

令和 5 年 5 月 30 日現在

機関番号：83906

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05355

研究課題名（和文）次世代パワー半導体 型酸化ガリウムの大面積転位検出分類法の開発

研究課題名（英文）Development of large-area dislocation detection and classification techniques for next-generation power semiconductor beta-Ga203

研究代表者

姚 永昭（Yao, Yongzhao）

一般財団法人ファインセラミックスセンター・材料技術研究所・主任研究員

研究者番号：80523935

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）： 型酸化ガリウム（以下、 $\beta$ -Ga203）のパワーデバイスは、次世代の高耐圧かつ省エネの電力変換・制御用半導体として、電力基幹や鉄道、自動車等様々な分野で期待されているが、現状、その原料である  $\beta$ -Ga203結晶には高密度に線状の格子欠陥である転位が含まれており、デバイスの性能と信頼性が材料の理論値より大きく低下する。本研究は、転位低減に向けて、大面積の単結晶において転位を検出と分類する技術の確立に取り組んだ。低コスト、簡易に実施可能なエッチピット欠陥検出法と非破壊・高精度の放射光X線トポグラフィーを中心に、「転位を見る技術」を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で確立した転位検出分類技術を利用することにより、 $\beta$ -Ga203結晶内の転位の空間分布や転位の種類に関する情報を正確に把握できるため、結晶成長条件の最適化に的確なフィードバックを提供することが可能となる。また、転位分布とデバイス特性との相関解析を行うことで、転位のデバイスに及ぼす影響とその機構を解明できる。 $\beta$ -Ga203パワーデバイスの普及に向けて、結晶の高品質化の一層の加速が期待される。従来のシリコン半導体から高性能・高信頼性の  $\beta$ -Ga203半導体に移行することで、電力変換と制御の高効率化が進み、地球温暖化の要因である温室効果ガスの排出が抜本的に削減される。

研究成果の概要（英文）：Power devices based on  $\beta$ -type gallium oxide ( $\beta$ -Ga203), hereinafter referred to as  $\beta$ -Ga203, are expected to be the next-generation high-voltage and energy-efficient semiconductor for power conversion and control in various fields such as power infrastructure, railways, and automobiles. However, the current state of  $\beta$ -Ga203 crystals, which are the raw material for these devices, contains high-density linear lattice defects called dislocations, which significantly degrade the performance and reliability of the devices compared to the theoretical values of the material. This study focuses on the establishment of a technique to detect and classify dislocations in large-area single crystals for dislocation reduction. We have developed dislocation visualization techniques primarily based on a low-cost and simple etch pit defect detection method and non-destructive, high-precision synchrotron X-ray topography.

研究分野：結晶工学

キーワード：パワーデバイス 酸化ガリウム 結晶格子欠陥 転位 エッチピット 放射光X線トポグラフィー

### 1. 研究開始当初の背景

近年、「第4の革命」と言われるように、化石燃料消費の抑制、電気自動車の普及、再生可能エネルギーの高度な利用など、エネルギーの消費と生産の構成が大きく変わっている。あらゆる電子機器において電力の変換と制御を担うパワーデバイスは、従来シリコン (Si) を原料として作られていたが、更に高性能と低損失を実現するためには、SiC、GaN、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のようなワイドバンドギャップを持つ先進半導体材料への移行が必要である。その中でも、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は特段に優れた物性をもつため (文献①)、その利用により、SiC と GaN よりも更なる超高耐圧・低損失のパワーデバイスの実現が期待できる。また、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は融液成長法により単結晶バルクが作製可能なため、基板量産の観点からも他のワイドバンドギャップ半導体に比べて絶対的な優位に立っている。研究開始当初 (2020 年) は、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のパワーデバイス市場が 10 年以内に GaN を上回ると予想されていた (文献②)。

ところが、当時の β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 結晶には、転位 (線状の格子欠陥) が 10<sup>4</sup>~10<sup>5</sup> cm<sup>-2</sup> 台の高密度で含まれ、転位を低減しなければ、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> パワーデバイスの理論的な性能が実現できないだけでなく、デバイスの長期信頼性にも懸念が生じる。β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は単斜晶系に属するため、転位解析が困難であり、有力な評価手法が確立されていなかった。その結果、転位に関する情報は著しく不足していた。理論計算では十種類以上の転位バーガースベクトル (転位の格子変位を表すベクトル) (文献③) が予言されていたが、実験で確認されたのはその内の 3 種類しかなく、残りの転位種類が実際に存在するか否かも不明であった。転位の種類だけでなく、密度に関する情報も不十分なまま、マクロ的な結晶評価を頼りにした結晶成長条件最適化とデバイス設計を行わざるを得ない状況にあった。これは、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> パワーデバイスの実用化に向けて不安要素となっていた。

### 2. 研究の目的

β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 結晶の高品質化とパワーデバイス性能と信頼性の向上を実現するために、転位の分布情報と種別を精確に知った上で結晶育成条件を最適化することが必要不可欠である。本研究は、以上の情報を得るために、大面積にわたって、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の単結晶基板またはエピタキシャル膜に内在する転位を検出・分類する技術の確立を目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究では非破壊の手法である放射光 X 線トポグラフィ (XRT) を利用することにより、転位の大面積検出と正確分類を実現した。

XRT は、図 1 に示すように、転位周囲の結晶面の湾曲により生じた“回折方向の乱れ”を利用し、転位を X 線回折強度の 2 次元マップ画像として可視化する方法である。転位コントラストの形状 (線状またはスポット状) は、転位の伸展方向を反映する。一方、コントラストの強さは、バーガースベクトル (b) と回折面の逆格子ベクトル (g) の内積に依存するため、同一転位の複数の g ベクトルでのコントラストを比較することで、バーガースベクトルが同定できる。現状では、XRT は β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の転位を大面積にわたり評価できる唯一の方法と考えている。

### 4. 研究成果

斜入射の反射配置 XRT を用い、大面積の β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 単結晶基板に内在する転位の分布をマッピングした上で、g・b 解析を行い、転位のバーガースベクトルを同定した。(-201) 面基板を例に説明する。

ノベルクリスタルテクノロジーから購入した市販単結晶基板を使用した。この基板は (-201) 面の主面を有し、Edge-defined film-fed growth (EFG) 法で [010] 方向に成長された β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> バルク結晶から切り出したものである (図 2)。(-201) 面は板状結晶の側面に相当する。XRD で曲率半径 (Rc) を測定した結果、Rc が 30 m 以上であることがわかった。この結果から、XRT 観察では基板上の広い範囲にわたって Bragg 条件が同時に満たされることが予想される。XRT 観察時に機械研磨等加工によって導入されたダメージ層の影響を最大限抑制するために、基板の表面に化学機械研磨 (CMP) を施した。

放射光 XRT 観察は、高エネルギー加速器研究機構 (KEK-PF) の BL-3C および BL-14B ビームラインで実施した。限られた X 線ビーム幅でより広い照射領域を確保するために、試料表面に約 5° の入射角で X 線を入射し、非対称回折である g ベクトルを用いて斜入射反射配置 (grazing incidence) で XRT 像を取得した。入射角度を一定にするためには、g ベクトルに

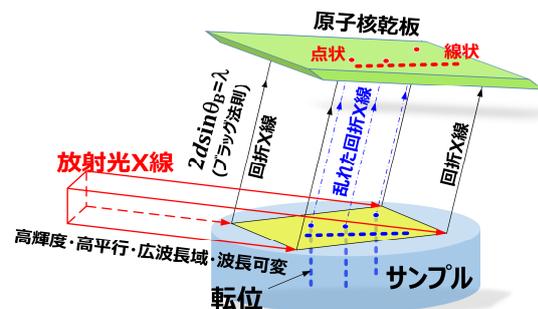


図 1 放射光 XRT による結晶格子欠陥の可視化

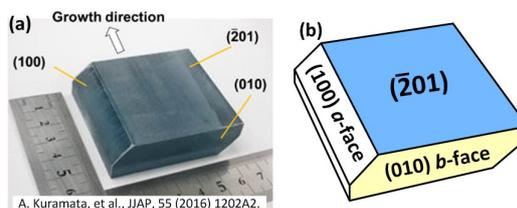


図 2 (a) EFG 法で成長された板状バルク単結晶の例 (文献④)。 (b) 各面の面方位の模式図。

合わせてX線の波長を調整する必要がある。また、転位のバーガースベクトルが(-201)面内に位置するかを調べるために、 $g = -603$ のような対称回折も使用した。対称回折の場合は、画像の変形を抑制する必要があるため、 $40^\circ \sim 50^\circ$ の大きな入射角を用いた。

$g \cdot b$ 解析を用いて転位バーガースベクトルを同定するには、異なる $g$ ベクトルで同じ試料領域からXRT像を取得し、転位のコントラスト解析を行った。XRT像は試料から10~25 cmの距離に設置された原子核乾板で(ILFORD社L4型、大きさ25.4 mm × 76.2 mm、平均粒子サイズ0.14  $\mu\text{m}$ )記録した。原子核乾板は表面法線方向が回折X線と一致するように設置した。これらの条件で撮影したXRT像では、深さ約20  $\mu\text{m}$ まで存在する格子欠陥がコントラストに大きく寄与する。 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の結晶構造はソフトウェアVESTAを使用して可視化した(文献⑤)。

図3にXRT像の取得に用いた回折ベクトルの極点図を示す。これらの24通りの $g$ ベクトルを用いることで、理論計算で予言されたすべてのすべり系のバーガースベクトル(文献③)の判別が可能となる(文献⑥)。一般的に、等方的な結晶では、 $g \cdot b = 0$ が満たされる場合、らせん転位のコントラストが消失する。一方、刃状および混合転位のコントラストを完全に消失させるには、さらに $g \cdot (b \times \zeta) = 0$ が同時に満たされなければならない。ここで、 $\zeta$ は転位線方向を示す単位ベクトルである。実際には、あらゆるタイプの転位において $g \cdot b = 0$ を満たせば、転位コントラストが消えるか、特に弱くなるのが期待される。これが $g \cdot b$ 解析の原理である。したがって、 $g \cdot b = 0$ を満たす等価でない $g$ ベクトルを二つ見つければ、 $b$ の方向を一義的に決定することができる(平行または反平行を含む)、即ち、 $b$ が二つの $g$ を含む面の法線方向と平行する。

$\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ はC2/m空間群に属する単斜晶構造を持つ。C2/mの低い空間対称性により、結晶学的に等価ではない多くの可能なバーガースベクトルが生じる。したがって、Si、4H-SiC、GaNなどの高い空間対称性を持つ他の半導体に比べ、従来の $g \cdot b = 0$ の消滅測を使用してすべてのバーガースベクトルを特定することはより困難である。山口らの先行研究(文献③)では、 $\{-201\}$ 、 $\{101\}$ 、 $\{-310\}$ 、および $\{-3-10\}$ の4種類の稠密面で構成される疑似4面体が $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ のすべり系と対応すると提唱している。各すべり面の最短および次に短い並進ベクトルを考慮し、11種類のバーガースベクトルを提案した(文献③)。これらの著者は、XRT観察に基づいて $b = \langle 010 \rangle$ のらせん転位、 $b = \langle 010 \rangle$ の刃状転位、および $b = 1/2\langle 112 \rangle$ 、 $b = 1/2\langle 130 \rangle$ のバーガースベクトルをXRTで特定した。しかし、ここでのバーガースベクトルの評価は、2通りの $g$ ベクトルで撮影されたXRT像の比較で行われており、判別に不確かさが残る。

本研究では、すべての転位バーガースベクトルを正確に同定することを旨とし、図3に示す24通りの $g$ ベクトルを選出した。ここで、文献③で予言された11種類のバーガースベクトルに、我々の研究グループの透過電子顕微鏡(TEM)観察で存在が示唆された $b = \langle 100 \rangle$ も加えた。相対的コントラストは、 $|g \cdot b| / |g| \cdot |b|$ で定義したパーセンテージで表した(表1)。 $g \perp b$ の場合は0% (■マーク)、 $g // b$ (平行または反平行を含む)の場合は100%となる。これらの24通りの $g$ ベクトルは、以下の基準で選出した。(1)  $g_x$ と $g_y$ が $g_x \cdot b = 0$ と $g_y \cdot b = 0$ を満たす必要があるため、すべての可能なバーガースベクトルに対して2つの"■"マ

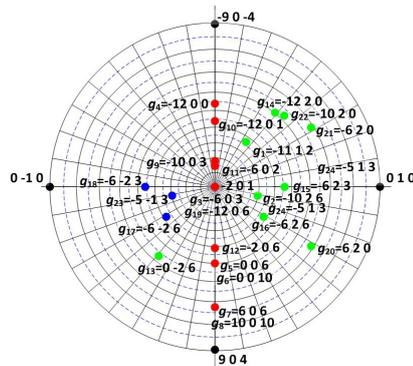


図3 XRT像の取得に用いた回折ベクトルの極点図

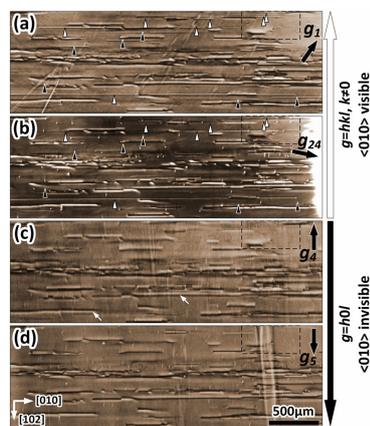


図4  $b = [010]$ らせん転位を同定する例

表1 選出した24通りの回折ベクトルgにおける各種バーガースベクトルを有する転位のXRTコントラスト(文献⑥)

Slip plane	Burgers vector, $\vec{b}$	$\vec{g}_1 = T121$							
		$\vec{g}_1 = T126$	$\vec{g}_2 = T026$	$\vec{g}_3 = T206$	$\vec{g}_4 = T206$	$\vec{g}_5 = T006$	$\vec{g}_6 = T006$	$\vec{g}_7 = T006$	$\vec{g}_8 = T003$
[201]	$(010)_{\text{new}}$	34%	48%	0%	0%	0%	0%	0%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 112 \rangle$	41%	20%	0%	79%	75%	93%	30%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 112 \rangle$	55%	0%	0%	79%	75%	93%	30%	0%
[101]	$(010)_{\text{edge}}$	34%	48%	0%	0%	0%	0%	0%	0%
	$(101)$	91%	80%	95%	91%	38%	100%	100%	100%
	$(001)$	36%	76%	81%	0%	97%	81%	59%	59%
[310]	$\frac{1}{2}\langle 130 \rangle$	95%	77%	61%	78%	0%	31%	74%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 132 \rangle$	60%	17%	0%	69%	65%	81%	26%	0%
	$(001)$	36%	76%	81%	0%	97%	81%	59%	59%
[001]	$\frac{1}{2}\langle 130 \rangle$	54%	19%	61%	78%	0%	31%	74%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 132 \rangle$	24%	34%	0%	69%	65%	81%	26%	0%
	$(100)$	93%	60%	77%	97%	0%	38%	93%	93%
Slip plane	Burgers vector, $\vec{b}$	$\vec{g}_9 = T201$							
		$\vec{g}_{10} = T201$	$\vec{g}_{11} = 602$	$\vec{g}_{12} = 206$	$\vec{g}_{13} = 026$	$\vec{g}_{14} = T220$	$\vec{g}_{15} = 623$	$\vec{g}_{16} = 626$	$\vec{g}_{17} = 626$
[201]	$(010)_{\text{new}}$	0%	0%	0%	53%	55%	72%	53%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 112 \rangle$	68%	25%	64%	53%	55%	15%	43%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 112 \rangle$	68%	25%	64%	75%	77%	15%	21%	0%
[101]	$(010)_{\text{edge}}$	0%	0%	0%	53%	55%	72%	53%	0%
	$(101)$	90%	100%	52%	33%	67%	67%	65%	65%
	$(001)$	18%	63%	100%	83%	0%	56%	83%	83%
[310]	$\frac{1}{2}\langle 130 \rangle$	80%	72%	13%	31%	13%	86%	63%	63%
	$\frac{1}{2}\langle 132 \rangle$	59%	21%	56%	83%	86%	38%	0%	0%
	$(001)$	18%	63%	100%	83%	0%	56%	83%	83%
[001]	$\frac{1}{2}\langle 130 \rangle$	80%	72%	13%	31%	33%	0%	0%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 132 \rangle$	59%	21%	56%	28%	29%	38%	55%	55%
	$(100)$	100%	90%	16%	0%	81%	53%	39%	39%
Slip plane	Burgers vector, $\vec{b}$	$\vec{g}_{18} = 623$							
		$\vec{g}_{18} = 623$	$\vec{g}_{19} = 620$	$\vec{g}_{20} = 620$	$\vec{g}_{21} = 620$	$\vec{g}_{22} = T020$	$\vec{g}_{23} = 513$	$\vec{g}_{24} = 513$	$\vec{g}_{25} = 513$
[201]	$(010)_{\text{new}}$	53%	72%	79%	79%	62%	48%	0%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 112 \rangle$	21%	15%	64%	32%	30%	20%	0%	0%
	$\frac{1}{2}\langle 112 \rangle$	43%	15%	32%	64%	75%	20%	0%	0%
[101]	$(010)_{\text{edge}}$	53%	72%	79%	79%	62%	48%	0%	0%
	$(101)$	65%	67%	49%	49%	63%	80%	76%	76%
	$(001)$	83%	56%	0%	0%	0%	80%	19%	19%
[310]	$\frac{1}{2}\langle 130 \rangle$	0%	0%	0%	95%	98%	83%	34%	34%
	$\frac{1}{2}\langle 132 \rangle$	55%	38%	0%	84%	86%	76%	76%	76%
	$(001)$	83%	56%	0%	95%	98%	83%	34%	34%
[001]	$\frac{1}{2}\langle 130 \rangle$	63%	86%	0%	84%	86%	76%	76%	76%
	$\frac{1}{2}\langle 132 \rangle$	0%	38%	84%	22%	17%	17%	17%	17%
	$(100)$	39%	53%	59%	59%	77%	60%	60%	60%

ークが各行に必要な。 (2) 比較的強い X 線回折強度を持つ結晶面が好まれる。 (3) KEK-PF の光学系と X 線の波長で実験が実施可能である。 (4) 互いに平行な幾つかの  $g$  ベクトルを選択することで、コントラストの消失が検証できる回折条件を選ぶ。

上記  $g$  ベクトルで観察した XRT 像を用いて  $g \cdot b$  解析を行った結果、表 1 の 1 列目に示すバーガースベクトルの存在を実験的に証明した。  $b = [010]$  のらせん転位と刃状転位を例にバーガースベクトルの同定方法を以下に説明する。

単斜晶  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  では、 $\langle 010 \rangle$   $b$  軸が三つの結晶軸の中で最短である。  $b = \langle 010 \rangle$  の転位は比較的小さな弾性エネルギーを持つため、多くの転位が  $\langle 010 \rangle$  成分を含むことが予想される。 また、EFG 法  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  において、 $b$  軸は引き上げ方向と一致する。  $\langle 010 \rangle$  のバーガースベクトルを持つ転位を特定するためには、 $g_x$  と  $g_y$  が  $g = h0l$  系列である必要があり、表 1 から選択することができる。 図 4 では、 $g_x = g_4 = -1200$  と  $g_y = g_5 = 006$  を転位コントラストが消失する条件とし、 $g_1 = -1112$  と  $g_{24} = -513$  を転位コントラストが現れる条件とし、 $b = \langle 010 \rangle$  を特定する。 図 4 (a)-(d) は、選出した 4 通りの  $g$  ベクトルで撮影した同じサンプル領域の XRT 画像を示す。 まず、図 4 (a) と (b) に、白色と黒色の三角形のマークで示す  $\langle 010 \rangle$  方向 (水平方向) の細い線状コントラストを注目する。 これらの線は  $g_4 = -1200$  (図 4 (c)) および  $g_5 = 006$  (図 4 (d)) ではコントラストが消失する。 この結果は、それらの転位のバーガースベクトル  $b$  は  $(g_4 \times g_5)$  に平行するとわかった。 転位線が  $\langle 010 \rangle$  方向に伸展するため、 $b // \zeta // \langle 010 \rangle$  の関係から、これらの転位は  $b$  軸らせん転位であることが明らかになった。  $b$  軸らせん転位の中では、 $\langle 010 \rangle$  方向に長さが 3 mm を超えるものもあり、この種類の転位は EFG 中に安定して存在することが示唆された。 なお、 $\langle 010 \rangle$  の整数倍のバーガースベクトルを持つ転位 ( $b = n\langle 010 \rangle$ ,  $n = 2, 3, \dots$ ) は、 $n = 1$  のらせん転位と同様な  $g \cdot b$  関係を持つため、コントラスト消失の有無で  $n$  を特定することはできない。 最短の並進ベクトル  $n = 1$  は弾性エネルギーが最も低いため、 $n$  が 2 以上のらせん転位より支配的になると推測できる。

図 5 (a)-(d) は、スポット状のコントラストを通じて  $b = \langle 010 \rangle$  の刃状転位を特定する例を示す。 これらの画像は、図 4 (a)-(d) の右上隅に点線の矩形枠で示された領域に対応しており、図 4 と同様な  $g$  ベクトルが使用されている。 円マークで囲まれる 2 つのスポット状のコントラストは、 $g_1$  と  $g_{24}$  においては現れ、 $g_4$  と  $g_5$  においては消失し、スポットの形状から転位線が  $\langle -201 \rangle$  面とほぼ垂直なため、刃状転位であることがわかった。 この転位は  $b$  軸らせん転位と同じ  $g \cdot b$  関係を持っている。 図 5 (e) の模式図は、 $\{-201\}$  面に存在するらせん転位による線状のコントラストと、 $\{101\}$  面に存在する刃状転位によるスポット状のコントラストを示す。 以上の方法で、表 1 に示すすべてのバーガースベクトルの存在を実験で証明した。

結晶内部の転位分布を評価するために、反射配置 XRT に加えて、透過配置の XRT 観察方法も確立した。  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  では、フォトルミネッセンス (PL) やカソードルミネッセンス (CL) 等転位の光りにくさを利用して転位分布を調べる手法は使えない。 また、化学エッチング (エッチピット法) (文献⑦⑧) 透過型電子顕微鏡 (TEM) (文献⑨⑩)、反射配置 XRT (文献③⑥) は、いずれも表面近傍の転位評価に限定されている。  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  の転位を調べるための唯一の非破壊・大面積技術である XRT は、重い Ga 原子による強い X 線吸収のために、運動学的回折コントラストでは透過モードの観察が困難である。 本研究では、ボルマン効果 (文献⑪⑫) として知られる動的回折現象である X 線の異常透過を利用した  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  の透過 XRT 観測を実証した (文献⑬⑭)。

透過配置 XRT には EFG 法で作製した Sn ドープ  $(001)$  方位  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  単結晶基板 (10mm × 15mm、厚さが 680  $\mu\text{m}$ ) を使用した。 基板の両面とも化学的機械的研磨を行った。 透過型 XRT は、SPRING-8 放射光施設 BL24XU ビームラインで行った。 図 6 に観察の模式図を示す。 異常透過の発生は、蛍光板上の  $o$  波 (前方回折波) と  $h$  波 (回折波) に対応するスポット強度を観察することで判断できる。 異常透過の発生は動力学 X 線回折理論に基づいて、以下のように説明できる (文献⑪)。

$o$  波と  $h$  波の 2 つの平面波が結晶内で励起され、互いに干渉しあった結果、定在波が生まれる。 定常波のゼロ振幅点 (node) がブラッグ反射に用いる原子面と一致すると、光電吸収の強度が著しく低下し、透過 X 線の強度が著しく増大する。 この条件下では、X 線エネルギーは反射面に沿って流れ、定在波はボルマンファン (Borrmann Fan) を出た時点で  $o$  波と  $h$  波に均等に分解される。 このような X 線の異常透過現象は、1940 年代ドイツの物理学者 G. Borrmann 博士によって発見され (文献⑪)、高い完全性を持つ厚い結晶でしか起こらない X 線の動力学回折現象である。 この原理からわかるように、格子欠

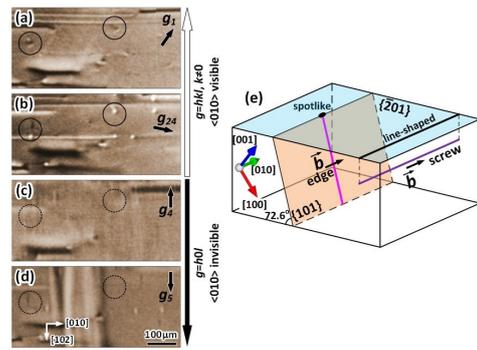


図 5  $b = [010]$  刃状転位を同定する例

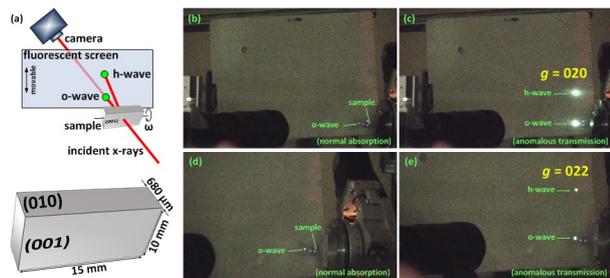


図 6 (a) 基板形状と光学系の模式図。 (b) ~ (e) 蛍光板上の  $o$  波と  $h$  波のスポットの写真。 (b) 非異常透過と (c)  $g = 020$  異常透過。 (d) と (e) は  $g = 022$ 。

陥のように原子が理想的な位置からずれて、ブラッグの法則を満たさない領域があると、そこでは異常透過が起こらなくなり、局所的に透過波の強度が低下する。従って、図6に示す光学系を利用し、結晶全体として異常透過を発生させた状態で透過波の強度分布を観測すれば、X線の弱いところに格子欠陥があると判断できる。図6(b)と(c)は、それぞれ  $g=020$  で通常吸収と異常透過の条件下での蛍光板上の  $o$  波と  $h$  波のスポットの写真である。両条件の  $\omega$  角には180秒角の差がある。通常の吸収条件下では、 $\mu t$  の値が大きい ( $\sim 9.7$ ) ために減衰が大きく、 $o$  波のスポットがかすかにしか確認できず、 $h$  波のスポットは観察されなかった。これに対し、厳密なブラッグ条件を満たすように  $\omega$  角を

精確に調整することで  $g=020$  回折で異常透過を発生させると、 $o$  波と  $h$  波に対応する2つの極めて明るいスポットが観測された(図6(c))。図6(d)と(e)は、同様の条件下で  $g=022$  の場合の写真である。非対称反射の異常透過は  $g=020$  の対称的なラウエの場合と比べ、異常透過の程度は低下する。同様の結果は、 $g=400$  等他の非対称反射においても確認された。図6(c)、(e)のように、同じように2つ強いスポットを確認した後、蛍光板を上方に移動し、 $o$  波をカメラに向かって進ませることで、 $o$  波に含まれる転位像が撮影できる。図7に異常透過を利用した撮影した  $10 \times 15 \text{ mm}^2$  基板の全面転位像を示す。

結晶に含まれる全種類の格子欠陥を満遍なく減らす方法より、悪影響の大きい欠陥を優先的に無くす方法がデバイスの性能向上には効率的である。異常透過による結晶内部の欠陥評価は、欠陥の分布だけでは不十分で、欠陥種を識別することも重要である。図8に様々な回折条件で撮影した結晶の一部の拡大像を示す。1番の矢印で示す欠陥は全ての画像において観察されるのに対し、2~5番の矢印で示す欠陥はある回折条件で現れてほかの回折条件で消えることがわかる。このような観察結果をもとに、それぞれの暗線がどのような種類の欠陥と対応するのか解析することができる。本実験に用いたEFG法で育成された結晶においては、成長方向と平行に伸びた、原子ズレの方向が異なる2種類の直線状の欠陥(縦方向の暗線、それぞれ  $b=[010]$  と  $[001]$  を持つ)、および結晶表面と平行な面に存在し、成長方向の原子ズレをもつ曲線状の欠陥が主な欠陥種類であることがわかった。

## 5. まとめ・今後の展開

本研究では大面積の  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  の転位検出分類技術の確立を目指し、反射配置と透過配置の双方においてXRT観察技術を開発した。得られたXRT像を基に転位コントラストの  $g \cdot b$  解析を行うことで、転位の空間分布だけでなく、転位の種類、即ち転位バーガースベクトル、を同定することができた。本手法で得られる高精度の欠陥情報を結晶開発にフィードバックすることで、結晶高品質化の一層の加速が期待できる。本実験に用いたEFG法で成長した結晶のほかに、様々な成長方法で育成された  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  結晶を評価し、成長方法に依存する欠陥の特徴を把握した上で、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  結晶の作製に最適な育成方法を見出すことが可能となる。また、単結晶作製にとどまることなく、本手法をデバイスの評価にも展開できる。特に、非破壊かつ高速応答といったX線回折の特徴を生かせば、動作中のデバイスにおける欠陥の挙動をリアルタイムで観察する方法の確立が可能となる。結晶開発に役立てるとともに、欠陥のデバイスに及ぼす影響とその機構を解明することで、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  パワーデバイスの高性能と高信頼性の同時実現に貢献できる。

## <引用文献>

- ① M. Higashiwaki, K. Sasaki, A. Kuramata, et al, Appl. Phys. Lett., 100 (2012) 013504.
- ② 次世代パワーデバイス&パワエレ関連機器市場の現状と将来展望、(株)富士経済 (2018).
- ③ H. Yamaguchi, A. Kuramata and T. Masui, Superlattice Microst., 99 (2016) 99.
- ④ A. Kuramata, K. Koshi, S. Watanabe, et al, Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 1202A2.
- ⑤ K. Momma and F. Izumi, J. Appl. Crystallogr. 44, 1272 (2011).
- ⑥ Y. Yao, Y. Sugawara and Y. Ishikawa, J. Appl. Phys., 127 (2020) 205110.
- ⑦ K. Hanada, T. Moribayashi, K. Koshi, et al, Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 1202BG.
- ⑧ Y. Yao, Y. Ishikawa and Y. Sugawara, Phys. Status Solidi A, 217 (2020) 1900630.
- ⑨ O. Ueda, N. Ikenaga, K. Koshi, et al, Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 1202BD.
- ⑩ K. Nakai, T. Nagai, K. Noami and T. Futagi, Jpn. J. Appl. Phys., 54 (2015) 051103.
- ⑪ G. Borrmann, Z. Phys. 127 (1950) 297.
- ⑫ A. Authier, Dynamical theory of XRD, Oxford University Press Inc., New York, (2001)
- ⑬ Y. Yao, K. Hirano, Y. Sugawara, et al, APL Mater., 10 (2022) 051101.
- ⑭ Y. Yao, Y. Tsusaka, K. Sasaki, et al, Appl. Phys. Lett., 121 (2022) 012105.

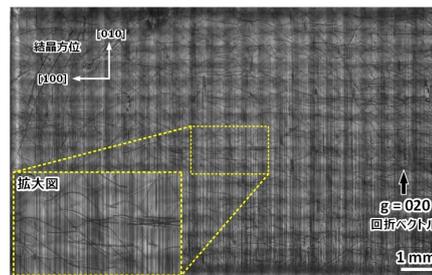


図7 (a)  $10 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$  の  $(001)$  面  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  単結晶基板の  $g=020$  異常透過 X線トポグラフィ像。

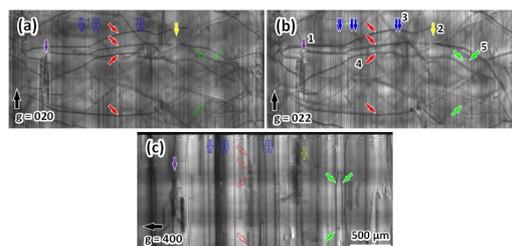


図8 複数の回折条件で撮影した同一場所の X線トポグラフィ像。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 13件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Yao Yongzhao, Tsusaka Yoshiyuki, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Sugawara Yoshihiro, Ishikawa Yukari	4. 巻 121
2. 論文標題 Large-area total-thickness imaging and Burgers vector analysis of dislocations in $\text{Ga}_{203}$ using bright-field x-ray topography based on anomalous transmission	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 012105 ~ 012105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0098942	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 Yao Yongzhao, Hirano Keiichi, Sugawara Yoshihiro, Ishikawa Yukari	4. 巻 37
2. 論文標題 Domain boundaries in $\text{ScAlMgO}_4$ single crystal observed by synchrotron radiation x-ray topography and reticulography	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Semiconductor Science and Technology	6. 最初と最後の頁 115009 ~ 115009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6641/ac974b	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 Yao Yongzhao, Wakimoto Daiki, Miyamoto Hironobu, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Hirano Keiichi, Sugawara Yoshihiro, Ishikawa Yukari	4. 巻 226
2. 論文標題 X-ray topographic observation of dislocations in $\text{Ga}_{203}$ Schottky barrier diodes and their glide and multiplication under reverse bias	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scripta Materialia	6. 最初と最後の頁 115216 ~ 115216
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2022.115216	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yao Yongzhao, Hirano Keiichi, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Sugawara Yoshihiro, Ishikawa Yukari	4. 巻 未定(In press)
2. 論文標題 Lattice misorientation at domain boundaries in $\text{Ga}_{203}$ single crystal substrates observed via synchrotron radiation X ray diffraction imaging and X ray reticulography	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the American Ceramic Society	6. 最初と最後の頁 未定(In press)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/jace.19156	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yao Yongzhao, Hirano Keiichi, Takahashi Yumiko, Sugawara Yoshihiro, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Ishikawa Yukari	4. 巻 576
2. 論文標題 Visualization of the curving of crystal planes in $\alpha$ -Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> by X-ray topography	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 126376 ~ 126376
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2021.126376	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 Yao Yongzhao, Sugawara Yoshihiro, Yokoe Daisaku, Hirano Keiichi, Okada Narihito, Tadatomo Kazuyuki, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Ishikawa Yukari	4. 巻 60
2. 論文標題 Anisotropic radius of curvature of crystal planes in wide-bandgap semiconductor wafers measured by X-ray diffraction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 128004 ~ 128004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac3a20	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 Yao Yongzhao, Sato Koji, Sugawara Yoshihiro, Okada Narihito, Tadatomo Kazuyuki, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Ishikawa Yukari	4. 巻 583
2. 論文標題 Three-dimensional curving of crystal planes in wide bandgap semiconductor wafers visualized using a laboratory X-ray diffractometer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 126558 ~ 126558
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2022.126558	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 Yao Yongzhao, Sugawara Yoshihiro, Sato Koji, Yokoe Daisaku, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Ishikawa Yukari	4. 巻 910
2. 論文標題 Etch pit formation on $\alpha$ -Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> by molten KOH+NaOH and hot H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> and their correlation with dislocations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 164788 ~ 164788
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2022.164788	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 Yao Yongzhao, Hirano Keiichi, Sugawara Yoshihiro, Sasaki Kohei, Kuramata Akito, Ishikawa Yukari	4. 巻 10
2. 論文標題 Observation of dislocations in thick $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ single-crystal substrates using Borrmann effect synchrotron X-ray topography	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 未定
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0088701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yao Yongzhao, Sugawara Yoshihiro, Ishikawa Yukari	4. 巻 127
2. 論文標題 Identification of Burgers vectors of dislocations in monoclinic $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ via synchrotron x-ray topography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 205110 ~ 205110
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0007229	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 Yao Yongzhao, Ishikawa Yukari, Sugawara Yoshihiro	4. 巻 548
2. 論文標題 Dislocation classification of a large-area $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ single crystal via contrast analysis of affine-transformed X-ray topographs	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 125825 ~ 125825
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcrysgro.2020.125825	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 Yao Yongzhao, Ishikawa Yukari, Sugawara Yoshihiro	4. 巻 59
2. 論文標題 Slip planes in monoclinic $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ revealed from its {010} face via synchrotron X-ray diffraction and X-ray topography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 125501 ~ 125501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abc1aa	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 Yao Yongzhao, Sugawara Yoshihiro, Ishikawa Yukari, Hirano Keiichi	4. 巻 60
2. 論文標題 X-ray topography of crystallographic defects in wide-bandgap semiconductors using a high-resolution digital camera	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 010908 ~ 010908
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abd2dd	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2件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 姚永昭
2. 発表標題 Evaluation of $\alpha$ -Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub> substrates using X-ray diffraction, synchrotron X-ray topography, and etch pit method
3. 学会等名 結晶加工と評価技術 第145委員会 第173回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 姚永昭
2. 発表標題 X線回折によるパワー半導体単結晶基板の結晶面湾曲の3D可視化
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 半導体基板の結晶面の形状評価方法および形状評価装置、ならびに、半導体基板の結晶面の形状評価を行うためのコンピュータプログラム	発明者 姚永昭、石川由加里、菅原義弘	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-148810	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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	石川 由加里  (Ishikawa Yukari)  (60416196)	一般財団法人ファインセラミックスセンター・その他部局等・主幹研究員   (83906)	
研究分担者	菅原 義弘  (Sugawara Yoshihiro)  (70466291)	一般財団法人ファインセラミックスセンター・その他部局等・上級研究員   (83906)	

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