

ホットディスク法による無対流下での InSb 融液の熱伝導度測定

産総研 永井秀明、間宮幹人、奥谷 猛

Thermal Conductivity Measurement of Molten InSb by Hot-Disk Method under No Thermal Convection

Hideaki Nagai, Mikito Mamiya and Takeshi Okutani

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology(AIST), Tsukuba, Ibaraki 305-8565

E-Mail: hideaki-nagai@aist.go.jp

Abstract: Thermal conductivity of semiconductor melts, such as molten silicon and compound semiconductor, is an important thermophysical property in the control of crystal growth processes. Thermal conductivity can be measured via thermal response when heat or energy is applied to a specimen. However, it is difficult to measure the thermal conductivities of molten materials, due to the fact that the molten state has a high reactivity in the corrosion of the sensor and the container in coincident with heat and energy transfer via convection as well as conduction. To overcome these difficulties, a hot-disk sensor for molten metal, which consists of molybdenum foil as the sensor element and aluminum nitride (AlN) as the insulator, was developed and the thermal conductivities of molten silicon, tin and bismuth were previously measured in short-duration microgravity by hot-disk method with this developed hot-disk sensor. In this study, thermal conductivity of molten indium antimonide (InSb) was measured by hot-disk method in short-duration microgravity. Thermal conductivity of molten InSb measured in microgravity was 17.6 W/mK at 550°C, which was 6% lower than that measured on the ground. The thermal conductivity at melting point (525°C) was estimated to be 17.0 W/mK.

Key words: Thermal conductivity, Molten InSb, Hot-Disk method, Thermal convection

1. はじめに

シリコンや化合物半導体融液などの高温融体の熱伝導度は、結晶成長などの熱移動を伴うプロセスを理解するために重要な熱物性値である。一般的には、熱伝導度は平行平板法に代表される定常法やレーザーフラッシュ法に代表される非定常法によって測定されている。しかし、高温融体に特有な腐食性や熱対流の影響により、これらの方法による測定そのものが非常に困難である。著者らは、これまでに熱伝導度の測定法の1つである S. E.Gustafsson によって開発さ

れたホットディスク法に着目し[1]、高温融液の測定に使用可能なホットディスクセンサーの開発を行い、熱対流の影響のない微小重力環境下でシリコン、スズ、ビスマス融液の熱伝導度測定を行ってきた[2,3]。本研究グループでは微小重力下での化合物半導体結晶の合成プロセスの研究を行っており、化合物半導体融液の正確な熱伝導度測定は合成プロセスの解析の一助となる。そこで、本研究では、化合物半導体である InSb 融液の熱伝導度測定にこのホットディスク法を適用し、地上及び微小重力下での測定を行

った。

2. 実験

2.1 高温融液用ホットディスクセンサーの作製

ホットディスク法に用いるホットディスクセンサーは、熱源と温度センサーを兼ねた2重螺旋状に加工したディスク状の金属箔 (Fig.1-(a)) を測定試料から電氣的に絶縁するための薄い絶縁体で被覆した形状をしている。本研究では、高温での測定を可能にするため、金属箔として高融点金属である Mo (厚さ:20mm、センサー部半径:3.05mm) を用いた。絶縁体としては、高温融液に対する腐食性の高い窒化アルミニウム (AlN) 板 (厚さ:50mm) を用い、上述した金属箔を挟んだ。金属箔と AlN 板の隙間には窒化硼素(BN)微粒子を充填し、試料融液が隙間からセンサー内に浸入することを防止している。これらを更に AlN 厚板 (厚さ:0.63mm、開口部有り) で挟んで保持することによって、センサーとしての取り扱いを容易にした (Fig.1-(b))。これらのセンサー部材はアルミナ製のボルトとナットによって固定した。

(a) Conducting pattern of Mo foil



(b) View of our developed hot-disk sensor

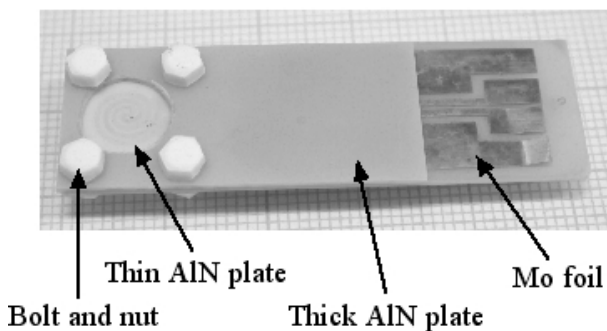


Fig.1 The hot-disk sensor for molten semiconductor

2.2 測定方法

融液の熱伝導測定は、開発した高温用ホットディスクセンサーを設置した雰囲気制御可能な加熱用チャンバーにホットディスク社製 Hot-Disk Thermal Constant Analyser (Fig.2) を取り付けに行った。ホットディスク法では、ホットディスクセンサーは測定時の熱源と温度センサーの両方の役割を担っている。一定の電力をソースメーターによってホットディスクセンサーに供給して測定試料に加える熱を発生させ、同時にセンサーの抵抗値を測定することによって温度係数(Temperature coefficient of resistance; TCR)からセンサーの温度変化を求めることが出来る。コンピュータで収集したこれらのデータを解析することによって試料の熱伝導度を求めることが出来る。解析の詳細は参考文献[1]を参照してほしい。

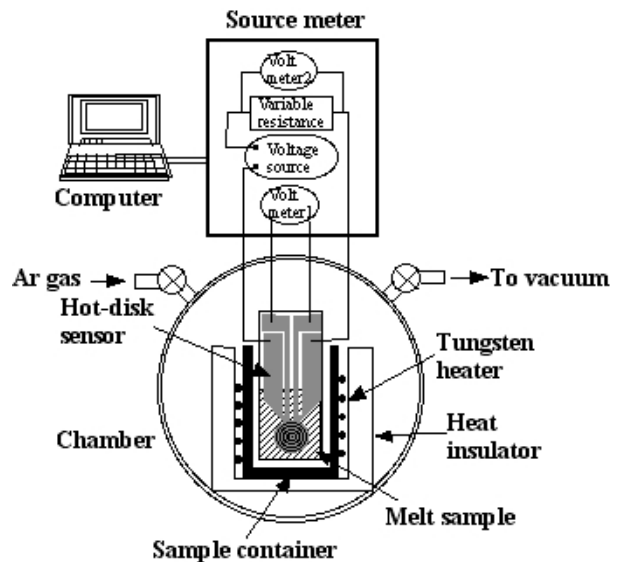


Fig.2 Schematic diagram of the hot-disk method

ホットディスクセンサーは垂直にアルミナ製容器 (内径:17mm、高さ 50mm、内壁を BN スプレーでコーティング) に入れ、測定試料として InSb 塊 (純度:5N) を充填した。試料はホット

ディスクセンサーのセンサー部が十分に浸る量（試料容器の約 1/3[約 18mm]の高さ）を入れた。試料上部は自由表面が出来ないように BN 板で覆い、Sb 蒸気の揮発を抑制するために酸化硼素 (B₂O₃)で BN 板とアルミナ容器の隙間を埋めた。これをステンレス製のチャンバー内の電気炉に設置し、真空に引いた後に内部を脱酸素カラムを通した高純度 Ar ガスで 0.1MPa に満たした。実験中は Ar ガスを 20ml/min で流通した。試料を所定の温度まで加熱し、ホットディスクセンサー温度が一定になるまで保持し、熱伝導度の測定を行った。微小重力下での実験は、産業技術総合研究所、北海道センターの 10m 落下塔を用いて行った。この施設では、10⁻³g、1.4 秒間の微小重力環境を得ることが出来る。微小重力下での実験はこの 1.4 秒間で行った。

熱伝導度測定実験の終了後、凝固した InSb 及びホットディスクセンサーの切断面を電子線マイクロアナライザーで組織観察及び組成分析を行った。

3. 結果および考察

3.1 高温融液用ホットディスクセンサーの性能評価

本研究で用いたホットディスクセンサーの性能を評価するために、まず、熱対流の影響を考慮する必要のない固体のビスマスあるいはスズを用いた熱伝導度測定を行った。結果を Table1 に示す。

Table 1. Thermal conductivity of solid bismuth and tin around the melting point

Material	Thermal conductivity (W/mK)	
	Present result	References
Bismuth	7.4	6.28-7.66[4-6]
Tin	57.0	54.2-59.9[4-8]

今回開発したホットディスクセンサーを用いて、これらの試料の融点近傍での熱伝導度を測定したところ、Table 1 に示すように文献値と良い一致を示した。このことから、今回開発したホットディスクセンサーを用いることによって少なくとも約 7~60W/mK の熱伝導度範囲において正しい測定値を示すことが分かる。この範囲は、多くの化合物半導体融液を測定するのに十分である。

3.2 InSb 融液の熱伝導度測定

このホットディスクセンサーを用いて、InSb 融液の熱伝導度を測定した。Fig.3 にホットディスク法で微小重力下及び地上で測定した熱伝導度を示す。また、これまでに報告されている InSb 融液の熱伝導度を同時に Fig.3 に示す。微小重力下で融点近傍の 550°C で得られた熱伝導度は 17.6W/mK であり、地上で測定した値より約 6% 小さい値となっていた。また、微小重力下で得られた値は高温ほど地上で得られた値との差が

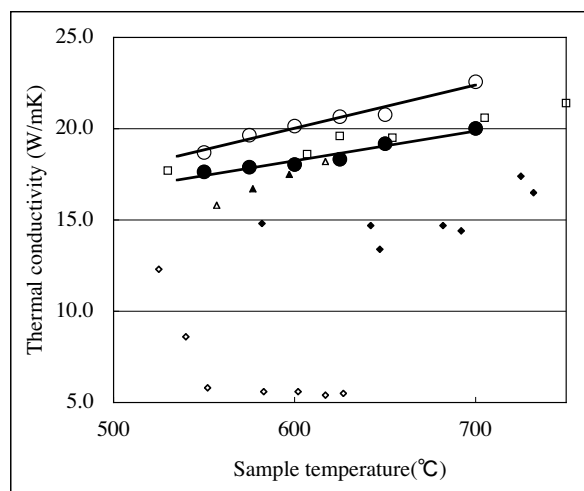


Fig.3 Thermal conductivity of molten InSb by Hot-Disk method

●:Our work (μ-g), ○:Our work (1-g), ◇:ref.[9], ◆:ref.[10], □:ref.[11], △:ref.[12], ▲:ref.[13]

大きくなる傾向が見られた。ホットディスク法によるシリコン融液の熱伝導度測定の場合には、地上で測定した値の方が微小重力下のそれより約 5%大きく現れ、この差が対流の寄与と考えられる[2]。今回の InSb 融液の熱伝導度測定においても同様の傾向が見られた。高温ほど熱伝導度の値の開きが大きくなっているのは InSb 融液の粘性の低下が影響している可能性がある。熱伝導度の温度勾配から融点 525°Cにおける熱伝導度は 17.0W/mK と見積もることが出来た。本研究で微小重力下で得られた値は、中村らが報告した結果とほぼ一致していたが、Amirkhanov らや Fedorov らの結果とは値が大きく異なっていた。

熱伝導度測定実験後、凝固した InSb 及びホットディスクセンサーの切断面を観察したが、InSb とセンサー表面の密着は良好で、気泡の存在や InSb 融液のホットディスクセンサー内への浸入は認められなかった。また、組成分析より、In:Sb=1:1(モル比)と出発時の組成を維持しており、Sb の蒸発が抑えられていたことが確認された。

参考文献

[1] S. E. Gustafsson; Rev. Sci. Instrum. 62 (1991),

797.

[2] H. Nagai, Y. Nakata, T. Tsurue, H. Minagawa, K. Kamada, S. E. Gustafsson, T. Okutani; Jpn. J. Appl. Phys. 39 (2000), 1405.

[3] H. Nagai, M. Mamiya, M. Castillo, T. Okutani; J. Jpn. Soc. Microgravity Appl. 22(2005), 319.

[4] S. Konno; Phil. Mag. 40 (1920) 542.

[5] B. P. Pashaev; Soviet Phys.-Solid State 3 (1961), 303.

[6] Y. I. Dutchak, P. V. Panasyuk; Soviet Phys.-Solid State 8 (1967), 2244.

[7] W. B. Brown; Phys. Rev. 22 (1923), 171.

[8] L. P. Filippov; Int. J. Heat Mass Transfer 9 (1966), 681.

[9] Kh. I. Amirkhanov, Ya. B. Magomedov; Sov. Phys. Solid State, 7 (1965) 506.

[10] V. I. Fedorov, V. I. Machuev; High Temp., 8 (1970) 419.

[11] S. Nakamura, T. Hibiya, F. Yamamoto; J. Appl. Phys. 68 (1990) 5125.

[12] S. Nakamura, T. Hibiya, F. Yamamoto, T. Yokota; Int. J. Thermophys., 12 (1991) 783.

[13] S. Nakamura, T. Hibiya; Microgravity Sci. Technol., 6 (1993) 119