

六方晶窒化ホウ素薄膜の CVD における成長反応

Growth reaction in the chemical vapor deposition process of hexagonal boron nitride

静岡大院工¹, 静岡大創造大院², 静岡大電子研³

○増田 敦¹, 梅原 直己², 清水 乙生¹, 光野 徹也¹, 小南 裕子¹, 原 和彦^{2,3}

Shizuoka Univ. ○A. Masuda, N. Umehara, T. Shimizu, T. Kouno, H. Kominami and K. Hara

E-mail: jn120825@ipc.shizuoka.ac.jp

【はじめに】 六方晶窒化ホウ素 (h-BN: $E_g \sim 6$ eV) は、ホウ素および窒素の sp^2 結合からなる原子シートが積層したグラファイト様の結晶構造をもつワイドギャップ材料である。その優れた物理的・化学的安定性に加えて、波長 215 nm に自由励起子発光を示すことから深紫外の受発光素子、グラフェンデバイス用基板、窒化物半導体用の剥離層などへの応用が期待されている¹⁻³⁾。我々はこのような応用に向けて、 BCl_3 と NH_3 を原料とする化学気相法 (CVD) を用いて、c 面サファイア基板上への h-BN 薄膜の作製に取り組んでいる。これまでに、減圧で成長を行うことで結晶性が大幅に向上することを明らかにするとともに、10 kPa で成長した試料において自由励起子発光を示す薄膜の作製を達成した⁴⁾。しかしながら、表面平坦性などの薄膜の品質は不十分であり、さらに高品質化を図るためには成長メカニズムを明らかにすることが必須である。そこで今回は BCl_3 と NH_3 供給量が h-BN 薄膜成長に与える影響について調査した結果を報告する。

【試料作製】 試料作製装置は BN 製反応管と管状炉により構成される。原料および雰囲気ガスは、 BCl_3 (0.03 % - N_2 希釈), NH_3 (99.99997 %) および N_2 であり、これらは同心円状のノズルを通して供給される。基板には c 面サファイアを用い、成長温度でサーマルクリーニングを 30 分間、次いで 10 分間窒化を行った後、2 時間の成長を行った。成長時の炉内圧力および成長温度は、5 または 10 kPa および 1200 °C とした。作製した試料について、X 線回折 (XRD) 測定およびカソードルミネッセンス (CL) 測定を用いて結晶性および発光特性を評価した。また、膜厚測定には触針式段差形状測定器を用いた。

【実験結果】 本報告で示す試料は、c 軸配向し、微弱ではあるが 214 nm 付近に h-BN の自由励起子発光を示した。図 1 に、 NH_3 供給量を 200 sccm に固定した場合の BCl_3 供給量と薄膜の成長速度の関係を示す。成長速度は BCl_3 供給量にほぼ比例して増加したが、供給量の低い領域では、一定量の BCl_3 が結晶成長へ寄与していないことがわかった。図 2 は、 BCl_3 供給量を 0.1 sccm に固定した場合の NH_3 供給量と成長速度および XRD 測定結果から評価した結晶性の関係を示している。 NH_3 供給量が 200 sccm まで増加するに伴い、成長速度が増加しているが、さらに供給量を増加させると成長速度および結晶性が急激に低下した。これらの結果は、h-BN の結晶成長が主に気相中の原料間での反応に影響されることを示唆しており、これらを制御することが薄膜の高品質化に向けて必要となる。また、成長初期の膜形成の挙動についても併せて発表する。

- 1) K. Watanabe et al, Nature Photon., 3, 591 (2009).
- 2) C. R. Dean et al, Nature Nanotech., 5, 722 (2010).
- 3) Y. Kobayashi et al, Nature, 484, 223 (2012).
- 4) 梅原他, 第 62 回応用物理学会学術講演会, 12p-B1-23 (2015).

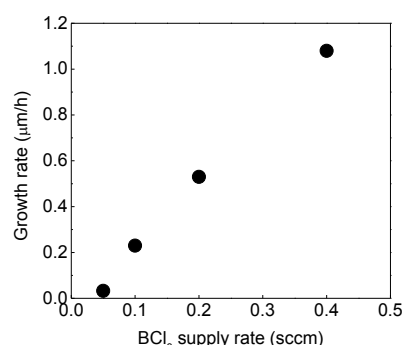


図 1 5 kPa で成長した試料における BCl_3 供給量と成長速度の関係。

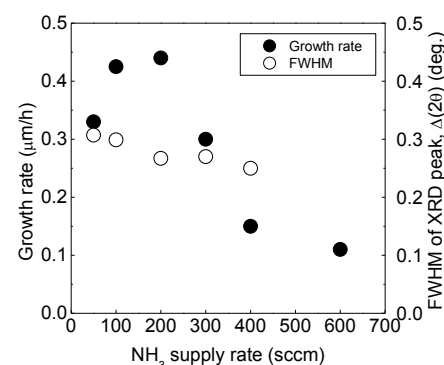


図 2 10 kPa で成長した試料における NH_3 供給量と成長速度および XRD パターンから求めた半値幅との関係。