

## チヨクラルスキー結晶成長法における融液対流に関する研究

岩本, 光生

<https://doi.org/10.11501/3100015>

---

出版情報 : 九州大学, 1994, 博士 (工学), 論文博士  
バージョン :  
権利関係 :

### 第3章

## LEC 法対流の可視化および数値解析

### 3.1 序 論

現在スーパーコンピュータ用論理回路などに用いる高速演算素子としてガリウムヒ素半導体が使用されるようになってきている。これはGaAsの電子移動度がシリコンに比べ数倍速く、かつ低消費電力であり高速演算素子に適しているためである。また他の用途として光デバイス、低雑音高周波特性を生かした衛星放送用送受信デバイス、携帯電話用FET素子など需要が近年急激に拡大してきている[9]。

GaAsやGaPなどの化合物半導体の単結晶の作成では、シリコンなどの元素系半導体と異なり、これらの半導体の融点以上の温度では、III属元素のガリウムなどとV属元素のヒ素などの蒸気圧が著しく異なるため、必要となる組成の溶融物を作る事は困難である。このため化合物半導体用単結晶基板を作成する方法として、封液付チヨクラルスキー法(LEC法: Liquid encapsulated Czochralski method)がある。これはルツボ内原料融液からのV属元素の蒸発を抑えるため、融液表面に比重が軽くかつ材料と反応しない封液で覆った構造とするとともに、融液中の原料が蒸発しないように、ルツボを収納している容器内を融液の解離圧よりも高圧にしている。封液材料としては $B_2O_3$ 、 $BaCl_2$ 、 $CaCl_2$ 、 $KCl$ 等があり、GaAsやGaPの場合には $B_2O_3$ 融液が多く用いられている[10]。

LEC法による単結晶棒の育成では、結晶品位に影響を及ぼす因子として、第6章で後述する原料融液内の流れや温度分布ばかりでなく、封止液内の流れやその温度分布も関与すると考えられる。従って封液および融液内の流動形態や温度分布を知ることは、結晶品位を向上させる上で重要となる。しかしLEC法結晶成長炉内は高温かつ高圧であり、また融液の反応性も高いためプローブを入れての測定が困難であり、ほとんど行われておらず、このため数値解析による考察が重要と考えられる。本章ではLEC法ルツボ内の流れ場および温度場について検討するため、まずモデル流体による感温液晶を用いた可視化実験と数値解析結果との比較を行い、解析手法の妥当性を検討した。次いで実際のGaAsにおける各結晶回転数での流れ場、温度場を求めると共に、このとき融液内に発生する振動流の発生領域について示した。次にその振動流を制御するため、ルツボを回転させたときのルツボ内の流れ場と温度場の変化についても併せて検討を行った。



## 3.2 既往の研究

LEC法では炉内部は高温高压であり、またGaAsの反応性が高く融液温度測定などが困難である等のため実験的研究は少ない。実験によるGaAs-LEC法についての報告としては、Wargo [11]は融液表面温度を光学的に測定し、その表面温度分布の報告を行った。またKakimotoら [12]はGaAs結晶成長中の $B_2O_3$ 封液内に浮遊させたタングステン粒子をX線で観察し、また併せて数値解析を行い、封液内の流れが軸対称の定常流となることを報告しているが、融液内はGaAs融液がX線に対して不透明であるため示されていない。

LEC法についての数値解析による研究は幾つか行われており、Salcudeanら [13]はGaAs-LEC法において、自然対流のみの場合、強制対流と自然対流の共存する混合対流の場合について解析を行い、混合対流場の幾つかの領域での融液内振動流の発生を報告している。またFontaineは $Pr_m = 0.015, Pr_e = 10$ における封液および融液中における解析 [14] や $Pr_m = 0.015, Pr_e = 10 \sim 3270$ での解析 [15] を行い、融液及び封液内の流れ場と温度場の周期的な変動を報告している。またCrowley [16]はLEC法における結晶成長中の温度分布を形態係数の変化を考慮し解析した。

GaAs-LEC法で融液に磁場を印加した場合の効果についてSabhapathyら [17]は、直径0.15mのルツボで直径0.075mの結晶を成長させる場合に、鉛直方向に磁場を印加した場合の解析を行った。またLEC法での磁場印加の実験的研究として磁場の印加が成長した単結晶中の不純物を低減させることを報告したもの [18] などがある。

また他の研究としてMotakef [19]はGaAs結晶中の転位密度の計算と実験を報告している。以上述べたようにLEC法においてルツボ内の融液と封液の双方について流れ場と温度分布の解析を実験と比較して報告したものは見られない。

ルツボ内の流れ場・温度場を観察する方法として代替流体による低温モデル実験が幾つか行われている。Cz法での低温モデルの可視化実験の最初の研究としては、Carruthersら [20]によるグリセリンと水との混合液(1:1)をルツボ内融液として用い、アニリン染料で可視化を行ったものがあり、この結果流動パターンには8種類のモードがあることを報告している。またMunakataら [21]はCz法対流をシリコンオイルを用い、感温液晶でルツボ内の温度場を示すと共に、周期的振動流が生じることを報告し、また数値計算結果との比較を行っている。またOzoeら [22, 23]はCz法低



温モデルにおいて融液内振動流を感温液晶により可視化し、結晶回転数を変化させたときの振動流の周期の変化を報告している。またHirataら[24]はCz法低温モデル実験での結晶棒とモデル流体にn-icosane( $C_{20}H_{42}$ )を用い、結晶回転数を変化させた場合の結晶棒の固液界面形状の変化を報告した。このようにCz法においては低温モデルによる報告は幾つか行われているが、LEC法での報告は知らない。

本研究ではまず数値解析結果と低温モデルによる可視化実験との比較を行い、解析コードの検証を行った。次いで実際のGaAs- $B_2O_3$ の系において最も問題となる結晶成長中の振動流の発生条件について、これまでの個別の表示ではなく、振動流が発生する領域についての指針を示した。次いでこの振動流の制御方法として、ルツボ回転が振動流の周期等に与える影響を示した。

### 3.3 LEC法の数値解析

#### 3.3.1 基礎方程式

解析に用いたモデルをFig.3-1に示す。半径 $L_{cru}$ のルツボ中に高さ $H_m$ の位置まで原料融液が入れられており、その上面に高さ $H_e$ の封液が浮かんでいる。ルツボ中央には半径 $L_{rod}$ の結晶棒があり、結晶棒先端面は融液と封液の界面にあるものとした。また解析では流体は非圧縮性のニュートン流体とし、ブジネスク近似が成り立つものとし、周方向に温度および速度勾配が存在しないとした擬3次元を用いた。このときの無次元化した基礎式を次に示す。式の導出の詳細は付録Aを参照されたい。

連続の式

$$\frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R}(RU) + \frac{\partial W}{\partial Z} = 0 \quad (3-1)$$

運動量方程式(融液)

$$\frac{\partial U}{\partial \tau} + U \frac{\partial U}{\partial R} - \frac{V^2}{R} + W \frac{\partial U}{\partial Z} = -\frac{\partial P}{\partial R} + Pr_m \left[ \frac{\partial}{\partial R} \left( \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R}(RU) \right) + \frac{\partial^2 U}{\partial Z^2} \right] \quad (3-2)$$

$$\frac{\partial V}{\partial \tau} + U \frac{\partial V}{\partial R} + \frac{UV}{R} + W \frac{\partial V}{\partial Z} = Pr_m \left[ \frac{\partial}{\partial R} \left( \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R}(RV) \right) + \frac{\partial^2 V}{\partial Z^2} \right] \quad (3-3)$$

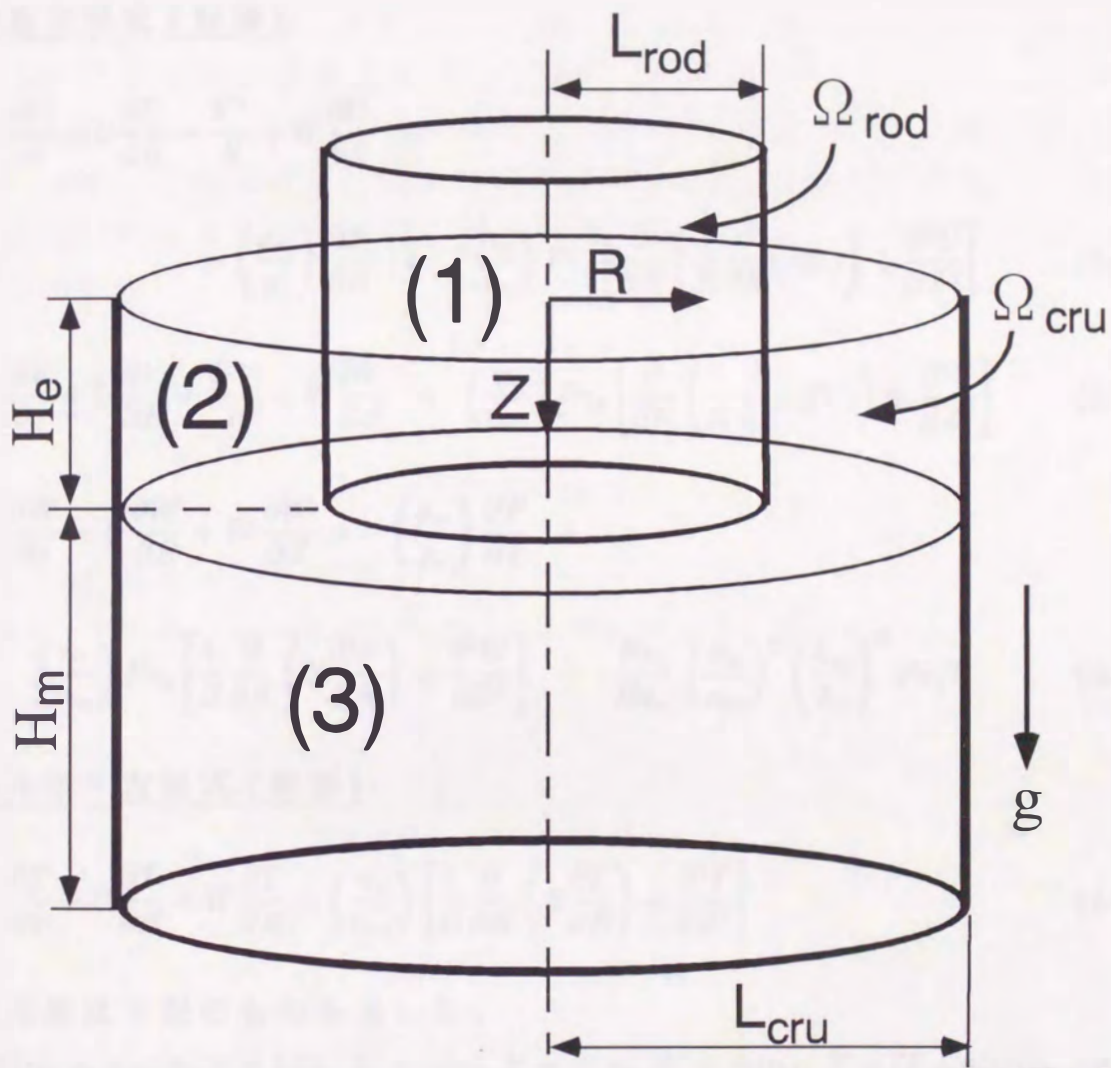


Fig. 3-1: Model system for liquid-encapsulated Czochralski crystallization system.

(1) a crystal rod    (2) encapsulated fluid    (3) melt



$$\frac{\partial W}{\partial \tau} + U \frac{\partial W}{\partial R} + W \frac{\partial W}{\partial Z} = -\frac{\partial P}{\partial Z} - Pr_m T + Pr_m \left[ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial W}{\partial R} \right) + \frac{\partial^2 W}{\partial Z^2} \right] \quad (3-4)$$

エネルギー - 方程式 (融液)

$$\frac{\partial T}{\partial \tau} + U \frac{\partial T}{\partial R} + W \frac{\partial T}{\partial Z} = \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial T}{\partial R} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} \quad (3-5)$$

運動量方程式 (封液)

$$\begin{aligned} \frac{\partial U}{\partial \tau} + U \frac{\partial U}{\partial R} - \frac{V^2}{R} + W \frac{\partial U}{\partial Z} = \\ - \left( \frac{\rho_m}{\rho_e} \right) \frac{\partial P}{\partial R} + \left( \frac{\alpha_e}{\alpha_m} \right) Pr_e \left[ \frac{\partial}{\partial R} \left( \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (RU) \right) + \frac{\partial^2 U}{\partial Z^2} \right] \end{aligned} \quad (3-6)$$

$$\frac{\partial V}{\partial \tau} + U \frac{\partial V}{\partial R} + \frac{UV}{R} + W \frac{\partial V}{\partial Z} = \left( \frac{\alpha_e}{\alpha_m} \right) Pr_e \left[ \frac{\partial}{\partial R} \left( \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (RV) \right) + \frac{\partial^2 V}{\partial Z^2} \right] \quad (3-7)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial W}{\partial \tau} + U \frac{\partial W}{\partial R} + W \frac{\partial W}{\partial Z} = - \left( \frac{\rho_m}{\rho_e} \right) \frac{\partial P}{\partial Z} + \\ \left( \frac{\alpha_e}{\alpha_m} \right) Pr_e \left[ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial W}{\partial R} \right) + \frac{\partial^2 W}{\partial Z^2} \right] - \frac{Ra_e}{Ra_m} \left( \frac{\alpha_e}{\alpha_m} \right)^2 \left( \frac{h_m}{h_e} \right)^3 Pr_e T \end{aligned} \quad (3-8)$$

エネルギー - 方程式 (封液)

$$\frac{\partial T}{\partial \tau} + U \frac{\partial T}{\partial R} + W \frac{\partial T}{\partial Z} = \left( \frac{\alpha_e}{\alpha_m} \right) \left[ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial T}{\partial R} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} \right] \quad (3-9)$$

無次元数は下記のものを用いた。

$$R = r/r_0, Z = z/r_0, \tau = t/t_0, U = u/u_0, V = v/u_0, W = w/u_0, T = (\theta - \theta_0)/(\theta_h - \theta_c), \\ P = p/p_0, \Omega = \omega/\omega_0$$

また基準量を下記のように定めた。

$$r_0 = [g\beta_m(\theta_h - \theta_c)/\alpha_m\nu_m]^{-1/3}, u_0 = \alpha_m/r_0, p_0 = \rho_m u_0^2, t_0 = r_0^2/\alpha_m, \theta_0 = (\theta_h + \theta_c)/2, \\ \omega_0 = \alpha_m/r_0^2$$

融液 (Subscript m) と封液 (Subscript e) の無次元数は以下で定義する。

$$Pr_m = \nu_m/\alpha_m, Ra_m = [g\beta_m(\theta_h - \theta_c)h_m^3]/(\alpha_m\nu_m), Re_m = (l_s^2\omega)/\nu_m$$

$$Pr_e = \nu_e / \alpha_e, Ra_e = [g\beta_e(\theta_h - \theta_c)h_c^3] / (\alpha_e\nu_e), Re_e = (l_s^2\omega) / \nu_e$$

### 3.3.2 境界条件および解法

Fig.3-2に境界条件を示す。結晶棒およびルツボ壁は剛体壁であり、半径方向速度成分Uと軸方向速度成分Wは壁上では流れが無く、また中心軸上を横切る流れは無いものとした。封液と融液の界面は半径方向および周方向ですべりが無く、境界を貫く軸方向速度は無いものとし、封液上面の気液界面は自由表面とした。

温度境界条件としては結晶棒は一定温度の冷却面、ルツボ側面および底面は等温加熱面で、封液と融液の界面での温度は同じとした。また封液上面の気液界面は計算の簡易化のため断熱とした。境界条件を次にまとめて示す。

#### 1. 結晶棒の底面および側面

$$(0 \leq Z \leq H_e, R = L_{rod} \text{ and } Z = H_e, 0 \leq R \leq L_{rod})$$

$$U = W = 0, V = R\Omega_{rod}, T = -0.5$$

#### 2. ルツボ側面および底面

$$(0 \leq Z \leq H_e + H_m, R = L_{cru} \text{ and } Z = H_e + H_m, 0 \leq R \leq L_{cru})$$

$$U = W = 0, V = R\Omega_{cru}, T = 0.5$$

#### 3. 中心軸 ( $0 \leq Z \leq H_e + H_m, R = 0$ )

$$U = V = 0, \frac{\partial W}{\partial R} = 0, \frac{\partial T}{\partial R} = 0$$

#### 4. 封液 - 融液境界面 ( $L_{rod} \leq R \leq L_{cru}, Z = Z_e$ )

$$U_e = U_m, V_e = V_m, W_e = W_m = 0, T_e = T_m$$

#### 5. 封液上面気液界面 ( $L_{rod} \leq R \leq L_{cru}, Z = 0$ )

$$\frac{\partial U}{\partial Z} = \frac{\partial V}{\partial Z} = W = 0, \frac{\partial T}{\partial Z} = 0$$

解析は等間隔のスタッガード格子を用いた。格子点数は融液で20（半径方向）×38（軸方向）、封液で10×14とした。計算方法としては速度場および温度場共2次精度の中心差分の陽解法で計算を行った。このとき圧力項の解法は各格子毎に連続の式を満たすように速度と圧力を反復法により修正を行うHS-MAC法[25, 26, 27]によった。また計算時の時間刻み



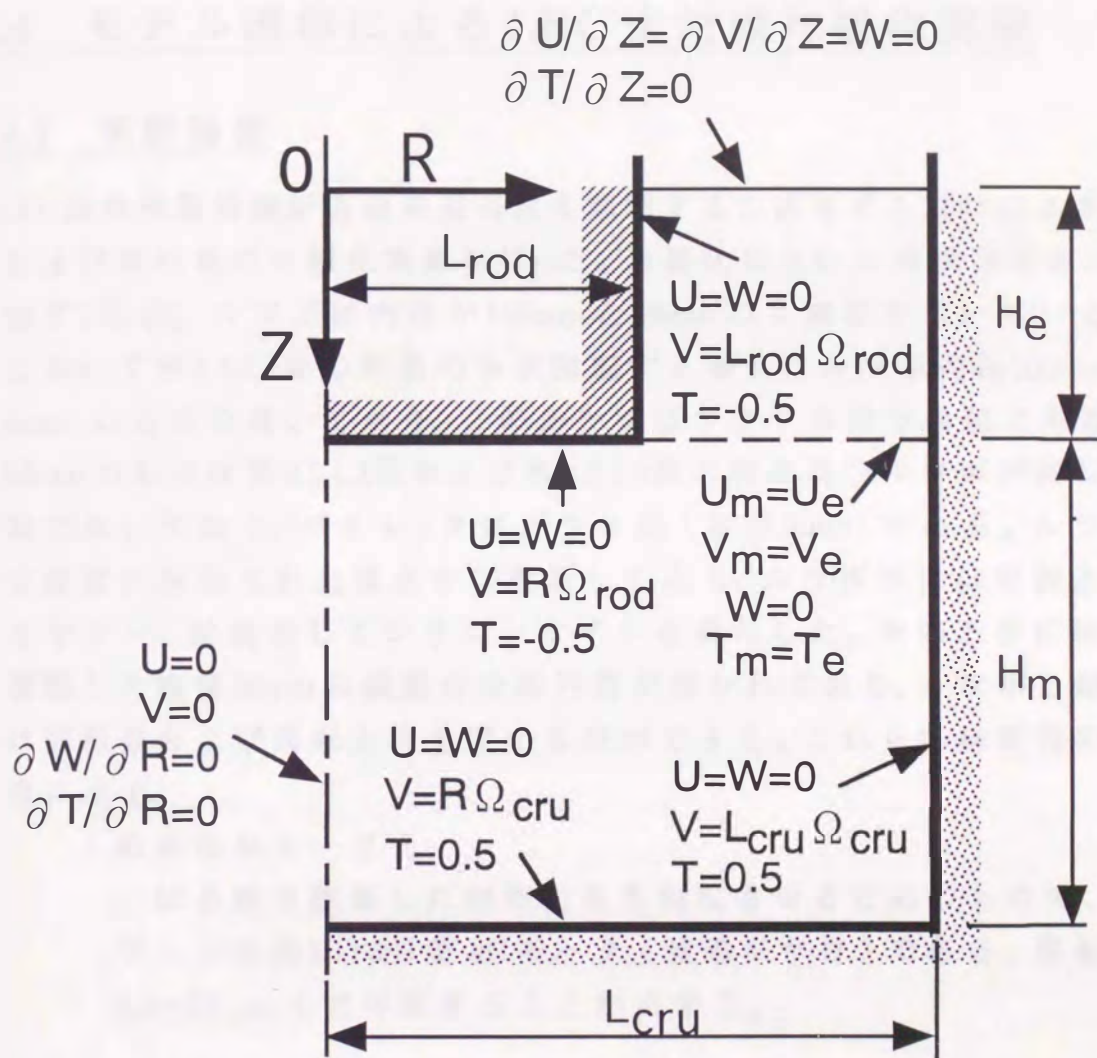


Fig. 3-2: Boundary conditions of the system for the right-hand side of a vertical cross-section.

はモデル流体の解析では $\Delta\tau = 7 \times 10^{-6} \sim 5 \times 10^{-5}$ 、GaAsにおける解析では $\Delta\tau = 2 \times 10^{-4}$ とした。

## 3.4 モデル流体によるLEC法対流可視化実験

### 3.4.1 実験装置

LEC法対流数値解析方法の妥当性を確認するためモデル流体による温度場および流れ場の可視化実験を行った。可視化に用いた実験装置をFig.3-3に示す[22, 28]。ルツボは内径が100mmと90mmの2種類を用いている。実験において第3.5.1.1節の結晶のみが回転する場合はルツボ内径100mm(板厚5mm)のものを用いており、このルツボはアクリルガラス製である。内径90mmのものは第3.5.1.2節および第3.5.1.3節の結晶及びルツボが回転する実験で用いており、パイレックスガラス製(板厚2mm)である。ルツボは一定温度に保持された温水中に設置してあり、ルツボ中には融液としてグリセリン、封液としてシリコンオイルを満たした。その上面に結晶棒を模擬した直径50mmの銅製の冷却円筒が置かれており、ルツボと銅製円筒は回転数および回転方向を変える事ができる。これら各構成部の詳細を次に示す。

#### 1. 結晶回転モーター

結晶棒を模擬した銅製円筒を回転させるためのもので、日本サーボ社製IHT6S3型ACモータ(減速ギヤ付)である。回転数は1.5~28rpmまで可変することが出来る。

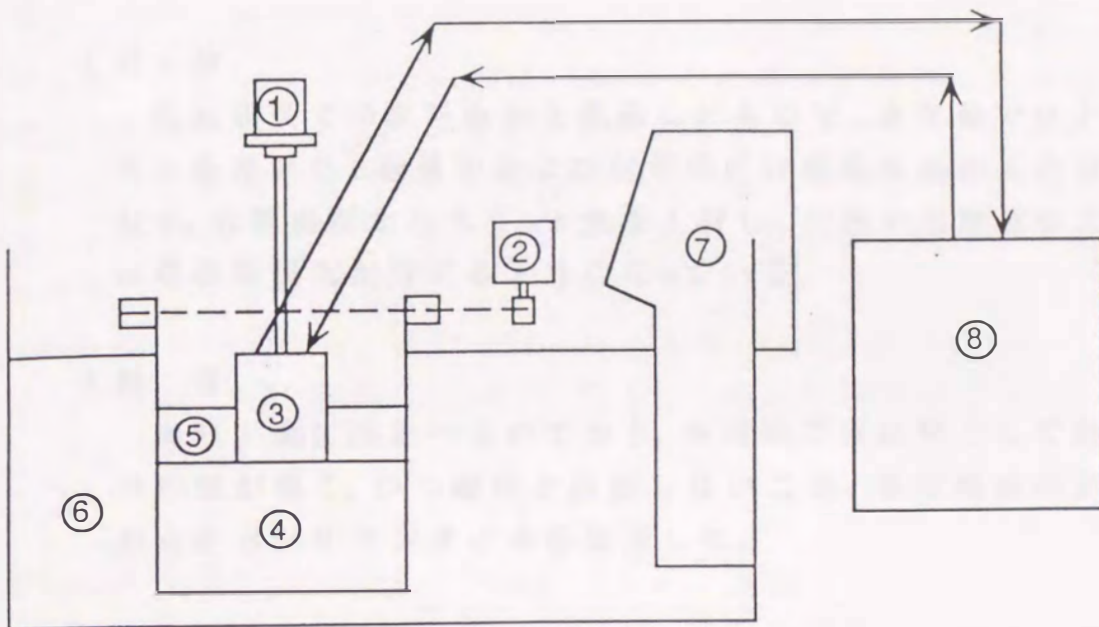
#### 2. ルツボ回転モーター

ルツボを回転させるためのモーターで、オリエンタルモーター製のインダクションモーター3IK15RGN-A型(減速ギヤ3GN30K型付)で双方向の回転が可能である。回転数は0, 1~50rpmで、シリコンゴム製のベルトでルツボに動力を伝える構造となっており、ルツボは0~17.4rpmまで回転可能である。

#### 3. 模擬結晶棒

LEC法やCz法における成長結晶棒に相当する部分で、外径50mm、板厚3mmの銅製の下面が閉じた円筒容器であり、(1)の





1. A motor with a gear for a model of crystal rod.
2. A motor with a gear for a model of crucible.
3. A rotating copper cylinder as a model for a crystal rod with 50 mm O.D.
4. A pyrex-glass cylinder with 90 mm I.D.  
and filled with glycerol as a model for the melt.
5. Encapsulated silicon oil at 500 centi Stokes at 25 °C.
6. A rectangular Plexi-glas enclosure to keep the hot water and also  
to compensate the cylindrical curvature for visualization.
7. A constant temperature controller at a high temperature.
8. A constant temperature regulator with a pump to keep  
at a cold temperature.

Fig. 3-3: Schematics of the experimental set-up.

モーターで回転できるようになっている。内部には銅製のスパイラル管が設けてあり、管内部には冷却水を流し冷却するようになっている。模擬結晶棒外周には反射防止艶消し塗装を施した。

#### 4. 融 液

結晶成長での原料融液を模擬したもので、本実験ではグリセリンを用いた。融液中および封液中には感温液晶が入れられており、容器側面からスリット光を入射し、内部の温度場および流れ場の可視化が行えるようになっている。

#### 5. 封 液

融液上面に浮かべられており、本実験では材料として融液より比重が軽く、かつ融液と反応しないこと、また液晶の発色性の点からシリコンオイルを使用した。

#### 6. 高温側恒温槽

ルツボを加熱するための恒温槽であり内寸300mm×300mm、高さ150mmの矩形容器であり、板厚10mmの透明アクリルガラスで出来ている。内部には反射防止用に黒色のラバーがスリット光の入射部と観察部を除き貼られている。内部にはルツボの加熱と光の屈折を矯正するために水が入れられている。

#### 7. 高温側温度調節器

高温側恒温槽(6)の温度を調節する為のもので、TAIYO C630型(大洋科学工業株式会社製、温度調節精度 $\pm 0.07\text{K}$ 、最大出力1kW)を用いた。この調節器は攪拌用ポンプを内蔵しており、サーミスタ時間比例制御方式で温度制御を行う。

#### 8. 低温側温度調節器

模擬結晶棒(3)を冷却するためのもので、結晶棒内のスパイラルパイプに冷却水を供給する。この装置は冷却装置としてイワキガラス社製のクーリングユニットCLU-27型(冷凍機出力600W)を用い、加熱装置として高温側温度調節器(7)と同じ大洋科学工業株式会社製のTAIYO C630型を組み合わせた構造となっている。



ルツボ内部の観察は、流体中の感温液晶が観察方向により発色が変化するため、光の入射方向に垂直な方向から観察を行った。光源としては1000Wハロゲンランプ装備のスライドプロジェクター (Master HI-LUX-HR1000) を2台使い、これを左右両側に置き、スリット光の光軸がルツボ中央で一致するように調節した。このときの観察方法をFig.3-4に示す。図中の(a)は軸方向断面を観察するときの模式図で、縦に細いスリット光が軸中心で重なるようにし、正面でカメラ撮影している。この装置はまた(b)のように水平断面の撮影も可能となっている。

撮影にはNikon-F3カメラを用い、レンズはMicro Nicole F2.8, 55mm、フィルムはフジカラー-SUPER-HG ASA400を用いた。撮影条件は絞りf5.6でシャッター開放時間は4秒とした。

### 3.4.2 感温液晶

LEC法における温度場の可視化は、融液および封液中に感温液晶を入れることにより行っており、液晶は日本カプセルプロダクツ社製「感温液晶マイクロカプセルスラリー-KWWN2030」を用いた。この液晶の各温度における発色特性をFig.3-5に示す。この発色特性は観察方向に対し垂直方向からスリット光を入射し観察を行ったもので、発色範囲は18~22℃で、18℃以下では無色で、それから温度が上がる毎に赤、黄色、緑、青、紫と変化し、これより流体内部の温度分布を測定することが可能となる。これを融液および封液中に約0.005wt%分散させて使用した。

### 3.4.3 モデル流体

モデル実験における実験流体としては、融液にグリセリン[29] (石津製薬製1級、純度95%以上: Table 3-1参照)、封液に東芝シリコン(株)製のシリコンオイルTSF-451-500[30](5Stokes, 25℃)を用いた。これらの材料の物性をTable 3-2に示す。これらの材料の物性を見ると、Table 3-3に示したGaAs-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>材料と比べ粘度が大きく異なっている。例えばGaAs-LECでのGaAs融液とB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>封液の粘性係数の比は

$$\frac{\mu_{B_2O_3}}{\mu_{GaAs}} = \frac{3.35(Pa \cdot s)}{2.79 \times 10^{-3}(Pa \cdot s)} = 1201 \quad (3-10)$$

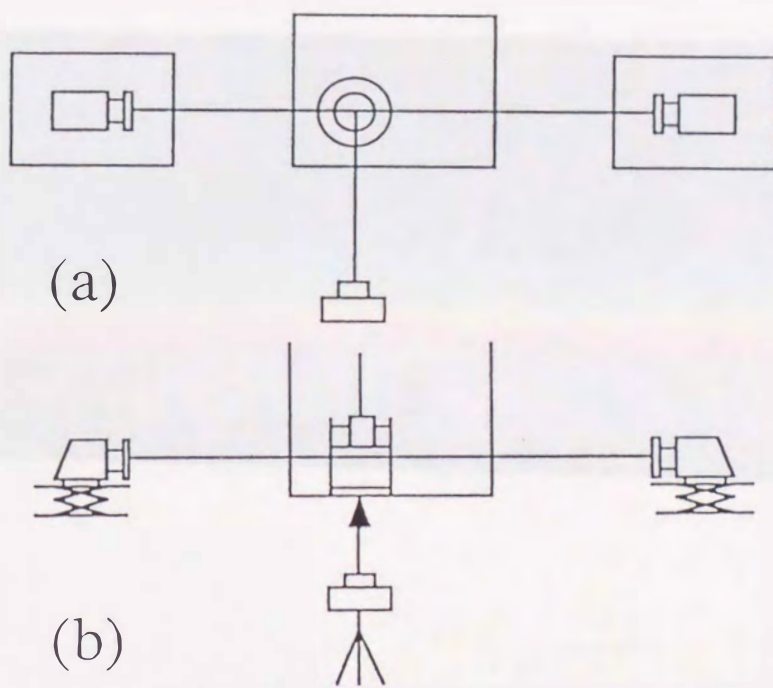


Fig. 3-4: Schematics to take (a) a vertical side view picture and (b) a bottom view picture.



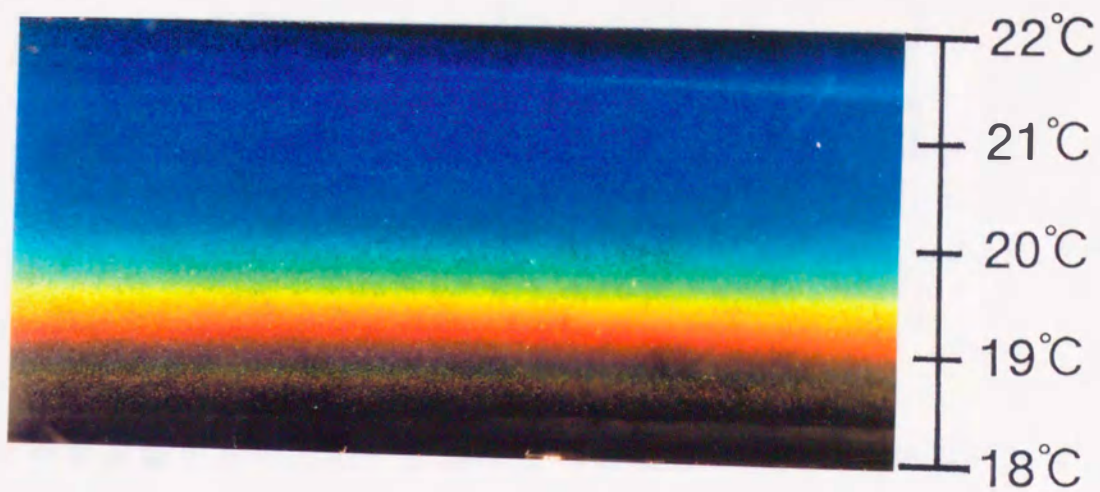


Fig. 3-5: Colour/temperature relationship for thermochromatic liquid crystal microcapsule KWWN2030 (Japan Capsule Products).

Table 3-1: Composition of glycerol employed. [7]

Component	Weight %
Glycerol	above 95.0
Glycerol butyrate	0.2
Sulfate	below 0.015
Cl	below 0.001
SO <sub>4</sub>	below 0.002
Heavy metal (as Pb)	below 0.0004
Fe	below 0.0003
As	below 0.0002

であり、一方本実験で用いたモデル流体での融液と封液の粘性係数の比は

$$\frac{\mu_{\text{Silicon oil}}}{\mu_{\text{Glycerol}}} = \frac{0.4855(\text{Pa} \cdot \text{s})}{1.4915(\text{Pa} \cdot \text{s})} = 0.3255 \quad (3-11)$$

と融液の方が封液より粘度は高くなっているが、定性的な流れの形態は似ていることを期待して実験を行った。

またモデル流体にグリセリン-シリコンオイルを選んだ理由としては、感温液晶を混入したときの発色特性が優れていること、物性が明かであること、人体に無害でかつ比較的安価であることなどのためである。

## 3.5 結果および検討

### 3.5.1 モデル流体の可視化実験および数値解析

モデル流体の実験を下記の場合について行うと共に、数値解析結果と比較した。

1. 結晶棒のみが回転し、ルツボが静止している場合。
2. ルツボ内融液温度振動の測定



Table 3-2: Physical properties of experimental fluid

notation	physical properties		glycerol [29]	silicon oil [30]
			[at 293.2K]	[at 298.2K]
$\rho$	density	$kg/m^3$	1264	971
$\mu$	viscosity	$Pa \cdot s$	1.4915	0.4855
$\nu$	kinematic viscosity	$m^2/s$	$1.18 \times 10^{-3}$	$5 \times 10^{-4}$
$k$	thermal conductivity	$W/(m \cdot K)$	0.286	0.16
$C_p$	specific heat	$J/(kg \cdot K)$	$2.39 \times 10^3$	$1.51 \times 10^3$
$\beta$	volumetric coefficient of expansion	$1/K$	$0.504 \times 10^{-3}$	$0.95 \times 10^{-3}$
$\alpha$	thermal diffusivity	$m^2/s$	$0.947 \times 10^{-7}$	$1.091 \times 10^{-7}$
Pr	Prandtl number	$[-]$	$1.246 \times 10^4$	4583

Table 3-3: Physical properties of  $GaAs - B_2O_3$  system [31]

physical properties		GaAs	$B_2O_3$
Freezing temperature	K	1511	-
Density	$kg/m^3$	5710	1500
Viscosity	$Pa \cdot s$	$2.79 \times 10^{-3}$	$10^{-1.862+3650/T}$ $=3.545(1513.5K)$
Kinematic viscosity	$m^2/s$	$4.89 \times 10^{-7}$	$2.36 \times 10^{-3}$
Thermal conductivity	$W/(m \cdot K)$	17.8	1.85
Specific heat	$J/(kg \cdot K)$	434	1830
Volumetric coefficient of expansion	$1/K$	$1.87 \times 10^{-4}$	$5.0 \times 10^{-5}$
Thermal diffusivity	$m^2/s$	$7.18 \times 10^{-6}$	$6.74 \times 10^{-7}$
Prandtl number	$[-]$	0.068	$3.51 \times 10^3$

### 3. ルツボ回転による振動流の抑制効果

これらの各項目についての検討結果を以下に述べる。

#### 3.5.1.1 結晶棒のみが回転する場合

結晶棒のみが回転し、ルツボが静止している場合での可視化実験は下記の項目について検討を行った。

##### (1) 結晶が回転しない自然対流のみの場合

Case (A-1)

##### (2) 結晶の回転による強制対流と自然対流が共存する混合対流状態

Case (A-2)

##### (3) 結晶の回転による強制対流が優勢な場合

Case (A-3)

実験は直径0.1mのルツボを用い、融液(グリセリン)高さは0.07m、封液(シリコンオイル)高さは0.03mに設定した。このときの各場合における結晶回転数、加熱・冷却面温度、融液および封液の各無次元物性をTable 3-4に示す。

まずCase(A-1)の結晶棒およびルツボ共回転せず、自然対流のみの場合の実験結果と解析結果をFig.3-6に示す。ここで図の左側がモデル流体での感温液晶によるルツボ中央縦断面での可視化写真で、右側は数値解析結果である。写真上部黒色部が模擬結晶棒であり、その両側が封液、下部が融液部である。右側の解析結果は加熱-冷却面間温度を20分割して加熱面温度を0.5、冷却面温度を-0.5としたときの無次元温度を0.05毎に示している。ルツボ内の流れは結晶棒により冷却された流体がルツボ中央で下降し底面で周方向に移動し、壁面で上昇する流れとなっている。また封液内では結晶棒側面において冷却された流体が封液と融液の界面に下降し、これにより融液上面の冷却効果が増加している。

このときの解析における各方向速度成分の二乗平均値 $U, V, W$ と算術平均温度 $T$ の過渡応答をFig.3-7に示す。ここで添字 $m$ は融液、添字 $e$ は封液における結果を示しており、またこの速度・温度共二次元平面内の平均値である。初期値としては無次元時間0で速度0、温度0としている。図をみると平均速度、平均温度共一定値に収束し、定常流となっている。

またこのときの過渡応答の収束結果を等温線図と速度ベクトル線図でFig.3-8に示す。図はルツボ内縦断面の右半分を示しており、上部の小さな四角形が封液部分、下部が融液部分である。速度ベクトルを見るとルツ



Table 3-4: Experimental conditions for Case A. The model fluids were glycerol for melt (subscript m) and silicon oil for encapsulated fluid (subscript e)

Run		A-1	A-2	A-3
Rotating rate of Rod	[rpm]	0	10	27.3
Rotating rate of crucible	[rpm]	0	0	0
Diameter of crucible	[mm]	100	100	100
Temp. of rod	[°C]	9.2	9.2	9.5
Temp. of crucible	[°C]	20.8	20.7	21.7
$Pr_e$	[-]	4583	4583	4583
$Gr_e$	[-]	11.7	11.6	12.3
$(Re_e)_{rod}$	[-]	0	1.31	3.57
$(Gr_e/Re_e^2)_{rod}$	[-]	$\infty$	6.75	0.965
$Pr_m$	[-]	12460	12460	12460
$Gr_m$	[-]	14.1	14.0	14.8
$(Re_m)_{rod}$	[-]	0	0.555	1.51
$(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$	[-]	$\infty$	45.4	6.49

Table 3-5: Experimental and computational results for Case A

Run		A-1	A-2	A-3
Oscillation period (Exp.)	[min]	0	10	7
Oscillation period (Cal.)	[min]	0	13.7	4.9
Amplitude of ave. temp. oscillation in the melt (Exp.)	[K]	0	—	—
Amplitude of ave. temp. oscillation in the melt (Cal.)	[K]	0	0.260	0.128

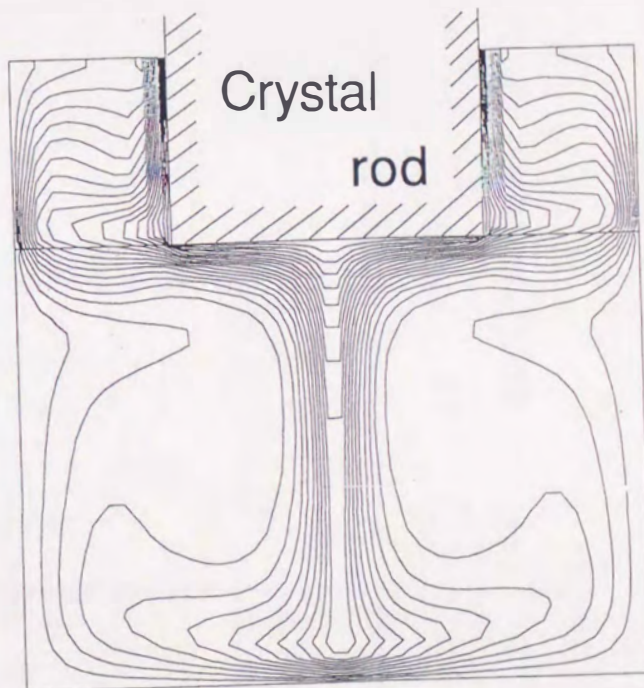
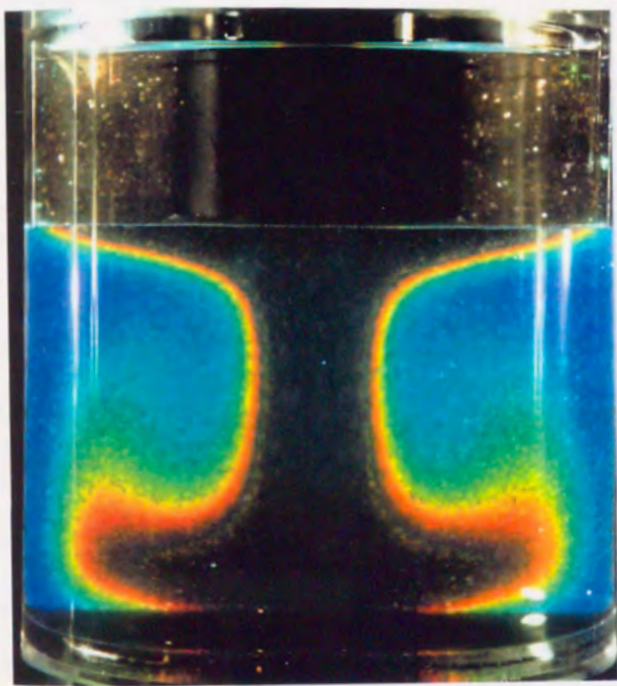


Fig. 3-6: Computed and visualized isotherms Case(A-1) without rotation of a top crystal rod and a crucible. See Table 3-4 for other condition.

Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



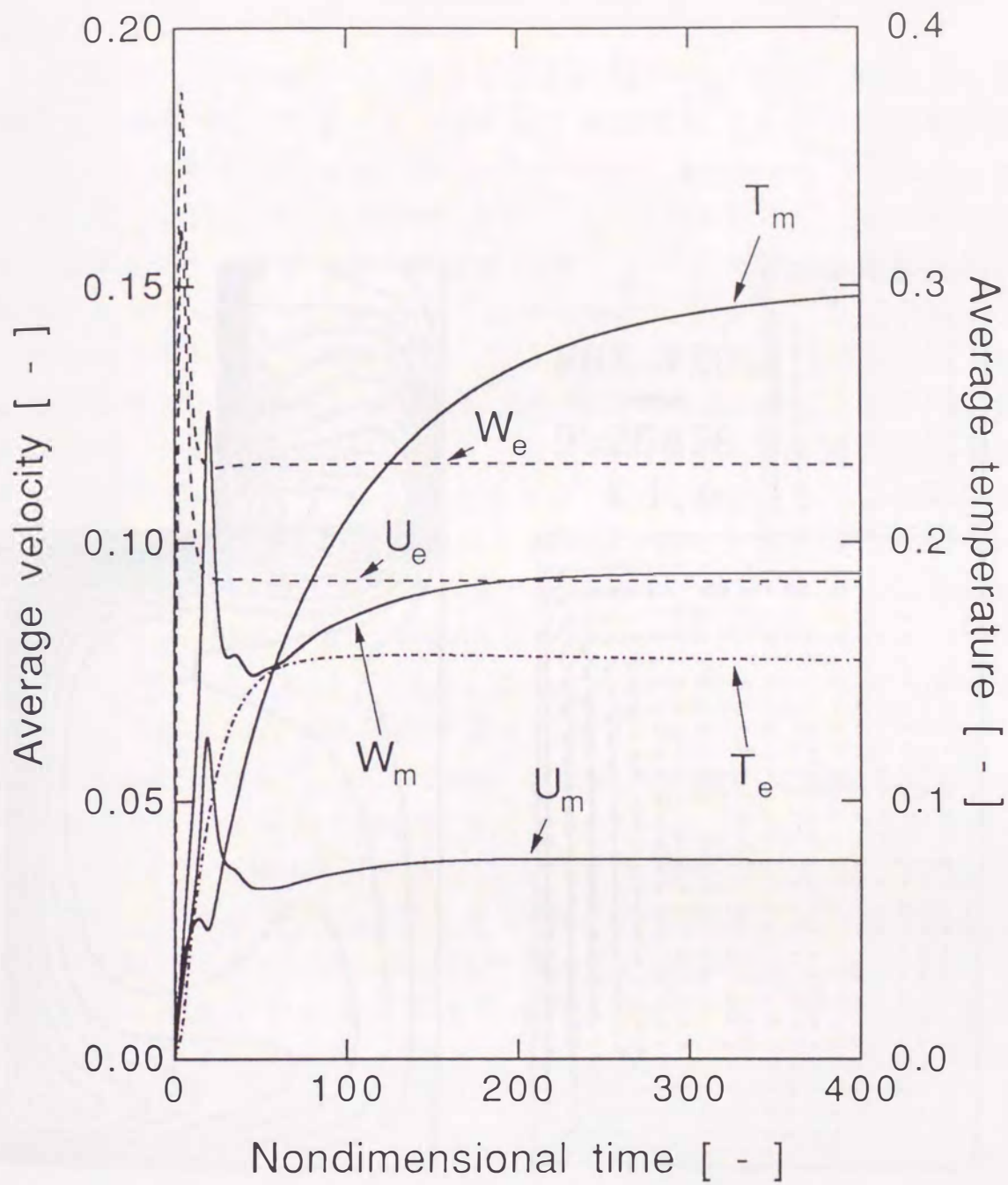
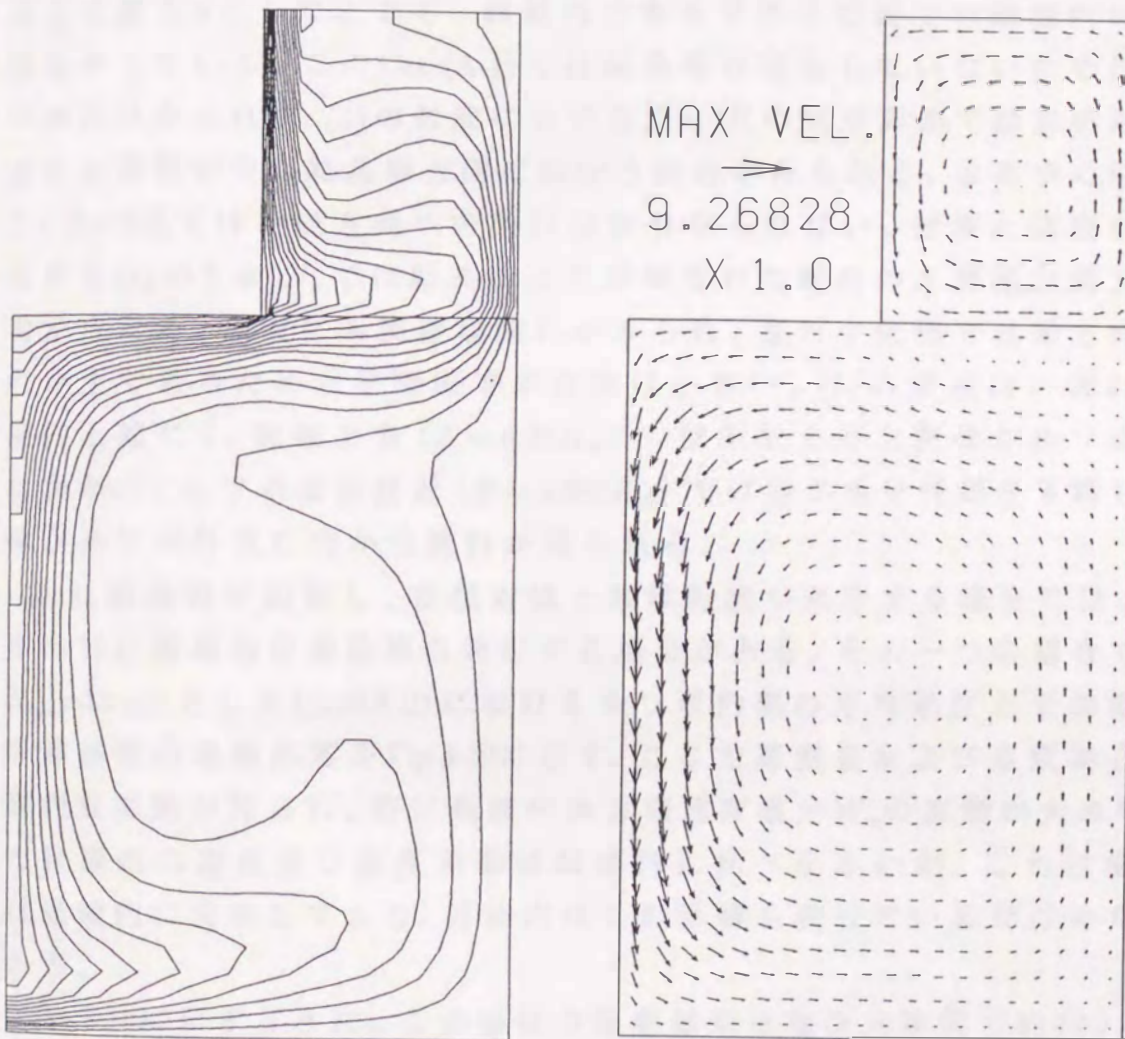


Fig. 3-7: Transient convergence of average velocity components and temperature for Case (A-1).



(a) Isotherms

(b) Velocity vectors

Fig. 3-8: Computed results in a vertical cross section for Case (A-1).

Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



ボ中央で流れが速くなっており、また中央の下降流がルツボ側面で上昇し、封液との界面で封液の自然対流による流れにより融液側の流れが一部逆転している。

Fig.3-9に同じく Case(A-1)における解析結果のルツボ水平断面での速度ベクトル線図を示す。最上部の2断面は封液での最上部の気液界面高さを0としたときの最上面  $Z=0H_e$  と封液ほぼ中央位置の  $Z=0.458H_e$  における結果を示している。また中央部および下部の4断面は封液-融液界面高さ位置を0としたときの、融液内の各水平高さ位置での融液内の流れ場を示している。この Case(A-1)では結晶棒が回転していないため周方向の流れはみられず、(a)の封液における  $Z=0H_e$  の気液界面では自然対流による上昇流が中心結晶棒方向に向かう流れがみられる。また中心位置の  $Z=0.458H_e$  では半径方向への流れは余り見られない。封液と融液の界面である (b)の  $Z=0H_m$  では結晶により冷却された封液の下降流が周方向へ向かうため、融液にも同様な流れがみられ、また中央部では軸方向の流れが主であるため水平断面での流れは小さい。(b)の融液内の流れは封液内と同じく、融液上方 ( $Z=0.25H_m$ ) で壁面からの上昇流がルツボ中央に向かい、ルツボ底面付近 ( $Z=0.982H_m$ ) ではルツボ中央部を下降した流体がルツボ外周に向かう流れが見られる。

次に結晶棒が回転し、自然対流と強制対流が共存する場合には、ルツボ内部に周期的な振動流の発生する場合がある。その一つの場合である  $N_{rod}=10\text{rpm}$  とした Case(A-2)におけるルツボ内部の平均速度と平均温度の計算結果の過渡応答を Fig.3-10に示す。ここで速度場および温度場とも周期的な変動が見られ、特に融液内軸方向速度成分  $W_m$  の変動が大きい。また封液内の速度及び温度振動は融液内に比べ小さいが、これは振動流は融液内に発生しており、封液内はこの影響を受けているだけのためである。

Fig.3-10に示すように、この場合の振動周期は無次元時間で約49.9となっている。これを次に示すように有次元に換算する。

$$r_0 = h_m Ra_m^{-\frac{1}{3}} = (0.07)(1.744 \times 10^5)^{-\frac{1}{3}} = 1.25 \times 10^{-3} [m]$$

$$u_0 = \alpha_m / r_0 = 0.947 \times 10^{-7} / (1.25 \times 10^{-3}) = 7.58 \times 10^{-5} [m/s]$$

$$t_0 = r_0 / u_0 = 16.5 [s]$$

$$\tau = 49.9 t_0 = 49.9 \times 16.5 = 823 [s] = 13.7 [min] \text{ (計算結果の振動周期)}$$

同じ条件でのモデル流体を使った可視化実験での周期は約10分であり、



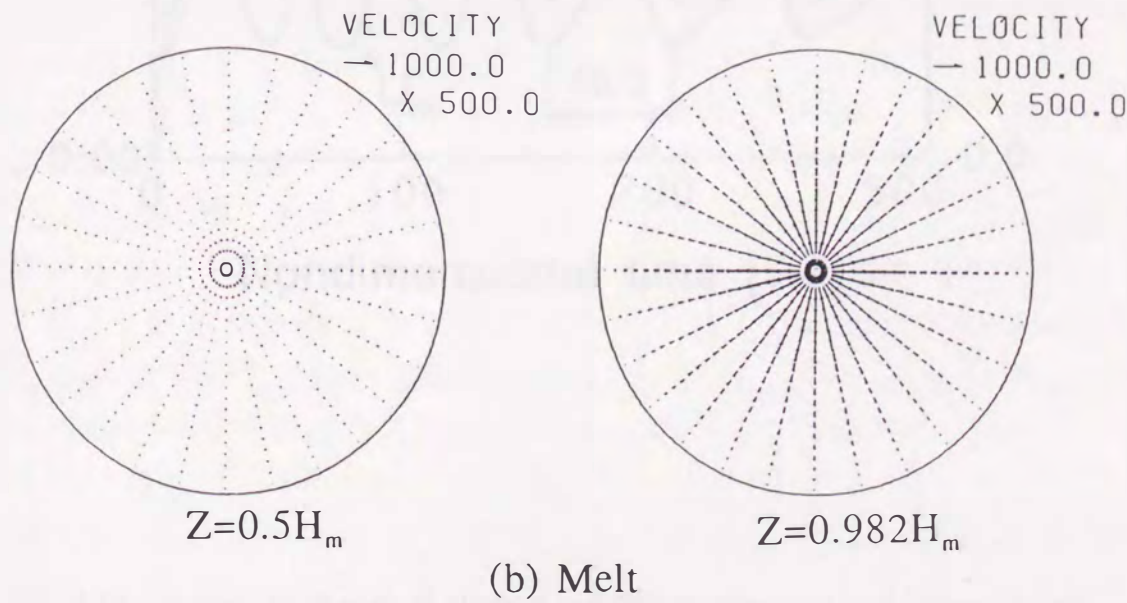
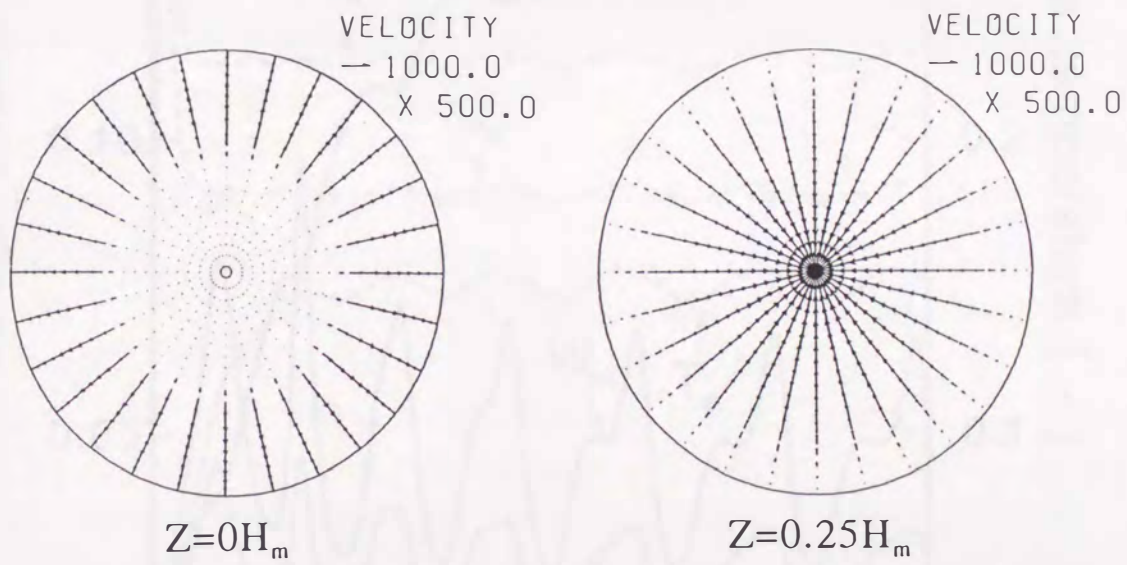
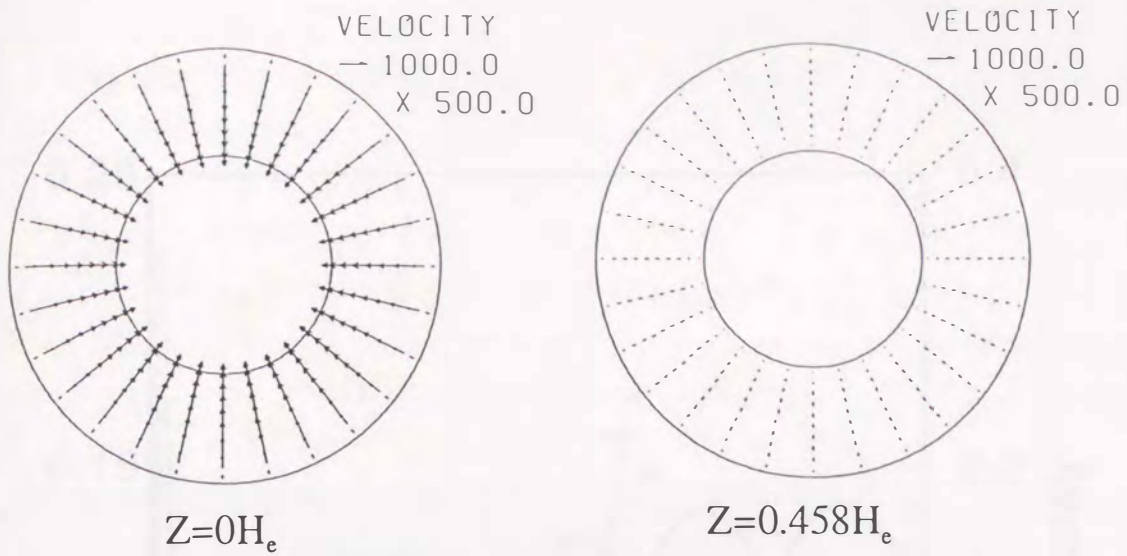


Fig. 3-9: Velocity vectors in horizontal cross sections for Case (A-1).



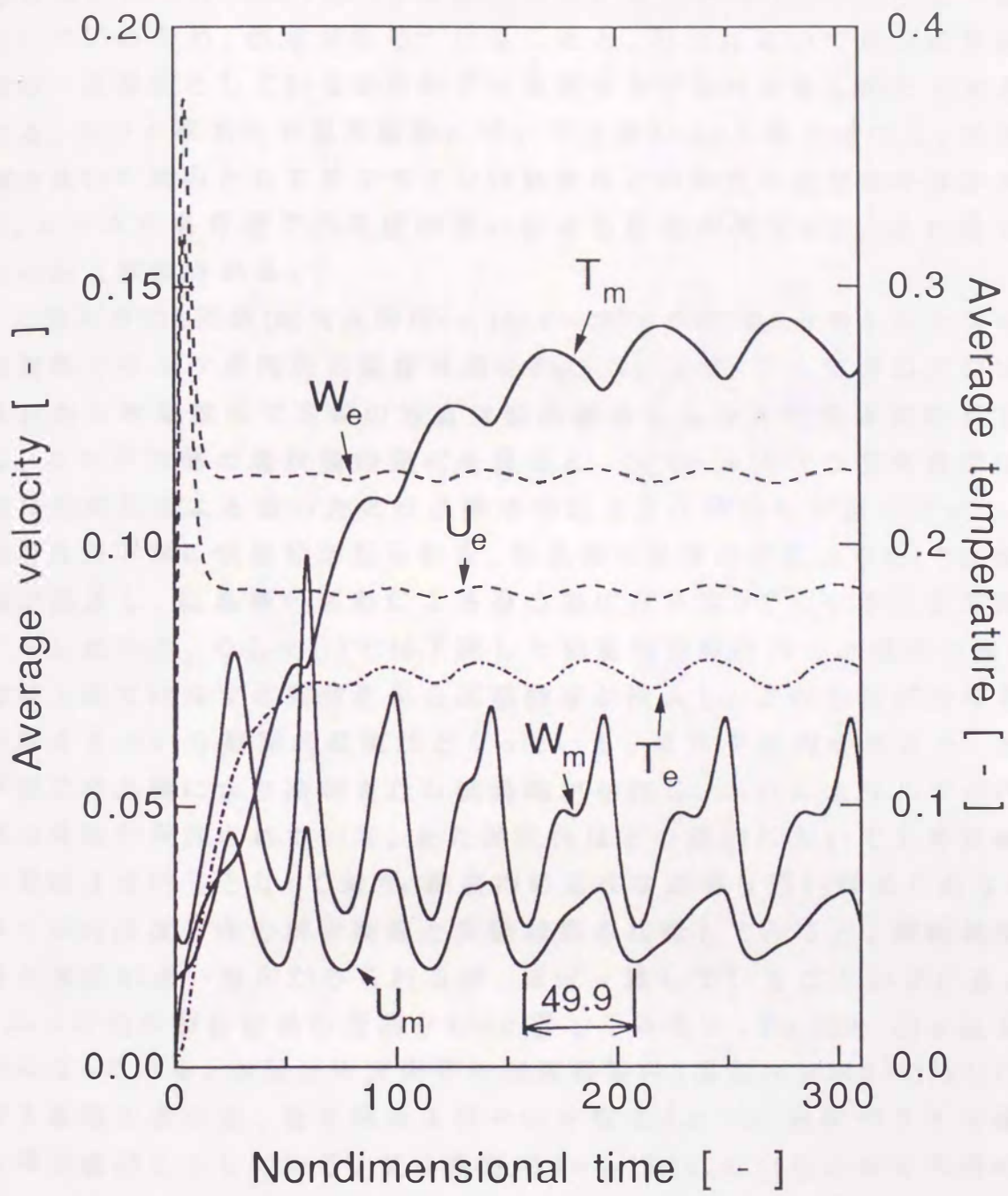


Fig. 3-10: Oscillatory change of average velocity components and temperature for Case (A-2).



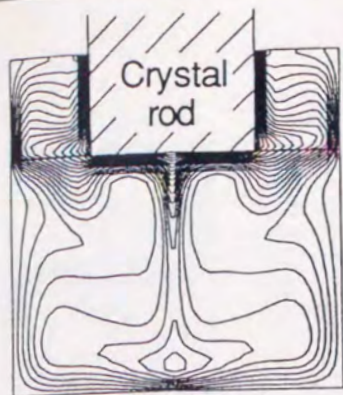
計算と実験の周期は少し異なっている。これは実験における周期の測定が目視により行われており、温度場の形が同じとなったところを一周期としているため、誤差が生じていることと、解析においてルツボ壁面温度は一定温度としているが実験では温度分布が存在するためだと考えられる。ルツボ壁面での温度振動については第3.6.1.2小節で述べる。他の周期の違いの要因としてグリセリンの粘度などの物性の温度依存性が大きく、ルツボ内各位置での温度の違いにより粘度が異なっているためではないかと推察される。

このときの1周期(無次元時間 $\tau = 157.7 \sim 207.6$ の間)を5分割したときの各時間毎でのルツボ内部の温度分布をFig.3-11に示す。ここで図の左側は解析結果の等温線図で右側の写真は感温液晶による可視化実験結果である。ルツボ内部の温度場の変化を見ると、(a)の $\tau = 157.7$ の融液側では結晶棒の回転による遠心力と結晶棒冷却による下降流の干渉によって、結晶棒外周下部に低温塊が見られる。結晶棒の冷却効果により(b)では低温塊が発達し、結晶棒の回転による遠心力に打ち勝ってルツボ底面方向に下降し始める。そして(e)では下降した低温塊部分はルツボ底面に達し、融液上面ではルツボ壁付近から高温融液が流入し、これが再び冷却され下降するという周期的な流れとなっている。また封液内を見ると、封液下部に結晶棒により冷却された低温塊が存在し、これによりルツボ内融液の冷却が促進されている。また封液内はどの周期においても等温線図の形はほぼ同じとなっており、融液内のような顕著な違いは見られない。ルツボ内温度分布の解析結果と実験結果を比較してみると、解析結果の方が現象が速い傾向がみられるが、ほぼ一致していることが分かる。

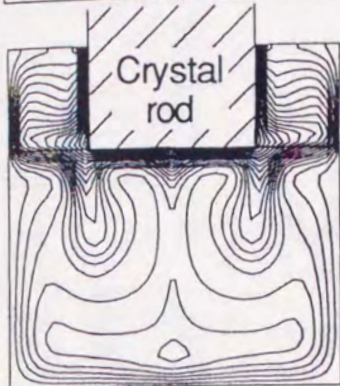
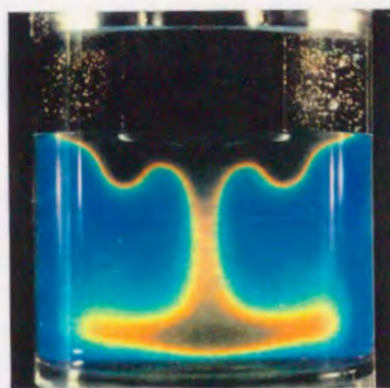
ルツボ内の解析結果の周期をもっと詳しくみると、Fig.3-12に示されるようになっている。本図はW方向平均速度振動の1周期( $\tau = 76.8 \sim 115.7$ )における振幅の最小部、最大部およびその中間の2点での速度ベクトル線図と等温線図を示している。最小振幅部の $\tau = 76.8$ においてはルツボ内の流れは小さく、結晶棒下部に小さな渦がみられる。結晶棒下部の低温塊が発達するとともに、比較的速い下降流が発生し、これにより低温塊がルツボ底面に向かって下降するのがみられる。そしてこれとともに融液上面にはルツボ壁付近から結晶中央部に向かう速い流れが発生している。

Case(A-2)の条件における解析結果の水平断面での $\tau = 99.1$ (1周期の振幅の最大部)での速度ベクトル線図をFig.3-13に示す。ここで融液内の $Z = 0.5H_m$ ,  $Z = 0.982H_m$ では、速度ベクトルは他の10倍の大ききさで示して

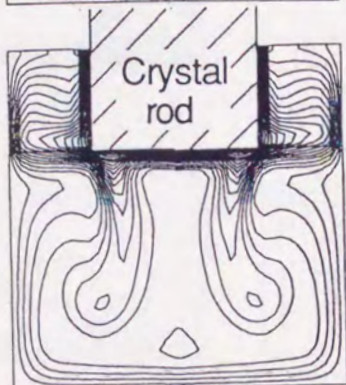
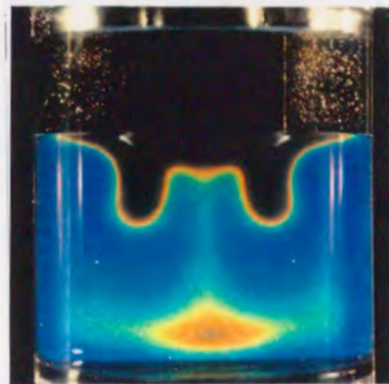




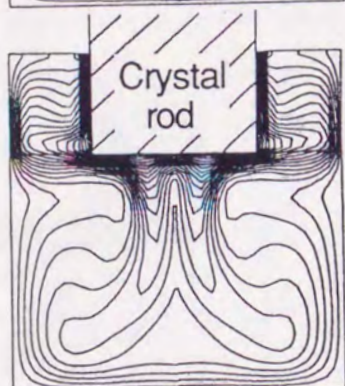
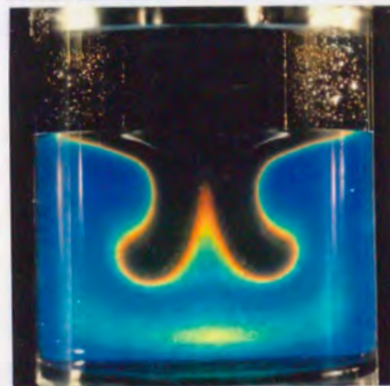
(a)  
 $\tau = 157.7$



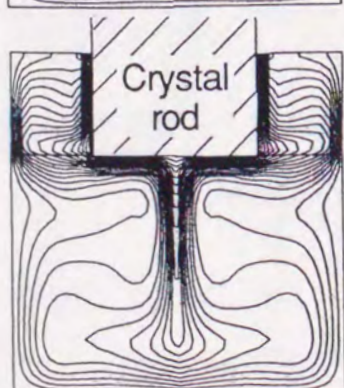
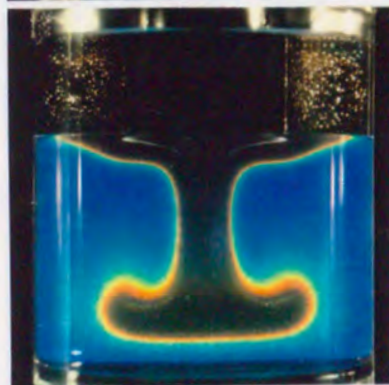
(b)  
 $\tau = 167.7$



(c)  
 $\tau = 177.7$



(d)  
 $\tau = 187.6$



(e)  
 $\tau = 197.6$

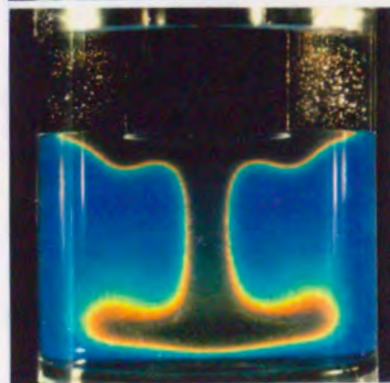


Fig. 3-11: Computed and visualized isotherms for Case (A-2). Visualized pictures were taken in two-minute intervals. Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



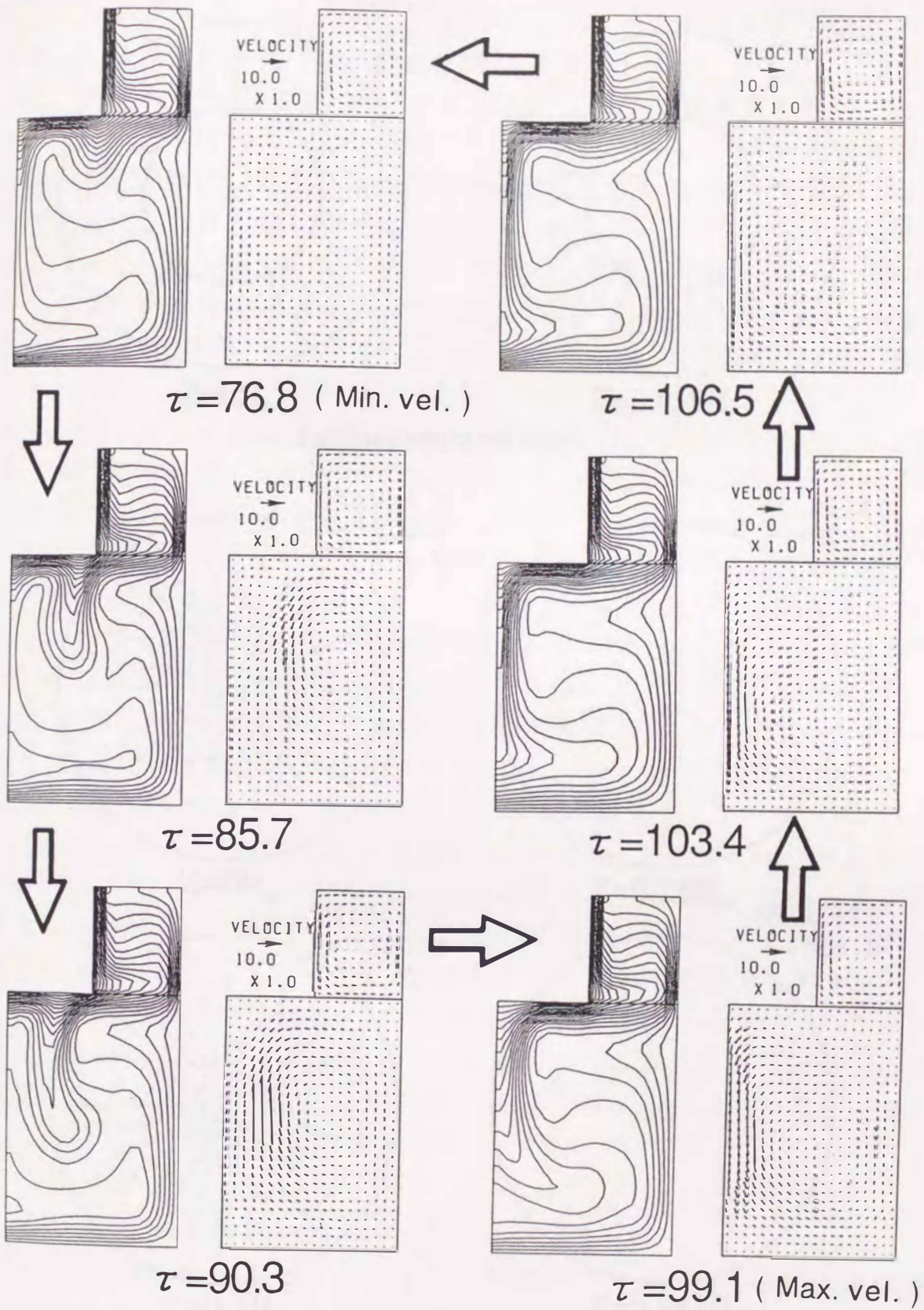
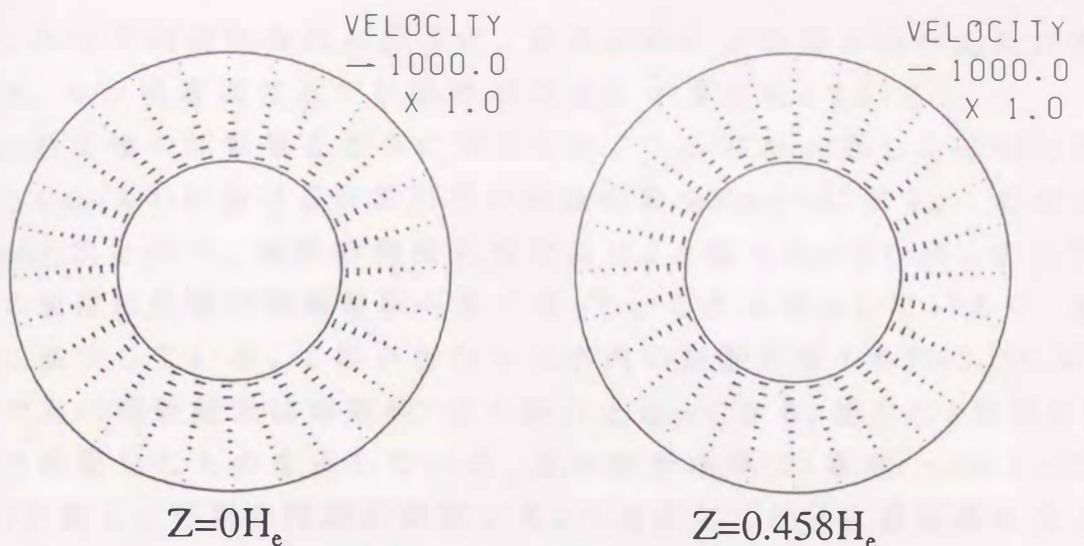


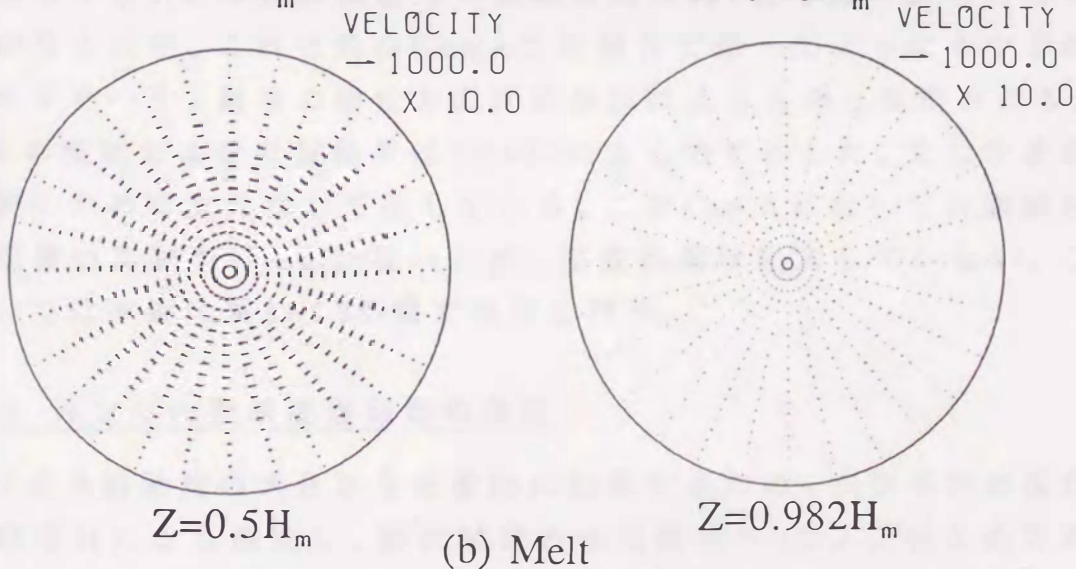
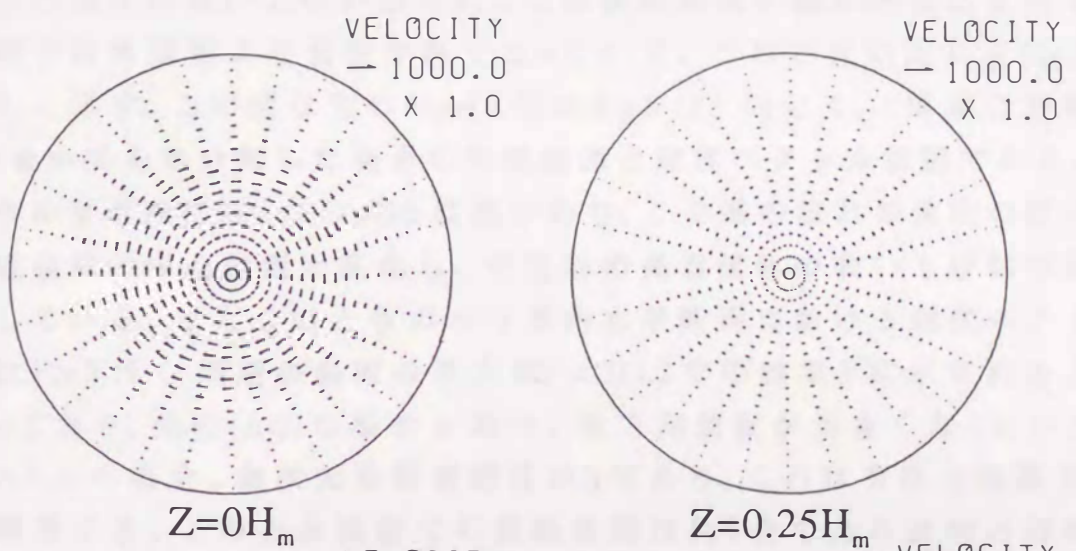
Fig. 3-12: Computed results in a vertical cross section for Case (A-2).

Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.





(a) Encapsulated fluid



(b) Melt

Fig. 3-13: Velocity vectors in horizontal cross sections for Case (A-2).



いる。ルツボ内部の流れを見ると、結晶回転による周方向の流れが優勢であり、ルツボ底面付近では流れは非常に小さくなっている。

次に結晶棒の回転数をさらに大きくし、 $N_{rod}=27.3\text{rpm}$ とした強制対流が優勢なCase(A-3)における計算結果の過渡応答をFig.3-14に示す。この場合先のCase(A-2)と比べ、振動の無次元周期は18.3と短くなっている。また平均速度の値は結晶棒の回転数が大きくなっているため増加しているが、振幅は逆に減少している。このときのルツボ内の振動の様子をFig.3-15に示す。ここで右の実験結果は周期約7分の流れとなっており、流れの1周期を2分間隔で撮影したものを示している。左の解析結果は1周期 $\tau = 205.5 \sim 223.8$ 間を7分割し、写真の時刻と対応する4つを示している。温度場を見ると融液上部にルツボ回転に起因する渦がみられ、ルツボ中心ではルツボ底面からの流体の吸い上げがみられ、この高温流体が渦に巻き込まれて渦中心部では外周部より温度が高くなっている。このときの流れをFig.3-16に詳しく示す。この図は先のCase(A-2)のFig.3-12と同じく、1周期の振幅の最大・最小間を等分割した場合の等温線図と速度ベクトル線図である。このときルツボ内には2つの大きな渦があり、この渦の流れの速度の変化により低温塊の中心位置が変化し、中央部の高温流体の吸い上げ部の幅が変化している。またこのときのルツボ内水平断面における速度ベクトル線図はFig.3-17(1周期の振幅の最大値 $\tau = 214.2$ での結果)に示されるようになっており、先の(A-2)の場合と比べ、周方向速度が大きくなっている。

Case(A-3)の場合、無次元振動周期は18.3であり、これは有次元換算で4.9分に相当する。このとき実験での振動周期は約7分であり実験と解析では差がみられが、これは先のCase(A-2)の場合で述べたようにルツボ壁面温度の不均一や、融液の物性の温度依存性によるものと推察される。

以上の実験および計算結果はTable3-5にまとめて示した。また計算結果は比較のため有次元化して示している。このCase Aにおいては実験時に融液温度の実測を行っていないため、温度振幅は記入していない。これについては次節の第3.5.1.2小節で検討を行う。

### 3.5.1.2 ルツボ内融液温度振動の測定

ルツボ内振動流の大きさを定量的に観察するため、ルツボ内の温度振動を熱電対により測定し、解析結果との比較を行った。このときの実験条件をTable 3-6に示す。ここでは結晶棒のみが17.4rpmで回転しており、ルツボは静止している。ルツボは内径9cmのパイレックスガラス製のものを



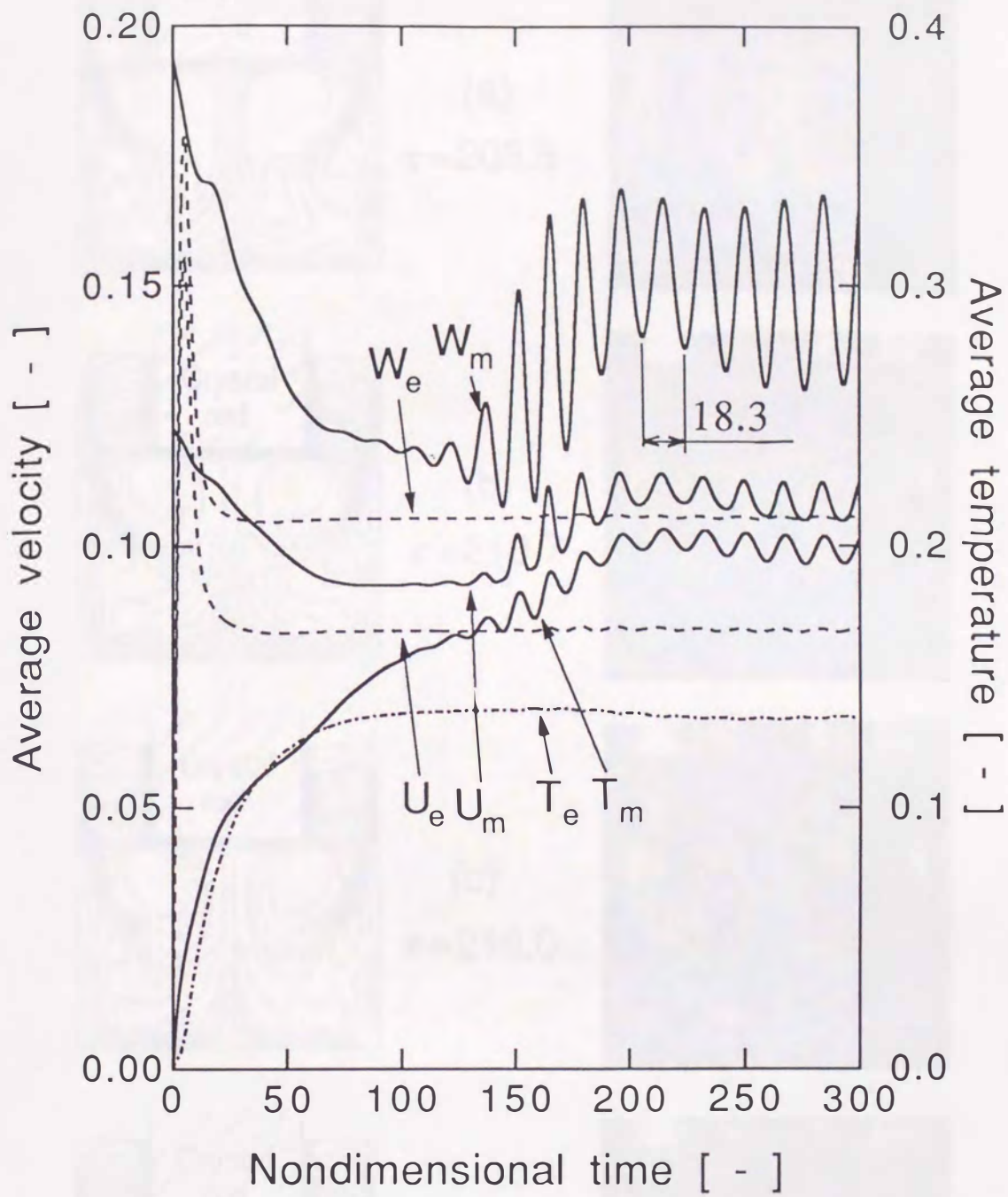
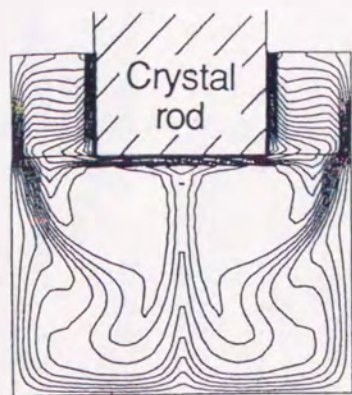
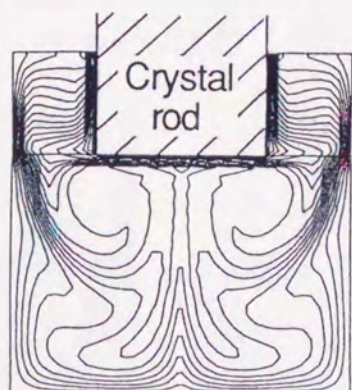
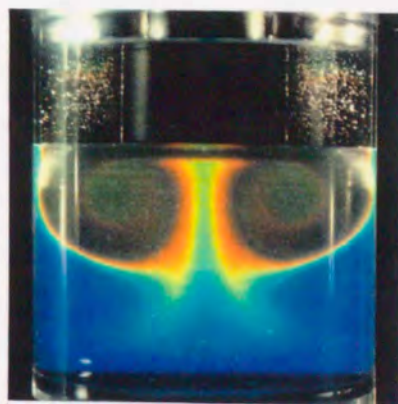


Fig. 3-14: Oscillatory change of average velocity components and temperature for Case (A-3).

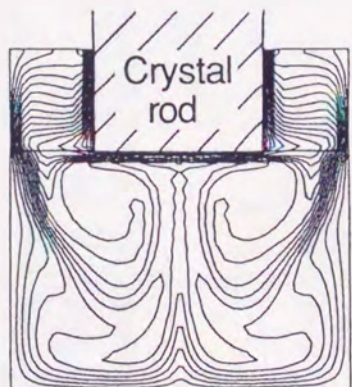




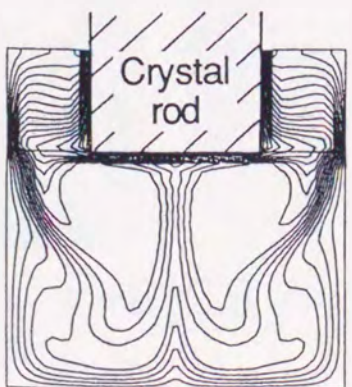
(a)  
 $\tau = 205.5$



(b)  
 $\tau = 210.7$



(c)  
 $\tau = 216.0$



(d)  
 $\tau = 221.2$



Fig. 3-15: Computed and visualized isotherms for Case (A-3). Visualized pictures were taken in two-minute intervals. Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



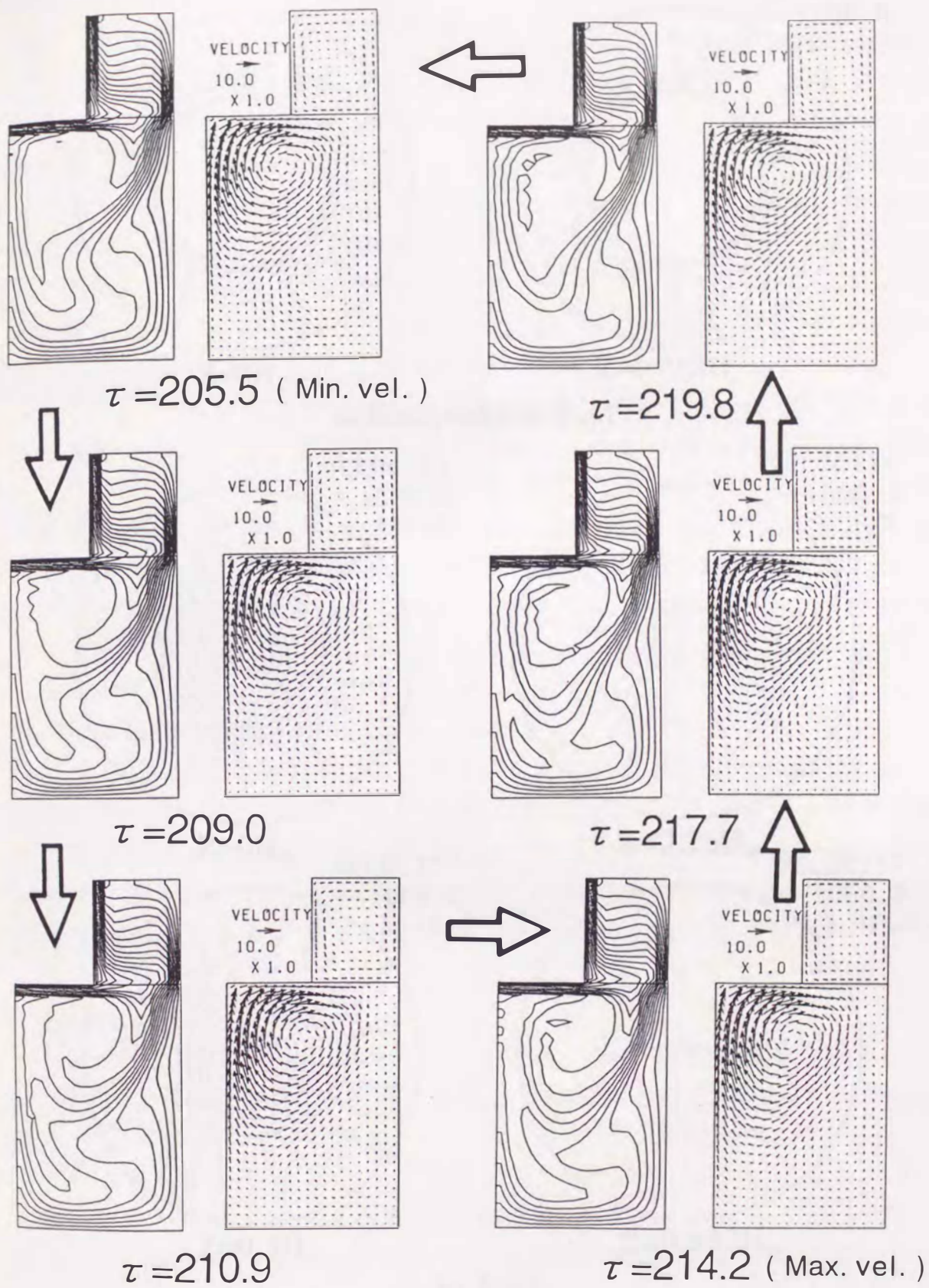


Fig. 3-16: Computed results in a vertical cross section for Case (A-3).

Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



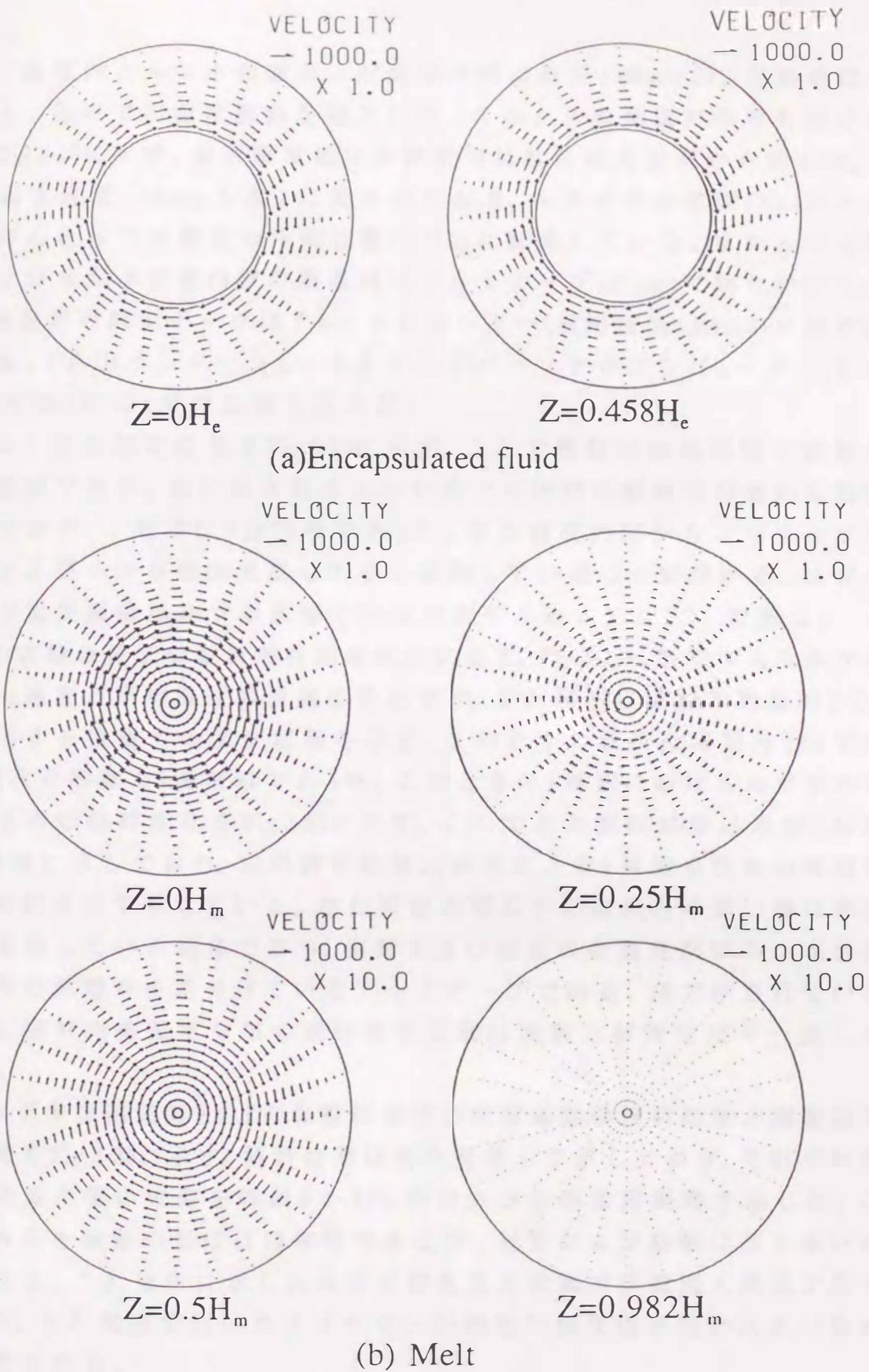


Fig. 3-17: Velocity vectors in horizontal cross sections for Case (A-3).



用い、融液内とルツボ側面および底面内側に直径0.05mmのT型熱電対を設置し、各点での温度振動を測定した。このときの熱電対の取り付け位置をFig.3-18に示す。融液温度測定用熱電対は結晶成長界面から約 $0.2H_m$ 下方の高さ位置(13mm下方)に置かれており、ルツボ中心位置(T.C.1)とルツボ中心とルツボ壁面の間位置(T.C.2)に設置している。またルツボ側面およびルツボ底面内壁の熱電対はアルミテープ(50 $\mu$ m)で貼り付けている。熱電対の測定データはチャートレコーダー(横河電機:LR4210)に取り込んだ後、GP-IBインターフェースを介してパーソナルコンピュータ(日本電気:PC9801E)に1秒毎に取り込んだ。

このときの測定結果をFig.3-19に示す。ここで横軸は経過時間で縦軸は測定温度である。図に示されるようにルツボ内部の融液は周期的な振動をしており、1周期は9分29秒であった。また融液内ばかりでなくルツボ側壁およびルツボ底面温度も小さく振動していることが分かる。ルツボ側壁での温度振動はルツボ底面でのの方が大きく最大で約 $0.2^{\circ}\text{C}$ である。

この実験条件での数値解析結果を次に示す。Fig.3-20に解析によるルツボ内平均速度と平均温度の過渡応答を示す。また図中に破線で熱電対T.C.1に相当する位置での温度応答を示す。このときの無次元周期は22.4であり、有次元換算で7分51秒であった。このときの1周期におけるルツボ内の温度分布の経時変化をFig.3-21に示す。ここで右の実験結果は周期9.49分を2分毎に示しており、左の解析結果は解析による1周期を実験の写真時刻と対応させて示している。また可視化写真中の融液内の黒い線は熱電対を支持している絹糸であり、側面および底面の金属光沢はルツボ温度測定用の熱電対を貼付けているアルミテープである。図で示されているように融液内の温度分布の経時変化挙動は実験と解析で良く一致している。

ルツボ中央熱電対T.C.1の位置における温度振動の解析結果と実験結果の比較をFig.3-22に示す。解析結果は有次元化して示しており、それぞれの振幅の最大値の位置を時刻0とし、その点からの温度振動を示した。これをみると振動の形はほぼ相似であるが、周期および振幅に若干違いが見られる。これは先に示したルツボ壁温度が実験では側面と底面で若干異なり、また実験で用いたグリセリンの物性の温度依存性が大きいと推察される。

またこのときの実験および解析により得られた周期、温度振幅を表3-7にまとめて示した。

Table 3-6: Experimental conditions for Case B

Run		B-1
Rotating rate of Rod	[rpm]	17.4
Rotating rate of crucible	[rpm]	0
Diameter of crucible	[mm]	90
Temp. of rod	[°C]	12.0
Ave. temp. of crucible walls	[°C]	21.1
Temp. of heating water	[°C]	21.5
$Pr_e$	[-]	4583
$Gr_e$	[-]	6.67
$Ra_e$	[-]	$3.06 \times 10^4$
$(Re_e)_{rod}$	[-]	2.28
$(Gr_e/Re_e^2)_{rod}$	[-]	1.28
$Pr_m$	[-]	12460
$Gr_m$	[-]	8.07
$Ra_m$	[-]	$1.01 \times 10^5$
$(Re_m)_{rod}$	[-]	0.965
$(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$	[-]	8.67

Table 3-7: Experimental and computational results for Case B

Run		B-1
Oscillation period (Exp.)	[min]	9.5
Oscillation period (Cal.)	[min]	7.9
Amplitude of temp. oscillation at T.C.1 (Exp.)	[ K ]	1.7
Amplitude of temp. oscillation at T.C.1 (Cal.)	[ K ]	1.0



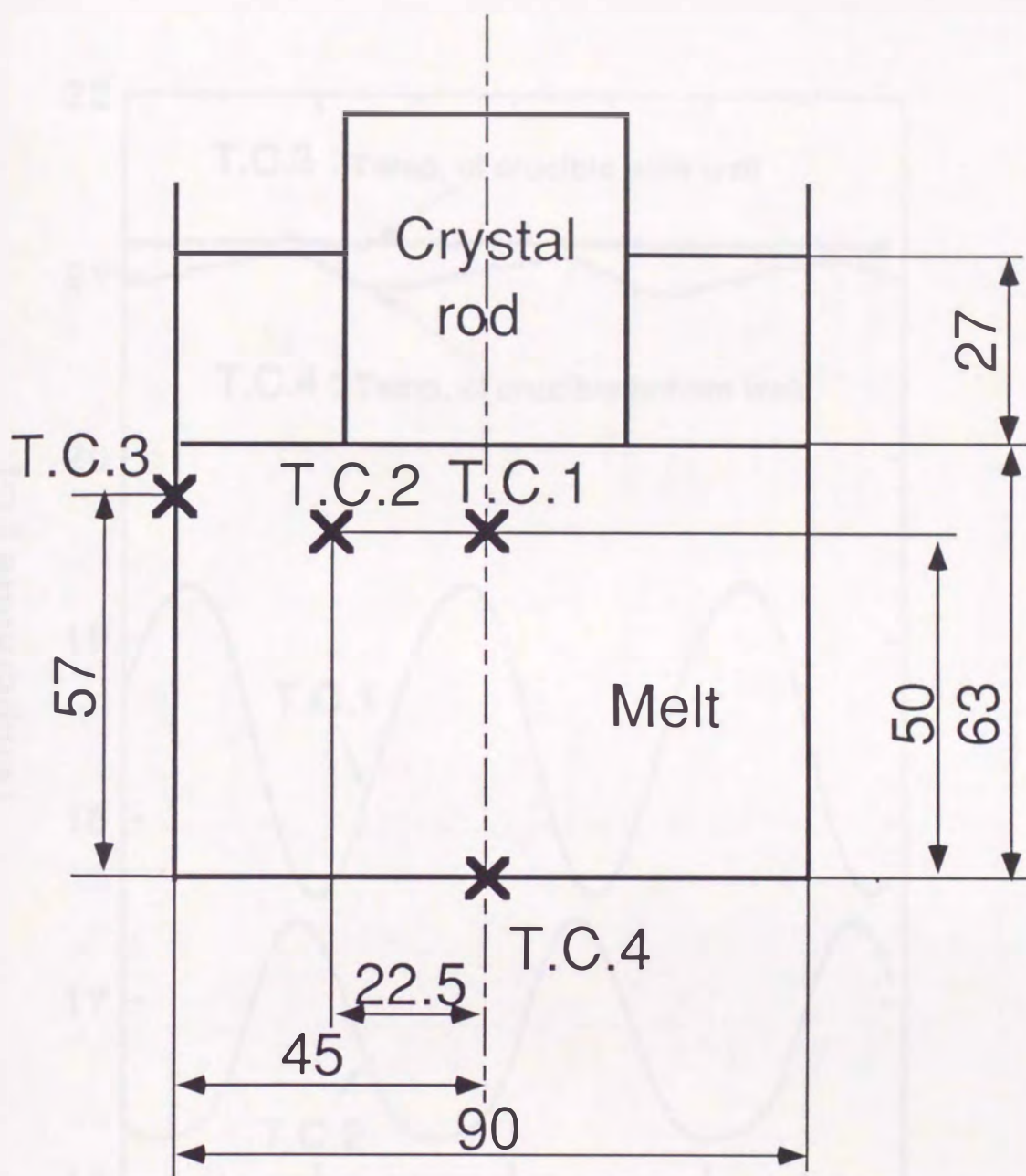


Fig. 3-18: The position of thermo-couples in the melt.

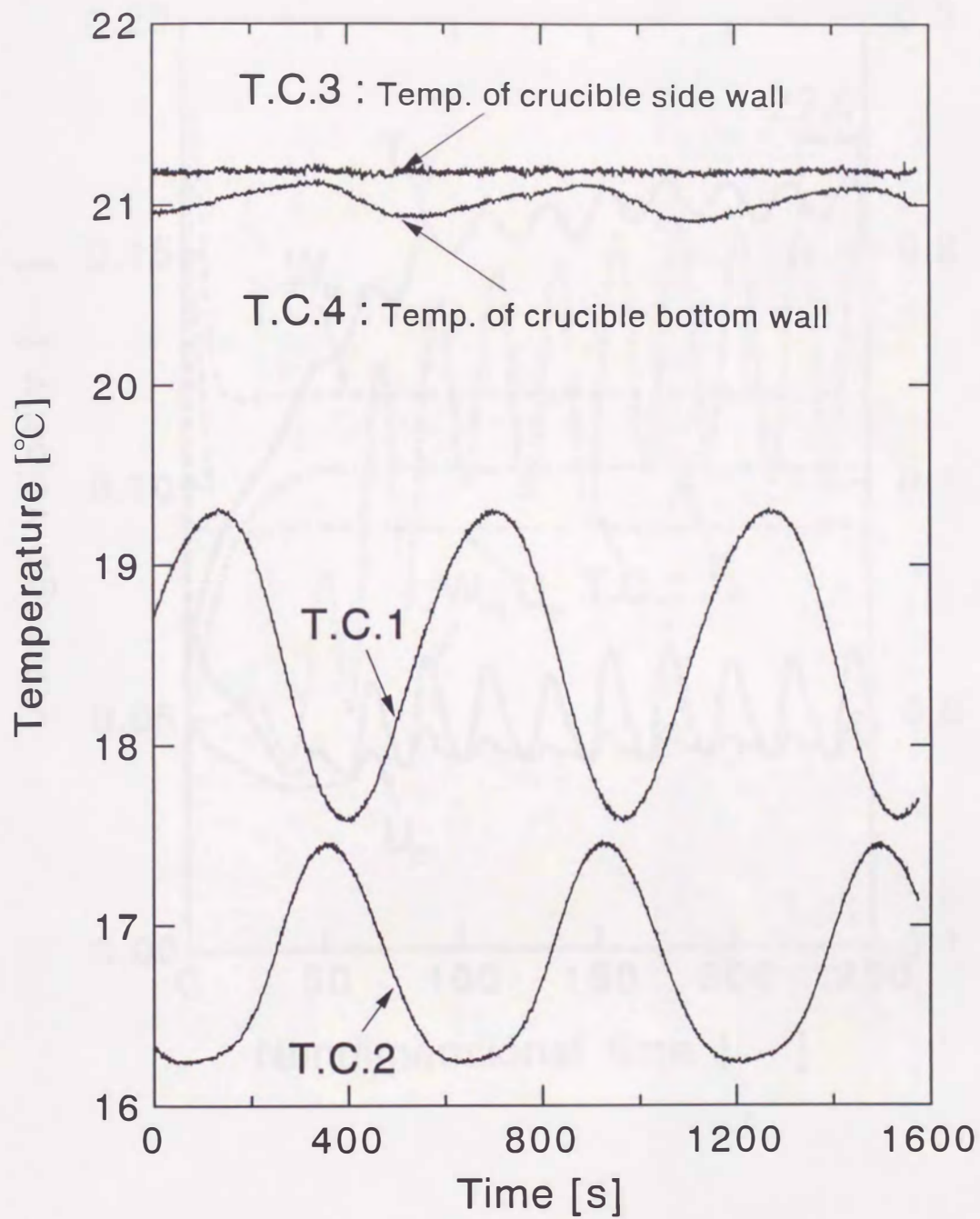


Fig. 3-19: The measured temperature oscillation in the melt (glycerol).



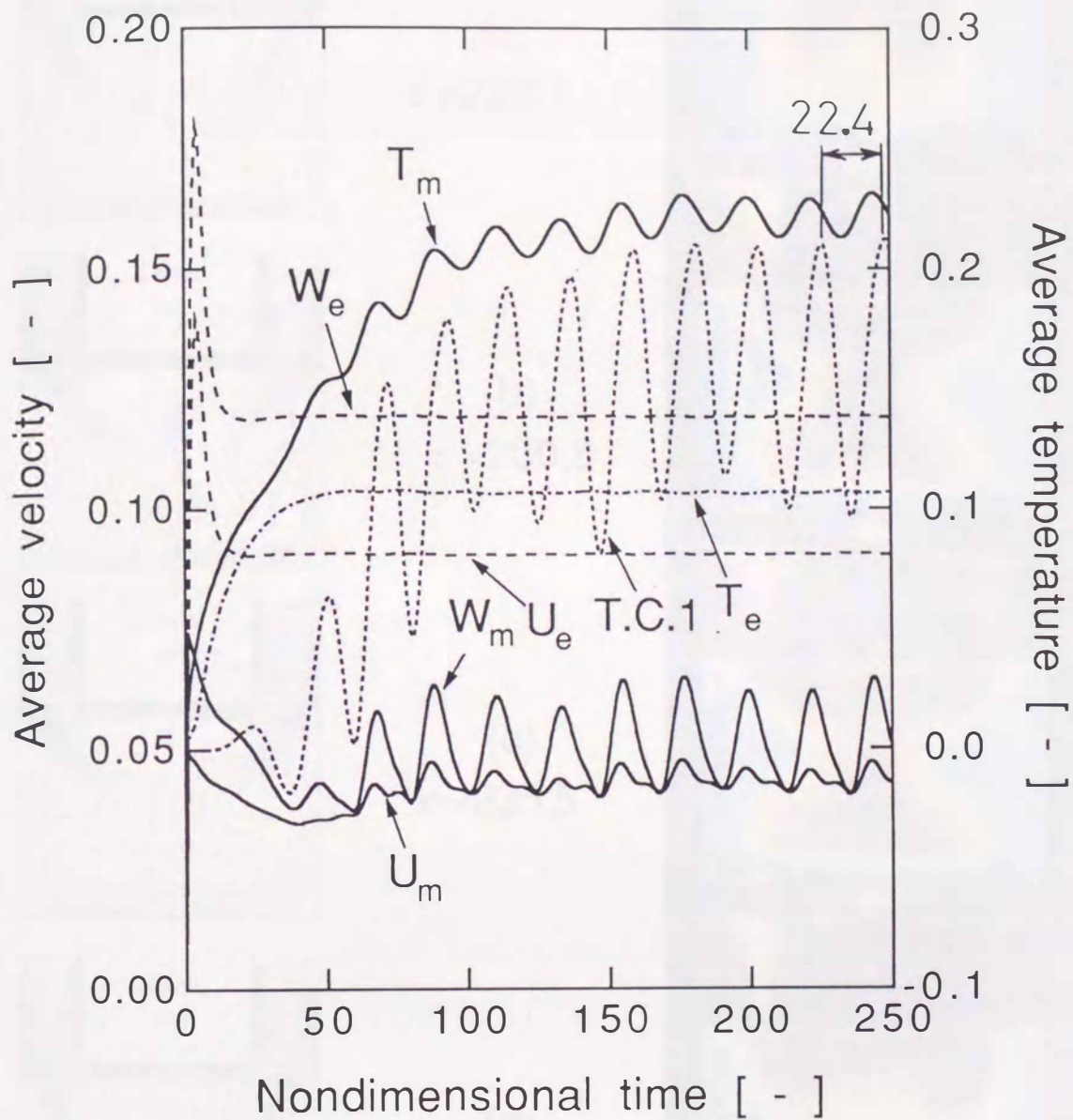
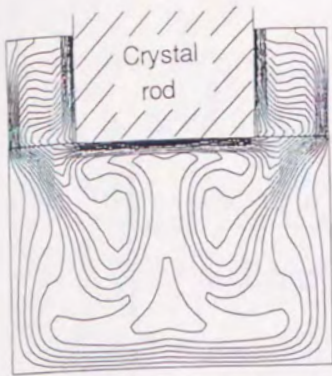
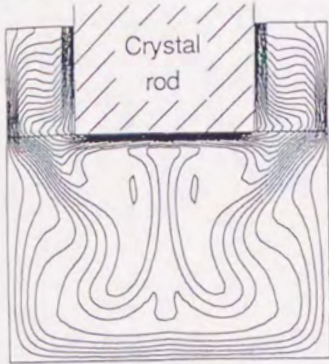
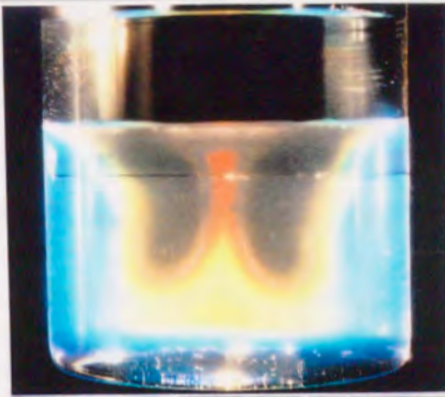


Fig. 3-20: Oscillatory change of average velocity components and temperature by numerical computation for Case (B-1).

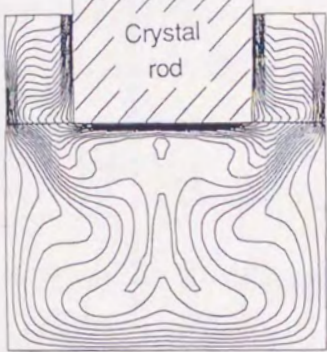
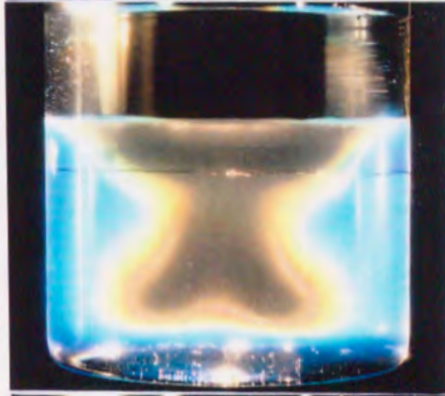




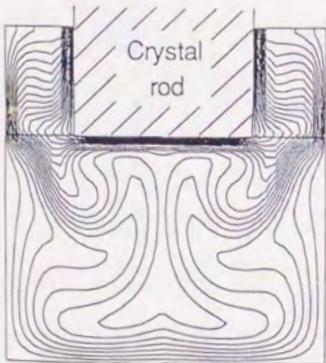
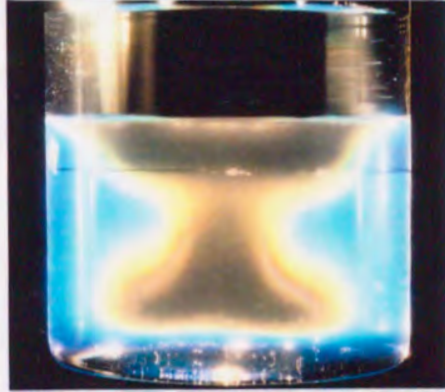
(a)  
 $\tau = 226.1$



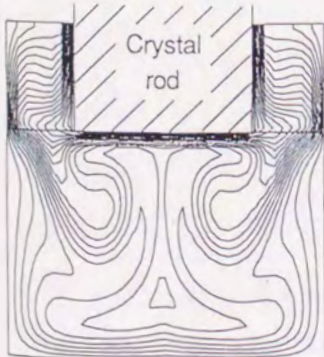
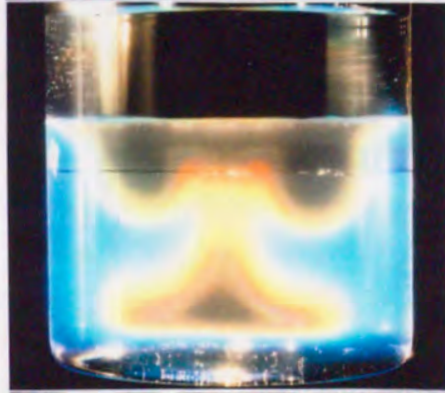
(b)  
 $\tau = 230.8$



(c)  
 $\tau = 235.5$



(d)  
 $\tau = 240.3$



(e)  
 $\tau = 245.0$

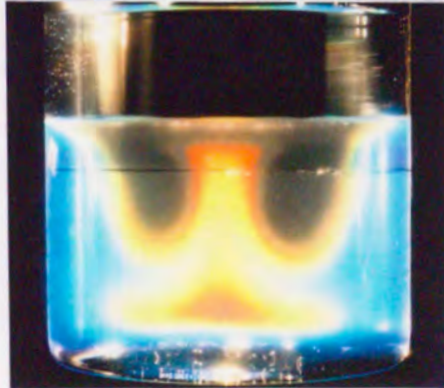


Fig. 3-21: Computed and visualized isotherms for Case(B-1). Visualized pictures were taken in two-minute intervals. Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



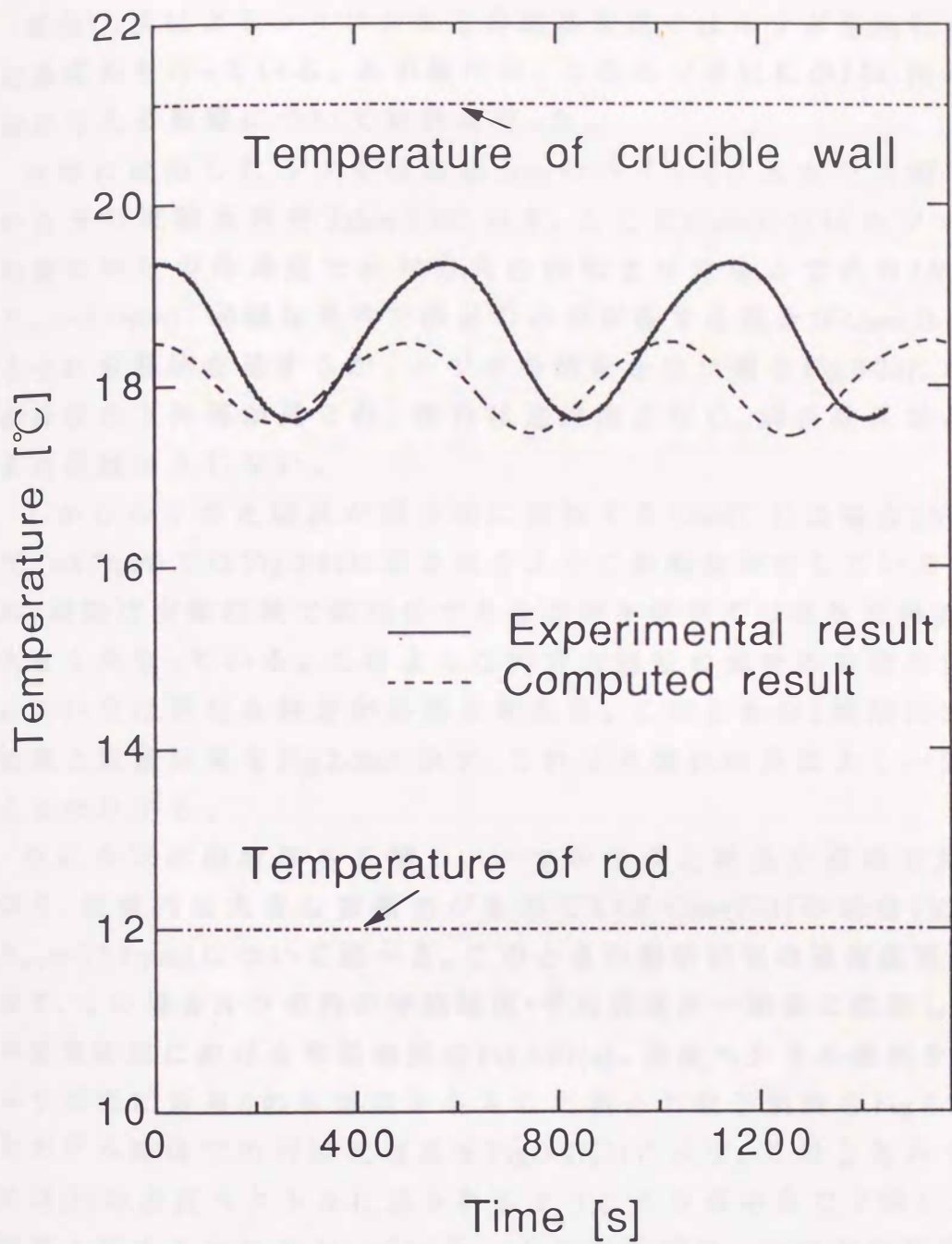


Fig. 3-22: Temperature oscillation at the T.C.1 point.

### 3.5.1.3 ルツボ回転効果

通常 Cz 法によるシリコンなどの結晶育成ではルツボを回転させながら結晶成長を行っている。本小節では、このルツボ回転が LEC 法ルツボ内流動に与える影響について検討を行った。

実験に使用したルツボは直径 9cm のパイレックスガラス製である。このときの実験条件を Table 3-8 に示す。ここで Case(C-1) はルツボを結晶回転数の半分の角速度で反対方向に回転させた場合であり ( $N_{rod}=17.4\text{rpm}$ ,  $N_{cru}=-8.7\text{rpm}$ )、同様な条件で結晶のみが回転する場合は Case(B-1) で示したように振動流を呈するが、ルツボを回転させた場合 Fig.3-23 に示すような螺旋状の下降流が見られ、流れは定常流となり、解析結果および実験結果共振動は生じない。

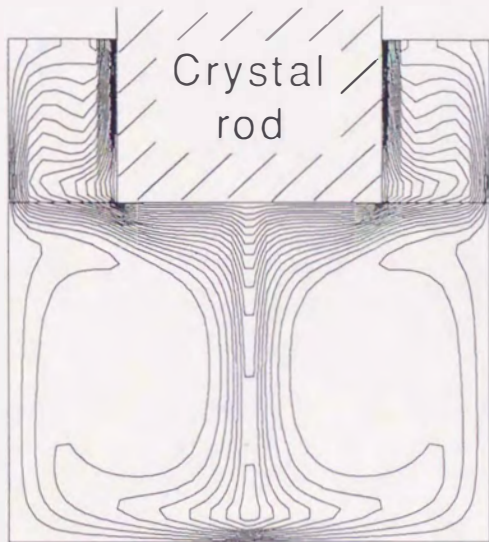
しかしルツボと結晶が同方向に回転する Case(C-2) の場合 ( $N_{rod}=17.4\text{rpm}$ ,  $N_{cru}=8.7\text{rpm}$ ) では Fig.3-24 に示されるように振動流が生じている。このときの 1 周期は実験結果で約 18 分であるが解析結果では有次元換算で 7.6 分と大きく異なっている。このような同方向回転の場合の周期の大きな違いについては更なる検討が必要と考える。このときの 1 周期における解析結果と実験結果を Fig.3-25 に示す。これより流れの形はよく一致していることが分かる。

次にルツボ融液深さを増し、かつルツボと結晶が高速で反対方向に回り、融液内に大きな剪断力が生じている Case(C-3) の場合 ( $N_{rod}=26.3\text{rpm}$ ,  $N_{cru}=-17.4\text{rpm}$ ) について述べる。このときの解析結果の過渡応答を Fig.3-26 に示す。この場合ルツボ内の平均速度・平均温度共一定値に収束している。この定常状態における等温線図を Fig.3-27(a)、速度ベクトル線図を Fig.3-27(b)、ルツボ内に質量 0 の仮想粒子を入れた場合の粒子軌跡を Fig.3-27(c) に、またモデル流体での可視化写真を Fig.3-27(d) に示す。このときルツボ内の流れは (b) の速度ベクトルに示されるようにルツボ中央で下降し、ルツボ側壁で上昇する流れとなっている。(d) の写真では、ルツボ内鉛直断面に細いスリット光を入射させて撮影しているため、スパイラル状に落下している低温塊の断面が見えている。Fig.3-27(c) の粒子軌跡を見ると、融液上面側壁付近 ( $0.05H_m$ ,  $0.84L_{cru}$ ) の粒子が、回転しながら (ルツボ回転方向) 中央部に移動し、結晶近傍で逆回転 (結晶回転方向) となった後、ルツボ高さの  $1/5$  ほど下降した地点で回転方向が再び逆になり、その後螺旋を描きながら下降し、ルツボ底付近で外周部に向かった後、ルツボ側壁付近を上昇している。これより結晶回転の影響は結晶棒直下のみであり、融



Table 3-8: Experimental conditions for Case C

Run		C-1	C-2	C-3
Rotating rate of rod	[rpm]	17.4	17.4	26.3
Rotating rate of crucible	[rpm]	-8.7	8.7	-17.4
Diameter of crucible	[mm]	90	90	90
Depth of melt	[mm]	63	63	89
Depth of encapsulated fluid	[mm]	27	30	30
Temp. of rod	[°C]	10.0	10.5	9.0
Temp. of crucible	[°C]	22.0	22.5	21.5
$Pr_e$	[-]	$4.58 \times 10^3$	$4.58 \times 10^3$	$4.58 \times 10^3$
$Gr_e$	[-]	8.80	12.1	12.6
$Ra_e$	[-]	$4.03 \times 10^4$	$5.53 \times 10^4$	$5.76 \times 10^4$
$(Re_e)_{rod}$	[-]	2.28	2.28	3.44
$(Re_e)_{cru}$	[-]	-3.69	3.69	-7.38
$(Gr_e/Re_e^2)_{rod}$	[-]	1.70	2.33	1.06
$(Gr_e/Re_e^2)_{cru}$	[-]	0.646	0.886	0.231
$Pr_m$	[-]	$1.25 \times 10^4$	$1.25 \times 10^4$	$1.25 \times 10^4$
$Gr_m$	[-]	10.6	10.6	31.3
$Ra_m$	[-]	$1.33 \times 10^5$	$1.33 \times 10^5$	$3.90 \times 10^5$
$(Re_m)_{rod}$	[-]	0.965	0.965	1.46
$(Re_m)_{cru}$	[-]	-1.56	1.56	-3.13
$(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$	[-]	11.4	11.4	14.7
$(Gr_m/Re_m^2)_{cru}$	[-]	4.35	4.35	3.20
Oscillation period (Exp.)	[min]	0	18	0
Oscillation period (Cal.)	[min]	0	7.6	0
Amplitude of average temp. oscillation (Exp.)	[K]	0	—	0
Amplitude of average temp. oscillation (Cal.)	[K]	0	0.17	0



(a) Computed isotherms



(b) Visualized picture

Fig. 3-23: Computed and visualized isotherms for Case (C-1). Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.



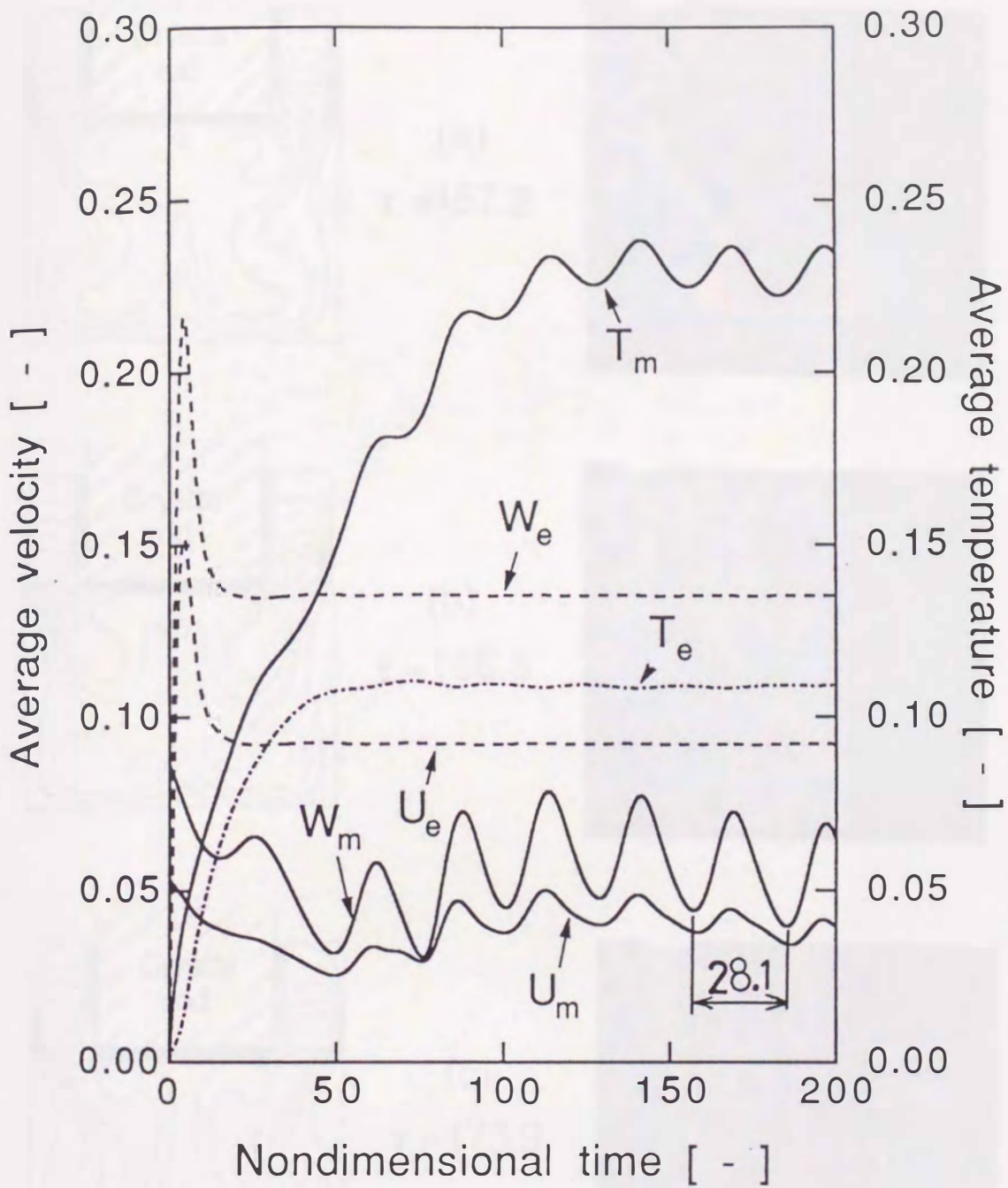
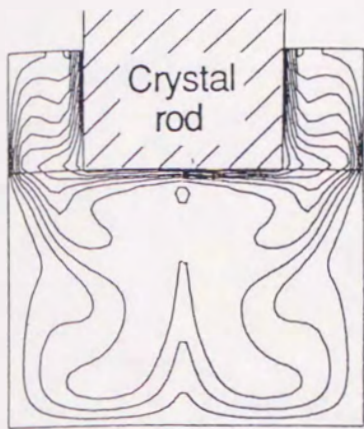
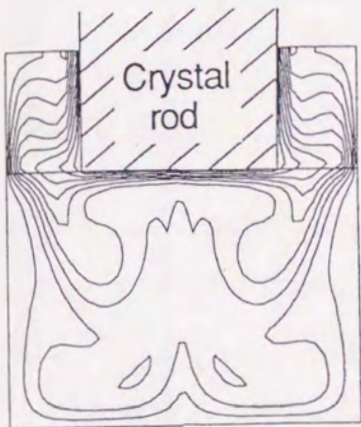
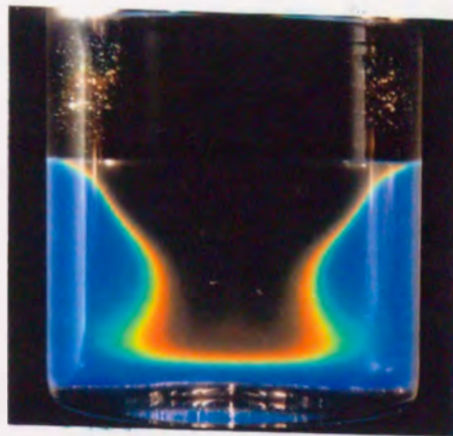


Fig. 3-24: Oscillatory change of average velocity components and temperature by numerical computation for Case (C-2).

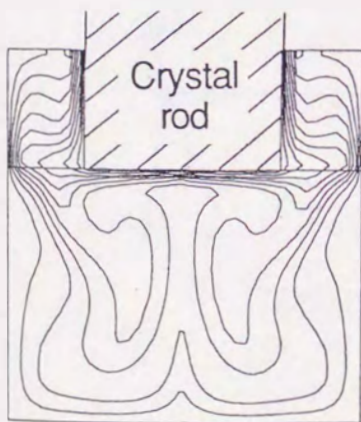
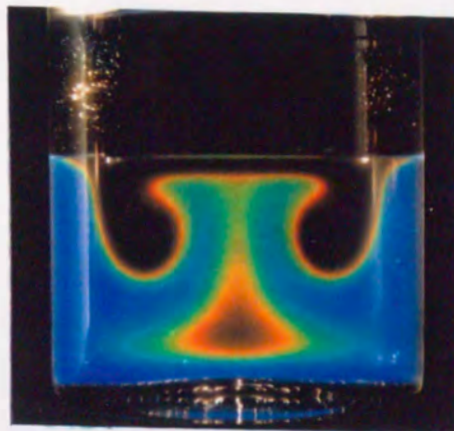




(a)  
 $\tau = 157.2$



(b)  
 $\tau = 166.6$



(c)  
 $\tau = 175.9$

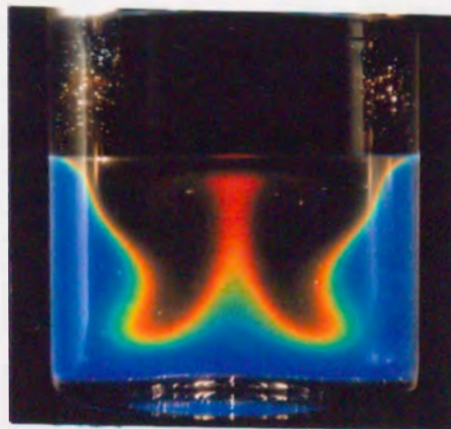


Fig. 3-25: Computed and visualized isotherms for Case (C-2). Visualized pictures are taken in six-minute intervals. Isothermal lines are at every 0.1 between -0.5 and 0.5.

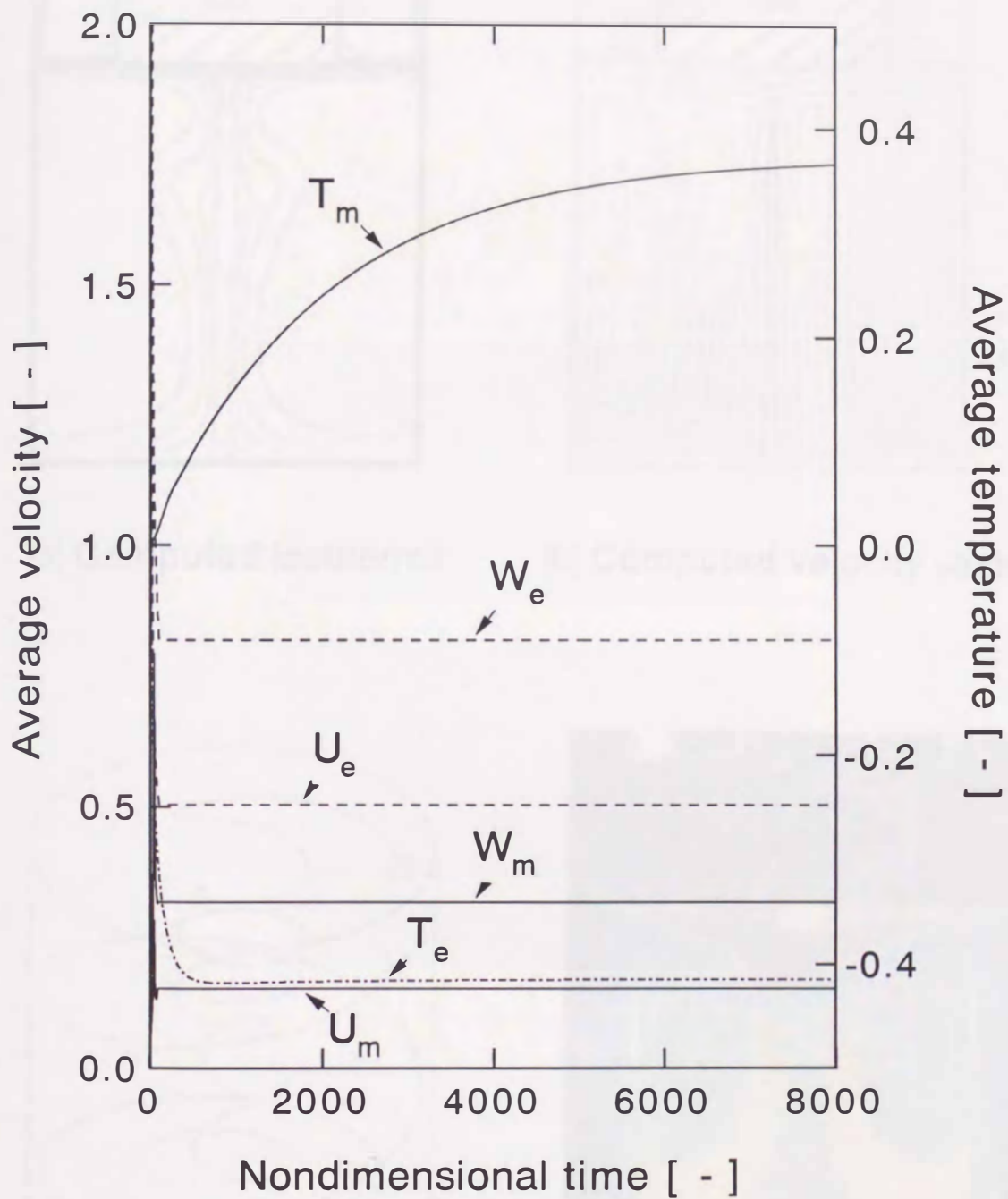
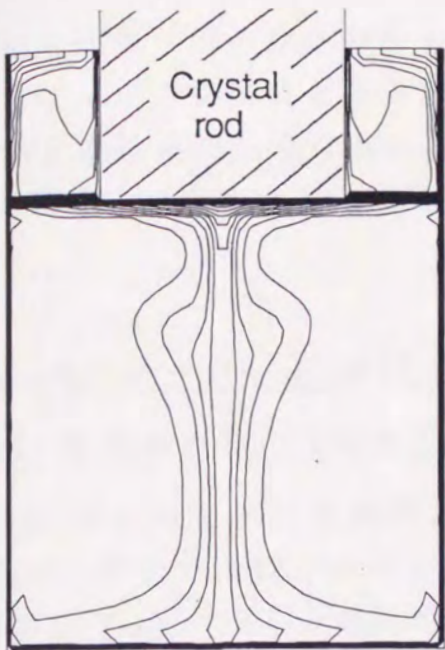
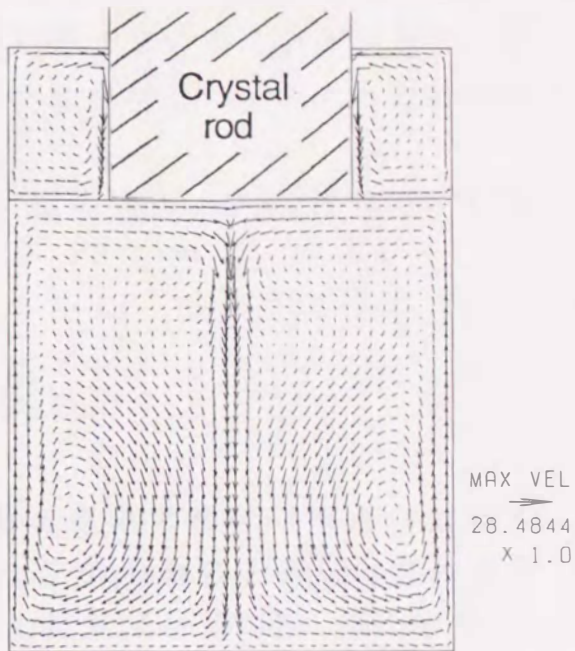


Fig. 3-26: Transient computation of average velocity components and temperature for Case (C-3).

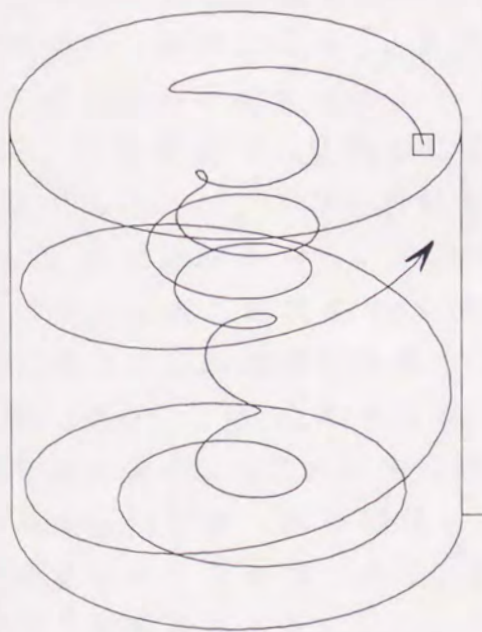




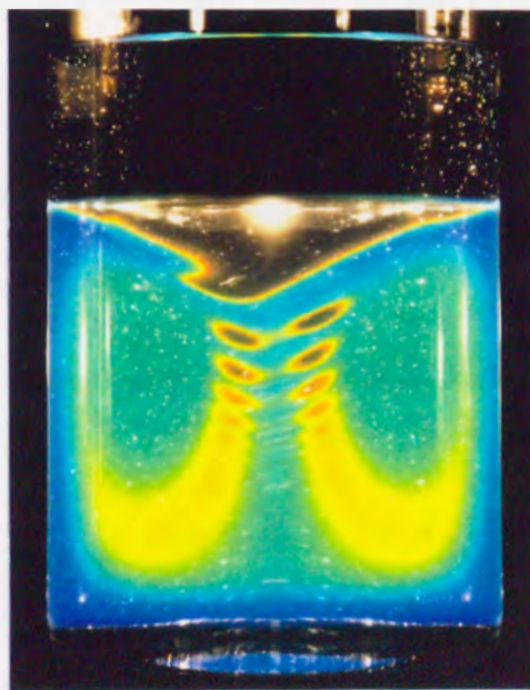
(a) Computed isotherms



(b) Computed velocity vectors



(c) Streak line



(d) Visualized picture

Fig. 3-27: Computed results and visualized isotherms for Case(C-3). Streak line consists of 355 time steps equivalent to  $\tau=0.355$ . Isotherm lines are at every 0.025 at -0.5 and 0.5.



液の流れはルツボの剛体回転の影響を強く受けていることが分かる。このためにルツボを結晶と反対方向に回転させた場合、ルツボ内の振動流を抑制する効果が見られる。

またこのCase Cにおける実験および解析結果はTable 3-8に併せて示している。

### 3.5.2 $GaAs - B_2O_3$ における数値解析

#### 3.5.2.1 結晶棒のみが回転する場合

第4.6.1節ではモデル流体を用いた可視化実験と解析結果との比較を行ったが、本節ではLEC法でよく用いられるGaAs融液と $B_2O_3$ 封液の場合の解析を行った。 $GaAs - B_2O_3$ の系における計算条件をTable 3-9に示す。この条件は有次元換算でルツボ直径4cm、融液高さ2.8cm、封液高さ1.2cm、加熱-冷却面間温度差5K、結晶回転数はCase(D-1)の場合で1rpm(=0.1047 rad/s), Case(D-2)の場合で20rpm(=2.09 rad/s)である。

Fig.3-28にCase(D-1)の場合のルツボ内平均速度と平均温度の過渡応答を示す。この場合平均速度、平均温度とも一定値に収束している。このときのルツボ内の等温線図および速度ベクトルをFig.3-29に示す。Case(D-1)では結晶棒の回転数が小さく、自然対流が優勢なため融液内部には結晶棒により冷却された低温流体がルツボ中心で下降し、ルツボ壁面で上昇している。また封液内の流れを見ると、封液の粘度が大きいため流れはほとんど見られない。このため封液内の温度分布は伝導支配となっている。

次に結晶回転数を増し、 $N_{rod}=20rpm$ としたCase(D-2)の場合の二乗平均速度と平均温度の応答をFig.3-30に示す。この場合、先のモデル流体の場合と同じく周期的な振動流がみられる。このときの無次元振動周期は $\tau=369$ となっており、これは有次元換算で27.1秒である。振動の1周期を6分割したときの、各時刻における流れ場と温度場の変化をFig.3-31に示す。図の左半分は加熱-冷却面間を10分割したときの等温線図であり、右半分は速度ベクトル線図である。融液内部には幾つかの渦がみられ、それが伸張と減衰を繰り返す、これによりルツボ内部の温度分布も変化している。また封液部は先のCase(D-1)の場合と同じように流れは殆ど見られず、温度分布も融液との界面付近を除き殆ど変化はみられない。このときのルツボ水平断面における速度ベクトル線図をFig.3-32に示す。これを見ると結晶棒付近の融液には速い周方向の流れがみられ、また封液内に



Table 3-9: Computational conditions for Case D

GaAs (subscript m ) and  $B_2O_3$  (subscript e) system

Run	D-1	D-2
$N_{rod}[rpm]$	1	20
$N_{cru}[rpm]$	0	0
$Pr_e$	$3.51 \times 10^3$	$3.51 \times 10^3$
$Gr_e$	$7.58 \times 10^{-4}$	$7.58 \times 10^{-4}$
$(Re_e)_{rod}$	$4.43 \times 10^{-3}$	$8.86 \times 10^{-2}$
$(Gr_e/Re_e^2)_{rod}$	38.6	0.0966
$Pr_m$	0.068	0.068
$Gr_m$	$8.43 \times 10^5$	$8.43 \times 10^5$
$(Re_m)_{rod}$	21.4	428.7
$(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$	1835	4.58

Table 3-10: Dimensional results for Case D

(  $\Delta\theta=5K$ ,  $h_m=28mm$ ,  $h_e=12mm$ ,  $r_{rod}=10mm$ ,  $r_{cru}=20mm$  )

Run	D-1	D-2
Oscillation period [ s ]	0	27.1
Vol. ave. vel. $U_m$ [m/s]	$2.97 \times 10^{-3}$	$1.31 \times 10^{-3}$ $\sim 2.15 \times 10^{-3}$
Vol. ave. vel. $V_m$ [m/s]	$2.67 \times 10^{-4}$	$3.14 \times 10^{-3}$ $\sim 3.36 \times 10^{-3}$
Vol. ave. vel. $W_m$ [m/s]	$3.34 \times 10^{-3}$	$2.13 \times 10^{-3}$ $\sim 2.31 \times 10^{-3}$
Vol. ave. temp. $T_m$ [ K ]	1512.89	1512.75 $\sim 1512.77$



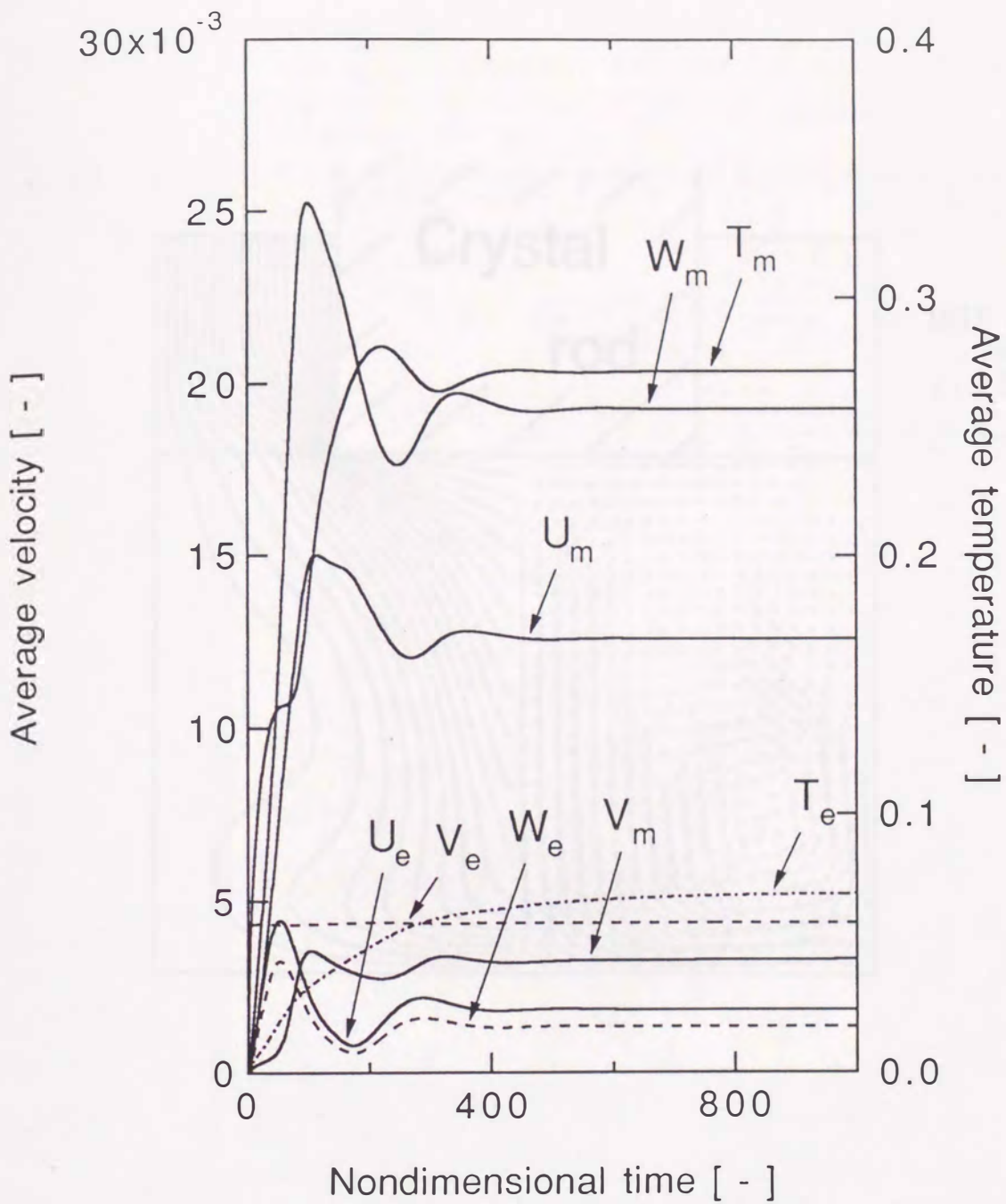


Fig. 3-28: Transient convergence of average velocity components and temperature for Case (D-1).



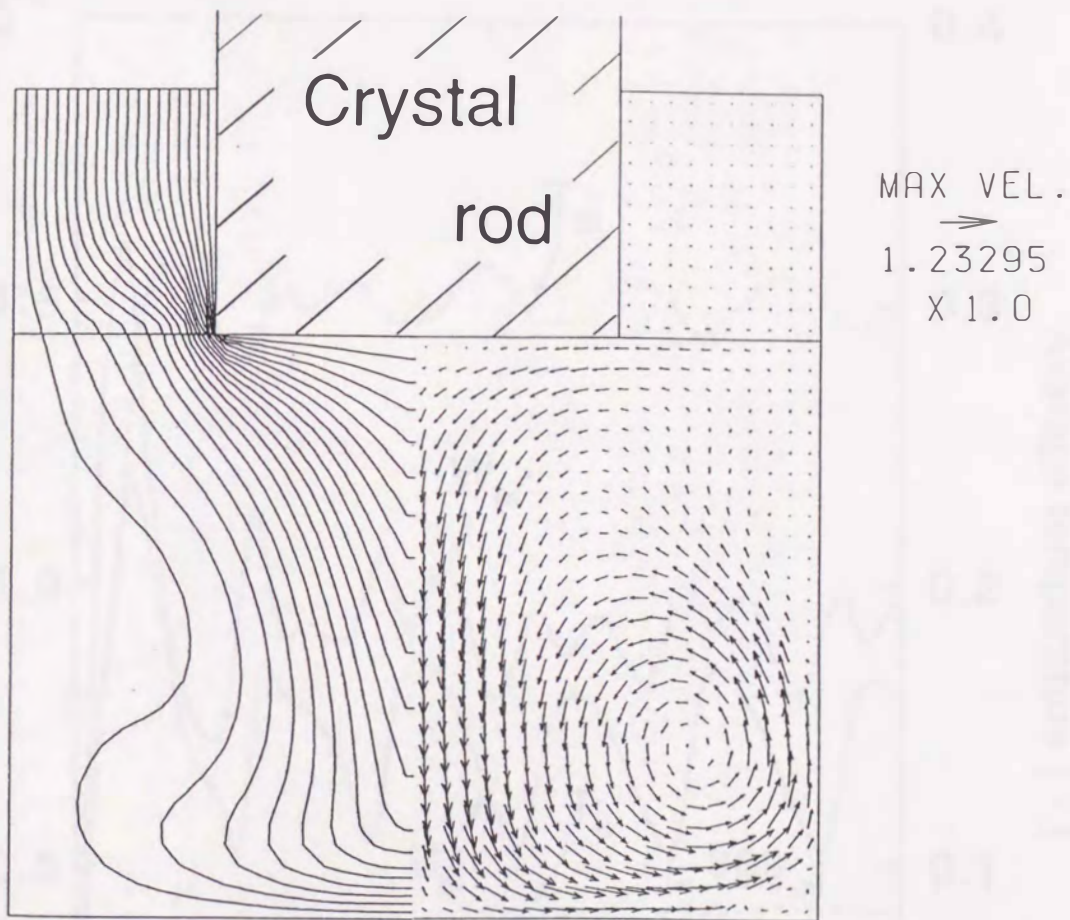


Fig. 3-29: Converged isotherms and velocity vectors for  $GaAs$  and  $B_2O_3$  system at  $(Gr_m/Re_m)_{rod} = 1835$  and  $(Gr_e/Re_e)_{rod} = 38.6$ . See Case (D-1).

Isothermal lines are at every 0.05 between -0.5 and 0.5.

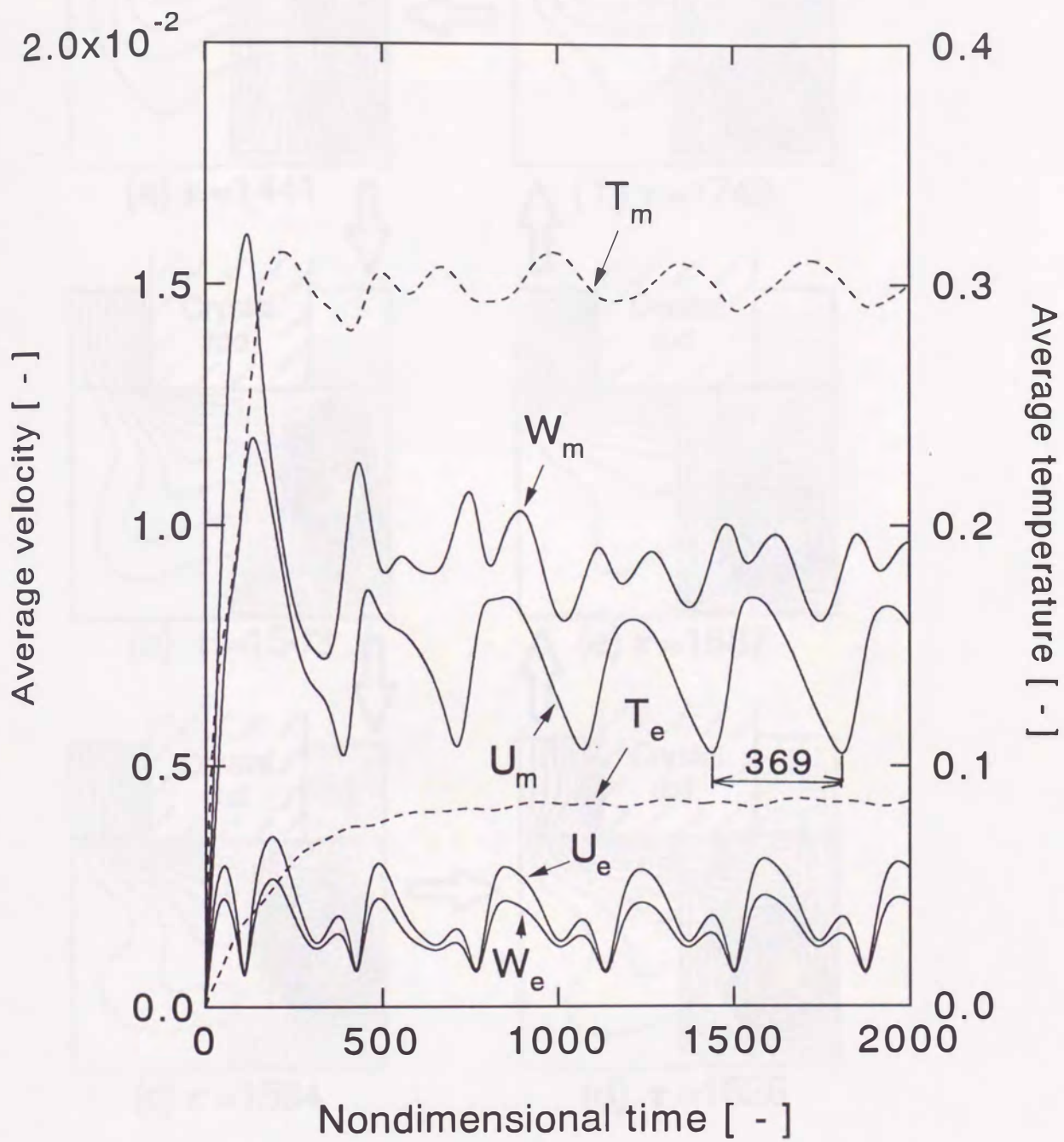


Fig. 3-30: Oscillatory change of average velocity components and temperature for GaAs and  $B_2O_3$  system. See Case (D-2).



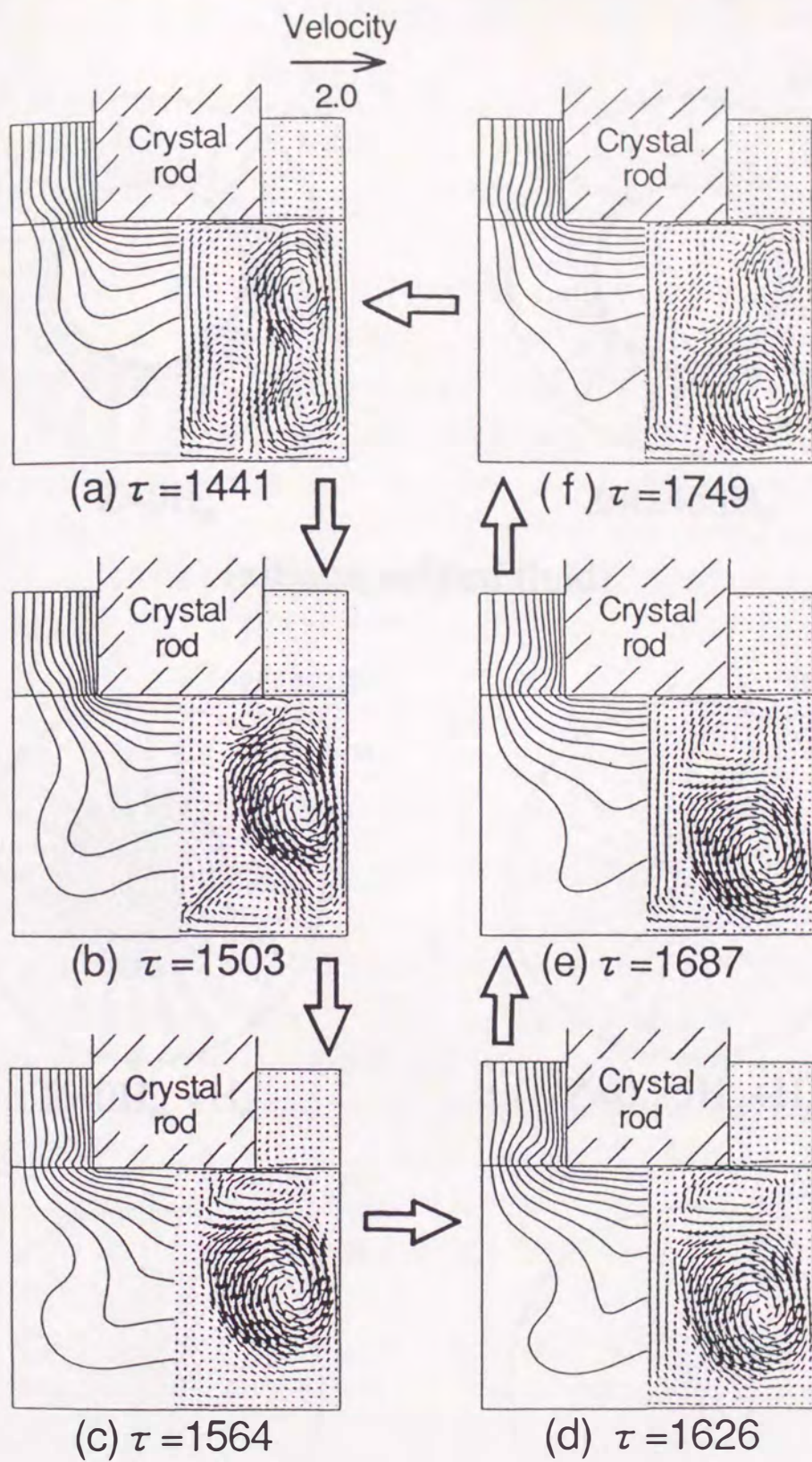
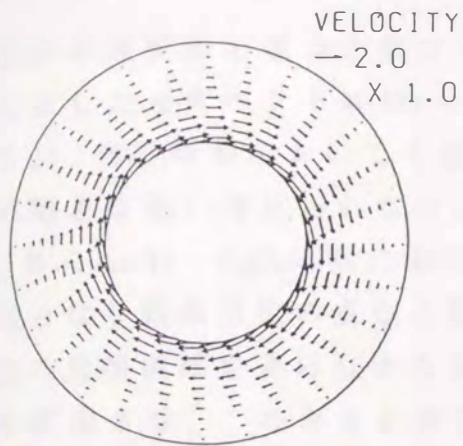
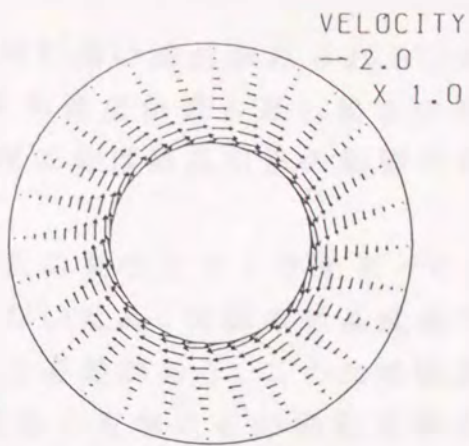


Fig. 3-31: Instantaneous isotherms and velocity vectors at six consecutive times in one period of oscillation for Case (D-2). Isothermal lines are at every 0.1 between -0.5 and 0.5.



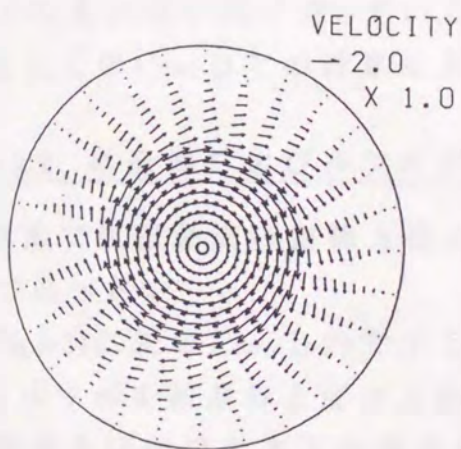


$$Z=0H_e$$

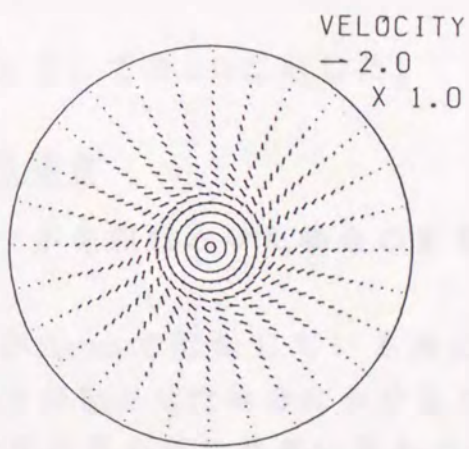


$$Z=0.458H_e$$

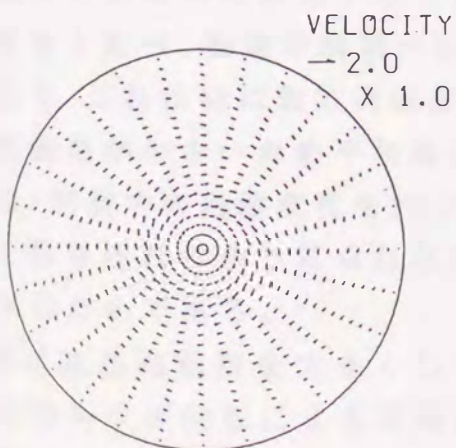
(a) Encapsulated fluid



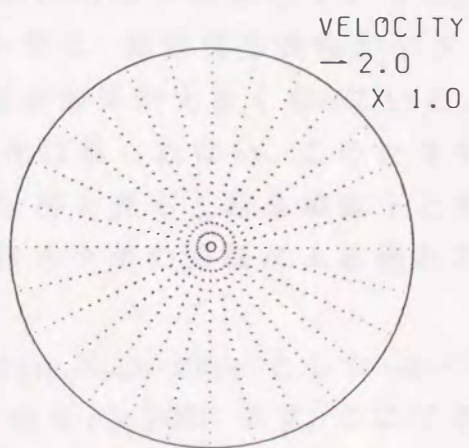
$$Z=0H_m + H_e$$



$$Z=0.25H_m + H_e$$



$$Z=0.5H_m + H_e$$



$$Z=0.982H_m + H_e$$

(b) Melt

Fig. 3-32: Velocity vectors at various levels for GaAs and  $B_2O_3$  system at  $\tau = 1441$  for Case (D-2).



も先の鉛直断面の場合と異なり、周方向の速い流れがみられる。またここに示した速度ベクトルは $\tau = 1441$ の平均速度が最も遅い場合の流れであるが、他の時刻においても周方向速度成分は結晶回転の影響が大きいため顕著な違いは見られない。

これら $GaAs - B_2O_3$ の系における振動流の発生はストライエーションの原因となり結晶品位の点から望ましくないため、実際の結晶成長では振動流の発生領域を避けながら育成を行う必要がある。このため結晶回転数を変化させ、このときの振動流の発生の有無とその振動周期を調べた。この解析結果をFig.3-33に白丸で示す。ここで横軸は浮力と慣性力の比である $(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$ であり、縦軸はルツボ内振動の周期を示している。このように結晶回転数が大きくなり、 $(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$ の値が小さくなると、 $(Gr_m/Re_m^2)_{rod} \simeq 10$ 付近で振動流が始まり、振動周期は $(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$ の値が小さくなるに従い短くなっている。

またこのCase Dでの計算結果を有次元化して表3-10に示した。

### 3.5.2.2 結晶棒およびルツボが回転する場合

本節では振動流の制御方法としてルツボを回転させた場合の影響について述べる。

Fig.3-34に先のCase(D-2)で示した結晶が20rpmで回転している系において、ルツボを結晶棒と反対方向に10rpmで回転させた場合におけるルツボ内融液及び封液の各方向成分の平均速度応答と平均温度応答を示す。このときの条件をTable 3-11のCase(E-1)に示す。図の平均速度および温度応答を見ると周期的な振動がみられるが、結晶のみが回転しているCase(D-2)の場合と比べ、振動の周期が短くなると共に、振動流の振幅が小さくなっており、これは特に軸方向速度成分で抑制効果が大きくなっている。また速度変動が小さいため平均温度には変化は見られない。このときの振動流の1周期中の過渡変化をFig.3-35に示す。図を見ると結晶棒直下とその下部を除き流れは余り見られない。これはルツボの回転による流れの抑制効果のためである。

次に結晶回転数を大きくして $N_{rod}=60\text{rpm}, N_{cru}=-10\text{rpm}$ としたCase(E-2)の場合のルツボ回転による平均速度の変化をFig.3-36に示す。ここで各方向速度成分および平均温度とも一定値に収束し、振動流は見られない。このときのルツボ内の流れをFig.3-37に示す。ルツボ内の流れは結晶直下で大きく、このため封液内でも界面付近に比較的速い流れがみられる。



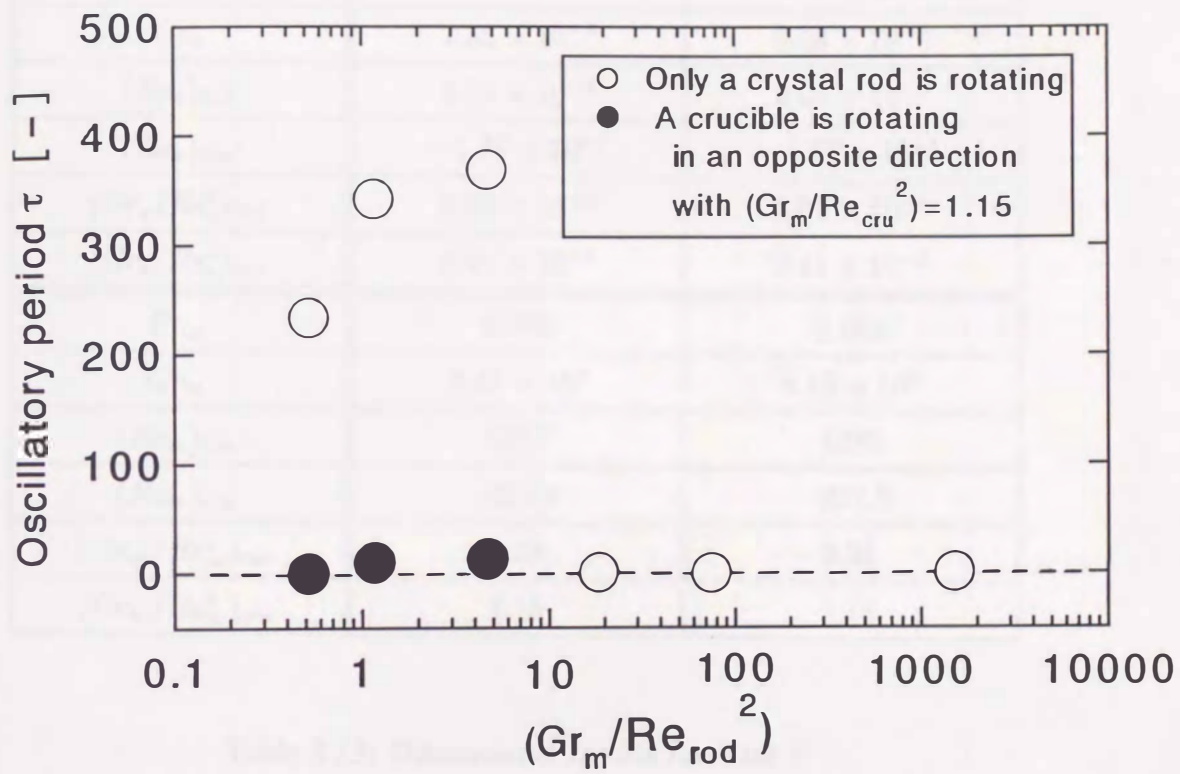


Fig. 3-33: One period of oscillation for  $(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$  at only rotating a crystal rod and also rotating a crucible at opposite direction each other.



Table 3-11: Computational condition for Case E

GaAs (subscript m ) and  $B_2O_3$  (subscript e) system

Run	E-1	E-2
$N_{rod}[rpm]$	20	60
$N_{cru}[rpm]$	-10	-10
$Pr_e$	3510	3510
$Gr_e$	$7.58 \times 10^{-4}$	$7.58 \times 10^{-4}$
$(Re_e)_{rod}$	$8.86 \times 10^{-2}$	$2.66 \times 10^{-1}$
$(Re_e)_{cru}$	$-1.77 \times 10^{-1}$	$-1.77 \times 10^{-1}$
$(Gr_e/Re_e^2)_{rod}$	$9.66 \times 10^{-2}$	$1.07 \times 10^{-2}$
$(Gr_e/Re_e^2)_{cru}$	$2.41 \times 10^{-2}$	$2.41 \times 10^{-2}$
$Pr_m$	0.068	0.068
$Gr_m$	$8.43 \times 10^5$	$8.43 \times 10^5$
$(Re_m)_{rod}$	428.7	1286
$(Re_m)_{cru}$	-857.3	-857.3
$(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$	4.58	0.51
$(Gr_m/Re_m^2)_{cru}$	1.15	1.15

Table 3-12: Dimensional results for Case E

 $(\Delta\theta=5K, h_m=28mm, h_e=12mm, r_{rod}=10mm, r_{cru}=20mm)$ 

Run	E-1	E-2
Oscillation period [ s ]	0.94	0
Vol. ave. vel. $U_m$ [m/s]	$7.74 \times 10^{-4}$ $\sim 7.96 \times 10^{-4}$	$1.62 \times 10^{-3}$
Vol. ave. vel. $V_m$ [m/s]	$1.37 \times 10^{-2}$	$1.19 \times 10^{-2}$
Vol. ave. vel. $W_m$ [m/s]	$8.65 \times 10^{-4}$ $\sim 8.66 \times 10^{-4}$	$8.38 \times 10^{-4}$
Vol. ave. temp. $T_m$ [ K ]	1512.74	1512.54



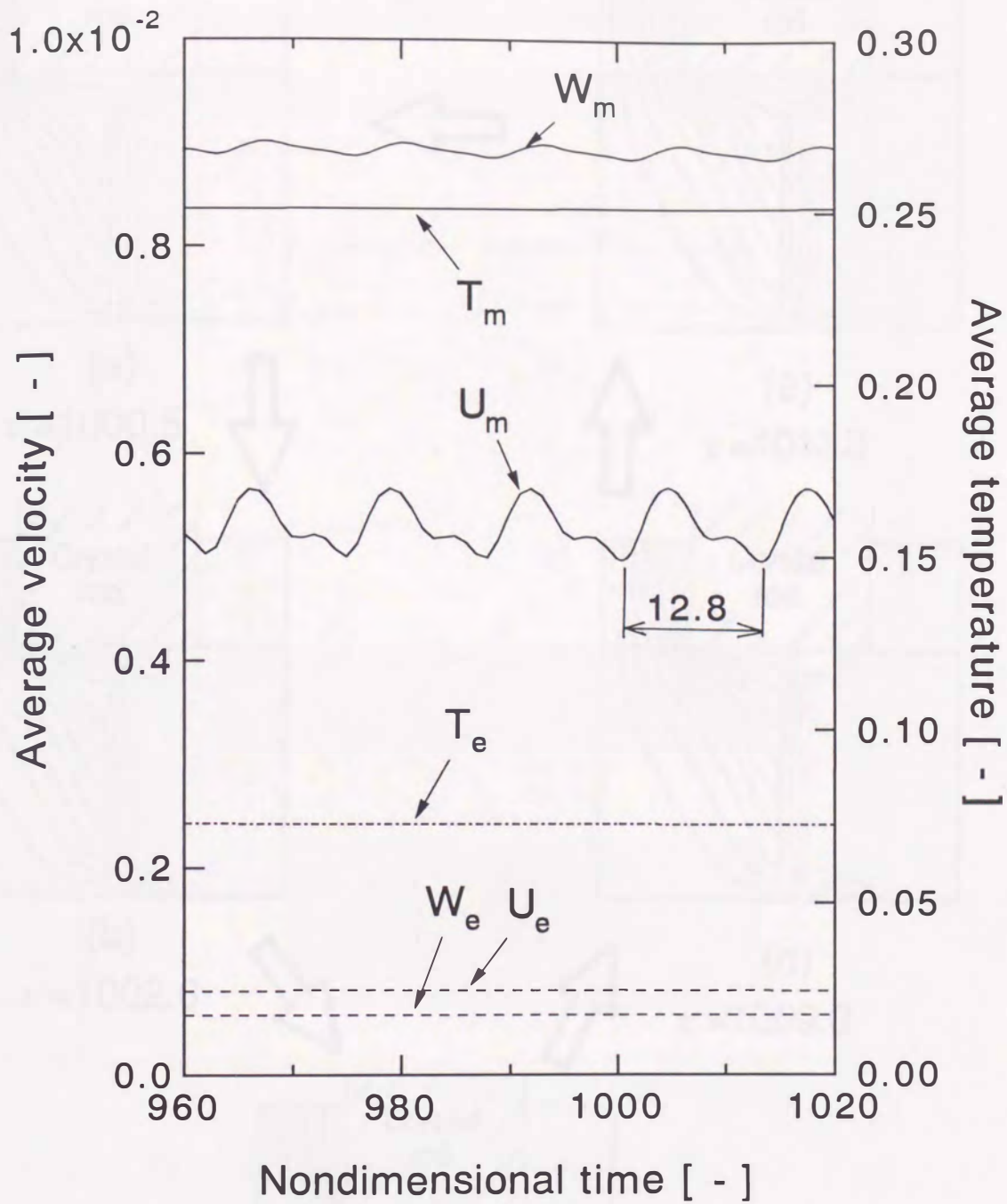


Fig. 3-34: Transient change of average velocity components and temperature for GaAs and  $B_2O_3$  system. See Case (E-1).



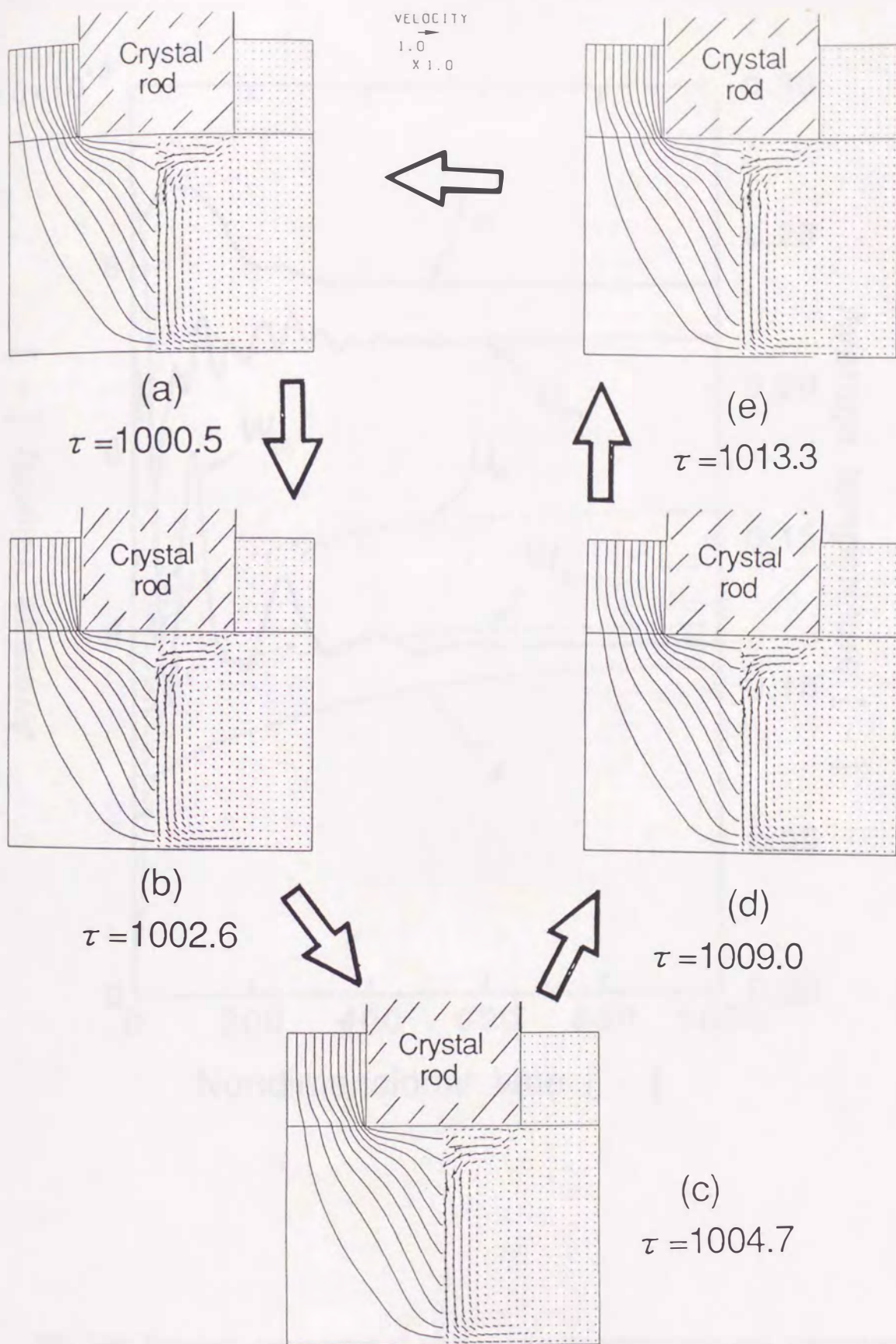


Fig. 3-35: Instantaneous isotherms and velocity vectors at five consecutive times in one period of oscillation for Case (E-1). Isothermal lines are at every 0.1 between -0.5 and 0.5.



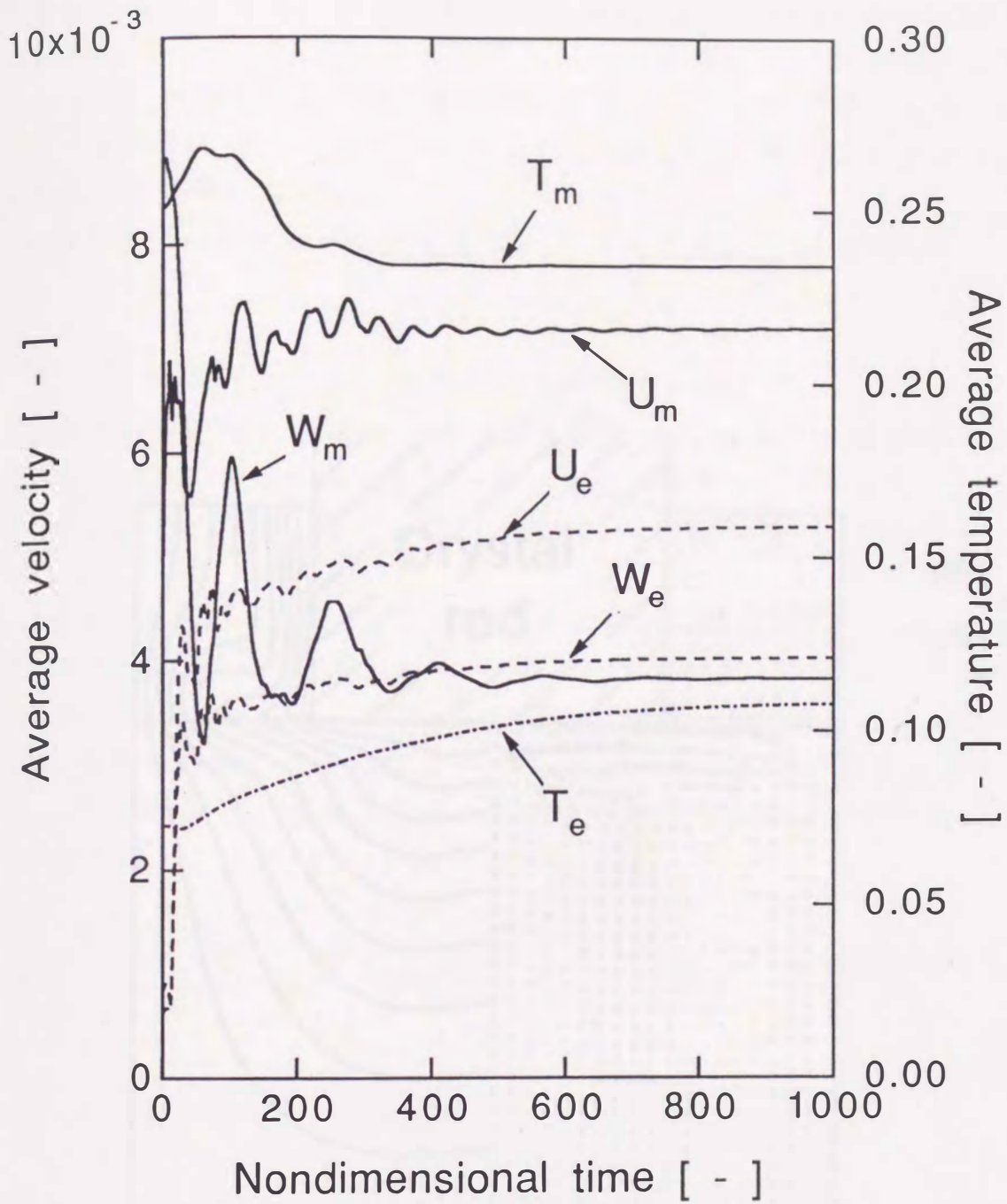


Fig. 3-36: Transient convergence of average velocity components and temperature for GaAs and  $B_2O_3$  system. See Case (E-2).



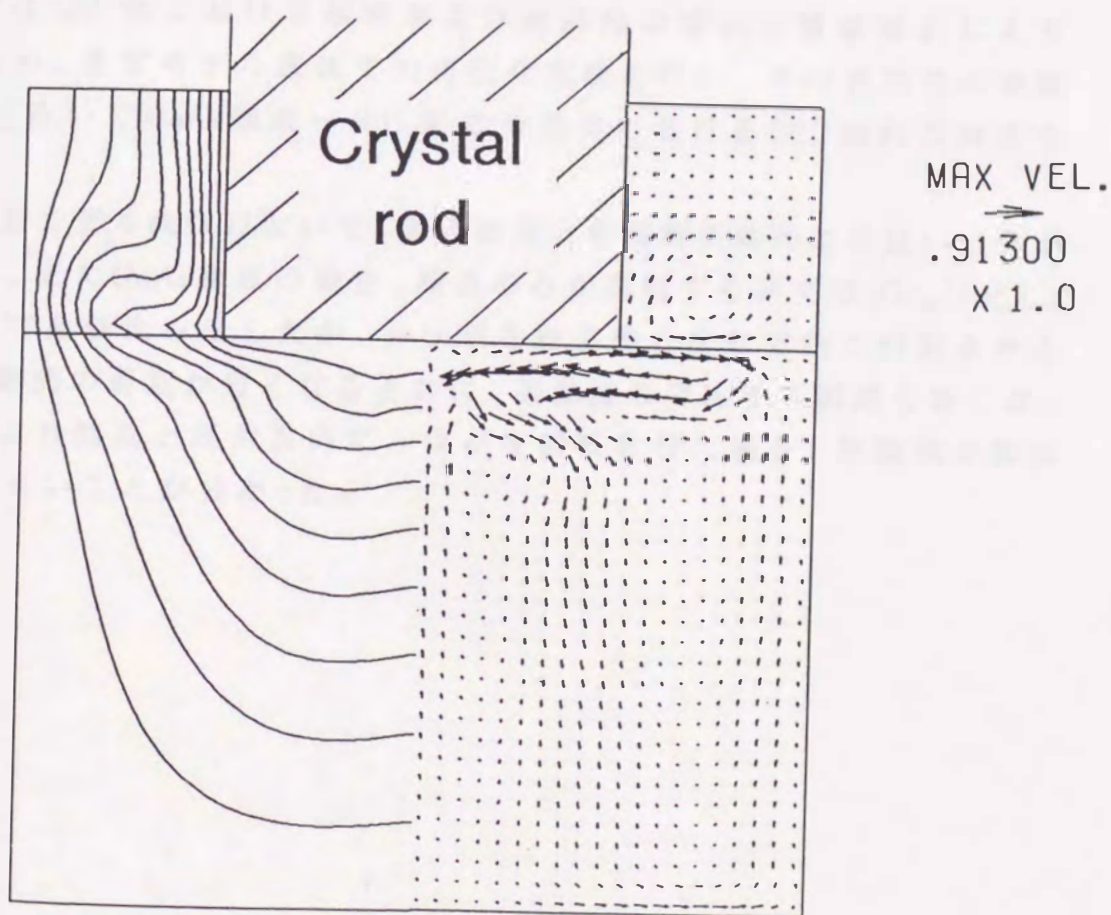


Fig. 3-37: Converged isotherms and velocity vectors for  $GaAs$  and  $B_2O_3$  system. See Case (E-2). Isothermal lines are at every 0.1 between -0.5 and 0.5.

これらの結晶及びルツボがお互いに反対方向に回転する系での、結晶回転数と振動周期との関係を前述のFig.3-33に黒丸で示す。これはルツボ回転数を-10rpmに固定し、結晶回転数のみを変化させたもので、先の結晶棒のみが回転する場合と比較してみると、ルツボが回転する場合、振動流の発生する領域が小さくなると共に、結晶棒直下とその下部を除き流れは余り見られない。

またこのCase Eの場合の結果を有次元化して表3-12に示した。

### 3.6 結 言

本章ではLEC法における融液および封液内の流れを数値解析により求めるため、まずモデル流体での可視化実験を行い、その妥当性の確認を行った。次いでGaAs融液 -  $B_2O_3$ 封液の場合におけるLEC流れの解析を行った。

この結果モデル流体において、実験結果と数値解析結果には良い一致が見られた。またGaAs融液の場合、結晶のみが回転する系では $(Gr_m/Re_m^2)_{rod}$ が10以下で振動流を呈したが、ルツボを結晶棒と反対方向に回転させた場合、振動流の周期が短くなると共に、振動流の発生する範囲も狭くなった。これより結晶と反対方向にルツボを回転させた場合、振動流の抑制効果が大きいことが分かった。