

超精密単一イオン注入装置におけるイオンダイナミクス研究

ION DYNAMICS STUDY IN AN ULTRAHIGH-PRECISION SINGLE-ION IMPLANTER

百合庸介^{A)}, 宮脇信正^{A)}, 穂坂綱一^{A)}, 細谷青児^{A)}, 石井保行^{A)}, 柏木啓次^{A)}, 島田紘行^{A)}, 山縣諒平^{A)},
佐藤隆博^{A)}, 齋藤勇一^{A)}, 小野田忍^{A)}, 鳴海一雅^{A)}, 室尾健人^{B)}, 伊藤清一^{B)}, 岡本宏己^{B)}

Yosuke Yuri^{A)}, Nobumasa Miyawaki^{A)}, Koichi Hosaka^{A)}, Seiji Hosoya^{A)}, Yasuyuki Ishii^{A)}, Hirotugu Kashiwagi^{A)},
Hiroyuki Shimada^{A)}, Ryohei Yamagata^{A)}, Takahiro Sato^{A)}, Yuichi Saito^{A)}, Shinobu Onoda^{A)}, Kazumasa Narumi^{A)},
Kento Muroo^{B)}, Kiyokazu Ito^{B)}, and Hiromi Okamoto^{B)}

^{A)} Takasaki Institute for Advanced Quantum Science, National Institutes for Quantum Science and Technology (QST)

^{B)} Graduate School of Advanced Science and Engineering, Hiroshima University

Abstract

A research and development study on a compact ion implanter system composed of a laser-cooled ion source and bipotential electrostatic lenses is ongoing toward the realization of the ultrahigh-precision single-ion implantation at QST Takasaki. We aim at the implantation of nitrogen molecular ions into diamond with an irradiation precision of the order of 10 nm to create high-quality nitrogen-vacancy center arrays for the application of quantum technologies. For this purpose, a linear Paul trap (LPT), compatible with the laser cooling technique, is adopted as an ultralow-emittance single-ion source. Single nitrogen ions are sympathetically cooled through laser-coolable calcium ions in the LPT and ejected from the LPT down to the electrostatic acceleration lens system. We investigate the feasibility of the ejection-acceleration-focusing scheme by detail molecular dynamics simulations: Only nitrogen ions can be ejected out of a Coulomb crystal mixed with calcium ions from the LPT maintaining an ultralow emittance and then focused down to the spot size of a few nm at an implantation energy of 14 keV. We also find out the fundamental characteristics of the implanter, such as an achievable spot size and working distance.

1. はじめに

イオン注入は半導体プロセスにおける不純物導入等、比較的低いビームエネルギーで材料改質の用途に広く利用される加速器技術のひとつであり、現在も大電流化や照射野拡大等の開発が進められている[1]。他方、量子デバイスの作製[2, 3]等において、特定の極微小領域へイオンを注入する技術の開発が近年、活発化している[4]。これは低エネルギーマイクロビーム照射の発展形と捉えることができるが、nm レベルの照射精度で、なおかつ、照射イオン数をも制御した究極のイオン照射・注入を実現するには、マスクやビームコリメーション等、従来のマイクロビーム技術に依らない質的に新しい“ナノビーム”形成手法が必要である。

そこで我々は、粒子源として、レーザー冷却技術を用いることで超低エミッタンスイオンの生成や少粒子数の制御が可能となる線形ポールトラップ (LPT) [5]に着目し、量子科学技術研究開発機構 (QST) 高崎量子応用研究所で培ってきたマイクロビーム技術[6]に融合することでイオン注入技術を超高精密化することを発案した。

LPT に捕捉したイオンにドップラーレーザー冷却を適用することでその熱振動を絶対零度近傍 (sub-mK レベル) まで除去でき、最終的にイオンはクーロン結晶化することが知られている[7]。結晶化したイオンのエミッタンスは理論上ほぼゼロであること、また、レーザー誘起蛍光により少数個のイオンを直接観測できることから、LPT を超高品質単一イオン源として用いるというのが本研究のアイデアである。トラップ軸方向の閉じ込めポテンシャルを適切に操作することにより、超低エミッタンス化され

たイオンを一つ一つ個別に引き出す。引き出されたイオンは、静電バイポテンシャルレンズ (静電加速レンズ) で必要なエネルギーへ加速するとともに、nm オーダーのスポットへ強力に集束する。

具体的な応用として、量子中継や量子センシング等に用いられるダイヤモンド NV センター (ダイヤモンド中で窒素原子と空孔からなる複合欠陥) [4]の精密な作製のため、10 nm オーダーの極めて高い照射精度での窒素イオンの注入を目指す。直接レーザー冷却が困難な窒素イオンの精密な注入を可能とするため、レーザー冷却可能なイオン (本研究では、⁴⁰Ca⁺イオンを採用) とのクーロン相互作用を通じた共同冷却および混合クーロン結晶化[8]を行う。これにより、原理的には任意のイオン種の超低エミッタンス化が可能である。

そこで、これまでに進めてきた LPT[9-11]および静電加速レンズ[12]の要素検討結果に基づき、LPT における混合クーロン結晶の生成、LPT からの窒素イオンの選択的な射出、静電レンズ系における加速および集束という単一イオン注入装置としての一連のスキームが成立することを、系統的な分子動力学シミュレーションにより調べた。その結果、共同冷却により Ca⁺のドップラー限界温度近傍まで冷却され超低エミッタンス化された窒素分子イオンを有意な加熱なくトラップから選択的に射出し、10 keV 級のエネルギーに加速するとともに数 nm のスポットサイズに集束することが可能であることが示された。加えて、ワーキングディスタンス等の本装置の集束特性を明らかにした。本稿では、これらのシミュレーション研究の結果について報告する。

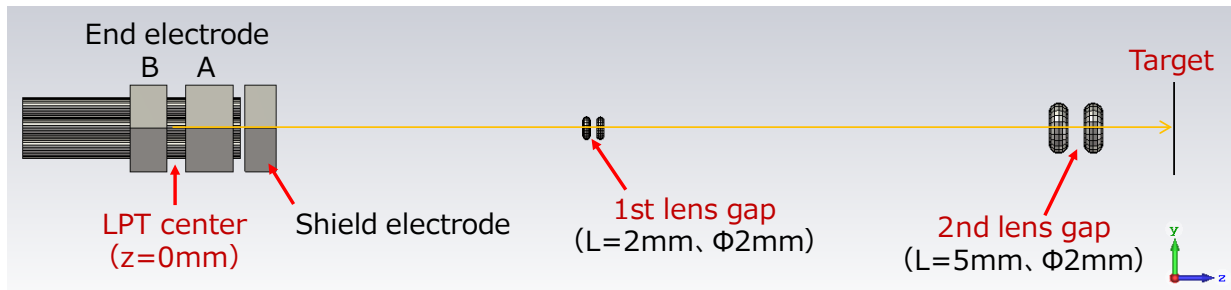


Figure 1: Schematic layout (simulation model) of the single-ion implanter system under development.

2. 精密イオン注入装置

開発中の精密単一イオン注入装置の概略図を Fig. 1 に示す。本装置は主としてイオン源とするLPTと2段の静電加速レンズから成る。トラップの中心から加速レンズの末端までの長さは約 30 cm である。ダイヤモンド試料に深さ 10 nm 程度で窒素イオンを注入することを目標に、本装置では注入核種として窒素分子イオン $^{14}\text{N}_2^+$ を採用し、その加速(注入)エネルギーは 14 keV (= 7 keV/atom) とした。窒素イオンは、直接レーザー冷却が可能な代表的なイオン種である $^{40}\text{Ca}^+$ (主要な冷却遷移波長 397 nm) とともに同時に LPT に捕捉し、共同冷却により超低エミッタンス化する。

イオントラップやレーザー冷却システムの仕様・構成は、 Ca^+ でレーザー冷却、クーロン結晶の生成および射出の実績がある広島大学のシステム[13]に準じた。横方向(x または y 方向)の閉じ込めを行う4本の円筒形ロッド(半径 3.44 mm) がトラップ軸方向(z 方向)に沿って四重極対称に配置(軸からロッドまでの最短距離は 3 mm)される。トラップ軸方向の閉じ込めを行う2つの端板 A、B 間の距離は 6 mm である。典型的には、四重極ロッドに印加する高周波 ($2\pi \times 2.0$ MHz) 電圧の振幅 V_{RF} は最大数十 V 程度、端板 DC 電圧 $V_{\text{A(B)}}$ は最大数 V 程度である。例えば、 $V_{\text{RF}} = 30$ V、 $V_{\text{A}} = V_{\text{B}} = 0.5$ V とすると、 Ca^+ の永年振動数は、横方向 140 kHz、軸方向 33 kHz であり、RF1 周期 (0.5 μs) 当たりのチューンは横方向 0.071、軸方向 0.016 に相当する。

数 mK 程度以下まで冷却されると、捕捉されたイオン群はクーロン結晶状態へと相転移する[7]。上述の閉じ込め条件で数個の Ca^+ を捕捉し冷却した場合、z 方向にほぼ等間隔に整列した紐状の結晶構造が形成される。粒子数が増えるとともに、結晶構造は、2次元的に配置するジグザグ構造を経て、3次元的に配置する殻構造となる[14]。複数のイオン種を含む異種混合イオンについてもクーロン結晶の生成は可能で、粒子数が十分に多い場合、それらの質量対電荷比に応じた構造を取ることが知られている[15]。

LPT から射出されたイオン(射出の具体的な手順や要件は次章以降にて述べる)の加速および集束には、高い縮小率が実現可能で、100 nm への集束の実績[16]がある。2段のバイポテンシャルレンズシステムを採用した。球面収差の発生を低減するために、第1(第2)レンズは、加速ギャップ長 2.0 mm (5.0 mm)、ボア直径 2.0 mm (2.0 mm) とし、LPT の中心から第1(第2)レンズギャップの中心までの距離は 136.0 mm (293.25 mm) とした[12]。

3. 単一イオン射出・注入スキーム

LPT に捕捉された冷却イオンを個別に射出するには、軸方向の閉じ込めを担う端板電極を適切に制御しなければならない。これまでの研究により、 Ca^+ と窒素イオンから成る混合クーロン結晶から注入対象である窒素イオンのみを超低エミッタンス(規格化エミッタンスで 10^{-16} m \cdot rad オーダー)のまま LPT から射出するための条件を明らかにした[9-11]。

すなわち、少数個のイオンからなる紐状混合クーロン結晶を用いる場合、注入対象である窒素イオンが1個のみ含まれ、なおかつ、引出方向の先頭(端部)に配置していなければならない。下流側端板(または上流側端板も併用して)の電圧を高速にスイッチ(降圧および昇圧)することで、後続の Ca^+ は射出させず、先頭の窒素イオンのみを射出し後段の加速レンズ系へ導くことができる。

あるいは、紐状構造の代わりに殻構造の混合クーロン結晶を用いることも可能である[10]。質量対電荷比の違いのために、粒子数や閉じ込め電圧の適切な条件下で、 Ca^+ は横方向に広がった殻構造を呈し、窒素イオンはトラップ軸上で紐状に配列しかつ軸方向前後に突き出すような構造を自然に取る。上流側端板の閉込電圧をゆっくりと高めることで、冷却イオンの平衡位置を下流側へ徐々にシフトさせ、先頭に配置した窒素イオンが下流側端板のポテンシャル障壁を越えることで断熱的な射出が可能である。いずれの場合にも、射出される窒素イオンの他イオンとのランダムなクーロン衝突は抑制され、結晶状態の超低エミッタンスをほぼ保ったまま射出が可能である。

後段の静電加速レンズにて適切に集束を行うためには、射出された超低速のイオンに数百 eV の初期運動エネルギー E_0 を付与する必要がある。端板電圧の高速スイッチによる射出の場合、 V_{A} を 2 kV 程度まで昇圧させる。断熱的射出の場合には、端板 A の直後にある加速レンズを接続するための板(第1加速レンズの入口側電極まで同電位)に負電位(-数百 V)を印加し、静電的に引き出す。

(次章で述べるように、)静電加速レンズのギャップ間電位差は、第1レンズ(V_1)で約 2 kV、第2レンズ(V_2)で約 11 kV とすることで、集束系の球面収差を抑えながら、適度なワーキングディスタンス(第2レンズ下端から標的までの距離)を確保することとした。

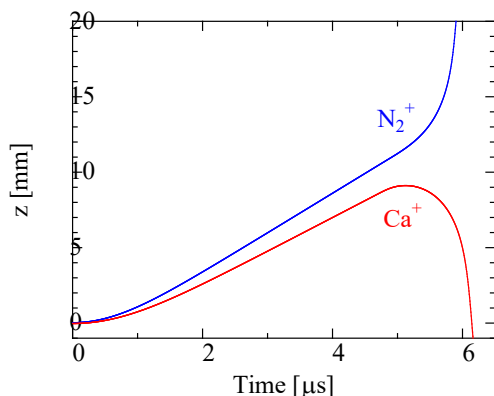


Figure 2: Temporal evolution of the axial position z of the two ions. The origin of the abscissa is the time when the prompt voltage ramping of the end plate electrode B from 0.5 V to 20 V is initiated. The voltage V_A of the end plate electrode A is promptly ramped from 0.5 V to 1.8 kV at 4.7 μ s to accelerate the leading N_2^+ ion and reflect the following Ca^+ ion backward.

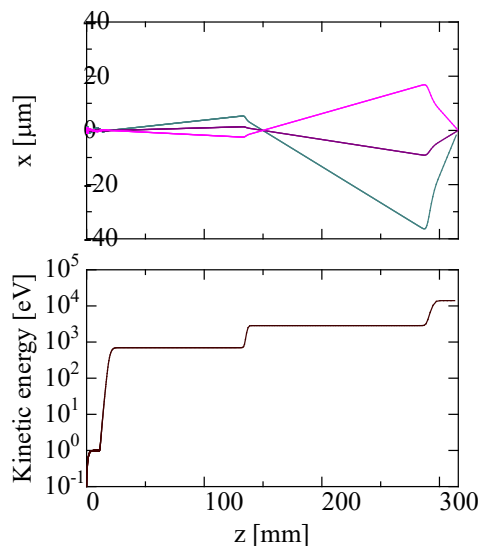


Figure 3: Particle orbit of arbitrary three N_2^+ ions ejected from the LPT and the kinetic energy of the ions along the path.

4. イオン射出・集束シミュレーション

4.1 分子動力学シミュレーションについて

LPT におけるイオンの捕捉・冷却、射出および加速レンズにおけるイオンの振舞いを調べるために分子動力学シミュレーションを実施した。LPT や静電レンズが作る外部集束場は、設計した電極の構造や配置を基に CST Studio Suite [17]を用いて静電ポテンシャルより求めた。粒子間に働くクーロン力は2粒子間のポテンシャルを全てのペアについて足し合わせ、正確な粒子間相互作用を考慮した[13, 10]。これらの外場および自己場の下で実粒子の3次元の運動方程式をシンプレクティックに数値積分することでイオン群の振舞いを追跡した。

レーザー冷却では個々のイオンの速度とレーザーの周波数や強度に応じて確率的に光子の吸収・放出が起こるが、ここでは簡単のため、イオンに与える散逸力はイオンの運動量を一定の割合で減じることでレーザー冷却を模擬することとした。ただし、ドップラー限界(Ca^+ の場合、0.54 mK)等、一定の平衡温度が実現されるようランダムな拡散の効果も取り込んだ。

射出された単一イオンの特性を統計的に評価するため、同じ初期条件で異なる乱数の種を用いた独立のシミュレーションを 100 回実施した。

4.2 高速スイッチングによる分離・射出

まず、 Ca^+ と N_2^+ から成る紐状混合結晶から、端板電圧を高速にスイッチさせ、 N_2^+ を射出する場合の結果を示す。ここでは、 Ca^+ 、 N_2^+ 各 1 個で構成される最も単純な 2 粒子結晶(前述のとおり、 N_2^+ が射出側に配置する)を考える。LPT の閉込電圧は、 $V_{RF} = 30$ V、 $V_A = V_B = 0.5$ V とした。ドップラー限界温度まで冷却した Ca^+ を通じた共同冷却により N_2^+ もほぼ同じ温度まで冷却された。このとき、結晶状態の 2 粒子間距離は約 50 μ m であった。

LPT から射出された 2 粒子の z 位置の経時変化を

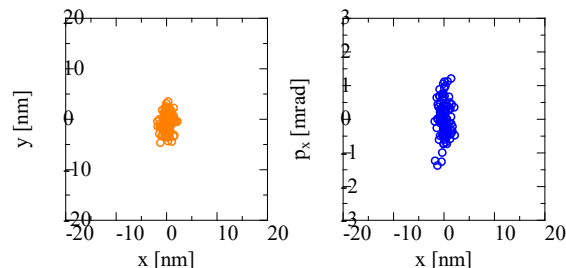


Figure 4: Transverse cross-sectional and phase-space distribution of the N_2^+ ions near the waist position ($z = 315.938$ mm). The results of 100 independent simulation runs are plotted. Single N_2^+ ions sympathetically cooled with Ca^+ are ejected from the LPT by switching V_A promptly and then accelerated up to 14 keV through the two-stage bipotential lens.

Fig. 2 に示す。上流側端板 B の電圧 V_B を 0.5 V から 20 V へ瞬時(10 ns)にスイッチし、極低温の 2 粒子を下流側へ押し出す。2 粒子の速度差のため、粒子間距離は徐々に広がっていく。 V_B をスイッチした 4.7 μ s 後に下流側(射出側)端板 A を $V_A = 1.8$ kV \sim 200 ns で高速に昇圧することで、端板 A 内を通過中の先頭の N_2^+ は 700 eV の初期運動エネルギー E_0 を得ながら下流へ輸送される (Fig. 3 下図を参照)。他方、後続の Ca^+ は端板 A 内で減速され逆方向 ($z < 0$) へ反射される。このようにして、不要なイオンを分離して、先頭に配置した N_2^+ のみを LPT から射出することができる。 N_2^+ のみを射出するためには、端板 A の昇圧タイミングに適切な範囲があることを確認した[11]。

Figure 3 には、射出された N_2^+ の横方向単粒子軌道および運動エネルギーの変化を示す。イオンは、第 1 レンズにより一度集束され大きく広がった後、第 2 レンズで強く集束されスポットを形成する。2 段の加速レンズのギャッ

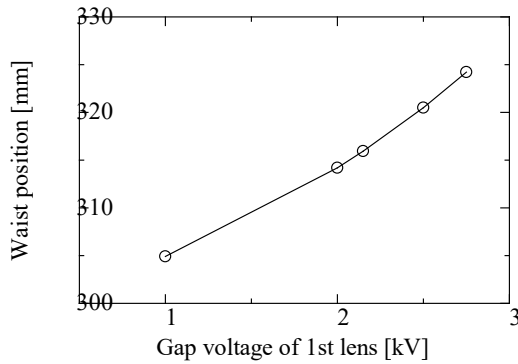


Figure 5: Dependence of the waist position of the focused N_2^+ ions on the gap voltage V_1 of the first bipotential lens. The initial energy E_0 and final energy of the ion is kept at 700 eV and 14 keV, respectively.

プ電位差は、上流側から $V_1 = 2.15$ kV および $V_2 = 11.15$ kV であり、最終エネルギーが 14 keV となる。第2レンズ通過後のウエスト近傍における N_2^+ の分布を Fig. 4 に示す。横方向規格化 rms (二乗平均平方根) エミッタンスは 5×10^{-16} m·rad であり、有意な加熱なく加速できることが示された。また、rms 値で 1 nm の最小スポットサイズが達成可能であることを確認した。現在の加速条件 ($V_A = 1.8$ kV, $V_1 = 2.15$ kV, $V_2 = 11.15$ kV) では、16 mm の適度なワーキングディスタンスが確保できることも分かった。

端板 A の昇圧により付与する初期エネルギー E_0 がより低い場合、加速レンズの球面収差の影響を受けること、より高い場合には集束力が弱まり最小スポットサイズが大きくなること、(第2レンズギャップ電圧 V_2 を下げ) 第1レンズギャップ電圧 V_1 を高めるとワーキングディスタンスが長くなる (Fig. 5) 等の加速システムとしての傾向があることを明らかにした。また、射出開始時 (V_B 昇圧開始時) の四重極ロッドの RF 位相によって標的位置での位相空間分布やスポットサイズが一定程度変化するものの影響は十分小さいことが分かった。

クーロン結晶状態の平衡温度が高くなるとともに射出イオンのエミッタンスが大きくなり、目標の数 nm での照射精度を達成するためには、 Ca^+ および N_2^+ の平衡温度は 4 mK 以下 (規格化 rms エミッタンスでは 3×10^{-15} m·rad 以下) に冷却する必要があることも明らかにした。この温度要件は技術的に十分に達成可能であると考えられる。

4.3 断熱的射出

次に前節とは異なる射出方法として、端板電圧の高速スイッチングを伴わず、イオンを LPT から断熱的に射出する場合を検討した[10]。LPT の閉込条件および元となるクーロン結晶 ($Ca^+ - N_2^+$ の 2 粒子結晶) は前節の場合と同一である。端板 A 電圧 $V_A = 0.5$ V は保持したまま、上流側端板 B 電圧 V_B を 0.5 V から 8.82 V \sim 10 ms かけてゆっくりと昇圧する (昇圧速度は 832 V/s) ことで、断熱的に先頭の N_2^+ のみを射出し、その後、初期エネルギー E_0 を付与するために負電位 (-700 V) を印加した引出電極 (Fig. 1 の Shield electrode) により静電的に引き出した。

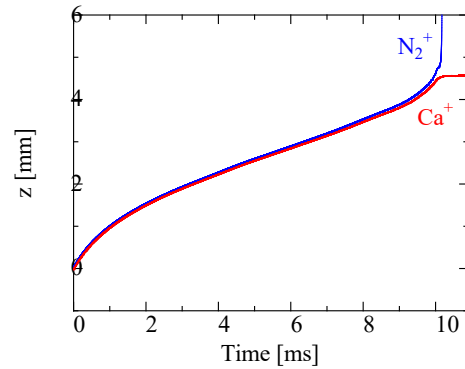


Figure 6: Temporal evolution of the axial position z of the two ions. The origin of the abscissa is the time when the voltage ramping of the end plate electrode B is initiated. V_B has been increased from 0.5 V to 8.82 V for 10 ms while V_A is kept at 0.5 V.

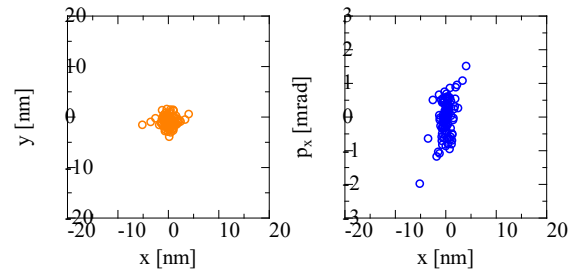


Figure 7: Transverse cross-sectional and phase-space distribution of the N_2^+ ions near the waist position ($z = 315.950$ mm). The results of 100 independent simulation runs are plotted. Single N_2^+ ions sympathetically cooled with Ca^+ are ejected adiabatically from the LPT by increasing V_B and then accelerated up to 14 keV through the two-stage bipotential lens.

Figure 6 に 2 粒子の z 位置の経時変化を示す。前節 (Fig. 2) の場合とは異なり、2 つのイオンは 4.5 mm 付近までほぼ同じ粒子間距離、すなわち結晶状態を維持したまま断熱的に移送される。10 ms の昇圧完了直後に N_2^+ が端板 A の障壁を超え LPT から射出され下流の加速レンズへと輸送される。他方、 Ca^+ は LPT 内に捕捉されたままである。Figure 7 に加速レンズ通過後のウエスト近傍における分布を示す。横方向規格化 rms エミッタンスおよび rms スポットサイズは、いずれも前節の場合とほぼ同等の 6×10^{-16} m·rad, 1 nm であり、断熱的射出の場合にも有意な加熱なく加速・集束できることが確かめられた。射出方法が異なるために加速レンズとしての物点における位相空間分布が厳密には一致しないに関わらず、 N_2^+ が集束される z 位置 (ウエスト位置) の違いは 10 μ m 程度と小さく、ほぼ同じスポットサイズが達成されることが分かった。

構成粒子数が比較的大きい際に形成される殻構造の混合クーロン結晶を用いた場合にも、同様に数 nm のスポットサイズへ集束できることを確認した。

5. まとめ

ダイヤモンドNVセンターの精密配列作製等の量子技術応用を目指して、レーザー冷却に基づいた超低エミッタンス単一イオン注入システムの特性を系統的な分子動力学シミュレーションにより検討した。LPTにおいてCa⁺イオンのドップラー限界温度近傍まで共同冷却したN₂⁺イオンは、高圧パルススイッチングによる速い分離射出、および、断熱的な遅い射出のいずれの場合にも、10⁻¹⁶ m·rad オーダーの極めて低い規格化エミッタンスのまま射出でき、静電加速レンズにより1 nm程度に集束可能である。すなわち、目標とする照射精度が実現可能であることが理論的に示された。さらに、加速電圧や冷却温度等に対する依存性を探索し、装置としての集束特性を明らかにした。

QST 高崎研では、これまでにスタディ用のLPTでCa⁺のクーロン結晶生成を達成した。現在は本注入装置の構築を進めているところである。

謝辞

本研究は、JSPS 科研費 JP20H00145 および JST ムーンショット型研究開発事業 JPMJMS2062 の支援を受けて実施したものである。

参考文献

- [1] See, e.g., MRS Advances 7 (2022) issue 36, <https://link.springer.com/journal/43580/volumes-and-issues/7-36>
- [2] J. Meijer *et al.*, “Towards the implanting of ions and positioning of nanoparticles with nm spatial resolution”, Applied Physics A 91 (2008) 567–571, doi:10.1007/s00339-008-4515-1
- [3] M. Singh *et al.*, “Electrostatically defined silicon quantum dots with counted antimony donor implants”, Appl. Phys. Lett. 108 (2016) 062101. doi:10.1063/1.4940421.
- [4] 根来誠, “量子センシングハンドブック”, (NTS, 2021).
- [5] M. Knoop, N. Madsen, and R. C. Thompson, “Trapped Charged Particles” (World Scientific, 2016).
- [6] S. Kurashima *et al.*, “Irradiation Facilities of the Takasaki Advanced Radiation Research Institute”, Quantum Beam Sci. 1 (2017) 2, doi:10.3390/qubs1010002
- [7] D. H. E. Dubin and T. M. O’Neil, “Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states)”, Rev. Mod. Phys. 71 (1999) 87, doi:10.1103/RevModPhys.71.87
- [8] P. Bowe *et al.*, “Sympathetic Crystallization of Trapped Ions”, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 2071, doi:10.1103/PhysRevLett.82.2071
- [9] N. Miyawaki *et al.*, “線形ポルトラップイオン源からの選択的イオン取出しに関する研究”, Proceedings of the 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 2022, pp. 61-64.
- [10] K. Muroo *et al.*, “Simulation study of ultrahigh-precision single-ion extraction from a linear Paul trap”, Prog. Theor. Exp. Phys. 2023 (2023) 063G01, doi:10.1093/ptep/ptad071
- [11] N. Miyawaki *et al.*, “Calculation study of selective ion extraction from ion source with Paul-trap-type laser cooling device”, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B 542 (2023) 183, doi: 10.1016/j.nimb.2023.06.015
- [12] Y. Ishii *et al.*, “Design of an apertureless two-stage acceleration lens for a single-ion implantation system”, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B 541 (2023) 200, doi: 10.1016/j.nimb.2023.05.021
- [13] K. Izawa, “Controlled Extraction of Ultracold Ions from a Linear Paul Trap for Nanobeam Production”, J. Phys. Soc. Jpn., 79 (2010) 124502, doi:10.1143/JPSJ.79.124502
- [14] R. W. Hasse and J. P. Schiffer, “The structure of the cylindrically confined Coulomb lattice”, Ann. Phys. 203 (1990) 419, doi:10.1016/0003-4916(90)90177-P
- [15] L. Hornekær *et al.*, “Structural Properties of Two-Component Coulomb Crystals in Linear Paul Traps”, Phys. Rev. Lett. 86 (2001) 1994, doi:10.1103/PhysRevLett.86.1994
- [16] Y. Ishii and T. Kojima, “Reduction of the divergence angle of an incident beam to enhance the demagnification factor of a two-stage acceleration lens in a gas ion nanobeam system of several tens of keV”, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B 420 (2018) 12, doi: 10.1016/j.nimb.2018.01.013
- [17] <https://www.3ds.com/products-services/simulia/products/cst-studio-suite/>