

基于同步辐射白光形貌术和 X 射线迹线法的 6H-SiC 单晶结构缺陷研究 *

Investigation on Structural Defects in 6H - SiC Single Crystal by Synchrotron Radiation White-Beam Topography and X-ray Tracing Method

胡小波

HU Xiao-bo

(山东大学晶体材料国家重点实验室, 山东济南 250100)

(State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shangdong, 250100, China)

摘要:【目的】SiC 材料结构缺陷的检测和控制是实现材料应用的关键环节, 因此本文对 6H-SiC 单晶中的结构缺陷进行研究。【方法】采用同步辐射白光形貌术观察 6H-SiC 单晶中的基本螺位错和基平面弯曲, 并利用 X 射线迹线法模拟基本螺位错的形貌和基平面弯曲后衍射斑点的形状。【结果】6H-SiC 单晶中的典型结构缺陷之一为基本螺位错, 它的形貌特征为白色的圆斑; 由于热弹应力的存在, 6H-SiC 单晶在生长过程中容易发生基平面弯曲, 结果导致衍射斑点的形状发生改变。【结论】同步辐射白光形貌术和 X 射线迹线法可以用于检测 6H-SiC 单晶结构缺陷; 样品的基本螺位错密度为 $1.56 \times 10^4 / \text{cm}^2$, 基平面弯曲半径近似为 1 m。

关键词: 基本螺位错 基平面弯曲 6H-SiC 单晶 同步辐射白光形貌术 X 射线迹线法

中图分类号: TG111.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1005-9164(2015)05-0457-05

Abstract:【Objective】A key step to realize the application of SiC materials is the detection and control of structural defects in 6H-SiC single crystals, which was studied herein.【Methods】Elementary screw dislocations and basal plane bending were observed by means of synchrotron radiation white-beam topography. In the meantime, the morphology of an elementary screw dislocation and the shape of diffraction beam in case of basal plane bending were simulated by X-ray tracing method.【Results】One of typical structural defects in 6H-SiC single crystals is the elementary screw dislocation, which exhibits the characteristic of white dot in synchrotron radiation image. Due to the existence of thermo-elastic stress during the 6H-SiC crystal growth, the basal plane is easily bended. As a result, the shape of diffraction beam is deformed.【Conclusion】Synchrotron radiation white-beam topography and X-ray tracing method can be used to examine structural defects in 6H-SiC single crystals. At present work, the density of elementary screw

dislocation is $1.56 \times 10^4 / \text{cm}^2$ and the radius of basal plane bending is approximately 1 meter.

Key words: elementary screw dislocation, basal plane bending, 6H - SiC single crystal, synchrotron radiation white - beam topography, X - ray tracing method

收稿日期: 2015-06-11

修回日期: 2015-07-28

作者简介: 胡小波(1963-), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事人工晶体的生长及晶体中结构缺陷的研究。

* 国家自然科学基金项目(11134006, 61327808)资助。

【研究意义】SiC 是第三代半导体材料的典型代表,具有优良的热学、电学性质及非常高的化学稳定性,如禁带宽度宽、热导率高、饱和电子迁移速率高、临界击穿电场强度大、耐酸碱腐蚀等^[1~3]。因此, SiC 材料可以耐受恶劣环境如高温、高电压、高功率、高频、强辐射。基于上述原因, SiC 材料已经广泛应用于固态照明、汽车电子、雷达通讯、电力传输等领域。由于 SiC 材料的质量直接影响器件的使用,对其结构缺陷的检测和控制是实现材料应用的关键环节。**【前人研究进展】**SiC 单晶衬底的典型结构缺陷之一是微管,其本质是 Burgers 矢量巨大的螺位错,它的存在对器件应用是致命的。研究表明, SiC 二极管在施加反向偏压时,在微管位置处器件非常容易被击穿^[4]。近年来,由于生长技术的进步, SiC 单晶中的微管密度已经得到有效控制,如 Cree 已经能生产零微管密度的 SiC 单晶衬底^[5]。随着 SiC 器件制备技术进步,对单晶衬底的结构完整性要求越来越高,人们开始关注 SiC 单晶中其它的结构缺陷如位错、多型包裹物、掺杂不均匀性、基平面弯曲等^[6~8]。SiC 单晶中的位错主要包括穿透性位错和基平面位错。穿透性位错中 Burgers 矢量为 $1c$ 的纯螺型位错又称为基本螺位错。尽管基本螺位错不会像微管那样给器件带来致命性损害,但它的存在仍然会影响器件的工作效率和长期运行的可靠性^[9,10]。至于基平面弯曲,实际上是 SiC (0001) 晶格平面在热弹应力作用下发生弯曲。基平面弯曲发生后, SiC 单晶衬底(0001)面的法线方向随位置的变化而变化。基平面弯曲是一种严重的塑性形变,会诱发大量基平面位错的形成。由于 SiC 电力电子器件通常在偏向衬底上外延生长,衬底中的基平面位错会延伸进入外延层中,并扩展成 Shockley 型的基平面堆垛层错。因此,基平面位错的存在会影响双极器件长期运行的可靠性^[11,12]。**【本研究切入点】**尽管对 SiC 进行化学腐蚀后,在光学显微镜下可以观察到基平面位错、基本螺位错的腐蚀坑的形态,但化学腐蚀法无法确定这些位错的基本性质,也无法确定基平面是否存在弯曲。**【拟解决的关键问题】**本研究采用背反射和透射同步辐射白光形貌术观察 6H-SiC 单晶中的基本螺位错和基平面弯曲。以基本螺位错的应变场为基础,采用 X 射线迹线法模拟和证实基本螺位错在同步辐射白光形貌像中的形态。假设基平面存在球面弯曲的条件下,采用 X 射线迹线法模拟衍射斑点的形状,并同形貌像进行对比,确定晶体的基平面弯曲半径。

1.1 材料

6H-SiC(0001)单晶衬底材料,衬底直径 50.4 mm,厚度 0.4 mm,生长于晶体材料国家重点实验室,晶体生长过程见文献^[13]。

1.2 方法

采用背反射和透射同步辐射白光形貌术对单晶中的结构缺陷进行观察,实验在北京同步辐射实验室 4W/1A 线束形貌站进行,实验过程中储存环电子能量 2.2 GeV,束流 80~100 mA。同步辐射背反射白光形貌术的衍射几何参考文献^[14],采用对称 000 $\bar{3}0$ 反射几何,入射束与晶体表面的夹角为 83°。同步辐射透射白光形貌像成像过程中,(0001)单晶表面与入射线垂直,采用富士底片记录。

2 结果与分析

2.1 基本螺位错的实验观察

采用同步辐射背反射白光形貌术对(0001)单晶衬底进行观察。根据布拉格方程计算出实验选择的 X 射线波长为 1 Å,样品与底片距离为 20 cm,光斑尺寸为 1 mm×1 mm,由此可得 SiC(0001)单晶衬底 000 $\bar{3}0$ 背反射同步辐射白光形貌像(图 1)。从该形貌像中可以看到许多带有相同直径(大约 26~28 μm)的白点,该白点实际上是基本螺位错的衍射形貌。根据图 1 中白点的分布,可以估算基本螺位错的密度为 $1.56 \times 10^4 / \text{cm}^2$ 。

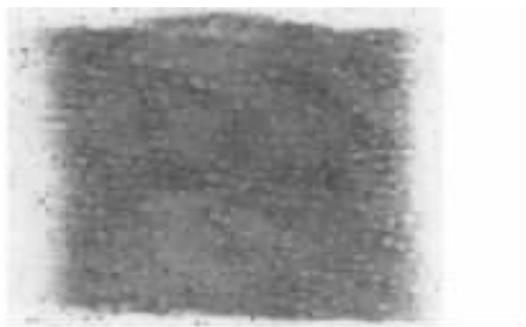


图 1 6H-SiC(0001)单晶衬底的同步辐射背反射白光形貌像,衍射矢量为 000 $\bar{3}0$

Fig. 1 Back-reflection synchrotron radiation white-beam topograph of 6H-SiC (0001) substrate with the 000 $\bar{3}0$ reflection

2.2 基本螺位错形貌像的模拟

采用 X 射线迹线法^[15]模拟基本螺位错的形貌像,并与实验结果进行对比,由此判断图 1 中的白点是否对应于基本螺位错的形貌像。

根据位错理论,沿 z 轴延伸的纯螺位错,在位错

中心邻域产生的位移场可以用以下方程来描述:

$$u_z = (b/2\pi)\tan^{-1}(y/x), \quad (1)$$

其中 b 为螺位错的 Burgers 矢量, 对于 6H-SiC 的基本螺位错, b 即为 6H-SiC 的晶格常数 c ; x, y 为位错中心邻域畸变区任一点的位置。根据方程(1), 可以推导出位错中心邻域发生形变后任一点(0001)面法线方向为

$$\begin{aligned} n_x(x, y, z) &= by/r(b^2 + 4\pi^2 r^2)^{1/2}, \\ n_y(x, y, z) &= -bx/r(b^2 + 4\pi^2 r^2)^{1/2}, \\ n_z(x, y, z) &= 2\pi r/(b^2 + 4\pi^2 r^2)^{1/2}, \end{aligned} \quad (2)$$

其中 $r = (x^2 + y^2)^{1/2}$ 。

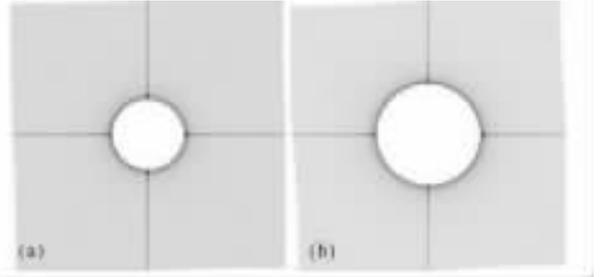
为进行螺位错形貌像的模拟, 将晶格畸变区划分为若干大小相同的小立方体, 假设所有的小立方体均产生相同强度的衍射。类似地, 将底片划分为若干面积相等的小方块。然后根据发生衍射的束线轨迹将所有小立方体产生衍射的 X 射线投射到记录底片上, 每一个小方块所接收到的射线总量即代表该区域的衍射强度。如果样品面积内晶格不发生任何畸变, 则底片上记录到的强度将处处相等; 而如果存在位错, 位错中心邻域晶格发生畸变, 导致衍射面的取向发生变化, 则底片记录的衍射强度将呈现不均匀分布。

与其它晶体不同的是, SiC 单晶中的螺位错具有不同的柏格斯矢量(Burgers 矢量), 如 $1c, 2c, 3c$ 等。为对比不同螺位错的形貌特征, 我们模拟具有不同 Burgers 矢量的螺位错的形貌像, 模拟区域的面积为 $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$, 结果如图 2 所示。从模拟像可以看出: 位错中心一定直径范围内的衍射强度为零, 而在零强度和背景强度的边界上存在高衍射强度环。实际上, 这是由于位错中心附近畸变区域衍射面形变导致衍射线方向发生变化, 引起衍射线聚集在环状区域的结果。底片记录的形貌像实际上为位错的赝像, 零强度区并不代表位错的中心为空心。根据模拟结果, 经测量基本螺位错形貌模拟像中心白点的直径为 $28 \mu\text{m}$, 而 Burgers 矢量为 $2c$ 的螺位错, 其中心白点直径为 $39 \mu\text{m}$ 。因此, 位错的 Burgers 矢量越大, 其形貌像中心零强度区域的直径越大。经比较, 图 2a 的模拟结果与图 1 的实验结果完全一致, 图 1 中的白点均对应基本螺位错, 即 Burgers 矢量最小的螺位错。

2.3 基平面弯曲的观察

采用透射同步辐射白光形貌术对 6H-SiC 的单晶质量进行评价。光源为同步辐射白光, 采用透射 Laue 法成像, 成像时样品与底片之间的距离为 12 cm, (0001)晶面面向并垂直于 X 射线光源, 底片与人

射束垂直。实验中入射光斑尺寸为 $6 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$ 的长方形。对于完整晶体来说, 根据衍射几何, 所有由衍射产生的 Laue 斑点均应与入射光斑具有相同的形状和尺寸。但图 3 中的情况并非如此, Laue 斑点发生严重变形; 而且对不同的衍射, Laue 斑点的变形量并不完全相同, 近似地看, 所有斑点似乎沿着离开中心斑点的方向拉伸。很显然由于衍射晶面发生弯曲, 导致衍射斑点发生上述形变现象。



(a)Burgers 矢量为 $1c$ 的螺位错; (b)Burgers 矢量为 $2c$ 的螺位错。

(a)Burgers vector $1c$; (b)Burgers vector $2c$.

图 2 具有不同 Burgers 矢量的螺位错的形貌模拟像

Fig. 2 The simulation images of screw dislocations with different Burgers vectors

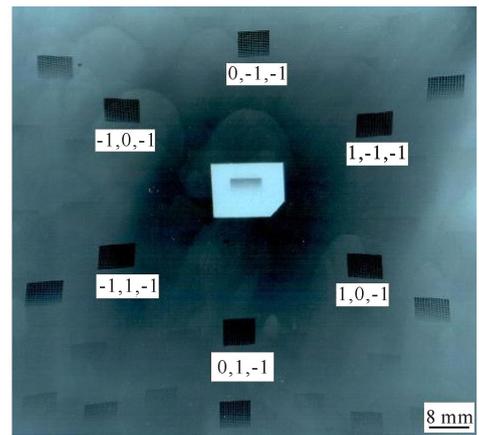


图 3 6H-SiC(0001)衬底的透射同步辐射透射白光形貌像

Fig. 3 Transmission synchrotron radiation white-beam topograph of 6H-SiC (0001) substrate

2.4 衍射斑点形状的模拟

SiC 单晶的生长过程是在 2100°C 以上高温下进行。高温下 SiC 单晶的强度变低, 由于温度场分布等原因, 热弹应力会使晶体产生塑性变形。由于晶体生长是在圆筒形的坩埚中进行, 热弹应力具有中心轴对称性。根据 SiC 单晶生长温度场分布特点, 可以初步判断在热弹应力的作用下, 6H-SiC(0001)晶面发生球形弯曲, 弯曲后(0001)晶面为一凹面。

单晶的基平面发生弯曲后, 样品上每一点晶体学坐标是位置的函数, 这将导致每点的衍射几何各不相同

同,最终衍射斑点发生形变。为模拟基平面弯曲后衍射斑点形状发生的变化,需要考察样品上各点晶体学坐标系发生的变化,再根据衍射几何追踪衍射线的方向,最后可模拟出衍射斑点的形状。为此,我们建立正交坐标系 xyz , 其中 x 平行于 a 轴, z 平行于 c 轴, y 垂直于 x, z 。

以样品中心为坐标原点,如果基平面弯曲半径为 R , 则球心的坐标为 $(0, 0, R)$, 样品任意一点 $(x, y, 0)$ 的 c 轴偏离 $[0001]$ 方向, 对应 (0001) 面的法线方向在正交坐标系中用 $(\cos\alpha, \cos\beta, \cos\gamma)$ 来描述如下:

$$\cos\alpha = \frac{-x}{\sqrt{x^2 + y^2 + R^2}}, \cos\beta = \frac{-y}{\sqrt{x^2 + y^2 + R^2}},$$

$$\cos\gamma = \frac{R}{\sqrt{x^2 + y^2 + R^2}} \quad (3)$$

从样品中心 $(0, 0, 0)$ 到 $(x, y, 0)$ 点的方向矢量为 $(\cos\delta, \sin\delta, 0)$, 其中

$$\cos\delta = \frac{x}{\sqrt{x^2 + y^2}}, \sin\delta = \frac{y}{\sqrt{x^2 + y^2}} \quad (4)$$

在基平面球形弯曲的情况下,样品上任一点 $(x, y, 0)$ 形变后用新坐标 $x'y'z'$ 来描述,新坐标是老坐标围绕 xy 平面内 $(\sin\delta, -\cos\delta, 0)$ 方向矢量旋转而成,新老坐标基矢变换关系如下

$$\begin{pmatrix} i' \\ j' \\ k' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos^2\delta\cos\gamma + \sin^2\delta & \cos\delta\sin\delta\cos\gamma - \cos\delta\sin\delta & \cos\delta\sin\gamma \\ \cos\delta\sin\delta\cos\gamma - \cos\delta\sin\delta & \cos^2\delta + \sin^2\delta\cos\gamma & \sin\delta\sin\gamma \\ -\cos\delta\sin\gamma & -\sin\delta\sin\gamma & \cos\gamma \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} i \\ j \\ k \end{pmatrix} \quad (5)$$

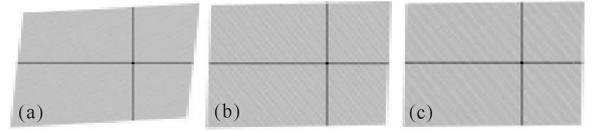
根据衍射几何,样品上任一点 hkl 反射的衍射矢量在底片上的投影可以表示为

$$\mathbf{g}_f = \left\{ \left(\frac{2h}{\sqrt{3}a} + \frac{k}{\sqrt{3}a} \right) (\cos^2\delta\cos\gamma + \sin^2\delta) + \frac{k}{a} (\sin\delta\cos\delta\cos\gamma - \sin\delta\cos\delta) - \frac{l}{c} \cos\delta\sin\gamma \right\} i + \left\{ \left(\frac{2h}{\sqrt{3}a} + \frac{k}{\sqrt{3}a} \right) (\sin\delta\cos\delta\cos\gamma - \sin\delta\cos\delta) + \frac{k}{a} (\cos^2\delta + \sin^2\delta\cos\gamma) - \frac{l}{c} \sin\delta\sin\gamma \right\} j \quad (6)$$

因此,当样品与底片的距离确定后,通过 X 射线迹线法,对任一点不同 hkl 反射,其在底片上的位置就可以确定,自然衍射斑点的位置也相应可以确定。

在假设基平面弯曲半径分别为 1 m, 3 m, 5 m 的情况下,我们分别模拟 $(1, -1, -1)$ 衍射斑点形状,结果如图 4 所示。将上述模拟结果与图 3 的实验结果

相比较,发现基平面弯曲半径为 1m 时,两者很接近。因此可以认为测试样品的基平面弯曲半径近似为 1 m。



(a)基平面弯曲半径 1 m;(b)基平面弯曲半径 3 m;(c)基平面弯曲半径 5 m。

(a) Basal plane bending radius of 1 m;(b) Basal plane bending radius of 3 m;(c) Basal plane bending radius of 5 m.

图 4 采用 X 射线迹线法模拟的 $(1, -1, -1)$ 衍射斑点模拟像

Fig. 4 The shapes of $(1, -1, -1)$ diffraction beams simulated by X-ray tracing method

3 结论

采用同步辐射背反射白光形貌术检测 6H-SiC (0001) 衬底的基本螺位错的分布和密度,发现基本螺位错的形貌为圆形白点,直径为 $26 \sim 28 \mu\text{m}$ 。使用 X 射线迹线法模拟基本螺位错的形貌,模拟结果证实实验观察到的圆形白点确实对应于基本螺位错,晶体中基本螺位错的密度近似为 $1.56 \times 10^4 / \text{cm}^2$ 。采用同步辐射透射白光形貌术研究 6H-SiC 单晶的基平面弯曲,发现基平面弯曲发生后,衍射斑点发生畸变。使用 X 射线迹线法模拟不同弯曲半径下衍射斑点的形状,发现当弯曲半径为 1 m 时,模拟与实验结果符合得比较好,这说明晶体的基平面弯曲比较严重。

参考文献:

- [1] Augustine G, Balakrishna V, Brandt C D. Growth and characterization of high-purity SiC single crystals[J]. Journal of Crystal Growth, 2000, 211(1): 339-342.
- [2] Bickermann M, Hofmann D, Straubinger T L, et al. On the preparation of semi-insulating SiC bulk crystals by the PVT technique[J]. Applied Surface Science, 2001, 184: 84.
- [3] Jenny J R, Skowronski M, Mitchel W C, et al. On the compensation mechanism in high-resistivity 6H-SiC doped with vanadium[J]. Journal of Applied Physics, 1995, 78(6): 3839-3842.
- [4] Neudeck P G, Powell J A. Performance limiting of micropipe defects in silicon carbide wafers[J]. IEEE Electron Device Letters, 1994, 15: 63-65.
- [5] Basceri C, Khlebnikov I, Khlebnikov Y, et al. Growth of micropipe-free single crystal silicon carbide (SiC) ingots via physical vapor transport (PVT)[J]. Materials Science Forum, 2006, 527-529: 39-42.

- [6] Lee J W, Skowronski M, Sanchez E K, et al. Origin of basal plane bending in hexagonal silicon carbide single crystals[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2008, 310(18): 4126-4131.
- [7] Nakamura D, Yamaguchi S, Gunjishima I, et al. Topographic study of dislocation structure in hexagonal SiC single crystals with low dislocation density[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2007, 304(1): 57-63.
- [8] Yakimova R, Syväjärvi M, Iakimov T, et al. Polytype stability in seeded sublimation growth of 4H-SiC boules [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2000, 217: 255-262.
- [9] Neudeck P G, Huang W, Dudley M. Breakdown degradation associated with elementary screw dislocations in 4H-SiC p+n junction rectifiers[J]. *Solid-State Electron*, 1998, 42(12): 2157-2164.
- [10] Lendenmann H, Dahlquist F, Johansson N, et al. Long term operation of 4.5 kV PiN and 2.5 kV JBS diodes [J]. *Materials Science Forum*, 2001, 353-356: 727-730.
- [11] Malhan R K, Nakamura H, Onda S, et al. Impact of SiC structural defects on the degradation phenomenon of bipolar SiC devices[J]. *Materials Science Forum*, 2003, 433-436: 917-920.
- [12] Ohtani N, Ohshige C, Katsuno M, et al. Structural investigation of the seeding process for physical vapor transport growth of 4H-SiC single crystals[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2014, 386: 9-15.
- [13] Hu X B, Xu X G, Li X X, et al. Stacking faults in SiC crystal grown by spontaneous nucleation sublimation method[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2006, 292(2): 192-196.
- [14] Huang X R, Dudley M, Vetter W M, et al. Direct evidence of micropipe-related pure superscrew dislocations in SiC[J]. *Applied Physics Letters*, 1999, 74: 353.
- [15] Huang X R, Dudley M, Vetter W M, et al. Superscrew dislocation contrast on synchrotron white-beam topographs: An accurate description of the direct dislocation image[J]. *Journal of Applied Crystallography*, 1999, 32(3): 516-524.

(责任编辑:米慧芝)