

審査の結果の要旨

氏名 鳴海 大翔

本論文は、次世代パワーデバイス用の高品質 SiC 単結晶の育成手法として期待される溶液成長法において、成長界面を制御した結晶成長を実現するために重要な、溶液中における SiC 結晶の界面の物理化学的性質の解明を目指した研究であり全7章からなる。

1章は序論として、SiC パワーデバイスの広範な普及と高耐圧化に向けて、現行の昇華再結晶法による単結晶より低欠陥密度の結晶が必要であることを述べている。高品質結晶の育成が期待される溶液成長法と他法の研究開発の状況を説明し、溶液成長法において解決すべき課題が、高速成長時の界面の形態制御にあることを述べ、本論文の目的が溶液中の 4H-SiC 結晶界面の性質の解明であることを示した。

2章では、SiC 結晶の溶液成長界面にて炭素の高過飽和濃度を得られる溶媒系と温度条件を調査するため、主要な溶液系である Si-Cr-C 系、Si-Ti-C 系、Si-Fe-C 系の相平衡関係を実験及び Calphad 法により検討している。Si-23mol%Ti 溶媒と Fe-40mol%Si 溶媒の SiC 飽和炭素溶解度は、液相に準正則溶体モデルを用いた推算結果とよく一致した。一方、Si-40mol%Cr 溶媒中の炭素溶解度は、準正則溶体モデルが測定値の 2-3 倍を予測し、溶液系によっては準正則溶体モデルが適当ではないことを示した。また評価した炭素溶解度を基にして既報における SiC の結晶成長速度を検討した結果、成長の律速過程が溶液中物質移動であることを明らかにした。

3章では、Si 系及び Si-Cr 系溶液中の SiC 結晶の安定晶癖を明らかにするため、系の界面エネルギーを駆動力とするオストワルド成長に着目し、高温溶液に分散した SiC 微粒子の粒成長挙動を評価している。第一に、1873-2173K における溶融 Si 中の 3C-SiC、4H-SiC、6H-SiC 微粒子の晶癖を調査し、基底面に加え溶液成長法で 4H-SiC への多形の制御に重要とされる $(10\bar{1}\bar{2})$ 面が準安定面として現れることを示した。また、4H-SiC は基底面内方向に向かって優先成長することを確認した。次に、溶液成長法で有望な溶媒とされる Si-40mol%Cr 合金中における 4H-SiC の微粒子の粒成長と合金への Al の添加の効果を検討している。

Si-40mol%Cr 合金中では溶融 Si 中より粒成長速度が大きく、粒子が c 軸方向に伸長した晶癖を示すことを確認した。4mol%の Al を添加した合金中では粒成長速度は溶融 Si 中と同等であり、基底面内方向に優先成長する傾向を見出した。以上より、溶媒系に応じて安定晶癖が異なることと、合金への Al の添加が 4H-SiC の基底面を安定化させることを明らかにした。

4 章では、SiC の溶液成長界面における原子レベルの挙動を分子動力学シミュレーションにより調査している。まず、共有結合系材料用に開発された Tersoff ポテンシャルのうち 3 種類について、Si、SiC、Diamond の比熱、密度と Si-C 溶液の混合熱を比較し、T₉₄ ポテンシャルを Si-C 固液共存系の計算に好適なものとして選択している。次に、Si-50mol% C 溶液からの 3C-SiC、4H-SiC、6H-SiC の界面成長挙動を計算した結果、3 章にて得られた安定面と合致した成長速度の異方性を得ている。また、4H-SiC 結晶の{0001}、{10 $\bar{1}$ 0}、{10 $\bar{1}$ 2}面における界面成長の大規模計算を実施し、{0001}面における層状成長と、{10 $\bar{1}$ 0}、{10 $\bar{1}$ 2}面における荒れた界面での成長を示し、{0001}以外の成長面では付着成長機構で成長することを推測している。

5 章では、微粒子の Gibbs-Thomson 効果を用いた SiC 結晶の液相エピタキシー法を検討している。SiC 微粒子を分散した溶融 Si を用いて、4H-SiC 4° オフ基板上に最大 90 μ m/h の高速エピタキシャル成長を得ている。分散溶媒に Si-40mol%Cr 合金と Si-40mol%Cr-4mol%Al 合金を用いた結果、溶融 Si より大きな成長速度を得た。4H-SiC オン基板上でのスパイラル成長速度が溶媒へ Al を添加した合金の場合に小さいことから、溶媒への Al の添加により (000 $\bar{1}$) 面におけるステップエネルギーの増加をもたらすことを示した。得られた結果に基づき、微粒子の Gibbs-Thomson 効果を用いた SiC 結晶の高速液相エピタキシー法を提案している。

6 章では、2 章から 5 章までの結果を踏まえて、SiC の溶液成長界面の不安定性を評価している。凝固分野で用いられる組成的過冷却と摂動論を溶液成長界面に適用し、Si-40mol%Cr 溶媒を用いた溶液成長の安定成長条件を検討し、好適な成長条件を示した。

7 章では、本研究により得られた成果を総括している。

以上のように、本論文は SiC 単結晶の溶液成長法における結晶成長界面の物理化学的性質を検討したものであり、得られた成果は溶液成長時の界面制御のための基礎的な知見を与え、結晶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。