

〔研究〕

微小重力下における融液内対流，伝熱，拡散現象の二次元矩形モデルによる数値解析

Numerical Simulation of Momentum, Heat and Mass Transfer in Two-Dimensional Rectangular Cavity

西澤 伸一
S. NISHIZAWA

In case of single crystal growth from melt, convective phenomena in melt have much affect on the quality of grown crystal. One of the advantages of space utilization is to be able to reduce buoyancy convection. However, thermocapillary and solutalcapillary convections which caused by surface tension gradient and independent on gravity, still active in the space. In this study, these convection with two-dimensional configuration was analyzed numerically. The effect of Prandtl and Schmidt number on convection in melt was analyzed. The effect of interaction between thermocapillary and solutalcapillary convection on heat and mass transfer in melt was also discussed.

§1 はじめに

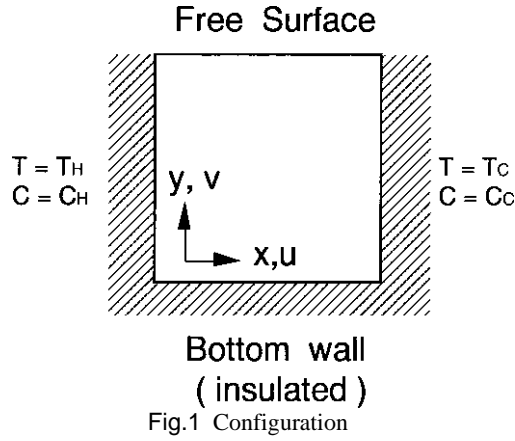
CZ法あるいはFZ法のような融液からの単結晶成長では，融液内部に発生する対流が融液内部の伝熱，拡散現象を支配し，ひいては成長単結晶品質に大きな影響を及ぼすことから，高品質単結晶を作製するためには，いかに融液内対流を制御するかが重要な課題となっている。宇宙空間では，微小重力環境を利用することにより，地上と比較して浮力に起因する自然対流を抑制することができ，理想的な拡散支配下での単結晶成長が可能であると予想され，アポロ計画などにおいて，いくつかの試みが行われた。しかしながら，実際には宇宙空間においても対流が存在し，成長結晶には，対流に起因する結晶欠陥が観察された。これは，結晶成長中の融液表面上に温度差が生じ，表面張力の不均衡が発生して，表面張力の小さなところから大きなところへ向かってマランゴニ対流が発生したためである。マランゴニ対流は重力とは無関係に発生することから，宇宙空間で高品質単結晶を作製するためには，このマランゴニ

対流を制御することが重要な課題となっている。

本研究においては，特にマランゴニ対流が融液内部の伝熱・拡散現象を評価するために，2次元矩形モデルを用いた数値解析を行った。これまで，マランゴニ対流の発生原因として，特に温度差による表面張力の不均衡が広く取り扱われてきた^{1,2)}。しかし最近，向井らの溶融シリコンの表面張力測定結果から，表面張力は単に温度の関数ではなく，雰囲気酸素分圧により大きく変化することが示され，特に半導体結晶成長においては，不純物濃度分布による表面張力の不均衡が重要であることが示唆された³⁾。そこで，本数値解析では，表面張力を変化させる因子として，温度，濃度の両者を取り扱い，融液内部に温度・濃度分布が存在する場合のマランゴニ対流による伝熱・拡散現象について，評価した。

§2 数値解析

Fig.1に数値解析に用いた2次元矩形モデル図を示す。左側壁を高温・高濃度に，右側壁を低温・低



濃度に保ち，下部は断熱底として，上部自由表面上の温度・濃度分布により生じる表面張力の不均衡から発生するマランゴニ対流，ならびに融液内の伝熱・拡散現象を数値解析した。なお，上部自由表面は平坦な面とし，また融液の熱物性値に関しては，表面張力は温度・濃度の関数，密度は温度の関数，その他の物性値は一定として取り扱った。以下に，解析に用いた無次元基礎式，および境界条件を示す。連続式

$$\frac{\partial U}{\partial X} + \frac{\partial V}{\partial Y} = 0 \quad (1)$$

Navier-stokes式

$$\frac{\partial U}{\partial t} + U \frac{\partial U}{\partial X} + V \frac{\partial U}{\partial Y} = -\frac{\partial P}{\partial X} + \left(\frac{\partial^2 U}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial Y^2} \right) \quad (2)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial V}{\partial t} + U \frac{\partial V}{\partial X} + V \frac{\partial V}{\partial Y} \\ & = -\frac{\partial P}{\partial Y} + \left(\frac{\partial^2 V}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial Y^2} \right) - Gr \cdot Pr^2 \cdot T \end{aligned} \quad (3)$$

エネルギー方程式

$$\frac{\partial T}{\partial t} + U \frac{\partial T}{\partial X} + V \frac{\partial T}{\partial Y} = \left(\frac{\partial^2 T}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial Y^2} \right) \quad (4)$$

拡散方程式

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U \frac{\partial C}{\partial X} + V \frac{\partial C}{\partial Y} = \left(\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2} \right) \quad (5)$$

境界条件

(a)左側壁

$$U=V=0, T=1, C=1 \quad (6)$$

(b)右側壁

$$U=V=0, T=0, C=0 \quad (7)$$

(c)底面

$$U=V=0$$

$$\frac{\partial T}{\partial Y} = \frac{\partial C}{\partial Y} = 0 \quad (8)$$

(d)自由表面

$$\frac{\partial U}{\partial Y} = -Ma_r \left(\frac{\partial T}{\partial X} \right) - Ma_c \frac{Pr}{Sc} \left(\frac{\partial C}{\partial X} \right) \quad (9)$$

$$V=0$$

$$\frac{\partial T}{\partial Y} = \frac{\partial C}{\partial Y} = 0 \quad (10)$$

無次元数

$$U = \frac{uL}{\alpha} \quad (11)$$

$$V = \frac{vL}{\alpha} \quad (12)$$

$$T = \frac{T - T_C}{T_H - T_C} \quad (13)$$

$$C = \frac{C - C_C}{C_H - C_C} \quad (14)$$

$$Pr = \frac{\nu}{\alpha} \quad (15)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D} \quad (16)$$

$$Ma_r = \frac{-(\partial\sigma/\partial x)L^2}{\mu\alpha} = \frac{-(\partial\sigma/\partial T)(\Delta T/L)L^2}{\mu\alpha} \quad (17)$$

$$Ma_c = \frac{-(\partial\sigma/\partial x)L^2}{\mu D} = \frac{-(\partial\sigma/\partial C)(\Delta C/L)L^2}{\mu D} \quad (18)$$

$$Gr = \frac{g\beta\Delta TL^3}{\nu^2} \quad (19)$$

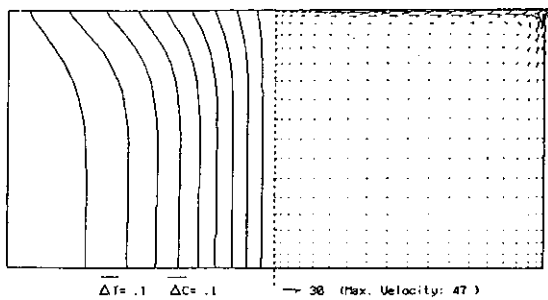
式(1)～(19)を，コントロールボリューム法により離散化し，HSMAC法により非定常数値解析を行った。なお，使用したメッシュは21×21の不等間隔メッシュである。

§3 結果および考察

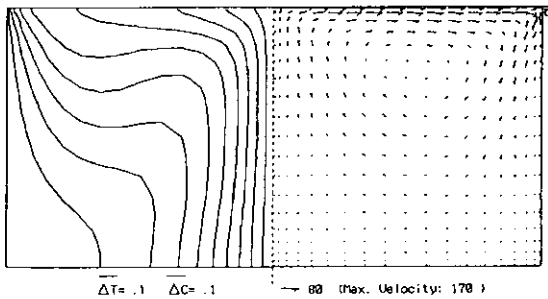
3.1 プラントル数, シュミット数の影響

Fig.2にプラントル数およびシュミット数を同時に変化させた場合の融液内部の速度, 温度・濃度分布, Fig.3にその時の自由表面上の速度, 温度・濃度分布の解析結果の一例を示す。ここで, プラントル数は式(15)に示すように, 融液の動粘性係数と熱伝達係数の比をあらわす無次元数でありプラントル数が大きい場合には, 融液内で対流による熱伝達が支配的であり, 酸化物融液などが相当する。またプラン

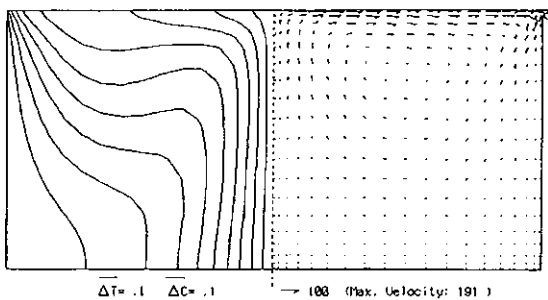
トル数が小さい場合は, 融液内で伝導伝熱が支配的であり, 半導体金属融液などが相当する。また, シュミット数は式(16)に示すように, 融液の動粘性係数と拡散係数の比をあらわす無次元数であり, シュミット数が大きい場合には, 融液内では対流による拡散が支配的であり, 一方, シュミット数が小さい場合には, 融液内では純粋拡散が支配的となる。Fig.2の右半分は融液内の速度ベクトルを, 左半分は融液内の温度(直線)・濃度(破線)分布を示している。また, Fig.2は, 中心軸がFig.1の左側壁となるよう, 特に温度・濃度分布はFig.1に対して左右反転像としてある。ここでは, 表面張力の温度・濃度係数がともに負で一定の場合($Ma_T=Ma_C=10^3$)を示した。すなわち, 表面張力は温度・濃度が増加するとともに減少することから, マランゴニ対流は自由表面上を高温部から低温部に向かって流れ, 特に自由表面近傍に渦中心を持つセル構造を呈している。Fig.2においては, プラントル数, シュミット数が同一の値であるため, 温度・濃度分布が同一のものとなっている。Fig.2から, プラントル数, シュミット数の大小により, 特に融液内部の温度・濃度分布が大きく異なることがわかる。すなわち, プラントル数, シュミット数が 10^{-2} の場合, 等温度・濃度線は, 自由表面近傍でマランゴニ対流により, 高温部から低温部に向かってのびるように少し変形しているが, 融液全体としては, 等温度・濃度線は垂直に立っており, 融液内部の伝熱・拡散は, 熱伝導・拡散現象が支配的であることがわかる。一方, プラントル数, シュミット数が 10^2 の場合, 等温度・濃度線は融液全体にわたって速度ベクトルの渦構造を反映した変形を示しており, 融液内部の伝熱・拡散は, 対流による伝導・拡散が支配的であることがわかる。またFig.3から, 特に自由表面上においては, プラントル数, シュミット数の大小にかかわらず, 高温・高濃度壁から低温・低濃度壁に向かって一方向に流れが発生し, 温度・濃度も一様に減少していることがわかる。また, 時間とともに初めは中心軸中央部に速度の極大値を持ちながら, マランゴニ対流が発達するとともに, 両壁面近傍において, 温度・濃度勾配が極めて大きくなり, その結果, 両壁面近傍で表面張力の駆動力が大きくなり, マランゴニ対流の速度分布が両壁面近傍に極大値を持つ特性を示



(a) $Pr=Sc=10^{-2}$



(b) $Pr=Sc=1$



(c) $Pr=Sc=10^2$

Fig.2 Effect of Prandtl and Schmidt number on convective phenomena in melt ($Ma_T=Ma_C=10^3, Gr=0$)

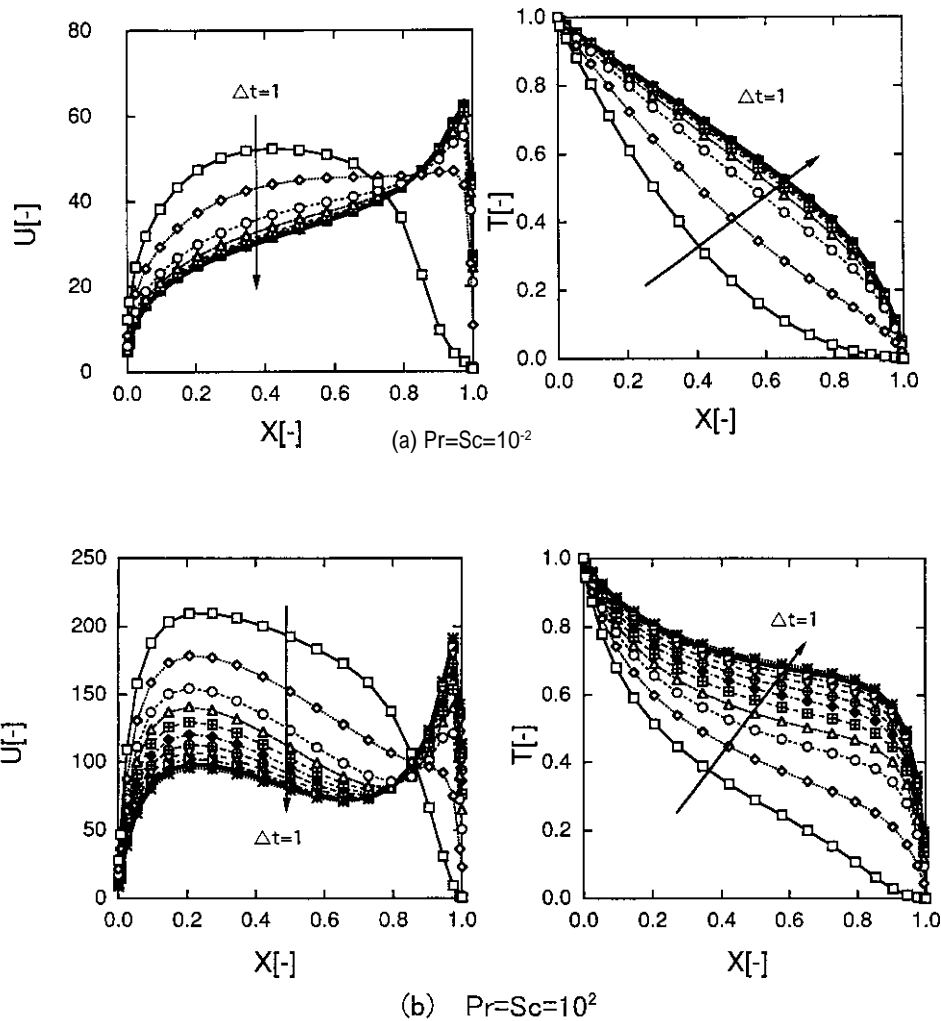


Fig.3 Effect of Prandtl and Schmidt number on velocity and temperature distribution on the free surface ($Ma_T=Ma_C=10^3$, $Gr=0$)

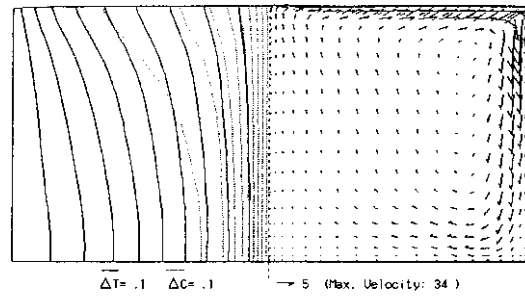
している。また、この傾向は特にプラントル数・シュミット数が大きい場合に顕著であることがわかる。

3.2 温度差・濃度差マランゴニ対流の影響

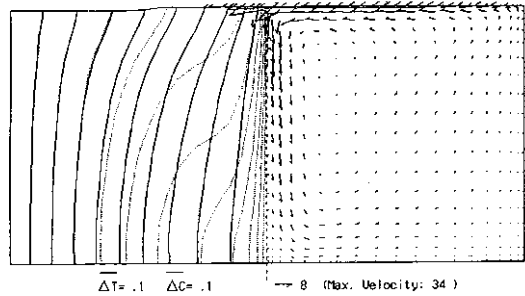
3.2.1 プラントル数がシュミット数より小さい場合

Fig. 4 に、表面張力の温度・濃度係数を変化させて、(a) $Ma_T=Ma_C=10^3$, (b) $Ma_T=-10^3$, $Ma_C=10^3$, (c) $Ma_T=10^3$, $Ma_C=-10^3$ の場合の融液内の速度、温度・濃度分布を示す。ここで、(a) は、温度差・濃度差マランゴニ対流がともに高温・高濃度壁から低温・低濃度壁へ向かって同方向に流れる場合、(b) は温度差マランゴニ対流が低温壁から高温壁へ、濃度差マランゴニ対流が高濃度壁から低濃度壁へ、と拮抗して流れる場合、(c) は温度差マランゴニ対流が高温壁から

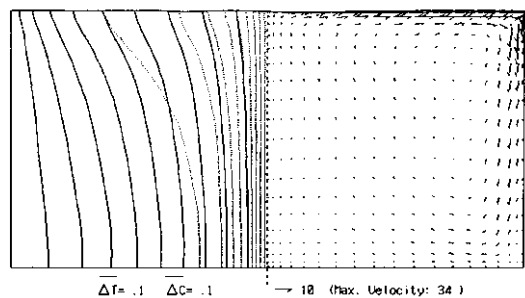
低温壁へ、濃度差マランゴニ対流が低濃度壁から高濃度壁へ、と拮抗して流れる場合である。いずれの場合も、 $Pr=10^{-2}$, $Sc=1$ であり、プラントル数がシュミット数と比較して極めて小さいため、温度分布は濃度分布と比較して早く発達している。Fig. 4 から、(a) $Ma_T=Ma_C=10^3$ と (c) $Ma_T=10^3$, $Ma_C=-10^3$ の分布が類似しており、(b) $Ma_T=-10^3$, $Ma_C=10^3$ が大きく異なることがわかる。本系では、プラントル数とシュミット数の比が小さく、境界条件中の式(9)において第1項、すなわち温度差マランゴニ対流の影響が、第2項すなわち濃度差マランゴニ対流の影響と比較して、極めて大きい。その結果、Fig. 4 に示すように、本系においては、濃度差マランゴニ対流の流れる方向に依存せず、融液内部の対流、伝熱・拡散は温度差マラン



(a) $Ma_T=10^3, Ma_C=10^3$



(b) $Ma_T=-10^3, Ma_C=10^3$



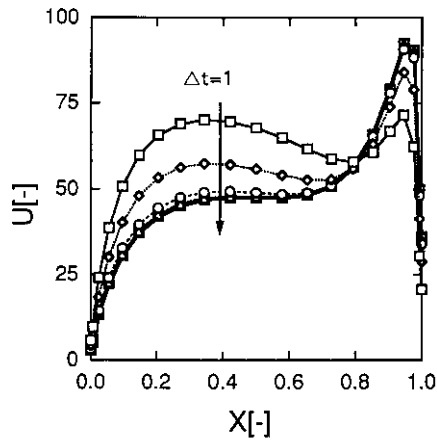
(c) $Ma_T=10^3, Ma_C=-10^3$

Fig.4 Effect of thermal Marangoni and solutal Marangoni number on convective phenomena in melt ($Pr=10^2, Sc=1, Gr=0$)

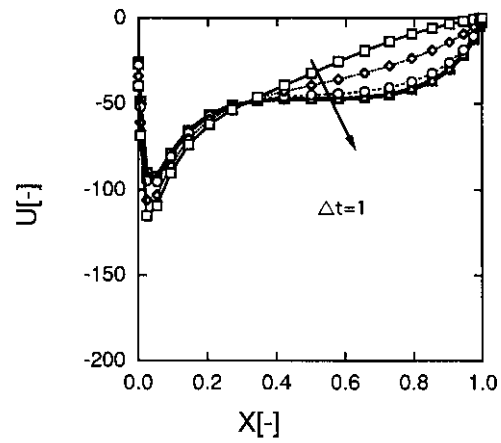
ゴニ対流により支配されていることがわかった。Fig.5およびFig.6に、自由表面上の速度、温度・濃度分布におよぼす温度差・濃度差マランゴニ対流の影響を示す。ここでは、Fig.4の結果から、特に(a) $Ma_T = Ma_C = 10^3$, (b) $Ma_T = -10^3, Ma_C = 10^3$ について示した。Fig.4の結果から融液内では温度差マランゴニ対流が支配的であることから、融液自由表面上の温度分布に着目すると、(a) $Ma_T = Ma_C = 10^3$ では、特に低温壁近傍において急激な温度勾配が、また(b) $Ma_T = -10^3, Ma_C = 10^3$ では高温壁近傍において急激な温度勾配が発生し、その結果、両地点において表面速度の極大値

を示していることがわかる。これらは、いずれも温度差マランゴニ対流の流れ方向を考慮したときに、自由表面上の終端部である。

3.2.2 プラントル数がシュミット数より大きい場合
前項と同様に、Fig.7に、表面張力の温度・濃度係数を変化させて、(a) $Ma_T = Ma_C = 10^3$, (b) $Ma_T = -10^3, Ma_C = 10^3$, (c) $Ma_T = 10^3, Ma_C = -10^3$ の場合の融液内の速度、温度・濃度分布を示す。いずれの場合も、本系では、 $Pr=10, Sc=10^{-1}$ であり、プラントル数がシュミット数と比較して極めて大きいため、温度分布は

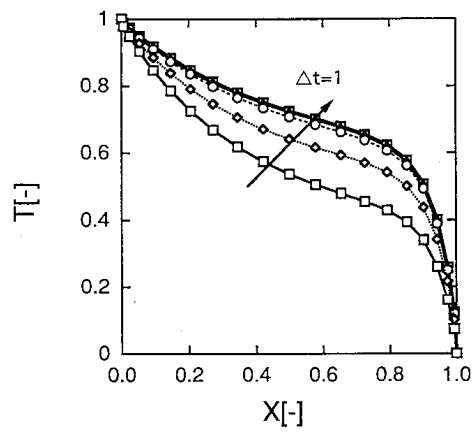


(a) $Ma_T=10^3, Ma_C=10^3$

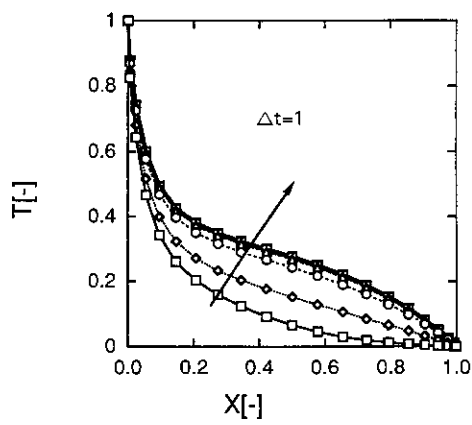
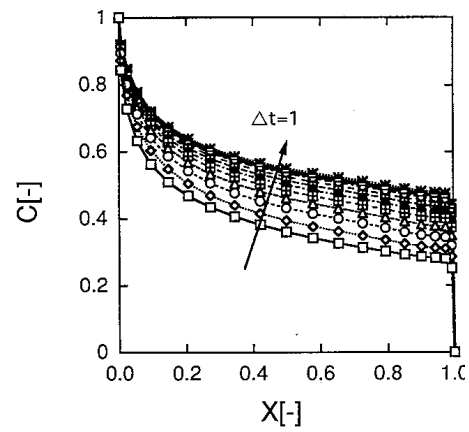


(b) $Ma_T=-10^3, Ma_C=10^3$

Fig.5 Effect of thermal Marangoni and solutal Marangoni number on velocity distribution on the free surface ($Pr=10^{-2}, Sc=1, Gr=0$)



(a) $Ma_T=10^3, Ma_C=10^3$



(b) $Ma_T=-10^3, Ma_C=10^3$

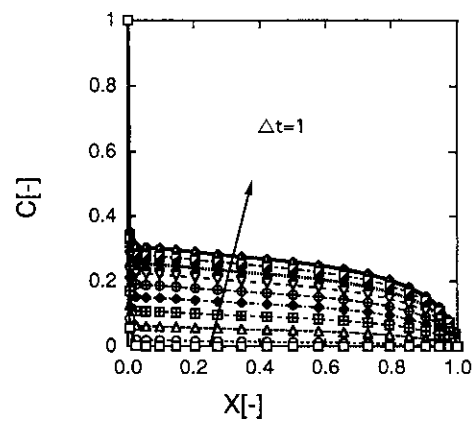
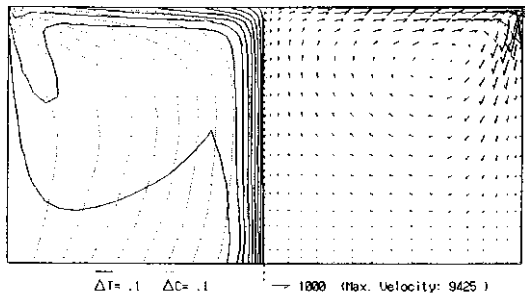
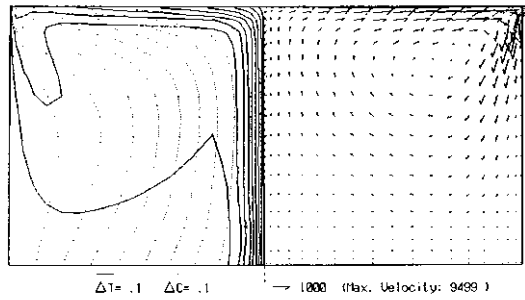


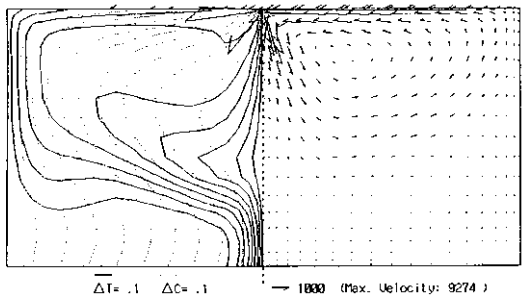
Fig.6 Effect of thermal Marangoni and solutal Marangoni number on Temperature and concentration distributions on the free surface ($Pr=10^{-2}, Sc=1, Gr=0$)



(a) $Ma_T=10^3, Ma_C=10^3$



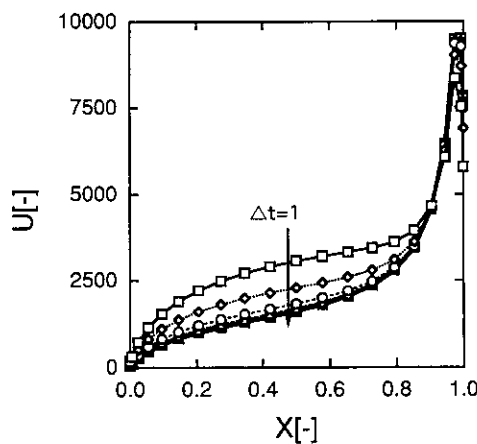
(b) $Ma_T=-10^3, Ma_C=10^3$



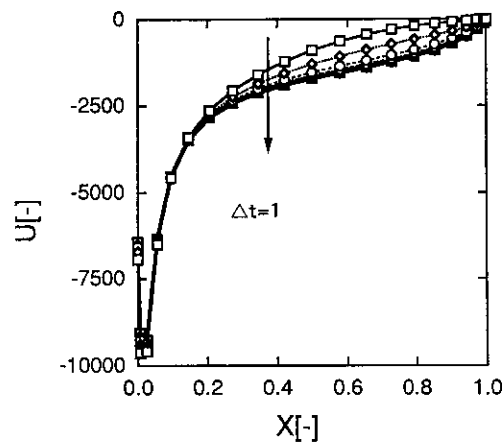
(c) $Ma_T=10^3, Ma_C=-10^3$

Fig.7 Effect of thermal and solutal Marangoni number on convective phenomena in melt ($Pr=10, Sc=10^{-1}, Gr=10^4$)

濃度分布と比較してゆっくりと発達している。Fig.7から、前項と異なり、(a) $Ma_T = Ma_C = 10^3$ と(b) $Ma_T = -10^3, Ma_C = 10^3$ の分布が類似しており、(c) $Ma_T = 10^3, Ma_C = -10^3$ が大きく異なることがわかる。本系では、プラントル数とシュミット数の比が大きく、境界条件中の式(9)において第1項、すなわち温度差マランゴニ対流の影響が、第2項すなわち濃度差マランゴニ対流の影響と比較して、極めて小さい。その結果、Fig.7に示すように、本系においては、温度差マランゴニ対流の流れる方向に依存せず、融液内部の対流、伝熱・拡散は濃度差マランゴニ対流により支配されていることがわかった。Fig.8およびFig.9に、自由表面上の速度、温度・濃度分布におよぼす温度差・濃度差マランゴニ対流の影響を示す。ここでは、Fig.7の結果から、特に(a) $Ma_T = Ma_C = 10^3$ 、(b) $Ma_T = 10^3, Ma_C = -10^3$ について示した。Fig.7の結果から融液内では濃度差マランゴニ対流が支配的であることから、融液自由表面上の濃度分布に着目すると、(a) $Ma_T = Ma_C = 10^3$ では、特に高濃度壁近傍において急激な濃度勾配が、また(b) $Ma_T = 10^3, Ma_C = -10^3$ では低温・低濃度壁近傍において急激な温度・濃度勾配が発生し、その結果、両地点において表面速度の極大値を示していることがわかる。これらは、いずれも濃度差マランゴニ対流の流れ方向を考慮したときに、自由表面上の終端部である。

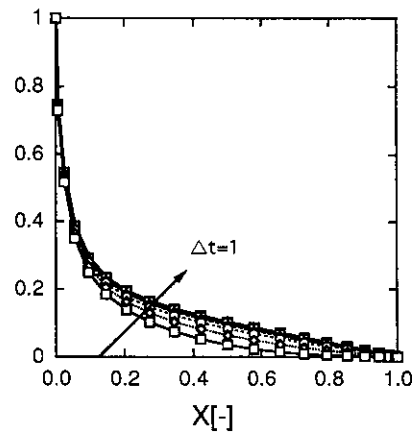
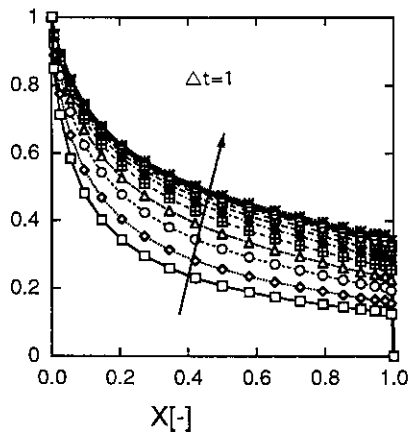


(a) $Ma_T=10^3, Ma_C=10^3$

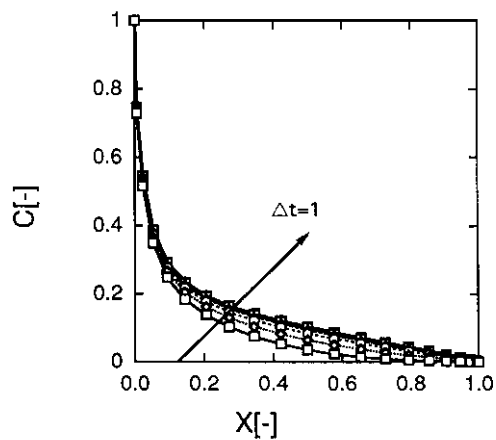
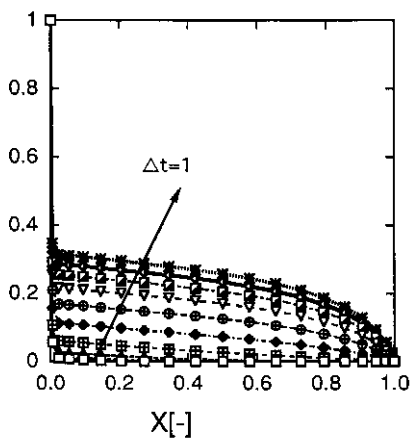


(b) $Ma_T=10^3, Ma_C=-10^3$

Fig.8 Effect of thermal Marangoni and solutal Marangoni number on velocity distribution on the free surface ($Pr=10, Sc=10^{-1}, Gr=10^4$)



(a) $Ma_T=10^3, Ma_C=10^3$



(b) $Ma_T=10^3, Ma_C=-10^3$

Fig.9 Effect of thermal Marangoni and solutal Marangoni number on Temperature and concentration distributions on the free surface ($Pr=10, Sc=10^1, Gr=10^4$)

§4 まとめ

表面張力を変化させる因子として、温度、濃度の両者を取り扱い、融液内部に温度/濃度分布が存在する場合のマランゴニ対流による伝熱・拡散現象について、数値解析的を行った。その結果、融液のプラントル数、シュミット数が対流、伝熱・拡散現象に及ぼす影響を評価した。また、温度差によるマランゴニ対流、および濃度差によるマランゴニ対流の相互作用による対流、伝熱・拡散現象に関して評価した。

記号

参考文献

C	concentration	[-]
D	diffusion coefficient	[m ² /s]
Gr	Grashof number	[-]
H	melt depth	[m]
L	melt width	[m]
Ma _c	solutal Marangoni number	[-]
Ma _T	thermal Marangoni number	[-]
P	nondimensional pressure	[-]
Pr	Prandtl number	[-]
Sc	Schmidt number	[-]
T	temperature	[K]
t	time	[-]
U	nondimensional x-velocity	[-]
u	x-direction velocity	[m/s]
V	nondimensional y-velocity	[-]
v	y-direction velocity	[m/s]
X	nondimensional x-coordinate	[-]
x	x-coordinate	[m]
Y	nondimensional y-coordinate	[-]
y	y-coordinate	[m]
α	thermal diffusivity	[m ² /s]
μ	dynamic viscosity	[kg/m/s]
ν	kinematic viscosity	[m ² /s]
ρ	density	[kg/m ³]
σ	interfacial tension	[N/m]

- 1) P.Gillon and G.M.Homsy : Phys.Fluids A8(1996)2953.
- 2) M.Mundrane and Z.Zebib : Phys.Fluids A5(1993)810.
- 3) K.Mukai and Z.Niu : J.Japanese Association for Crystal Growth,23(1996)93, in Japanese.
- 4) S.V.Patanker : Numerical heat transfer and fluid flow, Hemisphere, Washington, DC(1980)

(2000.2.16受付)