

343 FZ法を用いた Si/Ge 結晶成長時の三次元マランゴニ対流現象に関する解析

Numerical simulation on the 3-dimensional Marangoni convection during crystal growth of Si/Ge by using FZ technique

○正 岡野泰則 (静大工) 水口 尚 (静大院)

Yasunori OKANO, Hisashi MINAKUCHI, Department of Materials Science & Chemical Engineering, Shizuoka University, Johoku3-5-1, Hamamatsu, Shizuoka, 432-8561

1. 緒言

シリコンとゲルマニウムの合金(シリコン-ゲルマニウム:以降 Si/Ge と表記)は従来のシリコン製のチップに比べ大幅な消費電力の低減が可能のため、現在のエレクトロニクス製品の更なる小型化を可能にする。これに加え、ガリウム砒素等に比べ極めて信頼性が高く、しかも安価な将来のエレクトロニクス用材料として期待されている。現在 Si/Ge はシリコン基板上に薄膜として成長させ使用しているが、基板に Si/Ge そのものを使用すれば格子不整合の無い、即ち歪みの無い高品質な Si/Ge 薄膜の成長が可能となり、今後の高度 IT 社会に適合した高機能なマイクロコミュニケーション機器の開発が一気に加速することが予測される。そのためには高品質な Si/Ge パルク単結晶の作製が極めて必須となる。しかしシリコンとゲルマニウムの比重差が極めて大きい($\rho_{Ge}: 5.51\text{g/cm}^3 > \rho_{Si}: 2.52\text{g/cm}^3$) 通常の条件で融液から結晶を作製すると重力偏析のため、均一でかつ大型の結晶を作製することが困難となる。さらに高ゲルマニウム濃度領域で、シリコンの偏析係数が5と大きいことも均一結晶の育成を困難にしている¹⁾。

そこで演者らは重力偏析の生じない微小重力環境下において Floating Zone (以降 FZ)法を用い、Si/Ge を作製することを提案している。FZ法を用いることにより、るつぼからの不純物混入の無い高品質な結晶が可能になるものの、通常の重力場においては大型の結晶を作製することは困難である。しかし微小重力下においては大量の融液からなる液柱の保持が可能であるため、大型結晶作製が可能となる。その一方で、自由界面長さの増大に伴い、マランゴニ数が増大し、界面張力勾配に起因するマランゴニ対流の影響が顕著となることが予測される。特に本系においては従来の温度差に起因するマランゴニ対流に加え、濃度に起因するマランゴニ対流をも考慮する必要がある。これはシリコンの偏析係数が極めて大きい($\sigma_{Si} > \sigma_{Ge}$)ため、育成結晶内に大量のシリコンが取り込まれ、結晶成長界面付近ではゲルマニウム・リッチとなり、濃度勾配による界面張力勾配($\sigma_{Si} > \sigma_{Ge}$)が発生するためである。マランゴニ対流は非定常性、三次元性を呈しやすく、その結果として結晶内に濃度の不均一性を導入することが考えられる。そのため、高品質な結晶を育成するためには、結晶育成中に生じるマランゴニ対流の理解とその制御手法の確立が必須である。FZ内に生じる三次元マランゴニ対流現象の挙動に関しては既に多くの数値解析が報告されているが、それらは流体力学的な観点に基づく、ハーフ・ゾーンを対象としたものがほとんどであり⁽²⁾⁻⁽⁶⁾、実際の結晶成長の観点から行われた解析は極めて少ない⁽⁷⁾。本研究では FZ法を用いた Si/Ge の実際の結晶成長を念頭におき、実験条件に近いフル・ゾーンモデルにおける数値解析を行った。

2. 数値解析

Fig.1 に解析モデル図を示す。同一径の固体円柱(上部:原料、下部:育成結晶)に挟まれた Si/Ge 融液を外部より以

下で表される温度分布で加熱した場合を想定した。

$$T_a(z) = T_C + (T_H - T_C) \exp\left\{-\left(z - \frac{L}{2}\right)^2 / 0.04\right\} \quad (1)$$

融液は非圧縮性ニュートン流体とし、重力による液柱の形状変化は無視した。また固液界面形状は平坦とし、潜熱の影響は無視した。回転の影響を論じる際は、実際の結晶成長と同様、上下固体が互いに逆方向に回転を与えた。解析基礎式には三次元円筒座標表示の連続式、Navier-Stokes 式、エネルギー方程式、Si の拡散方程式を用いた。境界条件を以下に示す。

固液界面上 ($Z=0$ and 1):

$$\mathbf{u} = \mathbf{w} = 0, T = T_C, \quad \mathbf{v} = -\mathbf{v}_p \quad (2)$$

$$(c - c_f) \mathbf{v}_p = -D \frac{\partial c}{\partial z} \quad (\text{upper}), \quad (3)$$

$$c(1 - k_0) \mathbf{v}_p = D \frac{\partial c}{\partial z} \quad (\text{lower}) \quad (4)$$

自由界面上 ($R=1$):

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial r} = h(T - T_a(z)) + \epsilon \sigma (T^4 - T_a^4(z)) \quad (5)$$

$$\mu \left\{ r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\mathbf{w}}{r} \right) \right\} \frac{\partial \mathbf{w}}{\partial r} = \frac{1}{r} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right) \frac{\partial T}{\partial \theta} + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial c} \right) \frac{\partial c}{\partial \theta} \quad (6)$$

$$\mu \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial r} = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right) \frac{\partial T}{\partial z} + \left(\frac{\partial \sigma}{\partial c} \right) \frac{\partial c}{\partial z} \quad (7)$$

ここで(6)、(7)式はマランゴニ対流の影響を表している。基礎式、及び境界条件を無次元化した後、スタaggerド格子上に有限差分法で離散化し HSMAC 法を用い解析した。物性として $Pr=7.71 \times 10^{-3}$, $Sc=22.5$ を用い、アスペクト比を1、 $V_p=1.3888 \times 10^{-7}$ m/s とした。また初期値には熱伝導のみの場合の解析結果を用いた。

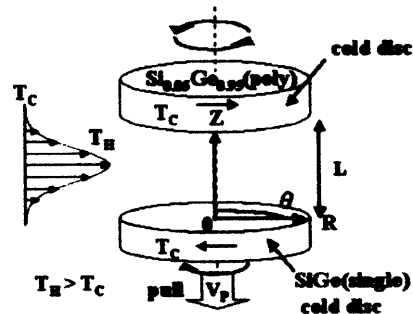


Fig.1 Schematic configuration for the analysis

3. 結果及び考察

(1) 濃度差マランゴニ対流の影響

Fig. 2 に濃度差マランゴニ対流のみが存在すると仮定した場合の解析結果を示す。自由界面上を下から上へ流れる対流が発生するが、その強さは弱く、ほとんど軸対称流であった。しかも時間経過に伴い自由界面上の濃度分布が均一化するため、対流強度は時間と共に更に弱くなった。

(2) 温度差マランゴニ対流の影響

Fig. 3 に温度差マランゴニ対流のみが存在 ($Ma_T=1 \times 10^4$) する場合の、温度分布(左)、速度分布(右) (a)、濃度分布(b)の垂直面断面図、および温度分布(c)、濃度分布(d)の水平面断面図を示す。プラントル数が小さいことと経時時間が短いことにより、速度分布及び温度分布はほぼ上下対称の二次元構造を呈した。しかしながら、濃度分布は三次元構造を示した。これはシュミット数が大きいこと、速度分布の僅かな乱れによって、濃度分布が大きく乱され、三次元構造を呈することを示している。Fig. 4 に温度差マランゴニ対流と濃度差マランゴニ対流が共存するときの対流速の経時変化を示した。温度差マランゴニ対流により誘起される速度は濃度差マランゴニ対流により誘起される対流に比べ大きく、しかもその向きが逆であるため、濃度差マランゴニ対流の影響はほとんど表れず、濃度差マランゴニ対流を考慮しない場合の挙動とほぼ一致した。Fig. 5 に等速度面の経時変化を示した。最初上下の大きさの等しい二次元軸対称であった流れが時間経過とともに、4回対称の流れへと変化し、更に時間が経過するにつれ乱れが生じてきた。

(3) 結晶回転の影響

Fig. 5 に示すような非軸対称な流れは育成結晶内の濃度分布に悪影響を及ぼすことが知られている。そこで濃度の均一化を目的に上下の固体円柱に 5rpm の互いに逆方向の回転を印加した解析を行った。Fig. 6 に結晶育成面上のシリコンの濃度分布を示す。結晶が静止しているとき(Fig. 6(a))は完全な非軸対称な濃度分布であったのに対し、結晶回転を印加することにより分布は軸対称に近くなった。しかし完全な軸対称とはならず、濃度分布は楕円形を呈した。軸対称の濃度分布を得るためにはより高回転の印加が必要と思われる。

4. 結言

FZ法を用い、高品質な Si/Ge を作製するための基礎的知見を得る目的で、結晶育成中の融液内に発生するマランゴニ対流に関する数値解析を行い、以下の結果を得た。

- ・濃度差マランゴニ対流の影響はさほど小さくなく、本計算条件下においては無視可能である。
- ・温度差マランゴニ対流により生じる流れは最初軸対称二次元流であるが、時間経過に伴い、三次元非軸対称、非定常性を呈す。
- ・結晶が静止しているとき、流れがほぼ軸対称であっても、育成結晶上の濃度分布は非軸対称になりうる。
- ・上下の結晶を互いに逆方向に回転させることにより濃度分布は軸対称に近づく。

5. 引用文献

- [1] Campbell, T. A. et al., J. Crystal Growth, 226 (2001) 231.
- [2] Lappa, M. et al., Int. J. Heat Mass Trans., 44 (2001) 1983.
- [3] Shevtsova, V.M., et al., Phys. Fluids, 13 (2001) 2851.
- [4] Zheng, Z. et al., Int. J. Heat Mass Trans., 44 (2001) 3765.
- [5] Nienhuser Ch., and H.C. Kuhlmann, J. Fluid Mech., 458 (2002) 35.
- [6] Imaishi, N. et al., J. Crystal Growth, 230 (2001) 164.
- [7] Lan, C.W. et al., J. Crystal Growth, 230 (2001) 172.

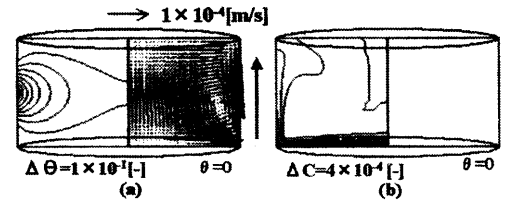


Fig.2 The numerical results at $Ma_T=0$ and $Ma_c=1 \times 10^5$ ($t=100\text{sec}$). In this figure, (a) shows the temperature (left half) and flow (right half) fields in the vertical plane, (b) shows the concentration field of silicon in the vertical plane.

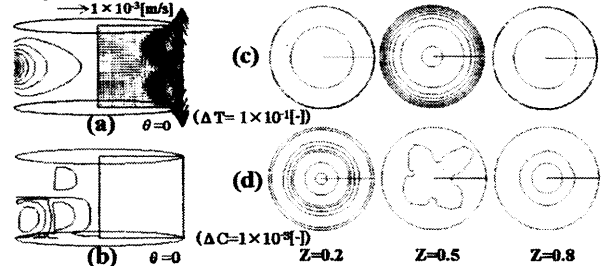


Fig.3 The numerical results at $Ma_T=1 \times 10^4$ and $Ma_c=0$ ($t=60\text{sec}$). In this figure, (a) shows the temperature (left half) and flow (right half) fields in the vertical plane, (b) shows the concentration field of silicon in the vertical plane, (c) and (d) show the temperature and concentration fields in the horizontal planes, respectively.

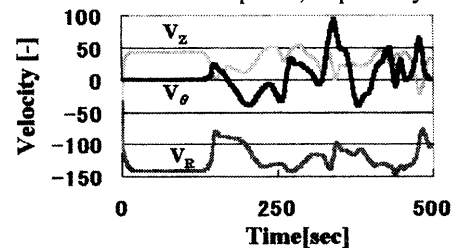


Fig.4 The time dependency of velocity when $Ma_T=5 \times 10^3$ and $Ma_c=1 \times 10^4$.

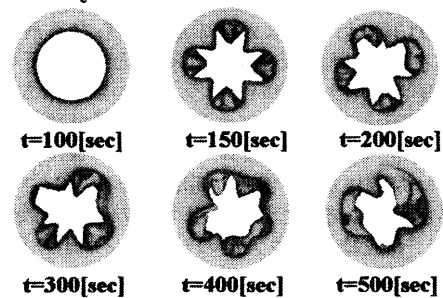


Fig.5 The time-dependency of the iso-velocity face when $Ma_T=5 \times 10^3$ and $Ma_c=1 \times 10^4$.

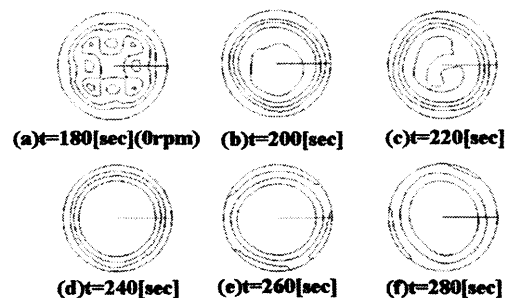


Fig.6 Effect of upper and lower disk rotation on the silicon concentration distribution along the growth interface when $Ma_T=5 \times 10^3$ and $Ma_c=1 \times 10^4$ ($\Delta C=1 \times 10^{-3}$)