

微小重力下における TLZ 法による均一組成 SiGe 結晶育成

木下 恭一 (JAXA), 荒井 康智 (JAXA), 稲富 裕光 (JAXA), 塚田 隆夫 (東北大), 宮田 浩旭 (AES)
田中 涼太 (AES), 阿部 敬太 (東北大), 住岡 沙羅 (東北大)

Growth of Homogeneous SiGe Crystals by the TLZ Method in Microgravity

Kyoichi Kinoshita*, Yasutomo Arai, Yuko Inatomi, Takao Tsukada, Hiroaki Miyata, Ryota Tanaka, Keita Abe, Sara Sumioka

*ISAS/JAXA, Tsukuba, Ibaraki 305-8505

E-Mail: kinoshita.kyoichi@jaxa.jp

Abstract: SiGe crystal growth experiments aboard the “Kibo” in the ISS were carried out for evaluating the growth model of the traveling liquidus-zone (TLZ) method. Results of the third experiment are reported along with the growth conditions. Discussion on the growth model was made.

Key words: SiGe, Crystal growth, International space station, TLZ method

1. はじめに

均一組成混晶育成を可能とする新しい結晶成長法 Traveling Liquidus-Zone (TLZ) 法の検証を目的として“きぼう”搭載の温度勾配炉 (GHF) を利用して SiGe 結晶成長実験を行った。計画していた 4 回の結晶成長実験は完了し、現在試料の解析を行っている。ここでは、3 回目の実験結果を中心に報告する。

2. 実験方法

試料は、直径 10mm の Ge 多結晶を Si 種結晶と Si 原料により挟んだ構造で、融液押圧用カーボンバネとともに BN ルツボ内に挿入され、石英アンプルに真空封入された。石英アンプルは電子ビーム溶接で金属カートリッジ内に真空封入され、GHF 内で加熱された。結晶成長実験は、温度勾配 9°C/cm、初期界面温度 1107°C、ヒータ移動速度 0.1mm/h で行われた^{1,2)}。数値解析の結果³⁾、カートリッジ表面の酸化による放射率変化がカートリッジ内部の温度を変化させ、軸方向の組成の均一性を悪化させていることが判明したため、3 回目の実験ではカートリッジ表面温度をモニターしてヒータ温度を調節し、放射率変化の補償のタイミングを合わせることを試みた。図 1 にヒータ温度の調節結果を示す。ヒータ温度は 1°C ステップで変化させ、変化の間隔は少なくとも 1 時間以上空けることとした。得られた SiGe 試料は断面研磨後、EPMA による組成分析を行うとともに、EBSD による方位解析を行った。

3. 実験結果と考察

結晶の外観を図 2 に示す。左から順に、Si 種結晶、SiGe 結晶、急冷された融液、Si 原料である。割れや欠けた箇所は観察されなかった。Si 原料部に融液の這い上がった跡 (D 印) が観察されるが、これは融液に対し Si 原料側からのバネによる押圧があったためと思われる。これにより、融液の自由表面は形成されず、したがってマランゴニ対流の発生はなかったと判断される。

軸方向 Ge 濃度分布を図 3 に示す。成長結晶の Ge 濃度は全体で 49.0 ± 2 at% であった。カートリッジ表面酸化による温度変化は今回の方法でも完全には排除し切れていない。カートリッジ表面温度測定では、内部の平衡温度からのずれを正確に測定できないためかも知れない。一方、成長距離は計画値 15 mm に対し中心軸での測定で 14.5 mm が得られた。温度勾配が成長速度を決めることから、温度勾配はほぼ計画通りであったと言える。

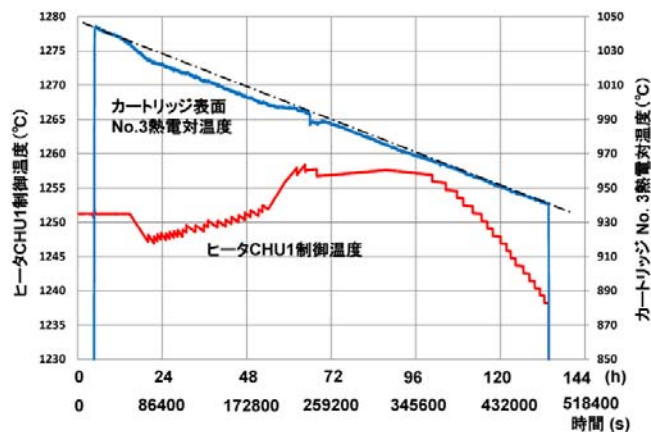


Fig.1 Temperature-time profiles.

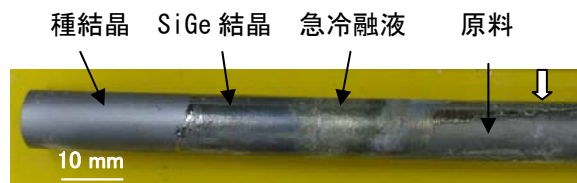


Fig.2 Outer view of a space processed sample.

ヒータ温度を 1°C ステップで変化させ制御した結果、図 4 に示すような成長縞が反射電子像により観察された。温度変化のタイミングと回数および成長縞の形成位置と本数の関係から、成長縞は温度変化

に対応していることが判明した。1°Cの温度変化に対して Ge 濃度が約 0.2at%変化するが、反射電子像でこの濃度変化を濃淡差として検出できたことになる。成長縞は界面形状を反映していることから、成長に伴う界面形状の変化を精密に観察することができた。界面形状は、種結晶との境界では凸で、それから徐々に平坦化していた。これは 2 回目の実験と同じ傾向である²⁾が、3 回目の実験の方が種結晶との界面での凸度が小さく、結晶成長の初期段階からほぼ平坦になっていた。このことを反映して、3 回目の実験では種結晶の近くから径方向組成均一性は良好であった。一例として、種結晶から 3 mm 成長した位置での径方向組成分布を図 5 に示す。濃度変化は±1at%以内で、均一性は非常に良いことが判る。このような良好な径方向均一性は成長距離 9 mm のところまで続いていた。その後、組成のバラツキが大きくなっていったが、これは組成的過冷却が生じたためと思われる、成長に伴う組成的過冷却の防止は、長尺結晶を育成する上での課題である。

成長縞の間隔と温度変化の時間間隔との関係から成長速度を正確に測定することができた。測定結果を図 6 に示す。初期に大きな成長速度を示すこと、および中心軸 ($r = 0$) と周辺部 ($r = \pm 4$) で成長速度に大きな違いが見られないことが特徴的である。このような成長速度の時間依存性および径方向位置依存性は、TLZ 法二次元モデル⁴⁾からは予測できず、宇宙実験により初めて明らかになった。成長縞上の組成分布や組成分布に基づいた温度分布を現在解析中であり、今後はそれらの解析結果や温度勾配を変えた実験 (4 回目実験) 結果と併せて大口径結晶の TLZ 法成長モデルを明らかにしていきたい。また、宇宙実験で得られた径方向均一性達成のための境界条件を地上での大型・均一組成 SiGe 結晶製造に活かしていく予定である。

参考文献

- 1) Kinoshita, K. *et. al.*, *J. Crystal Growth*, **388** (2014) 12.
- 2) Kinoshita, K. *et. al.*, *J. Crystal Growth*, (in print).
- 3) Abe, K. *et al.*, *J. Crystal Growth*, **402** (2014) 71.
- 4) Adachi, S., *et. al.*, *J. Crystal Growth*, **334** (2011) 67.

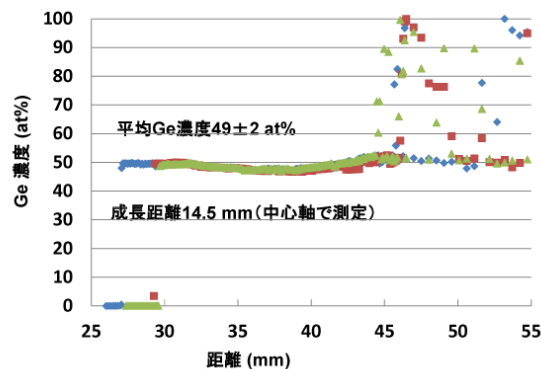


Fig.3 Axial Ge concentration profiles.

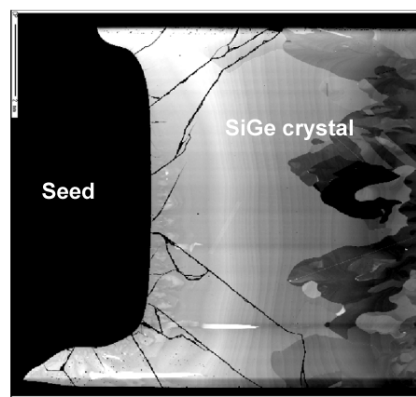


Fig.4 Backscattered electron reflection image.

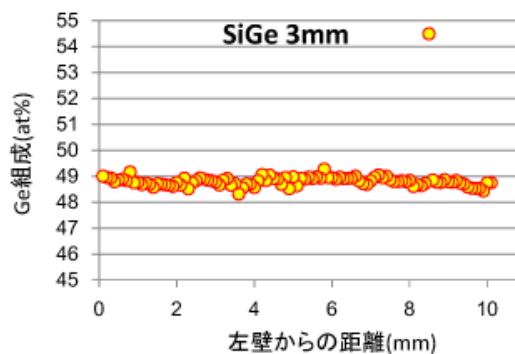


Fig.5 Radial Ge concentration profile at the growth length of 3 mm.

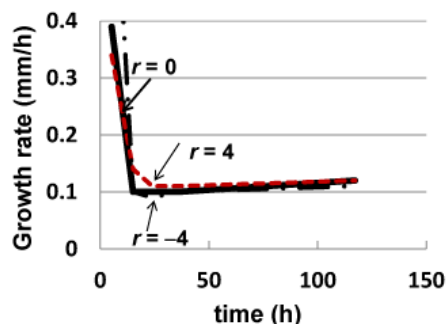


Fig.6 Growth rates at various r and time.