

極小熱伝導率を有する単結晶ゲルマナン薄膜の創製

Formation of single-crystalline germanane film with ultralow thermal conductivity

大阪大学¹ ○上松 悠人¹, 寺田 吏¹, 石部 貴史¹, 中村 芳明¹

Osaka Univ.¹, ○Yuto Uematsu¹, Tsukasa Terada¹, Takafumi Ishibe¹, and Yoshiaki Nakamura¹

E-mail: u261990k@ecs.osaka-u.ac.jp

【背景】近年、特異な電気伝導特性や光学特性を有することから、グラフェンをはじめとする二次元層状物質が注目されている。その中でも、グラフェンと同じ IV 族の二次元原子シート状物質であるシリセン (Si) やゲルマネン (Ge) が新材料として期待される。しかし、大気中での不安定性のため作製困難という課題がある。そこで、二次元構造を有し安定性が高いことで知られる、ゲルマネンを水素終端したゲルマナン (GeH) に着目した[1]。GeH は、高いキャリア移動度を示し、最近ではトランジスタ応用の報告例もある[2]。一方で、層状構造のため低い熱伝導率を示すと予想され、熱電変換への応用も期待できる。しかし、単結晶 GeH を作製した報告すらなく、ましてや伝熱特性に関する知見はない。本研究では、Ge 基板上の単結晶 GeH 薄膜の作製およびその熱伝導率測定を目的とする。

【方法】超高真空中 ($\sim 2 \times 10^{-8}$ Pa) で分子線エピタキシー法によって、Ca を室温で Ge(111)基板上に蒸着した後、700°C で加熱処理を施すことにより、蒸着した Ca と Ge 基板を反応させて GeH の前駆体となる平坦表面のエピタキシャル CaGe_2 薄膜を成長した。その後、 CaGe_2 薄膜を -30°C で 24 時間 HCl に浸漬することで GeH 薄膜を作製した。構造評価には、反射高速電子回折法 (RHEED)、X 線回折法 (XRD)、X 線反射率法 (XRR)、ラマン分光法 (Raman)、原子間力顕微鏡法 (AFM) を、熱伝導率評価には 2ω 法 (アドバンス理工) を使用した。

【結果】RHEED 観察と XRD 2θ 測定によって、前駆体の CaGe_2 薄膜(001)が Ge(111)基板上にエピタキシャル成長していることを確認した。HCl 反応後の試料の XRD 2θ 及び極点図測定により、Ge(111)基板上に GeH 薄膜(001)がエピタキシャル成長していることが分かった。また、HCl 反応前後での Raman ピークの変化を確認した (Fig. 1)。さらに、前駆体 CaSi_2 薄膜の Ca 蒸着量により、単結晶 GeH 薄膜の表面の平坦性を制御できることが分かった。この平坦化プロセスの確立により高精度な熱伝導率測定が可能となり、単結晶 GeH 薄膜は極小熱伝導率 ($1.1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) を有することを明らかにした[3]。本講演で詳細を報告する。

【謝辞】本研究の一部は、科研費 基盤研究 A (JP19H00853)、特別研究員奨励費 (JP21J20161) の支援により行われた。また、大阪大学総合解析センターにて XRD 装置支援を受けた。

【参考文献】 [1] E. Bianco et al., *ACS Nano*, 7, 4414 (2013).

[2] Y. Katayama et al., *Appl. Phys. Lett.* 115, 122101 (2019).

[3] Y. Uematsu et al., *Appl. Phys. Express* 13, 055503 (2020).

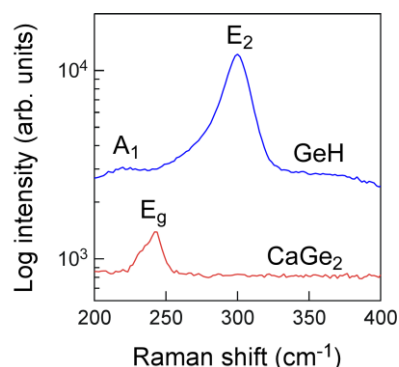


Fig. 1 Raman spectra of CaGe_2 films/Ge (lower) and GeH films/Ge (upper).