

「超高速・超省電力高性能ナノデバイス・システムの創製」
平成 14 年度採択研究代表者

大谷 俊介

(電気通信大学 教授)

「多価イオンプロセスによるナノデバイス創製」

1. 研究実施の概要

本研究の目的は、高度に電離したイオン（多価イオン：例えば裸のヨウ素イオン I^{53+} ）と各種固体表面との相互作用に関する理解を深め、そして、多価イオンのもつ特異的なプロセス能力を活用し、ナノデバイス創製への可能性を追求することである。そこで、種々の多価イオンを用いて固体表面でのみ起こるナノプロセスを系統的に調べ、その物理機構に関する次のような知見を得た。

1) イオン 1 個で表面ナノ領域を改質しうる。その加工範囲は、深さ方向で表面 2–3 層に留まり、水平方向には明瞭な価数依存をもち、価数とともに幅 0.5 nm から 10 nm へと増大し、価数ごとの改質領域の大きさは均一性が高い。

2) 形成される表面ナノ構造の形態と物性は物質ごとに千変万化し、結晶性、導電性、化学量論性あるいは吸着物質の有無などに強く支配される。

今後、ナノ加工性としての多価イオンプロセスの有用性を、「1 個のイオン照射により表面層に新物質相としてのナノ構造体を創りうる」とことと定め、この視点に立った基礎研究を遂行する。ひとつはデバイス創製に向けた原理実証実験であり、他は多価イオンの照射技術の向上を目指す開発研究である。

2. 研究実施内容

a) 単一多価イオンによる固体表面改質

多価イオンのHOPG(高配向性グラファイト)への照射効果をSTM(走査型トンネル顕微鏡)とラマン分光を使って調べた。単一イオンによって生成されたナノ構造は、高さは約0.5 nmで価数によらず一定、直径は1 nmから10 nmの範囲で価数とともに増大した。さらに照射痕の周りには $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R 30^\circ$ 再構成構造も観察された(図1)。照射痕のラマン散乱スペクトルには、照射する前

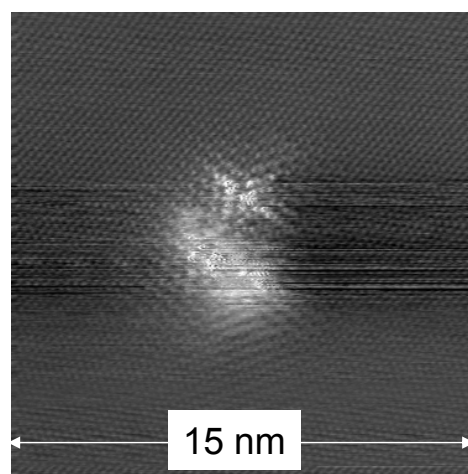


図1: Xe^{29+} 多価イオン1個によりグラファイト表面上に生成された照射痕のSTM像。

はラマン不活性であるが、欠陥生成と共に出現するラマンバンドが観測された．このような欠陥の熱緩和過程を調べた結果、多価イオン照射によって、ごく表面近傍に炭素クラスター放出によってできた、欠陥が存在することが明らかになった．

b) 単一多価イオンによる2次粒子放出機構

単一多価イオンのナノ加工能力を知るために、ポテンシャルエネルギー付与による2次粒子放出機構を調べた．以下に代表的な例として、 SiO_2 薄膜、 $\text{Si}(111)7\times7$ 清浄表面、水素終端Si表面の実験を紹介する．図2に SiO_2 薄膜からの2次イオン質量分析 (SIMS) スペクトルを示す．(A) のように、低価数多価イオンを照射した場合、 H^+ 、 Si^+ が同程度放出され、 O^+ イオンはほとんど観測されない．しかし、(B) のように高価数多価イオンを照射した場合、 H^+ 放出が飛躍的に増し、 O^+ も Si^+ より強い強度で観測された．さらに、 O^{2+} によるシグナルが明確なピークとして出現した．このように正イオンの放出割合が大きいということは、表面ナノメーター領域にいる原子群が近づく多価イオンに電子を供給しイオン集団となりクーロン反発により飛び出す“クーロン爆発”が生じていることを示唆している．そこで、クーロン爆発モデルから予想される、2次イオン収率に対する価数依存性曲線により実験結果のフィッティングを試みたところ、良い一致が得られた．

高価数照射による $\text{Si}(111)-(7\times7)$ 清浄表面からのSIMSスペクトルには、 Si^{n+} ($n=6$ まで) が観測され、ここでもクーロン爆発による2次粒子放出機構を示唆する結果が得られた．一方、1個の Xe^{44+} による $\text{Si}(111)-(7\times7)$ 表面上の照射痕 (図3) は直径が約5 nm、深さ1層のクレーター構造をしており、このことは、約50個のSi原子が放出したことに対応する．一方で、SIMS測定から得られたシリコンイオンの放出率の合計は、 Xe^{44+} 1個当たり0.5個程度であった．クーロン爆発的に飛び出した2次粒子の99%程度が中性化することが明らかとなった．

そして、多価イオンの固体表面層に対する強い相互作用力を示す例としてヨウ素多価イ

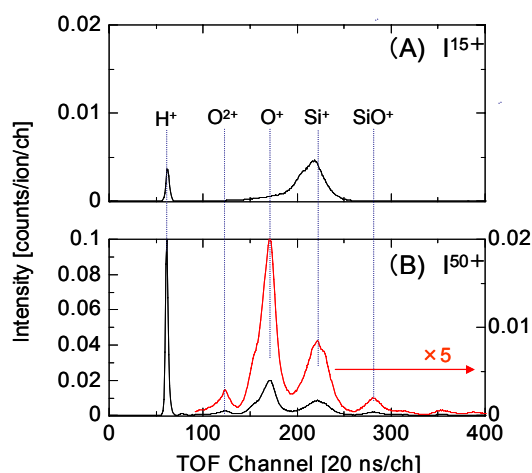


図 2: SiO_2 薄膜から得られた SIMS スペクトル. H^+ 、 O^+ 、 O^{2+} の価数依存性に注目．

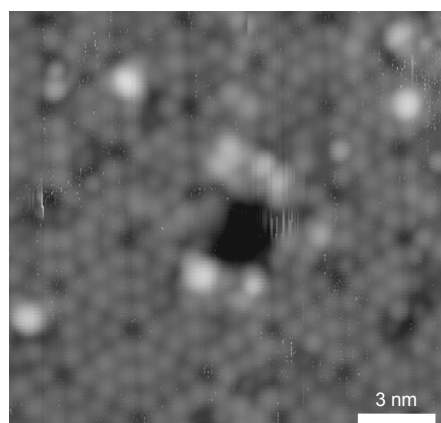


図 3: Xe^{44+} 1個の衝突によって生成された $\text{Si}(111) 7\times7$ 表面上の照射痕．

オンによる水素終端Si (111)-(1×1)表面からのイオンスパッター率の価数依存性について調べた。40価以上になると、多価イオン1個で表面から1個以上のプロトンを飛び出させるといった結果が観測された。水素終端シリコン表面は化学的に比較的安定であるが、水素が取れたナノ領域は反応性が高いと予想される。そこで、価数によってサイズ制御できるナノ活性領域に酸化膜などを形成させる計画が進行中である。

c) 希土類元素多価イオンの生成と引き出し

機能性多価イオンの固体表面への注入を目指し、希土類元素多価イオンビームの生成を試みた。K-cell (Knudsen-cell) からの希土類元素ビームをイオン源内に導入し、多価イオンを生成しビームとして引き出すことに成功した。図4に引き出されたホロミウム (Ho) 多価イオンビームの価数分布を示す。この他に、同じく希土類元素であるエルビウム (Er) 多価イオンの生成と引き出しを行った。引き出しイオンのビーム強度は運転条件に依存するが、例えば、図4の65価 (He 様) イオンの場合、当初の目標である 10^4 ions/sec/mm² を達成した (多価イオンを生成するための電子エネルギーは50 keV)。

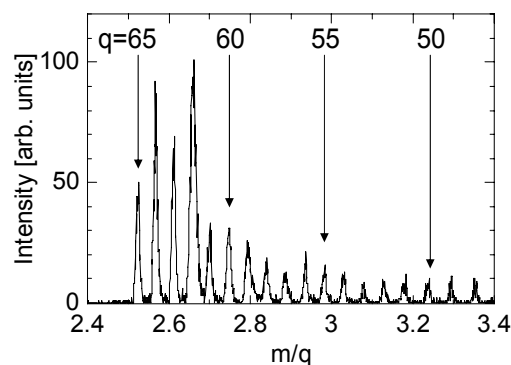


図4: Ho 多価イオンの価数分布スペクトル。Ho⁶⁵⁺は電子を2つしか持たないHe 様イオン (電子エネルギー: 50 keV)。

d) 合目的型小型多価イオン源の開発

図5は完成した合目的型小型多価イオン源本体と電源系の外観である。電子ビーム軌道シミュレーションとそれに基づくイオン源本体構造の詳細設計、電源系の設計、制御プログラム開発の結果、現在までに、イオン源本体および電源系が滞りなく完成した。さらに、低電流での運転、価数選別のためのビームライン製作とイオン引き出しの実験を数回行った。予備的結果としては、Ar の15価イオンを毎秒 10^6 個取り出すことができた。今後、大電流運転と多価イオンビームの高強度化を図るとともに多価イオン照射装置をビームラインに接続し、基板への多価イオンの周期照射実験などの応用研究に供する予定である。



図5: 合目的型小型イオン源の外観。

3. 研究実施体制

「A」 グループ

①研究分担グループ長：大谷 俊介（電気通信大学レーザー新世代研究センター、教授）

②研究項目：

1. 形成されたナノ構造素材の物性
2. 希土類元素多価イオンの生成と注入技術の開発

「B」 グループ

①研究分担グループ長：櫻井 誠（神戸大学理学部、助教授）

②研究項目：

1. 小型多価イオン源の製作、完成と運転
2. 周期孔マスク上からの多価イオン照射

4. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

（1） 論文（原著論文）発表

- Secondary ion emission from solid surfaces irradiated with highly charged ions:
M. Tona, K. Nagata, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani,
Nucl. Instrum. and Meth. B **232** (2005) 249.
- SPM observation of nano-dots induced by slow highly charged ions:
N. Nakamura, M. Terada, Y. Nakai, Y. Kanai, S. Ohtani, K. Komaki, and Y. Yamazaki,
Nucl. Instr. and Meth. B **232** (2005) 261.
- Development of electron beam ion source for nanoprocess using highly charged ions:
M. Sakurai, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Mashiko, and H. A. Sakaue,
Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 319.
- In and ex situ optical spectroscopy of HCI-bombarded solid surfaces:
M. Tona, Y. Baba, S. Takahashi, K. Nagata, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, and S. Ohtani,
Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 443.
- Observation of an HCI-induced nano-dot on an HOPG surface with STM and AFM:
M. Terada, N. Nakamura, Y. Nakai, Y. Kanai, S. Ohtani, K. Komaki, and Y. Yamazaki,
Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 452.
- Observation of surface modification and secondary particle emission in HCI-surface interaction:
S. Takahashi, M. Tona, K. Nagata, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and

- S. Ohtani,
Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 456.
- Toward over unity proton sputtering yield from a hydrogen-terminated Si(111)1×1 surface irradiated by highly charged ions:
S. Takahashi, M. Tona, K. Nagata, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, S. Ohtani, and M. Sakurai,
Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 063111.
 - Coulomb explosion potential sputtering induced by slow highly charged ion impact:
M. Tona, S. Takahashi, K. Nagata, N. Yoshiyasu, C. Yamada, N. Nakamura, S. Ohtani, and M. Sakurai,
Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 224102.
 - DIET in highly charged ion interaction with silicon surfaces:
S. Takahashi, K. Nagata, M. Tona, M. Sakurai, N. Nakamura, C. Yamada, and S. Ohtani,
Surf. Sci. **593** (2005) 318.
 - Surface modification on highly oriented pyrolytic graphite by slow highly charged ions:
Y. Baba, K. Nagata, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, S. Ohtani, and M. Tona.
Surf. Sci. **599** (2005) 248.
 - Some characteristics in the interaction of slow highly charged I^{q+} ions with a Si(111) 1×1-H surface:
M. Tona, K. Nagata, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani,
Surf. Sci. **600** (2006) 124.
 - Demonstrative experiment for single ion implantation technique using highly charged ions:
N. Yoshiyasu, S. Takahashi, M. Shibata, H. Shimizu, K. Nagata, N. Nakamura, M. Tona, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani,
Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) 995.
 - ナノプロセス用電子ビーム多価イオン源の開発
櫻井誠, 中畠史晴, 福本卓典, 中村信行, 大谷俊介, 益子信郎
J. Vac. Soc. Jpn. (真空) **48** (2005) 317.

(2) 特許出願

H17 年度出願件数 : 1 件 (CREST 研究期間累積件数 : 2 件)