TOF 型 ICISS/ERDA による表面解析*

木下 敏宏**・小林 忠司**・住友 弘二**
片山 逸雄***・生地 文也**・尾浦憲治郎**

(受付1990年12月6日, 掲載決定1991年3月2日)

Surface Analysis by a TOF-ICISS/ERDA Method

Toshihiro KINOSHITA**, Tadashi KOBAYASHI**, Koji SUMITOMO**
Itsuo KATAYAMA***, Fumiya SHOJI** and Kenjiro OURA**

** (Faculty of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka)

*** (Faculty of General Education, Osaka Inst. of Tech., Asakiku Ohmiya, Osaka)

(Received December 6, 1990, Accepted March 2, 1991)

1. はじめに

表面水素の振舞いは、清浄表面と同様に興味深い研究対象であり、我々はこれまで、主として高エネルギーイオンを用いた手法により表面水素の定量を行ってきた¹⁻³⁾。その間に表面水素によりAg薄膜の結晶成長が促進されることも見だしている⁴⁾。一方、飛行時間型低速イオン散乱分光法 (TOF-ICISS) は表面構造解析の有効な手法の一つであり、これまでに半導体表面や薄膜成長の初期過程の研究に応用してきた^{5,6)}。しかしながら、後方散乱法では最も軽い元素である表面水素の検出は極く限られた条件以外では不可能である⁷⁾。

そこで、我々は今回、表面水素解析に有効な低速イオン弾性反跳粒子検出法 (ERDA) と TOF-ICISS 法と組み合わせ、同一の試料に対して用いることのできる複合型表面解析装置を製作した。この二つの手法を同一の試料に対して用いることにより、表面水素の解析と、薄膜あるいは基板の構造解析を同時に行うことができる。また、飛行時間法を用いることによってプローブイオンによる表面損傷を軽減し、非破壊で、さらに時間と共に変化していくような現象を実時間で測定することができる。

ここでは、TOF-ICISS/ERDA 複合装置の概略と、いくつかの試料に対してこの装置を用いた実験結果、さらにその実験結果からこの装置が十分な基本性能を持っていることを示す。

2. 実験装置

Fig. 1 に、今回製作した TOF-ICISS/ERDA 複合装置の概略図を示す。

一次イオンビームは、磁場偏向型質量分析器により質量分析された後、二組の平行平板型偏向器で構成されるチョッピングステージによりパルス化される。パルス化されたプローブイオンを試料に照射し、MCP1 では散乱角180°で後方散乱される粒子を検出し、また、MCP2 では、試料表面で反跳される粒子を検出する。この時、後方散乱粒子及び前方反跳粒子の飛行時間を測定することにより、それぞれ粒子のエネルギー及び質量の分析を行った。入射イオンビームは1.0~2.5 keV の He⁺ または Ne⁺ を用いることができ、試料表面上のビーム径及び電流値はそれぞれ~3 mmφ と~50 nA 程度である。ビームのパルス幅は40~100 nsec, 繰り返し周波数は30 kHz である。この装置の特徴は、二つの検出器 (MCP1, MCP2) を選択することにより、後方散乱粒子と前方反跳粒子を同じ雰囲気中で、簡単に切り換えて測定できることである。

* 1990年10月24日 第31回真空に関する連合講演会で講演 (24Ap-11)

** 大阪大学工学部 (吹田市上田丘2-1)

*** 大阪工業大学一般教育科 (大阪市旭区大宮5-16-1)

Fig. 1 Schematic illustration of the TOF-ICISS/ERDA apparatus.

3. 実 験

3.1 ICISS

Fig. 2(a) (b)に ICISS のスペクトル例を示す。それぞれ、Si(111) 清浄表面上にエピタキシャル成長した Ag(111) 表面及び $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 超構造表面に対して、1.4 keV の He^+ イオンをプローブとした時に得られるスペクトルである。Fig. 2(a)では、二体弾性衝突モデルによる近似により計算される2.5 μsec 程度の所に鋭いピークをもち、それより飛行時間の遅い方にスペクトルが広がっていることがわかる。これは、入射イオンの中で、表面から奥深く進入し多重散乱効果や非弾性損失により、一回衝突以上にエネルギーを失った粒子が数多く分布しているからである。Fig. 2(b)では、表面の Ag で散乱された鋭いピークと、基板の Si 原子によって散乱された鈍いピークとからなる。表面の Ag の単原子層では一回散乱が支配的であるので鋭いピークとなるが、基板の Si 原子からの信号は多重散乱などの影響で鈍いピークとなる。

Fig. 3 に、ICISS スペクトルの照射角依存性の例を示す。清浄な Si(111) 表面上にエピタキシャル成長した Ag(111) 面に対して照射角を $[\bar{1}\bar{1}2]$ 方位に沿って $6^\circ \sim 174^\circ$ まで 2° おきに変えながら測定した。プローブは1.4 keV の He^+ イオンを用いている。照射角により散乱強度が変化しているのがよくわかるが、これは表面近傍層の構造を反映しているからである。逆にこの照射角依存性から表面の Ag の構造解析も可能である。

3.2 ERDA

Si(111) 表面上に Ne^+ イオンを入射角 3° で照射し、反跳角 14° で MCP2 で検出された反跳粒子のスペクトルを Fig. 4 に示す。Fig. 4(a)には、約 5×10^{-10} Torr まで真空排気を行った後、清浄化処理を行う前の試料から得ら

Fig. 2 Typical TOF-ICISS spectra, corresponding to He particles backscattered from the surfaces:
(a) A thick Ag(111) oriented film prepared on a Si(111) (Ag(111)//Si(111))
(b) Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ R30°-Ag surface induced by a 1 ML Ag deposition at 400°C .

れたスペクトルを、Fig. 4(b)には約 1000°C のフラッシュによる清浄化後のスペクトルを示してある。Fig. 4(a)では表面で散乱された Ne のほかに、反跳された水素や炭素のピークが存在するが、清浄化処理の後の Fig. 4(b)にはこれらの反跳粒子によるピークは消え、散乱粒子によるピークだけになる。図中の矢印で示している飛行時間は、二体弾性衝突近似による計算で求めた結果で、実験より得られたピークとよく一致している。これらのことから、反跳水素を散乱粒子や他の反跳粒子と十分に分離して検出することができることがわかった。

Fig. 5 に、Si(111) 清浄表面上に、 1×10^{-7} Torr の雰

Fig. 3 TOF-ICISS spectra as a function of the impact angle α , corresponding to He particles backscattered from a Ag(111) films epitaxially grown on a Si(111).

Fig. 4 Typical TOF-ERDA spectra corresponding to Si(111) surfaces: (a) before and (b) after cleaning processes (flash and annealings).

囲気中で水素を吸着させながら連続的に測定した反跳水素強度変化の様子を示す。水素の吸着は、タングステンフィラメントを1700°Cに加熱し、水素を原子状に解離して行った。反跳水素強度は暴露時間の増加と共に増加し、約150分程度の暴露時間で飽和し、Si(111)表面が完

Fig. 5 Intensity variations of hydrogen recoils as a function of hydrogen gas exposure.

Fig. 6 Intensity variations of hydrogen recoils observed during low temperature annealings.

全に水素終端されることを示している。また、この装置が、水素を検出するのに十分な質量分解能を持っていることがわかる。Si(111)面に対する水素の飽和吸着量は、高速イオンをプローブとしたERDA法により、1.5 MLであることが分かっており、本解析装置が表面水素に対して十分に高感度であることもわかる。

Si(111)清浄表面を上で述べた方法で水素終端し、その基板をそれぞれ室温、300°C、400°Cの温度に保ちながら、2.5 keVのHe⁺イオンを照射し加熱時間の関数として反跳水素強度を測定した結果をFig. 6に示す。反跳水素強度は、室温では60分程度照射してもほとんど変化しないので、He⁺イオンが試料に与えるダメージはほとんどないと考えられる。

しかし、300°Cや400°Cでは加熱処理のため、時間と共に反跳水素強度が減少し、表面の水素原子が徐々に熱

脱離している様子がわかる。60分の熱処理によって、基板温度が300°Cでは表面の水素の40%が熱脱離し、400°Cでは80%近くの表面水素が熱脱離をしてしまう。さらに高温で熱処理を行った場合では、瞬時に表面水素は熱脱離し、清浄なSi(111)にもどる。

4. ま と め

今回、我々は、新しくTOF-ICISS/ERDA実験装置を製作し、ICISSでは、照射角や方位角を変化させることにより表面数十層の構造解析を、また、ERDAでは、表面数層に存在する水素を検出することができた。これが、表面水素の分析に対し実時間で、しかも非破壊的に行えることが判明した。

Si(111)清浄表面上の水素の吸着実験の結果、時間と共に水素は徐々に吸着し1000 Lで飽和することがわか

った。また、水素終端Si(111)表面上の水素の脱離の様子を非破壊的に観察することができた。

〔文 献〕

- 1) K. Oura, J. Yamane, K. Umezawa, M. Naitoh, F. Shoji and T. Hanawa: Phys. Rev. B41 (1990) 1200.
- 2) K. Oura, M. Naitoh, J. Yamane and F. Shoji: Surf. Sci. 230 (1990) L151.
- 3) 尾浦憲治郎: (応用物理, 第59巻, 1990, p 937)
- 4) M. Naitoh, F. Shoji and K. Oura: Surf. Sci. (in press)
- 5) K. Sumitomo, K. Tanaka, Y. Izawa, I. Katayama, F. Shoji, K. Oura and T. Hanawa: Appl. Surf. Sci. 41/42 (1989) 112.
- 6) K. Sumitomo, K. Tanaka, I. Katayama, F. Shoji and K. Oura: Surf. Sci. (in press)
- 7) F. Shoji, I. Katayama, K. Oura and T. Hanawa: Surf. Sci. 220 (1989) L719.