

h-BN: van der Waals 積層ヘテロ構造における絶縁材料

hBN: Insulating materials in van der Waals heterostructure

物質・材料研究機構 谷口 尚

NIMS Takashi Taniguchi

E-mail: taniguchi.takashi@nims.go.jp

窒化ホウ素 (BN) は炭素と同様の結晶構造、高圧多形を有する。高圧合成ダイヤモンドの黄色は窒素不純物の影響であるが、この結晶育成溶媒中に窒素ゲッターとなるチタンを添加すると、窒素不純物を ppb レベルに下げた高純度ダイヤモンドが得られる。ダイヤモンドと同構造の立方晶 BN (cBN) は通常琥珀色であり、炭素、酸素不純物による影響がある。高純度 BN 単結晶合成では育成環境で強い還元、脱炭素効果の獲得が課題であり、溶媒としてホウ窒化バリウムを使用した際にほぼ無色の cBN 単結晶が育成できることが見出された。

六方晶 BN(hBN)は、古くから絶縁体等として広く応用されているが、上述のホウ窒化バリウム溶媒により高純度単結晶が得られ、波長 215nm の高輝度のバンド端発光が見出された。

現在、高純度 hBN 単結晶は、グラフェン、TMDC 等の 2D 系光・電子デバイス、van der Waals 積層ヘテロ構造の絶縁材料等としての応用が進んでいる。hBN 結晶で挟んだグラフェンの電極構造を最適化することで、室温下ではほぼ理論限界のキャリア移動度が観測されている。一方、低温領域では依然として何らかの散乱源の存在が示唆されており、残留不純物による影響と考えられる。

hBN 結晶中の主たる不純物は炭素と酸素であり、その定量分析手法はこれまで SIMS 分析に限られ、検出限界はそれぞれ 10^{18}cm^{-3} 及び 10^{17}cm^{-3} 程度である。この検出限界以下の高純度 hBN 結晶からバンド端発光が観測されるが、炭素不純物の残留($\sim 10^{19}\text{cm}^{-3}$ 、100ppm)によりバンド端発光は消失し、新たに波長 350nm 付近の発光が顕れる。現在、良質の hBN 結晶の目安として、カソードルミネッセンス (CL) によるこの不純物発光像 (350nm) を用いている。

本研究による hBN 結晶成長では、結晶の中央部に炭素不純物の局在がみられるが、そのメカニズムは不明である。hBN 結晶の 2D 系デバイス応用では、残留不純物の低減、結晶の均質化とともに hBN 中の ppm オーダーでの不純物分析手法の開発が課題である。

一方、炭素の同位体効果が多角的に研究されているのに対して、BN 結晶中のホウ素及び窒素同位体濃縮効果の研究は未踏である。熱伝導率を始めとする同位体濃縮効果による基礎物性の変化は興味深い。hBN 原料とアルカリ系窒化物触媒等の既存の経路に依らず、ホウ素及び窒素同位体を濃縮した試薬(ホウ化物、窒化物) から直接 BN 結晶を得る経路を見出し、ホウ素及び窒素同位体組成を任意に制御した hBN と cBN 高品位単結晶を合成した。

本報告では、高圧合成法による hBN 単結晶合成と不純物制御の現状、さらに最近のホウ素、窒素同位体を濃縮した BN 結晶の合成について紹介する。

謝辞：本研究は渡邊賢司主席研究員 (NIMS)、町田友樹教授 (東大) らとの共同研究です。