

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02605

研究課題名(和文) h-BNヘテロ構造を利用した高移動度ダイヤモンドFETの創製と量子輸送現象の開拓

研究課題名(英文) Development of high-mobility diamond FETs using h-BN heterostructures and exploration of their quantum transport phenomena

研究代表者

山口 尚秀 (YAMAGUCHI, Takahide)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員

研究者番号：70399385

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：パワーエレクトロニクスや高速情報通信への応用が期待されるダイヤモンド電界効果トランジスタ(FET)の性能向上に関する研究を遂行した。六方晶窒化ホウ素(h-BN)をゲート絶縁体とすることでダイヤモンドFETのチャネル移動度を向上させ、振動数がゲート電圧に依存する明瞭な量子振動(シュブニコフ・ドハース振動)の検出に成功した。さらに、水素終端化したダイヤモンド表面を大気に晒さずにh-BNを転写することで、大気由来の荷電不純物を低減し、室温で $680\text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ というワイドバンドギャップpチャネルFETのなかで最高レベルのチャネル移動度を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ダイヤモンド電界効果トランジスタのチャネル移動度向上は、素子の低損失化、高速化、および小型化につながる成果である。とくに、これまでのトランスファードーピングに基づいた特殊な設計ではなく、シリコンなどの一般的な半導体のFETと同様の設計指針に基づいて水素終端ダイヤモンドFETを作製できることを実証できたことは、今後のダイヤモンド素子開発の重要な基盤になると考えられる。また、量子輸送現象の観測はダイヤモンド表面の二次元正孔系についての知見を与えただけでなく、超伝導やスピントロニクス分野への波及効果も期待できる成果である。

研究成果の概要(英文)：We have conducted research on performance improvement of diamond field-effect transistors (FETs), which have potential applications in power electronics and communications. We have successfully detected clear quantum oscillations (Shubnikov-de Haas oscillations), whose frequency depended on gate voltage, by using hexagonal boron nitride (h-BN) as a gate insulator for diamond FETs and thereby increasing their channel mobility. The lamination of hydrogen-terminated diamond surface with h-BN without exposure to air decreased the density of atmospheric charged impurities at the interface and enabled us to further increase a room-temperature channel mobility of diamond FETs to $680\text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$, which is among the highest among wide-bandgap p-channel FETs reported so far.

研究分野：半導体物理、低温物性

キーワード：ダイヤモンド 電界効果トランジスタ 移動度 六方晶窒化ホウ素 量子振動 ワイドバンドギャップ

1. 研究開始当初の背景

ダイヤモンドは、ワイドバンドギャップ、高絶縁破壊電界、高熱伝導度などの特性からパワーエレクトロニクスや情報通信分野での次世代半導体として期待されている[1, 2]。とくに、不純物の少ないダイヤモンドの移動度は、室温で電子 $4500 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 、正孔 $3800 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ と非常に高く、省電力・高速素子を作るのに適していると考えられる。この高い移動度は、ダイヤモンドの大きな光学フォノンエネルギーおよび音響フォノン速度によって、室温でフォノン散乱の影響が小さいことに由来する[3]。

上記の応用に向けて、ダイヤモンドを使った電界効果トランジスタ(FET)の研究が活発に行われてきた。例えば欧州ではフランスを中心に 5 か国 15 機関が参加してダイヤモンド FET のパワーエレクトロニクス応用を目指した大型プロジェクト(Green diamond)が 2015 年から 4 年計画で推進されていた。そのような中、種々のゲート絶縁体材料を使った FET の研究が行われていた。しかし、報告されたキャリア移動度は多くの場合、 $10 \sim 200 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 程度と、本来の値に比べて一桁以上低かった[2]。

2. 研究の目的

本研究ではグラフェン等の 2 次元物質の研究手法を利用して、ダイヤモンド電界効果トランジスタ(FET)の特性、特に移動度を飛躍的に向上させることを目的とした。具体的には、これまで使われてきた Al_2O_3 などのアモルファスの酸化物の代わりに、単結晶の六方晶窒化ホウ素(h-BN)をゲート絶縁体として利用することで特性向上を図った。高品質なダイヤモンド/h-BN ヘテロ界面の形成によって高移動度化を追求し、高周波増幅器・省電力高速スイッチング素子の実現および新規量子物性の探索を行うことを目標とした。

3. 研究の方法

単結晶の六方晶窒化ホウ素 (h-BN) をゲート絶縁体としたダイヤモンド電界効果トランジスタ(FET)を作製した。ダイヤモンド表面は、表面準位密度低減と正孔の生成を容易にするために水素プラズマ照射によって水素終端化した(詳細後述)。高温高压合成された h-BN 単結晶をスコッチテープによって劈開し、ポリマーシートに転写ののち、光学顕微鏡のもとで位置及び結晶方位を合わせて、ダイヤモンド(111)表面に貼り合わせた。その後、ゲート電極の形成などを行い、FET 構造を完成させた。ホール効果を用いた移動度とキャリア密度の評価を行うため、デバイス形状はゲート付きホールバー構造とし、オーミック電極(ソース、ドレイン、および他のホールバーの端子)には Ti の蒸着とアニールによって形成した TiC を用いた。

なお、水素終端されたダイヤモンドは大気に数時間暴露すると p 型の表面伝導が生じることが知られている。大気に晒すことで、大気由来の二酸化炭素などの不純物を含んだ弱酸性の水が吸着し、ダイヤモンドの価電子帯から水の酸化還元準位に電子が移動(トランスファー)し、ダイヤモンド表面に正孔が生じるためだと考えられている(表面トランスフェードーピングモデル[4])。このとき、正孔の正の電荷は、吸着水層のなかの負電荷(HCO_3^- や OH^- など)と釣り合っていると考えられる。吸着水層だけではなく、水素終端ダイヤモンド表面に電子を受け取るアクセプター(C_{60} , NO_2 , MoO_3 , V_2O_5 など)があれば表面トランスフェードーピングが生じる[1]。水素終端ダイヤモンドで表面トランスフェードーピングが起こる根本的な原因は、水素と炭素の電気陰性度の違いによって、水素側が正、炭素側が負の電気双極子が生じるために、ダイヤモンド価電子帯がエネルギー的に高い位置にあり、電子を引き抜きやすいためである。

このような表面トランスフェードーピングによる表面負電荷生成を避けるため、水素終端表面を大気に晒さずに h-BN を転写する手法も開発した。表面負電荷は、ダイヤモンド表面を伝導する正孔の散乱要因となり、移動度を低下させるためである。ダイヤモンドを水素プラズマによって水素終端化したあと、真空搬送チャンバーを使ってアルゴンガスで満たされたグローブボックスに移送し、その中で劈開した h-BN 薄片を貼り合わせた。水素終端後グローブボックスに運び込んだダイヤモンドの表面のシート抵抗が少なくとも 3 日間は $10^{11} \Omega$ 程度と高いこと、また、その後大気に晒すと 1 時間程度で $10^5 \Omega$ 程度まで下がることをグローブボックス内のプローブシステムを使って観測し、グローブボックスを使うことで大気由来の吸着物を低減できることを確認した。

作製した FET は、室温において基本的な特性(伝達特性および出力特性など)の評価を行った。また、ホール効果測定によって、キャリア密度および移動度のゲート電圧依存性を調べた。無冷媒冷凍機を用いて 1.4 K までの低温における特性評価も行った。さらに希釈冷凍機を用いて 30 mK までの低温、17.5 T までの強磁場までの測定によって新規量子物性の探索を行った。

4. 研究成果

(1) 量子振動現象の観測

六方晶窒化ホウ素 (h-BN) をゲート絶縁体とするダイヤモンド電界効果トランジスタ(FET)の低温での磁気抵抗特性を調べ、量子振動 (シュブニコフ・ドハース振動) の検出に成功した。ゲート電圧に依存する振動周波数をもつ明瞭な量子振動の検出は、ダイヤモンドにおいてこれからはじめてである。磁気抵抗 $\rho_{xx}(B)$ とともにホール抵抗 $\rho_{yx}(B)$ に振動が見られた (図 1)。 ρ_{xx} と ρ_{yx} の振動の温度および磁場依存性は、標準的な二次元系の量子振動の理論によってよく説明されることがわかった (図 2)。振動の角度依存性も正孔ガスの二次元性を示した。振動の温度および磁場依存性から、有効質量と量子寿命 (quantum lifetime) を評価することができた。量子寿命は輸送寿命 (transport lifetime) と同程度であった。これは、正孔の主要な散乱要因がダイヤモンド表面から近い位置にある荷電不純物によるものであることを示唆した。この結果は、Phys. Rev. Mater.誌に Rapid Communication として掲載された[5]。

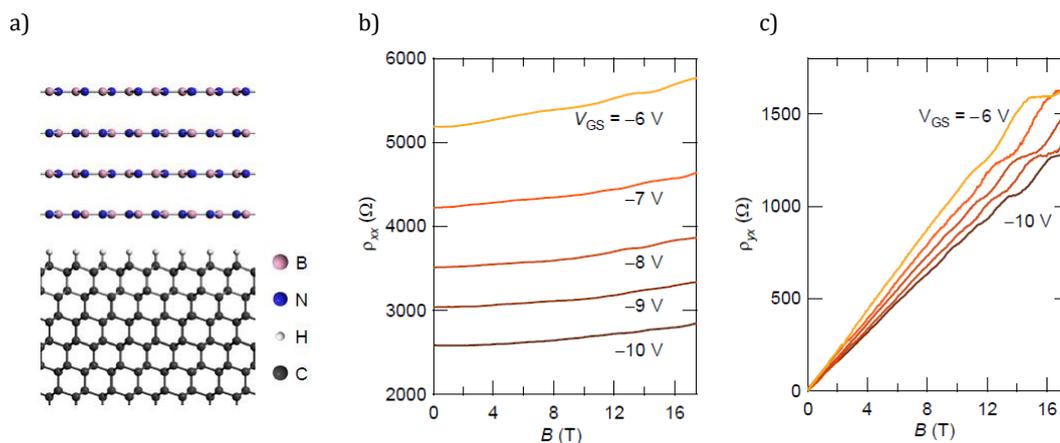


図 1 a) 水素終端ダイヤモンドと六方晶窒化ホウ素(h-BN)のヘテロ構造の模式図。 b) ρ_{xx} の磁場依存性。 c) ρ_{yx} の磁場依存性。 b) と c) にシュブニコフ・ドハース振動が見られる。 [5]

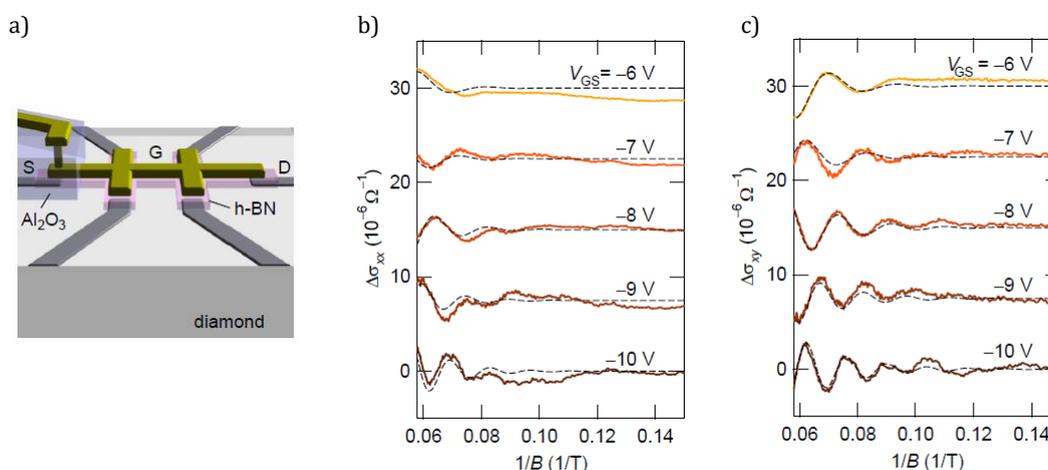


図 2 a) h-BN をゲート絶縁体とした水素終端ダイヤモンド FET の模式図。 b) σ_{xx} の振動成分の(磁場)⁻¹ 依存性。 c) σ_{xy} の振動成分の(磁場)⁻¹ 依存性。 b) と c) の破線は理論曲線のフィッティング。 [5]

(2) 室温移動度の制限要因の解析

上記の h-BN をゲート絶縁体とするダイヤモンド FET の室温での移動度を制限している要因を探るため、理論計算による移動度の評価を行った。シュレーディンガー・ポアソン方程式によってダイヤモンド表面のサブバンドへのキャリアの分布を求めたのち、界面荷電不純物、背景荷電不純物、表面粗さ、およびフォノンによる散乱を考慮して移動度を計算した。ダイヤモンドと h-BN の界面近くに存在する 10^{12} cm^{-2} 程度の荷電不純物が移動度を制限している主要因であることを示した (図 3)。比較的高いキャリア密度では、表面粗さ散乱の影響も効いていることがわかった。ダイヤモンド FET の移動度についての理論計算はこれまでされておらず、本理論計算は今後の移動度向上のための指針を得る上で重要な意義をもつ。この結果は、J. Appl. Phys.誌に Editor' Pick として掲載された[6]。

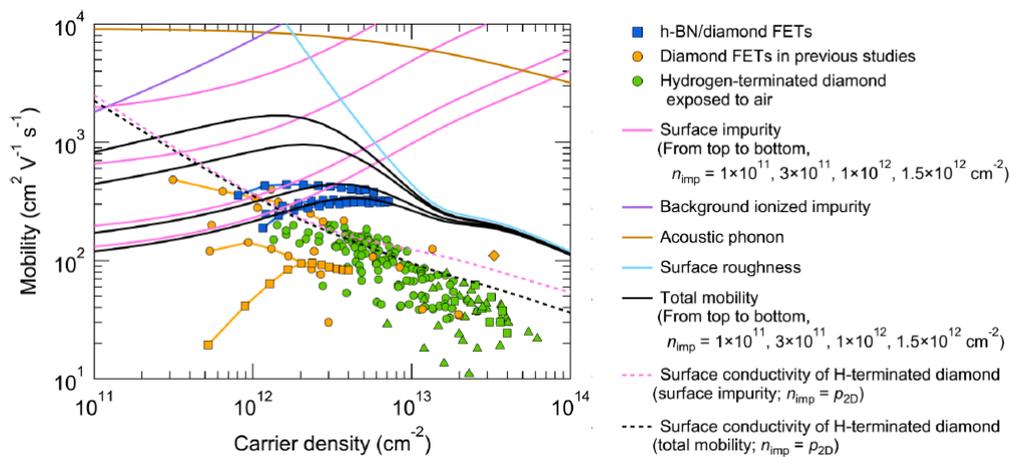


図3 本研究と先行研究の移動度のキャリア密度依存性。界面荷電不純物、背景荷電不純物、表面粗さ、およびフォノンによる散乱を考慮した移動度の計算結果も示す。[6]

(3) ダイヤモンド FET のチャネル移動度の向上

研究方法の欄に記述した水素終端表面を大気に晒さない手法 (図4) によって h-BN をゲート絶縁体とするダイヤモンド FET を作製することで、高いチャネル移動度を得ることに成功した。室温でのチャネル移動度は最大で $680 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ と、ダイヤモンドのみならず他のワイドバンドギャップ半導体の p チャネルトランジスタの中で最高レベルの値が得られた (図5)。また、この FET は、負の閾値電圧まで伝導性が生じないノーマリオフ動作を示した (図6)。このノーマリオフ動作は、大気由来の表面負電荷密度が低減したことと合致している。ノーマリオフ動作は、フェールセーフの観点からパワーエレクトロニクス应用到に適した特性である。そして、このように表面負電荷密度が低減したにも関わらず、 $1.4 \text{ k}\Omega$ というわれわれが知る限りこれまでにダイヤモンド FET で得られた最小のオン (シート) 抵抗が得られた。これは、水素終端ダイヤモンドの表面伝導に表面トランスファードーピングが必須ではなく、ゲート電圧印加によって (反転層として) 正孔を生成できることを示している。さらに、ゲート長が約 $8 \mu\text{m}$ と比較的長いにも関わらず 200 mAmm^{-1} という大きな電流密度を示した (図7)。

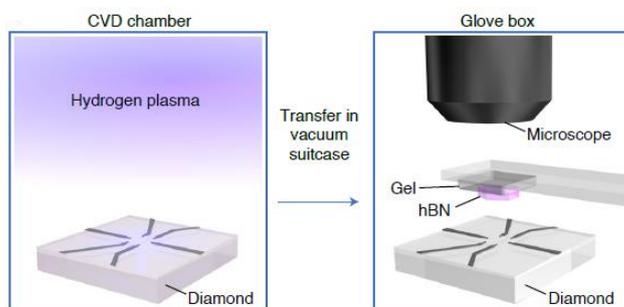


図4 水素終端ダイヤモンドを大気に晒さない作製プロセスの模式図。[7]

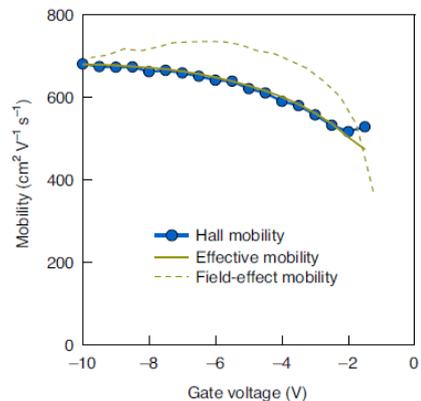


図5 大気に晒さないプロセスで作製した h-BN ゲートダイヤモンド FET 移動度のゲート電圧依存性。[7]

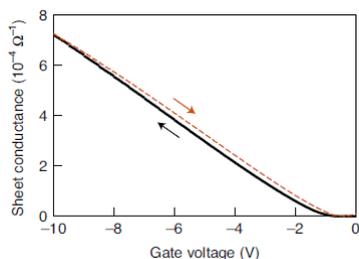


図6 大気に晒さないプロセスで作製した h-BN ゲートダイヤモンド FET の伝達特性。[7]

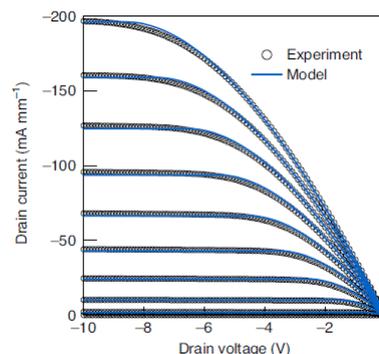


図7 大気に晒さないプロセスで作製した h-BN ゲートダイヤモンド FET の出力特性。[7]

図 8 に先行研究と本研究の FET の移動度とキャリア密度を示す。キャリア密度が高いところで比較すると、大気に晒さないプロセスで作製したダイヤモンド FET の移動度は、われわれが大気に晒したダイヤモンドと h-BN で作った FET の移動度よりも 2 倍程度高い。また、これまでに報告された SiC と GaN の p チャネル FET の移動度は、それぞれ $17 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 以下、 $30 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ 以下であり、これらに比べると 20 倍以上高い。図 9 に、トランジスタがオン状態のときに流すことのできる最大電流（ゲート長とゲート幅で規格化したもの）と、オンオフ比を示す。大気に晒さないプロセスで作製したダイヤモンド FET は、オンのときに高い電流を流せるとともに、オンオフ比も高い。これらの特性も SiC や GaN の p チャネル FET に比べて優れており、ダイヤモンドを使った p チャネル FET の高いポテンシャルを示すことができた。

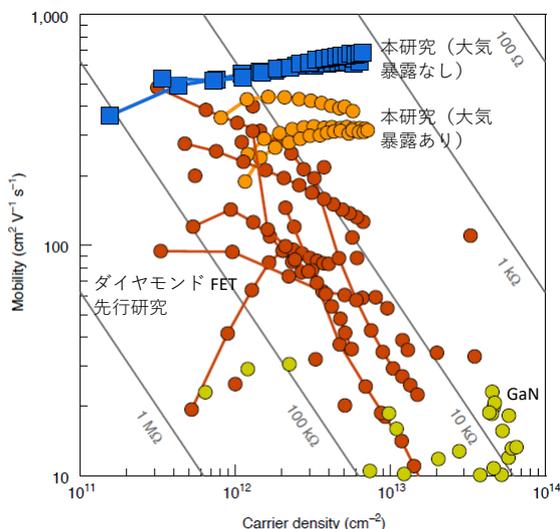


図 8 本研究と先行研究の移動度とキャリア密度の比較。GaN の p チャネルヘテロ構造の結果も示している。[7]

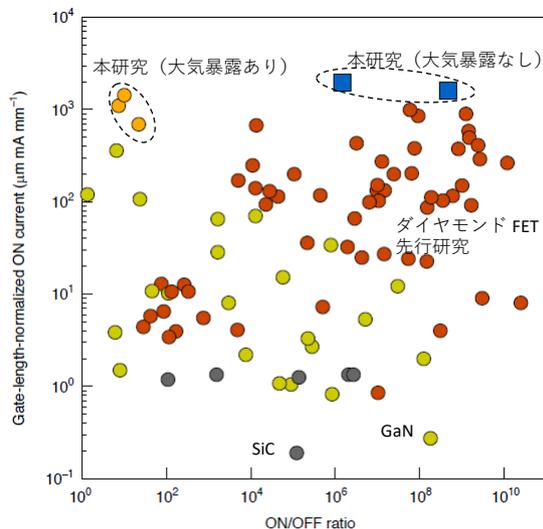


図 9 本研究と先行研究のオン電流密度とオン・オフ比。オン電流は、(チャンネル長) / (チャンネル幅)で規格化した値。GaN および SiC の p チャネル FET の結果も示している。[7]

以上のように、ゲート絶縁体として h-BN を用いるとともに、水素終端ダイヤモンドを大気に晒さない新しい作製手法によって、ワイドバンドギャップ p チャネル FET として最高レベルのチャンネル移動度を有する FET の創製に成功した。従来水素終端ダイヤモンドの表面伝導の発現に表面トランスフェードーピングが重要であると考えられてきたが、本研究によってそれが必ずしも必要なく、ゲート電圧印加によって反転層として正孔を生成できること、さらに、表面負電荷密度を低減することで FET の特性が向上することが示された。これは今後のダイヤモンドデバイス開発の重要な基盤となると考えている。本成果は、Nature Electronics 誌に掲載された [7]。

1. M. W. Geis, T. C. Wade, C. H. Wuorio, T. H. Fedynyshyn, B. Duncan, M. E. Plaut, J. O. Varghese, S. M. Warnock, S. A. Vitale and M. A. Hollis, *physica status solidi (a)* **215**, 1800681 (2018).
2. N. Donato, N. Rouger, J. Pernot, G. Longobardi and F. Udreă, *Journal of Physics D: Applied Physics* **53**, 093001 (2019).
3. J. Pernot, P. N. Volpe, F. Omnès, P. Muret, V. Mortet, K. Haenen and T. Teraji, *Physical Review B* **81**, 205203 (2010).
4. F. Maier, M. Riedel, B. Mantel, J. Ristein and L. Ley, *Physical Review Letters* **85**, 3472 (2000).
5. Y. Sasama, K. Komatsu, S. Moriyama, M. Imura, S. Sugiura, T. Terashima, S. Uji, K. Watanabe, T. Taniguchi, T. Uchihashi and T. Yamaguchi, *Physical Review Materials* **3**, 121601(R) (2019).
6. Y. Sasama, T. Kageura, K. Komatsu, S. Moriyama, J.-i. Inoue, M. Imura, K. Watanabe, T. Taniguchi, T. Uchihashi and T. Yamaguchi, *Journal of Applied Physics* **127**, 185707 (2020).
7. Y. Sasama, T. Kageura, M. Imura, K. Watanabe, T. Taniguchi, T. Uchihashi and T. Yamaguchi, *Nature Electronics* **5**, 37 (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Sasama Yosuke, Kageura Taisuke, Imura Masataka, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Uchihashi Takashi, Yamaguchi Takahide	4. 巻 5
2. 論文標題 High-mobility p-channel wide-bandgap transistors based on hydrogen-terminated diamond/hexagonal boron nitride heterostructures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Electronics	6. 最初と最後の頁 37~44
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41928-021-00689-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Sasama Yosuke, Kageura Taisuke, Komatsu Katsuyoshi, Moriyama Satoshi, Inoue Jun-ichi, Imura Masataka, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Uchihashi Takashi, Yamaguchi Takahide	4. 巻 127
2. 論文標題 Charge-carrier mobility in hydrogen-terminated diamond field-effect transistors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 185707~185707
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0001868	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Sasama Yosuke, Komatsu Katsuyoshi, Moriyama Satoshi, Imura Masataka, Sugiura Shiori, Terashima Taichi, Uji Shinya, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Uchihashi Takashi, Yamaguchi Takahide	4. 巻 3
2. 論文標題 Quantum oscillations in diamond field-effect transistors with a h-BN gate dielectric	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 121601(R)-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.3.121601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 笹間陽介、小松克伊、森山悟士、井村将隆、寺地徳之、渡邊賢司、谷口尚、内橋隆、山口尚秀	4. 巻 134
2. 論文標題 h-BNヘテロ界面を用いた高移動度ダイヤモンド電界効果トランジスタ	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 NEW DIAMOND	6. 最初と最後の頁 9-15
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 8件）

1. 発表者名 笹間 陽介, 蔭浦 泰資, 井村 将隆, 渡邊 賢司, 谷口 尚, 内橋 隆, 山口 尚秀
2. 発表標題 h-BNゲート絶縁体を用いたノーマリーオフ型高移動度ダイヤモンドFET
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 High-mobility p-channel FETs based on H-terminated diamond/h-BN heterostructures
3. 学会等名 The 3rd international workshop on diamond electronics in Kanazawa（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笹間 陽介, 山口 尚秀
2. 発表標題 ダイヤモンド高移動度トランジスタ
3. 学会等名 SATテクノロジー・ショーケース2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 Diamond / h-BN van der Waals heterostructures for high performance transistors
3. 学会等名 The 10th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology (IWAMSN 2021)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 笹間 陽介, 蔭浦 泰資, 井村 将隆, 渡邊 賢司, 谷口 尚, 内橋 隆, 山口 尚秀
2. 発表標題 h-BNヘテロ構造を用いたノーマリーオフ型高移動度ダイヤモンドトランジスタ
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yamaguchi Takahide, Yosuke Sasama, Taisuke Kageura, Masataka Imura, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Takashi Uchihashi
2. 発表標題 Modeling of Electrical Characteristics in Hydrogen-Terminated Diamond Field-Effect Transistors
3. 学会等名 14th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2020/2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yosuke Sasama, Taisuke Kageura, Masataka Imura, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Takashi Uchihashi, Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 High-Mobility Normally-Off Hydrogen-Terminated Diamond Field-Effect Transistors with a h-BN Gate Insulator
3. 学会等名 14th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2020/2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 笹間 陽介, 蔭浦 泰資, 小松 克伊, 森山 悟士, 井上 純一, 井村 将隆, 渡邊 賢司, 谷口 尚, 内橋 隆, 山口 尚秀
2. 発表標題 水素終端ダイヤモンド電界効果トランジスタの移動度の解析
3. 学会等名 第34回ダイヤモンドシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 High-mobility transistors based on h-BN/diamond heterostructures
3. 学会等名 MANA International Symposium 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yosuke Sasama, Taisuke Kageura, Katsuyoshi Komatsu, Satoshi Moriyama, Jun-ichi Inoue, Masataka Imura, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Takashi Uchihashi, Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 Mobility in h-BN gated diamond field-effect transistors
3. 学会等名 MANA International Symposium 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 Diamond transistor with an h-BN gate dielectric
3. 学会等名 13th New Diamond and Nano Carbons Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yamaguchi Takahide
2. 発表標題 Field effect transistor based on diamond/h-BN heterostructures
3. 学会等名 European Materials Research Society, 2019 Fall meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 笹間陽介、小松克伊、森山悟士、井村将隆、杉浦菜理、寺嶋太一、宇治進也、渡邊賢司、谷口尚、内橋隆、山口尚秀
2. 発表標題 h-BN/ダイヤモンドヘテロ界面に形成される二次元ホール系の量子振動
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>先端電子材料研究室 https://www.nims.go.jp/personal/yamaguchi-takahide/ ダイヤモンドで高移動度トランジスタを実現（プレスリリース） https://www.nims.go.jp/news/press/2022/01/202201180.html</p>

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------