

氏 名	はん ざわ たもつ 半 沢 保
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和 53 年 12 月 6 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最 終 学 歴	昭和 33 年 3 月 東京学芸大学理科物理卒業
学 位 論 文 題 目	水平型エピタキシャル反応装置に関する移動現象論 的研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 只木 楨力 東北大学教授 大谷 茂盛 東北大学教授 斎藤正三郎 東北大学教授 藤縄 勝彦

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 論

エピタキシャル反応装置は現在、半導体工業やその他一般の工業材料の表面処理などに広く利用されている。したがって本装置の設計などは、既に完成された技術であり確立化されているように思われがちである。しかしながら本装置内での単結晶の生成は気相からの析出反応によるものであり、気相中の複雑な現象を理論的に表現できず、個々の現象を単純化して研究している段階である。

本研究はそれらのうち現在最も広く使用されている水平型の装置について、装置の合理的な操作設計の方法を確立するために、装置内の流動の諸特性について実験的、理論的な検討を加えることにより、装置内の移動現象を解析することを目的としたものであり、全編 7 章よりなっている。

第 2 章 水平型流通系内移動現象の理論的解析に関する既往の研究

水平型エピタキシャル反応装置では、装置内に存在する加熱物体（基板）によって強力な自然対流が管断面方向に、また、本体流（反応ガス）によって強制対流が管軸方向にそれぞれ生じ、複雑な 3 次元の混合流れとなる。故に、この系内での移動現象を解析するためには 3 次元の基礎方程式を解かねばならない。しかし、この計算は数値計算の手法によるにしても、差分の方法や計算機の容量などの点から非常に困難が伴う。そこで、本章では本研究の装置に関係の深い、系

内での熱移動を伴った管内の流動を扱った報告の代表的なものについて、数値計算の手法と導入された仮定の妥当性を検討し、合せて本研究への適応性を考察した。

既往の研究に使用された仮定の主なものは、流体の Pr 数が大きいので、これによりナビエ・ストークスの式中の慣性項を無視できるようにしたものや、系内の着目部分では流れの変化が管軸方向に無視できるとしたもの、あるいは基礎方程式中の管断面方向と管軸方向の圧力項を別個に求めて計算しており、結局、これらの仮定により基礎方程式を 2 次元化して解を求めている。

以上の結果、本研究でも基礎方程式の計算に当っては、適当な仮定のもとに 2 次元化して解く方法を考慮する必要があると判断した。更に、本研究の場合には強力な自然対流の存在を考慮した安定性のある差分式の開発が望まれることも分かった。

第 3 章 底面一部加熱による密閉系内の流動

本章では本装置の流動状態および数値計算法に関する基礎資料を得る目的で、密閉系における底面一部加熱の場合の速度分布および温度分布を、基礎方程式を数値的に解くことによって求めると同時に、この場合の系内流動に対する写真観察を行い、計算結果と比較を行った。

その結果、系内温度分布は $Gr = 3 \times 10^3$ 位までは自然対流の影響の少ない伝導支配の条件下であるが、 $Gr = 10^4$ 程度になると対流の影響が見え始めて、系内温度は壁面近傍を除き広く一様になった。他方、流線分布の形状は Gr 数によってあまり変化しないが、流れ関数の値は大いに変化することがわかった。また、煙トレーサーによる写真観察結果と計算結果とは良好な一致をみた。なお、計算方法について本研究のように高 Gr 数 (10^6) の場合でも“upwind 法”による差分化によって充分安定した解が得られることが分かった。

第 4 章 水平型エピタキシャル反応装置の流動および伝熱特性

本研究において基礎方程式を 2 次元化して解く場合、どのような仮定が可能であるかを実際の現象の観察によって見極める必要があるところから、本章ではまず本装置内の流動の諸特性について実験的な検討を行った。

始めに、本装置では操作条件の違いによって顕著な 2 種類の流動形態の存在が観察されることから、この流動形態の遷移と操作条件との関係を求めた。その結果、流動が螺旋流から非螺旋流に変化する時の遷移域は、反応管相当径基準の Re 数で規定でき、その範囲は $80 < Re < 190$ であった。

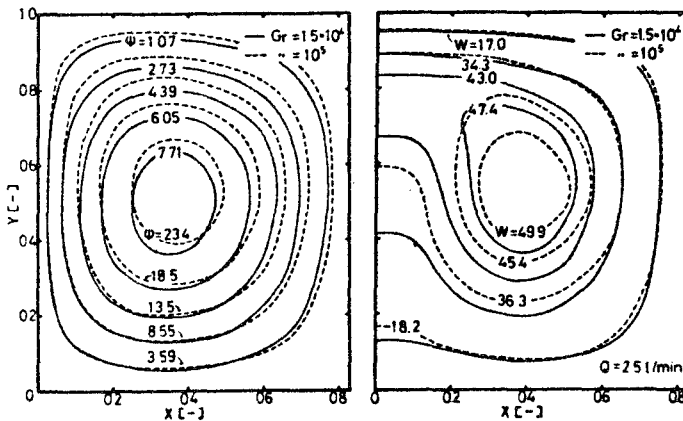
次に、装置内の流動が螺旋流になる領域に着目し、この場合の装置内のフローパターンの特性を煙および不活性ガス中の O_2 ガスの 2 種類のトレーサーを使用して測定した。その結果、系内でガスは中心部を上昇し、側壁を下降する回転運動をくり返しなが、本流体に押流されて螺旋状になっている。この流れは螺旋流領域下では非常に安定しており、流線の乱れもほとんどなく、螺旋流のピッチ長さは管軸方向距離によってほとんど変わらないことから、本装置内の各方向の速度成分は、管軸方向距離によって大略不変であることが推察された。

続いて、本装置の流動と基板上での析出反応とを規定する重要な因子として螺旋流のピッチが

考えられるところから、ピッチ長さに及ぼす操作条件（発熱体温度、本体流速度、管径、発熱体径、管断面形状および管材質）の影響について調べ、ピッチ長さを求める実験式を得た。

また、本装置内の温度分布を測定したところ、発熱体の端子部に近いわずかな部分を除いて、ガス温度は下流に向かって大略一定であり、また、管断面方向にも発熱体および管壁近傍を除いてほぼ一様であることが分かった。さらに装置内のガスの物性に影響を及ぼす装置内ガス温度の推算式を実験的に求めた。

最後に、先の装置内流動の観察結果に基づく仮定と、前章の密閉系において得られた計算法に関する基礎資料のもとに3次元の基礎方程式を解き、本装置内の流動と伝熱について理論的な検討を加え、さらに計算結果と先の流動についての諸実験結果との比較検討も行った。その結果、Gr数の増加と共に系内の回転流は激しくなり、管軸方向の速度は放物線状分布から左右2ヶ所に速度のピークがある分布に変化した（Fig.1）。また、温度分布もGr数が増加すると壁面近傍を除き広く一様になり（Fig.2）、基板からの熱伝達係数も増加した。そして、これらは実験結果とも良好な一致を示した。更に、計算により得られた管断面方向の局所速度と管軸方向の速度とを比較した結果、螺旋流領域下においては前者は後者に匹敵する程の大きさを持っていることが推察された。また、計算結果から求めた螺旋流のピッチ長さは、先の実験結果と良好な一致をみた。



(a) Stream function (b) Axial velocity

Fig.1 Contour maps of streamline and axial velocity with $Gr=1.5 \times 10^4$ and 10^5 for $L/H=0.827$, $x_A/H=0.310$, $Pr=0.69$ and $Re=26.8$ ($Re'=35.8$)

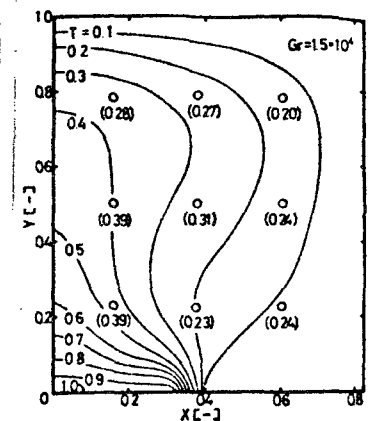


Fig.2 Comparison of calculated temperature distributions with experimental ones for $Gr=1.5 \times 10^4$, $L/H=0.827$, $x_A/H=0.310$, $Pr=0.69$ and $Re=12.8$ ($Re'=17.2$)

第5章 水平型エピタキシャル反応装置の物質移動特性

本章では、先ず本装置内における物質移動速度を、種々の操作条件のもとでカーボン板を空気本体流中で燃焼させることにより求め、物質移動係数と操作条件との関係式を求めた。ここで得られた物質移動係数は、等温状態におけるそれよりもかなり大きい値を示したが、これは強力な回転流によるものと推定される。

次に、装置内の反応物質の濃度分布を、基板とガス相間の物質移動が律速の場合について、前章で求めた速度分布に基づいて基礎方程式を数値的に解くことによって求め、さらに物質移動律速のもとでのカーボン板の燃焼反応実験を改めて行い、計算値と実測値との比較を行った。その結果、管断面内の濃度分布はGr数の増加と共に、あるいは管軸方向距離の増加と共に一様になった。また、本体流量の減少によっても一様になることが分かった (Fig. 3)。そして、この計算結果は物質移動律速下のカーボン板燃焼実験結果と良好な一致を示した。また、物質移動係数の計算結果も先の実測値と大略良好な一致を示した。

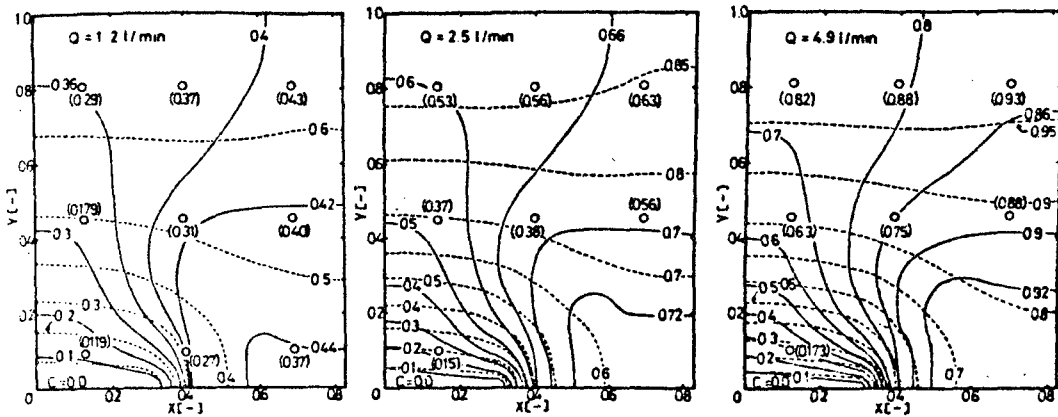


Fig. 3 Concentration distributions with $Q=1.2, 2.5$ and 4.9 l/min ($Re=12.8, 26.8$ and 52.7) for $L/H=0.827, x_A/H=0.310, Gr=1.5 \times 10^4, Pr=0.69, Sc=0.594$ and $Z=3.85$
(—: $U=V=0, \circ$: exp. results)

第6章 水平型エピタキシャル反応装置の反応特性

本章では本装置内における濃度分布を、表面反応が基板表面での総括反応速度に影響を及ぼすような場合について、3次元の基礎方程式を解くことにより求め、さらに同じ操作条件におけるカーボン板の燃焼による実験結果と比較検討を行った。

その結果、系内の反応ガス濃度は本体流量が小さい程、反応物体先端からの管軸方向距離が大きい程、そして反応物体の幅が大きい程それぞれ減少するが、しかし、濃度分布の形はあまり変化しないことが分かった。また、Gr数が大きくなるに従って反応ガス濃度は減少し、管断面方向の分布は一様になった。更に、反応速度定数が小さい程反応ガス濃度は大きく、分布も一様になった。そしてまた、カーボン板の燃焼反応による実験結果は計算結果と良好な一致を示した。

続いて、基板表面への移動速度が反応速度によって影響される場合と、物質移動律速の場合の各々の濃度分布の計算結果を比較したところ、前者が後者より濃度分布が一様になる結果を得た。

第7章 結 論

本章では、各章で得られた結論を総括したが、結局、本装置内の移動現象に関する理論的な解析結果が各種の実測値と非常に良好な一致を示すことから、本研究で用いた手法により、本装置を合理的に設計することが可能であると思われる。また、本研究結果により、本装置内の任意の場所における反応物の析出速度と操作条件との間の定量的関係を得ることが可能と思われる。

審査結果の要旨

高温気相化学反応によって基材表面に単結晶層を形成させるいわゆるエピタキシャル技術は、現在工業材料の表面処理や各種半導体の製造に広く用いられている。しかしそれに使用する装置内には特異な温度分布やガスの流れが存在するため、完全に解明することはなかなか困難であり、経験的に運転あるいは設計が行われているのが現状である。

本論文は水平型エピタキシャル反応装置の合理的な操作設計法を確立することを目的として、その移動現象を解析した結果をまとめたもので、全編7章より成る。

第1章は緒論で本研究の動機と目的を、そして第2章は本研究に関連する既往の研究をそれぞれ述べたものである。

第3章は、底面の一部が加熱されている密閉系の自然対流現象を理論的ならびに実験的に解析した結果を述べたものである。すなわちまず速度ならびに温度分布に関する数値解を高グラスホフ数の範囲まで求め、それを実測値と比較したところ、良好に一致したことを述べている。

第4章は水平型エピタキシャル反応器内の温度ならびに速度分布を、理論的ならびに実験的に求めた結果を述べたものである。すなわちまずガス流量の増加とともに螺旋流から乱流に移りてゆくことを実験的に見出し、螺旋流のピッチや乱流転移点などと操作条件の関係を明らかにした。ついで螺旋流領域で連続の式、運動方程式ならびにエネルギー方程式の数値解を求め、本反応器の速度ならびに温度分布をシュミレートしたところ、実測値をほぼ満足する結果を得ている。

第5章は反応器内の物質移動現象を解析した結果を述べたものである。すなわちまず装置底部におかれたカーボン板の、高温下における燃焼実験結果より物質移動係数を求め、操作条件との関係を明らかにした。ついで第4章で求めた速度ならびに温度分布の数値解を用い、燃焼反応速度を物質移動律速と仮定して求めた濃度分布が、実測値をよく表現することを述べている。

第6章は表面反応速度が総括物質移動速度に影響する場合の解析結果を述べたものである。すなわち第4章で求めた速度ならびに温度分布を基礎とし、表面反応速度がガス中の反応成分濃度の1次に比例するとして得た濃度分布が、温度を種々変えて行ったカーボン板の燃焼実験結果とよく一致することを明らかにしている。

第7章は結論である。

以上要するに、本論文は水平型エピタキシャル反応器内の移動現象を、理論ならびに実験の両面より解析したもので、設計ならびに操作上重要な知見を多数提供しており、化学工業ならびに化学工学に寄与するところ少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。