

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：11501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630119

研究課題名(和文)炭化ケイ素を用いたダークマテリアル創製への挑戦

研究課題名(英文)Challenge to a product of dark material made by a silicon carbide

研究代表者

成田 克(NARITA, Yuzuru)

山形大学・理工学研究科・助教

研究者番号：30396543

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：立方晶炭化ケイ素(3C-SiC)は屈折率が比較的高く反射率が20%もあるため、完全黒体に近い物質、ダークマテリアルにはなりえない。本研究課題で我々は、この反射率の高いSiCを用いたダークマテリアル創製に挑戦した。有機シランガスを用いた化学気相堆積法により表面が黒い多結晶SiC膜が堆積し、さらに堆積を最適化することで、紫外-可視-近赤外光領域で反射率が約6%の低反射率多結晶SiC膜の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：Because a refractive index of cubic silicon carbide (3C-SiC) is relatively high and a reflectance of SiC is about 20%, SiC cannot become the dark material which is near to a perfectly black body. In this study, we challenged a product of dark material made by the SiC films. The polycrystalline SiC film that the surface was black was deposited by chemical vapor deposition using organosilane gas. By optimizing the conditions of SiC growth, we succeeded in the development of polycrystalline SiC film with a low-reflectance of about 6% in an ultraviolet, visible, and near-infrared light range.

研究分野：表面科学、結晶成長、半導体工学

キーワード：炭化ケイ素 反射率 透過率 赤外光 紫外-可視光 黒体

1. 研究開始当初の背景

完全黒体とは、外部から入射する光や電磁波をすべて吸収する性質を持った理想的な物質である。これは光吸収や熱放射の向上、反射防止などのエンジニアリングに欠かせない材料であり、完全黒体に近い物質：ダークマテリアルの研究開発が精力的に行われている。その代表的な材料がカーボンナノチューブ (CNT) であり、2008 年に垂直配向 CNT を用いることで、反射率 0.045~0.07% (波長 457-633nm) のダークマテリアルが報告された。

本研究で使用する材料：炭化ケイ素 (SiC) は熱的・化学的に非常に安定な化合物半導体で、パワーデバイス用材料の他に、最近ではシリコン (Si) よりも移動度の大きいグラフェン形成用の基板材料として研究開発が行われている。この SiC をダークマテリアルに応用することを考えると、SiC は屈折率が高いために反射率が 20% もあり、到底ダークマテリアルにはなりえないと考えられてきた。

研究代表者はこれまで、単独の分子中に Si-C 結合が存在するモノメチルシランガス (H_3Si-CH_3 , MMS) を用いて、Si 基板上への単結晶立方晶 SiC (3C-SiC) 堆積を行ってきた。その研究過程において、ある堆積条件で SiC 膜を堆積させると、図 1 右に示すような表面が黒い多結晶 SiC 膜が得られることを見出した。

そこで、SiC 膜堆積条件の最適化を行えば、SiC も CNT と同様に反射率の低いダークマテリアルになりえるのではないかと考え、本課題を着想するに至った。この技術開発が出来れば、SiC を温度計測やサーモグラフィなどの赤外光技術分野への応用が期待できる。



図 1 左：単結晶 SiC, 右：多結晶 SiC

2. 研究の目的

モノメチルシランガスを用いた SiC 膜堆積時の堆積条件を最適化することで、反射率の低い多結晶 SiC 膜を創製することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究で使った SiC 膜堆積装置を図 2 に示す。装置構成は簡単で、通電による基板加熱機構部、MMS ガス導入部、真空排気系 (ターボ分子ポンプ、ロータリーポンプ)、真空計が取り付けられている。

SiC 膜堆積実験は堆積温度、堆積時間、堆積基板を変えて行い、SiC 膜は X 線回折 (XRD)、走査型電子顕微鏡 (SEM)、フーリエ変換赤外分光 (FT-IR)、紫外-可視-近赤外



図 2. 本研究で使った SiC 膜堆積装置
分光を用いて評価した。

4. 研究成果

(1) SiC 膜の堆積温度依存性

堆積時間を固定し、自然酸化膜付 Si(100) 基板上に堆積温度を変化させて SiC 膜堆積を行った。図 3 に各温度で堆積した SiC 膜表面の写真を示す。この写真から分かるように、すべての堆積温度で表面が黒い SiC 膜が得られた。図 4 に 900°C で堆積した SiC 膜表面の SEM 像を示す。この像から、SiC 表面に非常に鋭利な突起物の形成が見られ、この突起物は堆積温度の増加に伴い大きくなっていった。この鋭利な突起物が存在するために SiC 表面は黒く見えたと考えられる。



図 3 自然酸化膜付 Si(100)基板上に堆積させた SiC 膜の写真。左から堆積温度 760°C、800°C、850°C、900°Cである。

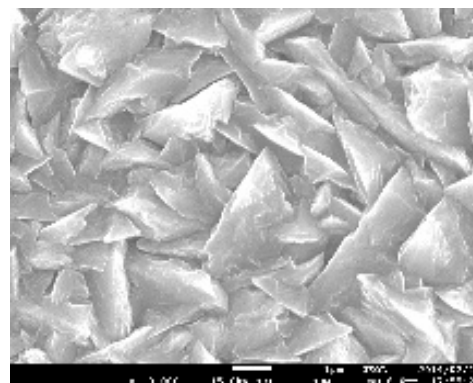


図 4 900°C で堆積した SiC 膜表面の SEM 像。表面に鋭利な突起物が形成していることが分かる。

図 5 に XRD パターンの堆積温度依存性を示す。この図から、760-900°C で堆積させたすべての SiC 膜は多結晶を示し、900°C では Si

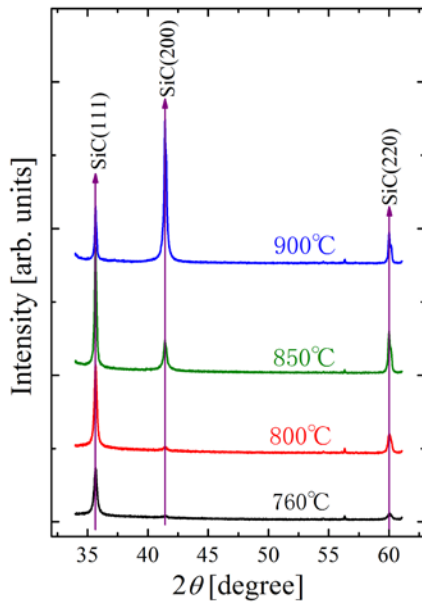


図 5 堆積温度を変化させた時の XRD パターンの変化

基板と同じ(100)が、850°C以下では(111)が強く配向した SiC 膜が得られた。850°C以下では成長速度が速い(111)が自然酸化膜上に優先的に堆積し、900°Cでは自然酸化膜の還元と SiC 核形成の競合関係により Si 基板の(100)が強く配向したものと考えられる。

(2) SiC 膜の堆積時間依存性

次に堆積温度を 800°Cに固定し、自然酸化膜付 Si(100)基板の上に堆積時間を変化させて SiC 膜堆積を行った。300 分堆積させた SiC 膜表面は黒色であった。図 6 に堆積時間を変化させた時の XRD パターンを示す。堆積温度 800°Cは図 5 から分かるように、自然酸化

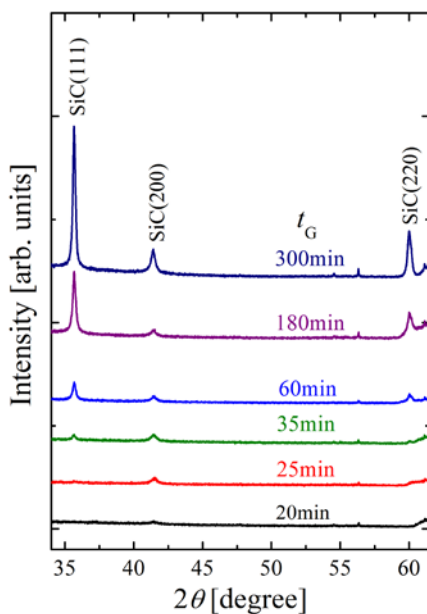


図 6 堆積時間を変化させた時の XRD パターンの変化

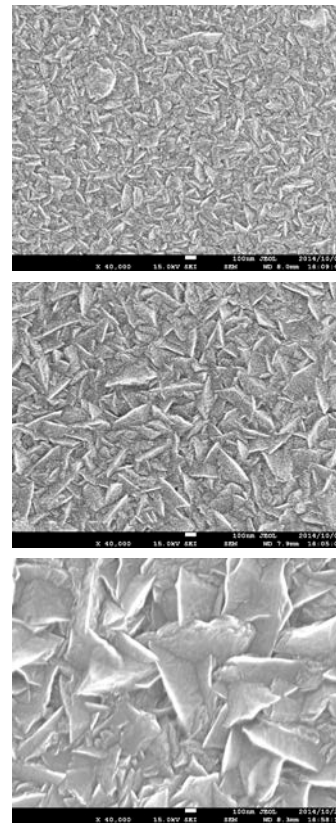


図 7 堆積時間(a) 25min、(b) 35min、(c)60 min の SiC 表面の SEM 像。

膜が基板表面から脱離しない温度である。図 6 から、堆積初期には自然酸化膜が存在するにもかかわらず Si 基板の面方位と同じ(200)ピークが現れるが、堆積時間が経過するにつれて(111)ピークが優先的に配向した。これは、一度 SiC 結晶核が形成されると、その後は成長速度の速い SiC(111)が優先的に成長することを示す。図 7 は SiC 膜表面の時間発展の SEM 像である。この図から、堆積時間の増加と共に鋭利な突起物が大きくなっていることが分かる。FT-IR 測定の結果、この突起物が大きくなるに従い赤外光は透過しない傾向にあることが分かった。

(3) SiC 膜の紫外-可視-近赤外光領域での光学特性

最後に、表面が黒い多結晶 SiC 膜の紫外-可視-近赤外光領域の透過率と反射率測定を行った。SiC 膜堆積基板として石英を使用した。石英を基板に使用しても自然酸化膜付 Si 基板と同様の多結晶 SiC 膜が得られていることを XRD と SEM から確認した。図 8 に本研究で得られた SiC 膜の反射率の測定結果を示す。比較のため、一般的な 3C-SiC の反射率データも示している。本研究で得られた SiC 膜は、一般的な SiC と比較して反射率が半分以上も減少していることが分かる。これは、図 4 や図 7 に示した SEM 像から分かるように、SiC 表面に形成された鋭利な突起物が光の反射を抑えているためである。また、ここには示さないが SiC 膜の透過率を測定したと

ころ、本研究で得られた多結晶 SiC 膜は、3C-SiC のバンドギャップ以下の光の透過率を 1/10 以下に減少させることも見出した。

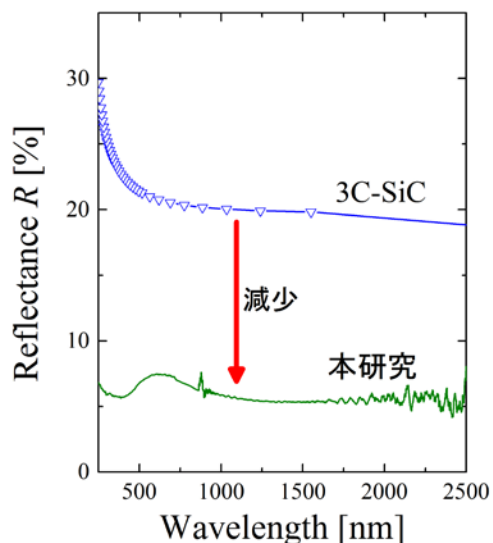


図 8 本研究で得られた多結晶 SiC 膜の反射率の波長依存性。比較のため一般的な 3C-SiC のデータも載せている。

以上の結果から、本研究で得られた SiC 膜の反射率 (~6%) はまだ垂直配向 CNT で得られた値 (0.045-0.07%) には及ばないものの、ダークマテリアルにはなりえないと言われる SiC の表面形状を工夫することで、SiC もダークマテリアルになりえることを示すことができた。

今後はさらに低い反射率を実現するために、ダークマテリアルに最適な SiC 表面形状を調査する必要がある。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 0 件)

[学会発表] (計 2 件)

①山田晋平、成田 克、中島健介、内藤正路、末光眞希、自然酸化膜付 Si 基板上へのモノメチルシランを用いた SiC 薄膜高速成長(II)、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 12 日、東海大学湘南キャンパス (神奈川県平塚市)

②成田 克、山田晋平、高野昌伸、早尾貴史、中島健介、末光眞希、自然酸化膜付 Si 基板上へのモノメチルシランを用いた SiC 薄膜高速成長、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 19 日、北海道大学札幌キャンパス (北海道札幌市)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

成田 克 (NARITA, Yuzuru)

山形大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：30396543