

## VII-2 ガンマ6グループ

助教授 河辺隆也

大学院生 2名

共同研究者 北島正弘(金属材料技術研究所)

水野伸夫(日本大学文理学部物理学教室)

### 【1】非平衡プラズマの基礎物理現象の研究

#### (1) 放電プラズマ中のカオス現象

テーマ「放電管を用いた緩和振動子回路の示す分岐現象」

放電管とキャパシタを並列に結合し、動作点を前期グロー放電領域内に設定するとその負性抵抗特性のために緩和振動あるいは弛緩振動と呼ばれる特徴的な振動が励起される。この放電管をもちいた緩和振動子はきわめて簡単な自励発振回路であるが、放電の制御パラメータの値を適当に選ぶとAlternating Periodic-Chaotic(APC) sequenceと呼ばれる興味深い分岐現象が観測されることが報告されている。しかしその発生機構は明らかではない。そこで、放電管内部の現象を電子とイオンに関する流体方程式によって近似し、それを外部回路と結合させた物理モデルを作り、数値シミュレーションを行い、その発生機構を調べている。現在、定性的に実験と一致する計算結果を得ることに成功している。

### 【2】プラズマと固体との相互作用

プラズマが固体表面に照射されたときに起こる物理現象の解明は固体表面の物理学を明らかにするという物理学上の重要性ばかりではなく、現代のハイテクの各分野(核融合、超高真空、半導体製造、新機能性固体表面改質、など)で非常に重要な課題である。このグループではこれらの課題に以前から取り組んできて、金属材料研究所との共同研究も進んでいる。

### (1) プラズマの放電洗浄効果の解明

グローモードプラズマ源を補助プラズマ源とした放電洗浄法は特許になったが、その研究の進展として今年度は、水素、重水素、不活性ガスを用いた放電洗浄効果を実験データを取り比較して、洗浄効果の物理的、化学的効果を分離して解明した。

### (2) 物質・材料研究機構(旧 金属材料技術研究所)との共同研究

これまで数年に渡り固体表面とプラズマの相互作用に関する研究を行ってきた。長さ 0.5 ミリの矩形シリコン基板のそりを 1 オングストローム(1 億分の 1 センチ)の分解能で検出できる超高精度光てこ法測定系を設計・開発し、複数の手法(熱酸化、中性酸素原子、オゾン、プラズマ)によるシリコン初期酸化過程、及びプラズマによる低エネルギーイオン・電子照射などの原子スケール表面・界面現象で発生する微小な歪み(表面応力)の実時間測定、およびその表面の走査型トンネル電子顕微鏡観察を組み合わせて行った。その主要な研究内容と成果は以下の通りである。

#### (a) 「プラズマによるイオン照射損傷とその低エネルギー電子線照射により緩和」

プラズマやイオン照射下で半導体表面上に導入された損傷(格子欠陥、スパッタ)を、高温の熱アニールを行うことなく、低エネルギーの電子照射を室温で行うだけで完全にかつ非熱的に解除(回復?)できることを実時間高分解能表面応力測定、およびその表面の走査型トンネル電子顕微鏡観察を組み合わせて初めて明らかにした研究である。本結果は、基板の温度を上げることにより原子を熱活性化させて行う既存の表面清浄化、結晶化に代わる全く新しい固体表面領域の非熱結晶化(秩序化)技術を提案しており、学問及び応用の両面において非常にインパクトのある研究であるといえる。また、本研究は日本表面科学会の第4回(2000 年度)スチューデント奨励賞を受賞している。

#### (b) 「反応活性種を用いたシリコン初期酸化過程における表面応力およびその原子像観

## 察」

MOS 電界効果トランジスタ(MOSFET)の性能を向上させるために、シリコンの初期酸化過程は広く活発に研究されている。しかし、そのナノメートル厚のゲート酸化膜の機械的な歪みを制御することが素子特性改善の鍵(パラメータ)となっているにもかかわらず、これまで現実的な膜厚での歪みの直接測定を行った例はなかった。本研究では、酸化反応種として活性な中性酸素原子、オゾン、酸素プラズマを用い、その酸化膜形成中の歪みの直接測定、および、その原子スケールでの反応機構、構造解析を行った。このような反応活性種を用いることは、プロセスの低温化につながる。

本結果により、同じ温度でもそれぞれの反応活性種が異なる酸化機構を有していることが分かった。また、Si(111)-7x7 の再構成表面の室温オゾン酸化においては積層欠陥側が優先的に酸化されるという特異な現象を見つけた。このことは、2.7nm(7x7 のユニッサイズ)のナノ構造体サイズの素子分離、局所絶縁化技術実現の可能性を示唆しており非常に重要である。

## 【3】プラズマ形中性子源の概念設計研究

昨年に続いて次期ミラー形核融合実験装置のひとつとして「ミラー形プラズマ中性子源」がますます重要性の点で認識されるようになってきた。これは、トカマク型閉じこめ方式によりDT核融合の臨界条件達成がここ数年以内に実現する見通しが立ってきたため、実験炉計画と共に核融合炉材料の照射研究開発計画を進める必要が認識されてきたためである。

ミラー型磁場閉じこめによる核融合プラズマ型中性子源の概念設計の研究は世界的に先駆け我々が1980年の初頭より推進してきた。プラズマモデルを実現性の高いものにするためにコンピューターコードを開発し、中性子源プラズマのパラメータを求めるを中心に行っている。

昨年度から自ら改良した、プラズマ計算機モデルにより、ミラーに閉じこめられたプラズマ

とNBIの斜め入射により生成された高速イオンの振る舞いを解明し、中性子フラックス、プラズマパラメーターの最適化を図った。また、アルファ粒子の振る舞いも明らかにした。

#### 【4】プラズマ応用の研究

このグループではかなり前からプラズマ応用の研究を進めており、前に述べたように放電洗浄では既に特許を取っている。このほかにプラズマによるフロン分解装置の研究開発を、NEDOを通じた経済産業省からの委託研究で実施し、開発に成功し、現在、事業化を進めている。さらに、プラズマを光源への応用や、機械工業へ応用を始めている。

##### (1) プラズマを用いた特定フロンの分解の研究、

フルオロカーボン(旧名称フロン)は、冷蔵庫、冷凍庫、カーエアコン、ルームエアコンの冷媒として使われてきたが、オゾンホール生成や地球温暖化など地球環境問題の原因として、1996年以降種類に応じて製造禁止、もしくは製造が段階的に削減されてきた。

フルオロカーボンは、回収後、再利用もしくは分解無害化処理しなければならない。またフルオロカーボン分解施設は全国で35施設(1999年11月1日現在)しかなく、回収業者はボンベに詰め替えて、分解施設のあるところまで運送しなければならないなどと非効率的である。そこで、可搬式の分解装置を開発し、現場で分解することが望まれている。

昨年度末に新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)より(財)中部科学技術センターに委託された地域コンソーシアム研究開発事業として「可搬式フルオロカーボン分解装置の研究開発」のプロジェクトが発足した。これはアサダ株式会社(本社名古屋市)など中部地区の企業、工業技術院名古屋工業技術研究所(アドバイザー)、筑波大学の産・官・学の共同研究開発である。筑波大学のプラズマ技術とアサダ株式会社のフルオロカーボン回収技術とコンパクト化技術をシーズとして分解装置を開発し、事業化を目指している。実験装置はアサダ株式会社犬山工場に新設された研究室に設置され、実験が進められた結果、フルオロカーボンを99.999%まで分解出来ることを実証し、デモ用の装置も開発した。平成13年3月8、9日に東京国際フォーラムで開催されるREGTECH2001で

展示、発表された。

また、国内外からの引き合いが既に来ている。

## (2) プラズマを用いた、産業用廃棄物処理装置の開発

廃棄物を燃焼処理すると、ダイオキシンが発生し、住民に大きな被害が及ぼされることが、報告されている。われわれは、プラズマを用いて、高温分解処理することにより、ダイオキシンが発生しない処理法を確立すべく、各種の実験と、理論的検討を進めてきたが、本年度には、米国PEAT社のTDRシステムを利用して、PCB分解の実証試験を行った。そのデータは、日本の環境基準に十分適合する性能を示している。

今後、国内での展開により、日本のPCB分解、無害化が進展することが期待できる。この活動の詳細は、国際芸術技術協力機構が引き継ぎ、学会発表などの後に、事業化を開発する。

## (3) 平板プラズマ光源の開発

光源は蛍光灯のような線光源から、平板全体が光っている面光源の開発を要求するようになってきた。これに対応するために蛍光灯の原理と、高周波バリアー放電の原理を利用して、面光源を株式会社三陽電機製作所を共同で開発に成功した。現在は A4の大きさの面光源まで可能となった。現在、実用化に移行した。

## 【5】環境教育プログラムの開発

環境マネジメントの国際規格である ISO14001 をベースにした子供の環境教育プログラムシステムを国際芸術技術協力機構と共同で開発し、実施を拡げた。

## 総合報告書

### 1. 河邊隆也

「グローモードプラズマ源を用いた放電洗浄」

## 論文

1. A. Kurokawa, S. Ichimura, T. Narushima, A. N. Itakura, M. Kitajima,  
「Real-time Observation of Surface Stress during Initial  
Ozone-Oxidation of Si(100)」  
(ISTC2001), Shanghai, 2001 (The Electrochemical Society) 212-217.
2. 板倉明子, 成島哲也, 北島正弘,  
「クリプトン酸素混合プラズマによるシリコン酸化中の表面応力変動」  
真空 44, 81 (2001)
3. Tetsuya Narushima, Akiko N. Itakura, Takaya Kawabe, Masahiro Kitajima  
「Electron-Stimulated Surface Stress Relaxation of Si」  
Applied Physics Letters, 79, 5, 605-607 (2001).
4. 成島哲也, 板倉明子, 河辺隆也, 北島正弘  
「電子照射によるシリコンの表面応力の緩和」  
表面科学, 22, 9, 614 (2001).
5. Tetsuya Narushima, Akiko N. Itakura, Takaya Kawabe, Masahiro Kitajima,  
“Electron-stimulated surface relaxation of Si”  
Applied Physics Letters, vol. 79, No. 5, pp605-607 (2001).

6. 板倉明子, 成島哲也, 北島正弘,  
「クリプトン酸素混合プラズマによるシリコン酸化中の表面応力変動」  
真空 44, 81 (2001)
  7. N. Itakura, R. Berger, Tetsuya Narushima, Masahiro Kitajima  
“Low-energy ion-induced tensile stress of self-assembled alkanethiol monolayers”  
Applied Physics Letters, 80, 20, 3712-3714 (2002).
  8. Tetsuya Narushima, Akiko N. Itakura, Takaya Kawabe,  
Masahiro Kitajima  
“Electron-stimulated athermal surface recrystallization of Si(100)”  
Submitted to Physical Review Letters.
- 国際会議発表
1. Nobuo.Mizuno, Ukyo.Tomioka, Takeshi.Hayashi, Takaya.Kawabe  
“SIMULATION OF HYSTERESIS IN GLOW DISCHARGE”  
11th International Congress on Plasma Physics  
Sydney, Australia, August 2002
  2. T. Narushima, A. Kurokawa, A. N. Itakura, M. Kitajima, S. Ichimura  
「Real-time Observation of Surface Stress during Initial Ozone-Oxidation of Si(100)」  
The ECS International Semiconductor Technology Conference(ISTC-2001)  
(2001年5月、中国上海)

3. T. Narushima, K. Miki, A. Kurokawa, A. N. Itakura, T. Kawabe, M. Kitajima  
「Low temperature oxidation of Si(100) with ozone radicals: Chemical Reaction Mechanism and Surface Stress」  
AVS 48th INTERNATIONAL SYMPOSIUM  
(2001年10月, Moscone Center and Marriott Hotel, San Francisco, California U.S.A.  
(米国同時多発テロのために渡米できず)
4. K. Miki, T. Narushima, M. Kitajima  
「Selective Oxidation of Unfaulted Halves of Si(111): (7x7) with Ozone」  
AVS 48th INTERNATIONAL SYMPOSIUM  
(2001年10月, Moscone Center and Marriott Hotel, San Francisco,  
California U.S.A.)  
(米国同時多発テロのために渡米できず)
5. T. Narushima, A.N. Itakura, M. Kitajima, K. Miki  
「Low temperature oxidation of Si(100) with ozone radicals: Chemical Reaction Mechanism and Surface Stress」  
2002 INTERNATIONAL CONFERENCE ON SOLID STATE DEVICE AND MATERIALS (ssdm 2002)  
(September 17-19, 2002, Nagoya Congress Center, Japan)
6. T. Narushima, M. Kitajima, K. Miki  
「Electron-Stimulated Atomic Scale Recovery of Surface Disorder Induced by Ion-Bombardment」

Fourth International Symposium on Control of Semiconductor Interfaces (ISCSI-IV)  
(October 21-25 2002, Karuizawa, Japan)

7. K. Miki, T. Narushima, M. Kitajima

「Nano-scale Unit Selective Oxidation of Faulted Halves of Si(111): (7x7) with Ozone」

Fourth International Symposium on Control of Semiconductor Interfaces (ISCSI-IV)

(October 21-25 2002, Karuizawa, Japan)

8. T. Narushima, M. Kitajima, K. Miki

「Electron-Stimulated Atomic Scale Recovery of Ion-Induced Damage on Si(100)」

AVS 49th INTERNATIONAL SYMPOSIUM

(November 4-8, 2002 Colorado Convention Center Denver, Colorado U.S.A.)

9. K. Miki, T. Narushima, M. Kitajima

「Selective Oxidation of Faulted Halves of Si(111): (7x7) with Ozone」

AVS 49th INTERNATIONAL SYMPOSIUM

(November 4-8, 2002 Colorado Convention Center Denver, Colorado U.S.A.)

学会講演

1. 成島哲也, 板倉明子, 河辺隆也, 北島正弘

「欠陥による表面応力の発生とその電子誘起緩和」

日本物理学会 2001年秋の年次会(2001年3月, 中央大学)

2. 成島哲也, 三木一司, 板倉明子, 河辺隆也, 北島正弘

「低エネルギーイオンおよび電子照射により改質された Si(001)表面の STM 観察」

第48回 応用物理学関係連合講演会(2001年3月, 明治大学)

3. 板倉明子, 北島正弘, 成島哲也, R.Berger

「金上に自己集合したアルカンチオール単層膜の吸着／脱離に伴う応力変動」

第48回 応用物理学関係連合講演会(2001年3月, 明治大学)

4. 板倉明子, 成島哲也, 北島正弘

「クリプトン・酸素希釈酸化中のシリコン表面応力変動」

応用物理学会 薄膜・表面物理分科会主催・シリコンテクノロジー研究会協賛

2000年度第8回特別研究会「極薄シリコン酸化膜の形成・評価・信頼性」

(2001年1月, 静岡県熱川ハイツ)

5. 三木一司, 成島哲也, 北島正弘

「オゾンによるシリコン表面酸化 1: (111)表面上での選択酸化」

第62回 応用物理学会学術講演会 (2001年9月, 愛知工業大学)

6. 成島哲也, 三木一司, 板倉明子, 河辺隆也, 北島正弘

「オゾンによるシリコン表面酸化 2: (001)表面上での反応機構と表面応力」

第62回 応用物理学会学術講演会 (2001年9月, 愛知工業大学)

7. 三木一司, 成島哲也, 北島正弘

「オゾンによる Si(111)表面のナノスケールサイト選択酸化」

日本物理学会2001年秋季大会 (2001年9月, 徳島文理大学徳島校)

招待講演

1. 成島哲也、板倉明子、北島正弘

「表面応力の発生と電子照射による緩和」

(2001年1月、東京工業大学 長津田キャンパス 生命理工学部大会議室)

### 研究会発表

1. 野村 奈々、水野 伸夫 (日大・文理)

「グロー放電におけるヒステリシス現象」

(発表 8月30日、論文集pp.19-21)

第6回八戸プラズマフォーラム 2001年8月30—31日

(第6回八戸プラズマフォーラム論文集 2002年2月20日)

2. 水野 伸夫 (日大・文理)

「プラズマ中の静電波動」

(発表 8月30日、論文集pp.23-26)

第6回八戸プラズマフォーラム 2001年8月30—31日

(第6回八戸プラズマフォーラム論文集 2002年2月20日)

### 受賞

1. T. Narushima

“The Finalist of the Morton S. Traum Award of The AVS Science and Technology Society”

(Final competition will be held in October end. 2001 in San Francisco, California U.S.A)

### 学位論文

1. 成島哲也

「Athermal Stress Release of Silicon Surface and the Microscopic Structure」

A dissertation submitted to the Doctoral Program in Physics, the University of Tsukuba

in partial fulfillment of requirements for degree of Doctor of Philosophy (Science)

October, 2001 Doctoral Program in Physics, University of Tsukuba

卒業論文

1. 青木一統

「活性酸化種を用いたナノスケール選択反応」

平成14年3月 筑波大学 第一学群自然科学類 物理学主専攻

出願中特許

1.「表面欠陥検出方法およびその装置」

特願 2000-345695

中村(板倉)明子、北島正弘、成島哲也

2.「欠陥性表面応力の緩和方法」

特願 2000-361747

中村(板倉)明子、北島正弘、成島哲也

紀要等

1.成島哲也、板倉明子、河辺隆也、北島正弘「酸化中のシリコン表面応力と基板表面粗さとの関連」

「極薄シリコン酸化膜の形成・評価・信頼性(第4回研究会)」

(JSAP Catalog Number:AP992204),p201

2.板倉明子、成島哲也、北島正弘「プラズマ酸化によるシリコン表面酸化層の微小応力の研究」

「極薄シリコン酸化膜の形成・評価・信頼性(第4回研究会)」

(JSAP Catalog Number:AP992204),p207

2. 成島哲也、上田伸夫、板倉明子、河辺隆也、北島正弘

「シリコンの酸化による表面応力の研究:表面乱れの影響」

「極薄シリコン酸化膜の形成・評価・信頼性(第5回研究会)」

(JSAP Catalog Number:AP002201),p259

4.板倉明子、成島哲也、北島正弘「クリプトン・酸素希釈酸化中のシリコン表面応力変動」

「極薄シリコン酸化膜の形成・評価・信頼性(第6回研究会)」

(JSAP Catalog Number:AP012202),p269