

バルク結晶成長機構 WG 活動報告

稲富裕光¹⁾, 早川泰弘²⁾, M. Arivanandhan²⁾, G. Rajesh²⁾, 小山忠信²⁾, 阪田薫穂¹⁾, 田中昭²⁾, 小澤哲夫³⁾, 岡野泰則⁴⁾, 新船幸二⁵⁾, 木下恭一¹⁾, 荒井康智¹⁾, 古川義純⁶⁾, 塚本勝男⁷⁾, 他研究班メンバー

1) JAXA, 2) 静岡大学, 3) 静岡理工科大学, 4) 大阪大学, 5) 兵庫県立大学, 6) 北海道大学, 7) 東北大学

Activity Report on WG for growth mechanism of bulk crystal

Yuko Inatomi and Group Members

ISAS/JAXA, 3-1-1 Yoshinodai, Sagami-hara, Kanagawa 229-8510

E-Mail: inatomi@isas.jaxa.jp

Abstract: Achievement of an extremely weak state of natural convection by utilization of microgravity environment is regarded as a promising method which leads us to investigate the influence of convection on growth process from liquid phase on the terrestrial condition. A main subject of this working group is to make proposals for microgravity experiments concerning to a bulk crystal growth from solution or from melt. In this fiscal year the working group performed the following subjects: (1) data analysis of FACET experiment on ISS, and (2) preparation for crystal growth experiment of InGaSb on ISS.

Key words; Bulk crystal growth, Surface kinetics, Microgravity utilization

【本 WG の目的】

溶液・融液からのバルク結晶成長機構の解明には、主として固液界面近傍での分子の取り込みと環境相内の熱・物質輸送の過程を正しく理解する必要がある。しかし地上においては対流が現象の理解、特に定量化を妨げている。従って、熱・物質の輸送が拡散支配状態となる微小重力環境の利用が問題解決に有効な手段である。そのため本研究班 WG では、バルク結晶の成長機構の解明と結晶の高品質化を目的として微小重力実験計画書作成および実施を目指す。

【今年度の活動内容】

今年度の WG 活動の進捗をまとめると以下の通りである。(1)「ファセット的セル状結晶成長機構の研究」実験で得られた成果を解析した。(2)「きぼう」船内実験室第2期利用候補テーマ「微小重力環境下における混晶半導体結晶成長」実験のフライト用供試体カートリッジの開発と軌道上への打ち上げ、適合性試験を行った。

（1）「きぼう」1期利用実験テーマの実施

「きぼう」における「ファセット的セル状結晶成長機構の研究」実験を実施した。ザロール/ブチルアルコール合金を試料として、結晶成長過程のその場観察実験を行った。「きぼう」搭載実験装置である SCOF（溶液結晶化観察装置）を用いて、その凝固成長過程における固液界面の形態変化および成長界面近傍の温度・濃度分布の同時測定を行った。試料中の温度・濃度分布を求めるために、SCOF では2種

の干渉縞画像、振幅変調画像を周期的に切り替え、得られる画像に対して画像処理を行った。結晶成長のパラメータは、異なる *t*-ブチルアルコールの初期濃度2条件、初期セル両端温度2条件、冷却速度5条件、の計20条件であった。

現在、宇宙実験のデータ解析を進めており、以下の点を明らかにした。1) 成長界面での過冷度分布が従来のセル状成長モデルから予測される値と実測値で大きく異なる。2) 界面過冷度およびその勾配が新たなセル境界の発生を支配する。

（2）「きぼう」2期利用実験テーマの準備

混晶半導体バルク結晶の特徴は、組成を制御することで格子定数や発光受光の波長を制御できることである。しかし、(1)偏析効果のために、結晶成長につれて結晶と溶液の組成が変化すること、(2)重力に起因した密度差対流により溶液の濃度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問題等があり、均一組成比の良質単結晶成長が困難である。問題解決のためには、溶液中の熱・溶質輸送効果と結晶成長界面におけるカイネティクス、特に結晶面方位効果の解明が必要である。「きぼう」2期利用テーマ「微小重力環境下における混晶半導体結晶成長」実験では、融点の低い InGaSb を実験材料として用い、「きぼう」内の微小重力環境下実験と地上実験の比較や数値解析により、混晶半導体結晶の溶液成長における一般則の導出を目的とする。

試料アンブルは Te 添加 InSb 結晶を面方位の異なる GaSb 種結晶と GaSb 供給原料でサンドウィッチ

状に挟み込んだものである。これを BN 管に入れた後、石英管に挿入し、真空引きした後封止する。温度勾配炉の温度勾配下で所定の温度まで加熱した後、一定温度に保持する。結晶成長時に熱パルスを試料に導入することで、意図的に不純物濃度濃淡縞を結晶中に導入し、固液界面形状、成長速度を解析する。GaSb 種結晶と GaSb 供給原料の結晶面方位を (111)A、(111)B、(110)、(100)とし、結晶面方位の相違が結晶成長速度や固液界面形状、結晶性に及ぼす効果を明らかにする。

供試体部は、サンプル部、サポート部とボス部で構成される。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さらにそれを、C-103 合金製の容器に真空封入したものをサンプル部とする。サンプル部は試料アンプルを内蔵する。

今年度で供試体カートリッジの開発は終了した。研究チームが準備した石英ガラス製試料アンプルを内蔵した計 5 本のフライト用カートリッジはソユーズで打ち上げられて“きぼう”に到着済みであり、軌道上実験の開始を待っている状況である。また、昨年度の検討結果に基づき GHF 地上モデルを用いて計 4 回の適合性試験を行った。その結果、Fig. 1 に示される温度プロファイルを経軌道上実験において実施するよう決定した。上記試験における 100 時間加熱後の試料中の In 濃度分布の例を Fig. 2 に示す。成長距離と共に徐々に濃度が低下するものの、値のばらつきが小さいことが分かる。軌道上実験では対流が抑制されるために、よりばらつきの小さいデータが得られることが期待される。

【来年度の活動】

「微小重力環境下における混晶半導体結晶成長」フライト実験実施に向けた準備を引き続き進めると共に、均一組成結晶成長法の確立に向けた将来の宇宙実験を検討する。

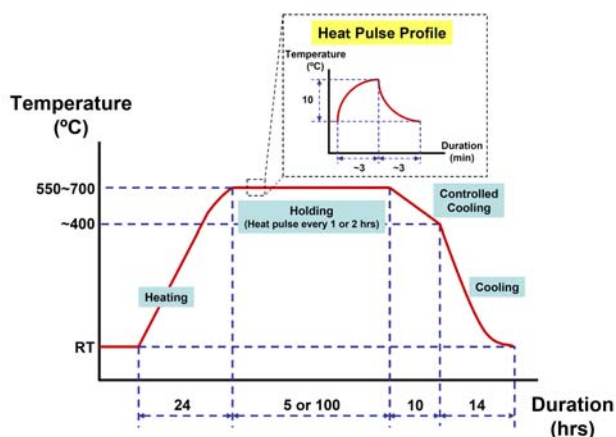


Fig. 2. Temperature and heat pulse profile for flight experiment.

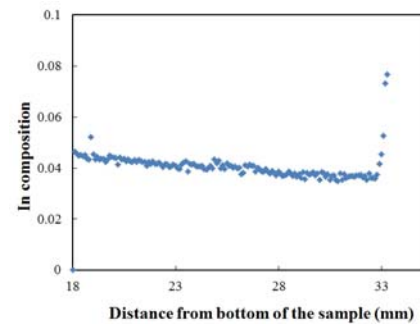


Fig. 2. Indium composition profile in grown region of sample.

【研究成果】

- 1) Y. INATOMI *et al.*, *Defect and Diffusion Forum* (2011) (in press).
- 2) M. ARIVANANDHAN *et al.*, *Defect and Diffusion Forum* (2011) (in press).
- 3) Yuko INATOMI *et al.*, *Proc. The 28th International Symposium on Space Technology and Science* (28th ISTS), June 10, 2011, Okinawa (accepted).
- 4) Yasuhiro Hayakawa *et al.*, *Thin Solid Films* **519** (2011) pp. 8532–8537.
- 5) M. ARIVANANDHAN *et al.*, 日本マイクログラビティ応用学会誌 **28** (2011) pp. S46-S50.
- 6) G. Rajesh *et al.*, *Journal of Crystal Growth* **324** (2011) pp. 157-162.
- 7) 稲富裕光, 日本マイクログラビティ応用学会誌 **28** (2011) pp. 155-159.
- 8) G. RAJESH *et al.*, 第 41 回結晶成長国内会議、NCCG-41, つくば市, 2011 年 11 月, 03pB01.
- 9) M. Arivanandhan *et al.*, 第 41 回結晶成長国内会議、NCCG-41, つくば市, 2011 年 11 月, 03pB02.
- 10) 稲富裕光 他, 日本マイクログラビティ応用学会第 25 回学術講演会, 横浜, 2011 年 11 月 28 日～29 日, J8.
- 11) 早川泰弘 他, 日本マイクログラビティ応用学会第 25 回学術講演会, 横浜, 2011 年 11 月 28 日～29 日, J16.
- 12) 芦田幹大 他, 日本マイクログラビティ応用学会第 25 回学術講演会, 横浜, 2011 年 11 月 28 日～29 日, J21.
- 13) 向井碧 他, 日本鉄鋼協会 第 162 回秋季講演大会, 大阪, 2011 年 9 月 20 日～22 日.
- 14) M. ARIVANANDHAN 他, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形, 2011 年 8 月 29 日～9 月 2 日, 2a-W-9.
- 15) G. RAJESH 他, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 山形, 2011 年 8 月 29 日～9 月 2 日, 1a-P8-26.