



|              |   |
|--------------|---|
| Title        | Syntheses and structural properties of Si nanostructures self-organizingly grown on a Si surface : Si nanowires and Si nanoholes                |
| Author(s)    | 尾崎, 信彦  |
| Citation     | 大阪大学, 2002, 博士論文  |
| Version Type |   |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/43618">https://hdl.handle.net/11094/43618</a>   |
| rights       |   |
| Note         | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

|               |   |
|---------------|---|
| 氏 名           | 尾崎 信彦   |
| 博士の専攻分野の名称    | 博士(理学)  |
| 学 位 記 番 号     | 第 16753 号   |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成14年3月25日  |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第4条第1項該当<br>理学研究科物理学専攻  |
| 学 位 論 文 名     | Syntheses and structural properties of Si nanostructures self-organizingly grown on a Si surface: Si nanowires and Si nanoholes<br>(自己組織的に成長したシリコンナノ構造の生成と構造に関する研究) |
| 論 文 審 査 委 員   | (主査)<br>教授 竹田 精治  |
|               | (副査)<br>教授 大貫 悅睦 教授 野末 泰夫 教授 大山 忠司<br>教授 阿久津泰弘  |

### 論文内容の要旨

シリコン表面上に自己組織的に成長するシリコンナノ構造(シリコンナノワイヤーとシリコンナノホール)に関する研究を行った。

シリコンナノワイヤーの生成は、VLS 機構を利用した自己結晶成長によるもので、最も細いナノワイヤーは直径約 2 nm であった。このシリコンナノワイヤーは、1) 共晶点以上の温度(500°C)でのシリコン表面におけるナノメーターサイズの金シリコン合金液滴の形成、2) 液滴へのシリコン原子の選択的な供給、3) 液滴からの過飽和なシリコンの析出、の 3 つの過程を経て、液滴を押し上げながら成長する。ここで合金液滴は、成長の触媒として働き、そのサイズがワイヤーの直径を決定している。透過型電子顕微鏡法(TEM)と、走査型トンネル顕微鏡法(STM)により、高温での合金液滴の形成過程をその場観察した結果、フッ化アンモニウムにより表面処理を施した Si{111} 面に金を蒸着し、500°Cで熱処理をした場合にナノサイズの合金液滴が形成されることがわかった。生成したナノワイヤーの構造は主にシリコン単結晶で、<112>方向へ成長するものが最も多く、他に<111>や<110>方向へ成長したものが見られた。さらに少数ながらダイヤモンド構造以外の、多形シリコンで構成されたナノワイヤーも存在した。これらの結果は、ナノ合金液滴からのシリコンの析出過程が単一過程ではないことを示している。ナノ合金液滴中では、揺らぎの効果によってさまざまな構造をもつ結晶の核が形成され、その中で比較的寿命の長い複数の種類の核からワイヤーが成長した結果、ワイヤーの内部構造が多様になったと考えられる。さらに、ナノワイヤーにおいては、量子閉じ込め効果が期待できるため、その光物性も調べた。透過型電子顕微鏡(TEM)に可視分光器を組み込んだ装置により、ナノワイヤーからの電子線励起発光(CL)を測定(その場 CL 測定)した。その結果、30K以下の低温において、バルクシリコンからは得られない可視波長領域での CL が観測された。この発光には偏光特性があり、一次元構造のナノワイヤーからの発光であると考えられる。

次に、シリコン表面ナノホール(以下ナノホール)についても研究を行った。ナノホールは、シリコンの薄膜に、高電圧で加速された電子線を照射すると電子線の出射面上に一様に形成される窪み(直径 2 – 3 nm、相互間隔約 6 nm)である。我々は TEM と STM により、ナノホールの形成メカニズムを調べた。TEM 観察の結果、ナノホール形成の素過程は、電子線による出射面上の単一のシリコン原子のはじき出しであることがわかった。また、電子線を照射し続けることによって、ナノホールは直径、相互間隔を維持しながら、電子線入射方向へ深くなる。十分に深くなつたナノホールは TEM により観察されるが、形成初期の浅いナノホールは観察が困難であるため、STM によっ

てナノホールの形成初期過程の観察を試みた。結果、電子線出射面上では、電子線によってわずか数原子層がはじき出された段階でナノホールが形成されることがわかった。以上の結果から、ナノホールの形成および成長は、はじき出しにより出射面上に形成された空格子点が拡散し、ある大きさのクラスターに成長後、更なる電子線照射により空格子点がクラスターの底へ供給されるために起こると考えられる。

### 論文審査の結果の要旨

著者はシリコン表面上に自己組織的に成長するシリコンの極微小構造（ナノ構造）に関する実験的研究を行ない、その成長メカニズムと原子構造を明らかにした。

第一に、直徑が10nm以下の極めて細いシリコン結晶のワイヤー（シリコンナノワイヤー）を、シリコン結晶基板から成長させる方法を確立した。このナノワイヤーは、基板上に生成させた微小な金・シリコン二元合金の液滴を触媒として成長するが、この触媒の生成メカニズムを直接観察実験からほぼ解明した。触媒のサイズがナノワイヤーの直徑を決めており意義深い。触媒からナノワイヤーが結晶成長する際に、揺らぎによって結晶構造には不完全性が導入されることも示唆された。ナノワイヤーにおける量子閉じ込め効果を探査するために、その電子線励起発光（CL）を30K以下の低温において測定して、バルクシリコンからは得られない可視波長領域での偏光したCLを得た。

第二に、シリコン結晶表面に電子線の照射によって生成する細孔（ナノホール）の生成初期の過程を研究した。この細孔の成長は負のナノワイヤー成長とみなせる。ナノホールは電子照射領域に、直徑2-3nm、相互間隔約6nmで同時に多数生成するが、ナノホール形成の素過程は、電子による表面上での単一のシリコン原子のはじき出しであると結論された。さらに、表面の数原子層がはじき出された段階でナノホールの位置とその直徑は決まり、その後、ナノホールの深さが増す過程へと進行することも解明された。以上の現象は、表面における原子と空格子点の拡散によるものとして統一的に解釈された。

最後に、シリコンのナノ構造が自己組織的に形成する現象を総括して、その応用についても議論した。

博士（理学）の学位論文として十分価値のあるものと認める。