六方晶窒化ホウ素薄膜の形成過程と結晶成長モデル

Film formation process and crystal growth model of hexagonal boron nitride thin films

静岡大学・創造科学技術大学院 [1]，大学院総合科学技術研究科 [2]，電子工学研究所 [3]
○梅原 直己 [1]，清水 乙生 [2]，増田 敦 [2]，光野 徹也 [2]，小南 裕子 [2]，原 和彦 [1,3]
Shizuoka Univ., °N. Umehara, T. Shimizu, A. Masuda, T. Kouno, H. Kominami and K. Hara
E-mail: umehara.naoki.15@shizuoka.ac.jp

【はじめに】 六方晶窒化ホウ素（h-BN：E_g ~ 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有する 2 次元材料である．その特異な結晶構造や電気絶縁性から，グラフェン系デバイスにおける基板や絶縁層として期待されるだけでなく、波長 215 nm に自由励起子由来の発光を示すことから，深紫外の受発光素子や窒化物半導体用の剥離層など，多分野へ応用される新規電子デバイス材料として世界的に注目を集めている [1, 2]．我々は，このような応用に向けた大面積 h-BN 薄膜の作製技術の確立に取り組んでおり，これまでに 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作製した薄膜において，減圧成長による結晶性の大幅な向上と，10 kPa 以下での成長による自由励起子発光を示す薄膜の作製を報告してきた [3, 4]．しかしながら，グラフェン系デバイス応用などの観点からは，表面平坦性などの特性は不十分であり，このような特性の改善に向けて，h-BN の成長メカニズムを明らかにすることが重要となる．本報告では同一条件で成長時間の異なる試料を複数作製し，表面形状および縦横方向の成長速度の変化を明らかにするとともに，結晶成長モデルについて検討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（0.1 % - N_2 希釈），NH_3（99.99997 %）および N_2 である．基板には c 面サファイアを用い，1200 °C でサーマルクリーニングを 30 分間行った後，成長時間を 6 から 240 分の間で変化させ成長を行った．成長時の炉内圧力および成長温度は，5 kPa および 1150 °C とした．BCl_3 供給量および NH_3 供給量はそれぞれ 0.2 および 200 sccm である．作製した試料について，X 線回折測定およびカソードルミネッセンス測定を用いて結晶性および発光特性を評価した．また，膜厚測定および形状の決定にはそれぞれ触針式段差形状測定器，原子間力顕微鏡および走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた．

【実験結果】 本報告で作製した試料は，c 軸配向し，不純物発光が支配的ではあるが 215 nm 付近に h-BN の自由励起子発光を示す．図 1 は，成長時間 6 分の試料の表面 SEM 像である．成長初期の試料からは，高さ 30 nm，直径 130 nm 程度の平坦な上面を有する結晶核が確認された．この結晶核は，成長時間の増加に従い横方向に優先的に成長し，成長時間 60 分の試料からは直径 500 nm ほどのグレイン同士が結合している様子が観察された．しかしながら，成長時間 240 分の試料においてもグレイン同士の完全な結合には至らなかった．薄膜の形状評価からは，上面が平坦なグレイン上に新たなグレインがホモエピタキシャル成長し，多層構造を形成している様子が確認された．この層形成は図 2 に示す様に，グレインの横方向への成長に比べ，縦方向の層形成が速いため，薄膜の平坦性に乏しく，成長方向および速度の制御が今後の課題である．また，本報告では，この分析を基に提案した結晶成長モデルについても議論する．

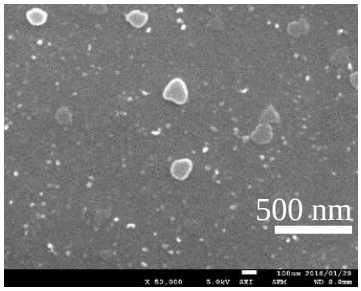

図 1 成長時間 6 分で作製した試料の表面 SEM 像

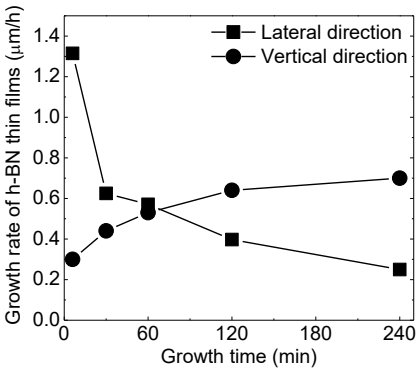

図 2 成長時間と成長速度の関係

1) C. R. Dean et al., Nature Nanotech., 5, 722 (2010).
2) K. Watanabe et al., Nature Photon., 3, 591 (2009).
3) N. Umehara et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 55, 05FD09-1 (2016).
4) 梅原他，第 62 回応用物理学会学術講演会, 12p-B1-23 (2015).

© 2016年 応用物理学会