

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 15 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26246019

研究課題名(和文) 高品質化の鍵となるSiC貫通転位変換過程のその場観察

研究課題名(英文) In-situ observation of threading dislocation conversion in high-quality SiC growth

研究代表者

宇治原 徹(Ujihara, Toru)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

研究者番号：60312641

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,200,000円

研究成果の概要(和文)：SiCは、シリコンパワーデバイスの性能を遙かに凌ぐ材料として世界中で研究開発が進んでいる。しかし、SiC基板には未だ貫通転位、基底面転位などが含まれており、これらの低減がSiCデバイスの大幅な性能・信頼性向上の鍵となる。本研究では、高温環境での結晶欠陥の挙動を知るために、成長表面その場観察とその場X線トポグラフィーを実現する装置を開発し、実際に観察を行った。

研究成果の概要(英文)：Silicon carbide technology which can overcome the performance of silicon power devices is being developed in the world. However, many types of defect (threading dislocations, stacking faults, basal-plane dislocations) still remain in commercial SiC wafers. Thus, the reduction of them is a key to increase its reliability and performance. In this study, we developed new system for in-situ observation of growth surface and in-situ X-ray topography and evaluated the behaviors of defects in SiC at high temperatures.

研究分野：結晶工学

キーワード：結晶成長 結晶欠陥

1. 研究開始当初の背景

SiCは、シリコンパワーデバイスの性能を遙かに凌ぐ材料として世界中で研究開発が進んでいる。しかし、SiC基板には未だ貫通転位、基底面転位などが含まれており、これらの低減がSiCデバイスの大幅な性能・信頼性向上の鍵となる。近年、高品質な基板結晶成長法として溶液法が注目されている (Fig. 1)。この方法ではSi系溶媒にカーボン飽和させ、種結晶を成長させる。溶液法は平衡に近いプロセスで、一般的に高品質化が可能であり、我々も、重篤な欠陥であるマイクロパイプについては皆無、基底面転位・貫通転位も格段に少ない結晶が成長できることを証明してきた。

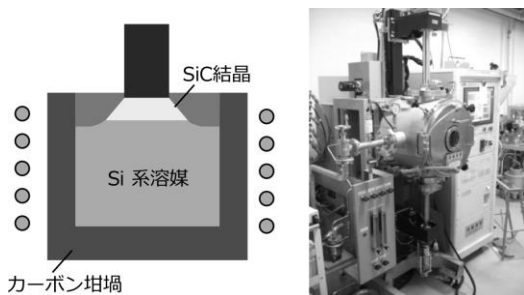


Fig. 1: SiC溶液成長の概要と、現有の結晶成長装置。高温に保持することでカーボン坩堝からカーボンが溶出し、Siと反応し結晶が成長する。

我々のグループでは、結晶中の貫通転位が基底面上の欠陥に変換することを、放射光を用いたX線トポグラフィーによる観察により見いだした。(Fig. 2)さらに、この基底面上の欠陥は、成長中に結晶の外に掃き出されるため、結果的に超高品質結晶を得ることができる。(Fig. 3)つまり、高品質結晶を成長させるためには、効率よく転位の変換現象を誘起させなければならない。我々のこれまでの研究から、貫通転位の変換機構においてはステップ高さが比較的高い「マクロステップ」が重要な役割を果たしていることを明らかにしている。

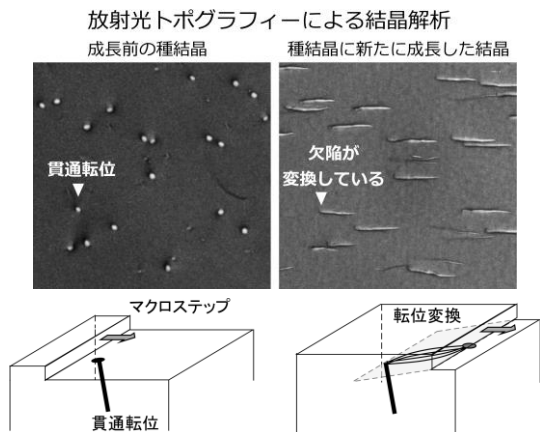
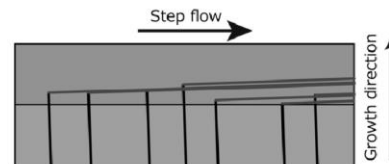
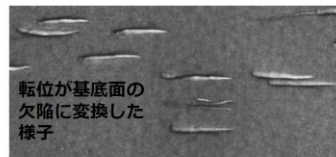


Fig. 2: 溶液成長によるSiC結晶のX線トポグラフィー像。下図に示すように、種結晶中の貫通転位が基底面上の横向きの欠陥に変換している。



結晶断面からみると、貫通転位が横向きの欠陥に変換し、最終的に排出される。

	市販SiCの標準的な値	本研究 (1/cm ²)
貫通らせん転位	3000	11
貫通刃状転位	10000	204
基底面転位	2000	64

Fig. 3: 変換現象を活用すると、成長に伴い欠陥が減少し、高品質化する。その結果、本報告書を各時点では、様々な欠陥において桁違いに欠陥密度が減少させることに成功している。

ところで、SiCにおいてはもう一つ抑制すべき欠陥がある。積層欠陥である。積層欠陥は、標準的なドーピング濃度では多くは発生しないが、低抵抗化のためにドーピング濃度を高くすると発生しはじめる。しかも、これらの積層欠陥は高温環境下で拡張することが知られている。これらの低減も同時に行う必要がある。

2. 研究の目的

実は我々の見いだした転位変換現象は実験条件に大きく依存する。たとえば、SiCにはSi終端面とC終端面があるが、それにより転位変換の頻度が極端に低減する。また一旦変換した欠陥が再び貫通転位に再変換されることもある。溶媒組成によっても変換頻度が大きく変化する。真の高品質技術にするには「確実な変換」を実現する必要がある。現時点では、変換現象は確率的に生じており、変換する転位としない転位で、何が異なるか、明らかでない。その解明には、変換が生じるとき、その瞬間に何がおきているのか、その場で確認する必要がある。また、積層欠陥については、高温での積層欠陥の挙動があまりわかっていない。それもやはりその場で確認する意義がある。

そこで本研究では、高温環境下での成長過程におけるトポグラフィーおよび成長界面その場測定法の確立を目指した。またそれを用いた結晶評価を行った。残念ながら、本研究期間では個別の要素の開発にはいたったが、成長過程のトポグラフィー観察まではい

たなかった。そのため本報告書では、開発したその場観察技術の内容と、高温環境下におけるトポグラフィーその場観察による積層欠陥観察について述べる。

3. 研究の方法

Fig. 4 に本研究で製作したその場観察装置の写真と構成図を示す。装置はカーボンヒーターによる加熱部分と、その前後に放射光トポグラフィーをするための窓が設置され、さらに上部からはサンプルの観察窓が取り付けられている。温度制御は抵抗加熱型のカーボンヒーターと W/Re 熱電対で行い、それとは別に試料温度測定用の放射温度計が試料上部に取り付けられるようになっている。また、X線が透過するようにポリイミド膜の窓がついており、内部の断熱材はX線を遮らない形状になっている。装置全体をゴニオメーターにより $\pm 20^\circ$ まで傾斜させることができ、透過配置、後方反射配置での観察が可能である。また、この状態で 1700°C まで昇温可能であることを確認している。

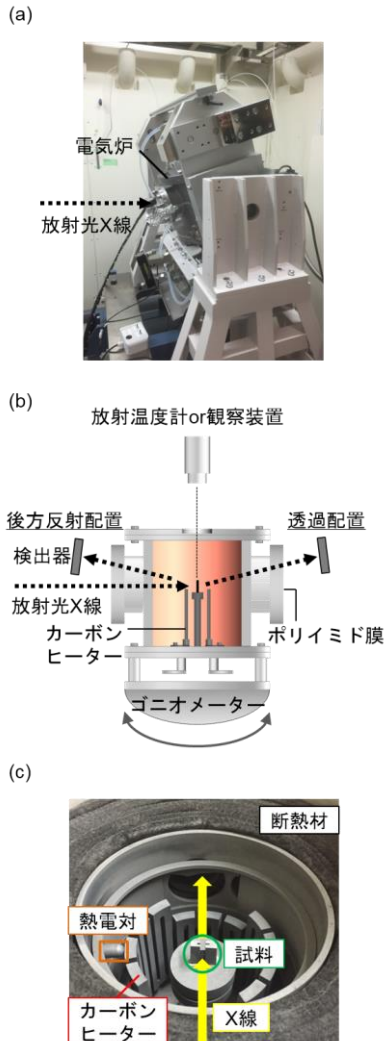


Fig. 4: (a)本研究で開発した装置の外観、(b)全体構造の概略、(c)内部加熱部分の写真。

また、上部の観察窓の部分に特殊な光学顕微鏡による観察システムを取り付けることで、加熱部分で SiC 溶液成長を行いながら、SiC 裏面からの観察で、結晶成長過程をその場観察することもできる。Fig. 5 に観察システムの写真と概要図を示す。SiC など高温で成長を行う結晶を観察する場合、成長炉の設計上の制約から試料から遠く離れた観察窓から観察せざるを得ない。したがって炉内で成長する結晶表面の観察は市販の焦点距離の短い顕微鏡もしくは焦点距離が長いが分解能の低い顕微鏡では不可能であるため、本研究では長い焦点距離を持った高分解能干渉顕微鏡を新規に設計した。この顕微鏡では通常約 5 倍の長焦点距離、高 NA の対物レンズを使用することで試料から 5~70mm 離れたところからでも高分解能の顕微鏡観察を実現し、市販顕微鏡では困難だったマクロステップの高分解能観察が可能である。また、この顕微鏡は反射式の干渉計の航路も有しており、結晶表面モルフォロジー、成長速度の精密測定がその場で可能となる。

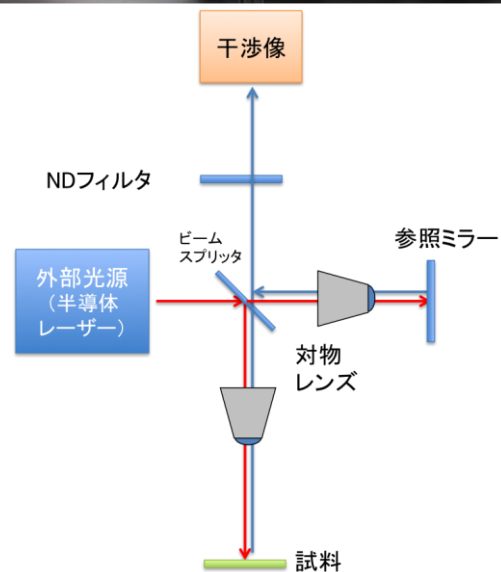
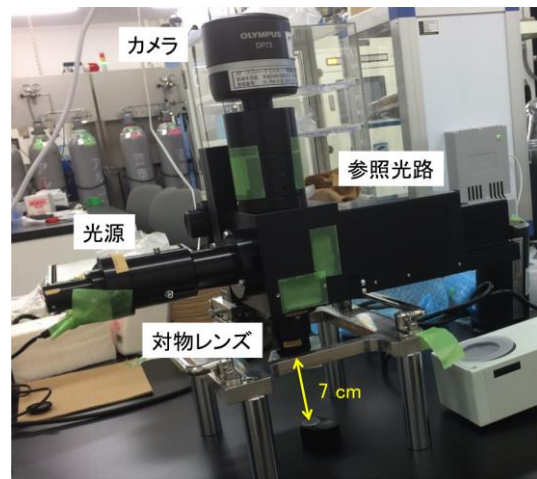


Fig. 5: 本研究で開発した成長過程その場観察用の光学顕微鏡。

4. 研究成果

(1) 成長表面その場観察

最初に、室温において本光学系の性能評価を行った。Fig. 6 に結晶成長した SiC 表面観察像を示す。マクロステップが鮮明に観察できている。次に、成長過程における成長表面観察を試みた。下部に C 供給源、間に Si 溶液層、その上に 4H-SiC 基板をおいた簡易的なセル (Fig. 7) を作製して炉を 1700°C に加熱し成長する結晶観察を試みた。顕微鏡での観察は成長基板を透過して、裏側の成長界面を観察した。1700°C の高温では炉全体が強く発光するため、通常の見分けが出来ない。本干渉顕微鏡では外部光源の入射によって結晶のみを明るく観察し、それにより成長界面に形成したマクロステップが観察できている (Fig.8)。

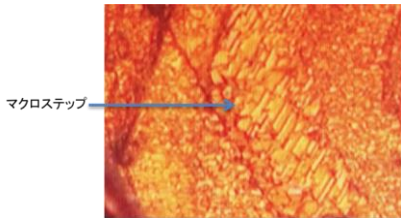


Fig. 6 室温で観察した結晶表面のマクロステップ。鮮明な結像のためには試料の発光による赤外線の影響の除去が重要である事がわかる。

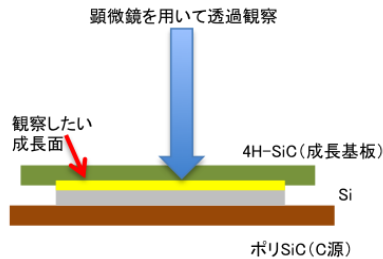


Fig. 7 成長セルの概略図

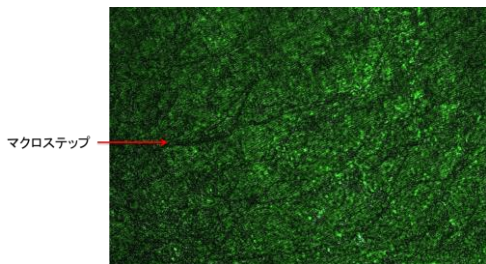


Fig. 8 干渉計で観察した成長界面に形成したマクロステップ。うるこ状のステップが形成していることが確認できる。

(2) 高温トポグラフィーその場測定

最初に、高温でのトポグラフィー観察が正しく行われているかどうかを確認するために、同じ SiC サンプルを室温と 1280°C の高温で測定し比較を行った。Fig. 7 は、同一箇所における透過配置(1-100)回折像を、室温お

よび 1280°C で撮影したものである。貫通転位、基底面転位がそれぞれ点状、線状コントラストとして確認できる。両者を比較すると多少、コントラストが高温でぼやけてはいるものの、ドリフトなどもなく、同じ位置に貫通転位や基底面転位のコントラストがはっきり確認できる。

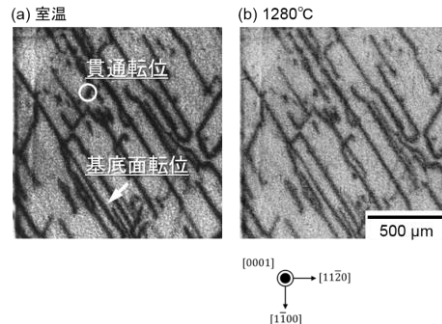


Fig. 7: SiC 結晶のトポグラフィー像。(a) 室温、(b)1280°C で撮影。

次に窒素濃度 $1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の 4H-SiC 単結晶を、He 雰囲気下において上記の温度シーケンスで熱処理した際の結果を Fig. 8 に示す。X 線源には放射光を Si(111)二結晶分光器で単色化した 19.23 から 19.28 keV の X 線を用い、原子核乾板に撮影した。一回の撮影時間は約 30 秒であった。(a)-(d)は 1100 °C から 1190 °C まで 50 °C/h で昇温した際の、同一箇所の X 線トポグラフィー像である。(1-100)回折においては、積層欠陥が面状コントラストとして現れる。1100 °C から 1190 °C において、貫通転位、基底面転位は動かず、面状コントラストの積層欠陥が拡張していることが分かる。

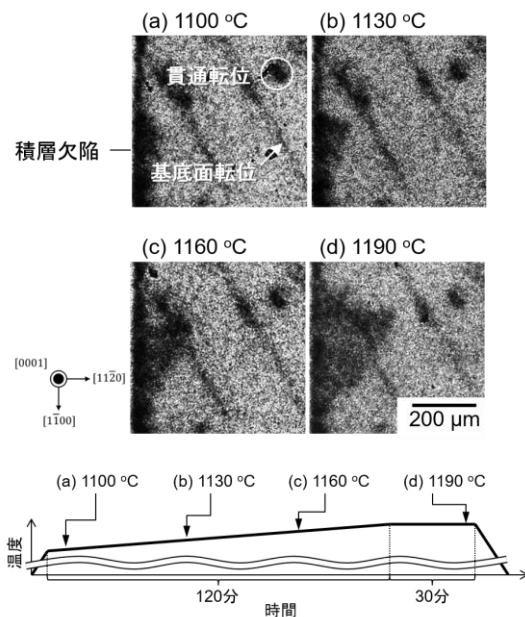


Fig. 8: 昇温過程における SiC 結晶中の積層欠陥のトポグラフィー像。昇温するにしたがって積層欠陥が拡張していく様子が観察された。

同じ試料を、He 雰囲気下において上記の温度シーケンスで熱処理した際の結果を Fig. 9 に示す。(a)-(c)は、1240 °C、1360 °C、1470 °Cでそれぞれ 40 分保持した際の各温度における同一箇所のX線トポグラフィ像である。1260 °Cで見られた面状コントラストの積層欠陥が、1360 °C、1470 °Cにかけて収縮していることが分かる。これらの拡張収縮現象は、熱処理後に室温に戻してから観察することで、確認はされてきたが、このように、その場で変化の様子を観察したのは、本研究がおそらく初めてである。

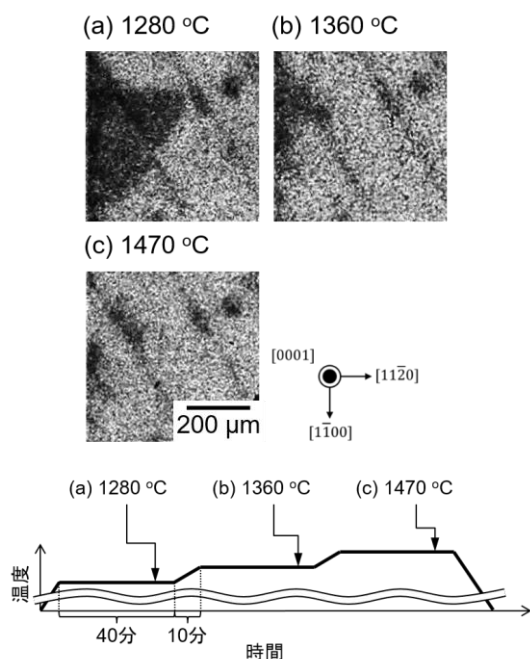


Fig. 10:高温領域における昇温過程におけるSiC結晶中の積層欠陥のトポグラフィ像。Fig. 9 と異なり昇温するにしたがって積層欠陥が収縮していく様子が観察された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

1. "Conversion behavior of threading screw dislocations on C face with different surface morphology during 4H-SiC solution growth", S. Xiao, S. Harada, K. Murayama, M. Tagawa, T. Ujihara, Cryst. Growth Des, 16, (2016), pp.6436-6439.
2. "Characterization of V-shaped defects formed during the 4H-SiC solution growth by transmission electron microscopy and X-ray topography analysis", S. Xiao, S. Harada, K. Murayama, T. Ujihara, Cryst. Growth Des, 16, (2016), pp.5136-5140.

[学会発表] (計 3 件)

1. "High Quality SiC Single Crystal Grown by Solution Growth Method", T. Ujihara, 2016 Fall Meeting of the Korean Ceramics Society, Seoul Korea, November 23-25(2016)
2. "Control of Macrostep Structure for High-Quality SiC Grown by Liquid Phase Epitaxy", T. Ujihara, C. Zhu, K. Murayama, S. Harada, M. Tagawa, the 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-18), Nagoya Japan, August 7-12, Mo1-G04-1
3. "The realization of high-quality 4H-SiC C-face grown crystals by controlling the macrosteps formation during solution growth", S. Y. Xiao, S. Harada, P. L. Chen, K. Murayama, T. Ujihara, the 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-18), Nagoya Japan, August 7-12, ThP-T10-1

[その他]

該当なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宇治原徹 (UJIHARA, TORU)

名古屋大学未来材料・システム研究所・教授

研究者番号：60312641

(2) 研究分担者

原田俊太 (HARADA, SHUNTA)

名古屋大学未来材料・システム研究所・講師

研究者番号：30612460

田淵雅夫 (TABUCHI, MASAO)

名古屋大学シンクロトン光研究センター・教授

研究者番号：90222124

(3) 連携研究者

該当なし