

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03582

研究課題名(和文) プラズマによる表面ナノ周期構造形成に関する研究

研究課題名(英文) Plasma-Induced Formation of Nanoscale Ripple Structures on Surfaces

研究代表者

斧 高一 (ONO, Kouichi)

大阪大学・接合科学研究所・特任教授

研究者番号：30311731

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：プラズマと固体表面との相互作用による自己組織的な表面ナノ周期構造形成について、プラズマ・プロセス実験(塩素プラズマによるシリコンエッチング)とモデリング・シミュレーション(モンテカルロ法をベースとした独自の3次元原子スケールセルモデル、分子動力学法)を駆使して、その形成機構を解析・モデル化するとともにプラズマ条件を探索し、シース制御板を用いて基板表面へのイオン斜め入射を実現することにより波長数10 nm程度の鋸波状リップル(波状のナノ周期構造)の形成を実験実証した。また、その形成において、イオンの基板表面での反射/散乱が重要な役割を担うことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Nanoscale surface roughening and ripple formation in response to ion incidence angle has been investigated during Si etching in Cl-based plasmas, by employing modeling and simulations of plasma-surface interactions and feature profile evolution: our own three-dimensional atomic-scale cellular model (ASCeM-3D) based on Monte Carlo algorithm, and a classical molecular dynamics (MD) simulation. Then, based on numerical results, we demonstrated experimentally the plasma-induced formation of well-defined periodic sawtooth-like ripples of wavelength on the order of several 10 nm, using sheath control plates to achieve the off-normal ion incidence on blank substrate surfaces. Moreover, a comparison of experiments with ASCeM-3D and MD simulations revealed the critical role of ion reflection from microstructural feature surfaces on incidence in plasma- and ion-induced surface roughening and rippling.

研究分野：電離気体工学，プラズマ物性工学

キーワード：プラズマ加工 プラズマ化学 表面・界面物性 半導体超微細化 微細加工形状 反応粒子輸送 プラズマエッチング プラズマ・表面過程揺動

## 1. 研究開始当初の背景

(1) プラズマを用いた微細加工 (プラズマエッチング) は、半導体集積回路 (ULSI) やマイクロマシン (MEMS) デバイス作製など先端技術分野で不可欠の微細加工プロセスであり、その科学・技術には不断の深化と発展が求められる。今後のプラズマ微細加工において特に、プラズマに晒された固体表面のナノスケールの微細形態 (モフォロジー/ラフネス) と、それにかかわるプラズマ・表面相互作用に関するより詳細で高度な理解と高精度な制御が一層重要となる。

(2) プラズマ微細加工において生じるパターン底面 (イオンは表面に垂直入射) のラフネスは空間的にランダムな凹凸であるが、パターン側壁 (イオンは表面に対して斜め入射) のライン端ラフネス (LER) は、スジ状構造いわゆるリップル様の周期的構造を示す。いずれもナノスケールデバイスの特性ばらつきにつながるためラフネスの抑制が不可欠であるが、プラズマによる表面ラフネス形成機構の理解は未だ十分でない。

(3) パターン側壁のリップル様 LER は、一般に、リソグラフィ工程におけるエッチングマスクの加工精度 (マスク端ラフネス) に起因して形成されると理解されているが、一方、プラズマと被エッチング表面との直接的な相互作用により自己組織的に形成されることも考えられる。このようなイオン斜め入射下での表面ナノ周期構造の形成は、プラズマ・表面相互作用の基礎的観点だけでなく、プラズマプロセスによるナノグレーティング作製などナノ周期構造作製の応用的・実用的観点からも興味深い。プラズマでは、既存のイオンビームスパッタリング (IBS) による作製法と比較して、一桁以上速い生産性 (作製速度と基板面積) が期待できる。

## 2. 研究の目的

プラズマ・表面相互作用による自己組織的な表面ナノ周期構造形成について、

(1) 基板表面へのイオン入射角度に依存して発現する表面ナノラフネス・表面ナノ周期構造形成を対象に、そのプラズマパラメータ依存性を系統的に調べ、形成機構を解明するとともに形成機構モデルを構築する。

(2) 表面ナノラフネス・表面ナノ周期構造形成にかかわる原子論的機構を明らかにし、形成機構モデルの高精度化に資する。特に、入射イオンの表面での反射/散乱の機構と影響に焦点をあてる。

(3) 基板上的プラズマシース制御法を考案して、平坦基板表面へのイオン斜め入射を実現することにより、表面ナノ周期構造形成を実証するとともに、その制御法を創出する。

## 3. 研究の方法

塩素 ( $\text{Cl}_2$ ) プラズマによるシリコン (Si) エッチングを対象に、プラズマと表面をモデリング・シミュレーションと実験を駆使して解析し、機構解明とモデル構築を進め、表面ナノ周期構造形成を実証する。

(1) 表面形状進展シミュレーション: 独自のモンテカルロ (MC) 法をベースとした 3 次元エッチング加工形状進展シミュレーション (3 次元原子スケールセルモデル, ASCeM-3D) を高度化する。具体的には、エッチング副生成物イオン ( $\text{SiCl}_x^+$ ) 入射の影響を新たにモデル化する。これは、これまでの ASCeM-3D シミュレーションの知見「表面ナノラフネス (イオン垂直入射) や表面ナノ周期構造 (イオン斜め入射) の発現が、イオン反射/散乱に大きく影響される」、およびプラズマ診断の結果「エッチング中のプラズマでは、エッチングガスイオン ( $\text{Cl}_x^+$ ) よりエッチング生成物・副生成物イオン ( $\text{SiCl}_x^+$ ) の方が多い」、に基づく。また、基板表面へのイオン入射角度に依存するナノラフネス・ナノ周期構造形成について、ASCeM-3D を駆使して、そのプラズマパラメータ (イオン入射エネルギー・フラックス, 中性反応種・反応抑制種フラックス, 基板表面温度, 等) に対する依存性を系統的に調べ、実験と比較することによりモデルの有効性・正当性を検証しモデルを高精度化する。

(2) 古典的分子動力学 (MD) シミュレーション: 斜め入射  $\text{Cl}_x^+$  ( $x=1, 2$ ),  $\text{SiCl}_x^+$  ( $x=0-4$ ) イオンと Si 基板表面との相互作用を MD を用いて原子論的に明らかにし、その知見 (エッチング収量・反応生成物、反射確率・反射原子分子種, 等) を ASCeM-3D にフィードバックすることにより、ASCeM-3D モデル高精度化に資するとともに、ナノラフネス・ナノ周期構造の原子論的な形成機構解明と形成モデル構築を促進する。

(3) プラズマ・プロセス実験: 平坦基板では、プラズマと基板表面との間のシースの存在のため、基板表面へのイオンの斜め入射の実験は一般に難しい。本研究では、斜めスリット構造を有する金属製のシース制御板を用いて、平坦基板表面へのイオン斜め入射を実現し、誘導結合型 (ICP)  $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si 平坦基板での表面ナノ構造形成を実験実証する。ここで、シース制御板の構造 (スリット幅・高さ・傾斜角度) は、プラズマ・シースに関する粒子 (PIC/MC) シミュレーションを用いて最適化をはかる。

## 4. 研究成果

(1) ASCeM-3D モデルの高度化—“イオン表面反射係数  $r_i$ ” の導入 ( $0 \leq r_i \leq 1$ )—: 図 1 に、 $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si エッチングに関する ASCeM-3D シミュレーションにおいてイオン表面反射係数を  $r_i=1 \rightarrow 0.5$  と減じて得ら

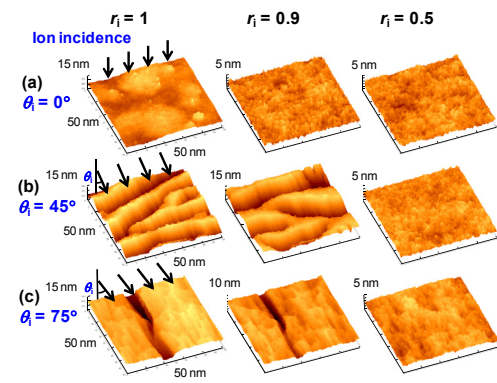


図 1.  $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si エッチングに関する ASCeM-3D シミュレーション (イオン入射エネルギー  $E_i = 100$  eV, 表面反射係数  $r_i = 1, 0.9, 0.5$ ): 基板表面に対するイオン入射角度  $\theta_i =$  (a)  $0^\circ$ , (b)  $45^\circ$ , (c)  $75^\circ$  におけるエッチング開始後  $t = 60$  s の表面形状.

れた Si 表面形状を示す (基板表面へのイオン入射角度  $\theta_i = 0^\circ, 45^\circ, 75^\circ$ , エネルギー  $E_i = 100$  eV, エッチング時間  $t = 60$  s). ここで, 反射係数  $r_i$  は, 基板表面に入射したイオンのうち表面反射/散乱過程の計算を進めるイオンの割合をさす [ASCeM では, 表面に到達したイオンの反射・侵入は, 基板原子との古典的弾性衝突過程にもとづき計算されるが, その反射確率を  $R_i(\theta, E_i)$  とすると, 入射イオンの実効的な表面反射確率は  $\mathcal{R}_i(\theta, E_i) = r_i \times R_i(\theta, E_i)$ ;  $0 \leq \mathcal{R}_i, r_i, R_i \leq 1$ ]. 反射係数  $r_i$  を小さくすると, エッチング速度はほとんど変わらないが, 従来の条件 ( $r_i = 1$ ) での Si 表面形状進展は消失する. 具体的には,  $r_i \approx 0.9$  で  $\theta_i = 0^\circ$  におけるラフネスは消失,  $r_i \approx 0.5$  で  $\theta_i = 45^\circ, 75^\circ$  におけるリップルもほぼ消失し,  $r_i < 0.5$  では, いずれのイオン入射角度  $\theta_i$  においても, ランダムな微小ラフネス (2 乗平均粗さ  $\text{RMS} < 0.4$  nm) のみとなる. すなわち, イオンの表面反射 (微細凹凸表面での散乱) の効果が小さい状況では, プラズマにより形成されるラフネスは, 確率的なレベル (stochastic roughening) にとどまるが, 表面反射が顕著な状況 ( $r_i = 1$ ) では, 微細凹凸の凹部底面へのイオンフラックスの集中が促され, ラフネスの発達やリップルの形成・発達に至る, と考えることができる.

(2) ASCeM-3D モデルの有効性・正当性の検証—実験・MD との比較—: 図 2 に, ASCeM-3D シミュレーションによる Si エッチング速度 (ER) と 2 乗平均粗さ (RMS) を示す ( $\theta_i = 0^\circ$ ,  $r_i = 1-0$ ,  $E_i \approx 20-500$  eV,  $t = 120$  s). 図に ICP- $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si エッチング実験結果をあわせて示す ( $\theta_i = 0^\circ$ ,  $E_i \approx 22-520$  eV). ASCeM-3D ( $r_i = 1$ ) は, 実験の ER vs  $E_i$  ( $E_i < 500$  eV) と RMS vs  $E_i$  ( $E_i < 250$  eV, roughening mode,  $\text{Cl}_2^+/\text{SiCl}_3^+$  ion rich) の相関を再現するが (ER, RMS は  $E_i$  とともに増大), 高い  $E_i > 250$  eV (smoothing mode,  $\text{SiCl}^+$  ion rich) にお

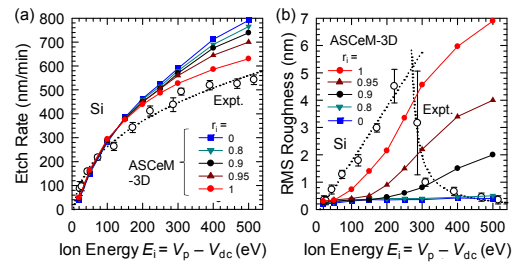


図 2.  $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si エッチングに関する ASCeM-3D シミュレーション ( $\theta_i = 0^\circ$ ,  $E_i = 20-500$  eV, イオン反射係数  $r_i = 1-0$ ) と実験との比較: (a) エッチング速度と (b) 表面ラフネス ( $t = 120$  s).

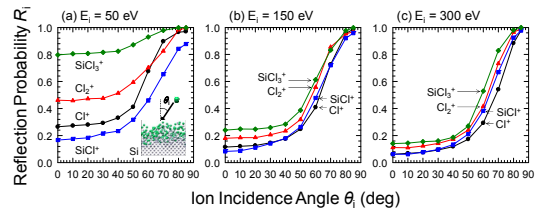


図 3.  $\text{Cl}^+, \text{Cl}_2^+, \text{SiCl}^+, \text{SiCl}_3^+$  イオンの Si(100) 表面における反射確率  $R_i(\theta, E_i)$  に関する MD シミュレーション: イオン入射エネルギー  $E_i =$  (a) 50, (b) 150, (c) 300 eV における入射角度  $\theta = 0^\circ-90^\circ$  依存性 ( $\theta = \theta_i$ ).

ける RMS vs  $E_i$  の相関を再現しない (ASCeM-3D の RMS は  $E_i$  とともに増大し続けるが, 実験では減少). 一方, イオン表面反射の効果を減じた ASCeM-3D ( $r_i < 1$ ) において, ER vs  $E_i$  はほとんど変わらないが, RMS は  $r_i$  の減少とともに減少し  $r_i < 0.8$  では  $E_i$  に依存せず低い値 ( $< 0.4$  nm) にとどまり, 実験の高い  $E_i > 470$  eV における  $\text{RMS} \approx 0.3$  nm と一致する.

このような表面反射係数の値 ( $r_i < 0.8$ ) は, 図 3 に示す  $\text{Cl}_x^+/\text{Si}$ ,  $\text{SiCl}_x^+/\text{Si}$  に関する MD シミュレーション ( $E_i = 50, 150, 300$  eV) と矛盾しない. 図において, 堆積性イオン ( $\text{Si}^+, \text{SiCl}^+, \text{SiCl}_2^+$ ) の Si 表面における反射確率  $R_i(\theta, E_i)$  は, 反応性イオン ( $\text{Cl}^+, \text{Cl}_2^+, \text{SiCl}_3^+, \text{SiCl}_4^+$ ) と比較して 10~20% 以上小さい.

さらに, 図 4 に, ASCeM-3D シミュレーションによるラフな Si 基板の平坦化の様子を示す [ $\theta_i = 0^\circ$ ,  $r_i = 0.8$ ,  $E_i = 500$  eV;  $t = 0-40$  s;  $\text{RMS}_0 = (\text{RMS at } t = 0) = 0.1-6$  nm at  $t = 0$ ]. ここで,  $\text{RMS}_0$  は基板の初期ラフネスである (図 1, 2 では  $\text{RMS}_0 = 0$ ). イオン表面反射の効果が減少した状態において ( $r_i < 0.8$ ) 表面平坦化が生じる. 図に ICP- $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si エッチング実験結果をあわせて示す ( $\theta_i = 0^\circ$ ,  $E_i \approx 22-520$  eV,  $t = 0-5$  min,  $\text{RMS}_0 \approx 2.2$  nm). ASCeM-3D の予測どおり,  $E_i \gg 250$  eV (smoothing mode) において平坦化に至ることがわかる.

これら図 2-4 の結果により ( $\theta_i \approx 0^\circ$ ,  $E_i = 20-500$  eV), ASCeM-3D モデルの有効性/正

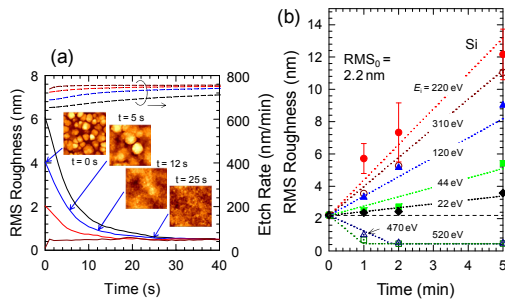


図 4 :  $\text{Cl}_2$  プラズマによる Si 表面平坦化 : (a) ASCeM-3D シミュレーション ( $\theta = 0^\circ$ ,  $E_i = 500$  eV,  $r_i = 0.8$ ,  $\text{RMS}_0 = 0.1\text{--}6$  nm,  $t = 0\text{--}40$  s). (b) エッチング実験 ( $\text{RMS}_0 = 2.2$  nm,  $t = 0\text{--}5$  min).

当性が立証された。

(3) シース制御板の設計と最適化 : 図 5 に、実験概要を示す。幅・傾斜角の異なるスリット (幅  $w_s = 3\text{--}7$  mm, 高さ  $h_s = 4$  mm, 角度  $\theta_s = 45^\circ, 90^\circ$ ) で隔てられた複数のブレード (幅 1 mm) を有する金属製のシース制御板 (5 cm  $\times$  5 cm  $\times$  4mmH) は、基板ステージとの電気的導通をとってステージ上の Si ウエハ (4 inch $\phi$ ) 上に配置され、エッチングサンプル (4 mm  $\times$  40 mm) はシース制御板のブレード側面あるいは底部に設置される。

図 6 に、2 種類のシース制御板 [( $w_s, \theta_s$ ) = (5 mm,  $45^\circ$ ), (3 mm,  $90^\circ$ )] について、2 次元静電粒子シミュレーション (2D electrostatic PIC, 2d/3v; 計算領域  $\Delta X = 12$  mm,  $\Delta Z = 15$  mm) を用いて算出したプラズマ・シースの電位分布、イオン軌道、およびサンプル基板が設置されるシース制御板のブレード側面・底部へのイオン入射角度分布を示す。ここで、イオン入射エネルギーは  $E_i = \phi_p - \phi_s = 500, 200, 100$  eV ( $\phi_p = 0$  V at  $Z = 15$  mm;  $\phi_s = -500, -200, -100$  V at  $Z = 0$ ) であり、プラズマ条件 ( $n_{i0} = 3 \times 10^{10}$  cm $^{-3}$ ,  $T_{e0} = 5$  eV) を仮定するとともに、プラズマ粒子は  $\text{Cl}_2^+$  イオン、電子  $e^-$  のみ ( $\text{Cl}^-$  イオンは無視)、また電子密度分布はボルツマン則に従うと仮定した。このような計算から、シース制御板によりシース構造すなわち電位分布が歪められ、イオン入射軌道が歪み、シース制御板のブレード側面・底部に設置されたサンプル基板表面へのイオン斜め入射が生じることがわかる。図において、入射角度分布は比較的広く、 $E_i = 500$  eV において、 $\theta_s = 45^\circ, 90^\circ$  それぞれのシース制御板のブレード側面において  $\theta_i \approx 40^\circ, 80^\circ$  (FWHM  $\Delta\theta_i \approx 10^\circ, 2^\circ$ ) であり、一方、底部において  $\theta_i \approx 20^\circ, 10^\circ$  (FWHM  $\Delta\theta_i \approx 15^\circ, 10^\circ$ ) である。

(4) 表面ナノ周期構造形成の実験実証 : 図 7 に、ICP- $\text{Cl}_2$  プラズマにおいて  $E_i = V_p - V_{dc} \approx 470$  eV ( $P_{rf} = 150$  W) でエッチングした Si 表面の原子間力顕微鏡像 (AFM 像, top view  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ , angle view  $0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$ ) を示す。ここで、サンプル基板は図 6 に示したシース制

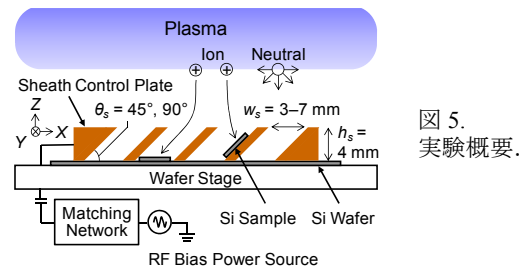


図 5. 実験概要。

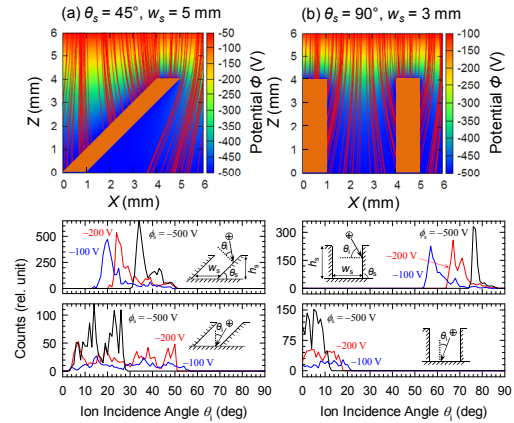


図 6. 2 次元静電粒子シミュレーション (計算領域  $\Delta X = 12$  mm,  $\Delta Z = 15$  mm) : 2 種類のシース制御板 ( $w_s, \theta_s$ ) = (a) (5 mm,  $45^\circ$ ), (b) (3 mm,  $90^\circ$ ) に関して算出されるプラズマ・シースの電位分布とイオン軌道 ( $E_i = \phi_p - \phi_s = 500$  V), およびサンプル基板が設置されるシース制御板のブレード側面・底部へのイオン入射角度分布 ( $E_i = 500, 200, 100$  eV).

御板 [( $w_s, \theta_s$ ) = (5 mm,  $45^\circ$ ), (3 mm,  $90^\circ$ )] のブレード側面に設置され、イオン入射角度とエッチング時間はそれぞれ  $\theta_i \approx 40^\circ, 80^\circ$ ,  $t = 3, 5$  min である。またそれぞれのラフネスは  $\text{RMS} \approx 6.3, 4.9$  nm, エッチング速度は  $\text{ER} \approx 360, 20$  nm/min であった。これらの結果から、 $\theta_i \approx 40^\circ$  ではイオン入射方向に直行する方向に伸長するリップルが、一方  $\theta_i \approx 80^\circ$  ではイオン入射に平行な方向に伸長するリップルが形成されることがわかり、ASCeM-3D シミュレーションとも矛盾しない。AFM データのラインスキャン (line scan) によると、リップル波長 (peak-to-peak/valley-to-valley) は  $\lambda_r \approx 30\text{--}100$  nm ( $\theta_i \approx 40^\circ$ ),  $\lambda_r \approx 50\text{--}150$  nm ( $\theta_i \approx 80^\circ$ ) 程度、また振幅 (peak-to-valley) は  $z_r \approx 10\text{--}20$  nm ( $\theta_i \approx 40^\circ$ ),  $z_r \approx 2\text{--}10$  nm ( $\theta_i \approx 80^\circ$ ) 程度である。また、空間周波数分布のパワースペクトル密度 (PSD) のピークは  $k_x \approx 0.015$  nm $^{-1}$  ( $\theta_i \approx 40^\circ$ ),  $k_y \approx 0.01$  nm $^{-1}$  ( $\theta_i \approx 80^\circ$ ) あたりに位置し、それぞれ波長  $\lambda_r \approx 65, 100$  nm に相当し矛盾しない。このようなプラズマによる自己組織的な表面ナノ周期構造形成の実験実証は、本研究が初めてである。

(5) 形成された表面ナノ周期構造の特徴 : 図 8 に、図 7 の AFM 像に対応する透過型電子顕微鏡像 (TEM 断面像,  $\theta_i \approx 40^\circ, 80^\circ$ ; 前者はイ

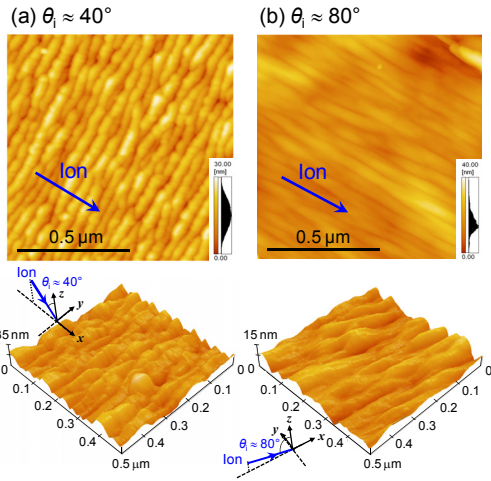


図7. ICP-Cl<sub>2</sub> プラズマにおいて  $E_i = V_p - V_{dc} \approx 470$  eV ( $P_{rf} = 150$  W) でエッチングした Si 表面の AFM 像 (top view  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ , angle view  $0.5 \times 0.5 \mu\text{m}^2$ ): (a)  $\theta_i \approx 40^\circ$  ( $t = 3$  min), (b)  $\theta_i \approx 80^\circ$  ( $t = 5$  min).

オン入射に平行, 後者は直角にカットした断面) を示す.  $\theta_i \approx 40^\circ$  では, 鋸刃形状のリップル (sawtooth-like ripple) が形成されており, リップル波長と振幅の平均値は  $\lambda_r \approx 62$  nm,  $z_r \approx 18$  nm 程度であり, AFM データから得られる値と矛盾しない. さらに, リップルのイオン入射に対して下流側の傾斜 (downward slope) と基板表面垂線とのなす角度  $\theta_r$  (ripple angle) はイオン入射角度とほぼ等しい ( $\theta_r \approx \theta_i \approx 40^\circ$ ). すなわち, リップルの下流側傾斜面 (downward-sloping surface) はイオン入射とほぼ平行, 一方, 上流側斜面 (upward-sloping surface) はイオン入射にほぼ垂直である. このような鋸刃状のリップル断面形状は, 局所入射角度 ( $\theta \neq \theta_i$ ) に依存するエッチング収量 (上流・下流側斜面でのイオン入射角度ひいてはエッチング収量が異なる) と, イオンシャドーイング効果 (斜め入射イオンに対するリップル凸部による陰影効果) に依る形状進展を反映している. 図の鋸刃状リップル断面形状は, 陰影効果が解消されファセット (faceting) が十分発達している条件,  $\tan(\pi/2 - \theta) \geq 2\pi h_0/\lambda_r$ , を満足する [ $\tan(\pi/2 - \theta) \approx 1.1$ ,  $2\pi h_0/\lambda_r \approx 0.91$  with  $h_0 = z_r/2$ ]. このような鋸刃状リップル形状は, IBS 実験において種々のイオン種と表面について観測されるが ( $E_i = 0.5\text{--}60$  keV,  $\theta_i = 45^\circ\text{--}80^\circ$ ), 本研究のプラズマ実験で示された十分発達した鋸刃状リップル ( $\theta_r \approx \theta_i$ ) の報告は数少なく, 生産性 (作製速度と基板面積) とあわせてプラズマの優位性が示された.

一方,  $\theta_i \approx 80^\circ$  では, 緩やかなリップルが形成され, Si 基板 (c-Si) 上に二層のアモルファス層が存在し, Si 基板のリップルは非常に弱い. リップル波長と振幅の平均値はアモルファス層上部表面において  $\lambda_r \approx 100$  nm,  $z_r$

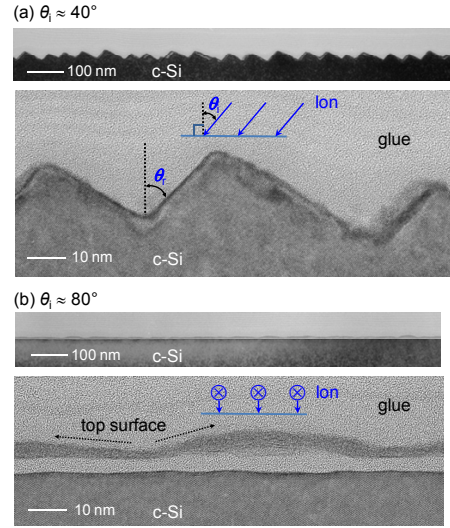


図8. 図7に示した AFM 像に対応する TEM 断面像: (a)  $\theta_i \approx 40^\circ$  はイオン入射に平行, (b)  $\theta_i \approx 40^\circ$  は直角にカットした断面.

$\approx 5$  nm 程度であり, AFM 像はこの部分を反映している. アモルファス層は, 斜め入射イオンによる表面チャネリングと関連しているとも考えられるが, 比較しうる IBS 実験報告も無く, 詳細解明と理解にはもう少し実験等 ( $\theta_i, E_i, t$ ) が必要である.

(6)プラズマと IBS 実験との比較—表面ナノ周期構造形成の機構解明—: 図9に, 本プラズマ実験 ( $E_i \approx 500$  eV Cl<sub>2</sub><sup>+</sup> on Si,  $\theta_i \approx 40^\circ$ ), IBS 実験 ( $E_i \approx 12$  keV N<sup>+</sup> on Si,  $\theta_i \approx 60^\circ$ ;  $E_i \approx 30$  keV Ga<sup>+</sup> on Cd<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub>,  $\theta_i \approx 45^\circ$ ), および ASCeM-3D シミュレーション ( $E_i \approx 50, 100, 150$  eV Cl<sup>+</sup> on Si,  $\theta_i \approx 45^\circ, r_i = 1$ ) で得られている鋸刃状リップル ( $\theta_r \approx \theta_i$ ) の波長  $\lambda_r$  と振幅  $z_r$  を示す. 異なる環境下でのデータであるが (イオン種・エネルギー, 材料表面; イオン入射角度は中程度の斜入射  $\theta_i \approx 45^\circ\text{--}60^\circ$ ), リップル波長と振幅は, IBS の分野で知られるスケーリング則  $\lambda_r \sim E_i^p, z_r \sim E_i^q$  ( $p, q \sim 0.6$ ) に従う. 図に, ASCeM-3D による鋸刃状リップルの表面 (top view,  $50 \times 50$  nm<sup>2</sup>,  $t = 60$  s) とそ

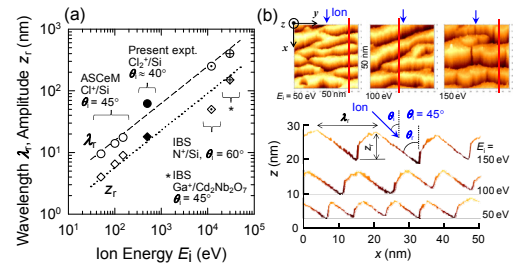


図9. (a) 本プラズマ実験, IBS 実験, ASCeM-3D シミュレーション ( $E_i \approx 50, 100, 150$  eV Cl<sup>+</sup> on Si,  $\theta_i \approx 45^\circ, r_i = 1, t = 60$  s) により得られた鋸刃状リップル ( $\theta_r \approx \theta_i$ ) の波長  $\lambda_r$ , 振幅  $z_r$  の比較. (b) ASCeM-3D シミュレーションにおける鋸刃状リップルの表面とその断面形状.

の断面形状をあわせて示す。  $E_i \approx 50, 100, 150$  eV におけるそれぞれのエッチング速度とラフネスは、  $ER \approx 130, 250, 340$  nm/min, RMS  $\approx 1.2, 1.5, 2.4$  nm であり、イオン入射方向のリップル伝播速度 (表面横方向移動速度)  $v_r \approx 2.7, 5.2, 7.0$  nm/s は、表面の下方向の移動速度  $v_{ER} = ER/60 \approx 2.2, 4.2, 5.7$  nm/s, よりやや速い。

イオン斜め入射により形成されるリップル波長や振幅は、IBS において、イオン入射角度・エネルギー・フラックス・フルエンスに依存することが知られ、図 9 におけるスケーリングは、リップル形成機構が IBS とプラズマエッチングにおいて類似であること、すなわち、シャドーイングとファセットティングが重要であることを示唆する。さらに、図 1 に示したように、ASCeM-3D においてイオン反射の効果を減じるとリップルが消失することより、表面でのイオン反射/散乱の効果も極めて重要であることがわかる。このような表面ナノ周期構造形成にかかわるメカニズムに関して、イオン反射の重要性の指摘は、本研究が初めてである。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- (1) N. Nakazaki, H. Matsumoto, S. Sonobe, T. Hatsuse, H. Tsuda, Y. Takao, K. Eriguchi, and K. Ono: “Ripple formation on Si surfaces during plasma etching in  $Cl_2$ ”, *AIP Adv.* **8** (2018), pp. 055027-1~12. [査読有]  
DOI: 10.1063/1.5017070
- (2) K. Ono, N. Nakazaki, H. Tsuda, Y. Takao, and K. Eriguchi: “Surface morphology evolution during plasma etching of silicon: roughening, smoothing and ripple formation”, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** (2017), pp. 414001-1~31. [査読有] DOI: 10.1088/1361-6463/aa8523
- (3) N. Nakazaki, H. Matsumoto, H. Tsuda, Y. Takao, K. Eriguchi, and K. Ono: “Surface smoothing during plasma etching of Si in  $Cl_2$ ”, *Appl. Phys. Lett.* **109** (2016), pp. 204101-1~5. [査読有] DOI: 10.1063/1.4967474
- (4) N. Nakazaki, Y. Takao, K. Eriguchi, and K. Ono: “Molecular dynamics simulations of Si etching in Cl- and Br-based plasmas:  $Cl^+$  and  $Br^+$  ion incidence in the presence of Cl and Br neutrals”, *J. Appl. Phys.* **118** (2015), pp. 233304-1~18 (2015). [査読有]  
DOI: 10.1063/1.4937449
- (5) 斧 高一: “プラズマ・固体表面界面反応制御：表面ラフネスとリップルの形成機構と制御”, *応用物理*, **84** (2015), pp. 895-902. [査読有]

[学会発表] (計 5 件)

- (1) 斧 高一: “プラズマエッチングにおける表面ナノ周期構造の形成”, 応用物理学会

第 206 回シリコンテクノロジー研究会, 2018 年 2 月, 東京. [招待講演].

- (2) K. Ono: “Plasma-surface interactions in nanofabrication and space exploration”, 14th International Symposium on Sputtering & Plasma Processes (ISSP 2017), 2017 年 7 月, Kanazawa, Japan (金沢市). [基調講演]
- (3) K. Ono: “Plasma-induced surface roughening and ripple formation during plasma etching of silicon”, AVS 62nd International Symposium (AVS2015), 2015 年 10 月, San Jose, CA, U.S.A. (米国カリフォルニア州サンノゼ市). [招待講演]
- (4) K. Ono: “Plasma-surface interactions for top-down and bottom-up nanofabrication”, 68th Annual Gaseous Electronics Conference (GEC2015) and 7th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP-8), 2015 年 10 月, Honolulu, HI, U.S.A. (米国ハワイ州ホノルル市). [基調講演].
- (5) 斧 高一: “プラズマ微細加工における原子層レベルの表面荒れ形成機構とその制御方法”, 日本学術振興会・プラズマ材料科学第 153 委員会, 薄膜第 131 委員会・アモルファス・ナノ材料第 147 委員会 合同研究会, 2015 年 4 月, 名古屋. [招待講演]

[図書] (計 1 件)

- (1) 斧 高一, 江利口浩二, 鷹尾祥典: “ナノエッチング技術”, 「プラズマプロセス技術: ナノ材料作製・加工のためのアトムテクノロジー」, プラズマ・核融合学会編 (森北出版, 2017), 第 4 章, pp. 90-146. [分担執筆]

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.propulsion.kuaero.kyoto-u.ac.jp/>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

斧 高一 (ONO, Kouichi)

大阪大学・接合科学研究所・特任教授  
研究者番号: 30311731

##### (2) 研究分担者

江利口 浩二 (ERIGUCHI, Koji)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号: 70419448

##### (3) 連携研究者

なし

##### (4) 研究協力者

なし