

氏 名	もく の よし あき 奎 野 由 明
授 与 学 位	博 士 (工 学)
学 位 授 与 年 月 日	平 成 8 年 9 月 11 日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項
最 終 学 歴	平 成 2 年 3 月 東北大学大学院工学研究科電子工学専攻前期課程修了
学 位 論 文 題 目	重イオンマイクロビームを用いた局所材料改質と多次元元素分析に 関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 山口 貞衛 東北大学教授 中村 尚司 東北大学教授 山田 幸男 東北大学教授 石井 慶造

論 文 内 容 要 旨

1. 序 論

MeV程度のエネルギーを持つ重イオンビームをミクロンメートルサイズへ集束する技術とその応用技術からなる重イオンマイクロビーム技術は、イオンビーム改質とイオンビーム分析の両分野からその開発が期待されている。しかし、protenやHeを用いる高エネルギーイオンマイクロビームを用いた分析技術の開発が進む一方で、重イオンマイクロビームの応用に関する研究はこれまでほとんど行われてこなかった。本研究では、1989年に大阪工業技術研究所にエネルギーMeV程度の重イオンの利用を目的とした重イオンマイクロビームラインが設置されたのを受け、新しいイオンビーム技術としての重イオンマイクロビーム技術を確立することを目的として、マスクレスMeVイオン注入技術と、これを用いた局所材料改質技術の開発を行うと同時に、ラザフォード後方散乱(RBS)法による三次元元素分布分析や、粒子励起X線(PIXE)法による元素分布分析に代表される、高エネルギーイオンマイクロビームを用いた多次元元素分析法の重イオンの利用による高感度・高精度化について検討を行った。

2. 重イオンマイクロビームシステムの構築

図1に使用したビームラインの構成を示す。タンデム加速器により加速されたイオンビームは分析電磁石によって曲げられ、偏向角 30° のマイクロビームラインに導かれる。マイクロビームラインは、3組の水平及び垂直方向のスリットの二連磁気四極子レンズから構成されており、ビームラインに入射したイオンビームは精密対物スリットによりそのビーム径を水平、垂直方向で独立に十から数百 μm 角程度に制限される。対物スリットを通過したビームは発散制限スリットによりその発散角を制限された後、二連磁気四極子レンズによって一定の縮小比で試料上に集束される。

本研究では、この重イオンマイクロビームラインにおいて、マスクレスMeVイオン注入による局所材料改質やRBS・PIXE法による多次元元素分析を行うため、大容量データ収集システムを含む重イオンマイクロビームシステムを構築した。これにより、マスクレスイオン注入に必要なビームの走査位置の制御や、分析に必要な数MB程度のデータセットをリアルタイムで取り込むことが可能になった。

次に、最小ビーム径を実現するため、ビームラインの調整に適した集束ビーム径の計測方法の検討を行った。その結果、イオン誘起蛍光発光を用いたビーム形状の計測システムとして、CsI(T1)シンチレータと長作動距離の顕微鏡を用いたシステムを構築し、集束ビーム径 $10\mu\text{m}$ 程度までの重イオンマイクロビームのビーム形状をリアルタイムで計測

できることを確認した。また、 $10\ \mu\text{m}$ 以下の集束ビーム径に対しては、イオン誘起二次電子を利用して、金属薄膜パター

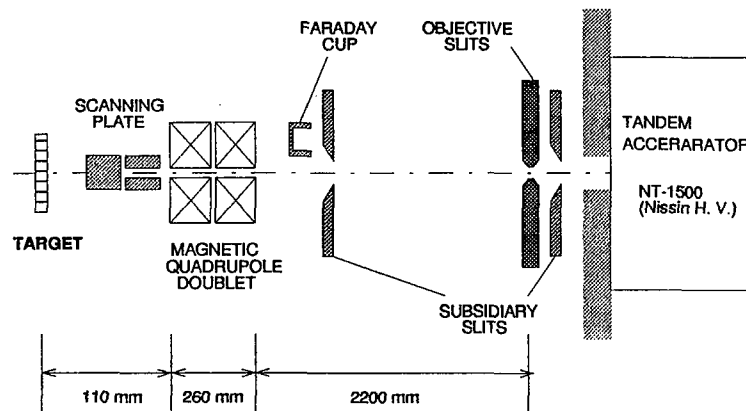


図1 大阪工業技術研究所の重イオンマイクロビームライン

ンを用いたナイフエッジ法により集束ビーム径を計測した。3 MeV Si^{2+} マイクロビームの集束特性を計測した結果、最小ビーム径 $2.7 \times 1.3\ \mu\text{m}^2$ を得た。さらに、種々のイオンビームの集束ビーム径の計測を行った結果、proton (2 MeV) およびC, O, Si, Cu, Niイオン (2価, 3 MeV), Auイオン (2価, 1.8 MeV) 等のイオンビームで $4\ \mu\text{m}$ 以下の集束ビーム径が得られることがわかった。続いて、計測されたビーム集束特性の評価を行うため、伝達行列法によるイオンの軌道の計測と集束ビーム形状のモンテカルロシミュレーションを行った。その結果、水平方向の最小ビーム径が大きい主な原因として、2個の四極子レンズの回転合わせ誤差が考えられることがわかった。

3. 重イオンマイクロビームを用いた局所材料改質

重イオンマイクロビームによるマスクレスMeVイオン注入は、材料表面の損傷を低減しながら深い改質層が得られるMeVイオン注入の特徴を利用して、材料深部の微小領域へ任意の元素を大量に導入することができる。さらに、ビームエネルギーを変えて注入深さを制御することにより、容易に三次元的な埋め込み注入層を形成することが可能である。その際、材料特性を局部的に改質できれば、三次元的な局所改質層をもつ新しい素子等を実現できる可能性がある。一方、重イオンマイクロビームは、イオンマイクロビームを用いたRBS/PIXE法による多次元元素分析技術を適用して、三次元的な埋め込み注入層の評価にも用いることができる。中でもRBS法による分析は、非破壊で三次元的な元素分布が得られるため、重イオンマイクロビームによって形成できる局所適な改質層の評価に適していると考えられる。

本研究では、重イオンマイクロビームを用いたマスクレスMeVイオン注入技術を実証するため、マイクロレイMeVイオン注入による三次元的な埋め込み注入層の試作と、重イオンRBS法による三次元元素分布分析を続けて行った。図2に示すように、1.8 MeV Au^{2+} マイクロビームと0.6 MeV Au^+ マイクロビームを形成し、これを線状に走査してSi基板中へマスクレスMeVイオン注入を行った。注入後、3 MeV C^{2+} マイクロビームを用いてRBS法による三次元元素分布分析を行い、試作した埋め込み注入層の評価を行った。得られたデータを基に、注入された金原子の分布を三次元像や特定断面の断層観察像 (RBS-tomography), 特定深さでの二次元分布像 (RBS-mapping) で表示し、マスクレスMeVイオン注入によって、Si基板中に深さの異なるAu注入層からなる三次元的な埋め込み注入層が形成できたことを確認した。

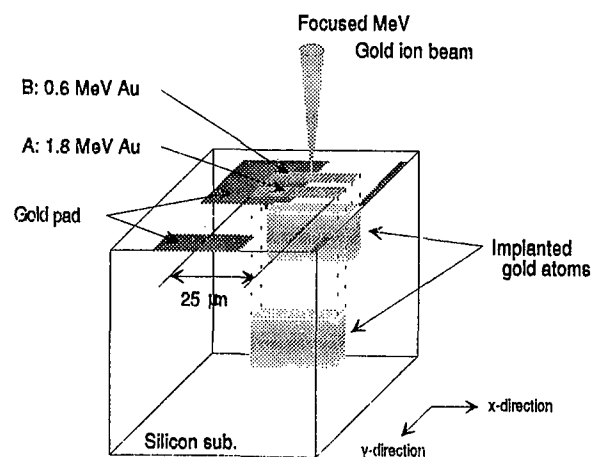


図2 AuイオンマイクロビームによるマスクレスMeVイオン注入の模式図

次に、マスクレスMeVイオン注入技術を用いた局所材料改質の可能性を検討した。図3に示すパッシベーションと絶縁膜として窒化珪素膜を使用したAl多層配線に1.4MeVと2.0MeVのNiイオンマイクロビームを用いてマスクレスMeVイオン注入を行い、配線間の窒化珪素膜絶縁膜の局所改質を試みた。図の多層配線の交差部分へ注入を行った後、多層配線間の印加電圧リーク電流特性を測定した結果、注入エネルギーや照射量によってリーク電流量が変化し、印加電圧を増大させると絶縁破壊が起こる場合があることを見出した。絶縁破壊後に配線間は導通状態となり、電極間抵抗は数 Ω 程度まで低下して、パッシベーション膜を破壊せずに層間絶縁膜中に埋め込みコンタクトパイア（編め込み導電層）が形成された。これにより、マスクレスMeVイオン注入による局所材料改質の可能性を世界で初めて実権的に示すことに成功した。

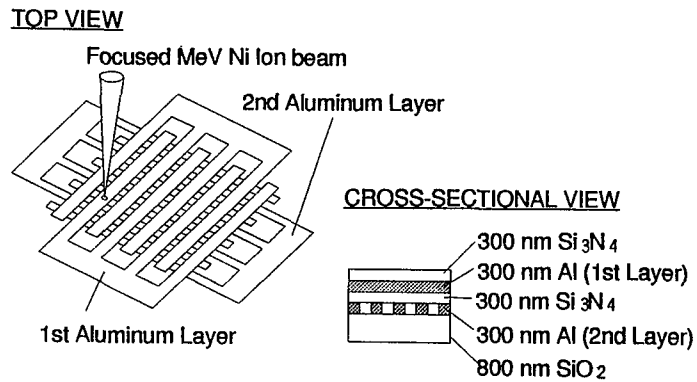


図3 Niイオンマイクロビームによる多層配線の配線間絶縁膜の局所改質の模式図

4. 重イオンマイクロビームを用いたPIXE分析

PIXE法は高速のイオンビームを試料に照射した際に発生する特性X線を分析する分析法で、材料表面の複数元素を同時に分析することができる。電子線に比べ、制動放射線によるバックグラウンドが低いため、幅広い材料の高感度元素分析に用いられている。イオンマイクロビームを用いたPIXE分析は、電子線マイクロアナライザ（EPMA）のような元素分布分析が可能になるため、イオンマイクロビームの開発当初から有力な分析法の一つとして用いられてきた。

PIXE分析には通常エネルギーが数MeVのprotonビームが用いられているが、エネルギーがMeV程度の重イオンを用いた場合、いくつかの特徴がある。まず、衝撃時に入射イオンと試料原子と二原子分子を形成し、その際、双方の内殻電子のエネルギー準位が一致または近接している場合に内殻電子がより高いエネルギー準位に昇位する分子軌道効果により、内殻電離が促進される場合がある。この効果を積極的に利用すれば、試料中の特定元素を選択励起して高感度に元素分析できる可能性がある。また、重イオンは同程度のエネルギーのproton等の軽イオンに比べ、固体中での飛程が極めて短いため、特性X線の発生深さが浅くなり、分析の表面感性が向上する。本研究では、これらの重イオンビームを用いたPIXE分析の特徴に着目し、以下の分析例を通して重イオンマイクロビームを用いたPIXE法による元素分布分析の特徴とその有用性を実験的に明らかにした。

まず、5.2MeVのNi、Geイオンビームを用いてSi表面のFe、Cu等の中重元素のPIXE分析を行った。その結果、Feの分析に内殻電子のエネルギー準位に近いNiイオンを用いた場合、分子軌道効果により内殻電離断面積が増大する結果、Fe-K X線収量が増大するとともに、高エネルギー側のバックグラウンドが低くなるため、2 MeV protonビームより高感度分析が可能になることを示した。

次に、重イオンマイクロビームを用いたPIXE法による元素分布分析において、入射イオンからのX線のマッピングの利用を提案した。NiおよびSiイオンマイクロビームによるCu-TiスパッタターゲットのPIXE分析を行い、入射イオンからのX線の内殻電離断面積が、試料元素の種類に依存して変化することを利用して、構成元素の分布を間接的に明らかにすることができる場合があることを示した。

重イオンマイクロビームの表面感性について検討するため、深さ1 μm 程度の構造をもつAl多層配線のPIXE分析を行った。イオンの飛程が多層配線構造の厚さと同程度のPイオンマイクロビームを用いた場合、X線が表面近傍から発生するため表面感度が増大し、表面保護膜の剥離のような多層配線構造の欠陥を容易に見出すことができることがわかった。

最後に生体試料への応用として、Alを投与したラットの厚い肝臓切片のPIXE分析を行った。Pイオンマイクロビームを用いることにより、分子軌道効果による選択励起と高い表面感性により、試料表面のAl分布を高感度に分析することがわかった。また、Siイオンマイクロビームを用いて薄片試料のPIXE分析を行い、Alを投与したラットの肝臓

では細胞核にAlが蓄積することを強く示唆する結果を得た。

5. 結 論

重イオンマイクロビームを用いたマスクレスMeVイオン注入技術を開発し、これを用いた局所材料改質技術の可能性を示すとともに、重イオンマイクロビームを用いたRBS・PIXE分析の特徴と有用性を明らかにした。本研究で開発した重イオンマイクロビームによる局所改質技術は、光材料の改質による新しい光デバイスの開発等への応用が考えられ、加速器やイオン源の開発・改良によるサブミクロンのビーム径が実現すれば、半導体集積回路等の微細な構造をもつ材料の改質・加工への応用も期待できる。重イオンマイクロビームを用いたPIXE分析は、結晶分光器等の高分解能のX線検出器を利用することで、局所乞丐分解能PIXE分析が可能になり、軽元素のK-X線や重元素のL-X線を用いた元素分布分析や局所的な化学結合状態分析等への応用が期待できる。

審査結果の要旨

MeV程度のエネルギーを持つ重イオンビームをマイクロメートルサイズに集束すると技術とその応用からなる重イオンマイクロビーム技術は、イオンビーム改質とイオンビーム分析の両分野からその開発が期待されている。本論文は、新しいイオンビーム技術として重イオンマイクロビーム技術を確立することを目的として、マスクレスイオン注入による局所材料改質技術とラザフォード後方散乱分光 (RBS) ・粒子励起X線放出 (PIXE) 法による多次元元素分析技術の開発を行ったもので、全編5章からなる。

第1章は緒論であり、本研究の背景および目的について述べている。

第2章では、本研究で用いる重イオンマイクロビームラインの概要と多次元分析のために開発したデータ収集システムについて述べている。また、集束ビーム径を計測し、その結果を伝達行列式によるイオン軌道の計算や集束ビーム形状のモンテカルロシミュレーションと比較して、ビームの集束特性の評価している。

第3章では、高エネルギー重イオンマイクロビームを用いて、マスクレスイオン注入による寸法を制御した三次元的な埋め込み注入層の創製とRBS法による注入層の評価を行い、重イオンマイクロビームを用いたマスクレスイオン注入による局所改質層の形成を実証している。さらに、マイクロビームイオン注入による多層配線の層間絶縁膜の導電化を行い、マスクレスイオン注入技術の微細加工プロセスへの応用が可能であることを示している。

第4章では、重イオンPIXE法による元素分析の原理と特徴を述べ、種々の材料の分析例を通して、重イオンマイクロビームによる選択励起と高い表面感性により、高感度の局所分析が可能であることを実証している。

第5章は結論である。

以上要するに本論文は、重イオンマイクロビームシステムを構築し、これを用いた局所材料改質技術とRBS・PIXE法による多次元元素分析法の開発を行い、重イオンマイクロビームが半導体集積回路のように微細な構造を持つ材料の改質や加工に極めて有用であることを示したもので、量子ビーム工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として合格と認める。