

平成22年 5月 15日現在

研究種目：若手研究（B）  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20760455  
 研究課題名（和文） 原子的に平坦なダイヤモンド（111）表面の大面积形成及びその機能の創出  
 研究課題名（英文） Large-area formation of atomically flat diamond (111) surface and creation of the functions  
 研究代表者  
 徳田 規夫（TOKUDA NORIO）  
 金沢大学・電子情報学系・助教  
 研究者番号：80462860

研究成果の概要（和文）：プラズマ CVD を用いたダイヤモンド結晶成長モードを制御することで、ダイヤモンド表面を原子レベルで制御することを行った。その結果、デバイスサイズ  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  のステップフリーダイヤモンド(111)表面の形成に成功した。また、単原子ステップを持つ正三角形島構造を世界最小のナノメートルスケールの物差しとして提案した。

研究成果の概要（英文）：The control of diamond surface in atomic level has been studied by controlling the diamond crystal growth using plasma-enhanced CVD. As a result,  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  step-free surface of diamond (111) was successfully formed. The diamond nano-structure, which was composed of equivalent triangular islands with single steps, was suggested as world's smallest nanometer-sized ruler.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：半導体物理、結晶成長、表面制御

科研費の分科・細目：材料工学・無機材料・物性

キーワード：ダイヤモンド、半導体、結晶成長、表面制御、標準試料

## 1. 研究開始当初の背景

ダイヤモンドは非常に優れた物性を有していることから、究極の半導体材料とされている。近年、私はダイヤモンド(111)面において2次元核形成を伴わないラテラル成長があることを証明し、それを用いて完全平坦面（ステップフリー表面）を選択的な場所に形成することに世界で初めて成功した。その

完全平坦ダイヤモンド表面は、欠陥フリーが予想され、それらの機能及び半導体デバイスの特性の向上が期待できる。

Si などでも、ステップフリー表面の形成に関する報告はあるが、その表面は大気中で容易に酸化し、アモルファスの  $\text{SiO}_2$  が形成される。一方、ダイヤモンドの C-C 結合及び水素終端表面の C-H 結合エネルギーが非常に大きいことから、ダイヤモンド表面は非常に安定

であり、その構造が維持されまたまデバイスに適用することが期待できる。しかし、その原子的に平坦な表面の面積は $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ のため、デバイス作製が困難なため、デバイスサイズまで大面積化する技術が必要である。

一方、原子レベルで制御された安定なナノ構造は、走査型プローブ顕微鏡の校正のためのナノメートルスケールの標準試料に適用できる。現在、用いられている標準試料は、シリコン表面を用いて作製されているが、縦方向は10 nm、横方向は数10  $\mu\text{m}$ とナノメートルスケールの校正には大きすぎるといった問題がある。また、シリコンの原子ステップを用いた標準試料も提案されているが、シリコンは大気中で容易に酸化膜を形成する。その酸化膜はアモルファスであるため、精度の劣化が問題である。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、優れた物性を有するダイヤモンド半導体を対象とし原子的に平坦なダイヤモンド(111)表面の大面積形成を実現し、その機能の解明とその特性の最大化をはかり、これらの特性を利用したFETや電子放出源、バイオ素子などのデバイス応用の高度化に資することである。

具体的には、ダイヤモンドが半導体として用いられるために必要な要素技術である表面・界面の平坦化技術を確立し、その表面の特性を評価可能なサイズにまで大面積化する。目標を直径100  $\mu\text{m}$ を持つステップフリー表面の形成とする。

また、もう一つの目的として、その表面制御技術の高度化し、原子レベルで制御されたダイヤモンドナノ構造を作製し、ナノメートルスケールの標準試料の開発を行う。

## 3. 研究の方法

### (1) ステップフリーの大面積化

ダイヤモンド(111)のステップフリー表面の形成方法を図1に示す。そのポイントは、以下の2点である。

1) ダイヤモンド基板上にメサ構造を形成することで、基板中に存在する転位からの異常成長を排除する。

2) 2次元核形成を完全に抑制したラテラル成長を用いることで、メサ表面上に存在する最上層のステップを成長させ(図1(b)参照)、メサ全面を覆うことでステップフリー表面を形成する(図1(c)参照)。

基板は、高温高压合成1b(111)単結晶ダイヤモンドを用いた。その基板上に、EBリソグラフィとICPエッチングを用いて、メサ構造を作製した(図2参照)。そのメサ構造のダイヤモンド(111)表面は、図3に示すように

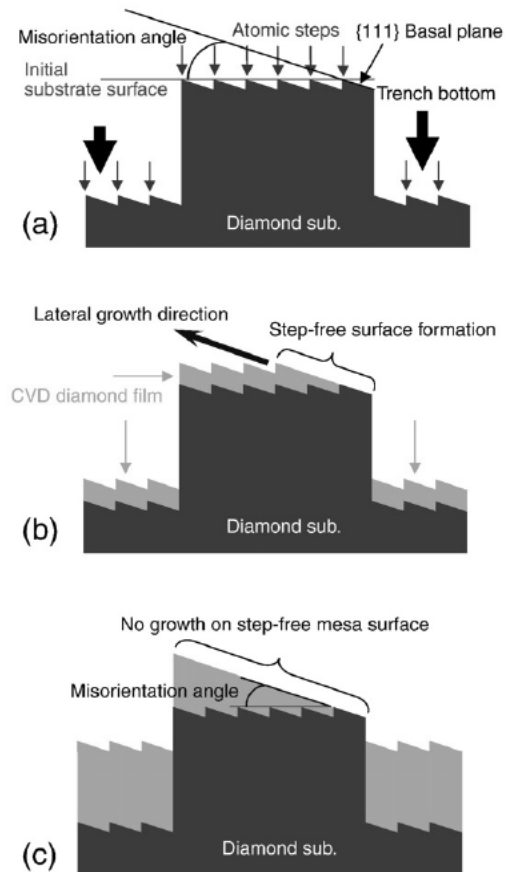


図1 ステップフリー表面の形成方法

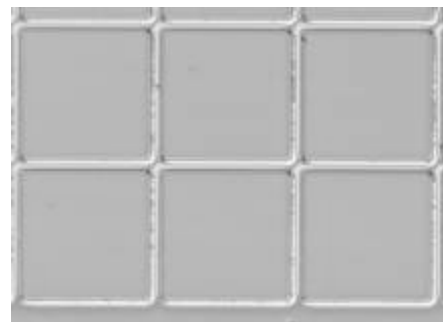


図2 ダイヤモンド(111)基板上に作製した $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ のメサ構造の微分干渉像

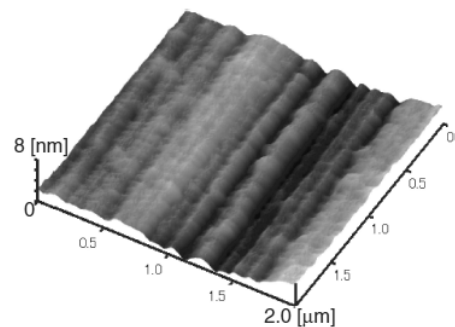


図3 成長前のダイヤモンド(111)基板表面の原子間力顕微鏡像

研磨に起因するラフネスが存在する。その表面ラフネス (RMS 値) は 0.69 nm であった。

次に、2.45 GHz のマイクロ波を用いたプラズマ CVD により、ダイヤモンド膜のホモエピタキシャル成長を行った。成長条件は、メタン/水素比 0.02%、基板温度約 900°C、成長圧力 50 Torr、投入電力 1200 W とした。その表面は原子間力顕微鏡を用いて観察された。

(2) ダイヤモンドのナノ構造を用いたナノメートルスケール標準試料の作製

ナノメートルスケール標準試料の形成方法を図 4 に示す。基本的には、ステップフリー表面の形成方法と同様であるが、2次元島成長の成長モードを用いる点異なる。

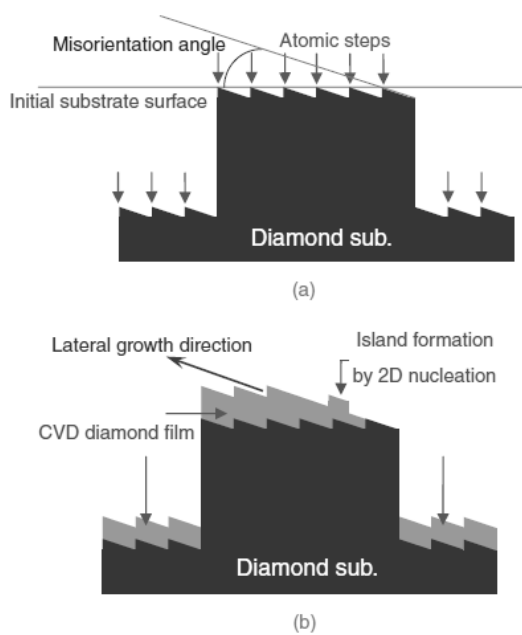


図 4 ダイヤモンドナノ構造の形成方法

4. 研究成果

(1) ステップフリーの大面積化

2次元核形成を抑制したラテラル成長モードを用いたホモエピタキシャル成長後のダイヤモンド表面の微分干渉像を図 5 に示す。その平らなメサ表面と三角形構造が観察されたメサ表面の原子間力顕微鏡像を図 6 (a)、(b) にそれぞれ示す。その結果から、平らなメサ表面はステップフリー表面であった。このことから、本研究の目的であるデバイスサイズ ( $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ ) のステップフリー表面の形成に成功した。一方、三角形構造のメサ表面は、成長丘が形成されていることが分かった。その成長丘は、らせん転位によるものであることが分かった。成長丘の密度は、



図 5 成長後の  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  のメサ構造の微分干渉像

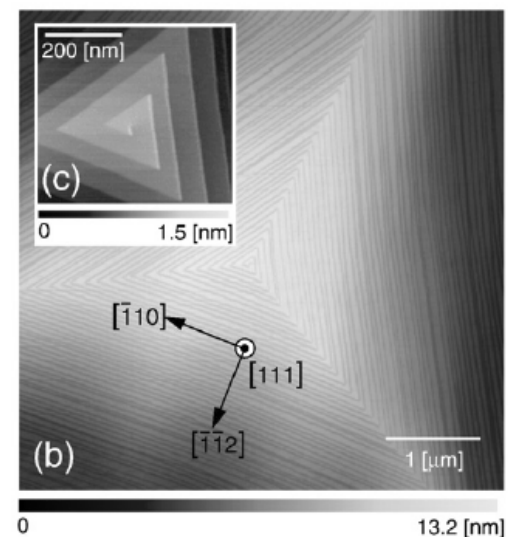
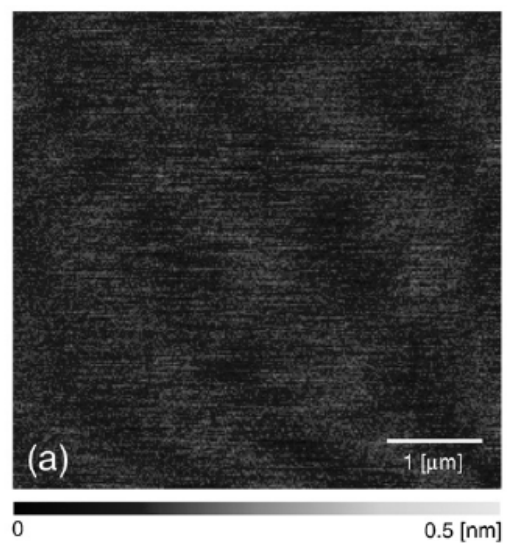


図 6 (a) 平らなメサ表面と (b) 3 角形構造が観察されたメサ表面の原子間力顕微鏡像。(a) ステップフリー表面。(b) らせん転位による成長丘。

$10^4 \text{ cm}^{-2}$  オーダーであり、基板の転位密度とほぼ同様であることがわかった。従って、デバイスサイズである  $100 \times 100 \text{ }\mu\text{m}^2$  のステップフリー表面形成の歩留まりを上げるには、転位密度を一桁以上上げる必要があることが分かった。

(2) ダイヤモンドのナノ構造を用いたナノメートルスケール標準試料の作製

2次島成長モードを用いたホモエピタキシャル成長後のダイヤモンド表面の原子間力顕微鏡像を図7に示す。その結果、大きさの異なる5つの正三角形島構造が原子的に平坦な表面上に形成されていることが分かった。また、その正三角形島の段差は、単原子ステップの  $0.21 \text{ nm}$  であった。今回形成された正三角形島構造は、図8のような原子構造であることを提案した。大気中で保管された試料を半年後観察した結果、表面形態に変化は観察されず、また表面ラフネスの増加も観察されなかった。このことから、今回作製した標準試料は、大気中でも安定であることを実証した。

以上の成果を第38回結晶成長国内会議(NCCG-38)と表面技術協会主催の第120回講演大会で発表し、それぞれ講演奨励賞と優秀講演賞を受賞した。また、The second international symposium on interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2009)では、招待講演を行った。更に、Applied Physics Expressに掲載された論文(Nanometer Scale Height Standard Using Atomically Controlled Diamond Surface)は、2009年4月期のTop 20 Most Downloaded Articlesに選ばれた。その結果は、産業技術総合研究所からプレスリリースされ、毎日新聞、朝日新聞等計8誌に記事が掲載された。さらに、JR東日本企画「トレインチャンネル」の番組内でも“世界最小のダイヤモンド製のさし”として、JR中央線及び京浜東北線のドア上モニターで紹介された。

ダイヤモンド成長モードの制御及び表面制御技術に関する成果は、究極の半導体材料と称されるダイヤモンドのデバイス開発の実現性を高め、ナノメートルスケール標準試料の開発に関する成果は、将来のナノテクノロジー社会の基盤を支える技術になると期待される。

また、ステップフリーダイヤモンド表面は、AlNやBNなどのワイドバンドギャップヘテロ構造の開発において理想界面を提供し、十分なデバイス特性の創出が期待される。

今後は、ステップフリー表面を用いたデバイス構造を作製し、次世代パワーデバイスの開発を行っていききたい。

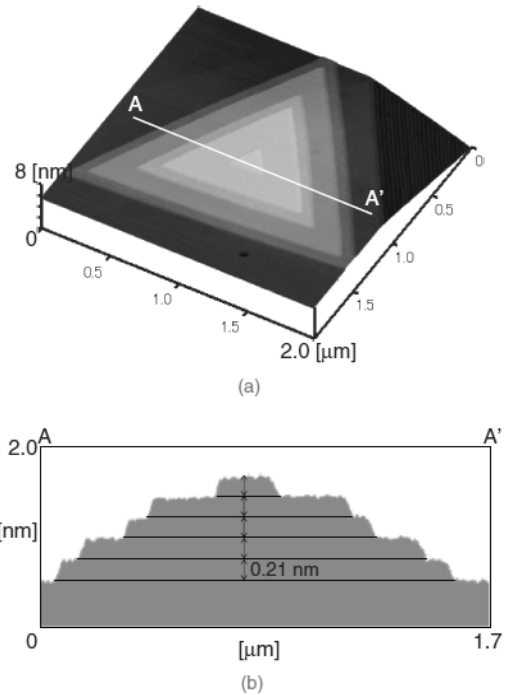


図7 ダイヤモンドナノ構造の原子間力顕微鏡像

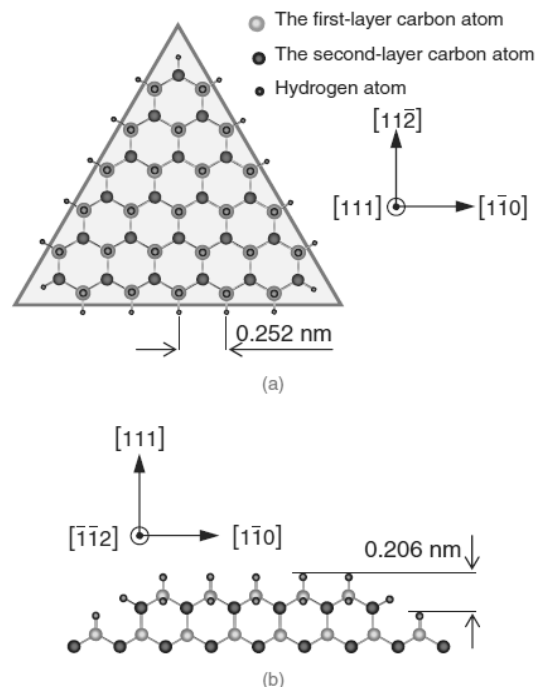


図8 正三角形ダイヤモンド(111)島の原子構造。(a)上面図。(b)側面図。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

1. Norio Tokuda, Hitoshi Umezawa, Kikuo Yamabe, Hideyo Okushi, and Satoshi Yamasaki, Growth of atomically step-free surface on diamond {111} mesas, Diamond and Related Materials, 19 (2010), 288-290, 査読有
2. 徳田規夫, 権太聡, 牧野俊晴, 山崎聡, 正確に0.2ナノメートルを測れますか? ~ダイヤモンドによるナノスケール標準試料の可能性~, MATERIAL STAGE, 9 (2010) 1-3, 査読無
3. 徳田規夫, 山崎聡, ナノサイズを測るダイヤモンドの“ものさし”, Newton, 8 (2009) 13, 査読無
4. Norio Tokuda, Hitoshi Umezawa, Hiromitsu Kato, Masahiko Ogura, Satoshi Gond a, Kikuo Yamabe, Hideyo Okushi, Satoshi Yamasaki, Applied Physics Express, 2 (2009) 055001, 査読有

[学会発表] (計4件)

1. 徳田規夫, 猪熊孝夫, 山部紀久夫, 大串秀世, 山崎聡, 完全平坦ダイヤモンド表面の形成, 表面技術協会 第120回講演大会, 2010年9月18日, 幕張メッセ国際会議場 (千葉県)
2. Norio Tokuda, Toshiharu Makino, Masahiko Ogura, Hiromitsu Kato, Hitoshi Umezawa, Kikuo Yamabe, Hideyo Okushi, Satoshi Yamasaki, Atomically controlled diamond surfaces, The second international symposium on interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2009), 2009年3月10日, つくば国際会議場 (茨城県)
3. 徳田規夫, 牧野俊晴, 小倉政彦, 山部紀久夫, 大串秀世, 山崎聡, マイクロ波プラズマ CVD によるステップフリーダイヤモンド(111)表面の形成, 第38回結晶成長国内会議(NCCG-38), 2008年11月6日, 仙台市戦災復興記念館 (宮城県)
4. 徳田規夫, 牧野俊晴, 小倉政彦, 山部紀久夫, 大串秀世, 山崎聡, マイクロ波プラズマ中のダイヤモンド(111)膜の成長とエッチング, 2008年秋季 第69回応用物理学会学術講演大会, 2008年9月2日, 中部大学 (愛知県)

[産業財産権]

○出願状況 (計2件)

名称: ナノメートルスケールの計測標準試料

及びナノメートルスケールの計測標準試料を使用した走査型顕微鏡の校正方法体

発明者: 徳田 規夫、山崎 聡、栗原 健一、権太 聡、太田 敏隆

権利者: 産業技術総合研究所

種類: 特許

番号: 特願 2008-222042

出願年月日: 2008年8月29日

国内外の別: 国内

名称: 単結晶ダイヤモンド基板

発明者: 徳田 規夫、小倉 政彦、加藤 宙光、竹内 大輔、牧野 俊晴、小山 和博、大串 秀世、山崎 聡

権利者: 産業技術総合研究所

種類: 特許

番号: 特願 2009-100870

出願年月日: 2009年4月17日

国内外の別: 国内

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

徳田 規夫 (TOKUDA NORIO)

金沢大学・電子情報学系・助教

研究者番号: 80462860