

六方晶窒化ホウ素薄膜の CVD 成長におけるグレイン成長と結合

Growth and coalescence of grains during the CVD of h-BN thin films

静岡大学・大学院総合科学技術研究科¹, 創造科学技術大学院², 電子工学研究所³

○名嘉真 朝泰¹, 松下 一貴¹, 渡邊 泰良¹, 小南 裕子¹, 原 和彦^{2,3}

Shizuoka Univ., [○]T. Nakama, K. Matsushita, T. Watanabe, H. Kominami and K. Hara

E-mail: nakama.tomoyasu.14@shizuoka.ac.jp

【はじめに】 六方晶窒化ホウ素 (h-BN: $E_g \sim 6$ eV) は、B と N の sp^2 結合からなる原子シートが周期的に積層した結晶構造を有する 2 次元物質で、電子デバイスの飛躍的な特性向上と高機能化をもたらし得る新規材料として注目されている。従来はセラミックス材料としての応用が主であったが、その特異な結晶構造や電気絶縁性から、グラフェンデバイス用基板や層間絶縁層の他、深紫外発光素子用蛍光体や窒化物半導体デバイス用の剥離層など、電子材料としても幅広い応用が期待されている¹⁻³。我々は、このようなデバイス応用に向け、B 原料に BCl_3 を用いる CVD により高品質 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、減圧下で成長を行うことで、グレイン構造が顕著であるものの薄膜の単結晶化⁴および室温固有励起子発光の観測を達成したが、これらの特性はデバイス応用に向けては不十分である。特に 2 次元デバイス応用の観点からは、表面の平坦性の大幅な改善が必要である。一般的な窒化物半導体のエピタキシャル成長では、成長時間によりグレイン径が増大し、横方向の結合が起こる。今回、h-BN 成長においてこのような平坦化が進む度合いが成長条件により異なることを見いだした。発表では、特に成長圧力の影響について検討した結果について報告する。

【試料作製】 薄膜作製装置は BN 製反応管と管状炉により構成される。原料ガスには、 BCl_3 (0.11% - N_2 希釈)、 NH_3 (99.99997%) を使用した。基板には c 面サファイアを用い、前回発表した周囲加熱(T_{wall})と局所加熱を併用して 1100 °C ($T_{wall} = 1000$ °C) まで昇温した⁵。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、成長時間(t)を 30 から 120 分の間で変化させて成長を行った。成長時の炉内圧力(P_g)は 5 および 10 kPa で、 BCl_3 と NH_3 の供給量をそれぞれ 0.1 および 100 sccm に固定した。

【結果と考察】 図 1 に、10 kPa で、30 から 120 分間作製した薄膜の表面 SEM 像を示す。試料は、上面が平坦な柱状グレインから構成され、これらのグレインの径は成長時間の増加に伴い増大した。試料(c)では、これまで得られなかった直径 1.8 μm 程度のグレインが形成され、隣り合ったグレインが結合している様子もみられた。一方、5 kPa で作製した試料(d)では、120 分の成長でもグレインの結合は不十分であった。成長圧力の低下は原料間の気相反応を抑制し、これに伴いグレインの横方向成長を妨げる無配向グレインの形成も抑制されると期待されたが、これらの結果は成長速度の変化などの他要因も考慮する必要があることを示している。

【謝辞】 本研究の一部は、科研費 18K04231 および東北大通研組織連携型共同プロジェクトの援助を受け行われた。

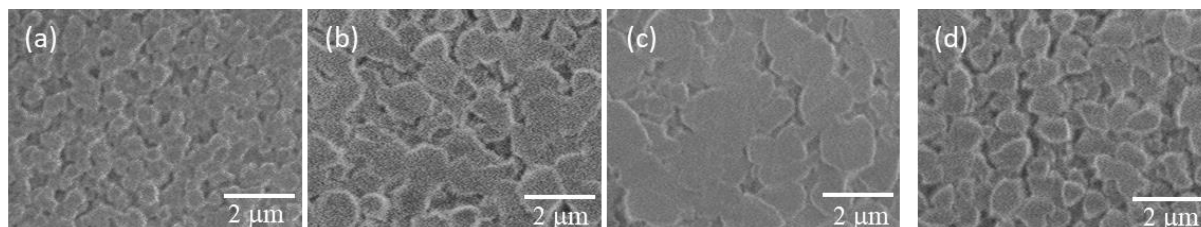


Fig. 1 SEM surface images of the samples grown at for (a) $t = 30$ min, (b) 75 min, (c) 120 min and (d) that grown at 5 kPa for 120 min.

- 1) C. R. Dean et al., Nature Nanotech., 5, 722 (2010).
- 2) K. Watanabe et al., Nature Photon., 3, 591 (2009).
- 3) Y. Kobayashi et al., Nature, 484, 223 (2012).
- 4) N. Umehara et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 55, 05FD09 (2016).
- 5) 名嘉真他, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 11a-PB4-8 (2019).