

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01891

研究課題名（和文）速度論的表面エネルギーを考慮したSiC多形制御結晶成長プロセス

研究課題名（英文）Polytype Controlled SiC Single Crystal Growth

研究代表者

西澤 伸一（NISHIZAWA, Shin-ichi）

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：40267414

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,000,000円

研究成果の概要（和文）：SiC多形制御について、バルクエネルギー、静的表面エネルギー、動的表面吸着エネルギーに対するドーパントの影響をDFTにより検討し、n型4H-SiC安定成長はC終端面かつ窒素ドーピング条件でのみ可能であることを示した。他の条件下では、4H-SiC基板上では多形変形が起きる可能性が高い。また、p型4H-SiCは、アルミニウムドーピングで成長させる際に、C終端面、Si終端面いずれも安定成長を困難であることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SiCの普及にたいして最大のボトルネックになっているSiC単結晶基板に関して、初めて理論的に多形制御物理を明らかにした。この成果は、4H-SiCを絶対安定に成長させるための最適結晶成長条件確立につながり、ポストシリコン時代の省エネルギーパワー半導体材料として期待されているSiCの本格的実用化を支えることである。

研究成果の概要（英文）：In this study, effects of nitrogen and aluminum dopant on the SiC crystal structure and poly-type stability were investigated by DFT. With taking account of the stacking energy of additional bilayer, the carbon terminated surface as seed surface with nitrogen doped condition is the only condition of 4H single poly-type SiC growth. Under the other conditions, poly-type conversion and inclusion might be occurred.

研究分野：結晶成長

キーワード：炭化ケイ素 結晶成長 不純物

1. 研究開始当初の背景

昇華法による SiC 単結晶成長では、これまで、例えば 4H-SiC を成長させる条件として経験的に ((000-1)C 終端面、窒素雰囲気、C/Si 比大雰囲気) が提案されてきたが、いまだ物理的根拠は不明なままであり、また高確率で 4H-SiC が成長はするが、確率論にすぎず、未だに多形混入が大きな課題となっていた。一方、多形安定性に関する理論解析は、SiC 各種多形のバルクエネルギー、表面エネルギーを静的に扱っており、これらの結果からは、4H-SiC など、ある特定の多形を選択的に成長させる条件は得られていなかった。将来のグリーン社会において重要な役割を果たすことが期待される SiC パワーデバイス応用において、その出発材料となる SiC 単結晶において、多形制御を解決することが大きな課題となっていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、特に結晶成長時の表面物理に着目し、結晶成長表面が関与する多形決定因子を理論的に明らかにすることで、特に 4H-SiC を絶対安定に成長させるための最適結晶成長条件を提案・実証し、ポストシリコン時代の省エネルギーパワー半導体材料として期待されている SiC の本格的実用化を支えることである。

3. 研究の方法

これまで経験則で提案されてきた 4H-SiC 成長条件 (C 終端面上への結晶成長、窒素雰囲気) を、DFT を用いて結晶成長時の表面エネルギー安定化の観点で再検討、定量的に評価する。なお、圧力・温度に関しては、DFT での直接検討が困難ため、結晶成長炉スケールでの解析から導かれる気相ガス種存在比・量などと比較することで検討する。これにより、4H-SiC を安定に成長させるための物理的条件を提案する。そのため、以下の研究を行う。

1. DFT による静的なバルクエネルギーおよび表面エネルギーの定量的評価

(1) バルクエネルギー評価: ノンドープおよび窒素 (n 型ドーパント) アルミニウム (p 型ドーパント) を混入した各種多形のバルクエネルギーおよび結晶格子定数の定量的評価を行う。他のドーパント物質の効果も検討することでドーパントによる多形安定化の可能性を検討する。
(2) 静的表面エネルギー評価: 各 SiC 多形で想定される結晶面を取り上げ、各表面での表面エネルギーを定量的に評価する。あわせて、上記 (1) と同様に、ドーパントを考慮した表面エネルギーを定量的に求め、ドーパントによる結晶成長および多形制御の観点から、表面安定効果を検討する。

2. DFT による結晶成長表面エネルギーの定量的評価

(1) 動的表面吸着エネルギー評価: 静的表面エネルギー解析から優先的と想定される結晶成長表面に対して、次層となる原子対がヘキサゴナルサイト、キュービクサイトのどちらに積層した場合が表面エネルギー的に安定化するか評価する。
(2) ドーパントによる安定効果の評価: ドーパントによる結晶成長表面安定化を検討するため、吸着原子側でドーパント物質を考慮した表面エネルギー解析、バルク中のドーパント物質を考慮した表面エネルギー解析の定量的評価を行う。

4. 研究成果

1. DFT による静的なバルクエネルギーおよび表面エネルギーの定量的評価

(1) バルクエネルギー評価: 図 1 に、各種ドーパントがバルクエネルギーにおよぼす影響を、図 2 に格子定数におよぼす影響を示す。図 1 から、窒素ドーパントの場合は 3C が最安定であり、アルミニウムドーパントの場合は多形間で大きな差が無いことがわかる。これは実験結果と矛盾しており、バルクエネルギーが多形を決定しているのではない。図 2 は、窒素、アルミニウムともにドーピング濃度が高くなるに従いバルクヘキサゴナリティが大きくなることがわかる。この時、窒素ドーパントは a を縮小、アルミニウムドーパントは c を拡大することでヘキサゴナリティが変化している。また、いずれも濃度が 10^{20}cm^{-3} を超えると、ヘキサゴナリティが大きく変化するが、これはエネルギー的に不安定な領域に入っており、現実の事象としては無視してよい。

(2) 静的表面エネルギー評価: 図 3 に、各 SiC 多形表面での表面エネルギーを示す。図 3 から、Si 終端面では 4H-SiC よりも、3C-、6H-SiC が安定表面であることがわかる。一方で、C 終端面では、3C-、6H-SiC よりも 4H-SiC が安定表面であることがわかる。ただし、そのエネルギー差がわずかであり、実際の結晶成長において多形制御のよりどころとすることは難しい。

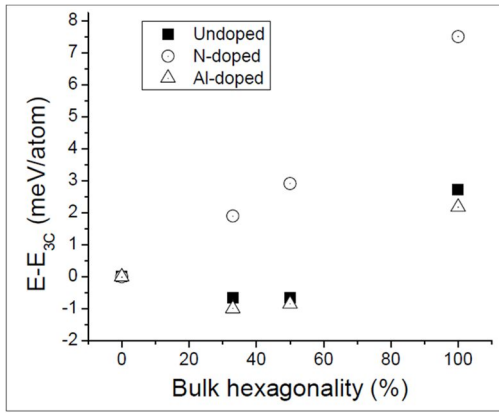


図1 バルクエネルギー

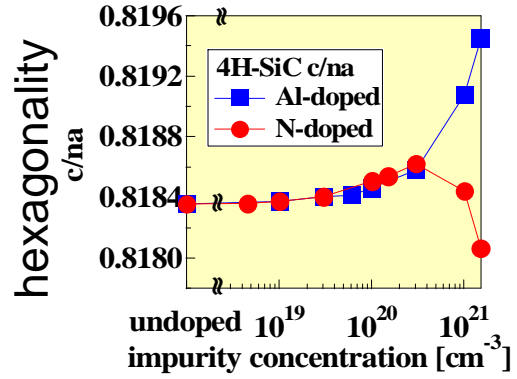
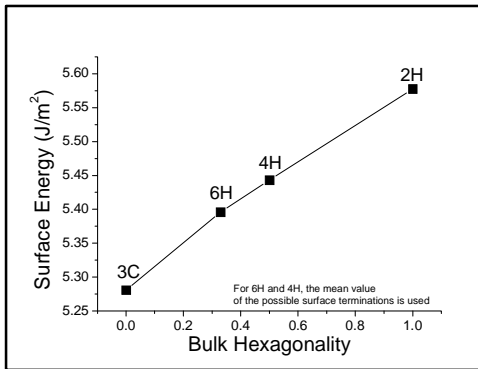
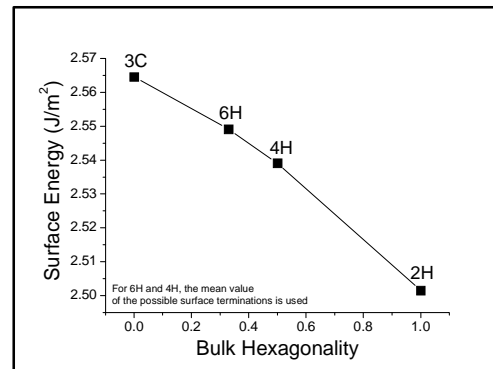


図2 格子定数への影響



(a) Si 終端面



(b) C 終端面

図3 静的表面エネルギー

2. DFT による結晶成長表面エネルギーの定量的評価

(1) 動的表面吸着エネルギー評価: 図4に、静的表面エネルギー解析から優先的と想定される結晶成長表面に対して、次層となる原子対がヘキサゴナルサイト、キュービックサイトのどちらに積層した場合が表面エネルギー的に安定化するか評価した結果を示す。図4縦軸が正の場合はキュービックサイト、負の場合はヘキサゴナルサイトが安定である。図4から、ヘキサゴナリティが大きい4H-SiCを成長させるためには、C終端面を利用することが良いことがわかる。

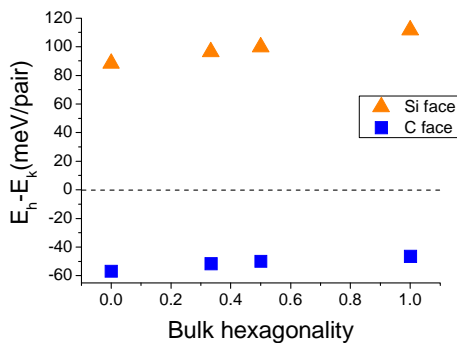


図4 動的表面吸着エネルギー

(2) ドーパントによる安定効果の評価: 図4の条件にたいして、ドーパントによる動的表面吸着エネルギーの変化を図5に示す。図5から、Si終端面において、窒素ドーパはキュービックサイト安定度を維持するが、アルミニウムドーパではキュービックサイト安定度が低下することがわかる。一方で、C終端面では、窒素ドーパはヘキサゴナルサイト安定度をより高くすること、一方でアルミニウムドーパはヘキサゴナルサイト安定度を大きく低下させることがわかる。これらをまとめて、図6に多形制御におよぼすドーパントの影響を示す。図6からSiC-MOSFET用に期待されるn型4H-SiCは、C終端面を用いて窒素ドーパにより成長させることが良いことがわかる。SiC-IGBT用に期待されるp型4H-SiCは安定成長が極めて困難であることが予測される。

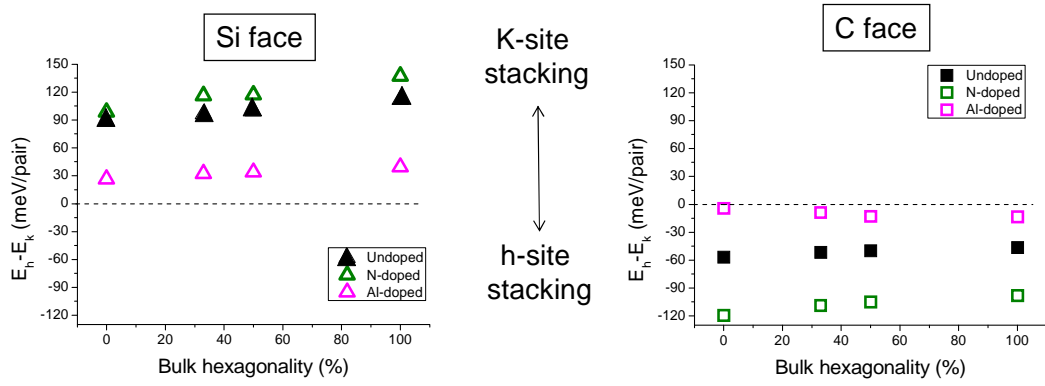


図5 動的表面吸着エネルギーへのドーパントの影響

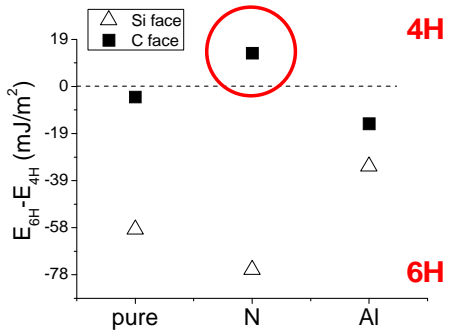


図6 多形安定条件

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S.Nishizawa, F.Mercier	4. 巻 518
2. 論文標題 Effect of nitrogen and aluminium on silicon carbide polytype stability	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 99-102
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcrysgro.2019.04.018	査読の有無 有
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 該当する

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Shin-ichi NISHIZAWA and Frédéric Mercier
2. 発表標題 Effect of Nitrogen / Aluminum on Silicon Carbide Poly-type Stability
3. 学会等名 the 9th International Workshop on Modeling in Crystal Growth（国際学会）
4. 発表年 2018年

〔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
研究分担者	柿本 浩一 (KAKIMOTO Koichi) (90291509)	九州大学・応用力学研究所・教授 (17102)	

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