
高精度密度測定による
半導体融体の局所構造変化と濃度揺らぎの研究

(課題番号 16560577)

平成 16～18 年度日本学術振興会科学研究補助金
研究成果報告書

基盤研究(C)

平成 19 年 3 月

研究代表者 土屋 良海
(新潟大学 自然科学系 教授)

新潟大学附属図書館



1080035199

はしがき

本報告書は独立行政法人日本学術振興会科学研究費補助金、基盤研究(c)(2)「高精度密度測定による半導体融体の局所構造変化と濃度揺らぎの研究」(平成16—18年度)課題番号16560577の成果をまとめたものである。

近年、高温融体の構造転移とそのメカニズムの解明は液体科学のトピックスのひとつとして盛んに研究されている。高温融体の構造転移の存在は古くから実験的に主張されてきたが、液体硫黄の159℃におけるラムダ転移以外に万人の認める液体-液体転移は見つけられていない。2000年には高温高圧下の燐(P)の液体-液体1次転移が報告されたが、その後の詳しい研究により高圧下の気体液体転移であることが明らかにされている。

一方、厳密には熱力学的転移とは定義できないものの、液体テルル(Te)は比較的狭い温度領域で連続的ではあるが1次転移に近い構造変化(クロスオーバー転移)を示す。申請者は液体Teに代表される構造変化の熱力学的研究を進め、クロスオーバー転移の熱力学応答関数の普遍的関係式を導出した。これによって多元混合液体では構造変化によって濃度揺らぎが誘起されることを発見し、Se-Te混合液体のミクロ相分離傾向の発達やS-Te混合液体の特異な閉環2液相分離領域の出現のメカニズムを熱力学的に明らかにしてきた。本研究では、高温融体の種々の実験・理論研究の基礎データとなるモル体積の測定を系統的に進めるとともに、構造変化とそれによって誘起される濃度揺らぎの相関の解明を進展させることを目的にしている。

本研究補助金により、現有的高エネルギーガンマ線吸収法による密度測定システムのガンマ線検出部分を整備した。これによっていままでに発見されている最も鋭いクロスオーバー転移を示す液体Ge-Te系、これと同属の液体Si-Te系、相転移記録媒体に使用されるGSTと呼ばれている液体Ge-Sb-Te系の密度の系統的な測定を行っている。これと平行して、光交流法による比熱測定、音速の精密測定を進めた。

主要な成果は

- Ge-Te液体の構造変化によって誘起される濃度揺らぎを解析し、液体 $\text{Ge}_{15}\text{Te}_{85}$ のクロスオーバー転移が濃度揺らぎを誘起せずに進行することを定量的に示した。この論文の比熱のデータは*Monatshefte für Chemie* 136 (2005) (TOFA2004の論文集)の表紙を飾っている。
- 音速の系統的な測定と組み合わせることによって、クロスオーバー転移を示す元素液体が周期律表上で規則的に現れる傾向が存在すること初めて示すことができた。

また海外共同研究者である Christophe Bichara 博士 (CRMCN, CNRS) を招聘し研究交流を行うとともに日本物理学会第60回年次大会(2005年3月、東京理科大学)の第6領域の招待講演「Properties of molten Ge chalcogenides: ab initio molecular dynamics studies versus

experiments」でこの分野の研究の現状の紹介をおこなった。

本研究の正式な研究分担者ではないが、新潟工科大学柿沼藤雄教授と液体 Ge-Te 系合金の比熱測定を共同で行った。記して感謝したい。

2007年3月

| | |
|--|----|
| はじめに | i |
| 目次 | 1 |
| 研究組織、研究経費 | 2 |
| 研究発表 | 3 |
| 研究成果 | |
| ・共晶組成近傍の液体 Ge-Te 合金の構造変化の熱力学：比熱測定と熱力学安定性 | 4 |
| ・音速測定で調べた元素液体の液体液体転移：周期律表上における傾向 | 12 |
| ・共晶液体 Ge-Te 合金の急速な液体液体転移と非金属-金属転移の核磁気共鳴による研究 | 18 |
| ・熔融(Ga _x In _{1-x})As の構造変化：音速測定 | 35 |

(以上既報 4 編, 含印刷中)

研究組織

研究代表者 土屋 良海

新潟大学教授

海外共同研究者

Dr. C. Bergman (Laboratoire de Matériaux et Microlectronique de Provence, Faculté de Saint Jérôme, Marseille, France)

Dr. C. Bichara (Centre de Recherche sur les Mécanismes de la Croissance Cristalline, CNRS, and Aix-Marseille Universities)

研究経費

| | | |
|--------|-------|----|
| 平成16年度 | 2,100 | 千円 |
| 平成17年度 | 600 | 千円 |
| 平成18年度 | 500 | 千円 |
| 計 | 3,200 | 千円 |

研究発表

(1) 国際会議講演

- 1) Thermodynamics of structural changes in liquid Ge-Te alloys around the eutectic composition: specific heat measurements and thermodynamic stability.
TOFA 2004, Vienna, Austria, 2004 September 2004
Y. Tsuchiya, K. Saitoh, and F. Kakinuma

(2) ポスター発表

- 1) NMR investigations of rapid structural changes and non-metal metal transition in the molten eutectic Ge-Te alloy.
LAM 12 Conference, Metz, France July 2004
Y. Tsuchiya, M. Narita, H. Kanaya, and K. Kurokawa
- 2) Structural changes in molten $(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})\text{As}$: sound velocity measurements.
LAM 12 Conference, Metz, France July 2004
Y. Tsuchiya, and M. Hisakabe

(3) 国際学術誌

- 1) Thermodynamics of structural changes in liquid Ge-Te alloys around the eutectic composition: specific heat measurements and thermodynamic stability.
Monatshefte für Chemie 136 (2005) 1963
Y. Tsuchiya, K. Saitoh, and F. Kakinuma
- 2) Liquid-liquid transition in elemental liquids investigated by sound velocity measurements: trends in the periodic table.
Int. J. Mat. Res. (formerly Z. Metallkd.) 97 (2006) 371
Y. Tsuchiya
- 3) NMR investigations of rapid structural changes and non-metal metal transition in the molten eutectic Ge-Te alloy.
J. Noncrystal. Solids (2007), accepted for publication.
Y. Tsuchiya, M. Narita, H. Kanaya, and K. Kurokawa
- 4) Structural changes in molten $(\text{Ga}_x\text{In}_{1-x})\text{As}$: sound velocity measurements.
J. Noncrystal. Solids (2007), accepted for publication.
Y. Tsuchiya, and M. Hisakabe