

令和 2 年 6 月 15 日現在

機関番号：14303

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K18769

研究課題名（和文）酸素アニオンラジカルによる低温酸化亜鉛プロセスと均一な負イオンクラスターへの挑戦

研究課題名（英文）Studies on negative oxygen ions for applying nano processing and uniform cluster at room temperature

研究代表者

比村 治彦（Himura, Haruhiko）

京都工芸繊維大学・電気電子工学系・教授

研究者番号：30311632

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は制御性の悪いダイレクトプラズマを用いるナノプロセス方式から、制御性がよくエネルギーが揃えられた反応性負イオン方式への転換を目的として行われたものである。この新しい方式の原理を実験的に検証するための装置が独自のシミュレーションに基づいて設計・製作された。その装置の平面型プラズマ生成室において、酸素負イオン生成するための電磁場配位と電子温度の空間分布が実現された。エネルギーを揃えるためのビーム引き出しパラメーター値がシミュレーションで確立された。また、原子層堆積（ALD）膜を生成する実験に必要な装置運転モードが実験的に確立された。これらにより、原子層堆積膜生成の検証実験準備が完了した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

IoTデバイス等に用いられる最先端半導体デバイスの製造過程において、微細化と複雑化が進んできている。加工寸法の微細化により得られる恩恵は、1チップ当たりのトランジスタの高集積化・高性能化、チップの低消費電力化・低コスト化などが挙げられる。この微細化による半導体デバイス高性能化により、例えばスマートフォンやPCの高性能化、データサーバーの小型化や大容量化、ビッグデータ解析を背景とした人工知能の普及など、日常生活における利便性の更なる向上が期待できる。微細加工を可能にするため、原子層プロセスが用いられている。本研究により、このための新方式の開発をスタートできたことが最大の学術的・社会的意義である。

研究成果の概要（英文）：This study proposed a method using reactive negative ions that has better controllability and uniform energy compared to the direct plasma method. A machine for verifying the principle of the new method was designed and constructed based on our own simulations. In a planar-type of plasma source in the machine, the electromagnetic fields were optimized for generating oxygen negative ions. Also, an appropriate spatial distribution of electron temperature ( $T_e$ ) was realized in which  $T_e$  was measured by a double probe. Values of other plasma parameters for extracting the negative ions with a uniform energy were investigated by simulation. This simulation considered the self-electric field of the negative ions. In addition, the operating mode of the machine necessary for the experiments to produce atomic layer deposition (ALD) films have been experimentally established. With these, the preparation for verifying the atomic layer deposition film by the negative ions was completed.

研究分野：プラズマ科学

キーワード：負イオンナノドライプロセス

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) IoT デバイス等に用いられる最先端半導体デバイスの製造過程において、微細化と複雑化が進んできている。微細化に関しては、最先端半導体デバイスの最小加工寸法は、2018 年に 7 nm になっている。加工寸法の微細化により得られる恩恵は、1 チップ当たりのトランジスタの高集積化・高性能化、チップの低消費電力化・低コスト化などが挙げられる。この微細化（スケールリング）による半導体デバイス高性能化により、例えばスマートフォンや PC の高性能化、データサーバーの小型化や大容量化、ビッグデータ解析を背景とした人工知能の普及など、日常生活における利便性の更なる向上が期待できる。

(2) 能動的制御方法としては、トップダウンプロセスのエッチングがある。ところが、超微細デバイスが要求するスケール長が 10 nm 程度に対して、リソグラフィ技術は光源やレンズ系の設計限界のため 22 nm 以下の微細加工に不向きである。

(3) 微細な加工を可能にするため、原子層堆積法 (ALD) などの原子層プロセスが用いられており、精密な制御が求められている。原子層プロセスにおいては、図 1 のようなダイレクトプラズマ方式による処理が行われているが、プラズマ中に含まれるイオン、ラジカル、電子の精密な制御は、ダイレクトプラズマ方式では難しいのが現状である。

(4) さらに、プラズマから出される紫外線による表面欠陥や、プラズマが熱的に緩和していないことによるゆらぎ、たとえ熱緩和したとしてもプラズマ温度に起因するエネルギーのばらつきが問題となっている。これらは、特に化合物半導体の製造に用いられる材料が Si に比べて不安定で脆弱なため、プラズマを用いて欠陥のないナノ構造を作成することは不可能とまで言われている。

### 2. 研究の目的

そこで、本研究では、ダイレクトプラズマ方式ではなく、プラズマ源から反応性粒子だけを引き出して、その反応性粒子を所望の位置へと能動的に制御できる新しいリモートナノプロセス方式を開拓する。これにより、既存のダイレクトプラズマ方式からの方式の転換を図る。そして、そのリモートナノプロセス方式を用いて、膜質が向上した超薄膜や、均一な面密度で広がる大きさの揃った量子ドット生成法の開発に対する展望を得る。

### 3. 研究の方法

(1) 一般的なリモートプラズマ方式とは、加工対象物がプラズマ生成室内に置かれていないだけである。つまり、特定イオンを抽出できたとしても、そのエネルギーを所望の値に制御することが困難である。これらすべての難点を一度に解決するための方法として、プラズマから特定イオンだけを電磁場で引き出す。特定イオンの速度と密度の積（フラックス）は一定になるので、特定イオンの速度を上げることで、特定イオンの密度が下がる。密度が下がれば、それに応じて特定イオンのデバイ長が長くなる。デバイ長は特定イオンの慣性長なので、このデバイ長がプロセス装置の装置スケール長と同程度とすれば、特定イオンはマクスウェル分布を持つプラズマ状態にならない。つまり、特定イオンの速度は揃う。このとき、フラックスは一定値なので、特定イオンの密度も揃う。この原理を実証する実験装置製作のためのシミュレーションを行う。

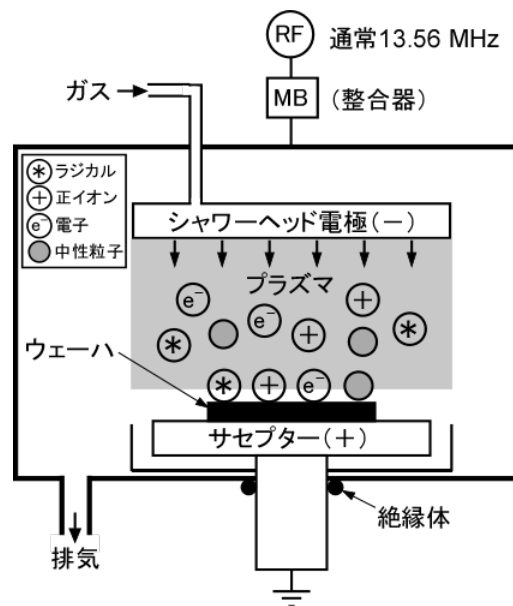


図 1: ダイレクトプラズマ方式を用いたプラズマ CVD の模式図。

- (2) 項目(1)の結果に基づいて、実際にプロトタイプの実験装置を設計・製作する。
- (3) プロトタイプ装置で作り出されるプラズマ、引き出されるビームの各種パラメータ値を実測し、リモートナノプロセス方式に必要とされる値と比較する。

#### 4. 研究成果

(1) プラズマから電磁場を用いて特定イオンだけを引き出す際に、電場による加速と減速だけでなく、電場あるいは電場と磁場の両方を用いた収束、そして、磁場による偏向を組み合わすことで、特定のイオンだけを所望のエネルギーとフラックスで抽出できることをシミュレーションで示した。図4は、そのシミュレーション結果の一例であり、左側のプラズマ生成室から引き出された特定イオン群の自己電場による発散がアインツェルレンズと4重極コイルレンズで抑えられて、それらのラーマー半径がステアリングコイルの曲率半径と一致するものだけ偏向・収束されることを示している [T. Kanki, H. Himura *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SJJE01 (2020).].

(2) 平面型の酸素負イオンソースを開発した [N. Kodama, H. Himura *et al.*, *Plasma and Fusion Research* **14**, 1206088 (2019).]. 電極からの不純物の混入を防ぎ、電子温度の低下を回避するため、誘導結合方式 (ICP) で酸素プラズマを生成した。ICP に用いるアンテナに 13.56 MHz の高周波電流を流すことで生じる誘導電場の  $1/e$  減衰距離を、プラズマ生成容器の長さ (~25 mm) に合わせて、放電電力効率が本研

究用に最適化されたイオン源になっている。事前に実際のプラズマ放電ではインピーダンスが変化するためインピーダンスのミスマッチングで放電電力効率が下がることを予測していたが、これは整合回路のコンデンサー容量を変更しながら、最終的に ~0.2 kW の電力に留めることに成功した。

(3) 電子温度 2 領域を作り出すために、プラズマ生成領域の出口に永久磁石 (~150 G) で横磁場 (磁気フィルター) を印加し、

磁気フィルター下流領域の電子温度 ~1 eV を得て、解離性電子付着過程を生じさせられるようにした。これは特定イオンが酸素の負イオンの時である。磁気フィルターの上流領域と下流領域で静電プローブにより測定された電流-電圧特性曲線から算出されるが、確かに電子温度 2 領域を確立できている。この詳細と、装置の詳細についての論文を準備している。

(4) 反応性の高い酸素負イオンのフラックス量については、シミュレーションにより、加速電圧が 1 kV では不足することを明らかにし、この電源電圧を 7 kV に変更するための電源を製作する計画に変更し、高圧電源を完成させた。

(5) 本リモートナノプロセスは、プラズマ生成のためにプラズマ生成室へと封入するガスを連続的に入れられない。これはプラズマ生成用ガスが輸送部へと拡散し、特定イオン群によるビームがガス散乱されるためである。この問題は、プラズマ生成をパルス的に行うためのガス投入を電磁バルブ方式と変更し、あらたにプラズマ生成室に放電圧力を下げることを目的とした熱電子放出用フィラメントおよびそのスイッチング電源で解決できることを実験的に示した。

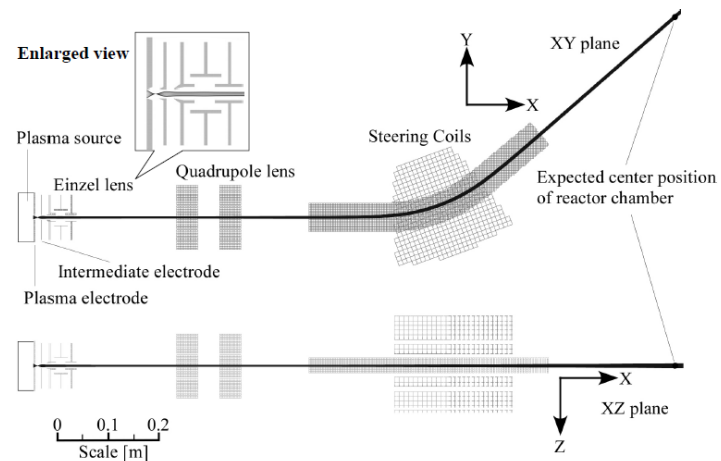


図 2: 酸素アニオンラジカルのみを一定のエネルギーとフラックスで加工対象物へと照射できることを示しているシミュレーション結果の一例 [発表論文\*].

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 N. Kodama, H. Himura, K. Azuma, K. Tsumori, H. Nakano	4. 巻 14
2. 論文標題 Effect of a magnetic filter across the exit hole of a flat oxygen plasma source	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 1206088-1-3
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1585/pfr.14.1206088	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 H. Himura, S. Kawai, K. Akaike, S. Okada, J. Aoki, and S. Masamune	4. 巻 24
2. 論文標題 Intermittent ion leakage from a Penning trap during potential barrier closure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physics of Plasmas	6. 最初と最後の頁 102129-1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.4997493	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Haruhiko HIMURA, Shohei YAMADA, Toshiki KATO and Sadao MASAMUNE	4. 巻 12
2. 論文標題 First Observation of Independent Ion and Electron Plasmas after Elapse of Two-Fluid Plasma State	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 1201037-1-3
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Haruhiko Himura	4. 巻 1928
2. 論文標題 Recent experiments with lithium ion and electron plasmas in the BX-U linear trap	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 020005-1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） <a href="https://doi.org/10.1063/1.5021570">https://doi.org/10.1063/1.5021570</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shohei Yamada, Haruhiko Himura, Toshiki Kato, Shigehumi Okada, Akio Sanpei, and Sadao Masamune	4. 巻 1928
2. 論文標題 Two-dimensional macroscopic shapes of lithium ion and electron plasmas after elapse of two-fluid plasma state	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 020016-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1063/1.5021581">https://doi.org/10.1063/1.5021581</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosuke Furukawa, Haruhiko Himura, Shigefumi Okada, Akio Sanpei, and Sadao Masamune	4. 巻 1928
2. 論文標題 Observation of macroscopic stability of weakly magnetized Li <sup>+</sup> ion beams near the Brillouin density limit	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 020002-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1063/1.5021567">https://doi.org/10.1063/1.5021567</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 T. Morioka, H. Himura et al.
2. 発表標題 Pulsed oxygen negative ion plasmas produced by RF discharge
3. 学会等名 2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics, 12-17,11.2018, Kanazawa, Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 D. Liu, H. Himura et al.
2. 発表標題 Characteristic of oxygen plasmas for developing new plasma processing
3. 学会等名 2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics, 12-17,11.2018, Kanazawa, Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

1 . 発表者名 N. Kodama, H. Himura et al .
2 . 発表標題 Remote deflecting plasma source for novel plasma processing
3 . 学会等名 Gaseous Electornics Conference ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 T. Morioka, H. Himura et al .
2 . 発表標題 Pulsed gas injection for effectively producing negative oxygen ion plasmas
3 . 学会等名 Dry Process Symposium ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 D. Liu, H. Himura et al .
2 . 発表標題 Effect of longitudinal magnetic field on plasma discharge with spiral antennas
3 . 学会等名 Dry Process Symposium ( 国際学会 )
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 H. Himura
2 . 発表標題 Recent experiments with lithium ion and electron plasmas in the BX-U linear trap
3 . 学会等名 International workshop on nonneutral plasmas ( 招待講演 ) ( 国際学会 )
4 . 発表年 2017年

1. 発表者名 H. Himura
2. 発表標題 Properties of ZnO thin film produced by intermittent RF oxygen plasma source
3. 学会等名 International Symposium on Dry Process (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 比村治彦
2. 発表標題 異なる流体運動を行うイオンプラズマと電子プラズマを用いた2流体プラズマ系の実験的開拓
3. 学会等名 Plasma Conference 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 特定種イオン源およびプラズマ成膜装置	発明者 比村治彦	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2018/41365	取得年 2019年	国内・外国の別 外国

〔その他〕

<p>京都工芸繊維大学・プラズマ基礎工学研究室  <a href="http://nuclear.es.kit.ac.jp/">http://nuclear.es.kit.ac.jp/</a></p>
----------------------------------------------------------------------------------------------------------

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	蓮池 紀幸  (Hasuike Noriyuki)  (40452370)	京都工芸繊維大学・電気電子工学系・助教    (14303)	
研究 分 担 者	三瓶 明希夫  (Sanpei Akio)  (90379066)	京都工芸繊維大学・電気電子工学系・准教授    (14303)	