

## 論文内容の要旨

論文題目 低速多価イオンによる F/Si(100)表面からの F<sup>+</sup>脱離

氏名 岡林 則夫

イオンを表面に照射すると、運動量移行および電子励起により、表面を構成する原子分子が、中性またはイオンの状態で放出される。一般に、前者の運動量移行による現象は Kinetic Sputtering (KS) と呼ばれ、後者の電子励起による放出現象は電子遷移誘起脱離 (DIET: Desorption Induced by Electronic Transitions) と呼ばれる。このような現象は、物質の改質として利用されており、工業的に重要な意味がある。また、放出二次イオンの質量分布を測定する事は、表面の組成分析において有用である事が知られている。通常イオンのエネルギーが数 keV/u 以下のエネルギー領域では KS の効果が支配的となるが、数十 keV/u 以上のエネルギー領域では DIET の効果が顕著になる。イオンは運動エネルギーの他にポテンシャルエネルギーを持っているので、通常 KS が重要とされるエネルギー領域でも、DIET が重要になる場合がある。このような現象は、イオンのポテンシャルエネルギーに起因することから PS (Potential Sputtering) と呼ばれる。近年の多価イオン源の発達に伴い、多価イオンによる PS の研究が盛んに行われるようになった。その結果様々な標的に対し、劇的な二次粒子収量の

増加が報告され、多価イオンによる表面組成分析や表面加工の可能性が示唆された。しかしながら、この分野の研究はまだ初期の段階にあり、その素過程は詳しく解明されていない。

イオン衝突によるPSの研究では、フッ素がよく対象として取り上げられる。大きな電気陰性度のためKSに起因する正イオン放出が起こりにくい、従ってPS過程が観測しやすいという理由からである。本研究では、このようなPS研究の典型例である $F^+$ の多価イオンによる脱離過程解明を目的としている。標的としては、ESDIAD (Electron Stimulated Desorption Ion Angular Distribution)により吸着構造が詳しく調べられているF/Si(100)表面を採用した。測定法としては、時間分解能が高い( $\Delta t \ll 10$  ns)二次元位置検出器を用いたイベント毎の二次イオン検出法を採用し、飛行時間と二次元位置、三次元運動量、放出エネルギーと放出角度の三次元情報を測定した。飛行時間法を用いているので入射粒子の数を抑える事ができ、イオン照射による表面状態の変化の無い実験が可能になった。また大口径(40mm $\Phi$ )の検出器を用いているので、全ての方向に放出される $F^+$ を検出することができた。多価イオン照射の前後には表面状態の変化が無い事を確認するためにESDIADの測定を行った。

入射イオンは $Ar^{q+}$ で、価数 $q$ は4から8まで、入射エネルギーは1.5 keVから5.0 keVまで、入射角は $22^\circ$ から $65^\circ$ まで変化させ、収量や三次元情報を系統的に測定した。図1に3.9 keV  $Ar^{q+}$  ( $\theta_i=30^\circ$ )照射により放出される $F^+$ の収量を入射イオンの価数の関数として示す。ここで $\theta_i$ は表面垂直方向から測った入射角である。図からわかるように $F^+$ 収量は価数の約3乗に比例して増加していた。この結果は $F^+$ 脱離において価数(ポテンシャルエネルギー)が重要な役割を果たしている事をはっきりと示している。収量の価数依存性は、多くのPSの研究で重要な判断基準となるが、水素以外の表面吸着原子のイオン化脱離収量が強い価数依存性を示す事は、本研究で初めて明らかになった。なお $Ar^{6+}$ に対する $F^+$ 収量は、ESDの場合の最大 $F^+$ 収量と比べると桁大きな値であった。図2に3.9 keV  $Ar^{q+}$  ( $\theta_i=35^\circ$ )照射によりF/Si(100)から放出される $F^+$ のエネルギー分布を示す。 $F^+$ の放出エネルギーは、価数によらず、 $2.0 \pm 0.6$  eVに最大値をもち、KSに特徴的な数百 eVまでおよぶテールは確認されなかった。またエネルギー分布の入射エネルギー依存性および入射角依存性は確認されなかった。従

って、本研究で調べた範囲では、F<sup>+</sup>脱離はPSに起因している事がわかった。さらに、図3に示したように、F<sup>+</sup>の表面に平行な成分(横方向)の運動量分布は、価数によらず、[01 $\bar{1}$ ]と[011]方向に沿ってそれぞれ二つのピークを持つ四回対称の分布を示していた。この方位角に関する対称性は、Si(100)表面上のフッ素の吸着状態を反映していた。F<sup>+</sup>の極角分布は、価数によらず、 $18 \pm 4^\circ$ に最大値を持ち、Si<sub>9</sub>H<sub>12</sub>F<sub>2</sub>クラスターに対して行われた第一原理計算によるSiFボンドと表面垂直との間の角度 $23^\circ$ と近い値であった。このように、イオン衝突により放出される二次イオンがボンドの向きに沿って放出される場合がある事は、本研究で初めて明らかになった。なお横方向の運動量分布および極角分布についても、入射エネルギー依存性、入射角依存性は確認されなかった。以上の結果からAr<sup>q+</sup>照射により脱離されるF<sup>+</sup>は、本研究で調べた範囲では、SiFボンドの向きに沿って放出される事がわかった。従って、PS過程はより具体的に、SiFボンド内の反発力に起因している事が特定できた。この結論とAr<sup>6+</sup>照射に対するF<sup>+</sup>収量がESDの場合のF<sup>+</sup>収量の最大値よりも二桁大きかった事を合わせて考えると、多価イオンはシリコン表面上のフッ素に対して、高感度で吸着状態を分析できる有効なプローブであることがわかった。

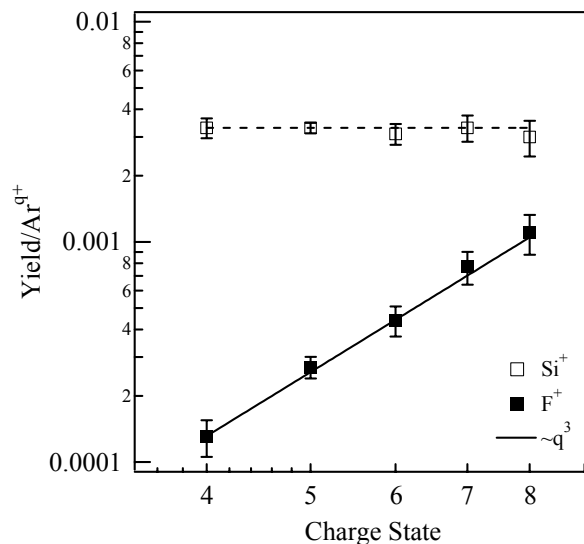


図1 3.2 keV Ar<sup>q+</sup> ( $\theta_i = 30^\circ$ )によりF/Si(100)表面から放出されるF<sup>+</sup>とSi<sup>+</sup>の入射イオンあたりの収量。縦軸、横軸共に対数表示。Si<sup>+</sup>収量は価数依存性が無いが、F<sup>+</sup>収量は $q^3$ に従って増加している。

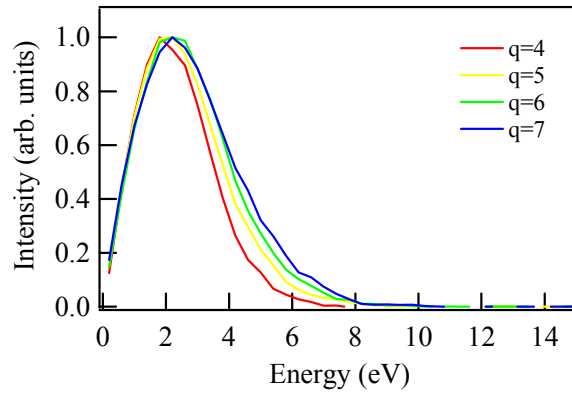


図2 3.9 keV  $\text{Ar}^{q+}$  ( $\theta_i = 35^\circ$ )によりF/Si(100)表面から放出される $\text{F}^+$ のエネルギー分布.

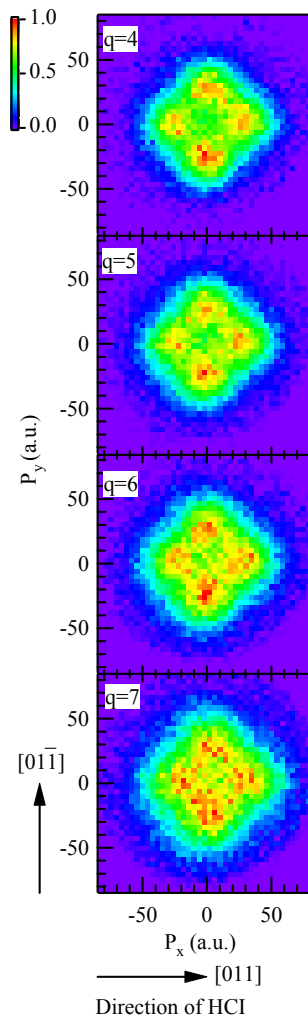


図3 3.9 keV  $\text{Ar}^{q+}$  ( $\theta_i = 35^\circ$ )によりF/Si(100)表面から放出される $\text{F}^+$ の表面に平行な成分の運動量分布. 最大値が1になるように規格化している.