

六方晶窒化ホウ素のバルク結晶成長

Synthesis of hexagonal boron nitride single crystals

物質・材料研究機構 谷口 尚

National Institute for Materials Science, Takashi Taniguchi

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

ホウ素と窒素からなる窒化ホウ素 (BN) は III-V 化合物として、周期律表の IV 族最上段の炭素原子の両隣に位置する。黒鉛と類似の構造を有する六方晶窒化ホウ素 (hBN) は高密度相としてダイヤモンドと同構造の立方晶窒化ホウ素 (cBN) に転換する。hBN は、断熱材、耐熱材、摺動材などとして焼結体、或いは粉末としての産業応用がなされてきた。cBN は硬度がダイヤモンドの半分程度であるが、耐熱性、化学的安定性に優れ、とりわけ鉄系金属材料との反応性がダイヤモンドと比較して著しく少ないという特徴を持ため、機械加工分野において重要な役割を果たしており、近年その需要は急増している。

バルク単結晶成長の観点では、融点が 3000°C 領域の炭素、或いは高温下で分解する窒化ホウ素はシリコンのように高温融液からの引き上げ、徐冷法などによる結晶成長は現実的ではなく、溶媒法による結晶成長が行われてきた。とりわけ高压下でのダイヤモンドの単結晶成長研究の歴史は長く、今や成熟した生産技術として確立されている。高純度ダイヤモンドは鉄系金属溶媒に僅かにチタン等の窒素ゲッターを添加することで、主たる残留不純物である窒素を ppb レベルにまで低減出来る。筆者はこのダイヤモンドの合成研究に習い、高品位 cBN 単結晶の合成研究に長年携わってきたが、バリウム系のホウ窒化物溶媒を用いることで、cBN の主たる不純物である酸素と炭素の低減が図れることを見出した。この高純度 cBN 単結晶の合成時に、高純度 hBN が同時に得られた。この高純度 hBN 単結晶は筆者に取りいえば副産物ではあるが、この結晶の光学的特性をカソードルミネッセンス (CL) により評価したところ、高輝度の遠紫外線発光が観測された。

現在、グラフェンを始めとする 2 次元光・電子デバイスの開発が活発であるが、これら原子層の特性発現では原子レベルで平坦かつ単結晶表面に非結合特性を持たない基板、絶縁縁材料が必要である。hBN 単結晶はこの条件に合致し、各種原子層 デバイスへの物理的・化学的擾乱を排して、その真の特性を得るための基板、ゲート絶縁膜として欠かせない材料となっている。

hBN 結晶に関わる材料研究の視点からは、結晶の更なる高品位化が依然として課題である。結晶の主たる残留不純物である炭素と窒素は、2010 年に 2 次元原子層の結晶基板として連携研究を開始して以降、当時の残留濃度 10 ppm レベルから、現在は数 10 ppb オーダーまで低減してきた。これに伴い遠紫外線バンド端発光強度も数十倍の向上が得られている。2 次元原子層研究者からのフィードバックを hBN 結晶成長の高度化 (溶媒、原料等の最適化) に役立てることができた。引き続き更なる高品位化を進めると共に、単なる残留欠陥の低減のみならず、ダイヤモンドの NV センター研究等に習い、hBN を主体とした量子材料研究 (新規量子センシング等) への展開が期待される。

本講演では、溶媒法による hBN 単結晶の高压及び常圧下での合成と、ホウ素、窒素同位体濃縮による新機能探索について、最近の筆者の取り組みを紹介する。