

1. はじめに

1970年代の Skylab 計画で Witt や Walter がドーパント濃度の均一な InSb 単結晶の育成[1]や、容器壁面との接触を避けて育成した InSb 単結晶の転位密度の低下[2]を報告してから微小重力を利用した半導体材料の高品質化に大きな期待が寄せられてきた。25年以上の長きにわたり類似の実験が繰り返されてきて、最近一つの方向性が示されたように思える。また、半導体の結晶成長に及ぼす微小重力の効果に関して、シミュレーションが盛んに行われるようになってきたのも最近の傾向である。パソコンの大幅な性能アップに伴い、複雑な流体計算もパソコンで出来るようになってきたのと、宇宙実験のコストを考え予め微小重力の効果を予測したり、実験条件の最適化を図ったりするためにシミュレーションは必要との認識が高まったためであると思われる。ここでは、上で述べた点を含めて微小重力を利用した半導体材料の最新の研究動向について概観する。

2. 均一組成単結晶の育成

熱および物質の輸送が拡散律速の状態であれば、均一ドーパント濃度の実現や均一組成の混晶育成が可能となることは、1950年代に Tiller らによって示されていた[3]。微小重力環境を利用して均一ドーパント濃度を実現したのが、1973年から1974年にかけてスカイラブで行われた Witt 達の Te ドープ InSb の結晶成長実験であった[1]。この実験に触発されて、その後多くの類似実験が行われた。1990年代に入っても宇宙実験の主要なテーマの一つであった。

最近の研究において、均一ドーパントが実現した例として Te ドープ GaSb [4] がある。図1にその結果を示す。場所によっては図1.(b)のように少し不規則性の加わった濃度分布になった箇所が見られたが、図1.(a)のような均一濃度領域が得られた。

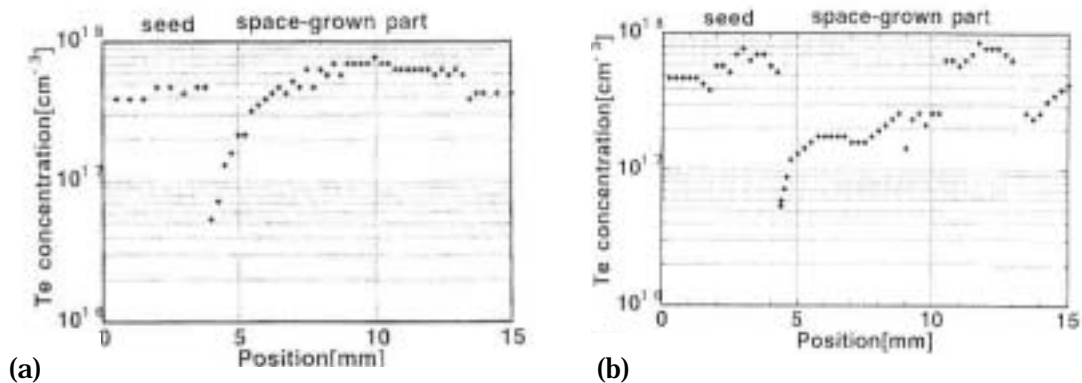


図1. 微小重力下育成 GaSb 中の Te 濃度分布 [4].

また、均一ドーパント濃度には至っていないものの拡散支配結晶成長の濃度分布が実現した例として In ドープ GaSb [5]がある。着目すべきは、これらの実験が無人的に行われた点と、ドーパントの添加量が微量 (0.1 at%以下)であった点である。無人的 EURECA や回収衛星を用いて行われたので、宇宙飛行士の日常活動に伴う g - ジッターの発生がなかったことが幸いしたのかもしれない。あるいは添加量が少なかったために大きな密度差が生ぜず、溶質対流の発生がなかったことによるのかもしれない。またはこれら 2 つの複合効果によるのかもしれない。今後の研究の進展が待たれるところである。

一方、固溶体 (混晶) の組成を均一に制御して育成するのに成功した例は筆者の知る限りではまだ報告されていない。均一組成の固溶体を実現するためには、スペースシャトルで達成される $10^{-4} G$ という微小重力環境は不十分で、もっと小さな例えば $10^{-6} G$ が必要であるとの解析[6]、 $10^{-6} G$ でもまだ不十分で $10^{-7} G$ 以下の微小重力環境が必要であるとの解析例[7]がある。また、重力ベクトルの方向と、結晶成長軸の方向が一致していれば $10^{-6} G$ でも均一組成を達成する上で問題ないが、ずれている場合は難しくなるとの解析結果も出されている[7, 8]。これらの解析結果を受けて最近では残留重力や g - ジッターに注意を払って行われた実験が多い。結晶成長軸と残留重力ベクトルとの相対向きを種々変えた実験[9, 10]、飛行士が全く活動していない時間帯に結晶成長を行うなどの実験例がある。

図 2 は 1995 年 10 月から 11 月にかけて第 2 回米国微小重力ミッション (USMP-2) で行われた $Hg_{1-x}Cd_xTe$ の結晶成長実験例である[11, 12]。なるべく残留重力がない所での実験を目指し、重心から約 3 m しか離れていない所に温度勾配炉を設置して実験が行われた。実験中の残留重力は、 $1 \times 10^{-6} G$ のオーダーであった。残留重力ベクトルの方向と組成分布との関係を知るために円柱状結晶の軸方向に沿って、その表面を 90° 毎に回転して組成

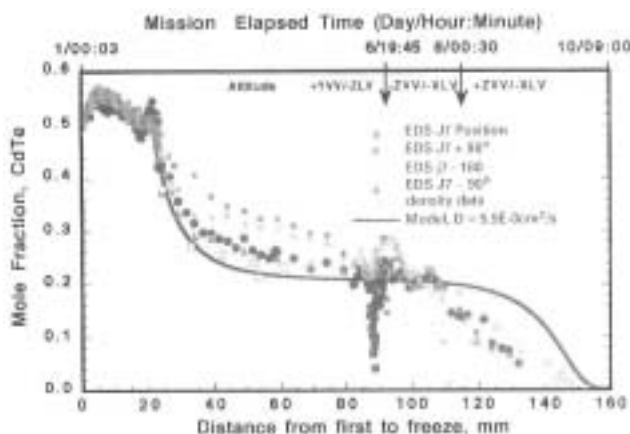


図 2 成長軸方向 CdTe 濃度分布 [11, 12] .

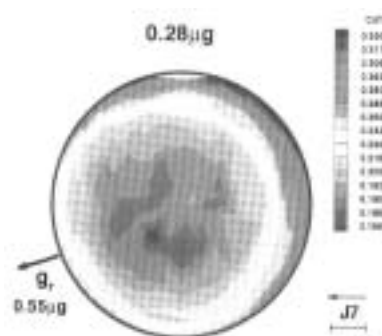


図 3 径方向 HgTe 濃度分布 [11, 12] .

分布が測定された。急に CdTe 濃度が減少している所は、試料移動速度を 0.79 mm/h から 15 倍の 11.85 mm/h に増加させて 5 分後に元の速度に戻した箇所に対応している。実線は

拡散律速定常状態成長が実現した場合に得られる組成分布であるが、実験結果は拡散律速の結晶成長が実現せず、均一組成が得られていないことを示している。また、90°毎に回転して測定した円柱表面の組成分布が一致していないことから、残留重力の加わる方向によって組成分布が変化することを示唆している。実際、輪切りにした試料の組成分布測定から、残留重力ベクトルの方向に HgTe 濃度が増加していることが判明した(図 3)。なお、今回の実験では育成結晶の口径は 10 mm であった。

図 4 は USMP-3 (STS-75 mission)において行われた $Pb_{1-x}Sn_xTe$ の結晶成長実験結果である。結晶成長軸と残留重力ベクトルとの相対向きを種々変えて実験が行われたが均一組成は実現しなかった[9, 10]。

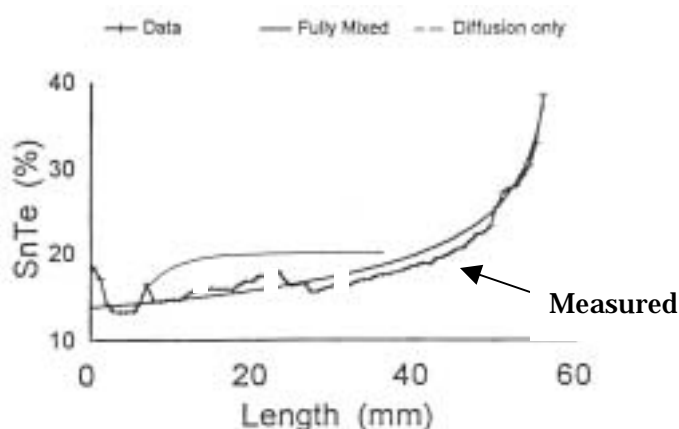


図 4 . $Pb_{1-x}Sn_xTe$ 中 SnTe 濃度分布 [10] .

ドーパントを添加する場合には均一濃度が実現している場合もあるので、均一組成の固溶体が育成できないのは、溶質対流の強度が大きくなるためであると考えられる。流体解析から溶質対流の駆動力を見積もった結果をみると、その駆動力は熱対流と同程度かそれよりも大きな強度になることが多い[8]。

以上、融液からの結晶成長について残留重力の影響を述べたが、結晶の口径が小さい場合や、溶液成長あるいは気相成長の場合は、拡散支配の結晶成長に必要な重力レベルはもっと緩和される。したがって、今後の宇宙実験計画に当たっては、最大の効果が得られるように実験方法や試料サイズの決定に配慮すべきであることを強調しておきたい。

3. 非接触成長

非接触成長で、すぐに思い浮かぶのはフローティングゾーン (F Z) 法であるが、微小重力下で F Z 法による結晶成長実験の良い結果は少ない。その理由は、F Z 法では自由表面が形成されるのでマランゴニ対流が発生し易いためである。その例として、Si や GaSb の F Z 法結晶成長が上げられる [13, 14]。微小重力下 F Z 法は、結晶成長よりも臨界マランゴニ数を求めるのに有効な実験であるとも言える[14]。F Z 法で最も成功した例は、ふわっと'92 実験で金属材料技術研究所の中谷らが提案し、毛利飛行士の手によって行われ

た InSb の結晶成長である[15]。この実験では InSb の表面が薄い酸化膜で覆われたが、それがマランゴニ対流を防止するという幸運に恵まれた。地上育成の場合は直径 3 mm が限度であったが、微小重力下では 20 ~ 30mm の大口径結晶が育成できるとともに、不純物濃度は地上育成の 1/2 以下、転位密度が 1 桁ないし 2 桁低くなっていた。

F Z 法よりも微小重力下育成の特長が発揮されるのは、容器を用いた非接触成長である。この実験の創始者は Walter と言っても良い。この実験も、1973 年から 1974 年にかけてスカイラブで行われた[2]。容器よりも細い InSb の原料棒の先端だけを溶かし、融液が容器壁面に接触しないように工夫して結晶成長させた。転位密度分布を調べたところ、結晶成長とともに減少し、容器からの応力を受けずに成長させた効果が観察された。

日本では松本や飯野らが SFU を利用して行った CdTe の結晶成長実験で良い結果が得られている[16, 17]。非接触成長により双晶の発生が抑制されるとともに、先端が球状になった単結晶が得られた。

上の 2 例は、容器内径よりもかなり細い原料棒の一部を溶かした実験であるが、このような工夫を凝らさない通常のブリッジマン法においても、微小重力下で成長した結晶は容器の一部だけに接して、容器壁面からの応力を受けずに成長することが多い。1974 年の Witt らによる Ge の一方向凝固実験[18]が詳しく解析された初めての例と思われるが、以来数多くの実験例が報告されている。最近では、西永らが中国の回収衛星を用いて行った Te ドープ GaSb [4]もその一例である。結晶成長とともに転位密度が減少し、ついには無転位になっているのが観察された。一方、結晶成長後半で融液が容器に接している所では転位密度が急に上昇していた。GaSb は固化膨張するので、容器壁面からの応力により転位密度が増加したと思われる。

ブリッジマン法における非接触成長に関しては、Wilcox と Regel [19 - 22]および Duffar ら[23, 24]によって詳しい解析がなされている。特に最近では、Regel らによってこれまでに行われた 136 の宇宙実験結果が非接触成長の観点からレビューされ、結晶が非接触成長するための条件として、成長した結晶と容器内面との間の隙間の気体圧力が大きな役割を果たしていることが報告されている[20 - 22]。

Regel らが通常のブリッジマン法で非接触成長が起きるメカニズムに関して行った考察を以下に紹介する。結論を先に述べると、容器壁面と融液の濡れ性のなさ、収縮、容器壁面の凹凸、酸化膜などは非接触成長を起こす要因ではないとしている。

容器壁面との de-wetting

宇宙実験が開始された当初は、非接触成長は融液が容器壁面に濡れないために起こると思われていた時期があった。この考えの根底には、結晶は融液の形を受け継いで成長するという誤った概念がある。C Z 法における結晶成長を考えてみよう。成長結晶は融液の形状を受け継いでいるであろうか？答えは否である。成長結晶の形状を決めるのは“Growth angle”である。図 5 に C Z 法における結晶成長界面での固体、液体、気体の間の関係を、引き上げ方向と結晶表面のなす角および成長角 (Growth angle) を用いて表す。φ = φ₀

の場合に一定径の結晶が成長する。これらの間には次の関係が成り立つ[25]。

$$\cos \varphi_0 \approx \frac{\sigma_{sg}^2 + \sigma_{lg}^2 - \sigma_{sl}^2}{2\sigma_{sg}\sigma_{lg}}$$

ここで、 σ_{sg} 、 σ_{lg} 、 σ_{sl} はそれぞれ固体 - 気体、液体 - 気体、固体 - 液体間の界面エネルギーである。Kuandrykov らがこれまでに測定された結果をまとめている[26]。平衡成長角はSiの{111}面で約11°、InSbの<111>方位成長で約25°である。

表1. 成長面、方位と成長角 [26].

Matter	φ_0 (deg)	Orientation	Surface
Al ₂ O ₃ , Cr doped Al ₂ O ₃	35 ± 4	{1010}, {1120}	Facet
	17 ± 4	{0001}, {1010}, {1120}	Curved
Al ₂ O ₃	20 ± 5		Curved
	12 ± 1		Curved
InSb	25 ± 1	{111}	Curved
Ge	9	Surface orientation {111}	Facet
	30	Surface orientation {100}	
	8		Curved
	13 ± 1	Surface orientation {111}	Facet
Si	11 ± 1	Surface orientation {111}	Facet
NaNO ₂	7 ± 1		Curved
LiF	19 ± 2		Curved

理論解析によれば、融液と容器壁との濡れ性が如何に悪くても、融液が容器から引き剥されることはない[19]。

収縮

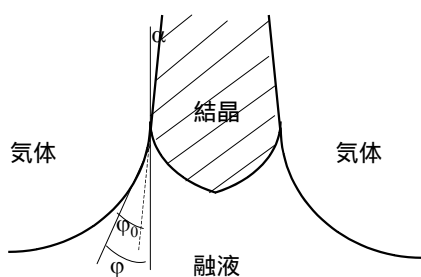
融液が固化する際の収縮によって非接触成長するという考えもあるが、これも誤りである。なぜなら、SiやGe、あるいはGaAsやInPなどの半導体は固化膨張するからである。この考えも結晶が融液形状を受け継いで成長するという誤った概念に基づいている。地上において縦型ブリッジマン法で育成する場合、融液は自重によりつつば内壁一杯に詰まっている。この場合、固化膨張する前述の半導体を育成してもつつばが割れることがないのは何故であろうか？この問いかけに対する答が正に非接触成長のメカニズムと同一であると言える。

容器壁面の凹凸

容器壁面の凹凸は一件非接触成長の源になっているように見える。しかし、この考えも誤りである。なぜなら、平滑な内壁面を有する石英アンブルを用いても非接触成長が生じるからである。

酸化皮膜

薄い酸化膜が融液表面を覆うことが非接触成長をもたらすとの説もある。しかし、実際に非接触成長した GaSb の表面を電子線チャネリングで調べても酸化膜は観察されなかった[27]。石英容器を用いて育成する場合、融液表面に酸化膜が形成されると酸化物同士が接することになり、固溶体を形成して逆に結合しやすくなるので、この観点からも酸化膜の形成はあり得ないと判断される。



α: 引き上げ軸と結晶表面のなす角
φ: 成長角、φ₀: 平衡成長角

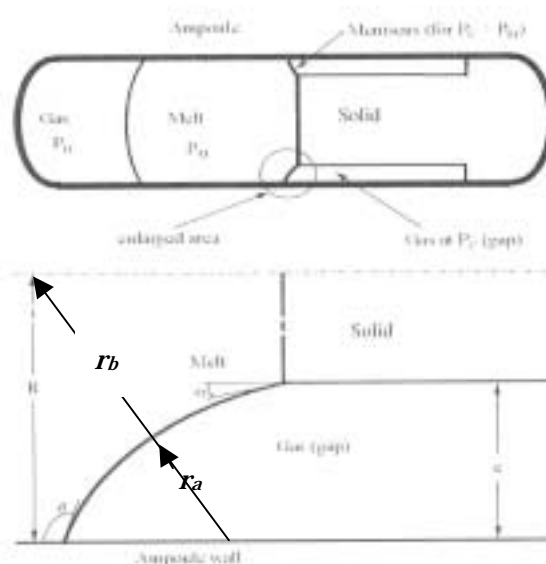


図 6 . 容器内非接触成長のモデル [20, 22].

図 5 . 結晶成長時の気相 液相 固相
共存関係 [25].

Regel らによる非接触成長のモデルを模式的に示すと、図 6 のようになる[20, 22]。結晶と容器壁面とは湾曲した融液のメニスカスでつながっている。このモデルの特徴は、結晶と容器内壁との間のギャップ部の気体圧力が大きな役割を担っている点である。この気体圧力 P_C が容器後端の隙間部の気体圧力 P_M よりも大きなことが重要である。メニスカスの主曲率半径 r_a および r_b 、融液後端での曲率 b 、融液の表面張力 σ 、融液の密度 ρ 、融液の高さ h との関係は次のようになる。ただし g は重力加速度である。

$$\Delta P = \sigma \left(\frac{1}{r_a} + \frac{1}{r_b} \right)$$

$$\Delta P = P_C - P_M + 2 \frac{\sigma}{b} + \rho gh$$

このガス圧差によって、ギャップが常に維持され、結晶が容器壁面に接触しないで成長する。このギャップが完全に一つにつながったものではなく、いくつもの気泡に分かれている場合に観察されるのがリッジ(Ridge)である[18]。

InSb の場合について、ギャップ幅と拡散係数で除した成長速度との関係の計算結果を図 7 に示す[20]。計算に当たっては、Kuandykov らによって測定された成長角 26° が用い

られた(表1参照)。図中縦軸は計算されたギャップ幅を表し、仮定のギャップ幅との交点
 が実際に実現可能なギャップ幅を示している。図から判ることは、安定な非接触成長が可
 能なのは、 V/D が 10 cm^{-1} 辺りまでであり、それ以上に速い成長速度では非接触成長が不
 可能であるということである。また、最高の成長速度が可能になるのはギャップ幅が 0.5
 mm 程度の場合であることも判る。図8に、同じく InSb の場合について、接触角とギャ
 ップ幅の計算結果を示す[22]。接触角 110° 以下では安定な非接触成長が不可能であるこ
 とがわかる。

興味深いことに、この非接触成長において、マランゴニ対流が生じない場合がある。そ
 れは、ギャップ幅が小さい時である。この理由については今後さらに詰めていく必要があ
 るが、表面に酸化膜が形成されるのではなく、融液に溶け込んでいる不純物が表面に集積
 して粘性に富む表面層を形成するからかも知れない。

Regel らは非接触成長の安定性についても考察している。 InSb の場合成長角は既に述べ
 たように、約 26° であるので、結晶は成長とともに大口径になろうとする。結晶の大口径
 化を防止し、同じ径に維持する原動力は熱伝達である。この原理は、CZ法で結晶径を制
 御するのが熱伝達であるのと同じである。

非接触成長が微小重力下で生じやすくなるのは、融液の重みによる静圧がなくなるから
 であるが、地上においてもギャップ内のガス圧を大きくすれば非接触成長は可能である。
 Duffar らは InSb と GaSb について、地上での非接触成長を試み成功している[24]。

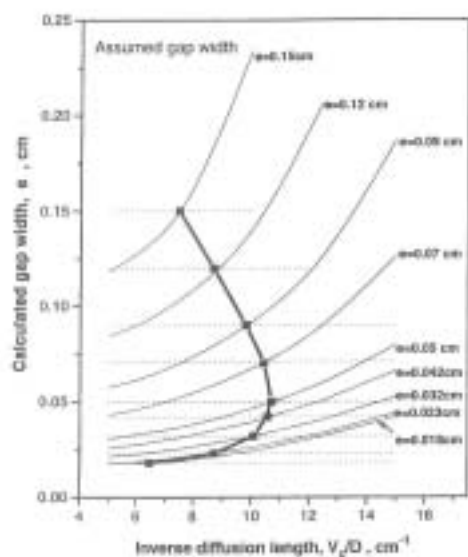


図7．成長速度とギャップ幅の関係 [20].

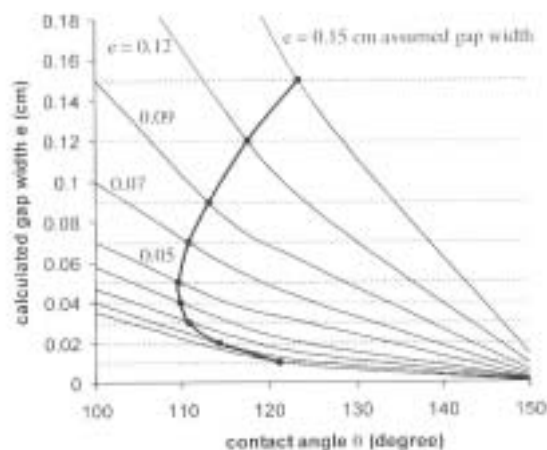


図8．接触角とギャップ幅の関係 [22].

4. 気相成長

気相成長における微小重力のメリットは、気流中の対流が抑制されて均一な成長速度が

実現できること、対流による擾乱がないために成長した結晶中の欠陥が少なくなることがあげられる。また、気相成長においては、融液成長程大きな対流は発生せず、拡散支配の物質輸送に要求される微小重力が、 10^{-3} G 程度と緩やかなことも特長としてあげられよう。

成長速度の面内均一性が微小重力下で向上するという計算結果がかなり報告されている。Pb_{1-x}Sn_xTe について筆者が計算した結果の内、地上育成の場合を図 9 に示す [28]。Pb_{1-x}Sn_xTe は固体から直接 PbTe と SnTe が分子状で蒸発する(昇華する)ので、Physical Vapor Transport (PVT)法の気相成長ということになる。水平ブリッジマン法と同じ構成で結晶成長させた場合、地上では対流の影響を受けて、下面ほど堆積速度が大きく成長速度の不均一性が生じることが分かる。微小重力下では均一な成長速度が見込める。

注目すべきは、重力レベルの要求値が融液成長に比べ格段に緩和される点である。両端での温度差 100 、容器直径 10 mm での気体中の対流流速計算結果を、同じ条件の融液中の対流流速と比較して図 10 に示す。気相成長の場合は、約 0.1 G で対流の流速は拡散速度以下になることが判る。これは、気体中では原子の詰まり方が疎らなので、拡散速度が大きいことと、密度差が生じ難いために対流流速が小さいことの相乗効果である。気相成長では、 10^{-3} G 程度の微小重力であれば十分である。 10^{-6} G 程度の残留重力でも組成分布に悪影響が出る融液成長に比べ大違いである。また、図 10 には溶液成長の場合に必要な重力レベルも矢印で示している。溶液からの成長において、残留重力レベルの条件が緩やかなのは、溶液中では密度差が小さく対流流速が気相成長並に抑制されるからである。

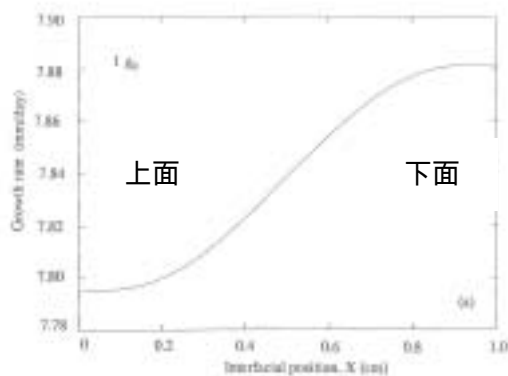


図 9 . 地上における面内上下成長速度の違い [28].

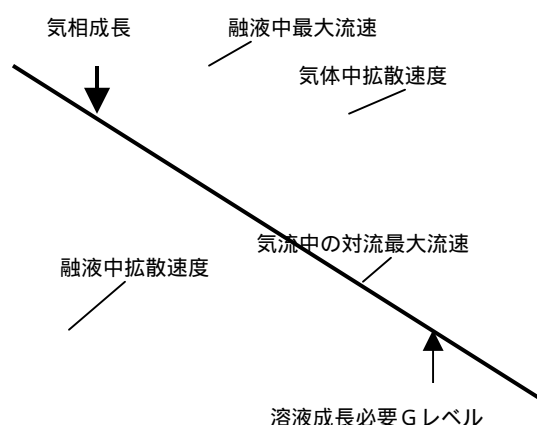


図 10 . 対流流速と重力レベルの関係 [28].

図 11 は、Su らが ZnSe の気相成長について、不純物濃度分布が重力の影響を受けることを実験的に示したものである [29]。重力が横方向に加わった図 11 (a)の場合、Si 濃度は重

力ベクトル方向に濃度勾配を有するが、重力が結晶成長軸方向に加わった図 1 1 (b) の場合は、Si 濃度は軸対称になっていることが判る。不純物は結晶中に点欠陥を生じさせるので、重力が点欠陥の分布に影響を与えることを明確に示した初めての実験例であると言えよう。

5. 結晶成長の原理確認

対流が抑制され、物質輸送が拡散のみによる状態では、一次元モデルで取り扱えるため、解析が非常に楽になる。したがって、宇宙実験により結晶成長の原理を究明しようとする試みも多くなされている。デンドライト成長における界面安定性の解析[30]や、氷の結晶成長の際の晶相の解析[31]などが行われてきた。半導体に関しては、溶解と成長の面方位依存性の研究例[32]がある。また、新しい結晶成長モデルの解析を目的として宇宙実験の準備が進められている[33]。

ここではまず、早川らによって行われた GaSb(111)A/InSb/GaSb(111)B サンドイッチ構造試料の溶融・凝固実験[32]を紹介する。実験は中国の回収衛星を用いて行われた。このサンドイッチ構造試料を加熱していくと、InSb の融点は 525 であるのでまず InSb が溶融され、さらに温度を 706 まで上げるにつれ両サイドの GaSb が InSb 中に溶け込んでいく。GaSb の融点は 712 であるので、全部が溶融されることはない。次に、平均 0.5 /分の徐冷速度で冷やすと、溶け残った GaSb を核として結晶が成長するしくみである。地上では、GaSb の方が InSb よりも比重が小さいので、GaSb が浮上し、溶融ゾーンは重力ベクトルの方向に広がる。一方、微小重力下ではそのような差異は生ぜず、径方向に均一な GaSb の溶け込みが観察された。しかし、GaSb(111)B 面の方が(111)A 面よりも InSb 中へ速く溶け込み、左右対称とはならなかった(図 1 2)。この違いは表面エネルギーの差異などを反映していると思われる興味深い。

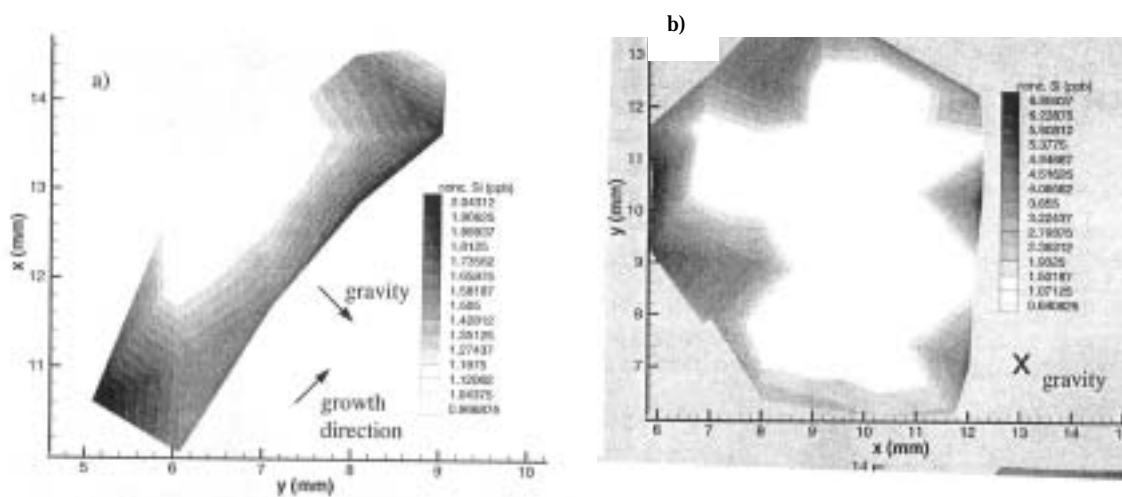


図 1 1 . ZnSe 中の Si 濃度分布、a): 横方向重力、b): 軸方向重力 [29].

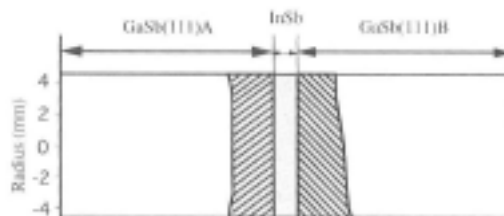
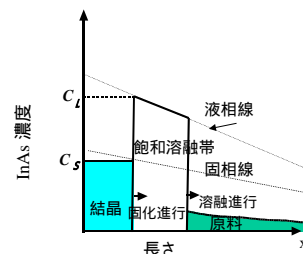
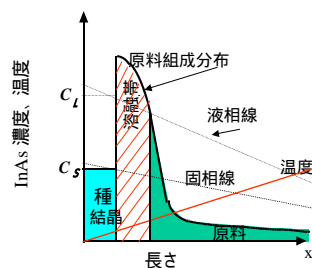


図 1 2 . GaSb(111)A 面と(111)B 面の InSb 中への溶解 [32].

次に筆者らが均一組成の $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 単結晶を育成する目的で開発した新しい結晶成長方法について述べる。結晶成長の原理から、飽和溶融帯移動法（英文名 **Traveling Liquidus Zone Method**、以下 TLZ 法と略す）と命名した[33]。この研究は元々、微小重力下においても存在する 10^{-6} G 台の残留重力の影響を受けずに均一組成の混晶を成長させる目的で、原料に傾斜濃度を持たせることから始めたものである。この方法の原理を図 1 3 に示す。InAs 濃度が種結晶側の先端で高く、後端ほど減少している傾斜組成原料を 20 /cm 程度の比較的低い温度勾配の下で加熱すると、融点温度の低い高濃度 InAs 領域だけが融かされ溶融帯が形成される（図 1 3-a）。この溶融帯の両側は、それらに接している固体の種結晶および原料と反応して飽和濃度の溶液を形成しようとするために、溶融帯の幅を広げながら次第に組成が平均化されていく。溶融帯の両端には温度差があるために濃度勾配が形成され、そのためこのような平衡状態に達した後も InAs が拡散により濃度の低い原料側に輸送され、次の段階の平衡状態に移ろうとする。この場合、種結晶側では InAs 濃度が低下して平衡濃度以下になり固化が始まる。InAs は結晶中に取り込まれ難いために、固化に際して InAs が成長界面前方の融液中に排出される。排出された InAs は、濃度勾配によって原料側へ輸送され、原料側では InAs 濃度の増加によって溶解が進む。このように温度勾配を与えておくと、結晶成長が自発的に高温側（原料側）へ向かって進行する（図 1 3-b）。この自発的結晶成長速度に一致させて試料を低温側へ移動させると、成長界面の温度と温度勾配すなわち成長界面での InAs 濃度と濃度勾配が一定に保たれ、均一組成の結晶が成長してくる。以



(b)飽和溶融帯移動法組概念図

上た

御し

この方法によって育成した結晶の例を図 1 4 に示す。微小重力下結晶成長を模擬するために、直径 2 mm の毛細管中で育成し、対流を抑制した。長さ 35 mm 以上にわたり、InAs モル分率 0.3 ± 0.02 の均一組成が実現するとともに、約 20 mm の単結晶領域が得られた。結晶中の InAs モル分率は、成長界面の温度を制御することにより可変で、0.2 から 0.33 までの均一組成単結晶育成に成功している。

以上述べたように、飽和溶融帯移動法は均一組成を可能にする非常に優れた方法であるが、課題もある。それは、大口径化に従い単結晶化が困難になることである。その原因として、対流による溶融帯内の局所的過冷却が上げられる。シミュレーションによる流体解析からも大口径化に伴い、組成的過冷却の深度が増大する結果が得られている。さらに、一次元モデルによる結晶成長メカニズム解析と実験結果は成長速度において差異がみられ、成長速度においても対流の影響が大きいことが判明した。対流が抑制できる微小重力下での実験は上記課題の解決に非常に魅力的であると言える。

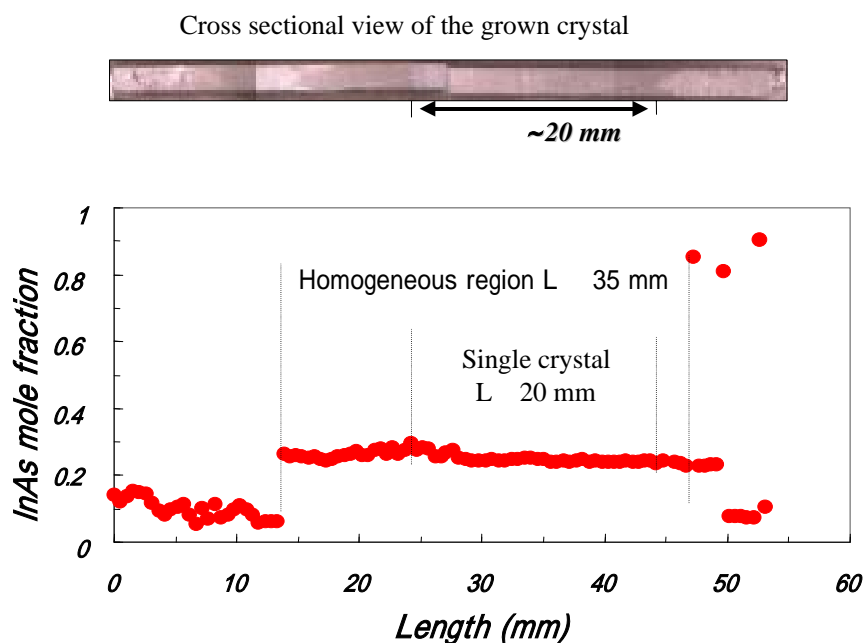


図 1 4 . T L Z 法育成結晶断面および軸方向 InAs 濃度分布 [33].

6 . マランゴニ対流

従来、透明なシリコンオイルや NaNO_2 を用いたマランゴニ対流の研究が数多くなされてきた。これらの液体は可視化が容易である反面、熱伝導率が悪く (Pr 数が高く)、半導体の結晶成長におけるマランゴニ対流の研究には直接結びつくことがないというもどかしさがあった。一方、 Pr 数の低い流体は可視化が困難で、表面が酸化され易く取り扱いが困難であるという問題点があった。

最近、高木らと Yang らで相次いで低 Pr 数液体の Sn の液柱を表面酸化膜なしに形成することに成功するとともに、振動流へ遷移する臨界マランゴニ数を測定するのに成功した [34, 35]。その内容を以下にやや詳しく紹介する。高木らは、酸化物微粒子をトレーサとして用いて液柱表面流れ場の可視化を行い、振動流遷移現象を確認した。直径 3 mm、高さ約 3 mm の液柱において表面流れ場の可視化観察結果を図 15 に示す。マランゴニ対流により液柱下部へと運ばれた粒子は渦を形成し、温度差 8 程度で二つの渦の境界が左右に振動し始めた。さらに温度差を大きくしていくと、振動は約 1 Hz の周期で定常状態となった。本結果は、低 Pr 数流体の振動流遷移現象を直接捉えた世界で初めての結果である [34, 36]。振動挙動の定量データは、トレーサを用いない清浄な液柱表面の温度変化を非接触で計測することによって得られる。実験により検出された温度振動 0.1 ~ 1 Hz 程度であり、数値解析の結果 [37, 38] と比較的良く一致した。Yang らは直径 4 mm、高さ 4 mm の液柱において、温度差 18.8 ± 1.5 の時に定常マランゴニ流は振動流へ遷移し、振動の周期は 1.1 ± 1 Hz であったと報告している [35]。

Si 液柱におけるマランゴニ振動流の観測が小型ロケット実験により日比谷ら [39] と Benz ら [13] によりなされている。また、Cheng らによる地上での Si 液柱での振動流の観察例も報告されている [40]。いずれも Si の臨界マランゴニ数 150 ± 50 [40] よりかなり大きなマランゴニ数のところでの実験である。

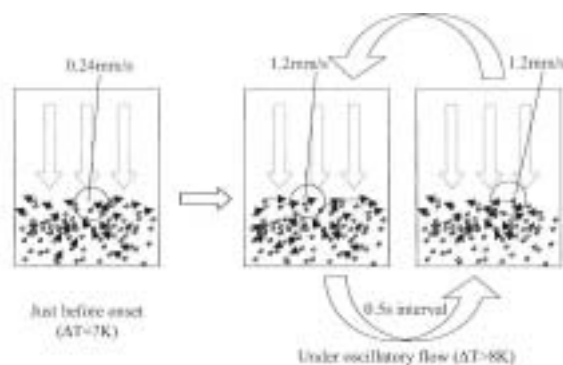


図 15 . 溶融 Sn 柱における振動流観察 [34].

7 . シミュレーションの発達

最近の、特徴として微小重力下結晶成長実験のシミュレーションに力が注がれてきたことが上げられよう。その理由として、PHOENICS などの流体解析ソフトの取り扱いが容易になったことと、パソコンやワークステーションの計算能力の発達により解析が容易になったことが上げられよう。最近の結晶成長や流体解析における興味深い例として、回転磁界の印加や坩堝回転による対流抑制の計算例がある [42, 43]。少ない磁界や坩堝回転で対流が抑制されることが報告されている。詳細は原著を参照されたい。

8 . データベースの充実

宇宙実験成果をまとめたデータベースが充実してきている。宇宙開発事業団では、過去

に行われたシャトル実験や小型ロケット実験など我が国の微小重力実験の全てについて、成果をデータベース化し、公開している。登録すれば NASA と ESA のデータベースともリンクして検索が出来るようになる。是非多くの方に利用して頂きたい。URL は以下の通りである。

NASDA: <http://idb.exst.nasda.go.jp/>

NASA: <http://mgravity.itsc.uah.edu/microgravity/micrex/micrex.stm>

ESA: <http://www.esa.int/cgi-bin/mgdb>

なお、最近の飛行実験を下表にまとめたので、参考にして頂ければ幸いである。

9. まとめ

微小重力実験に関する最近の半導体の動向をまとめた。米国では 1995 年から 1997 年にかけて残留重力の影響を調べる実験が盛んに行われたが、最近ではあまり行われておらず、興味の対象が非接触成長やタンパク質の結晶成長に移っている観がある。最近では、ナノテクノロジーが賑わっている。ESA でも流体の数値解析は相変わらず多いが、半導体の実験は減ってきている。このような状況の中で、地道に半導体に取り組んでいるのが日本である。融液からの半導体混晶の育成は残留重力の影響に敏感なものの一つであるが、影響を受けない方法も考案された。日本から世界をあっという間に驚かすような良い成果を出したいものである。

表 2 . 最近行われた主な宇宙実験

シャトル実験		
機名	年月日	内容
STS-72	1995.1.11~1.20	若田飛行士 SFU6回収
STS-75	1995.2.22~3.09	米国微小重力実験-3 (USMF-3)
STS-77	1995.5.19~5.29	SPACEHAB実験
STS-83	1997.4.04~4.06	MGL-1、燃料電池不具合で早期帰還
STS-84	1997.5.15~5.24	日本蛋白質結晶成長実験10件
STS-94	1997.7.01~7.17	MGL-1、再実験(主に結晶実験)
STS-87	1997.11.19~12.05	土井飛行士 スピラタン衛星回収, smap-4
STS-89	1998.1.22~1.31	SPACEHAB実験
STS-90	1998.4.17~5.03	ニューロラボ
STS-95	1998.10.29~11.07	西井飛行士 宇宙医学ムツイフサイエンス実験
STS-99	2000.2.11~2.22	6科飛行士 地球3D地形図データ収集
STS-94	2000.10.11~10.24	若田飛行士 ロボットアーム操作基地確立

小型ロケット実験		
機名	年月日	内容
TRIA-5	1990.9.25	燃焼、濃縮、蒸餾、拡散、コロイド
TRIA-6	1997.8.25	マランゴニ、拡散、凝集、骨芽細胞
TRIA-7	1998.11.19	結晶成長、拡散、凝集現象、燃焼、静電斥力

参考文献

- [1] H. U. Walter, J. Electrochem. Soc., **123** (1976) 1098.
- [2] A. F. Witt, H. C. Gatos, M. Lichtensteiger, M. C. Lavine, and C. J. Herman, J. Electrochem. Soc., **122** (1975) 276.
- [3] W. A. Tiller, K. A. Jackson, J. W. Rutter and B. Chalmers, Acta Meta. **1** (1953) 428.
- [4] T. Nakamura, T. Nishinaga, P. Ge and C. Huo, J. Crystal Growth **211** (2000) 441.
- [5] T. Duffar, M. D. Serrano, C. D. Moore, J. Camassel, S. Contreras, P. Dusserre, A. Rivoallant and B. K. Tanner, J. Crystal Growth **192** (1998) 63.
- [6] K. Kinoshita and T. Yamada, J. Crystal Growth **147** (1995) 91.
- [7] R. J. Naumann, J. Crystal Growth **142** (1994) 253.

- [8] T. Maekawa and S. Matsumoto, "Numerical modeling of crystal growth of binary semiconductors, *Modeling of transport phenomena in crystal growth*", (ed. J. S. Szmyd and K. Suzuki), WIT press, Southampton, UK, (2000) chapter 4 pp. 97-151.
- [9] A. L. Fripp, W. J. Debnam, G. A. Woodell, W. R. Rosch and R. Narayanan, AIAA 97-0676, 35th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit (Reno, NV 1997).
- [10] B. P. Matisak, A. X. Zhao, R. Narayanan and A. L. Fripp, *J. Crystal Growth* **174** (1997) 90.
- [11] S. L. Lehoczky, D. C. Gillies, F. R. Szofran, T. K. Pendergrass, D. A. Watring, C. R. Coppens, L. E. LeCroy and D. Popok, AIAA 95-0609, 33rd Aerospace Sciences Meeting and Exhibit (Reno, NV 1995).
- [12] D. C. Gillies, S. L. Lehoczky, F. R. Szofran, D. A. Watring, H. A. Alexander and G. A. Jerman, *J. Crystal Growth* **174** (1997) 101.
- [13] M. Schweizer, A. Croell, P. Dold, Th. Kaiser, M. Lichtensteiger, and K. W. Benz, *J. Crystal Growth* **203** (1999) 500.
- [14] A. Croell, Th. Kaiser, M. Schweizer, A. N. Danilewsky, S. Lauer, A. Tegetmeier and K. W. Benz, *J. Crystal Growth* **191** (1998) 365.
- [15] 中谷 功、高橋 總、小澤 清、西田勲夫：日本結晶成長学会誌、**21** (1994) 430.
- [16] 松本 博、梶ヶ谷富男、飯野貴幸、田中明和、酒井 宏：日本マイクログラフィティ応用学会誌、**14** (1997) 228.
- [17] T. Iino, H. Matsumoto, T. Kajigaya, A. Tanaka and H. Sakai, *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.* **15** Suppl. II (1998) 466.
- [18] A. F. Witt, H. C. Gatos, L. Lichtensteiger and C. J. Harman, *J. Electrochem. Soc.*, **125** (1978) 1832.
- [19] R. Sen and W. R. Wilcox, *J. Crystal Growth* **78** (1986) 129.
- [20] L. L. Regel and W. R. Wilcox, *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.* **15** Suppl. II (1998) 460.
- [21] L. L. Regel and W. R. Wilcox, *Microgravity Sci. Technol.* **11** (1999) 152.
- [22] Y. Wang, L. L. Regel and W. R. Wilcox, *J. Crystal Growth* **209** (2000) 175.
- [23] T. Duffar, C. Potard, P. Dusserre, *J. Crystal Growth* **192** (1998) 467.
- [24] T. Duffar, P. Dusserre, F. Picca, S. Lacroix, N. Giacometti, *J. Crystal Growth* **211** (2000) 434.
- [25] W. Bardsley, F. C. Frank, G. W. Green and D. T. J. Hurle, *J. Crystal Growth* **23** (1974) 341.
- [26] L. L. Kuandykov and P. I. Antonov, *J. Crystal Growth* **222** (2001) 852.
- [27] E. Lendvay, M. Harsy, T. Gorog, I. Gyuro, I. Pozsgai, F. Koltai, J. Gyulai, T. Lohner, G. Mezey, E. Kotai, F. Paszti, V. T. Hryapov, N. A. Kultchitsky and L. L.

- Regel, J. *Crystal Growth* **71** (1985) 538.
- [28] K. Kinoshita, *The PHOENICS Journal of Computational Fluid Dynamics & its applications*, **9** (1996) 343.
- [29] C. H. Su, S. Feth, D. Hirschfeld, T. M. Smith, L. J. Wang, M. P. Volz and S. L. Lehoczky, *J. Crystal Growth* **204** (1999) 41.
- [30] M. D. Dupouy and D. Camel, *J. Crystal Growth* **183** (1998) 469.
- [31] Y. Furukawa and E. Yokoyama, *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.* **17** Suppl. (2000) 43.
- [32] Y. Hayakawa, Y. Okano, A. Hirata, N. Imaishi, Y. Kumagiri, X. Zhong, X. Xie, B. Yuan, F. Wu, H. Liu, T. Yamaguchi and M. Kumagawa, *J. Crystal Growth* **213** (2000) 40.
- [33] K. Kinoshita, H. Kato, M. Iwai, T. Tsuru, Y. Muramatsu and S. Yoda, *J. Crystal Growth* (in print).
- [34] 高木克彦、大高雅彦、夏井秀定、新井達也、依田真一：日本マイクログラビティ応用学会誌、**18** (2001) 11.
- [35] Y. K. Yang and S. Kou, *J. Crystal Growth* **222** (2001) 135.
- [36] K. Takagi, M. Otaka, H. Natsui, T. Arai, S. Yoda, Z. Yuan, K. Mukai, S. Yasuhiro and N. Imaishi, *J. Crystal Growth* (Submitted).
- [37] 今石宜之、安廣祥一、秋山泰伸：日本マイクログラビティ応用学会誌、**18** (2001) 2.
- [38] N. Imaishi, S. Yasuhiro, Y. Akiyama and S. Yoda, *J. Crystal Growth* (Submitted).
- [39] S. Nakamura, T. Hibiya, K. Kakimoto, N. Imaishi, S. Nishizawa, A. Hirata, K. Mukai, S. Yoda and T. S. Morita, *J. Crystal Growth* **186** (1998) 85.
- [40] A. Croell, W. Mueller-Sebert, K. W. Benz and R. Nitsche, *Microgravity Sci., Technol.* **III/4** (1991) 204.
- [41] M. Cheng, S. Kou, *J. Crystal Growth* **218** (2000) 132.
- [42] C. K. Ghaddar, C. K. Lee, S. Motakef and D. C. Gillies, *J. Crystal Growth* **205** (1999) 97.
- [43] 近藤宏樹、酒井 奨、岡野泰則：化学装置における種々の流体の流動状態に関する数値解析と可視化技術、化学工学シンポジウムシリーズ **75**, pp. 44 – 53. (2000).