

持続可能社会形成のための冶金プロセス研究

マテリアル生産科学専攻 マテリアル科学コース
教授 吉川 健

1. はじめに

私は、2023年4月に大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 材料エネルギー理工学講座 材料熱力学領域に着任させていただきました。東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻にて森田一樹助教授の下で太陽電池用シリコンの製精錬研究により博士(工学)の学位を頂き、2006~2010年には本領域の前身の界面制御工学領域にて田中敏宏教授の下で助手・助教として勤めさせていただきました。その後2023年3月まで東京大学生産技術研究所にて准教授として研究・教育に従事させていただいたのちに、教授としてマテリアル生産科学専攻に戻る機会をいただきました。

私は学生期から助教期までに金属製精錬のための熱力学・反応速度論・融体物性論などの冶金学(メタラジ)の基礎を学ばせていただき、それを糧として研究を行っております。日本の素材産業は経済を支える基幹産業であり、冶金学により支えられ世界をリードする技術力を有しています。一方で、持続可能社会へ向けグリーントランスフォーメーションが加速化し、新たなエネルギー・資源転換プロセスの研究・開発が進んでいます。よって冶金学で取り扱う反応・現象も多岐にわたり、一層重要性が高まっています。

材料熱力学領域では、冶金学のさらなる深化・発展を基本理念としながら、鉄鋼材料や非鉄金属材料の製錬プロセス研究を行っています。また、そこで培う高温溶体の熱力学特性や物性の理解を基に、溶融合金を高温の反応媒体として用いた新しいマテリアルプロセスの研究も行っています。本稿では、材料熱力学領域における研究の一例として、化合物半導体の高温溶液成長法の取り組みを紹介させていただきます。

2. 化合物半導体の高温溶液成長

私は博士論文研究にてシリコンの溶融合金化により用意した合金溶媒の部分凝固により、高純度シリコンを得るプロセスの精錬研究を行っていたので、シリコン合金中の物性や異成分の溶解度をよく知っていました。その際に、シリコン合金を黒鉛坩堝内で融解すると必ず坩堝壁に形成する炭化ケイ素(SiC)のパワーエレクトロニクスへの応用が進んでいることを知りました。その時期から現在に至るまで、半導体用途のSiC単結晶インゴットは高純度SiC粉末を2200°C超に加熱して分解蒸発させたのちに種結晶上に成長させる昇華再結晶法により育成され、最近では8インチ口径の結晶が得られるようになってきました。しかし単結晶シリコンの融液成長に比べると成長速度は二桁ほど下回り、また転位密度も大きいことから、SiCデバイスの広範な普及へ向け、より高速で高品質結晶を育成する技術が望まれています。

SiCは二成分状態図上で一致溶解を示さず、昇温によりSi富化液相と黒鉛とに分解溶解することから「SiC液体」の冷却による液相成長を行うことはできません。シリコン基溶媒からの液相成長法により高品質結晶層の育成が可能であることは知られていたもののSiCの成長速度が小さく、単結晶インゴットの育成技術としては注目されてきませんでした。私はSiCの高速溶液成長を目指して高炭素溶解度の合金溶媒を利用することを出発点とし、炭素溶解度の高い鉄にシリコンを加えたFe-Si溶媒を用いた溶液成長法に取り組むことでSiC研究に参入しました。Fe-Si溶媒が溶融シリコンより数百倍の炭素溶解度を有することを明らかにしたのちに、同溶媒を用いた溶液成長により当時の最高速でのSiCのホモ成長を実現しました。その後、2000°Cまでの高温の合金溶媒から試料をサンプリングして炭素溶解度を正確に計測する技術を開発して様々な合金中溶解度を計測するとともに、炭素の侵入元素的なふるまいを考慮した熱力学モデルをもとに溶解度推算を行い、高速成長を実現するための溶媒の熱力学検討を進めています。

新任教授紹介

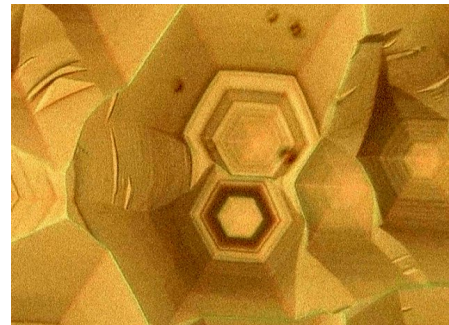
また半導体シリコンの結晶育成のための物性計測が多く行われたシリコン融体とは異なり、シリコン合金の融体物性はほとんど調査されていません。そこで連携研究により融体物性を実測するとともに熱力学モデルによる推算を行ってきました。それらのデータの提供のみならず、熱流体シミュレーションに搭載して成長環境中の温度や流れの正確な予測を可能とし、プロセス改善に応用してきました。

以上、溶融合合金化のアイデアからスタートし、熱力学や輸送現象論、融体物性論を融合した冶金学的な取り組みにより、シリコン溶媒での成長時と比べて10倍高速でのSiC単結晶の溶液成長技術の開発に貢献してきました。同じアイデアを、窒化アルミニウム単結晶の溶液成長に応用し、窒素との親和性の高いクロムとアルミニウムとの親和性の高いニッケルが混合したCr-Ni溶媒により、これまでに最も高速での窒化アルミニウムの単結晶の成長を実現しています。

3. 高温反応界面のその場観察技術

SiC単結晶の溶液成長においては、結晶成長面にてナノレベルの高さの結晶ステップが前進して成長が進みますが、結晶ステップ同士が束なり巨大なステップを形成すると界面が荒れ合金溶媒の成長結晶への取り込みや、SiCの異種多形の発生が生じます。そこで高温の結晶成長界面におけるステップの形成過程を直接観察することを起草し、可視光に対して「透明な」SiCの種結晶と成長結晶の背面から、結晶成長面を直接観察する手法を提案しました。

一例としてSiC単結晶の下方よりFe-Si合金が接触した際の界面の様子を図に示します。合金の接触と同時に貫通転位位置から六角形状の窪みが生じて拡大し、窪み同士が衝突した場所に稜線が形成され、凹凸のある界面へと発達します。単結晶中の転位が結晶の溶解挙動に大きな影響を及ぼすことが分かります。このような観察時に結晶の厚み変化を直接計測するために、単波長レーザーを用いた結晶内での干渉計測技術を導入することで成長方向の界面構造のナノ計測も可能としました。1500°C以上の高温で異なる温度や溶媒のもとでのSiC結晶の界面成長挙動を数多く観察し、ステップ成長挙動の制御知見を得るとともに、実際の結晶成長技術の改善へとつなげる研究を進めてきました。



100μm

図. 1200°C以上におけるFe-Si合金へのSiC単結晶が溶解する界面の様子：転位の位置で六角状の窪みが生じ、稜線が発達して凹凸な界面が生じる。

さらにこのような高温その場観察技術を、鉄鋼製錬における精錬反応や材料プロセスの表面・界面現象の観察に応用しています。さらには高温顕微鏡法に2色温度法を用いた温度イメージング技術を導入し、SiC繊維強化SiCマトリックス複合材料の溶融シリコン含浸法プロセスのその場観察に応用し、シリコンが含浸のモフォロジーと温度場同時計測を行っており、「見る」から「診る」へと高温観察技術を進化させてきました。

4. おわりに

我々の材料熱力学領域では熱力学的予測をもとに反応全体を設計し、反応速度論と融体物性とを組み合わせる冶金プロセスデザインを行うことを研究のベースとし、金属製錬と先端材料の両面でプロセス研究を進めてまいります。さらに高温の界面・反応のその場観察による「見える化」に分光計測を組み合わせた「診える化」へと進化させながら、様々なマテリアルプロセスにおけるマイクロ現象の観察・解析します。そして先端冶金学をもとにグリーントランスフォーメーションが急がれる素材産業分野との共同研究を拡げるとともに、エネルギー・原料事情の変化に柔軟に対応する次世代のものづくりを担う冶金人材の輩出も本領域の重要な役割と考え、研究・教育活動を行ってまいります。

(東京大学工学部卒(2000年)、東京大学大学院工学系研究科 博士課程修了(2005年))