

戦略的創造研究推進事業
ナノテクノロジー分野別バーチャルラボ
研究領域「超高速・超省電力高性能ナノデバイス・
システムの創製」

研究課題「多価イオンプロセスによる
ナノデバイス創製」

研究終了報告書

研究期間：平成14年11月～平成20年3月

研究代表者： 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)

1 研究実施の概要

原子に束縛されている電子を取り去り、高度に電離したイオンのことを多価イオンと呼ぶ。他の粒子・光子にはない多価イオンの大きな特徴は、それが物質と相互作用する時に自身の持っている膨大な内部エネルギーを付与することによる反応性の豊かさにある。図 1.1 にヨウ素多価イオンの価数とポテンシャルエネルギーとの関係を示す。1 価のヨウ素イオンのポテンシャルエネルギーが、ただだか 10 eV なのに対して、裸のヨウ素イオン (I^{53+}) のそれは、200 keV にまで達する。この内部エネルギー付与により誘き起こされる現象は、イオンの持つ運動エネルギー付与による効果とは質的に異なり、その影響はイオンと表面との接触点周囲ナノメートル領域に限定され、結果として現れる効果は絶大であり、固体の種類により多様であると想像される。我々は、この多価イオンの特徴を利用して、様々な物質の表面層に新しいナノプロセスを誘き起こし、その実態と物理機構を調べ、その理解を基にデバイス創製へ向けた研究を行った。

本研究で明らかにした、多価イオンナノプロセスの有用な特徴をまとめると以下のようなになる。そして、本研究実施に必要な技術開発項目と、将来の多価イオン高度利用ナノデバイス創製を目的としたイオン源開発の状況を示す。最後にナノ界面構造作製に向けた基礎研究を紹介する。

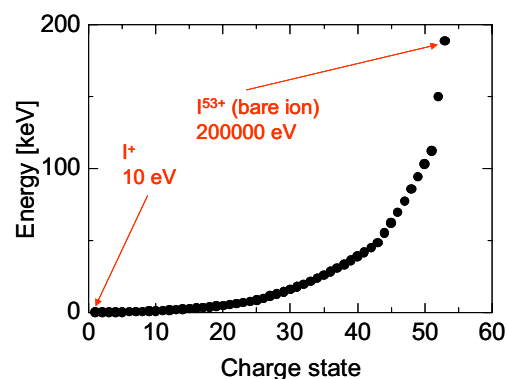


図 1.1：ヨウ素多価イオンの価数とポテンシャルエネルギーとの関係。

1. 多価イオンナノプロセスの特徴

1) 大量放出2次電子の検出により単一イオン入射を検知可能

これまでの測定によると、イオン衝突の Kinetic effect による 2 次電子放出率は、10 keV 近辺で1を超え、100 keV 程度になっても 10 以下である。このことは、数個の 2 次電子を確度 100% で検出することが非常に難しいことに加えて、10 keV 以下の運動エネルギーでは単一イオン入射を確実に検知することは、原理的に不可能であることを意味している。ところが、多価イオンの場合、運動エネルギーの極めて小さい、たとえば、10 eV の Xe^{44+} が固体表面に衝突した場合には 100 個程度の 2 次電子を放出する。この大きな収率をともなった 2 次電子放出特性を利用して、その 2 次電子検出を行うことにより、多価イオンの入射イベント回数を確度 100% で計数しうる手法を確立した。

2) 多価イオンの価数を選ぶことで 0.5 nm～10 nm まで加工範囲を制御可能

イオン 1 個で表面ナノ領域を改質でき、加工範囲は、表面深さ方向が 2,3 層に留まり、水平方向の大きさには明瞭な価数依存をもち(運動エネルギー依存はない)、その大きさは価数とともに 0.5 nm から 10 nm へと増大する。図 1.2(A) の Scanning Tunneling Microscope (STM) 像は、1 個の I^q ($q=30, 40, 50$) 衝突によって Si(111)-(7×7)再構成表面上に生成したクレーター構造を示している。DAS 構造の adatom と corner hole が明瞭に観察できるような原子分解能でクレーター型照射痕を見ることができる。図(B)は、adatom 欠損領域の平均面積に対する価数依存性を示す。他のグループによる Ar^+ 衝突実験の結果を白丸でプロットしている (PRB46(1992)7581)。これまでの低価数イオン ($q < 10$) を使った実験結果から、半導体表面に対して、多価イオン特有のプロセス効果はないと考えられてきた。すなわち、これまでの多価イオン衝突では運動エネルギー付与の効果だけが観測されていた。ところが、本研究によって、30 価程度以上の高価数イオンを使えば、直径 0.5 nm から 10 nm の範囲で 1 個のイオンを使って表面加工ができ、そのサイズは価数で制御できることが、はじめて示された。

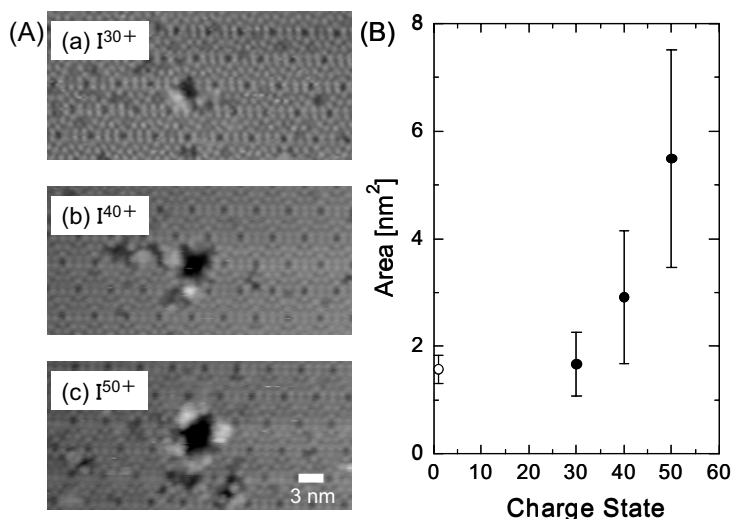


図 1.2 : (A) I^q ($q=30, 40, 50$) 衝突によって生成した照射痕の拡大像. (B) adatom 欠損領域の面積に対する価数依存性. 白丸は Ar^+ 衝突実験の結果 (PRB46(1992)7581).

3) 表面電子系と強くカップルした相互作用が誘起する構造変態

プロセス効果の質と大きさは、標的表面のバンド構造、結晶性、元素組成、吸着物質の有無などに強く支配される(例えば、反応性や照射痕の形状など). 表面電子系と多価イオンとの強いカップリング(主として伝導電子、価電子帯の電子から多価イオンの励起準位への遷移)が引き金となって、2次粒子放出現象が生じ、その結果、表面ナノ構造が生成することがわかった. 図1.3は、様々な標的材料に対する多価イオンの加工効果をSTM観察した結果を示す. $Au(111)$ 表面に I^{50+} を照射し、2次イオン放出率の測定と照射後表面のSTM観察を行った結果、2次イオン収率は観測不能なぐらい小さく、照射痕も見つけることができなかった. 遷移により失われた電子を容易に補償できる金属表面においては、多価イオン照射効果が、顕著に現れないと考えている. 同じ多価イオン I^{50+} による半導体Si表面上の照射痕は、大きさが直径約5 nm, 深さ0.3 nm程度のクレーター構造であるのに対し、酸化物 TiO_2 の場合、クレーターというよりはむしろ、外輪山をともなったカルデラのような形状をしていることがわかった(直径12 nm, 深さ 2nm). 直接的な観察方法を使って得られたこの結果は、酸化物に対する多価イオン表面改質効果が半導体のそれよりも大きいことを明確に示している.

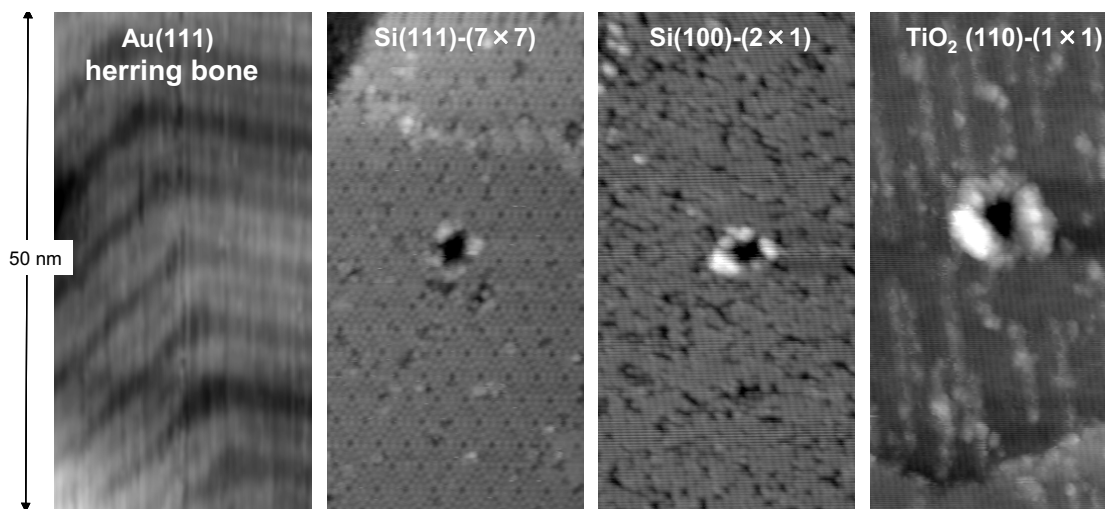


図 1.3 : 様々な標的材料に対する, I^{50+} 多価イオンの加工効果.

2. 技術開発

1) 低速多価イオンの輸送系と照射システムの開発

複数の試料室に多価イオンを輸送、照射し、照射時の2次粒子光子放出現象を計測、照射後の試料表面をその場で顕微鏡観察しうるシステムを作り上げた。

2) 多価イオン生成技術の開発

希土類金属などの機能性元素をイオン源に導入し多価イオン化、ビームとして安定に引き出す方法を開発した。これにより、表面改質をしたのちにそこに留まり、自らの機能性を発揮する新しいイオン注入法が展開する。

3) 2次イオン質量分析と放出収量測定法の開発

1価イオンと比べて数桁も大きい多価イオン衝突による2次粒子放出特性を利用し、2次電子検出により確認されたイオン入射ごとに放出される2次イオン種を飛行時間質量分析(TOF-SIMS)することによって、イオン種ごとのスパッター率の絶対測定が可能となった。

3. 合目的型多価イオン源の開発

ナノデバイス創製を目的としたテーブルトップサイズの汎用小型多価イオン源を開発、製作した。開発したイオン源は電気通信大学のTokyo-EBITと同じ形式の電子ビーム型イオン源であるが、超伝導磁石を市販の無冷媒型とし、これにイオン源本体の真空容器を挿入する形式とした。ビーム強度が高く、操作性・保守性に優れ、製造コスト・運転コストを抑えた合目的型多価イオン源を完成させることができた。また、このイオン源を用いた周期的ナノ構造作成の試行実験を実施した。

4. デバイス創製に向けたナノ界面構造の作製

上で述べた多価イオンビームの特性を応用すると、トップダウンアプローチの高効率性と1 nmの分解能を持つボトムアップアプローチの利点を併せ持つ、他の手法では不可能なナノプロセスが実現できる。1個の多価イオン衝突によって、100%の確率で誘き起こされる構造変態は、非常に高いスパッタリング収率をともなっている。表面から多くの構成元素が真空中に放出すると、その後、表面近傍には多数の遊離結合手“ダングリングボンド”が存在することになる。このことは、化学的に安定だった表面が、多価イオンとの相互作用によって、活性化することを意味する。この多価イオン刺激による表面反応性増強効果を半導体材料に適応し、単一イオンリソグラフィ技術の開発を試みた(図1.4(A))。例として、Si(100)-(2×1)-H表面にI⁴⁴⁺を酸素雰囲気(2×10⁻⁶ Pa)中で照射することで作製した、極微小なSi-O界面構造のSTM像を図1.4(B)に示す。44価のイオンをつかって、直径2~3 nmの異種物質層を持つ超微小界面の作製に成功した。このような超微小界面構造を半導体表面に高効率で高密度に集積させることができる。例えば、本研究で開発した小型イオン源を使えば、数分間で、このような微小界面構造の面密度を10¹²/cm²にまで到達させることができる。この他にも、いろいろなナノ構造を作る試みが進行中である。

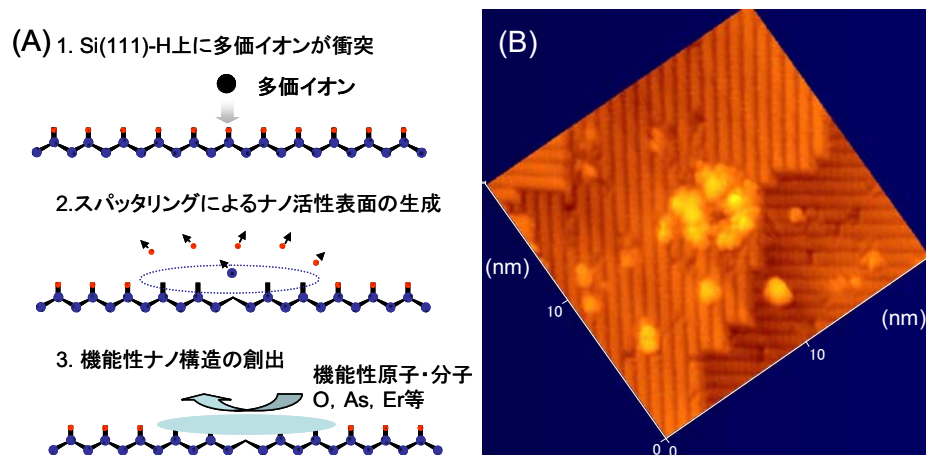


図 1.4 : (A) 単一イオンリソグラフィの概念図。(B) Si(100)-(2×1)-H 表面上に I⁴⁴⁺ 衝突によって生成した、酸化シリコンのナノ構造。

2 研究構想及び実施体制

(1) 研究構想

以下に示すのは研究開始時に構想した研究内容である。当時は、特に高価数多価イオンの誘起す表面プロセスに関する知見は皆無であり、その実態も知らない状況であった。そのため、これらの研究項目はほぼ全てが想像の域の中で構想されたものである。したがって、現在の理解が深まりつつある時点で下を見直すと、ピントが外れた部分も多い。しかしながら、下に揚げた具体的研究項目の70%は実施していることを考えると、当初の構想は路線としては基本的に正しい方向を与えていたことがわかる。

上の状況から容易に想像できるように、この新しい分野での研究の流れは進展とともに、当初の構想とは異なり各研究項目の実施における集中度の偏りが必然的に生じた。その原因は、低速多価イオンの表面プロセスがもつ物理的内容の圧倒的な豊かさにある。すなわち、これまで理解されてきたイオンプロセスとは質的にも量的にも異なる新奇な現象が研究着手直後から続々と見出され、その内容を理解することが研究の次への進展に欠かせないとの認識が高まった。そのため、下記項目1)に含まれる「多価イオンプロセスの物理機構の解明」の研究に重点が置かれることとなった。

本章の後半部には、このようにして研究内容が修正されつつ進められた、A,B両グループにおける具体的研究項目と役割分担について記述する。

1)多価イオン生成量子ドットの物性研究と生成機構の解明

多価イオンのエネルギーと価数を変えながら、シリコンなどの半導体、グラファイト、ダイヤモンドなどの誘電体結晶に単一イオン入射し、そこに生じた変態相の結晶構造を電子回折法などで評価するとともに、その形状と物性をSTM(あるいはAFM)や近接場光学顕微鏡(SNOM)での観察のもとに、単一ドットの分光測定、すなわちトンネル電流スペクトル、電荷注入およびレーザー照射による誘起蛍光などにより詳しく測定する。このような多価イオン照射と電荷注入あるいはガスとの反応で生成される量子ドットの特性に関する系統的研究を行い、多価イオン生成量子ドットの基本的性質を明らかにする。また、多価イオン照射時に真空中に放出される散乱イオンや二次イオン、二次電子、可視からX線領域の光子に関し、角度分布・エネルギー分布を詳細に調べ、さらに同時計測法による放出粒子間の相関を測定することにより、上記の多価イオン生成量子ドットの構造や物性に関する知見と総合して、その生成に関する物理機構を明らかにする。

2)単一イオン入射・整列量子ドット作成技術の確立と応用

価数選別された多価イオンビームを、イオンレンズ系を用いて形状を整え、50 nm(あるいはそれ以下)直径の単孔を通し試料表面に照射する。多価イオン照射ではイオン1個当たり数10個を越える2次電子が放出されるため、電子放出現象は確実に検出器(マイクロチャンネルプレートなど)で検知され、単一イオン入射を正確に確認できると予想される。その確認のあと、試料を支持しているナノメーター・ピエゾスライド機構を用いて、所定の照射位置まで移動させる。この手法により単一イオン入射点を空間制御しながら点在させ、操作する技術を確立する。

さらに、単一多価イオン入射と整列量子ドット作成技術の発展として、量子ドットレーザーなどのフォトニックデバイス創製への展開を目指す。

3)合目的型イオン源の開発と応用

よりナノプロセスに適した多価イオン源の開発に取り組む。無冷媒型超伝導磁石を用い操作性を向上させるとともに、多価イオンの生成効率・イオン取出しの輸送効率を高めることで、高いビーム強度の多価イオンを発生し得る、ナノプロセスに最適化したイオン源を設計・製作する。本項目は、神戸大学を主たる研究実施機関として行うが、イオン源が完成した時点で、電気通信大学の既設多価イオンビームラインに接続し、上記2)の研究に供用する。

A グループ

電気通信大学 レーザー新世代研究センター (大谷 俊介)

研究実施項目：

本章の冒頭に述べたような理由から、本グループは低速多価イオンの表面プロセスの物理機構の解明に主眼を置き、その理解を基にナノデバイス創製に向けた基礎研究を実施することにした。

既設の多価イオン生成閉じ込め装置Tokyo-EBITに本研究の遂行に適したイオン引き出しビームラインと、試料照射機構と観測装置を開発する。加えて、これまで世界でやられたことのない金属種(タネ)原子導入機構を開発し、周期律表上のあらゆる元素を望む価数にしうる運転様式を確立する。そして、役割分担として以下の項目の研究を構想した。

1. 多価イオンナノプロセスの実態の調査研究とその物理機構の解明
2. 単一イオン入射の検知技術の開発
3. ナノプロセスを利用したデバイス創製に向けた基礎研究
4. 多価イオンビームの空間操作技術の開発

概要:本研究グループは、本研究課題の主要部をなす。電気通信大学 レーザー新世代研究センターの電子ビーム多価イオン源(Tokyo-EBIT)を用いて、低速多価イオン1個の入射により、半導体などの固体表面に形成されるナノメートルサイズの量子ドットの量子状態を、トンネル電流スペクトル、電荷注入およびレーザー励起などによる分光測定により詳しく調べるとともに、照射時に発生する散乱イオン、可視からX線領域の光子、2次電子を同時計測法などにより解析し、多価イオン照射によるナノ構造生成の物理機構の解明を目指す。また、1個の多価イオンが照射された際、殆ど同時に放出される2次電子群を検出し、照射イオン数との対応を評価することにより、単一イオン入射技術を確立する。そして、革新的なナノデバイスの創製を目的とした基礎研究を積み上げる。

B グループ

神戸大学 理学部 (櫻井 誠)

研究実施項目：

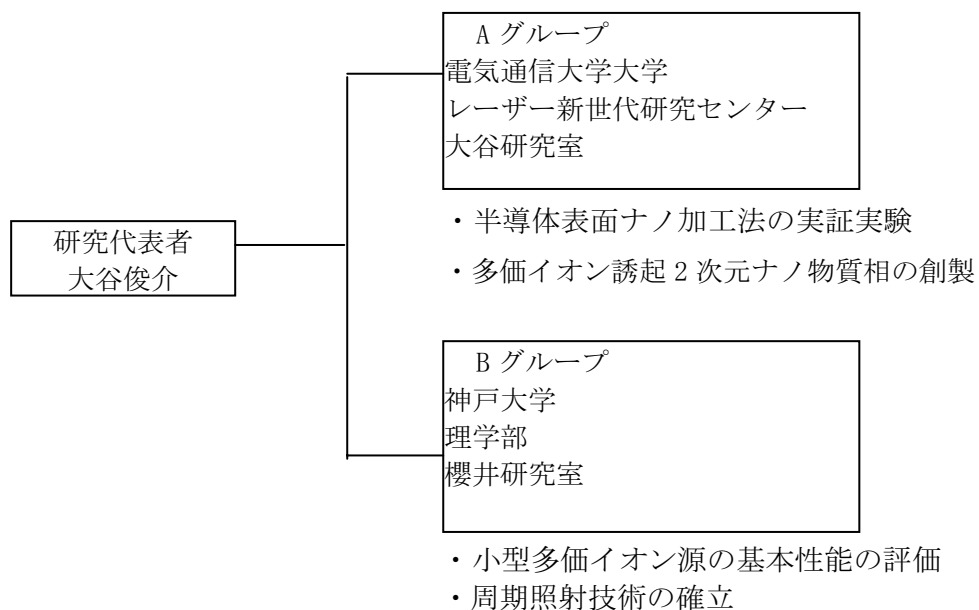
本グループでは当初案を修正して、ナノデバイス創製に適した合目的型小型多価イオン源の開発に専念する。このイオン源開発は国際的に見ても需要が高く世界のいくつかの研究機関で実施中であるが、困難な事業のためまだ成功に至っていない。そこで、本グループではAグループの協力のもとにこの開発研究を5年間かけて行う構想を立てた。

1. 合目的型多価イオン源の開発
2. 多価イオン周期照射技術の確立

概要：

ここでは運転が容易でなおかつ、高いビーム強度の多価イオンを発生しうる、ナノプロセスに最適化したイオン源を設計・製作する。本研究では、電子エネルギーを50keV以下におさえ、液体ヘリウムを使用しない超伝導磁石を用いることで、操作性を向上するとともに、イオンビーム強度を増すために、トラップ領域を通過する電子電流密度を増やし、イオンの引き出し効率を最適化した設計を行う。並行して多価イオンビームの減速・収束技術、マスクの精密位置制御技術、STMによる照射表面評価法を統合した、多価イオンの周期照射技術の確立を目指す。

(2)実施体制



3 研究実施内容及び成果

3.1 多価イオンナノプロセスの原理実証実験とその物理機構の解明 (電気通信大学大学 大谷グループ)

(1)研究実施内容及び成果

◎多価イオンの生成と引き出し

高価数多価イオンは電子ビームイオントラップ (Electron Beam Ion Trap: EBIT) 中で生成される。本研究で使用したEBITは、自然界に存在する最も重い元素“ウラン”をも裸イオンにしうる、世界最高性能のイオン源である。EBITは、主に、電子銃、ドリフトチューブ、超伝導磁石、電子コレクターから構成されている(図3.1.1)。電子ビーム(最大300 keV, 350mA)は強磁場(4 T)によりドリフトチューブの中央付近で60 μmに圧縮され、コレクターで回収される。ドリフトチューブ内に導入された種(タネ)原子は電子衝突によりイオン化される。イオンは図中右に示したような井戸型ポテンシャルにより閉じ込められ、逐次電離されることで高価数多価イオンとなる。

図3.1.2は、ヨウ素多価イオンが低価数から高価数へと時間とともに逐次生成されていく様子を示している。煩雑さを避けるために、 $q=43\sim 51$ まではひとつおきの価数イオンの成長曲線を表示している。この運転条件では、Ne様イオン程度以下の低価数イオンは、電子ビームとの相互作用開始から比較的短い時間(50 ms以下)で生成される。一方、高価数イオン、例えば、H様イオン(I^{52+})では、平衡状態に達するために、1.5 s程度必要なことがわかる。

EBIT内に種原子を導入できれば、原理的にあらゆる元素の多価イオンを生成できる。常温で気体(希ガスなど)、または、蒸気圧の高い液体(CH_3I など)は、原子、分子ビームとしてスキマーを通

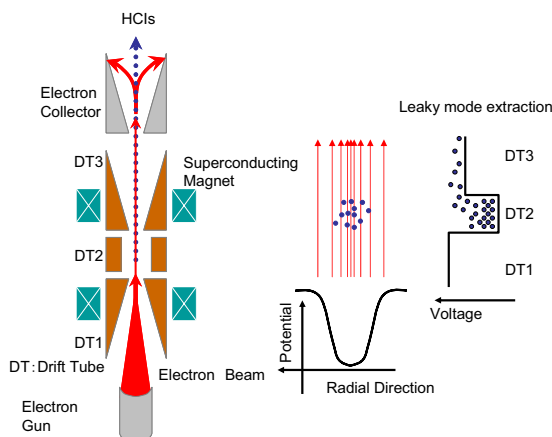


図 3.1.1 : 電子ビームイオントラップ (EBIT) の模式図. 右の図はイオンをトラップするためのビーム軸と径方向ポテンシャル.

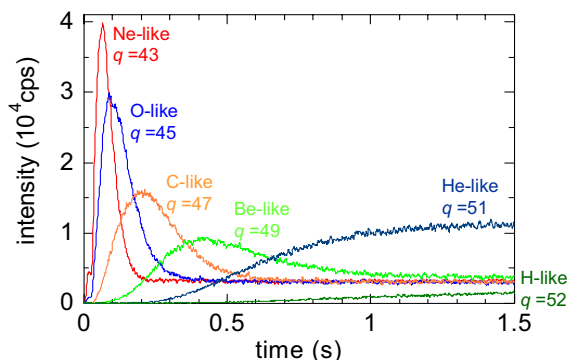


図 3.1.2 : イオントラップ内でヨウ素多価イオンが逐次的に生成されていく様子. $t=0$ でイオン生成開始 (電子ビーム ON).

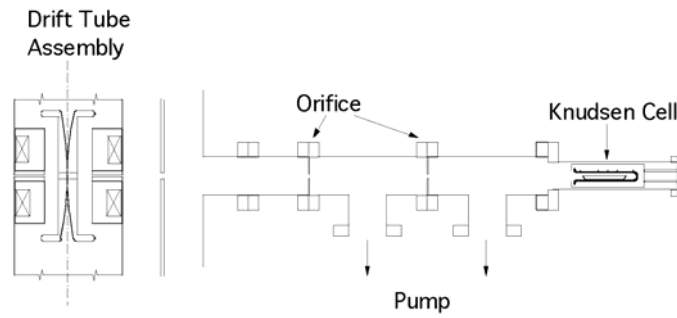


図 3.1.3 : K-cell を使った EBIT 内へのタネ原子導入法.

過してEBIT内に導入される。金属元素(一般に室温での蒸気圧は極めて小さい)の導入法として、これまでの、metal-vapor vacuum arc (MEVVA) ion sourcesが使われてきた。ところが、このイオン源の動作が不安定なこと、そして、イオン引き出しを行うときの、複雑な操作といった点で問題があった。そこで、本研究では、K-cell (Knudsen-cell) を使ったタネ金属原子導入法を開発した(図 3.1.3)。K-cellの中で加熱された金属蒸気は2つのOrificeを通ることで、原子ビームとなり、Drift Tubeへと導入される。高温(1500℃程度)においても蒸気圧の低い金属、たとえば、W、をEBIT内に導入する場合は、蒸気圧の高いその金属の酸化物やハロゲン化物を加熱原料として使う。K-cell法の開発によって、原理的に周期律表に載っているすべての元素の多価イオンを、安定に生成・引き出しすることが可能となった。

図3.1.4(A)は、代表的な例として、引き出された金属多価イオン、Mn (原子番号 $Z=25$)、Ho ($Z=67$) そして Bi ($Z=83$)の価数分布スペクトルを示している。多価イオンを生成するための電子ビームエネルギーは60 keV程度である。比較的軽い金属元素であるMn多価イオンの場合、電子を数個以下しか持たない、裸からHe様イオンが低価数イオンに比べて多くEBIT内で生成されている。一方で、HoやBiのような重金属多価イオンでは、Ne様からHe様多価イオンが支配的に生成されることがわかる。いままでもなく、このような引き出しイオンの価数分布は、電子ビームエネルギーに強く依存する。図3.1.4(B)は様々な電子ビームエネルギーで得られた、ヨウ素多価イオンの価数分布スペクトルである。低エネルギーの生成条件では、Ne様イオンが支配的にトラップ内に存在する

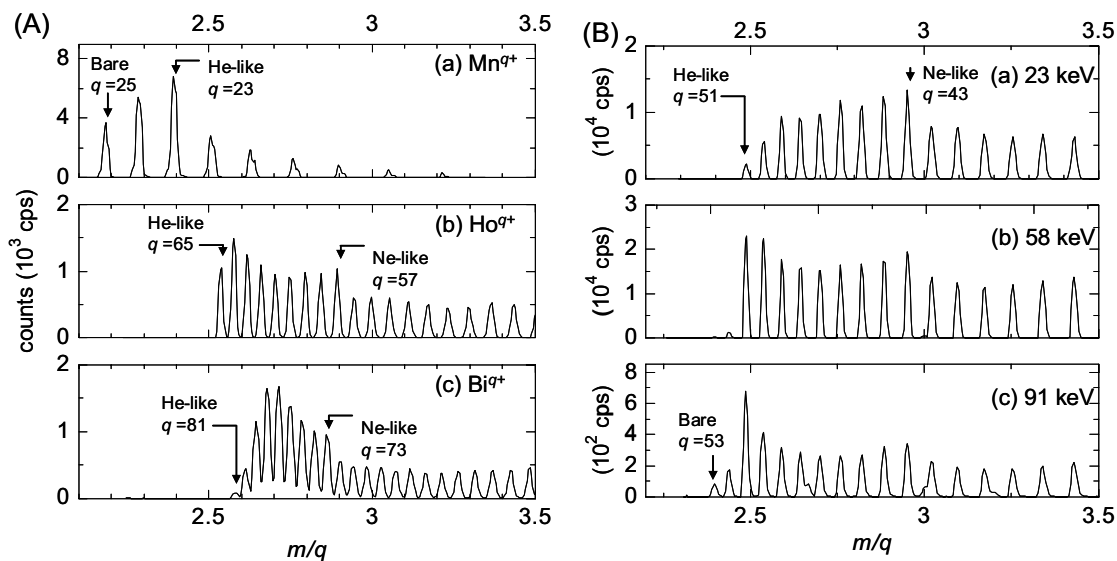


図 3.1.4 : (A) 金属多価イオン、Mn ($Z=25$)、Ho ($Z=67$) そして Bi ($Z=83$)の価数分布スペクトル。(B) 様々な電子ビームエネルギーで得られた I^{q+} の価数分布スペクトル。

((a) 23 keV). 電子ビームエネルギーの増加にともない、He様イオンが相対的に増加していく様子がわかる ((b) 58 keV). 最大ビームエネルギー ((c) 91 keV) では、裸イオンビームが明確に観測されている. この条件では、裸イオンビーム強度は200 cps程度であった.

EBITから引き出された多価イオンビームを効率よく輸送できる、ビームラインを敷設した (図 3.1.5). ビームラインに設置されているチェンバーは、ターボ分子ポンプとイオンポンプとで排気され、真空度は 10^{-9} Pa程度にまで到達している. EBITから引き出されたイオンは、分析磁石によって価数選別された後に、照射室で収束される. 本研究では2つの照射室を用いた. 第1室は、表面観察用のSTMチェンバーに接続されており、照射表面を大気に暴露することなく原子分解能で観察することができる. 第2室では、主に多価イオン-表面相互作用によって放出される、様々な2次粒子放出現象を観察した. このチェンバーにはTOF-SIMS (2次イオン), Si:Li SSD (X線), 穴あきMCP (2次電子), PMT (可視光) などの観測装置が設置されている. さらに、多価イオン照射前の表面状態を観察するために、LEED/Auger光学系が取り付けられている. 現在、多価イオン-表面相互作用の研究は、Max-Planck Institut(ドイツ), GSI(ドイツ), Univ. de Caen(フランス), NIST(米国), 理研(日本)など世界各国で行われている. その中で、われわれの研究グループだけが、低速・高価数イオン照射、そして、「その場観察」ができる装置を開発し運転している.

図3.1.6は、多価イオンが衝突したことを検知しながら、2次イオンを検出できるTOF-SIMS分析装置の概略図である. 多価イオンがサンプル表面に到達すると、大量の2次電子が放出する. この2次電子は、穴あきMCP(MCP1)によって、検出することができる. MCP1からの出力信号をTOF測定スタートパルスとして使った. 2次イオンは、静電レンズを使って、位置検出型MCP(MCP2)上に収束される. ストップパルスはMCP2から出力される. スタート、ストップパルスをマルチストップタイムアナライザーにそれぞれ入力し、信号処理された後、PCでTOFスペクトルの表示、記憶が行われる. 2次電子を検出するMCP1からの信号は、X線や可視光の測定時には、入射イオンの計数パルスとして使用すると同時に、検出器からの出力パルスに対するゲート信号としても使われた. この方法によって、信号/ノイズ比の良い結果を得ることができた.

多価イオンナノプロセスの研究において、ターゲット材料の清浄表面を作製することは非常に重要な基本技術である. なぜなら、目標とするナノ構造のサイズは0.5 nmから10 nm程度であり、多価イオンが表面近傍にのみ相互作用すると予想されることから、基板材料の表面は原子レベルで平

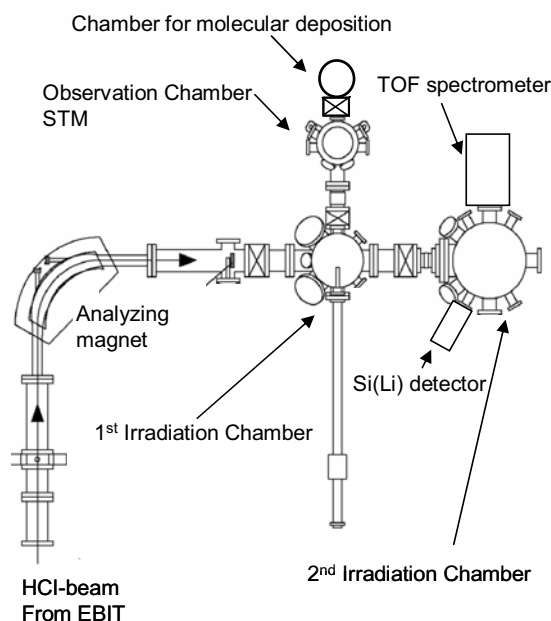


図 3.1.5 : 多価イオンビームラインと様々な観測装置.

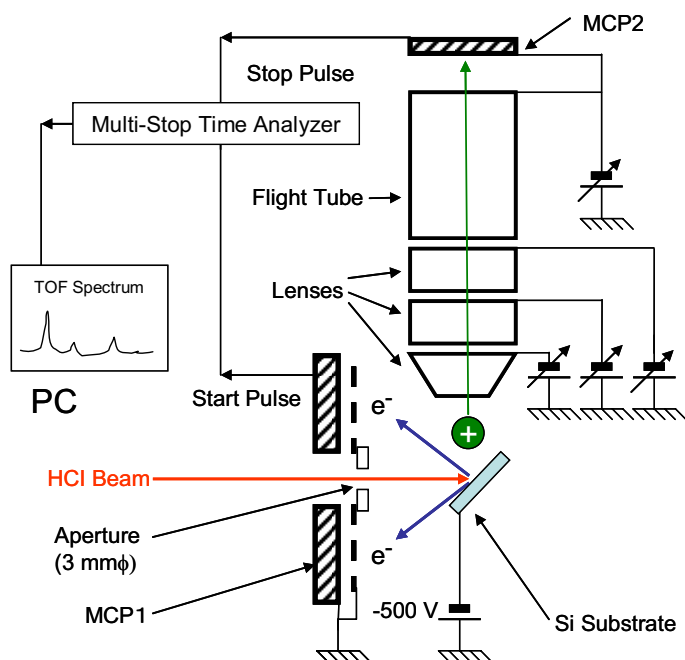


図 3. 1. 6 : TOF-SIMS 装置の概略図.

坦でかつ清浄でなければならない。ここで簡単に、本研究で用いた、様々な材料の清浄表面作製プロセスをまとめておく。基板は、Mo金属製のサンプルホルダーの上にTaまたはMo製のバンドを使って固定した。

・TiO₂(110) : イオンスパッタリング (2 keV) とアニーリングを数回繰り返す。イオンスパッタリングの条件は、次のとおりである。希ガス (Ar, Xe) をチャンバーの圧力が $\sim 10^{-4}$ Pa 程度になるように導入する。そのときのイオン電流は数 μ A であった。スパッター時間は5分から10分。サンプルの加熱は、基板の背面から輻射によりおこなった。Ta箔 (厚さ3 μ m) を基板とホルダーの隙間に固定し、通電によって1500°Cまで過熱した。加熱時間は5分から10分。

・Si(111) : 基板の加熱方法は、基板に直接電流を流す。前準備として、基板温度500°Cで12時間ガス出しをおこなう。その後、1250°Cで10秒程度加熱処理 (フラッシング) を数回おこなう。真空度は 5×10^{-7} Pa 以下におさえ、最後のフラッシング時は 10^{-8} Pa 台でおこなった。

・Si(100) : 基板温度500°Cで12時間ガス出し。その後、表面近傍に内在する水分子や水素分子を完全に放出させるために、1200°Cでのアニーリングを12時間おこなった。そして、800°C、10秒のフラッシングにより、ほとんど水素が内在せず、ダイマー欠損の少ない清浄表面を作製した。

・水素終端Si: 上で述べた方法で得られた清浄表面に原子状水素を暴露することで、終端表面を作製した。原子状水素は、1500°Cに熱せられたタングステンフィラメントに水素分子を通すことで得られた。暴露条件は次のとおり。タングステンフィラメントと基板との距離は数cm。暴露中のチャンバー内水素の圧力は 10^{-5} Pa 台。暴露時間数分。基板温度は300°C程度。

・Au(111) : マイカ基板のへき開面上にAu薄膜を膜厚0.1 μ m程度蒸着。清浄表面の作製方法はTiO₂(110)のそれと同様。ただし、Ta箔の温度は500°C程度。

◎多価イオンナノプロセスの物理機構

・多価イオン－酸化物

図3.1.7にSiO₂薄膜からのTOF-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、O⁺がSi⁺より強い強度で観測された。このO⁺収率に対する強い価数依存性はSiO₂薄膜だけでなく、TiO₂単結晶表面でも観測された(図3.1.8)。1価イオンなどの照射による、運動エネルギー付与による酸化物に対するスパッタリング現象(kinetic sputtering)では、酸素イオンは、陰イオンとして放出されやすく、陽イオンとしてはほとんど検出されないことが知られている。これは、酸素原子のイオン化ポテンシャルと電気陰性度が、それぞれ大きく、真空中に放出されるときに、電子を捕獲する確率が高いからである。図3.1.8に示したように、低価数イオン照射では、kinetic sputtering現象と同様に、O⁺収率が極めて低く、TOF-SIMSスペクトルでも明瞭なピークとして観測されなかった。ところが、価数の増加にともない、O⁺収率が劇的に増大していった(35価程度でSi⁺、Ti⁺の収率とほぼ等しくなる)。

このような酸素イオンが陽イオンとしてスパッターされる特徴的な現象は、多価イオン-表面相互作用の電子移行の機構と、酸化物のバンド構造とから説明できる。2次電子収率の測定から明らかのように、高価数イオン(たとえばI⁵⁰⁺)が表面と相互作用した時、100個以上の電子が固体表面から多価イオンへと移行する。Classical over the barrier modelによれば、酸化物ターゲットの場合、多価イオンに遷移する電子の多くは、価電子帯から供給される。酸化物の価電子帯は主に酸素の2p軌道の重なりで構成されているので、このことは、多価イオンへ遷移する電子は、酸素原子から供給されることを意味している。多価イオンと相互作用する前には、酸化物中で陰性である酸素が、電子遷移により中性化すると、イオン結合力は弱められる。さらに電子移行が進み、酸素原子が陽性になると、酸素同士だけでなく、もともと陽性のSiやTi原子とのクーロン反発によって、表面構造の不安定性が生じる。その結果、いわゆるクーロン爆発によって2次イオンや中性原子が放出すると考えられる。

上で見た2次イオン放出の機構は、新しいタイプのDIET (Desorption Induced by Electronic Transition)プロセスとして考えることができる。電子線やX線照射による酸化物からのO⁺脱離現象を説明するDIETプロセスのモデルとして、K-F (Knotek-Feibelman)機構が良く知られている。K-F DIETでは、酸化物を構成する元素の内殻レベルの電子が真空中に放出することが引き金となり、NVV (NはKまたはL) Auger遷移によって酸素原子がイオン化し、最終的にO⁺の脱離がクーロン反発で起こる。多価イオンDIETの場合、K-F DIETのようなAugerプロセスを介した間接的な酸素原子のイオン化ではなく、強い価電子帯とのカップリングによる、酸素原子から多価イオンへの直接的な電子遷移に特徴がある。電子線やX線照射ではその運動エネルギーの増加とともにO⁺収率が増加するのに対して、低速多価イオン衝突では運動エネルギーによらず、価数に強い依存性を示す。

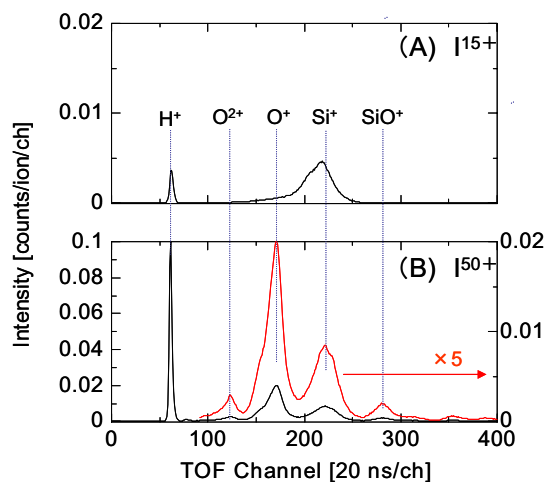


図 3.1.7 : (A) I¹⁵⁺, (B) I⁵⁰⁺衝突によって SiO₂ 薄膜から放出した 2 次イオン。

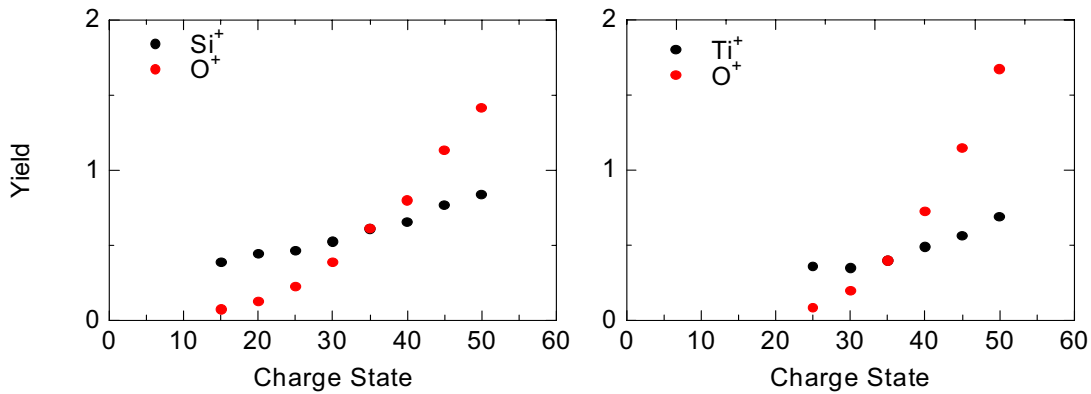


図 3.1.8 : 酸化物表面から放出する 2 次イオン収率の価数依存性.

さらに、多価イオンDIETの最大の特徴は、2次イオン収率が非常に大きいところにある、つまり、1個の高価数多価イオン衝突によって1個以上のイオンが放出する。このことは、電子やX線衝撃では決して見られない現象である。たとえば、 I^{50+} 衝突の場合、 SiO_2 からは平均3.5/ion、 TiO_2 からは4.4/ionの2次イオンが放出する。

酸化物表面からの1を超える高い2次イオン収率は、イオン1個の衝突により、酸化物表面を強く改質できることを示唆している。そこで、多価イオン衝突後の TiO_2 表面をSTMを使って、原子分解能で観察した。図3.1.9は I^{51+} イオンが衝突した TiO_2 (110)表面のSTM像である。火山が噴火した後のような形状からはクーロン爆発の激しさを見ることができる。この構造の高さは1 nm程度あり、 TiO_2 (110)表面のステップ(0.3 nm)より大きい。 I^{51+} イオン衝突表面を詳細に観察すると、照射痕形状がhillock型とcrater型との2つのタイプに分類できることがわかった(図3.1.10)。 TiO_2 (110)表面の拡大像(図3.1.10挿入図)では、この表面の原子構造をみることができ、[001]方向に平行な明るい線と暗い線は、それぞれ、TiとOの原子列に対応しており、それらの間隔は0.6 nmである。このような高分解能でhillock型の照射痕を観察すると、その表面形状がスムーズではなく凹凸であることがわかる。この微細な構造は、これまで報告されてきた、分解能が悪いAFM観察では決して見ることができなかった。Hillock型の照射痕のサイズは、直径が~10 nm、高さが~1 nmである。一方で、crater型の照射痕では、外輪山のようなリムの高さが~1 nmとなった。クレーターの深さは、針の形状に強く依存するために正確に測定することは困難だが、少なくとも1.5 nmに達していた。

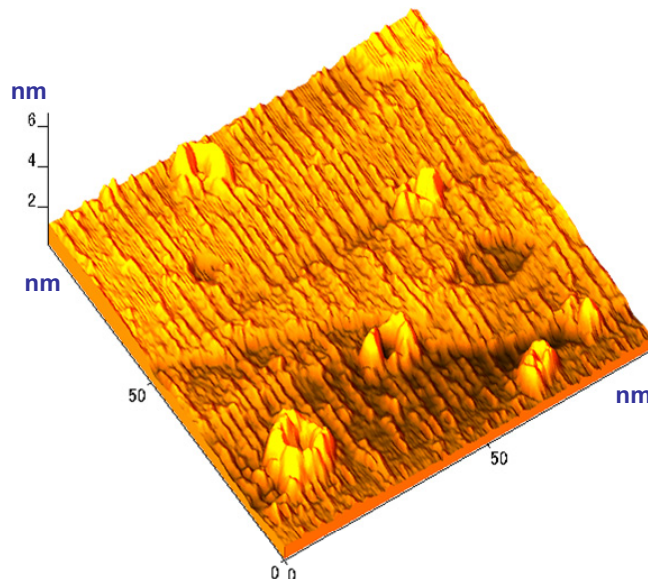


図 3.1.9 : TiO_2 (110)表面上に生成した I^{51+} 衝突によるナノ構造.

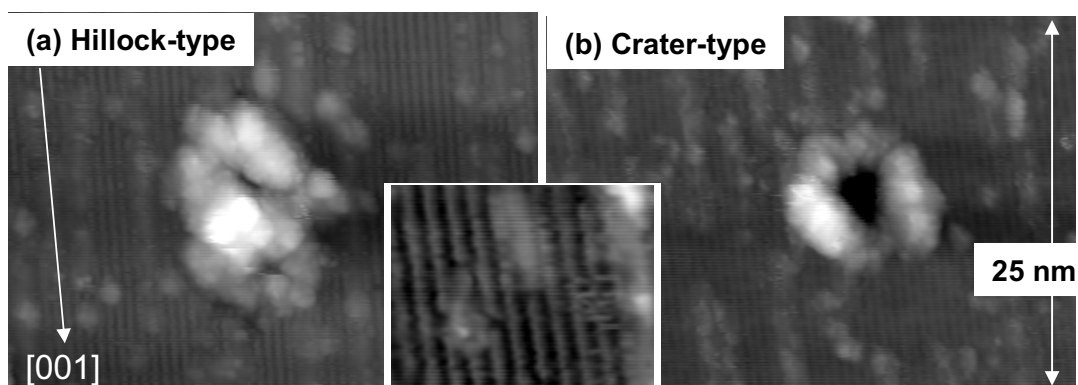


図3.1.10 : I^{51+} 多価イオン衝突による $TiO_2(110)$ 表面上の照射痕.

・多価イオン-半導体

図3.1.11のSTM像は, (A) 非照射, (B) I^{40+} 照射領域における $Si(111)-(7 \times 7)$ 再構成表面を比較的広い範囲 ($75 \times 35 \text{ nm}^2$) で観察した結果である. 周期的に整列している黒いスポットは, DAS (Dimer-Adatom-Stacking fault) 構造のcorner holeに対応している. 像(A)中の矢印で記した灰色のサイトは, native defectによるもので, アドアトム欠損による物理的欠陥または, 残留ガスの表面への吸着による化学的欠陥である. 像(B)では, 上で述べた構造に加え, より大きく, より深いクレーター構造を見ることができる. この構造が, 多価イオン衝突によって生成したと, 次の理由から結論づけた; (i)この構造は照射領域にのみ存在し, (ii)単位面積当たりのこの構造の数が多価イオン照射密度とほぼ等しく ($\sim 10^{11}/\text{cm}^2$), (iii)native defectの像は, サンプルバイアスの変化によって劇的に変化する一方で, そのような依存性はこの構造では見られなかった. 図3.1.12(A)は, 1個の I^q ($q=30, 40, 50$) 衝突によって生成した照射痕の拡大像である. DAS構造のadatomとcorner holeが明瞭に観察できる原子分解能でクレーター型照射痕を見ることができる. クレーターは, adatom欠損領域の周りに高さ $\sim 0.1 \text{ nm}$ の構造を持っていることがわかる. この構造は, Si原子が初期格子点から動かされるものの, 完全に真空中に放出されず, 照射痕の周りに吸着したために生じたと考え

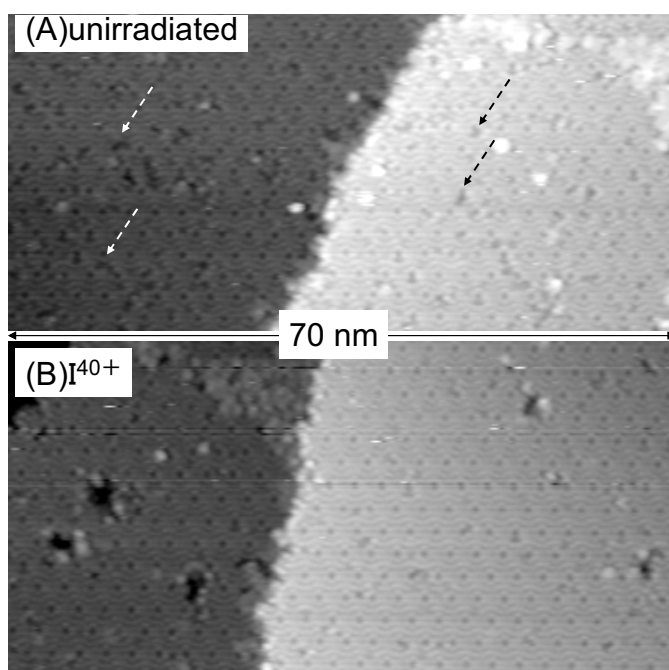


図 3.1.11 : (A) 非照射領域 (B) I^{40+} 照射領域の STM 像.

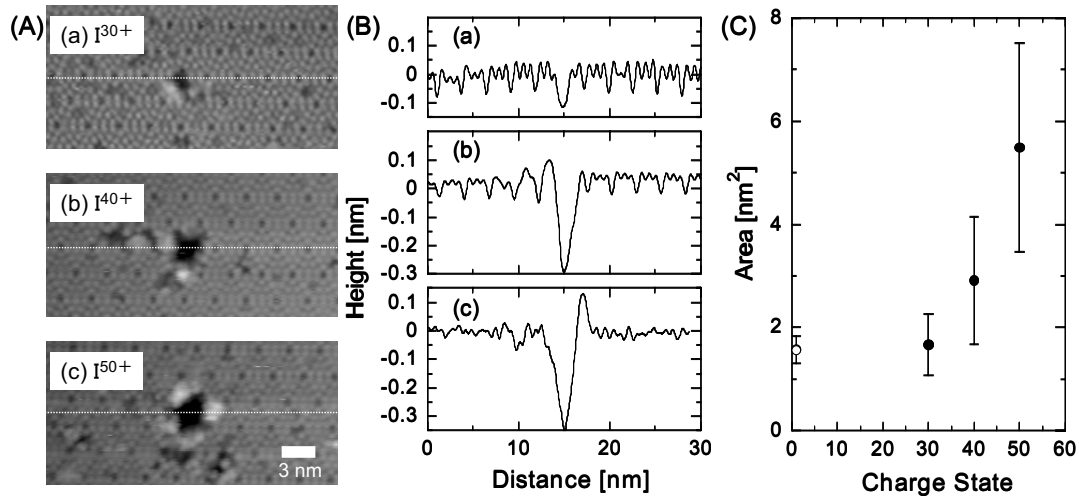


図 3.1.12 : (A) I^q ($q=30, 40, 50$) 衝突によって生成した照射痕の拡大像. (B) 高さプロファイル. 対応する STM 像 (A) の白線に沿って得られた. (C) adatom 欠損領域の面積に対する価数依存性. 白丸は Ar^+ 衝突実験の結果 (PRB46(1992)7581).

ている. 高さプロファイルを正確に測定することは困難であるが, (B) に示すように, 多価イオンの価数の増加とともに, クレーターは深くなり, I^{50+} 衝突によって, その深さは少なくとも, 0.35 nm に達している. この値は, DAS 構造の 1 ステップの高さ (adatom 層, stacking-fault 層, dimer 層) に対応する. このプロファイルでは, 深さ方向を拡大強調しているが, このクレーターは大変浅い構造をしていることがわかる (I^{50+} 衝突によるクレーターで深さ: 幅 = 1 : 15).

これまで多くの研究グループが, STM を使って, 様々な粒子による照射後の Si(111)-(7×7) 表面を詳しく観察してきた. それらの結果とここで示された結果を比べることは, 多価イオンが大変反応性を持った粒子であるといったことを理解するのに有用である. 電子線照射やレーザー照射では, 数個の adatom が脱離することが示された (PRL 82 (1999) 980, PRL 80 (1998) 4080). これらの脱離機構は DIET プロセスによって説明されている. そして, これらの欠損を生成するための反応断面積は非常に小さいことが知られている (電子衝撃の場合断面積は 10^{-20} cm² のオーダー). 他のグループによる Ar^+ イオン照射 (3 keV) の場合にも, 数個の adatom が脱離することが報告されている (PRB46(1992)7581). 電子・レーザー照射と異なる点は, 1 個のイオンで adatom 欠損によるクレーター構造を 1 個生成可能なことである. また, adatom の脱離機構も異なり, それは, DIET ではなく, 入射イオンの運動量移行によるものである.

驚くべきことに, 図 3.1.12 (C) に示したように, Ar^+ と I^{30+} とで運動エネルギー E_k とポテンシャルエネルギー E_p が, それぞれ, 大きく異なるにもかかわらず, adatom 欠損領域の面積はほぼ等しいといった結果を得た (I^{30+} : $E_k=90$ keV, $E_p=16$ keV, Ar^+ : $E_k=3$ keV, $E_p=16$ eV). そして, 30 価以上では, 価数の増加とともに, 面積が急激に広がっていくことがわかる. これまでの低価数イオン ($q < 10$) を使った実験結果から, 半導体表面に対して, 多価イオン特有のプロセス効果はないと考えられてきた. すなわち, これまでの多価イオン衝突では運動エネルギー付与の効果だけが観測されていた.ところが, 本研究によって, 30 価程度以上の高価数イオンを使えば, 直径 0.5 nm から 10 nm 以下の範囲で 1 個のイオンを使って表面加工ができ, そのサイズは価数で制御できることが, はじめて示された.

高価数イオン衝突のときに顕著に現れるこのプロセス作用が, Si ターゲット中の電子と多価イオンとの強いカップリングによることを示す結果が, 2 次イオン観測によって得られた. I^{50+} 衝突によって Si(111)-(7×7) 再構成表面から放出する 2 次イオンを検出して得られた TOF-SIMS スペクトルを図 3.1.13 に示す. スペクトルには, Si^+ と Si^{2+} による強い 2 本のピークの他に, Si^{n+} ($n=3, 4, 5$), Si_2^+ , H^+ , photon による比較的小さなピークが観測された. H^+ ピークは清浄表面作製後に吸着した水素であ

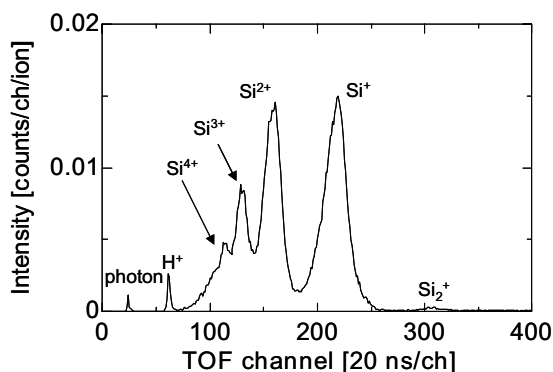


図 3.1.13 : . I⁵⁰⁺-Si(111)-(7×7) 表面相互作用で得られた TOF-SIMS スペクトル.

り、このピークの強度は、フラッシング後からの時間とともに増加していった。Photonピークは、2次イオンの加速電圧を変化させたところで、ピーク位置が変化しなかったことから帰属され、ここには示さないが、その強度が $q=44$ から急激に増加する価数依存性を示すことから、これは、多価イオンが中性化するときに放出するL-X線を検出していると結論づけられた。

Siⁿ⁺ ($n \geq 2$) は、ひとつのSi原子から多価イオンへの多電子移行によって生成される。Siⁿ⁺ ($n \geq 2$) 収率の総和は、I⁵⁰⁺衝突で0.3/ionに達する。一般に、単電子移行の断面積は、多電子移行のそれよりもはるかに大きいので、相等量のSi⁺が多価イオンとの相互作用領域に生成していると考えられる。それらの一部は後述のように真空中に放出され、一部は下地から電子を補給され格子位置を変えながら表面にとどまると考えられる。それぞれのSi原子の価電子からなるsp³混成軌道の波動関数は、お互いに重なり合いながら結晶中に拡がり、価電子帯を形成している。ナノ領域に限定され、価電子帯から多くの電子を引き抜かれると、共有結合力が弱められ結晶構造が不安定になるだけでなく、イオン化したSi同士のクーロン反発によって、一部のSiは真空中に放出される。このようなクーロン爆発モデルをつかったSi(111)表面の構造変態について、分子動力学シミュレーションの結果が報告されている(PRB55(1997)2628)。このシミュレーションでは、結晶中でイオン化したSiの分布が、爆発後にできるクレーター構造の形状を決定することを示していた。今回のSTM観察で得られた、極めて浅いクレーター形状は、イオン化したSiが、半球状に分布するのではなく、表面近傍だけに薄いディスク状に分布している初期状態から得られた計算結果と一致している。このことは、多価イオンが表面近傍の原子から優先的に電子を奪うことで、表面と強く反応することを示唆している。

表面への大きな反応性を示す結果は、Si表面を水素終端したターゲットに対しても、顕著に現れ

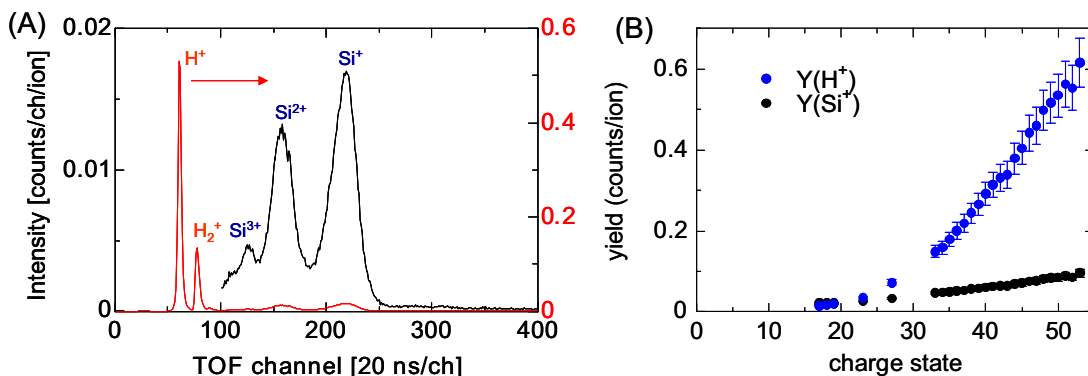


図 3.1.14: (A) Si(111)-(1×1)-H 表面に I⁵⁰⁺衝突させ得られた TOF-SIMS スペクトル. (B) H⁺(●)と Si⁺(●)の収率に対する価数依存性.

た. 図3.1.14(A)は, Si(111)-(1×1)-H表面に⁵⁰⁺衝突させ得られたTOF-SIMSスペクトルである. 左縦軸のスケールは図3.1.13のそれと等しい. 右縦軸は全ての2次イオン種を見ることができるようフルスケールを縮小して0.6 counts/ion/chとしてプロットしている(赤線). この赤い線で描かれたスペクトルから, 放出2次イオンのほとんどがH⁺とH₂⁺であることがわかる. 水素イオンの収率は, 多価イオンの価数qに強く依存する(図3.1.14(B)). 価数の増加とともに, Si⁺の収率Y(Si⁺)が緩やかに増加していく一方で, Y(H⁺)はほぼq^{3.4}に比例して増大していき, TOF-SIMS分析装置の検出効率を考慮すると(25%), q~40でY(H⁺)は1を超えることがわかった.

Y(H⁺)が1を超えるということは, 表面第1層にだけ存在する水素が1つの多価イオン衝突で同時に複数個放出することを意味している(correlative sputtering). その一方で, H⁺とSi⁺とのイオン放出イベントの相関を観測すると, この2種類のイオン同士は, 同時に放出されにくいといった現象が見つかった(anti-correlative sputtering). 図3.1.15(A)の●は, ある多価イオン衝突イベントで, H⁺とSi⁺とが検出される頻度Y(H⁺, Si⁺), ●はH⁺が検出されない一方でSi⁺が検出される頻度Y(<H⁺>, Si⁺) (= Y(Si⁺) - Y(H⁺, Si⁺))の価数依存性を示している. ●はY(Si⁺), 挿入図はY(H⁺)を示している. 低価数では, ほぼ0のY(H⁺, Si⁺)は価数と共に, 増大していく. Y(Si⁺)とY(H⁺)が価数と共に増大していくので, この2種類イオンの放出過程に相関がなくても, アクシデンタルイベント(偶発的共放出)が生じる頻度が高くなるので, 必然的に, Y(H⁺, Si⁺)は増加する. そこで, 相関放出現象を定量的に解析するために, 2種類のイオンA⁺, B⁺に対して, 次のような相関係数を導入した;

$$C(A^+, B^+) = \frac{Y(A^+, B^+)}{Y(A^+)Y(B^+)}$$

C=1のとき, A⁺とB⁺の同時放出現象は, 完全にアクシデンタルに生じていることを意味している. C>1のときには, それらは相関を持って同時放出しやすい傾向にあることを, 一方で, C<1のときには, それらは同時放出しにくい(anti-correlative sputtering), つまり, 一方のイオンが他方の放出を妨げる傾向があることを意味している. たとえば, 図3.1.15(A)からわかるように, q=48のとき, Y(H⁺)=0.5である. このことは, 2回の多価イオン入射イベントのうち, 平均的に1回H⁺が放出することを意味している. 一方で, Y(Si⁺)はq=48で0.08である. ゆえに, もし, H⁺とSi⁺とが全く相関がなく, アクシデンタルに放出しているとする, Y(H⁺, Si⁺)は0.04になるはずである. ところが, 計測された頻度は, Y(H⁺, Si⁺)=0.03となっており, これは, C(H⁺, Si⁺)を1より小さい値にする(この場合C(H⁺, Si⁺)=0.79). したがって, q=48ではH⁺とSi⁺とはanti-correlative sputteringであることがわかる.

図3.1.15(B)は, C(H⁺, Si⁺)を価数の関数としてプロットしている(○). 低価数領域のC(H⁺, Si⁺)の計算では, 小さな値同士の商が含まれているので, エラーが増大していることに注意しなければならない. このエラーの影響を少なくするために, 次の相関係数を調べることは有用である.

$$C(<H^+>, Si^+) = \frac{Y(<H^+>, Si^+)}{Y(<H^+>)Y(Si^+)} = \frac{1 - Y(H^+)C(H^+, Si^+)}{Y(<H^+>)}$$

ここで, Y(<H⁺>)=1-Y(H⁺). 上の関係式から, C(<H⁺>, Si⁺)=1のとき, C(H⁺, Si⁺)も同様に1になることがわかる. 図3.1.15(B)には, C(<H⁺>, Si⁺)も価数の関数としてプロットしている(○). 低価数領域(q<30)では, C(H⁺, Si⁺)もC(<H⁺>, Si⁺)も, ほぼ1で変化せず一定である. この価数領域は, Si(111)-(7×7)再構成表面に対する, 多価イオン衝突効果のところでも述べたように, ポテンシャルエネルギー付与の効果はほとんど現れない領域である. つまり, kineticにスパッタリングされた場合, これらの2種類の2次イオンは相関なしに放出されることを示唆している. 一方で, 高価数領域では, 価数の増加と共に, anti-correlative sputteringがより顕著になるといった結果を得た.

上で見た, 高価数イオン衝突において, H⁺の同時放出(correlative sputtering)と, H⁺とSi⁺とのanti-correlative sputteringは, 次のように解釈できる. これらの相関スパッタリングは, 多価イオンと相互作用する水素終端シリコンの表面構造と, 水素とシリコンの局在した化学結合によって誘き起こされると考えている. 図3.1.13と図3.1.14とに示したTOF-SIMSスペクトルを見比べると, 水素終端表面から得られたY(Siⁿ⁺)が清浄表面のそれと比べて, 小さくなっていることに気づく. 同様の違いはSi(100)表面でも観測された. この結果は, 多価イオンが, 表面第1層と, その下の層よりも, 強く相互作用することを示している. 水素原子は, シリコンの表面第1層にのみ存在し, 接近する多価イオ

ンと、はじめに相互作用する。その結果、多価イオンは、ナノメートル相互作用領域に存在する多くのH-Si結合から、連続的にかつ優先的に電子を奪う。H-Si結合は、局在しているために、結晶中に価電子帯として広がっているSi-Si結合と比べて、多価イオンへの電子遷移によって生じた空孔を補填することが、困難であると考えられる。結果的に、清浄表面でみられたSi⁺同士によるクーロン反発よりも激しい爆発でH⁺が同時放出していると考えている。

Pair-wise potential sputtering (PWPS) モデル(PRA54(1996)4140)によれば、H⁺とSi⁺の質量の違いによって、クーロンエネルギーがH⁺の並進エネルギーに変換され、H⁺がSi⁺より先んじて放出される。一方で、Si⁺は基板に留まり一部中性化されると予想している。これは、H⁺とSi⁺とのanti-correlative sputteringを説明する機構のひとつである。この2対相関に加えて、高度に電離が進んだH⁺領域は、第2層であるSi⁺の放出を押さえ込むと考えられる。電離層の面積は価数とともに拡大していくので、この押さえ込みはより顕著に現れる。さらに、多電子移行の断面積は価数とともに増大していくので、より多くのSi⁺が第2層以下で生成されていく。より深い位置からのスパッタリングでは、Si⁺はより高い確率で中性化すると考えられる。これらの理由から、図3.1.15(B)に示した相関係数の価数依存性が得られたと考えている。

Si(100)表面について、その清浄表面と水素終端表面に対して、多価イオン衝突実験を行った結果、Si(111)と同様の結果を得た。ただし、S(100)清浄表面作製方法の評価のために、多価イオンSIMSの水素に対する表面高感度分析性能が大変役に立つことが明らかになった。Si(100)面はそのデバイス基板への応用といった観点から、古くから詳しく研究されており、その清浄表面を作製する様々な方法が提案されてきた。図3.1.16は代表的な清浄表面作製法によって得られたSi(100)-(2×1)表面にXe⁵⁰⁺を照射して得られたTOF-SIMSスペクトルである。縦軸はLogスケールで表している。スペクトル(A)の表面は、1250°C5秒間のフラッシングを3回行った後に得られた。同様の方法で作製されたSi(111)-(7×7)表面のそれ(図3.1.13)と比べると、Siピークに対するH⁺ピークの

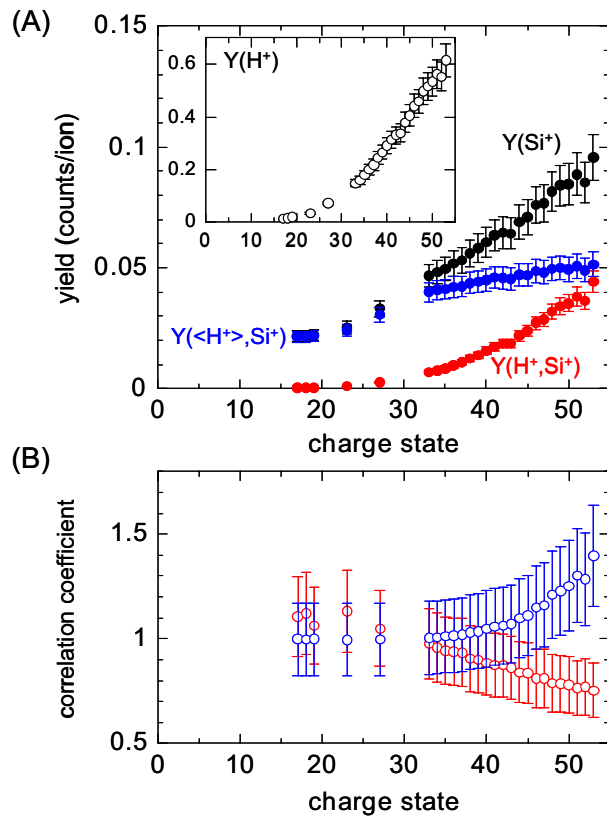


図 3.1.15 : (A) コインシデンス測定で得られた、Y(H⁺), Y(Si⁺), Y(H⁺, Si⁺), Y(<H⁺>, Si⁺) と価数との関係. (B) 相関係数 C(H⁺, Si⁺) (○), C(<H⁺>, Si⁺) (○) と価数との関係.

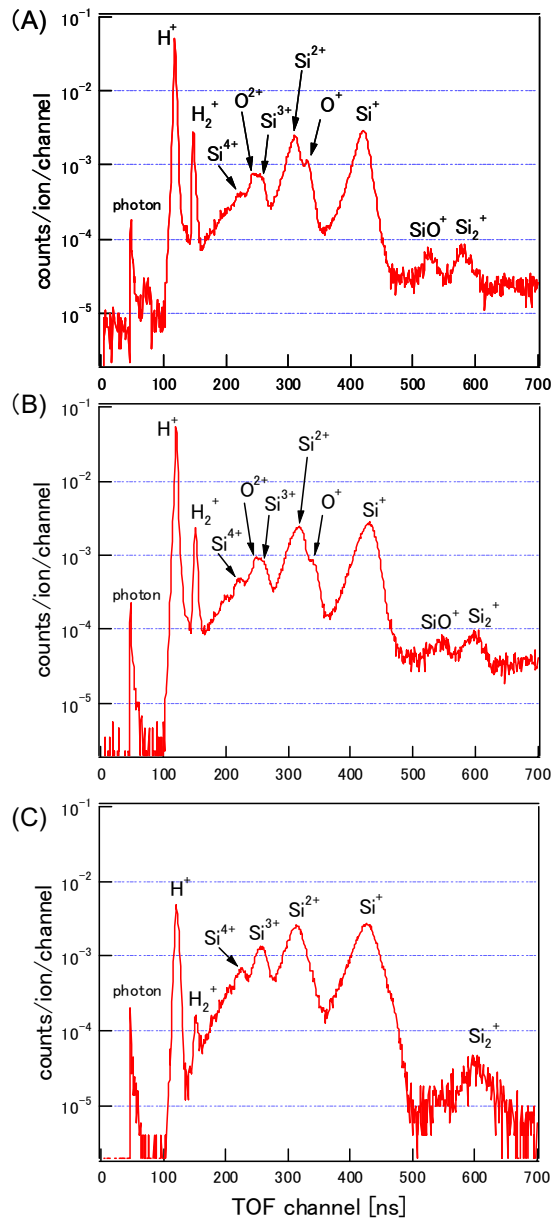


図 3.1.16 : 様々な表面処理によって得た Si(100)-(2×1) の TOF-SIMS スペクトル (Xe⁵⁰⁺ を照射). (A) フラッシング 1200°C 5 秒 3 回, (B) 白木法(wet 処理) + 900°C annealing 3 分, (C) annealing 1200°C 12 時間.

相対強度が極めて強いことに加えて、酸素に関連したピークが存在することに気づく。この結果は、Si(100)表面に対しては、Si(111)の清浄表面作製方法を適用できないことを示している。このことは、LEEDを使った観測;低温(-130°C以下)での(2×1)からc(4×2)への相転移現象、でも確かめられていた。このフラッシングプロセスでは、多くの欠陥が表面に存在するために、相転移が起こらないことが知られている。この相転移を妨げる欠陥はダイマー欠損であり、wet処理と超高真空下でのアニール処理によって、この欠陥がほとんど存在しない表面を作製することができる(白木法)。白木法で作製したSi(100)-(2×1)表面から得られたTOF-SIMSスペクトルを(B)に記す。このスペクトルにも不純物ピークがかなり強い強度で出現していることがわかる。これらの不純物は、低温で相転移可能なこの表面上には存在し得ないので、表面第2層以下の極浅い領域に内在していると考え

られる。スペクトル(C)は、1200°C12時間加熱処理を施した基板から得られた。このスペクトルでは、不純物(化学的欠陥)のピーク強度が著しく小さくなっていることがわかる。この高温長時間表面処理も、ダイマー欠損(物理的欠陥)の少ない清浄なSi(100)-(2×1)表面が作製できることが知られている。これまでのLEED観察では、この方法と白木法によって作製した表面の化学的欠陥を評価することが不可能だった。ところが、多価イオンSIMSで2つの表面を調べると、この方法が、物理的欠陥の少ない清浄表面だけでなく、白木法では作製困難であった、水、水素などが内在しない、すなわち化学的欠陥が少ない、清浄表面作製方法であると評価できた。

・多価イオンナノプロセスのまとめ

酸化物や半導体表面と多価イオンとの相互作用の結果、誘き起こされる現象について述べてきた。表面電子系と多価イオンとの強いカップリングが引き金となって、2次イオン放出現象が生じ、その結果、表面ナノ構造が生成することがわかった。引き抜かれた電子を容易に補償できる金属表面に対しては、多価イオン照射効果が顕著に現れないと想像できる。そこで、Au(111)表面に I^{50+} を照射し、2次イオン放出率の測定と照射後表面のSTM観察を行った。その結果、 Au^+ のスパッター収率は観測不能な程度小さく、照射痕も見つけることができなかった。

表1にこれまで述べてきた様々な測定結果の代表的な値をまとめる。多価イオン相互作用効果は、イオン結晶性の強い材料に対してより顕著に現れ、金属ではその効果が極めて小さいことがわかる。

標的材料		STM		生成確率	TOF-SIMS
		典型的なサイズ 高さ	(nm) 深さ		イオン収率
金属	Au(111)	見つけることができない		<<1	<<1
半導体	Si(111)	0.1	0.3	~1	0.6
	Si-H		NA		~10 (H^+)
酸化物	SiO ₂		NA		3.5
	TiO ₂	1	1.5	~1	4.4

表1：様々な材料に対する多価イオン相互作用効果 (I^{50+} 衝突)

◎ナノプロセスによる構造変態の観察

HOPG は化学的に極めて安定な表面を持つ基板材料として知られている。弱い van der Waals 相互作用によって結合している層を、へき開するだけで、原子レベルで平坦な表面を用意でき、そして、表面にはダングリングボンドが存在しないので、大気中でも清浄表面の炭素原子像を STM を使って観察できる。このような安定な表面を使えば、多価イオン刺激によって表面ナノ領域だけを化学的に活性化できると考えた(後述)。ここでは、HOPG への多価イオン照射効果を、SIMS, STM, ラマン分光法を使って調べた結果について記述する。

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。図 3.1.17(A)は HOPG 表面上の Xe²⁹⁺照射痕の STM 像である。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。挿入図は、図(A)の高速フーリエ変換(FFT)処理を施して得られた結果を示している。実線と点線で描かれた円に挟まれた領域に、基本周期構造に対応する 6 回対象の回折スポットを見ることができる。それに加えて、点線の内側には、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R 30^\circ$ 再構成構造に対応する回折パターンが確認できる。点線の内側だけを逆 FFT 処理した結果が図(B)である。基本周期の約 1.5 倍の長周期構造が、照射痕の周りだけに存在することを明確に示している。

HOPG のラマン散乱スペクトルには、照射する前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。図 3.1.18(A)に Xe⁴⁸⁺照射 HOPG 表面から得られたラマン散乱スペクトルを示す。照射領域のスペクトル(b)には、非照射領域のスペクトル(a)にも現れている G ピークに加えて、欠陥生成とともに出現する D ピークが観測された。この二つのピーク強度の比は、グラファイトの結晶性を評価する良い指標となることが知られている。この指標を基にした系統的な観測の結果、イオン照射による欠陥生成率は入射エネルギーによらず、価数すなわち多価イオンのもつポテンシャルエネルギーの増大とともに大きくなることが明らかになった。

照射後サンプルの熱処理によって、結晶性の回復過程を観測すると、多価イオンによって生成された欠陥は、単一空孔だけでなく、2 量体さらにはクラスター欠陥からなることが明らかになった。図 3.1.18(B)は D ピークと G ピークとの強度比を熱処理時間の関数としてプロットした。○は Ar⁺イオン照射で得られた結果、○は Xe⁴⁸⁺照射の結果である。これらの強度比は t=0 で 1 になるように規格化している。挿入図は熱処理開始直後の強度比の変化を示している。D ピークの強度を 2 つのサンプルでほぼ等しくするために、Ar⁺照射を Xe⁴⁸⁺照射量の約 1000 倍で行った。Ar⁺照射のサンプルの結晶性回復過程は、2 つの時定数をともなっていることに気づく。早い成分は熱処理による単一空孔の消滅、遅い成分は 2 量体欠陥の消滅に対応している。多価イオン照射の場合、これらの

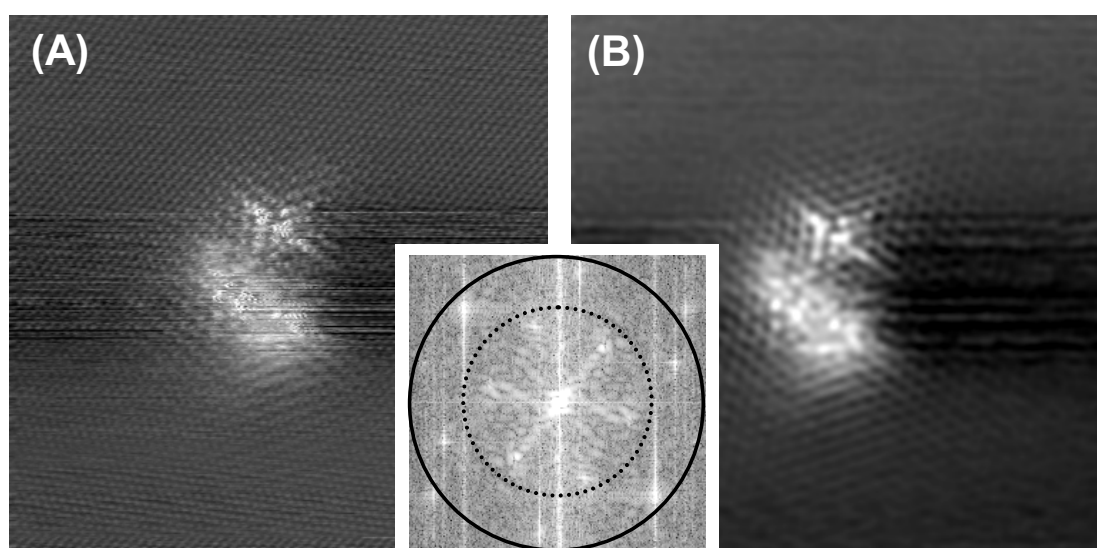


図 3.1.17 : (A) HOPG 表面上に生成した Xe²⁹⁺衝突によるナノ構造。(B) 挿入図 (A の FFT 像) 中の点線で囲まれた範囲だけを逆 FFT 変換して得られた像。

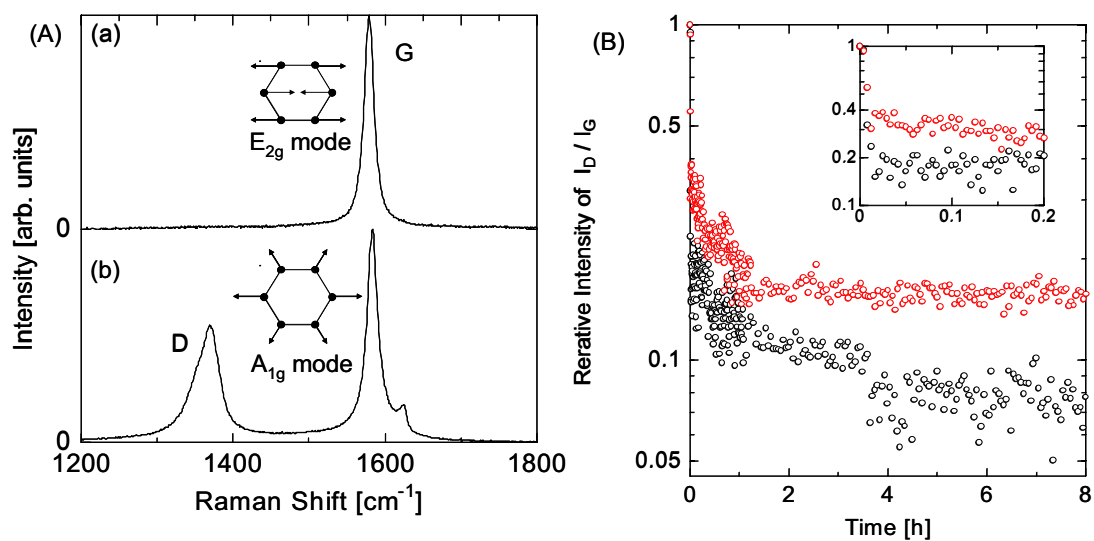


図 3.1.18 : (A) HOPG 表面のラマン散乱スペクトル. (a) 非照射領域, (b) Xe^{48+} 照射領域.
 (B) D ピークと G ピークとの強度比に対する熱処理時間依存性. \circ は Ar+イオン照射で得られた結果, \bullet は Xe^{48+} 照射の結果.

2 成分の回復過程に加えて, 極めて遅い回復過程が存在することが明らかになった. このことは, 多価イオン照射サンプルにはクラスター欠陥が含まれていることを意味している. この結果は, SIMS 測定で観測された大きな収率でのクラスター放出現象と一致した.

◎多価イオン表面相互作用によるイオンのポテンシャルエネルギー消費

EBIT では電子衝撃電離過程によりイオン又は原子の電子を剥ぎ取り多価イオンを生成する。電子衝撃電離断面積の最大値は剥ぎ取る電子のポテンシャルエネルギーの二乗に反比例するため、価数が高くなるにつれイオンの生成は困難になる。特に、原子から電子を順番に剥いで行くと、電子のポテンシャルエネルギーは殻が空になる所で不連続に増加するため(例えばヨウ素のベリリウム様イオンとリチウム様イオンの電子のポテンシャルエネルギーはそれぞれ 9 keV と 9.2 keV なのに対し、ひとつ価数の大きいヘリウム様イオンの場合 38 keV になる)、裸に近い多価イオンを生成するためには巨大なエネルギーを投入する必要がある。従って、イオンを生成するためのイオン源に要求される工学的な性能は、生成しようとするイオンの価数が大きくなるに従い急激に厳しくなる。実際のイオン源運転の場面では生成するイオンの価数が大きくなるに従い高電圧が必要であり、装置も大型化し、経済的、環境的影響も大きい。従って、効率的にナノプロセスを行うためにはイオン生成のために投入されたエネルギーの内のどれだけがプロセスに使われるか知る必要がある。この知識はナノプロセスに用いるイオン源の仕様を決めるための重要な指針となる。

多価イオンが固体表面と衝突するとそのポテンシャルエネルギーの一部が X 線という形で放出されることが知られているが、このエネルギーはプロセスに使用されない。我々はそのようなエネルギーを見積るために多価イオンを表面に照射し放出される X 線の絶対量と総エネルギーを測定した。図 3.1.19 はヨウ素多価イオンを水素終端シリコン(111)表面に照射した場合、イオンの K 殻(n=1), L 殻(n=2), M 殻(n=3)の空孔が X 線放射を伴う遷移により埋められる割合を示す。それぞれの殻について一定の割合で X 線放射を伴う遷移により空孔が埋められる。K 殻が 100% X 線放射を伴う遷移により埋められるのに対し、L 殻は 20%, M 殻はほぼ 0%である。図 3.1.20 はイオンの持つポテンシャルエネルギーのうち X 線放射により消費されるエネルギーの割合を示す。M 殻だけに空孔があるネオン様までのイオンでは X 線放射によりポテンシャルエネルギーは消費されないことが分かる。フッ素様から L 殻にも空孔が生じるが、空孔の数が増えるに従い消費されるエネルギーは増加し、ヘリウム様では約 10%が消費される。それに対して、K 殻に空孔が生じると 30%から 40%のポテンシャルエネルギーが X 線放射により消費される。次に、図 3.1.21 は異なる元素の多価イオンをタングステン表面に照射した際の、イオンの持つポテンシャルエネルギーのうち X 線放射により消費されるエネルギーの割合を示す。この図から明白なように、同じ価数のイオンを考えた場合 X 線で消費されるエネルギーの割合は原子番号が大きくなるほど増加する。ヘリウム様イオンを比べるとヨウ素で 8%であったのがビスマスにおいては 30%近くになる。一方、M 殻のみに空孔を持つネオン様イオンの場合は測定した全ての元素について 4%以下である。これらの結果から多価イオンナノプロセス

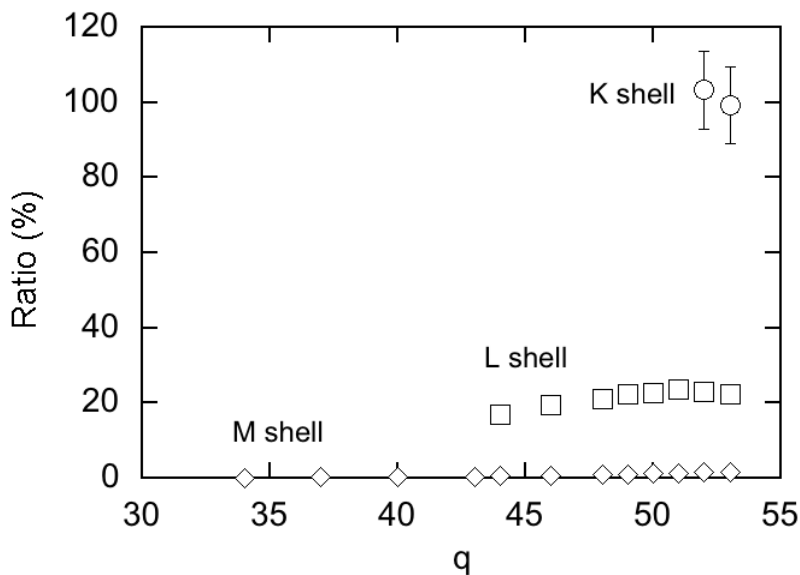


図 3.1.19 : 空孔を X 線の放射を伴い埋められる割合。

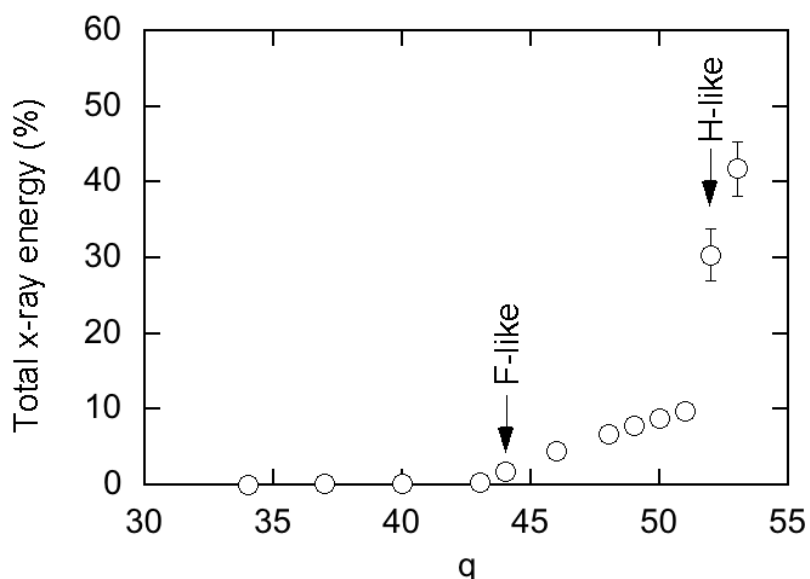


図 3.1.20 : ヨウ素多価イオンを水素終端シリコン(111)に照射した場合のイオンのポテンシャルエネルギーに対する放出総 X 線エネルギー.

ではエネルギー効率の点からネオン様イオンまでを用いると良い. 無論, 付与されるエネルギーの絶対量自体は価数が高くなるほど大きくなるが, 大きなポテンシャルエネルギーを付与したい場合は高 Z の元素イオンを用いれば良い.

電子衝撃電離断面積はイオンの電離エネルギーの 2,3 倍で最大になる. 容易に手に入る最も重い元素であるビスマスのナトリウム様イオンの電離エネルギーは 8.8 keV であるから, 30 keV 程度の電子エネルギーでネオン様イオンを効率的に生成することが出来る. 30 keV 程度の電子ビームを用いる小型の EBIS 型イオン源は多価イオンナノプロセスのためのイオン源として最適である.

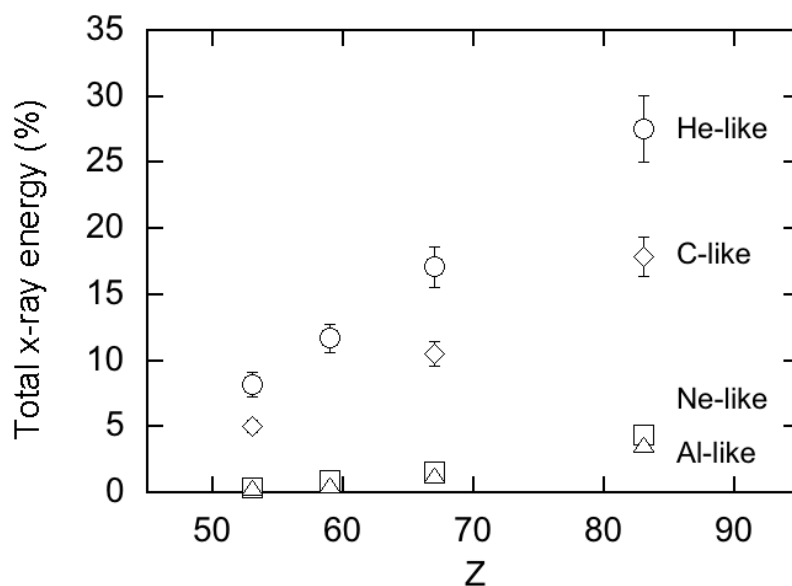


図 3.1.21 : 様々な元素の多価イオンをタングステンに照射した場合のイオンのポテンシャルエネルギーに対する放出総 X 線エネルギー.

◎単一イオンナノプロセスの応用

・単一イオン入射の検知

上で見たように、多価イオンが持つ特徴のひとつは、1個のイオンでナノメートルサイズの表面領域を構造変態できることである。これとは異なる、応用上興味深いもうひとつの特徴は、多価イオンの高い2次電子放出特性である。これまでの測定によると、イオン衝突におけるKinetic effectによる2次電子放出率は、入射エネルギーが10 keV近辺で1を超え、100 keV程度になっても10以下である。このことは、数個の2次電子を確度100%で検出することは非常に難しいことに加えて、10 keV以下の運動エネルギーでは、単一イオン入射を確実に検知することは原理的に不可能であることを意味している。ところが、多価イオンの場合、運動エネルギーが極めて小さくても、表面から電子を奪った後の、多価イオンの主な緩和プロセスであるAuger decayによって、たとえば、10 eVのXe⁴⁺の場合には、100個程度の2次電子を放出することが知られている。この高い2次電子放出特性を利用すれば、その2次電子検出を行うことにより、多価イオンの入射イベント回数を確度100%で計数しうる手法を確立できると考えた。

図3.1.22に実験装置の概略図を示す。Xe⁴⁺イオンビーム強度をチャンネルトロン(CEM1)を使って計測した。その後、高配向性グラファイト(HOPG)にXe⁴⁺を衝突させ、放出2次電子をCEM2を使って検出した。その結果、ビーム強度から見積もられた入射イオン数と、2次電子検出イベント数とが一致した。さらに、STMを使って、照射後のHOPG表面に生成されたナノ構造の数を計数した結果、照射痕の数密度が多価イオン入射密度と一致した。表2には計測結果をまとめている。この表の結果から、この方法により多価イオンの表面入射はほぼ完全に検知しうることになった。そして、多価イオン1個の入射で格子構造の変化した照射痕が必ず生成されることが確認された。

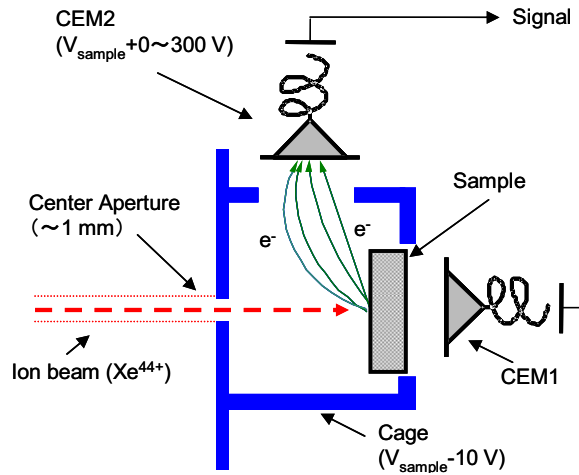


図 3. 1. 22 : 入射イオン量, 2次電子放出イベントを計測するためのセットアップ.

Observed quantity	Counts
Incident ions	1.07×10^7
Secondary emission events	1.03×10^7
Dot structures*	0.92×10^7

* $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ の範囲に917個のドットを観測

表2 : 入射イオン数, 2次電子放出イベント数, ナノ構造の生成数の比較.

・不活性表面へのナノ領域反応性付与

1個の多価イオン衝突によって、ほぼ100%の確率で表面構造を変態させることがこれまでの観測で明らかになった。この構造変態は非常に高いスパッタリング収率をともなっている。表面から多くの構成元素が真空中に放出すると、その後、表面近傍にはダングリングボンドが存在することになる。このことは、化学的に安定だった表面が、多価イオンとの相互作用によって、活性化することを意味する。このことを利用すれば、多価イオン-表面相互作用の範囲はナノメートルサイズ領域に限定されているので、単一多価イオン衝突によって、安定な表面にナノ活性点を生成できると考えた。この活性点は、たとえば、機能性分子のピンギング効果(活性点にのみ分子が吸着)といった特性を持つと期待される。ここでは、化学的に非常に安定な表面をもつHOPGを標的材料として選び、多価イオン照射痕のピンギング効果について述べる。

図3.1.23(A,a)は I^{30+} 照射後のHOPG表面のSTM像である。多価イオンの衝突した位置が白い斑点として見える。図(A,b)には、拡大像を示している。白い斑点の周りに炭素の原子像を見ることが出来る。Raman分光, SIMS測定, STM観察によって、このような照射痕は次のような性質を持つことが明らかになった;(i)照射痕の周りには、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3} R 30^\circ$ の再構成表面構造を持つ、(ii)照射痕には多くの欠陥を含み、それらは、単一空孔だけでなく、2量体さらにはクラスター欠陥からなる、(iii)照射痕のサイズは価数とともに1 nm~10 nmへと増大していき、欠陥数も同様に多くなっていく。このような欠陥を多く含んだ照射痕のピンギング効果を確かめるために、この表面にTBPP-CN分子を数分子層蒸着した。蒸着後のSTM像が図3.1.23(B)である。倍率は、対応する像(A)と等しい。蒸着後の照射痕のサイズは、直径、高さともに2倍程度増大していた。一方で非照射領域(たとえば図(B,b)の左下部分)を観察すると、依然として、周期的に配列した炭素の原子像を観察することができた。この観察結果は、TBPP-CN分子が照射痕の周りにだけに選択的に吸着していることを明瞭に示している。

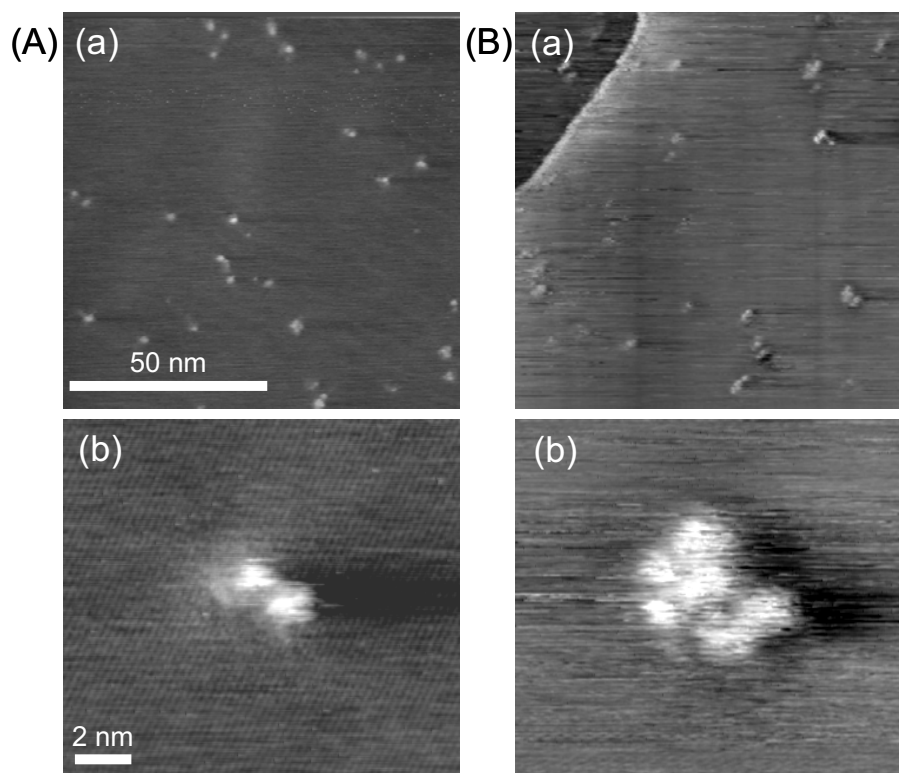


図 3.1.23 : (A) I^{30+} 衝突後に得られた HOPG 表面の STM 像, (B) (A) の表面に TBPP-CN 分子を数分子層蒸着後の表面. 倍率は対応する像 (A) と等しい.

・単一イオンリソグラフィー

多価イオン刺激による表面反応性増強効果を半導体材料に適応し、単一イオンリソグラフィー技術の開発を試みた。水素終端シリコン表面(Si-H)は、デバイス創製にとって最も重要なターゲット材料の1つである。Si-Hは化学的に安定な表面を持っている。超高真空中で、欠陥の非常に少ないSi(100)-(2×1)-H表面を作製可能で、この表面を一度大気にさらしても、依然として原子分解能で表面状態を観察できることが知られている(APL80(2002)201)。その一方で、多価イオンの持つ水素終端表面への強い反応性は、TOF-SIMS測定で示された。この測定では、1個以上の水素が1つの多価イオン衝突でスパッターされ、その収率は価数とともに増大することが明らかとなった。多価イオン衝突によって水素が剥離したナノ領域は反応性が増強すると予想される。そこで、このような価数によってサイズ制御できるナノ活性領域と異種物質(機能性原子・分子)との表面化学反応により、新機能を持った量子構造を作製できると考えた(図3.1.24(A))。

実験では、Si(100)-(2×1)-H表面にI⁴⁴⁺を酸素雰囲気(2×10⁻⁶ Pa)中で照射することで、衝突領域を局所的に酸化し、極微小なSi-O界面を作製した。図3.1.24(B)は、照射痕の周りに酸素が吸着した照射痕のSTM像である。44価のイオンでは直径2~3 nmの超微小界面が生成することがわかる。過去に、このサイズの量子構造の作製方法として、STMを使って、電流注入によって水素を剥がす方法が報告されている(APL85(2004)2619)。ところが、STMを使ったボトムアップ的な手法では、このような量子構造を広範囲にかつ高密度に作製することは困難である。FIBはイオンビーム加工の有効な手段として広く知られている。ただし、FIBでは、収差や輸送系の性能限界により、10 nm以下の加工は困難とされている。多価イオンは、イオン1個で数nmの加工が可能なので、STM加工のようなボトムアップ的な要素を持ちながら、FIBに用いられているようなビーム輸送技術によってトップダウン的に高効率に量子構造を作製できる利点を持っている。

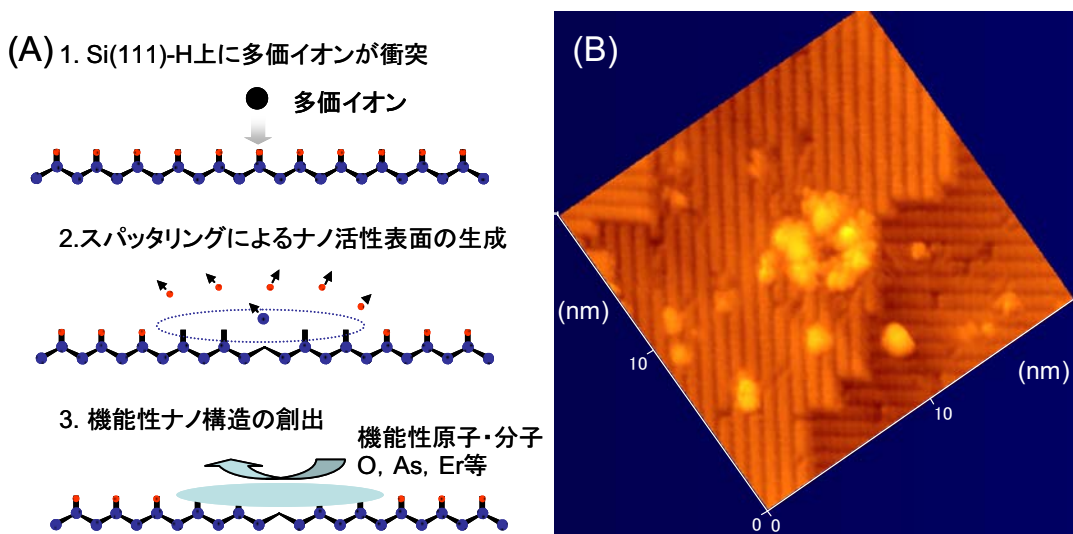


図 3.1.24: (A) 単一イオンリソグラフィーの概念図. (B) Si(100)-(2×1)-H表面上に I⁴⁴⁺ 衝突によって生成した、酸化シリコンのナノ構造.

◎キャピラリーを使った多価イオンビーム操作

最近、イオンビームをサブミクロンサイズに収束する方法として、ガラスキャピラリーを使ったイオンガイド効果が注目を集めている。微小開孔を持つキャピラリーの先端から多価イオンを出射させることができれば、これをプローブとすることで、望む場所を照射標準としその周囲ナノメートルサイズ領域の表面分析やイオン注入などへの応用が可能となる。そこで、高価数多価イオンビームのガラスキャピラリー通過特性を知るための基礎実験を遂行した。

図 3.1.25 (A) は作製したガラスキャピラリーの SEM 像である。キャピラリーの出口径が約 $1\ \mu\text{m}$ であることがわかる。キャピラリー作製のために、外径 $2\ \text{mm}$ 、内径 $0.8\ \text{mm}$ のボロシリケートガラス(パイレックス)管をカンタルヒーター線のリングで加熱しながら重力方向に荷重をかけて引っ張ることのできる装置を作製した。この装置には、均等に加熱するためにリングヒーターを回転できる機構が装備されており、加熱温度、荷重を調整しながら最適の長さ、出口径を得ることに成功した。これまでは、出口径が数 $100\ \text{nm}$ 、今後、 $100\ \text{nm}$ ～数十 nm 径のキャピラリーを作る予定である。

図 3.1.25 (B) に、ヨウ素の高価数多価イオンをガラスキャピラリーに入射して得た出射イオン強度の時間変化を示す。イオン入射後～40 秒でほぼ安定した出射イオン強度を得ることに成功した。立ち上がりの 40 秒間はガラスキャピラリー内を正に帯電させるに必要な時間であり、後続のイオンはキャピラリー内壁に衝突することなく反射あるいは直進して、キャピラリー内を通過できると考えている。

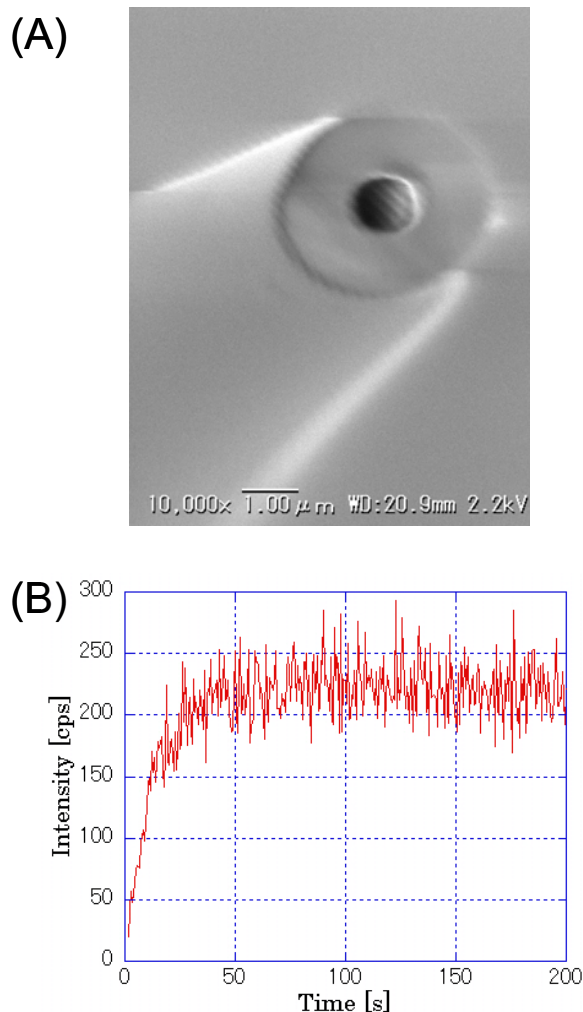


図 3.1.25 : (A) 作製したキャピラリーの SEM 像。 (B) ヨウ素多価イオンのキャピラリー通過特性。

(2) 研究成果の今後期待される効果

これまでに、我々は、約10年前に建設した高性能イオン源に、様々な観測装置を持った多価イオンビームラインを付設し、多価イオンナノプロセスの特徴を明らかにしてきた。現在、電子デバイスのさらなる微細化・高密度集積化にむけて、ナノ加工技術は、量子ドットや量子細線構造を10 nm以下にスケールダウンすることが重要かつ基本的技術課題となっている。これらの克服すべき課題は、多価イオンナノプロセスにより実現できると考えている。実際、このプロジェクト研究では、単一イオンリソグラフィーの実証実験として、表面吸着水素を多価イオン衝突で剥離できるレジストとして使い、Si(100)-(2×1)-H表面に2~3 nmの酸化シリコンナノ構造を作製した。このような、原子・分子レベルのプロセス技術の開発は、H19年度以降のCRESTの戦略目標になっているように、これからの最も重要な課題のひとつである。

これまでの我々の研究成果は、イオン-表面相互作用の研究分野で、多価イオンの有用性と特異性を明らかにしつつ、国際的に注目を集めてきた。このことは、本プログラムのように、高効率・低消費電力デバイス創製といった広範囲でかつ学際的な研究分野で本プロジェクトを行うことで可能となった。さらに、多価イオンをプローブとして使った研究が、ナノ表面科学、ナノ表面加工技術といった学際研究分野に参入すれば、異分野の研究者間の交流を通じて、ナノ表面科学技術に重要な革新をもたらすと考えている。

我々のイオン源で引き出せる低速高価数多価イオンの強度は、 F^{50+} では1 mm径のビームで 5×10^4 個/秒程度である。この値は、原理実証実験を行うのに十分な強度である。ところが、入射点の標準合わせのようなイオン照射技術や、プロセスの高速処理化といった技術研究では、2桁程度多いイオン量が必要とされる。今後、学際領域に研究を推進していくと、様々な分野から多価イオンナノプロセスへの注目が集まり、実用化に向けてイオン源のさらなる高性能化のための技術研究が望まれることになる。実際、我々のグループだけでなく、EBITを収束イオンビーム露光に応用する試みが国外で既に始まっており、多価イオンをプロセス応用に用いる動きが活発化してきている。言うまでもなく、多価イオン-表面相互作用の研究は、高価数多価イオンを生成でき、それを低速イオンビームとして引き出せるイオン源の開発とともに進展してきた。これからは逆に、多価イオンナノプロセスの進展が、多価イオン源工学分野の活性化につながると考えている。そして、イオン源が高性能化するにつれて、さらなる多価イオンの応用分野が広がっていく。このことは、もともと、重原子少数電子系イオンを対象とした原子物理学の研究のために開発されたEBITが、本研究のようなナノプロセス・表面科学・処理技術分野だけでなく、従来、密接に関連してきた核融合、天文学や加速器科学などの研究をさらに刺激し、これらの分野の枠をこえて、本研究で明らかになった重元素多価イオンから放出する特性硬 X 線のバイオ・医療への利用といった応用研究に使用されるようになることを意味している。重元素の裸に近い多価イオンが固体表面に衝突すると100%の確率で高エネルギーX線を放出する。そのX線は線スペクトルであるためエネルギー帯域が狭く、単一光子の発生をイオンが固体表面に衝突した際に放出される二次電子を検出することで知ることが出来るため定量性がある。この X 線を元素分析機器やマンモグラフィーなどの X 線診断機器に用いれば非常にコントラストの良い像を得ることが出来、物質の定量評価が出来る。従って、先端的な計測・分析機器の光源として基盤技術となり得る。癌細胞に薬剤を選択的に送り込むドラッグデリバリー技術を用いると癌細胞に局所的に金属重元素を送り込むことが可能である。金属重元素が送り込まれた癌細胞にその元素の K 吸収端のエネルギーに近い高エネルギー X 線を照射すると、X 線は効率的にその元素に吸収され、癌細胞とその近傍に局所的に放射線効果を与え治療効果を与える。この治療法に多価イオン表面衝突を利用した光源を用いることが出来れば通常用いられるシンクロトン放射光利用に比べ大幅に小型化、低コスト化が出来、体内低損傷の治療が実現するため、その社会的な影響が大きい。

このように異種分野への参入を通して多価イオンの高度利用の促進を図ることにより、まだ若い多価イオン科学の研究が成熟していくことを期待している。

3. 2 合目的多価イオン源 KobeEBIS の開発と応用 (神戸大学 グループ)

(1)研究実施内容及び成果

以下は B グループで実施したイオン源開発のレポートである. のちに多価イオン源を製作しようとする人にとって有用な情報となるように, あえて細部を省略せずに詳述した.

1 はじめに

我々はこれまで電気通信大学レーザー新世代研究センターに設置された多価イオン源 Tokyo-EBIT を用いて研究を行ってきた. Tokyo-EBIT は元来, 多価イオンの分光学的性質を調べるという原子物理学上の学術研究を目的に開発されたもので, イオン源内部に閉じ込められた多価イオンの放射過程を観測するために最適化された仕様となっている. 上に述べたような多価イオンを固体試料に照射するような用途には, イオン源で生成された多価イオンを効率的に外部に取り出せる必要がある. このため我々は, 多価イオンを用いたナノメートル領域のプロセス技術の開発を目指した, 新しいイオン源, 「KobeEBIS」の開発に着手した. Tokyo-EBIT は運転中液体ヘリウムを大量に消費するため, 運転経費が安価であるということも仕様として重要である.

2-1 KobeEBIS の設計

多価イオン源として現在用いられている代表的なものは, 電子サイクロトロン共鳴 (ECR) 型と呼ばれるものと電子ビーム型と呼ばれるものがある. どちらも, 生成されたイオンが逃げないような電磁場配位にしておき, 電子を原子 (イオン) に繰り返し衝突させることによりイオンの電離を進めていく仕組みになっている. 電子ビーム型イオン源 (Electron Beam Ion Source; EBIS) では, 超伝導磁石の強磁場中で電子ビームの電流密度を極限まで高めることにより, 一定時間 (1 秒程度) 内に例えば Xe^{44+} といった高価数の状態まで電離させることが可能になっている.

図 3.2.1 は EBIS の模式図である. EBIS 全体は電子銃部, ドリフトチューブ部, コレクター部より構成されたイオン源電極と強磁場発生用コイルより成る. 電子銃部はカソード, フォーカス, アノード, スノート (snout) の各電極とバックキング (bucking) コイルで構成される. ドリフトチューブは多価イオンが生成, 蓄積される領域である. EBIS では加速電圧が数 kV~数百 kV, エミッション電流が数十 mA~数 A の電子ビームを用いるので, 電子ビームのパワーは著しく高いものとなる. イオン源内でこれを安全に回収する機構がコレクターである. 電子は電子銃部からドリフトチューブ部の間でイオン化に必要なエネルギーまで加速され, その後はコレクターへ入射する電子ビームのパワーを

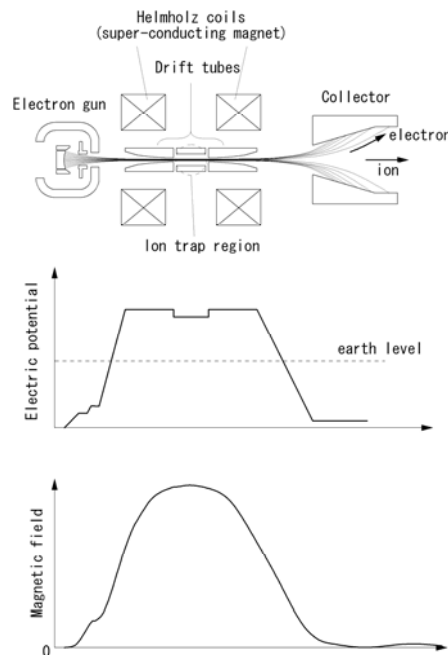


図 3. 2. 1 : EBIS の模式図.

抑えるためドリフトチューブ部からコレクター部の間で減速される。電子密度を最大にするためにはカソード位置での磁場強度を0にする必要があり、このため、バックリングコイルが用いられるとともに電子銃電極は鉄製の磁気シールド内に収納される。コレクターにおいても単位面積に入射する電子の電流を下げるために磁場強度をほぼ0にする必要がある。

多価イオンの電離度(価数)は電子ビームのエネルギー、電流密度、イオントラップ領域の圧力などによって決まる。電子とイオンの衝突によるイオンの電離と再結合、およびイオンと残留ガスとの衝突によるイオンの電子捕獲がバランスしたところで価数分布は時間的に一定になる。高価数イオンを得るためには強磁場により電子ビームを絞り電流密度を上げるとともに、残留ガスの密度を超高真空領域以下に抑える必要がある。ドリフトチューブのイオントラップ領域は電子銃、コレクター双方向に開口している(分子線が入射する)ので、ドリフトチューブ部だけでなくイオン源全体の真空系を超高真空領域まで排気する必要がある。

今回開発する KobeEBIS に要求される性能として掲げたのは、Xe⁵⁰⁺などの内部エネルギー100keV 程度の高電離多価イオンの量が毎秒10⁷~10⁸個に達しうること、運転経費節減のため液体ヘリウムを用いないことである。

強磁場発生用磁石は電磁石を用いる場合と永久磁石を用いる場合がある。永久磁石の場合、磁場強度は0.7~0.8 T以下に限定される。磁場中を通過する電子ビームの径と磁場強度の関係は、磁場が強くなるほど電子ビームは細くなるが、強磁場になるほど変化は鈍くなるので、むやみに強い磁石を用いても効果が少ない。今回のイオン源では磁場が有効に働く上限とも言える、3 Tをドリフトチューブ中心の磁場強度に設定した。一方、トラップ領域中の最大イオン数は、トラップ長とエミッション電流に比例するが、この場合もトラップ長をいたずらに長くするとイオンと電子ビームより成るプラズマとしての不安定性が顕著になり、高価数イオンが効率的に生成されなくなる。また、磁場強度は電子ビームの電流密度、イオン化効率や価数分布に影響するので、イオントラップ領域にわたって磁場の強度をある程度均一に保つ必要があるが、磁場の強さを広がった空間内で一定に保つのは容易ではない。そこで本イオン源においてはトラップ長として200 mmを目安にすることにした。

今回の設計では、まず磁石の形式として超伝導コイルの使用が不可避なので、冷凍機でコイルを冷却する形式とした。同様の形式のものは米国ローレンスリバモア研究所で開発されているが、これは超伝導コイルとイオン源電極を同一の真空容器に収めた形をとっている。この形式の利点は、ドリフトチューブ周辺の領域が極低温になるため、クライオポンプ効果が利用できること、コイルが小さくて済むことである。逆に欠点としては、構造が複雑になること、超伝導コイル関係の部品の耐熱性がなく加熱脱ガスが充分に行えないことが挙げられる。我々は、市販の超伝導コイルが利用できること、イオン源電極の加熱脱ガス操作を充分行えることなどの理由から、超伝導コイルとイオン源電極を別個の真空容器に収納する形式を採用した。さらに2つの真空容器の真空を保ちながら分離することが可能な構造とした。図 3.2.2 に KobeEBIS の大略の構造およびその外観を示した。長さ200 mmのイオントラップ領域にわたって磁場強度をある範囲内に収めるという要請から、超伝導コイルの形式としてヘルムホルツ型を採用している。図 3.2.3 に示した形状のヘルムホルツコイルを用いることにより、コイルの軸方向中心から±50 mmの範囲で磁場の均一性が±1%、±

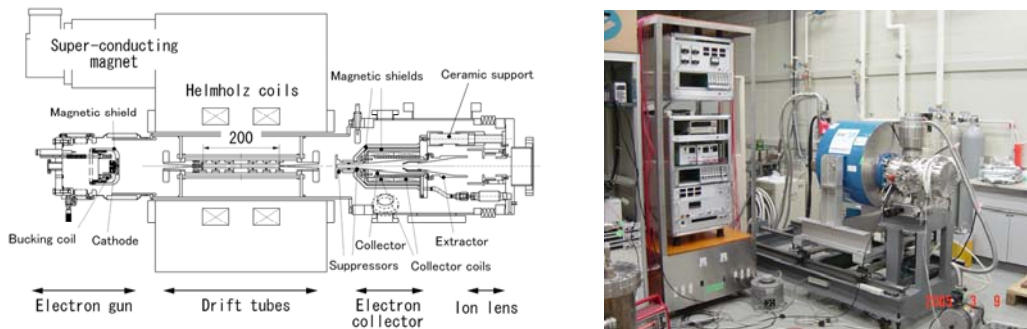


図 3.2.2 : KobeEBIS の構造と外観.

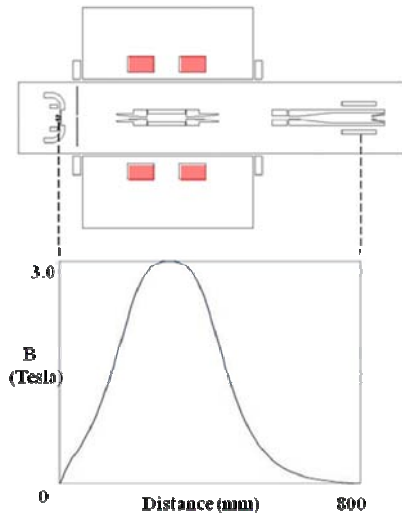


図 3.2.3：イオン源中の磁場分布.

100 mm の範囲で±8%となる.

多価イオンのポテンシャルエネルギーを利用したナノプロセスを行ううえでは、イオンの運動エネルギーはむしろ低いほうが望ましい。イオン源から取り出される多価イオンに対する加速電圧は、それが生成されるドリフトチューブの電位に等しいので、これを数 kV 以内に制限する必要がある。従って電子銃とコレクターの電位は、電子の加速電圧に相当する分、アース電位より負にする必要がある。電子銃とコレクターの電位をアースとする場合より電源系・制御系が複雑になる。

計算機シミュレーションにより、カソードからコレクターに至るまでの電子の軌道と、ドリフトチューブからコレクターを通過してイオン源外部に至るまでのイオンの軌道を、様々な電極、コイル形状と電磁場配位に対して求め、ドリフトチューブ中の電子ビームの電流密度が最大(すなわち一定のエミッション電流に対しビーム径が最小)になる条件、およびドリフトチューブ中のイオンがイオン源外部にもれなく取り出されるための条件を求めた(図 3.2.4)。

電子銃部の設計に関しては、エミッション電流 300 mA の実績のある Tokyo-EBIT の電極形状を踏襲した。電子軌道・イオン軌道に関して Tokyo-EBIT の設計に対する大きな変更点は、ドリフトチューブからコレクター間の距離を短縮し、両者の間に設置されていたトランスポートコイルを省略したこと、イオンがコレクターを通過しやすいようにポア径を 6 mm から 14 mm に広げたこと、コレクター直後にイオンレンズを設けたことなどである。

各イオン源電極に電位を与えるための電源のいくつかは高電圧の上に浮かせる必要があるので、出力電圧の制御信号と出力電流のモニター信号を、光ファイバーを介してコンピュータで制御・計

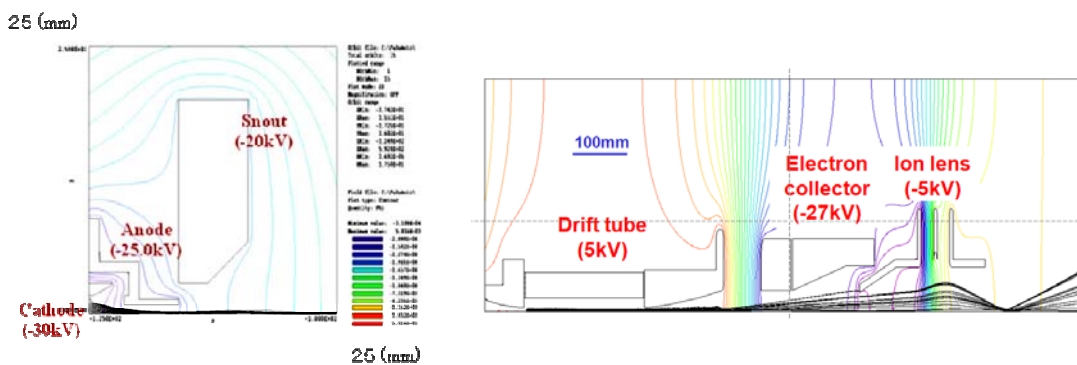


図 3.2.4：電子とイオンの軌道計算例 左が電子（電子銃部）、右がイオンの軌道.

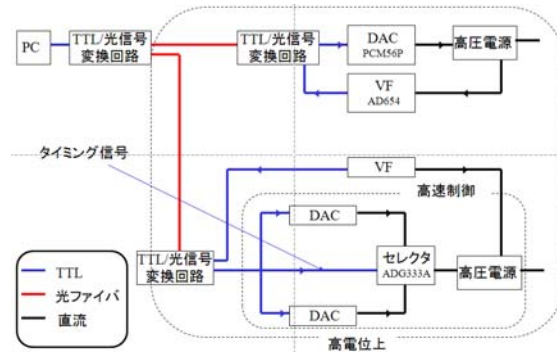


図 3.2.5：フローティング電源制御の構成.

測するようにした(図 3.2.5). EBIS ではドリフトチューブの作るポテンシャル井戸の形状を時間的に一定にして、井戸から溢れたイオンを取り出す運転モードと、パルス的に井戸の障壁を下げて定期的にイオンを取り出すモードが用いられる。前者のモードでは低価数から高価数にわたって広い価数範囲のイオンが混じって取り出されるのに対し、後者では高価数のイオンの比率が高くなるがイオンが定常的に得られない。それぞれ一長一短あり、本イオン源の電源は両者に対応できるようにした。後者では 1 μ 秒程度の精度でタイミングが制御できる。

2-2 KobeEBIS の立ち上げ

イオン源本体の排気系は、排気速度 300 リットル/s のターボ分子ポンプとチタンゲッターポンプである。高価数の多価イオンを生成するためには、大電流(100 mA 以上)電子ビームを発生させた状態で超高真空(10^{-8} Pa 以下)を維持する必要がある。イオン源運転中は、この電子ビームを回収するコレクターからの電子励起脱離による脱ガスに加え、強電界・強磁場中にある電極のペニング放電による脱ガス、カソードヒーターの熱による電子銃部の加熱脱ガスなど、多くの真空度を悪化させる要因があり超高真空を維持するのは容易ではない。本イオン源では、運転前の入念な脱ガス処理(イオン源全体を 200~250℃で 5 日間程度ベーキングした後、ドリフトチューブに磁場 2T, 電圧 5kV を印加した状態にし、ペニング放電による放電洗浄を 1-2 日行う)により、運転中も圧力 10^{-8} Pa 台を保持している。

EBIS ではエミッション電流 100 mA 以上の電子ビームを電子銃より発生させ高エネルギー(10 keV 以上)に加速しつつ、強磁場中に導き電子ビームを絞り、原子・イオンとの衝突による電離を繰り返すことにより多価イオンを生成する。電子ビームの殆どは衝突せずに多価イオン生成領域を通過し、コレクターに吸収される。電子銃から出た電子の全てが、コレクターに回収される必要があるが、電磁場の分布が悪いと電子が理想的な軌道を取らないためコレクター領域から電子銃側に逆戻りし、電子銃の各電極に衝突する。これによる加熱効果等で安定に電子ビームを発生させることができなくなる。電子が理想的な軌道を取るための条件は、カソード付近で磁場を 0 にし、その後急激に(2 次関数的に)磁場を立ち上げること、コレクターの電子回収領域でも磁場を 0 にすることである。当初製作したイオン源では、安定な電子ビームを維持できる限界の最大エミッション電流が 20mA であった。この原因についていろいろな可能性を調べたが、最終的に電子銃・コレクターの磁気シールドが不十分であることがわかった。設計段階でのシミュレーションに誤りがあったため、設計ではシールド内は磁場 0 になっているが、実測では 50 mT 以上残っていた。これを改善するため、1) 電子銃を当初より 90 mm 超伝導磁石から遠ざけ、2) 電子銃の磁気シールド形状を変更し、(磁場の立ち上がりが十分急峻ではなかったため、電子銃磁気シールドの磁性体の口径を 10 mm から 6 mm に絞った)、3) コレクターの磁気シールドの厚さを増すと同時に、4) シールド内部に電磁石(コレクターコイル)を設け、5) 電子のコレクターから電子銃側への戻りを抑えるためのサブレッサー電極を 2 個に増やし、6) サブレッサーとエキストラクターの口径を絞った。図 3.2.6 は、この改造前と改造後におけるコレクター部の構成図である。これらの変更により電子ビーム電流

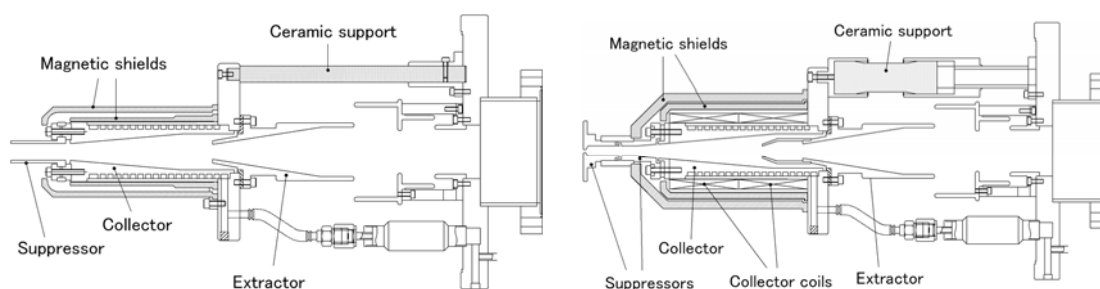


図 3.2.6 : 改造前後のコレクター部の構造 (左が改造前, 右が改造後)

180 mA を達成した。

コレクターの磁気シールドを厚くしたことにより、コレクター部の重量が増し、また超伝導磁石励磁中は磁気シールドが磁石に引き寄せられるが、この力も増したため、コレクター内の磁場分布測定中にコレクターを支持するセラミック棒が破断するという事故が発生した。このため、コレクターを支持する部分もセラミック棒を太くするなどの改良を加えた。図 3.2.6 左が改造前、右が改造後である。

電子が理想的な軌道を取るためのもう一つの条件は、電子銃、ドリフトチューブ、コレクターの各電極の中心軸と超伝導磁石の磁場軸が一定の誤差内で一致していることである。各電極の中心軸は、コレクター側に覗き窓を設置し、あらかじめドリフトチューブの軸に合わせておいたトランシットで観測しながら、電子銃とコレクターの位置調整をすることにより誤差 0.1 mm 以内に収めることができる。この軸と磁場軸との位置関係は、超伝導磁石容器のボアと、これに挿入されているドリフトチューブ配管との隙間を均一にするという方法で調整した。最終的には、実際に電子ビームとイオンビームを発生させ、最も優れた性能(電子ビームの回収率が高く、イオンの価数と強度が高い)を示すように微調整した。

2-3 生成イオンの測定

イオン源の下流側に電子レンズと分析磁石、各種検出器などを設けた配管(ビームライン)を接続し、前述のイオン源立ち上げの各段階で、イオン源から直流的に流出するイオンの質量スペクトル(質量電荷比の分布)を測定した。ビーム強度の測定には、分析磁石の出口スリット直後に設けたファラデーカップを用いた。その結果、イオンビーム強度や価数分布が磁場軸と電極軸のわずかなずれによって著しく変化すること、全圧約 5×10^{-8} Pa の残留ガスによっても高価数イオンの生成が阻害されていることがわかった。ただしこの圧力はコレクター部に取り付けられた真空計による測定値であり、ドリフトチューブ内部の圧力はこの値よりも高いと考えられる。電子ビーム電流 150 mA、電子ビームエネルギー 20 keV、超伝導磁石によるドリフトチューブ中心の磁束密度 3 T において、磁場軸と電極軸がほぼそろっていると思われる条件で、アルゴンガスを 5×10^{-8} Pa 導入して得られた多価イオンの強度は Ar^{9+} が 10 nA、 Ar^{12+} が 2 nA 程度(個数にして $10^9 \sim 10^{10}$ 個/s)である(図 3.2.7)。装置上の問題で質量分析の分解能が制限されており、これより高価数のイオンの強度は残留ガスの信号にかかれてしまうため、正確な見積はできていない。高価数イオン生成の障害となるのはドリフトチューブ内の残留ガスであり、この圧力を下げるために最も有効な方法はドリフトチューブを冷却することであると考えられる。電子ビーム発生時の脱ガスは CO 、 CO_2 が多いため、 CO が凝縮する 25 K 以下の領域まで冷却すれば大きな効果が期待できる。

電子ビームエネルギーは電子銃のカソードとドリフトチューブ間の電位差で決まるが、引き出されるイオンのエネルギーはドリフトチューブの電位に比例する。多価イオンのポテンシャルエネルギーの効果をナノプロセスに応用しようとする立場からは、試料に照射する際のイオンの運動エネルギーは低い方が望ましく、またイオン源から高速で引き出されたイオンを減速して照射すると、ビームを発散させる結果となり高密度で照射することができない。従ってイオン源からなるべく低エネルギーで引き出すことが望ましい。本イオン源ではドリフトチューブ電位が 1.5~3 kV の範囲において同

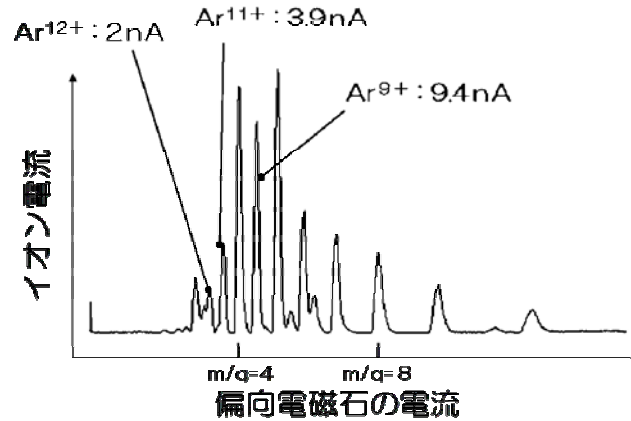


図 3. 2. 7 : KobeEBIS から出射した大強度 Ar 多価イオンビームの価数分布スペクトル.

程度のイオン電流が得られることがわかった.

2-4 照射装置

イオン源の立ち上げと並行して、イオン源から引き出した多価イオンを試料に照射するための装置を製作した。これは本イオン源の用途として掲げているナノプロセス応用のための基礎実験として、周期的に配列した孔をあけたマスクで多価イオンビームを絞り、試料の特定の場所に周期的な照射痕を生成する実験を目的としている。イオン源から取り出される多価イオンビームは 1 mm 前後の径であるから、基板の特定位置にナノ構造を作成するためには、ビームをナノメートルの径に切り出す必要がある。本研究では、厚さ 100 nm の薄膜 (Si_3N_4) に、FIB 加工で穴を周期的に配列させたものをマスクとして使用し、これを試料の直前に置いて照射する実験を試みた。マスクにあける孔のサイズは数十 nm から 100 nm の大きさで、多価イオンビームはこのマスクにより孔のサイズ程度のビーム(ナノビーム)に絞られるが、マスクと試料の間隔が離れているとビームの発散角の影響で試料上のビームサイズが広がってしまう。これを避けるため、マスクを試料から 1~10 μm 程度に近づける位置調整機構が必要となる。また、試料とマスクは多価イオンビームに対して位置合わせの機構が必要で、さらに試料は表面の清浄化処理や LEED, STM 観察のため移送可能である必要

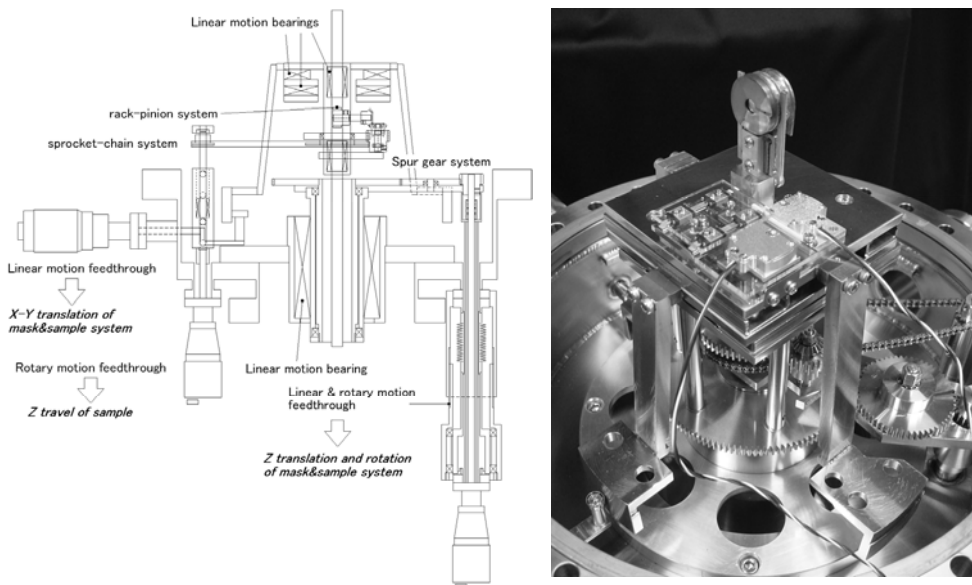


図 3. 2. 8 : 7 軸ゴニオメーターの構成と外観.

がある。

我々はこれらの要請を満たすような試料とマスクの位置調整機構(ゴニオメーター)を製作した。この調整機構は図 3.2.8 に示すように、マスクと試料支持の基盤で XYZ 方向の平行移動と垂直軸まわりの回転自由度をもつステージ上に、試料のみの Z 移動機構と試料に対してマスクを 100 nm ステップで駆動できる XY ステージを組み込んだものである。

このマスク用 XY ステージはマスクをサブミクロンの精度で滑らかに数 cm の距離にわたって移動させ得ることが必要である。このため、高精度の直動ガイドをミクロン精度で平坦に仕上げられた石英基板上に取り付け、これを超音波モーターで駆動する構造とした。

この 7 軸の自由度を持つゴニオメーターは ICF356 規格のフランジにマウントされ、駆動のための各種導入端子も同一のフランジに取り付けられている。

多価イオンのナノビーム生成のためのマスクとしては、直径 100 nm の孔を正方格子状に 300 nm 間隔で配列させたものを製作した。図 3.2.9(A) はマスクの SEM 像である。これを 7 軸ゴニオメーターのマスク台に設置し、このマスクを通してグラファイト表面に多価イオンを照射した。

図 3.2.9(B) にマスクの設置状況を示す。マスクは ϕ 厚さ 0.2 mm のシリコン基板に加工されており、これをマスクホルダーに接着し、このマスクホルダーをマスク用 XY ステージに取り付けている。マスクは試料と同様に、トランスファー機構により装置の真空を破ることなく交換可能である。マスクの孔は幅 10 μ m の領域に限られているので、STM 観測の便宜上、照射位置を試料表面上の特定の場所に正確に位置決めする必要がある。本研究では図 3.2.9(B) のレンズ電極内径を通してマスクと試料をコリメータで目視し、相対的位置関係をモニターしながら照射するという方法をとった。

マスクと試料の間隔については、ズームレンズ先端(大気中)を試料(超高真空中)から数 cm の距離まで近づけられるように特殊な覗き窓を製作し、この窓を通してマスクと試料の間隙を拡大して

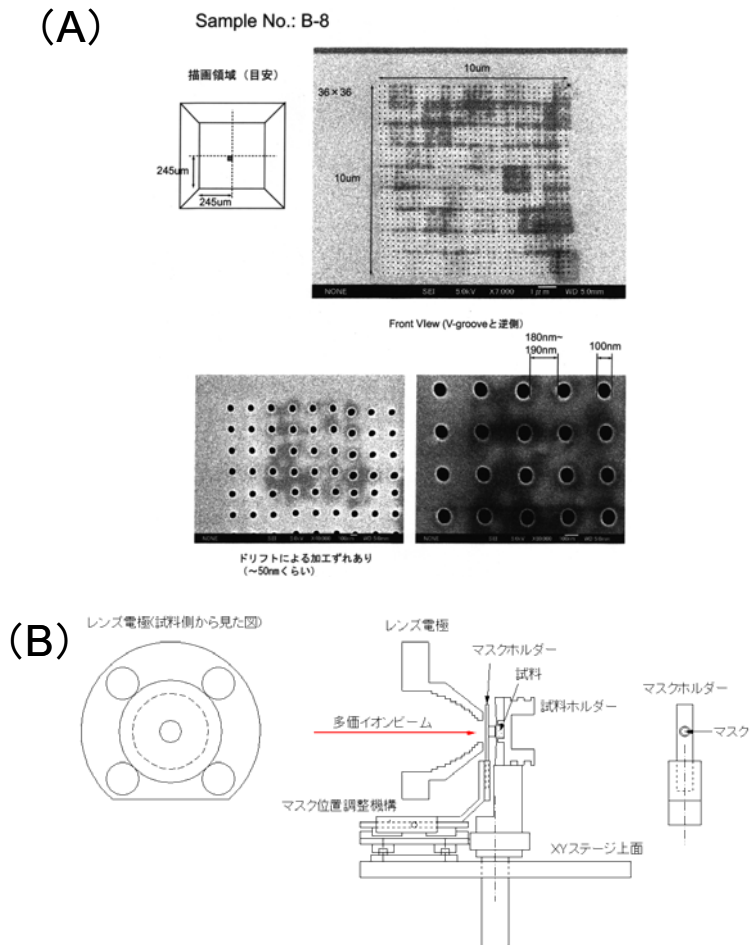


図 3.2.9 : (A) 作製したマスクの SEM 像. (B) マスクの設置状況.

観察しながら、マスクを試料に徐々に近づけた。現状ではマスクが3φの平面であるため、極限(ミクロンオーダー)まで接近させることはできない。これを実現するためには、今後マスクを突起状のマクロ形状をした薄膜に形成させるなどの改良を行う必要がある。

3 重照射試料の STM 観察

図 3.2.9(B)のような KobeEBIS と照射・観測装置を用いてグラファイト表面に多価イオン(Ar^{11+})を照射し、照射後の表面を STM で観察した。照射時のイオン電流は数 nA のオーダーであり、 1 mm^2 に毎秒 $10^8 \sim 10^9$ 個(10 nm 四方に毎秒 0.01~0.1 個)の多価イオンが入射していることになる。図 3.2.10 は約1時間照射した試料表面の STM 像である。

得られた STM 像は従来報告されているものと同様の、‘かさぶた’状の外観を示しており、そのサイズは 2 nm 前後である。本研究のように高密度の照射痕を明瞭に観測し得た例は少ない。

マスクを通して照射した試料の STM 観察を数か月にわたって試みたが、当初から予想されたように、照射位置と観測位置の調整精度が十分でないため、まだ照射痕の観測に成功していない。これには STM 装置の不具合も影響している。マスクを通して作成した照射痕の観察には、STM 観測視野を $10 \sim 100 \mu\text{m}$ 単位で自在に移動させることが必須であるが、この機能に深刻な問題があり、現在改善の努力をしている。

本 CREST で明らかにされた多価イオン照射痕の機能として、分子のピンング効果(照射痕に選択的に分子が吸着する)がある。照射痕を周期配列させたものを作成し、この上に分子を蒸着・熱処理すると、吸着分子の周期配列構造を作成することができると考えられる。想定している分子(Bis-MSB, TBPP)は 200°C 以下で蒸発するため、ヒーターのパワーが少なくて済み、蒸着源を小型化することができる。このため分子蒸着専用のクヌーセンセルを製作した。

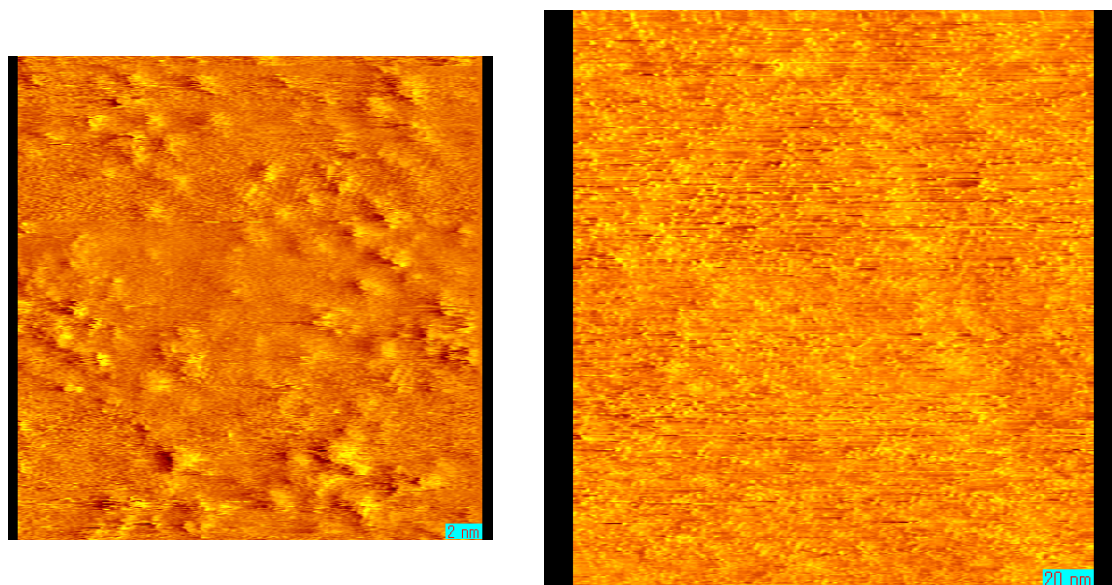


図 3.2.10 : 多価イオン照射グラファイトの STM 像 (異なる倍率での観測)

(2)研究成果の今後期待される効果

繰り返しになるが、多価イオンー表面反応の空間的広がりや多価イオンの価数に応じて1～数 nm に限定され、この値(ここでは装置の性能に依存する分解能と対比する意味で、多価イオン反応の‘量子分解能’と呼ぶ)は多価イオンと原子の衝突断面積で明確に規定されることから、電子ビームや集束イオンビームのような従来手法で問題となる、縮小倍率や収差などのビーム輸送系の性能に左右されない。

一方で、もとより多価イオンも荷電粒子であるから、従来のビーム輸送技術を利用することができる。一般に電子線などの量子ビーム操作によるプロセスは産業的に確立した手法であるから、多価イオンを用いる場合も高効率化が見込める。しかも、多価イオンなら1 nm 台の加工が可能(他の手法での最小値はFIBで20-30 nm, EUVで目標13 nm)であり、超高密度化に関して飛躍的な向上が期待できる。すなわち、多価イオンビームを用いると、トップダウンアプローチ(高効率)とボトムアップアプローチ(1nm オーダーの分解能)の利点を併せ持つ、他の手法では不可能なナノプロセスが実現できる。

本研究で行ったイオン源開発によって、 10^9 個/mm²/秒のビーム強度の多価イオンを生成することができるようになった。100 nm²に毎秒10個、10 nm²に0.1個のイオンを入射させることができる。今後、イオンの収束光学系を開発し、試料表面上での照射密度を向上させることにより、入射頻度を数桁改善することができる考えられ、この技術により nm オーダーの分解能をもった、高効率の加工・機能構造作成技術が実現可能となる。

本研究の過程でイオン源に関する特許出願を行った。この出願の内容は、従来の電子ビームイオン源(特に強磁場発生のために超伝導磁石を用いるもの)で問題となっていた、装置製作の難点を克服し、製造や運転・保守が容易な多価イオン源の製作に関するものである。

多価イオンを効率よく発生させるには、超高真空中(10^{-8} Pa 以下)において、大電流密度(1000 A/cm²以上)の電子ビームを維持する必要がある。このために超伝導磁石による強磁場が必要であるが、従来の多価イオン源は、超伝導磁石と電子ビーム装置が一体であるなどの理由により、超高真空を実現するために必要なベーキング処理(装置を150～200℃に加熱保持)が十分に行えない構造であった。本発明では、超伝導コイルを収納する真空容器と電子ビーム装置(電子源、多価イオンが発生・蓄積されるドリフトチューブ、電子捕集装置で構成される)を収納する超高真空容器を分離し、さらにお互いの真空容器を容易に着脱可能にしている。このため表3に示すような従来技術に対する優位性が実現した。 10^{14} ～ 10^{16} /cm²のドーズ量が実現することに加え、1個の多価イオン入射で数十～数百の2次電子が発生するとともに、数個以上の2次イオンも放出されることから、このイオン源の期待される用途として以下の応用が想定される。

- ・多価イオン入射によるナノ構造・ナノワイヤ作成、ナノ加工
- ・単一イオン注入用イオン源
- ・多価イオンをプローブとした2次イオン質量分析による微小部の高感度分析

EBISを収束イオンビーム露光に応用する試みは国外で既に始まっており、多価イオンをプロセス応用に用いる動きが活発化する可能性がある。本特許は従来、基礎科学分野のための特殊な実験装置という立場にあった電子ビーム多価イオン源を、汎用性の高い装置として社会に提供する基盤となる。

	従来技術	本発明
ビーム強度 (同形式・同規模 で比較)	$10^5 \sim 10^6$ /mm ² /s	10^8 /mm ² /s (PCT 出願後の実験で達成)
製作可能な 製造業者数	国内2-3社	~数十社 (超伝導磁石は市販品を使用)
製造コスト (販売価格)	Tokyo-EBIT(電通大試作機) は約3億円, REBIT(Physics and Technology 社, 米国) は8000万円	3500万円 (磁石 1700万円, 第2容器全体 900万円, 電源 600万円, 排気系 300万円)
運転コスト (本体部分)	LiqHe:3リットル/時間 → 1000~3000円/時間	電力:10kW → 100円/時間

表3：従来技術に対する優位性.

4 研究参加者

①A グループ

当初の研究計画書には、可能な研究参加者として電気通信大学の多くのメンバーをノミネートしたが、その一部はそれぞれの事情により参加できなかった。ここでは実際に参加したメンバーのみを示す。

氏名	所属	役職	担当する研究項目	参加時期
大谷 俊介	電気通信大学	教授	全体	H14,11～H20,3
山田 千樫	電気通信大学	教授	全体	H14,11～H20,3
吉安信雄	電気通信大学	講師	ナノ構造生成の物理機構の解明	H14,11～ H20,3
柴田 雅章	電気通信大学	大学院生	単一イオン入射技術の確立	H14,11～H15, 3
高橋 学士	電気通信大学	大学院生	単一イオン入射技術の確立	H14.11～H19.10
寺田雅史	電気通信大学	大学院生	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H15,4～H17, 3
馬場由香里	電気通信大学	大学院生	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H15,4～H17, 3
藤田祐崇	電気通信大学	大学院生	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H17,4～H19,3
阿部崇	電気通信大学	大学院生	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H17,4～H19,3
中村 信行	理化学研究所 電気通信大学	基礎科学 特別研究員	単一イオン入射技術の確立 全体	H14,11～H20,3
櫻井 誠	神戸大学	准教授	全体	H14,11～H20,3
庄司多津男	名古屋大学	准教授	単一イオン入射技術の確立	H16,7～H20,3
戸名正英	科学技術振興 事業団	CREST 研究員	全体	H15.8～H20,3
渡辺裕文	科学技術振興 事業団	CREST 研究員	多価イオンの生成と照射技術の開発	H17.7～H20,3

②B グループ

氏名	所属	役職	担当する研究項目	参加時期
櫻井 誠	神戸大学	准教授	多価イオン生成ナノ素材の物性評価 小型イオン生成源の完成と運転	H14,1 ～ H20,3
中寫 史晴	神戸大学	大学院生	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H15,4 ～ H17,3
福本 卓典	神戸大学	大学院生	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H16.4 ～ H18.3
三森 恵太	神戸大学	大学院生	小型多価イオン源の基本性能の評価	H17,4 ～ H19,3
川瀬 悠司	神戸大学	大学院生	周期照射技術の確立	H18,4 ～ H20,3
大西 弘行	神戸大学	大学院生	周期照射技術の確立	H19,4 ～ H20,3
大谷 俊介	電気通信大学	教授	多価イオン生成ナノ素材の物性評価 小型多価イオン源の基本性能の評価	H14,1～H20,3
益子 信郎	情報通信研究 機構	センター長	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H14,1～H20,3
照井 通文	情報通信研究 機構	主任研究員	多価イオン生成ナノ素材の物性評価	H14,1～H20,3

坂上 裕之	核融合科学研究所	助教	多価イオン生成ナノ素材の物性評価 小型多価イオン源の基本性能の評価	H16,7～H20,3
-------	----------	----	--------------------------------------	-------------

5 招聘した研究者等

氏名(所属, 役職)	招聘の目的	滞在先	滞在期間
F. J. Currell (Queen's University, Belfast)	バイオ・医療への多価イオンビーム利用のための基礎研究	電気通信大学	H19年 2月～3月
Y. Fu (Fudan University)	多価イオン照射技術の開発	電気通信大学	H19年 2月～3月

6 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内誌 3 件, 国際誌 50 件)

Y. Fu, J. Sun, M. Sakurai, N. Nakamura, M. Tona, H. Watanabe, C. Yamada, N. Yoshiyasu, and S. Ohtani:

“Production and extraction of highly charged ions from the Tokyo EBIT”, *Plasma and Fusion Research: Rapid Communications* **2** (2007) 028.

H. Watanabe, J. Sun, M. Tona, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, N. Yoshiyasu, and S. Ohtani:

“X-ray emission in collisions of highly charged I, Pr, Ho, and Bi ions with a W surface”, *Phys. Rev. A* **75** (2007) 062901.

M. Sakurai, M. Tona, S. Takahashi, H. Watanabe, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, S. Ohtani, H.A. Sakaue, Y. Kawase, K. Mitsumori, T. Terui, and S. Mashiko:

“Nano-scale Surface Modification of Materials with Slow, Highly Charged Ion Beams”, *Nucl. Instr. Meth. B* **257** (2007) 297.

M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani

“Potential sputtering from a Si surface by very highly charged ion impact”, *Nucl. Instrum. Methods B* **258** (2007) 163.

M. Tona, S. Takahashi, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, C. Yamada, M. Sakurai, T. Terui, S. Mashiko, and S. Ohtani:

“Nano-Crater Formation on a Si(111)-(7×7) Surface by Slow Highly Charged Ion Impact”, *Surf. Sci.* **601** (2007) 723.

M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, T. Terui, S. Mashiko, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Nano-Fabrication on a Si Surface by Slow Highly Charged Ion Impact”, *Nucl. Instrum. Methods B*, **256** (2007) 543.

M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, Y. Fujita, T. Abe, S. Jian, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, M. Sakurai, and S. Ohtani:

“Observation of HCl-induced nanostructures with a scanning probe microscope”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **58** (2007) 331.

H. Watanabe, T. Abe, Y. Fujita, J. Sun, S. Takahashi, M. Tona, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“X-ray emission in slow highly charged ion-surface collisions”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **58** (2007) 339.

Y. Mitsuda, B. E. O’Rourke, N. Nakamura, Y. Kanai, S. Ohtani, and Y. Yamazaki:

“SPM observation of slow highly charged ion induced nano-dots on highly oriented pyrolytic graphite (HOPG)”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **58** (2007) 351.

C. Yamada, K. Nagata, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Takahashi, T. Tobiyama, M. Tona, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, A. P. Kavanagh, and F. J. Currell:

“Injection of refractory metals into EBIT using a Knudsen cell”, J. Phys.: Conf. Ser. **58** (2007) 403.

A. P. Kavanagh, J. D. Gillaspay, D. G. Hirst, M. H. Mendenhall, N. Nakamura, S. Ohtani, H. Watanabe, and F. J. Currell:

“Radiation from K-shell filling in highly charged ions: a driver for resonant combination cancer therapy?”, J. Phys.: Conf. Ser. **58** (2007) 439.

H. Watanabe, S. Takahashi, M. Tona, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Dissipation of potential energy through x-ray emission in slow, highly charged ion-surface collisions”, Phys. Rev. A **74** (2006) 042901.

C. Yamada, K. Nagata, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Takahashi, T. Tobiyama, M. Tona, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, A. P. Kavanagh, and F. J. Currell:

“Injection of metallic elements into an electron-beam ion trap using a Knudsen cell”, Rev. Sci. Instrum. **77** (2006) 066110.

M. Tona, K. Nagata, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Some characteristics in the interaction of slow highly charged I^{q+} ions with a Si(111) 1×1 -H surface”, Surf. Sci. **600** (2006) 124.

N. Yoshiyasu, S. Takahashi, M. Shibata, H. Shimizu, K. Nagata, N. Nakamura, M. Tona, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Demonstrative experiment for single ion implantation technique using highly charged ions”, Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) 995.

T. Terui a, S. Yokoyama, H. Suzuki, S. Mashiko, M. Sakurai, and T. Moriwaki:

“Structures of Thin Films of Tertiary-Phenyl-Porphyrin Derivatives on Gold Surface”, Thin Solid Films **499** (2006) .

M. Tona, K. Nagata, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani,:

“Secondary ion emission from solid surfaces irradiated with highly charged ions”, Nucl. Instrum. and Meth. B **232** (2005) 249.

N. Nakamura, M. Terada, Y. Nakai, Y. Kanai, S. Ohtani, K. Komaki, and Y. Yamazaki :

“SPM observation of nano-dots induced by slow highly charged ions”, Nucl. Instr. and Meth. B **232** (2005) 261.

M. Sakurai, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Mashiko, and H. A. Sakaue:

“Development of electron beam ion source for nanoprocess using highly charged ions”, Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 319.

M. Tona, Y. Baba, S. Takahashi, K. Nagata, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, and S. Ohtani :

“In and ex situ optical spectroscopy of HCl-bombarded solid surfaces”, Nucl. Instrum. and

Meth. B **235** (2005) 443.

M. Terada, N. Nakamura, Y. Nakai, Y. Kanai, S. Ohtani, K. Komaki, and Y. Yamazaki:
“Observation of an HCI-induced nano-dot on an HOPG surface with STM and AFM”, Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 452.

S. Takahashi, M. Tona, K. Nagata, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:
“Observation of surface modification and secondary particle emission in HCI-surface interaction”, Nucl. Instrum. and Meth. B **235** (2005) 456.

S. Takahashi, M. Tona, K. Nagata, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, S. Ohtani, and M. Sakurai:
“Toward over unity proton sputtering yield from a hydrogen-terminated Si(111)1×1 surface irradiated by highly charged ions”, Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 063111.

M. Tona, S. Takahashi, K. Nagata, N. Yoshiyasu, C. Yamada, N. Nakamura, S. Ohtani, and M. Sakurai:
“Coulomb explosion potential sputtering induced by slow highly charged ion impact”, Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 224102.

S. Takahashi, K. Nagata, M. Tona, M. Sakurai, N. Nakamura, C. Yamada, and S. Ohtani :
“DIET in highly charged ion interaction with silicon surfaces”, Surf. Sci. **593** (2005) 318.

Y. Baba, K. Nagata, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, S. Ohtani, and M. Tona:
“Surface modification on highly oriented pyrolytic graphite by slow highly charged ions”, Surf. Sci. **599** (2005) 248.

N. Nakamura, M. Terada, A. Endo, Y. Nakai, Y Kanai, K. Komaki, and Y. Yamazaki:
“Application of bulk high-Tc superconductors to electron beam ion source: present status and outlook”, J. of Phys.: Conf. Ser. **2** (2004) 1.

M. Sakurai, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Nakamura, S. Ohtani, and S. Mashiko:
“Design of EBIS for nanoproceses using HCI”, J. of Phys.: Conf. Ser. **2** (2004) 52.

M. Tona and S. Takahashi
“Highly charged ion beams from the Tokyo EBIT for applications to nano-science and -technology”, J. of Phys.: Conf. Ser. **2** (2004) 57.

S. Ohtani:
“The initiation of EBIS/T-based HCI research in Japan”, J. of Phys.: Conf. Ser. **2** (2004) 190.

櫻井 誠, 川瀬悠司, 三森恵太, 坂上裕之, 渡辺裕文, 中村信行, 大谷俊介, 照井通文, 益子信郎:
“ナノプロセス用電子ビーム多価イオン源の開発Ⅱ”, 真空 **50** (2007) 390.

櫻井 誠, 中畠史晴, 福本卓典, 中村信行, 大谷俊介, 益子信郎:
“ナノプロセス用電子ビーム多価イオン源の開発”, 真空**48** (2005) 317-320.

参考論文(本プロジェクトで開発された技術によって成し得た研究など)

H. Watanabe, N. Nakamura, D. Kato, T. Nakano, and S. Ohtani:

“X-ray spectra from neon-like tungsten ions in the interaction with electrons”, *Plasma and Fusion Research: Rapid Communications* **2** (2007) 027.

H. Watanabe, H. Tobiyama, A. P. Kavanagh, Y. M. Li, N. Nakamura, H. A. Sakaue, F. J. Currell, and S. Ohtani:

“Dielectronic recombination of He-like to C-like iodine ions”, *Phys. Rev. A* **75** (2007) 012702.

H. Tobiyama, H. Nohara, A. P. Kavanagh, N. Nakamura, H. Watanabe, H. A. Sakaue, Y. Li, D. Kato, F. J. Currell, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Interference between dielectronic and radiative recombination in electron-highly charged Bi collisions”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **58** (2007) 239.

N. Nakamura, H. Tobiyama, H. Nohara, A. P. Kavanagh, H. Watanabe, H. A. Sakaue, Y. Li, D. Kato, F. J. Currell, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Resonant Electron Processes with Open-Shell Highly Charged Ion Targets”, *J. Phys.: Conf. Ser.* **58** (2007) 267.

N. Nakamura, H. Tobiyama, H. Nohara, D. Kato, H. Watanabe, F. J. Currell, and S. Ohtani:

“Investigation of resonant inner-shell processes with an electron beam ion trap”, *Radiation Phys. and Chem.* **75** (2006) 1749.

N. Nakamura, H. Tobiyama, H. Nohara, D. Kato, H. Watanabe, F. J. Currell, and S. Ohtani:

“Observation of resonant-excitation double autoionization in electron- I^{50+} collisions”, *Phys. Rev. A* **73** (2006) 20705.

H. A. Sakaue, K. Hosaka, H. Tawara, I. Yamada, N. Nakamura, S. Ohtani, A. Danjo, M. Kimura, A. Matsumoto, M. Sakurai, and M. Yoshino:

“Total Electron Transfer Cross Sections for Highly Charged Ion-Alkali Metal Atom Collisions”, *J. Plasma Fusion Research* **7** (2006) 195.

H. Watanabe, A. P. Kavanagh, H. Kuramoto, Y. Li, N. Nakamura, S. Ohtani, B. E. O’Rourke, A. Sato, H. Tawara, X. Tong and F. J. Currell:

“Dielectronic recombination of hydrogen-like ions”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **235** (2005) 261.

M. Sakurai and C. Yamada:

“Dynamics of physisorbed monolayer of methane on Ag(111)”, *Surf. Sci.* **593** (2005) 195.

T. Tachibana, Y. Yamauchi, T. Miura, T. Hirayama, M. Sakurai and I. Arakawa:

“Photodesorption of ionized water clusters from water physisorbed on rare gas solids”, *Surf. Sci.* **593** (2005) 264.

B. E. O’Rourke, H. Kuramoto, Y. M. Li, S. Ohtani, X. M. Tong, H. Watanabe, and F. J. Currell:

“Dielectronic recombination in He-like titanium ions”, *J. Phys. B* **37** (2004) .

T. Adachi, T. Hirayama, T. Miura, I. Arakawa and M. Sakurai:
“Absolute measurements of the total PSD and ESD yields at the surface of solid krypton”, Surf. Sci. **528** (2003) 60.

M. Sakurai, F. Nakajima, M. Yasuda, T. Nanba:
“LEED observation of methane monolayer physisorbed on Ag(111)”, J. Vac. Soc. Jpn. **46** (2003) 294.

I. Arakawa, T. Adachi, T. Hirayama, and M. Sakurai:
“Absolute yields of the exciton induced desorption at the surface of solid rare gases”, Low Temp. Phys. **29** (2003) 259.

Y. M. Li, D. Kato, H. Watanabe, B. O'Rourke, H. Kuramoto, F. J. Currell, C. Yamada, and S. Ohtani:
“Analysis of resonance transition in X-ray spectra of electron interaction with highly charged iron ions”, J. Plasma and Fusion Res. **79** (2003) 52.

N. Nakamura, D. Kato, and S. Ohtani:
“X-Ray spectroscopy of high-Z highly charged ions with the Tokyo EBIT”, Nucl. Instrum. Methods B **205C** (2003) 57.

B. E. O'Rourke, F. J. Currell, H. Kuramoto, Y. M. Li, S. Ohtani, X. M. Tong, and H. Watanabe:
“Dielectronic recombination in highly charged He-like ions”, Nucl. Instrum. Methods B **205** (2003) 378.

H. Watanabe, F. J. Currell, H. Kuramoto, Y. M. Li, S. Ohtani, B. E. O'Rourke and X. M. Tong:
“The measurement of the electron impact ionization cross section of hydrogen-like ions”, Nucl. Instrum. Methods B **205** (2003) 417.

N. Nakamura, T. Nakahara, and S. Ohtani:
“The 1s Lamb shift in hydrogen-like rhodium measured with an electron beam ion trap”, J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 1650.

K. Hosaka, D. N. Crosby, K. Gaarde-Widdowson, C. J. Smith, J. D. Silver, E. G. Myers, T. Kinugawa, and S. Ohtani:
“Towards a measurement of the n=2 Lamb shift in hydrogen-like nitrogen using an electron beam ion trap”, Hyperfine Interactions **146/147** (2003) 59.

立花 隆行, 山内 祐子, 長崎 仁志, 田澤 俊彦, 三浦 崇, 平山 孝人, 櫻井 誠, 荒川 一郎:
“水が吸着した希ガス固体表面から電子遷移誘起脱離する水クラスターイオンの観測”, 真空 **46** (2003) 257-260.

(2)その他の著作物 (総説, 書籍など) (国内誌 4 件, 国際誌 1 件)

中村信行:

“小特集「多価イオン原子過程の基礎と広がる応用研究」1. はじめに”, プラズマ・核融合学会誌 **83** (2007) 658.

渡辺裕文, 加藤太治:

“小特集「多価イオン原子過程の基礎と広がる応用研究」2.1 電子-多価イオン”, プラズマ・核融合学会誌 **83** (2007) 660.

坂上裕之, 中村信行:

“小特集「多価イオン原子過程の基礎と広がる応用研究」3. 多価イオン生成の方法”, プラズマ・核融合学会誌 **83** (2007) 671.

櫻井 誠:

“小特集「多価イオン原子過程の基礎と広がる応用研究」4.3 ナノテクノロジーへの応用”, プラズマ・核融合学会誌 **83** (2007) 684.

N. Nakamura, S. Ohtani, M. Sakurai, S. Takahashi, M. Tona, C. Yamada and N. Yoshiyasu:

“Surface studies with the Tokyo EBIT”, Atomic Collision Research in Japan, Prog. Rep. **29** (2003) 63.

(3)学会発表(国際学会発表及び主要な国内学会発表)

① 招待講演 (国内会議 0件, 国際会議 19件)

N. Nakamura, A. P. Kavanagh, H. Watanabe, H. A. Sakaue, Y. Li, D. Kato, F. J. Currell, and S. Ohtani:

“Relativistic effects on resonant interactions between electrons and highly charged ions (HCIs)”, XXV International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC XXV), Freiburg, Germany (2007)

N. Nakamura:

“Recent activity at the Tokyo EBIT: Collisions of very highly charged ions with electrons and surfaces”, Physics at EBIT and Advanced Research Light sources (PEARL2007), Shanghai (2007).

N. Nakamura, H. Kikuchi, T. Kobayashi, R. Nakayama, S. Ohtani, H. A. Sakaue, M. Sakurai, T. Shimazaki, J. Sun, M. Tona, H. Watanabe, C. Yamada, N. Yoshiyasu:

“Recent activities at the Tokyo-EBIT 2007”, X International Symposium on the Physics and Applications of Electron Beam Ion Sources and Traps (EBIS/T 2007), Heidelberg, Germany, (2007)

J. Sun, Y. Fu, N. Nakamura, M. Tona, H. Watanabe, M. Sakurai, C. Yamada, N. Yoshiyasu, and S. Ohtani:

“Time evolution of extracted highly charged ions with the Tokyo electron beam ion trap”, X International Symposium on the Physics and Applications of Electron Beam Ion Sources and Traps (EBIS/T 2007), Heidelberg, Germany, (2007).

M. Tona and S. Ohtani:

“Potential sputtering from a Si surface by very highly charged ion impact”, 16th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (IISC-16), Hernstein, Austria (2006).

N. Nakamura, H. Watanabe, A. P. Kavanagh, H. A. Sakaue, Y. Li, D. Kato, F. J. Currell, and S. Ohtani:

“Resonant Processes in Collisions of Highly Charged Ions with Electrons”, 7th Asian

International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP7), Chennai, India (2006).

N. Nakamura, H. Tobiya, H. Nohara, A. P. Kavanagh, H. Watanabe, H. A. Sakaue, Y. Li, D. Kato, F. J. Currell, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Resonant Electron Processes with Open-Shell Highly Charged Ion Targets”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

N. Nakamura:

“Recent activity at the Tokyo EBIT”, 20 Years of Spectroscopy with the Electron Beam Ion Trap, Berkeley, California (2006).

N. Nakamura and S. Ohtani:

“EBIT(Electron Beam Ion Trap) potential for atomic data production”The 14th International Toki Conference and the 14th International Conference on Atomic and Molecular Data, Gifu, Japan (2005).

N. Nakamura:

“Activities at the Tokyo-EBIT”, Physics at EBIT and Advanced Research Light Sources, Huayuan, Hainan, China (2005).

M. Sakurai:

“Nanoprocess using highly charged ions”, International Symposium on Application of Quantum Beam Kobe, Japan (2005).

M. Tona and S. Ohtani:

“Tokyo EBIT and its application to nanotechnology”, International Workshop on Atomic Collisions of Slow/Trapped Highly-Charged Ions, RIKEN, Wako, Japan (2004).

N. Nakamura:

“Simultaneous STM/AFM observation of HOPG surfaces irradiated with highly charged ions”, International Workshop on Atomic Collisions of Slow/Trapped Highly-Charged Ions, RIKEN, Wako, Japan (2004).

N. Nakamura, M. Terada, A. Endo, Y. Nakai, Y. Kanai, K. Komaki, and Y. Yamazaki:

“Application of bulk high-T_c superconductors to electron beam ion source: present status and outlook”, The 9th International Symposium on Electron Beam Ion Sources and Traps and Their Applications (EBIS/T2004), Tokyo, Japan (2004).

M. Sakurai, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Nakamura, S. Ohtani, and S. Mashiko:

“Design of EBIS for nanoprocesses using HCI”, The 9th International Symposium on Electron Beam Ion Sources and Traps and Their Applications (EBIS/T2004), Tokyo, Japan (2004).

M. Tona and S. Takahashi:

“Highly charged ion beams from the Tokyo EBIT for applications to nano-science and -technology”, The 9th International Symposium on Electron Beam Ion Sources and Traps and Their Applications (EBIS/T2004), Tokyo, Japan (2004).

S. Ohtani:

“The initiation of EBIS/T-based HCI research in Japan”, The 9th International Symposium on

Electron Beam Ion Sources and Traps and Their Applications (EBIS/T2004), Tokyo, Japan (2004).

T. Tachibana, Y. Yamauchi, H. Nagasaki, Y. Shitomi, T. Miura, M. Sakurai and I. Arakawa: “DIET of cluster ions from water physisorbed on rare gas solids”, 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10), Susono, Japan (2004).

S. Ohtani (Plenary Talk): “Atomic Physics Experiments with an EBIT”, 10th International Conference on Ion Source, Dubna, Russia (2003).

② 口頭発表 (国内会議 40 件, 国際会議 2 件)

M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, T. Terui, S. Mashiko, C Yamada, and S. Ohtani:

“Nano-Fabrication on a Si Surface by Slow Highly Charged Ion Impact” 22nd International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS06), Berlin (2006).

M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, Y. Fujita, T. Abe, S. Jian, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, M. Sakurai, and S. Ohtani:

“Observation of HCl-induced nanostructures with a scanning probe microscope”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

櫻井 誠, 川瀬悠司, 大西弘行, 渡辺裕文, 中村信行, 大谷俊介, 照井通文, 益子信郎, 坂上裕之:

“Kobe EBISを用いた固体表面への多価イオン照射実験”, 日本物理学会第62回年次大会, 北海道大学(2007).

小林朋弘, 孫建, 渡辺裕文, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:

“イオン-磁性体表面衝突における2次電子のスピン偏極度測定”, 日本物理学会第62回年次大会, 北海道大学(2007).

菊池浩行, 中村信行, 坂上裕之, 渡邊鉄哉:

“鉄多価イオン分光用イオン源の製作”, 日本物理学会第62回年次大会, 北海道大学(2007).

中山 亮, 島崎隆宏, 孫 建, 渡辺裕文, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:

“高価数多価イオンビームのガラスキャピラリー通過実験”, 日本物理学会第62回年次大会, 北海道大学(2007).

坂上裕之, 菊池浩行, 中村信行, 大谷俊介, 田沼肇, 山本則正, 加藤太治, 加藤隆子, 原弘久, 渡邊鉄哉:

“電子ビームイオントラップによる鉄多価イオンの EUV 分光”, 日本物理学会第62回年次大会, 北海道大学(2007).

中村信行, 菊池浩行, 大谷俊介, 田沼肇, 坂上裕之, 甲斐健師, 藤岡慎介, 西村博明, 西原功修:

“電子ビームイオントラップによる Sn, Xe 多価イオンの EUV 分光測定”, 日本物理学会第62

回年次大会, 北海道大学(2007).

中村信行, 坂上裕之, 田沼 肇, 加藤太治, 山本則正, 大谷俊介, 加藤隆子, 原 弘久, 渡邊鉄哉:

“太陽コロナプラズマ EUV 分光診断に対する実験室からの貢献”, 日本天文学会 2007 年秋季年会, 岐阜大学(2007)

戸名正英, 渡辺裕文, 孫 建, 中村信行, 吉安信雄, 櫻井 誠, 小谷正博, 山田千樫, 大谷俊介:

“低速多価イオンとの相互作用によって励起された Bis(MSB)薄膜からの発光”, 2007 年秋季第 68 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学(2007).

孫 建, 阿部崇, 藤田祐崇, 高橋学士, 渡辺裕文, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井誠, 山田千樫, 大谷俊介:

“x-ray emission yields dependent on the target materials”, 日本物理学春季大会, 鹿児島大学(2007).

野原宏彰, 仲村慎吾, 李 月明, 大谷俊介, 中村信行:

“水素様イオンの二電子性再結合過程に対する高分解能 X 線分光測定”, 日本物理学春季大会, 鹿児島大学(2007).

藤田祐崇, 阿部崇, 戸名正英, 渡辺裕文, 高橋学士, 孫健, 櫻井 誠, 吉安信雄, 中村信行, 山田千樫, 大谷俊介:

“多価イオン衝突による酸化物表面からの二次粒子放出 I”, 日本物理学会秋季大会, 千葉大学(2006).

阿部崇, 藤田祐崇, 戸名正英, 渡辺裕文, 高橋学士, 孫健, 櫻井 誠, 吉安信雄, 中村信行, 山田千樫, 大谷俊介:

“多価イオン衝突による酸化物表面からの二次粒子放出 II”, 日本物理学会秋季大会, 千葉大学(2006).

孫建, 阿部崇, 藤田祐崇, 高橋学士, 渡辺裕文, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井誠, 山田千樫, 大谷俊介:

“The Z dependence of X-ray emission yield in highly charged ion-surface collisions”, 日本物理学会秋季大会, 千葉大学(2006).

櫻井 誠, 川瀬悠司, 三森恵太, 坂上裕之, 渡辺裕文, 中村信行, 大谷俊介, 照井通文, 益子信郎:

“ナノプロセス用電子ビーム多価イオン源の開発 II”: 日本真空協会連合講演会, 大阪(2006).

戸名正英, 渡辺裕文, 高橋学士, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:

“多価イオンー表面衝突によって生成したナノ構造の観察”, 日本物理学春季大会, 愛媛大学(2006).

渡辺裕文, 高橋学士, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:

“多価イオンー表面衝突における X 線収量”, 日本物理学春季大会, 愛媛大学(2006).

満田康晴, B. O'Rourke, 中村信行, 金井保之, 中井陽一, 大谷俊介, 山崎泰規:
“低速多価イオン照射により HOPG 表面上に形成される照射痕の STM 観察”, 日本物理学
春季大会, 愛媛大学(2006).

飛山廣継, A. P. Kavanagh, 中村信行, 渡辺裕文, 坂上裕之, 加藤太治, F. J. Currell, 山田
千樫, 大谷俊介:
“電子-多価イオン衝突における共鳴過程の観測 II”, 日本物理学春季大会, 愛媛大学
(2006).

中村信行, 飛山廣継, A. P. Kavanagh, 渡辺裕文, 坂上裕之, 加藤太治, F. J. Currell, 山田
千樫, 大谷俊介:
“電子-多価イオン衝突における二電子性再結合と放射性再結合の干渉効果の観測”, 日
本物理学春季大会, 愛媛大学(2006).

永田一夫, 高橋学士, 戸名正英, 中村信行, 吉安信雄, 山田千樫, 櫻井 誠, 大谷俊介:
“多価イオン-水素終端 Si 表面相互作用における表面化学反応”, 日本物理学会秋季大会,
同志社大学(2005).

飛山廣継, 野原宏彰, 中村信行, 渡辺裕文, 加藤太治, F. J. Currell, 大谷俊介:
“電子-多価イオン衝突における共鳴過程の観測”, 日本物理学会秋季大会, 同志社大学
(2005).

戸名正英, 高橋学士, 永田一夫, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:
“多価イオン照射によって水素終端シリコンから放出された2次粒子の観測”, 日本物理学会
秋季大会, 同志社大学(2005).

櫻井 誠, 中畠史晴, 福本卓典, 中村信行, 大谷俊介, 益子信郎, 坂上裕之:
“ナノプロセス用多価イオン源の製作”, 日本物理学春季大会, 東京理科大学, 野田(2005).

佐藤鏡文, F. J. Currell, 中村信行, 大谷俊介, 飛山廣継, 渡辺裕文:
“Tokyo-EBIT を用いた重元素多価イオンの二電子性再結合過程の観測”, 日本物理学春季
大会, 東京理科大学, 野田(2005).

寺田雅史, B. O'Rourke, 中村信行, 金井保之, 中井陽一, 小牧研一郎, 大谷俊介, 山崎泰
規:
“グラファイト表面上に形成される多価イオン照射痕の SPM 観察”, 日本物理学春季大会, 東
京理科大学, 野田(2005).

馬場由香里, 高橋学士, 戸名正英, 永田一夫, 吉安信雄, 櫻井 誠, 中村信行, 山田千樫,
大谷俊介:
“多価イオン照射固体表面のラマン散乱 2”, 日本物理学春季大会, 東京理科大学, 野田
(2005).

高橋学士, 永田一夫, 戸名正英, 中村信行, 吉安信雄, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:
“多価イオンプローブによるシリコン表面の高感度水素分析”, 2005年秋季 第66回応用物理
学会学術講演会, 徳島大学(2005).

戸名正英, 高橋学士, 永田一夫, 中村信行, 吉安信雄, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:
“多価イオンによる水素終端 Si 表面のポテンシャルスパッタリング”, 2005年秋季 第66回応

用物理学学会学術講演会, 徳島大学(2005).

戸名正英, 高橋学士, 永田一夫, 中村信行, 吉安信雄, 山田千樫, 大谷俊介, 櫻井 誠:
“多価イオン照射による水素終端シリコン表面からの2次イオン放出”, 第53回質量分析学会
討論会, さいたま(2005).

永田一夫, 高橋学士, 戸名正英, 中村信行, 吉安信雄, 山田千樫, 大谷俊介:
“多価イオン照射により改質された固体表面の電子エネルギー損失分光法による研究”, 日本
物理学学会秋季大会, 青森大学(2004).

馬場由香里, 高橋学士, 戸名正英, 永田一夫, 吉安信夫, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫,
大谷俊介:
“多価イオン照射固体表面のラマン散乱”, 日本物理学学会秋季大会, 青森大学(2004).

高橋学士, 戸名正英, 永田一夫, 吉安信夫, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:
“多価イオン照射によるシリコン表面の改質 II”, 日本物理学学会秋季大会, 青森大学(2004).

佐藤鏡文, F. J. Currell, A. Kavanagh, 倉本秀治, Yu-Ming LiC, 中村信行, Brian O'Rourke,
大谷俊介, 俵 博之, Xiao-Ming Tong, 渡辺裕文, 山田千樫:
“水素様多価イオンの二電子性再結合過程の測定”, 日本物理学学会秋季大会, 青森大学
(2004).

櫻井 誠, 中嶋史晴, 福本卓典, 中村信行, 大谷俊介, 益子信郎:
“ナノプロセス用電子ビーム多価イオン源の開発”, 日本真空協会第45回連合講演会, 大阪
大学(2004)

櫻井 誠, 中嶋史晴, 福本卓典, 中村信行, 山田千樫, 大谷俊介:
“ナノプロセス用電子ビーム多価イオン源の設計”, 日本物理学学会春季大会, 九州大学
(2004).

寺田雅史, 中村信行, 金井保之, 中井陽一, 小牧研一郎, 大谷俊介, 山崎泰規:
“多価イオンによる表面改質:STM・AFM による照射痕の観察 II”, 日本物理学学会春季大会,
九州大学(2004).

戸名正英, 高橋学士, 照井通文, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井 誠, 山田千樫, 大谷俊介:
“多価イオン照射によるシリコン表面の改質”, 日本物理学学会春季大会, 九州大学(2004).

中村信行, 遠藤厚身, 金井保之, 中井陽一, 小牧研一郎, 山崎泰規:
“高温超伝導体を用いた多価イオン源の開発およびそれを用いた表面衝突実験の計画”, 日
本物理学学会秋季大会, 東北大学(2003).

立花隆行, 山内祐子, 長崎仁志, 三浦崇, 平山孝人, 櫻井 誠, 荒川一郎:
“水を吸着した希ガス固体表面上から電子・光励起脱離する水クラスターイオンの観測”, 日
本物理学学会秋季大会, 東北大学(2003).

森脇太郎, 池本夕佳, 広野等子, 木村洋昭, 西龍彦, 松波雅治, 寺上光司, 福井一俊, 中川
英之, 篠田圭司, 高橋敏晴, 木村真一, 岡村英一, 櫻井 誠, 近藤泰洋, 難波孝夫:
“SPRING-8 赤外物性ビームライン BL43IR の現状”, 日本放射光学会年次大会, 姫路(2003).

③ ポスター発表 (国内会議 0 件, 国際会議 26 件)

J. Sun, S. Takahashi, H. Watanabe, M. Tona, T. Watanabe, N. Nakamura, C. Yamada, S. Ohtani:

“X-ray emission from hollow atoms produced in interaction of slow highly charged ions with different targets materials”, XXV International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC XXV), Freiburg, Germany (2007).

C. Yamada, H. Watanabe, M. Tona, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, and S. Ohtani:

“Surface photo-emission of slow highly charged ions”, 22nd International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS06), Berlin (2006).

C. Yamada, K. Nagata, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Takahashi, T. Tobiyama, M. Tona, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, A. P. Kavanagh, and F. J. Currell:

“Injection of refractory metals into EBIT using a Knudsen cell”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

H. Watanabe, T. Abe, Y. Fujita, J. Sun, S. Takahashi, M. Tona, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“X-ray emission in slow highly charged ion-surface collisions”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

H. Tobiyama, H. Nohara, A. P. Kavanagh, N. Nakamura, H. Watanabe, H. A. Sakaue, Y. Li, D. Kato, F. J. Currell, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Interference between dielectronic and radiative recombination in electron-highly charged Bi collisions”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

Y. Mitsuda, B. E. O'Rourke, N. Nakamura, Y. Kanai, S. Ohtani, and Y. Yamazaki:

“SPM observation of slow highly charged ion induced nano-dots on highly oriented pyrolytic graphite (HOPG)”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

A. P. Kavanagh, J. D. Gillaspay, D. G. Hirst, M. H. Mendenhall, N. Nakamura, S. Ohtani, H. Watanabe, and F. J. Currell:

“Radiation from K-shell filling in highly charged ions: a driver for resonant combination cancer therapy?”, 13th International conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI2006), Belfast (2006).

H. Watanabe, J. Sun, S. Takahashi, M. Tona, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“Experiment using extracted ions from the Tokyo-EBIT”, 20 Years of Spectroscopy with the Electron Beam Ion Trap, Berkeley, California (2006).

M. Sakurai, M. Tona, S. Takahashi, H. Watanabe, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, S. Ohtani, H. A. Sakaue, Y. Kawase, K. Mitsumori, T. Terui, and S. Mashiko:

“Nano-scale Surface Modification of Materials with Slow, Highly Charged Ion Beams”, International Conference on Ion Beam Modification of Materials (IBMM2006), Italy (2006).

T. Terui, A. Otomo, S. Takahashi, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, S. Mashiko, and S. Ohtani:

“Photoluminescence Measurement of Si (100) Surface Irradiated by Highly Charged Ions”, Int. Conf. on Nano-Molecular Electronics, Kobe (2006).

K. Nagata, S. Takahashi, M. Tona, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, C. Yamada, M. Sakurai, and S. Ohtani:

“Surface reactions on hydrogen terminated Si surfaces induced by highly charged ions”, European conference on surface science (ECOSS), Berlin (2005).

N. Nakamura, H. Tobiyama, H. Nohara, H. Watanabe, F. J. Currel, and S. Ohtani:

“1. Resonant interactions of highly charged ions with electrons studied with an electron beam ion trap”, XXIV International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXIV-ICPEAC), Rosario, Argentina (2005).

M. Tona, S. Takahashi, K. Nagata, N. Yoshiyasu, C. Yamada, N. Nakamura and S. Ohtani.:

“In-and ex-situ optical spectroscopy of HCI-bombarded solid surfaces”, 12th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI-2004), Vilnius, Lithuania (2004).

H. Watanabe, A. P. Kavanagh, H. Kuramoto, Y. M. Li, N. Nakamura, S. Ohtani, B. E. O’Rourke, A. Sato, H. Tawara, X. M. Tong, and F. J. Currell:

“Dielectronic recombination of hydrogen-like ions”, 12th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI-2004), Vilnius, Lithuania (2004).

M. Terada, N. Nakamura, Y. Nakai, Y. Kanai, S. Ohtani, K. Komaki, and Y. Yamazaki:

“Observation of an HCI-induced nano-dot on an HOPG surface with STM and AFM”, 12th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI-2004), Vilnius, Lithuania (2004).

M. Sakurai, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Nakamura, S. Ohtani, and S. Mashiko:

“Development of an electron beam ion source for nanoprocess using highly charge ions”, 12th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI-2004), Vilnius, Lithuania (2004).

S. Takahashi, M. Tona, K. Nagata, N. Yoshiyasu, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, and S. Ohtani:

“STM observation of HOPG and Si surfaces irradiated with highly charged ions”, 12th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI-2004), Vilnius, Lithuania (2004).

M. Tona, K. Nagata, S. Takahashi, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, N. Nakamura, and S. Ohtani:

“Secondary ion emission from solid surfaces irradiated with highly charged ions”, 15th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (IISC-15), Mie, Japan (2004).

N. Nakamura, M. Terada, Y. Nakai, S. Ohtani, K. Komaki, and Y. Yamazaki:

“SPM observation of nano-dots induced by slow highly charged ions”, 15th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions (IISC-15), Mie, Japan (2004).

M. Sakurai, S. Takahashi, M. Tona, N. Nakamura, C. Yamada and S. Ohtani:
“DIET in highly charged ion interaction with surfaces”, The 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET-10), Susono, Japan (2004).

M. Sakurai and C. Yamada:
“Dynamics of physisorbed monolayer of methane on Ag(111)”, 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10), Susono, Japan (2004).

C. Yamada, T. Kinugawa, S. Takahashi, S. Ohtani, B. E. O’Rourke, and F. J. Currell:
“Dielectronic Recombination in He- and H-like Ions”, 23rd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXIII-ICPEAC), Stockholm (2003).

E. Sokell, F. J. Currell, T. Kinugawa, S. Ohtani, B. E. O’Rourke, S. Takahashi, and H. Watanabe:
“Electron-Ion Recombination Processes Measured in Highly Charged Xe ions”, 23rd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXIII-ICPEAC), Stockholm (2003).

H. Watanabe, F. J. Currell, H. Kuramoto, Y. M. Li, S. Ohtani, B. E. O’Rourke, and X.M.Tong:
“Electron-Highly Charged Ion Interactions in Astrophysically and Industrially Relevant Systems”, 23rd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXIII-ICPEAC), Stockholm (2003).

G. El Machtoub, D. Kato, S. Ohtani and T. Kinugawa:
“Theoretical Analysis on Dielectronic Satellite Transitions of Highly charged Krypton Ions”, 23rd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXIII-ICPEAC), Stockholm (2003).

M. Sakurai and T. Nanba:
“LEED and HREELS study of methane physisorbed on Ag(111)”, American Vacuum Society 49th International Symposium, Denver, USA (2002).

(4)特許出願

①国内出願 (3 件)

1. 多価イオンビーム照射方法及び装置, 照井通文・益子信郎・櫻井 誠, 情報通信研究機構, 特願 2007-174805.
2. 多価イオン照射装置及びそれを用いた微細構造の製造方法, 戸名正英・大谷俊介・櫻井 誠, 科学技術振興機構, 特願 2005-125806.
3. 多価イオン発生源およびこの発生源を用いた荷電粒子ビーム装置, 櫻井 誠・福本卓典・中畠史晴・中村信行・大谷俊介・益子信郎, 科学技術振興機構, 特願 2004-296890.

②海外出願 (1 件)

1. 多価イオン発生源およびこの発生源を用いた荷電粒子ビーム装置, 櫻井 誠・福本卓典・中畠史晴・中村信行・大谷俊介・益子信郎, 科学技術振興機構, PCT/JP2005/007284.

(5)受賞等

①受賞

大谷俊介：

“多価イオンを用いた相対論的領域における原子物理学の実験的研究”，松尾学術賞 (2006).

7 研究期間中の主な活動(ワークショップ・シンポジウム等)

年月日	名称	場所	参加人数	概要
H18. 3. 11	YEBISU10 周年講演会	電気通信大学	50	高価数多価イオン源 YEBISU (Tokyo-EBIT) を使った研究に関する討論会
H16. 4.15-17.	多価イオン源国際会議	東京都立大学, 東京	40	多価イオン源の技術的発展と工学への応用のための議論. ヨーロッパ, 日本の EBIS/T の開発とそれを使った研究成果が報告された.
2ヶ月に1度 (不定期)	研究計画立案・成果報告会	東京, 調布 または 神戸	5~10	研究の進捗状況を報告し 短期的研究計画を立案

8 研究成果の展開

(1)他の研究事業への展開

Aグループのコアメンバーのうち3名が, 本研究と密接に関係する研究課題として以下の競争的資金を獲得しそれぞれの研究を進展させている.

- ・ 科学研究費補助金 若手(B)
「多価イオン照射により磁性表面から放出される2次電子のスピン分析」
H17,18年度, 代表:中村信行 340万円.
- ・ 日本原子力研究開発機構 黎明研究
「高電離重イオンビームを利用した微小単色X線光源開発のための基礎研究」
H18年度, 代表:中村信行 350万円
- ・ 科学研究費補助金 基盤(C)
「多価イオンによる固体表面発光」
H18,19年度, 代表:山田千櫨 170万円
- ・ 松尾学術振興財団 研究助成金
「水素様多価イオンのレーザー分光のためのイオントラップの開発」
H19年度11月以降, 代表:渡辺裕文 350万円
- ・ 21世紀 COE
「コヒーレント光科学の展開」
H15~H19年度,
拠点リーダー:白田耕蔵, 代表幹事:植田憲一, 大谷俊介, 武田光夫, 三木哲也

B グループにおいては、本研究の過程で情報通信研究機構 未来 ICT 研究センター(ナノ ICT グループ)との共同研究のもとに、下記の競争的資金を獲得した。

- ・ 通信総合研究所 受託研究
「ナノプロセス用多価イオン源を用いたナノプロセス技術の調査研究」
H15 年度, 代表: 櫻井 誠, 500 万円
- ・ 情報通信研究機構 受託研究
「ナノプロセス用多価イオン源の開発と応用に関する研究」
H16 年度, 代表: 櫻井 誠, 500 万円
- ・ 情報通信研究機構 受託研究
「多価イオン生成ナノ構造のデバイス応用に関する研究」
H17 年度, 代表: 櫻井 誠, 450 万円

(2)実用化に向けた展開

本研究期間内に申請済みの特許(多価イオンビーム照射方法及び装置, 照井通文・益子信郎・櫻井 誠, 情報通信研究機構, 特願 2007-174805)をもとに、本研究において新たに開発した多価イオン源と、これを用いた多価イオン照射装置に関する技術移転が情報通信研究機構と(株)イーオーアールの間で進められている。

9 他チーム, 他領域との活動とその効果

(1)領域内の活動とその効果

特になし

(2)領域横断的活動とその効果

当プログラム期間中に 2 度開催された「ナノテクノロジー分野別バーチャルラボ全体発表会」では、ポスター発表を行った。デバイス作製の専門家や表面科学の研究者との活発な議論によって本研究の推進にとって有益な情報を得ることができた。

本報告書に示した6(3)学会発表に加えて、「原子衝突研究協会」主催の研究会に当グループから毎年 3, 4 件の講演, ポスター発表を行った。ここでは原子・分子物理学を専門とする研究者から多価イオンの表面プロセスの微視的, 動的過程の理解に関して有益な議論が行われた。

また, 応用物理学会「励起ナノプロセス研究グループ」の研究会にも毎年出席し, 講演発表を行ってきた。この会では, 励起プローブがイオンの他に, 光や電子などにより誘起されるプロセスに関する発表がなされ, 相互の比較が行われ有益な討論ができた。

平成17年度情報通信研究機構研究発表会においてポスター発表「多価イオンプロセスを使用したナノデバイス作製と評価に関する研究」を行うと共に, 参加者との意見交換を行った。

平成17年度神戸大学教育研究活性化支援経費「神戸大学量子ビーム理工学研究の新展開」(International Symposium on Application of Quantum Beam 2005)において招待講演 “Nanoprocess using highly charged ions” を行い, 発表内容についての討論を行った。これがきっかけとなって神戸大学内の量子ビーム, ナノテクノロジー関連の研究者との意見・情報交換が活発化し, 本研究の推進に役立った。

電気学会の「量子ビームによるナノバイオ科学と基盤技術調査専門委員会(平成 18 年度発足)」および「光・量子デバイス研究会」に参加し, 当該分野の研究動向を収集することにより, 本研究における多価イオンプロセスの応用に関する課題探索等に有益な情報を得た。

10 研究成果の今後の貢献について

(1) 科学技術の進歩が期待される成果

本研究で得られた研究成果の今後の展開に関しては、本報告書内3.1(2)項と3.2(2)項に詳述した。Aグループでは、価数の極めて高い重元素多価イオンを低エネルギーで引き出し操作しうる、現在世界で唯一の装置である Tokyo-EBIT を用いて、種々の固体表面上で起こるナノプロセスを系統的に調べてきた。この研究は、Aグループによる世界での独壇上の仕事で他の追随を許さない。加えて、この多価イオンナノプロセスがデバイス創製にとってこれまでにない有用な表面効果となることを示すことができた。そして、このナノプロセスの物理機構の研究を通して、表面で起こる諸現象には豊富な物理内容を包含していることがわかり、本研究の実施により新しい表面科学の一分野が開かれた。今後は、これらの基礎と応用に関する研究が幅広く展開されていくことと期待される。

Bグループにおいて新たに開発した多価イオン源(Kobe EBIS)と照射装置は、多価イオンを用いたプロセス技術を現実のものとするうえで必須である、多価イオン源の高強度化、低エネルギー化、ナノビーム化という基本性能の高度化と、量産化に際して重要な小型化、製造コスト・運転コストの低減、および操作性・保守性の改善を達成している。多価イオンを用いたプロセスは、トップダウンアプローチ(高効率)とボトムアップアプローチ(1 nm オーダーの分解能)の利点を併せ持つ、他の手法では達成不可能なナノプロセスを可能にすることから、デバイス製造技術において更なる高集積化のブレークスルーになると考えられる。

また、本研究の過程で明らかになった、多価イオンによる高感度2次イオン質量分析法(HCI-SIMS)の有用性を、具体的な実用的汎用分析機器の開発に展開することが、科学技術・産業技術の発展に重要な寄与をすることは間違いないが、上述の基本性能の高度化と量産化への適合性という、Kobe EBIS のもつ多価イオン源としての特徴・優位性は HCI-SIMS 実用化への決定的なファクターになると考えられる。

11 結び

天体や核融合研究の中から生まれた多価イオン科学は、一方でその原子構造や動的過程に強い相対論・量子電磁力学効果が現れることから新しい量子物理学の一分野として発展した。

我々はその渦中に身を置き、約 10 年前に新しい着想に基づく多価イオン生成・実験装置を開発し、それを用いた原子(核)物理学の研究を展開した。その過程で、多価イオンのもつ大きな反応性に注目し、電子や原子・分子などの物質との相互作用の研究に着手、新しい原子衝突物理学の領域に興味を広げた。そして、その中で工学応用として、反応性の豊かさが際立つ低エネルギー多価イオンと固体表面との相互作用を用い、新しいナノデバイス創製への可能性を探索する研究を着想した。

多価イオンと固体表面との相互作用の研究は、未踏の分野として、1990 年代後半からヨーロッパ連合の組織的な重点研究として展開され、理解が深まった。しかし、この大きな共同研究では用いた多価イオン源の性能の制約から表面に照射するイオンはアルゴンなどの軽元素の 10 価程度までに限られていた。そして、相互作用の大きさが、入射イオンの価数とともに指数関数的に増大する予兆が様々な表面現象に現れたが、それを確かめることができずに具体的な観察はのちの研究に委ねられた。この背景の中で、我々は、高価数域の多価イオンの表面ナノプロセスによる諸現象を系統的に観察し、その物理機構を理解しつつ、そのプロセスを用いたデバイス創製に向けた基礎研究を行う計画を立案した。

これまで固体表面を扱った研究経験がほとんどない A グループのメンバーは、本研究開始後 2 年間をかけ、B グループの協力のもとに、各種試料の清浄表面の作製法を学び、イオン源から引き出した多価イオンのエネルギーと質量/電荷比を選別、操作しながら表面に照射、そして、そこで起きるさまざまな現象を調べる研究を行うための全ての道具立てを整備した。加えて世界ではじめての試みとして、超高真空を保持したままに、多価イオン照射により表面がどのように改質されたかを見る顕微観察システムを(STM/AFM)を作った。

この研究では、得られる実験結果が全て世界初演のデータであり、これまでにない新しい知見を提供するものとして高く評価され、国際的な注目を集めた。そして、参加した若手研究者たちは、皆

毎年、関係する国際会議に招かれ講演を行うようになった。必然的に彼等は勉学に励み、活気に溢れて仕事をし、たちまちにしてこの新しい分野における有力研究者と目されるようになった。

ただし、この報告書内の2(1)研究構想にも述べた通り、高価数低エネルギー多価イオンが誘起するナノプロセスの物理的内容が新しくかつ豊かであったため、その物理機構の解明に研究の比重が偏り、デバイス創製への取り組みが相対的に劣勢になってしまった。この傾向をもたらしたのは、ひとつには研究代表者の個性と嗜好によるところが多いと反省している。

しかしながら、このことを予見してこのプロジェクトでは、ナノデバイス創製を目的とする専用小型多価イオン源を開発し、それを用いた照射技術の開発も行った。今後はこれを活用し、多価イオンナノプロセスによるこれまでにないナノデバイス創製に向けた技術研究が広く展開しうる下地が整った。

付録:写真集



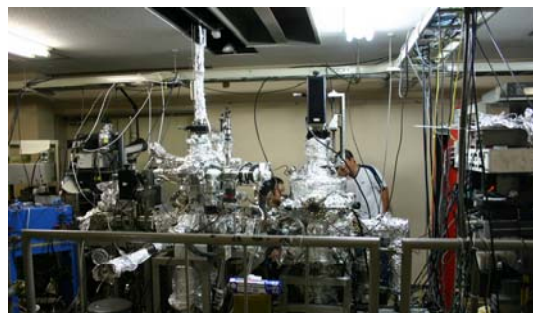
P1:Aグループ集合写真.



P2：国際交流.



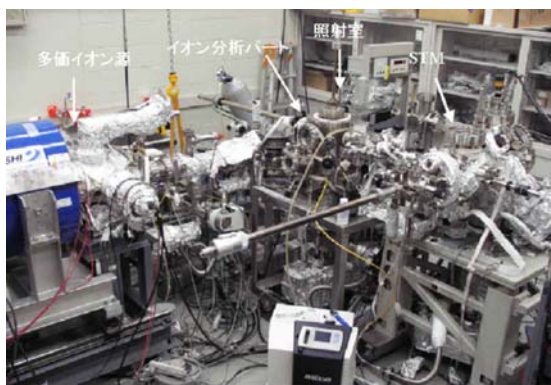
P3：作業風景.



P4：(左)Tokyo-EBIT. (右)多価イオンビームラインとその制御パネル.



P5:KobeEBIS, 「脱着可能」超伝導磁石.



P6：(左)KobeEBIS とビームライン. (右)照射室内の様子.