

令和元年6月3日現在

機関番号：14501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14656

研究課題名(和文) Super high-k層状物質との複層化によるh-BNゲート絶縁膜の高誘電化

研究課題名(英文) Improvement of permittivity of h-BN using super high-k layered dielectric for gate insulator

研究代表者

服部 吉晃(Hattori, Yoshiaki)

神戸大学・工学研究科・助教

研究者番号：90736654

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：高い電子移動度を持つグラフェン電界効果トランジスタは、六方晶窒化ホウ素(h-BN)の上に設置することにより、さらに性能が向上することが分かっている。しかし、h-BNをゲート絶縁膜として利用する場合、誘電率が低い問題がある。この問題はh-BNを薄くして、高い誘電率を持つ材料に積層させることで解決できるが、h-BNを薄くした際に流れるリーク電流の調査が必要である。本研究ではそのリーク電流がホール電流であることを明らかにし、それを電極の材料により抑制できることを実験的に確かめた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

h-BNは実用化されているシリコン熱酸化膜(SiO<sub>2</sub>)に匹敵する絶縁破壊強さや信頼性を有する点から、電子材料としての物性はSiO<sub>2</sub>に類似点が多いと考えられるが、実際には、SiO<sub>2</sub>とはバンドアライメントが異なっていて、F-Nトンネル電流に関しては一般的な酸化物絶縁体とは異なり、ホール電流であることを明らかにした。つまり、絶縁破壊において、SiO<sub>2</sub>は電子電流により破壊され、h-BNはホール電流により破壊される。一方で、通常の酸化物ではフェルミ準位ピンニング起こりにくく、トンネル絶縁膜としても利用されているが、本研究では実験的にh-BNにおいて、ピンニングが確認された。

研究成果の概要(英文)：Hexagonal boron nitride (h-BN) is widely utilized as the substrate to achieve high carrier mobility in a graphene field effect transistor. However, the characteristic of low permittivity in h-BN requires high operating voltages in transistors. The problem can be solved by composite film with high-k and low-k dielectrics. However, the tunneling current goes through the gate insulator in the thin h-BN film as leakage current. However, little systematic study on the tunneling current and band alignment has been conducted for h-BN. We found that the polarity of tunneling current is hole, unlike general oxide material, because the Fermi levels of metals are pinned in the small energy range around 3.5 eV from the top of the conduction band of h-BN with Fermi level pinning.

研究分野：電子・電気材料工学

キーワード：h-BN F-N tunneling Fermi level pinning barrier height

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高い電界移動度を持つグラフェン FET は、同じ層状物質で絶縁性のある六方晶窒化ホウ素 (h-BN) の上に設置することにより、性能が向上することが分かっている。これは、絶縁膜とチャネル材の境界における散乱が抑制される効果によるものである。しかし、ゲート絶縁膜として利用する場合、h-BN の誘電率が低いために静電容量を大きくできない問題がある。そこで、本研究では同じ層状物質であり、かつ、高い比誘電率と絶縁性をもち層状構造をしたナノシートを h-BN と積層させることで、この問題を解決することを目的にする。

### 2. 研究の目的

高い静電容量を達成するには、チャネル材料が接触する h-BN をなるべく薄くして、高誘電体ナノシートが占める厚さの割合を大きくする必要がある。しかし、h-BN を薄くしていくと、物理的に排除できないトンネル電流に起因したリーク電流が発生し、FET の消費電力が上がってしまう問題がある。したがって、薄い h-BN におけるトンネル電流のリーク電流のメカニズムを明らかにし、これを制御することが重要である。

トンネル電流は絶縁体と接触している材料とバンドアライメントに大きく影響する。本研究の場合、キャリアの注入側となる h-BN と金属電極とのバンドアライメントが重要であるが、これまでそれらは明らかになっていない。そこで、本研究では F-N トンネル電流を測定することにより、バリアハイトを定量的に算出し、金属/h-BN 界面でのバンドアライメント明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

トンネル電流からバリアハイトを算出することで、バンドアライメントを明らかにすることは一般的な手法であるが、この手法では注入されるキャリアの極性が判明している必要がある。多くの酸化物絶縁体では F-N トンネルが電子電流であることが明らかになっているが、h-BN はその極性がまだ明らかでないために、その調査を行う必要である。そこで、図 1 に示すように 2 種類の研究手法を考え、デバイスの作製と電気的評価を行った。

#### (1) 単層グラフェン電極を使用したデバイス

図 1 の左側のデバイスは単層グラフェンを利用したデバイスである。h-BN が金属電極と単層グラフェンで挟まれている構造となっている。単層グラフェンは状態密度が小さいために、基板に電圧を印加することで、SiO<sub>2</sub> のバックゲートでグラフェンのフェルミ準位を制御することができる。つまり、電極/h-BN 界面のバリアハイトをバックゲートで制御を行い、それに伴うトンネル電流の増減から極性を明らかにする手法である。

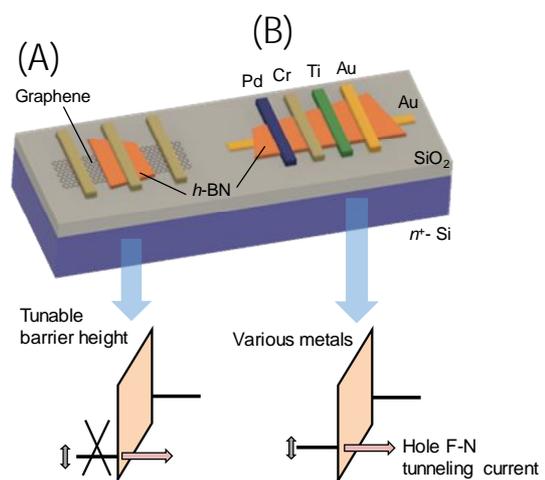


図1 F-Nトンネル電流の極性を調べるためのデバイス

#### (2) 様々なメタル電極を用いたデバイス

図 1 の右側のデバイスでは h-BN が金属電極で挟まれているが、片側は Au 電極であり、もう一方は様々な金属電極である。材料によりその仕事関数が異なるために、それに伴いバリア

ハイトも変わる。仮に F-N トンネル電流がホール電流であれば、大きな仕事関数を持つ電極ほどホールに対するバリアハイトが減少するので、F-N トンネル電流は増加するはずである。逆に、F-N トンネル電流が電子電流であれば、大きな仕事関数を持つ金属ほどトンネル電流は減少するために、キャリアの極性が判断できる。

また、このデバイスは F-N トンネル電流を電極材料によって制御可能かを確認する手法でもある。上記に記述したように、理想的には異なった仕事関数をもつ金属材料を用いることで、バリアハイトの制御が可能ではあるが、実際にはフェルミ準位ピンニングにより、そのバリアハイト制御範囲が小さくなってしまう問題がある。h-BN において、そのピンニングがどの程度か定量的に調べることで、F-N トンネル電流の制御について検討する。

#### 4. 研究成果

##### (1) 単層グラフェンを用いたデバイス

図 2(a)は作製した単層グラフェンを用いたデバイスで、図 2(b)はそのバンドアライメントを示している。図 2(b)の中央のグラフェンのフェルミ準位がバックゲート( $V_{BG}$ )によりコントロールできるので、h-BN とのバリアハイト  $\phi_{bg}$  が制御されることが確認できる。図 2(c)は F-N トンネル電流を示している。トンネル電流は h-BN が挟まれている電極に電圧( $V_{TG}$ )を印加することで測定されるが、その極性にかかわらず、6V 程度印加することで F-N トンネル電流が観測されている。しかし、バックゲート依存に着目すると、 $V_{TG}$  が負のときにしか依存していない。h-BN で挟まれている電極の内、バックゲートでバリアハイトが変調されるのは片側だけであるので、バックゲート依存性のある電極側でキャリアが注入されていると判断することができる(図 2(c)挿絵参照)。この挙動から F-N トンネル電流はホール電流であると結論付けられる。また、これらの実験において、グラフェンのフェルミ準位がバックゲートで変調される量をキャパシタンス測定から算出したものが図 2(d)に示されている。本デバイスにおいて、 $V_{BG}$  を -30 ~ +30V に印加することで、グラフェンのフェルミ準位がおよそ  $\pm 0.3$  eV 変調されていることが分かる。また、図に示されている理論値ともよい一致をしていることが分かり、実験の妥当性も確認した。

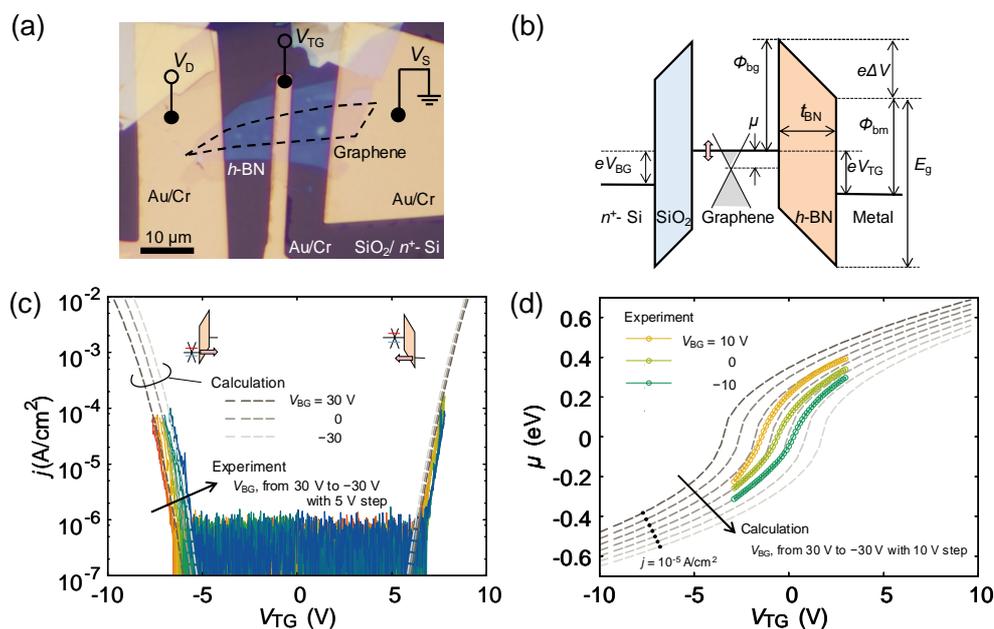


図2 単層グラフェンを用いたデバイスとF-Nトンネル電流

## (2) 様々なメタル電極を用いたデバイス

図 3(a)は作製したデバイスを示し、図 3(b)はその模式図を示している。トップの電極が様々なメタル電極をしている構造となっている。また、F-N トンネル電流はその絶縁膜の厚さに対し大きな依存性を有するが、作成したデバイスは h-BN を剥離法で作成したフレークであり、フレーク内における膜厚のばらつきは非常に小さいために、トップの電極の素材の違いを定量的に評価できる。図 3(c)は F-N トンネル電流を示している。横軸は h-BN が挟まれている電極間に印加した電圧（電界）であるが、仕事関数の大きな Pd のような仕事関数の大きな電極を用いた方が、小さな電界で F-N トンネル電流が観測してしまっていることが分かる。この結果は図 3(c)の挿絵にあるように、観測された F-N トンネル電流はトップの電極から注入された電流であり、仕事関数が大きな金属ほど、ホールに対するバリアハイトが小さくなることで、実験結果が説明できる。以上のことから、F-N トンネル電流はホールであると判断することができ、(1)の結果とも一致する。

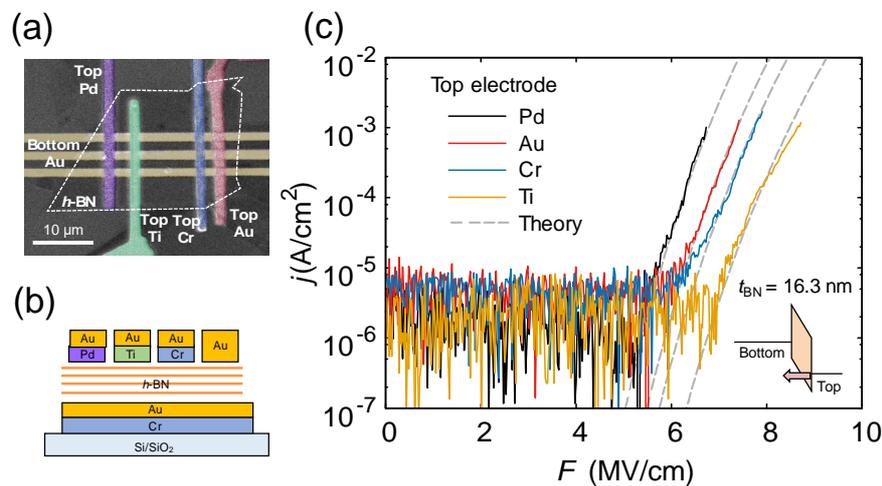


図3 様々な金属電極を用いたデバイスとF-Nトンネル電流

## (3) h-BN のフェルミ準位ピンニング

h-BN のトンネル電流の極性が明らかになったために、高誘電化の際に重要な問題となるリーク電流は、ホールに対するバリアハイトを高くすることで、抑制できることが示唆される。そのためには仕事関数の小さな金属を使う必要があるが、どの程度制御できるかを定量的に算出した。図 4(a)はフェルミ準位ピンニングを表したもので、横軸に金属の仕事関数、縦軸に算出したバリアハイトを示している。図 3 (c)で示したように定性的には仕事関数の小さな電極を使うほどホールに対するバリアハイトが小さくなっていることが確認されるが、ピンニングの効果により、実験で用いた金属電極に対する測定から得たバリアハイトの違いは 0.4 eV 程度であり、これは金属の仕事関数の差と比べてかなり小さくなっている。その度合いはピンニングファクター  $S$  として評価できるが、図 4(a)の傾きから算出すると 0.3 程度であった。これを他の材料と比較したものが図 4(b)である。  $S$  ファクターは経験則として、光学的誘電率と依存性があることが分かっているが、それと比較すると h-BN も他の材料と同じ傾向であることが分かる。ピンニングの発生メカニズムとしては界面での欠陥準位が重要な働きをしていることが分かっているが、その点で、層状物質は理想的な界面が形成できるためピンニングは起こりにくいと想定されたが、実験的には図中の青で書かれた層状構造の半導体でも、本実験で確認した層状絶縁体でもフェルミ準位ピンニングは通常の材料と同じように起こることが明らかになった。

本研究からフェルミ準位ピンニング考慮して適切な電極材料を選択することが高誘電化のためには重要である。

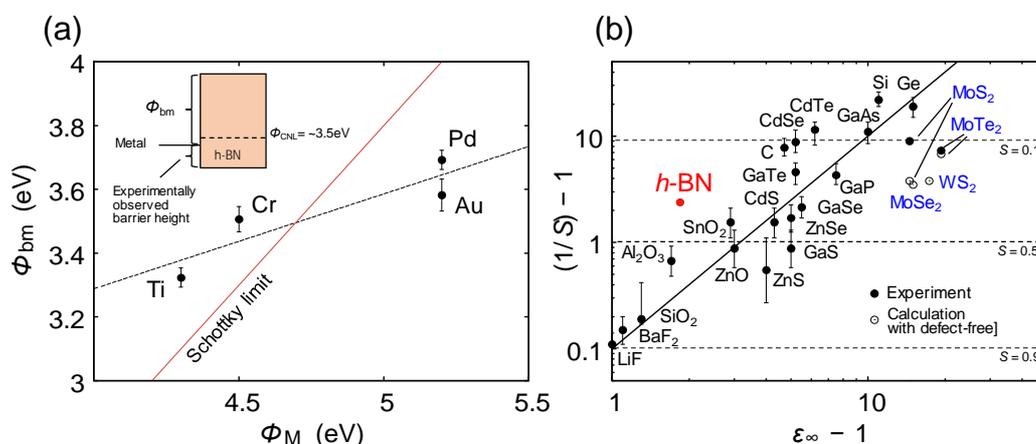


図4 h-BNにおけるフェルミ準位ピンニング効果とその比較

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- 1) **服部吉晃**, 長汐晃輔, “hBN の絶縁性破壊強さの異方性とその起源”, NEW DIAMOND, 133, (2019),19-24, ニューダイヤモンドフォーラム
- 2) **Yoshiaki Hattori**, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, and Kosuke Nagashio. "Determination of Carrier Polarity in Fowler–Nordheim Tunneling and Evidence of Fermi Level Pinning at the Hexagonal Boron Nitride/Metal Interface." ACS applied materials & interfaces 10, no. 14 (2018): 11732-11738.
- 3) **Yoshiaki Hattori**, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, and Kosuke Nagashio. "Impact ionization and transport properties of hexagonal boron nitride in a constant-voltage measurement." Physical Review B 97, no. 4 (2018): 045425.

〔学会発表〕(計 4 件)

- 1) **Yoshiaki Hattori**, “Dielectric breakdown of h-BN and growth mechanism of DPh-DNTT” 2nd Bilateral Kobe-Kiel Workshop, (September 26, 2018, Kobe University, Hyogo, Japan).
- 2) **Yoshiaki Hattori**, “Layered materials for electronics”, 3rd Bilateral Workshop on Research Exchange between National Taiwan University and Kobe University, (July 17, 2018, Kobe University, Hyogo).
- 3) **服部吉晃**, 谷口尚, 渡邊賢司, 長汐晃輔, “金属電極とのバリアハイトを考慮した極薄 h-BN の絶縁性評価”, 2017 年第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, (2017.9.7, 福岡国際会議場)
- 4) **Yoshiaki Hattori**, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Kosuke Nagashio, “Random Telegraph Noise in h-BN under Constant-Voltage Stress Test”, International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), (September 19-22, 2017, Sendai International Center, Sendai, Japan).

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。