシャルを用いて数値計算[2.5]で求めた。これらは深さによる変化はなく一定とし、また、 $\varepsilon$  は 65 % [2.29] として計算した。その結果、図 5-19 のエネルギースペクトルを得たときの立体角  $\Delta\Omega$  は、0.3 msr と計算された。これを、動径方向に同じ幅をもつ円環状の検出器を仮定した場合の立体角  $\Delta\Omega_{\text{all}}$  へ換算する。そのために、用いた検出器の面積と円環状検出器を仮定した場合の面積比  $S_{\text{all}}/S = 2\pi\rho_d/W$  を乗じた。ここで  $W$  は用いた検出器の幅である。面積比を乗じた結果、今回の測定を全方位角にわたって取得できる円環状の検出器で行った場合の立体角  $\Delta\Omega_{\text{all}}$  は、約 17 msr と計算され、従来 HRBS の約 40 倍の立体角で測定可能であることがわかった。ただし、これは 3.2.2 節の立体角の議論で  $\rho_d = 98$  mm を用いて計算される 30 msr に比べ半分程度の値であり、この差異の原因として、入射粒子

数  $Q$  の計測における誤差や磁場分布による散乱イオン軌道のずれなどが考えられる。特に前者の入射粒子数については、試料電流計測を行ったのは測定開始時のみであったため、測定中の電流変動は考慮されておらず、これが主要因であると考えられる。

### 5.2.2.2 スリット付半導体検出器による位置スペクトルの取得

強磁場中で位置検出器が良好に動作しないため、図 5-20 に示すような実験配置で間接的に位置スペクトルの取得を試みた。前節と同じ  $\text{HfO}_2(2.2 \text{ nm}) / \text{SiO}_2(4.5 \text{ nm}) / \text{Si}$  試料を用いて、Hf 元素による散乱イオンピークが現れる位置( $\rho_d = 128 \text{ mm}$  付近)に、図 5-21 の外観写真に示すような幅  $1 \text{ mm}$  長さ  $10 \text{ mm}$  の検出スリットを設けた直径  $20 \text{ mm}$  の SSD を設置した。本来、検出器を動径方向に移動させることで位置スペクトルを測定すべきであるが、強磁場中でそのような動作機構を構築するのは困難なため、検出器は固定したまま、散乱イオンピークの位置を移動させて測定した。散乱イオンのエネルギーが変化するとエネルギー分離アパーチャを通過するイオンの半径検出位置も変化するため、図 5-20 で示した円環の半径が変化することになる。円環は、位置スペクトルにおける試料 Hf 元素からの散乱イオンピーク幅を示している。入射エネルギーを大きくしていくと、円環は中心から外側へ移動していくため、ある入射エネルギーから幅  $1 \text{ mm}$  のスリットに入射し始め、やがてスリットを通過しなくなる。検出スリットの後方には SSD があるので、各入射エネルギーに対する同一時間内で測定されるイオン数をカウントすることにより、間接的に位置スペクトルを得ることができる。本実験においては、入射エネルギー  $E_{in}$  を  $325 \text{ keV}$  前後とし、 $B = 1.85 \text{ T}$ 、 $L = 350 \text{ mm}$ 、 $\phi_a = 2 \text{ mm}$  として測定を行った。

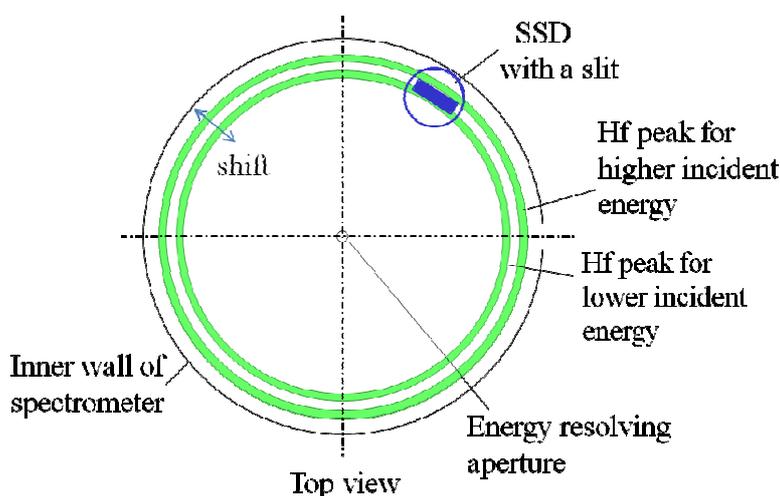


図 5-20 ボアチューブ(スペクトロメータ)内  $\rho_d = 128 \text{ mm}$  付近に、前面に  $1 \times 10 \text{ mm}^2$  のスリットを設けた直径  $20 \text{ mm}$  の SSD を設置した場合の上面模式図。薄緑色の 2 つの円環は、異なる入射エネルギーを用いた場合の試料 Hf 元素からの散乱イオンピーク。入射エネルギーを高くしていくと円環(Hf ピーク)は外側に移動する。

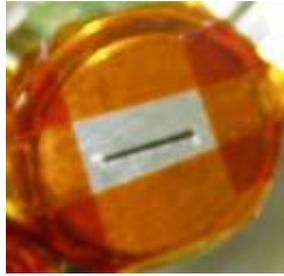


図 5-21 前面に  $1 \times 10 \text{ mm}^2$  の検出スリットを設けた直径 20 mm の SSD の外観写真。アルミ板にスリットを設け、カプトンテープで SSD 前面に固定した。

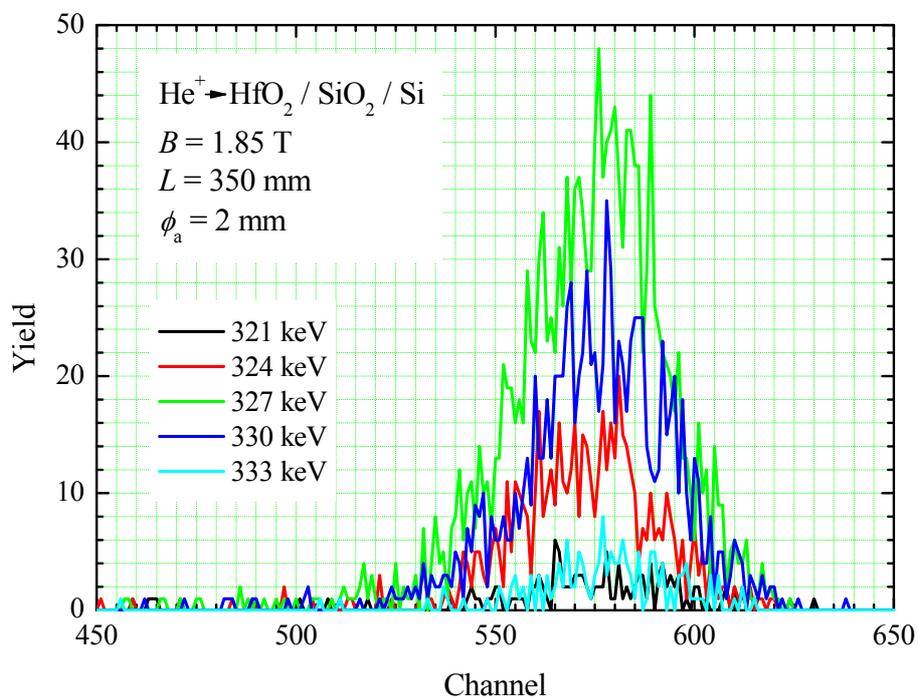


図 5-22  $\rho_a = 128 \text{ mm}$  付近に  $1 \times 10 \text{ mm}^2$  のスリットを設置した SSD を用いて、入射エネルギーを変化させて取得したスペクトル。Hf 元素からの散乱イオンピークの一部をスリットで切り出して取得していることになる。入射エネルギー 327 keV 付近で散乱イオンのカウントは最大となり、このとき円環状の Hf ピークの動径方向中央付近がスリット付近に存在していると考えられる。

スリット付 SSD で得られたスペクトルのうち、いくつかの入射エネルギーに対する結果を図 5-22 に示す。 $E_m$  が 321 keV 付近では散乱粒子はほとんど検出されないが、 $E_m$  を大きくしていくと徐々に増えていき、327 keV 付近でカウントは最大となり、333 keV 付近で再びカウントはなくなっていくことがわかる。すなわち、入射エネルギー 327 keV 付近で、円環状の Hf ピークがスリット位置に存在していると考えられる。各入射エネルギーに対する総カウント数を各測定時の試料電流値で規格化した値を、入射イオンのエネルギーの関数としてプロットしたしたも

のを図 5-23 に示す。図の上横軸は各入射エネルギーに対して、試料表面の Hf 原子からの散乱イオンが検出器上で測定されるエネルギーを示している。

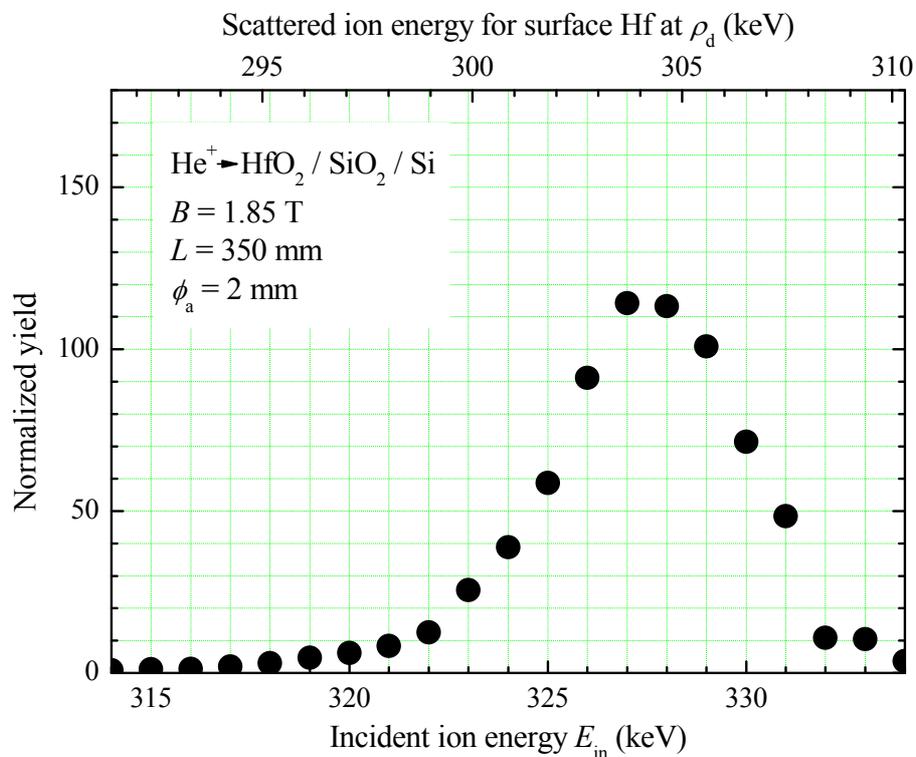


図 5-23 入射イオンエネルギーに対する、 $1 \times 10$  mm<sup>2</sup>のスリットを通して SSD で得られたカウント数。ただし試料電流で規格化している。上横軸は各入射エネルギーに対して試料表面の Hf からの散乱イオンが検出器上で測定されるエネルギーを示している。

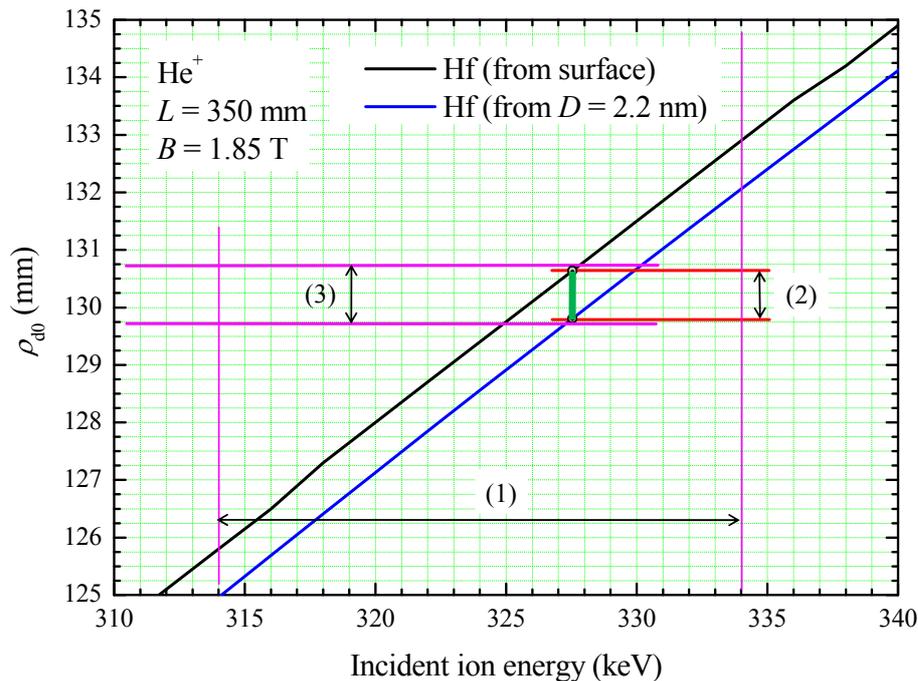


図 5-24 条件  $L=350$  mm、 $B=1.85$  T で、試料表面および表面からの深さ 2.2 nm の Hf 原子からの散乱イオンが検出される半径検出位置。横軸は入射  $\text{He}^+$  イオンエネルギー。黒実線は試料表面からの、青線は 2.2 nm 深さからの散乱イオンにそれぞれ対応している。(1)は測定に用いた入射エネルギー範囲、(2)はエネルギー分離アパーチャが無限小の場合の Hf ピークの幅( $\sim 0.83$  mm)、(3)は検出スリット幅(1 mm)を示している。

ここで、図 5-24 を用いて入射エネルギーとスリット付 SSD の動径方向の位置との関係、および Hf 原子からの散乱イオンの動径方向分布のピーク幅について考察する。図 5-24 は、図 5-18 で得られた計算結果の入射エネルギー 310~340 keV の部分を拡大したもので、試料表面および試料表面から深さ 2.2 nm の Hf 原子から散乱された散乱イオンが検出される半径検出位置を、それぞれ黒実線および青実線で示している。図中の矢印(1)は測定に用いた入射エネルギーの範囲を示している。 $\text{HfO}_2$  の膜厚によるスペクトルの広がり、本試験で用いた入射エネルギー範囲では、いずれの入射エネルギーを用いた場合でも矢印(2)で示すようにほぼ同じ幅 0.83 mm を持つため、入射エネルギーを変化させてもピークの形状は変化しないと仮定でき、本測定は、検出器面上の位置スペクトル(の Hf ピーク)を 1 mm の位置分解能(検出スリットの幅: 図中矢印(3))で測定していると見なすことができる。ただし矢印(2)で示した幅は、アパーチャ中心を通過したイオンに対しての幅であるから、実際には、アパーチャが直径 2 mm のサイズを持つことによるスペクトルの広がり幅  $\delta\rho_a$ ( $\sim 0.48$  mm)と、エネルギー・ロス・ストラグリングによるスペクトルの広がり幅  $\delta\rho_{st}$ ( $\sim 0.47$  mm)の寄与が加わった幅をもつ。

したがって、Hf 原子から散乱された散乱イオンの検出半径位置方向の分布は、Hf 膜厚による幅  $\delta\rho_a$ ( $= 0.83$  mm)の矩形関数に、膜の試料表面側においては幅  $\delta\rho_a$  の矩形関数を畳み込んだ、また、膜の界面側においては、幅  $\delta\rho_a$  の矩形関数および半値幅  $\delta\rho_{st}$  のガウス関数を畳み込んだ分

布( $F(\rho)$ とする)となる。この分布  $F(\rho)$  を 1 mm 幅で順次積分していたものが、測定で得られる(と予想される)分布であり、これを計算し  $\rho_d$  (mm) に対して図 5-25 に青実線でプロットした。図 5-25 には、図 5-23 に示した測定結果を横軸  $\rho_d$  (mm) に換算して黒丸でプロットしたものも示した。両者の幅を比較すると、黒丸の分布の幅の方が広いが、これは、測定結果には上述した以外の要因、すなわち、システムが持つ分散要因が存在するためであると考えられる。そこで、システムが持つ分散分布が、半値幅  $\delta\rho_{\text{sys}}$  のガウス関数で表されるとして  $\delta\rho_{\text{sys}}$  を見積もった。すなわち、 $F(\rho)$  に半値幅  $\delta\rho_{\text{sys}}$  のガウス関数を畳み込んだ分布( $G(\rho)$ とする)を計算して  $\delta\rho_{\text{sys}}$  を見積もった。そのために、分布  $G(\rho)$  を 1 mm 幅で順次積分していった場合の分布が、測定で得られたプロット(図の黒丸)に最も近づくように、 $\delta\rho_{\text{sys}}$  を決定した。その結果得られた(1 mm 幅で積分した場合の)分布が図中赤実線であり、このとき  $\delta\rho_{\text{sys}} = 1.73$  mm であった。これが、実際のシステムが持つ分散であり、測定で得られた分布の分散要因のほとんどを占めている。システムが持つ分散を含めると、試料表面 Hf に対する位置分解能は 1.76 mm と計算され、これを深さ分解能に換算すると、4.3 nm となる。

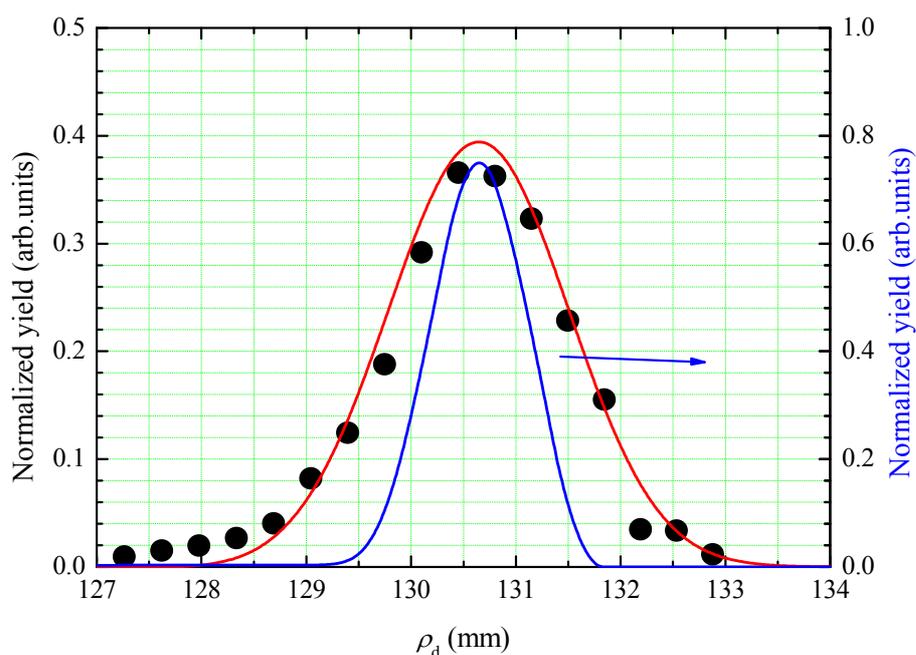


図 5-25 黒丸は、図 5-23 に示した測定結果を横軸  $\rho_d$  (mm) に変換してプロットしたもの。青実線は、エネルギー分離アパーチャが直径 2 mm のサイズを持つことによる広がり  $\delta\rho_a$  とエネルギー・ロス・ストラグリングによる広がり  $\delta\rho_{\text{sr}}$  を考慮した Hf のスペクトル  $F(\rho)$  を 1 mm 幅で順次積分していった場合のプロファイル。赤実線は、 $F(\rho)$  に半値幅  $\delta\rho_{\text{sys}}$  のガウス関数を畳み込んだ分布( $G(\rho)$ )を 1 mm 幅で順次積分していった場合の分布が、黒丸に最も近づくように  $\delta\rho_{\text{sys}}$  を最適化した結果得られた(1 mm 幅で積分した場合の)分布。

本測定における分解能を決める主要因は、システムのもつ分散  $\delta\rho_{\text{sys}}$  であることがわかったが(これがない場合の表面における深さ分解能は約 1.2 nm と計算される)、 $\delta\rho_{\text{sys}}$  の主要因としては、

測定ビームサイズによる分散が大きいと考えられる。試験では、測定中にビームサイズを把握する手段がなかったため詳細な値は確認できていないが、他条件における観測から、ビームサイズは1~1.5 mm程度であり、図5-25の考察で得られた値1.73 mmのほとんどを占めていると予想される。逆に、小さなビーム径を得ることができれば、 $\delta\rho_{\text{sys}}$ を小さくすることが可能となり、3章で議論した深さ分解能に近づくものと考えられる。

### 5.3 まとめ

本章では、開発したCRBS分析装置を用いて、 $\text{HfO}_2$ 膜試料を測定した結果について述べた。MCPシステムの磁場中におけるイオン検出感度低下および一次元半導体検出器のS/N不足で、スペクトル測定は困難なため、CRBS分光系によるエネルギースペクトルと、間接的な位置スペクトルを得ることを目指した。これらの測定の中で得られたことをまとめると、以下のようになる。

- ・長方形の半導体検出器を用いてエネルギースペクトルを取得した。 $\text{HfO}_2$ 膜のHfからの散乱イオンを捉えるための条件 $B = 1.85 \text{ T}$ 、 $L = 350 \text{ mm}$ に設定して、入射エネルギーを変化させることにより、理論通りエネルギースペクトルがシフトすることを確認した。また、方位角方向すべてにおいて信号取得した場合には立体角17 msrとなることを示し、大立体角のコンセプトを実証した。

- ・幅1 mmの検出スリットを設けた半導体検出器を設置し、スリットを通過する散乱イオンのカウント数を入射エネルギーの変化に対してプロットすることにより、間接的に位置スペクトルを取得した。スペクトルから位置分解能を見積もった結果、入射ビームサイズが主要因と考えられる分解能の低下が存在することがわかった。見積もった位置分解能を試料表面におけるHfに対する深さ分解能に換算すると、約4.3 nmであることがわかった。

## 第6章 結論

磁場中の荷電粒子のサイクロトロン運動を利用したラザフォード散乱分光法(CRBS)の特性について、理論的に解明するとともに、原理を実証するためのシステムを設計・製作した。実証実験では、CRBS 特有のエネルギースペクトル、位置スペクトルを測定し、その大立体角性を確認することができた。

本研究で得られた具体的な成果を以下に総括する。

- (1) 散乱イオンのサイクロトロン運動を利用した CRBS 分光の原理を示し、CRBS の特性としてエネルギー分解能、立体角、質量分解能、深さ分解能を解析的に評価する公式を導いた。概して、試料-エネルギー分離アパーチャ間の距離  $L$  やアパーチャの直径  $\phi_a$  を小さくするとエネルギー分解能、質量分解能、深さ分解能とも向上するが、立体角は小さくなることを示した。また、具体的な  $L$  や  $\phi_a$  の例を示し、これらを適切に選択すれば、10 msr 以上の大きな立体角と、HRBS や MEIS 並みの分解能を同時に実現できることを明らかにした。
- (2) 散乱イオンのスペクトル・シミュレータのためのスペクトル計算の基礎公式を導出し、プログラムコードを完成させた。シミュレータで得られた CRBS スペクトルは、通常の RBS スペクトルと類似していることを示した。
- (3) 実際に CRBS システムの機器設計・製作を行い、幅 1.8 m、奥行き 1.4 m、高さ 2.5 m とコンパクトな CRBS システムを完成させた。各パーツの特性評価を行い、中エネルギー  $\text{He}^+$  ビームが安定に十分な電流を持って得られること、均一度の高い磁場空間が得られることを確認した。散乱イオンの軌道計算シミュレータを開発し、分布を持つ磁場中の軌道計算を行うことにより、測定で得られた磁場分布が CRBS 分光を行うのに十分な均一度を持っていることを示した。さらに、収束入射ビームを用いる場合、磁場中の収束特性から最適な試料照射位置が存在することを明らかにした。
- (4) 開発した CRBS 分析装置を用いて極薄  $\text{HfO}_2$  膜試料を測定した。MCP システムの磁場中におけるイオン検出感度低下および一次元半導体検出器の S/N 不足のため、スペクトル検出は困難であることがわかった。一方、CRBS 分光系によるエネルギースペクトルと間接的な位置スペクトルを得ることにより、立体角 10 msr 以上の大立体角性能と、試料表面の Hf に対する深さ分解能 4.3 nm を確認した。

1995 年の井上らのアイデアの公開以来 10 年以上が経過し、本研究開発により試作システムの完成、原理の実証まで行うことができたが、大立体角性能を具現化する大面積での位置スペクトル測定を実現することができなかった。今後は、強磁場中で動作し、かつ、大面積な位置検出器の開発に力を注ぐことが重要であり、これをクリアすることができれば、筆者らが目指した「高分解能で明るい」分光器の実用化に大きく近づくものと考えている。

## 謝辞

本研究の遂行にあたり、経験の浅い私に対し、常に暖かいご配慮と、適切かつ辛抱強いご指導をいただきました京都大学大学院工学研究科 木村健二 教授に深く感謝いたします。

また、本研究を進めるにあたり、有益なご指導をいただきました同研究科 井手亜里 教授、河合潤 教授に心から感謝いたします。

本研究の遂行に関し、ご支援いただきました同研究科 鈴木基史 准教授、中嶋薫 助教に感謝の意を表します。

本テーマの企画からプロジェクトの発足、開発研究の推進に至るまで、ご尽力、ご指導賜りました株式会社神戸製鋼所技術開発本部 電子技術研究所 井上憲一 所長、同所電子応用研究室 小林明 主任研究員に深く感謝いたします。

本研究に関し、京都大学への入学の機会を与え、また常に暖かいご配慮をいただいた株式会社神戸製鋼所 電子技術研究所 (現材料研究所 所長) 杉崎康昭 元所長、電子応用研究室 (現コベルコ科研 主席部員) 古保里隆 元室長、電子技術研究所 (現超電導研究室 室長) 宮崎隆好 元企画担当に深く感謝いたします。

また、本研究を通じて、強力な支援および暖かいご指導をいただきました、電子応用研究室 福本吉人 室長、超電導研究室(現電子技術研究所専門部長) 濱田衛 元室長、電子技術研究所(現セント・キャサリンズ・カレッジ事務局長) 小橋宏司 元専門部長に感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、有益なご助言、ご指導をいただきました京都大学大学院工学研究科 石川順三 教授、後藤康仁 准教授、辻博司 助教に感謝の意を表します。

本研究の遂行にあたり、種々のご援助をいただきました同研究科木村研究室羽野仁彦様、中野博史様、梅井小織様に感謝いたします。

本研究を通じて株式会社神戸製鋼所の数多くの皆様にご支援およびご指導、ご助言を賜りました。

高圧電源、加速器の製作に関して、足立成人 主任部員、木村誠 主任部員、結城隆裕様、吉成聡志様、前原正明様、柳英樹様に心から感謝いたします。スペクトロメータの評価に関し、和佐泰宏 主任研究員、井上浩司様、平野貴之 主任研究員、後藤裕史 主任研究員に深く感謝いたします。装置製作において、都倉春繁様、上島義明様、平野貴則様に心から感謝いたします。スペクトル測定に関し、米田哲平様に深く感謝いたします。実用装置の製作全般に関して、機械エンジニアリングカンパニー 福山博文 主任部員、牟礼祥一 主任部員、森芳一様の貴重なご助言に心から感謝いたします。その他、数々の有益な助言や支援をいただきました高松弘行 主任研究員、橋武史 主任研究員、山口証 主任研究員、森本勉 主任部員、林和志 主任研究員、高橋英二 主任研究員、奈良井哲様、甘中将人様、迫田尚和様、片山亮様、辻敏之様をはじめとする電子応用研究室、薄膜材料研究室の皆様我心から感謝いたします。

また、本研究の一部は新エネルギー・産業技術総合開発機構の委託事業として行われましたことを記します。

最後に、本研究が完成に至ったのは、妻と三人の子供たち、両親たちの忍耐と協力によるものであり、心から感謝いたします。

**2008年**  
**一原 主税**

## 研究発表一覧

### 研究論文

1. K. Ishibashi, Y. Furukawa, C. Ichihara, K. Yokoyama, K. Inoue, and H. Fukuyama, "Design of a new high voltage generator for ion beam analysis", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 118 (1996) 442.
2. Chikara Ichihara, Akira Kobayashi, Yasuhito Gotoh, Ken-ichi Inoue, Hiroshi Tsuji, and Junzo Ishikawa, "Discharge Characteristics of Micro Gas Jet Ion Source", Journal of the Vacuum Society of Japan 47 (2004) 285, (in Japanese).
3. K. Kobashi, A. Watanabe, Y. Ando, Y. Nishibayashi, Y. Yokota, T. Hirano, K. Oura, C. Ichihara, and A. Kobayashi, "Observation of electron field emission patterns from B-doped diamond films", Diamond & Related Materials 13 (2004) 2113.
4. Chikara Ichihara, Akira Kobayashi, Ken-ichi Inoue, and Kenji Kimura, "A new spectrometer for Rutherford backscattering spectrometry", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 229 (2005) pp. 527 - 532.
5. Kazushi Hayashi, Nobuyuki Kawakami, Chikara Ichihara, Koji Kobashi, "Characterization of subsurface hydrogen in diamond films by high-resolution elastic recoil detection analysis", Physica B 376 (2006) 307.
6. Chikara Ichihara, Mamoru Hamada, Akira Kobayashi, Kouji Inoue, Yasuhiro Wasa, and Ken-ichi Inoue, "Superconducting magnet for cyclotron Rutherford backscattering spectrometry system", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 249 (2006) pp. 261 - 265.
7. Takeshi Tachibana, Chikara Ichihara, Nobuyuki Kawakami, Yoshihiro Yokota, "Nucleation and initial growth processes of diamond thin films for stripper foils", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 590 (2008) 22.
8. Chikara Ichihara, Nobuyuki Kawakami, Satoshi Yasuno, Aya Hino, Kazuhisa Fujikawa, Akira Kobayashi, Mototaka Ochi, Hiroshi Gotoh, and Toshihiro Kugimiya, "Characterization of Al-Ni / a-Si interface by high resolution Rutherford backscattering spectrometry", Micron (2008), (in press).
9. Chikara Ichihara, Akira Kobayashi, and Kenji Kimura, "Implant dose measurement and depth profiling of 10-keV implanted As by high-resolution RBS", Journal of Surface Analysis (in press).
10. Chikara Ichihara, Akira Kobayashi, Ken-ichi Inoue, and Kenji Kimura, "Theoretical analysis of mass and depth resolutions of cyclotron Rutherford backscattering spectrometry system", submitted to Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.

### 国際会議発表

1. Y. Toyota, H. Tsuji, S. Nagumo, C. Ichihara, S. Sakai, Y. Gotoh, and J. Ishikawa, "Charging voltage model and its experimental evaluation of isolated electrode in negative-ion implantation", Proceedings of 5th Symposium of Beam Engineering of Advanced Material Synthesis (1994) 209 (in Japanese).

2. Kiyotaka Ishibashi, Ken-ichi Inoue, Chikara Ichihara, Yukito Furukawa, Kazushi Yokoyama, and Hirofumi Fukuyama, "New MV-class generator", Proceedings of SPIE 2522 (1995) 200.
3. Chikara Ichihara, Mamoru Hamada, Akira Kobayashi, Kouji Inoue, Yasuhiro Wasa, and Ken-ichi Inoue, "Superconducting magnet for cyclotron Rutherford backscattering spectrometry", 17th International Conference on Ion beam Analysis (2005/6/26-7/1, Sevilla, Spain).
4. Kazushi Hayashi, Nobuyuki Kawakami, Chikara Ichihara, Koji Kobashi, "Characterization of subsurface hydrogen in diamond films by high-resolution elastic recoil detection analysis", International conference on defects in semiconductors, (2005/7/24, Awaji, Japan).
5. Chikara Ichihara, Kazushi Hayashi, Nobuyuki Kawakami, Akira Kobayashi, Ken-ichi Inoue, "Subsurface hydrogen analysis in diamond films by high-resolution elastic recoil detection analysis (HERDA) and high-resolution Rutherford backscattering spectrometry (HRBS)", 4th Korean Symposium on Surface Analysis (2006/9/28-29, Gyeongju, Korea).
6. Y. Gotoh, C. Ichihara, A. Kobayashi, T. Hirano, H. Tsuji, and J. Ishikawa, "Discharge characteristics of helium under inhomogeneous pressure distribution", Proceedings of XXIIInd International Symposium on Discharges and Electrical Insulation in Vacuum 2 (2006) 670 (2006/9/26, Matsue, Japan).
7. Chikara Ichihara, Nobuyuki Kawakami, Akira Kobayashi, Satoshi Yasuno, Kazuhisa Fujikawa, Mototaka Ochi, Aya Hino, Hiroshi Gotoh, and Toshihiro Kugimiya, "Characterization of Al-Ni / a-Si interface by high resolution Rutherford backscattering spectrometry", European Materials Research Society fall meeting 2007 (2007/9/17-21, Warsaw, Poland).
8. M. J. P. Hopstaken, C. Ichihara, A. Kobayashi, B. Imbert, S. Lhostis, M. Juhel, L. F. Tz. Kwakman, C. Wyon, "Benefits of High-Resolution Rutherford Backscattering Spectroscopy in ultra-thin film analysis for advanced semiconductor materials", 16th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry, (2007/10/29-11/2, Kanazawa, Japan).
9. Chikara Ichihara, Akira Kobayashi, "Implant dose measurement and depth profiling of low-energy implanted As by high-resolution RBS", Practical Surface Analysis 2007 (2007/11/25-28, Kanazawa, Japan).

## 国内口頭発表

1. 一原主税、石橋清隆、"新型高電圧発生機構による昇圧実験"、第 44 回応用物理学関係連合講演会 (1997) 28pQ1、(1997 年 3 月 28 日、船橋)
2. 一原主税、小林明、石橋清隆、足立成人、森芳一、前原正明、"新型高電圧発生機構による昇圧実験 II"、第 59 回応用物理学学会学術講演会 (1998) 17aM1、(1998 年 9 月 17 日、八王子)
3. 一原主税、福山博文、結城隆裕、"超小型 3MeV タンデム加速器の実用化"、第 12 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会(1999)、(1999 年 7 月 8 日、京都)
4. 一原主税、木村誠、森芳一、前原正明、福山博文、小林明、"高分解能 RBS 分析装置(HRBS500)の現状と今後の展開"、イオンビームによる表面・界面解析研究会(2001)、(2001 年 12 月 1 日、岡山)
5. 一原主税、國仲剛、小林明、井上憲一、後藤康仁、辻博司、石川順三、"マイクロガスジェットイオン源の開発"、第 63 回応用物理学学会学術講演会 (2002) 25aB3、(2002 年 9 月 25 日、新潟)

6. 一原主税、小林明、後藤康仁、井上憲一、辻博司、石川順三、”マイクロガスジェットイオン源の放電特性把握実験”、第 44 回真空に関する講演会 (2003) 14Bp9、(2003 年 11 月 14 日、東京)
7. 一原主税、小林明、井上憲一、後藤康仁、辻博司、石川順三、”無声放電によるマイクロガスジェットイオン源の放電安定化開発”、第 64 回応用物理学関係連合講演会(2003)、(2003 年 9 月)
8. 一原主税、小林明、井上憲一、木村健二、”軸対称磁場を用いた RBS 分析装置用光学系の設計”、第 51 回応用物理学関係連合講演会 (2004) 30aZY2、(2004 年 3 月 30 日、八王子)
9. 小林明、一原主税、井上憲一、濱田衛、足立成人、前原正明、四方田正彦、後藤裕史、和佐泰宏、井上浩司、結城隆裕、”円筒超電導磁石を用いた高分解能 RBS 分析装置の開発”、第 51 回応用物理学関係連合講演会 (2004) 30aZY1、(2004 年 3 月 30 日、八王子)
10. 一原主税、濱田衛、井上浩司、和佐泰宏、小林明、井上憲一、”高速高分解能 RBS スペクトロメータ用超電導磁石の開発”、第 65 回応用物理学学会学術講演会 (2004) 4aG2、(2004 年 9 月 4 日、仙台)
11. 一原主税、濱田衛、井上浩司、和佐泰宏、小林明、井上憲一、”超電導磁石を用いた高速高分解能 RBS スペクトロメータ内のビーム軌道評価”、第 52 回応用物理学関係連合講演会 (2005) 29pYN1、(2005 年 3 月 29 日、さいたま)
12. 一原主税、小林明、牟礼祥一、藤川和久、笹川薫、小椋厚志、木村健二、”高分解能 RBS による歪 Si の歪み評価”、第 53 回応用物理学関係連合講演会 (2006) 22pZE4、(2006 年 3 月 22 日、東京)
13. 一原主税、小林明、”サイクロトロン軌道を利用した RBS システムにおけるエネルギースペクトル”、第 67 回応用物理学学会学術講演会 (2006) 30aK8、(2006 年 8 月 30 日、草津)
14. 一原主税、小林明、濱田衛、井上浩司、和佐泰宏、井上憲一、”サイクロトロン軌道を利用した RBS 分析装置の開発”、イオンビームによる表面・界面解析研究会(2006)、(2006 年 12 月 8 日、岡山)