

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14559

研究課題名（和文）六方晶窒化ホウ素単結晶中不純物が絶縁特性に及ぼす影響評価

研究課題名（英文）Evaluation of the Effect of Impurities in Hexagonal Boron Nitride Single Crystals on Insulation Properties

研究代表者

小野寺 桃子 (Onodera, Momoko)

東京大学・生産技術研究所・特任助教

研究者番号：10907819

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：六方晶窒化ホウ素（h-BN）中の不純物が耐電圧特性に及ぼす影響を評価するため、炭素アニール結晶及びアニールしていない結晶を使用し、粘着テープを用いたメカニカル劈開法によって薄膜化しSiO<sub>2</sub>基板の上にh-BNフレークを作製した。それらのフレークを塩化ビニール（PVC）を用いてSiO<sub>2</sub>基板上の金属電極上に載せ、その後さらに金属電極を載せることによって上下の電極でh-BNを挟み込んだデバイスを作製し、室温及び極低温で測定を行った。炭素原子がドーピングされている場合とされていない場合において耐電圧曲線の振る舞いが変化することが確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

炭素ドーピング結晶とドーピングしていない結晶において耐電圧曲線の振る舞いが異なることが確かめられたが、この振る舞いの違いに関しては一つのフレーク内でもばらつきがある。このばらつきの要因としては転写時にh-BN層にあかるひずみによるh-BNへの欠陥の導入、あるいは転写時にh-BNと接触したPVCから付着したポリマー残渣の影響が考えられる。そこで、これらの転写による原子層へのダメージを極力少なくするため、PVC転写の開発に取り組んできた。その結果として、PVCの膜厚制御による持ち上げ温度変化や転写効率の向上に成功している。

研究成果の概要（英文）：To evaluate the effect of impurities in hexagonal boron nitride (h-BN) on voltage holding capability, carbon annealed and unannealed crystals were used. The flakes were then fabricated on a SiO<sub>2</sub> substrate by a mechanical cleavage method using adhesive tape. The flakes were placed on the metal electrode on the SiO<sub>2</sub> substrate using PVC. The devices were fabricated by sandwiching h-BN between the top and bottom electrodes, and measurements were performed at room temperature and at cryogenic temperatures. Measurements were performed at room temperature and cryogenic temperatures. The behavior of the withstand voltage curve changed between the cases with and without carbon atoms doped.

研究分野：二次元材料

キーワード：六方晶窒化ホウ素 二次元層状物質

## 1. 研究開始当初の背景

二次元層状物質がファンデルワールス (vdW) 力によって積層された vdW 接合においては物質界面での格子整合が不要であり、様々な物性の二次元層状物質を任意の順番で積層でき、無限通りの構造組み合わせが可能となる。二次元材料の選択肢は膨大であるが、絶縁性の二次元材料は六方晶窒化ホウ素 (h-BN) のみである。h-BN はあらゆる vdW 接合に組み込まれ、本研究分野で必要不可欠な物質である。

h-BN 結晶の合成法として最も代表的なのが高温高压合成法である。1500 °C、4.5 GPa 程度の高温高压下で Ba-BN を触媒として合成する。高温高压合成結晶は高品質として知られ世界中の研究機関で用いられている。大きな特徴として、高温高压結晶中心部には炭素不純物過多領域 (ドメイン) が存在する。他のより簡便な合成法として、金属触媒を用いた高温常圧合成法があり、結晶品質はやや劣るものの不純物過多ドメインが存在しないという利点もある。また、結晶合成後に炭素アニールを施すことにより意図的に炭素不純物量を増やした結晶も合成できている。これらの結晶の特徴を以下の表にまとめた。

h-BN は様々な用途で vdW 接合に組み込まれるが、特にゲート絶縁層としての機能は重要であり、h-BN の耐電界特性は FET 素子の性能を決定する要因である。ところが、h-BN 中の欠陥及び不純物が h-BN の耐電界特性にどのような影響を及ぼすのかは明らかになっていない。h-BN の特性を考える上では欠陥の影響の理解が必要不可欠である。

## 2. 研究の目的

本研究提案では、h-BN 結晶の耐電界に関する評価を多面的に行うことを目的とする。特に高温高压合成結晶を使用する上で問題になってくる炭素不純物ドメインに着目し、ドメイン内外及びドメイン境界での耐電界の違いを調査する。さらに炭素ドーピング結晶を用いて炭素濃度と耐電界との関係を明らかにするほか、常圧合成結晶の耐電界特性も評価する。複数のカテゴリーの結晶特性が異なる h-BN 結晶を用いて h-BN 耐電界の差異を明らかにする試みは前例がなく、今後の vdW デバイス作製における指針を与えるものとなる。

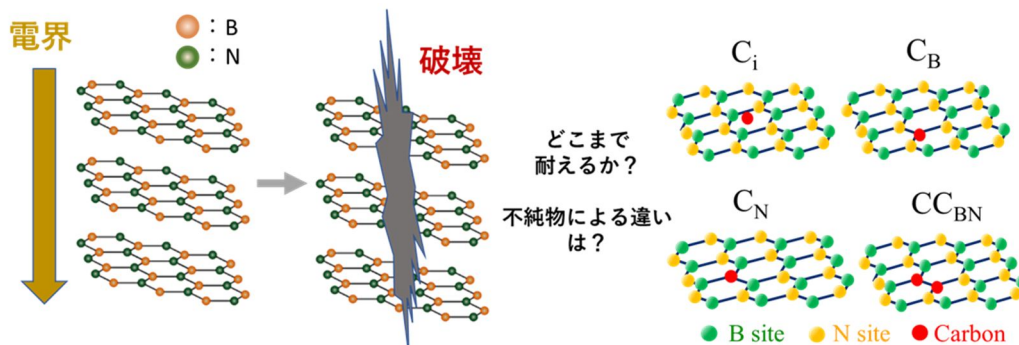


図 1 : 実験の概念図 (左)、h-BN 中の炭素位置 (右)

## 3. 研究の方法

h-BN 結晶をスコッチテープを用いて SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に劈開し、光学顕微鏡下でフレークを探索する。厚みは 10-30 nm 程度とし、表面に汚れや傷が無いものを使用する。フォトルミネッセンス (PL) により h-BN フレークのスペクトル像を取得し、エキシトン発光ピーク強度よりも不純物発光ピーク強度が相対的に強い領域をドメインと判定する。ドメイン内外の耐電圧を同一フレーク内で直接的に比較したいので、フレーク内にドメイン境界が含まれるものを探し出す。あらかじめ SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に作製しておいた金属ゲート (厚み 15 nm 程度) の上に h-BN フレークを転写する。試料をカバー付きのサンプルホルダに取り付け、真空引きを行う。上下の金属電極間に電圧を印加し、面直電場の大きさに対してリーク電流がどう変化するか (I-V 特性) を測定する。

## 4. 研究成果

炭素ドーピング結晶とドーピングしていない結晶において耐電圧曲線の振る舞いが異なることが確かめられた。さらに、この振る舞いの違いに関しては一つのフレーク内でもばらつきがある。このば

らつきの要因としては転写時に h-BN 層にあかるひずみによる h-BN への欠陥の導入、あるいは転写時に h-BN と接触した PVC から付着したポリマー残渣の影響が考えられる。そこで、これらの転写による原子層へのダメージを極力少なくするため、PVC 転写の開発に取り組んだ。その結果として、PVC の膜厚制御による持ち上げ温度変化や転写効率の向上に成功している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Onodera Momoko, Wakafuji Yusai, Hashimoto Taketo, Masubuchi Satoru, Moriya Rai, Zhang Yijin, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Machida Tomoki	4. 巻 12
2. 論文標題 All-dry flip-over stacking of van der Waals junctions of 2D materials using polyvinyl chloride	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 21963
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-022-26193-z	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 -

1. 著者名 Wakafuji Yusai, Onodera Momoko, Masubuchi Satoru, Moriya Rai, Zhang Yijin, Watanabe Kenji, Taniguchi Takashi, Machida Tomoki	4. 巻 6
2. 論文標題 Evaluation of polyvinyl chloride adhesion to 2D crystal flakes	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 npj 2D Materials and Applications	6. 最初と最後の頁 44
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41699-022-00323-7	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
---------	---------