

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：52601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420076

研究課題名(和文) 極低速エピタキシャル結晶成長を利用した規則的マイクロテクスチャの自律的創成技術

研究課題名(英文) Generating Micro-Textured Surfaces with Regular Alignment Shapes by using Ultra Low Rate Epitaxial Growth

研究代表者

角田 陽 (KAKUTA, Akira)

東京工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：60224359

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)：マイクロテクスチャ面とは、代表寸法がマイクロメートル以下のオーダの単位規則形状が整列した表面をさし、濡れ性の制御によるはっ水効果など、さまざまな分野での応用が期待できる。本研究では、極低速でのMBE(Molecular Beam Epitaxy)によるエピタキシャル成長を用いて、機械的加工によらない、マイクロテクスチャ面の創成技術の確立を目指しており、単結晶Si基板にフォトリソグラフィとRIEによるドライエッチングによりさまざまなパターン形状を付加した後に、MBEを行い、加工条件と創成テクスチャの関係を体系化することで、任意のマイクロテクスチャ面創成技術を確立するための知見を得た。

研究成果の概要(英文)：This study aims to generate nano or micro-textured surfaces by using epitaxial growth process with low growth rate. Molecular Beam Epitaxy (MBE), one of the highly-developed epitaxial growth methods, was carried out on mono crystal Si substrate with pre-patterns by photolithography and etching under property conditions. The pre-patterns consist of concavo-convex line and space, circle, square and so on with micro or nano meter size. On the flat surface during MBE, some regular micro or nano meter size shapes are generated randomly. On the other hand, the pre-patterns can be controlled the size and position of these shapes on the surface. Therefore, it is possible to generate nano-micro textured surfaces with regular alignment shapes by MBE. It was investigated that how generating patterns can align the position and size by some kinds of pre-patterns.

研究分野：精密・微細加工学

キーワード：マイクロテクスチャ エピタキシャル成長

### 1. 研究開始当初の背景

マイクロテクスチャとは、代表寸法がマイクロメートルオーダー以下の単位規則形状が無秩序に、または秩序よく規則的に整列配置されている面である。機械構造体や機械要素部品の表面に付与すると、濡れ性の制御によるはっ水効果、氷雪の付着防止や摺動面での摩擦制御によるすべり防止効果、光の波長反射の制御による太陽電池の高効率化などを実現でき、さまざまな分野での応用が期待できる。実際にマイクロテクスチャ面形成技術の利用により、携帯電話用半透過反射型 LCD では表示性能が繊細になりかつ省エネルギー化が格段に進んだ例もある。こうした、従来にはない機能や摩擦減少等の省エネルギー化への寄与など、地球環境問題対策をはじめ、さまざまな分野への直接的・間接的な波及効果が期待できる。

しかし、マイクロテクスチャ面を機械的加工のみで製作することはその微細さゆえに困難であり、創成技術の確立は十分とはいえず、あらたな創成技術の開発が必要となっている。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、マイクロテクスチャ創成技術のひとつとして、極低速の薄膜エピタキシャル結晶成長における分子の自律的な整列現象の応用を提案している。そして、実際の試作実験および解析により、単位規則形状が秩序よく規則的に整列配置され、マイクロメートルオーダー以下の形状精度をもったマイクロテクスチャの自律的創成技術の確立に資する知見を得ることを目的とする。

MBE(分子線エピタキシ)によるエピタキシャル成長とは、超高真空環境下において単結晶基板上に基板の結晶軸にあわせて一原子・分子層ごとに成長分子を配列させる、単結晶成膜成長技術のことである。MBE を用いると、原子・分子層単位に分子を基板上に堆積させることができ、またそれらが基板の結晶軸に沿って自律的に成長するため、適切な条件下では、マイクロテクスチャ面を作製できることが先行研究により示されている。

MBE 工程のみを行った場合、成膜途上で見られるマイクロテクスチャ単位規則形状はランダムに現出する。これに対して、本研究では、フォトリソグラフィと RIE によりパターン形状をあらかじめ付加した基板に対して、特定条件のもと、MBE によるエピタキシャル成長を行い、その付加形状により、創成される単位規則形状の位置制御や形状制御を図ろうとする試みである。

先行研究では溝パターンを付加した(111)単結晶 Si 基板において、三角形を整列させるなど、いくつかの種類の単位規則形状の現出を見出している。しかし、現状では、付加したパターン形状と MBE 実験条件の関係性の解析が十分ではないため、任意のマイクロテクスチャ面の創成までには至っていない。

そこで本研究では、先行研究を基礎として、単結晶 Si 基板にフォトリソグラフィと RIE によるドライエッチングによりさまざまなパターン形状を付加した後に、極低速での MBE を行った場合について、加工条件と創成テクスチャの関係を体系化することで、任意のマイクロテクスチャ面創成技術を確立するための知見を得ることを目的とした。

### 3. 研究の方法

本実験で用いた MBE 実験装置(図 1 参照)は、以下の系によって構成されている。

真空排気系：ロータリポンプ  
チタンゲッタポンプ  
ターボ分子ポンプ  
液体窒素シュラウド

基板加熱機構：熱放射型ヒータ

分子線源：電子線蒸発源(Electronic beam evaporator: EB)

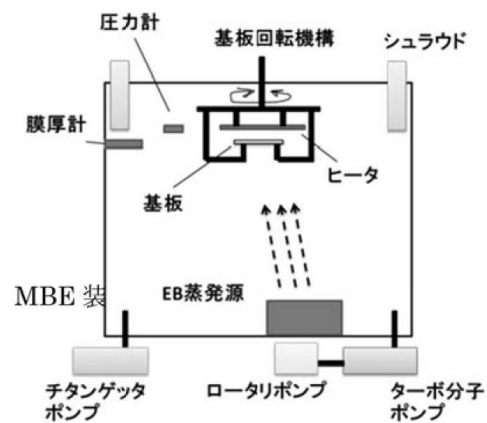


図1 実験装置の構成概要

本実験では以下に述べる工程、条件で MBE 実験を行った。

基板は、単結晶(100)Si 基板とし、フォトリソグラフィと RIE によるドライエッチングによりさまざまなパターン形状を付加した基板に、以下の MBE 工程を行った。

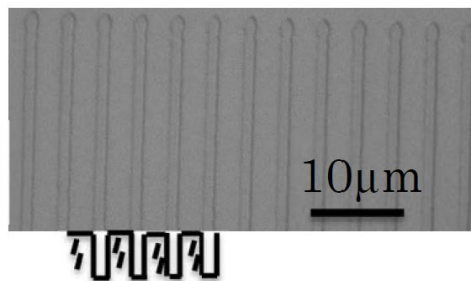
パターン形状付与基板に対して、洗浄工程では、ふっ酸(HF)処理により、基板表面の自然酸化膜を一度除去し、基板表面に極薄の清浄な酸化膜を形成し、基板表面を不活性化することで、大気中での汚染を防ぐ処理を行う。その後 MBE 装置に導入し、900℃、10min の熱処理を行うことで酸化膜を除去した。

成膜工程では基板を MBE 装置に導入し、前述の酸化膜除去工程を経て、成膜工程を開始する。基板温度 800℃ で成膜することとした。基板の昇温作業と並行して、電子線蒸発源によって分子線を発生させ、所望の成膜速度になるように電子線出力の調節をする。成膜速

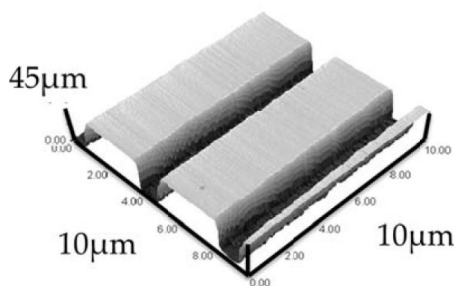
度の調整中は、基板直下のメインシャッタが閉じており、基板に分子線は入射しない。分子線が所望の成膜速度で安定した後、メインシャッタを開け、基板に分子線を入射させて成膜を開始する。成膜中は水晶発振式膜厚計で成膜量を測定し、所望の成膜量に達した時点でメインシャッタを閉じ、成膜を停止する。

#### 4. 研究成果

単結晶 Si 基板に、フォトリソグラフィと RIE によるドライエッチングによりパターン形状を付加した基板は、微分干渉顕微鏡と原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて観察と確認を行った。その一例を図 2 に示す。幅  $1\mu\text{m}$  の凹凸溝型 (ラインアンドスペース) がフォトリソグラフィでのマスクパターンどおりの寸法にエッチングすることができている。なお、エッチング深さは  $40\text{nm}$  程度である。



(a) 微分干渉顕微鏡観察結果



(b) 原子間力顕微鏡観察結果

図 2 パターン形状付与結果の一例

このようなパターン形状付与基板に対して、上述の基板温度  $900^\circ\text{C}$  での酸化膜除去工程後、基板温度  $800^\circ\text{C}$ 、成膜速度  $0.25\text{nm}/\text{min}$  という極低速で、成膜量  $15\sim 100\text{nm}$  程度の厚さで離散的なエピタキシャル成長を行い、成膜成長工程の解析を行った。

図 3 は基板にプレパターンを何も付与していない場所での成膜実験後の表面観察結果である。基板上には三角形が現れ、三角形の向きは一律であるが大きさ、並び方は不規則であった。この形状は大きいもので一辺が  $2\mu\text{m}$  程度であった。

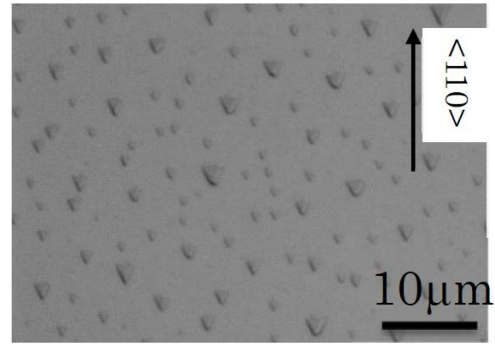


図 3 パターン無し部での MBE 成膜後の基板の観察結果の一例 (微分干渉顕微鏡)

これに対して、図 4, 5 は直線の溝パターン付近での成膜後の観察結果の一例である。

溝幅が  $3.5\mu\text{m}$  以上あるとき、溝の側面に沿って三角形が並び、溝幅が  $1\sim 1.5\mu\text{m}$  程度になると、溝の中心付近に沿って三角形ができる。溝幅もしくはピッチが  $0.7\mu\text{m}$  程度になると三角穴形状を整列させることができなくなっている。また、溝の間隔が広がると溝と溝の間の中心付近に三角形が創成されるのが観察される。

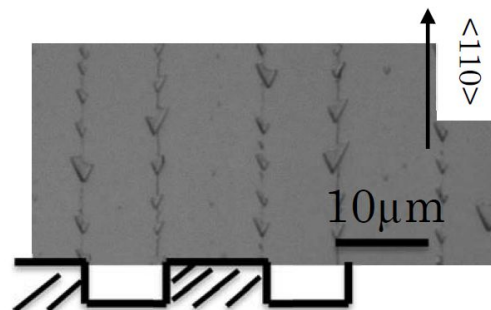


図 4 溝型パターン部での MBE 成長後の基板の観察結果の一例 (溝幅  $8.5\mu\text{m}$  ピッチ  $20\mu\text{m}$ )

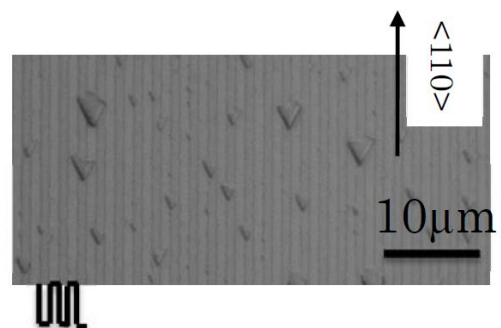


図 5 溝型パターン部での MBE 成長後の基板の観察結果の一例 (溝幅  $0.7\mu\text{m}$  ピッチ  $1\mu\text{m}$ )

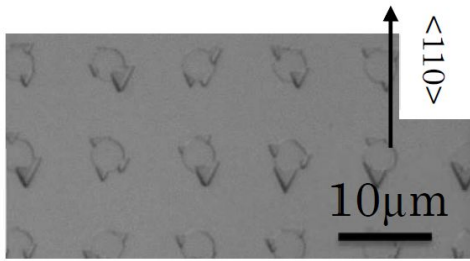


図6 円型パターン部での MBE 成長後の基板の観察結果の一例（直径  $3.5\mu\text{m}$  ピッチ  $10\mu\text{m}$ ）

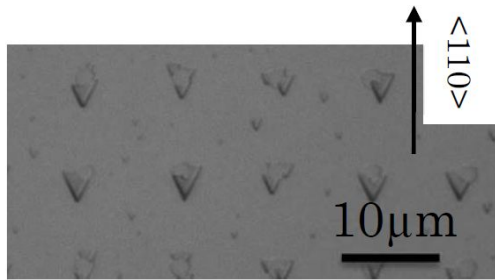


図7 円型パターン部での MBE 成長後の基板の観察結果の一例（直径  $1.5\mu\text{m}$  ピッチ  $10\mu\text{m}$ ）

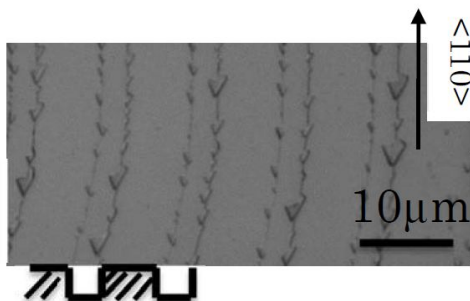


図8 同心円型パターン部での MBE 成長後の基板の観察結果の一例（溝幅  $3.5\mu\text{m}$  ピッチ  $10\mu\text{m}$ ）

図6, 7は円形穴パターン付近の成膜後の様子である。直径  $8.5\mu\text{m}$  と直径  $3.5\mu\text{m}$  の円形穴では穴側面にいくつかの三角形状ができている。また円形穴の間隔が広いために溝パターン同様に凸面においても三角形状ができている。直径  $1.5\sim 0.7\mu\text{m}$  の時、一つの円形穴につき一つの三角形状ができる確率が高いようであった。さらに、円形穴にできる三角形状は、おおよそ同じサイズで創成されることがわかった。

図8は同心円パターンの場合の成膜後の観察結果の一例である。溝幅  $7.5\mu\text{m}$  の同心円パターンで、溝パターンとは違い、溝底部においても三角形状ができている。溝幅  $3.5\mu\text{m}$  パターンでは溝側面において三角形状ができ、さらに溝幅が小さくなると三角形状を整

列させることはできなかった。

以上、みてきたように、極低速での条件において、付加したパターン形状により、MBE成長時の三角形状構造が形成され、その単位規則形状の位置や大きさを制御できる可能性を実験により示した。この三角形状の創成メカニズムは十分には解明できていないが、検証実験などを継続し、マイクロテクスチャ面創成制御技術の確立に寄与していきたい。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1件)

N. TAIRA, A. KAKUTA: Autonomously Generating Micro-Textured Surfaces with Regular Alignment Shapes by using Molecular Beam Epitaxy for Nanoimprint Die, Proceedings of the International Conference on Micromanufacturing (ICOMM), I2M2, CD-ROM, 2015. 3, (査読有)

〔学会発表〕(計 2件)

平直樹, 角田陽: 単位形状を規則的に配列したマイクロテクスチャ面の創成(第1報), 精密工学会春季大会学術講演論文集, CD-ROM, 2015.3, 日本, 東洋大学(東京都文京区)

尾方博紀, 角田陽: エピタキシャル薄膜成長を利用したマイクロテクスチャ面の創成-(100)Si基板への極低速成長による創成-, 精密工学会学生会卒業研究発表講演会講演論文集, CD-ROM, 2016. 3, 日本, 東京理科大学(千葉県野田市)

## 6. 研究組織

研究代表者

角田 陽 (KAKUTA Akira)

東京工業高等専門学校, 准教授

研究者番号:

60224359