

《小特集》

シリコン融液の表面張力の温度および酸素等不純物濃度依存性

向井楠宏*・袁章福*

ABSTRACT Surface tension of silicon melt was measured with the sessile drop method under precisely controlling the oxygen partial pressure, P_{O_2} , of argon atmosphere in relation to P_{O_2} , concentrations of boron and carbon in the melts, and temperature. Obtained relations between the surface tension and P_{O_2} , the impurity concentrations, and temperature in the range of $P_{O_2} \leq P_{O_2, sat}$ were fairly described with Szyskowski's equation and also the equations of temperature coefficient of surface tension which were derived by authors. Results obtained under $P_{O_2} > P_{O_2, sat}$ may have a close relation to the surface tension behavior of silicon melt in the Czochralski process. Deep understanding and explanation of the results obtained under $P_{O_2} > P_{O_2, sat}$ are still remained for the task of a future study.

1. はじめに

融液の対流は、一般にるつぼや結晶の回転による強制対流、融液の温度差に起因する浮力によって生ずる自然対流、融液の表面張力勾配に起因するマランゴニ対流からなるが、シリコン融液においてはマランゴニ対流の実態は十分に明確になっていない。その主な理由の一つとして、マランゴニ対流の解明に必須の基礎的なデータであるシリコン融液の表面張力が正確に測定されていないことがあげられる。即ち、シリコン融液の表面張力の測定は、向井らのレビュー¹⁾に述べられているように、これまでに多くの研究者によってなされてきたが、測定された表面張力の値には大きな差異があり、マランゴニ対流解明のための基礎データとしては、非常に不十分な状態にある。特に表面張力の温度、酸素依存性は、マランゴニ対流の解明に必須のデータであるが、酸素依存性についての定量的測定結果は皆無であり、酸素ポテンシャルが不明のままの温度依存性のデータが報告されているのみであり、しかもそれらの値には非常に大きな相違がある。

著者らは、シリコン融液の表面張力の酸素分圧依存性を精密に測定することを目的として、測定系の雰囲気コントロールなどの点で最も優れ、しかも、動的因子を含まない測定法である静滴法を用いて、アルゴン

ガス中の酸素分圧 P_{O_2} を精密にコントロールしうる装置を製作し、その装置を用いてシリコン融液の表面張力と酸素分圧、温度との関係を測定した。さらに、 P_{O_2} を制御（極低酸素分圧）した状態でシリコンの表面張力におよぼすシリコン中のホウ素 (B) と炭素 (C) の影響を測定した。

紙数の都合により、実験、考察等の詳細は省略した。既報の著者らの論文¹⁻³⁾を参照頂ければ幸いである。

2. 実験装置と方法

静滴法によるシリコン融液の表面張力測定装置の構成は表面張力測定炉、ガス精製装置、酸素分圧センサー、液滴形状撮影装置、デジタイザーとコンピュータ解析装置からなる。

表面張力測定炉は、反応管を通しての大気のリークを防ぐため、高純度アルミナよりなる2重管構造にした。ガスの精製系は、アルゴンガスについてはガス精製装置を通したのち、873 K 前後に加熱したマグネシウム炉を通すことによって、極低 P_{O_2} を実現した。 P_{O_2} はマグネシウム炉の温度を変化させることにより、 $10^{-25} \sim 10^{-14}$ MPa の間に制御できた。酸素分圧の測定には、固体電解質 ($ZrO_2 \cdot CaO$) よりなる酸素センサーを用いた。

シリコン試料(単結晶、酸素濃度 $< 10^{18}$ atoms/cm³, 約1.8 g) を BN (純度: 99.5%) 支持基板にのせ、アルゴン気流中で昇温し、測定温度に30 min 間保持してから、液滴の形状を撮影した。同時に、炉から排出されるガスの酸素分圧を1073 K において固体電解質

Dependence of the Surface Tension of Silicon Melts on Temperature and Impurity Elements such as Oxygen, Boron and Carbon. By Kusuhiro Mukai and Zhangfu Yuan (Dept. of Materials Science and Engineering, Kyushu Institute of Technology).

*九州工業大学工学部物質工学科

(ZrO₂·CaO) 酸素センサーで測定した。表面張力を求める方法としては、Rotenberg ら⁴⁾の提案した液滴の形状をデジタイザーで数値化してコンピューター解析する方法を用いた。表面張力の測定値としては、液滴の形状撮影開始後の測定値が一定に達したとみなせる 20 min 付近からの測定値 10 個の平均値を採用した。表面張力の最大測定誤差は±2%と見積られる。

静滴法を用いて表面張力の正確な値を求めるには、シリコン融液の正確な密度の値を知る必要がある。本研究では、筆者らの一人が開発したつぼ法⁵⁾により本研究の表面張力測定炉を用いて測定した密度⁶⁾を表面張力の算出に用いた。

測定前後のシリコン試料中のホウ素濃度の分析は誘導結合プラズマ発光分光装置 (I.C.P. 法) を用いて行った。測定前後のシリコン試料中の炭素分析は炭素・硫黄同時分析装置 (赤外線燃焼吸収法) を用いて行った。

3. 実験結果および考察

3.1 Si(l)-SiO₂(s)-O₂(g) 系の P_{O₂} の測定

図 1 に示すように、測定炉内に Si(l) と SiO₂(s) を共存させた状態で表面張力測定時と同一アルゴンガス流量において炉から排出されるガスの P_{O₂} を測定した。Si(l) と SiO₂(s) が共存する場合、Si(l)-SiO₂(s)-O₂(g) 系が平衡状態にあればその場合の気相中の平衡酸素分圧 P_{O₂}, すなわち P_{O₂,sat} は、反応(1)の平衡定数 K₁ が K₁=P_{O₂}⁻¹ となるので、ΔG₁^o=-RT ln K₁ より温

度のみ関数となる。即ち、温度が一定であれば一定の値を保つ。P_{O₂,sat} は次式(2)に示す ΔG₁^o より算出できる。



$$\Delta G_1^o = -952700 + 203.8 T(\text{J}) \quad (2)$$

図 1 には、そのようにして算出した P_{O₂,sat} と酸素センサーによる測定値 P_{O₂} との関係を示す。炉内に入るアルゴンガス中の酸素分圧 P_{O₂}ⁱⁿ を P_{O₂,sat} を中心にして 2 桁程度変化させても、排出ガス中の P_{O₂}^{out} は平衡値 P_{O₂,sat} に近づいている。それゆえ、図 1 で P_{O₂}^{out} が P_{O₂,sat} にほぼ一致している P_{O₂}ⁱⁿ (横軸) の範囲では、反応(1)は測定炉内において平衡状態にあるとみなせ、その時の P_{O₂,sat} の値は、炉から排出されるガス中 P_{O₂} 即ち P_{O₂}^{out} を酸素センサーで測定することにより求められることがわかる。

上記の結果より、P_{O₂} が P_{O₂,sat} 程度以下の、しかも P_{O₂} が 2 桁程度しか変化しないような測定条件のもとでは、排出ガス中の P_{O₂} (P_{O₂}^{out}) を測定すれば、その値をシリコン液滴中の酸素と平衡する酸素分圧とみなすことができる。それゆえ、本研究の P_{O₂}ⁱⁿ ≤ 10⁻¹⁸ MPa の条件では、前述のマグネシウム炉を用いて P_{O₂}ⁱⁿ を適当に変化させて、表面張力と P_{O₂}^{out} との関係を測定すれば、表面張力の酸素分圧依存性を明らかにできることになる。以後の P_{O₂} は特にことわりのない限りすべて P_{O₂}^{out} の値である。

3.2 P_{O₂} ≤ P_{O₂,sat} における表面張力と酸素分圧、酸素濃度との関係

1693 K, 1723 K, 1753 K, 1773 K の各温度における酸素分圧と表面張力との関係を図 2 に示す。図中の実線は実測点をもとに最小二乗法で求めたものである。各温度でのシリコン融液の表面張力は、シリコン融液が SiO₂(s) と平衡する場合の酸素分圧 P_{O₂,sat} 以下の P_{O₂} 領域では、P_{O₂} の増加とともに著しく低下する。

気相中の酸素とシリコン融液中の酸素が平衡にあるとみなした場合、次の反応(3)の標準自由エネルギー変化 ΔG₃^o を用いて、式(4)、(5)よりシリコン融液中の酸素濃度 C_O (mass%) が計算できる。



$$\Delta G_3^o = -306888 + 48.26 T(\text{J}) \quad (4)$$

$$K_3 = a_{\text{O}} / P_{\text{O}_2}^{1/2} \doteq C_{\text{O}} / P_{\text{O}_2}^{1/2} \quad (5)$$

ここで $\underline{\text{O}}_{\text{Si}}$ はシリコン融液中の酸素、T は絶対温度、a_O はシリコン融液中の酸素活量であり、濃度が非常に低いので a_O ≐ C_O (mass%) とおける。K₃ は反応(3)の平衡定数である。

そこで、図 2 の表面張力と酸素分圧との関係を、上

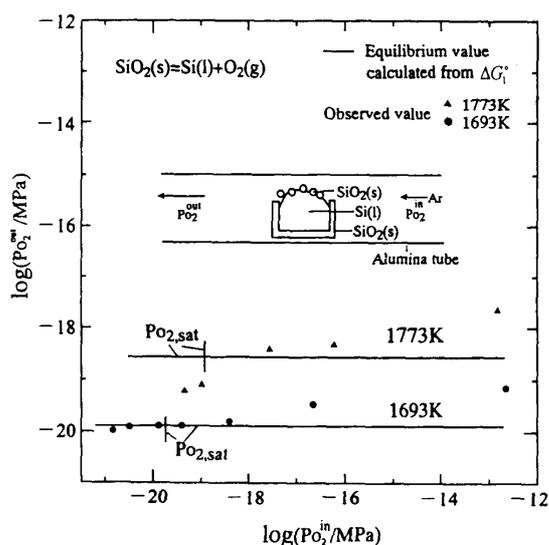


図 1 SiO₂(s)-Si(l)-O₂(g) 系における酸素分圧 P_{O₂}ⁱⁿ と P_{O₂}^{out} との関係

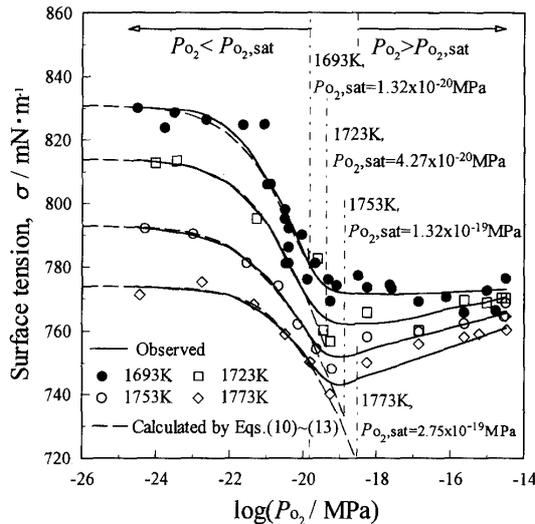


図2 シリコン融液の表面張力と酸素分圧との関係

記熱力学的計算により表面張力と酸素濃度との関係で表わしたのが図3である。図中の実線は実測点をもとに最小二乗法で求めたものである。図より、表面張力は酸素飽和濃度 $C_{O, sat}$ に到達するまでは、酸素濃度の増加とともに著しく低下する。すなわち酸素は1693 Kから1773 Kの温度範囲において非常に強い表面活性成分であることがわかった。

式(6)は、表面張力と酸素濃度との関係を表わす関係式であり、*Szyszkowski*⁹⁾が表面活性物質を含む希薄水溶液系の表面張力と吸着との関係式として経験的に導いたものであり、*March*ら¹⁰⁾がその後2元系溶液の化学ポテンシャルから理論的に導き出した式でもある。

$$\sigma^\circ - \sigma = RT\Gamma_o^\circ \ln(1 + K_O a_o) \quad (6)$$

ここで、 σ° は純シリコン融液の表面張力、すなわち、酸素濃度零におけるシリコン融液の表面張力である。 Γ_o° はGibbsの吸着式(7)から求められる酸素の飽和表面過剰量である。

$$\Gamma_o^\circ = -\frac{1}{RT} \frac{\partial \sigma}{\partial \ln a_o} \quad (7)$$

式(6)は萩野¹¹⁾ら、*Belton*¹²⁾や他の研究者によって溶鉄系にも適用されている。本系においても酸素の吸着平衡および反応(3)の平衡を仮定すれば、式(6)が適用できる。式(6)と式(5)を組み合わせることで、表面張力と気相中の P_{O_2} との関係を表わす式(8)が導かれる。

$$\sigma^\circ - \sigma = RT\Gamma_o^\circ \ln(1 + K_p P_{O_2}^{1/2}) \quad (8)$$

K_O は吸着係数で、次式(9)で示される融液表面にお

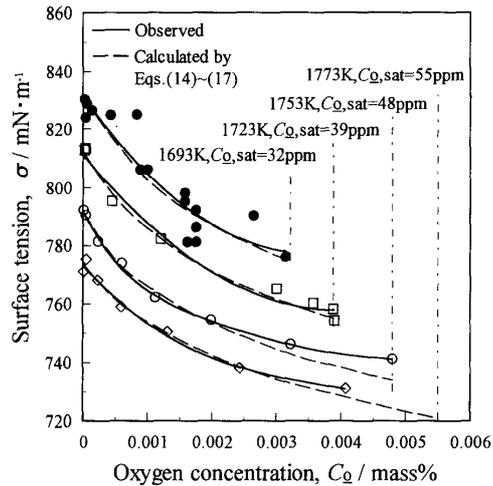


図3 シリコン融液の表面張力と酸素濃度との関係

ける酸素の吸着反応の平衡定数である。 $K_p = K_3 \cdot K_O$



V^* は未吸着席、 O^* は吸着酸素である。

まず、式(8)を用いて1693~1773 Kにおける本系の測定値を記述することを試みる。その際、各温度における測定値を酸素分圧零 ($C_O = 0$) まで外挿することにより求めた値を σ° として用いた。溶鉄系での Γ_o° は1873~2023 Kの間でほとんど変化しないことが報告されている¹³⁾。そこで本系においても1723~1773 Kでの Γ_o° (以下 Γ° で記述) として1693 Kにおける値 $\Gamma^\circ = 2.1 \times 10^{-6} \text{ mol/m}^2$ を採用した。このような σ° 、 Γ° および各温度のもとで、式(8)に実測値 σ および P_{O_2} を代入し、最小二乗法により、 K_p の最適値を求めた。

各温度でのシリコン融液の表面張力 ($\sigma/\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$) と酸素分圧 (P_{O_2}/MPa) との関係を表わす式(10)~(13)に示す。

$$\sigma = 831 - 29.5 \ln(1 + 3.88 \times 10^{10} P_{O_2}^{1/2}), \quad 1693 \text{ K} \quad (10)$$

$$\sigma = 814 - 30.1 \ln(1 + 3.06 \times 10^{10} P_{O_2}^{1/2}), \quad 1723 \text{ K} \quad (11)$$

$$\sigma = 793 - 30.6 \ln(1 + 2.47 \times 10^{10} P_{O_2}^{1/2}), \quad 1753 \text{ K} \quad (12)$$

$$\sigma = 774 - 31.0 \ln(1 + 1.01 \times 10^{10} P_{O_2}^{1/2}), \quad 1773 \text{ K} \quad (13)$$

式(10)~(13)を用いてシリコン融液の表面張力と酸素分圧との関係を求め、図2に破線で表わした。酸素の飽和溶解度に相当する酸素分圧、すなわち $P_{O_2, sat}$ 以下の P_{O_2} では、破線と実線は良く一致している。図よ

り高温になるほど酸素分圧の増加に対する表面張力の低下割合は減少することがわかる。

次に式(6)を用いて、表面張力と酸素濃度 (C_O /mass%) との関係性を求め、式(14)~(17)を得た。

$$\sigma = 831 - 29.5 \ln(1 + 1944 C_O), 1693 \text{ K} \quad (14)$$

$$\sigma = 814 - 30.1 \ln(1 + 1573 C_O), 1723 \text{ K} \quad (15)$$

$$\sigma = 793 - 30.6 \ln(1 + 1395 C_O), 1753 \text{ K} \quad (16)$$

$$\sigma = 774 - 31.0 \ln(1 + 1001 C_O), 1773 \text{ K} \quad (17)$$

式(14)~(17)による計算結果を実測値とともに図3に破線で示した。破線は実測結果をよく記述している。

3.3 $P_{O_2} \leq P_{O_2, \text{sat}}$ における表面張力の温度依存性

図4には P_{O_2} 一定での表面張力と温度との関係性を示す。図より、 P_{O_2} 一定のもとで表面張力は、1693 K~1773 Kの間で温度の上昇とともにほぼ直線的に減少し、しかも P_{O_2} が増加すると表面張力の減少割合は小さくなる。図中、実線は実測点をもとに、表面張力と温度との関係を直線とみなして最小二乗法で求めたものであり、破線は式(10)~(13)より求めたものである。図4に示した直線の勾配より、1693 Kから1773 Kまでの温度範囲における表面張力の温度係数 $(\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}}$ が得られる。 $P_{O_2} = 3.9 \times 10^{-25}$ MPa の場合、表面張力の温度依存性は次式で示される。

$$\sigma = 835 - 0.74 (T - 1693), \text{ mN/m} \quad (18)$$

ここで $K^p = (\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}} = -0.74 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 、すなわち、この場合の表面張力の温度係数の絶対値 $|K^p|$ は、これまでの発表された文献の中で最も高い値であり、その表面張力値は Keene¹⁴⁾ が分類した高い値のグ

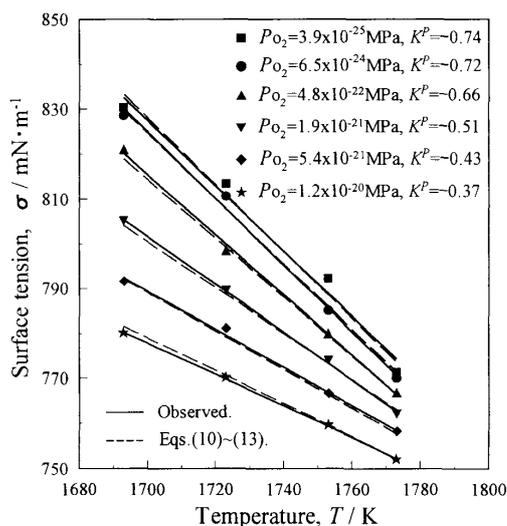


図4 $P_{O_2} \leq P_{O_2, \text{sat}}$ におけるシリコン融液の表面張力の温度依存性

ループに属している。

図5には $P_{O_2} = 10^{-25} \sim 10^{-14}$ MPaの広い範囲におけるシリコン融液の表面張力の温度係数 K^p と酸素分圧 P_{O_2} との関係性を示した。極低酸素分圧 ($P_{O_2} \leq 10^{-22}$ MPa)のもとでは、 P_{O_2} が増加しても、表面張力温度係数 $(\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}}$ はほとんど増大せず、ほぼ一定の値を示す。 P_{O_2} : $10^{-22} \sim 10^{-19}$ MPaの範囲内 ($P_{O_2, \text{sat}}$ 付近まで)では、 $(\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}}$ は P_{O_2} の増加とともにほぼ直線的に急激に増加する。それ以上の高酸素分圧 ($P_{O_2} > P_{O_2, \text{sat}}$)のもとでも、 $(\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}}$ は P_{O_2} の増加とともに増大し、著しく高い値を示す。温度係数は酸素分圧に依存しており、酸素分圧の増加とともに大きくなる。すなわち温度係数の絶対値 $|(\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}}|$ は小さくなる。しかも酸素分圧が大きくなるにつれて、酸素分圧の増加に対する $|(\partial\sigma/\partial T)_{P_{O_2}}|$ の低下割合は減少する。

シリコン融液—気相間平衡、及び融液表面での吸着平衡を仮定することにより、表面張力の温度係数と温度、酸素分圧、あるいは温度、酸素濃度との関係式(19),(20)を導出した。図5の破線は式(19)より求めたものである。

$$\begin{aligned} K_{\text{ave}}^p &= \int_{T_1}^{T_2} K^p dT / \int_{T_1}^{T_2} dT \\ &= K^\circ - R\Gamma^\circ \{ T_1 \ln(1 + K_{p_1} P_{O_2}^{1/2}) \\ &\quad - T_2 \ln(1 + K_{p_2} P_{O_2}^{1/2}) \} / (T_2 - T_1) \\ &= -0.90 + 0.370 \ln(1 + 6.62 \times 10^{10} P_{O_2}^{1/2}) \\ &\quad - 0.387 \ln(1 + 8.22 \times 10^9 P_{O_2}^{1/2}) \quad (19) \end{aligned}$$

ここで K_{p_1} , K_{p_2} は、それぞれ T_1 (1693 K), T_2 (1773 K) の場合の K_p である。同様に、表面張力の温度係数と温度、酸素濃度との関係式は次式(20)で表わされ

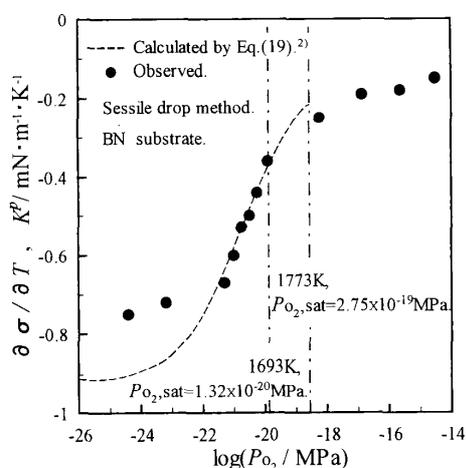


図5 表面張力の温度係数と酸素分圧との関係

る。

$$\begin{aligned} K_{ave}^{\epsilon} &= \int_{T_1}^{T_2} K^{\epsilon} dT / \int_{T_1}^{T_2} dT \\ &= K^{\circ} - RT^{\circ} \{ T_1 \ln(1 + K_{O_1} C_{O_1}) \\ &\quad - T_2 \ln(1 + K_{O_2} C_{O_2}) \} / (T_2 - T_1) \\ &= -0.90 + 0.370 \ln(1 + 2382 C_{O_2}) \\ &\quad - 0.387 \ln(1 + 791 C_{O_1}) \quad (20) \end{aligned}$$

ここで K_{O_1} , K_{O_2} は、それぞれ T_1 (1693 K), T_2 (1773 K) の場合の K_O である。式(19)と式(20)は実測結果をよく記述しているとみなせる。

3.4 $P_{O_2} > P_{O_2, sat}$ における表面張力及びその温度係数と P_{O_2} との関係

図2, 5には, $P_{O_2} > P_{O_2, sat}$ の測定結果³⁾も示した。 $P_{O_2} > P_{O_2, sat}$ の場合では, 表面張力は, P_{O_2} が増加しても殆ど変化しなくなり, 高温では, わずかではあるが増加する傾向さえみとれる。その結果, 表面張力の温度係数は P_{O_2} の増加とともにわずかではあるが増加する傾向を示し, Keene のレビュー¹⁴⁾に紹介されている表面張力の温度係数の値に近い高い値(絶対値では低い)になっている。しかし, 得られたこれらの結果の解釈については, これからの解明に待つところが殆どであり, 今後の興味深い問題として残されている。

3.5 表面張力に及ぼす不純物成分 (B, C) の影響

前述のように, 酸素は非常に強い表面活性成分であるから, 表面張力に及ぼすシリコン中の不純物成分 (B, C) の影響を調べるには, 雰囲気中の酸素分圧を精密に制御した状態で測定をしなければならない。本測定装置を用いて $P_{O_2} \leq 10^{-22}$ MPa の極低酸素分圧下で, シリコン融液の表面張力に及ぼすホウ素, 炭素成分の影響を測定した。

図6に Si-B 系の表面張力と C_B の関係および他の測定者の値¹⁴⁾をまとめて示す。飽和ホウ素濃度 (約3.2 mass%¹⁵⁾) 以内の表面張力は C_B の増加とともに増大し, 温度が高くなるほど, 増大の割合が大きくなる。図中の破線は, 酸素の場合と同様, 式(6)を用いて, 以下の式(21)~(24)より, ホウ素濃度と表面張力の関係を示したものであり, 実測値をよく記述している。

$$\sigma = 821 + 6.37 \ln(1 + 4.49 C_B) \text{ mN/m, } 1693 \text{ K} \quad (21)$$

$$\sigma = 809 + 8.07 \ln(1 + 6.84 C_B) \text{ mN/m, } 1703 \text{ K} \quad (22)$$

$$\sigma = 799 + 11.9 \ln(1 + 4.40 C_B) \text{ mN/m, } 1713 \text{ K} \quad (23)$$

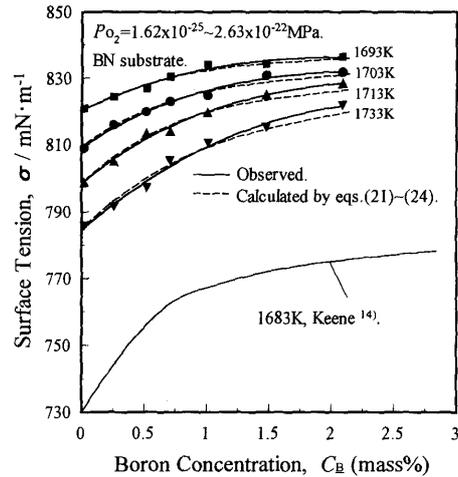


図6 Si-B系の表面張力に及ぼすホウ素濃度の影響

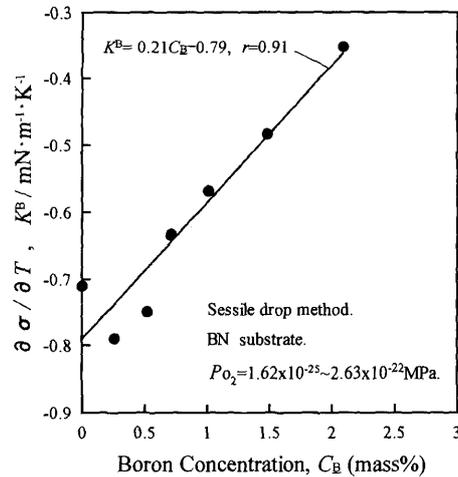


図7 表面張力の温度係数とホウ素濃度との関係

$$\sigma = 785 + 14.9 \ln(1 + 3.81 C_B) \text{ mN/m, } 1733 \text{ K} \quad (24)$$

式(21)と式(14)から1693 Kにおける Si-B-O 系の表面張力を表わす式(25)を得た。

$$\begin{aligned} \sigma &= 831 - 29.5 \ln(1 + 1944 \times C_{O_2}) \\ &\quad + 6.37 \ln(1 + 4.49 C_B) \quad 1693 \text{ K} \quad (25) \end{aligned}$$

式(25)による計算値は Si-B-O 系の表面張力測定値¹⁶⁾とよく一致した。

図7にシリコン融液の表面張力の温度係数と C_B の関係を示す。 C_B の変化による温度係数 $(\partial\sigma/\partial T)_{C_B} = K^B$ の変化は $-0.35 \sim -0.79 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ であり, C_B が高くなるほど, 温度係数の絶対値 $|K^B|$ は小さくなる。図5に示した P_{O_2} の影響と同様に, ホウ素に対

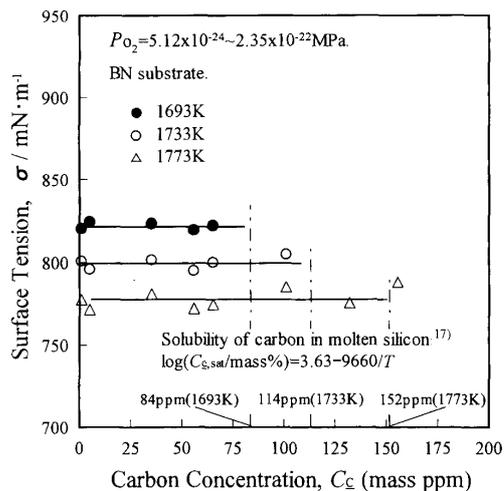


図8 シリコン融液の表面張力に及ぼす炭素濃度の影響

しても $|K^B|$ は C_B 濃度の増加とともに減少する。

1693 K, 1733 K, 1773 K におけるシリコン融液の表面張力と C_C の関係を図8に示す。シリコン中の C_C が増加しても、炭素の飽和濃度¹⁷⁾以下の範囲では、シリコン融液の表面張力は殆ど変化しない。また、シリコン融液の表面張力の温度係数 $(\partial\sigma/\partial T)_{C_C} = K^C$ と C_C の関係は、 $C_C \leq 84$ mass ppm (1693 K での $C_{C,sat}$) の範囲では、殆ど一定の値を示す。

4. おわりに

酸素分圧 P_{O_2} が飽和酸素分圧 $P_{O_2,sat}$ より低い範囲のシリコン融液の表面張力について、実験とその解析により、酸素分圧あるいは酸素濃度、ホウ素濃度、炭素濃度および温度の関数として記述することができた。

チョクラルスキー法の操業条件は減圧の状態であり、酸素分圧については $P_{O_2} > P_{O_2,sat}$ の範囲を含む領域も考えなければならないと思われる。それゆえ、今後、大気圧下における $P_{O_2} > P_{O_2,sat}$ および減圧状態における $P_{O_2} > P_{O_2,sat}$ での表面張力の温度、不純物濃度依存性の解明が、チョクラルスキー法におけるシリコン融液のマランゴニ対流あるいは広くは融液流動の理解と制御にとって重要なものになるとと思われる。

参考文献

- 1) 向井楠宏, 牛正 剛: シリコン融液の表面張力測定,

- 日本結晶成長学会誌, 23-2, 93/99 (1996)
- 2) 牛正 剛, 向井楠宏, 白石 裕, 日比谷孟俊, 柿本浩一, 小山正人: シリコン融液の表面張力に及ぼす酸素と温度の影響, 日本結晶成長学会誌, 24-4, 369/378 (1997)
- 3) K. Mukai, Z. Yuan, K. Nogi, T. Hibiya: Effect of Oxygen Partial Pressure on the Surface Tension of Molten Silicon and its Temperature Coefficient, *ISIJ International*, 40-Supplement, S148/S152 (2000)
- 4) Y. Rotenberg, L. Boruvka, A. W. Neumann: Determination of Surface Tension and Contact Angle from the Shapes of Axisymmetric Fluid Interface, *J. Colloid Interface Sci.*, 93-1, 169/183 (1983)
- 5) 余 伸 達, 向井楠宏: メニスカス形状からの液体酸化物の表面張力と密度の測定, 日本金属学会誌, 59-8, 806/813 (1995)
- 6) K. Mukai and Z. Yuan: Measurement of the Density of Molten Silicon by a Modified Sessile Drop Method, *Materials Transactions, JIM*, 41-2, 323/330 (2000)
- 7) T. Narushima, K. Matsuzawa, Y. Mukai, Y. Iguchi: Oxygen Solubility in Liquid Silicon, *Materials Transaction, JIM*, 35-8, 522/528 (1994)
- 8) H. Hirata and K. Hoshikawa: Oxygen Solubility and its Temperature Dependence in a Silicon Melt in Equilibrium with Solid Silica, *J. Crystal Growth*, 106, 657/664 (1990)
- 9) B. V. Szyszowski: *Z. Phys. Chem.*, 64, 385/389 (1908)
- 10) N. H. March and P. M. Tosi: *Atomic Dynamics in Liquids*, MacMillan, London, 256 (1976)
- 11) 荻野和己, 野城 清, 細井千秋: 熔融 Fe-O-S 合金の表面張力, 鉄と鋼, 69-16, 1989/1994 (1983)
- 12) G. R. Belton: Langmuir Adsorption, the Gibbs Adsorption Isotherm, and Interfacial Kinetics in Liquid Metal Systems, *Metall. Trans.*, 7B-March, 35/42 (1976)
- 13) 瀧内直祐, 谷内貴之, 田中泰邦, 篠崎信也, 向井楠宏: 溶鉄の表面張力およびアルミナとのぬれ性におよぼす酸素と温度の影響, 日本金属学会誌, 55-2, 180/185 (1991)
- 14) B. J. Keene: A Review of the Surface Tension of Silicon and its Binary Alloys with Reference to Marangoni Flow, *Surface and Interface Analysis*, 10, 367/383 (1987)
- 15) R. W. Olesinski, G. J. Abbaschian: *Binary Alloy Phase Diagrams*, Vol. 1, ed. by T. B. Massalski, American Society for Metals, 384/385 (1986)
- 16) K. Mukai and Z. Yuan: Effects of Boron and Carbon on the Surface tension of Molten Silicon under Precisely Controlled Oxygen Partial Pressure, *Materials Transactions, JIM*, 41-2, 331/337 (2000)
- 17) K. Yanaba, M. Akasaka, M. Watanabe, T. Narushima, Y. Iguchi: Solubility of Carbon in Liquid Silicon Equilibrated with Silicon Carbide, *Materials Transactions, JIM*, 38-11, 990/994 (1997)