

Fe-Si系溶液を用いたSiC単結晶の溶液成長の界面現象と速度論

| | |
|---------|---|
| 著者 | 川西 咲子 |
| 学位授与年月日 | 2013-09-27 |
| URL | http://doi.org/10.15083/00006382 |

審査の結果の要旨

氏名 川西 咲子

本論文は、Fe-Si系溶液を用いたSiC単結晶の溶液成長プロセスの検討のため、SiCの溶液成長時の界面現象の調査および速度論的検討を行った研究であり、全7章からなる。

第1章では、省エネパワー半導体デバイス用の材料として注目されるSiCについて、バルク単結晶の一般的な製造法の昇華法とその代替法として注目される溶液成長法の特徴と研究開発状況を説明し、パワーデバイス応用のために要求されるSiCの結晶品質を示している。また、Fe-Si系溶液を用いて実施したSiCの溶液成長に関する研究成果を述べて低温高速溶液成長の可能性を示すとともに、SiC結晶の溶液成長分野全般における課題を述べている。それらを踏まえて本研究の位置付けならびに目的を明確にしている。

第2章では、Fe-Si系溶液を用いた温度差法によるSiCの溶液成長における成長メカニズムの検討を行っている。密度差対流抑制下ならびに強制対流下でSiCの溶液成長を1623~1723Kにて実施するとともに、熱流体シミュレーションにより、溶液内の温度分布ならびに流動を予測している。密度差対流抑制下でのSiCの溶液成長の場合、成長層外周部でのみ60~200 $\mu\text{m}/\text{h}$ の顕著な成長が認められている。熱流体解析により、マランゴニ効果が溶液内に大きく影響することを示し、それにより外周部での著しい成長が生じたことを明らかにした。一方、溶液中央近傍での成長速度は小さく、また流動が微弱であることを推算しており、拡散成長によるSiCの高速溶液成長が困難であることを示している。種結晶と原料基板の回転による強制対流下でのSiCの溶液成長の場合、界面全域にて60~160 $\mu\text{m}/\text{h}$ での沿面成長を得ている。溶液成長速度は炭素の過飽和量に比例して増加したことから、溶液内の炭素の物質移動律速であることを明らかにしている。

第3章ではSiC結晶の可視光透過性を利用したSiC-Fe-Si溶液間の高温界面の観察法を検討している。明視野観察により、熔融Fe-36mol%Si合金への4H-SiCの溶解挙動を観察し、1523~1773Kにおいて4H-SiC-溶液間の高温界面の観察に成功している。また、単色レーザー光を利用した干渉観察により、1573Kにおける4H-SiCの溶液成長時の干渉観察像よりステップの高さを評価し、固液界面の10nm以下の高さのステップバンチングの計測に成功している。以上、SiCの溶液成長界面におけるナノメートルオーダーの結晶成長ステップの観察ならびに高さ計測に初めて成功し、SiC-溶液間界面のその場観察法を確立している。

第4章では、3章で確立した可視光透過観察により、Fe-Si溶液へのSiCの溶解時のSiC-溶液間界面のその場観察を行い、溶解挙動の速度論的検討を行っている。4H-SiCが溶液に溶解する際、らせん転位を起点として六角錐状のピットを形成することを確認してい

る。干渉観察により、SiCの溶解厚みの変化を計測し、飽和溶解量から求めた溶液中SiC溶解度と報告値の一致を確かめ、干渉観察による高さ計測の妥当性を示している。また、SiC結晶の溶液への溶解速度が、溶液中炭素の物質移動と界面でのSiCの溶解反応の混合律速であることを示している。さらに溶解ピットの形状より溶解界面近傍の溶液中炭素濃度を求め、それが平衡濃度と近いことを示し、溶液中物質移動が溶解反応の主たる律速段階であることを明らかにしている。

第5章では、3章で確立した可視光透過観察を用いて、4H-SiCの溶液成長時のSiC-溶液間の高温界面のその場観察を実施している。1773Kまでの高温域で、渦巻き成長、島状成長、ステップフロー成長の各成長挙動の観察に成功している。また、干渉観察により溶液成長界面の成長速度の定量評価を行っている。1573Kと1673Kでの溶液成長時の渦巻き成長部の界面形状から界面過飽和度を求め、対流が大きく作用する状況でも成長速度が炭素の物質移動に律速されることを示している。さらに、結晶品質の低下に寄与すると考えられる、バンチングステップの形成要因を推定し、その形成の抑制に対する界面過飽和度の制御の重要性を述べている。

第6章では、SiCの溶液成長プロセスの確立に向けた検討を行っている。強制対流下での溶液成長速度を基に J_D 因子と回転レイノルズ数の相関を得ることにより、種々の温度や基板回転条件にて溶液成長速度の予測を行っている。1773Kにて500 $\mu\text{m/h}$ 以上の成長速度が得られる可能性を示し、Fe-Si系溶液を用いた溶液成長法が他の溶液系での成長や昇華法と比較して、低温高速成長に好適であることを示している。また、界面現象の観察結果に基づいたプロセス設計により、高品質SiC単結晶の育成が可能であることを述べている。

第7章では本研究により得られた成果を総括している。

以上要すると、本論文はFe-Si系溶液を用いたSiC単結晶の溶液成長に関して、成長メカニズムを速度論的に検討するとともに、SiC結晶の溶液への溶解あるいは溶液からの成長時の界面を観察する手法を確立し、界面現象を調査したものである。これらの成果は高品質SiCの高速溶液成長プロセスを構築する上での基礎知見を与え、SiCの溶液成長技術の発展に大きく寄与するものである。

よって、本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。