

Numerical Analysis of Velocity, Temperature and Thermal Stress Fields in Czochralski Furnace

今石, 宣之
九州大学機能物質科学研究所

塚田, 隆夫
東北大学非水溶液化学研究所

宝沢, 光紀
東北大学非水溶液化学研究所

<https://doi.org/10.15017/6552>

出版情報 : 九州大学機能物質科学研究所報告. 3 (1), pp.9-19, 1989-09-30. Institute of Advanced Material Study Kyushu University

バージョン :

権利関係 :



チョクラルスキー炉内の流速・温度分布と 熱応力解析

今石 宣之・塚田 隆夫*・宝沢 光紀*

Numerical Analysis of Velocity, Temperature and Thermal Stress Fields in Czochralski Furnace

Nobuyuki IMAISHI, Takao TSUKADA*
and Mitsunori HOZAWA*

Single crystal of oxides, such as Al_2O_3 and $LiNbO_3$, are prepared by Czochralski method. Melted oxides have larger Prandtl number than the molten semiconducting materials, thus shape of the crystal varies with operating conditions.

The shape and temperature distribution give influences on thermal stress, and the quality of the crystal. There was, however, no theoretical background to calculate thermal stress in the growing crystal, because of the complicatedly coupled non-linear phenomena in the CZ furnace. The finite element method is used to develop a computational code and sample computations are carried out for Al_2O_3 system. In this case, the crystal shape, and the thermal stress distribution are found to be dependent on the crystal rotation rate.

When crystal rotation rate is increased, with other operating conditions unchanged, the melt/crystal interface changes its shape from convex to concave toward melt, at the critical Reynolds number (Re_s^*). When $Re_s < Re_s^*$, the maximum thermal stress on the melt/crystal interface is small and insensible to Re_s . When Re_s exceeds Re_s^* , thermal stress on the interface increases very rapidly.

1. はじめに

近年のオプトエレクトロニクスの進展に伴って、半導体結晶以外にも、種々の光学的機能を有する誘電体単結晶の工業的製造が要求されている。単結晶製造法のなかでもっとも広く用いられているチョクラルスキー (Cz) 法は、シリコン分野では10インチ径もの無転位単結晶を、GaAs 分野では4インチ単結晶を量産出来るほどにまで、ある意味で完成された技術となっ

ている。しかし、誘電体単結晶製造の分野では、未だ単結晶作製法、結晶内での転位や欠陥の密度を減少させるための操作法、炉の設計法の開発に着手した段階にある。チョクラルスキー技術の問題点は、単結晶製造時に融液や結晶内で生じている温度分布、流動状態、ドーパントの濃度分布あるいは熱応力の分布などを定量的に把握する手法がない点にある。これらのマクロな諸量は、結晶内の転位、点欠陥等の制御やそれらミクロ現象の発生メカニズムを理解するために、本来必要不可欠な情報である。しかし、高温下の現象であるため実験的な解析が困難であり、また理論面でも現実

受理日 平成元年5月29日

* 東北大学・非水溶液化学研究所

的な状況下での熱・流動解析手法の開発が遅れているため、十分な検討がなされていないものである。

しかし、近年有限要素法を用いた解析手法が、チョクラスキー炉の解析に精力的に適用され、シリコン単結晶製造炉の解析¹⁾²⁾³⁾、GaAs 単結晶用液封形 Cz 炉の解析⁴⁾、GaAs 単結晶内の熱応力解析⁵⁾、GGG 単結晶炉の解析⁶⁾等が発表されている。しかし、融液のプラントル数が大きく、融液中の流動と温度分布が複雑に関連し合う誘電体（酸化物系）結晶引き上げについて、系内の流動、温度分布、単結晶の直径、固液界面の形状、および結晶中の熱応力分布状態を総括的に解析した例は見られない。本報では、Al₂O₃（サファイア）の単結晶を小型 Cz 炉で引き上げる場合を例にとって、操作条件と融液対流、結晶直径・固液界面形状との関係を論じ、更に、固液界面形状と結晶内熱応力分布状態について検討する。

2. Cz 炉のモデルと解析法

本解析では前報⁷⁾と同様に、Cz 炉の基本要素を Fig. 1 のように、一定温度のルツボ、融液、一様径の単結晶丸棒および一定温度の周囲壁から成り立つ系と近似する。高さ z'_c 半径 r'_c のルツボの温度を T'_c 、周囲壁

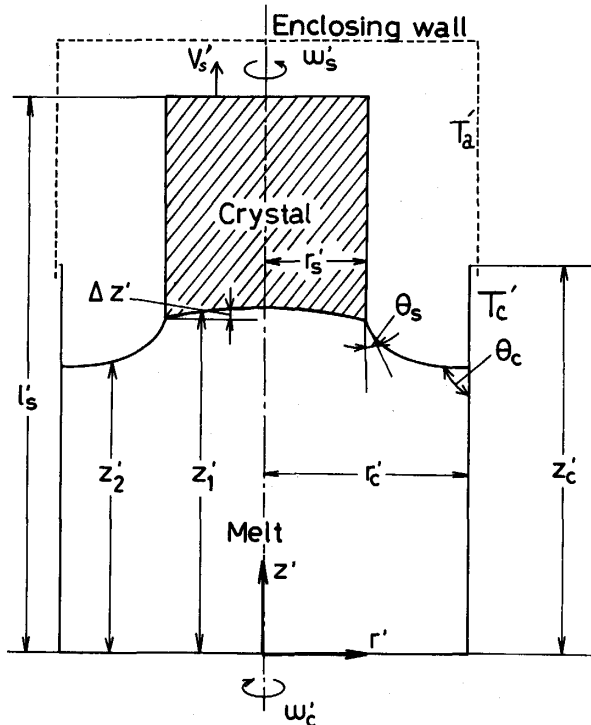


Fig. 1 Model of Cz furnace and coordinate system

温を T'_a とする。ルツボ中には体積 V'_m の融液が存在し、半径 r'_s の単結晶がルツボ中心軸と同軸で融液に接し、角速度 $\omega'_s (=2\pi n'_s)$ で回転しつつ、 V'_s なる速度で引き上げられる。高温下での操作のため融液表面および結晶外表面からの熱損失は全て輻射伝熱のみにより生じるとみなす。固液界面では融点温度にあり、凝固潜熱が放出される。引き上げ速度は遅いため系内の温度分布、流速分布は擬定常状態にあるとみなし、更に、諸量の分布は軸対称であるとす。

2.1 熱・流動および結晶形状の解析

解析に当たっては、基礎量を無次元化して標記する。但し、本解析では、代表長さとしてルツボ半径 r'_c を、代表温度として溶融温度 T'_m を採用している点に注意を要する。この理由は、結晶半径、ルツボと溶融温度との温度差などは解析中でいずれも可変量としているため、代表量として不適当なためである。

系内の流速と温度の分布に対する無次元基礎方程式は次式となる。

融液内で：

Navier-Stokes 式

$$v_l \cdot \nabla v_l = -\nabla p_l - \nabla \cdot \tau_l + G_r (T_l - 1) e_z \quad (1)$$

$$\text{ただし、} \tau_l = -(\nabla v_l + \nabla v_l^T)$$

連続式

$$\nabla \cdot v_l = 0 \quad (2)$$

伝熱式

$$P_r v_l \cdot \nabla T_l = \nabla^2 T_l \quad (3)$$

結晶内で：

伝熱式

$$P_e e_z \cdot \nabla T_s = \nabla^2 T_s \quad (4)$$

境界条件として以下の式を用いる。

ルツボ壁面で：

$$u_l = 0, v_l = 0, w_l = 0, T_l = T_c \quad (5 \sim 8)$$

周囲壁面上で：

$$T = T_a \quad (9)$$

結晶外表面上で：

$$-n \cdot \nabla T_s = q_{rad,s} \quad (10)$$

融液表面上で：

$$n \cdot v_l = 0, \tau : nt = 0 \quad (11, 12)$$

$$\tau_l : ne_\theta = 0, -n \cdot \nabla T_l = q_{rad,l} \quad (13, 14)$$

固液（結晶-融液）界面上で：

$$u_l = 0, v_l = 0, w_l = r Re_s \quad (15 \sim 17)$$

$$T_l = T_s = 1.0 \quad (18)$$

$$n \cdot \nabla T_l - \kappa n \cdot \nabla T_s = \kappa P_e S_l n \cdot e_z \quad (19)$$

中心軸上で:

$$u_l=0, \omega_l=0, \mathbf{n} \cdot \nabla v_l=0 \quad (20 \sim 22)$$

$$\mathbf{n} \cdot \nabla T_l=0, \mathbf{n} \cdot \nabla T_s=0 \quad (23, 24)$$

なお、融液表面の形状は、融液の表面張力が一般に大きく、また融液の周方向速度は比較的小さいので、遠心力、法線方向応力の効果を見捨て、次の Young-Laplace の方程式から求めた。融液と結晶外面およびルツボ壁との接触角の値はそれぞれ θ_s, θ_c で一定であると仮定した。

$$2H = BoZ_2 + \lambda \quad (25)$$

本解析では、ルツボ底から結晶頭頂までの長さ l_s のみを指定し、結晶半径、融液表面形状、固液界面形状を変数とした。融液表面形状を決定するための拘束条件として、融液体積が所定値 V_m で一定であるとの条件を用いた。すなわち、

$$V_m = \int_0^{r_s} r z_1 dr + \int_{r_s}^{1.0} r z_2 dr \quad (26)$$

を使用した。

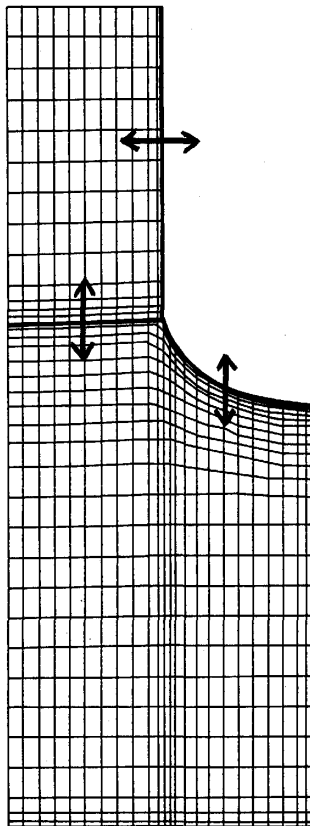


Fig. 2 Discretization of calculation domain for the finite element method

本解析において決定される結晶のマクロな形状は、次の定常熱収支式を満足する。

$$\begin{aligned} & (\text{結晶表面からの全輻射熱損失速度}) \\ & = (\text{ルツボ壁から固液界面を通しての熱供給速度}) \\ & \quad + (\text{固液界面での凝固潜熱放出速度}) \end{aligned}$$

上記の方程式系を有限要素法を用いて数値的に解くことにより、融液や結晶内の温度・流速の分布と結晶直径、固液界面形状、融液表面形状を同時に計算できる。ここでは、系内を Fig. 2 にしめすように、719個の4角形要素に分割し、各要素内に9個の節点を置いた。温度、流速に対しては双2次の、圧力に対しては双1次の試行関数を使用した。また、気液界面位置に対する試行関数には Hermit の3次関数を使用した。

輻射伝熱量の計算には、直接および反射両効果を考慮した Gebhart の計算法⁸⁾を用いた。境界条件中の、 i 要素からの輻射熱移動量 $q_{rad,i}$ は次式で算出する。

$$q_{rad,i} = R_i \left\{ T_i^4 - \left(\sum_{j=1}^N A_j \epsilon_j T_j^4 G_{ji} \right) / (A_i \epsilon_i) \right\} \quad (27)$$

G_{ij} は、表面要素 i から放射された熱量のうち、表面要素 j に到達して吸収される割合で、 $\eta_j = 1 - \epsilon_j$ とすると次式で決定される。

$$\begin{aligned} & \begin{bmatrix} (F_{11} \eta_1 - 1) & F_{12} \eta_2 & \cdots & F_{1N} \eta_N \\ F_{21} \eta_1 & (F_{22} \eta_2 - 1) & \cdots & F_{2N} \eta_N \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ F_{N,1} \eta_1 & F_{N,2} \eta_2 & \cdots & (F_{NN} \eta_N - 1) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} G_{1,i} \\ G_{2,i} \\ \vdots \\ G_{N,i} \end{bmatrix} \\ & = \begin{bmatrix} -F_{1i} \epsilon_i \\ -F_{2i} \epsilon_i \\ \vdots \\ -F_{Ni} \epsilon_i \end{bmatrix} \quad (28) \end{aligned}$$

G_{ij} は全ての表面要素 i (総数 N) について算出され、 N^2 個の成分を有する。なお、表面要素間の角関係 F_{ji} は、それぞれ数値積分法によって計算した。なお、反射の効果を考慮したため、2次元軸対称伝熱問題であるにもかかわらず、周囲壁との関係では3次元の(円周方向の全ての面との)熱交換を計算する必要がある。

2.2 熱応力の解析

結晶内の熱応力分布を解析するに当たって、次の仮定を置く。

- 1) 結晶は等方性の線形弾性体である。
- 2) 熱弾性変形は、軸対称的に発生する。

3) 熱応力以外の、体積力あるいは表面力は作用しない。

これらの仮定の下では、結晶内の構成方程式は次式で表される。

$$\sigma' = \begin{Bmatrix} \sigma'_r \\ \sigma'_z \\ \sigma'_\theta \\ \tau'_{rz} \end{Bmatrix} = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \times$$

$$\begin{bmatrix} 1-\nu & \nu & \nu & 0 \\ \nu & 1-\nu & \nu & 0 \\ \nu & \nu & 1-\nu & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{2} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon'_r - \varepsilon'_{0r} \\ \varepsilon'_z - \varepsilon'_{0z} \\ \varepsilon'_\theta - \varepsilon'_{0\theta} \\ \gamma'_{rz} - \gamma'_{0rz} \end{pmatrix}$$

$$= \mathbf{D}(\boldsymbol{\varepsilon}' - \boldsymbol{\varepsilon}'_0) \quad (29)$$

ここで、 E はヤング率、 ν はポアソン比である。 $\boldsymbol{\varepsilon}'$ は弾性歪ベクトル、 $\boldsymbol{\varepsilon}'_0$ は温度 T'_s の分布に起因する自由収縮膨張歪ベクトルで、基準温度を T'_{ref} 、材料の線膨張係数を α を置くと、次式となる。

$$\boldsymbol{\varepsilon}'_0 = \alpha (T'_s - T'_{ref}) \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (30)$$

ところで、歪 $\boldsymbol{\varepsilon}'$ と変位 \mathbf{d}' の間の関係は次式で表される。

$$\boldsymbol{\varepsilon}' = \mathbf{A} \mathbf{d}' \quad (31)$$

ここで

$$\mathbf{A} = \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial r} & 0 \\ 0 & \frac{\partial}{\partial z} \\ \frac{1}{r} & 0 \\ \frac{\partial}{\partial z} & \frac{\partial}{\partial r} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{d}' = \begin{pmatrix} u' \\ v' \end{pmatrix}$$

解析に当たって、4角形4節点要素を用い、多1次試行関数を使用する有限要素法を採用すると、ある要素内での変位 \mathbf{d}' は、要素の節点変位 \mathbf{a}' を用いて

$$\mathbf{d}' = \boldsymbol{\phi} \mathbf{a}' \quad (32)$$

と書ける。ここで、

$$\boldsymbol{\phi} = \begin{bmatrix} \phi_1 & 0 & \phi_2 & 0 & \phi_3 & 0 & \phi_4 & 0 \\ 0 & \phi_1 & 0 & \phi_2 & 0 & \phi_3 & 0 & \phi_4 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{a}'^T = (u'_1, v'_1, u'_2, v'_2, u'_3, v'_3, u'_4, v'_4)$$

である。したがって、次式が成り立つ。

$$\boldsymbol{\varepsilon}' = \begin{pmatrix} \frac{\partial \phi_1}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \phi_2}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \phi_3}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \phi_4}{\partial r} & 0 \\ 0 & \frac{\partial \phi_1}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \phi_2}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \phi_3}{\partial r} & 0 & \frac{\partial \phi_4}{\partial r} \\ \frac{\phi_1}{r} & 0 & \frac{\phi_2}{r} & 0 & \frac{\phi_3}{r} & 0 & \frac{\phi_4}{r} & 0 \\ \frac{\partial \phi_1}{\partial z} & \frac{\partial \phi_1}{\partial r} & \frac{\partial \phi_2}{\partial z} & \frac{\partial \phi_2}{\partial r} & \frac{\partial \phi_3}{\partial z} & \frac{\partial \phi_3}{\partial r} & \frac{\partial \phi_4}{\partial z} & \frac{\partial \phi_4}{\partial r} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u'_1 \\ v'_1 \\ u'_2 \\ v'_2 \\ u'_3 \\ v'_3 \\ u'_4 \\ v'_4 \end{pmatrix} = \mathbf{B} \mathbf{a}' \quad (33)$$

更に、仮想仕事の原理を適用すると、仮定3)のもとでは、

$$\int_V \delta \boldsymbol{\varepsilon}'^T \boldsymbol{\sigma}' = 0 \quad (34)$$

$\boldsymbol{\sigma}' = \mathbf{D}(\boldsymbol{\varepsilon}' - \boldsymbol{\varepsilon}'_0)$ であるから、

$$\int_V \delta \mathbf{a}'^T \mathbf{B}^T \mathbf{D}(\mathbf{B} \mathbf{a}' - \boldsymbol{\varepsilon}'_0) dV = 0 \quad (35)$$

上式が任意の $\delta \mathbf{a}'^T$ に対して成立するための条件から、 \mathbf{a}' に関する線形連立方程式

$$\left(\int_V \mathbf{B}^T \mathbf{D} \mathbf{B} dV \right) \mathbf{a}' = \int_V \mathbf{B}^T \mathbf{D} \boldsymbol{\varepsilon}'_0 dV \quad (36)$$

が得られる。この式の解として求まる変位 \mathbf{a}' を用い、

$$\boldsymbol{\sigma}' = \mathbf{D}(\mathbf{B} \mathbf{a}' - \boldsymbol{\varepsilon}'_0)$$

から結晶内熱応力分布を計算する。

本解析においては、 $\boldsymbol{\sigma}'$ 、 $\boldsymbol{\tau}'$ に多1次試行関数を用いたため、応力場は要素毎に不連続的に変化する。要素応力・要素歪から節点応力・節点歪に変換するため、最小自乗法を利用したスムーズ化法を導入した。また、本解析結果の表現法として、ある点での最大主応力 σ'_1 と最小主応力 σ'_3 ($\sigma'_1 > \sigma'_2 > \sigma'_3$) を用いた Tresca 応力 (Maximum shear stress) τ'_{max} を採用した。

$$\tau'_{max} = \frac{\sigma'_1 - \sigma'_3}{2} \quad (37)$$

解析に用いた物性値および結晶製造操作条件等を

Table 1 に示した。なお、線膨張係数 α 、ヤング率 E に対しては次式の温度依存性を持たせた。

$$\alpha = 5.129 \times 10^{-6} + 4.284 \times 10^{-9} T' - 6.621 \times 10^{-13} T'^2 \quad [K^{-1}] \quad (38)^9$$

$$E = 3.62 \times 10^5 - 60.94 (T' - 273.15) \quad (39)^{10}$$

サファイアのポアソン比 ν は不明であるが、ここではその値を 0.25 と仮定した。

3. 計算結果と考察

3.1 温度分布・流速分布・結晶形状

ルツボおよび周囲壁温度をそれぞれ、2473K, 1737K で一定に保ち、結晶の回転レイノルズ数 Re_s を 0~800 (結晶回転数にして、0~68rpm) の範囲で変えた場合の、融液内の流速分布 (周速度の等速度線および

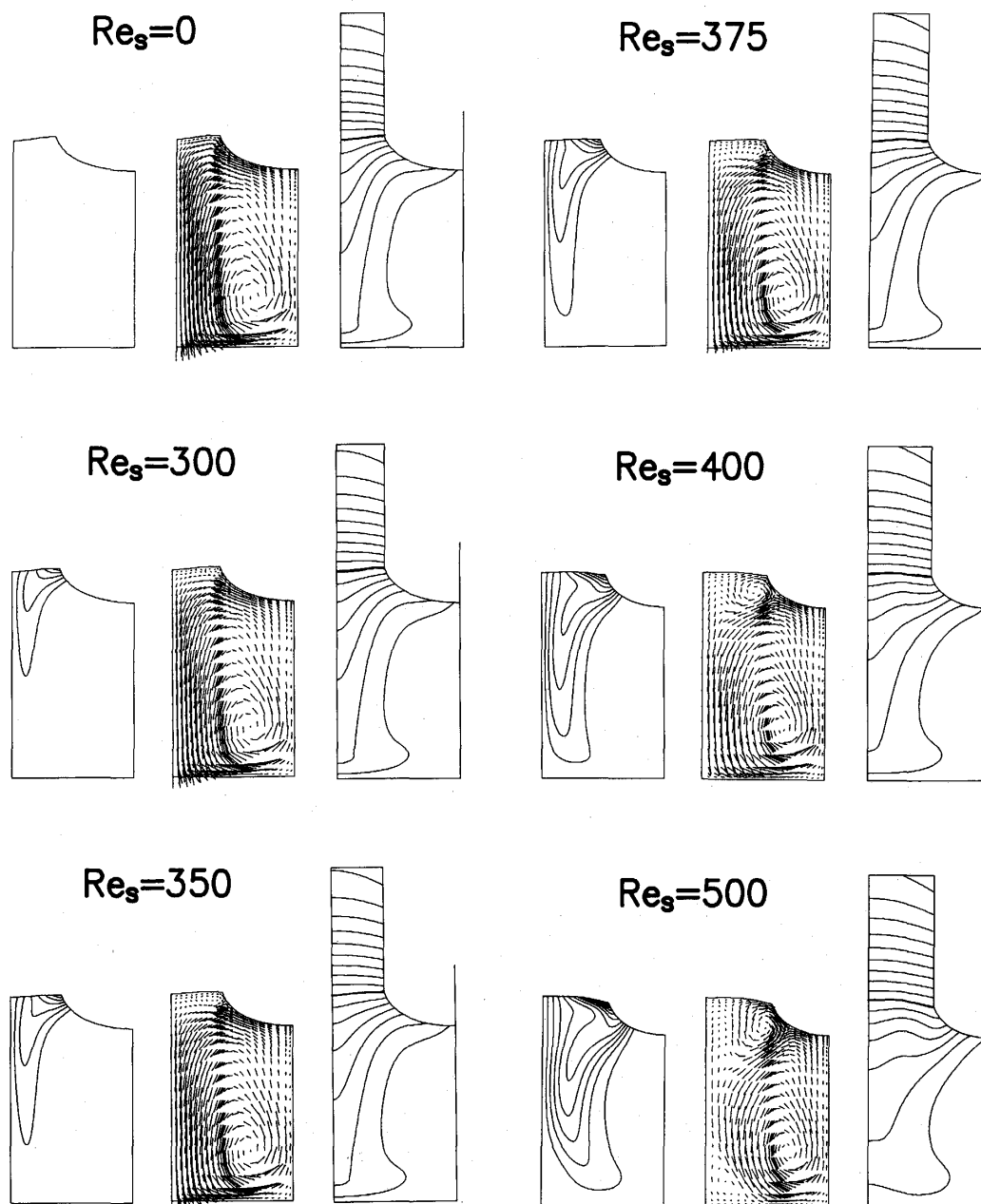


Fig. 3 Effect of crystal rotation on flow pattern and temperature distribution in the melt and crystal, with $Gr = 8.56 \times 10^5$, $T_c = 1.068$. (Contour line of azimuthal velocity, r - z velocity components and isotherms)

r - z 速度成分のベクトル表示) および温度分布を Fig. 3 に示す。

$Re_s=0$ では、融液内では自然対流が支配的で、高温のルツボ壁で熱せられた融液が結晶下部まで到達する。従って、ルツボから結晶へは効率よく熱が移動するため、結晶直径は小さい状態で熱収支が成立する。

また、冷却された融液が中心軸に沿って流下するため、固液界面(熔融温度等温線)は融液に向かって凸の形状を呈する。

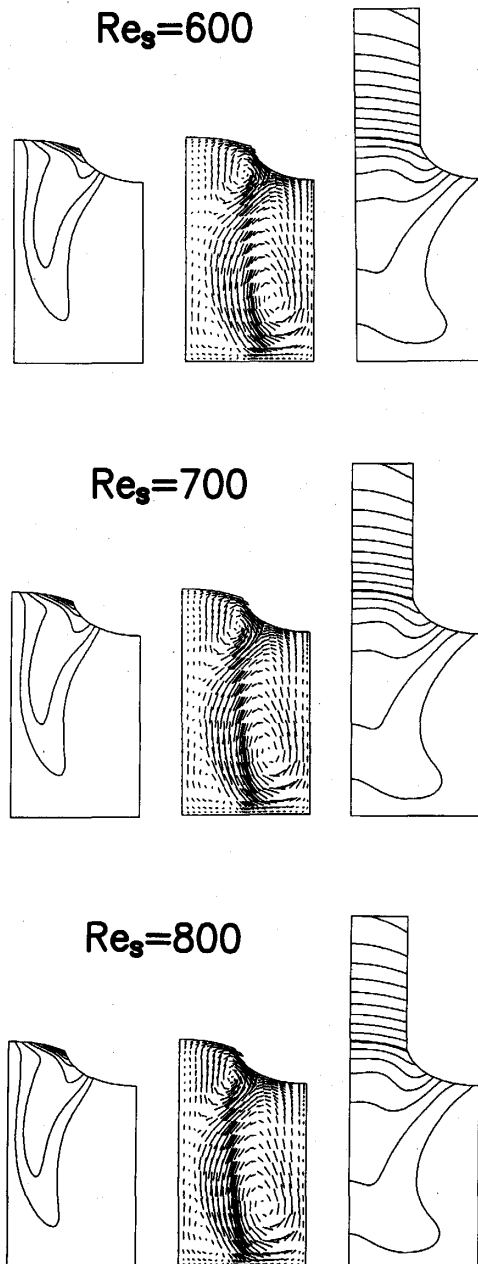


Fig. 3 Continued

Table 1 Physical properties and processing parameters used for calculations

1. Physical properties	
Melting point (T_m) [K]	2316
Heat of solidification (ΔH_s) [$J \cdot g^{-1}$]	1046
Thermal conductivity	
melt (k_l) [$W \cdot cm^{-1} K^{-1}$]	0.1
crystal (k_s) [$W \cdot cm^{-1} K^{-1}$]	0.1
Density	
melt (ρ_l) [$g \cdot cm^{-3}$]	3.05
crystal (ρ_s) [$g \cdot cm^{-3}$]	4.0
Kinematic viscosity (ν_l) [$cm^2 \cdot s^{-1}$]	0.00892
Heat capacity	
melt (C_{pl}) [$J \cdot g^{-1} K^{-1}$]	1.26
crystal (C_{ps}) [$J \cdot g^{-1} K^{-1}$]	1.26
Emissivity	
melt (ϵ_l)	0.33
crystal (ϵ_s)	0.33
crucible wall (ϵ_c)	0.3
ambient wall (ϵ_a)	0.3
Thermal expansion coefficient (β) [K^{-1}]	3.0×10^{-5}
Surface tension (γ) [$dyn \cdot cm^{-1}$]	700
Contact angle	
against crystal (θ_c) [deg]	17
against crucible (θ_c) [deg]	90
Prandtl number (Pr) [-]	0.34
2. Processing parameter	
Crucible radius (r_c) [cm]	1.0
Crucible height (z_c) [cm]	1.9
Crystal length (l_c) [cm]	2.7
Melt volume (V_m) [cm^3]	4.7
Enclosing wall area (A_w) [cm^2]	10.0
Enclosing wall temperature (T_w) [K]	1737
Crucible temperature (T_c) [K]	2473
Crystal rotation rate (n_c) [min^{-1}]	0-68
Crucible rotation rate (n_c) [min^{-1}]	0
Pull rate (V_p) [$mm \cdot min^{-1}$]	0.1
Peclet number (Pe) [-]	0.084
Stefan number (St) [-]	0.358

結晶回転を加えると、結晶の下部に、円周方向の強制対流域が形成されるため、自然対流は結晶下部へ直接到達できなくなり、ルツボから結晶への伝熱効率は低下し、結晶下部の等温度線は平坦化する。従って、結晶の直径は増大し、同時に、固液界面の凸度も減少する。結晶回転レイノルズ数が小さい場合には、結晶下部の強制対流は円周方向成分が卓越しており、半径方向の速度は小さい。しかし、結晶回転レイノルズ数の増大と共に、固液界面に沿って、外向きの半径方向速度が発達し、結晶外周部の下に強制対流による循環流が惹起される。流れの変化にともない、プラントル数の小さな半導体 (Si) の場合⁷⁾ と異なり、融液中の等温度線の分布状態も変化する。温度分布の変化にとも

ない、固液界面形状は、臨界レイノルズ数 (Re_s^*) 近傍の比較的狭い領域内で融液に向かって凸から、凹へと変化する。 Re_s^* において固液界面形状は最も平坦に近くなる。 Re_s^* 以上の回転レイノルズ数においては、回転速度の増加にともない中心軸に沿う高温融液の上昇速度が増すため、固液界面の凹度は増加し、再びルツボから結晶への伝熱効率が増加し、結晶径は減少する。結晶回転レイノルズ数による固液界面形状および結晶径の変化を、Fig. 4 に示した。

本解析の条件下での、 Al_2O_3 系の臨界レイノルズ数 Re_s^* は、375と求められた。

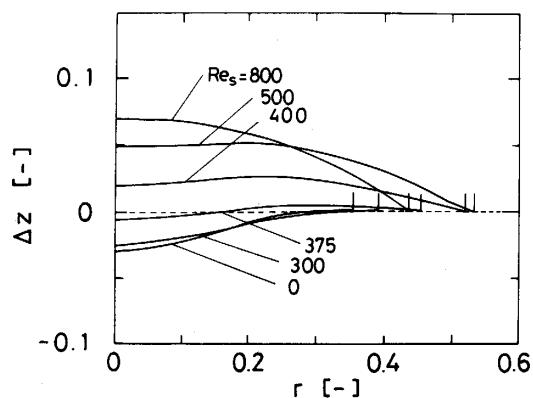


Fig. 4 Effect of crystal rotation rate on the melt/crystal interface shape

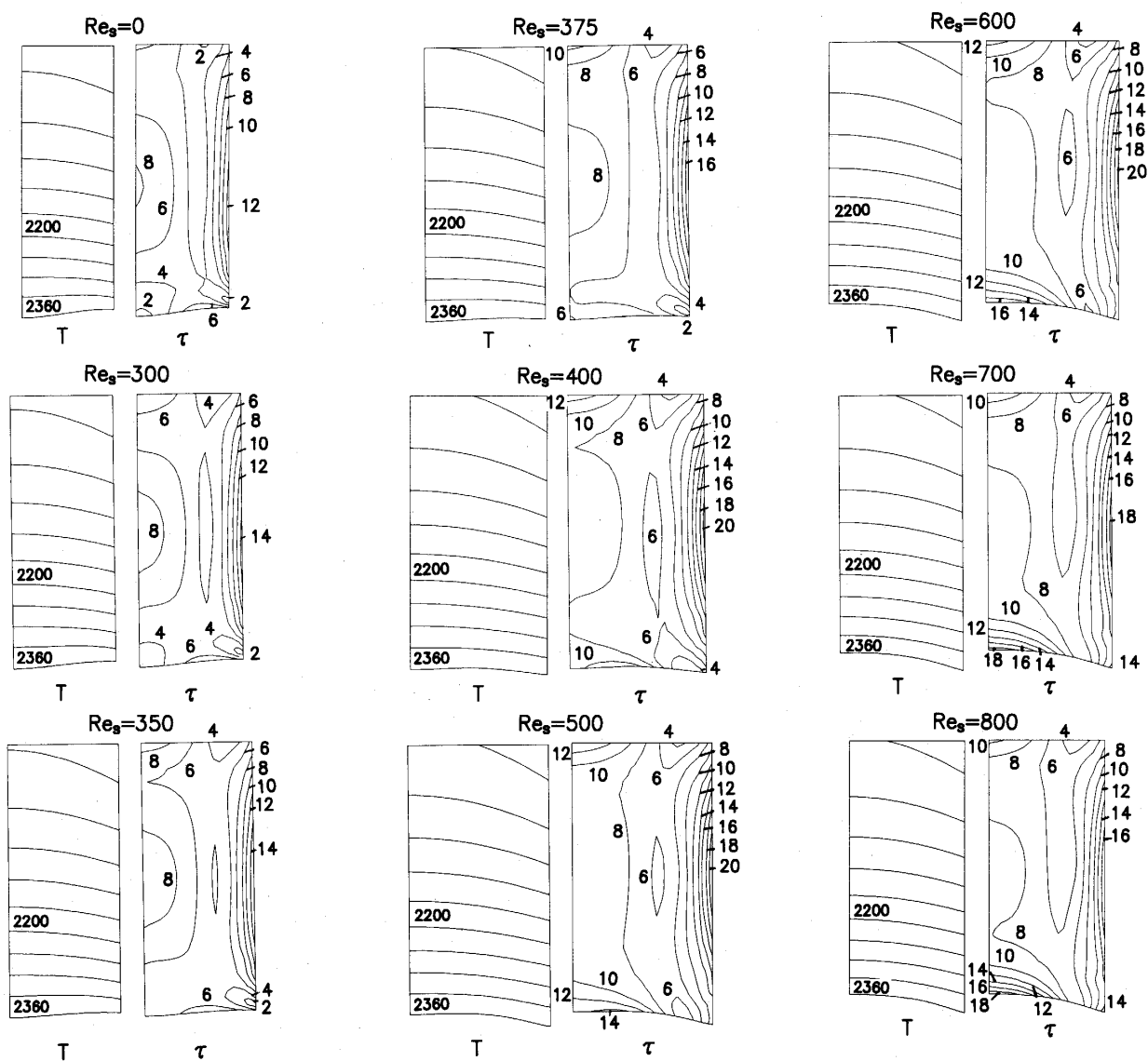


Fig. 5 Temperature and thermal stress fields in Al_2O_3 crystal, with $Gr=8.56 \times 10^5$ and $T_c=1.068$

プラントル数の大きい酸化物系のチョクラルスキー操作時に、ある臨界結晶回転レイノルズ数において、固液界面の形状が、融液に対して凸から凹へと突然変化することは、“結晶界面の反転”現象として、良く知られている。良質の結晶を作成するためには、臨界レイノルズ数の値が重要となることが多い。しかし、これまで、臨界レイノルズ数の推算方法は確立されていない。小林は¹¹⁾、強制対流と自然対流との平衡条件に対する理論的考察と実験結果に基づいて、 Re_s^* と Gr との間の半経験的相関式を提案した。

$$Re_s^* = 2.51 Gr^{0.4} (T_c - 1)^{0.4} r_s^{-0.8} \quad (40)$$

この式を利用して Re_s^* を求めるためには、結晶半径 r_s の値を知る必要がある。しかし、操作条件と r_s との間の相関が知られていないため、Eq.40 をア priori に使用することはできない。Fig. 4 に示した r_s の値を用いて、Eq. 40 から算出した Re_s^* の値は379となり、本解析は、小林が Eq. 40 の定数決定に用いた実験結果と同様な挙動を示すことが推察される。従って、本解析法のスキームを用いることにより、多くの系で一般的に、与えられた操作条件下での Re_s^* を算出可能になったと考える。

3. 2 熱応力分布

各結晶回転レイノルズ数における結晶形状、結晶内温度分布、および熱応力分布を Fig. 5 に示す。結晶径、固液界面形状の変化にともない、熱応力 (τ_{max}) の最大値、最小値および分布状態が変化する。

いずれの場合にも、結晶の側面上、ルツボの上縁の高さの近傍に大きな熱応力が発生している。これは、等温度周囲壁を仮定した本解析モデルでは、この近傍の結晶表面からの輻射熱損失が一番大きく、結晶内の温度勾配が最大となることと対応している。

ここではまず、本来結晶品質に最も重要な影響をおよぼすと思われる、固液界面近傍の熱応力分布について検討する。

固液界面上の τ_{max} の、半径方向分布を Fig. 6 に示す。

固液界面が融液に対して凸および平坦な場合 ($Re_s < Re_s^*$) には、固液界面上の熱応力は比較的小さく、中心軸近傍の熱応力が小さい逆w字形の分布を示す。一方、凹界面の場合には全般に熱応力値は増大し、中心軸近傍および周辺部近傍の熱応力が著しく増大し、w字形の分布に近づく。結晶回転レイノルズ数を変化させた場合の、固液界面上の中心軸と最外側における

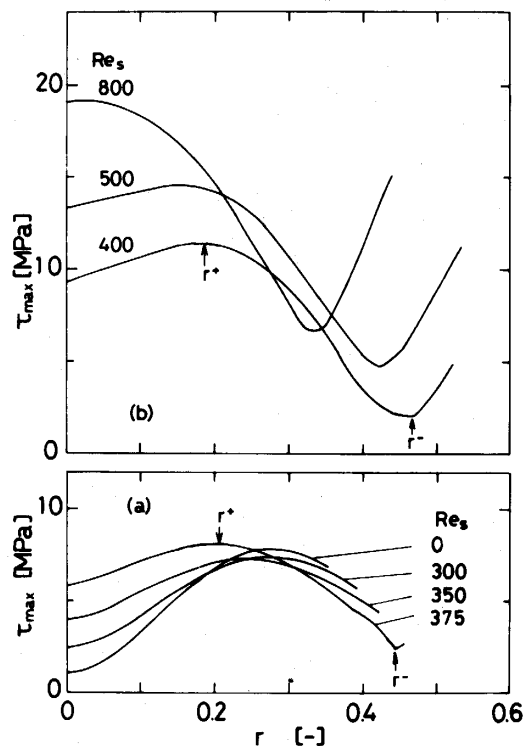


Fig. 6 Thermal stress distribution on the melt/crystal interface

熱応力を、同界面内の最大・最小値と共に Fig. 7 に示した。図中にはまた、側壁面を含めた結晶内最大熱応力値の変化も示してある。

結晶界面の反転が生じるレイノルズ数 Re_s^* (本例では $Re_s^* = 375$) より僅かに小さな Re_s において、界面上での熱応力の偏差は最小となる。 Re_s^* においては、固液界面の最外周部での熱応力は極小値を示すが、中心軸上での熱応力は既に増大している。固液界面上での熱応力の最小値は、 Re_s (固液界面形状) によってはあまり大きく変化しない。しかし、その最大値は $Re_s > Re_s^*$ において急増する。従って、界面の凹度が大きい場合には、Fig. 6 のように固液界面上に著しい熱応力分布が発生する。

酸化物や塩類の単結晶引き上げ中の固液界面上の熱応力値およびその分布状態と、結晶品質との関係はこれまで余り論議されていない。その原因は、これまで引き上げ中の結晶内の熱応力の推定法がなかったためである。一方、融液のプラントル数が小さい Si¹²⁾ や GaAs⁵⁾ 系では、炉内温度分布の解析に融液の対流を無視した伝導伝熱モデルを適用した、熱応力解析例がみられる。

しかし、プラントル数が大きく、融液対流が固液界

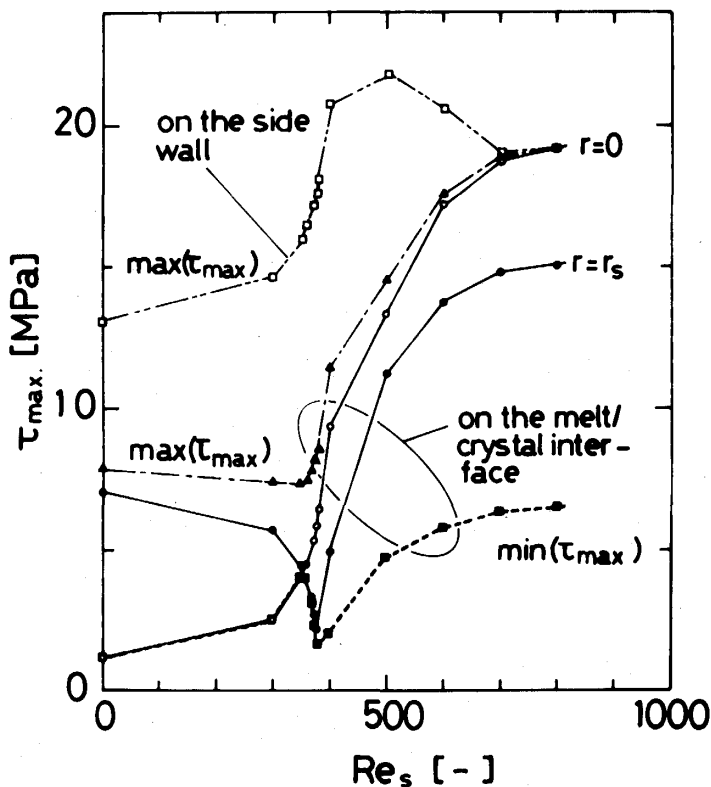


Fig. 7 Effect of Re_s on the maximum and minimum values of τ_{max} on the melt/crystal interface and in the whole crystal

面形状に大きく影響をおよぼす場合の定量的解析例はこれまで見られない。井上¹³⁾は、KClの単結晶について実験を行い、固液界面が平坦に近い場合の方が、融液に対して凸の場合よりも、欠陥密度が少ないことを見いだした。その説明のために、Billing¹⁴⁾のモデルに基づいて、“界面が凸の場合、より大きな熱応力が結晶化界面近傍に発生するためである”と論じたが、本解析の結果は、固液界面近傍の熱応力は半径方向に著しい分布を示し、単純に界面の凹凸のみによってその値の大小を推定するのは妥当ではないことを示唆している。

今後、本解析のように、現実的な固液界面形状の下での熱応力解析手法を用いて、結晶品質（欠陥密度など）と熱応力との関係を定量的に検討する必要がある。

なお、酸化物のチョクラルスキー炉では、炉頂部近傍に低温の壁を見通す開口部を有するため、結晶頭頂部に大きな熱応力が発生して割れが入ることがしばしば問題となっており、その解決のために多大な労力を費やしているのが現状である。しかし、本解析モデルでは、アフターヒータの設置等の適切な処置により、炉頂低温部を解消した場合の問題を取り扱っている。

ただし、周囲壁温度に分布をもたせれば、本解析法を、現状技術の解析に用いることも可能である。

4. 結 言

以上、簡単な数学モデルを用いて、チョクラルスキー法による Al_2O_3 の単結晶引き上げの操作条件が結晶形状や温度分布・流速分布におよぼす効果を示した。さらに、結晶内熱応力分布が結晶の形状によって変化することを示した。今後、本解析法をさらに改良し、結晶学的知見と有機的に結合することによって、高品位結晶を製造するための工学的基礎の確立へと発展することが期待される。

使用番号

A_k	=area of surface element	[m^2]
A_k	= $A_k / 2\pi r_c^2$	[—]
A_d	=enclosing wall area	[m^2]
a	=nodal displacement vector	[m]
B	=strain-displacement matrix	[1/m]
B_0	=Bond number ($=\rho_l r_c^2 g / r$)	[—]
C_p	=heat capacity	[$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$]

D	=elastic stress-strain matrix	[Pa]	V'_m	=melt volume	[m ³]
d	=displacement vector	[m]	V_m	= $V'_m/2\pi r'_c{}^3$	[—]
E	=Young's modulus	[Pa]	V'_s	=crystal pull rate	[m·s ⁻¹]
e	=unit vector	[—]	\mathbf{v}'	=velocity vectors	[m·s ⁻¹]
G_{jk}	=Gebhart's absorption factor	[—]	v'	=axial component of velocity vectors	[m·s ⁻¹]
Gr	=Grashof number ($=r'_c{}^3 \beta T'_m g / \nu_l^2$)	[—]	w'	=azimuthal component of velocity vectors	[m·s ⁻¹]
g	=gravitational acceleration	[m·s ⁻²]	u, v, w	= $u' r'_c / \nu_l, v' r'_c / \nu_l, w' r'_c / \nu_l$	[—]
H'	=mean curvature	[m ⁻¹]	z'	=axial distance in cylindrical coordinates	[m]
H	= $r'_c H'$	[—]	z'_c	=crucible height	[m]
ΔH_s	=latent heat of solidification	[J·kg ⁻¹]	z, z_c	= $z' / r'_c, z'_c / r'_c$	[—]
k'	=thermal conductivity	[W·m ⁻¹ ·K ⁻¹]	z'_1	=distance between crucible bottom and melt/crystal interface	[m]
l'_s	=crystal length	[m]	z'_2	=distance between crucible bottom and melt/gas interface	[—]
l_s	= l'_s / r'_c	[—]	z_1, z_2	= $z'_1 / r'_c, z'_2 / r'_c$	[—]
\mathbf{n}	=outward-pointing normal at the boundary	[—]	$\Delta z'$	= $z'_1 - z'_2 (r' = r'_s)$	[m]
n'	=rotation rate	[s ⁻¹]	Δz	= $\Delta z' / r'_c$	[—]
Pe	=Peclet number ($=\rho_s C_{Ps} V'_s r'_c / k_s$)	[—]	α	=linear thermal expansion coefficient of crystal	[K ⁻¹]
Pr	=Prandtl number ($\mu_l C_{Pl} / k_l$)	[—]	β	=volumetric thermal expansion coefficient of melt	[K ⁻¹]
p'	=pressure	[Pa]	γ	=surface tension	[N m ⁻¹]
p'_c	=pressure in gas phase	[Pa]	ϵ	=strain	[—]
p'_0	=pressure at reference position	[Pa]	ϵ_0	=initial strain	[—]
p	= $(p' - p'_0 + \rho_l g z') r'_c{}^2 / \rho_l \nu_l^2$	[—]	ϵ	=emissivity	[—]
q'_{rad}	=heat flux due to radiation	[W·m ⁻²]	θ_s, θ_c	=contact angle	[deg]
q_{rad}	= $q'_{rad} r'_c / k' \cdot T'_m$	[—]	κ	= k_s / k_l	[—]
R_k	=radiation number ($=\epsilon_k \sigma_B r'_c{}^3 T'_m{}^3 / k_k$)	[—]	λ	= $(p'_0 - p'_c) r'_c / \gamma$	[—]
Re	=Reynolds number ($=r'_c{}^2 \omega' / \nu_l$)	[—]	μ_l	=viscosity	[Pa·s]
r'	=radial distance in cylindrical coordinates	[m]	ν_l	=kinematic viscosity	[m ² ·s ⁻¹]
r'_c	=crucible radius	[m]	ν	=Poisson's ratio	[—]
r'_s	=crystal radius	[m]	ρ	=density	[kg·m ⁻³]
r, r_s	= $r' / r'_c, r'_s / r'_c$	[—]	σ	=stress	[Pa]
St	=Stefan number ($=\Delta H_s / C_{Ps} T'_m$)	[—]	$\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$	=principal stress	[Pa]
T'	=temperature	[K]	σ_B	=Stefan-Boltzman constant	[W·m ⁻² ·K ⁻⁴]
T'_c	=crucible temperature	[K]	\mathbf{T}'	=stress tensor	[Pa]
T'_m	=melting-point temperature	[K]	τ	= $\mathbf{T}' r'_c{}^2 / \rho_l \nu_l^2$	[—]
T'_a	=enclosing-wall temperature	[K]	τ'_{max}	=maximum shear stress	[Pa]
T, T_c, T_a	= $T' / T'_m, T'_c / T'_m, T'_a / T'_m$	[—]			
ΔT	=interval of isotherms	[—]			
t	=tangential unit vector	[—]			
u'	=radial component of velocity vectors	[m·s ⁻¹]			

ω' =angular velocity ($2\pi n'$) [rad·s⁻¹]
 ϕ, ψ, χ =trial functions [—]

< Subscripts >

l =melt
 s =crystal
 r =radial
 z =z directional
 θ =azimuthal

参 照 文 献

- 1) Atherton, L.J., J.J. Derby and R.A. Brown, *J. Crystal Growth*, **84**, 57 (1987).
- 2) Tsukada, T., N. Imaishi, M. Hozawa and K. Fujinawa, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **20**, 146 (1987).
- 3) Tsukada, T., N. Imaishi and M. Hozawa, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **21**, 381 (1988).
- 4) Derby, J. J. and R. A. Brown, *J. Crystal Growth*, **74**, 605 (1986).
- 5) Motakeff, S., *J. Crystal Growth*, **88**, 341 (1988).
- 6) Sackinger, P. A., R. A. Brown and J. J. Derby, *Int. J. Numerical Method in Fluids*, **8**, (1988).
- 7) Tsukada, T., N. Imaishi and M. Hozawa, *J. Chem. Eng. Jpn.*, **21**, 184 (1988).
- 8) Siegal, R. and J. R. Howell, "Thermal Radiation Heat Transfer", McGraw Hill, NY., (1982).
- 9) Touloukian, Y. S. ed., "Thermophysical Properties of Matter", vol.13, IFI/Plenum, NY. (1977).
- 10) Wachtman, J. B. and D. G. Lam, *J. Amer. Ceramic Soc.*, **42**, 254 (1959).
- 11) Kobayashi, N., *J. Crystal Growth*, **54**, 414 (1981).
- 12) Tsukada, T., N. Imaishi and M. Hozawa, submitted to *J. Chem. Eng. Jpn.*
- 13) 井上哲夫, 小松 啓, 日本結晶成長学会誌, **9**, 21 (1982).
- 14) Billig, E., *Proc. Roy. Soc. A235*, 37 (1956).