

高温アニールによる窒化ホウ素 (BN) 薄膜の構造相転移

Structural phase transition of boron nitride (BN) films by high-temperature annealing

日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所 ○平間 一行, 谷保 芳孝, 熊倉 一英

NTT Basic Research Laboratories, NTT Corporation ○Kazuyuki Hirama, Yoshitaka Taniyasu,
and Kazuhide Kumakura

E-mail: kazuyuki.hirama.gz@hco.ntt.co.jp

【はじめに】 窒化ホウ素(BN)の常圧安定相である sp^2 結合の六方晶 BN(h-BN)は、グラフェンなどの二次元層状物質とのヘテロ構造や深紫外発光デバイスへの応用が注目されている。一方、BNの高圧安定相である sp^3 結合の立方晶 BN(c-BN)は、高い絶縁破壊電界(> 15 MV/cm)が予測されており、高耐圧電子デバイスへの応用が期待されている。これまでに我々は、独自の成長手法(イオンビームアシスト MBE 法)による c-BN 薄膜のエピタキシャル成長に成功している[1, 2]。本研究では、c-BN エピタキシャル薄膜の高温下における熱的安定性を報告する。

【実験】 c-BN(111)及び(001)薄膜は、イオンビームアシスト MBE 法を用いてダイヤモンド基板上に成長した。次に、 N_2 雰囲気下で高温アニールを行い、結晶構造の変化を評価した。アニール温度は 1100-1500°C、 N_2 雰囲気の圧力は 600 Torr、アニール時間は 1 時間である。

【結果】 c-BN(111)薄膜では 1300°C 以上、c-BN(001)薄膜では 1500°C で高温アニールした場合、相転移が起こり、FT-IR スペクトルにおいて sp^2 結合に由来する吸収ピークが現れた。1500°C でアニールしたサンプルの断面 TEM 像と電子線回折像を Fig. 1 に示す。c-BN(111)薄膜をアニールしたサンプルでは、c-BN(111)の結晶構造は見られず、薄膜全体が sp^2 結合の BN に相転移している[Fig. 1(a)]。電子線回折像では、元の c-BN(111)薄膜の[111]方位に h-BN(0002)に由来する回折スポットが見られることから、c-BN(111)は高温アニールによって(0001)配向の h-BN に相転移することが分かった。一方、c-BN(001)薄膜をアニールしたサンプルでは、表面から深さ~3 nm の領域まで sp^2 結合の BN への相転移が見られるが、薄膜の大部分は c-BN(001)の結晶構造を維持している[Fig. 1(b)]。電子線回折像では、c-BN(001)に由来する回折パターンのみが見られた。以上の結果から、相転移が起こるアニール温度と相転移後の結晶構造が、c-BN の面方位に大きく依存することが分かった。(001)面では全ての原子層で B と N のバックボンドが常に 2 本であるのに対して、(111)面ではバックボンドが 3 本の原子層と 1 本の原子層が交互に積層している。そのため、(111)面では 1 本のバックボンドで結合している原子層間が解離しやすく、(001)面よりも低いアニール温度で立方晶構造(sp^3 結合の四面体配位)を維持できなくなり、 sp^2 結合への相転移が起こると考えられる。

相転移が起こるアニール温度以下[(111): < 1300°C, (001): < 1500°C]では、アニール温度が高いほど c-BN 薄膜の X 線ロックアップカーブの半値幅と、 2θ - ω スキャンから見積もった成長方向の歪みが低減した。このことから、相転移が起こらない温度範囲では、高温アニールが c-BN 薄膜の結晶性向上と残留歪みの緩和に有効であることが分かった。[1] K. Hirama *et al.*, Appl. Phys. Express, 10 (2017) 035501. [2] K. Hirama *et al.*, J. Appl. Phys., 125, 115303 (2019).

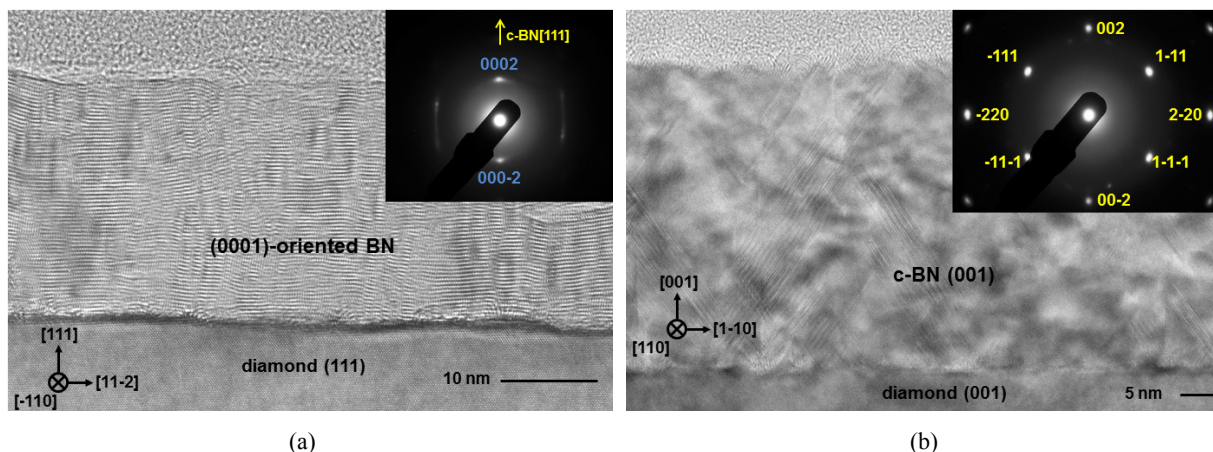


Fig. 1 (a) Crosssectional TEM images and selected area electron diffraction patterns of (a) c-BN (111) and (b) c-BN (001) films after 1500°C annealing.