

## 609 フローティング・ゾーン融液内温度差・濃度差マランゴニ対流現象

## に関する数値解析

## Numerical simulation of thermal and solutal Marangoni convective phenomena in a floating zone system

○正 岡野 泰則 (静大創科院) 平田 邦紘 (静大院)  
杉浦 裕樹 (静大工) 水口 尚 (静大工)

Yasunori OKANO, Kunihiko HIRATA, Hiroki SUGIURA, Hisashi MINAKUCHI  
Shizuoka University, Johoku3-5-1, Hamamatsu, Shizuoka, 432-8561

## 1. 緒言

フローティング・ゾーン (FZ: Floating zone) 法は、半導体および酸化物バルク単結晶作製に広く使用されている方法であり、るつぼを使わないため、高融点物質の作製に適しており、またるつぼからの汚染が生じないため、不純物混入の無い高品質な物質の作製に適している。しかしながら、るつぼを使わず原料の一部を育成結晶と原料部との間に溶融し浮遊させた状態に保つため、極めて小さな領域に大きな温度勾配を付加させなくてはならない。そのためチョクラルスキー法等の他の結晶育成法では通常問題とならない表面張力勾配に起因する流れ、即ちマランゴニ対流の影響が融液内で顕著となり、育成結晶内の濃度分布や固液界面形状に重要な影響を及ぼすこと広く知られている<sup>1)</sup>。そのため、FZ内マランゴニ対流現象に関する研究が数多く行われている<sup>2)</sup>が、その多くは温度差マランゴニ対流現象に関するものである。これは通常のドーピング剤の添加程度では通常表面張力の変化は無視できるものと考えることができ、ことに起因する。

しかし、シリコンとゲルマニウムの合金 (シリコン-ゲルマニウム: Si/Ge) を FZ 法で作製する場合などにおいては、原料棒と育成結晶の組成が大きな偏析係数のために異なるため、融液内に大きな濃度勾配が生じ、その結果として従来の温度差マランゴニ対流に加え、濃度差に起因するマランゴニ対流が発生し、育成結晶品質に影響を及ぼすことが実験的に示唆されている<sup>3)</sup>。濃度差マランゴニ対流は化学工学分野においては界面攪乱、界面汚染現象の要因として古くから知られていたが<sup>4)</sup>、FZ 結晶成長においてその影響について着目した解析例は極めて少ない。唯一 Witkowski & Walker による報告<sup>5)</sup>があるのみである。しかし、彼らは濃度差マランゴニについてのみを解析対象としており、濃度差マランゴニ対流と温度差マランゴニ対流との共存効果については議論されていない。

一方、著者らは3次元円筒モデルを用い、濃度差・温度差、両マランゴニ対流の共存効果を数値解析により検討した<sup>6)</sup>。その結果、濃度差マランゴニ対流により誘起される流速は温度差マランゴニ対流により誘起される対流に比べて遅いものの、その両者が共存すると濃度差マランゴニの影響は極めて顕著であり、対流モードを変化させるまでであることを示した。しかしながら本解析では平坦な固液界面を有する融液部のみを解析対象としたため、Campbell らの実験結果<sup>3)</sup>を説明するには至らなかった。そこで本解析では、実際の実験結果との比較を行うべく、より実現に近い解析モデルを使用し、結晶の異常成長発生に及ぼす濃度差・温度差マランゴニ対流現象の共存効果に関し、数値解析を行うことを目的とする。

## 2. 数値解析

Fig. 1 に解析モデル図を示す。解析領域は、供給部、溶融部、結晶部の3領域であり外部より以下で表される温度分布で加熱し、中央部に溶融部を形成させる。

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

溶融部は非圧縮性ニュートン流体とした。無重力場を仮定し、自然対流の影響は無視し、自由界面形状は平坦であるとした。解析基礎式には融液内は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、結晶内には熱伝導方程式を用いた。マランゴニ対流の影響は自由界面上に以下の境界条件を付加することにより考慮した。

$$\mu \left\{ r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{w}{r} \right) \right\} \frac{\partial w}{\partial r} = \frac{1}{r} \left( \frac{\partial \sigma}{\partial T} \right) \frac{\partial T}{\partial \theta} + \frac{1}{r} \left( \frac{\partial \sigma}{\partial c} \right) \frac{\partial c}{\partial \theta} \quad (2)$$

$$\mu \frac{\partial v}{\partial r} = \left( \frac{\partial \sigma}{\partial T} \right) \frac{\partial T}{\partial z} + \left( \frac{\partial \sigma}{\partial c} \right) \frac{\partial c}{\partial z} \quad (3)$$

本解析においては固液界面の位置および形状を事前に設定することは不可能で、これらは計算の結果として決定される。本解析においては固液界面は融点と一致すると仮定し、固液間における熱バランス式を固液界面上の境界条件に付加することにより位置および形状を決定した。

また湾曲した固液界面形状を取り扱うために基礎式並びに境界条件を一般座標変換した。以上で得られた基礎式及び境界条件を無次元化した後、スタッガード格子上に有限体積法で離散化し SIMPLE 法を用い解析した。ここで対流項においては QUICK スキームを使用した。融液物性として  $Pr=1.0 \times 10^{-2}$ ,  $Sc=29.4$  を用いた。

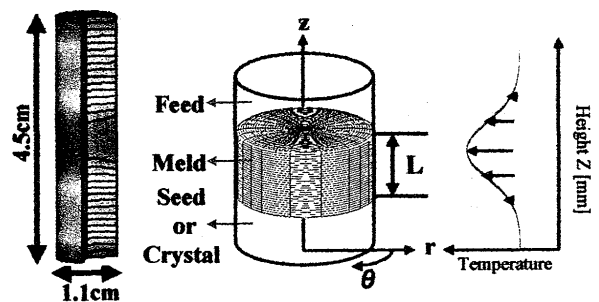


Fig.1 Schematic configuration for the analysis.

### 3. 結果及び考察

#### (1) 温度差・濃度差マランゴニ対流の影響

Fig.2は熔融部における(a)温度差  $Ma$  対流のみと、(b)濃度差  $Ma$  対流のみの場合の濃度分布(左)と速度ベクトル(右)を示している。温度差  $Ma$  対流は自由界面上で上下に対称な渦が生じ、中央部から上下に向かった流れを生じている。これは熔融部の中央をヒーターで加熱したことによって生じた  $z$  軸方向の温度差による対流が生じたことによる。また、濃度差  $Ma$  対流は自由界面上で下部から上部に向かった流れが生じている。これはシリコンが多く含まれている供給部側からの溶け出しにより熔融部の上下に濃度差が生じ、表面張力値の大きいシリコンをより多く含む上部に向かい、自由界面が引かれることによる。

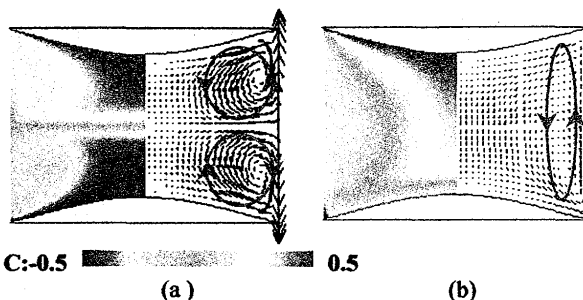


Fig.2 The concentration field (left half) and velocity field (right half) when (a)  $Ma_T=5000, Ma_C=0$  and (b)  $Ma_T=0, Ma_C=500$ .

Fig.3 に固液界面形状に及ぼす温度差マランゴニ数の影響を示す。マランゴニ数の増大に伴い、自由界面付近の溶融が促進され、固液界面形状は融液に対し凸型を呈す。これはマランゴニ数の増大に伴い、融液中心部から結晶側への伝熱が促進されたため、結晶の溶融が促進されたためである。

#### (2) 温度差・濃度差マランゴニ対流共存の影響

Fig.4 に温度差・濃度差マランゴニ対流共存時の濃度分布(左)と速度ベクトル(右)を示す。また、Fig.5に各種温度差マランゴニ数と濃度差マランゴニ数における自由界面上の速度分布を示した。両マランゴニ対流が共存する場合、濃度差マランゴニ対流により、温度差マランゴニ対流により生じた渦が下部(結晶育成部)では打ち消され、上部(原料供給部)では促進されていることがわかる。Fig.4(a)では非対称な上下の対流の他に下部の固液界面端に小さな渦が発生していることがわかる。また、濃度差マランゴニ数を増加させた Fig.4 (b)では下部の渦がほぼ消失していることがわかる。この結果、結晶育成部近傍における自由界面上にゲルマニウム濃度の大きい領域が現れている。シリコンに比べ、ゲルマニウムは融点が著しく低いいため、この部分で結晶の異常成長が発生するものと容易に考えられ、この結果はCampbellらの実験結果<sup>3)</sup>を良好に説明しうるものである。

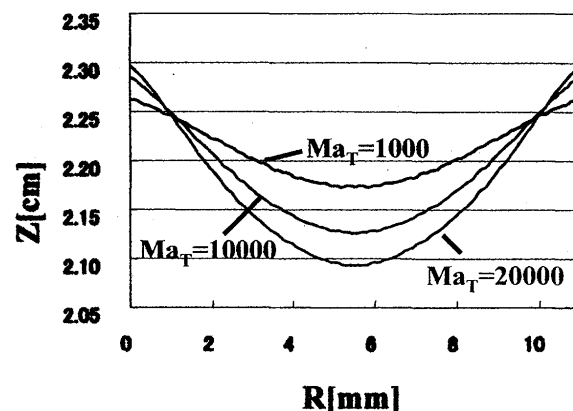


Fig.3 Effect of thermal Marangoni convection on the solid/liquid interface shape.

### 4. 結言

シリコンとゲルマニウムの合金をフローティング・ゾーン法で作製する際、融液内で発生する温度差および濃度差マランゴニ対流の共存効果に関し数値解析を用い検討を行った。濃度差マランゴニ対流の存在により、結晶成長付近の対流が抑制され、低融点物質であるゲルマニウムを多く含む部分が自由界面上に発現することが分かった。この結果は既往の実験における異常成長の結果を定性的に説明しうるものである。

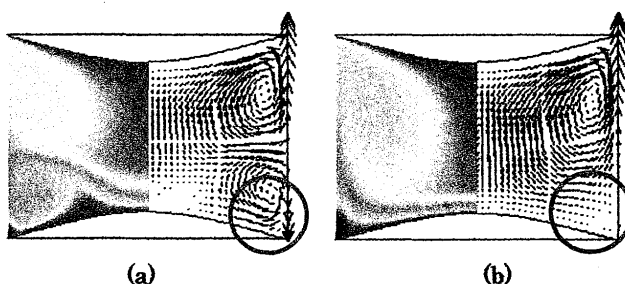


Fig.4 Effect of co-existence effect on concentration field (left half) and velocity field (right half) when (a)  $Ma_T=5000, Ma_C=200$  and (b)  $Ma_T=5000, Ma_C=300$ .

### 5. 引用文献

- [1] H.C. Kuhlmann, "Thermocapillary convection in models of crystal growth", Springer Tract in Modern Physics Vol. 152, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1999.
- [2] M. Lappa, "Fluid, Materials and Microgravity: Numerical Technique and Insights into Physics", Elsevier 2004.
- [3] T. A. Campbell et al., J. Crystal Growth, 226 (2001) 231.
- [4] 平田、岡野、化学工学, 48 (1984) 236.
- [5] L.M. Witkowski and J.S. Walker, Phys Fluid, 14 (2002) 2647.
- [6] H. Minakuchi, Y. Okano and S. Dost, J. Crystal Growth, 266 (2004) 140.

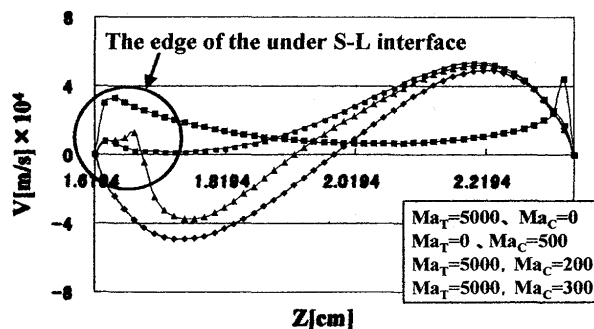


Fig.5 Velocity distribution along free surface.