

微小重力下でのIn/GaSb/Sb融液混合と凝固過程に関する研究

メタデータ	言語: ja 出版者: 静岡大学大学院電子科学研究科 公開日: 2008-04-11 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 興津, 和彦 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10297/1573

氏名・(本籍)	興 津 和 彦 (静岡県)
学位の種類	博 士 (工 学)
学位記番号	工博甲第 147 号
学位授与の日付	平成 9 年 3 月 22 日
学位授与の要件	学位規程第 5 条第 1 項該当
研究科・専攻の名称	電子科学研究科 電子材料科学
学位論文題目	微小重力下でのIn/GaSb/Sb融液混合と凝固過程に関する研究

論文審査委員	(委員長)		
	教授 栗原 弘	教授 福家 俊郎	
	教授 熊川 征司	助教授 早川 泰弘	

論 文 内 容 の 要 旨

InGaSbは多元素化合物半導体の一つで、組成比を選択することにより格子定数を6.094~6.478(Å)、発光・受光の波長を1.7~6.8(μm)に制御出来るので、光デバイス材料として不可欠な材料である。しかし、地上での高品質の結晶を作成することは非常に難しい。一方、宇宙空間などの微小重力環境のもとでは、密度に起因する現象が無くなるので、良質の結晶作成が期待し得る。すなわち、微小重力のために密度差の影響がなく、溶液濃度の均一化が可能となるためである。また微小重力下では熱対流が消失するため、自由表面上の濃度差や温度差によるマランゴニ対流が顕在化する。このマランゴニ対流を積極的に活用することによって融液混合の促進化が可能である。

本研究の目的は、重力やマランゴニ対流が半導体の融液混合に及ぼす効果を調べること及び、地上では熱対流の影響により真の値の計測が困難な拡散係数の同定を行なうことである。

組成比がInSb, In_{0.5}Ga_{0.5}Sb, In_{0.3}Ga_{0.7}Sbの場合について、自由表面の有無を実験パラメータとして与えて、地上予備実験、比較の地上実験、スペースシャトルを用いた宇宙実験(微小重力下実験)の三種類の実験を行なった。

最初の地上予備実験では、自由表面の有無に依らず、InSb試料は均一に混合したが、三元のInGaSbでは、重力方向に濃度分布が存在し、試料上部にいくほどGa濃度が増加し、In濃度は逆に減少した。またSb濃度は、試料全域において約50at.%で一定であった。これはInの密度が6.92(g/cm³)と大きく、Gaの密度が5.72(g/cm³)と小さいために、浮力の影響で、軽いGaの濃度が上部にいくほど増大し、重いInは試料下部に残留した結果と考えられた。また濃度変化幅は、自由表面の無い試料ではGaが18~31at.%、自由表面の有る試料では14~31at.%であり、表面の無い方が有る試料よりも均一になった。

三元の試料では、多数の針状結晶が形成していた。組成分析から、針状結晶部はGa組成比の高いInGaSbで、個々の結晶内部では組成比がほぼ一定であったが、試料上部に位置する針状結晶ほどGa組成比が高かった。このことから、試料は上部から固化したことが分かった。他方、残留凝固部は針状結晶から離れるに従ってGa組成比は急激に減少し、中央では $\text{In}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}\text{Sb}$ であった。

次に、地上での比較実験と微小重力下での実験より、以下のことが明らかになった。

地上実験のInSb試料では、自由表面の有る場合には均一に混合したが、無い場合には試料下部に近づくほどIn濃度が増加した。一方、微小重力下実験では、マランゴニ対流によって混合が促進する自由表面の有る試料だけではなく、拡散のみで混合された自由表面の無い試料も均一混合になった。これから、拡散係数の値が予想していた値よりも数倍以上大きいと推測された。宇宙では均一混合し、地上で濃度分布が生じたのは、密度の大きいInが初期状態で下側に配置されたために、拡散による混合が抑制されたためと考えられた。数値計算の結果、地上での見かけの拡散係数は $2.0 \times 10^{-4} (\text{cm}^2/\text{s})$ に相当した。また、均一混合した宇宙試料の拡散係数は $3.9 \times 10^{-4} (\text{cm}^2/\text{s})$ 以上であると算出された。

$\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$ 試料は、微小重力下で球状になった溶液を保持する爪が有る場合と無い場合の二種類が実験された。地上の比較実験では重力方向に濃度分布が存在し、試料下部に近づくほどIn濃度が増加した。しかし、微小重力下実験では均一に混合された。自由表面が存在することによって、マランゴニ対流が発生し、混合が促進されることが確認された。

$\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{Sb}$ 試料で自由表面の有る試料では、 $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$ 試料の結果と同じく、地上では重力方向に濃度分布が存在したが、微小重力下では均一に混合した。マランゴニ対流が発生して、混合が促進したと考えられる。他方、 $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{Sb}$ 試料で自由表面の無い試料では、地上実験の場合、指数関数で近似される濃度分布になった。混合の度合いから、拡散係数が $2.0 \times 10^{-4} (\text{cm}^2/\text{s})$ の場合に相当した。一方、微小重力下での分布は、拡散のみで混合された場合の理想的な濃度分布の形状に一致しており、誤差関数の多項式で近似された。In溶媒中へのGaSbの溶解を含んだ数値計算の結果との対応から、拡散係数は $3.5 \times 10^{-4} (\text{cm}^2/\text{s})$ と算出された。

以上、三種類の組成比の異なるInGaSb融液混合実験結果から、拡散係数を導出し、また拡散現象とマランゴニ対流の混合への寄与についての知見を得た。

論文審査結果の要旨

宇宙の微小重力環境下では、無対流、無浮力・無沈降、無静圧、非接触浮遊等の効果が有るので、組成や結晶構造等を高度に制御した材料の製造が可能である。宇宙環境利用の半導体材料実験は、1973年以來今日に至るまで続けられている。本論文は米国航空宇宙局(NASA)が国際協力の元で推進した第2回国際微小重力実験室計画(IML-2)で行った研究の一つであるIn/GaSb/Sbの融液混合とその凝固過程の研究と地上比較実験を纏めたものである。宇宙実験は米国スペースシャトル「コロンビア」内で行われた。本論文は8章から成る。第1章は序論で本研究の背景と目的である。第2章ではIML-2計画を詳述した後、実験試料と実験方法、更に試料解析方法を説明している。第3章から第7章までは主要な実験結果である。第3章は地上予備実験結果で、宇宙実験を遂行する上で必要な基礎データ(均熱炉の温度特性)、実験試料の温度耐久性、試料の原料組成比と融液自由表面の有無による試料構造の決定等)の取得を目的として行われた。更に、 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{Sb}$ ($x=0, 0.5, 0.7$)の試料固相組成に対して、実験後の濃度分布、針状結晶の存在位置と組成比等を測定し、評価した。この結果を踏まえて、第4章では針状結晶の発生と成長に関して、計算機による数値解析を行い、成長初期では2次元的に、後半では1次元的に成長したと推察している。第5章はInSb二元系融液混合に関してであり、融液の自由表面の有無による宇宙と地上の実験結果の相違を述べている。地上では自由表面有りの場合は均一混合したが、無しでは試料下部でIn濃度が増加し、重力効果が認められた。宇宙試料は自由表面の有無に拘わらず均一混合した。このことから、Sb中へのIn拡散係数が地上の値に比べて数倍大きいことが判明した。結晶粒界の詳細な組成分析や凝固過程についても考察している。第6章は $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$ 三元系に関する結果である。宇宙の自由表面有り試料は、固化膨張による噴出突起部を除けばほぼ球状となっており、この断面の面分析からIn、Ga、Sbの三者は全域に渡って均一に混合していた。球内部には、0.2~2.8mm長×0.05~0.6mm幅の針状結晶が多数存在し、これらの大半の組成比は $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{Sb}$ で表された。同一条件の試料の地上実験結果は、原料がルツボ下部に落下して円筒状となり、その組成比は上部でGa濃度が高く且つIn濃度の低い分布を示した。明らかに重力による対流の影響を受けていた。第7章では、InとGaの組成比を変化させて、 $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{Sb}$ の融液混合を研究している。自由表面無しの宇宙試料は、融液混合の後ではIn濃度分布が誤差関数に従っていることから、拡散のみで混合が促進されたと結論している。In-Ga-Sb溶液中のInの拡散係数として $3.5 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{s}$ を得ており、地上の値に比べて約1桁大きいことを見出した。地上試料は、対流の為に指数関数的な分布を示していた。第8章は纏めで、全体を総括している。以上の様に、微小重力環境下で得られた成果は今後の宇宙での材料創製・開発研究に対する基礎的知見を多く提供している。よって、本論文は博士(工学)の学位に値すると認定する。