

令和 6 年 6 月 26 日現在

機関番号：13102

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H02478

研究課題名（和文）究極の省エネ半導体実現を見据えたヘテロエピタキシャルダイヤモンドの徹底的低欠陥化

研究課題名（英文）Improvement of crystal quality of heteroepitaxial diamond toward realization of next-generation power electronics devices

研究代表者

會田 英雄（AIDA, HIDEO）

長岡技術科学大学・工学研究科・准教授

研究者番号：10811648

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,100,000円

研究成果の概要（和文）：ダイヤモンドヘテロエピタキシャル成長を実用化するには、結晶欠陥発生を抑制して結晶を高品質化する必要がある。完璧な下地基板製作と、発生した欠陥を消滅/低減するための欠陥伝搬制御の特殊成長テクニックの開発、ならびにそれらの技術融合を検討した。下地基板となるMgO表面の無じょう乱研磨加工とその後の洗浄およびアニール手法を確立し、原子レベルステップテラス表面創製に成功した。また選択成長技術による転位低減の可能性を見出した。さらに、ダイヤモンド成長中の成膜状況および基板反りのリアルタイムモニタリングに世界初で成功し、成長時応力の計測を可能とした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

温室効果ガス削減に極めて大きな貢献が期待されるダイヤモンドによる究極の省エネルギーパワー半導体デバイスの実現には、高品質かつ大型のダイヤモンド基板実現が必須である。ヘテロエピタキシャル成長法による基板大型化には目途が付いているが、結晶欠陥密度の低い高品質ダイヤモンド成長技術開発が必要である。本検討を通じ世界に先駆けて成功した成長時応力のリアルタイム計測により、成長応力の発生機構を検討できる可能性が見出された。また成膜条件のリアルタイム精密制御を可能とすることで低欠陥化できる可能も見出したことから、大型かつ高品質なダイヤモンド基板の実現に向けた成膜制御技術が大きく進展した。

研究成果の概要（英文）：To realize diamond heteroepitaxy for substrate production, reduction of dislocations is important task. In this project, we focused on the fabrication of perfect foreign substrate for heteroepitaxy, annihilation/reduction technique of dislocations generated at substrate/epitaxial interface. Polishing, and subsequent cleaning and annealing of MgO was proven to produce MgO surface to be free of damage, which resulted in the atomical step-terrace structures. Epitaxial overgrowth technique was applied to effectively reduce the dislocations. In addition, we have succeeded the in-situ monitoring of surface reflectance and substrate curvatures during the heteroepitaxial diamond growth at the first time, which enabled to understand accumulation of growth strain in heteroepitaxial diamond.

研究分野：結晶工学

キーワード：ダイヤモンド ヘテロエピタキシャル成長 CVD法 欠陥密度

1. 研究開始当初の背景

半導体パワーエレクトロニクス分野からの温室効果ガス削減への貢献として、大電力制御素子、高周波大出力素子、スイッチング素子など電力変換デバイスの効率改善がある。現在の主役である Si デバイスが性能限界を迎え、これ以上の飛躍的エネルギー効率向上が期待できないことから、ポスト Si として次世代材料である SiC や GaN による高効率半導体デバイス実用化が本格化し始めた。さらに次々世代を念頭に、さらなる高効率パワーエレクトロニクス実現を見据えれば、SiC・GaN デバイスをも遥かに凌駕する「単結晶ダイヤモンド半導体デバイス」がある(図1)。半導体デバイスの理論的特性値は、各材料の熱伝導率、飽和電子速度、絶縁破壊電界、比誘電率などから見積もることができ、単結晶ダイヤモンドはパワーエレクトロニクス将来材料候補の頂点に立つ理想的材料として知られる。しかし、その普及へ向けた現状は、結晶成長、結晶加工、結晶欠陥評価法、MOS 界面形成法など多方面からの課題が山積している。特にデバイス成長の基となる単結晶ダイヤモンド基板の開発が急務である。SiC や GaN などの先行デバイスの歴史を見れば、デバイス研究の本格化、試験的産業化、本格的量産化の各ステージに対しそれぞれ 2、4、6 インチ直径の基板が必要とされてきた。同時に、デバイス品質に直結する基板結晶品質の向上も求められる。要するに大型サイズと結晶品質のいずれも兼ね備えた実用型単結晶ダイヤモンド基板の実現こそが次世代の究極省エネデバイス実現の要となる。

大型ダイヤモンド基板製造の最有力手法としてヘテロエピタキシャル成長法がある(図2)。化学気相析出法(CVD 法)を用いて大型の下地基板構造上(Ir/MgO 基板上)に下地と同サイズの大型単結晶ダイヤモンドを成長させる手法で、1996年に青山学院大学で具現化されて以来、実験レベルで最大4インチ程度までが実証されている。量産化では、近年の応募者の研究成果もあり、15mm程度の基板サイズまでの安定供給を実現した。しかし結晶品質面では、下地基板構造とダイヤモンドの格子ミスマッチに起因しヘテロエピタキシャル界面で結晶欠陥が発生するという本質的課題がある。

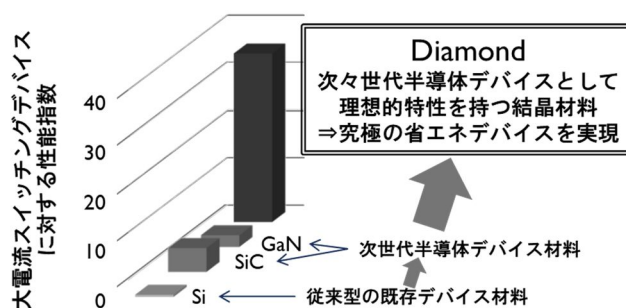


図1 単結晶ダイヤモンドを用いた次々世代半導体デバイスの有効性 : 一例として、従来型Si単結晶デバイスによる大電流スイッチングデバイス性能指数を1としたときの比較

2. 研究の目的

ダイヤモンドヘテロエピタキシャル界面の結晶欠陥発生機構解明と初期成長の原子オーダー緻密制御テクニック創造によりヘテロエピタキシャルダイヤモンド結晶の高品質化を行う。具体的技術課題は、下地構造とダイヤモンドとの格子ミスマッチであり、結晶成長初期に導入される結晶欠陥の排除が争点である。そこで『下地基板アプローチ』と『成膜プロセスアプローチ』を融合した高品質ヘテロエピタキシャルダイヤモンド成長技術確立を行う。まず『下地基板アプローチ』として完璧な下地 MgO 基板の表面創成を行う。じょう乱ヘテロ界面に起因する結晶欠陥を排除した上で、原子ステップテラス表面を利用した格子ミスマッチ緩和効果によるヘテロ界面からの結晶欠陥発生を抑制する。これにより、基板表面原子配列状態と成長界面におけるダイヤモンド構造形成を、格子ミスマッチ緩和メカニズムや欠陥発生機構とともに総合的に理解する。並行して『成膜プロセスアプローチ』を展開し、発生した欠陥の伝搬方向制御や伝搬そのもののブロックを行う結晶成長テクニックを適用する。そのためには成長時の成膜表面および基板反り量のリアルタイム計測が鍵となる。ダイヤモンドヘテロエピタキシャル成長のための In-situ 観察技術を世界に先駆けて開発する。

3. 研究の方法

下地結晶基板状態を原子オーダーで引継ぎダイヤモンド結晶を成長させるための原子オーダー無じょう乱表面を有する MgO 基板表面創成を実施する。その後、熱処理等による表面原子再配列効果を利用し原子ステップテラス構造を有する MgO 基板の開発を進める。MgO 結晶は表面剥離性および潮解性を持つため、加工難易度が高い。研磨に用いる化学スラリーを探求/開発する。下地基板上へのダイヤモンドの初期核形成およびコアレンス様式制御の基礎検討を進める。下地上に形成されたダイヤモンド微小核は、成長に従い次第に大きくなり隣接する核とコアレンスしつつ次第に薄膜化する。コアレンス様式がダイヤモンド品質に大きな影響を及ぼすため、In-situ 観察技術を確立し、ヘテロエピタキシャルダイヤモンドの CVD 成長条件(基板温度・成長圧力・プラズマ状態など)と、核発生密度、核成長レート、コアレンス形態といった初期成長に関する基礎的な相関関係を明らかにする

4. 研究成果

ダイヤモンド成長のための下地基板となる MgO 基板の表面研削研磨加工を検討した。図 2 にその結果を示す。ダイヤモンド研削砥石による粗加工からダイヤモンド微細遊離砥粒を用いた機械研磨加工をお経て、最後に砥粒径数十ナノメートルのコロイダルシリカスラリーを用いた化学機械研磨 (CMP) 加工を施すことにより、最終的に原子レベル表面平坦性 ($R_a=0.05\text{nm}$) を達成した。最初の粗研削加工により機械的ダメージが、基板表面下に導入されるが、それが加工工程を経るごとに徐々に除去 (低減) され、最終的に無加工歪表面となる。その様子を観察したのが、図 3 に示す加工工程ごとの X 線ロッキングカーブである。加工工程を経るごとにロッキングカーブ半値幅が減少していることがわかる。最終的に CMP 加工 3 時間で一定の半値幅に収束した。一方、CMP 加工時間ごとの表面粗さの変化の追跡を図 4 に示す。表面粗さは CMP 加工時間 1 時間で $R_a0.05\text{nm}$ 程度に収束していることがわかる。表面粗さが原子レベル平坦状態に達してもなお、表面化に残留した加工変質層の存在が示唆された。以上の検討から、本研究が目的とする加工変質層の無い無じょう乱原子レベル表面の達成のための加工条件が明らかとなった。

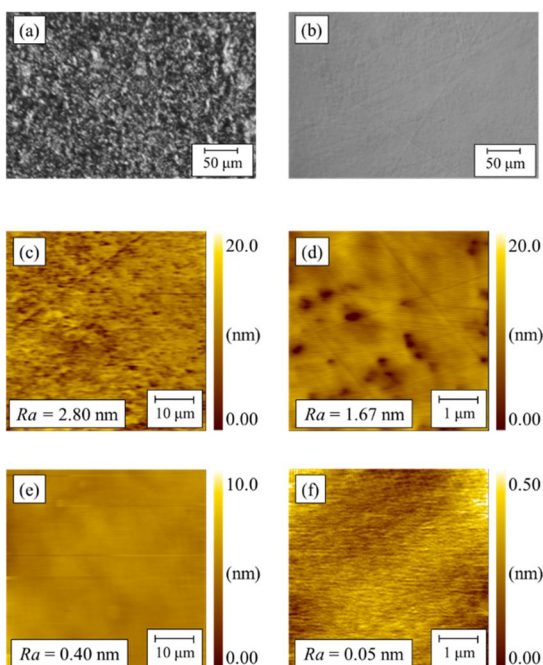


図 2 研削研磨加工後の MgO 基板の表面状態 (a) 粗研削後の光学顕微鏡像, (b) 精密機械研磨後の光学顕微鏡像, (c) 機械研磨後の $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ エリアの AFM 像, (d) 機械研磨後の $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ エリアの AFM 像, (e) CMP 後の $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ エリアの AFM 像, (f) CMP 後の $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ エリアの AFM 像

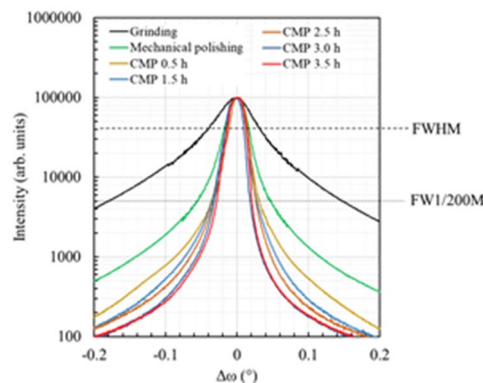


図 3 各加工工程ごとの MgO(002)面の XRD ロッキングカーブの変化

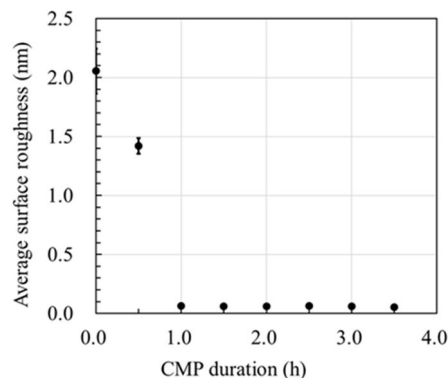


図 4 CMP 加工時間に対する MgO 基板の表面粗さ変化

次に、表面原子ステップテラスの形成を検討した。その結果、CMP 加工後表面に対しアニール処理を行うことで、原子ステップテラス形成を確認した (図 5)。なお、MgO 基板に対するアニール処理は、数々の文献が存在する。しかしながら、その効果は様々であり、ステップバンチングの発生や、MgO 基板内に存在する Ca 不純物の表面偏析が課題となっていた。しかし本研究では、CMP 加工により予め無じょう乱化した MgO 基板をアニール処理することで、これらのマイナス要因を排除できることを見出した。例えば図 6 に示すように、CMP 加工が不十分な場合や CMP 加工を行わない状態でアニール処理をすると Ca 表面偏析が生じやすいことが明らかとなった。表面の加工欠陥 (転位) を通じて内部に存在する Ca がアニール時に表面に析出する機構によると推測される (図 7)。以上に基づいて、完ぺきな基板創成を目的とする MgO 基板処理の手法を確立した。

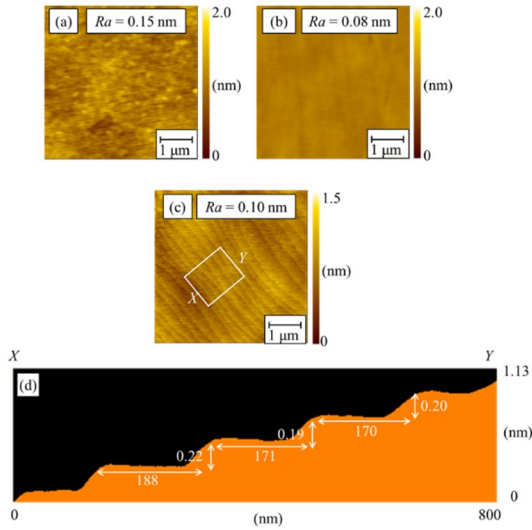


図5 大気雰囲気中で20時間アニールしたCMP加工後のMgO基板のAFM像 (a) アニール温度900, (b) アニール温度1000, (c) アニール温度1100, (d) 1100アニールしたMgO基板の(c)に示すXY断面構造

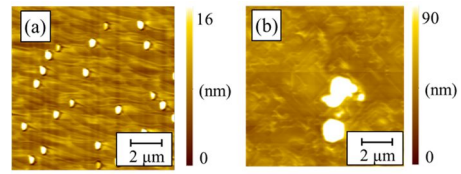


図6 大気雰囲気1100で20時間アニールした(a) CMPが不十分なMgO基板, (b) 機械研磨した(CMPをしていない)MgO基板のAFM像

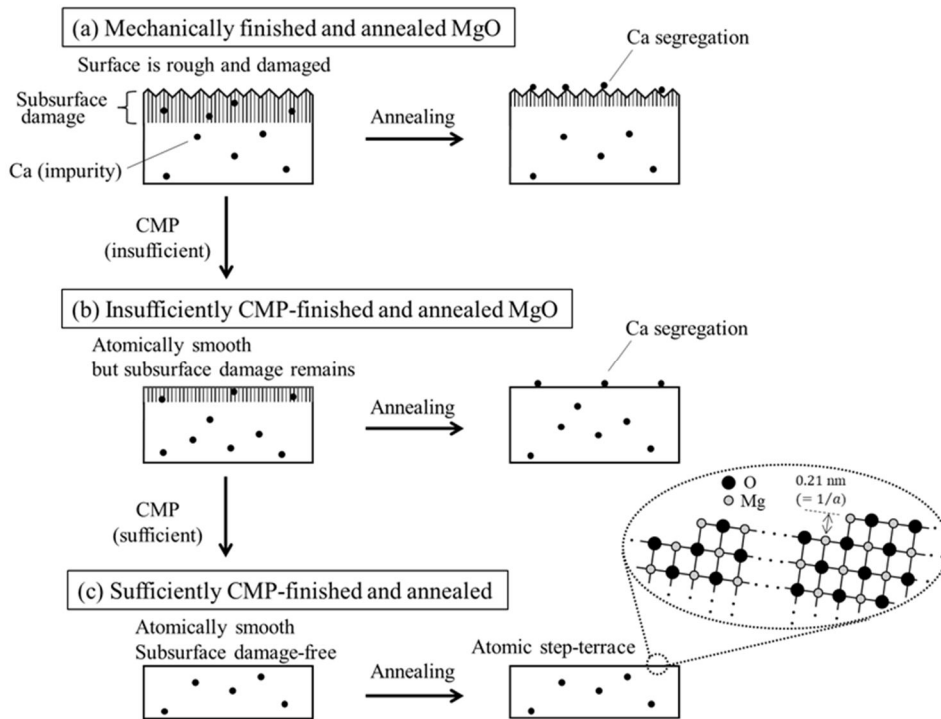


図7 MgO表面処理法におけるCMP加工の必要性と効果

成長手法を改善するためのアプローチでは、ダイヤモンド成長中のIn-situ観察を行った。図8は成長中のヘテロエピタキシャルダイヤモンドの表面反射率を追跡した結果である。ダイヤモンド成長が進展するに伴い、いずれの観察波長においても反射率の振幅が認められた。一方、図9は成長条件のミスマッチにより多結晶ダイヤモンドが成長した際の反射率変化である。成長初期に低下した反射率がそのまま振幅挙動を見せず低下し続けることが分かった。In-situ反射率測定による振幅から成長レートをリアルタイムで把握することができることから、さらにダイヤモンド成膜中の基板の反り挙動をリアルタイムで計測し、成膜時の応力を調べた。その結果成膜前の基板過熱によりMgO基板が大きく反り、その上にダイヤモンド成長が開始する様子が明らかとなった。ヘテロエピタキシャル成長における成膜初期の基板反りも考慮しなければ

転位密度の低減を図れないことが明らかとなったことから、その解決が高品質化に向けた今後のキーとなるといえる。

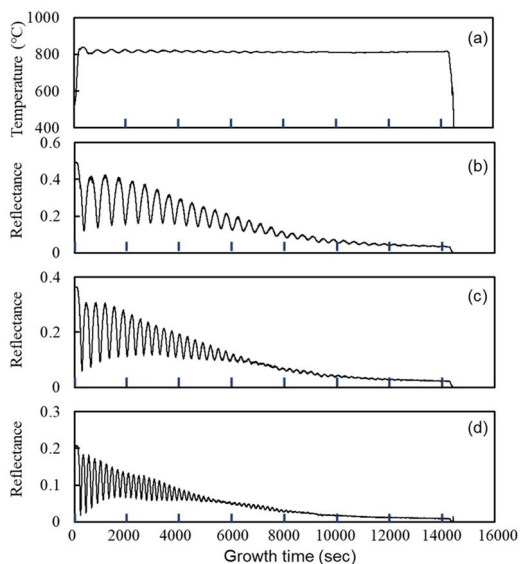


図 8 ヘテロエピタキシャルダイヤモンド成長中の In-situ 反射率測定結果

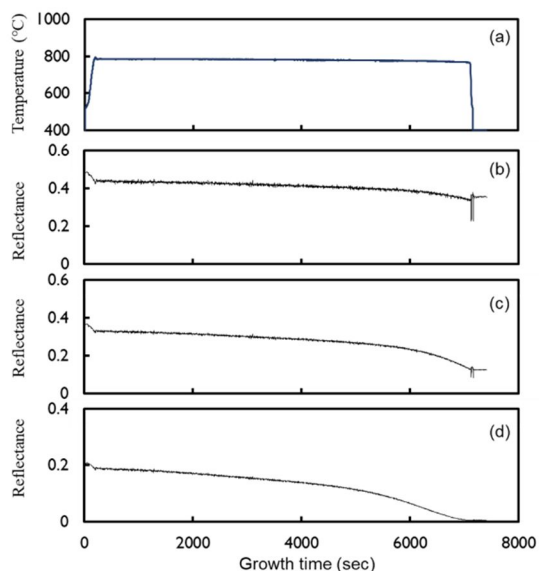


図 9 多結晶ダイヤモンド成長中の In-situ 反射率測定結果

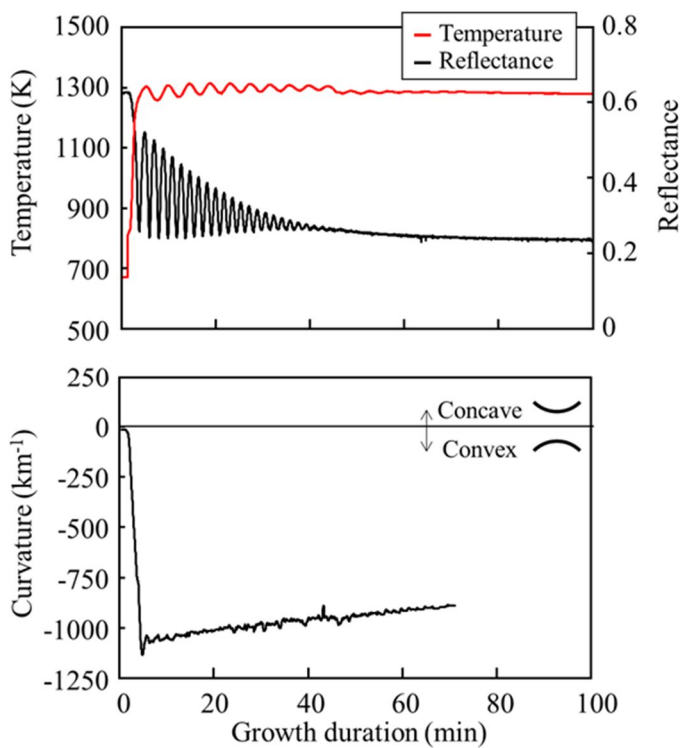


図 10 ヘテロエピタキシャルダイヤモンド成長中の In-situ 反射率および反り測定結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6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 Kimura Yutaka, Oshima Ryuji, Sawabe Atsuhito, Aida Hideo	4. 巻 595
2. 論文標題 Analysis of the correlation between in-situ and ex-situ observations of the initial stages of growth of heteroepitaxial diamond on Ir(0 0 1)/MgO(0 0 1)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 126807 ~ 126807
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcrysgro.2022.126807	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 -
1. 著者名 Aida Hideo, Ojima Takumi, Oshima Ryuji, Ihara Takahiro, Takeda Hidetoshi, Kimura Yutaka, Sawabe Atsuhito	4. 巻 11
2. 論文標題 Chemical Mechanical Polishing of MgO Substrate and Its Effect on Fabrication of Atomic Step-Terrace Structures on MgO Surface by Subsequent High-Temperature Annealing	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 114005 ~ 114005
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1149/2162-8777/aca3d1	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 -
1. 著者名 DOI K.Toshiro, AIDA Hideo, OHNISHI Osamu, YIN Shaohui, REN Yinghui	4. 巻 42
2. 論文標題 Challenges of future high-precision polishing methods for hard-to-process materials by the fusion of environmental control and plasma technology	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Diamond & Abrasives Engineering	6. 最初と最後の頁 637 ~ 649
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.13394/j.cnki.jgszz.2022.7001	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 -
1. 著者名 Ryuji Oshima, Xiang Ren Cui, Hideo Aida, Kanji Iizuka	4. 巻 9
2. 論文標題 Synthesis and characterization of diamond abrasives grains containing boron compounds	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Micro-Fabrication and Green Technology	6. 最初と最後の頁 30-34
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 -

1. 著者名 Aida Hideo, Oshima Ryuji, Minamigata Hiroki, Kawaguchi Shogo, Tokutake Junpei, Sifuentes Juan Manuel Del Angel, Kimura Yutaka	4. 巻 121
2. 論文標題 Mirror-grinding of single-crystal diamond substrates with a rotary grinder	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Diamond and Related Materials	6. 最初と最後の頁 108733 ~ 108733
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.diamond.2021.108733	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 -

1. 著者名 Aida Hideo, Oshima Ryuji, Ouchi Takaya, Kimura Yutaka, Sawabe Atsuhito	4. 巻 113
2. 論文標題 In-situ reflectance interferometry of heteroepitaxial diamond growth	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Diamond and Related Materials	6. 最初と最後の頁 108253 ~ 108253
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.diamond.2021.108253	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 -

〔学会発表〕 計18件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Yutaka Kimura, Ryuji Oshima, Atsuhito Sawabe, Hideo Aida
2. 発表標題 Comparison of in-situ and ex-situ observation of initial growth morphology of heteroepitaxial diamond grown on Ir(001)/MgO(001)
3. 学会等名 32nd International Conference on Diamond and Carbon Materials (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Junpei Tokutake, Hiroki Minamigata, Juan Manuel Del Angel Sifuentes, Tetsuro Iyama, Yutaka Kimura, Ryuji Oshima, Hideo Aida
2. 発表標題 Investigation of Mirror-Grinding Conditions for Large diameter Single Crystal Diamond Substrates
3. 学会等名 The 15th International Conference on New Diamond and Nano Carbons (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takahiro Ihara, Takumi Ojima, Ryuji Oshima, Yutaka Kimura, Atsuhito Sawabe, Hideo Aida
2. 発表標題 Detailed study on preparation of MgO substrate for diamond heteroepitaxy
3. 学会等名 The 15th International Conference on New Diamond and Nano Carbons (NDNC2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yutaka Kimura, Takahiro Ihara, Takumi Ojima, Hina Tanaka, Ryuji Oshima, Atsuhito Sawabe, Hideo Aida
2. 発表標題 Experimental and theoretical analysis on substrate bending during heteroepitaxial growth of diamond
3. 学会等名 The 15th International Conference on New Diamond and Nano Carbons (NDNC2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Junpei Tokutake, Takaya Kobayashi, Kyosuke Nakagawa, Ryuji Oshima, Hideo Aida
2. 発表標題 Oblique Chemical Mechanical Polishing for Investigating Distribution of Subsurface Damages in Single Crystal Diamond Substrate
3. 学会等名 Advanced Micro-Fabrication and Green Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊原隆宏, 木村豊, 澤邊厚仁, 高須智也, 大島龍司, 會田英雄
2. 発表標題 Ir/MgO基板上へテロエピタキシャルダイヤモンド初期成長様式のその場観察
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryuji Oshima, Xiang Ren Cui, Hideo Aida, Kanji Iizuka
2. 発表標題 Synthesis and characterization of diamond abrasives grains containing boron compounds
3. 学会等名 Advanced Micro-Fabrication and Green Technology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 會田英雄
2. 発表標題 GaN・ダイヤモンド基板の精密加工と加工変質層の評価
3. 学会等名 第154回結晶工学分科会研究会(応用物理学会)(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾島拓海, 田中日菜, 木村豊, 澤邊厚仁, 大島龍司, 會田英雄
2. 発表標題 結晶MgO基板の原子レベル平坦化プロセスの最適化
3. 学会等名 表面技術協会第144回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊原隆宏, 尾島拓海, 田中日菜, 大島龍司, 木村豊, 澤邊厚仁, 會田英雄
2. 発表標題 ヘテロエピタキシャルダイヤモンドの成長過程における下地基板の反り挙動観察
3. 学会等名 精密工学会北陸信越支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾島拓海, 田中日菜, 伊原隆宏, 木村豊, 澤邊厚仁, 大島龍司, 會田英雄
2. 発表標題 単結晶MgO基板の原子平坦化プロセスの構築
3. 学会等名 精密工学会北陸信越支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 徳武純平, 南方啓貴, Juan Manuel Del Angel Sifentes, 井山徹郎, 木村豊, 大島龍司, 會田英雄
2. 発表標題 横型研削機を用いたホモエピタキシャル成長用単結晶ダイヤモンド基板の作製 - 基板の固定研削および回転研削における加工特性の評価 -
3. 学会等名 精密工学会北陸信越支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 尾島拓海, 伊原隆宏, 大島龍司, 木村豊, 澤邊厚仁, 會田英雄
2. 発表標題 単結晶MgO基板の原子レベル表面創製
3. 学会等名 表面技術協会第145回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木村豊, 伊原隆宏, 尾島拓海, 田中日菜, 大島龍司, 澤邊厚仁, 會田英雄
2. 発表標題 ヘテロエピタキシャルダイヤモンド成長における基板反り変形の観察
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木村豊, 大内貴矢, 會田英雄, 大島龍司, 澤邊厚仁
2. 発表標題 Ir(001)/MgO(001)基板上に成長したヘテロエピタキシャルダイヤモンドの初期成長の表面観察と配向評価
3. 学会等名 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大宮裕之, 南方啓貴, 川口正悟, 會田英雄, 大島龍司
2. 発表標題 ホモエピタキシャル成長用ダイヤモンド基板の研削加工とダメージ評価
3. 学会等名 2021年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 南方啓貴, 川口正悟, 福田雅人, 大宮裕之, 大島龍司, 會田英雄
2. 発表標題 研削加工によるホモエピタキシャル成長用下地ダイヤモンド基板の作成と評価
3. 学会等名 2020年度精密工学会北陸信越支部学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 尾島拓海, Francisco Raul Vazquez Gomez Martinez, 會田英雄, 大島龍司, 木村豊, 澤邊厚仁
2. 発表標題 単結晶MgO 基板の原子レベル平坦化加工
3. 学会等名 2020年度精密工学会北陸信越支部学術講演会
4. 発表年 2020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	木村 豊 (Kimura Yutaka) (40838851)	青山学院大学・理工学部・助教 (32601)	
研究 分担者	澤邊 厚仁 (Sawabe Atsuhito) (70187300)	青山学院大学・理工学部・教授 (32601)	

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