

| | |
|------|-------|
| 課題番号 | GR046 |
|------|-------|

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実施状況報告書(平成 25 年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

| | |
|----------------|---------------------------------------|
| 研究課題名 | 窒化物半導体との融合を目指したエピタキシャルニホウ化物薄膜の表面・界面研究 |
| 研究機関・ 部局・職名 | 北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・准教授 |
| 氏名 | 高村 由起子(山田由起子) |

1. 当該年度の研究目的

ニホウ化物薄膜上における窒化物膜の成長を行い、表面構造及び界面構造の詳細な観察と、その構造の第一原理計算による考察と合わせて、高品質窒化物半導体薄膜成長のための指導原理を得ることを目的とする。本研究課題では窒化物半導体薄膜の欠陥の低減に大きく寄与すると考えられるニホウ化物薄膜表面の選択的窒化による不活性化を利用した横方向成長の実現を目指しており、このプロセスのキーとなるニホウ化物薄膜表面上に形成される不活性極薄グラファイト状窒化物層と付加元素による核生成サイト形成の詳細を実験から明らかにすることに取り組む。

2. 研究の実施状況

本年度は、シリコン(Si)ウェハー上ニホウ化ジルコニウム(ZrB_2)薄膜を窒化することでその表面上に形成され、高品質窒化物薄膜成長のキーとなるホウ素の窒化物の形成過程を電子線回折、光電子分光、走査トンネル顕微鏡等で詳細に調べた。酸化膜を除去した状態の ZrB_2 薄膜表面には一原子厚み相当の Si 層が存在するが、加熱温度・時間などの窒化条件を最適化することで Si を含まないグラファイト様の六方晶窒化ホウ素(hBN)層を一層だけ形成することが可能であることが確認された。こうして得られた一原子厚みの hBN 層は大気中でも安定であり、一旦大気に晒した後他の超高真空装置に導入しても、温度と時間を最適化した上で再加熱し、 ZrB_2 薄膜の酸化物部分を除去すれば、窒化したての状態を再生することが可能であることも確認された。この簡便な表面清浄化方法は基板としての非常に優れた特性である。 ZrB_2 薄膜、及び、窒化物層への付加元素の蒸着とその結合状態の分析も合わせて試みた。

また、窒化ガリウムと ZrB_2 の双方との熱膨張率の整合性に優れるゲルマニウム(Ge)ウェハー上に成長した単結晶配向 ZrB_2 薄膜表面を走査トンネル顕微鏡と放射光施設における光電子分光で詳細に調べたところ、Si ウェハーを基板とした場合と異なり、一原子厚み以上の厚さを持った Ge 超薄膜が形成されていることが明らかとなった。この層のため、 ZrB_2 薄膜の成長は早い段階で停止し、10nm の厚みを超える単結晶配向薄膜を得ることは出来なかった。

高温における ZrB_2 薄膜表面の走査トンネル顕微鏡の原子分解能観察からは、Si 層によって形成される表面再構成構造のドメインサイズに変化が起きるのが直接観察され、現在その現象の理解に務めている。

3. 研究発表等

| | |
|------------------------|--|
| <p>雑誌論文 計 7 件</p> | <p>(掲載済み一査読有り) 計 5 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 Microscopic origin of the π states in epitaxial silicene, A. Fleurence, Y. Yoshida, C.-C. Lee, T. Ozaki, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and Y. Hasegawa, Applied Physics Letters 104, 021605(1-4) (2014). http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/104/2/10.1063/1.4862261 2 First-principles study on competing phases of silicene: Effect of substrate and strain, C.-C. Lee, A. Fleurence, R. Friedlein, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, Physical Review B 88, 165404 (1-10) (2013). http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.88.165404 3 Mechanisms of parasitic crystallites formation in ZrB₂(0001) buffer layer grown on Si(111), A. Fleurence, W. Zhang, C. Hubault, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, Applied Surface Science 284, 432-437 (2013). http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169433213014268 4 Unfolding method for first-principles LCAO electronic structure calculations, C.-C. Lee, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, Journal of Physics: Condensed Matter 25, 345501(1-9) (2013). http://iopscience.iop.org/0953-8984/25/34/345501/ 5 Tuning of silicene-substrate interactions with potassium adsorption, R. Friedlein, A. Fleurence, J. T. Sadowski, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, Applied Physics Letters 102, 221603(1-4) (2013). http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/102/22/10.1063/1.4808214 <p>(掲載済み一査読無し) 計 2 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. シリセン - π 電子を有するモノレイヤーケイ素シートの化学, ライナー・フリードライン, <u>高村(山田)由起子</u>, 化学と工業 第 66 巻 900-902 (2013). 2. シリセン:ケイ素で出来たグラフェン?, <u>高村(山田)由起子</u>, アントワーヌ・フロランス, ライナー・フリードライン, 尾崎泰助, 日本物理学会誌 第 68 巻 305-308 (2013). <p>(未掲載) 計 0 件</p> |
| <p>会議発表 計 19 件</p> | <p>専門家向け 計 18 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 シリセン: π 電子を有するモノレイヤーケイ素シートの合成と評価, <u>高村(山田)由起子</u>, 日本化学会第 94 春季年会 (2014), 名古屋大学, 2014.03.27 2 Novel two-dimensional silicon and germanium allotropes: a first-principles study, F. Gimbert, C.-C. Lee, R. Friedlein, A. Fleurence, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, American Physical Society March Meeting 2014, Denver, U.S.A., 2014.03.06 3 Microscopic origin of the π states in epitaxial silicene on ZrB₂(0001), A. Fleurence, Y. Yoshida, C.-C. Lee, T. Ozaki, Y. Hasegawa, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, American Physical Society March Meeting 2014, Denver, U.S.A., 2014.03.05 4 Formation of hBN monolayers by nitridation of ZrB₂ thin films with epitaxial silicene, K. Aoyagi, A. Fleurence, R. Friedlein, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, American Physical Society March Meeting 2014, Denver, U.S.A., 2014.03.03 5 ニホウ化ジルコニウム薄膜上のシリセンの形成, <u>高村(山田)由起子</u>, 日本金属学会関西支部材料物性談話会, 京都大学, 2013.12.05 6 シリセン:ケイ素で出来た新しい二次元材料, <u>高村(山田)由起子</u>, 平成 25 年度 日本表面科学会中部支部研究会, 金沢, 2013.10.25 7 Nitridation study of ZrB₂(0001) thin films on Si(111): Formation process of graphene-like BN layer, K. Aoyagi, A. Fleurence, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, International Symposium on Advanced Materials 2013, JAIST, 2013.10.17 8 ニホウ化物薄膜上のシリセンの形成, <u>高村(山田)由起子</u>, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 徳島大学, 2013.9.25 9 Large-scale first-principles calculations of epitaxial silicene on ZrB₂, C.-C. Lee, A. Fleurence, R. Friedlein, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Kyoto, Japan, 2013.09.16 10 Microscopic study of structural and electronic properties of epitaxial silicene on ZrB₂(0001), A. Fleurence, Y. Yoshida, C.-C. Lee, T. Ozaki, Y. Hasegawa, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, 19th International Vacuum Congress (IVC-19), Paris, France, 2013.09.13 11 Epitaxial silicene - tunable hybridization with the substrate and weak interactions with epitaxial organic overlayers, R. Friedlein, A. Fleurence, F. Bussolotti, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, 19th International Vacuum |

様式19 別紙1

| | |
|--|--|
| | <p>Congress (IVC-19), Paris, France, 2013.09.10</p> <p>12 エピタキシャルシリセンの合成と評価, <u>高村(山田)由起子</u>, 日本学術振興会第151委員会平成25年度第二回研究会「2次元原子薄膜の最前線」, 東京大学, 2013.8.30</p> <p>13 Silicene: A new two-dimensional material made of silicon, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, SPIE Optics + Photonics 2013, San Diego, U.S.A., 2013.8.25</p> <p>14 Spontaneous formation of silicene on diboride thin films grown on Si wafers, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, 17th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-17), Warsaw, Poland, 2013.08.16</p> <p>15 First-principles calculations on germanene multilayers under strain, F. Gimbert, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, International Symposium on Atomistic Modeling for Mechanics and Multiphysics of Materials (ISAM4), Tokyo, Japan, 2013.07.23</p> <p>16 From germanene monolayer to multilayers: first-principles calculations, F. Gimbert, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, The 12th Asia Pacific Physics Conference (APPC12), Makuhari, Japan, 2013.07.15</p> <p>17 Electronic structure and chemistry of epitaxial silicene on zirconium diboride substrates, R. Friedlein, A. Fleurence, F. Bussolotti, and <u>Y. Yamada-Takamura</u>, Collaborative Conference on 3D & Materials Research 2013, Jeju, Korea, 2013.06.24</p> <p>18 エピタキシャルシリセン研究とナノプローブ技術, <u>高村(山田)由起子</u>, 日本学術振興会第167委員会(ナノプローブテクノロジー)研究会「グラフェン・シリセンがもたらすナノ材料のブレークスルー～基礎・応用・展望～」, 産業技術総合研究所臨海副都心センター, 2013.04.18</p> <p>一般向け 計1件</p> <p>1. 原子・分子からナノマテリアルへ 創る・観る・測る, <u>高村 由起子</u>, C. F. Hirjibehedin, JAIST 国際スクール 2014 日英ナノテクフロンティア, 秋葉原, 2014.3.11</p> |
| <p>図書</p> <p>計0件</p> | |
| <p>産業財産権 出願・取得状 況</p> <p>計0件</p> | <p>(取得済み) 計0件</p> <p>(出願中) 計0件</p> |
| <p>Webページ (URL)</p> | <p>研究室ホームページ: http://www.jaist.ac.jp/ms/labs/yukikoyt</p> |
| <p>国民との科 学・技術対話 の実施状況</p> | <p>1. 窒化物半導体との融合を目指したエピタキシャル二ホウ化物薄膜の表面・界面研究, FIRST シンポジウム「科学技術が拓く2030年」へのシナリオ, 新宿, 2014.3.1, 一般の来場者及び最先端・次世代研究開発支援プログラム研究者(参加者 300-500名程度)に対してポスター形式で研究成果の発表を行った。</p> |
| <p>新聞・一般雑 誌等掲載 計1件</p> | <p>1. Silicene: atom-thick silicon with tunable properties, R. Friedlein, A. Fleurence, <u>Y. Yamada-Takamura</u>, and T. Ozaki, SPIE Newsroom (国際光学会の運営するニュースサイト), 7 June 2013, DOI: 10.1117/2.1201305.004854</p> |
| <p>その他</p> | |

4. その他特記事項

・昨年度に、掲載済論文として報告した平成24年6月に Physical Review Letters 誌に掲載された論文 (<http://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.108.245501>)の被引用数が、平成25年12月末に100を超えた(Web of Science 参照)。

実施状況報告書(平成25年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されません

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

| | ①交付決定額 | ②既受領額 (前年度迄の 累計) | ③当該年度受 領額 | ④(=①-②- ③)未受領額 | 既返還額(前 年度迄の累 計) |
|------|-------------|------------------------|--------------|-------------------|-----------------------|
| 直接経費 | 112,000,000 | 96,290,000 | 15,710,000 | 0 | 0 |
| 間接経費 | 33,600,000 | 28,887,000 | 4,713,000 | 0 | 0 |
| 合計 | 145,600,000 | 125,177,000 | 20,423,000 | 0 | 0 |

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

| | ①前年度未執 行額 | ②当該年度受 領額 | ③当該年度受 取利息等額 (未収利息を除 く) | ④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入 | ⑤当該年度執 行額 | ⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額 | 当該年度返還 額 |
|------|--------------|--------------|----------------------------------|---------------------------|--------------|-------------------------|-------------|
| 直接経費 | 14,113,434 | 15,710,000 | 0 | 29,823,434 | 29,823,434 | 0 | 0 |
| 間接経費 | 0 | 4,713,000 | 0 | 4,713,000 | 4,713,000 | 0 | 0 |
| 合計 | 14,113,434 | 20,423,000 | 0 | 34,536,434 | 34,536,434 | 0 | 0 |

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

| | 金額 | 備考 |
|---------|------------|--|
| 物品費 | 10,952,535 | 赤外線放射温度計、PIXcel1D検出器、顕微鏡用デジタルカメラ、ソフトウェア等 |
| 旅費 | 2,240,084 | 研究発表旅費等 |
| 謝金・人件費等 | 13,849,835 | 研究員、研究補助員人件費 |
| その他 | 2,780,980 | 学会参加費、装置修理費等 |
| 直接経費計 | 29,823,434 | |
| 間接経費計 | 4,713,000 | |
| 合計 | 34,536,434 | |

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

| 物品名 | 仕様・型・性能等 | 数量 | 単価 (単位:円) | 金額 (単位:円) | 納入 年月日 | 設置研究機関 名 |
|---------------------------|------------------------|----|--------------|--------------|------------|---------------|
| 赤外線放射温度計 | KTL-PRO-04(300~2000°C) | 1 | 527,310 | 527,310 | 2013/5/7 | 北陸先端科学技術大学院大学 |
| PIXcel1D 検出器 | スペクトリス株式会社製 | 1 | 3,441,532 | 3,441,532 | 2013/7/29 | 北陸先端科学技術大学院大学 |
| 顕微鏡用デジタルカメラ | DS-Ri1-U3 | 1 | 1,336,581 | 1,336,581 | 2013/10/24 | 北陸先端科学技術大学院大学 |
| 残留ガス分析計 (Windows用ソフト付) | RGA100型 | 1 | 651,000 | 651,000 | 2013/12/24 | 北陸先端科学技術大学院大学 |