

連載 (講義)

イオンビーム分析概論 (I) (HEIS, MEIS, LEIS) (第2回)

笹川 薫*
コベルコ科研 〒651-2271 神戸市西区高塚台 1-5-5
*sasakawak@kobelcokaken.co.jp

(2007年5月28日受理)

イオンビーム分析概論 (I) として、イオン散乱全般の入門的な内容を紹介する。イオン散乱分析を理解するために必要な5つの基本的な概念のうちから、カイネマティック因子、散乱断面積、阻止能、エネルギーストラグリリング、について第一回よりも詳細に説明する。

Introduction to Ion Beam Analysis (I) (HEIS, MEIS, LEIS) (2)

K. Sasakawa*
Kobelco Research Institute, Inc., 1-5-5, Nishi-ku, Takatsukadai, Kobe, Hyogo 651-2271, Japan
*sasakawak@kobelcokaken.co.jp

(Received: May 28, 2007)

As an introduction of the ion beam analysis, I will introduce the elementary aspects of ion scattering analysis method of HEIS, MEIS and LEIS. I will explain these four important concepts, kinematic factor, scattering cross section, stopping power, and energy straggling.

1. はじめに

連載の第1回目は、最初にイオンビームを用いた各種分析法の用語と概略を簡単に紹介した(ここで、MEISをMiddle Energy Ion Scatteringとしたが、Middleは殆ど使われていないのでMediumに訂正する)。そのあと、イオン散乱分析の物理的な基礎となる概念を簡単に説明したが、本連載の企画の意図である、「初心者にもわかる」、「教科書に載っていない」、という内容にはほど遠く、断片的な記述になっていたようである。

そこで、イオン散乱分析の基本概念を、再度、第2回と第3回に分けてわかりやすく詳細に説明することにする。第2回ではカイネマティック因子(Kinematic Factorは決まった日本語訳が無く、第1回では弾性散乱因子と訳したが、準拠すべきものが見当たらないのでKinematicのカタカナ表記とFactorの和訳である因子を合わせたカイネマティック因子に変更する。反跳のKinematic Factorは反跳散

乱因子と訳したが、これは反跳のカイネマティック因子に変更する。)と散乱断面積と阻止能を中心に、第3回では阻止能の理論とエネルギーストラグリリングとチャネリングを中心に解説する。なお、説明の都合上、第1回の基本概念的説明およびQ&Aで重要と思われる内容については、そのまま、もしくは修正して使用する。

2. イオン散乱分析の基礎

2.1. カイネマティック因子 (Kinematic Factor)

イオン散乱分析では、散乱されたイオンの運動エネルギーから、標的原子の種類を判別する。この散乱されたイオンの運動エネルギーの大きさを決めるのがカイネマティック因子 K である。いま、図1に示すように、エネルギー E_0 、質量 M_1 の入射粒子が、静止した質量 M_2 の標的原子に衝突し、エネルギー E_1 で散乱角 θ 方向に散乱され、質量 M_2 の標的粒子がエネルギー E_2 で反跳角 ϕ 方向に反跳される場合を考

える。

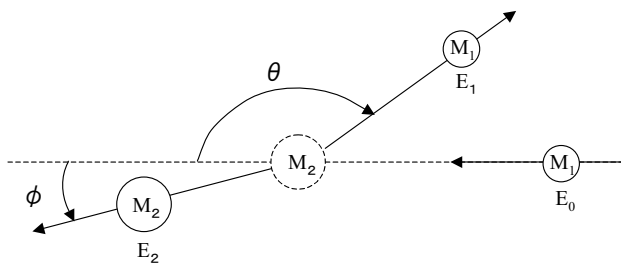


Fig. 1. Schematic diagram of elastic collision between a projectile of mass M_1 , energy E_0 and a target mass M_2 which is initially at rest. After the collision, projectile of mass M_1 is scattered in direction of angle θ with energy E_1 , and target particles of mass M_2 are recoiled in direction of angle ϕ with energy E_2 .

散乱された粒子の運動エネルギー E_1 は、入射粒子の運動エネルギー E_0 と質量 M_1 、標的原子の質量 M_2 と散乱角 θ から、運動エネルギーと運動量の保存則により計算することができる。散乱粒子の運動エネルギー E_1 の入射粒子の運動エネルギー E_0 に対する比はカイネマティック因子と呼ばれ、次式であらわされる[1]。

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{(M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + M_1 \cos \theta}{M_2 + M_1} \right]^2 \quad (1)$$

このように、カイネマティック因子は、照射粒子の質量 M_1 、標的原子の質量 M_2 、および散乱角 θ の関数である。

カイネマティック因子を標的原子の質量に対してプロットしたものを図2に示す。入射イオンはHeで散乱角は 170° とした。カイネマティック因子は標的原子の質量5で立ち上がり、単調に増大する。その曲線の傾きは標的原子の質量が大きくなるにしたがって小さくなることからわかる。曲線の傾きは、標的原子質量に対するカイネマティック因子の変化率であり、質量が小さい領域で曲線の傾きが大きいことから、質量が小さいほど質量の違いを識別しやすい、すなわち元素を識別しやすいことがわかる。

それでは、どのくらいの質量差まで見分けられるか具体的に調べてみよう。RBSの典型的な測定条件、すなわち入射イオンは He^+ 、入射エネルギーは2 MeV、散乱角は 170° とする。この場合の、散乱イオンのエネルギーの標的原子質量依存性は、図2と形状は同じで縦軸のカイネマティック因子 K に2 MeVを掛けたものになる。標的原子の質量が1増えたときの散乱イオンのエネルギーの増分を標的原子の質

量に対してプロットしたものを図3に示す。Heイオンの検出に用いられる半導体検出器のエネルギー分解能を15 keVであると仮定する。そうするとエネルギー分解能は、質量38の標的原子によって散乱されたイオンのエネルギーと、質量39の標的原子によって散乱されたイオンのエネルギーとの差に相当することから、質量40くらいまでなら質量数1の違いを見分けられる可能性があることがわかる。元素の識別が可能かどうかは、各元素の平均原子量や同位体分布から推定できる。しかしながら、散乱イオンのエネルギーは、標的原子の質量だけでなく、存在深さによっても変化するため、元素の識別が可能かどうか、さらには、どのような深さ方向の情報が見られるかは、想定される試料構造から計算したスペク

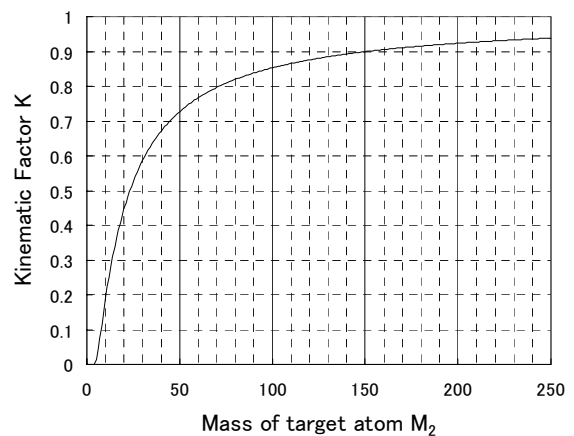


Fig. 2. Kinematic factor K [Eq. (1)] of He projectile at a scattering angle of 170° as a function of the target mass M_2 .

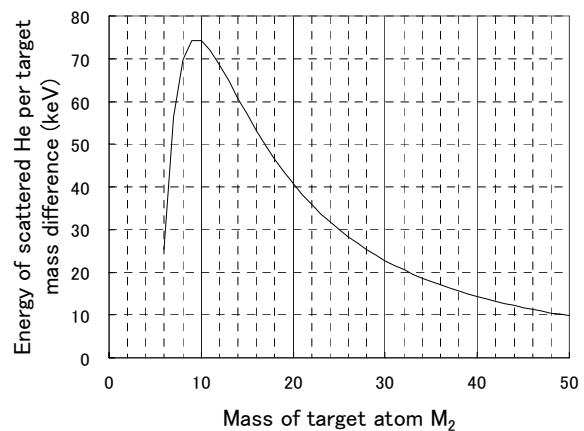


Fig. 3. Energy of scattered He projectile per target mass difference at a scattering angle of 170° and an incident energy of 2 MeV as a function of the target mass M_2 .

トル (シミュレーションスペクトル) から判断することが必要になる。

照射イオンのエネルギーが高いほど、単位質量あたりのエネルギーは高くなるため、検出系のエネルギー分解能が同じであれば、照射イオンのエネルギーを高くしたほうが元素間の識別は容易になる。以上のように、通常の RBS 分析の条件では ^{12}C , ^{14}N , ^{16}O , ^{19}F などの軽元素は容易に識別でき、 ^{16}O と ^{18}O などの同位体も容易に識別することができる。原子番号が高くなると識別し難くなるが、重元素でも質量が十分離れていれば識別できるのはいうまでもない。

入射イオンの種類を変えるとカイネマティック因子の標的原子質量依存性は変わる。入射イオンを H, He および Ne とした場合、カイネマティック因子の標的原子質量依存性は図 4 のようになる。入射イオンに H を用いた場合、標的原子質量によるカイネマティック因子の変化は低質量側で、He の場合よりも変化率が大きくなることがわかる。これに対して、入射イオンに Ne を用いると、He イオンを用いた場合よりも高質量側でカイネマティック因子の変化率が大きくなることがわかる。散乱された Ne を He と同じエネルギー分解能で検出できれば、高質量数側の元素の識別が容易になる筈である。

散乱角の大きさによってもカイネマティック因子の標的原子質量依存性は変わる。入射イオンを He とし、散乱角を 170° , 100° および 50° にした場合、カイネマティック因子の標的原子質量依存性は図 5 のようになる。散乱角が小さくなるにしたがい、高質量領域において、カイネマティック因子の質量に対する変化率は小さくなることがわかる。このように、照射するイオンの種類とエネルギーが同じであれば、散乱角を大きくした方が高質量領域において元素を識別しやすくなることがわかる。

このように、標的原子の質量の識別しやすさは、検出系のエネルギー分解能はもちろん、入射イオンの質量、エネルギー、および散乱角によって変わることがわかる。通常の RBS の条件では、相対的に軽い元素は識別しやすいが、元素が重くなるに従って識別し難くなる。重い元素を識別しやすくするための指針として、入射イオンに質量が大きい元素を用いる、入射エネルギーを高くする、散乱角を大きくする、などがあげられる。高エネルギーや中エネルギーの後方散乱分析では、質量数の大きい入射イオンは殆ど使われていないようであるが、低エネルギーの後方散乱分析では、Ne や Ar などの重い元素

も入射イオンとして使われ、より重い元素が識別しやすくなるという報告がある[4->2]。

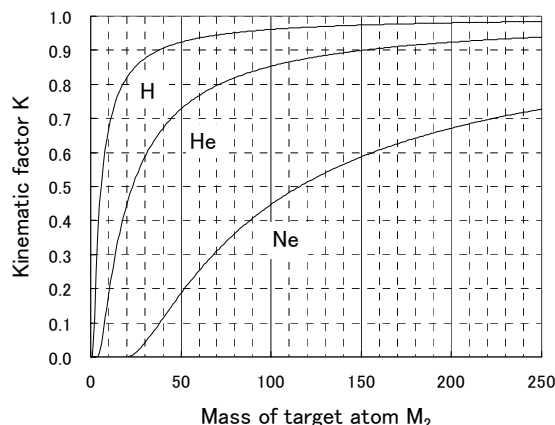


Fig. 4. Kinematic factor K [Eq. (1)] at a scattering angle of $=170^\circ$ as a function of the target mass M_2 for the projectile of H, He and Ne.

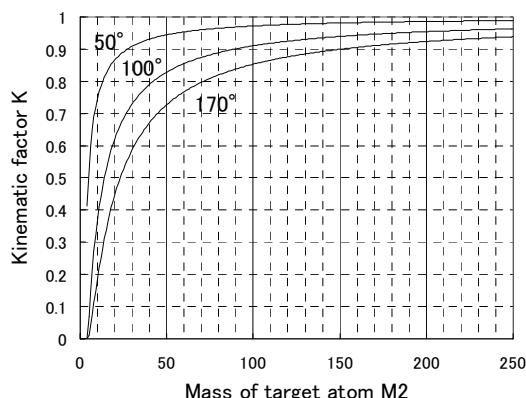


Fig. 5. Kinematic factor K [Eq. (1)] of ^4He projectile as a function of the target mass M_2 at scattering angles of $=50^\circ$, 100° and 170° .

ここまでは、入射粒子が標的原子によって散乱される場合についてみてきた。次に、入射イオンによって散乱された標的原子がどうなるかをみてみよう。入射イオンによって散乱された標的原子は反跳原子または反跳粒子と呼ばれる。入射イオン M_1 によって反跳された標的原子 M_2 は反跳によって運動エネルギーを得る。入射イオンのエネルギー E_0 と反跳粒子のエネルギー E_2 の比を反跳のカイネマティック因子 K_r (添え字の r は recoil の頭文字) と呼ぶ。反跳のカイネマティック因子 K_r は次式であらわされる [2->3]。

$$K_r = \frac{E_2}{E_0} = \frac{4M_1M_2}{(M_2 + M_1)^2} \cos^2 \phi \quad (2)$$

照射イオン種として He, N および Cl を用いた場合の K_r の標的原子質量依存性を図 6 に示す. 反跳散乱角 ϕ (図 1 参照) は 30° とした. 反跳のカイネマティック因子 K_r は質量 1 で立ち上がり, 照射イオンの質量と標的原子の質量が同じになったとき最大になり, 標的原子の質量が照射イオンの質量を越えると小さくなる.

図 6 に示されているように, 水素原子に対する K_r は, N や Cl よりも He イオンの方が大きい. 標的原子の質量数 7 までは He イオン照射の K_r が最も大きく, 質量数 8 から 21 までは N イオン照射の K_r が最も大きく, 質量数 23 以上では Cl イオン照射の K_r が最も大きい.

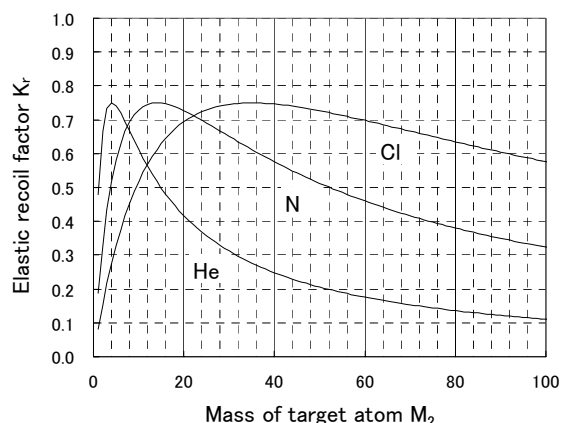


Fig. 6. Recoil kinematic factor K_r [Eq. (2)] at a recoil angle of 30° as a function of the target mass M_2 for the projectile of ^4He , ^{14}N and ^{35}Cl .

水素原子が He イオン照射による反跳散乱を利用して分析されていることはよく知られている. しかしながら, Li, Be, B などの元素が He イオン照射による反跳散乱を利用して分析されたという話は聞かない. 図 6 からわかるように, He イオン照射の場合でも Li, Be, B 等の反跳のカイネマティック因子は H のそれより大きい. それにもかかわらず Li, Be, B などの元素が He イオン照射による反跳散乱で分析されていないのはなぜだろうか. 前回の解説記事の Q&A で, 反跳粒子の検出には, 反跳粒子と同じ方向に散乱されてくる照射イオンと分離しなければならないが, Li, Be, B などの反跳粒子を透過させこれらの粒子と同じ方向に散乱されてくる He イオンを止める方法が無いという説明をした. このことをもう

少し定量的に検討する.

まず水素を分析する場合について検討する. 2 MeV の He イオンを照射すれば, 30° 方向に反跳された水素が得るエネルギーは K_r が 0.48 であるから 0.96 MeV となる. 一方, 照射した He イオンが 30° 方向に散乱されるときエネルギーは, 媒質の組成によって異なるが, よく調べられる炭素材料のような軽い元素であってもカイネマティック因子は 0.9 以上であり, もとのエネルギーと大きく変わらない. したがって, 水素を分析するためには, 2 MeV の He を止めて 1 MeV の水素を通す膜を半導体検出器の前に設置することが必要となる. He を止める膜として Al 箔を用いる場合を考えよう. Al 中における 2 MeV の He の飛程は $6.8 \mu\text{m}$ であるのに対し, 1 MeV の水素の飛程は $14.3 \mu\text{m}$ である [5->4]. したがって, 厚さ $7 \mu\text{m}$ の Al 箔を試料と検出器の間に設置すれば, 水素だけを検出することができる.

この水素分析において, 実際に, 反跳されて試料から飛び出す水素原子の数と, 前方に散乱されてくる He イオンの数はどうなっているだろうか. 炭素材料中の水素を分析する場合を想定しよう. 検出器は通常, 散乱角 30° の位置に設置される. 2 MeV の He イオンを炭素に照射した場合の散乱断面積は $1 \times 10^{-23} \text{ cm}^2/\text{sr}$ であり, 水素の反跳散乱断面積は $3 \times 10^{-25} \text{ cm}^2/\text{sr}$ である. したがって, この条件で, He イオンが炭素によって散乱される確率は, 水素が He イオンによって反跳される確率より 33 倍大きい. したがって, 炭素材料中の水素濃度が 10 at% の場合には, 散乱 He の強度は反跳水素の約 330 倍になる. 先ほど説明したように, Al 箔中における He と水素の飛程の差を利用することによって, He の 1/330 の強度しかない水素を検出することができるのである.

同じように高エネルギーの He イオンを照射して, 水素以外の元素を分析することはできないだろうか. シリコン中のホウ素について調べてみよう. 2 MeV の He イオンを照射した場合, 30° 方向に反跳された B が得るエネルギーは反跳のカイネマティック因子が 0.6 であるから 1.2 MeV となる. 照射した He イオンがシリコン原子によって 30° 方向に散乱されたときのエネルギーは, 1.9 MeV 以上である. ここで, 1.9 MeV の He と 1.2 MeV の B を識別できれば, 水素と同様に反跳散乱で分析できることになる. しかしながら, 後の章で説明するように, 媒質の阻止能は, 入射粒子の原子番号が大きいほど大きくなる, 入射粒子のエネルギーが高いほど大きくなるので, 反跳 B と同じ方向に散乱された He イオンを止めて,

反跳 B のみ透過するような物質は存在しないので、He イオンによる反跳粒子検出法では、水素は検出できるが、He より重い元素は、通常の半導体検出器を使う限り検出できないのである。

以上の説明から、分析対象元素よりも重い元素を入射粒子として使えば、反跳粒子分析法によって水素以外の元素が分析できるであろうことが予想できる。大型の加速器を用いて、数 MeV 以上の高エネルギーの塩素や金のイオンを照射し、軽元素を反跳によって固体表面から飛び出させ、適当な薄膜を用いて前方に散乱してきた入射粒子を止め、半導体検出器を用いて RBS よりも高い感度で分析することができる。

2.2. 散乱断面積

イオン散乱分析では、散乱されたイオンの強度から、標的原子の濃度がわかる。散乱されたイオンの強度と照射イオンの強度を結びつけているのが散乱断面積である。イオン散乱における散乱断面積は、散乱粒子数を単位面積あたりの照射粒子数で割ったもので、標的粒子の大きさを反映し、面積の次元を持つ。散乱されたイオンのうちで、特定の方向の単位立体角 Ω を通過したイオンの強度を照射粒子数で割ったものが、微分散乱断面積である。

イオン散乱が、照射イオンの原子核と標的原子の原子核との間のクーロンポテンシャルによる散乱であるとみなせる場合、微分散乱断面積は、古典力学によって計算できる。それが次に示すラザフォードの式である。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left\{ \left\{ 1 - \left[(M_1/M_2) \sin \theta \right]^2 \right\}^{1/2} + \cos \theta \right\}^2}{\left\{ 1 - \left[(M_1/M_2) \sin \theta \right]^2 \right\}^{1/2}} \quad (3)$$

ここで E は入射イオンのエネルギー、 Z_1 は入射イオンの原子番号、 Z_2 は標的原子の原子番号、 θ は散乱角である[1]。この式が示しているように、微分散乱断面積は、入射イオンの原子番号の 2 乗、標的原子の原子番号の 2 乗に比例し、入射イオンのエネルギーの 2 乗に反比例する。

2 MeV、1 MeV および 0.5 MeV の He イオンを照射し、散乱角 170° の場合の微分散乱断面積を標的原子の原子番号に対してプロットしたものを図 7 に示す。散乱断面積が標的原子の原子番号に対して指数関数的に増大し、照射イオンのエネルギーが低いほ

ど散乱断面積が大きいことが示されている。さらに、縦軸の散乱断面積の指数部分は -23 で、これは、原子核の断面積に近い値である。この散乱断面積の値から、高エネルギーイオン散乱が、照射イオンの原子核と標的原子の原子核の間の散乱現象を利用しているということを実感することができる。

微分散乱断面積が標的原子の原子番号の 2 乗に比例するため、たとえば窒化タングステン (WN) を RBS で分析すると、W と N とでは原子番号が 10 倍以上違うため散乱断面積は 100 倍以上違う。そのため、W と N のスペクトルを同時に表示するには SIMS と同じように縦軸を対数表示にしなければならないのである。

微分散乱断面積の標的原子番号依存性をいくつかの散乱角に対してプロットしたものを図 8 に示す。散乱角が小さくなるに従って、散乱断面積は大きくなり、散乱角 50° では 170° の 10 倍くらい大きくなる。

散乱断面積は入射イオンのエネルギーの 2 乗に反比例するため、入射イオンのエネルギーを 2 MeV から 500 keV まで下げると散乱断面積は 16 倍になる。

ラザフォードの断面積の式は、入射イオンと標的原子の原子核の散乱におけるポテンシャルが、原子核のクーロンポテンシャルで記述できるとの仮定のもとに導出されたものである。しかしながら、この仮定は、散乱が原子核の近傍で生じる場合には成立するが、標的原子の原子番号が高い場合や衝突エネルギーが低い場合のように散乱が原子核から離れた場所で生じる場合には成立しない。それは、内殻電子によって原子核のクーロンポテンシャルが遮蔽されるためである。このような場合にはラザフォードの散乱断面積に対する補正が必要になる。L'Ecuyer

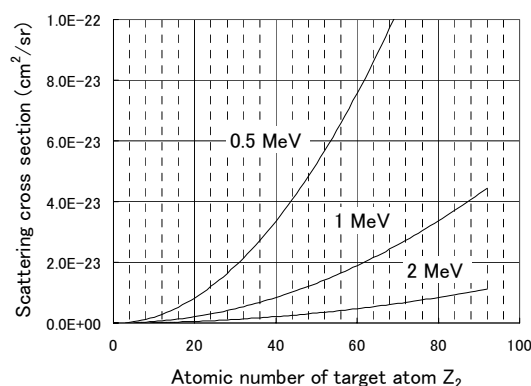


Fig. 7. Rutherford differential scattering cross section $d\sigma/d\Omega$ [Eq. (3)] of ^4He projectile at a scattering angle of $\theta = 170^\circ$ as a function of the target atomic number Z_2 at the incident kinetic energy of 0.5, 1 and 2 MeV.

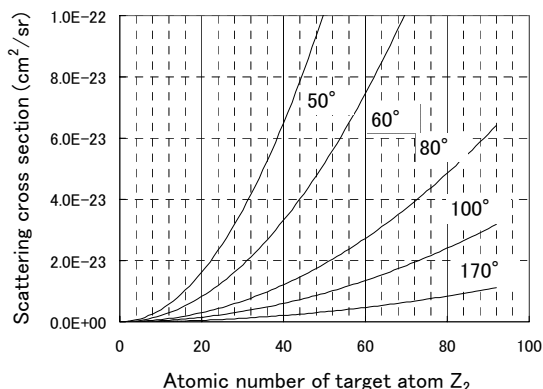


Fig. 8. Rutherford differential scattering cross section d/d [Eq. (3)] of He projectile as a function of the target atomic number Z_2 at an incident kinetic energy of 2 MeV for various scattering angles.

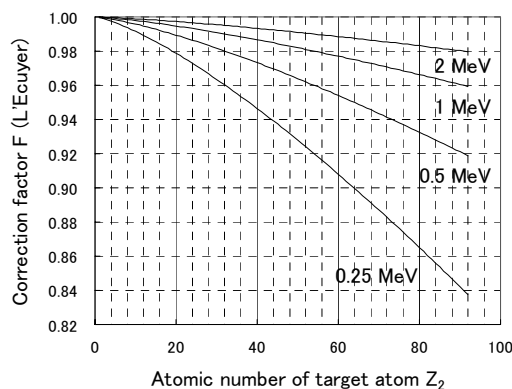


Fig. 9. Correction factors F [Eq. (4)] for the Rutherford cross section of He projectile at a scattering angle of $\theta = 170^\circ$ as a function of the target atomic number Z_2 for a variety of incident kinetic energies.

らは、次のような補正式を提案している[2-3]

$$\sigma_{sc} = \sigma(\theta)F \quad (4)$$

$$F = 1 - 0.049Z_1Z_2^{4/3}/E$$

ここで $\sigma(\theta)$ はラザフォードの散乱断面積、 σ_{sc} は補正された散乱断面積である。入射粒子が He の場合の補正係数 F を標的原子番号に対してプロットしたものを図 9 に示す。式(4)に示されているように、補正係数 F は標的原子番号が大きいほど、入射粒子のエネルギーが低いほど、1 より小さくなる。図 9 に示されているように、0.25 MeV の He を重元素に照射した場合には 10%以上の補正が必要になる。2 MeV の He を照射した場合、散乱断面積の誤差は最大でも 2%程度である。しかしながら、このデータをもって、2 MeV の He イオンを用いた RBS 分析では補正しなくても 2%以内の誤差で分析できると考えてはいけない。表面に存在している原子による散乱は、入射イオンのエネルギーで散乱断面積を計算すればよいが、深い領域に存在する原子による散乱の場合には、散乱時の入射イオンのエネルギーは深さに応じて低下していることを考慮しなければならない。入射時のエネルギーが 2 MeV でも、散乱時のエネルギーが 1.0 MeV まで低下していると、散乱断面積の補正係数は約 4%になる。

散乱断面積がラザフォードの式からはずれる条件が他にもある。それは散乱角が小さい場合である。RBS では 170°前後の散乱角を用いることが多いが、深さ方向分解能を上げるために、90°あるいはそれ以下の散乱角を用いることがある。散乱角が小さくなると、入射イオンと標的原子の最近接距離が長くなるため、遮蔽の影響が無視できなくなる。Andersen らによる補正係数の計算結果を図 10 に示す。遮蔽効

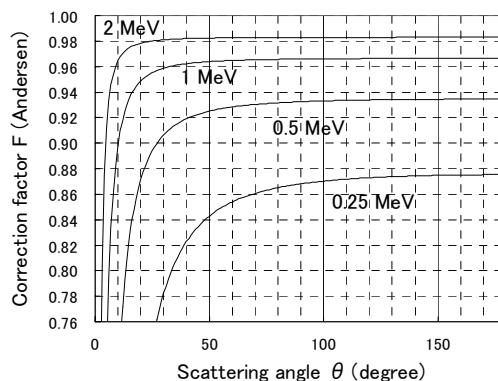


Fig. 10. Correction factors F [Eq. (4)] for the Rutherford cross section of He backscattered from gold as a function of scattering angle θ at a variety of incident kinetic energies.

果が大きい標的原子である Au に対して、入射 He イオンのエネルギーが 2 MeV, 1 MeV, 0.5 MeV, および 0.25 MeV の場合の散乱断面積のラザフォードの値からの補正係数の散乱角依存性を示した。散乱角が大きい場合、散乱断面積は L'Ecuyer らの値に一致する。RBS の典型的な分析条件 (2 MeV, He, 170°) の場合には補正は不要であるが、深さ方向分解能を上げるために中エネルギーイオン散乱で用いられることがある散乱角 50°の場合、0.5 MeV では L'Ecuyer の補正係数よりも 1%くらい小さい値になり、0.25 MeV では L'Ecuyer の補正係数よりも 3%くらい小さい値になる。

次に反跳散乱の散乱断面積について説明する。反跳散乱においても次に示すラザフォードの式がある。入射イオンのエネルギーが低い場合や、標的原子の原子番号が高い場合には、後方散乱の場合と同様に、反跳散乱においても遮蔽に対する補正が必要である。

$$\sigma_r^{\text{ERD}} = 2.0731 \times 10^7 \frac{[Z_1 Z_2 (M_1 + M_2)]^2}{(2M_2 E [\text{keV}])^2 \cos^3 \theta} \quad [\text{mb/sr}] \quad (5)$$

ここでは、反跳散乱のなかで最も汎用的に使われている水素分析をとりあげる。反跳散乱による水素分析の典型的な条件、2 MeV の He イオンを照射し散乱角 30° で検出する場合の反跳散乱断面積は、ラザフォードの式(5)から計算すると $2 \times 10^{-25} \text{ cm}^2/\text{sr}$ となる。ところが同様の条件で実験的に求めた反跳散乱断面積の値として、 $3 \times 10^{-25} \text{ cm}^2/\text{sr}$ あるいはそれ以上の値が報告されている。この場合の不一致は、実験データの方が大きな値になっており、内殻電子による遮蔽とは異なる現象によるものである。1 MeV より高いエネルギーの He イオンが水素原子と衝突する場合には、原子核のクーロン障壁を突き抜けることによって、反跳散乱断面積がラザフォードの式に従わなくなるのである。詳細は第3回で紹介したい。

2.3. 阻止能

一般に、あるエネルギーをもったイオンは、媒質中を通過する際にそのエネルギーの一部または全部を失う。その失うエネルギーの大きさは媒質を通過した距離に応じて変化する。媒質に入射したイオンが媒質中で失うエネルギーと媒質中を通過した距離を関係付ける概念がエネルギー損失 (energy loss) または阻止能 (stopping power) である。通常、エネルギー損失は dE/dx (単位走行長あたりに失うエネルギー) で定義され、単位としては、たとえば eV/nm , MeV/mm などであらわされる。通常、阻止能は $(1/N) \times (dE/dx)$ または $(1/\rho) \times (dE/dx)$ で定義される。ここで N は原子密度 (atoms/cm^3)、 ρ は質量密度 (g/cm^3) である。阻止能の単位としては、たとえば $\text{eV}/(10^{15} \text{ atoms}/\text{cm}^2)$, $\text{keV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)$ などであらわされる。阻止能は阻止断面積 (stopping cross section) とも称されている。推奨される単位系については後で説明する。

媒質中に照射されたイオンは、媒質中で弾性散乱もしくは非弾性散乱によってエネルギーを失う。弾性散乱による阻止能は核的阻止能 S_n (nuclear stopping power)、非弾性散乱によるエネルギー損失は電子的阻止能 S_e (electronic stopping power) と呼ばれる。高エネルギーや中エネルギーイオン散乱においては、電子的阻止能によるエネルギー損失が優勢で、低エネルギーイオン散乱においては、核的阻止能によるエネルギー損失が優勢である。

イオン散乱分析におけるエネルギー損失と深さの

関係を模式的に図 11 に示す。エネルギー E_0 で入射したイオンは着目原子に衝突するまでに媒質中でエネルギー ΔE_{in} を失う。このとき失うエネルギーは媒質の組成、密度、および通過距離によって決まる。標的原子にカイネマティック因子 K で散乱されると、散乱直後の散乱イオンのエネルギーは $K(E_0 - \Delta E_{\text{in}})$ となる。そこからさらに真空中に飛び出すまでに媒質中でエネルギー ΔE_{out} を失う。この損失エネルギー ($K\Delta E_{\text{in}} + \Delta E_{\text{out}}$) から、標的原子が存在していた深さが計算される。このように、物質中におけるイオンのエネルギー損失が、イオン散乱分析において、深さ方向分析のもとになっている。

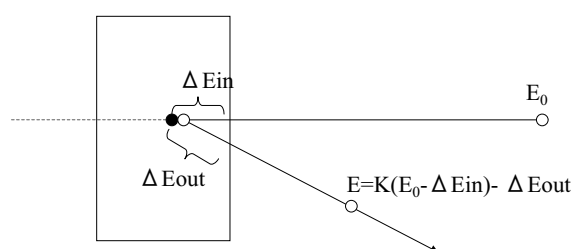


Fig. 11. Schematic diagram showing relation between the energy loss and the depth of target atoms in ion scattering analysis.

イオンが媒質中で失うエネルギーの大きさは、媒質の組成によって異なる。媒質中におけるイオンのエネルギー損失を、単位走行長あたりのエネルギーであらわしたものが阻止能である。媒質の単位深さは、長さで表す場合と単位面積あたりの物質質量で表す場合がある。単位面積あたりの物質質量は、長さとの積、すなわち面密度である。この面密度は使われる単位系によって異なり、長さ (cm) と重量密度 (g/cm^3) の積は重量面密度 (g/cm^2)、長さ (cm) と原子密度 (atoms/cm^3) の積は原子面密度 (atoms/cm^2) となる。イオン散乱の原理や理論を記述する場合はどの単位系でもとくに問題ないが、実際に深さ方向分析の解析をする場合や、その結果を正しく用いるためには、原子面密度 (atoms/cm^2) あたりの値であらわされた阻止能 [$\text{eV}/(\text{atoms}/\text{cm}^2)$] の扱いに慣れておく必要がある。

He イオンに対する電子的阻止能 S_e の値を計算するために、Andersen と Ziegler により与えられた経験式を式(6)に示す[6->5]。ここで S_{Low} は低エネルギー領域の電子的阻止能、 S_{High} は高エネルギー領域の電子的阻止能である。 E は He イオンのエネルギー、 A_1 から A_5 は標的元素毎に与えられた定数である。入射粒子の速度を標的原子の価電子の速度と比較して、

入射粒子の速度が遅い場合を Low, 速い場合を High としている.

$$\frac{1}{S_e} = \frac{1}{S_{Low}} + \frac{1}{S_{High}} \quad (6-1)$$

$$S_{Low} = A_1 E^{A_2} \quad (6-2)$$

$$S_{High} = \frac{A_3}{E} \ln \left(1 + \frac{A_4}{E} + A_5 E \right) \quad (6-3)$$

Si 中における He イオンの阻止能を図 12 に示す. 横軸は照射イオンのエネルギー, 縦軸は単位面密度あたりの阻止能 [eV/(10¹⁵atoms/cm²)] である. 実際に式(6)を用いて電子的阻止能を計算するとき S_{Low} や S_{High} を意識する必要はないが, 図には S とともに S_{Low} と S_{High} もプロットした. S_{Low} は低エネルギー側における S_e の漸近線になっていることから低エネルギー領域における電子的阻止能を, S_{High} は高エネルギー側における S_e の漸近線になっていることから, 高エネルギー領域における電子的阻止能を支配している式であることがわかる. 図 12 には核的阻止能 S_n も示した. 核的阻止能は Krypton-Carbon ポテンシャルを仮定して導出された式[6->5]から計算したものである.

H イオンが Si や Au に入射した場合, および, He イオンが Si や Au に入射した場合の, 電子的阻止能のエネルギー依存性を図 13 に示す. H イオンの阻止能の計算には適用範囲が 1 MeV までの経験式[6->5]を, He イオンの阻止能の計算には適用範囲が 10 MeV までの式(6)を用いた. H イオン照射の場合, Si の阻止能の最大値は 25 eV/(10¹⁵ atoms/cm²), Au のそれは 46 eV/(10¹⁵ atoms/cm²). He イオン照射の場合, Si の阻止能の最大値は 73 eV/(10¹⁵ atoms/cm²), Au のそれは 125 eV/(10¹⁵ atoms/cm²) である. He イオンに対する阻止能は, H に対する阻止能よりも最大で約 3 倍大きい. Si と Au の比較では, Au の阻止能が Si のそれより 2 倍弱大きいということがわかる.

深さ方向分解能は, 測定システムのエネルギー分解能が同じであれば, 阻止能が大きいほど良い. 例えば Si を分析する場合, 2 MeV と数 100 keV の He イオンとでは阻止能は 1.5 倍くらい異なるため, 同じエネルギー分解能の検出器では, 数 100 keV の He イオンを用いたほうが, 良い深さ分解能のスペクトルが得られる.

また, MeV 領域では, 水素イオンは He イオンよ

りも阻止能が小さいことから, 同じエネルギー分解能の検出器で分析した場合, He イオンを照射した方が高い深さ分解能のスペクトルが得られる. しかしながら, 水素イオンは阻止能が小さいため He イオンよりも透過能が高いことから, 1 μm を超える膜の分析が可能であるという利点がある.

典型的なイオン散乱の条件において, 阻止能が元素によってどのように変化するかを図 14 に示す. 原子番号の増大とともに阻止能が大きくなる傾向にあるが, 原子番号に対して単調には変化していない.

ここまで説明してきた阻止能に関する記述は, すべて, 媒質が単一元素からなる場合である. 媒質が複数の元素から構成され, 種々の結合様式を含む場合, 阻止能はどのようにして求められるのか. このような媒質の阻止能は, 標的原子と入射イオンの相互作用は標的原子のまわりの環境に依存しないと仮定し, 構成元素の阻止能の線形結合であらわすことができるという Bragg 則により計算される.

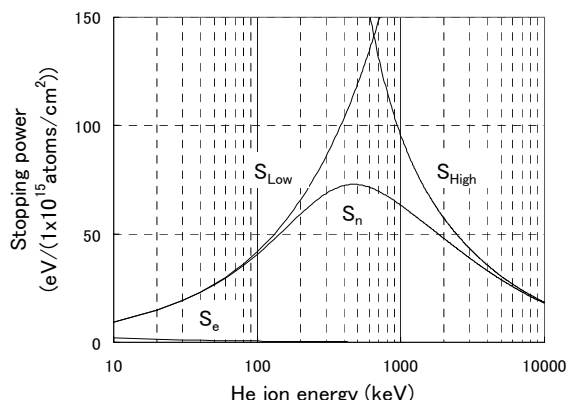


Fig. 12. He ion energy dependence of an electronic stopping power S_e and a nuclear stopping power S_n for Si target.

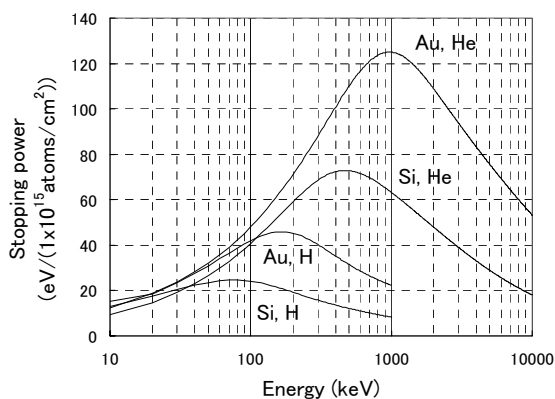


Fig. 13. Energy dependence of the stopping power of Si and Au target for the projectile of H and He.

$$S = \sum C_i S_i \quad (7)$$

ここで C_i は元素 i の原子濃度, S_i は元素 i の阻止能である. Baglin と Ziegler は 2 MeV の He イオンを種々の純物質と化合物 (RhSi, HfSi, SiO₂, Al₂O₃, Si₃N₄, AlN, W₂N₃, SiC, メラニン, および アデニン) に照射して阻止能を実験的に決定し, 測定誤差の範囲内 (約 2%) で Bragg 則が成り立つと報告している [7->6]. しかしながら, Boutard らは種々の炭化水素の阻止能を詳細に調べ, 炭化水素材料では Bragg 則で計算した阻止能が実際よりも 30% 程度低く見積もる場合があり, その原因として, 結合様式 (sp^2 や sp^3 など) による阻止能の違いが考えられている [8->7].

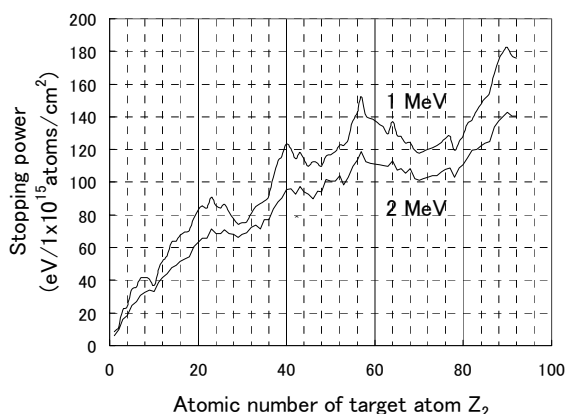


Fig. 14. Stopping power of He projectile to all elements for the projectile energy of 1 and 2 MeV.

[Q&A]

Q. 単位長さの阻止能と単位面密度の阻止能の関係がよくわからない。

A. シリコンを例にして, 厚さの単位について説明する. シリコンの重量密度は 2.33 g/cm³ である. 厚さ 1 cm のシリコンの面密度 (単位面積あたりの重さ) は, 重量密度に厚さを掛けて, 2.33 g/cm² となる. ここに, 厚さ 1 cm のシリコンと, 面密度 2.33 g/cm² のシリコンは等価である. 同様に, 厚さ 100 nm のシリコンの面密度は, 重量密度に厚さを掛けて 2.33×10⁻⁵ g/cm²=23.3 μg/cm² となり, 厚さ 100 nm のシリコンと面密度 23.3 μg/cm² のシリコンは等価である.

イオン散乱では重量密度よりも原子数密度がよく用いられる. シリコンの原子数密度は 5×10²² atoms/cm³ であるから, 厚さ 1 cm のシリコンは面密度 5×10²² atoms/cm² のシリコンと等価であり, 厚さ 1 nm のシリコンは 5×10¹⁵ atoms/cm² のシリコンと等価で

ある. エネルギー損失をあらわす場合によく用いられる単位面密度は 1×10¹⁵ atoms/cm² で, これは, シリコンであれば厚さ 0.2 nm に相当する.

2 MeV の He イオンに対するシリコンの阻止能を単位面密度であらわすと 48 eV/(10¹⁵ atoms/cm²) である. 単位長さの阻止能は, これに原子数密度 (5×10²² atoms/cm³) をかけて, 240 eV/nm と求められる. シリコン単結晶の場合には, 密度が不変であるときみなせるので, 面密度と厚さ (長さ) は 1 対 1 に対応するので, 阻止能を単位長さであらわしても単位面密度であらわしても問題は無い. ところが, 組成が同じでも密度が異なる場合には, 阻止能に用いる単位系の良否が明らかになる. たとえば水素フリーのアモルファスカーボンでは, 密度 2 のものもあれば密度 2.4 のものもある. 2 MeV の He イオンに対する炭素の阻止能を単位面密度であらわすと 27 eV/(10¹⁵ atoms/cm²) である. これを単位長さの阻止能に変換すると, 密度 2 の場合は 270 eV/nm となるが, 密度 2.4 の場合は 318 eV/nm となり, 密度によって阻止能の値が違ってくる. イオン散乱スペクトルのエネルギースケールを厚さスケールに変換する場合, 単位面密度の阻止能を使えば厚さは一義的に決められる. ただし, 厚さの表示は面密度になるためわかりにくい. これに対し, 単位長さの阻止能を使って厚さスケールに変換すれば厚さをメートル単位で表示できるのでわかりやすい. ただし, 密度が不明の場合は単位長さの阻止能が使えないことになる.

以上のことから, イオン散乱分析では, 通常, 単位面密度であらわされた阻止能が用いられている. そのため, スペクトル解析によって得られる深さ方向分布の深さのスケールは, まず, 面密度であらわされる. 面密度であらわされた深さ方向分布を長さの単位であらわすためには, 組成が異なる層ごとに密度を決めて長さに変換することが必要になるのである.

2.4. エネルギーストラグリング

入射イオンが物質中を透過するとき, 物質中を移動しながら徐々にエネルギーを失うのであるが, 失うエネルギーには広がりが生じる. これは, 物質中を通過する際に生じるエネルギー損失は, それぞれ独立した衝突過程で生じるためであると考えられている. 同一の入射エネルギーで同一の厚さだけ透過しても, 失うエネルギーはある平均値のまわりに分布する. この現象はエネルギーストラグリングと呼ばれる.

エネルギーストラグリングは Bohr によってはじめて計算され、次の式であらわされている[1].

$$\Omega_B^2 = 4\pi(Z_1 e^2)^2 Z_2 N t \quad (8)$$

ここで N は標的物質の原子密度 (atoms/cm³), t は標的物質の厚さ(cm)である. Nt は面密度 (atoms/cm²) をあらわす. Ω_B^2 はエネルギー損失のゆらぎの 2 乗平均すなわち分散であり, Ω_B は標準偏差である. エネルギー分解能 δE は通常, 半値幅 (FWHM) であらわされるので, ガウス分布における半値幅と分散の関係 (FWHM=2 σ (2ln2)^{1/2}≈2.35 σ) から, 半値幅であらわしたエネルギーストラグリングは 2.35 Ω_B となる. Bohr のエネルギーストラグリングの式は, 入射イオンと標的原子の原子番号および厚さに依存し, 入射イオンのエネルギーには依存しないことを示している. Bohr は標的原子中の電子は静止しており, 照射粒子は完全にイオン化しているという状態を仮定してエネルギーストラグリングの式を導いた. そのため, このような状態が近似的に成り立つ高エネルギー領域 (RBS より更に高いエネルギー領域) では実験結果と合うが, RBS で通常使われる 2 MeV 以下のエネルギー領域では実際よりも大きく見積もることになる.

He イオンを Si に照射した場合の Bohr のエネルギーストラグリングを深さに対してプロットしたものを図 15 に示す. 半導体検出器のエネルギー分解能 (~15 keV) と等価な厚さは 500 nm 程度である. 実際のストラグリングはこれより小さいので, 半導体検出器を用いる高エネルギーイオン散乱では, エネルギーストラグリングの影響は比較的小さい.

Lindhard と Schriff, Bonderup と Hvelplund らの理論的検討や種々の実験データを踏まえて, Chu は, 実験データをよく説明できる理論計算を行い, さらに Yang らは公表されている実験結果を整理して Chu のモデルをもとにフィッティング関数を提案している. エネルギーストラグリングは中エネルギーイオン散乱において深さ方向分解能の支配要因になっている. 詳細は次回説明する予定である.

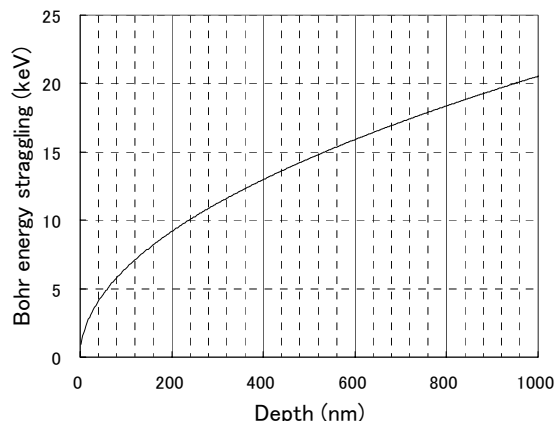


Fig. 15. Depth dependence of the Bohr energy straggling of He projectile irradiated to Si target.

3. おわりに

第2回の今回は, 5つの基本概念のうちチャネリングを除く4つについて, 図を多くして理解しやすくしたつもりである. 第3回は, 阻止能の理論とエネルギーストラグリングを補足するとともに, チャネリングを詳しく説明する予定である. なお, 筆者の浅学ゆえに間違った記述も多々あるかと思うがご容赦願いたい.

4. 参考文献

- [1] W. K. Chu, J. W. Mayer, and M. A. Nicolet, in *Backscattering Spectrometry*, Academic Press (1978).
- [2] H. H. Brongersma, N. Hazewindus, J. M. van Nieuwland, A. M. M. Otten, and A. J. Smets, *Rev. Sci. Instrum.* **49**, 707 (1978).
- [3] L. C. Feldman and J. W. Mayer, in *Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis*, Elsevier Science Publishing (1986).
- [4] *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*, ed. by J. R. Tesmer and M. Nastasi, Materials Research Society (1995).
- [5] M. Mayer, *SIMNRA User's Guide*, MaxPlanck Institut für Plasmaphysik (1997-2002).
- [6] J. E. E. Baglin and J. F. Ziegler, *J. Appl. Phys.* **45**, 1413 (1974).
- [7] D. Boutard, W. Moller, and B. M. U. Schertzer, *Phys. Rev. B* **38**, 2988 (1988).