

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 18 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25286061

研究課題名(和文) 異方ストレス印加技術を用いた表面物性の制御と新奇ナノ構造の創製

研究課題名(英文) Control of surface properties and nano-structures by means of anisotropic surface stress

研究代表者

朝岡 秀人 (Asaoka, Hidehito)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究主席

研究者番号：40370340

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：表面ストレスは成長原子の拡散・吸着過程を決定することから、表面ストレスの解明・制御がナノ構造創製のために有力な手段となる。我々はサーファクタントを利用したヘテロ成長過程におけるストレス変化や、表面再構成構造に内在するストレスを実験的に捉えるため、電子線回折と基板たわみ同時計測法を開発し、表面構造に対応するストレスを定量的に評価した。さらには基板ホルダーにストレスを印加する機構を付加し、ストレス印加によるナノ構造創成を可能とした。

研究成果の概要(英文)： Surface stress processes reveal nature of growth stages during nano-structural formation. We focused on time evolution of the stress during surfactant-mediated epitaxy and reconstruction. Real-time observations of the stress/strain and morphology were performed simultaneously by using substrate curvature and electron diffraction methods. As a result, we have found a direct evidence for stress of reconstruction. Furthermore, the real-time stress measurement has provided a unique stress evolution during the nano-structure growth. We have realized a stress induced system for fabrication of nano-structures.

研究分野：結晶成長

キーワード：結晶成長 表面・界面物性 MBE・エピタキシャル 自己組織化

1. 研究開始当初の背景

次世代ナノテクノロジーを担う低次元量子構造を実現する自己組織化技術が求められている。表面ストレスは成長原子の拡散・吸着過程や、デバイス特性を決定するため、表面ストレスの制御がナノ構造の制御のために重要な手段となる。しかし、自己組織化のテンプレートとなるSi表面はアドアトム、ダイマーなどを含む複雑な再構成構造により形成されるために、これまで表面ストレスの理論計算による報告があるものの実験的に評価することが困難であった。

2. 研究の目的

再構成構造のストレス計測する技術確立し、水素やビスマス終端過程を含む成長過程を解明する。異方ストレスを自在に印加する技術を開発し、ストレスをパラメーターとしてナノ構造創製に向けた知見を得る。これらの知見に基づき、新規量子デバイス実現に向けた設計指針を提案する。

3. 研究の方法

自己組織化に用いる再構成表面に内在するストレスを実験的に計測することから始まり、ストレス計測による水素やビスマス終端過程を含む原子吸着過程の解明を行う。さらには機械的に基板をたわませ表面ストレスを自在に印加する技術を導入し、自己組織化による低次元ナノ構造創成を試みる。

4. 研究成果

これまでに得られた主な成果を以下のテーマごとに記載する。

(1) Bi サーファクタントを利用した Ge/Si(111)ヘテロ成長過程におけるストレス解析

Bi サーファクタントを利用した Ge/Si(111)ヘテロ成長過程の基板のたわみを実測したストレス遷移と、RHEEDの同時観測、更には同成長条件下の表面構造をSTMにより観測した。Si(111)-7×7 清浄表面上のBi終端構造生成と共に、引張ストレスの減少が観測され、Bi単原子層による $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 再構成表面が完成し、表面応力が飽和した。さらにBi終端Si(111)上にGe成長が開始されると、 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 再構成を保持しながら圧縮ストレスが発生し、臨界膜厚(2-3BL付近)に達すると転位の発生に伴う緩和が観測された(図1)。初期に生成したGeの2D island(図2)は15BLまでには合体し、層成長に移行し、ストレスを緩和した平坦面を保持しながらFM成長モードでの成長形態を示す。Biサーファクタントによる独自の成長モードを可能とするストレス変化を定量的に評価した。

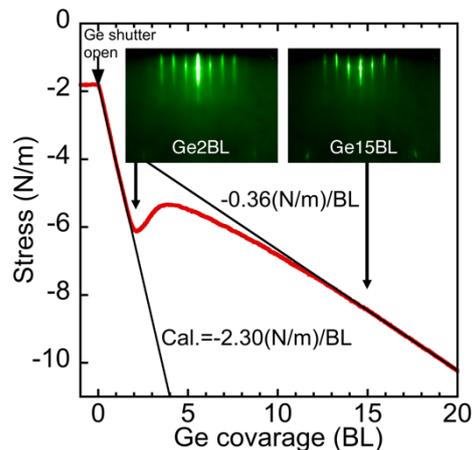


図1 Bi サーファクタントを利用した Ge/Si(111)ヘテロ成長過程における表面構造とストレス変化

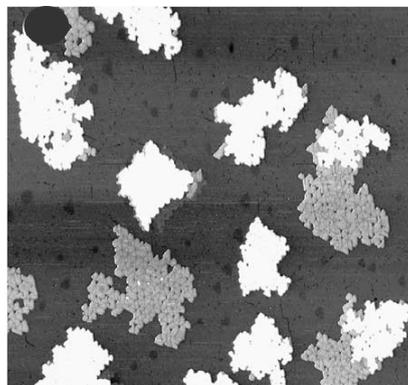


図2 Bi サーファクタントを利用した Ge/Si(111)ヘテロ成長初期に生成する Ge の 2D islands

(2) Si(111)表面再構成生成過程のストレス解析

水素終端 Si(111)-1×1 表面への Ge 成長に伴う水素脱離過程と、Si(111)-7×7 表面への水素原子の吸着過程のストレスをその場測定した。水素終端 Si 表面に Ge をヘテロエピタキシャル成長させると、水素終端 Ge 表面に移行し、水素終端 Si 表面との水素脱離温度の差から、水素終端 Ge 表面のみから水素が脱離する。このため Ge ウエッチング成長過程で、定温状態での水素脱離が可能となり、再構成構造生成時のストレス変化を観測した(図3)。一方、Si(111)-7×7 表面への水素吸着による水素終端 Si(111)-1×1 生成に伴うストレス変化を観測した(図4)。これらの結果から、水素終端 Si(111)-1×1 表面が、引張応力を有する Si(111)-7×7 表面からのストレス緩和量を定量的に計測することができた。

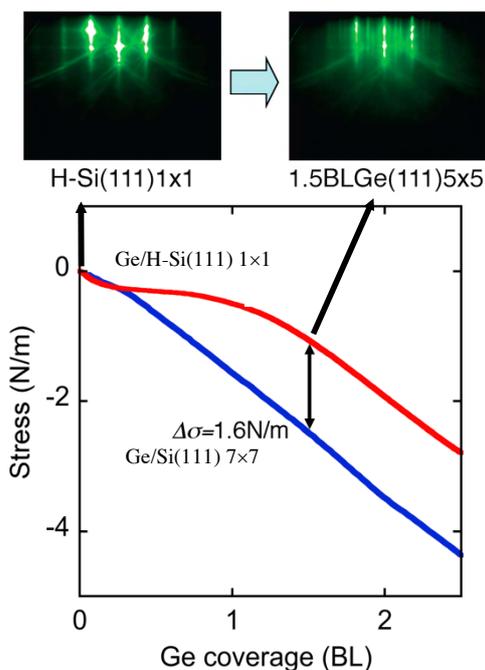


図3 水素終端 Si (111)-1×1 表面への Ge 成長に伴う水素脱離過程の表面構造とストレス変化

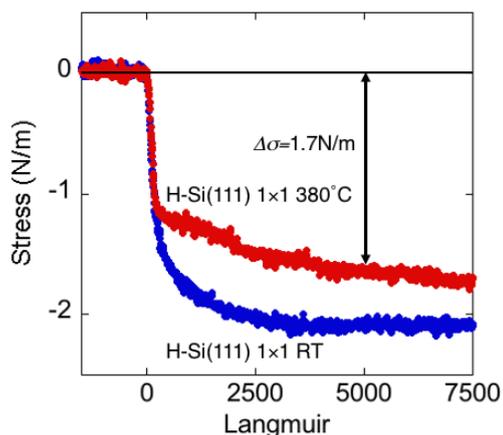


図4 Si (111)-7×7 表面への水素原子の吸着過程のストレス変化

5. 主な発表論文等
〔雑誌論文〕 (計 14 件)

- (1) **Processes of silver photo-diffusion into Ge-chalcogenide probed by neutron reflectivity technique**, Y. Sakaguchi, H. Asaoka, Y. Uozumi, Y. Kawakita, T. Ito, M. Kubota, D. Yamazaki, K. Soyama, G. Sheoran, M. Mitkova, Phys. Status Solidi A **213** (2016) 1894-1903.
doi:10.1002/pssa.201533037 (査読あり)
- (2) **Stress evolution during Si(111)7×7 surface reconstruction**, H. Asaoka, Y.

Uozumi, J. Surf. Sci. Jpn. **37** (2016) 446-450. (in Japanese).
doi:http://doi.org/10.1380/jsssj.37.446 (査読あり)

- (3) **Silver photo-diffusion and photo-induced macroscopic surface deformation of Ge₃₃S₆₇/Ag / Si substrate**, Y. Sakaguchi, H. Asaoka, Y. Uozumi, K. Kondo, D. Yamazaki, K. Soyama, M. Ailavajhala, M. Mitkova, J. Appl. Phys. **120** (2016) 055103 (1-10),
doi: 10.1063/1.4959207 (査読あり) .
- (4) **Dynamics of silver photo-diffusion into Ge-chalcogenide films: time-resolved neutron reflectometry**, Y. Sakaguchi, H. Asaoka, Y. Uozumi, Y. Kawakita, T. Ito, M. Kubota, D. Yamazaki, K. Soyama, M. Ailavajhala, M. R. Latif, K. Wolf, M. Mitkova, M. W. A. Skoda, J. Phys.: Conf. Ser. **619**(2015) 012046 (1-4).
doi:10.1088/1742-6596/619/1/012046 (査読あり)
- (5) **Crystal structure and electron density distribution analyses of Nd_xCe_{1-x}O_{2-δ} for electrolyte by Rietveld/ maximum entropy method**, T. Taguchi, N. Igawa, S. Miwa, A. Birumachi, H. Asaoka, M. Osaka, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **13** (2015) 339-342.
doi:10.1380/ejsnt.2015.339 (査読あり)
- (6) **Measurement of transient photo-induced changes in thin films at J-PARC -time-resolved neutron reflectivity measurement of silver photo-diffusion into Ge-chalcogenide films-**, Y. Sakaguchi, H. Asaoka, Y. Uozumi, Y. Kawakita, T. Ito, M. Kubota, D. Yamazaki, K. Soyama, M. Ailavajhala, K. Wolf, M. Mitkova, M. W. A. Skoda, J. Phys. Soc. Jpn. **8** (2015) 031023 (1-10).

- doi:http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.8.0310
23 (査読あり)
- (7) **Surface stress measurement of Si(111) 7×7 reconstruction by comparison with hydrogen-terminated 1×1 surface**, H. Asaoka, Y. Uozumi, Thin Solid Films **591** (2015) 200-203.
doi:10.1016/j.tsf.2015.03.055 (査読あり)
- (8) **Synthesis of silicon carbide nanotube heterostructure by crystallinity change using ion irradiation technique**, T. Taguchi, S. Yamamoto, K. Kodama, H. Asaoka, Carbon **95** (2015) 279-285.
doi:10.1016/j.carbon.2015.08.056 (査読あり)
- (9) **Studies of silver photo-diffusion dynamics in Ag/Ge_xSi_{1-x} (x=0.2 and 0.4) films by means of neutron reflectometry**, Y. Sakaguchi, H. Asaoka, Y. Uozumi, Y. Kawakita, T. Ito, M. Kubota, D. Yamazaki, K. Soyama, M. Ailavajhala, M. R. Latif, M. Mitkova, Can. J. Phys. **92** (2014) 654-658.
doi:10.1139/cjp-2013-0593 (査読あり)
- (10) **Unique surface structure formation on Ge covered Si(110) surface**, Y. Yokoyama, Y. Uozumi, H. Asaoka, J. Cryst. Growth **405** (2014) 35-38.
doi:10.1016/j.jcrysgro.2014.07.047 (査読あり)
- (11) **Direct stress measurement of Si(111) 7×7 reconstruction**, H. Asaoka, T. Yamazaki, Y. Yokoyama, K. Yamaguchi, J. Cryst. Growth **378** (2013) 37-40.
doi:10.1016/j.jcrysgro.2012.12.124 (査読あり)
- (12) **Change of Si(110) reconstructed structure by Ge nano cluster formation**, Y. Yokoyama, T. Yamazaki, H. Asaoka, J. Cryst. Growth **378** (2013) 230-232.
doi:10.1016/j.jcrysgro.2012.10.047 (査読あり)
- (13) **Preferential adsorption of C₆₀ molecules to step edges of the Si(110)-16×2 single domain surface**, Y. Yokoyama, Y. Yamada, H. Asaoka, M. Sasaki, J. Phys.: Conf. Ser. **417** (2013) 012036 (1-6).
doi:10.1088/1742-6596/417/1/012036 (査読あり)
- (14) **Direct measurement of surface stress during Bi-mediated Ge growth on Si**, H. Asaoka, T. Yamazaki, K. Yamaguchi, S. Shamoto, S. N. Filimonov, M. Suemitsu, Surf. Sci. **609** (2013) 157-160.
doi:10.1016/j.susc.2012.12.002 (査読あり)
- [学会発表] (計 19 件)
- (1) (招待講演) ヘテロエピタキシャル成長と埋もれた水素ヘテロ界面構造の研究、朝岡秀人、Workshop: CROSS roads of users and J-PARC 第19回「中性子とミュオンによる界面研究」、いばらき量子ビーム研究センター(茨城、東海村)、Feb. 13, 2017.
- (2) **Si(110)-16x2単一ドメイン表面**、朝岡秀人、計算機センター特別研究プロジェクト「結晶成長の数理」第11回研究会核生成再考～古典核生成理論を越えて～、学習院大(東京、豊島区)、Dec. 17, 18, 2016.
- (3) **Surface stress relief during Ge wetting layer and nanodot formation on Si(111)**, Y. Uozumi, T. Yamazaki, H. Asaoka, 29th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2016), Kyoto, Japan, Nov. 8-11, 2016.
- (4) (招待講演) **Direct determination of surface stress during nano-structural formation on Silicon**, H. Asaoka, Annual

- World Congress of Nano Science & Technology, Singapore Oct. 26-28, 2016.
- (5) (招待講演) **Relationship between surface stress and reconstruction**, H. Asaoka, Energy Materials and Nanotechnology Meeting on Epitaxy, Budapest, Hungary, Sep. 4-8, 2016.
- (6) **Low temperature formation of Si(110)-16×2 through wet etching**, M. Yano, S. Suzuki, Y. Uozumi, H. Asaoka, 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-18), Nagoya, Japan, Aug. 7-12, 2016.
- (7) **Real-time measurement of intrinsic stress in silicon reconstruction during hydrogen adsorption/desorption process**, H. Asaoka, Y. Uozumi, 16th International Conference on Atomic Layer Deposition (ALD 2016), Dublin, Ireland, Jul. 24-27, 2016.
- (8) (招待講演) ナノ構造形成過程の表面ストレスその場測定、朝岡秀人、電気化学会北海道支部ライラックセミナー、おたる自然の村おこぼち山荘（北海道、小樽市）、Jun. 25-26, 2016.
- (9) (招待講演) ヘテロ成長過程の表面ストレスの解明、朝岡秀人、計算機センター特別研究プロジェクト「結晶成長の数理」第9回研究会 表面—歪み、構造、相転移—、学習院大（東京、豊島区）、Dec. 24,25, 2015.
- (10) (招待講演) **Real-time measurement of surface stress evolution during nano-structural formation on Silicon**, H. Asaoka, Collaborative Conference on Crystal Growth, Hong Kong, China, Dec. 14-17, 2015.
- (11) (奨励賞受賞) 化学処理によるSi(110)清浄表面の構造評価、鈴木 翔太、朝岡秀人、魚住雄輝、山口 憲司、日本化学会 第26回 茨城地区研究交流会、日立市多賀市民プラザ（茨城、日立市）、Nov. 27, 2015.
- (12) **Real-time stress measurement during Si surface reconstruction and Ge nanodot growth on Si**, H. Asaoka, Y. Uozumi, 31th European Conference on Surface Science (ECOSS-31), Barcelona Spain, Aug.31-Sep.4, 2015.
- (13) **Real-Time Measurement of Surface Stress Relief during Ge Nanodot Growth on Si**, H. Asaoka, Y. Uozumi, T. Yamazaki, M. Suemitsu, 9th International Conference on Silicon Epitaxy and Heterostructures (ICSI-9), Montreal, Canada, May 17-22, 2015.
- (14) (招待講演) **Surface stress evolution during structural formation on Silicon**, H. Asaoka, Collaborative Conference on Crystal Growth, Phuket, Thailand, Nov. 4-7, 2014.
- (15) **Crystal Structure and Electron Density Distribution Analyses of Nd_xCe_{1-x}O_{2-δ} for Electrolyte by Rietveld/ Maximum Entropy Method**, T. Taguchi, N. Igawa, S. Miwa, A. Birumachi, H. Asaoka, M. Osaka, The 7th International Symposium on Surface Science (ISSS-7), Matsue, Japan, Nov. 2-6, 2014.
- (16) **Surface stress measurement of Si reconstruction**, H. Asaoka, Y. Uozumi, Y.Y okoyama, 16th International Conference on Thin Films (ICTF16), Dubrovnik, Croatia, Oct.13-16, 2014.
- (17) **Unique surface structure formation on Ge covered Si(110) surface**, Y. Yokoyama, Y. Uozumi, H. Asaoka, the 19th International Vacuum Congress (IVC-19), Paris, France, Sep. 9–13, 2013.

- (18) **Stress evolution during Si surface reconstruction**, H. Asaoka, Y. Uozumi, Y. Yokoyama, K. Yamaguchi, the 19th International Vacuum Congress (IVC-19), Paris, France, Sep. 9–13, 2013.
- (19) (招待講演) **Direct determination of stress evolution during hetero-epitaxial growth**, H. Asaoka, Collaborative Conference on Crystal Growth, Cancun, Mexico, Jun. 10-13, 2013.

[その他]

ホームページ等

<https://sites.google.com/site/hidehitoasaoka/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

朝岡 秀人 (ASAOKA HIDEHITO)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究主席

研究者番号：40370340

(2) 研究分担者

山田 洋一 (YAMADA YOICHI)

筑波大学・数理物質科学研究科 (系) ・講師

研究者番号：20435598

田口 富嗣 (TAGUCHI TOMITSUGU)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・その他部局等・上席研究員

研究者番号：50354832