集束ビーム用ガスイオン源

寺岡 努・中根 英章・安達 洋

(受付1992年7月3日, 掲載決定1992年8月1日)

Gaseous Field Ion Source for Fine Focused Beam

Tsutomu TERAOKA, Hideaki NAKANE and Hiroshi ADACHI

(Department of Electrical and Electronic Engineering, Muroran Institute of Technology, Mizumoto-cho, Muroran)*

(Received July 3, 1992, Accepted August 1, 1992)

1. ま え が き

半導体集積回路の高集積化では, 極微細加工技術がキーテクノロジーとして注目されている. 現在開発が進められている16~64 M ビットの DRAM (Dynamic Random Access Memory) では必要加工線幅は0.3~0.5 μm 程度であり, そのためのプロセス技術の研究開発が進められている¹⁾. しかし, それ以下の線幅に対応できるプロセスについては模索されている最中であり, まだ明確な方向は示されていない. プロセスに使われている粒子線源には, 光, 電子, イオン, 及び X 線等があり, それぞれ特徴がある. イオンビームは原子, 分子が, 電荷を帯びたもので広い応用範囲を持ち, プロセスのほとんどの部分への応用が可能である. サブミクロン加工技術に直接結び付くと期待されているイオン源に電界電離イオン源 (GFIS: Gaseous Field Ion Source) がある. このイオン源は集束イオンビーム (FIB: Focused Ion Beam) のためのもので, ビーム径0.1 μm 以下の細く絞ったイオンビームが実現可能であり, 基板や薄膜表面の微細加工, あるいは分析が行える. マスクレスで多種類のデバイスプロセスや分析評価を可能にするものと期待されている. イオンビームは粒子の質量が大きいため, 電子ビームで問題となる近接効果が, 図1, 図2に示すように軽減され, 原理的にイオンビームの方が細い線幅の加工が可能と考えられ開発が進められて来た. しかし, 現在においてこのイオン源は再現性が充分ではなく, 実用を

図1 20 keV 電子ビームレジスト (300 Å PMMA) および基板 (1000 Å Si) からの散乱電子のモンテカルロ計算²⁾
(a) 入射電子ビームの散乱.
(b) 2 次電子の PMMA 中での散乱.

* 室蘭工業大学電気電子工学科 (〒050 室蘭市水元町27-1)

図2 60 keV プロトンビームのPMMA 中での散乱過程のモンテカルロ計算³⁾.
(a) PMMA/Au (b) PMMA/Si (c) PMMA. イオン背面散乱の効果は小さく、分解能は入射イオンの前方散乱効果で決まる。

妨げている。ここでは実用化に向けて行われている様々な工夫と改良について現状を紹介する。

2. 電界電離ガスイオン源³⁾

2.1 電界電離現象

FIBの開発は、少なくとも新しいものではなく、その技術が注目されるようになったのは、1979年に Hughes 研究所の R. L. Seliger らによる液体金属イオン源 (LMIS: Liquid Metal Ion Source) を用いた FIB が開発されたからである。このイオン源は、従来から利用されてきたプラズマ型イオン源に比較して100倍以上の輝度を持ち、 $0.1 \mu\text{m}$ 以下のビームの形成を実現した⁴⁾。この研究により半導体プロセスに応用する要求が始った^{5), 6), 7)}。

イオン源が高い輝度を持つためにはイオンの発生領域が小さいこと、イオンとなる物質を十分に供給できることの両方を同時に満たすことが必要である。その条件を満たしたものが LMIS や GFIS であり、両方とも電界電離現象を利用している。

GFIS は鋭い針状電極の先端に集中する強電界を利用して気体電離 (イオン化) を行っている。針先の電界強度 F は形状の因子が複雑に影響し、単純ではないが近似的に

$$F \approx V/5r$$

としても充分である⁸⁾。従って先端の実効的な半径 r が $0.1 \sim 0.01 \mu\text{m}$ の針状電極 (Tip) に $2 \sim 30 \text{ kV}$ の正電位 V を与え、対向電極を接地すると、Tip 先端には $10^8 \sim 10^9 \text{ V/cm}$ もの強い電界 F がつくられる。周囲が 10^{-1} Pa 程度の H_2 , He , Ar などのガス雰囲気であるときガス

図3 電界電離のポテンシャル。
 $x < x_c$ ではイオン化されない。
電子のエネルギー準位がフェルミレベルより下の時、パウリ原理よりトンネル電子は収容できない。
 $x > x_c$
 x があまりに大きいと、トンネル確率が小さくなる。

分子は Tip 先端の高電界領域で電界電離しイオンとなる。この現象の利用は1951年に Müller によって発表された電界電離顕微鏡 (FIM: Field Ion Microscopy) に始った^{8), 9)}。高電界が作用する金属表面に近づいた原子の電子に対するポテンシャルを図3に示す。金属表面に電界 F を加えると、ガス分子の電子のエネルギー準位は、金属表面から距離 x に比例して図3のように eFx だけ上側に移る。そして金属側のポテンシャルカーブはクーロンポテンシャルによって大きく引き下げられる。金属

図4 典型的な電界電離イオン源の $\log V$ - $\log I$ 特性¹⁰⁾。
先端半径 $r=100$ nm で規格化されている。

表面に近づくほど金属と気体分子間のポテンシャル障壁の厚さは薄くなり、また、金属表面とガス分子の相互作用による障壁の低下も加わって、電子が原子から金属へトンネル効果により透過して移動し、気体分子はイオン化する。しかし、このイオン化の発生する距離には量子力学的な要求から最適値 x_c があり、これより近づいても離れても電離効率は急激に低下する。原子のイオン化ポテンシャルを V_i 、金属の仕事関数を ϕ とすると

$$x_c = (V_i - \phi) / F$$

で与えられる⁶⁾。従ってイオン化領域は x_c ($=0.4 \sim 0.8$ nm) 近傍の狭い領域に限られる。そのため発生したイオンのエネルギー分布の半値幅 ΔE は非常に狭くなる。

GFIS の典型的な電圧-電流特性を図4 (ただし先端半径 $r=100$ nm で規格化されている) に示す。イオン電流は Tip 先端のイオン化領域に入射する単位時間当りのガス分子数とイオン化効率との積に比例する。低電界領域ではイオン化効率の急激な増加により勾配が急である。曲線の傾きが大きく変化する電界はガスの電離電圧と金属の仕事関数により決定される。例えば、金属がタングステンの場合は、He: 440 MV/cm, Ar: ~ 220 MV/cm, H₂: ~ 220 MV/cm になる⁸⁾。

勾配の緩やかな高電界領域では、Tip 先端の電界電離領域に入ったガスが全てイオン化 (イオン化効率=1) すると仮定でき、イオン電流 I は

$$I = 2\pi r^2 \frac{e p}{\sqrt{2\pi m k T}} \left(\frac{2\alpha F^2}{\pi k T} \right)^{1/2}$$

で与えられる。ここで、 r は Tip の先端半径、 e は電気素量、 p はガス圧、 m は分子の質量、 k はボルツマン定数、 T はガスの絶対温度、 α はガスの分極率である¹⁰⁾。

電界をさらに加えると Tip 自身の電界蒸発が発生するため、Tip の材料には蒸発電界が大ききものでなければならない。

ガスの温度が高いとガス分子は Tip 先端で跳躍運動をしながら周囲に逃げるが多くなるため、Tip はもちろん、その雰囲気も冷却して気体分子の運動を低減させる必要がある。このことは、図4でも示されている。

また、イオン化空間のガス分子数を増やすとイオン電流が大きくなるが、大きくし過ぎるとグロー放電が生じ、上限がある。

2.2 電界電離ガスイオン源の高輝度化

GFIS のマイクロプローブへの応用研究が J. H. Orloff と L. W. Swanson によって1975年に発表された。この研究により、GFIS は $0.1 \mu\text{m}$ の分解能と 10^{-10} A 以上の電流を得ることができることが報告されている^{12), 13)}。

その後 Hansen らは図5に示す実験装置を用いて高輝度ガスイオンの発生を示した¹⁴⁾。Tip 及び引出し電極 (Cathode) は冷凍器によって冷やされている。Cathode には、1 mm ϕ のピンホールが開いており、Tip の先端は 1~2 mm 後方に位置している。導入ガスは予備冷却してから Tip 先端に供給される。イオンの放射パターンは CEMA (Channel Electron Multiplier Array) により観察され、また移動可能なファラディカップを用いて任意の位置の電流を測定している。

Tip および Cathode の温度を従来の液体窒素温度 ($T \approx 78$ K) から液体ヘリウム温度 ($T \approx 4$ K) まで下げている。水素の 1 気圧におけるガスの融点及び沸点はそれぞれ 13.7 K 及び 20.2 K であるから、その結果 H₂ 分子が Tip の幹の部分にも凝縮し、これがイオン化領域まで移動するので気体分子の供給量は増加し、イオン電流の増加に寄与している。また Tip 先端に、さらに非常に狭い領域の突起部を作り、イオンの放出領域を 1~10 原子に局在化することを可能にしている。イオン化領域にはその周辺部からイオンとなる H₂ 分子が進入してくるので、イオン化領域が制限された分だけ供給量は増加する。この Tip 先端に作られた突起部により電界強度が増し、従来のタイプより低い引出し電圧でもイオン化が可能になった。低い電圧で動作させた時、放出イオン種を H₂⁺ のみとなり $\Delta E \approx 1$ eV を得ることができた。以前の実験では一般に H⁺, H₂⁺ が混合しており $\Delta E \approx 4$ eV となっていた¹²⁾。

この実験により GFIS の高輝度化は、イオン源となる

図5 高輝度点イオン源として作製された電界電離イオン源¹⁴⁾。

試料ガスを沸点以下に冷却し、Tip 表面に凝縮層を形成しその拡散によりガスを電離可能領域まで供給することで可能である。また、高輝度スポットを作るには、数百 Å の原子レベルで滑らかな面と、数十原子ほどでできた突起を作製することが必要である。この突起は Tip の構成物質と残留ガスとの反応物と考えられているが、その作製した Tip によるイオンの放出方向や安定性に再現性がない。しかし、特性は非常に優れており実用化への期待を示した。

3. 実用化への開発状況

開発のポイントは、ガスを微小な電離可能領域に充分に供給することであり、その方法としては2つが考えられている。一つは Hansen らの実験のように、イオンとなる物質の供給増加を冷却によるガスの凝縮により行い、Tip 表面の拡散を利用する方法である。この場合 Tip の形成が重要なポイントとなる^{15),16),17)}。もう一つは、まったく新しいイオンの供給方法の開発である。現在において供給方法の改良を試みたものではなく、前述の Hansen らの実験が基本となっている。

3.1 H₂ ガスイオン源

ガス種に H₂ ガスを用い、Tip の成形に重点をおいた GFIS の開発を紹介する。

J. A. Kubby と B. M. Siegel は、電解研磨した Tip を透過型電子顕微鏡 (TEM: Transmission Electron Microscopy) の中で Tip の軸方向に沿って、Tip 自身を回転させながらイオンミリングを施した後、電場中で加

熱した。そうすることで表面を滑らかにし、かつ汚れを除去した¹⁸⁾。この Tip から図4に示すような GFIS の典型的な電圧-電流特性が得られ、電流の安定性は、トータル電流 6 nA (角度電流密度: 9.7 μA/sr) で ±5% であることを確認した。

P. R. Schwoebel と G. R. Hanson は電解放射顕微鏡 (FEM: Field electron Microscopy) で観察しながら、Tip 先端表面に microboss と呼ばれる微小な突起を成長させた¹⁹⁾。Tip の成長は、加熱清浄化した後、Tip 温度を 5 K にし、10⁻³ Pa 程度の H₂ ガス雰囲気中で負電界を加えることにより行った。そして成長した Microboss を 1100 K でアニールする。この Microboss からのイオン電流は図6に示すように約1時間にわたって極めて安定であったと報告されている。

3.2 He ガスイオン源

軽元素の不活性ガスとして He をガス種に用いた GFIS の最近の開発状況は、基本的には Hanson らの実験装置と変わらない^{20),21),22)}。K. Horiuchi らの実験では、イオンとなる物質の純度によるイオン電流の安定性が報告されている (図7)。試料ガス導入系のガス出しを行うことで、ガス中の不純物を取り除きふたつきのない、(c)に示すような60分間で ±10% の安定な電流が得られた。イオン電流の安定化のためには、Tip の成形のみならずガスの純度にも気をつけなければならないことを示している。また、100 keV FIB 装置²³⁾の試作も行われている。

GFIS は、放射電流が少なく安定な動作を得ることが

図6 水素イオン電流の時間依存性¹⁹⁾。

難しい現状にあるため、レジストに描画した実験報告は少ない。しかし、最近注目すべき実験結果が報告された²⁴⁾。Tipは、 $\langle 111 \rangle$ 方位の単結晶Wを電解研磨により先端半径300 nm程度とした。Tipからのイオン放射パターンを蛍光スクリーンで観察し、軸方向に強いビームが放出されるようにした。さらに引出し電圧を変化させビームが比較的安定に動作する電圧でレジストへの描画を行った。

図8は、14.4 kVのHeイオンビームによりレジスト(PMIPK)に描画した線パターンのSEM写真である。線幅約0.2 μm 、プローブ電流0.7 pA、角度電流密度0.02 $\mu\text{A}/\text{sr}$ である。注意してみると、線パターンは揺らいで見える。これは、イオン源が振動しているためであり、FIBには十分な振動対策が必要であることを示している。

3.3 Arガスイオン源

従来Tip成形には、電界蒸発、リモルディングなどの処理が施されてきたが、Tip自身の加工変形ではなく、Tip先端の特定面への吸着ガス層からの表面拡散を利用したものが報告されている^{25), 26)}。イオン放射時のTipの形状維持が大変であるから、この方法による高輝度化は、非常に興味深いものがある。実験装置は原理的には従来のものと変わらない。Tipには電界研磨したタングステンTipを使用し、図9のような方向を向いている。導入ガスのArガス圧を 10^{-1} Pa程度の状態にしたときのGFISは、電界誘起表面拡散より熱的表面拡散の影響

図7 Heイオン電流の時間依存性²¹⁾。

(a), (b) He導入系のガス出し前。

印加電圧5.3 kV, Heガス圧0.96 Pa, 温度25 K。

(c) He導入系のガス出し後。

印加電圧5.8 kV, Heガス圧0.23 Pa, 温度27 K。

図8 14.4 kV Heイオンによる0.2 μm 幅の線パターン²⁴⁾。

を受け電界の低い $\{110\}$ 面に表面拡散してくる。よってTipの先端を $\{110\}$ 面で使用すれば、発生源が小さく物質の供給が行われるため非常に好都合である。この現象はArが不活性ガスであるためTip表面に化学吸着しないため、表面原子の再構成が起こらず、構造に沿って表面上をガス分子が拡散したためだと原著者らは考えている。窒素ガスについては、化学吸着が示唆されるような結果が得られているが、その電流特性はほぼArと同じであり、Tipと弱い吸着を起こすような他のガスについ

図9 Ar電界電離イオン電流の高圧力域での(110)面の領域への局在化^{(25), (26)}.

でも同様な結果になるものと考えられる。Tipを変形させないのでTipが壊れないかぎり何回でも使用可能であり、しかもレンズ系の軸合わせも不用となるので実用上有利である。

3.4 反応性ガスイオン源

Si, SiO₂のエッチングにフッ素 (F) が有効であることから、FのGFISを研究したものがあ⁽²⁷⁾。Hansonらの装置と基本構造は同じであるが、Q-mass (四重極質量分析計) によりイオン流の構成元素分析が可能である。Tipにはタングステン、試料ガスにはF₂(10%)–

He (90%) の混合ガスを用いている。図10は、イオン電流と引出し電圧の関係を測定したものである。Tip温度を7 Kとしたとき電圧を変化させると9.7 kVでイオン電流はピークを持つ。温度条件を変え、Tip温度を80 Kにして、同様なガス圧で実験を行った。電圧を増加させるとピークBが現れ、電圧を減少させていくと5.5 kVでピークAが現れた。一度2つのピークが現れると、その後は、電圧の増加、減少のいずれの場合にも2つのピークが現れるようになった。ピークAのイオン電流を質量分析した結果、質量数19(F⁺, F₂⁺)と38(F₂⁺)のものが得られ、電流の構成物質はフッ素である。

図10(a), (b)の相違は、F₂の沸点が85 K、融点が55.2 Kであることに起因する。(a)では混合ガス中のF₂は凍結し、Heのみがガスの供給源でありイオン流の構成元素は高電界でHeとなる。(b)ではFとHeの両方がガスの供給源となる。低電界のピークAでは、イオン化エネルギーがHeよりも小さいFがイオン化する最適電界である。高電界のピークBでは、イオン化エネルギーが大きいHeがイオン化する最適電界であるため、ピークが2つ現れる。

Fイオンの温度依存性を確かめるために、ピークA, Bの電圧において、Tip温度を変化させたときの輝度を測定したものが図11である。低電界、高電界いずれもピークAと同様な電圧において、52 Kでピークが測定された。そのピークを境にして低温側の方が輝度が高かった。低温側で輝度が高くなるのは、Fは凍結してしまう

図10 F₂-He混合ガスを用いた電界電離イオン源の引出し電圧-イオン電流特性⁽²⁷⁾.

(a)動作温度7 K

(b)動作温度80 K

図11 角度電流強度と輝度の温度依存性²⁷⁾.
W(110)Tipを用い、F-Heガス圧 $1.5\text{--}2.0 \times 10^{-6}$ Torrで実験.

が、HeがTipに表面吸着しイオンとなるためである。Fイオン電流は、ピークAの電圧において、52Kのとき電流最大となることが確認された。引出し電圧5.5 kV, Tip温度52Kのとき、 6×10^8 A/cm²srの輝度のFイオンが得られた。よって、Tipの電界と温度をパラメーターとしてFイオンを選択的に得ることが可能である。反応性ガスをイオンとして利用できることはプロセスの自由度を広げることにつながる。

4. 結 び

イオン源として、イオン化される物質の供給、Tipの成形と処理、イオン光学系^{28),29),30)}など技術的な問題は、徐々に改善されてきた。しかし、長時間にわたって安定に動作させることが難しく、実用上の再現性が充分とは言えない。これは動作中のTipの形状を維持することが困難なためである。

また、現在において半導体製造等の大量生産では、粒子線源として光、電子、X線の開発がかなり進んでいる。しかし、回路をマスクに移す作業は電子ビーム露光に任されているのが現状であるが、それは加工体の移動機構が電子銃の分解能よりも低いことに原因がある。移動機構の開発が進むに連れて、電子線より分解能が高い加工法が求められることは自明である。したがって、軽元素イオン源が有望な候補となると著者達は考えている。さらに、イオンビームはエネルギー、運動量を輸送するだけでなく、物質合成を可能とする元素をイオンの

形で輸送でき、加工の自由度を広げるためにも必要な技術である。そこで従来とは異なった視点から、イオン化される物質の供給を、金属表面とガス分子の反応を利用したプロトンイオン源を現在模索している^{31),32)}。これは、被イオン化物質の解離エネルギーが電離電圧より低いことに着目したものである。

【文 献】

- 1) 滝川忠宏：応用物理61 (4) (1992) 366
- 2) N. Samoto and R. Shimizu: J. Appl. Phys. 54 (1983) 3855
- 3) M. Komuro, H. Hiroshima, H. Shimizu, M. Ono, S. Ichimura, H. Murakami, and M. Sato: 電子技術総合研究所調査報告第209号 (1984)
- 4) R. L. Seliger, R. L. Kubena, R. D. Olney, J. W. Ward, and V. Wang: J. Vac. Sci. Technol. 16 (6) (1979) 1610
- 5) T. M. Hall, A. Wagner, and L. F. Thompson: J. Vac. Sci. Technol. 16 (6) (1979) 1889
- 6) G. Stengl, R. Kaitna, H. Loschner, P. Wolf, and R. Sacher: J. Vac. Sci. Technol. 16 (6) (1979) 1883
- 7) J. S. Huh, M. I. Shepard, and J. Melngailis: J. Vac. Sci. Technol. B9 (1) (1991) 173
- 8) E. W. Müller and T. T. Tsong: American Elsevier Publishing Company, inc., (1969)
- 9) 菅田栄治, 中村勝吾：応用物理31 (12) (1962) 955
- 10) A. Jason, B. Halpern, M. G. Ingram, and R. Gomer: J. Chem. Phys. 52, 5 (1970) 2227
- 11) R. Levi-Setti: Advances in electronics and electron physics Suppl. 13A (1980) 261
- 12) J. H. Orloff and L. W. Swanson: J. Vac. Sci. Technol. 12, 6 (1975) 1209
- 13) J. H. Orloff and L. W. Swanson: J. Vac. Sci. Technol. 15 (3) (1978) 845
- 14) G. R. Hansen and B. M. Siegel: J. Vac. Sci. Technol. 16 (6) (1979) 1875
- 15) D. K. Biegelsen, F. A. Ponce, J. C. Tramontana: Appl. Phys. Lett. 54 (13) (1989) 1223
- 16) S. Morishita and F. Okuyama: J. Vac. Sci. Technol. A9 (1) (1991) 167
- 17) Allan J. Melmed: J. Vac. Sci. Technol. B9 (2) (1991) 601
- 18) Joel A. Kubby and Benjamin M. Siegel: J. Vac. Sci. Technol. B4 (1) (1986) 120
- 19) P. R. Schwoebel and G. R. Hanson: J. Vac. Sci. Technol. B3 (1) (1985) 214
- 20) Morikazu Konishi, Masaaki Takizawa, and Toshiro Tsumori: J. Vac. Sci. Technol. B6 (1) (1988) 498
- 21) K. Horiuchi, T. Itakura, and H. Ishikawa: RIKEN Symposium Abstract Papers (1988) 105
- 22) K. Horiuchi, T. Itakura, and H. Ishikawa: J. Vac. Sci. Technol. B6 (3) (1988) 937
- 23) T. Itakura, K. Horiuchi, and N. Nakayama: J. Vac. Sci. Tech. B9 (5) (1991) 2596
- 24) Hiroshi HIROSHIMA, Masanori KOMURO,

- Morikazu KONISHI, Toshiro TSUMORI : 平成 3 年
秋応物 (1990) 11a-ZG-6
- 25) M. Sato: Proceedings of the First Workshop on Beam Engineering of Advanced Material Syntheses (1990) 33
 - 26) M. Sato: Proceedings of the Second Workshop on Beam Engineering of Advanced Material Syntheses (1991) 57
 - 27) Yukinori ochiai, Eiichi Nomura, Yoshikatsu Kojima, and Shinji Matsui: J. Vac. Sci. Technol. A9 (1) (1991) 51
 - 28) H. Ohiwa, R. J. Blackwell, and B. M. Siegel: J. Vac. Sci. Technol. 19 () (1981) 1074
 - 29) R. J. Blackwell, J. A. Kubby, G. N. Lewis, and B. M. Siegel: J. Vac. Sci. Technol. B3 (1) (1985) 82
 - 30) G. N. Lewis, H. Paik, J. Mioduszewski, and B. m. siegel: J. Vac. Sci. Technol. B4 (1) (1986) 116
 - 31) T. Teraoka, Y. Sekiya, H. Adachi, K. Suzuki: Proceedings of the First Workshop on Beam Engineering of Advanced Material Syntheses (1990) 21
 - 32) Y. Sekiya, T. Teraoka, H. Adachi, H. Nakane: Proceedings of the Second Workshop on Beam Engineering of Advanced Material Syntheses (1991) 31