

令和 2 年 6 月 29 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14584

研究課題名(和文) 流体構造連成解析を用いたメガソニック洗浄における粒子除去メカニズムの解明

研究課題名(英文) Clarification of Mechanism of Particle Removal by Megasonic Cleaning using Fluid Structure Coupling Method

研究代表者

落合 直哉 (Ochiai, Naoya)

東北大学・流体科学研究所・助教

研究者番号：40614508

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、メガソニック洗浄における粒子除去メカニズムを検討するために、メガソニック場中の気泡挙動の流体解析と付着粒子の構造解析の連成解析手法を構築した。流体解析には圧縮性気液二相局所均質媒体モデルを、構造解析には拡張個別要素法を用い、付着粒子と壁面間にVan der Waals力を考慮した。本解析手法によってメガソニック場中の気泡振動に誘起する圧力によってはく離される付着粒子挙動を解析可能となった。解析結果から、圧力が作用する方向や気泡の振動回数などの影響はあると考えられるが、 $0.25\ \mu\text{m}$ の付着粒子を除去するためには1MPa程度の圧力が作用する必要があることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって、メガソニック場中の気泡分布などの洗浄条件からどの程度の粒子除去力が推定されるのか、その除去力によって粒子除去がなされるのかという一貫したメガソニック洗浄の数値解析が可能となった点に学術的及び社会的意義がある。特に、付着粒子を除去するために必要となる圧力及び気泡の条件を明らかにできたことは、メガソニック洗浄における粒子除去メカニズムを明かにするために重要な知見であり、ダメージレスで効率的な半導体洗浄手法の確立へつなげるものとなった。

研究成果の概要(英文)：In the present study, a coupled numerical analysis of the bubble behavior in a megasonic field and the adhered particle on a wall are proposed. The bubble behavior is simulated by a compressible locally homogeneous model of a gas-liquid two-phase medium. The adhered particle is simulated by extended distinct element method. Van der Waals force between the adhered particle and the wall is considered. The present method simulates the bubble behavior in a megasonic field and the induced pressure field, and the oscillation and the removal of the adhered particle. The simulation results show that the pressure higher than 1 MPa can remove the adhered particle with the radius of  $0.25\ \mu\text{m}$  from a wall although the direction of pressure gradient induced by a bubble oscillation and the number of bubble oscillation influence the threshold pressure.

研究分野：流体工学

キーワード：メガソニック 流体構造連成解析 個別要素法 粒子除去

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

半導体製造において、ウェハに付着する汚染物質が半導体の品質に大きな影響を与えるため、半導体洗浄工程は非常に重要な工程である。半導体デバイスの微細化のために、従来と異なる材料の使用が検討されているが、これらの材料は従来のバッチ浸漬式の化学洗浄手法では溶解させてしまう恐れがある。そのためさまざまな物理洗浄手法が提案されている。

物理洗浄手法の一つがメガソニック洗浄である。メガソニック洗浄では、誘起される音響流、粒子まわりに形成される圧力勾配、液体の局所静圧がその飽和蒸気圧より下がる際に液体が気化して発生するキャビテーション気泡などによって粒子除去がなされると言われているがその詳細なメカニズムはいまだに不明である。一方で、キャビテーション気泡の崩壊によって引き起こされる圧力波は、場合によってはナノデバイスにダメージを与えることがある。そのため、メガソニック洗浄を確立したダメージレス洗浄手法にするためには、メガソニック洗浄における粒子除去メカニズムを明らかにする必要がある。

メガソニック洗浄における粒子除去に関しては、過去の理論的な研究[1-3]などから、粒子除去に必要な力がどの程度であるかといった点についてはわかってきている。一方で、これまでの研究は、メガソニック場中の気泡挙動が及ぼす除去力などの粒子除去を及ぼす力について考慮できず、粒子除去メカニズムを明らかにするには不十分である。

研究代表者は、これまでにメガソニック場中で振動する単一気泡及び複数気泡挙動を数値解析し[4-6]、音響場中の気泡挙動や気泡間相互作用が複数気泡挙動に及ぼす影響について明らかにしてきた。これらの研究で用いたメガソニック場中の気泡挙動の数値解析手法は、気泡挙動が及ぼす粒子除去力及び気泡分布などが粒子除去力に与える影響を再現することが期待でき、本手法と除去対象粒子の構造解析を組み合わせることによって、メガソニック洗浄における粒子除去メカニズムを明らかにできると考え、本研究の着想に至った。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、メガソニック洗浄における付着粒子除去挙動の数値解析手法の構築と粒子除去メカニズムの解明を目的とする。メガソニック場中の気泡挙動には流体の数値解析手法を、除去対象となる付着粒子挙動には構造の数値解析手法を用いた、流体構造連成数値解析手法を構築する。さらに本手法を用いて、メガソニック場中の気泡挙動及びそれが誘起する圧力場の影響を受ける付着粒子のはく離挙動を解析することで、メガソニック洗浄における粒子除去メカニズムの解明を目指す。

### 3. 研究の方法

#### 3.1 流体の数値解析手法

流体側の解析には、圧縮性気液二相局所均質媒体モデルを用いた。均質媒体の状態方程式は、以下ようになる：

$$\rho = \frac{p(p + p_c)}{K_1(1 - Y)p(T + T_0) + R_g Y(p + p_c)T}$$

ここで、 $\rho$ 、 $p$ 、 $T$ は、均質媒体の密度、圧力、温度、 $p_c$ 、 $K_1$ 、 $T_0$ 、 $R_g$ 、状態方程式に関わる定数である。

支配方程式は、以下の通りとなる：

$$\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t} + \frac{\partial (\mathbf{E}_j - \mathbf{E}_{vj})}{\partial x_j} = \mathbf{S},$$
$$\mathbf{Q} = \begin{bmatrix} \rho \\ \rho u_i \\ e \\ \rho Y \\ \rho Y D_a \end{bmatrix}, \quad \mathbf{E}_j = \begin{bmatrix} \rho u_j \\ \rho u_i u_j + \delta_{ij} p \\ \rho u_j H \\ \rho u_j Y \\ \rho u_j Y D_a \end{bmatrix}, \quad \mathbf{E}_{vj} = \begin{bmatrix} 0 \\ \tau_{ij} \\ -q_j + \tau_{jk} u_k \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad \mathbf{S} = \begin{bmatrix} 0 \\ -\kappa \sigma_{st} n_i \\ 0 \\ \dot{m} \\ 0 \end{bmatrix},$$

ここで、第1式は均質媒体の質量保存の式、第2式は運動量保存の式、第3式はエネルギー保存の式、第4式と第5式はそれぞれ気相と非凝縮性気体の質量保存の式である。また、 $u_i$ は*i*方向速度、 $e$ は単位体積当たりの全エネルギー、 $D_a$ は気相内非凝縮性気体の密度比、 $H$ 、 $\tau_{ij}$ 、 $q_j$ は、全エンタルピ、せん断応力、熱流束である。 $\mathbf{S}$ はソース項であり、運動量保存の式では表面張力項を、気相の質量保存の式では蒸発凝縮項を考慮している。

本研究では、メガソニック波を引き起こす振動子を模擬した壁面と水面との間で形成される定在波中の気泡挙動を数値解析する。このために振動子を模擬した壁面では、以下のように壁

面垂直方向速度  $v$  の境界条件を与える:

$$v = \begin{cases} A_{am} \sin(2\pi ft) & (t < 2h_w/C) \\ A_{am} \sin(2\pi ft) + A_{am} \sin(2\pi f(t - 2h_w/C)) & (t \geq 2h_w/C) \end{cases}$$

ここで,  $A_{am}$  と  $f$  は, 速度の振動振幅と振動数であり, 本研究では,  $A_{am} = 0.02$  m/s,  $f = 1$  MHz とした.  $h_w$  は壁面から水面までの距離で,  $C$  は音速である. 振動壁から誘起されたメガソニック波は, 水面に到達すると反射する. 境界条件では, この反射波が到達した際の影響についても考慮している.

### 3.2 付着粒子の数値解析手法

本研究では, 付着粒子の挙動を数値解析するために個別要素法(Distinct Element Method, DEM)を連続体に応用した拡張個別要素法(Extended DEM, EDEM)[7]を用いた. 本手法では, 付着粒子を複数の EDEM 粒子で構成されていると考える. DEM では, DEM 粒子が接触しているときに, 粒子間の変位からフオークトモデルで推定される弾性ばねと粘性ダッシュポットによる力が作用すると仮定される. EDEM では, この接触時の力に加えて, EDEM 粒子間に存在すると仮定した間隙物質由来の間隙ばね, ダッシュポットによる力が作用するとしている. このような仮定の下, 以下のような各 EDEM 粒子の並進方向と回転方向の運動方程式を解く:

$$m \frac{d^2 \mathbf{u}}{dt^2} = \mathbf{F}_{int} + \mathbf{F}_g + \mathbf{F}_p + \mathbf{F}_{adh},$$

$$I \frac{d^2 \boldsymbol{\omega}}{dt^2} = \mathbf{M}_{int},$$

ここで,  $m$ ,  $\mathbf{u}$  は EDEM 粒子の質量と速度ベクトル,  $\mathbf{F}_{int}$ ,  $\mathbf{F}_g$ ,  $\mathbf{F}_p$ ,  $\mathbf{F}_{adh}$ , は, それぞれ EDEM 粒子間に作用する力, 重力による力, 流体から受ける圧力勾配による力, 壁面との付着力である. また,  $I$  は慣性モーメント,  $\boldsymbol{\omega}$  は角速度ベクトル,  $\mathbf{M}_{int}$  は, EDEM 粒子間の接線方向ばね及びダッシュポットが及ぼす接線力によるモーメントである. 壁面との付着力には球体と平面の間に作用するファンデルワールス力から, 以下のように与える:

$$|\mathbf{F}_{adh}| = \frac{Ar}{6z_0},$$

ここで,  $A$ ,  $r$ ,  $z_0$  は, Hamaker 定数, 粒子半径, 粒子表面間距離である.

## 4. 研究成果

### 4.1 圧力勾配による力を受けた際の付着粒子挙動

本節では, 壁面に付着した粒子に一方向の圧力勾配が作用した際のはく離挙動を解析し, 圧力勾配の大きさや作用時間が付着及びはく離挙動にどのような影響を与えるのかを確認した. ここでは, 半径が  $0.013 \mu\text{m}$  の EDEM 粒子で構成される半径  $0.25 \mu\text{m}$  の付着粒子を計算対象とした. 図 1 に, 付着粒子に  $x$  方向の圧力勾配を加えた場合の粒子挙動を示す. 圧力勾配の大きさを変化させているが, 圧力勾配が小さい図 1(a) の場合は粒子ははく離しないのに対して, 図 1(b), 図 1(c) のように圧力勾配が大きくなると粒子がはく離する様子が確認された. 本計算では, 圧力勾配が粒子に及ぼす回転モーメントが付着力による回転モーメントより大きくなったことによる回転運動によりはく離がなされている. また, 圧力勾配の大きさによってはく離されるまでの時間が異なり, 図 1(b) の場合より圧力勾配が大きい図 1(c) の場合では, より早くはく離が達成される様子が見られる. 図 2 には, 圧力勾配の大きさが図 1(b) と同じとした場合において, 圧力勾配の作用時間を変えた各計算での粒子挙動を示す. 図 2 から, 圧力勾配の作用時間の短い図 2(a) の場合には粒子ははく離までに至らないことがわかる. また, 図 2(b) と図 2(c) の比較から, 圧力勾配が十分な時間作用していれば付着粒子ははく離するが, 圧力勾配の作用時間が長いほどより早くはく離することもわかった.

### 4.2 メガソニック場中の付着粒子挙動

本節では, メガソニック場中の壁面近傍で振動する気泡と付着粒子の挙動を解析する. 図 3 に示すように付着粒子近傍でメガソニック波を受ける気泡が振動した際の付着粒子の計算を行っている. 本計算では気泡の中心を  $z = 0$  平面に置くことで,  $z = 0$  面に対して気泡挙動が面対称となる計算とした. 液体中の初期圧力を  $100$  kPa, 初期温度を  $293.15$  K とした. 計算格子は( $x$  方向)  $\times$  ( $y$  方向)  $\times$  ( $z$  方向) =  $221 \times 401 \times 121$  とした. また, 気泡周辺の,  $0 \leq x \leq 20 \mu\text{m}$ ,  $787.5 \mu\text{m} \leq y \leq 812.5 \mu\text{m}$ ,  $0 \leq z \leq 10 \mu\text{m}$  の領域を,  $201 \times 251 \times 101$  の格子を用いて詳細に解析している. 気泡の初期半径は  $2.2 \mu\text{m}$  とし, 初期位置を  $(x, y, z) = (4R_0, 800 \mu\text{m}, 0)$  とした. 付着粒子の半径及びそれを構成する EDEM 粒子の半径は前節と同様である.

図 4 に, 本計算条件における気泡挙動及び付着粒子挙動の経時変化を示す. 図は  $z = 0$  断面における圧力分布を示しており, 白い線がボイド率  $0.5$  の等値線を示しており, 気泡の外形に相当する. 気泡は, メガソニック波の振動を受けて体積の膨張・収縮を繰り返す. 気泡はメガソニッ

ク波の低圧の影響で膨張し、その後の高圧を受けると収縮し、内部圧力及び周囲圧力が高くなる。本計算条件では、気泡はメガソニック波に共振した状態になり、徐々に振動振幅が大きくなる。その影響で収縮時に周囲に形成される圧力場も徐々に高くなっていく。この影響を受けて付着粒子は振動を繰り返し、ある程度以上の圧力が作用した際(図 4(ii))にはく離する。本計算条件では、付着粒子に 0.7 MPa 程度の圧力が作用しているサイクルではく離しないが、0.9 MPa 程度の圧力が作用した際にはく離している。このことから、圧力が作用する方向や気泡の振動回数などの影響はあると考えられるが、1MPa 程度の圧力が作用した時に、本計算で設定した 0.25  $\mu\text{m}$  の付着粒子を除去可能であることがわかった。

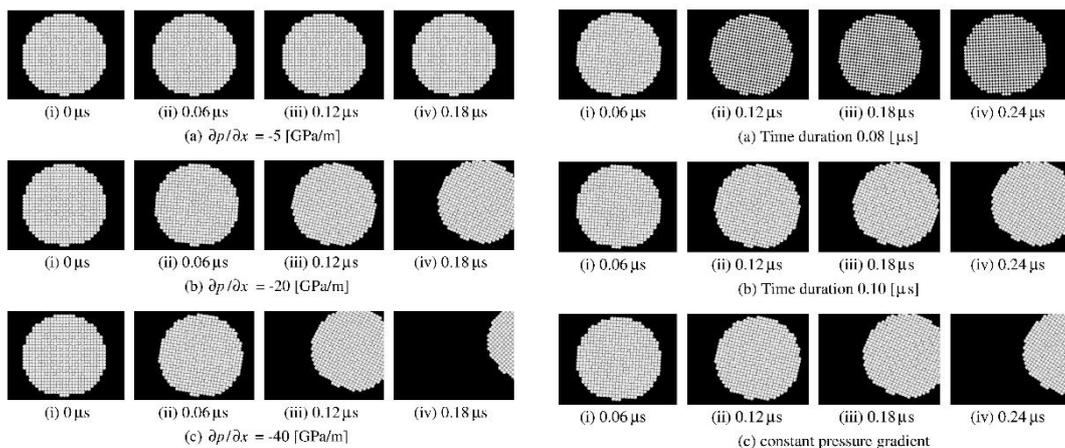


図 1 圧力勾配を受ける付着粒子のはく離挙動

図 2 付着粒子挙動に与える圧力勾配作用時間の影響

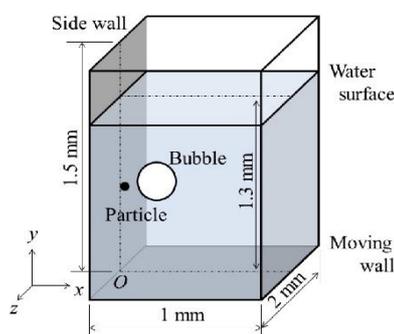


図 3 メガソニック場中の気泡と付着粒子の連成解析の計算領域

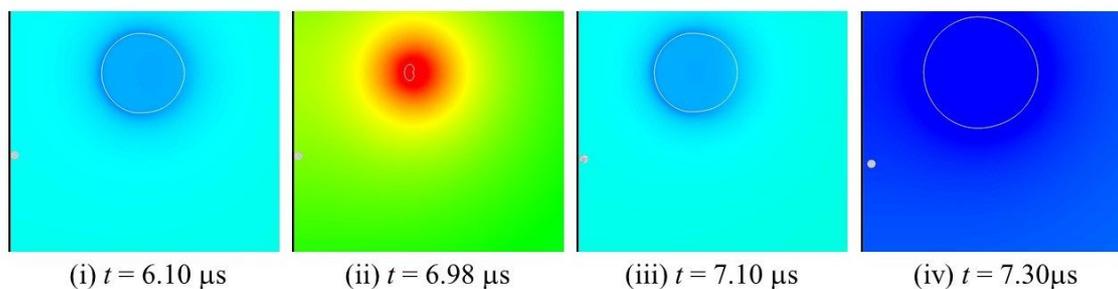


図 4 メガソニック場中の振動気泡と深く粒子挙動の経時変化

#### 4.3 メガソニック場中の複数気泡挙動に与える気泡分布の影響

本節では、メガソニック場中の複数気泡挙動解析を行い、気泡分布が複数気泡挙動及び発生する衝撃圧に与える影響について明らかにした点について述べる。図 5 に、本計算における気泡挙動と壁面圧力分布の経時変化を示す。本計算では、次のような気泡の数密度分布に従うように各気泡の初期半径をランダムに与えている。

$$N(R) = 1.0 \times 10^{-5} R^{-3.5}$$

ここで  $N$  は気泡数密度分布関数であり、初期半径の最小値及び最大値は、1  $\mu\text{m}$ , 2  $\mu\text{m}$  とした。また、気泡の初期位置は、本計算において気泡が存在しうると仮定している主計算領域内でランダムに与えている。図 5 の計算では、主計算領域の初期ポイド率を 0.25% としている。赤で示している気泡は相互作用の結果、合体した気泡群である。このように合体するような共振振動を示している気泡群は、図 5(v) で示されるように壁面に高衝撃圧を及ぼすことが確認された。また、

小さな初期半径の気泡は、大きな初期半径の気泡に振動を抑制されるため、誘起される圧力は弱い傾向にあった。一方で、本計算とこのような小さな気泡がない場合の計算を比較すると、小さな気泡群の存在は、大きな気泡の振動とその誘起圧力を抑制する働きをしていることもわかった。図 6 には、主計算領域のポイド率を変化させた場合の最大壁面圧力の値をまとめている。ランダムに与えている各気泡の初期位置が結果に影響を及ぼす可能性があるため、各初期ポイド率の計算を 3 回ずつ行っている。図 6 より、気泡の初期位置によって違いはあるものの、今回計算を行ったものの中では中間の初期ポイド率である 0.25% の際に、数 MPa から数十 MPa の高い壁面圧力を及ぼしていることがわかり、メガソニック場中のポイド率(気泡個数)が気泡群の挙動及び洗浄に大きく寄与すると考えられる誘起衝撃圧に対して大きな影響を及ぼしていることが確認された。

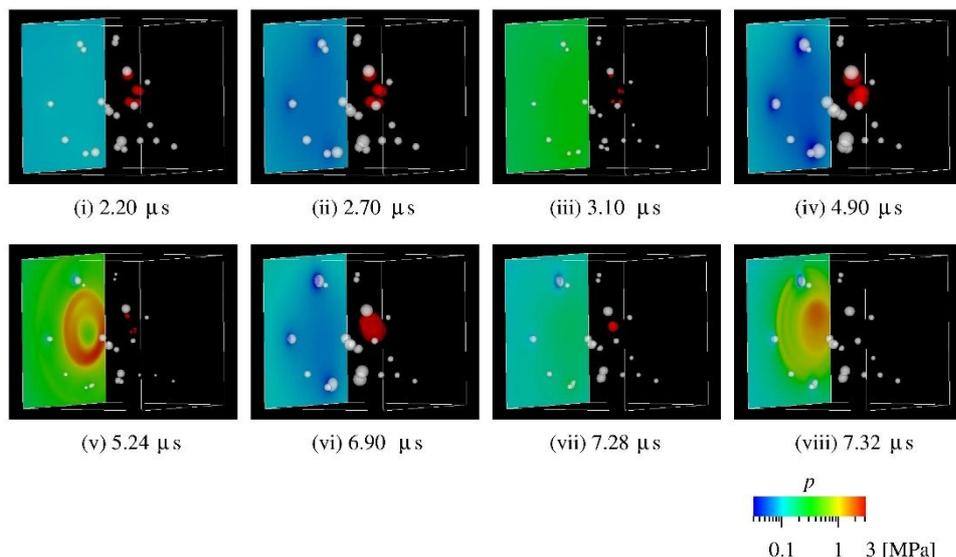


図 5 メガソニック場中の複数気泡挙動と壁面圧力分布の経時変化

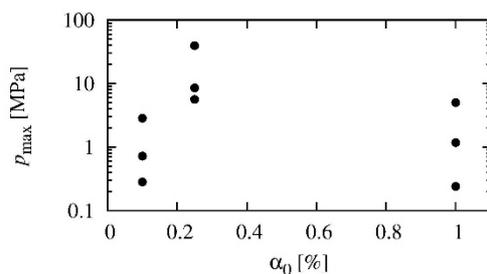


図 6 最大壁面圧力(計算領域初期ポイド率の影響)

#### 参考文献

- [1] P. A. Deymier et al., J. App. Phys., Vol. 88, No. 5 (2000), pp. 2423-2429.
- [2] F. Zhang et al., J. Electronic Materials, Vol. 29, No. 2 (2000), pp. 199-204.
- [3] T.-G. Kim et al., Solid State Phenomena, Vol. 145-146 (2009), pp. 47-50.
- [4] N. Ochiai and J. Ishimoto, ECS Journal of Solid State Science and Technology, Vol. 3, Issue 1 (2014), pp. N3112-N3117.
- [5] N. Ochiai and J. Ishimoto, Ultrasonics Sonochemistry, Vol. 26 (2015), pp. 351-360.
- [6] N. Ochiai and J. Ishimoto, J. Fluid Mechanics, Vol 818 (2017), pp. 562-594.
- [7] 目黒, 伯野, 地震研究所彙報, Vol. 63, No. 4 (1989), pp. 409-468.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ochiai, N. and Ishimoto, J.	4. 巻 61
2. 論文標題 Numerical analysis of the effect of bubble distribution on multiple-bubble behavior	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Ultrasonics Sonochemistry	6. 最初と最後の頁 104818
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ultsonch.2019.104818	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 N.Ochiai and J. Ishimoto
2. 発表標題 Numerical Analysis of Influence of Bubble Distribution on Multiple-Bubble Behavior in Megasonic Field
3. 学会等名 2018 International Conference on Material Strength and Applied Mechanics（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 落合直哉, 石本淳
2. 発表標題 メガソニック場中の気泡振動による粒子除去の流体構造連成数値解析
3. 学会等名 日本混相流学会混相流シンポジウム2018
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----