

微小重力下における TLZ 法による均一組成 SiGe 結晶育成の研究

木下恭一¹、荒井康智¹、宮田浩旭²、田中涼太²、曾根武彦³、吉川淳一³、木原孝志⁴、
柴山博治⁴、足立 聡¹、稲富裕光¹、高柳昌弘¹、依田真一¹

¹宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部、²(株) エイ・イー・エス

³有人宇宙システム(株)、⁴宇宙技術開発(株)

Growth of Homogeneous SiGe Crystals in Microgravity by the TLZ Method

Kyoichi Kinoshita¹, Yasutomo Arai¹, Hiroaki Miyata², Ryota Tanaka², Takehiko Sone³, Jyunichi Yoshikawa³, Takashi Kihara⁴, Hiroharu Shibayama⁴, Satoshi Adachi¹, Yuko Inatomi¹, Masahiro Takayanagi¹ and Shinichi Yoda¹

¹Institute of Space and Astronautical Science, JAXA, 2-1-1, Sengen, Tsukuba, 305-8505

²Advanced Engineering Services Co. Ltd. Takezono, Tsukuba, 305-0032

³Utilization Engineering Dept., JAMSS, 1-1-26, Kawaguchi, Tsuchiura, 300-0033

⁴Space Environment Utilization Group, SED, 1-12-2, Takezono. Tsukuba, 305-0032

E-Mail: kinoshita.kyoichi@jaxa.jp

Abstract: We are preparing for SiGe crystal growth experiments on board the ISS "Kibo". The two-dimensional model of the TLZ (traveling liquidus-zone) method will be studied by microgravity experiments because disturbance in constituent element by convection upon freezing is avoided in microgravity because convection in a melt is suppressed. For successful space experiments, growth conditions using a bread board model of a gradient heating furnace (GHF) for space experiments are examined. Design and fabrication of a FM cartridge are developed. Here, achievements in the present preparatory stage are reported.

Key words; Crystal growth, TLZ method, Si-Ge alloy, GHF, Microgravity

1. はじめに

微小重力環境下で均一組成の混晶育成を可能とする新しい結晶成長方法 Traveling Liquidus-Zone 法 (略称 TLZ 法) を考案し、国際宇宙ステーション内日本実験棟「きぼう」を利用した宇宙実験の準備を進めてきた¹⁾⁻⁴⁾。この一年間の準備状況を報告する。

2. 宇宙実験の目的

均一組成の混晶育成用に考案した飽和溶融帯移動法(Traveling Liquidus Zone Method, 略称 TLZ 法)を SiGe の結晶成長を通して確立することを目的とする。大口径均一組成達成のためには軸方向だけではなく、径方向の均一性も求められる。対流の抑制できる微小重力下では結晶化に伴う溶質濃度分布を見積ることが容易となるので、径方向の組成分布を評価するために考案した二次元 TLZ モデルの妥当性を宇宙実験を通して検証する。

3. TLZ 法二次元モデルの考察

我々が提案している TLZ 法二次元モデル式の一例を以下に示す⁵⁾。

$$-\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{D}{(C_L - C_S)} \frac{\partial C_L}{\partial T} \left(\frac{\partial T}{\partial Z} - \frac{\partial T}{\partial r} \frac{\partial f}{\partial r} \right)_{z=0} \quad (1)$$

$\partial f / \partial t$ が結晶成長界面移動速度で、 D は拡散係数、 C_L は成長界面における溶質の液相濃度、 C_S は同じく溶質の固相濃度、 $\partial C / \partial T$ は液相線の勾配の逆数、

$(\partial T / \partial Z)_{z=0}$ は成長界面における軸方向温度勾配、 $(\partial T / \partial r)_{z=0}$ は界面での径方向温度勾配、 $\partial f / \partial r$ は径方向の界面形状変化率、 Z は成長界面からの距離である。右辺括弧内第二項が 0 であるのが一次元 TLZ 法モデル式で、第二項が一次元モデルからのズレを表わす。

TLZ 法二次元モデル式のもう一つの例として、 $\Delta T = (\partial T / \partial Z) \Delta Z + (\partial T / \partial r) \Delta r$ を考慮するとともに、溶融帯内平均温度勾配を重視したものとして

$$-\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{D}{(C_L - C_S)} \frac{\partial C_L}{\partial T} \left(\frac{\partial T}{\partial Z} - \frac{\partial T}{\partial r} \frac{r}{d} \right) \quad (2)$$

を候補に上げることができる。ここで、 r は径方向距離、 d は溶融帯の幅を表わす。

(1)式および(2)式の右辺カッコ内の第二項は結晶成長に伴う界面形状の変化となって表れるので、宇宙実験では軸方向温度勾配や成長距離を変えて界面形状を観察し、平均の成長速度の径方向依存性を測定してこの第二項を定量的に評価し、モデルの妥当性を評価する。

4. 二次元モデルから予測される成長界面形状

モデル式から界面形状を予め予測しておくことは重要である。(2)式から予測される界面形状を以下に述べる。

(a) $\partial T / \partial r$ が 0 の場合

この場合は二次元モデル式における右辺の第二項が 0 となり、成長界面は常に平坦となる。

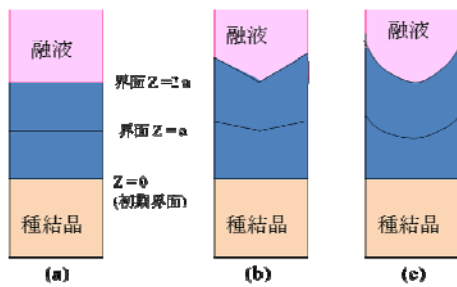


Fig. 1 Comparison of freezing interface shape for

(a) $\partial T/\partial r=0$, (b) $\partial T/\partial r=c$, (c) $\partial T/\partial r=cr$

(b) $\partial T/\partial r$ が一定の場合

第二項は r の一次式となるので、界面形状はV字型となる。成長が進むにつれてV字の傾きは急になる。

(c) $\partial T/\partial r$ が r の一次式で表わされる場合

第二項は r の二次式となるので、界面形状はU字型となる。成長が進むにつれてU字の傾きは急になる。

以上の様子を模式的に図1に示す。宇宙実験により径方向の温度勾配 $\partial T/\partial r$ が成長界面形状、ひいては組成分布に与える影響の程度を明らかにし、それらを定量的に記述するのに相応しい二次元モデルを求める。

5. BBM 炉を用いた宇宙実験準備

以上述べた TLZ 法における二次元性の考察のためには宇宙実験で TLZ 法の原理による結晶成長が進むことが前提となる。そのためには、一定な温度勾配の設定とその温度勾配に合わせた試料移動速度の設定が求められる。宇宙実験用の温度勾配炉は地上実験で通常使用する電気炉よりもヒータの距離が短く、長い領域にわたり一定な温度勾配を維持するのが難しい。そのため、地上での実験条件出しを十分行う必要がある。今年度はこの条件出しを主に BBM 炉を用いて行った。

図2(a)に温度勾配 $14^\circ\text{C}/\text{cm}$ 設定の下で育成した SiGe 結晶の軸方向組成分布を示す。長さ約 18mm にわたりほぼ均一組成の $\text{Si}_{0.6}\text{Ge}_{0.5}$ 結晶が得られた。これは、電気炉内の温度勾配が一定に保たれ、結晶成長速度とヒータ移動速度とがほぼマッチしたことを示す。

図2(b)は結晶中央部の二次元組成マッピング結果を示す。界面形状が明確ではないが、これは成長距離が長過ぎて融液が枯渇してしまったためと思われる。今後、成長距離を短くして、界面形状が観察されることを確認するとともに、正確な成長速度を

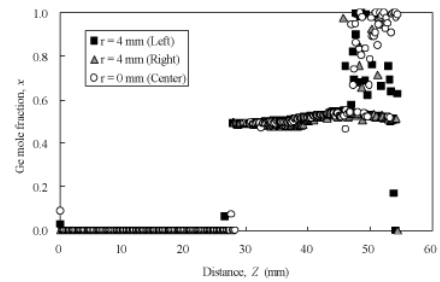


Fig. 2(a) Ge concentration along the growth



Fig. 2(b) 2D Ge concentration mapping result by EPMA

求める予定である。

宇宙実験では $14^\circ\text{C}/\text{cm}$ の温度勾配の他に、 $7^\circ\text{C}/\text{cm}$ の温度勾配の実験を予定しており、今後 3~4 回の予備実験を行い、 $7^\circ\text{C}/\text{cm}$ における実験条件を詰める予定である。

6. まとめ

TLZ 法による大口径均一組成を実現する上で重要な径方向温度勾配の影響を定量的に表わす二次元モデルを考察した。ヒータ構造が異なる宇宙実験用電気炉での実験条件の詰めを進めている。温度勾配 $14^\circ\text{C}/\text{cm}$ については条件出しをほぼ終了し、今後 $7^\circ\text{C}/\text{cm}$ の条件を詰めていく予定で、2011年2月の打上予定に備える。

参考文献

- 1) Kinoshita K., H. Kato, M. Iwai, T. Tsuru, Y. Muramatsu, S. Yoda, method", *J. Cryst. Growth*, **225**, 59 (2001)
- 2) Kinoshita K., Y. Hanaue, H. Nakamura, S. Yoda, M. Iwai, T. Tsuru, Y. Muramatsu, *J. Cryst. Growth*, **237-239**, 1859 (2002).
- 3) 木下恭一, 緒方康行, 越川尚清, 足立 聡, 松本 聡, 岩井正行, 鶴 哲也, 村松祐治, 中村裕彦, 前川 透, 依田真一, *日本結晶成長学会誌* **29**, 349 (2002).
- 4) Nakamura H., Y. Hanaue, H. Kato, K. Kinoshita and S. Yoda, *J. Cryst. Growth*, **258**, 49 (2003).
- 5) 足立 聡, 緒方康行, 松本 聡, 吉崎 泉, 高柳昌弘, 木下恭一, 依田真一, 日本機械学会 2005 年度年次大会, (2005 年 9 月, 東京)
- 6) Tiller W. A., K. A. Jackson, J. W. Rutter, and R. Chalmers, *Acta Metall.*, **1**, 428 (1953).