

ガラスキャピラリーによる多価イオンビーム操作

量子・物質工学専攻 山田千樫研究室 中山亮

1. 目的・背景

1.1 研究目的

近年、多価イオン自身の価数を保持したまま多価イオンビームの径をマイクロメートル、あるいはナノメートルサイズまでに絞り込み、ビームの偏向が行える方法としてガラスキャピラリーを用いた集束法が期待されている。しかしこれまでは比較的低価数($q \leq 10$)のイオンによる実験が主であったため、高価数領域での通過特性は調べられた例がない。本研究では、電通大 Tokyo-EBIT[1] によって生成した多価イオンを用いて、高価数領域でのガラスキャピラリーに対する通過特性を調べるために本研究を行った。

1.2 多価イオンと固体表面との相互作用

一般に2価以上の正負のイオンを多価イオンと呼ぶが、本研究が対象としている多価イオンとは、高度に電離したイオンである(例: I^{53+} 、 Xe^{54+} 等)。多価イオンの持つポテンシャルエネルギーは、そのイオンを生成するためのイオン化エネルギーの総和として定義され、価数 q とともに急激に増加していく。1価のヨウ素イオンのポテンシャルエネルギーが、たかだか10 eVであるのに対して、裸のヨウ素イオン(I^{53+})のそれは、200 keVにまで達する。低速多価イオンが固体表面に接近していくと、膨大なポテンシャルエネルギーを表面の微小領域(~ 10 nm)に短時間(~ 10 fs)で注入する。その結果、高い2次粒子(電子・イオン)放出率、ナノ領域における表面改質などの特徴的な現象が生じる。

1.3 ガラスキャピラリーを用いた多価イオンビーム集束法

1.2節で述べたような多価イオンのプロセス効果を利用して微細加工技術や表面分析技術等に応用するためには多価イオンビームをナノメートルサイズにする必要がある。我々が多価イオン源として用いる Tokyo-EBIT[1]は、EBIS型多価イオン源であり、それらの多価イオン生成領域の空間広がりには100 μm 程度となり、このままでは従来の静電レンズや磁気レンズを用いてナノメートルサイズに絞り込むことはできない。

近年、ガラスキャピラリーによるイオンビームの集束法が見出された。以下にその集束法について説明する。

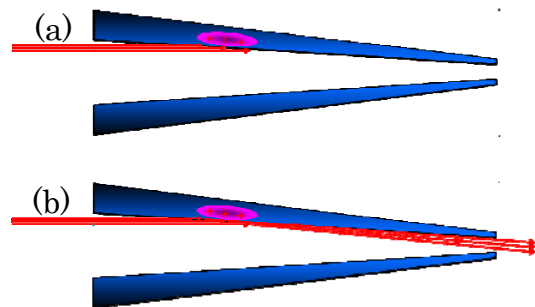


図1: ガラスキャピラリーを用いた多価イオンビーム集束法

キャピラリー内壁が帯電していない状態で、キャピラリーに入射したイオンは、キャピラリー内壁に衝突することによって停止してしまう(a)が、そのイオンの電荷により内壁表面は帯電する。これらの内壁の帯電分布と同じ場所にきた後続のイオンは、クーロン反発力により、内壁に近づくことができず、前方に散乱される(b)。この散乱を1回または複数回繰り返すことで、イオンはキャピラリー出口から出射することができる。このとき、

出射直後のイオンビームの径はキャピラリー出口に等しいと考えられる。また、必ずしも内壁とビームの間の角度を厳密に要求していないことから、ビーム軸とキャピラリー軸が完全には一致していなくてもビーム通過が起こる（ガイド効果）。

また、 Ar^{8+} をキャピラリーに通過させた際に、99%以上の通過イオンが8価のままであったとの報告されており、入射・出射前後でのイオンの価数保持が観測されている[2]。

2. 実験装置

2.1 ガラスキャピラリー

ガラスキャピラリーの材質として、ATG社のIWAKI TE-32のガラス管(外径2 mm ϕ 、内径0.8 mm ϕ)を使用した。この材質を選択したのは、粘度の値が下記の製作方法を取る上で最も適切であるためである。

上記のガラス管を、耐熱性のあるカンタルヒーター線のリングで加熱しながら重力方向に荷重をかけて引っ張ることのできる装置を製作した(図2)。

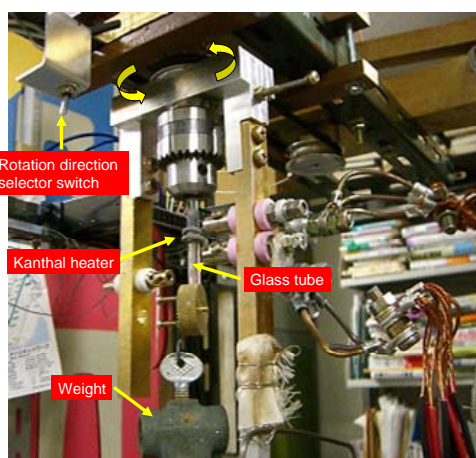


図2：キャピラリー製作装置

均等にガラス管に熱を与えられるように、リングヒーターを回転できる機構が装備されており、1回転毎に回転方向が変えられる仕組みが施されている。加熱温度、荷重を調整しながら最適の長さ、出口径を得ることができる。

出口内径は、上記のような方法で数100 nm ϕ から数10 μm ϕ の出口内径のキャピラリーを製作することが可能となった。実験に使用したガラスキャピラリーの全体像(a)と出口のSEM像(b)を図3に示す。

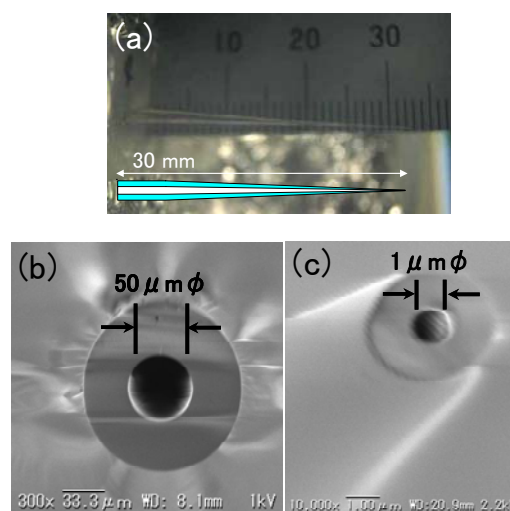


図3：ガラスキャピラリーの外形と先端のSEM像

2.2 実験セットアップ

図4に本研究で用いた実験チャンバー内部の構造図を示した。

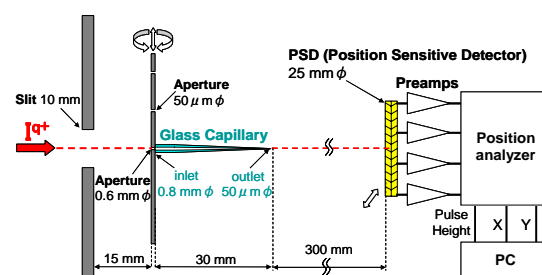


図4：実験セットアップ

作製したガラスキャピラリーは、キャピラリーホルダーに設置されている。キャピラリーホルダーはマニピュレーター（位置微調機構）の先に取り付けられており、イオンビーム入射軸に対して垂直な方向に上下させることが可能で、水平方向に回転できるようになっている。

キャピラリーホルダーの入口の上流15 mmの位

置に 10 mm 幅のスリットを開けた板が取り付けられている。これは、キャピラリーの出口以外から出射してきたイオンが下流の検出器に届くのを防いでいる。

キャピラリーホルダーの入口には、0.6 mm ϕ のアパーチャーが取り付けられている。また、キャピラリーの出口から下流 300 mm には二次元位置敏感型検出器(PSD : Position Sensitive Detector)が設置してある。PSD はマニピュレーターの前に取り付けてあり、紙面垂直方向に前後可能となっている。PSD を用いることにより、PSD に到達したキャピラリーからの出射イオンの二次元的な位置やパルス波高の情報を得ることができる。

3. 実験

3.1 内壁での電荷分布形成過程

絶縁体であるガラスキャピラリーにおける多価イオンビームに対するガイド効果は、イオン照射によってキャピラリー内壁に電荷分布が形成され、その電荷によるポテンシャルによってイオンが内壁に衝突されることなく出口へと反射されるものと考えられているが、詳細なメカニズムは明らかになっていない。

本研究では、高価数多価イオンビーム照射によるキャピラリー内壁表面の電荷分布形成過程についての知見を得るために、キャピラリーからの出射イオン強度の時間的変化を調べた。

3.1.1 実験方法

実験セットアップは図 4 の通りで、EBIT から引き出してきた多価イオンビームを 10 mm のスリット、0.8 mm ϕ のアパーチャーを介してキャピラリーに入射する。キャピラリーの出口より出射してくるイオンを PSD にて検出する。

そして、出射イオン強度の時間変化のイオンの入射軸からのキャピラリーの傾け角、または入射イオン強度に対する依存性を調べた。

3.1.2 結果と考察

図 5(a)は 50 μm ϕ のアパーチャーにイオンを入射したときの出射イオン強度の時間変化である。時間的に、強度が変化せず、ほぼ一定を保っていることが分かる。アパーチャーからの出射イオン強度を測定することによって、キャピラリーに入射するイオン強度を見積もることができる。

キャピラリーからの出射イオン強度の時間変化を図 5(b)-(e)、図 7 に示す。図の横軸は、イオンビームがキャピラリーに照射され始めた時刻をゼロとしており、イオンビームの照射時間を示している。縦軸は 1 秒間にキャピラリーから何個のイオンが出射してきたかを示している。

キャピラリーからの出射イオン強度の時間変化は、アパーチャーからのそれとは異なり、立ち上がり数十秒にかけて、徐々に強度が増加していつていることが分かる。この出射イオン強度の時間変化の振る舞いを式 3.1 でフィッティングを行い、立ち上がりの振る舞いを調べた。

$$J_{\infty} \cdot \left[1 - \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau}\right) \right] \quad (3.1)$$

J_{∞} は出射イオン強度が飽和したときの値を示している。 τ は立ち上がりの振る舞いを示す時定数を表しており、 t_0 はイオンが出射してくるまでの遅延時間を示している。

以下に、(1)キャピラリーの傾け角依存性と(2)入射イオン強度依存性について考察を示す。

(1) 傾け角依存性

キャピラリーの入口への入射イオン強度を一定 ($J_{in} = 650 \text{ cps} / 50 \mu\text{m} \phi$) とし、キャピラリーのイオンの入射軸からの傾け角 θ_i を $-1^{\circ} \sim +0.25^{\circ}$ と変化させたときの、出射イオン強度の時間変化を図 5(b)-(e) に示す。また、式 3.1 でフィッティングを行った結果を表 1 に示した。

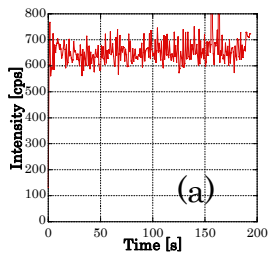
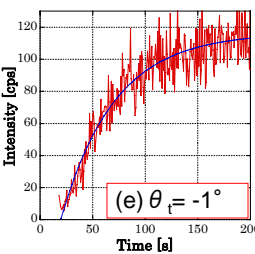
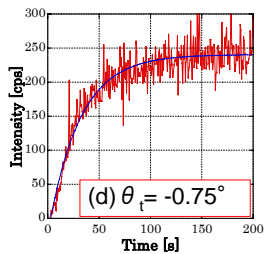
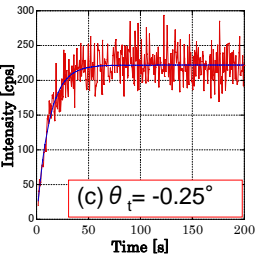
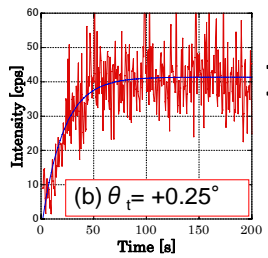


図 5 : アパーチャー(a)、
またはキャピラリー
(b)-(d)からの出射イオン
強度の時間変化の傾け
角依存性



	J_{∞} [cps]	t_0 [s]	τ [s]
(b)	41 ± 0.59	1.8 ± 1.4	20 ± 2.3
(c)	220 ± 1.4	0.22 ± 0.68	12 ± 0.92
(d)	240 ± 1.8	2.9 ± 0.83	31 ± 1.5
(e)	120 ± 1.8	20 ± 1.3	51 ± 3.0

表 1 : 図 5 における出射イオン強度の時間変化を
式 3.1 でフィッティングした結果 (値±標準誤差)

式 3.1 でフィッティングを行った際の時定数 τ と遅延時間 t_0 に注目してみると、キャピラリーの傾け角 θ_t の増大とともにそれぞれ増加する傾向にあることが分かる。

ここで、遅延時間 t_0 と入射イオン強度 J_m の積である照射積分イオン密度 $Q_d \equiv J_m \cdot t_0$ [counts/ mm²] と、立ち上がり時定数 τ と入射イオン強度 J_m の積である特性積分イオン密度

$Q_c \equiv J_m \cdot \tau$ [counts/ mm²]、さらにそれらの和である飽和積分イオン密度 $Q_{\infty} \equiv Q_d + Q_c$ を定義する。 Q_d は、キャピラリー内壁に電荷分布が形成されて、そのガイド効果によりイオンがキャピラリーから出射してくるまでにキャピラリー内壁の 1 mm² あたりに照射したイオン数である。 Q_c は、イオンが出射し始めてから、時定数の τ 秒間、つまり出射イオン強度が最大値に対して約 2/3 に達するまでにキャピラリー内壁の 1 mm² あたりに照射したイオン数である。そして、 Q_{∞} はそれらの和であるから、この値が大きい程、出射イオン強度が飽和するまでにキャピラリー内壁に供給された電荷量が多いことを示している。この Q_{∞} を傾け角 θ_t の大きさを横軸としてプロットしたのが図 6 である。傾け角 θ_t の大きさの増大とともにこれらの値も増大していることが分かる。

これは、入射イオン強度一定で、傾け角を大きくすると、イオン強度が最大に達するために必要なキャピラリー内壁の電荷量がより多く必要になることを示している。

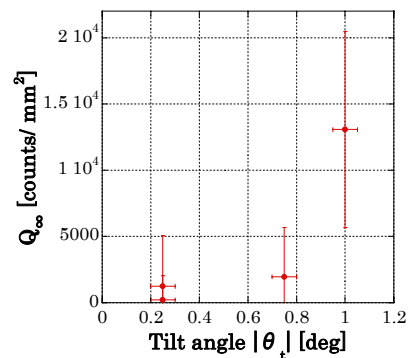


図 6 : 飽和積分イオン密度 Q_{∞} の
傾け角 θ_t に対する依存性

(2) 入射イオン強度依存性

キャピラリーのイオンの入射軸からの傾け角を一定 ($\theta_t = -0.25^\circ$) として、入射イオン強度 J_m を変化させたときの出射イオン強度の時間変化を図 8 に示す。また、式 3.1 でフィッティングを行った結

果を表 2 に示した。

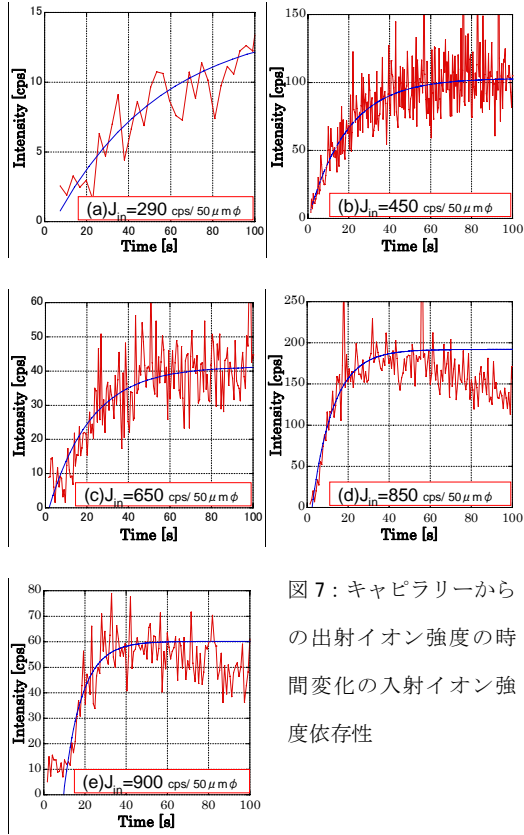


図 7 : キャピラリーからの出射イオン強度の時間変化の入射イオン強度依存性

	J_{∞} [cps]	t_0 [s]	τ [s]
(a)	14 ± 0.19	4.6 ± 4.6	51 ± 6.8
(b)	100 ± 1.4	0.18 ± 1.3	19 ± 1.9
(c)	41 ± 0.59	1.8 ± 1.4	20 ± 2.3
(d)	190 ± 6.8	2.4 ± 0.42	10 ± 1.3
(e)	52 ± 0.85	12 ± 0.74	4.7 ± 1.1

表 2 : 図 7 における出射イオン強度の時間変化を式 3.1 でフィッティングした結果 (値±標準誤差)

Q_{∞} を横軸を入射イオン強度 J_{in} としてプロットしたのが図 8 である。 J_{in} を変化させても Q_{∞} はあまり変化していないことが分かる。これは、入射イオン強度に関わらず、傾き角が一定の下では、出射イオン強度が最大に達するまでに必要なポテンシャルが一定となることを示している。

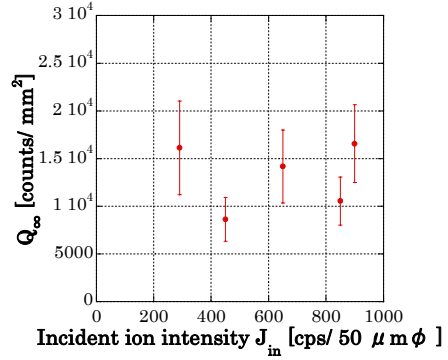


図 8 : Q_{∞} の J_{in} に対する依存性

3.2 イオンビームの偏向角測定

1.3 節で述べたガイド効果は、イオン照射により形成されたキャピラリー内壁の電荷分布によって、入射イオンが偏向され、キャピラリーをイオンの入射軸から数°程度傾けても入射したイオンを出射させることができる効果である。このガイド効果が高価数多価イオンビームでも起こりうるか確かめるために以下のような実験を行った。

3.2.1 実験方法

3.1.1 節と同様に EBIT から引き出してきた多価イオンビームをキャピラリーに入射し、出口より出射してくるイオンを PSD にて検出する。

マニピュレーターでキャピラリーを少しずつ傾けながら、PSD 上のスポットについて調べた。

3.2.2 結果と考察

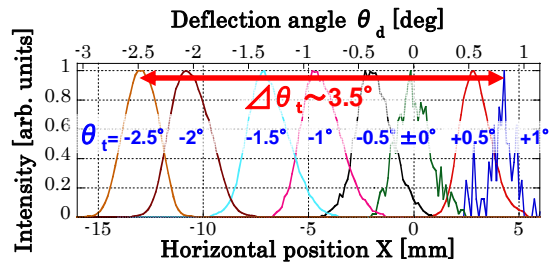


図 9 : ガイド効果によるイオンビームの偏向

図 9 はキャピラリーの傾け角 θ_t を変化させたとき、PSD にて検出した出射イオンの二次元像を水平方向への射影したものである。下の横軸は、検

出器上の水平方向の位置で、上の横軸は、その位置を偏向角 θ_d に直したものである。なお、使用したガラスキャピラリーの幾何学的許容角の幅は 1.2° 程度で、ガラスキャピラリーに入射する際のビーム拡がりは $\pm 0.1^\circ$ 程度である。

図9を見てみると、偏向可能角 $\angle\theta_t$ が 3.5° 程度となっており、幾何学的許容角を大きく上回っている。また、傾け角 θ_t と反射角 θ_d の値に注目してみると、 $\theta_t \sim \theta_d$ となっていることが分かる。これは、キャピラリーを傾けた方向にイオンビームが偏向されていることを示している。これは、絶縁体であるガラスキャピラリーによる多価イオンビームのガイド効果を確認できたといえる。

3.3 入射イオンと出射イオンの価数分布

高価数多価イオンビームを用いた場合の、キャピラリーにおける入射・出射前後でのイオンの価数分布の変化について調べるために実験を行った。

3.3.1 実験方法

3.1.1節と同様にEBITから引き出してきた多価イオンビームをキャピラリーに入射し、出口より出射してくるイオンをPSDにて検出する。PSDにて、出射イオンのパルス波高分布を測定した。

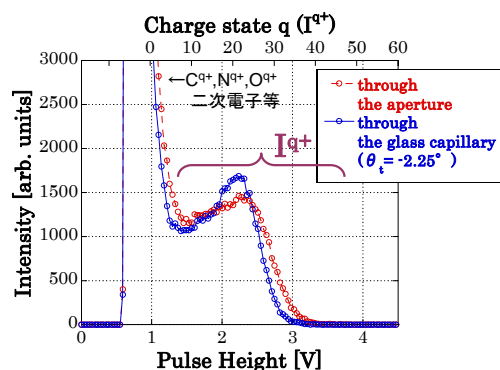


図10：出射イオンのパルス波高分布

図10は、 $50\ \mu\text{m}$ φアパーチャー、またはキャピラリーからの出射イオンのパルス波高分布の一例である。アパーチャーからの出射イオンの波高分布はキャピラリーに入射するイオンの波高分布と

考えることができ、キャピラリー通過後のイオンの波高分布と比較することで、入射・出射前後での波高分布を比較することができる。下の横軸は、波高の大きさをVoltを単位として表したもので、上の横軸は、その波高の大きさをイオンの価数に変換したものである。縦軸は、各波高における強度を示しており、ため込み時間はともに同じで150秒となっている。図10のパルス波高分布において、1V付近の波高は主に、 C^{q+} 、 N^{q+} 、 O^{q+} や二次電子等の波高の集まりで、2V付近をピークとする波高がヨウ素多価イオンのものである。

図10から、アパーチャーからの出射イオン同様に、キャピラリーからの出射イオンにもヨウ素の多価イオン($q \sim 20-30$, $q_{\text{max}} \sim 50$)が出射してきていることが分かる。これまでは通過が確認されたイオンの最高価数は $q = 8$ [2]であるから、これまでの報告例の中で最も高い価数のイオンのガラスキャピラリー通過を確認することができた。

4. 総括

ガラスキャピラリーによるイオンビームの集束法に注目し、電通大Tokyo-EBITによって生成した多価イオンを用いて、高価数領域でのガラスキャピラリーに対する通過特性を調べた。

本研究で、高価数多価イオンビームに対するガラスキャピラリーのガイド効果を確認し、ガラスキャピラリーの有用性を確認した。

今後、ガラスキャピラリー通過特性をより詳細に調べながら、多価イオン-絶縁体表面の相互作用についての知見を得つつ、ガラスキャピラリーによる高価数多価イオンのマイクロ・ナノビーム生成法の可能性を探っていききたい。

参考文献

- [1] F.J. Currell *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 3186 (1996).
- [2] T. Ikeda *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 163502 (2006).