

## 輸送現象の数理解析と実験

尾添, 紘之

九州大学機能物質科学研究所素子開発部門数理輸送現象研究分野

井上, 剛良

九州大学機能物質科学研究所素子開発部門数理輸送現象研究分野

岩本, 光生

九州大学機能物質科学研究所素子開発部門数理輸送現象研究分野

<https://doi.org/10.15017/6580>

---

出版情報 : 九州大学機能物質科学研究所報告. 4 (2), pp.115-149, 1991-03-30. 九州大学機能物質科学研究所

バージョン :

権利関係 :

## 輸送現象の数理解析と実験

尾添 紘之, 井上 剛良, 岩本 光生

(九州大学機能物質科学研究所素子開発部門数理輸送現象研究分野)

### Numerical Analyses and Experiments of Transport Processes

Hiroyuki OZOE, Takayoshi INOUE and Mitsuo IWAMOTO

Transport processes in manufacturing functional materials determinate the quality and the functions of the materials especially for semi-conducting and/or optical devices. The substrate of integrate circuits is mostly manufactured by Czochralski method for which an external magnetic field is employed to control the convection of the feed material. Followings are experimental and theoretical approaches to study the effect of magnetic field on the convection of liquid metals as feed material. Thin film formation experiment and clustering of water molecules are also studied for their mechanism of formation and functions.

#### 目 次

はじめに

- A. 液体金属の自然対流に及ぼす鉛直方向外部磁場の影響：二次元場解析
- B. 液体金属の自然対流に及ぼす水平横方向外部磁場の影響：二次元場解析
- C. 立方体容器内の液体金属の自然対流に及ぼす磁場の方向の影響：三次元場解析
- D. 立方体容器内の液体ガリウムの自然対流熱伝達に及ぼす外部磁場の方向の影響に関する実験
- E. Cz法対流に及ぼす軸方向磁場の影響：2.5次元場解析
- F. Cz法流れ場の常温可視化実験
- G. 浮遊帯域法結晶成長プロセスの簡易モデルによる数値解析
- H. 無重力場における浮遊帯域法の簡易モデルによる数値解析
- I. クラスタ形成における混合気体分子および回転エネルギーの影響
- J. 振動励起による蒸着過程の研究

#### はじめに

本研究分野では機能性素子の死命を制する素子基盤の製造プロセスにおける各種数理輸送現象の数理解析の構築とその数値解析並びに薄膜素子の形成機構の研究等を行っている。現在の半導体素子基盤はその大半がシリコン(Si)によって作られているが、これはシリコンの純粋結晶であり、その工業的製造方法は主としてチョクラスキー(Cz)法と言われるものである。この方法では原料多結晶シリコンを炉内で融解し、その液上面より種結晶を成長させ、長い棒状単結晶に仕

上げていくものである。その時単結晶の純度、不純物分布等の重要特性に固化時の融液内の液流動特性が重大な影響を及ぼすことが知られているが、その詳細な機構や制御方法には未知な点が多い。さて熔融半導体原料は電気伝導性を持つので、この特性を生かして、外部より磁界を加え、その流れを抑制し、その結果、融液中への不純物の溶解速度を低下させ、ひいては結晶内の不純物濃度を目標値に制御していこうとする方法が試みられている。導電性流体の流れが磁場によって力を受け、自身の流れを変える特性は電磁気学の分野ではローレンツ力として知られているが、例えば、

上記半導体材料の融解しているルツボ内の流れのような複雑な流れ場にこのような磁場が作用した際に流れにどの様に作用するのかは直観的に把握でき難い。実際のチョクラルスキー製造プロセスにおいては、重力が作用し、さらに結晶棒自身や、ルツボもその中心軸の周りに回転されており、例えば外部より印加する磁場の最も有効な方向についても議論が分かれている。

以下の(A)~(F)は本問題に関係した各個別テーマの研究を紹介する。また半導体基盤材料製造方法にはその他に Bridgeman 法や浮遊帯域法と言われる宇宙空間での製造に適合した方法も小規模ながら行われており、以下の(G)~(H)がこれに関連した結晶成長プロセスのシミュレーションであり、本プロセスの改善への足がかりを得ようと試みているものである。

一方、このような液相から固相への変換による結晶基盤に加え、素子形成に重要なプロセスに気相から固相への変換を行う薄膜形成過程がある。薄膜はこれを構成する相の厚さが薄く、固相内部とは異なった物性を示す可能性が期待され、またその薄膜が形成されるプロセスも薄膜の機能発現特性に関連すると考えられる。以下の(I), (J)はこのような観点から行っている研究である。

## A. 液体金属の自然対流に及ぼす鉛直外部磁場の影響：二次元場解析 [A. 1]

### A-1. はじめに

プラズマ（電離気体）とか液体金属のような導電性流体が磁場下において流動すれば、その内部に電流が発生し磁場によりいわゆるローレンツ力が作用する。導電性流体が磁場下にありかつ非等温境界条件下にあれば自然対流を呈し、かつその流れは電磁気的な力をも受けるようになり、従ってまたその流体の関与する熱伝達も影響を受けることになる。このような導電性流体は熱の良伝導体であり、プラントル数の値が小さい。低プラントル数流体の自然対流の問題を取り扱ったものに例えば、Hunt & Wilks [A. 2] がある。これは磁場の影響を級数近似解法により取り扱った。Nagase ら [A. 3] は低 Pr 数流体の自然対流熱伝達の実験的測定を長く行っている。また直方体容器内に導電性流体が外部磁場下で示す対流について Tabeling [A. 4] は線形安定論に基づき、ベナールセルの方向と磁場との関係について論じている。

また地球物理学の分野に関連して、多孔質層内の流体に及ぼす磁場と自然対流の相互作用を論じたものに

Raptis & Vlahos [A. 5] のものがある。一方、半導体製造プロセスの宇宙での実施を想定して、例えば前川と棚沢 [A. 6] は表面張力場と重力の干渉する場での水平流体内の自然対流の安定性を線形安定論に基づいて論じている。また、ポート法を想定した表面張力流を取り扱ったものに、森岡ら [A. 7] の報告がある。本報告により密接な関連のあるものとしては Weiss [A. 8] のものがある。これは二次元場での導電性流体に及ぼす磁場と重力場の干渉影響を数値解析したものであり、非線形対流項も考慮したものである。しかし取り扱った流動境界条件は周囲の四壁とも摩擦無しという宇宙空間ガスを対象としたものであると共に、プラントル数=1 という場合であった。さて上述の液体金属の結晶成長工程の改良、改善には、その移動現象の解明が急がれる。我々はこのような観点より、まず基本的な幾何学的系を対象として、一般的な特性を把握することとした。即ち正方形断面内の液体金属が対向する鉛直側壁より加熱・冷却され外部より磁場が鉛直方向に作用する場合を例として取り上げる。以下では導電性流体として熔融金属シリコンを想定し、 $Pr = 0.054$  という一定値の下で、磁場と重力場の両方の外力場における二次元ついで三次元自然対流の流動特性を数値計算によって求めようとしたものである。

### A-2. モデル方程式と対象とする系

電磁流体力学の基礎方程式は、流体の連続の式、エネルギー式、運動方程式からなる。ここで運動方程式中の項に重力場の浮力のみならず電磁場からの力も考慮しなければならない。問題を二次元場に限定し、かつ、浮力の項の密度以外の物性は温度に依存しないというブシネスクの近似を行った。はじめに磁場の方程式を解いたが  $\nabla \cdot \vec{B} = 0$  を満たすことが出来なかった。そこで Weiss に習い、磁場のベクトルポテンシャル  $A$  を導入した。以下に無次元化した方程式をまとめて示す。エネルギー式

$$\frac{DT}{D\tau} = \nabla^2 T \quad (A. 1)$$

磁場の誘導方程式

$$\frac{D\vec{B}}{D\tau} - (B_x \frac{\partial \vec{U}}{\partial X} + B_y \frac{\partial \vec{U}}{\partial Y}) = Pr_m \nabla^2 \vec{B} \quad (A. 2), (A. 3)$$

Maxwell 方程式

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (A. 4)$$

渦度方程式

$$\frac{D\Omega}{D\tau} = -Pr \frac{\partial T}{\partial Y} + Pr \nabla^2 \Omega$$

$$+ Ha^2 Ra^{-2/3} Pr Pr_m \left\{ B_x \frac{\partial}{\partial X} \left( \frac{\partial B_y}{\partial X} - \frac{\partial B_x}{\partial Y} \right) + B_y \frac{\partial}{\partial Y} \left( \frac{\partial B_y}{\partial X} - \frac{\partial B_x}{\partial Y} \right) \right\} \quad (A. 5)$$

渦度の定義式

$$\Omega = \frac{\partial V}{\partial X} - \frac{\partial U}{\partial Y} = -\nabla^2 \Psi \quad (A. 6)$$

速度の定義式

$$U = \frac{\partial \Psi}{\partial Y} \quad (A. 7) \quad V = -\frac{\partial \Psi}{\partial X} \quad (A. 8)$$

磁場のベクトルポテンシャルの定義式

$$B_x = \frac{\partial A}{\partial Y} \quad (A. 9) \quad B_y = -\frac{\partial A}{\partial X} \quad (A. 10)$$

磁場のベクトルポテンシャルの保存式

$$\frac{\partial A}{\partial \tau} + U \frac{\partial A}{\partial X} + V \frac{\partial A}{\partial Y} = Pr_m \left( \frac{\partial^2 A}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 A}{\partial Y^2} \right) \quad (A. 11)$$

尚、ここで無次元数は以下のように定義した。

$$X = x/x_0, Y = y/y_0, U = u/u_0, V = v/v_0,$$

$$\tau = t/t_0, u_0 = v_0 = \alpha/x_0, t_0 = x_0^2/\alpha,$$

$$T = \frac{\theta - \theta_0}{\theta_h - \theta_c}, B_x = b_x/B_0, B_y = b_y/B_0,$$

$$x_0 = y_0 = \left[ \frac{g\beta(\theta_h - \theta_c)}{\alpha\nu} \right]^{-1/3}, \theta_0 = \frac{\theta_h + \theta_c}{2},$$

$$Ha = \left( \frac{\sigma_e}{\mu} \right)^{1/2} B_0 \ell, Pr_m = \frac{\nu_m}{\alpha}, Pr = \frac{\nu}{\alpha}$$

$$L = \ell/x_0 = Ra^{1/3}, Ra = g\beta(\theta_h - \theta_c)\ell^3/(\alpha\nu)$$

計算手順としては、まず  $B_x = B_y = 0$  の条件下で流動場の収束解を求め、これを初期条件にして、順次上式により各変数が収束するまで非定常計算を行った。なお、低プラントル数においては、熱拡散率が大きくなり、温度分布はほぼ直線の分布を示し、温度勾配の計算精度が落ちてくる。そこで  $Pr = 0.054$  の場合に対しては、温度変数を直線温度分布からのずれとして定義した式を用いた。

### A-3. 初期条件と境界条件

計算対象とした系を図A-1に示す。簡単のため、正方形断面のダクト内流体が一鉛直側壁から一定温度  $\theta_h$  で加熱され、対向する鉛直側壁から  $\theta_c$  で冷却され、上下水平面は断熱されているものとする。四周壁は固体壁とする。図中に差分格子幅を示す。不等間隔で  $x, y$  方向とも24分割である。

#### 1) Temperature

$$\begin{aligned} T &= 0.5 && \text{at } Y = 0 \\ T &= -0.5 && \text{at } Y = L \\ \partial T / \partial X &= 0 && \text{at } X = 0 \text{ and } L \end{aligned}$$

#### 2) Velocity

$$U = V = 0 \quad \text{at } X = 0 \text{ and } L$$

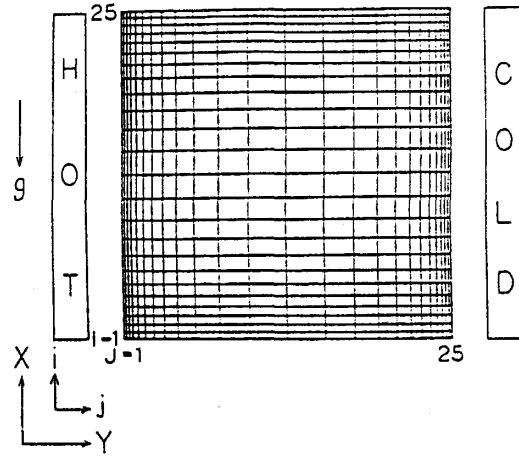


Fig. A-1 System Considered and Grid Points.

at  $Y = 0$  and  $L$

#### 3) Stream function

$$\Psi = 0 \quad \text{at } X = 0 \text{ and } L$$

$$\Psi = 0 \quad \text{at } Y = 0 \text{ and } L$$

#### 4) Vorticity

$$\Omega = \partial V / \partial X \quad \text{at } X = 0 \text{ and } L$$

$$\Omega = -\partial U / \partial Y \quad \text{at } Y = 0 \text{ and } L$$

#### 5) Magnetic vector potential

$$A = 0 \quad \text{at } Y = 0$$

$$A = Ra^{1/3} \quad \text{at } Y = L$$

$$A = Y \quad \text{at } X = 0 \text{ and } L$$

#### 6) Magnetic field

$$B_x = 1 \text{ and } \partial B_y / \partial X = 0 \quad \text{at } X = 0 \text{ and } L$$

$$B_y = 0 \text{ and } \partial B_x / \partial Y = 0 \quad \text{at } Y = 0 \text{ and } L$$

磁場と磁場ベクトルポテンシャルの境界条件は磁場が  $X$  方向に作用する場合であり、磁場ベクトルポテンシャルの境界条件はこれに対応するものとして導出した。

### A-4. 計算結果

磁場の作用しない場合 まず  $Pr$  数の大きい場合から定常解を求め、 $Pr$  数を小さくしていくこととした。その後磁場を考慮していく。まず水の場合に相当する  $Pr = 9.17$  で  $Ra = 10^6$  の解が既に求められている [A. 9] ので、これを初期値として、 $Pr = 1, 0.1$  の場合について大略の収束値を求めた。 $Pr = 0.054$  の場合には、上述のように、温度の変数として、直線温度分布からのずれを用いた式で計算した。 $Pr = 9.17$  と1ではあまり変わらないが、 $0.054$  となると流動形態は鉛直側壁に沿う境界層流れから流体が全体として回転している流れとなった。表A-1に中心の流れ関数の値を示す。 $Nu$  数は9.38から6.08へと減少する。Churchill [A. 10] の相

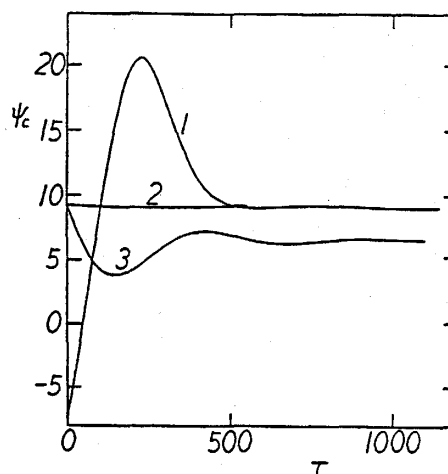
**Table A-1** The Effect of the Prandtl Number on the Nusselt Number and the Central Stream Function at  $Ra = 10^6$  without a Magnetic Force.

Pr	Nu	Nu*	$\Psi_c$	$\Psi_c/Pr$
9.17	9.38	10.859	21.745	2.371
1	9.36	9.309	17.385	17.385
0.1	7.00	6.697	12.169	121.69
0.054	6.08	5.960	10.506	194.55

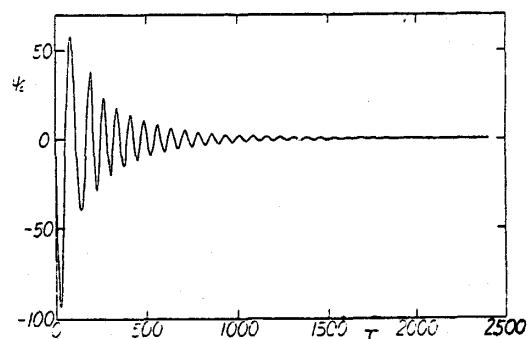
Nu\* = Correlation equation by Churchill

関式による値も示す。両者はよく一致しており、本計算が低プラントル数の自由対流の特性を正しく反映していることが推測される。

**磁場の作用する場合** 系のパラメータとしては、レイリー数 $Ra$ 、ハルトマン数 $Ha$ 、プラントル数 $Pr$ 、磁気プラントル数 $Pr_m$ の4つがあるが、ここでは問題を簡単にするために $Pr_m = 1$ の場合のみを取り扱った。 $Ra = 10^6$ 、 $Pr = 0.054$ 一定の状態では $Ha = 1, 10, 10^2, 10^3$ の4種の磁場の強さに対する解を求めた。 $Ha = 1, 10, 100$ の場合の過渡状態を図A-2に、 $Ha = 10^3$ のそれを図A-3に示す。後者の場合振動の振幅が+50から-90の大きさになり、非常にゆっくりと多数回の振動を繰り返すついでには、殆ど流れ関数の中心値がほぼゼロに近い値になった。これらの収束時の平均Nu数、中心流れ関数値を表A-2に示す。平均Nu数が、 $Ha = 1$ と10では大小がわずかに逆転しているがその理由は不明である。この表よりハルトマン数の増大と共にNu数も循環流量も減少していくことがわかり、磁場が強くなると対流が抑制されるという通念と一致している。小林 [A. 11] の解説によれば、 $Ra < \pi^2 Ha^2$  が融液の流れが磁場によって抑制される条件であるが、 $Ra = 10^6$  の場合  $Ha_c = 318$  となる。さらに  $Ra = 10^4, 10^5$  で  $Ha = 100$  の場合についても計算を行った。これらの結果を総合すれば、 $Ha$  数と  $Ra$  数の両者の関数として Nu 数を相関できるはずである。そこで安定論に基づき  $Ha^2/Ra$  に対して Nu 数をプロットしたものを図A-4に示す。ここで  $Nu_0$  は磁場のないときの値である。この図では Log



**Fig. A-2** Responses of a Central Stream Function. Curve 1 is for a steady state at  $Ha = 1$ , Curve 2 is for a steady state at  $Ha = 10$ , Curve 3 is for a steady state at  $Ha = 100$ ,



**Fig. A-3** Transient Response of a Central Stream Function at  $Ha = 1000$ , and  $Ra = 10^6$ .

$(Ha^2/Ra) = -2$  の時、2つの異なった縦軸の値が与えられた。そこで、無次元化式中に現れた  $Ha/Ra^{1/3}$  を横軸にとったものを図A-5に示す。この図ははるかに滑らかな点群を与えた。このような曲線は Churchill and Usagi [A. 12] の方法で次の近似式で与えることが出来る。

**Table A-2** The Effect of the Hartmann Number on the Central Stream Function and the Average Nusselt Number at  $Ra = 10^6$ ,  $Pr = 0.054$  and  $Pr_m = 1$

Ha	Nu	$\Psi_c$	$(B_x)_{max}$	$(B_x)_{min}$	$(B_y)_{max}$	$(B_y)_{min}$	Umax
1	6.078	10.499	6.53	0.0574	0.955	-4.51	1.233
10	6.094	10.473	6.52	0.0607	0.955	-4.55	1.233
100	4.622	6.552	4.17	0.287	1.188	-4.31	0.879
1000	1.004	0.206	1.05	0.957	0.0355	-0.108	0.0369

Table A-3 Computed Results to Correlate the Average Nusselt Number at  $Pr_m=1$  and  $Pr=0.054$

Ra	Ha	Nu	$[Nu-1] / [Nu(Ha=0)-1]$	$Ha/Ra^{1/3}$	$Ha^2/Ra$
$10^4$	0	1.850	1	0	0
	100	1.004	0.0047	4.6416	1
$10^5$	0	3.304	1	0	0
	33.333	2.907	0.828	0.7181	0.0111
	100	1.262	0.114	2.154	$10^{-1}$
$10^6$	0	6.084	1	0	0
	1	6.078	0.999	0.01	$10^{-6}$
	10	6.094	1.002	0.1	$10^{-4}$
	$10^2$	4.622	0.712	1	$10^{-2}$
	$10^3$	1.004	0.001	10	1

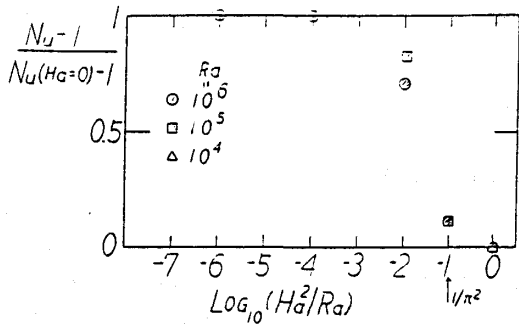


Fig. A-4 A Primary Plot for the Correlation of the Average Nusselt Number at  $Pr=0.054$  and  $Pr_m=1$ .

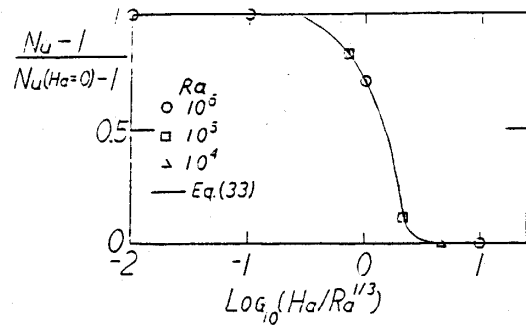


Fig. A-5 General Plot for the Average Nusselt Number at  $Pr=0.054$  and  $Pr_m=1$ .

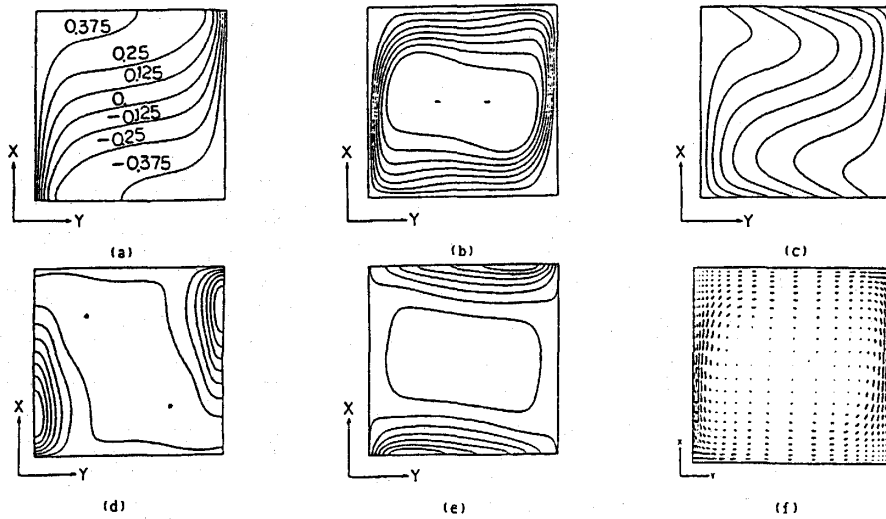


Fig. A-6 Steady State Profiles at  $Ha=100$ ,  $Ra=10^6$ ,  $Pr=0.054$  and  $Pr_m=1$ .  
 (a) isotherms (b) stream function  
 (c) magnetic vector potential (d) magnetic field  $B_x$ .  
 (e)  $B_y$  (f) velocity vectors.

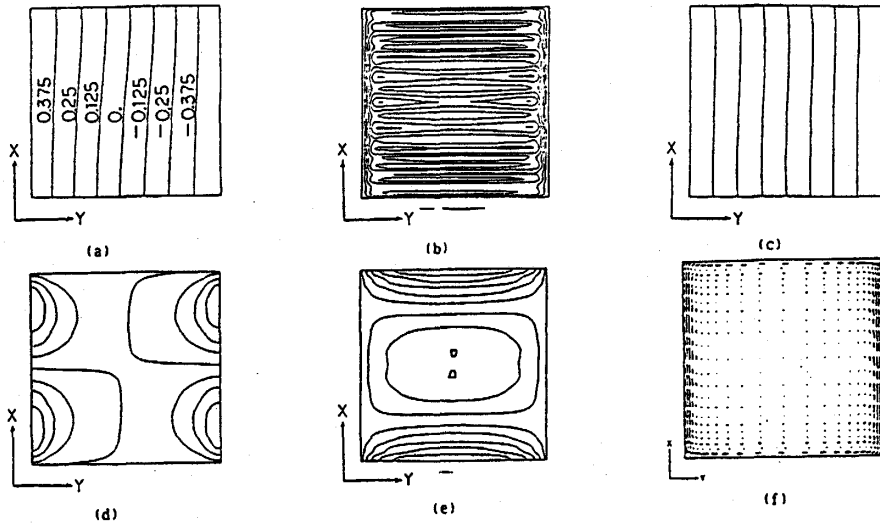


Fig. A-7 Steady State Profiles at  $Ha=10^3$ ,  $Ra=10^6$ ,  $Pr=0.054$  and  $Pr_m=1$ .  
 (a) isotherms (b) stream function  
 (c) magnetic vector potential (d) magnetic field  $B_x$ .  
 (e)  $B_y$  (f) velocity vectors.

$$\frac{Nu-1}{Nu_0-1} = 1 - \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{2 \cdot 2Ra^{1/3}}{Ha}\right)^{9.012}\right]^{1/5.62}} \quad (A.12)$$

図A-5中の実線がそれである。このような無次元数の組合せにより、重力場と磁場の両者の混在する自然対流場の熱伝達が表現できる。等温線図、等流れ関数線図、等磁場ベクトルポテンシャル線図、等磁場図、 $B_x$ 、 $B_y$ の両成分を $Ra=10^6$ で $Ha=10^2, 10^3$ の各場合について図A-6、A-7に示す。特に $Ha=10^3$ における等流れ関数線図と速度ベクトル図によると、強い磁場下の低プラントル数流体は、加熱板と冷却板の間に短絡するような対流渦が高さ方向に多数並んで発生することを示している。しかしこれは非常に遅い流れであり、実在するものかどうか不明である。

**B. 液体金属の自然対流に及ぼす水平横方向外部磁場の影響：二次元場解析 [B.1]**

**B-1. はじめに**

A節では、側壁加熱下の正方形断面内の導電性流体( $Pr=0.054$ )に縦方向の外部磁場を印加した時の自然対流についてモデル方程式の導出と数値解析を行い、磁場の強さの増加と共に平均熱伝達率が減少すること、強い磁場をステップ印加すると、渦流れが交互に変化することを示した。しかし磁気プラントル数 $Pr_m=$

$(\sigma_e \mu_m \alpha)^{-1} = 1$ に限られた為、半導体材料( $Pr_m \approx 10^4$ 以上)のようなものへ適用できるかどうか不明であった。ここでは横磁場の場合と、 $Pr_m$ の影響について検討した結果を示す。基礎式はA節に示した通りである。

**B-2. 初期条件と境界条件**

計算対象とした系を図B-1に示す。簡単のため、正方形断面のダクト内流体が一鉛直側壁から一定温度 $\theta_h$ で加熱され、対向する鉛直側壁から $\theta_c$ で冷却され、上下水平面は断熱されているものとする。四周壁は固体壁とする。図中に差分格子巾を示す。不等間隔で $x, y$

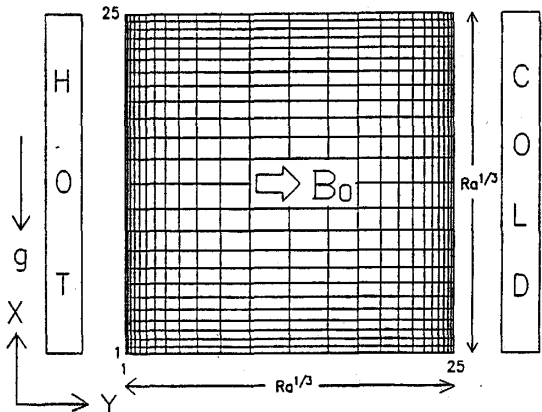


Fig. B-1 The System Considered in This Work with a Lateral Magnetic Field.

方向共24分割である。磁場のベクトルポテンシャル

$$\begin{aligned} A &= 0 & \text{at } X=0 \\ A &= -Ra^{1/3} & \text{at } X=L \\ A &= -X & \text{at } Y=0 \text{ and } L \end{aligned}$$

磁場 B

$$\begin{aligned} B_x &= 0 & \text{at } X=0 \text{ and } L \\ B_y &= 1 & \text{at } Y=0 \text{ and } L \end{aligned}$$

磁場と磁場のベクトルポテンシャルの境界条件は外部磁場が Y 方向に作用する場合であり、磁場ベクトルポテンシャルの境界条件はこれに対応するものとして導出した。

**B-3. 計算結果**

磁気プラントル数  $Pr_m$  の影響

磁気プラントル数は  $Pr_m = (\sigma_e \mu_m \alpha)^{-1}$  で定義される物理量で磁場の拡散する速さ  $(\sigma_e \mu_m)^{-1}$  と温度の拡散する速さ  $\alpha$  の比と考えられる。各条件でほぼ収束解に達した。平均ヌセルト数  $Nu$  と共に表 B. 1 に収束解を示す。一つの欄中の二つの近接した数値は振動の上下の値を示す。 $\Psi_c, Nu$  数共にほとんど変化がみられない。 $Ha$  数が500と大きくした場合に、 $Pr_m = 1, 10, 100$  と変化させた場合についても同様に表中に示すが、この場

**Table B-1** Converged Results

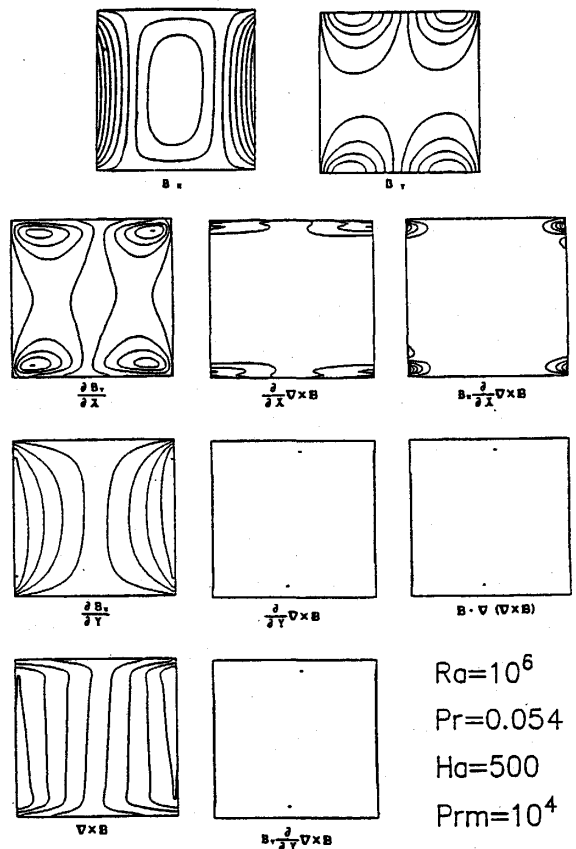
Ra	Ha	Prm	$\Psi_c$	Nu
$10^6$	1	$10^4$	9.2960	5.884
$10^6$	10	$10^1$	9.2970 9.0863	5.848
$10^6$	10	$10^2$	9.2463 9.2456	5.863 5.862
$10^6$	10	$10^3$	9.2452 9.2445	5.863 5.862
$10^6$	10	$10^4$	9.2604 9.2596	5.866 5.866
$10^6$	500	1	0.5054 0.4863	1.053 1.051
$10^6$	500	$10^1$	0.49556 0.49184	1.05258 1.05217
$10^6$	500	$10^2$	0.49411 0.49379	1.05230 1.05227
$10^7$	0	$10^4$	17.642 17.403	10.80
$10^7$	1	$10^4$	7.680 7.217	10.90

合もほとんど変わりがみられない。これらの結果より、熱伝達率、流れ函数とも磁気プラントル数には影響されないものと結論できる。これは以下の考察から流体内では磁場が一様であると近似できることになろう。

水平方向に一様磁場があれば、 $B_y = 1, B_x = 0$  とおける。その時、式(A.5)のローレンツ項は 以下のように変形できる。ただし定常状態と仮定する。

$$\begin{aligned} & Ha^2 Ra^{-2/3} Pr Pr_m \left\{ B_x \frac{\partial}{\partial X} \left( \frac{\partial B_y}{\partial X} - \frac{\partial B_x}{\partial Y} \right) \right. \\ & \left. + B_y \frac{\partial}{\partial Y} \left( \frac{\partial B_y}{\partial X} - \frac{\partial B_x}{\partial Y} \right) \right\} \\ & = Ha^2 Ra^{-2/3} Pr Pr_m \left\{ \frac{\partial}{\partial Y} \left( -\frac{\partial^2 A}{\partial X^2} - \frac{\partial^2 A}{\partial Y^2} \right) \right\} \\ & = -Ha^2 Ra^{-2/3} Pr \left\{ \frac{\partial}{\partial Y} \left( \frac{DA}{D\tau} \right) \right\} \\ & = Ha^2 Ra^{-2/3} Pr \frac{\partial}{\partial Y} (UB_y) \\ & = Ha^2 Ra^{-2/3} Pr B_y \frac{\partial U}{\partial Y} \end{aligned} \tag{B, 1}$$

結局、磁気プラントル数  $Pr_m$  はパラメータでなくなる。つまり、本問題では磁気プラントル数の影響が小さい



**Fig. B-2** Contour Maps of Each Term in a Lorentz Force and its Summation.



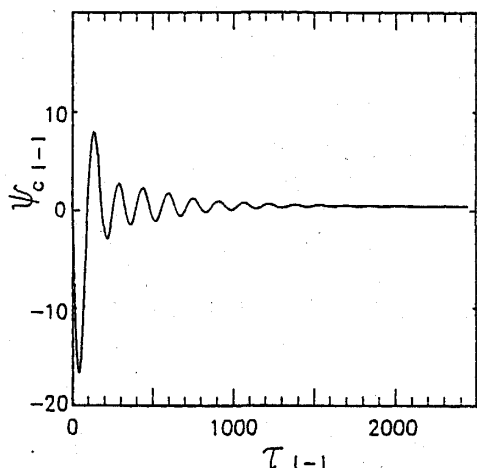


Fig. B-3 Transient Responses of a Central Value of a Stream Function after a Step Change in the Hartmann Number from 100 to 500. Other Conditions are  $Ra=10^6$ ,  $Pr=0.054$  and  $Pr_m=1$ .

一様磁場の仮定がほぼ適用できる場と考えられることを意味しよう。この時の Lorentz 項の各項を別々に計算して図示したものを図 B-2 に示す。磁場の成分  $B_x$ ,  $B_y$  は、それぞれ全く異なるが、それらの X-, Y-微係数を取り、最終的に Lorentz 項を求めると、等高線が、鉛直の加熱・冷却壁近傍に集中し、この付近においてのみ、大きな値を取ることが示された。この結果より、

加熱板、冷却板に沿った極く限られた部分に集中的に Lorentz 力が作用し、本問題のように、加熱・冷却板に沿う境界層的自然対流が、流れの駆動力の場合、水平方向の外部磁場は極めて有効に作用することが示唆された。なお、 $Pr_m=10$  についても  $Ha=10,500$  に対し計算し図示したが、 $Pr_m=10^4$  の場合とほぼ同じであった。過渡特性

$Ha=100$  から  $500$  へ増加した場合の流れ函数の中心値  $\Psi_c$  の過渡応答を図 B-3 に示す。流れ函数の中心の値はその絶対値が大きい程、流れの強さが強く、符号は渦の回転の方向を示す。図 B-3 の縦軸はゼロを中心としており、 $\Psi_c$  は無次元時間  $\tau$  と共に、正負と振動しつつ、小さな正の値に収束していつている。これは、流れの方向が交互に逆転しつつ一方の弱い流れに収束していつたことを示す。この特性は縦磁場を印加した時と同じである。では流動パターンはどうだろうか。図 B-4 (a) に  $\tau=2440$  までの間の 31 点の各時刻における流れ函数の等高線と速度ベクトル図を示す。流れ方向は図中に矢印で示している。各図の左側面が加熱面で、右側面が冷却面である。図 B-3 の流れ関数の中心の値の正負の変化からでは伺いしれない、部分的な逆転流れ ( $\tau=840$  とか  $1140$ ) とか、 $\tau=1760$  から  $1840$  にみられる縦長のロールの流れの形の振動等が読み取られる。

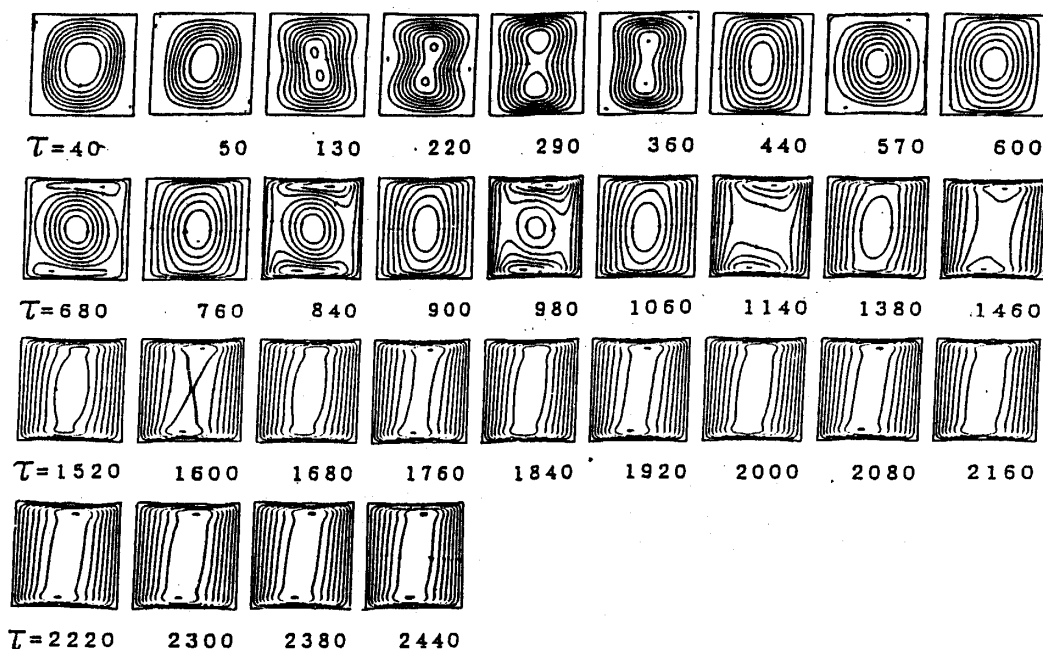


Fig. B-4 Transient Profiles of Stream Function after a Step Change in the Hartmann Number from 100 to 500. At  $Ra=10^6$ ,  $Pr=0.054$ ,  $Pr_m=1$ .  
(a) Instantaneous Stream Function Profiles.

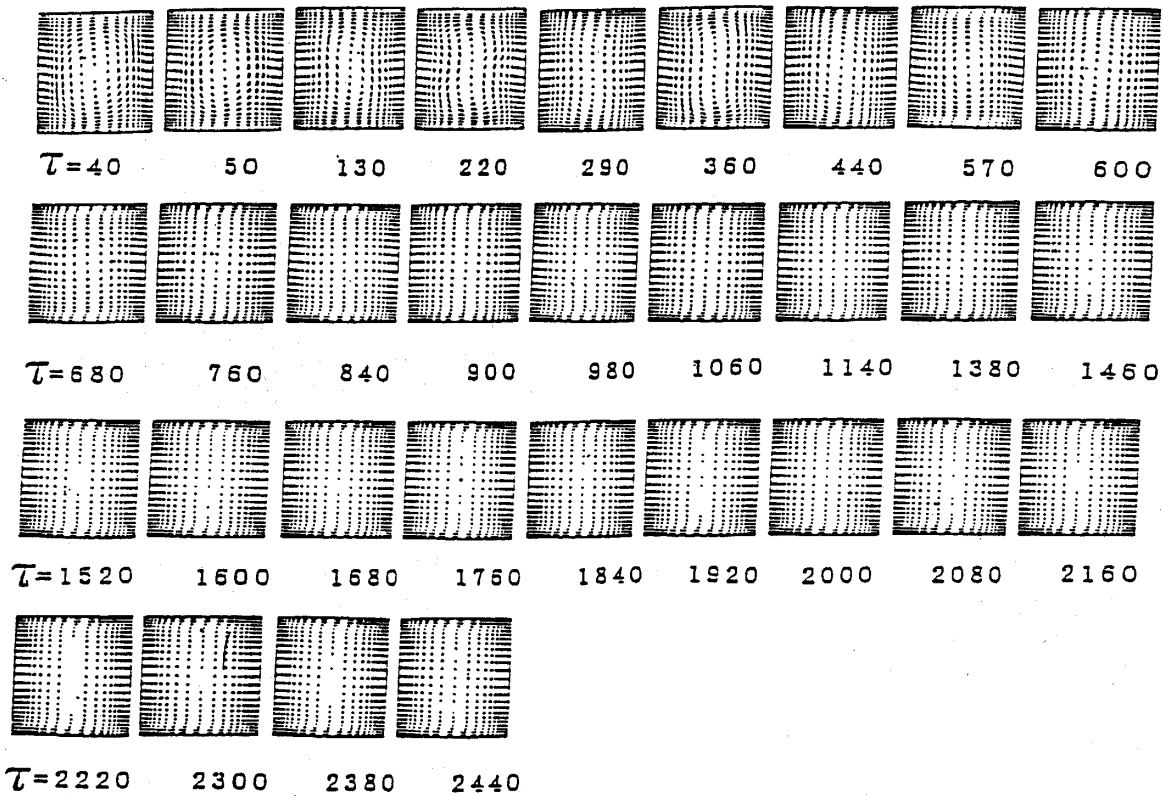


Fig. B-4 (b) Instantaneous Velocity Vectors.

図B-5はほぼ定常状態に対応する諸量の等高線であり、(a)の等温線がほぼ平行となり流体全域が定常熱伝導に近いことを示す。(f)の速度ベクトル図では、水平磁場のため上下界面に沿った流れのみが残り、伝熱の駆動力である鉛直面に沿う流れが抑制されていることが解る。自然対流抑止効果が極めて顕著に現れている。有次元値への換算例

一般に無次元数による数値解析結果だけでは、必ずしもその結果を直感的に理解しがたいことも多いので、磁場の強さも含めた有次元換算値の例を以下に示す。上記の計算では、 $Pr=0.054$ の熔融シリコンを想定したが、物性値に不明な点が多いので、 $Pr$ 数は異なるが、水銀を例にとると以下のようなになる [B. 2]。

- 水銀の密度  $\rho=1.3528 \times 10^4 [\text{kg}/\text{m}^3]$
- 動粘性係数  $\nu=1.12 \times 10^{-7} [\text{m}^2/\text{s}]$
- 熱伝導率  $k=8.52 [\text{W}/\text{m} \cdot \text{K}]$
- 温度伝導率  $\alpha=4.53 \times 10^{-6} [\text{m}^2/\text{s}]$
- プラントル数  $Pr=0.0248$
- 体膨張係数  $\beta=1.819 \times 10^{-4} [\text{K}^{-1}]$
- 電気伝導度  $\sigma_e=1.04 \times 10^6 [\Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}]$
- 透磁率  $\mu_m=1.257 \times 10^{-6} [\Omega \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-1}]$
- 磁気プラントル数  $Pr_m=1/(\sigma_e \mu_m \alpha)=1.69 \times 10^5$

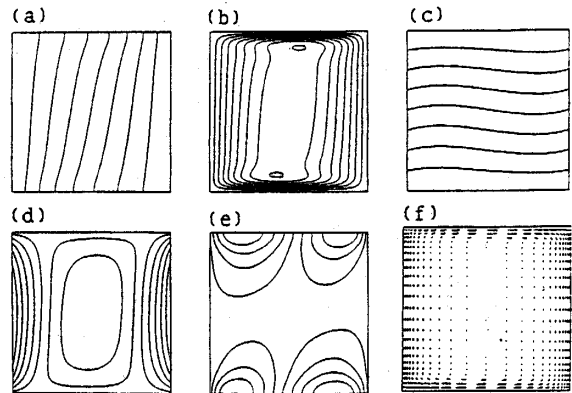


Fig. B-5 Instantaneous Contour Maps of Each Property at  $\tau=2440$ .

代表長さ  $l=0.05 [\text{m}]$  とすると、  
 レイリー数  $Ra=10^6$  は、 $\theta_h - \theta_c = 0.44 [\text{K}]$   
 レイリー数  $Ra=10^7$  は、 $\theta_h - \theta_c = 4.4 [\text{K}]$  に相当する。  
 ハルトマン数  $Ha = (\sigma_e / \mu)^{1/2} B_0 l$  であるので、  
 $Ha=500$  は、 $B_0 = 3816 [\text{Gauss}]$  に相当する。  
 この程度の磁場の強さは実験室規模の電磁石で充分発生可能である [B. 3]。

C. 立方体容器内の液体金属の自然対流に及ぼす磁場の方向の影響：三次元場解析 [C. 1]

C-1. はじめに

A節, B節において, 二次元対流場における磁場の方向の影響について検討したが, これらの検証に際しては三次元場での実験結果を使用せざるを得ず, そのためには, 三次元対流場の数値解析が望ましい。また, 二次元対流場における結果が必ずしも三次元場で成立するとも限らない。そこで, 以下においては, 三次元自然対流場に外部から一様磁場が加えられたときの対流の数値計算例を示す。ここで一様磁場を仮定したのはB節で述べた結果に基づき, 磁気プラントル数  $Pr_m$  がここで対象とするような溶融半導体材料では,  $10^5$ 程度で一様磁場の仮定がほぼ成立すると考えられることによる。以下では, 三次元矩形密閉容器内の  $Pr = 0.054$  の導電性流体に対する磁場の方向と強さの影響を検討した。

C-2. 解 析

対象モデル：図C-1に, 対象となるモデルを示す。立方体容器内で流体が一鉛直側壁から一定温度  $\theta_h$  で加熱され, 対向する側壁から  $\theta_c$  で冷却され, 他の壁面は断熱されているものとし, また, 全壁面は固体壁とする。磁場は, (a), (b), (c)に示すように座標軸方向にそれぞれ一様に作用するものとする。図C. 2に示すようにX, Y, Z軸方向に  $21 \times 11 \times 15$  の格子点を設けた。

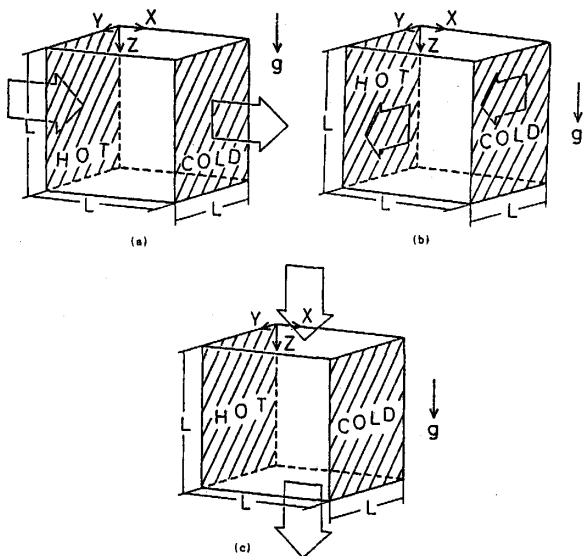


Fig. C-1 Three Directional Magnetic Field either in (a) X-, (b) Y- or (c) Z-direction.

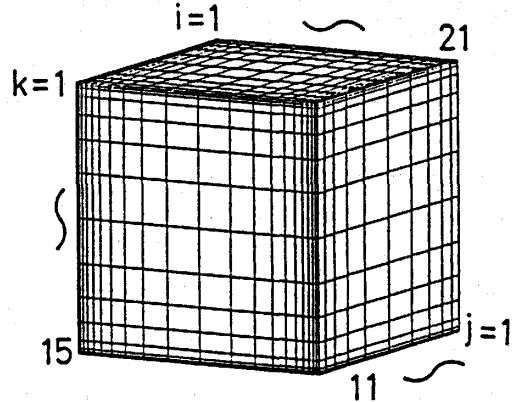


Fig. C-2 Computational Grids.

基礎方程式：ブシネスク近似を用い, 誘導電流により生じる磁場を無視した。また, 小林 [C. 2] に習い,  $\vec{E} = \nabla \psi_e$  なる電場のスカラーポテンシャル  $\psi_e$  を導入した。以下に, 無次元化したエネルギー方程式, 渦度輸送方程式, 渦度の定義式, 速度の定義式, 電場のスカラーポテンシャルの式を示す。

$$\frac{DT}{D\tau} = \nabla^2 T \quad (C. 1)$$

$$\begin{aligned} \frac{D\vec{\Omega}}{D\tau} = & (\vec{\Omega} \cdot \nabla) \vec{U} + Pr \nabla^2 \vec{\Omega} + Pr \left( -\frac{\partial T}{\partial Y}, \frac{\partial T}{\partial X}, 0 \right)^T \\ & + Ha^2 Ra^{-2/3} Pr \{ -\nabla \times (\nabla \psi_e \times \vec{e}) \\ & + \nabla \times [(\vec{U} \times \vec{e}) \times \vec{e}] \} \end{aligned} \quad (C. 2)$$

$$\vec{\Omega} = -\nabla^2 \vec{\Psi} \quad (C. 3)$$

$$\vec{U} = \nabla \times \vec{\Psi} \quad (C. 4)$$

$$\nabla^2 \psi_e = (\nabla \times \vec{U}) \cdot \vec{e} \quad (C. 5)$$

ここで,  $\vec{e}$  は磁場の作用する方向を持つ単位ベクトルである。また, 無次元数は以下のように定義した。

$$\begin{aligned} X = x/x_0, Y = y/y_0, Z = z/z_0, U = u/u_0, V = v/v_0, W = w/w_0, \tau = t/t_0, \Psi_c = \psi_c/\psi_{c0}, \\ L = \ell/x_0 = Ra^{1/3}, Pr = \nu/\alpha, T = (\theta - \theta_0)/(\theta_h - \theta_c), Ra = g\beta(\theta_h - \theta_c)\ell^3/(\alpha\nu), \\ Ha = (\sigma_e/\mu)^{1/2} B_0 \ell, x_0 = y_0 = z_0 = [g\beta(\theta_h - \theta_c)/(\alpha\nu)]^{-1/3}, t_0 = x_0^2/\alpha, u_0 = v_0 = w_0 = \alpha/x_0, \\ \theta_0 = (\theta_h + \theta_c)/2, \psi_{c0} = \alpha B_0 \end{aligned}$$

初期条件と境界条件：非磁場下での定常解を初期条件として, 以下の境界条件のもとに非定常計算を行った。

a. 温度： $T = 0.5$	at $X = 0,$
$T = -0.5$	at $X = L$
$\partial T / \partial Y = 0.$	at $Y = 0., L$
$\partial T / \partial Z = 0.$	at $Z = 0., L$

- b. 速度： $U=V=W=0$ .  
 at  $X=0, L$ , at  $Y=0, L$ , at  $Z=0, L$
- c. 流れ関数：  
 $\partial\Psi_x/\partial X=\Psi_y=\Psi_z=0$ . at  $X=0, L$   
 $\Psi_x=\partial\Psi_y/\partial Y=\Psi_z=0$ . at  $Y=0, L$   
 $\Psi_x=\Psi_y=\partial\Psi_z/\partial Z=0$ . at  $Z=0, L$
- d. 渦度：  
 $\Omega_x=0, \Omega_y=-\partial W/\partial X, \Omega_z=\partial V/\partial X$  at  $X=0, L$   
 $\Omega_x=\partial W/\partial Y, \Omega_y=0, \Omega_z=-\partial U/\partial Y$  at  $Y=0, L$   
 $\Omega_x=-\partial V/\partial Z, \Omega_y=\partial U/\partial Z, \Omega_z=0$ . at  $Z=0, L$
- e. 電場のスカラーポテンシャル：  
 $\partial\Psi_e/\partial X=0$ . at  $X=0, L$   
 $\partial\Psi_e/\partial Y=0$ . at  $Y=0, L$   
 $\partial\Psi_e/\partial Z=0$ . at  $Z=0, L$

C-3. 計算結果

まず,  $Pr=0.054, Ra=10^7, Ha=100$ , の場合について, 磁場の方向をそれぞれX, Y, Z軸方向に取り, 計算を行なった。図C-3に, 中心流れ関数 $\Psi_y(\text{CENTER})$ の過渡応答曲線, 表C.1に, ヌセルト数 $Nu, \Psi_y(\text{CENTER})$ を示す。Y方向磁場については, (C.3)式から流れ関数を求める際に収束性が悪かったこと, 及び, 他と比較して $\Psi_y(\text{CENTER})$ の変動が非常に小さかったことから計算を途中で打ち切った。対流抑制効果は, X方向磁場がもっとも大きく次いでZ方向磁場, Y方向磁場となった。一般に, 外部磁場が流れに直交すれば流れを抑制するといわれており, Y方向外部磁場は上下流にも水平流にも直交しているの, Y方向外部磁場が一番有効に作用するものと当初予想していた。しかし数値計算結果では一番作用しなかった。そこで, 渦度方程式のZ成分の式中のローレンツ項, X方向外部磁場のみの場合 $\partial\Psi_e/\partial Y-W$ とY方向外部磁場のみの場合 $-\partial\Psi_e/\partial X-W$ の各項の大きさを求め, 図C-4に示す。

X方向のみの外部磁場の場合, ローレンツ項の大きさは(a)に示すものとなり, 加熱・冷却板近くで大きな値を取っていることがわかる。(b), (c)は,  $\partial\Psi_e/\partial Y$ と $-W$ をそれぞれ表す。

一方, Y方向のみの外部磁場の場合, ローレンツ項の大きさは(d)に示すように, 加熱・冷却板上で部分的に大きいが, (a)程ではない。(e)と(f)は,  $-\partial\Psi_e/\partial X$ と $-W$ で各々は大きな値を取るが, 両者は互いに相殺し合って(d)のようになることがわかった。その結果, Y方向外部磁場は予想外に効果がなかったものと考えられる。

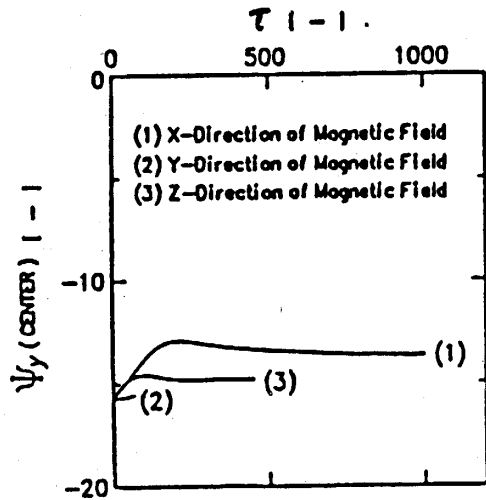


Fig. C-3 Transient Responses of  $\Psi_y(\text{CENTER})$  at  $Ra=10^7$  and  $Ha=100$ .

Table C-1 Summary of Computed Results

Ra	Ha	$\vec{B}$	Nu	$\Psi_y(\text{CENTER})$
$10^7$	0	—	10.524	-15.708
$10^7$	100	X	9.655	-13.682
$10^7$	100	Y	10.445	-15.523
$10^7$	100	Z	10.024	-14.805
$10^6$	0	—	5.7371	-8.876
$10^6$	100	X	4.4577	-7.792
$10^6$	200	X	2.9168	-4.670
$10^6$	300	X	2.2508	-2.998

次に $Ra=10^6, X$ 方向外部磁場について,  $Ha=100, 200, 300$ として計算を行った結果を表C-1に示す。磁場の強さが大きくなると,  $\Psi_y(\text{CENTER})$ が小さくなり,  $Nu$ も小さくなっていく。

計算結果を図示する。図C-5は中心断面の等温線図を示す。 $Ha=0$ という磁場の無いときと $Ha=300$ の磁場のあるときの違いが解る。磁場が強いときには境界層の流れが消えてしまう。図C-6はベクトルポテンシャルのY成分の等高線を示す。磁場の無いとき( $Ha=0$ )と比べ, 強い磁場下では, 上下面沿いの水平方向流れがむしろ境界層の流れとなっている。

以上まとめると, 液体金属の三次元自然対流場に三方向からの一様外部磁場が作用したときの対流抑制効果の検討を行い, 鉛直加熱・冷却面に直交し水平なX方向磁場が最も効果が大きく, 次に鉛直方向(Z方向)の外部磁場, 最も効果が少ないのが, 予想に反して, 加熱・冷却面に平行で水平なY方向外部磁場であるこ

とがわかった。

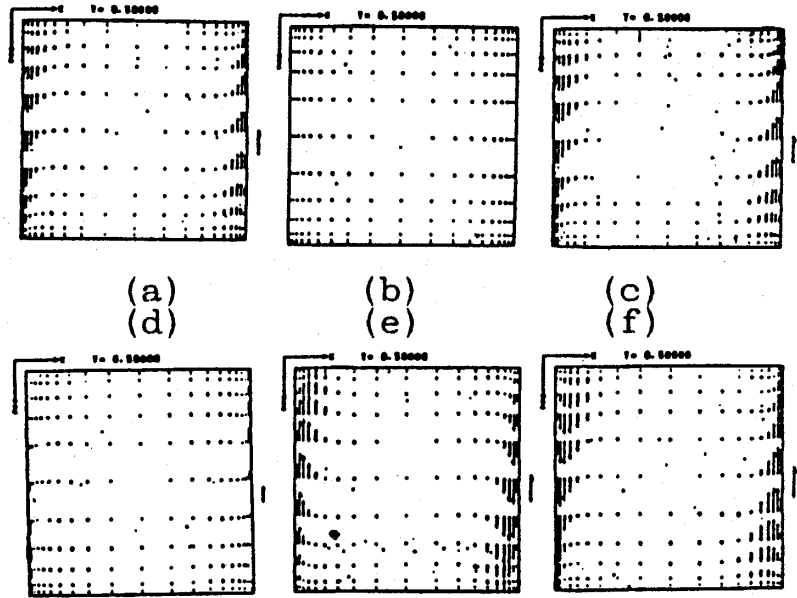


Fig. C-4 Vectorized Visualization of Lorentz Terms. (a), (b) and (c) are for X-directional Magnetic Field and (d), (e) and (f) are for Y-directional Magnetic Field.

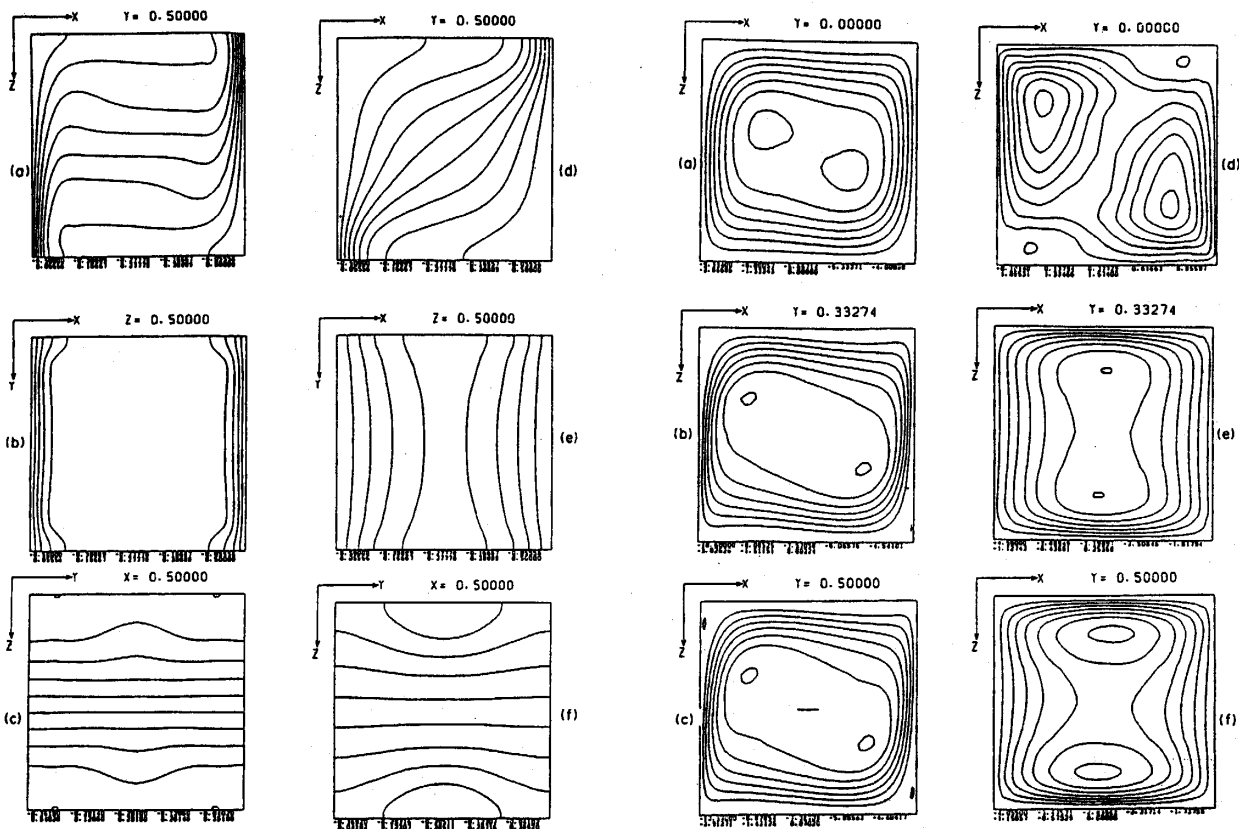


Fig. C-5 Computed Isotherms at  $Ra=10^6$  and  $Pr=0.054$ . (a)-(c) are for  $Ha=0$  and (d)-(f) are for  $Ha=300$ .

Fig. C-6 Contour Maps of Vector Potential  $\Psi$ , at  $Ra=10^6$  and  $Pr=0.054$ . (a)-(c) are for  $Ha=0$  and (d)-(f) are for  $Ha=300$ .

**D. 立方体容器内の液体ガリウムの自然対流  
熱伝達に及ぼす外部磁場の方向の影響に  
関する実験 [D.1]**

**D-1. はじめに**

C節で行った数値解析の検討を行うことを目的として、磁場下における液体ガリウム（融点29.8°C）の自然対流実験を試みた。液体金属の自然対流実験や磁場の効果については原子力分野における長い研究蓄積がある。しかし、このような閉空間内で磁場の方向の影響について検討されたことはあまり無いようである。

本研究においては、対向する鉛直側壁がそれぞれ加熱冷却された立方体容器内に、液体ガリウム ( $Pr=0.025$ ) を満たし、自然対流を起こさせ、かつ、その外部より電磁石により磁場を与え、外部磁場の方向、強さ、加熱伝熱量等の各組合せを変えた実験を行ってみた結果について報告する。本実験では熱流量の精度良い測定値を得るため、電熱加熱とした。これにより加熱板表面温度は一樣にならないが、少なくとも定性的な検討は可能である。

**D-2. 実験装置及び実験方法**

実験装置の概略図を図D-1に示す。本実験では、鉄心直径100mmφの電磁石により4000Gsまでの一様磁場を発生させることが出来る。実験容器は、内寸が30mm×30mm×30mmの立方体であり、その加熱面は、ヒーターに一定電力を供給して一定熱流束とし、冷却面は、恒温槽から冷却水を循環させて一定温度とした。これらを図D-1のように電磁石間に設置した。また、断熱を充分に行うために、グラスウールで覆った実験容器を、電磁石ごと、恒温室の中に設置した。

ここで、実験容器の座標系を図D-2に示す。外部磁

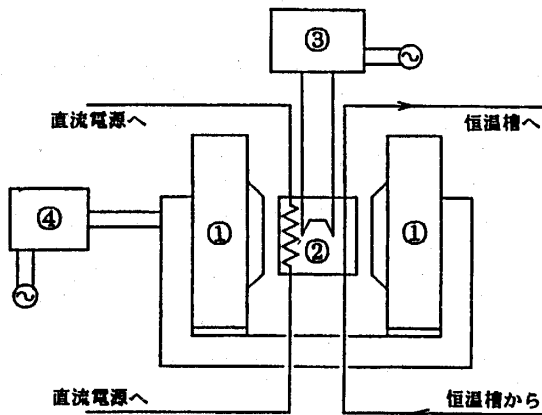


Fig. D-1 Schematics of the Experimental Apparatus.

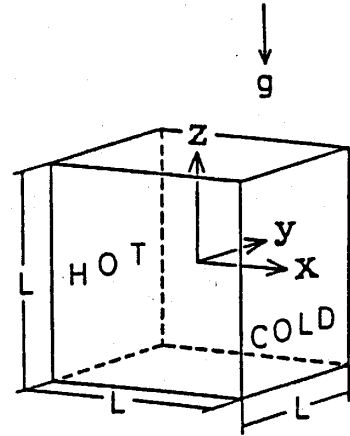


Fig. D-2 Coordinate.

場が、加熱面(冷却面)に垂直方向(x方向外部磁場、図D-2参照、以後こう呼ぶ)、及び、加熱面(冷却面)に平行でかつ水平方向(y方向外部磁場、図D-2参照、以後こう呼ぶ)ならびに鉛直方向(z方向)の三方向にそれぞれ単独に作用するように、実験容器の設置方向を変えて測定を行った。

**D-3. 実験結果**

**D-3-1 無次元数による整理**

実験結果を、熱流束基準のレーリー数 $Ra^*$ と、ヌセルト数 $Nu$ 及びハルトマン数 $Ha$ という無次元パラメータにより整理した。

$$Ra^* = \frac{g\beta\ell^4 Q_{net}/S}{\nu k} \quad (D, 1)$$

$$Nu = \frac{Q_{net}}{Sk \frac{\Delta\theta}{\ell}} \quad (D, 2)$$

$$Ha = \left(\frac{\sigma_e}{\mu}\right)^{1/2} B_0 \ell \quad (D, 3)$$

$g$ : 重力加速度 [m/s<sup>2</sup>]  $\beta$ : 体膨張係数 [K<sup>-1</sup>]

$Q_{net}$ : 正味入熱量 [W]

$\ell$ : 加熱面冷却面間距離 [m]

$S$ : 加熱面面積 [m<sup>2</sup>]  $\alpha$ : 温度伝導率 [m<sup>2</sup>/s]

$\nu$ : 動粘度 [m<sup>2</sup>/s]  $k$ : 熱伝導率 [W/(mK)]

$\mu$ : 粘度 [Pa·s]  $\sigma_e$ : 導電率 [(Ωm)<sup>-1</sup>]

$\Delta\theta$ : 加熱面冷却面温度差 [K]

図D-3, 4は、 $Ra^*$ 対 $Nu$ を、 $Ha$ をパラメータとしてプロットしたものである。

図D-3より、 $Ha=0$ の非磁場下において、 $Ra^*$ の増大に伴い $Nu$ も増大し右上がりの曲線となっているが、X方向外部磁場下では $Ha$ の増大により、この曲線は $Nu \rightarrow$ 小の方向に移動し、またその右上がりの勾配も小

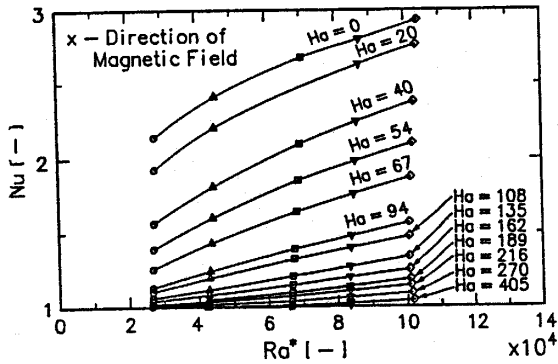


Fig. D-3  $Ra^*$  vs.  $Nu$  (x-directional magnetic field)

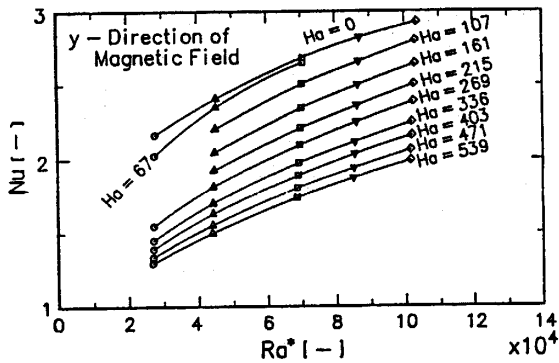


Fig. D-4  $Ra^*$  vs.  $Nu$  (y-directional magnetic field)

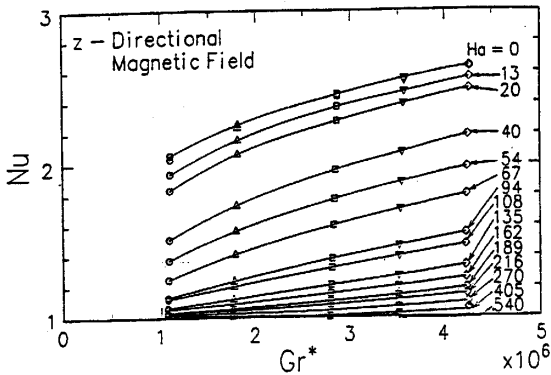


Fig. D-5  $Ra^*$  vs.  $Nu$  (z-directional magnetic field)

さくなっているのが分かる。 $Ha \approx 100$ までは、その減少の割合が急激であるが、その後は緩やかに $Nu=1$ に漸近している。もし十分に大きな $Ha$ を有していれば $Ra^*$ の大きな領域においても $Nu \approx 1$ と言う擬熱伝導状態を実現できると考えられる。これに対し図D-4のy方向外部磁場においては、 $Ha$ の増大に伴い曲線が下方へほぼ平行に移動しその $Nu$ 数の変化の割合もx方向外部磁場と比べればかなり小さいものとなっている。例えば、図D-3で $Ra^* = 10^5$ の時 $Nu \approx 2$ となるのは $Ha$

$\approx 54$ だが、図D-4では $Ha \approx 539$ と一桁大きい磁場を必要とする。これらの結果より、y方向外部磁場と比較してx方向外部磁場は、圧倒的に強い熱伝達抑制効果を示すことが分かった。図D-5ではz方向外部磁場の測定結果を示す。x方向外部磁場とほぼ同程度の極めて大きい対流抑制効果がうかがわれる。

### D-3-2 非定常過渡応答実験 [D. 2]

上記の実験結果は定常状態の値であるが、過渡特性の実験を行って見た。これは熔融金属の物性値の測定値が少なく、特にその測定が困難な熱伝導率を測定する場合に、磁場を印加することにより流れを抑制し、その測定精度を向上させようということを我々は提案し、これを数値計算によって示した[D. 3], [D. 4]。これに基づいて中村ら[D. 5]はHgを例とした実験結果を報告している。

実験としては、磁場を印加しておいて、加熱板温度をステップ上昇させた後、加熱・冷却板中心高さ間の温度差が収束するまで測定を行った。

### 定常磁場下のステップ加熱過渡応答実験

初期状態では、加熱面冷却面温度差 $\Delta\theta = 0^\circ\text{C}$ として、ステップ加熱をヒーターへの電力供給により開始した。ヒーター入力電力 $Q_{\text{tot}} = 4.98\text{W}, 9.96\text{W}$ 、外部磁場の磁束密度 $B_0 = 0\text{Gs}, 800\text{Gs}, 3700\text{Gs}$ 、磁場の方向x, yの各組合せについて実験を行った。

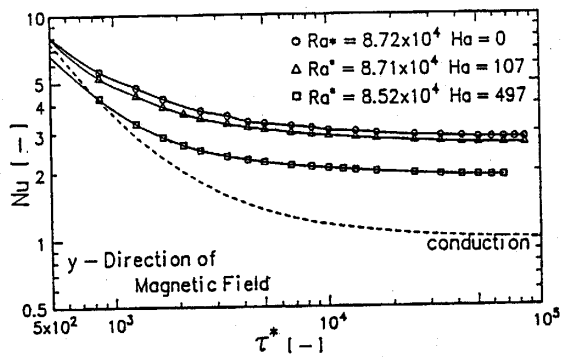
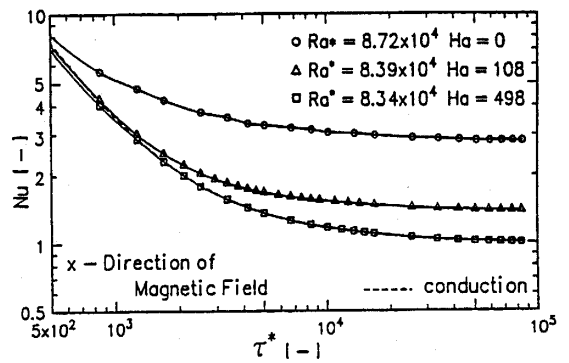


Fig. D-6 Transient Responses of  $Nu$ .

図D-6に、ヌセルト数Nuの過渡応答を両対数プロットした。ここで無次元時間 $\tau^* = Ra^{*2/3} \alpha t / \ell^2$ である。x方向外部磁場下では、最大磁場強さ(Ha=500)においてヌセルト数Nuの過渡応答曲線が熱伝導時のそれと非常によく一致している。ただ、無次元時間 $\tau^*$ の小さな区間では多少のずれが見受けられ、この原因として、測温の際のペンレコーダーからの熱起電力差の読み取り誤差、及び、ステップ加熱以前の初期状態における温度偏差などが考えられる。これらより、強い磁場下ではほぼ純熱伝導状態がもたらされ、定常、非定常法の熱伝導率測定が可能とみられる。

相関式

定常状態の熱伝達率は以下のように相関できる。このデータはChurchill & Usagi [D. 6]の方法により下記のような相関式で簡潔に表すことができる。Ra数、Pr数は変数全域で成立するので、おそらくHa数の全域で適用できる。[D. 1]

x方向磁場

$$\frac{Nu-1}{Nu_0-1} = \left[ 1 + \left( \frac{4.85Ca}{Ra^{*1/2}} \right)^{2.172} \right]^{-1/1.029} \quad (D. 4)$$

y方向磁場

$$\frac{Nu-1}{Nu_0-1} = \left[ 1 + \left( \frac{0.601Ha}{Ra^{*1/2}} \right)^{1.503} \right]^{-1} \quad (D. 5)$$

z方向磁場

$$\frac{Nu-1}{Nu_0-1} = \left[ 1 + \left( \frac{4.758Ha}{Ra^{*1/2}} \right)^{1.9374} \right]^{-1} \quad (D. 6)$$

## E. Cz法対流におよぼす軸方向磁場の影響：

### 2.5次元場解析 [E. 1]

#### E-1. はじめに

現在、集積回路の基盤として多用されているシリコン単結晶は、チョクラルスキー引き上げ法で作成されている。しかしその生産装置はまだ改善の余地があると考えられ、その輸送過程を明らかにすることが必要と思われる。本研究では、流れを抑制するために使用されている磁場の効果を検討するため、外部磁場下における溶融シリコンの熱流動特性について、そのモデル式の導出と数値解析を試みた。

まず、この分野における従来の研究のいくつかを概観する。A. E. Organ [E. 2]は $Pr=10^{-3}$ の流体に対しCzochralski結晶成長における磁場下でのバルク流れを渦度、スワール関数法で解いた。その方程式系はLangloisとLee [E. 3]によるものに類似している。それらにより磁場の効果は半径方向の動きの抑制を伴い、周方向の動きを強めるということがわかった。こ

の結果は後に詳述する我々の結果と一部一致する。彼らのローレンツ力項に関する式は、項を落とすことによる簡略化を含んでいる。

LangloisとLee [E. 3]はCzochralski結晶成長において、ルツボ内のバルク流れにおける軸方向磁場の影響を研究した。彼らはcurrent functionを導入し、電流に対する連続条件を満たした。これは通常、電場を表現する際に用いられる電場のスカラーポテンシャルとは異なる。彼らは角速度成分 $v$ よりもswirl  $rv$  (角運動量関数)を導入した。彼らは結晶成長においてジュール消散の影響を研究し無視小であることを見いだした。

KimとLanglois [E. 4]はLangloisとLeeによる数学モデルに類似したモデルでシリコンの磁場印加Czochralski成長におけるBoron輸送のコンピュータシミュレーションを行った。彼らは磁場が印加される場合とされない場合とで抵抗分布を表し、濃度分布は磁場がない場合(流れのため)均一であるが、2kGの磁場下では110%異なることを示した。

HjellmingとWalker [E. 5]は軸方向磁場下の融液の挙動を報告した。しかしながら彼らは慣性項を落しルツボ近くの領域を境界層、Hartmann層、中心部に分割した。境界層近似や一連の近似が、この力の場の影響を不鮮明なものにした。このような近似の下での流動機構は明らかではない。

上述の論文においては数式はすべて渦度-スワールモデルである。ローレンツ力項を含む多数の仮定により数学モデルは簡略化されたものになっている。

#### E-2. 数学モデル

モデル式は連続の式、運動量方程式、エネルギー式、電場のスカラーポテンシャル式からなり、後に述べる差分方程式で近似し数値解析した。ここで周方向の各物理量の勾配は総てゼロとしたが、周方向流速成分はその方向の運動方程式を解くことによって求めた。その意味で本解析は2.5次元場解析と称する。

連続の式：

$$\frac{U}{R} + \frac{\partial U}{\partial R} + \frac{\partial W}{\partial Z} = 0 \quad (E. 1)$$

運動方程式：

$$\begin{aligned} \frac{\partial U}{\partial \tau} + U \frac{\partial U}{\partial R} - \frac{V^2}{R} + W \frac{\partial U}{\partial Z} \\ = -Ha^2 Ra^{-2/3} Pr U - \frac{\partial P}{\partial R} \\ + Pr \left[ \frac{\partial}{\partial R} \left\{ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (RU) \right\} + \frac{\partial^2 U}{\partial Z^2} \right] \end{aligned} \quad (E. 2)$$



$$\begin{aligned} & \frac{\partial V}{\partial \tau} + U \frac{\partial V}{\partial R} + \frac{UV}{R} + W \frac{\partial V}{\partial Z} \\ &= -Ha^2 Ra^{-2/3} Pr \left( \frac{\partial \Psi_e}{\partial R} + V \right) \\ &+ Pr \left[ \frac{\partial}{\partial R} \left\{ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (RV) \right\} + \frac{\partial^2 V}{\partial Z^2} \right] \end{aligned} \quad (E.3)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial W}{\partial \tau} + U \frac{\partial W}{\partial R} + W \frac{\partial W}{\partial Z} \\ &= - \frac{\partial P}{\partial Z} - Pr T + Pr \left[ \frac{\partial^2 W}{\partial R^2} + \frac{1}{R} \frac{\partial W}{\partial R} + \frac{\partial^2 W}{\partial Z^2} \right] \end{aligned} \quad (E.4)$$

エネルギー式；

$$\frac{\partial T}{\partial \tau} + U \frac{\partial T}{\partial R} + W \frac{\partial T}{\partial Z} = \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left( R \frac{\partial T}{\partial R} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial Z^2} \quad (E.5)$$

電場のスカラーポテンシャル式；

$$\frac{\partial^2 \Psi_e}{\partial R^2} + \frac{1}{R} \frac{\partial \Psi_e}{\partial R} + \frac{\partial^2 \Psi_e}{\partial Z^2} = - \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (RV) \quad (E.6)$$

次の無次元数を導入した。

$$\begin{aligned} R &= r/r_0, \quad Z = z/z_0, \quad \tau = t/t_0, \quad U = u/u_0, \quad V = v/v_0, \\ W &= w/w_0, \quad T = (\theta - \theta_0)/(\theta_h - \theta_c), \\ P &= p/p_0, \quad \Psi_e = \psi_e/\psi_{e0}, \quad \Omega_c = \omega_c/\omega_{c0}, \\ r_0 &= z_0 = hRa^{-1/3}, \\ Ra &= g\beta(\theta_h - \theta_c)h^3/\alpha\nu, \\ u_0 &= v_0 = w_0 = \alpha/r_0, \quad Ha = (\sigma/\mu)^{1/2}B_0h \\ p_0 &= \rho_0 u_0^2 = \rho_0(\alpha/r_0)^2, \quad t_0 = r_0^2/\alpha, \quad \psi_{e0} = B_0 u_0 r_0 = B_0 \alpha, \\ \omega_{c0} &= 1/t_0, \quad \theta_0 = (\theta_h - \theta_c)/2. \end{aligned}$$

ここで考える系はOzoeとMatsui [E. 6] が磁場の無い場合に対して報告したものと同じでFig. E-1にそれを示す。ルツボの直径と高さがHの円筒形とした。上部の結晶棒の直径は、H/2でルツボと同軸である。熔融シリコンはルツボ内にある。計算の簡略化のためルツボ中心に非常に小さな半径R<sub>in</sub>の内筒を想定している。液の表面張力は無視小で、液面は水平で断熱とした。ルツボ壁は高温でθ<sub>h</sub>、結晶棒は低温でθ<sub>c</sub>である。結晶棒は角速度ω<sub>c</sub>で回転する。

境界条件はつぎのとおりである。

温度：

$$\begin{aligned} T &= 0.5 \text{ at } R=R_{out} \text{ and } Z=H \\ T &= -0.5 \text{ at } R_{in} < R < R_{in} + 0.5(R_{out} - R_{in}) \text{ at } Z=0 \\ \partial T / \partial Z &= 0 \text{ at } R_{in} + 0.5(R_{out} - R_{in}) < R \text{ at } Z=0 \\ \partial T / \partial R &= 0 \text{ at } R=R_{in} \end{aligned}$$

速度：

$$\begin{aligned} V &= R\Omega_c \text{ at } R_{in} < R < R_{in} + 0.5(R_{out} - R_{in}) \text{ at } Z=0 \\ \partial U / \partial Z &= \partial V / \partial Z = 0 \text{ at } R_{in} + 0.5(R_{out} - R_{in}) < R \text{ at } Z \\ &= 0 \end{aligned}$$

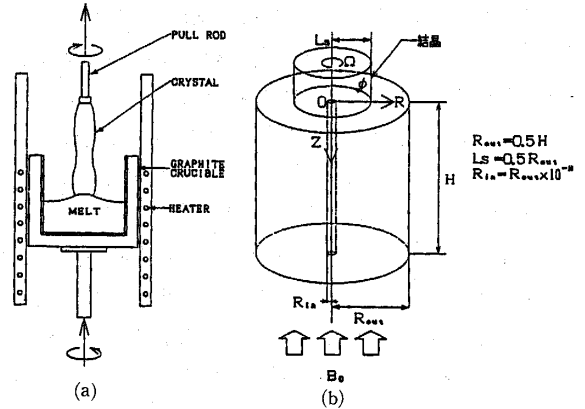


Fig. E-1 (a) Description of Czochralski Crystallization Scheme. (b) Model Geometry for Czochralski Bulk Flow.

$$\begin{aligned} U &= \partial V / \partial R = \partial W / \partial R = 0 \text{ at } R=R_{in} \\ W &= 0 \text{ at } Z=0 \\ U &= V = W = 0 \text{ at } R=R_{out} \text{ and at } Z=H \end{aligned}$$

電場のスカラーポテンシャル：

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Psi_e}{\partial Z} &= 0 \\ \frac{\partial \Psi_e}{\partial R} &= -V \text{ at } R=R_{in}, R_{out}, Z=0, Ra^{1/3} \end{aligned} \quad (E.7)$$

計算領域はFig. E-2(a), (b)のように分割した。差分式は各々のコントロールボリュームについて積分することにより求めた。

ここでは、磁場の無い場合をSIMPLE法で解き、磁場が印加された対流をSIMPLER法で解いた。解法の詳細はパタンカーによる本にある。[E. 7]

### E-3. 計算結果

Table. E-1にそれぞれのtypeについて各速度成分の平均値に対する磁場の影響による変化を示す。Type 1のように浮力支配の系に対しては磁場により磁場がないときに比べHa=100の時の半径方向速度成分、垂

Table E-1 Magnitude of Average Velocity Components under an Axial Magnetic Field at Re=10<sup>3</sup>, Pr=0.054

TYPE	Gr/Re <sup>2</sup>	$\bar{U}$	Ha=0	Ha=100	Ha=1000
1	18.5	U	0.2448	0.4420	0.0041
		V	0.1118	0.0829	0.0813
		W	0.7410	1.6150	0.0194
2	1.0	U	0.0895	0.0296	0.0003
		V	0.5484	0.0218	0.0215
		W	0.1437	0.0664	0.0010
3	2.31	U	0.0827	0.0393	0.0006
		V	0.4433	0.1643	0.1625
		W	0.2763	0.0880	0.0019

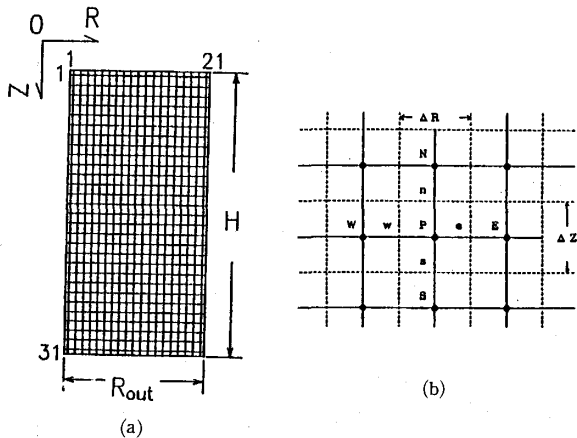


Fig. E-2 (a) Grid Locations in a Vertical Cross Section for Axi-Symmetric Flow. (b) Control Volume Naming.

直方向速度成分は加速される。周方向速度成分は  $Ha=100$  になると減少するが、 $Ha=10^3$  になっても変わらず、結晶の近くのみが回転している。このことは後述の  $V$  の等高線図よりよくわかる。 $Ha=10^3$  では半径方向、垂直方向速度成分は大幅に減少している。外部磁場により垂直断面内の循環対流は大きく減少することがわかる。

Type 2 では  $Ha=0$  の時は浮力に比べむしろ回転が支配的である。 $Ha=100$  では全ての速度成分は  $Ha=0$  の時のそれよりも減少している。この場合、鉛直方向磁場は Type 1 に比べ効果的である。 $Ha=10^3$  の時は  $U$ ,  $W$  成分は  $Ha=100$  の時のそれよりも2桁小さくなっている。しかしながら  $V$  成分は Type 1 の時と同様変化がなく単結晶近くの流体のみが回転していると考えられる。

Type 3 に対しては  $Gr/Re^2=2.31$  で浮力と回転力が

Table E-2 The Effect of the Hartmann Number on the Average Nusselt Number for Three Types of System Given in Table E.1

TYPE	$Gr/Re^2$	$Ha$	average Nu
1	18.5	0	2.9204
		100	6.4062
		1000	1.7412
2	1.0	0	1.1430
		100	1.0731
		1000	1.0373
3	2.31	0	1.3101
		100	1.1781
		1000	1.0704

比較的同じオーダーで反対方向に回転する2つのロールセルが形成される。この系における各速度成分の磁場による変化は Type 2 と同様であるが  $V$  はそれほど変化しない。 $Ha=10^3$  に増加するときも同様である。

3つの結果を要約すると軸方向磁場の効果は単純ではない。Type 1 の  $Ha=100$  の時は断面内速度成分は増加した。Organ によれば回転支配の時に磁場により流れが促進されるが、ここでは浮力支配の時に流れと熱伝達が促進された。

次にこれら3つの系において外部磁場が平均Nu数に与える影響を Table E-2 にまとめて示す。Nu数は上部単結晶棒下面での値である。浮力の強い  $Gr/Re^2=18.5$  の場合、 $Ha=0$  の時よりも平均Nu数は2倍強くなった。数値計算誤差も含まれるが、流れが不均一となって温度勾配が上部単結晶棒(冷却面)上で大きくなったことが伺える。 $Ha=1000$  になると、強い磁場のため平均Nu数が1.74に減少している。

一方、回転流支配の  $Gr/Re^2=1.0$  の時、 $Ha$  数の増加に伴い、平均Nu数は順々に減少している。Type 3 でこれらの系の中間の場合、同様に  $Ha$  数と共にNu数は減

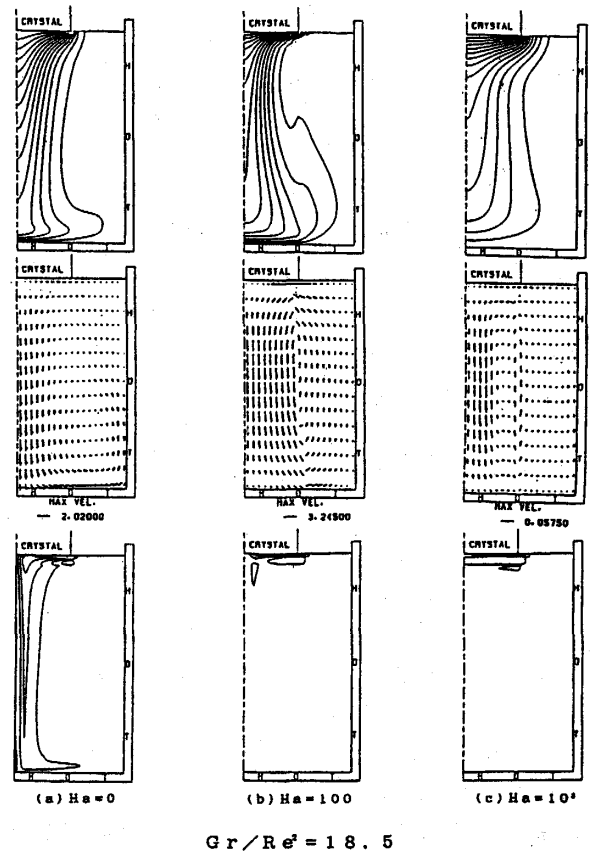


Fig. E-3 Computed Isotherms, Velocity Vectors and Contour Maps of  $V$  at  $Gr/Re^2=18.5$ .

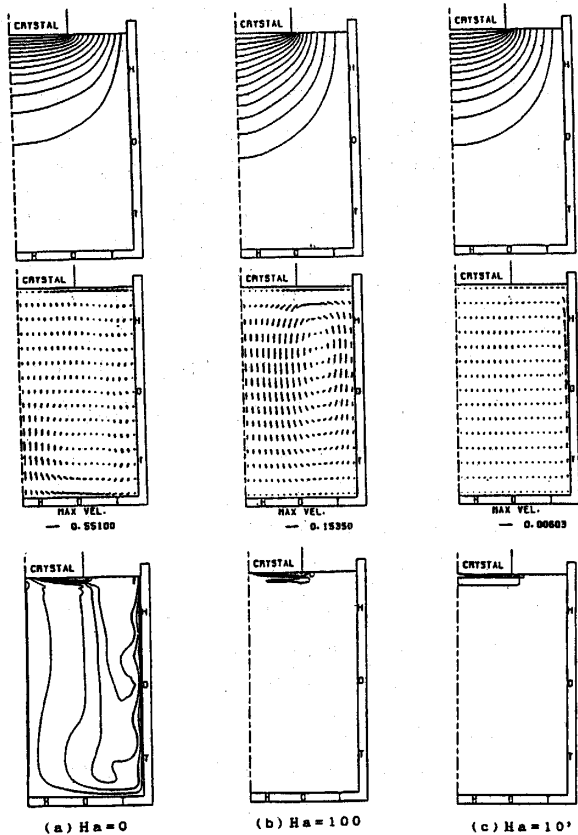


Fig. E-4 Computed Isotherms, Velocity Vectors and Contour Maps of  $V$  at  $Gr/Re^2=1.0$

少している。

Fig. E-3はTable E-2のType 1の場合の条件における速度ベクトルと等温線である。低温プリュームがルツボ中央で最大速度を持ち結晶棒より降下している。Ha=100で、軸方向磁場が印加されると、結晶棒下部の下降流は棒下部でほぼ一様な下降流速を持ってきた。しかし、Ha=10<sup>3</sup>の時、最大流速値は0.0575に減少し、結晶棒下部で循環流が形成された。等温線はこれらの流動形態の大きな変化にもかかわらず、殆ど全体的には変わらないように見えるが、結晶棒下部での等温線の密集の仕方はHa=100で一番大きくTable E-2中のNu数の値が6.4になったことを反映している。

この結果、Gr/Re<sup>2</sup>=18.5の自然対流支配域ではHa=100の時Nuが増加した。それに対し、Gr/Re<sup>2</sup>=1と2.31の強制対流支配域ではHa数の増加により、Nu数は単調に減少した。Gr/Re<sup>2</sup>=1.0ならびに2.31の時の結果をFig. E-4, Fig. E-5に示す。いずれの場合も磁場が強くなるにつれほぼ熱伝導に近くなる。また強い磁場下においては単結晶底面の局所Nu数の分布は一樣

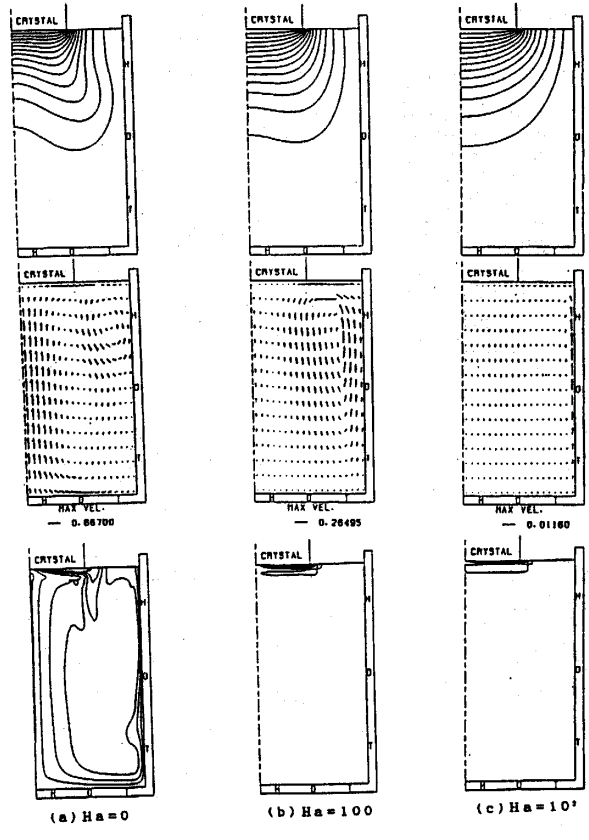


Fig. E-5 Computed Isotherms, Velocity Vectors and Contour Maps of  $V$  at  $Gr/Re^2=2.31$

となり平坦な単結晶成長面ができることが期待されることがわかった。

## F. 液晶を用いた円筒容器内のCz法対流の可視化実験 [F. 1]

### F.1 緒言

チョクラルスキー法においてルツボ内の融液の流動形態を把握することは重要であるが実際は高温炉内の現象であるため直接観察は困難である。棚沢らはチョクラルスキー法を模擬した円筒容器内の対流場において温度場及び流れ場が時間的に振動することを実験及び計算により報告した [F. 2]。我々はE節の結果の検証の必要性もあって可視化実験を行い、結晶回転数の変化による対流場の変化を観察し、また系内の温度場を観察したものをここに示す。

### F-2 実験装置及び方法

図F-1に実験装置の概略図を示す。アクリル製の恒温槽の中にルツボにみたてたアクリル製円筒容器③を固定した。恒温槽中には水を満たし、円筒容器③には

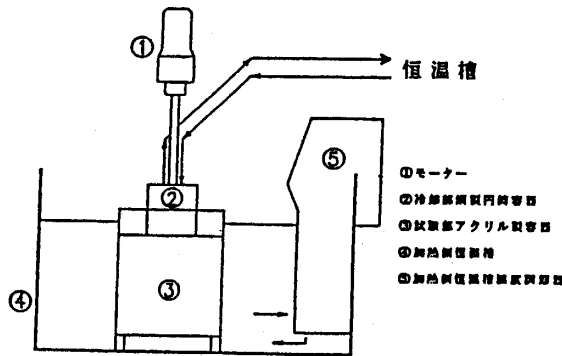


Fig. F-1 Experimental Set-Up.

試験流体であるシリコンオイルを入れこれに少量の感温液晶を混入した。そして結晶にみたてた銅製円筒容器②をモーターに接続し円筒容器③と同軸になるように固定した。円筒容器②の中には水を入れ、モーターシャフトに当たらないように銅製の蛇管を固定した。この蛇管には別の恒温槽中よりポンプで冷却水を循環させた。そして試験部である円筒容器③にスライドプロジェクターによりスリット光を照射し、これと直角方向より観察し、カメラで撮影した。装置は試験部の任意の縦断面、横断面を観察できるようになっている。以上の装置を用いて、加熱冷却温度差を10度とし、結晶の回転数を徐々に変えながら試験部内の流れ場がどの様に変化していくかを観察した。

### F-3 実験結果及び考察

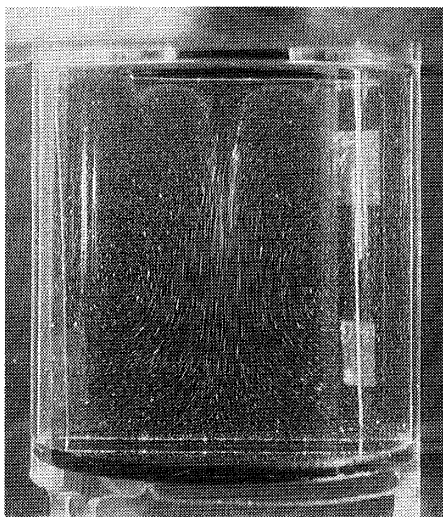
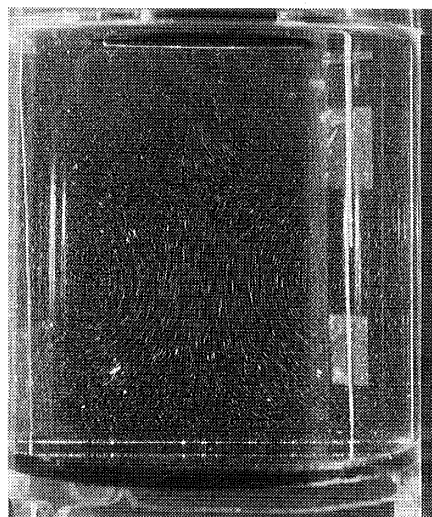
まず結晶回転のみの場合と回転なしで温度差のみの場合で実験を行った。回転のみの場合は中心軸を上昇

し結晶の縁から周囲へ押しやられる流れとなったが、温度差のみの場合は逆にルツボ壁に沿って上昇し中心軸を下降する流れとなった。よってこの系はこれら相反する2つの対流推進力の相互作用によって流れ場が規定される。次に結晶回転数を徐々にあげていき流れ場がどの様に変化するかみていった。 $Gr/Re^2=608$ では温度差のみの場合と同様の温度分布となった。 $Gr/Re^2=233$ になると低温プリュームが結晶下部にたまって周期的に降下する流れとなった。さらに回転数があがって $Gr/Re^2=133$ になると図F-2に示すように結晶下部では遠心力の影響が強くなり結晶の縁からも低温プリュームが周期的に降下し、中心軸から降下したプリュームと合一してルツボ底部へと降下していく流れとなる。以上の結果は棚沢らと一致した。

さらに回転数をあげ $Gr/Re^2=33.8$ となると結晶下部で遠心力によるロール、ルツボの底部では温度差による自然対流によるロールと2つのロールが生成した。この場合でもやはり結晶下部からは低温プリュームが周期的に降下して定常流にはならなかった。

また液面より3cmの中心軸上に熱電対を固定し温度を測定した結果を図F-3に示す。これらからもわかるように系内の温度は周期的に振動しており定常流にはならないことがわかる。

$Gr/Re^2$ を横軸に取り、温度変動の周期を縦軸に取り、これを図F-4に示す。上述のように流動形態が $Gr/Re^2=100$ にて変わることがわかる。しかしこの値は液深やPr数によって変わることが考えられる。

Fig. F-2 (a) Liquid Crystal Visualization at  $Gr/Re^2=133$ (b) Liquid Crystal Visualization at  $Gr/Re^2=33.8$

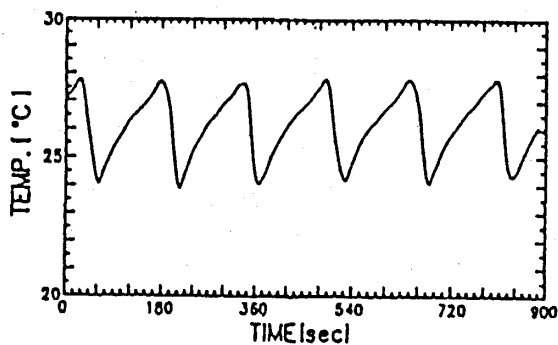


Fig. F-3 Temperature Fluctuation Observed.

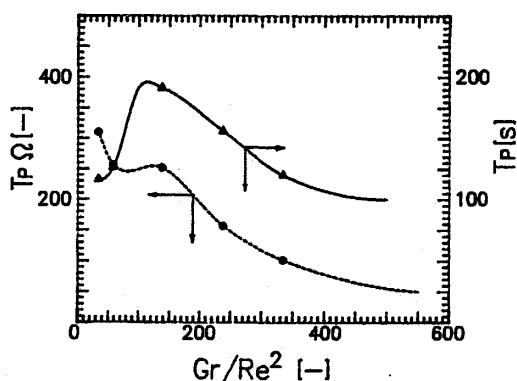


Fig. F-4 Fluctuating Time Period as a Function of Gr/Re<sup>2</sup>.

### G. 浮遊帯域法結晶成長プロセスの簡易モデルによる数値解析 [G. 1]

#### G. 1. はじめに

半導体材料の製造法の一つに浮遊帯域法(Floating Zone法)があるが、これは容器と接しないで単結晶を精製できる点でメリットのある方法である。この方法では、原材料棒の一部分を溶解し、順次、結晶化していくものであるが、高温操作であるため、流れ場や温度場の詳細は測定が困難な場合が少なくない。数値解析例は多数あり、Duranceau & Brown [G. 2] とか Smith [G. 3] はその一部である。ここではこれらの追試と拡張をめざした第一歩として、図G-1に示すような円柱部分中央が加熱融解されているものとして、固液界面形状を求め、各種パラメータの影響を検討したものである。

#### G. 2. モデル方程式と境界条件

モデルとした系は図G. 1に示す半径1,長さ3の円柱棒で、棒の上半分が原料多結晶棒で下半分が単結晶で中央の0.52部分が一樣内部発熱しているものとした。

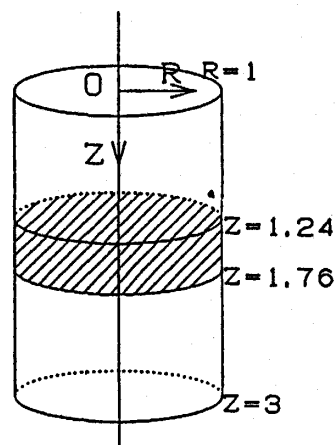


Fig. G-1 System.

基礎式は円筒座標系二次元のエネルギー式、渦度の式と流れ関数の式で与えられる。

$$DT/D\tau = \nabla^2 T + 1 \quad (G. 1)$$

$$D\Omega/D\tau - U\Omega/R = Pr(\nabla^2 \Omega - \Omega/R^2) + Gr^* Pr^2 \frac{\partial T}{\partial R} \quad (G. 2)$$

$$U = -\partial\psi/\partial Z, \quad W = (1/R)\partial(R\psi)/\partial R \quad (G. 3)$$

$$\Omega = -\nabla^2 \psi + \psi/R^2 \quad (G. 4)$$

$$D/D\tau = \partial/\partial\tau + U\partial/\partial R + W\partial/\partial Z \quad (G. 5)$$

$$\nabla^2 = \partial^2/\partial R^2 + \partial^2/\partial Z^2 + (1/R)\partial/\partial R \quad (G. 6)$$

無次元数は以下のように定義した。r<sub>0</sub>は有次元半径。

$$R = r/r_0, \quad Z = z/r_0, \quad U = u/u_0, \quad W = w/u_0,$$

$$T = (\theta - \theta_m)/\theta_a, \quad \tau = t/t_0, \quad u_0 = \alpha/r_0$$

$$t_0 = r_0/u_0, \quad \theta_a = qr_0^2/k, \quad Pr = \nu/\alpha,$$

$$Gr^* = g\beta r_0^5 q/(k\nu^2), \quad Bi^* = h_{eq} r_0/k,$$

$$Ma = (C_p r_0^3 q/\nu k^2)(-\partial\sigma/\partial\theta)$$

系の円柱の右側縦断面を図G-2に示す。簡単のため中

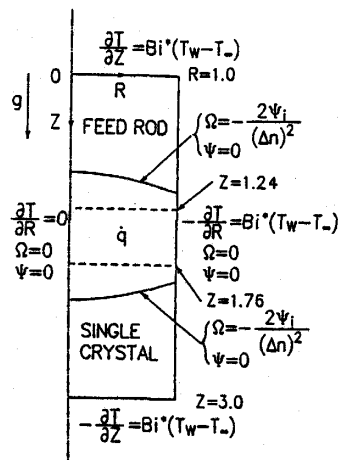


Fig. G-2 Boundary Conditions.

心軸を除いて、同じ等価熱伝達率 $h_{eq}$ で冷却されるものとした。また固液の熱伝導率も同じとした。融液部の点線で囲まれた部分で一様発熱 $q$ が生じるとし、右側気液界面は摩擦無しとした。固液界面上の渦度は液層側からの外挿で与えた。

G-3. 計算方法

図の断面を $9 \times 27$ 等分割し、四角系の有限要素に対して、ガラーキソ有限要素法を用い、要素内の渦度、流れ函数をアイソパラメトリック近似した。内挿函数は各方向を一次元近似し、積分はガウス・ルジャンドルの積分公式を用いて数値を求めた。まず熱伝導解を求め、融点温度の等温線を求め、これを固液界面として、中央の液相部分については自然対流を加えて、さらに数値解析を行い、時間ステップ10回毎に融点等温線に基づき新しい固液界面位置を決定しなおした。中央の $z$ 軸方向三要素分は内部発熱量を一定に保つため要素位置は固定した。固相部分についても等温線に沿って要素位置を求めなおした。流速成分の相対変化量が10回連続して1/1000以下となった時を収束解とした。

G-4. 計算結果

4.1 気液界面に摩擦無しの場合

この時の境界条件を図G-2に示す。 $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$ ,  $T_\infty=-2.198$ として、 $Gr^*=10^4, 10^5, 10^6$ の場合の収束解を求めた。図G-3に $Gr^*=10^6$ の場合の最終メッシュ位置、等温線、等流れ函数線、速度ベクトル図をそれぞれ示す。図G-4には固液界面の上側のものを上部に、下側のものを下部に示す。発熱量の増加にともない、上方原料部と液相との界面の形が中心で凸になって行くのに対し、下方結晶部では殆ど変化が無いことがわかる。なお、上記の $Gr^*$ が一桁ずつ増

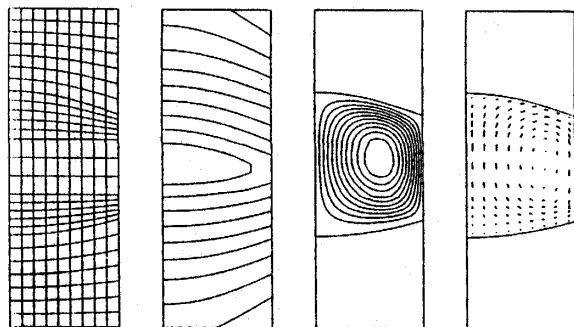


Fig. G-3 Converged solution for  $Gr^*=1.0 \times 10^6$ ,  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$ ,  $T_\infty=-2.198$ .

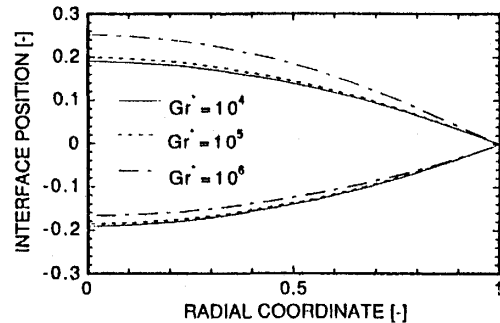


Fig. G-4 Melt/Crystal Interface Shape for  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$ ,  $T_\infty=-2.198$   
Upper Curves : Melt/Feed Rod Interface.  
Lower Curves : Melt/Single Crystal Interface.

加するにつれ、無次元流速成分はほぼ一桁ずつ増加している。

4.2 気液界面に表面張力を考えたとき

表面張力流と自然対流が共存する場合であるが、境界条件は気液界面の渦度の値にマランゴニ数が入るだけであり、これを図G-5に示す。 $Ma=10, 250, 1000$ の各場合の収束解の等流れ線図と速度ベクトル図を図G-6, G-7, G-8に示す。固液界面の形を一括して図G-9に示す。 $Ma$ 数の増加に応じ、平らな形に近付いて行くことが解る。図G-10には $Ma=100$ で $Gr^*=10^5$ の場合を示す。 $Gr^*$ の増加と共に上下の渦が非対称になってきた。上下の渦の流れ函数の最大値の比を縦軸に取って $Gr^*/Ma=r_0^2 g \beta k / [v C_p (-\partial \sigma / \partial \theta)]$ を横軸にしたものを図G-11に示す。同一材料では、 $r_0$ の増加と共に上下の渦が非対称になって行くことが示される。それに対し、固液界面の形はほぼ変わりなく、マラン

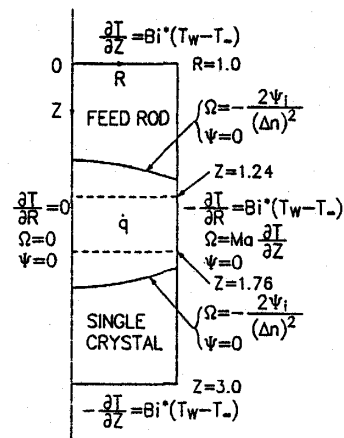


Fig. G-5 Boundary Conditions.

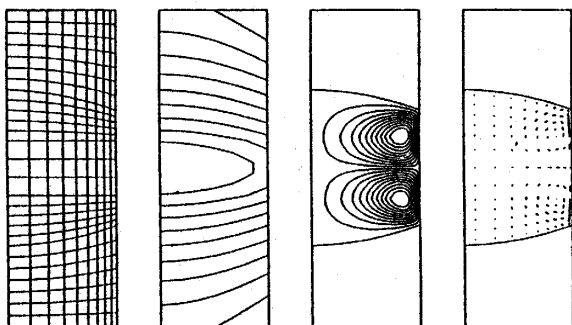


Fig. G-6 Converged Profile for  $Ma=10$ ,  $Gr^*=1000$ ,  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .

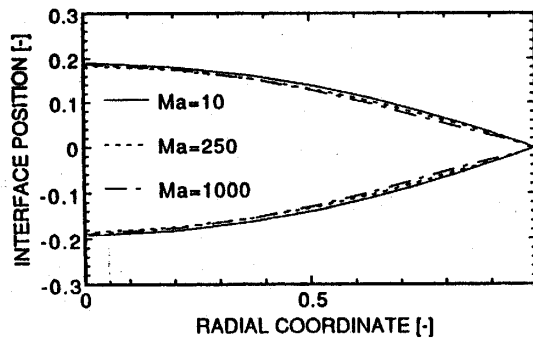


Fig. G-9 Melt/Crystal Interface Shape for  $Gr^*=10^3$ ,  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .  
Upper Curves : Melt/Feed Rod Interface.  
Lower Curves : Melt/Single Crystal Interface.

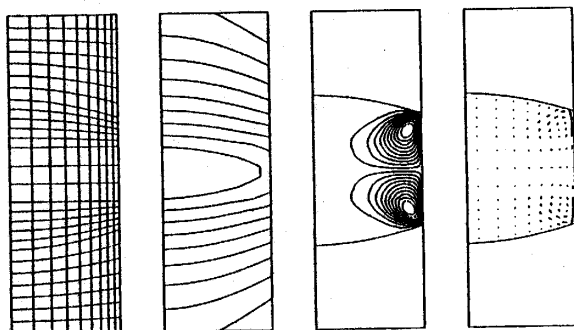


Fig. G-7 Converged Profile for  $Ma=250$ ,  $Gr^*=1000$ ,  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .

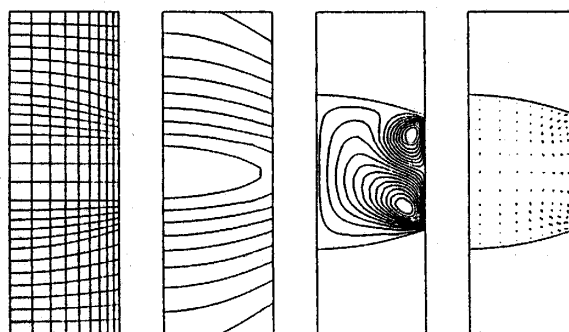


Fig. G-10 Converged Profile for  $Ma=100$ ,  $Gr^*=10^5$ ,  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .

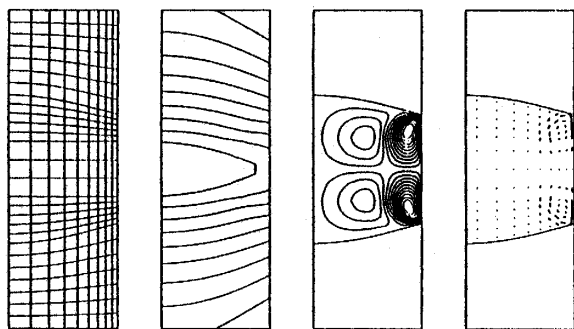


Fig. G-8 Converged Profile for  $Ma=1000$ ,  $Gr^*=1000$ ,  $Pr=0.01$ ,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .

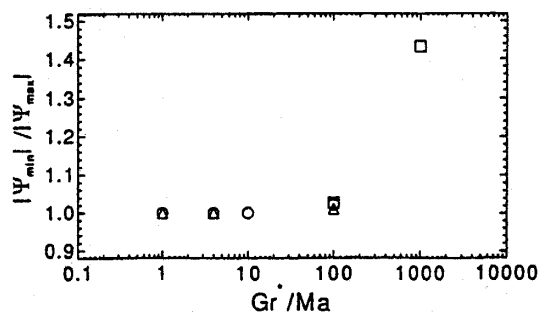


Fig. G-11  $|\Psi_{min}|/|\Psi_{max}|$  vs.  $Gr^*/Ma$ . Other Conditions are the Same as Fig. G-10.

ゴニ対流がこの場合には支配的であると考えられる。

## H. 無重力場における浮遊帯域法の簡易モデルによる数値解析 [H. 1]

### H. 1. はじめに

半導体材料製造法のひとつに、浮遊帯域法(Floating Zone法)があるが、これは容器と接しないで、多結晶材料から単結晶棒が作製できるため、不純物の溶け込みを防ぐことができる長所がある。またそのため宇宙空間での実験も有望視されている。

しかし、この時にはよく知られているように表面張力によるマランゴニ対流が発生し、無重力下でも流れを無視することはできない。本稿はマランゴニ対流と固液界面の位置決定を数値計算により求める方法の開発をこころみたものである。本報告では気液界面が円柱系に保たれると単純化し、RFコイルにより、内部発熱する場合と、外部から輻射加熱される場合を対象に数値計算を行った結果について述べる。

### H. 2. モデル式と境界条件

図H-1にモデルとした系の模式図を示す。半径1、長さ3の円柱棒の $z=1.24$ から $1.76$ の部分で内部発熱あるいは外周上に輻射加熱を受けるものとした。その時、固体は部分的に溶解し、液相の下端から固化が、液相の上端では融解が起こり、定常的に上の原料が溶け、下の単結晶ができて行くが、ここではこれを静止しているものとした。全体の長さ3の外表面から放熱が生じ、液相部分の表面は軸方向の温度勾配により、表面張力に勾配ができ、気液界面上の渦度の値が次のように表面張力の函数となり、流れを生じる。

$$\Omega = \text{Ma} (\partial T / \partial Z) \quad (\text{H. 1})$$

系全体にはエネルギー式、液相部には渦度の式、流れ

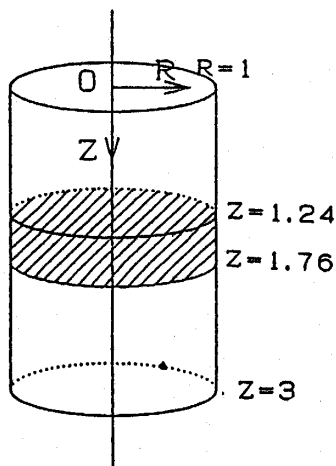


Fig. H-1 Modelled System. Shaded Area Dissipates Heat or is Radiated.

函数の式が以下のように成立する。

$$DT/D\tau = \nabla^2 T + 1 \quad (+1 \text{の項は内部発熱時のみ}) \quad (\text{H. 2})$$

$$\frac{D\Omega}{D\tau} - U\Omega/R = \text{Pr}(\nabla^2 \Omega - \Omega/R^2) \quad (\text{H. 3})$$

$$U = -\partial \Psi / \partial Z, \quad W = (1/R) \partial (R\Psi) / \partial R \quad (\text{H. 4})(\text{H. 5})$$

$$\Omega = -\nabla^2 \Psi + \Psi/R^2 \quad (\text{H. 6})$$

$$D/D\tau = \partial/\partial\tau + U\partial/\partial R + W\partial/\partial Z \quad (\text{H. 7})$$

$$\nabla^2 = \partial^2/\partial R^2 + \partial^2/\partial Z^2 + (1/R)\partial/\partial R \quad (\text{H. 8})$$

無次元数は以下のように定義した。 $r_0$ は有次元半径、 $q$ は内部発熱量、 $h_{eq}$ は等価熱伝達率である。

$$R = r/r_0, \quad Z = z/r_0, \quad U = u/u_0, \quad W = w/u_0,$$

$$T = (\theta - \theta_m)/\Theta_a, \quad \tau = t/t_0, \quad u_0 = \alpha/r_0,$$

$$t_0 = r_0/u_0, \quad \Theta_a = qr_0^2/k, \quad \text{Pr} = \nu/\alpha,$$

$$\text{Gr}^* = g\beta r_0^5 q / (k\nu^2), \quad \text{Bi}^* = h_{eq}r_0/k,$$

$$\text{Ma} = (C_p r_0^3 q / \nu k^2) (-\partial\sigma/\partial\theta)$$

図H-2には本問題の境界条件を一括して示す。計算はまず熱伝導のみを仮定して有限要素メッシュを順次切り直ししながら収束時の融点等温線を固液界面とした。その後、各パラメータの下で液相内の対流も含めた計算を行い、さらに固液界面の形状を切り直しながら計算を進め、収束させて行き、定常界面形状を決定した。

### H. 3. 計算結果

#### H. 3.1 内部発熱の場合

RFコイルにより多結晶原料内部に発熱が生じる場合を対象として、マランゴニ数、 $\text{Ma}=10, 100, 1000$ について計算した。 $\text{Ma}=10$ と $1000$ の場合の格子形状、最終

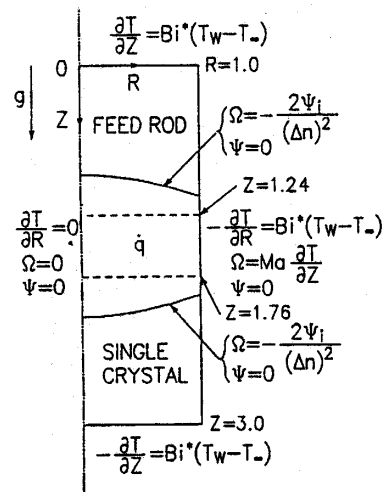


Fig. H-2 Boundary Conditions.



ベクトル図を図H-3, 図H-4に示す。重力が無い  
ため、全体的な一つの自然対流でなく、表面の温度勾配  
に沿う二つの渦が断面内に発生する。

図H-3の流れが遅いときは固液界面の形は棒の中心  
(図では左側)の方が液相部が長いのに対し、図H  
-4の流れが速いときは気液界面部の流れが強く、固液  
界面の形が外側に向かって開く形になった。これは実  
験結果に近い[H. 2]。またMa数の増加と共に渦の中心  
が固液界面に近付いていく特性はSchwabeら [H.  
3]の実験による結果とよく一致している。図H-4の  
中心近くには二次流れが発生している。

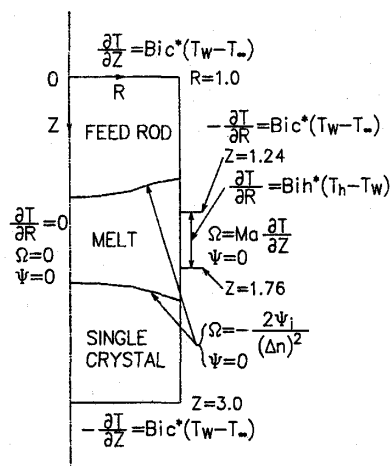
H. 3.2 外部より輻射加熱される場合

この時の境界条件を図H. 5に示す。  $Bi_c^* = h_{ceq}r_0/k$ ,  
 $Bi_h^* = h_{neq}r_0/k$ で、冷却及び加熱面上の等価熱伝達率を  
用いて定義したビオ数である。

またこの時の無次元温度の代表値は  $\theta_h - \theta_\infty$  であり、

$$Ma \equiv \frac{C_p r_0 (\theta_h - \theta_\infty)}{\nu k} \left( - \frac{\partial \sigma}{\partial \theta} \right)$$

である。Ma=10, 100について数値計算し、同様収束  
固液界面の形状を求めた。



Boundary Conditions

Fig. H-5 Boundary Conditions.

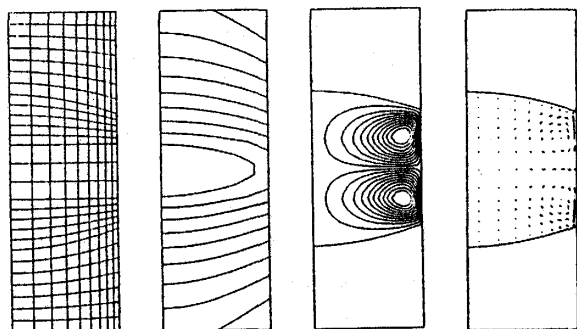


Fig. H-3 Computed Converged Results at Ma=10,  
Pr=0.01,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .

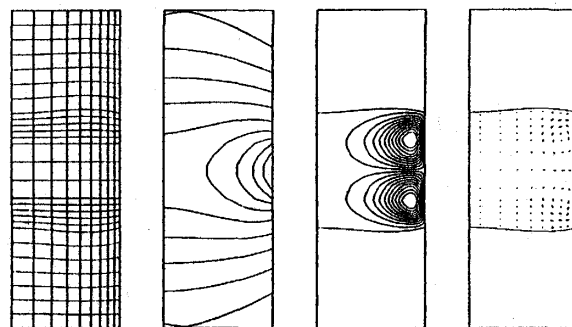


Fig. H-6 Computed Converged Results at Ma=10,  
Pr=0.01,  $Bi_h^*=1.1$ ,  $Bi_c^*=0.03$ ,  $T_h=0.215$  and  
 $T_\infty=-0.785$ .

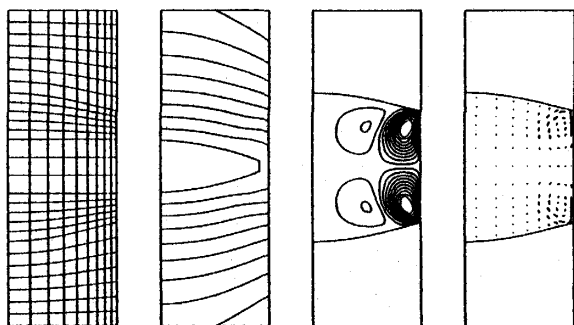


Fig. H-4 Computed Converged Results at Ma=1000,  
Pr=0.01,  $Bi^*=0.03$  and  $T_\infty=-2.198$ .

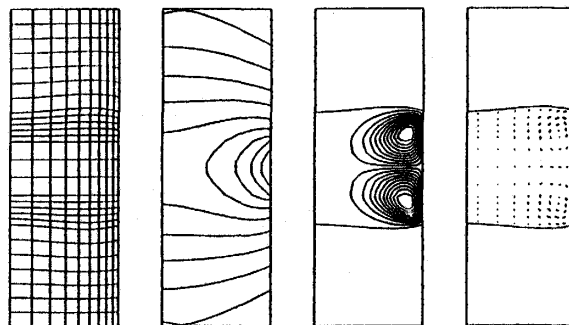


Fig. H-7 Computed Converged Results at Ma=100,  
Pr=0.01,  $Bi_h^*=1.10$ ,  
 $Bi_c^*=0.03$ ,  $T_h=0.215$  and  $T_\infty=-0.785$ .

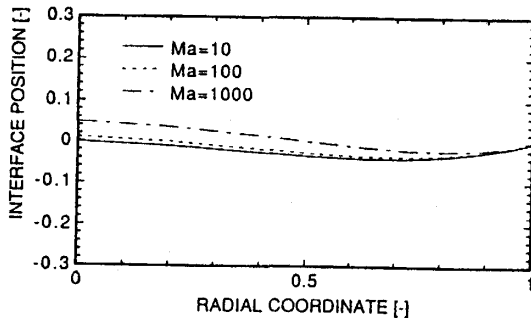


Fig. H-8 Computed Converged Results at  $Pr=0.01$ ,  $Bi_h^*=1.1$ ,  $Bi_c^*=0.03$ ,  $T_h=0.215$ ,  $T_\infty=-0.785$ .

図H-6, H-7に $Ma=10, 100$ の場合の最終収束結果を示す。内部発熱の場合より、さらに気液界面側に開いた形の固液界面となり、逆にいえばこのような断面の固相ができる場合には表面張力流となっていると推測することができる。図H-8はこの時の下方固液界面の形で $Ma$ 数の増加と共に、半径方向に界面がひろがっていくことがわかる。

#### H.4 結 言

無重力下におけるFZ法結晶成長法のマランゴニ対流のシミュレーション計算を行い、 $Ma$ 数の増加とともに、固液界面が半径と共に広がることを見いだした。

### 1. クラスター形成における混合気体分子および回転エネルギーの影響 [1.1]

#### 1.1. まえがき

粒径が100nm程度より小さい粒子は超微粒子、これよりさらに小さく分子的な取り扱いが可能な程度の粒子はクラスターと呼ばれている。このような小さな粒子になると、バルクな物理的性質とは違った特異な性質を示すようになることが明らかにされており、新規な物性を示す物質として期待されている。

クラスターが特異な性質を示す本質的な原因は、

- (1) 粒径が小さいためにエネルギー準位が離散的になること (サイズ効果, 粒径効果)
- (2) 表面を形成する分子の割合が大きくなるために粒子の物性に寄与する表面分子の影響が大きくなること (表面効果)

と考えられており、このことから粒子の大きさが物性に大きく影響することが予想される。このため、クラスター生成過程を積極的に制御することにより、より均一なクラスターを生成する技術を確立することが

望まれている。

クラスター生成過程を積極的に制御する方法としては種々考えられるが、異種分子の混合による分子間のエネルギー交換過程の制御または分子の内部エネルギー状態を制御することによる凝集過程の制御などもその一つの方法として考えられる。

このような観点から、本研究では水分子を用いて、

- (1) 混合気体分子がクラスター生成に及ぼす影響
- (2) 分子の回転エネルギーがクラスター生成機構に及ぼす影響

を実験的に明らかにし、生成機構の制御の可能性を調べた。

#### 1.2. 実験装置及び実験方法

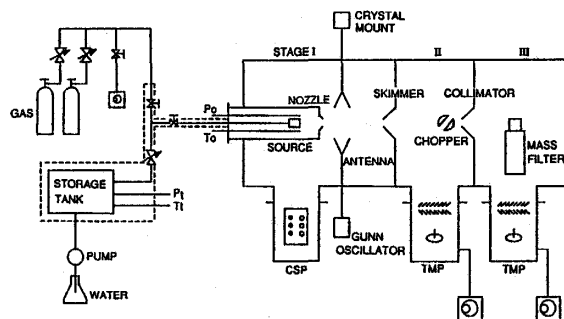
##### 分子線装置

自由分子噴流終端での分子及びクラスターの生成量を測定するために用いた分子線装置を図I.1に示す。第3段真空槽の到達圧力はおおよそ $3 \times 10^{-8}$  torrである。本実験では直径173 $\mu$ mの先細ノズルを用いた。また、各種クラスターの検出には四重極質量分析計を用いた。なお、コリメーターの直前に設置したチョッパーを用いて分子線を変調させることによりS/N比を向上させた。

図I.2にノズル部の詳細を示す。ノズルおよびスキマーは送信および受信の2つのホーンアンテナ間に挿入されており、水分子はノズルから噴出しスキマーによりサンプリングされるまでマイクロ波照射される。本実験で用いたマイクロ波の周波数は22.235GHz (水分子の $J=5 \rightarrow 6$ に対応) である。

##### 実験方法

イオン交換水を電気加熱することにより水蒸気を発生させ、約140°Cに温度制御された恒温槽内にあるニードルバルブによって流量制御する。すなわちバルブ上流に、内径70mm, 長さ96mm, ステンレス製の水蒸気貯



図I.1 実験装置

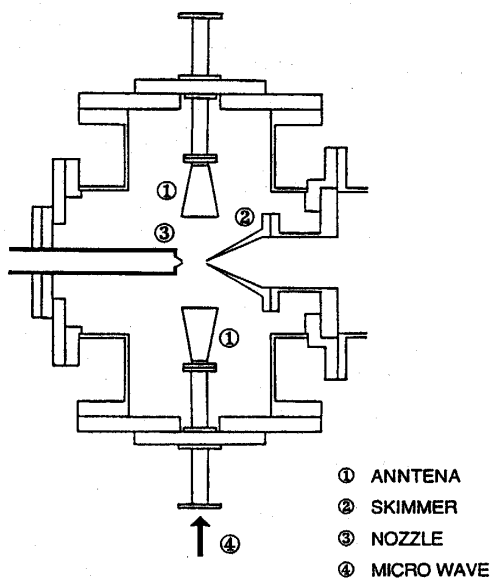


図 1.2 ノズル部詳細図

蔵タンクをバッファとして用い、タンク内の水蒸気を外径1/16インチ、長さ250mmのステンレス製パイプを通して大気に開放することによりタンク内の水蒸気圧力を常時一定の圧力(約1.05atm)に制御する。この時、ニードルバルブ下流の圧力は約200torrまたは約330 torrであり、ニードルバルブはチョーク状態となっているため、水蒸気質量流量はニードルバルブ喉部面積、バルブ温度およびバルブ上流圧力のみ関数となる。これにより、バルブ下流の圧力変動に関係なく水蒸気流量を制御することが可能となる。一方、混合する気体の流量は定流量弁を用いて制御し、その流量は定流量弁下流において石鹼膜流量計で測定した。気体は加熱された後、恒温槽内で水蒸気と混合され、ノズルへ導かれる。実験には高純度Ar, N<sub>2</sub>を用いた。それぞれ気体の純度は、Ar(99.999%), N<sub>2</sub>(99.9999%)である。なお、水蒸気を通る配管は水蒸気が凝縮しないように常時130°C以上に加熱している。

気体源において、混合気体は平均径 7 μm の孔を有する焼結合金よりしみ出し、直径173 μm の先細ノズルより第1段真空槽内に噴出する。この時、気体源の淀み点温度は所定の温度(本実験では363Kに設定した)に制御されている。また、混合気体の一部をニードルバルブを通して油回転ポンプで排気することにより、ソース淀み点圧力も所定の圧力に制御した。

超音速分子線

ノズルより真空中へ噴出した混合気体は自由分子噴流を形成する。この時、温度、密度が等エントロピー

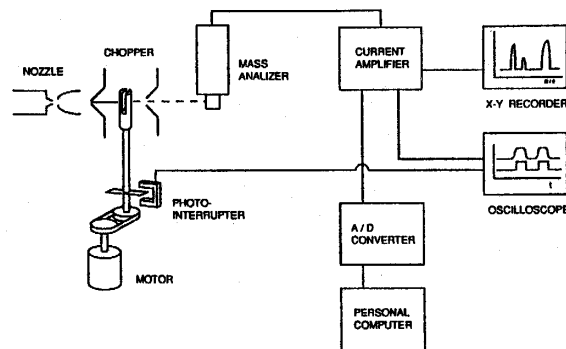


図 1.3 信号処理系

的に減少し、各種クラスターが生成される。スキマーにより、これら分子及びクラスターをサンプリングし超音速分子線を形成する。チョッパー(回転周波数18 Hz)により変調された分子線は、コリメーターを通った後、第3段真空槽で質量分析される。

信号処理系

本実験の信号処理系を図 1.3 に示す。質量分析計からの出力電流信号の S/N 比は次の方法で向上させた。質量分析計の二次電子増倍管の出力電流はピコアンペア程度の微弱電流であるため、カレントアンプ(KEYTHLEY, Model 427)により増幅・電流電圧変換する。一方、チョッパーのフォトインタラプターからのパルス信号をトリガーとし、前述の増幅した二次電子増倍管出力信号をパーソナルコンピュータに順次蓄積する。これをあらかじめ指定した回数だけ繰り返し積算する。積算した二次電子増倍管出力信号の一例を図 1.4 に示す。チョッパーの回転位相が ON(開) - OFF(閉) のときの信号値の差からこの質量電荷比での二次電子増倍管出力信号を求めた。

**1.3. 実験結果及び考察**

クラスターの同定

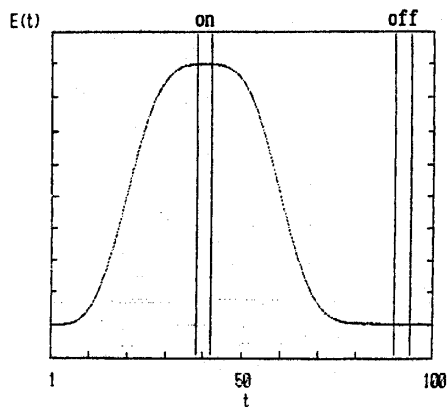


図 1.4 積算出力信号

電子衝撃形イオン源を有する質量分析計においては、イオン化室内における分子クラスターと電子との衝突により、親ピーク以外にもフラグメントピーク、同位体ピーク、2価イオンピークなど数多くのピークからなる質量スペクトルが得られる。このため実験より得られた質量スペクトルを各クラスターに帰属させる必要がある。このため、圧力( $P_0$ )200torr、温度( $T_0$ )90°Cの気体源条件においてクラスターの同定を行い、以下の結果を得た。

- (1) 気体源の $H_2O$ モル分率が1 (他の気体と混合しない)の場合、質量電荷比( $m/e$ )が18, 36及び19, 37, ...,  $[18(n-1)+1]$  ( $n \geq 2$ ) 及び1, 17の正イオンが検出された。
- (2) 試料気体が純ガスの場合 (気体源の $H_2O$ モル分率が0), これらのイオンは検出されなかった。
- (3) 気体源における $H_2O$ モル分率が大きくなるにつれて、これらのイオンに対する質量スペクトルは大きくなった。
- (4)  $m/e=9, 27$ には正イオンは検出されなかった。

実験結果(4)より、本実験においては2価以上のイオンの生成は無視できるものと考え、 $m/e=18, 36$ はそれぞれ $H_2O^+$ ,  $(H_2O)_2^+$ と同定した。 $m/e=19$ のイオンとしては $H_2O$ 分子の同位体の1価イオン及び $(H_2O)_2$ クラスターのフラグメントイオンである $(H_2O)H^+$ とが考えられる。 $m/e=19$ のイオンに対する信号強度は、 $m/e=18$ のイオンに対する信号強度の約18%であった。 $H_2O$ の同位体として $^2H-^{16}O-^1H$ ,  $^1H-^{17}O-^1H$ が考えられるが、天然に存在する元素の同位体の存在比より、 $m/e=19$ の $H_2O$ は $m/e=18$ の $H_2O$ の約0.07%と見なすことができる。このため、本実験では、 $m/e=19$ のイオンは、 $(H_2O)H^+$ とみなした。また、 $m/e=19$ のイオンに対する出力電流は $m/e=36$ の出力電流の約5600倍であった。このため、本実験においては自由噴流で生成された $(H_2O)_2$ クラスターは、質量分析計のイオン源において電子と衝突することにより、 $OH^-$ イオンをはぎ取られたフラグメントイオン $(H_2O)H^+$ の形で検出されるものとみなした。より大きな $(H_2O)_n$  ( $n \geq 2$ )クラスターにおいても $m/e = [18(n-1)+1]$  ( $n \geq 2$ )のイオンが検出されることより、 $(H_2O)_n$ クラスターは全て $m/e = [18(n-1)+1]$  ( $n \geq 2$ )のイオン $(H_2O)_{n-1}H^+$ として検出されるものと考えた。すなわち、 $m/e=18, 19, 37, \dots, [18(n-1)+1]$ に対する二次電子増倍管出力信号を、それぞれ、 $H_2O$ ,  $(H_2O)_2$ ,  $(H_2O)_3$ , ...,  $(H_2O)_n$ クラスターに帰属させた。

#### クラスター生成量の定義

一般に四重極質量分析計の感度は電氣的に中性な化学種およびクラスター種によって異なるが、本実験においては内部標準等による感度の校正は行わなかった。このため実験より得られた二次電子増倍管出力電流から自由噴流終端での各種クラスターの絶対濃度を求めることはできないが、次のように自由噴流終端での各種クラスターの「生成量」を定義した。

$$X_{(H_2O)} = (I_{(H_2O)_n} / I_{H_2O}) X_{H_2O} \\ = (I_{(H_2O)_n} / I_{H_2O}) X_0$$

$I$ : 二次電子増倍管出力電流

$X_0$ : 気体源における $H_2O$ のモル分率

#### 組成比の影響

図 I. 5 に気体源圧力200torr、気体源温度90°Cでの $(H_2O-X)$  ( $X=Ar, N_2$ )混合系の気体源 $H_2O$ モル分率に対する自由噴流終端での $(H_2O)_n$  ( $n=2-9$ )クラスターの生成量を示す。図より、本実験条件の範囲では、いかなる組成比においてもクラスターが大きくなるにつれて $(H_2O)_n$ クラスターの生成量は減少していることがわかる。また $(H_2O)_2$ クラスターの生成量は、混合分子がArの場合と $N_2$ の場合とで差はあまりなく、混合気体の $H_2O$ モル分率が大きくなるにつれて単調的に増加している。一方、 $(H_2O)_3$ より大きな $(H_2O)_n$ クラスターでは、混合分子が $N_2$ の場合よりArの場合のほうが $(H_2O)_n$ クラスターの生成量が大きく、この差はクラスターが大きくなるにつれて顕著になっていく。特に混合気体の $H_2O$ モル分率が小さい場合にこの差は大きい。混合分子がArの場合、 $(H_2O)_n$ クラスターが大きくなると、混合気体の $H_2O$ モル分率に対する $(H_2O)_n$ クラスターの生成量は最大値を有するが、混合分子が $N_2$ の場合は明確な最大値は示さなかった。

$(H_2O)_n$ クラスターの生成量に対する気体源組成の影響について、以下に示す三種類の熱力学的効果が考えられる。

- (1) ホスト気体 ( $H_2O$ ) にAr,  $N_2$ 等を混合することにより気体源における $H_2O$ の分子数が増加・減少し、これが $(H_2O)_n$ クラスターの生成量の増減に影響する(濃度効果)。この効果においては、 $H_2O$ モル分率に対して $(H_2O)_n$ クラスターの生成量は単調的に増加する。
- (2) 比熱比 $\gamma$ の異なる二種類の気体を混合することにより、混合気体の平均的な比熱比が変化し、その結果自由噴流中の温度場・密度場が変化することによりクラスター生成量が増減する(比熱比効果)。比熱

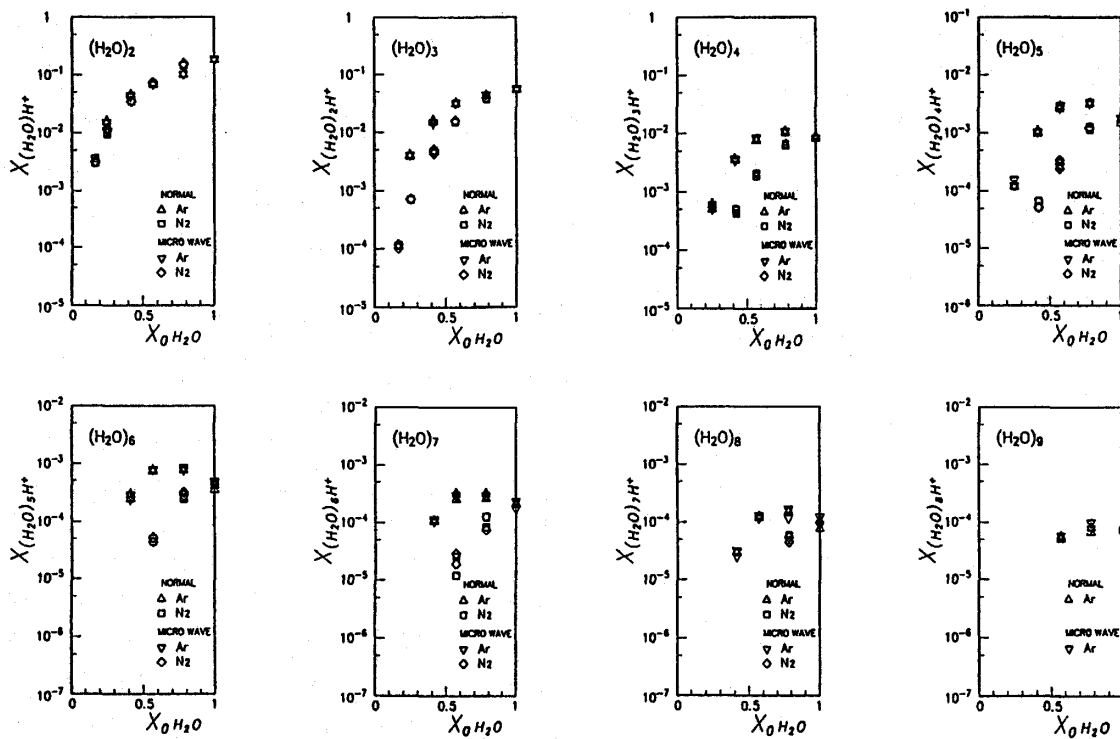


図 1.5 クラスター生成量に対する混合気体組成および回転エネルギーの影響  
( $P_0=200\text{torr}, T_0=363\text{K}$ )

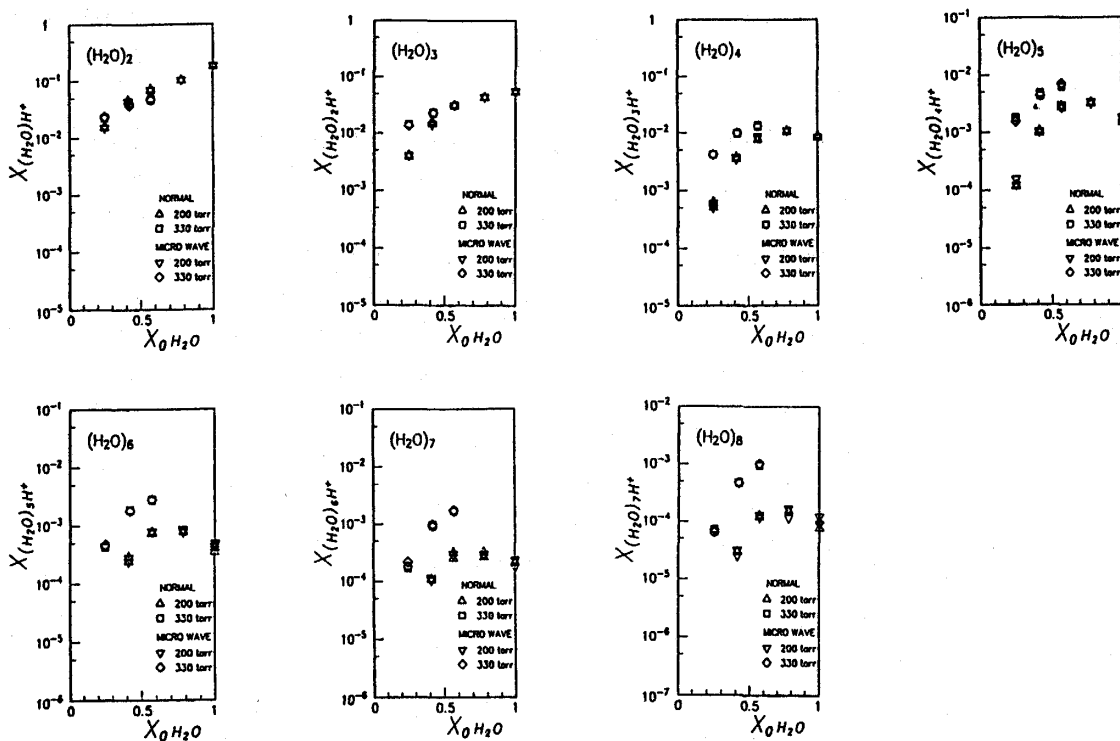


図 1.6 クラスター生成量に対する気体源圧力および回転エネルギーの影響  
( $P_0=200\text{torr}, 330\text{torr}, T_0=363\text{K}$ )

比効果においては、比熱比が大きいほど気体分子の並進温度が低くなり一般的にクラスターが生成されやすくなる。

- (3) 分子質量の異なる二種類の気体を混合することにより、混合気体の「平均的」分子質量が変化し、その結果流れの速度・特性時間が変化し、クラスター生成にかかわる「反応時間」が変化することによってクラスター生成量が増減する(質量効果)。一般に、分子の質量が大きいほど分子の持つ並進速度が小さくなり、「反応時間」が長くなるためクラスター生成量が大きくなると考えられる。

これらの熱力学的効果を考えることにより実験結果の定性的な把握が可能である。

#### 気体源圧力の影響

図 I. 6 に気体源圧力 ( $P_0$ ) が 200torr と 330torr の場合の  $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターの生成量を示す。この図より、 $(\text{H}_2\text{O})_2$  クラスターの生成量に対しては、 $P_0=200\text{torr}$  の場合と  $P_0=330\text{torr}$  の場合とではあまり変化がみられない。

一方、 $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターが大きくなるにつれて  $P_0=330\text{torr}$  の場合の  $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターの生成量は  $P_0=200\text{torr}$  の場合に比べて大きくなる。特に、気体源での  $\text{H}_2\text{O}$  モル分率が大きい場合にこの差が大きい。しかし、気体源での  $\text{H}_2\text{O}$  モル分率に対する  $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスター生成量の変化の様子は、200torr の場合も 330torr の場合も全体的にはほぼ同じ傾向であるといえる。

#### 回転エネルギーの影響

自由噴流に 22.235GHz のマイクロ波を照射することにより、水分子の回転エネルギーを  $J=5 \rightarrow 6$  に励起したクラスター生成実験を行い、クラスター生成に及ぼす回転エネルギーの影響を調べた。実験結果を図 I. 5 および 6 に示す。これらの図より、混合分子が Ar,  $\text{N}_2$  いずれの場合にも、 $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスター生成に対する回転エネルギーの明確な影響はみられなかった。また圧力が気体源が 330torr の場合も、回転エネルギーの顕著な影響は認められなかった。

今回の実験では、 $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターの生成に対する水分子の回転エネルギーの影響は非常に小さかった。この原因として以下のことが推察される。

- (1) 周波数 22.235GHz のマイクロ波のエネルギーは温度に換算すると数 K 程度であり、マイクロ波照射が  $\text{H}_2\text{O}$  分子に与えるエネルギー量は小さいため、クラスターの生成に顕著な影響を及ぼすまでには至らない。

- (2) 自由噴流中の急激な密度低下により、 $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターの生成はノズル先端近傍 ( $\sim 1\text{mm}$  程度) の領域に限られる。本実験装置ではこの領域に照射されるマイクロ波の強度は計測できないが、金属製のノズル等の影響で十分な強度のマイクロ波が照射されていない可能性も考えられる。現在、ガラス製のノズルを用いることにより、ノズル内で水分子の回転エネルギーを励起したクラスター生成実験を計画している。

#### I. 4. 結 論

$(\text{H}_2\text{O}-\text{X})$  ( $\text{X}=\text{Ar}, \text{N}_2$ ) 系の混合気体による超音速分子線を用いて、 $\text{H}_2\text{O}$  クラスターの生成に及ぼす第三体分子の影響を調べた。また水分子の回転エネルギーを励起したクラスター生成実験を行い、クラスター生成に及ぼす回転エネルギーの影響を調べた。その結果、以下のような実験結果が得られた。

- (1)  $(\text{H}_2\text{O})_2$  クラスターの生成量は、混合分子の種類にあまり影響されないが、より大きな  $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターでは、混合分子の種類による  $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターの生成量の違いが大きくなる。
- (2) クラスター生成量に対する混合気体組成の影響は定性的には熱力学的効果により説明できる。
- (3) 本実験においては、回転エネルギーが  $(\text{H}_2\text{O})_n$  クラスターの生成に及ぼす影響は非常に小さい。

#### J. 振動励起による蒸着過程の研究 [J. 1]

##### J. 1. まえがき

気体分子の固体表面への凝縮(蒸着)現象は工業的には種々の分野で利用されているが、その機構については未だ十分には明らかにされていない。これは蒸着現象が固体表面の物性・ミクロな形状などにより大きな影響をうけるため、蒸着機構の系統的な解明およびその制御が困難であることが原因と考えられる。しかし、薄膜技術を用いた電子デバイス、機能材料開発においては、蒸着機構を原子・分子レベルで解明し、それを積極的に制御することが必要となり、実験手法および実験装置の急速な進歩にともなってこの分野の研究は活発に展開されているところである。本研究では、最もシンプルな蒸着過程として金属原子の真空蒸着を用いて、原子間の振動エネルギー等種々のエネルギーが蒸着機構に及ぼす影響を実験的に調べ、蒸着機構制御の可能性を調べた。

J. 2. 実験装置および実験方法

図 J. 1 に実験装置の概略を示す。本実験装置は一般的な真空蒸着装置であり、金属蒸発源にはクヌードセル (K-CELL) を用いた。るつぼを電気抵抗加熱することにより金属蒸気を発生させ、これをセルに対向して置かれた基板ホルダーに設置されている基板上に蒸着させる。このときの基板温度は K 型熱電対、シーヒーターおよび液体窒素により温度制御されている。るつぼと基板のなす角度は約 13.5 度、距離はおよそ 300 mm である。蒸着中にパルス YAG レーザーを基板に垂直に照射することにより、基板-蒸着金属原子の局所的振動励起が可能である。また蒸着中、反射型高速電子線回折 (RHEED) により薄膜結晶構造を常時”その場”観察した。形成した薄膜は走査型電子顕微鏡および X 線マイクロアナライザー (EPMA) により分析した。実験に用いた金属材料は Al, 基板は (100) Si 単結晶 (P-dope) およびガラスである。なお、本実験においては K-CELL のるつぼ温度は 1100°C に設定した。

J. 3. 実験結果および考察

一般に、蒸着原子は基板または薄膜の表面を活発に移動 (マイグレーション) し、レッジ、キンクなどの蒸着しやすい箇所に落ち着く。この過程において蒸着原子-基板系の振動エネルギーを励起・脱励起することによりマイグレーションさらには形成される薄膜の結晶構造を制御することが可能と考えられる。最もシンプルな振動エネルギーの制御は基板温度を制御することであるため、まず基板温度を変えた Al 蒸着実験を行った。これらの実験で形成された Al 薄膜の電子顕微鏡写真を図 J. 2 に示す。基板温度が -196°C の場合、

結晶構造を確認することができなかったが、RHEED 像よりこれらの薄膜はアモルファス状であると思われる。基板温度が高くなるにつれて薄膜結晶粒は大きくなり、基板温度 300°C では粒径が 0.2~0.3 μm 程度に成長している。ガラス基板の場合でもほぼ同様の結晶構造が観察された。図 J. 3 に蒸着過程における RHEED 像の時間変化を示す。基板は Si 単結晶であり、蒸着開始前の RHEED 像には単結晶特有の回折像 (輝点) が観察できる。蒸着を開始するとこの輝点が徐々に弱くなり、

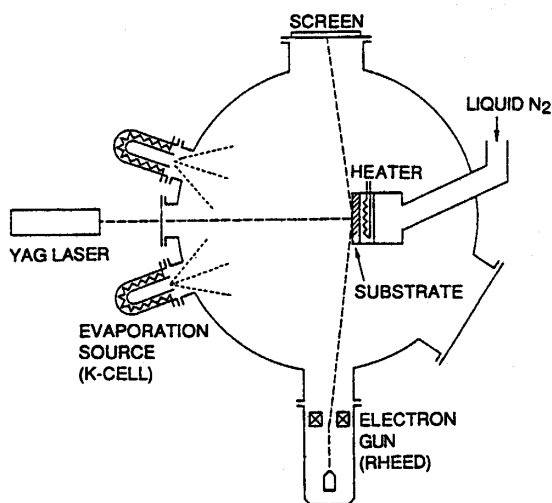
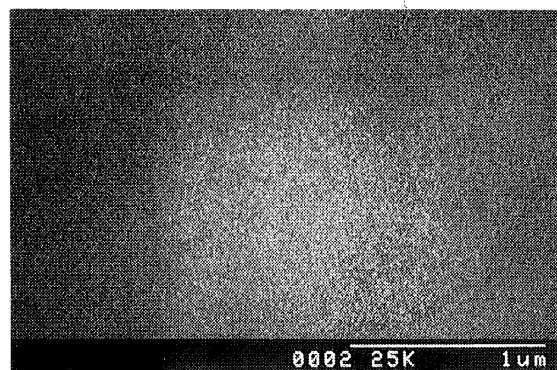
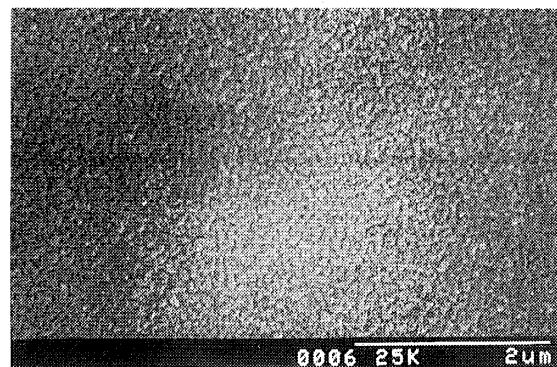


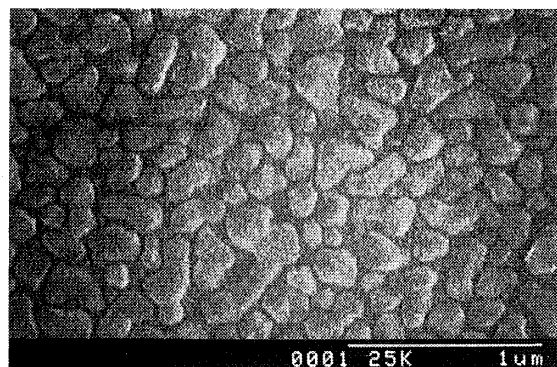
図 J. 1. 実験装置の概略



(a) 基板温度: -196°C (倍率: 4万倍)



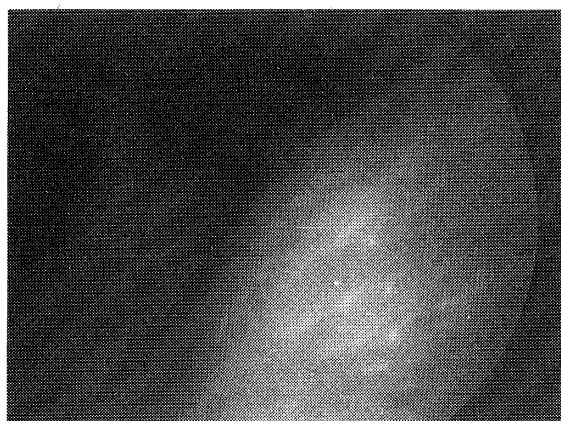
(b) 基板温度: 50°C (倍率: 2万倍)



(c) 基板温度: 300°C (倍率: 4万倍)

図 J. 2 シリコン基板上に形成した Al 薄膜の電子顕微鏡写真 (蒸着時間15分)

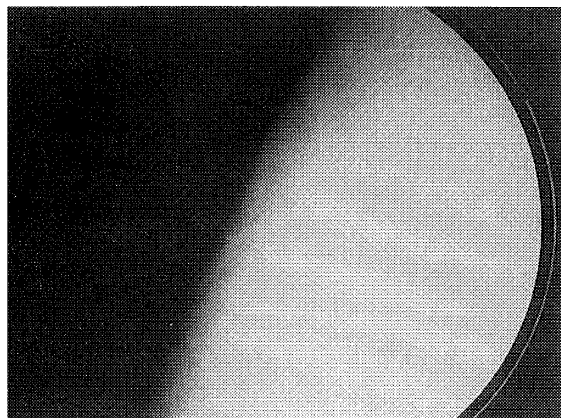
本実験では蒸着開始から約40秒でほぼ回折像が見えなくなった。さらに蒸着を続けると、基板温度が50°C、300°Cの場合、多結晶構造を示す環状の回折像が観察された。本実験の範囲では、Alの単結晶薄膜は得られなかった。



(a) 蒸着開始前



(b) 蒸着開始から40秒後



(c) 蒸着開始から15分後

図 J. 3 Al 蒸着過程における RHEED 像の変化  
((100)Si 単結晶基板, 基板温度50°C)

次にYAGレーザー照射による原子間振動励起を試みた。まずSi単結晶基板にYAGレーザーを1パルス照射(出力約32J/パルス, パルス幅約2 msec, ビーム径約10mm)し, そのときのRHEED像の変化を観察した。その結果, 照射前に観察された輝点は, パルスレーザーを照射することにより瞬間的に輝点の強度が減衰または消滅し, ふたたび同じ場所に輝点が観察された。これはYAGレーザー照射により基板原子の振動が局所的に励起され(局所的融解が起きたことも考えられる)たが, 熱伝導により冷却されふたたび元の単結晶構造に戻ったものと考えられる。次にAl蒸着中にパルスYAGレーザーを繰り返し照射し(出力約30J/パルス, パルス幅約2 msec, パルス周期5 pps, ビーム径約10mm), RHEED像の変化および電子顕微鏡による結晶構造の変化を観察したが, レーザー照射のないときに比べ顕著な変化は観察されなかった。

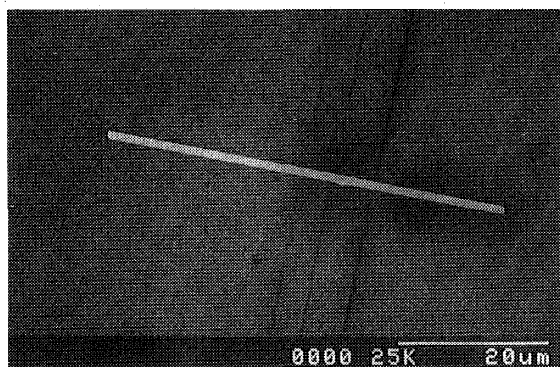
レーザーを照射しない場合の蒸着において, RHEED観察のため基板および薄膜には常時電子線を照射したため, 薄膜形成後の電子顕微鏡写真において図J. 4に示すような電子線照射跡が薄膜表面に観察された。図J. 4(c)は電子線照射部分, (d)は電子線のあたっていない下地部分(写真の白い部分は電子線照射部分)の結晶構造を示す。いずれの場所においても0.2 μm程度の結晶粒が確認される。図J. 4(b)は反射電子像であり, 電子線照射部分は隆起していると思われる。また図J. 5にEPMAによる元素分析の結果を示す。(a)は電子線照射部分, (b)は下地部分である。EPMAでは電子の侵入深さが~1 μm程度あるため, この深さ程度までに存在する元素が検出される。このため基板であるSiと蒸着したAlに対応するピークが検出された。それぞれの元素の質量比は表1に示すとおりである。これらの実験結果より, 電子線照射によってAlの蒸着が促進されるが, その結晶構造には明確な変化はないことがわかった。

#### J. 4. 結 論

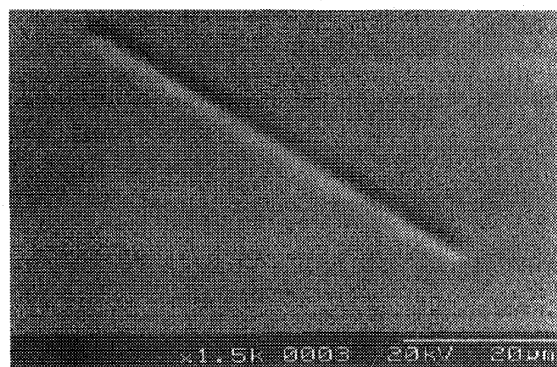
YAGレーザーによる局所振動励起Al真空蒸着実験を行い, 振動励起が薄膜の結晶構造等に及ぼす影響を実験的に調べた。その結果,

- (1) 基板温度が薄膜結晶構造に及ぼす影響は大きく, 温度が高いほど形成される結晶粒径は大きくなる。
- (2) YAGレーザーによる局所振動励起が薄膜結晶構造に及ぼす影響は観察されなかった。
- (3) 蒸着過程において常時電子線照射された部分では蒸着が促進されたが, その結晶構造に顕著な変化は

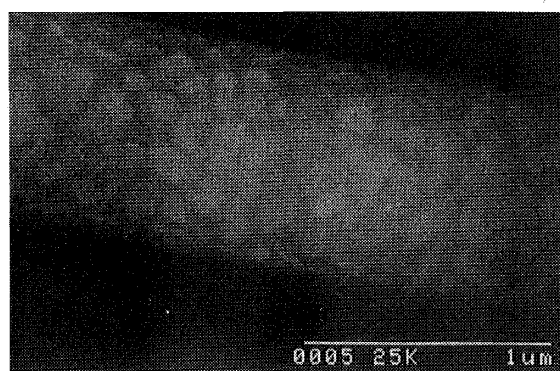




(a) 電子線照射部分 (倍率: 1500倍)



(b) 電子線照射部分の反射電子像 (倍率: 1500倍)



(c) 電子線照射部分の結晶構造 (倍率: 5万倍)



(d) 電子線が照射されていない部分の結晶構造 (倍率: 5万倍)

図J.4 Al薄膜の電子顕微鏡写真  
(Si単結晶基板: 基板温度300°C)

表J.1 EPMAによる元素の質量比

Spectrum	Si	Al
(a) part	93.99%	6.01%
(b) part	97.93%	2.07%

認められなかった。

(4) 電子線照射により蒸着過程を制御できる可能性が発見された。

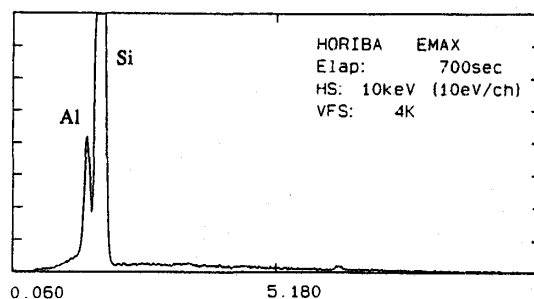
上記一連の研究には以下の文部省科学研究費の補助を得て実現したものであり、ここに記して謝す。

一般研究(C)(代表 尾添紘之)昭和62年度, 昭和63年度,  
「磁場と重力場における液体金属の自然対流熱伝達に関する研究」

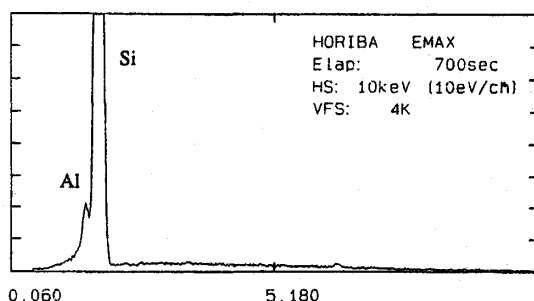
国際学術研究(共同研究)(代表 尾添紘之)昭和63年度,  
平成元年度,

「磁場下における液体金属の伝熱流動特性に関する研究」

試験研究(B)(代表 尾添紘之)平成元年度, 平成2年度,



(a) 電子線照射部分



(b) 電子線が照射されていない部分

図J.5 EPMAによる元素分析

「単結晶製造熱プロセスの改善に関する研究」  
 一般研究(B)(代表 尾添紘之)平成元年度, 平成2年度,  
 「蒸着機構の熱力学的研究」  
 一般研究(C)(代表 井上剛良)平成元年度, 平成2年度,  
 「回転温度制御による水の凝縮機構の研究」  
 総合研究(A)(代表 長島 昭)昭和62, 63, 平成元年度,  
 「高温融体の熱物性計測に関する研究」  
 総合研究(A)(代表 棚沢一郎)昭和63, 平成元年度,  
 「高レベルの伝熱制御による材料の製造・加工・処  
 理技術の向上に関する研究」  
 また以下の本研究所内共同研究の補助も得た。  
 特定研究(代表 西村幸雄)平成元年度,  
 「薄膜形成過程の原子・分子反応制御と機能発現に  
 関する研究」  
 大型研究(代表 持田 勲)平成元年度, 2年度, 3年度,  
 「都市域の環境改善のための微量低濃度有害排出  
 物高度浄化法に関する開発基礎研究」  
 なお本研究は九州大学総合理工学研究科熱エネル  
 ギーシステム工学専攻の以下の大学院生の諸君の協力  
 の賜である。  
 岡田和人, 藤敬司, 安部孝昭, 松尾浩(89.3 修士修  
 了)  
 田中伸二, 莫雲, 岩崎誠司(90.3 修士修了)。  
 また本稿は大原直美氏にタイプしていただいた。記  
 して謝す。

## References

- A. 1) Ozoe, H. and E. Maruo, JSME Int. J., **3**, 774 (1987).  
 A. 2) Hunt, R. and G. Wilks, Num. Heat Trans., **4**, 303(1981).  
 A. 3) Nagase, M., O. Takahashi, I. Michiyoshi and N. Takenaka, 22nd. Nat. Heat Tran. Sympo., C 304, 413(1985).  
 A. 4) Tabeling, P., J. Physique, **43**, 1295(1982).  
 A. 5) Raptis A. and J. Vlahos, Lett. Heat Mass Tran., **9**, 59(1982).  
 A. 6) Maekawa T. and I. Tanasawa, 23rd. Nat. Heat Tran. Sympo., C221, 391 (1986).  
 A. 7) Morioka, M., J. Ochiai, K. Kuwabara and S. Enya, 23nd. Nat. Heat Tran. Sympo., C223, 397 (1986).  
 A. 8) Weiss, N. O., J. Fluid Mech., **108**, 247(1981).  
 A. 9) Ozoe, H., A. Mouri, M. Ohmuro, S. W. Churchill and N. Lior, Int. J. Heat Mass Tran., **28**, 125(1985).  
 A. 10) Churchill, S. W., Heat Exch. Design Hand-book, sec. 2. 5. 8, Hemisphere, (1983).  
 A. 11) Kobayashi, N., Appl. Phys., **51**, 1206(1982).  
 A. 12) Churchill, S. W., & R. Usagi, Ind. Eng. Chem. Fund., **13**, 39(1974).  
 B. 1) 尾添紘之, 丸尾英司, 松尾浩, 化学工学論文集, **16**, 990(1990).  
 B. 2) 伝熱工学資料, 改訂4版, P. 323(1986).  
 B. 3) 岡田和人, 尾添紘之, 26回日本伝熱シンポジウム, B324, (1989).  
 C. 1) Ozoe, H. and K. Okada, Int. J. Heat Mass Transfer, **32**, 1939(1989).  
 C. 2) Kobayasi, S., J. Crystal Growth, **75**, 301 (1986).  
 D. 1) Okada, K. and H. Ozoe, in preparation.  
 D. 2) Okada, K. and H. Ozoe, AIChE, Chicago, paper 293d(1990).  
 D. 3) Ozoe, H. and H. Matsuo, 9th Japan Symp. on Thermophysical properties, B116, 139(1988).  
 D. 4) Okada, K. and H. Ozoe, 10th Japan Symp. on Thermophysical properties, paper 316, 171 (1989).  
 D. 5) Nakamura, S., T. Hibiya, Y. Yamamoto and T. Yokota, 10th Jpn. Symp. Thermophysical Properties, paper 210, 91(1989).  
 D. 6) Churchill S. W. and R. Usagi, Ind. Eng. Chem. Fund., **13**, 39(1974).  
 E. 1) Ozoe, H. and K. Toh, Proc. 9th Int. Heat Transf. Conf., Jerusalem, **6**, 311(1990).  
 E. 2) Organ, A. E., J. Crystal Growth, **73**, 571 (1985).  
 E. 3) Langlois, W. E. and Ki-Jun Lee, IBM J. Res. Develop., **27**, 281(1983).  
 E. 4) Kim, K. M. and W. E. Langlois, J. Electrochem. Soc., Solid-state science and Technology, **133**, 2586(1986).  
 E. 5) Hjellming, L. N. and J. S. Walker, J. Fluid Mech., **164**, 237(1986).  
 E. 6) Ozoe, H. and T. Matsui, Numerical Methods in Thermal Problems, (Eds) Lewis Morgan & Habashi, Pineridge Press, **5**, part 2, 1664(1987).  
 E. 7) Patankar, S. V., Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, Hemisphere Pub. Corp. (1980).  
 F. 1) Ozoe, H., K. Toh and T. Inoue, in preparation.  
 F. 2) 宗像鉄雄, 棚沢一郎, 第25回日本伝熱シンポジウム講演論文集, B212,(1988).  
 G. 1) Ozoe, H. and S. Tanaka, in preparation.  
 G. 2) Duranceau, J. L. and R. A. Brown, J. C. G., **75**, 367(1986).

- G. 3) Smith, M. K., J. Fluid Mech., **166**, 245(1989).  
 H. 1) Ozoe, H. and S. Tanaka, in preparation.  
 H. 2) Pope, (Univ. of Penn), private communication.  
 H. 3) Schwabe, D., A. Scharmann, F. Preisser and R. Oeder, J. Crys. Growth, **43**, 305(1978).  
 I. 1) 投稿準備中  
 I. 2) Y. Yoshihara and M. Ikegami, JSME Int. J., **32**, 273(1989)  
 I. 3) J. B. Howard, 12th Symp.(Int.) Comb., 877 (1969)  
 I. 4) H. F. Calcote, Combustion and Flame **42**, 215 (1981)  
 I. 5) T. Inoue and S. Kotake, J. Chem. Phys. **91**, 162(1989)  
 I. 6) M. Yamashita, T. Sano, S. Kotake and J. B. Fenn, J. Chem. Phys. **75**, 5355(1981)  
 I. 7) R. Viswanathan, L. M. Raff and D. L. Thompson, J. Chem. Phys. **79**, 28 57(1983)  
 J. 1) 投稿準備中。

**Nomenclature**

- A abbreviated  $A_z$   
 $\bar{A}$  dimensionless magnetic vector potential [-]  
 $\bar{B}$  magnetic induction (magsetic field) [Weber $\cdot$ m $^{-2}$ ] = [volt $\cdot$ s $\cdot$ m $^{-2}$ ]  
 $B_0$  external magnetic field [Weber $\cdot$ m $^{-2}$ ]  
 $B_x$  =  $b_x/B_0$  [-]  
 $B_y$  =  $b_y/B_0$  [-]  
 b height of an enclosure  
 $b_x$  x-component of the magnetic field [Weber $\cdot$ m $^{-2}$ ]  
 $b_y$  y-component of the magnetic field [Weber $\cdot$ m $^{-2}$ ]  
 C specific heat [J/(kg $\cdot$ K)]  
 $\bar{D}$  electric displacement [C $\cdot$ m $^{-2}$ ]  
 $\bar{E}$  electric field intensity [V $\cdot$ m $^{-1}$ ]  
 $\vec{e}$  unit vector for an external magnetic field [-]  
 g acceleration due to gravity [m/s $^2$ ]  
 Gr Grashof number =  $g\beta(\theta_h - \theta_c)\ell^3/\nu^2$  [-]  
 $Gr^*$  =  $g\beta D^4 Q_{net}/(S\nu^2 k)$  [-]  
 $H$  =  $h/z_0 Ra^{1/3}$  [-]  
 h melt depth [m]  
 $Ha$  Hartmann number =  $(\sigma_e/\mu)^{1/2} B_0 \ell$  [-]  
 k thermal conductivity of fluid [J/(m $\cdot$ s $\cdot$ K)]  
 $L$  =  $\ell/x_0 = Ra^{1/3}$  [-]

- $\ell$  distance between vertical hot and cold walls [m]  
 Nu an average Nusselt number =  $Q_{net}\ell / Sk \Delta \theta$   
 p pressure [N/m $^2$ ]  
 P dimensionless pressure [-]  
 Pr Prandtl number of the fluid =  $\nu/\alpha$  [-]  
 $Pr_m$  magnetic Prandtl number =  $\nu_m/\alpha$  [-]  
 q heat flux density [J/(m $^2$  $\cdot$ s)]  
 $Q_{net}$  net heat flow [J/s]  
 $Q_{tot}$  total heat flow [J/s]  
 r coordinate [m]  
 R  $r/r_0$   
 $R_{in}$  radius of inner cylinder [m]  
 $R_{out}$  inner radius of crucible [m]  
 Ra Rayleigh number =  $Gr \cdot Pr$  [-]  
 S area of hot wall [m $^2$ ]  
 T dimensionless temperature =  $(\theta - \theta_c)/(\theta_h - \theta_c)$  [-]  
 t time [s]  
 $\vec{u}$  velocity vector [m/s $^{-1}$ ]  
 $\bar{U}$  dimensionless velocity vector [-]  
 u x-component of velocity [m/s]  
 U  $u/u_0$  [-]  
 v y-component of velocity [m/s]  
 V  $v/v_0$  [-]  
 w z-component of velocity [m/s]  
 W  $w/w_0$  [-]  
 x coordinate [m]  
 X  $x/x_0$  [-]  
 y coordinate [m]  
 Y  $y/y_0$  [-]  
 z coordinate [m]  
 Z  $z/z_0$  [-]

**Greek letters**

- $\alpha$  thermal diffusivity [m $^2$ /s]  
 $\beta$  volumetric coefficient of expansion [K $^{-1}$ ]  
 $\epsilon$  dielectric constant [C $\cdot$ V $^{-1}$  $\cdot$ m $^{-1}$ ]  
 $\theta$  temperature [K]  
 $\theta_c$  cold wall temperature [K]  
 $\theta_h$  hot wall temperature [K]  
 $\mu$  viscosity of fluid [kg $\cdot$ m $^{-1}$  $\cdot$ s $^{-1}$ ]  
 $\mu_m$  magnetic permeability [henry $\cdot$ m $^{-1}$ ]  
 $\nu$  kinematic viscosity [m $^2$  $\cdot$ s $^{-1}$ ]  
 $\nu_m$  coefficient of magnetic viscosity =  $1/(\sigma_e \mu_m)$  [ohm $\cdot$ m $^2$  $\cdot$ henry $^{-1}$ ]  
 $\vec{\xi}$  vorticity vector [s $^{-1}$ ]  
 $\rho$  density of fluid [kg $\cdot$ m $^{-3}$ ]  
 $\rho_e$  electric charge density of fluid [C $\cdot$ m $^{-3}$ ]

$\sigma_e$  electric conductivity of fluid [ $\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$ ]  
 $\tau$  dimensionless time= $t/t_0$  [-]  
 $\vec{\psi}$  vector potential for a flow field [ $m^2 \cdot s^{-1}$ ]  
 $\psi_e$  scalar potential for an electric field  
 [Weber $\cdot s^{-1}$ ] = [V]  
 $\vec{\Psi}$  dimensionless vector potential for a flow  
 field= $\vec{\psi}/\alpha$  [-]  
 $\Psi$  abbreviated  $\Psi_z$  [-]  
 $\Psi_e$  dimensionless scalar potential for an electric  
 field= $\psi_e/\alpha$  [-]  
 $\vec{\Omega}$  dimensionless vorticity vector= $\vec{\xi}/(\alpha x_0^{-2})$   
 [-]

$\Omega$  abbreviated  $\Omega_z$  [-]  
 $\Omega_c$  dimensionless rotation rate [-]  
 $\omega_c$  rotation rate [ $s^{-1}$ ]

**Operator**

$D/D\tau = \partial/\partial\tau + U\partial/\partial X + V\partial/\partial Y + W\partial/\partial Z$   
 $\nabla^2 = \partial^2/\partial X^2 + \partial^2/\partial Y^2 + \partial^2/\partial Z^2$   
 $\nabla = (\partial/\partial X, \partial/\partial Y, \partial/\partial Z)$   
 $X$  vector product