

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：17501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420151

研究課題名(和文) 高品位結晶育成のための融液流動制御と流れの直接測定

研究課題名(英文) The measurements of Czochralski melt flow under the rotational magnetic field and the electromagnetic field for the high quality crystal growth.

研究代表者

岩本 光生 (Iwamoto, Mitsuo)

大分大学・工学部・准教授

研究者番号：80232718

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：チョクラルスキー法で作成する半導体用シリコン単結晶の高品位化を目的とし、ルツボ内の導電性融液の流れを精密に制御するため、回転磁場印加や、垂直磁場印加で融液に電流をながす電流-磁場印加による流れの制御効果について、モデル実験と数値解析により検討を行った。この結果従来の静磁場印加に対し、回転磁場による磁束密度や磁場回転数の変化は、電流-磁場印加での場磁束密度や印加電流の変化は、数mT～数十mTの弱い磁束密度でも、結晶回転方向の流れを逆転できる強い流れの制御効果があり、またこれによる周方向流れにより、軸方向流れの制御も可能なことがわかった。

研究成果の概要(英文)：Experimental and numerical studies were carried out for Czochralski melt convection under the rotational magnetic field and the electromagnetic field. A silicon single crystal for the semiconductor is mainly manufactured by Czochralski method. The quality of grown crystal is determined by the melt flow, so that the static magnetic field applied the melt to control the melt convection, nowadays. The model experiment using Gallium melt was carried out under the rotational magnetic field and the electromagnetic field. In addition, the numerical computation was carried out to visualize the melt convection under the rotational magnetic field. The rotational magnetic field and the electromagnetic field had an advantage to control the melt convection than the traditional static magnetic field in spite of the weak magnetic field.

研究分野：熱工学

キーワード：対流伝熱 チョクラルスキー法 液体金属 回転磁場 電流-磁場印加 超音波ドップラー法 数値シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

液体金属のような導電性流体の流れは、単結晶の育成、製鉄業における融液の攪拌や不純物分離、液体金属冷却原子炉などで重要である。例えば半導体基板用のシリコン単結晶の育成に用いるチョクラスキー法では、大口径結晶の育成時に静磁場をシリコン融液に印加することにより流れの安定化と制御を行っているが、この方法では融液内や育成した結晶棒に不純物濃度の不均一が生じ、さらに結晶成長に伴う融液の減少に対応した流れの制御が困難である。さらなる生産性向上のための大口径化や、素子の高密度のための結晶品位の向上には新たな融液の流れの制御方法が求められている。

2. 研究の目的

チョクラスキー法による結晶成長で重要となる導電性融液の流れを、融液への回転磁場印加や、融液に垂直磁場を印加した状態で電流を流す電流 - 磁場印加により制御する場合の制御効果を、超音波ドップラー法による流れの直接測定や、数値解析により検討した。これにより回転磁場の磁場回転数や磁束密度、電流 - 磁場印加による磁束密度や印加電流が流れに及ぼす影響を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

3.1 回転磁場印加 Cz 法 (RMCZ 法) 実験

チョクラスキー法 (以下 Cz 法) における回転磁場印加効果についてモデル実験により検討した。図 1 に実験装置を示す。これは Cz 法を模擬しており、恒温槽で加熱された内径 46mm のパイレックスガラス製ルツボ内にガリウム融液 (融点 29.76°C) を深さ 46mm まで満たし、この上面に冷却された模擬結晶棒 (直径 23mm) が 35rpm で回転している。

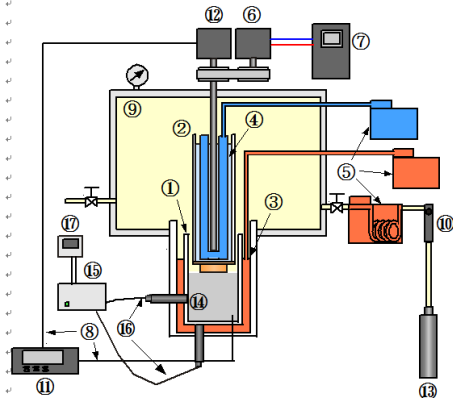


図 1 RMCZ 法実験装置の概略

回転磁場の印加は図 2 で示すように、ルツボの外周に 1 対の希土類磁石を取り付けることにより水平磁場をガリウム融液に印加し、磁石をモーターで回転させることにより回転磁場とした。実験では磁束密度の変化は磁石のサイズや磁石間距離を変える

ことにより行なった。流速の測定は超音波ドップラー法 (UVP 法) を用いた。超音波送受信器であるトランスデューサをルツボ側面に取り付け、融液内に超音波の反射体としてホウ化ジルコニウム粉 (粒径 6-10 μm) を混入した。

流速の測定方法の詳細を図 3 に示す。トランスデューサから発射された 8MHz のパルス波はルツボ内壁で屈折し、細い赤色の矢印方向に進行し、ホウ化ジルコニウム粒子により反射される。この跳ね返ってくるまでの時間から距離を、位相差から速度を求めることで速度分布が得られる。本装置でガリウムを用いた場合の速度分解能は 0.17mm/s である。

実験では回転磁場の磁束密度・磁場回転数を変化させ、このときの流れの変化を UVP 法で測定した。

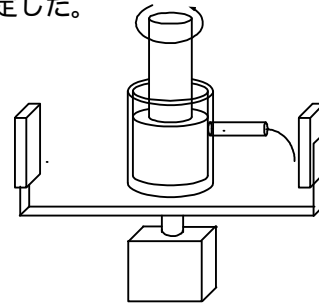


図 2 回転磁場印加方法および流速測定方法

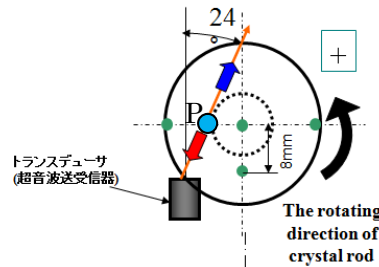


図 3 流速測定部詳細

3.2 電流 - 磁場印加 Cz 法実験 (EMCZ 法)

電流 - 磁場実験装置では、図 4 に示すようにルツボ上下に置かれた 2 つのソレノイドコイルに電流を流すことにより垂直磁場を印加し、かつ融液に直流電流を流し、これらにより融液内にローレンツ力が生じる。実験ではソレノイドコイルにより平均磁束密度 4.0 ~ 8.0mT の垂直磁場を印加し、中心電極からルツボ内周に貼られた円環電極 (金メッキした銅板) に電気を流した。そして磁束密度・印加電流を変化させた場合の流れの変化を UVP 法により測定した。

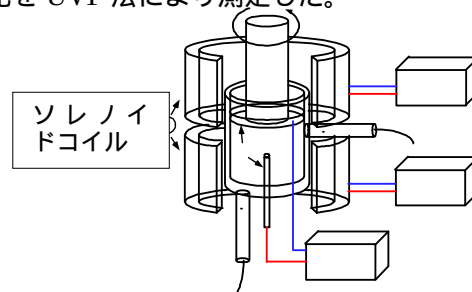


図 4 EMCZ 法実験装置の概略

3.3 数値解析による検討

数値解析により RMCZ 法および EMCZ 法における流れの詳細を検討した。用いた基礎式を下記に示す。

Equation of continuity

$$\frac{1}{r} \frac{\partial(ru)}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial \phi} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \quad (1)$$

Equation of energy

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + u \frac{\partial \theta}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial \theta}{\partial \phi} + w \frac{\partial \theta}{\partial z} = \alpha \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 \theta}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} \right] \quad (2)$$

Equation of momentum

$$\left. \begin{aligned} & \text{R-component} \\ & \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial u}{\partial \phi} + w \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{u v^2}{r} = \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right] + \frac{f_r}{\rho_0} \\ & \phi\text{-component} \\ & \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial v}{\partial \phi} + w \frac{\partial v}{\partial z} - \frac{u v}{r} = \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial p}{\partial \phi} + \nu \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial v}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 v}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right] + \frac{f_\phi}{\rho_0} \\ & z\text{-component} \\ & \frac{\partial w}{\partial t} + u \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{v}{r} \frac{\partial w}{\partial \phi} + w \frac{\partial w}{\partial z} = \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial w}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 w}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right] + \frac{f_z}{\rho_0} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

解析では 3 次元円筒座標系を用い、基礎式として連続の式(1)、エネルギー方程式(2)、運動方程式(3)、電荷保存則を用い、回転磁場や電流 - 磁場印加により式(3)の f で示すローレンツ力が流体に働くものとした。

解析では対流項は 3 次精度の風上差分法 (UTOPIA 法)、拡散項は 4 次精度中心差分法、圧力項は HS-MAC 法を用い陽的に離散化した。計算格子は不等間隔格子を用い、格子数は半径方向 21 × 周方向 36 × 軸方向 41 とした。

境界条件として、結晶棒は一定温度の冷却面で正方向に回転しており、ルツボは一定温度の加熱面で静止、融液上面の気液界面は自由表面で断熱とした。

4. 研究成果

4.1 回転磁場印加実験

融液に回転磁場を印加した場合の流れの変化を測定した。まず無磁場 (磁束密度 B=0mT) における図 3 の P 点 (青丸) の位置における矢印方向の速度成分の時間変化を図 5 に示す。まず上側の図を見ると流れは 196s の周期で変動しており、この 1 周期での時刻 (a) と (c) での速度分布 (図 5 下側、横軸はトランスデューサからの距離、縦軸は速度) を見ると、速度が正方向 (結晶回転方向) から逆方向に逆転していることが分かる。

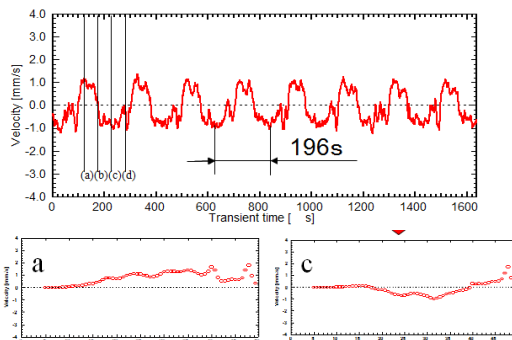


図 5 流速の経時変化と速度分布 (B=0mT)

次にこの系に回転磁場を印加した場合の P 点の速度変化を図 6 に示す。ここでは

B=2.8mT 一定とし、磁場回転数を $N_B=0, -9, -18$ rpm に変化させた。磁場は結晶回転方向を +、逆回転を - と定義した。まず $N_B=0$ rpm では周期 157s となり、図 5 の無磁場に対しわずかに周期が減少している。回転磁場を結晶回転と逆方向の $N_B=-9$ rpm 印加すると、周期的変動が見られなくなり、さらに $N_B=-18$ rpm にすると再び長周期の変動が生じた。これは後の数値解析の節でも述べるが、まず $N_B=0$ rpm での流れは非軸対象で、これが結晶回転方向に周方向に回転している。そして $N_B=-9$ rpm ではこの周方向の流れがほぼ停止し、 $N_B=-18$ rpm では結晶回転方向と逆の磁場回転方向に回転したためである。

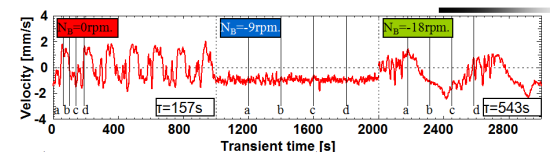


図 6 各磁場回転数での流速の経時変化

次に N_B 一定で磁束密度を変化させた場合の P 点での流速の経時変化を図 7 に示す。このとき B=1 ~ 2mT では周期的な速度変動が見られるが、B=3mT では定常流となっている。このように回転磁場では磁束密度 B や磁場回転数 N_B を変化させることにより周方向の巡回速度や方向を変化させることが可能となる。

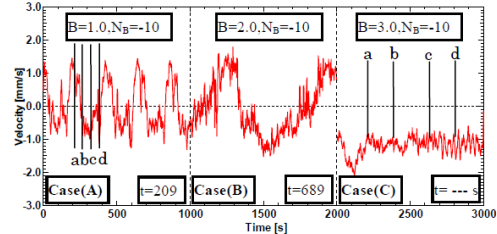


図 7 各磁束密度での流速の経時変化

図 6、7 で示したように B や N_B を変化させることにより流速や流れの方向が変化する。回転磁場で生じるローレンツ力は $B^2 N_B$ に比例し、また速度変動周期は流れがルツボを 1 回転するのに要する時間であるため、その逆数は周方向速度に対応する。図 8 にローレンツ力と速度変動周期の関係を示す。ここで $B^2 N_B=0$ が無磁場であり、それに対し正方向 (結晶回転方向) に回転磁場を印加すると流速は増加し、逆方向に印加すると流速は減少し、-50 ~ -100 で静止し、それ以下では逆方向の流れが増加することが分かった。

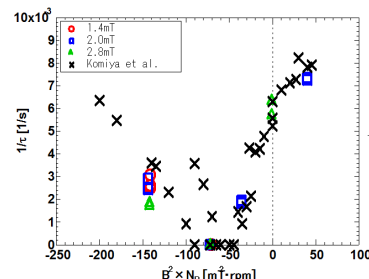


図 8 ローレンツ力と(1/Tc)の関係

このようにローレンツ力を変えると巡回速度が変化する。次にローレンツ力が $B^2N_b = -144$ と一定で、 B や N_b が異なる場合の速度の経時変化を図9に示す。このように同じローレンツ力でも周期や流れが少し異なる。これは回転磁場によるローレンツ力が一定でも、結晶回転に起因する流れにより生じる誘導電流が、磁場の強さにより変化するためではないかと考えられる。

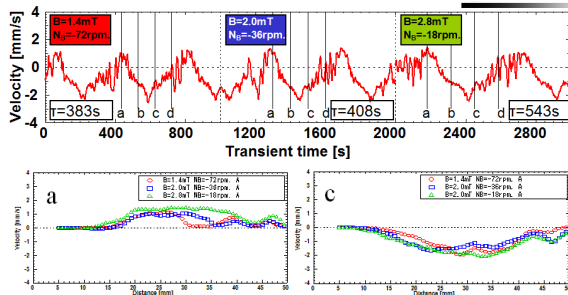


図9 B および N_b が異なり $B^2N_b = -144$ 一定の場合の流れの経時変化と速度分布

4.2 電流 - 磁場印加実験

融液に垂直磁場を印加した状態で融液に電流を流す EMCZ 法による流れの制御効果を実験的に検討した。図10に垂直磁場の磁束密度 B と融液への印加電流 I を変化した各場合の流速の経時変化を示す。ここでローレンツ力は結晶回転と逆方向に印加するように設定した。ここで、(a)では周期370sの速度変動がみられ、(b)で460s、(c)で650sと周期が長くなっている。これはローレンツ力が結晶棒回転と反対方向に印加されているため、周方向回転速度が抑制され、1回転に要する時間が長くなるためだと考えられる。

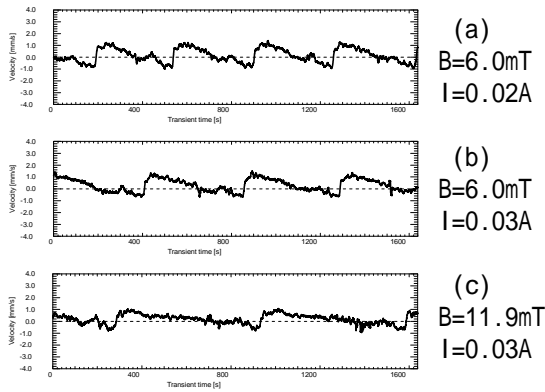


図10 EMCZ 法における流速の経時変化

EMCZ法で生じるローレンツ力は $I \times B$ で示される。このため、ローレンツ力と速度変動周期の逆数の関係を図11に示す。EMCZ法の場合も、先のRMCZ法と同様に、磁束密度や印加電流を増していくと結晶方向回転の流速が減少し、 $B \times I = 0.4 \sim 1.4$ でほぼ静止し、それ以上ではローレンツ力印加方向の流れに逆転した。このように EMCZ 法でも、正方向から逆方向までの流れの制御が可能となることが分かった。

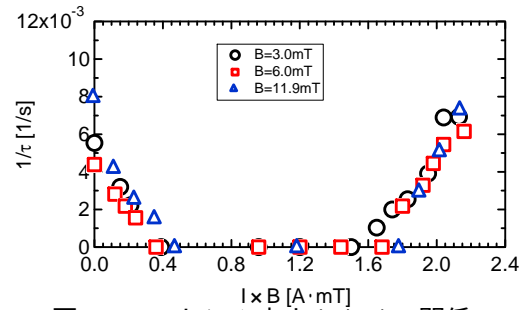
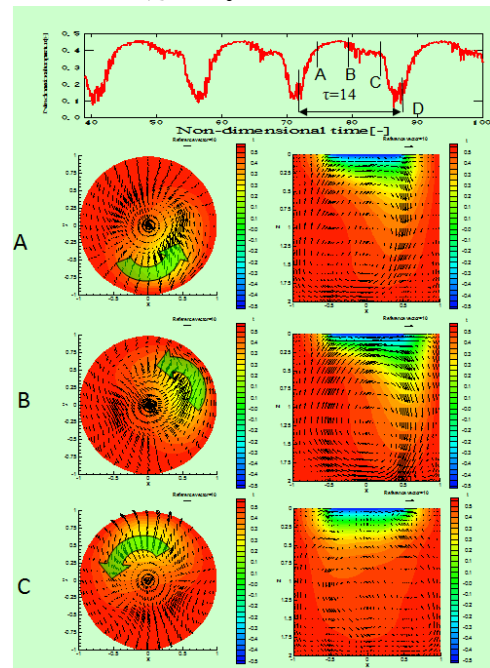


図11 ローレンツ力と $(1/\tau)$ の関係

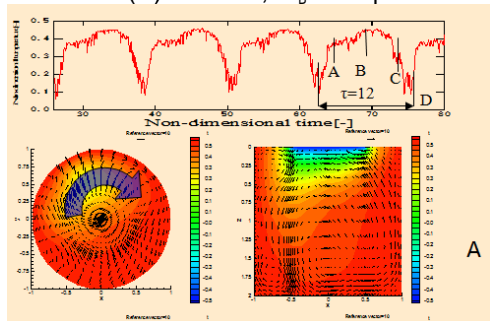
4.3 数値解析結果

(1) RMCZ 法における流れ解析

$B=1.0\text{mT}$ 、 $N_b=-10\text{rpm}$ での融液内の無次元平均温度の時間変化と、各時刻における水平断面と垂直断面の速度ベクトルと温度分布の数値解析結果を図12(i)に示す。ここで温度は無次元時間 $\tau=14$ で振動しており、この1周期の時刻 A~C での速度を見ると、中心を横切る非軸対象な流れが周方向に回転し、これにより先で述べた周期的な速度変動が生じていることが分かる。また磁束密度を $B=3.0\text{mT}$ に増やした図12(ii)では周期にあまり違いが見られないが、ローレンツ力が3倍に増加するため、周方向の流れの向きが逆転していることが分かる。



(i) $B=1.0\text{mT}$ 、 $N_b=-10\text{rpm}$.

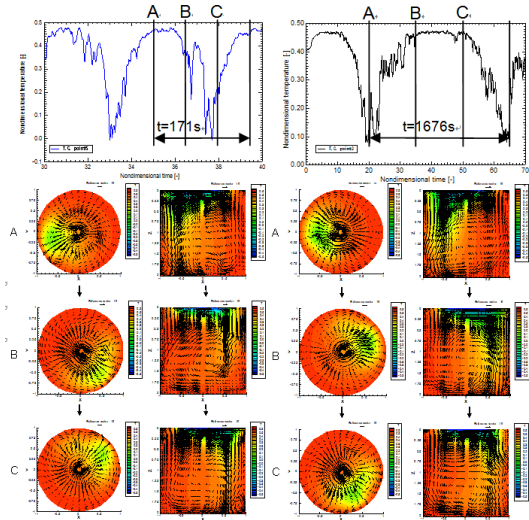


(ii) $B=3.0\text{mT}$ 、 $N_b=-10\text{rpm}$.

図12 温度の過渡応答および速度・温度分布

(2)EMCZ 法における流れ解析

B=3mT, I=0.05A と B=11.9mT, I=0.18A での、温度の過渡応答と各時刻での速度ベクトルと温度分布の数値解析結果を図 13 に示す。ここで縦断面を見ると、上部中心付近に大きな流れが発生しているが、これは中心電極付近の電流密度が大きい為、大きなローレンツ力が生じることが原因であり、また B と I を増加すると結晶回転流れが抑制され、周期が長くなった。



(i) B=3mT, I=0.05A (ii) B=11.9mT, I=0.18A
 図 13 平均温度の過渡応答と各時刻での速度ベクトルおよび温度分布

図 14 に $I \times B$ で示されるローレンツ力と、平均周方向速度の関係を示す。ここでローレンツ力を増していくと、+方向の結晶回転速度は減少し、さらに $I \times B$ を増すと、ローレンツ力印加方向の - 方向の流れに逆転するという実験と同様な傾向が得られた。

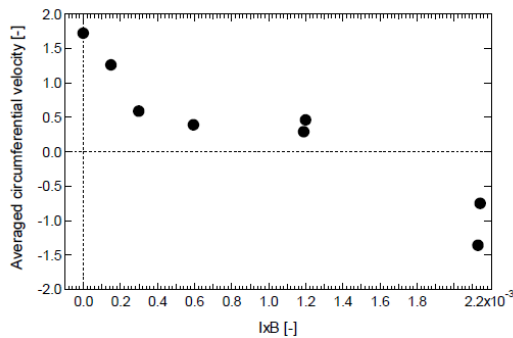


図 14 ローレンツ力と平均周方向速度の関係

まとめ

回転磁場および電流 - 磁場印加による Cz 法融液流れの制御効果を実験および数値解析的により検討した。この結果、数十 mT の弱い磁束密度でも、磁場回転や電流印加により、周方向流れを正・逆方向の広い領域で制御が可能であり、またこの旋回流により生じる遠心力により軸方向流れの制御も可能ながことが分かった。

5 . 主な発表論文等

(雑誌論文)(計0件)

(学会発表)(計16件)

Shinji Hayashida, Daichi Ozaki, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito, Masato Akamatsu and Hiroyuki Ozoe. Numerical study of Czochralski melt flow in the electric conductive crucible under the rotational magnetic field., The 29th International Symposium on Chemical Engineering, PG-05 2016年12月2-3日,シーガイアコンベンションセンター(宮崎県・宮崎市)

Daichi Ozaki, Shinji Hayashida, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito, Masato Akamatsu and Hiroyuki Ozoe

UVP measurement of the Czochralski melt flow in the electric conductive crucible under the rotational magnetic field.

The 29th International Symposium on Chemical Engineering, PG-01 2016年12月2-3日,シーガイアコンベンションセンター(宮崎県・宮崎市)

尾崎大地, 林田真治, 岩本光生, 齋藤晋一

導電性ルツボにおける RMCZ 法融液対流の UVP 法による測定,

化学工学会九州支部 第 27 回九州地区若手ケミカルエンジニア討論会 p.18, 2016年7月22-23日, 休暇村志賀島(福岡県・福岡市)

林田真治, 尾崎大地, 岩本光生, 齋藤晋一

導電性ルツボにおける RMCZ 法融液対流の数値解析的研究,

化学工学会九州支部 第 27 回九州地区若手ケミカルエンジニア討論会 p.19, 2016年7月22-23日, 休暇村志賀島(福岡県・福岡市)

Megumi Asahina, Miyuki Honda, Ryotaro Tone, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito, Masato Akamatsu and Hiroyuki Ozoe

UVP measurement of the non-axisymmetric Czochralski melt flow under the electromagnetic field.

The 28th International Symposium on Chemical Engineering, OE-01 (2015年12月4-6日) 済州島(大韓民国)

Miyuki Honda, Megumi Asahina, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito, Masato Akamatsu, and Hiroyuki Ozoe

Numerical study of Czochralski melt flow under the rotational magnetic field and the electromagnetic field.

The 28th International Symposium on Chemical Engineering, OE-17 (2015年12月4-6日) 済州島(大韓民国)

朝比奈愛美, 利根凌太郎, 岩本光生, 齋藤晋一

MCZ 法流動におよぼす電流・磁場の影響の測定

化学工学会九州支部 第 26 回九州地区若手ケミカルエンジニア討論会, No.27(2015) pp.42, 2015 年 7 月 17-18 日, 伊万里グランドホテル (佐賀県・伊万里市)

本田美由紀, 朝比奈愛美, 岩本光生, 齋藤晋一

RMCZ 法における流れと温度分布の数値解析的研究

化学工学会九州支部 第 26 回九州地区若手ケミカルエンジニア討論会, No.28(2015) pp.43

2015 年 7 月 17-18 日, 伊万里グランドホテル (佐賀県・伊万里市)

Kenichi Yoshikane, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito, Masato Akamatsu, Hiroyuki Ozoe.

Lorentz force distribution in the Czochralski melt flow under the Electromagnetic field, The 27th International Symposium on Chemical Engineering No.OC-03

2014 年 12 月 5-7 日クアラルンプール (マレーシア)

Megumi Asahina, Miyuki Honda, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito Masato, Akamatsu, Hiroyuki Ozoe.

Study on UVP measurement of transient CZ melt flow under the rotational magnetic field, The 27th International Symposium on Chemical Engineering, No.PC-17

2014 年 12 月 5-7 日クアラルンプール (マレーシア)

Miyuki Honda, Megumi Asahina, Mitsuo Iwamoto, Shinichi Saito, Masato Akamatsu, Hiroyuki Ozoe

The effect of Lorentz force in the CZ melt flow under the rotational magnetic field The 27th International Symposium on Chemical Engineering, No.PC-18

2014 年 12 月 5-7 日クアラルンプール (マレーシア)

朝比奈 愛美, 本田 美由紀, 齋藤 晋一, 岩本 光生

UVP法による回転磁場下における CZ法融液流動の過渡変化の測定

日本機械学会 九州支部大分講演会 No.1C1 2014 年 9 月 20 日, ホルトホール大分 (大分県・大分市)

本田 美由紀, 吉兼 憲一, 阿部 雄太, 齋藤 晋一, 岩本 光生

回転磁場および電流-磁場印加が CZ法融液流れの過渡変化に及ぼす影響の数値解析

2014 年 9 月 20 日, ホルトホール大分 (大分県・大分市)

本田美由紀, 吉兼憲一, 阿部雄太, 齋藤 晋一, 岩本光生

回転磁場下における CZ 法融液流れの過渡変化に関する数値解析, 第 25 回九州地区若

手ケミカルエンジニア討論会 No.47, 2014 年 7 月 25-26 日, ANA ホリデーインリゾート 宮崎 (宮崎県・宮崎市)

朝比奈愛美, 本田美由紀, 齋藤晋一, 岩本光生

回転磁場印加 CZ 法における磁束密度や磁場回転数が融液流内流れ構造の過渡変化に及ぼす影響の実験的検討, 第 25 回九州地区若手ケミカルエンジニア討論会 No.46, 2014 年 7 月 25-26 日, ANA ホリデーインリゾート 宮崎 (宮崎県・宮崎市)

朝比奈愛美, 佐藤大樹, 齋藤晋一, 岩本光生

UVP法による回転磁場印加チヨクラルスキー法融液内速度分布の測定, 第 42 回可視化情報シンポジウム, D106, 2014 年 7 月 21-22 日, 工学院大学新宿キャンパス (東京都・新宿区)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.en.oita-u.ac.jp/miwaken/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩本 光生 (IWAMOTO, Mitsuo)

大分大学・工学部・准教授

研究者番号: 80232718

(2) 研究分担者: なし