

氏名(国籍)	ばん 潘	じん 晋(中国)
学位の種類	博士(工学)	
学位記番号	博甲第4846号	
学位授与年月日	平成20年9月30日	
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当	
審査研究科	数理物質科学研究科	
学位論文題目	<b>Self-assembled Nanostructure Formation by Ion Irradiation Combined with Microindentation</b> (微小押し込みと複合したイオン照射による自己組織化ナノ構造の形成)	
主査	筑波大学教授	理学博士 岸本直樹
副査	筑波大学教授	工学博士 村上浩一
副査	筑波大学教授	理学博士 関口隆史
副査	筑波大学准教授	博士(工学) 武田良彦

### 論文の内容の要旨

重イオンビームは、電子、光子等に比べて、非平衡原子導入や核的・電子的エネルギー付与等の特色があり、さらに物質波としては回折が少ないこと、近隣効果が小さいことなど、種々の材料種に亘り、優れた材料プロセッシング技術となる可能性を持っている。イオンビームを基礎とした技術は、原理的には電子ビームや極端紫外光によるリソグラフィ等のナノ加工技術を凌ぐ面がある。イオンビーム技術は、数nmの加工精度を達成し、広範囲のパターン作製技術で柔軟かつ高信頼性の投術を実現することで、半導体デバイスや磁気記録における加工精度の進展(ムーア則)に従い、10nmレベルの加工技術に向けてブレークスルーを達成することが期待されている。現在の関連技術では、リソグラフィやナノインプリント技術のように、装置開発に主に焦点を合わせているが、近未来の加工幅が10nmのスケールに近づくと、物理的な限界と高コストのため目標達成は危ぶまれている。

一方、イオンと物質の相互作用を利用した自己組織化の方法、例えば、イオンの角度依存スパッタリング過程は、30nm程度のナノリップル構造やドット構造を広範囲に一斉に作るなど、効率的な微視的材料制御法をもたらす可能性がある。しかし、これらの自己組織化法は、(巨視的な)位置の制御という観点からは、制御性が不足しているという欠点がある。

従って、現在望まれているのは、微視的なイオン・材料相互作用を自己組織化的に用いつつ、能動的に位置制御を行い得る巨視的な「誘導力(Guiding force)」と組み合わせた方法であり、もし実現されれば究極の方法となるだろう。その候補となる誘導力としての必要条件は、イオン・材料相互作用と強く結合していること、及び位置・方向・強さを高精度に制御することができることである。その種々の候補の中で、微小押し込みによる誘導力は、最も有望な候補の一つであり、原子移動と構造制御のための駆動力になるかもしれない。微小押し込み法は、1pNまでの荷重制御と、nmレベルの位置制御により精密な歪み場制御を実現することができる。このように、イオンビーム過程と微小押し込みの組み合わせは、最小の加工精度と良好な巨視的位置制御を兼ね備えて、自己組織化ナノ構造の制御のための新しい方法となることが期待される。本

研究の目的は、イオン照射過程と歪み場との結合効果の基礎過程を研究することであり、かつナノ構造形成・制御技術への可能性を調べることにある。

イオンビームと歪み場との相乗効果を研究するために、イオン・材料相互作用の基礎過程に基づいて実験条件を設定した。イオンが材料に照射される時、ターゲット材料の深さに依存して核的阻止能  $S_n$  と電子励起的阻止能  $S_e$  によりイオンエネルギーが減衰する。前者は照射欠陥生成やスパッタリングを引き起こし、後者はイオン化や熱スパイク効果の原因である。イオンビームと歪み場との結合効果を調べるに当たり、イオン照射計算コード (SRIM) での計算シミュレーションにより、2つの対照的なイオンエネルギー、60 keV と 3MeV の Cu イオンを照射条件として設定した。前者は、 $S_n$  が支配的であり ( $S_n(60\text{keV})/S_n(3\text{MeV})=12$ )、後者は  $S_e$  が支配的 ( $S_e(3\text{MeV})/S_e(60\text{keV})=6.3$ ) な条件となる。歪み場は微小ピッカース硬度計で印可し、ナノ押し込み試験機で応力歪み特性を評価して理論と併せて歪み場分布を解析した

試料は、非晶質  $\text{SiO}_2$  と結晶  $\text{SiO}_2$  を使い、微小押し込み応力の印可は、破壊応力以下の 100mN に設定した。これにより、半球型の塑性変形分布で、歪みが良く定義され効果的に蓄積される状態を作ることができた。非晶質  $\text{SiO}_2$  と結晶  $\text{SiO}_2$  の歪み場は対照的であり、前者は歪みミスフィットが 0.21 であるのに対し、後者ではミスフィット 0.08 と小さくなる。これらの試料に対して、60keV と 3MeV の Cu イオン照射を、種々条件を変化させて行い、AFM, TEM, 光学吸収等により表面形態、ナノ構造、析出状態等々を評価した。

核的阻止能  $S_n$  が支配的となる 60keV Cu イオン照射において、結晶  $\text{SiO}_2$  は、表面形態は殆ど変化しなかったが、非晶質  $\text{SiO}_2$  ではナノサイズの溝構造 (ナノグループと命名) が、歪み場の界面に沿って連続に形成した。これは初めての発見である。ピッカース圧子の形状・角度を変化させることにより、歪み場界面と歪みの大きさに強い相関があることを明らかにし、また、イオン照射量に比例して成長することを見出した。断面 TEM 観察により、歪み場の境界面に沿って、幅 30-40nm、深さ 180nm 以上に、成長することも示した。結晶  $\text{SiO}_2$  の歪みミスマッチは非晶質の 1/26 であることから、ナノグループは発生しない。イオン照射前の歪み状態を熱処理によって緩和させて比較すると、歪み場の熱緩和のみでは発生しないことは勿論、歪み場を緩和させてイオン照射を行うことではナノグループは発生しない。このように、ナノグループは、核的衝突効果が優勢な条件で、歪み場と結合したときにのみ起こる現象であることを実験的に明らかにし、照射で誘起された原子空孔の界面への捕獲・集積効果であることを結論づけた。

一方、電子励起効果  $S_e$  が支配的となる 3MeV Cu イオン照射においては、非晶質  $\text{SiO}_2$  では、ナノグループは全く発生せず、圧痕の平滑化のみが生じた。この対照的なイオン照射挙動は、高エネルギーの電子励起効果、特に、イオントラックに沿った熱スパイク効果が優勢になることによって、照射誘起の粘性流動が生じるためである。熱スパイクによりイオンビームの横方向にずれ変形が起こることにより表面平滑化が起こると説明される。さらに、結晶  $\text{SiO}_2$  も 60keV の場合とは全く異なり、歪み場領域に対応して、ナノサイズ ((高さ 140nm, 直径 9 $\mu\text{m}$ ) の隆起 (ナノマウンテンと命名) が観測された。これは MeV 領域のイオンで誘起され圧縮応力を伴った膨れ (Swelling) が、圧痕の歪み場部分で解放されたためと考えられる。

さらに、MeV Cu イオン注入によりナノ粒子の存在状態に注目した研究では、歪み場の印可と熱アニールの援用により、歪みの存在する領域で Cu ナノ粒子の析出・成長が促進されることを見出した。これは歪みによるナノ粒子の空間制御に一つの先鞭をつけたことになる。

## 審査の結果の要旨

本研究は、微小押し込みと複合したイオン照射によるナノ構造の形態変化を、対照的なエネルギー付与効果を示す 2 種のエネルギーのイオンを使い、かつ非晶質と結晶  $\text{SiO}_2$  を比較して用いて、系統的に調べ、多様なナノ構造の形成過程を明らかにしたものである。この研究結果は、イオン照射過程と歪み場との結合効

果の存在を系統的に明らかにしたことになり、基礎研究として大きな意義がある。また、自己組織化によるナノ構造形成に加えて、ナノサイズの界面導入により、能動的な「誘導力」を付与し、ナノ構造の位置制御を行い得ることを示したことは、新しいナノ構造の作製・制御法につながるもの期待される。

同人の見出した、イオン照射と歪み場の相互作用によるナノグループ形成等の自己組織化過程、あるいはナノ粒子析出促進効果等は、適切に論文にまとめている。また、質問に対する返答も概ね適切であり、学力に関しても問題ないと判断された。

よって、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。