

(様式第5号)

HPHT ダイヤモンド単結晶の三次元 X 線トポグラフィー観察 X-ray Topography observation of diamond single crystal.

嘉数 誠, 梶谷聡士, 森林朋也, 片桐英鉄

Makoto Kasu, Satoshi Masuya, Tomoya Moribayashi, Eitetsu Katakiri

佐賀大学大学院 工学系研究科
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)

ダイヤモンドや酸化ガリウム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。したがって、これらの結晶欠陥の観察・評価は産業応用に向けた重要な課題である。通常の X 線トポグラフィー測定は二次元投影像として画像が得られ欠陥の平面観察を行うため、結晶欠陥の三次元的な空間配置の理解は困難だった。そこで本研究ではセクショントポグラフィーという手法を用いて、ダイヤモンド単結晶の欠陥観察を三次元で行った。

(English)

Diamond and Gallium oxide are wide band gap semiconductor, and are expected as high-efficient high-power electronics device. However, defects in crystals lead to a leakage current and decrease the breakdown voltage. Therefore, to minimize the defect density, it is critical to understand crystal defects such as dislocations and stacking faults. Conventional two dimensional X-ray topography image limited analysis of 3-dimensional defect structure. Here, we perform 3 dimensional imaging of X-ray topography of single crystal diamond.

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が、これまでのダイヤモンドに関する欠陥の観察例はほとんどが二次元観察であり、三次元的な空間配置は理解されていなかった。そこで本研究ではダイヤモンドの欠陥の三次元的な構造を理解するためセクショントポグラフィーという手法を用いて、ダイヤモンド結晶中に存在する転位や積層欠陥の三次元観察を行った。

3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

測定試料は高温高压合成(HPHT)ダイヤモンド単結晶である[1]。試料のサイズは $5\text{mm} \times 5\text{mm} \times 5\text{mm}$ のブロック状の形状である。三次元観察を行うため、厚めの試料を用意した。この試料に対してBL09のビームラインにてX線トポグラフィー観察を行った。

通常のとポグラフィー測定ではスリットを広げ、入射X線のサイズを測定試料と同じ程度に設定するが、セクショントポグラフィーでは微小スリットによりビームを絞り、 0.05mm 程度のかかなり細いX線を入射する。図1に示すような透過Laue配置にて $g=220$ と $g=400$ の回折を測定した。最初はフラットパネルセンサーを用いて回折を確認し、その状況に応じてCCDカメラとX線フィルムを使用した。CCDカメラを用いて測定する場合は試料全体をスキャンし、サンプル全体像を測定した。得られた画像はImageJのソフトを用いて解析する。

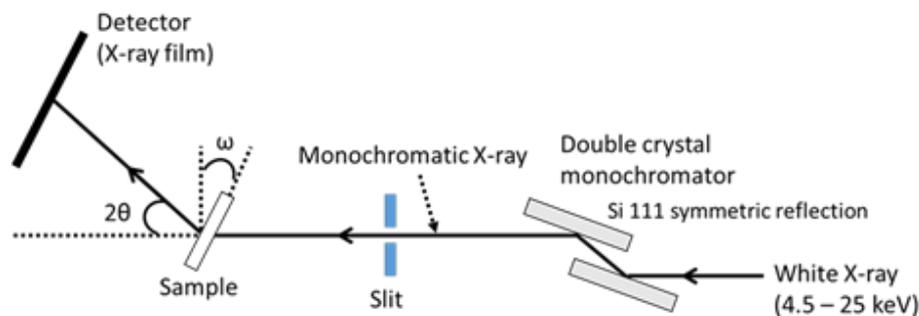


図1 透過 Laue 配置による X 線トポグラフィー測定

4. 実験結果と考察

得られたトポ像では転位や積層欠陥などの結晶欠陥が鮮明に観察できた。また、通常のとポ測定のような平面像のみではなく、各領域の断面像も得ることが出来た。これらの画像を ImageJ というソフトを用いて画像処理を行い、試料全体の三次元観察も行うことが出来た。

HPHT 成長に用いた種結晶付近では歪が多く、転位や積層欠陥などが発生している。しかしこれらの欠陥は種から放射状に広がり、種結晶から離れた領域では欠陥密度がかなり減少していることがわかった。また転位は試料表面からおよそ 55° 程度の角度に発生しており、 $\langle 112 \rangle$ 方向へ延伸しているものと思われる。

今後さらに解析を進めていくが、本実験で用いたセクショントポグラフィーが欠陥の三次元構造を理解するための強力なツールとなることがわかった。

5. 今後の課題

次世代のパワー半導体として注目されるダイヤモンドのシンクロトロン放射光を用いた X 線トポグラフィー観察を行った。セクショントポグラフィーを用いて欠陥の三次元観察を行うことが出来た。

三次元構造を理解することが出来たが、今後はこれらの知見を欠陥の発生メカニズムの解明や、欠陥の抑制技術の開発へと拡張していくことが課題である。

6. 参考文献

[1] H. Sumiya and K. Tamasaku, Japanese Journal of Applied Physics 51 (2012) 090102.

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 $<50\text{cm}^{-2}$ 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, 高温高压合成, X線トポグラフィ

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（2017年度実施課題は2019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： 2020年 3月）