高周波加熱 FZ 法によるシリコン単結晶育成時の
融液内対流に関する研究*宗 像 鉄 雄^{*1}, 棚 澤 一 郎^{*2}

Study of Silicon Melt Convection during the RF-FZ Crystal Growth Process

Tetsuo MUNAKATA and Ichiro TANASAWA

Flow and temperature distributions in silicon melt during the floating zone (FZ) crystal growth process are investigated numerically and experimentally. The main purpose of the study is to clarify the effect of radio frequency (RF) heating, which is widely used in industry, on the flow and temperature fields in the melt. On the numerical study, we have made a model of RF heating and calculated not only the experimental situation but also the radiative heating case and compared each other. On the experimental study, we have visualized a flow field by using a RF-FZ furnace with real silicon and a X-ray radiography system. The result reveals that the RF induced convection becomes dominant and the direction is opposite with Marangoni convection. Further, the magnitude of the convection becomes one order high. On the other hand, strong timewise fluctuation of flow and temperature fields are obtained. This fluctuation seems to cause a strong striation in the crystal.

Key Words: Natural Convection, Flow Visualization, Numerical Analysis, Silicon Crystal Growth, FZ Method, RF Heating

1. は じ め に

シリコン単結晶は、LSI、太陽電池、サイリスタ等、多くの電子デバイスに用いられている有用な電子材料である。シリコン単結晶は、ジーマンス法によるシランガスから得られた高純度多結晶を、CZ(チョクラルスキー)法、FZ(フローティングゾーン)法、ブリッジマン法等の熔融凝固法により単結晶化している。現在の主流は、CZ法であり、市場に出回っている製品は12"の単結晶から作られている。なお、通産省が行っているスーパシリコンプロジェクトでは、2000年までに16"の単結晶をCZ法を用いて引き上げる計画である。CZ法が多用される理由は、大口径の単結晶を比較的容易に育成できるためであるが、CZ法やブリッジマン法では、石英るつぼを用いるため、シリコン融液中にるつぼに含まれている酸素等の不純物が溶け込み、得られる結晶の品質を低下させるという欠点を本質的に有する。一方、FZ法では、このようなるつぼを用いないため、高純度の単結晶育成が可能であるが、

この場合には、大口径の融液柱を保持することが困難なため、6"程度の単結晶までしか現在の技術では達成されていない。しかし、今後の技術革新により、FZ法による大口径高純度シリコン単結晶の育成が可能になる可能性もある。

このような大口径高品質の単結晶を育成するためには、単結晶育成時の融液内対流、固液界面形状、自由液面形状、結晶内温度・熱応力分布等の情報が必要である。特に、融液内対流の構造が、固液界面形状、結晶内熱応力分布に大きな影響を与えるため、融液内対流の構造に関する知見を得ることが重要である。

CZ法に関しては、実際のシリコン融液に対しX線を用いた流れ場の可視化⁽¹⁾および数値計算⁽²⁾により実験的・解析的に融液内対流の構造が明らかになりつつある。一方、FZ法に関しては、実験的には、主としてマランゴニ対流を解明するため、赤外線加熱下における流れ場の可視化を行ったもの⁽³⁾しか得られておらず、工業的に多用されている高周波加熱下での融液内対流は観察されていない。また、解析的には、実験と比較する目的でマランゴニ対流に関する解析を行ったものが多く、高周波加熱下における計算は若干行われている⁽⁴⁾程度である。しかし、この場合でも、ワークコイル形状や供給電流に依存する対流構造となって

* 原稿受付 1997年8月19日。

^{*1} 正員、工業技術院機械技術研究所(☎305-8564 つくば市並木1-2)。^{*2} 正員、東京農工大学工学部(☎184-8588 小金井市中町2-24-16)。

いると考えられるためはん用性に欠け、また、実験データがないため計算結果の検証が行われていないなどの不備を有している。したがって、融液内対流に対する高周波加熱の影響については、工業的に多用されているにもかかわらずまだ明らかにされていない。

本研究は、FZ法におけるシリコン融液内対流に与える高周波加熱の影響を数値シミュレーションおよびX線可視化装置を用いた融液内対流の観察により明らかにしようとするものである。

記 号

- A : ベクトルポテンシャル
 B : 磁束密度
 Bi : ビオ数 $= (hR_s)/\lambda$
 C_p : 比熱
 E : 電場の強さ
 EM_1 : 無次元電磁場パラメータ
 $= (\mu_e^2 J_0^2 \sigma_e \omega_e R_s^6) / (2\rho_0 \nu^2)$
 EM_2 : 無次元電磁場パラメータ
 $= (\mu_e^2 J_0^2 \sigma_e \omega_e^2 R_s^6) / (2\rho_0 \nu T_m C_p)$
 EM_3 : 無次元電磁場パラメータ $= \mu_e \sigma_e \omega_e R_s^2$
 EM_4 : 無次元電磁場パラメータ $= (\mu_e J_0^2 R_s^4) / (2\mu \nu)$
 f_e : 電磁力
 g : 重力の加速度
 h : 熱伝達率
 I : 全電流密度 $= J + j$
 J : コイル電流密度
 j : 誘導電流密度
 Ma : マランゴニ数 $= (\sigma_T T_m R_s) / (\alpha \mu)$
 p : 圧力
 Pr : プラントル数 $= \nu / \alpha$
 q_e : 発熱密度
 Ra : レーレー数 $= (g \beta_T T_m R_s^3) / (\alpha \nu)$
 R_{ci}, R_{co} : 無次元ワークコイル内, 外半径
 Rd : 放射-伝導相互作用パラメータ
 $= (\epsilon \sigma_{SB} T_m^3 R_s) / \lambda$
 R_{max}, Z_{max} : 無次元計算領域
 R_s : 結晶および原料の半径
 R_{wc} : ワークコイル位置
 r, z : 座標
 T : 温度
 T_m : シリコンの融点
 t : 時間
 V : 流速
 v : 速度ベクトル
 Z_c, Z_f : 無次元固液界面位置

- Z_{cl}, Z_{ch} : 無次元ワークコイル下, 上位置
 α : 温度拡散係数
 β_T : 体膨張係数
 $\delta(R_{wc})$: ワークコイル位置を示す関数
 $(=1 \text{ ワークコイル位置})$
 $(=0 \text{ ワークコイル以外の位置})$
 ϵ : 放射率
 $\varphi: \theta$ 方向に関する修正ベクトルポテンシャル
 λ : 熱伝導率
 μ : 粘性係数
 μ_e : 透磁率
 ν : 動粘性係数
 ρ_0 : 密度
 σ_e : 導電率
 σ_{SB} : ステファン-ボルツマン定数
 σ_T : 表面張力の温度係数
 ω : 渦度
 ω_e : 電源周波数の角速度
 ψ : 流れ関数
 添 字
 a : 周囲
 c, s : $\cos, \sin$ 成分
 r, θ, z : r, θ, z 成分

2. 数値解析の方法

数値解析に用いたFZ法のモデルを図1に示す。本解析では、(1)系は軸対称、(2)固液界面形状および自由表面形状は平たん、(3)ワークコイルは1ターン矩形断面、(4)AC電流がワークコイルに供給される、(5)結晶および原料は回転しない、(6)電磁場に与え

Fig. 1 The model for FZ analysis

る対流の影響はないと仮定した。

2.1 電磁場のモデル化 マクスウェルの式より、対流の影響が無視できる場合、以下の方程式が得られる。

$$\text{rot } \mathbf{B} = \mu_e \mathbf{I} \quad (1)$$

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B} / \partial t \quad (2)$$

$$\mathbf{I} = \sigma_e \mathbf{E} \quad (3)$$

$$\text{div } \mathbf{B} = 0 \quad (4)$$

$$\text{div } \mathbf{E} = 0 \quad (5)$$

ここで、クーロンゲージ $\text{div } \mathbf{A} = 0$ を満足するベクトルポテンシャル $\mathbf{A}$ を $\mathbf{B} = \text{rot } \mathbf{A}$ として導入すると、式(4)は自動的に満足され、式(1)は、軸対称系で以下のようになる。

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial \varphi}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right) = -\mu_e \mathbf{I}_\theta \quad (6)$$

ここで、 $\varphi (= r \mathbf{A}_\theta)$ は、修正ベクトルポテンシャルである。次に、コイルに交流電流を印加するため、 φ は以下のように書ける。

$$\varphi = \varphi_c \cos(\omega_e t) + \varphi_s \sin(\omega_e t) \quad (7)$$

式(7)を式(6)に代入し、式(2)、(3)の関係をを用いると、

$$\frac{\partial^2 \varphi_c}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \varphi_c}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \varphi_c}{\partial r} = \mu_e \sigma_e \omega_e \varphi_s \quad (8)$$

$$\frac{\partial^2 \varphi_s}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \varphi_s}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \varphi_s}{\partial r} = -\mu_e (r \mathbf{J}_\theta + \sigma_e \omega_e \varphi_c) \quad (9)$$

なる関係が得られる。ここで、 $\mathbf{I} = \mathbf{J} + \mathbf{j}$ なる関係を用い、コイル電流密度は、 $\mathbf{J}_\theta \sin(\omega_e t)$ で表現されると仮定した。以上より、電磁場は適当な境界条件の下に、式(8)、(9)を解くことにより得られる。

融液内に発生する誘導電流密度 $\mathbf{j}_\theta$ は、式(2)、(3)およびベクトルポテンシャルの定義より、以下のように求まる。

$$\mathbf{j}_\theta = -\frac{\sigma_e}{r} \frac{\partial \varphi}{\partial t} \quad (10)$$

高周波加熱による時間平均発熱密度は、

$$q_e = \frac{\omega_e}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega_e} \frac{j_\theta^2}{\sigma_e} dt \quad (11)$$

と定義されるため、式(7)、(10)の関係を上式に代入し、最終的に以下の式が得られる。

$$q_e = \frac{\sigma_e \omega_e^2}{2r^2} (\varphi_c^2 + \varphi_s^2) \quad (12)$$

次に、融液の流れに影響を及ぼす電磁力は、 $\mathbf{j} \times \mathbf{B}$ で定義され、軸対称と仮定した本解析では、時間平均することにより以下のように導かれる。

$$f_{er} = \frac{\sigma_e \omega_e}{2r^2} \left(\varphi_c \frac{\partial \varphi_s}{\partial r} - \varphi_s \frac{\partial \varphi_c}{\partial r} \right) \quad (13)$$

$$f_{ez} = \frac{\sigma_e \omega_e}{2r^2} \left(\varphi_c \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} - \varphi_s \frac{\partial \varphi_c}{\partial z} \right) \quad (14)$$

ここで、 f_{er} , f_{ez} は、それぞれ r , z 方向の電磁力である。なお、式(12)は、エネルギー式で、式(13)、(14)は運動方程式でそれぞれ用いられる。

2.2 支配方程式および境界条件 融液内対流に関する支配方程式は、以下のようになる。

$$\text{div } \mathbf{v} = 0 \quad (15)$$

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad}) \mathbf{v} = -\frac{1}{\rho_0} \text{grad } p + \nu \nabla^2 \mathbf{v} - g \beta_r (T - T_m) + \frac{f_e}{\rho_0} \quad (16)$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \text{grad}) T = \alpha \nabla^2 T + \frac{q_e}{\rho_0 C_p} \quad (17)$$

2.1 節で求めた発熱密度および電磁力が上式に代入され、さらに、電磁場方程式(8)、(9)を上式に加えたものが高周波加熱 FZ 法の支配方程式となる。次に、

$$\mathbf{v}^* = \frac{\mathbf{v}}{\nu/R_s}, t^* = \frac{t}{R_s^2/\nu}, p^* = \frac{p}{\rho_0 \nu^2/R_s^2}, r^* = \frac{r}{R_s}, T^* = \frac{T}{T_m}, \varphi^* = \frac{\varphi}{\mu_e \mathbf{J}_\theta R_s^2} \quad (18)$$

なる無次元化を行い、渦度、流れ関数を導入し、無次元のシンボル(*)を消去すると、以下の支配方程式および境界条件が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \omega}{\partial t} + V_r \frac{\partial \omega}{\partial r} + V_z \frac{\partial \omega}{\partial z} - \frac{2V_r}{r} \omega \\ = \frac{\partial^2 \omega}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \omega}{\partial r} - \frac{Ra}{Pr} r \frac{\partial T}{\partial r} \\ - 2EM_1 \frac{1}{r} \left\{ \left(\frac{\partial \varphi_c}{\partial r} \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} - \frac{\partial \varphi_s}{\partial r} \frac{\partial \varphi_c}{\partial z} \right) \right. \\ \left. - \frac{1}{r} \left(\varphi_c \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} - \varphi_s \frac{\partial \varphi_c}{\partial z} \right) \right\} \quad (19) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial T}{\partial t} + V_r \frac{\partial T}{\partial r} + V_z \frac{\partial T}{\partial z} \\ = \frac{1}{Pr} \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} \right) \\ + EM_2 \frac{1}{r^2} (\varphi_c^2 + \varphi_s^2) \quad (20) \end{aligned}$$

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} = \omega \quad (21)$$

$$\frac{\partial^2 \varphi_c}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \varphi_c}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \varphi_c}{\partial r} = EM_3 \varphi_s \quad (22)$$

$$\frac{\partial^2 \varphi_s}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \varphi_s}{\partial z^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial \varphi_s}{\partial r} = -EM_3 \varphi_c - r \delta(R_{wc}) \quad (23)$$

$$V_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z}, V_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \quad (24)$$

境界条件

(1) 計算領域境界 ($r=0$, $r=R_{\max}$, $z=0$, $z=Z_{\max}$)

$$\varphi_c = 0, \varphi_s = 0 \quad (25)$$

(2) 中心軸($r=0$)

$$\omega=0, \partial T/\partial r=0, \psi=0 \dots\dots\dots (26)$$

(3) 固液界面($z=Z_c, z=Z_f$)

$$\omega=\partial^2\psi/\partial z^2, T=1, \psi=0 \dots\dots\dots (27)$$

(4) 自由表面($r=1$)

$$\omega=\frac{Ma}{Pr}\frac{\partial T}{\partial z}-EM_4\left(\frac{\partial\varphi_c}{\partial r}\frac{\partial\varphi_c}{\partial z}+\frac{\partial\varphi_s}{\partial r}\frac{\partial\varphi_s}{\partial z}\right),$$

$$\frac{\partial T}{\partial r}=-Bi(T-T_a)-Rd(T^4-T_a^4), \psi=0$$

..... (28)

2.3 計算方法 今回の計算では、固液界面形状、自由表面形状を固定し計算を行ったため、電磁場は時間変化しない。そこで、まず、電磁場を計算領域内で計算し、得られた修正ベクトルポテンシャルの値を用いて融液内対流の非定常計算を行った。電磁場の計算では、支配方程式(22), (23)を式(25)の境界条件の下に計算した。通常は、無限遠でベクトルポテンシャルが零となるように境界条件を設定するが、本計算では差分計算を行ったため、無限遠の設定が困難であり、コイル位置からほぼ無限遠とみなすことができるように、計算領域は、図1において、 $R_{\max}=20, Z_{\max}=20, Z_c=9, Z_f=11, Z_{cl}=9.9, Z_{ch}=10.1, R_{ci}=2.0, R_{co}=2.2$ と設定した。なお、無次元化の代表長さ(シリコンの半径) R_s は、以下に述べる実験と比較するため、実験条件と同じ5mmとした。用いたシリコンの物性値を表1に示すが、固体と融液で導電率が異なるため、パラメータ EM_3 は計算領域内で変化させた。次に、初期条件として、高周波加熱下における発熱を考慮した定常熱伝導解を用い、融液内対流に関する支配方程式(19)~(21), (24)を式(26)~(28)の境界条件の下に非定常計算した。表1より、無次元パラメータとして $Pr=0.011, Ra=3.62\times 10^4, Ma=4.18\times 10^4, Rd=6.02$

$\times 10^{-3}$ を用い、 $Bi=7.8\times 10^{-3}, Ta=0.5$ と仮定した。電磁場パラメータに関しては、コイル電流密度を $J_0=4.31\times 10^8$ A/m²と仮定し、 $EM_1=2.27\times 10^{14}, EM_2=7.65\times 10^8, EM_3=29.6$ (固体), $EM_3=710$ (融液), $EM_4=3.20\times 10^{11}$ なる値を用いた。なお、コイル電流密度に関しては、コイル形状が、実験と計算で仮定したものとで異なり、直接実験条件を用いることが困難なため、実験と等価な電流密度を計算し、上記コイル電流密度の値を用いた。高周波加熱の場合、融液内部に誘導される誘導電流は表皮厚さと呼ばれる表面近傍の薄い領域に制限される。本実験で用いる3MHz電源の場合、この厚さは0.265mmとなる。そこで、このような薄い領域においても計算精度を保つように、表面近傍で差分格子が密となる座標変換を行い、表皮厚さ内に5点以上の差分格子点が存在するようにして計算

Fig. 2 Grid system for FZ analysis

Table 1 Physical properties of silicon

$C_p = 10^3$ J/kg·K
$T_m = 1680$ K
$\alpha = 2.65\times 10^{-5}$ m ² /s
$\beta_T = 1.4\times 10^{-4}$ 1/K
$\epsilon = 0.3$
$\lambda = 67.0$ W/m·K
$\mu = 7.59\times 10^{-4}$ kg/m·s
$\mu_e = 1.2566\times 10^{-6}$ H/m
$\nu = 3\times 10^{-7}$ m ² /s
$\rho_0 = 2530$ kg/m ³
$\sigma_e = 1.2\times 10^6$ S/m (liquid)
$= 5\times 10^4$ S/m (solid)
$\sigma_T = 1.0\times 10^{-4}$ N/m·K

Fig. 3 Schematic diagram of experimental apparatus

を行った。差分格子は、計算領域全体で 200×200 とし、融液領域を 80×80 とした。用いた差分格子を融液近傍の領域を拡大して図2に示す。計算に用いた手法は前報⁽⁵⁾と同じため、詳細は省略するが、対流項に三次風上差分、他の項は中心差分を用いて差分化し、非定常式はADI法により時間積分、定常式はSOR法による収束解をそれぞれ計算した。計算は、工業技術院計算情報センターに設置されているCray C90スーパーコンピュータを用いた。なお、高周波加熱の場合、無次元時間0.1までの計算に要するCPUタイムは100hであったため、計算は無次元時間0.1までとした。

3. 実験装置および方法

実験装置の概略を図3に示す。炉は水冷ステンレス容器でできており、X線を用いた観察を行うため、直交した二方向にアルミニウムでできた窓がついている。また、通常のワークコイルは銅製であるが、銅のX線吸収係数は高く、X線を用いても融液内部の観察は不可能となるため、本実験では、アルミニウム製のワークコイルを用いた。ワークコイルは、 $\phi 5$ 肉厚1のパイプを2ターンさせ、コイル内径を約 $\phi 14$ とした

手製のものであり、パイプ内は冷却用の水が循環している。高周波電源は、3 MHz, 15 kW であり、X線源は焦点0.3 mm, 130 kV, 2 mA の東芝製X線管である。本実験では、直径1 cm, 長さ15 cm のシリコン丸棒を用い、融液内部にトレーサ(直径約0.5 mm のジルコニア製コアに石英被覆し直径約1 mm とし、さらにカーボンでコーティングしたもの⁽⁶⁾)を導入し、RF加熱下での融液内対流を観察した。なお、通常のシリコン単結晶育成は、アルゴンガス雰囲気で行われるが、本実験では、窒素ガス雰囲気を用いた。これは、本実験で用いたワークコイルでは、アルゴンガス雰囲気を用いるとワークコイルから結晶に対して放電が発生してしまい、十分な加熱ができなかったためである。また、実験では二方向にTVカメラを設置したが、一方向のイメージおよびカメラの調整が悪く、トレーサを検知することが困難となり、三次元速度場の再構成はできなかった。そのため、トレーサを感知できた一方からのX線画像における各時間ごとのトレーサの軌跡を観察した。本実験では、RF加熱の影響をみるため、通常行っている結晶・原料の回転および結晶育成に伴う移動は加えず、純粋に融液柱を形成した場合の融液内対流を可視化した。したがって、浮

Fig. 4 Numerical results of flow and temperature fields in silicon melt under RF heating

Fig. 5 Numerical result of flow and temperature fields in silicon melt under radiative heating

Fig. 6 Numerical result of velocity distribution under RF heating at $t=0.1$

力・表面張力・RF加熱による電気力が共存した対流場となっている。

4. 結果および考察

数値解析により得られた高周波加熱下におけるシリコン融液内の流れ場、温度場の結果を図4に、また、比較のため、放射加熱の場合の流れ場、温度場の解析結果を図5にそれぞれ示す。放射加熱の場合には、周囲温度を $T_a = 1.0 \times 0.3 \exp[-2\{(2z - Z_f - Z_c)/(Z_f - Z_c)\}^2]$ と仮定し、電磁場を除く他のパラメータは高周波加熱の場合と同一の値を用いて計算を行った。なお、図4, 5において、左側は流れ場、右側は温度場をそれぞれ示しており、流れ場に関しては、流れ関数が負となる流線を破線で、正となる流線を実線でそれぞれ示している。図4, 5より明らかなように、高周波加熱の場合には、時間的に変動する結果となっているのに対し、放射加熱の場合には定常解となっている。通常、マランゴニ対流は、表面張力が温度に比例して低

Fig. 7 Numerical result of temperature fluctuation under RF heating

下するため、自由表面上の高温部から低温部へ移動する流動として観察される。これは、浮力・表面張力以外の外力が加わらない放射加熱の場合、FZ法では融液自由表面中央の温度が高く、融液上下に固液界面(低温)を有する配置となっているため、上記のマランゴニ対流は、図5に示したように、融液の上下に二対のロールセルとして発生することになる。一方、高周波加熱下における流れ場に関しては、時間的に変動する結果となっているが、全時刻において固液界面付近で温度こう配が大きいため、固液界面付近の自由表面近傍で上記のマランゴニ対流、すなわち高温側から低温側への流動を確認できるが、その影響は小さく、融液全体で観察すると、放射加熱で観察される通常の自然対流の向きとは反対となり、その大きさも大きくなっている。有次元の最大表面流速と比較すると、放射加熱の場合の 0.18 m/s に対し高周波加熱の場合には約 2.5 m/s と1けた大きな流速となっている。なお、この値は、Mühlbauer ら⁽⁴⁾ が三角形断面をした1ターンのコイルであるニードルアイ形と呼ばれるワークコイルを用いた高周波加熱FZ法における解析で得た 1 m/s とオーダー的には一致している。高周波加熱下での無次元時刻 $t=0.1$ における無次元速度分布を図6に示すが、表面近傍で大きな速度こう配となっていることがわかる。一方、温度場に関しては、シリコン融液のプラントル数は小さいため、流速が比較的遅い放射加熱の場合には、ほぼ熱伝導に近い結果となっているのに対し、1けた流速の大きい高周波加熱の場合には、低プラントル数流体であるにもかかわらず対流の影響を大きく受けていることもわかる。図7に融液内の2点での温度変動を示すが、ほぼランダムに変動しており、その変動幅も無次元温度で約 0.006 (有次元で

Fig. 8 Typical X-ray image for tracer movement

Fig. 9 X-ray visualization result for tracer paths

約 10°C) と大きな値となっている。このような振幅の大きいランダムな温度変動は、FZ 法では結晶内に誘起されるストライエーション(成長しま)が強く現れるという事実と密接に関係しているものと思われる。なお、このような温度場においては、放射加熱の場合には融液に対し凸となる固液界面が形成されるのに対し高周波加熱の場合には凹となる固液界面が形成されると予測される。

次に、X 線可視化装置により得られたイメージ画像の一例を図 8 に示す。図 8 中、トレーサ 1 は上部へ移動しているのに対し、トレーサ 2 は 1 箇所にとどまっている。なお、図 8 は、比較的トレーサがよく動いた場合を示しており、実際には、トレーサ 1 も基準時刻の 0 s 以前は、ほぼ同一の場所に滞留しており、また上部に移動した 3/30 s 後もしばらくはこの場所に滞留していた。このようなトレーサの移動は、実験中頻繁に観察された。これは、実際に三次元速度場を構成しないと明確には判定できないが、基準時刻までは融液内部にあったものが、3/30 s 後の移動で融液表面に達し、融液表面に形成された酸化膜あるいは窒化膜の影響で、表面上を移動することが困難になったためと考えられる。図 9 は、これまでの実験により得られた結果をまとめて示したもので、各数字は基準時刻を 1 とし 1/30 s ごとの軌跡を示している。本実験では一

方向からの観察しかできなかったため奥行き方向の位置関係が不明ではあるが、上部から下部へ移動するもの(A や B)、下部から上部へ移動するもの(C)、下部で水平方向に移動するもの(D)などが観察された。D においては、トレーサが上下に振動しながら移動していることから、高周波加熱によるレビテーションの影響が認められ、これは、前述の解析で得た振動的な流れ場に相当するものと考えられる。また、A や B の移動では、1/30 s 内に直進距離で 5 mm 程度移動していることから、最大流速は 15 cm/s 以上になっていることもわかる。この最大流速は、解析結果の 2.5 m/s と比較すると 1 けた小さな値であるが、トレーサの大きさは無次元で 0.2 であり、これは図 6 に示した速度分布で考えると表面に形成された速度境界層の厚さと一致するため、解析で得られた最大流速を本実験で用いたトレーサはトレースできなかったためと考えられる。なお、CZ 法におけるシリコン融液内の流速に関する渡辺ら⁽⁷⁾の結果が 2 cm/s であることを考えると、本実験で得られた値は 1 けた以上大きな値となっており、高周波加熱によるかくはん効果は、FZ 法の場合、融液内対流に大きな影響を与えていることがわかる。

本実験では、非軸対称のワークコイルを用いたため、融液内の速度場も非軸対称になっていたと考えられる。実験と解析を比較し、解析モデルの妥当性を確認するため、今後、ニードルアイ形のワークコイルを用い、軸対称と考えられる系での実験が必要であり、二方向からの同時観察により対流の三次元構造を明らかにする必要がある。また、このような高速な対流は、結晶に大きな欠陥をもたらすと考えられるため、高品質の結晶を得るためには、磁場印加等の手法により速度場を制御する必要があると考えられる。

5. ま と め

実際のシリコンを用いた高周波加熱 FZ 法における融液内対流に関し、数値シミュレーションおよび X 線を用いた観察により以下の結果が得られた。

(1) 高周波加熱 FZ 法における融液内対流では、高周波による電磁力対流が支配的であり、電磁力対流はマランゴニ対流と反対向きに発生する。

(2) 高周波加熱 FZ 法では、CZ 法より 1 けた以上速い流れ場となっている。

(3) 上記の流動により、固液界面は融液に対し凹となって結晶が成長していると予測される。

(4) 高周波によるレビテーションの影響により、時間的に変動する流れ場・温度場となっている。

365-370.

(2) Kakimoto, K., ほか 3 名, *J. Crystal Growth*, **126** (1993), 435-440.

(3) 例えば, Tao, Y., ほか 2 名, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **38** (1995), 503-510.

(4) Mühlbauer, A., ほか 2 名, *J. Crystal Growth*, **64** (1983), 529-545.

(5) Munakata, T., ほか 2 名, *Natural Mix. Convect.*, HTD-317-1, ASME, (1995), 279-291.

(6) 日比谷孟俊・中村新, 私信, (1995).

(7) Watanabe, M., ほか 3 名, *Exp. Numer. Flow Visualiz.*, FED-128, ASME, (1991), 255-260.

文 献

(1) Kakimoto, K., ほか 3 名, *J. Crystal Growth*, **88** (1988),