

CVD 成長における Cu(111)上の hBN 島の臨界サイズと形状の理論研究

Theoretical study on critical size and shape of hBN island on Cu(111) in CVD growth

島根大院自然科学 [○](M2) 今村 僚, 影島 博之

Shimane Univ. [○]Ryo Imamura, Hiroyuki Kageshima

E-mail: n23m202@matsu.shimane-u.ac.jp

大面積の hBN を CVD 成長で作成することは、コストと産業応用の両面で都合がよいが、品質に課題を抱えており、その向上が求められている。そのためにも、hBN の詳細な成長メカニズムを様々なスケールで明らかにしたい。そこで、我々はマクロな視点で、hBN 島が自発的に大きくなり始める大きさ、つまり臨界サイズ l_c と、ミクロな視点で、初期の成長核の詳細な形状の特徴に焦点を当てて研究を行った。今回の発表では、プログラムパッケージ PHASE/0 [1] を用い、vdW-DF2-B86r 汎関数に基づく van der Waals 補正を考慮した第一原理計算によって得られた結果を報告する[2]。

まず、Cu(111) 6×6 モデルの表面上に様々な形状の単層 hBN 島を配置し、形成エネルギーを計算した。次に、この結果を解析することで、形成エネルギーに対するエッジ部分の寄与とエッジでない部分の寄与を表す ϵ_B 、 ϵ_N 、 ϵ_{in} の値を平均値で算出した。それらの値は、B-rich の場合がそれぞれ、1.02 eV、1.41 eV、-0.02 eV で、N-rich の場合がそれぞれ、1.91 eV、0.52 eV、-0.01 eV である。

ϵ_B 、 ϵ_N 、 ϵ_{in} を用いることで、B エッジの三角形 (TB)、N エッジの三角形 (TN) それぞれの B-rich と N-rich の場合の形成エネルギーが減少し始めるサイズ、つまり l_c を予測することができる。我々が定めた化学ポテンシャルの条件下において、TB と TN の l_c は B-rich の場合がそれぞれ、20 nm と 27 nm で、N-rich の

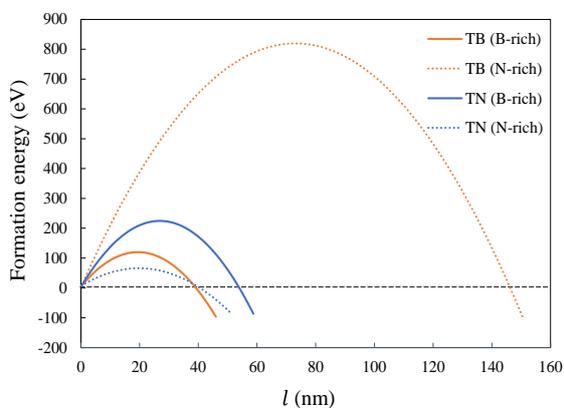


図1. 形成エネルギーを三角形 hBN 島の一边の長さ l の関数として予測した図。橙色と青色の線はそれぞれ TB と TN を表している。実線は B-rich に、点線は N-rich に対応する。

場合がそれぞれ 73 nm と 20 nm となった (図1)。実験では、化学ポテンシャルをある程度変えられるため、 l_c もそれなりに制御でき、そのため我々の結果は参考値にすぎない。しかし、これらの計算結果から、広い化学ポテンシャルの範囲で TN の方がエネルギー的に安定でできやすく、また TN の方が自発成長しやすいことが分かる。実際の CVD 成長では、三角形の hBN ができることが報告されており[3]、我々の結果を照らし合わせると、実験で見えているのは TN であると考えられる。

一方で、計算した Cu(111)上の hBN 島は理想的な平面ではなく、TN を除いてドーム状に丸まっていることを発見した (図2)。そして、この丸まりによって、形状特有の ϵ_{in} が下がるという相関関係があるため、初期の各 hBN 島の形成エネルギーは予測値と一致しているとは限らないことが分かった。丸まりは島が小さい時のみに効果が大きい現象であり、成長核の核形成を議論するためには、ミクロとマクロの2つの視点が必要であると考えられる。

そして、高品質な hBN 結晶を得るためには、N エッジの三角形の臨界サイズを大きくするような成長条件を探ることが重要である。

本研究の一部は、富岳及び、東京大学物性研究所スーパーコンピュータを用いて行われた。また、科研費 (21H01768、21H01394) の支援を一部受けた。

[1] <https://azuma.nims.go.jp>.

[2] R. Imamura and H. Kageshima, Jpn. J. Appl. Phys. 63, 04SP39 (2024).

[3] T. A. Chen, et al., Nature 579, 219 (2020).

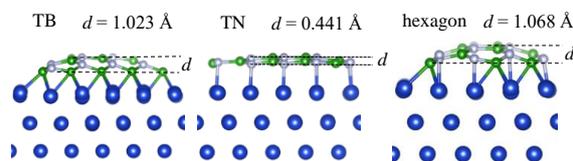


図2. Cu(111) 上の六員環10個の大きさのTB、TN及び六角形島(hexagon)の側面図。 d は、Cu表面から最も遠い原子と最も近い原子の距離で、丸まりの程度を表している。青、緑、銀色の球はそれぞれ Cu、B、N原子を表している。