主　論　文　の　要　約

論文題目　　成長界面近傍の溶媒対流制御による
　　SiC 単結晶の高速・高品質溶液成長

氏　　名　　梅﨑　智典

論　文　内　容　の　要　約

4H-SiC 単結晶は次世代パワーデバイス用半導体材料として研究開発が進んでいる。現在、量産されている 4H-SiC 単結晶ウェハはすべて昇華法の一種である改良 Lely 法によって得られた単結晶インゴットから製造されている。しかし、改良 Lely 法は結晶品質や量産性の面において未だ問題を抱えており、改良 Lely 法以外の新たな SiC 単結晶インゴットの製造技術開発も精力的に進められている。その中で注目されているのが溶液成長法である。溶液成長法による SiC 単結晶成長では成長過程における貫通転位の変換現象が報告されており、それを活用することで大幅な欠陥密度の低減が期待されている。また、昇華法と比較して低温での結晶成長が可能であり、更に単結晶成長で一般的な技術である引上げ法を適用可能であることから、品質と量産性に優れた SiC 単結晶インゴットの成長法として大きく発展する可能性がある。

しかしながら、溶液成長法による SiC 単結晶インゴット製造を実用化するためには特に SiC 単結晶の大型化（大口径化、長尺化）においていくつかの課題が存在する。主なものとして、溶液中での目的外の多結晶 SiC である雑晶の抑制や成長速度の高速化、連続成長時の成長界面のラフネス低減が挙げられる。

本研究では溶液成長法における SiC 単結晶の成長速度の高速化と連続成長時の成長界面ラフネスの低減を研究テーマと設定した。これらの技術課題を解決するアプローチとして、溶液の流体シミュレーション技術を導入し、結晶成長実験と並行として、溶液内で生じている現象のメカニズム解明を試みた。

成長速度の高速化について、我々は成長界面のごく近傍で形成される溶媒流れに着目した。成長界面近傍に意図的な溶媒流れを形成するため、成長時の種結晶回転速度を 100 rpm 以上に引上げて結晶成長を行った結果、回転速度 150 rpm では 20 rpm の回転条件と比較

して約 3 倍の成長速度を達成した。溶液の流体シミュレーションの結果、回転速度に応じて成長界面近傍の炭素濃度変化が急峻となることが分かった。成長速度と界面近傍の炭素濃度勾配は比例関係を示しており、SiC の溶液成長では成長界面近傍の濃度境界層を通した炭素輸送が結晶成長を律速していること、更に種結晶の回転速度を上昇させることで成長速度を増大可能であることを明らかにした。

連続成長時の成長界面ラフネスの低減については、高速回転で得られる成長界面近傍の溶媒流れと種結晶のステップフロー方向との関係に着目した。成長界面近傍の溶媒流れを変化させるため、オフ角を持つ種結晶の回転パターンと種結晶の回転軸位置を変化させて結晶成長を行った結果、種結晶を一定周期で時計回りと反時計回りを交互に反転させながら高速回転させ、かつ種結晶の回転軸をステップフロー方向の下流側に偏心させることで、これまで溶液成長では困難とされてきたオフ角を持つ種結晶上での安定した平滑成長の維持を成長面の広範囲わたり実現させた。溶液の流体シミュレーションの結果、平滑な成長面が維持されている領域では成長界面近傍での時間平均化した溶媒流れが成長表面のステップフロー方向と対向していた。

本研究結果は SiC の溶液成長において溶媒の流れを制御することで成長速度や成長界面を制御できることを定量的に示した有益な成果である。

本論文は、6 章で構成されている。以下に各章の概要をまとめる。

第 1 章では序論として、研究背景とその目的を示した。まず、パワーデバイスとパワーデバイス用半導体材料を解説し、次世代パワーデバイス用半導体材料として注目されている SiC についてその特徴を示すと共に、SiC 単結晶中の欠陥とそれがデバイス特性へ与える影響を説明した。更に、SiC バルク単結晶製造技術である改良 Lely 法、高温 CVD 法、溶液成長法についてその原理や特徴を示した。続いて、本論文の対象である溶液成長法による SiC 単結晶の高品質化やバルク単結晶製造技術に関する研究の動向や、その課題について概説し、最後に本論文における目的を述べた。

第 2 章では SiC の溶液成長法について説明した。まず、溶液成長の駆動力や、ファセット面上で生じる 2 種類の成長モード（二次元核形成とらせん転位を起点としたスパイラル成長）を解説した。更に、拡散や界面カイネティクスなどの結晶成長の律速過程や、溶液成長法における成長界面形状を特徴づける因子について説明した。

第 3 章では OpenFOAM を用いた溶液のシミュレーションについて説明した。OpenFOAM とはオープンソースコードとして配布されている流体解析ツールボックスである。まず、流体解析の手法や、OpenFOAM を用いて SiC の溶液成長を解析するために必要となるソースコードの追記について説明し、続いて溶液の流れや温度、溶質の輸送を解くための支配方程式と、解析に適用した物性値を示した。更に、実際の結晶成長実験と同一スケールに設定した 3 次元の解析モデルと、解析に用いた計算格子、適用した境界条件を説明した。

第 4 章では SiC 単結晶の成長速度増大に関する検討結果を示した。今回我々は成長界面

のごく近傍で形成される溶液対流に着目し、結晶成長実験により種結晶の回転速度に対する成長速度の変化を求め、更にシミュレーションを用いてその際の温度分布、炭素濃度分布等を解析した。結晶成長実験で使用した種結晶は対角 1 インチの正六角形状 4H-SiC で成長面は C 面である。溶質成分となる炭素は溶媒を収納する黒鉛坩堝の溶解により供給される。溶媒は Si 並びに Si-40at.%Cr を用いた。種結晶の回転速度を 20 rpm から 250 rpm まで変化させて成長速度を比較した結果、いずれの溶媒系においても種結晶回転速度の上昇に伴い成長速度は増大し、回転速度 150 rpm を境にほぼ横ばいとなった。Si-40at.%Cr 溶媒、成長温度 1900℃条件における種結晶回転速度 20 rpm, 150 rpm での成長速度はそれぞれ 50 μm/hr , 150 μm/hr となり、回転速度の増大により 3 倍の成長速度を達成した。成長速度増大の原因を探るため、OpenFOAM を用いて種結晶の回転速度に対する溶液の流れ、温度分布、炭素濃度分布を解析した。その結果、種結晶の回転速度増大に伴い、特に成長界面近傍の炭素濃度分布に著しい差が生じていた。そこで、成長界面近傍の炭素濃度勾配をシミュレーション結果より算出し、実験で得られた成長速度との関係をプロットした結果、両者は比例関係を示しており成長の律速過程が成長界面近傍の濃度境界層を通した炭素輸送であることが明らかになった。更に、本検討の結果から予測される溶液中の炭素の拡散係数は過去の報告値と良い一致を示していた。本研究では SiC の溶液成長の律速過程が成長界面近傍の濃度境界層を通した炭素輸送に支配されていることを明らかにするとともに、種結晶の回転速度増大が結晶成長速度を上昇させる有効な手段の一つになることを示した。

第 5 章では溶媒流れ制御による成長界面ラフネスの低減検討結果を示した。今回我々は種結晶の高速回転させた際に生じる成長界面近傍の溶媒流れに着目した。種結晶として C 面ジャストから[11-20]方向に 1 度傾斜した面上で結晶成長を行い、それが成長界面のモフォロジーに与える影響を解析した。まず、種結晶を 150 rpm で一方向に回転させながら溶液成長させた結果、成長表面は全般的に荒れており、更にその程度は回転軸周囲の円周方向に沿って大きく変化していた。シミュレーションにより種結晶下 0.2 mm での溶媒流れを解析した結果、成長表面のモフォロジーと溶媒の流れ方向には関係があり、種結晶のステップフロー方向と平行流、あるいは垂直方向への流れが形成する領域では幅 0.5～1 mm 程度の幅を持つマクロテラスと、その境界には数 μm の高さを持つジャイアントステップが存在していた。その一方、種結晶のステップフロー方向と垂直方向に近い対向流を形成する領域ではジャイアントステップの形成が抑制されていた。次に、種結晶を回転速度 150 rpm、240 秒周期で正逆方向に回転させながら溶液成長させた結果、回転軸に対してステップフロー上流側ではジャイアントステップの無い平滑な表面モフォロジーが得られることがわかった。シミュレーションにより溶媒流れを解析した結果、平滑な表面モフォロジーが得られた領域は、時間平均化した溶媒流れが種結晶のステップフロー方向と垂直な対向流を形成する領域とよく一致していた。このことは、時間平均化した溶媒流れがステップフロー方向と垂直方向に対向する条件を得れば、平滑成長が維持可能であることを示している。そこで更に、種結晶の回転軸を種結晶の中心からステップフローの上流側、下流側

に偏心させて 150 rpm、240 秒周期で結晶成長した結果、回転軸をステップフローの下流側に偏心させることで平滑な表面モフォロジーが得られる領域が大きく拡大することがわかった。溶液流れのシミュレーションの結果、回転軸の偏心により種結晶近傍でステップフロー方向に対向する非対称な一方向の溶媒流れが形成していることが明らかとなった。ステップフロー方向に垂直方向な対向流れを形成することで、溶質の取込口であるステップ周辺の炭素濃度分布に非対称性が生じ、それがマクロテラスの拡大と二次元核形成の発生確率を低下させたものと推測している。平滑な表面モフォロジーが得られた領域では結晶多形の変化もなく、平均幅 8 μm、平均高さ 80 nm の緻密なステップ列が維持されていた。本研究では種結晶の高速回転と偏心を成長条件に加えることで溶媒流れが制御され、従来困難とされてきたオフ角をもつ種結晶上への安定的な結晶成長条件の確立に成功した。

第 6 章は総括として本論文の研究成果をまとめた。