

解禁時間（テレビ、ラジオ、インターネット）：令和XX年x月x日（x）x時
（新聞）：令和XX年x月x日（x）付朝刊

2020年12月25日

報道関係者各位

奈良先端科学技術大学院大学
大阪大学 産業科学研究所

世界初！原子サイズの高精度で乱れのない立体表面の作製に成功 ピラミッドの形状が生み出す特殊な磁気特性の創出可能 ～3次元電子デバイスの高密度化、新機能開発に期待～

【概要】

奈良先端科学技術大学院大学（学長：横矢直和）先端科学技術研究科 物質創成科学領域のイルミキモフ・アイダールさん（博士後期課程2年）、パマシ・リリアニーさん（博士後期課程2年）、服部賢准教授、細糸信好准教授らの研究グループは、大阪大学 産業科学研究所の服部梓准教授、田中秀和教授、大坂藍特任助教（常勤）、中国 大連交通大学の郭方准教授らと共同研究を行い、最も重要な半導体材料であるシリコン（Si）基板上に、表面の凹凸の深さが0.1nm（nmは10億分の1メートル）と原子サイズの超高精度で乱れのない原子配列構造を持つピラミッド形の物質を作製する方法の開発に世界で初めて成功しました。また、そのピラミッド斜面上に作製した鉄ナノ薄膜は、特異な磁石の性質（強磁性特性）を示すことを見出しました。この現象はピラミッド立体構造という特殊な形が生み出す、電子の磁石の性質（磁気スピン）の状態変化に由来していることを突き止めました。

2次元の平坦な基板表面と異なり、次元性が増した3次元立体表面では、最表面の凹凸をnmオーダーで制御することは困難で、実現していませんでした。本研究では、経験則で発達してきたシリコンの立体加工作製方法を、結晶学と表面科学的なアプローチを駆使して高度化することで、従来の限界を超え、実現しうる最高の平坦性、すなわち、原子配列構造を持つ立体表面を達成しました。

試料形態を自在に操ることができれば、新たな物性を生み出すことができます。磁性ナノ薄膜をピラミッド形状にすると、その頂上に捕獲される磁化渦という磁気スピンの渦まいて配列する構造が創り出す特異な磁気特性について理論計算で予見されていましたが、今まで高品質な立体試料が作製できなかったため、実験的に確かめられていませんでした。

本研究で実証した理想表面を持つ立体構造を用いた0.1 nm精度の物づくりと、3次元形態制御による物性を変化させる技術の実現は、3次元立体空間での自在な形状制御がもたらす新機能特性という新しいプラットフォームでの物性開拓の推進を可能とし、ナノ材料科学分野の発展へと貢献していきます。また、あらゆる方向に広がる立体表面の原子制御技術は、立体化、集積化がますます進むIOTデバイス開発において必須であり、ナノ立体構造化デバイス工程の基幹技術の一つとなると期待されます。

本技術の詳細は、米国時間の202x年x月x日（x）午前x時【プレス解禁日時：日本時間202x年x月x日（x）午後x時】付で米国の学術誌「ACS Crystal Growth & Design」に掲載されます。なお、本研究は一部、科研費（18H01871, 20H02483）、JST A-STEP（JPMJTM19CM）、物質・デバイス領域共同研究拠点（20180410, 20194015, 20203017）等の支援を得て行われました。

つきましては、関係資料を配付いたしますので、取材方よろしくお願いたします。

【ご連絡事項】

本件につきましては、奈良先端科学技術大学院大学から奈良県文化教育記者クラブをメインとし、学研都市記者クラブ、大阪科学・大学記者クラブへ、大阪大学産業科学研究所から文部科学記者会、科学記者会に同時にご連絡しております。

【背景】

立体構造化試料の精密な作製は、物質科学、デバイス工学といった科学分野だけでなく、実際の IOT デバイス技術の革新に直結する重要な課題です。シリコン加工技術の中で、薬剤により腐食させるエッチング技術を用いたデバイスの三次元立体加工では、加工後の立体表面の平坦性や清浄度の確保は高機能性デバイスを構築するうえで重要な要素です。しかしながら、現時点ではこれを達成する立体表面の加工評価技術の確立が遅れています。一般的に使用される走査電子顕微鏡 (SEM) は、ナノメートル程度の分解能しかないため微細な評価はできません。また、これまで 2 次元平坦試料をターゲットとして発展してきた表面科学的手法を、3 次元構造試料へとそのまま適応することが難しいため、立体構造試料上に存在する立体表面に対しての原子精度での立体表面の作製・評価技術の基盤は整っておらず、立体表面を用いた原子精度のモノ作りは実現していませんでした。

【加工評価技術】

結晶は、結晶格子の幾何学的規則性を反映して結晶面を持ちます。本研究では、立体構造化にあたり結晶面の配列を考慮して、つまり形態をデザインすることで、Si 基板上に安定した原子配列表面構造をもつ結晶面から形成されたピラミッド構造の作製を実現しました (図 1)。作製したピラミッド構造は、基板表面の垂直方向に対して 54° の傾斜を持っており、4 つの斜面 (ファセット斜面) によって四角錐のピラミッド構造が構成されています。原子レベルで制御したピラミッド構造の実現のために、写真印刷技術のフォトリソグラフィとドライエッチング、ウェットエッチング、真空加熱を組み合わせた作製技術を開発しました。これはデバイス加工に用いられるリソグラフィ・パターニング処理、ドライエッチング処理に加え、結晶面の化学反応性を考慮したウェット処理、更に超高真空における表面作製加熱処理を連結して行うことで、試料基板の 3 次元立体加工、および立体加工した表面凹凸の原子精度制御を実現し得る技術と言えます。

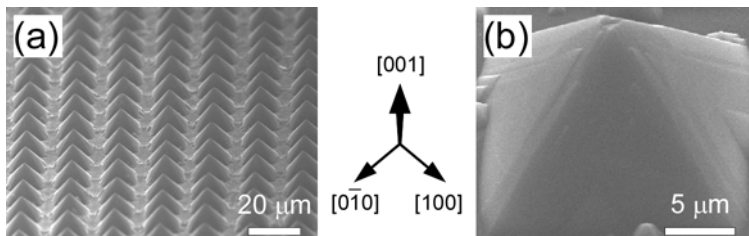


図 1 作製した Si ピラミッド (ウェットエッチング後) の (a) 全体と (b) 拡大した SEM 像。4 つの斜面は $\text{Si}\{111\}$ ファセット表面に対応している。

ナノメートル程度の分解能の SEM 観察 (図 1) からは、立体の 4 つのファセット斜面の表面構造を原子精度で観察することはできません。そこで本研究では、表面原子構造評価技術として、表面科学的アプローチの一つである低速電子線回折 (LEED) 法 (※1) を用いました (図 2)。これは電子の波の性質を利用し、電子線を表面原子に当てそこからの散乱した電子の干渉回折パターンを測定する手法で、もし表面が原子レベルで平坦で原子が周期的に配列していれば明瞭な回折スポットが現れます。従来の表面科学では 2 次元平坦基板表面が研究対象でしたが、本研究では 3 次元立体のファセット斜面の表面構造評価に適用しました。ピラミッド構造を取ったファセット斜面表面からの LEED 回折パターンは、従来の 2 次元基板表面からのパターンとは異なり、3 次元立体性ゆえに複雑になります。これを回折理論で用いられるエバルト球 (※2) という計算上の図形とピラミッド構造の関係から解析することにして、理論的シミュレーションを行いました (図 3)。その結果、観察された非常に複雑な 4 回対称の LEED パターンが、立体構造からのファセット面表面の逆格子ロッド (※2) とエバルト球との交

点で全て説明できることを明らかにしました。ファセット表面はSi {111}と表される4方向の面であり、平坦表面と同様の構造である「7×7超構造」(※3)を示すことがわかりました。

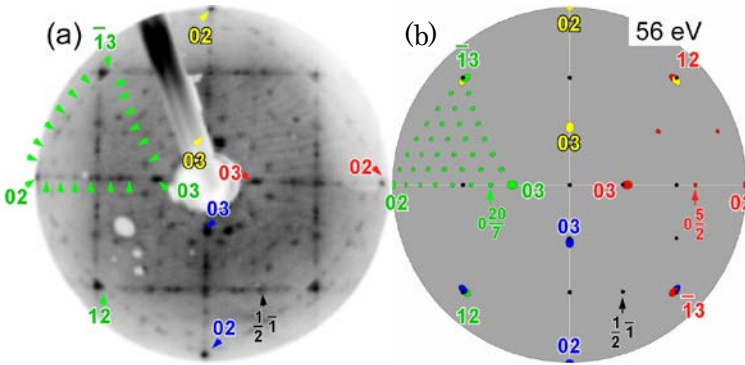


図2 (a) 4回対称のSi{111}ファセット面からのLEEDパターン実験結果と(b)シミュレーション結果。異なる色が各面に対応する。02などの数字は1×1基本スポットの指数を表示している。但し、緑矢印や緑点は7×7超構造スポットを表して

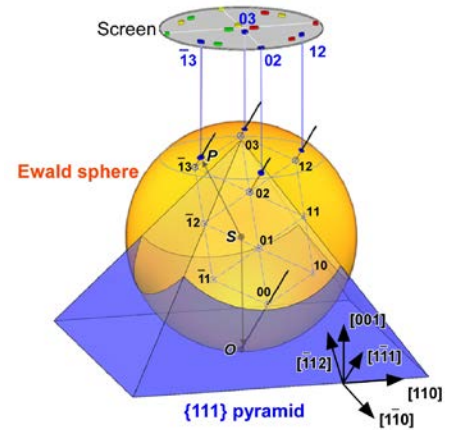


図3 LEEDパターンに反映されるピラミッドファセット表面の逆格子ロッドとエバルト球との交点の模式図。

【三次元立体科学】

原子レベルでオーダーしたファセット表面は、原子精度のモノづくりのプラットフォームとなります。そこでは今まで出来なかった原子レベルで制御された三次元立体形状そのものが導く新奇なサイエンスが期待できます。本研究では、モーター磁石やスピントロニクスデバイスなど次世代材料への展開を見据えて、三次元立体形状の磁気物性に注目しました。本研究では、この清浄化したSi {111} 7×7超構造ファセット表面上に、高品質な2nm~50nmの強磁性体Feナノ薄膜および半導体ナノ薄膜の成長を実現しました。そしてピラミッド構造上に成長させたFeナノ薄膜は、特異な強磁性特性を示すことを実験的に見出しました。

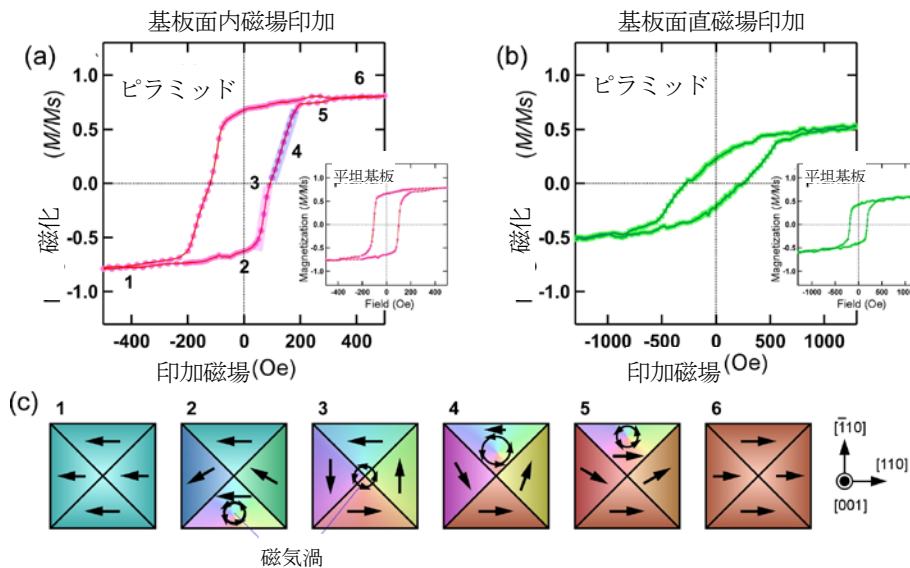


図4 ピラミッド形状をもつ30 nm-Feナノ薄膜の磁化(縦軸)と印加磁場(横軸)の関係。(a)基板面内方向に磁場印加、(b)基板面垂直方向に磁場印加。(c)面内磁場印加の場合の各磁場(図aの1~6)における磁化の模式図。磁化渦(vortex)がピラミッド頂上に捕獲される傾向にある。

図 4 は 30nm-Fe ナノ薄膜を清浄化された Si {111} ピラミッドに成長させ、立体ピラミッド形状の磁性ナノ薄膜の磁化と印加磁場の測定結果を示しています。図 4 (a) から分かるように、磁化-磁場曲線 (※4) は強磁性特有のヒステリシス (履歴) を描いていますが、点 3 で曲線が変曲しています。これは形や構造によって物性が変化する形状磁気異方性によるもので、ピラミッドの各面をつなぐエッジ (頂点) で磁氣的秩序構造が変調されるためであると考えられます。これまで理論計算で、立体面での磁化過程において、非対称的な磁気渦 (magnetic vortex) 状態が生み出され、渦の移動が異方的な立体形状によって異なり、ピラミッド頂上に捕獲され易い効果が出現することが予想されていましたが、本研究ではそれを初めて実験的に明らかにしました。

【研究成果のまとめ】

- * 多角的、融合的な表面科学的手法の導入により、0.1nm 精度の表面構造観察結果に基づく立体加工プロセスのパラメーターの最適化を可能とし、原子の配列に乱れのない理想的なファセット表面を創り出すことに成功しました。
- * 作製に成功したピラミッドシリコン構造を基盤とした、高品質な鉄ナノ薄膜、機能性半導体ナノ薄膜の作製を実現。成長方向を 3 次元空間へ拡大して形態制御した物質成長に成功し、立体機能性材料のモノ作りのプラットフォームになることを実証しました。
- * 形状を原子制御したナノ磁性体薄膜において、ピラミッド頂上に捕獲される磁気渦が織りなす特異な磁気物性を創出することに成功しました。

【今後の展開】

原子精度の構造評価技術を 3 次元展開することで、これまで実現していなかった形態を制御したモノづくりへと貢献することができます。具体的には、3 次元立体形態の基板立体表面、それを土台としたナノ薄膜の原子レベルでの制御は、立体デバイスなどのモノ作りの基本要素技術になり、ひいては限界が近づいているムーアの法則 (※5) 後の IOT デバイス技術へとつながります。また、立体形態が積極的に関与した未知の物性が出現する新規物性開拓の場を提供することができます。

【用語解説】

- ※1 **低速電子回折 (LEED)** : 表面原子の秩序配列を、電子波の干渉した回折パターンから調べる手法。通常 30~150eV のエネルギーの電子を表面に照射して後方散乱した回折パターンを観察する。表面原子が原子レベルで平坦な面上にあり、乱れなく秩序配列していると、表面周期性を反映した綺麗な回折スポットが現れる。
- ※2 **エバルト球** : 回折理論では、回折の状態を表すスポットは、電子の波長に逆比例する半径をもつエバルト球と表面に垂直で表面原子配列のユニット (単位) 長に逆比例する間隔をもつ逆格子ロッドとの交点からの観察スクリーンへの射影で表すことができる。
- ※3 **Si (111) 7×7 超構造** : 固体の表面は、固体内部とは異なり一方の原子がないため、固体内部とは異なる構造をもつ。Si 結晶の (111) 表面の場合、固体内部から派生する理想的な (二次元) 周期の一つのユニット方向が 7 倍、もう一つの方向も 7 倍となる超構造をもつことが知られている。実格子での長周期構造は、回折スポットに反映される逆格子では 1/7 倍となるため、図 2 では 1/7 次の分数をもつ指数が 7×7 超構造に対応している。
- ※4 **磁化-磁場曲線** : 試料にある方向の磁場を印加した際にその方向に現れる磁化の関係。試料が強

磁性体であれば、印加磁場の行き帰りで磁化応答が変化するヒステリシス曲線をとる。この磁化－磁場曲線の変化を解析することにより、局所的な磁化を議論することができる。

※5 ムーアの法則：集積回路上のトランジスタ数は18か月毎に2倍に増えるという経験則。1960年代から提唱され現在まで、このトレンド（2020年で細線幅が5nm程度）が続いている。しかし細線幅自体の原子サイズでの限界、リーク電流や揺らぎなど種々の問題のため、二次元構造を維持した微細化には限界が見え始めている。

【本プレスリリースに関するお問い合わせ先】

奈良先端科学技術大学院大学 企画・教育部 企画総務課 渉外企画係

TEL：0743-72-5026 E-mail：s-kikaku@ad.naist.jp

大阪大学 産業科学研究所 広報室

TEL：06-6879-8524 E-mail：kouhou-staff@sanken.osaka-u.ac.jp