



完全表面創成のための原子論的生産技術と 超精密科学に関するCOE国際シンポジウム報告

森 勇 藏*

Review of COE Symposium on Atomistic Production Engineering and
Ultra-precision Science and Technology for Perfect Surface

Key Words : Precision Engineering, Atomistic Production Engineering,
Precision Science and Technology, Center of Excellence
Ultra-precision Machining, Perfect Surface

1. はじめに

文部省(現文部科学省)は平成7年度から「創造性豊かな世界の最先端の学術研究を推進する卓越した研究拠点(Center of Excellence)」の形成プログラムを開始し、学術審議会の審査により、全国から応募する全学問分野の中から毎年6~7件を中核的研究拠点として選定している。その一つとして、平成8年度に、工学研究科精密科学専攻を中心に、「完全表面の創成」をテーマに、「大阪大学・超精密加工研究拠点」が設置された。それから5年間をかけ、研究リーダとして、先端技術や基礎科学に貢献するとともに、その研究成果を学術的に世界に発信すべく研究に邁進してきた。本拠点の形成にいたるまでの精密科学専攻(精密工学科)の歩みや、本拠点の目指すところは、本誌第48巻4号(1996)にて、すでに詳しく報告しているので、ここでは、これまでに得られた大きな成果を概観するとともに、去る平成13年3月6日(火)から8日(木)に大阪大学銀杏会館にて開催されたCOE国際シンポジウム(原子論的生産技術のための超精密科学—完全表面の創成)について報告する。本シンポジウムでは、超精密加工研究拠点のすべての研究テーマにわたって、最新の

成果を発表するとともに、関連する基礎科学、半導体技術分野の第一線で活躍される研究者からの招待講演をいただき、最先端科学を“物づくり”によって支える「原子論的生産技術」の役割とその成果を内外に広く発信する機会となった。

2. 超精密加工研究拠点の大きな成果

超精密加工研究拠点における研究目的は、任意形状に対して極度に高い形状精度と原子レベルで平坦な表面を作製する超精密加工技術を確立するとともに、創成した表面を原子・電子レベルで評価する技術を開発することであり、さらに超精密加工技術を科学的根拠に基づく学問領域として体系化することを目指している。この目標を達成するために、

- (1) 新しい加工プロセスの開発
- (2) 加工現象の理論的な解明
- (3) 加工プロセスの計測と制御技術の開発
- (4) 加工表面の評価と評価技術の開発

の4つの領域の課題を有機的に結合して研究を推進してきた。(1)では、従来の機械加工とは異なる新しい原理に基づく超精密加工技術の開発と実用化を目指した。EEM(Elastic Emission Machining)、大気圧プラズマCVM(Chemical Vaporization Machining)、超純水のみによる電気化学加工、また、大気圧プラズマCVD(Chemical Vapor Deposition)による高速成膜を新たに開発・実現している。(2)では、これら新しい加工プロセスの本質を明らかにする量子力学の第一原理に基づく分子動力学シミュレーションプログラムを開発し、加工現象の理解と学問的な体系化を目指すとともに、(3)では、高圧力プラズマの構造解析や、加工表面ごく近傍における気体および液体の流れ解析などを通じて加工

* Yuzo MORI

1940年3月31日生

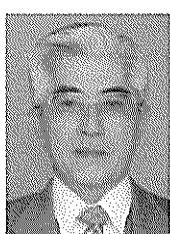
1963年(昭和38)大阪大学工学部精密工学科卒業

現在、大阪大学大学院工学研究科精密科学専攻、教授、大阪大学大学院工学研究科附属超精密科学研究センター、センター長

TEL 06-6879-7284

FAX 06-6879-7286

E-Mail mori@prec.eng.osaka-u.ac.jp



プロセスの一層の高性能化を支援している。(4)では、従来は不可能であった加工プロセス前後の形状のnmレベルでの計測手法や、表面マイクロラフネス・原子構造の超精密観察手法の開発を推進し、具体的な“物づくり”を可能にするための環境を整えるとともに、表面観察を通じた加工現象のより詳細な理解を可能にしている。以上のような多岐にわたる課題について研究を推進し、これまでに得られた大きな成果を表1にまとめる。詳細は、本シンポジウムのプロシーディングス(平成13年11月発刊)に譲るが、いずれも世界初もしくは世界最高水準を達成した成果の数々である。ナノメータから原子の大きさに迫る精度を実現するこれらの成果は、基礎物理学である原子・電子論を駆使した表面・界面現象の探索と、その“物づくり”への応用を図った結果得られたものである。こうした“物づくり”技術を「原子論的生産技術」と称し、これを支えるために体系化された学問領域を「超精密科学」と称している。そして、21世紀の先端生産技術とも呼ぶべき「原子論的生産技術」の確立と「超精密科学」の体系化を目指した本拠点では、研究をさらに継続して推進すべく2年間の期間延長が決まっている。さらに、平成13年4月1日より、大阪大学大学院工学研究科附属超精密科学研究センターの設置へと発展し、これまで培った「原子論的生産技術」と「超精密科学」の成果を社会に還元する使命を受けることとなった。大いなる進展を目指して研究に邁進しているところである。平成13年3月に行われたCOE国際シンポ

ジウムは、まさに新たな発展を向かえる節目に開催されたのであった。以下に、シンポジウムを概観する。

3. COE国際シンポジウム

シンポジウムは200名を超える参加者を得て、平成13年3月6日(火)から3月8日(木)の3日間にわたり開催された。シンポジウムのプログラムを表2に示す。本拠点からの成果報告と関連科学技術分野の最先端の話題が報告され、参加者の顔ぶれも国際色豊かなものとなった。なお、表2に示すプログラムでは、海外からの講演を除き、講演タイトルは日本語で表記している。シンポジウムは、石川哲也主任研究員(SPring-8/理化学研究所)から、第3-4世代シンクロトロン放射光とX線光学素子と題し、現在の挿入光源から次世代の自由電子レーザーに向けて、光学素子に求められる要件や必須の開発項目についての講演があり、引き続いて黒田和明教授(東京大学宇宙線研究所)より、大型低温重力波望遠鏡LCGT(Large-scale Cryogenic Gravitational Wave Telescope)計画について、その概要と必要とされる超精密光共振器の解説ならびに光学素子に求められる要件についての講演があった。いずれも、科学の最前線で、原子スケールの“物づくり”がいかに大切であるかが、実例に基づいて理解できる講演であり、本シンポジウムの幕開けにふさわしいものであった。引き続き、数値制御プラズマCVMおよびEEMによるX線光学素子の加工と放射光による評価、プラズマCVMによるシュバルツシルドミラー

表1 超精密加工研究拠点におけるこれまでの成果の例

EEMによる世界一平坦なSi(001)表面の創成とSTM原子像観察による実証
プラズマCVMによる次世代SOIウェハSi層の薄膜化および膜厚の均一化(膜厚とそのばらつき: 13nm±0.5nm)
プラズマCVMによるSPring-8用大型X線ミラー(400mm×50mm)の超精密数値制御加工(形状精度: 10nm)
プラズマCVM, EEMによる世界最高性能X線ミラーの加工とSPring-8でのコヒーレントX線を用いた性能実証
大気圧プラズマCVDによるSi(001)の高速・高品質エピタキシャル成長法の確立
大気圧プラズマCVDによる水素化アモルファスSi薄膜の高速成膜と太陽電池デバイス作製による性能実証
超純水のみを用いた電気化学加工法の開発とSi, Cu, Fe, Alなどの超精密加工法の確立
大規模システムの高速処理を可能にした第一原理分子動力学シミュレーションコードの開発
世界初のウェット処理Si(001)表面のSTMによる原子像の観察
STMとRHEED, AESの同時刻かつ同領域観察による超精密加工表面の原子構造解析システムの構築
検出感度20nmのパーティクルカウンターの開発

表2 COE国際シンポジウムのプログラム

3月6日(火)

開会挨拶

完全表面の創成—COE成果の概要—：研究リーダー 森 勇藏 [大阪大学]

●第3-4世代シンクロトロン放射光とX線光学素 [石川哲也 (SPring-8/理化学研究所)]

●大型低温重力波望遠鏡LCGT計画 [黒田和明 (東京大学宇宙線研究所)]

・数値制御プラズマCVMおよびEEMによるX線光学素子の加工と放射光による評価(第1報)

・数値制御プラズマCVMおよびEEMによるX線光学素子の加工と放射光による評価(第2報)

・プラズマCVMによるシェバルツシルドミラーのサブナノ精度加工

・EEMによるSi(001)表面の平坦化

・第一原理分子動力学シミュレーションによるEEM加工機構の解析

●水の中のクラスター形成と物質の溶解 [西 信之 (岡崎国立共同研究機構/分子科学研究所)]

・超純水のみによる電気化学的加工プロセスの第一原理分子動力学シミュレーション

・触媒反応による超純水の電気分解と超純水のみによる電気化学的加工法への応用

・超純水のみによる電気化学的加工システムの開発と平坦化加工プロセスへの応用

懇親会

3月7日(水)

セッションイントロダクトリートーク 計算科学：広瀬嘉久治 [大阪大学]

●第一原理分子動力学による金(111)表面上での自己組織化膜の研究 [森川良忠 (産業技術融合研究所)]

●第一原理分子動力学シミュレーションによる液体金属・半導体の構造と電子状態 [星野公三 (広島大学)]

●Si表面およびSiO₂での原子構造と電子状態：密度汎関数計算 [押山 淳 (筑波大学)]

・実空間差分法に基づく第一原理分子動力学シミュレーションプログラムの開発

・Lippmann-Schwinger方程式に基づくナノ構造の電子状態計算

・半無限表面の表面電子準位の第一原理計算

セッションイントロダクトリートーク 次世代シリコンテクノロジー：梅野正隆 [大阪大学]

●次世代半導体技術の展望 [大見忠弘、須川成利 (東北大学)]

・次世代半導体デバイスのための極めて薄い絶縁膜

・レーザー光散乱法によるSiウェハ表面上のナノ微粒子およびナノ欠陥の計測—積円面鏡を用いた全散乱光測定—

・シリコン／シリコン酸化膜界面の原子構造

・Si(001)湿式洗浄表面の原子構造および極薄シリコン酸化膜へのシリコンウェハ洗浄効果

セッションイントロダクトリートーク 超精密加工表面の計測：片岡俊彦 [大阪大学]

・シンクロトロン放射光ミラーの超精密形状計測装置の開発

・光ファイバ端からの回折球面波を用いたPDIの開発

・EUVL光学系Schwarzschildミラーのat-wavelength PDI評価

・光散乱法によるSiウェハ表面上のナノ微粒子・ナノ欠陥のCCD画像計測

・微小共振球プローブを用いた走査型近接場光学顕微鏡の開発

・STM/SREMによる湿式洗浄Si(001)表面の昇温過程の観察

・原子オーダーの空間分解能を有する元素分析法(STM-XMA)の開発

3月8日(木)

セッションイントロダクトリートーク 機能薄膜：芳井熊安 [大阪大学]

●Recent Advances in the Understanding of a-Si:H Materials and Progress in the Performance of their Solar Cells [C. R. Wronski (Penn. State Univ., U.S.A.)]

●Challenges in Poly-Si TFT Technology for Future FPDs [T.-J. King (UC Berkeley, U.S.A.)]

・大気圧プラズマCVD法によるa-Siの高速成膜と太陽電池デバイスへの応用

・大気圧プラズマCVD法によるエピタキシャルSiの高速成長

・大気圧以上の高圧力下でのプラズマCVDによるダイヤモンドの高速形成

・容量結合型・大気圧・高周波プラズマ中のCF, CF₂ラジカル密度のOESおよびLIF計測

セッションイントロダクトリートーク ナノプロセスの制御：青野正和 [大阪大学]

●Controlled growth of single wall nanotube crystals - A frustrated chemical reaction - [Mark E. Welland (University of Cambridge, UK)]

●From hybrid to mono-molecular electronics [Christian Joahim (CEMES-CNRS, France)]

・機能性有機分子の表面2次元自己組織化構造制御

●Effects of Electron and Atom Dynamics to Growth and Epitaxy [Tien-T. Tsong (Institute of Physics, Academia Sinica, Taiwan)]

●Epitaxial growth of ultra-thin complex oxides [Maria J.W. Seo (IBM Zurich, Switzerland)]

・X線定在波法による一次元量子構造の界面構造解析

●Light Emission from Atomic Scale Patterns [Carsten Thirstrup (Vir-Tech, Denmark)]

・ナノ構造作製へ向けた単色原子ビームの生成

●Nanomechanics from Atomic Resolution to Molecular Recognition based on AFM Technology [Christoph Gerber (IBM Zurich, Switzerland)]

閉会挨拶

◎印は招待講演



写真1 シンポジウム会場の様子

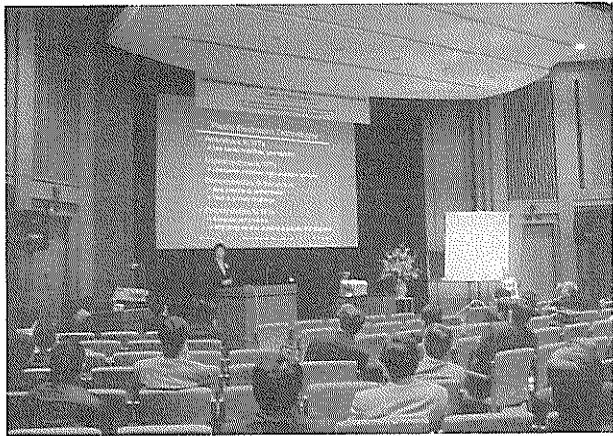


写真2 講演の様子

のサブナノ精度加工、EEMによるSi(001)表面の平坦化、第一原理分子動力学シミュレーションによるEEM加工機構の解析について本拠点の成果を報告した。X線光学素子やシュバルツシルドミラーの加工では、本拠点での研究成果により、すでに形状精度サブナノメータを実現できることを示した。EEMによるSi(001)表面の平坦化では、これまで超高真空以外では不可能であったSi(001)表面の原子レベルでの平坦化がEEMによって可能であることを実証し、100nm四方の領域の95%が3原子層で構成される極めて平坦な表面であることを示した。続く第一原理分子動力学シミュレーションによるEEM加工機構の解析では、微粒子と加工物表面間の反応開始から加工物表面原子の除去に至るまでの一連の過程のシミュレーションに成功したことを報告した。科学的根拠をもとにした最適微粒子の探索など、今後は実用面への展開が可能であることを示した。

超純水プロセスに関するセッションでは、岡崎国

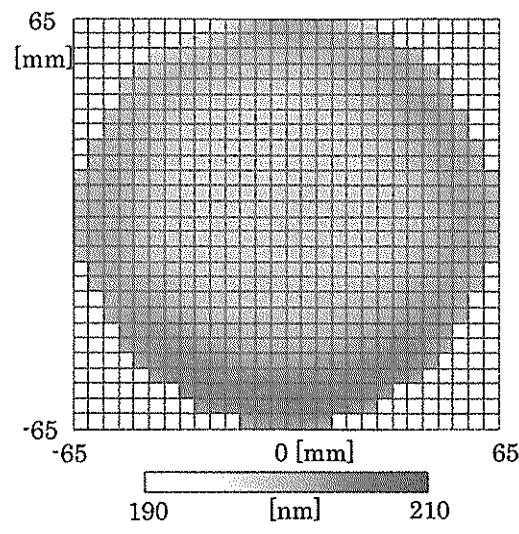
立共同研究機構／分子科学研究所の西信之教授から、水のクラスター構造の測定方法や物質の溶解に関する最新の研究結果が報告された。水とアルコールは分子レベルで混合しないことから、クラスター構造が安定で容易に崩れるものではないことが伺われ、クラスター構造を破壊することができれば、新しい水の化学的機能を利用する将来技術への展開が期待された。引き続き、本拠点からの研究報告を行った。超純水中のOH⁻イオンの化学的作用による加工現象の第一原理分子動力学シミュレーションでは、超純水電気化学加工において陽極では加工されないSiが陰極で加工されるという新しい発見を報告した。基礎実験では、触媒材料と高電界により超純水中の水分子を解離する方法を開発し、Cu, Feなどを実用的速度で加工することが可能となったことや、数値制御超純水電解加工システムを開発し、表面粗さ10nmのCu平坦面の創成に成功したことの報告、さらには、超純水のみによる電気化学的加工法の新しい超精密・超清浄加工法としての実用化の可能性を示した。

超精密加工表面の形状および原子構造の計測に関するセッションでは、大阪大学の片岡俊彦教授より本拠点における計測グループの取り組みについて紹介があり、その中でも、原子分解能を得るSTM観察の必要性が強調された。表面状態の計測において、原子分解能を得ることが究極的な絶対精度を保証するものとされた。引き続き、本拠点で進めているシンクロトロン放射光ミラーの超精密形状計測装置の開発についての成果を報告した。本装置は、被測定面上の法線を測定し、それを補間、積分することにより、数値制御EEMやCVM加工を行う場合に必要

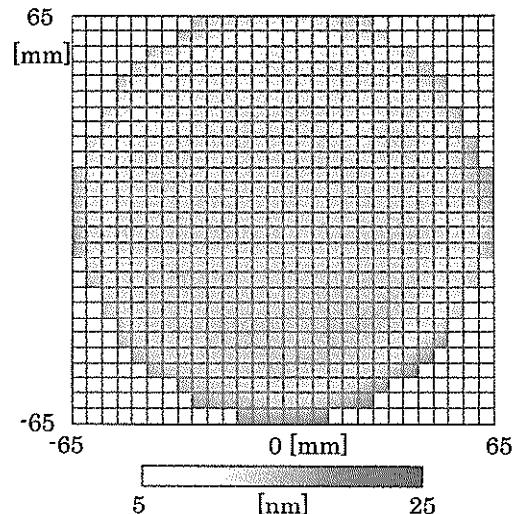
な前加工面の形状や、加工後の形状を1ナノメータオーダの絶対精度で測定することを目標としたもので、適用の実例として公称曲率半径2mおよび3mの球面ミラーを2nm/100mmの精度で測定可能であることを示した。光ファイバ端からの回折球面波を用いたPDI(Point diffraction Interferometer)の開発でも、直径30mm、曲率半径500mmの凹面鏡を測定した結果、2nmの再現性を持つ計測が可能であることを示した。EUVL(Extreme Ultraviolet Lithography)光学系であるシュバルツシルドミラーのat-wavelength評価は、露光時の使用波長である13nmの軟X線を用いるものであり、入射X線のバンド幅と測定値に含まれる位相誤差について解析し、 $\lambda/\Delta\lambda=40$ 程度であれば位相誤差としては0.006 λ (0.08nm)までの測定精度が得られることが示された。一方、光散乱法によるSiウェハ表面上のナノ微粒子・ナノ欠陥の計測グループからは、光散乱法を用いることにより、シリコンウェハ上の37nmの微粒子を検出するとともに、幅及び深さが1nm以下と想定される微小スクラッチの検出にも成功し、超精密加工表面の評価において限外顕微鏡の有効性を示した。その他、走査型近接場光学顕微鏡の開発では、3次元境界要素法を用いたSNOM(Scanning Nearfield Optical Microscope)プローブ構造の探索から、他に類を見ない微小共振球プローブを提案・開発し、その性能を示した。同じく世界に類をみな原子オーダーの空間分解能を有する元素分析法(STM(Scanning Tunneling Microscope)-XMA(X-ray Micro-analyzer))の開発に関する報告や湿式洗浄Si(001)表面の昇温過程のSTM/SREM(Scanning Reflection Electron Microscope)による観察を実施し、水素雰囲気中で昇温することにより、650°Cという低温下においてSi(001)2×1再構成構造を作製できることなどを明らかにした。

次世代Siテクノロジーに関するセッションでは、大阪大学の梅野正隆教授より、Si結晶成長技術に関する最新の話題が本セッションのイントロダクトリートークとして提供された。引き続き、東北大学の須川成利助教授から次世代半導体技術の展望と題して講演があり、ギガスケールで高集積化され、GHz動作する次世代のネットワークシステムLSI(Large Scale Integration devices)には、金属基板と金属ゲートの導入が必要であること、また次世代の半導体デバイス製造では、科学的に完全に制御された生産技術が

必要となることが示された。引き続き、次世代半導体デバイス用極薄絶縁膜の作製では、極薄酸化膜の特性による超精密加工表面の評価法を示すとともに、このために新しく開発した極薄酸化膜形成装置との性能を示した。また、レーザー光散乱法によるナノ微粒子計測では、10nmに迫る検出感度を利用したウエハ上のナノ構造の評価やクリーンルームの性能評価に関する報告を行った。プラズマCVMによるSOI(Silicon on Insulator)の薄膜化では、世界ではじめてSi層厚さが10nmに迫るSOIの製作に成功したことを報告した(図1)。プラズマの滞在時間制



薄膜化前の厚さ分布



プラズマCVMによる薄膜化後の厚さ分布

図1 プラズマCVMによるSOIウェハSi層の薄膜化と膜厚の均一化の一例

御による厚みの均一化を同時に達成したものである。さらに、Siと酸化膜界面の原子構造解析、Siウェハ洗浄表面の原子構造評価では、X線の高度利用により界面数原子層の構造解析や、大気中で処理されたSi(001)表面のSTMによる広領域の原子像観察など、世界水準または世界初の計測例を示し、その成果をもとに次世代Siテクノロジーへの提言や討論がなされた。

機能薄膜のセッションでは、大阪大学の芳井熊安教授のイントロダクトリートークがあり、本拠点で独自に開発中の高速成膜技術である大気圧プラズマCVD法の原理・特長に関して詳細な解説の後、アモルファスSi薄膜および多結晶Si薄膜について、基礎物性から最先端のデバイス応用技術に至る幅広い内容の講演が行われた。Penn. State大学のC.R.Wronski氏から、アモルファスSi薄膜について、成長プロセスに関する最近の研究成果と太陽電池の性能および安定性を向上させることを目的としたセル構造開発についてのレビューがあった。また、UC BerkleyのT.-J.King氏からは、プラスチック基板を用いた高性能な多結晶Si TFT(Thin Film Transistor)回路を実現するための研究成果について報告があり、本拠点でも精力的に取り組んでいるプロセスの低温化の重要性が強く指摘された。引き続き行われた本拠点の成果報告では、大気圧プラズマCVD法によるアモルファスSiの高速成膜と太陽電池デバイスへの応用、および、エピタキシャルSiの低温・高速成長に関して最新のデータを報告し、本成膜法がデバイスの高性能化および低コスト化に関してブレークスルー技術となり得ることを明らかにした。さらに、大粒径単結晶ダイヤモンドの高速形成やラジカル密度計測に関する最新のデータを紹介し、大気圧プラズマCVD法が高機能材料の成膜法として高いポテ

ンシャルを持つことを示した。

計算物理に関するセッションでは、大阪大学の廣瀬喜久治教授より、本拠点での第一原理分子動力学法の開発の動向が述べられた。ここでは、これまでの平面波展開法を用いた分子動力学シミュレーションコードの高速化に加え、本拠点で開発された実空間差分法によるシミュレーションコードが紹介され、電界や電流の厳密な取り扱いが可能になるなど、従来法では得られない新しい知見を得るものと期待できる。その後、産業技術融合領域研究所の森川良忠主任研究員より、近年注目されている自己組織化現象の一つである金属表面上でのチオールの自己組織化、広島大学の星野公三教授から有限温度下での液体半導体における半導体-金属転移の微視的機構の解明、また、筑波大学の押山淳教授から、Siエピタキシャル成長におけるSi原子の表面拡散機構の解明に関する講演があった。特に、Siエピタキシャル成長におけるSi原子の表面拡散では、水素原子が重要な役割を果たしていることが明らかにされ、成膜プロセスの設計を絡めた有意義な議論が展開された。本拠点からは、独自に開発した電界下での第一原理分子動力学計算手法(図2)、ナノ構造の電子状態や電気伝導の計算手法、半無限結晶表面の電子状態計算手法について、その理論的な骨組みと適応例を報告した。

最後のセッションとなるナノプロセスの制御に関するセッションでは、大阪大学の青野正和教授より、現在世界的に注目を集めているナノテクノロジーの最先端に関するイントロダクトリートークがあり、原子及び分子の構造や物性をナノスケールで制御することによる研究例として、イオン移動による原子スイッチの実現や、局所重合反応によるp共役系分子ワイヤーの構築についての紹介があった。Cambridge大

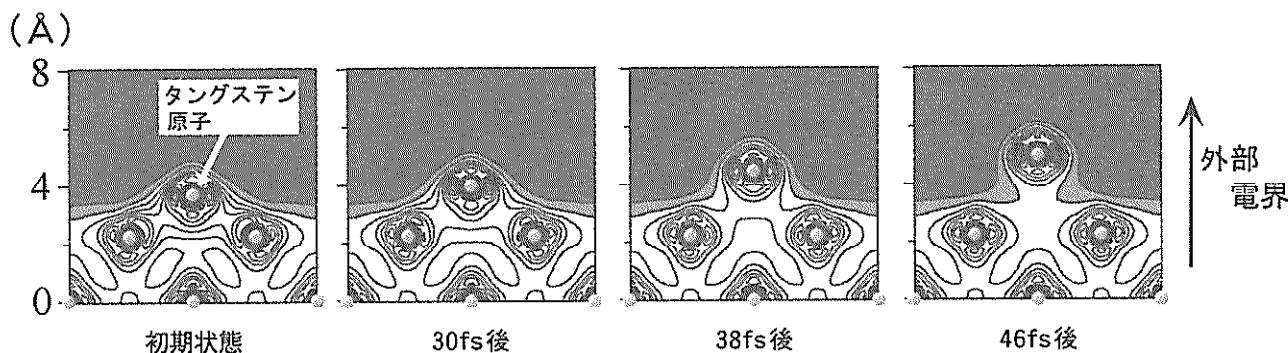


図2 実空間差分法を用いたタンゲステン(110)面の電界蒸発シミュレーションの一例(外部電界強度: $5.5 \times 10^{10} \text{ V/m}$)

学のM.E.Welland教授は、固体表面上で金属ナノクラスターを等間隔に形成することにより、それを核に成長したカーボンナノチューブの二次元パターンングが可能であることを示した。フランスCNRSのC.Joahim教授は、機能性有機分子を機能ブロックとした単分子エレクトロニクスの可能性について、主に理論の立場から講演された。またIBMのC.Gerber教授は、多探針AFMを分子認識による臭いセンサーとして用いた結果について講演され、人間の鼻の感度よりもはるかに敏感であることを示された。その他、台湾Academia SinicaのT.Tsong教授から膜成長のダイナミクスに関して、IBMのM.W.Seo博士からは酸化物の超薄膜成長の制御に関して、デンマークVir-TechのC.Thirstrup博士からは、トンネル電流誘起の発光現象に関して、興味深い講演があった。本拠点からは、機能性有機分子の表面自己組織化構造を制御する試み、Si表面上に形成された金属原子細線の構造解析、ハロゲン原子ビームによるナノスケールドライエッチングの可能性などを報告した。本拠点で進めている自己組織化現象や光による原子トラップなどを利用した新しいナノスケール構造の構築に関する試みとその最新の成果を報告したものである。

多くの参加者を得た活発な質疑応答のため、3日

間を通じて予定時刻を1時間近くオーバーすることとなった。最終日のクロージングは、午後7時を大きく過ぎてからと記憶している。様々な科学技術分野の多くの研究者から共同研究が提案され、「原子論的生産技術」への期待の大きさを肌で感じたシンポジウムであった。シンポジウム会場前のロビーでは、精密科学教室の修士コースの学生によるポスター展示も行われ、参加者との熱のこもった議論は、教育の場としても素晴らしい環境であったと感謝している。

4. おわりに

本拠点は、これまでの成果をもとに2年間の延長が認められ、同時に、平成13年4月1日より、大阪大学大学院工学研究科附属超精密科学研究センターの設置へと発展を遂げている。「超精密科学」に基づく「原子論的生産技術」は、その成果を社会に還元し、科学技術の発展に真に貢献する段階に入ったものと身を引き締めているところである。関係各位のご指導、ご支援を心よりお願いする次第である。また、本シンポジウム開催にあたり、ご協力いただいた方々、また本拠点での研究遂行にご協力いただいた方々に、この場を借りて厚く御礼申し上げる次第である。

