

Title	Formation of metal nanoparticles on electron-irradiated silicon surfaces
Author(s)	鳥越, 和尚
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/47629
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。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名	と 鳥 ご 越 か ず 和 ひ さ 尚
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 20844 号
学位授与年月日	平成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科物理学専攻
学位論文名	Formation of metal nanoparticles on electron-irradiated silicon surfaces (電子線照射されたシリコン表面上での金属ナノ微粒子の形成)
論文審査委員	(主査) 教 授 竹田 精治 (副査) 教 授 大貫 惇睦 教 授 田島 節子 教 授 野末 泰夫 助教授 河野日出夫

論 文 内 容 の 要 旨

本研究では、電子線照射されたシリコン (Si) 表面上における金属微粒子の形成について調べられた。清浄化された Si 表面の直径約 100 nm の微小領域が、超高真空透過型電子顕微鏡 (UHV-TEM) 内で電子線によって照射された。電子線照射後、室温にて金 (Au) 原子を表面に蒸着し、アニールすると、照射領域内で直径約 10 nm の Au 微粒子が選択的に成長することを見出した。UHV-TEM を利用することで、その成長プロセスをその場観察によって調べた。また、選択成長した微粒子の構造は、電子線回折法 (TED) や高角円環状検出器暗視野走査型透過電子顕微鏡法 (HAADF-STEM)、エネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX) 等を用いて調べられた。電子線のドーズ量、アニール温度に関して、Au 微粒子のサイズと空間分布が系統的に調べられた。その結果、照射領域内での Au 微粒子の成長位置は、それら実験パラメータを変えることで制御できることが見出された。成長メカニズムを調べるために、微粒子成長の一般的なモデルを、電子線照射によってラフネスを導入された表面上における、吸着原子の拡散と微粒子成長のモデルに拡張した。そのモデルでは、吸着原子の表面拡散の活性化エネルギーは電子線のドーズ量に比例すると仮定された。また、電子線照射によって導入された表面欠陥によって、吸着原子が捕獲される効果を考えた。その拡張されたモデルによって、実験結果を定性的に説明することが出来た。さらに、銅 (Cu)、ニッケル (Ni)、アルミニウム (Al) のような他の金属を用いて、電子線照射された Si 表面での微粒子成長が実験的に調べられた。ナノ構造作成への応用として、照射領域に選択成長させた Au 微粒子を触媒とした、シリコンナノワイヤの vapor-liquid-solid (VLS) 成長を試みた。成長はモノシランを用いた化学気相成長法 (CVD) によって行った。実験の結果、シリコンナノワイヤを照射領域内の Au 微粒子から選択的に成長させることに成功した。CVD プロセスの前後で同じ照射領域を観察することができる利点を活かして、シリコンナノワイヤの成長プロセスとメカニズムを TEM によって調べることができた。このことは、照射領域内で選択成長した Au 微粒子は、ナノ構造形成へ応用できるという利点があるばかりでなく、ナノワイヤなどの 1 次元ナノ構造の成長プロセスやメカニズムを調べるのに役立つことを示している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、典型的な半導体結晶であるシリコン (Si) の表面上における金属原子の拡散について、超高真空透過型電子顕微鏡法 (UHV-TEM) による実験および解析の結果を報告している。著者は、超高真空中の電子照射によってシリコン表面に原子レベルの粗さを導入すると、この表面上に蒸着した金 (Au) 原子は、拡散の結果、特異な空間分布をもつ金微粒子群を形成するという新現象を見いだした。そして、この新現象のメカニズムを議論し、さらに、そのナノテクノロジーへの応用についても検討した。

具体的には、UHV-TEM 内で清浄化された Si 表面の直径約 100 nm の微小領域に電子線を照射した後、室温にて金原子を表面に蒸着し、熱処理を加えると、照射領域内に直径約 10 nm の微粒子が選択的に成長した。選択成長した微粒子は、電子線回折法 (TED) や高角円環状検出器暗視野走査型透過電子顕微鏡法 (HAADF-STEM)、エネルギー分散型 X 線分析法 (EDX) 等を用いて金であると同定した。UHV-TEM によれば、金微粒子の成長プロセスを、その場 (*in-situ*) 観察できるので、電子線量、熱処理温度を変化させたときの金微粒子の粒径と空間分布を系統的に測定した。その結果、照射領域内での金微粒子の成長位置は、上記の実験パラメータによって制御できることを明らかにした。銅 (Cu)、ニッケル (Ni)、アルミニウム (Al) など金以外の金属についても同様の実験を試みたが、本論文の実験条件の範囲内では選択成長は再現できなかった。

以上の実験結果について、平坦な表面での吸着原子の拡散および微粒子成長についての従来のモデルを、電子線照射によって粗さが導入された表面に拡張した。この拡張されたモデルは、実験結果を定性的に説明した。

ナノ構造作成への応用として、照射領域に選択成長させた金微粒子を触媒として、モノシランを用いた化学気相成長法 (CVD) でシリコンナノワイヤを成長させた。電子照射位置は人工的に制御可能であるので、本現象は、シリコンナノワイヤなどの 1 次元ナノ構造の生成位置の制御に応用できることを示した。

よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値あるものと認める。