



チヨクラルスキー法酸化物単結晶引き上げ時の熱応力低減の解析検討

平澤, 茂樹
石橋, 浩之
蔵重, 和央
軍司, 章弘

(Citation)

日本機械学会論文集. B編, 71(708):2206-2209

(Issue Date)

2005-08-25

(Resource Type)

journal article

(Version)

Accepted Manuscript

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/90002187>



チョクラルスキー法酸化物単結晶引き上げ時の熱応力低減の解析検討

平澤茂樹^{*1}, 石橋浩之^{*2}
蔵重和央^{*2}, 軍司章弘^{*2}

Analysis to Reduce Thermal Stress in Oxide-Single-Crystal during Czochralski Growth

Shigeki HIRASAWA^{*3}, Hiroyuki ISHIBASHI,
Kazuhisa KURASHIGE, and Akihiro GUNJI

^{*3} Department of Mechanical Engineering, Kobe University,
1-1 Rokkodai, Nada-ku, Kobe-shi, Hyogo 657-8501 Japan

Temperature distributions and thermal stress distributions in a semi-transparent GSO crystal during Czochralski (CZ) single crystal growth were numerically investigated by thermal radiation heat transfer analysis and anisotropy stress analysis. As GSO has special optical properties, such as semi-transparency at a wavelength shorter than 4.5 μm , thermal radiation heat transfer was calculated by the Monte Carlo method. These calculations showed that thermal stress is caused by the radial temperature distribution on the outside of the upper part of the crystal. To reduce this temperature distribution, the following three manufacturing conditions were found to be effective: use a sharp taper angle of the crystal, install a lid to the top of the insulator, and install a ring around the tapered part of the crystal.

Key Words: Thermal Radiation, Numerical Analysis, Thermal Stress, Furnace, Crystal Growth, Manufacturing Process

1. 緒 言

Ce 添加 Gd_2SiO_5 (以下 GSO と略す) 単結晶製のシンチレータは, 蛍光減衰時間が短く, 蛍光出力が大きく, 化学的に安定である等の優れた特性を有する⁽¹⁾. そのため, 医療機器の断層撮像装置 (Positron emission computed tomography)⁽²⁾ に実用されている. GSO 単結晶は高周波誘導加熱チョクラルスキー法 (CZ 法) により製造される. 酸化物単結晶は強度が弱く, 製造過程において単結晶内部の熱応力を低減することが重要である. GSO 単結晶は, 可視光波長において半透明であり, 弾性定数や熱膨張率に強い異方性がある⁽³⁾⁽⁴⁾. また, GSO 単結晶は, 融点が 1950°C と非常に高温であり詳細な実験データ取得が難しく, 数値シミュレーションによる最適化検討が望まれている.

酸化物単結晶育成シミュレーションは, これまでも多くなされている. Derby ら⁽⁵⁾ は高周波誘導加熱チョクラルスキー法での温度分布解析を行い, 結晶成長に伴う融液量変化などの影響を計算した. 小林ら⁽⁶⁾ は結晶界面成長に及ぼす酸化物単結晶の内部放射・

吸収の影響について解析し, 融液の流れ, 温度分布, 界面形状が単結晶の吸収係数に大きく影響されることを示した. 宮崎ら⁽⁴⁾ は異方性応力解析コードを開発し, GSO 単結晶育成時の熱応力解析を行い, 結晶品質と単結晶の引き上げ結晶方位との関係について検討した. 著者ら⁽⁷⁾ は半透明材料を含む放射伝熱解析により単結晶育成時の温度分布に及ぼす装置構造因子の影響を検討し, 構造因子を適正化すれば単結晶下部の温度分布を低減できるが, 単結晶上部の温度分布低減が次の課題であることを示した. また従来は育成時の研究が多いが, 熱応力欠陥は冷却時に生じることも多く, 冷却時の温度分布の検討も必要である.

本研究では, 熱応力低減のための単結晶育成装置構造とプロセス条件の最適化を目的として, 半透明材料を含む放射伝熱解析により育成時及び冷却時の単結晶内の温度分布を計算し, その温度分布を用いて熱応力分布を計算し, 特に単結晶上部の温度分布に及ぼす装置構造因子の影響を検討するものである.

2. 温 度 解 析

図 1 は計算対象の高周波誘導加熱チョクラルスキー法による GSO 単結晶引き上げ装置の垂直断面図を示す. 融液上に吊り下げられた単結晶は回転しながら成長

* 原稿受付 2004 年 11 月 9 日.

^{*1} 正員, 神戸大学工学部 (〒657-8501 神戸市灘区六甲台町 1-1).

^{*2} 日立化成工業(株) 山崎事業所(〒312-0003 ひたちなか市足崎字西原 1380-1).

E-mail: hirasawa@mech.kobe-u.ac.jp

している．コイルで発生する高周波により，金属製のるつぼ側面が発熱する．単結晶周囲には断熱材が設けられている．装置の周囲壁は水冷されている．放射伝熱計算と熱伝導計算による温度解析に次の仮定を用いる．

(1) GSO 単結晶と融液について，波長が $4.5\mu\text{m}$ 以下の放射エネルギーに対して吸収係数 10m^{-1} の半透明とし，波長が $4.5\mu\text{m}$ 以上の放射エネルギーに対しては放射率が 1.0 の不透明とする（吸収係数は室温での測定値を用いたため前報⁽⁷⁾の仮定と異なる）．半透明材料内の散乱はないものとする．

(2) 固液界面の温度を融点 1950°C 一定とする．結晶成長の潜熱発熱は，るつぼの発熱量の 1% 以下であり無視する．

(3) 融液内の対流の速度分布を計算しない．融液の対流の影響については，融液の熱伝導率を固体の熱伝導率 $2\text{W}/\text{mK}$ の 100 倍と仮定する．

(4) るつぼ側面の発熱量は融液温度が融点より少し高くなるように 28kW とする．

(5) 単結晶表面からガスへの対流伝熱量は放射伝熱量の 20% 程度であり，対流伝熱を無視する．

(6) 水冷している装置内壁温度を 100°C 一定とする．

熱物性値を表 1 に示す（高温での物性値データがなく室温における値を用いる）．放射伝熱計算はモンテカルロ法を用いて行う⁽⁸⁾．仮定 (1) のように GSO 単結晶と融液は，波長が $4.5\mu\text{m}$ にて半透明から不透明に変化するため，放射伝熱計算は波長が $4.5\mu\text{m}$ を境に 2 つの波長域に分け，黒体放射関数を用いて行う．放射伝熱計算は 3 次元計算で行い，求まった放射伝熱量を周方向に平均して軸対称熱伝導計算に用いた．熱伝導計算は有限要素法を用いた．放射伝熱計算と熱伝導計算は緩和法による反復計算を行った．放射伝熱計算に用いた要素数は 1500，粒子数 1000 である．この場合，放射伝熱量の計算精度は 10% 程度になると思われる．

図 2 に装置垂直断面における単結晶育成時の温度分布の計算結果を示す．長手方向の温度分布と半径方向の温度差（中心－周囲）の計算結果を図 3，4 の○印（計算 No.1）に示す．図 4 の矢印はテーパ部と直胴部の境を示す．るつぼが発熱するため，単結晶下部の半径方向温度差は小さい．一方，単結晶上部では中心部が内部放射により加熱され，周囲に放熱するため半径方向温度差は大きいことがわかる．図 4 の温度差の振動的な挙動の原因は断熱材のメッシュが粗いためと思われる．

単結晶育成後に室温まで冷却する過程の温度分布を計算した．計算条件は，るつぼ温度を育成時の約

2000°C から 100°C まで 50 時間かけて比例的に低下させたものである．図 5 に半径方向の温度差の時間変化を示す．冷却速度が遅いため，単結晶内の温度分布は時間と共に次第に減少し，最大の温度分布は時間 = 0（育成時）に生じていることがわかる．破壊限界応力は温度に依存するため育成時の最大温度分布の時に熱応力欠陥が生じるとは言えないが，育成時の温度分布を最小にすることが冷却過程全体の温度分布を低減し熱応力欠陥の防止になることがわかる．

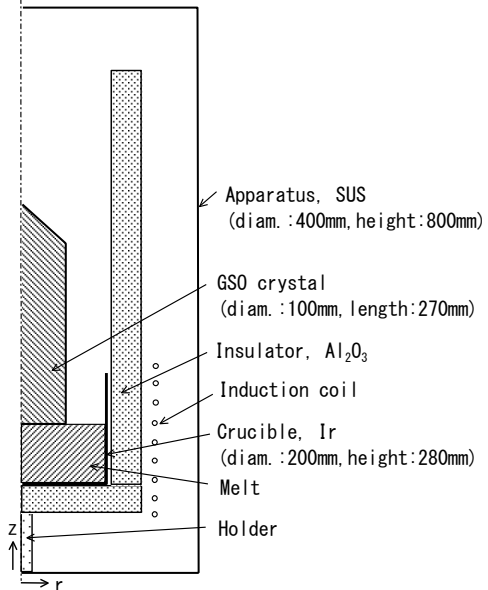


Fig. 1 Vertical cross section of apparatus

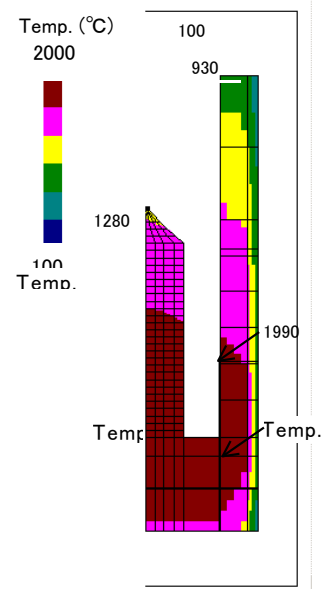


Fig. 2 Temperature distribution

Table 1 Thermal properties

Material	Conductivity (W/mK)	Density (kg/m ³)	Specific heat (J/kgK)	Emissivity
GSO crystal and melt	2 (crystal) 200 (melt)	6700	330	1.0 ($> 4.5\mu\text{m}$)
Crucible, Ir	139	22300	151	0.22
Insulator, Al ₂ O ₃	8.1	6300	359	0.4
Wall of apparatus, SUS	—	—	—	0.9

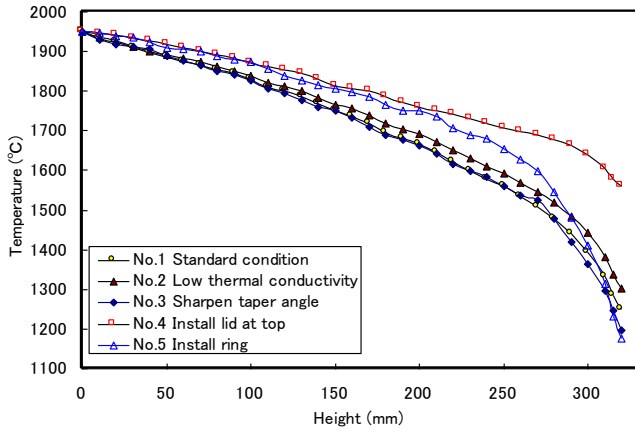


Fig. 3 Longitudinal temperature distribution in crystal

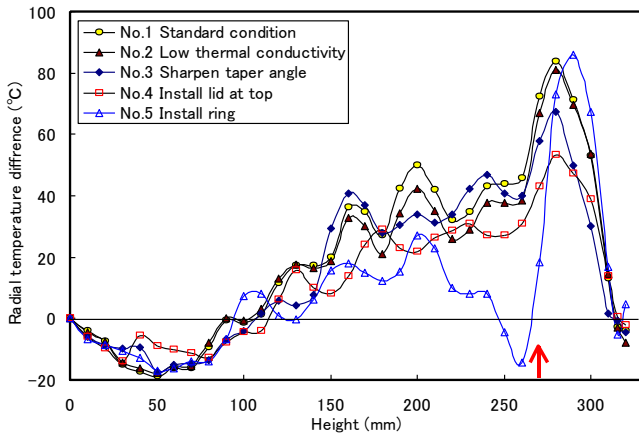


Fig. 4 Radial temperature difference in crystal

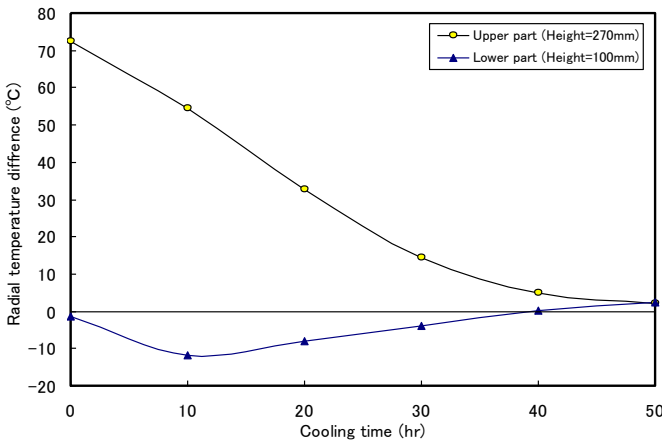
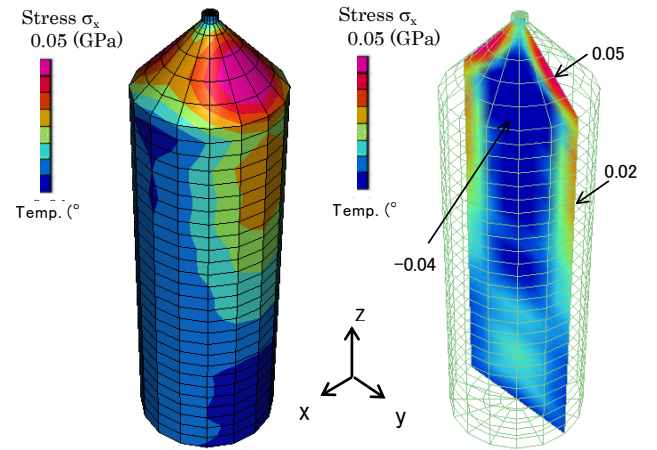


Fig. 5 Radial temperature difference in crystal during cooling process

Table 2 Mechanical properties of GSO

Young's modulus (GPa)	$E_x = 138$	$E_y = 68.4$	$E_z = 166$
Shear modulus (GPa)	$G_{xy} = 82.2$	$G_{yz} = 78.3$	$G_{zx} = 56$
Poisson's ratio	$\nu_{xy} = 0.7$	$\nu_{yz} = 0.28$	$\nu_{zx} = 0.13$
Thermal expansion (1/K)	$\alpha_x = 4.8 \times 10^{-6}$	$\alpha_y = 14 \times 10^{-6}$	$\alpha_z = 6.4 \times 10^{-6}$
Critical stress (GPa)	$\sigma_{cx} = 0.042$	$\sigma_{cy} = 0.091$	$\sigma_{cz} = 0.234$



(a) Outside (b) Vertical cross section
Fig. 6 Stress distribution

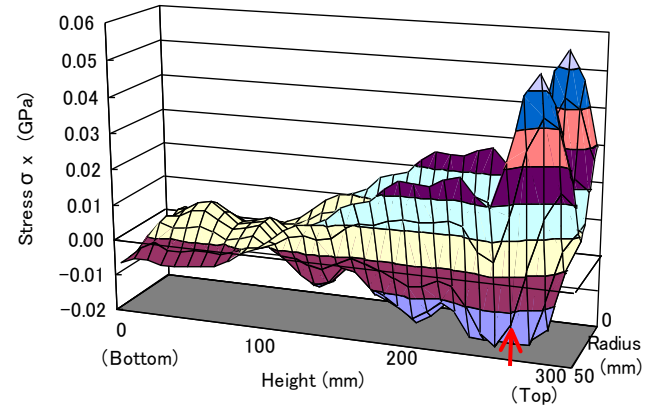
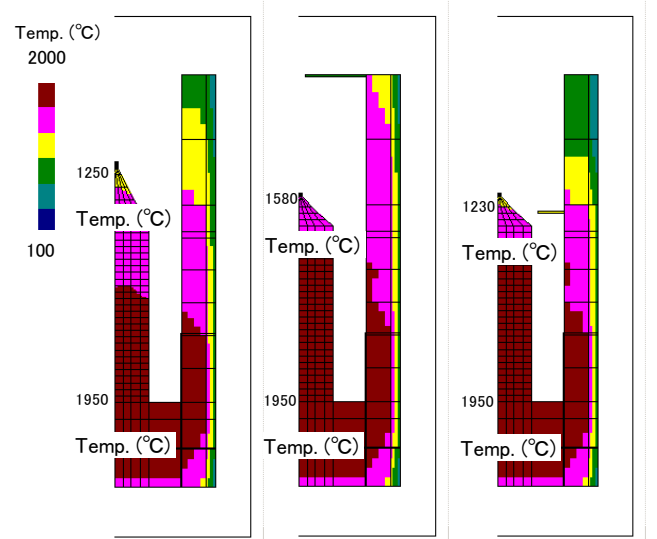


Fig. 7 Stress distribution



No.3 Sharpen No.4 Install lid No.5 Install ring
Fig. 8 Temperature distribution

3. 熱 応 力 解 析

GSO 単結晶は強い異方性材料であり、宮崎ら⁽⁴⁾が開発した有限要素法による3次元単斜晶系異方性応力解析コードを用いて熱応力を計算した(解析方法の詳細は文献⁽⁴⁾を参照のこと)。初期条件として結晶のすべてが融点 1950℃一定とし、それが前節で求めた育成時の温度分布に変化した時に生じる熱応力分布を計算した。GSO 単結晶の機械的な材料物性値(室温における値)を表2に示す⁽³⁾。破壊限界応力はx方向の値が最も小さいため、単結晶に生じるx方向の応力が重要である。なお、本報では単結晶の長手方向をz方向とし、単結晶の断面内にx、y方向がある場合を検討する。

図2の単結晶内の温度分布を与えた時の、x方向応力(σ_x)分布の計算結果を図6、7に示す。図7の矢印はテーパ部と直胴部の境を示す。単結晶上部の周囲に大きい引張り応力が生じることがわかる。図2の温度分布のうち、長手方向の温度分布のみ(半径方向に温度一定)と半径方向の温度分布のみ(結晶の中心軸の温度一定)を与えた場合の熱応力分布の計算した(結果は図示していない)。単結晶に生じる熱応力に対して、長手方向の温度分布の影響は小さく、主に半径方向の温度分布が影響しており、このことから、単結晶育成過程に生じる応力を低減するには半径方向の温度分布を低減することが重要であることがわかる。

4. 温度分布に及ぼす因子の影響

単結晶内の応力を低減するため、因子や構造を変えて育成時の温度分布を計算した。計算条件として次の5ケースを検討した: No.1 基準条件(図2の条件)、No.2 単結晶の周囲にある断熱材の熱伝導率を標準 8.1W/mK から 1/10 にした場合、No.3 単結晶のテーパの角度を 90° から 63° に変えた場合、No.4 断熱材の上部に蓋を設けた場合、No.5 単結晶のテーパ部周囲に放射熱遮断用のリング板(内径 120mm)を設けた場合。計算結果の長手方向の温度分布と半径方向の温度差(中心-周囲)を図3、4に示す。図8に計算条件 No.3~No.5 の装置垂直断面構造と温度分布の計算結果を示す。計算結果から、No.2 単結晶の周囲にある断熱材の熱伝導率を低減することによる温度分布への影響は小さいことがわかる。No.3 単結晶のテーパの角度を変えた場合にテーパ部の半径方向の温度分布を約 20%低減できる。No.4 断熱材の上部に蓋を設けた場合に単結晶全体の半径方向の温度分布を約 40%低減できる。No.5 単結晶のテーパ部周囲にリング板を設けた場合に

リング板より下方にある直胴部上部の半径方向の温度分布を低減できることがわかる。これらの結果は結晶内部の熱応力低減のための最適化設計指針を与えるものである。

5. 結 言

育成時と冷却時の単結晶内の温度分布と熱応力分布を計算し、さらに温度分布に及ぼす因子の影響を検討し次の結論を得た。

(1) 単結晶上部の周囲に大きい引張り応力が発生し、その熱応力について単結晶上部の半径方向の温度分布が関係している。

(2) 単結晶のテーパの角度を変えた場合、断熱材の上部に蓋を設けた場合、単結晶のテーパ部周囲にリング板を設けた場合に、単結晶上部の半径方向の温度分布を低減できる。

謝 辞

本研究では、京都大学 宮崎則幸教授が開発した単斜晶系異方性応力解析コード⁽⁴⁾を使わせて頂いた。また、(独)産業技術総合研究所 宗像鉄雄グループ長、(株)日立製作所機械研究所 池川正人主任研究員、澄川貴志研究員にご協力頂いた。ここに謝意を表す。

文 献

- (1) 石橋, ほか3名, ϕ 80大型Ce添加Gd₂SiO₅(GSO)単結晶, 日立化成テクニカルレポート, **28** (1997-1) 25-28.
- (2) Ficke, D. C., ほか3名, A GSO(Ce) Block Type Detector for High Count Rate PET Applications, 1994 IEEE Conference Record of the Nucl. Sci. Symp. and Medical Imaging, 94CH35762, **4** (1994) 1859-1963.
- (3) Kurashige, K., ほか3名, Mechanical Properties of a Ga₂SiO₅ Single Crystal, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**-4A, Pt.1 (1997) 2242-2246.
- (4) 宮崎, ほか4名, GSO単結晶の熱応力解析, 機論, **A**, **63**-612 (1997) 1744-1749.
- (5) Derby, J. J., ほか2名, An Integrated Process Model for the Growth of Oxide Crystals by the Czochralski Method, *J. Crystal Growth*, **97** (1989) 792-826.
- (6) Kobayashi, M., ほか3名, Effect of Internal Radiative Heat Transfer on Interface Inversion in Czochralski Crystal Growth of Oxides, *J. Crystal Growth*, **235** (2002) 258-270.
- (7) 平澤, ほか4名, チョクラスキー法酸化物単結晶引き上げ時の温度分布計算, 機論, **B**, **69**-683 (2003) 1679-1684.
- (8) 谷口博, ほか4名, パソコン活用による放射伝熱解析, コロナ社, 1994.