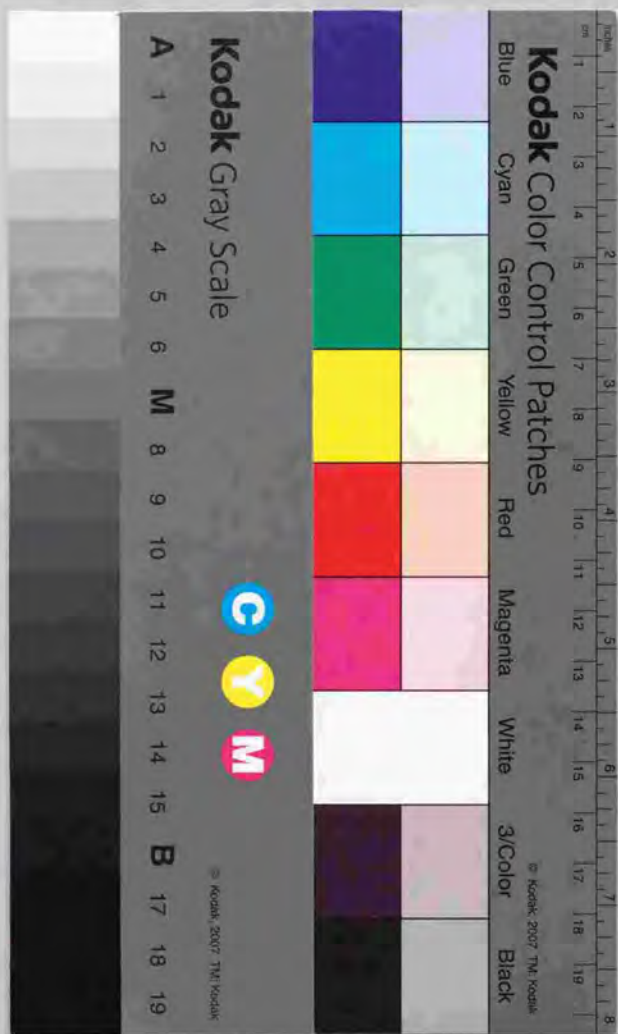


シリコン単結晶連続引上法における  
ドーパントおよび酸素の濃度制御法開発に関する研究

小 野 直 樹



シリコン単結晶連続引上法における  
ドーパントおよび酸素の濃度制御法開発に関する研究

小 野 直 樹

## 目次

### 第1章 序章

1-1 序	1
1-2 従来のチョクタルスキー法の問題点	1
1-3 開発の目標について	4
1-4 開発する連続引き上げ法の特徴	5
1-5 本論文の内容	8
1-6 第1章のまとめ	10

### 第2章 二重ルツボ構造におけるメルト熱流動状態の基礎的把握

2-1 序	12
2-2 無次元数による把握	12
2-3 温度測定実験による把握	14
2-4 数値シミュレーションによる把握	32
2-5 第2章のまとめ	69

### 第3章 ドーバント輸送の制御

3-1 序	70
3-2 解析の準備	71
3-3 従来のドーバント濃度均一化手法とその問題点	86
3-4 新しいドーピング手法への手がかり	92
3-5 二重ルツボ法のランプモデル	97
3-6 極値を持つメカニズム	101
3-7 均一化ドーピング手法の開発	106
3-8 ドーピング手法の実証実験	111
3-9 第3章のまとめ	115

### 第4章 酸素輸送現象の解析

4-1 序	117
-------	-----



4-2 モデル化	122
4-3 3つの比較モデル	127
4-4 計算結果と考察	130
4-5 第4章のまとめ	141

## 第5章 電磁搅拌技術適用の検討

5-1 序	142
5-2 電磁搅拌とは	143
5-3 モデル化と解析手法	146
5-4 計算結果と考察	163
5-5 第5章のまとめ	182

## 第6章 工業生産への応用

6-1 小口径単結晶	183
6-2 中口径単結晶	183
6-3 磁場印加引き上げ結晶	183

## 第7章 結言

7-1 本研究の結論	188
7-2 将来の課題	189

## 参考文献

付録1 メルト熱流動に関するその他の結果	191
付録2 ドーバント濃度変化の解析解の導出	194
付録3 ドーピングに関するその他のモデルの定式化	204
付録4 酸素輸送モデルに関する物質伝達率の推定	207
	215

## 謝辞

本論文に関する著者の発表論文	223
	225

主な記号 (S T単位系を中心に用いたが一部慣用的な単位系も使用した)

A	:ベクトルポテンシャル	(Tm)
B	:磁場ベクトル	(T)
$C_p$	:比熱	(J/kg K)
$C_D$	: $k-\epsilon$ モデルのパラメータ (=0.09)	
$C_1$	: $\epsilon$ (kの粘性消散率)の輸送方程式のパラメータ (=1.44)	
$C_2$	: $\epsilon$ (kの粘性消散率)の輸送方程式のパラメータ (=1.92)	
C	:溶質(ドーバント・酸素)の濃度	(atoms/cm <sup>3</sup> )
$C_s$	:固相中のドーバント濃度	(atoms/cm <sup>3</sup> )
$C_L$	:液相中のドーバント濃度	(atoms/cm <sup>3</sup> )
$C_0$	:固相中のドーバント濃度	(atoms/cm <sup>3</sup> )
$C_i$	:内ルツボのドーバント濃度	(atoms/g)
$C_o$	:外ルツボのドーバント濃度	(atoms/g)
$C_c$	:結晶中のドーバント濃度	(atoms/g)
$C_w$	:石英ルツボ壁面での酸素飽和濃度	(atoms/cm <sup>3</sup> )
$C_s$	:メルト表面における酸素濃度	(atoms/cm <sup>3</sup> )
$D$ (or $D_1$ )	:溶質の拡散係数	(m <sup>2</sup> /s)
$D_2$	:溶質の渦拡散係数	(m <sup>2</sup> /s)
$D_i$	:内ルツボのドーバント量	(atoms)
$D_o$	:外ルツボのドーバント量	(atoms)
E	:電場ベクトル	(V/m)
$E(k)$	:第二種完全楕円積分	
F	:ローレンツ力	(N/m <sup>3</sup> )
f	:結晶成長速度	(cm/s)
G	:乱れの生成項	(/s <sup>2</sup> )
$G_r$	:グラスホッフ数	
g	:重力加速度	(m/s <sup>2</sup> )
g	:固化率(第3章)	
h	:酸素の物質伝達率	(cm/s)
hw	:石英ルツボからの酸素溶解の物質伝達率	(cm/s)
hs	:メルト表面からの酸素蒸発の物質伝達率	(cm/s)
Ik	:交流コイル内の電流	(A)
J	:電流密度ベクトル	(A/m <sup>2</sup> )
$J_m$	:メルト内の電流	(A)
$J^*$	:複素数Jと共役な複素数	
$K(k)$	:第一種完全楕円積分	
k	:乱流エネルギー	(m <sup>2</sup> /s <sup>2</sup> )
k	:ドーバントの平衡偏析係数(第3章)	
$k_{eff}$	:ドーバントの実効偏析係数	
L	:系の代表長さ	(m)
$M_i, j$	:回路iと回路jの間の相互インダクタンス	
P	:圧力	(Pa)
$P_r$	:プラントル数	
$P_{r_1}$	:乱流プラントル数	
$q_{rm}$	:シリコンメルトからの輻射熱流束	(J/m <sup>2</sup> s)
$q_{rc}$	:石英ルツボからの輻射熱流束	(J/m <sup>2</sup> s)



$Re$	: レイノルズ数	
$Ra$	: レイリー数	
$R_{i \rightarrow i'}$	: 初期濃度の最適状態時濃度に対する比	
$r$	: 半径方向座標	(m)
$Sc$	: 溶質のシュミット数	
$Sc_i$	: 溶質の乱流シュミット数	
$S_i$	: 結晶界面の面積を含んだ内ルツボ内メルトの表面積 (m <sup>2</sup> )	
$S_o$	: 外ルツボ内メルトの表面積	(m <sup>2</sup> )
$S$	: 電流流路の断面積	(m <sup>2</sup> )
$T$	: 温度	(°C)
$T_a$	: 雰囲気温度	(K)
$T_m$	: シリコンメルトの温度	(K)
$T_c$	: 石英ルツボの温度	(K)
$t$	: 時間	(s)
$U$	: 系の代表速度	(m/s)
$u$	: 半径方向流速	(m/s)
$v$	: 周方向流速	(m/s)
$W_i$	: 内ルツボのメルト重量	(g)
$W_o$	: 外ルツボのメルト重量	(g)
$w$	: 鉛直方向流速	(m/s)
$x$	: 引き上げた結晶重量	(g)
$x_p$	: 極大値点結晶重量	(g)
$z$	: 鉛直方向座標	(m)
$\alpha$	: 内ルツボ内メルト表面積の自由表面積合計 (結晶界面含む) に対する比	
$\beta$	: 体積膨張率	(1/K)
$\delta$	: ドーバントの濃度境界層厚	(m)
$\delta_v$	: 速度境界層厚	(m)
$\varepsilon$	: $k$ の粘性消散率	(m <sup>2</sup> /s <sup>3</sup> )
$\varepsilon_m$	: シリコンメルトの輻射率	
$\varepsilon_c$	: 石英ルツボの輻射率	
$\theta$	: 周方向座標	(radian)
$\kappa$ (or $\kappa_t$ )	: 熱拡散率	(m <sup>2</sup> /s)
$\kappa_r$	: 渦熱拡散率	(m <sup>2</sup> /s)
$\lambda$	: 熱伝導率	(W/mK)
$\mu$	: 粘性係数	(N/m <sup>2</sup> s)
$\mu$	: 透磁率 (第5章)	
$\nu$ (or $\nu_t$ )	: 動粘性係数	(m <sup>2</sup> /s)
$\nu_r$	: 渦動粘性係数	(m <sup>2</sup> /s)
$\rho$	: 密度	(kg/m <sup>3</sup> )
$\sigma$	: ステファン-ボルツマン定数	(5.67 × 10 <sup>-8</sup> W/K <sup>2</sup> m <sup>2</sup> )
$\sigma$	: 導電率 (第5章)	(S/m)
$\sigma_k$	: $k$ (乱流エネルギー) の輸送方程式のパラメータ (=1)	
$\sigma_\varepsilon$	: $\varepsilon$ ( $k$ の粘性消散率) の輸送方程式のパラメータ (=1.3)	
$\tau$	: 剪断応力	(N/m <sup>2</sup> )
$\phi$	: 酸素の物質流束	(atoms/cm <sup>2</sup> s)

$\phi_w$	: 石英ルツボからの酸素溶解流束	(atoms/cm <sup>2</sup> s)
$\phi_s$	: メルト表面からの酸素蒸発流束	(atoms/cm <sup>2</sup> s)
$\omega$	: 回転角速度	(radian/s)
$\omega$	: 交流の角振動数 (第5章)	(radian/s)

## 第1章 序章

### 1-1 序

本章では、シリコン単結晶引き上げ技術であるチョクラルスキー (Czochralski) 法 (略してCZ法) において従来から解決が望まれていた問題点をまとめ、それらを解決するための技術開発目標を明確にしておく。そしてそのために著者の属しているグループが開発を続けてきた二重ルツボ法の概要に触れ、それらを踏まえて本論文の内容構成を示しておく。

### 1-2 従来のチョクラルスキー法の問題点

CZ法によってシリコンの単結晶が工業的に生産されることができるようになったのは1960年頃であり、当時は当然のことながら、図1-2-1に示すようなバッチプロセスであった。この工程を育成前後の操業手順も加えてフロー図として図1-2-2に示す。この手法は現在でも広く用いられているものの、次のような問題がある。

#### (1) 長尺結晶の育成に不適

ルツボ内のメルト原料がなくなるとプロセスは終了してしまうので、初期にチャージした原料に相当する長さ以上の結晶育成は原理的に不可能である。よって一回のプロセスで長尺の結晶を育成することは巨大なルツボを用いない限り非常に困難である。また当然次のバッチの為に改めて最初から原料をチャージし溶解し直す必要があるため、時間的及び電力的に非常に不経済である。

#### (2) ドーバントの不均一性

結晶の抵抗率を規定するためにメルトにリンやボロンなどのドーバント材を添加するが、これらのドーバント原子はそのメルト中濃度より低い濃度で結晶中に取り込まれるため (いわゆる偏析現象)、メルト量の減少に伴いドーバントが濃化し、結果的に育成初期の結晶頭部と育成終了時の結晶尾部のドーバント濃度に大きな不均一、つまり成長軸方向の濃度不均一が生じる。結果的に所定の目標抵抗率範囲内の部分が少なくなり製品収率が低下する。

#### (3) 酸濃度の不均一性

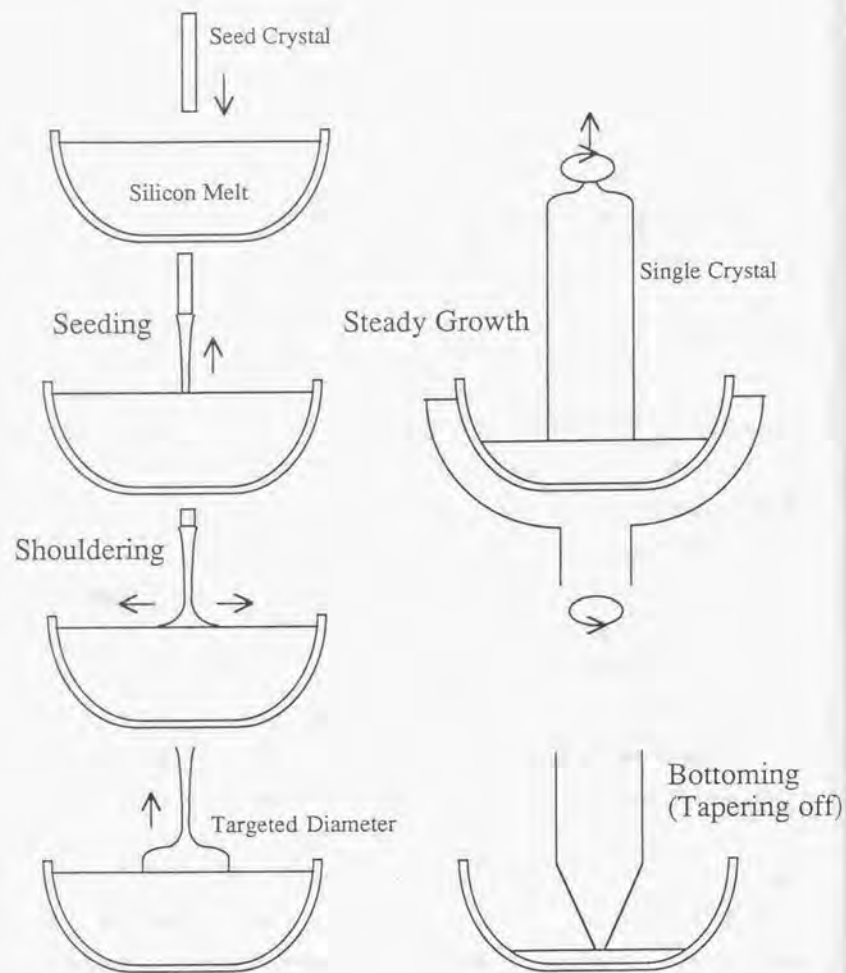


図1.2.1 従来のチョクラスキー法での結晶育成

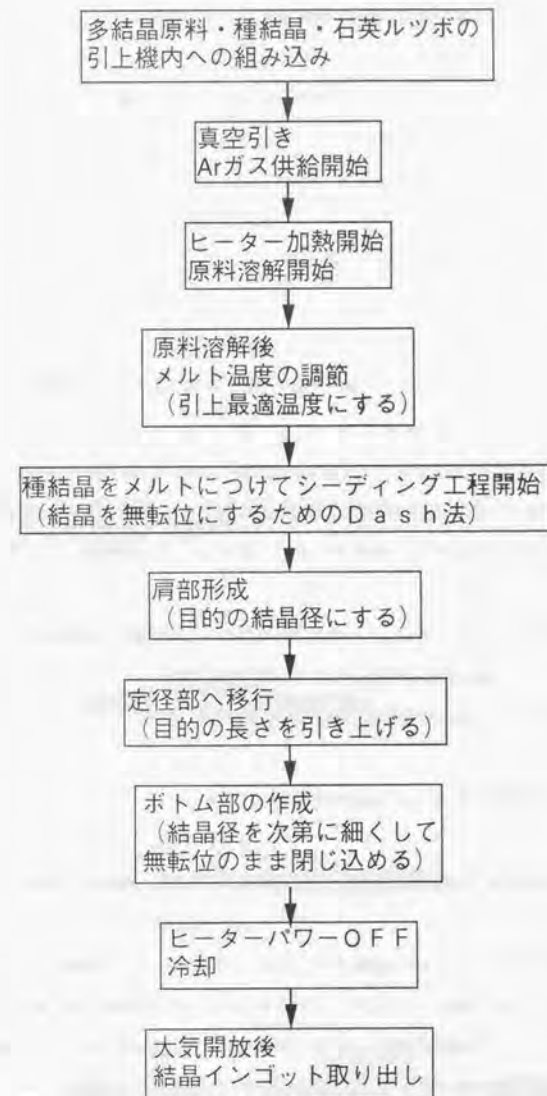


図1.2.2 CZ法での結晶引上工程の内容



メルト量が減少するにつれ、メルト中酸素原子の輸送状況が変化するため、結晶中の酸素濃度が減少していくことがわかっており、これも結晶頭部と尾部で酸素濃度に大きな不均一が生じる。

以上の欠点は古くから指摘されており、この法が本格的に工業化してから長年に渡る大きな問題であり、多くの研究者によって取り組みがなされてきた。

### 1-3 開発目標について

開発目標(1): 長尺結晶育成のための新プロセスの開発

このためにプロセスをぜひ連続プロセス化とすることが必要である。結晶を育成しながら原料を追加供給しメルト量を一定に保てば原理的には長尺の結晶を引き上げることが可能となるはずである。

著者らのグループでは、後述するように二重ルツボ法を用い固体粒状原料を追加供給する手法を採用し、外ルツボ内において継続的にその粒状原料を溶解するプロセスを考案した。長尺結晶育成のためには長時間に渡ってスムーズに原料溶解を続行することが必要になり、液温低下による融け残りなどは発生してはならない。

また大口径の結晶が要求される業界のトレンドに対応するために、追加供給する原料の供給フィードレートも結晶直径の2乗に比例して増加する。このような将来想定される状況下でもスムーズに原料を継続溶解する手法は長尺結晶の実現のために当然検討しておかなければならない。

開発目標(2): ドーバント・酸素濃度の均一な結晶の育成技術の開発

特にドーバント濃度の軸方向均一化をどう実現するかは大きな問題である。原料を追加供給できるシステムを利用する場合、原料とともにドーバント材を追加供給することは容易に実現できよう。しかし具体的な手法としてどのようなタイミングでメルトに添加すれば良いかが課題となる。後述するが二重ルツボ法の場合のドーバント濃度均一化の基本原理は従来からわかっており、それは内ルツボと外ルツボの濃度比を1:偏析係数に設定することである。従来はこのために初期の内ルツボにプリドーピング (Predoping) を行い、初期から強制的に濃度比を設定した。しかし現実的にはこれは上手くないことがわかっていて、ではどうすれば良いかが開発項目となる。

連続プロセスの場合、メルト体積を一定に維持するとメルト内の酸素輸送状況を変化させずに済むので、

それだけでも酸素濃度は軸方向に均一化できることが十分予期できる。しかしバッチ式単一ルツボの場合と比較して濃度の絶対レベルを比較すると、同一の初期メルト量を用意した二重ルツボ法の方が若干濃度が高くなることが実験的にわかってきた。どのような要因によって酸素濃度が上昇するのかを調べることは、その後のプロセス改良にとっても必要なことである。本論文ではそこに焦点を当てて解析した。(酸素濃度の制御法は従来から種々の試みがなされており、静磁場印加技術もその一つであるが、本論文では無磁場中のメルト挙動を対象としたので内容から除外してある。)

### 1-4 開発する連続引き上げ法の特徴

著者の属するグループが採用した連続引き上げ法(二重ルツボ法)の概説に入る前に、従来から様々な研究者により提案されている連続引き上げ法を簡単に概説しておく。

特許や学会等で公表されている種々の引き上げ法の一部を図1.4.1および図1.4.2に示す(著者が独自に想像して描いた模式図であるので、開発者(開発会社)の技術を忠実に再現しているものではない)。

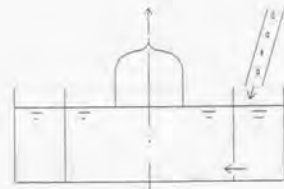
図1.4.1は原料を追加供給する手法であるので、原理的に長尺の結晶の育成が可能となるものである。また同時にメルト中の偏析によるドーバントの濃化を追加供給する原料により希釈することが可能となる。図1.4.2に示した例は、原料を追加しないので従来のバッチプロセス相当分しか結晶を育成することができないのでその意味では連続法とは異なるが、内外ルツボにドーバント濃度差を設けてその濃化を巧みに回避する方法である。これらを含む種々の引き上げ法を著者の考えに基づいて大きく分類すると、図1.4.3のようになる。

注意したいことは既に述べたように単に結晶軸方向のドーバント濃度を一定にするという目的なら、図1.4.2中の東芝のメンバーらの手法がルツボの改造のみで済むので技術的に構成が容易と考えられる。しかしこれでは長尺の結晶を連続的に引き上げるといったコンセプトからは外れることになるので、あくまでも原料供給しながら結晶を育成するというプロセスの開発は産業上の観点から見て、より重視すべきものである。

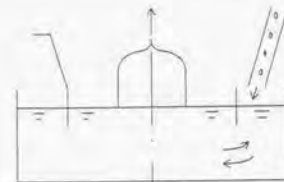
著者らのメンバーの方式は図中に示した位置づけ(二重ルツボ構造/メルト分離式/原料追加式/内ルツボ固定式/原料固体供給)を与えることができる。

次に著者らのメンバーの方式について述べる。

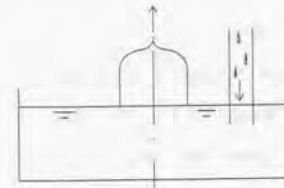
著者らの採用した方式は、開発メンバーの喜田がそのコンセプトを考案し、その手法と技術的な有効性を実験的に証明してみせたものである<sup>[10]</sup>。その概要図を図1.4.4に示す。追加原料としては、米国エチル社製の粒状多結晶シリコンを用いる。これは流動層法によって作られる直径が1mm前後の球形の固体



二重ルツボ構造  
メルト分離式  
原料追加式  
内ルツボ固定式  
原料固体供給  
ex. 三菱マテリアル、NKK、  
住友SITIX、新日鉄、  
小松電子金属など

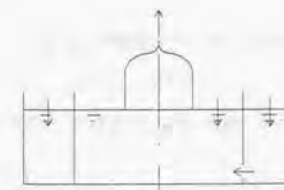


二重ルツボ構造  
メルト一体式  
原料追加式  
内ルツボ固定式  
ex. 信越半導体

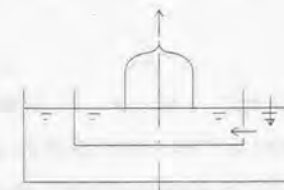


単一ルツボ構造  
原料追加式  
原料液体供給  
ex. ワッカー、小松電子金属など

図1.4.1 種々の新しいチヨクラスキー法(1) (原料を追加する方式)



二重ルツボ構造  
メルト分離式  
バッチ式  
内ルツボ固定式  
ex. 東芝



二重ルツボ構造  
メルト分離式  
バッチ式  
内ルツボ浮遊式

図1.4.2 種々の新しいチヨクラスキー法(2) (原料を追加しない方式)

## 二重ルツボ構造

### メルト分離式

#### 原料追加式

##### 内ルツボ固定式

###### 原料固体供給

ex. 三菱マテリアル、NKK、  
住友SITIX、新日鉄、  
小松電子金属など

###### 原料液体供給

##### 内ルツボ浮遊式

#### バッチ式

##### 内ルツボ固定式

ex. 東芝

##### 内ルツボ浮遊式

### メルト一体式

#### 原料追加式

##### 内ルツボ固定式

ex. 信越半導体

#### バッチ式

## 単一ルツボ構造

### 原料追加式

#### 原料固体供給

#### 原料液体供給

ex. ワッカー、小松電子金属など

図1.4.3 種々のチヨクラスキー法の分類



原料で、非常に流動性に優れた原料供給装置に連していたことによる。

この連続引き上げ法では二重ルツボを用いるが、図1.4.4に示すように著者らの用いた二重ルツボにおける内ルツボはいわゆるルツボ形ではなく単純な円筒形をしている。粒状の追加供給原料を内ルツボと外ルツボの間隙部に落下供給する。石英製内ルツボの断熱性により、外側での原料溶解と内側での結晶固化という熱的に相反する現象をうまく分離することができる。

また実際的にこの二重ルツボ構造をいかに得るかという問題がある。円筒形の内ルツボを通常のルツボと同型の外ルツボの内側に挿入し一体化させることにより二重ルツボを構成させているが、実は引き上げプロセスの最初からの構造を持っているのではなく、初期チャージ原料溶解後に合体させることにより得るのである。

つまり図1.4.5に示すように、初期チャージ原料の溶解時には内ルツボは分離し上方に待避させておき、溶解後に外ルツボと合体させる。原料溶解時には非常にヒーターパワーを上げるため、周囲がおよそ1600度以上の高温の状態になる。もしこの時、最初から内ルツボと外ルツボが一体構造を成している、外ルツボの外側をサポートしているカーボンルツボのように形を維持するものがない内ルツボは高温のため軟化が発生し、かなり変形することがある。石英ガラスは1000度以上で軟化が起きやすく、通常の引き上げ状態においても若干柔らかい物質なのである。このため固体原料溶解時には内ルツボを待避させておくことが実用上必要である。内ルツボの変形が大きいと結果的に温度およびメルト対流の非軸対称性が大きくなり、温度制御性の悪さから安定にメルトを単結晶化することができないからである。

## 1-5 本論文の内容

著者らの採用したコンセプトによる二重ルツボ法の開発にあたり著者は以下のような研究をおこない本論文の各章においてまとめた。

第2章にて、ドーパントや酸素のメルト内輸送を支配している対流状態を把握するため温度測定実験を行いメルトの熱流動状態の基礎的な把握を試みた。また温度分布を説明するために標準的な $k-\epsilon$ 乱流モデルでの数値計算を実施し現象の把握に役立てた。これらにより渦動粘性係数のオーダーを推測した。高動粘性係数と高拡散係数のオーダーはほぼ等しいので、この渦動粘性係数のオーダー把握は、物質移動のメルト内の実効的拡散状況(拡散時間)を把握するのに必要である。

第3章にて、一次元ラングミュアモデルにて軸方向のドーパント濃度変化を解析し、二重ルツボ特有の挙動を模倣した。この解析を踏まえてアリドーピングを必要としないドーピング手法を考案する。これが開発目標(2)の一つに掲げた、ドーパント濃度の均一化のための開発となる。

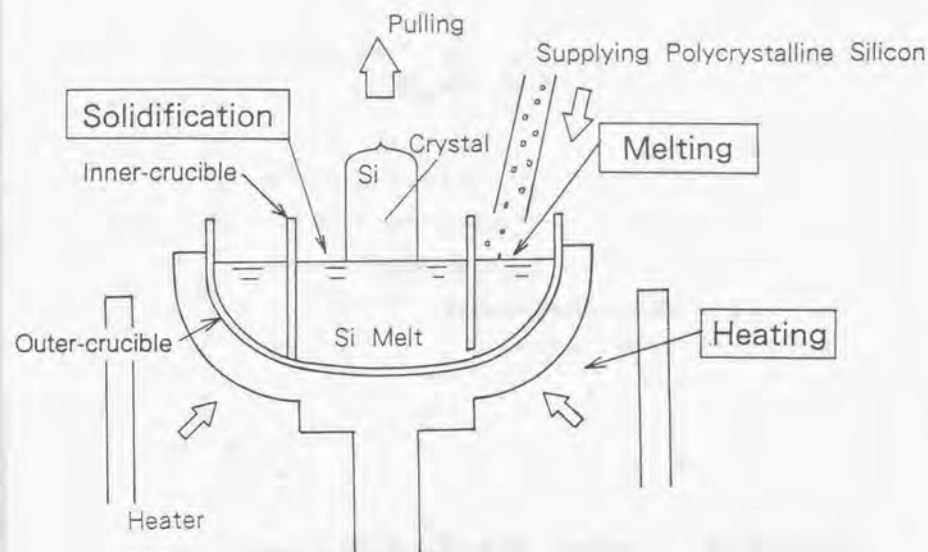
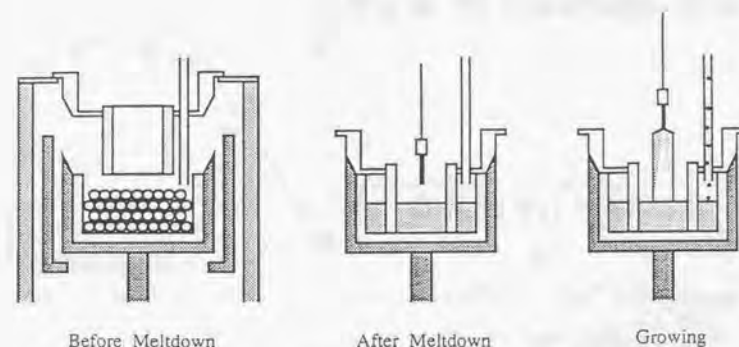


図1.4.4 三菱マテリアルが開発した連続チョクラスキー法の概念図



Schematic diagrams showing the improved structure of a double-crucible: Before meltdown, an inner wall is supported by a holder which is placed on a graphite ring. The holder can be removed from the ring by operating (lifting and rotating) the lower shaft. After meltdown, an outer crucible and an inner wall form a double crucible.

図1.4.5 三菱マテリアルの採用した二重ルツボの構成手法



第4章にて、今度はメルト中の酸素輸送問題に第2章の $k$ — $\epsilon$ 乱流モデルを用いて解析した。開発目標(2)の部分で触れた、二重ルツボ法を用いると単ルツボ法より結晶中酸素濃度が高まるという現象に関して内外ルツボを連結する導通孔の効果及びルツボ内面の温度という観点からその原因の解析を試みた。

第5章にて、将来の結晶の大口径化を考慮し、現状よりも多量の供給原料を外ルツボにおいてスムーズに継続溶解するためのアイデアとして、いわゆる電磁搅拌技術を利用できないか、またそのメリットを数値モデルを通じ検討した。開発目標(1)の長尺結晶育成を堅持するためにもスムーズな原料溶解手法の検討は必要だからである。

第6章にて、工業的実施例として、具体的な成果を簡単にまとめる。

第7章は、終章とし、結論と今後の課題を述べる。

以上の本論文の構成を図にすると図1-5-1のようになる。

## 1-6 第1章のまとめ

従来から用いられている $\zeta$ 法の問題点を述べ、それを解決するための開発目標を明確にした。目標は要約すると、長尺結晶の育成技術とドーパント・酸素濃度の均一化技術の開発にある。二重ルツボ法にも多くの種類があり、その中で著者らの採用した方法の特徴について述べた。また本論文の構成も示した。

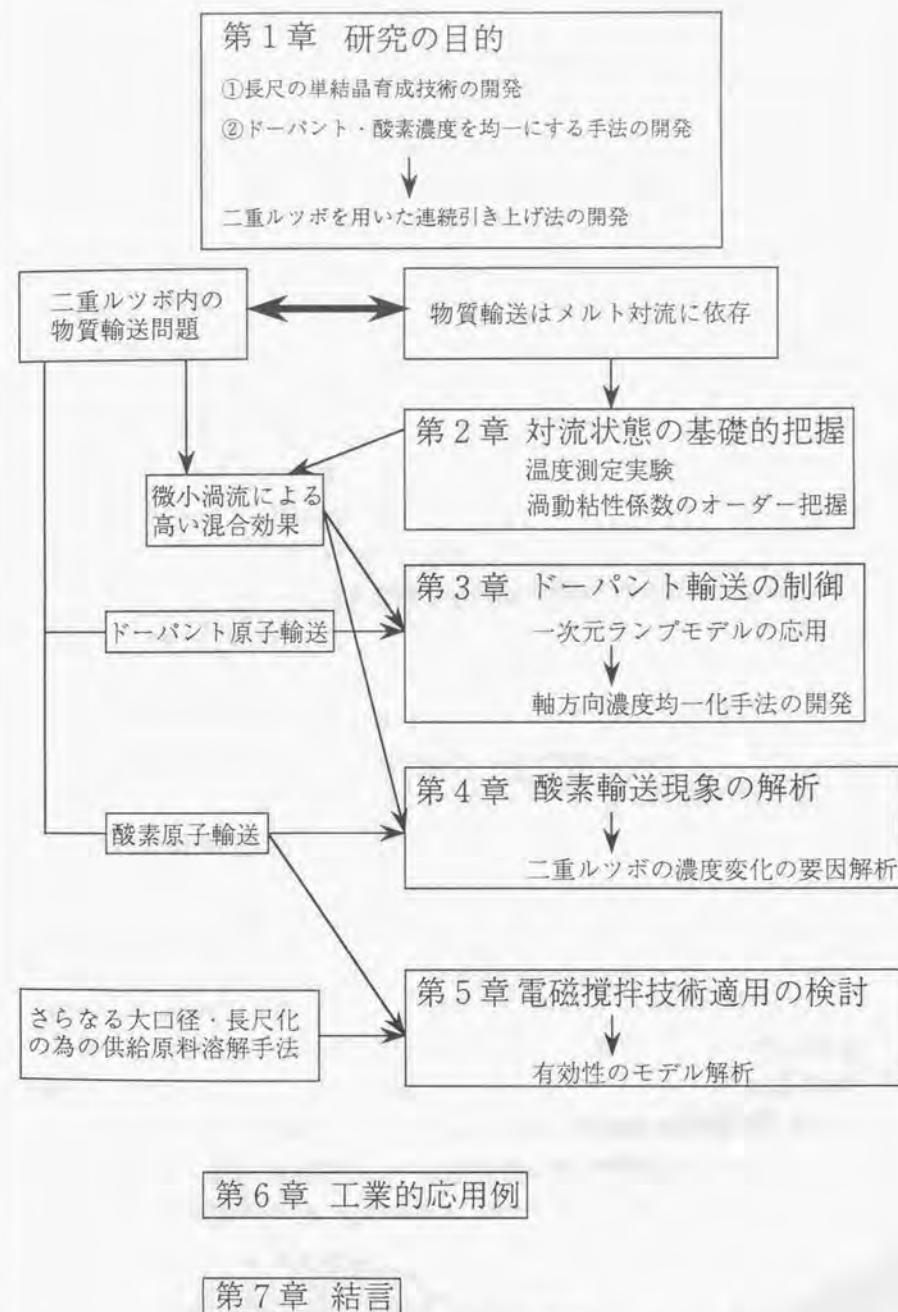


図1-5-1 本論文の内容構成図

## 第2章 二重ルツボ構造におけるメルトの熱流動状態の基礎的把握

### 2-1 序

本論文では、メルト中のドーパントと酸素の物質移動現象を主に扱う。それらの原子のシリコンメルト中の拡散係数は一般に非常に小さい ( $\sim 5 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ ) と考えられているので、その濃度分布はメルト対流に大きく依存することが推測される。しかし、もしメルト対流自体がかなり乱れた状態にあり、その微小渦流の攪拌効果により混合が進んでいるとすると、対流状態を正確に把握しなくても、各容器毎にランブ (LUMP) 化して扱えばその濃度解析は非常に単純化される。

ここでは熱流動解析を通じてそのような扱いが妥当であるかをまず検討する。このようなステップは本論文に限らず、多くの物質移動現象の解析の際に必要なものである。

乱れた状態の流れにおける、物質移動に対する混合効果を表現するものとして、渦拡散係数  $D_t$  という値がよく導入される。しかしこの値および分布を直接求めることは難しく、しばしば渦動粘性係数  $\nu_t$  を用いて  $D_t$  の値はそれと同じオーダーであると相関させられる。よってここではまず  $\nu_t$  を実験および数値計算によって基礎的に把握する。

手法としては、まずメルトの温度測定を実施し、その温度プロファイルの特徴をつかむ<sup>[2-1]</sup>。また特徴的な温度振動現象を観察する。流れとしては強い乱流ではなく遷移的な複雑な流れであることがわかった。次に基礎的な乱流モデルである  $k-\epsilon$  モデルを採用して、その特徴的な温度プロファイルの説明を試みた<sup>[2-2]</sup>。

以上によって渦動粘性係数  $\nu_t$  のオーダーが把握できないかを本章で探るものとする。

### 2-2 無次元数による把握

実験に入る前に最も基礎的な検討として、無次元数を算出しそのオーダーを考察することにした。

現象を支配する無次元数として種々想定が可能であるが、ここでは代表的なものを検討し定義式とともに表 2.2.1 に示す。

これらの値から  $Gr$  の系は層流と乱流の中間的な部分に位置する遷移的な流動状態であろうことがわかる。また周期的・非周期的な振動成分を多数含む複雑な流れである可能性もある。また  $Ra$  が非常に高いことから、浮力駆動力も大きく、浮力対流特有の 3 次元的不安定性/複雑さを伴う乱れた流れとなることも予想される。

表2.2.1 関係する各無次元数のオーダー

$$\begin{aligned} \text{結晶回転に関するレイノルズ数: } Re_x &= \frac{R_x^2 \omega_x}{\nu} = 2.40 \times 10^4 \\ \text{坩堝回転に関するレイノルズ数: } Re_c &= \frac{R_c^2 \omega_c}{\nu} = 7.13 \times 10^4 \\ \text{グラスホッフ数: } Gr &= \frac{d^3 g \beta \Delta T}{\nu^2} = 6.4 \times 10^7 \\ \text{プラントル数: } Pr &= \frac{\nu}{\kappa} = 0.012 \\ \text{レイリー数: } Ra &= Gr \cdot Pr = \frac{d^3 g \beta \Delta T}{\nu \kappa} = 7.6 \times 10^8 \end{aligned}$$

但し、各記号およびその使用した値は以下の通り。

$$\begin{aligned} R_x &= \text{結晶半径} = 0.065 \text{ (m)} \\ \omega_x &= \text{結晶回転数} = 15 \text{ (rpm)} = 1.571 \text{ (rad/s)} \\ d &= \text{メルト深さ} = 0.089 \text{ (m)} \\ R_c &= \text{ルツボ半径} = 0.194 \text{ (m)} \\ \omega_c &= \text{ルツボ回転数} = 5 \text{ (rpm)} = 0.524 \text{ (rad/s)} \\ \nu &= \text{動粘性係数} = 2.767 \times 10^{-7} \text{ (m}^2/\text{s)} \\ g &= \text{重力加速度} = 9.81 \text{ (m/s}^2\text{)} \\ \beta &= \text{体積膨張率} = 1.41 \times 10^{-5} \text{ (1/K)} \\ \kappa &= \text{温度伝導率} = 2.287 \times 10^{-3} \text{ (m}^2/\text{s)} \\ \Delta T &= \text{代表温度差} \approx 50 \text{ (K)} \end{aligned}$$

またPr数が0.012と小さいことから、温度場は、メルト中の熱伝導の寄与が大きいため、対流伝熱よりも伝導伝熱支配の分布を示すものと予想される。この点は温度場のみを計算するモデルの場合ならばメルト内を熱伝導のみを解いて代用させる近似<sup>[23,24)]</sup>の根拠となっている。

## 2-3 温度測定実験による解析

### (1) 実験方法

用いた実験装置の模式図を図2.3.1示す。メルトの温度は、石英管で保護されたRタイプ（白金-白金ロジウム）熱電対をメルト上方からさしこんでいき、深さ方向に位置を変えて測定した。石英の保護管は細いほど温度場を乱さず好ましいが、メルト中での石英の溶解および軟化時の強度を考慮して、図2.3.2の図面に示すものを作成し使用した。

この場合熱電対は回転せずに静止している。また測定は結晶の存在していないメルトに対して実施した。実験は主に外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボと、1.6インチの単一ルツボについて実施した。また補足的に外ルツボ1.5インチ/内ルツボ1.1インチの二重ルツボと、1.5インチの単一ルツボの場合についても実施した。

図2.3.3 (a)に外ルツボ1.6インチ（内ルツボ1.2インチ）の場合の熱電対の位置を示す。同様に図2.3.3 (b)に外ルツボ1.5インチ（内ルツボ1.1インチ）の場合の熱電対の位置を示す。

実験は全て結晶を作成していない状態、すなわちルツボにメルトだけが入っている状態に対して実施した。

本来なら、結晶成長を行いながらメルトの温度測定を実施したかったのだが、メルトに浸った結晶下部の温度を安定に測定することは、非常に困難であったので断念している。これは、引き上げ炉が1600度にも及ぶ高温で、かつ、真空炉（10<sup>-2</sup> Torr）であるので、細かい細工が難しかったことによる。

尚、本実験は、各系についてヒーターパワー値固定で実験を行った。そのパワー値の決定方法を以下に示しておく。

<1>測定の前に、まずルツボを5 rpmで回転させ、その状態のメルトにモニター用の種結晶を少し浸す。

<2>ヒーターパワーを調整して、種結晶とメルトが接触しているメニスカス部の形状の変化（大きき



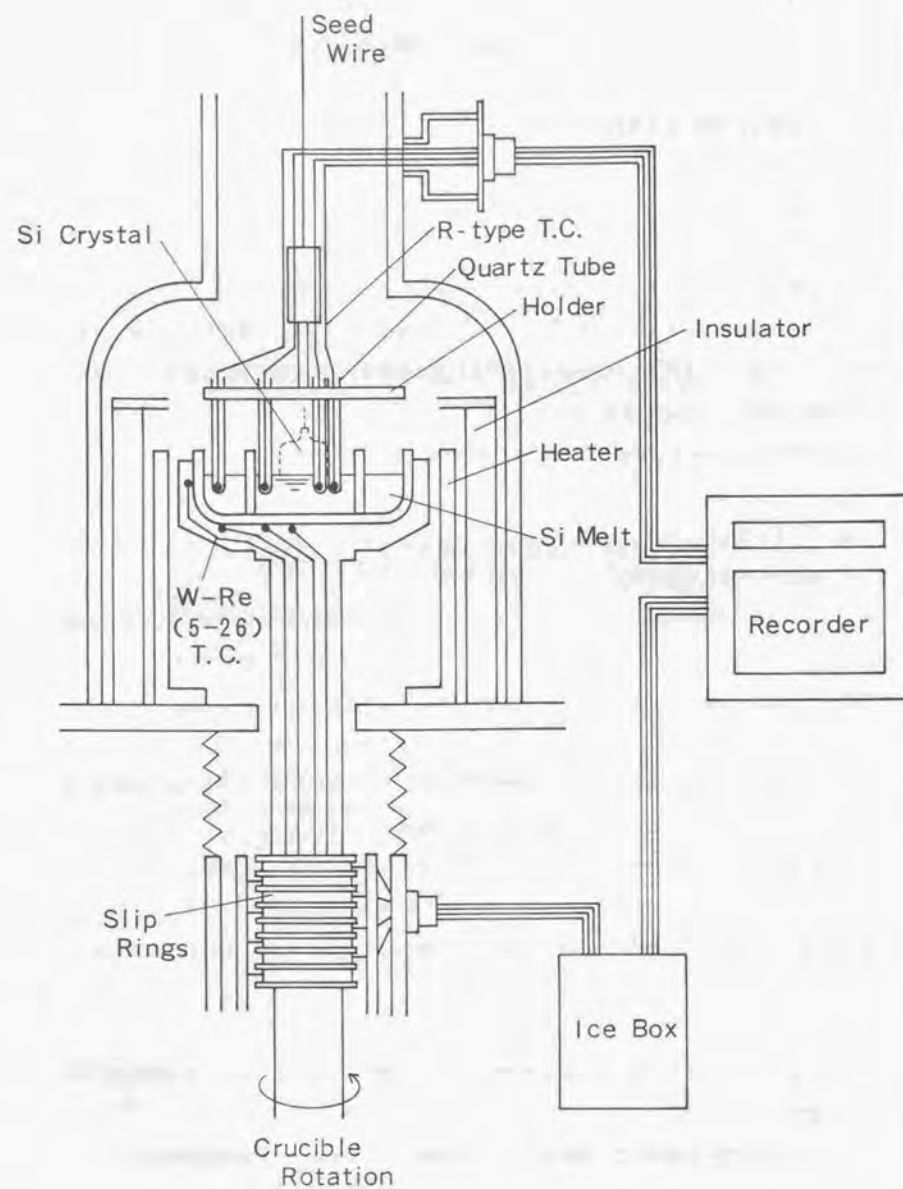


図2.3.1 温度測定手法の模式図

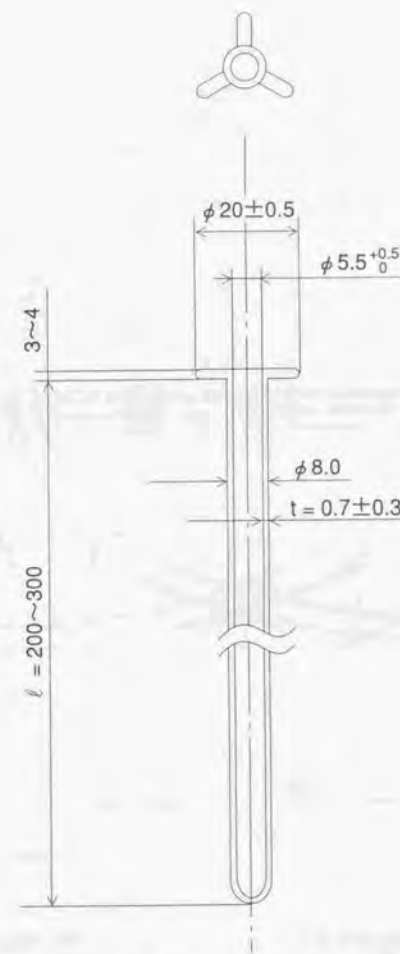


図2.3.2 メルトへ挿入する熱電対のための石英製保護管

Location of Thermo Couples  
(16" / 12" Crucible)

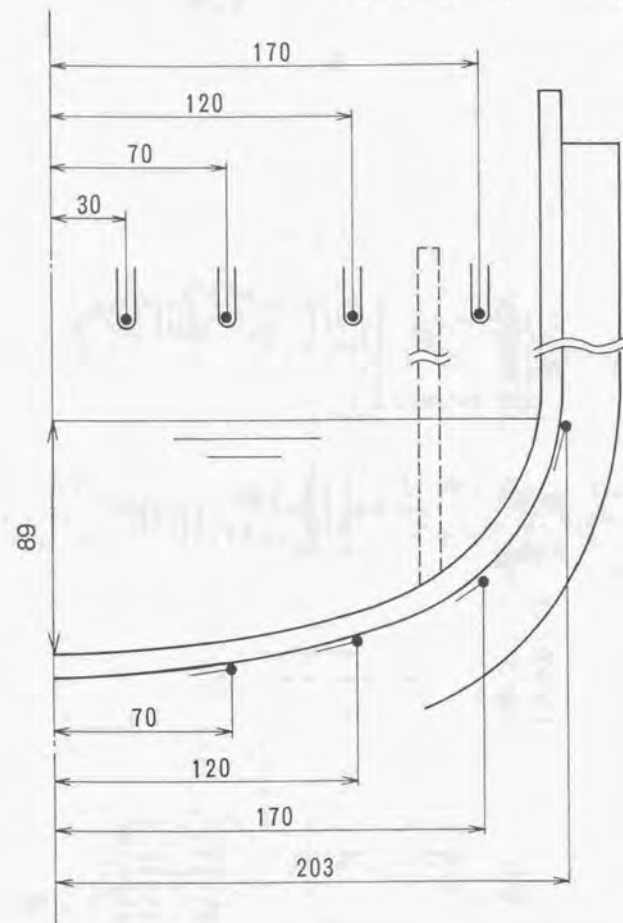


図2.3.3 (a) 外ルツボ16インチ (内ルツボ12インチ) の場合の熱電対位置

Location of Thermo Couples  
(15" / 11" Crucible)

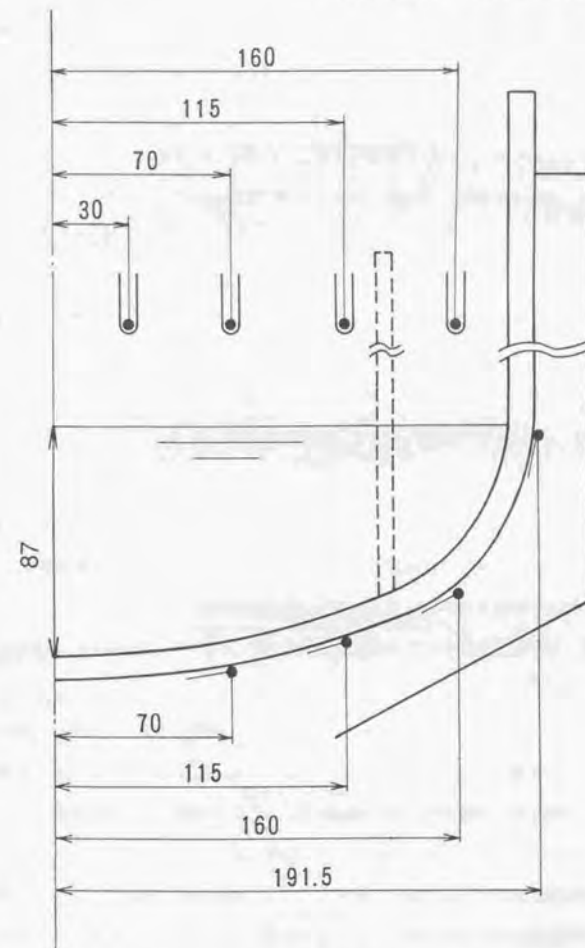


図2.3.3 (b) 外ルツボ15インチ (内ルツボ11インチ) の場合の熱電対位置

の変化、結晶方位に依存した幾何学形状の出現など）を肉眼で確認しながら、シーディング（あるいはネッキング）（注）にとって最適な温度になるようにする（図2.3.4参照）。

（注）シーディングとは、転位の含まれている種結晶から転位を完全に取り除くため、一旦種結晶を細く（直径3-4mm）かつ長く（数十cm）引く工程のことを言う。必要不可欠な工程である。

<3>最適な温度を実現した後、そのパワー値を記録し、以降その値を維持する。

<4>次に、熱電対（回転せず静止している）をメルト内に浸すことによって測定を開始する（図2.3.4参照）。

このようにして、シーディングに最適な温度が実現できたら、その時のヒーターパワーに凍結して一連の実験を行った。

## （2）温度振動現象

良く知られているようにCZ法におけるシリコンメルトの温度は数度の幅で振動する<sup>[2-3,24]</sup>。著者らが行った実験において得られた典型的な温度振動の実測例を図2.3.5に示す。当初われわれは、この温度振動は静止している熱電対と回転しているメルトとの相対運動の影響ではないかと考え、メルトを回転せずに測定を行ってみた。すると、かえってこの温度振動は大きくなり、さらに全体的に大きくうねる現象もおきるようになった。

メルト静止時の、大きな時間周期の温度揺らぎは、安定／不安定現象に由来しているとも思われる。しかし、変動の細かい微小な温度振動の方は小規模から中規模の渦流（e d y）によるものと考えの方が自然であろう。またこの静止時の実験からこの温度振動は、メルトと熱電対との相対運動に起因するものでなく、既にメルト自身に内在しているものであることも理解される。

この一見不思議な振動現象は、古くから多くの研究者によって報告されており<sup>[2-3,24]</sup>、その比較的大きな周期の振動が結晶の成長端（ストライエーション）を生成させるのだという説もある。しかしその微小な温度振動の方の起源となると定説が無いのが現状であろう。ただし、流れは安定していてかつ温度だけが振動するとは考えにくく、著者は大きな不安定渦からくずれた多数の微小渦によるものではないかと考えている。

しかしルツホを回転させているときは、一般の発達した乱流で見られる現象と同様に、温度に着目する

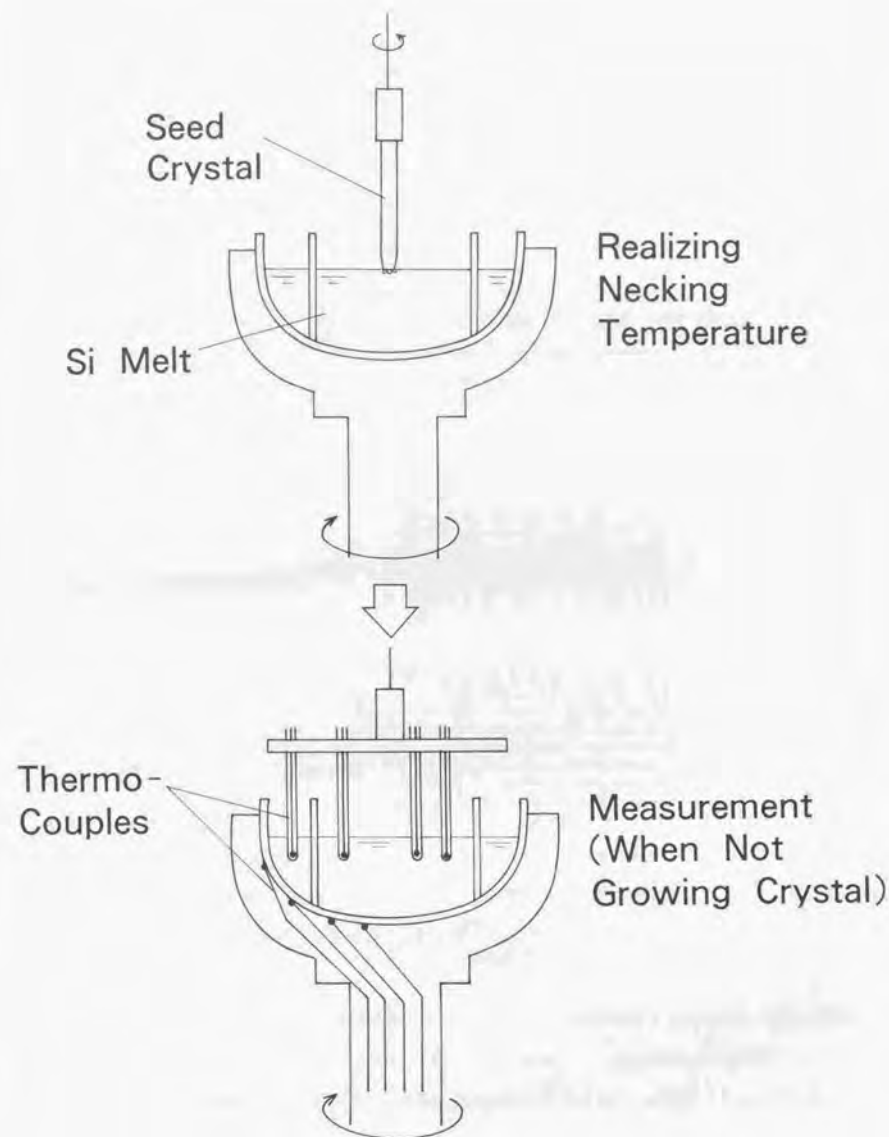


図2.3.4 ヒーターパワー値の決定手法



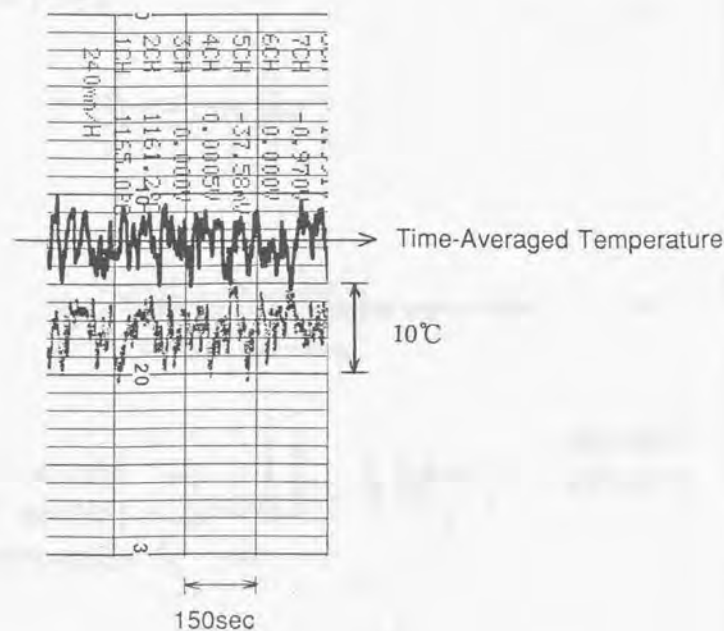


図 2.3.5 メルト温度の振動現象

とその時間平均値はかなり安定した値を持つ。ルツボを回転させている以上、この平均的温度はヒーターパワーの変動が無い限り、ほぼ一定値を示していた。

本論文ではその時間平均温度のみに注目し、その振動現象（振動幅や周期）には言及しないことにする。

### (3) 二重ルツボの場合の結果

毎分5回転（5 r p m）で回転している二重ルツボの結果を図2.3.6に示す。点線は推測した等温線である。

各温度はその測定位置が深くなるほど高い値を示していることがわかる。よって、その推測された等温線のプロファイルは、上下に入り組むことなく、あまりゆがまないものとなる。

ルツボ回転が2.5 r p mの時の結果を図2.3.7に示す。ここでも、やはり同様に、等温線は水平的に配列していることがわかる。

ルツボは回転しており、また浮力対流もおきているはずなので、ルツボの側面から沸き上がりメルト表面中心にて沈み込むような対流パターン（図2.3.8）が弱くとも発生しているはずである。よって、このマクロな流れにそって等温線も川下へ押し流されたような歪みを少しは持つと予想していたが、そのような傾向は見られなかった。

この熱拡散支配的な特徴は、低プラントル数流体に関しよく知られているが、 $Pr = 0.112$ のシリコンメルトの場合でも熱拡散（注）支配であると考えられる。

（注）ここでいう熱拡散とは、熱伝導のみのことではなく、微小渦流の攪拌効果に基づく熱輸送効果も含めた実効的な熱拡散のことを意味する。よって、時間平均的なマクロな対流によって、輸送される熱とは分けて考えている。これらの関係を表2.3.1に示しておく。

内ルツボと外ルツボに挟まれた部分のメルトに着目するとその温度は比較的高く維持されていることがわかる。つまり石英の内ルツボが断熱効果を及ぼしており、それ自身の中に温度勾配が存在しているはずである。この挟まれた部分において、供給された固体原料は溶解されるので、この温度上昇は非常に有利であることがわかる。

### (4) 単一ルツボの場合の結果

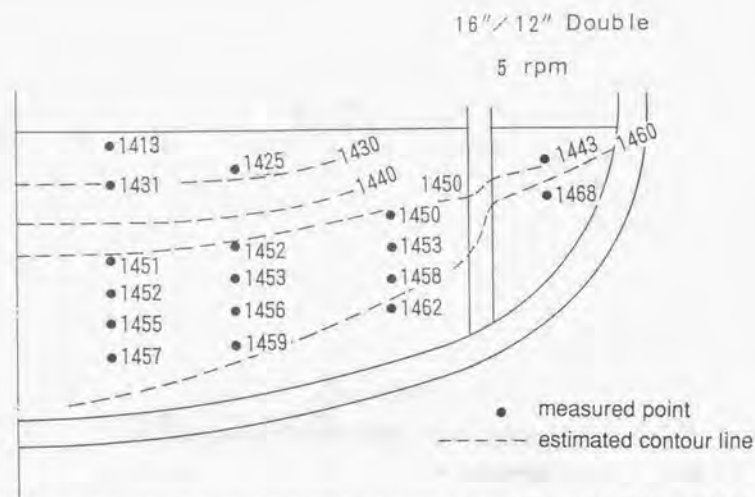


図2.3.6 外ルツボ16インチ/内ルツボ12インチの場合の温度測定結果と推定した等温線  
(ルツボ回転数=5 rpm)

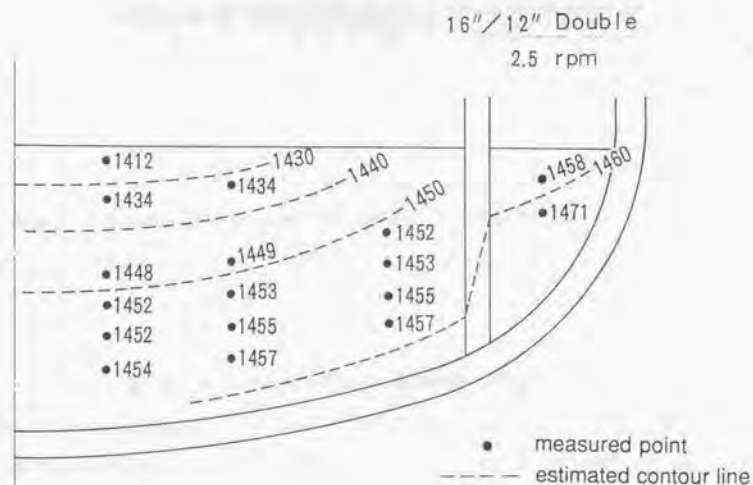


図2.3.7 外ルツボ16インチ/内ルツボ12インチの場合の温度測定結果と推定した等温線  
(ルツボ回転数=2.5 rpm)

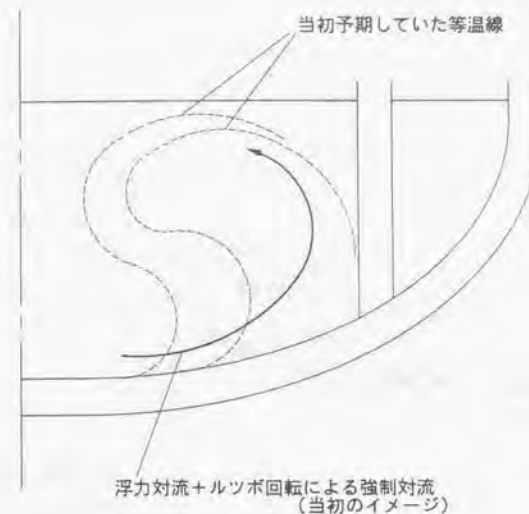


図2.3.8 予期していた等温線の状況

表2.3.1 本論文での熱移動に関する用語とその意味

### (実効的) 熱拡散

熱伝導による熱輸送

いわゆる純粋な意味での熱伝導

微小渦流の攪拌効果による熱輸送

微小渦流のミキシング効果によるものでモデル的に  
渦熱拡散係数を用いて拡散型に表現できる熱輸送

### (マクロな) 対流熱輸送

時間平均的に見たときのバルク流による熱輸送  
いわゆる対流移動の寄与

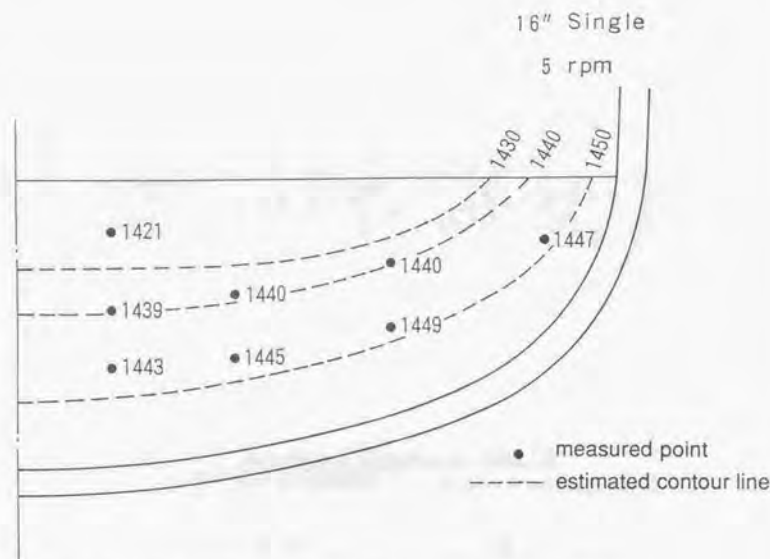


図2.3.9 16インチ単一ルツボの場合の温度測定結果と推定した等温線  
(ルツボ回転数=5 rpm)

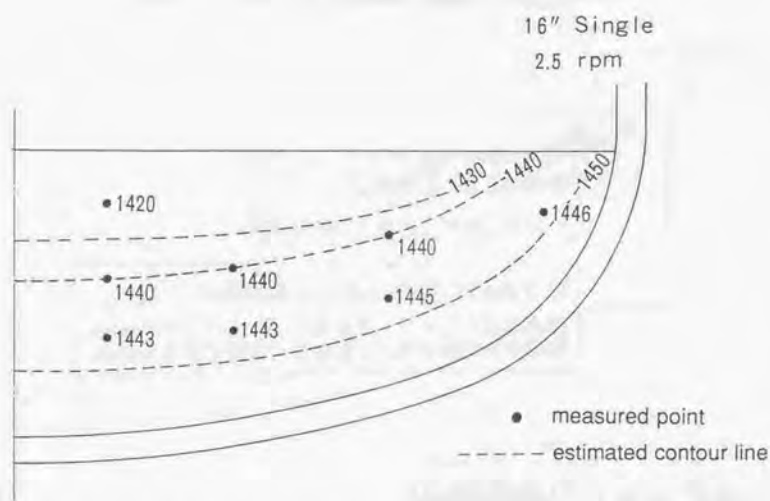


図2.3.10 16インチ単一ルツボの場合の温度測定結果と推定した等温線  
(ルツボ回転数=2.5 rpm)

図2.3.9に単一ルツボの場合(5 rpm)を示す。この場合においても推定した等温線は水平的な配列となることがわかる。同様にルツボ回転が2.5 rpmの時の結果も図2.3.10に示しておく。

単一ルツボの場合の、同様な温度プロファイルの測定結果の報告は他にもある<sup>[25]</sup>。また、どのように測定したかは不明であるが、結晶を成長させながらの温度測定の結果の報告<sup>[26]</sup>によると結晶がある場合でも、拡散的なつまり水平的な等温線分布を持っていると報告している(図2.3.11参照のこと)。

以上のように、メルトの温度分布は、発生しているであろうバルク対流に影響されない様相を呈している。

#### (5) 渦動粘性係数 $\nu_t$ の簡単なオーダーリング

温度測定結果から、ラフに  $\nu_t$  のオーダーを見積ってみた。2次元シミュレーションは次節で実施するので、ここでは単純に乱流の基礎式を用いて、 $k$  と  $\epsilon$  の値のオーダーを見積ることによって、 $\nu_t$  のオーダーを試算することとした。

次節で述べるように  $k-\epsilon$  乱流と仮定すること自体に多少問題は残るが、次の  $k$  の基礎式を用いる。

$$u \frac{\partial k}{\partial r} + w \frac{\partial k}{\partial z} = \frac{v_t}{\sigma_k} \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial k}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 k}{\partial z^2} \right\} + v_t G - \epsilon \quad (2.3.1)$$

系の代表長さを  $L$ 、代表速度を  $U$  とする。

各項のオーダーを考える。

$$LHS \sim \frac{U}{L} k \quad (2.3.2)$$

また式(2.3.1)の右辺は、

$$RHS \sim \frac{v_t}{\sigma_k} \frac{U}{L^2} k + v_t G - \epsilon \quad (2.3.3)$$



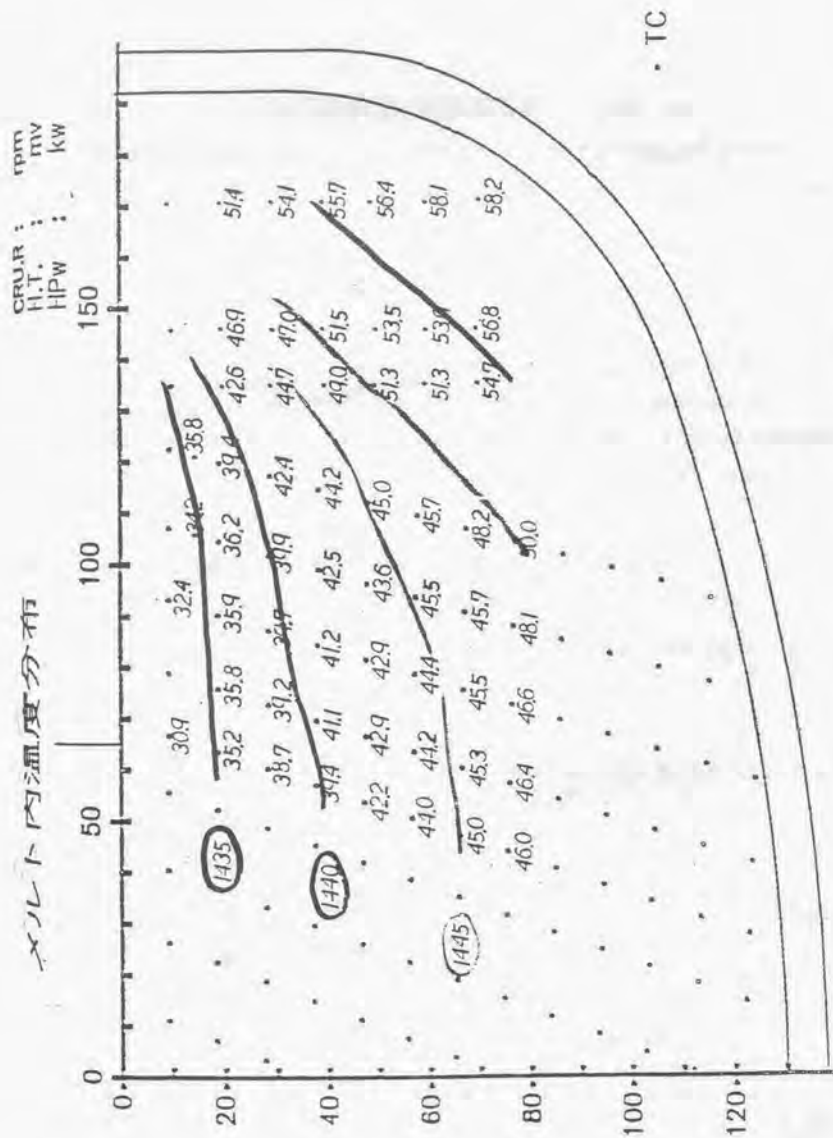


図 2.3.1 北川らによる結晶成長中のメルト温度測定結果<sup>(24)</sup>

$k$  : 乱流を仮定している。

$$v_i = C_D \frac{k^2}{\epsilon} \quad (2.3.4)$$

また、(1)は次の式に示すように速度勾配の2乗の形をとる乱れの生成項である。

$$G = 2 \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial r} \right)^2 + \left( \frac{u}{r} \right)^2 + \left( \frac{\partial w}{\partial z} \right)^2 \right\} + \left( \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial z} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} \right)^2 \quad (2.3.5)$$

よって、オーダー的には次のようになる。

$$G \sim \left( \frac{U}{L} \right)^2 \quad (2.3.6)$$

よって、式(2.3.2)から式(2.3.4)および(2.3.6)を式(2.3.1)に代入して、

$$\frac{U}{L} k - C_D \frac{k^2}{\epsilon} \frac{1}{\sigma_h} \frac{k}{L^2} + C_D \frac{k^2}{\epsilon} \left( \frac{U}{L} \right)^2 = \epsilon \quad (2.3.7)$$

よって、

$$\frac{U}{L} k - C_D \frac{k^2}{\epsilon} \left\{ \frac{1}{\sigma_h} \frac{k}{L^2} + \left( \frac{U}{L} \right)^2 \right\} = \epsilon \quad (2.3.8)$$

今、代表速度 $U$ として、0.1 (m/sec) のオーダーであるとし、また、代表長さ $L$ として、0.1 (m) のオーダーであるとする。すると、

$$U \sim 0.1 \quad (2.3.9)$$



$$L \sim 0.1 \quad (2.3.10)$$

$$G \sim \left(\frac{U}{L}\right)^2 \sim 1 \quad (2.3.11)$$

また、 $k = \varepsilon$  モデル式より、

$$\sigma_{\theta} = 1 \quad (2.3.12)$$

$$C_D = 0.09 \quad (2.3.13)$$

これらを、式(2.3.7)に代入すると、

$$k \sim 0.09 \frac{k^2}{\varepsilon} \left\{ \frac{k}{0.01} + 1 \right\} + \varepsilon \quad (2.3.14)$$

ところで、温度振動現象における振幅は図2.3.5より、 $\pm 5^\circ\text{C}$ のオーダーであることがわかる。系の最低温度は、成長界面における $1410^\circ\text{C}$ である。また、系の最高温度は約 $1460^\circ\text{C}$ である。よって、

$$\text{系の代表温度差 } \Delta T = 1460 - 1410 = 50^\circ\text{C}$$

$$\text{温度の変動成分 } \theta' = 5^\circ\text{C}$$

よって、

$$\frac{\theta'}{\Delta T} \sim 0.1 \quad (2.3.15)$$

今、ラフに温度変動量と速度変動量に対し次式が成立と仮定する。

$$\frac{u'}{U} \sim \frac{\theta'}{\Delta T} \sim 0.1 \quad (2.3.16)$$

乱流エネルギー  $k$  の本来の定義より、

$$k = \frac{1}{2} (u'^2 + v'^2 + w'^2) \quad (2.3.17)$$

今、ラフに  $u'$ 、 $v'$ 、 $w'$  に関し式(2.3.16)から次の様に見積る。

$$u' \sim v' \sim w' \sim 0.1U \quad (2.3.18)$$

すると、

$$k \sim (0.1U)^2 = 10^{-4} \quad (2.3.19)$$

よって、式(2.3.14)に代入すると

$$10^{-4} \sim 0.09 \cdot \frac{10^{-8}}{\varepsilon} \{0.01 + 1\} + \varepsilon \quad (2.3.20)$$

よって、

$$10^{-4} \varepsilon \sim 0.09 \cdot 10^{-8} + \varepsilon^2 \quad (2.3.21)$$

さらに整理すると、

$$10^{-4} \sim \frac{10^{-9}}{\varepsilon} + \varepsilon \quad (2.3.22)$$

この式から  $\varepsilon$  のオーダーを振って検討してみると、

$$10^{-5} \leq \varepsilon \leq 10^{-4} \quad (2.3.23)$$

である。

よってまとめると、

$$k \sim 10^{-4} \quad (2.3.24)$$

$$10^{-5} \leq \varepsilon \leq 10^{-4} \quad (2.3.25)$$

のオーダーであることがわかった。

よって、式(2.3.4)より、 $\nu_t$ のオーダーを計算してみると、

$$(i) \quad \varepsilon \sim 10^{-5}, k \sim 10^{-4} \text{の時}$$

$$\nu_t \sim 0.09 \cdot \frac{10^{-8}}{10^{-4}} \sim 0.09 \cdot 10^{-4} \sim 10^{-4} \quad (2.3.26)$$

つまり、 $\nu_t$ は $10^{-4} \text{ (m}^2/\text{s e c)}$ のオーダーであることがわかる。

$$(ii) \quad \varepsilon \sim 10^{-4}, k \sim 10^{-4} \text{の時}$$

$$\nu_t \sim 0.09 \cdot \frac{10^{-8}}{10^{-4}} \sim 0.09 \cdot 10^{-4} \sim 10^{-5} \quad (2.3.27)$$

この時、 $\nu_t$ は $10^{-5} \text{ (m}^2/\text{s e c)}$ のオーダーであることがわかる。

結局、 $\nu_t$ は $10^{-5} \sim 10^{-4} \text{ (m}^2/\text{s e c)}$ のオーダーであるという結論となる。

#### (6) 温度測定実験のまとめ

メルトの温度分布測定実験より、次のことがわかった。

<1> メルト温度は激しく振動しており、それは多くの微小渦に起因しているのではないと思われる。

<2> しかしその時間平均温度は安定しており、その等温線はマクロな流れに歪められることなく、水

平的に分布している。

<3> よって、温度分布はマクロなメルト対流でなく、微小にくずれた渦流による攪拌混合効果によって決定されるため、拡散的な等温線分布を呈するものと考えられる。

<4>  $k-\varepsilon$  乱流モデル式からの渦動粘性係数 $\nu_t$ のオーダーリングから、その値は $10^{-5} \sim 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s e c}$ のオーダーであると推算することができた。

## 2-4 数値シミュレーションによる把握

### (1) 目的

前節においてメルト内の等温線は大きく歪むことなく、水平的な配列を示すことを見だし、また渦動粘性係数 $\nu_t$ のオーダーをラフに見積ることができた。

しかしそれではなぜ等温線は水平的な配列を示すのかなどのメカニズムの解明は温度測定実験だけではなかなか難しい。かといって2-2で検討したように実際の流れは遷移流的な複雑な3次元の振動流である可能性が強いので、いわゆる $k-\varepsilon$ 乱流モデルといった汎用的な計算手法が適合するような強い乱流ではない。

ここでは考察をもう一步掘り下げるために、単純な2次元軸対称の $k-\varepsilon$ 乱流モデルを採用して、温度分布の特徴などの説明を試みた。これが今回の数値シミュレーションを使用する立場であり、計算結果の解釈にあたってこのことを常に念頭に置いておく必要がある。

数値計算に先立ち、その境界条件を定めなければならないが、従来多くの研究者が行っているようにメルト周囲の温度を固定するのではなく、メルトと石英ルツボの界面の温度はあくまでも変数とし、その外側つまり石英をつばの外面の温度を境界条件として固定することにした。

メルトと石英ルツボの界面の温度は当然、メルト対流の影響を受けているはずであり、界面での熱伝達状態によりその温度は決定されているはずである。よって、ここは固定せず、低熱伝導率であり温度変化に鈍感な石英ルツボの外面を固定したほうが、より現実に近い設定であり、解の精度も向上するものと考えられる。

次にこの石英ルツボ外面の温度測定について述べる。

## (2) 境界温度の測定

### (2-1) 実験方法

前節のメルトの温度測定と異なり、石英ルツボ外面の温度は、図2.4.1のように石英ルツボと黒鉛ルツボ（サセプタ）の間に熱電対を挟み、ルツボとともに回転しながら測定する。

熱電対はメルトの温度測定で用いたRタイプ（白金-白金ロジウム）でなく、より耐熱性に優れたWタイプ（タンガステン-タンガステニウム）熱電対を用いた。これは図2.3.1のように熱電対を回転軸下部から導入するので高温ヒーター部の横を通るため、Rタイプの熱電対を用いると溶けて断線しやすいためである。回転しながら測定するため、熱電対は回転軸下部に設置されているスリップリングに接続され、その出力はブラシ接点を通じて外部レコーダーに導入される。また後の（3-4）節の結晶成長時の計算の際に用いる境界温度は、図2.4.2のように結晶を育成している時に測定したものである。

### (2-2) 結果

#### <1>ルツボ回転数の影響

ルツボ外面温度に対するルツボ回転数の影響をみるため、回転数を様々に振ったときの温度を調べた。この実験は外ルツボ1.5インチ/内ルツボ1.1インチの場合についてのみ実施した。外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチについては残念ながらデータをとることができなかったが、回転数の影響は同様であろうと推測できる。

この実験を行う時は、メルトの温度測定の際にヒーターパワーを決定したのと同様にして（2-3の（1）参照）そのパワー値を固定し一連の実験を実施した。

各回転毎に十分定常待ちを行い（30分以上）その後定常状態に達したときの結果を図2.4.3にまとめる。このプロットにおいて温度が中心からの距離に対し単調に増加せず、中心から最外点の温度がその一つ内側の温度より低くなっている。この原因については付録1でも述べるが、この場合最外部では放射放熱の影響を強く受けたためであると考えている。

このように0.1rpmの時以外の回転させている条件では、定常になった状態ではあまりその温度に差がないことがわかる。

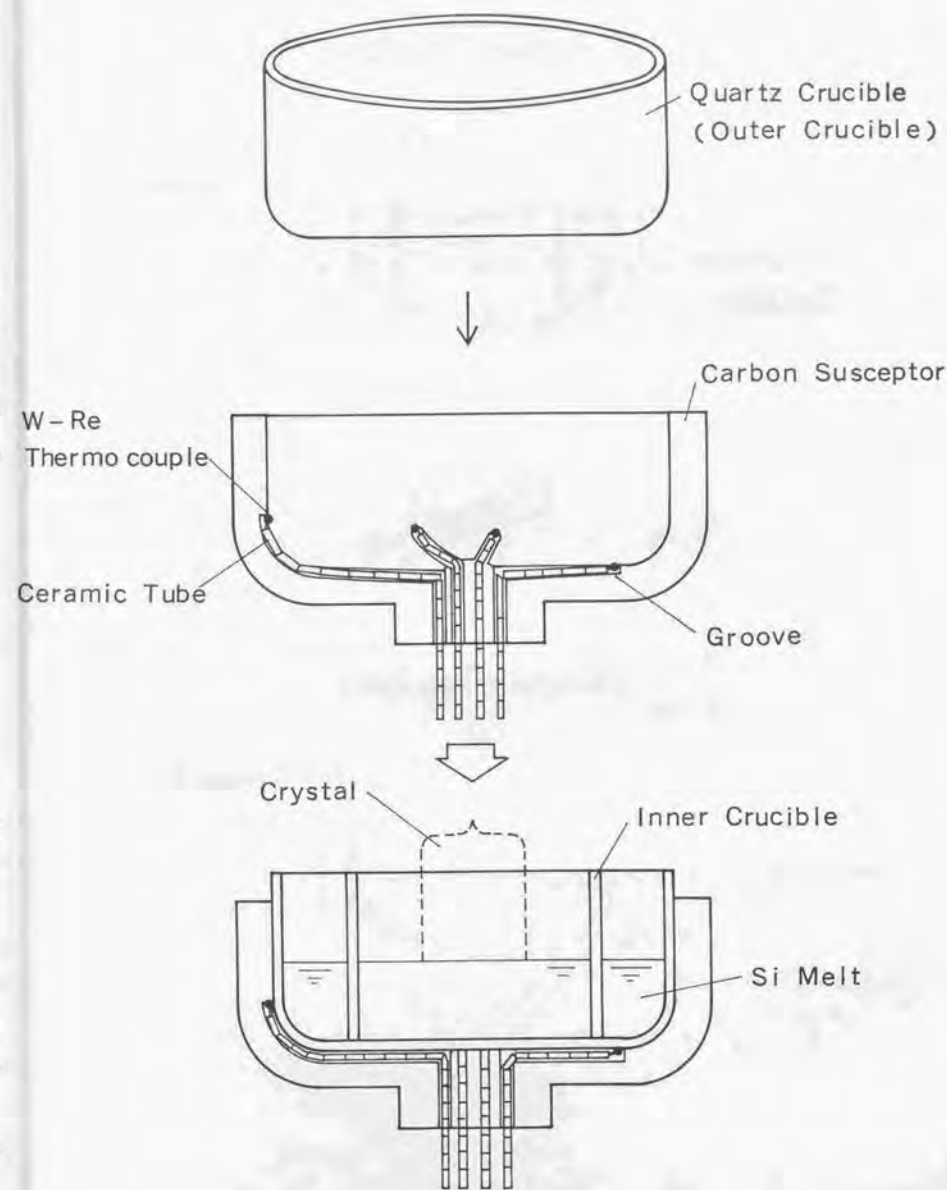


図2.4.1 石英ルツボ外面の温度測定手法



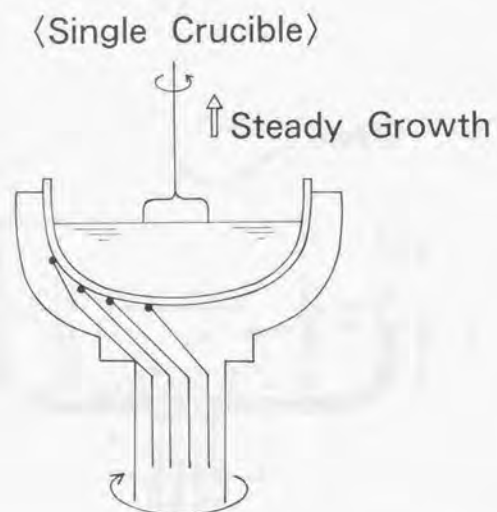
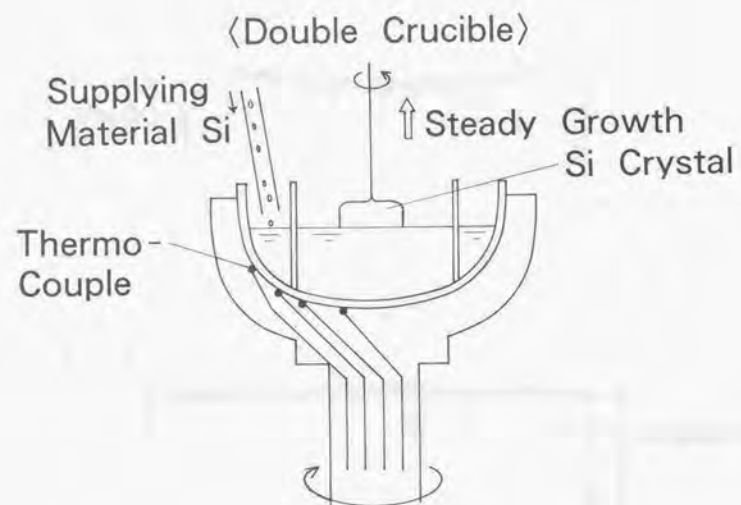


図2.4.2 結晶成長をしながらの石英ルツボ外面の温度測定状況の概念図

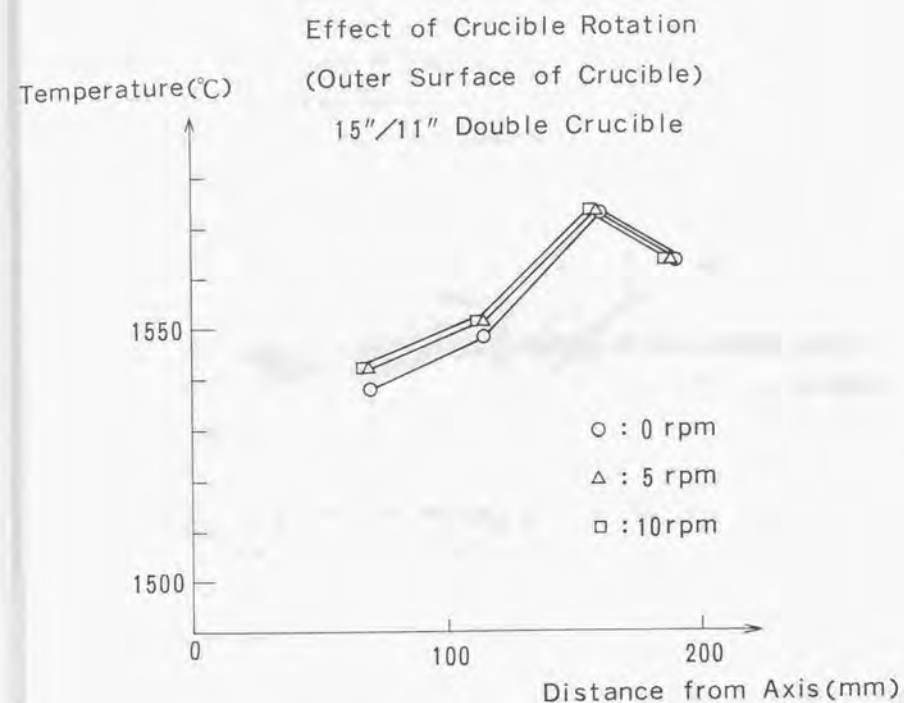


図2.4.3 石英ルツボ外面温度のルツボ回転数依存性

石英ルツボ自身温度変化に鈍感な材質であるし、内部のメルトの温度変化の影響をあまり受けないことを示していると考えられる。これから、通常の回転させている条件下では、メルトと石英ルツボの界面ではなく、石英ルツボ外面の温度を測定値で固定する方が妥当でありまた、現実に近い境界条件であると言える。

しかし、無回転の時だけ若干異なっている。これを解釈するに、ルツボ回転が無い時の、メルト対流の非軸対称性が考えられる。いわゆる片流れのような現象がおきて、メルトの温度分布が回転のある時と比べて大きく異なっているためではないかと思われる。片流れの報告は他にもあり<sup>12)</sup>、また、著者の行ったメルトの温度測定実験の際、ルツボ回転が無いと著しく軸対称的な温度分布が崩れるという経験とも矛盾しない。同時に前節でも述べたように、温度振動現象が非常に増幅されてくるので、異なった伝熱状態になっていると考えられる。

#### <2>ルツボ外面温度

ここでは、通常のシーディング、肩部形成の工程を経て、直径5インチの結晶を定常的に引き上げている状態における、ルツボ外面温度をとらえる。

二重ルツボを使用しているときは、内外ルツボの隙間に原料の多結晶シリコンを供給している。つまり温度は、その定常引き上げ状態の時に測定した。

結果を図2.4.4に示す。外ルツボ16インチ/内ルツボ12インチの二重ルツボの場合と16インチの単一ルツボの場合を併せて示してある。この温度分布（正確にはこの実験結果をフィッティングする曲線の関数式）が数値計算をする際の境界温度条件となる。

その他ルツボ径の異なる場合についての結果などは、付録1（メルト熱流動に関するその他の結果）において述べる。

### (3) 数値解析

#### (3-1) モデル化

流れの可視化実験<sup>12)</sup>からシリコンメルトの流動状態は、非常に複雑で3次元的でかつ非定常であることがわかってきている。しかし、それらを全て細かくシミュレーションするためには、膨大な数の3次元メッシュ及び、微小な時間刻みを用いるNavier-Stokes方程式の直接シミュレーションが必要である。と

Temperature(°C)

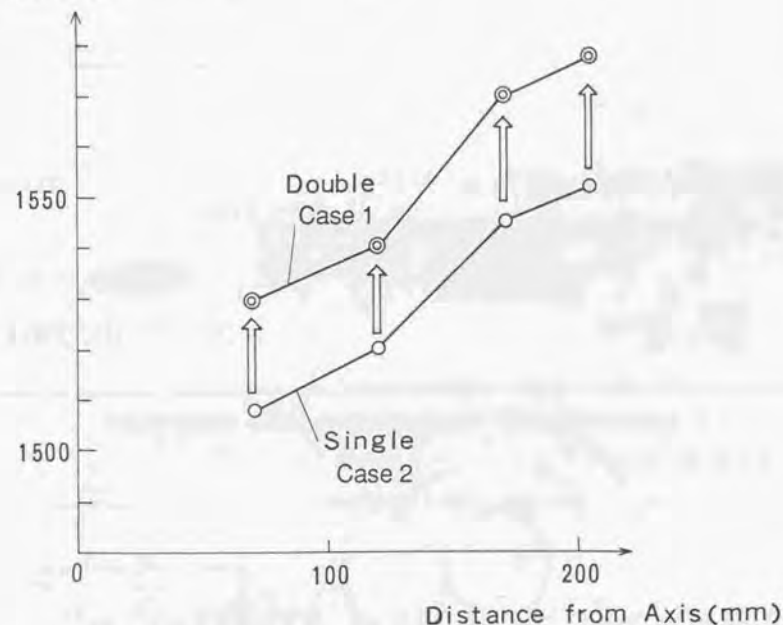


図2.4.4 外ルツボ16インチ（内ルツボ12インチ）の場合の石英ルツボ外面温度の測定結果

こみが、適当なコストの下でそのような研究を進めるのは非常に困難であり、微小な渦流などを十分捕捉してシミュレーションするのはまだ難しい状況にある。

しかし、前節での温度測定実験から、激しい温度振動をするにもかかわらず、その平均温度は、比較的安定していることがわかってきた。よって、ここではその時間平均値のみに着目し、またその時間平均的な流動状態は2次元軸対称乱流であると仮定し、LaunderとSpalding<sup>12,13)</sup>により開発された $k-\epsilon$ モデルが近似的に適用できると見なした。この近似の状況を図2.4.5にて模式的に説明した。そして、後の物質移動現象にとって重要な渦動粘性係数の値及び分布を調べることに主眼をおいてシミュレーションをおこなうことにする。

### 〔3-2〕支配方程式

計算に用いた支配方程式を以下に示す。

2次元軸対称定常流の場合の質量保存式として、次式を用いた。

$$\frac{\partial(ru)}{\partial r} + r \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \quad (2.4.1)$$

ここで、各記号及び座標系の取り方は、 $r$ は中心軸からの距離、 $z$ は結晶界面位置を $z=0$ とし、下向きを正に取っている。

$r$ 方向の速度 $u$ 、 $z$ 方向の速度 $w$ に関する運動量方程式として次式を用いた。

$$\rho \frac{\partial(ruw)}{\partial r} + \rho r \frac{\partial(uw)}{\partial z} = \rho v^2 - r \frac{\partial p}{\partial r} - \rho(v_r + v_z) \frac{u}{r} + \rho(v_r + v_z) \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial u}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right\} \quad (2.4.2)$$

$$\rho \frac{\partial(ruw)}{\partial r} + \rho r \frac{\partial(ww)}{\partial z} = r \rho g \beta (\bar{T} - T) - r \frac{\partial p}{\partial z} + \rho(v_r + v_z) \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial w}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \right\} \quad (2.4.3)$$

$\theta$ 方向の速度 $v$ についての運動量方程式は、2次元軸対称性から次式を用いた。

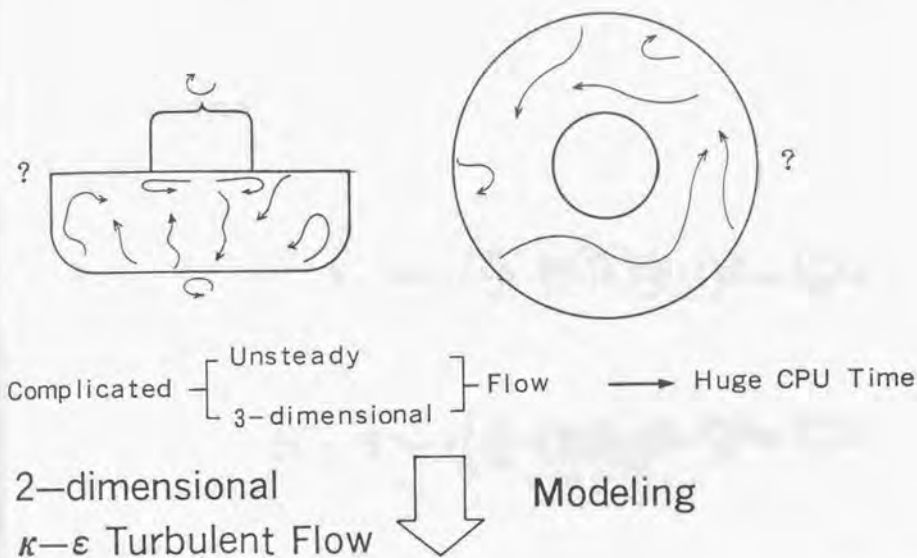


図2.4.5 メルト流動シミュレーションの二次元軸対称近似化の状況



$$\rho \frac{\partial(ruv)}{\partial r} + \rho r \frac{\partial(vw)}{\partial z} = -\rho uv - \rho(v_i + v_{ij}) \frac{v}{r} + \rho(v_i + v_{ij}) \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial v}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right\} \quad (2.4.4)$$

乱流モデルのパラメーターである、 $k$  (乱流エネルギー) 及び、 $\varepsilon$  ( $k$  の粘性消散率) に対しては、ごく一般的な次式を用いた。

$$\rho \frac{\partial(ruk)}{\partial r} + \rho r \frac{\partial(wk)}{\partial z} = \frac{\rho v_i}{\sigma_k} \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial k}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 k}{\partial z^2} \right\} + r \rho v_i G - r \rho \varepsilon \quad (2.4.5)$$

$$\rho \frac{\partial(rue)}{\partial r} + \rho r \frac{\partial(w\varepsilon)}{\partial z} = \frac{\rho v_i}{\sigma_\varepsilon} \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial \varepsilon}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right\} + r C_1 \rho v_i \frac{\varepsilon}{k} G - r C_2 \rho \frac{\varepsilon^2}{k} \quad (2.4.6)$$

そして、この  $k$  と  $\varepsilon$  を用いて、渦動粘性係数  $\nu_t$  を次のように表現するのが、 $k-\varepsilon$  モデルである。

$$\nu_t = C_D \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (2.4.7)$$

この  $\nu_t$  を (2.4.2) ~ (2.4.4) 式に用いるのである。

ここで、各定数パラメーターは、表 2.4.1 に示すように一般的な推定値を用いる。

また、乱れの生成項である  $G$  に対しては、2次元軸対称の場合の次式を用いた。

$$G = 2 \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial r} \right)^2 + \left( \frac{u}{r} \right)^2 + \left( \frac{\partial w}{\partial z} \right)^2 \right\} + \left( \frac{\partial w}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial z} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r} \right)^2 \quad (2.4.8)$$

この項に関し、浮力の影響を加味した次式

表 2.4.1  $k-\varepsilon$  乱流モデルの各パラメータ値

$\sigma_{k1}$	$\sigma_{\varepsilon1}$	C1	C2	$C_D$
1.0	1.3	1.44	1.92	0.09

表 2.4.2 反復計算 (不足緩和法) における各変数の緩和係数値

u	v	w	P	T	k	$\varepsilon$	$\nu_t$
0.5	0.5	0.5	0.8	0.5	0.8	0.8	0.7

$$G = G + \beta g \frac{\partial T}{\partial z} \quad (2.4.9)$$

を用いる場合もあるが、そのモデル化は物理的な根拠を持って構成するには困難な点もあり、また後でわかったことだが、このCZの系では式(2.4.9)を採用してもあまり式(2.4.8)式の場合と計算結果に差がなかったため、より基本的な式(2.4.8)式のままにとどめておくことにした。

温度に関してだが、液体金属の乱流に関する熱輸送の扱いは簡単でなく、多くの研究者がそのモデル化に取り組んでいる<sup>[2,9]</sup>。温度振動を直接解く手法も開発されてきており、またCZ法の系に適用されてもきている<sup>[2,9]</sup>が、今回の計算では、そのモデル化手法の開発が主眼ではないので燃焼乱流等で広く用いられている基礎的な近似法を採用した。

$$\rho C_p \frac{\partial(ruT)}{\partial r} + \rho C_p r \frac{\partial(wT)}{\partial z} = \rho C_p (k_r + k_t) \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right\} \quad (2.4.10)$$

ここで、 $k_t$ は渦熱拡散係数で、これについては次式のように単純にモデル化することにした。

$$k_t = \frac{\nu_t}{Pr_t} \quad (2.4.11)$$

ここで

$\nu_t$ : 渦動粘性係数

$Pr_t$ : 乱流プラントル数(ここでは、0.8)

壁面での速度、乱流エネルギー、および乱流エネルギー消散率の境界条件としては、 $k = \epsilon$  乱流モデルのテキスト<sup>[2,10]</sup>等になって設定することにした。

まず壁面での速度の境界条件として、その壁面摩擦係数に關し次の対数壁関数を適用した。但し、流れが低速の場合は単純なNewton則(層流近似)として扱っている。

$$y^+ \geq 11.63 \text{ の時 } \tau = \left\{ \frac{(C_D \frac{1}{2} k)^{\frac{1}{2}}}{u^+} \right\} u \quad (2.4.12)$$

$$\text{但しここで、 } u^+ = \frac{\log(Ey^+)}{\kappa} \quad E = 9.0 \quad \kappa = 0.435$$

$$y^+ < 11.63 \text{ の時 } \tau = \nu \frac{u}{y} \quad (2.4.13)$$

ここで  $y^+$  は、壁面での局所レイノルズ数で、以下の式で定義される。

$$y^+ = \frac{(C_D \frac{1}{2} k)^{\frac{1}{2}} y}{\nu} \quad (2.4.14)$$

$k$  の境界条件としては、壁面のセルにおいて生成項を修正し、以下のように設定し直す。

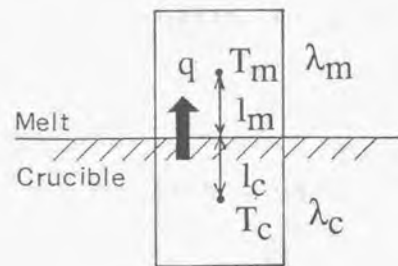
$$\nu_t G = (C_D \frac{1}{2} k)^{\frac{1}{2}} \left( \frac{u}{u^+} \right) \left( \frac{u}{y} \right) \quad (2.4.15)$$

$$\epsilon = (C_D \frac{3}{2} k^{\frac{1}{2}} u^+ y) k \quad (2.4.16)$$

$\epsilon$  の境界条件としては、壁面のセルにおいてその値を代数的に以下の値を与える。

$$\epsilon = \frac{C_D \frac{3}{2} k^{\frac{3}{2}}}{\kappa y} \quad (2.4.17)$$

また当然ながら実験によって測定したルツボ外周面の温度を、温度境界条件として用いた。この際、メルトとルツボの界面では、本来ならメルトへの熱流束として、乱流による熱伝達促進の効果を加味すべきであるが、シリコンメルトはその熱伝導率が非常に高いので、壁面近傍のように流れが低速の部分ではほとんどが熱伝導によってまかなわれていると近似し、ここでは、図2.4.6に示すように、熱伝導率の異なるメテア間熱伝導問題として解きその熱流束を求めた。厳密を期すには乱流熱流束に関する整理式



$$\frac{l_c + l_m}{\lambda_{\text{eff}}} = \frac{l_c}{\lambda_c} + \frac{l_m}{\lambda_m}$$

$$\therefore q = \lambda_{\text{eff}} \frac{T_c - T_m}{l_c + l_m}$$

$$= \frac{1}{\frac{l_c}{\lambda_c} + \frac{l_m}{\lambda_m}} (T_c - T_m)$$

図2.4.6 石英ルツボ／メルト界面での熱輸送の扱い

などを利用すべきである<sup>[27]</sup>。

またメルトの自由表面及びルツボの上端からの放射による放熱を考慮した。この際、単純に雰囲気温度を仮定し、次式のように放射熱流束を求めた。

$$q_{\text{top}} = \epsilon_m \sigma (T_m^4 - T_a^4) \quad (2.4.18)$$

$$q_b = \epsilon \sigma (T_c^4 - T_a^4) \quad (2.4.19)$$

この雰囲気温度  $T_a$  は、詳細は避けるが、メルト上の構造物（円盤状の輻射板など）の予備的な温度測定結果から決定している。

また、メルト自由表面でのマランゴニ効果は無視した（注1）。

メッシュは、スタガードメッシュを用い、その圧力解法として、PatankarによるSIMPLEアルゴリズム<sup>[24]</sup>を用いた。各変数の反復計算は、表2.4.2に示す緩和係数を用いて、陰解法不足緩和法で解いた。

計算に使用した、各物性値を表2.4.3に示す。特にシリコンメルトの熱物性値は最新のものを<sup>[25][26]</sup>を用いた。

図2.4.7に使用したメッシュを示す。外ルツボ1.6インチ／内ルツボ1.2インチの二重ルツボで結晶径5インチの場合をモデル化した。

計算の初期値としては、温度場としては別に解いておいた熱伝導解を用い、速度の初期値は全ての速度成分をゼロと置いた。収束判定条件としては、等温線や速度ベクトルをあるスweep毎にプロットし、変動がほとんどなくなることを確認し、数値的には温度については1スweepの変動値が最大温度差の1/1000以下になること、また速度については残差総和が基準値（想定される密度差対流から計算）の1/1000以下になることを条件とした。

#### 〔注1〕 マランゴニ対流の可能性

シリコンオイル等でよく観察される温度勾配による表面張力差対流がシリコンメルトの場合でも現実に発生しているかについては、著者は否定的な考えを持っている。かつて、図2.4.8のような実験をしたことがある。引き上げ機の上方に設置されている真空用のポートからルツボの中の溶けたシリコン融液のなかへ粒状多結晶シリコン原料を数十粒投入してみた。多結晶原料は、密度が融液より小さいためいわば、湯に入れた氷の粒のごとく表面に浮いたまま次第に溶けてなくなる。もし激しくマランゴニ対流が発生するのならば、急激に温度の低下した



表2.4.3 数値計算に用いた各物性値

Silicon Melt:

Density $\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$2.53 \times 10^3$
Viscosity $\mu$ (kg/ms)	$7.0 \times 10^{-4}$
Dynamic Viscosity $\nu$ (m <sup>2</sup> /s)	$2.77 \times 10^{-7}$
Volumetric Expansion Coefficient $\beta$ (1/°C)	$1.41 \times 10^{-5}$
Specific Heat $C_p$ (J/kg°C)	$9.68 \times 10^2$
Crystal Temperature $T_m$ (°C)	1410
Prandtl Number $Pr$	0.012
Thermal Conductivity $\lambda_m$ (W/m°C)	56.0
Emissivity $\epsilon_m$	0.3
Electrical Conductivity $\sigma$ (S/m)	$1.33 \times 10^6$
Magnetic Permeability $\mu_m$ (H/m)	$4\pi \times 10^{-7}$

Quartz Crucible:

Thermal Conductivity $\lambda_c$ (W/m°C)	3.0
Emissivity $\epsilon_c$	0.6

Dopant Atoms:

Diffusivity in Silicon Melt $D$ (m <sup>2</sup> /s)	$5.0 \times 10^{-8}$
---	----------------------

Oxygen Atoms:

Diffusivity in Silicon Melt $D$ (m <sup>2</sup> /s)	$5.0 \times 10^{-8}$
---	----------------------

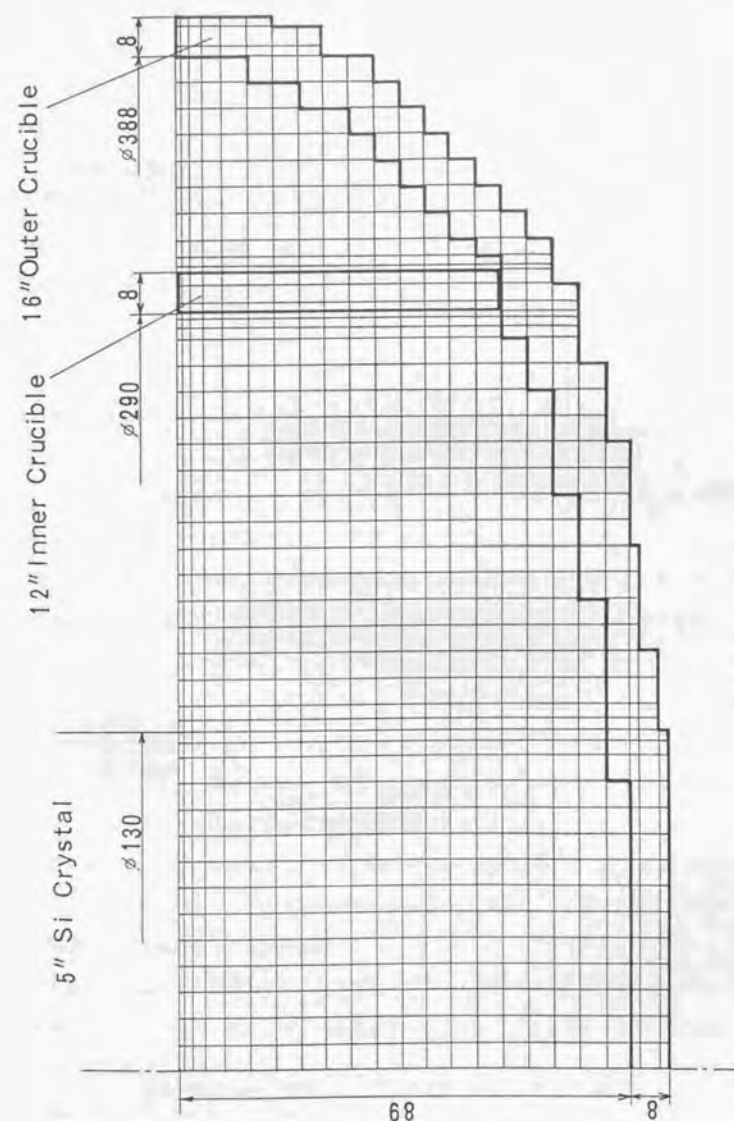


図2.4.7 計算に使用したメッシュ

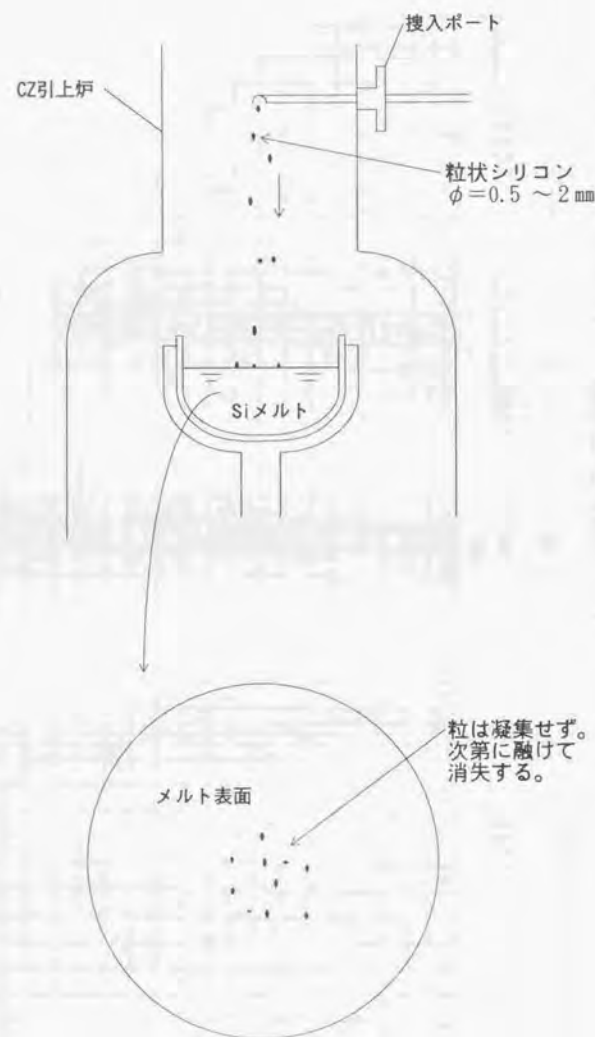


図2.4.8 メルト液面のマランゴニ対流に関する観察実験

粒が落ちた部分を目指して周囲のメルトが集まってくるはずである。そして、落とされた粒状シリコンは凝集するはずである。しかし、何回繰り返してもこのようなことは、発生しなかった。直径0.5 mm以下の小さい粒でおこなっても状況は同じであった。凝集することなく、そのまま漂いながら次第に溶けて消失するのみであった。

この件に関し、メルトの表面からはSi-Oの蒸気が常に激しく発生しているの、その表面濃度勾配とキャンセルしてマランゴニ対流が抑制されているという説が出されている<sup>[2-12]</sup>。

いずれにしろ、マランゴニ対流は発生しているとしても結晶界面近傍のメニスカス部分や石英ルツボとのメニスカス部分など非常に局所的に発生していると著者は考えている。学会論文誌などにおいても、数値解析の際にマランゴニ効果を加味する研究者もいれば<sup>[2-12]</sup>、考慮しない研究者も存在し<sup>[2-14]</sup>結論が出るにはまだ時間がかかるようである。

### (3-3) 計算結果及び実験との比較

前節で行った温度測定実験である、外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボで結晶の存在していない場合と同じ条件での数値計算を行い、両者を比較した。

前節にて定式化した $k-\epsilon$ 乱流モデルでの計算結果を図2.4.9と図2.4.10に示す。得られた等温線はメルトの流れにあまり依存せず大きくゆがんでいない状況が再現できている。この点で温度測定結果と定性的に一致する。

小林らによる、石英を除いたメルト部分だけの $k-\epsilon$ 乱流モデルでの解析でも、同様な報告がある<sup>[2-14]</sup>。今回、石英を連成させた解析でも、定性的に現実をよく再現していることがわかった。

しかし定量的に測定した温度と比較した場合(図2.4.9参照)、図2.4.11に示す熱伝導モデル(これは、熱伝達が熱伝導のみによってなされると大胆に仮定したモデル)のほうが、 $k-\epsilon$ 乱流モデルよりデータと良く整合する。この傾向は単ルツボの場合に、より顕著であった。図2.4.12に単ルツボの場合の $k-\epsilon$ 乱流モデルにより得られた温度場と実験値との比較を、また図2.4.13に単ルツボの場合の熱伝導モデルと実験値との比較を示す。

この点に関し本研究では $k-\epsilon$ 乱流モデル内の各数値パラメータとして、ごく標準的な値を用いているが、このCZ法の流れに対し特別に各パラメータを若干チューニングすべきなのかもしれないと考えている。しかし、 $k-\epsilon$ 乱流モデル内のパラメータは互いにリンクしているので、根拠を持ってその値を操作することは容易ではない。他の乱流モデル手法も含めて今後検討すべきなのであろう。



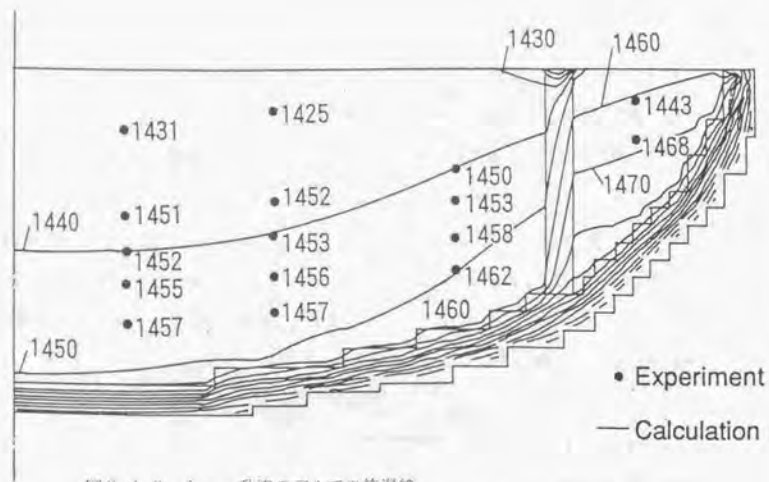


図2.4.9  $k-\epsilon$  乱流モデルでの等温線  
(外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボ)

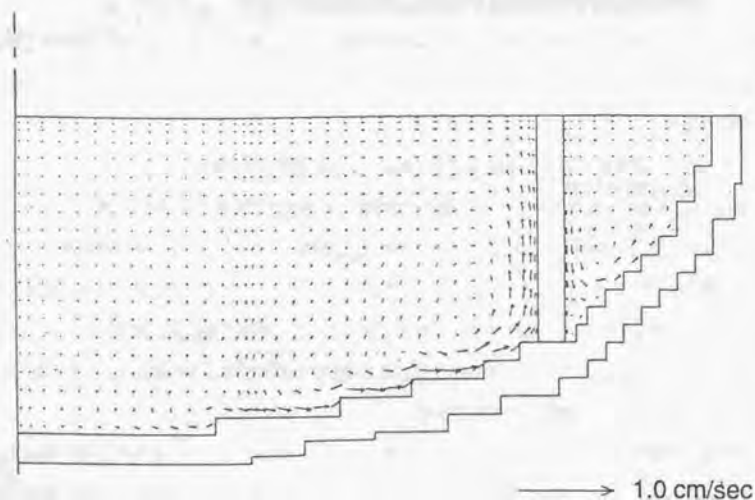


図2.4.10  $k-\epsilon$  乱流モデルでの速度ベクトル  
(外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボ)

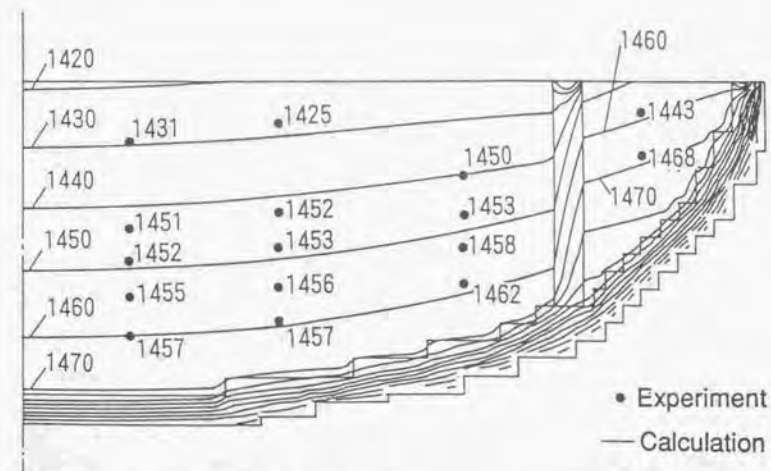


図2.4.11 熱伝導モデルでの等温線  
(外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボ)

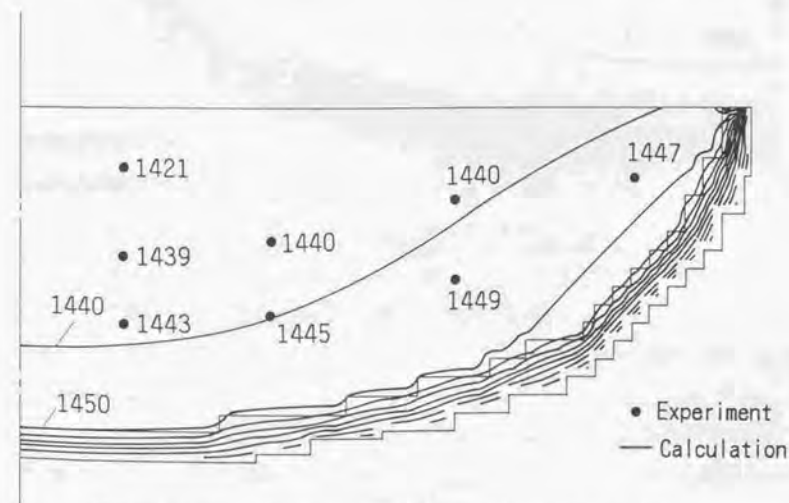


図2.4.12  $k-\epsilon$  乱流モデルでの等温線 (1.6インチの単一ルツボ)



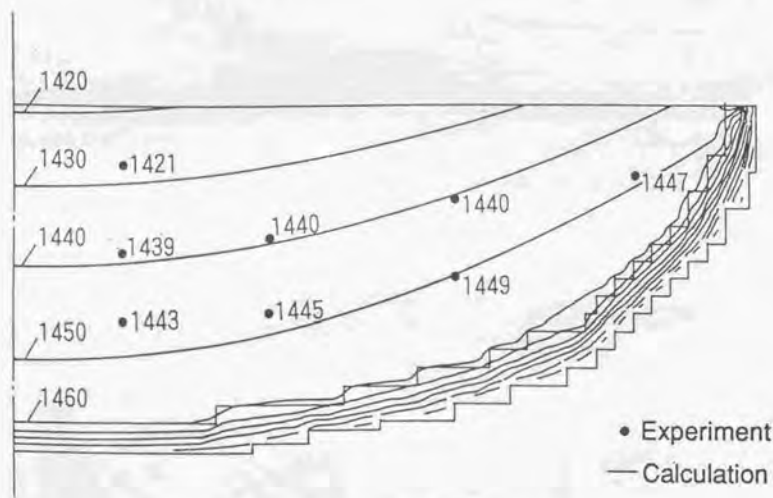


図2.4.1.3 熱伝導モデルでの等温線 (1.6インチの単一ルツボ)

次にこの  $k = \varepsilon$  乱流モデルを結晶成長時のシミュレーションに適用した結果を報告する。

### 3-4) $k = \varepsilon$ 乱流モデルの結晶育成時への適用

#### <1>温度分布

ルツボ回転 5 rpm、結晶回転 15 rpm の場合の計算結果を図 2.4.1.4 に示す。内外ルツボの隙間に供給された原料のシリコンは、メルトから熱を奪うので、ここでは、その等価な熱流束を考慮した。

やはり、この場合でも等温線が水平的に配列していることがわかる。ただし、若干、結晶下にて下向きの流れにて等温線が下に追いやられたような形になっている。

石英製内ルツボ自身内に半径方向に 10～20 度の温度落差がついていることがわかる。また、両ルツボの上端は、放射によって強く冷却されており、メルト温度にも若干影響を与えていることがわかる。つまり石英部の放射放熱はメルトの温度に影響を与えているのである。

#### <2>速度分布

得られた速度ベクトルを図 2.4.1.5 に示す。結晶直下のメルトは結晶回転により吹き飛ばされていることがわかる。その結晶回転による強制対流の層の厚みは約 2 mm で、中心を結晶端の下に持つ偏平な渦流を形成している。

また結晶の下方には、結晶面で冷やされたメルトの下向きのバルク流れが存在していることがわかる。そしてこの流れはルツボ底に達した後、その一部は結晶端部少し外側の位置に対応するルツボ底位置から上昇し、結晶端部から内側に向かう流れとなり、再び結晶下からの下降流に合流する。図 2.4.1.5 の速度ベクトルのうち結晶近くの部分を流線に直した図を図 2.4.1.6 に示す。

また結晶近傍以外の部分は、流れが意外と抑制されており、ルツボの内面に弱いルツボ回転による強制対流が残るのみである。

この流れのパターンは、マランゴニ対流を無視した Langlois の層流非定常モデルによる解析結果<sup>[2][3][6]</sup>に非常に似ている。Langlois の計算結果 (流線と等温線) を図 2.4.1.7 に示す。結晶下の偏平な渦流や結晶下からルツボ底に向かい、その後ルツボから離れ結晶端へ向かう上昇流も著者の計算と同様に得られていることがわかる。

結晶下以外の部分は、回転系独特のダンブ効果によって、縦断面内の対流が抑制されているように思わ

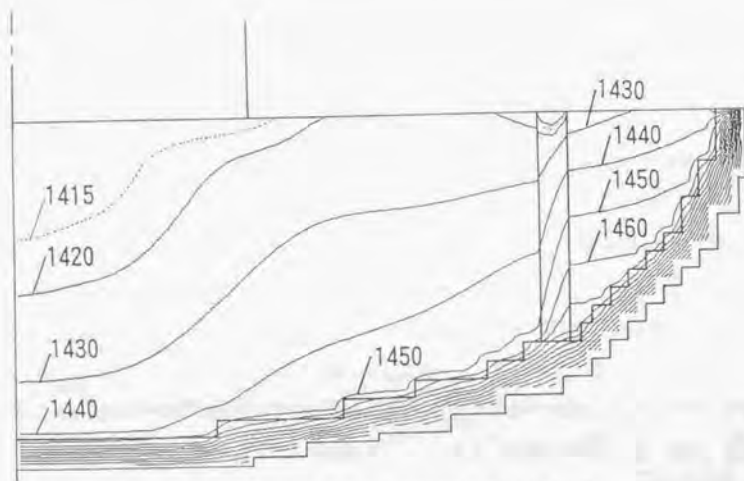


図2.4.14  $k-\epsilon$  乱流モデルでの結晶育成時の等温線  
(外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボ)

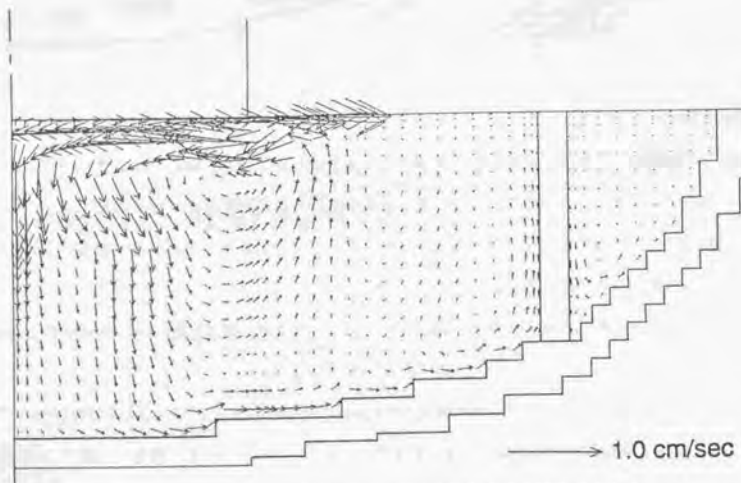


図2.4.15  $k-\epsilon$  乱流モデルでの結晶育成時の速度ベクトル  
(外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボ)



図2.4.16 結晶界面近傍の流線

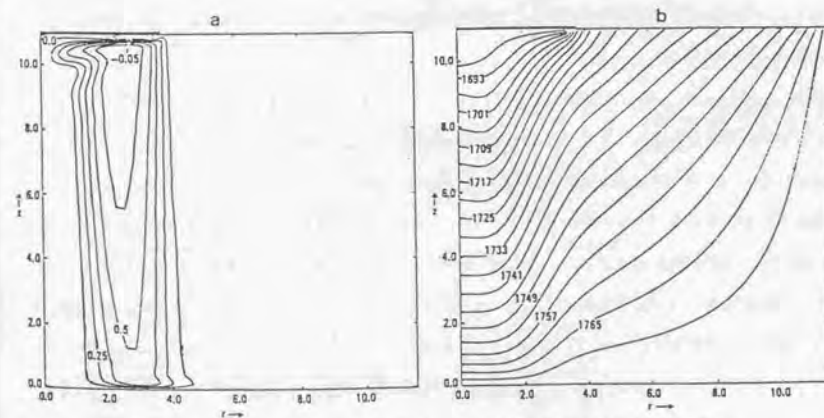


Fig. 5. The flow field with thermocapillarity turned off. a. Streamlines. b. Isotherms.

図2.4.17 Langloisらの層流非定常モデルによる解析結果<sup>[2-16]</sup>



れる。これは、回転系からメルトの流れを見た場合、一定速度で回転しているメルトにおいては、その半径方向にメルトのある部分が動いたとすると、コリオリ力と角運動量保存則により、半径方向（外から内／内から外の方共に）の速度変動が抑制されるためである。これに依存して連続の式の関係から鉛直方向の速度成分も小さくなる。これらの事情は運動方程式と角運動量保存則式から数式的に考察すると一層よく理解される。それを（注2）に示す。

以上のダンブ効果がよく発揮されるのは、このメカニズムからわかるように剛体回転がよく成り立っている、結晶から遠い部分である。

上述した一見特異な結晶下の流れパターンは、Carruthersの実験<sup>(17)</sup>で報告されているTaylor-Proudmanのセルの効果が現れているものと考察している。

Carruthersの整理によると、さまざまな結晶回転／ルツボ回転の組合せの時のメルト対流のパターンは、図2.4.18のようにになっている。このうち、実際のCZの系に近いのは、彼の文献中のFig. 5（v i）の場合であり、これは、著者の解析の図2.4.15のパターンと同一である。

また図2.4.15に戻り、内外ルツボの隙間部を見ると、弱い循環渦が存在していることがわかる。

$<3>k$ 、 $\epsilon$ 及び $\nu$ の分布

図2.4.19に乱流エネルギー $k$ の分布を示す。

$k$ は最も流れがゆがむ、つまり流れにせん断力のかかる部分である結晶界面下で最大値を持つ。次に大きい値を持つ部分はルツボとの界面である。その他の部分では、あまり分布を持たず、流れの抑制とともに $k$ の値も中程度の値で占められている。

図2.4.20に $\epsilon$ （ $k$ の粘性消散率）の分布を示す。 $k$ の分布とはほぼ同様な分布状況となる。そして、この $k$ と $\epsilon$ のバランスの結果（2.4.7）式に基づいて、 $\nu$ の分布をみると、図2.4.21のようになる。

結晶界面や、ルツボの内面では、 $k$ は大きい値をもつが、 $\epsilon$ も大きいので、結果的に $\nu$ は、そこでは、最大値を持たず、その他のメルト中心部で最大値を持っていることがわかる。つまり、結晶界面や、ルツボの内面では、流れの乱れは大きいといえるが、粘性の内部摩擦仕事として、消費される分も多いので、結果的に渦粘性はそれほど大きな値を持たず、むしろ平均流速のあまり大きくないメルト中心部で渦粘性は、極大値をもつのである。

そして $\nu$ のオーダーを調べてみると、ルツボ壁面や結晶界面下を除いた部分で、分子粘性の2.0倍から8.0倍となっている。これは具体的な値に直すと、 $5 \times 10^{-6}$ から $2.2 \times 10^{-3}$ （ $\text{m}^2/\text{s}$ ）の値となり、2.3の（3）において、基礎式から試算した $\nu$ のオーダーリングの値（ $10^{-3} \sim 10^{-1}$ のオー

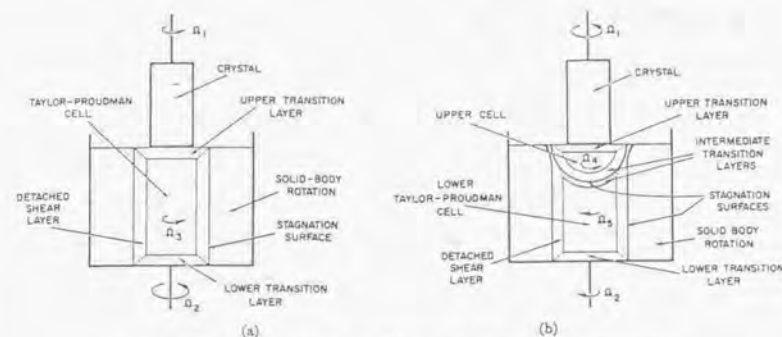


Fig. 1. Theoretical Taylor-Proudman cell shapes: (a) isorotation, (b) counterrotation.

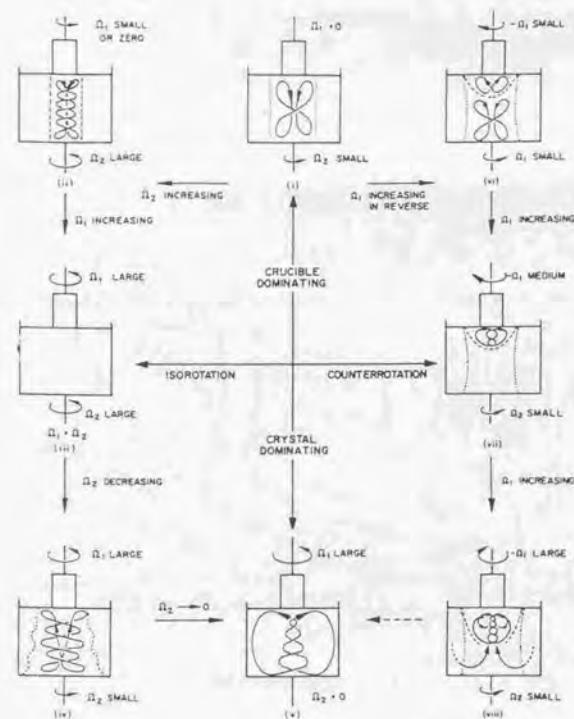


FIG. 5. The variation of flow patterns with the relative rotation directions and magnitudes of crystal and crucible.

図2.4.18 Carruthersの実験<sup>(17)</sup>により観察されたメルト対流のパターン



Distribution of  $k$  (Turbulence Kinetic Energy) ( $\text{m}^2/\text{sec}^2$ )

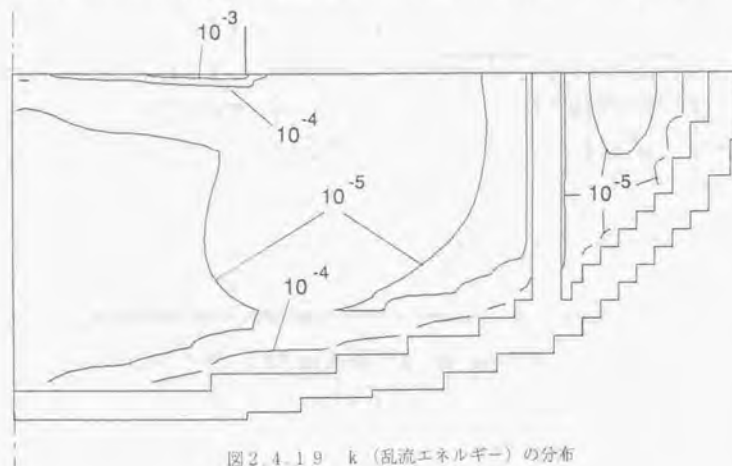


図2.4.19  $k$  (乱流エネルギー) の分布

Distribution of  $\epsilon$  (Dissipation Rate of  $k$ ) ( $\text{m}^2/\text{sec}^3$ )

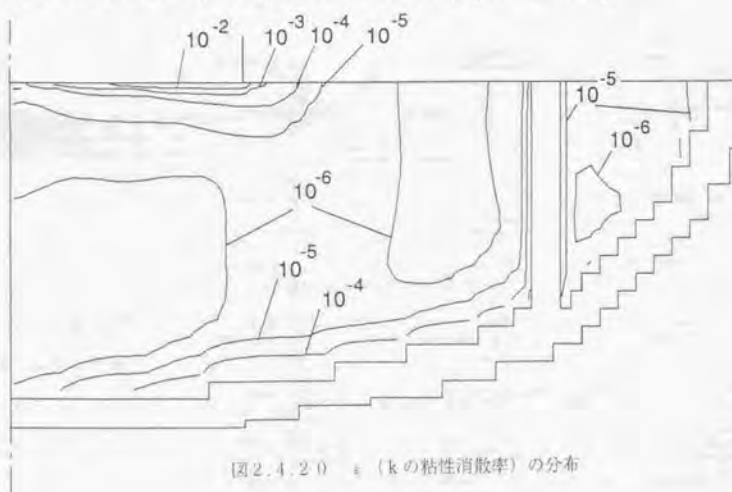
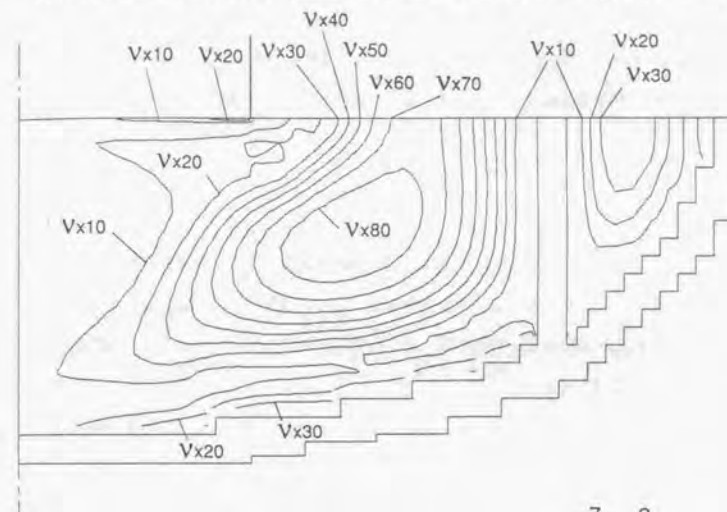


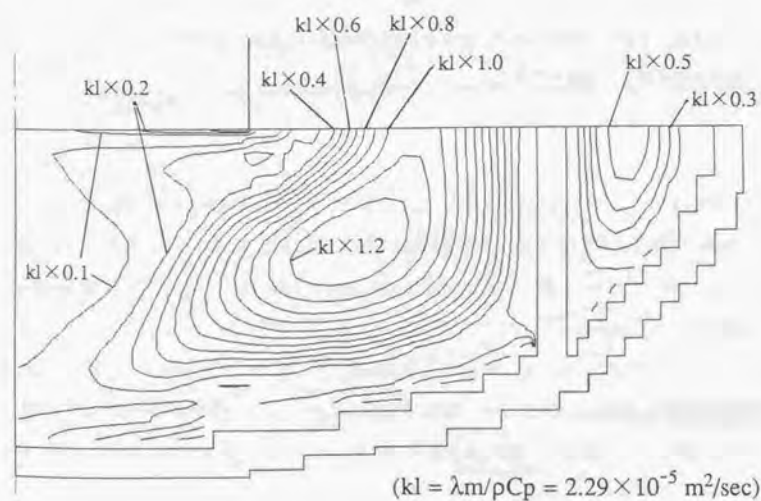
図2.4.20  $\epsilon$  ( $k$  の粘性消散率) の分布

Distribution of  $V_t$  (Turbulent Kinematic Viscosity) ( $\text{m}^2/\text{sec}$ )



Molecular Kinematic Viscosity  $\nu = 2.76 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{sec}$

図2.4.21  $\nu_t$  (渦動粘性係数) の分布



( $kl = \lambda m / \rho C_p = 2.29 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{sec}$ )

図2.4.22  $k$  (高熱拡散率) の分布

ダー)の若干小さい部分に位置することになるが、大きくは異ならず、受け入れられない結果ではない。  
この $\nu_t$ のオーダーが物質移動にとって重要であり、それに関する考察は次章にて述べる。

<4> $k_t$ の分布

図2.4.22に式(2.4.11)に基づいて計算した、過熱拡散率( $k_t$ )の分布を示す。当然であるが、 $\nu_t$ に比例した分布を持つ。物性値としての熱拡散率は、 $2.29 \times 10^{-5} \text{ (m}^2/\text{s} \cdot \text{c)}$ なので、式(2.4.11)により過熱拡散率を評価しても、ほぼ物性値と同じオーダーであるが、高いところでは約2倍の値を持つようになる。

改めて、乱流計算をしてなぜ温度分布が図2.4.14のように熱伝導的になるのかを考えると、以下の二つの要因が挙げられる。

(1) 結晶下以外の部分のメルト中心部で、回転系独特のダンプ効果により、その平均流速(バルクの流れ)が低く抑えられているので、平均温度場を大きく歪める程のバルク流れの効果がない。

(乱流であるので、微小な渦流はある。)

(2) しかも、微小渦流の実質的效果を示す、渦動粘性がそこで非常に大きい値を持ち、そのため過熱拡散係数が2倍に上昇するので、ますます熱拡散効果が支配的な温度分布となり、バルク対流の効果を受けにくい状態となる。

(追加)

以上の事情は単一ルツボの場合も同様であった。参考のためその計算結果も示す。図2.4.23に単一ルツボの場合の温度分布を、図2.4.24にその速度ベクトルを示す。結晶下の流れパターンは二重ルツボの場合とほぼ同一であることがわかる。結晶から離れた地点では、ルツボ回転に従って剛体回転的にメルトが運動するので、鉛直断面内のダンプ効果が現れていることがわかる。

図2.4.25~2.4.27に $k_t$ 、 $\epsilon$ 、および $\nu_t$ の分布を示す。単一ルツボの場合も二重ルツボと同レベルの渦動粘性係数 $\nu_t$ を持つことがわかる。図2.4.28はこの $\nu_t$ によって計算した過熱拡散係数 $k_t$ の分布を示す。これにより、結果的に実効的な熱拡散係数 $k_t + k_m$ は $k_t$ の約2倍となり得ることがわかる。

(注2) 回転系の対流ダンプ効果

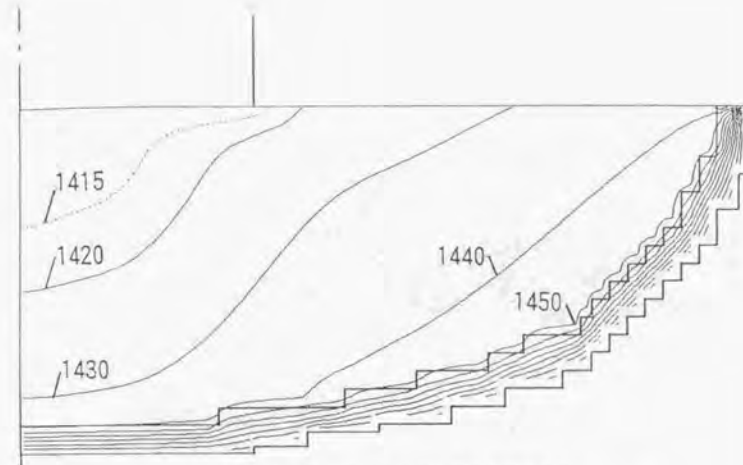


図2.4.23 単一ルツボの場合の温度分布

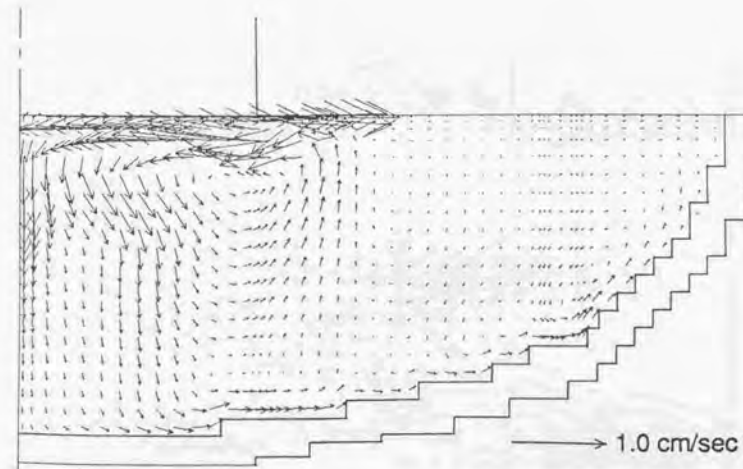


図2.4.24 単一ルツボの場合の速度ベクトル

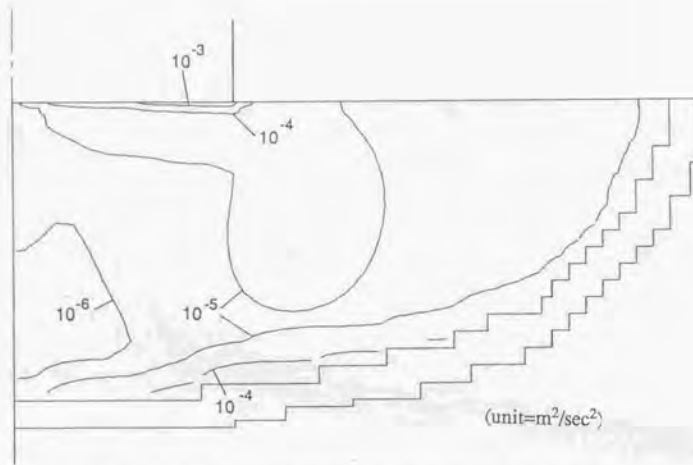


図2.4.25 単一渦ポの場合の  $k$  (乱流エネルギー) の分布

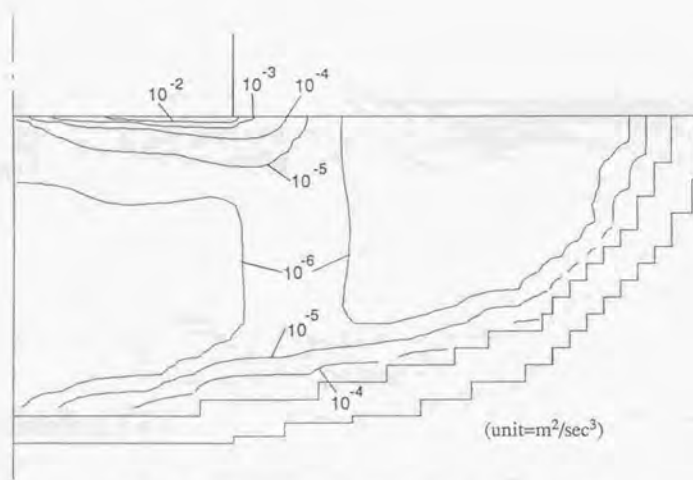


図2.4.26 単一渦ポの場合の  $\varepsilon$  ( $k$  の粘性消散率) の分布

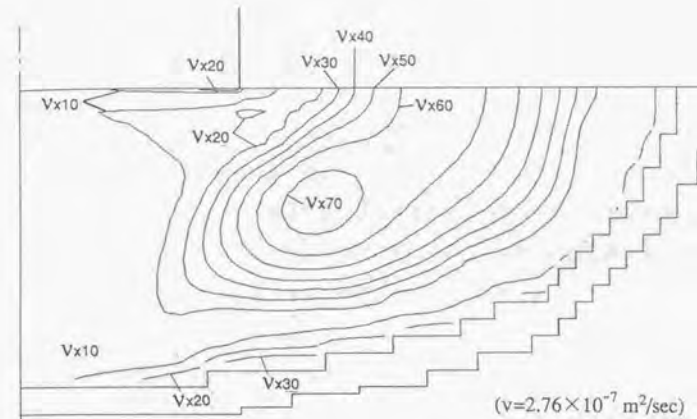


図2.4.27 単一渦ポの場合の  $\nu$  (渦動粘性係数) の分布

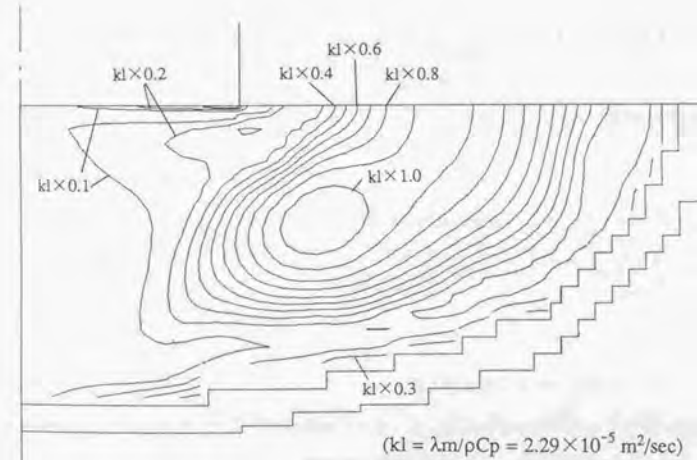


図2.4.28 単一渦ポの場合の  $k$  (渦熱拡散率) の分布



いわゆる定常のNavier-Stokes方程式を回転系からみた形に書き直すと次式となる<sup>2.4.2.1</sup>

$$\mathbf{u} \cdot \Delta \mathbf{u} = -\frac{\nabla P}{\rho} - \Omega \times (\Omega \times \mathbf{r}) - 2\Omega \times \mathbf{u} + \nu \nabla^2 \mathbf{u} \quad (2.4.2.0)$$

ここで、 $\Omega$ は回転角速度ベクトルで回転軸方向（ここでは、鉛直方向あるいは $z$ 軸方向）を向いているベクトルである。 $\Omega = (0, 0, \omega)$ とも書ける。 $\omega$ は、ここで想定している $z$ 軸回りの回転角速度である。いま、 $\omega > 0$ としても一般性を失わない。

さて上式右辺第2項の $-\Omega \times (\Omega \times \mathbf{r})$ はいわゆる遠心力項であり、通常剛体回転する流体中では、圧力分布とつりあいキャンセルされる方向に向かう量なので、ここではコリオリ力を表す第3項の $-2\Omega \times \mathbf{u}$ （ $=f_c$ とする）について考える。

$f_c$ 中の $\mathbf{u}$ はここでは、角速度 $\Omega$ で回転している系から見たときの相対速度であるため、もし流体全体が剛体回転しているならば、0となるベクトルである。

次に図2.4.2.9のような状況を考える。今、中心から $r$ だけ離れている部分にある流塊が回転速度 $\mathbf{v} = \mathbf{r} \times \Omega$ で剛体回転しているとす。次に何らかの要因で、 $r$ 方向外側に移動させられて、 $r + \Delta r$ の地点に滞在しようとしたとする。

回転物体に関しては、角運動量保存法則が成り立つので、この $r + \Delta r$ の地点に生ずる新しい回転角速度を $\mathbf{v}'$ とすると、

$$rv = (r + \Delta r)v' \quad (2.4.2.1)$$

よって、

$$v' = \frac{r}{r + \Delta r} v \quad (2.4.2.2)$$

次にこの時発生するコリオリ力を考える。

$f_c = -2\Omega \times \mathbf{u}$ の項の $\mathbf{u}$ としては、あくまでも回転系から見た相対速度つまり、剛体回転速度との差を意味しているから、今の場合の相対速度を $\mathbf{v}_{rel}'$ とすると

$$\mathbf{v}_{rel}' = \mathbf{v}' - (r + \Delta r)\omega$$

$$\Omega = (0, 0, \omega)$$

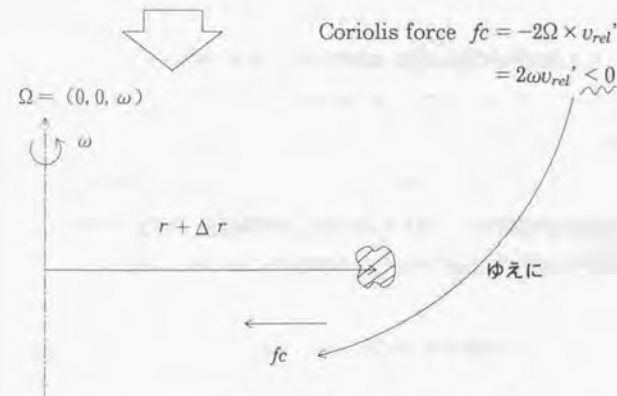
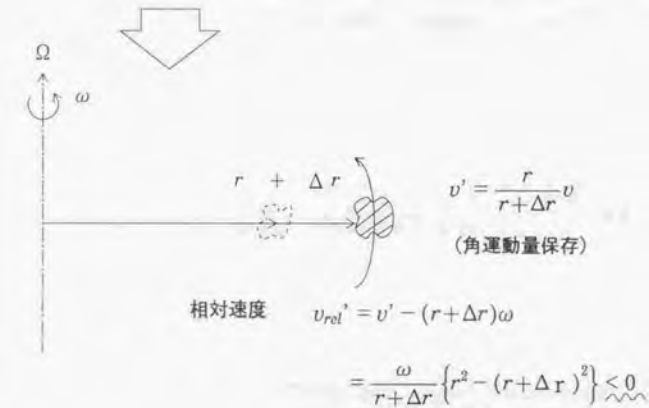
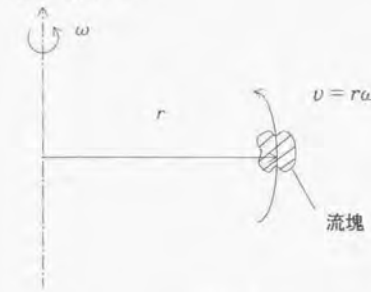


図2.4.2.9 回転運動する流塊に働くコリオリ力の特徴

$$= \frac{r}{r + \Delta r} v - (r + \Delta r) \omega \quad (2.4.23)$$

$v = r \omega$ であったことを代入すると、

$$v_{rel}' = \frac{\omega}{r + \Delta r} \left\{ r^2 - (r + \Delta r)^2 \right\} \quad (2.4.24)$$

今の場合 $\Delta r$ は正であるからこの $v_{rel}'$ の値は負となる。

よって、対応する相対速度ベクトル $u$ は、

$$u = (u_r, u_\theta, u_z) = (0, v_{rel}', 0) \quad (2.4.25)$$

また、

$$\Omega = (0, 0, \omega) \quad (2.4.26)$$

であるから、

$$f = -2\Omega \times u = 2\omega v_{rel}' \quad (2.4.27)$$

ここで、 $v_{rel}'$ は負の値であったから、 $f < 0$ つまり、コリオリ力は内向きとなる。これはこの流塊が動いて来た方向と逆行するので、流塊の動きを妨げるように作用する。

同様に流塊がある地点 $r$ から、何らかの要因で内側に動いて $r - \Delta r$ の地点に来た時も同様に議論でき、その場合は $f$ は外側に作用する。

以上のメカニズムにより、剛体回転、もしくはそれに近い回転運動をしている流体には本質的に半径方向の対流をダンブする作用があることがわかる。半径方向の対流がダンブされれば、質量保存から結果的に $z$ 方向の対流も抑制されることとなる。

(注3) シリコンメルトの体積膨張率 $\beta$ の値について

従来からシリコンメルトの体積膨張率 $\beta$ の値については、長年にわたる議論があり、それは $1.41 \times 10^{-5}$  (1/K)か、あるいは $1.41 \times 10^{-4}$  (1/K)のどちらかというものであった<sup>[2,20]</sup>。

1～2年前までは、どちらかというとして $1.41 \times 10^{-5}$ の方が一般的であり<sup>[2,16,20]</sup>、この研究分野で優れた研究を実施したNTT川・平田らのグループもその値を解析に用いていたので、本論文においてもそれを用いている。

しかし近年 $1.41 \times 10^{-4}$ の方が妥当ではないかという説が出され<sup>[2,21]</sup>、ジャーナル等においてもその値を採用する研究者も出現している。

またアルキメデス法にてシリコンメルトの温度による密度変化を実測する努力も佐々木ら<sup>[19,22]</sup>によってなされ、それによると融点近傍の低温部とそれ以外で体積膨張率は異なり近似的に次のデータにて整理できる。

$$1410^\circ\text{C} \sim 1430^\circ\text{C} \quad \beta = 7.6 \times 10^{-4}$$

$$1430^\circ\text{C} \text{以上} \quad \beta = 1.0 \times 10^{-4}$$

尚この値は佐々木らの密度の温度変化のグラフから著者が計算したものである。しかしこの融点近傍での非常に高い $\beta$ の値は現在でも議論を呼んでいる。

このように $\beta$ の値については上述した状況であり、高い $\beta$ の値を用いると著者がここに示した流れ・温度分布が異なってくる(密度差対流の効果が約1オーダー強くなる)可能性があることを記しておく。

#### (4) 数値解析のまとめ

二重ルツボ内のメルト対流解析の結果をまとめる。

<1>ルツボ外面の温度を測定し、数値解析の温度境界条件を得た。その温度はルツボ回転の影響をほとんど受けず、数値解析の境界条件として妥当であることがわかった。

<2>温度測定実験から得られた、流れの影響をあまり受けていないように見える水平的な等温線の配

列は、渦流効果を加味した $k-\epsilon$ 乱流モデルにて良く再現できた。しかし定量的な一致には到らず、パラメータチューニングが要される。

<3> 計算から $\nu_t$ のオーダーが得られ、その値は概ね、 $10^{-6}$ から $10^{-5}$  ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) のオーダーである。この値は乱流エネルギーの基礎式を用いた次元解析から得られたオーダーより若干小さいが、大きく異なっていたはいなかった。

その他この章では紹介しなかった多くの温度測定実験・数値解析を行った。付録1に主なものをまとめて記した。

#### 2-5 第2章のまとめ

<1> メルトの温度測定実験からその温度は、激しく振動しており、その振幅は $\pm 5^\circ\text{C}$ のオーダーであった。この値と $k-\epsilon$ モデルの基礎式から渦動粘性係数 $\nu_t$ のオーダーを見積ると $10^{-5}$ ~ $10^{-4}$  ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) であった。

<2> 実験から得られた等温線は水平的な配列を示し、バルク対流の影響は小さい分布を示した。

<3> 2次元軸対称近似した $k-\epsilon$ 乱流モデルにより、水平的な温度分布が現れるメカニズムを説明することを試みた。

<4>  $k-\epsilon$ 乱流モデルから得られた渦動粘性係数 $\nu_t$ のオーダーは、基礎式からオーダーチェックにより見積ったオーダーとほぼ一致した。

### 第3章 ドーバント輸送の制御

#### 3-1 序

前章でのメルト流動に関する実験及び数値計算から、かなりメルトの流動状態は乱れていることがわかってきた。発達した乱流を仮定する $k-\epsilon$ モデルと完全に整合する程度のものでないしろ、その温度振動現象から、また平均温度分布が熱拡散的になることから、微小渦流の多数の存在が想定できる。

そうすると、ドーバントのようなメルト中の拡散係数(静的な自己拡散係数)の小さいものでもかなり搅拌されて様な濃度分布になっていると考えられる。本章にてまず最初にその搅拌混合の程度を前章の $k-\epsilon$ 乱流モデルにて求めた渦動粘性係数から考察する。

またドーバントには偏析現象が必ずつきまとう。これは簡単に説明すると、シリコン融液が固化する際、溶けている不純物の全てが固相には移動しないという現象である。実際には不純物は一定の割合で固相に移動し、その割合が偏析係数と呼ばれている物性値である。一般的なドーバント材であるリンやボロンに対しその偏析係数が調べられおり、実際的には結晶成長や結晶成長面でのメルト対流の境界層の影響を考慮した実効偏析係数 $k_{eff}$ (通常1より小さい)の値で評価されている。

単一ルツボでの結晶成長の場合、いわゆるNormal Freezingの考え方から偏析による融液中そして結晶中のドーバント濃度の濃化の様子が計算できる。これより、特にリンの場合( $k_{eff}=0.38$ )は濃化が激しく工業上大きな問題であることが理解される。

このような状況のなかで、連続引き上げ法の目的の一つである、軸方向に結晶中ドーバント濃度をどう均一にするかを模索していかなければならない。

従来からの方法である、シーディング前に内ルツボのみにドーピングする方法(ブリードローピング)では、その後のシーディング・肩部形成時にバックディフュージョンが発生しその濃度差(内:外=1: $k_{eff}$ )を維持することは現実には大変困難であることがわかっている。よって、シーディング・肩部形成時の内外ルツボの濃度を等しく維持すれば何も問題は発生しないはずである。さらに、その初期濃度が内外ともに等しい場合には、その後のドーバントの結晶中濃度変化は独特の「山なり」カーブを描くことがわかり、その現象を理解するためにまず、各ルツボ内の濃度を均一と見なし扱ったランプトメソッドにより濃度変化を解析した。

また、同じ手法を用いてメルト総量に変化していく場合も含めた一般的なランプトモデル式を付録3にまとめた。通常の連続引き上げ法では、メルト総量は終始一定であるのに対し、この一般化したモデルは、



残ったメルトを意図的に追加原料供給なしで結晶育成に利用する際などの解析に対して利用できると考えたからである。

### 3-2 解析の準備

本題に入る前にその準備としていくつか基礎的なことに触れておく。まずドーバントの拡散時間の把握と、次にこの研究分野では半ば常識的に用いられるB-P-S理論とNormal Freezingの考え方についてまとめる。

#### (1) 混合状況の予察

渦動粘性係数 $\nu_t$ と、物質移動現象における渦拡散係数 $D_t$ との関係は、それ自体多くの研究者の課題となっており単純な問題ではない。

しかし、ここでは前章で求めた $\nu_t$ と $D_t$ との関係を、非常に単純な式で相関させる。

$$D_t = \frac{\nu_t}{Sc_t} \quad (3.2.1)$$

この関係式は単純なものであるが、鉄融液中の溶質輸送や燃焼乱流等の解析に用いられている手法である。ここで $Sc_t$ とは、乱流シュミット数のことであり、(ほぼ1に等しいとする<sup>[4][15][16]</sup>)。つまりこれは渦拡散係数はほぼ渦動粘性係数のオーダーとなることを意味している。

次にドーバントの拡散時間を見積ってみる。

時間 $\Delta t$ の間に物質の輸送、つまり濃度変化が生じる距離を $l$ とすると、オーダーリングとして次式が成り立つ。

$$l \sim (D_t \cdot \Delta t)^{\frac{1}{2}} \quad (3.2.2)$$

今検討している系の代表長さを $l$ とし、その長さまで濃度変化が及ぶ時間を $\Delta t$ とすると、同様に

$$L \sim (D_t \cdot \Delta t)^{\frac{1}{2}} \quad (3.2.3)$$

よって、

$$\Delta t \sim \frac{L^2}{D_t} \quad (3.2.4)$$

ところで $D_t$ のオーダーであるが、 $\nu_t$ と同じとすると前章の結果から、 $10^{-3} \sim 10^{-4} (\text{m}^2/\text{sec})$ のオーダーである。

$L$ として、内ルツボの半径、および外ルツボの幅(内外ルツボの間隔)を各々代入し、 $D_t$ を $10^{-3}$ 、及び $10^{-4} (\text{m}^2/\text{sec})$ に振った時の $\Delta t$ をまとめて、表3.2.1に示す。

これからわかるように、ドーバント原子が拡散する時間は高々数分～数十分であることがわかる。

著者の目的は結晶の軸方向のマクロ濃度分布を均一化する方法を考えていくことであり、その時間スケールに対しこの拡散時間は十分短い。というのは、結晶成長の速度はおおよそ $1 \text{ mm/min}$ であり、軸方向の平均濃度のマクロ変動(ここではストライエーションのような微小変動を議論していない)としては、 $10 \text{ cm}$ オーダー、つまり $100 \text{ mm}$ ( $100 \text{ 分}$ )オーダーの変動を議論しているからである。

以上より、内ルツボ側/外ルツボ側を各々独立として、その中では瞬時にドーバント原子が複相混合され、濃度が一樣になっていると扱う、いわゆるランプ法を使用しても大きな誤差なく解析することが可能であることがわかる。

ただし、次に問題となるのが結晶界面の偏析の問題である。

#### (2) 結晶界面での偏析現象

結晶界面においては、ドーバント原子は、液相中の濃度のままでは結晶に取り込まれず、多くの場合1より小さい比率で固相中に取り込まれる。これは一般に「偏析」と呼ばれている現象である。基礎的には、図3.2.1のように固相と液相が平衡して共存し、その界面の移動がない場合の分配比を、平衡偏析係数 $k$ と呼んでいる。この値はドーバント原子の種類毎に測定値等があり、いわば物性値である。主な物質の平衡偏析係数を表3.2.2に示す。

次に、固相(結晶)成長し、界面が液相側に移動していく場合を考える。今かりに液相側の対流は無視する。すると成長にともない偏析により固相に移動できず吐き出されたドーバント原子は液相へ拡散によ

表3.2.1 各ルツボ内でのドーパント拡散時間の把握

内ルツボ半径  $L = 145$  (mm)  
 内外ルツボ間  $L = 90$  (mm)  
 メルト中のドーパント原子の実効的拡散係数  $D_i = 10^{-4} \sim 10^{-6}$  ( $\text{m}^2/\text{s}$ )

これらの各場合の拡散時間  $\Delta t$  の見積りは次式から以下の表の通りとなる。

$$\Delta t \sim \frac{L^2}{D_i}$$

	内ルツボ半径	内外ルツボ間
$D_i = 10^{-4} (\text{m}^2/\text{s})$ の場合	$\Delta t = 210$ (s) = 3.5 (min)	$\Delta t = 81$ (s) = 1.4 (min)
$D_i = 10^{-6} (\text{m}^2/\text{s})$ の場合	$\Delta t = 2103$ (s) = 35 (min)	$\Delta t = 810$ (s) = 13.5 (min)

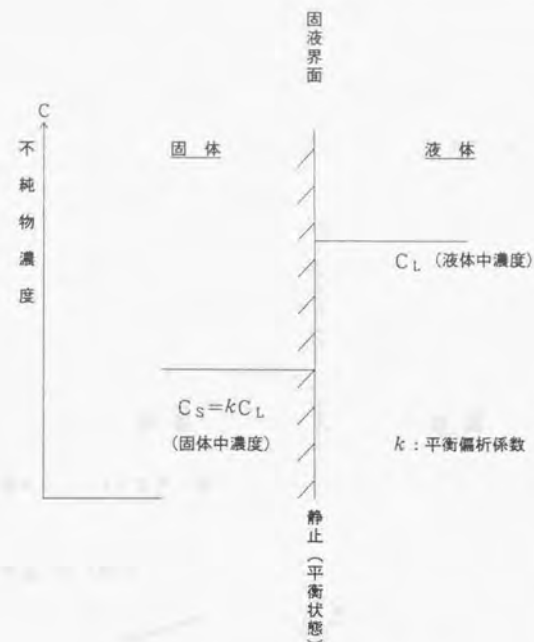


図3.2.1 平衡偏析係数の定義

表3.2.2 主なドーピング物質のシリコンメルト中の平衡偏析係数  
 (W. Zulehner and D. Huber, "Czochralski-Grown Silicon", Springer-Verlag 1982より抜粋して引用)

ドーパントの種類	平衡偏析係数
ホウ素 (Boron)	0.8
リン (Phosphorous)	0.35
アンチモン (Antimony)	0.023
ヒ素 (Arsenic)	0.3
炭素 (Carbon)	0.06 or 0.07

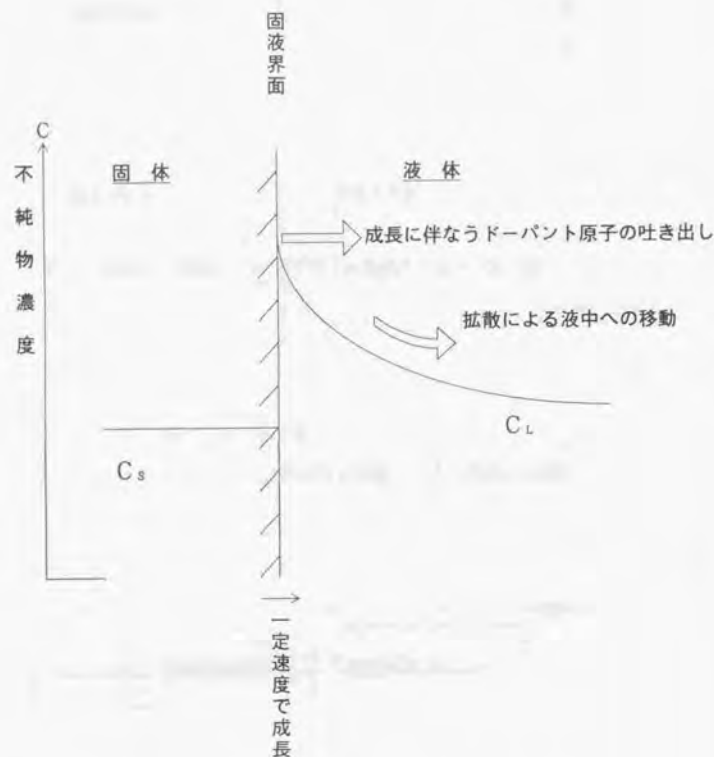


図3.2.2 界面が移動する時のドーパント濃度分布の状況

り輸送されなければならないので、成長界面では図3.2.2のような濃度プロファイルを持ち定常状態にいたる。定常状態では、一定速度の成長に伴って吐き出されたドーパントの量（質量流量）と、拡散により液側へ移動している量が釣りあっているのである。

このような対流を無視した濃度分布の解析解はZone-Meltingの研究などから古くから知られており<sup>[3-4]</sup>、ここで過去の代表的な研究の概要を簡単に触れておく。この過去の解析は次の1次元のドーパント原子に関する輸送方程式に基づくものである。

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + f \frac{\partial C}{\partial x} = 0 \quad (3.2.5)$$

ここで、C：ドーパント濃度

D：メルト中のドーパント原子の拡散係数

f：固液界面の成長速度

解は、一般的には次のような指数関数で表現できる。

$$C = A \cdot \exp\left(-\frac{fx}{D}\right) + B \quad (3.2.6)$$

図3.2.2の場合の境界条件は、

$$x=0 \text{ で } C=C_0 \text{ (固相) } \quad C=C_L \text{ (液相)}$$

$$x \rightarrow \infty \text{ で } C \rightarrow C_L$$

この条件から、図3.2.2の曲線は次式となる。

$$C = C_L + (C_0 - C_L) \exp\left(-\frac{fx}{D}\right) \quad (3.2.7)$$

ここで、 $C_L$ ：界面から遠く離れた点でのドーパント濃度（＝初期濃度）



$C_0$ : 固液界面での (平衡) ドーバント濃度 (固相側)

このプロファイルから、界面でのドーバント吐き出しとメルト中拡散移動がつりあう条件である次式を自動的に満たしていることがわかる。

$$(C_0 - C_L)f = -D \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} \quad (3.2.8)$$

その後、メルト中の対流による混合効果を考慮する検討がなされ、濃度境界層・速度境界層を導入するモデルが現れた。ここに、そのCZの系に対する代表的な理論であるBPS理論<sup>[35]</sup>を概説する。

このBPS理論においても式(3.2.5)から出発するのだが、その濃度プロファイルはメルト側の対流を無視した図3.2.2の形を、対流のため薄くなった濃度境界層の中のみに持たせると考えるのである。図3.2.3にそのように考えた濃度プロファイルを示す。

壁面 (固液界面) に流れがある場合、速度境界層および濃度境界層が存在するのであるが、その濃度境界層 $\delta$ の内部において指数関数的に濃度が分布しており、 $x = \delta$ でバルクの濃度 $C_L$ になり、その外側では対流の攪拌混合効果により濃度は $C_L$ で一定に均一になっているとする。

よって、式(3.2.6)において、つぎのような境界条件を付加した形となる。

$$x = 0 \text{ において、} \dot{C} = C_0 \text{ (液相側)} \quad C = C_s \text{ (固相側)}$$

固相の成長につれて、吐き出されるドーバント原子 ( $-(C_0 - C_s)$ ) が界面でのメルト中拡散によって排除されるから、

$$x = 0 \text{ において、}$$

$$(C_0 - C_s)f = -D \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} \quad (3.2.9)$$

$$x \geq \delta \text{ において、} \dot{C} = 0$$

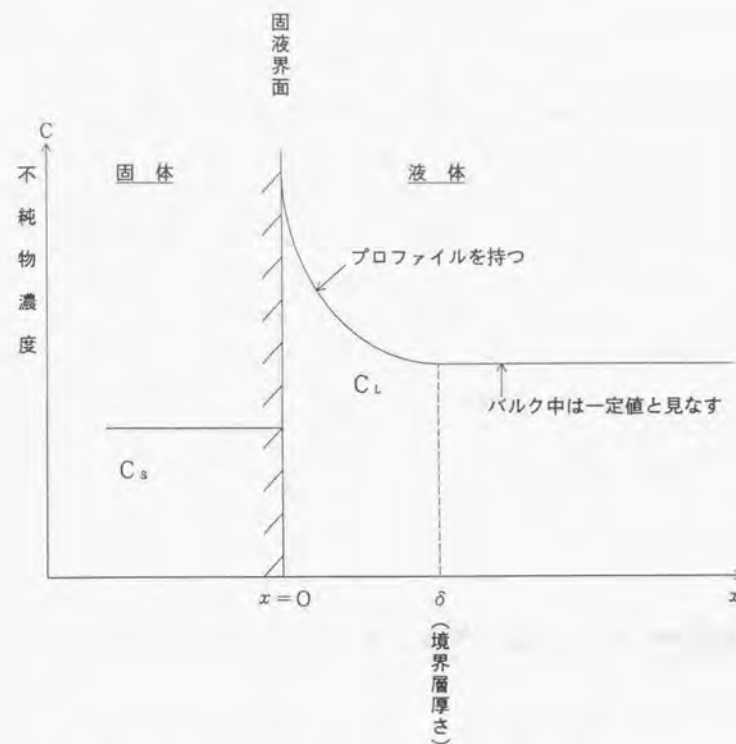


図3.2.3 BPS理論<sup>[35]</sup>において想定されたドーバント濃度分布

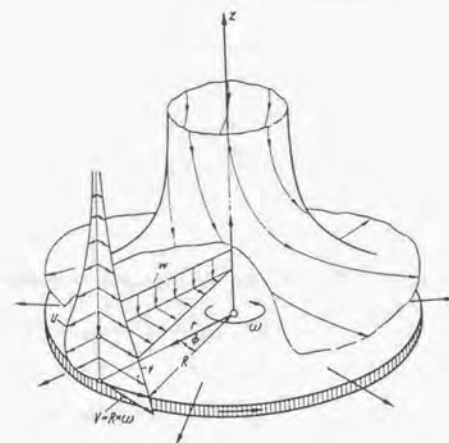


図3.2.4 Cochranの無限回転円盤上の流れ場解析<sup>[36]</sup>

この境界条件のうち、最初の2つの条件により、濃度境界層内でのプロファイルが次式のように求まる。

$$C = C_s + (C_0 - C_s) \exp\left(-\frac{fx}{D}\right) \quad (3.2.10)$$

この式に3つめの境界条件： $x = \delta$ において $C = C_L$ を成り立たせると、

$$C_L = C_s + (C_0 - C_s) \exp\left(-\frac{f\delta}{D}\right) \quad (3.2.11)$$

変形して、

$$\frac{C_0 - C_s}{C_L - C_s} = e^{\Delta} \quad (3.2.12)$$

但し、

$$\Delta = \frac{f\delta}{D} \quad (3.2.13)$$

今、成長界面にて $C_s$ と $C_0$ が完全に平衡偏析していると見なせるとすると、

$$\frac{C_s}{C_0} = k \quad (3.2.14)$$

$x \geq \delta$ での濃度 $C_L$ と $C_s$ との比がこの際、新たな見かけ上の偏析係数（＝実効偏析係数）となり、次式で定義する。

$$\frac{C_s}{C_L} = k_{eff} \quad (3.2.15)$$

この $k$ 、 $k_{eff}$ を用いて式(3.2.12)を表現すると、

$$\frac{1-k}{\frac{k}{k_{eff}} - k} = e^{\Delta} \quad (3.2.16)$$

$k_{eff}$ について整理すると、

$$k_{eff} = \frac{k}{k + (1-k) \exp(-\Delta)} \quad (3.2.17)$$

これが、いわゆるBPS理論による実効偏析係数 $k_{eff}$ の表現式である。

この意味するところは、平衡偏析係数 $k$ が1より小さく（ $k < 1$ ）、また固相が成長している時（ $f > 0$ つまり、 $\Delta > 0$ ）のとき、 $k_{eff}$ は $k$ より必ず若干大きくなることである。

これは、式(3.2.17)の分母を次のように変形すればわかる。

$$\text{分母} = 1 - (1-k) \{1 - \exp(-\Delta)\} \quad (3.2.18)$$

$$0 < k < 1 \text{ より、 } 0 < 1 - k < 1$$

$$0 < \exp(-\Delta) < 1 \text{ より、 } 0 < 1 - \exp(-\Delta) < 1$$

よって、

$$0 < \text{分母} = 1 - (1-k) \{1 - \exp(-\Delta)\} < 1 \quad (3.2.19)$$

となり、分母が1より小さい値となるからである。

また、ルツボ回転数の影響はルツボ回転に伴い濃度境界層の厚み $\delta$ が変化するので、BPS理論によって評価できることになる。

CZ法の場合のように、界面がディスク状であり、かつ回転している場合に関し、図3.2.4に示すような、Cochranの無限回転円盤上の流れ場解析<sup>(12,13)</sup>がある。Cochranの解析より、回転円盤上の流れの速度境界層の厚みは次式で表現できる。

$$\delta_c \sim \nu^{\frac{1}{2}} \omega^{-\frac{1}{2}} \quad (3.2.20)$$

ここで、 $\nu$ はメルトの動粘性係数 ( $\text{m}^2/\text{sec}$ )

$\omega$ は円盤の回転角速度 ( $\text{rad}/\text{sec}$ )

一般的な層流境界層内の物質移動に関し、 $Sc$ 数 ( $=\nu/D$ ) が1より大きく、濃度境界層が速度境界層の内側に存在する場合、濃度境界層の厚み $\delta$ と速度境界層の厚み $\delta_c$ の比に関し、次のような解析式がある<sup>(14)</sup>。

$$\frac{\delta}{\delta_c} \sim Sc^{\frac{1}{3}} = \nu^{-\frac{1}{3}} D^{\frac{1}{3}} \quad (3.2.21)$$

よって、

$$\delta \sim \delta_c \cdot \nu^{-\frac{1}{3}} D^{\frac{1}{3}} \quad (3.2.22)$$

上式に $\delta_c$ の式を代入して

$$\delta \sim D^{\frac{1}{3}} \nu^{\frac{1}{6}} \omega^{-\frac{1}{2}} \quad (3.2.23)$$

が成り立つ。BPS理論では $\delta$ の式として具体的に次式を採用している。

$$\delta = 1.6 D^{\frac{1}{3}} \nu^{\frac{1}{6}} \omega^{-\frac{1}{2}} \quad (3.2.24)$$

この式を $k_{eff}$ の式(3.2.17)に代入すれば、結晶回転数/成長速度の影響を全て加味した理論式となる。

Burtonらは、実験的にも平衡偏析係数を測定し、理論の整合を確認している。

彼らの理論は、あくまでも1次元解析であるので、結晶界面内の $k_{eff}$ の分布などの検討ができない。また結晶界面の移動速度のみを考慮し、液層の流れは、界面に平行/垂直方向ともに無視している。これらの短所を改善するため、その後いくつかの研究が発表されている<sup>(15,16)</sup>。しかし本質的には式(3.2.17)で十分な場合が多く、この式の値と実験値を整合させていることが多い。

著者が実施するランプモデルの場合も1次元モデルであり、結晶成長界面における実効偏析係数についてはこのBPS理論の結果を用いる。著者らの実験条件(結晶回転数・ドーパントの種類がリンまたはボロン)の場合の理論値を表3.2.3に示す。

これから主として解析するリンがドーパントの場合、 $k_{eff} = 0.37 \sim 0.39$ であることがわかる。

厳密な議論をすると、BPS理論は層流境界層理論であるCochranの解析から境界層厚みを求めているため、第2章で述べたような乱流的な流れが発生しているメルトの流れに対しては乱流境界層理論を用いる必要があるかもしれない。第2章の対流計算結果から調べたところ、結晶界面内部の中心軸に近い部分(r座標が小さい部分)では局所レイノルズ数が小さくニュートン則適用領域であったが、界面端部(r座標が大きい部分)では局所レイノルズ数が大きく乱流対数壁法則適用領域となっていた。このような状況では正確には遷移流的な流れにおける壁面境界層を考える必要があるが、扱いが複雑になるので、ここでは単純化するために結晶成長界面では層流境界層を想定したBPS理論を近似的に用いているということをつけ加えておく。

### (3) Normal Freezing

次に偏析の別の基本的な考え方である、「Normal Freezing」について説明する。これは本来図3.2.5に示すようなゾーンメルティング精製法に関してPfann<sup>(17)</sup>が解析したもので、不純物が一様に溶けた金属熔液の一端から凝固させて行くときのその成長方向(長手方向)のマクロ偏析を予測する式である。ここでその考え方に簡単に触れておく。

ここでは、残されたメルト側では、常に完全に混合が進んでおり、濃度分布は一様であると仮定している。



表3.2.3 BPS理論に基づく実効偏析係数の計算例

$$\delta = 1.6 D^{1/3} \nu \omega^{-1/2}$$

$$\Delta = \frac{f\delta}{D}$$

$$k_{eff} = \frac{k}{k + (1-k) \exp(-\Delta)}$$

ここで、

$D = 5 \times 10^{-8} \text{ (m}^2/\text{s)}$  (ドーパントがリン/ボロン共にこの値を使用)

$\nu = 2.77 \times 10^{-7} \text{ (m}^2/\text{s)}$

この物性値を用いて、 $f$  (引上速度) と  $\omega$  (結晶回転数) 値を振り  $k_{eff}$  の値を計算した。

(1) ドーパントがリンの時 (平衡偏析係数  $k = 0.35$ )

$f(\text{mm/min}) \Rightarrow$ $\omega(\text{rpm}) \Downarrow$	0.5	1.0	1.5
5	0.375	0.401	0.428
10	0.368	0.386	0.405
15	0.365	0.379	0.394
20	0.363	0.375	0.388
25	0.361	0.373	0.384

(2) ドーパントがボロンの時 (平衡偏析係数  $k = 0.8$ )

$f(\text{mm/min}) \Rightarrow$ $\omega(\text{rpm}) \Downarrow$	0.5	1.0	1.5
5	0.817	0.833	0.848
10	0.812	0.824	0.835
15	0.810	0.819	0.829
20	0.809	0.817	0.825
25	0.808	0.815	0.822

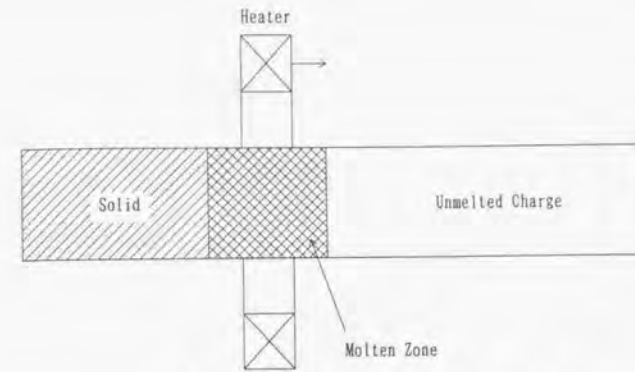


図3.2.5 ゾーンメルティング精製法の状況

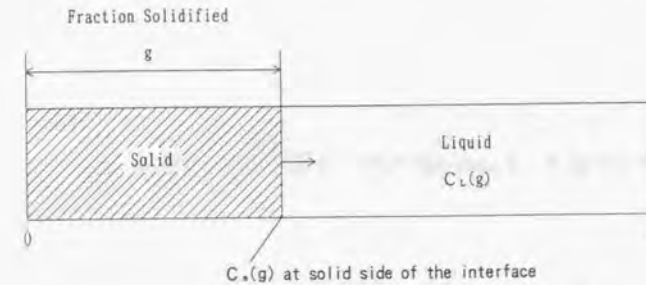


図3.2.6 Normal Freezingの解析モデル

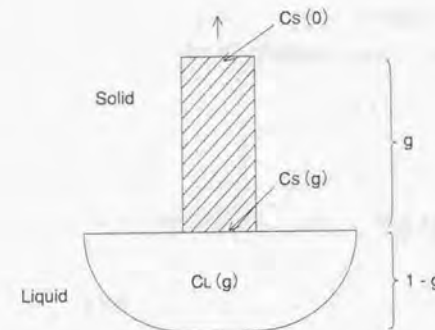


図3.2.7 CZ法へのNormal Freezingの考え方の適用

今、図3.2.6のような状況を想定し、各記号を次のように定義する。

$g$  = 固化率、初期メルト量を1とした時の固化した割合 ( $0 < g < 1$ )

$C_s(g)$  = 固化率が  $g$  のときの固液界面のドーパント濃度

$C_l(g)$  = 固化率が  $g$  のときの液中のドーパント濃度 (液中は完全混合を仮定しているため、液中の均一濃度のことである)

$k_{eff}$  = 実効偏析係数

固相/液相全体を考えるとドーパントの総量は変わらないので、次式が成り立つ。

$$\int_0^g C_s(g) dg + C_l(g)(1-g) = \text{const} \quad (3.2.25)$$

固相への取り込みは、ある実効偏析係数を仮定し、終始その値は変わらないと仮定すると次式が成り立つ。

$$C_s(g) = k_{eff} \cdot C_l(g) \quad (3.2.26)$$

さて、まず式 (3.2.25) を  $g$  で微分すると、

$$C_s(g) + \frac{dC_l(g)}{dg}(1-g) - C_l(g) = 0 \quad (3.2.27)$$

上式に式 (3.2.26) を代入して変形すると

$$\frac{dC_l(g)}{dg}(1-g) = (1-k_{eff})C_l(g) \quad (3.2.28)$$

よって、

$$\frac{dC_l(g)}{C_l(g)} = (1-k_{eff}) \frac{dg}{1-g} \quad (3.2.29)$$

これを、 $g=1$  のとき  $C_l=C_0$  (初期メルト中ドーパント濃度) として解くと

$$C_l(g) = C_0(1-g)^{k_{eff}-1} \quad (3.2.30)$$

よって、

$$C_s(g) = k_{eff}C_0(1-g)^{k_{eff}-1} \quad (3.2.31)$$

単一ルツボの場合のドーパント濃度の変化に対しても、通常同じ様に Normal Freezing を仮定して整理されることが多い。マクロに見た場合、メルト総量 (固化分含む)、ドーパント総量が変わらず、図3.2.7のように状況が図3.2.6と似ているからである。

通常の単一ルツボでの引き上げにおけるメルト内のドーパント濃度変化の代表的な例をグラフに示すと図3.2.8のようになる。

結晶に  $k_{eff}$  分のドーパントしか移動しないため、メルト内が濃化し、メルト量の減少とともに結晶中のドーパント濃度も次第に増大していく。

この濃度変化の曲線は広く常識的に知られている事柄である。

図3.2.8にドーパントのボロンの場合のいわゆるP型半導体の場合が示してある。ボロンの場合、 $k_{eff}$  は0.8~0.84程度であるため、偏析により残留するドーパント原子も多くなく、よって濃化の程度が比較的弱い。

しかし、リンドーパントの場合、 $k_{eff}$  は0.35~0.40と小さいため、図3.2.8のように濃化が激しく、実際工業上、与えられたスペックに対し、歩留まりを非常に低下させる要因となっている。この問題は、従来から認識されており、その解決法として二重ルツボが試されてきているのである。

### 3-3 従来のドーパント濃度均一化手法とその問題点

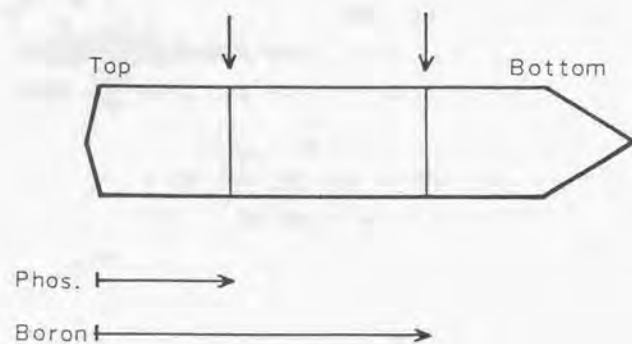
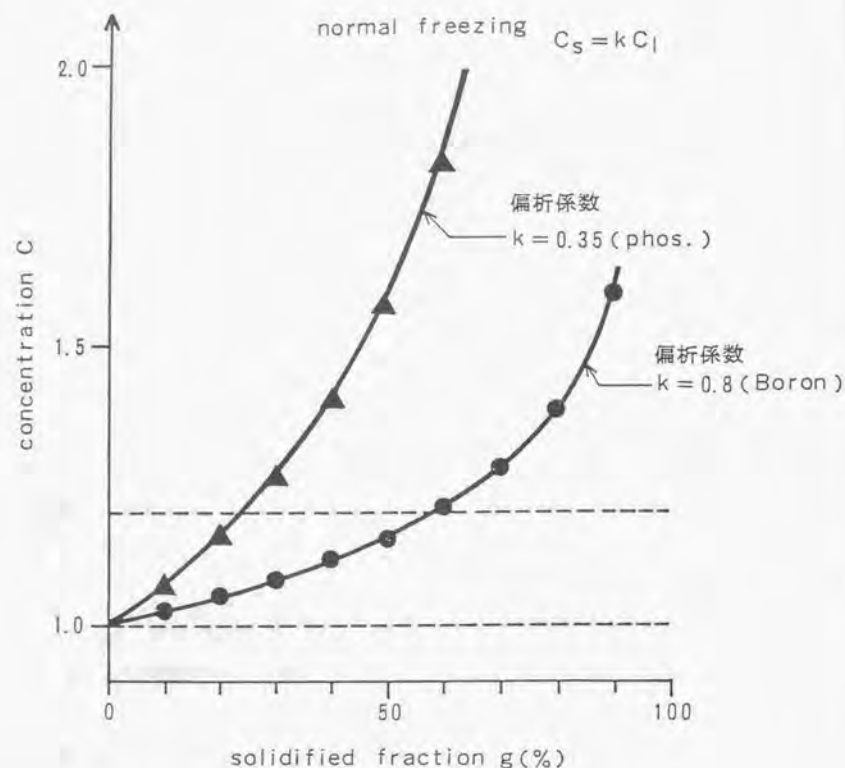


図3.2.8 単一ルツボ法(通常法)でのドーパント濃度変化の例

前節で述べたドーパント濃化の問題を回避するために、今までいくつかの手法が報告されている。その基本的考え方は、内ルツボと外ルツボのドーパント濃度比を

$$C_{\text{out}} : C_{\text{in}} = 1 : k_{\text{eff}} \quad (3.3.1)$$

のように  $1 : k_{\text{eff}}$  と設定することにある。この状態を実現すれば、図3.3.1に示すように、結晶に  $k_{\text{eff}}$  分のドーパントが移動し、少し内ルツボのメルトが濃化しても外ルツボから濃度  $k_{\text{eff}}$  の低濃度のメルトが流入して希釈し、結局内ルツボ濃度は変化しないのである。

この考え方による過去に提案された手法の代表的な2つの例を図3.3.2に示す。図中のFloating Crucibleを用いた手法では、大ルツボの中に小ルツボを浮遊させながらその内部から結晶育成を行う手法であり、全体のメルト量は引き上げに伴い減少するが、小ルツボ内のメルト量は一定になるようにする。

ドーパントに関しては、初期の大ルツボ内メルト中の濃度を1とすると、シーディング前に小ルツボ内へ、ドーパント材を投入し(Predoping)、小ルツボ内のメルト中濃度を  $k_{\text{eff}}$  になるように設定する。その後、シーディング、肩部形成を経た後、定常育成中は、濃度1のメルトが小ルツボの中へ常に流れ込むので、図3.3.1のメカニズムにより、小ルツボ内の濃度は常に一定に保たれる。

図3.3.2中の二重ルツボ法では、見学者の方法に類似しているが、 $1 : k_{\text{eff}}$  の濃度比を得るためにシーディングの前に内ルツボ内へPredopingを行い、その後シーディング・肩部形成へ移行する。定常育成に入ったら、連続法の為、原料を外ルツボに供給開始されるが、すぐに  $k_{\text{eff}}$  のドーパント濃度を持つ原料を投入する。その後のメカニズムは図3.3.1と同様である。

これらの方法に共通に言えることは、シーディング前にPredopingをしなければならないということである。よって、その後のシーディングおよび肩部形成の時に、その  $1 : k_{\text{eff}}$  の濃度比が変化しないということ为前提としている。

しかし現実には、そのシーディングおよび肩部形成の間にこの濃度比を凍結することは大変困難である。というのはPredoping後のメルトに対しては既にシーディング工程の為にルツボを回転しており、メルト内はルツボ回転による強制対流や浮力対流による複雑な混合対流が実際には起きていると考えられ、前章で述べたように乱流微小滴流がメルト内を多く満たしている。内ルツボの連結孔近傍での微小攪拌効果により、 $1 : k_{\text{eff}}$  の濃度比がくずれてくるのである。

また微小滴流よりスケールの大きい不安定なゆらぎ流れのような現象も、このようなレイリー数の高い状況下では発生している可能性が高く、マクロな流れが一次的に内ルツボから外ルツボへ、または逆方向へ流入する危険性も考えられる。また当然ながら、濃度は内ルツボの方が高いために、連結孔での濃度勾



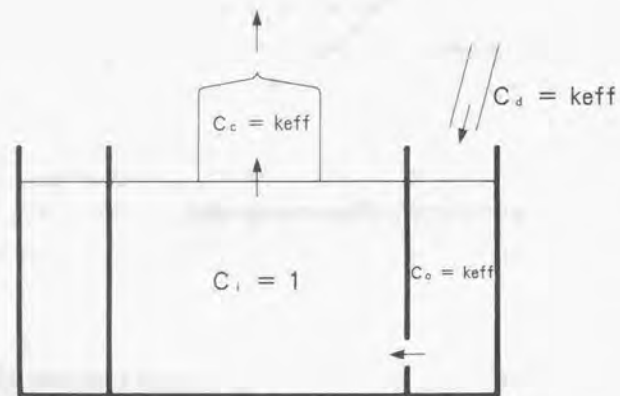
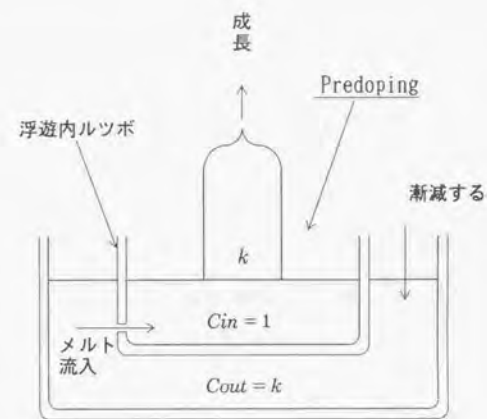
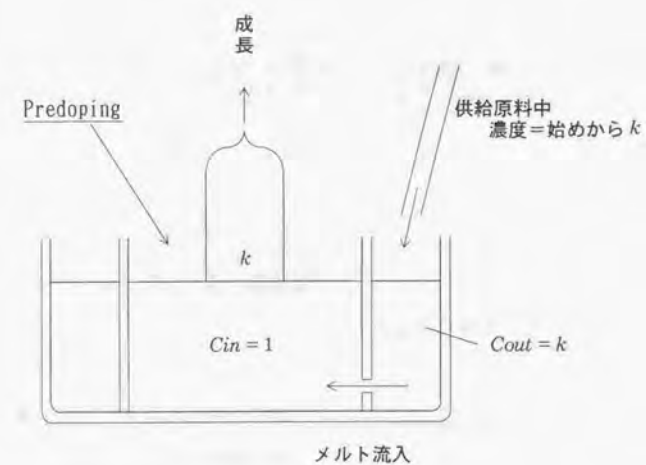


図 3.3.1 二重ルツボ法でドーパント濃度を一定にするための内外ルツボ濃度比



浮遊内ルツボ法  
(Floating Crucible Method)



二重ルツボ法  
(Double Crucible Method)

図 3.3.2 従来から提案されている Predoping を用いる手法の例

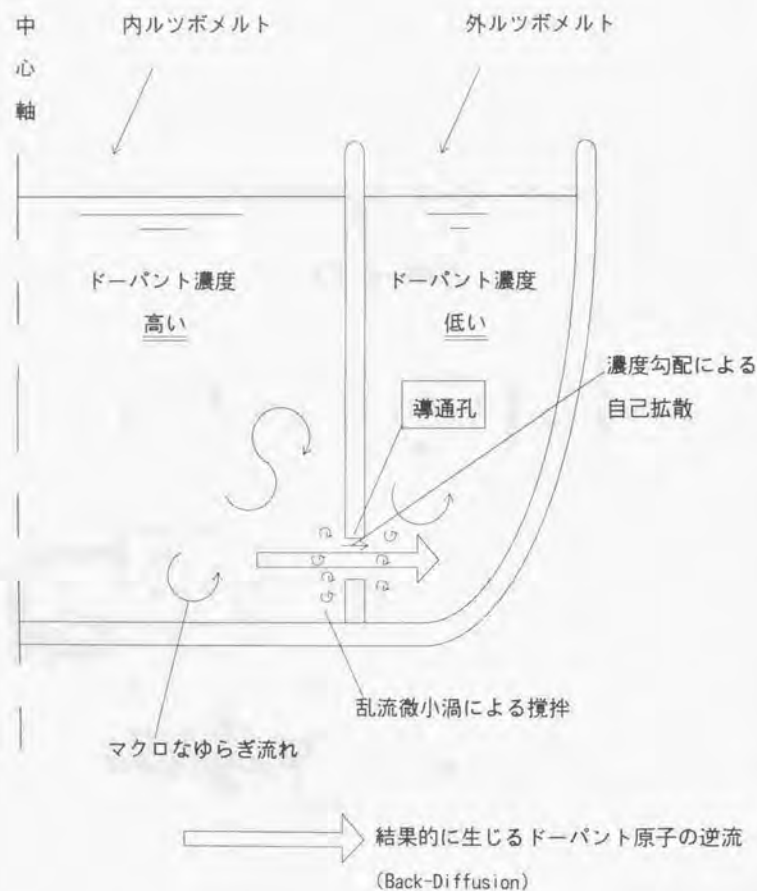


図3.2.3 ドーパント原子の逆流現象 (Back-Diffusion)

配により、長時間においては、少量ではあるが自己拡散により、ドーパント原子が外側に移動し得る。

これらの要因の複合的な効果により、図3.2.3に示すように、内ルツボ内のドーパント原子は外ルツボ側に移動してしまうのである。

通常シーディング+肩部形成に要される時間は2～3時間であり、結晶径の大口径化に伴い、肩部形成に要する時間は以前より長くなってきている。またシーディングにかかる時間は毎回まちまちであり、また肩部の成長が異常をきたして多結晶化した際はシーディングからやり直す必要があり、シーディング+肩部に要される時間は毎回大きくばらつくこともまれではない。

このような状況の中で、 $1:k_{out}$ の濃度を維持することは、至難の技であり、また均一化の度合 ( $1:k_{out}$ からのずれ、あるいは内ルツボ内の濃度の低下/外ルツボ内の濃度の上昇) を定量的に予測することは現実上ほとんど不可能と言ってよい。

この要因を無視して、ドーパント濃度  $k_{out}$  の原料を供給し、最終的には  $1:k_{out}$  の濃度比の状態に復活するとしても、低下した内ルツボ内の濃度 ( $<1$ ) から理想状態の1に上昇する (もしくは上昇した外ルツボ内の濃度 ( $>k_{out}$ ) から理想状態の  $k_{out}$  に低下する) までの過渡状態の時間を見積もることができず、目標濃度からはずれた結晶部分をどのくらいの長さ育成しなければならないかを予測することができない。生産管理的な立場から見ても問題を抱え込むことになり、製品収率に大きく影響する課題となる。

上述した濃度の高い内ルツボのメルトから外ルツボに向かって、上述した諸効果により、ドーパント原子が移動してくることが濃度比凍結の大きな障害となっていた。従来の文献の中にも、この要因は「Back-Diffusion」として指摘されており、それをどう回避するかが開発の鍵となっていた<sup>12)13)</sup>。

断っておくが、この問題を避けるために、肩部形成後 (定常育成直前) に内ルツボに Predoping することは実際上不可能である。結晶育成は非常にデリケートなプロセスであるだけに、液面の大きな波立ちや、異物が落下し成長面に付着するなどの要因で容易に多結晶化してしまう。Predopingは通常所定の濃度を含んだ固体シリコン片を投入することによっておこなうが、このような行為を結晶育成中の内ルツボへ実施すると、簡単に多結晶化してしまうのである。

### 3-4 新しいドーピング手法への手がかり

このような状況下で、将来の結晶径の大口径化を考えた場合、シーディング・肩部形成時に内外ルツボ

内の濃度比を凍結させることは、さらに難しくなってくると想像される。よって、基本的にはPredopingという手続は回避したい。

ところで、連続法では、肩部形成終了後からの定常定径引き上げがいったん始まると、結晶成長にともなうメルト消費量を補償するように外ルツボに固体原料を供給するため、内ルツボの連結孔では、図3.4.1に示すように、定常的な内向きの流れが存在する。この流れの力を借りれば、定常引き上げ中にも発生するバックディフュージョン現象を効果的に防げることができると考えられる。なぜなら、連結孔の径を小さくすることにより、その流速を増加させ、バックディフュージョンに対抗する効果を上げることが可能であるし、残るは径を小さくすることに伴うエンジニアリング的な要因を実験的に最適化すればよいだけだからである。

従って残された問題は、いかにして図3.3.1の  $1:k_{eff}$  の濃度比をPredopingなしで実現するかである。

これについて、実は次に述べるように、純粋な原料のみを追いチャージするときに発生する結晶中ドーパント濃度の一見奇妙な変化を利用するのである。

二重ルツボ法を用いた連続引き上げ法の場合は、メルト総量を一定に保つよう原料を追加供給するため、ドーパント原子を含まない純粋な原料のみを供給するならば、最終的には濃度0に漸近するはずである。

外ルツボにドーパントを含まない純粋な原料を加えて（引上げた結晶重量を補うように原料を加えるのでメルト総重量は終始ほぼ一定）実際に引き上げた実験結果を図3.4.2に示す。

ここでは、結晶の抵抗測定結果は濃度に換算してグラフに丸で示してある。

結晶の抵抗を測るには、インゴットから厚み約1mmのウエハー状サンプルを切り出し、4探針法（注）にて測定する。抵抗値からドーパント濃度への換算には、従来から知られているIrvin曲線（注）という換算グラフを用いる。正確には、このIrvin曲線を近似した関数形に代入することによりドーパント濃度（多数キャリア濃度）を算出する。

ここでわかることは、結晶中の濃度（これは、ランプモデル上内ルツボ内メルトの濃度の実効偏析係数を乗じた値に等しい）は、初期濃度から一旦ある程度増加してから極大値に至りその後減少に向かうという一見奇妙なプロファイルを持っているということである。

この独特な濃度変化を理解するためにまず次節にてランプモデルによって解析する。すでに検討したように、微小逆流による操作効果のため、各ルツボを一次元化して扱うランプモデルによっても大きな誤差なく現実を再現できると考えられるからである。

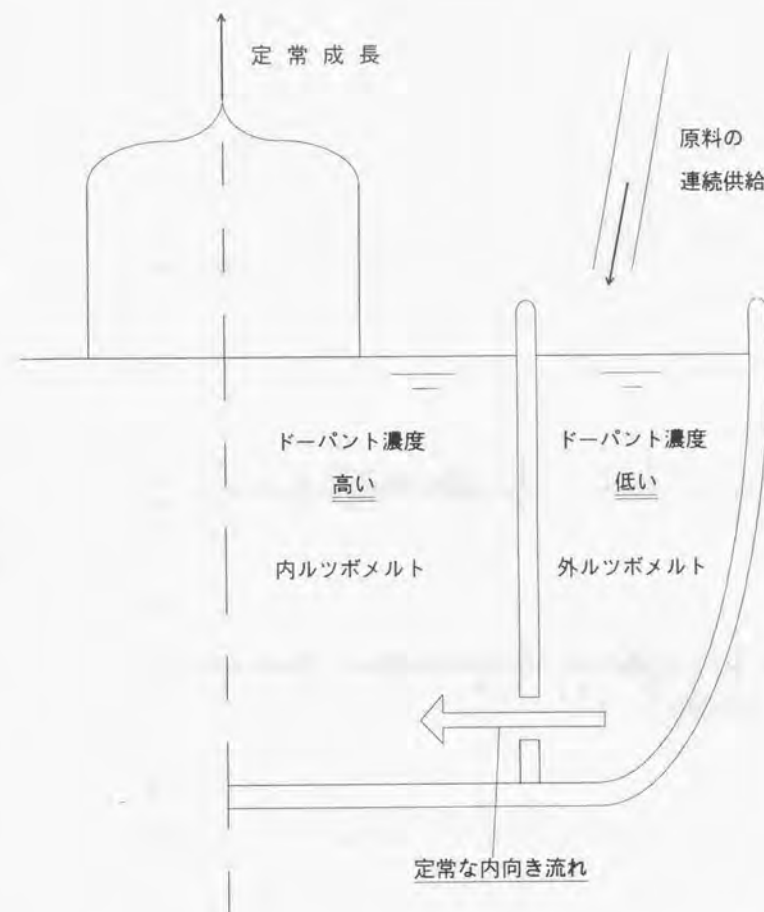


図3.4.1 定常成長時の導通孔での内向きの流れ



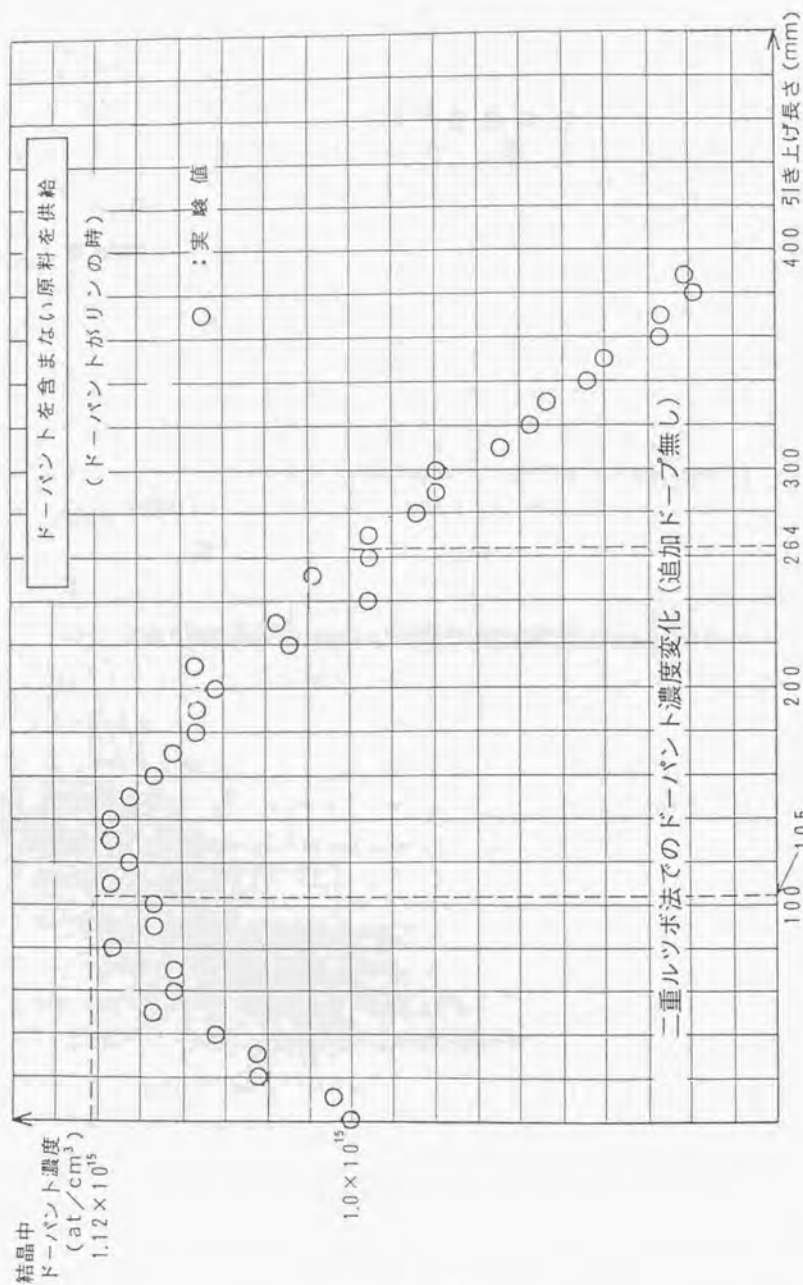
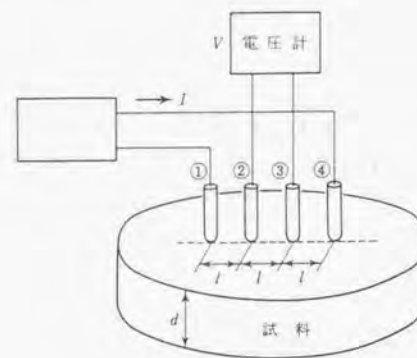


図3.4.2 二重ルツボ法でのドーパント濃度変化  
(初期の内外ルツボドーパント濃度等しい、ドーパントを含まない純粋な原料を追加供給)



四探針法

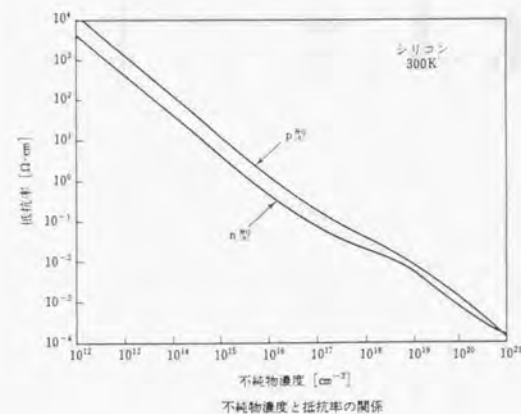


図3.4.3 四探針法および抵抗率／ドーパント濃度のプロット  
(小間篤ら著, "シリコンの物性と評価法" (丸善株式会社) より抜粋して引用)

(注) 4 探針法および Irvin 曲線

4 探針法とは図 3.4.3 の上図に示すように 4 つの針をサンプルに接触させ、その両端の 2 つの端子間に電流を流し、中間の 2 端子間に発生する電圧を測定しその値から求めるものである。試料が厚い場合は問題ないが、ウエハーの様に端子間の距離に比べて薄い場合は、予め調べられている補正係数表の値を乗じて換算する。最近では自動で換算してくれる測定装置が広く市販されている。

Irvin 曲線は図 3.4.3 の下図に示すようなドーバント（ここでは不純物と記されている）濃度と抵抗率の関数グラフのことであり、これに基づいて抵抗率の値を具体的な濃度に変換する。グラフを見ると抵抗率と濃度の積はほぼ一定である。

### 3-5 二重ルツボ法のランプモデル

図 3.5.1 のような状況を考える。そして次のような仮定を置く。

- (1) Si メルトの総量は常に厳密に一定。
- (2) 既に行った検討に基づき、各ルツボ内では、ドーバントは瞬時に攪はんされ、一様に混ぜられるとする（ランプ化する）。つまり、内外ルツボ間では濃度差は存在するが、各ルツボ内では一様であるとする。
- (3) 内外ルツボの導通孔部においては、メルトは常に外ルツボから内ルツボに向かって流れているとして、逆流や揺らぎなどの効果は無視する。

次に各記号を定義する。

$k_{eff}$  : ドーバントの実効偏析係数

$x$  : 引き上げた結晶重量 (g) / 供給原料質量 (g)

$W_i$  : 内ルツボ中のメルト質量 (g) (一定)

$W_o$  : 外ルツボ中のメルト質量 (g) (一定)

$D_i$  : 内ルツボ中のドーバント量 (atom s)

$D_o$  : 外ルツボ中のドーバント量 (atom s)

$C_i$  : 内ルツボ中のドーバント濃度 (atom s/g) (=  $D_i / W_i$ )

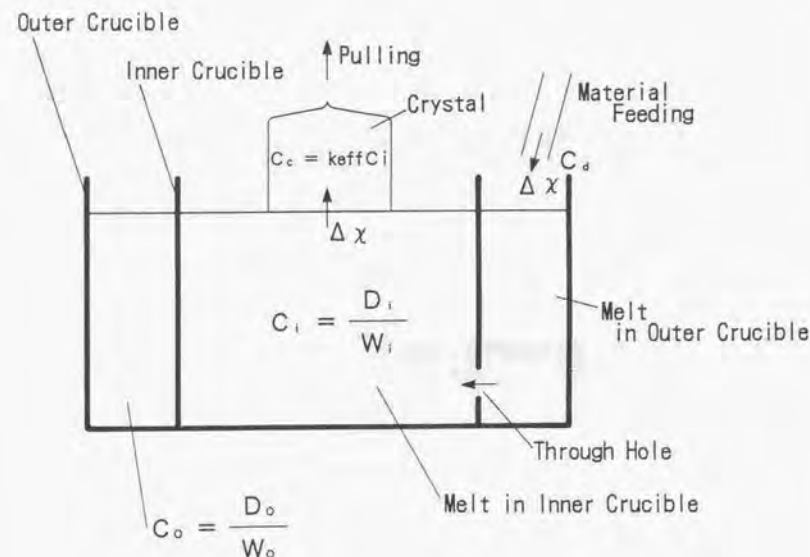


図 3.5.1 二重ルツボ法のランプモデル

$C_o$  : 外ルツボ中のドーパント濃度 (atoms/g) ( $= D_o/W_o$ )

$C_i$  : 引き上げた結晶中のドーパント濃度 (atoms/g) ( $= k \cdot C_o$ )

上記の  $D_i, C_i$  の変数はすべて  $x$  の関数となっている。

今、ある状況から外ルツボに  $dx$  (g) だけ純粋な原料が入り、同時に外ルツボから内ルツボへ  $dx$  (g) 流入し、また内ルツボから結晶へ  $dx$  (g) 固化したとする。

この時内ルツボ内のドーパント収支を考えてみると、流出するのは結晶に持っていかれる分で、流入するのは外ルツボからその濃度で入ってくる分であるから、

$$D_i(x+dx) - D_i(x) = -k_{eff} \frac{D_i(x)}{W_i} dx + \frac{D_o(x)}{W_o} dx \quad (3.5.1)$$

外ルツボではただその濃度で内ルツボに流出しているだけであるから、

$$D_o(x+dx) - D_o(x) = -\frac{D_o(x)}{W_o} dx \quad (3.5.2)$$

式 (3.5.1) (3.5.2) の両辺を  $dx$  で割ると、

$$\frac{D_i(x+dx) - D_i(x)}{dx} = -k_{eff} \frac{D_i(x)}{W_i} + \frac{D_o(x)}{W_o} \quad (3.5.3)$$

$$\frac{D_o(x+dx) - D_o(x)}{dx} = -\frac{D_o(x)}{W_o} \quad (3.5.4)$$

式 (3.5.3) (3.5.4) で  $dx$  を無限小にもっていくと、左辺は微分となるから、

$$\frac{dD_i(x)}{dx} = -k_{eff} \frac{D_i(x)}{W_i} + \frac{D_o(x)}{W_o} \quad (3.5.5)$$

$$\frac{dD_o(x)}{dx} = -\frac{D_o(x)}{W_o} \quad (3.5.6)$$

この式 (3.5.5) (3.5.6) が基礎式となる。

この常微分方程式をとくと (この解析解の求め方は付録2を参照のこと)。

$$D_i(x) = \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i}x\right) \left[ D_i(0) + \frac{D_o(0)W_i}{k_{eff}W_o - W_i} \left\{ \exp\left(\frac{k_{eff}W_o - W_i}{W_iW_o}x\right) - 1 \right\} \right] \quad (3.5.7)$$

$$D_o(x) = D_o(0) \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right) \quad (3.5.8)$$

上式 (3.5.7) (3.5.8) はドーパント量 ( $D_i, D_o$ ) で表現したが、ドーパント濃度 ( $C_i, C_o$ ) で書き直すと、

$$C_i(x) = \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i}x\right) \left[ C_i(0) + \frac{C_o(0)W_i}{k_{eff}W_o - W_i} \left\{ \exp\left(\frac{k_{eff}W_o - W_i}{W_iW_o}x\right) - 1 \right\} \right] \quad (3.5.9)$$

$$C_o(x) = C_o(0) \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right) \quad (3.5.10)$$



そして、結晶中の濃度は、

$$C_c(x) = k_{eff} \cdot C_l(x) \quad (3.5.11)$$

この式(3.5.9) (3.5.10) (3.5.11)に具体的な数値を代入すれば各濃度変化を計算することができる。

今図3.4.2の場合の条件を具体的に入れて計算した結晶の濃度変化を図3.5.2に示す。実線は式(3.5.11)に基づいて計算した結果である。比較的良好一致をみる事ができた。

このようにラングモデルと実験がよく整合することから逆に、各ルツボ内ではドーバント原子が微小渦流により、良く攪拌混合されている状況にあると言えることができる。またさらに、定常成長している際は、導通孔でのBack-Diffusionは起きていないことも同時に確認できたことになる。

計算に用いた実効偏析係数は、実験において通常の1mm/minよりも若干高速に引き上げたことを考慮し、BPS理論の式を用いて0.39という値を用いた。

この時の外ルツボ、内ルツボ、結晶の各ドーバントの変化をまとめて図3.5.3に示す(ラングモデルによる計算結果である)。ここでは一般化するために、結晶径によらない引き上げ重量(kg)を横軸にとっている。一旦増加して減少する内ルツボと結晶中の濃度変化に対し、急激に減少していく外ルツボの変化の様子がわかる。

(注)ここでのモデルは、常に供給される原料のフィードレイトと、メルトが結晶化するスピードが等しく、メルト重量は常時一定である場合に限定している。しかし、より一般化した状況、または現実的な状況として、メルト量に変化する場合がある。これは意識せず結晶引き上げ速度と原料供給速度が不整合をおこしている場合、あるいは意識的に途中でメルト量を増加させたり減少させたりして、ドーバント濃度をコントロールしようとする場合であり、このような場合も実は上述したモデルを修正して用いれば解析が可能となる。これについては付録3にまとめて記しておく。

### 3-6 極値を持つメカニズム

再び、図3.5.3の曲線を参照し、この曲線の極大値の状態を考えてみる。

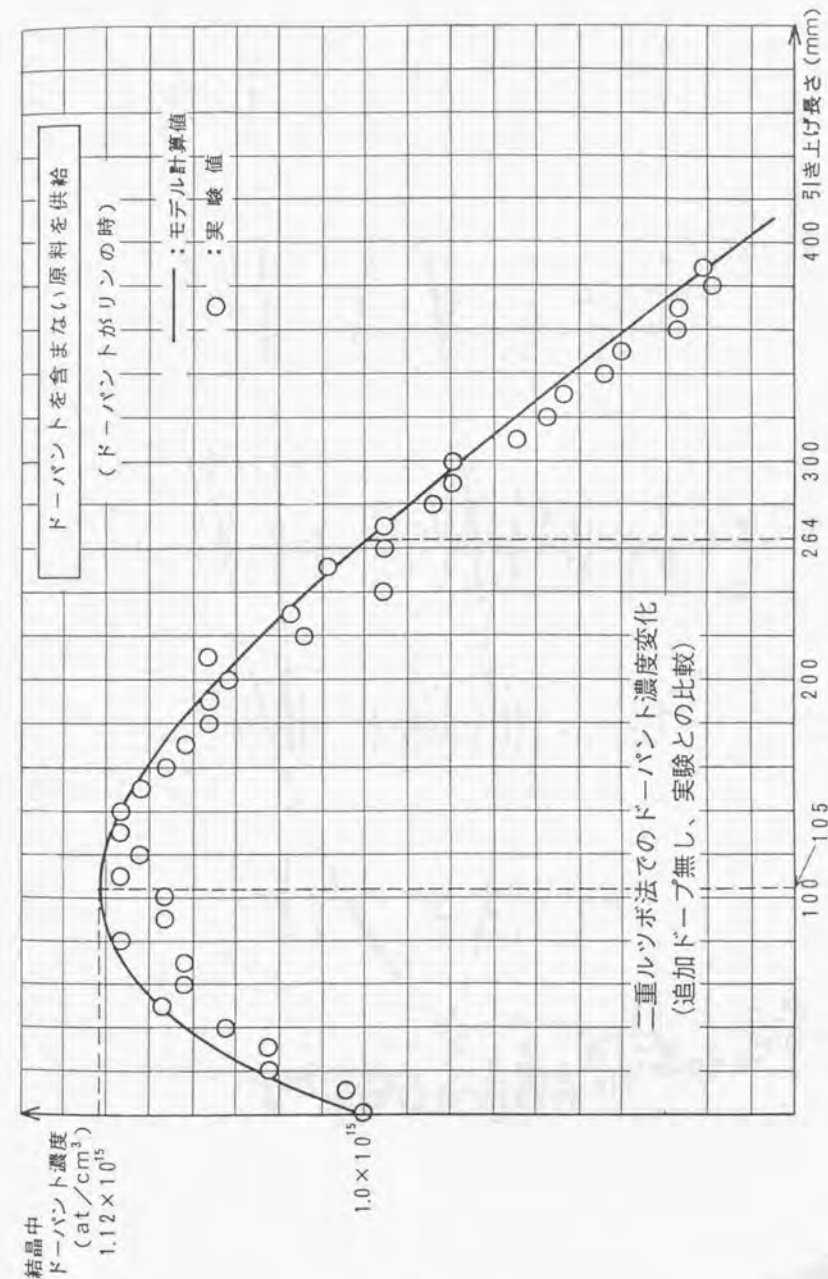


図3.5.2 ラングモデルと実験結果の比較

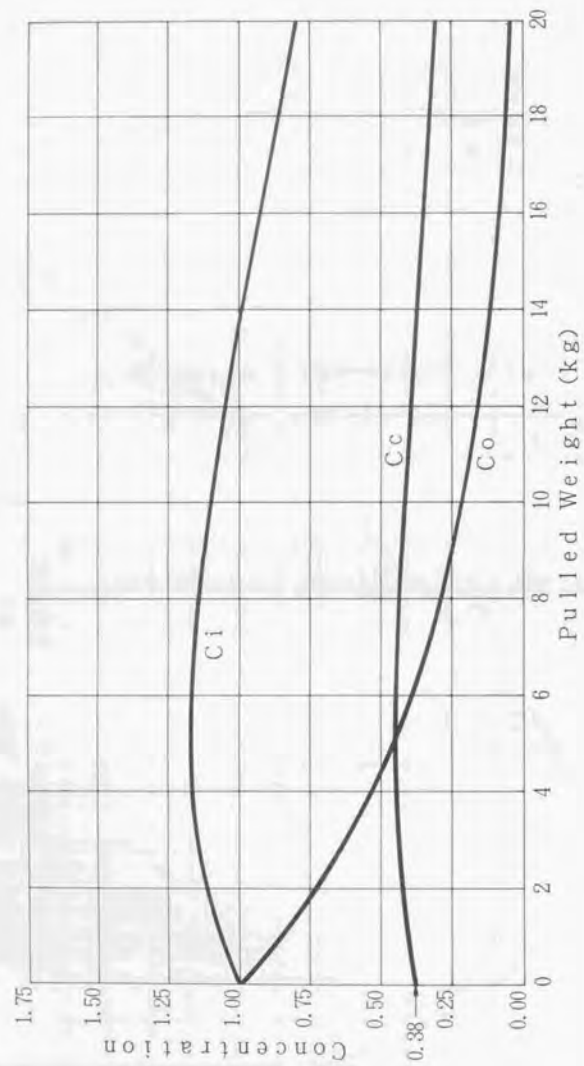


図3.5.3 二重ルツ中各部でのドーパント濃度変化の状況

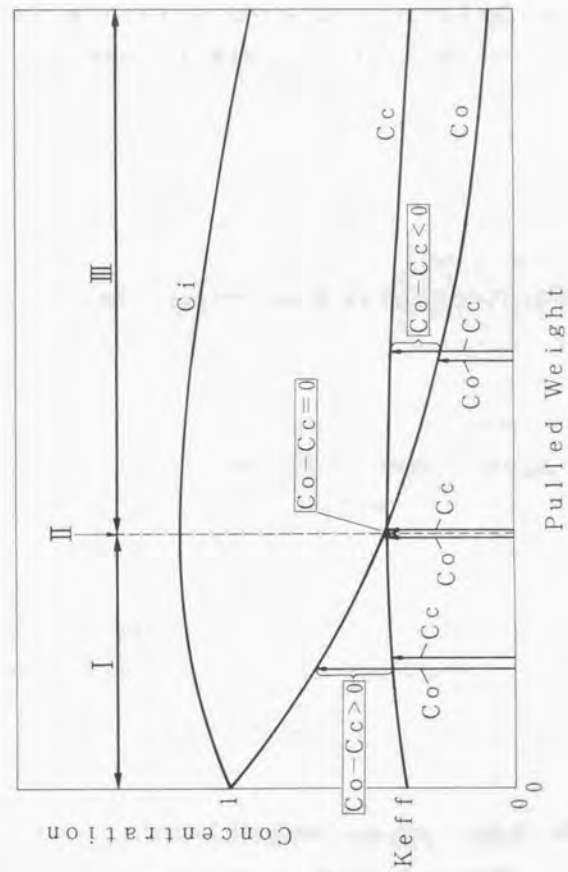


図3.6.1 ドーパント濃度変化の解析

これを分析するために、図3.6.1のように、3つの状況に分けて考える。

#### 〔Phase 1〕初期状態から極大値まで

初期のドーバント濃度は、内ルツボ／外ルツボともに等しく、外ルツボでは、新鮮な原料が投入され、濃度は次第に薄くなっていくのであるが、この段階ではまだそれほど希釈されておらず、比較的高い濃度のメルトが内ルツボ内に流入する。よって、内ルツボからは、その濃度×実効偏析係数分のドーバントが結晶へと移動するが、外ルツボから流入するドーバントの影響が強く、結果的に濃度は上昇する。

これは、図3.6.1のなかで、 $C_{in} = C_{out}$ の値が正であることに対応している。

しかし、図3.6.1からわかるように、外ルツボ内の濃度は急速に低下しているので、 $C_{in} - C_{out}$ の値は正ではあるが、次第に小さくなっていくことがわかる。

#### 〔Phase 2〕極大値の状態

やがて、 $C_{in} - C_{out}$ の値は0となる。つまり、外ルツボから流入するドーバントの量と結晶へ移動するドーバントの量が等しくなるのである。

これは、外ルツボでの濃度低下と、内ルツボ内濃度上昇による結晶へ物質移動量の増加という2つの要因の競合の結果である。

#### 〔Phase 3〕極大値以降の状態

極大値を過ぎても、外ルツボ内では、供給される原料の影響でさらに濃度が小さくなっていく。よって、結晶内に移動するドーバント量を補償するだけのドーバントを外ルツボは供給できなくなり、内ルツボの濃度は今度は逆に減少に転じる。これは、図3.6.1からわかるように、 $C_{in} - C_{out}$ の値が負となり、さらに小さい値になっていくことに対応している。非常に長い時間経過すれば、 $C_{in}$ 、 $C_{out}$ ともにりに漸近していく。

以上が $C_{in}$ 、 $C_{out}$ の濃度変化プロファイルが山なりになるメカニズムである。

極大値以前では、適正な濃度よりまだ外ルツボの濃度が高いので、内ルツボへ高い濃度のメルトを供給してしまうことになり、内ルツボの濃度を上げてしまい、逆に極大値以降では、適正濃度よりすでに外ル

ツボ内の濃度は下がってしまっているの、内ルツボの濃度を下げていくことになるのである。これが、山なりの濃度変化をする理由である。

そして、この極大値の状態が実は、連続引き上げにとって最適な状態であり、この時、内ルツボと外ルツボの濃度比は、

$$C_{in} : C_{out} = 1 : k_{eff} \quad (3.6.1)$$

になっているのである。これは、すでに図3.3.1で説明したように、内ルツボ内の濃度1に対して、 $k_{eff}$ の濃度のメルトが結晶中に移動し、外ルツボからは濃度 $k_{eff}$ の濃度のメルトが流入するので、内ルツボ内のドーバントの収支は±ゼロとなる状態となっているのである。

#### 3-7 均一化ドーピング手法の開発<sup>13,12)</sup>

よって、式(3.6.1)の状態が一旦実現すれば、あとはこの状態を維持すれば良い。言葉を変えると、この状態を維持するように、外ルツボにドーバントを追加供給すればよい。

つまり上記の極大点に状態が至ったら、そこから一定濃度（その時の外ルツボの濃度（＝その時の結晶中の濃度））のドーバント濃度を持つ原料を供給していけばよい。外ルツボの濃度がそこで一定になるようにドーバントを加えていくわけで、このような理想状態にした各濃度の変化曲線を図3.7.1に示す。

次に理論上いつ式(3.6.1)の極大値に達するか（この極大値を与える、引き上げた結晶重量Xを以降X<sub>p</sub>と名付ける）を導いておく必要がある。これが、いつからドーバントを含んだ原料を供給開始すればよいかを示すからである。

##### （1）極大値点結晶重量X<sub>p</sub>の算出

基礎式は既に述べた、式(3.5.9)＝(3.5.11)である。

これらの式が、図3.6.1の各曲線を表すのである。

この解は、実効偏析係数 $k_{eff}$ 、内ルツボメルト重量 $W_{in}$ 、外ルツボメルト重量 $W_{out}$ 、供給原料量Xの関数であるが、 $k_{eff}$ 、 $W_{in}$ 、 $W_{out}$ は既知量とすれば、すべて供給原料量Xのみの関数と見なせる。

それでは、極大値を求めることにする。式(3.5.9)をXで微分し整理すると、



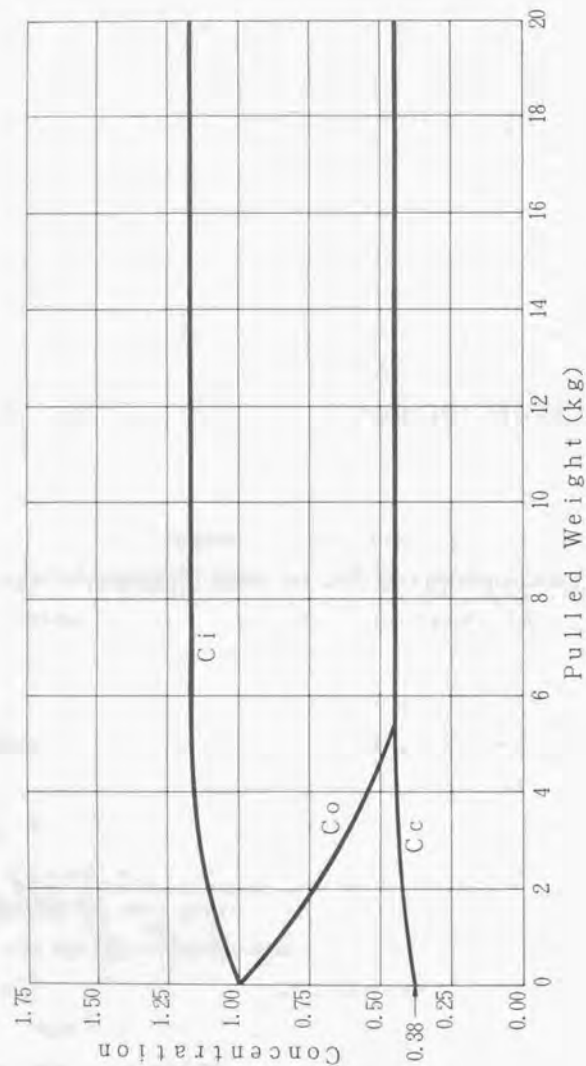


図3.7.1 ドーバント濃度を一定にしていく理想的な状況

$$\frac{dD(x)}{dx} = \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i}x\right) \frac{1}{W_i(k_{eff}W_o - W_i)} \times \left\{ -k_{eff}^2 C_i(0)W_o + k_{eff}C_i(0)W_i + k_{eff}C_o(0)W_o - C_o(0)W_i \exp\left(\frac{k_{eff}W_o - W_i}{W_iW_o}x\right) \right\} \quad (3.7.1)$$

極値はただ一つであることがわかっているから、

式(3.7.1) = 0 としてもとまるXが極大値を与える原料供給量 ( $X_p$ とする) なのである。よって、

$$\exp\left(\frac{k_{eff}W_o - W_i}{W_iW_o}x\right) = \frac{-k_{eff}^2 C_i(0)W_o + k_{eff}C_i(0)W_i + k_{eff}C_o(0)W_o}{C_o(0)W_i} \quad (3.7.2)$$

ここで、我々の方法では、 $C_i(0) = C_o(0)$  だから、

$$\exp\left(\frac{k_{eff}W_o - W_i}{W_iW_o}x\right) = \frac{-k_{eff}^2 W_o + k_{eff}W_i + k_{eff}W_o}{W_i} = \frac{k_{eff}\{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \quad (3.7.3)$$

よって、

$$x = \frac{W_iW_o}{k_{eff}W_o - W_i} \ln \left[ \frac{k_{eff}\{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \right] \equiv x_p \quad (3.7.4)$$

$x = x_p$ の時の結晶、内ルツボ、外ルツボの各ドーバント濃度を求めると次のようになる (途中の式変形省略)

$$C_o(x_p) = C_o(0) \left[ \frac{k_{eff} \{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \right]^{\frac{-W_i}{k_{eff}W_o - W_i}} \quad (3.7.5)$$

$$C_i(x_p) = \frac{C_i(0)}{k_{eff}} \left[ \frac{k_{eff} \{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \right]^{\frac{-W_i}{k_{eff}W_o - W_i}} \quad (3.7.6)$$

$$C_o(x_p) = k_{eff} C_i(x_p) = C_i(0) \left[ \frac{k_{eff} \{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \right]^{\frac{-W_i}{k_{eff}W_o - W_i}} \quad (3.7.7)$$

$C_o(0) = C_i(0)$  なので、結晶の濃度＝外ルツボ内の濃度となっていることがわかる。

理論的には、 $x = x_p$  のときからこのドーバント濃度の原料をそこまでの純粋な原料から切り替えて、加えれば式 (3.7.7) の濃度の結晶が定常的にあがることになる。

## (2) 目標結晶濃度が与えられている場合

通常は、製品のスペックが与えられているので、上記式 (3.7.7) の濃度が目標濃度になっている必要がある。

ところで、図 3.7.1 からわかるように定常な状態の結晶中ドーバント濃度は、初期のルツボ内ドーバント濃度（内、外ともに同濃度）より、少し増加していることがわかる。よって単純に初期のメルトのドーバント濃度を、目標結晶中濃度×有効偏析係数とすると、目標濃度より少し高い濃度の結晶をつくってしまうことになる。

この問題を解決するために、以上のことを見越して初期のメルト中ドーバント濃度をその分少し低くし

ておく必要がある。

それでは、どのくらい初期濃度をうすめておけばよいか導いておく。

初期の内ルツボのメルト濃度（＝外ルツボ濃度）は、

$$C_i(0) = C_o(0)$$

濃度が極値になり最適状態となった時の内ルツボの濃度は式 (3.7.6) で与えられ、

$$C_i(x_p) = \frac{C_i(0)}{k_{eff}} \left[ \frac{k_{eff} \{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \right]^{\frac{-W_i}{k_{eff}W_o - W_i}}$$

よって、初期濃度の最適状態時濃度に対する比（ $R_{init}$  とする）は、

$$R_{init} = \frac{C_i(0)}{C_i(x_p)} \quad (3.7.8)$$

$$R_{init} = k_{eff} \left[ \frac{k_{eff} \{W_i + (1 - k_{eff})W_o\}}{W_i} \right]^{\frac{W_i}{k_{eff}W_o - W_i}} = k_{eff}^{\frac{k_{eff}W_o}{k_{eff}W_o - W_i}} \left[ \frac{W_i + (1 - k_{eff})W_o}{W_i} \right]^{\frac{W_i}{k_{eff}W_o - W_i}} \quad (3.7.9)$$

この値は、必ず 1 より小さくなる値である。

この式からわかるように、この比は、 $k_{eff}$ 、 $W_i$ 、 $W_o$  のみの関数なので、初期濃度や目標濃度が変化しても変わらないことがわかる。

よって、この比をあらかじめ計算しておけば、目標濃度はこの比を乗じた濃度になるように初期チャー

ジ原料に初期ドーパントを加えればよい。

### (3) 連続CZ法でのドーピング法のまとめ

今までのまとめ、理論的なドーピング法を整理しておく。手順的な説明図を図3.7.2に示す。

<1>初期チャージ原料に目標濃度より、次式(式(3.7.9)と同じ)：

$$R_{mi} = k_{eff} \frac{k_{eff} W_o}{k_{eff} W_o - W_i} \left[ \frac{W_i + (1 - k_{eff}) W_o}{W_i} \right] \frac{W_i}{k_{eff} W_o - W_i} \quad (3.7.10)$$

に従って少し薄い濃度 ( $R_{mi} < 1$ ) になるように初期ドーパントを加える。この状態では、 $C_i = C_o$  である。

<2>連続引き上げが始まると、 $C_i$ が増加し $C_o$ が減少していく。追加原料の総量  $x$  が次式(式(3.7.4)と同じ)：

$$x = \frac{W_i W_o}{k_{eff} W_o - W_i} \ln \left[ \frac{k_{eff} \{ W_i + (1 - k_{eff}) W_o \}}{W_i} \right] \quad (3.7.11)$$

の  $x$  (g) になったら(あるいは、それに相当する重量の結晶を引き上げたら)、 $C_i : C_o = 1 : k_{eff}$  となっているのでこの時点から目標ドーパント濃度(目標結晶中濃度)にドーパントを混ぜてある原料に切り替えて供給する。その後は自動的に結晶濃度  $C_i$  が一定に保たれる。

### 3.7.8. ドーピング手法の実証実験

今までの解析により考案したドーピング手法により、実際の引き上げにて確かに軸方向の均一性が実現されるかを実験にて確かめた。これらにより、本手法によって軸方向の抵抗が均一な結晶育成が可能であ

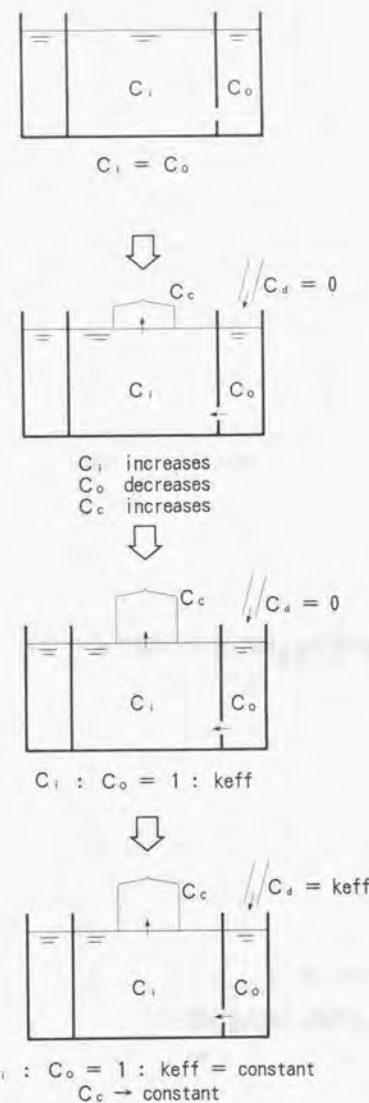


図3.7.2 ドーパント濃度を一定にしていく手順の説明図



ることが実証されている。

# (1) リンドープN型半導体の例

この時の引き上げの各条件は、

$$W_1 = 12800 \text{ (g)}$$

$$W_0 = 4200 \text{ (g)}$$

$$k_{eff} = 0.38$$

となる。式(3.7.10)および式(3.7.11)により、 $R_{eff}$ と $x_B$ を計算すると、

$$R_{eff} = 0.929$$

$$x_B = 3754 \text{ (g)}$$

という値が得られる。

この方案により、目標 $1\Omega\text{cm}$ 狙いの、4インチ(育成時の直径は105mm)の単結晶1mを実際に引き上げ、その抵抗率の軸方向分布を測定した結果が図3.8.1である。トップ部を除いて非常に均一な抵抗の結晶が育成できていることがわかる。

点線は比較のため同等のチャージ量のメルトにより、バッチ式にて結晶を引き上げたときの抵抗変化を示す(Normal Freezingを想定した計算結果)。ここで比較として単純に初期チャージ量を連続法に合わせ、 $17\text{kg}$ とすることは、バッチ式にとって適切ではない。というのはこの連続法によって合計で重量換算で約 $20\text{kg}$ 引き上げることになるので、当然バッチ式でこれを実現しようとする初期にこの量は最低チャージしておく必要があるし、また初期チャージ量を $17\text{kg}$ と取ると $20\text{kg}$ とした場合より濃化が激しいので、双方の理由から比較としてバッチ式の場合は初期チャージ量として $20\text{kg}$ の場合のNormal Freezingを想定してある。繰り返しになるが、バッチ式で初期チャージ量を $17\text{kg}$ にとるとこのグラフより若干濃化が激しい結果となること注意されたい。

$80.0\text{mm}$ 引き上げると抵抗が $8.0\%$ も変化することがわかる。いかに、連続引き上げ法を用いた本ドレーピング手法が有効かを物語っている。

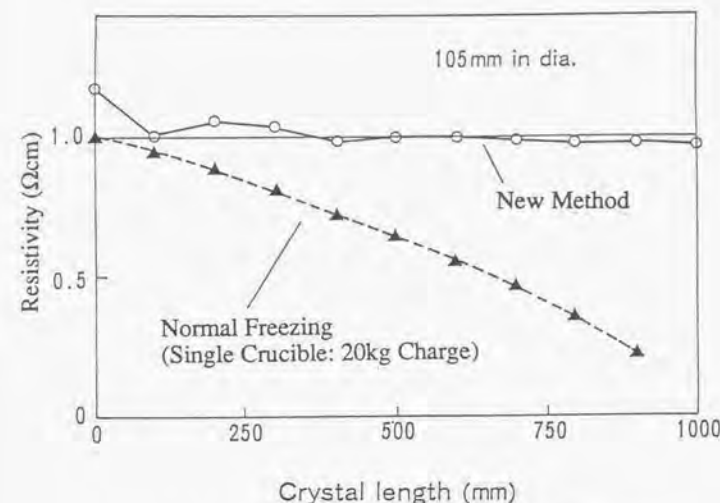


図3.8.1 Nタイプ(リンドープ)結晶での実証実験結果

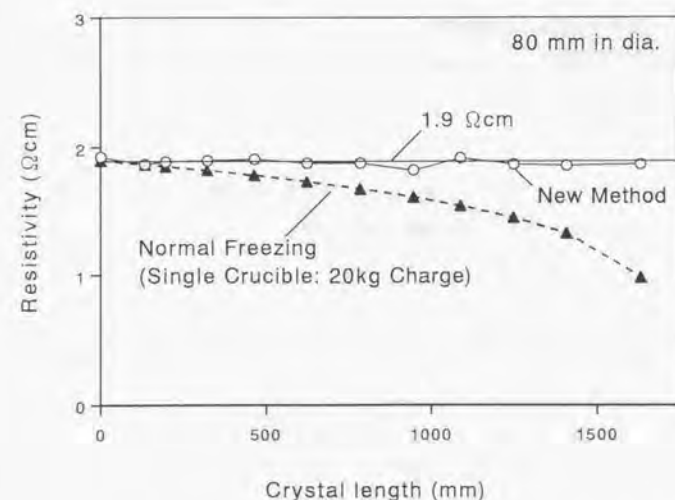


図3.8.2 Pタイプ(ポロンドープ)結晶での実証実験結果

## (2) ホロンドープP型半導体の例

次にホロンをドープした結晶の実験結果を示す。

ホロンは、偏析係数が大きいため、リンドープに比べて、本手法における定常状態までの遷移部分が短く、安定に抵抗を一定にしやすい。

実験の各条件は、

$$W_1 = 11800 \text{ (g)}$$

$$W_0 = 3700 \text{ (g)}$$

$$k_{r1} = 0.82$$

$R_{1,0(t)}$  と  $x_p$  を各々計算すると、

$$R_{1,0(t)} = 0.995$$

$$x_0 = 715 \text{ (g)}$$

$x_p$  がリンドープに比べて小さいことがわかる。

実験の結果を図3.8.2に示す。この実験は結晶径3インチ（育成時の直径は80mm）で、目標抵抗率1.9Ωcmと設定したものである。このグラフから軸方向に非常に均一な抵抗率分布になっていることがわかる。

比較として、バッチ式の場合（初期チャージ量20kg、20kgを想定する理由は前節と同じ）も点線で示した。ホロンは平衡偏析係数が0.8と比較的大きいのでリンに比べ濃化は遅いが、それでも連続法のメリットは長い結晶になるほど大きいことがわかる。

## 3.9 第3章のまとめ

<1>シリコンメルトの流動粘性係数とドーパント原子の渦拡散係数が同じオーダーであるとする、ルツボ（内ルツボ、外ルツボ）の寸法に比べて渦拡散は速やかにすすみ、各ルツボ内で短時間で濃度が一様になっていると推算できる。よって、各ルツボ内の濃度を1つで代表させる1次元ラ

ンプモデルの適用が可能であることがわかった。

<2>従来用いられていたPredopingをあくまでも回避するという立場にたち、ランプモデルにより二重ルツボ法での独特なドーパント濃度変化（内外初期濃度が等しい場合）を解析した。それにより濃度が極大となる点において、内/外ルツボの濃度比が1: $k_{r1}$ という理想状態となっていることがわかった。その後この濃度比を維持するようにドーパントを含んだ原料を供給すれば濃度を一定にできることがわかった。

<3>極大点の位置、及びその濃度を解析的に式で表現できた。それは、初期濃度、内外ルツボのメルト量及び実効偏析係数のみの関数であることがわかり、引き上げ初期の状態を操作することにより自由にコントロールできることがわかった。また極大値までの濃度増加量も補償できることがわかった。

<4>考案した新しいドーピング手法を用いた引き上げ実験にて、実際に軸方向のドーパント濃度均一化が実現されるかの実証試験をおこなった。その結果、本手法によって濃度均一化が可能であることが確認できた。

## 第4章 酸素輸送現象の解析

### 4-1 序

前章までにおいて、メルト内の対流による攪拌が進んでいることを実験によって確認した上で、1次元ラングモデルを用いドーパント濃度の軸方向均一化手法を開発した。これにより実用的には十分な知見が得られていると言える。

次に検討する課題はもう一つの重要な品質制御物質である酸素の輸送解析である。

メルト中の酸素原子は結晶内に入り込み、様々な働きをする重要な不純物である（注）。このため結晶中の酸素濃度を制御することは従来から重要な技術課題であった。

従来のCZ法による問題点は、模式的に図4.1.1に示すように、引き上げに伴いメルトの総量が減少していくにつれ、結晶中の酸素濃度が次第に減少することであった。これはメルト量の減少に伴い、酸素発生源である石英ルツボとメルトの接触部が減少し、結晶界面に到るまでの酸素原子の輸送状況が変化するためと考えられる。この点二重ルツボ法は大きなメリットを与えてくれる。二重ルツボ連続引き上げ法では、原料を追加供給することにより基本的にメルト総量は常に一定に保つため、メルトと石英の接触状況、および酸素を実際に輸送しているメルト内対流の状況は容易に一定に保つことができる。よって図4.1.1に示すように、自動的に結晶内の酸素濃度を一定に維持することができ、その意味では従来のCZ法の問題点を既に解決していると言える。

実際の実験結果の一例を図4.1.2に示す。これはそれぞれ二重ルツボ連続法と同じメルト量の単一ルツボバッチ式の引き上げ法により、育成した結晶中の酸素濃度の軸方向の分布をプロットしたものである。初期メルトの重量はともに20kgと設定している。これから明らかなように、メルト体積を一定にした連続引き上げの方はメルトが減少する通常のバッチ式と異なり、軸方向に均一な濃度に維持できることがわかる。単一ルツボバッチ式では、メルト量の減少に伴い激しく酸素濃度が減少していることがわかる。これは歩留まりを低下させる一要因である。

しかし、二重ルツボ法では、通常の単一ルツボ法（一般のCZ法）に比べ、同一のメルト総量に設定しても、育成初期の濃度と比較して10～20%結晶中の酸素濃度が増加する傾向があることが著者らのメンバーの実験によりわかってきた。これは図4.1.2のグラフからも理解できる。

表4.1.1に著者らの育成した結晶のうちの別の例を示す。この場合は初期メルト重量は33.7kgとなっている。単一ルツボと二重ルツボの相違だけで、その他のルツボ回転数やメルト総量などの操業条件は等しくしてある。二重ルツボの方が結晶のトップ部の酸素濃度で約20%高いことがわかる。



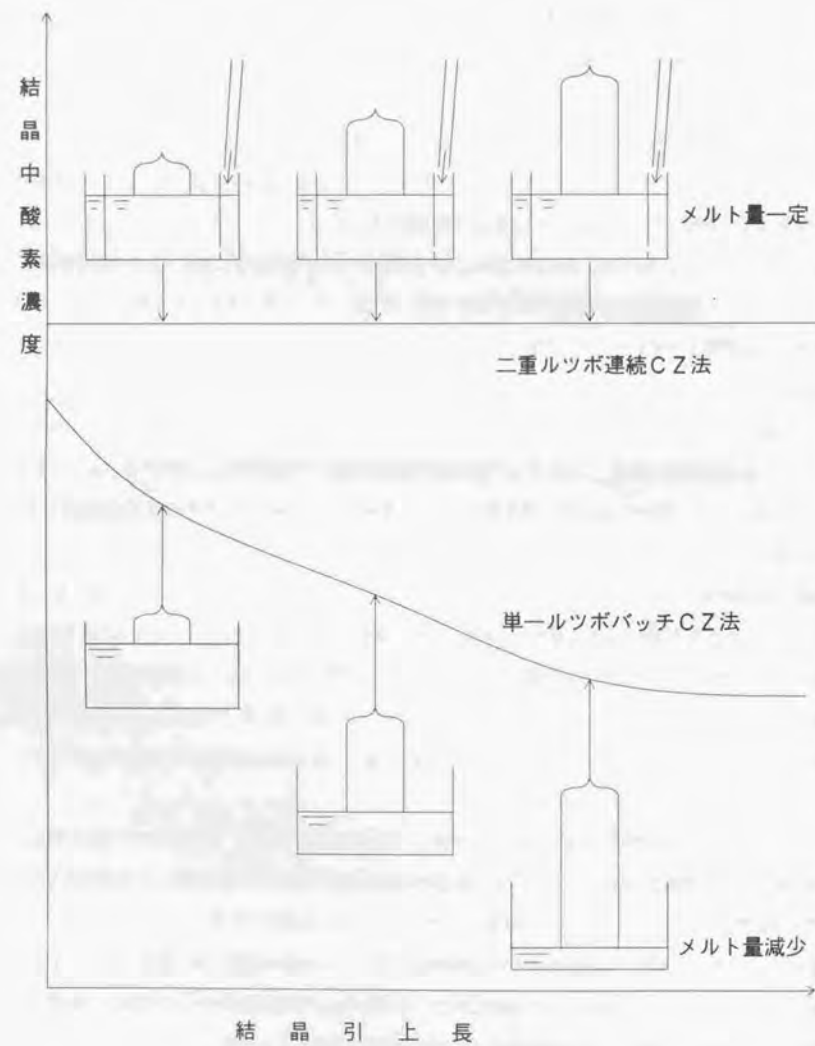


図4.1.1 各引上手法による酸素濃度変化の状況

# Axial profile of oxygen concentration

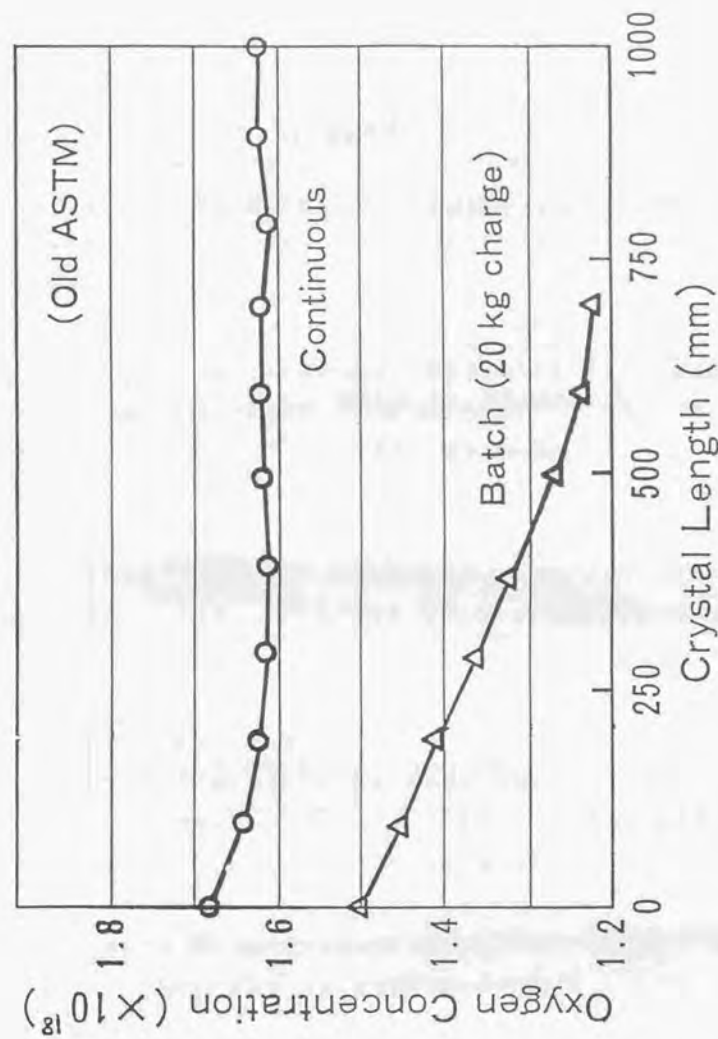


図4.1.2 軸方向酸素濃度変化の測定例その1

表4.1.1 軸方向酸素濃度変化の測定例その2

引き上げ条件概要

<単一ルツボ法>

直径2.2インチルツボ

メルト量 33.7 (kg)

<二重ルツボ法>

外ルツボ直径2.2インチルツボ

内ルツボ直径1.6インチルツボ

メルト総量 33.7 (kg)

結晶中酸素濃度の比較表

(結晶トップ部から200 (mm) までの値)

	結晶中酸素濃度 ( $\times 10^{18}$ atoms/cc)
単一ルツボ法	1.3 ~ 1.4
二重ルツボ法	1.55 ~ 1.77

この傾向は、単純にメルトに接触している石英（酸素原子の供給源）の面積が内ルツボの分だけ単一ルツボより増加しているためと解釈される場合が多い。しかし、果たしてそのようなメルト内の輸送プロセスを考慮していない要因だけで理解してよいものか疑問は残っている。

酸素輸送に関する1次元ランブモデル（メルト対流は基本的に無視）での解析は、他の研究者によって古くからなされており、実用的なモデルも提案されてきている<sup>[14][15]</sup>。本研究で著者は、それらとは異なる、2次元軸対称モデルを用いた対流シミュレーションにて解析を試みた。

過去に提案されたメルト中酸素輸送に関する1次元ランブモデル<sup>[14][15]</sup>を簡単に説明すると、石英ルツボとメルトとの界面、およびメルト自由表面での酸素の物質伝達率を想定し、バルク中では単純に均一濃度と仮定する。そしてメルトのルツボとの接触面積および自由表面積の結晶成長に伴う変化に着目して、1次元ランブモデル式を立ててパラメータフィッティングするものである。ある条件下での実験データと良く整合するという大きな成果をあげたが、バルク中のメルト対流パターンが操業条件により大きく変化した時においてもバルク中酸素濃度は一様であると仮定することに実際上限界があると考えられ、酸素輸送問題をルツボとメルトの界面およびメルト自由表面という界面現象だけに縮小してしまうきらいがある。概要をつかむには非常に優れた1次元ランブモデルであるが、現在ではメルト全体の対流計算をして同時に酸素濃度もその流れ場を用いて計算するという研究者が多数派になっている。

このような状況もあり著者は酸素輸送現象に関しては1次元ランブモデルでなく、2次元シミュレーションを選んだのであるが、著者が一方で第3章のドーバント輸送解析において1次元ランブモデルを用いているのに、酸素の輸送解析において使用しなかった別の理由は、ドーバントの場合は結晶界面の偏析現象を除けば石英ルツボとの界面及びメルト自由表面においてドーバント原子はほとんど何も影響を受けずここでは“Insulate”されていると考えて良いのに対し、酸素原子についてはルツボからの物質移動（アブレーション）と液面からの物質移動（蒸発）が移動量の分布を持って広い面積に渡って発生しており、ランブ化して扱うには余りにも複雑ではないかと思ったためである。結晶界面の面積に対し、ルツボ/メルト界面及びメルト自由表面の総面積は数倍も異なり、その輸送バランスの結果として成長界面での酸素濃度が決定されている事実からも問題を2次元的にとらえた方がより現実を理解するために良いのではないかと考えられる。

ここでは、上述した二重ルツボにおいて酸素濃度が増加するメカニズムを探ることを目的として、第2章で述べた $k-k_r$ 乱流モデルに基づいた方法で、メルト中の酸素濃度分布を数値計算した。むしろ二重ルツボと単一ルツボの対比に着目している。

(注) 酸素原子の役割

結晶中の酸素原子はシリコン格子間に入り込むことにより、ウエハの機械的強度を高める反面、酸化誘起積層欠陥 (Oxidation-induced Stacking Fault, 略して O S F) と呼ばれる結晶欠陥 (図 4.1.3 の黒色の原子群、および図 4.1.4 の写真参照) を発生させるため、その濃度のコントロールをフレキシブルに変更できることが理想である。ウエハのユーザーであるデバイスメーカーによっても、高めの酸素濃度を要求してくるところもあればその逆もあり、彼らの用いているデバイス作成プロセスに依存してスペックがばらついているのが現状である。

4-2 モデル化<sup>[4-1]</sup>

酸素輸送の計算にあたって、 $k = \varepsilon$  乱流モデルにより得られた流れ場、温度場をそのまま使い、いわゆる次の輸送方程式を用いる。

$$\frac{\partial(ruC)}{\partial r} + r \frac{\partial(wC)}{\partial z} = (D_i + D_t) \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial C}{\partial r} \right) + r \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right\} \quad (4.2.1)$$

バルク中の渦拡散係数  $D_t$  に対しては、乱流モデルより得た渦動粘性係数  $\nu_t$  と単純かつ基本的な次式で関係づけた。

$$D_t = \frac{\nu_t}{Sc_t} \quad (4.2.2)$$

$Sc_t$ : 乱流シュミット数でここでは  $Sc_t = 0.8$

この関係式を用いることに対しては、ドーパント輸送解析の前節でも述べたように検討の余地が多い。乱流内物質輸送 (スカラー量輸送) 自体が現在もお多くの研究者の研究対象であり、乱流の微小渦構造と並んで不明な点が多いのである。式 (4.2.2) のようなモデル化は、鉄や銅などの金属メルト中の溶質輸送<sup>[4-3]</sup>や、燃焼流の乱流解析に多く用いられており<sup>[4-6]</sup>、初歩的に議論するには第一近似的に良いであろう。

W. Zulehner and D. Huber

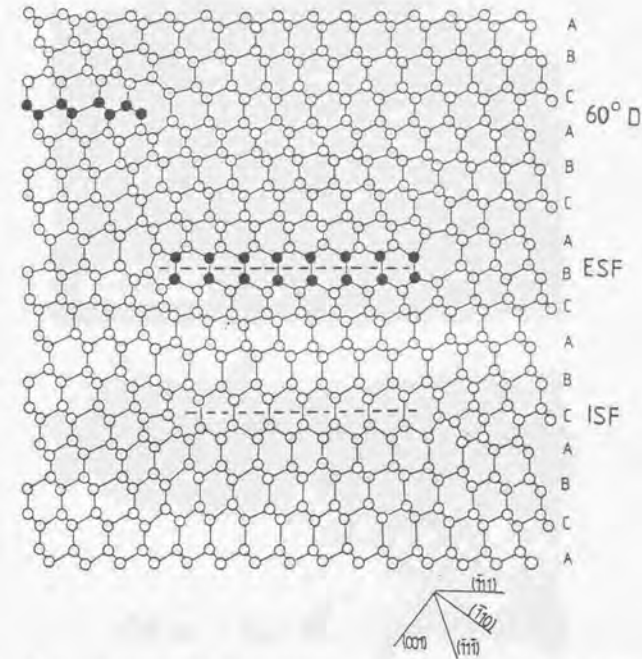


Fig. 51. (110) projection of the Si lattice with an intrinsic stacking fault (ISF), an extrinsic stacking fault (ESF) and a 60°-dislocation (60°D). Inserted atoms are drawn in black

図 4.1.3 酸化誘起積層欠陥 (O S F) の概念図

(W.Zulehner and D.Huber, "Czochralski-Grown Silicon", Springer-Verlag 1982より抜粋して引用)



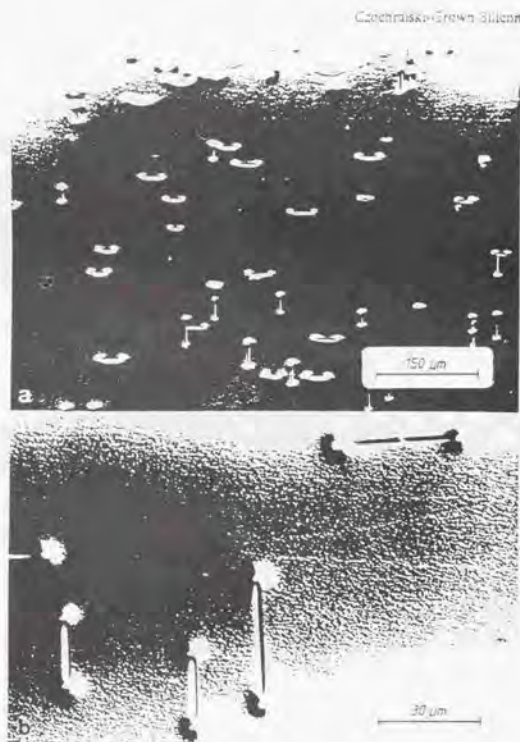


Fig. 63 a, b. Oxidation-induced stacking faults of different length nucleated at surface-near point-defect clusters. The growth velocity of the OSF depends on their distance from the oxidizing surface. b is an enlarged part of a demonstrating the differences in fault length

図 4.1.4 酸化誘起積層欠陥 (OSF) の観察結果

(W. Zulehner and D. Huber, "Czochralski-Grown Silicon", Springer-Verlag 1982より抜粋して引用)

この定式化により酸素原子の微小偏流を考慮した実効的な拡散係数は物性値であるメルト中の分子拡散係数の値より数百倍のオーダーとなる。第2章での検討により流動粘性係数 $\eta$ の値のオーダーは概ね $10^{-3} \text{ m}^2/\text{s}$ であったので、式(4.2.2)により、酸素のメルト中の実効的拡散係数も同オーダーとなる。これに対し酸素の分子拡散係数の値は $5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ と小さい。

石英ルツボとメルトの界面では、酸素は飽和濃度(固溶限界値)になっているものとして、平田・干川による実験式<sup>14,15)</sup>

$$C_s = 4.0 \times 10^{21} \exp\left(-\frac{2.0 \times 10^4}{T}\right) \quad (\text{atoms}/\text{cm}^3) \quad (4.2.3)$$

$C_s$  : 壁面での飽和濃度

$T$  : 壁面の温度 (K)

を用いた。

結晶界面での偏析は無視し、つまり偏析係数は1とおいた。これにより、結晶界面にて酸素の濃度勾配は0となる。

$$\frac{dC}{dz} = 0 \quad (4.2.4)$$

メルト自由表面では、酸素原子はシリコン原子と結びつき $\text{SiO}$ ガスとなり蒸発している。炉内は減圧(約1 Torr=約0.133 kPa)であり、また通常アルゴンガスが流れており $\text{SiO}$ ガスを常に排気しているので、蒸発は非常に速く進んでいると考えられている。よって、液面では急激に酸素濃度が低下している見なしこの濃度はゼロと近似した。

$$C_s = 0 \quad (4.2.5)$$

ルツボ界面及び自由表面での酸素の移動は輸送律速と見なし、物質伝達率により次式のように物質流束 $J$ を評価した。

$$\phi = h(C_w - C_p) \quad (4.2.6)$$

$h$  : 物質伝達率

$C_w$  : 隣接セル中心での濃度

つまり、物質流束は壁面濃度と近傍の濃度の差がドライビングフォースとなってそれに比例係数をかけた形で評価する。

よって、石英ルツボからの溶解物質流束は、次式で表現される。

$$\phi_w = h_w(C_w - C_{wp}) \quad (4.2.7)$$

$h_w$  : 石英ルツボからの酸素溶解の物質伝達率

$C_w$  : 石英ルツボとメルトの界面の温度における飽和酸素濃度 (4.2.3) 式)

$C_{wp}$  : 隣接セル中心での濃度

またメルト表面からの蒸発物質流束は、

$$\phi_s = h_s(C_{sp} - C_p) \quad (4.2.8)$$

$h_s$  : メルトからの酸素蒸発の物質伝達率

$C_{sp}$  : メルト表面における酸素濃度

$C_{sp}$  : 隣接セル中心での濃度

この場合 (4.2.5) で示しようにメルト表面の濃度は十分小さいと近似できるので、

$$\phi_s = h_s C_{sp} \quad (4.2.9)$$

と表現し直すことができる。

しかし、問題は  $h$  の値の評価である。 $h$  は正確には壁面上での対流状態、せん断応力、及び流れの乱れ状態などの関数になっているはずである。理想的には実験により条件を振って調べることであるが、シリコンのような高温融液の場合それはなかなか容易な実験ではない。

他の手段として濃度境界層内でメッシュ分割して直接的に  $\phi$  を求めるという方法が考えられるが、濃度境界層の厚みは非常に薄く (オーダーエスティメイトより 0.1 ~ 0.1 mm と考えられている)、分割は非常に困難である。ここではとりあえず単純かつ基礎的に扱うため、各界面では拡散支配 (分子拡散支配) と近似し、各地点でのセルの濃度勾配  $\times$  拡散係数 (物性値) の値を用いた。

マランゴニ対流の存在については第2章で述べたようにはっきりしていないので、ここでも無視することにした。

以上のモデル化の状況を図 4.2.1 に示す。

計算は第2章と同様の有限体積法を用いて行っている。計算に用いた物性値は第2章の表 2.4.4 に示した通りで、この表の中に酸素原子のシリコンメルト中での拡散係数の値も示しておいた。

#### 4-3 3つの比較モデル

最初に次の3つの場合を設定してみた (図 4.3.1 (a) ~ (c) 参照)

<モデル1> 内ルツボに導通部のある二重ルツボ (図番 (a))

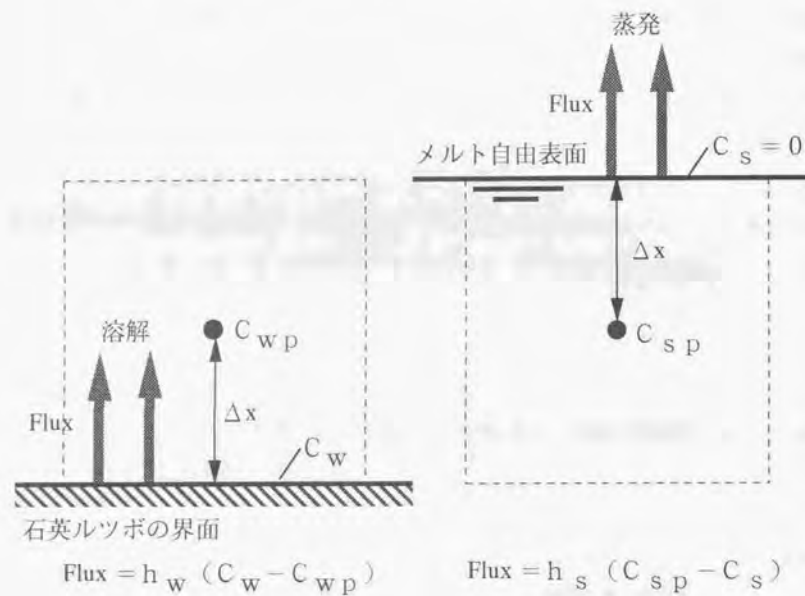
<モデル2> 内ルツボに導通部のない二重ルツボ (図番 (b))

<モデル3> 単一ルツボ (図番 (c))

基本的には第2章でのモデルと同様で外ルツボ 1.6", 内ルツボ 1.2", 結晶径 5" を想定している。中心軸上でのメルト深さは 8.9 mm である。また、固液界面はフラットと近似している。

モデル1の導通孔は外ルツボからシリコンメルトが流れ込むようにするためのもので、ここでは2次元軸対称モデルなので周方向に開いているギャップとなっている。またモデル1では、結晶が 1 mm/min の速度で育成されている状況をモデル化している。内外ルツボの隙間部に結晶成長に伴うメルト減少分を補うように原料を供給するのである。ここでは、結晶成長界面での上方のメルト速度を 1 mm/min と設定している。しかし、この速度はメルトのバルク中の流速に比べて非常に小さい値である。

モデル1での導通孔の存在は重要な要因となるであろうと当初予想されたので比較のためにモデル2を考案した。これは外ルツボからのメルトの流入の無い現実的には意味を持たないものであるが、外ルツボ



近似として、

$$h_w, h_s = D / \Delta x$$

図4.2.1 酸素原子のルツボからの溶解・液面からの蒸発のモデル化

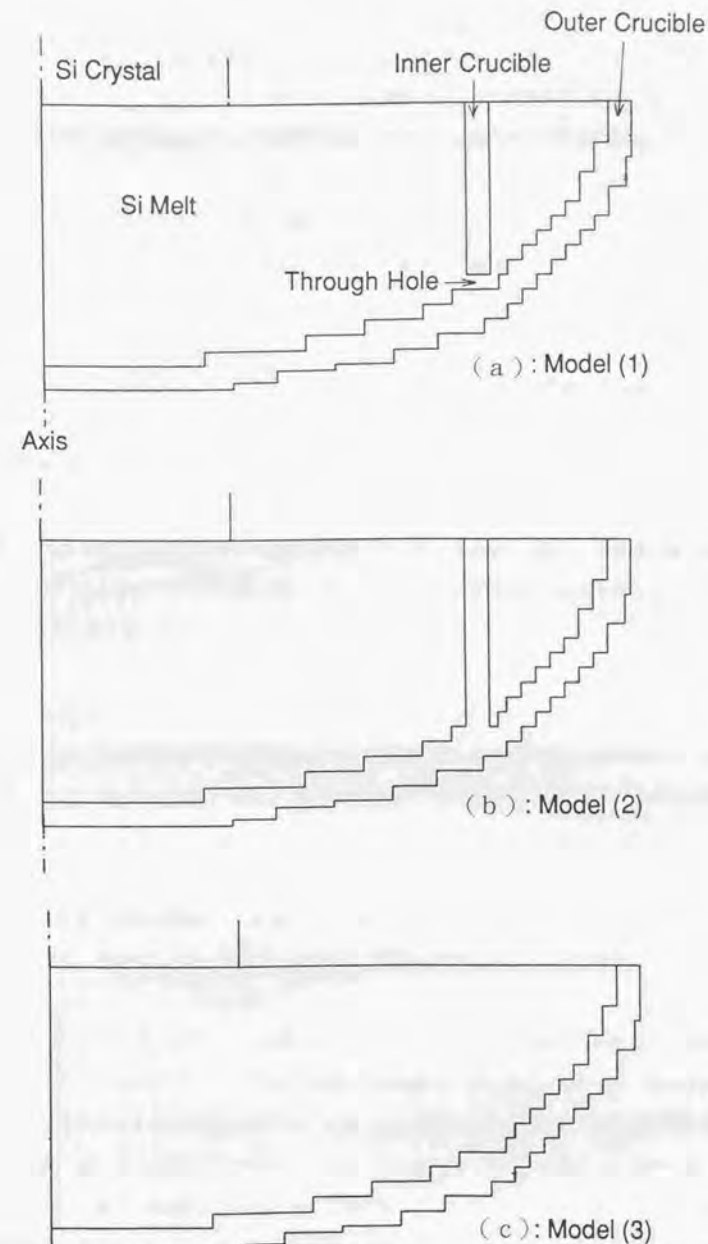


図4.3.1 3つの比較モデル

- (a) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のあるモデル
- (b) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のないモデル
- (c) 単一ルツボのモデル



内の熱的状況が内ルツボ石英を介して伝わり内ルツボの内面の温度を決定しているという状況を再現することができる。ただし結晶界面での上方の速度成分は0である。

モデル3の通常の単一ルツボの状況も比較の為のもので、メルトの体積は変化せず結晶界面での上方の速度成分は0である。

温度の境界条件としては、自由表面およびルツボ上端面からの放射放熱を考慮し、ルツボの外周面温度として、第2章において行った実験による値を用いた。よって、メルトとルツボの接触部の温度は固定していない。

#### 4-4 計算結果と考察

図4.4.1に上記3つの場合の流れ場を示す。ルツボ回転はすべて5rpmで、結晶回転は15rpmである。

結晶近傍を見ると、二重ルツボも単一ルツボもそれほど差がない。しかし、二重ルツボ法の場合内ルツボが存在するために内ルツボの内面下部から上方に向かう弱い流れが存在することがわかる。

図4.4.2(a)～(c)に求めた酸素濃度分布の等濃度線を示す。等濃度線の間隔は、 $0.1 \times 10^{18}$  (atoms/cm<sup>3</sup>)である。

ルツボ内面近傍において、等高線の端部が内面にきちんと接触していないことがわかる。これは、計算上はルツボ内面の高い飽和酸素濃度とそれに接触している計算セル中心の間は前述したように線形拡散にて近似しているため、実際には等高線端とルツボ内面の間には多数の等高線が内挿されなければならない。作図の関係上省略してある。この内挿はメルト表面にも成り立つ。

図4.4.3(a)～(c)にこの3ケースの等温線を示す。

全ての場合について、ルツボ外面の境界温度は同一としてある。これは第2章の二重ルツボのシミュレーションモデル（導通孔無しの場合、結晶を考慮したモデル）にて用いたルツボ外面の温度分布と同一である。

二重ルツボの場合に特有なこととして、その内ルツボの厚み方向に温度勾配が見られ、その内ルツボの断熱効果の故に外ルツボの中のメルトが高温状態に維持されていることがわかる。

二重ルツボと単一ルツボの場合を比較すると、内ルツボが存在することにより内ルツボと外ルツボに挟まれた部分のメルトの温度が上昇しているの、これに引きずられて、内ルツボ下部の導通孔近傍の温度（石英・メルトともに）も上昇していることがわかる（1470℃の等温線に注意）。

また、内ルツボがメルト中に存在するだけでその内面に接触しているメルトの酸素濃度を飽和酸素濃度

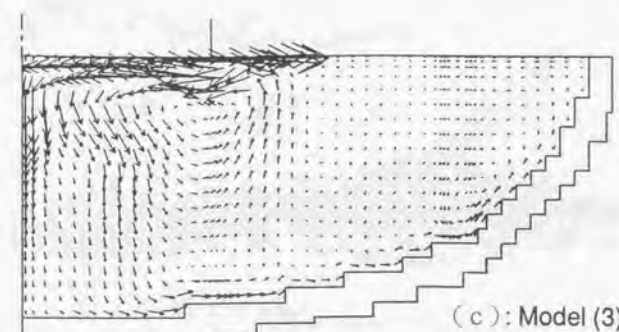
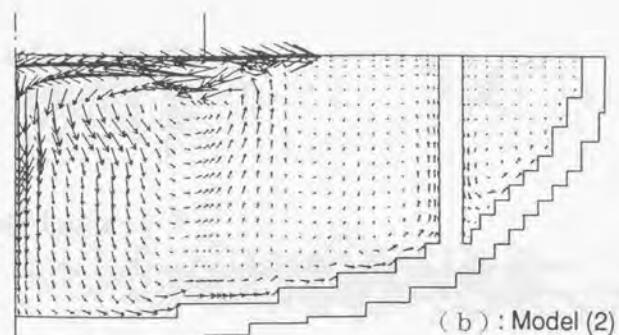
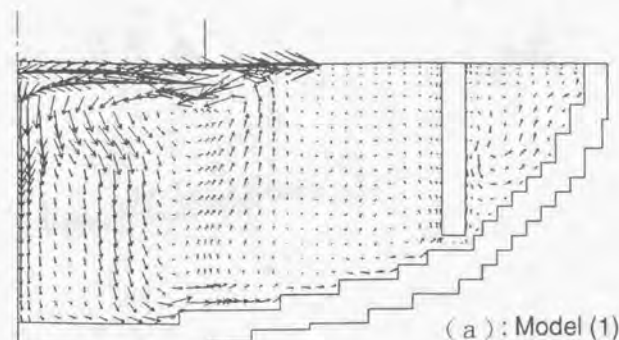


図4.4.1 流れ場の計算結果

- (a) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のあるモデル
- (b) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のないモデル
- (c) 単一ルツボのモデル

→ 1 cm/sec

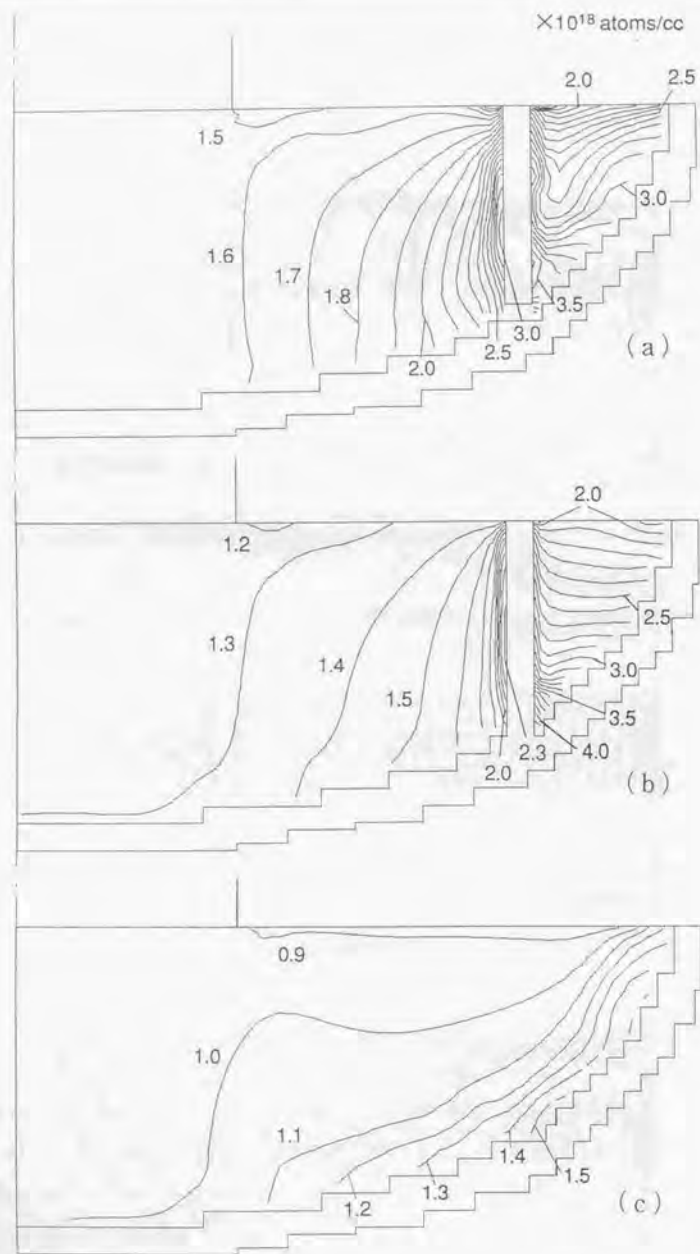


図4.4.2 酸濃度分布の計算結果

- (a) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のあるモデル
- (b) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のないモデル
- (c) 単一ルツボのモデル

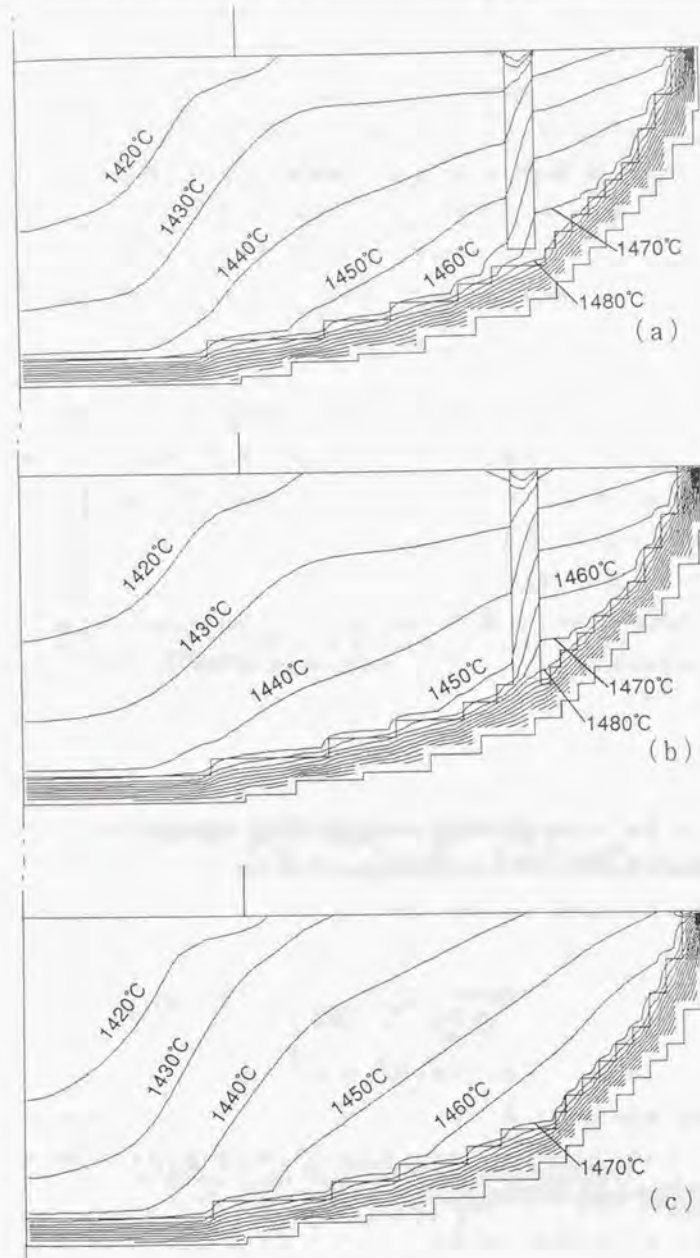


図4.4.3 温度場の計算結果

- (a) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のあるモデル
- (b) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のないモデル
- (c) 単一ルツボのモデル



に維持してしまうということが起こる。内ルツボの無い単一ルツボ法に比べ、その飽和濃度のメルトと結晶成長界面との距離が、短く迫ってくるため、結晶下での酸素濃度はバルク内の輸送を経由して上昇することになる。これは、図4.4.2 (a)と図4.4.2 (c)を比較するとわかる。

内ルツボの間隙部では、すでに述べたようにメルトの温度は非常に高いのでメルトに接触しているルツボ界面の温度は高く、飽和酸素濃度も高くなり、結果的にメルトの酸素濃度を押し上げる。そして、特に下部で濃度が高いことがわかる。

つぎに導通孔の存在の影響に関してみると、図4.4.3 (a)と図4.4.3 (b)との比較により導通孔の周辺の温度分布に対しいくらか影響を与えていることがわかる。内ルツボの底部において、導通孔のある場合は、ない場合に対し約1.0度高いことがわかる。これは、導通孔の間に挟まった熱伝導性の良いメルトが外側の熱いメルトから熱を誘導しているからである。

この効果に加えて、導通孔は酸素原子が内ルツボ内部へ浸透することを許すかたちとなる。内外ルツボ間隙部の酸素濃度は非常に高いので、導通孔での濃度勾配は  $1.6 \times 10^{18}$  (atoms/cc/cm) のオーダーである。結晶の成長速度は遅い (約1 mm/分) ので導通孔でのメルト流速は小さいが、拡散による酸素原子の輸送は無視できない。

また内ルツボの内面では上方へ向かう流れが存在しているのでそれも手伝い、結果的に図4.4.2 (a)に示すように、内ルツボの内面近傍の酸素濃度を高めることになる。

この解析では、乱流による高い実効拡散係数 (= 分子拡散 + 渦拡散) を酸素輸送に関し仮定しているもので、内ルツボの中心部つまりメルトバルク中の等濃度線は拡散的な分布を示すようになる。

この強い酸素輸送と自由表面での酸素蒸発が結晶界面近傍で競合している。界面下では、図4.4.4 (a) (b)のように結晶回転により循環流が生じており複雑な競合状態となっている。これらの結果として、界面での酸素濃度レベルが決定されるのである。

上記3ケースでの界面直下での半径方向の酸素濃度分布を図4.4.5に示す。すでに述べたメカニズムにより、導通孔のある二重ルツボの場合が最も高い値を持ち、およそ  $1.5 \times 10^{18}$  (atoms/cc) である。最も低いのは、単一ルツボの場合である。これは、著者らの実際の酸素濃度測定結果 (赤外線分光法を用いる) と定性的に同じ傾向を示していた。

ここに二重ルツボ法でなぜ酸素濃度が上昇するかを以下にまとめると、

<1> 内ルツボの内表面はその温度で規定される比較的高い飽和酸素濃度を持っている。よって、成長し

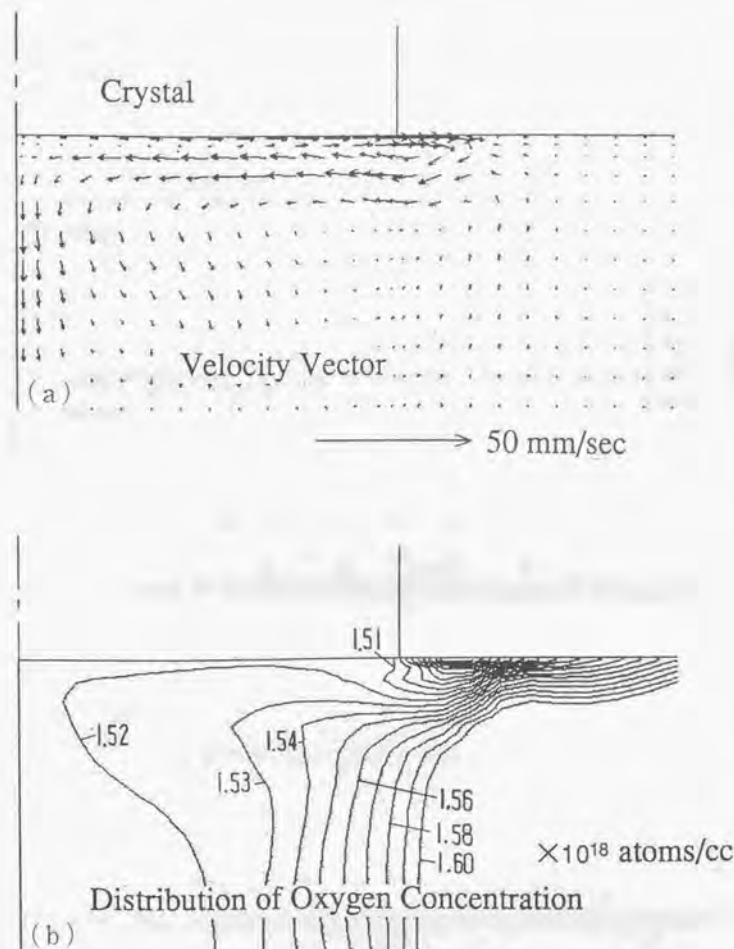


図4.4.4 結晶界面下の状態  
(a) 流れ場の様子  
(b) 酸素濃度分布



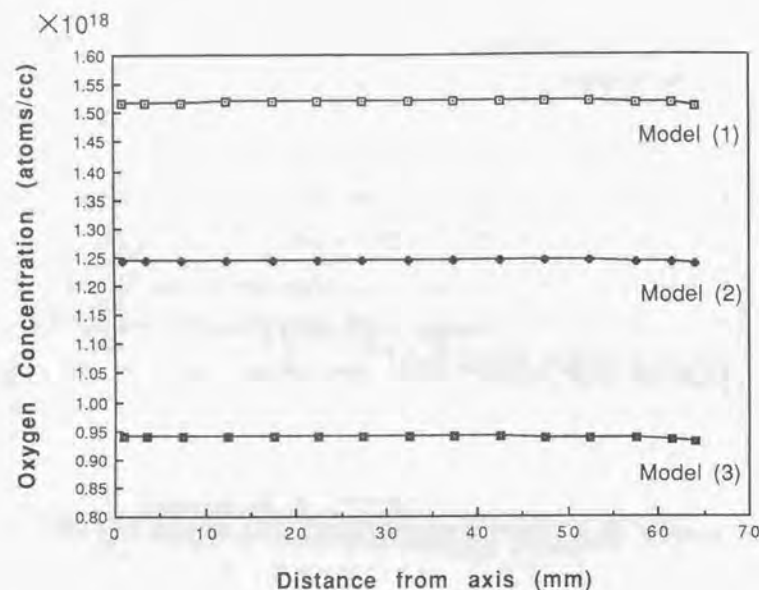


図 4.4.5 結晶界面直下での酸素濃度分布その 1

ている結晶からみると新しい酸素源とみることができる。二重ルツボの場合、その新しい酸素源と結晶界面が近づくため、比較的高い酸素濃度源から放出された酸素原子が内ルツボから結晶界面に輸送され結果的にそこでの濃度を押し上げる。

<2> 内外ルツボに挟まれた部分の濃度は、メルト温度が高いために内ルツボ内より高く維持されており、特に下部が高い。そして導通孔がある場合は、それを通じて酸素が内部に移動し、内ルツボの内面近傍の濃度を増加させる。そして結果的に結晶界面の濃度を押し上げる。

<3> 導通孔のある二重ルツボの場合、導通孔周囲の石英の温度はそこに満たされているシリコンメルトのために上昇している。結果的に導通孔周囲の石英表面の飽和酸素濃度を上昇させる。よって結晶界面の濃度増加に寄与する。

以上のメカニズムをより明確に調べるために、さらに図 4.4.6 (a) (b) に示すように内ルツボからの酸素の溶けだしを無くしたモデルを導通孔のある場合とない場合の二重ルツボに対して作成した。つまり、

<モデル 4> 内ルツボに導通部のある二重ルツボで、内ルツボから酸素の溶出を無くしたもの

<モデル 5> 内ルツボに導通部のない二重ルツボで、内ルツボから酸素の溶出を無くしたもの

これは、内ルツボ表面からの物質流束をゼロにすることを意味する。この種の状況は数値計算でのみ解析することができるものである。

図 4.4.7 (a) にモデル 4 の結果を示す。内ルツボ表面からの物質流束がゼロなので、等濃度線はその表面に垂直に接触していくことがわかる。

内ルツボから酸素原子は溶出しないが、図 4.4.7 (a) (b) からわかるように外ルツボと内ルツボの間隙部での酸素濃度は、高い状態にあることがわかる。

もう一つ重要なことは、内ルツボが酸素を出さないのに、導通孔の内側近傍の濃度は図 4.4.7 (a) に示すように比較的高くなっていることである。これは、おもに導通孔を通じて入ってきた酸素原子のためである。これは、前節で説明した<2>のメカニズムが確かに存在していることを示している。

図 4.4.8 にモデル 1～5 までについて結晶界面での酸素濃度分布をまとめて示す。モデル 4 の場合は

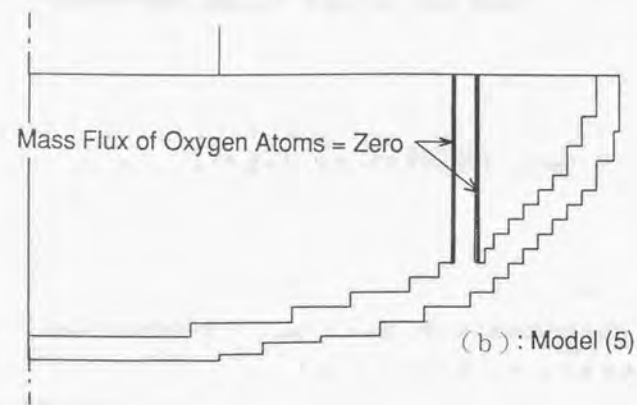
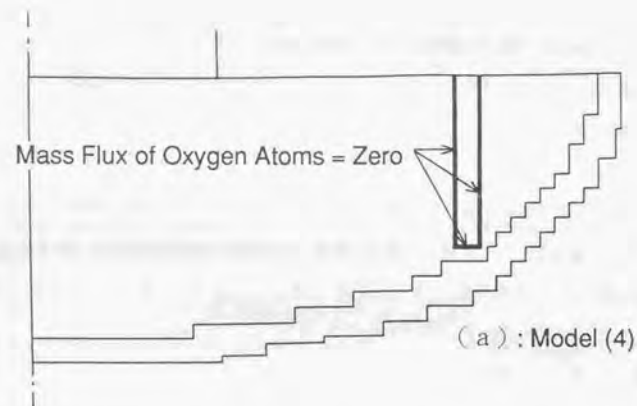


図4.4.6 内ルツボからの酸素溶解の無いモデル  
(a) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のあるモデル  
(b) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のないモデル

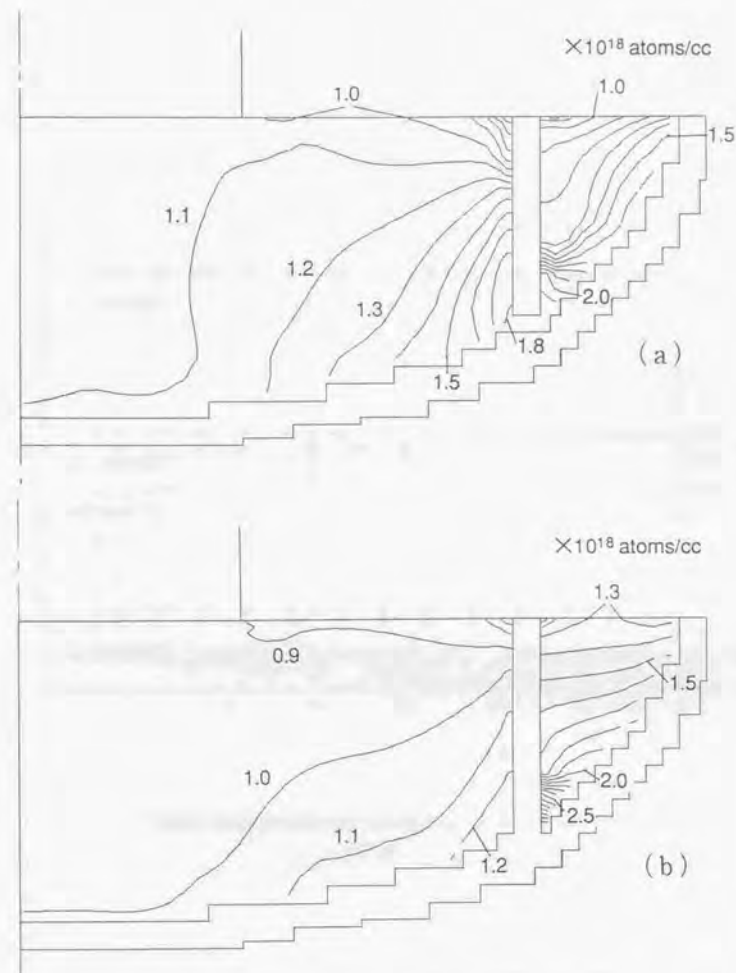


図4.4.7 酸素濃度分布の計算結果  
(a) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のあるモデル  
(b) 二重ルツボで内ルツボに導通孔のないモデル

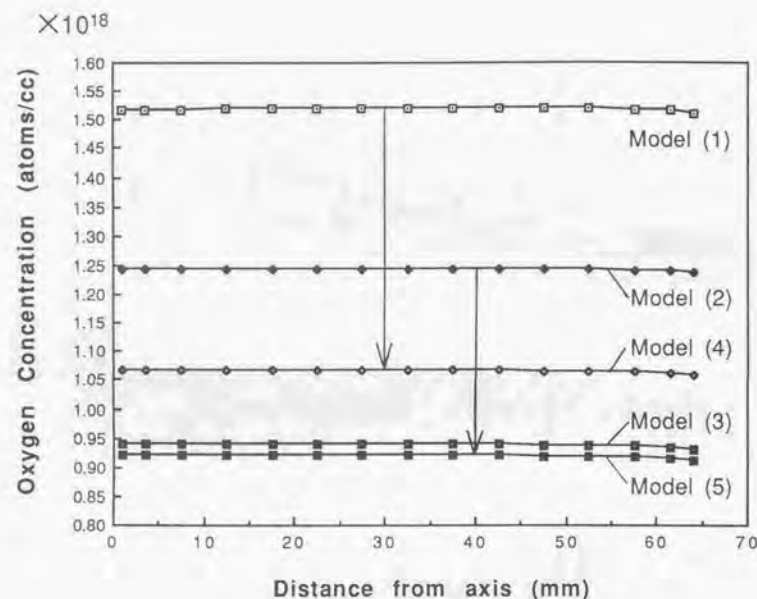


図4.4.8 結晶界面直下での酸素濃度分布その2

モデル1の $1.5 \times 10^{18}$  (atoms/cc) のレベルから $1.1 \times 10^{18}$  (atoms/cc) のレベルまで下がっていることがわかる。しかしモデル3の単一ルツボの場合よりは高いレベルである。このことから、前節のメカニズム<1>が二重ルツボの酸素濃度増加現象にとって、主たる原因ではないかと考えられる。

導通孔近傍の濃度変化を詳しく見てみる。図4.4.7 (b) より、内ルツボの内側底部での酸素濃度はおよそ $1.2 \times 10^{18}$  (atoms/cc) である。これに対し、図4.4.7 (a) から導通孔内での濃度は $1.8 \times 10^{18}$  (atoms/cc) であり、前者との差は $0.6 \times 10^{18}$  (atoms/cc) である。図4.4.7 (a) の場合の内ルツボの内側底部の温度は $1460^\circ\text{C}$  であり、図4.4.7 (b) の同じ部分の温度は $1470^\circ\text{C}$  である (図4.4.3 (a) と (b) の比較による)。式 (4.2.3) によると、この温度差は石英ルツボ表面の飽和酸素濃度に換算して $0.2 \times 10^{18}$  (atoms/cc) である。上記のメカニズム<3>のみを考えれば、メルト中酸素濃度も $0.2 \times 10^{18}$  (atoms/cc) だけ上昇してよい。しかし、結果的にこの場合 $0.6 \times 10^{18}$  (atoms/cc) も増加している。よって、この増加は主に内外ルツボの間隙部の底部の高酸素濃度のメルトから輸送されてもたらされたということを意味している。これは、<2>のメカニズムを意味している。

#### 4-5 第4章のまとめ

<1>乱流モデルを用いた2次元数値シミュレーションにより、二重ルツボ内の酸素輸送現象を解析することを試みた。

<2>二重ルツボの場合に結晶中酸素濃度が単一ルツボの場合より増加する要因をシミュレーションにより探った。その結果、考えられるもっとも大きな要因として、二重ルツボの場合は内ルツボが新しい強い酸素源となり、その内面と結晶界面との距離がせまるため結晶界面での酸素濃度を上昇させているということがわかった。

<3>また二重ルツボの場合、内外ルツボ間隙部での酸素濃度が非常に高く、特に下部で高いため、導通孔を通じて酸素が内側に移動している可能性が示唆された。



## 第5章 電磁攪拌技術適用の検討

### 5-1 序

近年シリコンウエハーの口径の大型化が急速に進んでおり、97年現在では8インチのウエハーも商用ベースに完全に乗り、一部では12インチのウエハーも試作され始めている段階にある。このような時代においても第1章で述べた連続CZの必要性は少しもあせることなく存在し、その技術的有用性は常に意識されている。

しかし大口径の単結晶育成に連続CZ技術を適用した場合に想定される課題点として次のようなものが考えられる。

(1) 粒状原料の連続供給レートが結晶径の2乗に比例して増大する。その多量の供給原料を外ルツボにおいていかにスムーズに継続溶解するか。

(2) 結晶径の増大とともにルツボ径も増大し、ヒーターパワーが上昇しルツボのヒーター近傍部の高温化が進む。それに伴い結晶中の酸素濃度の上昇につながる危険性がある。

(1)は当然予想される問題であり、固体粒状原料を使う限り常に念頭に置いておくべき点である。これに関しルツボへ液体の状態で供給するというアイデアもありうるが、ハンドリングの困難さや液体シリコンへの不純物汚染などの心配などから、著者らはあくまでも固体粒状原料を供給するという立場を取っている。よって問題は外ルツボのメルトの原料溶解能力をいかに向上させるかという点にある。

(2)の点は近年の傾向として、どちらかというとも低酸素濃度のウエハーがデバイスメーカーに好まれるという状況と関連している。また酸素濃度が高いウエハーは育成中にOSF(酸化誘起欠陥)の発生を引き起こし、品質の劣化につながる。ヒーターパワーの増大と共に、局所的な高温部が発生することは十分考えられ、それと同時に第4章で述べた石英ルツボとメルトとの界面の温度が上昇し、そこでの酸素濃度が上昇し、メルト中の酸素濃度を押し上げ、最終的に結晶中の酸素濃度まで上昇させるのではないかの危険があるのである。

但しつけ加えておくが、現状つまり8インチの結晶の連続育成時までは、上記の問題は微妙な熱バランスの達成により首尾良く回避できている<sup>13)</sup>。しかし12インチなどのさらなる大口径の結晶に適用した

場合を想定して、事前に検討を加えておくことは重要でありまた意味のあることである。

ここでは、上記の課題点を解決する手段として、電磁搅拌技術を取り上げその有効性を数値モデルにて検討することとした。電磁搅拌技術は非接触にて液体金属を対流駆動することのできる興味深い技術であり、これを二重ルツボの外ルツボメルトに印加して搅拌混合を施すと、上記の問題に対して有利に作用することが想像できる。外ルツボを搅拌してやれば、液面の温度が上昇し、上記(1)の課題に対する効果は容易に想像できるかもしれない。しかし具体的にコイル配置や電流値を想定したとき、液面温度は何度上昇するのかというエンジニアリングの情報の予測と、また(2)の酸素濃度に対して弊害はないのかというのが、本研究の具体的な動機である。

尚、本章は著者が米国マサチューセッツ州のMIT (Massachusetts Institute of Technology) の材料工学科、セカリー教授 (Prof. Szekely) 研究室に1993年7月から1995年1月まで客員研究員として留学していた際に取り組んだ研究の一つである<sup>[5,25,31]</sup>。

## 5-2 電磁搅拌とは

ここではいわゆる電磁搅拌現象について簡単に説明を加える。

電気伝導性の物質 (液体金属、固体金属) に交番磁場 (交流電流により発生する磁場) を印加すると、その物質内部に誘導起電力が発生し、外部磁場を打ち消す方向に磁場を発生させるように誘導電流が発生する (いわゆるレンツの法則である)。そしてその発生した誘導電流と、物質内部に浸透している磁場との干渉からローレンツ力が発生する。

物質表面にコイルを並べ、全てのコイルに単純に同相の交番電流を流し、その物質表面近傍に磁場を印加した場合、発生するローレンツ力は、常に表面に鉛直内側である。それゆえこの力を表面を押さえつけるピンチ力と見なして「磁気圧」と呼ぶこともある。この時の状況を軸対称物体の時を例にとり図5.2.1(a) ~ (b) に示す。コイルの交流電流がどちらを向いていても、 $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$  の向きを考えると常に物質内側であることがわかる。

次にもう少し状況が複雑で、コイルの電流が全て同相でなく、一方向に位相がシフトしている場合を考えてみる。例えば図5.2.2(a) に示すような瞬間を考えると、上方の2つのコイルの間に近い物質内の点A点では、コイルの電流変化を打ち消すような方向に電流が発生するため、図のように紙面奥側から手前側である。同じ理由により下方のB点では発生する電流は紙面手前側から奥側である。次に物質内に浸透している磁場を考えてみる。最上部のコイル電流により反時計廻りの磁場を物質側に発生する。真ん

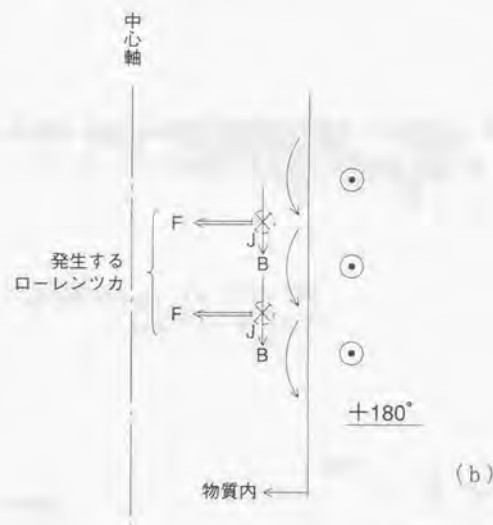


図5.2.1 交流磁場によるローレンツ力の発生 (定在磁場の場合)  
(a) ある時点での状況  
(b) 位相が180度進んだ時の状況

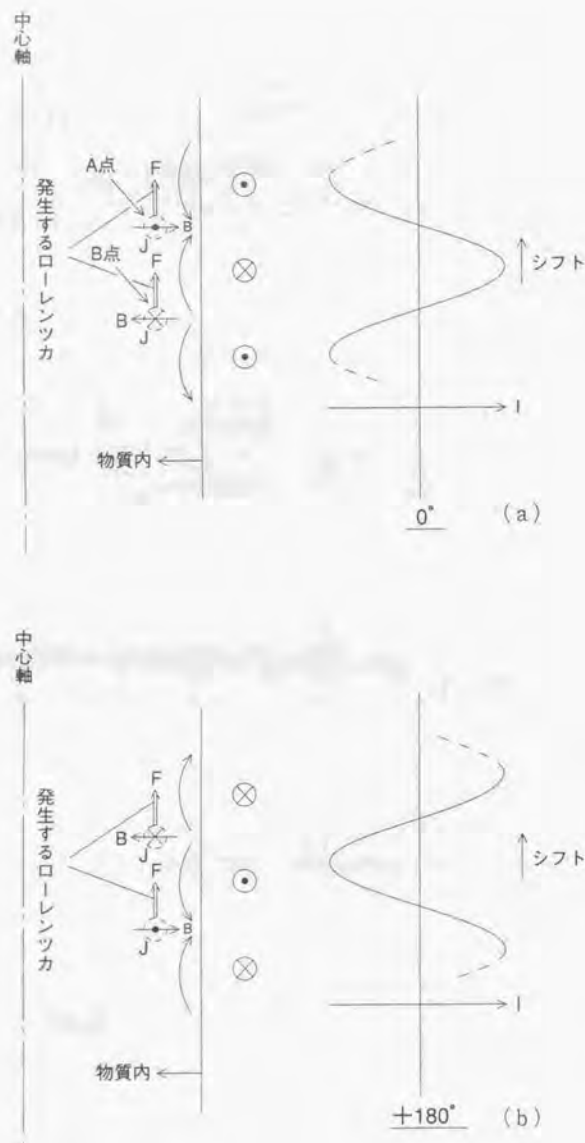


図5-2.2 交流磁場によるローレンツ力の発生(シフトする磁場の場合)  
(a) ある時点での状況  
(b) 位相が180度進んだ時の状況

中のコイル電流では逆に時計廻りの磁場を生むようになる。よってA点ではそれらが平均化され、物質内部から表面に向く磁場の要素が大きくなる。従ってA点において $J \times B$ を考えると、ローレンツ力 $F$ は上を向くことがわかる。B点においても同様に考えて、 $F$ は上を向くことが理解される。図5.2.2 (b)にコイル群の交流電流の位相が180度進み、各コイル内の電流方向が反転している場合を示す。ここでも最終的なローレンツ力は上向きであることがわかる。つまり、コイル内を流れる電流のシフトしている方向と同じ方向にローレンツ力が発生することがわかる。

そしてその電気伝導性物質が液体である場合、発生するローレンツ力の方向に従って流れが駆動され、多くの場合液体内に循環セルが形成される。単相のコイル電流を用いて、磁気圧のため全体的に内側に押されている場合は最も強い部分で内側に沈む方向に流れが駆動され、シフトする交流電流の場合はその方向に誘導されたローレンツ力と同じ方向に対流駆動されるのである。

上の2つの説明例だけでなく、回転磁場を用いたり磁場を発生させるコイル部の形状やシステムを工夫することにより、様々な対流駆動パターンを実現することができる。図5.2.3に鉄鋼分野の連続鑄造技術に用いられた様々な例を示す<sup>124)</sup>。

電磁攪拌技術自体は古くから存在し、すでに鉄鋼分野では溶鋼の凝固時に冷却装置と併用することで実用化している。そこでの目的は溶質を凝固界面全体に均一に分配させ品質を安定化させることなどである。また電磁気冶金の分野のコールドクルーシブル法は、上述の磁気圧力を融液の形状保持さらに浮揚力として用いるものである。完全に浮揚させる場合は高純度を要される金属の非接触溶解を狙ったものが多い<sup>124)</sup>。高温融液時にルツボと接触するとルツボからの不純物の溶解などが問題になる場合があるからである。コールドクルーシブル法ではほとんどが水冷銅ハース自体に交流電流が流れるように工夫しローレンツ力を発生させるものである<sup>124)</sup>。

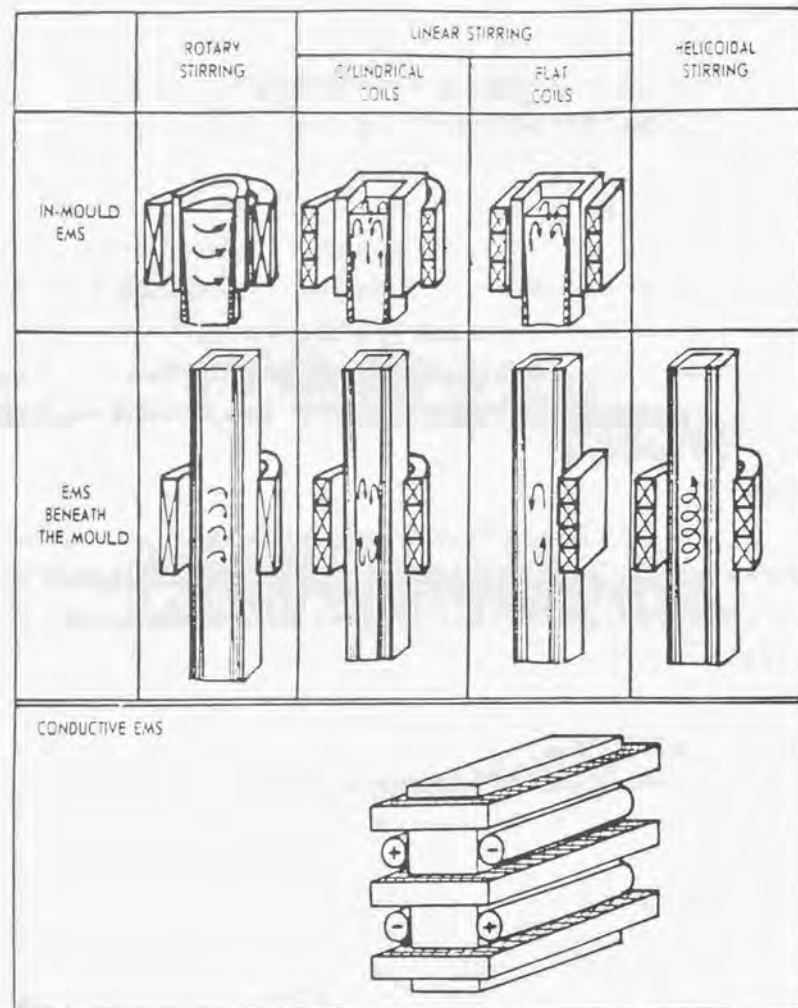
さらにシリコンの分野のいわゆるFZ (Floating Zone法) は、誘導電流を磁気圧でなく、ジュール熱発生源として用いるものである。金属分野でのV I炉も同様と言える。

### 5-3 モデル化と解析手法

#### (1) モデル

第2章～第4章までにおいて、ルツボ内のメルト形状は基本的に2次元軸対称として扱ってきた。これは解析のし易さと、また2次元軸対称に近似した際の解を求めることが最も基礎的であるという立場からである。





Electromagnetic stirring arrangements used for billets and blooms

図5.2.3 鉄鋼分野の連続鋳造技術に用いられた電磁攪拌技術の例<sup>[5-4]</sup>

この電磁攪拌についても、図5.2.3に示したように、様々なシステムや印加方法が考えられる。しかし、ここでも最も基礎的にかつ2次元軸対称として扱える図5.2.1～5.2.2に示した円状のコイルに交流電流を流した場合の解析を試みることにした。

このような系の場合の誘導電流および攪拌のローレンツ力の計算は以降に述べるように、相互インダクタンスの考え方と複素数を用いた交流理論によって、鮮やかに解くことができる<sup>[5-7,10]</sup>。次節にてこの手法について説明する。

## (2) 解析手法

図5.3.1のように交流コイルがリング形状をしている場合、その誘導電流は交流コイル同様回転方向に発生するが、その方向は反対となる。誘導電流が回転電流つまり2次元軸対称と扱えることから、メルト領域を分割し、多くの環状物体の集合体に分け、その各々のリング内の誘導電流を算出すればよいことになる。

相互インダクタンスは本来交流の変圧器の設計に用いられていたものであり、ある回路に交流が流れている際に他の回路に発生する誘導電圧を算出することを可能にする。しかし困難な点は、ある回路の誘導電流を計算する際に、その回路をとりまく全ての回路あるいは電流路を流れる電流を考慮する必要がある点である。

一旦、メルト中の電流分布が計算できたら、磁場分布はマクスウェルの方程式を用いてすぐに算出することができる。そしてこの誘導電流と磁場分布から時間平均のローレンツ力（攪拌力）を計算することができる。以上が概要であるが、数式を用いて詳しく述べることにする。

一般に電流が空間を流れる時、対応するベクトルポテンシャルを次のように定義することができる。

$$A = \frac{\mu}{4\pi} \int_{\text{vol}} \frac{J}{r'} dv \quad (5.3.1)$$

このベクトルポテンシャルを用いると磁場は簡便に次式から求めることができる。

$$B = \nabla \times A \quad (5.3.2)$$

ところで、マクスウェルの理論から電場と磁場は次式によって関係づけられる。

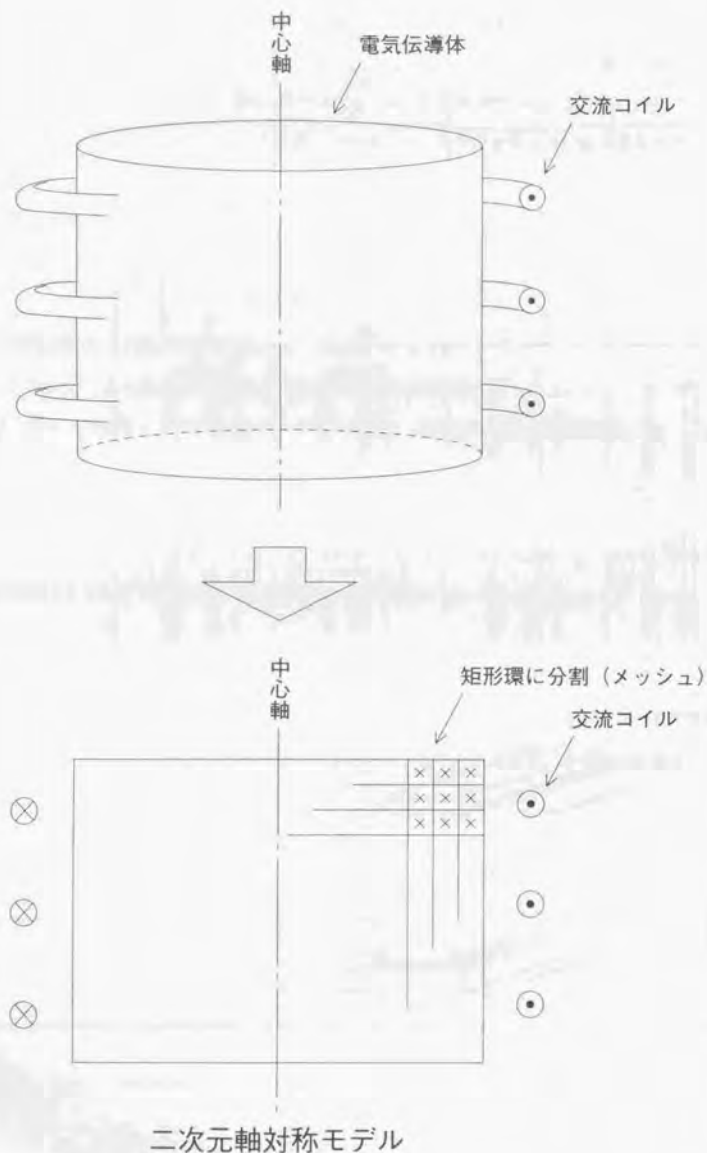


図5.3.1. 数値計算のためのモデル化

$$\nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t} \quad (5.3.3)$$

式(5.3.2)を上式に代入すると次のようにベクトルポテンシャルから直接電場を求めることができる。

$$\nabla \times E = \nabla \times \left( -\frac{\partial A}{\partial t} \right) \quad (5.3.4)$$

ゆえに、

$$E = -\frac{\partial A}{\partial t} \quad (5.3.5)$$

電流、電場、磁場ともに交流として振動しているとする(これが電磁攪拌の場合であるが)、ベクトルポテンシャルは複素数(フェーザ)を用いて次のように表現することができる。

$$A = A e^{j\omega t} \quad (5.3.6)$$

よって式(5.3.5)を用いると、

$$E = -j\omega A \quad (5.3.7)$$

一般に電気伝導性の物質内には、次式に従って電流が発生する。

$$J = \sigma(E + v \times B) \quad (5.3.8)$$

右辺第一項は物質内に発生した電場の寄与であり、第2項はその物質が磁場内を運動することによって生ずる寄与を表している。

しかし、ほとんどの電磁擾拌の状況では  $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$  の項は無視できる。つまりメディアが動くことによって生ずる起電力は微小であるため無視することにする。

よって、誘導電流は次式のように生ずる電場から直接求めることができる。

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (5.3.9)$$

式 (5.3.7) と式 (5.3.9) を組み合わせて、

$$\mathbf{J} = -i\omega\sigma\mathbf{A} \quad (5.3.10)$$

結果として、式 (5.3.1) と上式を用いて物質内の電流 (密度) は以下のように表現することができる。

$$\mathbf{J} = -i\omega\sigma \left( \frac{\mu}{4\pi} \int_{vol} \frac{\mathbf{J}}{r'} dv \right) \quad (5.3.11)$$

より問題に即して考えると、上式の右辺の電流としてメルト内の電流はもちろんであるが外部に設置する交流コイルの電流も考慮する必要がある。よって、

$$\mathbf{J} = -i\omega\sigma \frac{\mu}{4\pi} \left\{ \sum_{m=1}^{mult} J_m S_m \oint \frac{d\mathbf{l}_m}{r'} + \sum_{k=1}^{coil} I(k) \oint \frac{d\mathbf{l}_k}{r'} \right\} \quad (5.3.12)$$

ここで、電流密度の体積分に関し、

$$\mathbf{J} dv = \mathbf{J} S dl \quad (5.3.13)$$

という関係を用いている。

次に式 (5.3.12) 左辺の電流路に沿った積分を考える。積分を取ると次のような式が得られる。

$$\oint \mathbf{J}_i \cdot d\mathbf{l}_i = -i\omega\sigma \frac{\mu}{4\pi} \left\{ \sum_{m=1}^{mult} J_m S_m \oint \frac{d\mathbf{l}_m}{r'} + \sum_{k=1}^{coil} I(k) \oint \frac{d\mathbf{l}_k}{r'} \right\} \cdot d\mathbf{l}_i \quad (5.3.14)$$

よって、

$$\oint \mathbf{J}_i \cdot d\mathbf{l}_i = -i\omega\sigma \left[ \sum_{m=1}^{mult} \left\{ \frac{\mu}{4\pi} \iint \frac{d\mathbf{l}_m \cdot d\mathbf{l}_i}{r'} \right\} J_m S_m + \sum_{k=1}^{coil} \left\{ \frac{\mu}{4\pi} \iint \frac{d\mathbf{l}_k \cdot d\mathbf{l}_i}{r'} \right\} I(k) \right] \quad (5.3.15)$$

この式を簡明にするために相互インダクタンスを導入する。これは次式で定義される。

$$M_{im} \equiv \frac{\mu}{4\pi} \iint \frac{d\mathbf{l}_i \cdot d\mathbf{l}_m}{r'} \quad (5.3.16)$$

相互インダクタンスには次のような関係があるので注意する。

$$M_{im} = M_{mi} \quad (5.3.17)$$

さらに軸対称形状では、式 (5.3.15) の左辺は次のように単純化される。

$$\oint \mathbf{J}_i \cdot d\mathbf{l}_i = J_i 2\pi r_i \quad (5.3.18)$$

結果としてこの相互インダクタンスを用いると軸対称物体内の電流密度分布の支配方程式として次式が得られる。



$$J_i 2\pi r_i = -i\omega\sigma \left[ \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} J_m S_m + \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} I(k) \right] \quad (5.3.19)$$

この式は電流として複素数（フェーザ）を用いた時にも有効である。そこで今次のような複素数の電流を考える。

$$J_i = J_{Ri} + iJ_{Ii} \quad (5.3.20)$$

$$J_m = J_{Rm} + iJ_{Im} \quad (5.3.21)$$

$$I(k) = I_R(k) + iI_I(k) \quad (5.3.22)$$

これらの表現を代入すると、式(5.3.19)は次のようになる。

$$(J_{Ri} + iJ_{Ii}) 2\pi r_i = -i\omega\sigma \left[ \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} S_m \{J_{Rm} + iJ_{Im}\} + \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} \{I_R(k) + iI_I(k)\} \right] \quad (5.3.23)$$

上式において実部と虚部を整理すると、

$$J_{Ri} 2\pi r_i + iJ_{Ii} 2\pi r_i = \omega\sigma \left[ \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} S_m \{J_{Im} - iJ_{Rm}\} + \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} \{I_I(k) - iI_R(k)\} \right] \quad (5.3.24)$$

実部と虚部は各々等しくなる必要があるので、次の2式が得られる。

$$J_{Ri} 2\pi r_i = \omega\sigma \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} S_m J_{Im} + \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} I_I(k) \quad (5.3.25)$$

$$J_{Ii} 2\pi r_i = -\omega\sigma \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} S_m J_{Rm} - \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} I_R(k) \quad (5.3.26)$$

相互インダクタンスの求め方のところでも述べるが、今回のモデルではメルト領域を多くの矩形セルに分割する。各セル内の電流密度はそれを取り巻く部分のセル及び印加する交流電流の相互影響の結果として算出されるものである。

式(5.3.25)と式(5.3.26)において、未知数はメルト内の全ての電流密度である。既知数は印加するコイル内電流のみである。なおこのコイル電流もし各コイルが同相でなく、互いに位相がずれている場合は、あるコイルの電流を基準としそれだけの実数のみで表現し、他の電流はその位相差を加味した虚数（フェーザ）を用いて表現しても全く問題はない。

今未知数を全て左辺へ移項すると、次式となる。

$$J_{Ri} 2\pi r_i - \omega\sigma \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} S_m J_{Im} = \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} I_I(k) \quad (5.3.27)$$

$$J_{Ii} 2\pi r_i + \omega\sigma \sum_{m=1}^{melt} M_{i,m} S_m J_{Rm} = \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{i,k} I_R(k) \quad (5.3.28)$$

これは最終的にマトリックスで表現でき上2式をまとめた大きなマトリックスとなる。

左辺第1項のJは第2項のサメーションの中のJのどれかと等しいことに注意して、

$$\begin{pmatrix} 2\pi r_1, & 0, & \dots & 0, & -\omega\sigma M_{11}S_1, & \dots & -\omega\sigma M_{1N}S_N \\ 0, & 2\pi r_2, & \dots & 0, & -\omega\sigma M_{21}S_1, & \dots & -\omega\sigma M_{2N}S_N \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0, & \dots & \dots & 2\pi r_N, & -\omega\sigma M_{N1}S_1, & \dots & -\omega\sigma M_{NN}S_N \\ \omega\sigma M_{11}S_1, & \dots & \omega\sigma M_{1N}S_N, & 2\pi r_1, & 0, & \dots & 0 \\ \omega\sigma M_{21}S_1, & \dots & \omega\sigma M_{2N}S_N, & 0, & 2\pi r_2, & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \omega\sigma M_{N1}S_1, & \dots & \omega\sigma M_{NN}S_N, & 0, & \dots & 2\pi r_N \end{pmatrix}$$

$$\times \begin{pmatrix} J_{R1} \\ J_{R2} \\ \vdots \\ J_{RN} \\ J_R \\ J_E \\ \vdots \\ J_{BN} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{1,k} I_k(k) \\ \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{2,k} I_k(k) \\ \vdots \\ \omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{N,k} I_k(k) \\ -\omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{1,k} J_R(k) \\ -\omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{2,k} J_R(k) \\ \vdots \\ -\omega\sigma \sum_{k=1}^{coil} M_{N,k} J_R(k) \end{pmatrix} \quad (5.3.29)$$

この大きな行列はガウスの掃き出し法（正確にはLU分解法）にて解くことができる。  
これが求まるとメルト内の磁場分布を算出することができる。

マックスウェルの方程式から式（5.3.10）を導いたがこれを変形して、

$$A = -\frac{1}{i\omega\sigma} J \quad (5.3.30)$$

よって、

$$A = \frac{i}{\omega\sigma} J \quad (5.3.31)$$

ベクトルポテンシャルの関係式（5.3.2）に上式を代入して

$$B = \frac{i}{\omega\sigma} \nabla \times J \quad (5.3.32)$$

ところで、メルトにはコイル電流による磁場しか印加されないで、メルト中の誘導電流は回転方向（周方向）の成分しか存在しない。つまり、

$$J = (J_r, J_\theta, J_z) = (0, J_\theta, 0) \quad (5.3.33)$$

この成分の電流密度を式（5.3.32）に代入すると、具体的に得られる磁場の形は、

$$B = \frac{i}{\omega\sigma} \left( -\frac{\partial J_\theta}{\partial z}, \quad 0, \quad \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial z} (r J_\theta) \right) \quad (5.3.34)$$

電流密度も磁場もともに実部と虚部がある。

$$J_\theta = J_{R\theta} + iJ_{I\theta} \quad (5.3.35)$$

$$B = b_R + ib_I \quad (5.3.36)$$

よって、

$$B = \frac{i}{\omega\sigma} \left( -\frac{\partial}{\partial z}(J_{R\theta} + iJ_{\theta R}), \quad 0, \quad \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial z} \left\{ r(J_{R\theta} + iJ_{\theta R}) \right\} \right) \quad (5.3.37)$$

整理して実部と虚部に分離すると、

$$B = \frac{1}{\omega\sigma} \left( \frac{\partial J_{\theta R}}{\partial z}, \quad 0, \quad -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial z} (rJ_{\theta R}) \right) \quad (5.3.38)$$

$$+ i \frac{1}{\omega\sigma} \left( -\frac{\partial J_{R\theta}}{\partial z}, \quad 0, \quad \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial z} (rJ_{R\theta}) \right) \quad (5.3.39)$$

よって、磁場の各要素は次のようになる。

$$b_R = \frac{1}{\omega\sigma} \frac{\partial J_{\theta R}}{\partial z} \quad (5.3.40)$$

$$b_\theta = -\frac{1}{\omega\sigma} \frac{\partial J_{R\theta}}{\partial z} \quad (5.3.41)$$

$$b_{R\theta} = -\frac{1}{\omega\sigma} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rJ_{\theta R}) \quad (5.3.42)$$

$$b_L = \frac{1}{\omega\sigma} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rJ_{R\theta}) \quad (5.3.43)$$

そして他の成分はつぎのようにゼロとなる。

$$b_{R\theta} = b_{\theta R} = 0 \quad (5.3.44)$$

電流密度分布と磁場分布がわかれば、あとはローレンツ力を求めることができる。

これには次式を用いる。

$$F = J \times B \quad (5.3.45)$$

この体積力であるローレンツ力も方向は一方向を向いているが振動している力である。メルトに対して実効的に効くのはその時間平均の力と考えてよい。これはメルトの流動状態より一般に高い振動数を持つ交流電流を用いるからである。

複素数の場  $\langle J \rangle$  と  $\langle B \rangle$  の外積の時間平均値を求めるのに大変便利な公式がある。

$$\langle F \rangle = \frac{1}{2} \text{Re} (J^* \times B) \quad (5.3.46)$$

よってこの公式を用いて式 (5.3.33) ~ (5.3.44) を用いて計算すると、

$$\langle F \rangle_r = \frac{1}{2} (J_{R\theta} b_{Rz} + J_{\theta R} b_{Lz}) \quad (5.3.47)$$

$$\langle F \rangle_\theta = 0 \quad (5.3.48)$$

$$\langle F \rangle_z = \frac{1}{2} (-J_{R\theta} b_{Rr} - J_{\theta R} b_{\theta r}) \quad (5.3.49)$$

このようにして求められたローレンツ力をナビエーストークス方程式に体積力項として付加すればよい。



### (3) 相互インダクタンスの求め方<sup>15)16)</sup>

今回の計算では計算形状は軸対称であるので、相互インダクタンスは同心円環の間の形状情報から直接計算できる。現にそのための理論解が既に求められている。

一言に相互インダクタンスといっても正確には2種類あり、異なる環間のインダクタンスであるいわゆる典型的な相互インダクタンスと、環の自分自身のインダクタンスである自己インダクタンスである。状況を図5.3.2に示す。

#### (3-1) 相互インダクタンス

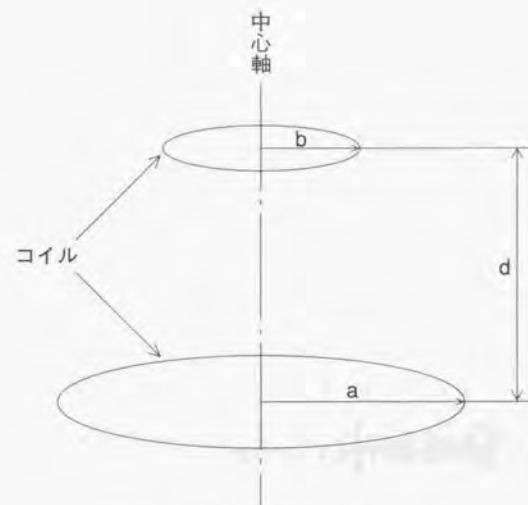
この場合は図5.3.2(a)のように単純な環状電流間の理論解を用いる。この場合その電流の流れている断面形状は対称軸からの距離に比べて十分小さいとして流れる断面の中心に電流が集中していると近似している理論で代用することにする。

$$M = \mu \sqrt{ab} \left\{ \left( \frac{2}{k} - k \right) K(k) - \frac{2}{k} E(k) \right\} \quad (5.3.50)$$

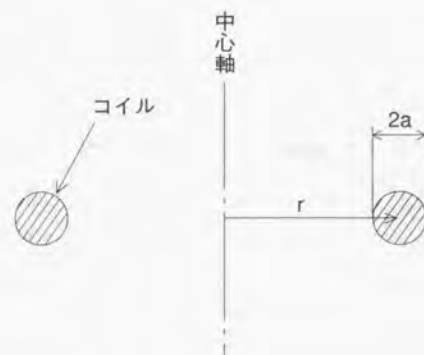
ここで  $K(k)$  と  $E(k)$  はそれぞれ第一種、第二種の完全楕円積分を表す。その意味するところは次式の通りである。

$$K(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\phi}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \phi}} \quad (5.3.51)$$

$$E(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sqrt{1 - k^2 \sin^2 \phi} d\phi \quad (5.3.52)$$



(a) 相互インダクタンス



(b) 自己インダクタンス

図5.3.2 相互インダクタンスと自己インダクタンス

但しここでは  $k$  は次式から求めるとする。

$$k^2 = \frac{4ab}{d^2 + (a+b)^2} \quad (5.3.53)$$

(3-2) 自己インダクタンス

図 5.3.2 (b) を参照して、

$$L = \mu(2r-a) \left\{ \left( 1 - \frac{k^2}{2} \right) K(k) - E(k) \right\} \quad (5.3.54)$$

ここでの  $k$  は次式から求める。

$$k^2 = \frac{4r(r-a)}{(2r-a)^2} \quad (5.3.55)$$

この場合上式の  $a$  はコイル自身の半径を意味する。しかしここでの計算では、メルトを矩形メッシュに分割しているので、厳密には半径を定義できない。しかし単純に近似するには、矩形メッシュセルと同一な面積を持つ円の半径で代用することにすればよい。

つまり、

$$\pi a^2 = \Delta r \Delta z \quad (5.3.56)$$

よって、

$$a = \sqrt{\frac{\Delta r \Delta z}{\pi}} \quad (5.3.57)$$

この値をもって代用する。

ところで、完全楕円関数の値は解析的に求めることはとても煩雑である。よって、ここでは多項式による近似式を用いる。多項式ではあるが十分な精度が保証されている以下のものを用いる<sup>[511]</sup>。

$$m = k^2 \quad (5.3.58)$$

$$m_1 = 1 - m \quad (5.3.59)$$

この  $m_1$  を用いて各完全楕円関数は次のように近似できる。

$$K(m) = K(1 - m_1) \quad (5.3.60)$$

$$\cong a_0 + a_1 m_1 + a_2 m_1^2 + a_3 m_1^3 + a_4 m_1^4 + \left( b_0 + b_1 m_1 + b_2 m_1^2 + b_3 m_1^3 + b_4 m_1^4 \right) \ln \left( \frac{1}{m_1} \right)$$

ここで

$$a_0 = 1.38629436112$$

$$a_1 = 0.09666344259$$

$$a_2 = 0.03590092383$$

$$a_3 = 0.03742563713$$

$$a_4 = 0.01451196212$$

$$b_0 = 0.5$$

$$b_1 = 0.12498593597$$

$$b_2 = 0.06880248576$$

$$b_3 = 0.03328355346$$

$$b_4 = 0.00441787012$$

$$E(m) = E(1 - m_1) \quad (5.3.61)$$

$$\equiv 1 + a_1 m_1 + a_2 m_1^2 + a_3 m_1^3 + a_4 m_1^4 + \left( b_1 m_1 + b_2 m_1^2 + b_3 m_1^3 + b_4 m_1^4 \right) \ln \left( \frac{1}{m_1} \right)$$

ここで

$$a_1 = 0.44325141463$$

$$a_2 = 0.06280601220$$

$$a_3 = 0.04757383546$$

$$a_4 = 0.01736506451$$

$$b_1 = 0.24998368310$$

$$b_2 = 0.09200180037$$

$$b_3 = 0.04069697526$$

$$b_4 = 0.00526449639$$

以上の近似式を用いて求める。

#### 5-4 計算結果と考察<sup>[5.2.5-9]</sup>

それでは、交流コイルを適用した時の計算の内容に移ることにする。

計算形状は図5.4.1に示すように、第2～4章で示したような、実験と比較するための現実に近いボウル状ではなく、単純矩形形状とした。ここでは単純に電磁攪拌の効果を計算上で見積もることが目的であるからである。図5.4.2に本計算のメッシュを示す。シリコンメルトの物性値は表2.4.3に示したものと同一である。ローレンツ力の計算のためにここでは新たにメルトの電気伝導率 (Electrical Conductivity) と透磁率 (Magnetic Permeability) が重要な値となる。流動のモデルとしては、第2章と同様に標準的なk-ε乱流モデルを用い、そのモデル式及びパラメータ群は同一である。

結晶は15rpmで回転しており、ルツボは反対方向に5rpmで回転している。結晶界面およびルツボ界面では第2章と同様に壁関数により剪断力を評価した。



図 5.4.1 計算モデル



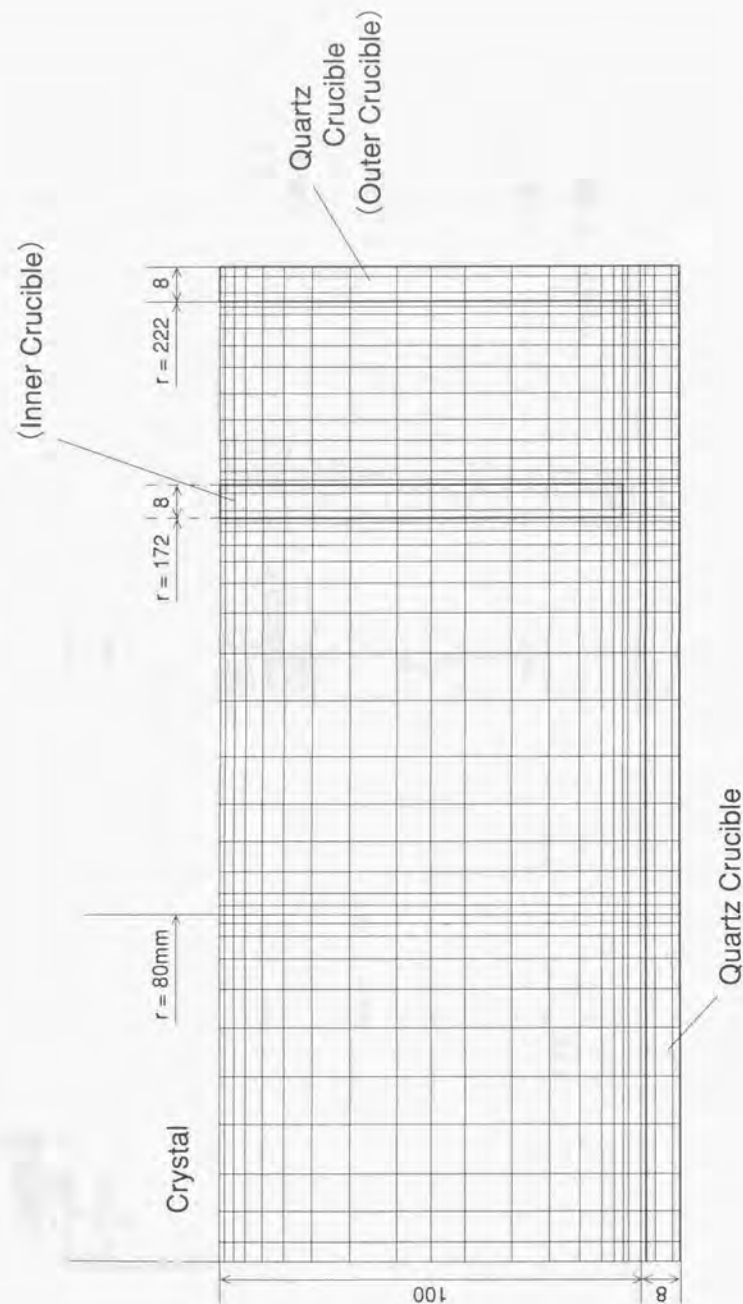


図5.4.2 計算に用いたメッシュ

温度の境界条件は図5.4.1に示すように設定し、底部の外縁部が1560度と最も高温になるように設定した。これは現実のCZ炉では、ほとんどの場合この部分がヒーター最高温度に近く、温度測定実験などからも非常に高温に維持されていることが経験的に分かっているからである。

コイルの配置を図5.4.3に説明する。基本的な仕様は以下の通りである。

コイル数	3本
交流周波数	50Hz
シフトする方向	上方
電流	各コイル 1000A

ここでは2種類の配置を想定した。一つは、メルトの側面の下半分領域に3本のコイルを配置したものである。もう一つは、側面全体に渡って3本配置したものである。

前者は、高温部である底部のみを狙って配置したものであるが、コイル間のギャップが狭くなるため、攪拌力に影響を与えてくるのでそれを調べるためである。

前節で述べた相互インダクタンスを用いる手法によって、メルト中の誘導電流と磁場を計算する。計算領域にはシリコンメルトだけでなく、石英ルツボも存在している。石英ルツボはメルトと比較して非常に小さい電気伝導率を持っているので、計算には異なる電気伝導率を使用しなければならない。つまり石英内に誘導される電流が非常に小さくなるのでその周囲の電流分布に影響を与える可能性がある。しかし結果としては、用いている石英ルツボの肉厚がメルトに比して薄いので、その影響は小さいことが分かった。計算では一応石英内の誘導電流も計算するようにしている（計算では石英の電気伝導率として $1(10^{-12})$  (S/m) という小さい値を用いて計算した）。

#### (1) 得られたローレンツ力（攪拌力）

計算で得られた時間平均ローレンツ力を図5.4.4 (a) ~ (b) に示す。

下半分の攪拌の場合（図5.4.4 (a)）と側面全体の攪拌の場合（図5.4.4 (b)）とを比較すると、両者ともに同じく1000Aの交流電流を用いているが、発生するローレンツ力は下半分の攪拌の場合はかなり小さくなっていることがわかる。

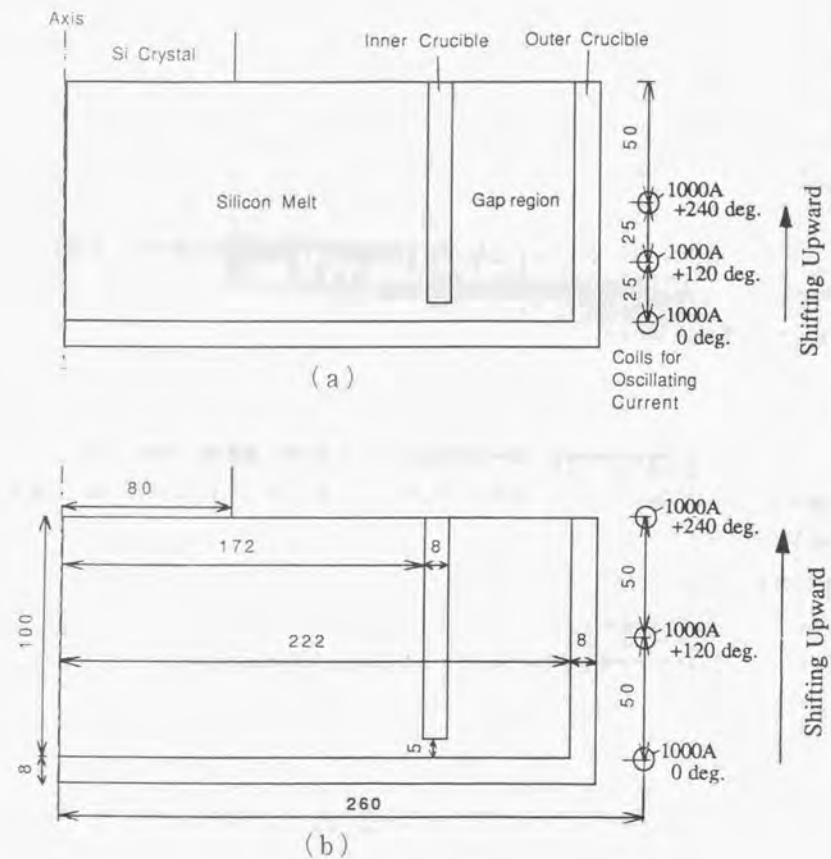


図 5.4.3 交流コイルの配置  
(a) 側面下方半分に配置した場合  
(b) 側面全体に配置した場合

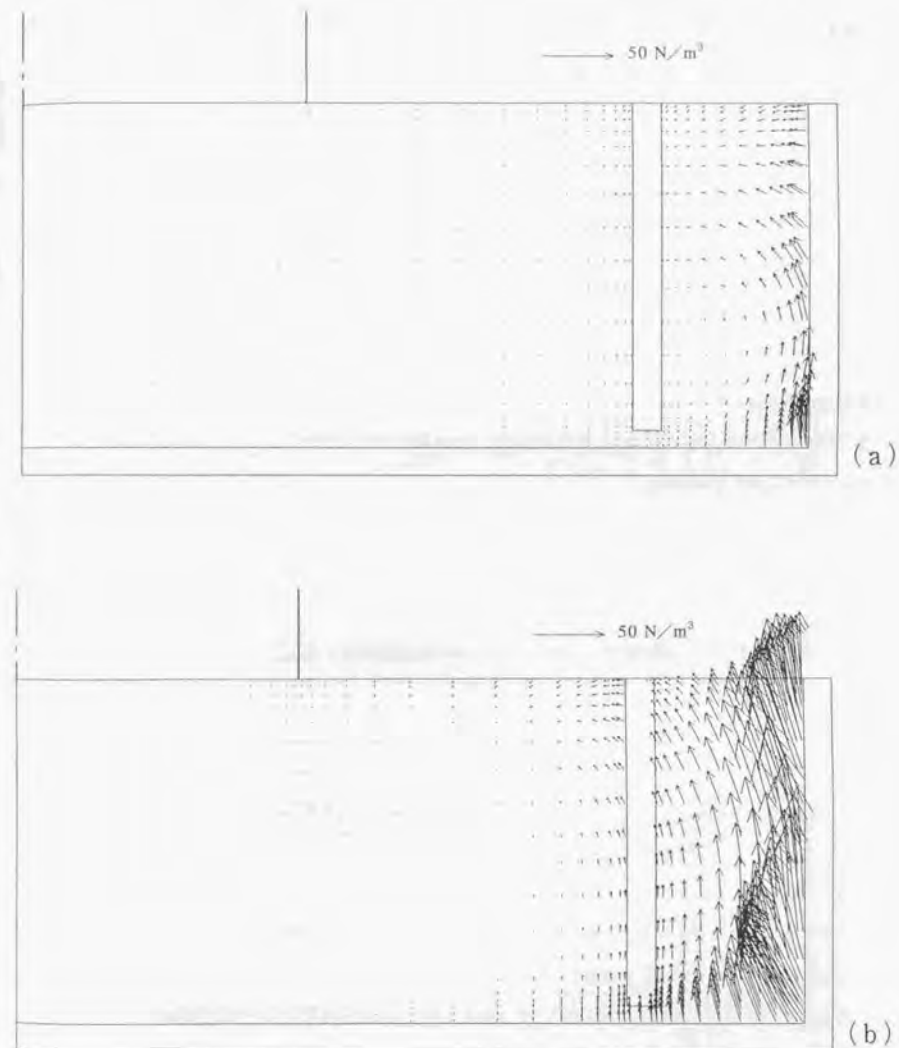


図 5.4.4 計算で得られたローレンツ力  
(a) コイルを側面下方半分に配置した場合  
(b) コイルを側面全体に配置した場合



それゆえ効率の点からみて、大きなローレンツ力を得るにはコイルは互いにある程度離れた方がよいといえる。簡単に説明するのは難しいが、コイル間を離れた方が内部に誘導される電流と干渉する部分を多く得ることになり、また隣りの位相の異なるコイルにより磁場が相殺される影響も小さいためと考えられる。流動の計算をする際にはこれらの得られた時間平均ローレンツ力を体積力項として運動量方程式に加えればよいことになる。

## (2) 流れ場

図5.4.5 (a) ~ (c) に攪拌無し、下方半分の攪拌、側面全体の攪拌をそれぞれほどこした際の計算により得られた流れの様子を示す。

内ルツボの内側の流れは、CarnuthersやLangloisの得ている流れパターンと同等である。結晶下にいわゆるTaylor-Proudmanのセルが形成されている。この辺りの事情は第2章に述べたのでここでは省略する。図5.4.5 (a) の外ルツボ部では、第2章で述べた回転系の対流抑制効果にて流れの速度が非常に小さく抑えられていることがわかる。

下方半分の攪拌の場合、外ルツボ部の流れが駆動され大きく変化していることが図5.4.5 (b) から分かる。上向きのローレンツ力により駆動された循環流動セルが形成され、その上部は液面に近づいている。

側面全体に渡ってコイルを配置した場合は、その循環セルが非常に強さを増し、図5.4.5 (c) のように外ルツボ全体を占めるようになる。この場合最大流速は約3 cm/secであった。これから、この攪拌された流れが熱移動や酸素移動に対しても強い影響を与えることが期待される。

また興味深いことは、図5.4.5からわかるように、攪拌力の効果は外ルツボのみに限定されていることである。ローレンツ力自身は、厳密には内ルツボの内側にも発生しているが、そこでの強度は小さく、それ自身では対流駆動にほとんど寄与しない。また外ルツボ内の対流は内ルツボが存在するために強制的に限定されている。ただし使用電流をオーダー的に大きいものにしたたり、また使用周波数を非常に小さくして、誘導電流の侵入深さ (Skin Depth) を大きくするとこの通りではないことに注意する必要がある。

## (3) 温度場

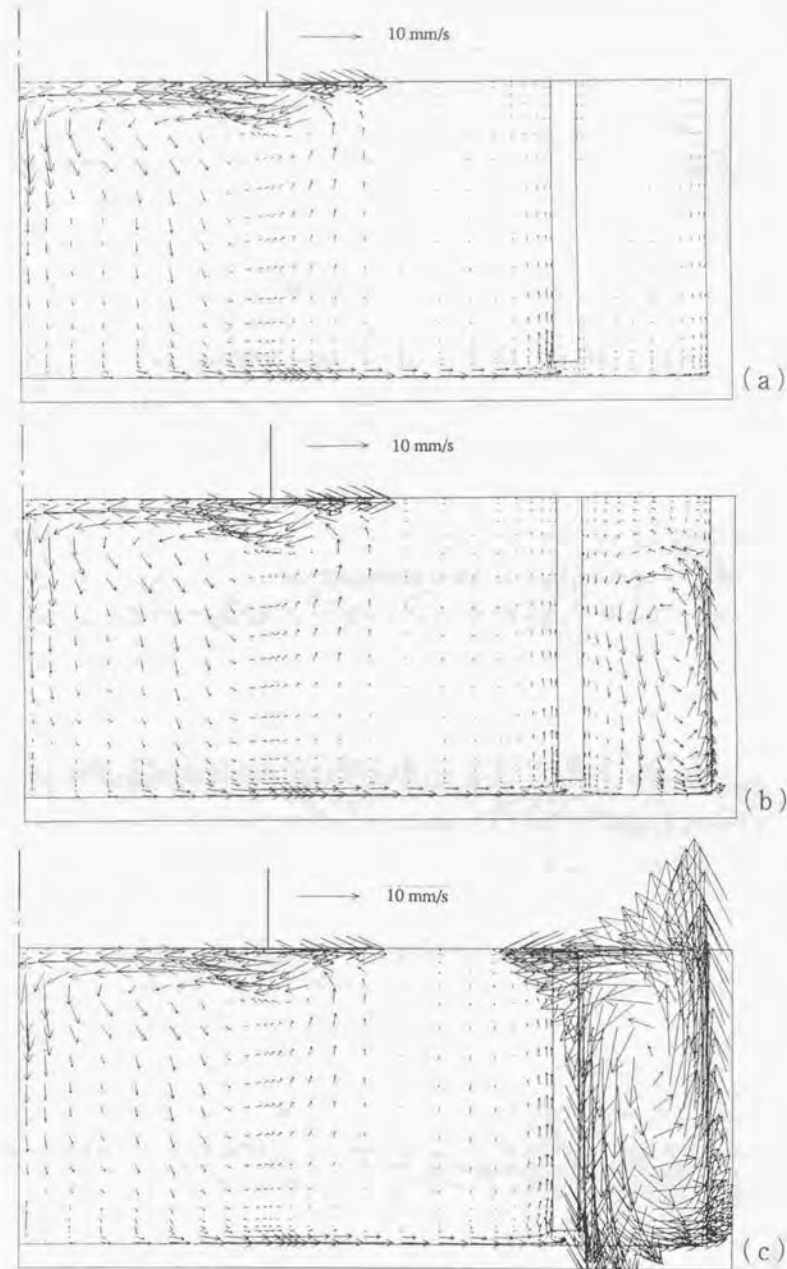


図5.4.5 流れ場の計算結果

- (a) 電磁攪拌がない場合
- (b) コイルを側面下方半分に配置した場合
- (c) コイルを側面全体に配置した場合



図5.4.6 (a) - (c) に得られた温度分布を示す。

攪拌を施していない場合は、外ルツボでは流れが強く抑制されているので、その等温線は拡散的な配置を示す。しかし交流電流による流れ（循環セル）が強くなるにつれ、その循環セル内での温度分布は次第に均一化される。つまり液面近傍の温度としては上昇し、一方で底部近くの温度は低下する。

外ルツボの液面近くの温度は供給多結晶シリコン原料を連続溶解するのにとても重要である。それは、十分に高い温度でないと供給された原料はスムーズに溶解されず、最悪の場合には固体状態のまま堆積していく危険性があるからである。

液面の温度分布を図5.4.7にプロットする。外ルツボの液面のみを取り出してプロットしたものを図5.4.8に示す。攪拌していない通常の場合と比べて、液面の温度上昇のメリットは、下方半分の攪拌で平均して約10度、側面全体の攪拌で約25度となった。

また攪拌による液温均一効果により、外ルツボ底部の内面の温度が低下していることにも注意を払うべきである。これに関してメルトとルツボの界面部の温度分布を図5.4.9に示す（外ルツボ部のみ）。攪拌対流により液面近くでは温度が上昇するが、底部近くでは、逆に温度が低下していることがわかる。これは温度を均一にすることの結果でもある。これが、あとで述べるようにその石英との界面での酸素濃度に影響を与えるのである。

また外ルツボでのこのような劇的な温度分布の変化は石英ルツボの断熱効果により、内ルツボの内部にはあまり影響を与えていない。これはつまり結晶成長界面には外ルツボでの電磁搅拌操作が熱的に影響を与えないことを意味しているのでも重要なメリットである。正確に見ると、内ルツボの内表面の温度は電磁搅拌印加時は少し上昇するのであるが、酸素濃度に与えるその影響は後に示す別の効果によってキャンセルされる。

現実的な状況を考えると、原料の粒状多結晶が内るつぼと外るつぼの間隙部に供給されると熱はメルトから奪われる。原料がメルトから融点までの昇温熱と融解熱を奪うからである。固体シリコンは液体より密度が小さいため、粒状原料は液面に浮遊する。よって熱は液面近傍から奪われると見なしてよい。

この状況を模擬するためには厳密には境界条件に関し3次元的に問題を取り扱わなければならないが<sup>15-17)</sup>、ここでは二次元軸対称モデルにて扱うため、メルト表面から上記の原料溶解に等価な熱流束を奪った場合の計算も実施した。熱流束としては、原料溶解に要する単位時間当たりの熱量を外ルツボの液表面の面積で除したものを熱流束としてこの2次元モデルに反映させた。

その時のメルト表面の温度分布を図5.4.10と図5.4.11に示す。

この計算の結果、原料の投下により液面の温度が原料供給を考慮していない場合に比べて、全体的に約

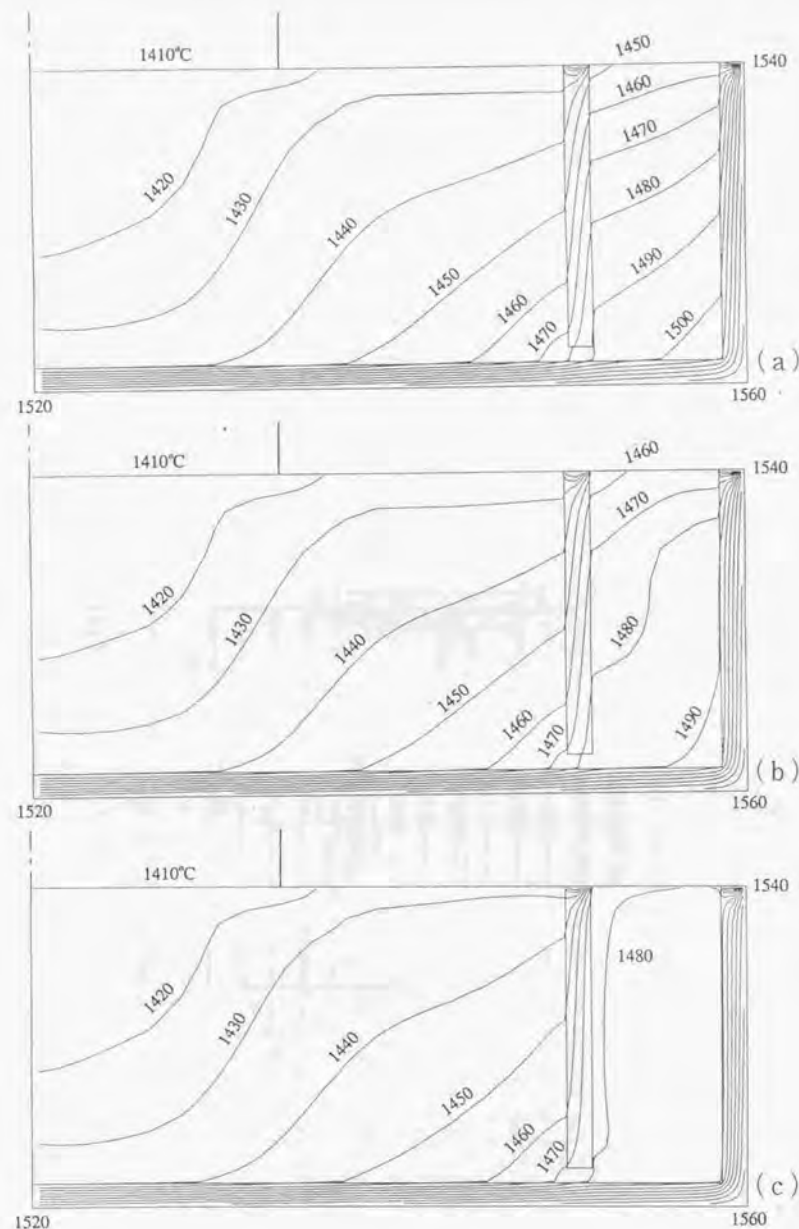


図5.4.6 温度場の計算結果

- (a) 電磁搅拌がない場合
- (b) コイルを側面下方半分に配置した場合
- (c) コイルを側面全体に配置した場合

Temperature at the melt surface

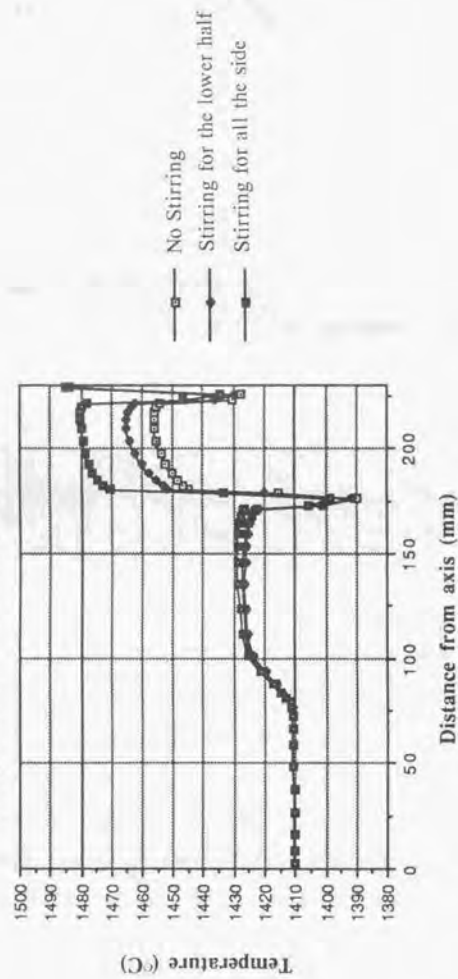


図 5.4.7 液面の温度分布

Temperature at the melt surface in the outer crucible

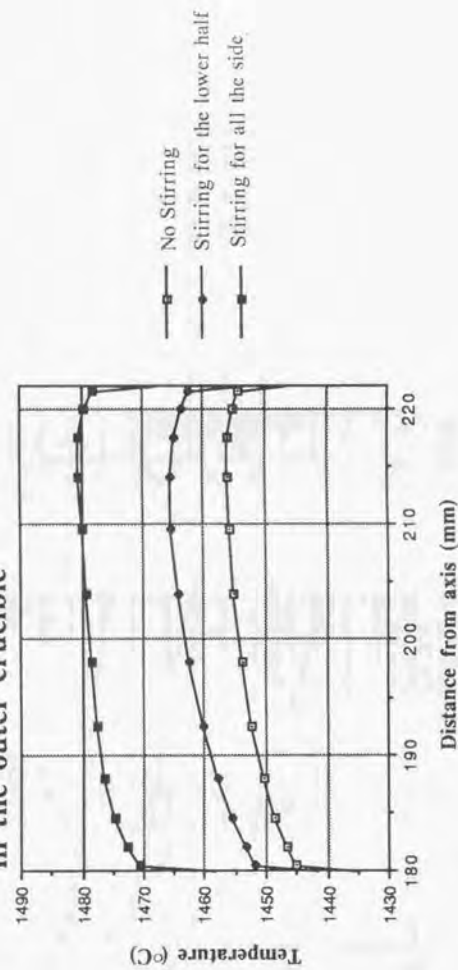


図 5.4.8 外ルツボ内の液面の温度分布

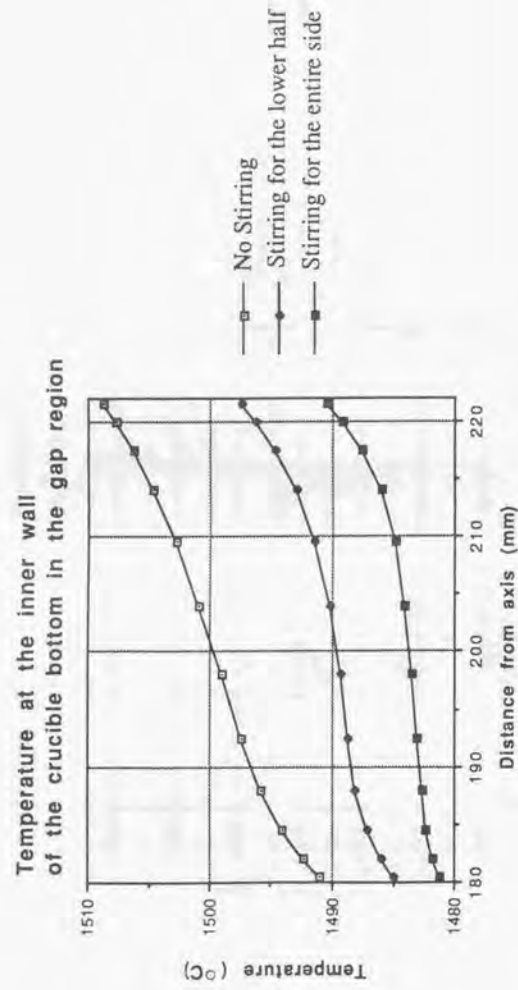


図5-4.9 外ルツボ内底部でのメルト/石英ルツボ界面の温度分布

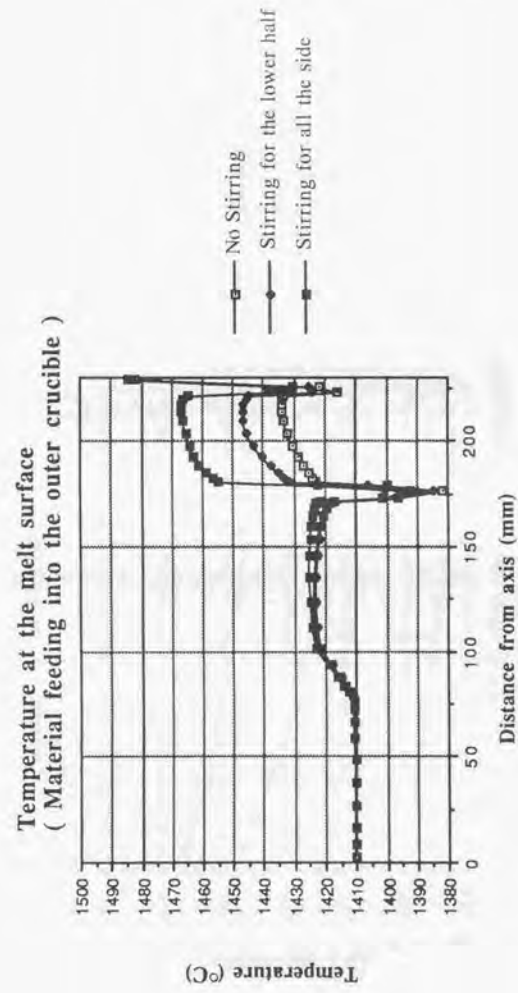


図5-4.10 供給原料の吸熱効果を加味した場合の液面の温度分布



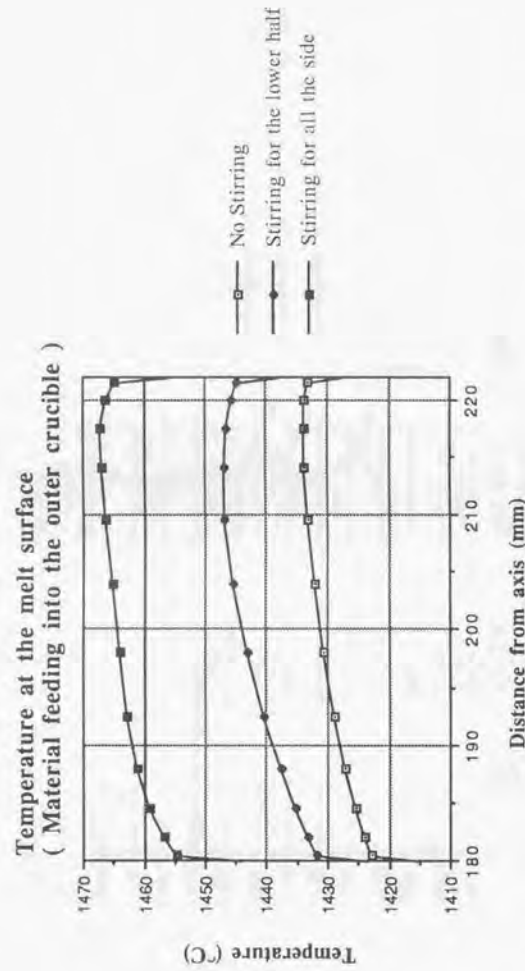


図 5.4.1.1 供給原料の吸熱効果を加味した場合の外ルツボ内の液面の温度分布

1.5 度低下していることが予測された。系が若干小さく測定点が少し異なる実験結果<sup>[14]</sup> (付録 1 参照) と同程度の温度低下であり、この計算結果自体は妥当だと考えられる。次に電磁搅拌の効果を見ると、この場合も同等でありその効果をあらためて確認することができる。つまり原料供給による温度低下に負けることなく液面の温度上昇を確保することができ、搅拌を施さない場合よりもメリットを確保できると考えられる。

#### 4 酸素濃度分布

前節までに求めた、メルトの速度ベクトルと温度分布を用いて、電磁搅拌の酸素輸送に与える影響を調べた。

ここでも第 4 章で述べた理由と同じ理由にて、1 次元ランプモデルではなく、2 次元シミュレーションによりメルト内の酸素濃度分布の計算を実施する。電磁搅拌の施し方により外ルツボ内のバルク対流パターンが変わるので、その寄与を表現できない 1 次元ランプモデルではさらに近似精度が悪くなってしまうとの状況も理由として挙げられる。

従来から使用している乱流モデルにこの酸素輸送計算を組み込むに当たり、境界条件の与え方に関し、ここでは第 4 章で用いた非常に単純化した近似 (拡散近似) とは異なり、もう少し現実的なモデル化を試みることにした。つまり単純な拡散近似でなく、なるべく文献値や実験的な経験値と整合するように、石英ルツボからの酸素原子のとけ込みに関する物質伝達率およびメルト自由表面からの蒸発に関する物質伝達率を与えて計算することを考えた。

このために、単一ルツボの計算にもどり、同じ乱流モデルを用いて、文献値などを参考にいくつか上記の二つの物質伝達率を振って計算し、妥当な結晶界面の濃度 (つまり  $1.0 \times 10^{-18}$  atoms/cc) となるように調整した。

これにより、石英ルツボからの現実的な酸素溶出量および自由表面からの酸素蒸発量が再現できるようになってきた。そして、これは Kim と Langlois の非常に微小なメッシュを用いた詳細な計算<sup>[514]</sup> から求められる値とはほぼ一致した。これに関しては付録 4 にまとめてあるので参照のこと。

メルトと石英ルツボとの界面での酸素の飽和濃度 (溶解度) は第 4 章と同様に平田らの実験式<sup>[515]</sup> により与えてある。つまり、

$$C_d = 4.0 \times 10^{23} \exp\left(\frac{-2.0 \times 10^4}{T_w}\right) \quad (\text{atoms/cm}^3) \quad (5.4.1)$$

ここで  $T_w$  はメルトと石英ルツボ界面の温度である

図 5.4.1.2 (a) ~ (c) に得られた酸素濃度分布を示す

撹拌を施していない場合は、ここでも回転系の抑制された流動状態のため、外ルツボ内では等濃度線は拡散的な配列を示す。

また高酸素濃度のメルトが外ルツボの底部に滞留していることがわかり、この部分は導通孔を通じ内ルツボ側にも影響を及ぼしていることもわかる。

下方半分の撹拌の場合は、その駆動された流動により、酸素濃度場をある程度均一化しているが、その効果はメルト表面には到達していない。しかし注目すべき点は、その撹拌により発生した循環セル内では濃度の均一化が促進されており、底部近くの酸素濃度が、撹拌を用いない場合に比べて大きく低減していることがわかる。これは図 5.4.1.2 (a) と (b) を比較すると分かる。

この傾向は、図 5.4.1.2 (c) に示すように、側面全体の撹拌の場合になると益々顕著になり、外ルツボ内では石英ルツボとの界面ごく近傍を除いて、ほとんど均一化している状態になる。

さらに、前節で触れたように、外ルツボ底部の石英内面の温度が撹拌対流により低下しているため、導通孔近傍の酸素濃度もかなり低下していることがわかる。

この状況はまた導通孔を通じ、内ルツボの内側にも影響を与え、最終的には結晶成長界面での濃度に対しても影響を与えていることがわかる。内ルツボ内の流動状態は、第 2 章でも述べたように渦動粘性係数が大きく、かなり乱れた状態であることから、酸素輸送も渦拡散が強く等濃度線も拡散的な分布になることをこのモデルでは示唆しているのであるが、導通孔の内ルツボ側の濃度が低下することで、その周囲の濃度も低下させ、最終的に結晶界面近傍の濃度まで低くおさえるようになる。

結晶成長界面での酸素濃度分布を図 5.4.1.3 に示す

今まで述べたメカニズムにより、外ルツボにおける撹拌状態が強くなるにつれ、結晶界面での酸素濃度が若干低下していくことが分かった。

結晶界面での酸素濃度は、第 4 章でも述べたように界面近傍での対流パターン・構造にも敏感で、微妙なバランスの上に決定されていると思われる。第 4 章での結果と同様に、ここでの計算の結果が、正確に

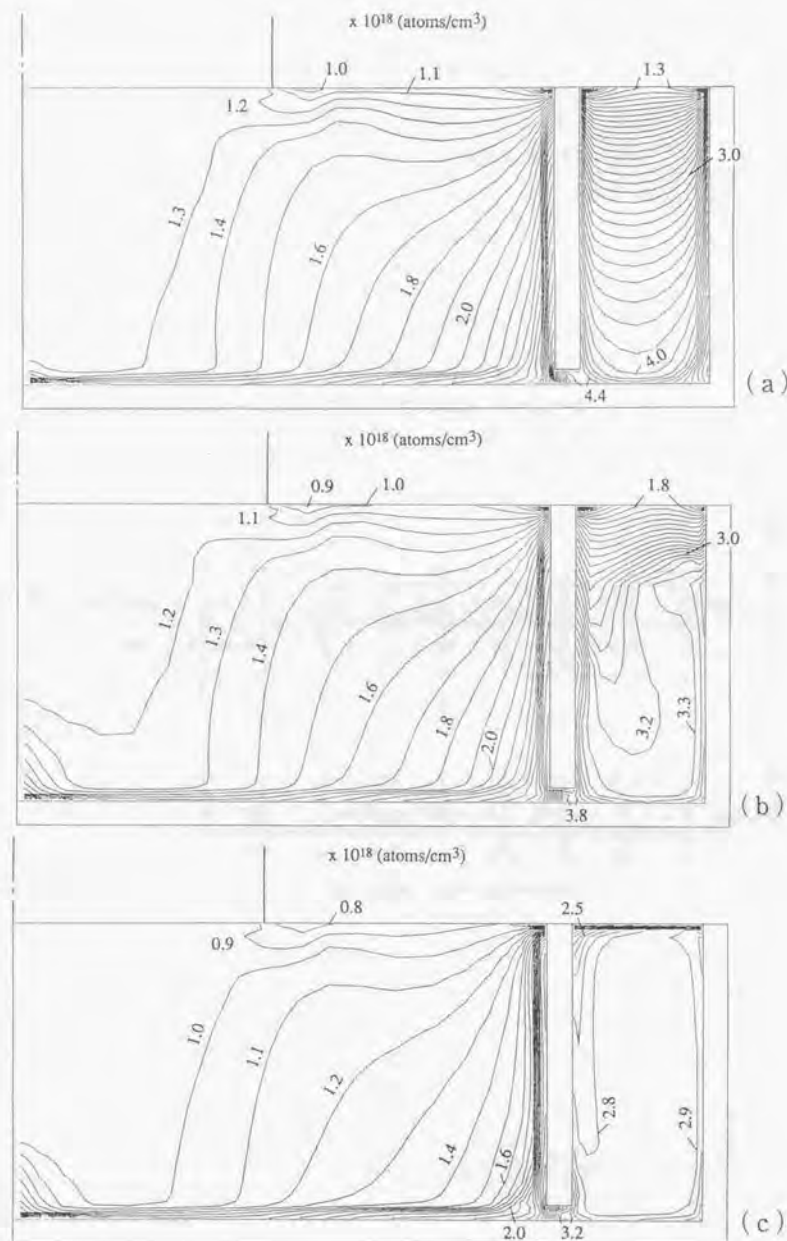


図 5.4.1.2 酸素濃度分布の計算結果  
(a) 電磁撹拌がない場合  
(b) コイルを側面下方半分に配置した場合  
(c) コイルを側面全体に配置した場合

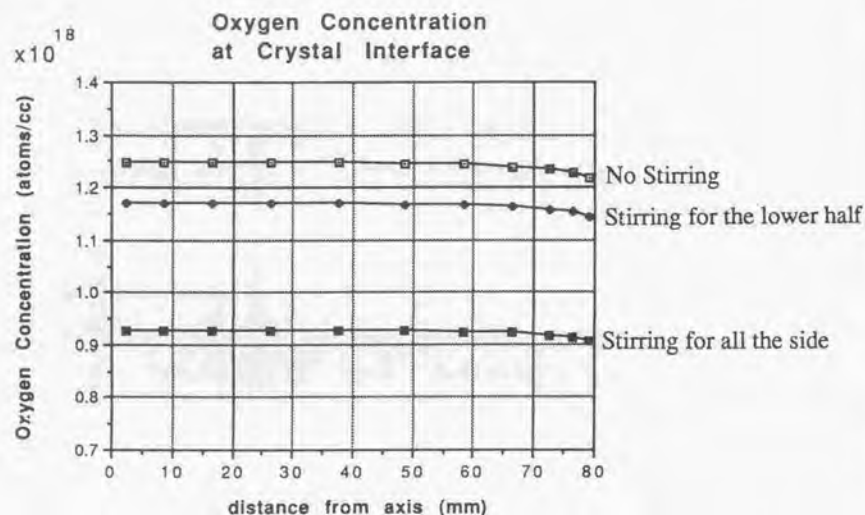


図5-4-1-3 結晶界面下での酸素濃度分布

現実の結晶の酸素濃度決定の機構を再現しているとは断言できない。しかしここでの計算の結果から少なくともと言えることは、直感的に電磁搅拌と言うと、対流による物質輸送が非常に強くなるので、二重ルツボの場合も結果的に結晶中酸素濃度を押し上げてしまうのではないかと単純に思われがちであるが、そうではなく、石英ルツボとの界面の温度の変化や、低酸素濃度部の分布の変化を吟味すると、結果的に若干ではあるが、結晶の酸素濃度を逆に低下させることができる可能性があるということをこのモデルは示唆している。

#### 5-5 第5章のまとめ

<1>シリコン結晶の将来の大口径化を鑑み、電磁搅拌技術を二重ルツボを用いた連続CZ法に適用した際にメリットが得られないかを数値シミュレーションにより予測した。

<2>内ルツボと外ルツボの間隙部のメルトに主として搅拌対流を発生させることにより、その部分の液面温度を効果的に上昇させることがわかった。これは、多量の固体原料を溶解するのに大きなメリットとなる。

<3>また搅拌効果は、間隙部メルト内の酸素濃度の均一化および間隙部底部の石英内面の温度を低下させることにより、底部に滞留していた高酸素濃度部が消滅し、結果的に成長界面での酸素濃度を若干であるが低下に導くという結果を得た。



## 第6章 工業生産への応用

本章では、本研究の成果を工業レベルの結晶生産に適用した結果をまとめる。

引き上げ機の概要は、すでに図1.4.1に示した通りで、その構造の詳細の一つ一つが開発により得られた、いわばノウハウになっている。

### 6-1 小口径単結晶

これは開発の初期の段階で取り組んだ比較的小規模な引き上げ機および小型の2重ルツボを用いての連続CZ法にて引き上げた結晶であり、そのいくつかの写真を図6.1.1に示す。3本の結晶を撮ったものであるが、小さいものから2インチ(300mm長)、3インチ(560mm長)、4インチ(800mm長)となっている。第3章で述べた手法により結晶中のドーパント濃度(抵抗率値)は均一になるよう制御されている。小型の引き上げ機の方が扱い易く、様々な開発アイデアを試すために小口径結晶を育成した。

### 6-2 中口径単結晶

1991年11月に開催されたSEMI(セミコンダクターJAPAN)に展示された6インチ径2m長の結晶の写真を図6.2.1に示す。またこの内容は業界新聞にも掲載され話題を呼んだ。

これが公表された時点で、この規模のシリコン単結晶(6インチ2m長)は世界最長である。6インチ結晶のこの記録は本論文を作成している1997年7月現在においてもまだ破られていないものである。

6-1より大きな口径(この場合は6インチ)の単結晶を引き上げる場合に技術的に問題になったのは、やはりメルトの熱バランスであった。結晶直径の2乗に比例して原料の供給量(供給速度)が大きくなる。つまり、単位時間当りにより多くの固体原料を連続して溶かす必要があるためである。

### 6-3 磁場印加引き上げ結晶

その後、結晶内酸素濃度の低減を主目的として、横磁場印加装置を設置した引き上げ機を開発した<sup>14)</sup>。引き上げ機の概要を図6.3.1に示す。

この磁場印加装置の導入により第4章の解析の動機となった。二重ルツボ法において結晶中酸素濃度が

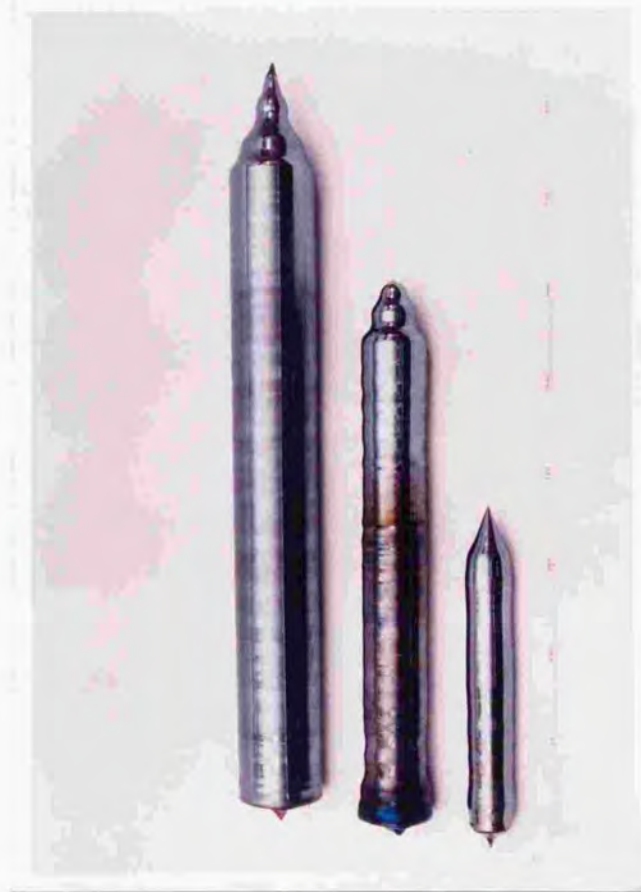


図 6.1.1 開発した連続引上法による小口径単結晶の写真



図6.2.1 開発した連続引上法による中口径単結晶の写真



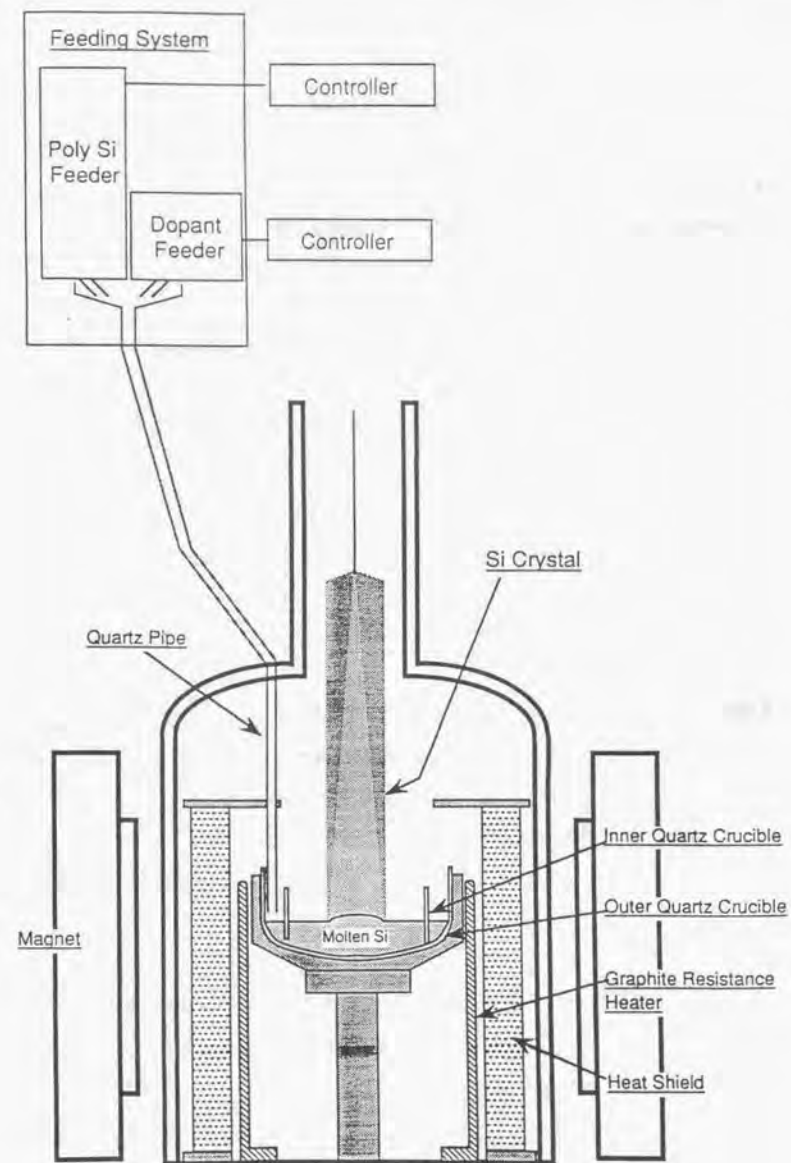


図 6.3.1 横磁場印加装置を設置した連続引き上げ機を開発<sup>16-1)</sup>

通常CZ法に比べて増加するという課題点をみごとに解決することができている<sup>16)</sup>。誤解をおそれず簡単に説明すると、静磁場の対流抑制作用により酸素のメルト内輸送過程そのものが減速されるので結晶中酸素濃度が低下するのである。

また静磁場の印加によりメルト対流が層流化し温度振動が低減され、結晶成長が安定するというメリットもある。この技術により単に低酸素濃度の結晶だけでなく、ルツボ回転数を上げたり磁場強度を弱めたりすることにより、高い酸素濃度の結晶も作成可能であることもわかっている。

この引き上げ機によっても図6.2.1に示したのと同様な6インチ2m長の結晶の作成が可能となっている。

以上これらの技術は、既に工場サイトに移管され、実際の生産技術の一部として用いられている。原料供給装置などハード的な部分だけでなく、開発したドーピング手法のソフト部分も工場サイトの引き上げ装置のコンピューター制御部にプログラミングされ組み込まれている。

## 第7章 結言

### 7-1 本研究の結論

- (1) 二重ルツボ構造内のシリコンメルトの流動状態について基礎的な把握を実施した。内外ルツボ内のメルトの流動状態は、強いバブル流れは存在していないが、温度振動現象・時間平均温度分布の測定の結果、微小渦流の多く満たされた渦動粘性係数のオーダーが $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度の流動状態であると考えられることがわかった。また並行して二次元軸対称k- $\epsilon$ 乱流モデルを用いて現象の説明を試みた。
- (2) メルト内の微小渦流による混合状態を踏まえ、ドーバント原子の渦拡散係数のオーダーとしては $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 程度前後と考えて良く、二重ルツボの各ルツボ内では速やかに混合が進行するため、各ルツボ内の濃度をランダム化して扱うモデルを用いても大きな誤差なくそのマクロな濃度変化を予測できることがわかった。
- (3) 二重ルツボを用いてのドーバント濃度制御法の従来からの問題点であるブリドーピングを回避する手法を1次元ランダムモデルにより模索した。その結果、純粋な原料のみを加える際の独特な濃度変化の解析からその極値点が理想的な状態であることがわかり、その後ドーバントを加えた原料に切り替えればよいことがわかった。そしてその極値点は実効偏析係数、各ルツボ内のメルト量の関数で簡明に表現できることがわかった。この新しいドーバント濃度制御法は実験的にも実証に成功した。
- (4) メルト内酸素輸送現象について、乱流プラントル数を仮定するモデルにて数値解析を試みた。その結果、二重ルツボにおいて結晶中酸素濃度が通常の単ルツボの場合より増加する原因として、内ルツボが結晶界面にせまっていること、及び外ルツボ底部の高酸素濃度のメルトが滞留している部分から内ルツボ内へ酸素原子が浸透してくることが考えられることがわかった。
- (5) 電磁攪拌技術を二重ルツボを用いた連続CZ法に適用した際にメリットが得られないかを数値シミュレーションにより予測した。外ルツボのメルトに攪拌対流を発生させることにより、その部分の液面温度を効果的に上昇させ得ることがモデルにより具体的にわかった。これは結晶の大口

径化にともない連続供給原料が増加する際に大きなメリットとなる。また攪拌効果は、外ルツボメルト内の酸素濃度の均一化および間隙底部の石英内面の温度を低下させることにより結果的に成長界面での酸素濃度を上昇させず、若干であるが低下に導くという予測を得た。

- (6) 本研究を含む連続引き上げ技術の開発により、世界最長の6インチ2mのシリコン単結晶を育成する技術を工業的に可能なレベルにならしめることに成功した。本研究により開発したドーパント濃度制御技術も実際に適用しその実証を果たした。現在これらの技術は研究開発段階を終え、工場サイトでの生産技術の一部に用いられている。

## 7-2 将来の課題

### (1) 大口径単結晶の連続引き上げ技術

LSIの集積度が64メガビット、256メガビットの時代になると、そのチップ製品歩留まりの関係上、基盤ウエハーの口径はまず8インチとなり、次は10インチを飛び越えて12インチになるとかつて言われ<sup>7)</sup>、97年6月現在業界はそうのように推移しており、確かに12インチの開発・試作段階に入っている。これは8インチから10インチへの増径では、設備投資（ウエハーの治具等の関係で、装置を全て新規交換する必要がある）に対して歩留まり上昇のメリットがないため、一挙に12インチまで変えないと経済的意味が無いからである。そうすると12インチの結晶をバッチ式でなく連続引き上げ法で育成するためには非常に大きな2重ルツボが必要となってくるため、まず装置および生産技術上の諸問題を解決していく必要が出てくる。おもに熱制御の問題が大きいであろう。

特に連続引き上げ法では供給原料を溶解していかななくてはならないため、12インチ相当の大量の粒状原料を継続的に溶解する技術を確認する必要がある。第5章にて電磁攪拌技術の適用を検討しその有用性を確認したが、場合によっては固体原料供給法だけでなく改めて液体供給法を再検討する意味があるかもしれない。これにより潜熱による液温低下をかなりおさえることができるからである。その場合予備溶解の技術が新しい開発課題となる。

### (2) 結晶中酸素濃度制御技術

同様に結晶径が巨大化すると当然ながら使用する石英ルツボや初期のメルト量も増大する。これに伴い、

ヒーターも巨大化し導入する電力量も大きくなり、最終的にルツボ/メルト界面の温度が上昇し、メルト中の酸素濃度を押し上げる可能性が予想される。しかしながら、ウエハーメーカーとしては、スペックに応じて種々の酸素濃度のウエハーを作成できなければならないので、技術的にどのようにメルト中の酸素濃度をコントロールするかという問題がクローズアップされると思われる。

この目的のためには、もちろん既に用いられている磁場印加技術が有効であるが、引上機の巨大化にともない単純に磁場強度を上げることは、コスト及び安全性、操作性の点からみて必ずしも得策ではない。

ルツボ回りの温度分布や効果的なメルト対流の実現など磁場強度に依存しない操業因子の解析及び高度な最適化技術が必要となるであろう。



参考文献

第1章

- [1-1]喜田道夫、新井義明、小野直樹、佐平健彰：日本結晶成長学会誌、Vol.18, No.4, (1991) 455

第2章

- [2-1]N Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, J. Electrochemical Society 140 (1993) 2101-2105  
[2-2]N Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, J. Electrochemical Society 140 (1993) 2106-2111  
[2-3]K.M.Kim, A.F.Witt, and H.C.Gatos, J. Electrochemical Society 119 (1972) 1218-1226  
[2-4]H.Hirata, K.Hoshikawa, and N.Inoue, J. Crystal Growth 70 (1983) 330-334  
[2-5]北川邦彦：Melt Growth 研究会報告書（4）（東北大学金属材料研究所共同利用研究会）、p270  
[2-6]K.Kakimoto, M.Eguchi, H.Watanabe, and T.Hibiya, J. Crystal Growth 88 (1988) 365-370  
[2-7]B.E.Launders and D.B.Spalding, Computer Methods Appl. Mech. Eng. 23 (1980) 21-33  
[2-8]日本機械学会、「熱と流れのコンピューターアナリシス」（コロナ社）、p103-127  
[2-9]S.Kobayashi, S.Miyahara, T.Fujiwara, T.Kubo and H.Fujiwara, J. Crystal Growth 109 (1991) 149-154  
[2-10]第32回生研講習会テキスト（NST〈乱流シミュレーション〉の実態と応用）p111  
[2-11]S.V.Patankar, Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, McGraw-Hill(1980)  
[2-12]K.Yamamoto, T.Abe and S.Takasu, the 10th Japan Symposium on Thermophysical Properties, Proceedings (1989) 119-122  
[2-13]平田彰、岡野泰則、伊藤正康、高野直幸、第35回応用物理学関係連合講演会予稿集28a-Z A-6、1988年春期  
[2-14]S.Kobayashi, J. Crystal Growth 99 (1990) 692-695  
[2-15]W.E.Langlois, J. Crystal Growth 42 (1977) 386-399  
[2-16]W.E.Langlois, Computer Methods Appl. Mech. Eng. 25 (1981) 315-333  
[2-17]J.R.Carruthers and K.Nassau, J. Appl. Phys. 39 (1968) 5205-5214  
[2-18]D.J.Tritton, Physical Fluid Dynamics, Oxford University Press(1993)  
[2-19]W.E.Langlois, Ki-Jun Lee, IBM J. Res. Develop. Vol.27, No.3, May 1983, 281-284  
[2-20]W.E.Langlois, J. Crystal Growth 56 (1982) 15  
[2-21]K.Kakimoto, P.Nicodeme, M.Lecomte, F.Dupret and M.J.Crochet, J. Crystal Growth 114 (1991) 715  
[2-22]H.Sasaki, E.Tokizaki, K.Terashima, and S.Kimura, Jpn. J. Appl. Phys. 33 (1994) 3803-3807

### 第3章

- [3-1]日本機械学会、「熱と流れのコンピュータ・アナリシス」(コロナ社)、p128-149
- [3-2]M.A.Serag-Eldin and D.B.Spalding, *J. Engineering for Power*, 101 (1979) 326
- [3-3]J.Szekely, J.W.Evans and J.K.Brimacombe, the Mathematical and physical modeling of primary metals processing operations (John Wiley & sons) p163-167
- [3-4]W.A.Tiller, K.A.Jackson, J.W.Rutter and B.Chalmers, *Acta Metallurgica*, 1 (1953) 428-437
- [3-5]A.Burton, R.C.Prim and W.P.Slichter, *J. Chem. Phys.*, 21 (1953) 1987
- [3-6]W.G.Cochran, *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 30 (1934) 365
- [3-7]例えば, R.B.Bird, W.E.Stewart and E.N.Lightfoot, *Transport Phenomena* (John Wiley & Sons) p605-608
- [3-8]C.T.Yen and W.A.Tiller, *J. Crystal Growth* 118 (1992) 258-267
- [3-9]A.G.Ostrogorsky and G.Muller, *J. Crystal Growth* 121 (1992) 587-598
- [3-10]W.G.Pfann, *J. Metals*, July 1952, 747-753
- [3-11]W.Lin, D.W.Hill: *Silicon Processing*, ed. D.C.Gupta, (ASTM, STP804, 1983) p.24
- [3-12]N.Ono, M.Kida, Y.Arai, K.Abe and K.Sahira, *J.Crystal Growth* 135 (1993) 359

### 第4章

- [4-1]干川圭吾学位論文
- [4-2]P.A.Ramachandran, M.P.Dudukovic and D.Dorsey, *J. Electrochemical Society* 137 (1990) 3229-3237
- [4-3]関康之、西崎克己、高田至康、第52回応用物理学学会学術講演会予稿集、1-1 p-ZC-6、(1991年秋期)
- [4-4]N.Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, *J.Crystal Growth*, 137 (1994) 427-434
- [4-5]J.Szekely, J.W.Evans and J.K.Brimacombe, The mathematical and physical modeling of primary metals processing operations (John Wiley & sons), p163-167
- [4-6]日本機械学会、「熱と流れのコンピュータ・アナリシス」(コロナ社)、p128-149
- [4-7]H.Hirata and K.Hoshikawa, *J. Crystal Growth*, 106 (1990) 657-664

### 第5章

- [5-1]然海貴、喜田道夫、降屋久弘、第42回応用物理学関係連合講演会1994年春期講演予稿集30a-1A-1.1

[5-2]N.Ono, G.Trapaga and J.Szekely, Abstract 470, p.740, The Electrochemical Society Extended Abstracts, Vol.94-2, Miami Beach, FL, Oct. 9-14, 1994.

[5-3]N.Ono and G.Trapaga, *J. Electrochemical Society* 144 (1997) 764-772

[5-4]J.Birat and J.Choue, *Continuous Casting Vol.3, The Application of Electromagnetic Stirring(EMS) in the Continuous Casting of Steel*, ISS-AIME, 1984, ed. J.J.Moore, pp.21.

[5-5]E.M.Schwartz, Ph.D.Thesis, 1995, Massachusetts Institute of Technology

[5-6]日本鉄鋼協会、西山記念技術講座(平成元年5月10日)、「磁気圧を利用する材料処理プロセス」、浅井滋生、講義テキストp.51.

[5-7]J.Szekely and C.W.Chang, *Ironmaking and Steelmaking*, 1977, vol. 4, p.190.

[5-8]E.Tarapore and J.W.Evans, *Metall. Trans. B*, 1976, vol. 7B, p.343.

[5-9]J.L.Meyer, N.El-Kaddah, J.Szekely, C.Vives and R.Ricou, *Metall. Trans. B*, 1987, vol. 18B, p.529.

[5-10]Navtej Saluja, D.Sc.Thesis, 1991, Massachusetts Institute of Technology

[5-11]M.Abramowitz and I.A.Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, Dover Publications

[5-12]N.Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, *J. Crystal Growth* 132 (1993) 297-304

[5-13]N.Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, *J. Electrochemical Society* 140 (1993) 2101-2105

[5-14]W.E.Langlois, K.M.Kim and J.S.Walker, *J.Crystal Growth* 126 (1993) 352.

[5-15]H.Hirata and K.Hoshikawa, *J.Crystal Growth* 106 (1990) 657.

### 第6章

[6-1]Y.Arai, M.Kida, N.Ono, N.Machida, K.Abe, H.Furuya and K.Sahira, in: 185th ECS Meeting, Extended Abstracts (1994) p.669.

### 第7章

[7-1]Nikkei Microdevice, 1992年11月号、特集p.22

付録1 メルト熱流動に関するその他の結果

第2章で述べたもの以外にも数多くの温度測定実験・数値解析を実施した。ここに主なものをまとめる。

#### (1) 原料供給による液温変化<sup>付1-1)</sup>

原料供給によって、メルトが冷やされるが、具体的にどの程度温度が低下しているかを知ることは、ホットゾーン的设计等において重要である。ここでは、15インチφ11インチの2重ルツボの場合について、4インチ結晶の1mm/minの引き上げ速度に相当する供給レート（この場合15g/minとなる）で内外ルツボの隙間に原料を供給した時の液温の変化を調べた。

測定した位置を図付1.1に示す。

供給をスタートし、再び止めた時の経時変化を図付1.2に示す。

供給を始めると、速やかに温度が低下し約3.50秒後には安定した。この地点では、約1.3度温度が低下していることがわかる。そして、供給をストップすると速やかに再びは元の温度に回復していることがわかる。非常にその応答が速いことがわかった。

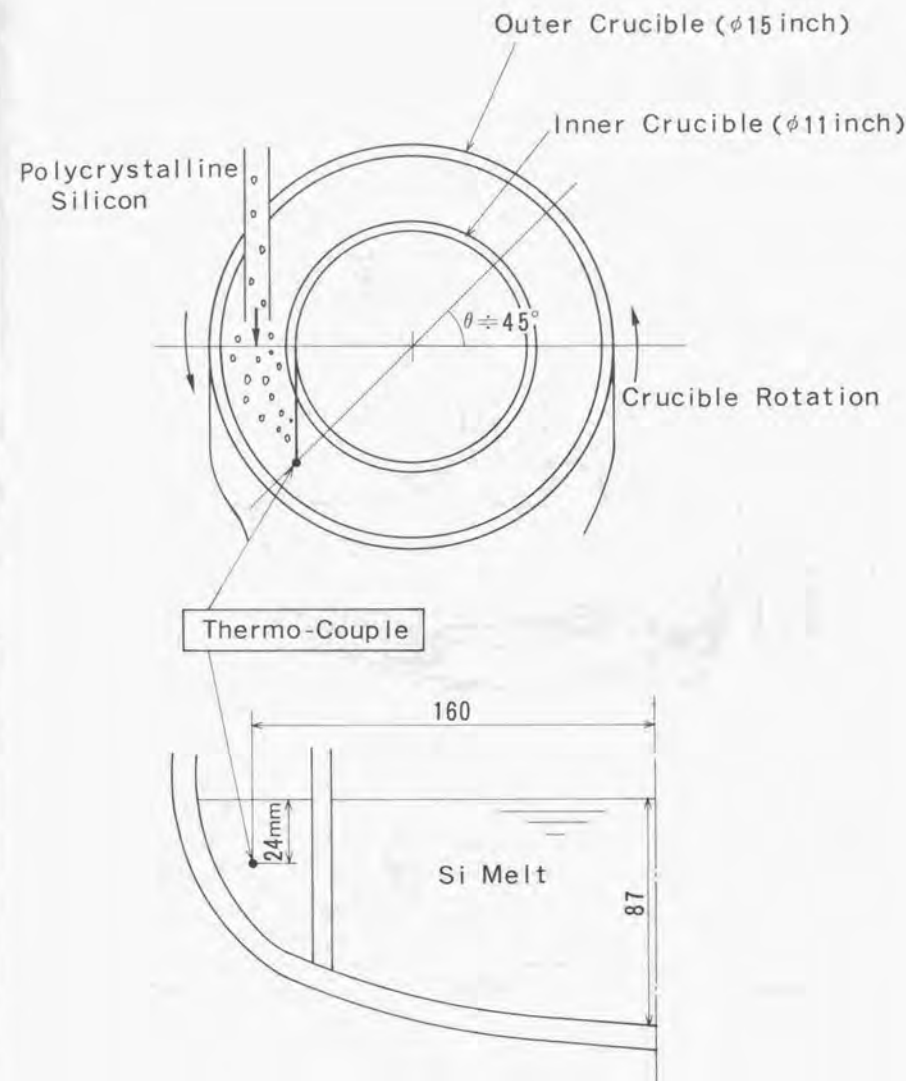
#### (2) 原料供給による液温低下現象のシミュレーション<sup>付1-2)</sup>

上述の液温低下量は、原料初期温度に依存するのはもちろんのことであるが、ルツボ回転数にも依存しているのではないかと考えられた。なぜならルツボ回転数が大きいと原料が落下供給される部分をなめる単位時間当りのメルト表面積が増加し、原料溶解を担うメルト部分が多くなるからである。

この現象をモデル的に扱うため、図付1.3の状況を考え、原料による吸熱部分の面積は一定とし、純粹にルツボの回転の効果を知るモデルを作成した。計算はフル3次元の計算となるため対流全てを解かず、メルトはルツボ回転に従い剛体回転しているものとした。例えば、回転しているコマの端の一部を静止している外部から強制冷却しているというような、一種興味深い伝熱状態となる。

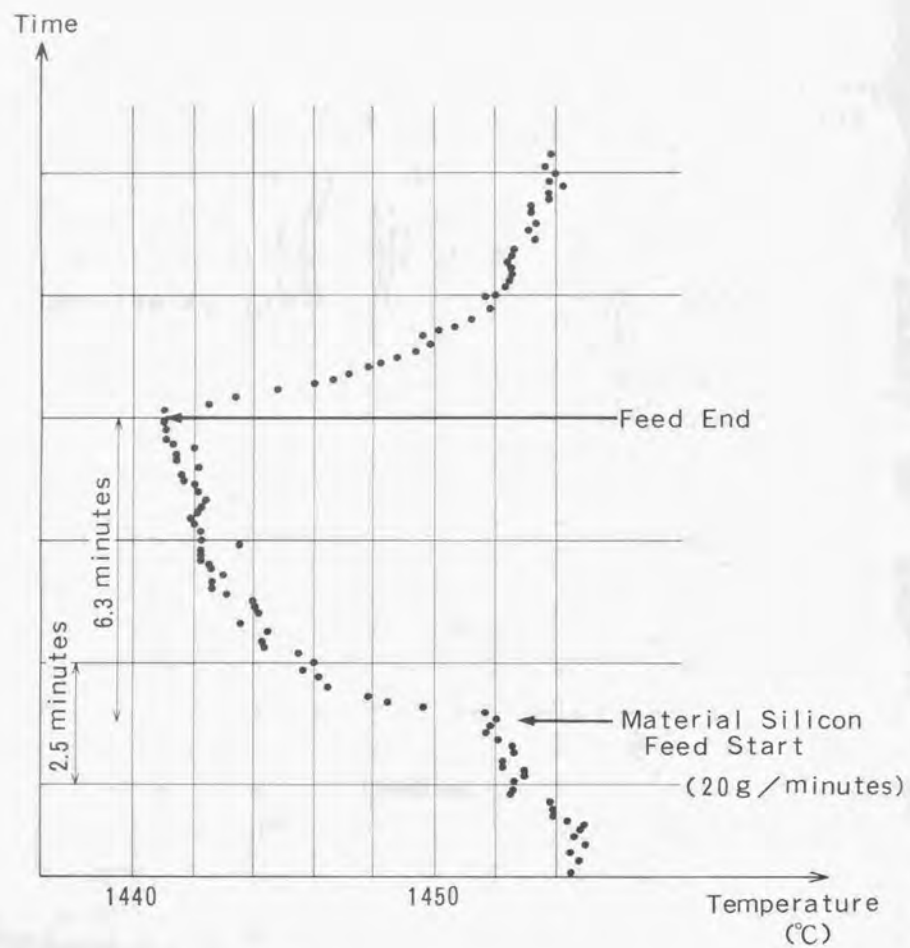
このモデルによる計算結果の一部を図付1.4に示す。この図では回転数に伴うメルト表面温度の変化を示している。ルツボ回転が1rpmと10rpmの時を比較すると最低温度点において10rpmの時の方が3.0度程度温度低下が小さいことがわかる。

現実にはメルト内には対流伝熱も発生しているため、伝導伝熱だけを考慮したこのモデルの結果は多少オーバーエスティメイトしていると考えられる。しかし、強磁場印加引き上げのようにメルト内対流を強

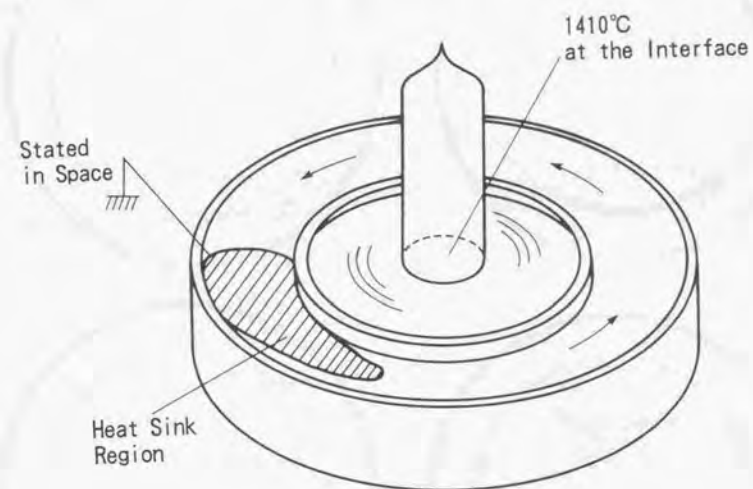


図付1.1 原料供給による液温変化測定の測定位置





図付1.2 原料供給による液温変化の測定結果



図付1.3 原料供給による液温低下現象のモデル化

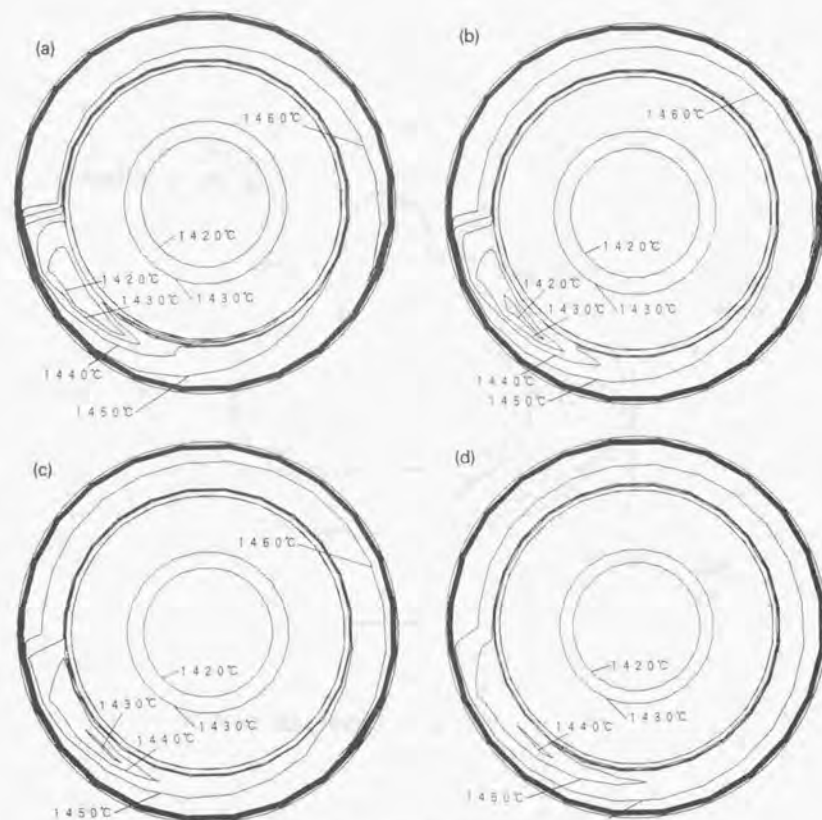


Fig. 4. Isotherms at the melt surface. Crucible rotation rates are: (a) 1 rpm; (b) 2 rpm; (c) 5 rpm; (d) 10 rpm.

図付1.4 原料供給による液温低下現象のモデル計算結果  
ルツボ回転数はそれぞれ;  
(a) 1 rpm (b) 2 rpm  
(c) 5 rpm (d) 10 rpm

く抑制した状況下では、このモデル計算結果も現実味を帯びてくると思われる。

### (3) ルツボ外面温度<sup>(12)(13)</sup>

#### (3-1) 二重ルツボと単一ルツボの場合の比較

二重ルツボと単一ルツボの結果の比較(1.6インチ/1.2インチの二重ルツボと1.6インチの単一ルツボの比較である)を図付1.5に示す

二重ルツボの場合の温度は、単一ルツボの場合より領域全体に渡って高いことがわかり、その差はこの場合では20~25度であった。

二重ルツボ法の場合、メルト中に石英製の内ルツボが存在する。そしてこれが、断熱的效果を及ぼす。結晶成長を適正な温度に保つために、単一ルツボの場合より、この温度差の分だけ高い温度に設定しなければならないことをこの結果は示している。

#### (3-2) 寸法効果

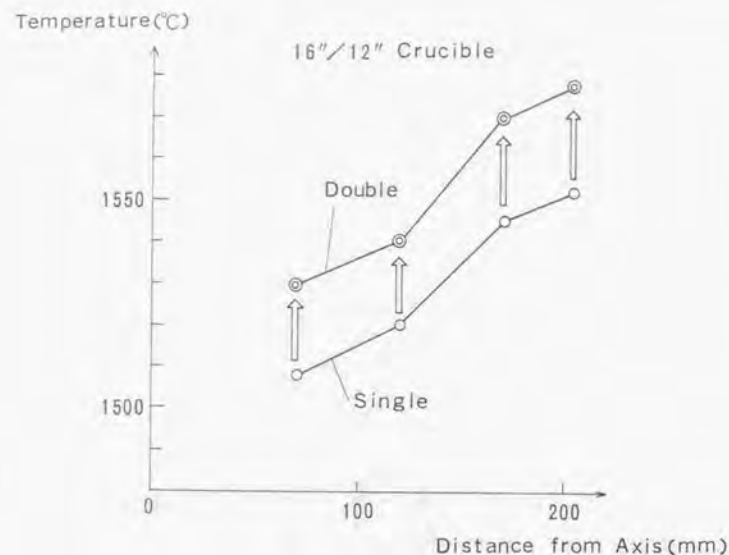
外ルツボ1.6インチ/内ルツボ1.2インチの二重ルツボと、外ルツボ1.5インチ/内ルツボ1.1インチの二重ルツボ(この時成長させている結晶は1インチ)の結果の比較を図付1.6に示す。プロファイルが異なるので単純には比較できないが、1.6/1.2インチの二重ルツボの場合の方が、中心近くで約18度高いことがわかる。

直径が大きくなるにつれ、放射により放熱される面積も大きくなる。この影響を補償するための温度差を表していると考えることができる。

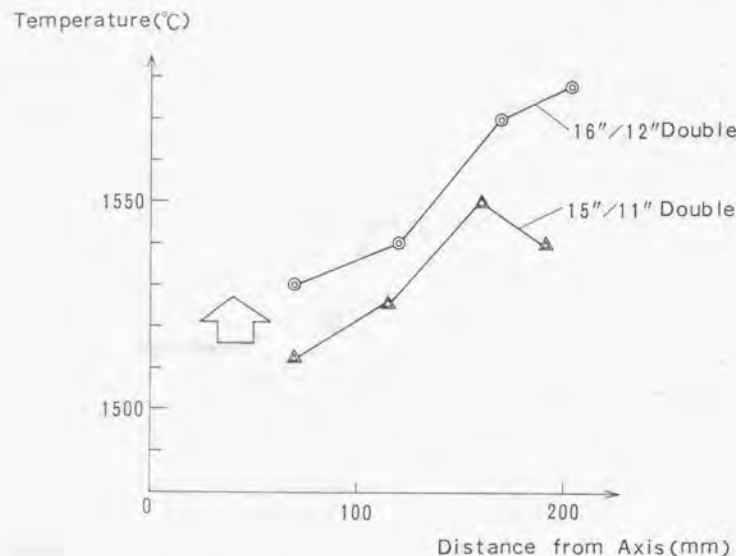
なお、最外縁点での温度が、1.5インチの場合では、かなり低下しているのに対し、1.6インチの場合では低下が小さいのは、1.5インチの場合の方がメルト液面から上方にでている石英ルツボの部分が長い。ここでの放射放熱による冷却を顕著に受けたためであろうと考えている。

### (4) 引き上げ機全体のヒーターパワー変化への応答<sup>(12)(1)</sup>

引き上げ機全体のヒーターパワー変化への過渡応答をみるために、メルト内部の温度の応答を調べた。測定点は、中心から70mm離れた内ルツボ中で、液深10mmの地点である。



図付1-5 二重ルツボと単一ルツボのルツボ外面温度の比較



図付1-6 ルツボ外面温度に与える系の寸法効果

ヒーターパワーを4kw上昇させたところ、変化が現れてくるのに若干時間がかかり、4-5分後であった。しかし、その後の定常状態に落ち着くまで、60分以上かかることがわかった。この状況を図付1-7に示す。

ヒーターとメルトの間には、黒鉛ルツボと石英ルツボがある。この石英ルツボの低熱伝導性により、定常状態になるまで時間がかかるのではないかと考え、つぎにルツボ外面の温度の応答性を調べる実験をおこなった。

ヒーターパワーをある定常状態から3kw急に下げたときの、ルツボ外周面(石英ルツボ/カーボンセブタ界面)の温度変化を図付1-8に示す。変化への反応は非常に速いが、次の定常状態に落ち着くまでには、非常に時間がかかり、この場合60分以上かかっている。新しい定常状態に落ち着くまでの時間が、これほどかかるのは、引き上げ機の各部にヒーターの温度変化が伝播し、新しい熱バランス(加熱と冷却)を作り上げるのにこの程度の長時間を要することを意味している。

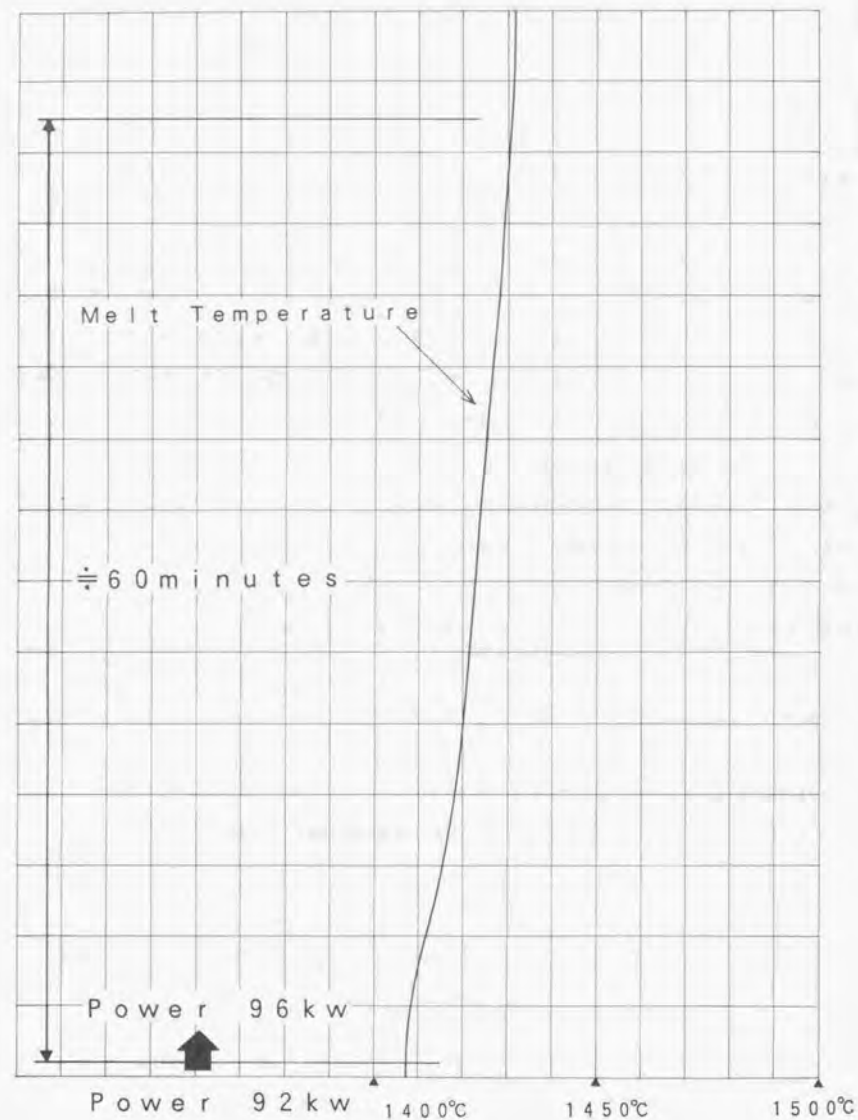
ヒーターのすぐ内側に黒鉛ルツボがあり、それが、温度応答をこれほど遅くしているとは考えにくい。一方、ヒーターの外側には、非常に熱伝導率の低い断熱材(カーボンフェルト)が設置されている。この断熱材の温度応答が遅いことが想像され、断熱材全体として、また、その外側の水冷チャンバーの水温も含めて、新しい熱的定常状態に推移するには、かなり時間がかかると考えられる。このおもに断熱材の時間遅延が起因して、結果的にメルトの温度変化も長時間を要するのであろう。

#### 付録1の引用文献

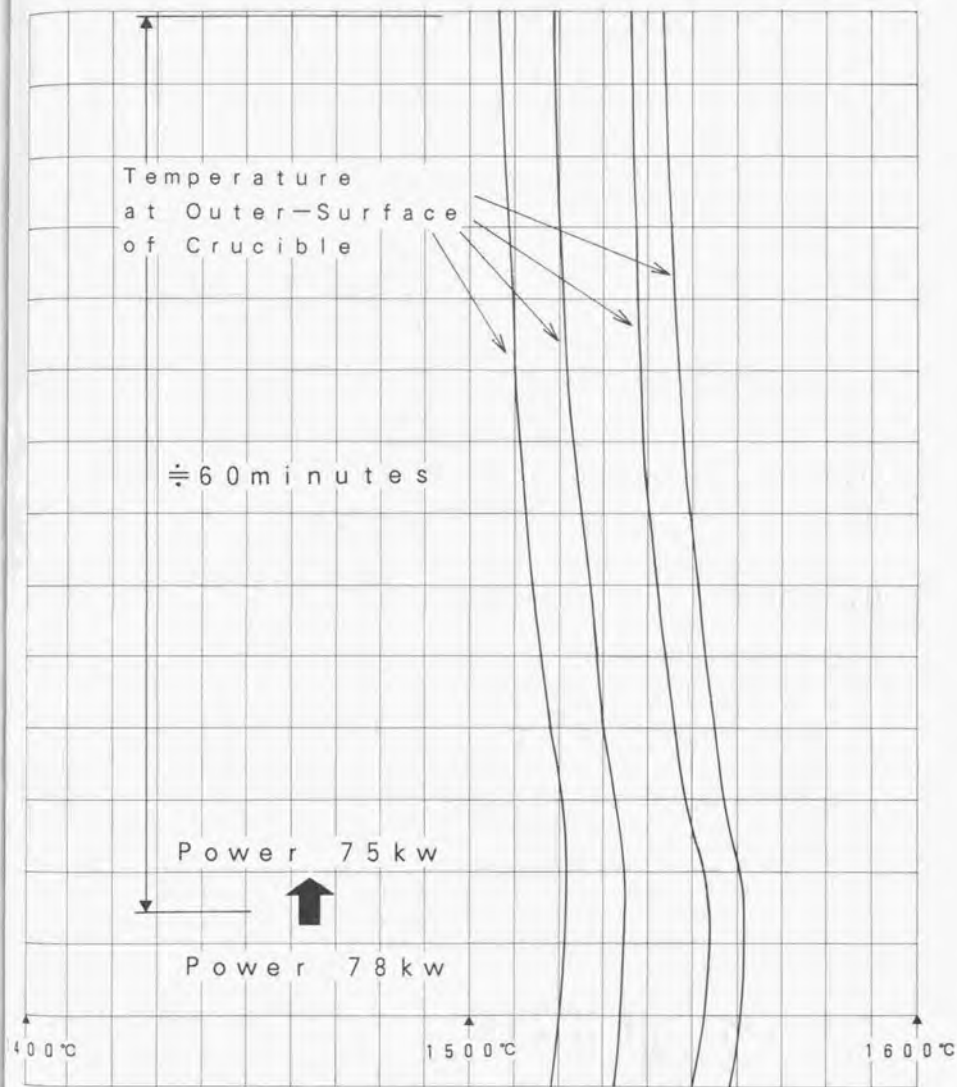
[付1-1]N.Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, J. Electrochemical Society 140 (1993) 2101-2105

[付1-2]N.Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira, J. Crystal Growth 132 (1993) 297-304





図付 1.7 メルト内部温度のヒーターパワー変化への応答



図付 1.8 ルツボ外面温度のヒーターパワー変化への応答

次に示す第3章の式(3.5.5) (3.5.6)が基礎式となる。

$$\frac{dD_i(x)}{dx} = -k_{eff} \frac{D_i(x)}{W_i} + \frac{D_o(x)}{W_o} \quad (3.5.5)$$

$$\frac{dD_o(x)}{dx} = -\frac{D_o(x)}{W_o} \quad (3.5.6)$$

上2式の微分方程式をとくのだが、まず式(3.5.6)を解く。

(3.5.6)を変数分離に変形して、

$$\frac{dD_o(x)}{D_o(x)} = -\frac{dx}{W_o} \quad (付2.1)$$

よって、

$$\ln \{D_o(x)\} = -\frac{x}{W_o} + C_1$$

ゆえに、

$$D_o(x) = \exp\left(-\frac{x}{W_o} + C_1\right) = C_2 \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right)$$

$D_o(0) = C_2$  となるから、

$$D_o(x) = D_o(0) \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right) \quad (付2.2)$$

この式(付2.2)を式(3.5.5)に代入して、

$$\frac{dD_i(x)}{dx} = -k_{eff} \frac{D_i(x)}{W_i} + \frac{D_o(0)}{W_o} \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right)$$

変形して、

$$\frac{dD_i(x)}{dx} + k_{eff} \frac{D_i(x)}{W_i} = \frac{D_o(0)}{W_o} \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right)$$

ゆえに、

$$\frac{dD_i(x)}{dx} + \frac{k_{eff}}{W_i} D_i(x) = \frac{D_o(0)}{W_o} \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right) \quad (付2.3)$$

つまり、

$$\frac{dy}{dx} + P(x)y = Q(x) \text{ の形になっているが、これには次の公式がある。}$$

$$y = \exp\left(\int -P(x)dx\right) \cdot \left\{ \int \exp\left(\int P(x)dx\right) Q(x)dx + C \right\}$$

(各積分定数=0としてよい)

これを用いると、式(付2.3)は、

$$D_i(x) = \exp\left(\int -\frac{k_{eff}}{W_i} dx\right) \cdot \left\{ \int \exp\left(\int \frac{k_{eff}}{W_i} dx\right) \frac{D_o(0)}{W_o} \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right) dx + C \right\}$$

$$= \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i} x\right) \cdot \left\{ \int \exp\left(\frac{k_{eff}}{W_i} x\right) \frac{D_o(0)}{W_o} \exp\left(-\frac{x}{W_o}\right) dx + C \right\}$$

$$= \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i} x\right) \cdot \left\{ \frac{D_o(0)}{W_o} \int \exp\left(\frac{k_{eff} W_o - W_i}{W_i W_o} x\right) dx + C \right\}$$

$$= \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i} x\right) \cdot \left\{ \frac{D_o(0)}{W_o} \frac{W_i W_o}{k_{eff} W_o - W_i} \exp\left(\frac{k_{eff} W_o - W_i}{W_i W_o} x\right) + C \right\}$$

ゆえに、

$$D_i(0) = \frac{D_s(0)W_i}{k_{eff}W_o - W_i} + C$$

よって、

$$C = D_i(0) - \frac{D_s(0)W_i}{k_{eff}W_o - W_i}$$

この定数を代入して、次式が得られる。

$$D_i(x) = \exp\left(-\frac{k_{eff}}{W_i}x\right) \left[ D_i(0) + \frac{D_s(0)W_i}{k_{eff}W_o - W_i} \left\{ \exp\left(\frac{k_{eff}W_o - W_i}{W_iW_o}x\right) - 1 \right\} \right] \quad (\text{付2.4})$$

### 付録3 ドーピングに関するその他のモデルの定式化

第3章で述べたモデルにより、メルト総量の変化しない場合の扱いは十分であろうと考えられる。

しかし、より一般化した状況、または現実的な状況として、メルト量が増加する場合がある。これは、意識せず結晶引き上げ速度と、原料供給速度が不整合をおこしている場合、あるいは、意識的に途中でメルト量を増加させたり、減少させたりして、ドーパント濃度をコントロールしようとする場合の解析に有効である。

#### (1) 一般化したモデルの定式化

結晶成長によるメルト量の減少、および原料供給によるメルト量の増加を一般的に考えるため、図付3.1のような状況を考える。

ある時の結晶成長界面の面積を含んだ内ルツボ内メルトの表面積を $S_i$ とし、外ルツボ内メルトの表面積を $S_o$ とする。 $\alpha$ という変数を次のように定義する。

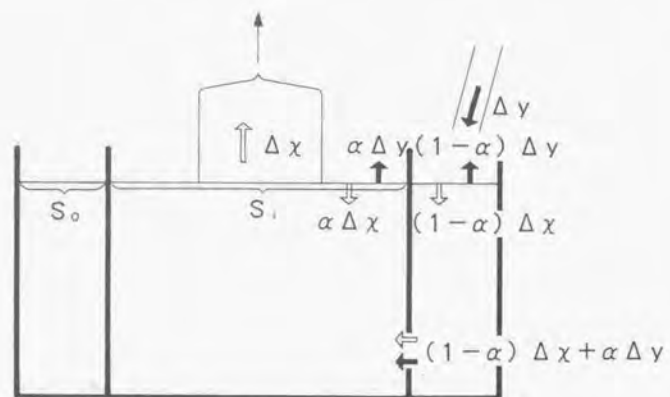
$$\alpha = \frac{S_i}{S_i + S_o} \quad (\text{付3.1})$$

この変数 $\alpha$ は、内ルツボ内表面積の自由表面積合計に対する比を意味している。ルツボの形状が単純な鉛直2重円筒の場合では、 $\alpha$ は内ルツボと外ルツボの半径のみで決定され、定数になる。しかし、実際的なルツボでは、図付3.2のように下部がラウンド状になっており、メルトが減少し、液面がそのラウンド部に入ってくると、 $\alpha$ の値が変化する。そのような場合は、 $\alpha$ を総メルト量あるいはメルト深さの関数として、式で表現してやれば、逐次それを参照して、計算を続けられよい。これは、プログラム上何も問題の無いことである。

今、図付3.3のように結晶に $\Delta x$  (g)だけメルトが移動し固化したとする。合計として、メルトからも $\Delta x$ 減少するわけであるが、自由表面の面積比の関係から、内ルツボ内のメルトからは、 $\alpha \cdot \Delta x$ 減少し、外ルツボ内のメルトからは、 $(1-\alpha) \cdot \Delta x$ 減少する。内ルツボの導通孔部に注目すると、外ルツボのメルト減少量が、導通孔を通して、内側へ入る量となるので、結局外ルツボから内ルツボへの移動メルト量は、 $(1-\alpha) \cdot \Delta x$ に等しい。

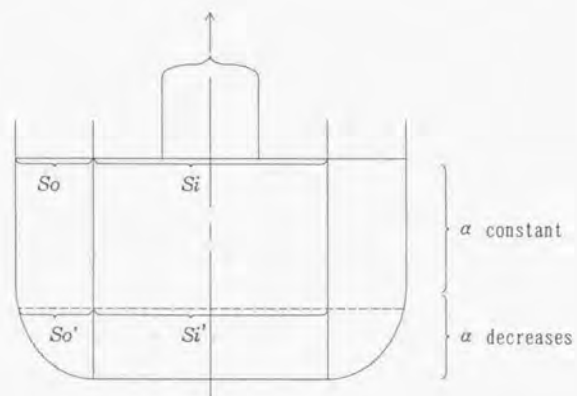
次に、図付3.4のように外ルツボに $\Delta y$  (g)の原料を供給し、メルトが増加したとする。自由表面





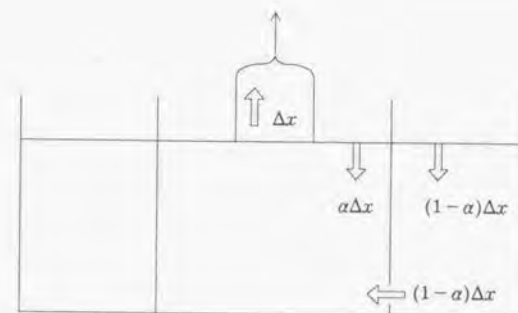
$$\alpha = \frac{S_i}{S_i + S_o}$$

図付 3.1 一般化したランプモデルの状況

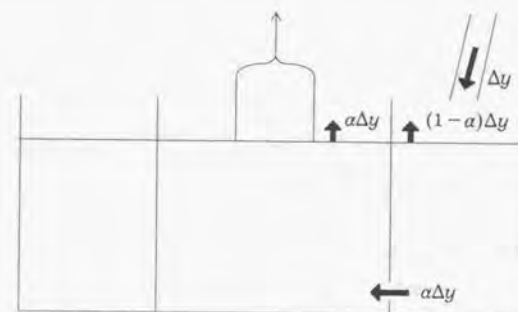


$$\alpha = \frac{S_i}{S_i + S_o}$$

図付 3.2 変数  $\alpha$  の定義



図付 3.3 結晶に  $\Delta x$  (g) だけメルトが移動し固化した状況



図付 3.4 外ルツボに  $\Delta y$  (g) の原料を供給しメルトが増加した状況

積比の関係から、この $\Delta y$ は分離され、内ルツボ内に $\alpha \cdot \Delta y$ 蓄積され、外ルツボには、 $(1-\alpha) \cdot \Delta y$ だけ蓄積することになる。よって、導通孔に着目すると、内ルツボへ蓄積される量が導通孔を通して内側へ流入した量なので、 $\alpha \cdot \Delta y$  (g) に等しい。

結晶成長と原料の供給が同時に生じていても、図付3.1のように各ルツボ内でのメルト量の変化は、別別に考えた量を足しあわせてよい。よって、 $\Delta x$  (g) 結晶成長し、同時に $\Delta y$  (g) 外ルツボに原料が供給された場合の各ルツボ内のメルト量の変化(累計結晶成長重量が $x$ から $x + \Delta x$ へ変化した時の変化)は、次の様に、離散化式で表現することができる。

$$W_i(x + \Delta x) - W_i(x) = -\alpha \Delta x + \alpha \Delta y \quad (\text{付3.2})$$

$$W_o(x + \Delta x) - W_o(x) = -(1-\alpha) \Delta x + (1-\alpha) \Delta y \quad (\text{付3.3})$$

導通孔を流入するメルト量は、結晶成長と原料の供給が同時に生じていても、上で各々検討した値をこれもまた足しあわせてもよいから、 $(1-\alpha) \Delta x + \alpha \Delta y$  (g) である。よって、この時、外ルツボから導かれるドーパント原子の数は、このメルト量にその時の外ルツボ内のドーパント濃度を乗じた値でよいから、次式となる。

$$C_o(x) \{ (1-\alpha) \Delta x + C_o(x) \alpha \Delta y \} \quad (\text{付3.4})$$

次に、結晶に移動するドーパントの原子数を考えると、その時の内ルツボ内のドーパント濃度に実効偏析係数を乗じた値が結晶中の濃度としているため、 $\Delta x$  結晶成長する際には、次式の量が結晶に移動する。

$$C_i(x) k_{eff} \Delta x \quad (\text{付3.5})$$

以上から内ルツボ内のドーパント原子数の変化を離散化式により次の様に表すことができる。

$$D_i(x + \Delta x) - D_i(x) = -C_i(x) k_{eff} \Delta x + C_o(x) \{ (1-\alpha) \Delta x + C_o(x) \alpha \Delta y \} \quad (\text{付3.6})$$

同様に外ルツボの中のドーパント原子数の変化を考える。外ルツボから内ルツボへ移動する原子数は式「付3.4」で与えられている。もし、供給原料 $\Delta y$ の中のドーパント濃度を $C_o$ とすると、原料供給によ

り、外ルツボに入るドーパント原子数は $C_o \cdot \Delta y$ である。以上より、外ルツボ内のドーパント原子数の変化の離散化式は、次の様になる。

$$D_o(x + \Delta x) - D_o(x) = -C_o(x) \{ (1-\alpha) \Delta x - C_o(x) \alpha \Delta y + C_o \Delta y \} \quad (\text{付3.7})$$

各ルツボ内の平均ドーパント濃度は、我々の仮定から単純に次式で表現できる。

$$C_i(x) = \frac{D_i(x)}{W_i(x)} \quad (\text{付3.8})$$

$$C_o(x) = \frac{D_o(x)}{W_o(x)} \quad (\text{付3.9})$$

(付3.8) 式からその時の結晶中のドーパント濃度を実効偏析係数を用いて、次式の様に表せる。

$$C_i(x) = k_{eff} \cdot C_o(x) \quad (\text{付3.10})$$

(付3.2) - (付3.10) までの式を全て連成して解く必要がある。 $\Delta x$ ,  $\Delta y$ を $dx$ ,  $dy$ として、微分方程式を作ることでもできるが、特殊な場合を除いて、厳密解は存在しない。よって、ここでは、例えば、オイラー法のように、初期状態から1ステップ毎に数値計算して濃度変化を追えば良い。

これより、前節のメルト量が一定の場合では、 $\Delta x = \Delta y$ としている場合であることがわかる。

## (2) 様々な状況のモデル

本節での一般式を用いると以下のような、二重ルツボに関連する様々な場合のドーパント濃度変化をシミュレートすることができる。

<1> 単一ルツボによる通常引き上げ

<2> 二重ルツボによるパッチ引き上げ(原料供給なし)

<3>二重ルツボによる原料再チャージ

<4>二重ルツボによる引き上げ速度/原料供給速度の差をつける方法

<5>二重ルツボ連続引き上げ

<5>については、第3章に述べた通りなので、上の<1>~<4>の定式化を以下にまとめて示しておく。数式的には(付3.2)~(付3.10)の基礎式を修正していく形になる。

<1>単一ルツボによる通常引き上げ

最も基本的なこの場合は、ルツボは1つしかないので、内ルツボのみとここでは見なすと $\Delta y = 0$ であり、 $\alpha$ の値は関係なくなるので次の通りとなる。

$$W_i(x + \Delta x) - W_i(x) = -\Delta x \quad (\text{付3.11})$$

$$D_i(x + \Delta x) - D_i(x) = -C_i(x)k_{eff}\Delta x \quad (\text{付3.12})$$

$$C_i(x) = \frac{D_i(x)}{W_i(x)} \quad (\text{付3.13})$$

$$C_o(x) = k_{eff} \cdot C_i(x) \quad (\text{付3.14})$$

これは、Pfannの式と同等である。(解析解が存在する)

<2>二重ルツボによるバッチ引き上げ(原料供給しない)

この場合は、二重ルツボであるが、 $\Delta y = 0$ である。

$$W_i(x + \Delta x) - W_i(x) = -\alpha \Delta x \quad (\text{付3.15})$$

$$W_o(x + \Delta x) - W_o(x) = -(1 - \alpha) \Delta x \quad (\text{付3.16})$$

$$D_i(x + \Delta x) - D_i(x) = -C_i(x)k_{eff}\Delta x + C_o(x)(1 - \alpha)\Delta x \quad (\text{付3.17})$$

$$D_o(x + \Delta x) - D_o(x) = -C_o(x)(1 - \alpha)\Delta x \quad (\text{付3.18})$$

$$C_i(x) = \frac{D_i(x)}{W_i(x)} \quad (\text{付3.19})$$

$$C_o(x) = \frac{D_o(x)}{W_o(x)} \quad (\text{付3.20})$$

$$C_o(x) = k_{eff} \cdot C_i(x) \quad (\text{付3.21})$$

<3>二重ルツボによる原料再チャージ

例えば、現実的に可能かどうかは不明であるが、二重ルツボにて最初上記<2>の方法によって、バッチ的に引き上げ、メルト総量が減少した後、外ルツボへ原料を供給してメルト量を元に戻す場合が有り得るかもしれない。

その際は、その前回の最終状態までの、結晶引き上げ重量を $x_1$ とし、その後の濃度変化を原料追加供給量 $y$ を基準で考えると、 $\Delta x = 0$ であるから、

$$W_i(x_1 + y + \Delta y) - W_i(x_1 + y) = \alpha \Delta y \quad (\text{付3.22})$$

$$W_o(x_1 + y + \Delta y) - W_o(x_1 + y) = (1 - \alpha) \Delta y \quad (\text{付3.23})$$

$$D_i(x_1 + y + \Delta y) - D_i(x_1 + y) = C_o(x_1 + y) \alpha \Delta y \quad (\text{付3.24})$$

$$D_o(x_1 + y + \Delta y) - D_o(x_1 + y) = -C_o(x_1 + y) \alpha \Delta y + C_o \Delta y \quad (\text{付3.25})$$



$$C_l(x_1+y) = \frac{D_l(x_1+y)}{W_l(x_1+y)} \quad (\text{付3.26})$$

$$C_s(x_1+y) = \frac{D_s(x_1+y)}{W_s(x_1+y)} \quad (\text{付3.27})$$

$$C_l(x_1+y) = k_{eff} \cdot C_s(x_1+y) \quad (\text{付3.28})$$

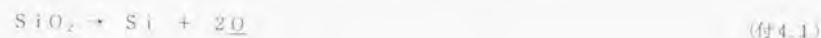
<4>二重ルツボによる引き上げ速度／原料供給速度の差をつける方法

基本式は冒頭の式群と同一であるが、 $\Delta x$ と $\Delta y$ を少し異なる値に設定して、計算を進めればよい。

#### 付録4 酸素輸送モデルに関する物質伝達率の推定

CZモデル計算における酸素原子の石英ルツボからの溶解速度係数・液面からの蒸発速度係数の見積もりについてまとめる。

酸素原子は石英( $\text{SiO}_2$ )ルツボが以下のように分解して溶解し、シリコンメルト中にとけこむ。



いわゆるアブレーションとよべるものである。

さらに酸素原子は一酸化珪素( $\text{SiO}$ )ガスの形で、メルト表面から盛んに蒸発していると考えられている。



一般にこの蒸発はCZ炉のような真空炉の中では、非常に速く進行するためメルト表面近傍の酸素濃度はオーダー的に非常に小さく、メルト中の酸素を議論する際はゼロと見なしてよいと考えられている<sup>1941)</sup>。

両者の場合とも、単結晶引き上げのように高温のプロセスの場合、上記の化学反応自体が全体の物質移動を律速することはあまりなく、メルト側の拡散や流動による輸送現象が律速していると考えてよいであろう<sup>1942)</sup>。

よってその物質流束はいわゆる物質伝達率を用いて以下のように記述できる。

アブレーションの場合

$$\text{Ablation Flux} = h_a (C_w - C_p) \quad (\text{付4.3})$$

ここで、

$C_w$ はその温度におけるシリコンメルト中の酸素原子の溶解度(飽和濃度)である。

$C_p$ は石英壁(ルツボ壁)近傍のバルク中酸素濃度である。

蒸発の場合

$$\text{Evaporation Flux} = h_e (C_e - C_s) \cong h_e C_e \quad (\text{付4.4})$$

ここで、

$C_s$  は、メルト表面での酸素濃度。ここではゼロと近似している。

$C_p$  は表面近傍のバルク中の酸素濃度である。

もし、極度に細かいメッシュを濃度境界層の内部にまで用いるのなら物質流束は上で定義した物質伝達率を導入せずに直接求めることができるはずである。

しかし、シリコンメルト中の酸素の拡散係数は非常に小さく、 $5 \times 10^{-8} \text{ (m}^2/\text{sec)}$  のオーダーと考えられているので、濃度境界層の厚みは数十ミクロン程度と考えられる。よってこのような極微のメッシュを用いて計算することは実用的ではない。

従ってここでは、上で定義した物質伝達率を用いて、いくつかの実験データから得られている結果と大きくはずれない妥当な物質流束を計算上でも得られるようにその値を探した。

他の研究者により得られているデータをいくつか示す。

#### 酸素の溶解速度

Chaney et al. <sup>[1242]</sup>	$0.84 \times 10^{-16} \text{ (atoms/cm}^2\text{sec)}$
Zulchner et al. <sup>[1243]</sup>	$1.40 \times 10^{-16}$
Hirata et al. <sup>[1244]</sup>	$2.85 \times 10^{-16}$
Bathey et al. <sup>[1245]</sup>	$2.92 \times 10^{-16}$
Kim&Langlois <sup>[1246]</sup>	$2.00 \times 10^{-16} \text{ (calculated)}$

Kim&Langloisの計算は非常に細かいメッシュを用いた計算で、まさに前述したように濃度境界層の内部までメッシュを切ったもので、他にあまり例を見ない貴重な計算である。彼らの結果を調べて蒸発速度を具体的に見積もることができる。

#### 酸素の蒸発速度

$$\text{Kim\&Langlois}^{[1246]} \quad \text{約} 5 \times 10^{-16} \text{ (atoms/cm}^2\text{sec)}$$

この値は彼らの文献から著者が見積もった値である。

#### 各物質伝達率の見積もり手順

ここでは、計算モデルとして二重ルツボでなく、基礎的な単一ルツボの場合に立ち戻り、著者の用いていた  $k_{-E}$  乱流モデルを用いて流動状態をまず計算した。

図付4.1に用いた形状を示す。第5章で用いたモデルと基本的に同じものを用いたので、使用したメッシュは図5.4.2において内ルツボの部分をメルトに置き直したものである。結晶回転数は15rpm、ルツボ回転数は逆方向に5rpmである。温度の境界条件や、メルトの物性値は第5章と同じものを用いた。図付4.2に得られた速度ベクトルを示す。図付4.3に温度分布を示す。

その後、酸素の輸送計算に移るわけであるが、この石英ルツボとメルトの界面部分からの物質伝達率に推定値をいれ、また自由表面に移動する物質伝達率にも推定値をいれて試行錯誤して考えていく。厳密に考えると物質伝達率は界面の状態や流れの状態、またそこでの流れの乱れにも影響を受け、それらの総合的な関数となっているはずである。しかし、それらの個々の変化には目をつむって一義的に決めてやろうというのがここでの課題である。

モデルでは  $k_{-E}$  乱流モデルを用いているため、渦動粘性係数を導入し、また熱輸送および酸素輸送に関し、各々乱流プラントル数および乱流シュミット数を仮定して計算している。

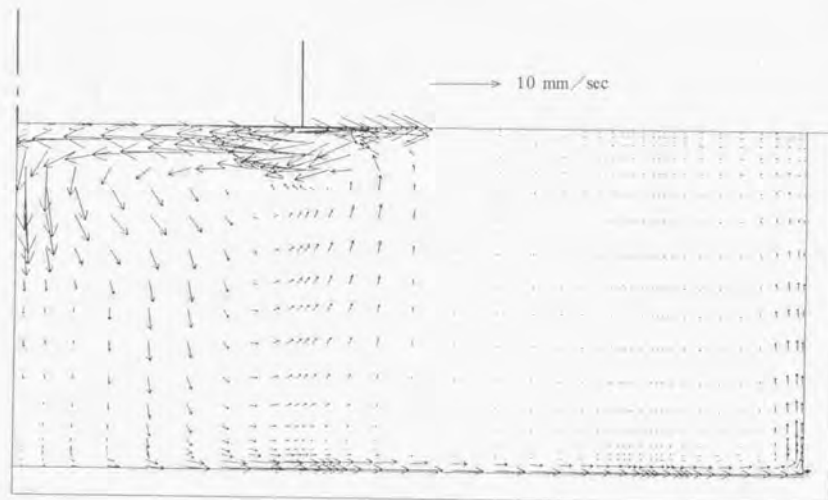
つまり、界面セルではセルの中心での濃度と界面での濃度の濃度差に物質伝達率を乗じた値を流束として計算に導入し、結果として得られる各界面での物質伝達量および結晶界面での酸素濃度をチェックしていくのである。

#### 計算結果

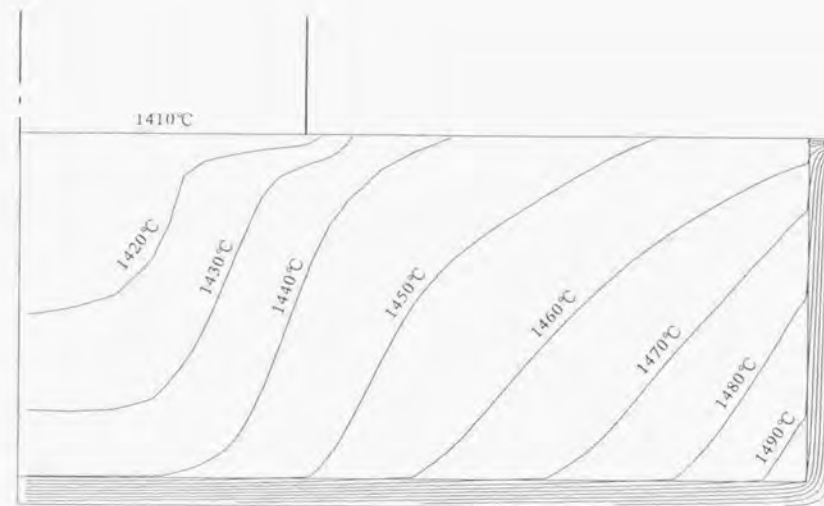
試行錯誤的に調べた結果、以下の値が妥当であろうとの結果を得た。



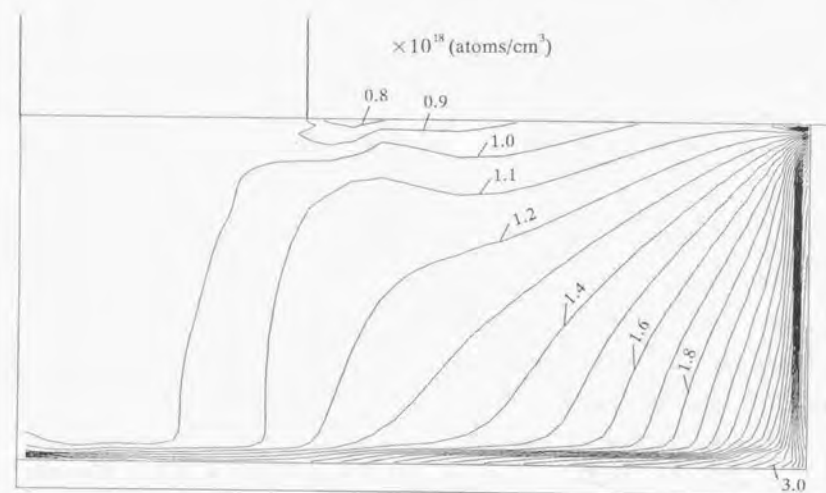
図付 4.1 用いたモデル形状



図付 4.2 得られた速度ベクトル



図付 4.3 得られた温度分布



図付 4.4 得られた酸素濃度分布



Ablation Flux  $= h_a = 1.1 \times 10^{-4}$  (m/sec) (付4.5)

Evaporation Flux  $= h_e = 4.5 \times 10^{-4}$  (m/sec) (付4.6)

これらの値を用いた時の酸素濃度分布を図付4.4に示す。

図付4.5にこれらの値を用いた時の石英ルツボ底部内面からの酸素流束(溶解速度)を示す。また図付4.6に自由表面からの酸素流束(蒸発速度)を示す。

石英ルツボからのアブレーション流束は上に示したKim&Langloisの値によく一致している。また、この値は上の表で示した各研究者の値の平均的な値となっている。また蒸発速度に関しては、Kim&Langloisの値と比べて少し小さい値をとっているが決して悪い一致ではない。

最終的に得られる結晶下の濃度分布を図付4.7に示す。

この計算の系と全く同一の引き上げ実験をおこなうことは、難しく、また同じ形状でも引き上げ機によってもその結晶中の酸素濃度の絶対レベルは振れることがあり、一般的に明確な値で代表することは難しい。しかし著者の知るところでは、似たような条件の場合は、ほぼ  $1 \times 10^{18}$  (atoms/cm<sup>3</sup>) の前後に落ちついているようである。その点からすると、ここで得られた値はまずまず妥当な値だといえる。

結論としてこの検討計算の結果得られた係数は著者の計算モデルにおいて用いた場合、近似的に用いても得られる酸素流束に関し大きな誤差はないものと考えられる。

付録4の引用文献

[付4-1] 千川圭吾学位論文

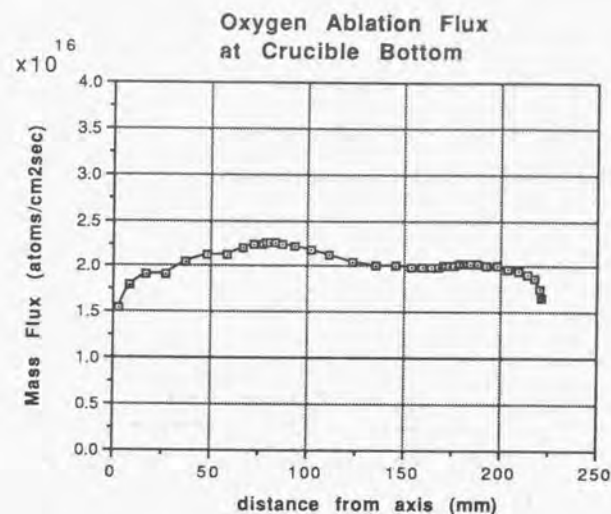
[付4-2] R.E.Chaney and C.J.Varker, J. Crystal Growth 33 (1976) 188.

[付4-3] W.Zulchner and D.Huber, "Czochralski Grown Silicon Crystals", Crystals, Growth, Properties and Applications, ed. H.C.Freyhardt, Vol.8, pp.21-26, Springer Verlag, Berlin, (1988).

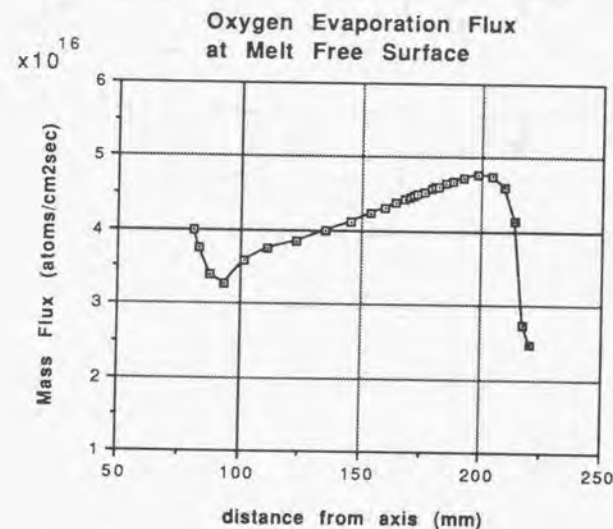
[付4-4] H.Hirata and K.Hoshikawa, Jpn. J. Appl. Phys. 19 (1980) 1573.

[付4-5] B.Bathey, H.E.Bates and M.Cretella, J. Electrochem. Soc. 127 (1980) 771.

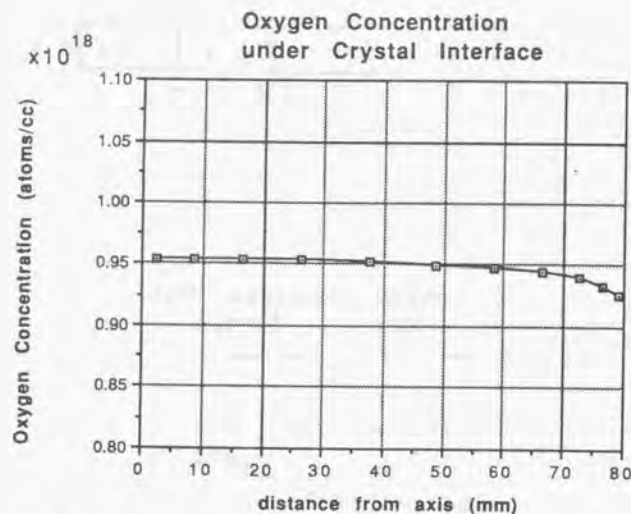
[付4-6] W.E.Langlois, K.M.Kim and J.S.Walker, J.Crystal Growth 126 (1993) 352.



図付4.5 石英ルツボ底部内面からの酸素流束(溶解速度)の分布



図付4.6 自由表面からの酸素流束(蒸発速度)の分布



図付4.7 結晶界面下の酸素濃度分布

#### 謝辞

本論文は、東京大学工学系研究科教授 庄司正弘先生の長年に渡る御指導と御鞭撻によってまとめることが出来たものであり、本研究を激励して下さいましたことに深甚の謝意を表します。

また有益なる御助言と御教示を頂いた東京大学生産技術研究所 小林敏夫教授、西尾茂文教授、東京大学工学系研究科 松本洋一郎教授、飛原英治助教授に厚く御礼申し上げます。

本研究は主に小生が三菱マテリアル株式会社総合研究所に在籍していた期間の研究活動の中での成果であり、この間上司として直接御指導頂いた、財団法人高輝度光科学研究センター（元三菱マテリアル株式会社総合研究所室長）佐平健彰氏、三菱マテリアルシリコン株式会社技術本部開発センター大宮分室室長 喜田道夫氏、三菱マテリアルシリコン株式会社技術本部プロセス技術部長 降屋久博士には深く感謝の意を表します。

また長年に渡り本研究活動を共にした、三菱マテリアル株式会社地球環境事業本部 新井義明氏、スーパーシリコン研究所（元三菱マテリアルシリコン株式会社）町田倫久氏、三菱マテリアルシリコン株式会社 安部啓成氏、齊藤丈夫氏、三菱マテリアル株式会社総合研究所 中田裕二氏には心より御礼申し上げます。

また本論文の作成にあたり多大なる御支援と御高配を賜りました、三菱マテリアル株式会社総合研究所 所長 武下拓夫博士、総合研究所副所長 木下千蔵氏、三菱マテリアル株式会社企画開発部部長 大村泰三博士、元三菱マテリアル株式会社技師長 中田秀文博士、三菱伸銅株式会社取締役（元三菱マテリアル株式会社総合研究所材料技術研究所副所長）前義治博士、三菱マテリアル株式会社総合研究所材料技術研究所所長 木村敏郎氏、総合研究所材料技術研究所室長 山内徹氏に深く感謝を申し上げます。

さらに本研究に関し多大なる御支援を頂いた、三菱マテリアルシリコン株式会社技術本部副本部長 渡藤一佳氏、技術本部開発センター長 島貫康博士、技術本部プロセス技術部次長 新行内隆之氏には深く感謝致します。

さらに米国マサチューセッツ工科大学にて小生を客員研究員として受け入れて下さり本研究に関し貴重な御助言と御指導を賜りました、Department of Materials Science and Engineering 故Julian Szekely教授、極め細やかな御指導をして下さったGerardo Trapaga博士に心より感謝致します。また留学中に様々な形で御協力頂いた、Szekely研究室のDavid Woolley氏、Adam Powell博士、Robert Hyers氏、Elliot Schwanz博士に厚く御礼申し上げます。

また小生が庄司教授の研究室を訪問する度に懇意にして頂き激励して下さいました、東京大学工学系研究科 丸山助教授をはじめ庄司・丸山研究室の皆様には感謝致します。

未筆ながら、本研究に関して様々な御支援を頂きました三菱マテリアルシリコン株式会社技術本部開発センター大宮分室結晶チームの皆様、三菱マテリアル株式会社総合研究所材料技術研究所喜田チームの皆様、総合研究所CAB室関係者の皆様には深く感謝致します。

本論文に関する著者の発表論文

1. "Thermal Analysis of the Double-Crucible Method in Continuous Silicon Czochralski Processing  
I: Experimental Analysis"  
N.Ono, M.Kida, Y.Arai, and K.Sahira  
Journal of the Electrochemical Society Vol.140, No.7, July 1993, pp2101
2. "Thermal Analysis of the Double-Crucible Method in Continuous Silicon Czochralski Processing  
II: Numerical Analysis"  
N.Ono, M.Kida, Y.Arai, and K.Sahira  
Journal of the Electrochemical Society Vol.140, No.7, July 1993, pp2106
3. "A Numerical Study of the Influence of Feeding Polycrystalline Silicon Granules on Melt Temperature in the Continuous Czochralski Process"  
N.Ono, M.Kida, Y.Arai and K.Sahira  
Journal of Crystal Growth 132 (1993) 297
4. "A New Method of Controlling the Dopant Concentration in the Double-Crucible Method"  
N.Ono, M.Kida, Y.Arai, K.Abe and K.Sahira  
Journal of Crystal Growth 135 (1993) 359
5. "A Numerical Study on Oxygen Transport in the Silicon Melt in a Double Crucible Method"  
N.Ono, M.Kida, Y.Arai, K.Sahira  
Journal of Crystal Growth 137 (1994) 427
6. "A Numerical Study of the Effect of Electromagnetic Stirring on the Distributions of Temperature and Oxygen Concentration in Silicon Double-Crucible Czochralski Processing"  
N.Ono, G.Trapaga  
Journal of the Electrochemical Society Vol.144, No.2, February 1997, pp764



