

ISS・きぼう利用ミッション
「微小重力環境下における混晶半導体結晶成長（略称:Alloy Semiconductor）」
研究成果報告書

代表研究者： 稲富 裕光（JAXA 宇宙科学研究所）

平成 29 年 2 月

1. 諸言

1.1 研究内容、目標の概要

本宇宙実験の目的は、微小重力環境下において $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 混晶半導体の結晶成長実験を行い、地上実験結果と比較することにより以下の点を明らかにすることである。

- (1) 重力に起因した自然対流や拡散が混晶半導体結晶成長に及ぼす効果
- (2) 混晶半導体の溶解や成長過程の面方位依存性

1.2 研究内容の重要性、分野・領域での位置付け、意義

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 三元混晶半導体はその組成比を変えることにより、格子定数を $6.094 \text{ \AA} \sim 6.478 \text{ \AA}$ の範囲で、禁制帯幅を $0.18\text{eV} \sim 0.72\text{eV}$ の範囲で、これに対応して発光受光の波長を $1.7 \mu\text{m} \sim 6.8 \mu\text{m}$ の範囲で制御できる。この物質は中赤外光に感度を有するため、熱光発電デバイスや各種ガスセンサー等を作製する上で重要な材料である。現在、ヘテロエピタキシー技術により格子定数の異なる基板上に良質な薄膜を成長させる研究が行われているが、任意の格子定数を有する均一組成で良質な混晶半導体バルク単結晶を成長させ得れば、これを基板としてホモエピタキシャル成長させることで、良質な薄膜の成長を期待できる。

しかし、地上で均一組成の良質な $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 三元混晶半導体単結晶を成長させることは難しい。これは、(1) 偏析効果のために、結晶が成長するにつれて結晶と溶液の組成が変化すること、(2) 液相線と固相線の乖離が大きいために成長界面近傍の溶液が組成的過冷却状態になる結果、界面が不安定化して多結晶化することや (3) 地上では重力に起因した密度差対流が発生するため、溶液の組成分布と温度分布に揺らぎが生じる結果、結晶欠陥が導入されることによる。また、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ の結晶構造は閃亜鉛鉱型であるので、結晶成長速度は結晶成長界面におけるカイネティクスに影響される。しかし、地上では対流の影響が大きいため、結晶成長界面におけるカイネティクスと結晶成長速度や結晶品質との関係は未だよく理解されていないのが現状であり、結晶成長中の固液界面近傍での熱物質輸送過程の解明が必要不可欠である。

ところが微小重力環境下では、密度差に起因した対流が抑制され、溶液表面に自由表面がなければ表面張力に起因したマランゴニ対流も発生しないため、熱・物質輸送は主に拡散で律速される。従って、この環境を利用すれば溶質輸送と結晶成長速度の関係や界面形態の不安定性、結晶中の欠陥発生機構と結晶成長速度の関係を明らかにできる。しかし、本バルク結晶成長実験には1回で少なくとも数時間を必要とするため、長時間の微小重力環境が得られる「きぼう」実験棟の利用が極めて有効である。

1.3 研究動機、バックグラウンド

1.3.1 期待される活用、波及効果

従来のガスタービンシステムによる発電の高効率化や風力発電、地熱発電、燃料電池等の多種多様な発電技術開発が推進されている一方で、可動部を持たない熱光起電力(Thermophotovoltaic; TPV)発電が新たな発電システムとして注目を集めている。一般に、TPV システムは、(1)熱源からの入力エネルギーをもとに発光するエミッター、(2)光電変換に寄与しない放射をエミッターに反射する光フィルター、(3)エミッターからの赤外線を電気変換する PV セルの三つの要素から構成される。太陽光発電では、セルの受ける光のスペクトル分布は決まっているが、TPV では主にエミッター材料の種類により、スペクトルを人為的に加工することが可能である。このように TPV においては、光照射密度が極めて高いなど、太陽光発電とは質及び量的に大きく異なる。1970 年代から、米国を中心に宇宙用あるいは軍事用の小型電源、可搬型電源への適用を目指して開発が進められてきたが、近年では、TPV の上記の特徴を活かした民生用、産業用途への適用も検討されてきている [以上、文献[1]からの抜粋]。

エミッターからPVセルへの入射光は、半導体結晶のバンドギャップよりも低いエネルギー(長い波長)の光は透過し、高いエネルギーの光はPVセルに吸収されて熱となる。つまり PV セルが起電力を発生するために利用できる光は、バンドギャップごく近傍の波長範囲に限られる。従って、TPV 発電において入力エネルギーの大部分を PV セルの感度領域の光に変換することができれば、高い発電効率が達成される。そのため、選択エミッターから放射される光の波長と PV セルの受光波長の整合性を取ることが重要である。混晶半導体は組成制御により格子定数を変化させることが可能であり、その結晶を用いた光素子の吸収端波長を制御できる利点を有する。その中でも、 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 三元混晶半導体はその組成比を変えることにより、吸収端波長を $1.7\ \mu\text{m}\sim 6.8\ \mu\text{m}$ の範囲で制御できる。そのため、エミッターへの対応が可能である。

1.3.2 新たな高品質結晶育成方法の開発を目指して

前述のように地上で均一組成の良質な $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 三元混晶半導体単結晶を成長させることは難しい。そこで本研究グループは、温度勾配冷却法による均一組成の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 三元混晶半導体結晶成長実験に取り組んできた。図1-1の InSb-GaSb 擬似二元相図から分かるように、液相線と固相線が大きく乖離しているため、溶液の液相組成と成長結晶の固相組成が一致しない。例えば、 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{Sb}$ の場合、結晶中の InSb 濃度は 15at.%であるのに対し、それと平衡する溶液の InSb 濃度は 60at.%であり、結晶成長を開始すると成長結晶に取り込まれなかった InSb が溶液中に排出される。

そこで、均質組成の $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 結晶成長を得るために以下の手順で結晶を育成する。図1-2に示すように、出発試料は(GaSb 種結晶)/(InSb 溶媒)/(GaSb 原料結晶)のサンドイッチ構造とし、坩堝に入れ試料アンプルに封入する。原料結晶が種結晶よりも高温となるように温度勾配を与え、 InSb 溶媒のみが熔融する温度設定にする。すると、 GaSb 原料が熔融帯中に溶解し GaSb 種結晶近傍に輸送されて InGaSb 結晶が自発成長する。しかし、このま

までは成長するにつれて結晶成長界面が高温側へ移動する。そこで均一組成の結晶を成長させるためには、偏析で不足する GaSb 溶質成分を補充し、かつ成長界面の温度を一定に保つ必要がある。このように温度降下速度を最適化し、溶解と成長のバランスをとることで、任意の組成を有する均一組成比をもつ高品質な $In_xGa_{1-x}Sb$ 三元混晶半導体単結晶を成長させることが可能であると考えている。

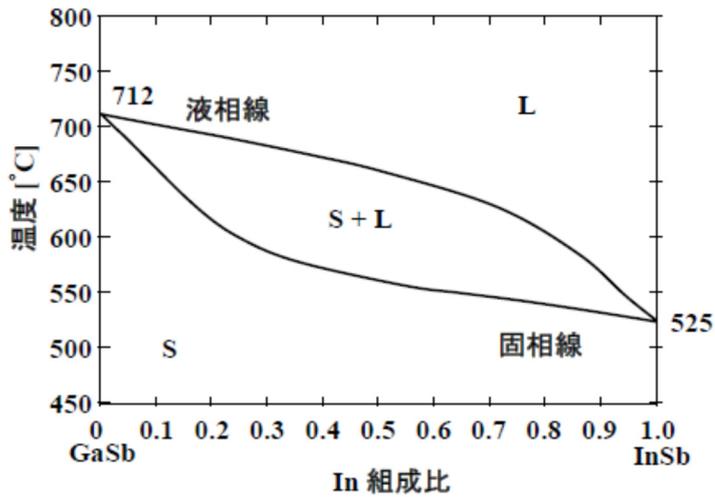


図1-1. InSb-GaSb 擬似二元相図。

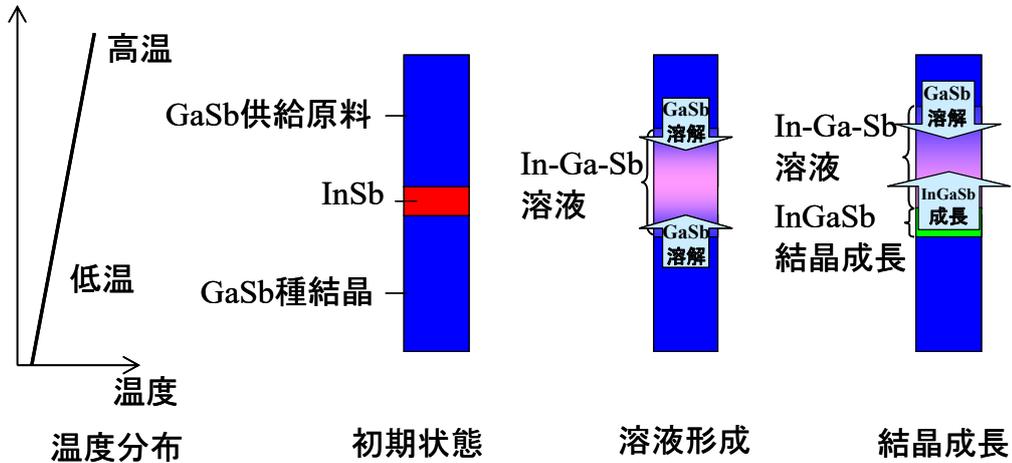


図1-2. 温度勾配徐冷法の模式図。

1.3.3 本研究に関連の深い宇宙実験の経緯

本研究に関連の深い微小重力環境を利用した半導体結晶成長実験として、(1) 対流の抑制された状態で物質輸送が拡散支配となることを利用した実験、(2) 成長結晶が容器と非接触になることで、坩堝壁からの転位の発生を抑制する実験、(3) 結晶面方位依存性を調べる実験、が行われた。

(1)に関しては、Witt たちがスカイラボで Te 添加 InSb の単結晶成長実験を行い、微小重力環境下で不純物濃度変動を抑制できることが初めて実証された [2]。混晶半導体結晶成

長に関しては、木下らが“ふわっと 92”で $Pb_{1-x}Sn_xTe$ 結晶成長実験を行った結果、温度勾配炉の中で融液を種結晶側から一方向凝固させると組成の均一組成領域が形成されることを実証した [3]。しかし、単なる一方向凝固法と $10^{-4}G$ の微小重力環境の組み合わせでは狙いとする均一組成の混晶育成は困難であることも判明した。

(2)に関しては、西永が中国の回収衛星を利用して GaSb の非接触ブリッジマン成長実験を行い、GaSb 単結晶成長に成功し、アンプルと非接触で成長した領域では転位密度が小さくなることや不純物縞が消失することを示した [4]。Duffar は表面の凹凸をつけた坩堝内を用いて、EURECA 衛星中でブリッジマン法により GaSb と $In_{0.99}Ga_{0.01}Sb$ 結晶成長実験を行ったが、種結晶がすべて溶解してしまったため均一組成の結晶は育成できなかった[5]。

(3)に関しては、児玉が SFU を利用して行った。結晶面方位が(100)、(111)A、(111)B の半絶縁性 GaAs 基板を 2 枚ずつ箱型に組み立て、中に Al-Ga を入れた構造とし、マランゴニ対流を防止した状態とした。GaAs 基板の一部を溶解し、Al-Ga-As 溶液を形成した後、温度を徐々に下げ、GaAs 基板上に AlGaAs を成長させた。その結果、地上試料では下側基板よりも上側基板の成長層が厚く、また表面の凹凸が大きくなったが、宇宙試料では均一な成長膜厚が得られた。しかし、基板の面方位による成長速度の相違は明らかにできなかった [6]。

このような状況の中、早稲田大学の平田、九州大学の今石と、静岡大学のグループ(熊川、早川、岡野、小澤)は、本研究提案と同じ InGaSb 系の材料を用いて、スペースシャトル、中国回収衛星、落下塔を利用した微小重力環境下実験を行なった。(a) 1994 年のスペースシャトル実験では、多元系化合物半導体の均一分散混合に対する拡散とマランゴニ対流の効果を調べた。試料は In-Sb 構造及び In-GaSb-Sb サンドイッチ構造とし、自由表面の有無の相違により計 6 種類の実験試料を用いた。微小重力環境下では、試料の周囲に自由表面が存在すると $In_{0.5}Ga_{0.5}Sb$ 試料の一部に突起部が形成されたが、形状はほぼ球形となった。In 濃度が高い突起部を除いては均一な濃度分布となった。これは、マランゴニ対流が混合に寄与した可能性を示していた。一方、地上実験試料では、重力偏析のため、重力方向の上部ほど密度の小さい Ga 濃度が高くなり、密度の大きい In 濃度が低くなっていた。また、自由表面の無い試料を用いた微小重力環境下実験の In 濃度分布から、見かけの拡散係数が得られた [7、8]。(b) 1996 年に中国回収衛星を利用して InSb 融液への GaSb 溶解と InGaSb 結晶成長実験を行い、重力効果を調べた。微小重力環境下実験と地上の 1G 環境下実験の結果から、(1) 1G 環境下では重力偏析のために、重力方向の組成が不均一であるのに対して、微小重力環境下では結晶径方向の組成分布が均一になることや、(2) 固液界面形状が 1G 環境下では重力方向に末広がりになるのに対して、微小重力環境下ではほぼ平行になることが明らかとなった [9]。また、(3) In-Ga-Sb 溶液への GaSb 結晶溶解と GaSb 結晶上への $In_xGa_{1-x}Sb$ 結晶成長の面方位依存性を調べた結果、(111)B 面は(111)A 面よりも溶解しやすく、結晶成長しにくいことが示唆された [10]。さらに、重力レベルを変数とした自然対流計算やマランゴニ対流数値解析から、溶液内部の濃度差対流やマランゴニ対流が組成分布や固液界面形状へ大きな影響を及ぼすことが分かった [11、12]。

2. 研究計画

2.1 研究目標、内容

2.1.1 研究目標

本宇宙実験の目的は、微小重力環境下において $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ 混晶半導体の結晶成長実験を行い、地上実験結果と比較することにより以下の点を明らかにすることである。

- (1) 重力に起因した自然対流や拡散が混晶半導体結晶成長に及ぼす効果
- (2) 混晶半導体の溶解や成長過程の面方位依存性

重力効果を調べるために、GaSb 種結晶/Te 添加 InSb/GaSb 供給原料から構成されるサンドイッチ構造の試料を用いて地上実験と微小重力実験を行い、GaSb の種結晶と供給原料の溶解量、結晶成長速度、In 組成分布、欠陥密度分布を測定し、比較検討する。また、結晶面方位効果を明らかにするために、GaSb 結晶面方位の異なる 4 種類の試料(111)A、(111)B、(110)、(100)を用いる。

2.1.2 科学的サクセスクライテリア

フライト実験準備移行審査会で設定された本実験の科学的サクセスクライテリアは以下の通りである。

表2-1. 科学的サクセスクライテリア。

クライテリア	内容
Minimum Success	微小重力と地上で得られた結晶の組成分布・成長速度の違い、溶液中の熱物質輸送過程を定量的に評価出来ること。
Full Success	Minimum Success に加えて、異なる面方位の結晶を解析して、成長カインティクスの影響を定量的に評価し、結晶成長のモデル化につなげること。

2.1.2 実験方法

図2-1に試料アンプルの構造を示す。GaSb 種結晶/Te 添加 InSb 溶液形成結晶/GaSb 原料供給結晶から構成されるサンドイッチ構造の試料を BN 管に入れ、これをさらに石英管に入れ真空封入して試料アンプルとする。GaSb 種結晶と GaSb 供給原料は単結晶であり、表2-2に示す通り結晶面方位が(111)A、(111)B、(110)、(100)面の4種類とした。意図的に不純物縞をタイムマーカーとして結晶中に形成するために、InSb に Te をドーブした。

実験手順は以下の通りである。加熱ヒーターの移動や温度変化に伴う成長条件の擾乱を極力抑制するために、加熱温度および加熱ヒーター位置を結晶成長開始時以降は一定とした。

- 1) 「きぼう」実験棟に設置された温度勾配炉(GHF)内に試料アンプルを設置する。
- 2) 温度勾配 $6^\circ\text{C}/\text{cm}$ を保持したまま全体の温度を上昇させることで、GaSb 種結晶及び GaSb 原料供給結晶が InSb 融液に溶解して InGaSb 溶液を形成する。原料結晶の高温端を 690°C 程度で保持する。
- 3) 高温側である原料供給結晶の溶解が進行し、GaSb が物質拡散により低温側である種結晶上に輸送されて InGaSb 結晶が成長する。
- 4) 結晶の成長速度と界面形状を調べるために、結晶成長中に 2 時間ごとに熱パルスを試料全体に印加することで意図的に不純物縞を形成する。熱パルスの導入場所を明らか

にするために、4 本目と 5 本目の熱パルス間隔を1時間とする。

「きぼう」内で結晶成長実験を行う前に、温度校正用供試体を加熱して温度分布の事前確認をし、カートリッジ表面に埋め込んだ熱電対の最高温度が所定の値となるように、加熱ヒーター温度の微調整を実施した。なお、温度校正用試料 No. 1 は試料 No. 2 と同一素材・構造とすることで温度特性を同等にした。

実験後の試料は長手方向に(110)面が現れるように X 線回折法により結晶面方位を確認した上で切断し、鏡面研磨した。組成 $\text{KMnO}_4:\text{HF}:\text{CH}_3\text{COOH} = 1:1:1$ (体積比)のエッチング液で処理した後、光学顕微鏡によって観察した。不純物として添加した Te 濃度差によりエッチング速度が変わり不純物縞が断面で可視化される。結晶成長速度は不純物縞間隔から測定した。組成分析は電子線マイクロアナリシス法(EPMA)で測定した。また、溶液中の温度勾配は InSb-GaSb 擬似二元相図を用いて成長結晶の組成分布を温度分布に変換した。

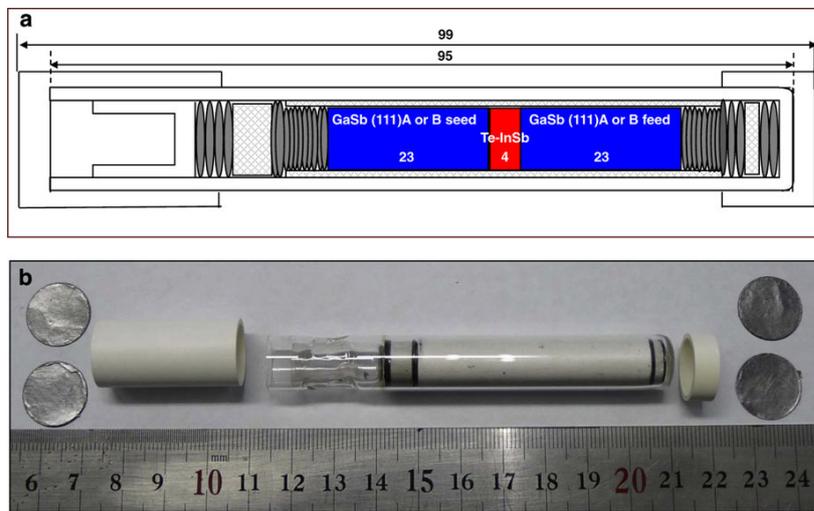


図2-1. 試料アンプルの構造：(a) 概略、(b) 写真。

表2-2. 試料アンプル中の種結晶と原料結晶の組み合わせ。

試料No.	実験No.	目的	種結晶	原料結晶
1	-	チェックアウト時の温度校正	GaSb(111)A	GaSb(111)A
2	1	GaSb(111)A結晶成長	GaSb(111)A	GaSb(111)A
3	2	GaSb(111)B結晶成長	GaSb(111)B	GaSb(111)B
4	3	GaSb(100)結晶成長	GaSb(100)	GaSb(100)
5	4	GaSb(110)結晶成長	GaSb(110)	GaSb(110)

2.2 体制

表2-3に研究の実施体制を示す(平成22年6月8日に開催されたフライト実験準備移行審査会での資料に基づく)。後述するように当初予定よりも実験時期が遅れかつ軌道上装置の不具合が発生したが、各フェーズにて体制が十分に機能し役割を果たした結果、地上実験および軌道上実験が実施出来、成果創出につながった。

表2-3. 実施体制

役割	所属・氏名	分担内容
研究代表者	JAXA 宇宙科学研究所・稲富裕光	研究全般とりまとめ 供試体開発
実験コーディネーター	JAXA 宇宙科学研究所・石川毅彦	JAXA 内外の調整窓口
共同研究者	静岡大学 電子工学研究所・早川泰弘	予備実験、解析
	静岡大学 電子工学研究所・Arivanandhan MUKANNAN	予備実験、解析
	JAXA 宇宙科学研究所・木下恭一	予備実験、解析
	JAXA 宇宙科学研究所・荒井康智	供試体開発
	大阪大学大学院 基礎工学科・岡野泰則	解析
	静岡大学 電子工学研究所・田中昭	解析
	静岡理工科大学 理工学部・小澤哲夫	解析
	兵庫県立大学大学院・新船幸二	解析
供試体製造担当	株式会社 IHI エアロスペース 宇宙技術部・岡利春	供試体開発
実験計画等支援	財団法人日本宇宙フォーラム 宇宙利用事業部・島岡太郎	実験計画作成
実験運用等支援	有人宇宙システム株式会社 利用エンジニアリング部・吉川淳一	実験計画作成

- 研究計画詳細化： 早川、田中、小澤、荒船、稲富は結晶成長条件を決定した。JAXA きぼう利用センターは、GHF の機械的・電氣的インターフェースなど供試体設計に必要な情報を PI チームに提供した。
- 実験準備移行審査： 石川、島岡、吉川は、打ち上げ～試料回収に至るスケジュールおよび実験要求の最適化、実験実現性の検討など支援を行った。
- 供試体設計・製作・試験： 木下、荒井は供試体構造の基本設計を支援した。稲富は GHF 内の伝熱解析を行いサンプル部の構造決定を行った。早川は試料アンプルの製作を行った。岡は供試体製造の可能性および機能・性能を検討し、製作した。稲富、早川、島岡、吉川は供試体の機械環境試験や予備的加熱試験を行った。
- 適合性試験： 稲富、早川、島岡、吉川は供試体 EM および GHF 地上炉を用いて軌道上実験と同等の加熱試験を行い、その実現性を検討した。JAXA きぼう利用センターは GHF の特性および使用に関する情報を PI チームに提供した。
- 運用要求書の作成および安全審査： 石川、島岡、吉川は支援を行った。
- 射場作業移行審査： JAXA きぼう利用センターが実施した。
- 供試体打ち上げ～軌道上実験～供試体の回収： GHF の真空排気系の問題が発生したため、JAXA きぼう利用センターがその対策を検討した。その結果、供試体の昇温速度を当初予定よりも低く設定することで本実験実施が可能となった。供試体の打ち上げ、回収は JAXA きぼう利用センターが支援した。
- 飛行後解析： 稲富、石川と共同研究者が実施した。

3. 実験準備・運用

3.1 候補テーマ選定

2008年2月に、船内実験室第2期前半期間候補テーマとして選定された。

選定理由：高品質な混晶半導体の製作を目指しながらも、物質輸送や結晶界面との関係の解明を目指すなど学術的価値が高い。仮説に基づく数値計算による予測など綿密で高いレベルの検討がされており、確実な成果が期待される。

選定に当たっての付帯条件：GHFの分離機構カートリッジを前提として供試体設計を行うこと。

3.2 研究計画詳細化

選定後の詳細化フェーズにおいて、実験要求の詳細化と実行計画を検討した。

- 実験要求、供試体概念検討、運用性検討、安全性検討を実施。
- 実験プロジェクトとしての実施項目、コスト、スケジュール、体制などの具体化。

3.3 実験準備移行審査

実験準備フェーズへの移行に当たっては、実験要求が設定され、供試体の開発や試験、運用準備などの作業に着手できるかを判断された。

- 2010年5月21日 実験要求の妥当性：外部専門家による評価

1) 実験の目的、仮説、予想される結果が具体的かつ明確であり、選定時の科学的意義が損なわれていないこと、2) 実験の目的達成に対して、実験方法や条件などが具体的でかつ実現性があること、3) 上記を実現できる必要な供試体、器具類への設計要求が明確でかつ実現性があること、が全て確認された。

- 2010年6月8日 実施計画の妥当性：JAXA 準備移行審査会

1) 宇宙実験実施までの作業スケジュール、コスト、体制が明確かつ実現性があること、2) 外部評価での実験要求の評価状況の報告、3) 運用性、安全性の面で実現性があること、が審査された。その結果、要処置事項に対処することを条件に実験準備フェーズに移行することが認められた。

3.4 供試体設計、製作、試験

3.4.1 実験用結晶の準備

回転引き上げ法を用いて、GaSb(111)、(100)、(110)バルク単結晶およびInSb結晶の育成を行なった。そして、X線ラウエ法を用いてGaSb結晶の面方位を確認した。不純物導入のためInSb結晶にTeを 10^{21} atm/cm³ドープした。

3.4.2 供試体の設計・試作

供試体は、**図3-1**に示すようにボス部、サポート部、サンプル部で構成される。結晶や溶液形成材、るつぼなどを真空封入した試料アンプルを耐熱合金であるC-103合金(89% Nb+10% Hf+1% Ti、融点：約2350℃)製の容器に電子ビーム溶接にて真空封入したものをサンプル部とする。サンプル部は**図2-1**に示した試料アンプルを内蔵する。そして温度計測用熱電対を表面近傍に埋め込んだサンプル部をサポート部に嵌め込み、ボス部を介してGHFとの機

械的・熱的・電氣的インターフェースを形成する。

サンプル部表面への熱電対取付けについて、少なくとも本実験で想定される加熱温度範囲内で C-103 合金と接触しても問題ないシースを持つ W-Re 型熱電対をアリ溝加工により最大 5 本配置することが可能と判断した。しかし、GHF 制御装置側の標準の低温カートリッジ用熱電対インターフェースは R 型熱電対に対応しているため、サンプル部用熱電対の 1 本をボス部コネクタ温度測定用に転用し、熱電対テレメトリ変換式を変更することで、他の 4 本の熱電対による温度測定を可能にした。

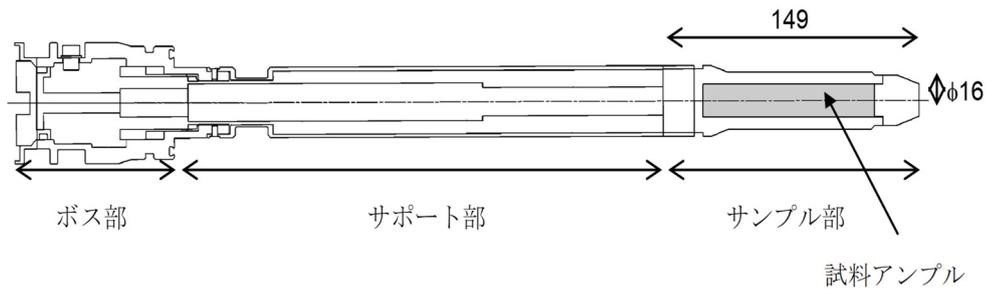


図3-1. 供試体の構造の概略図。

供試体の伝熱特性に関する基礎データを得るために、レーザーフラッシュ法熱定数測定装置を用いて、BN とカーボンシートの熱拡散率、比熱、熱伝導率を求めた。更に、InGaSb 結晶成長の数値流体力学的計算を実施する上で必要な InGaSb 融液の粘性の温度、濃度依存性を求めた[0-2、0-3、0-4]。

有限要素法による 2 次元軸対称計算モデルでの数値シミュレーションにより GHF 加熱炉内の伝熱解析を行い、図3-2に示すように SiGe 結晶成長実験(Hicari テーマ)の地上実験でのカートリッジ表面温度分布をほぼ再現することに成功した。なお、モデル作成および計算には商用 CFD ソフトウェア GAMBIT 2.4、FIDAP 8.7.4 を使用した。

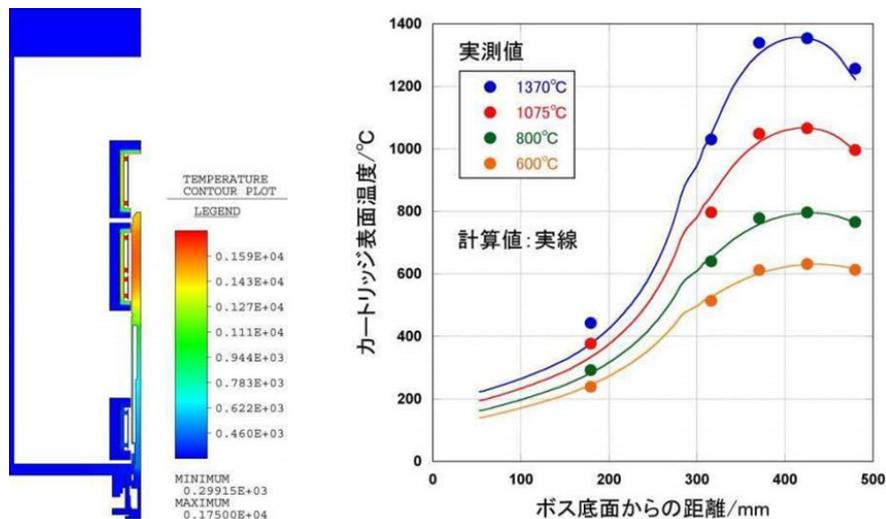


図3-2. Hicari テーマの地上実験用カートリッジ表面温度分布の計算結果。

この実績に基づき本実験のためのヒーター配置と温度プログラムの決定、供試体形状の詳細化を行った。計算の結果得られた本実験における GHF 内の温度分布の計算例を図3-3に示す[0-1]。サンプル部表面の放射率を 0.28~0.98 の範囲で仮定し、GHF ヒーターの設定温度を算出した。その結果、サンプル部表面の放射率を 0.9 以上に増大させることでサンプル部内部に鋭い熱パルスを導入することが可能であることを明らかにした。従って、C-103 試験片表面に様々な粒径でのショットブラスト処理を施し、FT-IR 測定を併用して放射率が 0.9 以上となる処理条件を求めた。図3-4に供試体エンジニアリングモデルの写真を示す。

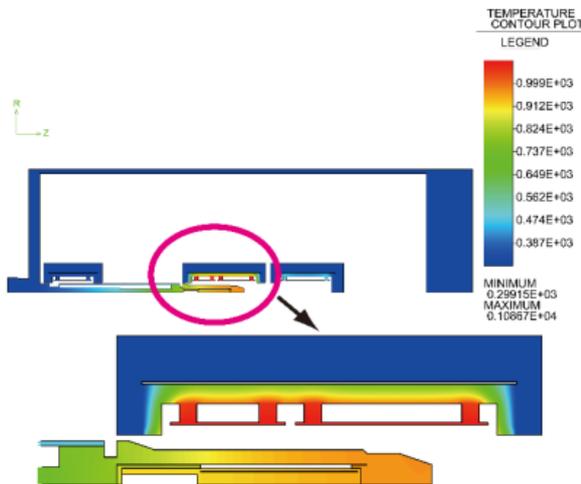


図3-3. GHF 内の温度分布の計算結果。

図3-4. 供試体のエンジニアリングモデルの写真。

3.4.3 安全性の確認

「きぼう」内での本実験の安全性を検証するために以下の測定や確認を実施した結果[0-5]、本実験の安全性は問題ないと判断された。

- 蒸発率測定装置を用いて GaSb、InSb、 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{Sb}$ の蒸発速度の温度依存性を測定した結果、 1127°C における蒸発率は $4 \times 10^{-5} \text{g/cm}^2 \text{sec}$ と低かった。
- InGaSb 融液の石英、BN、カーボン及び C-103 合金に対する濡れ性を計測した。InGaSb 結晶をそれらの素材に接触させ 1100°C まで上昇させた結果、石英、BN、カーボンは濡れ性が悪く、C-103 合金上は濡れ性が非常に良いことが分かった。従って、もし試料を封入してある試料アンプルが実験中に破損して InGaSb 溶液が漏れ出しカートリッジと接触したとしても、溶液がカートリッジの内壁全体に広がりサンプル部の一か所で集中的に腐食が進行しないことが明らかになった。
- C-103 合金を 1200°C の InGaSb 融液中に 100 時間浸して腐食試験を実施した。その結果、サンプル部の最低肉厚は 4mm あれば十分であると結論付けた。
- NASA による試料素材の毒性評価の結果、毒性レベルは 0 と判定された。

3.4.4 加熱試験

伝熱特性シミュレーション結果に基づき、供試体エンジニアリングモデル/地上炉組合せに

よる加熱実験を実施した。その結果、ヒーター温度の調整により所定の温度分布を取得し、適切な熱パルスの導入を達成出来ることを実証した。そして、EPMA による組成分布と成長縞を用いた成長速度の測定の結果から、地上では予定している実験条件により結晶成長後の試料から成長速度、濃度分布を計測出来る事を確認した。それらの結果を踏まえて、軌道上実験における温度プロファイルを最終的に決定した。

3.4.5 機械的環境試験

本宇宙実験テーマでは、2011 年打ち上げの HTV 3 号機により供試体を地上から「きぼう」へ輸送し、軌道上の GHF にて同カートリッジの加熱・冷却を行い、ロシアのソユーズないし米国で開発中の往還機により供試体を地上に回収することが予定されていた。従って、それらの飛翔体打ち上げ時の振動、軌道上の加熱、帰還時の振動と衝撃を模擬した環境試験を 2010 年 6 月および 12 月に行った。振動試験を複数回実施して試料アンプル構造の最適化を行い、内部構造が振動および衝撃に十分耐えることを X 線透過測定により非破壊的に確認した。

3.5 実験準備フェーズ終了～供試体打ち上げ

供試体のフライトモデル製作は 2011 年 2 月に終了し JAXA に引き渡されて実験準備フェーズを終えた。その後、ロシアへ輸送されソユーズで 2011 年 12 月に打ち上げた。

3.6 軌道上実験の運用

実験運用のスケジュール調整の結果、本実験の前に同じく GHF を利用する Hicari 実験を実施することとなり、実験の実施時期が当初予定から変更となった。

2013 年 3 月に 5 本の供試体がクルーにより GHF にインストールされた。そして 2013 年 4 月にチェックアウトを行い、温度勾配や各熱電対の温度は地上試験の結果を再現できること、温度パルスは予定通り自動／手動で入ることを確認した。但し、昇温速度を地上試験と同様のペースで昇温を行ったところ、当初の予想より脱ガスが多かったため、0.1Pa を超えた時点(695°C)で、700°Cまで上昇させることを断念した。その後、675°Cまで下げて加熱を再開した。

以上の結果を元に実験 No.1 の温度シーケンスに反映した。具体的には、410°C→640°Cを 46 時間で昇温し、その後、手動での昇温を速度 2.5°C/30 分で行うこととした。加熱室が 500°C未満の時は、結晶成長が開始していないので、冷却後、再度試験を行うことが出来る。500°C以上では結晶成長が始まっており、もし GHF を緊急停止すると急冷となり凝固後の結晶にクラックが入るので、徐冷によりクラックが発生しないようにする。

軌道上実験は 2015 年 12 月に全て終了した。その際に測定されたサンプル部表面温度プロファイルの例を図 3-5 に示す[R-1]。当初目標温度への到達および 100 時間を超える温度保持、そしてほぼ 2 時間毎の 10°C の熱パルス導入の達成が確認された。

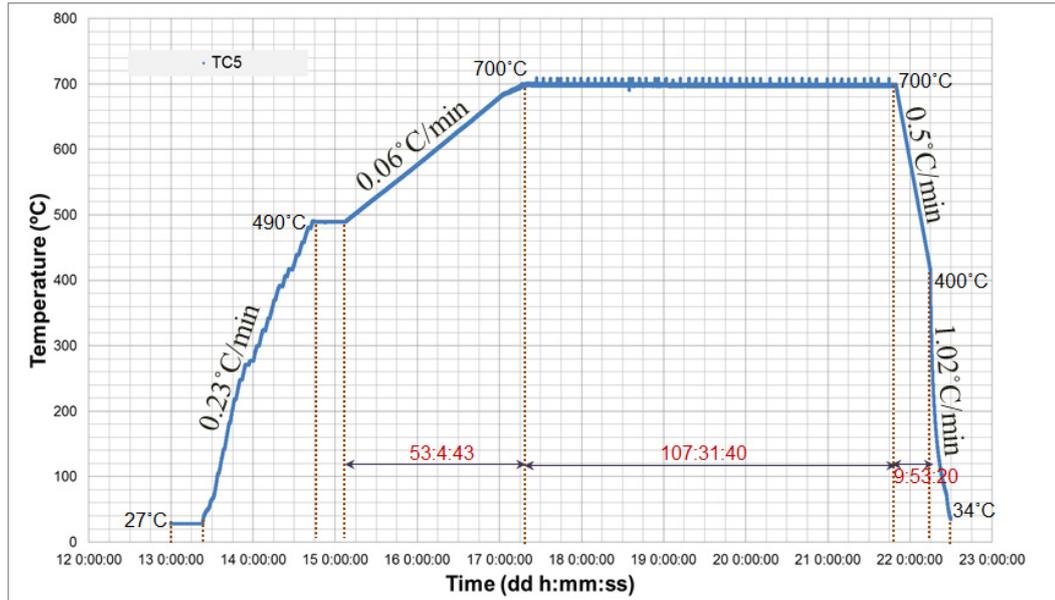


図3-5. 軌道上実験における典型的なサンプル部表面温度プロファイル。

3.7 供試体の回収

供試体 No.2 はソユーズ宇宙船により帰還して 2013 年 11 月に、残り全てはドラゴン宇宙船 SpX により帰還して 2015 年 3 月に JAXA 筑波宇宙センターに到着した。供試体はサンプル部とサポート部で分離された(図3-1)。ウォータージェット加工によりサンプル部端部を切断して試料アンプルを取り出した。そして、目視および X 線透過試験により試料アンプルに破損など問題ないことを非破壊的に確認した。

4. 実験結果および成果

4.1 重力の影響

4.1.1 GaSb の種結晶と供給原料の融解長さ

GaSb(111)A 種結晶/Te 添加 InSb/GaSb(111)A 供給原料から構成される試料を用いて、地上実験と宇宙実験を行い、両試料の特性を比較することで重力効果を調べた。

図4-1に微小重力環境(以降、 μG と略す)と地上重力環境(以降、1G と略す)試料の実験前の外観写真と実験後の(110)断面写真を示す[0-7]。図中で実験前の種結晶と供給原料の位置を赤矢印で示してある。また、GaSb 種結晶の一部が InSb 融液に溶解した後、InGaSb が結晶成長したときの界面位置を黒矢印で示してある。溶け残った種結晶と供給原料の長さを測定し、成長実験前の種結晶と供給原料の長さとの比較により、溶解した種結晶と供給原料の長さを求めた。 μG 実験では種結晶と供給原料の溶解長さはそれぞれ 2.3 と 15mm であり、1G 試料では 4.9 と 11mm であった。種結晶融解長さは 1G 試料の方が μG 試料よりも長く、供給原料の融解長さは 1G 試料よりも μG 試料の方が長いことが示された。

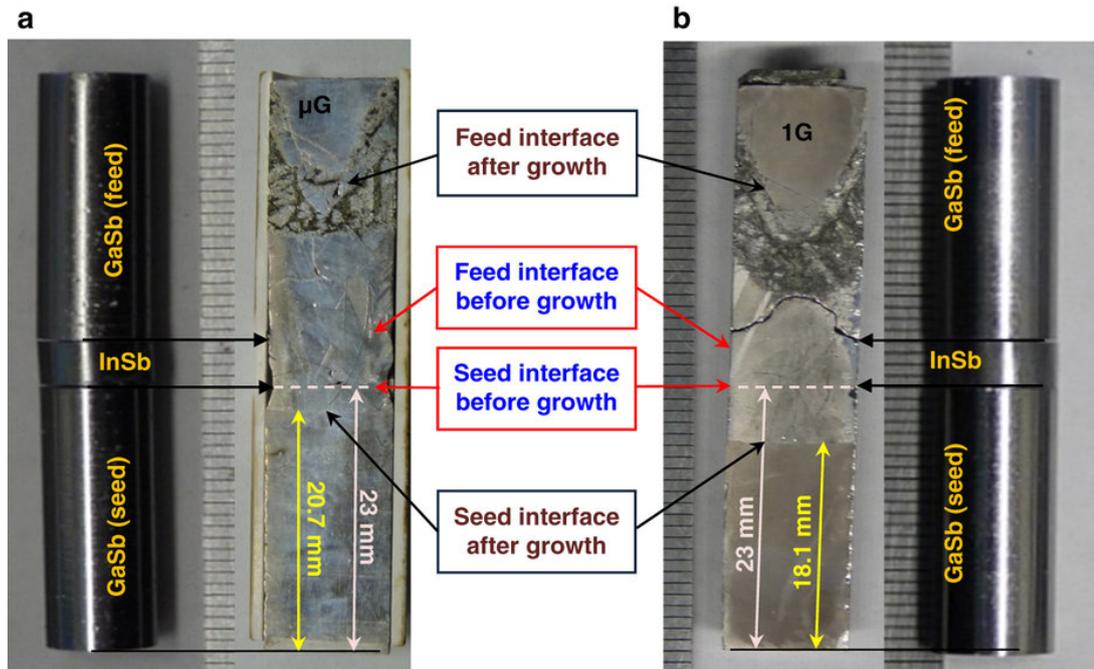


図4-1. GaSb(111)A種結晶/Te添加InSb/GaSb(111)A試料：(a) μ G、(b) 1G。

4.1.2 μ G、1G 試料の組成分布比較

図4-2は μ G と 1G での(111)A 試料の In 組成分布である[0-7]。種結晶界面形状は両試料ともほぼ平坦であるが、成長後の領域では μ G 試料の界面形状がほぼ平坦であるのに対して、1G 試料では大きく湾曲していた。これは結晶成長界面形状が成長と共に湾曲していったことを反映している。

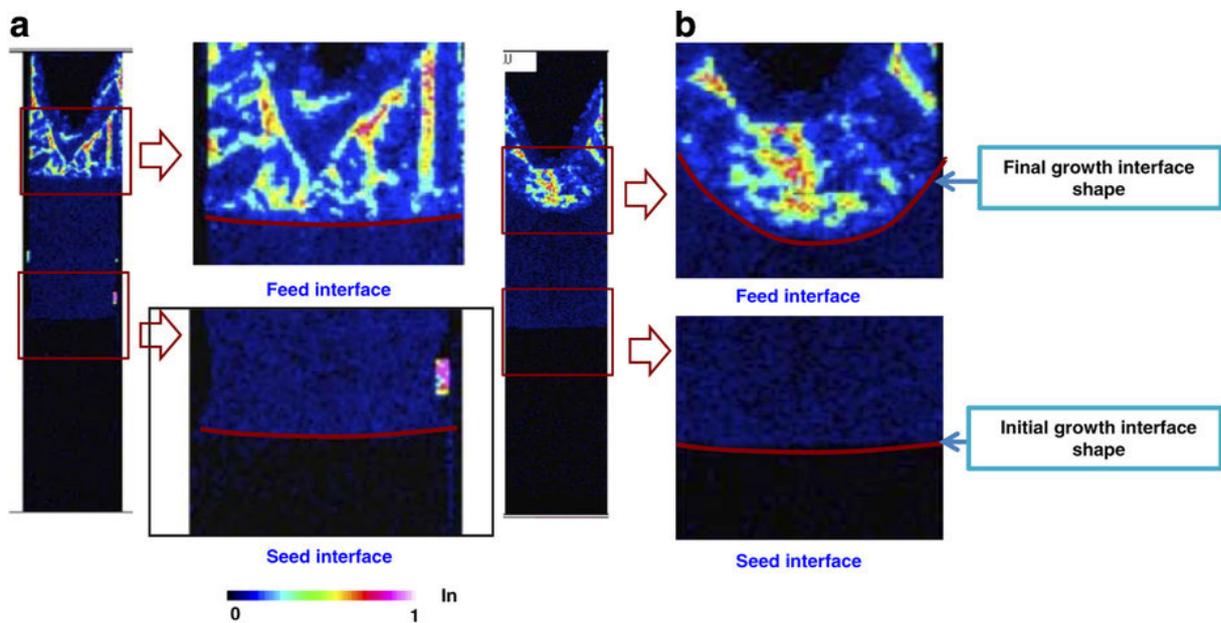


図4-2. 実験後試料の切断面におけるIn分布：(a) μ G試料、(b) 1G試料。

結晶中央部を成長方向に EPMA で測定した In 組成分布を図4-3 (a)に示す[0-7]。種結晶界面の In 組成は μ G 試料では 0.028、1G 試料では 0.041 であり、1G 試料の方が高い

値であった。これは、1G 試料の方が μG 試料よりも種結晶がより多く溶解したため、結晶成長開始温度が低かったことを示している。両試料とも成長が進むにつれて In 組成が減少した。これは、成長が進むにつれて成長界面位置が高温側へ移動するため、成長温度が高くなるためである。InSb-GaSb 擬似二元相図を用いて In 組成分布を平衡温度に換算した結果、 μG 試料では $0.64\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ 、1G 試料では $0.58\text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$ の温度勾配が算出された。 μG 実験の温度勾配が 1G 実験よりも僅かに高かったことが示唆された。In 組成は成長につれて減少した後、 μG 試料では 36.1 mm 、1G 試料では 30.6 mm 以降大きく変動していた。これは、残留溶液が凝固した領域に対応していた。

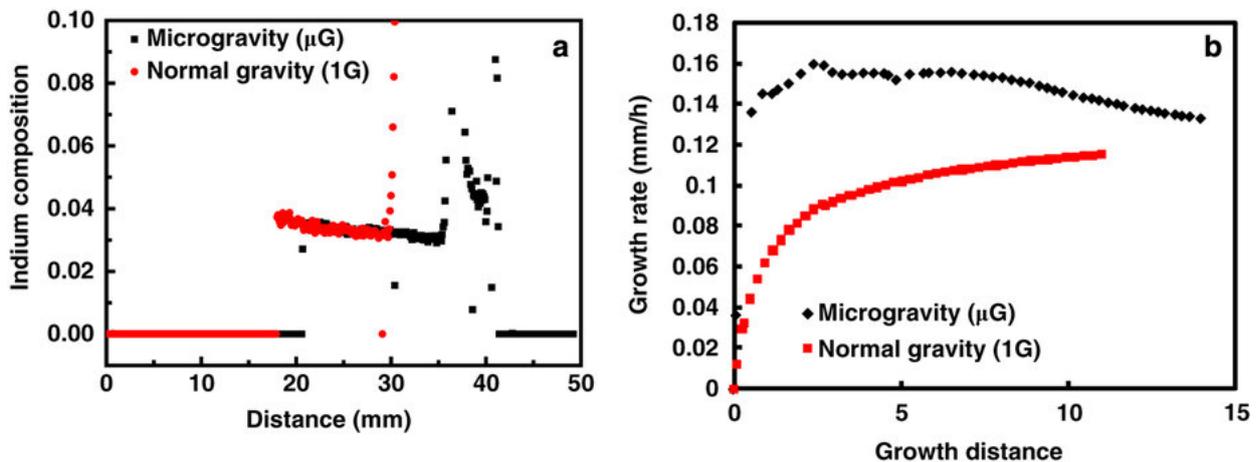


図4-3. μG 実験と 1G 実験試料の切断面における結晶中心軸に沿った解析結果：(a) In 組成分布、(b) 成長速度。

4.1.3 μG 、1G 試料の成長速度比較

図4-4にエッチング後の InGaSb 結晶表面を示す[0-7]。(a)が μG 、(b)は 1G 試料、(c)と (d)は 1G 試料での結晶周辺部の拡大写真である。 μG 試料はすべての不純物縞を成長界面全域に渡って明瞭に観察できた。縞の形状はほぼ平坦であった。これは、 μG 試料は種結晶の成長界面全域で結晶が成長したことを示している。一方 1G 試料では(c)に示すように、1本目と 2 本目の縞を結晶周辺部で観察できたが、結晶中央部では観察できなかった。縞は、融液方向に大きく湾曲していた。これは、成長初期に結晶が周辺部分から成長したこと及び種結晶中央部では溶液が未飽和であり、結晶成長しなかったことを示している。(d)に示すように、1G 試料では種結晶が溶解したとき、結晶端部に(111)面からなるファセットが現れていた。(111)面は他の面と比べると安定な面であることから、成長カイネティクスが重要な役割を果たしていることが示唆された。

不純物縞の間隔と導入時間間隔から成長速度を算出した結果を図4-3 (b)に示す。1G 試料は結晶成長初期では成長速度が遅いが、成長するにつれて高くなった。

結晶成長速度 V は以下の式で示すことができる。

$$V = -\frac{D}{(C_{l0} - C_{s0})} \left(\frac{\partial C_L}{\partial Z} \right)_{Z=0} \quad (4-1)$$

ここで D は拡散係数であり、式(4-1)の分子は溶質の供給速度を示している。分母の C_{l0} と C_{s0}

はそれぞれ成長界面付近の溶液と成長結晶の組成を示している。結晶が成長するにつれて成長界面の位置は高温側に移動するため、連動して成長温度は上昇する。InSb-GaSb 擬似二元相図から、成長温度が高くなるにつれて、液相線と固相線が近づくために $(C_0 - C_s)$ の値は小さくなる。その結果、式(4-1)の分子の項の値が小さくなり結晶成長速度が増加する。

μ G 試料の成長速度は、成長長さが 2.4mm に達したとき成長速度は 0.16mm/h の最大値に増加した。また、3mm を過ぎた後の成長速度は徐々に減少し、1G 試料の値に近づいた。InGaSb 結晶が成長するにつれて、溶液中の InSb 濃度と GaSb 濃度が消費されるため、GaSb 供給原料が InGaSb 溶液に溶解することで溶液中に GaSb 溶質が補充される。しかし、成長終盤では溶液中への GaSb 供給が十分行われなくなるため、成長速度が減少したと考えられる。 μ G 試料の成長速度と 1G 試料を比較すると、 μ G 試料の方が 1G 試料よりも成長速度が大きいことが分かる。

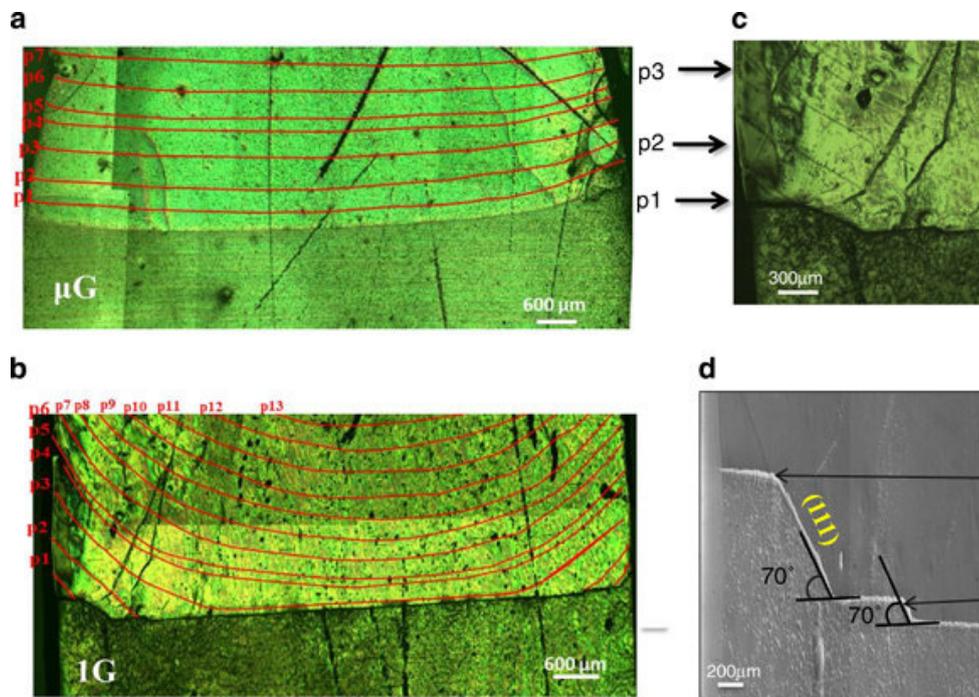


図4-4. (a) エッチングした μ G 実験試料断面の偏光顕微鏡像、(b) 1G 実験での偏光顕微鏡写像、(c) 1G 実験での周辺部の結晶光学顕微鏡写真、(d) 1G 実験での外縁部分のFE-SEM像。不純物縞の位置を実線でなぞっており、熱パルスの導入番号順に縞をp1、p2…と名付けた。

4.1.4 μ G、1G 試料の欠陥分布比較

InGaSb 成長結晶のエッチピット密度 (EPD) は GaSb 種結晶の EPD よりも低くなった。 μ G 試料と 1G 試料の EPD はそれぞれ $2.16 \times 10^4 / \text{cm}^2$ と $2.72 \times 10^4 / \text{cm}^2$ であり、 μ G 試料の方が 1G 試料よりも欠陥密度が低くなった。これは、 μ G では対流が抑制されるため、1G 試料よりも高品質の結晶が成長したことを示している [0-7]。

4.1.5 結晶成長界面形状に関する数値計算

重力が InSb 溶液中への GaSb 溶解に及ぼす効果を数値解析結果から検討した。解析に用いた基礎式は、流体内では連続式、温度差及び濃度差に起因する浮力項を考慮した Navier-

Stokes 方程式、エネルギー方程式、拡散方程式、固体内ではエネルギー方程式である。

図4-5に μG 条件下と 1G 条件下における InSb 融液中への GaSb 溶解過程の数値解析結果を示す。左側に溶質速度分布、右側に溶質濃度分布を示す。 μG 条件下では溶質対流は極めて小さいため、 InSb 融液中に GaSb 結晶が溶解し、拡散によって溶液中央部に輸送される。温度の高い供給原料の方が温度の低い種結晶よりも GaSb 溶解量が大きくなる。また、 μG 試料は1本目の不純物縞が全域で観察できることから、種結晶の全域から結晶成長していることが分かる。更に、種結晶近傍の溶液に GaSb 溶質が蓄積しやすいため、結晶成長速度は 1G 試料よりも大きくなっていった。

一方、 1G 下では GaSb の融液密度 ($6,01\text{kg}/\text{m}^3$) が InSb の値 ($6,32\text{kg}/\text{m}^3$) よりも小さいため、濃度差に起因した密度差対流 (溶質対流) が発生する。この溶質対流により、溶解した GaSb 溶質が溶液下部から上部へ輸送され、供給原料界面に蓄積する。その結果、 GaSb 供給原料の溶解が抑制される。種結晶近傍では溶液が未飽和になるため、種結晶の溶解が促進される。また、対流により種結晶の端周辺に溶質が蓄積しやすいため、 1G 試料は結晶周辺部から成長が始まっている。溶液が未飽和になりやすいため、結晶成長速度も μG 試料よりも小さくなったと考えられる。

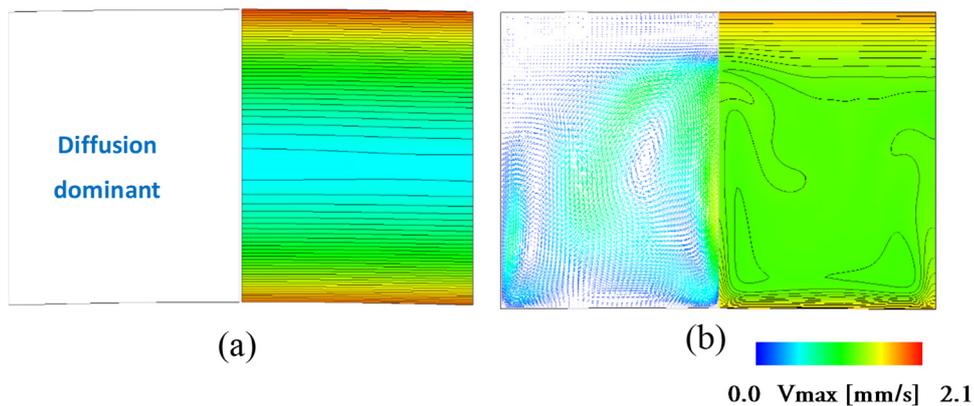


図4-5. InGaSb 溶液中のフローパターンと濃度分布: (a) μG 、(b) 1G 。

当初は高温側が最初に溶融することを予測していたが、実際には低温側である下側結晶の溶融が生じ、逆に高温側の上側結晶はほとんど溶融しなかった。これは比重が小さく融点の高い GaSb が下部で溶融すると上部に輸送され、上部で GaSb が高濃度になるため溶融しにくくなるためであることが数値解析より判明した。実験結果 (プロット) と数値解析結果 (実線) との比較を図4-6に示す [O-6]。

ここまで記した解析は実際の宇宙実験に比べ、かなり小さなサイズでしかも立方体の試料に対する計算であった。しかし、実際の実験結果と比較し界面カインेटイクスの影響を検討し、アンプルの ISS 内重力との傾きや微小重力変動の影響を厳密に議論するには実験で用いたものと同サイズで円筒形三次元計算を行う必要がある。そのためにはこれまで用いていた、BFC (Boundary Fixing Coordinate) 法では計算負荷が大きく、実用的な計算に支障をきたしていた。そこで新たに volume-averaging continuum 法 [13] を OpenFOAM に導入し計算負荷の低減を行った [DC-14]。本法は、固体、液体、それらの混合体を同時に扱うモデルであり、

BFC に比べ精度の低下は懸念されるものの計算時間は短縮可能である。

本方法で行った成長初期に関する計算結果[14]を図4-6の破線で示す。この結果は BFC を用いた結果と良好に一致しており、健全に計算が行われていることを示している。このときの速度分布、濃度分布、温度分布の一例を図4-7に示す[DC-14]。固液界面を温度分布が横切っており、長方形格子において固液界面を良好に表現出来ていることが判る。また OpenFOAM に導入することにより並列計算が容易となり、大幅な計算時間の短縮を実現した。

微小重力実験と同一の大きさを対象とした 2 次元計算結果の一例を図4-8に示す。また固液界面形状に関する実験結果と計算結果との比較を図4-9に示す。両者は良好に一致しており、宇宙実験結果を本手法で解析しうることが分かった[DC-14]。

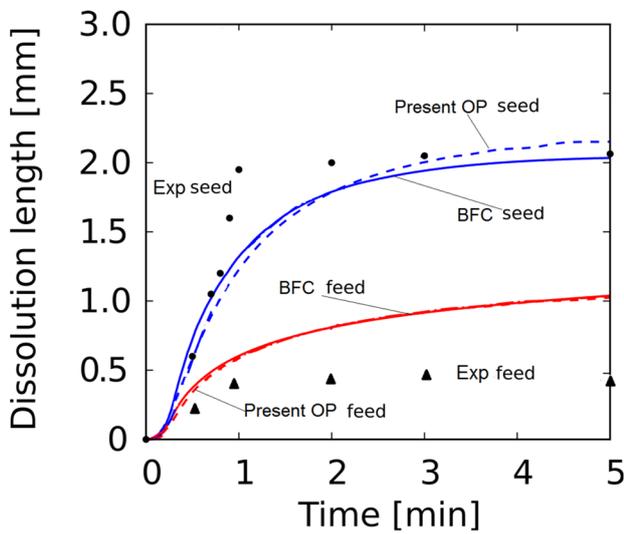


図4-6. 成長初期の X 線透過実験結果と数値解析結果との比較。

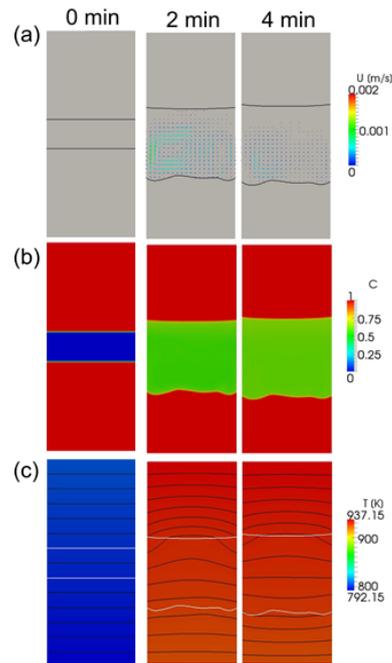


図4-7. 解析結果の例。(a)速度分布、(b)濃度分布、(c)温度分布。

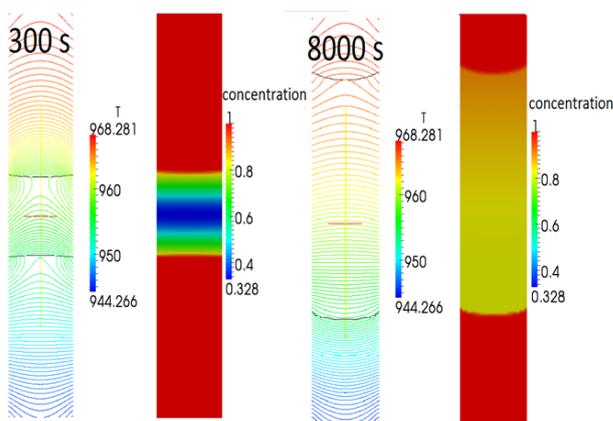


図4-8. 溶液中の等温線分布(左)と濃度分布(右)の時間変化。

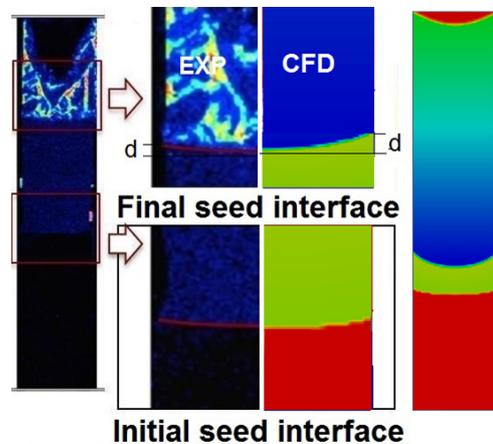


図4-9. 固液界面形状の比較。

4.2 結晶成長界面方位効果

4.2.1 In 組成分布の結晶面方位依存性

μG 実験における成長結晶切断面の In 組成分布を測定した結果を図4-10に示す[0-11]。結晶周辺、中央部を成長方向に測定した。3箇所とも同様の傾向を示していた。(111)A 面試料では、種結晶との界面では In 組成が 0.034 であり、成長方向に徐々に低くなり 0.026 となった。(111)B 面試料では、種結晶との界面では In 組成が 0.034 であり、成長方向に徐々に低くなり 0.026 となった。半径方向の In 組成分布は(111)A 面、(111)B 面とも均一であった。

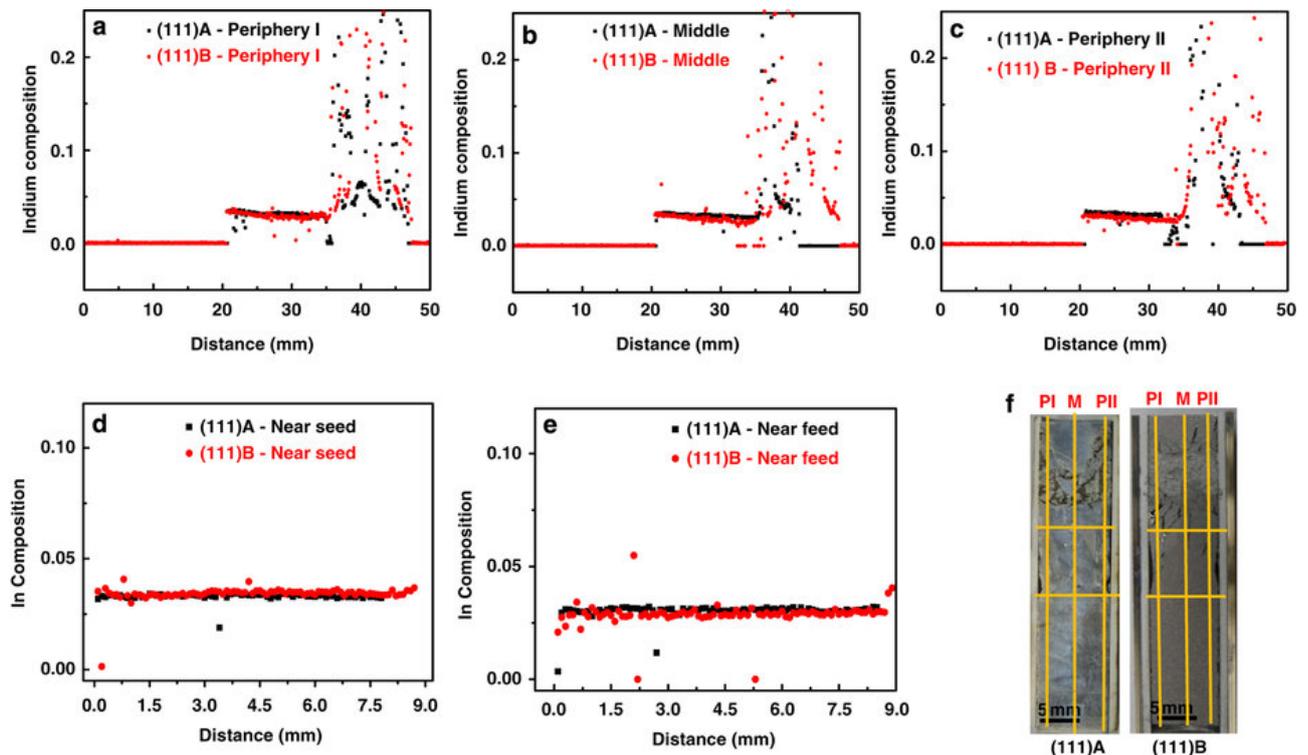


図4-10. In 濃度分布：(a) 周辺部-I(軸方向)、(b) 中心部(軸方向)、(c) 周辺部-II(軸方向)、(d) 種結晶界面(半径方向)、(e)原料結晶界面(半径方向)、(f) 測定箇所。

4.2.2 供給原料の溶解長さおよび結晶成長速度の結晶面方位依存性

図4-11は(111)A 面と(111)B 面を用いたときの供試体サンプル部側面に沿った温度分布を示す。(111)A 面と(111)B 面種結晶界面温度はそれぞれ 687.3℃と 688.2℃であり、温度勾配は 0.81℃/mm と 0.90℃/mm となり、後者の温度勾配が 11.1%高い。図4-12は(111)A 面と(111)B 面を用いたときの試料(110)断面写真と In 組成のマッピング図を示す[0-11]。種結晶界面と成長終了後の界面形状は両試料ともほぼ平坦であった。(111)A 面と(111)B 面試料の種結晶溶解長さはそれぞれ 2.3mm と 2.5 mm、供給原料溶解長さはそれぞれ 14.4 mm と 19.9 mm であった。(111)B 面の方が(111)A 面よりも溶解しやすいことが分かった。

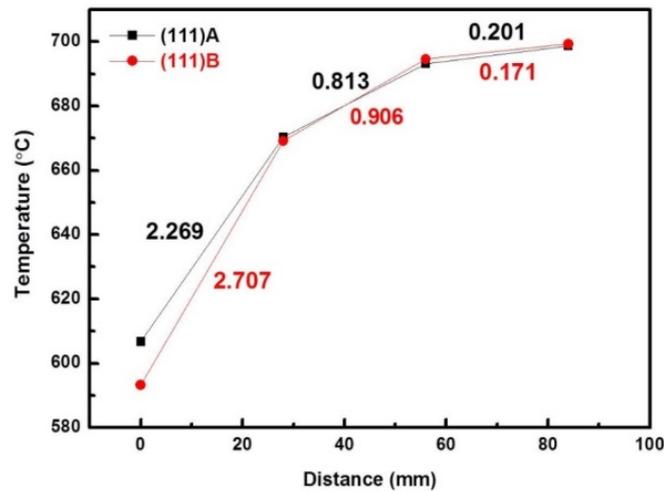


図4-11. サンプル部側面に沿った温度分布。黒字、赤字は(111)A、Bの供試体に対応する。

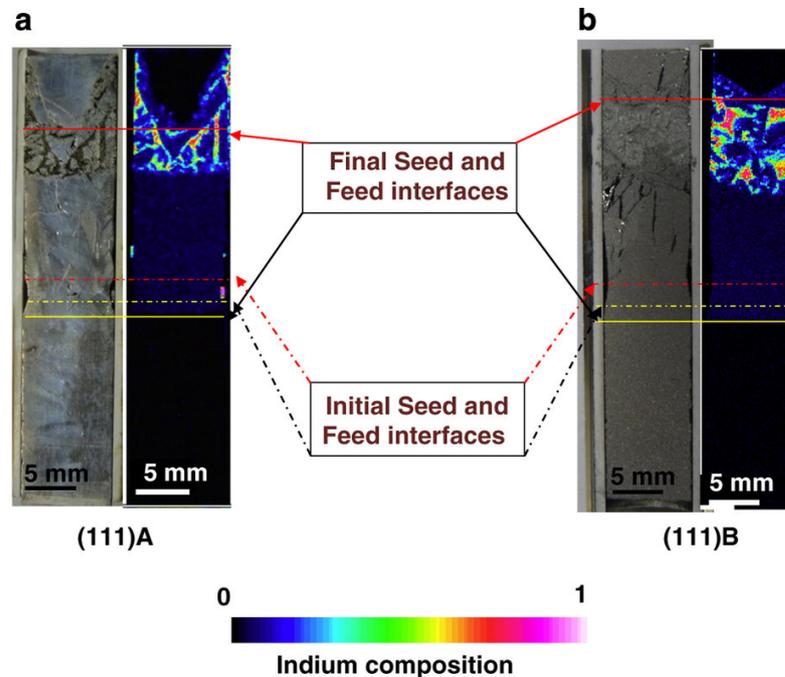


図4-12. μG 実験試料の切断面の光学顕微鏡像と EPMA による In 組成マッピング：(a) (111)A 試料、(b) (111)B 試料。図中の赤線、黄線はそれぞれ種結晶、種結晶界面位置を、点線と実線はそれぞれ成長の初期、終期を示している。

(111)A 面と(111)B 面の溶解量の相違 GaSb の原子配列の相違を考慮して検討した[0-11]。図4-13は単位胞のコーナーに Ga 原子がある場合を仮定した場合の GaSb $1 \times 1 \times 1$ セルおよび GaSb $2 \times 2 \times 2$ セルの原子配列を表している。GaSb は閃亜鉛鉱構造をしている。(111)A 面は Ga-Sb-Ga-Sb-のように Ga 原子と Sb 原子が交互に配列している。単位胞中の一番上に Ga 原子が 6 個あり、その次の面の Sb 原子が 3 個、その次の面に Ga 原子が 6 個、その次の面に Sb 原子が 1 個並んでいる。一方、(111)B 面は Sb-Ga-Sb-Ga-のように Sb 原子と Ga 原子が交互に配列し、単位胞中の一番上に Sb 原子が 1 個あり、その次の面の Ga 原子が 6 個、その次の面に Sb 原子が 3 個、その次の面に Ga 原子が 6 個並んでいる。Ga 原

子と Sb 原子の総数は同じである。一方、Ga 原子と Sb 原子の結合数を調べると、(111)A 面では 9、3、3、1 結合数の順となり総数は 16 結合となる。一方、(111)B 面では 3、3、9、0 結合数の順となり結合数の合計 15 である。これは、(111)B 面の方が(111)A 面よりも結合数が少ないことを意味する。 $2 \times 2 \times 2$ セル構造では、同様に Ga と Sb 原子数は同じであるが、結合数は(111)A 面では 124 個、(111)B 面では 122 個となり、(111)B 面の方が(111)A 面よりも結合数が少ない。もし、 $n \times n \times n$ セルを考えると、結合数は n 倍の差となる。従って、結合数の少ない(111)B 面の方が(111)A 面よりも溶解しやすいことが示された。

図4-13下部に GaSb(111)A 面と(111)B 面の化学エッチングパターンを示す。(111)A 面は三角形、(111)B 面は円形のパターンが現れている。これは結晶面方位の相違を示しており、(111)A 面と(111)B 面の GaSb を種結晶として InGaSb 結晶を成長させた場合、結晶面方位の効果があることを示唆している。

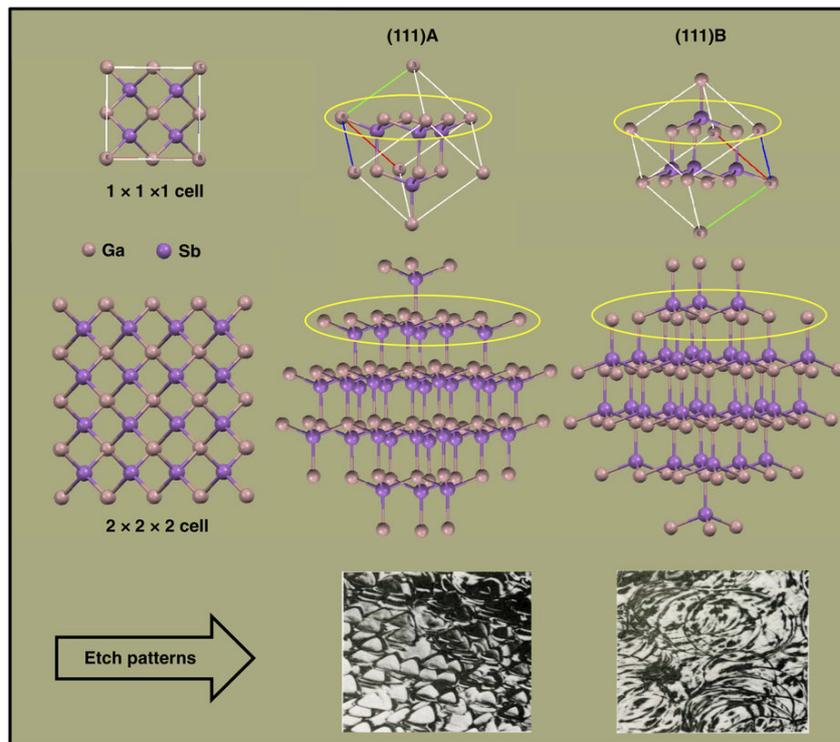


図4-13. GaSb (111)A 面と(111)B 面における原子配列とエッチングパターン。

エッチング後の InGaSb 結晶表面を図4-14に示す[0-11]。両試料とも不純物縞が形成された。成長界面形状は両試料ともほぼ平坦であった。図4-15に結晶周辺、中央部の3ヶ所における成長速度分布を示す[0-11]。成長初期の成長速度を図中に示す。(111)A 面試料、(111)B 面試料の結晶成長速度は成長初期では小さいが、成長が進むにつれて大きくなり、極大値を示した後、減少する傾向があった。結晶が成長するにつれて(111)A 面試料、(111)B 面試料の成長速度の差が大きくなった。(111)B 面試料の成長速度は(111)A 面試料よりも 15.4 %高くなった。

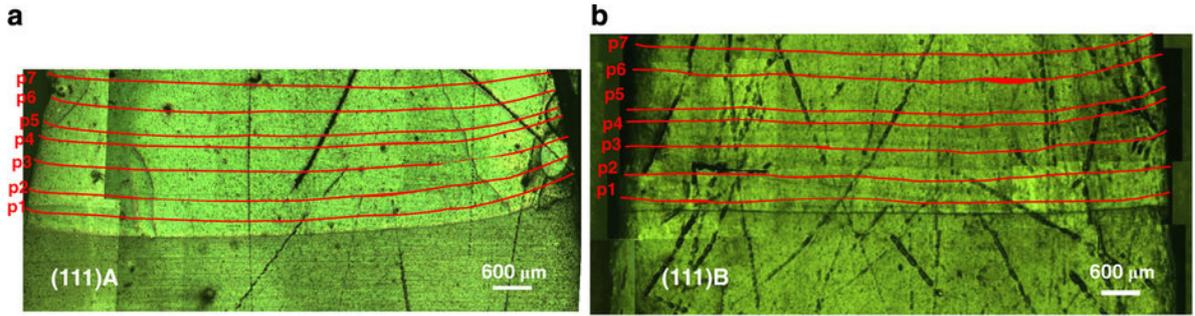


図4-14. 種結晶近傍の成長界面形状と不純物縞：(a) (111)A、(b) (111)B。不純物縞の位置を明確にするために、実線でなぞってある。

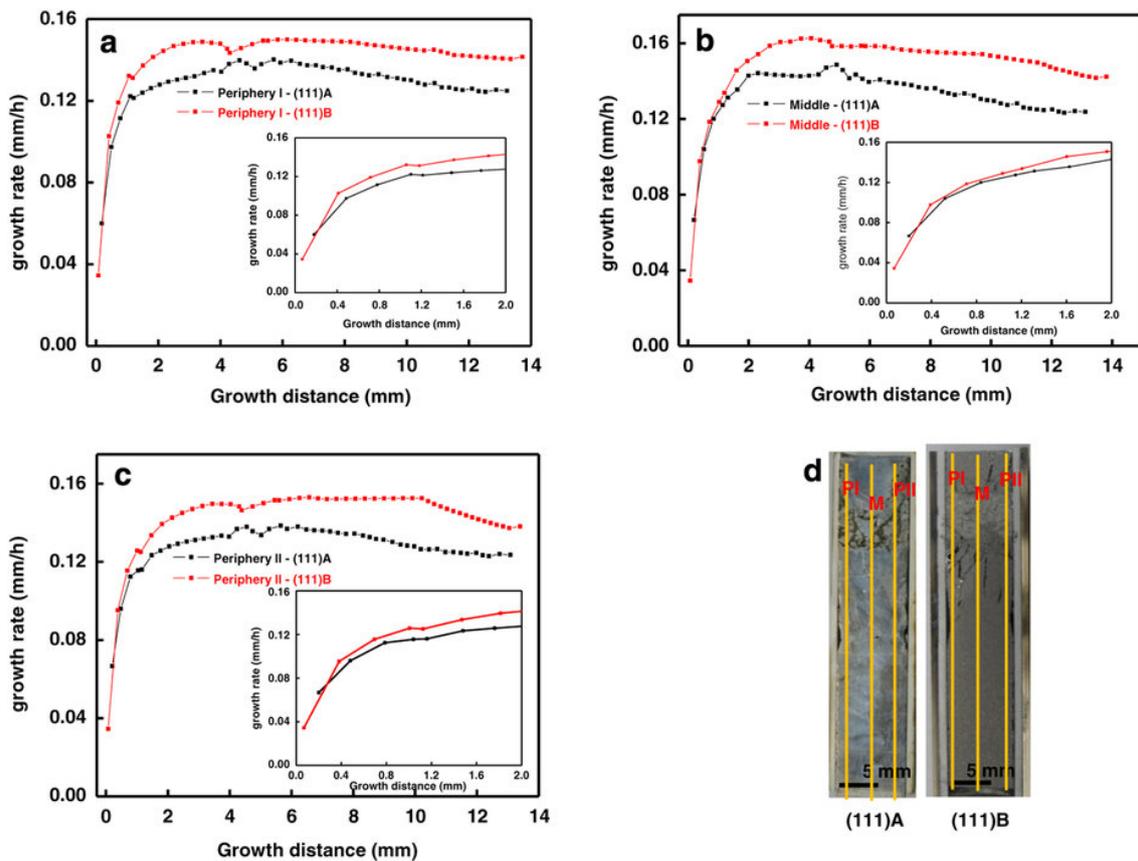


図4-15. 軸方向の成長速度：(a) 周辺部-I、(b) 中心部、(c) 周辺部-II、(d) 測定箇所。

結晶成長速度 V は以下の式で示すことができる。

$$V = -\frac{D}{(C_{l0} - C_{s0})} \left(\frac{\partial C_L}{\partial Z} \right)_{Z=0} = -\frac{D}{(C_{l0} - C_{s0})} \left(\frac{\partial C_L}{\partial T} \right) \left(\frac{\partial T}{\partial Z} \right)_{Z=0} \quad (4-2)$$

ここで、 $\frac{\partial C_L}{\partial Z}$ は濃度勾配、 $\frac{\partial C_L}{\partial T}$ は液相線勾配の逆数である。 $\frac{\partial T}{\partial Z}$ は温度勾配であるから、成長

速度は温度勾配に比例する。成長界面温度が同じであれば、 $A = -\frac{D}{(C_{l0} - C_{s0})} \left(\frac{\partial C_L}{\partial T} \right)$ は一

定とみなせるので、 V_1 と V_2 を(111)A面と(111)B面の成長速度、 $\frac{\partial T_1}{\partial Z}$ と $\frac{\partial T_2}{\partial Z}$ を(111)A面と(111)B面の温度勾配とすると、

$$V_1 = A \left(\frac{\partial T_1}{\partial Z} \right), V_2 = A \left(\frac{\partial T_2}{\partial Z} \right) \quad (4-3)$$

従って、

$$V_1/V_2 = \left(\frac{\partial T_1}{\partial Z} \right) / \left(\frac{\partial T_2}{\partial Z} \right) \quad (4-4)$$

が得られる。実験は(111)B 試料の方が (111)A 面試料よりも温度勾配が 11.1 %高い条件で行われたため、成長速度も(111)B 試料の方が (111)A 面試料よりも 11.1 %高くなることが予想された。しかし、成長速度は(111)B 試料の方が (111)A 面試料よりも 15.4 %高くなっていた。これは、温度勾配のみが結晶成長速度を支配している要因ではないことを示唆している。

本研究から(111)B 面は(111)A 面よりも GaSb の溶解が大きいことが示されている。供給原料として (111)B と(111)A 面の GaSb をそれぞれ使用しているため、(111)B 面試料では(111)A 面試料よりも供給原料の溶解量が大きくなっていた。(111)B 面試料は(111)A 面試料よりも結晶成長時に溶液に供給される GaSb の量が多いため、結晶成長速度が高くなったと推論できる。これは結晶方位が結晶の溶解と成長の両方に影響をもたらすことを示している。

同様の手法により、GaSb(110)面と(100)面を種結晶と原料供給結晶とした場合の解析を行った(成果公開準備中のため関連データは掲載しない)。(110)面の成長速度は(111)B 面よりも小さく、(111)A 面よりも大きいことが分かった。一方、(100)面を用いた実験は他の3つの実験と比べ温度が高くなったため、供給原料が最終的にはすべて溶解して成長していた。界面形状に関しては、(110)、(110)面共に成長初期から湾曲し、以降もそのまま成長を続けたことから、(111)面は他の面と比べると安定な面であることも踏まえると、対流の影響がない条件では界面形状に成長カインेटクスが重要な役割を果たしていることが示唆された。

4.2.3 界面カインेटクスの影響に関する数値解析

InGaSb 結晶成長における界面カインेटクスの影響に関する数値解析を行った[0-8]。図4-16、図4-17に解析モデルを示す。基礎方程式は液相部においては連続式、Navier-Stokes 式、エネルギー式、拡散方程式である。一方、結晶、BN、及び石英の固体部においては熱伝導方程式である。上下の結晶・液相界面では物質バランス式、エネルギーバランス式、及び $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ の状態図を連立し、固液界面位置を時刻で求める。面方位依存性を導入するために、溶液成長における既存の研究[15]を参考に新しいパラメータ β を導入し、界面カインेटクスを考慮に入れた種結晶・液相界面での物質バランス式を以下に示す。

$$D_L(\vec{n} \cdot \nabla C)_L = (C_S - C_i)V_n \quad (4-6)$$

$$D_L(\vec{n} \cdot \nabla C)_L = \beta(C_i - C_e) \quad (4-7)$$

$$\beta \approx \beta(0) + \beta_{st}m \quad (4-8)$$

ここで添え字 L、S、i、e はそれぞれ液相、固相、界面(液相側)、平衡を表し、 D は拡散係数、 V_n は界面に垂直な成長速度を表す。

基礎方程式を境界座標に変換し、有限体積法を用いて離散化した。速度場と圧力場のカップリングには SIMPLE 法を用いた。また、固液界面に境界座標を固定するために計算格子は

時間的に変化するが、格子移動に伴う誤差を取り除くために Arbitrary Lagrangian Eulerian Method (ALE 法)を用いた。本数値解析では重力の方向を試料中心軸の下向きとし、重力レベルを $10^{-4}G$ とした。今回の計算範囲においては、 β_{st} の影響は小さく、 $\beta(0)$ の値が小さくなるにつれ成長速度が小さくなることが分かった。また、計算上面方位の影響を考慮しなかった供給側(地上では上側)溶融速度も面方位の影響を受けることが分かった。これは種側結晶(地上では下側)の成長速度が低下することにより、溶液内濃度が変化したためである。また本計算結果は実際の宇宙実験結果[0-11]と定性的に一致した。

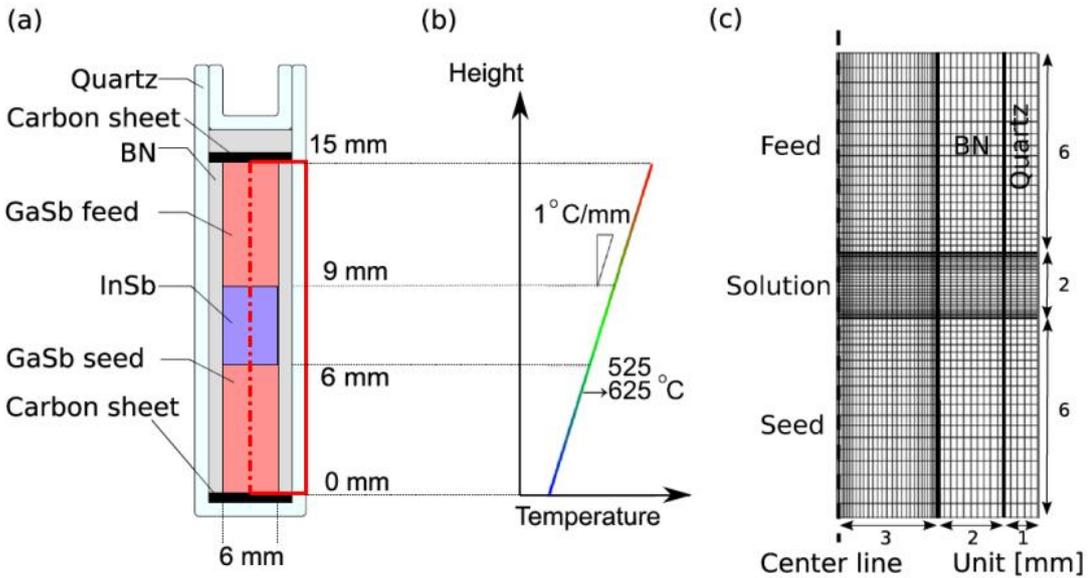
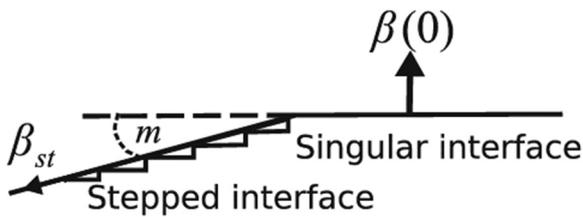


図4-16. (a) 試料アンプルの概略図、(b) 試料アンプル壁面に沿った温度分布、(c) 数値シミュレーションで用いた試料アンプルの構造。



Label	$\beta(0) / \text{m} \cdot \text{s}$	$\beta_{st} / \text{m} \cdot \text{s}$
Case A	∞	∞
Case B	1.0×10^{-4}	2.0×10^{-2}
Case C	1.0×10^{-5}	2.0×10^{-2}
Case D	1.0×10^{-5}	1.0×10^{-3}

図4-17. カイネティクス係数の効果を取り込んだ結晶表面のモデル化。

図4-18に結晶/溶液界面の位置および溶質濃度の時間変化を示す。本結晶成長法では最初に種結晶側の GaSb が溶解し、InGaSb 溶液が過飽和状態に達した後に結晶成長が始まるため、界面位置は下降し、その後上昇に転じた。この図から β の値が小さくなるにつれて、成長速度が遅くなることが分かる。Case A, B, C, D の成長速度はそれぞれ 0.36、0.32、0.23、0.22 mm/h となった。これらの値を比較すると、 β_{st} よりも $\beta(0)$ の方が成長速度に影響を与えることが分かる。これは特異面からの勾配のずれ m の値が比較的小さく、 10^{-4} から 10^{-7} までの範囲内にあるからである。本解析では、成長過程において、溶液内は上部で GaSb 濃度が高い一方向の濃度分布となり、GaSb の供給原料側から種結晶側界面への輸送は拡散律速

となる。しかし、式(4-7)に示すように β の値が小さくなるにつれて、界面における GaSb 組成 C が大きくなる。その結果 GaSb の高さ方向の拡散速度は β が小さい場合で遅くなり種結晶側界面への GaSb 供給速度が減少したそのため、式(4-6)の右辺が小さくなり結晶成長速度も遅くなると考えられる。また、InGaSb 結晶が成長する際、GaSb 溶質が InGaSb 結晶に取り込まれるため、溶液中の GaSb 溶質量は減少した。成長過程において、温度を一定に保ち、溶液内における平衡組成を保持することで、GaSb 供給原料が溶液中に溶解した。 β の値が小さくなるにつれて、種結晶側の成長速度が遅くなり、GaSb 溶質の取り込み速度が遅くなるので、GaSb 供給原料の溶解速度は小さくなった。

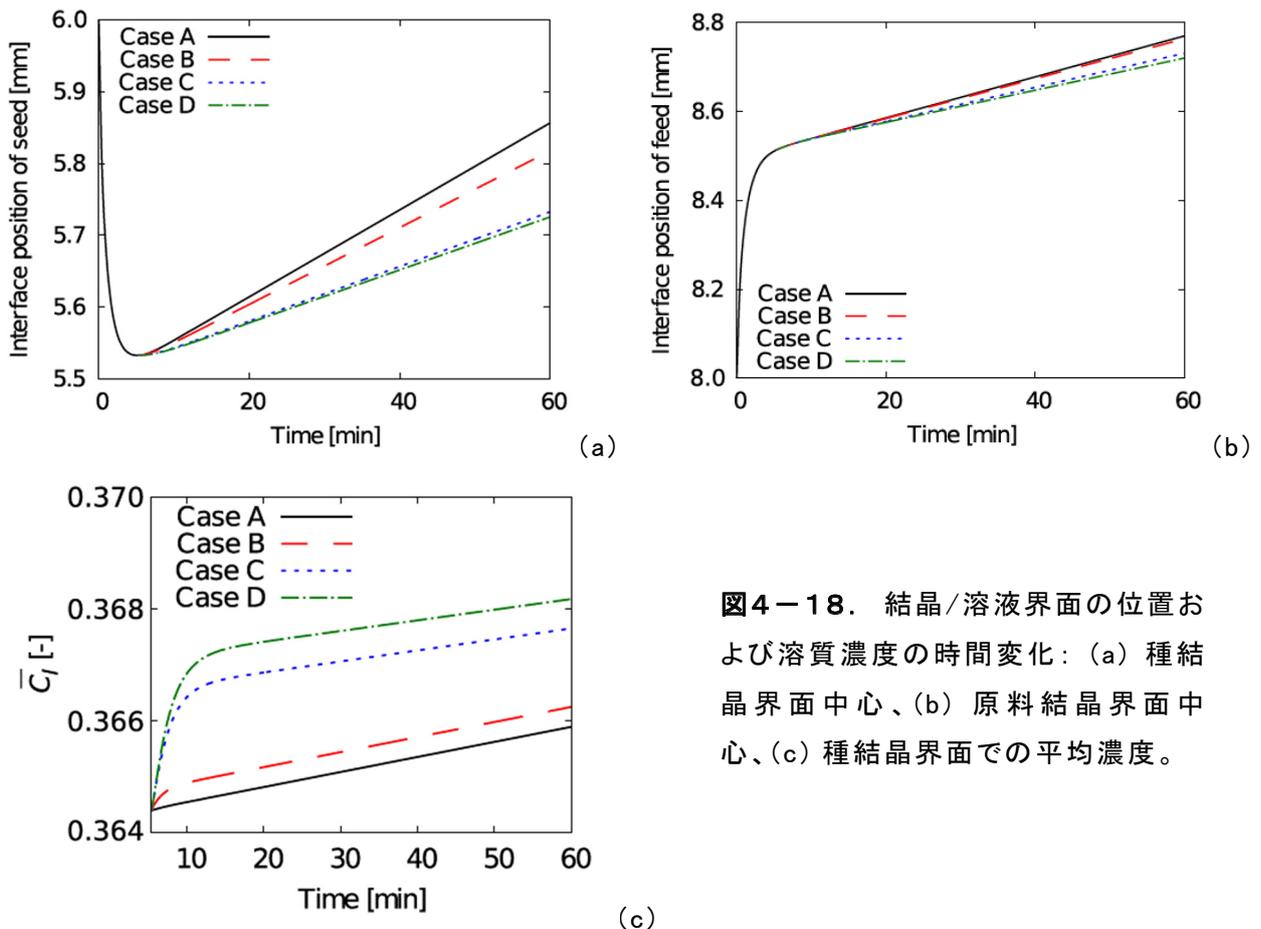


図4-18. 結晶/溶液界面の位置および溶質濃度の時間変化：(a) 種結晶界面中心、(b) 原料結晶界面中心、(c) 種結晶界面での平均濃度。

4.4 今後の本研究の展開

宇宙実験の成果を基に地上での結晶高品質化を進展させる[0-10、16、17]ためには、結晶育成過程に影響を与える多くの因子の再整理と相互関係の解明、そして結晶育成プロセスの高度な制御手法の開発、を解決することが必要不可欠である。

本実験の成果である、成長結晶中の濃度均一性の向上と欠陥の減少、高速成長現象と(111)面上における成長界面の平坦化に関する発見は、地上では困難とされる赤外線素子用高品質バルク半導体結晶の育成技術開発へ向けて大きな手掛かりを与えるものである。特に、液相中の熱物質輸送過程と固液界面におけるカイネティクスの複合影響はマイクロ～メソスコピック～マクロスケールにわたる大規模数値計算に基づき現象を解析する必要がある。これは、宇宙実験試料の更なる詳細分析、結晶成長での鍵となる現象の制御方法の高度化と併せて今後地上研究にて解決すべき重要な研究課題と考えられる。なお、本実験で明らかにした溶

解・成長界面におけるカイネティクスの差異の定量的裏付けは本稿で述べた結晶格子モデルでは得られないので分子動力学法などマイクロレベルでのアプローチが必要不可欠である。

4.3 研究目標・サクセスクライテリアの達成度

表4-1. 科学的サクセスクライテリアの達成度

クライテリア	評価基準	達成度
Minimum Success	微小重力と地上で得られた結晶の組成分布・成長速度の違い、溶液中の熱物質輸送過程を定量的に評価出来ること。	◎: 高度に達成
		当初の計画通り、全ての宇宙実験試料について組成分布・成長速度の測定に成功し、数値シミュレーションやモデルとの比較が可能となった。 μG では 1G に比べ成長結晶中の濃度均一性が向上し欠陥が減少するという当初から予想された結果に留まらず、成長量が多く成長速度が高いという現象を発見した。その原因は数値シミュレーションにより説明された。
Full Success	Minimum Success に加えて、異なる面方位の結晶を解析して、成長カイネティクスの影響を定量的に評価し、結晶成長のモデル化につなげること。	◎: 高度に達成
		成長界面形状について、(110)面、(110)面の結晶は μG と 1G で共に湾曲する一方で、(111)A、B 面の結晶は μG のみ平坦に成長し、成長速度に面方位依存性があるという現象を発見した。特に(111)A、B 面の成長速度の違いの原因は結晶格子モデルに基づいて説明された。 また、新たに開発した数値シミュレーションの解析結果により、成長界面でのカイネティクスが原料結晶の溶解速度にも影響を与える可能性が示唆された。

5. 結言

ISS・きぼう利用ミッション「微小重力環境下における混晶半導体結晶成長」により、以下の成果が得られた。

- 1) 対流が抑制された状態で、成長結晶中の濃度均一性の向上や欠陥の減少に留まらず、成長量が多く結晶成長の高速化が起こった。これは、微小重力環境では物質が拡散のみで輸送されるので地上に比べて結晶の成長速度が遅くなるはずという従来の一般的考えでは説明できない現象である。数値シミュレーションにより、この原因は 1G では密度差対流が原料から成長界面近傍への均等な溶質輸送を阻害することによることが明らかになった。
- 2) 対流が抑制された状態で、成長カイネティクスの影響が顕在化し、(111)A、B 面の結晶は共に平坦に成長し、溶解量、成長速度に面方位依存性が現れた。結晶格子モデルに基づく考察により、(111)A、B 面の成長・溶解過程の違いは単位胞中の結合数が異なることが原因と考えられる。
- 3) 新たに開発した数値シミュレーションの解析結果により、成長界面でのカイネティクスが原料結晶の溶解速度にも影響を与える可能性が示唆された。

参考文献

- 1) 湯上浩雄, 中川成人, 大坪英樹: “希土類選択エミッター材料”, 特開 2000-272955(P2000-272955A) (2000).
- 2) A.F. Witt, H.C. Gatos, M. Lichtensteiger, M.C. Lavine and C.J. Herman: “Crystal Growth and Steady - State Segregation under Zero Gravity: InSb”, *Journal of the Electrochemical Society* **122** (1975) pp. 276-283.
- 3) Kyoichi Kinoshita and Tomoaki Yamada: “Pb_{1-x}Sn_xTe crystal growth in space”, *Journal of Crystal Growth* **147** (1995) pp. 91-98.
- 4) T. Nishinaga, P. Ge, C. Huo, J. He, Nakamura: “Melt growth of striation and etch pit free GaSb under microgravity”, *Journal of Crystal Growth* **174** (1997) pp. 96-100.
- 5) T. Duffar, M.D. Serrano, C.D. Moore, J. Camassel, S. Contreras, P. Dusserre, A. Rivoallant, B.K. Tanner: “Bridgman solidification of GaSb in space”, *Journal of Crystal Growth* **192** (1998) pp. 63-72.
- 6) S. Kodama, K. Nakajima, Y. Suzuki, O. Ohtsuki, H. Sakai: “Compositional variation in AlGaAs crystals grown by LPE under microgravity and terrestrial conditions”, *Journal of Crystal Growth* **194** (1998) pp. 166-172.
- 7) Kazuhiko Okitsu, Yasuhiro Hayakawa, Tomuo Yamaguchi, Akira Hirata¹, Syogo Fujiwara¹, Yasunori Okano, Nobuyuki Imaishi, Shin-ichi Yoda, Toshihiko Oida and Masashi Kumagawa: “Melt Mixing of the 0.3In/0.7GaSb/0.3Sb Solid Combination by Diffusion under Microgravity”, *Japanese Journal of Applied Physics* **36** (1997) pp. 3613-3619
- 8) A. Hirata, K. Okitsu, Y. Hayakawa, Y. Okano, S. Sakai, S. Fujiwara, N. Imaishi, T. Yamaguchi, S. Yoda, T. Oida, M. Kumagawa: “Effect of gravity on the mixing of In-Sb melt”, *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics* **10** (2000) pp. 527-536.
- 9) Y. Hayakawa, Y. Okano, A. Hirata, N. Imaishi, Y. Kumagiri, X. Zhong, X. Xie, B. Yuan, F. Wu, H. Liu, T. Yamaguchi, M. Kumagawa: “Experimental and numerical investigations on dissolution and recrystallization processes of GaSb/InSb/GaSb under microgravity and terrestrial conditions”, *Journal of Crystal Growth* **213** (2000) pp. 40-50.
- 10) T. Kimura, Y. Hayakawa, T. Ozawa, Y. Okano, A. Hirata, M. Miyazawa, N. Imaishi, K. Arafune, T. Yamaguchi and M. Kumagawa: “Dependence of Dissolution and Growth Processes of Compound Semiconductors on Crystal Surface Orientations”, *Journal of the Japan Society of Microgravity Application* **15** (1999) pp. 472-475.
- 11) T. Kimura, K. Arafune, K. Balakrishnan, T. Ozawa, Y. Okano, N. Murakami, H. Adachi, Y. Hayakawa, M. Kumagawa: “Numerical analysis of the dissolution process of GaSb into InSb melt under different gravity conditions”, *Journal of Crystal Growth* **247** (2003) pp. 291-300.
- 12) Hisashi Minakuchi, Yasunori Okano, Sadik Dost: “A three-dimensional numerical

- simulation study of the Marangoni convection occurring in the crystal growth of $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ by the float-zone technique in zero gravity”, *Journal of Crystal Growth* **266** (2004) pp. 140-144.
- 13) W.D. Bennon and F.P. Incropera: “A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems—I. Model formulation”, *International Journal of Heat and Mass Transfer* **30** (1987) pp. 2161-2170.
- 14) G. Rajesh, M. Arivanandhan, N. Suzuki, A. Tanaka, H. Morii, T. Aoki, T. Koyama, Y. Momose, T. Ozawa, Y. Inatomi, Y. Takagi, Y. Okano and Y. Hayakawa: “Effects of Solutal Convection on the Dissolution of GaSb into InSb Melt and Solute Transport Mechanism in InGaSb Solution: Numerical Simulations and In-situ Observation Experiments”, *Journal of Crystal Growth* **324** (2011) pp. 157-162.
- 15) Y. Inatomi and K. Kuribayashi: “Morphological Stability of GaP(111)8 in LPE Under Static Magnetic Field”, *Journal of Crystal Growth* **241**(2002) pp. 395-403,.
- 16) M. Omprakash, M. Arivanandhan, M. Sabarinathan, T. Koyama, Y. Momose, H. Ikeda, H. Tatsuoka, D.K. Aswal, S. Bhattacharya, Y. Inatomi, and Y. Hayakawa: “Vertical gradient solution growth of N-type $\text{Si}_{0.73}\text{Ge}_{0.27}$ bulk crystals with homogeneous composition and its thermoelectric properties”, *Journal of Crystal Growth* **442** (2016) pp. 102-109.
- 17) Muthusamy Omprakash, Mukannan Arivanandhan, Tadanobu Koyama, Yoshimi Momose, Hiroya Ikeda, Hirokazu Tatsuoka, Dinesh Aswal, Shovit Bhattacharya, Yasunori Okano, Tetsuo Ozawa, Yuko Inatomi, Sridharan Moorthy Babu, Yasuhiro Hayakawa: “High power factor of Ga-doped compositionally homogeneous $\text{Si}_{0.68}\text{Ge}_{0.32}$ bulk crystal grown by the vertical temperature gradient freezing method”, *Crystal Growth & Design* **15** (2015) pp. 1380–1388.

成果リスト

原著論文

- O-1) Yuko INATOMI, Kaoruho SAKATA, Mukannan ARIVANANDHAN, Govindasamy RAJESH, Yasuhiro HAYAKAWA, Akira TANAKA, Tetsuo OZAWA, Yasunori OKANO, Takehiko ISHIKAWA, Masahiro TAKAYANAGI, Shinichi YODA, Yoshinori YOSHIMURA: "Current Status of Alloy Semiconductor Crystal Growth Project under Microgravity", *Transactions of the Japan Society for Aeronautical and Space Sciences, Aerospace Technology Japan* 10 (2012) pp. Th_1-Th_4.
- O-2) 阪田薫穂, 向井碧, Govindasamy Rajesh, Mukannan Arivanandan, 稲富裕光, 石川毅彦, 早川泰弘: "国際宇宙ステーションでの結晶成長実験に関する溶融 InGaSb の粘度測定", *熱物性* 27 (2013) pp. 152-156.
- O-3) K. Sakata, M. Mukai, G. Rajesh, M. Arivanandhan, Y. Inatomi, T. Ishikawa, Y. Hayakawa: "Viscosity of Molten InSb, GaSb, and $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ alloy semiconductors", *International Journal of Thermophysics* 35 (2014) pp. 352-360. (IF=0.946)
- O-4) K. Sakata, M. Mukai, G. Rajesh, M. Arivanandhan, Y. Inatomi, T. Ishikawa, Y. Hayakawa: "Thermal Properties of Molten InSb, GaSb, and $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ Alloy Semiconductor Materials in Preparation for Crystal Growth Experiment on International Space Station", *Advances in Space Research* 53 (2014) pp. 689-695. (IF=1.409)
- O-5) K. Sakata, M. Midori, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Ishikawa, Y. Inatomi and Y. Hayakawa: "Crystal Growth of Ternary Alloy Semiconductor and Preliminary Study for Microgravity Experiment at the International Space Station", *Transactions of the Japan Society for Aeronautical and Space Sciences, Aerospace Technology Japan* 12 (2014) Ph_31-Ph_35.
- O-6) Masahiro Nobeoka, Youhei Takagi, Yasunori Okano, Yasuhiro Hayakawa, Sadik Dost: "Numerical simulation of InGaSb crystal growth by temperature gradient method under normal- and micro-gravity fields", *Journal of Crystal Growth* 385 (2014) pp. 66-71. (IF=1.462)
- O-7) Y. Inatomi, K. Sakata, M. Arivanandhan, G. Rajesh, V. Nirmal Kumar, T. Koyama, Y. Momose, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Hayakawa: "Growth of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ alloy semiconductor at the International Space Station (ISS) and comparison with terrestrial experiments", *npj Microgravity* 1 (2015) pp. 15011 1-6.
- O-8) H. Mirsandi, T. Yamamoto, Y. Takagi, Y. Okano, Y. Inatomi, Y. Hayakawa, S. Dost: "A Numerical Study on the Growth Process of InGaSb Crystals Under Microgravity with Interfacial Kinetics", *Microgravity Science and Technology* 27 (2015) pp. 313-320. (IF=0.725)
- O-9) Takuya Yamamoto, Haryo Mirsandi, Xin Jin, Youhei Takagi, Yasunori Okano, Yuko Inatomi, Yasuhiro Hayakawa, and Sadik Dost: "Numerical Simulation Model by Volume Averaging for the dissolution process of GaSb into InSb in a sandwich system", *Numerical Heat Transfer, Part B* 70 (2016) pp. 441-458. (IF=1.330)
- O-10) Nirmal Kumar Velu, Mukannan Arivanandhan, Tadanobu Koyama, Haruhiko Uono, Yuko Inatomi, Yasuhiro Hayakawa: "Effects of varying indium composition on the thermoelectric properties of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ ternary alloys", *Applied Physics A* 122 (2016) pp. 885 1-5. (IF=1.444)
- O-11) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, K. Sakata, T. Ozawa, Y. Okano, Y. Inatomi and Y. Hayakawa: "Investigation of directionally solidified InGaSb ternary alloys from Ga and Sb faces of GaSb(111) under prolonged microgravity at the International Space Station", *npj Microgravity* 2 (2016) pp. 16026 1-7.

- O-12) Xin Jin, Haryo Mirsandi, Takuya Yamamoto, Youhei Takagi, Yasunori Okano, Yuko Inatomi, Yasuhiro Hayakawa, Sadik Dost: "Numerical Simulation of InGaSb Crystals Growth under Microgravity Onboard the International Space Station", *JJAP Conference Proceedings* **4** (2016) pp. 011107 1-7.
- O-13) Xin Jin, Takuya Yamamoto, Youhei Takagi, Yasunori Okano, Yuko Inatomi, Yasuhiro Hayakawa and Sadik Dost: "A Numerical Study on the Dissolution Process of InGaSb Crystals Under Zero-Gravity on the International Space Station-", *International Journal of Microgravity Science Application* **34** (2017) pp. 340206 1-7.

解説

- R-1) 稲富裕光, 早川泰弘, 岡野泰則, 石川毅彦: "Alloy Semiconductor 実験総括", *International Journal of Microgravity Science and Application* **34** (2017) pp. 340110 1-6.
- R-2) Yasuhiro Hayakawa, Velu Nirmal Kumar, Mukkannan Arivanandhan, Govindasamy Rajesh, Tadanobu Koyama, Yoshimi Momose, Kaoruho Sakata, Tetsuo Ozawa, Yasunori Okano, and Yuko Inatomi: "Effects of gravity and crystal orientation on the growth of InGaSb ternary alloy semiconductors - Experiments at the International Space Station and on Earth-", *International Journal of Microgravity Science and Application* **34** (2017) pp. 340111 1-12.

学位取得

- D-1) Haryo Mirsandi: "A numerical study on the growth process of InGaSb crystals under microgravity with interfacial kinetics" (微小重力環境下での InGaSb 結晶成長における界面カインेटイクスの影響に関する数値解析), 2015 年 9 月, 修士, 大阪大学.
- D-2) Xin Jin: "Numerical Simulation of InGaSb Crystals Growth under Microgravity Onboard the International Space Station" (国際宇宙ステーション内微小重力下での InGaSb 結晶成長の数値シミュレーション), 2016 年 9 月, 大阪大学, 修士.
- D-3) Velu Nirmal Kumar: "Effects of gravity and orientation on the growth properties of InGaSb ternary alloy semiconductors: Experiments under microgravity on board the International Space Station and normal gravity on Earth" (InGaSb 三元混晶半導体結晶成長特性に対する重力と結晶面方位効果 : 国際宇宙ステーション内微小重力環境下及び地上実験), 2016 年 9 月, 静岡大学, 博士(工学).

口頭発表 概要集

国際会議での学術講演

- IC-1) H. Mirsandi, Y. Takagi, T. Yamamoto, Y. Inatomi, Y. Hayakawa, S. Dost, and Y. Okano: "A numerical simulation study on the interface kinetics during the growth process of InGaSb crystal", *The 26th International Symposium on Chemical Engineering (ISChE 2013)*, BEXCO, Busan, Korea (December 6-8, 2013) OF-04.
- IC-2) Y. Inatomi: "JAXA's Crystal Growth Experiments on ISS", *The 1st Japan-China Joint Workshop on Material Science in Space*, Hamamatsu, Japan (February 9, 2014).
- IC-3) Y. Hayakawa: "Introduction of Microgravity experiments" *The 1st Japan-China Joint Workshop on Material Science in Space*, Hamamatsu, Japan (February 9, 2014).

- IC-4) V. Nirmal Kumar, Y. Katsumata, M. Arivanandhan, T. Koyama, Y. Momose, Y. Hayakawa, Y. Okano, T. Ozawa, and Y. Inatomi: "Ground-based Experiments for Crystal Growth of InGaSb", *The 1st Japan-China Joint Workshop on Material Science in Space*, Hamamatsu, Japan (February 9, 2014).
- IC-5) M. Arivanandhan, M. Omprakash, H. Morii, T. Aoki, T. Koyama, Y. Momose, H. Ikeda, H. Tatsuoka, Y. Okano, T. Ozawa, Y. Inatomi, S. Moorthy Babu and Y. Hayakawa: "A novel method for the in-situ observation of dissolution and growth process of alloy semiconductor", International Conference on Materials and Characterization Techniques (ICMCT 2014) IT66, VIT University, Vellore, India (March 10-12, 2014) (**Invited**)
- IC-6) Yuko Inatomi, Kaoruho Sakata, Yasuhiro Hayakawa, Takehiko Ishikawa, Mukannan Arivanandhan, Govindasamy Rajesh, Tadanobu Koyama, Yoshimi Momose, Krishnasamy Sankaranarayanan, Akira Tanaka, Tetsuo Ozawa, Yasunori Okano, Masahiro Takayanagi, Shinichi Yoda, and Y. Kamigaichi: "First Experiment of Alloy Semiconductor Project in ISS", 40th COSPAR Scientific Assembly (COSPAR MOSCOW 2014), Moscow, Russia (August 2-10, 2014), G0.1-0005-14.
- IC-7) Y. Hayakawa, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Yoda, Y. Kamigaichi, M. Arivanandhan, G. Rajesh, V. Nirmal Kumar, T. Koyama, Y. Momose, T. Ozawa and Y. Okano, "In_xGa_{1-x}Sb alloy semiconductor crystal growth under microgravity at International Space Station (ISS)", The 9th International Conference on Diffusion in Materials (DIMAT2014), Munster, Germany (August 17-22, 2014,) O-86.
- IC-8) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Kamigaichi, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Hayakawa: "Growth of InGaSb alloy semiconductor crystal under 1G condition as a preliminary study for microgravity experiment at International Space Station", 13th International Conference on Global Research and Education (Inter-Academia 2014), Riga Technical University, Riga, Latvia (September 10-12, 2014) p.265-266.
- IC-9) Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Yoda, Y. Kamigaichi, M. Arivanandhan, G. Rajesh, V. Nirmal Kumar, T. Koyama, Y. Momose, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Hayakawa: "Crystal growth of In_xGa_{1-x}Sb alloy semiconductor under microgravity at International Space Station (ISS) and comparison with ground based experiment", 10th Asian Microgravity Symposium, Seoul, Korea (October 28-31, 2014).
- IC-10) Y. Okano, H. Mirsandi, Y. Inatomi, Y. Hayakawa and S. Dost: "A numerical study on growth process of InGaSb crystal under microgravity field with considering interfacial kinetics", 10th Asian Microgravity Symposium, Seoul, Korea (October 28-31, 2014).
- IC-11) Y. Hayakawa, "Effect of gravity on the dissolution and growth processes of InGaSb ternary alloy bulk semiconductor", The 16th Takayanagi Kenjiro memorial symposium, Shizuoka University, Japan (November 11 -12, 2014) pp. TP2-1-1 – TP2-1-5 (**Invited talk**).
- IC-12) Yuko Inatomi and Masahiro Takayanagi: "Japanese Crystal Growth Experiments on International Space Station", The 2nd China-Japan Workshop on Material Science in Space, Jinan, Shandong Province, China (December 20-22, 2014).
- IC-13) Y. Hayakawa, M. Arivanandhan, V. Nirmal Kumar, G. Rajesh, Y. Katsumata, T. Koyama, Y. Momose, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Kamigaichi, T. Ozawa and Y. Okano: "InGaSb alloy semiconductor growth under 1G and microgravity", The 2nd China-Japan Workshop on Material Science in Space Jinan, Shandong Province, China (December 20-22, 2014).
- IC-14) Y. Okano, H. Mirsandi, T. Yamamoto, Y. Takagi, Y. Inatomi and Y. Hayakawa: "Numerical investigation of melting and growth of InGaSb by using

- temperature gradient method”, The 2nd China-Japan Workshop on Material Science in Space Jinan, Shandong Province, China (December 20-22, 2014).
- IC-15) Y. Katsumata, M. Arivanandhan, V. Nirmal Kumar, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Hayakawa: “Effect of gravity on the growth of InGaSb ternary alloy semiconductor bulk crystals”, SRM University - Shizuoka University Joint Symposium, Shizuoka University, Hamamatsu, Japan (January 7, 2015).
- IC-16) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, Y. Katsumata, T. Koyama, Y. Momose, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Kamigaichi, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Hayakawa: “Growth Process of InGaSb under Microgravity and Normal Gravity Conditions”, 2015 International Symposium toward the Future of Advanced Researches in Shizuoka University - Joint International Workshops on Advanced Nanovision Science / Advanced Green Science / Promotion of Global Young Researchers in Shizuoka University - Shizuoka University. Hamamatsu, Japan (January 27-28, 2015) PS-17.
- IC-17) Y. Inatomi, Kaoruho Sakata, M. Arivanandhan, G. Rajesh, V. Nirmal Kumar, T. Koyama, Y. Momose, T. Ozawa, Y. Okano, and Y. Hayakawa: “Crystal growth of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ under Reduced Convection Condition”, 3rd International Conference on Nanoscience and Nanotechnology (ICONN 2015), SRM University, Tamilnadu, India (February 4-6, 2015) (**Invited talk**).
- IC-18) Y. Hayakawa, M. Arivanandhan, V. Nirmal Kumar, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, H. Morii, T. Aoki, Y. Okano, T. Ozawa, K. Sakata and Y. Inatomi: “Growth of InGaSb Alloy Semiconductor under 1 G and Microgravity Conditions”, Tongji University, China (March 28-31, 2015), Invited lecture at Tongji University (**Invited Talk**).
- IC-19) Yuko Inatomi, Mukannan Arivanandhan, Velu Nirmal Kumar, Haryo Mirsandi, Tadanobu Koyama, Yoshimi Momose, Tetsuo Ozawa, Takehiko Ishikawa, Yasunori Okano, Yasuhiro Hayakawa: “Morphological change of S/L interface in semiconductor solution growth under reduced convection condition”, *The 30th International Symposium on Space Technology and Science (30th ISTS)*, Kobe International Conference Center, in Kobe City, Hyogo, Japan, (July 4-10, 2015) 2015-h-09.
- IC-20) Xin Jin, Haryo Mirsandi, Takuya Yamamoto, Yohei Takagi, Yasunori Okano, Yuko Inatomi, Yasuhiro Hayakawa, Sadik Dost: “A Numerical Simulation Study on the Growth Process of InGaSb Crystals under Microgravity by Using Open FOAM”, *The 30th International Symposium on Space Technology and Science (30th ISTS)*, Kobe International Conference Center, in Kobe City, Hyogo, Japan, (July 4-10, 2015) 2015-h-11.
- IC-21) V. Nirmal Kumar, G. Rajesh, M. Arivanandhan, T. Koyama, Y. Momose, K. Sakata, T. Ishikawa, T. Ozawa, Y. Okano, Y. Inatomi and Y. Hayakawa: “Growth Properties of InGaSb under Normal and Microgravity Condition at International Space Station”, SRM University - Shizuoka University Joint Symposium (September 3, 2015).
- IC-22) Velu Nirmal Kumar, Govindasamy Rajesh, Tadanobu Koyama, Yoshimi Momose, Yuko Inatomi, Kaoruho Sakata, Takehiko Ishikawa, Masahito Takayanagi, Shigeki Kamigaichi, Tetsuo Ozawa, Yasunori Okano, Yasuhiro Hayakawa: “Growth Properties of InGaSb Ternary Alloys Under Microgravity and Normal Gravity Conditions”, The Joint Conference of 6th International Symposium on Physical Sciences in Space (ISPS-6) and 10th International Conference on Two-Phase Systems for Space and Ground Applications (ITTW2015) , Doshisha University, Kyoto, Japan (September 14-18, 2015) 17Cr-5.
- IC-23) X. Jin, H. Mirsandi, T. Yamamoto, Y. Takagi, Y. Okano, Y. Inatomi, Y. Hayakawa and S. Dost: “Numerical Simulation of InGaSb Crystals growth under Micro-Gravity environment onboard the International Space Station”, Inter-Academia 2015, Congress Center in Hamamatsu ACT CITY, Japan

- (September 28-30, 2015) PY2-4.
- IC-24) Yuko Inatomi, Yasunori Okano, Yasuhiro Hayakawa: "Growth of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ alloy semiconductor at the ISS and comparison with terrestrial experiment", 9th Workshop on Microgravity Sciences in XIAMEN, Fujian Province, China (November 9-13, 2015).
- IC-25) Y. Hayakawa, V.N. Kumar, G. Rajesh, M. Arivanandhan, T. Koyama, Y. Momose, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Inatomi: "Microgravity Experiment of InGaSb Alloy Semiconductor Crystals at International Space Station", The 60th DAE Solid State Physics Symposium IT-44, Amity University, Noida, Uttar Pradesh, India, (December 21-25, 2015) (**Invited talk**).
- IC-26) Yuko Inatomi: "Japanese Material Research under Microgravity", The 3rd Japan-China Workshop on Material Science in Space, University of the Ryukyus, Okinawa, Japan (March 25-28, 2016).
- IC-27) X. Jin, T. Yamamoto, Y. Takagi, Y. Okano, and Y. Inatomi, Y. Hayakawa and S. Dost: "A Numerical Study on the Growth Process of InGaSb Crystals under Microgravity Onboard the International Space Station", The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-18), Nagoya, Japan, August 7-12, 2016), TuP-G10-7.
- IC-28) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, K. Sakata, T. Ozawa, Y. Okano, Y. Inatomi and Y Hayakawa, "Growth properties of InGaSb ternary alloys from Ga and Sb faces of GaSb (111) under microgravity on board the International Space Station", SRM University - Shizuoka University Joint Symposium 20 Shizuoka University, Hamamatsu, Japan (August 31, 2016,).
- IC-29) Yuko Inatomi, Velu Nirmal Kumar, Mukannan Arivanandhan, Govindasamy Rajesh, Kaoruho Sakata, Tadanobu Koyama, Yoshimi Momose, Yasunori Okano and Yasuhiro Hayakawa: "Growth and Dissolution Rates of InGaSb Crystal under Reduced Convection Condition", 11th Asian Microgravity Symposium (AMS 2016), Hokkaido University, Sapporo, Japan (October 25-29, 2016) 28Cr-2K.
- IC-30) X. Jin, T. Yamamoto, Y. Takagi, Y. Okano, Y. Inatomi, Y. Hayakawa and S. Dost: "A Numerical Simulation Study for Predicting the Dissolution Length in Growth of InGaSb under the Microgravity Conditions of the ISS", 11th Asian Microgravity Symposium (AMS 2016), Hokkaido University, Sapporo, Japan (October 25-29, 2016) 26SP-A-7.

国内会議での学術講演、研究会

- DC-1) 稲富裕光, 阪田薫穂, 早川泰弘, 石川毅彦, Mukannan Arivanandan, Govindasamy Rajesh, 小山忠信, 百瀬与志美, 田中 昭, 小澤哲夫, 岡野泰則, 高柳昌弘, 上垣内茂樹: "ISSにおけるAlloy Semiconductorプロジェクトの現状", 日本マイクロ重力応用学会第27回学術講演会, 芝浦工業大学, 東京都江東区, 2013年11月27日-29日, 27B10.
- DC-2) 岡野泰則, 高木洋平, ハルヨ・ミルサンディ, 延岡雅弘, 稲富裕光, 早川泰弘: "InGaSb混晶半導体作製に及ぼす重力の影響", 化学工学会第79年会, 岐阜大学柳戸キャンパス, 岐阜県岐阜市, 2014年3月18日-20日, I224.
- DC-3) Haryo Mirsandi, 高木洋平, 岡野泰則, 延岡雅弘, 稲富裕光, 早川泰弘: "InGaSb結晶成長過程における界面カインेटイクスの影響に関する数値解析", 化学工学会第79年会, 岐阜大学柳戸キャンパス, 岐阜県岐阜市, 2014年3月18日-20日, SB2P67.
- DC-4) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Kamigaichi, T. Ozawa, Y. Okano, Y. Hayakawa: "Growth and properties of InGaSb alloy semiconductor crystals grown under microgravity and 1G conditions", 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学札幌キャンパス, 2014年9月17日-20日, 18p-PB9 - 1.
- DC-5) ハルヨ・ミルサンディ, 山本卓也, 高木洋平, 岡野泰則, 稲富裕光, 早川泰弘: "微小重力環境下でのInGaSb結晶成長における界面カインेटイクスの影響に関する数値解析", 第63回

- 理論応用力学講演会，東京工業大学大岡山キャンパス，2014年9月26日-28日，OS05-02-05.
- DC-6) 早川泰弘, Mukannan Arivanandhan, Velu Niramal Kumar, Govindasamy Rajesh, 小山忠信, 百瀬与志美, 稲富裕光, 阪田薫穂, 石川毅彦, 高柳昌弘, 上垣内茂樹, 小澤哲夫, 岡野泰則: “InGaSb混晶半導体結晶成長に対する重力効果—国際宇宙ステーション実験—”, 第44回結晶成長国内会議, 学習院創立百周年記念会館, 2014年11月6日-8日, 08aB07.
- DC-7) Velu Niramal Kumar, Mukannan Arivanandhan, Govindasamy Rajesh, 小山忠信, 百瀬与志美, 稲富裕光, 阪田薫穂, 石川毅彦, 高柳昌弘, 上垣内茂樹, 小澤哲夫, 岡野泰則, 早川泰弘: “InGaSb結晶成長に対する重力効果 —国際宇宙ステーション内の微小重力下と1G下実験—”, 日本マイクログラビティ応用学会第28回学術講演会, イーグレひめじ, 兵庫県姫路市, 2014年11月26-28日, P18.
- DC-8) ミルサンディハルヨ, 山本卓也, 高木洋平, 岡野泰則, 稲富裕光, 早川泰弘: “ISSにおけるInGaSb結晶成長実験に対する数値シミュレーション”, 日本マイクログラビティ応用学会第28回学術講演会, イーグレひめじ, 兵庫県姫路市, 2014年11月26日-28日, P05.
- DC-9) 早川泰弘, 稲富裕光, 阪田薫穂, 石川毅彦, 高柳昌弘, 上垣内茂樹, M. Arivanandhan, V. Nirmal Kumar, G. Rajesh, 小山忠信, 百瀬与志美, 小澤哲夫, 岡野泰則: “国際宇宙ステーション内の微小重力環境下における混晶半導体結晶成長”, 第29回宇宙環境利用シンポジウム, 宇宙航空研究開発機構 相模原キャンパス, 神奈川県相模原市, 2015年1月24日-25日, pp. 44-47.
- DC-10) 早川泰弘、稲富裕光、岡野泰則、新船幸二、M. Arivanandhan、小澤哲夫、木下恭一、荒井康智、塚田隆夫、久保正樹、杉岡健一: “バルク結晶成長機構研究チーム活動報告”, 第29回宇宙環境利用シンポジウム宇宙航空研究開発機構 相模原キャンパス, 神奈川県相模原市, 2015年1月24日-25日, pp. 48-52.
- DC-11) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, Y. Inatomi, K. Sakata, T. Ishikawa, M. Takayanagi, S. Yoda, S. Kamigaichi, T. Ozawa, Y. Okano and Y. Hayakawa: "Properties of InGaSb Crystals Grown under μ G at International Space Station and 1G Conditions", 第62回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県平塚市, 2015年3月11日-14日, E 12a-D13-1.
- DC-12) 岡野泰則, Jin Xin, 山本卓也, 高木洋平, 早川泰弘, 稲富裕光: “国際宇宙ステーション内InGaSb結晶成長に関する数値解析”, 第63回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京都目黒区, 2016年3月19日-22日, 19a-H112-8.
- DC-13) V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, G. Rajesh, T. Koyama, Y. Momose, K. Sakata, T. Ozawa, Y. Okano, Y. Inatomi and Y. Hayakawa: “Gravity effect on the properties of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{Sb}$ ternary alloys grown at the International Space Station”, 電子情報通信学会電子デバイス・シリコン材料デバイス合同研究会、静岡大学浜松キャンパス, 静岡県浜松市, 2016年5月19-20日, 「機能ナノデバイスおよび関連技術」信越技報 vol. 116, [48], pp. 55-59.
- DC-14) 岡野泰則, JIN Xin, 山本卓也, 高木洋平, 早川泰弘, 稲富裕光: “微小重力環境下におけるInGaSb凝固に関する数値解析”, 第53回日本伝熱シンポジウム, 大阪国際会議場, 大阪府大阪市, 2016年5月24日-26日, H314.
- DC-15) 早川泰弘, V. Nirmal Kumar, M. Arivanandhan, 小山忠信, 百瀬与志美, 阪田薫穂, 小澤哲夫, 岡野泰則, 稲富裕光: “国際宇宙ステーション内の長期微小重力環境下におけるGaSb(111)Ga面及びSb面種結晶からのInGaSb三元混晶結晶成長”, 第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市, 2016年9月13日-16日, 14p-A25-11.

新聞やインターネットなど

- N-1) 2016年6月17日「宇宙発イノベーション・進む産業応用(3)次世代材料の「混晶」均一組成」
日刊工業新聞

受賞など

- A-1) Velu Nirmal Kumar: 文部科学省国費外国人留学生制度にて採用, “Research field: Growth and analyses of InGaSb crystal under microgravity condition at the international space station”, 2013年10月1日- 2016年9月30日.
- A-2) 早川泰弘: 第27回高柳記念賞, “エネルギーデバイス関連高品質材料の結晶成長に関する研究”, 2013年12月8日.(静岡新聞2013年12月10日朝刊ほか掲載)
- A-3) V. Nirmal Kumar: Young Researcher Award, Inter-Academia 2014, “Growth of InGaSb alloy semiconductor crystal under 1G condition as a preliminary study for microgravity experiment at International Space Station”, Riga Technical University, Riga, Latvia, 2014年9月10日-12日.
- A-4) V. Nirmal Kumar: 第28回日本マイクログラビティ応用学会学術講演会 毛利ポスターセッション敢闘賞, “Effect of gravity on InGaSb crystal growth - Microgravity at International Space Station and 1G conditions -”, イーグレ姫路, 兵庫県姫路市, 2014年11月26日-28日.
- A-5) 早川泰弘: 静岡大学研究フェローに就任, “微小重力環境下での結晶成長とエネルギー関連材料の開発”, 2016年4月1日.
- A-6) V. Nirmal Kumar: 静岡大学創造科学技術大学院賞, 2016年9月16日.
- A-7) X. Jin: Notable Poster Award, Mohri Poster session, 11th Asian Microgravity Symposium (AMS 2016), “A Numerical Simulation Study for Predicting the Dissolution Length in Growth of InGaSb under the Microgravity Conditions of the ISS”, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 2016年10月27日.

獲得外部競争資金

- B-1) 基盤研究(B)(一般)(2013~2016年度)「対流制御による高品質InGaSb結晶の育成」(代表: 稲富裕光、分担: 早川泰弘)
- B-2) 基盤研究(B)(一般)(2013~2015年度)「タンデム型熱電セル作製のための高品質混晶半導体結晶成長と溶質輸送効果の解明」(代表: 早川泰弘、分担: 稲富裕光)