

(様式第 5 号)

実施課題名 熱フィラメント CVD 法により合成した不純物ドーパダイヤモンド薄膜の X 線トポグラフィ解析

X-ray topography imaging of impurity-doped diamond films prepared by hot-filament CVD

大曲新矢<sup>1</sup>, 小林篤史<sup>1</sup>, 片宗優貴<sup>2</sup>

Shinya Ohmagari<sup>1</sup>, Atsushi Kobayashi<sup>1</sup>, and Yuki Katamune<sup>2</sup>

1 産総研先進パワエレ, 2 九工大若手アカデミー

1 AIST ADPERC, 2 Kyushu Inst. Tech.

- ※ 1 先端創生利用 (長期タイプ) 課題は、実施課題名の末尾に期を表す (I)、(II)、(III) を追記してください。
- ※ 2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後 2 年以内に研究成果公開 (論文 (査読付) の発表又は研究センターの研究成果公報で公表) が必要です (トライアル利用を除く)。
- ※ 3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※ 4 共著者には実験参加者をご記載ください (各実験参加機関より 1 人以上)。

## 1. 概要 (注: 結論を含めて下さい)

大面積均一成長に優位性のある熱フィラメント CVD 法を用いたダイヤモンド単結晶ホモエピタキシャル薄膜成長と、転位の伝搬・増殖挙動を明らかにするために、X 線トポグラフィ法により欠陥構造を評価した。今回は基板中の転位構造の観察を試みた。CVD 製単結晶ダイヤモンド基板中には、成長セクターは存在せず、多数の転位 (および転位束) が観測された。転位種の判別や転位密度の定量には、結晶全体に広がる内部ひずみの低減が必要である。

### (English)

Hot-filament CVD possesses great advantageous for large-diameter and homogeneous diamond growth. In order to clarify the propagation and proliferation behavior of dislocations, the defect structure was evaluated by X-ray topography. In this study, we attempted to observe the dislocation structure in the substrate. For the CVD-grown single-crystal diamond substrate, no growth sector was observed, and dislocations (and dislocation bundles) were observed. For further discussing the dislocation density and type of dislocations, it is necessary to reduce the internal strain spreading throughout the crystal.

## 2. 背景と目的

ダイヤモンドは、高絶縁破壊電界 (>10MV/cm), 高移動度 (電子 7300 cm<sup>2</sup>/Vs, 正孔 5300 cm<sup>2</sup>/Vs), 物質中最高の熱伝導率 (22 W/cmK) を有しており、高温・極限環境でも安定動作する次々世代のパワー半導体材料として期待されている。実用素子構造には、寄生抵抗成分 (バルク抵抗+金属接触抵抗) を極限まで低減することが必要となる。ダイヤモンドは高濃度ホウ素ドーパによる低抵抗化が可能であるが、10<sup>20</sup>cm<sup>-3</sup>を超えるドーピングに関しては、転位の増大およびドーパント不純物の偏在により結晶品質が劣化する。我々は面積均一成長に優位性のある、熱フィラメント CVD 法による単結晶ホモエピタキシャル成長に取り組んでいる [1-3]。これまでに (1) 気相から膜中へのドーピング効率が 100%を超える高効率 B ドーピングが可能であること、(2) >10<sup>21</sup>cm<sup>-3</sup>の高濃度ドーピングにおいてマクロスコピックに平滑な結晶成長が可能であることを明らかにしてきた。抵抗率は、世界最小レベル 1 mΩcm (@室温) を実現している。本研究課題では、X 線トポグラフィ法による、不純物ドーパ単結晶ダイヤモンド薄膜の構造評価を行う。基板から膜中への転位の伝搬・増殖挙動を明らかにする

ため、今回は基板中の転位構造を観察した。

### 3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

単結晶ダイヤモンド基板の上に、20-50  $\mu\text{m}$ の薄膜をホモエピタキシャル成長し、基板中および膜中の転位イメージングを行う。非対称ブラッグ反射条件で{044}および{113}面を測定する。今回は、CVD製基板中の欠陥構造を評価した。

単色X線トポグラフィ BL09

- ・単結晶ダイヤモンド (100)
- ・非対称ブラッグ反射条件, {044}, {113}
- ・X線フィルムで撮影
- ・試料サイズ 2-3 mm角

結晶構造：ダイヤモンド構造

主要面：(100)

基板：CVD製、およびHPHT製ダイヤモンド単結晶基板

試料数：3枚

### 4. 実験結果と考察

図1にCVD法で合成されたダイヤモンド結晶のX線トポグラフィ像を示す。放射光の光子エネルギーは12 keV、入射角度は10度、回折面は(404)に設定した。結晶内部のひずみ場を反映して、多数の欠陥が白黒のコントラストとして観測された。また全体像が歪んでいることから、結晶全体に渡ってひずみが蓄積されていることが分かった。高温高圧 (HPHT) 製結晶では、成長セクターに加え、積層欠陥や貫通転位による明瞭なコントラストが確認できた。

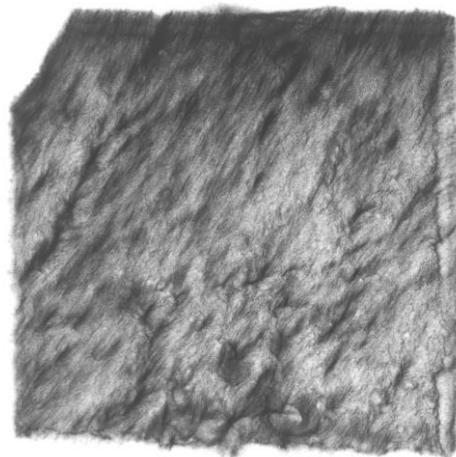


図1. CVDダイヤモンド結晶 ( $2 \times 2 \text{ mm}^2$ ) のX線トポグラフィ像

### 5. 今後の課題

CVD法で合成した単結晶ダイヤモンド基板の内部欠陥構造を、X線トポグラフィ法により評価した。CVD合成ダイヤモンドの結晶内部には、結晶成長に由来する特有のひずみが結晶全体に渡って存在することが明らかになった。今後、基板から膜中に伝搬する転位の挙動を評価するために、内部歪みの小さい基板上へのエピ成長が必要である。

### 6. 参考文献

- [1] S. Ohmagari et al., *Diamond Relat. Mater.* 48 (2014) 19.  
[2] 大曲ら, 「不純物ドーパダイヤモンド及びその製造方法」特願 2015-098261  
[3] 大曲ら, 「半導体-金属複合材料及びその製造方法」特願2015-030450

#### 7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

- [1] "Schottky barrier diodes fabricated on diamond mosaic wafers: dislocation reduction to mitigate the effect of coalescence boundaries"  
S. Ohmagari, H. Yamada, N. Tsubouchi, H. Umezawa, A. Chayahara, A. Seki, F. Kawaii, H. Saitoh, and Y. Mokuno  
*Appl. Phys. Lett.* 114, 082104 (2019). Editor's pick <https://doi.org/10.1063/1.5085364>
- [2] "Improved drain current of diamond metal-semiconductor field-effect transistor by selectively grown p+ contact layer"  
H. Kawashima, S. Ohmagari, H. Umezawa, and D. Takeuchi  
*Jpn. J. Appl. Phys.* (2019) in press
- [3]"Large reduction of threading dislocations in diamond by hot-filament chemical vapor deposition accompanying W incorporations"  
S. Ohmagari, H. Yamada, N. Tsubouchi, H. Umezawa, A. Chayahara, S. Tanaka, and Y. Mokuno  
*Appl. Phys. Lett.* 113 (2018) 032108. <https://doi.org/10.1063/1.5040658>
- [4] "Growth and characterization of heavily B-doped p+ diamond for vertical power devices"  
Shinya Ohmagari  
In: S. Koizumi, H. Umezawa, J. Pernot, M. Suzuki (Eds), *Power Electronics Device Applications of Diamond Semiconductors*, A volume in Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials, 99 - 117 Chapter 2.1 (Elsevier 2018).
- [5]"Growth and characterization of freestanding p+ diamond (100) substrates prepared by hot-filament chemical vapor deposition"  
S. Ohmagari, H. Yamada, H. Umezawa, N. Tsubouchi, A. Chayahara, and Y. Mokuno  
*Diamond and Related Materials* 81 (2018) 33. <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2017.11.003>
- [6]"Lifetime and migration length of B-related ad molecules on diamond {100}-surface: Comparative study of hot-filament and microwave plasma-enhanced chemical vapor deposition"  
S. Ohmagari, M. Ogura, H. Umezawa, and Y. Mokuno  
*Journal of Crystal Growth* 479 (2017) 52. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2017.09.022>
- [7]"Characterization of X-Ray Radiation Hardness of Diamond Schottky Barrier Diode and Metal-Semiconductor Field-Effect Transistor"  
H. Umezawa, S. Ohmagari, Y. Mokuno, and J.H. Kaneko  
*IEEE Conference Publications, ISPSD (2017) 379-382.* 10.23919/ISPSD.2017.7988983
- [8]"Submicron-scale diamond selective-area growth by hot-filament chemical vapor deposition"  
S. Ohmagari, T. Matsumoto, H. Umezawa, and Y. Mokuno  
*Thin Solid Films* 615 (2016) 239. <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2016.07.017>
- [9]"Ohmic contact formation to heavily boron-doped p+ diamond prepared by hot-filament chemical vapor deposition"  
S. Ohmagari, T. Matsumoto, H. Umezawa, and Y. Mokuno  
*MRS Advances* 1 (2016) 3489. <https://doi.org/10.1557/adv.2016.471>
- [10]"Boron inhomogeneity of HPHT-grown single-crystal diamond substrates: confocal micro-Raman mapping investigations"  
K. Srimongkon, S. Ohmagari (C.A.), Y. Kato, V. Amornkitbamrung, and S. Shikata  
*Diamond Relat. Mater.* 63 (2016) 21. doi: 10.1016/j.diamond.2015.09.014

#### 8. キーワード (注: 試料及び実験方法を特定する用語を2~3)

ダイヤモンド, 不純物, 転位, 結晶欠陥

**9. 研究成果公開について**（注：※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文（査読付）発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後2年以内です。例えば2018年度実施課題であれば、2020年度末（2021年3月31日）となります。

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

① 論文（査読付）発表の報告

（報告時期： 2021年 3月）