

様 式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19（共通）

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書



令和 5 年 6 月 28 日現在

機関番号：57301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20433

研究課題名（和文）紫外発光素子に向けた多粒界による強発光強度スパッタリング六方晶窒化ホウ素の作製

研究課題名（英文）The synthesis of multi-grain hexagonal boron nitride by sputtering deposition for ultraviolet luminescence device

研究代表者

日比野 祐介（Hibino, Yusuke）

佐世保工業高等専門学校・電気電子工学科・講師

研究者番号：20910045

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,300,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究は近年社会問題となったCOVID-19や、それに伴い社会において意識が大きく向くようになった安全衛生の確保に向けた紫外光発光デバイスのための新たな材料の作製と、材料として近年着目されてきた二次元層状物質の利用が大きな特徴として挙げられる。本研究においては、これまで薄膜の作製報告例がスパッタリング法を用いた六方晶窒化ホウ素(hexagonal boron nitride: h-BN)の作製を試みた。作製とその後の物性評価の結果、ある程度の膜品質を得るためにはターゲットと基板間の距離を変えることなどが必須であるとわかった。これらの条件は発光デバイス達成のための今後の指標となる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究において扱った六方晶窒化ホウ素は近年注目を集めている二次元層状物質の一種。本研究の成果は六方晶窒化ホウ素の衛生管理のための紫外発光デバイスの実現に寄与し、本材料の社会的有用性を高めることが期待される。また、期待される発光デバイスは高い発光効率を実現できることが予測され、現時点で利用されているものを置換し、さらなる省エネルギーについてはカーボンニュートラルの社会の実現に向けて貢献できると考えられる。さらに、本研究で作るスパッタリングによる多結晶形成とそれによる発光効率増加のメカニズムはまだ不明瞭な点も多くあり、材料の形成とその評価からそのメカニズム解明に寄与できる学術的な意義も期待される。

研究成果の概要（英文）：The most characteristic feature of this research is that the fact that its focus is on the social and personal hygiene which has been the interest of the society after COVID-19. The objective of the research is to fabricate ultraviolet light emitting device for sterilization. In addition, this research focuses on the fabrication of hexagonal boron nitride for the device. It is a two-dimensional material which is drawing more attention recently. The material was fabricated using sputtering deposition technique. There are not many reports on the fabrication of hexagonal boron nitride thin film using sputtering technique. By thorough evaluation of the fabricated films, it has been shown that retaining appropriate target-substrate distance is crucial to ensure a certain quality of the film. Combined with different findings of the relation between fabrication condition and film quality, these factors will play a crucial role in realizing the light emitting device.

研究分野：電気電子材料

キーワード：六方晶窒化ホウ素 スパッタリング 結晶成長 二次元層状物質

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、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

社会で急速に普及している電子デバイスの中核を担う電子材料としてこれまではシリコン(Si)が広く利用されてきたが、その性能限界などが叫ばれるようになり、新材料として2次元層状物質が近年注目されてきた。2次元層状物質は従来の3次元物質とは異なり、層状構造を形成するため固有の物理特性などを示してきており、当初はトランジスタのチャネル材料として着目されていたところが、様々な応用に対する期待が高まってきた材料である。その一つが光学素子である。六方晶窒化ホウ素(hexagonal Boron Nitride: h-BN)も2次元物質の一つであり、バンドギャップが大きく、絶縁体的性質を示している(図1)。さらに、近年h-BNは直接遷移型のバンドギャップを有しており、高い発光効率が期待されると先行研究で示されたh-BNが発光素子として応用されれば

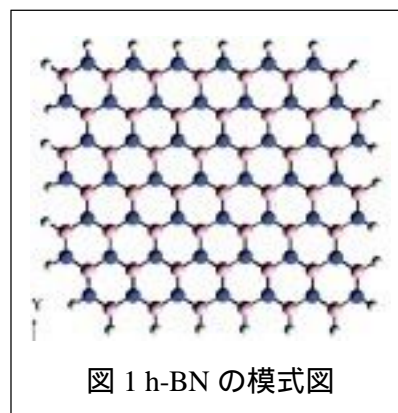


図1 h-BNの模式図

対応する波長はおよそ215 nmの深紫外領域にある。紫外光は現在世界中で混乱を引き起こしているCOVID-19をはじめとするウィルスや、細菌などの殺菌のための装置のように身近なところから、紫外線光電子分光法による材料特性の研究に至るまで、様々な場面で利用されている。このことから、h-BNの有効利用は今後の生活面・学術面両方において非常に有用であることが期待される。

## 2. 研究の目的

本研究では上記目標達成のため、スパッタリング法をベースとした発光デバイス向け多粒界h-BN薄膜の形成法確立およびデバイス形成を目的とした。

## 3. 研究の方法

本研究ではまずスパッタリングによるh-BN膜の作製を試みた。これまでスパッタリングによる数層のh-BN作製の報告例は少なく、各成膜条件が及ぼす影響に対する知見が少なかった、具体的な検討内容として、薄膜作製における成膜中の圧力、ターゲットと薄膜の土台となる基板間の距離、成膜時間の影響を調べた。これらの条件に対して形成される薄膜の品質等を調べることで、本研究の目的となる発光デバイスにおいて最適な作製条件を導き出すことを試みた。

## 4. 研究成果

### (1) 圧力の影響

上記でも述べたように、成膜条件を変化させて成膜を行った。まず、成膜の際に導入されるArの圧力による違いを検討したところ、どのような条件下においても本来導入が好ましくない酸素が膜中に含まれることが明らかになった。これは形成したサンプルを成膜後に大気に暴露した際に大気中の酸素と結合したものと考えられる。他方、本来膜中に含まれるべき窒素が条件によっては非常に少量しか含まれていないことも明らかになった。これはホウ素と窒素の蒸気圧差に由来していると考えられる。h-BNとは別の二次元層状材料である二硫化モリブデンの先行研究においてはモリブデンと硫黄の蒸気圧差により、膜中の硫黄が欠乏してしまうということが報告されている。同様のことがh-BNでも発生していると考えられる。このような事態に対する対策として成膜中の窒素導入が挙げられる。成膜中に窒素ガスを導入することで、膜中の窒素欠乏を防ぐことができると考えられる。

### (2) ターゲット-基板間の距離

次に検討したのがターゲットと基板の間の距離である。上記でも述べられているように膜中の窒素欠乏がサンプルにおいて確認されたが、条件の検討の結果、ターゲットと基板間の距離が離れていると窒素欠乏がより抑制されることが明らかになった。これは図2に示すようにX線光電子分光法(XPS)によって示された。スパッタリング時に膜を形成するために入射する粒子のエネルギーはターゲット-基板間の距離が小さければ大きく、距離が大きければエネルギーは小さい。高いエネルギーの入射粒子は膜を形成する原子等を叩き出してしまい(これを再スパッタと言う)、特に窒素はホウ素に比べ蒸気圧が高いため優先的に叩き出されてしまう。これが窒素欠乏の原因と考えられる。このように(1)で述べた窒素導入だけでなく、ターゲットと基板間の

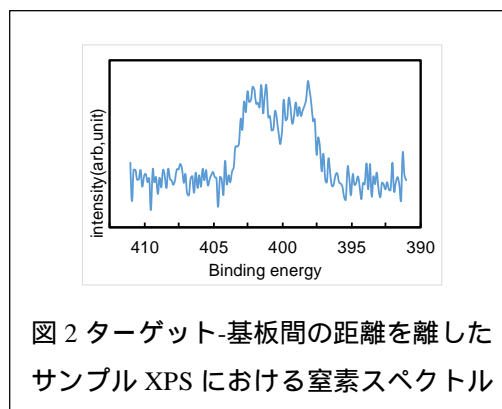


図2 ターゲット-基板間の距離を離れたサンプル XPS における窒素スペクトル

ターゲットと基板間の

距離を調整することでも窒素欠乏を防ぎ、必要な品質を有する膜の作製が可能であることが示唆された。

### (3)成膜時間の検討

成膜時間の変化により、膜がどのような速度で形成されるかの検討も行った。図3に示したのはその結果となる。図に示されているように、膜が形成される速度はある一定値を示しており、膜形成途中の形成モードが変化していないことがわかる。ただし、他の層状材料において膜形成初期の段階では形成モードが変化することが示されており、より膜形成時間が少ない領域での形成速度も今後検討する必要がある。今回検討した膜の形成時間における領域では線形な特性が得られていることから、膜の形成時間に対する膜厚は良好な再現性が得られることが示唆された。

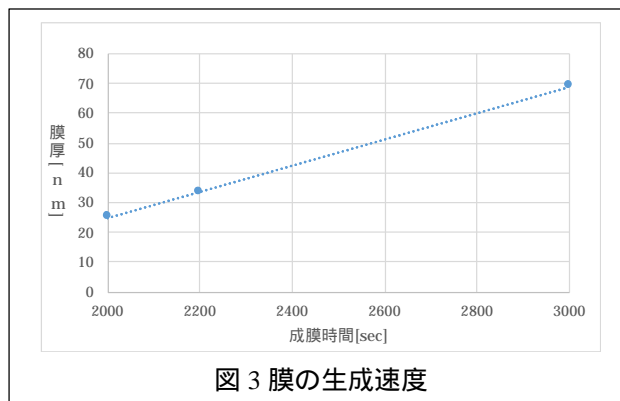


図3 膜の生成速度

また膜の形成速度は  $0.017 \text{ nm/s}$  と、非常に遅いことも確認された。この形成速度はターゲットのスputter率が低いこと、もしくは膜が形成される際に、(2)でも述べた再sputterが起こり膜自体が一定分削られてしまっていることを示唆する。今後の調査で具体的にどのようなことが膜形成時に起きているかを調べるのが重要となってくる。

以上の結果から、h-BN 膜形成における異なる成膜条件が与える影響を明らかにした。加えて当面の課題となる膜中からの窒素の欠乏に対して有効である手段も明らかになった。今後はこういった手段を実際に用いて薄膜を作製し、それらの品質、また発光特性を調べることで発光デバイス作製に向けて必要な条件を明らかにできると考えられる。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------	---------