真空中へ噴出したジェットの数束角分布の理論計算*

南部 健一^{*1}, 伝 宝 一 樹^{*2}Theoretical Study on the Angular Distribution
of Molecular Flux Effusing into a Vacuum

Kenichi NANBU and Kazuki DENPOH

The angular distributions of molecular flux effusing from cylindrical nozzles into a vacuum are calculated for both argon and nitrogen gas by using the Monte Carlo direct simulation method. For argon gas, the dependence of the angular distribution on the Knudsen number Kn and the nozzle length-to-diameter ratio shows a good agreement with experimental data. Both Monte Carlo and experimental data are summarized into a best-fit equation. The inelastic collision between diatomic molecules makes the peak of the angular distribution lower than that of monatomic gas for $Kn < 0.1$.

Key Words: Rarefied Gas, Numerical Analysis, Jet, Molecular Flow, Angular Distribution

1. 緒 言

真空蒸着法やスパッタ法, CVD(Chemical Vapor Deposition) 法などに代表される真空中の薄膜作成法は, 機械工業や光学工業, 特に半導体を中心とする電子工業においては欠くことのできない重要な技術である。そのため盛んに研究が行われ, 次々に新しい方法が開発されている⁽¹⁾。

近年, 成膜技術はドライ化が進み, ジェット CVD 法やガスソース MBE(Molecular Beam Epitaxy) 法など, 原料を気体状態で, オリフィスやノズルから真空チャンバー内に供給する方法が発展して来た。基板上に作成される薄膜には一般に±1%以内の膜厚の均一性が要求され, このような高品質の薄膜を製造する装置の設計には, 膜厚分布の予測が不可欠となる。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, オリフィスやノズルなどのソース(原料ガスの供給源)から飛び出した分子の飛行方向, すなわち分子数束角分布より, いかなる基板配置に対しても計算で簡単に求めることが出来る。

本研究の第一の目的は, 上記の成膜技術の基礎となる円筒ノズルから真空中に噴出したアルゴンおよび窒素ジェットの分子数束角分布を, モンテカルロ直接法(MCDS法)を用いて求めることである。特に, アルゴンの分子数束角分布につ

いては, 筆者ら⁽²⁾による実験結果との比較を行い, 本計算結果の妥当性を示す。このことは, ミクロな量についての実験結果と MCDS 法による計算結果の比較の例が極端に少ないという面から考えても非常に有意義である。

2. 分子数束角分布およびクヌーセン数の定義

分子数束角分布とは, 図1に示す分子の供給源であるソースを中心とする十分大きな半径を有する球面上の立体角 $d\omega$ に散乱される分子の数束角分布のことである。ソースの形状が軸対称の場合, この分布は極角 θ のみの関数となり, 次式を満足する。

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

ここで, 確率密度関数 $f(\theta)$ を分子数束角分布と呼ぶ。分子

図1 立体角に散乱される数束角

* 平成3年10月16日 第69期全国大会講演会において講演, 原稿受付 平成4年3月23日。

^{*1} 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)。

^{*2} 学生員, 東北大学大学院。

間衝突により負の x 方向速度を持った分子は、 $\theta > \pi/2$ の $d\omega$ に入射するために積分の上限は π となる。

ソース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进行。したがって、この場合の角分布はソース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ソースの形状だけではなく、クヌーセン数 Kn にも依存するようになる。本報では Kn を既報⁽²⁾の実験と同様に

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

で定義する。ここに、 d はノズルの内径、 λ_0 は貯気槽内の分子の平均自由行程で

$$\lambda_0 = \frac{\mu_0}{\rho_0} \sqrt{\frac{\pi}{2RT_0}} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ただし、 μ_0 、 ρ_0 、 T_0 はそれぞれ貯気槽内の気体の粘性係数、密度、温度であり、 R は単位質量当りの気体定数である。

3. 数値計算の概要

3・1 単原子気体のジェット 図2は本計算で用いた計算領域、直角座標系およびセル分割の一例を示している。 x 軸はノズルの中心軸、 y は半径を表す。 a はノズルの内半径、 ℓ はノズル長さである。計算領域は、貯気槽内 (O を中心とする半径 $r = R_0$ の半球)、ノズル内 (半径 a 、長さ ℓ の円筒) および真空槽内 (O' を中心とする半径 $r = R_1$ の半球) の3つの領域から構成されている。 $R_0 = 3a$ 、 $R_1 = 10a$ に選んだ。本報では、円筒ノズル内外に形成される流れを軸対称流と仮定して計算を行うので、実際には図2に示すように xy 平面だけを考えればよい。

時刻 $t = 0$ でノズル出口 ($x = \ell$) はシャッターで閉じられて

おり、ノズル前方の貯気槽およびノズル内部には数密度 n_0 、温度 T_0 の静止気体が満たされているものとする。真空槽内は分子のない完全真空とする。時刻 $t = +0$ でシャッターが瞬間的に開くと気体は真空中に噴出し、やがてノズル内外に定常流を形成する。ノズル壁面は、貯気槽温度に等しい温度に保たれ、壁面で分子は乱反射をするものとする。

計算領域の上流境界から流入する流れについては、その速度を正確に考慮しなければならない⁽³⁾⁽⁴⁾。本計算では、上流境界 (O を中心とする半径 $r = R_0$ の半球面) に垂直な一定速度の半径流 u を考える。これは、 $R_0 \gg a$ のときノズルを点吸い込みと見なしていることになる。流速 u の決定には、逐次流速推定法⁽⁵⁾を用いる。

分子間衝突は、分子を逆べき型分子^{(6)~(8)}と仮定して取り扱う。数密度 n_0 、温度 T_0 に対する逆べき型分子の平均自由行程 λ_{IPL} は

$$\lambda_{IPL} = \frac{1}{\sqrt{2}\sigma_M n_0} \quad \dots\dots\dots (4)$$

で定義する⁽⁷⁾。ただし、 σ_M は運動量移動断面積の平衡状態における平均値で

$$\sigma_M = 4\sqrt{\pi} A_1(\alpha) \Gamma\left(\frac{3}{2} - \frac{2}{\alpha}\right) \left(\frac{\alpha a}{2kT_0}\right)^{2/\alpha} \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここに、 Γ はガンマ関数、 k はボルツマン定数、 $A_1(\alpha)$ は文献⁽⁸⁾に示されている数値定数。 a 、 α は分子間ポテンシャル $V(r) = a/r^\alpha$ の定数およびべき指数である。ただし、 r は分子間の距離。アルゴンの場合、 $\alpha = 6.5$ である⁽⁶⁾。本報では Kn を式(2)で定義しているので、 λ_0 と λ_{IPL} の関係を求めておく必要がある。逆べき型分子の温度 T_0 に対する粘性係数 μ_0 は

$$\mu_0 = \frac{5\sqrt{mkT_0/\pi}(2kT_0/\alpha a)^{2/\alpha}}{8A_2(\alpha)\Gamma(4-2/\alpha)} \quad \dots\dots\dots (6)$$

図2 計算領域、座標系およびセル分割の例

で与えられる⁽⁹⁾. ここに, m は分子 1 個の質量, $A_2(\alpha)$ は $A_1(\alpha)$ と同様に文献 (8) に示されている数値定数である. 式 (3) および式 (6) を用いると式 (4) は

$$\lambda_{\text{IPL}} = \frac{2A_2(\alpha)\Gamma(4-2/\alpha)}{5\sqrt{\pi}A_1(\alpha)\Gamma(3/2-2/\alpha)}\lambda_0 \quad \dots\dots\dots (7)$$

と書ける.

分子間衝突は, 最大衝突数法⁽¹⁰⁾で取り扱う. Δt 時間に, N 個のサンプル分子を含む数密度 n のセル内で起きる最大衝突数 $(N_c)_{\text{max}}$ は

$$(N_c)_{\text{max}} = \frac{2^2/\alpha \sqrt{\pi} \beta_0^2 (2RT_0)^{2/\alpha} n (N-1) \Delta t}{8\sqrt{2} A_1(\alpha) \Gamma(3/2-2/\alpha) n_0 \lambda_{\text{IPL}}} g_{\text{max}}^{1-4/\alpha} \quad \dots\dots\dots (8)$$

ただし, β_0 は無次元衝突径数のカットオフ値⁽⁸⁾. g_{max} は衝突対の最大相対速度であり, 貯気槽における平均相対速度の 2.5 倍に選んだ.

分子 (i, j) の衝突後の速度 (c'_i, c'_j) は, 衝突前の速度を (c_i, c_j) とすると次式で表される⁽¹¹⁾.

$$\left. \begin{aligned} c'_i &= c_i + \frac{1}{2} [g(1 - \cos \chi) + h \sin \chi] \\ c'_j &= c_j - \frac{1}{2} [g(1 - \cos \chi) + h \sin \chi] \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (9)$$

ここに, $g = c_j - c_i$. ベクトル $h(h_x, h_y, h_z)$ は

$$\left. \begin{aligned} h_x &= \sqrt{g^2 - g_x^2} \cos \psi \\ h_y &= -\frac{g_x g_y \cos \psi + g g_z \sin \psi}{\sqrt{g^2 - g_x^2}} \\ h_z &= -\frac{g_x g_z \cos \psi - g g_y \sin \psi}{\sqrt{g^2 - g_x^2}} \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (10)$$

ただし, $g = |g|$. 角度 χ , ψ はそれぞれ分子間衝突における偏向角⁽⁸⁾および衝突面の方位角である.

分子数角分布 $f(\theta)$ は, 図 2 に示す下流境界 (O' を中心とする半径 $r = R_1$ の半球面) から出た分子の数から求める. このような分子の総数を N 個とすると, 図 1 の立体角 $\Delta\omega$ に入射する分子の数 ΔN は

$$\Delta N = N f(\theta) \Delta\omega \quad \dots\dots\dots (11)$$

である. 今, 下流境界から計算領域外に, 速度 (c_x, c_y, c_z) で飛び出して行った分子 i を考える. 計算領域外は自由分子流領域であり, 分子間衝突が起こらないため, 分子は直線軌道进行. ノズル出口から無限遠方における分子 i の軌道の極角 θ_i は, $c_x > 0$ のとき

$$\theta_i = \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{c_y^2 + c_z^2}}{c_x} \right) \quad \dots\dots\dots (12)$$

となる. θ_i が, $\theta < \theta_i < \theta + \Delta\theta$ を満足するとき, 分子 i は極角が $(\theta, \theta + \Delta\theta)$ の $\Delta\omega$ に散乱される. このような分子の数 ΔN

を数えることにより, 式 (11) から $f(\theta)$ を求める. データ ΔN のサンプリングは流れが定常になってから行い, $N > 10^6$ となるまで計算を続行した. また, $\Delta\theta = 3^\circ$ に選んだ.

厳密に言えば, $r = R_1$ を横断した分子の直線軌道は点 O' を通らない. しかし, 分子数角分布は O' を中心とする無限大の半径を持つ球面上で考えるので, 領域 $r < R_1$ のものを点と見なすことができる.

3・2 二原子気体のジェット 二原子気体のジェットの計算方法は, 単原子気体の場合とほぼ同じである. したがって, ここでは単原子気体の場合と異なる所のみを述べる.

二原子気体として, 並進および回転の自由度を有する窒素を考える. 貯気槽温度 T_0 は室温としているので振動の自由度は考えない. 時刻 $t = 0$ の初期状態として, 分子は貯気槽温度 T_0 に相当する回転エネルギー ε を持っているものとする. ボルツマン分布を仮定すると, ε は次のエネルギー分布関数 $f(\varepsilon)$ のランダムサンプルで与えられる⁽¹²⁾.

$$f(\varepsilon) = \frac{\exp(-\varepsilon/kT_0)}{kT_0} \quad \dots\dots\dots (13)$$

上流境界から計算領域内に貯気槽温度 T_0 で流入する分子および温度 T_0 のノズル壁面で乱反射した分子は, T_0 に相当する ε を持つ. したがって, これらの分子の ε も初期状態と同様に, 式 (13) のランダムサンプルで与えられる.

二原子分子の分子間衝突は, 非弾性衝突を考慮しなければならない. 本報では, 非弾性衝突確率を 0.2 に仮定した. 弾性衝突は単原子気体の分子間衝突と同じなので, 3・1 節を参照されたい. ただし, 窒素に対する分子間ポテンシャルのべき指数 α は, 8.4 である⁽⁶⁾. 非弾性衝突については, Larsen-Borgnakke モデル⁽¹³⁾を任意の逆べき型分子に一般化して用いた. すなわち, 衝突後の分子の相対速度 g' の向きが, 単原子の逆べき型分子のそれに等しいと仮定し, 式 (9) を

$$\left. \begin{aligned} c'_i &= c_i + \frac{1}{2} \left[g \left(1 - \frac{g'}{g} \cos \chi \right) + h \frac{g'}{g} \sin \chi \right] \\ c'_j &= c_j - \frac{1}{2} \left[g \left(1 - \frac{g'}{g} \cos \chi \right) + h \frac{g'}{g} \sin \chi \right] \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (14)$$

のように拡張した. 回転エネルギーの移動だけが起きる $g' = g$ の場合には, 上式は単原子分子の場合に一致する. Larsen と Borgnakke⁽¹³⁾ は, (c'_i, c'_j) を等方散乱から決めている. しかし, 分子が回転自由度を有するとき, 衝突後の速度の方向に分子間力の法則が何の影響も与えないという考えには無理がある.

4. 結果と考察

4・1 アルゴンジェットの分子数角分布 アルゴンジェットの分子数角分布の計算結果と既報⁽²⁾の実験結果と

の比較を図3および4に示す。図には角分布 $f(\theta)$ を $\theta = 0^\circ$ の値 $f(0)$ で基準化した $\hat{f}(\theta) (= f(\theta)/f(0))$ を極座標表示している。また、図中の実線は次式を表している。

$$\hat{f}(\theta) = \frac{p \exp(-p\theta^2)}{\sqrt{p^2 + \theta^2}} \left[1 - \left(\frac{2\theta}{\pi} \right)^q \right] \quad \dots\dots\dots (15)$$

ただし、 θ はラジアン。定数 p および q の値は、最小自乗法を用いて決めた。これを表1に示す。式(15)は、広範囲の Kn に渡り計算および実験結果を表しており、薄膜製造への応用に利用できると思われる。

図3に示されている $\ell/d = 1.19$ の場合を見ると、計算および実験による $\hat{f}(\theta)$ は共に $Kn = 9.43 \times 10^{-2}$ で最も太く、この Kn を境に $\hat{f}(\theta)$ は細くなる。 $Kn > 9.43 \times 10^{-2}$ の領域

では Kn が大きくなるにつれて $\hat{f}(\theta)$ は細くなっていく。これは Kn の増加に伴い分子間衝突の頻度が減少し、ノズル壁面によるコリメーション効果⁽¹⁴⁾が顕著になるためである。 $Kn < 9.43 \times 10^{-2}$ の領域では、ノズル内部での分子間衝突による流れの慣性効果⁽¹⁴⁾により $\hat{f}(\theta)$ は細くなる。図4に示されている $\ell/d = 2.32$ の場合は、 $\ell/d = 1.19$ の場合と同様な傾向を示しているが、 ℓ/d が大きいのでコリメーション効果が強まり、 $Kn > 8.93 \times 10^{-2}$ の領域では $\ell/d = 1.19$ の場合の $\hat{f}(\theta)$ よりも細くなっている。 $Kn \leq 8.93 \times 10^{-2}$ の領域では分子間衝突によりコリメーション効果が打ち消されるために ℓ/d の影響は見られず、 $\ell/d = 1.19$ の場合の $\hat{f}(\theta)$ とほぼ一致する。

図3 分子束角分布
(Ar , $\ell/d = 1.19$)

図4 分子束角分布
(Ar, $\ell/d = 2.32$)

表1 定数 p および q の値 (Ar)

(a) $\ell/d = 1.19$

Kn	p		q	
	MCDS	EXPT	MCDS	EXPT
9.43	0.392	0.475	3.47	1.37
9.43×10^{-1}	0.430	0.566	3.36	1.52
9.43×10^{-2}	0.779	0.834	2.60	1.88
9.43×10^{-3}	1.35	1.58	1.72	1.59

(b) $\ell/d = 2.32$

Kn	p		q	
	MCDS	EXPT	MCDS	EXPT
8.93	0.222	0.192	3.31	1.77
8.93×10^{-1}	0.279	0.253	3.40	2.92
8.93×10^{-2}	0.723	0.775	2.74	1.93
8.93×10^{-3}	1.29	1.49	1.63	1.63

以上のことは、図5に示す細長度 S (楕円状の形をした $\hat{f}(\theta)$ の長軸 $\hat{f}(0)$ に対する最大横幅の比) の Kn に対する変化の様子からも見て取れる。 $\ell/d = 2.32$ の場合については、図4に示した Kn 以外に対しても S の計算を行っている。

定量的には、 $\ell/d = 1.19, 2.32$ の場合において、いずれの Kn に対しても、計算による $\hat{f}(\theta)$ は実験による $\hat{f}(\theta)$ よりも若干太くなっている。ノズル壁面の影響が顕著に現れる自由分子流領域に近い大きな $Kn (= 9.43, 8.93)$ で両者の結果の差異が大きくなることから、この原因として、実験で用いたノズルの断面形状の真円からのずれや、内壁の表面粗さを考慮にいれた実効的な ℓ/d が計算で用いた 1.19 や 2.32 などの値よりも大きいこと、さらに、計算で仮定したノズル壁面での分子の乱反射モデルが実際の反射とは異なっていることが考えられる。なぜなら、自由分子流の場合、計算には分子間力のモデルに関する仮定が入ってこないため、 $f(\theta)$ はノズル

図5 クヌーセン数に対する細長度の挙動 (Ar)

の形状と面分子干渉のみによって決まるからである。なお、通常用いられる乱反射と鏡面反射の混合モデル (マクスウェルモデル) では、角分布の実験データを説明できないということを確認した。

4・2 窒素ジェットの分子数角分布 窒素ジェットの分子数角分布 $f(\theta)$ の計算結果をアルゴンジェットの計算結果と比較し、図6および7に示す。図6に示されている $\ell/d = 1.19$ の場合を見ると、 $Kn \geq 9.43 \times 10^{-1}$ では、アルゴンと窒素の $f(\theta)$ は一致している。 Kn 大では、 $f(\theta)$ は分子間衝突に依存しないので、これは当然のことと言える。 $Kn = 9.43 \times 10^{-2}$ では、窒素の $f(\theta)$ の方がよりなだらかな分布となる。この傾向は、 $Kn = 9.43 \times 10^{-3}$ で一層強まる。この Kn ではアルゴンの $f(\theta)$ は慣性効果により鋭い分布となるのに対し、窒素の $f(\theta)$ はわずかに鋭くなるもののなだらかなままで、 $Kn = 9.43 \times 10^{-2}$ の $f(\theta)$ にほぼ一致する。以上の Kn に対する窒素の $f(\theta)$ の挙動は、図7に示す $\ell/d = 2.32$ の場合についても同様である。アルゴンと窒素の $f(\theta)$ の形状の差は Kn が小さくなるにつれ分子間衝突の頻度が増加するため、それに伴い非弾性衝突の影響も大きく現れるのである。そして、図6(d) および 7(d) から明白のように、この二原子分子の非弾性衝突は、単原子分子に比べ $f(\theta)$ をなだらかにする効果を与える。

ℓ/d に対する窒素の $f(\theta)$ の挙動は、アルゴンのそれと同様な挙動を示す。すなわち、 $Kn > 0.1$ の領域では、 ℓ/d が大きいほどコリメーション効果が強くなるため、それに伴い $f(\theta)$ は鋭くなる。 $Kn < 0.1$ の領域では、分子間衝突により

(a)

(b)

図6 分子数角分布
($\ell/d = 1.19$)

(c)

(d)

 図 6(続) 分子数束角分布
($\ell/d = 1.19$)

(a)

(b)

(c)

(d)

 図 7 分子数束角分布
($\ell/d = 2.32$)

コリメーション効果が打ち消されるために ℓ/d の影響は消え、 $\ell/d = 1.19$ と 2.32 の $f(\theta)$ はほぼ一致する。

5. 結 論

円筒ノズルから真空中へ噴出するジェットの数密度角分布を、モンテカルロ直接法を用いて計算し、以下の結論を得た。

(1) 計算により求めたアルゴンの数密度角分布 $f(\theta)$ は、全てのクヌーセン数 Kn およびノズル長さ-直径比 ℓ/d に対し、実験結果とかなり良い一致を示す。 Kn の増加と共に増大する計算値と実験値のわずかな差の原因として、計算で用いた乱反射モデルが実際の反射とは異なること、さらに、実験で用いたノズルの実効的な ℓ/d の値が、計算で用いた値よりも大きいことが考えられる。

(2) 窒素の $f(\theta)$ は非弾性衝突の影響により、アルゴンの $f(\theta)$ よりも $Kn < 0.1$ の領域でなだらかな分布となる。また、アルゴンと同様に、 $Kn < 0.1$ では ℓ/d の影響はなく、 $Kn > 0.1$ では ℓ/d の増加と共に $f(\theta)$ は鋭くなる。

文 献

- (1) 麻蒔, 薄膜作成の基礎, 第2版, (1984), 99, 日刊工業新聞社.
- (2) 渡部・南部・前田・伝宝・五十嵐, 機論, **57**-536, B (1991), 1214.
- (3) 藤本・宇佐美, 機論, **50**-459, B (1984), 2717.
- (4) K. Nanbu, Proc. Int. Symp. Comput. Fluid Dyn., **2** (1986), 297.
- (5) 池川・小林, 機論, **54**-507, B (1988), 3057.
- (6) S. Chapman and T. G. Cowling, *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*, (1970), 232, Cambridge Univ. Press.
- (7) K. Nanbu and Y. Watanabe, *Rep. Inst. High Speed Mech.*, Tohoku Univ., **43** (1981), 21.
- (8) K. Nanbu and K. Denpoh, *Rep. Inst. Fluid Sci.*, Tohoku Univ., **4** (1992), 115.
- (9) S. Chapman and T. G. Cowling, *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*, (1970), 172, Cambridge Univ. Press.
- (10) 南部, 東北大学流体科学研究所報告, **3** (1992), 47.
- (11) W. G. Vincenti and C. H. Kruger, Jr., *Introduction to Physical Gas Dynamics*, (1967), 352, John Wiley and Sons.
- (12) K. Nanbu, S. Igarashi and Y. Watanabe, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **57** (1988), 3371.
- (13) C. Borgnakke and P. S. Larsen, *J. Comput. Phys.*, **18** (1975), 405.
- (14) Y. Watanabe, K. Nanbu and S. Igarashi, *Rarefied Gas Dyn.: Physical Phenomena, Prog. Astro. Aero.*, **117** (1989), 403, AIAA.