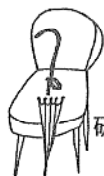


# 気相雰囲気における表面プロセスの イオンビームその場計測法の開拓



研究ノート

片山 光浩\*

## Development of Ion Scattering and Recoiling Spectroscopy for In-situ Monitoring of Surface Processes in Gas Phase Atmosphere

**Key Words** : surface processes in gas phase atmosphere, co-axial impact-collision ion scattering spectroscopy(CAICISS), time-of-flight elastic recoil detection analysis(TOF-ERDA), differential pumping

### 1. はじめに

最近、半導体表面上に種々の薄膜材料を成長させる際に、 $10^{-6} \sim 10^{-4}$  Torr程度の励起水素を介在させると、サーファクタント効果などにより極めて高品質の半導体膜あるいは新規な極微構造膜の成膜が可能であることが報告され注目されている<sup>1-3)</sup>。このような現象においては、気相の励起水素と半導体表面との相互作用素過程が鍵を握っているにもかかわらず、その原子スケールメカニズムについてはほとんど未解明のままである。その最大の原因として、表面近傍に存在する水素原子の挙動など、励起水素の気相雰囲気における表面動的過程をその場観察することが特に困難なことが挙げられる。この現象に限らず、一般に、化学気相成長(CVD)やガスソース分子線エピタキシー(GSMBE)など、気相と表面との相互作用が関与する種々の現象について研究を進めるためには、気相雰囲気における表面プロセスをその場計測することが必要である。しかしながら、その場計測の実験は、水素原子などの反応性のガス雰囲気という過酷な環境下で行わなければならないので、既存の表面解析手法をそのまま採用することはできず、限られたいくつかのその場計測法により断片的に調べられているのが現状である。特に、気

相雰囲気下での表面の組成や表面水素の挙動の分析については、従来の手法では困難であり、これらをその場計測する新しい手法の開発が待ち望まれている。

この要請に応える有望な手法として、筆者らが開発した、低速イオンをプローブとする同軸型直衝突イオン散乱分光法(CAICISS)<sup>4)</sup>と、飛行時間型弾性反跳粒子検出法(TOF-ERDA)<sup>5)</sup>とを相補的に組み合わせる手法がある。このCAICISS/TOF-ERDA法は、イオンの散乱・反跳断面積が大きいため、表面における水素の挙動などの表面プロセスをその場計測するのに適している。最近筆者らは、CAICISS/TOF-ERDA複合装置において、イオンビーム輸送経路および検出器の部分に差動排気機構を設けることにより、気相雰囲気における表面プロセスのイオンビームその場計測が可能な装置を開発した。本稿では、同装置とその応用例について紹介する。

### 2. 気相雰囲気下表面プロセスその場計測用 CAICISS/TOF-ERDA 複合装置

図1に本装置の原理と概略図を示す。CAICISS/TOF-ERDA複合装置のイオンビーム輸送経路および検出器(マイクロチャンネルプレート)の部分に、それぞれ2基のターボ分子ポンプと2段のオリフィスを設けた差動排気機構が導入されている。検出器が動作可能な真空度は $10^{-6}$  Torr以下であり、気相雰囲気下で測定を行う場合、検出器の周囲を $10^{-6}$  Torr以下の真空度に保つ必要がある。図2は膜成長室と差動排気された検出器部分の真空度の関係を測定した結果である。差動排気により検出器部分の真空度が試料周りの真空度より2桁程度向上しており、従来のイオンビーム分析装置では困難な、 $10^{-6} \sim 10^{-4}$



\* Mitsuhiro KATAYAMA  
1962年6月1日生  
昭和60年大阪大学・工学部・電子工  
学科卒業  
現在、大阪大学大学院・工学研究科・  
電子工学専攻、助教授、工学博士、  
表面科学  
TEL 06-6879-7776  
FAX 06-6879-7780  
E-Mail katayama@ele.eng.  
osaka-u.ac.jp

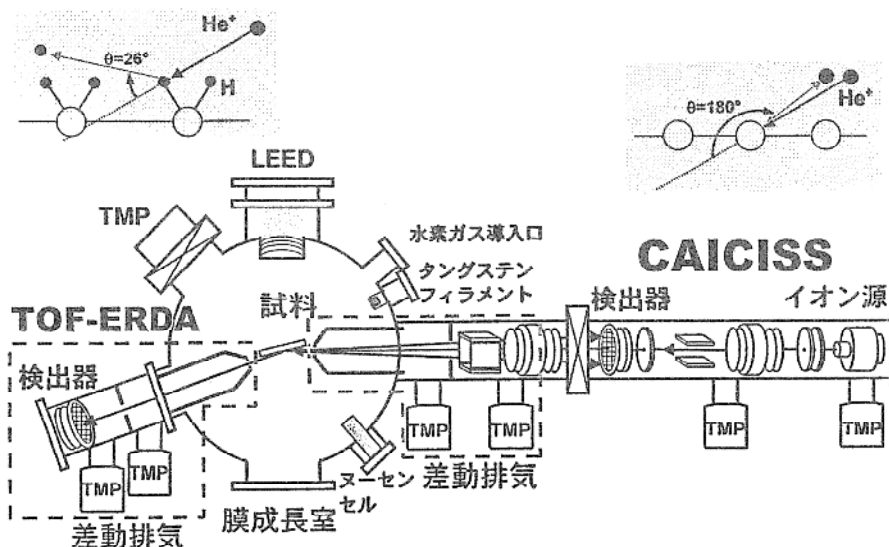


図1 気相雰囲気下表面プロセスその場計測用CAICISS/TOF-ERDA装置

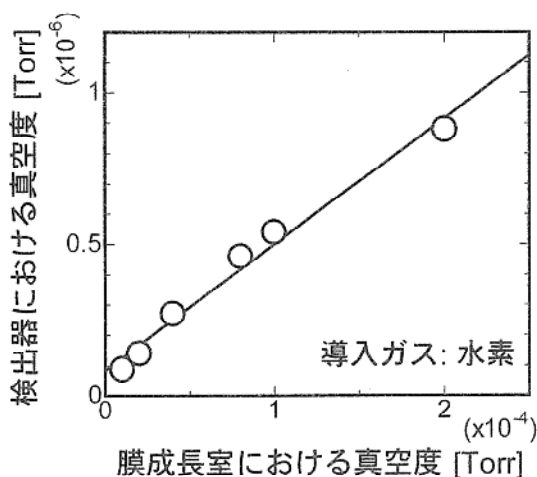


図2 差動排気機構の性能

Torrの気相雰囲気における表面プロセスのその場計測を行うことが可能ながわることになる。

CAICISSの装置においては、イオン源と飛行時間型エネルギー分析器とが同軸上に一体化されている。イオン源を出たkeV程度の低速イオンビームは、チョッピング偏向器とチョッピングアパチャーによってパルス化され、差動排気されたイオンビーム光学系(偏向器・レンズ)を通過し、試料に到達する。この際、イオンが2段のオリフィスの中心を通過できるように、イオンのビーム径と軌道がイオンビーム光学系によって最適化されている。試料によって散乱された粒子のうち、散乱角180°で完全に後方散乱

された粒子が、差動排気された検出器によって検出され、飛行時間法によって散乱粒子のエネルギースペクトルが測定される。この測定により、気相雰囲気下の試料表面の組成と構造をリアルタイムでその場計測できる。一方、TOF-ERDA装置においては、低速イオンによって反跳角26°の方向に反跳された軽元素の原子が、差動排気された検出器によって検出され、飛行時間法によって反跳粒子のエネルギースペクトルが測定される。この測定により、気相雰囲気下の試料表面における、表面水素をはじめとする軽元素の絶対量をリアルタイムでその場計測できる。

### 3. 応用例

同装置の応用例として、水素雰囲気下におけるSi表面上のGe薄膜成長をリアルタイムでその場観察した結果を紹介しよう。Si(001)表面に平坦で欠陥のないGe層を成長させることは、Ge-Si超格子の電子輸送特性を改善するうえで重要である。しかしながら、SiとGeには4.2%の格子不整合があるためにGeを臨界膜厚(約3ML)を越えて成長させると、layer-by-layer成長から島状成長に成長様式が変化する(S-K成長)。ここで、Ge成長中に原子状水素を添加すると、水素原子がサーファクタントとして働き、臨界膜厚を越えてもlayer-by-layer成長が続くことが報告されている<sup>2,3)</sup>。ここでは、新たに製作した気相雰囲気下で観察が可能なCAICISS/TOF

-ERDA装置(図1)を用いて、原子状水素雰囲気中のSi(001)表面上のGe薄膜成長をリアルタイムでその場計測し、水素の流量を変化させた場合、水素サーファクタント効果のGe成長条件依存性について調べた<sup>6)</sup>。なお、以下で紹介するデータはすべて2keVのHe<sup>+</sup>イオンを用いて測定したものである。

図3は基板温度300℃で(a)水素を供給せずにGe薄膜を成長させた場合、(b)水素分圧1×10<sup>-4</sup>Torrの条件で水素を供給しながらGe薄膜を成長させた場合のCAICISSスペクトルである。Geの蒸着量が増えるにしたがって、Ge原子による散乱強度が増加している。このうち、Ge原子によって多重散乱を受けた粒子の強度(図中の斜線部分)は、成長したGe膜の平坦性に関する情報を含んでいる。Ge膜が比較的厚い領域においては、入射したHe<sup>+</sup>イオンは多重散乱を受けやすく、逆に薄い膜では多重散乱が起こりにくい。つまり、この多重散乱強度はGe膜厚に依存して大きくなる。GeがS-K成長した場合、島以外の領域におけるGe膜厚は薄くなることから、層状に成長したGe薄膜よりも多重散乱強度が小さくなる。すなわち、多重散乱強度が大きいほど平坦なGe薄膜が成長している。図3において、水素を

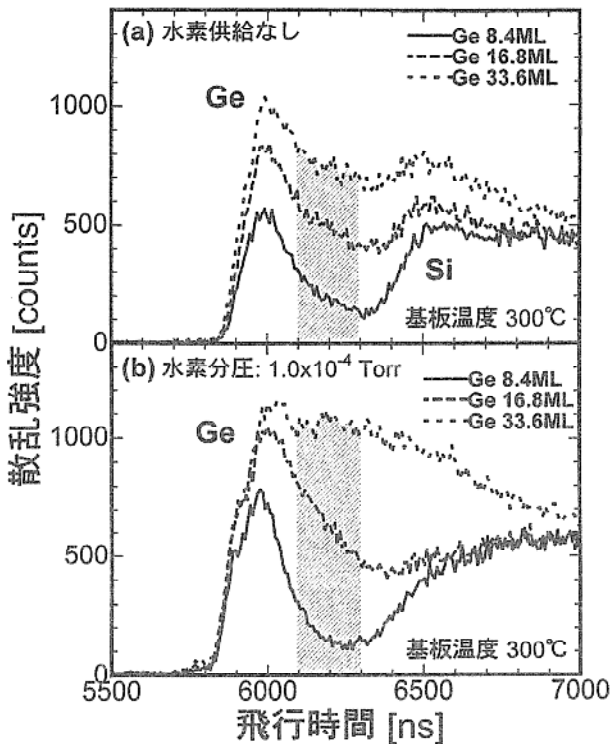


図3 Ge薄膜成長時における水素供給の有無によるCAICISSスペクトルの変化

供給しながらGeを成長させた場合(b)、水素供給なしの場合(a)に比べてGe原子による多重散乱強度の増加がより顕著であることから、水素サーファクタント効果によりGe薄膜の平坦化が実現されていることがわかる。

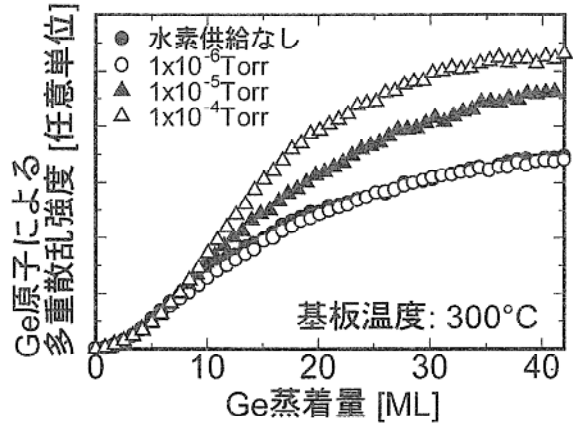


図4 Ge原子による多重散乱強度の水素供給量依存性

図4は基板温度300℃で、水素の供給量を変化させてGeを成長させたときの、CAICISSスペクトルにおけるGe原子による多重散乱強度の変化をプロットしたものである。水素供給量を増やすにしたがって、Ge原子による多重散乱強度が増加しているのがわかる。すなわち、水素サーファクタントによるGe薄膜の平坦化は、水素供給量を増やすほど、より効果的になるといえる。

Si表面上Ge成長の水素サーファクタント効果については、これまでの我々の研究から、最も平坦なGe薄膜を成長させるには、基板温度および水素供給量に最適値が存在することを報告している<sup>7)</sup>。ところが、今回の実験において水素供給量に最適値は観察されなかった。このように結果が異なった原因として、原子状水素の供給方法の違いによる水素の表面吸着レートの差が挙げられる。今回の実験では、H<sub>2</sub>ガスをチャンバー内に満たし、チャンバーの別のポートに設置されたWフィラメント(1600℃)を用いて解離吸着した。これに対して、前回の実験では、H<sub>2</sub>ドーサーを用いた。これはH<sub>2</sub>ガスをノズルから試料に向けて直接噴射し、その噴射口の先に設置されたWフィラメント(1600℃)により、解離吸着をおこなうものである。すなわち、同じ水素分圧における水素吸着レートは、前回の実験のほうが大きいと考えられる。そのため、今回の実験においては、水

素供給が過多となる条件までには至らず、水素供給量の増加と共にGe薄膜の平坦性が向上する結果となったものと思われる。

#### 4. ま と め

固体表面の組成と構造および表面水素の定量が可能な、イオンビームをプローブとする低速イオン散乱・反跳分光(CAICISS/TOF-ERDA)装置において、イオンビーム輸送経路および検出器の部分に差動排気機構を設けることにより、気相雰囲気下の種々の表面プロセスをその場計測できる装置を開発した。同装置は、従来のその場観察法では困難であった、気相雰囲気下での表面組成の絶対量と表面構造の同時その場観察が実現できるため、化学気相成長(CVD)、ガスソース分子線エピタキシー(GSMBE)、ドライエッチングプロセスなどの気相雰囲気下の材料創製プロセスのモニタリングとその精緻な制御において広範な応用が期待できるものと考えている。

#### 謝 辞

本研究は、以下の共同研究者とともに行ったものであり、ここに記して感謝致します。

共同研究者：尾浦憲治郎，藤野俊明，山崎宥人，  
井上真一（所属は大阪大学）

#### 参 考 文 献

- 1) K. Oura, V. G. Lifshits, A. A. Saranin, A. V. Zotov and M. Katayama, Surf. Sci. Rep. 35 (1999) 1.
- 2) A. Sakai and T. Tatsumi, Appl. Phys. Lett. 64 (1994) 52.
- 3) S. -J. Kahng, Y. H. Ha, J. -Y. Park, S. Kim, D. W. Moon and Y. Kuk, Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 4931.
- 4) M. Katayama, E. Nomura, N. Kanekama, H. Soejima and M. Aono, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 33 (1988) 857.
- 5) T. Fuse, J.-T. Ryu, T. Fujino, K. Inudzuka, M. Katayama and K. Oura, Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) 1359.
- 6) T. Fujino, M. Katayama, Y. Yamazaki, S. Inoue, J.-T. Ryu and K. Oura, in preparation.
- 7) T. Fujino, T. Fuse, E. Tazou, T. Nakano, K. Inudzuka, K. Goto, Y. Yamazaki, M. Katayama and K. Oura, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 161-163 (2000) 419.

