

GHF 炉を利用した均一組成混晶育成

木下恭一¹、足立 聡¹、宮田浩旭²、稲富裕光¹、荒井康智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

Growth of compositionally uniform alloy crystals using a gradient heating furnace (GHF)

Kyoichi Kinoshita¹, Satoshi Adachi¹, Hiroaki Miyata², Yuko Inatomi¹ and Yasutomo Arai¹, Shinichi Yoda¹

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

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

E-Mail: kinoshita.kyoichi@jaxa.jp

Abstract: We are preparing for crystal growth experiments in microgravity using a gradient heating furnace (GHF) on board the ISS “Kibo”. The two-dimensionality in the traveling liquidus-zone (TLZ) growth should be avoided for obtaining large scale compositionally uniform alloy crystals. Factors affecting one-dimensionality are further studied theoretically and verification items are extracted. Cartridge design and fabrication of an engineering model are progressed. Here, achievements in the present preparatory stage are reported.

Key words: Crystal growth, TLZ Method, Alloy semiconductors, 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. 実験項目

実験目的、応用面の有望性、供試体製造容易性、安全性などを考慮し、Si_{0.5}Ge_{0.5}の育成を通して下記の実験内容を提案した。

宇宙実験の目的は次の3つである。

- 1: TLZ 法一次元モデルの実証
- 2: TLZ 法適用限界の明確化
- 3: 単結晶の育成

3. TLZ 法における二次元性の影響

結晶径を太くしていくと径方向の温度勾配の影響を受け成長速度の面内均一性は保たれなくなり一次元モデルからずれる。このずれを二次元モデルとして取り扱うこととした⁵⁾。TLZ 法二次元モデル式を以下に示す。

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

$\partial f / \partial t$ 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。数値解析により求めた直径 10mm 結晶における中心軸($r = 0$)と周辺部($r = 5$)における成長速度の違いを図 1 に示す。

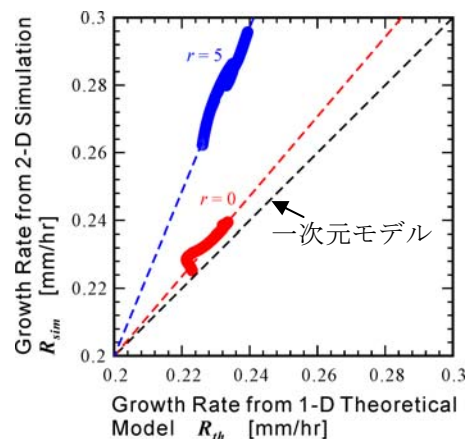


Fig. 1 Simulated growth rate for a 10 mm diameter crystal.

このズレを詳細に把握することは大口径均一組成の結晶育成に不可欠であるが、地上実験ではこのズレは熱伝導の影響と融液内対流の影響の2つが合体して効いてきて分離が困難である。対流の抑制できる微小重力下での実験により、熱伝導の影響だけを分離して定量的に評価する。図から明らかのように成長速度の一次元モデルからのズレを詳細に議論するためには成長速度の速い領域での実験が必要であるが、それには温度勾配を高くした実験が不可欠である。宇宙実験では2水準の温度勾配を予定している。

また、このズレは種結晶の熱伝導率の違いにも依

存する。宇宙実験では、種結晶の熱伝導率をできるだけ高くした実験も行う予定である。

5. 組成的過冷却防止条件

TLZ法で均一組成が得られるのは自発凝固速度に合わせて試料を移動させる場合である。この試料移動速度はTillerらの解析によれば、組成的過冷却を防止できる境界の速度である⁹⁾。TLZ法一次元モデル式は成長界面での溶質濃度分布を線形近似して得られた解であるので、厳密には溶質濃度分布の線形からのずれを考慮する必要がある。この線形からのずれを考慮した組成的過冷却防止条件を数値解析で調べた。

その結果明らかになった点は、①温度勾配を高くする程、均一組成実現下では組成的過冷却が生じやすくなる、②溶融帯幅を広くする程、組成的過冷却は生じやすくなる、の2点である。実験で溶融帯幅を一定にしておき、温度勾配を変化させて育成し、急冷したSi_{0.5}Ge_{0.5}結晶のEPMAによる結果を組成分析結果を図2に示す。なお、融液内の対流を抑制するために結晶の直径は2mmとした。

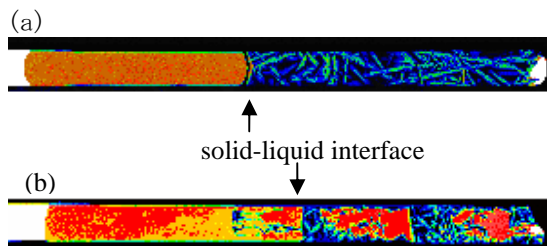


Fig. 2 Comparison of EPMA mapping (a): $G = 7.4^\circ\text{C}/\text{cm}$, (b): $G = 23.9^\circ\text{C}/\text{cm}$

数値解析で示された通り、温度勾配の高い(b)の方で、融液内で固相が形成され組成的過冷却が生じていることが判る。

6. 供試体実現性の検討

実験試料をSiGe系に変更することに伴い、供試体実現性を新たに検討した。検討項目は、カートリッジの肉厚設計のための材料腐食性試験、試料(Si feed) / BN容器のクリアランス設計などである。これらの項目に加えて、GHFを使用するにあたり検討すべき項目として、熱電対のカートリッジへの固定方法の検討、カートリッジ材料 / 熱電対シースの反応試験等を行った。また、実験後の試料の持ち帰り重量が制約を受けることから軽量化を図るべくカートリッジ先端試料部の分離方式の

検討と熱電対切断方法の検討を行った。

7. まとめ

Si_{1-x}Ge_x系に対してTLZ法を適用してSi_{0.5}Ge_{0.5}結晶育成を行うに当たり、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解析し、それに必要な物性値や実験条件を定めた。また、組成的過冷却防止に必要な温度勾配の範囲を解析と実験両面から求めた。試料や熱電対シースとカートリッジ材質との反応性や試料押圧バネのバネ定数の選定などを行い、供試体エンジニアリングモデルの設計を行うとともに製作に着手した。

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).