

(論文)

# 大立体角ラザフォードバックスキヤタリング分析装置の開発

Development of a New Spectrometer for Rutherford Backscattering Spectrometry



小林 明\*  
Akira Kobayashi



一原主税\*  
Chikara Ichihara



濱田 衛\*(工博)  
Dr. Mamoru Hamada



井上憲一\*(工博)  
Dr. Kenichi Inoue



前原正明\*\*\*  
Masaaki Maehara



吉成聡志\*\*\*  
Satoshi Yoshinari

A high-resolution and high-speed composition analysis technique and system for ultra-thin films based on RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) is currently being developed. The system makes it possible to analyze the composition of nanometer-thick thin films such as high-k gate dielectric films and thin films magnetic heads with high depth resolution, high-speed measuring, and non-destructiveness without standard reference materials.

まえばき = 近年半導体デバイス分野において素子の小型化が年々進展しており、表面構造はナノメートルレベルまで薄膜化されつつあり、原子層レベルでの膜厚や組成の制御が必要となりつつある。たとえば新しいメモリ素子である MRAM など用いられる TMR (Tunneling MagnetoResistive) 構造では、磁性膜間の絶縁層はオングストローム以下の精度の管理が求められている。また、半導体トランジスタのゲート絶縁膜においては従来のシリコン酸化膜換算で 2nm 以下の厚さが必要となる。このような原子層レベルの薄膜の膜厚測定や組成分析は、二次イオン質量分析法 (SIMS) や断面 TEM 観察などの従来表面分析法では困難になってきている。

この課題に対応するため、当社では中エネルギー (~500keV) のヘリウムイオンを用い、90°の偏向磁場型エネルギー分析器を搭載した高分解能ラザフォード後方散乱 (RBS) 分析装置を販売している<sup>1),2)</sup>。これは、試料に入射したイオンがある確率で試料中の元素から散乱される効果を利用して、散乱イオンのエネルギーを測定することで深さ方向の組成分析を行うものである。しかしながらこの装置は、全空間に広がる散乱イオンのうち 1mm 程度の開孔を通過した分のみ検出するため、軽元素や濃度の低い元素の分析を行う場合は検出効率が低く測定時間が長くなったり、試料にダメージが生起する可能性がある。そこで筆者らは、新しい散乱イオン捕捉光学系により高効率で散乱イオンを検出可能とする、新しいタイプの高速度高分解能分析が可能な RBS 分析装置を開発している。本稿では、この装置の概要と現在の開発状況について説明する。

## 1. RBS の原理と特徴

高エネルギーイオンを用いた表面分析手法である RBS

法は、試料中の元素の種類、組成を深さ方向に非破壊、定量的に比較的短時間で測定できるという特長をもち、試料の深さ方向の定量分析手段として用いられている。これは、図 1 に示すように試料表面に入射された高エネルギーのイオンと試料構成原子と核同士の衝突による弾性後方散乱を基本現象としている。入射イオンは、ヘリウムなどの軽イオンを用い、結晶格子をほとんど破損せずに試料原子と衝突し、試料原子質量に応じたエネルギーで弾性散乱される。さらに試料内を通る際に、イオンは電子雲と非弾性散乱を起こし衝突位置の深さに比例したエネルギー損失が加わり、また散乱されるイオンの数は元素の数に比例する。したがって散乱イオン数のエネルギー分布は、試料表面下の元素組成と深さ分布の情報を有しており、この情報を解析することで試料表面の組成分布を求めることができる。特に散乱イオンのエネルギーを高分解能で分析することにより、単原子層レベルでの組成分析が可能となる。この方法は原理的に非破壊的で、原子核散乱という物理公式で厳密に規定された現象に基づく

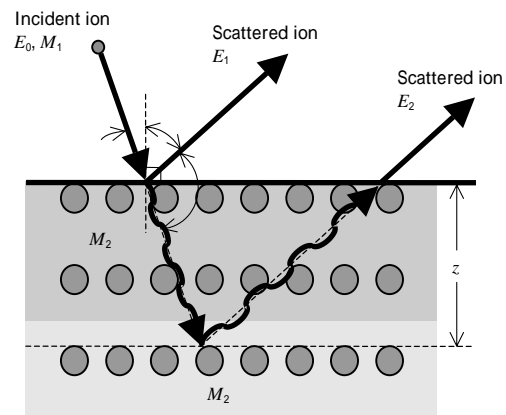


図 1 RBS 分析法の原理  
Fig. 1 Principle of RBS analysis

\*技術開発本部 電子技術研究所 \*\*技術開発本部 生産システム研究所 \*\*\*機械エンジニアリングカンパニー 開発センター

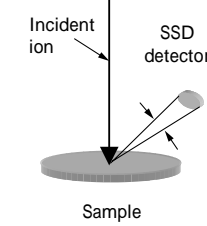
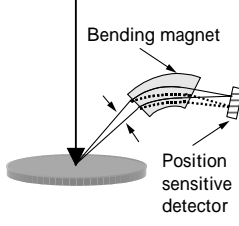
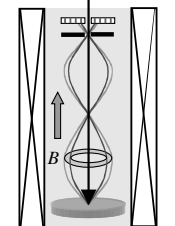
	Conventional RBS	High resolution RBS	High solid angle RBS
Principle and characteristics	Energy resolution : low	Energy resolution : high	Energy resolution : high
	Solid angle : medium	Solid angle : small	Solid angle : large
			
Spectrometer type	Solid state detector	Bending magnetic	Cylindrical magnetic field

図2 各種RBS分析手法の比較  
Fig. 2 Comparison of various RBS techniques

ため、信頼性と定量性に極めてすぐれた分析手法である。

従来行われているRBS分析法(図2左)では、散乱イオンを試料の上流に設置したコイン型の半導体検出器で検出する。散乱イオンの捕捉効率は検出器の感受面積の張る立体角で表され、1~2mstrad程度で、またエネルギー分解能は約15keV(深さ分解能換算~3nm)であり、ナノメートルレベルの薄膜分析には向かない。また、当社で販売している常電導の偏向電磁石を用いてエネルギー分解能を高めた高分解能RBS分析装置(図2中央)の場合、エネルギー分解能は~1.0keV(~0.2nm<sup>2</sup>)と半導体検出器に比べて1桁以上良いため、深さ分解能は向上するが立体角は逆に0.4mstrad程度と小さい。

本稿で述べる新しい光学系は、あらゆる方向に生成する散乱イオンを効率よく捕捉するため、図2右に示すように超電導マグネットを用いた強磁場・軸対称分光系とし、試料から検出器までの散乱イオン検出空間全体をビーム軸と平行かつ一様な強磁場空間とすることで、同一散乱角をもつイオンを全周にわたって捕集し、短時間かつ高分解能な測定が可能となる。

## 2. スペクトロメータの分析原理

本スペクトロメータは、RBS分析手法の高深さ分解能性と短い分析時間を両立させるために、無冷媒超電導マグネットを用い散乱イオン検出空間全体にわたって強力磁場を発生させ、全方位角に散乱したイオンを捕捉する。図3に散乱イオン捕捉部(スペクトロメータ部)の概要を示す。加速された高エネルギーイオンは、スペクトロメータ上部から入射し下部に設置された試料に入射する。入射したイオンの一部は試料内元素と衝突し弾性散乱により後方に散乱されるが、ビーム軸と平行な磁場によりサイクロトロン運動を行い、特定の散乱角、散乱エネルギーEの散乱イオンは、試料から距離Lの位置に設けたエネルギー分離アパーチャ中心部にいったん収束した後、再度軸から離れ、エネルギー分離アパーチャから距離lにあるイオン2次元位置検出器に入射する。

ここで、磁場強度B、イオン質量m、電荷qとすると

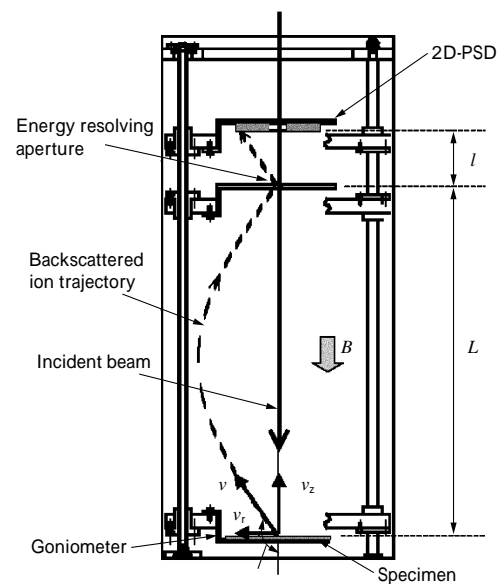


図3 円筒磁場を用いたスペクトロメータの構造  
Fig. 3 Schematic diagram of spectrometer using cylindrical magnetic field

イオン速度  $v = \sqrt{\frac{2qeE}{m}}$  であり、このうち水平方向の速度成分は  $v_r = v \sin \theta$ 、垂直方向の速度成分は  $v_z = v \cos \theta$  と表され、サイクロトロン周波数  $\omega_c = \frac{qe}{m} B$  である。これらの式をもとに、検出器上のイオン位置(中心軸からの距離)  $d$  を計算すると、

$$d = 2 \frac{v_r}{\omega_c} \left| \sin \left( \frac{l}{L} N \right) \right| \dots \dots \dots (1)$$

となる<sup>3)</sup>。ここにNは、散乱イオンが試料からエネルギー分離アパーチャに到達するまでのサイクロトロン運動周回数である。

なお、Lは次式を満たす。

$$L = \frac{2N}{\omega_c} v_z \dots \dots \dots (2)$$

散乱イオンエネルギーは2次元検出器上の位置に換算されるため、もっとも分解能よく分析できるための条件は(1)式から検出器上でビームサイズのもっとも広がる

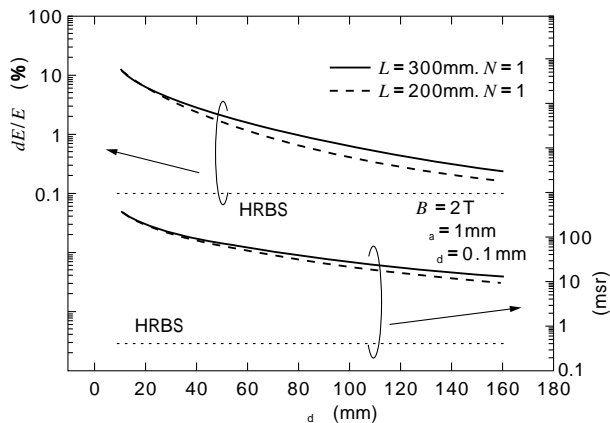


図4 本分析装置におけるエネルギー分解能と立体角の計算結果  
Fig. 4 Calculation results of energy resolution and solid angle

$$L = 2IN \dots\dots\dots(3)$$

の条件の場合である。したがって、以下の議論は(3)の条件に基づいて進める。

いったんエネルギー分離アパーチャの中心に収束し、イオン2次元位置検出器の  $d$  の位置に入射した散乱イオンのエネルギーおよび散乱角は、次式で表される。

$$E(d) = \frac{m}{2}(v_r^2 + v_z^2) = \frac{m}{8} \left( \frac{c}{d} \right)^2 \left( d^2 + \left( \frac{L}{N} \right)^2 \right) \dots\dots\dots(4)$$

$$\theta(d) = \arctan\left(-\frac{v_r}{v_z}\right) = \arctan\left(-\frac{N}{L} \frac{d}{d}\right) \dots\dots\dots(5)$$

したがってイオンの検出器上への入射位置を精密に計測することにより散乱イオンのエネルギーが分かり、 $d$  と入射イオン数の関係を測定することで試料の深さ方向の組成分析が可能となる。

また、本スペクトロメータのエネルギー分解能  $E$  および立体角  $\Omega$  は次式で表わされる。

$$E = \sqrt{(E_a)^2 + (E_d)^2} = \sqrt{\left(\frac{m}{2N} \frac{c}{d} \frac{a}{\tan^2(\theta)}\right)^2 + \left(\frac{m}{4} \frac{c}{d} \frac{a}{d}\right)^2} \dots\dots\dots(6)$$

$$\Omega = 2 \sin^2 \theta = \frac{4}{N} \frac{a}{d} |\cos(\theta)| \dots\dots\dots(7)$$

ここに、 $a$  はエネルギー分離アパーチャの直径、 $d$  はイオン検出器の位置分解能、 $E_a$  は  $a$  に起因するエネルギー分解能、 $E_d$  は  $d$  に起因するエネルギー分解能で、 $\Omega$  は

$$\Omega = \frac{c}{2vN} \frac{a}{\sin(\theta) \tan(\theta)} \dots\dots\dots(8)$$

である。

これらの結果から、 $B = 2T$ 、 $L = 200\text{mm}$  および  $300\text{mm}$ 、 $a = 1\text{mm}$ 、 $d = 0.1\text{mm}$  としたときの、検出されるイオンのエネルギー分解能と立体角の計算結果を図4に示す。上がエネルギー分解能、下がイオン捕捉の立体角を表している。検出位置が中心から離れるほど分解能は向上するが、立体角は減少するというトレードオフの関係であり、 $d = 160\text{mm}$  では  $E/E = 0.23\%$ 、 $\Omega = 13\text{mstr}$  となる。

### 3. 本装置のシステム

システム外観を図5に示す。本体はイオンビームを生成する加速器と分析を行う超電導スペクトロメータに分けられ、他に制御・信号処理部と測定・制御用PCなどから構成される。加速電圧は最大500kVとし、四重極マ



図5 本システムの外観  
Fig. 5 Photograph of new RBS system

グネットを設けることでビームを収束させ試料上でのビームサイズ  $50\mu\text{m}$ 、ビーム電流  $50\text{nA}$  以上を目標としている。

また、新たな光学系を用いており、従来のRBS分析アルゴリズムでは対応できないので、分析用ソフトウェアも開発している。以下に、本装置で重要な加速器、超電導スペクトロメータ、ソフトウェア開発について詳細を述べる。

#### 3.1 加速器部

図6に示す加速器部は、ヘリウムイオンを発生するイオン源、最大500kVの直流高電圧を発生する高電圧電源(コッククロフト-ウォルトン型)とイオンを加速する加速管、およびこれらを電氣的に外部と絶縁する0.2MPaのSF<sub>6</sub>ガスを封入したタンクから成る。散乱イオンエネルギー分析を高分解能で行うためには、入射イオンのエネルギーが安定していることが前提であり、電源の電圧安定度  $\Delta V/V$  は  $10^{-4}$  以下に抑える必要がある。さらに加速器を超電導スペクトロメータ上部に設置するため、重量、高さに制約があるため、高安定で小型の高電圧電源を新規に開発した。

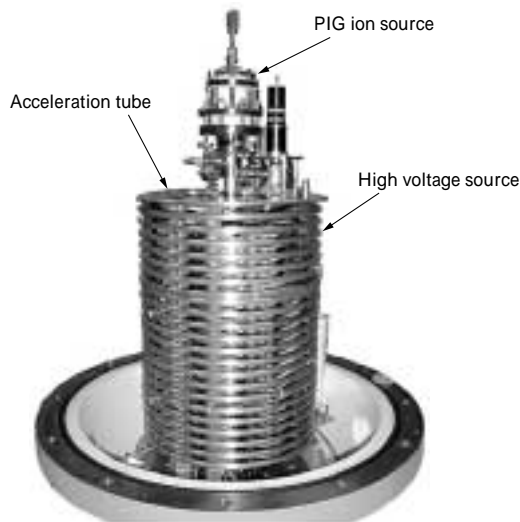


図6 加速器  
Fig. 6 Photograph of accelerator

電源昇圧部は円筒構造として中央部に加速管を配置し、下方へビームを加速する縦型構造とした。昇圧部を構成するダイオード、コンデンサなどには小型高耐圧の素子を使用し、複数のコンデンサを加速管周囲に環状に並列配列することで容量を確保するとともに、空間電位の一様化が図れるため異常放電が抑制される。この構造により電源は従来比約30%の体積となり、電圧安定度は400kV昇圧後30分から8時間間のリップル電圧として $\pm 38V$  ( $V/V = \pm 9.5 \times 10^{-5}$ )であり十分な性能となっている。

本高圧電源にPIGイオン源を組み合わせ、ビーム評価を実施した。その結果、400kV加速時にビーム電流400nA以上、発散角0.5mrad、ビームサイズ1.5mm（非収束時）とエミッタンスの良い1価ヘリウムイオンビームが安定して得られている。

図7のように、本小型、縦型加速器は当社の偏向マグ

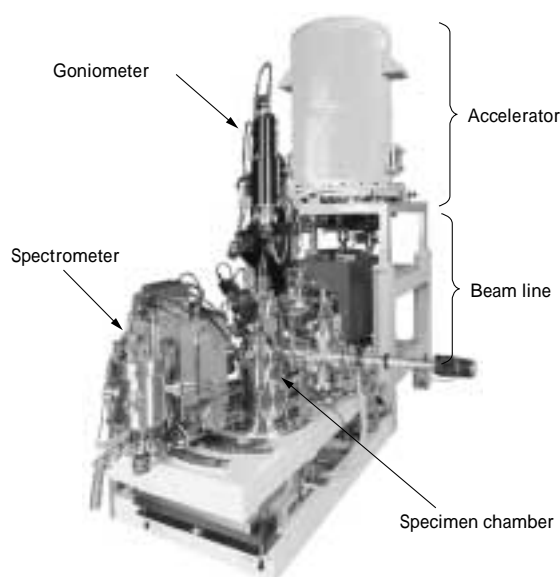


図7 縦型加速器を用いた高分解能RBS分析装置(HRBS-V500)  
Fig. 7 Photograph of high resolution RBS system with vertical accelerator (HRBS-V500)

ネットタイプのスペクトロメータによる従来型高分解能RBS分析装置の新型機種(HRBS-V500)に搭載されている。

### 3.2 超電導スペクトロメータ

図8に超電導マグネットを用いたスペクトロメータの構造を示す。おもに様な強磁場を発生させる超電導マグネット、散乱イオンを検出するイオン位置検出器、散乱イオンを弁別するエネルギー分離アパーチャ、試料を搭載するゴニオメータより構成される。

#### 3.2.1 超電導マグネット

超電導マグネットは、冷却に液体ヘリウムの不要な無冷媒タイプを採用し、サイズおよび励磁速度から動作中の最高温度を7Kとした。ポア径は最大6インチウエーハの測定を行えるように340mmである。コイル構成は、主たる磁場を発生するロングソレノイド型のメインコイル、磁場の分布を向上させるための補正コイル、磁場の分布を調整するための補助コイルから成る。メインコイルと補正コイルは直列に接続し同一電流を流し、補助コイルは磁場分布計算結果より5個を独立に駆動する。分析に当たっては超電導マグネットにより340mm×750mmの真空中に、一様な2Tの強磁場を散乱イオンの通過する領域では0.1%以下の磁場一様性で発生させる必要がある。一様性が悪い場合、散乱イオンはエネルギー分離アパーチャの中心開孔を通過しなくなる。そこで広い領域での一様磁場を達成するため、2Tまで磁気飽和の少ない鉄コバルト合金(パーメンジュール)磁極を採用した。磁極形状やコイル配置などの磁気回路の設計に当たっては、高速かつ精度の高い積分要素法の計算コードを用い、イオン軌道シミュレーションによりビーム軌道进行评估し、構造や電流パラメータを最適化した。

また磁場の一様性を確認するため、専用の磁場分布測定装置を設計・製作し磁場分布を確認し、軌道シミュレーションを行った。結果を図9に示す。磁場分布は軸上中心磁場 $B = 2.018T$ (励磁電流80A)からのずれを示す。図中の3本の曲線は異なる条件で計算した散乱イオンの

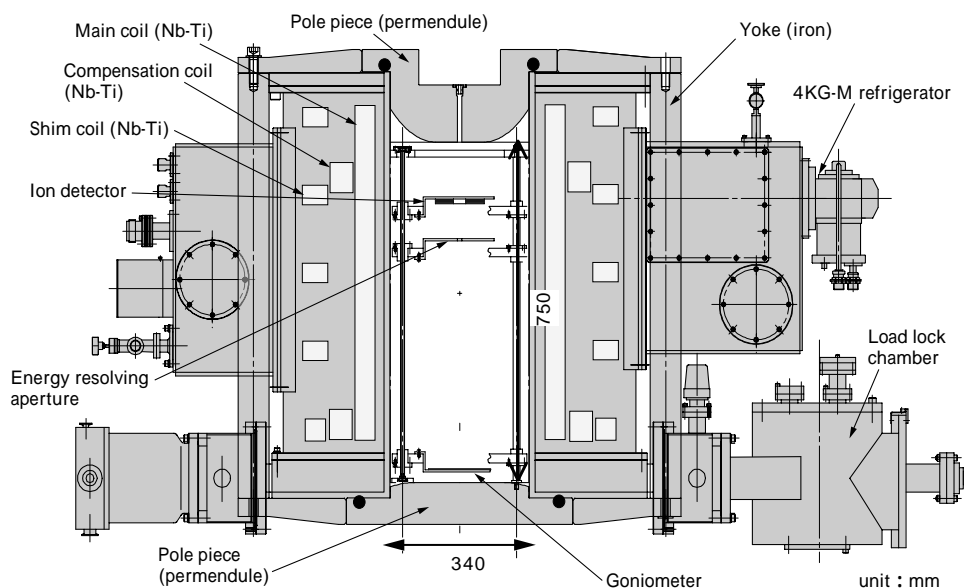


図8 超電導スペクトロメータの構造  
Fig. 8 Schematic drawing of spectrometer using superconducting magnet

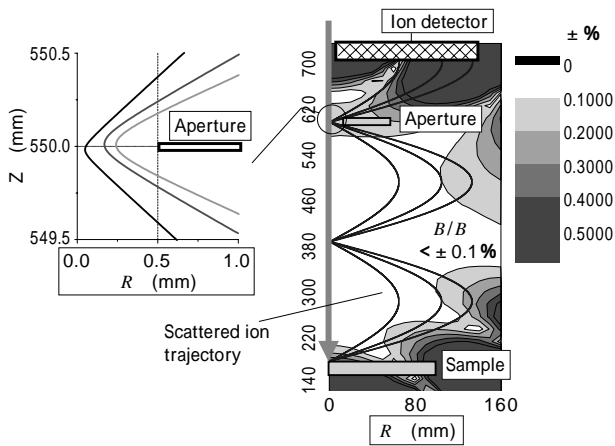


図9 超電導マグネット内の磁場分布とイオン軌道  
Fig. 9 Measured magnetic field distribution and calculated ion trajectory in superconducting magnet

軌道を示す。いずれの散乱イオンもエネルギー分離アパーチャの中心開孔 (1mm) を通過しており、実用に耐えうる一様性の良い磁場分布が得られていることが分かる。

なお、現在は加速器と超電導スペクトロメータを組合わせてビーム入射を行い、収束と散乱イオンスペクトルの測定評価を実施している。

### 3.3 スペクトル解析技術

本装置は、試料と検出器を同一の磁場空間に設置し、散乱イオンを捕捉するという、従来にない検出方式を使っているため、測定した散乱イオン位置スペクトルから薄膜中の元素分布を求めるためには新しい解析アルゴリズムが必要となる。そこで、試料の組成から得られる散乱イオンスペクトルのシミュレーションアルゴリズム、および散乱イオンスペクトルから組成分析を行うアルゴリズムの開発を行っている。

RBS など通常のイオン散乱法では、イオンのエネルギースペクトルは一定の散乱角の条件下で測定されるが、本イオン分光系の検出器上のイオンの位置は式(4)、(5)に示すようにイオンエネルギーと散乱角の両方の関数である。したがって、通常のイオン散乱法に比べて、より多くの情報量が一度に得られる可能性を有する反面、データの直感的な理解が困難になると考えられる。そこで式(1)~(8)を基にイオン位置検出器位置分解能、イオンビームエネルギー広がり、エネルギー分離アパーチャ開口径などを考慮したスペクトル・シミュレータを開発して、質量分解能、深さ分解能などの評価を行った。

例として図10にシリコン基板上的ジルコニウム酸化膜 ( $ZrO_2(3nm)/Si$ ) に 400keV  $He^+$  を垂直に入射したときの、本イオン分光系で測定される散乱  $He^+$  イオンのスペクトルの計算結果を示す。計算条件は  $L=200mm$ ,  $B=2T$ ,  $E=0.1keV$ ,  $d_a=1mm$  であり、イオンの入射量は  $10\mu C$  である。

横軸は  $d$ , 縦軸は検出器半径方向単位長 (1mm) あた

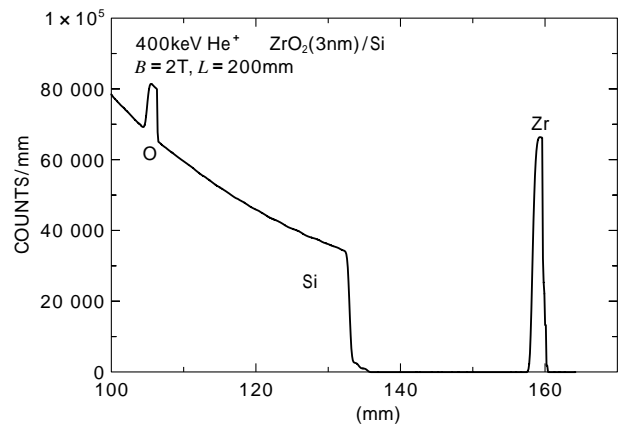


図10 イオンスペクトル計算例  
Fig.10 Calculated ion spectrum

りに入射する散乱イオンの個数である。 $d=160mm$  付近のピークが Zr で散乱されたイオンであり、133mm より小さな位置は Si の信号、106mm 付近には酸素の信号がある。スペクトルの形状は比較的通常の HRBS と類似しており、重い元素が大きな  $d$  の位置に現れ、軽い元素の信号は相対的に弱いことが分かる。シリコンの立上がりでの 134mm 付近の小さなステップは Si の同位体である  $^{29}Si$  と  $^{30}Si$  である。

また、ほかのシミュレーションも行った結果、エネルギーロス・ストラグリングを無視した場合の深さ分解能は Si で 0.3nm 程度、金で 0.2nm 程度である。

むすび = RBS 分析装置の新たな展開として、無冷媒超電導マグネットを用い、試料から検出器までの散乱イオン検出系全体を強磁場下に設置する新しい光学系を持った、高速で高分解能の薄膜分析装置について報告した。現在、各コンポーネントの開発はほぼ終わり、システムとしての評価段階にきている。今後基本性能を確認し、工場での検査用途もふくめて高分解能 RBS 分析装置のさらなる普及を図る。最後に、開発において重要な指導、助言をいただいた京都大学 工学研究科 木村教授に深く感謝いたします。なお、本研究は、基盤技術研究促進事業として、独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構から委託され実施している。

### 参考文献

- 1) K. Kimura et al. : CP475 "Development of a Compact High-Resolution RBS System for Monolayer Analysis", Applications of Accelerators in Research and Industry (1999) p.500.
- 2) 森芳一ほか : R&D 神戸製鋼技報, Vol.52, No.2 (2002) p.53.
- 3) C. Ichihara et al. : "A new spectrometer for Rutherford backscattering spectrometry", Nucl. Instr. Methods B, Vol.229, No.3-4 (2005) p.527.