## 論文の内容の要旨

論文題目 低速多価イオンによるプロトンスパッタリングの研究

## 氏名黑木健郎

大きなポテンシャルエネルギーをもった多価イオンが物質の表面に近づくと、表面から プロトンが多価イオンの強い価数依存性をもって放出されることが知られている。この価 数依存性は多価イオンの運動エネルギーを小さくした低速の多価イオンにおいては非常に 強くなる(価数の5乗程度)ことが報告されている。この強い価数依存性は古典的障壁乗 リ越えモデル(COBモデル: Clasical Over the Barrier)によって説明できることが示さ れている。本研究では、多価イオンによるプロトンスパッタリングを研究するために、清 浄表面実験が可能な超高真空実験槽を製作し、放出プロトンの二次元分布が測定できる TOF-2DPSD (Time Of Flight - 2Dimentional Position Sensitive Detector)測定装置を開 発して、低速の多価イオンを固体表面に衝撃し、放出プロトンの収量、二次元分布、放出 エネルギーなどを測定した。

まず、本研究では 4 価から 12 価までの Xe イオンを、超高真空中の熱処理によって再構成された Si(100)-(2×1)清浄表面から作成した Si(100)-(2×1)H、Si(100)-(1×1)H 表面に衝撃したときの Xe イオン 1 個あたりのプロトン収量を測定した。実験結果を図 1 に示す。図にはプロトンと同時に測定された Si<sup>+</sup>イオン収量も表示している。プロトン収量は Si - (2×1)H、Si - (1×1)H 表面ともに  $q^5$  という非常に強い価数依存性を示していることがわかる。一方 Si<sup>+</sup> イオン収量には価数依存性はみられない。同じようなプロトン収量の価数依存性はKakutani らが未処理表面に関して報告しており、その生成機構を Burgdörfer らは COB モデルによって説明している。本研究における Si (100) - (2×1)清浄表面から作成したよく定義さ



図 1 Si-2x1H、-1x1H 表面からのプロトンと Si<sup>+</sup> 収量の価数依存性 (点線は *q*<sup>6</sup>の依存性を示す。プロトンには価数依存性があるが Si<sup>+</sup> にはない)

れた Si 表面からのプロトンスパッタリングにおいても、多価イオン衝撃によるプロトン生成機構は COB モデルによって説明されると考えられた。

また、TOF-2 DPSD 装置によって多価イオン衝撃による二次イオンの放出二次元分布と その放出エネルギーを測定した。図2に色々なSi表面からの放出プロトンの二次元分布を 示す。Si-(2×1)H表面からSi-(3×1)H、Si-(1×1)H表面と表面上の水素原子数が増えると放 出プロトンの二次元分布も広がっていた。Si-(2×1)H<sub>2</sub>O表面においては表面上の水素原子数 はSi-(2×1)H表面よりも少ないが、放出プロトンの二次元分布は非常に大きく広がっていた。 2 DPSD 装置で測定される二次元分布は放出プロトンのSi表面に平行なエネルギー成分を 現している。Si表面に垂直なエネルギー成分は放出プロトンの TOF から求めた。さらに、 超高真空中の熱処理によって再構成されたSi(100)-(2×1)清浄表面に水素、重水素、水を吸 着させて表面状態を変化させて、多価イオン衝撃によるプロトン収量の表面に対する依存 性を測定した。図1においてもSi-(2×1)HとSi-(1×1)H表面では表面に吸着した水素原子数 が2倍程度しか変化していないのにプロトン収量は10倍程度増加している。Si<sup>+</sup>イオン収量 も3倍程度増加している。Si(100)の各表面を3keVのXe<sup>8+</sup>イオンで衝撃したときのプロト ン収量、Si<sup>+</sup>イオン収量、水素被覆率、放出プロトンエネルギー、表面Si<sup>+</sup>の寿命の一欄表を 表1に示す。表において(2×1)H、(3×1)H、(2×1)H<sub>2</sub>Oの各表面は原子的に平坦な表面であり、 (1×1)Hと(1×1)D表面は原子的にラフな平面であるとSTMの観測によって理解されている。



図2 Si 各表面の放出プロトン二次元分布

プロトン収量は(2×1)H と(3×1)H 表面では表面上の水素原子数と同程度であるが、同じように原子的に平坦な(2×1)H<sub>2</sub>O 表面においては表面上の水素原子数は(2×1)H 表面の 8 割弱で あるにもかかわらずプロトン収量は(2×1)H の 3.5 倍となっている。原子的にラフな(1×1)H 表面においては表面上の水素原子数は(2×1)H 表面の 2 倍程度であるのにプロトン収量は (2×1)H の 10 倍程度になっている。3keV の Xe<sup>8+</sup>イオンで衝撃したときに表面上で生成され るプロトン量が表面上の水素原子数に対して一定であると仮定すると、これらのプロトン 収量の変化は生成されたプロトンの中性化確率の違いを表していると考えられた。原子的 に平坦な(2×1)H<sub>2</sub>O 表面においてプロトンの中性化確率が抑制されるのは(2×1)H<sub>2</sub>O 表面の Si-OH ボンドの水素が O 原子の上に存在するために Si 表面からの距離が大きいためである

Si surface	Si(100)	Si(100)	Si(100)	Si(100)	Si(100)
	(2×1)H	(3×1)H	(1×1)H	(1×1)D	(2×1)H <sub>2</sub> O
Proton yield (/Xe <sup>8+</sup> , 3keV)	1.2×10 <sup>-4</sup>	2.0×10 <sup>-4</sup>	1.3×10 <sup>-3</sup>	8.5×10 <sup>-5</sup>	4.2×10 <sup>-4</sup>
Si <sup>+</sup> yield(/Xe <sup>8+</sup> , 3keV)	8.3×10 <sup>-4</sup>	9.0×10 <sup>-4</sup>	$2.4 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^{-3}$	8.5×10 <sup>-4</sup>
Coverage (ML, theory)	1	1.33	2	2	0.5
Coverage (ML, TDS)	1	1.5	2.0	-	0.38(Si-H) 0.38(Si-OH)
Coverage (ML, ERDA)	1	1.7	1.85 <u>+</u> 0.18	-	-
Proton $\sigma$ (10 <sup>-18</sup> cm <sup>2</sup> )	0.177	0.197	0.959	0.0627	0.177(Si-H) 1.45(Si-OH)
Proton $\sigma$ (ratio)	1	1.11	5.42	0.35	1(Si-H) 8.2(Si-OH)
$\langle E_{\prime\prime\prime}\rangle$ (eV)	0.6	0.7	1.2	-	-
$\langle E_{\perp} \rangle$ (eV)	0.6	-	4.7	-	-
$\langle E \rangle$ (eV)	1.2	-	5.9	-	-
Si <sup>+</sup> life (fs)	2.7	-	11	-	_
Proton life (fs)			0.6		
$H^+$ , $D^+$ survival prob.	-	-	$1.45 \times 10^{-3}$	9.7×10 <sup>-5</sup>	-

表1 各種 Si 表面におけるプロトン収量、Si<sup>+</sup>イオン収量、水素被覆率、 放出プロトンエネルギー、表面 Si<sup>+</sup>の寿命

と考えられる。(1×1)H 表面の水素原子に関しては、表面の凸凹によって Si の表面からの距離が実効的に大きくなっているためであると考えられた。原子的に平坦な表面では Si<sup>+</sup>イオン収量は、プロトン収量とは対照的にほぼ同じであり、ラフな表面では増加していた。

電気的性質が同じで質量だけが異なる重水素吸着表面、(1×1)D 表面からの重水素イオン 収量を測定して(1×1)H 表面からのプロトン収量を比較すると生成されたプロトンの生き残 リ確率を求めることができる(表 1)。この確率から計算すると、Si-(1×1)H 表面においては、 3keV の Xe<sup>8+</sup>イオン 1 個の衝撃で 0.9 個程度のプロトンが生成されていることになる。ま た、このプロトン収量と重水素イオン収量の比からプロトンの表面でのイオン寿命(0.6fs)を 求めることができた。これは、後述する放出プロトンエネルギーから求められる Si<sup>+</sup>の表面 でのイオン寿命(11fs)に比べて非常に短くなっていた。