

報告番号	甲 第 13597 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 放射光トポグラフィーその場観察による
4H-SiC 単結晶における積層欠陥拡大/縮小
のダイナミクス解明
(The dynamics of stacking fault
expansion/shrinkage in 4H-SiC single
crystals studied by *in-situ* synchrotron X-
ray topography)

氏 名 藤 榮 文 博

論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、放射光トポグラフィーにより、4H-SiC 単結晶におけるダブルショックレー型積層欠陥の高温環境下での特異な挙動とその温度依存性、不純物（窒素、ボロン）が与える影響について横断的に調べ、SiC 結晶の高品質化への指針を得ることを目的として行った。また、シミュレーションとの比較により 2 次元の放射光トポグラフィー像から SiC 結晶における基底面転位の結晶表面からの深さ情報が得られるという知見を得た。各章の内容をまとめると以下ようになる。

第一章では、SiC パワーデバイスの現状と課題、SiC 単結晶内に存在する種々の結晶欠陥とデバイス特性への影響について示し、これまでの研究で報告されている窒素を高濃度に添加した 4H-SiC 結晶における積層欠陥の形成・拡大メカニズムについてまとめた。また、X 線トポグラフィーを用いたその場観察の先行研究について紹介した。

第二章では、放射光トポグラフィーによる高温その場観察システムを構築し、最大約 2000 K における転位挙動の観察を可能とした。これにより、窒素濃度 $1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の 4H-SiC において 1370–1550 K で拡大した積層欠陥が 1550 K 以上では縮小することを実証した。また、積層欠陥の拡大を伴う部分転位は、そのコア構造によって移動度が異なるため積層欠陥の拡大挙動に影響を及ぼすと考えられており、反射配置のトポグラフィーではそのような構造の違いが転位のコントラストに反映される。Si 面後方反射配置 000,16 回折によりそ

の場観察を行ったところ、30 度 Si コア部分転位の移動を伴いながら積層欠陥が拡大していく様子を観察した。これにより、高温下で転位のコア構造を決定しつつ積層欠陥の挙動を追跡することが可能であることが示された。

第三章ではその場観察により積層欠陥挙動の温度・窒素濃度依存性を解明した。積層欠陥の拡大を伴う部分転位の移動速度を Si 面後方反射 000,16 回折像から測定したところ、速度は窒素濃度とともに増加したが、その温度依存性は窒素濃度によって異なる結果が得られた。窒素濃度が $2.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の場合、1350 K から 1650 K にかけて積層欠陥の拡大速度はアレニウス側に従い温度とともに指数関数的に増加する傾向がみられた。しかしながら窒素濃度が低い場合 ($1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, $2.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$)、高温域で拡大速度はむしろ減少し、 $1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 結晶においては 1730 K 以上で積層欠陥は縮小した。これらの結果は、積層欠陥エネルギー γ が窒素濃度とともに減少するが温度とともに増加、つまり拡大の駆動力が窒素濃度に対しては増加するが温度に対しては減少することを示している。また、その場観察の結果から、貫通らせん転位にピンニングされた部分転位の曲率から高温における γ の値を定量的に求めた。その結果、窒素濃度 $1.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ において 1630–1910 K で γ は -0.6 mJ/m^2 から 0.8 mJ/m^2 にかけて増加することがわかった。この傾向は、先行研究による理論計算結果と傾向が一致するが、値は理論計算結果よりも低い（積層欠陥は拡大しやすい）結果となった。 γ の定量化により、1800 K 以上での熱処理が積層欠陥の拡大抑制に効果的という知見を得た。

第四章では、高窒素濃度 ($3.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) の 4H-SiC 結晶において部分転位の形状変化とともに積層欠陥の拡大が停止することがあることを示した。ここではまず、結晶全体 (10 mm×10 mm) における高温下での転位の運動を追跡するため、一定の範囲で放射光のエネルギーをスキャンを繰り返し、読み取り速度の速い X 線 sCMOS カメラにより像を取得するように手法を改良した。窒素濃度 $3.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ の 4H-SiC 結晶においては、1590 K 以上で部分転位の形状が直線からジグザグ状に変化し、この形状変化に伴い積層欠陥の拡大が停止する様子が観察された。部分転位の移動速度から、1540 K 以下の低温域では積層欠陥の拡大速度はアレニウス側に従い温度とともに指数関数的に増加する傾向がみられた。他の SiC 結晶における積層欠陥拡大速度との比較から、部分転位の活性化エネルギーの上昇により積層欠陥の拡大が停止したことが示唆された。また、断面 HAADF-STEM による EDS 測定、*ex-situ* 放射光トポグラフィ観察により、点欠陥（空孔）と部分転位との相互作用による上昇運動で転位のコア構造が Si コアから C コアへの変化したことが部分転位の不動化要因として示唆された。

第五章では 4H-SiC 単結晶へ窒素とともにボロンを共添加することによる積層欠陥拡大抑制の機構を解明した。~1800 K の観察温度域で窒素単独添加 ($2.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) 結晶に比べ、窒素・ボロン共添加（窒素： $2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 、ボロン： $3.3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ）結晶における積層欠陥拡大速度は遅く、ボロン添加が積層欠陥の拡大抑制に効果的であることが実証された。また、転位の活性化エネルギーはボロン添加によって減少しており、ボロンによるアク

セプター準位への電子捕獲を介した積層欠陥エネルギーの上昇（絶対値の減少）が拡大抑制の要因と考えられる。しかし SiC 結晶中のボロン濃度が高い場合、積層欠陥の拡大速度はむしろわずかに増加し、より高温まで拡大し続ける傾向がみられた。これは SiC 結晶内のボロンが一部 D センターとなり、アクセプター不純物として機能しなかったことが一つの要因として考えられる。したがってアクセプターとして働く不純物の濃度を増やすことが積層欠陥の拡大抑制に効果的といえる。また、温度上昇に伴い積層欠陥先端部の曲率が減少していく様子が観察され、これは拡大の駆動力の減少により 90 度部分転位の曲率が減少することに対応すると結論付けた。90 度部分転位の線張力と積層欠陥先端の曲率半径から積層欠陥エネルギーを算出したところ、1700 K から 1760 K において約 $-0.45 \text{ mJ/m}^2 \sim 0.1 \text{ mJ/m}^2$ の範囲で増加する結果となり、これは 1700 K 以上での積層欠陥拡大速度の減少と相関することが示された。

第六章では、放射光トポグラフィーの 2 次元画像から SiC 結晶における基底面らせん転位の結晶表面からの深さ評価が可能であることを明らかにした。On-axis 4H-SiC 単結晶の 11 $\bar{2}$ 8 回折像における基底面らせん転位のコントラストは上下の黒い線に縁どられた白いコントラスト、黒いコントラストの 2 種類に大きく分類され、4 度オフ SiC 結晶における基底面らせん転位のコントラストとの比較から、2 種類のコントラストは転位の深さの違いによるものであることが示唆された。また、X 線トポグラフィーにおける基底面らせん転位の像のシミュレーションにより転位の深さ変化に伴うコントラストの変化が明らかとなった。さらに放射光トポグラフィー像における転位と垂直な方向の強度プロファイルから基底面らせん転位の深さの評価が可能であり、X 線の侵入深さが異なる像における強度プロファイルを比較することで、より正確に転位深さを見積もることができることが示唆された。

以上のように、放射光トポグラフィーその場観察により、窒素添加した 4H-SiC 単結晶におけるダブルショックレー型積層欠陥の温度、不純物（窒素、ボロン）濃度依存性を解明し、以下に示す 3 つが積層欠陥の拡大抑制に効果的であるという知見を得た。

1. 積層欠陥エネルギー γ が正の温度域での熱処理による積層欠陥の縮小。
2. ボロン共添加による積層欠陥拡大速度の減少。
3. 高窒素濃度 ($>3.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) SiC 結晶における部分転位の不動化。

この知見は、高品質かつ低抵抗の n 型 4H-SiC 単結晶を得る上で有用であり、SiC パワーデバイスのさらなるオン抵抗の低減、デバイス性能向上が期待できる。また、SiC において、基底面転位の結晶表面からの深さはシングルショックレー型積層欠陥の拡大開始電流密度と相関することが報告されており、放射光トポグラフィーによる転位の深さ評価は積層欠陥の拡大抑制に有用な知見を与えることが期待される。