

令和元年9月19日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05967

研究課題名(和文) SiC薄膜成長過程のマルチスケール転位動力学の開発と底面-貫通転位変換過程の解明

研究課題名(英文) Development of multi-scale dislocation dynamics and conversion of basal plane dislocation to threading edge dislocation in SiC film growth process

研究代表者

泉 聡志 (Izumi, Satoshi)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：30322069

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：4H-SiCは先端パワーデバイスの材料として期待されている。本論文では、らせん型基底面転位(BPD)から貫通らせん転位(TED)への変換プロセスを反応経路解析により明らかにした。部分転位対の収縮は表面近くで起こりやすく、表面がSi面のほうが起こりやすいことがわかった。また、BPDの交差すべりは表面近傍で起こりやすく、Si面のほうが起こりやすいことがわかった。加えて、交差すべりの抑制プロセスが、グライドセット面からシャフルグライド混合タイプへの遷移過程であることがわかった。分子動力学シミュレーションにより、オフ角を設定した基板中のBPD-TED変換が低温でも即座に起こることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、応用物理学会で二回の受賞(第65回応用物理学会 春季学術講演会 講演奨励賞、第78回応用物理学会 秋季学術講演会 PosterAward)を受けており、学術・産業界において非常にインパクトの高い研究である。それらの成果はJapanese Journal of Applied Physicsに掲載されている。また、SIPプロジェクト「次世代パワーエレクトロニクス」のメンバの中でも情報収集され、企業や研究所のメンバと議論を行った。今後、SiCパワーデバイスの品質改善に応用されていく予定である。

研究成果の概要(英文)：4H-SiC has gained attention as a material for advanced power devices. In this paper, we investigate the surface effect on the screw-type BPD (basal plane dislocation)-TED (threading edge dislocation) conversion using reaction pathway analysis. It is found that the constriction of a partial dislocation pair easily occurs in the vicinity of the surface and that the constriction in the Si-face substrate is easier than that in the C-face one. Also, we find that the cross slip of a perfect screw BPD easily occurs in the vicinity of the surface and that the cross slip in the Si-face is easier than that in the C-face. In addition, we reveal that the rate-limiting step of the cross slip is the glide to shuffle-glide mix transition. We also perform molecular dynamics simulations of a perfect screw BPD-TED conversion in an off-cut substrate and confirm that spontaneous conversion occurs even at low temperature(500K).

研究分野：材料強度、材料力学

キーワード：分子動力学 4H-SiC 転位

## 1. 研究開始当初の背景

4H-SiC はその優れた物性から次世代パワーデバイスとして注目されており、すでにデバイス実用化の段階に入っている。4H-SiC のエピタキシャル膜は基底面(0001)面から僅かにずれた面を表面としたオフ角付基板の上に成膜されている。この過程で、基板に内在する悪性欠陥である BPD(Basal Plane Dislocation: 基底面転位)はエピタキシャル成膜中にほぼすべてが良性的 TED(Threading Edge Dislocation)へと変換される。しかし、残った僅かな BPD がデバイス性能を著しく損なう 2 ことから、エピタキシャル成長時の TED への変換率の向上を目指した技術開発が行われてきた。

しかし依然として BPD-TED 変換率は 100% ではない。BPD-TED 変換のメカニズムが不明であることが大きな原因である。BPD は基底面内で Shockley 型の部分転位に解離していることが知られているが、TED へ変換する際には解離した部分転位が収縮し、一本の完全転位になる必要がある。収縮は表面近傍で起こると言われているが、詳しい機構は明らかではない。

また、エピ膜内に変換されずに伝播する BPD は全てらせん転位であることが知られている。らせん BPD は収縮後鏡像力により交差すべりをし、TED へと変換すると言われている。しかし、4H における完全らせん BPD に関する構造は未だ十分に明らかとなっておらず、BPD-TED 変換の素過程であると予想されている交差滑りのメカニズムは不明である。

## 2. 研究の目的

本研究では、原子間ポテンシャルを用いた反応経路解析および動力学計算によって、らせん BPD の収縮現象及び交差すべりに表面が与える影響を解析し、考察を行う。

## 3. 研究の方法

本研究の計算はすべて大規模並列古典分子動力学計算用のオープンソースソフトウェアである LAMMPS[1]を用いて行われている。また、使用した原子間ポテンシャルは全て Vashishta ポテンシャル[2]である。

### (1) 表面近傍での BPD 部分転位対収縮現象のエネルギー

解析モデルを図 1 に

示す。

$$\mathbf{b} = 1/3[11\bar{2}0], \quad \boldsymbol{\xi} = [11\bar{2}0]$$

の完全らせん BPD が解離した転位である

30°Si(g) core と 30°C(g)

core の 2 本の転位を

z=5nm の位置に配置する。

解析は w について 0.4

~1.3nm まで

$\sqrt{3} a_0/2 = 0.267$  nm 刻

みで 4 条件, l について

0.25~4.75nm まで

c/4 = 0.25nm 刻みの 19

条件, 表面極性は Si 面と C 面の両面について解析を行う。本解析は反応経路長が非常に長いことから収縮前後のエネルギー差を NEB 計算[3]によって求めた。

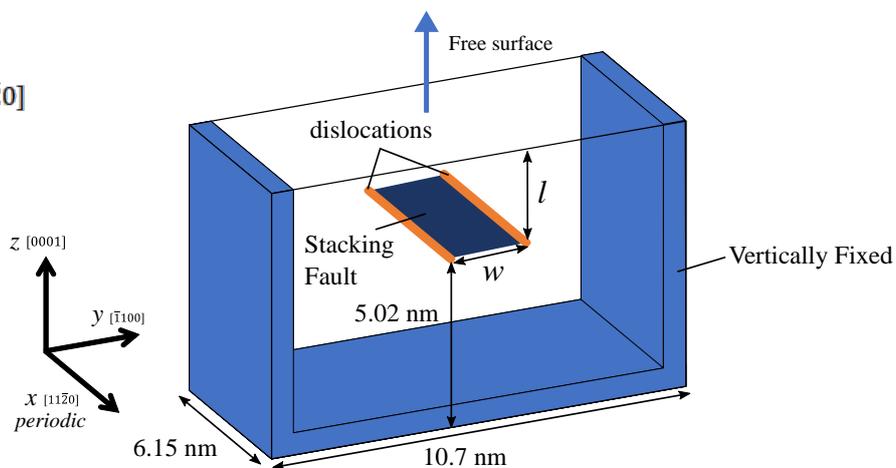


図 1 収縮のエネルギー算出のためのシミュレーションモデル

### (2) 表面近傍での BPD 部分転位対収縮現象の活性化エネルギー

収縮の活性化エネルギーを求めために、図 1 と同様のモデルに

$\mathbf{b} = 1/6[10\bar{1}0]$  or  $1/6[01\bar{1}0]$ ,  $\boldsymbol{\xi} = [11\bar{2}0]$  の 30°Si(g) core もしくは 30°C(g) core を系に導入する。

表面-転位間の距離 l は 0.25~4.75nm まで c/4=0.25nm (1 バイレイヤーに相当) 刻みで 19 条件について解析を行った。さらに、自由表面は Si 面および C 面の両条件について解析を行った。

cg 緩和を終えた後、kink nucleation および migration の NEB 計算を行う。30°転位は転位線方向に関して非対称の構造をしており、migration については 2 種類の構造変化(LK: left kink, RK: right kink)が存在するので、それぞれについて個別に解析を行う。

(3) 完全らせん BPD の交差すべり活性化エネルギー

解析モデルを図 2 に示す.  $z=10.0\text{nm}$  の位置に  $\mathbf{b} = 1/3[11\bar{2}0]$ ,  $\xi = [11\bar{2}0]$  の完全らせん BPD を配置する. cg 緩和を行うと転位芯はグライドセットの位置で安定するため, 本解析では初期位置をグライドセットとする. 転位-表面間の距離を  $l$  とし,  $l$  を  $1.75\sim 9.75\text{nm}$  まで  $c/2 = 0.5\text{nm}$  ずつ変えて解析を行う. 自由表面の極性は Si と C 両面について解析を行う.

4H-SiC の交差すべりには 2 つの滑りモード ( $(\pm 8, \mp 8, 0, 3)[\mp 4, \pm 4, 0, 3]$  と  $(1\bar{1}00)[0001]$ ) があることが予想される. 本論文では cubic 積層におけるすべりである  $(\pm 8, \mp 8, 0, 3)[\mp 4, \pm 4, 0, 3]$  を cubic slip, hexagonal 積層におけるすべりである  $(1\bar{1}00)[0001]$  を hexagonal slip と定義する. これら 2 種のすべりについては原子の積層順をずらすことによって, 区別して解析を行う.

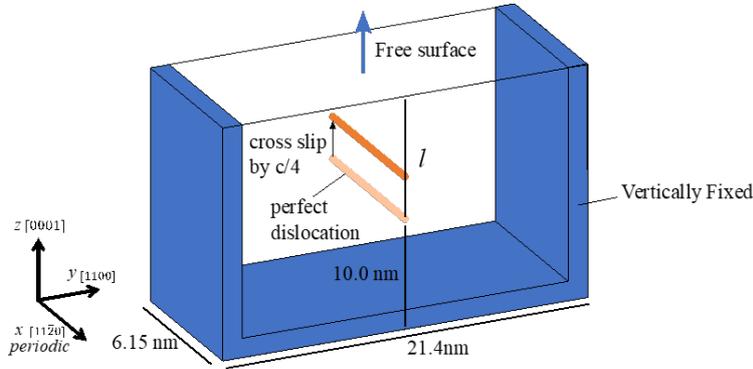


図 2 交差すべりの活性化エネルギー算出のためのシミュレーションモデル

転位を導入した系を cg 法によって緩和し, NEB 解析を行う. 最終状態は転位が表面に向かって 1 バイレイヤー分

( $c/4 = 0.25\text{ nm}$ ) だけ滑った後の構造とする. また, NEB 法のバネ力は転位線を中心として半径  $4\text{nm}$  の円筒内の原子にのみ与える.

(4) BPD-TED 変換の分子動力学シミュレーション

オフ角付基板を模擬した系における分子動力学計算を行い, 実際に交差すべりによって BPD-TED 変換現象が起こるかどうかを調べた. 解析モデルを図 3 に示す.  $10.0 \times 76.9 \times 21.3\text{nm}^3$  の直方体の系の基底面に完全らせん転位 ( $\mathbf{b} = 1/3[11\bar{2}0]$ ,  $\xi = [11\bar{2}0]$ ) を導入した後 cg 法によって緩和をし, 原子を削除することにより斜面を形成する (斜面形成後の原子数: 約 120 万). その後さらに cg 法によって緩和を行う. オフ角は  $4.6^\circ$  とした. 転位の端は斜面に出ている. また,  $-x$  方向と  $-z$  方向の端面は原子を固定した. 表面極性は Si および C の両方で解析を行う. 緩和計算を行った後は,  $500\text{K}$  の NVT 計算を行う.

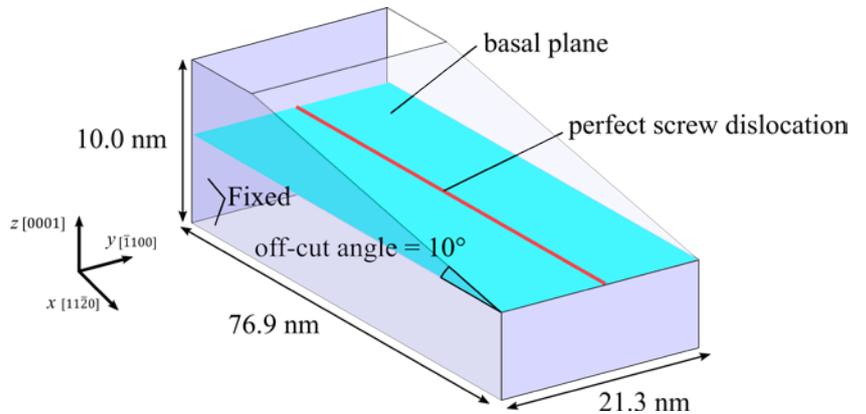


図 3 BPD-TED 変換の分子動力学シミュレーションモデル

4. 研究成果

(1) 表面近傍での BPD 部分転位対収縮現象

完全らせん BPD が解離した  $30^\circ\text{Si}(\text{g})$  core と  $30^\circ\text{C}(\text{g})$  core 部分転位対の収縮現象に対して, エネルギー変化の観点から表面の影響を解析した.

結果の一部を図 4 に示す. 横軸は  $l$  を, 縦軸は  $w = 1.3\text{nm}$  を基準としたエネルギー差を示している.  $l = 5\text{nm}$  のとき拡張幅が狭まるにつれエネルギーが増加しているが,  $l = 0.25\text{nm}$  のときは減少している. つまり, 表面極近傍においては収縮した方がエネルギー的

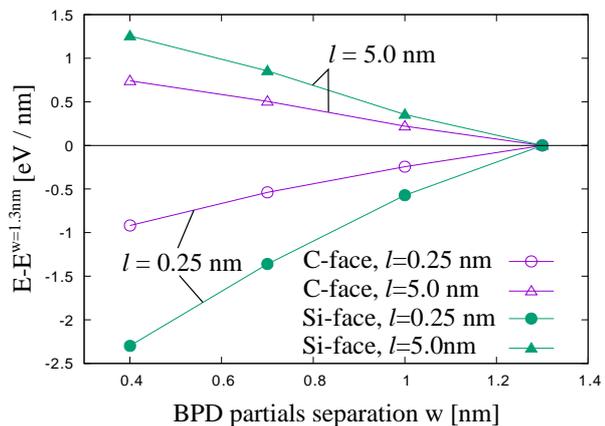


図 4 BPD 部分転位対の幅とエネルギー関係

に安定である。また、表面極性はC面よりもSi面の場合にエネルギー利得が大きく、より収縮しやすいことがわかった。

### (2) 表面近傍でのBPD部分転位対収縮現象の活性化エネルギー

次にBPD部分転位対収縮の活性化エネルギーに対して表面が与える影響を調べるため、部分転位単体の移動度に関する解析を行った。NEB法によるkink nucleationと2種のmigrationの解析結果を図5に示す。Si(g) coreの方がC(g) coreよりも活性化エネルギーが低い。つまり、Si(g) coreの方がmobilityが高い。これは従来の実験結果と定性的に一致する[4]。また、Si面におけるSi(g) coreとC面におけるC(g) coreは表面に近づくにつれ活性化エネルギーが減少し、Si面におけるC(g) coreとC面におけるSi(g) coreは活性化エネルギーが上昇すること

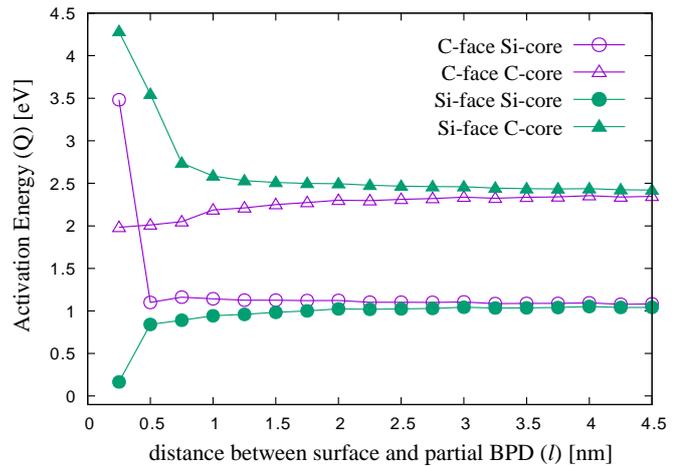


図5 表面の距離による転位の移動度の活性化エネルギーの変化

がわかった。弾性論により、鏡像力による転位芯近傍の垂直歪がすべり面間の距離を広げると同時に、局所パーガースペクトルの大きさを小さくすることが原因であると考えられる。

部分転位対の収縮はmobilityの高い方の転位の移動によって起こると考えられるため、本解析結果はSi面の方がC面よりも収縮が起こりやすいことを示している。つまり、BPD部分転位対の収縮現象は表面極近傍( $\leq 1\text{nm}$ )で促進され、Si面の方がC面よりも起こりやすいと考えられる。

### (3) 交差すべりのメカニズムと表面の影響

次に、表面が完全らせん転位の交差すべりに与える影響を解析した。

図6に表面-転位間の距離( $l$ )と活性化エネルギーの関係を示す。交差すべりの活性化エネルギーは表面から強く影響を受け、表面に近づくにつれ減少することがわかる。また、C面の活性化エネルギーの方がSi面の活性化エネルギーよりも低い。つまりC面の方がSi面よりも交差すべりしやすいことがわかった。

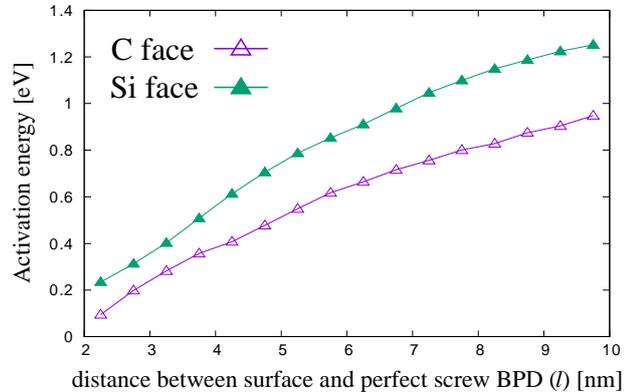


図6 交差すべりの活性化エネルギーの表面からの距離依存性

また解析の結果、交差すべり時の転位芯の移動経路も明らかになった。図7に示す通り、4H-SiCのらせん転位の転位芯はA(シャフルセット)、B(シャフル-グライドミックス)、C(グライドセット)のいずれかの位置に安定して存在すると言われている。解析の結果、交差すべりの転位芯の移動経路はC-B-A-Cであり、律速はC-B遷移であることがわかった。さらにBPD部分転位移動の構造変化との類似性から、Si面よりもC面の方が交差すべりの活性化エネルギーが低い理由を明らかにした。

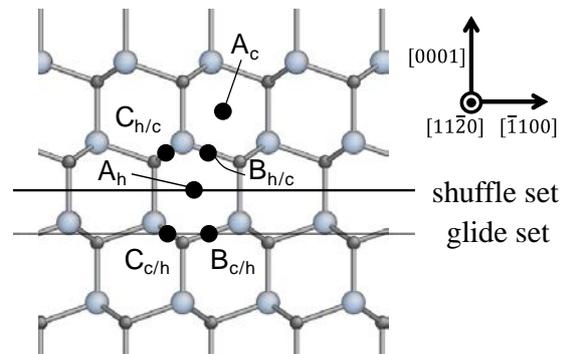


図7 4H-SiCの構造。黒丸はらせんBPDの転位芯が存在する位置 A(pure shuffle), B(shuffle-glide mix), C(pure glide)

#### (4) BPD-TED 変換の分子動力学シミュレーション

図 8 に結果を示す. 今回の解析は 500K の動力学計算であったが, これは実際のエピタキシャル成膜プロセス (1800K 程度) よりもはるかに低い温度である. だが, 約 70nm の BPD は 50ps ( $5.0 \times 10^{-11}$ s) のごく短い時間で TED へと変換することがわかった. また, Si 面よりも C 面の方が変換速度が大きく, NEB 解析の結果と整合していることがわかる.

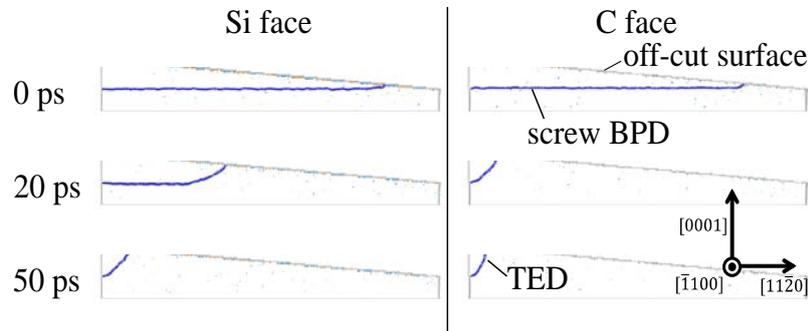


図 8 BPD-TED 変換の分子動力学シミュレーション

#### <引用文献>

- [1] LAMMPS <http://lammmps.sandia.gov>
- [2] Vashishta, P., et. Al., J. Appl. Phys. 101, 103515 (2007).
- [3] Henkelman, G.et.al., J. Chem. Phys., 113, 9978–9985 (2000).
- [4] Ha, S. et al. Appl. Phys. Lett. 83, 4957 (2003).

#### 5. 主な発表論文等

##### [雑誌論文] (計 2 件)

1. So Takamoto, Tomohisa Kumagai, Takahiro Yamasaki, Takahisa Ohno, Chioko Kaneta, Asuka Hatano, Satoshi Izumi, "Charge-transfer interatomic potential for investigation of the thermal-oxidation growth process of silicon", Journal of Applied Physics, 120-16, 165109, (2016)
2. Yohei Tamura, Hiroki Sakakima, So Takamoto, Asuka Hatano and Satoshi Izumi, "Reaction pathway analysis for the conversion of perfect screw basal plane dislocation to threading edge dislocation in 4H-SiC", Journal of Applied Physics, 58, 081005, (2019)

##### 3.

##### [学会発表] (計 2 件)

1. 田村 陽平, 榑間 大輝, 高本 聡, 波田野 明日可, 泉 聡志 4H-SiC における BPD-TED 変換の分子動力学解析 応用物理学会 第 78 回秋季学術講演会, 福岡, 2017, 9 月 5 日
2. 田村 陽平, 榑間 大輝, 波田野 明日可, 泉 聡志, 4H-SiC における基底面部分転位の貫通刃状転位への変換現象に関する反応経路解析, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会 早稲田大学, 2018, 3 月 19 日

#### 6. 研究組織

##### (1)研究分担者

研究分担者氏名: 波田野 明日可

ローマ字氏名: HATANO, Asuka

所属研究機関名: 東京大学大学院

部局名: 工学系研究科

職名: 講師

研究者番号 (8 桁): 20707202

※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。