

## GHF 炉を利用した半導体混晶育成

木下恭一<sup>1</sup>、荒井康智<sup>1</sup>、植田稔晃<sup>1</sup>、足立 聡<sup>1</sup>、宮田浩旭<sup>2</sup>、田中涼太<sup>2</sup>、依田眞一<sup>1</sup>

<sup>1</sup>宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部

<sup>2</sup>(株) エイ・イー・エス

### Growth of alloy semiconductors using a gradient heating furnace (GHF)

Kyoichi Kinoshita<sup>1</sup>, Yasutomo Arai<sup>1</sup>, Toshiaki Ueda<sup>1</sup>, Satoshi Adachi<sup>1</sup>, Hiroaki Miyata<sup>2</sup>, Ryota Tanaka<sup>2</sup> and Shinichi Yoda<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Space and Astronautical Science, JAXA, 2-1-1, Sengen, Tsukuba, 305-8505

<sup>2</sup>Advanced 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). The one-dimensional traveling liquidus-zone (TLZ) growth model is limited by the radial temperature gradient, convection in a melt and so on. Such factors affecting one-dimensionality are studied experimentally and theoretically. From a viewpoint of single crystal growth we would like to select Si-Ge as target materials. Here, achievements in the present preparatory stage are reported.

Key words: Crystal growth, TLZ Method, Alloy semiconductors, GHF, Microgravity

#### 1. はじめに

残留重力の影響を受け難く、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、宇宙実験の準備を進めてきた<sup>1)-4)</sup>。この一年間の準備状況を報告する。

#### 2. 宇宙実験の目的と実験試料

国際公募で提案した宇宙実験の目的は次の2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

上記目的に対し当初  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  系が最適であると判断していたが、 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  は毒性の強い砒素蒸気圧が高いので、安全性を保证するのが困難である。一方、 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  系は、融点での平衡蒸気圧も低く安全確保が容易である。またこれまでの研究から、 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  は単結晶化が極めて困難で  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  系の方が単結晶化が容易であることが判明している。以上に加え、 $\text{Si}_x\text{Ge}_x$  系は高速電子デバイス用基板材料としての期待が高い点を考慮し、宇宙実験試料を  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  系に変更したく、 $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  系の結晶成長条件把握に努めた。併せて数値解析を行った。

#### 3. TLZ 法一次元モデルの $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$ 系への適用

私達の提案した一次元モデル式で結晶の自発凝固速度  $R$  は(1)式のように表される。

$$-R = \frac{D}{(C_{L0} - C_{S0})} \left( \frac{\partial C_L}{\partial Z} \right)_{Z=0} = \frac{D}{(C_{L0} - C_{S0})} \left( \frac{\partial C_L}{\partial T} \right) \left( \frac{\partial T}{\partial Z} \right)_{Z=0} \quad \text{----- (1)}$$

ここで  $Z$  は界面から原料方向への距離、 $D$  は拡散係数、 $C_{L0}$  は成長界面における溶質の液相濃度、 $C_{S0}$

は同じく固相濃度、 $(\partial C_L / \partial Z)_{Z=0}$  は成長界面における溶質の濃度勾配を表す。 $\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$  に対して実験的に Fig. 1 に示す均一組成が得られた。この時の育成条件は、アンプル外部での温度勾配  $10^\circ\text{C}/\text{cm}$  に対し試料移動速度  $0.12\text{mm}/\text{h}$  であった。式(1)から  $D = 9.5 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$  などを用いて温度勾配  $10^\circ\text{C}/\text{cm}$  に対して計算される凝固速度は  $0.16\text{mm}/\text{h}$  となる。実験ではアンプル外部での温度勾配であるので、実際の試料内部では温度勾配は低くなっているはずであり、その点を考慮すると妥当な結果であると思われる。

#### 4. 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 (図2)。このずれを詳

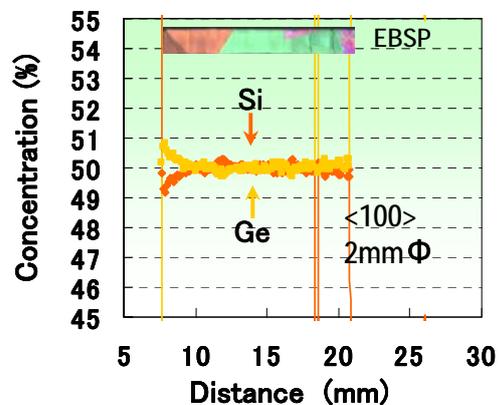


Fig. 1 Compositionally uniform  $\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$  crystal grown by the TLZ method ( $\Phi 2\text{mm}$ ,  $\langle 111 \rangle$  grown).

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、地上実験ではこのずれ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と地上実験を比較することにより、熱伝導の影響だけを分離して定量的に評価する。図から明らかなように成長速度の一次元モデルからのずれ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、(1)式からも明らかなように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。

図3に直径10mmの試料における軸方向組成分布を示す。成長界面から5mm程度までは均一であるが成長するにつれてGe/Siが漸次増大する。図1の直径2mmの場合と比較して成長につれて組成分布が均一でなくなるのは、径方向熱伝導の影響や融液内対流の影響を受けたためと思われる。

### 5. 組成的過冷却

TLZ法で均一組成が得られるのは(1)式で表される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ギリギリの境界の速度である<sup>5)</sup>。すなわちTLZ法は組成的過冷却と隣り合わせの結晶成長方法ということになり、組成的過冷却を防止する条件を明確にすることは、TLZ法で多結晶化を防止して単結晶を育成するために解決しておかなければならない必須の課題である。

地上実験と微小重力実験の比較により、対流と組成的過冷却の深度との関係、組成的過冷却の深度と多結晶化の関係を明らかにして混晶の単結晶製造の基礎データとする。

### 6. GHF用カートリッジの要素試作

微小重力実験の成否を左右する重要な要素が供試体開発である。本実験の場合はカートリッジ部分である。カートリッジ材質のC103合金とSi-Geの腐食試験のデータを基に肉厚等を決めカートリッジを設計した。

### 7. まとめ

Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>系に対してTLZ法を適用して均一組成のSi<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>単結晶育成条件を探究するとともに、径方向温度勾配の影響や対流の影響を数値解析により求め、宇宙実験の準備を進めた。

### 参考文献

1) Kinoshita K., H. Kato, M. Iwai, T. Tsuru, Y. Muramatsu, S. Yoda, method", *J. Cryst. Growth*,

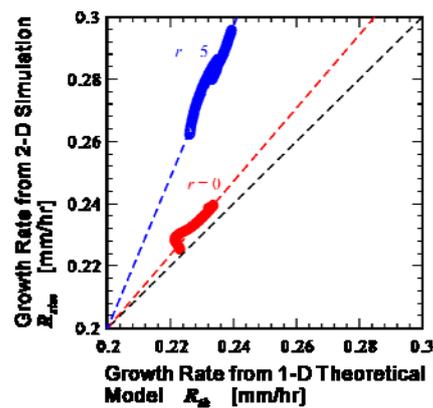


Fig. 2 Simulated growth rate for a 10 mm diameter crystal.

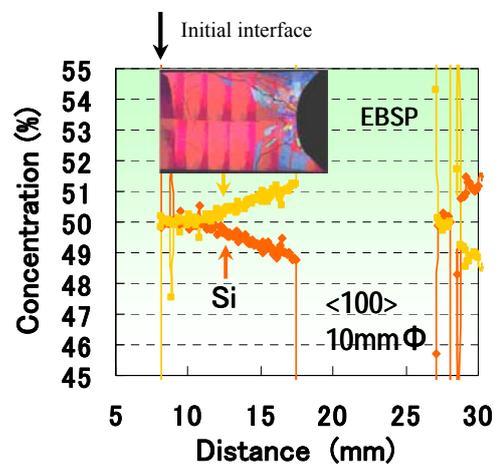


Fig. 3 Axial compositional profiles in a 10 mm diameter TLZ-grown crystal.

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, "A one-dimensional model to predict the growth conditions of In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As alloy crystals grown by the traveling liquidus-zone method", *J. Cryst. Growth*, **258**, 49 (2003).
- 5) Tiller W. A., K. A. Jackson, J. W. Rutter, and R. Chalmers, "The redistribution of solute atoms during the solidification of metals", *Acta Metall.*, **1**, 428 (1953).