

回転流と熱対流による流動現象*

吉 原 正 一^{*1} 東 久 雄^{*1} 大 西 充^{*1}

Interactive Flow Phenomena with Thermal Convection and Rotational Flow*

Shoichi YOSHIHARA^{*1}, Hisao AZUMA^{*1}, and Mitsuru OHNISHI^{*1}

ABSTRACT

Flow velocity in a Czochralski crystal puller model was measured by an ultrasonic technique. Silicone oil and mercury were used as model liquids and the experiments covered a wide range of Reynolds number $Re \equiv 10^2 \sim 10^5$. From the velocity measurements, oscillatory characteristics of the flow were obtained. Six groups of different frequencies of the oscillation were found to exist in the experiments without applying temperature differences. The influence of thermal convection on frequencies of the oscillation was clarified in the case of mercury. Due to the thermal convection, one frequency of the oscillation is divided into two frequencies. With increasing Reynolds number, the frequencies joined again and a chaotic flow was finally observed.

Keywords: oscillatory flow, thermal convection, rotational flow, chaotic flow, ultrasonic technique (UVP), Czochralski method

概 要

チョクラルスキ結晶成長法モデルでの流れ速度を超音波を用いた手法で測定した。シリコンオイルと水銀をモデル流体として用い、広い範囲のレイノルズ数 $Re \equiv 10^2 \sim 10^5$ のもとで実験を行った。速度測定から流れの振動特性が得られ、温度差を与えない実験では異なった振動数の六つのグループが存在することが分かり、また水銀の場合については熱対流の振動数への影響が明らかになった。熱対流により、一つの振動数は二つに分かれ、レイノルズ数の増加につれて、二つの振動数の流れは合流し、カオス流が観測された。

記 号

Pr :	プラントル数	$Pr = \nu / \alpha$
Gr :	グラスホフ数	$Gr = g\beta (T_h - T_c) \cdot r_c^3 \nu^{-2}$
Re :	レイノルズ数	$Re = r_c^2 \omega / \nu$
g :	重力加速度	
	円筒容器半径	
r_c :	ロッド半径	
α :	モデル流体の熱拡散係数	
β :	モデル流体の体積膨張率	
T_h :	円筒容器の温度(高温部)	
T_c :	ロッドの温度(低温部)	
ν :	モデル流体の動粘性率	
ω :	ロッドの角速度 (rad/s)	
Ω :	ロッドの回転数 (rpm or rps)	

1. はじめに

いわゆるチョクラルスキ結晶成長法はシリコン結晶の工業的生産に広く使われている。現在まで、同方法のつば内の流れについての多くの研究がなされている。流速分布が単純に周期的に変動する振動流や、さらに複雑な様相を見せるカオス流は生成される結晶の品位に大きな影響を与えるため特に定常流(層流)から振動流、カオス流への遷移過程に興味が持たれている。Munakata 等¹⁾、Ozoe 等²⁾、Kakinoki 等³⁾、Mukherjee 等⁴⁾は、モデル流体としてシリコンオイルを、また流れの振動測定に熱電対を用いて流れの状態間遷移に着目した実験を行った。Tokuhiko 等⁵⁾は超音波速度分布計(UVP)⁶⁾を用いてシリコンオイルの振動流開始の臨界レイノルズ数を測定した。これらすべての実験は比較的低いレイノルズ数($Re=1 \sim 500$)で行われて

* 平成 9 年 8 月 18 日受付(received 18 August 1997)

*1 宇宙研究グループ (Space Technology Research Group)

いる。しかし、これら多くの努力にもかかわらず、シリコン融液の流体挙動の理解は完全ではない。その理由として、実際の状況ではレイノルズ数、グラスホフ数とも非常に高いことが考えられ、また熱対流はプラントル数に強く依存していることが知られている⁷⁾にもかかわらず、低プラントル数流体であるシリコン融液のモデル流体として高プラントル数流体であるシリコンオイルを用いていることが考えられる。シリコン融液をはじめとする低プラントル数流体のほとんどは不透明であるため、高精度の測定結果が得られる光学的観測は不可能である。Kakimoto 等^{8,9)}の研究のようにX線透過法を用いてシリコン融液内部の流れパターンをトレーサを使って可視化することは可能であるが、その方法の精度的な限界から流れの振動特性を与えるには至っていない。

現在、結晶径を大きくすることが工業的応用から求められており、生産プロセスの制御のための融液流れのより完全な理解が必要である。結晶径が大きくなるに従い、融液のレイノルズ数、グラスホフ数は増加し、流れは振動あるいはカオス状態になり、流れの測定はさらに困難となる。

先に述べた困難を解決するため、本研究では不透明流体にも適用可能な UVP 技術を用いて流速分布の時間変動の測定を行った。0.65cSt, 2cSt, 10cSt のシリコンオイル ($Pr=9.7$, $Pr=28$, $Pr=140$ at 25) と水銀 ($Pr=0.027$ at 20) をシリコン融液の代わりにモデル流体として用いた。シリコンオイルをその高いプラントル数にもかかわらず用いたのは、水銀と合わせて広いレイノルズ数領域をカバーし、また流れパターンを光学的に観察するためである。水銀のプラントル数はシリコン融液($Pr=0.02$ at 1412¹⁰⁾)と同じオーダーであり、シリコン融液の良いモデル流体と考

えられる。

2. 実験方法

実験装置は図 1 に示すように、パイレックスガラスの内径 10cm、高さ 10cm の円筒容器(1)、真ちゅうからなる 3cm 径の円筒ロッド(2)から構成される。容器及びロッドの温度は、二つの温度調整された恒温循環槽(3, 4)から供給される水を用いて制御される。容器(1)にはモデル流体としてのシリコンオイルあるいは水銀が満たされる。水銀の場合には、表面の酸化を防ぐため 1cm の厚さの 5wt% 過塩素酸水溶液(5)で水銀表面を覆う。結晶を模擬しているロッドは、液体表面に接触するように配置し、モータ(6)により回転する。モデル流体と真ちゅうの良好な濡れにより、ロッドの回転に従ってモデル流体も回転する。

トランスジューサ(7)は液面より 1 cm 下の位置で容器の外側に接してセットした。水銀では白金をメッキした直径 0.1mm ~ 0.2mm の水銀と比重を合わせたタンゲステンとモリブデンの合金の粉末をトレーサとして用いた。シリコンオイルでは、中空シリカ粉末をトレーサとして用いた。流体の速度分布は、超音波のパルスをトランスジューサより発生させ、流体各点でのトレーサによるエコーを同じトランスジューサで受信し、このエコー信号の中に含まれる位置と速度の情報から求める。放射音波線に沿った 128 点の各位置の速度は 135msec の間に計測され、各位置の間隔は等間隔で水銀では 1.45mm、シリコンオイルでは 1mm である。この速度分布波形を一定の時間間隔で 1024 回計測し、位置 - 時間 - 速度ダイヤグラムを得た。

二つの熱電対(8)は容器の内側の壁、ロッド表面に共に液体表面に接して取り付けられ、速度の測定を開始する前

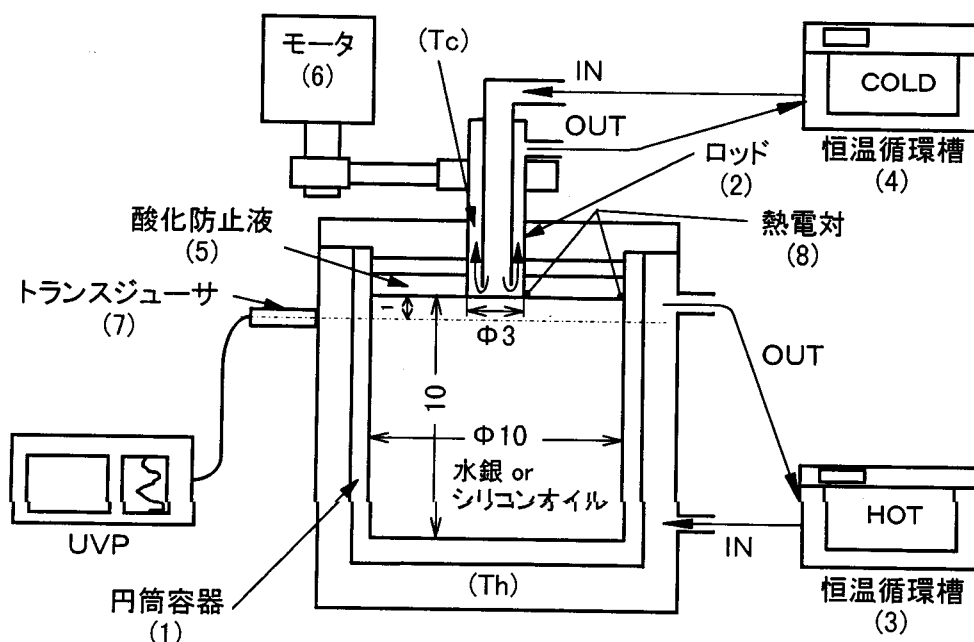


図 1. 実験装置概略図

に液体の温度分布が定常であることを確認した。

測定はレイノルズ数 $Re=10^2 \sim 10^5$ 、グラスホフ数 $Gr=0 \sim 3.4 \times 10^8$ の範囲で行った。シリコンオイルの実験では $Re=10^2 \sim 10^4$ を、水銀の実験ではさらに高いレイノルズ数の領域 $Re=10^4 \sim 10^5$ をカバーした。シリコンオイル実験では光シートとトレーサで流れのパターンを観測し、流れの振動数と比較した。温度差は水銀実験の場合にのみ付

加し、回転流と熱対流の合成流を測定した。

3. 実験結果と検討

UVP で測定したシリコンオイル 2cSt、ロッドの回転数 100rpm での位置 - 時間 - 速度ダイアグラム例を図 2 に示す。このデータから放射音波線上 128 個の各位置での FFT データを求める。流れ全体の特性を掌握するため、放射音

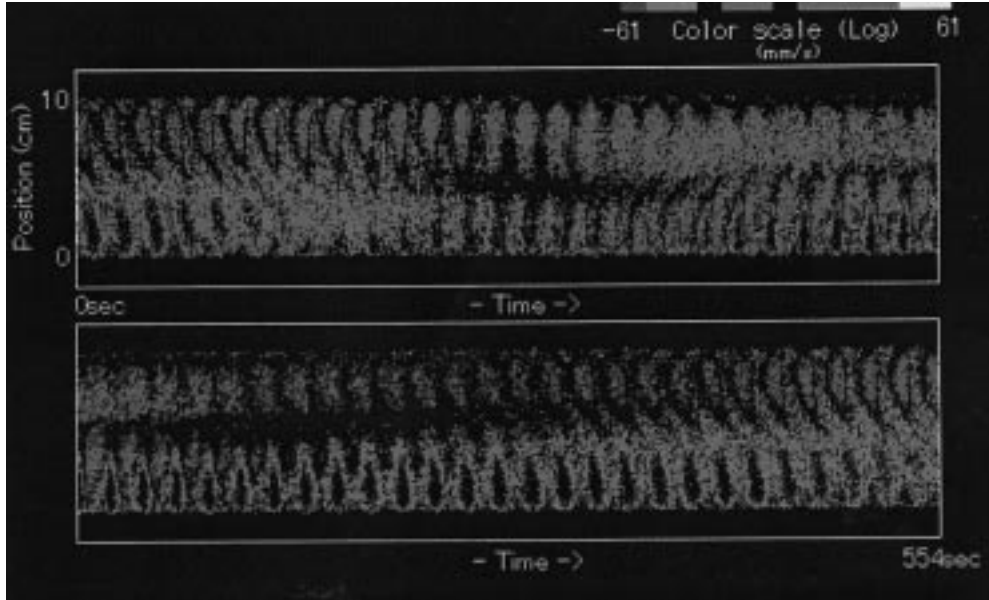


図 2. UVP で計測した位置 - 時間 - 速度ダイアグラム
($Re=1.2 \times 10^3$ ($\Omega=100\text{rpm}$), $Gr=0$, シリコンオイル 2 cSt)

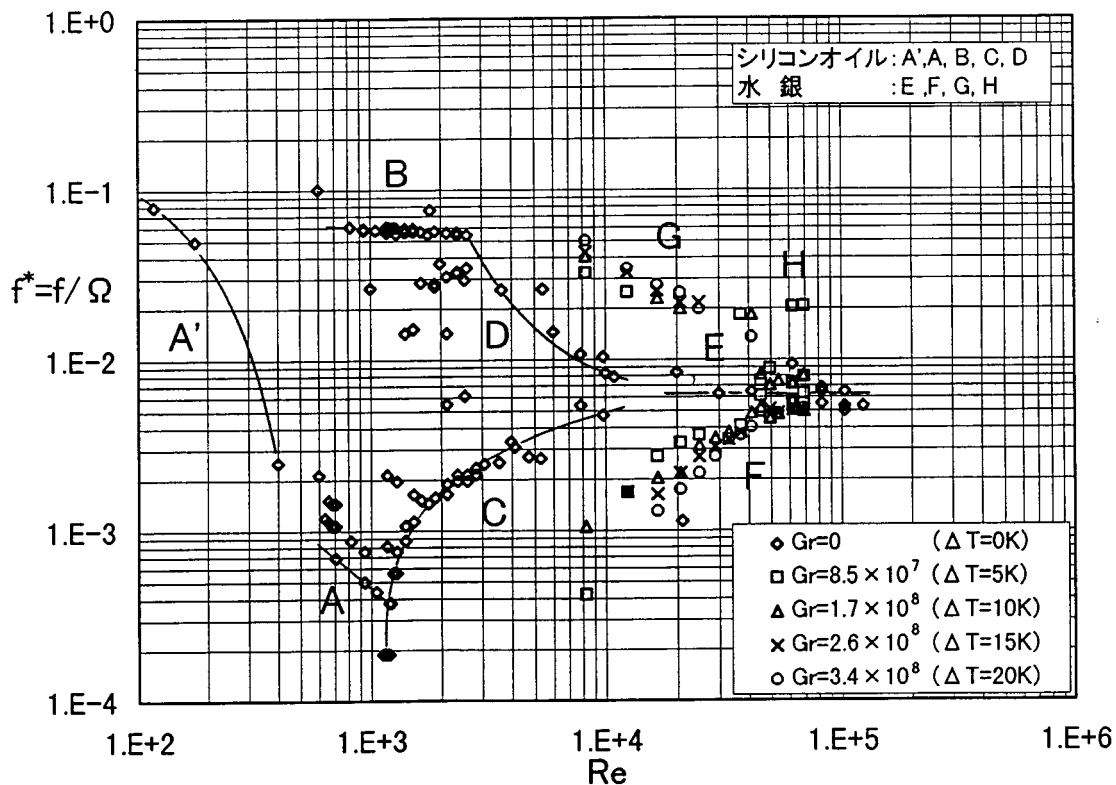


図 3. レイノルズ数 - 正規化振動数

波線上における速度の時間変動から求めた振動数を、流体振動全体の特性振動数とした。

上記で求めた振動数 f をロッドの回転数 Ω で正規化し、レイノルズ数と正規化振動数 f^* との関係を図 3 に示す。レイノルズ数にはロッド径による定義を用いた。この図で表される結果は、シリコンオイルを用いた $Re \leq 10^4$ の範囲(グループ A', A, B, C, D)の実験と水銀を用いた $Re \approx 10^4 \sim 10^5$ の範囲(グループ E, F, G, H)の実験から成っている。

3.1 シリコンオイル実験

流れパターンの観察から、(図 4)グループ A', A, B, C, D で計測される振動流は各々以下に述べる現象により起きると推定される。

A', A 両方に対して、軸がずれて回転する対称なトーラス、あるいは非対称なトーラスの回転が観測された。(A')外側が容器の内壁に接触していないトーラスが、ロッドの回転により液体表面直下で発生する。(図 4(a))

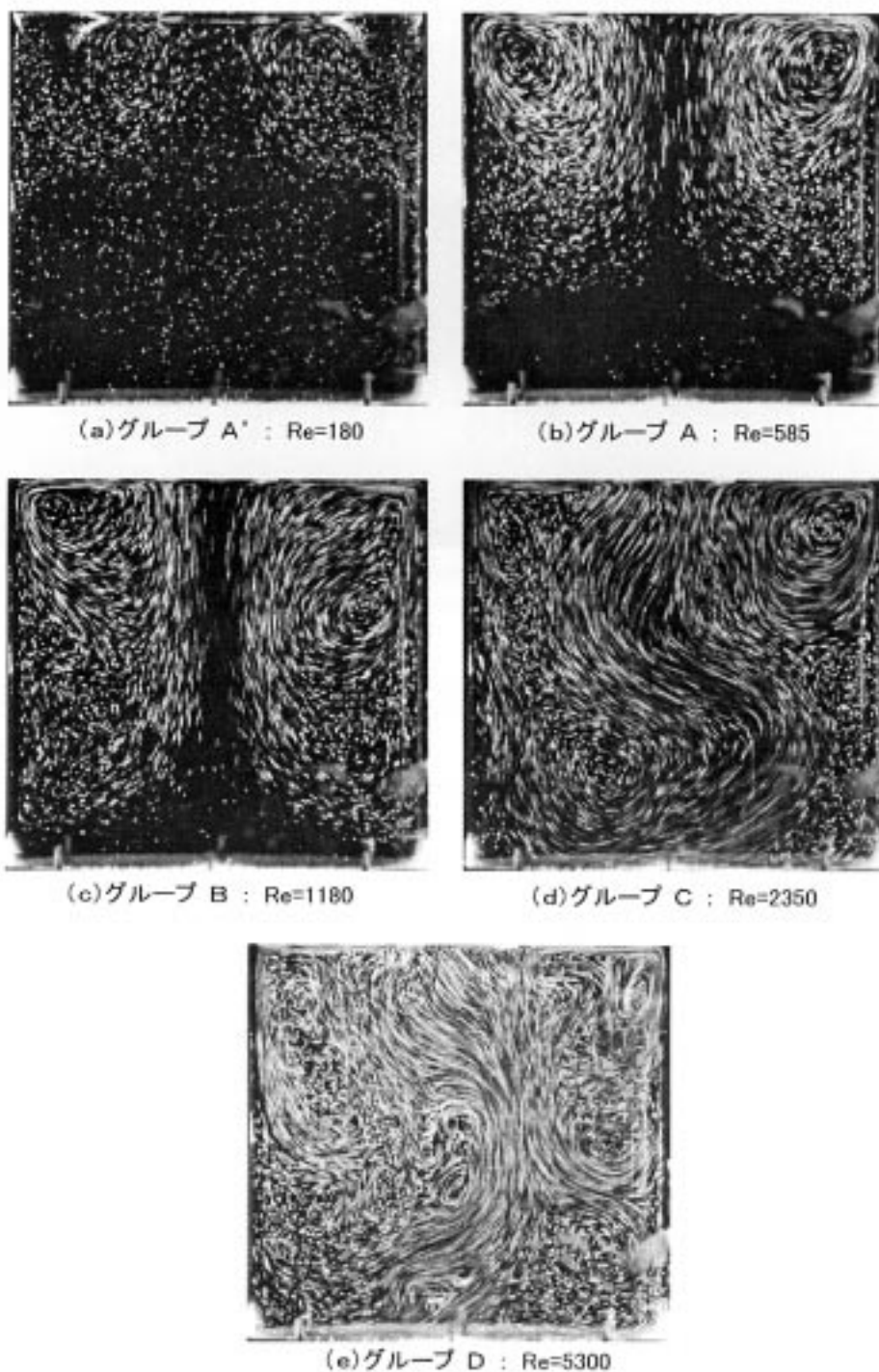


図 4. 容器内の流れの可視可写真
(シリコンオイル 2 cSt, $Gr=0$, 露光時間 1 秒)

- (A) この場合は A' と同様なトーラスが観察されるが、その外側は広がって容器 (1) の内壁に接している。(図 4 (b))
- (B) 容器の底からロッドの直下への上昇流がその位置を変える。(図 4 (c))
- (C) 三つのトーラスがその形を変え、干渉する。(図 4 (d))
- (D) 複数の渦がその位置と大きさを変え、上昇流が強く蛇行する。(図 4 (e))

グループ A' , A, B, C, D, E に対応するピークパワー(P)を図 5 に示す。これから、振動の相対的強さを知ることができる。低い振動数のグループ A, C がグループ B, D より強いことが分かる。グループ A は $Re \cong 600$ から始まる。これは Tokuhiro 等⁵⁾が定常流(層流)から振動流への遷移に対して観測した臨界レイノルズ数 $Re_{crit} \cong 669$ に近い。しかしながら、他の不安定性 A' がより低いレイノルズ数の

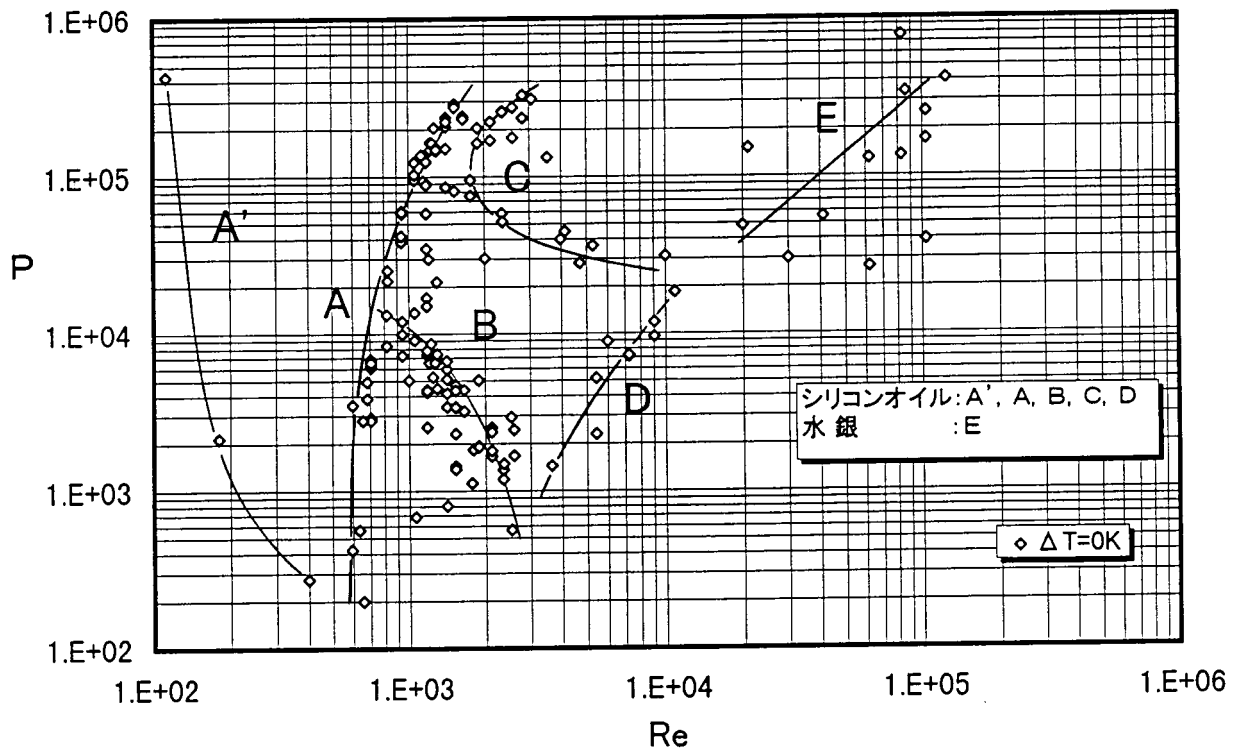


図 5. ピークパワー - レイノルズ数
(図 3 のグループ A' , A, B, C, D, E に対応)

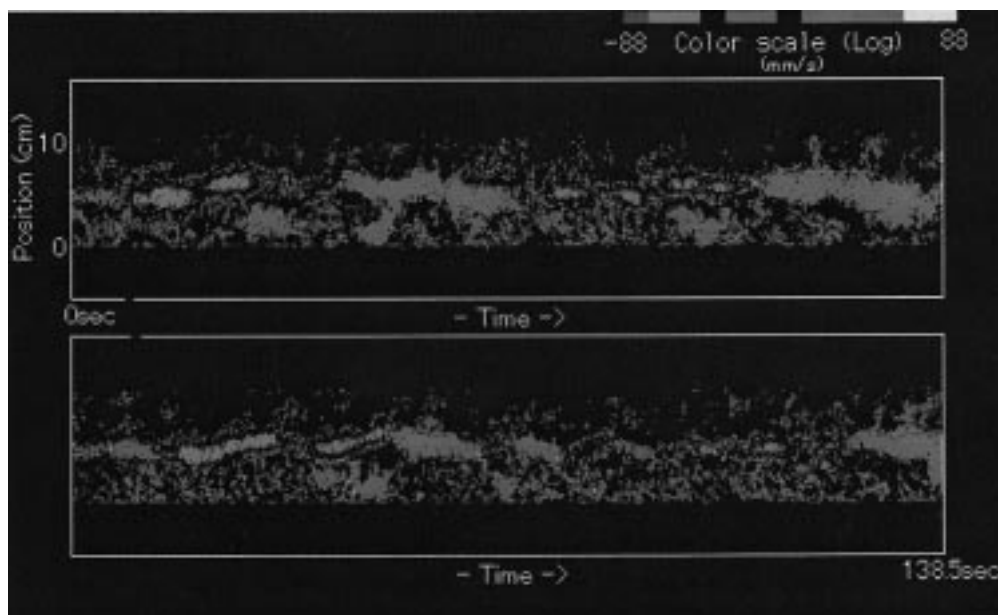


図 6. カオス流に相当する位置 - 時間 - 速度ダイヤグラムの例
($Re=6.9 \times 10^4$ ($\Omega=335\text{rpm}$), $Gr=3.4 \times 10^8$ ($\Delta T=20\text{K}$))

範囲で明らかに存在し、レイノルズ数が低いほど強くなる
ことが観測される。

3.2 水銀実験

温度差を付けずに最初に行った水銀実験では、レイノルズ数を 10^4 以上に増加していくと、二つの振動数のグループ(C, D) は合流して一つの振動数のグループ(E)に発達する。(図3) 容器とロッドの間に温度差を付けた時、回転流と熱対流との合成により元の振動数は二つの振動数(F, G)に分かれる。グループFではグラスホフ数が増加するにつれて振動数は減少する。一方、グループGでは振動数は増加する。レイノルズ数が更に増加するにつれて、グループFとGの振動数の差は小さくなり、グループFとGが合流するところに領域Eが現れる。領域Hでは、カオス流が観測された。このカオス流に対応する位置-時間-速度ダイアグラムを図6に示す。図7にグループF, G, Hの正規化振動数を Gr/Re^2 に対して示す。 Gr/Re^2 は熱対流と回転流のバルク流に対する寄与を比較するための量である。熱対流が回転流と同じオーダになった時、前に述べたように二つの明確な振動流が現れることを図7は示唆している。

水銀の場合の流れパターンは UVP による速度分布測定からある程度推測できる。図8-aに $Re = 8.3 \times 10^3$ ($\Omega = 40\text{rpm}$), $Gr = 3.4 \times 10^8$ ($\Delta T = 20\text{K}$) の場合の位置-時間-速度ダイアグラムを示す。流れはロッド軸の回転方向とは無関係にトランスジューサから遠ざかる方向の速度成

分のみが計測されかつその速度には時間変動が見られる。 $Re = 1.2 \times 10^4$ ($\Omega = 60\text{rpm}$) 以上になるとトランスジューサからの放射音波線上にそった速度成分の向きが交互に変わる流れが図8-b($Re = 1.7 \times 10^4$ ($\Omega = 80\text{rpm}$), $Gr = 3.4 \times 10^8$ ($\Delta T = 20\text{K}$))に示すように現れる。このことは、熱対流による非対称な速度を持った流れがロッドの周りを回転していることを示唆している。この振動数のグループはFで表され、回転流と熱対流の合体で現れてくる。一方、グループGで表される振動数は熱対流に本質的なものであり、ロッドの回転数の増加に伴い減少する。

4. 結 論

シリコンオイルと水銀を用いて広い範囲のレイノルズ数で流れの振動特性を求めた。この範囲において定常流(層流)、振動流、カオス流が順次発現し、この流れの振動数をレイノルズ数、グラスホフ数の関数として求めることに成功した。シリコンオイルを用いて、回転流の振動特性がレイノルズ数によって五つのグループに分類できることを明らかにした。また、水銀内部の局所的な流れの測定に成功した。しかしながら、全体的な流れパターンの推定には複数のトランスジューサを必要とし、今後の課題となっている。局所的流れながら振動数に対する熱対流と回転流の影響を明らかにした。回転だけで引き起こされた一つの振動数は、熱対流の影響で二つの振動数に分かれる。この二つの振動数の流れは合体し、最終的にカオス流に移行した。このことは二つの振動数はそれぞれ回転流、熱対流に起源

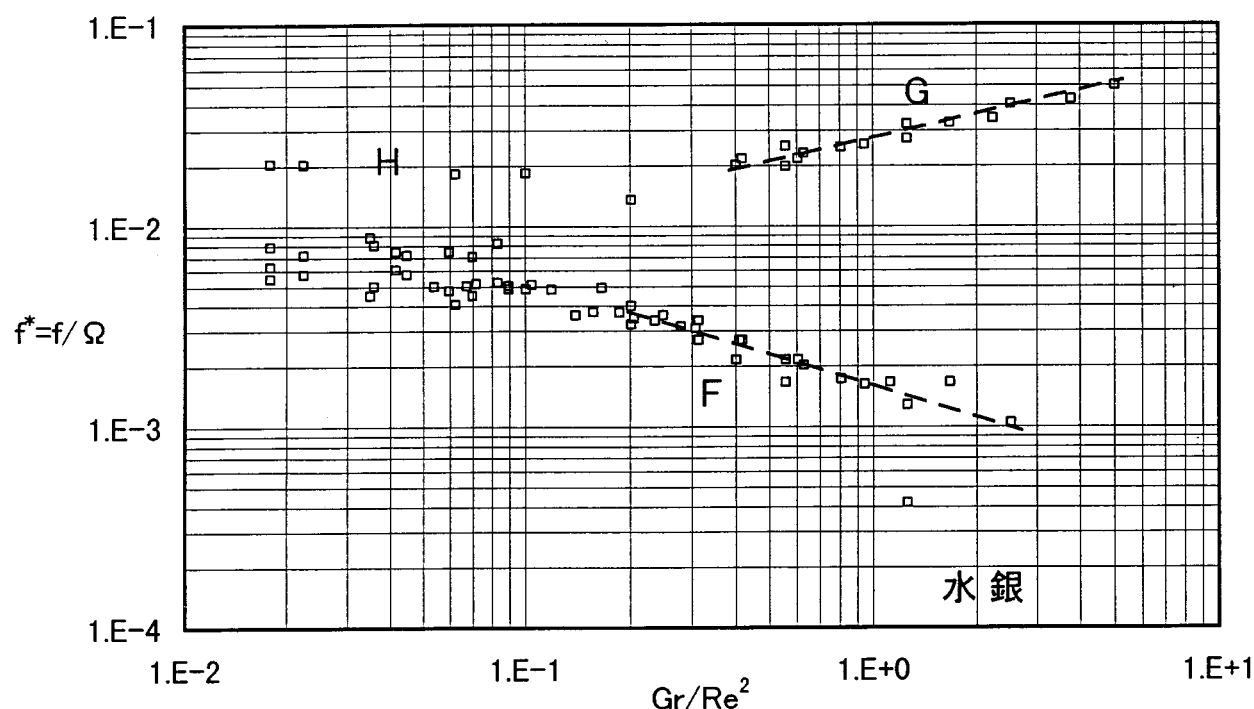


図7. 関数 Gr/Re^2 - 正規化振動数
(図3のグループF, G, Hに対応)

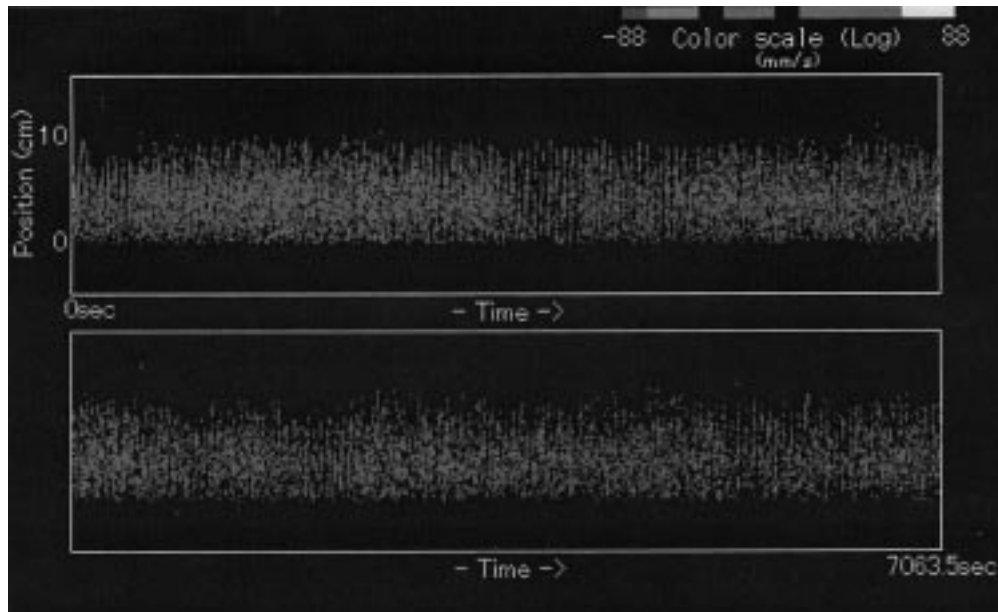


図 8-a. 位置 - 時間 - 速度ダイヤグラム
($Re=8.3 \times 10^3$ ($\Omega=40\text{rpm}$), $Gr=3.4 \times 10^8$ ($\Delta T=20\text{K}$))

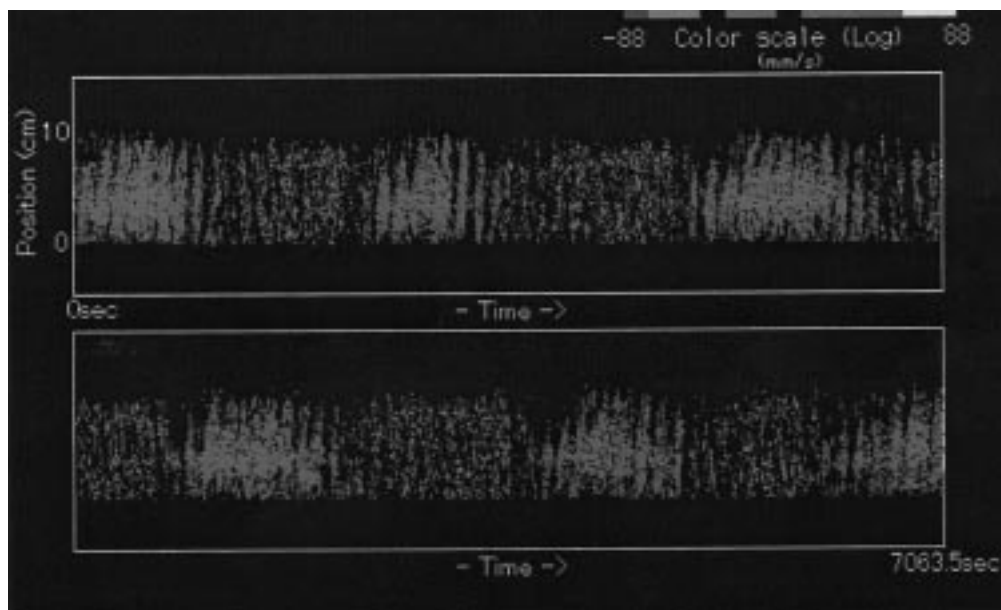


図 8-b. 位置 - 時間 - 速度ダイヤグラム
($Re=1.7 \times 10^4$ ($\Omega=80\text{rpm}$), $Gr=3.4 \times 10^8$ ($\Delta T=20\text{K}$))

を持ち、二つの流れが拮抗するところでカオス流が現れることを、この事実は示唆している。

我々はより高いレイノルズ数、グラスホフ数での流れを研究する基礎を確立した。

謝 辞

UVP の発案者であり、有益な助言をいただいたスイスの Paul Scherrer 研究所の武田靖博士、実験を手伝ってくれた横浜国立大学学生・江守智之君、色々な指摘をしてくれた STA フェロー S. Rahal 博士に感謝します。

本研究は科学技術振興調整費「1. 短時間微小重力場の利用技術の研究 1.5 マランゴニ対流制御技術に関する研究 1.5.1 材料生成時の流れの解明と制御に関する研究」を得て行った。

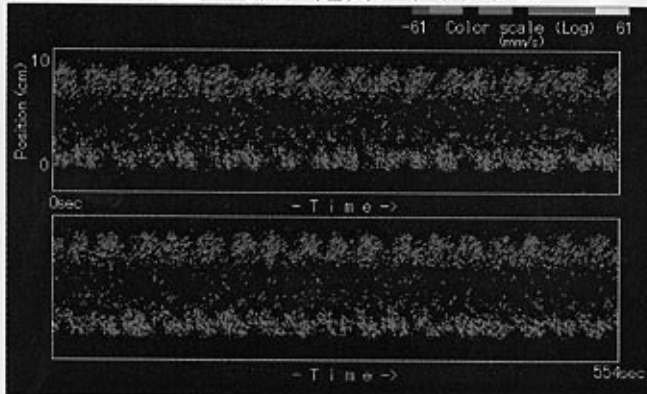
5. 引用文献

- 1) T. Munakata and I. Tanasawa, "Onset of oscillatory flow in a Czochralski growth melt and its suppression by magnetic field", J. Crystal Growth, 106 (1990), 566-576.
- 2) H. Ozoe, K. Toh and T. Inoue, "Transition mechanism of

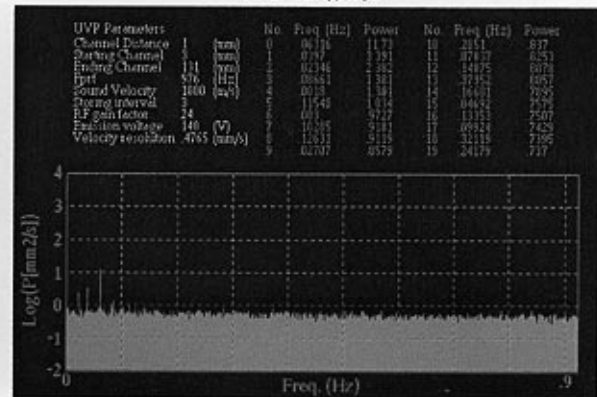
- flow modes in Czochralski convection”, J. Crystal Growth, 110 (1991), 472-480.
- 3) K. Kakinoki, M. Suzuki, T. Tsukada, M. Hozawa and N. Imaishi, “Transition of Flow mode in a model CZ melt”, J. Chemical Engineering of Japan, 27 (1994), 790-794.
 - 4) D. K. Mukherjee, V. Prasad, P. Dutta, T. Yuan, “Liquid crystal visualization of the effects of crucible and crystal rotation on CZ melt flows”, J. Crystal Growth, 169 (1996), 136-146.
 - 5) A. Tokuhiro and Y. Takeda, “Measurement of flow phenomena using the ultrasonic velocity profile method in a simulated Czochralski crystal puller”, J. Crystal Growth, 130 (1993), 421-432.
 - 6) Y. Takeda, “Development of an ultrasound velocity profile monitor”, Nuclear Engineering and Design, 126 (1991), 277-284.
 - 7) A. C. Skeldon, D. S. Riley, K. A. Cliffe, “Convection in a low Prandtl number fluid”, J. Crystal Growth, 162 (1996), 95-106.
 - 8) K. Kakimoto, M. Eguchi, H. Watanabe and T. Hibiya, “Natural and forced convection of molten Silicon during Czochralski single crystal growth”, J. Crystal Growth, 94 (1989), 412-420.
 - 9) K. Kakimoto, M. Watanabe, M. Eguchi and T. Hibiya, “Ordered structure in non-axisymmetric flow of silicon melt convection”, J. Crystal Growth, 126 (1993), 435-440.
 - 10) S. Nakamura and T. Hibiya, “Thermophysical Properties Data on Molten Semiconductors”, Intl. J. Thermo-physics, 13 (1992), 1061-1083.

付録 1-1. シリコンオイル (0.65 cSt, $Gr=0$, $\Delta T=0K$) の位置 - 時間 - 速度ダイアグラムと FFT 結果

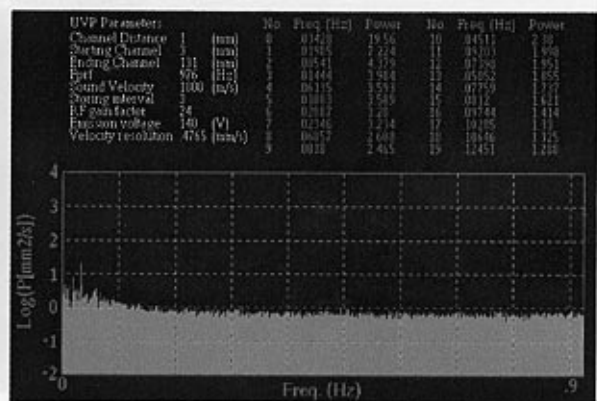
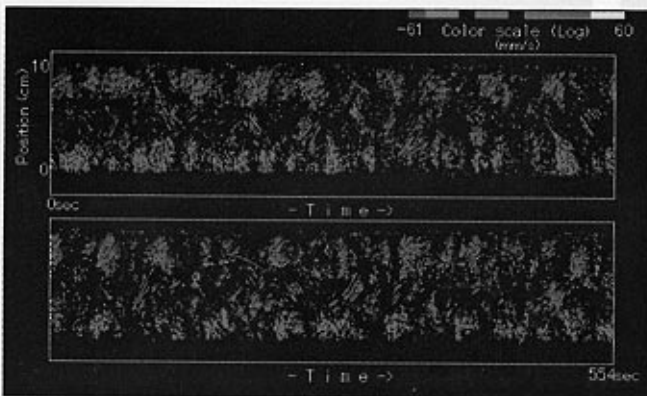
位置-時間-速度ダイアグラム



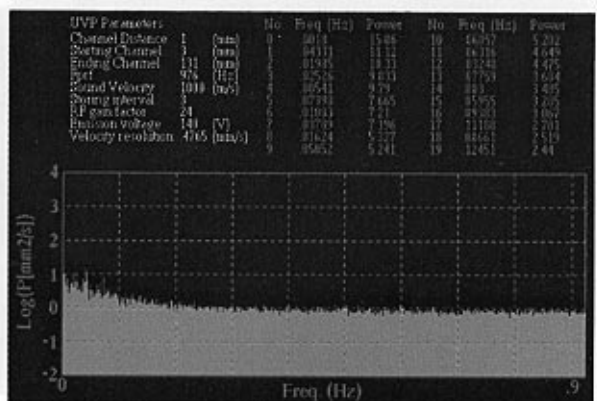
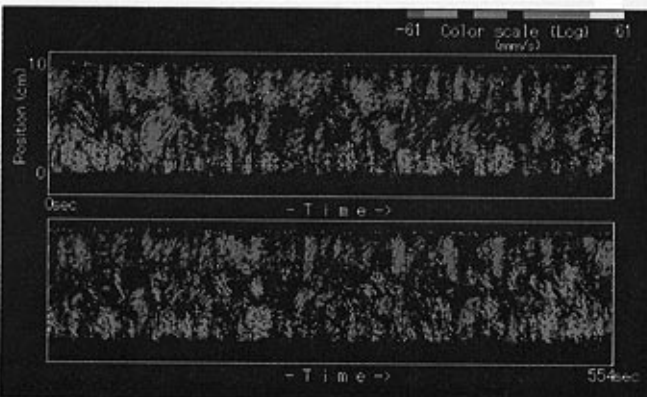
FFT 結果



$Re=1.8 \times 10^3$ ($\Omega=50\text{rpm}$)

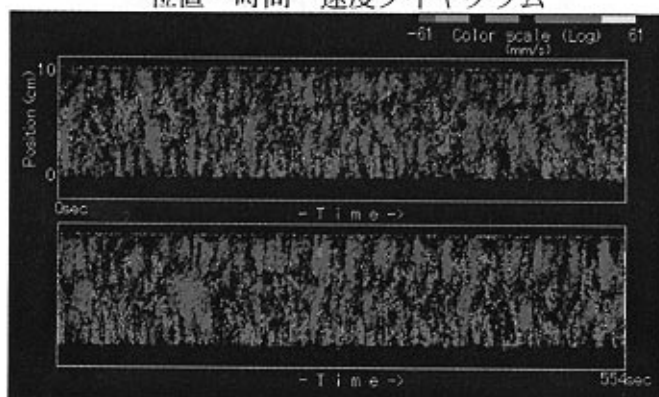


$Re=2.5 \times 10^3$ ($\Omega=70\text{rpm}$)

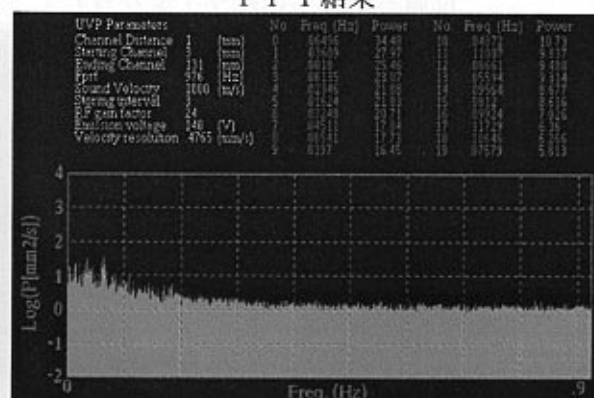
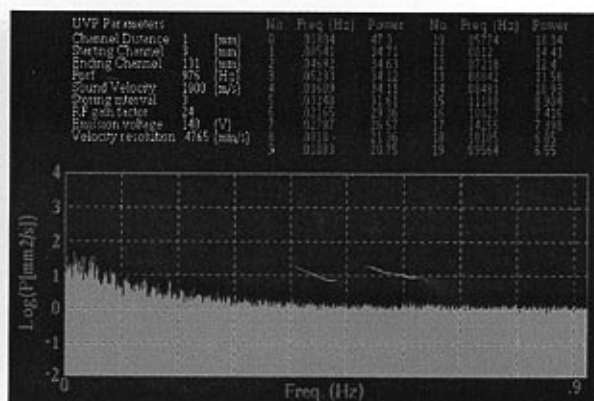
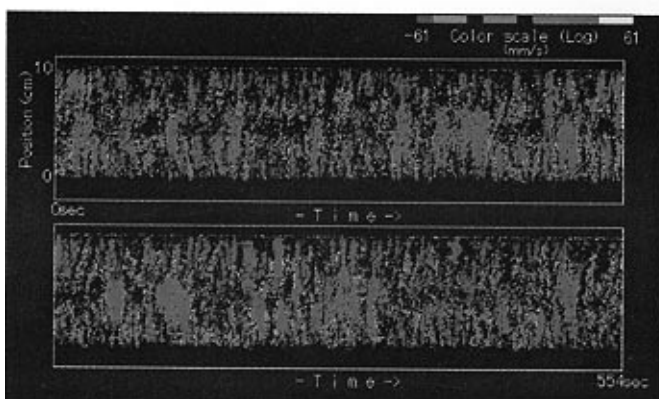
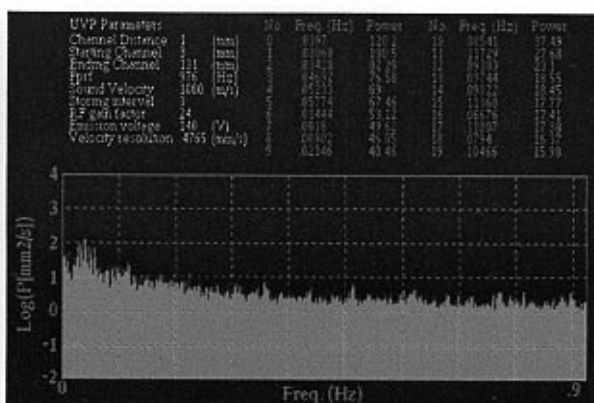
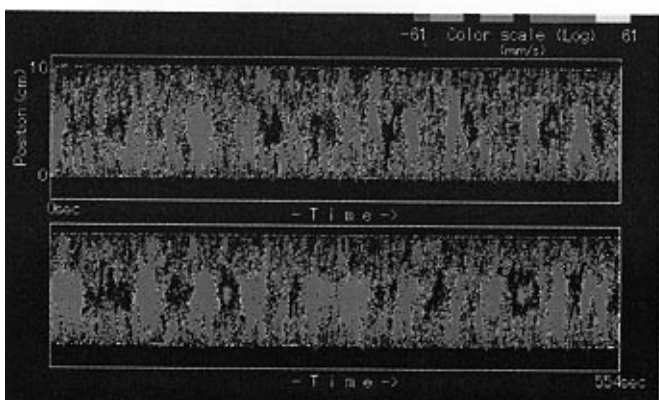


$Re=3.6 \times 10^3$ ($\Omega=100\text{rpm}$)

位置-時間-速度ダイアグラム

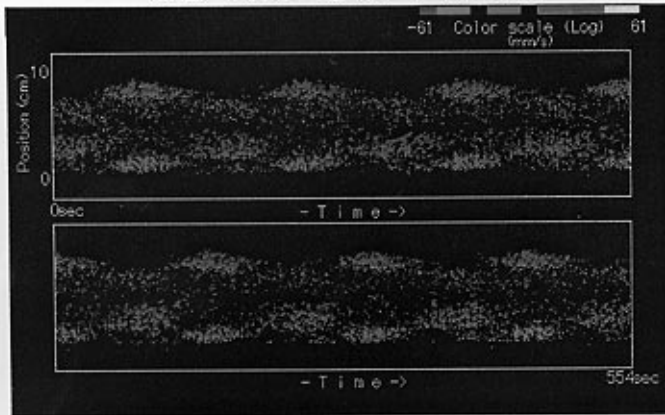


FFT結果

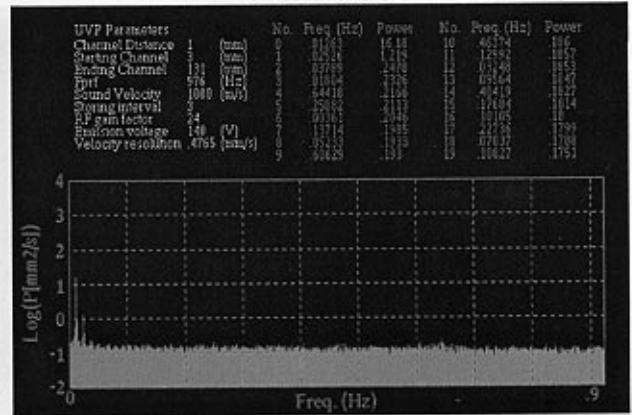

 $Re = 5.4 \times 10^3$ ($\Omega = 150 \text{ rpm}$)

 $Re = 7.2 \times 10^3$ ($\Omega = 200 \text{ rpm}$)

 $Re = 1.1 \times 10^4$ ($\Omega = 300 \text{ rpm}$)

付録 1-2. シリコンオイル (2 cSt, $Gr=0$, $\Delta T=0K$) の位置 - 時間 - 速度ダイヤグラムと FFT 結果

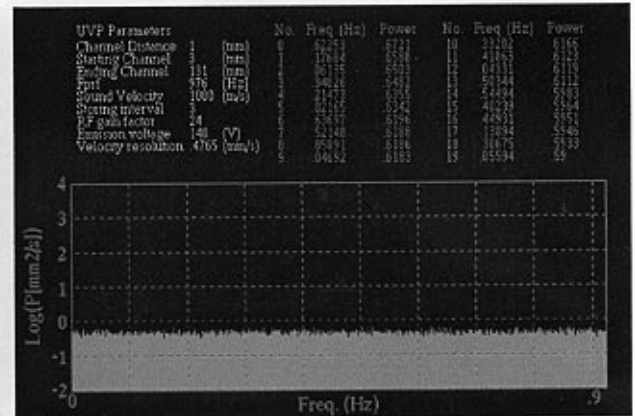
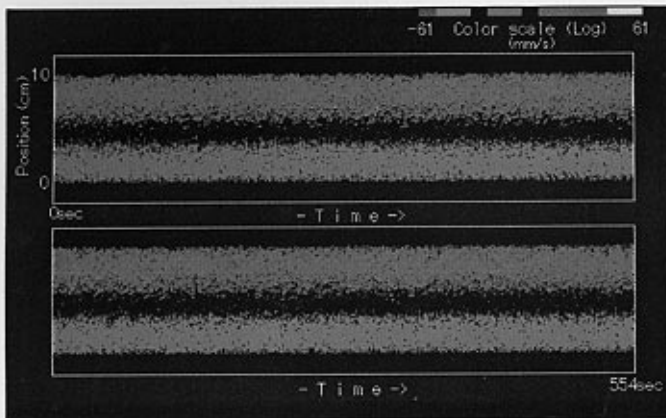
位置-時間-速度ダイヤグラム



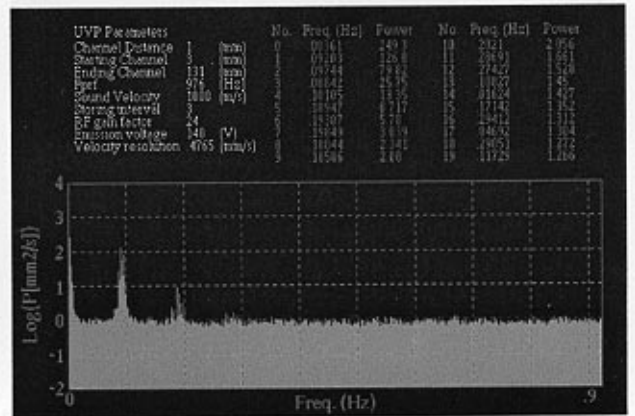
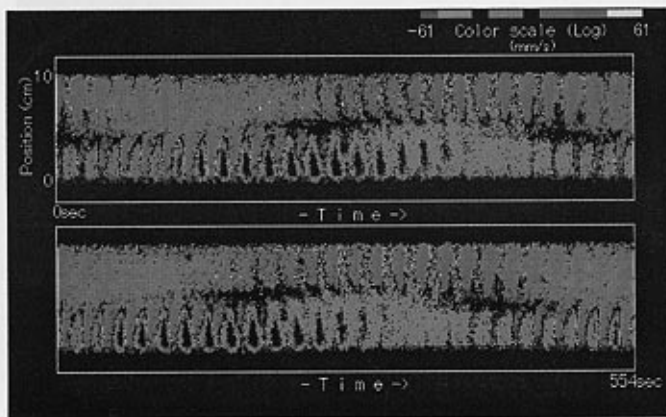
FFT結果



Re=180 ($\Omega=15\text{rpm}$) (図 4 (a) グループ A'に対応)

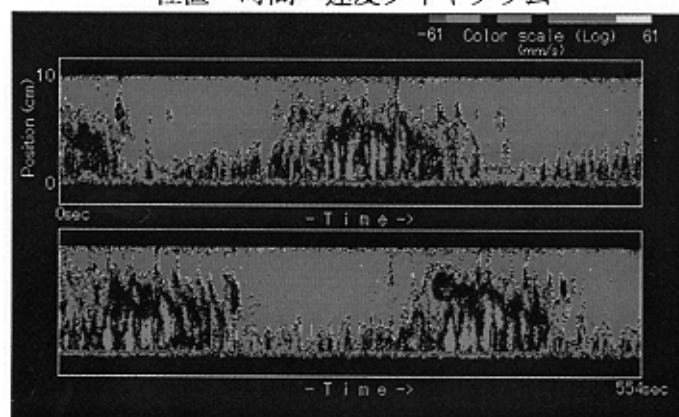


Re=585 ($\Omega=50\text{rpm}$) (図 4 (b) グループ Aに対応)

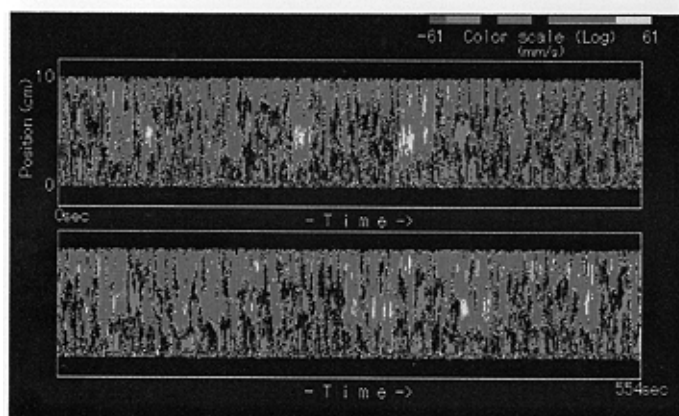
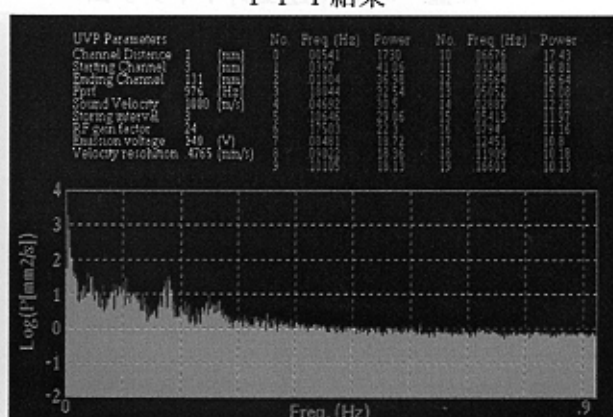
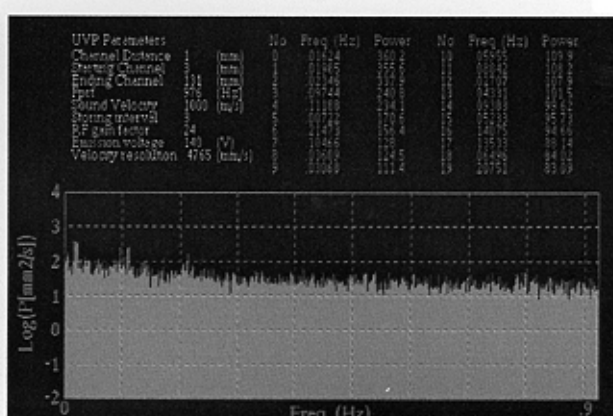


Re=1180 ($\Omega=100\text{rpm}$) (図 4 (c) グループ Bに対応)

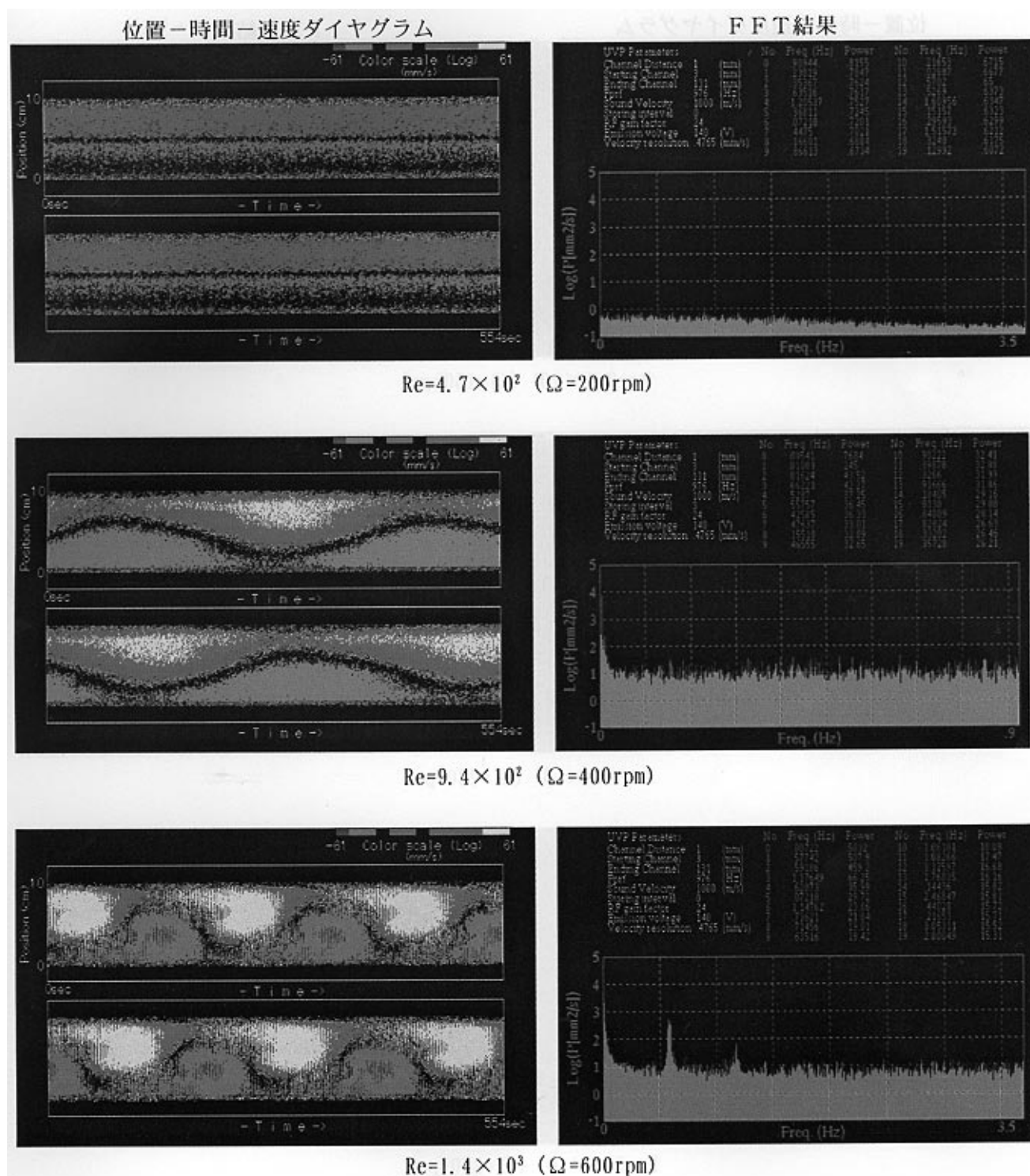
位置-時間-速度ダイヤグラム

Re=2350 ($\Omega=200$ rpm) (図 4 (d) グループ C に対応)

FFT結果

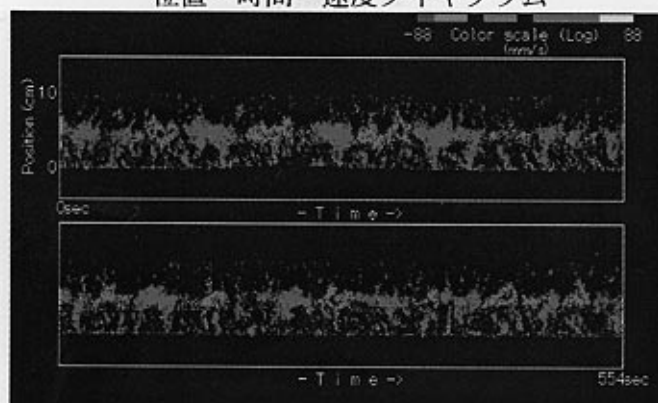
Re=5300 ($\Omega=450$ rpm) (図 4 (c) グループ D に対応)

付録 1-3. シリコンオイル (10 cSt, $Gr=0$, $\Delta T=0K$) の位置 - 時間 - 速度ダイヤグラムと FFT 結果

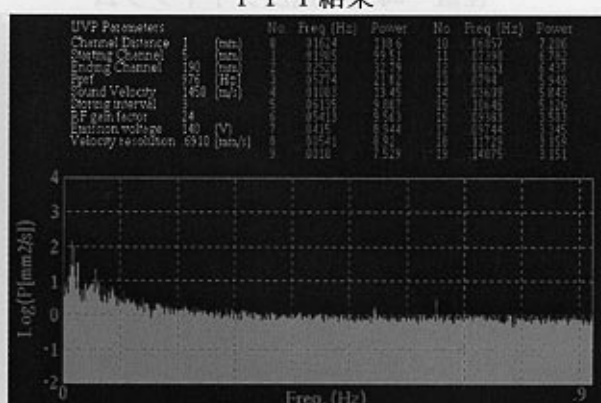
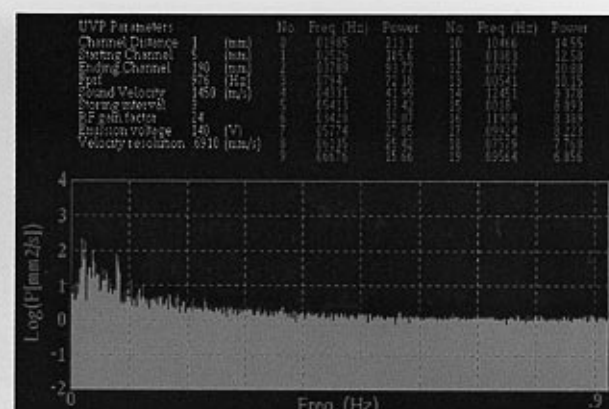
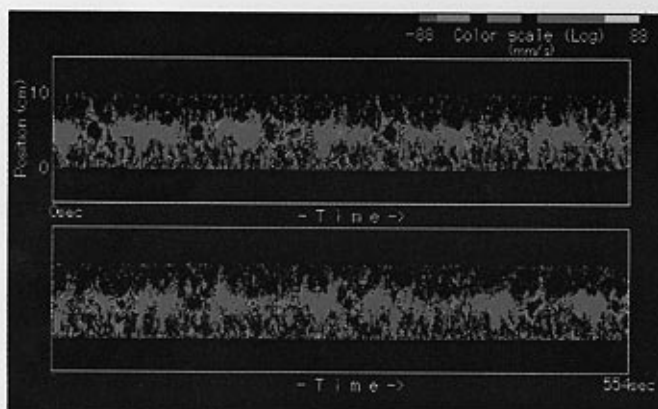
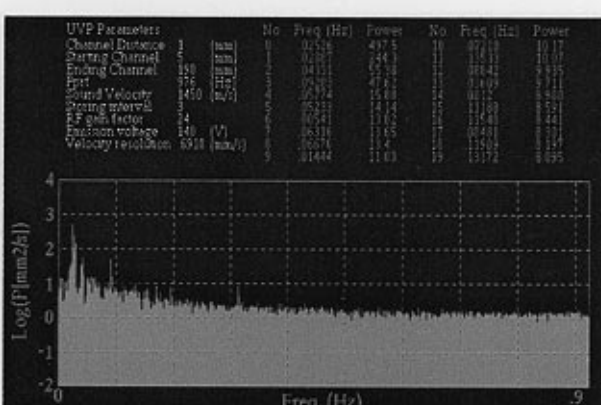
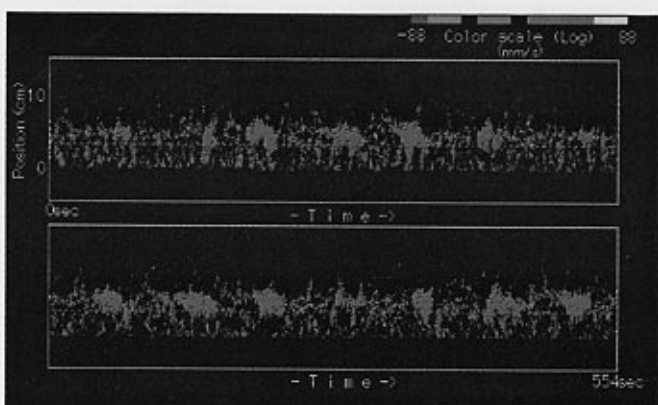


付録 2-1. 水銀実験 ($Gr=0$, $\Delta T=0K$) の位置 - 時間 - 速度ダイヤグラムと FFT 結果

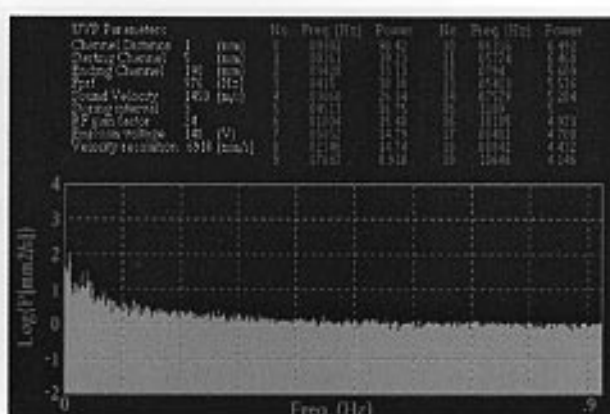
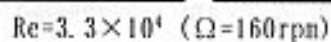
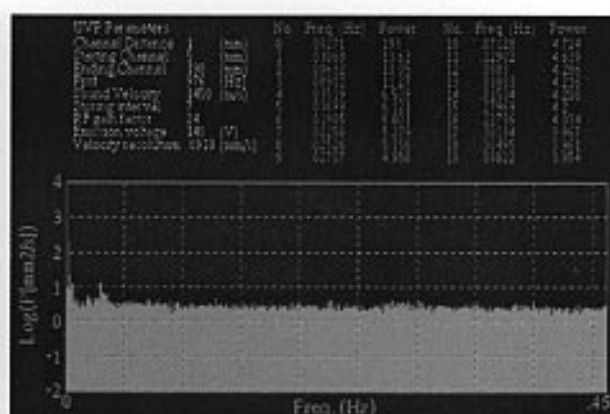
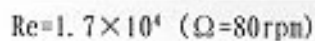
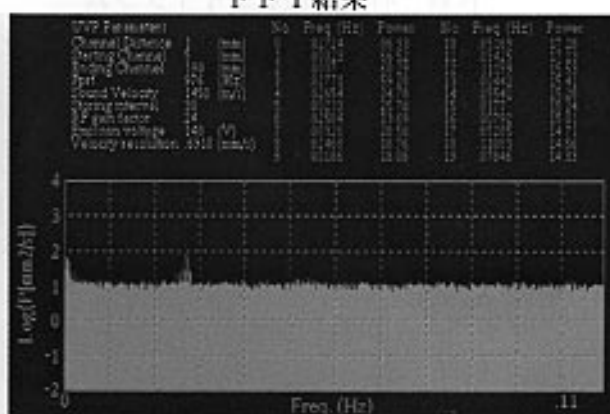
位置 - 時間 - 速度ダイヤグラム



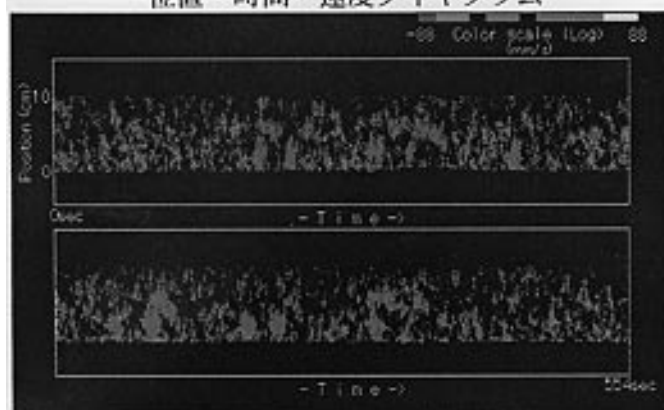
FFT結果

 $Re = 3.1 \times 10^4$ ($\Omega = 150 \text{ rpm}$) $Re = 4.1 \times 10^4$ ($\Omega = 200 \text{ rpm}$) $Re = 5.0 \times 10^4$ ($\Omega = 240 \text{ rpm}$)

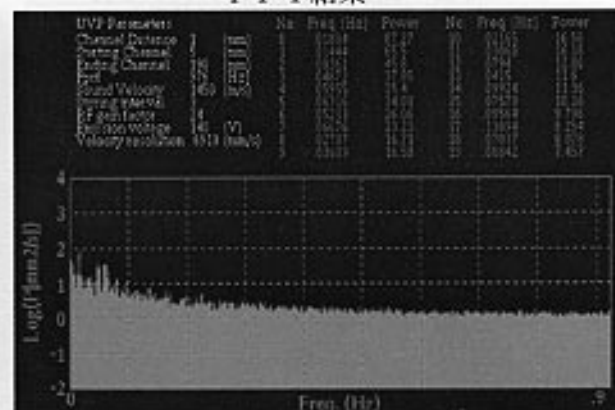
位置-時間-速度ダイアグラム



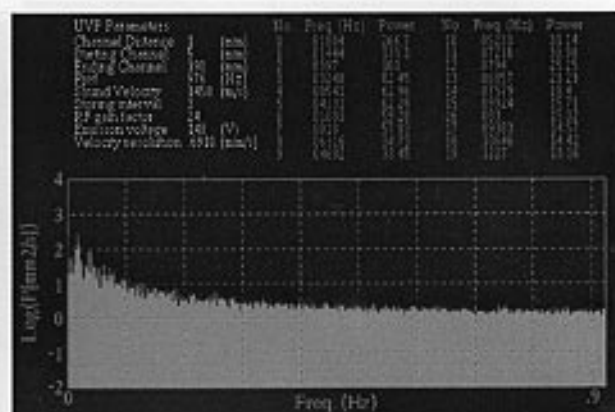
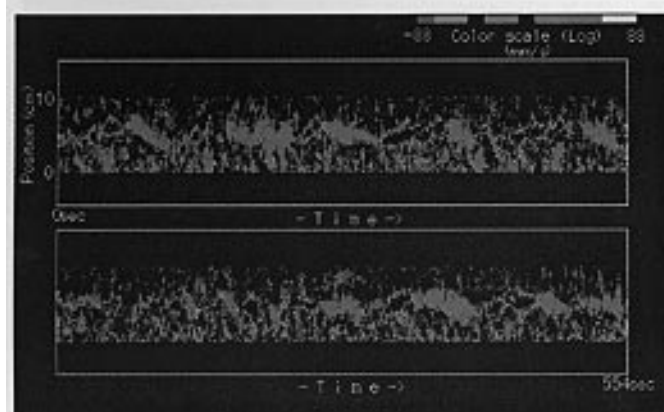
位置-時間-速度ダイアグラム



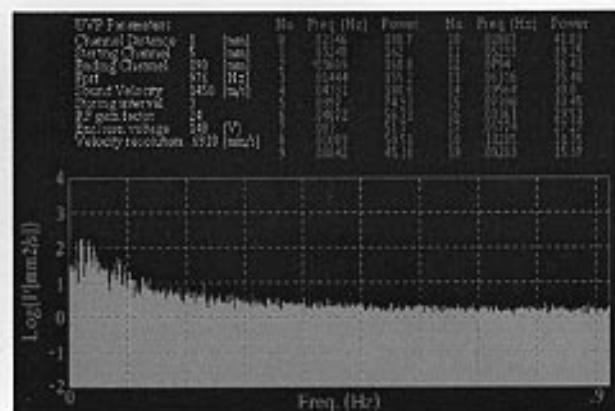
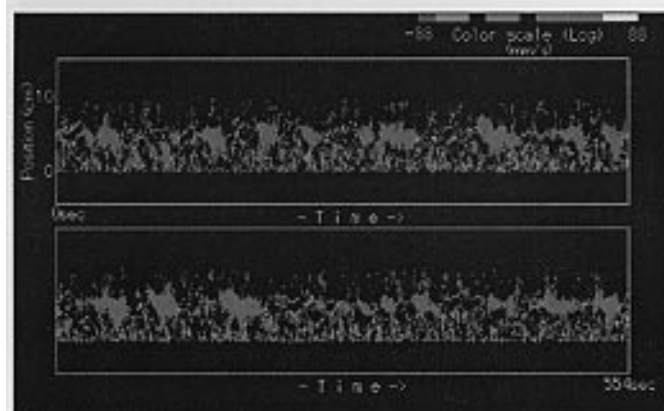
F F T 結果



$Re = 4.1 \times 10^4$ ($\Omega = 200 \text{ rpm}$)

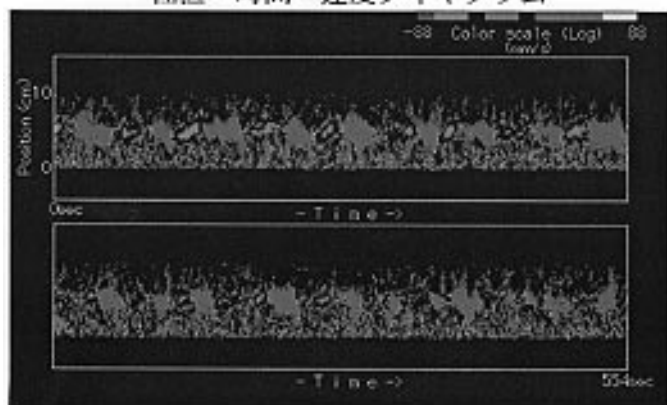


$Re = 5.0 \times 10^4$ ($\Omega = 240 \text{ rpm}$)

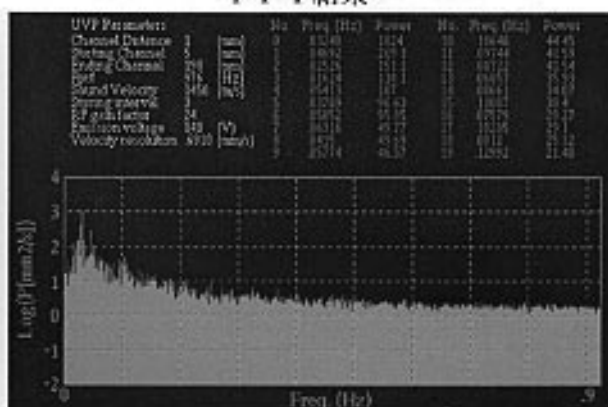
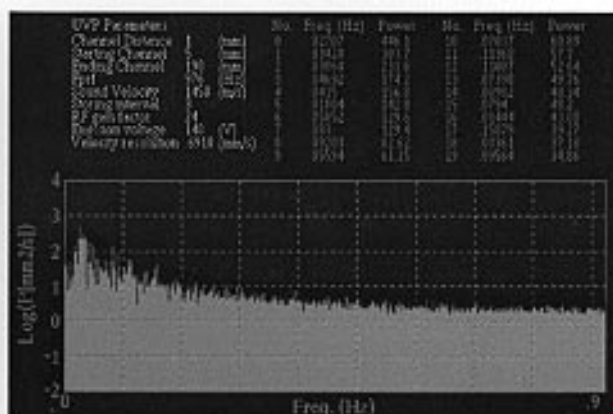
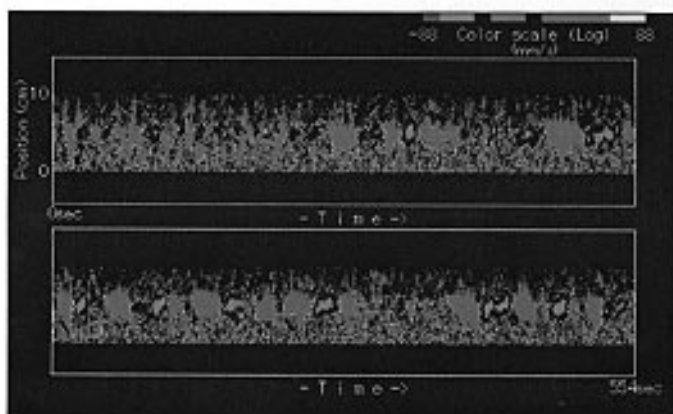


$Re = 5.4 \times 10^4$ ($\Omega = 260 \text{ rpm}$)

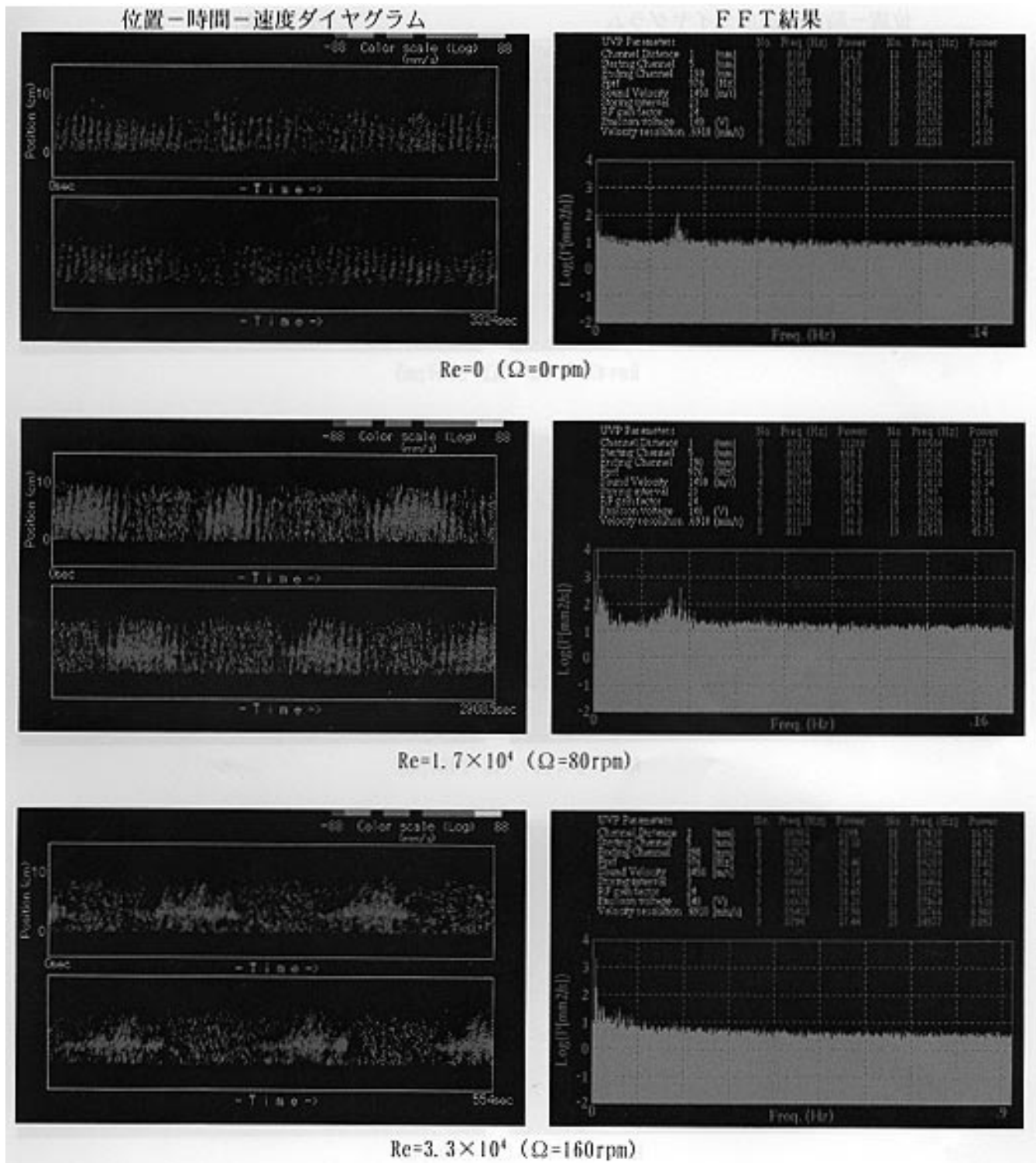
位置-時間-速度ダイヤグラム



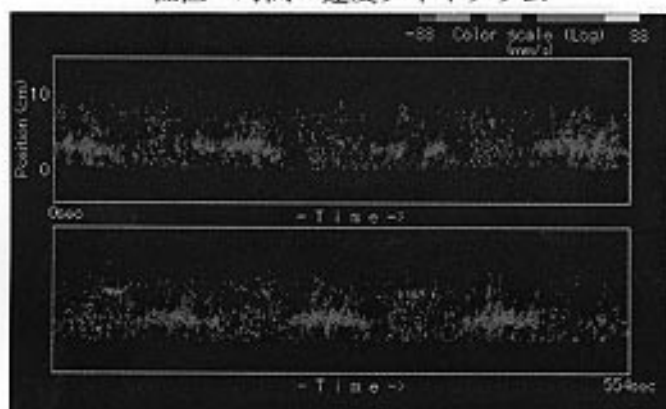
FFT結果


 $Re = 6.2 \times 10^4$ ($\Omega = 300 \text{ rpm}$)

 $Re = 6.9 \times 10^4$ ($\Omega = 335 \text{ rpm}$)

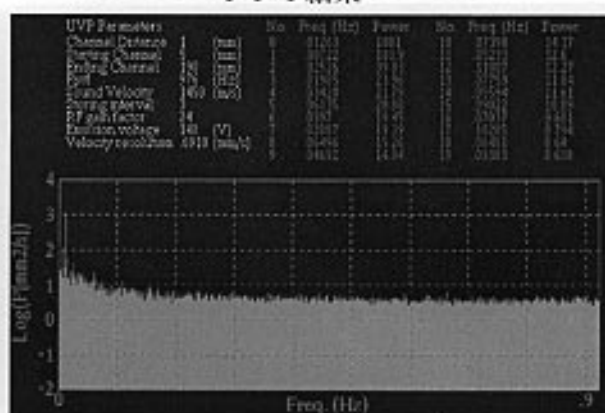
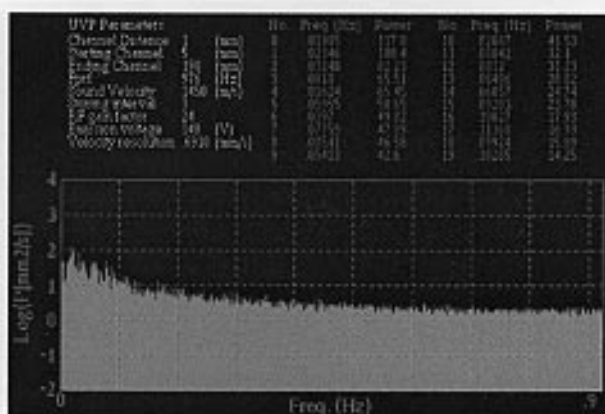
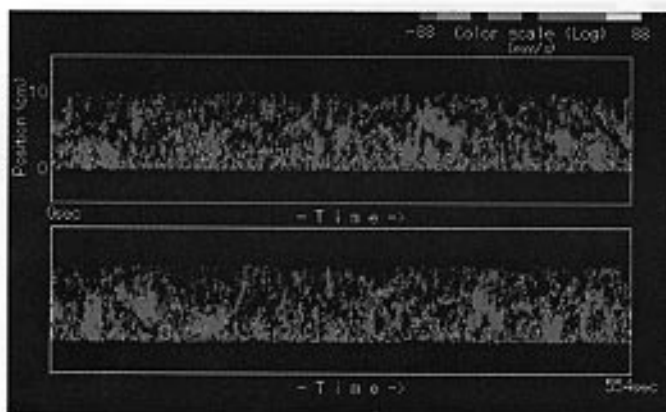
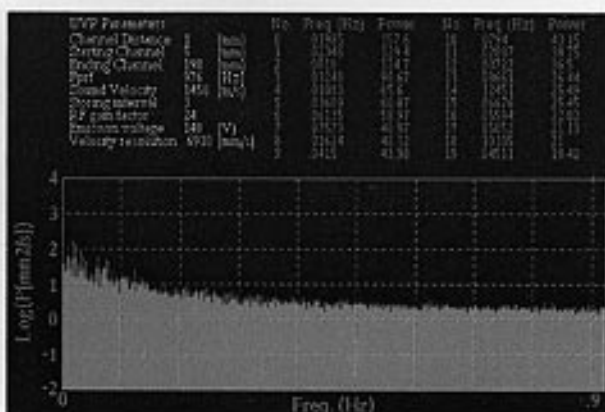
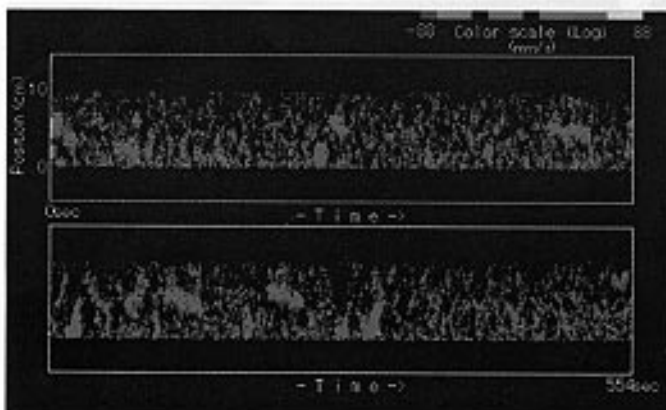
付録 2-3. 水銀実験 ($Gr=3.4 \times 10^8$, $\Delta T=20K$) の位置 - 時間 - 速度ダイヤグラムと FFT 結果



位置-時間-速度ダイアグラム



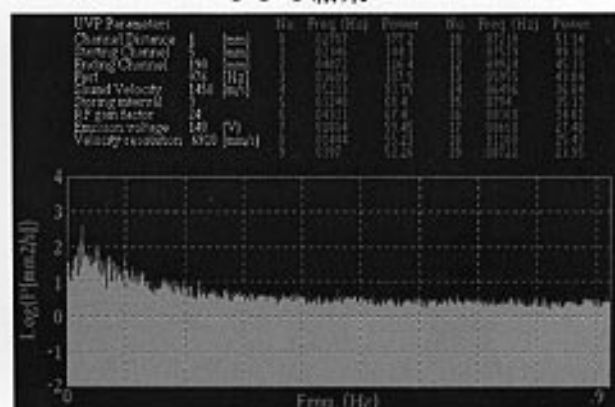
FFT結果

 $Re = 4.1 \times 10^4$ ($\Omega = 200 \text{ rpm}$) $Re = 5.0 \times 10^4$ ($\Omega = 240 \text{ rpm}$) $Re = 5.4 \times 10^4$ ($\Omega = 260 \text{ rpm}$)

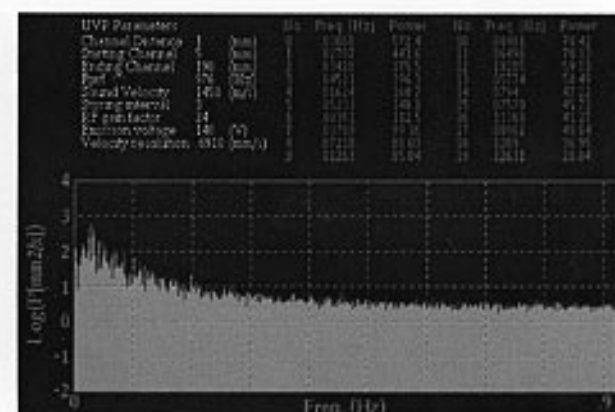
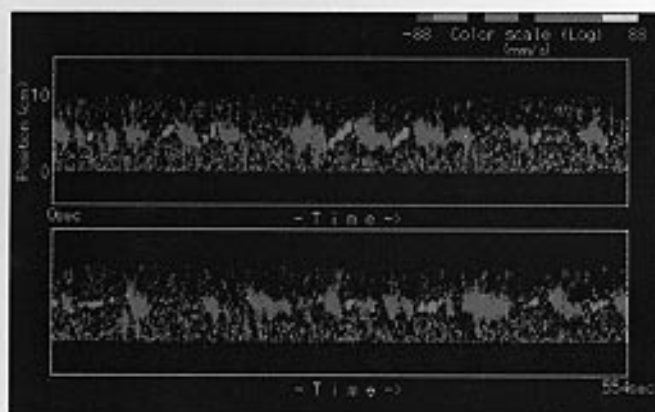
位置-時間-速度ダイヤグラム



FFT結果



$Re = 6.2 \times 10^4$ ($\Omega = 300 \text{ rpm}$)



$Re = 6.9 \times 10^4$ ($\Omega = 335 \text{ rpm}$)