

非晶質薄膜中のイオントラックの透過顕微鏡による直接観察

Direct observation of ion tracks in amorphous thin films using TEM

木村 健二¹⁾ 森田 陽亮¹⁾ 中嶋 薫¹⁾ 松田 誠²⁾ 左高 正雄²⁾

Kenji KIMURA Yousuke MORITA Kaoru NAKAJIMA Makoto MATSUDA Masao SATAKA

¹⁾京都大学 ²⁾原子力機構

200 MeV の Au³²⁺イオンと炭素薄膜を通過して荷電平衡状態になった 200 MeV の Kr イオンを 20 nm の SiO₂ 薄膜と 30nm の Si₃N₄ 薄膜に照射して、透過電子顕微鏡でイオントラックの観察を行った。その結果、200 MeV の Au³²⁺イオン照射により、SiO₂ 薄膜と Si₃N₄ 薄膜の両方にイオントラックが形成されていることがわかった。一方、200 MeV の Kr イオン照射では、いずれの膜にもイオントラックが見られなかった。

キーワード：イオントラック、シリコン窒化膜、高速重イオン

1. 目的

高速重イオンにより物質中に形成されるイオントラックに関しては多くの研究がなされており、電子的阻止能が物質に依存する閾値を越えるとイオントラックが形成されることが知られている。試料が結晶の場合は、透過電子顕微鏡 (TEM) によりイオントラックの詳細な構造が直接観察されているが、非晶質中に形成されたイオントラックはコントラストが弱いため、TEM による観察は困難と考えられていた。実際にこれまで TEM による非晶質中のイオントラック構造の観察例は報告されておらず、ラマン分光などの間接的な方法での研究がほとんどであった。最近 X 線小角散乱法 (SAXS) により、SiO₂ 中のイオントラックが、密度の低下したコア部分とその周りをシェル状に取り巻いた密度が増加した領域からなる、core-shell 構造をとっていることが明らかになった[1]。しかしながら、より詳細な構造の情報は SAXS では得ることが難しい。

最近我々は、サブ MeV の C₆₀ イオンを Si₃N₄ 薄膜に照射した時に、TEM で明瞭に観察できるイオントラックが形成されていることを見出した(ref)。さらに、scanning transmission electron microscopy (STEM) による定量的な観察により、SAXS により観察された SiO₂ 中のイオントラックと同様に、Si₃N₄ 中でも core-shell 構造をもったイオントラックが形成されることが明らかになった[2]。サブ MeV の C₆₀ イオンの Si₃N₄ 中の阻止能は 20 keV/nm 程度であり、核的阻止能と電子的阻止能がほぼ同程度の大きさである。このため核的阻止能の効果が寄与している可能性が高い。本研究では、核的阻止能が無視できる高エネルギー重イオンによる非晶質中のイオントラック形成について調べて、電子的阻止能と核的阻止能のいずれがイオントラックの形成に寄与しているのかを明らかにすることを目的としている。

2. 方法

電子顕微鏡のメッシュサイズのシリコンフレームに保持された、20 nm の SiO₂ と 30nm の Si₃N₄ の薄膜を試料ホルダーに固定し、表面に垂直方向に、原子力機構のタンデム加速器で加速された 200 MeV の Au イオンと 200 MeV の Kr イオンを 1×10¹¹ cm⁻² 程度のフルエンスで照射した。阻止能はイオンの電荷に依存し、平衡電荷からずれた荷電状態で入射すると、試料中を進むにつれて荷電状態が変化し、それに応じて阻止能も変化することになるため、阻止能依存を調べる際に問題となる。このため、Au イオン照射の場合は、炭素薄膜を透過させたのち、マグネット で荷電状態を分析して、最も多い Au³²⁺ イオンを選び出して試料に照射した。また、Kr イオンの場合は、試料の直前に炭素薄膜を設置して、ほぼ荷電平衡の状態になった Kr イオンを試料に照射した。

照射した試料を、京都大学物質-細胞統合システム拠点 (iCeMS) の透過電子顕微鏡 (JEM-2200FS) により観察した。電子線の加速電圧は 200 kV で通常の TEM モードおよび STEM モードの両方で観察を行った。

3. 結果及び考察

図 1 に 200 MeV の Au³²⁺ イオンを照射した SiO₂ と (a) と Si₃N₄ の薄膜 (b) の TEM 像を示した。いずれの TEM 像にも 2~3 nm 程度の大きさの白い照射痕が見えている。これは 200 MeV の Au³²⁺ イオン照射により、密度の低下したイオ

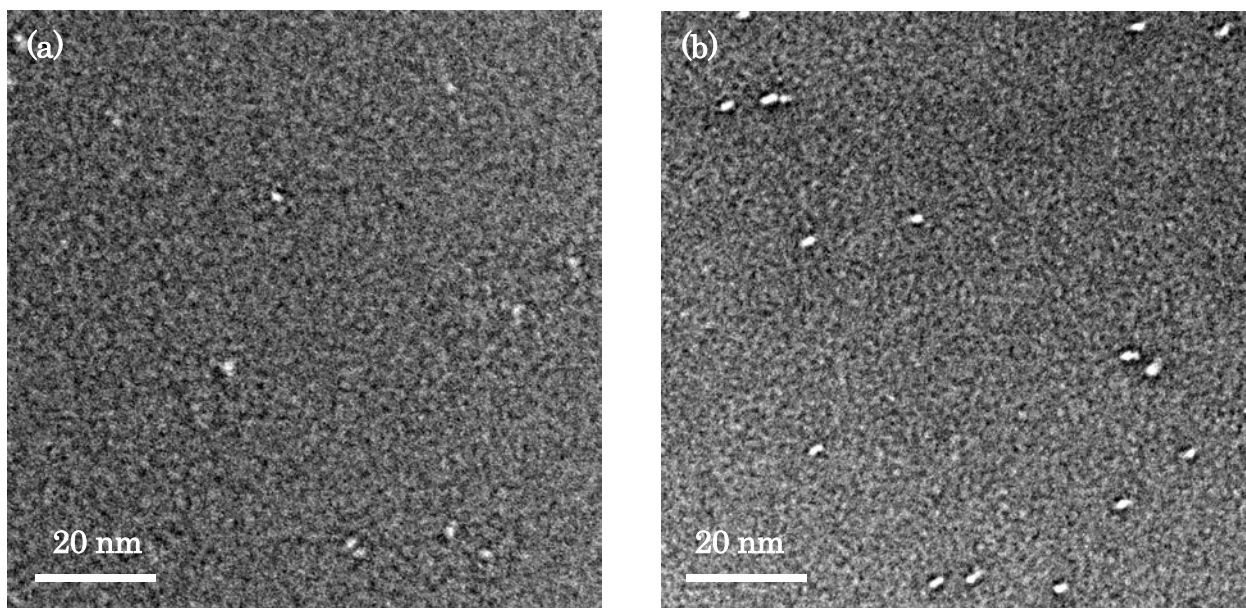


図1 200 MeVの Au^{32+} イオンを照射した SiO_2 と(a)と Si_3N_4 の薄膜(b)のTEM像

ントラックが形成されたことを示している。両者を比べると、 SiO_2 薄膜のイオントラックの方が大きさは少し大きく見えるが、あまり明瞭なコントラストを示していない。 SiO_2 および Si_3N_4 中の、200 MeVの Au^{32+} イオンの阻止能はそれぞれ18 keV/nm、28 keV/nmであり、 Si_3N_4 中のイオントラックが SiO_2 に比べてより明瞭に観察できたのは、阻止能の違いが原因である可能性が高い。

また、図2には試料を25度傾斜して観察したTEM像を示した。いずれの試料でも長く伸びたイオントラックが観測され、照射痕が表面だけに存在するのではなく、膜中を貫通していることを示している。これらのTEM像を詳しく見ると、イオントラックはイオンのパスに沿って不連続のように見える。特に SiO_2 薄膜の場合には、傾斜していない場合と同様に、イオントラックの像は明瞭ではない。また、ここには示していないが、200 MeVのKrイオン照射では、どちらの試料にもTEM像には照射痕は認められなかった。これは、200 MeVのKrイオンの阻止能は SiO_2 で10 keV/nm、 Si_3N_4 で15 keV/nmと、200 MeVの Au^{32+} イオンに比べて小さいため、イオントラックが形成されなかったのか、形成されても今回のTEMでは観測できないほど小さなイオントラックであった可能性が高い。

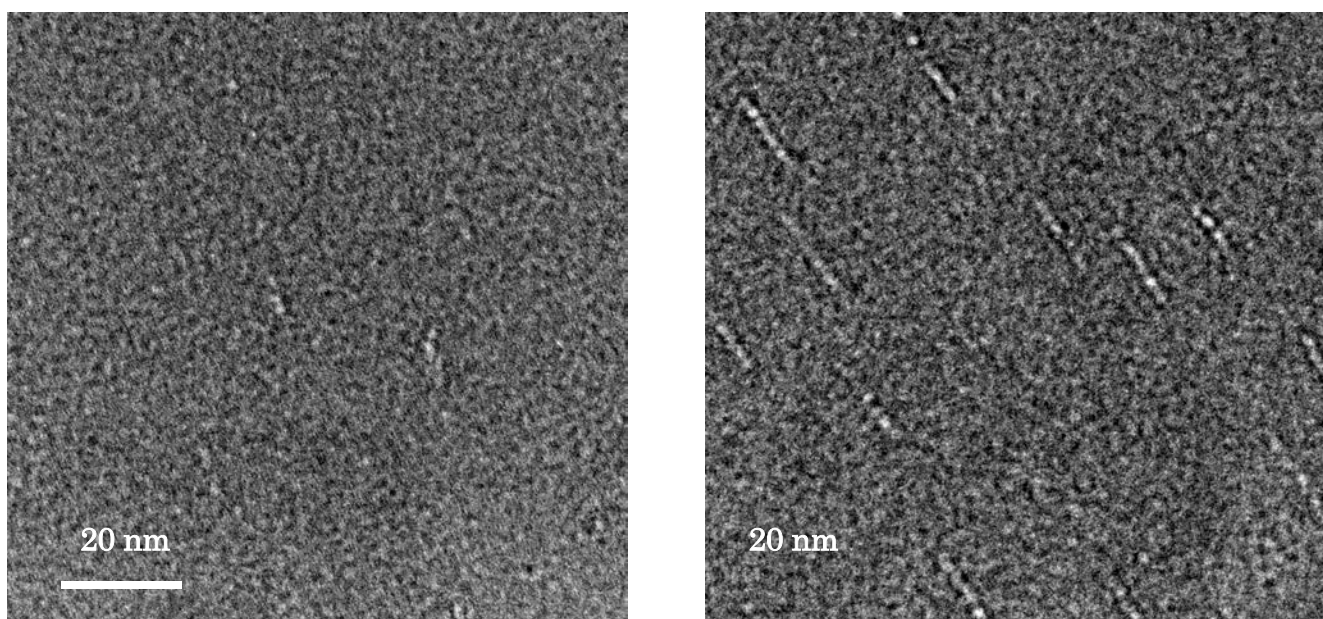


図2 200 MeVの Au^{32+} イオンを照射した SiO_2 と(a)と Si_3N_4 の薄膜(b)の傾斜TEM像。試料を25度傾けて観察している

4. 引用(参照)文献等

- [1] P. Kluth, C.S. Schnohr, O.H. Pakarinen, F. Djurabekova, D.J. Sprouster, R. Giulian, M.C. Ridgway, A.P. Byrne, C. Trautmann, D.J. Cookson, K. Nordlund, M. Toulemonde, Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 175503.
- [2] K. Nakajima, Y. Morita, M. Suzuki, K. Narumi, Y. Saitoh, N. Ishikawa, K. Hojou, M. Tsujimoto, S. Isoda and K. Kimura, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **291** (2012) 12.