

審査の結果の要旨

氏名 大黒 寛典

本論文は、パワー半導体素子の基盤材料である 4H-SiC の高品質・低コスト育成手法として期待される溶液成長法において、長尺結晶の高速成長を実現するための溶媒の設計指針の確立に向けて、Si-Cr 系溶媒を用いた SiC 単結晶の溶液成長と溶媒への Al 添加の効果を物理化学的に検討した研究であり、全 7 章からなる。

1 章では、省エネ化に寄与するパワー半導体素子の材料として期待される SiC について、現行の昇華再結晶法で作製された結晶の品質に起因する不十分な材料歩留まりが大きな課題であり、高品質基板の低コスト製造法の重要性を述べている。昇華再結晶法およびその代替法である溶液成長法と高温 CVD 法による結晶成長法の特徴と開発状況を述べている。溶液成長法における結晶成長原理と解決課題を説明している。成長の素過程の原理を確認しつつ、Si-Cr 系溶媒を用いた SiC 単結晶の溶液成長と溶媒への Al 添加の効果を物理化学的に検討することが本研究の目的であることを示した。

2 章では、Si-Cr 溶媒中の C 溶解度と溶媒への Al の添加の効果を明らかにするため、1773-2073K において SiC 飽和 Si-Cr 及び Si-Cr-Al 溶媒中の C 溶解度の測定と熱力学的推算を行っている。温度の上昇と溶媒中 Cr 濃度の増加に伴い、C 溶解度が増加する傾向を確認している。この挙動を説明する適切な熱力学モデルを選択するために、液相に準正則溶体モデルと擬化学モデルを用いた評価を行い、前者は特に Si-Cr の中間組成近傍にて C の活量係数を過小に予測し、後者の Si-Cr 間結合を格子間位置の C が阻害することを考慮した擬化学モデルは Si-Cr 合金中の C の活量係数を比較的良く再現することを示している。さらに Si-Cr 溶媒中に 10mol% まで Al を添加した際の C 溶解度の測定を実施し、Al の添加が C 溶解度を増減しないことを明らかにしている。

3 章では、溶液の高温物性が SiC 単結晶の育成時の溶液内の温度や流動分布に与える影響を明らかにするため、Si-Cr 系合金の密度、粘性、表面張力を静電浮遊法により測定するとともに、測定した物性値を用いた熱流体シミュレーションにより溶液内の熱流動を予測している。従来広く行われてきた熔融 Si の物性を代用した推算と比較し、測定した物性値を用いたシミュレーションが、溶

液内の温度差と溶液の流速をともに小さく予測することを示している。さらに Si-40mol%Cr 合金に Al を添加した場合の高温物性を予測して熱流体シミュレーションを行い、溶媒への Al の添加が溶液温度・流動分布に影響を及ぼさないことを示している。

4 章では、成長界面その場観察手法を用いて、Si-40mol%Cr および Si-40mol%Cr-2mol%Al 溶媒中の 4H-SiC の界面成長挙動を 1873、1993K にて調査している。Si-40mol%Cr 溶媒からの成長の場合には、ステップフロー成長時にらせん転位箇所においてステップのピンニングが生じ、テラス幅の拡大とステップのバンチングが進行することを見出している。さらにテラス端からのデンドライト成長の進行を確認し、Si-40mol%Cr 溶媒における (000 $\bar{1}$) 面上での成長時には、バンチングステップが界面不安定性を示すことを示している。Si-40mol%Cr-2mol%Al 溶媒からの成長の場合には、成長開始期に多数の成長丘が発生するとともに、ステップフロー成長に移行した後もステップのバンチングが進行せず、テラス幅を維持した成長が継続することを確認している。このことから溶媒に Al を添加することによってステップが安定化し、ステップのバンチングが抑制されることを明らかにしている。

5 章では、2273K にて Si-40mol%Cr 系溶媒を用いた 2 インチ径の 4H-SiC 結晶の育成を行い、Al の添加による結晶成長形状の変化と、4H-SiC の安定化の影響の調査を行っている。凹界面形状成長時の最成長部が結晶の最外周に存在する (1 $\bar{1}0\bar{2}$) ファセットであり、この特異面の有する原子配列が 4H-SiC の維持を可能とすることを推定している。また Al の添加により同ファセットが拡大し、0.07mol%以上の Al 添加で 4H-SiC 結晶を得られることを示している。さらに種々の結晶面の 4H-SiC 基板を種結晶とした SiC の溶液成長を実施し、Al の添加により特に (1 $\bar{1}0\bar{2}$) 上の成長結晶の表面荒れが抑制されることを確認している。以上を踏まえ、SiC の凹界面形状成長時に溶媒に Al を添加することで外周の (1 $\bar{1}0\bar{2}$) ファセットを安定化して 4H-SiC が継続成長する機構を提案している。

6 章では、大口径、長尺バルク結晶のための好適な溶媒の設計に向けた検討を行い、成長結晶の外周に形成する (1 $\bar{1}0\bar{2}$) ファセットの安定性と溶媒インクルージョンの発生を抑制可能な基底面の安定化を両立する溶媒中 Al の濃度域を推定している。

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 Si-Cr 系溶媒を用いた SiC 単結晶の溶液成長について結晶成長の素過程に及ぼす溶媒系の高温物性の寄与と溶媒への Al の添加効果を検討したものであり、得られた成果は結晶成長速度と欠陥の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。