

ISS・きぼう利用ミッション

「微小重力下における TLZ 法による均一組成 SiGe 結晶育成の研究 (Hicari)」

研究成果概要書

代表研究者; 木下恭一 (日本宇宙フォーラム)

平成 29 年 2 月

1. 研究目的・意義

本研究の目的は、均一組成のバルク混晶製造方法を微小重力環境を利用して開発することである。均一組成のバルク混晶半導体結晶の製造は、Shockley が接合型トランジスタを発明した 1951 年の 10 年後には早くも盛んに研究されるようになった。その理由は、組成によってバンドギャップエネルギーと格子定数を制御することができ、エレクトロニクスや光エレクトロニクス分野の新機能デバイス製造が可能になり、大幅に応用の可能性が広がるためである。それ以来、50 年以上が経過しているが、いまだに均一組成の大型バルク混晶単結晶は製造されていない。大口径・高品質なバルク混晶単結晶の新しい製造方法を開発することができれば、学術的貢献のみならず、産業界特に半導体産業への貢献は大である。また、混晶を使った新しい製品が開発されれば、私達の社会生活への波及効果も大きく、本研究の意義は極めて大きいと考えられる。

2. 実験方法

微小重力下結晶成長の特徴は、液体内の対流が抑制できることである。この長所を利用して均一組成を達成する結晶成長方法を種々検討した結果、出発原料に傾斜組成を持たせて原料を部分的に融かす方法を考案した(特許第 4239065 号)。その新しい結晶成長方法では結晶成長の開始時点で、拡散律速定常状態の溶質濃度勾配が熔融帯内に実現しており、均一組成の混晶製造に適した方法であることを見出した。またこの方法では、熔融帯幅が狭い場合は熔融帯全体がほぼ飽和濃度になっていることから、「飽和熔融帯移動法、英文名: Traveling Liquidus-Zone (TLZ)法」と名付けた。対流がある場合は溶液中の溶質濃度分布が乱されるため、地上では直径 2 mm 程度の細い結晶か、あるいは長さが 10 mm 程度に限定された短い結晶しか育成できない。そこで、実用に供される大口径・長尺の結晶成長においても、TLZ 法結晶成長の原理が適用可能か否かを確認すること、および径方向の成長速度を詳細に調べ、二次元結晶成長モデルを評価し、TLZ 法をさらに進化させること、ならびに地上製造への応用の知見を獲得することを目的として宇宙実験を提案した。実験は、2013 年から 2014 年にかけて計 4 回実施された。全て所期の結晶成長条件で実験を実施することができ、また、試料も無事回収することができた。

3. 研究成果

結晶成長条件と主な結果をまとめて表 1 に示す。

表 1. 宇宙実験条件と主な結果

No.	目標値				達成値			
	温度勾配	ヒータ移動速度	成長距離	組成	温度勾配	ヒータ移動速度	成長距離	組成 (平均値)
1	8°C/cm	0.1mm/h	15mm	Si _{10.5} Ge _{0.5}	9°C/cm	0.1mm/h	17.2mm	Si _{0.515} Ge _{0.485}
2	8°C/cm	0.1mm/h	10mm	Si _{10.5} Ge _{0.5}	9°C/cm	0.1mm/h	9.2mm	Si _{0.502} Ge _{0.498}
3	8°C/cm	0.1mm/h	15mm	Si _{10.5} Ge _{0.5}	9°C/cm	0.1mm/h	14.5mm	Si _{0.506} Ge _{0.494}
4	16°C/cm	0.2mm/h	10mm	Si _{10.5} Ge _{0.5}	18°C/cm	0.2mm/h	11.4mm	Si _{0.521} Ge _{0.479}

実験試料の外観を図 1 に示す。Si 種結晶、SiGe 結晶、急冷された融液部、Si 原料が識別できる。実

験試料を縦割りにして、その表面の反射電子像を観察した結果を図 2 に示す。白い横縞が観察されるが、これは結晶成長中の 1°C のステップ状温度変化によって結晶組成が変化したために観察できるようになった成長縞である。この成長縞の間隔および成長縞上の組成測定の結果、軸方向成長速度に加え、径方向成長速度を算出することができた。また、この図から結晶成長初期に地上では観測されない、約 4 倍の高速成長領域があることが判明した。育成した SiGe 結晶の軸方向 Ge 濃度分布を 3 回目実験の結晶と 4 回目実験の結晶とを比較して図 3 に示す。両者間では温度勾配が 2 倍異なるが、似た組成分布となっている。これは、温度勾配が 2 倍になれば、成長速度が 2 倍になると予測してヒータを移動させた結果であり、TLZ 法成長原理が直径 10 mm の結晶でも成立することを示すものである。本研究における主な成果をまとめると、以下の通りである。

- (1) Traveling Liquidus-Zone (TLZ)法という新しい混晶結晶成長方法を考案した。
- (2) 微小重力下実験により TLZ 法成長原理が確認でき、大口径・長尺の SiGe 結晶製造条件を把握することができた。
- (3) ステップ状温度変化によって結晶組成変化を生じさせ、成長界面のマーキングに成功した。
- (4) 成長縞の間隔および成長縞上の組成測定により、軸方向成長速度に加え径方向温度勾配を正確に見積ることに成功し、二次元性指標の成長距離依存性を算出した。
- (5) TLZ 法二次元成長モデル式と実験値の定量的な比較を行い、二次元モデル式の検証を行った。成長距離 2.3 mm までは両者は良く合ったが、成長が進むにつれて乖離が大きくなった。
- (6) 対流抑制による成長界面の平坦化が確認でき、径方向均一組成達成条件を把握した。
- (7) 地上実験では観測されない、結晶成長初期の約 4 倍の高速成長という新しい事象を発見した。
- (8) TLZ 法の組成的過冷却防止条件を明確にし、単結晶育成条件を明らかにした。
- (9) 地上実験との比較により、完全に対流ゼロの状態より少し対流のある方が単結晶成長に良いことが判明し、宇宙実験成果の地上製造への応用の途を拓いた。

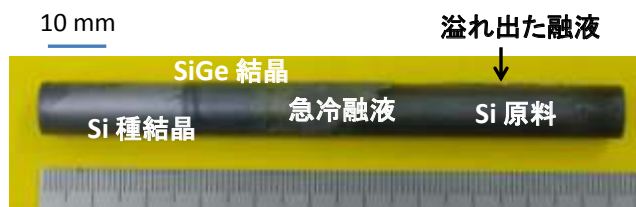


図 1. 育成した SiGe 結晶の外観

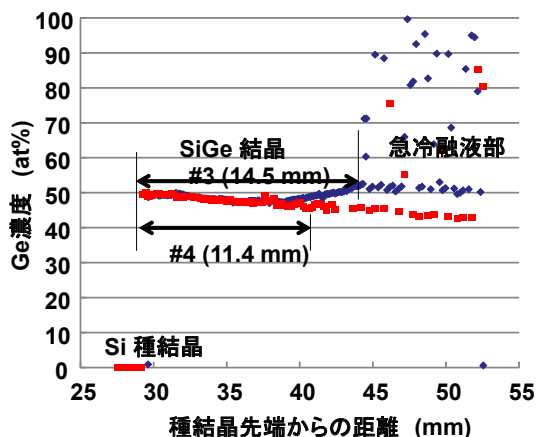


図 3. 軸方向 Ge 濃度分布の #3 と #4 の結晶の比較

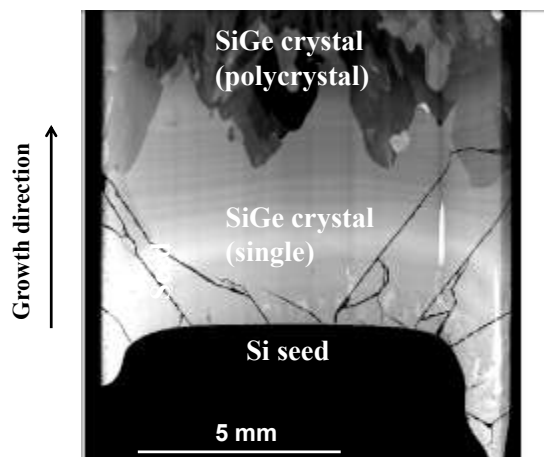


図 2. 結晶断面の反射電子像(白い横縞は成長界面のマーキングによる)

(成果発表)

1. K. Kinoshita *et al.*, J. Crystal Growth, **388** (2014) 12.
2. K. Abe *et al.* *ibid.* **402** (2014) 71.
3. K. Kinoshita *et al.*, *ibid.* **417** (2015) 31.
4. K. Kinoshita *et al.*, *ibid.* **419** (2015) 47.
5. K. Kinoshita *et al.*, *ibid.* **455** (2016) 49.