



極低エネルギーイオンビーム技術と材料開発への応用

木内 正人

(独立行政法人産業技術総合研究所)

Low-Energy Ion Beam Technology for a Material Application

KIUCHI Masato

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Ikeda 563 - 8577, Japan

(Received 8 April 2003)

Abstract

Low-energy ion beam technology is very interesting for material researchers. The advantages of this technology are the controllability of both the ion species and the energy of impinging ions, and the process in an ultra-high vacuum. However, the quality of the ion beam must be well considered during the designing process. Organometallic ion beam deposition which is a newly developed attractive technique for compound research is also described.

Keywords:

deposition, ion beam, thin film, organosilicon, SiC

1. はじめに

原子をひとつずつ並べて、新材料を頭の中に描いたとおり、積み木のように組み立てることは、材料研究者にとって夢の技術である。実際にはそのようなことは不可能であるが、その夢に近づくための努力が営々と行われている。その手法として、分子線エビタキシー法 (MBE)、ヘリコンスパッター法と並んで、極低エネルギーイオンビーム法 [1] は、その候補の一つである。

極低エネルギーイオンビーム法は、20 - 200 eV 程度の極低エネルギーを持つイオンビームを基板上に堆積させることにより、望みの材料を手に入れようとするものである。特定のイオンを特定のエネルギーで堆積することができるこの方法は、夢に最も近い方法であり、多くの研究者を引き付けてきた。今までには、ケイ素膜 [2]、炭素膜 [3]、銀膜 [4] などの形成が試みられてきた。

固体を構成する原子同士の結合は、1つの結合あたり

author's e-mail: dd160@ni.aist.go.jp

で高々数 eV 程度である。固体中の原子1つを弾き出すのに必要なエネルギーは、20 - 30 eV である [5]。また、固体の最表面での原子1つを弾き出すのに必要なエネルギーは、それよりも若干小さいと考えられる。したがって、固体表面において原子の配列に大きな影響を及ぼしながら材料開発を行うには、前述の20 - 200 eV 程度のイオンの照射が興味深いことが容易に想像できる。本解説では、この極低エネルギーイオンビーム法の技術について述べる。

2. 極低エネルギーイオンビーム法の装置

本方法では、目的とするイオンを、イオン源で発生させ、質量分離により目的外のイオンをビームから除去し、所定のエネルギーにてイオンを基板上に供給することにより材料創製を行う。このとき、イオンビームのエネルギーは、イオン源に電位を与える電源の電圧を調整

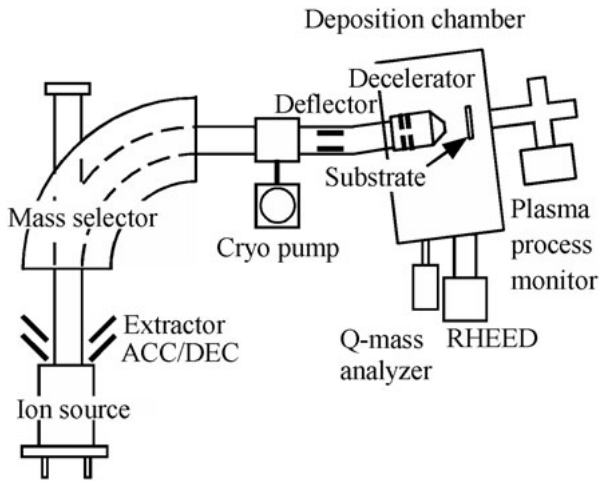


Fig. 1 Low-energy ion beam deposition apparatus at Osaka University.

することにより、高精度に制御が可能である。したがって、他の方法よりも精密な堆積実験を実施できる。Fig. 1に、大阪大学大学院工学研究科に設置されている装置の概略図を示す。

イオン源 (Ion source) にはフリーマン型 (Fig. 2) の改造型を採用している[6]。ガスを前駆体とするイオンを得る場合には、ガスを導入する。希ガス類や窒素のイオンを発生させたいときはそのガスを導入し、炭素イオンを発生させたいときには二酸化炭素を導入する。また、固体を前駆体とするイオンを得る場合には、スパッター用のターゲットを挿入し、アルゴンイオンでスパッターしてイオンを得る。金、鉄、チタンなどのターゲットからそれぞれのイオンを発生させることができる。

イオンを基板 (Fig. 1 の substrate) に供給するときの運動エネルギーを 100 eV と設定する場合には、基板を接地電位としていることから、イオン源の電位については 100 V に設定する。実際には、まずイオン源からイオンを -22 kV で引き出す (Extractor ACC)。その後、-20 kV の電位に戻して (Extractor DEC)、ビーム搬送系に引き渡す。ビーム搬送系では、まず、磁場型セクター (Mass selector) により、所望のイオン以外をビームから排除する。さらに 7° 偏向電極対 (Deflector) により、中性粒子をビームから排除する。中性粒子は、ビームを搬送しているときに、イオンと残留ガスとの電荷交換により発生したものである。最後に、イオンを照射する基板の直前で減速し (Decelerator)、接地している基板に所定のエネルギーで堆積させる。Fig. 3 にビーム搬送系における各電位を示しておく。

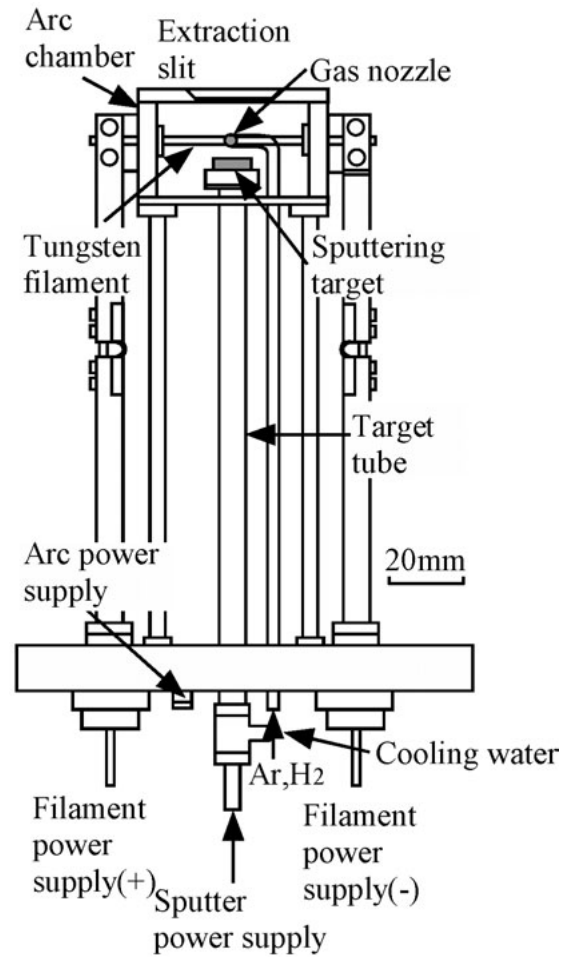


Fig. 2 Freeman-type hybrid ion source. Gas precursor and solid precursor are applicable for ion production.

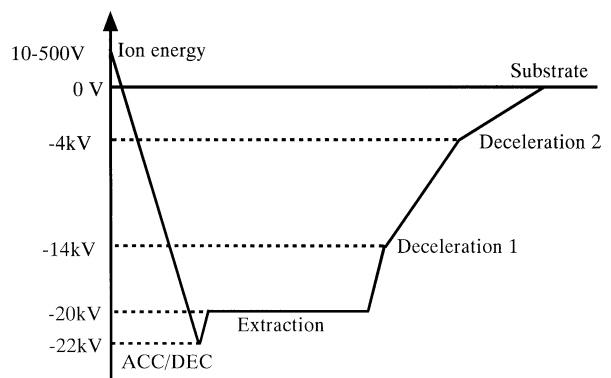


Fig. 3 Electric potential in the beam handling system.

試料室では、イオンを照射しながら基板上に堆積する薄膜の分析を *in situ* で行えるように高速電子線回折法 (RHEED) のための電子銃と蛍光板が設置されている。また、イオンビームの質 (運動エネルギー、エネルギー)

ギー揺らぎ，原子種)を調べるため，基板ホルダーを取り外せばイオンビームがプラズマプロセスモニター (Balzers PPM421) に入射できるような配置になっている。

試料室の真空度は，超高真空に対応できるように設計されている．現在の技術では，イオンビームの電流密度は数 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 程度，あるいはそれ以下である．単位時間当たり基板に到達するイオンの数が，残留ガスの入射頻度よりも圧倒的に多い必要があるため，真空度は， 1×10^{-7} Pa 以下であることが望ましいからである．

3. イオンビームの質

極低エネルギーイオンビームを基板に供給すれば，基板表面が改質されて，設計どおりの薄膜が形成されるはずである．しかし，イオンビームの質を把握していなければ設計どおりのプロセスが進行するかどうかはわからない．したがって，イオンビームを照射する前に，イオンビームの質を十分に検討しておく必要がある．

イオン源の種類にもよるが，イオン源から引き出されたイオンのエネルギーには，イオン源内での初速によるエネルギーおよびエネルギーゆらぎが関係することを考慮しておく必要がある．スパッター現象を利用してイオンを発生する型のイオン源では，スパッター現象に起因するエネルギー分布がある．通常，スパッターされた粒子は数 eV の初速 (平均的には 5 - 7 eV) によるエネルギーを持っていて，その分布も半値幅で ± 3 eV 程度はある．したがって，基板に入射するイオンのエネルギーは，イオン源に設定した電位によるエネルギーにこの初速とゆらぎによるものを加えたものである．体積プラズマ型のイオン源では，プラズマポテンシャルに起因する初速とエネルギー分布を持ったイオンビームを得ることになる．

前述したように Fig. 2 に示すイオン源は，体積プラズマによるイオン発生と，スパッターによるイオン発生の両方に利用できる，改造フリーマン型イオン源である．これを用いて，イオンビームの質を検討した．このイオン源は，ガスを前駆体として用いる場合には，体積プラズマ型として機能する．イオン源に Ar を導入し，イオン源の電位を 50 V，および 100 V に設定した場合に得られたイオンビーム ($^{40}\text{Ar}^+$) のエネルギー分布を，プラズマプロセスモニターで計測した結果を Fig. 4 に示す．また， CO_2 をイオン源に導入したときに得られたイオンビーム ($^{12}\text{C}^+$) について，Fig. 5 に示す．それぞれプラズマポテンシャルおよびエネルギーゆらぎによると考えられる分布

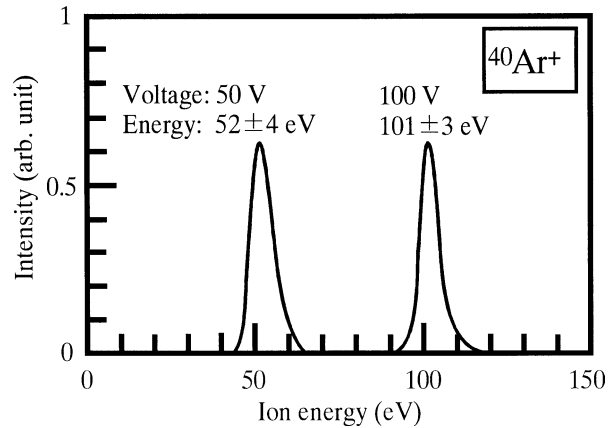


Fig. 4 Beam Quality of $^{40}\text{Ar}^+$ ion produced by the Freeman-type ion source.

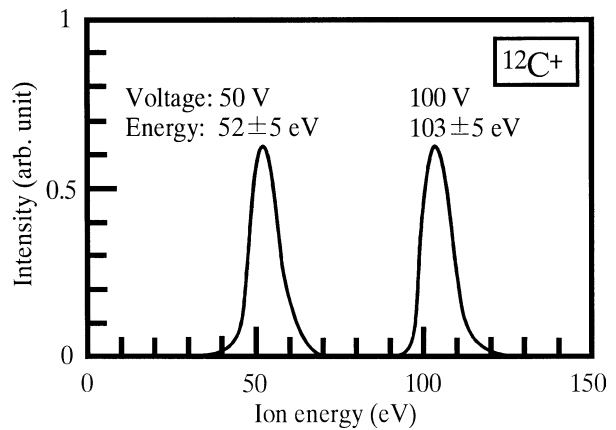


Fig. 5 Beam Quality of $^{12}\text{C}^+$ ion produced by the Freeman-type ion source with a precursor of CO_2 .

が見られる．

固体を前駆体としてイオンを発生する場合には，スパッター型イオン源として機能させる．Fig. 2 に示すスパッタリングターゲットに Ti ペレットを載せ，Ar ガスを導入して Ar^+ で Ti ペレットをスパッターして $^{48}\text{Ti}^+$ イオンビームを発生させた場合のエネルギー分布を Fig. 6 に示す．スパッター効果により，エネルギー分布は非対称であり，高エネルギー側にテールを引いている．

極低エネルギーイオンビームの質を議論する場合には，高速中性粒子についても検討する必要がある．2 章で説明したように，7 偏向電極対により高速中性粒子がビームから排除されたあと，イオンビームは，スリット，減速系を経て，基板に到達する．しかし，この間において，イオンが残留ガスや真空容器壁と電荷交換して新たに生成した中性粒子はビームから排除されず，高エネルギーのままに基板に衝突する．Fig. 1 に示す装置に

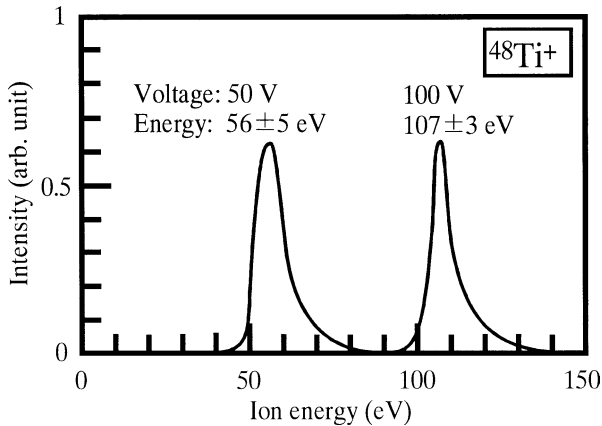


Fig. 6 Beam Quality of $^{48}\text{Ti}^+$ ion produced by the Freeman-type ion source using sputtering of Ti target.

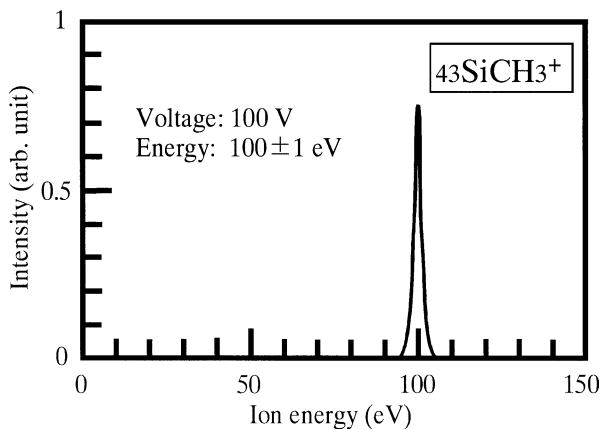


Fig. 7 Beam Quality of SiCH_3^+ ion produced by the Freeman-type ion source with a precursor of $\text{CH}_3\text{SiH}_2\text{CH}_3$.

において、高速中性粒子の量を測定したところ、100 eV の $^{40}\text{Ar}^+$ ビームの場合、原子数換算でおよそ 1.4% の高速中性粒子が含まれていることが判明した。ただし、極低エネルギーイオンビームが堆積しつつある最表面のみに限れば、高速中性粒子のほとんどは素通りするため、そこに落とすエネルギーはわずかである。この程度の量は、直ちに堆積プロセスに大きな影響を及ぼすとは考えにくいだが、影響の見積もりを十分に検討する必要があることは確かである。

4. 新しい試み

今まで、極低エネルギーイオンビーム堆積による材料開発研究では、イオンと表面の相互作用解明に重点を置いていたため、単元素イオンの照射とその議論が中心であり、化合物材料の開発につながるような実用的な領域についてはあまり注目されていなかった。そこで、われ

われは、化合物の材料開発に寄与するために、やはり前述の装置 (Fig. 1) を利用して、有機金属分子イオンビームを用いる方法を提案している。

ジメチルシラン ($\text{CH}_3\text{SiH}_2\text{CH}_3$) は室温で気体であり、フリーマン型イオン源にガスとして導入される。そして、タングステンフィラメントで加熱され、表面電離によりイオン化し、開裂することによりメチルシリセニウムイオン (SiCH_3^+) になる [7]。このイオンのビームとしての質を Fig. 7 に示す。エネルギー分布の広がりがほとんどなくプラズマポテンシャルによる影響も見られない。ほぼ単色で、かつ化学的にも揃ったイオンビームを得ることができた。

われわれは、このイオンビームを用いて炭化ケイ素 (SiC) を合成した。SiC は、次世代半導体として高温下でも動作し、高周波・パワーデバイス用材料として注目されている。これまで、CVD などの方法で 1,300 以上の基板温度で形成されているが、われわれは、メチルシリセニウムイオンビームを Si 基板に供給することにより、600 の基板温度でヘテロエピタキシャル成長に成功した [8, 9]。また、CVD 法を用いて SiC 薄膜形成を試みる場合、メタン (CH_4) とシラン (SiH_4) の混合ガスを用いる。Si と C とでは、成長しつつある表面での付着確率が異なるため、所望の化学量論組成を達成することが困難であったが、われわれが提案する SiCH_3^+ イオンビーム堆積法では、基板に供給されるイオンに Si と C が 1 つずつ含まれるため、この問題を回避できていると考えられる。有機金属イオンビーム法は、まだ研究の端緒にすぎないばかりであり、今後、大きく成長するものと期待している。

5. おわりに

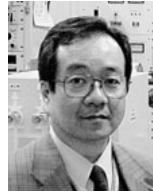
極低エネルギーイオンビーム法は、材料開発の分野において非常に有用である。まず、本方法によって新しい材料技術が切り拓かれるだけでなく、本方法により得られた基礎的な知見が他の材料開発手法の発展に貢献することが期待できる。たとえば、イオンと炉壁の相互作用の議論や、半導体産業における反応性エッチング過程の基礎研究などに適用されている。また、有機金属イオンビームなどの新しい試みが更なる発展を呼ぶものと予想される。そのためには、装置技術として大電流化や高真空化、高速中性粒子発生防止など、抱えている課題の解決が望まれている。

謝辞

本稿で紹介した研究成果は、大阪大学大学院工学研究科原子分子イオン制御理工学センターにおいて得られたものである。後藤誠一教授、杉本敏司助教授、松本貴士博士をはじめとする共同研究者の皆様へ感謝します。

参考文献

- [1] J.W. Rabalais, *Low Energy Ion-Surface Interactions* (John Wiley & Sons, 1994) Chapter 9.
- [2] K. Miyake and T. Tokuyama, *Thin Solid Films* 92, 123 (1982).
- [3] S. Aisenberg and R. Chabot, *J. Appl. Phys.* 42, 2953 (1971).
- [4] G.E. Thomas, L.J. Beckers, J.J. Vracking and B.R. de Koning, *Crystal Growth* 56, 557 (1982).
- [5] 石野 稔：照射損傷（東京大学出版会）p. 132.
- [6] T. Matsumoto, K. Mimoto, S. Goto, M. Ohba, Y. Agawa and M. Kiuchi, *Rev. Sci. Instrum.* 71, 1168 (2000).
- [7] M. Kiuchi, T. Matsumoto, K. Mimoto, T. Takeuchi and S. Goto, *Rev. Sci. Instrum.* 71, 1157 (2001).
- [8] T. Matsumoto, M. Kiuchi, S. Sugimoto and S. Goto, *Surf. Sci.* 493, 426 (2001).
- [9] 工業技術院：特許第3015892号



きうち まさと
木内 正人

独立行政法人産業技術総合研究所 生活環境系特別研究体 環境保全技術連携研究体長。1982年大阪大学工学部応用物理学科卒業。主な研究分野はプラズマ工学・イオンビーム工学。現在の業務：イオンと固体表面の相互作用についての基礎研究を行いながら、イオンビームやプラズマ技術の事業化を企画しています。