

走査型トンネル顕微鏡によるナノ塑性加工

梅田倫弘*

1. はじめに

走査型トンネル顕微鏡 (STM) は、金属材料から半導体、有機化学、生物まで様々な分野において原子分解能を有する顕微鏡として知られ¹⁾、例えば、半導体表面での吸着原子像の振る舞いや液晶分子²⁾あるいはDNAを観測する³⁾まで研究が進展している。一方、最近では、STMの高分解能性を利用してナノメートルオーダーの極微細加工が試みられている。

そこで本発表では、STMの原理とそれを利用した極微細加工の研究の現況について概観した後、我々が現在試みているSTM加工についてその研究成果の一端を紹介する。

2. STMの原理

STMは、1982年にIBMチューリッヒ研究所のBinnig,Rohrerらによって開発された顕微鏡である¹⁾。その構成は、図1に示すように比較的簡単である。先端曲率が数十ナノメートルの金属探針を観測試料に1nm程度接近させて、それらの間に1V程度の電圧を加えると、真空トンネリング現象によって、1nA程度のトンネル電流が流れる。トンネル電流は、探針-試料間距離の変化に非常に敏感で、例えば、そのギャップが1Åだけ増えると、トンネル電流は10倍になる。従って、トンネル電流が一定となるように、探針-試料間を制御しながら、試料面内を2次元走査すれば、制御誤差信号が試料表面形状を与える。STMは、探針の他に、探針や試料を保

持する剛性の高いフレームを持つ3次元走査機構、制御回路及びパーソナルコンピュータ、防振装置等の構成要素からなるのが一般的である。

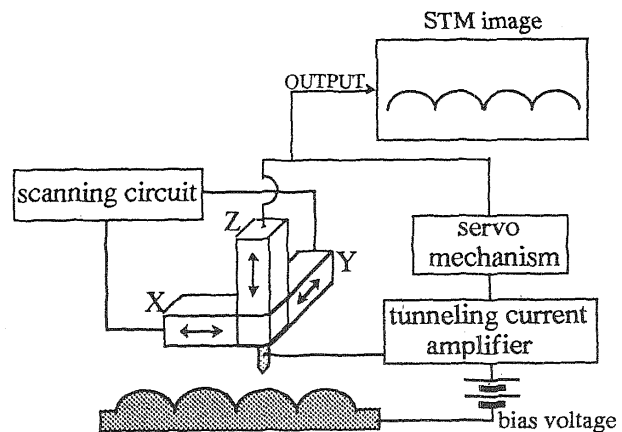


図1 STMの基本構成

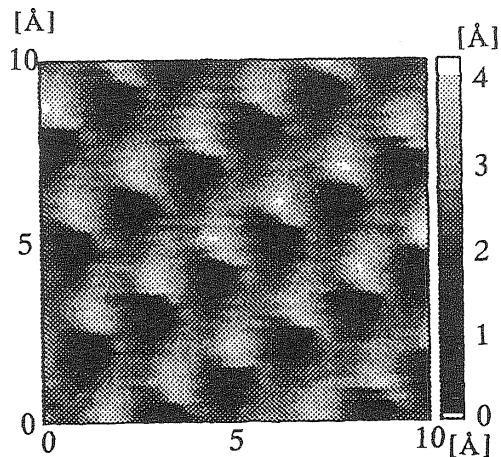


図2 HOPGの原子像

図2は、自作装置によるグラファイト(HOPG)へき開表面の表面形状で、炭素原子に対応する電子分布が観測されており、0.1 nm以下の分解能を持っていることがわかる。

3. STMナノ加工の現状

以上のように、STMは簡単な構成で、原子分解能が得られる卓越した顕微鏡として、様々な分野で利用されている。一方、原子レベルの分解能が得られることは、STMの探針先端を、同程度の位置分解能で制御できること、また、探針-試料間距離が1 nm程度であるため、探針と試料との相互作用による局所的な加工エネルギーを容易に利用できることを示している。すなわち、探針を工具として試料表面にナノメートルオーダーの加工を施すことが可能になり、STMを観測装置としてだけでなく、加工装置として利用できる。

STMをナノ加工に応用する場合に制御可能な加工パラメータとして、1) 探針-試料間距離と 2) バイアス電圧があり、また、フィードバックループを閉じている場合には、上記の他に 3) 設定トンネル電流値がある。図3⁴⁾のように、これらのパラメータを単独にもしくは組み合わせによってトンネル電流や電界が変化し、試料にエネルギー流束を与えたり、ポテンシャル障壁や加工力を発生させることで、試料面が加工される。

これらの現象を用いて、これまでに報告されている加工法を表1に示す⁴⁾。機械的加工法は、簡易であるにもかかわらず、数nmの加工が可能である。一方、電気的加工法は、トンネル電流や電界に制御性があるため、各種の方法が提案されている。例えば、5 V程度のバイアス電圧をパルス的に加工対象に加えて電界蒸発させて表面原子を選択的に除去したり、熱エネルギーを加えて表面を熔融除

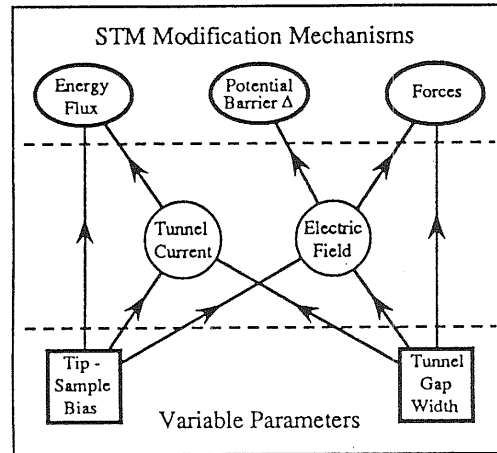


図3 STMナノ加工の基本原則

加工原理	加工手法
機械的加工	インデント
	スクラッチ
電気的加工	電圧パルス
	静電力
	堆積
化学的加工	レジスト加工
	エッチング

表1 STMナノメートル加工

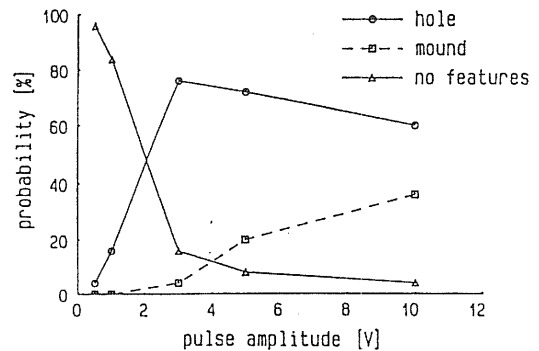


図4 電圧パルス法による加工の再現性

去する方法などがある。また、電荷注入によってレジスト膜を加工したり、陽極化によって表面化学反応を促進させてナノ加工した報告例がある。

4. 機械的及び電氣的加工法を組み合わせたSTM加工⁵⁾

我々はこれまでに電圧パルスを探針-試料間に加えて熱エネルギーを与えることによって試料面を熔融除去する方法を試みてきた。しかし、図4のように印加パルス電圧に対して除去加工できる割合は100%ではなく加工再現性に問題があった。そこで、機械的塑性加工と電氣的放電加工を組み合わせた手法を考案した。

4. 1 実験装置

本研究のSTMは、大気中で動作する、原子分解能を有する装置である。機械的加工と電氣的加工は、同一の装置を用いて行った。観測においてはバイアス電圧=300mV（試料側が正）、バイアス電流=1nAの一定電流モードで行った。

試料には、表面粗さを少なくするために金線（純度99.95%、 ϕ 0.50mm）を熔融させて再結晶させたAuを用いた。STMによってまた、耐酸化性に優れている直径0.3mmのPt/Ir合金（Pt:Ir=90%:10%）を膜エッチング法（エッチング液成分は、CaCl₂:H₂O:HCl=60%:25%:15%）により製作した探針を用いた。

4. 2 加工方法

今回行った機械的加工法として、Z軸PZTに電圧を印加し、探針を試料表面に押し込むインデント法を用いた。また、電氣的加工法である電圧パルス印加による加工はバイア

ス電圧を300mV~数Vまで変化させることによって行った。

電圧パルス印加のみによる加工方法とインデントと電圧パルスとを組み合わせた加工方法を図5(a), (b)に示す。まず、電圧パルス印加のみによる加工では、トンネル間隔 Z_0 を保ったまま、電圧パルスを試料表面に印加し加工痕を形成させる（図5(a)）。またインデントと電圧パルスとを組み合わせた加工では、まずZ軸PZTにインデント電圧 V_i を印加することにより、探針を試料表面に Z_i だけ押し込み、その後インデント電圧 V_i から電圧 V_r （=後退電圧）だけ後退することにより押し込み量を変化させ、その後に電圧パルスを印加し加工痕を形成させる（図5(b)）。

電氣的加工条件としては、最初のインデントにより加工痕を形成させる際のインデント電圧 V_i を30Vとし、電圧パルスは常に、パルス振幅=5V（試料側が正）、パルス幅=100 μ secで一定とする。

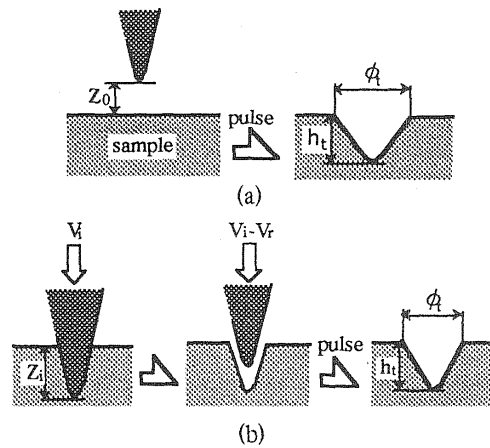


図5 機械的及び電氣的的手法によるSTM加工

4. 3 実験結果及び考察

(a) インデント量

Z軸PZTに印加する電圧に対する加工痕の深さについて調べた。インデント電圧（=

V_i に対する加工痕の深さ ($=h_i$) を図6に示す。この結果より、加工が可能なインデント電圧に閾値があることがわかる。すなわち、インデント電圧が27V以下では加工痕が形成されないのに対して、インデント電圧を増加させると、加工痕の深さも比例的に増加していく傾向がみられた。このふるまいは、試料や探針の弾性的性質に起因していると考えられる。

(b) 加工痕形状評価

インデント電圧 $V_i=30V$ で連続的に加工した時の、加工痕形状の再現性を図7に示す。

この図より、加工痕の深さのばらつきは小さく、平均約7nmであることがわかった。しかし、加工痕の直径に関しては、約±15nmのばらつきがあることがわかる。これは、加工時の探針と試料のなす角度が直角に設定されておらず、インデントの際、斜めに探針が押し込まれて、楕円状に加工痕の形状が形成されたためと考えられる。

(c) インデント+電圧パルス加工の評価

探針を試料に押し込んだ後、Z軸PZTによって探針を後退させる電圧を変化させた時の加工痕形状への影響を調べた。

後退電圧 V_r に対する加工痕の直径 ϕ_t と深さ h_t を図8に示す。この実験結果より、加工痕の深さについては後退電圧が5Vの時を除き、加工痕の深さは13nm前後ではほぼ一定であることがわかる。このことより、探針が試料表面にかなり近い場合を除き、電圧パルスを印加するZ軸方向の位置によって加工痕の深さは変化しないことがわかる。また、加工痕の深さとのかねあいを考慮に入れ、後退電圧が5Vの時、すなわち探針が試料表面にかなり近い場合には、10V以上の後退電圧の場合とは加工機構が異なっていることが予測

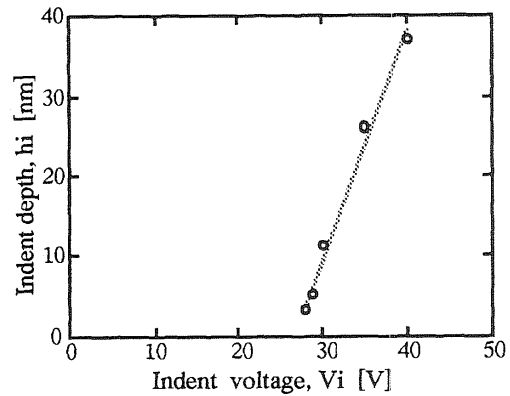


図6 Z軸PZTの印加電圧に対するインデント深さ

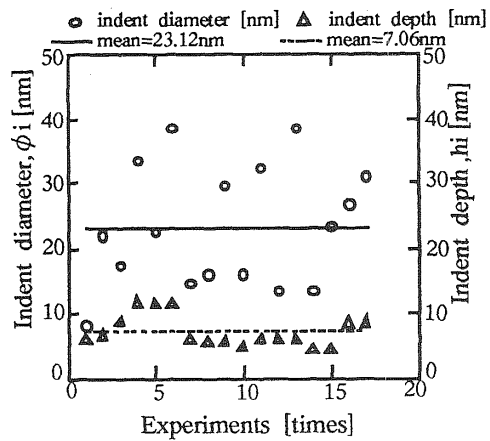


図7 インデント加工の再現性

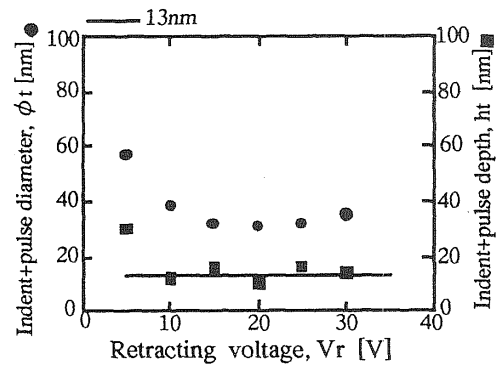


図8 Z軸PZT後退電圧に対する加工ピットの大きさ

される。さらに、電圧パルスを印加することにより、機械的加工による加工痕の形状が楕円形から円形に近づくことが確認された。

(d) 電圧パルスのみの場合との比較

電圧パルスのみの場合と、電圧パルスとインデントとを組み合わせせた場合の加工形状のSTM像を図9に示す。電圧パルスのみの場合(a)，大きくえぐられたような加工痕を形成しているのに対し、インデントと組み合わせること(b)により、試料表面に影響を与える範囲が狭くなることがわかる。これは、図10に示すように、電圧パルスのみ

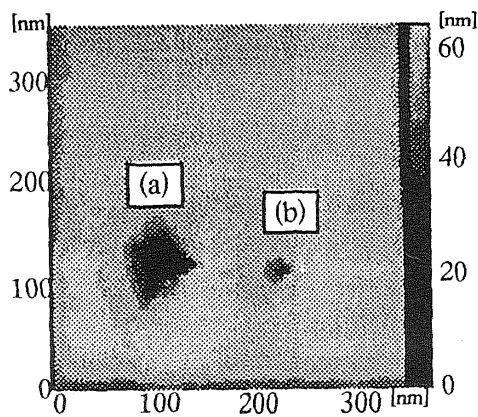


図9 STM加工による加工例

場合には、試料の広範囲に電圧パルスによる熱的エネルギーが加えられるのに対し、インデントと電圧パルスを組み合わせせた場合には、インデントにより形成された加工痕の輪郭部に電圧パルスによる熱的エネルギーが集中するためと考えられる。

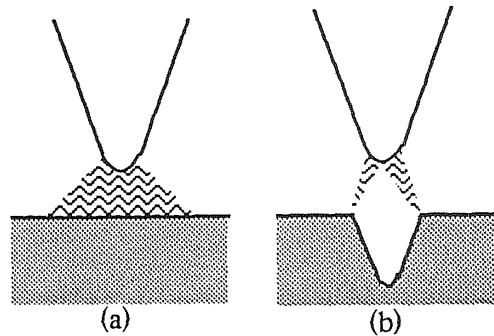
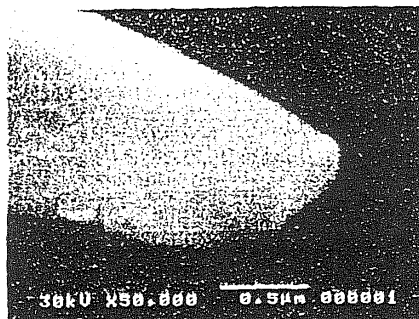


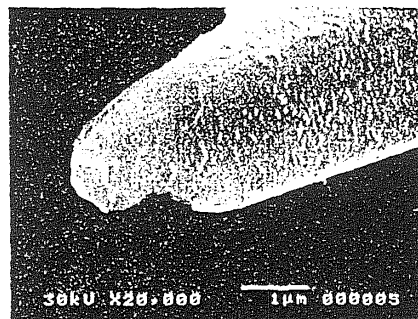
図10 STM加工における放電パルスの経路
(a) 電圧パルスのみ
(b) インデント+電圧パルス

(e) 探針先端の評価

機械的加工を施すことによる探針の先端部への影響を調べた。インデントによる加工をする前の探針のSEM像を図11(a)，インデントによる加工をした後の探針のSEM像を



(a)



(b)

図11 インデント加工による探針先端の変形 (a) 加工前 (b) 加工後

図11(b)に示す。これらの観測から、インデントによって探針先端部に付着物が確認された。これは、試料であるAuが押し込み操作により探針先端部に付着したためと考えられる。しかし、探針先端部の曲率半径は約100nmのままに保たれているため、STM像に影響を与えていない。

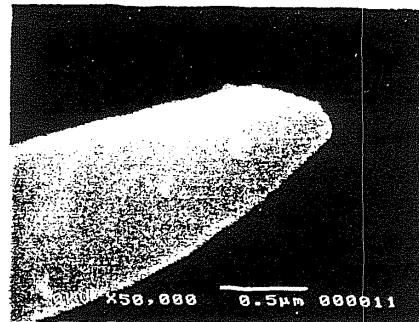
次に、機械的手法と電気的手法とを組み合わせ合わせた加工を10回程度行った場合の探針先端を評価した。加工する前の探針のSEM像を図12(a)、加工した後の探針のSEM像を図12(b)に示す。これらから、加工によって探針先端部の形状変化はほとんどなく、また機械的加工のみの時に比べ、探針先端部の付着物の量がわずかであることがわかる。これは、インデントによる探針先端部の付着物が電圧パルスを印加することによって除去されるためと考えられる。

5. おわりに

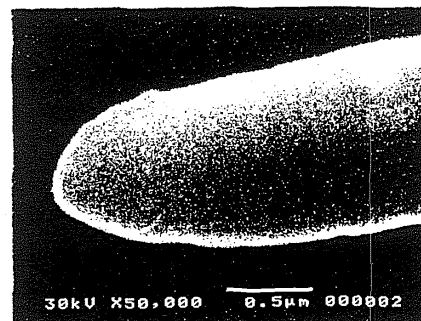
STMによる極微細加工の研究動向と我々が行っている研究について述べた。STMによるナノメートル加工は、本質的に点加工であるため、ICに見られるような大量生産には向かない。しかし、電子ビームやX線等による手法に比べ本質的に原子レベルでの加工に適しているため、例えばX線リソグラフィにおけるマスクの加工とか、ナノメートル加工物のリペア、あるいは原子、分子のナノマニピュレーション等に最適であろう。今後の研究の進展を期待したい。

参考文献

- 1) G.Binnig, et. al.: Appl. Phys. Lett., 40, 178 (1989)
- 2) E.J.Loenen, et. al.: Appl. Phys. Lett., 55, 1312 (1989)
- 3) D.M.Eiglar, et. al.: Nature, 334, 524 (1990)



(a)



(b)

図12 機械的及び電氣的加工を組み合わせたSTM加工の探針先端
(a)加工前 (b)加工後

- 4) R.G.Garcia: Appl. Phys. Lett., 60, 1960 (1992)
- 5) 石川嘉久、梅田倫弘、高柳淳夫：第6回電磁力関連のダイナミックシンポジウム講演論文集、321 (1994)。