噴流の分子数束角分布に関する実験的研究*

渡部 安雄^{*1}, 南部 健一^{*2}, 前田 学^{*3},
傳 實一樹^{*4}, 五十嵐 三武郎^{*2}

Measurement of Angular Distributions of Molecular Flux Effusing into Vacuum

Yasuo WATANABE, Kenichi NANBU, Manabu MAEDA,
Kazuki DENPOH, and Saburo IGARASHI

Angular distributions of molecular flux effusing into vacuum from various circular nozzles are measured by means of the Bayard-Alpert ionization gauge. The range of the Knudsen number is approximately from 0.01 to 10. The experimental data are summarized into a best-fit equation. The dependence of angular distributions on the Knudsen number and the nozzle length-to-diameter ratio l/d is discussed through the coefficients in this equation. Collimation of molecular flux is remarkable when the Knudsen number and l/d are large.

Key Words: Rarefied Gas, Jet, Molecular Flow, Flow Measurements

1. 緒 言

電子材料等の機能材料薄膜の製造技術はドライ化が進み、ガスソース分子線エビタキシー(MBE)法やジェットCVD法など、原料ガスを真空チャンバーに気体状態で供給する方法が発展して来た。良質の膜の第一条件は膜厚の均一性であり、一般的には $\pm 1\%$ 以内の均一性が要求される。このような厳しい条件を満たす高品質の機能材料薄膜を効率よく製造出来る装置を設計するには、装置内の流動状態を知り、膜厚分布の予測が出来て初めて可能となる。膜厚分布は、基板上での分子の付着確率が一定でかつマイグレーションが無視できる場合には、ソース(原子・分子の供給源)から飛び出した分子の飛行方向の角分布さえ分かれば、いかなる基板配置に対しても計算によって簡単に求めることが出来る。

ボルツマン方程式をモンテカルロ直接法(MCDS)を用いて解くことにより、最近では、広範囲のクヌーセン数に対して分子数束角分布を計算で求めることが出来るようになってきた^{(1)・(2)}。計算で求めた角分布を実際に薄膜製造装置の設計に利用するには、求めた角分布の妥当性を実験的に明らかにしておく必要があり、広範囲のクヌーセン数に対する正確な角分布の実験データが要求される。これまで、ソース内外の流れ

がスリップ流および中間流における角分布は、炉内の溶融金属面から真空中に蒸発した原子の基板上への蒸着量の大きさから求められている^{(3)・(4)}。しかしながら、ガスソースの場合、存在するのはほとんどが自由分子流の角分布であり^{(5)・(6)}、広範囲のクヌーセン数にわたる角分布を実験的に求め、その挙動におよぼす諸因子の影響を明らかにした研究はこれまで見当たらない。

本研究では、ガスソース用円筒ノズルからの噴流の分子数束角分布を取り扱う。目的は、計算結果の試金石となりうる連続流近傍から自由分子流の広範囲にわたる正確な角分布の実験データを提供するとともに、角分布を支配する因子の影響を実験的に明らかにすることである。本報では、これらの因子としてノズル長さ一直径比(l/d)とクヌーセン数を取り上げる。すなわち、角分布を簡単な実験式にまとめ、これに基づき l/d およびクヌーセン数の影響を定量的に明らかにする。

2. 分子数束の角分布

分子数束の角分布とは、図1に示す分子の供給源(ソース)を中心とする、十分大きな半径の半球面上の立体角 $d\omega$ に散乱される分子の数流束分布のことである。単位は個/($\text{sec} \cdot \text{rad}$)で表す。供給源の形状が x 軸を軸とする軸対称の場合、角分布は極角 θ のみの関数となる。いま、分子の数流束を考える代わりに1個の分子が立体角 $d\omega$ に散乱される確率を考える。この

* 原稿受付 平成2年5月29日。

^{*1} 正員、筑波技術短期大学(〒305 つくば市天久保4-3)。^{*2} 正員、東北大学流体科学研究所(〒980 仙台市青葉区片平2-1-1)。^{*3} 三菱重工業(株)高砂研究所(〒676 高砂市荒井町新浜2-1-1)。^{*4} 東北大学大学院。

確率を $f(\theta) \cdot d\omega$ とおく、($d\omega$ に散乱される数流束は、全数流束と確率の積で表される。) ソースが軸対称の場合、確率密度関数 $f(\theta)$ は次式を満足する。

$$\int_{4\pi} f(\theta) d\omega = 2\pi \int_0^\pi f(\theta) \sin\theta \, d\theta = 1 \quad (1)$$

$f(\theta)$ を分子数束の角分布と呼ぶ。式(1)で、分子間衝突により負の x 方向速度を持った分子は $\theta > \pi/2$ の立体角に入るために、積分の上限は π となる。分子の供給源からの流量が小さい場合、流れ場は自由分子流となり、真空中に飛び出した分子は直線軌道を走る。したがってこの場合の角分布は、分子供給源の形状のみに依存する。逆に流量が大きい場合、流れ場は滑り流や中間流となり、分子の軌道は分子間衝突により曲げられる。この場合の角分布は供給源の形状だけでなく、クヌーセン数 (λ/d) にも依存するようになる。ここに、 λ は供給源での分子の平均自由行程、 d は供給源の代表長さである。

3. 実験装置の概要

3.1 実験装置 本研究に用いた実験装置の概要を図2に示す。装置は真空槽1および貯気槽2、排気系19、分子数束測定用プローブ4、ガス導入部3などから構成されている。

アルミニウム製の真空槽(内容積 0.269 m^3 、直径および高さ 0.7 m)の上部フランジの外面には、真空槽内に設置したノズルの位置微調整に使う三次元移動機構、真空槽内の圧力測定に用いる電離真空計、および回転導入機を取付けた。フランジの真空側の面には、分子数束を測るプローブをノズル軸を中心として ± 100 度回転移動させ得る回転移動機構が取付けてあり、これは大気側に取付けた回転導入機を回転するとウォームギヤを介して回転する。上部フランジには、貯気槽(内容積 0.005 m^3)を設置してある。貯気槽と真空槽は二つの独立した管路で連結されている。一つは貯気槽内の

図 1 分子数束の角分布

1, Vacuum chamber	11, Rotary motion drive
2, Reservoir	12, Current terminal
3, Test nozzle	13, Microammeter
4, Probe	14, Precision pressure gauge
5, Skimmer	15, Penning gauge
6, Thermometer	16, Pirani gauge
7, Pirani gauge	17, Pressure gauge
8, Pressure gauge	18, Nozzle displacement mechanism
9, Regulator	19, Diffusion pump
10, Ionization gauge	20, Rotary pump

図 2 実験装置の概略図

圧力調整用のバイパス管路である。もう一つは貯気槽から真空槽内へガスを供給する管路である。排気系は、油拡散ポンプと粗引き用の油回転ポンプから構成されている。ノズルから噴出した分子のほとんどを直接排気し、残留ガスの影響を小さくするために、油拡散ポンプの吸い込み口をノズル直下に配置した。この排気系を完全に作動させた時の到達真空度は約 $1.33 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ (10^{-7} Torr) であった。真空槽内の圧力測定には電離真空計を使用した。また貯気槽内の圧力は Texas Instruments 社製の精密圧力計を用いて測定し、温度測定はサーミスタ温度計を用いた。供試ノズルの形状および寸法を図3および表1に示す。 l/d の異なる4種類の円筒ノズルを用いた。ノズル直径を非常に小さくしたため、ソースを点源と見なすことができ、かつ貯気槽圧を変化させることにより広範囲の Kn に対する角分布を測定出来る。分子数束の測定には、市販の B-A ゲージ球 (UGD-IS, 日電アネルバ社製) をプローブとして用いた。この管球を用いて圧力を測定した時の圧力値(イオン電流値)は、管球内に入射してきた分子の数流束に比例する。したがって管球内のイオンコレクタを直接微小電流計(振動容量型エレクトロメータ, アドバンテスト社製)に接続し、電流の指示値から数流束を測定した。また、プローブの先端には角度分解能を高めるために入口直径が 1 mm のスキマ

表 1 供試ノズルの寸法

ノズル	d (mm)	l (mm)	l/d
No. 1	0.095	0.089	0.937
No. 2	0.053	0.063	1.19
No. 3	0.056	0.130	2.32
No. 4	0.057	0.204	3.58

図 3 供試ノズルの形状

ーを取付けた。試験気体には単原子気体のアルゴンガスを使用した。

3. 2 実験方法 表1に示す4種類の供試円筒ノズルの直径は約0.05mm~0.1mmであり、ノズル内の流速をノズル入口前方の直径2mmのパイプ内の流速と比較すると、後者は桁違いに小さく流速0と見なしうる。したがって、この直径2mmのパイプ内と貯気槽内の状態を同一と見なすことができる。ここで、このノズル前方での平均自由行程 λ_0 (貯気槽内での平均自由行程と同じ) とノズル直径 d を用いて Kn を定義する。

$$Kn = \lambda_0 / d \quad (2)$$

ただし、

$$\lambda_0 = \frac{2\mu_0 R T_0}{\bar{c}_0 p_0} \quad (3)$$

ここで、 $\bar{c}_0 (= \sqrt{8RT_0/\pi})$ は分子の平均速度、 R は単位質量当りのガス定数、 p_0 および T_0 はそれぞれ貯気槽内での圧力および温度であり、 μ_0 は気体の粘性係数で T_0 のみの関数である。温度 T_r での粘性係数が分かっているとき、温度 T_0 での粘性係数は次式から求まる。

$$\frac{\mu_0}{\mu_r} = \left(\frac{T_0}{T_r} \right)^{3/2} \frac{T_r + C_0}{T_0 + C_0} \quad (4)$$

ここで、 C_0 はサザランド定数でアルゴンの場合、142 K であり、また $T_r = 273K$ で $\mu_r = 22.3 \times 10^{-6}$ Pa sec である⁽⁷⁾。

角分布は Kn に依存するから、実験はそれぞれの供試円筒ノズルに対し Kn を変えて行った。分子数束角分布は、プローブをノズル出口を中心とする半径 R の円周上を回転させて測定した。プローブおよびスキマ

ーの中心軸がノズル軸と一致するとき、 $\theta = 0^\circ$ である。正確に分子数束角分布を測定するには、予めプローブ内の残留ガスを除去しておく必要がある。このため角度 θ を設定することにノズルからのガスの流出を一旦止め、プローブ内のガスを十分に放出させ、真空槽内とプローブ内の圧力の一致を確認してから、ガスを供給した。プローブの回転角 θ は真空槽内に直径 600mm の目盛付分度器を設置し、回転アームに取付けた針の指示角度から読み取った。本実験では、ノズル出口とスキマ入口間の距離 R をノズル出口を点源と見なし得る程度にまで十分大きく取ることができ、 $R = 200d \sim 500d$ である。これらの距離においてはもはや分子間衝突はなく、スキマに達する流れは自由分子流になっている。

4. 実験結果および考察

角分布の実験値は、ある角度でのイオン電流値 $I(\theta)$ を最大値 $I(0^\circ)$ で基準化した角分布 $f(\theta) [= I(\theta)/I(0^\circ)]$ で示す。ここで、 $I(\theta) = I'(\theta) - I'_0$ である。 I' は微小電流計から直接読み取ったデータである。 I'_0 は真空槽内の残留ガスによる電流値であり、本実験では $I'(90^\circ)$ に等しいとした。したがって、残留ガスの影響を除いた $I(\theta)$ は数流束に比例する。

4. 1 角分布の実験式 角分布の実験値は、余弦則にも余弦べき乗則にも従わないことが分かった。そこで、角分布の実験データを次の実験式に表現した。

$$f(\theta) = \exp(-A \sin^2 \theta) \quad (2) \quad (0 < \theta < \theta_0)$$

A は定数で、実験値から最小二乗法を用いて決めた。 A の値および適用範囲 θ_0 を表2に示す。 θ_0 は Kn および $1/d$ が大きくなると小さくなる。No. 2, 3, 4 のノズルで Kn が約0.9より大きい場合は、 $\theta_0 = 10^\circ \sim 30^\circ$ となる。それ以外の場合、式(2)は $\theta = 40^\circ$ 付近までは実験値とほぼ一致する。式(2)の適用範囲 θ_0 は比較的小さいが、本報では、角分布定数 A を通じて因子 Kn と $1/d$ の影響を定量的に把握するために、実験を実施したすべての場合に対して同一の実験式(2)を用いてデータを整理した。また、薄膜製造の場合には比較的小さい極角の分子数束がより重要となることから、式(2)は薄膜製造への応用に利用できるものと思われる。

4. 2 円筒ノズルの角分布 実験は、ノズルの長さ直径比 l/d の異なる No. 1~4 の4種類の円筒ノズルに対して行った。各ノズルに対して、角分布にお

よぼす Kn の影響を図 4 (a)～(d)に、図 5 には角分布定数 A によぼす Kn の影響を示す。角分布は半径を $f(\theta)$ にとる極座標で示した。図 4 の θ のマイナス符号はプローブの回転方向が逆方向であることを意味する。円となる余弦則とは異なりその形状は楕円形に近い。数流束がノズル中心軸（極角が 0° ）近傍に集中する場合、角分布はやせて極表示では細長い楕円形となる。この時式 (2) の角分布定数 A の値は大きくなる。逆に $\theta = 0^\circ$ 付近の数流束が減少するにつれて角分布は太った楕円形となる。この時には A の値は小さくなる。Watanabe ら⁽²⁾による円筒のつばからの蒸発の計算によると、角分布を細くする要因は二つ考えられる。一つはノズル内部での分子間衝突による流れの慣性効果（流体要素に働く慣性力により、ノズルを出たジェットがノズル軸と同方向に向かう効果）で、この効果は Kn の小さい所で強くなる。もう一つは l/d の増大と共に大きくなるノズル壁面による分子の

表 2 角分布定数 A

ノズル	Kn	A	θ_s (deg.)
No. 1 ($l/d = 0.937$)	1.05×10^{-2}	2.43	40
	1.05×10^{-1}	1.86	40
	1.05	2.20	45
	1.05×10	2.50	60
No. 2 ($l/d = 1.19$)	9.43×10^{-2}	2.69	40
	9.43×10^{-1}	2.12	40
	9.43×10^{-1}	2.86	30
	9.43	3.59	20
No. 3 ($l/d = 2.32$)	8.93×10^{-2}	2.57	40
	8.93×10^{-1}	2.13	45
	8.93×10^{-1}	7.47	10
	8.93	11.5	10
No. 4 ($l/d = 3.58$)	8.77×10^{-2}	2.58	45
	8.77×10^{-1}	1.90	40
	8.77×10^{-1}	10.3	10
	8.77	19.0	10

(a)

(b)

(c)

(d)

図 4 角分布におよぼす Kn の影響
プロット: 実験値 実線: 式 (2)

コリメーション効果であり、 Kn の大きな領域で顕著に現れる。図 4 (a) に示す No. 1 ノズルの場合、 $Kn = 0.105$ の角分布が一番太い。 $Kn = 0.0105$ と 10.5 の角分布はほとんど一致し、その形状は他の二つの Kn の角分布より幾分やせて細目である。この理由は、 Kn

図 5 角分布定数におよぼす Kn の影響

$= 0.0105$ の場合には慣性効果、 $Kn = 10.5$ の場合にはコリメーション効果によって角分布がやせ、結果として同一形状をとったものと考えられる。図 4 (b) に示す No. 2 のノズルの場合、 Kn の変化による角分布の相違が (a) の場合よりはっきりと確認出来る。 $Kn = 0.0943$ の角分布は、No. 1 のノズルの $Kn = 0.105$ の角分布とほとんど同じで、やはり一番太い楕円形状を示すが、 $Kn = 0.943, 9.43$ の角分布は No. 1 のノズルのほぼ同等な Kn の角分布より幾分やせてくる。このことは、No. 2 は No. 1 より $1/d$ が多少大きいいため Kn の大きい所でコリメーション効果が少し強まってきたためと思われる。上記の Kn の変化による角分布の形状変化の傾向は、図 4 (c), (d) に示す $1/d$ がさらに大きい場合には一層顕著となり、特に Kn が大のときのコリメーション効果による角分布のやせは激しい。以上のことは、図 5 に示す角分布定数 A の変化の様子から一層はつきりする。No. 1 のノズルの場合、

(a)

(b)

(c)

(d)

図 6 角分布におよぼす $1/d$ の影響
プロット: 実験値 実線: 式 (2)

A の値は Kn の変化に対しあまり変化しないが, $Kn = 0.1$ 付近で A は最小値を取り, $Kn = 0.01$ および 10 付近ではほぼ同じ値を取る. このことは先に述べた図 4 (a) の角分布の挙動と完全に対応している. No. 2 のノズルの場合, $Kn > 0.1$ の範囲で No. 1 のノズルの場合より大きな値を取るようになる. これはコリメーション効果があらわれ始めたことを示す. $1/d$ がさらに大きい No. 3, 4 のノズルでは $Kn > 0.1$ の範囲における A の値の増加は急激になる. また増加の割合は $1/d$ が大きい程大きい. したがってノズル壁面によるコリメーション効果は, $Kn > 0.1$ の範囲であらわれ, $1/d$ および Kn が大きいとその効果は著しく強くなる. また, $Kn < 0.1$ の領域では Kn の減少と共に A の値はわずかに増加する. これは分子間衝突による慣性効果によるものであり, この効果は $1/d$ にほとんど関係なく, 実験を実施した範囲でのコリメーション効果と比較すれば慣性効果は小さいと言える.

次に Kn を固定した時の角分布におよぼす $1/d$ の影響を図 6 (a)~(d) に示す. ここで, 表 2 に示すように Kn の値がノズルにより若干異なるため, 4 種のノズルの平均の Kn を図に示した. また図 7 には, Kn を固定した時の A の値の変化を, $1/d$ に対して示す. 図 6 (a) の $Kn = 9.41 \times 10^{-3}$ の場合, ノズル壁面によるコリメーション効果は分子間衝突によって打ち消され, $1/d$ の影響は全くあらわれない. 図 6 (b) の $Kn = 9.41 \times 10^{-2}$ 場合も同様にコリメーション効果はほとんど確認出来ないが, $Kn = 9.41 \times 10^{-3}$ の場合よりも角分布は太くなる. このことは Kn の増加と共に流れの慣性効果が弱くなるためと考えられる. 次に図 6 (c) の $Kn = 9.41 \times 10^{-1}$ の場合には, 分子間衝突の頻度が小さくなるためノズル壁によるコリメーション効果がはっきりあらわれ, $1/d$ が大きくなるにつれ角分布はやせた楕円形状になる. また図 6 (d) に示す $Kn = 9.41$ の場合, コリメーション効果が更に顕著になり, $1/d$ の増加と共に角分布のやせ方が (c) の場合より大きくなる. このことは図 7 に示す A の変化からも分かる. ノズル内外の流れが中間流 ($Kn \sim 1$) または自由分子流領域 ($Kn \sim 10$) においては, $1/d > 1$ の範囲で A の値が急激に増加し, その増加の割合は Kn が大きいほど大きくなる. この時の A の値は, コリメーション効果の強さを表している. また, $Kn < 0.1$ の範囲では分子間衝突の頻度が大きくコリメーション効果は打ち消され A の値は $1/d$ に無関係にほぼ一定値を取る. 以上のことは, Watanabe ら⁽²⁾ の示した蒸発分子の角分布の挙動

図 7 角分布定数におよぼす $1/d$ の影響

とはほぼ対応している. 円筒ノズルからの蒸発との主なちがいは, 蒸発の場合には本研究の場合より慣性効果が大きいことである.

5. 結 論

円筒ノズルから真空中に噴出するアルゴンジェット
の分子数束角分布を, $Kn \approx 0.01 \sim 10$, $1/d = 0.9 \sim 3.6$ に対し実験的に測定し次の結論を得た.

- (1) 角分布は余弦べき乗則に従わず, 式 (2) に従う.
- (2) 円筒ノズルの角分布 $f(\theta)$ を鋭くする要因は, ノズル内での分子間衝突による慣性効果 (IE) と, ノズル壁によるコリメーション効果 (CE) である. $Kn < 0.1$ の時 IE $\gg$ CE となり, IE は Kn 小で若干増大するが $1/d$ にほとんど依存しない, この時 $f(\theta)$ は $1/d$ に無関係と言える. 一方, $Kn > 0.1$ のとき CE $\gg$ IE であり, CE は Kn および $1/d$ と共に増大する. このとき $f(\theta)$ は $1/d > 1$ の範囲で急激に鋭くなる.

文 献

- (1) Watanabe, Y. and Nanbu, K., Proc. 15th Intern. Symp. Rarefied Gas Dynamics, 2 (1986), 261, Teubner.
- (2) Watanabe, Y., ほか 2 名, Rarefied Gas Dynamics: Physical Phenomena, Prog. Astro. Aero., 117 (1989), 403, AIAA.
- (3) Jackson, S. C., ほか 3 名, J. Vac. Sci. Technol., 4 (1967), 10.
- (4) Stickney, R. E., ほか 3 名, J. Vac. Sci. Technol. A, 3 (1985), 1916.
- (5) Schaeetzle, W. J., Trans. 3rd Intern. Vacuum Congress, 2 (1965), 105, Pergamon Press.
- (6) Adamson, S. and McGilp, J. F., Vacuum, 36 (1986), 227.
- (7) 平川ほか, 理科年表, 第 58 冊, 1985, 442, 丸善.