

平成 22 年 4 月 21 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2011

課題番号：19053002

研究課題名（和文） ナノ機能元素制御高機能薄膜材料の創成

研究課題名（英文） Development of functional thin films modified by nano dopant

研究代表者

山本 剛久 (YAMAMOTO TAKAHISA)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・准教授

研究者番号：20220478

研究分野：セラミック材料学

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：機能元素、PLD、転位、薄膜材料、透過型電子顕微鏡、粒界、界面

### 1. 研究計画の概要

種々の材料における機能発現は、転位、粒界、界面などの格子不整合領域に偏析、集積したドーパント（機能元素）に依存する。本計画研究では、この機能元素の役割を明らかにし、機能元素の理論予測に立脚した新規材料の創製を行っていくことを目的としている。具体的には、(1)PLD法による複合酸化物薄膜形成時の陽イオン比レーザーフルーエンス依存性の精密制御法、さらには陽イオン空孔の制御法を確立させる。最終的には陽イオン空孔を制御した新たな機能性薄膜材の作成を行う。(2)MOCVD法による選択横方向成長による高品位化合物半導体薄膜結晶を得るための成長条件の確定、および、得られた薄膜における貫通転位の形成状態と薄膜の物性との相関性について明らかにし、従来以上の高い結晶性を有した化合物半導体薄膜を作製する。(3)Ga<sub>n</sub>, Al<sub>n</sub>, などの化合物半導体、STOなどの複合酸化物薄膜中の貫通転位を利用した転位ナノ細線を作成し、その物性と原子構造などとの相関性を明らかにする。最終的には、転位を利用した新たな機能材料の創成に挑戦する。

### 2. 研究の進捗状況

(1) PLD法における複合酸化物（STO）の陽イオン比制御に関する基礎的条件の抽出および陽イオン空孔制御に成功した。薄膜中の陽イオン比は照射エネルギー密度に依存することを系統的な実験から確定させ、エネルギー値を厳密に制御することで化学量論比および化学量論比から変化したSTO薄膜を合成

しうることを明らかにした。薄膜中の Sr/Ti 比はレーザーフルーエンスに依存し、そのエネルギー値が低くなると Sr 過剰、高い場合には Ti 過剰となる。ある特定のレーザーフルーエンスにおいてのみ真に化学量論比の Sr/Ti 比を有する薄膜を得ることができた。一方この Sr/Ti 比レーザーフルーエンス依存性を用いて、薄膜材中の Sr 空孔、もしくは、Ti 空孔の形成を制御することが可能となる。成長温度を制御することによりそれら陽イオン空孔の均一分布、クラスタリングを制御できることを突き止めた。

(2) GaAs 結晶成長における結晶の高品質化を目的とし、Si 基板表面の SiO<sub>2</sub> マスク形成法を適用した結晶中転位密度の低減を実現させた。結晶成長はこのマスク中に加工した微小ホール（基板表面が露出している箇所）から生じ、成長に伴う転位はこの部分から成長し、結晶膜の成長とともに上方へ成長していく。この横方向成長を利用し、結晶中の転位密度を極端に減少させることに成功した。

(3) 結晶中の転位を利用した電気伝導ナノ細線の開発を行った。Ga<sub>n</sub> 単結晶を作成し、塑性変形により導入した変形転位の電気伝導を接触式 AFM を用いて直接測定し、転位線に沿った電気伝導の直接確認に成功した。この電気伝導の機構について調べたところ、電流はフレンケル-プールの機構に従って流れることを明らかにした。また、アルミナなどの酸化物、GaAs などの化合物半導体についても同様な実験を展開させている。

### 3. 現在までの達成度

(1) 当初の計画以上に進展している。

当初目的としていた研究事項について進

抄状況の項で述べたように計画どおりに進展し、さらに、空孔のクラスタリング制御などの新たな知見が得られているため。

(2) 当初の計画以上に進展している。

MOCVD 法による選択横方向成長による高品位化合物半導体薄膜結晶の成長条件と結晶性の相関性について明らかにでき、さらに、貫通転位密度が極端に少ない結晶領域を作製することに成功したため。

(3) おおむね順調に進展している。

計画していた貫通転位における電気伝導の直接測定に成功し、その伝導機構を明らかにできた。今後この成果をもとに新たな機能材料の創出していきたい。

#### 4. 今後の研究の推進方策

研究遂行に特に問題となる事項はなく、当初の計画どおりに進めていく。

#### 5. 代表的な研究成果

〔雑誌論文〕(計5件)

1) T. Yamamoto (5人中4番目), "Atomic structure of threading dislocations in AlN thin films", PHYSICA B-CONDENSED MATTER, 404[23-24], 4886-4888, (2009), 査読有.

2) H. Yoshida, T. Yamamoto (5人中4番目), "Doping amount and temperature dependence of superplastic flow in tetragonal ZrO<sub>2</sub> polycrystal doped with TiO<sub>2</sub> and/or GeO<sub>2</sub>", ACTA MATERIALIA, 57[10], 3029-3038, (2009), 査読有.

3) T. Yamamoto, M. Sugiyama (7人中4番目), "Dislocation Free InGaAs on Si(111) Using Micro Channel Selective Area Metalorganic Vapor Phase Epitaxy", APPLIED PHYSICS EXPRESS, 2[1], 011101 (2009), 査読有.

4) T. Ohnishi, T. Yamamoto, (4人中3番目), "Defects and transport in complex oxide thin films", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 103[10], 103703, (2008), 査読有.

5) 山本剛久, 幾原雄一, "n型半導体 SrTiO<sub>3</sub> 単一粒界素子の粒界構造と電気特性", マテリアルズインテグレーション, 20[10], 8-14(2007), 査読有.

〔学会発表〕(計5件)

1) 山本剛久, 「構造・機能セラミックスの粒界計測と組織制御に関する研究」(学術賞受賞講演), 日本セラミックス協会2010年春季大会, 22-24 MAR 2010, 東京.

2) T. Yamamoto (5人中1番目), "Off-Stoichiometry at Grain Boundaries and Surfaces in BaTiO<sub>3</sub> and SrTiO<sub>3</sub>" (Invited), The 10<sup>th</sup> International Symposium on Nanocomposites and Nanoporous Materials, 3-5.Dec.(2009), Dusan, Korea.

3) 山本剛久, 溝口照康, 柴田直哉, Si Young Choi, 幾原雄一, 「BaTiO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub>における点欠陥制御の重要性」(基調講演), 日本金属学会秋季シンポジウム, 15-17 SEP 2009, 京都.

4) T. Yamamoto (5人中1番目), "HRTEM Study for Cemented Carbides doped with Transition Metal Carbides of VC, NbC and ZrC", 17<sup>th</sup> Plansee Seminar, 29.May, 2009, Reutte Austria.

5) T. Yamamoto (6人中1番目), "Grain Boundary Structures and Electrical Properties in BaTiO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub> and ZnO Bicrystals" (Invited), 4<sup>th</sup> International Symposium on Designing, Processing and Properties of Advanced Engineering Materials(ISEAM), 2008.Nov.20, 名古屋.

〔産業財産権〕

出願状況(計3件)

1) 名称: 記憶素子およびその製造方法  
発明者: 大久保勇気、山本剛久他 計11名  
番号: 特願2008-151016  
出願年月日: 2008-06-09  
国内外の別: 国内・国際

2) 名称: 酸化リチウム焼結体及び当該焼結体の製造方法  
発明者: 曾我向平、山本剛久他 計4名  
番号: 特願特願2008-021606  
出願年月日: 2008-01-31  
国内外の別: 国内・国際

3) 名称: 物理蒸着装置および物理蒸着方法  
発明者: 湯元敦史、山本剛久他 計4名  
番号: 特願2007-031144  
出願年月日: 2007-02-09  
国内外の別: 国内・国際