

溶解シリコンのチョクラルスキー混合対流の数値計算

尾添, 紘之
九州大学機能物質科学研究所

松井, 利夫
神戸製鋼株式会社

<https://doi.org/10.15017/6536>

出版情報 : 九州大学機能物質科学研究所報告. 2 (1), pp.143-148, 1988-06-30. 九州大学機能物質科学研究所
バージョン :
権利関係 :

溶解シリコンのチョクラルスキー混合対流の数値計算

尾添 紘之・松井 利夫*

(本論文を名誉教授柘植乙彦先生に献呈する)

Numerical Computation of Czochralski Mixed Convection for Molten Silicon

Hiroyuki OZOE and Toshio MATSUI*

The semiconducting materials such as metallic silicon and gallium arsenide are processed in a crucible at high temperature. Melted material convects under a gravitational field. In Czochralski method, the crystal silicon is pulled up with a rotation in order to keep the uniformity of the crystal component. The melted metal receives both the buoyant and the rotational centrifugal force. The resulted convection pattern depends on the combination of the parameters such as the Reynolds number, the Grashof number and the Prantl number. A stable computational code was developed and sample computations were carried out for three different values in dimensionless parameter of Gr/Re^2 . Three different flow modes were found to be stable depending on this dimensionless parameter.

1. はじめに

現在コンピュータに多用されている集積回路 (integrated circuits) はその多くが単結晶シリコン基盤の上に作られているが、その製造過程では、多結晶シリコンを熔融し、単結晶棒として引き上げることによって純度を高めるということが行われている。この過程は高温域の作業で熱移動制御が製品の品質を左右している。さて、記憶素子の一つである DRAM, Dynamic random access memory (読み書きでき、消去できる素子) では、100万個から400万個の素子を指先程の面積に集積しているが、この集積回路を組み立てる際の基盤がシリコンウェハーと言われるものである。

素子が正常に作動するためには基盤自身がきれいな結晶構造、つまり単結晶でできている必要があるということ、シリコンの単結晶棒を作ることが、一つの

重要なプロセスである。

シリコンの単結晶棒は水平 Bridgeman 法とか、Floating zone 法、チョクラルスキー (Cz) 法とよばれる方法でつくられている。Cz 法は図1に示すように、融けた多結晶 Si 液の上部に種結晶をつけ、少しずつ上にひっぱり上げて、液が固体に相変化しながら種結晶に付着し、大きく成長させていくもので、この時、製品のむら、液のむら、加熱むらをなくすため、種結晶もルツボも回転されている。雰囲気はアルゴンガスで、真空に引いてある。だいたい 1.65m 位にまで成長させる。こうしてできたシリコン棒を厚さ 0.4~0.6mm にスライスして、これを基盤として使う。材料の多結晶シリコンの製造法としてはシーメンス法とよばれるものが主流である。この様なプロセスについて文献1) に詳しくレビューがある。

さてここではより適切な製法を模索することを目指して Cz 法によって単結晶を精製する際の現象を的確に把握し、その原理を理解し、再現するために計算機シミュレーションを試みた結果について述べる。

受理日 昭和63年4月18日

*所属 神戸製鋼株式会社

Table 1. Summary of the computed system.

k	system	1	2	3
	Rout / H	0.5	0.5	0.5
	Rin / Rout	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹⁰	10 ⁻¹⁰
	Ra	10 ⁶	5.4 × 10 ⁴	1.25 × 10 ⁵
	Pr	0.054	0.054	0.054
	Ω	0.0432	0.3024	0.1728
	Re	1000	1000	1000
	Gr	1.85 × 10 ⁷	10 ⁶	2.31 × 10 ⁶
	Gr / Re ²	18.5	1	2.31
	2Ls	50	18.9	25
	Vmax	1.08	2.857	2.16

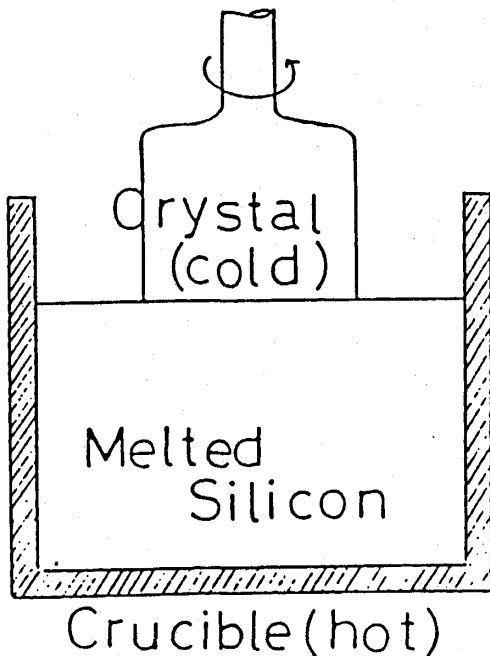


Fig. 1 Schematics of the Czochralski method

Nomenclature

- g acceleration due to gravity, [m/s²]
- Gr Grashof number = $g\beta(T_h' - T_c')h^3/\nu^2$
- H = h/r_0
- h height of the crucible, [m]
- L = $R_{out} - R_{in}$
- ℓ_s radius of a crystal rod [m]
- L_s = ℓ_s/r_0
- P = P'/P_0
- P' perturbed pressure due to convection [Pa]
- Pr Prandtl number = ν/α

- R = r/r_0
- Ra Rayleigh number = $Gr Pr$
- Re Reynolds number = $\ell_s V_{max}/\nu$
- r radius of the crucible [m]
- T = $(T' - T_0')/(T_h' - T_c')$
- T_0' = $(T_h' + T_c')/2$ [K]
- T' temperature [K]
- t time [s]
- U = u/u_0
- u velocity component in the radial direction [m/s]
- V = v/v_0
- v velocity component in the circumferential direction [m/s]
- v_{max} maximum rotational velocity at the perimeter of the crucible [m/s]
- V_{max} = v_{max}/v_0
- W = w/w_0
- w velocity component in the axial direction [m/s]

Greek letters

- α thermal diffusivity [m²/s]
- β volumetric coefficient of expansion [1/K]
- θ circumferential coordinate [radian]
- ν kinematic viscosity [m²/s]
- ρ density [kg/m³]
- τ dimensionless time = t/t_0
- Ω angular velocity of a crystal rod [rad./s]

Subscripts

- c cold wall

- h hot wall
- in inner radius
- N point in the north direction
- out outer radius of a domain
- p central point to represent pressure
- 0 reference value for a dimensionless variable

2. 数値計算モデル式と解法

Cz法の計算機シミュレーションは1970年頃から小林信之²⁾により盛んに報告されている。さらに Langlois³⁾が比較的最近多くの報告を出している。ここでは、著者らが最近行った計算について以下示す⁴⁾。

図2は円柱座標系で Cz法のルツボをモデル化したものである。上部の結晶棒は角速度Ωで回転し、低い温度に保たれる。外のるつぼは現場では回転されているがここでは取扱を容易にするため静止しているものとし、かつ高温に保たれるものとする。中心は摩擦のない実質的に大きさない Rinの半径の内筒を想定している。

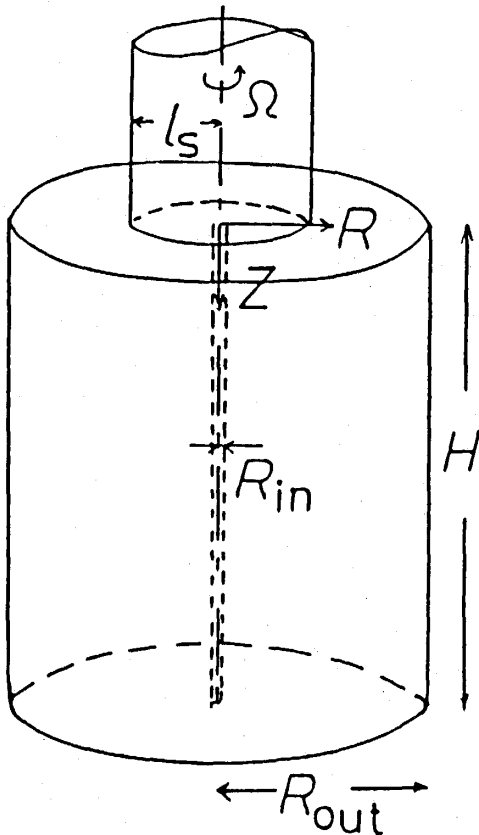


Fig. 2 Geometry of the cylindrical coordinate of the model.

計算領域はルツボ鉛直断面右半分とし、ルツボ直径=ルツボ高さ、結晶直径=ルツボの高さの半分、Rout=H/2とした。

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

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

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

$$\frac{\partial T}{\partial \tau} + U \frac{\partial T}{\partial R} + W \frac{\partial T}{\partial Z} = \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left(R \frac{\partial T}{\partial R} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} \quad (4)$$

$$\frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (RU) + \frac{\partial W}{\partial Z} = 0 \quad (5)$$

(1)~(3)式が半径方向、円周方向、軸方向の運動量収支式、(4)式がエネルギー収支式、(5)式が連続の式である。

これらの式において全ての変数の円周方向の微分=0とした軸対称性を仮定した。これは上部の結晶棒が

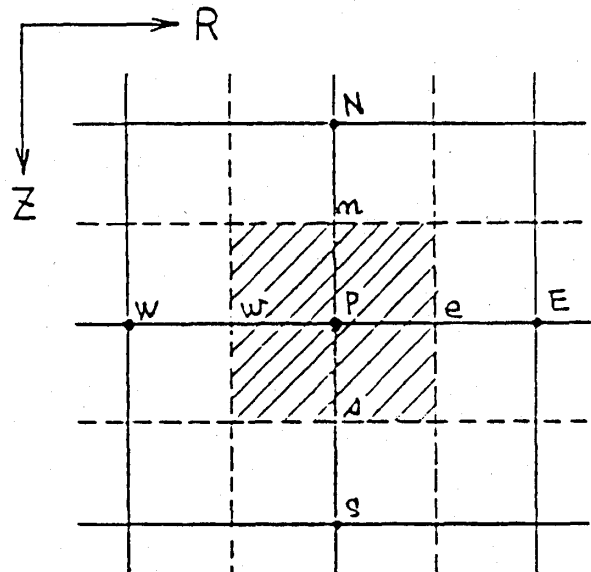


Fig. 3 Control volume for temperature

回転しているので、かなりのよい近似で成り立つものと思われたからである。しかし(2)式のように円周方向の流速の運動方程式は当然考えているので準3次元方程式と考えられる。

無次元変数は以下のように定義した。

$$R=r/r_0, Z=z/z_0, U=u/u_0, V=v/v_0, W=w/w_0, \\ \tau=t/t_0, \\ P=p'/P_0, T=(T'-T'_0)/(T'_h-T'_c), \\ r_0=z_0=[g\beta(T'_h-T'_c)/(\alpha\nu)]^{-1/3}=h/Ra_h^{1/3} \\ u_0=v_0=w_0=\alpha/r_0, P_0=\rho_0u_0^2, t_0=r_0^2/\alpha.$$

先のモデル式を差分近似して数値計算した。図3はR-Z鉛直面内の格子点によって囲まれた1つのcontrol volumeの図で、圧力、温度のスカラー量をこの大文字の点で求め、小文字の点の位置のR方向の流速成分はw、eの点でZ方向の流速成分はn、s点で定義するというstaggered meshという取り方を示す。このようにすると、連続の式が各格子で満足され、圧力が求めやすいからである。

3. 数値計算の結果

表1に三つの計算の例を表示する。主として異なるのはRa数で、 $10^6 \sim 5.4 \times 10^4$ 、 $Pr=0.054$ 、 $Re=1000$ と一定である。結果的に Gr/Re^2 が

18.5 1 2.31

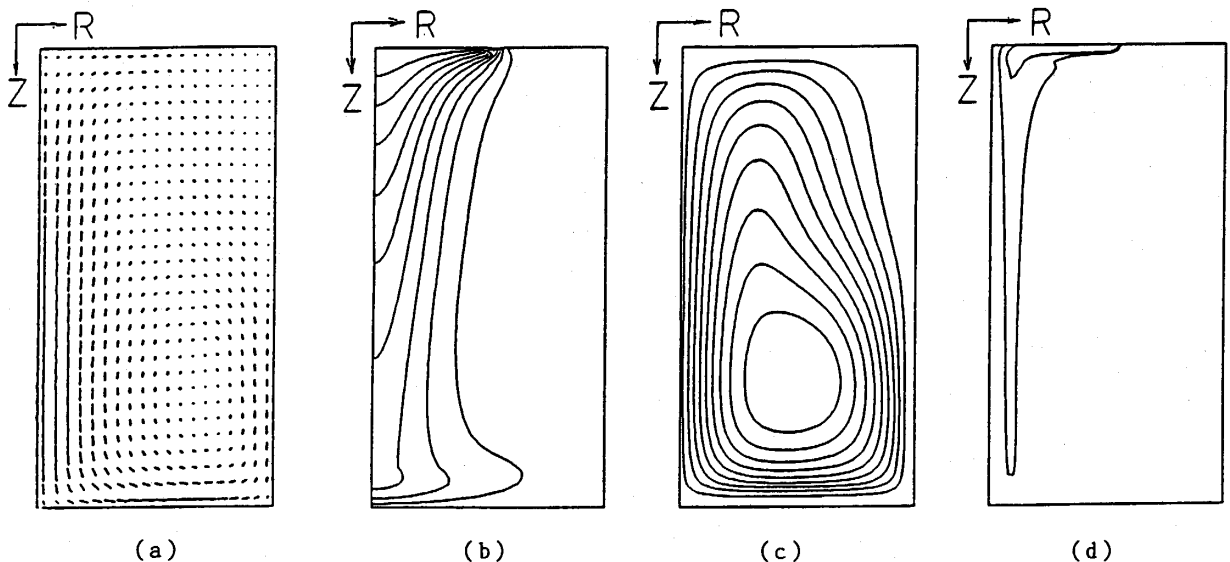


Fig. 4 Computed results for system 1 at $Ra=10^6$, $Gr/Re^2=18.5$ and $Pr=0.054$.

(a) velocity vectors (b) isothermal lines
(c) iso stream lines (d) iso circumferential velocity

と変わっている。

図4に $Gr/Re^2=18.5$ の収束解を示す。各図の左辺が円筒の中心で、右辺が回転の加熱面、下が底、上面の左半分が回転結晶で冷却面である。左側から右側に向かって流速ベクトル、等温線、等流れ函数線、一番右が、円周方向の回転流速の等高線である。この図より、流れは回転壁に沿って上昇し、中心を冷たい流れが下降していく自然対流の優勢な流れであることがわかる。また等温線が結晶面近くで下に凸になっている。

図5は $Gr/Re^2=1$ の場合で、三番目の流れ函数線図からみられるように、流れが不安定になっているが、速度ベクトルからみて、これは上部の結晶の回転に支配された遠心力支配の流れで、加熱する壁に沿って暖かい流体が下向きに流されるために、このような波打ち流れが起こっていると思われる。

そこで図6に示すように $Gr/Re^2=2.31$ としてみた。すると、今までと全く異なった二つの流れが現れた。つまり、右上の小さいうずは加熱面に沿って上昇する自然対流流れであるのに対し、左下の大きな流れは遠心力支配の流れで、そのため両者のぶつかる回転結晶面の下は上に凹な等温面を形成している。このような流れは小林が既に求めているが低プラントル数で全ての計算が行われていたわけではなかった点が異なる。

図7はこれの粒子軌跡を描いたものである。自然対流と回転による強制対流の混合した対流場はこのよう

な周期的な循環流となっていることが示唆される。さて具体的に例えばこの最後の場合の結果から有次元の値に直してみる。

るつぼの高さ 10cm

結晶棒直径 5cm

とすると、

回転角速度 $\Omega = 0.216 \text{ rad/s}$, 一回転に29秒

結晶棒先端の回転スピード 5.4mm/s

体膨張係数を β とすると

$$\Delta T = \left(\frac{1.72 \times 10^{-5}}{\beta} \right) = \frac{1.72 \times 10^{-5}}{1.41 \times 10^{-5}} = 1.22 \text{ (K)}$$

先の粒子軌跡所要時間は 400 (s) となる。ここで、小林により与えられた下記の物性値を使った。つまり、熔融シリコンの融点 1683K, $\nu = 2.7 \times 10^{-7} \text{ (m}^2/\text{s)}$, $\alpha = 5 \times 10^{-4} \text{ (m}^2/\text{s)}$, $Pr = 0.054$ である。

さて、実際のチョコラルスキー法では不純物がルツボ壁からとけ込むので、これを避けるため流れを抑えることも行われている。そのためにルツボ全体に磁場を掛けて流れないようにしている。これは導電性流体に磁場がかかるとローレンツ力が生じ、流れに抗する力が働くことを利用したものである。これらについては、またべつの機会に報告する。関連する文献として

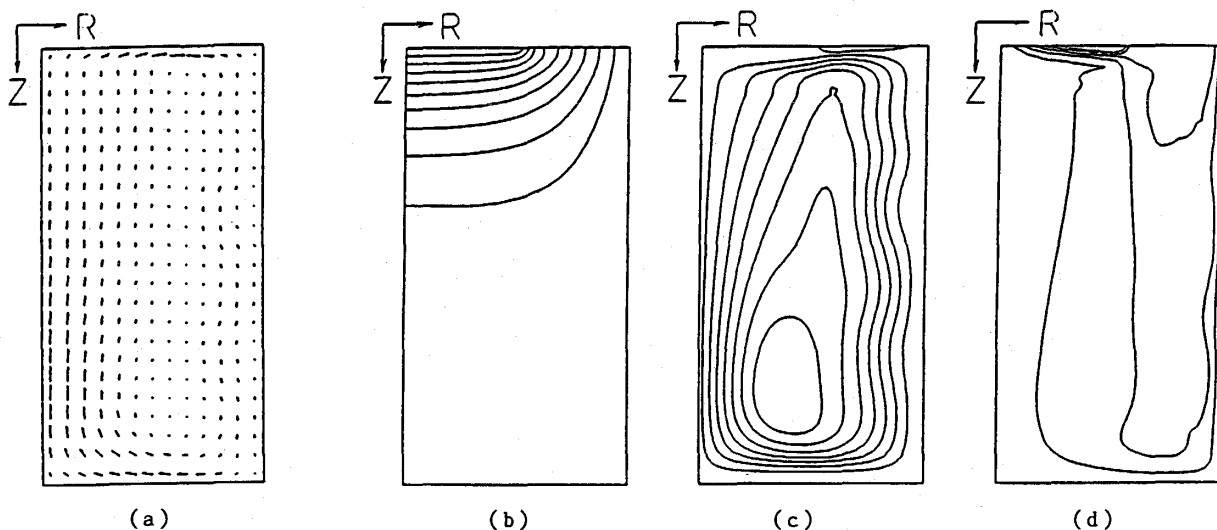


Fig. 5 Computed results for system 2 at $Ra = 5.4 \times 10^4$, $Gr/Re^2 = 1$ and $Pr = 0.054$. (a) to (d) are the same as Fig. 4.

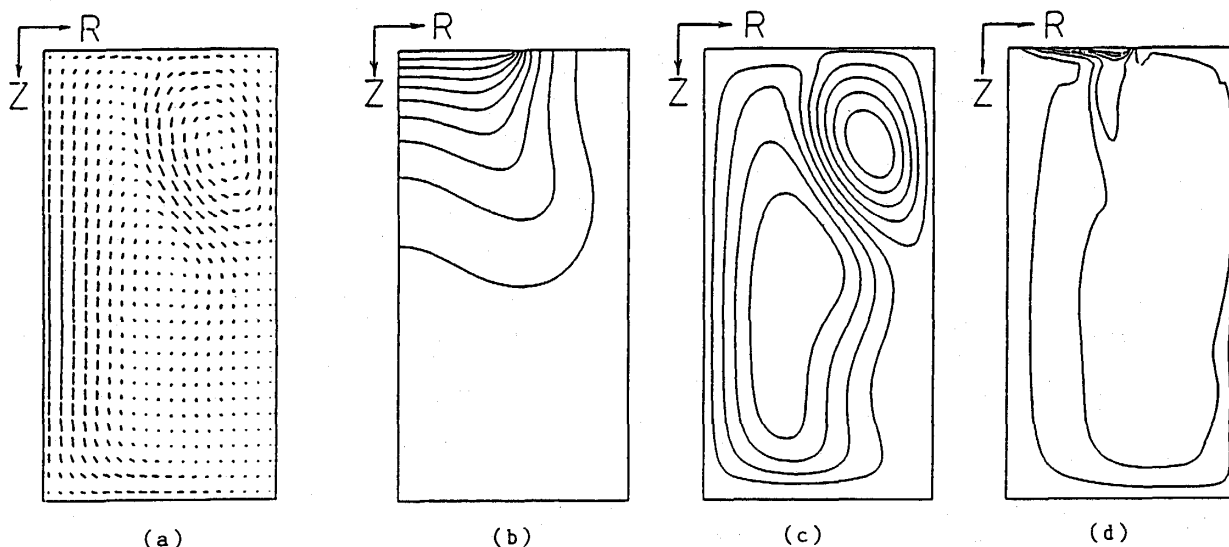


Fig. 6 Computed results for system 3 at $Ra = 1.25 \times 10^5$ and $Gr/Re^2 = 2.31$ and $Pr = 0.054$. (a) to (d) are the same as Fig. 4.

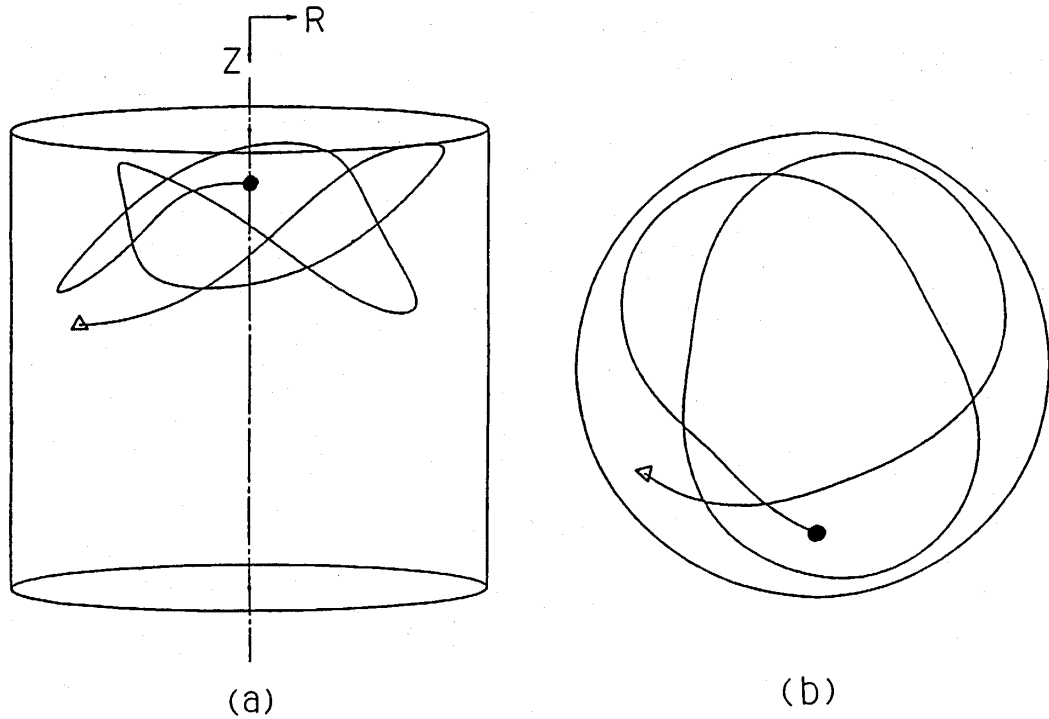


Fig. 7 Computed streak lines for system 3 at a steady state. Starting point of a tracer is indicated by a black circle located at $(R, \theta, Z) = (18, 0, 4)$ and 1000 steps with a step size $\Delta\tau = 0.5$.

は例えば以下のもの5) - 11) が、みられる。

4. 結 言

以上、チョクラスキー法による単結晶製造法の数学モデル式とその数値解析結果について述べ、 Gr/Re^2 の値によって流れの形態が全く異なってくることを示した。この様な計算法を更に拡張していくことによって、より現実的な単結晶育成過程のシミュレーションを行うことができると共に、更に優れた製造法開発につながっていくことが期待される。

参 照 文 献

- 1) 特集「超 LSI 技術への招待」, 化学工学, **51**-5, (1987), 335.
- 2) 小林信之, 応用物理, **51**-11, (1982), 1206.
- 3) Langlois, W. E., J. of Crystal Growth, **70** (1984), 73.
- 4) Ozoe, E, and T. Matsui, Proc. of the Fifth Int. Conf. in Montreal, Numerical Methods in Thermal Problems, 5-2, (1987), 1664.
- 5) 星 金治, 伊沢伸幸, 鈴木利彦, 応用物理, **53**-1, (1984), 38.
- 6) Mihelcic, M. and K. Wingerath, J. of Crystal Growth, **71**, (1985), 163.
- 7) Hjellming, L. N. and J. S. Walker, J. Fluid Mech., **164**, (1986), 237.
- 8) Ozoe, H, and E. Maruo, JSME Int. Jl., **30**-263, (1987), 774.
- 9) 宗像鉄雄, 棚沢一郎, 熱工学第948回講演会, **107**, (1987), 14-15.
- 10) 宗像鉄雄, 棚沢一郎, 熱工学第948回講演会, **108**, (1987), 16.
- 11) Tsukada, T., N. Imaishi, M. Hozawa and K. Fujinawa, J. Chem. Eng. Japan, **20** (1987), 146.