

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：26402

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760539

研究課題名(和文)低エネルギー電子照射による半導体ナノ結晶の形成

研究課題名(英文)Formation of nanocrystal by low energy electron irradiation in semiconductors

研究代表者

新田 紀子(NITTA, Noriko)

高知工科大学・公私立大学の部局等・講師

研究者番号：80412443

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：化合物半導体GaSb(アンチモン化ガリウム)、InSb(アンチモン化インジウム)単結晶に低エネルギー(125 keV)の電子を100 以上で照射したとき、内部に結晶方位のそろったナノサイズの微結晶が形成されることを新しく見出している(Nitta et al., Philo. Mag. Lett., 2011)。このナノ結晶の形成メカニズムの解明が本研究の主たる目的である。そのために、GaSb、InSbに電子照射およびそれに加えてイオン照射を行い、その照射挙動についての知見を得た。

研究成果の概要(英文)：We recently found that the nanocrystals which has same orientation, are observed in GaSb and InSb low-energy electron (125 keV) irradiated at over 373 K (Nitta et al., Philo. Mag. Lett., 2011). In this study, effects of low-energy electron irradiation in GaSb and InSb were the investigated for indentification of formation mechnism. Additionally, effects of ion beam irradiation were investigated.

研究分野：材料工学

キーワード：電子照射 イオン照射 ナノ結晶 ナノ構造 バリアント 電子顕微鏡 集束イオンビーム

### 1. 研究開始当初の背景

GaSb、InSb 単結晶に高温（100 以上）で低エネルギーの電子線を照射すると、内部に結晶方位のそろったナノサイズの微結晶が形成されることを見出している(N. Nitta *et al.*, Philosophical Magazine Letters **91** (2011))。図 1 に GaSb に加速電圧 125 keV の電子線を 200 で照射した場合の明視野像とそれに対応する電子線回折像を示す。左の写真(a)が照射前の像で、右の写真(b)が 40 分照射後とその拡大図である。照射後には、直径が小さいもので 7 nm、大きいもので 30 nm で、平均 18 nm 程度の新たなナノ結晶の形成が確認される。電子線回折像では、通常、微結晶が形成されると多結晶リングが観察されるが、それらは観察されず、多くのエクストラスポットが確認された。このことは、ナノ結晶の方位がそろっていることを示す。電子線回折像の解析から、ナノ結晶はマトリクスと互いに 90° 回転した{110}バリエーション(兄弟晶)であることがわかった。図 2 に室温照射の結果を示す。明視野像において干渉縞に変化は見られる

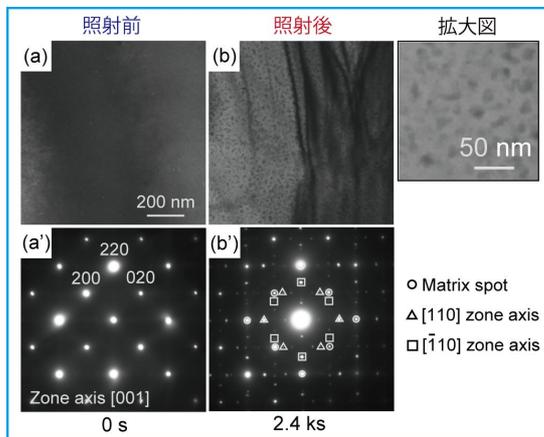


図 1. 電子線照射 (125 keV, 200 ) した GaSb の明視野像と電子線回折図形。照射および観察方向は[001]方向である。

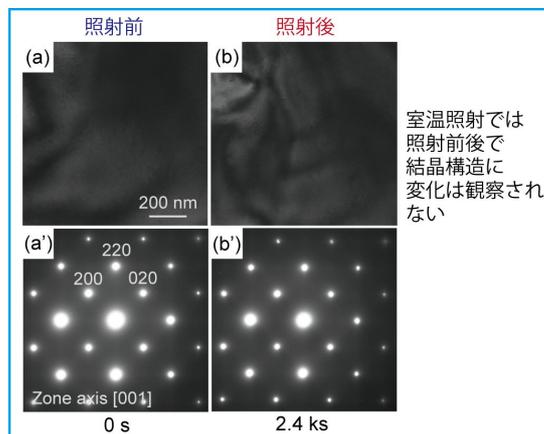


図 2. 電子線照射 (125 keV, 20 ) した GaSb の明視野像と電子線回折図形。照射および観察方向は[001]方向である。

が、電子線回折像に照射前後で変化はなく、結晶構造は変化していない。照射温度を上昇させることでナノ結晶の形成が起こることがわかる。

この現象は、同じ化合物半導体である InSb にも 100 以上の電子線照射によって起こる。InSb ではナノ結晶形成に加えて、電子線回折像に規則格子斑点の分裂が観察される。これはナノ結晶中に逆位相長周期構造の形成が起きていることが考えられる。

図 3 に照射前後における結晶構造の変化を示す。これらのナノ結晶の形成は、{111}面にショックレーの部分転位が導入されることによって擬似的な{110}面が形成されたものと考えられる。

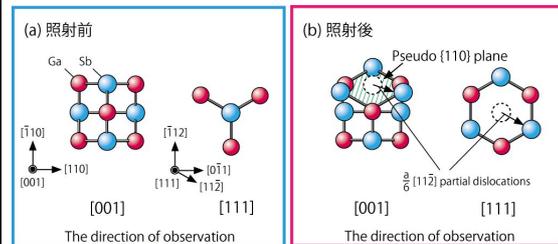


図 3. 照射前後における構造変化の模式図。1/6a[112]方向に部分転位が導入されることによって擬似的な{110}面が形成される。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、電子線照射誘起 GaSb、InSb ナノ結晶の形成メカニズムのさらなる精密化である。またこの現象は GaSb と InSb にしか発現を見出していない。他の系の探索を行う。

### 3. 研究の方法

形成メカニズムの精密化のために、照射条件を変化させ、それによる照射挙動を明らかにする。照射条件として、エネルギー、照射量、照射温度、流束を変化させ実験を行う。加えて、電子に変わりイオンを照射し、他の粒子線による効果を確認する。照射条件を制御し、それによって形成される構造を調べ、形成メカニズムにフィードバックを行い、精密化を目指す。さらに、GaSb、InSb 以外の他の系にナノ結晶が発現しないか確かめるために、種々の化合物半導体および元素半導体に対して照射実験を行う。

### 4. 研究成果

平成 24 年度は、GaSb、InSb に対して電子線の照射量、温度を変化させ実験を行った (大阪大学超高压電子顕微鏡センターにて)。さらに、GaSb、InSb 以外の他の系にナノ結晶が発現しないか確かめるために、Si、Ge、GaP、InP に対して照射実験を行った。

GaSb、InSb では、ナノ結晶は照射時間と長

いほど、また照射温度が高いほど、大きさと密度が増加した。これはナノ結晶形成が原子のすべりによる部分転位の導入によって引き起こされるため、試料内に蓄積される応力が大きくなる照射時間の増加と、すべり運動の速度が速い高温の方が変形量が大きいためと考えられる。加えて、電子照射するとき使用する電子顕微鏡の真空度が高い ( $10^{-5}$  Pa 程度) とナノ結晶が形成されないことが判明した。Si、Ge、GaP、InP では照射前後ではナノ結晶の形成は確認されなかった。

平成 25 年度は、高知工科大学では高真空の電子顕微鏡しか保有しておらず、ナノ結晶作製の実験を頻繁に行うことが困難であるため、GaSb、InSb に対して他の粒子線(イオン)を照射した場合の効果調べた。GaSb、InSb に集束イオンビームを用い、照射量、加速電圧、照射温度、照射材料の形状を変化させ照射実験を行った。イオン照射した表面に多孔質構造の形成を確認した。照射量が多く、加速電圧、照射温度が高く、薄膜よりバルク試料ほど表面に大きなサイズの多孔質構造が形成された。

平成 26 年度は 25 年度と同様、電子照射の代わりに InSb に対してイオン照射実験を行った。InSb に集束イオンビームを用い、周期的な構造を作製後(ボトムアップ)、イオン照射を行い(トップダウン)形成されるナノ構造について調べた。ナノ構造の深さ方向への成長には、イオンビームのフラックスを小さくすることが有効であることが明らかになった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- [1] N. Nitta, T. Hasegawa, H. Yasuda, K. Sato, Q. Xu, T. Yoshiie, M. Taniwaki, and A. Hatta, Beam flux dependence of ion-irradiation-induced porous structures in III-V compound semiconductors, *Radiation Effects and Defects in Solids* **168**, 247-252 (2013).  
[DOI: 10.1080/10420150.2012.737329]

〔学会発表〕(計 9 件)

- [1] 石川修, 新田紀子, 谷脇雅文, 高アスペクト比 InSb 規則構造の作製, 日本金属学会第 156 回春期大会, 東京大学, 2015 年 3 月 19 日.
- [2] K. Morita, K. Shigematsu, A. Matsumoto, N. Nitta, M. Taniwaki, Miniaturization of ion beam irradiation induced periodic nanostructures on germanium surface, 2014

MRS Fall Meeting & Exhibit, December 1, Boston, Massachusetts.

- [3] 森田憲治, 重松晃次, 松本亜里紗, 新田紀子, 谷脇雅文, イオンビーム照射によるゲルマニウム表面周期構造の微細化の検討, 日本金属学会第 155 回秋期大会, 名古屋大学, 2014 年 9 月 26 日.
- [4] 新田紀子, 重松晃次, 谷脇雅文, 八田章光, 保田英洋, 化合物半導体のイオンビーム照射効果の解明とその応用, 第 33 回ナノテスティングシンポジウム, 千里ライフサイエンスセンター, 2013 年 11 月 15 日.
- [5] 新田紀子, 重松晃次, 谷脇雅文, 八田章光, イオンビーム照射による半導体多孔質構造のサイズ制御, 日本金属学会第 153 回秋期大会, 金沢大学, 2013 年 9 月 17 日.
- [6] N. Nitta, T. Nishiuchi, M. Taniwaki, A. Hatta, and H. Yasuda, Temperature dependence of low-energy electron irradiation induced nanocrystal in GaSb, 25th International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS25), Kyoto University, Kyoto, Japan, October 24, 2012.
- [7] T. Nishiuchi, N. Nitta, M. Taniwaki, A. Hatta, and H. Yasuda, Structural changes induced by low-energy electron irradiation in III-V compound semiconductors, 25th International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS25), Kyoto University, Kyoto, Japan, October 24, 2012.
- [8] 新田紀子, 西内大貴, 谷脇雅文, 八田章光, 保田英洋, 低エネルギー電子照射によるナノ結晶形成の照射温度依存性, 日本金属学会第 151 回秋期大会, 愛媛大学, 2012 年 9 月 19 日.
- [9] 西内大貴, 新田紀子, 谷脇雅文, 八田章光, 保田英洋, III-V 族化合物半導体の電子照射による構造変化, 日本金属学会第 151 回秋期大会, 愛媛大学, 2012 年 9 月 17 日.

〔その他〕

ホームページ

<http://www.nano.kochi-tech.ac.jp/nnitta>

<http://researchmap.jp/nitta>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

新田 紀子 (NITTA, Noriko)

高知工科大学・総合研究所・講師  
研究者番号: 80412443