

減圧化学気相法を用いた Si (111)基板上への六方晶窒化ホウ素薄膜成長

Growth of h-BN thin films on Si (111) substrates by low-pressure CVD

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

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

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

E-mail: matsushita.kazuki.15@shizuoka.ac.jp

【はじめに】六方晶窒化ホウ素(h-BN)は、耐熱性や物理的・化学的安定性に優れたワイドバンドギャップ材料であり、耐熱構造材や坩堝として利用されてきたが、近年、高品質な h-BN 単結晶が深紫外領域において固有の励起子発光を示すことが明らかになり¹⁾、深紫外発光素子への応用が期待されている。また、グラファイトに類似した結晶構造と優れた絶縁性から、グラフェンデバイスの基板および絶縁層への応用も期待されている²⁾。しかし、現状で得られる単結晶は 1~2 mm 程度のサイズであることから、デバイスへの応用のためには、大面積かつ高品質な h-BN 薄膜の作製が求められる。これまで本研究室では、BCl₃とNH₃を使用した減圧化学気相法(CVD)によりサファイア基板上に h-BN 薄膜の成長を行ってきたが、今回、Si 基板上に着目した。Si 基板はサファイア基板に比べ安価であり、より大面積のウェハの入手が可能である。また、Si 基板上に高品質な h-BN 薄膜を成長させることができれば、既存の Si デバイスに h-BN デバイスを複合化させることも可能となる。しかし、Si 基板上への h-BN 薄膜成長については、トリエチルボロンを用いた有機金属気相成長法が報告されているのみであり、結晶性、発光などの特性も十分に明らかになっていない³⁾。以上のような背景から、Si (111)基板上に、BCl₃を用いる減圧 CVD 法を用いて h-BN 薄膜の成長を試みた。

【試料作製】h-BN の CVD 装置は、BN 製反応管と管状炉から構成されている。原料ガスには BCl₃ (0.011%-N₂ 希釈)と NH₃ (99.99997%)を使用した。Si 基板の前処理としては、有機洗浄後、2%フッ化水素酸に 1 分間浸すことで表面酸化物の除去を行い、成長直前には N₂ ガス中でサーマルクリーニングを 1200 °C で 30 分間施した。その後、BCl₃ および NH₃ の供給量を 0.1 および 100 sccm とし、10 kPa で 2 時間の成長を行った。基板の加熱方法としては、炉内全体を加熱する周囲加熱(T_{wall})と基板局所加熱を併用し、基板温度(T_g)を 1000 °C ($T_{\text{wall}} = 900$ °C)、1100 °C ($T_{\text{wall}} = 1000$ °C)、1200 °C ($T_{\text{wall}} = 1100$ °C)として試料を作製した。

【実験結果】Fig. 1 に、基板温度 1100 °C で作製した試料の XRD 測定結果を示す。28.4 °の Si (111)のピーク他には、26.7 °に h-BN (002)のピークのみが観測された。このことから、c 軸方向に h-BN が成長していることが確認できる。また、Fig. 2 に試料の表面 SEM 像を示す。全ての試料において、サファイア基板に成長させた試料と同様の柱状グレインの成長が確認された。 $T_g = 1000$ °C で作製した試料 (a)は、他の 2 つの試料と比較してグレインの横方向成長が少ないことがわかる。また、 $T_g = 1200$ °C で作製した試料 (c)は、 $T_g = 1100$ °C で作製した試料 (b)と同様にグレインが横方向成長しているが、無配向のグレインが多くみられる。これは、周囲加熱温度が高いために気相中での原料ガスの反応が増加したためであると考えられる。

【謝辞】本研究の一部は、科学研究費補助金 18K04231 により行われた。

- 1) K. Watanabe et al., Nature Photon., 3, 591 (2009). 2) C. R. Dean et al., Nature Nanotech., 5, 722 (2010).
3) K. Ahmed, R Dahal, A. Weltz, J.-Q. Lu, Y. Danon, and I. B. Bhat. Appl. Phys. Lett. 109, 113501 (2016).

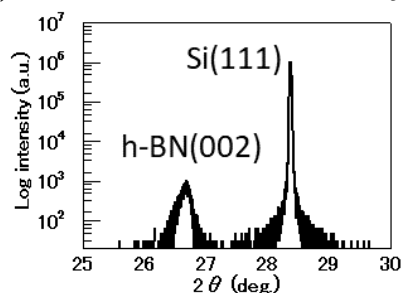


Fig. 1 XRD pattern of the sample grown at 1100 °C

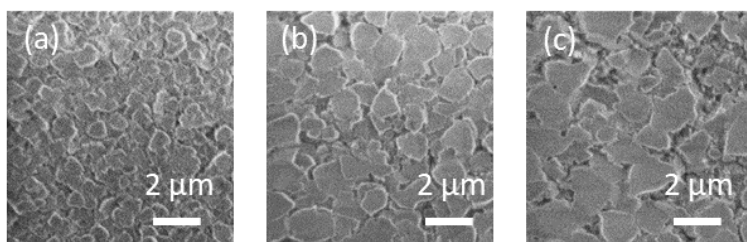


Fig. 2 SEM surface images of the samples grown at (a) 1000, (b) 1100 and (c) 1200 °C.