

準安定溶媒エピタキシー法の動作原理と環境依存性

Driving force and environmental dependency of metastable solvent epitaxy of SiC

西谷滋人¹, 戸賀瀬健介^{1,2}, 藤原博康³, 金子忠昭¹

¹ 関西学院大学工学部、三田市学園 2-1、nishitani@kwansei.ac.jp,

² 関西学院大学大学院、三田市学園 2-1、

³ 京都大学エネルギー科学、京都市左京区吉田本町

アブストラクト

SiC の新規な溶媒成長法である準安定溶媒エピタキシー(Metastable Solvent Epitaxy)の駆動力について準安定平衡状態図から解説する。また、第一原理計算によって得られた SiC 多形の表面エネルギーの環境依存性は極性界面である(0001)面が、Si-rich では安定、C-rich では不安定となる。この結果は、SiC の成長に特有のマイクロパイプの生成消滅が環境に依存していることを示唆している。

1. はじめに

準安定溶媒エピタキシー(Metastable Solvent Epitaxy)は筆者らが開発した新奇な SiC 液相成長法である[1]。その構成は、基板に 4H-SiC、原料板に 3C-SiC を対向させ、その間に薄膜の液体 Si を挟み込む。溶媒の厚みは極めて薄く、数十から数百 μm で、均質な温度環境におかれる。このような結晶成長が起こりにくいと考えられる環境で、4H-SiC がなぜ成長するのか、その駆動力について準安定平衡状態図から解説する。また、第一原理計算によって得られた SiC の極性表面エネルギーの環境依存性について報告する。

2. 準安定平衡状態図(ダブル状態図)からの解釈

溶媒 Si を挟んで対向している 3C と 4HSiC のエネルギー差つまり化学ポテンシャルの差によって物質移動が起こり、結晶成長が進行する。この成長の駆動力はダイヤモンド合成と同じである。ダブル状態図は冶金学においては Fe-C 系のごとくなじみ深く、準安定相を含んだ系においては一般的に現われる。Si(l)と Si(s)をそれぞれ Si の液体、固体とすると、Si(l) \rightarrow Si(s)+SiC(3C)の準安定共晶温度は、Si(l) \rightarrow Si(s)+SiC(4H)の安定共晶温度よりも低い温度にある。対応する自由エネルギー--組成図を

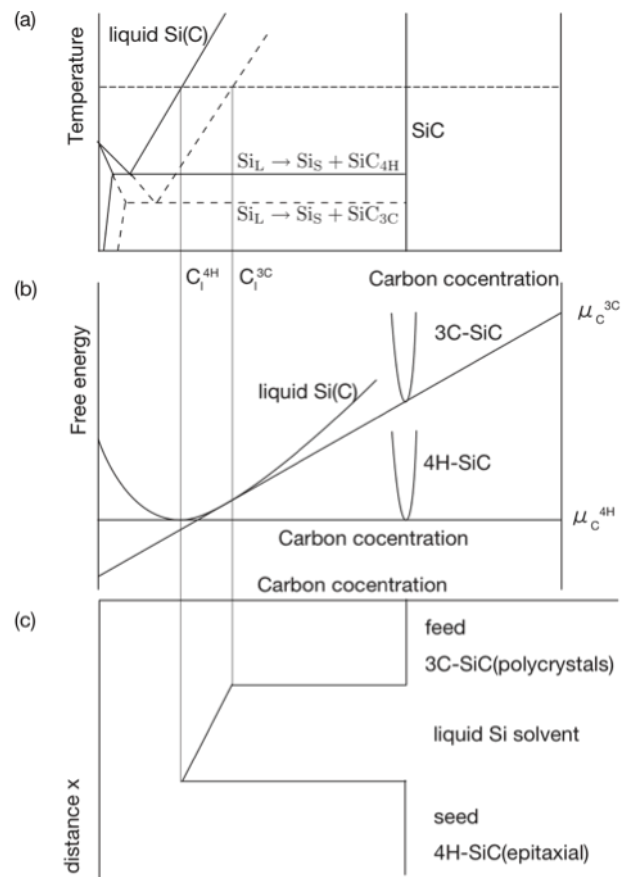


図 1 準安定溶媒エピタキシー法の原理を説明する模式的な (a) 準安定平衡(ダブル)状態図, (b) 組成エネルギー図, および (c) 炭素濃度プロファイル。

図 1(b)に模式的に示した. それぞれの相の溶解度限は, 共存相の自由エネルギーの共通接線で得られる. 温度 T において, 準安定 3C SiC の溶解度は C^{3C} で, 対応する液相線が図 1(a)の破線で示されている. もう一つの安定 4H SiC の固溶限は C^{4H} で実線で示した液相線に対応している. 濃度勾配が, 3C と 4H SiC と間に挟んだ Si 薄膜のサンドイッチ構造から得られる. その模式的な濃度プロファイルを図 1(c)に示した. 3C SiC の準安定溶解度からの濃度勾配によって, フィードから炭素が取り出される. おなじ温度勾配によって, 炭素は液体 Si 中を拡散し, シードの界面へ持ち来らされる. そこで, 炭素は 4H SiC に対して過飽和なため, 析出する.

3. 極性表面エネルギーの環境依存性

計算の対象は, SiC 結晶の多形である 3C, 4H, 6H-SiC, 表面方位は, 六方晶となる 4H, 6H-SiC では極性面となる $\{0001\}$ 面とそれに直交する $\{11-20\}$, $\{1-100\}$ 面を, 立方晶をとる 3C-SiC についてはそれらと等価となる $\{111\}$, $\{1-10\}$, $\{11-2\}$ 面である. 第一原理計算には, 平面波擬ポテンシャル法である VASP を用いた. SiC のスラブモデルを構築し, 化学ポテンシャル差を考慮して, 単位面積あたりの表面エネルギーを求めた. 計算結果を図 2 にまとめた. 各面の表面エネルギーは(a)Si-rich, (b)C-rich のいずれの環境においても, SiC 多形の間で大きな差は見られなかった. 極性面である $\{0001\}$ 面は, Si-rich 環境では最安定面となり, C-rich 環境では最も不安定な面となった. この結果は, SiC の成長に特有のマイクロパイプの生成消滅が環境に依存していることを示唆している. すなわち, Si-rich 環境である準安定溶媒エピタキシー法においてマイクロパイプが閉塞する傾向を示唆している.

参考文献

[1] Shigeto R. Nishitani and Tadaaki Kaneko, "Metastable Solvent Epitaxy of SiC", J. Crystal Growth, Vol 310/7-9 (2008), pp 1815-1818.

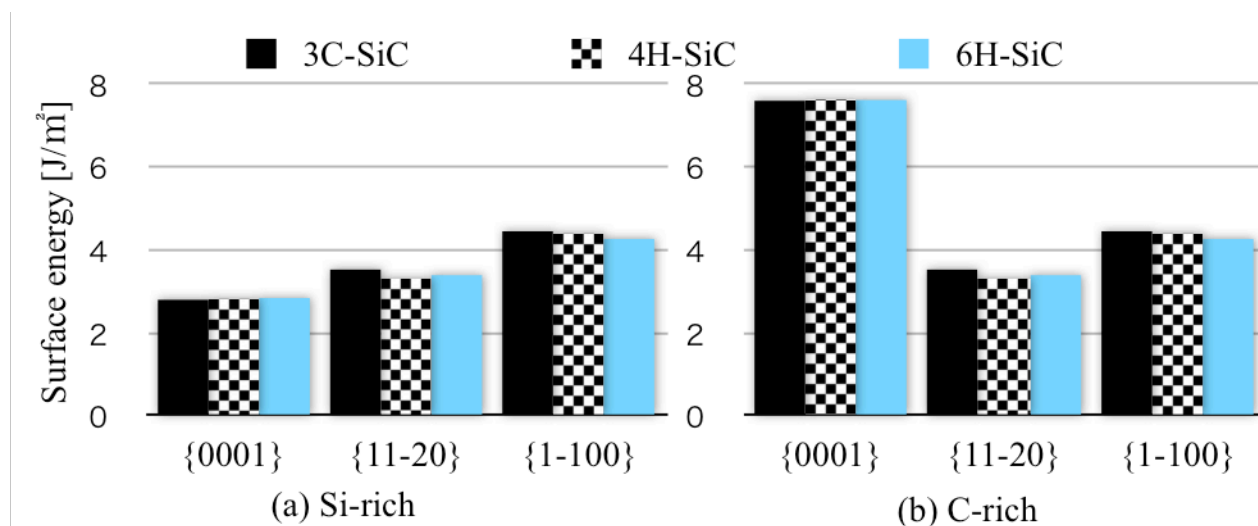


図 2 SiC 多形の極性界面エネルギーの環境依存性.