

六方晶窒化ホウ素薄膜成長における初期核形成の成長条件依存性

Influence of growth conditions on the initial nucleation for h-BN thin film growth

○梅原 直己¹, 安達 拓郎², 光野 徹也², 小南 裕子², 原 和彦^{1,3}

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

Shizuoka Univ., ¹N. Umehara, T. Adachi, T. Kouno, H. Kominami and K. Hara

E-mail: umehara.naoki.15@shizuoka.ac.jp

【はじめに】 グラファイト様の結晶構造を有する六方晶窒化ホウ素 (h-BN: $E_g \sim 6$ eV) は、グラフェンや MoS₂ などの遷移金属半導体とともに、代表的な 2 次元層状物質の 1 つである。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、深紫外の受発光素子や窒化物半導体用の剥離層など、多くの分野において新規電子デバイス材料として研究開発が進められている^{1,2)}。我々は、このようなデバイス応用へ向けた、大面積 h-BN 薄膜の作製技術の確立に取り組んでいる。これまでに、BCl₃ と NH₃ 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、減圧成長による薄膜の単結晶化³⁾、室温で波長 215 nm に自由励起子発光を示す薄膜の作製に成功した。また前回の発表では、表面平坦性改善に向けた結晶成長過程の解明を進め、配向した結晶核の形成が薄膜の高品質化につながることを報告した⁴⁾。本報告では、表面平坦性向上に必要な結晶核の均一な形成に向けて、成長温度が核形成に与える影響および成長前の基板の表面形状が結晶核の形成に与える影響を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、BCl₃ (0.1 % - N₂ 希釈), NH₃ (99.99997 %) および N₂ である。基板には c 面サファイアを用いた。成長前処理として 1200 °C でのサーマルクリーニングを 30 分間施した後、6 および 120 分間成長を行った。成長時の炉内圧力を 5 kPa とし、成長温度を 900 から 1150 °C の間で変化させた。BCl₃ 供給量および NH₃ 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および原子間力顕微鏡 (AFM) を用いた。

【実験結果】 本報告で示した成長条件で作製した試料は、成長時間 2 時間で c 軸配向し、かつ不純物発光が支配的であるが室温で波長 215 nm に h-BN の自由励起子発光を示す。図 1 は、成長時間 6 分、成長温度 900 から 1150 °C で作製した試料の表面 AFM 像である。結晶核の形状は平坦な上面を有する円筒状で、成長温度 900 °C では直径 60 nm、高さ 10 nm 程度であった。結晶核のサイズは、成長温度の上昇に伴い増大し、1150 °C では直径 200 nm、高さ 50 nm 程度の結晶核の形成が確認された。この結果は、結晶核の成長速度が成長温度に依存していることを示唆するものであり、均一な核形成の実現に向けて核形成の密度を制御することが今後の課題である。また、当日の発表では成長直前の基板の表面状態が核形成に与える影響についても議論する。

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 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 16a-A21-9 (2016).

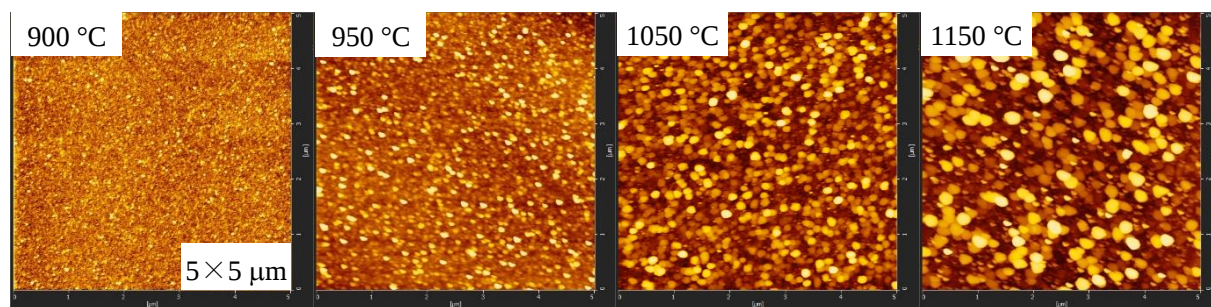


Fig. 1 AFM images of the sample surface after 6 min growth at different temperature