

九州シンクロトロン光研究センター 県有ビームライン利用報告書

課題番号： 2111120S

BL番号： BL09

(様式第5号)

サファイア基板上のヘテロエピタキシャルダイヤモンド結晶の X 線トポグラフィ観察
X-ray topography observation of highest-quality heteroepitaxial diamond wafers grown on sapphire substrate

嘉数 誠, Sdoeung Sayleap
Che Amirul Syafiq Iqval

Makoto Kasu, Sdoeung Sayleap,
Che Amirul Syafiq Iqval

佐賀大学大学院 理工学研究科
Graduate School of Engineering, Saga University

- ※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）

ダイヤモンドは広いバンドギャップ、高い絶縁破壊電界や優れた熱伝導率などから次世代のパワーデバイス材料として期待されている。しかし、半導体デバイスの下地となる単結晶基板中の格子欠陥（結晶欠陥）は、素子特性に影響を与えるため課題である。

実際にダイヤモンドを用いた電界効果トランジスタ（FET）を作製したところ、転位などの欠陥がリーク電流を引き起こすことが報告されている。従って、ダイヤモンドにおいても結晶欠陥の抑制や制御が不可欠であることが明らかになった。

我々はこれまでに X 線トポグラフィによりダイヤモンド単結晶[1-3]や $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 単結晶[4]やエピタキシャル薄膜で転位や積層欠陥の観察と同定を行ってきた。サファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドは 1 インチまで大口径化でき、低転位密度だった[5]。しかし最近では、傾斜したサファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドは、さらに最大 2 インチまで大口径化ができ、X 線ロックングカーブ半値幅では世界最高品質だった。

そこで今回は、ダイヤモンドを X 線トポグラフィ観察し、結晶中の欠陥の種類と密度を調べる。これまでもトポグラフィ像をとり欠陥について調べてきましたが、ダイヤモンドエピ結晶を調べる。

(English)

Diamond is wide band gap semiconductor, and is expected as high-efficient high-power electronics device. However, defects in crystals lead to a leakage current and decrease the breakdown voltage.

It has been reported that dislocations in diamond cause leakage current by field-effect transistors. Therefore, to minimize the defect density, it is critical to understand crystal defects such as dislocations and stacking faults. Recently we obtained high-quality diamond.

In this study, we investigated defects in diamond grown on sapphire.

2. 背景と目的

我々はこれまで新しい電子材料の創製とそれを生かしたデバイス応用に関する研究を行ってきた。現在は、シリコンカーバイド(SiC)、窒化ガリウム(GaN)、窒化アルミニウム(AlN)、ダイヤモンド、 β -Ga₂O₃等の広いバンドギャップをもつ新しい半導体の創製とそれをを用いた低損失・高耐圧のパワーデバイスの応用に関する研究を行っている。

環境・エネルギー問題は、今や不可避の深刻な社会問題である。エレクトロニクス、情報通信ネットワーク、電力ネットワークのエネルギー効率、システムのハードウェアの大部分を占めるシリコン(Si)材料の固有の物性限界に到達している。それを打破するために、Siよりバンドギャップが広いSiCやGaNや、新しいワイドギャップ半導体であるダイヤモンドや酸化ガリウムを用いた高効率パワーデバイスの実用化に繋げ、エネルギー問題を根本的に解決することが最大の目標である。しかしながら、半導体結晶を用いて作製される電子デバイス・光デバイスの特性は、その結晶中の格子欠陥の物性に大きく左右される。例えば、線状欠陥である転位は格子歪、欠陥準位、局所反応サイトなどを与え、多くの場合、デバイス特性を悪化させる要因となる。そのため結晶欠陥の観察や評価は、産業応用に向けた重要な課題である。我々はこれまでにX線トポグラフィー測定によりダイヤモンド単結晶や β -Ga₂O₃単結晶の転位や積層欠陥の観察と同定を行ってきた。

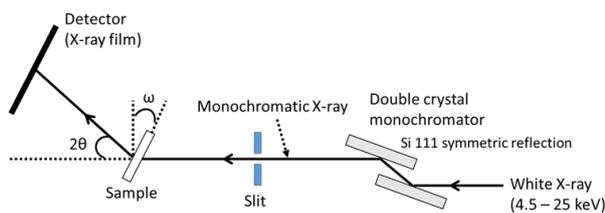
ダイヤモンドに関しては、これまで透過トポによる表面近傍の観察を行い、二次元像として欠陥の観察を行ってきた。しかし、これらの欠陥が実際に電子デバイスに与える影響はわかっていない。そのため、ダイヤモンド半導体の素子特性向上のために、キラー欠陥となるものを理解しておく必要がある。

最近サファイア基板上で高品質ダイヤモンドエピ結晶が得られるようになった、そこで今回は、その高品質ダイヤモンドエピ結晶のシンクロトロンX線トポグラフィーを観察し、欠陥の分布や特性を調べた。

3. 実験内容 (試料,実験方法,解析方法の説明)

ダイヤモンドエピ結晶の(100)面方位の試料を用意する。そのシンクロトロンX線トポグラフィーを観察し、欠陥の分布や特性を調べる。gベクトルは出来るだけ多くのパターンで測定し、得られたトポグラフ像を比較し、欠陥コントラストの消滅則により、転位のバーガーズベクトルを同定する。

測定条件(X線エネルギー、試料配置など)は測定試料の面方位、観察範囲(表面からの深さ)によって変更するが、ブラッグ条件に当てはめ条件を決定する。



(a) 透過配置

4. 実験結果と考察

今回ダイヤモンドエピ結晶をシンクロトロンX線トポグラフィー観察した。特に測定が困難とされている透過配置($g=-400$ と $g=020$)でも、撮像することに成功した。

5. 今後の課題

今回ダイヤモンドエピ結晶をシンクロトロンX線トポグラフィー観察した。現在、バーガーズベクトルの解析を行っている。X線トポグラフィーやAFMや断面TEMなどを活用して欠陥の分布や種類の傾向についてより詳しく調べる。

6. 参考文献

[1] 実験の概要

(カテゴリー)

(注：公募内容を確認の上、1～5から該当する項目を選びチェックしてください。複数選択可。)

1：設計材料・試料・デバイス評価

2：イメージング

3：その場測定

4：製造技術評価

5：その他

(背景)

(注：400～600文字程度。外部状況等を踏まえた本実験課題の背景、経緯等を記入し、必要に応じて主要論文リストを引用しつつ得られた知見等を記入して下さい。)

現在、電力エネルギー問題は深刻な社会問題です。エレクトロニクス、情報通信ネットワーク、電力ネットワークのエネルギー効率は、システムのハードウェアの大部分を占めるシリコン(Si)材料の固有の物性限界に到達しているからです。それを解決するために、Siよりバンドギャップが広いダイヤモンドや酸化ガリウム等の様々なワイドギャップ半導体の高効率パワーデバイスの実用化が必要です。

半導体デバイスは単結晶ウエハ上に作られますが、この単結晶ウエハ中の格子欠陥(結晶欠陥)はリーク電流の発生や耐圧低下など素子特性劣化の原因となるため、これらの生成を抑制したりや制御する技術の確立が課題です。従って、これらの観察や素性の同定が求められています。

我々はこれまでに X 線トポグラフィによりダイヤモンド単結晶[1-3]や β -Ga₂O₃ 単結晶[4]やエピタキシャル薄膜で転位や積層欠陥の観察と同定を行ってきました。サファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドは1インチまで大口径化でき、低転位密度でした[5]。しかし最近では、傾斜したサファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドは、さらに最大2インチまで大口径化ができ、X線ロックアップカーブ半値幅では世界最高品質でした。

[1] M. Kasu, R. Murakami, S. Masuya, K. Harada, H. Sumiya, Applied Physics Express, 7 (2014) 125501.

[2] S.-W. Kim, Y. Kawamata, R. Takaya, K. Koyama, and M. Kasu, Appl. Phys. Lett. 117, 202102 (2020).

[3] S. Masuya, K. Hanada, T. Uematsu, T. Moribayashi, H. Sumiya, M. Kasu, Japanese Journal of Applied Physics, 55 (2016) 040303.

[4] A. Kuramata, K. Koshi, S. Watanabe, Y. Yamaoka, T. Masui, and S. Yamakoshi, Jpn. J. Appl. Phys. 55, 1202A2 (2016).

[5] S. -W. Kim, Y. Kawamata, R. Takaya, K. Koyama, M. Kasu, Appl. Phys. Lett. 117, 202102 (2020).

[6] S. -W. Kim, R. Takaya, S. Hirano, M. Kasu, Appl. Phys. Express 14, 115501 (2021).

(これまでの実験結果および、その結果との関係)

(注：200～400文字程度。研究センターで本実験課題と同種の実験、または関連する実験を行ったことがある場合は、それらの実験結果および、その結果と本実験課題との関係を記入して下さい。)しかしながら、その時に最高品質のVB結晶ウエハの面方位は(001)面のみで、バーガーズベクトルの同定や転位の方向や欠陥の三次元的な構造はわかりませんでした。そのため、今回は、同じバルク結晶を、(100),(-201),(010)面方位などでも切り出し、三次元的に転位や欠陥の観察を行いたいと思います。

(本実験課題の狙いと特色)

(注：400～600文字程度。実験の方法と関連付けて記入して下さい。)

今回は、サファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドおよび傾斜サファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドの X 線トポグラフィ観察を行います。傾斜基板も異なる傾斜方向、様々な傾斜角度のものを使います。

これまででは、実験室での X 線回折法や断面 TEM 観察で結晶品質を調べてきましたが、本実験課題により、結晶成長機構や結晶品質を決定する要因を明らかにできると考えています。

(期待される成果)

(注：400～600文字程度。先端産業の実用化技術又は基盤技術高度化に関する具体的な貢献内容の記述が必要です。)

半導体結晶を用いて作製される電子デバイス・光デバイスの特性は、その結晶中の格子欠陥の物性に大きく左右される。例えば、線状欠陥である転位は格子歪、欠陥準位、局所反応サイトなどを与え、多くの場合、デバイス特性を悪化させる要因となります。従って、格子欠陥の抑制や制御は結晶成長

やデバイス開発に携わる研究者、エンジニアの必達目標です。そのため、格子欠陥の低減や制御技術の確立へと発展させるためにも、これらの欠陥を観察し、構造を同定することは産業界においても学術界においても重要な課題です。

また、大電力を扱うパワーデバイスの分野では、それぞれの電子デバイスの信頼性が重要になってきます。実用化技術および基盤技術の高度化において、各種デバイスの信頼性を向上させることは不可避です。これらの問題を克服するための基礎事項として、デバイスにおける劣化機構を解明しておくことは重要な課題です。

サファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドおよび傾斜サファイア基板上にヘテロエピタキシャル成長したダイヤモンドの X 線トポグラフィ観察を行います。傾斜基板も異なる傾斜方向、様々な傾斜角度のものを使います。

これまで、実験室での X 線回折法や断面 TEM 観察で結晶品質を調べてきましたが、本実験課題により、結晶成長機構や結晶品質を決定する要因を明らかにできると考えています。

(本課題と直接関係する実験参加者の主要論文リスト等)

(注：関係する主要な論文を最大 10 件程度まで。)

- [1] A. Tallaire, M. Kasu, K. Ueda, T. Makimoto, "Origin of growth defects in CVD diamond epitaxial films", *Diamond and Related Materials* 17 (2008) 60.
- [2] J. Achard, F. Silva, O. Brinza, X. Bonnin, V. Lille, R. Issaoui, M. Kasu, A. Gicquel, "Identification of the etch-pits crystallographic faces induced on a diamond surface by H₂/O₂ etching plasma treatment", *Phys. Status Solidi*, A206 (2009) 1949.
- [3] M. Kasu, R. Murakami, S. Masuya, K. Harada, H. Sumiya, "Synchrotron X-ray topography of dislocations in high pressure high temperature grown single crystal diamond with low dislocation density", *Applied Physics Express*, 7 (2014) 125501.
- [4] S. Masuya, K. Hanada, T. Uematsu, T. Moribayashi, H. Sumiya, M. Kasu, "Determination of the type of stacking faults in single-crystal high-purity diamond with a low dislocation density of < 50 cm⁻² by synchrotron X-ray", *Japanese Journal of Applied Physics*, 55 (2016) 040303.
- [5] S. Masuya, K. Hanada, T. Moribayashi, H. Sumiya, M. Kasu, "Determination of partial dislocations of stacking fault in (111) single crystal diamond grown on (111) seed crystal by synchrotron X-ray topography", *Journal of Crystal Growth*, 468 (2017) 439
- [6] S. Masuya, K. Hanada, T. Oshima, H. Sumiya, M. Kasu, "Formation of stacking fault and dislocation behavior during the high-temperature annealing of single crystal HPHT diamond", *Diamond and Related Materials* 75 (2017) 155.
- [7] S. Masuya, K. Sasaki, A. Kuramata, S. Yamakoshi, O. Ueda, and M. Kasu, "Characterization of crystalline defects in β-Ga₂O₃ single crystals grown by edge-defined film-fed growth and halide vapor-phase epitaxy using synchrotron X-ray topography", *Japanese Journal of Applied Physics* vol.58, pp.055501 (2019).
- [8] S. Sdoeung, K. Sasaki, K. Kawasaki, J. Hirabayashi, A. Kuramata, T. Oishi, and M. Kasu, "Origin of reverse leakage current path in edge-defined film-fed growth (001) β-Ga₂O₃ Schottky barrier diodes observed by high-sensitive emission microscopy", *Applied Physics Letters* 117, 022106 (2020).
- [9] S. Sdoeung, K. Sasaki, S. Masuya, K. Kawasaki, J. Hirabayashi, A. Kuramata, and M. Kasu, "Stacking faults: Origin of leakage current in halide vapor phase epitaxial (001) β-Ga₂O₃ Schottky barrier diodes", *Appl. Phys. Lett.* 118, 172106 (2021).
- [10] S. -W. Kim, Y. Kawamata, R. Takaya, K. Koyama, M. Kasu, "Growth of high-quality one-inch freestanding heteroepitaxial (001) diamond on (11-20) sapphire substrate", *Appl. Phys. Lett.* 117, 202102 (2020).
- [11] S. -W. Kim, R. Takaya, S. Hirano, M. Kasu, "Two-inch high-quality (001) diamond heteroepitaxial growth on sapphire (11-20) misoriented substrate by step-flow mode", *Appl. Phys. Express* 14, 115501 (2021).

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] M. Kasu, R. Murakami, S. Masuya, K. Harada, and H. Sumiya, Synchrotron X-ray topography of dislocations in high-pressure high-temperature-grown single-crystal diamond with low dislocation density, *Applied Physics Express*, 7 (2014)125501.
- [2] S. Masuya, K. Hanada, T. Uematsu, T. Moribayashi, H. Sumiya, M. Kasu, Determination of the type of stacking faults in single-crystal high-purity diamond with a low dislocation density of <50cm⁻² by synchrotron X-ray topography, *Japanese Journal of Applied Physics* 55, (2016)040303
- [3] S. Masuya, K. Hanada, T. Moribayashi, H. Sumiya, M. Kasu, Determination of partial dislocations of stacking fault in (111) single crystal diamond grown on (111) seed crystal by synchrotron X-ray topography, *Journal of Crystal Growth*, 468 (2017) 439.
- [4] S. Masuya, K. Hanada, T. Oshima, H. Sumiya, M. Kasu, "Formation of stacking fault and dislocation behavior during the high-temperature annealing of single crystal HPHT diamond", *Diamond and Related Materials* 75 (2017) 155.

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, X線トポグラフィー

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（2018年度実施課題は2020年度末が期限となります）。

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： 2022年 6月）