

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26820038

研究課題名(和文)メガソニック場中の複数気泡ダイナミクスの解明とダメージレス洗浄への応用

研究課題名(英文)Clarification of multiple bubble dynamics in megasonic field and the application to damage-less cleaning

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) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：MHz帯の音波を用いたメガソニックによる半導体デバイスの物理洗浄手法の確立のために、数値流体力学を用いてメガソニック場中の非球状複数気泡挙動の数値解析を行った。気泡の並進運動に注目した研究では、二気泡の平衡半径毎の気泡挙動の分類を行い、気泡挙動を制御したメガソニック洗浄のために有用な知見を得た。気泡の振動挙動に注目した研究では、気泡個数が増加すると、より小さな平衡半径の気泡が高い圧力を誘起することがわかった。これは、多数の気泡が存在する現実のメガソニック場中では、単一気泡解析から想定されるよりは小さな気泡が洗浄及びダメージ発生に影響を与えていると考えられることを示している。

研究成果の概要(英文)：The nonspherical multiple-bubble behavior in a megasonic field is analyzed using computational fluid dynamics to establish megasonic cleaning which is a physical cleaning method for semiconductor device. In the study of translational motion of multiple-bubble, two bubbles behavior are classified according to the equilibrium radius and the useful characteristics for the megasonic cleaning without pattern damage. In the study of the oscillating behavior, when the number of bubbles increases, bubbles with a smaller equilibrium radius can induce high impulsive pressure. The result indicates that bubbles with a smaller equilibrium radius predicted by single bubble analysis contribute to the cleaning and pattern damage in the typical megasonic field including many bubbles.

研究分野：流体工学

キーワード：メガソニック キャピテーション 気泡間相互作用 誘起圧力波 数値解析 Bjerknes力

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、除去対象粒子のサイズも小さくなっている。さらに、デバイスの低消費電力化、高速化のために、渋滞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。そのためデバイスにダメージを与えずに、効率的に粒子を除去する洗浄手法の確立が課題となっている。

ダメージレス洗浄手法の一つとして期待されている、メガソニック洗浄は、MHz帯の高周波音波を発生させ、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を行う、物理的洗浄手法である。物理的洗浄手法であるため、材料溶解の恐れのある薬液を使う必要がない低環境負荷な洗浄手法である。一方で、メガソニックによって引き起こされるキャビテーションの崩壊によってナノデバイスにダメージを与えてしまう可能性もある。そのため、メガソニック洗浄を確立した洗浄手法にするためには、メガソニック場中の多数のキャビテーション気泡をダメージは与えず粒子除去を実現できるように制御することが必要と言える。

メガソニック洗浄に関する研究は、実験的な研究を中心に行われてきたが、除去粒子サイズの空間スケールが微細であり、発生したキャビテーションの崩壊時間スケールが非常に高速であるため、実験的にメガソニック洗浄における気泡挙動を詳細に解析することは困難である。数値解析による研究は、ウェハ近傍のメガソニック音響場を計算し m 粒子に作用するはく離力と付着力を比較し、粒子除去について考察した研究など、音響流や粒子まわりの圧力勾配による粒子除去について注目した研究が見られるが、メガソニック場中のキャビテーション気泡挙動も含めた数値解析例は見られない。

研究代表者は、これまでにキャビテーション気泡の崩壊と圧力波の伝播の数値解析を行ってきた。この研究では、気泡の複雑な非球状崩壊や気泡崩壊時に発生する圧力波伝播現象を再現することができた。この数値解析手法を、現実のメガソニック場に近い複数気泡系の計算に応用することで、メガソニック洗浄における粒子除去メカニズムの解明と気泡制御の可能性について検討できると考え、本研究の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、メガソニック場中の単一及び複数気泡挙動の数値解析を行い、粒子除去に影響を与える主要メカニズム及び気泡の平

衡半径や位置に対する気泡間相互作用の結果生じる気泡の並進運動や半径変動などの複数気泡ダイナミクスを解明し、キャビテーション気泡挙動を制御したメガソニック洗浄による半導体ナノデバイスのダメージレス粒子除去手法を提案することを目指している。

3. 研究の方法

以下で示す、圧縮性気液二相局所均質媒体モデルを用いて、メガソニック場中の気泡挙動を数値解析する。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、 ρ , p , T は、均質媒体の密度、圧力、温度、 p_c , K_1 , T_0 , R_g は、状態方程式に関する定数である。

支配方程式は、以下の通りとなる：

$$\frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t} + \frac{\partial (\mathbf{E}_j - \mathbf{E}_{vj})}{\partial t} = \mathbf{S}$$

$$\mathbf{Q} = \begin{bmatrix} \rho \\ \rho u_i \\ e \\ \rho Y \\ \rho Y D_a \end{bmatrix}, \quad \mathbf{E}_j = \begin{bmatrix} \rho u_j \\ \rho u_i u_j + \delta_{ij} p \\ \rho u_j H \\ \rho u_j Y \\ \rho u_j Y D_a \end{bmatrix}, \quad \mathbf{E}_{vj} = \begin{bmatrix} 0 \\ \tau_{ij} \\ -q_j + \tau_{jk} u_k \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

ここで、第4式、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 , τ_{ij} , q_j は、全エンタルピー、せん断応力、熱流束である。さらに、ソース項 $\mathbf{S} = [0 \quad -\kappa \sigma_s n_i \quad 0 \quad m \quad 0]^T$ を与えている。ここで、運動量保存式のソース項は表面張力項であり、 m は蒸発凝縮率である。

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：

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

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。

4. 研究成果

まずは、単一及び複数気泡の並進運動に着目した研究成果について示す。図1に本計算の模式図を示す。図1では、二気泡の計算例を用いているが、ここで示したように振

動壁に垂直な方向に並んだ単一及び複数気泡の挙動を扱っている。 d_0 は初期気泡間距離である。本研究では、 $d_0 = 20, 40 \mu\text{m}$ の二つのケースの計算を行っている。また、気泡の平衡半径は、 $10 \mu\text{m}$ 以下としており、気泡の存在する領域は計算領域全体に比べると非常に狭い領域となっている。

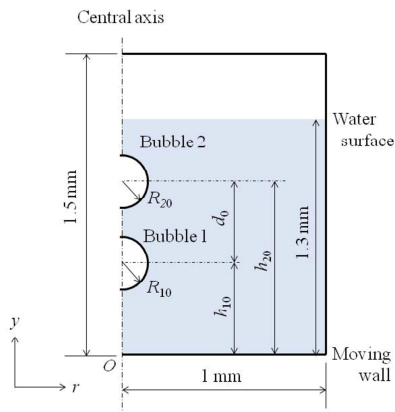


図 1 メガソニック場中の気泡挙動計算の模式図(軸対称計算)

メガソニック場中を単一気泡が振動する際には、気泡まわりの圧力勾配による時間平均的な力である primary Bjerknes 力が作用することで並進運動することが知られている。本計算手法を用いて数値計算を行った際の気泡の並進運動挙動と気泡の最大半径を気泡の平衡半径に対してまとめたものを図 2 に示す。気泡の挙動は無次元最大半径が最大となる $R_0 = 2.5 \mu\text{m}$ (共振半径) を境界に気泡の並進運動方向が反転していることがわかる。これは過去の研究からも明らかにされている単一気泡挙動の特徴であり、本数値解析手法を用いて音響場中の気泡挙動を再現できていることがわかった。

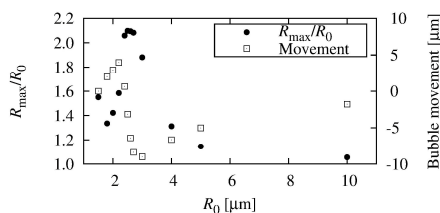


図 2 気泡平衡半径に対する最大半径と $50\mu\text{s}$ までの気泡移動距離(単一気泡, 初期気泡位置 0.8 mm)

図 3 には、初期気泡間距離を $40 \mu\text{m}$ とした二気泡の並進運動挙動をまとめたものである。二気泡の計算では、過去の研究から、他気泡の振動が誘起する二次的な圧力のために気泡間に相互作用力 (secondary Bjerknes 力) が生まれ、両気泡の平衡半径が両方とも共振半径より大きいまたは小さい場合に気泡間に引力が、そのほかの場合に気泡間に斥力が働くことが示されている。

一方で、本研究では、一方もしくは両方の気泡の平衡半径が共振半径付近の大きさであると、過去の線形解析からは捕えることのできなかった、secondary Bjerknes 力の向きの反転が生じ、気泡間距離が一定のままになる挙動(図 3 の Stable motion)や気泡間距離の増減を繰り返す挙動(図 3 の periodic motion)を示すことがわかった。さらに、Stable motion を示す気泡の組み合わせの中には、図 4 で示すような分裂挙動を示すものがあることもわかった。図 4 の条件では、計算初期には気泡間に引力が発生しており二気泡は近づいていく。その後気泡間距離が一定となっているが、上側の気泡の上部から微小な気泡が放出されている。以上のように、共振半径より小さい気泡であれば線形解析結果に従い、反発・合体を制御しやすい可能性があることや気泡間距離が一定となる気泡の組み合わせを用いれば予期しない気泡合体を抑制できることといった、気泡挙動を制御したメガソニック洗浄のために有用な知見を得ることができた。

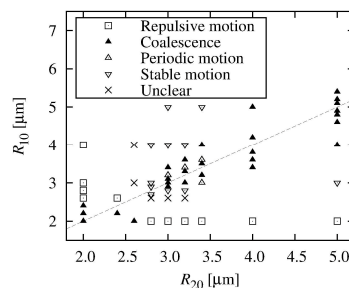


図 3 平衡半径に対する二気泡並進運動の分類 ($h_{10} = 0.76 \text{ mm}$, $h_{20} = 0.80 \text{ mm}$)

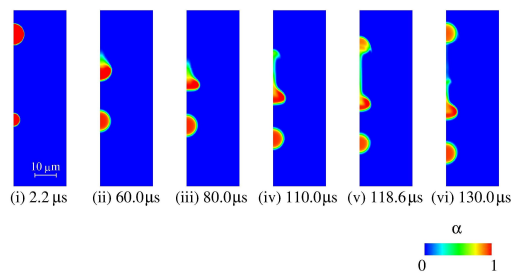


図 4 気泡の分裂挙動(気相の体積分率の分布図, $R_{10} = 3.0 \mu\text{m}$, $R_{20} = 5.0 \mu\text{m}$, $h_{10} = 0.76 \text{ mm}$, $h_{20} = 0.80 \text{ mm}$)

次に、単一及び複数気泡の振動挙動とそれが誘起する圧力波に着目した研究成果について示す。図 5 に示すように側壁近傍で振動する気泡挙動の解析を行った。図 6 に気泡平衡半径に対する側壁上の最大圧力を気泡個数ごとに示す。ここでは、振動壁に垂直な方向に一直線に並んだ等平衡半径の気泡を対象としている。気泡は共振半径付近で激しく振動し側壁上に高い圧力を引き起こすことになるが、図 6 から、気泡個数が増加すると側壁上最大圧力が最大となる平衡半径が小さくなっており、気泡個数の増加に従

い気泡の共振半径が小さくなっていることがわかる。このことから、多数気泡が存在する現実のメガソニック場中では、単一気泡の古典的な解析から想定されるよりは小さな気泡が激しく崩壊し、洗浄もしくはダメージ発生に貢献していることが考えられる。また、図6からは、気泡個数の増加に伴って、最大圧力値も増加していることもわかる。これは、気泡個数が増加すると外側の気泡から崩壊が始まり、その崩壊の影響を受けて内側の気泡が崩壊していくという連鎖的な崩壊挙動が引き起こされることで、より激しい気泡崩壊が生じるためである(図7)。本研究では、さらに以下のような研究結果を得ている：

- (1) 異なる平衡半径の二気泡の計算から、二気泡が合体するような場合には単一気泡時よりも高い壁面圧力を誘起することがわかった。また、等平衡半径の二気泡が振動する場合よりも高い壁面圧力を及ぼす組み合わせがあるもわかった。
- (2) 初期気泡間距離が気泡振動に与える影響について議論し、初期気泡間距離が長くなると、気泡が合体するまでの気泡の側壁方向への移動が大きくなり、より側壁に近い位置で気泡が共振振動をすることから、壁面上に高い圧力を誘起することがわかった。
- (3) 円周上に分布した多数気泡の計算から、直線状に分布した場合に比べて気泡数の増加に対する共振半径の減少が大きくなることわかった。

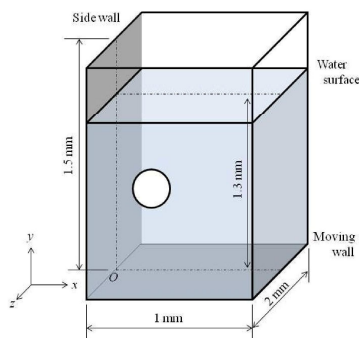


図5 メガソニック場中の側壁近傍での気泡挙動計算の模式図(三次元計算)

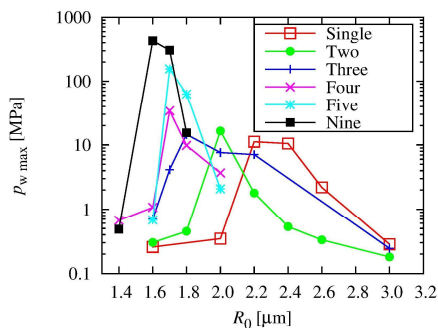


図6 平衡半径に対する側壁上最大圧力(直線状気泡分布)

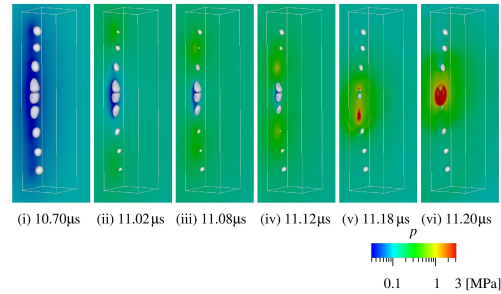


図7 側壁近傍での9気泡の崩壊挙動($R_0 = 1.6 \mu\text{m}$, 気相の体積分率0.5の等値面)

本研究から、さまざまな条件での複数気泡挙動についての特徴を知ることができた。一方で、本研究で対象とした気泡分布は比較的単純な気泡分布となっている。現実のメガソニック場はより複雑な気泡分布であるため、本研究で得られた知見をもとにより現実的なメガソニック場中の気泡挙動を予測する理論を構築していくことが今後の重要な課題である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 2件)

- (1) Naoya Ochiai and Jun Ishimoto, "Numerical investigation of multiple-bubble behaviour and induced pressure in a megasonic field", Journal of Fluid Mechanics, Vol. 818 (2017), pp. 562-594, 査読有, doi:10.1017/jfm.2017.154
- (2) Naoya Ochiai and Jun Ishimoto, "Computational Study of the Dynamics of Two Interacting Bubbles in a Megasonic Field", Ultrasonics Sonochemistry, Vol. 26 (2015), pp. 351-360, 査読有, doi: 10.1016/j.ultsonch.2015.04.005

〔学会発表〕(計 7件)

- (1) 森勇斗, 落合直哉, 石本淳, 「メガソニック場中の複数気泡並進運動メカニズムの数値的解明」, 日本混相流学会混相流シンポジウム2016, 2016年8月9日, 同志社大学(京都府・京都市).
- (2) 落合直哉, 石本淳, 「メガソニック場中における壁面近傍での複数気泡挙動の数値シミュレーション」, 日本機械学会第93期流体工学部門講演会, 2015年11月7日, 東京理科大学(東京都・葛飾区).
- (3) 落合直哉, 石本淳, 「メガソニック場中の気泡崩壊に及ぼす気泡間相互作用の影響に関する数値的研究」, 日本混相流学会混相流シンポジウム2015, 2015年8月4日, 高知工科大学(高知県・香美市).
- (4) 落合直哉, 石本淳, 「メガソニック場中の

二気泡間に作用する相互作用力に関する数値シミュレーション」, 第 23 回ソノケミストリー討論会, 2014 年 10 月 31 日, 秋田市にぎわい交流館 AU(あう) (秋田県・秋田市).

(5) Naoya Ochiai and Jun Ishimoto, "Numerical Investigation of Two Interacting Bubbles Behavior in a Megasonic Field", Eleventh International Conference on Flow Dynamics (ICFD2014), 2014 年 10 月 10 日, Sendai International Center (Miyagi, Sendai).

(6) Naoya Ochiai, Jun Ishimoto and Jin-Goo Park, "Computational Study of Bubble Behavior for Clarification of Particle Removal Mechanism in Megasonic Cleaning", Eleventh International Conference on Flow Dynamics (ICFD2014), 2014 年 10 月 9 日, Sendai International Center (Miyagi, Sendai).

(7) 落合直哉, 石本淳, 「メガソニック場中における複数気泡挙動の数値解析」, 日本混相流学会混相流シンポジウム 2014, 2014 年 7 月 28 日, かでる 2・7 (北海道・札幌市).

6 . 研究組織

(1) 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