

課題番号 P-1

## X線イメージセンサーを用いた半導体結晶成長過程 その場観察

[1] 組織

代表者：稲富 裕光

(宇宙航空研究開発機構)

対応者：早川 泰弘

(静岡大学電子工学研究所)

分担者：

田中 昭

(静岡大学電子工学研究所)

青木 徹

(静岡大学電子工学研究所)

Mukannan Arivanandhan

(静岡大学電子工学研究所)

岡野 泰則

(大阪大学大学院基礎工学研究科)

小澤 哲夫

(静岡理科大学)

[2] 研究経過

研究目的・概要：

混晶半導体は組成比により、禁制帯幅や格子定数を制御できる。デバイス設計の自由度を大きくするためには、InGaSb や SiGe 等の均一組成で高品質な混晶半導体バルク単結晶成長技術の開発が望まれている。しかし、均一で高品質な混晶半導体バルク単結晶成長のためには (1)結晶成長時における結晶組成と溶液組成の変化、及び(2)溶液の濃度分布と温度分布の揺らぎに起因した成長界面不安定と多結晶化の問題を解決する方法が求められている。任意の組成を有する均一組成の混晶半導体単結晶成長を達成するための根本的な課題は、高温溶液中の熱・溶質輸送過程と結晶溶解・成長との関係を定量的に把握することである。X線は溶液を透過するため、X線イメージセンサーを用いた結晶成長過程の観察は極めて有効な方法であると期待される。

本プロジェクトの目的は、(1)X線イメージセンサーを用いて溶液中の溶質濃度分布の温度と時間変化を観察し、混晶半導体結晶の溶解・成長と溶質輸送との関係を把握すること、(2)国際宇宙ステーション内の微小重力環境下実験と地上参照実験を行い、対流の極めて小さい環境下での実験結果と地上実験結

果を比較することで、熱・溶質対流や結晶界面方位が均一組成混晶半導体バルク単結晶成長に及ぼす効果を明らかにすること、(3) InGaSb や SiGe などの混晶半導体バルク結晶成長技術を確立すること及び(4) GaAs 系材料を用いて、X線画像検出器を作製することである。

本年度は、(1) X線透過法を用いて、Ge溶液中へのSi溶質の溶解過程とSiGe結晶成長過程の観察を行い、溶質対流が溶解過程に及ぼす効果を確認した。(2) 国際宇宙ステーション内実験のアンブルを準備した。アンブルはロシアのロケットにより国際宇宙ステーションに輸送された。(3) 熱電素子材料として有望な均一組成SiGeバルク結晶成長に成功した。また均一組成SiGeをMg蒸気下で熱処理することで均一組成のMg<sub>2</sub>SiGe結晶を成長させた。これらの結晶のゼーベック係数と抵抗の組成依存性と温度依存性を調べた。(4) 結晶成長時に電流を印加することでGaAs結晶の成長速度を制御できることを示した。

以下、研究活動状況の概要を記す。研究打ち合わせ・研究討論会を下記の日程で開催した。

- (1) 2011年4月25日、静岡理科大学、小澤先生と第1回研究打ち合わせ
- (2) 2011年5月9日、静岡理科大学、小澤先生と第2回研究打ち合わせ
- (3) 2011年5月10日、宇宙航空研究開発機構、筑波宇宙センター、「きぼう」船内実験第1回調整会
- (4) 2011年5月24日、静岡大学電子工学研究所、岡野先生と第1回研究打ち合わせ
- (5) 2011年6月8日—6月9日、宇宙航空研究開発機構、筑波宇宙センター、NASA、ESA、JAXA のサイエンスシンポジウム
- (6) 2011年6月28日、静岡大学電子工学研究所、岡野先生と第2回研究打ち合わせ
- (7) 2011年7月26日、静岡大学電子工学研究所、岡野先生と第3回研究打ち合わせ
- (8) 2011年8月15日、宇宙航空研究開発機構、筑波宇宙センター、第2回個別調整会
- (9) 2011年9月6日、静岡大学電子工学研究所、岡野先生と第4回研究打ち合わせ
- (10) 2011年10月4日—10月5日、静岡大学電子工学研究所、岡野先生と第5回研究打ち合わせ

(11) 2011年11月14日、宇宙航空研究開発機構相模原キャンパス、バルク結晶成長機構WG第2回会合

(12) 2011年12月18日—12月19日、静岡大学電子工学研究所、共同研究打ち合わせ及びバルク結晶成長機構WG第3回会合(稲富裕光、阪田薫穂、余野健定(宇宙航空研究開発機構(JAXA)))

(13) 2011年12月27日—12月28日、静岡大学電子工学研究所、岡野先生と第6回研究打ち合わせ

(14) 2012年1月17日—19日、静岡大学電子工学研究所、共同研究打ち合わせ(阪田薫穂(JAXA))

(15) 2012年2月2日—4日、中国科学院上海珪酸塩研究所、中国回収衛星実験共同研究打ち合わせ(依田真一、稲富裕光、余野健一(JAXA)、Yan Liu(上海珪酸塩研究所))

(16) 2012年3月21日、静岡大学電子工学研究所、共同研究打ち合わせ(稲富裕光、石川毅彦、阪田薫穂、島岡太郎(JAXA)、岡野泰則(大阪大学))

### [3] 成果

#### (3-1) 研究成果

- (1) X線透過法を用いて、Ge溶液中へのSi溶質の溶解過程とSiGe結晶成長過程の観察を行った。SiとGeの密度差が大きいため、GaSb-InSb系と比べ、X線透過強度の差が大きく、溶解過程におけるX線強度分布の変化を明瞭に測定することができた。その結果、溶質対流が溶解過程に及ぼす効果を確認した。
- (2) 国際宇宙ステーション実験アンブルを5本製作した。アンブルはロケット打ち上げ時の振動実験にも合格し、ロシアのロケットにより国際宇宙ステーションに輸送された。また、地上予備実験として、異なった結晶面方位をもつGaSb種結晶/InSb/GaSb供給原料の試料を用いて、熱パルス導入実験を実施し、熱パルス縞の形成を確認した。
- (3) 温度差法を用い均一組成SiGeバルク結晶成長実験を実施した。温度勾配を低くすることで、SiGe結晶の均一組成化を行った。また、均一組成SiGeをMg蒸気下で熱処理することで均一組成のMg<sub>2</sub>SiGe結晶成長に成功した。Si<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>のセーバック係数はSiやGeの値よりも高いこと、また高温側ではSi<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>の値が高く、低温側ではMg<sub>2</sub>Si<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>の値が高いこと、Mg<sub>2</sub>Si<sub>0.7</sub>Ge<sub>0.3</sub>の値はMg<sub>2</sub>Si<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>の値よりも高く、セーバック係数の値に組成依存性があることなどを示した。
- (4) 電流制御液相成長法を用いてGaAsパターン基板上へGaAs厚膜結晶成長実験を行ない、電流が成長に及ぼす効果と厚膜成長に最適な成長方向を調べた。結晶成長時に印加する電流値により、GaAs結晶の成長速度を制御できることを示した。

#### (3-2) 波及効果と発展性など

本研究は、画像科学と結晶成長を融合させた学際研究である点に特色がある。また、熱・溶質輸送効果と結晶界面方位効果を把握し、任意の組成を有する均一組成混晶半導体バルク単結晶成長の手法を実験的、理論的に提案する点に学術的意義がある。本共同研究プロジェクトは、静岡大学、宇宙航空研究開発機構、大阪大学、静岡理工科大学との研究者ネットワークを構築している。本研究は国際宇宙ステーション内の微小重力実験の地上参照実験としても位置づけており、熱・溶質対流や界面方位が混晶半導体バルク単結晶成長に及ぼす効果を把握できると期待される。本研究はInGaSb、SiGeやInGaAs等の混晶半導体結晶成長にも適用できる一般的な概念の構築を目指している。

### [4] 成果資料

#### 論文リスト

- (1) D.Mouleeswaran, T.Koyama and Y.Hayakawa, "Orientation-dependent epitaxial growth of GaAs by current-controlled liquid phase epitaxy", *J.Cryst. Growth*, **321**, pp.85-90 (2011).
- (2) M.Arivanandhan, Y.Saito, T.Koyama, Y.Momose,, H.Ikeda, A.Tanaka, T.Tatsuoka, D.K.Aswal, Y.Inatomi and Y.Hayakawa, "Growth of Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> bulk crystals with highly homogeneous composition for thermoelectric applications", *J.Cryst. Growth*, **318**, pp.324-327 (2011).
- (3) 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", *J.Cryst. Growth*, **324**, pp.157-162 (2011).
- (4) Y.Hayakawa, M.Arivanandhan, Y.Saito, T.Koyama, Y.Momose, H.Ikeda, A.Tanaka, C.Wen, Y.Kubota, T.Nakamura, D.K.Aswal, S.Bhattacharya, S.Moorthy Babu, Y.Inatomi and H.Tatsuoka, "Growth of homogeneous polycrystalline Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> and Mg<sub>2</sub>Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub> for thermoelectric application", *Thin Solid Films* **519**, pp.8532-8537 (2011).
- (5) M.Arivanandhan, G.Rajesh, T.Koyama, Y.Momose, K.Sankaranarayanan, A.Tanaka, Y.Hayakawa, T.Ozawa, Y.Okano and Y.Inatomi, "Crystal growth of InGaSb alloy semiconductor at International Space Station: preliminary experiments", *J.Jpn.Soc.Microgravity Appl.* **28** [2], pp.s46-50 (2011).

## 出張報告

(1)氏名：岡野 泰則

所属：大阪大学大学院基礎工学研究科

期間：2011年10月4日—10月5日

用務先：静岡大学電子工学研究所（浜松市中区城北3-5-1）

用務内容：第5回共同研究打ち合わせ

主たる対応者：早川泰弘

(2)氏名：稲富 裕光

所属：宇宙航空研究開発機構

期間：2011年12月18日—12月19日

用務先：静岡大学電子工学研究所（浜松市中区城北3-5-1）

用務内容：共同研究打ち合わせ及びバルク結晶成長機構WG第3回会合

主たる対応者：早川泰弘

(3)氏名：岡野 泰則

所属：大阪大学大学院基礎工学研究科

期間：2011年12月27日—12月28日

用務先：静岡大学電子工学研究所（浜松市中区城北3-5-1）

用務内容：第6回共同研究打ち合わせ

主たる対応者：早川泰弘