九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

矩形流路内の熱拡散濃度分離現象に及ぼす重力の影響

有馬, 博史
九州大学大学院総合理工学研究科

森山, 伸也
九州大学大学院総合理工学研究科

佐藤, 恒之
九州大学機能物質科学研究所

今石, 宣之
九州大学機能物質科学研究所

https://doi.org/10.15017/7890

出版情報：九州大学機能物質科学研究所報告. 12 (1), pp.21-27, 1998-07-31. 九州大学機能物質科学研究所
バージョン：
権利関係：

矩形流路内の熱拡散濃度分離現象に及ぼす重力の影響

有馬博史*・森山伸也*
佐藤恒之・今石宣之

Gravity Effect on the Compositional Separation by Thermal Diffusion in a Rectangular Flow Channel

Hirofumi ARIMA*, Shinya MORIYAMA*,
Tsuneyuki SATO and Nobuyuki IMAISHI

A compositional separation by thermal diffusion phenomena (Soret effect) in a locally heated rectangular flow channel under 1*G* and microgravity condition was investigated experimentally and theoretically. Parabolic flight experiments on thermal diffusion were conducted using binary gas mixture systems of He-SF_6 and Ne-SF_6. Under the conditions of various G-levels, the local gas mixture was sampled through a fused quartz tube (75•m I.D. and 90cm in length) inserted into the flow channel, and analyzed by means of a quadrupole mass spectrometer evacuated by a turbo molecular pump and diaphragm type dry vacuum pump. Gas flow, heat and mass transfer in a rectangular flow channel under 1*G* and •*G* were also predicted numerically using a steady state three-dimensional simulation code. The calculated results of the concentration distribution in the channel agreed well with the experimental ones under almost all conditions except for the microgravity Ne-SF_6 system.

1. 緒　言

熱エネルギーを反応励起源とする熱 CVD では、矩形流路型装置の底部に高温基板を配して成膜を行う、いわゆるコールドウォール型反応装置がしばしば用いられる。この形式の反応器では空間内の温度分布に基づいて熱拡散による濃度分布が生ずる。熱拡散は重分子(CVD 時においては一般に原料蒸気分子)の高温基板近傍における濃度減少と低温領域における濃度増加を引き起こし、その結果成膜速度が減少することになる[(1)-(6)]。そのため、成膜速度を高精度に予測するためには、熱拡散を考慮したシミュレーション計算法を確立する必要がある。

しかし地上重力(1G)下では自然対流に基づく複雑な熱流動場が形成されるため、濃度分布も流れの影響を強く受け、熱拡散による成分分離挙動の本質が把握しづらい面がある[(4)-(5)]。これに対し微小重力(μG)下ではガス種や操作条件によらずスムーズな流れ様式が得られるので、1G 下では分離できない対流混合の影響を排除して熱拡散現象を考察することが可能となる[(4)-(5), (7)]。われわれはこれまで、1G 下あるいは、航空機微小重力実験により局所加熱型矩形流路内の熱流動状態を可視化法により明らかにするとともに、2 次元および 3 次元数値シミュレーションにより熱流動場におよぼす遷移重力の影響を明らかにしてきた[(7)]。

本研究では航空機を利用した微小重力実験においてはじめて実施された四重極質量分析計による気相濃度分析結果を報告するとともに、地上重力場で形成される濃度場との比較を行い、熱拡散による成分分離挙動におよぼす重力の影響を考察した。

2. 実　験

受理日　1998 年 6 月 19 日
*九州大学大学院総合理工学研究科

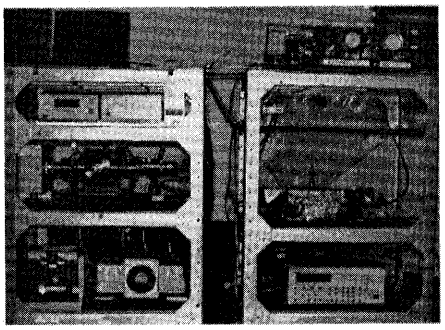


Fig.1 Total Experimental Set Up

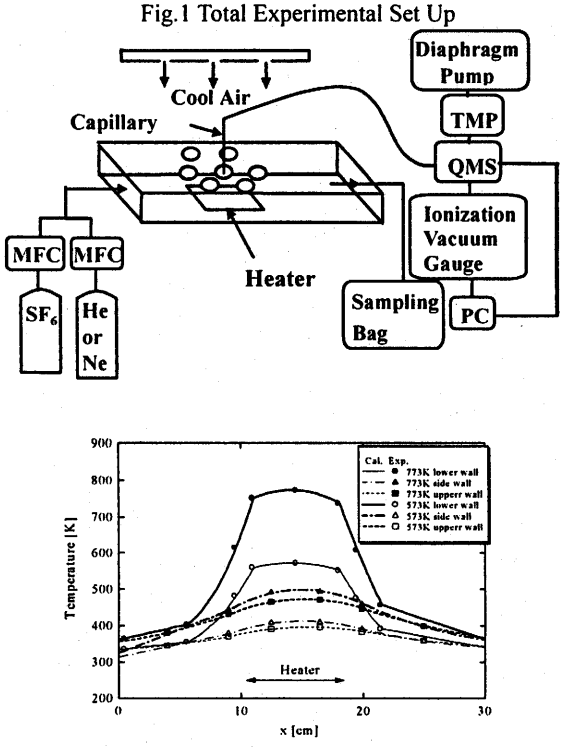


Fig.2 Schematics of Experimental Apperatus with observed temperature distributions on the walls

実験装置のラック搭載写真ならびに実験装置概要と、実験で得られた壁の温度分布を図 1 および図 2 にそれぞれ示す。実験装置は矩形流路を有する模擬 CVD 装置本体とその周辺装置ならびに濃度分析装置からなり、2 台のラックにそれぞれ収納した。(向って左：濃度分析装置＋真空系、向って右：模擬 CVD 装置本体とその周辺装置) 模擬 CVD 装置は長さ 40cm、幅 7.5cm、高さ 1.5cm の総ステンレス製(肉厚 5mm)で、ヒーターにて底部中央面(幅 6cm×長さ 8cm)を裏面から加熱し PID により所定温度に設定した。裏面加熱領域の周囲に幅 5mm 肉厚 1mm 程度の溝を付け周辺への熱伝導による熱損失を極力抑えた。また装置各点での温度を熱電対により測定、データロガーに記録した。キャリアガス（ヘリウム（He)、ネオン（Ne)）中に CVD 模擬原料として六フッ化硫黄ガス(SF_6：分子量 146)をマスフローコントローラー(MFC)を介して一定量混合し、装置内に供給する。熱拡散ファクター値に信頼性の高い値が存在する[8]He および Ne をキャリアガスとして採用した。サンプリング管は、ガス掃引速度がほぼ 0 で気相内ガス流動の変動が生じないよう溶融石英キャピラリー(内径 75μm、長さ 90cm)を使用した。局所ガス組成を迅速かつ高精度で分析する目的で四重極質量分析計(QMS, ANELVA 製 M-QA200TS)を採用した。ガスサンプリングは流れ方向数点において上下位置を変えて行えるようにした(図 3)。排気系は無重力下でも安定した排気を行えるターボ分子ポンプ(TMP)とダイアフラム真空ポンプを QMS と組み合わせたドライポンプ系を航空機実験として初めて採用した。地上走行中および離着陸時の機体の振動を吸収する目的で分析装置ならびにポンプ系の底部に金属ワイヤー製緩衝装置(エアロフレックス社製ショックマウント)を取り付けた。分析結果はノート型パソコン(PC)のメモリーカードに GPIB を経由して記録した。

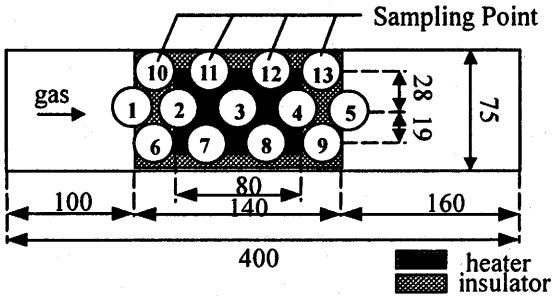


Fig.3 Sampling Points

実験条件を表 1 に示す。また、二次流れの発生条件を示した、グラスホフ数($\overline{Gr}$)-レイノルズ数($\overline{Re}$)マップを図 4 に示す。ここで、$\overline{Gr}$ および $\overline{Re}$ は平均温度における物性値に基づく値である[(4), (9)]。$\overline{Gr}$=2440 は無限平行平板間のベナール対流発生に対する臨界 $\overline{Gr}$ ($\overline{Ra}_c=\overline{Gr}\overline{Pr}$=1800)であり、曲線は数値計算[(4)]から得られた横渦の発生条件を示している。

操作条件の選定にあたっては、矩形流路内の派生流動の状態が大きく異なるようにした。すなわち、比較的低 Re 数の領域において、He-SF_6 については側壁付近を除いて 2 次元流が支配的な流れとなり、一方 Ne-SF_6 では 3 次

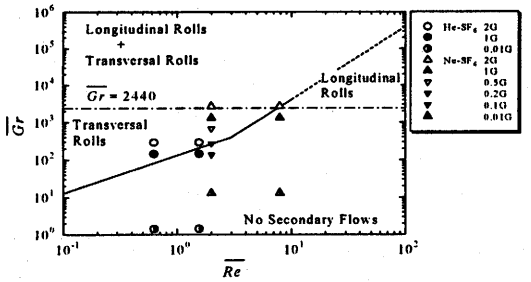


Fig.4 $\overline{Re}$-$\overline{Gr}$ map

元性の複雑な流れ状態となるように決定した。なお重力レベルを 3 段階替えたパラボリック飛行を行い自然対流強度の影響を検討した。

Table 1 Experimental conditions

Gas	He-SF_6	Ne-SF_6
SF_6 mass fraction at inlet [-]	0.2	0.2
Flow rate [L/min]	0.9 ($\overline{Re}$=0.63) 2.4 ($\overline{Re}$=1.57)	0.7 ($\overline{Re}$=1.57) 3.8 ($\overline{Re}$=7.94)
Grashof Number ($\overline{Gr}$) [-]	140 (1G) 1.40 (0.01G)	1300 (1G) 13 (0.01G)
Heater temperature [K]	773	773
Gravity level [G]	0.01,0.1,0.2,0.5	0.01

3. 結果と考察

3.1 3次元計算結果

熱拡散濃度分離挙動の 3 次元計算に使用したモデルを図 5 に示す。計算空間は、流路中心断面を対称面とするハーフゾーンモデルである。

なお 3 次元計算に当たり、濃度拡散方程式を既に開発済みの 3 次元熱流動解析コード[(4),(5)]に追加し基礎式とした。計算スキームには SIMPLE 法[(10)]を用い、すべての物性値には温度依存性を考慮し、さらに密度には局所組成依存性を考慮した。計算に際し、温度境界条件として実測の壁温分布を採用した。T_h=773K とした場合の結果の一例を図 6 から図 9 に示す。これらの図は、流れ方向中央縦断面(I)および流れ方向に垂直な横断面内の加熱領域近傍(II)における(a)速度分布、(b)温度分布、(c)濃度分布、(d)濃度分布を濃淡で示したものである。なお濃度分布図における濃淡図は色が濃いほど高濃度に対応する。図 6、7 は He-SF_6 系の 1G 下と 10^{-2}G 下の結果を示し、また図 8、9 は Ne-SF_6 系の結果を示す。He-SF_6 系(1G)における計算結果をみると(図 6)、加熱板前縁領域で浮力と熱膨張によって生じた上昇流は強制流と重畳し上方に歪んだ層流速度分布を維持したまま加熱領域全域を通過し、加熱部後端のかなり下流で下降流となり出口に向かう。濃度分布をみると加熱領域の上壁近傍に高濃度部、加熱板近傍に低濃度部が形成されている。低濃度部は流動状態に追従して下流にゆくほど上壁近傍までひろがる。横断面の濃度分布をみると低温の四隅に高濃度部が形成されている。一方、無重力下では(図 7)、流れは加熱板領域で若干膨張するものの、流路全域でほぼ歪みなしの層流速度分布をとる。温度分布には 1G 下と際だった差はみられない。しかし濃度分布をみると、浮力対流の消滅により加熱板前縁部で上壁へ向かう低濃度領域の移動と加熱板後端下流までのびていた低濃度領域が消え 1G 下に比べ低濃度領域が減少している。それに対応して上壁近傍では下流まで高濃度領域が形成されている。また側壁近傍部では、渦の消滅にともなって側壁に沿う下降流による高濃度部の底部への移動が消え横方向への低濃度部の広がりが顕著となっている。

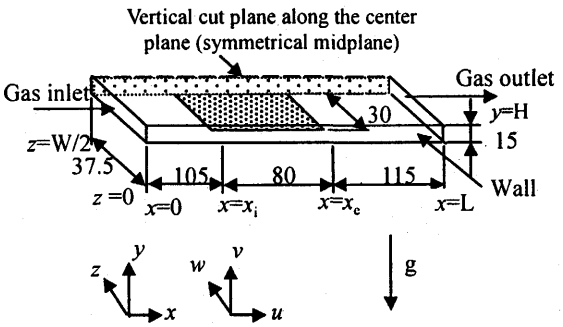


Fig. 5 3D-Symmetric calculation model

Ne-SF_6 系(図 8)では 1G 下において加熱板前・後縁部で強い横渦の発生と 2 対の縦渦が重畳した三次元性の強い複雑な流れ場が形成される。これらの流れ形態は物性の類似した窒素(N_2)流の場合にも可視化実験および数値計算によって確認されている[(4),(5)]。ところが無重力場では、流れ構造が一変し渦流のないきわめてなめらかな流れ様式となる。そのため濃度分布も 1G 下のものとは大きく異なり、無重力下の He-SF_6 系と類似の分布構造を示す。しかし He-SF_6 系に比べ熱拡散ファクター値が小さいために加熱板近傍領域の低濃度域の広がりは抑えられている。

3.2 地上重力下の熱拡散実験結果と計算結果との比較

Ne-SF_6 系における、流れ方向縦断面内の濃度分布の実験結果(プロット)と計算結果(曲線)を比較して図 10 に示す。横軸は流路高さで規格化した入り口からの距離、縦軸は入り口質量分率で規格化した SF_6 の局所濃度を表す。なお、He-SF_6 系については、地上実験結果と 2 次元数値計算の結果の濃度分布の比較を既に行い良好な一致が得られることを確認している[(5)]。各図上より(I) z =9.5mm、(II)18.5mm および(III)37.5mm における面内分布を示す。いずれの条件においても 3 次元計算結果は実験結果を定量的に表現しており、本解析が有効であることが分かる。

各図より、側壁近傍面と比べて中央断面では濃度分離の程度が大きいこと、加熱板温度の上昇とともに熱拡散が促進され分離の程度が増すこと、ガス流量の増加とともに上壁面近傍のピーク濃度点が下流に移行することが明らかになっている。

3.3 熱拡散現象に及ぼす重力の影響

1G 下(水平飛行時) および微小重力下の He-SF_6 系における流路中央縦断面内の濃度分布の計算結果を実測値と比較して図 11 に示す。微小重力時のデータはパラボリッ

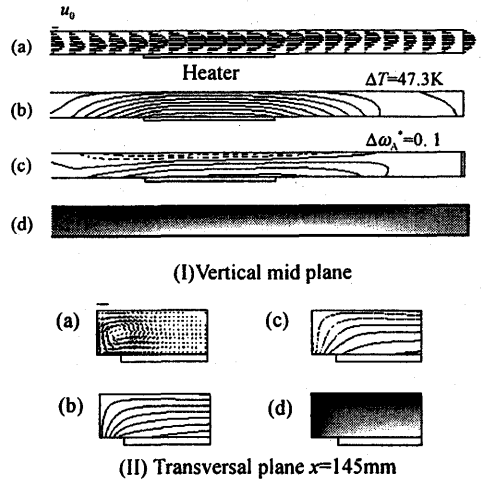


Fig. 6 Calculated (a) velocity vectors, (b) isotherms, (c) concentration distribution normalized with inlet value and (d) gradation pattern of SF_6 distribution under 1G
(He-SF_6, ω_{A0}=0.2, u_0=1.45cm/s, T_0=300K, T_h=773K, T_c=423K, Re=2, $\overline{Re}$=0.63, $\overline{Gr}$ =140)

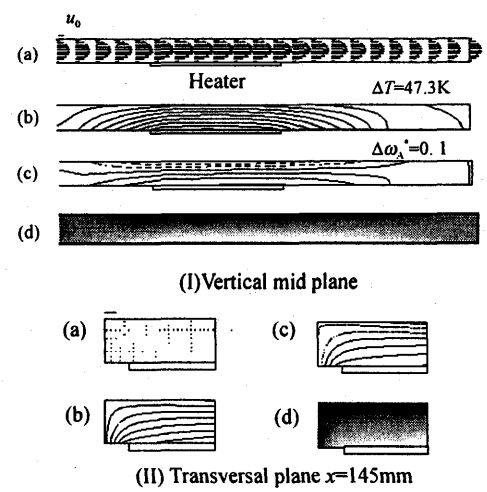


Fig. 7 Calculated (a) velocity vectors, (b) isotherms, (c) concentration distribution normalized with inlet value and (d) gradation pattern of SF_6 distribution under μG
(He-SF_6, ω_{A0}=0.2, u_0=1.45cm/s, T_0=300K, T_h=773K, T_c=423K, Re=2, $\overline{Re}$=0.63, $\overline{Gr}$ =1.40)

クフライト中の微小重力検知時から 20 秒後の測定データである。図 a)の点綴は図 b)の縦断面および横断面中で○印で示した全 8 カ所の濃度を示す。He-SF_6 系では 1G 下でも全域で渦流のない二次元性の流れ形態であるため、微小重力下でも濃度分布に大きな差はみられない。それでも上壁近傍での高濃度領域の広がりなど、実測値を良好に表現していることがわかる。下壁近傍の濃度減少状態も計算結果と実測値とで傾向は一致している。

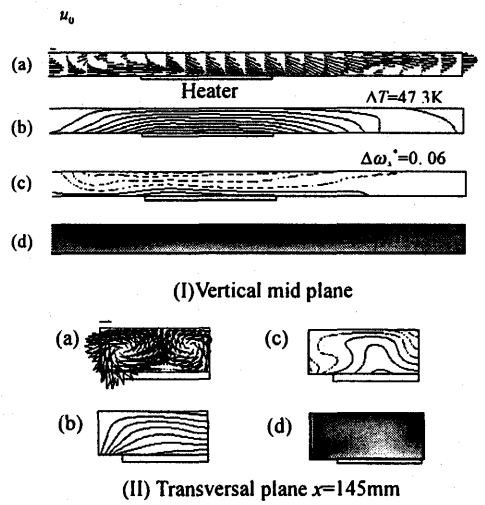


Fig. 8 Calculated (a) velocity vectors, (b) isotherms, (c) concentration distribution normalized with inlet value and (d) gradation pattern of SF_6 distribution under 1G
(Ne-SF_6, ω_{A0}=0.2, u_0=1.12cm/s, T_0=300K, T_h=773K, T_c=423K, Re=5, $\overline{Re}$=1.57, $\overline{Gr}$ =1300)

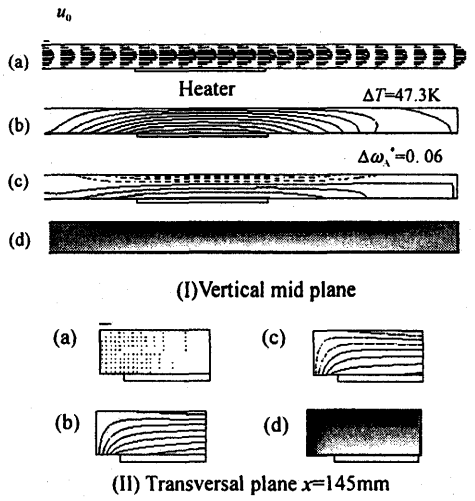
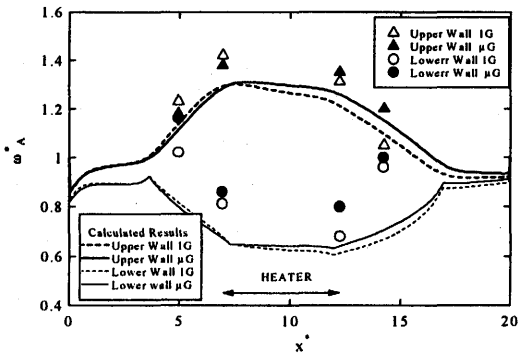
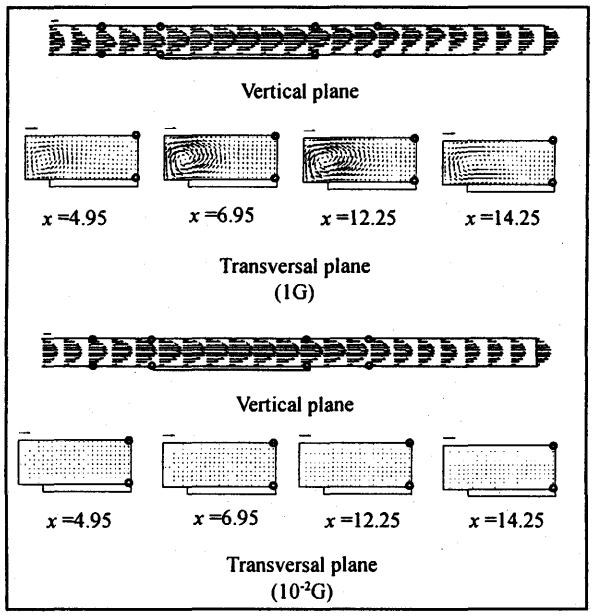


Fig. 9 Calculated (a) velocity vectors, (b) isotherms, (c) concentration distribution normalized with inlet value and (d) gradation pattern of SF_6 distribution under μG
(Ne-SF_6, ω_{A0}=0.2, u_0=1.12cm/s, T_0=300K, T_h=773K, T_c=423K, Re=5, $\overline{Re}$=1.57, $\overline{Gr}$ =13)

Ne-SF_6 系の結果を図 12 に示す。計算結果をみると上壁部の高濃度領域が 1G 下では横渦のため上流にまで広がるのに対し、微小重力下では横渦の消滅にともない上流への高濃度領域の対流移動の寄与がなくなること、また下壁加熱板近傍の濃度低下が 1G 下では対流混合の影響から微小重力時に比べ抑えられることなどが明瞭となっている。しかしこの条件では実測値は上下間の濃度差の傾向をある程度示してはいるものの、計算結果に比べ全

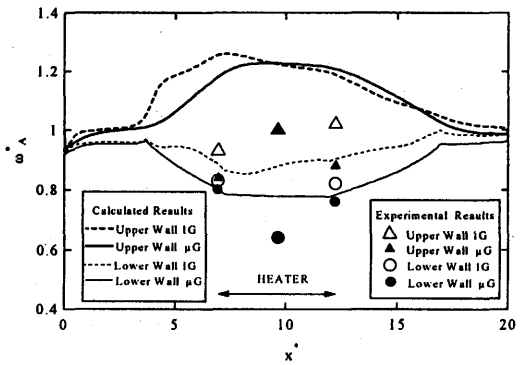


(a) Experimental and calculated concentration profiles of SF_6

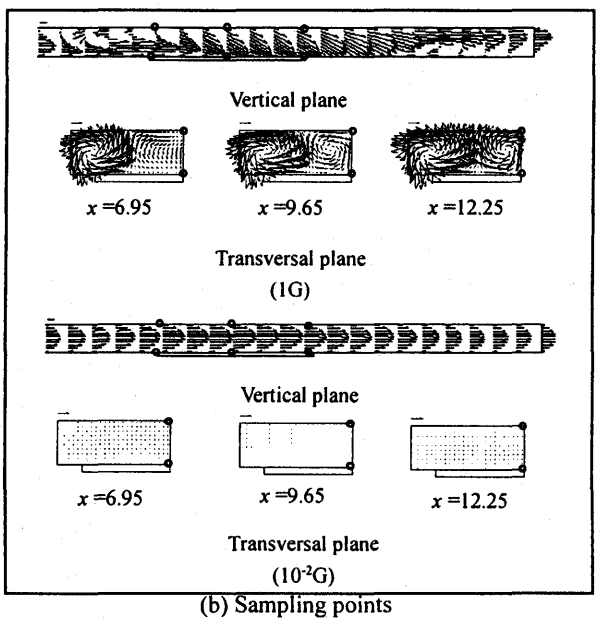


(b) Sampling points

Fig.11 Concentration distribution of SF_6 in He-SF_6 system along the center axis
(He-SF_6, ω_{A0}=0.2, T_h=773K, T_c=423K, Re=2, $\overline{Re}$ =0.63)



(a) Experimental and calculated concentration profiles of SF_6



(b) Sampling points

Fig.12 Concentration distribution of SF_6 in Ne-SF_6 system along the center axis
(Ne-SF_6, ω_{A0}=0.2, T_h=773K, T_c=423K, Re=5, $\overline{Re}$ =1.57)

体に小さい値をとっている。この原因として、パラボリック飛行時の四重極質量分析計の不安定性が考えられ、今後分析装置の配置法などを再検討する必要がある。

図 13 に Ne-SF_6 系の加熱板端近傍面内の濃度分布に及ぼす G レベルの影響を示す。比較した G レベルでは計算結果が示すように、重力レベルの低下とともに濃度減少は著しい。これは流路隅が最低温となるためにこの領域に最高濃度部が存在するが、1G 下ではこの隅から低濃度領域への流れが存在するため濃度減少が抑えられるのに対して、重力レベルの低下とともにこの流れが減衰するためと考えられる。実験結果はこの傾向を良好に表している。しかし測定濃度の減少とともに計算結果との差は大きくなっており、より高精度の実験結果を得るためには実験方法の改善が必要である。

3.4 熱拡散現象に及ぼすガス流量の影響

図 14 に、He-SF_6 系における濃度場分布に及ぼす Re 数の影響を示す。一般的な CVD での流量条件と考えられる高 Re 数の場合においても、熱拡散による重分子の高温壁からの排除効果が大きいことが分かる。このことは、CVD 反応装置では熱拡散によって重分子原料ガスの高温基板近傍での濃度が減少し、成膜速度が低下することを意味している。

4. 結　言

航空機を利用したパラボリックフライト微小重力環境下で、模擬水平コールドウォール型 CVD 装置を用い、熱拡散濃度分離実験を行うとともに、数値計算により現象の解析を試み以下の結論を得た。

(1)濃度分析装置として四重極質量分析計ならびにドライポンプ系（ターボ分子ポンプとダイアフラムポンプ）か

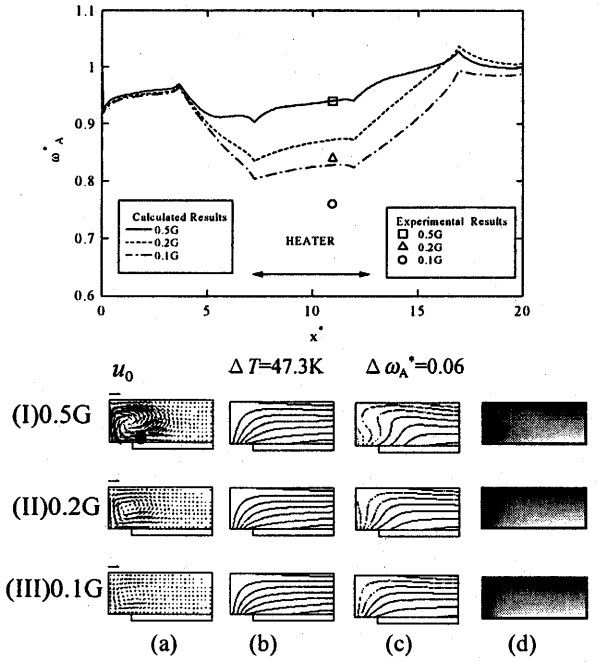


Fig.13 Effect of microgravity level calculated (a) velocity vectors, (b) isotherms, (c) concentration distribution normalized with inlet value and (d) gradation pattern of SF_6 distribution
(Ne-SF_6, ω_{A0}=0.2, u_0=1.12cm/s, T_0=300K, T_s=773K, T_c=423K, Re=5, $\overline{Re}$=1.57, $\overline{Gr}$ =13)

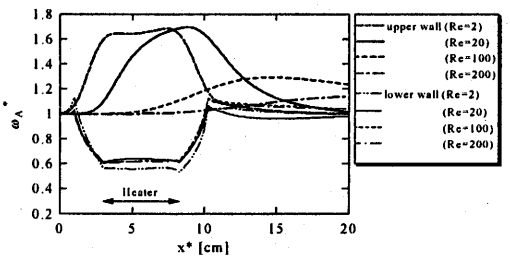


Fig. 14 Concentrations at upper and lower plates in He-SF_6 at different Reynolds numbers

らなるシステムを航空機実験としてははじめて使用した。分析装置ならびに操作法に問題はなくシステムが濃度分析装置として有用であることが確認された。この装置では微小重力下での Ne-SF_6 系の場合を除いてすべての状態で正常に動作する事が確認された。分析精度を改善するためには、四重極質量分析計の適切な配置法を選定する必要がある。

(2)1G 下で流動状態の著しく異なるガス系（He-SF_6 ならびに Ne-SF_6）であるにもかかわらず、定常数値解は実験で得られた濃度分布を良好に再現した。また、重力が熱拡散濃度分離に及ぼす影響を明らかにした。このことは、信頼できる熱拡散ファクターの値が存在すれば、シミュレーションは妥当な結果を与えることを示唆している。

なお、本研究は宇宙開発事業団、(財) 日本宇宙フォーラムが推進している「宇宙環境利用に関する地上研究公募」プロジェクトの一環として行ったものである。

記号

g	:重力加速度	[m/s^2]
g_0	:地上における重力加速度	[m/s^2]
H	:流路高さ	[mm]
T	:温度	[K]
T_{av}	:平均温度(=(T_0+T_h)/2)	[K]
ΔT	:冷却壁と加熱壁との温度差(=T_h-T_c)	[K]
u	:x 方向の速度成分	[cm/s]
v	:y 方向の速度成分	[cm/s]
w	:z 方向の速度成分	[cm/s]
x,y,z	:座標	[mm]
W	:流路幅	[mm]

無次元数

Re	:レイノルズ数(=$\rho_0 u_0 H/\mu_0$)	[-]
$\overline{Re}$	:平均レイノルズ数(=$\rho_{av} u_0 H/\mu_{av}$)	[-]
Gr	:グラシホフ数(= $\rho_0^2 \beta_0 H^3 \Delta T/\mu_0^2$)	[-]
$\overline{Gr}$	:平均グラシホフ数(= $\rho_{av}^2 \beta_{av} H^3 \Delta T/\mu_{av}^2$)	[-]
G	: 重力加速度の大きさ(=g/g_0)	[-]

ギリシャ文字

β	:体積膨張係数	[K^{-1}]
μ	:粘度	[Ps·s]
ρ	:密度	[kg/m^3]
ω	:質量分率	[-]

添え字

0	:流路入り口
A	:SF_6 成分
av	:加熱壁温度と入り口温度との平均温度における物性値
c	:低温側 (壁側)
h	:高温側 (ヒーター)

文献

(1)Holstein, J., 1989, "Effect of buoyancy forces and reactor orientation on fluid flow and growth rate uniformity in cold-

wall channel CVD reactor," J. Crystal Growth, Vol. 94, pp. 145-155

(2)Kleijn, C, R, 1991, "A mathematical model of the hydrodyanmics and gas-phase reactions in Silicon LPCVD in a single – wafer reactor," J. Electrochem., Soc., Vol.138, pp.2190 – 2200

(3)Habuka, H, M. Katayama, M. Shimada and K. Okuyama, 1994, "Numerical Evaluation of Silicon thin film growth from $SiHCl_3$ – H_2 gas mixture in a horizontal Chemical Vapor Deposition," Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 33, pp. 1977 – 1985

(4) Tanoue, K., T. Sato and N. Imaishi, 1996a, "Transport phenomena in a horizontal cold-wall CVD reactor, Proc. 3rd KSME-JSME Thermal Engineering Conference," pp. II59-64

(5) 田之上健一郎, 佐藤恒之, 今石宣之, 化学工学論文集, **22** (1996), 140-149

(6)Habuka, H, M. Katayama, M.Shimada and K. Okuyama, 1997, " Transport of dopant gas during Silicon epitaxial thin film growth in a horizontal reactor," Kagaku Kogaku Ronbunshu, Vol.23, pp.772-779

(7) 田之上健一郎, 有馬博史, 森山伸也, 佐藤恒之, 今石宣之, 森田知二, "微小重力下における下側加熱された水平矩形流路内の熱流動", 機会学会論文集, 投稿中

(8)Hirshfelder, J.O., C.F. Curtis and R.B.Bird, 1954, "Molecular theory of gases and liquids",John Wiley & Sons, New York

(9) Visser, E. P., J. Kleijin, C.A.M. Covers, C. J. Hoogendoorn and L.J. Gilling, 1989, "Return flows in horizontal MOCVD reactors studied with the use of TiO_2 particles injection and numerical calculations, " J. Crystal Growth, Vol. 94, pp. 929-939

(10) Patankar, S.V., 1980, "Heat transfer and fluid flow," Hemisphere pub. Co., McGraw-Hill, New York