〔総合報告〕

イオン・チャネリングによる 結晶内格子欠陥の解析

名古屋大学・工学部 森 田 健 治

筑波大学・物理工学系 工 藤 博

Kenji MORITA and Hiroshi KUDOH : Ion-Channeling Analysis of Lattice Defects in Single Crystals

Channeling-effect measurements for structural analysis of lattice defects in single crystals are reviewed. Angle dependence of the yields of close collisions such as Rutherford backscattering, X-ray emission and nuclear reaction is shown to be powerful to determine the lattice site of impurity atoms and self-interstitial atoms constituting point-like defects. Energy dependence of the yields of dechanneling is also shown to provide quantitative information on the structure of extended and distortion-type defects such as stacking faults, twins, Guinier-Preston zones and dislocations. [J. Cryst. Soc. Japan. 25, 143 (1983)].

1. はじめに

1963年頃に発見された高速イオンの結晶内におけるチャネリング効果の研究は、その発展段階の1967年頃に、半導体研究の分野でイオン注入した不純物原子の格子位置決定、又核物理の分野で複合核の寿命測定に応用され、急速に進歩した¹⁻³⁾。今日では、このイオン・チャネリングは、固体物理の分野で、結晶内の不純物原子や格子間原子の格子位置決定など格子欠陥の研究⁴⁻⁹⁾、表面構造の研究¹⁰⁾や多層膜結晶の界面構造の研究¹¹⁾等に広く利用されつつある。

チャネリング効果の格子欠陥研究への応用の初期段階では、主として他の手法を用いて或る程度構造の明らかな格子欠陥のチャネリング効果に及ぼす効果が調べられた。その基礎的研究の結果、不純物原子の格子位置決定のように、手法として確立されているものがある反面格子欠陥の構造決定についてはまだ確立していない点もある。本稿ではイオン・チャネリング効果を結晶内の格子欠陥の解析に利用する場合、どのような知見を、どの程度得ることができるか、又どのような問題点があるかを全般的に解説する。詳細については上記の解説や原著論文を参照されたい。

2. 格子欠陥のチャネリングに及ぼす効果

高速イオンを単結晶の低指数軸方向あるいは面方向に平行に入射させると、イオンは表面から侵入するとき、第1図に示すように整列した原子列あるいは原子面の表面第1層原子と衝突する。イオン・原子衝突における原子の大きさは、その半径がトーマス・ヘルミの遮蔽

距離 ($\sim 0.1\text{\AA}$) 程度であるので、大部分のイオンは原子と近接衝突をすることなく、原子列間(軸チャネル)あるいは原子面間(面チャネル)を深く伝播する。この現象がチャネリングと呼ばれている。この場合の近接衝突、すなわち後方散乱、蛍光X線発生、核反応などの収量は、表面第1層原子により散乱され、その方向がチャネル軸やチャネル面から大きくそれたランダム粒子によってのみ生じる。従ってその値は、どの結晶軸や面に平行でないランダム入射の場合の値に比べ、軸チャネルの場合約 $1/80$ に、面チャネルの場合、約 $1/3$ に減少する。

チャネル内に障害物、つまり格子欠陥が存在する場合、チャネリング粒子はその障害物原子に散乱される。ある場合には、直接近接衝突し、後方散乱、蛍光X線発生や核反応の収量が増加する。他の場合にはその方向だけ大きくそれランダム粒子に移行(デイ・チャネリングと呼ぶ)し、その後生じる近接衝突によりそれらの収量が増加する。イオン・チャネリングによる格子欠陥の解析の原理はこの近接衝突収量の増加の検出に基づいている。1つの格子間位置に存在する障害物原子を第1図のように異なったチャネル軸方向から見ると、それぞれのチャネル軸に対して、チャネルの中央に現れたり、原子列の中に隠れたりする¹²⁾。又チャネル内を伝播するチャネリング粒子は振動軌道を取るので(第4図参照)、チャネル内の粒子束分布は空間的に一様でない。一様な粒子束分布のランダム入射と比較すると、チャネリング入射の粒子束はチャネルの中央で大きく、原子列や原子面近傍で低い¹³⁾。上述の事柄から格子間原子がチャネルの中央にある場合チャネリング入射における粒子1個当たりの近接衝突量は、ランダム入射のそれより大きく、逆に格子間原子が原子列近傍に存在する場合小さくなることがわかる。このことから、数%以下の低濃度の格子欠陥の解析には直接衝突による収量のイオン入射角依存検出が利用されている。しかし試料全体からの収量は格子欠陥濃度に比例するので、多くの原子が原子列近傍に変位したと見なし得る転移や積層欠陥などの集合格子欠陥の解析には、デイ・チャネリングによる近接衝突収量の増加のイオンエネルギー依存などが利用されている。以下の2.1において格子間原子による近接衝突収量、2.2においてデイ・チャネリングによる収量について述べる。

	Directional effect		
	●	×	□
<01>	Yes	50%	No
<11>	Yes	No	Yes

第1図 格子間原子の位置を決めるためのチャネリング効果の有用性を示す二次元模型。表は3つの位置が<01>および<11>方向における比較により区別できることを示す¹²⁾。

2.1 近接衝突収量の入射角依存

結晶表面を通過したチャネリング粒子は、チャネル内を原子列ポテンシャルあるいは原子面ポテンシャルに従って運動する。第2図(a)に従って軸チャネルについて考える。チャネル軸に垂直な面上においてチャネルの中心Oから点rの位置にある粒子は横エネルギー $E_{\perp} = U(r) + p_{\perp}^2/2M_1$ をもつ。ここで $U(r)$ は原子列ポテンシャル、 $p_{\perp}$ は横の運動、 M_1 は粒子

第2図 種々の格子間位置O, A, B, S, (a), 種々の入射角における粒子束分布(b), 近接衝突収量曲線の入射角依存(c)¹⁴⁾.

の質量である。多重散乱を無視すると、その横エネルギー $E_{\perp}$ が保存されるので、粒子の横運動は $E_{\perp}$ がポテンシャル $U(r)$ より大きい空間 $A(E_{\perp})$ 内に制限される¹⁵⁾。簡単化のため、軸に垂直な方向の運動が統計的な平衡状態にあるとすると、横エネルギー $E_{\perp}$ のチャネリング粒子束は $A(E_{\perp})$ 内で一様になる。従って $A(E_{\perp})$ 内の点 r における粒子束は $A_0/A(E_{\perp})$ に比例する。ここで A_0 は1つのチャネルのウィグナ・サイツ断面積である。従って点 r におけるチャネリング粒子束は

$$W(r, \phi_{in}) = \int_{E_{\perp} = U_{min}(r)}^{E_{\perp c}} \frac{A_0}{A(E_{\perp}')} F(E_{\perp}', \phi_{in}) dE_{\perp}' \quad (1)$$

で表される。ここで ϕ_{in} は入射角、 $F(E_{\perp}, \phi_{in})$ はチャネリング粒子の横エネルギー分布、 $E_{\perp c}$ はチャネリング粒子の横エネルギーの臨界値であり $E\phi c^2$ で表わされる。横エネルギー分布 $F(E_{\perp}, \phi_{in})$ は横運動の統計平衡を仮定すると $dA(E_{\perp})/dE_{\perp}$ となる。面チャネルにおける粒子束も同様に計算できる。

格子間位置に存在する原子からの近接衝突の収量は式(1)の粒子束分布を用いて容易に計算できる。1つの格子間位置は、単位胞格子内にいくつかの等価な位置をもつ。これらの格子間位置のチャネル軸に垂直な面への投影は、チャネル内の異なった場所に現れる。また、格子間原子は1つの格子間位置のまわりで格子振動している。これらのことを考慮に入れると、格子間位置に存在する原子に対する近接衝突の収量は

$$Y_I(\phi_{in}) = N_e \sum_i \int \sigma(E(r)) W(r, \phi_{in}) g(r - r_i) d\tau \quad (2)$$

で表される。ここで N_e は実験条件から決まる定数、 σ は近接衝突の断面積、 g は原子が格子振動に従って位置 r_i のまわりに存在する確率である。また $\sum_i$ は等価な格子間位置に対する総和を表している。

ここで(1), (2)式の計算例を示す。チャネル内の種々の位置についての粒子束分布 $W(r, \phi_{in})$ の結果を第2図(b)に、 $Y_I(\phi_{in})$ の結果を第2図(c)に示す。第2図(b)から $\phi_{in}=0$ におけるチャネル中央粒子束がランダム粒子束(1)の8倍であることがわかる。また第2図(c)からチャネリング粒子束の非一様性により、収量曲線はそれぞれその位置に対し

で特徴的な形をもつことがわかる。これらの結果は、収量曲線測定により格子間位置を精度よく決定できることを示している。

結晶全体からの収量は、格子欠陥濃度、つまり格子間位置に存在する原子の割合に依存する。格子間位置に存在する割合を N とすると、全体の収量は¹⁶⁾

$$Y(\phi_{in}) = Y_I(\phi_{in}) + Y_L(\phi_{in})/N \quad (3)$$

で表される。ここで Y_L は格子位置にある原子からの収量である。実際の解析では不純物の格子位置決定と、母体原子と同種の自己格子間原子の位置決定とを分けて解析する必要がある。不純物原子は、大抵の場合その濃度が数%以下で、同一位置を占め、且つ実験的に母体原子と識別できる¹⁷⁾ので $Y_L=0$ と置ける。

一方自己格子間原子は、或る決まった構造を取る場合、その濃度は数%以下であると予想される。この場合、チャネリング入射 $\phi_{in}=0$ において(3)式の右辺の第1項の値は第2項の値と同程度で、且つランダム収量の約数%であるため、全収量曲線は単なるデイクとなる。従って特殊な格子間位置を除いて、その位置の決定は困難である。自己格子間原子の格子位置の決定には後述の二重チャネリング法が用いられている¹⁸⁾。

2.2 格子欠陥によるデイク・チャネリング収量

チャネリング粒子が格子欠陥によりランダム粒子にデイク・チャネリングされ、その結果生じる近接衝突収量を評価する。結晶表面から深さ z の距離におけるランダム粒子の割合を $\chi_R(z)$ とする。格子欠陥によるデイク・チャネリングの断面積を σ_d 、その濃度を $n_d(z)$ とすると、深さ z においてデイク・チャネリングされ、生じるランダム粒子の量は

$$d\chi_R(z) = (1 - \chi_R(z))(1 - \beta)\sigma_d n_d(z) dz \quad (4)$$

となる。(1 - $\chi_R(z)$) は深さ z におけるチャネリング粒子の割合であり、 β は直接的な近接衝突の割合である。 β の値は z に依存しないものとする、(4)式は次のようになる^{8, 18)}。

$$(1 - \chi_R(z))/(1 - \chi_0(z)) = (1 - \beta) \cdot \exp\left(-\int_0^z \sigma_d n_d(z') dz'\right) \quad (5)$$

ここで $\chi_0(z)$ は格子欠陥を含まない完全結晶におけるランダム粒子の割合を表す。完全結晶においても、電子による非弾性散乱や格子振動原子による散乱によりデイク・チャネリングは生じるが、直接的な近接衝突は生じないとした。(5)式において、左辺は実験的に測定できる量であるから、いくつかのチャネル軸方向についての測定結果から σ_d と n_d とを決定することにより格子欠陥の構造の知見が得られる。以下、それぞれの格子欠陥のデイク・チャネリング断面積の特徴を述べる。

2.2.1 格子歪みを伴わない格子欠陥によるデイク・チャネリング

(1) 格子間原子によるデイク・チャネリング

横エネルギー $E_{\perp}(=U(r) + p_{\perp c}^2/2M_1)$ 以上にデイク・チャネリングされる場合を考える。デイク・チャネリングされるのに必要な散乱角 $\Delta\phi(=p_{\perp}/p_0)$ は第3図に示すような座標系¹⁹⁾では

$$\Delta\phi = -|\phi| \cos \alpha + (|\phi_c^2 - \phi^2 \sin^2 \alpha|)^{1/2} \quad (6)$$

となる。横エネルギー $E_{\perp}$ の粒子に対するデイク・チャネリングの断面積 $\sigma(E_{\perp}, E_{\perp c}, E, r)$ は

$$\sigma(E_{\perp}, E_{\perp c}, E, r) = \frac{1}{2\pi} \int_{\alpha=0}^{2\pi} d\alpha \int_{\beta=0}^{2\pi} d\beta \int_0^{P_{\max}(\alpha, \beta)} PdP \quad (7)$$

で表される。チャネリング粒子に対して平均した全デイク・チャネリング断面積は(1)の粒

子束分布を用いると

$$\sigma_d(E, r) = \int_{E_L = U_{\min}(r)}^{E_{Lc}} \sigma(E_L', E_{Lc}, E, r) \frac{A_0}{A(E_L')} F(E_L') dE_L' \quad (8)$$

第3図 位置 r における格子間原子と衝突し、ディ・チャネリングされる、チャンネル軸に対して ψ の角度 (横運動量 p_L) をもつ粒子。 ψ_1 はチャネリングの臨界角、 $\Delta\psi$ は散乱角、 $P_{\max}$ は ψ_1 以上の散乱を生じる衝突係数 P の最大値。挿入図の太線は等ポテンシャル曲線¹⁹⁾。

と書ける。イオン原子衝突の相互作用ポテンシャルを与えると、(6)式の $\Delta\psi (= \Delta p_L / p_0)$ に対して衝突係数 P が求まり、(7)(8)式を用いて σ_d が計算できる。

σ_d の値は(8)式からもわかるように、格子間原子の位置 r およびチャネリング粒子のエネルギーに依存する。具体的な計算は、連続体近似による解析的取り扱い²⁰⁻²²⁾により又計算機シミュレーション¹⁹⁾により行われている。MeV α 粒子に対する面チャネルの場合の断面積は

$$\sigma_d = z_1 z_2 e^2 L \pi / 2 \cdot \{E \cdot V(x_c)\}^{-1/2} \quad (9)$$

第4図 積層欠陥を通過するチャネリング粒子の軌道の概略。1), 2) は横エネルギーの変化の場合, 3), 4) はディ・チャネリングの場合を表す。

になることが示されている²²⁾。ここで x_c はチャネリング粒子のチャンネル面に対する最近接距離である。 x_c は粒子エネルギーに対してほとんど依存しないので、(9)式は断面積 σ_d が $E^{-1/2}$ に比例することを表している。

(2) 積層欠陥によるディ・チャネリング

積層欠陥の構造は第4図のように、チャンネル軸が一様にずれた構造を取る⁹⁾。したがってその境界面の先端の原子はチャネリング粒子に対して格子間原子と同じように取り扱える。しかしこの場合臨界横エネルギー $E_{Lc} = U(r) + p_L^2 / 2M_1$ 中に含まれる $U(r)$ の値を $U(r_c)$ に置き換えなければならない。従って原子列の先端の原子と衝突した粒子のうち横運動の p_L が零の粒子だけがディ・チャネリングされないことになる。この条件と(6)(7)(8)式を用いると、断面積 σ_d を計算することができる。Morgan と Van Vliet²³⁾ は計算機シミュレーションにより、銅単結晶中の MeV 陽子に対して、その断面積がエネルギーと共に減少するという結果を得ている。

2.2.2. 格子歪みを伴う格子欠陥によるディ・チャネリング

(1) 連続近似模型

転位などのように格子間隔に較べ広範囲に格子歪みを持つ格子欠陥によるデイ・チャネリングは、前述の格子間原子や積層欠陥と異なった方法で取り扱われている。その断面積 σ_d は格子欠陥位置からチャネルまでの距離を $\bar{L}$ とすると、デイ・チャネリング確率 $Q(\bar{L})$ を用

$$\sigma_d = \int Q(\bar{L}) d\bar{L} \quad (10)$$

いて(10)式のように表されている。 $Q(\bar{L})$ は一般に格子の歪み具合のほか、チャネリング粒子のエネルギー E 、原子番号 z 、結晶原子の原子番号 z_2 に依存する。実験から直接測定される量は σ_d および n_d であるから、実験結果の解析には $Q(\bar{L})$ を理論的に計算する方法を確立することが不可欠である。ここではまず格子歪みによるデイ・チャネリングの連続近似模型について述べる^{7,24,25)}。簡単化のため、面チャネルについて述べる。

連続近似模型は Lindhard のチャネリングに対する連続体近似¹⁵⁾と格子歪みの変位関数を、チャネルの曲率に起因する遠心力を介して結びつけたものである。面チャネル(中央を $y=0$ に取る)に歪みがある場合、面ポテンシャルを $U(y)$ とすると進行方向位置 $Z=z$ におけるチャネリング粒子のチャネル内における軌道 $y(Z)$ は

$$\frac{d^2 y}{dz^2} = -\frac{1}{2E} \frac{dU(y)}{dy} - \left(\frac{\partial^2 u_1}{\partial Z^2} \right)_{Z=z} \quad (11)$$

で表される。 u_1 は $Z=z$ における原子変位のチャネルに垂直な成分であり、 $\partial^2 u_1 / \partial Z^2$ は進行方向位置 Z においてチャネリング粒子に働く遠心力に由来する項である。(11)式は $|\partial u_1 / \partial Z| \ll 1$ 、すなわちチャネルの方向変化が小さく且つ $|\partial^2 u_1 / \partial Z^2| d_p \ll 1$ 、すなわちチャネルの曲率半径が大きいときよい近似となる。ここで d_p は面チャネルの間隔である。チャネル粒子は(11)式の遠心力のため、横エネルギー $E_\perp$ の変化を受け、その軌道の振幅が変わり、その結果軌道 $y(z)$ がチャネリングの臨界位置 y_c に達した場合、デイ・チャネリングが生じると定義する。ここで y_c はトーマス・ヘルミの遮蔽距離を a_{TF} とすると $y_c = d_p/2 - a_{TF}$ で表される¹⁵⁾。横エネルギー $E_\perp$ のチャネリング粒子の軌道 $y(z)$ 、および横運動量 $p_\perp$ の種々の値に対して、格子欠陥の近傍で遠心力の及ぶ区間 $z_i < z < z_f$ について $y(z)$ を計算し、全軌道数に対するデイ・チャネリング軌道数の比として $Q(\bar{L}, E_\perp, y, p_\perp)$ を求めることができる。横エネルギー $E_\perp$ の粒子の y および $p_\perp$ に対する分布は統計平衡が成り立つとき

$$G(E_\perp, y, p_\perp) dy dp_\perp = C \{E_\perp - U(y)\}^{-1/2} \delta(p_\perp - \sqrt{2M_i(E_\perp - U(y))}) dy dp_\perp \quad (12)$$

で表される¹⁴⁾。ここで C は規格化定数である。統計平衡が成り立つとき、 $Q(\bar{L}, E_\perp, y, p_\perp)$ は歪みの始まる場所 z_i に依存しない。デイ・チャネリング確率 $Q(\bar{L})$ は粒子の横エネルギー $E_\perp$ に対する分布を $F(E_\perp)$ とすると

$$Q(\bar{L}) = \iiint Q(\bar{L}, E_\perp, y, p_\perp) F(E_\perp) G(E_\perp, y, p_\perp) dE_\perp dy dp_\perp \quad (13)$$

となる。面チャネルに対する $F(E_\perp)$ の値は完全結晶におけるデイ・チャネリングの理論から比較的精度よく求めることができる^{26,27)}。

又軸チャネリングの場合も、ほぼ同様の手続きで $Q(\bar{L})$ および σ_d を計算することができる^{7,24)}。

(2) 転位によるデイ・チャネリング

前述の連続近似模型から転位によるデイ・チャネリングの特徴を知ることができる。まず

任意の方向のバーガース・ベクトル $\bar{b}$ をもつ単一の直線転位による面デイ・チャネリングについて考える。弾性論によれば、この転位に対して Z 軸がどの方向を向いても $u_{\perp}$ は刃状転位およびらせん転位の変位関数²⁷⁾の線型結合で表される。これらの変位関数は距離に依存する部分が次元を持たない形をしているため $\partial^2 u_{\perp} / \partial Z^2$ は一般に

$$\partial^2 u_{\perp} / \partial Z^2 = L^{-2} f(Z/L) \quad (14)$$

のように表現できる²⁴⁾。 L を転位線と Z 軸との距離に、 Z 軸の原点を軸上で転位線に最も近い点にとると (14) 式を用いて (11) 式は

$$\frac{d^2 y}{dz'^2} = -\frac{1}{2E} \frac{dU}{dy} - (LE^{-1/2})^{-2} f(z'/[LE^{-1/2}]) \quad (15)$$

のように書くことができる。ただし $z' = E^{-1/2} z$ である。統計平衡が成り立つ場合、 Q は z' に依存しないので、(15) 式から Q は、パラメータ $LE^{-1/2}$ の関数となることがわかる。したがって転位の単位長さあたりのデイ・チャネリング断面積、すなわちデイ・チャネリング幅 μ は

$$\mu = \int_{-\infty}^{\infty} Q(LE^{-1/2}) dL = \sqrt{E} \int_{-\infty}^{\infty} Q(LE^{-1/2}) d(LE^{-1/2}) \quad (16)$$

となる。この式は積分が発散することなく有限の値を持つから、この式は単一の直線転位によるデイ・チャネリング断面積は $E^{1/2}$ に比例することを示している。更にチャネリング粒子が完全にイオン化している場合、 Q は $L(z_1/E)^{1/2}$ の関数になり、その結果 μ は $(E/z_1)^{1/2}$ に比例することがわかる^{8, 25, 29)}。

円形転位ループの場合には、同様の議論によりループ半径を R とすると

$$\mu/R = f_L(E^{1/2}/R) \quad (17)$$

の関係が成立すること³⁰⁾、又間隔 D の転位列について

$$\mu/D = f_D(E^{1/2}/D) \quad (18)$$

の関係が成立することが明らかになっている³¹⁾。(16) の積分値あるいは f_L, f_D の関数形は各々の場合について 2.2.2(1) に述べた計算から数値的に求めることができる。(16)(17)(18) 式のスケーリングは軸チャネリングの場合にも成立する。その他、対称性の高い転位配置についても同様に種々のスケーリングを導くことが可能であり、これらは実験結果の解析に有用である。

第5図 Al 結晶中の刃状転位 $\bar{b} = \frac{1}{3}a\langle 111 \rangle$ によるデイ・チャネリング確率 $Q(LE^{-1/2})$ の計算結果。転位に対して示した (111) 面方向への He イオンのチャネリングの場合。

第6図 Al 結晶中の円形転位ループ $b = \frac{1}{3}a$ $\langle 111 \rangle$ によるデイ・チャネリング幅 μ のエネルギー依存。[111] 軸方向への He イオンのチャネリングの場合³⁰⁾。

Q および μ の計算例を示す。第5図は Al 結晶中の刃状転位 $\bar{b} = \frac{1}{3}a\langle 111 \rangle (=2.43\text{\AA})$ の転位線に垂直、且つ $\bar{b}$ に垂直な (111) 面方向へチャネリングした He^+ イオンについての $Q(LE^{-1/2})$ である。第6図に Al 結晶中の空格子型円形転位ループ $\bar{b} = \frac{1}{3}a\langle 111 \rangle (=2.43\text{\AA})$ に垂直な $[111]$ 軸方向へチャネリングした He^+ イオンについての μ のエネルギー依存性を示す。黒丸がループ径 $R=20b$ の場合の数値計算によるもので、この曲線から他のループ径についての $\mu(E)$ を (17) 式のスケーリングにより図中の破線のように得ることができる。

単一の直線転位による μ の $E^{1/2}$ 依存性は (16) 式あるいは第5図によれば、転位周囲のデイ・チャネリング領域が $E^{1/2}$ に比例して横方向に広がることに起因する。隣接する転位があって歪み場が弱められれば、第6図のような大きな E の値について、 $E^{1/2}$ 依存性が破れることは明らかである。更に E が大きくなると、チャネル粒子はチャネルに平行に進むようになるため、 Q は $Z=-\infty$ を基準にとった $|u_{\perp}|$ の最大値によって決まり、その結果 E に依存しなくなる。従って第6図に示した μ と E の関係は R と転位密度に対応させて解釈すれば、極めて一般性をもつものである。

3. 近接衝突収量の角度依存による点欠陥の解析

3.1 不純物原子の格子位置決定

格子欠陥の解析を目的としたチャネリングの実験ではそれに応じて、近接衝突すなわち後方散乱、蛍光X線あるいは核反応の収量が測定されている¹⁷⁾。不純物原子の検出には、母体結晶原子より質量の大きい不純物に対しては後方散乱測定が、母体原子より質量の小さいあるいは原子番号の近い不純物に対しては蛍光X線測定が、又原子番号の小さい不純物には核反応生成粒子あるいは放出 γ 線測定が利用されている。

チャネリング効果が、半導体にイオン注入した不純物原子の格子位置決定に用いられた初期には、その目的は単に不純物原子が格子位置を占める割合を知ることであった³²⁾。1971年

第7図 Yb を注入した Si 結晶からの後方散乱収量曲線。
実線は Si に対する収量、点線は Yb に対する収量
を表す¹⁸⁾。

に Andersen ら¹³⁾や Feldman ら³³⁾はチャンネル内における粒子束分布が一樣でないことを利用して、不純物からの収量の入射角依存測定することにより、その位置を精度よく決定できることを示した。第7図に Andersen ら¹³⁾の測定による Si 中に注入した Yb からの後方散乱収量曲線の実験結果を示す。三つのチャンネル軸方向における特徴的な収量曲線から、彼等らは、Yb 原子が比較対称の高い4面体格子間位置や6面体位置を占めるのではなく、いわゆる Yb 位置を占めると結論した。これらの実験結果は、その後の計算機シミュレーションによる計算結果¹⁶⁾や、解析的な粒子束計算に基づく収量計算の結果³⁴⁾ときわめてよく一致することが確認されている。

これらの実験以後、半導体³⁵⁾、金属^{36, 37)}あるいはイオン結晶³⁸⁾について、イオン注入あるいは熱拡散などにより混入した不純物の格子位置決定や、特に最近では核融合炉工学に関連し金属中の水素、ヘリウムの格子位置決定に関する実験が報告されている⁶⁾。これらの結果を総合すると第7図の $\langle 110 \rangle$ 軸の様に粒子束ピークの現れる場合には、その占める位置を一意的に決めることができるが、いずれの方向においても $\langle 111 \rangle$ 軸のような特徴のない収量曲線を示す場合には、一意的に決めることは困難である。このような収量曲線は、不純物があり対称性の高くない位置を占めている場合や原子列近傍に存在する場合に相当する。

チャネリング効果の測定は、前述のように不純物の格子位置に関して直接的な知見を与えるので、メスパワー効果や、X線散慢散乱、ESR、光吸収などからの知見と組み合わせ、照射により生じた格子欠陥の構造や^{39, 40)}その挙動について特徴的な研究が行われている。チョーク・リバー研究所の Swanson ら^{39, 40)}は格子位置を占めていた不純物原子が、照射により生じた格子間原子と結合し、格子位置から格子間位置に移り混合亜鉛型格子原子を形成することを確認した。更に種々の不純物について、熱的焼鈍による回復過程を系統的に測定し混合亜鉛型格子間原子の安定度を決定した。

3.2 自己格子間原子の格子位置決定

自己格子間原子の格子位置決定には、前述の不純物原子に用いた手法をそのまま適用できない。イオンを1つのチャンネル軸方向に入射し、他のチャンネル軸方向に散乱される粒子の放出角依存を測定する二重チャネリング法が用いられている¹⁶⁾。格子原子に散乱された粒子の放出角依存はブロッキング効果⁴²⁾と呼ばれ第2図(c)と同じ形を示し、格子間原子の位置決定に利用できる。また格子原子からの散乱収量を減少させるためチャネリング入射が併用されている。これによると 10^{-3} 程度の原子比の格子間原子の格子位置決定が可能である。

この二重チャネリング法は、これまで Si や KBr 結晶の格子間原子の位置決定に適用されている。室温における Si の実験では、 $\langle 111 \rangle$ 軸方向において特徴的な粒子束ピークが観測されていて、この実験結果の解析から照射により生成された格子間原子は6方対称位置および結合間位置を1:2の割合で占めている可能性⁴¹⁾と内部摩擦測定から提案されている $\langle 110 \rangle$ スプリット配置を取る可能性⁴³⁾とが指摘されている。

KBr 結晶の実験⁴⁴⁾では、二重チャネリングと光吸収測定の結果から、LNT おいて照射により生成された格子間原子型の V_K 中心は、2つの Br 原子が体心に近い位置を占める Br_2 分子であると提案されている。

これらの実験では後方散乱粒子の検出にプラスチックフィルムを用いているが、連続測定の可能な検出手段の採用により、格子間原子構造について更に詳細な知見を得る可能性がある。

4. デイ・チャネリングによる集合欠陥の解析

解析に必要な実験データは、(5)式に表されたランダム粒子の割合 $\chi(x)$, $\chi_0(x)$ であるので、大抵の実験ではこれらの量を求めるのに後方散乱測定が採用されている。具体的には格子欠陥を含む試料および可能な場合には格子欠陥を含まない試料におけるチャネリング入射の後方散乱スペクトルをランダム入射のスペクトルで規格化し、粒子のエネルギーを試料内の深さ x に換算し、求める。研究の初期段階では、電子顕微鏡観察によりその欠陥構造と量がある程度知れている試料について σ_d を実験的に求め、 σ_d の理論値と比較が行われてきた。応用上特に興味があるのは、 σ_d の実験値から直接欠陥構造の詳細な知見を得ることである。以下主な解析を述べる。

4.1 格子歪みを伴わない格子欠陥解析

この分類に属するのは、双晶や積層欠陥である。Foti ら⁴⁵⁾は Si を注入した (111) Si 結晶を焼鈍し形成された双晶領域層における MeV He⁺ に対するデイ・チャネリングを測定した。双晶軸でない $\langle 111 \rangle$ 軸が $\langle 115 \rangle$ 軸に変換されているという電子顕微鏡観察に基づく解析から、デイ・チャネリングの実験値がよく説明されることを示した。また Capisano ら⁴⁶⁾は Al₂O₃ 上にエピタキシン成長させた Si 中の積層欠陥に対する He⁺ イオンのチャネリング効果を調べ、デイ・チャネリング断面積が 1.1~2.5 MeV においてエネルギーにほとんど依存せず、その値は直接的なデイ・チャネリングの断面積より 10 倍程度大きいことを示した。

またごく最近 Chu ら¹¹⁾は分子ビームエピタキシン成長させた InAs-GaSb の多層膜(超格子)の界面構造をデイ・チャネリング測定により調べた。 $\langle 100 \rangle$ 軸では界面において全くデイ・チャネリングが生じないこと、また $\langle 110 \rangle$ 軸において生じるデイ・チャネリングがエネルギーに依存しないという実験結果から、その Ga-As 界面では面間隔が約 7% 縮み、逆に In-Sb 界面では面間隔が 7% 伸びているという界面構造モデルを提案している。

4.2 格子歪みを伴う格子欠陥の解析

4.2.1 Guinier-Preston (GP) 層

ある種の時硬化合金内に形成される析出物 GP 層は母体と同じ結晶構造をもつことが知られているが、原子半径の違いのためその付近の結晶格子は母体格子に較べわずかな歪みを持つ。GP 層の存在がデイ・チャネリングを起こすことを Sakurai⁴⁷⁾が Al-Zn 合金について、Desarmot⁴⁸⁾が Al-Cu 合金について最初に観測した。GP 層による原子変位は格子間隔に較べて小さいため、直接散乱の確率は小さいので、(5)式で $\beta=0$ とおくことができる。弾性論によれば半径 R の球状析出物の場合、球の中心から $\vec{r}$ の位置における原子変位 $\vec{u}(\vec{r})$ は歪み定数を A とすると、

$$\vec{u}(\vec{r}) = \begin{cases} A\vec{r} & (r \leq R) \\ AR^3\vec{r}/|\vec{r}|^3 & (r > R) \end{cases} \quad (19)$$

で与えられる。 $\vec{u}(\vec{r})$ からチャネル軸に垂直な原子変位 $u_1(x)$ が決定できるので、連続近似模型を用いると、 σ_d-A 曲線を求めることができる。ここで $A=0$ の場合でも GP 層内外の組成元素の違いによる $U(y)$ の違いに起因するデイ・チャネリングが生じる。実験から直接決定できる量は σ_d , $n_d(x)$ であるので、 n_d の既知の試料については、 σ_d の測定値から A の値を決定することができる。実際 Al-Zn 合金と Al-Ag 合金^{49,50)}について解析が行われてい

第8図 Al-Zn 合金結晶中の半径 $20\text{\AA}$ の GP 層附近におけるデイ・チャネリング確率 (単位 0.1%) の計算結果. 1.5 MeV He^+ イオンが図の横軸に平行な (111) 面方向へチャネリングした場合⁵⁰⁾.

第9図 Au 結晶中の (111) 面上の転位ループ $\bar{b} = \frac{1}{3}a\langle 111 \rangle$ によるデイ・チャネリング確率 (単位 $\%$) の計算結果. 2 MeV He^+ イオンが $[001]$ 軸にチャネリングした場合⁵²⁾.

る. 第8図に Al-Zn 合金の $R=20\text{\AA}$ GP 層 (破線) 周辺における (111) 面チャネリングの Q の計算結果を示す⁵⁰⁾.

4.2.2 転位

Merkle ら⁵¹⁾は MeV He^+ の照射損傷によって形成された Au 結晶中の転位ループの σ_d 測定を行った. このループは平均半径が $19\text{\AA}$ で, (111) 面上の Frank 型転位であると推定されている. 第9図は連続近似模型による計算結果で図中の (x_1, x_2) における 2 MeV He^+ の $[001]$ 軸チャネリングについて $Q(\%)$ を等値線で示してある. Q を x_1, x_2 に関して積分して求めた計算値 $\sigma_d=210\text{\AA}^2$ は Merkle らの実験値 $235\text{\AA}^2$ とよく一致している.

Picraux ら⁵³⁾は Al イオンおよび Zn イオンの照射によって Al 結晶中に形成された複雑にからみ合った転位について σ_d とその E, z_1 依存性を測定した. その結果 $0.5\sim 2.8\text{ MeV}$ の H^+, He^+ について, σ_d は $(E/z_1)^{1/2}$ に比例すること, デイ・チャネリング効果に較べ直接散乱の効果は小さいこと, デイ・チャネリング測定には, $10^9\sim 10^{10}\text{ cm}^{-2}$ 以上の転位密度が必

要であることなどを見出した。 σ_d の $E^{1/2}$ 依存の実験結果は、彼らの測定における n_d 、したがって転位の平均間隔と E が第6図の $\mu \propto E^{1/2}$ の領域に対応していることを意味している。

重イオン照射と熱処理によってSi結晶中に直径 $1\mu\text{m}$ 程度の大きさの転位網を導入することができる⁵⁴⁾。この転位はSi結晶内で照射重イオンの飛程附近に局在し、また電子顕微鏡観察からその構造がわかるため転位によるデイ・チャネリングの基礎的研究に適している。この転位網について n_d, σ_d あるいはその E や z_1 依存などの測定が行われている^{55, 56)}。一例として第10図に E 依存性についてのMannamiら⁵⁵⁾の実験結果を示す。

最近PbS/PbSe結晶境界面に格子状に分布する境界転位についてデイ・チャネリングの測定および解析がKimuraとMannamiらにより報告されている⁵⁸⁻⁶⁰⁾。彼らは σ_d の実験値を連続近似模型により解析し、その境界転位の構成状態を決定した⁵⁹⁾。又面チャネリングについての σ_d が E に依存しないことが観測され⁶⁰⁾、これは第5図の E 依存のない μ の部分に相当する。このほか境界面に垂直な $[100]$ 軸チャネリングで後方散乱スペクトル

中に界面付近のPb原子による直接散乱を示すピークが見い出されている^{57, 58)}。この結果は転位を含む結晶における後方散乱過程をより明らかにできる点で興味深い⁵⁷⁾。

そのほか、Au-Ag合金結晶⁶¹⁾、Ta結晶内の転位⁶²⁾についてのデイ・チャネリングの測定がある。

5. おわりに

イオン・チャネリングによる不純物や格子間原子の格子位置や格子欠陥構造などの直接的な情報と他の手段により得られる情報とを相補的に組み合わせることにより、結晶内の格子欠陥構造がより明確になる例を紹介した。MeV程度の小型加速器の普及および元素分析手段としてのイオンビームの特徴により、多くの応用を経て更に発展することが期待される。記述については、2.1, 2.2.1, 3.を森田が、2.2.2および4.を工藤が担当した。

文 献

- 1) D. S. Gemmell : Rev. Mod. Phys **46**, 129 (1974).
- 2) D. V. Morgan (ed.) : *Channeling*, John Wiley & Sons, New York (1973).
- 3) J. F. Ziegler (ed.) : *New Use of Ion Accelerator*, Plenum Press, New York (1975).

第10図 Si結晶内の深さ約 $1\mu\text{m}$ に局在する転位網によるデイ・チャネリングを示す規格化スペクトル、およびデイ・チャネリング断面積($\Delta\chi/(1-\chi)$ に比例)のエネルギー依存性の実験結果⁵⁵⁾。

- 4) 小牧研一郎 : 応用物理, **48**, 637 (1979).
- 5) J. H. Barrett : Nucl. Instr. Meth. **149**, 341 (1978).
- 6) 山口貞衛, 小沢国夫 : 日本結晶学会誌, **20**, 199 (1978).
- 7) 工藤博 : 応用物理, **48**, 580 (1970).
- 8) 木村健二, 京島徹, 万波通彦 : 応用物理, **49**, 921 (1980).
- 9) A. P. Pathak : Rad. Effects **61**, 1 (1982).
- 10) 松波紀明 : 応用物理, **48**, 686 (1979).
- 11) W. K. Chu, F. W. Saris, C-A Chang, R. Ludeke and L. Esaki : Phys. Rev. **B26**, 1999 (1982).
- 12) in Ref 2. Chap. XIII.
- 13) J. U. Andersen, O. Andreassen, J. A. Davies and E. Uggerhøj : Rad. Effects **7**, 25 (1965).
- 14) R. B. Alexander, P. T. Callaghan and J. M. Poate : Phys. Rev. **B9**, 3022 (1974).
- 15) J. Lindhard, K. Dan and Vid. Selsk : Mat. Fys. Medd. **34**, No. 14 (1965).
- 16) K. Morita : Rad. Effects **28**, 65 (1976).
- 17) J. W. Mayer, E. Rimini (ed.) : *Ion Beam Handbook for Material Analysis*, Academic Press, New York (1977).
- 18) E. Bøgh : Can. J. Phys. **46**, 653 (1968).
- 19) K. Morita and R. Sizmann : Rad. Effects **24**, 281 (1975).
- 20) N. Matsunami, T. Gotoh and N. Itoh : Rad. Effects **33**, 209 (1977).
- 21) J. H. Quillico and J. C. Jousset : Phys. Rev. **B11**, 1791 (1975).
- 22) A. Dunlop, N. Lorenalli and J. C. Jousset : Phys. Stat. Sol. (a) **49**, 643 (1978).
- 23) D. V. Morgan and D. Van Vliet : *Atomic Collision Phenomena in Solids*, ed. by D. W. Palmer et al., North-Holland p. 476 (1970).
- 24) H. Kudo : J. Phys. Soc. Japan. **40**, 1645 (1976).
- 25) H. Kudo : Nucl. Instr. Meth. **170**, 129 (1980).
- 26) T. Oshiyama : J. Phys. Soc. Japan. **49**, 290 (1980).
- 27) T. Oshiyama and M. Mannami : Phys. Lett. **81A**, 43 (1981).
- 28) 鈴木秀次 : 転位論入門 (アグネ, 1967) など.
- 29) Y. Quéré : Phys. Stat. Sol. **30**, 713 (1968).
- 30) H. Kudo : Phys. Rev. **B18**, 5995 (1978).
- 31) K. Kimura, T. Oshiyama and M. Mannami : Japan. J. Appl. Phys. **21**, 1222 (1982).
- 32) J. A. Davies, J. Denhartog, L. Eriksson and J. W. Mayer : Can. J. Phys. **45**, 4053 (1971).
- 33) J. U. Anderson, E. Laegsgard and L. C. Feldman : Rad. Effects **12**, 219 (1972).
- 34) K. Komaki : *Ion Beam Surface Layer Analysis*, ed. by O. Mayer et al., Plenum Press, New York (1976).
- 35) N. Iue, N. Matsunami, K. Morita, N. Itoh, M. Yoshida and S. Hirota : Rad. Effects **14**, 191 (1972).
- 36) R. B. Alexander and J. M. Poate : Rad. Effects **12**, 211 (1972).
- 37) S. T. Picraux, W. L. Brown and W. M. Gibson : Phys. Rev. **B6**, 1382 (1972).
- 38) K. Tachibana, K. Morita and N. Itoh : Solid State Commun. **9**, 1425 (1971).
- 39) M. L. Swanson, L. M. Howe and A. F. Quenneville : J. Nucl. Mat. **69**, **70**, 372 (1978).
- 40) M. L. Swanson, L. M. Howe and A. F. Quenneville : Nucl. Instr. Meth. **170**, 427 (1980).
- 41) K. Morita and H. D. Carstanjen : Rad. Effects **28**, 97 (1976).
- 42) B. Domeij : Nucl. Instr. Meth. **38**, 207 (1965).

- 43) K. Morita and H. D. Canstaujen : Rad. Effects **59**, 117 (1982).
- 44) Y. Mitsushima, K. Morita, N. Matsunami and N. Itoh : J. de Physique **C7**, 95 (1976).
- 45) G. Foti, L. Cseprregi, E. F. Kennedy, J. M. Mayer, P. P. Pronko and M. D. Rechtin : Phil. Mag. **A37**, 591 (1978).
- 46) S. U. Capisano, G. Fofi, E. Rimini and S. T. Picraux : Nucl. Instr. Meth. **149**, 371 (1978).
- 47) T. Sakurai : J. Phys. Soc. Japan. **35**, 113, 632 (1975).
- 48) G. Desármot : Phys. Lett. **46A**, 159 (1973).
- 49) H. Kudo and M. Mannami : J. Phys. Soc. Japan. **40**, 1654 (1976).
- 50) M. Matsushita : J. Phys. Soc. Japan. **51**, 1264 (1982).
- 51) K. L. Merkle, P. P. Pronko, D. S. Gemmell, R. C. Mikkelsen and J. R. Wrobel : Phys. Rev. **B8**, 1002 (1973).
- 52) H. Kudo and M. Mannami : Phys. Lett. **58A**, 323 (1976).
- 53) S. T. Picraux, E. Rimini, G. Foti and S. U. Capisano : Phys. Rev. **B18**, 2073 (1978).
- 54) 例え[†] N. N. Gerasimenko, V. V. Valinin and S. I. Stenin : Rad. Effects **37**, 167 (1978).
- 55) M. Mannami, K. Kimura, A. Kyoshima, M. Matsushita and N. Natsuaki : J. Phys. Soc. Japan. **49**, 2319 (1980).
- 56) G. Götz and B. Grusha : Nucl. Instr. Meth. **194**, 199 (1982).
- 57) A. Kyoshima, M. Matsushita, K. Kimura and M. Mannami : Phys. Lett. **76A**, 149 (1980).
- 58) A. Kyoshima : J. Phys. Soc. Japan. **50**, 2395 (1981).
- 59) K. Kimura and M. Mannami : Japan. J. Appl. Phys. **20**, 2295 (1981).
- 60) K. Kimura, S. Sawada and M. Mannami : Japan. J. Appl. Phys. **21**, 1228 (1982).
- 61) K. Kimura, M. Mannami, A. Kyoshima and M. Matsushita : Japan. J. Appl. Phys. **19**, 733 (1980).
- 62) P. K. Bhattacharaya, J. Chevallier, E. Uggerhøj, J. Mory and Y. Quéré : Rad. Effects **51**, 127 (1980).