

報告番号	※ 甲 第 10725 号
------	---------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 溶液法4H-SiCバルク結晶成長と伝導型制御に関する研究

氏 名 楠 一彦

論 文 内 容 の 要 旨

次世代パワーデバイス用材料として4H-SiC単結晶の開発が進んでいる。今日、4H-SiC単結晶ウエハーは、昇華再結晶法によって製造され、販売されているが、結晶品質および製造効率の両面において未だ問題を抱えている。飛躍的な高品質化や生産性向上への期待から、近年、溶液法によるSiC単結晶成長が注目されている。溶液法によるSiC単結晶成長では、成長過程において結晶欠陥の挙動を制御することで、欠陥密度を大幅に低減できることが示されている。また、昇華再結晶法と比べると成長温度が低く、常圧での結晶成長であるため、成長の操作性に優れ、成長装置の簡素化も期待できる。このように溶液法は、昇華再結晶法を凌駕する大口径で高品質な結晶を高効率で成長する手法に発展する可能性がある。

しかし、パワーデバイス用途の4H-SiCバルク単結晶を溶液法で実用化するには、いくつかの技術課題が存在している。本研究では、以下に示す二つの主要課題を研究課題とした。一つは、伝導型制御である。これまで溶液法では、伝導型制御に関する系統的な研究は、ほとんど行われておらず、4H-SiC結晶へのドーピング量を精密に制御する技術が未確立であった。そこで、本研究においてn型、p型両伝導型制御に関する研究を行った。n型ドーパントに窒素およびリンを、p型ドーパントにアルミニウムを用い、成長温度やドーパント添加量といった結晶成長条件と結晶中へ取り込まれたドーパント量との関係を詳細に調べることによって、4H-SiC結晶へのドーピング挙動を明らかにした。さらに、溶液法で窒素ドープによるn型、アルミニウムドープによるp型低抵抗結晶が得られることを実証した。

溶液法の、もう一つの技術課題は、バルク結晶成長技術である。溶液法では、結晶サイズの大形化や長時間成長による結晶長尺化を進めると、成長表面モフォロジーの不安定性が顕著となり、それが原因で結晶中に溶媒が巻き込まれるといった問題がある。結晶の大形化に伴って生じる不安定性の原因として成長表面における溶液流れの不均質性が考えられる。そこで本研究では、溶液内部にドーナツ状の円盤部材を配置し、溶液の流れを空間的に制限することで、流れの均質化を目指した。一方、長時間成長において生じる不安定性は、成長表面における過飽和度の時間変化により2次元的な成長から3次元的な成長に変

化することが原因と考えた。そこでコンピューターシミュレーションにより成長表面における過飽和度の時間変化を計算することで、過飽和度が長時間にわたり一定に維持されるための成長条件を明らかにして結晶成長を行った。それらの結果、溶液法において3インチ径、10 mm厚みを超える4H-SiCバルク単結晶の成長に世界で初めて成功した。

本論文は、6章から構成されている。以下に要約をまとめる。

第1章は、本論文の序論と目的を示した。研究の背景として、パワーデバイス半導体、パワーデバイス半導体用材料、SiC単結晶およびSiC単結晶の製造方法について示し、さらに、SiC結晶中の欠陥とデバイス特性の関係を説明した。続いて、本論文で対象とする溶液法の原理と特徴、さらに実用化を見据えた現状の技術課題を概説し、最後に本論文における目的を述べた。

第2章では、窒素およびリンをドーパントとして用いたn型4H-SiCの結晶成長について述べた。窒素ドーピングについては、雰囲気中の窒素分圧によりドーピング量の制御が可能であり、またドーパ量を $3E19 \text{ atoms/cm}^3$ 以下に抑制することで高密度の積層欠陥の発生を抑制しつつ高品質なn型結晶を実現できることを明らかにした。これらの結晶は、その抵抗値が約 $10\sim 15 \text{ m}\Omega \text{ cm}$ と低く、X線ロックアップ測定による(0004)回折ピークの半価幅が約 20 arcsec であり、c軸配向性に優れた結晶であった。一方、リンによるドーピングについては、黒鉛坩堝の中でSiとInPを融解した溶媒を用いて行った。種結晶は坩堝の底に配置し、底周辺が低温部になるように温度差を設けた。その結果、溶液法でリンがドーパされたSiC結晶の育成に世界で初めて成功した。しかし、SiC結晶中のリン量は、 $3.5E17 \text{ atoms/cm}^3$ と窒素の場合に比べると2桁少なく、その理由としてリンの蒸気圧が高く溶媒中から蒸発してしまうことが考えられる。現時点では、溶液法によるリンの高濃度ドーピングは、極めて難しく、他のSiC結晶成長手法と同様に、n型低抵抗結晶用のドーパントには窒素が最適であると結論付けた。

第3章では、アルミニウムをドーパントとして用いたp型4H-SiCの結晶成長について述べた。溶媒からアルミニウムをドーピングするときの課題として、Si-Al融液と融液を収容する黒鉛坩堝との反応により坩堝が崩壊する問題があった。本研究では、CuをSi-Al融液に添加することで、融液と黒鉛との反応を抑制することに成功した。SiC結晶へのアルミニウムドーパ量は、溶液中のアルミニウム組成が増大するほど、また成長温度が高くなるほど結晶中に取り込まれ、また、溶液組成および成長温度を変えることで結晶へのアルミニウムドーパ量を精密に制御できることが分った。アルミニウムが最もドーパされたSiC結晶は、 $2.8E20 \text{ atoms/cm}^3$ であったが、この結晶には高密度の積層欠陥が生成した。積層欠陥フリーのアルミニウムドーパSiC結晶([Al]: $1.0E20 \text{ atoms/cm}^3$)の抵抗値は、最小約 $70 \text{ m}\Omega \text{ cm}$ であった。本研究では、新規に選定したアルミニウムドーパ用溶媒を用いることで、低抵抗p型バルク結晶が得られることを示した。

第4章では、Si-Ti溶媒からの3インチ径4H-SiC結晶成長について述べた。当初、大口徑化においては成長開始後のステップバンチングにより表面モフォロジーの不安定性が生じ、結晶内に溶媒の巻き込みが生じる傾向にあった。溶液流動のコンピューターシミュレーションを行ったところ、溶液内に生じるローレンツ力の影響により向きの異なる大きな渦が上下2個生成し、これらが衝突するため、成長表面に向かう溶媒の流れが不均質になり、それが成長表面モフォロジーの不安定性の原因の一つと考えた。本研究では、溶液流れの均質

化を目的に「浸漬ガイド (IG: Immersion Guide)」と呼ぶドーナツ状の黒鉛円盤を溶液内に配置した。シミュレーションの結果、坩堝内径に対してIG内径の比が、0.6~0.8であるIGを選択すると、成長界面に向かう流れは均質化できることを明らかにし、さらに、このIGを用いて成長を行ったところ、ステップバンチングが抑制され平滑な表面モフォロジーの結晶を得ることに成功した。さらに、IGを適用すると成長速度は増大した。坩堝内径に対してIG内径の比を、0.77としたIG形状では、成長界面が効率的に冷却され、大きな過飽和度が得られることがシミュレーションから明らかになった。IGを適用した新規SiC溶液成長法で、現状の溶液法で世界最大口径となる3インチ径4mm厚の4H-SiC結晶育成に成功した。

第5章では、溶液法SiC単結晶の長尺成長について述べた。当初、溶液法では、長時間成長にともない、溶液内部や種結晶を保持する軸において予期せぬ多結晶SiCが生成し、その結果、単結晶成長が阻害される問題があった。また、長時間成長に伴って表面モフォロジーの不安定性が顕在化する問題もあった。多結晶SiCの生成の主な原因は、溶媒中の温度分布であり、溶媒の均熱化によりこれを解決した。溶媒の均熱化が進むと、単結晶成長の過飽和度も小さくなり成長速度が低下してしまうが、結晶保持軸を冷却することで過飽和度低下を防いだ。

また、成長時間の延長に伴う表面モフォロジーの不安定性は、コンピューターシミュレーションにより、成長中の溶液表面と成長界面との間の高さの変化にともない、過飽和度が変動するためであることが分かった。そこで、実験では、成長中において溶液表面と成長界面との間の高さを一定に保つ調整を行ったところSi-Cr溶媒を用いて3インチ径、14mm厚みのバルク結晶を育成に成功した。同様にSi-Ti溶媒からもバルク結晶を育成し、自立結晶を作製した。また、得られた自立結晶の貫通転位のエッチピット密度は約2000 cm⁻²であり、低欠陥密度であることを確認した。

第6章は、総括として本論文の研究成果をまとめた。