

# Nara Women's University

## 高速陽子表面チャネリングを利用したイオン結晶の 表面構造解析に関する研究

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 深澤優子 公開日: 2013-11-05 キーワード (Ja): イオン結晶, 高速陽子, 表面チャネリング, 表面構造解析 キーワード (En): 作成者: 深澤,優子 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10935/3511">http://hdl.handle.net/10935/3511</a>

高速陽子表面チャネリングを利用した  
イオン結晶の表面構造解析に関する研究

2010年

深澤優子

高速陽子表面チャネリングを利用した  
イオン結晶の表面構造解析に関する研究

2010 年  
深澤 優子



## 要旨

本論文は高速陽子による表面チャネリングを用い、電子刺激脱離したイオン結晶表面の形状変化について行った研究をまとめたものである。この際、実験結果の解釈を裏付けるために、原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope: AFM) とコンピュータ・シミュレーションを併用し、これらの結果も提示した。

イオン結晶などの絶縁体や半導体に電子線などの荷電粒子や光を照射すると表面からイオンや中性粒子が脱離する。特に電子線によって誘起されたものは電子刺激脱離 (Electron Stimulated Desorption, ESD) と呼ばれている。イオン結晶表面は、適切な照射量で電子線照射を行うと、表面上にステップが高密度に生成され、その上に蒸着した薄膜の性質を改善することが知られており、薄膜形成へ応用されてきた。また、近年の非接触原子間力顕微鏡 (Noncontact Atomic Force Microscope: NC-AFM) の発達により、イオン結晶に電子線照射を行った表面の直接観察が精力的に行われ、照射損傷の形状や機構が明らかになってきた。特に KBr 表面では適切な照射量で電子線照射を行うと、結晶の [100] [010] に平行な方向のステップを辺とした、単原子層高さの矩形のピットが形成される。イオン結晶はバンドギャップが大きいので、SiC や SiO<sub>2</sub> にかわるデバイス中の絶縁物として期待が持てるうえに、単原子層での厚さで表面に形状を描けるという利点も加わり、この矩形ピットを利用した、電子デバイスのテンプレートへの応用などが期待されている。しかし、イオン結晶に対して電子線を用いて表面構造解析することは、上記 ESD にともない表面を破壊することにつながる。また、絶縁物であるため走査トンネル顕微鏡での観察にも不向きであった。

一方、このようにステップが高密度に生成された表面において、半導体や金属では、ステップの存在や、そこに吸着した物質によっておこる、表面格子歪みが報告されている。イオン結晶では、NC-AFM の発展により、ナノオーダー、原子レベルでの観察が可能になってきている今日でも、欠陥が生成された表面での格子の歪みについての、深い議論は見当たらない。イオン結晶表面のランプリングや緩和については報告があるが、ステップの存在により、レッジにおいてこれらと同様の現象が結晶表面に垂直な方向だけでなく、平行な方向にも起こり得る可能性がある。すなわち、表面構造の解析を困難にさせてきた ESD によって形成される表面ステップが、逆に新しい物性を示す表面を創り出す可能性がある。

本論文はこのようなイオン結晶表面の格子歪みの測定を視野に入れ、電子刺激脱離した KCl(001)、KBr(001) 表面に小さな入射角で高速陽子を入射し、表面チャネリングを起こして散乱する陽子のエネルギースペクトルや収量を観察することで、電子線照射による表面の変化を調べる手法を研究したものである。この表面チャネリングを用いた手法は、表面の形状に敏感であるとともに、表面構造の変化をその場でほぼ非破壊に観察することができる。実験結果と比較していくために、陽子散乱実験後の試料表面を AFM により観察し、表面形状の解析を行った。また定性的な理解を助けるため、2 つの簡単なコンピュータ・シミュレーションを行った。1 つはイオン散乱のコンピュータ・シミュレーションであり、もう 1 つは表

面形状形成のコンピュータ・シミュレーションである。

高速陽子散乱実験において、イオン結晶試料表面に生成される欠陥密度分布および、入射角の違いによる斜入射・散乱ビームのエネルギー損失と散乱角分布の変化を調べた。次に斜入射イオンビームの結晶への入射方向を、ランダム方位と軸に沿ったチャネリング方位としたときに得られる散乱陽子のエネルギースペクトルのステップ密度による変化を調べた。また、チャネリング軸近くでの入射方位角の変化による散乱陽子の収量の変化（チャネリング・ディップ）の電子線照射量依存を調べた。それぞれの実験に対してイオン散乱のシミュレーションを行い比較した。

表面形状形成のコンピュータ・シミュレーションにおいて、電子刺激脱離が起こった表面の形状変化を原子間力顕微鏡により観察し、原子脱離のシミュレーションによる結果と比較した。本論文は以上の成果をまとめたもので7章からなる。以下に各章の概要を記す。

第1章は序論として、本研究にいたる経緯と世界的な研究動向としての学術的背景について述べた後、イオン結晶の表面原子の脱離過程に関する現在までの研究状況等について報告した。さらに本研究で行った斜入射高速イオンビームを用いた表面分析の意義について述べた。また、イオン結晶の表面ステップ近傍の格子歪みについて行った簡単な計算結果を示した。

第2章では、本研究で用いた実験装置と実験方法について説明した。斜入射イオン散乱実験における実験装置の概要とエネルギースペクトルの測定方法やイオン結晶表面への電子線照射の方法、原子間力顕微鏡(AFM)観察のための試料作製方法についての詳細を述べた。

第3章は、結晶表面での斜入射イオン散乱について行ったコンピュータ・シミュレーションの説明である。まず、計算に用いた基礎理論と表面ステップの導入方法について述べ、次に実験結果と比較するために得た散乱イオンの散乱パターンやエネルギースペクトルの例をあげた。

第4章では、これにひき続く電子線照射を用いた研究に対する予備的な実験として、照射量や照射の均一性がイオン散乱に与える影響を確認した。具体的には、表面に電子線損傷が生成されたときの散乱イオンのエネルギースペクトルと散乱角分布に及ぼす影響を損傷密度分布の均一性から検討した。電子線照射量の増加による散乱陽子のエネルギー損失と散乱角分布のピークの変化は、 $10^{16} \text{ cm}^2$  を超えた照射量で損傷密度の分布により大きく異なった。結果をコンピュータ・シミュレーションによる計算結果と比較した。散乱角分布の変化は損傷密度の分布だけでなく、陽子の入射角にも依存することがわかった。

第5章では、3種のイオン散乱実験結果について述べた。まず、KCl表面について陽子を $\langle 100 \rangle$ チャネリング方向とランダム方位に小角で入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルの電子線照射による変化を調べた。次に陽子の入射方位角をKClの $\langle 100 \rangle$ および、 $\langle 110 \rangle$ チャネリング軸を中心に±数10 mrad変化させたときの散乱収量の変化、すなわち、チャネリング・ディップの電子線照射量に対する変化について調べた。最後にKBrで同様の実験を行い、KClの結果と比較した。

第 5 章 1 節にこの章に対する序論を記した。次の第 5 章 2 節はこの章に対する実験に関する記述をまとめたものである。

第 5 章 3 節では電子線照射より高密度なステップを均一に生成した KCl 表面に、陽子を小角で $\langle 100 \rangle$ チャネリング方向とランダム方位で入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルを調べた。すなわち、 $\langle 100 \rangle$ チャネリング軸から測った入射方位角が 0 と 100 mrad のエネルギースペクトルの比較である。ランダム入射(入射方位角 100 mrad)では、電子線照射量の増加とともに、表面第一層(最表面)を潜って出射した陽子の割合が増加した。これらの陽子は結晶表面のステップから入って出てくるものである。チャネリング入射(入射方位角 0 mrad)の場合、ある電子線照射量領域において、この収量は減少した。この場合、表面を潜る陽子は必ずしも表面ステップを通過するとは限らないからである。

第 5 章 4 節では、KCl(001)表面で表面散乱した陽子のエネルギースペクトルと $\langle 100 \rangle$ 表面軸チャネリングによるチャネリング・ディップを測定した。電子線で脱離が起こった表面では、 $\langle 100 \rangle$ 軸に沿った陽子ビームは結晶の中に潜り、検出角と異なる大きな角度で散乱されるようになる。この結果は電子刺激脱離により、表面形状が変化したことによるものである。

第 5 章 5 節では、斜入射陽子ビームの入射方位角を結晶の $\langle 100 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ 軸の方向に合わせ、それぞれの表面軸チャネリング条件において散乱収量のチャネリング・ディップを観察した。ディップの最小収量と幅を測定し、 $\langle 100 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ 軸とで比較した。電子線照射量がある値に近づくとつれ、 $\langle 100 \rangle$ 軸では、ディップの深さは有意に変わらず、幅は広がった。 $\langle 110 \rangle$ 軸では浅くなり、幅は広がった。電子線照射された表面は単原子層の高さでサブミクロンの大きさのテラスが数多く重なった形状であった。電子線照射で表面形状が変化することで、 $\langle 100 \rangle$ 表面軸チャネリングではビーム軌道が中断される。一方、形状変化した表面の $\langle 110 \rangle$ 表面軸に沿って入射すると、陽子は原子列で反射せず、ステップのある表面のポテンシャルにより反射する。 $\langle 110 \rangle$ 軸チャネリングに対する臨界角が(001)鏡面反射に対する臨界角より小さいことが原因の 1 つになっている。この散乱過程はステップのある表面での入射陽子の軌道についてのコンピュータ・シミュレーション結果によっても、妥当性が示された。

第 5 章 6 節では、KBr(001)の $\langle 100 \rangle$ 表面軸チャネリング・ディップの最小収量と幅を KCl(001)での実験結果と比較した。両者の格子定数は数%異なるが、これらは同様の電子線照射量依存性を示した。KBr と KCl のチャネリング・ディップにおいて、ともに対称な位置に 2 つの小さなピークが現れた。これら 2 つのピークの間隔と幅は、電子線照射量の増加とともに大きくなった。この実験では 2 種のイオン結晶表面において、多少の実験結果の違いがみられたが、格子定数の違いから生じる実験結果の違いは測定出来なかった。また、ステップが誘起する格子歪みの存在やその大きさの違いに関し、実験結果の解釈のみで実証することはできなかった。

第 6 章では、KCl(001)表面と KBr(001)表面に、電子線をラインスキャンおよび、2 次元スキャンで照射したときのモフォロジー変化によって生じる表面粗さ(RMS 粗さ)の測定値を提示し、真空と接している最表面の原子から脱離原子を選ぶことと、隣接原子数の少ないサイトにいる原子が脱離しやすいという条件を仮定した脱離のシミュレーションの結果と比較した。シミュレーションは層状脱離の際におこる脱離粒子の収量の振動構造を再現するように、パラメータを導入した。シミュレーションの結果得られた  $10^{16}\text{cm}^{-2}$  の照射量領域での最

終的な表面モフォロジーは、方位の不規則なテラスが多く重なり合ったものが生成された。これらのテラス長は観察されたものに比べて小さいものの、表面が示したモフォロジーから、層状脱離を想定した脱離の過程が、表面に多重層のステップを生成する可能性をもつことがわかった。また、電子線を多く照射した表面に対して、最表面の原子が脱離することを仮定した解析的な取り扱いを行い、RMS 粗さの測定値をシミュレーションで得られた値の照射量依存性と比較した。これにより、実験で観察した結果は最表面の原子が多く脱離し、層状に剥がれることが繰り返され、少しずつ乱れてきた結果である可能性が高いことを結論した。

第7章では、本研究で得られた成果を整理し、今後の課題を含め総括した。

# 目次

<b>第 1 章 序論</b> .....	1
1-1. 研究背景.....	3
1-2. イオン結晶表面原子の電子刺激脱離.....	5
1-3. 高速イオンビームチャネリング法を用いた表面分析.....	7
1-4. 表面ステップ近傍の格子歪みの簡単な計算および結果.....	9
1-5. 論文の構成.....	12
<b>第 2 章 実験</b> .....	15
2-1. 実験装置の概要.....	17
2-2. 超高真空散乱槽.....	17
2-3. エネルギー分析システム.....	19
2-4. 電子線照射装置.....	21
2-5. 試料作製用高真空散乱槽.....	21
<b>第 3 章 高速イオン散乱のコンピュータ・シミュレーション</b> .....	25
3-1. 高速イオンと結晶表面原子との相互作用.....	27
3-2. イオン軌道の計算.....	30
3-3. 表面ステップの導入.....	31
3-4. 散乱イオンの散乱パターンとエネルギースペクトルの例.....	32
3-5. 散乱イオンのプロッキングパターンの例.....	34
<b>第 4 章 電子線照射を行った KCl(001) 表面での高速陽子の散乱に対する損傷密度非均一の影響</b> ....	39
4-1. はじめに.....	41
4-2. 実験.....	41
4-3. 実験結果.....	42
4-4. シミュレーションおよび考察.....	44
4-5. まとめ.....	46
<b>第 5 章 ステップ密度を変化させたイオン結晶表面での高速陽子の表面軸チャネリング</b> .....	49
5-1. はじめに.....	51
5-2. 実験.....	52

5-3. 電子線照射によるエネルギースペクトルの変化 .....	53
5-3-1. 実験結果 .....	53
5-3-2. シミュレーション .....	56
5-4. 電子線照射にともなうチャネリング・ディップの変化 .....	59
5-4-1. 実験結果 .....	59
5-4-2. シミュレーションおよび考察 .....	61
5-5. チャネリング軸指数の違いによるディップ形状の違い .....	63
5-5-1. 実験結果 .....	63
5-5-2. 考察 .....	68
5-6. 結晶格子定数等の違いによるチャネリング・ディップ形状の違い .....	72
5-6-1. 実験結果および考察 .....	72
5-7. まとめ .....	76
<b>第6章 電子刺激脱離させたイオン結晶表面のモフォロジー .....</b>	<b>79</b>
6-1. はじめに .....	81
6-2. 実験 .....	82
6-3. シミュレーション .....	84
6-4. 考察 .....	88
6-5. まとめ .....	90
<b>第7章 まとめ .....</b>	<b>93</b>
<b>謝辞 .....</b>	<b>97</b>
<b>業績 .....</b>	<b>101</b>

## 第 1 章 序論



# 第 1 章 序論

## 1-1. 研究背景

薄膜の生成過程やその下地表面に対する研究は、古くから現在に至るまで、物理学、応用物理学、化学、工学の多くの研究者にとっての課題となっている。本研究に至る背景として、我々は真空蒸着法で下地イオン結晶上に銀薄膜を作製する際の銀膜の成長過程を調べていた経緯がある。初期成長過程を調べるために、薄膜の成長段階の観察に透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) を用い、セルフサポートが可能となるまで厚くした薄膜の観察にイオンビームの透過チャネリング法を用いていた。真空蒸着法でイオン結晶上に銀等の金属薄膜を蒸着する際、下地となる KCl や NaCl などの結晶表面に電子線損傷を与えると、結晶性の良い膜が得られることが古くから知られている。このことには蒸発した金属原子は電子線照射によりできた F 中心の上 (格子点上) に吸着され、そこで負イオンになり、微結晶の核になっていく傾向にあるという説明がなされている<sup>1)</sup>。一方で、アルカリハライドを劈開したときなどにできるステップの下 (格子間) にポテンシャルの極小が存在するという計算結果が報告されている<sup>2)</sup>。電子線照射により、下地結晶に F 中心やステップなどの欠陥を生成して銀を蒸着する場合、銀はそれぞれの蒸着サイトで島程度の大きさまでは、結晶性良く成長するであろう。しかし、膜が厚くなるにつれ、サイト位置のずれによる結晶性の乱れを起し、結晶性の良い膜は得られなくなることが予想される。しかしながら、優先的な蒸着サイトとなりうる欠陥の種類と照射量領域との関係を調べることができたら、結晶性の良い銀薄膜を比較的容易に得ることができるであろうと考えた。

5keV の電子線を様々な照射量で下地結晶に照射し、下地に損傷を与え、銀を蒸着し、透過型電子顕微鏡 (日立 H-300) で観察すると、ある照射量で KCl(100) 上に、銀の島が下地と決まった方位関係で成長している様子が見られた。しかし、電子顕微鏡での銀膜の観察は下地結晶からはがして行うため、下地との方位関係を直接確認することは行わなかった。薄膜の下地基板上での成長過程の研究については、高速反射電子回折法 (Reflection High-Energy Electron Diffraction: RHEED)、低速電子回折法 (Low-Energy Electron Diffraction: LEED) 等の手法によるものが一般的だが、下地に用いるイオン結晶表面の電子線損傷を扱うため、これらの手法を安易に用いることはできない。そこで、F 中心によって成長が促進された島と、ステップの近傍に成長した島との間に方位のずれが見られるかを調べるために、イオンチャネリング法を用いることを想定した。イオンチャネリング法を用いて下地結晶のステップの密度や方位を調べたのちに、銀を蒸着し島程度まで成長させて、その方位を調べるものである。

我々はこのために、まず電子線照射を施した下地イオン結晶表面で散乱するイオンビームのエネルギースペクトルの観察に着手した。ひきつづき、表面の結晶軸に対して任意の角度方向に生成されたステップ密度の決定や表面モフォロジーを調べるための結晶表面構造解析を行う研究を開始し、いくつかの興味深い結果を得、さらに次への課題が具体化しつつある。一方で、これまでに得た結果を踏まえ、現在 TEM によるレプリカ観察を用い、下地結晶のステップ近傍での金の微結晶の方位を調べることを手掛けている。

以上のような背景で着手した微粒子の研究まで含めた幅広い一連の研究は現在も進行中である。このような中で、本論文ではすでに結果を得た下地イオン結晶表面に関する研究成果をまとめ、記述の内容はイオン結晶表面そのもののモフォロジーの解析と構造解析手法の確立にとどめる。

本論文で扱う研究分野の発展を促した社会的背景として、近年の非接触原子間力顕微鏡 (Noncontact Atomic Force Microscope: NC-AFM) の開発が重要な役割を担ってきた。これにともない、アルカリハライドに電子線や荷電粒子、光照射を行った表面の直接観察が精力的に行われ、照射損傷の形状や機構が明らかになってきた。次節でも触れるが、照射によって生成した励起 F 中心が表面原子を放出するために、結晶表面には数多くのステップが生成される。このときの特徴は、最終的なプロセスとして放出される原子は表面原子であり、結果として残る照射損傷も主として表面にステップを形成することである。特に KBr 表面では数 keV の電子を  $10^{13} \text{ cm}^{-2}$  程度の照射量で照射を行うと、図 1.1 のように結晶の [100] [010] に平行な方向のステップを辺とした、単原子層高さの矩形のピットが形成される<sup>3)</sup>。また電子以外の荷電粒子によっても照射条件を変えることで、図 1.2 に示されるように、矩形ピットの大きさや数密度を制御できることが報告されており<sup>4)</sup>、さらにピット内部に分子を規則正しく配置するという試みもなされている<sup>5)</sup>。イオン結晶はバンドギャップが大きいので、SiC や SiO<sub>2</sub> にかわるデバイス中の絶縁物として期待がもてるうえに、単原子層での厚さで表面に形状を描けるという利点も加わり、この単原子層高さの矩形ピットを利用した、電子デバイスのテンプレートへの応用などが期待されている。現在、Si で製造されている LSI は 32 nm プロセスであり、この最小線幅は 32 nm、厚みは 100nm 程度である。これは、単原子層の技術ではない。カーボンナノチューブ (CNT) を用いたワイヤー状のナノ技術の直径も 10 – 20 nm 程度である。したがって、イオン結晶の表面を LSI の基板等に応用するには、単原子層の技術が確立してくる以前に、 $10^{14} \text{ cm}^{-2}$  以上の領域での電子線やイオンビームを局所的に照射したときのモフォロジーも重要になってくるであろう。

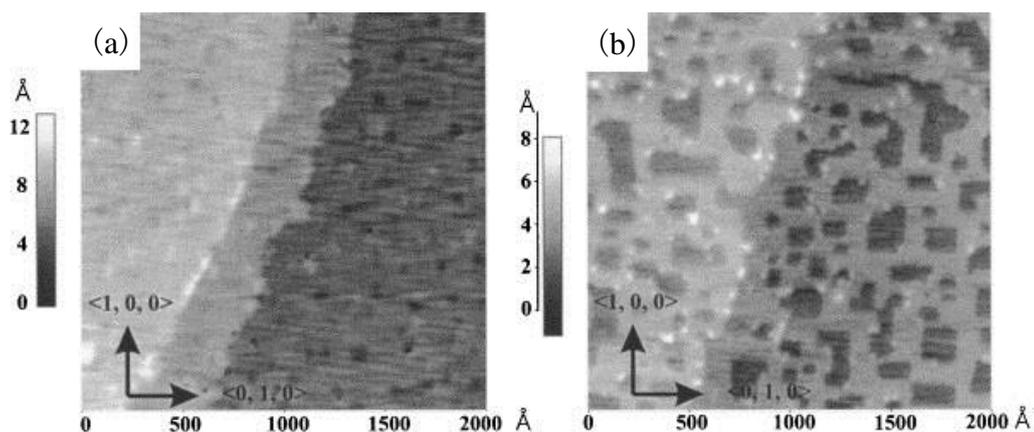


図 1.1 電子刺激脱離により KBr(001) 表面に生成された矩形ピットの NC-AFM 像<sup>3)</sup>。電子線のエネルギーは 1keV。照射量はそれぞれ、(a)  $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  , (b)  $6 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 。

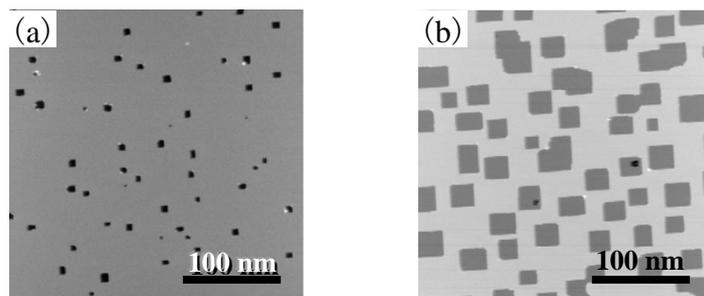


図 1.2 散乱槽内の残留ガスをイオン化し，加速して照射した KBr(001)表面に生成された単原子層深さの矩形ピットの NC-AFM 像<sup>4)</sup>。  
照射量はそれぞれ，(a)  $0.12 \pm 0.01 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ，(b)  $1.2 \pm 0.1 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 。

一方，このようにステップが高密度に生成された表面において，半導体や金属では，ステップの存在や，そこに吸着した物質によっておこる，表面格子歪みが報告されている<sup>6,7)</sup>。たとえば金属では Pt(111)の微斜面ステップエッジにおいて，斜面の法線方向のバルク側にわずかな緩和があることが報告されている<sup>8)</sup>。しかしながら，イオン結晶では，NC-AFM の発展により，ナノオーダー，原子レベルでの観察が可能になってきているにもかかわらず，欠陥が生成された表面での格子の歪みについての，深い議論は見当たらない。イオン結晶表面のランプリングや緩和については報告があるが<sup>9,10)</sup>，ステップの存在により，レッジにおいてこれらと同様の現象が結晶表面に垂直な方向だけでなく，平行な方向にも起こる可能性がある。格子歪みは Si 半導体製品の劣化や応答速度の迅速化に影響を与えるので，イオン結晶の表面を LSI の基板等に应用するためには格子歪みの情報も必要になる。

### 1-2. イオン結晶表面原子の電子刺激脱離

絶縁物や半導体の固体結晶に光や電子を照射するとそのエネルギーは吸収され，固体内部および，表面の電子系の励起により，固体表面からの原子の脱離現象が起こる。このような現象を電子励起誘起脱離 (Desorption Induced by Electron Transition: DIET) と呼び，特に電子線照射により生じる脱離を電子刺激脱離 (Electron Stimulated Desorption: ESD) という<sup>11)</sup>。イオン結晶では電子線や X 線を照射すると DIET によって表面から原子が放出されるため，容易に損傷がおこる。このことが古くから電子線や X 線を用いた手法によってイオン結晶の前節で述べたような表面構造の解析を行うことを困難にさせてきた。

電子励起に伴う脱離には，内殻励起によるイオン脱離と価電子励起による中性原子(分子)脱離のおおきく 2 種類があり，イオン結晶の中でもアルカリハライドについては後者の機構があてはまる。結晶に電子が照射されると，価電子帯の電子が伝導帯に励起し，価電子帯に正孔ができる。これらの電子や正孔はそれぞれ伝導帯，価電子帯を自由に移動できる。また，価電子帯の正孔と伝導帯の電子がクーロン力により結びついたまま，結晶内を自由に動き回ることがあり，これを励起子という。励起子が結晶中で静止し，格子を緩和させて準安定な状態となる現象を自己束縛といい，この励起子を自己束縛励起子という<sup>12)</sup>。図 1.3 にアルカリハライドの励起子と自己束縛励起子の模式図を示す<sup>13)</sup>。図 1.3 (a)は励起子である。アルカリハライドの価電子帯はハロゲンの s 軌道，伝導帯はアルカリの p 軌道で構成されているため，ハロゲン原子に電子が捕らえられたものとみなせる。図 1.3 (b), (c)は自己束縛励起子で

ある。(b)の形態は不安定なため、(c)の形態に変換する。(c)の形態も準安定状態であり、ある寿命で放射または無放射遷移し、再結合や安定なフレンケル対（空格子点と格子間原子の対）への変化が起こる。事実、(c)は空格子点と格子間原子の間の距離が最も小さい最近接フレンケル対であり、格子間ハロゲン原子がさらに $\langle 110 \rangle$ に移動すると、空格子点と格子間原子とが遊離する。この格子点をF中心という。図 1.4(a)にF中心の概形を示す。ハロゲン原子は2個のハロゲンイオンとハロゲン分子イオンを含んだH中心を形成する。図 1.4(b)にH中心の概形を示す。

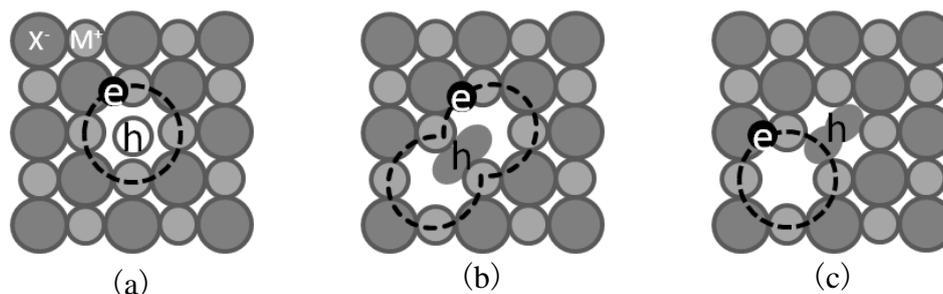


図 1.3 アルカリハライドの励起子と自己束縛励起子。  
 (a) 励起子。(b), (c) 自己束縛励起子。(b) は不安定で(c)の形態に変換する。  
 励起子ではハロゲンサイトにあるハロゲン原子(X)に自己束縛励起子では正孔はハロゲン分子イオン( $X_2^-$ )の形をとる<sup>13)</sup>。  
 X: ハロゲンイオン, M<sup>+</sup>: アルカリイオン, h: 正孔, e: 電子。

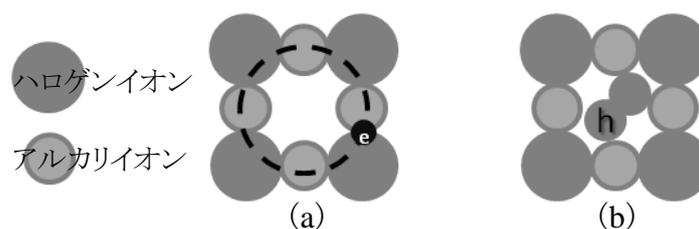


図 1.4 F中心とH中心。  
 (a) F中心。ハロゲンが抜け、電子が捕らえられたもの。基底状態では動かないが励起すると結晶内を動きまわることができる。(b) H中心。格子間の正孔として、ハロゲン原子2つが2原子分子イオンの形をとる。

電子線照射や光照射によって表面から放出するアルカリ原子とハロゲン原子のうち、ハロゲン原子放出には2つの成分があり、1つは熱的、もう1つは非熱的放出である。アルカリ原子は熱的放出のみが起こる。照射により発生した電子-正孔対が表面で再結合すると、F中心を残して非熱的ハロゲン原子を放出する。また表面に生成された表面励起子は表面自己束縛励起子の無放射遷移を経て非熱的ハロゲンを脱離させる。一方、結晶内部に生成した励起子の一部は結晶内部で格子と相互作用し、自己束縛励起子を経てF中心とH中心対を生成する。基底状態のF中心は安定で動かないが、励起F中心(F\*中心)は遊動性があり、結晶内部に拡散する。安定な基底状態のF中心がハロゲンの1s軌道に電子が捕獲されているのに対し、F\*中心は2p軌道に励起している。F\*中心が表面にぶつかると、その一部は結晶内部へとはねかえるが、一部は非熱的ハロゲン原子を脱離させる。また、F\*中心がステップサイトの結合の弱い部分に到達して結合すると、エッジやキックのアルカリ原子を熱的に脱離する。

H 中心は表面に到達すると、熱的ハロゲン原子を脱離させる。表面形状の変化をおこす脱離は主に F\* 中心の拡散によるものである。図 1.5 に F\* 中心と H 中心の拡散による表面原子脱離の過程を示す<sup>14)</sup>。ステップサイトに到達した F\* 中心が低配位のアリカリ原子を放出させるため、アリカリハライドの結晶表面ではステップなどの低配位位置の原子から優先的に脱離が起こり、表面第一層の脱離の後に第二層の脱離が続けて起こる、すなわち単層剥離となる。という一連のモデルが提唱されており、支持されている。

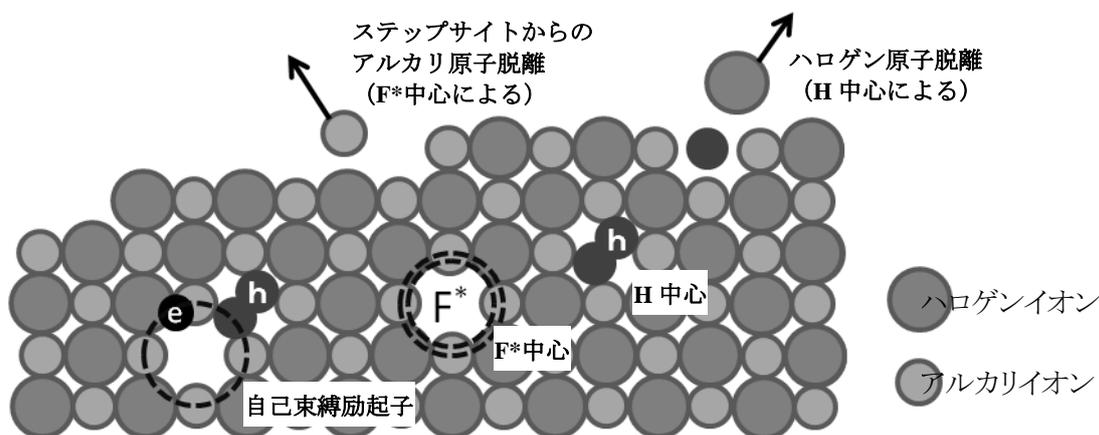


図 1.5 F\* 中心と H 中心の拡散による表面原子脱離の過程。  
電子線照射により自己束縛励起子を経て生成した F\* 中心が拡散し、表面に到達すると低配位のアリカリ原子を脱離させるため、層ごとの脱離が起こり、表面形状が変化する。H 中心が表面に到達するとハロゲン原子を脱離させる<sup>14)</sup>。

### 1-3. 高速イオンビームチャネリング法を用いた表面分析

本研究では原子脱離した表面の構造について解析を行うために高速イオンビームをプローブとして用いる。イオンビームと固体結晶が相互作用すると様々な物理現象が起こるが、その 1 つにイオンチャネリングという現象がある。結晶は原子が規則正しく並んで形成されており、この原子の列を原子列という。また、各原子列の間は原子の存在しない大きな空間を形成しており、この空間を結晶のチャンネルという。図 1.6 のように、荷電粒子が結晶軸または結晶面に対してほぼ平行に入射したとき、一部の荷電粒子は結晶表面の原子と直接衝突して散乱し、結晶外あるいは結晶軸方向から大きく外れた方向に進行する。しかし、大部分は原子列に対して小角散乱を繰り返して原子列の原子と近接衝突することなく、結晶軸に沿った軸チャンネルや結晶面に沿った面チャンネルのなかを進行するため<sup>13)</sup>、一般の方向に入射した粒子に比べて飛程が大きい。結晶チャンネル中を進行する粒子をチャンネル粒子といい、このような現象をイオンチャネリングという。特に入射方向が結晶軸に平行な場合を軸チャネリング、面に平行な場合を面チャネリングという。チャネリングを利用した、表面分析方法にラザフォード後方散乱 (Rutherford Backscattering spectroscopy: RBS) がある。結晶の原子列に平行にイオンが入射すると、入射イオンからは、表面の原子だけが見え、表面原子に当たらなかったイオンはチャネリングより、結晶奥深くまで進入するため、RBS スペクトルには表面ピークと呼ばれる表面原子にあたってはね返ったイオンのつくるピークが形成される。表面原子が変位したり、異種原子が吸着したりすると、表面ピークが変化するので、この手法で表面構造を解析することができる<sup>8)</sup>。

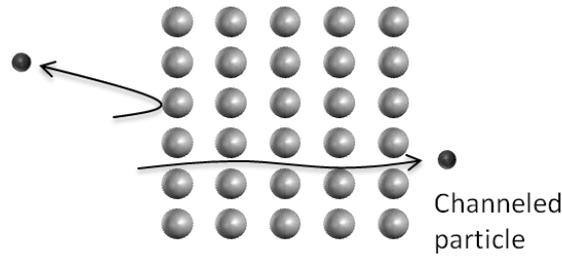


図 1.6 チャネリング. 結晶の面や軸にほぼ平行に入射したイオンの大部分は結晶チャンネルを進む.

表面を面チャンネルの片面とみなしたとき, 高速イオンを単結晶表面に小角度で入射すると, イオンは表面原子と小角散乱を繰り返し, 原子と近接衝突することなく, また結晶内に進入することなく入射角の 2 倍の角度に散乱される. これを表面面チャネリング, または鏡面反射という. 結晶表面に原子レベルのステップが存在すると, 一部の入射イオンはステップから結晶内部にはいり, ふたたび, ステップから出てくる場合がある. ステップから出てきたイオンは, 表面で鏡面反射したものに比べて, エネルギー損失が大きくなるため, このことを利用して, 表面ステップの密度を評価するなど, 表面構造を知る手がかりとなる<sup>15)</sup>. また, 表面の低指数軸にほぼ平行にイオンが入射すると, イオンは表面の原子列によってもチャネリングを起こす. これを表面軸チャネリングという<sup>13)</sup>. 表面軸チャネリングが起きると, イオンの運動は原子列の間に限定され結晶原子に近づけなくなるために, 通常のチャネリングと同様に, 結晶原子による大角度の弾性散乱や結晶原子の内殻電子励起, イオンと原子核の核反応などの各種の非弾性散乱が起こりにくくなる<sup>16, 17)</sup>. 図 1.7 に表面に平行に入射したイオンと表面との相互作用の概要を示す<sup>15, 17)</sup>. このような性質を利用して表面の構造を解析する研究が行われており, たとえば, 図 1.8 に示すように, 内殻電子励起によるオージェ電子放出の軸チャネリング周辺角度での収量変化から, 原子が吸着した表面の原子列の間隔の変化などが調べられている<sup>17, 18)</sup>. また, 表面原子列のポテンシャル形状を反映したイオンの散乱強度分布から表面構造を探る手法も行われている<sup>19)</sup>.

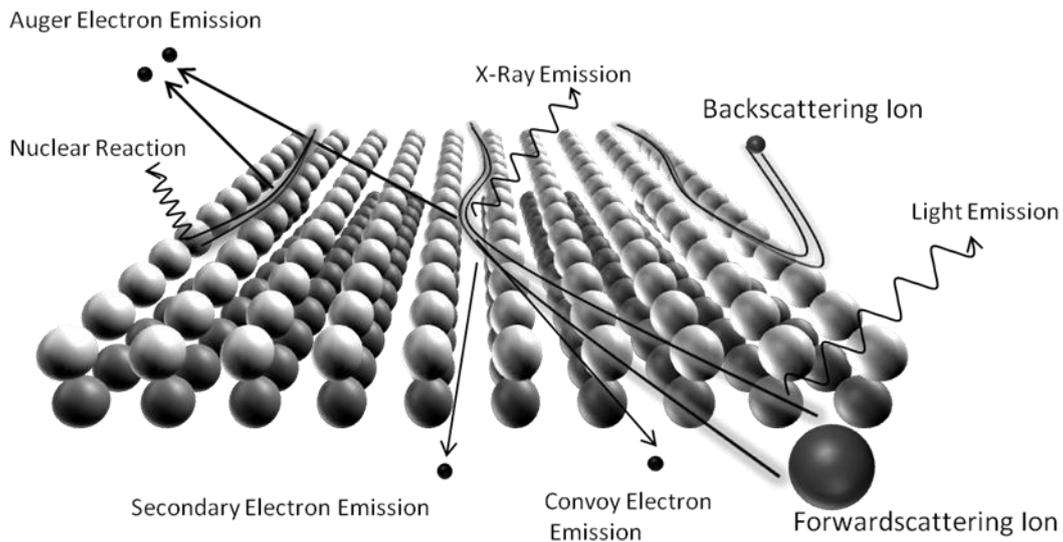


図 1.7 斜入射イオンの表面散乱の概要<sup>15, 17)</sup>.  
(文献 15 より改変引用)

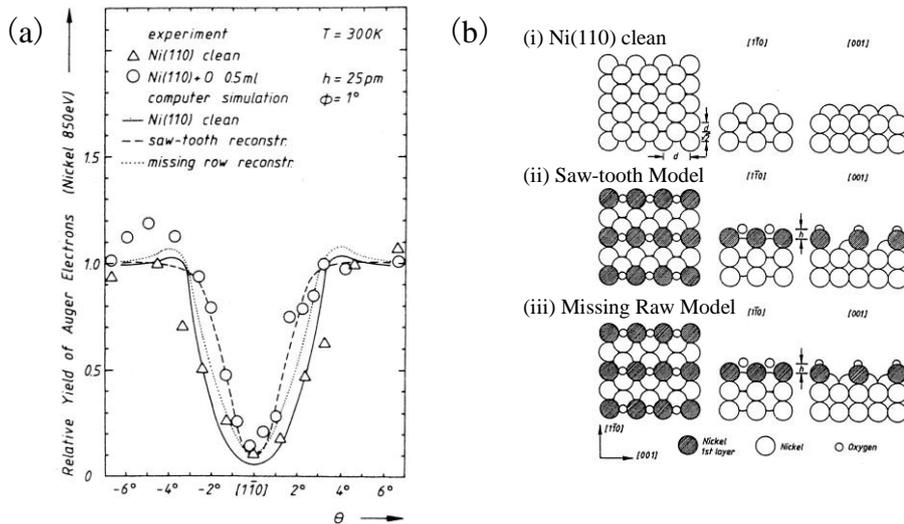


図 1.8 表面構造解析の例<sup>17, 18)</sup>.

(a) Ni(110)に150keVの $H^+$ を入射させたときに観測されたオーグエ電子収量の $[1\bar{1}0]$ 周辺角度での変化. 清浄表面( $\Delta$ )と酸素を0.5原子層吸着させたもの( $\circ$ )とを計算結果と比較して, 酸素吸着表面では(b)の(ii) Saw-tooth Modelの構造をとることが示された.

#### 1-4. 表面ステップ近傍の格子歪みの簡単な計算および結果

本節では, ステップが高密度に生成されたイオン結晶において, 表面格子にステップによる歪みが生じるかどうかを検討するため, イオン結晶表面のステップ付近での原子位置のずれに関する簡単な計算を試みた. 計算は, KCl(001)とKBr(001)について行った. 一様な表面の上に $[100]$ と $[010]$ に平行なステップをもつ一原子層の小さな(001)テラス面を置いたときの, テラスに起こる緩和とテラス上のレッジの安定位置, および, 平坦な結晶表面の中心から結晶の端までの一原子層のテラスを取り除いたときの, レッジの安定位置の計算を行った. これらのイオン結晶の表面緩和やランプリングについてはいくつか報告があるが, 同じ表面を扱っても, 必ずしも一致した値になっていない<sup>9, 10)</sup>. 計算においては, 本来, 表面緩和やランプリングに加え, 熱振動についても考慮する必要がある. しかし, ここでは, テラスやレッジが変位を起こす可能性とそのオーダーを探ることを目的にし, 表面緩和, ランプリング, 熱振動を無視した. また, モデルを単純化させ, 変位を求めるべきテラスやレッジ上の原子を一斉に仮想的に変位させ, 全格子エネルギーの計算を行い, それが最小になる位置を探した. したがって, テラスが湾曲することやレッジが曲がることは扱わないモデルである. また本節の計算ではエバルトの格子和の方法をとっていない<sup>20, 21)</sup>. 表面は半分の空間を初めから欠陥としている非対称性をもつので, 系を小型化し, 直接的でわかりやすい計算にした.

イオン $i$ とイオン $j$ の間のポテンシャルエネルギー $U_{ij}$ は, 文献20より与えられた. これらが最隣接イオンであれば,

$$U_{ij} = \lambda \exp\left(-\frac{R}{\rho}\right) - \frac{q^2}{R}$$

で与えられる. ここで,  $\lambda$ と $\rho$ は斥力パラメータ,  $R$ は最隣接イオン間距離,  $q$ はイオンの電荷(電子の電荷)である. 最隣接イオン以外に対しては,

$$U_{ij} = \pm \frac{q^2}{R_{ij}}$$

で与えられる. ここで,  $R_{ij}$  は  $i$  と  $j$  のイオン間距離である. これらにより, 全分子数が  $N$  (すなわち, 全イオン数が  $2N$ ) の系の全格子エネルギーの分子当たりの平均値  $U$  は,

$$U = \frac{1}{N} \sum_{i < j}^N U_{ij}$$

で与えられる.

計算に用いた物理定数は KCl と KBr に対して, それぞれ  $\lambda = 2.05 \times 10^{-5}, 2.30 \times 10^{-5} \text{ eV}$ ,  $\rho = 0.326, 0.336 \text{ \AA}$  である<sup>20</sup>. ステップがない場合の  $U$  の値は, 文献 20 に挙げられているため, その値と比較し, 計算結果が正しいことを確認した. KCl に対して  $7.00 \text{ eV}$  である.

図 1.9 に示すように, 座標系は,  $x, y$  方向に広がりをもつ平坦な結晶の表面を仮定し, ステップを  $z$  軸に平行に作った. この座標で平坦な結晶の表面に,  $[100]$  と  $[010]$  に平行なステップをもつ 1 原子層の小さなテラスを置いたもの(図 1.9(a)), および, 平坦な結晶表面の中心から結晶の端まで, 1 原子層のテラスを取り除いたもの(図 1.9(b))を用意した. そのうえで, 全格子エネルギーの分子当たりの平均値  $U$  を以下の条件 A, B, C で計算した;

条件 A : 図 1.9 (a) に示すように, 平坦な表面の中心に 1 原子層のテラスを置いたときの, テラスの一樣変位  $dz$  に対する  $U$  の変化を計算した. 平坦な結晶表面として,  $x, y, z$  方向にそれぞれ  $30 \times 30 \times 4$  個のイオンを用意し, この上に 1 原子層のテラスとして  $6 \times 6 \times 1$  個のイオンを置いた. このテラスを平坦な表面から測って, 最隣接距離  $R$  の位置に置いたときを  $dz = 0$  とし,  $R$  を単位とした  $dz$  を  $-0.1$  から  $0.1$  まで変化させた.

条件 B : 図 1.9 (b) に示すように, 平坦な表面の中心から結晶の端まで 1 原子層のテラスを取り除くことで, 結晶の中央に作ったレッジの一樣変位  $dx$  と  $dz$  に対する  $U$  の変化を計算した. 平坦な結晶表面として,  $x, y, z$  方向にそれぞれ  $30 \times 30 \times 5$  個のイオンを用意し, レッジは 6 個のイオンで作った. このレッジを正確な結晶格子の位置に置いたときを  $dx = 0, dz = 0$  とし,  $R$  を単位とした  $dx$  と  $dz$  をそれぞれ  $-0.1$  から  $0.1$  まで変化させた.

条件 C : 図 1.9 (a) に示すように, 平坦な表面の中心に 1 原子層のテラスを最も安定な位置に置いたときの, テラス上のレッジの一樣変位  $dx$  と  $dz$  に対する  $U$  の変化を計算した. 条件 A と同様に平坦な結晶表面として,  $x, y, z$  方向に  $30 \times 30 \times 4$  個のイオンを用意し, この上に 1 原子層のテラスとして  $6 \times 6 \times 1$  個のイオンを置いた. このテラスの  $z$  位置を条件 A の計算結果から求めた最も安定な位置に置き, このときを  $dz = 0$  とし, テラス上のエッジの位置の  $dx$  と  $dz$  を,  $R$  を単位とし, それぞれ  $-0.1$  から  $0.1$  まで変化させた.

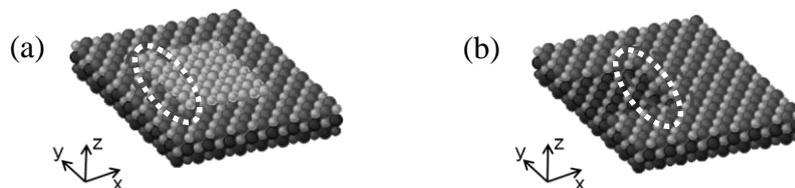


図 1.9 座標系と表面.

(a) 表面にテラスを置いたもの. (b) 表面の中心にレッジをおいたもの.

条件Aについて KCl, KBr に対する計算結果をそれぞれ 図 1.10 (a) と図 1.11 (a) に示す. KCl では, 最隣接距離の 2.9 % だけ表面に近づいた方がテラスのイオンが安定することがわかった. このとき, 分子当たり 0.07 meV, 1818 個の分子をもつ今回の系全体で 0.13 eV だけエネルギーが下がる. 同様に KBr では, 最隣接距離の 2.5 % だけ表面に近づいたとき, 分子当たり 0.05 meV, 系全体で 0.09 eV だけエネルギーが下がる.

条件Bについて KCl, KBr に対する計算結果をそれぞれ 図 1.10 (b) と図 1.11 (b) に示す. KCl では,  $(dx, dz) = (0.038, -0.033)$  のとき最もエネルギーが下がることになった. レッジは固体側に変位していることがわかる. このとき, 分子当たり 0.04 meV, 2205 個の分子をもつ今回の系全体で 0.09 eV だけエネルギーが下がる. 同様に KBr では,  $(dx, dz) = (0.034, -0.028)$  のとき最もエネルギーが下がり, 分子当たり 0.02 meV, 系全体で 0.04 eV だけエネルギーが下がる.

条件Cについて KCl, KBr に対する計算結果をそれぞれ 図 1.10 (c) と図 1.11 (c) に示す. KCl では,  $(dx, dz) = (0.034, -0.028)$  のとき最もエネルギーが下がることになった. この場合もレッジは固体側に変位していることがわかる. このとき, 分子当たり 0.02 meV, 1818 個の分子をもつ今回の系全体で 0.04 eV だけエネルギーが下がる. 同様に KBr では,  $(dx, dz) = (0.036, -0.016)$  のとき最もエネルギーが下がり, 分子当たり 0.03 meV, 系全体で 0.05 eV だけエネルギーが下がる. 条件Cの場合, テラスの  $z$  位置を条件Aの計算結果で求めた最も安定な位置としている. 条件Aで求めた安定位置も表面に近づいているので, 結果として, 変位させた原子軸は KCl, KBr それぞれ  $z$  方向に最隣接距離の 5.7%, 4.1% 近づいたところで最もエネルギーが下がったことになる. エネルギーは KCl, KBr それぞれ 1818 個の分子をもつ系全体で 0.17 eV, 0.14 eV だけ下がる.

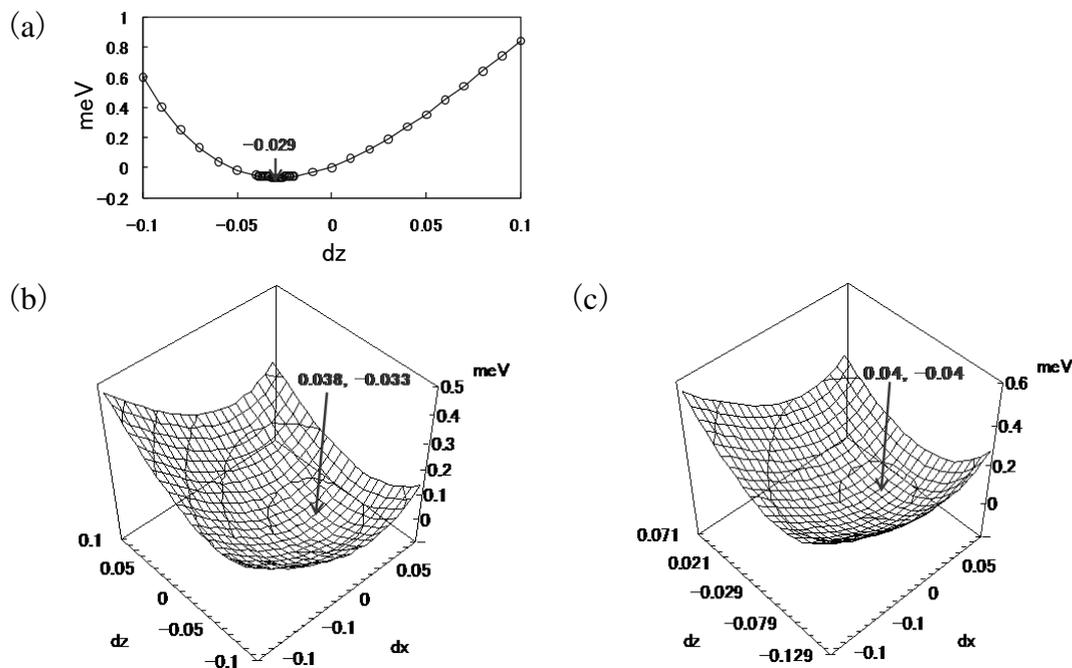


図 1.10 KCl(001) 表面原子の格子位置 ( $dx = 0, dz = 0$ ) からの変位に対するエネルギー差の計算値 (lattice energy/molecule  $U$ ).

(a) テラスの変位. (b) レッジの変位.

(c) 平坦な表面の中心に一原子層のテラスを置いたときのレッジの変位.

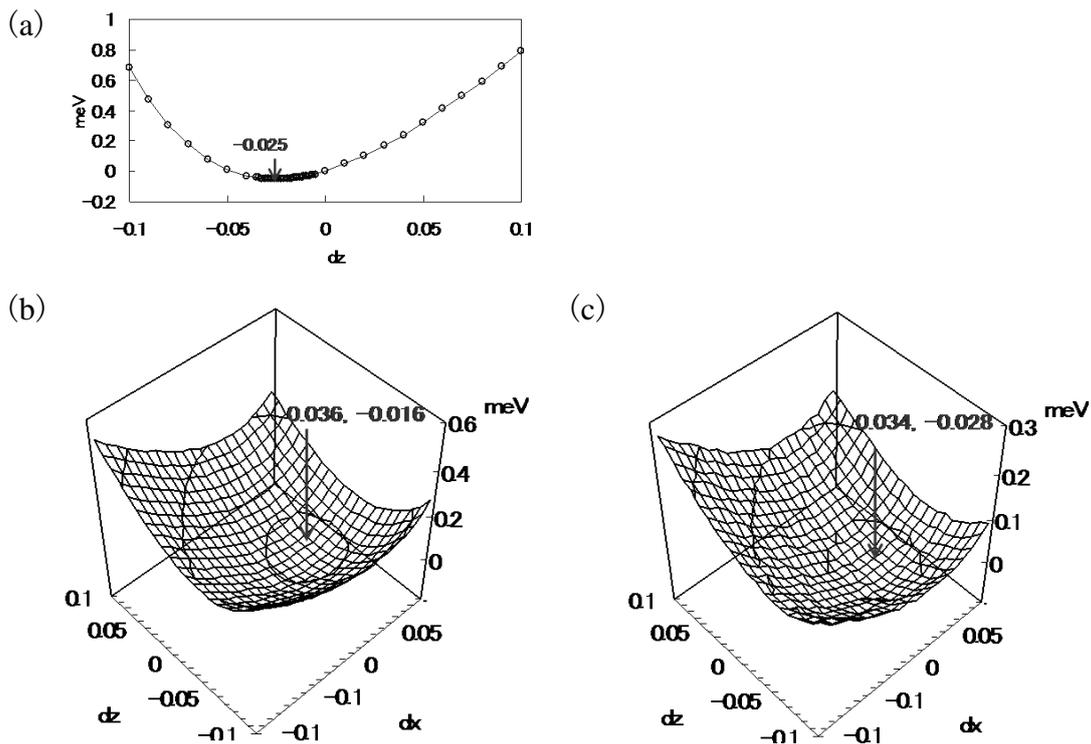


図 1.11 KBr(001) 表面原子の格子位置 ( $dx = 0, dz = 0$ ) からの変位に対するエネルギー差の計算値 (lattice energy/molecule  $U$ ).  
 (a) テラスの変位. (b) レッジの変位.  
 (c) 平坦な表面の中心に一原子層のテラスを置いたときのレッジの変位.

以上の計算結果から、テラス上、レッジ上のイオンはいずれも固体側に変位した方が安定であることが明らかになった。変位の量のオーダーは最隣接距離  $R$  の 2% から 4% である。特にテラスのレッジは正確な結晶格子位置と比べ、KCl で 5.7%, KBr で 4.1% 表面第二層に近づくことになる。電子線照射で高密度にステップをつくればこういった歪みをもつ表面格子が重なり合うことが予想される。そのため表面のモフォロジーが不規則になり、複雑化することが予想される。

### 1-5. 論文の構成

本研究では、電子刺激脱離が起こったイオン結晶表面の形状変化を表面チャネリング法(表面面チャネリングおよび、表面軸チャネリング)により調べた。高速陽子を電子線照射した KCl, KBr 表面にほぼ平行に入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルと収量を測定した。この手法の利点として、表面構造解析手法として一般的な電子線や X 線の回折現象を用いた方法と異なり、実空間の情報を得ることができる<sup>16)</sup>。また、表面の形状に敏感であり、ほぼ非破壊で結晶表面の損傷を防ぐことができることがあげられる。実験結果との比較を行うために原子間力顕微鏡を用いて電子線照射を行った試料を観察し、表面形状の解析を行った。また、コンピュータ・シミュレーションを行い実験結果と比較した。

第 2 章では、本研究で使用した実験装置の概要を説明する。第 3 章では実験結果との比較

のために行った，コンピュータ・シミュレーションの基礎理論と概要を記す．第 4 章では電子線照射により均一および，非均一にステップが生成された KCl 表面で散乱された陽子のエネルギー損失と散乱角分布の電子線照射による変化について述べる．第 5 章では均一にステップを生成した KCl 表面での散乱陽子のエネルギースペクトルの形状の変化と陽子の入射方位角を KCl の  $\langle 100 \rangle$  および， $\langle 110 \rangle$  チャネリング軸を中心に  $\pm 10$  mrad 変化させたときの散乱収量の変化，すなわち，チャネリング・ディップの電子線照射量に対する変化について説明する．さらに同様の実験を格子定数が約 5%異なる KBr を用いて行い，軸チャネリングを用いた手法による表面格子歪みの測定の可能性について述べる．第 6 章では電子刺激脱離が起こった表面の形状変化をシミュレーションによる結果と比較して説明する．第 7 章ではまとめとして主に第 4 章から第 6 章で得られた結果を，項目を追って整理し，今後の研究課題について言及する．

[参考文献]

- 1) D. G. Lord and M. Prutton : Thin Solid Films, **21** (1974) 341.
- 2) J. Nakamura, T. Kagawa and T. Osaka : Surf. Sci., **389** (1997) 109.
- 3) B. Such, P. Czuba, P. Piatkowski and M. Szymonski : Surf. Sci., **451** (2000) 203.
- 4) J. M. Mativetsky, Y. Miyahara, S. Fostner, S. A. Burke and P. Grutter : Appl. Phys. Lett. , **88** (2006) 233121.
- 5) L. Nony, E. Gnecco, A. Baratoff, A. Alkauskas, R. Bennewitz, O. Pfeiffer, S. Maier, A. Wetzl, E. Meyer and Ch. Gerber : Nano. Lett., **4** (2004) 2185.
- 6) K. Sudoh, H. Iwasaki, H. Kuribayashi, R. Hiruta and R. Shimizu : Surf. Sci., **600** (2006) L67.
- 7) M. Ono, T. Nishio, T. Eguchi and Y. Hasegawa : Hyomen Kagaku (J. Surf. Sci. Soc. Jpn.), **27** (2006) 695 [in Japanese] .
- 8) 小間篤, 八木克道, 塚田捷, 青野正和: 表面科学入門 (丸善 1994).
- 9) W. Takeuchi and Y. Yamamura : Nucl. Instr. and Meth. B, **184** (2001) 544.
- 10) J. Vogt and H. Weiss : Surf. Sci., **501** (2002) 203.
- 11) S. Tanaka and K. Mase : Hyomen Kagaku (J. Surf. Sci. Soc. Jpn.), **23** (2002) 753 [in Japanese].
- 12) 伊藤憲昭 : 物理学最前線 17, 大槻義彦 編 (共立出版 1987) 69.
- 13) 藤本文範, 小牧研一郎 編 : イオンビーム工学 イオン・固体相互作用編 (内田老鶴圃 1995).
- 14) M. Szymonski, J. Kolodziej, B. Such, P. Piatkowski, P. Struski, P. Czuba and F. Krok : Prog. Surf. Sci., **67** (2001) 123.
- 15) Y. Fujii : *Doctor Thesis* ( Kyoto University, 1993 ).
- 16) 藤居義和, 木村健二, 万波通彦 : 応用物理, **60** (1991) 1207.
- 17) R. Pfandzelter and M. Schuster: Nucl. Instr. and Meth. B, **33** (1988) 898.
- 18) M.Schuster and C. Varelas : Nucl. Instr. and Meth. B, **2** (1984) 299
- 19) J. Seifert and H. Winter : Surf. Sci., **603** (2009) L109.
- 20) C. Kittel : *Introduction to Solid State Physics chapter 3, 8th ed.*, (John Wiley & Sons. Inc, New York 2005).
- 21) Y. Nakai and N. Itoh : Phys. Rev.B, **49** (1994) 11364.

## 第2章 実験

### 摘要

この章では、実験装置と実験方法について説明する。イオン散乱実験における実験装置の概要とエネルギースペクトルの測定方法やイオン結晶表面への電子線照射の方法、原子間力顕微鏡 (AFM) 観察のための試料作製方法についての詳細を述べる。



## 第 2 章 実験

### 2-1. 実験装置の概要

本研究に用いた実験装置の概要を図 2.1 に示す. イオンビーム散乱実験は奈良女子大学理学部静電加速装置に接続した超高真空散乱槽で行っており, ここに, 試料を取り付けるためのゴニオメータ, 散乱したイオンビームをエネルギー分析・検出するエネルギー分析システムとイオン結晶表面に電子線を照射するための電子銃が備えつけられている. イオン散乱実験後の試料のみならず, さまざまな照射量で電子線照射したイオン結晶を原子間力顕微鏡で観察するために, 試料作製用の高真空散乱槽を大阪教育大学に設置している.

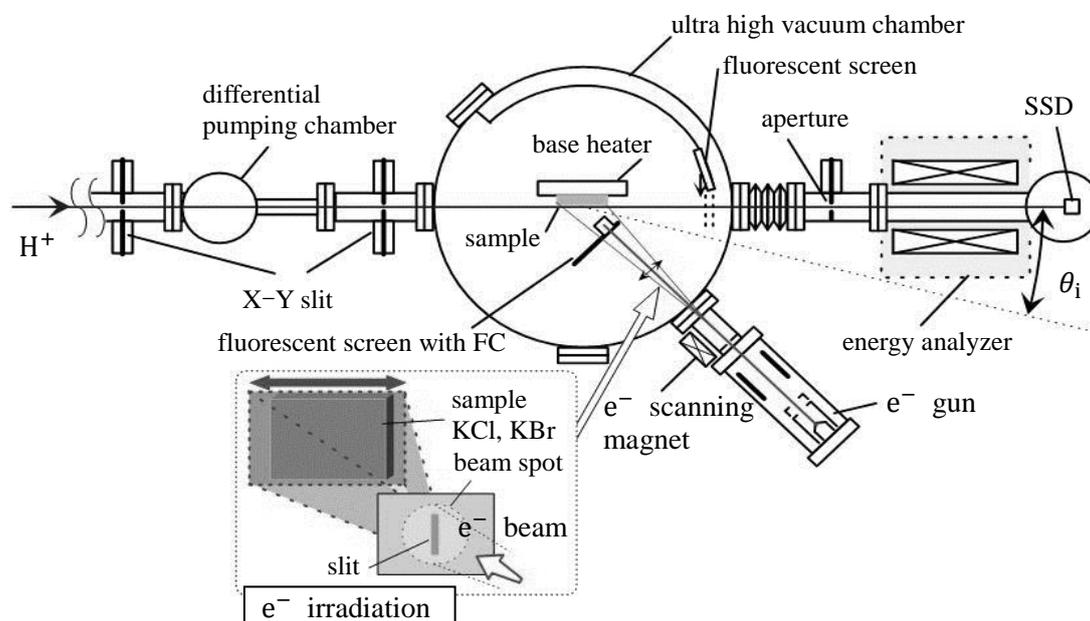


図 2.1 実験装置の概要.

### 2-2. 超高真空散乱槽

超高真空散乱槽は奈良女子大学理学部静電加速装置の  $15^\circ$  ビームコースに接続している<sup>1)</sup>. 超高真空の状態を保つために, 散乱槽の上流に差動排気系を備えている. 差動排気にはターボ分子ポンプを使用し, 超高真空散乱槽ではイオンポンプにより  $10^{-8}$  Pa 台後半から  $10^{-7}$  Pa 前半程度の真空度を得ている. 加速器で加速された陽子は差動排気系の上流と下流にそれぞれ 1 セットずつ取り付けられた 2 つの X-Y スリットによりコリメートされ, 超高真空散乱槽の 4 軸ゴニオメータに取り付けられたイオン結晶試料表面にほぼ平行に入射する. 上流の X-Y スリットでの電流で入射ビーム量を規格化している. 結晶表面で散乱した陽子によるブロッキングパターンを観察するために, ゴニオメータのすぐ下流に蛍光板が取り付けられている. この蛍光板は可動式で下流にある検出器のシャッターの役割も担っている.

図 2.2 にゴニオメータの試料設置部分の概要を示す. ベースヒータが取り付けられた試料

台はイオンビームに対して2つの方向に回転させることができる。1つは図 2.2(b)の  $\theta$  の回転でイオンビームの表面に対する入射角を変える。もうひとつは図 2.2(a)の  $\phi$  の回転でイオンビームの試料表面上の $\langle 100 \rangle$ 又は $\langle 110 \rangle$ 軸に対する方位角を変える。ゴニオメータの  $\theta$  の回転は  $90^\circ$  を超える大きな角度幅で回転させることが可能だが、 $\phi$  は角度幅が  $\pm 15^\circ$  と限られているため、 $\langle 110 \rangle$ 軸に関する実験時は図 2.2(a)の挿入図に示したように、試料を  $45^\circ$  回転させてとりつけている。 $\theta$  を固定し数  $10^\circ$  の角度幅で  $\phi$  を回転させることにより、イオンビームの入射角に  $\pm 1 \text{ mrad}$  程度の誤差を生じる場合が多い。この入射角の誤差は 2-3 節で述べる散乱角の分布を確認することで見積もった。

試料台の前面には、電子銃からの電子線電流を測定するために、上下方向に可動なファラデーカップ (Faraday cup: FC) を取り付けている。FC は、イオンビーム入射時および、電子線照射時は図の位置に置き、電子線照射電流測定時には試料の高さまで下ろしている。電子線照射は試料表面に対して  $45^\circ$  の角度で行っているため、FC が電子線に対して正面を向くように設置した。また、電子線スポットの形状を見るために、FC 直前に取り付けたサプレッサには蛍光板を使用した。

試料は試料台上に置き、板バネにより 2 か所で押し当て支持している。イオン結晶試料は単結晶 KCl および、KBr である。試料を空気中で  $\{001\}$  面に平行に劈開し、すみやかにゴニオメータに取り付け、約 24 時間のベーキングの後、表面の清浄化のためにベースヒータにより  $250^\circ\text{C}$  で 1 時間加熱している<sup>2, 3)</sup>。また、実験時は陽子ビームや電子ビーム照射による帯電を防ぐため、試料の温度を  $100\sim 180^\circ\text{C}$  に保った<sup>4)</sup>。第 4 章、第 5 章 3 節では  $100^\circ\text{C}$ 、第 5 章 4 節では  $180^\circ\text{C}$ 、第 5 章 5 節、6 節では  $150^\circ\text{C}$  に保ったが、KCl ではこれらの温度の違いによる帯電現象は見られなかった。

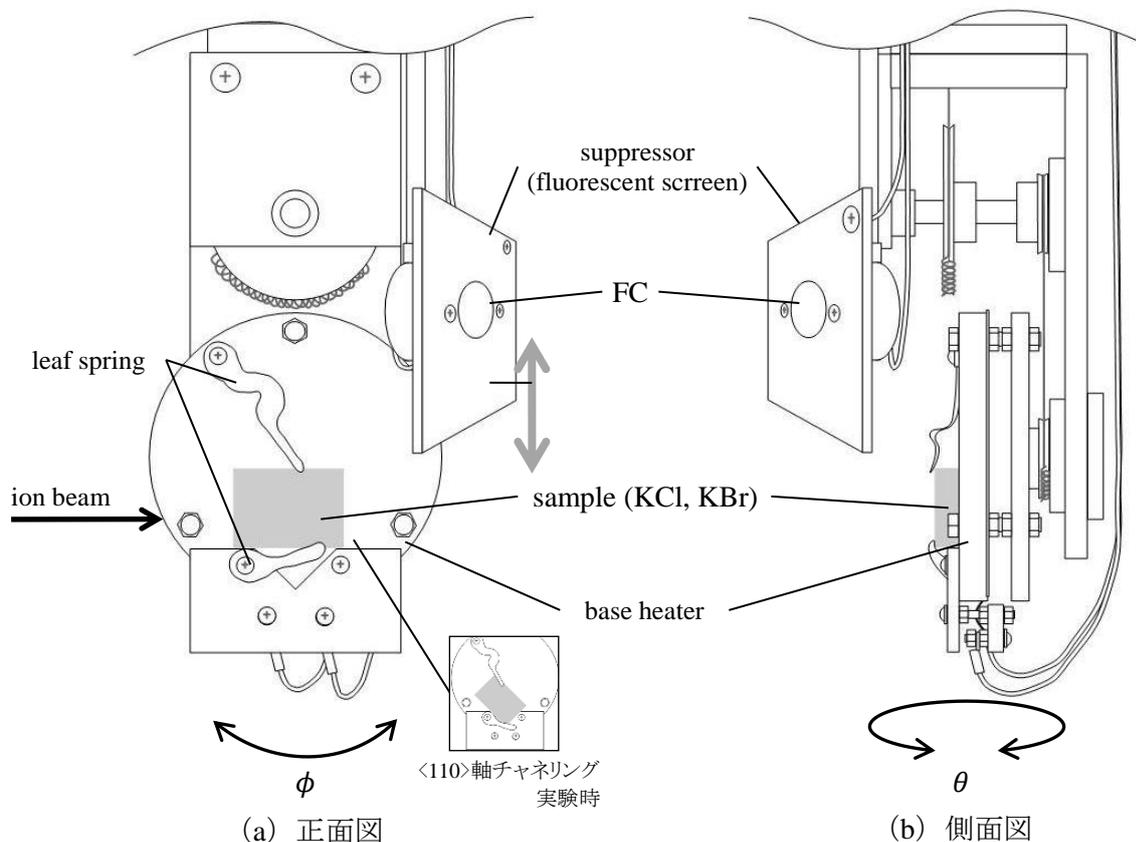


図 2.2 ゴニオメータ 試料設置部の概要. (a) 正面図. (b) 側面図.

### 2-3. エネルギー分析システム

超高真空散乱槽の中央に置かれた結晶で散乱された陽子は、特定の散乱角に置かれたエネルギー分析器で分析される。この分析システムは、電磁石を取り付けたビーム偏向ダクトと±0.1%以下の精度が必要な電磁石の電源（高砂製作所 GP072 - 20R）、この電源を制御し、検出回路を通じて陽子の収量を計数するカウンターを制御するためのコンピュータからなる。なお、ビーム偏向ダクトと電磁石の全体を鉄のカバーで覆い、磁場が外部に漏れないよう、特に散乱角を決める点スリット付近に漏れないように配慮している。

作製した分析システムと偏向ダクトの概要を図 2.3, 2.4 に示す。分析システムでの一連の分析は以下のとおりである。結晶で散乱された陽子は偏向ダクト前に取り付けられた直径 0.3 mm の点スリットを通ることで散乱角を選別され、偏向ダクトに入射する。点スリットと偏向ダクトは図 2.3 の結晶の鉛直方向の回転軸を中心に -10 ~ +30 mrad 程度回転させることができる。この回転機構を用いて散乱陽子の散乱角分布を測る。分析システムの電磁石電源はコンピュータによりデジタルアナログ変換された電圧信号を受け取り、その電圧に応じた電流を電磁石に出力し、偏向ダクト内の磁場の強さを変化させる。偏向ダクトでの磁場の強さを一定時間間隔で掃引させることで、陽子ビームは徐々に偏向され、ビームラインから 130 ~ 150 mm 上方に置かれた検出器に到達する。陽子検出に使用した半導体検出器 (solid state detector : SSD) で得られた検出信号は前置増幅器、増幅器、シングルチャンネルアナライザーを経て、コンピュータに組み込んだカウンターで計数される。電磁石に流した各電流での収量がコンピュータのディスプレイ上にヒストグラムとしてプロットされる。繰り返し掃引し、各電流での収量を足し上げた。このようにして散乱陽子のエネルギースペクトルを得た。

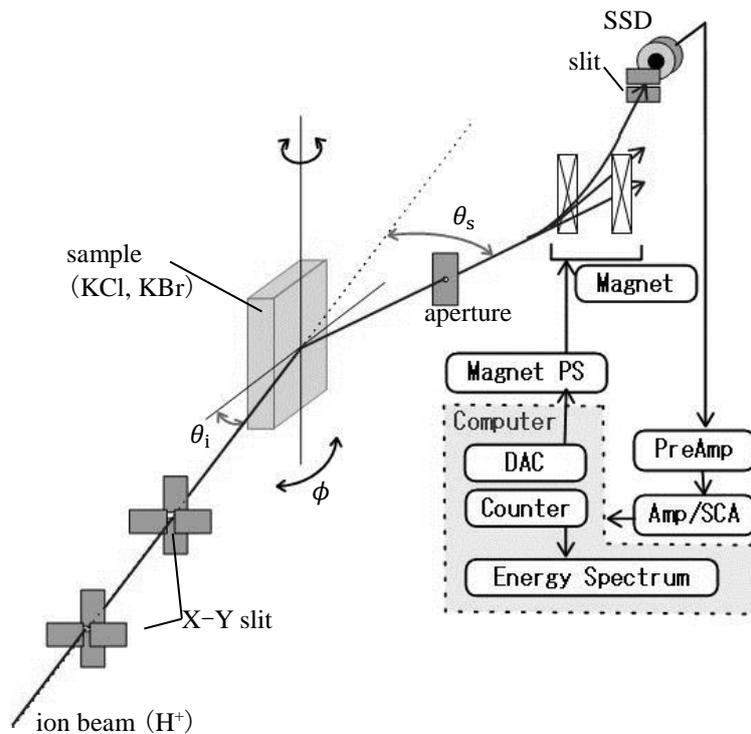


図 2.3 イオンビームのエネルギー分析システム。

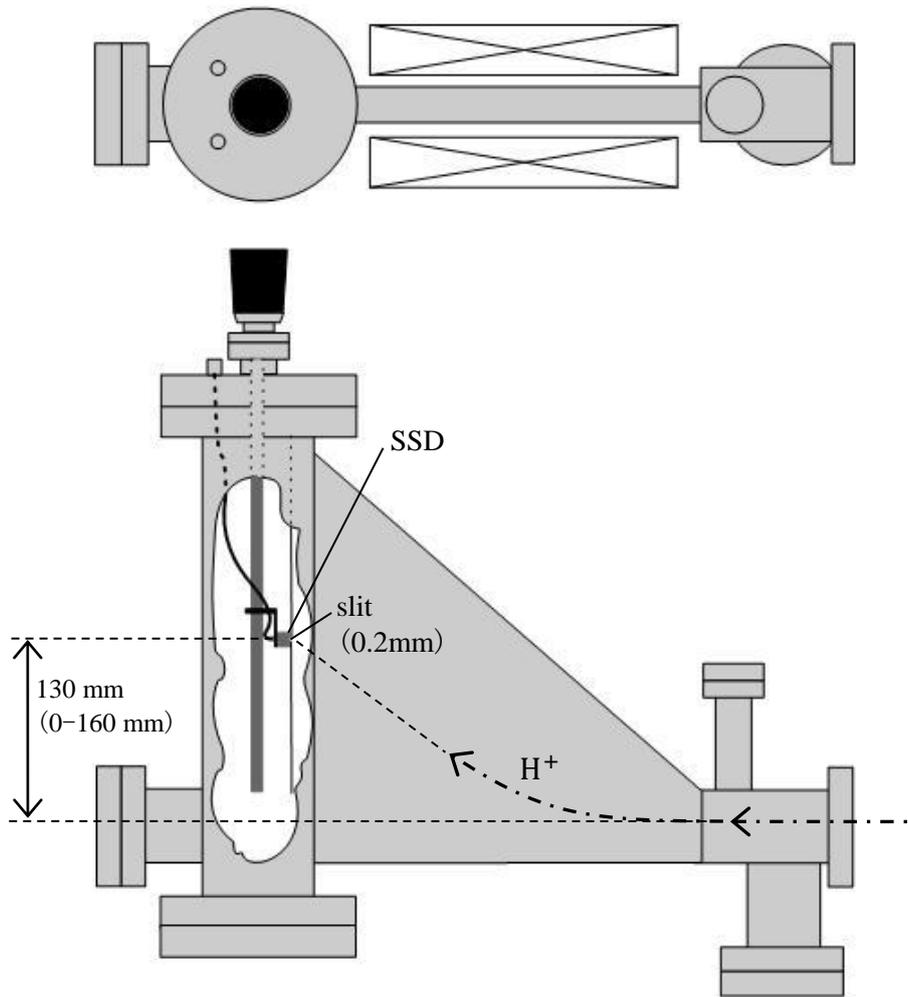


図 2.4 磁場型エネルギー分析器の偏向ダクトの構造.

この分析システムにより得られた典型的なエネルギースペクトルの例を図 2.5 に示す. 結晶で散乱を受けずに直接検出器に入射した陽子のエネルギースペクトルの分解能( $\Delta E/E$ )は約 $\pm 0.2\%$ であり,  $10 \text{ mrad}$  程度の角度にわたって発散した散乱ビームに対しては $\pm 0.4\%$ であった. なお, 散乱ビームに対する分解能は, 分解能のわかる SSD からの信号により散乱ビームのエネルギー幅 (エネルギーストラグリングと角度広がりによる分解能を含む) を算出し, 本分析器で得られたスペクトル幅を比較することにより求めた.

SSD はビームラインから約  $160 \text{ mm}$  上方の高さまで可動であり, SSD の直前に, ビームラインからそれぞれ  $50 \text{ mm}$ ,  $90 \text{ mm}$ ,  $130 \text{ mm}$ ,  $150 \text{ mm}$  上方に  $0.2 \text{ mm}$  のスリットを取り付けた. このようにすることで, SSD の高さを調節しながら, 偏向されたビームの軌道を確認することができるようにした.

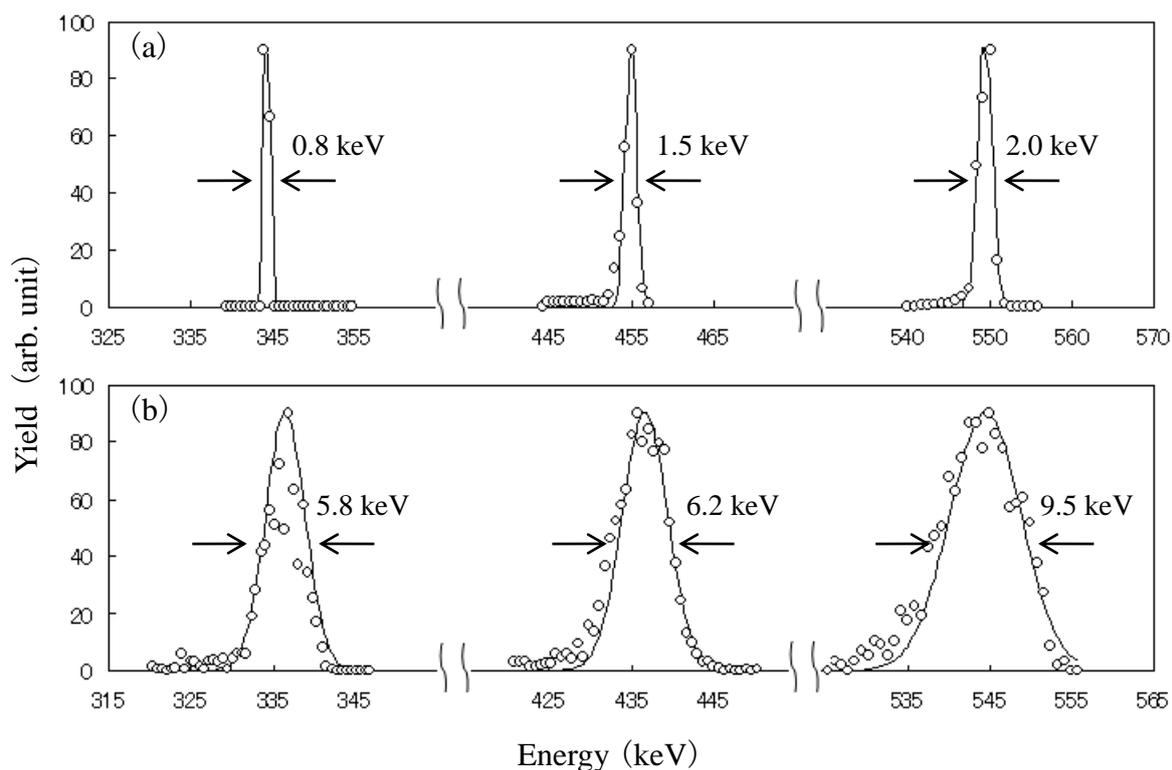


図 2.5 エネルギースペクトルの例. (a) 入射ビーム. (b) 散乱ビーム.

#### 2-4. 電子線照射装置

試料表面への電子線照射は、超高真空散乱槽に取り付けた電子銃により行っている。この電子銃はモノクロブラウン管 TV 用に作られたものを使用している<sup>5)</sup>。電子銃の4つのグリッドに、回路内の抵抗分割で電位を与え、フィラメントからの熱電子は5kVで加速される。電子銃下流途中に偏向板を置き、そのすぐ下流に蛍光板を置いた。この蛍光板の中心にはビームが通過するための穴を開けており、ビームコースを窓から目で見ながら調整できるようにしている。

電子ビームは0.6mmのスリットで縦長にコリメートし、そこを通過した縦長の電子ビームを磁石により12Hz程度で左右に往復偏向させ、1次元ラインスキャンすることで試料表面に均一に照射した。照射電子ビーム量は試料近くに置いた可動式のファラデーカップに入射させることによって測定した。なお、大阪教育大学に設置している試料作製用高真空散乱槽では、電子線を点状にコリメートし、2セットの電磁石を用いて、2次元スキャンが行えるようにしている(図 2.6)。2次元スキャンのときの一方向の偏向周期は12Hz程度だが、他方は900Hz程度に大きく変えることで、一様な照射を行っている。また、電子銃は表面散乱実験と試料作製とで共通に使うため、ゲートバルブを取りつけ、真空中に封じたまま持ち運びできるように工夫した。さらに、電子銃の交換や整備後の粗引きのためにLバルブを取りつけた。

#### 2-5. 試料作製用高真空散乱槽

試料表面に電子線照射を行った試料の各照射量での表面形状や平均二乗粗さについて解析

するために、原子間力顕微鏡を用いて観察している。観察は神戸大学研究基盤センターの原子間力顕微鏡 (Digital Instruments: Bio Scope NVB100 または SII ナノテクノロジー: NanoNavi II, E-sweep) を使用している<sup>6)</sup>。試料を長時間大気にさらすことのないよう、小型デシケータに入れ、真空排気して持ち運んでいる。2-2 節で述べた散乱槽内で照射した試料は加速器を利用した実験終了時まで積算照射したもの以外取り出せないため、様々な照射量で照射を行った観察用の試料は、大阪教育大学に設置している高真空散乱槽で作製している。

図 2.6 に観察試料作製の高真空散乱槽を示す。ターボ分子ポンプで排気しながらベークした後、イオンポンプで排気し、表面清浄化の操作として試料台の昇温を経た後、 $1 \times 10^{-6}$  Pa 程度の到達真空度を得ている。イオンポンプ作動開始時には排気速度の向上および、これによる到達真空度の上昇を期待して、チタンサブレーションポンプを併用している。その後電子銃の昇温や照射により  $2 \times 10^{-5}$  Pa 程度に悪くなるが、電子線照射はこの程度の真空度で行った。試料は試料台に取り付けた銅製の試料ホルダーに挿入し、側面を押さえて固定し、試料台から均一に加熱している。この試料台は固定式で結晶を回転、移動させることはできない。試料の大きさは  $7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$  程度である。電子線照射は前節で示した電子線照射装置で行っている。電子線を縦長にコリメートし、電磁石で水平方向にスキャンするラインスキャンと点状にコリメートして行う 2 次元スキャンを行うことができる。図 2.6 の挿入図にラインスキャンと 2 次元スキャンの様子を示した。電子線照射量は試料台前方に設置した可動式の FC で電流をモニターすることで測定している。試料はイオン散乱実験と同様、KCl と KBr である。

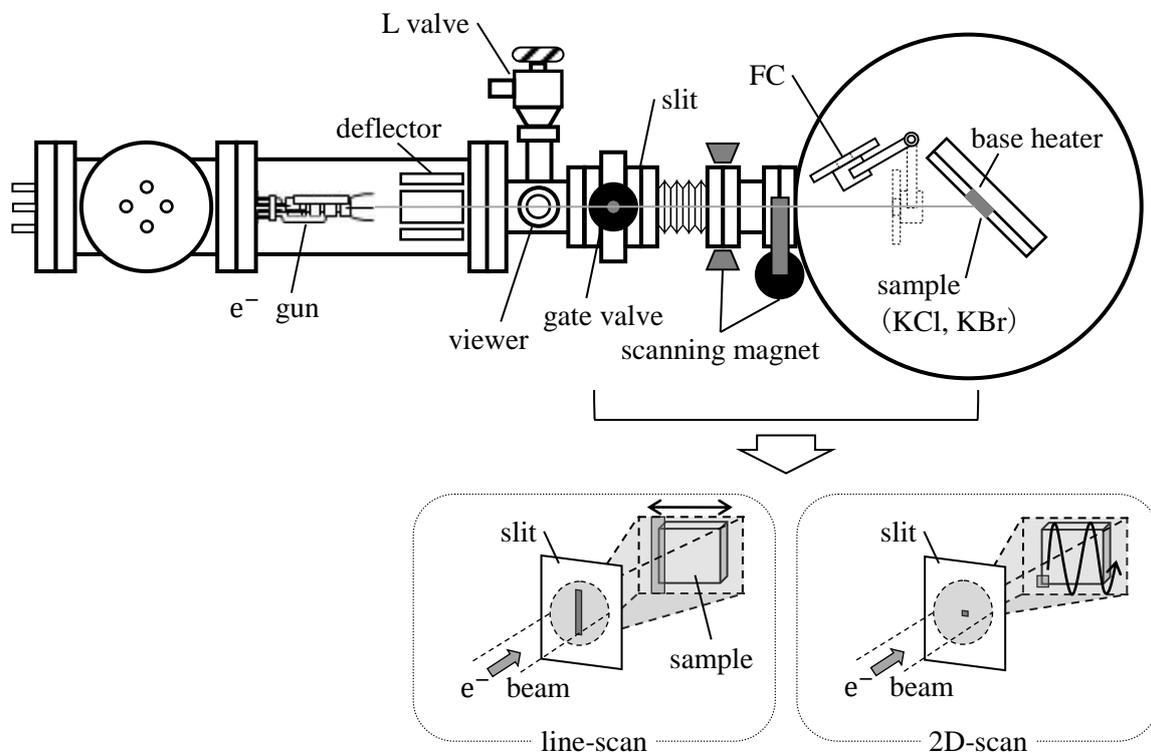


図 2.6 電子線照射試料作製用真空散乱槽。

[参考文献]

- 1) 奈良女子大学理学部物理学科 : 物質分析用静電加速器装置 (1994).
- 2) M. Goryl, B. Such, F. Krok, K. Meisel, J. J. Kolodziej and M. Szymonski : Surf. Sci., **593** (2005) 147.
- 3) M. Prutton : *Surface Physics*, Oxford University Press (1975).
- 4) K. Nakajima and K. Kimura : Butsuri, **61** (2006) 98 [ in Japanese ].
- 5) 株式会社ニラコ : 研究用基礎材料カタログ, No.**30** (2008) 108.
- 6) 神戸大学研究基盤センター報, No.**5** (2008).



## 第3章 高速イオン散乱のコンピュータ・シミュレーション

### 摘要

結晶表面での高速イオン散乱について、コンピュータ・シミュレーションを行った。まず、計算に用いた基礎理論と表面ステップの導入方法について述べる。次に実験結果と比較するために得た、散乱イオンの散乱パターンやエネルギースペクトルの例をあげる。



## 第3章 高速イオン散乱のコンピュータ・シミュレーション

### 3-1. 高速イオンと結晶表面原子との相互作用

高速イオンが結晶表面にほぼ平行に入射すると、入射イオンは表面にある原子全体から受けるポテンシャルの中を運動する。結晶表面上に原点をとり、表面に平行に  $x, y$  軸、結晶表面の真空側を正とした法線方向に  $z$  軸を置き、入射イオンの位置を表すと、位置  $(x, y, z)$  にあるイオンは  $xy$  面上で周期的なポテンシャルを受けるため、イオンに対する表面原子のポテンシャルは以下のように書くことができる<sup>1)</sup>。

$$\begin{aligned} V_p(x, y, z) &= \sum_{i,j} V\left(\sqrt{(x+ia)^2 + (y+ib)^2 + z^2}\right) \\ &= \sum_{h,k} V_{hk}(z) \exp\{2\pi i(hx/a + ky/b)\} \quad , \quad (3.1) \end{aligned}$$

ただし、 $a, b$  はそれぞれ  $x, y$  軸方向の格子定数、 $V_{hk}(z)$  はポテンシャル  $V_p(x, y, z)$  のフーリエ係数である。 $x, y$  方向の短い周期でのイオンの加速、減速は平均するとイオンの運動への寄与は少ないため、 $xy$  面での平均のポテンシャル  $V_{00}(z)$  が支配的になる。この平均ポテンシャルを連続表面ポテンシャルと言い、 $V_p(z)$  で表すと、

$$V_p(z) = n_p \int_0^\infty V(\sqrt{z^2 + R^2}) 2\pi R dR \quad (3.2)$$

と書くことができる。ただし、 $n_p$  は結晶表面の原子密度である。原子番号  $Z_1$  の入射イオンと原子番号  $Z_2$  の表面原子の原子間ポテンシャルとしてトーマス・フェルミポテンシャルのモリエール近似を用いると、式(3.2)は以下のようなになる<sup>2)</sup>。

$$V_p(z) = 2\pi Z_1 Z_2 e^2 n_p \sum_{i=1}^3 \frac{\alpha_i}{\beta_i} \cdot \exp\left(-\frac{\beta_i z}{a_{TF}}\right) \quad , \quad (3.3)$$

ここで  $\alpha_i$  はモリエールポテンシャルの係数、 $\beta_i$  は指数の係数であり、それぞれ、 $\{\alpha_i\} = \{0.1, 0.55, 0.35\}$ 、 $\{\beta_i\} = \{6.0, 1.2, 0.3\}$  である。 $a_{TF}$  はトーマス・フェルミ遮蔽距離である。

入射エネルギー  $E$  のイオンが結晶表面にほぼ平行に小角  $\theta_i$  で入射すると、その表面に垂直な運動エネルギー  $E\theta_i^2$  がある特定の  $z_0$  でのポテンシャルエネルギー  $V_p(z_0)$  を超えない場合、表面に  $z_0$  以下には近づけず、第1章3節で述べたように、イオンは入射角の2倍の角度に散乱される（鏡面反射または表面面チャネリング）。さらに、イオンの入射方位角が結晶表面の低指数軸にほぼ平行である場合、イオンは表面の原子列によっても散乱される（表面軸チャネリング）。図3.1に例として、結晶の(001)表面で鏡面反射したイオンの軌道を示す。質量  $M$ 、エネルギー  $E$  のイオンが結晶表面に垂直な  $xz$  面内に入射するとき、イオンの運

動方程式は

$$M \frac{d^2x}{dt^2} = -s(z), \quad M \frac{d^2z}{dt^2} = -\frac{dV_p(z)}{dz} \quad (3.4)$$

である。ここで  $s(z)$  は結晶表面の入射イオンに対する阻止能であり、 $z$  のみの関数で近似した<sup>3,4)</sup>。

イオンが  $\theta_i$  の入射角で入射し、阻止能が無視できる場合、式(3.4) から得られる、 $z$  方向のエネルギー保存則より、イオンが結晶表面の原子面に最も近づく、最近接距離  $z_{\min}$  と入射角の関係を導くことができる。

$$V_p(z_{\min}) = E\theta_i^2 \quad (3.5)$$

であり、 $z_{\min}$ として、連続ポテンシャル近似が適用できる。トーマス-フェルミ遮蔽距離  $a_{TF}$  を代入し、鏡面反射をおこす臨界角  $\phi_c$ を求めると

$$\phi_c = \sqrt{\frac{V_p(a_{TF})}{E}} \quad (3.6)$$

となる。鏡面反射の臨界角  $\phi_c$  は 550 keV 陽子に対して KCl(001) では 7.3 mrad である。

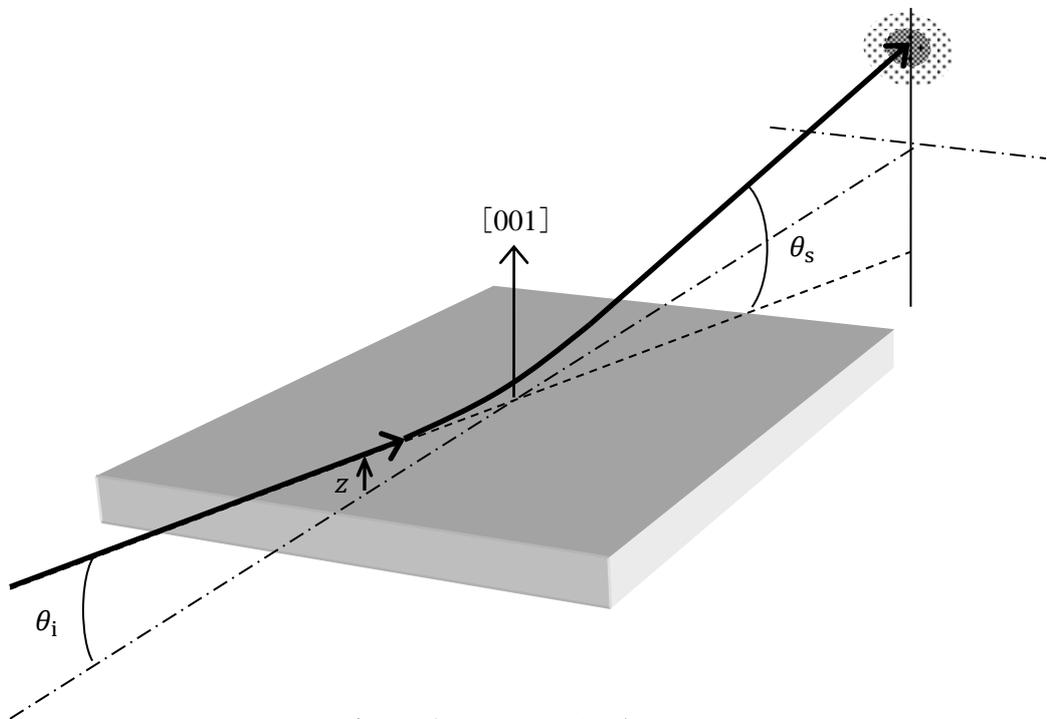


図 3.1 鏡面反射のイオン軌道<sup>3)</sup>。

表面軸チャネリングの場合，軸に平行な方向にポテンシャルを平均した，連続軸ポテンシヤル  $V_A(\rho)$  は，連続表面ポテンシヤルと同様な方法で，トーマス - フェルミポテンシヤルのモリエール近似を用いて以下のように書くことができる．

$$V_A(\rho) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{\infty} V(\sqrt{\rho^2 + x^2}) dx$$

$$= \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{d} \sum_{i=1}^3 \alpha_i K_0 \left( \frac{\beta_i \rho}{a_{TF}} \right) , \quad (3.7)$$

ただし  $\rho$  は原子列からの距離， $d$  は原子軸方向の原子間距離であり  $K_0(x)$  は 0 次第 2 種変形ベッセル関数である．

図 3.2 に結晶の (001) 表面の [100] 軸で表面軸チャネリングして出射したイオンの軌道を模式的に示す．質量  $M$ ，エネルギー  $E$  のイオンが結晶表面に  $\theta_i$  の入射角， $\phi_i$  の方位角で入射するとき，イオンの運動方程式は

$$M \frac{d^2 x}{dt^2} = -s(\rho), \quad M \frac{d^2 y}{dt^2} = -\frac{\partial V_A(\rho)}{\partial y}, \quad M \frac{d^2 z}{dt^2} = -\frac{\partial V_A(\rho)}{\partial z} \quad (3.8)$$

であり，ここで  $s(\rho)$  は原子軸の入射イオンに対する阻止能であり， $\rho$  のみに依存するとした<sup>3,4)</sup>．阻止能が無視できる場合，

$$\left( \frac{dy}{dx} \right)^2 + \left( \frac{dz}{dx} \right)^2 + \frac{V_A(\rho)}{E} = \theta_i^2 + \phi_i^2 \quad (3.9)$$

が得られる．結晶表面から測ったイオンの出射角および，出射方位角をそれぞれ  $\theta_o$ ， $\phi_o$  とすると

$$\theta_o^2 + \phi_o^2 = \theta_i^2 + \phi_i^2 \quad (3.10)$$

の関係が成り立ち，イオンは図 3.2 のように，結晶軸の方向を中心とした円弧上に散乱する．

この表面軸チャネリングに対しても臨界角の考え方を導入することができる．バルク結晶中の軸チャネリングに対しては臨界角  $\Psi_1$  が定義され，

$$\Psi_1 = \sqrt{\frac{2Z_1 Z_2 e^2}{dE}} \quad (3.11)$$

である． $\Psi_1$  に熱振動振幅等を考慮した補正関数  $F$  を乗じて定義された，

$$\Psi_{1/2} = 0.8F(1.2D/a_{TF}) \Psi_1 \quad (3.12)$$

を軸チャネリングの臨界角として使用するのが一般的である<sup>2)</sup>．ここで  $D$  は結晶格子の熱振動振幅である．550 keV 陽子に対して KCl(001) の  $\langle 100 \rangle$ ， $\langle 110 \rangle$  軸チャネリングの臨界角  $\Psi_{1/2}$

はそれぞれ 8.0 mrad, 6.5 mrad である. 表面軸チャネリングの臨界角を, このバルク内での軸チャネリングの臨界角から見積もることができる. 入射角  $\theta_i$  を固定し, 入射方位角  $\phi_i$  を変化させるとき,  $\theta_i^2 + \phi_i^2 \leq \Psi_{1/2}^2$  が成り立つ限り, 表面軸チャネリングがおこり, イオンは図 3.2 に示した円弧状に散乱する. なお, 本研究で扱うような,  $\theta_i$  を固定し,  $\phi_i$  を動かしながら  $\theta_s = 2\theta_i$ ,  $\phi_o = -\phi_i$  位置での散乱強度を求める場合, 軸チャネリングをおこすことで収量は減少するが, 軸チャネリングから外れても, 表面内に潜るような条件であれば, そこで収量は回復しない.

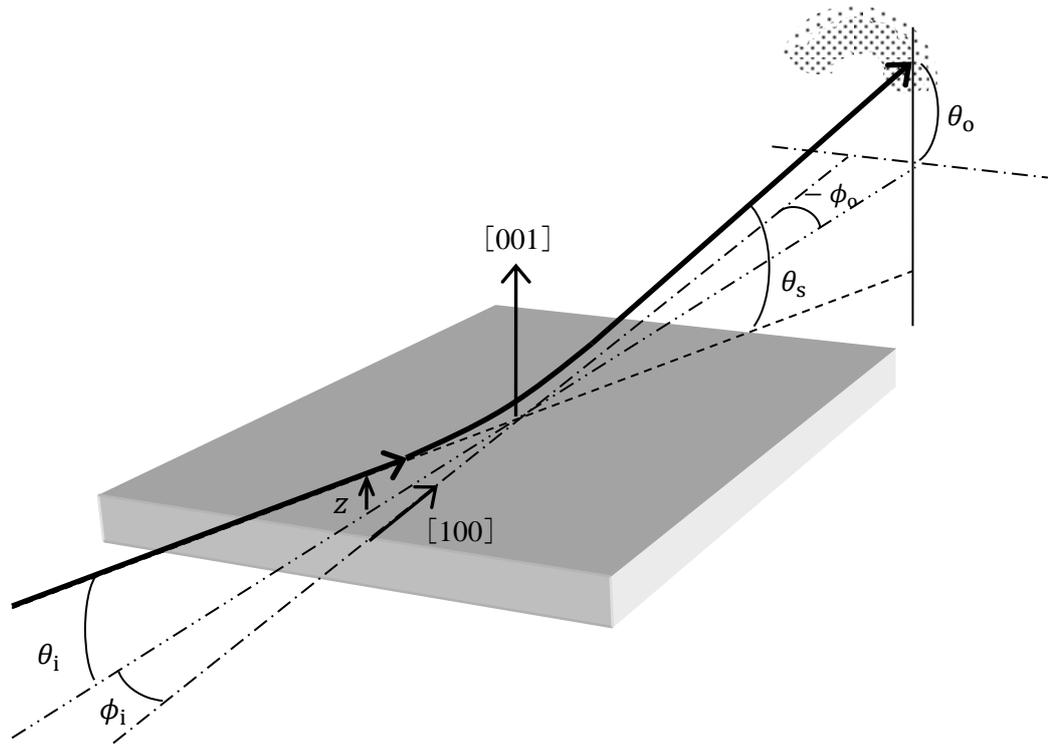


図 3.2 表面軸チャネリングのイオン軌道<sup>3)</sup>.

### 3-2. イオン軌道の計算

シミュレーションにおいて, イオンと表面原子の相互作用ポテンシャルは, 前節で述べた, トーマス-フェルミポテンシャルのモリエール近似を用いた. イオンが表面より外側にあり, 結晶の面間隔  $d$  の半分以上表面から離れているとき, 表面連続ポテンシャル (式(3.3)) のもとでの軌道を, 運動方程式を解くことによって計算した.

イオンが表面に  $d/2$  より近づいたときは, イオンと標的原子間のポテンシャルはイオンと標的原子間の距離を  $r$  として

$$V(r) = \frac{z_1 z_2 e^2}{r} \sum_{i=1}^3 \alpha_i \cdot \exp\left(-\frac{\beta_i r}{a_{TF}}\right) \quad (3.13)$$

とした. 座標のとり方は前節と同様で,  $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$  である.  $x$  方向の力は前後で打ち消しあうため, イオンに働く力を  $y, z$  方向の成分で示すと,

$$\mathbf{F} = z_1 z_2 e^2 \sum_{i=1}^3 \alpha_i \left[ \left\{ \frac{y}{\rho^2 + x^2} \left( \frac{1}{\sqrt{\rho^2 + x^2}} + \frac{\beta_i}{a_{\text{TF}}} \right) \cdot \exp \left( -\frac{\beta_i \sqrt{\rho^2 + x^2}}{a_{\text{TF}}} \right) \right\} \mathbf{j} \right. \\ \left. + \left\{ \frac{z}{\rho^2 + x^2} \left( \frac{1}{\sqrt{\rho^2 + x^2}} + \frac{\beta_i}{a_{\text{TF}}} \right) \cdot \exp \left( -\frac{\beta_i \sqrt{\rho^2 + x^2}}{a_{\text{TF}}} \right) \right\} \mathbf{k} \right] \quad (3.14)$$

となる。ただし  $\rho = \sqrt{y^2 + z^2}$  である。イオンが1つの表面格子を進むごとに標的原子を探し、運動方程式を解いて、軌道の計算を行った。扱う標的原子の数はイオンが表面に近づいたときや結晶表面に入ったときに最も近づく4つ以下とした。

一方、もう1つの方法として軌道の運動方程式を解くかわりに力積近似を用いて、原子との衝突による偏向角を求めた。力積  $\Delta P(\rho)$  を与えられたときの衝突による偏向角  $\theta$  の変化は

$$\Delta\theta(\rho) = \frac{\Delta P(\rho)}{P} = \frac{1}{Mv} \int_{-\infty}^{\infty} -\frac{\partial}{\partial \rho} V(\sqrt{\rho^2 + x^2}) \frac{dx}{v} \\ = \frac{z_1 z_2 e^2}{a_{\text{TF}} E} \sum_{i=1}^3 \alpha_i \beta_i K_1 \left( \frac{\beta_i \rho}{a_{\text{TF}}} \right) \quad (3.15)$$

によって計算される。  $K_1(x)$  は1次の第2種ベッセル関数である。イオンが1つの表面格子を進むごとに、標的原子を探し、それらの原子との衝突によるこの偏向角を加えた。この方法でも扱う原子の数は同じである。3-4節および、第5章5節ではこの力積近似を用いた。

また、イオンに対する固体表面の阻止能はこの入射エネルギー領域では電子的阻止能で与えられる。この電子的阻止能は表面からの距離に依存する関数として、

$$s(z) = S_0 \exp \left( -\frac{\beta_3 z}{2a_{\text{TF}}} \right) \quad (3.16)$$

を用いた<sup>4)</sup>。ただし、  $S_0$  は係数であり、実測値に合うように決めた。

エネルギー損失による、イオンの偏向角を  $\Delta\phi$  とすると、

$$\Delta\phi = \sqrt{\frac{2ms(z)\Delta x}{M^2 V^2}} \quad (3.17)$$

となる。ただし、  $m$  は電子の質量である。微小な進行距離  $\Delta x$  ごとに偏向角を求め、この偏向角を乱数によって、  $y, z$  方向にそれぞれ振り分けた。

### 3-3. 表面ステップの導入

1つ1つの表面原子の位置を決めるために、熱振動振幅、表面緩和、ランプリングを取り入れている<sup>5)</sup>。しかし、これらがシミュレーションで求めるイオン軌道に与える影響は小さく、最も大きな影響を生むものが表面に導入する表面ステップである。表面ステップは、結晶表面として定義した座標系に  $[100], [010]$  の2方向に長いレッジを持つ単原子層高さの矩

形テラスを乱数で決めた座標に置き重ねる，または取り除くことで生成した．図 3.3 に示すように，イオンにとって表面が徐々に高くなるアップステップと表面が徐々に低くなるダウンステップを生成し，それらを足し合わせることで，上りのみと下りのみのステップ表面をつくった．たとえばアップステップの場合，図 3.3 に示す起点に対して，イオンビームから見て右側にテラスを置くか，左側にテラスを置くかは乱数で決めた．第 4 章および，第 5 章 3，4 節では，アップステップ表面とダウンステップ表面それぞれについて分けて計算を行い，それらを足し合わせたものを，一様なステップのある表面での結果とした．次節および，5 章 5 節では，アップステップかダウンステップかを乱数で決め，上りと下りが平均的な表面についてイオン散乱計算を行った．これらの節では結果の表示に用いるステップ密度は，ステップのある表面と (001) 表面のなす平均の傾き角またはイオンの進行方向の単位長さ当たりのステップの平均の数で示した．

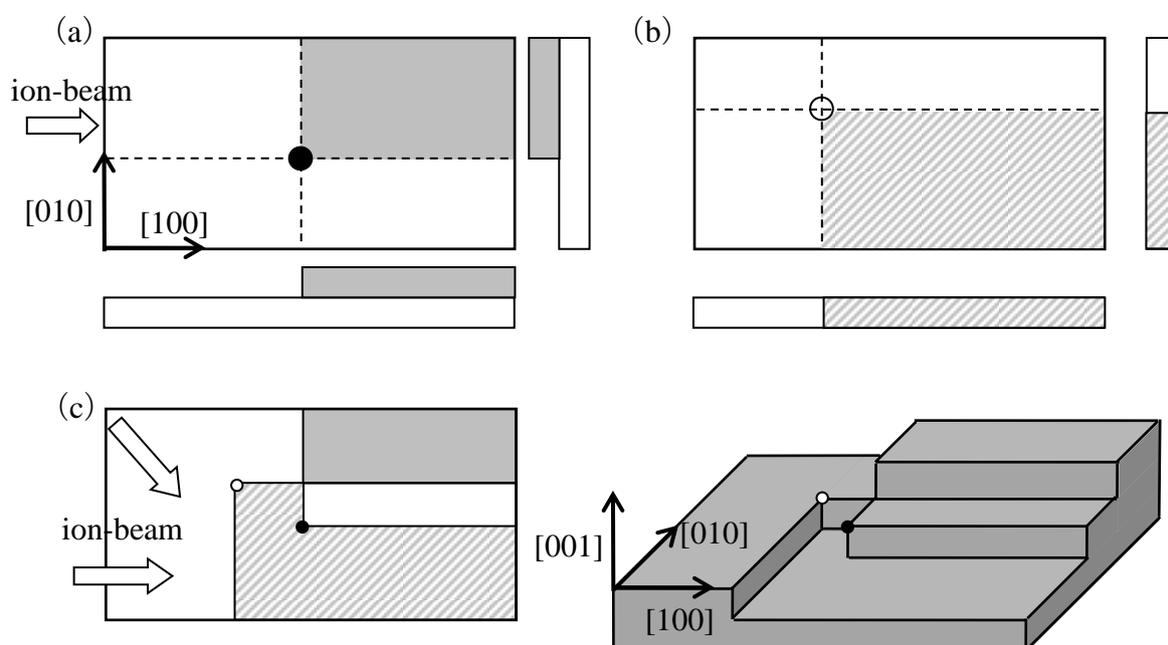


図 3.3 表面ステップの導入方法．

- (a) アップステップの導入 乱数で決めた起点●を基準にテラスを置く．
- (b) ダウンステップの導入 乱数で決めた起点○からテラスを取り除く．
- (c) (a), (b)を合わせた，上りと下りが平均的なステップ表面．

### 3-4. 散乱イオンの散乱パターンとエネルギースペクトルの例

シミュレーションによって計算される散乱イオンの速度から，イオンの散乱パターンや任意の散乱角に散乱したイオンのエネルギースペクトルを得ることができる．

図 3.4 は鏡面反射， $\langle 100 \rangle$ 表面軸チャネリングの条件で入射した，散乱パターンの例である．3-1 節において図 3.2 で示したように，チャネリング軸を中心として円弧状にパターンが広がっていることがわかる．

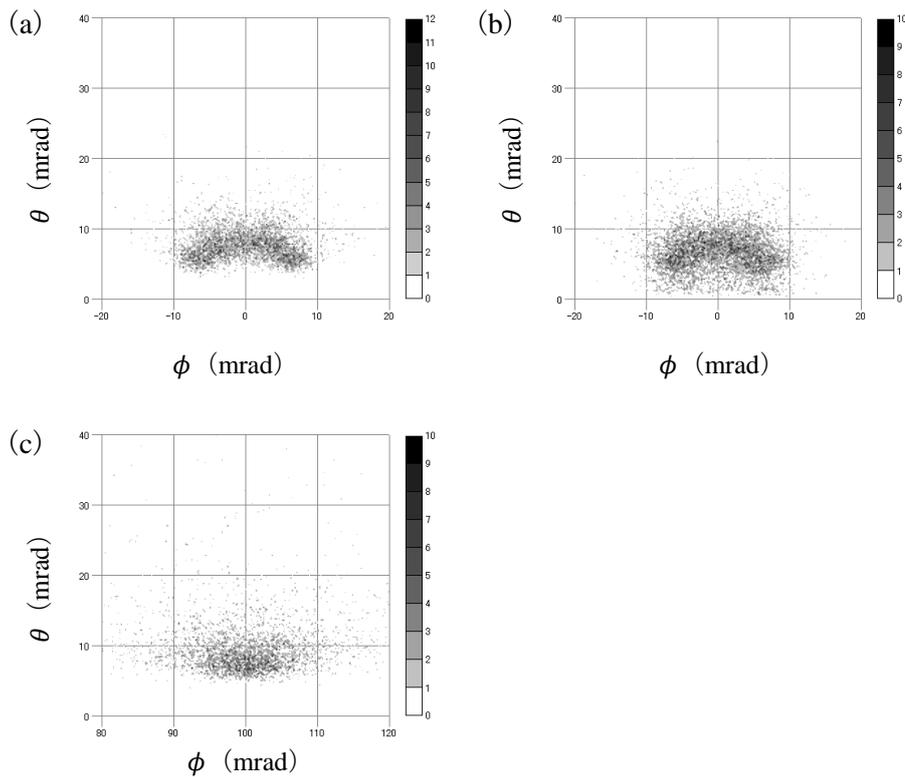


図 3.4 KCl(001)表面での散乱パターン例 ( $\theta_i = 9$  mrad,  $\phi_i$  は $\langle 100 \rangle$ 軸に対するもの).  
 (a) フラットな表面,  $\phi_i = 0$  mrad.  
 (b) 平均  $0.8 \times 10^5 \text{cm}^{-1}$  のステップを導入した表面,  $\phi_i = 0$  mrad.  
 (c) 鏡面反射のパターン,  $\phi_i = 100$  mrad で入射.

図 3.5 は KCl(001)表面に入射角  $6 \pm 1$  mrad で $\langle 100 \rangle$ チャネリング軸近くの入射方位角で 550keV の陽子が入射したときのエネルギースペクトルの例である. チャネリング軸とほぼ平行 ( $\phi_i = 0$  mrad, 5 mrad) に入射し, 散乱したイオンのエネルギースペクトルにおいて, 最もエネルギーの高いピークは表面上の 1 本の $\langle 100 \rangle$ 軸で散乱されたものである. また, 2 番目にエネルギーが高いピークは 2 本の原子列によって散乱されたものである. さらに, これに加え結晶の内部に潜って散乱したピークが低エネルギー側にみられる.  $\phi_i = 10$  mrad ではエネルギースペクトルは表面第一層にならぶ軸で 1 回から複数回で散乱したものが 1 つのピークを形成している. また, 表面にステップを導入した表面のエネルギースペクトルはフラットな表面よりも形が崩れていることがわかる. このようなエネルギースペクトルから, チャネリング軸周辺角度における散乱収量の変化, すなわち, チャネリング・ディップをもとめ, 実験で得られたチャネリング・ディップと比較することができる.

これらのコンピュータ・シミュレーションの結果は, 各章において実験結果と比較して述べる. 尚, 本章で用いたプログラムは, 第 5 章 5 節で用いたプログラムであり, 力積近似を用いて計算している. ステップが上りか下りかは乱数で決めている.

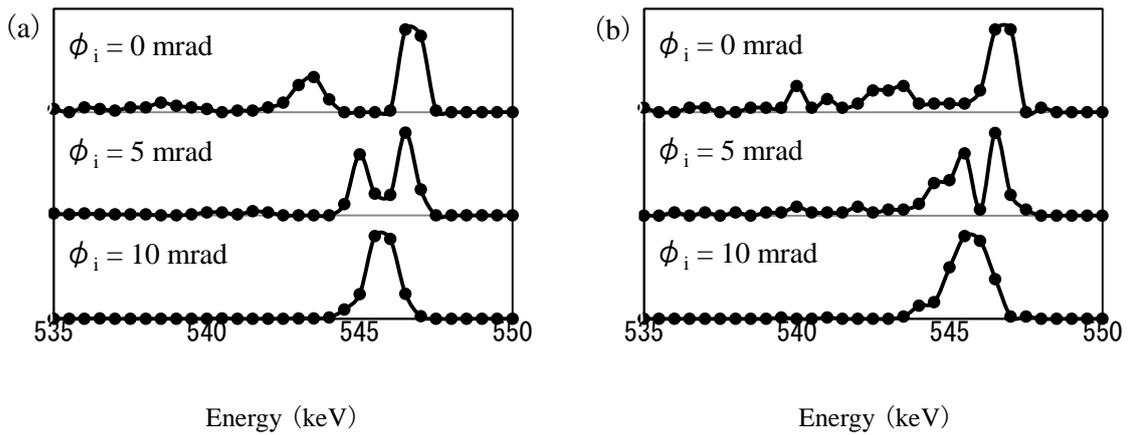


図 3.5 KClに入射した陽子のエネルギースペクトルの計算例 ( $\langle 100 \rangle$ 軸周辺角度).  
 (a)フラットな表面. (b)平均  $1.6 \times 10^5 \text{cm}^{-1}$  のステップを導入した表面.  
 ともに入射角  $\theta_i$  は  $6 \pm 1 \text{mrad}$ , 散乱角  $\theta_s$  は  $12 \text{mrad}$ .

### 3-5. 散乱イオンのブロッキングパターンの例

表面軸チャネリングとは対比して、特定の方向に向かうイオンがその方向に密に並んだ原子で散乱されるために計測に寄与しなくなる、ブロッキングという現象がある。今回扱ったような表面チャネリング実験においても、表面のチャネリング軸にほぼ平行にイオンを入射すると、表面を潜り、固体内部の原子で散乱したイオンが表面の原子列によってさらに散乱され、散乱パターン的一部分に影ができた、ブロッキングパターンが観察される。

本研究では実験中の試料の結晶軸の確認は、比較的大きな入射角で十分狭くコリメートする前のビームを入射し、このブロッキングパターンを蛍光板で観察することで行った。図 3.6 は結晶の  $\langle 100 \rangle$  軸と  $\langle 110 \rangle$  軸に入射したときに得られる表面散乱ブロッキングパターンの模式図である。本節ではブロッキングパターンの強度変化を観察し、実験で得た散乱パターンとシミュレーションによって得られた散乱パターンとを比較することで、表面の軸の脱離量依存等に関する情報が導けることを予想し、予備的な研究を行った。本章に記したコンピュータ・シミュレーションの応用例の 1 つとして、結果の提示を行う。

KBr(001)表面の  $\langle 100 \rangle$  軸に 550 keV の陽子を  $\theta_i = 5 \pm 1 \text{ mrad}$  の入射角で入射して得られた散乱パターンの例を図 3.7 に示す。このパターンは KBr(001) 表面に電子線照射を行う前のものである。散乱パターンは結晶の下流に設置した蛍光板を CMOS カメラで数十枚撮影し、コンピュータで画像処理をして重ね合わせることで得た。肉眼ではパターンの中心付近に暗線が見られたが、カメラの解像度が悪くノイズも多いため、ブロッキングの暗線は鮮明でない。入射ビームの右側に弱い暗線が見える。電子線照射を行った後の散乱パターンは入射ビームのコリメーションを上げ、エネルギー分析を行う実験と同時進行したことも原因し、図 3.7 よりもさらに強度が弱く、暗線を確認できなかった。したがって、現在のシステムでは、電子線照射によって表面モフォロジーが変化した表面のブロッキングパターンの強度変化をとらえることは困難であった。しかし、高性能なカメラを導入するなど、システムを工夫することで、鮮明な像を得ることは可能となるだろう。

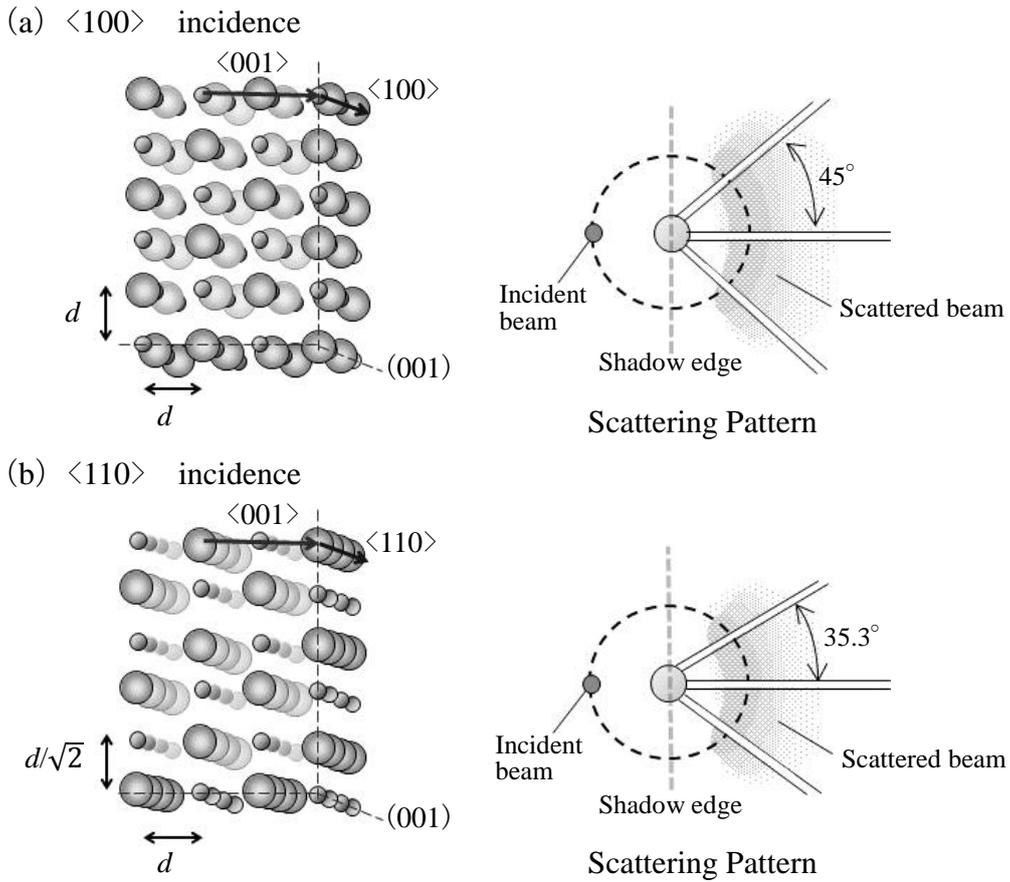


図 3.6 入射イオンから見た結晶と表面散乱ブロッキングパターン.  
 それぞれ(a)  $\langle 100 \rangle$ 軸, (b)  $\langle 100 \rangle$ 軸 に対するもの.  
 入射イオンの一部は軸に沿って結晶内部に潜り散乱するが, 表面の原子列に  
 ブロックされるため, 散乱パターンに原子列の位置に対応した図のような暗  
 線があらわれる.

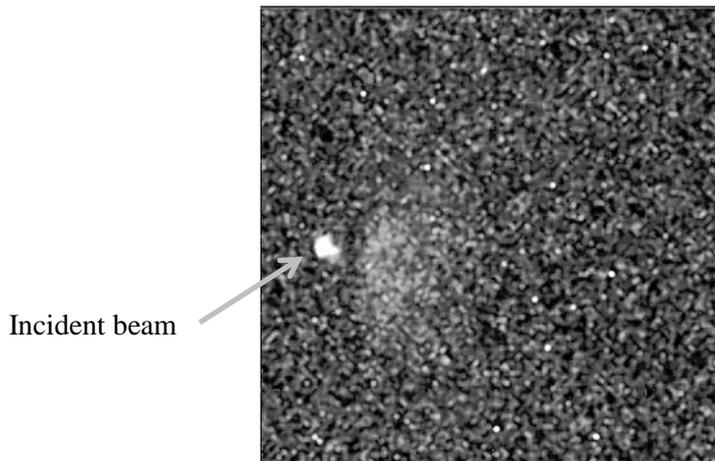


図 3.7 表面散乱ブロッキングパターンの観察例.  
**KBr** (001) 表面の  $\langle 100 \rangle$  軸に 550 keV の陽子を  $\theta_i = 5 \pm 1$  mrad で入射したときの  
 もの (電子線未照射).  
 白い部分が入射ビームでその右側に薄く広がる白い影が散乱ビームである.

図 3.8 は KCl(001) 表面の  $\langle 100 \rangle$  軸と  $\langle 110 \rangle$  軸近くに入射した陽子の散乱パターンのシミュレーションである。図 3.8 (a) - (c) は 550 keV の陽子を  $\langle 100 \rangle$  軸に対して入射角  $\theta_i = 9$  mrad, 入射方位角  $\phi_i = 5$  mrad で入射したもので、(d) - (f) は  $\langle 110 \rangle$  軸に対して  $\theta_i = 6.4$  mrad,  $\phi_i = 3.5$  mrad で入射したものである。入射角は実験中にブロッキングパターンが見やすい条件として、チャネリングの臨界角より少し大きめにした。また、(a), (d) はフラットな表面、(b), (e) は平均  $1.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  のステップを導入した表面、(c), (f) は平均  $3.2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  のステップを導入した表面である。このシミュレーション結果より、固体内へのイオンの侵入が浅いため明瞭に観察することはできないが、ブロッキングパターンが薄く観察されている。ステップ密度の増加により、パターン全体が低散乱角側にシフトし (第 4 章参照)、また、円弧状の散乱パターンが乱れ、ランダムに散乱される陽子が増えることがわかった。

特に注目すべき点は、 $\langle 110 \rangle$  表面軸チャネリングに対する散乱パターンである。第 5 章 5 節で述べることと関連するが、 $\langle 110 \rangle$  軸チャネリングがおこる臨界角は鏡面反射がおこる臨界角より小さい。このため、この入射角、入射方位角の条件にすることで、鏡面反射イオンによる輝点が現れるのがわかる。すなわち、 $\langle 110 \rangle$  軸チャネリングがおこりにくくなる時、そのかわりに鏡面反射が起こりはじめる。

本節のシミュレーションの結果、ブロッキングパターンは明瞭でなく、そこから有益な情報は得られそうにないことがわかった。しかし、電子線照射によってステップ密度を増やすことで、散乱イオン全体がつくる散乱パターンが変化していく様子がわかった。

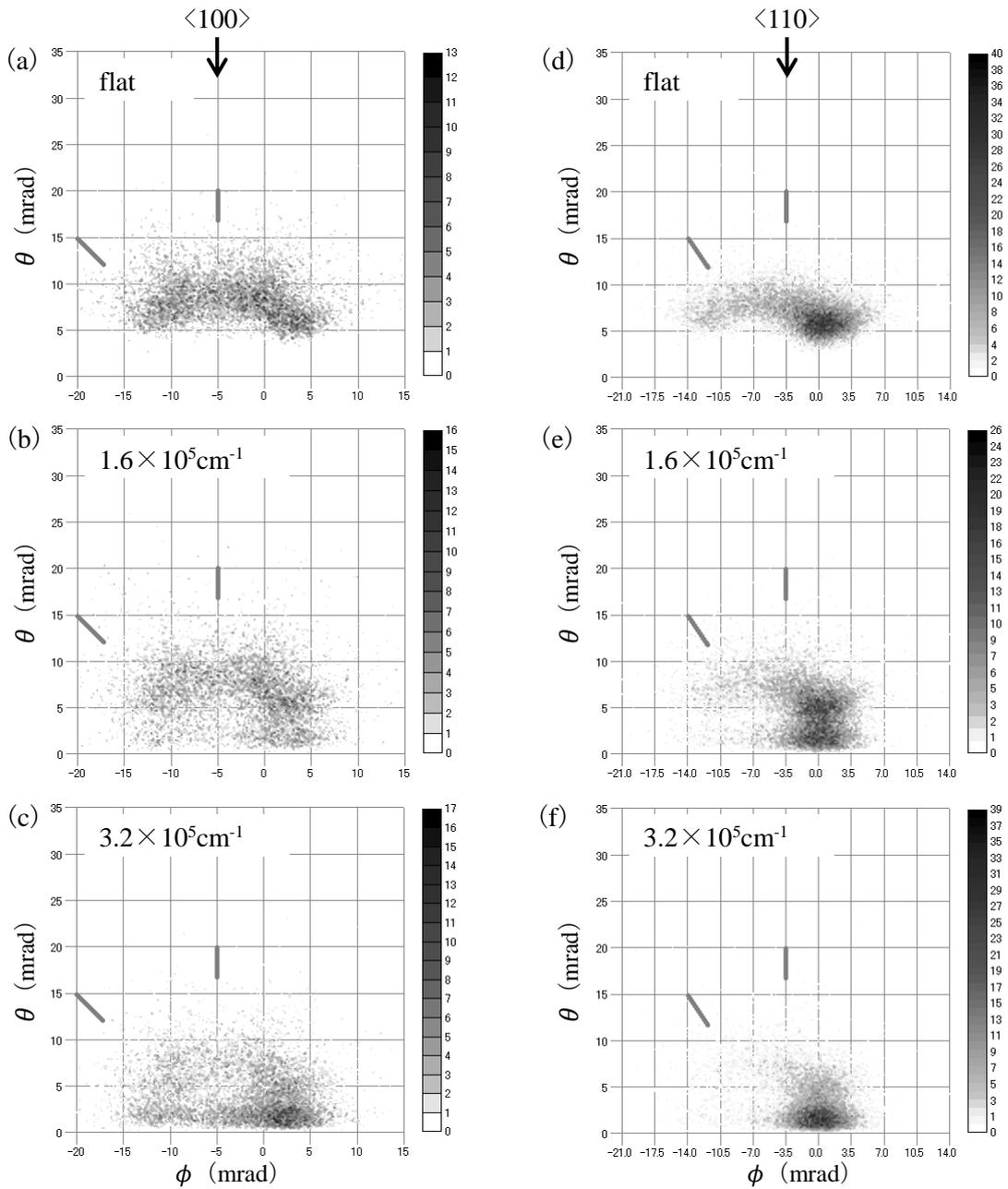


図 3.8 KCl(001) 表面の $\langle 100 \rangle$ 軸と $\langle 110 \rangle$ 軸に対する散乱パターンのステップによる変化。  
 (a) – (c)  $\langle 100 \rangle$ 軸  $\theta_i = 9$  mrad,  $\phi_i = 5$  mrad.  
 (d) – (f)  $\langle 110 \rangle$ 軸  $\theta_i = 6.4$  mrad,  $\phi_i = 3.5$  mrad.  
 (a) (d) フラットな表面。  
 (b) (e) 平均  $1.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  のステップを導入した表面。  
 (c) (f) 平均  $3.2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  のステップを導入した表面。  
 各図に挿入したラインの延長上にブロッキングパターンが薄く形成されている。

[参考文献]

- 1) 藤本文範, 小牧研一郎 : *イオンビーム工学 イオン・固体相互作用編* (内田老鶴圃 1995).
- 2) D.S.Gemmell : *Rev. Mod. Phys.*, **46** (1974) 129.
- 3) Y. Fujii : *Doctor Thesis* ( Kyoto University, 1993 ).
- 4) K. Kimura, M. Hasegawa and M. Mannami : *Phys. Rev. B*, **36** (1987) 7.
- 5) J. Vogt and H. Weiss : *Surf. Sci.*, **491** (2001) 155.

## 第4章 電子線照射を行った KCl(001) 表面での高速陽子の散乱に対する損傷密度非均一の影響

### 摘要

表面に電子線損傷が生成されたときの散乱陽子のエネルギースペクトル, 散乱角分布に及ぼす影響を損傷密度分布の均一性から検討した. 実験は KCl(001) 表面の入射イオンビームに対して上流側となる部分に優先的に電子線照射をした非均一照射表面と, 全体に一樣に照射を行った均一照射表面で行った. 入射陽子のエネルギーは 610 keV であり, 結晶への入射角は 13mrad 以下であった. 電子線照射した表面は原子間力顕微鏡で観察した. 電子線照射量の増加による散乱陽子のエネルギー損失と散乱角のピークの変化を調べると,  $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  を超えた照射量で, 損傷密度の分布により大きく異なった. 結果をコンピュータ・シミュレーションによる計算結果と比較した. 散乱角分布の変化は損傷密度の分布だけでなく, 入射陽子の入射角にも依存することがわかった.



## 第4章 電子線照射を行った KCl(001) 表面での高速陽子

### の散乱に対する損傷密度非均一の影響

#### 4-1. はじめに

イオン結晶表面に金属を蒸着した場合、一般に 3 次元核成長をする。下地のイオン結晶表面に予め X 線や電子線を照射すると、表面には F 中心やステップなどの欠陥が形成され、蒸着物質の成長核(クラスターやナノ粒子)の形成を促すことが古くから知られている<sup>1)</sup>。セルフサポートの単結晶薄膜を用いたチャネリング実験においても、X 線照射を行った下地を使って作製した単結晶薄膜が多く用いられてきた<sup>2,3)</sup>。

一方、X 線や電子線照射により生じるイオン結晶表面からの原子の脱離は、layer-by-layer で起こるといことが知られている<sup>4,5)</sup>。これらの論文によれば、layer-by-layer で脱離が起こる低照射量では、単一原子層高さのステップのみが形成されるが、更に照射を続けると、表面が荒れることがわかる。このときステップは様々な高さをもつことになる。ステップエッジの下は、蒸着された金属原子にとって成長核を形成しやすいサイトの 1 つで、ステップの高さが高いほど、より安定な核成長サイトになる。適切な形状のステップが生成された表面ではより多くの成長核の形成が期待される。このサイトはテラス上や F 中心の上にてできるナノクラスターにとって最も安定なサイトとは異なる<sup>6,7)</sup>。蒸着量を増していくことで、異なる安定サイトから成長したクラスターが結合する際に生じる歪みが以後の膜形成に影響を与えるはずである。

本章では、このような金属クラスターの成長の下地となる結晶表面でのイオン散乱の研究に向けて、電子線照射で生じた結晶表面のステップが斜入射イオン散乱に与える影響を調べた。表面蒸着膜にてできるステップとイオン散乱についてはすでに詳細な研究がなされているが<sup>8)</sup>、今回、電子線照射量や方法を変えることでステップの密度分布の異なるイオン結晶表面を用意して、散乱イオンのエネルギーと角度分布を測定し、その結果をシミュレーションと比較した。特に、電子線照射を用いた研究に対する予備的な実験として、照射量や照射の均一性がイオン散乱に与える影響を確認した。実験結果とシミュレーション結果の対応を付けるため、試料表面を原子間力顕微鏡 (AFM) で観察し、表面の欠陥の形や密度を調べた。

#### 4-2. 実験

実験は第2章 図 2.1 に示した超高真空散乱槽で行った。この実験を行ったときはまだ磁場型エネルギー分析システムを散乱槽下流に取り付けておらず、散乱イオンのエネルギーは半導体検出器 (SSD) からの信号の波形で分析した。試料は KCl であり、(001) 劈開面でビームが散乱するようにゴニオメータに取り付け、表面は真空槽ごとベークアウトすることにより清浄化した。使用したイオンビームは 610 keV の陽子である。イオンビームは 2 つの X-Y スリットで 0.1mm 角程度にコリメートし、ゴニオメータ上の試料に入射した。入射角 ( $\theta_i$ ) は試料の (001) 面に対し数 mrad の角度である。入射するイオンビーム量で測定値を規格化するために、上流のスリットに流れ込む電流をモニターした。イオンの入射条件は、入射角を変えずに入射方位角を変えることでランダム (鏡面反射) と  $\langle 100 \rangle$  チャネリング (表面軸チャネリ

ング)の2通りを行った。散乱されたイオンを、受け角 $\pm 0.7$  mrad の点スリットで選別し、SSDで検出することにより、散乱角度分布( $\theta_s$  分布)とエネルギー損失スペクトルを測定した。実験中は試料の温度を  $100^\circ\text{C}$  に保った。試料への電子線の照射は、イオンビームの下流側から試料に対して  $45^\circ$  の角度で行った。超高真空中で逐次、電子線照射を行い、試料表面で散乱したイオンを観察した。電子線を試料表面の全面に均一に照射した試料と、非均一に照射した2種類の試料で観察を行った。均一な照射は電子銃からの電子ビーム(直径約  $15\text{mm}$ )の直径部分を  $0.6\text{mm}$  のスリットでコリメートし、そこを通過した縦長の電子ビームを左右に往復偏向させることにより行った。非均一に照射した試料では、電子ビームをイオンビーム上流側に強く照射し、イオンビームにとってアップステップが優先的に形成されるようにした。いずれの場合も電子ビーム量は電子線を偏向し、近くに置いたファラデーカップに入射することによって測定した。

最後の照射が終わったあとの試料を取り出し、神戸大学研究基盤センターの AFM (Bio Scope NVB100; Digital Instruments) によって空气中で観察した。観察した試料表面の例を図 4.1 に示す。  $2.0 \times 10^{16}\text{ cm}^{-2}$  の電子線照射をした試料 (a) には大きさ数  $\text{nm} \sim 50\text{ nm}$ 、深さ  $2\text{nm}$  程度の矩形のピットが多数見られる。  $2.0 \times 10^{17}\text{ cm}^{-2}$  の電子線照射をした試料 (b) は浸食が進んで矩形に切り取られている。矩形内に狭い間隔でステップを見つけられることから層状に剥がれた結果といえる<sup>4,5)</sup>。また、非均一に電子線を照射した試料は、照射量の多い上流側が荒れていることがわかった。上流側の表面の層状剥離が進んだ結果、イオンビームにとってアップステップの多い傾斜した表面が形成されていると考えられる。

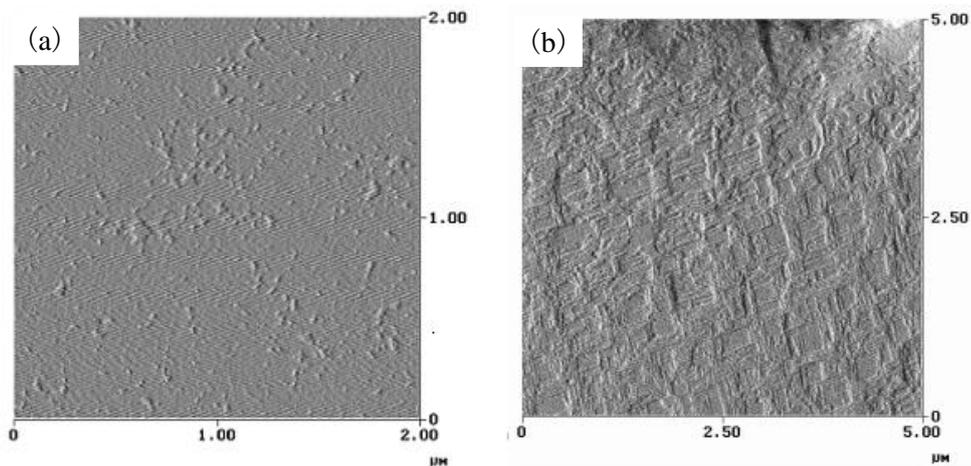


図 4.1 電子線照射を行った KCl(001) 表面の AFM 像(エラーシグナルモード).  
(a)  $2.0 \times 10^{16}\text{ cm}^{-2}$ . (b)  $2.0 \times 10^{17}\text{ cm}^{-2}$ .

### 4-3. 実験結果

均一に電子線照射を行った結晶表面からの散乱陽子のエネルギースペクトルの例を図 4.2 (a) に、エネルギースペクトルのピーク付近の収量をプロットして描いた散乱角分布の例を図 4.2 (b) に示す。いずれもランダムな方位角で入射し、入射角は(001)面に対し  $7 \pm 1$  mrad である。均一照射した試料に対し、散乱角分布のピーク付近で測ったエネルギースペクトル

から求めたエネルギー損失と $\theta_s$ 分布のピークシフトを電子線照射量に対して図 4.3 にプロットした。エネルギー損失の結果は照射量に依存せず、ほぼ一定値をとり、 $\theta_s$ 分布のピークは照射量の増加とともにわずかに低散乱角側にシフトする傾向が見えた<sup>10)</sup>。

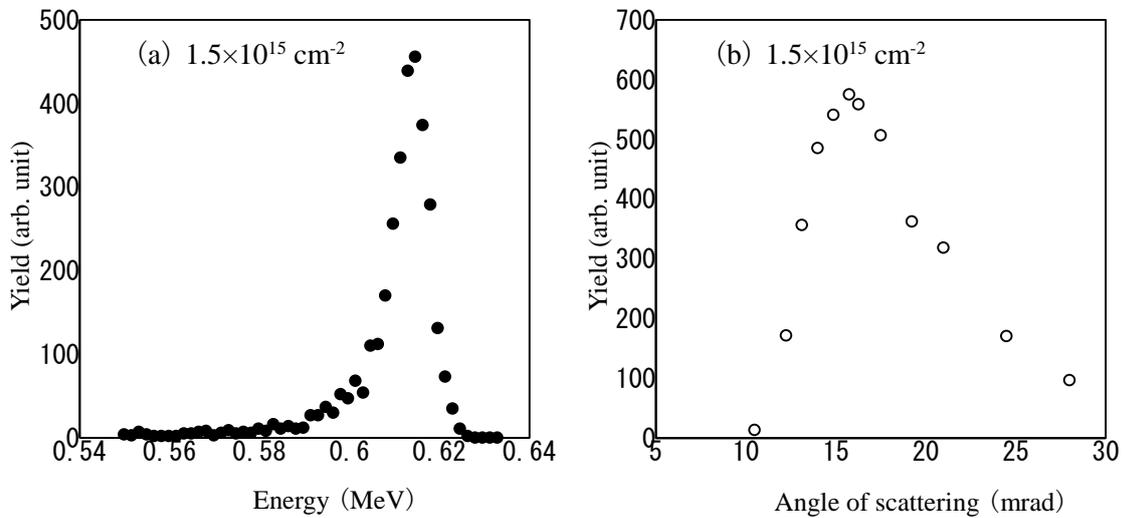


図 4.2 均一に照射した試料のエネルギースペクトルと散乱角分布の例。  
(a) エネルギースペクトル。 (b) 散乱角分布。

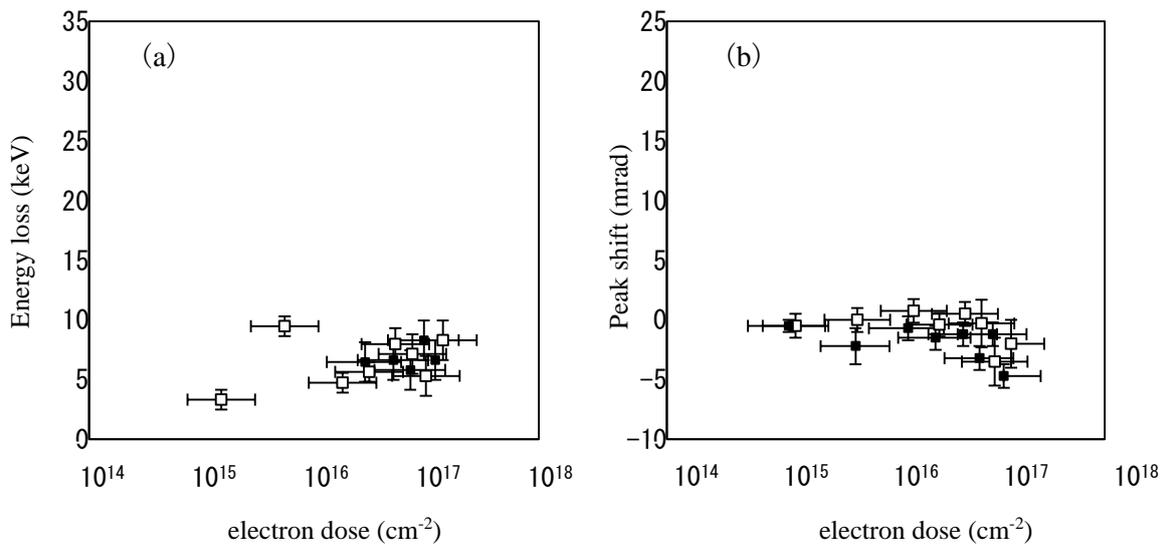


図 4.3 均一照射した試料のエネルギー損失と散乱角分布のピークシフト。  
(a) エネルギー損失。 (b) 散乱角分布のピークシフト。

一方、非均一に電子線照射を行った試料の(001)面に  $13 \pm 2$  mrad で入射したときの  $\theta$  分布のピーク付近でのエネルギー損失を図 4.4 (a) に、 $\theta_s$  分布のピークシフトを図 4.4 (b) に示す。

図の横軸はビーム電流から見積もった試料全面に対する平均照射量を示す。  $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  を超えた照射では、エネルギー損失は照射量が増えると増加した。また  $\theta_s$  分布のピークは散乱角の大きい方へシフトした。

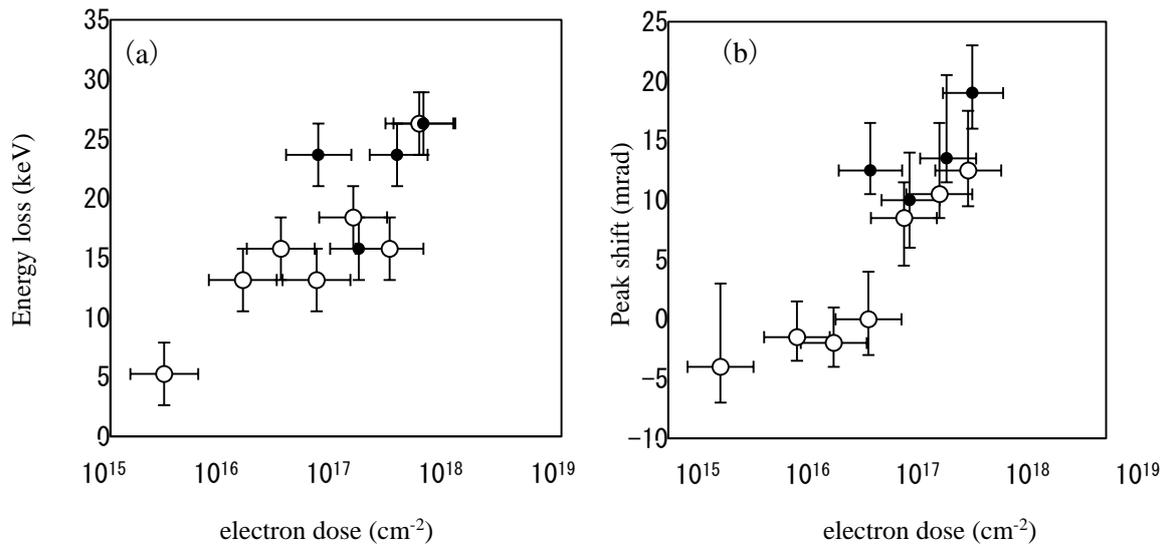


図 4.4 非均一照射した試料のエネルギー損失と散乱角分布のピークシフト。  
(a)エネルギー損失. (b)散乱角分布のピークシフト.

#### 4-4. シミュレーションおよび考察

実験結果を説明するために、以下に示す計算機シミュレーションを行った。

1. イオンと表面原子間の相互作用ポテンシャルとしてトーマス - フェルミポテンシャルのモリエール近似を用いた。イオンが表面より外で、結晶の(001)面間隔の半分以上表面から離れているときには、表面連続ポテンシャルのもとでの軌道を計算した。これより近づいたときや結晶内に入ったときは、衝突を扱う標的原子はイオンに最も近接する4つ以下とした。
2. イオンに対する電子的阻止能として表面からの距離依存の指数関数型を用い、微小な進行距離ごとに偏向角を求めた<sup>11)</sup>。
3. 表面原子の位置に関し、熱振動振幅、表面緩和、ランプリングを取り入れた<sup>12)</sup>。表面ステップとして、乱数で位置を決めた[100][010]2方向に長いレッジを持つ矩形テラスを置き重ねた。イオンにとって表面が徐々に高くなるアップステップと表面が徐々に低くなるダウンステップを個別に計算した。2つのデータを合計したものが一様照射のケースであるとした。

計算は(001)結晶面に対し、入射角( $\theta_i$ )が6 mradと13 mradで行った。一方、入射方位角はランダム入射に対応させるために $\langle 100 \rangle$ 軸から100 mradに固定し、それぞれの条件で600keVの陽子を数万本ずつ入射してイオンの軌道とエネルギーを計算した。図4.5にアップステップとダウンステップそれぞれを仮定したKCl(001)にイオンを入射したときの、散乱角分布のピーク付近でのエネルギー損失、散乱角分布のピークシフトを示す。横軸は入射イオンが感じる平均表面の(001)面に対する角度を示す(第3章参照)。横軸が正の側がイオンにとってアップステップ表面、負の側がダウンステップ表面を意味し、絶対値が大きいほどステップ密度の高い表面に相当する。アップステップ表面では、ステップ密度が増加するにつれ、エネルギー損失、ピークシフトがともに増加している。この結果が上流側を削った試

料に対する実験結果に定性的に一致するので、以下に散乱の単純なモデルを提示する；

$\theta_i = 13 \text{ mrad}$  のとき、(001)面チャネリングの臨界角より大きな角度で入射しているため、入射イオンは鏡面反射を起こしにくい。イオンの多くは結晶内に潜り、結晶原子との近接衝突を経て散乱されてくるので、(001)結晶面ではなく平均表面で散乱されているように感じる。したがって、アップステップのとき、 $\theta_s$  分布のピークはステップ密度の増加とともに大きい方へシフトする。これらのイオンのため、エネルギー損失もステップ密度の増加とともに大きくなる。なお、アップステップの試料に、 $\theta_i = 6 \text{ mrad}$  で入射したときは、平坦な領域では鏡面反射が起こる。これらのイオンが十分に少なくなるほどにステップ密度を上げない限り、平均的には鏡面の角度 (12 mrad) へ散乱されることになる。

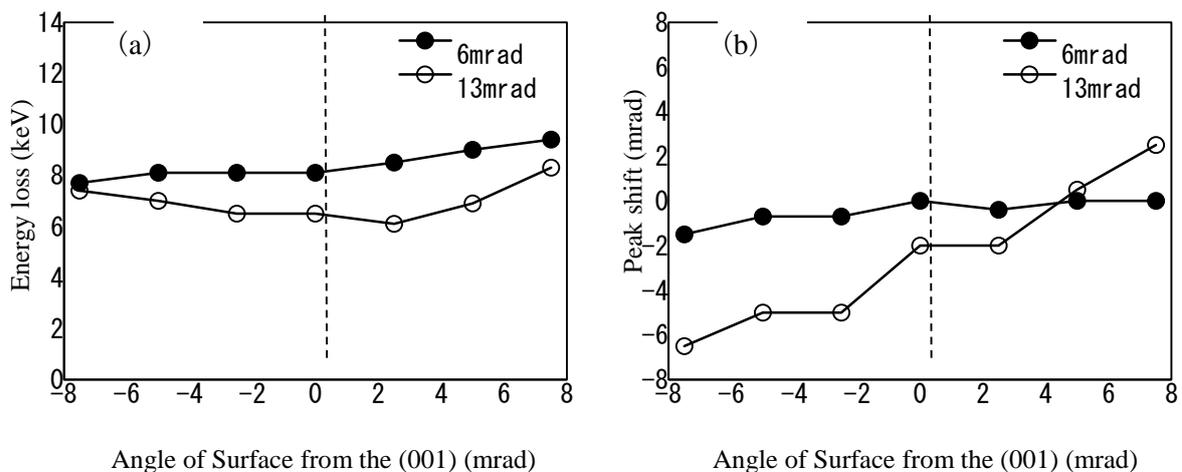


図 4.5 エネルギー損失と散乱角分布のピークシフトの計算結果。  
(a) エネルギー損失の平均. (b) 散乱角分布のピークシフト.

一方、アップ・ダウンステップ密度の等しい表面に対する計算データをそれぞれ合計することにより、一様な損傷を持った KCl (001) 表面での結果を求めた。 $\theta_s$  分布のピーク付近でのエネルギー損失、ピークシフトを図 4.6 に示す。ピークシフトは起こらないか、ステップ密度の増加とともにわずかに小角に散乱される傾向にある。実験結果でも、ピークシフトはほとんど起こらないか、わずかに減少したため、シミュレーションの結果は実験結果とほぼ一致している。この結果はアップステップ表面とダウンステップ表面との散乱強度の違いに関係している。ダウンステップに対しては、イオンの多くは表面に入射することなく素通りするが、偶然長いテラスに入射したとき、イオンが表面に対して出射する向きにまで散乱を受けていれば、その後、1 原子層以上表面から離れる以前にステップに出会っても進路を妨げられることはない。したがって、アップステップとダウンステップを均等に仮定した場合は、イオンはアップステップ部により多く入射するが、検出されるものの多くはダウンステップ部で散乱されたものである。このため、均一照射した試料では、エネルギー損失についても、ステップ密度に対して大きな変化はない。

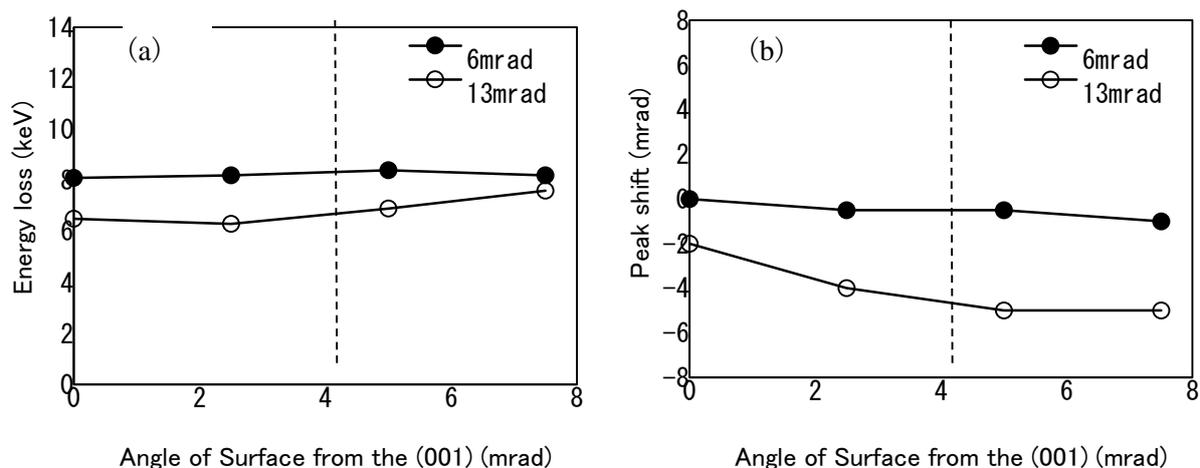


図 4.6 均一照射表面に対するエネルギー損失と散乱角分布のピークシフトの計算結果.  
(a)エネルギー損失. (b)散乱角分布のピークシフト.

#### 4-5. まとめ

本章では、超高真空中で逐次 5 keV 電子線照射を行った試料表面での 610 keV 陽子の斜入射散乱の様子を観察した。電子線照射量に対して、エネルギー損失と散乱角分布のピークを求めた。 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  を超えた照射では、形成した試料表面の欠陥密度分布の違いで実験結果が大きく変わることがわかった。これらをシミュレーションと比較した。その結果、傾向は良く一致し、欠陥密度分布と入射角を同時に指定することで統一的に議論できることがわかった。この研究から、ダメージができた表面では、平坦な部分での散乱とステップの部分での散乱の強度比が効いて、散乱角分布やエネルギー分布を変化させることがわかった。

[参考文献]

- 1) P. M. Palmberg, C. J. Todd and T. N. Rhodin : J. appl. Phys., **39** (1968) 4650.
- 2) S. Datz, C. D. Moak, T. S. Noggle, B. R. Appleton and H. O. Lutz : Phys. Rev., **179** (1969) 315.
- 3) T. S. Noggle : Nucl. Instr. and Meth. B, **102** (1972) 539.
- 4) H. Hoche, J. P. Toennies and R. Vollmer : Phys. Rev. B, **50** (1994) 679.
- 5) M. Szymonski, J. Kolodziej, B. Such, P. Piatkowski, P. Struski, P. Czuba and F. Krok : Prog. Surf. Sci., **67** (2001) 123.
- 6) D. G. Lord and M. Prutton : Thin Solid Films, **21** (1974) 341.
- 7) J. Nakamura, T. Kagawa and T. Osaka : Surf. Sci., **389** (1997) 109.
- 8) Y. Fujii : *Doctor Thesis* ( Kyoto University, 1993 ).
- 9) Y. Susuki, K. Nishioka, M. Maehara, J. Hyou, T. Ikeda and K. Katsura : Phys. Rev. A, **69** (2004) 032710.
- 10) 深澤優子, 光原 圭, 越智健太, 松本雄吾, 塩見祐樹, 鈴木康文 : 第 47 回真空に関する連合講演会 講演予稿集 (2006) 128.
- 11) K. Kimura, M. Hasegawa and M. Mannami : Phys. Rev. B, **36** (1987) 7.
- 12) J. Vogt and H. Weiss : Surf. Sci., **491** (2001) 155.



## 第5章 ステップ密度を変化させたイオン結晶表面での 高速陽子の表面軸チャネリング

### 摘要

電子線照射によって、ステップ密度を徐々に上げた KCl, KBr 表面に、550keV の陽子を小角で  $\langle 100 \rangle$  チャネリング方向とランダム方位 ( $\langle 100 \rangle$  方向に対し 100mrad) で入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルを調べた。また、入射ビームを結晶の  $\langle 100 \rangle$  と  $\langle 110 \rangle$  軸の方向に合わせ、それぞれのチャネリング条件において散乱収量のチャネリング・ディップを観察した。ディップの最小収量と幅を測定し、 $\langle 100 \rangle$  と  $\langle 110 \rangle$  軸とで比較した。実験後の試料は原子間力顕微鏡 (AFM) で観察した。エネルギースペクトルはコンピュータ・シミュレーションによる計算結果と比較した。

エネルギースペクトルの変化から、荒れた表面ではチャネリング入射軸に沿って潜った陽子が検出されなくなることがわかった。チャネリング・ディップの変化は  $\langle 100 \rangle$  と  $\langle 110 \rangle$  軸とで異なる傾向を示した。これは欠陥のある  $\langle 100 \rangle$  チャネルは  $\langle 100 \rangle$  チャネリング陽子の軌道を中断させるが、 $\langle 110 \rangle$  チャネリング陽子は表面の原子列反射が弱まり多くのステップの存在により変化した表面によって反射するためである。さらにチャネリング・ディップの対称な位置に 2 つの小さなピークが現れた。これらのピークの間隔や幅に入射イオンと相互作用する表面原子軸の長さや軸間距離の乱れに関する情報が潜在する。



## 第 5 章 ステップ密度を変化させたイオン結晶表面での

### 高速陽子の表面軸チャネリング

#### 5-1. はじめに

表面科学の研究分野はこの 20 年間で大いに発展しているが、表面に存在する原子レベルのステップはしばしばこの分野での実験結果を適切に解釈することの妨げになり<sup>1)</sup>、表面でのイオン散乱実験においてもステップの存在は望ましくない<sup>2)</sup>。一方、イオン結晶表面が電子によって照射されると、効率的に表面原子が放出されることが知られており、脱離収量は電子 1 個あたり、数原子である<sup>3)</sup>。この電子刺激脱離のために多くの表面ステップが生成される<sup>4)</sup>。表面モフォロジーは脱離の初期においては、格子欠陥と表面ステップが形成されることにより変化し、これらが結晶構造にレッジの湾曲やテラスの湾曲や緩和など、何らかの歪みをもたらす可能性がある。最近は原子間力顕微鏡 (AFM) を用いたイオン結晶表面の観察が行われている。しかしながら、よほど高い分解能を持つものなければ、AFM によって結晶構造の変化を調べるのは難しい。例えば、Goryl らは超高真空下においてナノメートルスケールで観察できるダイナミックモード AFM により KBr(001) 表面モフォロジーを研究している<sup>5)</sup>。KBr(001) 表面は 1 keV の電子により  $10^{14} \text{ cm}^{-2}$  の照射量で照射され、表面第一層(最表面)に [100] と [010] の結晶軸方向に平行なエッジをもつ矩形ピットが形成される。しかしながら、レッジや面の変位については言及していない。

本研究では、電子線照射を行ったイオン結晶表面での MeV 陽子の散乱の様子を調べている<sup>6)</sup>。イオン散乱分光法は、最表面からバルク領域の表面の格子歪み、表面緩和やランプリング等の結晶構造の測定に有用である<sup>7,8)</sup>。表面軸チャネリングを用いて入射イオンに対する表面軸に対称なポテンシャルの情報も示されている<sup>9)</sup>。したがってチャネリングは結晶軸や結晶面からのステップエッジやテラスの変位を測定するために役に立つ。表面付近でのモフォロジーと結晶構造の変化は表面チャネリング測定に影響を及ぼすだろう。

本章では本研究で行った 4 つのイオン散乱実験結果について述べる。まず、KCl 表面について陽子を  $\langle 100 \rangle$  軸チャネリング方向とランダム方位に小角で入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルの電子線照射による変化を調べた。次に陽子の入射方位角を KCl の  $\langle 100 \rangle$  および、 $\langle 110 \rangle$  チャネリング軸を中心に  $\pm$  数 10 mrad 変化させたときの散乱収量の変化、すなわち、チャネリング・ディップの電子線照射量に対する変化について調べた。最後に KBr で同様の実験を行い、KCl の結果と比較した。表面の様子は原子間力顕微鏡 (AFM) によって空气中で観測した。測定されたエネルギースペクトル、チャネリング・ディップは電子線照射によって生成されたステップで散乱した陽子の散乱過程を議論するためにコンピュータ・シミュレーションによる計算結果と比較した。

## 5-2. 実験

実験装置の概要は第2章図2.1に示したとおりである<sup>6, 10)</sup>. KClまたはKBrの単結晶を空气中で(001)に沿って劈開し, 超高真空散乱槽内の4軸ゴニオメータに取り付けた. 超高真空散乱槽を20~24時間, ベーキングし, 続いて $10^{-8}$  Paの超高真空条件下でサンプルホルダーを約250°Cで加熱することで劈開面を清浄化した. この清浄化手順は文献11の方法にしている<sup>11)</sup>. また, 測定の間は試料表面温度を100~180°Cに保っており, 実験中, 表面の帯電は観察されていない. 電子銃を備えた超高真空散乱槽は奈良女子大学のファンデグラフ加速器の15°のビームラインに接続されている. 超高真空散乱槽内に取付けられた電子銃からの5keV電子により45°の入射角で試料表面を照射した. 電子線を長さ12 mmと幅0.6 mmの矩形スリットでコリメートし, 三角波磁場によって水平に偏向し, スキャンすることで試料表面を一様に照射した. 電子ビーム電流はファラデーカップによってモニターしており, 平均電流は約50 ~ 100 nA/cm<sup>2</sup>であった.

加速器からの550 keVの陽子ビームを2セットのX-Yスリットによってコリメートし, 7 mrad以下の入射角で表面に入射した. 入射ビーム量で散乱イオン収量を規格化するため, 上流のX-Yスリットでビーム電流を測定した. <100>または<110>結晶軸に沿った表面軸チャネリングとそこから100 mradはずしたランダム条件の入射方位角で陽子を入射した. 電子線照射されたKCl(001)またはKBr(001)の表面で散乱した陽子のエネルギースペクトルは磁場を用いた分析器によって測定された. この分析器のエネルギー分解能( $\Delta E/E$ )は入射ビームに対しては±0.2%であり, 10 mrad程度の角度にわたって発散した散乱ビームに対しては±0.4%であった. 表面軸チャネリングによるチャネリング・ディップ測定時は, 分析器の磁場をエネルギースペクトルのピークの位置に固定し, 表面軸チャネリングの周り±30mradの範囲で軸から測った入射方位角 $\phi_i$ と散乱イオンの収量との関係を求めた.

実験後, 試料表面を研究基盤センターのAFM(Digital Instruments: Bio Scope NVB100 またはSII ナノテクノロジー: NanoNavi II, E-sweep)を用いて, 空气中で観測した. 加速器を用いたこの実験で用いた試料以外に, 異なる電子線照射量で照射した, いくつかの試料についてAFM観察を行った.

### 5-3. 電子線照射によるエネルギースペクトルの変化

この節では、電子線照射 ( $5 \text{ keV}$ ,  $50 \text{ nA cm}^{-2}$ ) により高密度なステップを生成した KCl 表面に、 $550 \text{ keV}$  の陽子を小角で  $\langle 100 \rangle$  表面軸チャネリング方向で入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルを調べ、ランダム方位 ( $\langle 100 \rangle$  から  $100 \text{ mrad}$  外した位置) で入射したときのもものと比較した。すなわち、 $\langle 100 \rangle$  チャネリング軸から測った入射方位角が  $0$  と  $100 \text{ mrad}$  のときのエネルギースペクトルの比較である。スペクトルの変化から、荒れた表面軸上の散乱について説明した。

#### 5-3-1. 実験結果

散乱陽子のエネルギースペクトルの例を図 5.3.1 に示す。表面への入射角  $\theta_i$  は鏡面反射の臨界角以下の  $6 \text{ mrad}$  とし、散乱角  $\theta_s = 2\theta_i$  で検出したものである。これらのエネルギースペクトルは高エネルギー側の 1 本のピークと低エネルギー側の肩またはテールからなる。約  $545 \text{ keV}$  のピークは表面第一層(最表面)で散乱された陽子に対応している<sup>12)</sup>。最表面で散乱した陽子を取り除くために、エネルギースペクトルの最も高いピークをピークの高エネルギー側の収量について、最小二乗法によりガウス型でフィッティングしてエネルギースペクトルから差引いた。最も高いピークを差し引いた後の  $540 \text{ keV}$  未満の広がったピークは表面を潜って散乱した陽子に対応している<sup>12-14)</sup>。それらを図 5.3.1 では黒四角で示した。

未照射の表面でのランダム入射のエネルギースペクトルを図 5.3.1 (a) に示す。これは検出された陽子のほぼすべてが、最表面で散乱したものであることを示している。しかしながら電子線照射後の図 5.3.1 (b), (c) に示されているスペクトルでは、電子線照射により生成されたステップのために、最表面を潜った陽子が多くなっている。軌道に周期的な振動を持つ面チャネリングイオンは、エネルギースペクトルの低エネルギー側で小さなふくらみとして観察されており、これらは陽子が入るときと出るときにステップを 2 度通り過ぎたものである<sup>13,14)</sup>。さらに電子線を照射した図 5.3.1 (d), (e) では、 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  台の電子線照射量でエネルギースペクトルはより広くなる。すなわち、高エネルギー側の立ち上がりはゆるやかになり、低いエネルギー側の構造が不鮮明になっている。

未照射の表面での  $\langle 100 \rangle$  表面軸チャネリング入射のエネルギースペクトルを図 5.3.1 (f) に示す。検出された陽子のかなり多くがチャネリングにより、いったん表面内部に入り込んでいたのがわかる。(a) との比較により、(f) では表面ステップを入り口・出口として通りすぎたためだけではなく、 $\langle 100 \rangle$  軸チャネルに沿って潜り、出てきたものが多いことを示している。しかし電子線照射後の図 5.3.1 (g), (h) のスペクトルでは、 $\langle 100 \rangle$  軸に沿って潜って出る陽子の収量が減少している。これは、電子線照射によって表面が変化し、 $\theta_s = 2\theta_i$  で検出された陽子をみる限り、入射陽子がチャネリングを起こし固体内部に潜り込みにくくなっているか、一旦潜り込んだものが出てこなくなっていることを意味する。したがって、適度な量の照射によってエネルギースペクトルの最表面で散乱した陽子のピークが明瞭になる。さらに照射を続け、 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  台を超えると、図 5.3.1 (i), (j) のように、エネルギースペクトルのピークの低エネルギー側の収量が再び増える。

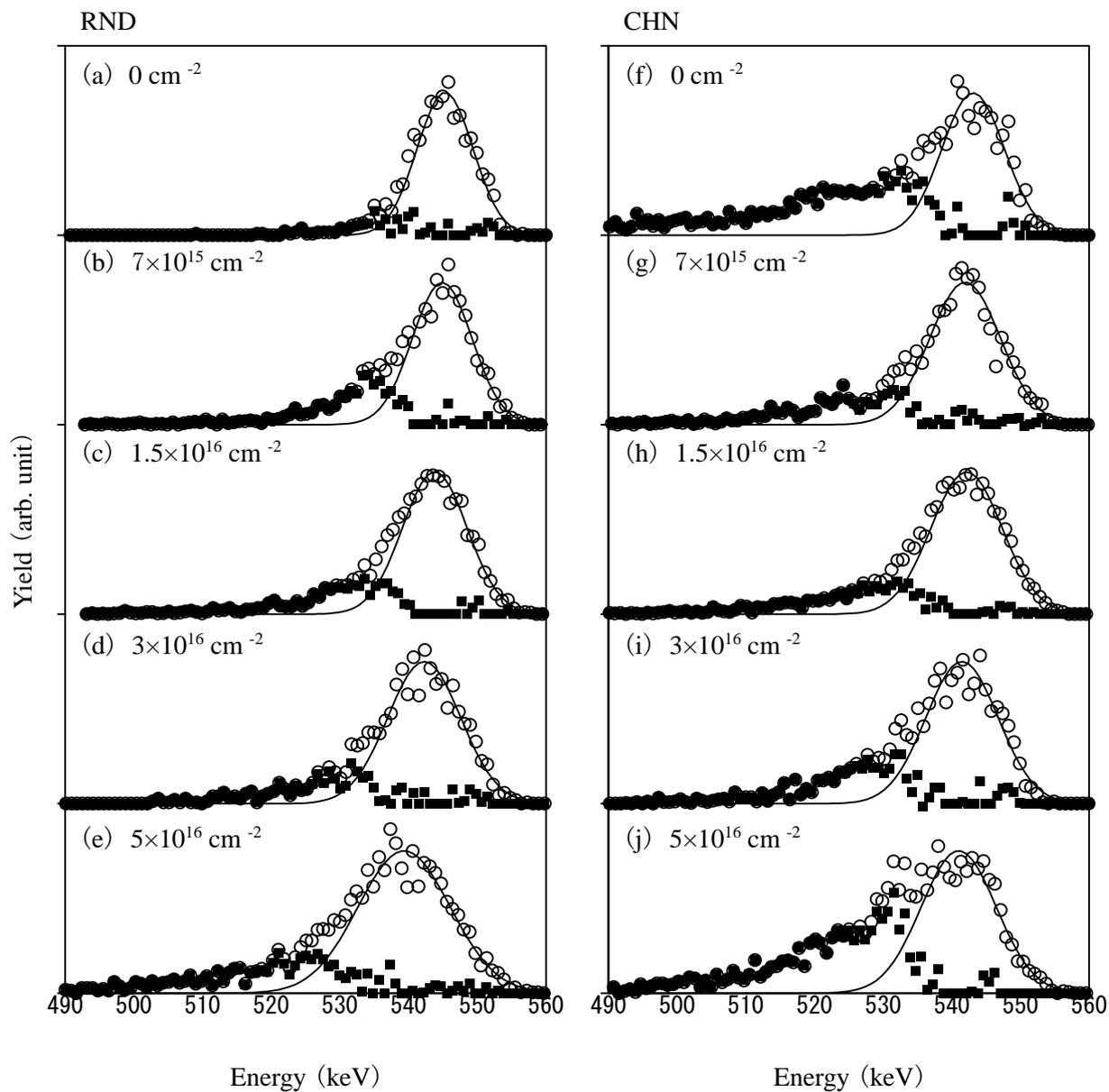


図 5.3.1 エネルギースペクトルの例.

散乱陽子のエネルギースペクトルを白抜丸(o)で示した. エネルギーの一番高いピークをガウス型でフィット(実線)してエネルギースペクトルから差し引き, 残ったものを黒四角(■)で示した. それぞれ(a) - (e) ランダム入射, (f) - (j) チャネリング入射であり, (a) と (f) は未照射, (b) と (g) は  $7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ , (c) と (h) は  $1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ , (d) と (i) は  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ , (e) と (j) は  $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  の試料に対するものである.

図 5.3.2 は、表面を潜って散乱した陽子の収量の最表面で散乱した陽子の収量に対する相対収量を、照射量ごとにプロットしたものである。ランダム入射では、図 5.3.2 (a) に示されているように相対収量は  $10^{15}$  から  $10^{17}$   $\text{cm}^{-2}$  未満の照射量領域で徐々に増加した。一方、チャネリング入射では、図 5.3.2 (b) で示されているように照射量が  $10^{16}$   $\text{cm}^{-2}$  にまで増加するにしたいが、相対収量は減少した。その後、 $10^{16}$   $\text{cm}^{-2}$  の領域では増加に転じた。すなわち、一度潜り込んでピークの低エネルギー側のすそにまぎれている陽子は  $10^{16}$   $\text{cm}^{-2}$  以上の照射で再び増加した。この増加は、表面から  $2\theta_i$  の散乱角に出射したけれども、ほとんどランダムに散乱したイオンが混じることによるものであることが、図 5.3.1 に示したエネルギースペクトルから判断できる。

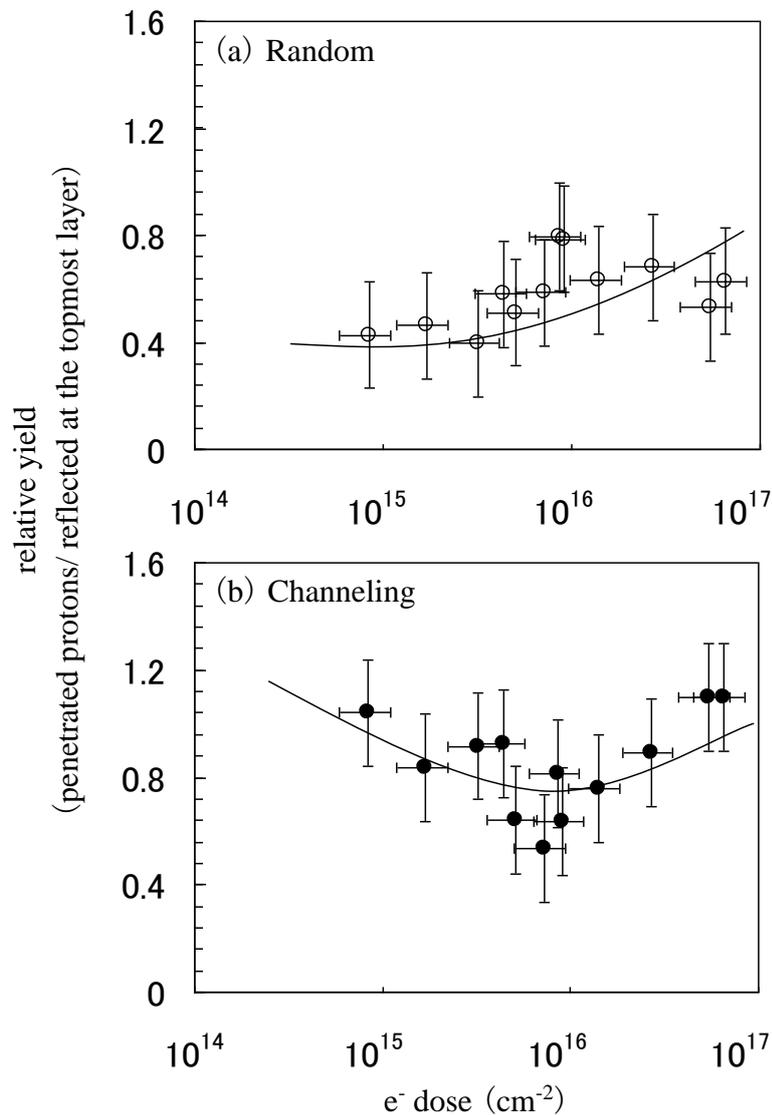


図 5.3.2 結晶表面を潜って散乱した陽子の、最表面で散乱したものに対する割合。  
(a) ランダム入射. (b) チャネリング入射.

表面モフォロジーの変化の照射量依存を示すために図 5.3.3 に AFM 像の例を示す. 多くの数原子層ステップやテラスが存在し, その長さは (a), (b) に示した  $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  位の照射量で数 100 nm である. 図 5.3.3 に示していないが, なかには  $\mu\text{m}$  程度の長さの長方形や円形のテラスもある (図 5.4.3 参照). また, (b) には約 0.1  $\mu\text{m}$  の間隔で離れた数原子層高さのステップが見られた. (c) (d) に示した  $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  以上の照射量では数十原子層高さのステップをもつ大きいテラスが存在し, (d) に見られるようにテラスが荒れた部分もある. 高いステップや荒れたテラスは潜った陽子を捕らえるために, エネルギースペクトルのピークは広がる結果となる.

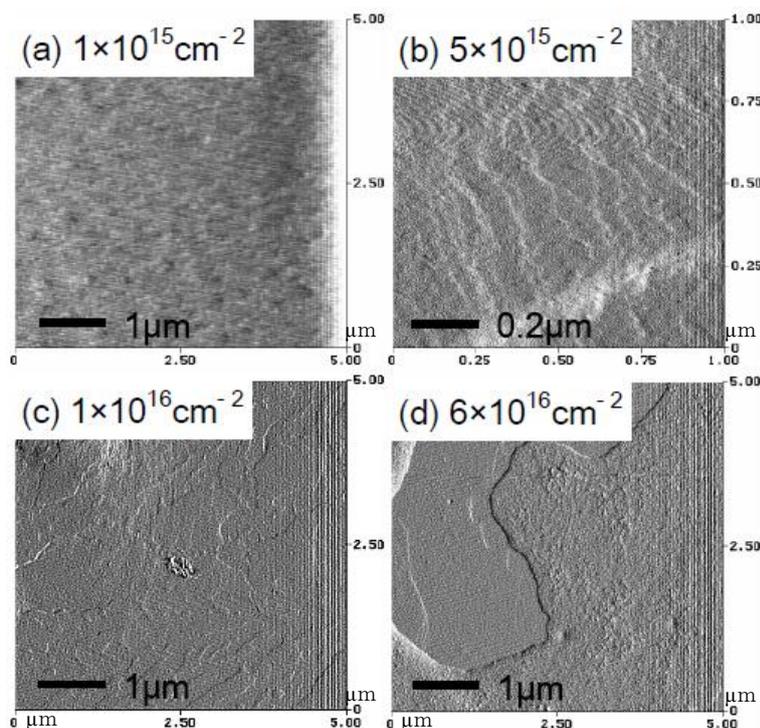


図 5.3.3 照射による表面モフォロジーの変化 (エラーシグナルモード).

### 5-3-2. シミュレーション

第 4 章と同様に, 相互作用ポテンシャルとして, トーマス - フェルミポテンシャルのモリエール近似を用いてコンピュータ・シミュレーションを行った. 表面からの距離に依存する阻止能を使用し, 計算には電子的な散乱による偏向を考慮に入れた<sup>6, 12)</sup>. なお, この際の阻止能の係数(3 章 (3.16) 式の  $S_0$ ) は実験結果とよく合うようにするため, 第 4 章で用いた値からさらに調整した. 第 4 章同様, KCl(001) 表面原子の熱振動, ランプリングおよび, 緩和を考慮に入れ<sup>6, 15)</sup>, 表面ステップは以下のとおり仮定した;

$x$  軸をチャネリング入射のビーム軸方向,  $y$  軸を表面に平行なもうひとつの軸にとり, 二次元の座標  $(x_0, y_0)$  をランダムに決め, そこを直交する 2 つの表面ステップを置いた. すなわち, ステップをもつテラスは 2 つの線  $x = x_0$  ( $y = y_0$ ) によって分けられた, 4 つの区画のうちの一つである. このようにして決めた, 単原子層のステップをもつテラスを表面に置き重ねていくことにより, ステップ密度 [ $\text{cm}^{-1}$ ] で表される, ステップのある表面を形成した. アップステップ表面とダウンステップ表面を作成し, アップステップ表面でのイオン軌道計算では, イオン軌道に沿って上がっているステップだけを導入した. ダウンステップの表面に

ついでに計算も同様である。

この方法は入り口と出口の表面ステップで潜って出てくる陽子を扱うためには適切ではないが、この方法で得られる計算結果は系が単純化されているため扱いやすく、ステップ密度の変化によるエネルギースペクトルの系統的な変化を調べるために役に立つ。

イオン軌道に沿った平均ステップ密度を変化させ、それぞれのステップ密度につき、550keVの陽子を〈100〉表面軸チャネリングまたはランダム条件のもとで  $\theta_i = 6\text{mrad}$  で3万本の陽子を入射した。計算結果を表示するため、角度  $\theta = 2\theta_i$  で反射した陽子のエネルギースペクトルを集めた。

図5.3.4に計算で得たエネルギースペクトルの例を示す。図5.3.4 (a), (b) はランダム入射、(c), (d) はチャネリング入射のスペクトルである。また、(a)と(c) はアップステップの表面に対するスペクトルであり、(b)と(d) はダウンステップの表面に対するスペクトルである。全ての図において、アップステップ、ダウンステップそれぞれともに、ステップ密度が増加するにつれ、検出陽子の収量は減少しているのがわかる。

ランダム入射に対して、エネルギースペクトルは1本からなる。このシミュレーションでは上りまたは下りのみのステップを仮定しているため、一度表面に潜った陽子は再び表面から出てくるのが難しい。しかしながら、アップステップの密度が増加するにしたがって、最表面で散乱した陽子のピーク幅は大きくなり、ダウンステップを導入した場合、エネルギースペクトル（ピーク幅）はあまり変化しないことがわかる。それは、表面との相互作用がステップで終わり、陽子が表面から出ることができるためである。

チャネリング入射では、エネルギースペクトルは高エネルギー側の1本のピーク、それよりエネルギーが低いピーク、および、さらに低エネルギーのテールからなる。フラットな表面、 $0\text{ cm}^{-1}$ のスペクトルで、最もエネルギーの高いピーク（547 keV）と、2番目に高いエネルギーのピーク（543.5 keV）はそれぞれ、表面上の1本の原子列と2本の隣接している原子列によって散乱したものに对应する<sup>14)</sup>。アップステップ、ダウンステップともに、ステップの密度が増加するに従い、これらのピーク収量は急速に減少する。特に2本の隣接している原子列からの散乱が急速に少なくなり、(c), (d)とも  $0.8 \times 10^5\text{ cm}^{-1}$  でほとんど消えてしまう。一方、(c)ではアップステップの密度の増加とともにエネルギースペクトルの2番目のピークよりさらに低エネルギー側の成分（542 keV）すなわち、表面ステップを潜った陽子の部分が増加する。これは、表面を潜る陽子が出射するとき、必ずしもチャネリングのための出口表面ステップを必要とするというわけではないことを意味する。一方で一度潜って出射する陽子の収量はダウンステップでは少なく、(d)ではほとんどみえていない。

今回のシミュレーションでは表面軸チャネリングであっても、一度潜って外に出るイオンを定量的に扱うことには適さない。一方、図5.3.1 (h)と図5.3.2 (b)の実験データにおいては、 $10^{16}\text{ cm}^{-2}$ 程度の照射量で、最表面で散乱した陽子のピークが明瞭になるが、今回のシミュレーションではこの事実を説明することができない。この実験結果の説明にはさらにステップ以外の効果も無視できないであろう。また、図5.3.3で観測された、表面モフォロジーも実験結果に影響を及ぼしたと考えられる。

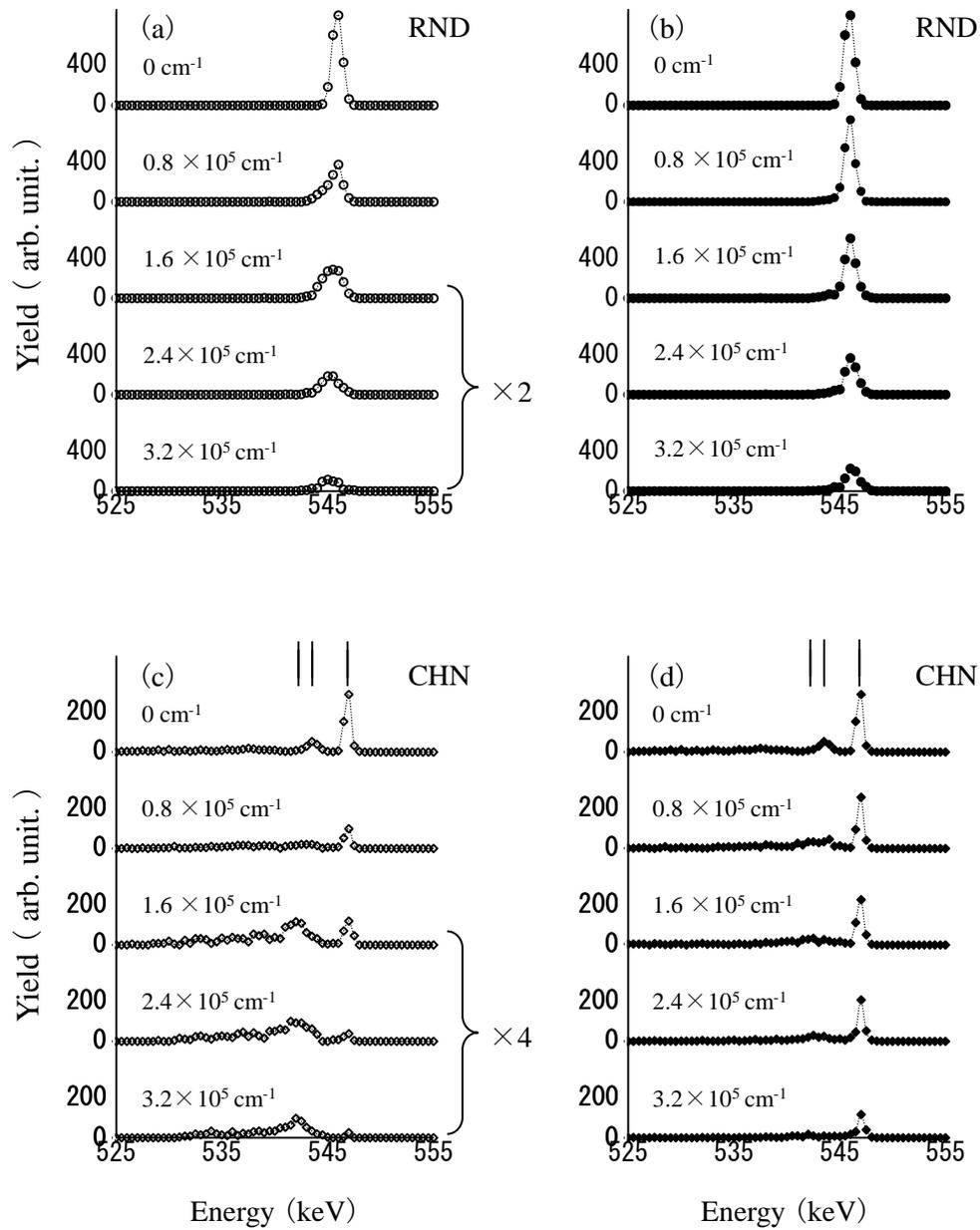


図 5.3.4 エネルギースペクトルの計算結果の例.  
 ここでは平均のステップ密度を示している.  
 (a) ランダム入射, アップステップ.  
 (b) ランダム入射, ダウンステップ.  
 (c) チャネリング入射, アップステップ.  
 (d) チャネリング入射, ダウンステップ.  
 (c), (d) の 3 本のラインは 3 つのピーク位置, 542 keV, 543.5keV, 547keV を示す.

#### 5-4. 電子線照射にともなうチャネリング・ディップの変化

KCl 表面に、550keV の陽子を小角で入射し、エネルギー分析器の磁場を表面第一層（最表面）からの散乱イオンが最も効率よく測ることができる磁場に固定して、ゴニオメータで試料の方位角を回転させることによりチャネリング・ディップを測った。〈100〉表面軸チャネリングの周り $\pm 30\text{mrad}$  の範囲での〈100〉軸から測った入射方位角  $\phi_i$  と散乱イオンの収量との関係を求め、チャネリング・ディップの電子線照射量依存を調べた。チャネリング・ディップの形状が、表面が荒れることによってどのように変化していくかを説明した。

##### 5-4-1. 実験結果

図 5.4.1 にチャネリング入射時のエネルギースペクトルの例を示す。スペクトルは最表面で散乱したイオンによる大きなピークをもつ。前節で示したように、電子線照射量を増やすとエネルギースペクトルの幅は変化し、次第に低エネルギー側に長く裾を引くようになる<sup>16)</sup>。分析器の磁場をエネルギースペクトル上で最表面で散乱したイオンによるピーク的位置に固定し、〈100〉表面軸チャネリングの周り $\pm 30\text{mrad}$  の範囲でのチャネリング・ディップを調べた。

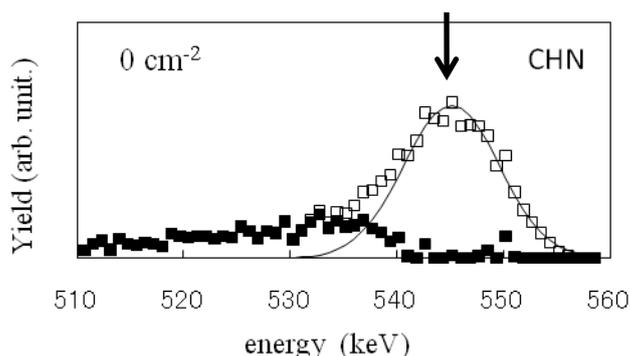


図 5.4.1 エネルギースペクトルの例（〈100〉チャネリング、 $\theta_i = 5 \pm 1 \text{ mrad}$ 、 $\phi_i = 0 \text{ mrad}$ ）。エネルギーが最も高いピークをガウス型でフィット（実線）し、全体から差し引いたものを黒四角（■）で示した。チャネリング・ディップ（図 5.4.2）は図の矢印の位置にエネルギー分析器の磁場を固定し、ゴニオメータの角  $\phi$  を回転させることで得た。

図 5.4.2 は〈100〉チャネリング軸の周りで散乱角  $10 \pm 2 \text{ mrad}$  ( $2\theta_i$ ) に散乱した陽子のうち、表面第一層で散乱したものの収量を調べたものである。チャネリング・ディップの底にチャネリング軸を中心にして対称な位置に 2 つのピークがあらわれた。チャネリング・ディップは電子線照射量が増えるにつれ少しずつ広がった。さらに照射を行うと先の 2 つのピークは約  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^2$  の電子線照射量で見られなくなり、チャネリング軸近くのディップだけが残った。図 5.4.2 の結果に加え図 5.3.1 (h) に示したようにこの照射量でのエネルギースペクトルに低エネルギー側のピークが見られないことと、4 章に示したようにこの照射量では散乱角度分布にもランダム入射のときと大きな違いを生じていない実験結果がある<sup>6)</sup>。このことから軸に沿って結晶内に潜った陽子が再び結晶の外に出ることができなくなったか、もしくは本実験システムで検出するより大きな角度に散乱され、広がっているかであることがわかる。

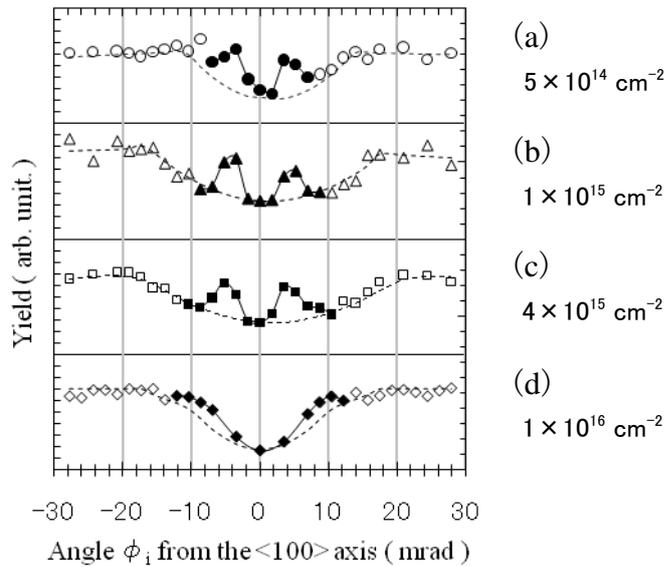


図 5.4.2 各電子線照射量における<100>チャネリング軸周辺でのチャネリング・ディップ。  
 図 5.4.1 の矢印の位置にエネルギー分析器の磁場を固定した。

イオンビーム実験後の KCl(001) 表面の AFM 像を図 5.4.3 に示す。未照射の表面(c)には劈開時のステップのみが観察されているのに対し、電子線照射量  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  の試料表面は層状に剥離したように荒れており、数 nm の高さのステップが重なり合い、百 nm 程度のテラスをつくっているが、ステップが形成される方向は不規則である。このような形状の変化が、イオン散乱実験のエネルギースペクトルやチャネリング・ディップの変化に影響を及ぼした可能性が高い。なお、この画像は第 4 章、5-3 節、5 節のものより、同一の照射量で表面が荒れているように見える。AFM では巨視的な試料の微視的な部分を観察しているため見極めが困難であるが、この画像観察において AFM の使用条件であるカンチレバーのチューニング等が凹凸のある表面に対し適値をおさえていたため鮮明な画像が得られたことも理由の一つであろう。

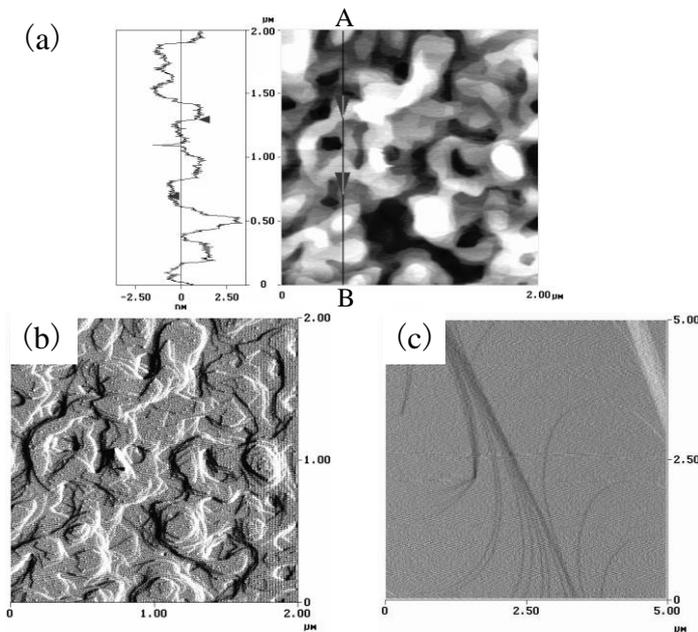


図 5.4.3 電子線照射を行った KCl (001) 表面形状の AFM 像。  
 (a) 高低モードでの像と断面 A-B での高さ解析。  
 (b) エラーシグナルモード像 照射量は (a), (b) とともに  $1 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$ 。  
 (c) 未照射表面のエラーシグナルモード像。

#### 5-4-2. シミュレーションおよび考察

シミュレーション条件の詳細は第 4 章と 5-3 節で述べているため<sup>6,16)</sup>、ここでは概要を簡単に説明する。イオン結晶表面の原子は層状に脱離するため、[100]軸と[010]軸にそれぞれ平行な稜を持つ、高さ一原子層の直方体を乱数で決めた座標に置き重ねることで、密なステップを持つ表面を作り、シミュレーションを行った。表面原子とイオンビームとの相互作用にはトーマス-フェルミポテンシャルのモリエール近似を使用し、表面からの距離依存の阻止能を使いエネルギー損失も計算した<sup>6,12)</sup>。ビーム軌道の進行方向に沿って上りとなるように作ったものをアップステップ、下りとなるようにしたものをダウンステップとして作り、それぞれに 550keV の  $\text{H}^+$  を 20,000~30,000 本入射した。入射角  $\theta_i$  は 6 mrad であり、散乱角  $\theta_s = 12 \text{ mrad}$  に散乱した  $\text{H}^+$  のエネルギースペクトルを得た。アップステップ、ダウンステップの計算結果を足し合わせたものを一様なステップが存在する表面からの計算結果とした。

図 5.4.4 (a) はシミュレーションの結果得られたチャネリング入射方位角  $\phi_i = 2 \text{ mrad}$  のエネルギースペクトルの例である。高エネルギー側のピークは表面の 1 本の原子列で散乱したものであり、2 番目に高いピークは表面の 2 本の原子列によって引き続いて散乱したものである。また、それ以下の低エネルギー側の裾は表面を潜って散乱したもの等に対応する。図 5.4.4 (b) の  $\alpha, \gamma$  は最表面にある 2 本の原子列で引き続いて散乱した部分の収量のみをプロットして得たチャネリング・ディップのステップ密度依存を示した計算結果である。実験結果と同様、チャネリング軸を中心にして対称な位置に 2 つのピークがあらわれた。ステップ密度  $1.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  の結果はフラットな表面の結果に対して、若干幅が広がったものの、フラットな結晶と同様にチャネリングのディップの底に 2 つのピークが確認できた。一方、図 5.4.4 (b)

の  $\beta$ ,  $\delta$  は最表面で散乱した陽子全体の収量をプロットして得たチャネリング・ディップである。フラットな表面の  $\beta$  ではディップの底の 2 つのピークは確認できるが、ステップがある表面の  $\delta$  ではほとんど確認できなかった。

今回のシミュレーションでは表面の欠陥として規則正しいステップのみを用意したため、チャネリング・ディップの形の変化について実験と定量的な比較は困難である。実際の表面にはステップ以外の不規則な凹凸を形成する欠陥が生成されるが、この効果を取り入れることで、実験結果と比較し得る定量的な議論が可能であろう。

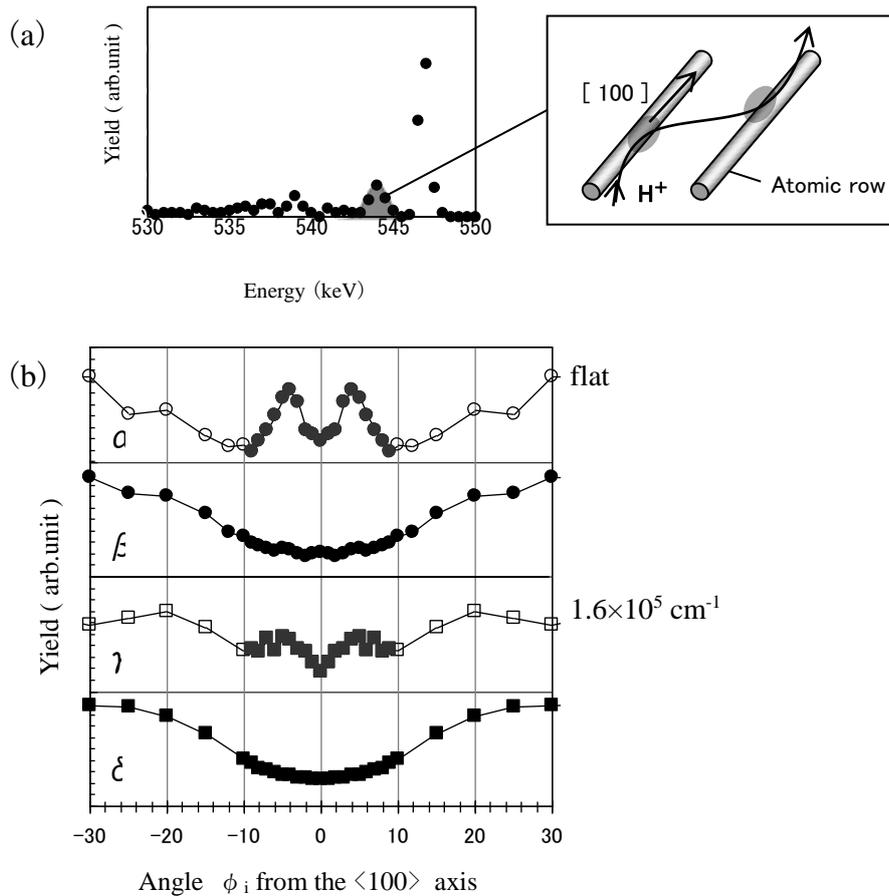


図 5.4.4 エネルギースペクトルとチャネリング・ディップの計算例。

(a) エネルギースペクトル ( $\phi_i = 2 \text{ mrad}$ ) と表面の 2 本の原子列で散乱したイオン軌道の概要<sup>14)</sup>。

(b)  $\langle 100 \rangle$  軸周辺でのチャネリング・ディップ。(  $\alpha$ ,  $\beta$  ) はフラットな表面に対するもの。(  $\gamma$ ,  $\delta$  ) はステップ密度  $1.6 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  の表面に対するもの。 $\alpha$  と  $\gamma$  は (a) に斜線で示したピーク、すなわち 2 本の原子列によって散乱された陽子の収量の変化であり、 $\beta$  と  $\delta$  は 540keV 以上のイオン全体、すなわち、最表面で乱された陽子の収量の変化である。

## 5-5. チャネリング軸指数の違いによるディップ形状の違い

超高真空条件のもとで5keVの電子によって照射されたKCl(001)表面に対し550 keV陽子のビームを5mradで入射した。〈100〉と〈110〉結晶軸方向周辺の入射方位角で入射し、散乱した陽子のエネルギースペクトルと散乱強度のチャネリング・ディップを測定した。これら2つのチャネリングの間には格子点の並び方や面間距離、列に沿ったイオン種の並び方など、いくつか異なる部分がある。この節では、実験結果に基づいて、2つの結晶軸について最表面および、表面近傍での散乱過程を説明した。

### 5-5-1. 実験結果

各電子線照射量において、 $10 \pm 2 \text{ mrad}$  ( $\theta_s = 2 \theta_i$ )の散乱角で散乱した陽子のエネルギースペクトルとチャネリング・ディップの測定を逐次行った。図5.5.1は〈110〉の方位における電子線照射量に対する散乱陽子のエネルギースペクトルの変化を示したものである。エネルギースペクトルは高エネルギー側のピークの部分と低エネルギー側にテールを引いた部分からなる。高エネルギー側のピークは最表面の〈110〉原子列または(001)面チャネリングをおこして散乱されたものであり、テール部分は表面から潜って散乱されたものである<sup>17)</sup>。高エネルギー側のピークの幅は $10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の照射量まで一定であった。

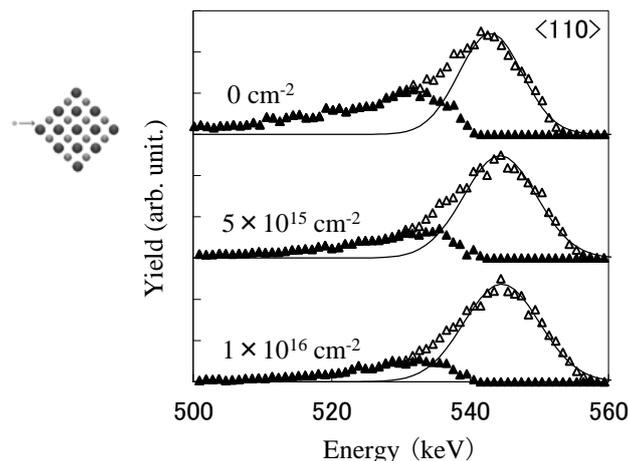


図 5.5.1 エネルギースペクトルの例。

収量は白抜き記号で示した。実線はピークをガウス型でフィットしたもので、これをスペクトルから差し引いたものを黒塗りの記号で示した。電子線照射量はそれぞれ上から  $0, 5 \times 10^{15}, 1 \times 10^{16}$  electrons/cm<sup>2</sup>。

図 5.5.2(a) と (b) はテールの収量のピークの収量に対する比を示したものである。〈100〉チャネリングでの相対収量は〈110〉のものより大きくなった。このことは5-3節で示したように〈100〉のテールがステップから入り、ステップから出るイオンではなく、軸に沿って潜り、出てくるイオンが多いことを表している。〈100〉チャネリングに対して図 5.5.2(a) では $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ までは相対収量が減少した。このときのエネルギースペクトルの変化の様子は図 5.3.1 に示したものと同様である。一方で、〈110〉チャネリングでは実験誤差の範囲内でこの電子線照射量領域でほぼ一定である。すなわち、〈110〉チャネリングのスペクトルでは、テール部分は $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の最終照射まで存在し、その後 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の照射量領域では、表面が荒れることによ

り潜った陽子が、ランダムな衝突を起こして比較的大きいエネルギー損失を受けて、エネルギースペクトルのテール部分に混入する。  $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  以上の照射量でのことは、 $\langle 100 \rangle$  チャネリングでも同じであるが、いったん潜った陽子はランダム入射の、すなわち、(001) 表面の鏡面反射のエネルギースペクトルと同様なプロセスで、照射量とともに増加する。しかしながら高エネルギー側のピークの幅はランダム方位で観測されたものと異なっている。図 5.3.1(c) に示したように、ランダム入射のエネルギースペクトルでは高エネルギー側のピークの幅は照射量の増加とともに広がる<sup>17)</sup>。表面軸チャネリングでは高エネルギー側のピークの幅に変化はみられないことから、この照射量領域程度に表面が荒れても、高エネルギー側のピークは、特にそのピークの高エネルギー側の成分は表面軸により反射していることがわかる。

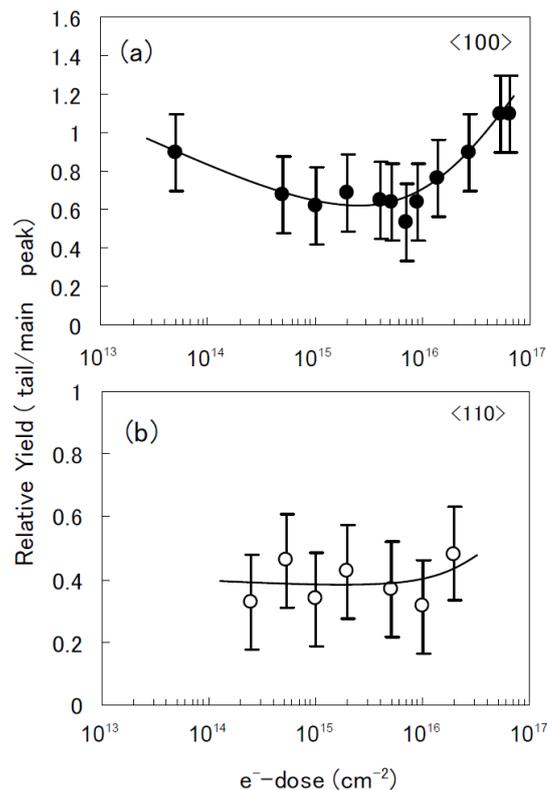


図 5.5.2 エネルギースペクトルのメインピークに対するテール部分の割合。  
(a)  $\langle 100 \rangle$  軸チャネリング. (b)  $\langle 110 \rangle$  軸チャネリング.

最表面で散乱した、陽子の収量の入射方位角  $\phi_i$  による変化(チャネリング・ディップ)の電子線照射量による変化を測定した。最表面で散乱した陽子に限定するために、アナライザーの磁場をエネルギースペクトルのピーク的位置に設定し、入射陽子の方位角  $\phi_i$  を変化させて検出した。 $\langle 100 \rangle$  と  $\langle 110 \rangle$  方位に対して得られたチャネリング・ディップを図 5.5.3 (a), (b) にそれぞれ示した。

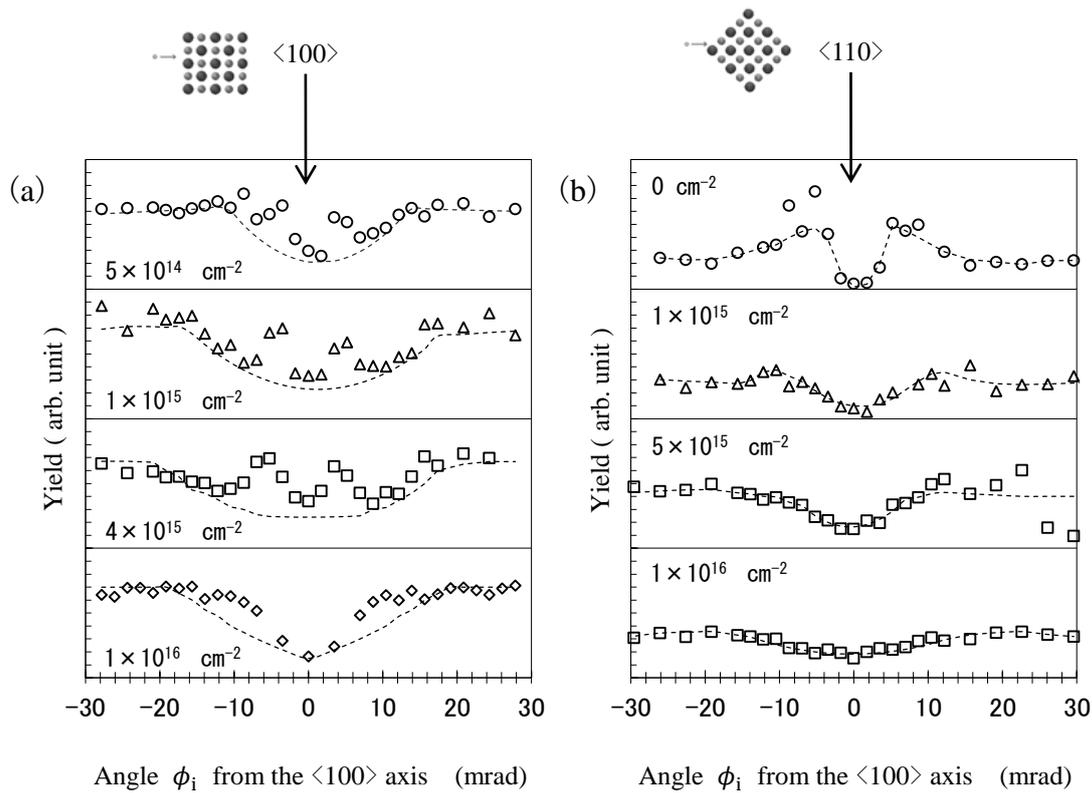


図 5.5.3 チャネリング・ディップの照射量依存.

(a)  $\langle 100 \rangle$  軸. (b)  $\langle 110 \rangle$  軸. 点線は  $\psi_{1/2}$  と  $\chi_{\min}$  をはかるために引いたもの.

ディップの半値幅  $\psi_{1/2}$ , および, 規格化された最小収量  $\chi_{\min}$  は, 図 5.5.3 に示した点線から読み取った.  $\psi_{1/2}$  と,  $\chi_{\min}$  の未照射表面に対して規格化した相対値を, 図 5.5.4 に示した. 図 5.5.3 (a) に示されているように,  $\langle 100 \rangle$  軸チャネリングではチャネリング・ディップの底にチャネリング方位を中心として対称な位置に 2 つのピークが現れた. この 2 つのピークのために,  $\psi_{1/2}$  と  $\chi_{\min}$  の測定は難しいが, 図 5.5.4 では 2 つのピークを除いて測定した値を示した. 図 5.5.4 で,  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  チャネリング軸について, どちらも  $\psi_{1/2}$  の角度幅が照射量の増加に伴い増加することがわかる. 一方, 最小収量  $\chi_{\min}$  は,  $\langle 100 \rangle$  チャネリングでは測定した照射量領域でほぼ一定であったのに対し,  $\langle 110 \rangle$  チャネリングでは照射量の増加とともに増加した. なお, 軸チャネリングの臨界角は,  $\langle 100 \rangle$  と  $\langle 110 \rangle$  それぞれに対し, 8.0 mrad および, 6.5 mrad である<sup>18)</sup>. 今回の表面軸チャネリングでは, 入射角  $\theta_i$  が  $5 \pm 1$  mrad である. 散乱収量で測定した表面軸チャネリングの  $\psi_{1/2}$  はバルク内での軸チャネリングの臨界角と同じではないが, この入射角の影響は  $\langle 100 \rangle$  表面軸チャネリングに対して  $\psi_{1/2}$  を狭くするほどには大きくなく,  $\langle 110 \rangle$  表面軸チャネリングに対しては  $\psi_{1/2}$  を少し狭くしている.

$\langle 100 \rangle$  のディップ中の左右対称のピークは前節 (5-4 節) で述べた 2 つの隣接している原子列との二回衝突によるものである<sup>17)</sup>. これらの左右対称のピークの角度間隔が照射で広がるために, ディップの幅は図 5.5.4 (a) の  $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  の照射量でかなり広がったように見える. 図 5.5.3 (b) の  $\langle 110 \rangle$  のチャネリング・ディップの中にはピークは見られなかった. しかしながら,  $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  以下の照射量で 2 つの左右対称の肩がディップの周りで見られた.

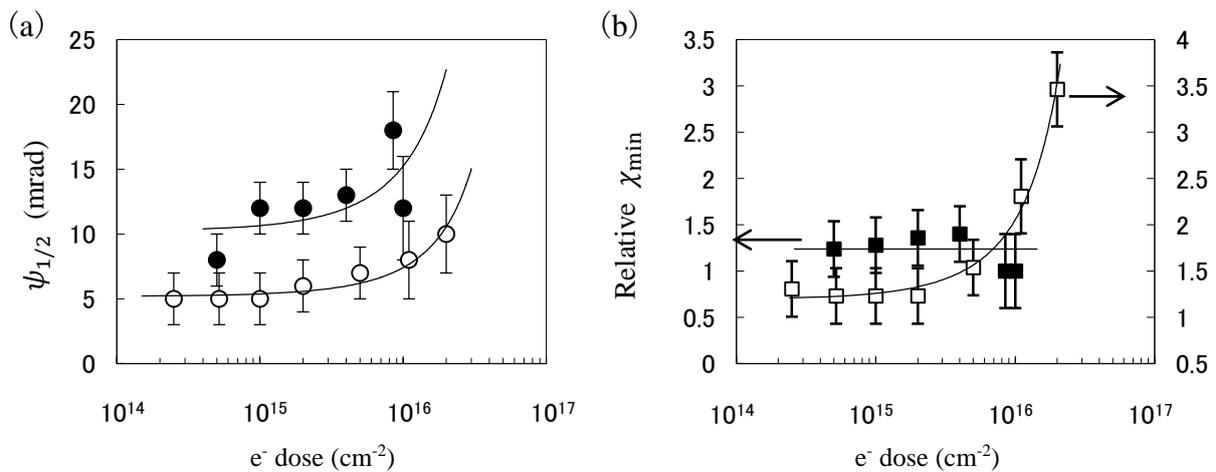


図 5.5.4 チャネリング・ディップの幅と深さ。  
 (a) 半値角,  $\psi_{1/2}$ . (b) ランダム角度での収量で規格化した最小収量  $\chi_{\min}$ .

イオン散乱実験後の結晶表面と第 2 章 5 節で述べた装置で様々な電子線照射量で照射した KCl 表面は、神戸大学 (BioScope NVB100; デジタル・インスツルメンツ) の AFM を用いて空气中で観測した。各電子線照射での表面モフォロジーの例を図 5.5.5 に示す。図 5.5.5 の (a) と (b) とを比較すると、電子線照射によりステップエッジの一部が浸食され、 $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  の照射量では、テラスの一部が岬のような形状になっている。また、数多くの単原子層のピットが形成されている。これらのピットが単原子層の深さであることは図 5.5.5 (c) の断面図から判断できる。このピットの形は、文献 4, 5 において KBr(001) について示されているような長方形ではなく、不規則な形をしている。さらに照射量が増加すると、浸食されたステップエッジや多くのピットの領域が広がっていることがわかる (図 5.5.5 (d))。図 5.5.5 (e) に示したように、最終的には様々な方向のステップが重なることにより生じた多くのテラスが観測される。このテラスの長さは  $0.1$  から  $0.5 \mu\text{m}$  程度で、形は不規則であり、単原子層のステップも観察された。平均二乗粗さ (RMS) は  $0.5 \text{ nm}$  から  $1.5 \text{ nm}$  であり、図 5.5.6 に示したように照射量の増加にしたがって RMS の値が増加した。

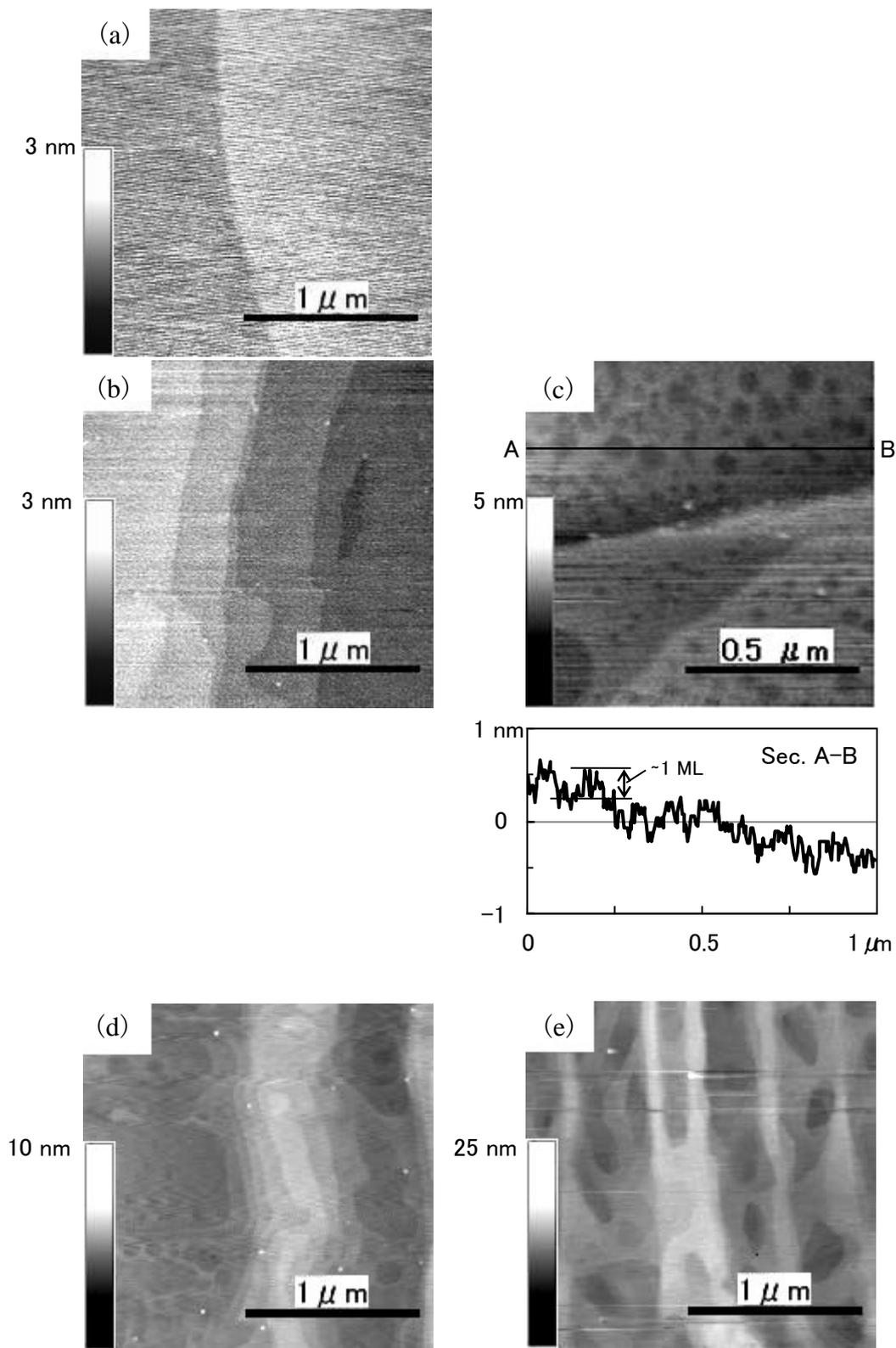


図 5.5.5 KCl 表面の AFM 像.  
 (a) 未照射. (b)  $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . (c) (b) と同一表面で別の場所の像と A-B 断面図.  
 (d)  $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . (e)  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ .

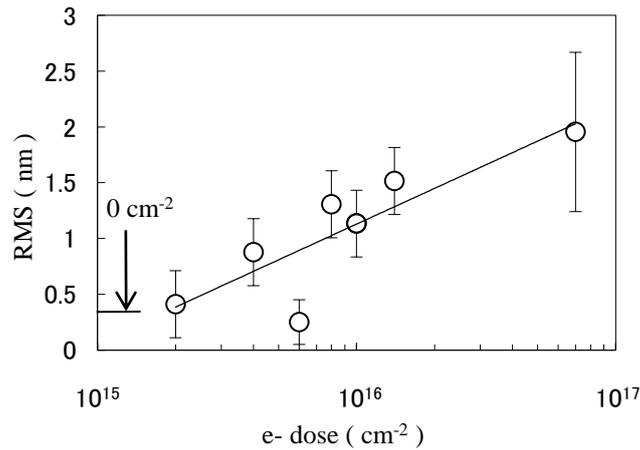


図 5.5.6 RMS 値の照射量依存.  
実線は照射量の対数関数で最小自乗フィッティングを行ったもの。

### 5-5-2. 考察

<100>と<110>チャネリングの両方に対して， $\phi_i = 0$  では入射陽子の軌道が表面原子列の上になければ，大部分は最表面を通過して，その下の領域に達する．この上にあった陽子のみが数 keV のエネルギー損失をともなって反射する．したがって， $\theta_s = 2\theta_i$ で検出される収量は，角度  $\phi_i = 0$  で最小の値をとる．

図 5.5.3(a)と図 5.5.4 から，照射量の増加に応じて<100>軸の周りのディップが広がっていくのがわかる．他方，図 5.5.2 では  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^2$  程度の照射量で，<100>チャネリングのエネルギースペクトルのテール部分が小さくなった．この理由として， $\theta_i \leq 5 \text{ mrad}$  で<100>軸に沿って表面に近づく 550 keV 陽子の軌道は欠陥が生成された最表面の軸の上で途切れることとなるため，陽子は  $2\theta_i$  以外の角度で散乱するようになり，測定した  $\theta_s = 2\theta_i$  の角度の反射の確率が減少したと考えられる．最表面を潜った軸チャネリング陽子も同様に散乱されるため，テール部分の収量も減少した．実験データは相対的に最表面で散乱されたものよりも最表面を潜ったものの減少が大きかったことを示している．一方  $10^{16} \text{ cm}^2$  より大きい照射線量では，図 5.3.1(j) に示したようにエネルギースペクトルのテール部分の相対収量は再び増加し，これらの陽子は最表面から散乱したものと重なった．

図 5.5.3(a)にあらわれた，<100>チャネリング軸に対称な位置にある 2 つのピーク間の角度幅は照射の増加とともに広がった．この 2 つのピークのために  $\psi_{1/2}$  と  $\chi_{\min}$  の測定は難しくなるが，ピークは荒れた表面からの散乱に関する重要な情報を与える．テラスの長さが短くなると，ピークを出現させるための二回衝突の頻度が少なくなるため，ピークは照射量の増加とともに小さくなる．方位角 ( $\phi_i$ ) が小さくなると軸チャネルの中央部分に入射した軸チャネリングイオンに対してチャネリング軌道が長くなるため，テラスの長さが短くなるとともに，二回衝突が顕著におこりにくくなる．このため，ピークは 2 つの中央から削られていく．したがって，照射によりピークはより小さくなり，その間隔は広がる．照射量に応じてピークは形を変えるので，チャネリング・ディップは顕著に現れるように見える．このピークに影響されないようにするため，図 5.5.3(a)の推定線では， $5 \times 10^{15} \text{ cm}^2$  以下の照射量で明確にあったピークを思い切って取り除いた．取り除いた結果の点線から得られた図 5.5.4 (b)は，<100>チャネリング・ディップの深さが照射量によらず，ほとんど一定であることを

示している.

<110>チャネリングでは照射量が増加して、 $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ に近づくにつれ、ディップは浅くなり、エネルギースペクトルのテール部分の相対収量はほぼ一定になる. 照射量が少ないとき、<110>チャネリングした陽子は、最表面を潜り表面の第 2, 3 層で散乱し、それらはエネルギースペクトルのテール部分にカウントされる. しかしながら、照射量が増えると、 $\theta_1 \leq 5 \text{ mrad}$ で<110>軸に近づく陽子は臨界角  $\phi_c$  が  $7.3 \text{ mrad}$  の最表面を通り抜けるのが難しく、鏡面反射する確率が増える. 結局、原子列による小角での一連の衝突をおこす陽子の収量は減少し、チャネリング・ディップは照射量の増加とともに浅くなる. 表面が荒れていくにつれ、散乱は鏡面反射のものと同様になるので、陽子はステップ部分で容易に表面に入り込み、エネルギースペクトルのテール部分はなくなる.

我々が与えた照射量において、<100>と<110>とで測定されたチャネリング・ディップの最小収量  $\chi_{\min}$  の照射量依存の相違から、表面が荒れ、<110>軸チャネリングが起こりにくくなると (001) 面チャネリングが起こる傾向にあることがわかる. これは<110>軸チャネリングの臨界角は第 3 章 1 節や 5-1 節に示したように<100>軸チャネリングや (001) 面チャネリングの臨界角より小さいためである. しかし、もっと広い照射量領域も含めれば、今回観測された相違は観測できなくなる可能性がある. 図 5.5.2(a) から、表面で<100>チャネリングしたイオンのエネルギースペクトルのテールには、 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  以上の照射量では表面を潜ってランダムに散乱した陽子が混じっている. したがって、これ以上に照射された表面では<100>チャネリングに沿った散乱は<110>チャネリングと同様になり、検出される陽子は原子列の原子との引き続いておこる小角衝突によって反射したものではなく、多くのステップにより変化した表面のポテンシャルによって反射したものである.

KCl(001) に対して、電子線照射による初期の損傷で、単層剥離が起こることが知られている<sup>4)</sup>. しかしながら、いまのところ、KCl(001)の表面について KBr(001)で観察されているような、[100]と[010]の方向に平行なステップレジをもつピットがあるという報告は見当たらない. 我々の AFM 像観察結果から  $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  台の電子線照射量で方向依存のない単原子層のピットがあり、これより大きい照射量で不規則なステップをもつテラスが示されたが、ピットの優先的な方向は決定出来なかった. しかしながら、これまで述べた散乱過程を確認するために、[100]と[010]の方向のレジをもつ単原子層のステップを重ね合わせた表面モフォロジーを仮定してコンピュータ・シミュレーションを実行した. このシミュレーションの基本的な手順は 5-3 節や 5-4 節と同じである<sup>6, 17, 19)</sup> が以下の部分について修正を行った;

前節までは、与えたステップ密度  $\text{cm}^{-1}$  で [100] と [010] の方向に沿った上りか下りのステップを導入していた. 本節ではステップの半分はアップステップ、残り半分はダウンステップを導入し、上りか下りかは乱数で決めた. さらに、入射粒子の軌道すなわち、標的原子との衝突における偏角の計算には、入射粒子に対する運動方程式を解くかわりに力積近似を用いた軌道計算を行った.

550 keV 陽子を 6 mrad で入射したときのチャネリング・ディップに対応するシミュレーションの結果の例を図 5.5.7 に示した. ここでは、各ステップ密度に対して表面で反射し検出された陽子の収量をプロットした. <100>チャネリングに対しては、5-4 節で述べたように隣接した 2 本の原子列との二回衝突を経た陽子はシミュレーションで得られたエネルギースペクトルの少し低エネルギー側に現れた<sup>19)</sup>. エネルギースペクトル上のこれらのみを数えると、

チャネリング・ディップ内の対称な位置にある2つのピークがはっきり現れたが、全収量を数えると図 5.5.7(a)に示すようにこれらのピークは小さくなった<sup>19)</sup>。ステップ密度の増加とともにこのディップ底のピークは目につかないほど小さくなり、2つのピーク間の間隔は広がった。このステップ密度依存性は実験結果と一致する。このディップ底のピークは、図 5.5.7(b)に示されているように<110>のディップの中には見られなかったが、このことも実験結果に一致する。

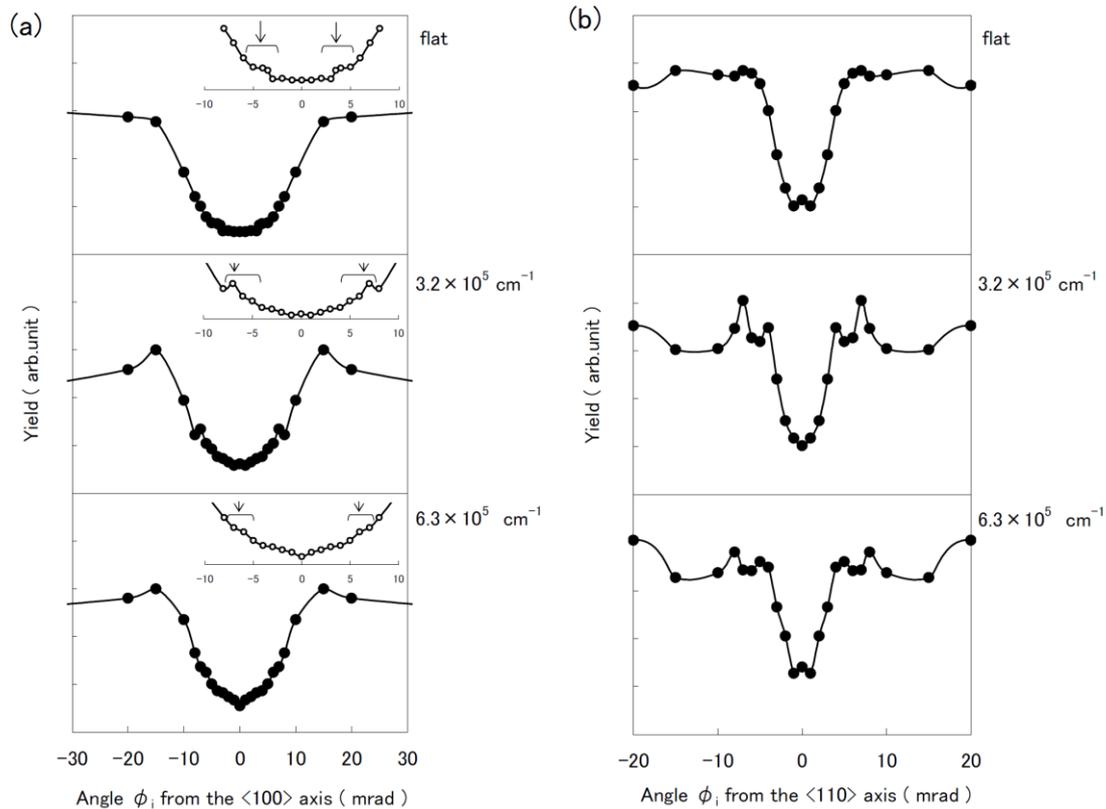


図 5.5.7 シミュレーションにより計算されたチャネリング・ディップの例。 $\theta_i = 6$  mrad.  
 (a) <100> チャネリング. (b) <110> チャネリング.  
 ステップ密度はそれぞれ上から  $0 \text{ cm}^{-2}$  (flat),  $3.2 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ ,  $6.3 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$ .

図 5.5.8(a)に示した、チャネリング・ディップの幅  $\psi_{1/2}$  は<100>、<110>ともにステップ密度の増加により、わずかに減少している。実験結果との不一致の理由は主に仮定した表面モフォロジーによるものと考えられる。図 5.5.8 (b)はシミュレーションによる規格化された最小収量  $\chi_{\min}$  の値を示している。ステップ密度を増やしても<100>の最小収量  $\chi_{\min}$  はほとんど一定で、<110>ではステップ密度の増加とともに浅くなるのがわかる。この結果は、図 5.5.4(b)に示した<100>と<110>チャネリングに対する測定値の傾向と合致している。

したがって、この簡単なシミュレーションはいくつかの役に立つ結果を与える。しかしながら、結果は仮定したテラスの形にも一部依存するだろう。<110>チャネリングではテラスを  $45^\circ$  で通り過ぎる。このためイオンが通過するテラスの平均長さは<100>チャネリングの方が

$\langle 110 \rangle$ チャネリングよりも $\sqrt{2}$ 倍長い. このコンピュータ・シミュレーションにより散乱過程を理解するためには, 照射された表面に対し, より現実的なモフォロジーを導入する必要がある. また, シミュレーション結果と実験データとの比較により, 結晶構造のずれ, 例えば, 格子歪みに関する情報を導く可能性が期待される.

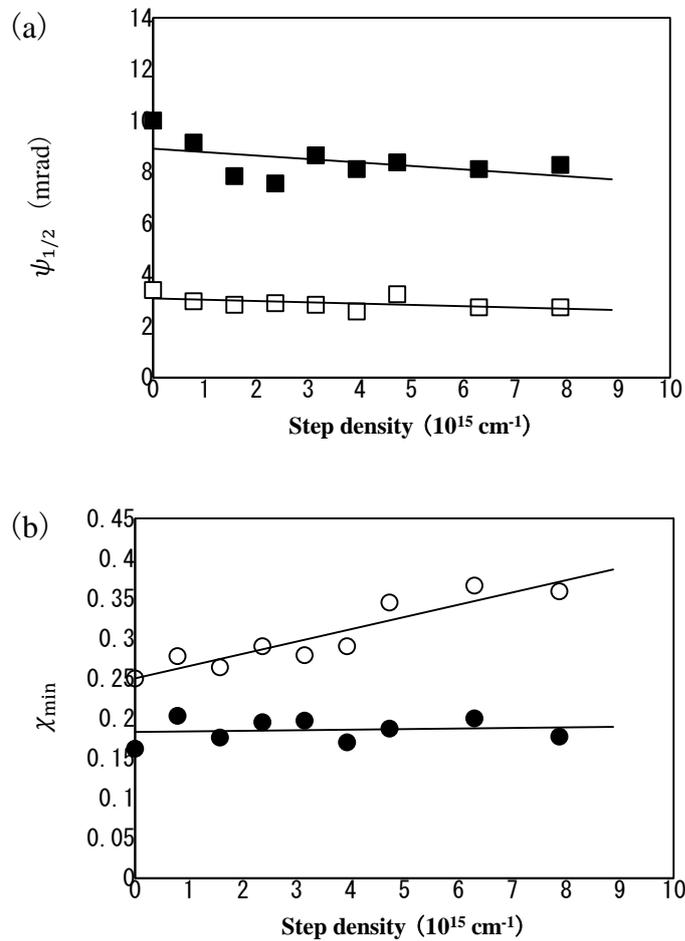


図 5.5.8 半値角および, 最小収量と平均ステップ密度の関係.  
 (a) チャネリング・ディップの半値角  $\psi_{1/2}$ .  
 (b) 規格化された最小収量  $\chi_{\min}$ .  
 実線はデータを最小自乗法でフィットしたもの.

## 5-6. 結晶格子定数等の違いによるチャネリング・ディップ形状の違い

表面原子のバルクの格子定数から求められる位置からのずれを格子歪みとして、直接観察にかかる方法で調べることを目的とし、KBr(001)についてKCl(001)と同様の実験を行った。KBrは、他の研究者による原子間力顕微鏡での観察報告が多く<sup>20)</sup>、KClに対して約5%格子定数が多い。格子定数が多い試料に対する実験結果をKClでの実験結果と比較することで、ステップにより誘起される表面格子歪みを、表面軸チャネリングを用いて測定する可能性について議論した。

### 5-6-1. 実験結果および考察

散乱角  $10 \pm 2$  mrad に散乱した陽子の収量の入射方位角  $\phi_i$  に対する変化を調べた。図 5.6.1 にエネルギーアナライザの磁場を表面第一層(最表面)で散乱した陽子と、最表面を潜って散乱した陽子、それぞれに固定し、得られた収量の方位角に対する変化を重ねて示した。図 5.6.1 ではいずれのチャネリング・ディップの中にも対称な位置に小さなピークが見られた。図 5.6.2 (a) (b) は図 5.6.1 で得られた、最表面で散乱した陽子によるチャネリング・ディップの幅  $\psi_{1/2}$  とランダム方位の収量で規格化したディップの深さ  $\chi_{\min}$  の電子線照射量による変化をKClで得られた結果と比較して示したものである<sup>21)</sup>。これらの量を求める際、5-5節で行ったようにディップの中のピークをさし引いた図 5.6.1 の点線を用いた。

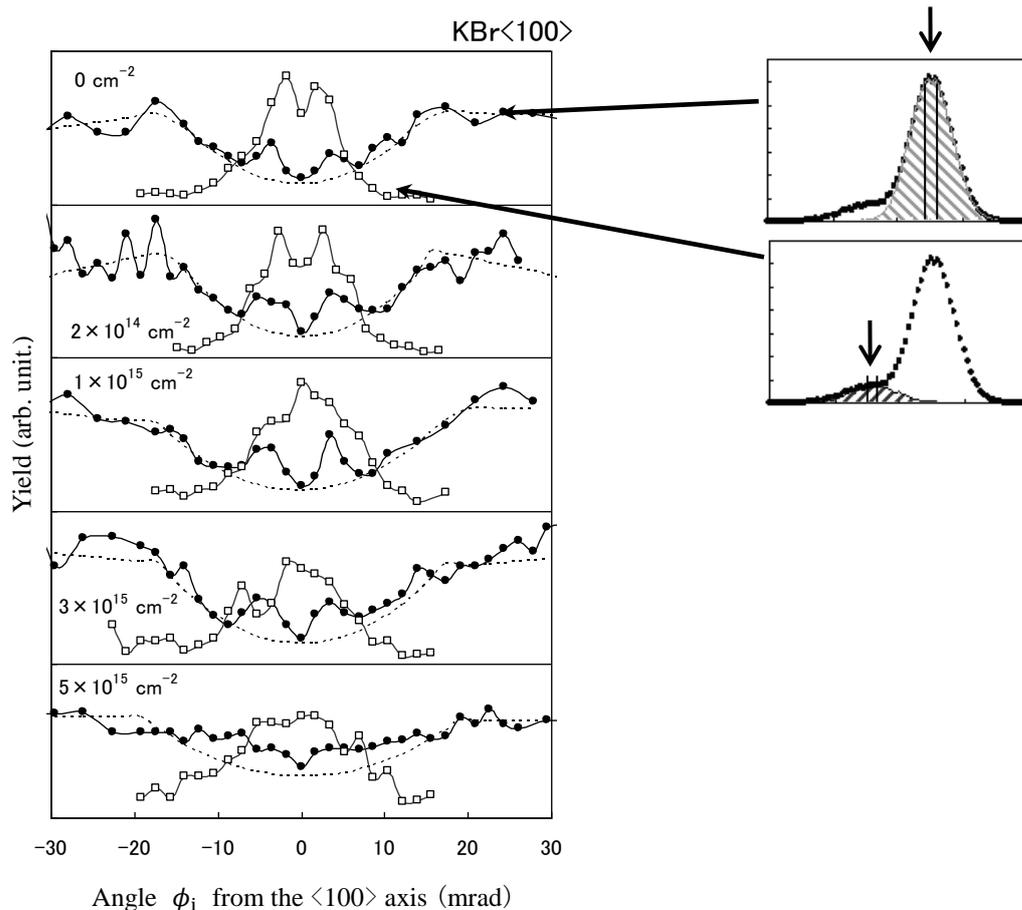


図 5.6.1 散乱収量の照射量依存.

黒丸(●)は表面第一層(最表面)で散乱したもので白抜き四角(□)は最表面を潜って散乱したもの. 点線はディップ底の2つのピークを除いて示したチャネリング・ディップの概形.

図 5.6.2(a)より, 電子線照射によりチャネリング・ディップの幅は広がり, KBr が KCl と同様の傾向にあることがわかる. 表面が十分に荒れた状態では, 表面軸チャネリングは起こりにくくなるはずであるから, 図 5.6.2(b)に示した  $\chi_{\min}$  は大きくなるはずである. KBr ではこのことが顕著に現れ,  $10^{15}\text{cm}^{-2}$  台での照射量でディップの深さは照射により浅くなった. KCl では  $10^{16}\text{cm}^{-2}$  程度の照射量で再び深くなっていくようにみえるが, ピークをさし引くことにより生じる誤差も大きくなり, 誤差内ではほぼ一定であったとみている.  $10^{16}\text{cm}^{-2}$  台で照射を行った KCl の AFM 像によると, 表面はかなり荒れた状態で単原子層のテラスが不規則な方向に重なりあった十数原子層の凹凸が存在し, このような大きな形状の変化が, ディップの形に影響を及ぼした可能性もある<sup>19, 21)</sup>.

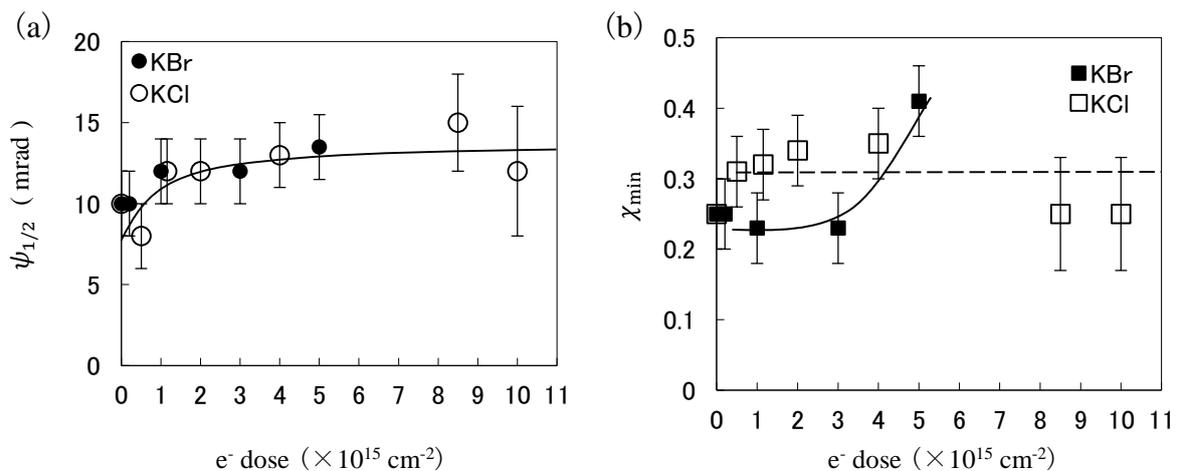


図 5.6.2 チャネリング・ディップ概形の照射量依存.

(a) 半値角,  $\psi_{1/2}$ . 実線は KBr と KCl 両方に対するものである.

(b) 規格化最小収量,  $\chi_{\min}$ . 実線は KBr, 破線は KCl に対するものである.

図 5.6.1 の白抜き四角で示した最表面を潜って散乱した陽子により形成されたチャネリング軸を中心としたピークの幅, および, ランダム方位の収量で規格化した高さの電子線照射量による変化を図 5.6.3 (a) (b)に示した. ピークの幅は広がり, 高さは低くなった. KCl(001)の実験では, この収量の測定は行っていない. 図 5.6.3 は表面に潜ってふたたび出てきた陽子に注目しているため, 図 5.6.2 に比べて照射による変化が顕著である. これらの結果から, 表面が荒れることによりチャネリングしにくくなる反面, チャネリングするための角度領域が広がってくることをわかる.

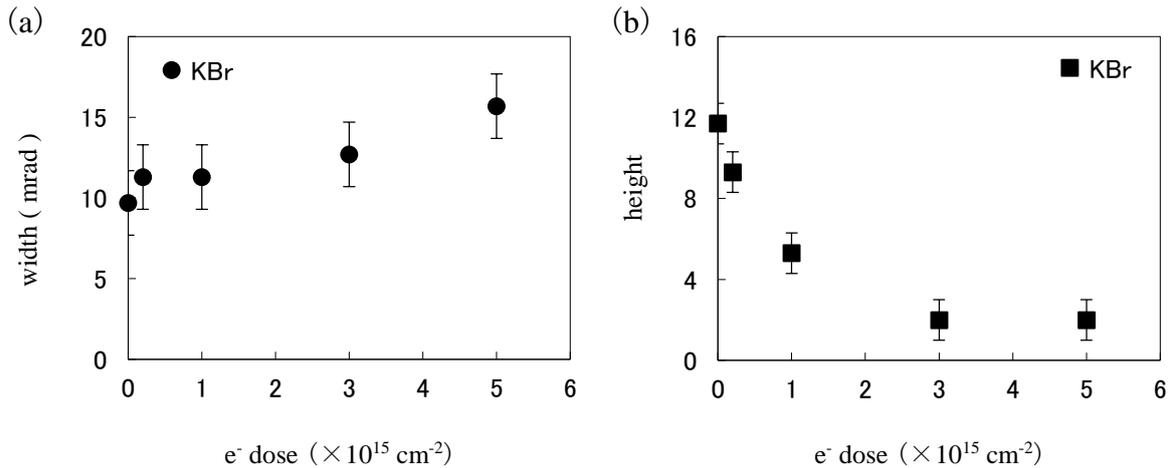


図 5.6.3 最表面を潜って散乱した収量のピーク概形の照射量依存。  
(a) 角度の半値幅. (b) ランダム方位の収量で規格化した高さ.

また図 5.6.1 のチャネリング・ディップにおいてチャネリング軸を中心にして対称な位置に 2 つのピークがあらわれた. これは最表面にありビームにほぼ平行な 2 本の原子列によってひきつづいて散乱されたものであるため<sup>19)</sup>, 表面格子の格子定数の変化に敏感であると考えられる. 図 5.6.4 (a) (b) はディップ底の 2 つのピークの間隔とピークの幅をもとめ, これらの結果を KCl(001) での実験結果と比較したものである. ピークの間隔と幅は電子線照射量の増加とともに, 少しずつ広がった. この 2 つの測定値の傾向から導ける定性的なモデルは以下のようなものである;

1. ピークの間隔について; 入射方位角  $\phi_i$  が小さいときチャンネルの中央付近を入射した陽子が起こす二回衝突は, その間の長い距離が必要であるが, 表面が荒れ長い軸が失われていくことによりこの成分は失われていく. したがって, 表面が荒れるにつれ, ピークの間隔は広がる.
2. ピークの幅について; 表面のビームに平行な原子列間距離が一定であれば二回衝突を起こす入射方位角  $\phi_i$  は入射の原子列間位置と対応するため, ピークをつくる  $\phi_i$  の分布は比較的狭くなる. しかし原子列間距離が様々に変化した場合, 二回衝突を起こすことができる入射方位角  $\phi_i$  の分布が広がる. したがって, 表面が荒れ, ステップ密度が増加したために, ビームに平行なステップレッジ上の原子のビームに垂直な方向への平衡位置からのずれ, すなわち, 表面の格子歪みが大きくなった場合, ピークの幅は広がる.

図 5.6.4 (b) では, ピークの幅は KBr の方が広がり方が急峻である. したがって, 図 5.6.4 (b) の結果のみからは, KBr は KCl よりも荒れやすい, またはステップエッジの変位を起こしやすいといえる. これに対し, 図 5.6.4 (a) において KBr と KCl とを比較すると, ピークの間隔はほぼ同じ値を示しているため, 同一照射量による KBr と KCl の表面の荒れ方は同程度である.

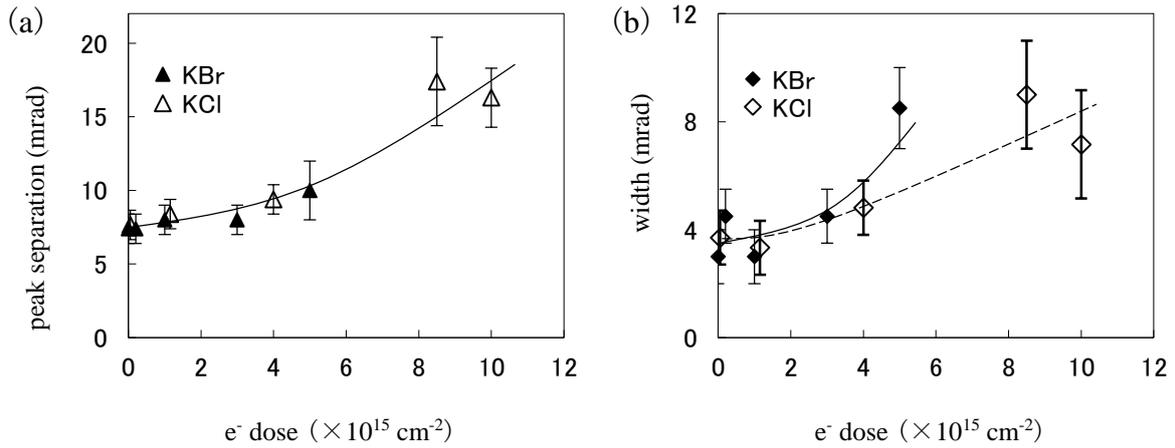


図 5.6.4 ディップ底の対称な位置にある小さなピーク概形の照射量依存.  
 (a) ピークの角度間隔. 実線は KBr と KCl 両方に対するものである.  
 (b) ピークの半値角 実線は KBr, 破線は KCl に対するものである.

一方, 図 5.6.5 にはほぼ同じ電子線照射量で照射を行った KCl (001), KBr (001) の AFM 像を示す. とともに単原子層段差のピットがいくつか存在し, 平均二乗粗さは 0.25 nm であり, 同様の形状を示した. なお, 図 5.6.5 には電子線照射による脱離の初期段階に生成される矩形のピットは見られなかった. これらの形状とステップやキックなどの低配位位置にある原子が優先して脱離することを仮定したシミュレーション(第 6 章参照)との比較から, 電子線照射量が増えることで, 矩形ピットが数多く形成される延長線上にこのようなモフォロジーが出現すると解釈している<sup>22)</sup>.

以上の結果から, KBr は同一の電子線照射量で表面の荒れは KCl と同等であるが, ステップレッジの変位を起こしやすい可能性がある. しかし, 今回の実験結果のみで KBr と KCl の変位の大小について結論することは困難である. この理由として, KBr (001) と KCl (001) とでは格子定数も約 5% 異なるが, 陽子が感じる軸や表面のポテンシャルが異なることがあげられる. 適切な表面モデルを用意して, イオン散乱のシミュレーションを行い, 実験と比較することによって, 格子歪みの比較や検証ができることが期待される.

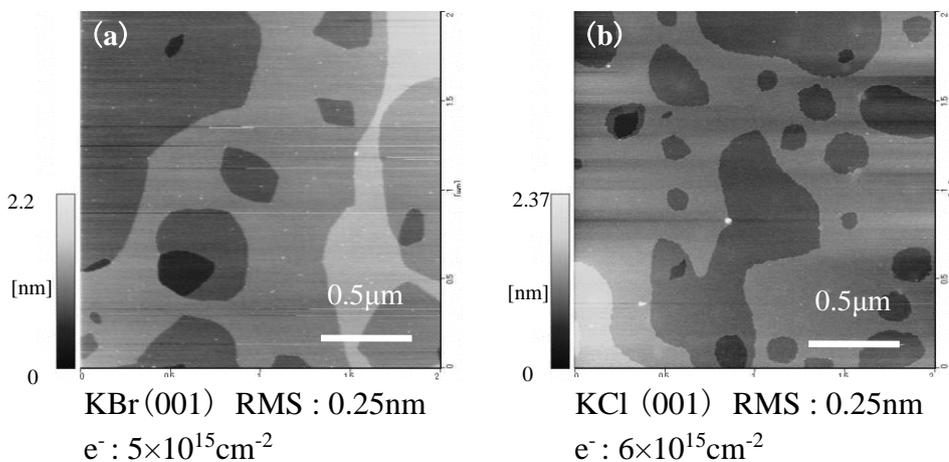


図 5.6.5 AFM 像の例.  
 (a) KBr (001) 照射量  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . (b) KCl(001) 照射量  $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ .

## 5-7. まとめ

電子刺激脱離の起こった KCl(001), KBr(001)表面に 550keV の陽子を小角で入射し、散乱陽子のエネルギースペクトルおよび、チャネリング・ディップの変化を調べ、シミュレーション結果と比較した。実験後の試料は原子間力顕微鏡(AFM)で観察した。

5-3 節では、電子線照射によるエネルギースペクトルの変化を調べた。表面を潜って散乱する陽子はランダム入射では表面ステップで起こり、その収量は照射量の増加とともに増加した。チャネリング入射では、表面を一旦潜って出射した陽子の収量は  $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  台の照射量領域で減少した。〈100〉チャネリングの場合、表面を潜る陽子は必ずしも表面ステップを通過するとは限らないからである。軸に沿って潜ったイオンがチャネリング軌道を描いて検出角に散乱されることが少なくなったからであろう。 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  台の照射量領域ではチャネリング入射で観測される陽子にはランダム入射と同様な散乱をおこしたものが増加している。

5-4, 5 節では、チャネリング・ディップの変化を調べた。5-4 節で〈100〉のチャネリングのディップの性質を調べ、5-5 節で〈100〉と〈110〉のチャネリング・ディップの最小収量と幅の照射量依存を比較した。実験結果から、〈100〉チャネリングでは、電子刺激脱離により表面の形状が変化したことで、軸に沿って表面にもぐったイオンが外に出にくくなるか、大角に散乱され検出されないことがわかった。 $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  台の照射量で〈100〉と〈110〉軸でチャネリング・ディップの形の変化を比較すると、〈100〉のチャネリング・ディップの深さは照射とともに有意に変わらず、幅が広がった。一方、〈110〉では照射とともに浅くなった。 $10^{15} \text{ cm}^{-2}$  台の照射量では、軸に近づく陽子に対し、欠陥のある〈100〉チャネルは〈100〉チャネリング陽子の軌道を中断させる。対照的に〈110〉チャネリング陽子は欠陥がある表面の原子列の上で反射をするより、多くのステップの存在により変化した表面によって反射する。コンピュータ・シミュレーションの結果を引き合いに出すことにより 2 本の軸の間の散乱過程の違いを示した。

5-6 節では KBr(001)を用いてイオンビーム・チャネリング実験を行い、KCl(001)で得られた結果と比較することで、格子歪みの測定の可能性を検討した。実験結果から、KBr と KCl とでは電子線照射量の増加によるチャネリング・ディップの変化の傾向は類似していた。ディップ内の対称な位置に現れた小さな 2 つのピークに関する情報から、格子歪みに関する情報が得られる可能性を議論したが、2 つの結晶の格子歪みの差を直接見出すことは困難であった。一方、今回求めた、表面から潜って散乱した陽子の収量の入射方位角に対する変化は、照射量の増加に伴うステップ形成に敏感であることがわかった。これらを考慮にいれ、適切なイオン散乱のシミュレーションを行う必要がある。

AFM 観察結果から、試料表面は電子線照射量の増加とともに、テラスの一部が岬のような形状になり、数多くの単原子層のピットが形成された。このピットの形は、KBr(001)について報告されているような長方形ではなく、不規則な形をしていた。さらに照射量が増加すると、浸食されたステップエッジや多くの穴の領域が広がっていき、電子線照射量が  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  を超えると試料表面は層状に剥離したように荒れ、様々な方向のステップが重なることにより生じた多くのテラスが観測された。

[参考文献]

- 1) 例え、I.N. Kholmanov, L. Gavioli, M. Fanetti, M. Casella, C. Cepek, C. Mattevi and M. Sancrotti : Surf. Sci., **601** (2007) 188.
- 2) 例え、M. Busch, M. Gruyters and H. Winter : Surf. Sci., **600** (2006) 4166.
- 3) H. Overeijnder, M. Szymonski, A. Haring and A. E. de Vries : Radiat. Eff., **38** (1978) 21.
- 4) M. Szymonski, J. Kolodziej, B. Such, P. Piatkowski, P. Struski, P. Czuba and F. Krok : Prog. Surf. Sci., **67** (2001) 123.
- 5) M. Goryl, B. Such, F. Krok, M. Meisel, J.J. Kolodziej and M. Szymonski : Surf. Sci., **593** (2005) 147.
- 6) Y. Fukazawa, K. Mitsuhashi, K. Ochi, Y. Matsumoto, Y. Shiomi, and Y. Susuki : Shinku (J. Vac. Soc. Jpn.), **50** (2007) 301 [ in Japanese ].
- 7) K. Nakajima, S. Joumori, M. Suzuki, K. Kimura and T. Osipowicz, K. L. Tok, J. Z. Zheng, A. See and B. C. Zhang : Appl. Phys. Lett., **83** (2003) 296.
- 8) T. Okazawa, S. Ohno, Y. Hoshino, T. Nishimura and Y. Kido : Nucl. Instr. and Meth. B, **183** (2001) 108.
- 9) A. Schuller and H. Winter : Nucl. Instr. and Meth. B, **256** (2007) 122.
- 10) Y. Susuki, K. Nishioka, M. Maehara, J. Hyou, T. Ikeda and K. Katsura : Phys. Rev. A, **69** (2004) 032710.
- 11) K. Nakajima and K. Kimura : Butsuri, **61** (2006) 98 [ in Japanese ].
- 12) Y. Fujii, S. Fujiwara, K. Narumi, K. Kimura and M. Mannami : Surf. Sci., **277** (1992) 164.
- 13) K. Kimura, M. Hasegawa, Y. Fujii, M. Suzuki, Y. Susuki and M. Mannami : Nucl. Instr. and Meth. B, **33** (1988) 358.
- 14) Y. Fujii, K. Kishine, K. Narumi, K. Kimura and M. Mannami : Phys. Rev. A, **47** (1993) 2047.
- 15) J. Vogt and H. Weiss : Surf. Sci., **491** (2001) 155.
- 16) Y. Fukazawa, K. Mitsuhashi, Y. Shiomi, Y. Matsumoto and Y. Susuki : *Proc. 9th Int. Symp. on Sputtering and Plasma Processes*, Kanazawa, Ishikawa, Japan, 2007, p407
- 17) Y. Fukazawa, K. Mitsuhashi, Y. Shiomi, Y. Matsumoto and Y. Susuki : Vacuum, **83** (2008) 653.
- 18) D.S.Gemmell: Rev. Mod. Phys., **46** (1974) 129.
- 19) Y. Fukazawa, K. Mitsuhashi, Y. Matsumoto and Y. Susuki : J. Vac. Soc. Jpn., **51** (2008) 131 [in Japanese].
- 20) B. Such, P. Czuba, P. Piatkowski and M. Szymonski : Surf. Sci., **451** (2000) 203.
- 21) Y. Fukazawa, Y. Matsumoto, K. Mitsuhashi and Y. Susuki : Appl. Surf. Sci., **256** (2009) 1184.
- 22) Y. Matsumoto, Y. Fukazawa and Y. Susuki : J. Vac. Soc. Jpn., **52** (2009) 411 [in Japanese].



## 第 6 章 電子刺激脱離させたイオン結晶表面のモフォロジー

### 摘要

KCl(001)表面と KBr(001)表面に、電子線をラインスキャン法および、2次元スキャン法を用いて照射した。このときのモフォロジー変化によって生じる表面粗さ(RMS粗さ)の測定値を提示し、存在する最も上の原子(最表面の原子)から脱離原子を選ぶことと、隣接原子数の少ないサイトにある原子が脱離しやすいという条件を仮定した脱離のシミュレーションの結果と比較した。シミュレーションで得られた値は実験値に比べ半分程度であるが、照射量依存性は同じものであった。電子線を多く照射した表面に対して、最表面の原子が脱離することを仮定した解析的な取り扱いを行い、RMS粗さの測定値および、シミュレーションでの値の照射量依存性と比較した。結果として、実験で観察したモフォロジーは最表面の原子が多く脱離し、層状に剥離することが繰り返され、少しずつ乱れてきた結果である可能性が高いことを結論した。



## 第 6 章 電子刺激脱離させたイオン結晶表面のモフォロジー

### 6-1. はじめに

電子線や X 線をイオン結晶や半導体表面に照射すると、固体内部で電子系の励起が生じ、表面原子の脱離が生じる。電子線で生じるこのような電子刺激脱離 (ESD) と呼ばれる現象は、近年さまざまな手法により研究されている<sup>1,2)</sup>。イオン結晶表面からの ESD については、基板と蒸着薄膜の密着性を上げることや、放出されるハロゲンの原子源に用いる等の応用が研究されている<sup>3)</sup>。さらに、ESD させた KBr 表面を分子エレクトロニクス of テンプレートに用いる研究も行われている<sup>4)</sup>。

ESD によるイオン結晶の表面モフォロジーの変化は、これまで  $10^{14} \text{ cm}^{-2}$  位の照射量で詳しく調べられてきた<sup>5,6)</sup>。表面にできる欠陥の多くは、表面から結晶内部に深く入り込んだ電子がつくる欠陥が、表面まで拡散し、低配位の原子を優先的に脱離させることでつくられる。このことから厚さ 1ML の長方形のピットを形成しながら表面を 1 層ごとに脱離させることができる。これらの研究では、モフォロジーは主として KBr のものが提示され、 $\text{mm}$  以下に絞った電子ビームを 2 次元スキャンする手法を用い、数原子層が脱離するまでの結果を示している<sup>5,6)</sup>。その照射量は、上記のいくつかの応用には、かなり小さいものである。積算照射量が数倍増せば、1 層ごとの脱離過程は乱れる可能性があり、そのときのモフォロジーが、応用していく上で重要になる。しかし、 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  を越えた照射量に至るまでに、KBr 以外のイオン結晶の表面がどのようなモフォロジーを示していくかについては、十分な報告が見あたらない。一方、照射量を減らさずに照射時間を減らすためには、ビーム電流の密度を増やすことがあるが、これを行うと、アルカリ原子が表面で金属化する傾向があることが知られている<sup>7)</sup>。

我々は、主として KCl(001) 表面に、5keV の電子線のラインスキャンを行い、非接触原子間力顕微鏡 (NC-AFM) で表面モフォロジーを観察してきた<sup>9-12)</sup>。この方法は一方向のスキャンを行うだけなので、ライン上でのビームの一様性を強く要求しない場合において、2 次元スキャンに比べ簡便である。また、ビームを縦に大きくできるため、電流密度を増やさず照射時間を減らすことも可能である。本章では、KCl(001) に加え KBr(001) 表面に、電子線をラインスキャンおよび、2 次元スキャン (2D スキャン) した。KBr(001) は、これまで他者によって、電子刺激脱離した表面モフォロジーが最も報告されているものである。本章では、照射後のモフォロジー変化によって生じる表面の平均 2 乗粗さ (RMS 粗さ) の測定値を提示し、隣接原子数の少ないサイトにいる原子が脱離しやすいという条件を加えた脱離のシミュレーションの結果と比較する。RMS 粗さは物質成長の要因を支配する表面の複雑なモフォロジーに対する代表的な定量的指標の 1 つである。これによって実験で起こっている脱離過程の表面でのプロセスを検討することを目的とした。

## 6-2. 実験

実験装置の概要は第2章図2.6に示したとおりである。詳細については他で述べたが、本章ではアウトラインを記述する<sup>12)</sup>。空气中で劈開したKClまたはKBr(7×7 mm<sup>2</sup>)を試料台に取り付けた銅製の試料ホルダーに挿入し、側面を押さえて固定し真空槽内に置いた。ターボ分子ポンプ(VARIAN co. turbo-V81)で排気しながらベークした後、イオンポンプ(ULVAC co. PST2CT)で排気し、表面清浄化の操作として試料台の昇温を経た後、10<sup>-7</sup> Pa 台の到達真空を得た。電子線照射中の試料表面の温度は420Kにした。照射は5keV電子ビームを用い、表面に対して45°の方向から行った。縦長のビームを1つの電磁石でラインスキャンしたKCl(001)と、1×1mm<sup>2</sup>の四角形ビームを2つの電磁石で2DスキャンしたKCl(001)および、KBr(001)を作製した。電子ビーム電流の時間平均値はラインスキャンで100 nA/cm<sup>2</sup>、2Dスキャンで40 nA/cm<sup>2</sup>であり、試料直前の可動のファラデーカップでモニターした。積算照射量は試料ごとに3×10<sup>14</sup>~2×10<sup>16</sup> cm<sup>2</sup>の範囲である。

電子線照射後の試料は神戸大学研究基盤センターのAFM(Digital Instruments: Bio Scope NVB100 または SII ナノテクノロジー: NanoNavi II, E-sweep)により、空气中で観察した。観察はタッピングモードを使用した。これによって表面のモフォロジーとともに、RMS粗さを求めた。ラインスキャンしたKCl(001)試料表面の像を図6.1に示す。(a)は照射量が4×10<sup>15</sup> cm<sup>2</sup>、(b)は照射量が1×10<sup>16</sup> cm<sup>2</sup>である。(c)は(b)と同じ場所のエラーシグナルモードでの観察である。(a)では方向が不規則なステップが重なり合い、高さ数原子層の角が取れたピラミッド状のピットを形成している。(b)(c)に示した深さ10原子層程度のピラミッド状のピットの断面プロファイルを図(d)に示す。ステップの高さには1原子層のものも観察されており、層状に剥離してできたものであることを示している<sup>5,10)</sup>。比較のため、今回の装置で5 keV電子線の2Dスキャンを行い3×10<sup>14</sup> cm<sup>2</sup>の照射をKBr表面に行った。この結果を図(e)に示す。ここでは、Szymonskiら<sup>5,6)</sup>が報告しているような1原子層のピットが多く観察された。その大きさは小さいもので20原子×20原子程度であり、今回の実験が妥当なものであることを示している。また、図6.2にKBr(001)に対し、図6.1のKClと同程度の照射量で電子線を2Dスキャンした試料の観察結果の表面モフォロジーを示す。(a)は照射量が5×10<sup>15</sup> cm<sup>2</sup>、(b)は照射量が2×10<sup>16</sup> cm<sup>2</sup>である。(a)では方向が不規則な1原子層のステップが重なり合っているのがわかる<sup>9,12)</sup>。(b)には方向が不規則な数原子層の島が見られる。

図6.3にKClとKBrのRMS粗さの照射量依存を示した。KBrに対してはラインスキャンを行っていないが、KClに対しては2Dスキャンを行った試料とラインスキャンを行った試料で違いが見られなかったため、重ねてプロットを行った。この結果から、KBrとKClで大きな違いはなく、ともに $\sqrt{cq + C_0}$ の関数曲線によく乗る形になった。ここで、 $q$ は電子の照射量、 $c$ と $C_0$ は定数であり、最適値をフィッティングしたカーブをそれぞれの表面に対し実線で示した。

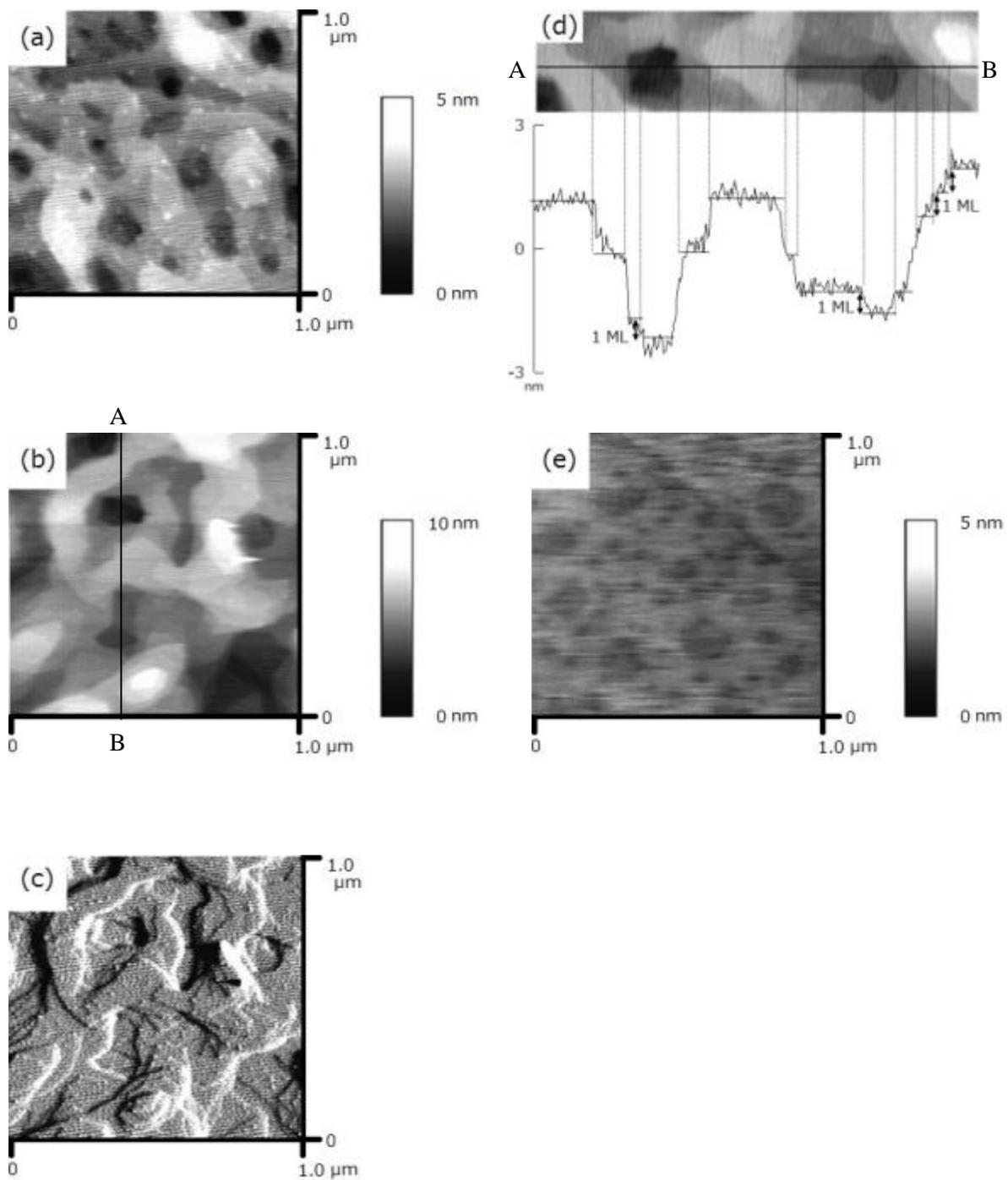


図 6.1 KCl (001) の表面モフォロジー.  
 (a)  $4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  (高低モード). (b)  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  (高低モード).  
 (c)  $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$  (エラーシグナルモード). (d) (b) の A-B 断面図.  
 (e) 2D スキャン照射した KBr  $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ . (高低モード).

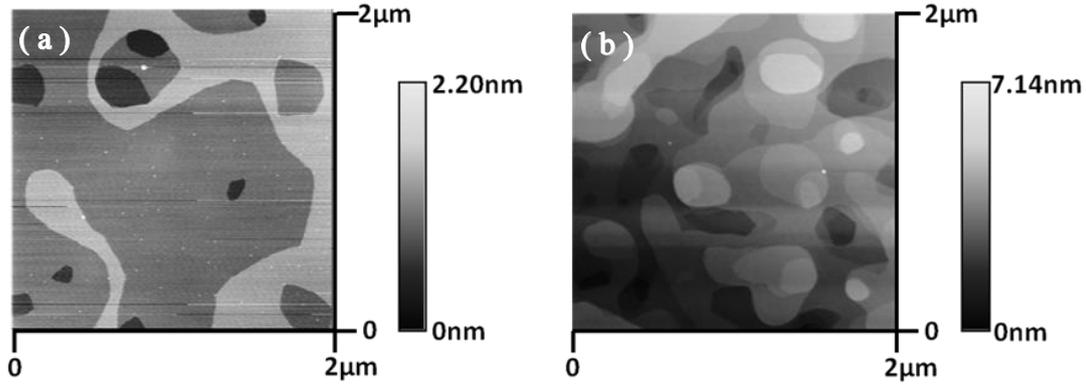


図 6.2 KBr (001)脱離表面の AFM 像 (高低モード).  
 (a)  $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . (b)  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ .

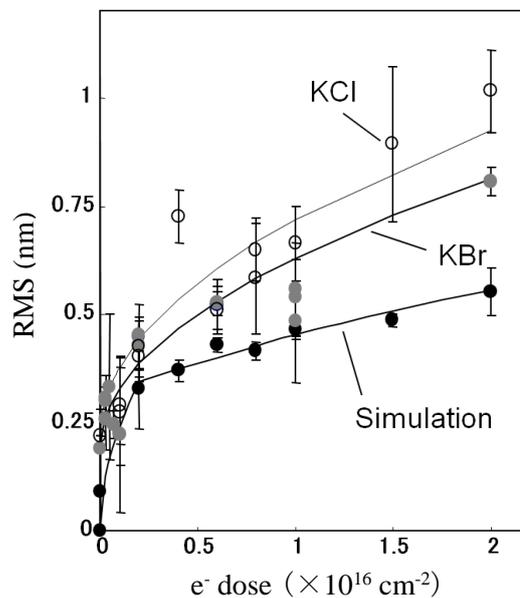


図 6.3 表面の RMS 粗さの照射量依存.  
 測定値とシミュレーションの値を丸で示し、フィッティングしたカーブを実線で示した.

### 6-3. シミュレーション

ESD において、バルク内深くに侵入した電子が、結晶表面を層状に剥離していくという結果に対し、次のような一連のモデルが提案されている<sup>5, 6, 13)</sup>。表面から侵入した電子が、バルク中で F 中心をつくり、これが蓄積するうちに励起 F 中心 (F\*中心) が形成される。この F\*中心は動きやすいため表面まで拡散する。表面にぶつかったとき、バルクに向かって反射することもあるが、低配位のサイト近くにぶつかるとそのサイトにある粒子を放出させる。こういう放出が優先的に起こるため、照射の初期には、表面に 1 原子層の 20 原子 $\times$ 20 原子程度の大きさの長方形のピットが形成される。このピットは [100] と [010] 方向にふちを持ち、その多くはキックを持つ。このキックが次の低配位のサイトとして働くため、照射量を増すと同時にピットが大きくなる。大部分の脱離原子が前述のように生成されるとき、1 層ずつの剥離が起こるようになる。

これらの過程を結論付けた 2D スキャンの実験と比較し、本研究で行った照射のビーム電流密度の平均値は同程度である<sup>4, 5)</sup>。これらの論文では、バルクから F\*中心が拡散する機構をモデル化し、表面にぶつかった F\*中心のエネルギーが脱離粒子の運動エネルギーに転換される過程に考察がなされている。これに対し、本研究では、F\*中心が表面原子を脱離させる部分だけに取り扱いを限定し、2桁程度大きな電子線照射量に至る過程を扱う。脱離が起こった表面を表示する際の色彩を AFM 像と比較し易くすることや、表面原子の脱離を画像化することを視野に入れ、言語には WINDOWS XP 上で動作する Visual C++2005、画像処理には GDI (Graphic Device Interface) を用いた。電子線照射量と 1 層が脱離するための脱離原子数との対応をつけるため、電子 1 個入射するごとに 1 個の F\*中心が原子の脱離を起こすと仮定した。570×570 nm の表面を仮定し、バルクから拡散してきた F\*中心が表面の任意の場所にあたったと仮定し、以下の手法をとった。

1. F\*中心があたった場所の周囲の比較的大きな領域（以下に走査する 5 つの領域のうち最大の領域③の縁を囲む 16×16 サイト）を走査し、そこに凹凸がなければ F\*中心があたった場所の 2×2 原子の単原子層ピットを脱離の候補に選んだ。
2. 走査した領域に 1 原子層のくぼみがある場合は、くぼみが 1 原子の場合はその隣の 1 つを、1 原子を 2 方向以上のくぼみで囲む場合には、囲まれたサイトの原子を脱離の候補に選んだ。サイトの配位数によって脱離エネルギーが違うことが予想される。このため、以下のように場合わけをした。1 原子のくぼみは最も小さい領域①の中で探し、見つからなければもう少し大きな領域②、更に見つからなければ、もっと大きな領域③で探すことにした。サイトを 2 方向のくぼみで囲むものは、領域①より大きい領域④の中で探し、見つからなければ大きな領域③で探すことにした。3 方向以上のくぼみで囲むサイトは、初めから領域③の中で探した。条件に合うサイトにいる原子全てを脱離の候補に選んだ。この探し方で、配位数の少ないサイトにある原子ほど脱離しやすくし、配位数の多いサイトは多く脱離しすぎないようにした。
3. スキャンした領域に 2 原子層以上のくぼみがある場合も考え方は同じであるが、1 原子サイトのくぼみがある場合、2 方向のくぼみで囲むサイト、3 方向以上のくぼみで囲むサイトに対して、探す領域を広げた。このことで、2 原子層以上のくぼみがある場合、1 原子層のものに比べ、くぼみの周囲の原子を脱離しやすくさせた。具体的には、領域①の代わりに領域②、領域②の代わりに領域③、領域④の代わりに領域⑤を用いた。
4. 候補として探した原子を一気に脱離させ、次にバルクからの F\*中心を表面にあてた。

層状剥離が起こることを直接仮定してはいないが、脱離をおこす原子は真空と接している最も上の原子（最表面の原子）である。領域①～⑤の大きさはパラメータであり、Szymonski ら<sup>5)</sup>の脱離原子数を示す実験結果（図 6.5）に近い形になるように試行錯誤した結果は、それぞれ 6×6, 10×10, 14×14, 8×8, 12×12 である。領域の大きさをこれらの値にすることで、バルクから拡散してきた表面にぶつかり消滅する F\*中心ひとつ当たり、7.3 個の原子が放出されることになった。まず、このシミュレーションの結果得られた  $5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  までの脱離確率の平均値の、表面上で最隣接する原子の占有配位数依存を図 6.4 に示す。示した確率は、 $10^{12} \text{ cm}^{-2}$  の電子入射ごとに放出割合を求め、これらを 500 回平均したものである。この図より、低配位のサイトにある原子が脱離しやすいことが、この手続きの中に取り入れられているこ

とがわかる.

この仮定の下で求めた微分脱離原子数の電子線照射量依存を, Szymonski らの KBr に対する実験結果<sup>5)</sup>にどの程度あわせることができるかを図 6.5 に示す. かなり良い一致をみることができた. 図 6.5 の振動のピークの場所 **a** と底の場所 **b** での表面の様子をそれぞれ図 6.6 (a), (b) に示す. **a** では表面が荒れることで配位数の少ないサイト数が増大し, 放出原子数が増えることや, **b** では再び表面が平滑化することで配位数の少ないサイト数が減少し, 放出原子数が減ることを示している. すなわち, このシミュレーションで層状剥離が起こっている. なお, 2 原子層以上のくぼみがある場合を分けずに, 1 原子層のものと同じ処理をした場合, 図 6.5 の振動の照射量増加に伴うダンピングが弱くなり, 照射量が増すほど実験とのずれが目立つようになった. この結果は, 実験で観測されているダンピングは, 表面が荒れてきて凹凸が 2 原子層以上生じることにより起こってくることを示唆している.

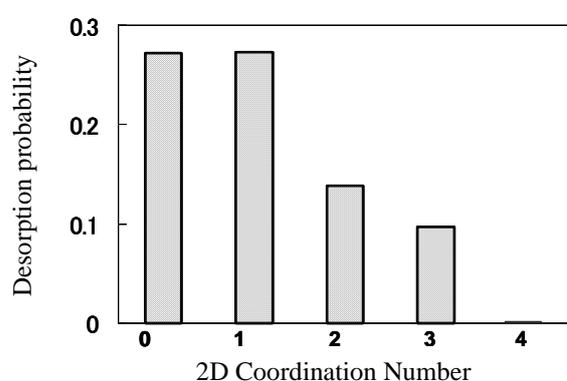


図 6.4 計算による低配位サイトからの脱離確率. 配位数は表面面内での数である. 脱離確率は電子線照射  $5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  まで至る間の  $F^*$  センターが 500 回生成された時の平均.

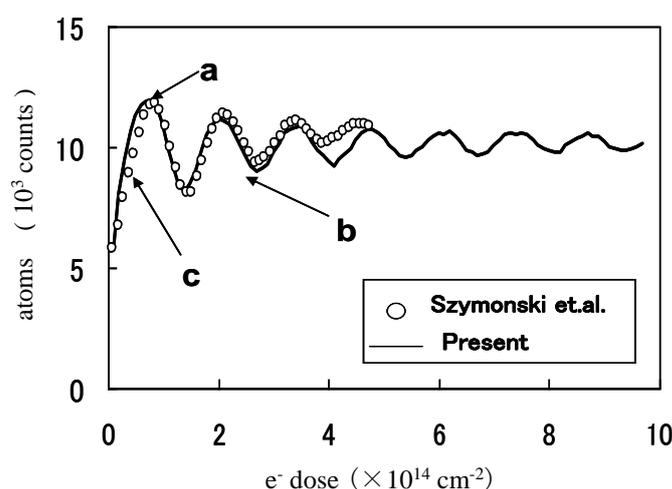


図 6.5 脱離原子数の電子線照射量依存. 実線はシミュレーションによって得たもの, 白丸(○)は Szymonski らの報告によるもの<sup>5)</sup>.

次に, 図 6.6 (c) に 図 6.5 の **c** の位置, すなわち, 照射の初期の  $0.4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  の照射での表面を示す. Szymonski ら長方形のピットや図 6.1 (e) の KBr の表面に長さ数 10nm のふちをも

つ多くのくぼみが形成されているのは、この程度の照射量である。図 6.6 (c) のシミュレーション結果にも多くのピットが観察できるが、その形は不規則であり、長方形のピットは、ほとんど見つけることはできない。照射量が  $1 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$  の電子線照射に対応する表面モフォロジーの結果を図 6.6 (d) に、その拡大図および、断面プロファイルをそれぞれ (e) と (f) に示す。これらの結果には、1 原子層のステップが観察されており、テラスの大きさは 100nm 程度である。AFM で観察されたものに比べ小さいが、図 6.1 (b) (c), 図 6.2 と同様に、方向が不規則なステップが重なり合った複雑な形状のテラスが見える。このことから今回のモデルにより、図 6.1, 図 6.2 の AFM 像から見える特徴の一部を再現できたといえる。

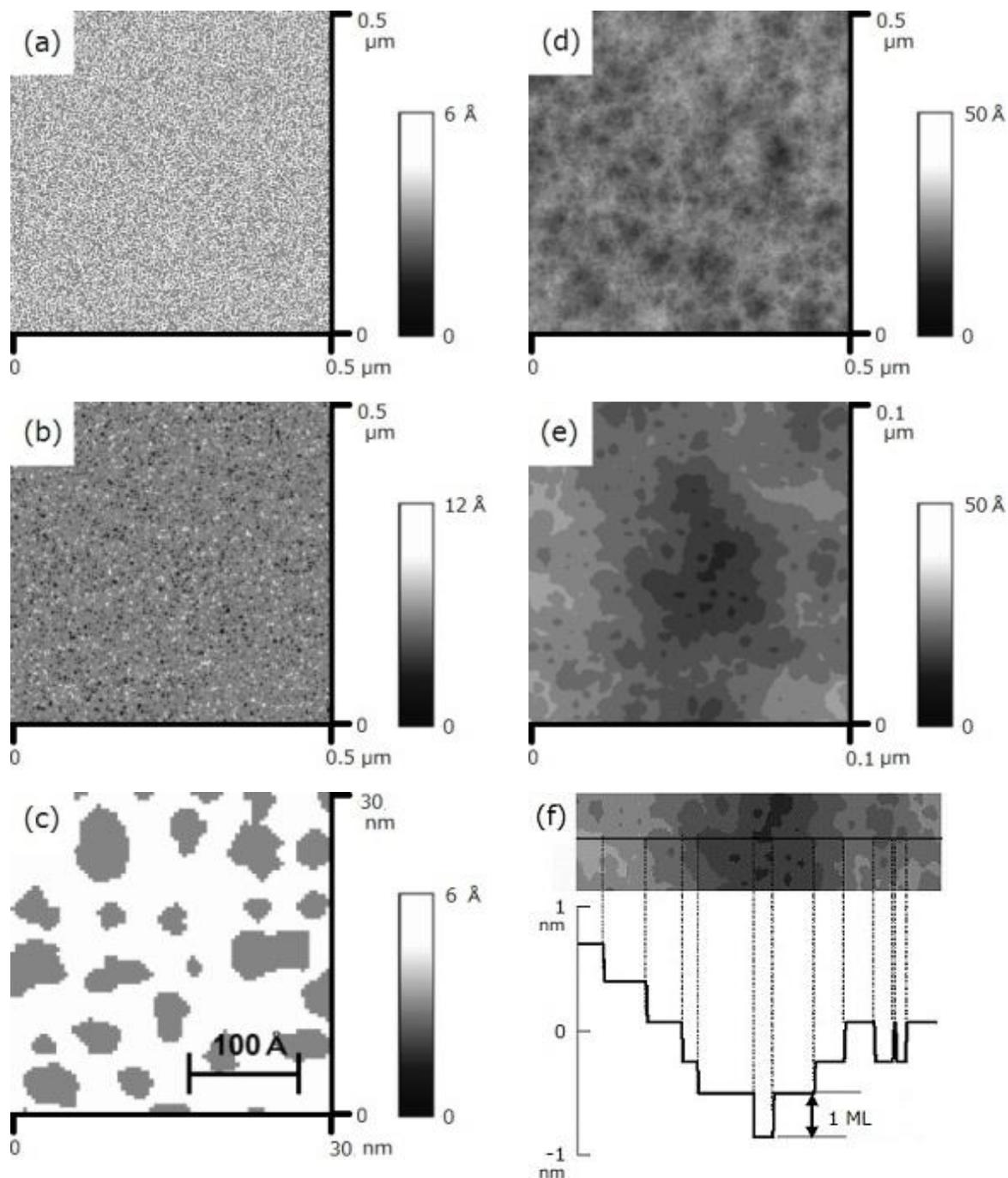


図 6.6 シミュレーションにより得られた表面モフォロジー。  
 (a)  $0.7 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}$ . (b)  $2.7 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}$ . (c)  $0.4 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}$ . (d)  $1 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$ .  
 (e) (d) の拡大図. (f) (e) の断面図.

シミュレーションにより得られた表面の RMS 粗さを図 6.3 で実験値と比較した。実験では未照射試料の粗さが 0.15nm であるため、この分は計算値との間で差が生じている。しかしそれを差し引いて比べても、計算値は実験値より少し小さい。

今回のシミュレーションで、脱離原子の数が多くなると、テラスの角が落ちて丸くなる傾向にあるのは、低配位のサイトにある原子が脱離しやすいためである。図 6.5 でダンピングを強くするためには、凹凸が 2 原子層以上ある場合、広い範囲で脱離が起こることを取り入れる必要があった。シミュレーション結果のダンピングはまだ少し弱い、 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$  の表面のモフォロジーは、原子サイズ程度の凹凸が不規則に繰り返されたものではなく、重なり合いテラスを作る。

#### 6-4. 考察

シミュレーションは、5 種類の領域の大きさをパラメータとし、照射の初期の照射量  $5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  程度までの脱離原子の量やその照射量依存における振動構造を実験結果と比較し、パラメータ決定をしたものである<sup>12)</sup>。比較した実験結果は、1keV の電子を表面温度が 400K の KBr(001) 表面に照射したときのものである<sup>5)</sup>。このときと同じような脱離原子量の振動構造は、NaCl(001) 表面に電子や真空紫外光を照射した場合や、KCl(001) 表面の電子刺激脱離による脱離原子の量にも観察されている<sup>5,7)</sup>。

このシミュレーションの結果の表面モフォロジーを調べ、3 原子層程度まで層状に原子が脱離することを確認した<sup>12)</sup>。また、層状に脱離が起こることの定量的な指標としての脱離原子量の照射量依存における振動は、10 原子層程度まで残ることを確認した<sup>12)</sup>。一方、形成されたピットの形は 1 原子層程度の脱離が起こる照射の初期であっても、不規則であった。計算結果として得られた図 6.6 (d), (e) は、図 6.2 (b) と比較し、ピットの大きさが 1/10 程度であるが、同じような不規則な形状をしている。また、これらの結果から求めた RMS 粗さを図 6.3 に示した。実験結果に比べ、値は半分程度であるが、照射量に対する依存性は共通している。これらのことから、現在実験で得られたモフォロジーや RMS 粗さは、初期には層状に剥離することが繰り返されながら形成されたものである可能性が高い<sup>12)</sup>。

シミュレーションでは、1keV 電子を 400K の KBr に照射した実験からパラメータを決めている。脱離原子の量は入射電子のエネルギーや試料および、その表面温度に依存するので、シミュレーションで求めた粗さと今回の実験データの詳細な比較はできない。特に、表面の温度によって脱離原子量の振動の周期が大きく変わることが指摘されている<sup>14)</sup>。また、入射電子のエネルギーが 5keV と比較的高いとき、照射によって振動する脱離成分の相対強度が他の機構による脱離成分に比べ相対的に多くなることも指摘されている<sup>6,15)</sup>。しかし、これらの条件が異なることによる本質的な違いはなく、我々の実験での観察も初期段階では層状に脱離する傾向を保っている<sup>12)</sup>。このことは、図 6.1(a), (b) や図 6.2(a) で示したモフォロジーが、層状にはがれていくことを裏付けたものになっていることから、理解できる。

照射量が  $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  台以上の実験結果が、層状に剥がれることが繰り返されている結果起こることを示すため、以下のように考察した；

RMS 粗さの定義式は、

$$R_M = \sqrt{\frac{1}{A} \int [f(x,y)]^2 dA}$$

で与えられる。ここで  $A$  は粗さの測定を行った面積であり、 $f(x,y)$  は座標  $(x,y)$  での基準面からの高さであり、今回は固体側を正にとる。これより、1つの電子が表面にあたったとき、シミュレーションで仮定したように、最表面が平坦でない場合も、 $f(x,y)$  が最も小さな、すなわち、真空と接しているこれらがいくつか抜けるとすれば、そのときの RMS 粗さの増分は、

$$\begin{aligned} \Delta R_M^2 &= \frac{1}{A} \int_S [f(x,y) + \theta(x,y)]^2 - [f(x,y)]^2 dA \\ &= \frac{1}{A} \int_{S_0} [2f(x,y) + 1] dA \end{aligned}$$

となる。ここで  $\theta(x,y)$  は原子が抜けた部分（すなわち、 $S_0$  の場所）のみ 1 となるステップ関数であり、 $S$  は取り扱う全表面、 $S_0$  は原子が抜けた部分を表す。

$N$  個の電子が全表面に一樣にあたったとき、それぞれの電子が最表面の原子に限り、平均的に  $S_0$  の面積だけ脱離するとすれば、

$$\begin{aligned} \Delta R_M^2 &= \frac{1}{A} \sum_{i=1}^N \int_{S_0} [2f(x,y) + 1] dA_i \\ &= \frac{NS_0}{A} \end{aligned}$$

となる。ここで、 $f(x,y)$  が正または負の値をとる確率は同等であり、

$$\sum_{i=1}^N \int_{S_0} f(x,y) dA_i = 0$$

が期待されるため、第 2 式を得た。この式は  $N$  に比例するので、結局、照射量  $\Delta q$  に比例することになる。したがって、

$$\Delta R_M^2 = c \Delta q$$

を得る。ここで  $c$  は定数である。

これより RMS 粗さは、

$$\int dR_M^2 = c \int dq$$

と書けるため、

$$R_M^2 = cq + C_0$$

となる。ここで  $C_0$  は定数である。したがって、

$$R_M = \sqrt{cq + C_0}$$

と導かれる。

実験値を用い、照射量に対し、 $\sqrt{cq + C_0}$  の関数曲線でフィットした曲線を図 6.3 に示した。結果はこれに良く乗る形であった。また、照射量がそこそこ大きくなった場合のシミュレーションの値をこの関数でフィットした曲線を図 6.3 に示した。結果はこれによく乗る形であった。したがって、今回仮定した、それぞれの電子が最表面の原子を多く脱離していく、というモデルは妥当であろう。なお、図 6.3 のシミュレーションの値に対する照射量が  $2 \times 10^{15} \text{ cm}^2$  以下の曲線は  $C_0 = 0$  としたものである。

一方、単層剥離を起こす機構の基礎は低配位のサイトにいる原子が脱離しやすいことである。そのため、2 層以上のステップができたときその壁面からの脱離も起こりやすくなることが予想できる。現実には起こっていることは、このような過程を踏まえ、小さなピラミッドを核として広がることであろう。この脱離原子量を実験と比べながら、1 つの入射電子に対する F\* 中心形成個数や拡散過程と脱離確率を与える必要がある。隣接原子数の少ないサイトにいる原子が脱離しやすいというモデルならば、2 原子層以上のステップができたとき、その側面からの脱離の可能性も検討すべきであろう<sup>12)</sup>。これに対し本節の結果はそれぞれの電子が最表面の原子を多く脱離していくことを主張したものである。実験において、 $2 \times 10^{15} \text{ cm}^2$  台以上の照射をした後、ステップの壁面からの脱離を考慮すれば、あらっぽくは、 $\Delta R_M^2$  は最表面からの脱離と壁面からの脱離の和で表されることになり、壁面から多く脱離する場合、実験結果を説明できるかどうかは結論できない。最表面の原子を多く脱離し、それに加え壁面からの脱離の寄与がある場合でも、その相対的な割合が小さければ、実験結果を説明できる可能性がある。

## 6-5. まとめ

本研究では、KCl(001)に加え、表面モフォロジーが最も報告されている KBr(001)表面に、電子線をラインスキャンおよび、2D スキャンした。このときのモフォロジー変化によって生じる表面粗さの測定値を提示し、隣接原子数の少ないサイトにある原子が脱離しやすいという条件を加えた脱離のシミュレーションの結果と比較した。このシミュレーションは最表面の原子のみを脱離させることを仮定しているが、数層までは層状に脱離し、その後この延長上に実験で得られたモフォロジーがあることを示した。RMS 粗さの実験値とシミュレーションの照射量依存性は同じものであった。電子線を多く照射した後でも、最表面の原子が脱離することを仮定して解析的な取り扱いを行い、RMS 粗さの観測値とシミュレーションで求めた値を説明した。これによって、実験で起こっている脱離は最表面の原子を多く脱離し、層状に剥がれることが繰り返され少しずつ乱れていく結果起こると可能性が高いことを確認した。

[参考文献]

- 1) I. Arakawa and T. Hirayama : Shinku (J. Vac. Soc. Jpn.), **49** (2006) 593 [in Japanese].
- 2) H. Hoche, J. P. Toennies and R. Vollmer : Phys. Rev. B, **50** (1994) 679.
- 3) W. P. Hess, A. G. Joly, K. M. Beck, D. P. Gerrity, P. V. Sushko and A. L. Shluger : Appl. Phys. Lett., **81** (2002) 1140.
- 4) J. M. Mativetsky, Y. Miyahara, S. Fostner, S. A. Burke and P. Grutter : Appl. Phys. Lett., **88** (2006) 233121.
- 5) M. Szymonski, J. Kolodziej, B. Such, P. Piatkowski, P. Struski, P. Czuba and F. Krok : Prog. Surf. Sci., **67** (2001) 123.
- 6) M. Goryl, B. Such, F. Krok, K. Meisel, J. J. Kolodziej and M. Szymonski : Surf. Sci., **593** (2005) 147.
- 7) M. Szymonski : Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., **43** (1993) 495.
- 8) Y. Fukazawa, K. Mitsuhara, K. Ochi, Y. Matsumoto, Y. Shiomi and Y. Susuki : Shinku (J. Vac. Soc. Jpn.), **50** (2007) 301 [in Japanese].
- 9) Y. Fukazawa, K. Mitsuhara, Y. Matsumoto and Y. Susuki : J. Vac. Soc. Jpn., **51** (2008) 131 [in Japanese].
- 10) Y. Fukazawa, K. Mitsuhara, Y. Matsumoto and Y. Susuki : Vacuum, **83** (2008) 653.
- 11) Y. Fukazawa, Y. Matsumoto, K. Mitsuhara and Y. Susuki : Appl. Surf. Sci., **256** (2009) 1184.
- 12) Y. Matsumoto, Y. Fukazawa and Y. Susuki : J. Vac. Soc. Jpn., **52** (2009) 411 [in Japanese].
- 13) O. Salminen, P. Riihola, A. Ozols and T. Vitala : Phys. Rev. B, **53** (1996) 6129.
- 14) J. J. Kolodziej, B. Such, P. Czuba, F. Krok, P. Piatkowski, P. Struski, M. Szymonski, R. Bennewitz, S. Schar and E. Meyer : Surf. Sci., **482-485** (2001) 903.
- 15) Z. Postawa, J. Kolodziej, P. Czuba, P. Piatkowski, A. Poradzisz, M. Szymonski and J. Fine : *Desorption Induced by Electronic Transitions DIET V, Springer Series in Surface Sciences* **31**, (Springer-Verlag, 1993) 299.



## 第7章 まとめ



## 第7章 まとめ

本研究では、高速イオンビームの表面チャネリングを用いて電子刺激脱離がおきたイオン結晶表面の構造を調べることを目的として、実験および、コンピュータ・シミュレーションを行った。ここでは、得られた成果をまとめ、今後取り組むべき課題をあげる。

### ▶ 試料表面に生成される欠陥密度分布および、入射角の違いによる、散乱イオンビームのエネルギー損失と散乱角分布の変化（第4章）

表面に形成した欠陥の密度分布及びその非均一性が、イオンビーム散乱へ与える影響を調べるために、試料表面のイオンビームに対して上流側を優先的に電子線照射し、電子線照射量に対して、エネルギー損失と散乱角分布のピークを求めた。10<sup>16</sup> cm<sup>2</sup> を超えた照射では、形成した試料表面の欠陥密度分布の違いで実験結果が大きく変わることがわかった。これらをシミュレーションと比較した結果、傾向は良く一致した。ダメージができた表面では平坦な部分での散乱とステップの部分での散乱の強度比が効いて、散乱角分布やエネルギー分布を変化させることがわかった。欠陥密度分布と入射角を同時に指定することで統一的に議論できることがわかった。

### ▶ ランダム入射とチャネリング入射で得られるエネルギースペクトルのステップ密度による変化（第5章）

KCl(001)表面に、ランダム入射と表面軸チャネリング入射の条件で陽子を入射し、それぞれのエネルギースペクトルの電子線照射量による変化を調べた。ランダム入射では、電子線照射量の増加とともにエネルギースペクトルの幅が広がった。これはステップ部分から結晶内に潜って散乱したものが、エネルギースペクトルにおいて低エネルギー側のテールを形成しこれがピークと混じりあうためであると説明できる。チャネリング入射では、軸に沿って結晶内に潜りこむため、ステップのない表面でも、エネルギースペクトルは特徴的なテールを長くひくが、表面を潜って出射した陽子の収量は10<sup>15</sup> cm<sup>2</sup> 台の照射量領域で減少した。電子線照射により、表面のモフォロジーが変化したことで、軸に沿って潜った陽子は結晶の外に出にくくなるか、検出器の位置に散乱されなくなったといえる。10<sup>16</sup> cm<sup>2</sup> 台の照射量領域では、ランダム入射と同様な散乱をおこしはじめるが、エネルギースペクトルのピークの幅はランダム入射時ほど広がらない。表面モフォロジーの変化を原子間力顕微鏡で観察すると、照射量の増加とともに単原子層のテラスが不規則な方向に重なりあった複雑な形状に変化していくことがわかった。

### ▶ 電子線照射によるチャネリング・ディップの変化（第5章）

KCl(001)表面に対してチャネリング・ディップの最小収量および、幅の照射量依存を<100>軸、<110>軸についてそれぞれ調べ、シミュレーション結果と比較した。<100>のチャネリング・ディップは照射とともに明瞭になったが<110>では浅くなった。10<sup>15</sup> cm<sup>2</sup> 台の照射量では、

軸に近づく陽子に対し、欠陥のある $\langle 100 \rangle$ チャネルは $\langle 100 \rangle$ チャネリング陽子の軌道を中断させる。対照的に $\langle 110 \rangle$ チャネリング陽子は欠陥がある表面の $\langle 110 \rangle$ 原子列での反射が弱まり、それらは多くのステップの存在により変化した(001)表面によって反射することがわかった。

$\langle 100 \rangle$ 軸周辺のチャネリング・ディップでは、ディップの底に表面の2本の原子列によって引き続いて散乱されたものによる小さなピークが、軸を中心として対称な位置に形成された。このピークの形状の変化は、原子列の幅や原子列の長さの変化に敏感であるため、ステップが数多く生成されたことによる、結晶表面の原子の位置のずれ、すなわち、表面の格子歪みについての情報を得ることができると考えられる。このことを検討するため、KBr (001)を用いてチャネリング実験を行い、KCl (001)で得られた結果と比較した。現在の実験条件において、これらのディップ内の対称な位置に現れる小さな2つのピークに関する情報から、格子歪みの差を直接見出すことは困難であった。

#### ▶ 電子刺激脱離したイオン結晶表面モフォロジーのシミュレーションと粗さ解析 (第6章)

バルクから表面に拡散してきた $F^*$ 中心が配位数の少ないサイトの原子を放出するという一連の機構の最終段階のみを領域の大きさ(パラメータ)を用いてモデル化した。脱離機構に単原子層の比較的大きなピットを脱離させるなどの層状剥離が起こる仮定を取り入れず、照射量が少ない領域で、1層ごとに脱離収量が振動する実験結果を再現した。結果として得られた表面モフォロジーは、完全ではないが、AFM像から見える特徴を再現した。この結果、 $10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の照射量では、完全にランダムに細かく荒れた表面になるのではなく、ピットが重なり合いテラスをつくるということがわかった。また、KCl(001)に加え、KBr(001)表面に、電子線をラインスキャンおよび、2次元スキャンしたときのモフォロジー変化によって生じる表面粗さの測定値を提示し、このシミュレーションの結果と比較した。RMS粗さの実験値とシミュレーションの照射量依存性は同じ形であった。電子線を多く照射した後でも最表面の原子が脱離すると仮定することによって、解析的な取り扱いを行い、RMS粗さの観測値とシミュレーションで求めた値を説明した。これによって、実験で起こっている脱離は最表面の原子を多く脱離し、層状に剥がれることが繰り返され少しずつ乱れていく結果起こるということを確認した。

#### ▶ 今後の課題

一連の実験から、イオン結晶表面の格子歪みについての知見を得られる可能性が示された。電子刺激脱離が起きたイオン結晶表面での定量的な構造解析に向け、実験方法を工夫する必要がある。また、シミュレーションとの比較において、実験結果を定量的に再現するために、表面のモフォロジーの変化とその変化による格子歪みについてより現実的なイオン結晶表面を表現する計算手法の確立を目指す。

## 謝辭



## 謝辞

本論文は大阪教育大学において、2004年から行ってきた研究成果をまとめたものである。本論文をまとめるにあたり、著者の母校の恩師である、奈良女子大学理学部 教授 小川英巳先生に懇切なるご指導をいただいた。ここに深謝の意を表す。学位論文審査にあたり、貴重なご意見、ご助言をいただいた奈良女子大学理学部 教授 比連崎悟先生、准教授 清川修二先生、准教授 山本一樹先生に感謝の意を表す。大学院在籍時より、数々のご助言、御激励をいただき、また、本研究を開始するにあたり、イオンビームに関わる実験装置の調整や加速器の使用等に関して丁寧なご指導をいただいた故 坂本直樹先生（当時 奈良女子大学理学部 教授）に深謝の意を表す。加速器の利用に関し、有益なご助言をいただいた奈良女子大学理学部 助教 石井邦和先生、技術職員 狩俣順也氏、奈良女子大学理学部 放射線物理学研究室の各位に感謝の意を表す。原子間力顕微鏡の使用について、神戸大学研究基盤センター 准教授 藤居義和先生には多大な支援を受けた。ここに感謝の意を表す。本研究の実施の機会を与えていただき、終始懇切なご指導をいただいた、大阪教育大学教育学部 教授 鈴木康文先生に深謝の意を表す。共同研究者としてご討議いただいた同大学モダン - 物性研究室の光原圭氏（現 立命館大学理工学部助手）、松本雄吾氏（現 近畿大学附属豊岡高等学校教諭）、塩見祐樹氏（現 飯塚市立鎮西中学校教諭）、越智健太氏（現 高槻市立富田小学校教諭）、池本将健氏（大阪教育大学大学院）、柴田卓氏（大阪教育大学大学院）に感謝の意を表す。また同研究室の各位には実験に協力いただいた。ここに謝意を表す。

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費（若手研究 B No.19760047）、大阪教育大学若手教員等助成経費（No.113302）および、大阪教育大学戦略的重点経費（No.117717）の支援を受けた。



## 業績



## 業績

### I 本研究に関するもの

#### a. 発表論文

1. “電子線損傷を与えたイオン結晶表面での高速陽子の散乱”  
( Scattering of fast protons on electron-irradiated surfaces of ionic crystals )  
深澤優子, 光原 圭, 越智 健太, 松本 雄吾, 塩見 祐樹, 鈴木 康文  
真空 50 (2007) 301-304. / 査読 有
2. “Scattering of fast protons at densely stepped surfaces of ionic crystals”  
Yuuko Fukazawa, Kei Mitsuhara, Yuuki Shiomi, Yuugo Matsumoto and Yasufumi Susuki  
Proceedings of the ninth international symposium on sputtering and plasma processes9 (2007)  
407-410. / 査読 無
3. “電子誘起脱離が起こったイオン結晶に対する表面チャネリングの観察”  
( Observation of electron-stimulated-desorption from ionic crystals utilizing  
the surface channeling technique )  
深澤優子, 光原 圭, 松本雄吾, 鈴木康文  
J. Vac. Soc. Jpn. 51 (2008)131-134. / 査読 有
4. “Scattering of fast protons on densely stepped surfaces of ionic crystals ”  
Yuuko Fukazawa, Kei Mitsuhara, Yuuki Shiomi, Yuugo Matsumoto,  
Yasufumi Susuki  
Vacuum 83 (2008) 653-657. / 査読 有
5. “電子線をラインスキャンし刺激脱離させたイオン結晶表面のモフォロジー”  
( Morphology of ionic crystal surface structured by ESD using a line-scan of electrons )  
松本雄吾, 深澤優子, 鈴木康文  
J. Vac. Soc. Jpn. 52 (2009) 411-415. / 査読 有
6. “MeV-ion axial surface-channeling from an electron irradiated KCl(001) surface”  
Yuuko Fukazawa, Yuugo Matsumoto, Kei Mitsuhara, Yasufumi Susuki  
Appl. Surf. Sci. 256 (2009) 1184-1190. / 査読 有
7. “電子刺激脱離した KBr(001)表面における高速陽子の表面軸チャネリング”  
( Axial surface-channeling of fast protons from an ESD - induced stepped surface of KBr(001) )  
深澤優子, 池本将健, 柴田卓, 鈴木康文  
J. Vac. Soc. Jpn. 53 (2010) 172-175 / 査読 有

## b. 学会発表要旨

1. “イオンチャネリング実験に向けたエピタキシャル薄膜に関する研究”  
深澤優子, 藤本豊大, 前原充, 若月暁, 細川太郎, 鈴木康文  
日本物理学会 第 60 回年次大会 於 東京理科大学野田キャンパス 2005/03/25
2. “薄膜を蒸着するために欠陥を形成した KCl,NaCl 表面でのイオン散乱”  
深澤優子, 藤本豊大, 越智健太, 大寺栄理子, 光原圭, 細川太郎, 若月暁, 鈴木康文  
日本物理学会 2005 年秋季大会 於 同志社大学京田辺キャンパス 2005/09/19
3. “電子線照射により欠陥を作ったアルカリ塩化物表面でのイオン散乱”  
深澤優子, 越智健太, 大寺栄理子, 光原圭, 細川太郎, 鈴木康文  
第 6 回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会 於 京都大学福井謙一記念研究センター 2005/12/17
4. “欠陥を与えたイオン結晶表面での MeV 陽子の散乱”  
深澤優子, 越智健太, 光原圭, 細川太郎, 大寺栄理子, 鈴木康文  
日本物理学会 第 61 回年次大会 於 愛媛大学・松山大学 2006/03/28
5. “電子線損傷を与えたイオン結晶表面での高速陽子の散乱”  
深澤優子, 光原圭, 越智健太, 松本雄吾, 塩見祐樹, 鈴木康文  
第 47 回真空に関する連合講演会 於 大阪大学吹田キャンパス 2006/11/08
6. “電子線照射により作られる結晶表面ステップのイオン散乱への影響”  
深澤優子, 塩見祐樹, 光原圭, 松本雄吾, 鈴木康文  
第 7 回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会 於 岡山理科大学  
2006/12/08
7. “電子線照射によりイオン結晶表面上に生成したステップでの高速陽子の散乱”  
光原圭, 深澤優子, 塩見祐樹, 松本雄吾, 鈴木康文  
日本物理学会 2007 年春季大会 於 鹿児島大学郡元キャンパス 2007/03/18
8. “Scattering of fast protons at densely stepped surfaces of ionic crystals”  
Yuuko Fukazawa, Kei Mitsuhashi, Yuuki Shiomi, Yuugo Matsumoto and Yasufumi Susuki  
The ninth international symposium on sputtering and plasma processes (ISSP 2007)  
Kanazawa Kokusai Hotel 2007/06/08
9. “電子線照射によりステップを形成した KCl 表面での高速イオンチャネリング”  
深澤優子, 光原 圭, 塩見祐樹, 松本雄吾, 鈴木康文  
日本物理学会第 62 回年次大会 於 北海道大学札幌キャンパス 2007/09/21

10. “電子誘起脱離が起こったイオン結晶に対する表面チャネリングの観察”  
深澤優子, 光原 圭, 松本雄吾, 鈴木康文  
 第 48 回真空に関する連合講演会 於 学習院大学 2007/11/14
  
11. “電子線によりステップが誘起された KCl(001)表面での MeV 陽子散乱”  
深澤優子, 光原圭, 松本雄吾, 鈴木康文  
 日本物理学会第 63 回年次大会 於 近畿大学本部キャンパス 2008/03/23
  
12. “電子線照射によって生じるイオン結晶表面の原子脱離のシミュレーション”  
 松本雄吾, 深澤優子, 鈴木康文  
 日本物理学会 2008 年秋季大会 於 岩手大学上田キャンパス 2008/09/21
  
13. “イオン結晶表面の電子刺激脱離によるモフォロジー変化の照射量依存性”  
 松本雄吾, 池本将健, 太田翔一, 深澤優子, 鈴木康文  
 京都大学量子理工学研究実験センター第 9 回公開シンポジウム 於 京都大学宇治キャンパス 2008/10/17
  
14. “MeV-Ion Axial Surface Channeling from an Electron Irradiated KCl (001) Surface”  
Yuuko Fukazawa, Yuugo Matsumoto, Kei Mitsuhara, Yasufumi Susuki  
 The 4th Vacuum and Surface Sciences Conference of Asia and Australia 於 くにびきメッセ (松江市) 2008/10/28
  
15. “電子線をラインスキャンし刺激脱離させたイオン結晶表面のモフォロジー”  
 松本雄吾, 深澤優子, 鈴木康文  
 第 49 回真空に関する連合講演会 於 くにびきメッセ (松江市) 2008/10/28
  
16. “高速陽子の散乱を用いたイオン結晶表面の構造解析”  
深澤優子  
 第 49 回真空に関する連合講演会 於 くにびきメッセ (松江市) 2008/10/28  
 (真空進歩賞受賞記念講演)
  
17. “電子刺激脱離したイオン結晶表面モフォロジーの照射量依存”  
 松本雄吾, 深澤優子, 池本将健, 太田翔一, 鈴木康文  
 神戸大学研究基盤センター若手フロンティア研究会 2008 於 神戸大学 2008/12/24
  
18. “原子脱離により起こるイオン結晶表面の表面格子歪みに対する考察”  
深澤優子, 松本雄吾, 池本将健, 太田翔一, 鈴木康文  
 日本物理学会第 64 回年次大会 於 立教大学池袋キャンパス 2009/03/28

19. “電子刺激脱離にともなうイオン結晶表面粗さ及び形状変化の解析”  
池本将健, 深澤優子, 松本雄吾, 柴田 卓, 鈴木康文  
日本物理学会 2009 年秋季大会 於 熊本大学黒髪キャンパス 2009/09/25
20. “イオン結晶表面ステップによって誘起される格子歪み測定に向けた表面モフォロジーの観察”  
深澤優子, 松本雄吾, 池本将健, 柴田 卓, 鈴木康文  
日本物理学会 2009 年秋季大会 於 熊本大学黒髪キャンパス 2009/09/25
21. “イオン結晶表面ステップにより誘起される最表面の格子歪み”  
深澤優子, 池本将健, 柴田卓, 鈴木康文  
第 50 回真空に関する連合講演会 於 学習院大学 2009/11/04
22. “欠陥が生成されたイオン結晶表面での高速陽子の散乱パターンの観察”  
鈴木康文, 池本将健, 柴田卓, 深澤優子  
日本物理学会第 65 回年次大会 於 岡山大学 2010/03/20
23. “ステップ密度を上げたイオン結晶表面で成長する金ナノ粒子や成長核”  
柴田卓, 池本将健, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 2010 年秋季大会 於 大阪府立大学 2010/09/24
24. “KBr(001) 表面の電子刺激脱離によるモフォロジー変化の観察”  
深澤優子, 池本将健, 柴田卓, 鈴木康文  
第 51 回真空に関する連合講演会 於 大阪大学コンベンションセンター 2010/11/05

## II その他

### a. 発表論文

1. “波源の振動に向けて斜めに張った糸にできる定在波を扱う物理教材の製作”  
深澤優子, 若月暁, 藤本豊大, 細川太郎, 鈴木康文  
大阪教育大学紀要V部門 54(2005) 115-122. / 査読 無
2. “研究室で製作した教材を活用した教員養成系の物理学実験”  
鈴木康文, 深澤優子, 細川太郎, 藤本豊大, 若月暁  
物理教育 53(2005) 208-212. / 査読 有
3. “磁気で物体の共鳴現象を探る物理教材の開発”  
若月暁, 深澤優子, 藤本豊大, 細川太郎, 鈴木康文  
大阪教育大学紀要V部門 54(2006) 21-28. / 査読 無

4. “手作り科学館と学校インターン制度を活用した実験教材の開発”  
大寺栄理子, 深澤優子, 越智健太, 光原圭, 細川太郎, 鈴木康文  
大阪教育大学紀要V部門 55 (2006) 17-24. / 査読 無
5. “小さな手作り科学館による物理実験と教材開発”  
鈴木康文, 大寺栄理子, 深澤優子, 越智健太, 細川太郎, 光原圭  
物理教育 54 (2006) 310-311. / 査読 有
6. “手作り移動科学館を用いた小学生教育への貢献”  
横谷真一, 中村秀俊, 廣瀬明浩, 深澤優子, 鈴木康文  
大阪教育大学紀要第V部門 56 (2007) 41-48. / 査読 無
7. “研究室学生の主導による体験型の科学館に期待できるもの”  
廣瀬明浩, 中村秀俊, 横谷真一, 光原圭, 深澤優子, 鈴木康文  
物理教育 55 (2007) 205-208. / 査読 有
8. “Measurements of Angle-Dependent Energy Losses of 5-10 keV Protons in Collisions with CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, and C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> Molecules”  
Yasufumi Susuki, Yuugo Matsumoto, Taro Hosokawa, and Yuuko Fukazawa  
Journal of the Physical Society of Japan 77 (2008) 44301 / 査読 有
9. “ガイスラー管からの X 線を用いた 3D-トモグラフィ”  
中村秀俊, 廣瀬明浩, 光原圭, 深澤優子, 鈴木康文  
物理教育 56 (2008) 125-129. / 査読 有

#### b. 学会発表要旨

1. “角度広がりを抑えた 5keV 陽子ビームの気体分子との衝突”  
細川太郎, 宮前智一, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 2004 年秋季大会 於 青森大学 2004/09/12
2. “弦を伝わる波の物理教材の開発”  
若月暁, 深澤優子, 藤本豊大, 細川太郎, 鈴木康文  
日本物理学会 2004 年秋季大会 於 青森大学 2004/09/13
3. “AMS による泥炭地の 14C 年代測定 —尾瀬ヶ原、羅臼木隠湿原の場合—”  
武村麻衣子, 深澤優子, 土田秀次, 坂本直樹, 小川英巳, 狩俣順也, 石井邦和, 相馬秀廣, 田澤雄二, 松本博, 広瀬昌憲, 中村正信  
第 7 回 AMS シンポジウム 於 京都大学大学院理学部物理学教室 2005/01/13

4. “原子の磁気共鳴に関するモデル教材の開発”  
若月暁, 藤本豊大, 細川太郎, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 第 60 回年次大会 於 東京理科大学野田キャンパス 2005/03/24
5. “5keV 陽子の炭化水素分子との衝突によるエネルギー損失の散乱角依存性”  
細川太郎, 深澤優子, 宮前智一, 若月暁, 藤本豊大, 鈴木康文  
日本物理学会 第 60 回年次大会 於 東京理科大学野田キャンパス 2005/03/25
6. “小さな手作り科学館による演示実験”  
大寺栄理子, 若月暁, 越智健太, 光原圭, 細川太郎, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 2005 年秋季大会 於 同志社大学京田辺キャンパス 2005/09/19
7. “手作り科学館出展教材を用いた小学校での授業実践”  
大寺栄理子, 越智健太, 光原圭, 細川太郎, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 第 61 回年次大会 於 愛媛大学・松山大学 2006/03/25
8. “炭化水素分子と衝突した陽子のエネルギー損失と収量の角度依存性”  
細川太郎, 深澤優子, 越智健太, 光原圭, 大寺栄理子, 鈴木康文  
日本物理学会 第 61 回年次大会 於 愛媛大学・松山大学 2006/03/28
9. “ガイスラー管と GM 管を用いた 3D トモグラフィー”  
中村秀俊, 廣瀬明浩, 横谷真一, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 2007 年春季大会 於 鹿児島大学郡元キャンパス 2007/03/21
10. “炭化水素分子と衝突した keV 陽子のエネルギー損失”  
松本雄吾, 友野由人, 細川太郎, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会第 62 回年次大会 於 北海道大学札幌キャンパス 2007/09/21
11. “ガイスラー管を X 線源として用いた 3D トモグラフィー実験の実演”  
中村秀俊, 廣瀬明浩, 松本雄吾, 光原圭, 田中達也, 塩津雄人, 深澤優子, 鈴木康文  
京都大学量子理工学研究実験センター第 8 回公開シンポジウム 於 京都大学宇治キャンパス 2007/10/19
12. “太陽電波の観測をきっかけとした高校生に対する現代物理の浸透”  
塩津雄人, 中村秀俊, 田中達也, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会第 63 回年次大会 於 近畿大学本部キャンパス 2008/03/24
13. “現代社会の中で家族が担う物理教育の現状と意義”  
柴田 卓, 池本将健, 太田翔一, 北門裕一, 松本雄吾, 塩津雄人, 深澤優子, 鈴木康文  
日本物理学会 2008 年秋季大会 於 岩手大学上田キャンパス 2008/09/20

14. “現代社会の中で家族が担う物理教育の現状と意義－PART2”  
柴田卓，太田翔一，松本雄吾，深澤優子，鈴木康文  
日本物理学会第 64 回年次大会 於 立教大学池袋キャンパス 2009/03/28
15. “手回し発電機を用いた電気エネルギーの利用実験”  
高瀬あさみ，柴田卓，池本将健，青木迪崇，岡本裕亮，土井良子，岡森一洋，上田陽平，深澤優子，鈴木康文  
京都大学量子理工学研究実験センター第 10 回公開シンポジウム 於 京都大学宇治キャンパス 2009/10/23
16. “大学の地域貢献における理科教育の現状とこれからの取り組み”  
岡本裕亮，青木迪崇，土井良子，深澤優子，鈴木康文  
日本理科教育学会近畿支部大会 於 大阪教育大学 2009/11/28
17. “大学発地域貢献の課題と物理分野における今後の取り組み”  
岡本裕亮，土井良子，池本将健，青木迪崇，深澤優子，鈴木康文  
日本物理学会第 65 回年次大会 於 岡山大学 2010/03/21
18. “近代以前のテクノロジーに着目した物理教材の開発”  
土井良子，神谷光一，池本将健，柴田卓，深澤優子，鈴木康文  
日本物理学会 2010 年秋季大会 於 大阪府立大学 2010/09/24
19. “フラッシュ蒸着法を利用した中・高等学校での科学アートの製作”  
神谷光一，深澤優子，池本将健，柴田卓，土井良子，西村依泰，山崎雅子，田村幸司，岡森一洋，鈴木康文  
京都大学量子理工学研究実験センター第 11 回公開シンポジウム 於 京都大学宇治キャンパス 2010/10/22

### c. その他

1. “加速器質量分析法による尾瀬ヶ原泥炭層の年代測定”  
深澤優子，坂本直樹，土田秀次，小川英巳，狩俣順也，相馬秀廣，田澤雄二，松本博，広瀬昌憲，中村正信  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」 於 奈良女子大学 2003/01/14
2. “チャネリングイオンのエネルギー損失を目的とするエピタキシャル薄膜の作製”  
深澤優子，藤本豊大，前原充，若月暁，細川太郎，鈴木康文  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」 於 奈良女子大学 2005/1/8

3. “1mrad 以下に絞った keV 陽子の炭化水素分子での散乱”  
細川太郎, 深澤優子, 越智健太, 光原圭, 大寺栄理子, 鈴木康文  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」於 岡山理科大学 2005/12/23
4. “炭化水素分子と衝突した 5–10keV 陽子のエネルギー損失”  
松本雄吾, 友野由人, 細川太郎, 深澤優子, 鈴木康文  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」於 奈良女子大学 2007/1/13
5. “電子刺激脱離が起こった KCl 表面での高速陽子の小角散乱”  
光原 圭, 深澤優子, 松本雄吾, 後藤友彦, 小嶋祥吾, 鈴木康文  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」於 大阪府立大学 2008/1/12
6. “電子刺激脱離によって放出されるイオンの収量とエネルギー測定に向けた分析器の製作”  
北門裕一, 太田翔一, 松本雄吾, 深澤優子, 鈴木康文  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」於 京都大学宇治キャンパス 2009/1/10
7. “イオン結晶表面のレプリカ法によるモフォロジー観察の試み”  
柴田卓, 高瀬あさみ, 上田陽平, 池本将健, 深澤優子, 鈴木康文  
フォーラム 21 「イオンビームを用いた物理とその応用」於 奈良女子大学 2010/1/9