

論文審査の結果の要旨

氏名 宮副 裕之

電子線リソグラフィに代表される直接描画法は、現在の我々の生活に不可欠である半導体産業の基盤となった微細加工技術のひとつである。そのなかでもプロセス雰囲気中に反応性ガスを導入し、材料の表面加工を行う集束電子ビーム誘起プロセスは任意の形状の基板材料上にナノメートルスケールでの材料加工（エッチング、堆積など）を3次元的におこなうことができるため、この20年来、精力的に研究開発が進められてきた。一方で基板表面から広範囲で放出される二次電子や後方散乱電子の放出がその加工解像度を決定することから、得られる構造物のサイズは一般的に一次のビーム径よりも大きくなる。さらに通常の有機金属原料を用いて金属ナノ構造物の堆積をおこなった場合、プロセスの反応性の低さから、その金属含有率は10 at. %程度となり、純粋な金属の構造物はほとんど得られていない。以上を背景として、本論文では、①加工サイズ、および、②堆積物の組成、という従来課題とされてきた二点に焦点をあて、新規解決策の提案、および、実験・考察による検証、さらにプロセスの新たな応用展開に関して論じている。本論文は全5章からなっている。

第1章では序論として、集束電子ビーム誘起プロセス、またプラズマと集束電子ビームの併用に関する先行研究、および、応用例をまとめ、従来の課題と本論文の目的について明示されている。

第2章では実験方法として、本論文研究で用いた、集束電子ビーム装置、および、プロセスにおいてもっとも重要なパラメータの一つとなる原料と、その供給システムに関してまとめられている。

第3章ではH₂OとXeF₂を原料ガスとしてアモルファスカーボンのエッチングをおこなっている。厚さが10 nm程度のメンブレン基板を用いることで、一次電子ビームの後方散乱、それにともなう広範囲での二次電子の放出を低減し、一次ビームサイズの20%-40%というサブビームサイズの加工解像度を得ている。さらに汎用的なプロセスモニタリング手法であるステージ電流のモニタリングの結果を理論的（シミュレーション）、実験的に解析することにより、作製されたナノホールのサイズとステージ電流の変化量に相関を見出し、エッチングプロセスのエンドポイントディテクションとしての本モニタリング手法への理解を深めている。

第4章では有機銅を原料として作製した堆積物中の銅の含有率の向上を目指し、水素・アルゴンマイクロプラズマを用いて、還元環境下で行った(1)従来法で作製した堆積物に対するポストプラズマ処理、(2)プロセス中にマイクロプラズマを補助的に照射するマイクロプラズマ援用型堆積法の開発をおこなっている。以上に先立ち、高真空間下(10⁻⁵-10⁻¹ Pa)で長時間・低電力で動作可能なマイクロプラズマ源の開発とその評価がおこなわれている。開発されたプラズマ源は電子温度が7000 K、ガス温度が1000 K程度の非平衡プラズマであった。また、ラジカル源としての評価のためにおこなった原子状酸素のフラックスの測定では、10¹⁹ atoms/cm²sと高真空中で使用される従来の原子状酸素源と比較して100-1000倍程度の高フラックスが得られ、材料プロセスに応用した際の高速プロセスの実現を示唆している。さらに従来法で作製された銅の構造物（厚さ160 nm程度）に水素・アルゴンプラズマを照射したポストプラズマ処理の結果、従来問題とされてきた炭素系の不純物を選択的に除去し、銅の含有率を11 at. %から27 at. %に向上した。一方、マイクロプラズマ援用型堆積法においてはナノメートルスケールでの電子ビームの位置制御性、集束性をプラズマの発生により攪乱することなく、従来法と同程度の高解像度での堆積プロセスをおこない、さらに、銅の含有率を11 at. %（従来法）から41 at. %（マイクロプラズマ援用型堆積法）に向上し、今後のプロセスの最適化によりさらなる高純度の金属ナノ構造物の作製の可能性を示唆している。

第5章では本研究の総括を述べている。

以上、本論文は、集束電子ビーム誘起プロセスに関する研究として、エッチングにおけるサブビームサイズの加工解像度、堆積における反応性の向上を試みたものである。これらの成果は、集束電子ビームに限ることではなく、イオンビームといった他の集束荷電粒子ビームへの適用可能性をも示唆するものであり、直接描画法による微細加工プロセスの今後の発展に大きく寄与するものと判断される。

なお、本研究の第3章は、Ivo Utke、Johann Michler、寺嶋和夫との共同研究であり、第4章は崔允起、Sven Stauss、寺嶋和夫との共同研究であるが、論文提出者が主体となって、分析および、検証を行ったもので論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって博士(科学)の学位を授与できると認める。