

# 熱処理によって高密度窒素ドープ 4H-SiC 結晶中に発生するダブルショックレー型積層欠陥の構造解析\*

Structural Analysis of Double-Layer Shockley Stacking Faults Formed in Heavily-Nitrogen-Doped 4H-SiC during Annealing

徳田 雄一郎  
Yuichiro TOKUDA

山下 任  
Tamotsu YAMASHITA

加藤 智久  
Tomohisa KATO

奥村 元  
Hajime OKUMURA

星乃 紀博  
Norihiro HOSHINO

宮澤 哲哉  
Tetuya MIYAZAWA

鎌田 功穂  
Isaho KAMATA

土田 秀一  
Hidekazu TSUCHIDA

木本 恒暢  
Tsunenobu KIMOTO

We investigated the structures and expansion behavior of double-Shockley stacking faults (DSFs) formed in heavily-nitrogen-doped 4H-SiC during annealing. Heavily-doped-epilayers prepared as specimens were successively annealed. Various types of DSFs showing different shapes and dislocation contrast were found in photoluminescence and synchrotron X-ray topography images. Taking account of every possible stacking sequences forming DSFs, the structures of the various types of the DSFs were determined by the observations in plane-view transmission electron microscopy (TEM) and cross-sectional high-angle annular dark-field scanning TEM. We found that a bounding dislocation enclosing a DSF splits to two partial dislocations (PDs) and their Burgers vectors are identical, while the distance of the two PDs depended on their core structures ( $30^\circ$  Si-,  $30^\circ$  C- or  $90^\circ$  C-core). We also discussed the contrast rule for the dislocation consisting of the two PDs in the synchrotron X-ray topography images and the mobile PDs for the DSF expansion in the epilayers with different nitrogen concentrations.

*Key words :*

*SiC, Crystal defect, Stacking fault, TEM, Synchrotron X-ray topography*

## 1. 序論

シリコンカーバイド (SiC), 特に 4H ポリタイプの SiC は, 高耐圧用パワーデバイスにとって魅力的なワイドギャップ半導体材料である<sup>1)-3)</sup>. 絶縁破壊電界はシリコン (Si) 半導体と比較しておおよそ 10 倍であり, この特性を活かすことで低損失かつ高耐圧のパワーデバイスが実現できる. 実際に, SiC パワーデバイ

スの実用化に向け, 着実に研究開発が進められており, 630 V 耐圧では  $0.79 \text{ m}\Omega\text{cm}^{-2}$ , 1260 V 耐圧では  $1.41 \text{ m}\Omega\text{cm}^{-2}$  という低損失かつ高耐圧の MOSFET (Metal-Oxide-Semiconductor Field Effect Transistor) の動作が確認されている. このように低損失であることは, SiC パワーデバイスの特徴であり, パワーデバイスとして重要な性能の一つである. 一方で, さらなる低損失化を図る上で, デバイスを作製する基板であるウエ

\* Reproduced from Journal of Applied Physics 122, 045707 (2017), with the permission of AIP Publishing.

ハの抵抗成分が問題となっている。

一般に低抵抗 n 型 4H-SiC ウエハは、SiC バルク結晶の成長中に窒素を高密度にドーピングすることで得られる。現在市販されている n 型ウエハは 15-25 mΩcm に留まる一方で、窒素を  $1.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  という密度でドーピングすることで 1.5 mΩcm という極めて低い抵抗率を示した研究報告もある<sup>4)</sup>。しかし、このような低抵抗 n 型ウエハには致命的な課題が残されている。それは、窒素ドーピング密度  $2-3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  以上のウエハを SiC のデバイスプロセス温度である 1000-1100 °C で熱処理をすると、ウエハ中にダブルショックレー型積層欠陥 (Double-Shockley Stacking Fault : DSF) と呼ばれる面状の結晶欠陥が発生することである<sup>5)6)</sup>。このような積層欠陥 (Stacking Fault : SF) は、デバイス性能に大きな悪影響を与えるため抑制する必要がある。いくつかの研究機関において研究が行われ、現在では、この DSF の発生は、2 ステップに分けて考えることができることが分かっている。すなわち、(i) 応力による DSF の核形成、(ii) 核からの DSF 拡大である<sup>4)7)</sup>。

応力による DSF の核形成の可能性、より具体的に言うと機械的なダメージによる DSF の核形成の可能性を最初に指摘したのは Irmischer らである<sup>7)</sup>。彼らは高密度に窒素をドーピングした SiC 結晶の表面に部分的にスクラッチを導入し、熱処理を行った。その結果、スクラッチによるダメージを導入した近辺でのみ DSF の発生が確認された。この結果を受けて、彼らはスクラッチ等による表面損傷によって発生した部分転位が DSF の核であると結論付けた。このモデルの証明はされていないが、スクラッチに加えて研磨傷<sup>4)</sup> やダイシング端面<sup>8)</sup> など機械的なダメージを与えた箇所が DSF の起点となることが分かっている。さらに、4H-SiC と 3C-SiC の格子不整合起因の応力が働いている領域も同様に DSF の発生起点となることを著者らのグループは報告した<sup>8)</sup>。

一般的に転位はせん断応力によって運動する<sup>9)-11)</sup>。一方で、4H-SiC の完全結晶と DSF を含む 4H-SiC 結晶のエネルギー差を駆動力として DSF は拡大するとされる。SF を数層の異なるポリタイプインクルージョンとみなすと、SF のエネルギー準位は、cubic ポリタイプと hexagonal のポリタイプのバンドギャッ

プの大きな違いによって形成される一次元の量子井戸のように働くとされる<sup>12)13)</sup>。このような量子井戸的な構造を持つ SF のエネルギー準位は積層構造に依存し、そのため SF は固有のフォトルミネッセンス (Photoluminescence : PL) スペクトルを持つ。例えば、室温における PL スペクトルのピーク位置は、シングルショックレー型 SF (Single-Shockley SF : SSF) は 420 nm (2.95 eV)、DSF は 500 nm (2.48 eV)、(5, 3) 構造の SF は 480 nm (2.58 eV)、8H-type の SF は 455-470 nm (2.65-2.73 eV) である<sup>14)-17)</sup>。この PL スペクトルのピーク位置から分かるように、DSF のエネルギー準位はこれらの SF の中で最も低い、すなわち最も深い量子井戸の構造を持つことを意味する。4H-SiC 結晶中に高密度に窒素をドーピングすると、フェルミ準位が上昇し、伝導帯バンド端より 0.59 eV 下にある DSF のエネルギー準位よりも上にくる。このとき、伝導帯に励起された電子は、次々とより低いエネルギー状態である DSF のエネルギー準位に落ち込む。すなわち、量子井戸に落ち込んでいく。このとき量子井戸の中に落ち込むことで電子の持つエネルギーは下がるため、結晶の持つ電子のエネルギーをすべて考慮すると、ある一定以上電子が量子井戸にチャージされた場合に DSF は 4H-SiC 完全結晶よりもエネルギー的に安定になることが示唆されている<sup>18)-21)</sup>。また、このエネルギー差が DSF 拡大の駆動力とされる。

このように DSF の発生について様々な研究がされてきたが、未だにメカニズムが解明されたとは言えない。その 1 つは、この DSF の構造である。欠陥構造は DSF の発生を理解する上で最も基本的な課題であると同時に、一般的に欠陥構造は SF の拡大挙動 (形状や拡大速度など) を決定づける重要な因子である。4H-SiC 結晶中の転位や SF を同定する有効な手法として放射光トポグラフィがある。実際に、貫通刃状転位 (Threading Edge Dislocations : TED)、基底面転位 (Basal Plane Dislocation : BPD)、SSF の外縁部に走る部分転位のバーガースペクトルは、放射光トポグラフィにより決定可能である<sup>22)-25)</sup>。高密度窒素ドーピング 4H-SiC 結晶中の DSF についても同様に放射光トポグラフィによる観察は行われているものの<sup>26)</sup>、現時点では DSF の構造同定に適用するのは難しい。

放射光トポグラフィでの DSF 構造同定の難しさは、DSF の構造の複雑さに起因する。SSF は 1 つのすべり面を持つ（そのため“シングル”ショックレー SF と呼ばれる）。すべり面の端部には部分転位が形成されるため、SSF の端部には 1 本の部分転位が存在する。この SSF の周りを走る 1 本の部分転位のトポグラフィ像でのコントラスト規則は明確になっている。すなわち、 $g = \bar{1}\bar{1}28$  の回折条件において、Si コア部分転位は明るいコントラストとして現れ、C コア部分転位は暗いコントラストとして現れる<sup>24)25)</sup>。この規則を適用することで、SSF の構造が同定できる。一方で DSF は 2 重のすべり面を持つ。各すべり面の端にそれぞれ部分転位が存在するため、DSF の端部には 2 本の部分転位が存在する。この 2 本の部分転位は異なる構造を持つ可能性もあり、この 2 本の部分転位から構成される転位のトポコントラスト規則は明確になっていない。そのため、コントラスト規則の関係が明確になっていない現状では、放射光トポグラフィによる DSF の構造同定は難しい。また Idrissi らの報告によると窒素密度が  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の 4H-SiC 結晶中の DSF の端部に存在する 2 本の部分転位は 60 nm 程度離れて存在する<sup>10)</sup>。高密度窒素ドーブ 4H-SiC 結晶において観察される DSF の端部の部分転位も同様であるかは不明であるが、2 本の転位が数十 nm 程度離れて存在していても X 線トポグラフィではその空間分解能不足から、2 本の部分転位を個別に観察することは難しい。透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscopy : TEM) は破壊検査ではあるものの、このような微細な欠陥構造を同定する際によく用いられる<sup>27)-29)</sup>。例えば、4H-SiC 結晶中の BPD が 2 本の部分転位に分解していることを観察した報告がある<sup>30)</sup>。しかし、DSF に関しては、トポトポグラフィ像における転位コントラストと DSF の端部の詳細な構造解析の対応を取った研究報告はない。

本論文では、高密度窒素ドーブ 4H-SiC 結晶中に熱処理で発生する DSF の構造について検討を行う。DSF の端部の転位の詳細な構造を平面 TEM 観察と断面の高角散乱環状暗視野走査 TEM (High-angle Annular Dark Field Scanning TEM : HAADF-STEM) 観察により解析した。また、あらかじめ結晶学的に部分転位周りの積層構造を全パターン検討し、この検討

結果を踏まえて、部分転位のバーガスベクトルとコア構造を個別に同定した。また同定した構造に基づき、放射光トポグラフィ像におけるコントラスト規則を導出した。最後に同定した構造をもとに DSF 拡大における可動転位について議論する。

## 2. 実験手順

高密度に窒素をドーブしたエピタキシャル膜 (エピ膜) を直径 3 インチの市販 4H-SiC 基板上へ CVD 成長にて成膜した。なお市販基板は  $4^\circ$  のオフ角を持つ。エピ膜の窒素密度は  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  であり、これは SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry) にて測定した。エピ膜厚は 10  $\mu\text{m}$  である。成長した 3 インチエピ膜をダイシングにて複数サンプルに分割した。分割後のいくつかのチップサイズのサンプルをアルゴン雰囲気中で断続的に繰り返し 1000  $^\circ\text{C}$  で熱処理を行った。また残りのサンプルのいくつかは比較的低温な 600-650  $^\circ\text{C}$  で断続的に繰り返し熱処理を行った。最初の熱処理を実施する前に、各サンプルのエピ膜表面には部分的にスクラッチを導入した。熱処理前後において、PL イメージング測定を行い、DSF の発生有無および拡大を観察した。また、バンドパスフィルター (BPF) としては  $500 \pm 20 \text{ nm}$  を用いた。励起光源にはキセノン水銀ランプを用いた。また、発生した DSF について放射光トポグラフィを SPring8 BL08 にて実施した。これにより DSF の端部の転位を観察した。回折条件は主に  $g = \bar{1}\bar{1}28$  を用いた。さらに、DSF の端部の転位を、平面 TEM を用いて高分解能で観察した。各すべり面の端部に存在する部分転位のバーガスベクトルの向きを TEM による  $g \cdot b$  解析を用いて決定した。さらに、部分転位周辺部の積層構造を断面 HAADF-STEM を用いて観察することで、部分転位のコア構造を同定した。

窒素密度  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜に加えて、 $9.8 \times 10^{18}$ ,  $1.5 \times 10^{19}$ ,  $4.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の 3 水準の窒素密度を持つエピ膜を用意した。これは、DSF 拡大挙動の窒素密度依存性を調査するためである。これらのエピ膜についても同様に、表面に部分的にスクラッチを導入し、その後熱処理を行った。DSF の拡大は PL イメージン

グ測定により追跡観察を行い、DSFの構造は本研究で明らかにした放射光トポグラフィ像におけるコントラスト規則を適用することで、同定した。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 発生・拡大するDSFの観察

Fig. 1は、1000 °C、2 hの熱処理前後で取得した高密度窒素ドーパ（窒素密度： $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ）エピ膜のPLイメージング像である。PLイメージング像において白い領域がDSFである。熱処理前のエピ膜中にも上下に伸びるバー状のDSFが部分的に確認されるものの、残りの多くの領域はDSFの発生なく高密度窒素ドーパエピ膜を成膜できていることが分かる（Fig. 1 (a)）。このエピ膜を1000 °Cで熱処理したところ、多くのDSFが新たに発生した（Fig. 1 (b)）。また、PLイメージング像からDSFはいくつかの異なる形状を持つことが分かり、これはDSFの構造の違いに起因すると推定した。

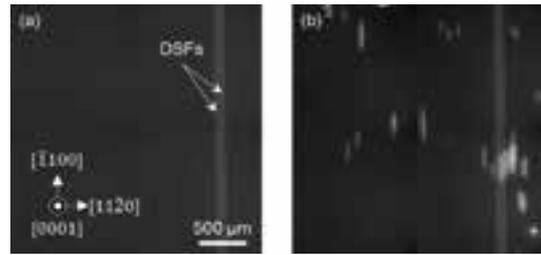


Fig. 1 PL images of a heavily-doped epilayer using a BPF of  $500 \pm 20 \text{ nm}$  taken (a) before annealing and (b) after annealing at 1000 °C for 2 hours

Fig. 2は、窒素密度  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜中を拡大する典型的なDSFのPLイメージング像と放射光トポグラフィ像である。熱処理温度は1000 °Cである。Fig. 2 (a)に示すように熱処理前のエピ膜の観察領域にはDSFは確認されない。Fig. 2 (b)は、1000 °C、2 hの熱処理後のPLイメージング像である。PLイメージング像から、二等辺三角形のような形状を持つDSFが発生していることが分かる。さらに2 h追加で熱処理をすることでこのDSFはさらに拡大し、バー形状となった（Fig. 2 (c)）。熱処理前のエピ膜の放射光トポグラフィ像を確認すると、PLイメージング像と同様、基底面上の転位は確認されない（Fig. 2 (d)）。一方で、Fig. 2 (e)およびFig. 2 (f)に示すように、熱処

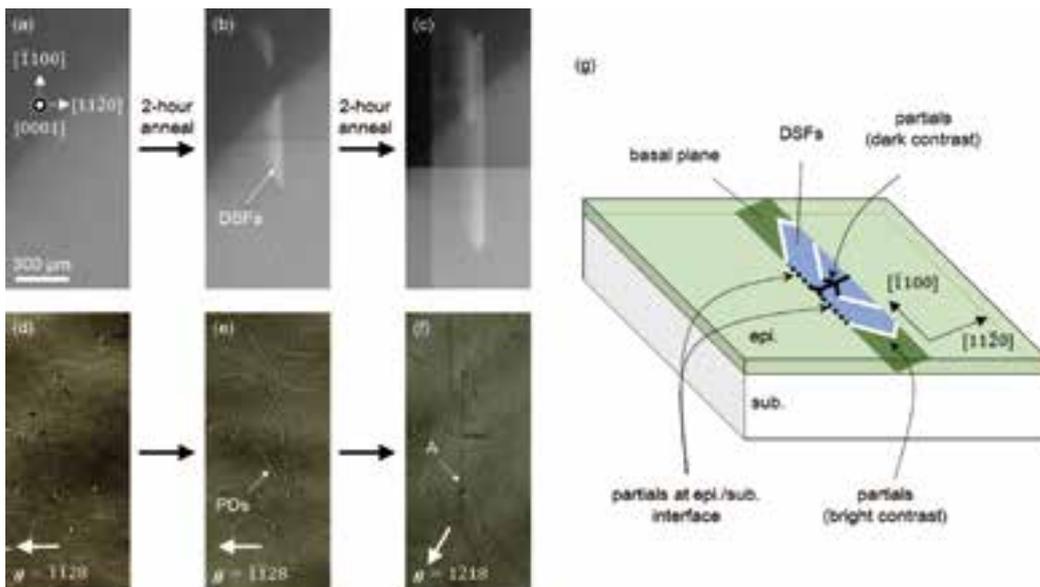


Fig. 2 (a), (b), (c) PL images using BPF of  $500 \pm 20 \text{ nm}$  and (d), (e), (f) synchrotron X-ray topography images of DSFs formed in heavily-doped epilayer taken in the course of successive high-temperature annealing at 1000 °C and (g) a schematic illustration of the DSF expansion in the heavily-doped epilayer

理によって発生したDSFの端部の転位が放射光トポグラフィ像から観察された。熱処理後の放射光トポグラフィ像, 例えば Fig. 2 (e) から, PL イメージング像で二等辺三角形に見えたDSFは, 上下対称な2つのDSFで構成されていることが分かった。Fig. 2 (e) 中の  $[\bar{1}100]$  方向へ走る転位Aは, エピ膜/基板界面を走る界面転位である。すなわち, このDSFは, エピ膜表面で発生した後, エピ膜中を左方向へ拡大し, エピ膜/基板界面で拡大が停止したことを意味する。このDSF拡大が界面で停止したのは, 基板の窒素密度 ( $8.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) に起因する。すなわち, DSFはある閾値以上の窒素密度を持つ4H-SiC結晶中を拡大するとされているが, この基板中の窒素密度は閾値よりも低く, そのため拡大しなかったものと思われる。このDSFの拡大挙動を Fig. 2 (g) に図示する。白の太線と黒の太線はそれぞれ  $g=1\bar{2}18$  の回折条件で取得した放射光トポグラフィ像にて明るいコントラストで確認された転位と暗いコントラストで確認された転位である。また界面転位は黒の点線で示している。

1000 °C の熱処理で発生したDSFに加えて, 高密度窒素ドーピングエピ膜 (窒素密度  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) には, 比較的低温の 600-650 °C の熱処理でもDSFが発生することを発見した。Fig. 3 (a), Fig. 3 (b) は, 高密度窒素ドーピングエピ膜の熱処理前後のPLイメージング像である。熱処理前後のPLイメージング像から新たにバー状のDSFが発生していることが分かる。なお, 熱処理は温度 625 °C で5 h 実施した。1000 °C の熱処理では Fig. 1 (b) に示すように多くのDSFが発生した一方で, 625 °C の熱処理では観察範囲で1つだけである。このDSFは追加の熱処理で下方 ( $[1\bar{1}00]$  方向) に拡大した。このことより, この観察されたDSFはダイシング面において発生し, このダイシング面を起点として下方に拡大したものと思われる。またこのようなバー状のDSFの発生は625 °C の熱処理に加えて600, 650 °C の熱処理でも同様に観察された。さらに, 窒素密度が  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ,  $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜を600-650 °C の温度で熱処理してもこのようなDSFは発生しなかったが, 窒素密度が  $4.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜を600-650 °C で熱処理したところ同様のバー状のDSFが発生した。 $g=2\bar{1}18$  の回折条件で取得したこの

DSFの上端と下端の放射光トポグラフィ像を Fig. 3 (c), Fig. 3 (d) に示す。DSFの上端の転位は明るいコントラストを持つ (Fig. 3 (c))。また, DSFの上端は円状の明るいコントラストと繋がっている。これは, ダイシングによって機械的にダメージを与えられた箇所であり, DSFの発生起点であると考えられる。DSFの下端の転位は暗いコントラストを持つ (Fig. 3 (d))。このDSFは下方へ拡大したことは, すなわちこの暗いコントラストを持つ下端の転位が熱処理によって下方へ運動したことを意味する。

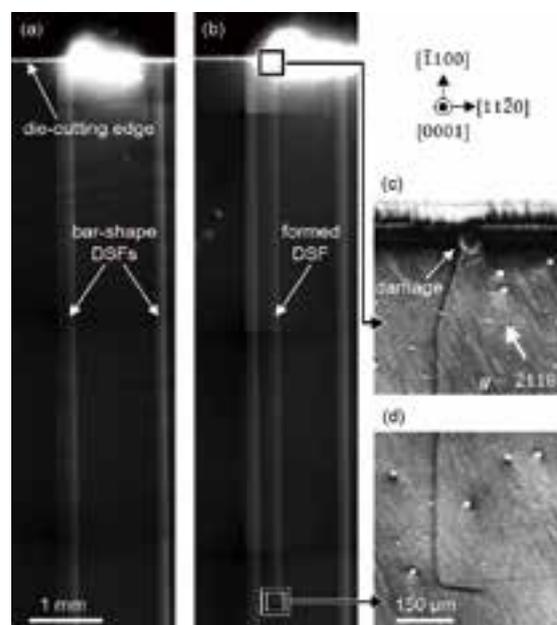


Fig. 3 PL images of bar-shape DSFs in the heavily-doped epilayer (a) before and (d) after annealing at 625 °C for 5 hours and synchrotron X-ray topography images of (c) upper-side and (d) lower-side ends of the DSF formed by annealing taken under the diffraction of  $g=2\bar{1}18$ .

### 3.2 結晶学的に考えられるDSFの構造

ここでは, DSF 端部に存在する2本の部分転位の周辺部の積層構造を結晶学的に検討する。DSFはショックレー型SFであり, また2重のすべり面を持つ。Fig. 4は4H-SiC完全結晶からDSFが形成される一例を図示している。SiCは, Siを中心にCを端部に配置した四面体を基本的な単位として, この四面体を積層させることで結晶となる。図に示す構造は  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$  から観察したときの積層構造である。図中の三角形は四面体

を  $\{11\bar{2}0\}$  面に投影したものであり、四面体の向きによって投影のされ方が異なる。白い円は Si 原子を表しており、黒い円は C 原子を表す。四面体の中心に配置される Si 原子の位置には、3つの異なるサイトがあり、それぞれ A サイト、B サイト、C サイトと名付けた。Fig. 4 (a) に示すように、4H-SiC の完全結晶の積層構造は ABA'C' の繰り返しで表すことができる。なお A' や C' のようにダッシュを付けているのは、このサイトに配置された Si 原子を含む四面体の向きが、その下の A や B に配置された四面体と異なることを意味している。Zhdanov's notation に従うと、4H-SiC は (2, 2) の積層構造で表すことができる。図中の G1 面においてすべりが発生した場合を考える。このとき、G1 面直上の Si 原子が C' サイトから B サイトへすべる。なお、このときすべる Si 原子よりも上の結晶構造は Si 原子と一緒にそのままシフトさせる。この G1 での C'→B すべりによって形成される SSF の積層構造を Fig. 4 (b) に示す。この SSF は (1, 3) 構造で表すことができる。また、SSF の積層構造は 4 種類考えられる。これは 4H-SiC が 4 層周期であることに対応し、すべり面の位置が G1, G2, G3, G4 の 4 種類である。この G1 すべりで形成された SSF において、さらに G2 面で A'→C すべりが発生した場合、DSF が形成される。形成された DSF を Fig. 4 (c) に示す。なお、Fig. 4 (b) に示した SSF からは、G2 すべりによる DSF しか形成されない。すなわち、SSF を形成する際の 1 つ目のすべり面が決まると、DSF を形成するための 2 つ目のす

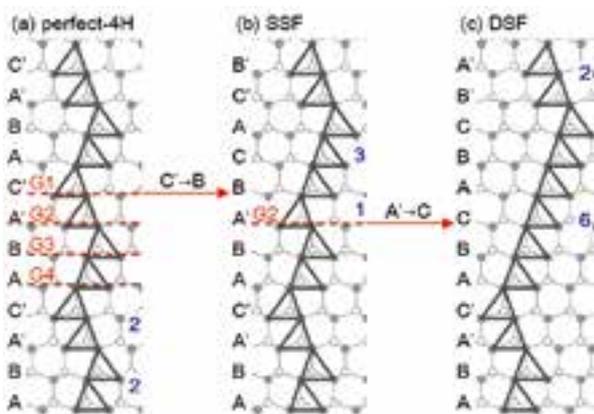


Fig. 4 Typical stacking sequences of (a) a perfect 4H-SiC, (b) a SSF and (c) a DSF.

べり面位置は自動的に 1 つに決まる。図示したケースでは、1 層目のすべり面は G1 面での C'→B であり、2 層目のすべり面は G2 面での A'→C すべりである。

Fig. 5 は、G1 面での C'→B すべりによって、4H-SiC 中 SSF が形成された際の構造変化を示している。各図において、上図は  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$  方向から観察した積層構造を示しており、下図は  $[0001]$  方向からみたすべり面 (G1 面) 直上と直下の Si 原子と C 原子の配置を示している。Fig. 5 (a) は、すべりが発生する前の構造である。図示したように C'→B すべりには 3 方向の可能性がある。すなわち、平面図において、右方向、左上方向、左下方向の 3 方向である。右方向への C'→B すべりが起きた後の構造を Fig. 5 (b) に示す。図示した積層構造と原子配置は、太線で示した原子と結合をそのままシフトさせることでつくられる。Fig. 5 (b) において、左側が 4H-SiC であり、右側が SSF である。図に示すようにすべった領域とすべらずに残った領域の境界において、ダングリングボンドを持つ C 原子ができる。このダングリングボンドがある状態はエネルギー的に不安定であるので、ダングリングボンドを持つ C 原子同士が結合する。結合後の構造を Fig. 5 (c) に示す。C-C 結合による転位が形成されている。なお、この転位は断面図 (上図) において紙面に垂直方向に走っており、原子配置図 (下図) においては上下方向に走る。またこのように C-C 結合による部分転位は C コア部分転位と呼ばれており、さらにすべった方向と転位の走る方向のなす角を頭につけて、 $90^\circ$  C コア部分転位と呼ばれる。なお、図示した C-C 結合は single-period structure と呼ばれる最も単純な結合の仕方であり、実際の結合はより複雑であることが示唆されている<sup>31)</sup>。

左下への C'→B すべりによって形成される構造を Fig. 5 (d) と Fig. 5 (e) に示す。Si 原子からダングリングボンドが供給されており、再結合することで Si-Si 結合が形成される。このような部分転位は、さきほどと同様の定義によって  $30^\circ$  Si コア部分転位に分類される。C'→B すべりにはもう一つの方向がある。すなわち左上方向へのすべりである。このすべりによって形成される構造の  $\{11\bar{2}0\}$  面への投影図は、左下方向へのすべりのそれと同じである。すなわち、左上方向へのすべりで形成される積層構造は Fig. 5 (e) の上図に

示す積層構造と同じものである。なお、Fig. 4 (c) に示す DSF は、Fig. 5 (c) もしくは Fig. 5 (e) に示す SSF から G2 面で A'→C すべりが追加ですべることによって形成される。このとき、先ほどと同様の考え方で、A'→C すべりには 3 方向（右方向、左上方向、左下方向）ありえる。ここで気を付けるべきことは、G1 面でのすべり方向と G2 面でのすべり方向は同じもしくは 120° 異なるということである。

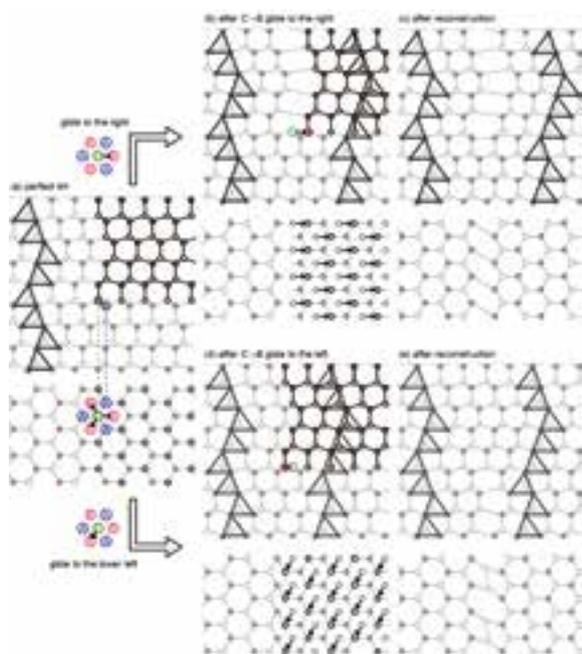


Fig. 5 Stacking sequences and atomic positions (a) before glide, (b), (c) after C'→B glide to the right at G1 plane and (d), (e) after C'→B glide to the lower left at G1 plane

Fig. 5 と同様の手法で 4H-SiC と SSF の境界の積層構造の全パターンを検討した。Fig. 6 がその検討した結果である。図示した断面構造は  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$  方向から見たものであり、境界に存在する部分転位はすべて紙面に対して垂直方向に走る。それぞれの断面構造において左に 4H-SiC、右に G1, G2, G3, G4 の何れかのすべりで形成された SSF を示す。すべり面の位置は前述のとおり 4 種類考えられる。一方、各すべり面において、すべり方向は 3 方向あるが、 $\{11\bar{2}0\}$  面へ投影した断面構造を考える場合は 2 方向で十分である。そのため全部で 8 パターン（すべり面位置 4 種類×すべり方向 2 方向）ある。鎖線は SSF のすべり面を意味する。また、すべり方向と転位の走る方向の関係と、結合の

仕方（Si-Si 結合 or C-C 結合）から、転位の種類を分類した。30° Si コア部分転位の上側（Si 面側）には余剰原子面が確認できる (Fig. 6 (a), Fig. 6 (b))。あるいは、転位の上側に存在する Si 原子の数が下側に存在する Si 原子の数よりも一つ多いとも言える。30° C コア部分転位の場合は、余剰原子面が下側（C 面側）に存在する (Fig. 6 (c), Fig. 6 (d))。90° Si もしくは 90° C コア部分転位の場合は、Fig. 6 (e), Fig. 6 (f), Fig. 6 (g) および Fig. 6 (h) に示すように、明確な余剰原子面は確認されない。このときバーガスベクトルは左右の構造の違いに現れる。また、断面の積層構造を観察した際は、左右の積層構造を見比べることでコア構造の同定が可能である。

同様の手法で SSF と DSF の境界の積層構造を検討した。Fig. 7 に、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$  方向から観察したときの SSF と DSF の境界の積層構造を示す。なお、積層構造において、境界の部分転位は紙面に対して垂直方向に走っている。SSF からの追加のすべり面の位置は、各 SSF の積層構造について 1 種類しかない。例えば、G1 面でのすべりで形成された SSF から DSF を形成するには G2 面において追加のすべりが発生するしかない。このような G2 面での追加のすべりで形成された DSF の積層構造は Fig. 7 (a) と Fig. 7 (e) に示す通りである。すべり方向に関しては、 $\{11\bar{2}0\}$  面へ投影した積層構造を検討しているので、各 SSF に対して 2 方向考えればよい。そのため、4H-SiC/SSF の境界の構造と同様に、全部で 8 パターン（SSF4 種類×すべり方向 2 方向）ある。また、形成される SSF/DSF の境界の構造も 4H-SiC/SSF の場合と同じ法則が適用できる。すなわち、余剰原子面が転位の上側（Si 面側）にあると 30° Si コア部分転位であり、余剰原子面が転位の下側（C 面側）にあると 30° C コア部分転位である。90° Si コア部分転位や 90° C コア部分転位の場合は、余剰原子面は明確には確認できない。そのため、転位のコア構造の同定には、左右の積層構造から判断するのが良いと思われる。

さて次に DSF の転位ループについて検討する。 $[0001]$  方向から観察した場合の DSF の転位ループを Fig. 8 に示す。2 種類の転位ループが考えられるが、どちらのループにおいても転位線の向きは右回りに

とっており、バーガスサーキットは転位線の向き $\xi$ の周りを右回りにとっている。また、バーガスベクトル $\mathbf{b}$ は、FS/RH (perfect) に従い定義した<sup>32)</sup>。この定義に従うと、Fig. 5において矢印で示したSi原子のすべりが部分転位のバーガスベクトルに相当する。太い実線はSiコア部分転位、太い鎖線はCコア部分転位、そしてハッチングしている領域がDSFである。Fig. 8 (a)に示すように、一層目のすべり方向と二層目のすべり方向が同じ方向のDSFをtype Aとした。このときDSF外縁部を走る2本の部分転位のバーガスベクトルは同じである。図示したtype AのDSFでは、部分転位は2本とも $\mathbf{b} = 1/3 [1\bar{1}00]$ であり、2本の合計のベクトルは $\mathbf{b} = 2/3 [1\bar{1}00]$ である。一方で、一層目

と二層目のすべり方向が $120^\circ$ 異なる場合もあることを述べた。このようなDSFをtype Bと分類した。代表的なtype BのDSFをFig. 8 (b)に図示する。この図示したtype BのDSFは外側をループする部分転位は $\mathbf{b} = 1/3 [10\bar{1}0]$ のバーガスベクトルを持っており、内側をループする部分転位は $\mathbf{b} = 1/3 [0\bar{1}10]$ のバーガスベクトルを持っている。結果、2本のバーガスベクトルの合計は $\mathbf{b} = 1/3 [1\bar{1}00]$ となる。このようにtype AとBを囲む転位ループのバーガスベクトルはどちらも $[1\bar{1}00]$ 方向に平行となる。しかし、その構造は明らかに異なり、この結果は2本の部分転位を個別に同定する必要があることを示唆している。

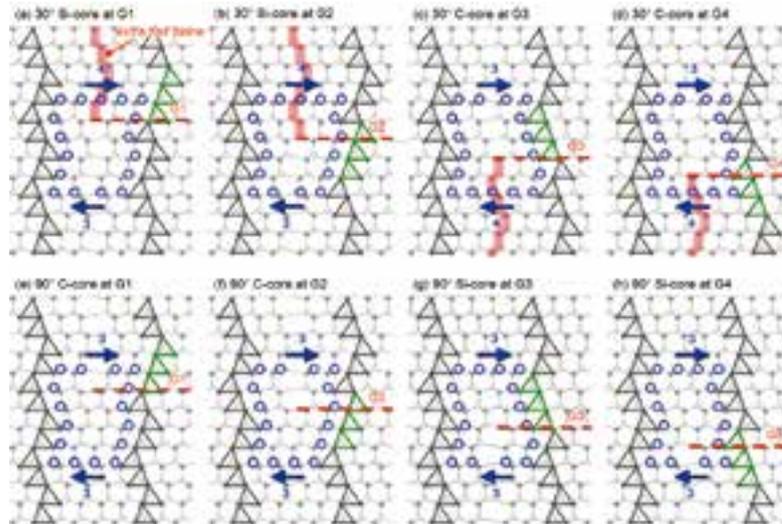


Fig. 6 Every types of stacking sequences at the boundaries between perfect-4H and SSFs when bounding PDs lie in the direction of  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$

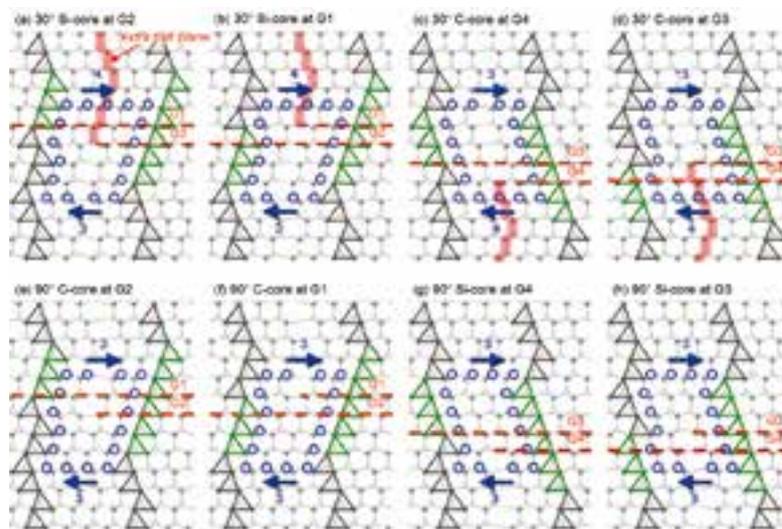


Fig. 7 Every types of stacking sequences at the boundaries between SSFs and DSFs when bounding PDs lie in the direction of  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$

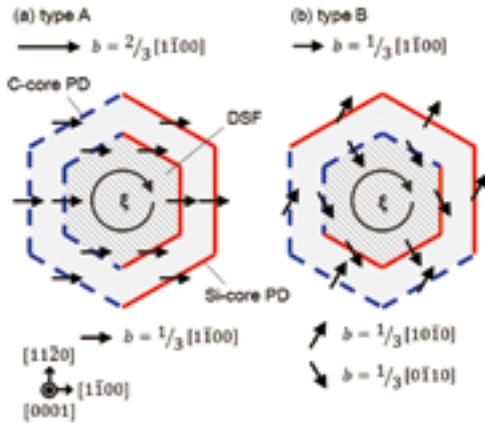


Fig. 8 Dislocation loops with Burgers vectors of (a)  $b=2/3 [1100]$  and (b)  $b=1/3 [1100]$  which enclose DSFs

### 3.3 DSF の構造同定

Fig. 9 (a) は、Fig. 2 で示した DSF を  $g = \bar{1}\bar{1}28$  の回折条件で観察した放射光トポグラフィ像である。エピ膜/基板の界面転位は図中において白い点線で示しており、この回折条件においてコントラストが消失した。なお、Fig. 2 (f) に示すように、 $g = \bar{1}2\bar{1}8$  の回折条件では暗い転位コントラストとして現れている。転位コントラストで囲まれている領域が DSF である。DSF 下端の  $[1\bar{2}10]$  方向に走る転位について暗視野での平面 TEM 観察を行った。 $g = \bar{1}2\bar{1}0$  の回折条件での TEM 観察より、DSF の端部の 2 本の部分転位は離れて存在しており、その距離はおおよそ 50 nm であることが判明した (Fig. 9 (b))。各すべり面の端部に部分転位は存在することから、2 本の部分転位の間の領域は、すべり

面は 1 層しかない。すなわち狭い幅の SSF が存在していることを示唆している。この部分転位のコントラストは、 $g = \bar{1}1\bar{2}0$  の回折条件にて 2 本とも消失した (Fig. 9 (c))。転位のコントラストは、ベクトルの内積  $g \cdot b$  に依存する。そのためバーガースベクトル  $b$  が回折ベクトル  $g$  に垂直なとき ( $g \cdot b = 0$ )、転位コントラストは消失する。 $g = \bar{1}1\bar{2}0$  において、転位コントラストが消失したことから、部分転位は 2 本ともバーガースベクトル  $b = \pm 1/3 [1\bar{1}00]$  を持つことが分かった。しかし、一方でバーガースベクトルの方向 (プラス or マイナス) までは、 $g \cdot b$  解析からは分からない。

Fig. 8 に示すように部分転位のコア構造は、転位線の向きとバーガースベクトルで決まる。Fig. 9 (b) に示す部分転位のバーガースベクトルが  $b = 1/3 [1\bar{1}00]$  であれば、 $30^\circ$  Si コア部分転位であり、 $b = 1/3 [\bar{1}100]$  であれば、 $30^\circ$  C コア部分転位である。逆にコア構造 (Si コア or C コア) が決定できれば、バーガースベクトルも決まる ( $b = 1/3 [1\bar{1}00]$  or  $b = 1/3 [\bar{1}100]$ )。そこで、各部分転位のコア構造を断面 HAADF-STEM によって特定した。なお同定にあたり、HAADF-STEM で観察された積層構造と 3.2 での結晶学的に検討した積層構造を比較した。適用した、 $[\bar{1}2\bar{1}0]$  方向からの DSF/SSF および SSF/perfect-4H の積層構造の観察結果をそれぞれ Fig. 9 (d) と Fig. 9 (e) に示す。なお、境界に存在する部分転位は各画像において紙面に垂直方向に走る。DSF/SSF の境界の積層構造において、点線で示す余剰原子面が上面 (Si 面側) に観察される (Fig. 9 (d))。

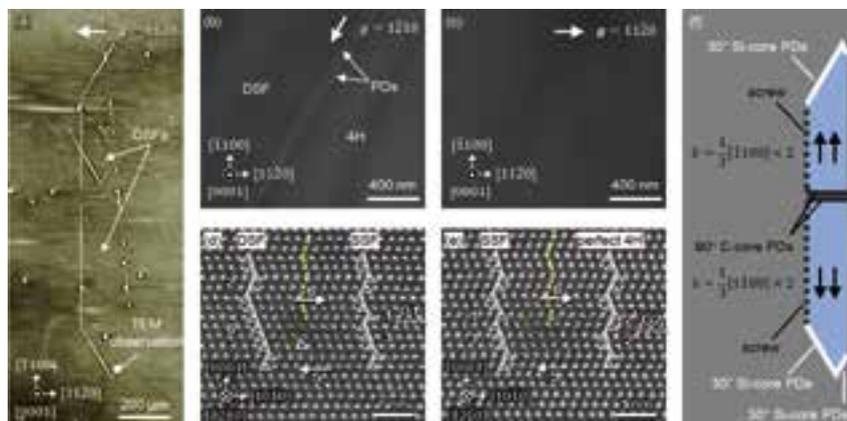


Fig. 9 (a) Synchrotron X-ray topography image of typical DSFs, plan-view TEM images of PDs taken under the diffraction of (b)  $g = \bar{1}2\bar{1}0$  and (c)  $g = \bar{1}1\bar{2}0$ , cross-sectional HAADF-STEM images at the boundaries of (d) DSF/SSF and (e) SSF/perfect-4H and identified structure of the DSFs

また、この積層構造は Fig. 7 (b) に対応する。すなわち、DSF/SSF の境界に存在する部分転位は  $30^\circ$  Si コア部分転位であることが判明した。さらに、SSF/perfect-4H の境界に存在する部分転位についても同様に同定し、 $30^\circ$  Si コア部分転位であることが分かった (Fig. 9 (e))。この SSF/perfect-4H の境界の積層構造は、Fig. 6 (b) に相当する。断面の積層構造の観察より、部分転位はどちらも  $30^\circ$  Si コアであることが分かり、さらに  $g \cdot b$  解析との組み合わせより部分転位のバーガスベクトルは  $b=1/3 [1\bar{1}00]$  であると決定された。

この結果を踏まえて同定された DSF の構造を Fig. 9 (f) に図示する。図中の矢印は部分転位のバーガスベクトルを表している。また太い白線、太い黒線はそれぞれ  $g=\bar{1}\bar{1}28$  の回折条件での放射光トポグラフィ像において明るく観察された転位と暗く観察された転位である。前述したように下側の DSF の端部の部分転位はどちらも  $b=1/3 [1\bar{1}00]$  のバーガスベクトルを持つ。一方で、上側の DSF は下側の DSF と上下対称な形状をしており、放射光トポグラフィ像における転位コントラストも上下対称である。そのため上側の DSF の外縁部の部分転位はどちらも  $b=1/3 [\bar{1}100]$  のバーガスベクトルを持つことが推定される。さらに、 $g=\bar{1}\bar{1}28$  の回折条件における放射光トポグラフィ像 (Fig. 9 (a)) と同定した構造の比較から、Si コア部分転位のペアは明るいコントラストを持ち、C コア部分転位のペアは暗いコントラストを持つことが分かった。また、2 本の部分転位のバーガスベクトルの合計は  $b=2/3 [1\bar{1}00]$  と

$b=2/3 [\bar{1}100]$  であり、この回折条件 ( $g=\bar{1}\bar{1}28$ ) において転位コントラストが消失したことも一致する。

異なる形状を持つ DSF についても同様の解析を行った。Fig. 10 (a) は  $g=\bar{1}\bar{1}28$  の回折条件にて取得した DSF の放射光トポグラフィ像である。この四角形型の DSF は、 $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の高密度窒素ドープエド膜を  $1000^\circ\text{C}$ 、合計 4 h の熱処理後に観察された DSF の一つである。DSF の端部を走る転位が放射光トポグラフィ像から確認できる。界面転位と下端の転位は明るいコントラストを持ち、上端の転位は暗いコントラストを持つ。このうち下端の明るいコントラストを持つ転位について暗視野平面 TEM 観察を行った。 $g=\bar{1}\bar{1}20$  での平面 TEM 像より、2 本の部分転位はおおよそ 50 nm 程度離れて存在していることが確認できた (Fig. 10 (b))。この距離は、Fig. 9 (b) に示す部分転位間の距離とほぼ等しい。 $g=\bar{2}110$  において転位コントラストが 2 本とも消失したことから (Fig. 10 (c))、部分転位は 2 本とも  $b=\pm 1/3 [0\bar{1}10]$  のバーガスベクトルを持つことが判明した。また、各部分転位のコア構造も HAADF-STEM により同定した。余剰原子面が上側 (Si 面側) に存在していることからこの部分転位はどちらも  $30^\circ$  Si コア部分転位であることが判明した (Fig. 10 (d), Fig. 10 (e))。また、Fig. 10 (d), Fig. 10 (e) に示す積層構造はそれぞれ Fig. 6 (b), Fig. 7 (b) に対応する。このような観察を通じて、部分転位のバーガスベクトルはどちらも  $b=1/3 [0\bar{1}10]$  であることが分かった。

Fig. 9 (f) に、四角形の形状を持つ DSF の構造の同

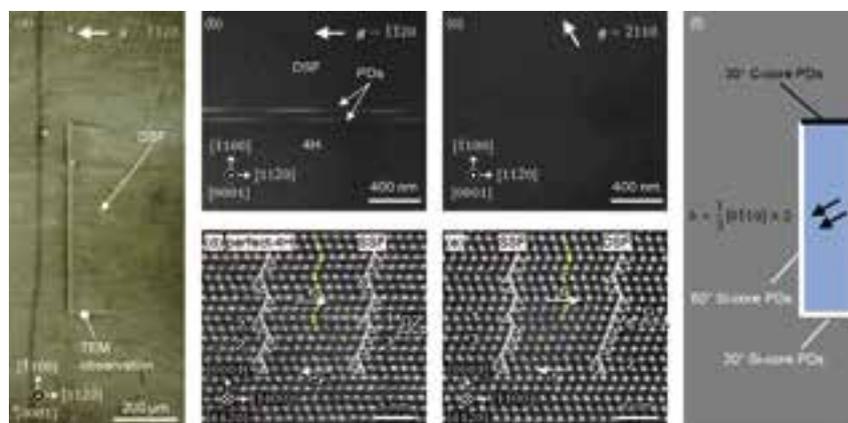


Fig. 10 (a) Synchrotron X-ray topography image of the square-shape DSF, plan-view TEM images of PDs taken under the diffraction of (b)  $g=1120$  and (c)  $g=2110$ , cross-sectional HAADF-STEM images at the boundaries of (d) perfect-4H/SSF and (e) SSF/DSF and (f) identified structure of the DSF

定結果を図示する。太い白線は、 $g=\bar{1}\bar{1}28$ での放射光トポグラフィ観察にて明るく観察された転位を意味する。一方で、太い黒線は、 $g=\bar{1}\bar{1}28$ での放射光トポグラフィ観察にて暗く観察された転位を意味する。決定した各部分転位のバーガースベクトルより、明るいコントラストで観察された界面転位は  $60^\circ$  Si コア部分転位のペアであり、一方暗いコントラストで観察された上端の転位は  $30^\circ$  C コア部分転位のペアであることが分かった。確認のため、上端の2本の  $30^\circ$  C コア部分転位についても平面 TEM および断面 HAADF-STEM 観察を行い、確かに  $30^\circ$  C コア部分転位であることを確認した。また、この2本の  $30^\circ$  C コア部分転位はおおよそ  $70\text{ nm}$  程度離れて存在することが分かった。

Fig. 11 は、形状は四角形でありながら、長さが短い DSF についての構造解析の結果である。図示した DSF は、 $1000^\circ\text{C}$ 、 $4\text{ h}$  の熱処理後のエピ膜（窒素密度  $4.9 \times 10^{19}\text{ cm}^{-3}$ ）中に発生したものである。放射光トポグラフィ像において、エピ膜/基板界面の転位は暗いコントラストで観察され (Fig. 11 (a)), Fig. 10 (a) に示す類似の形状を持つ DSF とは異なるコントラストを示す。この界面転位のトポコントラストの違いは、Fig. 11 (a) に示す DSF と Fig. 10 (a) に示す DSF の構造が異なることを示唆する。放射光トポグラフィ像にて明るいコントラストを持つ上端の転位について平面 TEM と断面 HAADF-STEM を用いて観察を行った。その結果、この上端の2本の部分転位はおおよそ  $50\text{ nm}$  離れて存在していることが分かった (Fig. 11

(b))。この距離は他の2つの DSF (Fig. 9, Fig. 10) における  $30^\circ$  Si コア部分転位同士の距離とほぼ同じである。さらに、 $g \cdot b$  解析よりこの2本の部分転位はどちらも  $b = \pm 1/3 [0\bar{1}10]$  のバーガースベクトルを持つことが判明した (Fig. 11 (c))。各部分転位周辺部の積層構造を HAADF-STEM により観察し (Fig. 11 (d), Fig. 11 (e))、この2本の部分転位はどちらも  $30^\circ$  C コア部分転位であることが分かった。また、この結果、バーガースベクトルは  $b = 1/3 [01\bar{1}0]$  と決定された。同定した DSF の構造を Fig. 11 (f) に図示する。放射光トポグラフィ像との比較から、他の DSF と同様のトポコントラストを示すことが分かった。すなわち、Si コア部分転位のペアは明るく、C コア部分転位のペアは暗く観察される。

Fig. 12 (a), Fig. 12 (b) は、 $625^\circ\text{C}$  の比較的低温の熱処理で発生した DSF の放射光トポグラフィ像である。回折条件は  $g=\bar{1}\bar{1}28$  である。DSF の上端の転位は、放射光トポグラフィ像にて明るいコントラストで観察される (Fig. 12 (a))。一方で、DSF の下端の転位は暗いコントラストで観察される (Fig. 12 (b))。また、界面転位の転位コントラストはこの回折条件にて消滅した。Fig. 12 (c) に示すように、下端の暗いコントラストを持つ転位を  $g=\bar{1}2\bar{1}0$  での平面 TEM 観察を行ったところ、この転位は2本の部分転位で構成されていることが判明した。また、その距離はおおよそ  $80\text{ nm}$  と、2本の  $30^\circ$  Si コア部分転位間の距離や2本の  $30^\circ$  C コア部分転位間の距離と比べて、離れていることが

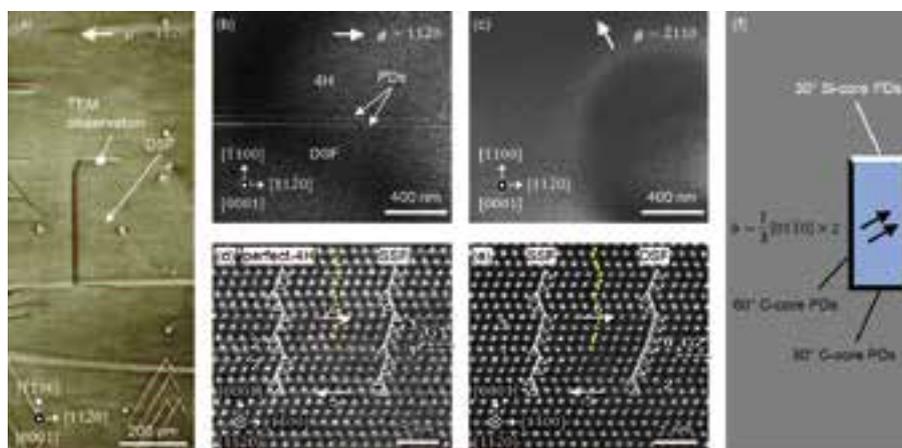


Fig. 11 (a) Synchrotron X-ray topography image of the square-shape DSF with shorter length, plan-view TEM images of PDs taken under the diffraction of (b)  $g=1120$  and (c)  $g=2110$ , cross-sectional HAADF-STEM images at the boundaries of (d) perfect-4H/SSF and (e) SSF/DSF and (f) identified structure of the DSF

分かった. さらにこの2本の部分転位の転位コントラストは,  $g=11\bar{2}0$  の回折条件で消失した (Fig. 12 (d)). これより, この部分転位のバーガースベクトルは  $b=\pm 1/3 [1\bar{1}00]$  であることが分かった.

この2本の部分転位のコア構造は,  $90^\circ$  C コアであることが断面 HAADF-STEM 観察から判明した (Fig. 12 (e), Fig. 12 (f)). 観察された 4H-SiC/ SSF の境界の積層構造 (Fig. 12 (e)) は, Fig. 6 (e) に対応している. また, 観察された SSF/DSF の境界の積層構造 (Fig. 12 (e)) は, Fig. 7 (e) に対応する. 同定された DSF の構造を Fig. 12 (g) に図示する.  $g \cdot b$  解析 (Fig. 12 (c), Fig. 12 (d)) およびコア構造の (Fig. 12 (e), Fig. 12 (f)) から, この DSF の端部に存在する部分転位のバーガースベクトルは  $b=1/3 [\bar{1}100]$  であることが分かった. すでに述べたように追加の熱処理によって DSF は下方に拡大した. 構造同定の結果を踏まえると, この DSF 拡大は  $90^\circ$  C コア部分転位の運動によって起きていることが判明した. また, 部分転位のバーガースベクトルは  $b=1/3 [\bar{1}100]$  であることから判断すると, 上端の転位は  $30^\circ$  Si コア部分転位である. 一般的に Si コア部分転位は C コア部分転位よりも運動しやすい転位として知られている<sup>11) 33)-36)</sup>. しかし,  $600-650^\circ$  C の熱処理において, Si コア部分転位と目される上端の明るいコントラストを持つ転位は運動しなかった. すなわち, 今回の実験においては,  $90^\circ$  C コア部分転位が可動転位であり,  $30^\circ$  Si コア部分転位が不動

転位であった. 確認のため, 上端の明るいコントラストを持つ転位について断面 HAADF-STEM 観察を行った. その結果, この転位は確かに  $30^\circ$  Si コア部分転位のペアであることを確認した.

$1000^\circ$  C の熱処理で発生した3つの DSF と  $625^\circ$  C の熱処理で発生した1つの DSF について, 放射光トポグラフィ観察, 平面 TEM 観察, 断面 HAADF-STEM 観察を行った (Fig. 9-12). これらの観察により, 高密度窒素ドーパ 4H-SiC 結晶中に熱処理によって発生する DSF についていくつかの規則があることが分かった. 1つは DSF の端部の転位は, 2本の部分転位で構成されており, また2本の部分転位は離れて存在していることである. また, その距離は部分転位のコア構造に依存しており,  $30^\circ$  Si コア部分転位同士では  $50$  nm,  $30^\circ$  C コア部分転位同士では  $70$  nm,  $90^\circ$  C コア部分転位同士では  $80$  nm であった. Idrissi らは,  $30^\circ$  Si コア部分転位同士はおおよそ  $60$  nm 離れていると報告しており<sup>10)</sup>, 本研究で算出した値と比べると少し異なる. 一般に2本の部分転位の距離 (その間に存在する SF の幅) は SF の形成エネルギーに依存し, さらに SF の形成エネルギーは窒素のドーピング密度の影響を受ける<sup>20)37)38)</sup>. このことを考慮すると Idrissi らの報告と本研究におけるこの距離の違いは, 窒素のドーピング密度に起因する可能性がある. また, 2本の部分転位は同じバーガースベクトルを持つことを新たに発見した. これは, 熱処理で発生する DSF は, Fig. 8

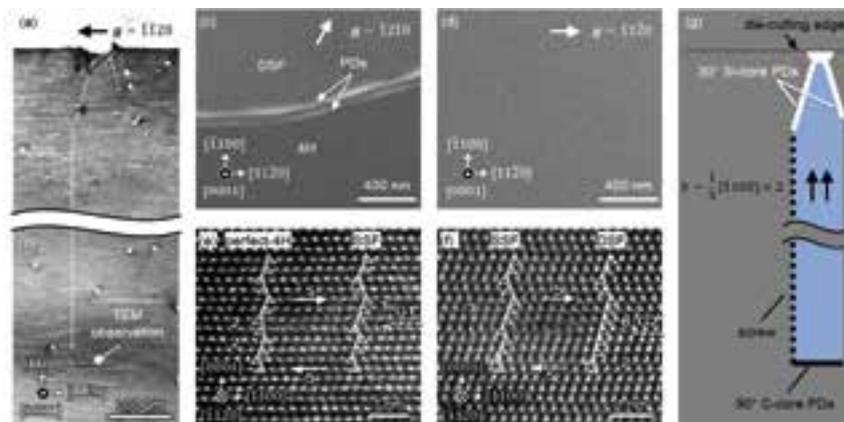


Fig. 12 Synchrotron X-ray topography image (a) at upper and (b) lower ends of the DSF formed by annealing at  $625^\circ$  C taken under the diffraction of  $g=1\bar{1}28$ . Plan-view TEM images of PDs the lower edge of the DSF taken under the diffractions of (c)  $g=1\bar{2}10$  and (d)  $g=11\bar{2}0$  and cross-sectional HAADF-STEM images of the PDs at the boundaries between (e) perfect-4H and SSF and (f) SSF and DSF. (g) Schematic illustration of the identified structure of the DSF.

でいうと type A に分類されることを意味する。

さらに、同定した DSF の構造と放射光トポグラフィ像を比較することで、放射光トポグラフィ像におけるトポコントラストの規則を明確にした。すなわち、 $g=\bar{1}\bar{1}28$  の回折条件において、Si コア部分転位のペアは明るいコントラストを持ち、C コア部分転位のペアは暗いコントラストを持つことである。先行研究によって SSF の端部を走る部分転位のコントラスト規則が判明しており<sup>24) 25)</sup>、 $g=\bar{1}\bar{1}28$  において Si コア部分転位は明るく、C コア部分転位は暗く観察されることが分かっている。すなわち、DSF においては端部の転位は 2 本の部分転位で構成されているものの、同じコントラスト規則を適用できることが判明した。本研究によって、放射光トポグラフィ観察による DSF 構造の同定手法が確立したと言える。

### 3.4 DSF の拡大挙動

最後に DSF の拡大挙動について調べた。Fig. 13 は、DSF の拡大挙動に対する窒素密度の影響と DSF の構造による影響を示している。窒素密度が  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜と  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜を繰り返し熱処理を行った。熱処理温度は  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜については  $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ 、 $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜については  $1000 \text{ }^\circ\text{C}$  とした。窒素密度の低いエピ膜 ( $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) 中に発生した DSF の放射光トポグラフィ像の一例を Fig. 13 (a) に示す。なお、回折条件は  $g=\bar{1}\bar{1}28$  であり、合計で 2.5 h の熱処理後のエピ膜を観察した像である。転位のコントラストから判断すると、部分転位 1 本あたりのバーガスベクトルは  $b=1/3 [1\bar{1}00]$  である。暗いコントラストを持つ C コア部分転位の片側の端は、円状の明るいコントラストに繋がっている。このコントラストはスクラッチのダメージによって導入された歪である。このようなダメージは DSF の発生起点になることから、円状の明るいコントラストのある領域において DSF は核形成し、明るいコントラストを持つ Si コア部分転位が下方に拡大したと結論付けた。また、Si コア部分転位は運動したものの、暗いコントラストを持つ C コア部分転位は動かなかったものと思われる。Fig. 13 (b) は断続的な繰り返し熱処理による DSF 拡大を示す PL イメージング像である。こ

の PL イメージング像からも、DSF は Si コア部分転位の運動によって拡大したことが示唆される。この DSF の拡大挙動も Fig. 13 (b) に図示している。この DSF は、エピ膜/基板界面に到達する前までは二等辺三角形の形状を保ちながら拡大した。エピ膜/基板界面に到達後は、 $[\bar{1}\bar{1}20]$  方向への拡大は界面において停止した一方で、下方への DSF 拡大はそのまま継続した。また、この DSF 拡大において、DSF 上端の位置は維持したままであった。

菱形の DSF も同じエピ膜中 (窒素密度:  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ) に複数観察された。一例を Fig. 13 (c) に示す。 $g=\bar{1}\bar{1}28$  の回折条件で取得した放射光トポグラフィ像における転位コントラストより、部分転位のバーガスベクトルは 1 本あたり  $b=1/3 [\bar{1}010]$  であることが分かった。この DSF の拡大挙動を Fig. 13 (d) に示す。DSF は、拡大に伴い菱形から直角三角形へと形状を変えた。DSF が直角三角形になった後は、追加の熱処理を実施してもそれ以上の拡大は観察されなかった。この結果は、Si コア部分転位は可動転位であり、C コア部分転位は不動転位であることを示唆する。Fig. 13 (a)-(d) に示す 2 タイプの DSF の拡大挙動から、窒素密度  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の 4H-SiC 結晶中において、C コア部分転位のペアは運動しない一方で、Si コア部分転位のペアが運動することで DSF が拡大すると結論付けた。また、ここで示した DSF の拡大挙動と結論は、Yang らによる放射光トポグラフィ観察の報告<sup>26)</sup> とよく一致する。また、先行研究において DSF は  $2-3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  以上の窒素ドーピング密度において発生・拡大するとされてきたが、それよりも低い窒素密度においても DSF は発生・拡大することを新たに発見した。

窒素密度  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜中に発生した DSF の放射光トポグラフィ像の一例を Fig. 13 (e) に示す。このトポグラフィ像は、 $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ 、合計 1.5 h の熱処理後のエピ膜を  $g=\bar{1}\bar{1}28$  の回折条件で取得したものである。DSF の端部の部分転位のバーガスベクトルは  $b=1/3 [1\bar{1}00]$  であり、Fig. 13 (a) に示す DSF の部分転位のバーガスベクトルと同じである。このように、DSF の構造は同じであるにも関わらず、Fig. 13 (a) に示す DSF と形状は異なる。放射光トポグラフィ像において、中心付近に観察される明るい円状のコントラ

ストが、DSFの発生起点となるダメージを与えられた箇所である。DSFを囲む転位はこのダメージを与えられた箇所に繋がっていない。これはすなわち、Siコア部分転位だけでなく、Cコア部分転位も運動したことを示唆する。このエピ膜について、KOH溶融エッチングを実施し、部分転位起因のエッチピットとダメージによるピットの位置は離れていることを確認した。PLイメージング測定によって追跡観察したDSFの拡大挙動をFig. 13 (f)に示す。Siコア部分転位は、Fig. 13 (b)に示した運動と同じような運動であったが、一方でCコア部分転位も運動した。このCコア部分転位の運動が、少し変わった形状のDSFが発生した原因であると結論付けた。

バーガースベクトル  $b=1/3 [1\bar{1}0]$  の部分転位のペアに囲まれるDSFについても同様に検討した。結果をFig. 13 (g), Fig. 13 (h)に示す。なお、このDSFは、Fig. 13 (c)に示すDSFと同じ構造である。放射光トポグラフィ像 (Fig. 13 (g)) は、1000 °C、合計1.5 hの熱処理後のエピ膜から取得したものである。このDSFにおいても、転位コントラストとダメージ起因のコントラストは離れている。すなわち、Siコア部分転位もCコア部分転位も運動したことを示唆する。このDSFの拡大挙動をFig. 13 (h)に図示する。窒素密度

$9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜中のDSFは最終的に直角三角形になり、それ以上拡大しなかったが (Fig. 13 (d)), 窒素密度がより高いこのエピ膜 ( $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) では、DSFがエピ膜/基板界面に到達した後も拡大し続けた (Fig. 13 (h))。このようなDSFの継続的な拡大は、Cコア部分転位の運動に起因する。なお、Fig. 13 (g), Fig. 13 (h)に示すDSFはFig. 10に示すDSFと同じタイプである。そのため、Fig. 10に示すDSFの形状が四角形であったのは、Siコア部分転位の運動に加えてCコア部分転位の運動があったためであると分かった。Fig. 11に示すDSFも同様にCコア部分転位が運動したことで形成されたDSFである。あるいは、このDSFはCコア部分転位の運動がなければ形成しえないDSFであるとも言える。また、窒素密度  $4.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜中においても、このようなCコア部分転位の運動が確認された。結論として、ある閾値以上に窒素をドーピングすると熱処理によってCコア部分転位も運動することを発見した。Cコア部分転位が運動を始める窒素密度の閾値の決定には、さらなる詳細な解析が必要であるものの、少なくともは  $4.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の窒素密度においては、Cコア部分転位は運動するようである。

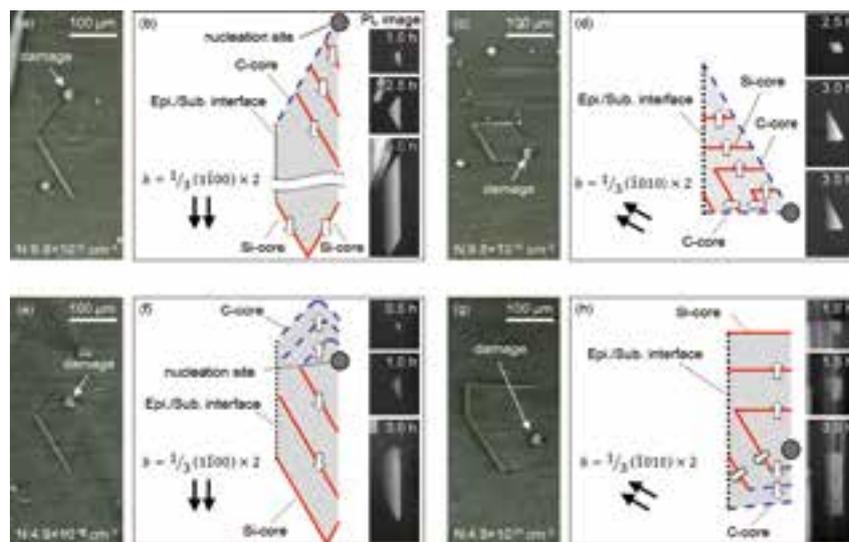


Fig. 13 Synchrotron X-ray topography images of DSFs formed in the epilayers doped with nitrogen in different levels of  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  and  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  taken under the diffraction of  $g=1\bar{1}28$ , and schematic illustrations of expansion behavior of each DSF. The insets show PL images with a BPF of  $500 \pm 20 \text{ nm}$  taken in the course of successive annealing.

## 4. 結論

本論文は、 $1\text{-}5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  と高密度に窒素をドーピングした 4H-SiC 結晶中において発生・拡大する DSF の構造を解析したものである。まず、 $1000 \text{ }^\circ\text{C}$  の熱処理によって高密度窒素ドーピングエピ膜 ( $1\text{-}5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) に多くの DSF が発生することを PL イメージング測定 (BPF:  $500 \pm 20 \text{ nm}$ ) により確認した。また、数は少ないものの  $600\text{-}650 \text{ }^\circ\text{C}$  の比較的低温の熱処理によって、DSF が発生することを発見した。なお、この比較的低温での DSF 発生は、窒素密度  $4.1 \times 10^{19}$ 、 $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のサンプルで確認された一方、窒素密度  $9.8 \times 10^{18}$ 、 $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のサンプルでは確認されなかった。窒素密度  $4.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  のエピ膜において、 $1000 \text{ }^\circ\text{C}$  の熱処理で発生した典型的な形状を持つ 3 つのタイプの DSF と  $625 \text{ }^\circ\text{C}$  の熱処理で発生した DSF について放射光トポグラフィ観察、平面 TEM 観察、HAADF-STEM 観察を実施した。なお、あらかじめ部分転位周りの積層構造と部分転位のコア構造の関係を結晶学的に検討し、明らかにした。これらの観察の結果、DSF の端部の転位は 2 本の部分転位で構成されており、離れて存在していることが明らかとなった。また、この 2 本の部分転位は同じバーガスベクトルを持つことも明らかとなった。結晶学的には、2 本の部分転位のバーガスベクトルの向きは互いに  $120^\circ$  異なる場合もあるが、そのような DSF は観察されなかった。また、2 本の部分転位同士の距離はコア構造に依存することが判明し、その距離は  $50 \text{ nm}$  ( $30^\circ$  Si コア部分転位)、 $70 \text{ nm}$  ( $30^\circ$  C コア部分転位)、 $90 \text{ nm}$  ( $90^\circ$  C コア部分転位) と見積もられた。さらに、DSF 端部の部分転位のトポコントラスト規則を明らかにした。すなわち、 $g = \bar{1}\bar{1}28$  の回折条件において、Si コア部分転位のペアは明るいコントラストで観察され、C コア部分転位は暗いコントラストで観察されることが分かった。これにより、放射光トポグラフィ観察による DSF の構造同定手法が確立された。さらに、窒素ドーピング密度による DSF の拡大挙動への影響も調査した。窒素密度  $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  の場合は、C コア部分転位は不動転位である一方で、Si コア部分転位のペアが運動することが分かった。また、この Si コア部分転位の運動によ

り DSF が拡大することが判明した。窒素密度が  $4.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  以上になると、 $1000\text{-}1100 \text{ }^\circ\text{C}$  の熱処理によって Si コア部分転位のみでなく、C コア部分転位も運動することを発見した。比較的低温 ( $600\text{-}650 \text{ }^\circ\text{C}$ ) における DSF の拡大挙動については、より詳細な解析が必要であるものの、窒素密度が  $4.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  以上の 4H-SiC 結晶で  $90^\circ$  C コア部分転位のペアの運動により DSF が拡大することを発見した。

## 謝辞

本研究は、総合科学技術・イノベーション会議の SIP (戦略的イノベーション創造プログラム) 「次世代パワーエレクトロニクス / SiC 次世代パワーエレクトロニクスの統合的研究開発」(管理法人: NEDO) によって実施された。また、本研究における欠陥構造解析は、国立研究開発法人産業技術総合研究所の内城氏、林氏のご協力のもと実施した。

## 参考文献

- 1) M. Bhatnagar and B.J. Baliga, IEEE Trans. Electron Devices **40**, 645 (1993).
- 2) H. Okumura, Jpn. J. Appl. Phys. **45**, 7565 (2006).
- 3) T. Kimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 040103 (2015).
- 4) N. Ohtani, M. Katsuno, M. Nakabayashi, T. Fujimoto, H. Tsuge, H. Yashiro, T. Aigo, H. Hirano, T. Hoshino, and K. Tatsumi, J. Cryst. Growth **311**, 1475 (2009).
- 5) R.S. Okojie, M. Xhang, P. Pirouz, S. Tumakha, G. Jessen, and L.J. Brillson, Appl. Phys. Lett. **79**, 3056 (2001).
- 6) H.-J. Rost, J. Doerschel, K. Irmscher, D. Schulz, and D. Siche, J. Cryst. Growth **257**, 75 (2003).
- 7) K. Irmscher, M. Albrecht, M. Rossberg, H.-J. Rost, D. Siche, and G. Wagner, Phys. B Condens. Matter **376-377**, 338 (2006).
- 8) Y. Tokuda, I. Kamata, N. Hoshino, T. Kato, H. Okumura, T. Kimoto, and H. Tsuchida, J. Cryst. Growth **468**, 889 (2017).
- 9) I. Yonenaga, Eng. Fract. Mech. **147**, 468 (2015).
- 10) H. Idrissi, G. Regula, M. Lancin, J. Douin, and B. Pichaud, Phys. Status Solidi **2**, 1998 (2005).
- 11) H. Idrissi, B. Pichaud, G. Regula, and M. Lancin, J. Appl. Phys. **101**, 113533 (2007).
- 12) H. Iwata, U. Lindefelt, S. Öberg, and P.R. Briddon, Phys. Rev. B **65**, 033203 (2001).
- 13) U. Lindefelt, H. Iwata, S. Öberg, and P.R. Briddon, Phys. Rev. B **67**, 155204 (2003).
- 14) I. Kamata, X. Zhang, and H. Tsuchida, Appl. Phys. Lett. **97**,

- 172107 (2010).
- 15) G. Feng, J. Suda, and T. Kimoto, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 091910 (2009).
  - 16) G. Feng, J. Suda, and T. Kimoto, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 221906 (2008).
  - 17) S. Izumi, H. Tsuchida, I. Kamata, and T. Tawara, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 202108 (2005).
  - 18) M.S. Miao and W.R.L. Lambrecht, *J. Appl. Phys.* **101**, 103711 (2007).
  - 19) J.Q. Liu, H.J. Chung, T. Kuhr, Q. Li, and M. Skowronski, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 2111 (2002).
  - 20) T.A. Kuhr, J. Liu, H.J. Chung, M. Skowronski, and F. Szmulowicz, *J. Appl. Phys.* **92**, 5863 (2002).
  - 21) C. Taniguchi, A. Ichimura, N. Ohtani, M. Katsuno, T. Fujimoto, S. Sato, H. Tsuge, and T. Yano, *J. Appl. Phys.* **119**, 145704 (2016).
  - 22) I. Kamata, M. Nagano, H. Tsuchida, Y. Chen, and M. Dudley, *J. Cryst. Growth* **311**, 1416 (2009).
  - 23) H. Matsuhata, H. Yamaguchi, and T. Ohno, *Philos. Mag.* **92**, 4599 (2012).
  - 24) H. Matsuhata, H. Yamaguchi, T. Yamashita, T. Tanaka, B. Chen, and T. Sekiguchi, *Philos. Mag.* **94**, 1674 (2014).
  - 25) X.R. Huang, D.R. Black, A.T. Macrander, J. Maj, Y. Chen, and M. Dudley, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 231903 (2007).
  - 26) Y. Yang, J.Q. Guo, O. Goue, B. Raghathamachar, M. Dudley, G.Y. Chung, E. Sanchez, J. Quast, I. Manning, and D. Hansen, *Mater. Sci. Forum* **858**, 105 (2016).
  - 27) P. Pirouz and J.W. Yang, *Ultramicroscopy* **51**, 189 (1993).
  - 28) H. Matsuhata, T. Kato, S. Tsukimoto, and Y. Ikuhara, *Philos. Mag.* **92**, 3780 (2012).
  - 29) H. Sako, H. Matsuhata, M. Sasaki, M. Nagaya, T. Kido, K. Kawata, T. Kato, J. Senzaki, M. Kitabatake, and H. Okumura, *J. Appl. Phys.* **119**, 135702 (2016).
  - 30) P. Pirouz, J.L. Demenet, and M.H. Hong, *Philos. Mag. A* **81**, 1207 (2001).
  - 31) A.T. Blumenau, C.J. Fall, R. Jones, S. Öberg, T. Frauenheim, and P.R. Briddon, *Phys. Rev. B* **68**, 174108 (2003).
  - 32) J.P. Hirth and J. Lothe, *Krieger Publ. Co.* (1992).
  - 33) K. Maeda, K. Suzuki, S. Fujita, M. Ichihara, and S. Hyodo, *Philos. Mag. A* **57**, 573 (1988).
  - 34) P. Pirouz, M. Zhang, J.-L. Demenet, and H.M. Hobgood, *J. Appl. Phys.* **93**, 3279 (2003).
  - 35) M. Skowronski and S. Ha, *J. Appl. Phys.* **99**, 011101 (2006).
  - 36) A. Tanaka, H. Matsuhata, N. Kawabata, D. Mori, K. Inoue, M. Ryo, T. Fujimoto, T. Tawara, M. Miyazato, M. Miyajima, K. Fukuda, A. Ohtsuki, T. Kato, H. Tsuchida, Y. Yonezawa, and T. Kimoto, *J. Appl. Phys.* **119**, 095711 (2016).
  - 37) M.H. Hong, A. V. Samant, and P. Pirouz, *Philos. Mag. A* **80**, 919 (2000).
  - 38) X. Zhang, M. Nagano, and H. Tsuchida, *Mater. Sci. Forum* **717–720**, 335 (2012).

## 著者



### 徳田 雄一郎

とくだ ゆういちろう

マテリアル研究部  
SiC 半導体の結晶成長の研究開発に従事



### 山下 任

やました たもつ

国立研究開発法人 産業技術総合研究所  
先進パワーエレクトロニクスセンター  
SiC 結晶の結晶欠陥構造に関する研究に従事



### 加藤 智久

かとう ともひさ

国立研究開発法人 産業技術総合研究所  
先進パワーエレクトロニクスセンター  
工学博士  
SiC バルク単結晶成長技術、ウエハ加工  
技術の研究開発に従事



### 奥村 元

おくむら はじめ

国立研究開発法人 産業技術総合研究所  
先進パワーエレクトロニクスセンター教授 工学博士  
化合物半導体の結晶成長、物性評価デバイス応用、  
特にワイドギャップ半導体パワーエレクトロニクスの  
研究に従事



### 星乃 紀博

ほしの のりひろ

一般財団法人電力中央研究所 材料科学  
研究所 工学博士  
SiC 結晶成長の研究開発に従事



### 宮澤 哲哉

みやざわ てつや

一般財団法人電力中央研究所 材料科学  
研究所 工学博士  
パワー半導体の研究開発に従事



### 鎌田 功穂

かまた いさほ

一般財団法人電力中央研究所 材料科学  
研究所 工学博士  
SiC 結晶評価の研究開発に従事



### 土田 秀一

つちだ ひでかず

一般財団法人電力中央研究所 材料科学  
研究所 工学博士  
SiC 結晶成長・評価の研究開発に従事



### 木本 恒暢

きもと つねのぶ

京都大学大学院工学系研究科電子工学専攻  
教授 工学博士  
SiC 半導体の結晶成長、物性欠陥評価、プロセス技術、パワー  
デバイスおよび高温デバイスの基礎研究に従事  
半導体ナノワイヤ、抵抗変化型メモリ用酸化物の研究にも従事