

## 研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		ナノインプリント技術を応用した単結晶薄膜の作製と表面微細構造の同時制御			
研究テーマ (欧文) AZ		Fabrication of single crystalline thin film with controlled surface structure based on solid phase epitaxy and thermal nanoimprint			
研究氏 代表 者	カタカナ CC	姓) ヒロセ	名) ヤスシ	研究期間 B	2010 ~ 2011 年
	漢字 CB	廣瀬	靖	報告年度 YR	2012 年
	ローマ字 CZ	HIROSE	YASUSHI	研究機関名	東京大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		東京大学 大学院理学系研究科 化学専攻・助教			
<p>概要 EA (600 字～800 字程度にまとめてください。)</p> <p>遷移金属酸化物はワイドギャップ半導体、強誘電体、超伝導体など多彩な電子機能を有することからエレクトロニクスデバイスへの応用が期待されている。一方、その多くでは機能の発現や高性能化に結晶構造と配向が完全に揃った高品質なエピタキシャル薄膜が要求される。このため、より安価なガラスや樹脂などの安価な非晶質基板上で結晶構造や配向を制御するための技術が求められている。</p> <p>代表者は 2009 年に「固相成長法によるエピタキシャル薄膜作製技術」と「ガラスや樹脂を微細な金型(モールド)でプレスして形状を転写・成型するナノ加工技術である熱ナノインプリント法」を融合したインプリントエピタキシー法を開発し、ガラス基板上にペロブスカイト型酸化物のエピタキシャル薄膜を作成することに成功した。本研究では、インプリントエピタキシー法において熱ナノインプリント過程を積極的に利用することで、表面微細形状の作製を試みた。すなわち、モールドとして用いる単結晶表面に微細形状を作製し、エピタキシャル成長と同時にナノスケールの微細構造をトップダウンで形成することを目的とした。</p> <p>はじめに、ステップ&amp;テラス構造を有する LaSrAlO<sub>4</sub> 単結晶をモールドとし、ソーダガラス基板上に LaAlO<sub>3</sub> のエピタキシャル薄膜を作製した。その結果、ステップ&amp;テラス形状は完全には転写されず、ステップ端に対応した周期的な溝構造が形成されていた。塩酸を用いた化学エッチングにより薄膜表面の欠陥分布を可視化した結果、この溝は LaSrAlO<sub>4</sub> と LaAlO<sub>3</sub> の c 軸長(ステップ高さ)の違いによってステップ端に高密度に導入された格子欠陥に起因することがわかった。</p> <p>次に、深さとピッチが数 100nm のライン&amp;スペース構造を有する LaSrAlO<sub>4</sub> 単結晶をモールドとし、同様の実験を行った。LaSrAlO<sub>4</sub> は機械的強度が低く、ガラス基板への構造の転写に必要な圧力の印可は困難であったが、接触部(モールド凸部)に数 nm 程度の凹凸が形成されることを確認した。また、断面 TEM 観察の結果、非接触部(モールド凹部)も、LaAlO<sub>3</sub> 結晶粒のラテラル成長により結晶化していることが明らかになった。</p> <p>本研究の結果をまとめると、目的としていた微細構造の 3 次元的な転写の実現には至らなかった。熱ナノインプリント過程を利用した直接的な形状転写には、機械的強度の高い単結晶モールドの探索が必要である。一方で、薄膜材料とモールドの格子ミスマッチを利用して局所的な格子欠陥を導入することで、エッチングによって 2 次元的な微細加工が可能であることがわかった。これは、インプリントエピタキシー法の新たな応用方法として有望である。</p>					
キーワード FA	エピタキシャル成長	ナノインプリント	微細加工	酸化物薄膜	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）

雑誌	論文標題 GB								
	著者名 GA		雑誌名 GC						
	ページ GF	～	発行年 GE					巻号 GD	
雑誌	論文標題 GB								
	著者名 GA		雑誌名 GC						
	ページ GF	～	発行年 GE					巻号 GD	
雑誌	論文標題 GB								
	著者名 GA		雑誌名 GC						
	ページ GF	～	発行年 GE					巻号 GD	
図書	著者名 HA								
	書名 HC								
	出版者 HB		発行年 HD					総ページ HE	
図書	著者名 HA								
	書名 HC								
	出版者 HB		発行年 HD					総ページ HE	

#### 欧文概要 EZ

In this research, epitaxial thin films of perovskite oxide were grown on glass substrate by the imprint epitaxy method. The main focus of the research was top-down fabrication of 3-dimensional nanostructure on the film through thermal imprint process by using a nano-structured single crystalline mold.

As a first step,  $\text{LaAlO}_3$  thin film was fabricated on a soda glass substrate with a  $\text{LaSrAlO}_4$  mold with step and terrace structure. Although the obtained  $\text{LaAlO}_3$  was epitaxially crystallized, the step and terrace structure was not transferred. Instead, valley-like periodic structures appeared at the region where the steps of the  $\text{LaSrAlO}_4$  mold contacted. These valley structures were originated from defects in the  $\text{LaAlO}_3$  film, which were introduced due to the large difference of c-axis length between  $\text{LaAlO}_3$  and  $\text{LaSrAlO}_4$ . This phenomenon can be used as a new method to make 2-dimensional pattern on the film made by imprint epitaxy method.

Next, similar experiment was conducted with  $\text{LaSrAlO}_4$  mold which has line and space structure with  $\sim 100$  nm pitch and depth. Transfer of the structure was not achieved because the mold was broken when applying a pressure required to thermal imprint. To realize the fabrication of 3-dimensional structure by imprint epitaxy method, single crystalline mold of which mechanical strength is high is needed. On the other hand, the area contact with the mold showed a structure with several nm of height. In addition, cross-sectional TEM measurement revealed that the area not contact with the mold was also crystallized due to lateral epitaxial crystallization of  $\text{LaAlO}_3$ .

In conclusion, it was indicated that the material of single crystalline mold must be mechanically strong for fabrication of 3-dimensional structure. On the other hand, 2-dimensional structure can be fabricated by imprint epitaxy method through introducing defects on patterned area, which is a promising application of this method.