

学位論文審査報告

星野, 邦弘

温, 廣成

登田, 慎一郎

田原, 良信

他

<https://doi.org/10.15017/17454>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 19 (4), pp.361-378, 1998-03-01. Interdisciplinary Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

学位論文審査報告

氏名(本籍) 星野邦宏(東京都)
学位記番号 総理工博甲第252号
学位授与の日附 平成9年9月25日
学位論文題目 浮体式海洋構造物に働く粘性流体力の推定法に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 小寺山 亘
(副査) 〃 〃 大楠 丹
〃 〃 〃 速水 洋

論文内容の要旨

浮体式海洋構造物は、海洋石油資源の開発とともに発達した。海洋石油の生産が沿岸域から水深の大きな沖合いに展開するにしたがって、着底式の海洋構造物では技術的にも経済的にも不利となるため浮体式海洋構造物が多く採用される。また、浮体式海洋構造物の動揺を極力押さえる必要性から、波浪に対する動揺特性の優れた半潜水式海洋構造物が生まれた。半潜水式海洋構造物の構造様式は、ローハル付カラムやフーティング付カラムなどの没水浮力体で構成される方式が一般的である。フーティング付カラムとローハル付カラムとでは、動揺性能、曳航性能、経済性の面でそれぞれ特徴があるが、半潜水式海洋構造物としては、今後もこれらの一つの方式のいずれかが採用されるであろう。

浮体式海洋構造物は、波の中で上下(Heave)、左右(Sway)、前後(Surge)の直線運動、縦揺れ(Pitch)、横揺れ(Roll)、回頭揺れ(Yaw)の回転運動の合わせて6自由度の種々の運動を行うため流体力について固定式海洋構造物とはかなり取り扱いを異にする。波浪中で運動する浮体に働く流体力の内、ポテンシャル理論に基づく造波減衰力および付加質量力の推定法は現段階で実用的にほぼ確立しているが、粘性に基づく流体力については未だ実用的な推算法が示されていない。

粘性に基づく流体力は、従来、海洋構造物の縮尺模型を用いて水槽実験により推定されている。この方法では、実機の浮体式海洋構造物の運動推定の際に尺度影響を考慮することは困難である。最近では計算機の高性能化と大容量化ともなってCFD(Computational Fluid Dynamics)で粘性に基づく流体力を求めることも可能となり、船舶、土木、機械、建築、風工学等の分野で精力的な研究が行われている。ただし、複雑に構成された浮体式海洋構造物まわりの流れ場を解いて、粘性に基づく流体力係数を求めることは、未だ実用段階に達しているとは言い難い。

このような現状を鑑み、本論では、浮体式海洋構造物を構成する基本要素毎に流体力を求め、要素間の相互干渉効果を考慮しながら構造物全体の粘性に基づく流体力係数を推算する実用的方法を開発した。開発した推算法は、形状影響、3次元影響、尺度影響、表面粗度影響、相互干渉影響を含んでおり、現状では、実機の浮体式海洋構造物に働く粘性に基づく流体力を推定し得る最も実用的な方法と考えられる。本論では、海洋構造物の運動推定法として、流体力から運動応答までの一貫した方法を提案した。また、その適用性を模型実験および実海域での実機海洋構造物の計測データを用いて検証したものであり、以下の全10章から構成されている。

第1章では、研究の背景について述べた。

第2章では、浮体式海洋構造物を構成する基本要素部材である円柱および矩形柱に加わる粘性流体力に及ぼす3次元影響および傾斜影響を実験的に明らかにした。

第3章では、粘性流体力に関する要素部材間の相互干渉影響の考慮法を組み立てた。

第4章では、要素部材に働く粘性流体力に及ぼす尺度影響の考慮法を組み立て、大型円柱模型の強制動揺実験を行い、その適用性を検証した。

第5章では、要素部材への生物付着による表面粗度影響の評価法を示した。また、粗面円柱の強制動揺実験を行って、開発した表面粗度影響の評価法の妥当性を実験的に検証した。

第6章では、フーティング付カラム及びローハル付カラムの2種類の要素浮体単独の粘性流体力に関する既存の実験結果と本論で開発した推算法により求めた粘性流体力とを比較し、要素浮体レベルでの粘性流体力推算法の適要性を確認した。

第7章では、水槽実験により、TLP海洋構造物、フーティング付カラム型海洋構造物およびローハル付カラム型海洋構造物の3種類の海洋構造物模型に働く粘性流体力を実験的に求めた。実験により求めた粘性流体力と、2章から6章の研究成果を取り入れた推算法により求めた粘性流体力とを比較して模型試験レベルで各種様式の浮体式海洋構造物の粘性流体力を精度良く推算できることを確認した。

第8章では、実機の浮体式海洋構造物の曳航実験から定常流中の粘性流体力係数、自由動揺試験から海洋構造物が固有周期で長周期動揺する時の粘性流体力係数を実験的に求めた。自由動揺試験の解析では、動揺の減衰が大きく通常の減減曲線法で解析する事が出来なかったため、時系列フィッティング法により実験解析を行った。実海域実験で得られたデータの解析より求めた粘性流体力係数と本論で開発した推算法を使っ

て求めた粘性流体力係数を比較して、実用上十分な精度を有することを確認した。

第9章では、浮体式海洋構造物の運動推定法の概要を示し、第8章で推算した流体力係数を使って求めた実機海洋構造物の運動と実測値の比較を行い、浮体式海洋構造物の流体力から運動までの一貫した推定法としての精度を検証した。

第10章では、本論文で得られた研究成果をまとめた。

論文調査の要旨

浮体式海洋構造物は海底石油開発や水産増養殖などの海洋資源の探査・生産、橋梁や人工島などの海洋空間の利用、海洋環境の長期モニタリング調査などのために、1970年代から数多く開発されてきた。今後も陸上資源の枯渇、人口の増大、地球環境の悪化に伴って益々大規模化、かつ多様化しながら発展して行くものと考えられている。しかしながら、同じ海洋での大型構造物である船舶の場合と異なり、浮体式海洋構造物の設計法は未だ確立しているとは言い難い。特に運動性能に大きな影響をもたらす抗力・粘性減衰力などの粘性流体力に対する尺度影響に関しては殆ど解明されていないのが現状である。それは、半潜式、緊張係留式、箱型浮体式など様々な形式の浮体式海洋構造物がそれぞれの用途・環境条件によって使い分けられている上に、その構造も船舶に比較して複雑な形状をしており、明解な結論を得ることが困難であったためである。

浮体式海洋構造物の波浪中での運動性能は、ポテンシャル理論に基づく特異点分布法などによる数値計算結果、あるいは波浪水槽における模型試験結果から推定されていた。しかしながらポテンシャル理論に基づく数値計算結果は上下揺れや前後揺れなどの波浪との同調周波数領域の運動に対して設計不能なほど過大な結果を与える。また一般に模型実験では構成部材の直径と波浪中の水粒子速度から定義されるレイノルズ数は 10^5 程度であり、実機の場合には $10^7 \sim 10^8$ にも成りうる事を考えれば模型試験結果からの実機の直接推定は粘性減衰力を過大に評価する危険性ははらんでいる。さらに初期設計の段階で多くの形式・形状の模型を制作し、その優劣を実験的に検討することは費用・時間の面で不経済である。

本論文は浮体式海洋構造物が全体としてはかなり複雑な形状をしていても、その構成部材の大部分は円柱または角柱であることに注目して、構成部材に加わる粘性流体力をまず推定し、3次元影響、相互干渉影響、表面粗度影響さらには尺度影響を考慮に入れることで、模型試験に頼ることなく、実機の流体力を推定する方法を開発したものである。

本研究で得られた主な成果は以下の通りである。

[1] 浮体式海洋構造物を構成する基本要素部材である円柱及び角柱に加わる粘性流体力に及ぼす3次元影響及び傾斜影響を実験的に明かにした。

[2] 著者が行った実験及び既存の研究成果に基づいて粘性流体力に関する要素部材間の相互干渉影響の推定法を組み立てた。

[3] 要素部材に働く粘性流体力に及ぼす尺度影響の推定法を組み立て、大型円柱模型の強制動揺実験を行い、その適用性を検証した。

[4] 要素部材への生物付着による表面粗度影響の評価法を示した。また、粗度円柱の強制動揺実験を行って、開発した表面粗度影響の評価法の妥当性を実験的に検証した。

[5] 2種類の異なる形式の要素浮体の粘性流体力に関する実験結果と本論で開発した推算法により求めた粘性流体力とを比較し、要素浮体レベルでの粘性流体力推算法の適用性を確認した。

[6] 水槽実験により、3種類の形式の海洋構造物模型に働く粘性流体力を実験的に求めた。実験で求めた粘性流体力と本論で開発した推算法により求めた粘性流体力とを比較して模型試験レベルで各種様式の浮体式海洋構造物の粘性流体力を精度良く推算出来ることを確認した。

[7] 実機の浮体式海洋構造物の曳航実験から定常流中の粘性流体力係数、自由動揺試験から海洋構造物が固有周期で長周期動揺する時の減衰力係数を実験的に求めた。これらと本論で開発した推算法を使って求めた粘性流体力係数を比較して、推算法が実用上十分な精度を有することを確認した。

以上要するに、本論文は浮体式海洋構造物の運動性能の推定に必要な粘性流体力の推定法に関し、要素部材に加わる粘性流体力を積算して、構造物全体に加わる流体力を求める方法を提案し、実機海洋構造物の海上実験によって、その有効性を実証したもので、海洋工学上寄与するところが大きい。よって、本論文は博士(工学)に値するものと認める。

最終試験の結果の要旨

本論文に関して、調査委員から(1)本推定法の適用範囲と期待される精度、(2)実機の海上実験のデータ解析手法、(3)粗度円柱の抗力のレイノルズ数による整理方法の妥当性、(4)本推定法を応用して海洋構造物の運動性能の推定を行う際の問題点、などについて質問がなされたが、いずれも著者の回答は的確であった。

また、公聴会においては、学内外から多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説

明により質問者の理解が得られた。

以上の結果から、著者は試験に合格したものと認めた。

氏名(本籍) 温 廣成(中国)
 学位記番号 総理工博甲第253号
 学位授与の日付 平成9年9月25日
 学位論文題目 Theoretical Prediction of Seakeeping of High Speed Ships
 (高速船の耐航性能の理論計算法に関する研究)

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 大 楠 丹
 (副査) 〃 〃 小寺山 亘
 〃 〃 〃 速 水 洋

論文内容の要旨

近年いろいろな種類的高速船が運航されるようになってきた。高速船は一般に軽量に作られるので、波浪中を損傷を受けないで安全に航走することのできる性能、すなわち耐航性能をあらかじめ正確に知ることが高速船の設計上必要である。

高速船の耐航性能を理論計算するためには、波浪中を高速で走る物体に作用する波力とその動揺、さらには動揺によって誘起される流体力を精度良く計算する流体力学的な理論が必要である。しかしながら完全な理論を実現するには多くの困難がある。その困難の大部分は、物体周囲の流れを決定する水面上の自由表面条件と動揺する物体上の境界条件の両者が非線形であること、その両方の境界面が交わった場所における複雑な物理現象の数学的な定式化が困難であることに起因する。また高速の前進速度の影響をこれらの境界条件に正しく考慮しようとするに困難はさらに増加する。

耐航性能を計算するための現有の理論は、波浪の振幅が微小であるとして水面上の自由表面条件および物体上の境界条件を線形化し、さらに前進速度が低速であることや前進速度による物体周囲の定常相対速度が一様であることを仮定している。高速船の場合ではこれらの仮定は完全には正しくないことは明らかである。したがって現象の正しい物理的な理解にもとづいた数学的に合理的な高速船のための理論が必要である。

本論文では、波浪や船体動揺を微小振幅とする仮定を導入することなく、また高速前進速度の影響を合理的に考慮して、高速船の耐航性能を推定する数値計算に適した理論を提案した。また理論による計算結果を水槽実験によって検証し、提案した理論が実用的に有効であることを確かめた。

本論文で提案した理論の基本的な考え方は以下の通りである。

(1) 船型が十分細長いとして船体近くの流れの船体長さ方向の変化率をほかの方向の変化率に比べて無視し、流れの支配方程式を2次元の形で近似する。

(2) 前進速度が高速であることを考慮すると、水面上の自由表面条件では流れの船体長さ方向の変化率をふくむ項を無視することができないので、完全な形の自由表面条件を用いる。特に波浪の振幅が有限であること、また船型によっては前進速度による船体周囲の定常相対速度が一様でないことを考慮する。

(3) 船体の動揺は有限の大きさであり、したがって船体上の境界条件が時々刻々移動する物体の表面上で満足されるようにする。

本論文は6章から構成される。

第1章は序章であり現有の理論を概観して高速船に適用する際の流体力学的な問題点について論じ、本研究の目的について述べている。

第2章では波浪中を走る船舶の周囲の非定常流れを決定する境界値問題を数学的に厳密な形であたえている。そして自由表面条件および船体表面条件の近似的な表現方法について検討し、高速船の場合について合理的な自由表面条件および船体表面条件を導いている。

第3章では高速船が一定周期の規則波中を航走する場合の問題を周波数領域で取りあつかっている。船型が十分細長く、船体周囲の相対流速の定常的な部分の非一様性が高次の量であるとして無視し、高速船の耐航性能の線形理論を導いている。細長船の仮定から、船体周囲の非定常流れを表現する速度ポテンシャルの境界値問題は船体断面を含む平面内の2次元の問題となる。一方高速前進速度を考慮すると自由表面条件では速度ポテンシャルの船体長さ方向の微係数の項を無視できない。そこで自由表面上の速度ポテンシャルの値を自由表面条件にしたがって船体の長さ方向に前進させながら、2次元境界値問題を船首断面から始めて船体後方に向かって次々の断面内で解く方法を用いる。この章の理論は線形理論であるが、後の章の非線形理論でもほぼ同じ考え方を用いる。なお2次元境界値問題を数値的に解くときに問題となる水面と船体の交点上の解の特異性、船体より遠方の開境界条件についても検討が加えられている。この理論を用いて高速双胴船に作用する流体力の数値計算を実施し、水槽試験の結果と比較して本章で示した理論が高速双胴船の耐航性を推定するのに有効であることを結論している。

第4章では前章と同様の考え方にしたがっているが、船舶の前進速度によって生ずる船体周りの定常流が一様でない場合を取りあつかっている。まず前章で導いた高速船の理論を、肥大船型が波浪中を航走する場合

の船首近くの非定常流れの解析に用いることが許されることを理論的に示している。次にそのような船型の場合に著しい定常流れの非一様性を考慮した非定常波動場と流体力の計算を行っている。計算結果を水槽試験結果と比較し、定常流れの非一様性を考慮することによって船首近くの非定常波動をより正確に推定することができることを明らかにしている。

第5章は前章までに展開した線形理論に関する研究成果を基礎として、有限振幅の波浪中を高速で走る船舶の耐航性能を推定する理論を展開している。理論の基本的なアイデアは第3章とほぼ同じであるが、非線形理論であり次の点で異なっている。(1) 時間領域で解析を行う。(2) 定常流れと非定常流れを区別しないでいっしょに取り扱う。(3) 船体上の境界条件は、時々刻々移動する船体上で満足される。(4) 水面の自由表面条件は入射波浪の波面上で満足される。(5) 船体動揺の方程式と船体周りの圧力場を同時に数値的に解く必要から問題の解析に速度ポテンシャルの代わりに加速度ポテンシャルを用いる。数値計算は数学船型について向波状態について行われ、計算結果の安定性について確かめている。上下揺および縦揺について数値計算の結果が水槽試験結果と良く一致することを示している。この結果から、本章で示した理論が波浪中における高速船の大振幅動揺の実用的な計算法として有効であることを結論している。

第6章は結論であり、本論文の成果をまとめ、今後の研究の方向について言及している。

論文調査の要旨

高速海上輸送の必要から、種々の高速の客船が運航されるようになり、貨物輸送を目的とする大型の高速船舶も計画されている。高速船の海上運航の安全性は、波浪による荷重をどの程度正確に予測できるかにかかっているが、そのもとになる波浪と高速船の流体力学的相互作用は複雑で、その理論的解析は容易ではなく、最近になってようやく研究が行われるようになってきた。

波浪中を航走する船舶に作用する波力、船体動揺、及び動揺によって誘起される流体力を推定するための現在の理論では、波浪の振幅及び船体動揺の大きさが十分に小さいと仮定して水面上の自由表面条件や船体上の境界条件を線形化し、さらに船舶の前進速度が低いと仮定している。したがってこの理論を高速船の場合に適用して推定した波浪荷重の精度に十分な信頼をおくことはできない。

本論文は波浪中の高速船に作用する波浪荷重の計算精度の向上を目的として、波浪中を高速で走る細長い物体周りの非定常流れを合理的な方法で解析し、高速

船の場合に不適当な仮定に依存することなく波浪荷重を数値計算する方法を開発したものである。

本研究で得られた主な成果は次の通りである。

[1] 細長い船体と波浪との相互作用によって生じる流れは、船体近くでは船体長さ方向の変化率を無視できて2次元である。ただし前進速度が高速の場合には水面の自由表面条件で船体長さ方向の流れの変化を無視できない。この考察に基づいて波浪中の高速船の周囲の流れを、水面上では船体前方から後方へ伝わる波動の形式を持つが、流れの場は船体断面をふくむ平面内で2次元であるとして解析する方法を示している。

[2] [1] の理論によって得られる船体周囲の流れに関する境界値問題を解く数値計算の方法を開発している。この計算では、船体近くでの水面変動の計算精度が問題となるが、解析解との比較で計算精度が十分であることを示している。

[3] 高速双胴船の場合における波力及び動揺による流体力の計算方法を示し、実験結果と比較してその精度を検証している。この方法を応用して高速双胴船の不規則な波浪中における相対水位、甲板波浪衝撃の頻度などの耐航性能の推定方法を開発している。

[4] 船舶の前進速度によって生ずる船体周りの定常的な相対流速が一様でないことを水面上の自由表面条件に考慮し、波浪中における高速船の周囲の流れの解析方法を肥大した船の船首付近における波動の解析に適用している。計算結果を計測した船体周囲の波動と比較し、船首近くの水面変動に対する船体周囲の定常流れと非定常流れの相互干渉の影響を明らかにしている。

[5] 高速船の周囲の流れの時間領域での解析方法を提案し、船体上の条件において船体動揺の大きさが有限であること、及び水面上の自由表面条件において入射波浪の振幅が有限であることを考慮した波力や船体動揺の計算方法を開発し、大波高の波浪中における高速船の波浪荷重の推定方法を示している。

以上要するに、本論文は高速船舶の耐航性能の理論的推定法に関し、高速前進速度及び有限振幅の船体動揺の影響を考慮した波浪荷重の合理的な計算方法を提案し、数値計算及び水槽実験を実施してその検証を行ったもので、海洋工学上寄与するところが大きい。よって本論文は博士(工学)に値するものと認められる。

最終試験の結果の要旨

本論文に関し調査委員から(1) 高速船の船体周囲の非定常流れの3次元的な特性と本論文の理論で採用した近似的な方法との関係、(2) 高速の意味とその基礎式への反映、(3) 摂動法における各項のオー

ダーの評価, (4) 計算した対抗性要素の無次元化の意義, などについて質問がなされたが, いずれも著者の回答は的確であった。

また, 公聴会においては, 学内外から多数の出席者があり, 種々の質問がなされたが, いずれも著者の説明により質問者の理解が得られた。

以上の結果から, 著者は試験に合格したものと認めた。

氏 名 (本籍) 登 田 慎一郎 (福岡県)
 学 位 記 番 号 総理工博甲第254号
 学位授与の日附 平成9年11月20日
 学位論文題目 L/H Transition Characteristics
 due to Bipolar Losses in Tokamak
 Plasmas
 (トカマクプラズマにおける極性
 損失による L/H 遷移特性)

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 伊 藤 早 苗
 (副 査) " " " 凶 子 秀 樹
 " " " 村 岡 克 紀

論文内容の要旨

熱核融合反応を制御し, そのエネルギーを取り出す試みとして, 磁気核融合研究が行われている. 'トカマク' と呼ばれる磁気閉じ込め装置は, 特に研究が進んでおり, ITER (国際熱核融合実験炉) においてもその設計装置として採用されている. トカマクが炉として機能するためには高い密度のプラズマを高温で十分長い時間閉じ込めておく必要がある, 核融合出力エネルギーが入力エネルギーと等しくなるという条件を満足することが必要条件である. しかし異常輸送と呼ばれる現象のため, 入力パワーを増加させるほどエネルギー閉じ込め時間が劣化し, (Lモードと呼ばれる) 上記の条件を満足させることは困難であった。

1つのブレークスルーは1982年にドイツの ASDEX トカマクにおいて閉じ込めがLモードの2倍程度良いHモードと呼ばれる閉じ込め状態を発見した点である. Lモード/Hモード遷移について多くの理論研究がなされている. 研究において, 径方向の電場が隠れた変数として存在する事が予言され, 実験的にもプラズマの静電分岐現象の存在が明らかにされた. 径電場の重要性が認識され, 径電場を制御することで閉じ込めモードを改善する研究が行われている。

またHモードへの遷移に伴い, 間欠的に粒子や熱がプラズマの外へ流出する現象 (ELMs) が見つかった. ELM を伴うモードは核融合炉においてアルファ粒子

灰や不純物排気の可能性を示しており, 粒子制御の観点からも重要視されている。

Hモードあるいは ELM を伴うHモードの物理を解明することは核融合研究においては急務であり, チャレンジ的なテーマである。

本研究では, 静電分岐に則った L/H 遷移理論を拡張する. 従来までに遷移機構として取り上げられていない極性損失を考慮し, 高温プラズマの L/H 遷移の特性の変化を調べる. また実験との比較研究を試みる。

イオンと電子の様々な損失のバランスが径電場を決める要因になる. いくつかの機構を考慮し, 運動方程式がヒステリシス特性を伴う多種の静電分岐現象を示す解を持つことを示す. 静電場の存在する場合に熱力学的力に対する粒子流束 (拡散係数) の関係を調べる。

また, 間欠的にプラズマと熱が噴き出す ELM 現象についても研究を深める. 従来のモデル方程式では径電場のみを考慮していたが, 径電場の勾配 (シア) の効果を取り入れて拡張し, 新たなギンツブルグランダウ型のモデル方程式を得る. このモデル方程式はプラズマ密度の時間発展を含む動的モデルへの拡張にもなっている. 以下に, 本論文の要旨を示す。

第1章では, 本論文の概要を記す。

第2章では, 従来の L/H 遷移, ELM の実験結果と理論モデルの概要を説明する。

第3章では, この研究で用いる理論モデルすなわち, 運動量バランスに影響を与えるトルクとなるプラズマの損失のモデルを挙げる. すなわち, (1) ロスコーン損失, (2) バルク粘性損失, (3) トロイダルリップル場による高温のイオン損失, (4) 中性粒子によるイオン損失, (5) 異常損失を挙げ, それらの理論式を示す。

第4, 5, 6, 7章では, ポロイダル回転の運動方程式を用いて, 3章に挙げた極性損失が存在する場合の様々な L/H 遷移条件を新たに得る。

第4章では, JT-60U の実験結果を調べると, 高温のイオンリップル損失が重要であると考えられる. その効果を取り入れ遷移理論を拡張して解析する. 高密度では ELM を伴うHモード, 低密度では軟遷移 (ヒステリシスを伴わない遷移) が理論的に予測できる. これは実験結果を定性的に説明できる。

第5章では, L/H 遷移のダイナミクスを, 損失機構 (ロスコーン損失, バルク粘性損失, 異常損失) を考慮して, 研究する. 勾配と流束関係に5重解を持つ状態を新たに予言出来る. また5重解に伴うダブルヒステリシス特性により新たな種の ELM の存在も予言する. 更にこの特性を得られる条件を解析しその発現パラメーター領域を示す。

第6章では, 中性粒子の L/H 遷移に対する役割に

ついて調べる。X点付近と主プラズマの中性粒子を分けて、拡張したモデル理論式を作成する。解析の結果、従来の考え方に反し、X点付近の中性粒子がL/H遷移を起こし得る事を示す。またこの遷移を満たすX点付近の中性粒子密度の低限を調べる。結果JFT-2Mの実験結果をかなり説明することが出来る。更に、損失機構(ロスコーン損失, バルク粘性損失, 異常損失, 加えて中性粒子による損失)を考慮したL/H遷移条件をも示す。

第7章では、径電場シアの効果を入れて、径電場のL/H遷移分岐モデルの拡張を、新たに行う。この拡張したモデルを用いても、ELMs現象の1つであるdithering ELMに対応する自励振動の存在を予想することが出来る。また自励振動が現れるための径電場シアの条件を示す。

第8章では、本論文の総括を行い、併せてL/H理論に関する今後の課題について考察する。

論文調査の要旨

磁気核融合研究において、‘トカマク’と呼ばれる閉じ込め装置を用いた研究が進んでおり、ITER(国際熱核融合実験炉)においてもその閉じ込め方式として採用されている。トカマクが炉として機能するためには高い密度のプラズマを高温で十分長い時間閉じ込めておく必要がある。しかし異常輸送と呼ばれる現象のため、入力パワーを増加させるほどエネルギー閉じ込めが劣化し(Lモードと呼ばれる)、上述の必要条件を満足させることが困難であった。ひとつのブレイクスルーは、ドイツのASDEXトカマクにおいて、閉じ込めがLモードの二倍程度良いHモードと呼ばれる閉じ込め状態が1982年に発見された事である。またその後の研究でHモードでは、間欠的に粒子や熱がプラズマの外へ流出するバースト現象(ELMsと呼ばれる)が起きることも明らかにされた。Hモード(あるいはELMsを伴うHモード)の物理を解明することは、核融合研究においては閉じ込めを改善するために急務であり、また高温プラズマの物性物理の研究としても重要課題である。

Lモード/Hモード遷移について多くの理論研究がなされている。径方向の電場が隠れた変数として存在することが理論的に予言され、実験的にもプラズマの静電分岐現象の存在が明らかにされた。その後、径電場の重要性が認識され、多くの研究が行われている。本論文では、トカマクプラズマを題材にとり、静電分岐理論に基づくL/H遷移理論を拡張している。従来までに考慮されていない極性損失を理論モデルに取り入れて、L/H遷移の特性変化を示し、また実験との比較研究をも行い、以下の成果を得ている。

(1) 高エネルギーイオンの軌道損失についてリップル損失の効果を実式化して、モデル方程式の拡張を行い、その解析を行っている。その結果、プラズマの密度が高い場合にはELMsを伴うHモードが現れやすく、また低密度領域では軟遷移が現れることを理論的に予測している。JT-60U装置での実験結果に対して初めて比較研究を行い、その結果を定性的に説明できることを示している。

(2) 極性損失を起こす機構が複数種共存する場合について、L/H遷移モデルの方程式を新たに定式化している。その解析の結果、勾配と流束との特性関係に五重解を持つ領域があり、ダブルヒステリシス特性が存在することを示している。この五重解に伴うダイナミクスを解析し、新しい型のELMsが現れる事を理論的に予言している。更に、その特性が現れる条件も示している。

(3) 中性粒子のL/H遷移への役割を再考察し、主プラズマ近傍の中性粒子と、X点と呼ばれるダイバータ付近の中性粒子の両者の役割の違いを明らかにしている。両者を区別したモデル方程式を実式化して解析を行った結果、従来の予想に反してX点付近の中性粒子は遠隔荷電交換を行うことによって、L/H遷移を助長しうることを示している。更に、その遷移条件なども新たに示している。

(4) 静電場の分岐理論に、径電場に加えて径電場の勾配を取り入れ、理論モデルの拡張を行い、遷移のダイナミクスについて新しい知見を得ている。両方の効果が共存する場合の自励振動の存在を示し、その発現領域を明らかにしている。

以上、要するに本論文は、高温プラズマにおける静電場の分岐理論に則ったL/H遷移理論を、様々な極性損失を取り入れて拡張し、モデル方程式として定式化を行い、その解析の結果、新種のバースト現象(ELMs)の存在を予想するなど、重要な知見を得ているもので、核融合科学及びプラズマ物理学に寄与するところが大きい。

よって、本論文は博士(理学)の学位論文に値するものと認められる。

最終試験の結果の要旨

本論文に関して調査委員から、1. 電子とイオンの異常損失項の理論的モデル、2. 一次元モデル解析の位置付け、3. 熱力学的な力や流れと観測パラメーターとの対応、4. 中性粒子の電離損失と荷電交換の相違点、5. Shaingのモデル理論との違い、等について質問がなされたが、いずれも著者により適切な回答があった。

公聴会においては学内外より多数の出席者があり、

種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上の結果から、著者は試験に合格したものと認めた。

氏 名 (本籍) 田 原 良 信 (宮崎県)
 学 位 記 番 号 総理工博乙第264号
 学位授与の日附 平成9年9月25日
 学位論文題目 B2型規則合金の規則化過程に関する速度論的研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 沖 憲 典
 (副 査) 〃 〃 森 永 健 次
 〃 〃 〃 太 田 道 雄

論文内容の要旨

規則合金の速度論的研究は実験的にも理論的にも数多くなされているが、それらの解析に用いられた速度式はいずれも多くのパラメータと複雑な関数を含む微分方程式であり、規則化過程を詳細に論ずることが出来る反面、その取り扱いが複雑で実験結果の解析に直接用いるにはかなり不便である。また、高温から焼き入れられた試料は多くの過剰空孔を含み、その後の種々の物理量の変化に大きな影響を与える。特に、規則-不規則変態温度以上の温度領域から急冷して不規則化させた合金には、その後の昇温過程で過剰空孔の移動、消滅に伴う規則化と平衡空孔の移動による規則化との、いわゆる2段階の規則化過程が存在することが報告されている。しかし、空孔濃度の時間変化と規則度の変化との関係については定量的な取り扱いが十分でなく、B2型規則合金の規則化過程に及ぼす空孔の役割および規則度と物理量の関係については、まだ不明な点が多い。

本研究では、B2型規則合金における一般的な物理条件から、実験結果の解析に簡便に適用できる速度式(一般的速度式)を導出した。また、典型的なB2型規則合金の一つであるFeCo合金の等温規則化に伴う格子定数変化および等速昇温規則化に伴う電気抵抗変化の測定を行った。本論文は、これらの実験結果の一般的速度式による解析をとおして、B2型規則合金の規則化過程、特に空孔の役割とその2段階変化を速度論的に解釈することを目的として行った研究をまとめたものであり、以下の7章から構成されている。

第1章では、本研究の背景および目的、構成について述べた。

第2章では、B2型規則合金における一般的考察、すなわち、 α 副格子と β 副格子の互換対称性および平

衡条件とその安定性から規則度Sの3次式で表される簡単な一般的速度式を導出した。さらに、この速度式を、規則化が空孔を媒介として進行することを陽に取り入れ、空孔濃度の時間変化まで考慮し、等温規則化過程および等速昇温規則化過程に適用できる速度式に拡張した。また、擬化学反応論より導出されたTakagi-Oguchiの式および原子論的立場から導出されたVineyardの式と本研究の速度式とをそれぞれ対比させて、速度式に含まれる諸パラメータの物理的意味を明らかにした。また、他の速度式との比較検討を行い、活性化エネルギーおよび原子振動数に関する関係式を得た。

第3章では、等原子比のFeCo合金の格子定数測定用の粉末試料と電気抵抗測定用の楔形試料の作製とその熱処理、およびそれらの測定方法について述べた。

第4章では、等温規則化に伴う格子定数変化の実験結果と一般的速度式による解析について述べた。実験の結果、格子定数は規則度の2乗Xに比例して増加すること、773K以下の低温領域においては格子定数が焼鈍時間とともに明瞭な2段階変化を示すことを見出した。これらの結果を空孔濃度の時間変化まで考慮した速度式で解析し、2段階変化の現象は、FeCo合金を等温焼鈍により規則化する場合、焼鈍の初期には焼入れによる過剰空孔を媒介として規則化が急速に進み、やがて過剰空孔は消滅し、つぎに熱平衡濃度の空孔によって規則化が進行するためであることを速度論的に明らかにした。また、FeCo合金における空孔の移動エネルギーとして139kJ/mol、形成エネルギーとして91kJ/molを得た。

第5章では、等速昇温規則化に伴う電気抵抗変化の実験結果と拡張した速度式による解析について述べた。実験結果の解析を可能にするため、電気抵抗に対するフォノン散乱や磁氣的散乱の寄与を見積り、さらに、規則度が各散乱項に及ぼす影響をも考慮して、電気抵抗の温度微係数と規則度の2乗Xおよび dX/dT との関係式を見出した。また、規則度のみ依存する温度微係数との関係式を導出した。実験結果をこれらの関係式で解析し、FeCo合金の昇温過程では規則度の2段階変化は起こらないことを速度論的に示した。また、フォノン散乱および残留抵抗率は、規則化に伴い規則度の2乗に比例して減少し、その比例定数がそれぞれ $7.0 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ と0.03になることを示した。

第6章では、焼入れ過程の空孔消滅に伴う規則度変化を一般的速度式から正確に見積った。本研究の実験方法では、約1.5%の空孔が消滅し、規則度の2乗Xが0.4%増加することがわかった。また、等温規則化過程と等速昇温規則化過程における空孔濃度の時間変化と規則度変化の関係および規則度の2段階変化の焼

入れ温度依存性について総合的に考察し、B2型規則合金の規則化過程を一般的速度式により総括的に説明した。

第7章は、結論で、本研究を通じて得られた成果を総括した。

論文調査の要旨

規則合金の物性は、規則化あるいは不規則化に伴う原子の再配列に依存することから、実験的、理論的な面からの速度論的研究が数多く行われてきた。しかるに、従来提出されてきた速度式は、多くのパラメータと複雑な関数を含む非線形方程式で、実験結果の解析にはあまりにも不便であった。しかも、高温から急冷した不規則合金は多くの過剰空孔を含み、規則化において種々の物性値に大きな影響を与えるにもかかわらず、B2型合金の規則化過程に及ぼす空孔の役割および規則度と物性値との関係については定量的な取り扱いが十分にされていない。また、本研究で取り上げたFeCo合金は原子番号が隣接しているため、実験的にはX線回折における規則格子反射の強度が小さく、規則度を直接求めることが困難な合金系である。このような場合には、規則度に代わる適当な物性値を測定し、規則度との対応関係をつける必要がある。

本論文は、B2型合金の規則化の素過程に関する特定のモデルによらず、一般的な物理条件のみから、実験結果の解析に適用できる簡便な速度式を導出するとともに、典型的なB2型規則合金であるFeCo合金の等温規則化および等速昇温規則化過程における格子定数と電気抵抗の測定結果を、導出した速度式で解析し、FeCo合金の規則化過程を解明したもので、以下の結果を得ている。

1. B2型規則合金における α 、 β 副格子の互換対称性および平衡条件とその安定性から、規則度 S の3次式の形をもち実験結果の解析に容易に適用可能な速度式を導出している。次いで、規則化が空孔を媒介とすることから、空孔濃度の時間変化を考慮した、等温規則化過程および等速昇温規則化過程に適用できる速度式に拡張している。また、擬化学反応論および原子論的立場から導出された他の研究者による速度式と対比させることにより、速度式に含まれる諸パラメータの物理的意味を明らかにしている。

2. 不規則領域から焼き入れたFeCo合金の等温規則化に伴う格子定数変化をX線回折法で測定し、導出した速度式で解析している。その結果、格子定数は規則度 S の2乗(X)に比例して増加すること、格子定数が焼鈍時間とともに明瞭な2段階変化を示すこと、この2段階変化は過剰空孔を媒介とした焼鈍初期の急速な規則化と引き続き熱平衡空孔による規則化が原因

で現れること、および2段階変化は低温焼鈍ほど顕著に現れることを明らかにしている。

3. 等速昇温規則化過程における空孔濃度の時間変化と規則度変化の関係を考察している。焼入れ過程の空孔消滅に伴う規則度変化を拡張した速度式を用いて解析し、焼き入れ過程における約1.5%の空孔の消滅に伴って規則度の初期値が0.13になることを見出している。また、焼き入れによる凍結空孔は昇温過程で急速に減少し、一旦最小値を経た後平衡空孔濃度に達すること、この空孔濃度の変化に付随して、規則度もオーバーシュート現象を起こすこと、等速昇温過程では規則度の2段階変化は起こらないことを明らかにしている。

4. 等速昇温規則化に伴う電気抵抗変化を測定し、電気抵抗に対するフォノン散乱や磁氣的散乱の寄与を見積り、規則度が各散乱項に及ぼす影響を考慮して、電気抵抗の温度微係数 α_R および規則度だけに依存する電気抵抗の温度微係数 $\Delta\alpha_R$ と規則度の2乗 X ならびに dX/dT との関係を得ている。磁氣的散乱による電気抵抗は規則化の影響をほとんど受けないが、フォノン散乱による電気抵抗は規則化に伴い規則度の2乗に比例した影響を受けること、および残留抵抗率は規則度の2乗に比例して減少することを明らかにしている。

以上要するに、本論文はB2型合金の規則化過程に対する実験結果の解析に適用できる簡便な速度式を導出するとともに、FeCo合金の規則化過程に伴う格子定数変化および電気抵抗変化を測定し、導出した速度式による解析をとおして、B2型規則合金の等温規則化および等速昇温規則化過程を明らかにしたもので、金属材料学および固体物性学上寄与するところが大きい。よって、本論文は博士(工学)に値するものと認める。

最終試験の結果の要旨

本論文に関して調査委員から、(1)速度式導出における基本的条件、(2)X線回折における標準試料とピーク位置の同定方法、(3)電気抵抗測定用楔形試料の特徴、(4)格子定数の2段階変化における空孔の役割、(5)電気抵抗の温度微係数のもつ物理的意味、(6)使用したパラメータの妥当性、などについて質問がなされたが、著者の回答は何れも的確であった。

また、公聴会においては、学内外から多数の出席者があり、活発な質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上の結果より、著者は試験に合格したものと認められた。

学力確認の結果の要旨

口頭により試問を行った。金属組織学，X線結晶学，金属物性学などについて試問を行った結果，十分な学力を有し，研究者として自立して研究活動を行うに必要な能力をもつものと認めた。

外国語の学力に関しては，英語については本人が発表した英語の論文から見て，仏語については本論文に関係のある仏語の論文の和訳を提出させ，試問を行った結果，十分な学力をもつものと判定した。

氏名(本籍) 横 峯 健 彦(鹿児島県)
 学位記番号 総理工博乙第265号
 学位授与の日附 平成9年9月25日
 学位論文題目 固気混相乱流数値モデルの開発とその応用に関する研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 清 水 昭比古
 (副査) 〃 〃 福 田 研 二
 〃 〃 〃 小 山 繁
 〃 〃 〃 速 水 洋

論文内容の要旨

数値流体力学の進歩は，混相流の現象解析に大きな影響を与えている。単相流の延長上に混相流の数値シミュレーションを発展させることは自然であり，ここ数年報告が急増しているが，計算による予測はまだ信頼できる段階に達していない。一方，実験研究に関しても，その計測技術および再現性の困難さから，実験室で得られた結果でさえ信用されず，実装置での試験データだけがよりどころにされることが工業の場ではしばしばある。それだけに実験に替わるような信頼できる予測計算法が確立されれば，その価値は計り知れない。混相流は最近，“多重構造流体”と呼ばれているが，その名の示す通り，様々な時空間スケールが共存した構造を持ち，現象の複雑性および数値解析の困難さは，まさにこれに起因している。そのため，混相流中の現象を正しく数値予測するためには，この多重構造を明確に意識した流動機構の解明とモデル化が不可欠である。スケールは，小さい順に，連続体スケール，粒子スケール，時空間平均スケールと分類できるが，この中で工業上の実際の問題に応用されるのは，最終的なマクロな時空間平均スケールでのモデル方程式となる。よって，この平均スケールの基礎方程式を軸に，多重構造に起因する種々の因子，いわゆる“粒子—乱流渦間相互作用”を何らかの形で定式化しなければ

らないが，いまだ確立されたモデルは存在しない。このような観点から，本論文は，対象を固気系混相流に限定した上で，時空間平均スケール上での混相乱流数値モデル，すなわち固気混相 $k-\epsilon$ 乱流モデルの構築を目的として研究を行なったもので，5章より構成されている。

第1章では，混相流数値解析のスケール毎の問題点を述べると共に，本研究の動機となった固気混相流冷却核融合動力炉の開発状況を概説した。

第2章では，上述の粒子—乱流渦間相互作用の数値モデルに関する従来の研究を概観し，相互作用の中で特に，粒子の存在が流れ場の乱れ構造を変化させる，いわゆる乱流変調 (turbulence modulation) についての従来型モデルの問題点を示した。すなわち，乱流変調には粒子によって乱れが増加する場合と減少する場合がありますが，双方を考慮したモデルを構築する必要があるが，従来型モデルでは本質的に後者の記述しかできないことを簡単な思考実験で証明した。そこで，粒子による乱れの増加が粒子後流に発生するウェイクの乱れに起因すると仮定し，新たな数値モデルを導出した。従来型のモデルでは，平均流がなす仕事は，直接熱として消散するしかなかったが，本モデルではこれを3つのエネルギーフローに分割した。すなわち，直接熱に消散する部分，粒子の加速・減速に消費される部分および一旦，乱流エネルギーに変換され，乱流エネルギーの増加に寄与し，その後熱として消散する部分である。この最後の寄与分を付加的な粒子ソースタームとして乱流エネルギー方程式に組み込み，固気混相 $k-\epsilon$ 乱流モデルを完成させた。粒子ソースタームのモデル化においては，粒子スケールと連続体スケールの相互作用を粒子と乱流渦の時間および空間スケール比を用いて記述し，そのモデルが満たすべき漸近挙動を確認した。さらに，2つの異なる体系での実験結果と比較し，提唱したモデルが問題毎にモデル定数を調整せずに実験結果を再現できることを示した。

第3章では，粒子の固体壁への繰り返し衝突で生ずるエロージョンの数値予測に第2章で提唱したモデルを応用した。先ず，エロージョン素過程を簡単な予備実験でモデル化する手法を示した。そのエロージョン素過程モデルを混相乱流数値予測モデルに組み込んで，ねじりテープ入り管内固気混相流におけるエロージョン予測を試みた。解析にあたっては，流れ場の強い非等方性を考慮して，混相 $k-\epsilon$ 乱流モデルに代数応力モデルを連立させた。同時に，計算と同じ体系でエロージョン実験を行い，数値予測結果の妥当性を確認した。また，エロージョンや粒子濃度分布に与えるねじりテープのピッチや幅等の影響についても考察し，筋状の粒子高濃度集中領域の発生条件やそれが発生す

ることにより管内壁に主に切削摩耗による溝状のエロージョン傷が生ずることを再現した。

第4章では第2の応用例として、核融合炉エネルギー変換システムの構築の際にその中核要素機器となるガス-高温粒子間熱交換器に着目し、本モデルにより装置の開発設計が十分可能であることを実証した。この熱交換器は、両相の“直接混合かつ向流型の熱交換”と同時に“効果的な固気分離”を実現する必要があるため、そのために旋回遠心場を利用するものである。概念設計から試行計算を行いその成立性を検討し、モデル器を設計・製作した。製作したモデル器では、受熱ガスは軸流旋回流として容器内に吹き込まれ、内管から供給される高温粒子と準向流型の熱交換を行う。モデル器を用いた固気分離実験および伝熱実験を行い、得られた結果と数値予測結果を比較検討することにより、粒子が高濃度になると、粒子は供給口における高濃度状態を保ったままほぼ直線的に落下し、ガス流はその高濃度領域を避けて反転し系外へ出るため、両相の混合が不十分で熱交換器の熱効率は低くなること、および粒子供給口直下に粒子拡散盤を設置すれば、ガス流れ場を大きく変化させることなく両相の混合が促進され、高い熱効率を得ることができること、の2点が明らかになった。

第5章では、本論文を総括し、得られた結果を要約した。

論文調査の要旨

混相乱流は様々な時空間スケールが共存した複雑な多重構造をもち、工業上多くの場面で見られる現象であるが、信頼できる数値計算法は今だに確立されていない。本研究は、対象を固気系混相流に限定した上で、この多重構造性に立脚した分散粒子系混相乱流の数値モデルを開発し、さらに開発したモデルを用いて、固気混相流ダクトに生ずるエロージョンの数値予測及び直接混合軸流サイクロン型固気熱交換器の開発を試みたもので、以下に示す成果を得ている。

(1) 多重構造性に起因する粒子-乱流渦間相互作用を現象論的に分類するとともに数値モデルに関する既往の研究を概観し、相互作用の中で特に、粒子の存在が流れ場の乱れ構造を変化させる、いわゆる乱流変動に関する既存モデルの誤りを指摘している。すなわち著者は、分散粒子系混相流の気流乱れは単相流に比して増加することも減少することもあるにも拘わらず既往モデルは本質的に減少する場合しか記述できないことを証明している。

(2) 粒子による乱れの増加が粒子後流(ウェイク)に起因すると仮定する新たな数値モデルを導出している。すなわち、気相平均流がなす仕事を直接熱に消散

される部分、粒子の加速・減速に使われる部分、及び一旦ウェイクの乱流エネルギー増加に寄与した後に熱として消散される部分、という三つのエネルギーフローの項に分割し、最終項のみを付加的粒子ソース項として乱流エネルギー方程式に組み込む新たな固気混相 $k-\epsilon$ 乱流モデルを構築している。

(3) 上記粒子ソース項のモデル化において、粒子スケールと連続体スケールの相互作用を粒子と乱流渦の時空間スケール比を用いて記述し、さらに、数値予測結果を二つの異なる体系での実験結果と比較して、提唱したモデルの有効性を示している。

(4) 以上の数値モデルを、粒子の繰り返し衝突によってねじりテープ入り管内固気混相流の管路壁に生ずるエロージョンの数値予測に応用し、計算と同じ体系で行ったエロージョン実験と比較して数値予測の妥当性を確認している。また、エロージョンや粒子濃度分布に与えるねじりテープのピッチ及び管路との隙間幅の影響についても考察し、筋状の粒子高濃度集中領域の出現や、主に切削摩耗によって生ずる溝状のエロージョン傷の発生を数値計算で再現している。

(5) モデルの第二の応用として、固気混相冷却核融合動力炉のエネルギー変換システム構築の際に中核要素機器となるガス-高温粒子間熱交換器の開発を試みている。この熱交換器は、軸流旋回吹き込みガス流による遠心力場を利用して、両相間の直接混合向流型の熱交換及び効果的再分離の二点を実現するもので、著者は、概念設計段階から前記数値モデルによる試行計算を併用してその成立性を綿密に検討した上で、熱交換器を設計・試作している。試作器を用いた固気再分離実験及び伝熱実験では、粒子が高濃度になると、粒子は供給口における高濃度状態を保ったままほぼ直線的に落下し、ガス流はその高濃度領域を避けて反転し系外へ出るため熱交換器の熱効率は低くなることが示されている。さらに著者はその対策として、粒子供給口直下に粒子拡散盤を設置することを提唱し、これによりガス流れ場を大きく変化させることなく両相の混合を促進し高い熱効率が達成できることを実証している。

以上要するに本論文は、固気混相乱流場の数値計算において、既往の研究では不十分であった粒子-乱流渦間相互作用の数値モデルを現象論的に導出し、さらにこれを応用してねじりテープ入り管の内壁に生ずるエロージョンの数値予測、及び直接混合軸流サイクロン型固気熱交換器の開発に成功したもので、これらの研究内容は熱工学、流体工学及び核融合炉工学上価値ある業績である。

よって本論文は、博士(工学)の学位論文に値するものと認める。

試験の結果の要旨

本論文に関し調査委員から、(1) 提案した固気混相乱流数値モデルと従来のモデルとの主な相違点、(2) 乱流エネルギー増加に寄与する粒子ソースタームの物理的解釈、(3) 軸流サイクロン型固気熱交換器の他の分野での応用可能性、などについて質問がなされたが、いずれも著者からの確かな回答がなされた。

また公聴会においては、学内外より多数の出席者があり活発な質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上の結果により、著者は試験に合格したものと認められた。

学力試験の結果の要旨

口頭により試験を行った。熱工学、流体工学などに関して試問をした結果、十分な学力があり、かつ研究者として自立して研究活動を行うに必要な能力を持つものと認められた。

外国語の学力に関しては、本論文に関係のある独語論文の和訳を提出させ試問した結果及び本人が発表した英語論文から判断して、十分な学力を持つものと判断した。

氏名(本籍) 十河 慎二(神奈川県)
 学位記番号 総理工博乙第266号
 学位授与の日附 平成9年9月25日
 学位論文題目 CZ法に於けるSi単結晶育成時の融液流動と酸素輸送に関する研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 今石 宣之
 (副査) 〃 〃 尾添 紘之
 〃 〃 〃 宮崎 則幸
 〃 〃 〃 助教授 柿本 浩一

論文内容の要旨

現在、コンピュータから家庭用電化製品の核となる電子デバイスは、その殆どが引き上げ(CZ)法により育成されたSi単結晶基板上に作成されている。デバイスの高集積化が進むにつれSi結晶には大口径化、高品質化が常に要求され続けている。CZ法により育成される結晶の品質は、育成時の温度履歴や坩堝内Si融液の流動状況により大きく左右される。特に、最も重要な品質の1つである結晶中酸素濃度に関しては、融液流れの影響を強く受けるため、これを十分に制御する必要がある。しかし実際の製造プロセスにおける融液流れと酸素濃度の相関についての理解は十分

ではなく、試行錯誤により結晶成長条件を決めているのが現状である。今後、さらに結晶品質のスペックが厳しくなり、酸素濃度のファインコントロールが必要となった場合、融液流れの十分な理解が不可欠となることは言うまでもない。

このような観点から、本論文はCZ-Si単結晶育成時の融液流動と酸素輸送について、コンピュータシミュレーション及び実験の双方から解析を行い、これらと結晶品質との相関を解明することを目的として研究を行ったものであり、10章より構成されている。

第1章では、CZ法の概要、融液流動解析の重要性及び従来の研究例を概観した後、本論文の構成を述べている。

第2章では、以下第3～5章で用いている2次元軸対称モデルの解析手法を説明している。

第3章は、Si結晶育成時の酸素濃度調整パラメータとして用いられる坩堝、結晶回転が、融液中の酸素輸送機構に及ぼす影響について解析した結果を示している。このうち坩堝回転については、結晶がない場合には坩堝壁からの熱や酸素の輸送を妨げる方向に働くことを明らかとした。このことは、角運動量保存則により説明が可能である。一方で、結晶が育成されている場合には、酸素が坩堝の底部から供給されることを示した。坩堝が高回転になった場合の酸素濃度の増加は、結晶径一定を保つための坩堝壁温度の上昇により坩堝底からの酸素の供給量が増加するためと考えられる。また結晶回転については、結晶面内の酸素濃度分布を均一化させる方向に働くが、Si融液のような低Pr数流体では、流れの変化が固液界面のごく近傍にしか及ばないため、結晶中の酸素濃度レベルには影響を及ぼさないことが分かった。つまりこの効果は、結晶回転を増加させることで界面のごく近傍で誘起される強制対流により、自由表面からの低酸素融液の進入が防がれるためと理解できる。さらにこの効果により固液界面下の経時的な酸素濃度変動が減少し、結晶中の微小な酸素濃度分布も均一なものとなる。実験的にこの効果が、熱処理後に結晶内部に発生するストリエーションの減少として現れることを確認した。

第4章では、前章の解析に加えて自由表面での境界条件として酸素の蒸発速度を、坩堝壁での境界条件として新しい酸素溶解度値を与えて数値解析を行うことで、自由表面での酸素濃度分布を明らかにしている。さらに固液界面や自由表面での流動の経時的変化を調べることで、酸素濃度を決定する対流構造の詳細を明らかにした。自由表面部には $10^{15} \sim 10^{16}$ atoms/ccのオーダーで酸素が分布する。この部分での、計算による酸素濃度の経時変動と径方向流速の間には、よい相関が認められ、同位置での酸素濃度がバルク中で発生

する縦方向のロールセルにより支配されていることを確認した。また自由表面部の酸素濃度分布を計算することで、実験で得られた結晶周辺部の酸素濃度分布の傾向を正しく再現することができた。さらに結晶周辺部での酸素濃度の変動周期は、坩堝中心で生じる軸方向流速の振動に同期することを見いだした。これは流体の連続性により、坩堝中心部で下降流に同期して自由表面下から低酸素の融液が引き込まれるというメカニズムによるものである。

第5章では、結晶中の酸素濃度を決定する石英坩堝からの溶出に関して、供給位置を限定した坩堝を用いての結晶育成及び数値解析により、酸素濃度が結晶の大部分で坩堝の底部から輸送される酸素により支配されていることを確認している。ただし、結晶育成の初期段階においては、坩堝側壁からの輸送も酸素濃度の高低に影響を持つことから、輸送形態は育成時の坩堝の加熱形態により決められ、初期段階では側壁加熱による傾圧不安定流による径方向の輸送、それ以降では下面加熱による上下方向の輸送が優勢であると考えられる。また坩堝底部の内、融液中の酸素の高低に最も強い影響を持つのが育成プロセス中、最高温部になるコーナー部からの溶出であった。この位置からの酸素は自由表面下部領域に輸送されるため、第4章で説明したメカニズムにより固液界面下に流れ込む融液の酸素濃度を高く保ち、この部分での酸素濃度の稀釈が弱められることを明らかにした。

第6章では結晶育成時の結晶下部領域の対流構造に対して、最近明らかとなった密度異常現象(1430℃から凝固点の範囲で体膨張係数が8.5倍に増加)が大きな影響を持つことを、温度変動測定実験により明らかにした。基本的に結晶の下部領域の流れは、Heslotらの示した自然対流におけるSoft turbulenceに類似したものであり、これは結晶中心下部の下向きの流れが坩堝底部付近の高温部を非周期的に巻き上げることで維持されている。この状況下に密度異常を抑える不純物であるGaを添加した場合、液深が浅くなったときに温度変動のパワースペクトルの傾きが-4乗からずれ、定常的な層流に近づくことを確認した。加えて、時間局所的な周波数成分の分布を明らかにするために行ったウェーブレット解析から、密度異常が存在する場合には44秒周期の位置に非定常的に強いエネルギーを持つ振動が現れることを観測した。この振動がGa添加で液深が70mmの場合にのみ消滅したことから、前述したSoft turbulenceに特有な坩堝底付近からの熱塊の剥離によるものであると考えられる。

第7章では、密度異常現象は結晶下部領域のみならず、結晶外周下部及び自由表面下部の対流構造にも変化を与えることを明らかにした。密度異常が存在しな

い場合には、自由表面下には周方向に明確な波数1と2の温度分布構造(坩堝回転5rpmで12.6秒周期)が現れるが、密度異常の出現によりこの構造が22~44秒周期の非常に緩やかなものへと変化することを確認した。前者は、Kishidaらが示したように傾圧不安定現象によるものであるが、測定位置が密度異常領域にある場合は、自由表面下の高温部から沸き上がる流れにより規則的渦構造が乱れるものと考えられる。

第8章では、密度異常が坩堝内部の対流構造及び酸素輸送現象に及ぼす影響を、3次元乱流モデルを用いたコンピュータシミュレーション及び対応する実験との比較により明らかにした。坩堝内に発生する流れは密度異常の起こる温度領域を境に流れのパターンが全く異なり、結晶の下部では強い乱流成分をもつ流れが形成されるようになる。また坩堝回転が低回転で系全体の温度が低下した場合には、坩堝のほぼ全域が密度異常の領域に含まれるようになり、全体的に乱流成分の強い流れ場となる。これは密度異常発生温度を境として体膨張係数が急変することにより、発生する浮力が8.5倍程度上昇するためである。この乱流成分の増加により、熱や酸素の輸送も大きな影響を受ける。特に酸素輸送に関しては、坩堝低回転時において、坩堝壁温度が低下し酸素の溶解量が減少しているのに関わらず、計算で得られた結晶部の酸素濃度が高回転の場合とほぼ同一であった。同様な傾向が、実験的に育成した結晶に見られたこと、及び融液内温度分布の実測値が密度異常を考慮した計算結果によく一致したことから、第6、7章で示した融液中に密度異常現象が存在し、流動に強い影響を持つ可能性が高いことを確認できた。

第9章では本論文の結果と実際の結晶品質を比較、検討することで、今後の酸素濃度制御指針を示した。

第10章では、本研究で得られた知見を総括した。

論文調査の要旨

電子デバイスの超微細化・高機能化に伴い、基板材料としてのシリコン単結晶の大口径化と高品質化の要求がますます厳しくなっている。特に、チョクラスキー(CZ)法で育成されるシリコン単結晶の品質制御には、結晶の熱履歴のみならず、結晶中の酸素濃度およびその均一性も重要な因子となっている。酸素は石英ルツボからシリコン融液中へ溶出し、融液中の対流によって輸送され、結晶直下の融液から結晶中に取り込まれる。融液内の酸素輸送は、高温ルツボ壁や低温結晶による自然対流やマランゴニ対流、ルツボや結晶の回転に起因する回転流、ルツボ壁温度分布、融液表面からの放散速度など多くの因子が関与する複雑系で、これらに関する系統的な理解が必要とされている。

本研究は実験および数値解析に基づいて、融液内対流と酸素輸送に関する基礎的な検討を行った結果をまとめたものである。

著者はまず、2次元数値シミュレーションによりルツボ内の融液対流と酸素輸送の挙動を解析し、結晶が無い場合の融液対流は、ルツボ壁に沿って上昇し融液表面近傍を中心に向かい、中心で下降する自然対流循環流が支配的で、酸素もこの循環流によって輸送されること、また、ルツボを回転すると、中心に向かう流れが抑制され、熱や酸素の輸送が抑制されることを明らかにしている。しかし、結晶を付けてそれを回転させた場合には、結晶下部にルツボ底から結晶へ向かって上昇する流れが誘起され、酸素はルツボ底から固液界面へと直接輸送されるように変化することを明らかにしている。このシミュレーションは、結晶回転速度を変化させても結晶中の酸素濃度レベルはほとんど変化しないが高回転にするほど半径方向の酸素濃度均一性が向上する事実など、比較のために実施したルツボ内温度分布、融液内および結晶内の酸素濃度分布の測定結果を良好に説明できることを示している。

さらに著者は、数値シミュレーションにおける融液表面での酸素濃度の境界条件が重要であり、融液表面での酸素濃度をゼロに設定すると実験結果を説明できず、別途行った酸素放散速度の測定結果から酸素の蒸発速度係数を算出して、シミュレーションの境界条件に導入することで始めて、定量的な計算が可能であることを明らかにしている。

次に著者は、石英ルツボ内壁の側面部あるいは底部に治具を装着してその部分からの酸素溶出を防止しつつ結晶成長させる実験を行い、側壁を覆って育成した結晶は通常操作（ルツボ内面全面が融液と接触）とほぼ同じ酸素濃度を示すこと、一方、ルツボ底部を覆って育成すると結晶中酸素濃度は減少することを確認し、シミュレーションで示されたルツボ底から酸素が供給される機構が重要であることの検証に成功している。

著者は、融液内温度分布とその経時変化を測定し、温度信号をフーリエ変換してパワースペクトルを調べた結果、低周波成分の強度は一定で特定の周波数に際立ったピークが現われる傾向は無いこと、0.05Hz 程度以上の領域では周波数の -4 乗に比例して減衰することを見い出しており、さらにウェーブレット変換の結果も考慮して、ルツボ内の融液流れは層流と乱流の遷移領域にあると推定している。

純粋なシリコン融液あるいはボロン (B) 添加融液では密度異常現象 [融点近傍 (1412℃~1430℃) で融液の体膨張係数が、高温領域でのその値の8倍程度に増大する現象] が発生すること、ガリウム (Ga) を添加すると密度異常が消滅することが知られているが、

この密度異常現象が融液対流や酸素輸送に及ぼす効果を、 $k-\epsilon$ モデルを導入した3次元非定常数値シミュレーションによって検討し、融液温度が1430℃以下になる領域では乱流強度が増大することを示している。密度異常を考慮した計算結果は、小型ルツボを用いた実験で得られた融液内温度分布や結晶内酸素濃度の半径方向分布を良く説明できることを確認している。

以上要するに、本論文はチョクラルスキー (CZ) 法によって育成されるシリコン単結晶の品質を決める最大の因子である酸素の取り込みと、ルツボ内のシリコン融液の流れ、温度分布、酸素濃度分布との関係について、実験および数値解析に基づいて多くの重要な知見を得たものであり、結晶工学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) の学位論文に値するものと認められる。

最終試験の結果の要旨

本論文に関して調査委員から、(1) 数値解析の手法と時間ステップの大きさ、(2) 実測の融液内酸素濃度分布とシミュレーション結果との若干の差異の原因、(3) ルツボ内壁被覆治具の装着による温度変化の原因とその影響、(4) 密度異常発生領域の大きさと結晶育成条件の関係、(5) 非直交系ガウス型ウェーブレットを使用した理由とその効果、などについて質問がなされたが、いずれも著者から満足な回答が得られた。

また公聴会においては、多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

学力確認の結果の要旨

口頭により試問を行った。伝熱工学、流体力学、結晶工学などに関して質問した結果、十分な学力があり、かつ研究者として自立して研究活動を行うのに十分な能力を有するものと認めた。英語については本人が発表した英語論文からみて、また独語については本論文に関連のある独語論文の和訳を提出させて試問を行った結果から判断して、十分な学力をもつものと判断した。

氏 名 (本籍) 秋 山 泰 伸 (福岡県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第267号

学位授与の日附 平成9年9月25日

学位論文題目 熱 CVD 成膜過程のモデル解析

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 今 石 宣 之

(副 査) 〃 〃 〃 尾 添 紘 之

〃 〃 〃 諸 岡 成 治

論文内容の要旨

本論文では、酸化物薄膜の CVD (Chemical Vapor Deposition) を取り上げ単成分および複成分膜について反応のモデル化を行い、シミュレーションを併用することで反応速度と組成の説明を行なった。また、ステップ、ホールカバレッジの高速シミュレーション法を開発し、ミクロスケールの成膜形状に及ぼす様々な操作因子について検討した。

第 2 章では、CVD 反応中の成膜速度を決める過程、つまり律速になる過程のみを考慮した簡単な反応スキームを組み立てた。その反応スキームを用いて、表面反応の速度過程を解析するために、従来の計算手法の長所を取り入れ、かつ飛躍的に高速化できるアルゴリズムを考案し、プログラムコードを開発した。また、気相での速度過程を解析するために、熱移動、物質移動および反応を考慮した円管式ホットウォール CVD 装置内の成膜速度分布をシミュレーションできるプログラムの作製を行った。

第 3 章では、有機金属錯体を原料とした CVD (MOCVD) によるジルコニア (ZrO_2) およびイットリア (Y_2O_3) の成膜過程を対象に、その膜組織等に及ぼす CVD の操作因子の影響について調べるとともに、第 2 章で開発したマイクロレンチ上の形状シミュレーションコードおよび円管式ホットウォール CVD 装置内の成膜速度シミュレーションコードを使用して、反応のモデル解析を行なった。反応スキームとしては、原料が一次の気相反応を経て成膜前駆体になり、成膜前駆体が基板面上に移動して一次の表面反応を経て膜になるというモデルで、その成膜速度分布を説明できることを示した。また、その反応モデル中に含まれる表面ならびに気相反応の速度定数を決定した。ここで記した反応モデル、速度定数及びシミュレーションプログラムを併用すれば、実際に実験することなく、 ZrO_2 と Y_2O_3 のミクロスケールおよびマクロスケールでの成膜速度を予測する事が可能となる。

第 4 章では、 ZrO_2 および Y_2O_3 の固溶体であるイットリア安定化ジルコニアの MOCVD を対象にモデル解析を行なった。YSZ は全ての組成で固溶する系であるという性質から、単成分膜の成膜過程と YSZ の速度過程が近似しているのではないかという予想のもとに、単純な ZrO_2 、 Y_2O_3 の成膜過程の重ねあわせで成膜速度、組成の説明を試みた。第 2 章で開発した単成分成膜用のカバレッジおよび反応管内成膜速度のシミュレーションコードを、多成分系にも対応できるように拡張した。単成分成膜過程の重ねあわせで、反応管内の成膜速度および組成の分布に関しては、ほぼ定量的に、またステップカバレッジの結果についても定

量的には実験結果を説明することができ、第一次近似としては単成分成膜過程の重ねあわせが成り立つを示した。しかし、カバレッジの組成を単成分の成膜過程の重ねあわせで定量的に説明できないことから、単成分成膜過程と YSZ の成膜過程で表面反応速度過程が異なる可能性も示唆された。また、トレンチ内で組成分布が生じる事実から、成膜前駆体としてアダクトが生成している可能性は低いことが示された。

第 5 章では、非線型表面反応に対応できるカバレッジのシミュレーションコードの開発を行い、Langmuir-Hinshelwood 型 (L-H) 型の表面反応を例にシミュレーションを行なった。一次表面反応と L-H 型表面反応の場合のカバレッジ形状の違いについて、いくつかのケースについてシミュレーションを行なった。また、L-H 型の表面反応過程であると推測される $TiCl_4$ と NH_3 からの TiN の CVD について、トレンチ内の成膜形状と析出した膜中の残留塩素濃度の関係についてシミュレーションを行なった。カバレッジの良い膜は残留塩素濃度が高く、カバレッジの悪い膜は塩素濃度が低いので必要に応じて成膜条件を選択する必要があることを示した。

第 6 章では、CVD の操作条件と、ホールおよびトレンチ上のカバレッジ形状の関係について研究を行なった。まず、YSZ の固体燃料電池用の電解質としての応用を考慮して、可能な限り薄い膜で完全閉塞させるとともに孔内での成膜量を減少させるための操作条件の探索を目的としてシミュレーションを行なった。その結果、高温で成膜し、孔内に殆ど成膜させずに入口付近のみ成膜させることで溝幅を狭くし、その後低温にして閉塞させる方法が効果的である事を示した。また、この操作法が有効であることを実験により確認した。次に、流れを利用して成膜形状を制御する流通型 CVD について、その有効性を確認すべくダイレクトシミュレーションモンタカルロ法を用いたカバレッジシミュレーションのコードを開発した。付着確率およびクヌッセン数がある程度小さい成膜条件を選択することで、前駆体を細孔内部に運ぶ効果を大きくすることができ、流通型 CVD の操作が有効に作用することを示した。流通型 CVD を多孔質基板に対して行なえば、大きい直径の孔の方が、小さい直径の孔よりも効果的に径が小さくなるので、孔径を一定に揃える効果があることが示唆された。

本論文に記した CVD のモデル解析法は、様々な既存の CVD 系や今後開発される新材料を用いた系に対しても有効な手法である。また、ここで開発したシミュレーターは、線形、非線形どちらの表面反応に対しても、反応の解析および形状の予測に対して利便性が高いと思われる。

論文調査の要旨

CVD (Chemical Vapor Deposition; 化学蒸着法) は広範な産業分野における重要な基本操作となりつつある。デバイス類の超微細化・高機能化に伴い、CVD 操作の高度制御が要求され、CVD 装置の合理的設計、操作条件の最適化を合理的に行うために、シミュレーション手法の開発が強く望まれている。しかし、CVD 操作には化学反応が内在するため、物理的な真空蒸着法等に比べて数理モデルの開発が遅れている。したがって、気相反応や表面反応の特性を取り込んだモデル解析手法の確立が CVD 反応工学上の重要な課題となっている。

本研究は、熱化学反応を利用した CVD (熱 CVD) における化学反応、特に固気界面での表面反応のモデル化と速度パラメータの決定手法の開発を中心として、CVD 反応器内のマイクロからマクロまで広範なスケールの現象を取り扱うモデル解析についての基礎的検討の結果をまとめたものである。

著者は、CVD における表面反応の解析のため、マイクロトレンチ (μm スケールの微細な溝) 内部に成長した薄膜の形状から表面反応速度定数を決定することを試みている。一般に、気相反応で生成した活性中間体は、マイクロトレンチ内で固体壁面上の表面反応との競合拡散の結果、濃度分布を生じ、それに応じた膜厚分布を形成する。著者はまず、この表面反応速度が界面近傍の気相内の活性中間体濃度の 1 次反応である場合について、表面反応を中間体が壁面に衝突した場合に固体へ変化する確率過程 (反応性付着確率: η) とみなし、トレンチ内の成膜速度を気相内の拡散と、固体壁面への衝突時の固体への遷移、の 2 種の確率過程からなる数理モデルで表現し、さらに固体膜の成長をセルモデルで表現するモンテカルロシミュレーションコードを開発している。さらに、管型反応器の軸方向の膜成長速度分布のマクロシミュレーションと組み合わせることで、表面反応、気相反応がともに線形である CVD 系での化学反応の速度パラメータを実験的に決定する手段を確立している。

著者は次に、前章で提案した解析手法を、有機金属錯体を原料とするジルコニア (ZrO_2) およびイットリア (Y_2O_3) の熱 CVD 系に対して適用し、実験で求めたマイクロトレンチ上の膜形状のシミュレーションから、各々の CVD 系での η を反応温度の関数として決定している。さらにマクロシミュレーション手法を適用して気相反応の速度定数も決定している。その結果、合理的なモデル化を行えば、任意の CVD 反応器内での $0.1\mu\text{m}$ から 1m までの広範な空間スケールにおける成膜特性を予測可能であることを示唆している。

著者はさらに、ジルコニアとイットリアの固溶体である、イットリア安定化ジルコニア (YSZ) の薄膜の CVD 合成実験を行い、前節で求めた両成分の単独の成膜速度の加成性を仮定することで、2 成分系 CVD 膜の成膜速度や固体内の組成の分布をほぼ正確に予測できることを実証している。ただ、 μm スケールのトレンチ内の膜組成分布の予測精度は未だ不十分で、表面反応速度の固体表面組成依存性などが今後の課題として残されている。

次に著者は、表面反応速度が気相内の活性中間体濃度の非線形関数で表わされる系での表面反応の解析手法としてマイクロトレンチ法を拡張することを試み、任意の非線形関数で表わされる場合に対しても適用できる、逐次近似法を導入したモンテカルロシミュレーションコードを開発し、実際にラングミュア-ヒンシェルウッド型の吸着特性を示す TiCl_4 と NH_3 を原料とする TiN 膜の CVD 系における、マイクロトレンチ内の膜形状と膜内残留塩素量の関係の予測に応用している。

著者はまた、微細なトレンチや孔の開口幅や開口径の制御法についてシミュレーションに基づいて検討し、内部での膜堆積量を少なくし、かつ開口部を小さくする (あるいは出来るだけ急峻に開口部を閉塞する) ためには、まず高温で成膜してその後低温で成膜することが有効であることを見出し、実験で実証している。また、多孔質固体内部への CVD 成長に利用されるガス吸引式の CVD 操作の効果を、ダイレクトシミュレーションモンテカルロ法に基づいて解析している。

以上要するに、本論文は熱 CVD の数理モデルの構築、実験で得た膜形状から反応機構や反応速度パラメータを抽出するための数値解析コードの開発、膜形状や膜組成の分布の定量的予測法など、熱 CVD のモデル解析手法について、多くの重要な知見を得たものであり、CVD 反応工学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) の学位論文に値するものと認められる。

最終試験の結果の要旨

本論文に関して調査委員から、(1) モンテカルロシミュレーションに必要な計算時間やメモリーサイズ、(2) 反応性付着確率と表面反応速度定数の関係、(3) 2 成分固体膜組成の予測の誤差要因、(4) 非線形表面反応の解析に要する計算時間、(5) 著者の開発したモンテカルロ法の精度および実用性、などについて質問がなされたが、いずれも著者から満足な回答が得られた。

また公聴会においては、多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解がえられた。

学力確認の結果の要旨

口頭により試問を行った。反応工学，物理化学，数値計算法などに関して質問した結果，十分な学力があり，かつ研究者として自立して研究活動を行うのに十分な能力を有するものと認めた。英語については本人が発表した英語論文からみて，また独語については本論文に関連のある独語論文の和訳を提出させて試問を行った結果から判断して，十分な学力をもつものと判断した。

氏名(本籍) 黒光祥郎(愛媛県)
 学位記番号 総理工博乙第268号
 学位授与の日附 平成9年11月20日
 学位論文題目 ガラスとセラミックスの界面反応解析及びその半導体実装用 AlN 回路基板への応用
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 森永健次
 (副査) 〃 〃 沖憲典
 〃 〃 〃 森克巳

論文内容の要旨

アルミナは，その高い絶縁性や優れた機械的強度等の点から，セラミックス回路基板材料として，現在最も汎用的に使用されている。AlN は，アルミナと同程度の絶縁性と機械的強度を有し，しかもアルミナに比較して約10倍の熱伝導性と Si と同程度の熱膨張率を有することから，アルミナを凌駕するセラミックス回路基板材料として注目され，その実用化は着実に進んでいる。しかし，AlN を厚膜回路用基板として用いる場合，アルミナ用に設計されている汎用的な厚膜材料を適用できない問題がある。BaTiO₃ は代表的な強誘電体であり，各種コンデンサー材料や厚膜誘電体材料として広く用いられてきた。ガラスは，厚膜材料中においては，主にセラミックス回路基板材料やコンデンサー基板材料との接合性の観点から添加されている。またセラミックスへのガラス添加は，セラミックスの低温焼結化のための有効な方法である。

以上のことから，ガラスとセラミックスとの界面反応現象は，セラミックス基板材料や厚膜材料を開発する際に極めて重要な知見にもかかわらず，その基礎的な研究はほとんどなされていない。そこで，本研究においては，上記3種類のセラミックス，すなわち，アルミナ，AlN 及び BaTiO₃ と3種類の2元系ガラス，すなわち，PbO-B₂O₃，PbO-SiO₂ 及び Bi₂O₃-B₂O₃ 系ガラスとの界面反応機構を明らかにすることを目的と

した。さらに，この界面反応機構を基に，上記 AlN の問題点を解決することを目指して，AlN を厚膜回路基板として用いるための AlN 基板に対する表面処理方法を提案し，その有効性を実証した。以下，本研究で得られた知見を各章ごとに要約する。

第1章では，AlN の半導体実装用回路基板としての位置づけやその開発状況についてまとめた。

第2章では，汎用的な厚膜材料が AlN 基板に適用できない問題点，すなわち，導体/96% Al₂O₃ 基板間の接合強度は実用的に十分であるが，導体/AlN 基板の接合強度は極めて低く実用性に乏しいことを示した。さらに，この接合強度の差を，導体中に含まれているガラスとセラミックス基板との反応形態の差に起因すると結論づけた。

第3章及び第4章においては，上記3種類のセラミックスと2元系ガラスとの界面における反応機構について検討を行い，以下の結論を得た。

1. ガラスと96% Al₂O₃ 基板との界面においては，ガラス系や組成に依ることなく，96% Al₂O₃ 基板中にガラスが侵入した反応層を形成した。この反応層は，ガラスが96% Al₂O₃ 基板の粒界成分である SiO₂ をガラス中に溶解しながら基板の粒界に侵入することによって形成される。ガラスの96% Al₂O₃ 基板中への侵入に対する駆動力を毛細引力と仮定することによって，反応層の厚さの時間変化や反応層の厚さとガラスの表面張力や粘度との関係をうまく説明した。また，ガラス中への SiO₂ の溶解は，ガラスの基板中への侵入速度を極端に引き下げると考察した。

2. ガラスと AlN 基板との界面においては，AlN 自身がガラス中に溶解する反応が進行することを確認し，また，AlN のガラス中への溶解現象を支配する主な要因を，ガラス中の自由酸素イオンであると結論づけた。

3. ガラスと BaTiO₃ 粉体との界面においては，3種類の反応現象すなわち，化合物の生成，Pb と BaTiO₃ の Ba との置換反応及び BaTiO₃ の粒成長を観察した。BaTiO₃ の Ba とガラス中の Pb との置換反応は，BaB₂O₄ もしくは Ba₂SiO₄ の生成によって引き起こされると結論づけた。一方，PbO を含まない Bi₂O₃-B₂O₃ 系ガラスと BaTiO₃ 粉体との反応においては，BaTiO₃ の置換反応や BaTiO₃ の粒成長は起こらず，反応生成化合物のみを観察した。

4. ガラスと BaTiO₃ 板との界面においては，その反応形態を2種類に分類した。その第1の形態は，PbO もしくは Bi₂O₃ 含有量が多いガラス組成領域において観察され，ガラスは BaTiO₃ 粒界に侵入し，またガラス中の Pb は BaTiO₃ 中に拡散していた。また，第2の界面形態は，B₂O₃ や SiO₂ 含有量が多いガラス

組成領域において観察され、その界面には種々の化合物が生成していた。さらに、この界面生成化合物と、ガラスと BaTiO₃ 粉体との反応によって確認した化合物の結果より、主要な界面反応化合物の生成式について考察した。

第 5 章においては、上記ガラスとセラミックスとの界面反応形態を 4 種類に分類し、その接合性について考察した。

第 6 章においては、第 2 章にて提起した問題点、すなわち汎用的厚膜導体材料と AlN 基板との接合性が極めて低いことを解決すべく AlN 基板の表面処理方法を提案した。この表面処理方法は、AlN 基板を酸化することによって Al₂O₃ 層を形成した後に、ゾルゲル法にて SiO₂ 層を形成するものであり、表面処理後の AlN 基板は SiO₂/Al₂O₃/AlN からなる多層構造を得る。さらに、AlN の酸化メカニズムについて検討し、AlN を酸化させる雰囲気は、AlN 上に生成される酸化層 (α -Al₂O₃) の形態を支配することを明らかにするとともに、それぞれの雰囲気における律速過程及び反応速度定数について検討した。

第 7 章においては、第 6 章において提案した AlN 基板の表面処理方法の有効性を実証すると共に、厚膜導体と表面処理 AlN 基板との接合性と導体焼成条件や表面処理層厚との関係を検討し、以下の結論を得た。

1. AlN 基板表面に形成された SiO₂ 層/酸化層 (Al₂O₃ 層) からなる多層構造は導体中のガラスと AlN 自身の反応を抑え、導体/基板間の接合強度を導体/96% Al₂O₃ 基板間の接合強度に匹敵するまで高めることができる。

2. 表面処理層 (酸化層及び SiO₂ 層) が形成された AlN 基板と導体との接合強度は、表面処理層の厚さと導体の焼成サイクル数に依存することを明らかにし、その接合強度メカニズムについて考察した。

3. 標準焼成 (850℃~10min.) された導体と接合強度が良好な表面処理層を有する AlN 基板を用いて、その信頼性を評価した結果、基本的には 96% Al₂O₃ 基板上と同等の特性を得ることができた。

第 8 章においては、本研究全般の総括を行い、また、Appendix においては、表面処理 AlN 基板を用いた、厚膜ハイブリッド IC や AlN 表面処理方法を応用したグレーズド AlN 基板の試作についてまとめた。

以上、第 3 章及び第 4 章で述べたガラス/セラミックス間の界面反応に関する知見は、本研究の最終目的とした AlN 基板に対する表面処理方法だけでなく、広くセラミックス基板材料や厚膜材料を開発するための基礎的知見である。また、第 6 章及び第 7 章で述べた AlN 基板に対する表面処理方法は、AlN 基板の本質的問題を解決した工学的手法である。

論文調査の要旨

半導体実装分野において、セラミックス回路基板材料とガラス粉体を主体とした厚膜材料の設計および成膜プロセスの開発は極めて重要な技術である。この技術の基盤を確立するにはセラミックスとガラスの界面反応現象の理解が重要であるが、必ずしもこれらの現象の十分な理解がなされていないのが現状である。

本論文はセラミックスとして 96% Al₂O₃ [4% (SiO₂ + MgO)], 99.99% Al₂O₃ および BaTiO₃ を、厚膜用ガラスとしては現在汎用されている PbO-B₂O₃, PbO-SiO₂ 二元系ガラスを選択し、これらセラミックスとガラス融体の界面反応現象の解明に成功したものである。さらにこの成果を基礎に、高熱伝導材料として注目された AlN の実装回路基板への実用化に成功したものである。

本論文で得られた主な知見は以下の通りである。

1. 現在賞用されている 96% Al₂O₃ 基板および 99.99% Al₂O₃ 基板とガラス融体との界面での反応形態の差異を明確に示し、96% Al₂O₃ が基板材料として最適であることを実証している。すなわち 99.99% Al₂O₃ 基板とガラス融体の界面では、均一な“濡れ”現象によって接合するか、Al₂O₃ 粒子の溶解で接合しているのに対し、96% Al₂O₃ 基板ではその粒界に存在する SiO₂ とガラス融体が選択的に反応し、浸透層を生成する機構で接合することを明確に示している。また 96% Al₂O₃ 基板での接合は接着強度の点でも優れていることを明示している。さらにガラス融体の基板への浸透の駆動力を毛細管引力と仮定すると、浸透層の厚さの時間変化がガラス融体の表面張力、粘度で説明できることも示し、現在汎用されている 96% Al₂O₃ 基板とガラスの接着機構の解析に成功している。

2. 化合物 BaTiO₃ 粉体とガラス融体では、ガラス融体の組成によって二種類の反応現象が観察されることを明らかにしている。すなわち、PbO が少ない領域では BaTiO₃ と SiO₂ あるいは B₂O₃ の化合物の生成、PbO が多い領域では BaTiO₃ の Ba²⁺ と Pb²⁺ の一部置換反応が観察され、さらに全領域での BaTiO₃ 粉体の粒成長も認められた。さらに BaTiO₃ 基板とガラス融体との界面反応形態も上記粉体での結果と同様の結果を得ており、主要な界面反応化合物の生成化学式についても詳細に考察を加えている。

3. 高い熱伝導率をもつ AlN の回路基板への応用は研究者の長い間の懸案であった。それについては AlN 基板と上記ガラス融体の反応が、主にガス発生 (N₂ および NO_x) を伴う AlN 基板の溶解であることを明らかにし、汎用的な厚膜導体材料と AlN 基板との接合強度が極めて低いことの原因が、界面に発生し

た気泡の生成に起因することを見出している。この結果より、AlN 基板の表面処理の必要性を提案している。

4. AlN 基板の表面のみをガラスとの接合が良好な 96% Al₂O₃ 基板の類似形態に表面処理する方法を確立し、世界に先駆けて AlN 基板の実装回路基板への応用に成功している。すなわち、AlN 基板表面に高温酸化により緻密な数 μm の Al₂O₃ 膜を形成する条件を確立している。さらにガラス融体との選択的反応のため 96% Al₂O₃ 粒界中の SiO₂ に相当する 0.1~0.3 μm の SiO₂ 膜をゾルーゲル法で形成し、96% Al₂O₃ 基板の表面と類似する表面層の形成手法を確立している。この結果、表面処理層での熱伝導率低下を約 5% に抑え、AlN の機能を十分に発揮できる表面処理 AlN 基板の作製に成功している。この表面処理された AlN 基板には従来 96% Al₂O₃ 基板に賞用されている全ての厚膜材料が利用できることを実証し、工業的に大きな成果を収めている。

以上要するに本論文はセラミックスとガラス融体の界面反応の解析を系統的に行い、これらの研究成果に基づいて AlN 基板の表面処理法を確立、AlN 基板の実装回路への実用手法の開発に成功したものであり、セラミックス材料工学、無機反応工学および成膜プロセス工学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文に値するものと認める。

試験の結果の要旨

本論文に関し、調査委員から、(1) BaTiO₃ 中の Ba²⁺ とガラス中の Pb²⁺ との置換反応を支配する要因、(2) AlN 基板上に形成された表面処理層 (Al₂O₃ 層及び SiO₂ 層) の役割や表面処理層との厚膜導体材料との反応機構、(3) AlN の酸化機構、(4) 表面処理された AlN 基板の熱伝導率などについて質問がなされたが、いずれも著者からの確かな回答がなされた。

また、公聴会においては、学内外より多数の出席者があり活発な質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上の結果より、著者は試験に合格したものと認められた。

学力確認の要旨

口頭により試験を行った。無機材料工学、界面化学、融体プロセス工学などに関して試問した結果、十分な学力があり、かつ研究者として自立して研究活動を行うに必要な能力を持つものと認めた。

外国語の学力に関しては、本論文に関係のある独語論文の和訳を提出させ試問した結果及び本人が発表した英語論文から判断して、十分な学力をもつものと判断した。

