

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 29 日現在

機関番号：50102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560244

研究課題名(和文)化合物半導体結晶成長安定化のためのダイナミクスに関する研究

研究課題名(英文)A study on the dynamics for compound semiconductor crystal growth stabilization

研究代表者

菊田 和重 (KIKUTA, Kazushige)

苫小牧工業高等専門学校・その他部局等・教授

研究者番号：90214741

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：GaAs単結晶成長の安定成長を目的として、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ならびに数値シミュレーションによるモデリングを行った。可視化実験により、融液の量が増減した際の複雑な流動場の挙動を概ね明らかにすることができた。一方、数値シミュレーションによるモデリングでは、自然対流を含む複雑な流れ場のモデリングに加えて、回転による強制対流のモデリングを実施した。その結果、可視化実験による流れ場を良好に再現できるモデルが完成した。本研究により、複雑な流れ場とそれに大きく関わる結晶成長のメカニズムを明らかにすることができた。

研究成果の概要(英文)：This study is aimed at stabilizing the growth of the GaAs single crystal growth. To clarify the complex flow phenomenon of the melt was subjected to modeling by flow observation and numerical simulation of the melt in the crucible that simulates the growth apparatus using a visualization experiment equipment. It was able to clarify the behavior of the complex flow field when the changes of the amount of the melt by visualization experiments. On the other hand, the modeling by numerical simulation, in addition to the modeling of complex flow fields with natural convection was carried modeling of the forced convection due to the rotation. As a result, the model was able to satisfactorily reproduce the flow field by the visualization experiment. In this study, it was possible to clarify the complex flow field and mechanisms of crystal growth associated with it.

研究分野：熱工学

キーワード：結晶成長 化合物半導体 伝熱 対流

1. 研究開始当初の背景

(1) 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、対流を総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 単結晶成長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。

(2) 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 製の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

(1) 化合物半導体 GaAs の単結晶成長は結晶欠陥が生じやすく品質確保や大型化の障害となっている。結晶の成長過程では非常に複雑な熱・物質移動を伴うため、その成長に関わる諸因子を制御するのに困難を極めている。本研究では、結晶成長装置を模擬した熱流動場における可視化実験ならびに流速と温度の定量化、実機による成長実験、数値計算によるモデリングにより成長に関わる諸因子の影響を特定するとともに、それらの制御手法を確立することを目的とする。

(2) 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とそれらの制御を目的とし、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) 結晶の界面形状を支配する諸因子の影響を知るためには、高精度な可視化実験と温度および流速の定量化が必要となるほか、計算の高度なモデリングが必要となる。可視化実験には高出力レーザーを用いることにより、高精度な画像撮影を可能なものとする。

(2) 数値計算のモデリングでは汎用熱流動解析ソフトの FLUENT をベースとして用い、凝固潜熱や過冷却を含むモデルを加えるほか、自然対流や回転による強制対流の計算モデルの修正を行う。

4. 研究成果

(1) 可視化実験は図 1 に示す結晶成長模擬装置を用いて行った。粘性の低い GaAs 融液を水で、粘性の高い B₂O₃ 液を機械油でそれぞれ模擬した。また、融液の量は 2000ml と 1500ml の 2 種類で可視化を行った。

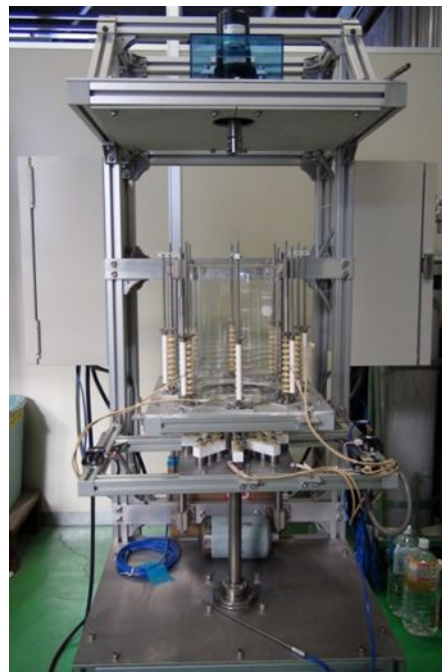


図 1 結晶成長模擬装置

(2) 加熱による自然対流のみの場合、るつぼ側面を上昇し結晶に沿って下降、中央付近

で沈み、底を伝って側面を上昇する循環が見られた。その際、つば上部で旋回する流れも見られた。

つばのみの回転による強制対流の場合、結晶下部に沿って下降し、つばの中央付近で底に沈む流れが見られた。つば側面は回転による影響で手前から奥に向かう流れが生じているが、今回は正面からの撮影のため、可視化は困難になっている。時間の経過とともにその範囲が広がっていくのが確認できた。



図2 自然対流によるつば内の流れ
(左：2000ml, 右：1500ml)

(3) 結晶のみの回転による強制対流の結果を示す。結晶側面で時計回りの旋回流が発生し、それに伴い、つばの底を中央に向かい結晶下部を上昇していく流れが見られた。結晶付近の流れは、つばを回転させた場合と同様に奥から手前への流れが生じているが、可視化できない範囲は狭い。

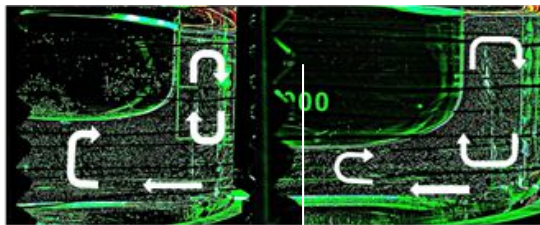


図3 結晶回転時のつば内の流れ
(左：2000ml, 右：1500ml)

(4) 結晶とつばを回転させた際の強制対流の結果を示す。油との境界で旋回し、結晶側面に沿って下降、結晶下部付近で小さな旋回が発生し、中央付近で底に沈む流れが見られた。この旋回は、つばの回転による結晶付近を下降する流れと、結晶の回転による上昇する流れの衝突によって発生していると考えられる。ここでも同様に、つば側面は可視化が難しくなっているが、大きな循環流が観察されたため上昇していると考えられる。

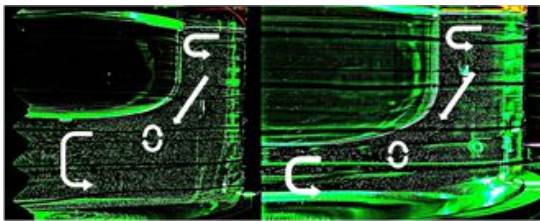


図4 結晶とつばの両方回転時のつば内の流れ
(左：2000ml, 右：1500ml)

(5) 加熱と回転の両方が作用する結果を示す。側面の流れは可視化が困難であり、結晶に沿って下降する流れが見られた。つば側面は図4と同様に上昇する流れがあり、自然対流が加わる分そのスピードも速いと考えられる。また、図4と同様に結晶下部で旋回する流れも見られたが、回転のみのもの比べると小さく、つばの回転による流れに巻き込まれ消えることがある。

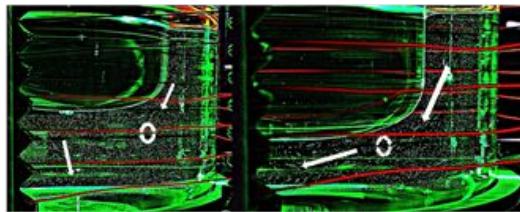


図5 結晶とつばの両方回転時のつば内の流れ
(加熱時)(左：2000ml, 右：1500ml)

(6) 図2より、加熱による自然対流のみの場合、水量の減少に伴い結晶下部の流れの影響が大きくなる。2000mlの場合、つば中央付近の流れが弱く、粒子の動きが少ないのに対し、1500mlの場合はこの部分の粒子の動きが速くなっている。これは、自然対流はつばや結晶、水面との境界に沿って流れが発生するため、水量が多い場合、影響が小さい領域が存在し、水量が減るに従ってその領域が小さくなっていくと考えられる。

(7) 図3~4より、結晶、つばの回転、またその両方による強制対流が作用した場合、水量の減少による流れの方向の変化は少ないが、強制対流の影響が全体に及ぶまでの時間が短くなる。これは、水量が減った分、より少ないエネルギーで全体を循環させることが可能になったためと考えられる。また、図4より、つばと結晶を同時に回転させた場合、流れの方向はつばを回転させた場合のものに近い。これは、つばと結晶の半径の違いによる遠心力の差に起因していると考えられる。結晶下部では、つばの回転による下降する流れと、結晶の回転による上昇する流れがぶつかり、回転する流れが見られる。

(8) 図5より、加熱による自然対流と回転による強制対流の両方が作用した場合、水量が多い方が、強制対流の影響が支配的になっている範囲が広い。これは、水量が多い場合には自然対流よりも強制対流の影響が強くなるためと考えられる。結晶側面はつばの回転と加熱により下降する流れが強くなり、結晶の回転による上昇する流れを弱めているが、結晶下部での回転が残っている。この回転は1か所に留まらず、結晶下部を移動している。

(9) 加熱による自然対流のみの場合、水量が減少すると、対流の影響が水全体にいきわた

るようになり、粒子の動きが速くなる。回転による強制対流のみの場合、水量が減少すると、対流の影響が広がるスピードが速くなる。加熱と回転両方が作用する場合、水量が減少すると、回転の影響で可視化が難しくなる範囲が小さくなる。結晶側面から下部にかけての、上昇する流れと下降する流れが衝突する場所では、小さな渦が発生するが、同じ場所には留まりにくく、他の流れに巻き込まれ消滅したり、再び現れたりする。

これらの結果より、水量の減少に伴い自然対流の影響が大きくなり、相対的に強制対流の影響が小さくなることが明らかになった。また、結晶成長時における固液界面の温度分布を乱す原因として、結晶下部に発生する旋回流の影響や、水量の減少に伴うつぼの回転の影響の変化が考えられる。温度分布を均一にするには全体を常に均一に攪拌させる必要があるが、結晶下部の旋回流がこれを妨害し、つぼの回転の影響が小さくなる。そのため結晶の回転による上昇する流れが強くなるようになり、結晶下部の旋回流が強くなるほか、攪拌する力も弱くなっていくと考えられる。

(10) 汎用熱流動解析ソフトの FLUENT による解析を行い、結晶成長時の融液の量が変化した際のつぼ内の流れおよび温度分布の解析を行った。その結果、可視化実験による結果と良好に対応する解析結果が得られた。

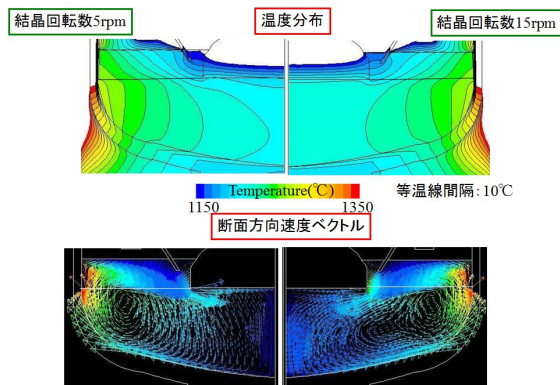


図6 解析結果（結晶成長 50mm 時）

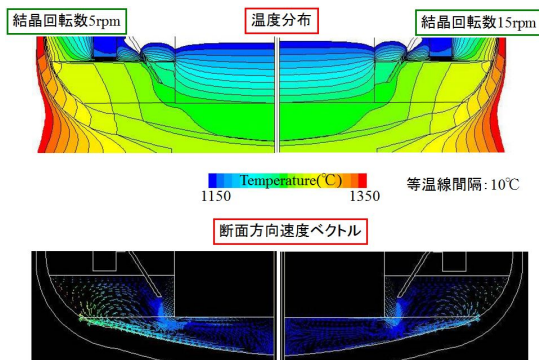


図7 解析結果（結晶成長 300mm 時）

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 1件)

長谷川剛志, 菊田和重

“化合物半導体結晶成長に関する融液の可視化観察”

日本機械学会 北海道学生会, 第43回学生員卒業研究発表講演会,(2014),115-116, 査読無し

〔学会発表〕(計 1件)

長谷川剛志, 菊田和重

“化合物半導体結晶成長に関する融液の可視化観察”

日本機械学会 北海道学生会, 第43回学生員卒業研究発表講演会,(2014)

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

(3)連携研究者

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

(1) 研究協力者

大関 敦 (OOZEKI, Atsushi)

長谷川 剛志 (HASEGAWA, Takeshi)