

氏 名	臼 井 博 明
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	工 博 第 996 号
学位授与の日付	昭 和 63 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 電 子 工 学 専 攻
学位論文題目	IONIZED CLUSTER BEAM TECHNIQUES — Formation of Cluster Beams by Vaporized Solid Materials and Their Applications to Film Depositions — (クラスターイオンビーム技術—蒸気化固体物質によるクラスタービームの生成と、その薄膜形成への応用—)
論文調査委員	(主 査) 教 授 高 木 俊 宜 教 授 山 田 公 教 授 川 端 昭

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、クラスターイオンビーム技術について、有機物・無機物いずれの材料をも含め、蒸気化固体物質によるクラスタービームの形成と、その薄膜形成への応用を中心として行った研究をまとめたものであって、8章から成っている。

第1章は序論であり、本研究の動機と目的を示すとともに、本論文全体の構成について、概要を述べている。

第2章は、クラスターイオンビーム技術についての概要である。イオンを用いた薄膜形成技術である同技術の特徴及びその原理について述べ、これまでに得られた成果を要約している。さらに、クラスター科学の観点から、クラスターイオンビーム技術の歴史的な位置付けを行うとともに、本論文の研究の意義を明らかにしている。

第3章では、クラスターイオンビーム技術の基礎であるクラスター形成過程について、古典凝縮理論及び流体力学による理論的検討を行っている。まず、古典凝縮理論及び流体力学的関係式について概説し、クラスタービームの超音速ノズル流としての特性を明らかにしている。次に、古典凝縮理論に基く従来の議論では、金属のように表面張力 σ の大きな物質はクラスターを形成し難いといわれていたのに対し、本論文では詳細な検討を行った結果、クラスター形成は σ のみならず動作温度 T をも考慮に入れた σ/kT で議論すべきことを指摘し、多くの金属や半導体は常温で気体である物質に比べ、むしろクラスターを形成しやすいことを示している。さらに、数値計算により蒸気の噴射過程でのクラスター生成過程をシミュレーションし、金属蒸気では流れの亜音速領域、即ちノズル孔よりるつぼ内部ですでにクラスターの生成が始まり、常温で気体である物質に比べて低いるつぼ内圧力でも百から二千個程度の原子からなる巨大なクラスターが生成されることを示している。

第4章では、金属蒸気クラスターの生成機構及び特性を、実験的に明らかにしている。まず、飛行時間

法による速度解析によって、ろつばから噴射された金属蒸気が超音速ノズル流を形成し、断熱膨張によってクラスター生成に必要なとされる過冷却状態になっていることを示した。次いで、静電偏向型エネルギー分析器、逆電界型エネルギー分析器、飛行時間質量分析器、さらには透過型電子顕微鏡による観察等によって Ag, Te, Zn 等のクラスターのサイズ測定を行い、いずれの物質でも数百から二千個程度の原子からなる金属蒸気クラスターが生成されることを示している。さらに、金属蒸気クラスターの微視的構造を解明するために、Te, Sb, Bi 等のクラスタービームを電子線回折によって構造解析し、動径分布関数を導出した結果、金属蒸気クラスターは原子配列に長距離秩序をほとんど持たず、原子同志が緩く結合した構造をとることを明らかにしている。

第5章では、クラスターイオンビーム技術として初めて手がけた新しい応用分野である有機材料のクラスター形成について、アントラセンを用いて理論的及び実験的検討を加えている。まず、古典凝縮理論に基づく計算機シミュレーションの結果、蒸気化有機物質をろつばから真空中へ噴射することによってクラスターが生成できることを示している。次に、飛行時間法による速度分析実験によって、有機クラスタービームの超音速ノズル流としての特徴を明らかにし、さらに静電偏向エネルギー分析実験により、アントラセンクラスターが約 10 分子程度で構成されることを明らかにしている。

第6章では、クラスターイオンビーム技術の無機薄膜形成への応用について、超 LSI や三次元デバイス開発のために重要な Al の薄膜形成及び CaF₂ の薄膜形成について述べている。クラスターイオンビーム技術では、イオンの効果によって膜形成初期過程における凝縮核形成機構を三次元島状成長から二次元層状成長へ制御することが可能であり、格子不整、熱ひずみ、表面自由エネルギーの差異の原因で従来法では困難であった条件でも、良好なエピタキシャル成長が可能となり、拡散現象や熱的不安定性等の問題を解決した積層構造の構成が可能となることを示している。

第7章では、クラスターイオンビーム技術の有機薄膜形成への応用を取り扱っている。代表的なモノマー材料としてアントラセン、ポリマー材料としてポリエチレン、有機半導体として銅フタロシアニン、さらに有機非線形光学材料として2メチル4ニトロアニリン等の蒸着を行い、その膜質を評価している。その結果クラスターイオンビーム蒸着膜は純度が高く、結晶性に優れた性質を持ち、電気的特性や膜と基板間の界面特性が改善できることを示している。また、有機薄膜を利用した薄膜型トランジスターや電界効果トランジスター等の作成が可能となることも示されている。

第8章は結論であり、本論文の研究で得られた結果を要約し、将来への展望を述べている。

論文審査の結果の要旨

クラスターイオンビーム技術は、京都大学で開発された独創的な薄膜形成技術である。半導体工業等の発展に伴って新材料・高機能薄膜形成のための新技術開発に対する要請が高まり、この技術は世界的に注目を集め実用化研究が進められている。それに伴って、本技術の基盤であるクラスター形成についてさらに理解を深める必要性が高まり、一方では三次元構造デバイスや有機材料等の新しい分野への応用範囲の拡大が強く望まれていた。

本論文は、現在のクラスターイオンビーム技術における重要課題を検討し、同技術の学問的及び技術的完成度を高めるために、有機・無機の両材料にわたり、蒸気化固体物質による巨大クラスター生成機構について研究を進め、さらに、次世代固体デバイス開発に重要な金属及び絶縁材料のエピタキシャル成長と、数種の基本的有機材料の薄膜形成について研究をまとめたものであり、得られた主な成果は次の通りである。

1. 古典凝縮理論に対する詳細な検討の結果、金属は表面張力が大きいので巨大なクラスターを形成しにくいという従来の考え方は誤りであり、比較的低い蒸気圧でも、数百から二千個程度の原子からなる巨大なクラスターが生成できることを明らかにした。

2. 金属蒸気クラスタービームの速度分析実験によって、金属蒸気が超音速ノズル流を形成し、過冷却となることを確認した。さらに、エネルギー分析法、飛行時間質量分析法、透過電子顕微鏡観察等の実験によって、金属蒸気クラスターのサイズが約百から二千原子であることを確認した。また、電子線回折による構造解析によって、金属蒸気クラスターは原子同志が緩く結合して構成され、原子配列に長距離秩序を持たないことを見出した。

3. 古典凝縮理論による検討の結果、蒸気化有機物質を用いても金属蒸気の場合と同様にしてクラスターを形成できることを示し、アントラセンビームの速度分析とエネルギー分析の実験によってこのことを確認した。

4. クラスターイオンビーム技術を Al 及び CaF₂ 薄膜のエピタキシャル成長に応用し、同技術を用いることによって膜形成機構を三次元島状成長から二次元層状成長へと制御することが可能であり、従来法では困難な条件のもとでも高品質の薄膜をエピタキシャル成長できることを示した。その結果、熱的安定性に優れた全エピタキシャル積層構造の構築が可能となり、概存の集積回路技術における信頼性や高密度化に伴う問題点を解決できる可能性を示すことができた。

5. クラスターイオンビーム蒸着技術の有機薄膜形成への応用として、アントラセン、ポリエチレン、銅フタロシアニン、2メチル4ニトロアニリン等の薄膜形成を試み、同技術を各種有機材料の蒸着へ応用できることを見出した。クラスターイオンビーム蒸着有機薄膜は、化学的純度が高く、結晶性に優れ、電気的特性や界面物性を制御でき、薄膜型トランジスターや電界効果トランジスターの試作を通じて、本技術が有機電子デバイスの開発に有用であることを示した。

以上を要するに、本論文は、クラスターイオンビーム技術について、その基礎過程である蒸気化固体物質によるクラスターの形成機構を明らかにするとともに、応用面ではその薄膜形成の特徴を明らかにし、三次元集積回路や有機電子デバイス等の新分野開発への道を拓いたのである。これらの成果は、広くイオン工学、電子工学、材料科学、さらにはクラスター科学といった新しい分野に多くの有用な知見を導いたものであって、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。

また、昭和63年1月9日、論文内容とその関連事項について試問を行った結果、合格と認めた。