

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 15日現在

機関番号：50102

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560198

研究課題名（和文） GaAs 単結晶成長固液界面制御のための熱・物質移動現象の解明

研究課題名（英文） The investigation of heat and mass transfer phenomenon for the GaAs single crystal growth solid-fluid interface control.

研究代表者

菊田 和重 (KIKUTA KAZUSHIGE)

苫小牧工業高等専門学校・教授

研究者番号：90214741

研究成果の概要（和文）：GaAs単結晶成長における熱・物質移動現象の解明を目的として、融液の複雑な流動現象を明らかにするために、可視化実験装置を用いて成長装置を模擬したるつぼ内の融液の流動観察を行った。また、種々の結晶径、結晶長における成長装置内の熱流動数値計算を行い、単結晶成長実験結果と比較・検証することで実現象の解明を試みた。本研究により融液の流動特性をある程度明らかにできたほか、異なった結晶径、結晶長における装置内の熱・流動特性も明らかにすることができた。

研究成果の概要（英文）：The objective of this study is to clarify heat and mass transfer phenomenon in the GaAs single crystal growth. In order to clarify complicated flow phenomenon of the melt, flow observation of the melt in the crucible which was simulated the growth device was carried out using the visualization experiment equipment. And, thermal hydraulics numerical calculation in the growth device at various crystal diameters and crystal length was conducted and the elucidation of the actual phenomenon was tried by verifying in comparison with single crystal growth experimental result. Flow characteristic of the melt was able to be clarified to some extent by this study. It was also able to be clarified a heat and flow characteristic in the equipment at the different crystal diameters and crystal length.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：熱工学

キーワード：対流

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

1. 研究開始当初の背景

化合物半導体 GaAs は、電子の移動度がシリコンに比べて大きいことから超高速デバイスに使われ、レーザーやダイオード発光するなどのすぐれた特長を有する。GaAs 単結晶の成長はシリコンと同様に引き上げ法により行われるが、シリコンに比べて結晶欠陥（転位ならびに転位の増殖による多結晶化）が発生しやすく基板の品質確保や結晶の大型化の障害となっている。転位は結晶成長中の固液界面形状が凹凸になることにより増殖するので、固液界面形状を決定する結晶径方向の温度分布を極力均一にすることが重要である。しかし、この温度分布は結晶内の伝導や表面輻射、融液の流れも関連した複数の要因によって決定されるため、それらを適切に制御するのに困難を極めている。

シリコン単結晶では伝導や輻射、対流を統合的に導入することで結晶成長炉全体を解析することが進められている。一方では、局所的なアプローチとして融液の対流、融液の温度分布を実験、数値計算を適用して把握しようという試みがなされている。しかし、GaAs 単結晶に関する研究は少なく、界面形状の変化に着目した解析や実験はほとんど行われていないのが現状である。これは GaAs の結晶成長を行っているのが限られたいくつかのメーカーであり研究発表が少ないことが一因であるほか、現在は経験則に基づき小型の結晶成長を行っているのに留まっているからであると考えられる。

シリコンの結晶成長とは異なり、GaAs 融液上にはヒ素の蒸発を防ぐための B2O3（高粘性流体・低熱伝導率）が封止液として存在しており、それが伝熱挙動および融液の対流を複雑なものにしている。また、結晶の成長に伴い容積が減少する GaAs 融液の入ったるつぼと成長する結晶は相反する回転運動を行っており、B2O3 液や融液の流動（自然対流）に大きく影響を及ぼす。一方、GaAs 融液や B2O3 液は PBN 製るつぼが半透明であるためヒーターからの輻射によっても加熱されることになるが、これらの放射熱物性も明らかになってはいない。

2. 研究の目的

本研究は、固液界面形状の形成に関わる諸因子の影響を把握することを目的とし、界面形状に大きく影響すると考えられる物性が大きく異なった 2 液（GaAs 融液と B2O3 液*）の複雑な流動特性（固液界面形状と融液の容積が変化しながら回転を伴う流れ＋自然対流）やそれを含む伝熱挙動ならびに両液体の放射熱物性を基礎実験により明らかにする。

また、数値計算によるモデリングを行い、対流・伝導・輻射、凝固を含めた総合的な解析を行うほか、径方向の温度均一化による固液界面形状の制御手法を確立する。

3. 研究の方法

(1) 粘性や熱伝導率などの物性が大きく異なる 2 液の回転を伴う自然対流の可視化実験を行う。

① 流体への加熱および回転が可能なるつぼを想定した耐熱容器ならびに実験装置を製作。仮想するつぼには側面や底面からの熱流束を変化させられるように工夫する。

② 物性の異なる 2 液を用意し、トレーサー法ならびに光学的手法による可視化実験を行い、可視化手法を確立する。

③ 物性の異なる 2 液を用いてレーリー数やプラントル数、回転レイノルズ数などの無次元数を変化させた場合や実際の GaAs 融液、液体 B2O3 を用いて、対流の可視化、対流に回転が加わった時の可視化を行い、流動を確認する。

④ るつぼとは相反する方向に回転する結晶の固液界面形状の変化が融液の対流に与える影響を検討できるように実験装置に改造を加える。

⑤ 回転ならびに融液の容積変化の影響を加え、対流の変化を可視化により確認する。

(2) 結晶の熱伝導、対流、輻射を含めた総合的なモデリングを行う。基礎実験結果と数値計算結果の付き合わせから、熱流動計算ならびに凝固を含めた総合的なモデリングを行う。

(3) 基礎実験のほか総合的なモデリングを行った数値計算モデルによる解析結果と結晶成長実験との比較検討を行い、固液界面形状を支配する因子の特定を行う。

(4) 特定された因子を制御する手法を基礎実験のほか数値計算モデルによる解析ならびに結晶成長実験により検討を行い、その制御手法を確立する。

4. 研究成果

(1) 複数の結晶長について、結晶長の増加による融液の減少とるつぼの上昇にともなう炉

内の温度分布の変化について解析を行った。結晶径4インチおよび5, 6インチ全ての解析結果において結晶長増加にともない類似の傾向がみられた。そこで最もこれら傾向が明確な4インチ結晶成長に関して結晶近傍の温度分布を図1に示す。図1における等温線の間隔は40kである。温度は結晶長増加にともない上昇していることが確認できる。また、結晶内部の温度分布からも結晶長の増加と結晶近傍の温度上昇が結晶内部の温度分布に大きく影響していると考えられる。これは、炉内窒素ガスの速度分布より炉上部から流入する冷却された窒素ガスが結晶上部に衝突し炉上部へと循環し、十分に流入しないことが原因であると考えられる。結晶上部直近での窒素ガスの流動を見ると結晶に衝突後100mm成長では結晶側面と遮蔽板の間に流れ込んでいるのがわかった。また、200mm結晶成長で顕著なように、結晶長が長くなると結晶側面と遮蔽板側面に窒素ガスが流れ込まないことも同時に確認できた。

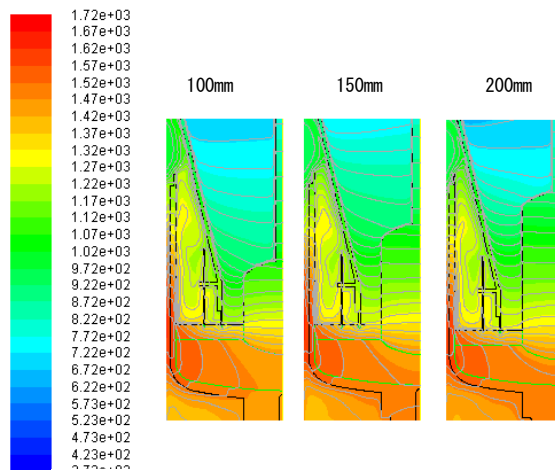


Fig.1 Temperature distributions in the furnace

4インチおよび5, 6インチ全ての解析結果において結晶長増加にともない、結晶と融液内に特徴的な変化が得られた。そこで、4インチ結晶成

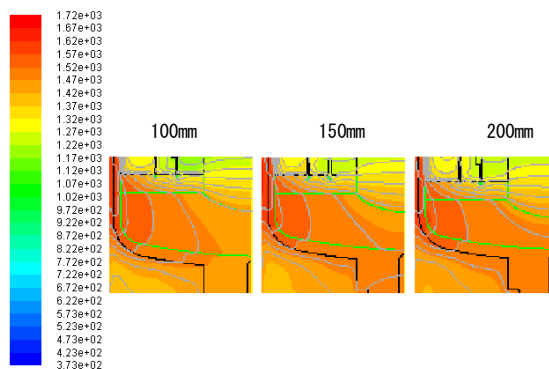


Fig.2 Temperature distributions inside the melt

長に関して結晶と融液内の温度分布を図2に示す。図2における等温線の間隔は前節と同様40kである。るつぼ融液内1470kの部分に注目すると、この温度の等温線は結晶が長くなるのにもない結晶成長の界面に近づいているのがわかる。これより結晶界面の温度も上昇し成長方向の温度分布にも大きく影響していると考えられる。

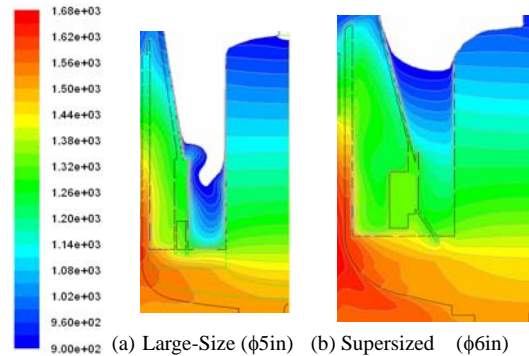


Fig.3 Temperature distributions

(2) 大型炉 ($\phi 5in$) と超大型炉 ($\phi 6in$) の温度分布やガス流動の比較を行った。図3には5インチ結晶成長時の大型炉と6インチ結晶成長時の超大型炉内の結晶長が250mm時の結晶周りの温度分布を示す。図は900Kから1680Kの範囲を30K間隔の等温線を引いたものである。結晶内の温度分布を見ると大型炉の方が等温線の間隔が若干密になり、結晶上部と下部の温度差が大きいことが明らかとなった。また、結晶周りのガス温度を見ると大型炉は超大型炉よりも低く、遮蔽板と結晶の間が特異な分布となっていることもわかった。大型炉では遮蔽板と結晶の間に蛇行するような流れが確認できた。これが、特異な温度分布となった原因であると考えられる。結晶周りの流れを見ると結晶上部の流速が大型炉は超大型炉に比べ大きいことがわかった。結晶の上部から下部に流れ込むガスの流れも大型炉の方が速いこともわかった。これらのガスの流れの違いは結晶に及ぼす熱伝達に大きく影響しており、歩留まり低下の要因の一つになっているものと推定できる。

次に大型炉 ($\phi 6in$) と超大型炉 ($\phi 6in$) の温度分布やガス流動の比較を行った。図4に6インチの結晶長250mm成長時の大型炉の温度分布を示す。先と同様に等温線の間隔は30Kである。結晶付近のガスの温度は結晶の上部と下部のそれぞれでガスの温度が結晶よりも高くなっている部分が確認できた。これは図4の両方では見られなかった結果である。遮蔽板と結晶の隙間を流れるガスの温度分布は特異な分布とはならず、超大型成長時と比較的類似の分布となった。図5には図4

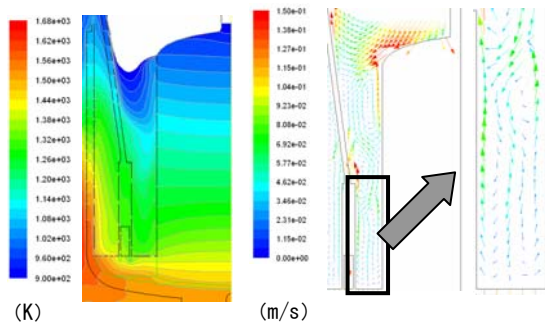


Fig.4 Temperature Distribut
in Large-Sized Furnace

Fig.5 Velocity Vectors
in Large-Sized Furnace($\phi 6in$)

に対応した速度ベクトルを示す。図を見ると、5 インチの場合と同様に結晶の上部では大型炉のガスの流速は超大型と比較して大きい。結晶上部からガスが流れ込む方向は超大型炉のものとは変わらないが、ガスの流速はかなり大きくなっているのがわかる。また、結晶下部では、ガスの流れが超大型炉では結晶に対して下向きに流れているのに対し、大型炉では上向きに流れているのが確認できた。この流れが、結晶付近のガスの温度を上昇させた原因だと考えられる。結晶付近のガス温度が高い場合には、熱はガスから結晶へと流入することになる。このような温度逆転の現象を回避し、歩留まりが安定している超大型炉の6インチ結晶成長時と同じような温度分布となるような方策を行なう必要がある。

(3)まとめ

GaAs単結晶成長における熱・物質移動現象の解明を目的として、融液の複雑な流動現象を明らかにするために、可視化実験装置を用いて成長装置を模擬したるつぼ内の融液の流動観察を行なうとともに、流動観察の結果と数値計算の比較を行い、計算モデルの妥当性の検証を行った。一方、種々の結晶径、結晶長における成長装置内の熱流動数値計算を行い、GaAs結晶成長実験結果と比較・検証することで実現象の解明を試みた。

可視化実験は、るつぼを模擬したビーカー内にGaAsを模擬した水と封止材である酸化ホウ素を模擬した機械油を用いて行なった。トレーサー粒子にはGlass Hollow Spheresを用いた。実験装置は成長装置と同様に加熱ができ、模擬結晶とビーカーも回転する構造となっている。るつぼの回転数や結晶の回転数を変えたほか、融液の量も変化させて可視化実験を行った。それぞれの可視化結果は遠心力と対流が共存し互いに影響しあうものとなったが、数値計算によってもその特性を定性的に確認することができ、計算モデルの妥当性についても検証することができた。一方、成長装置内の熱流動解析では、大型炉における

歩留まりの違いを明らかにするために、種々の結晶径、結晶長に対する解析を試みた。その結果、結晶径を問わず結晶長が長くなると結晶近傍の温度が上昇することが明らかになったほか、雰囲気中の窒素ガスの流動が結晶径の異なる成長において大きく変化することが明らかになった。このガス流動の違いが結晶の温度分布に与える影響は大きいこともわかった。

以上、本研究により融液の流動特性をある程度明らかにできたほか、異なった結晶径、結晶長における装置内の熱・流動特性も明らかにすることができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

(1) 大町悠樹, 菊田和重

“化合物半導体 GaAs 単結晶成長の歩留まり向上に関する研究”

日本機械学会 北海道学生会, 第41回学生員卒業研究発表講演会, (2012), 197-198, 査読無し

(2) Kazushige Kikuta, Jun Takakuwa
“Numerical simulation of flow and heat transfer in LEC growth of GaAs”
MEMOIRS OF THE TOMAKOMAI NATIONAL COLLEGE OF TECHNOLOGY,
No.46, Page.1-6, 2011, 査読有り

(3) 堂賢人, 菊田和重

“化合物半導体 GaAs 単結晶製造装置における熱・物質移動シミュレーション”

日本機械学会 北海道学生会, 第40回学生員卒業研究発表講演会, (2011), 207-208, 査読無し

(4) 木村恵敬, 田部豊, 近久武美

“GaAs 単結晶成長に及ぼす融液流動および温度分布の影響”

日本機械学会 第49回北海道支部講演会講演概要集, (2010), 23-24, 査読無し

(5) 門脇主将, 田部豊, 近久武美

“GaAs 単結晶製造装置内の熱流動可視化実験と解析”

日本機械学会 北海道学生会, 第39回学生員卒業研究発表講演会, (2010), 199-200, 査読無し

(6) 高桑潤, 菊田和重

“化合物半導体製造装置における結晶欠陥

抑制のための熱・物質移動に関する研究”
日本機械学会 北海道学生会, 第 39 回学生
員卒業研究発表講演会, (2010), 197-198,
査読無し

〔学会発表〕(計 5 件)

(1) 大町悠樹, 菊田和重

“化合物半導体 GaAs 単結晶成長の歩留まり
向上に関する研究”

日本機械学会 北海道学生会, 第 41 回学生
員卒業研究発表講演会, (2012)

(2) 堂賢人, 菊田和重

“化合物半導体 GaAs 単結晶製造装置におけ
る熱・物質移動シミュレーション”

日本機械学会 北海道学生会, 第 40 回学生
員卒業研究発表講演会, (2011)

(3) 木村恵敬, 田部豊, 近久武美

“GaAs 単結晶成長に及ぼす融液流動および
温度分布の影響”

日本機械学会 第 49 回北海道支部講演会,
(2010)

(4) 門脇主将, 田部豊, 近久武美

“GaAs 単結晶製造装置内の熱流動可視化実
験と解析”

日本機械学会 北海道学生会, 第 39 回学生
員卒業研究発表講演会, (2010)

(5) 高桑潤, 菊田和重

“化合物半導体製造装置における結晶欠陥
抑制のための熱・物質移動に関する研究”

日本機械学会 北海道学生会, 第 39 回学生
員卒業研究発表講演会, (2010)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菊田 和重 (KIKUTA KAZUSHIGE)

苫小牧工業高等専門学校・教授

研究者番号: 90214741

(2) 研究分担者

近久 武美 (CHIKAHISA TAKEMI)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号: 00155300