

混合を伴う希薄気体流れの数値シミュレーション

Numerical simulation of rarefied gas flow involving gas mixtures

松 本 裕 昭*・小 林 敏 雄*

Hiroaki MATSUMOTO and Toshio KOBAYASHI

1. は じ め に

機能材料製造工程は、化学反応、ミクロな流れ、表面反応等が複雑に存在する流れ場となっている。

本研究では S_2H_4 、 F_2 の反応を用いたCDリアクター¹⁾内の数値シミュレーションを試みた。CDリアクターは、反応炉内圧力を約 10^{-2} [torr]に保ち、 S_2H_4 と F_2 を混合させ、ラジカル種 $S_nH_mF_n$ ($n+m \leq 3$)をウエハー上に堆積させていく新しい手法である²⁾。この圧力下では S_2H_4 の平均自由行程は数 [mm] オーダとなりウエハー径の代表長さ $d = 3$ [inch]を用いてクヌッセン数を記述すれば $K_n \sim 10^{-2}$ オーダとなる。流れ場は、連続流の領域ではあるが、 $K_n \geq 10^{-2}$ で多種ガスの混合を簡単に扱うことのできる、DSMC法により、 S_2H_4 、 F_2 、 H_2 の混合を伴う希薄流れの解析を試みた。

2. 計 算 手 法

DSMC法は、計算対象流れ場に $10^3 \sim 10^4$ オーダ個の模擬分子を配置し、全分子について、微小時間 Δt 後の位置、速度を確率的に決定し、密度、温度、速度等のマクロな物理量を分子の平均値として計算する手法である³⁾。 Δt を分子の平均自由時間 t_F より十分に小さく選ぶと ($\Delta t \ll t_F$) 分離の原理 (principal of uncoupling) により、分子の位置 (移動) の計算と速度 (分子間衝突) の計算を別々に行うことができる³⁾。 Δt 後の位置は次式で計算される。

$$X_{t+\Delta t} = X_t + C_t \cdot \Delta t \quad (1)$$

分子間衝突の計算は、あらかじめ流れ場を微小空間(セル)に分割しておき、セルごとに行う。瞬間的にセル内では局所的に熱平衡状態にあると仮定し、統計力学から定まる各分子の衝突確率を用いて分子間衝突を計算していく。ただし取り扱う衝突は、二体衝突だけとする。分子間ポテンシャルを剛体分子ポテンシャルとすれば、セル内から抽出された分子ペア i, j の衝突確率 P_{ij} は、

$$P_{ij} \propto C_{ij} \quad C_{ij} = |C_j| = |C_i - C_j| \quad (2)$$

となる⁴⁾。

(2)式と棄却法⁶⁾を用いて衝突ペアを選出し、衝突の力学により衝突後の速度を決定する。また Δt 時間内に衝突しない分子は、速度の修正は行わない。

3. マクロ量の定義

多成分ガス系におけるマクロな物理量(数密度 n 、密度 ρ 、質量平均速度 C_0 、温度 T)を次式により定義する。

$$n = \sum_{p=1}^S n_p = \sum_{p=1}^S (N_p/V) \quad (3)$$

$$\rho = \sum_{p=1}^S m_p n_p \quad (4)$$

$$C_0 = \sum_{p=1}^S n_p m_p \bar{C}_p / \rho$$

$$\frac{3}{2} kT = \frac{1}{2} \sum_{p=1}^S (n_p m_p \overline{C_p^2}) / n \quad C_p' = C_{pi} - C_0 \quad (5)$$

ここに添字 p は p 成分ガスを示し、添字 i は各成分の分子番号を示す。また V 、 m_p 、 k 、 $\bar{\quad}$ は、それぞれ、セル体積1分子あたりの質量、Boltzmann定数、平均操作を示す。

4. 計算対象および計算領域

計算対象流れ場は図1に示すCDリアクターと呼ばれ

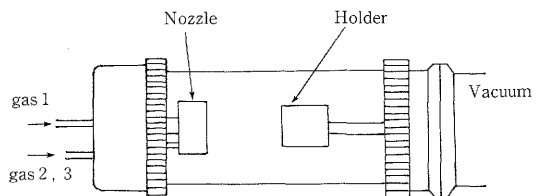


図1 CDリアクター

*東京大学生産技術研究所 第2部

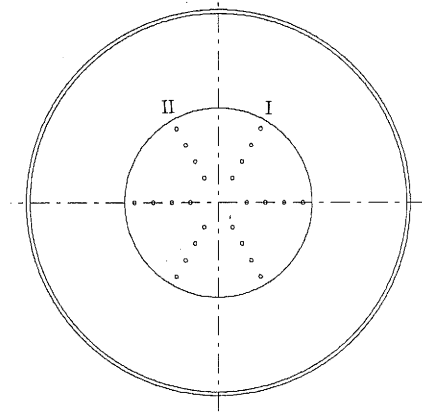


図 2 ノズル断面図

表 1 計算条件

ガス種	質 量 比	直 径 比	流入密度比	流入温度比
1	9.0	1.6	10.0	1.0
2	1.0	1.0	1.0	1.0
3	8.0	1.3	10.0	1.0

表 2 境界条件

流 入	一様流入 (I…ガス 1, II…ガス 1.2)	
流 出 ⑦	$\frac{\partial u}{\partial x} = \frac{\partial T}{\partial x} = 0$	$n_{out}/n_{in} = 0.1$
境 界 B, B'	周期条件	
境 界 ①	鏡面反射	
境 界 ②~⑤	拡散反射 ($T_w = 1.0$)	
境 界 ⑥	拡散反射 ($T_w = 2.0$)	

る半導体薄膜製造装置である。流入ガスは図 2 に示すように S_iH_4 の吹出口列 (列 I) $F_2 + He_e$ の吹出口列 (列 II) が等角度で周期的に配置されている。この流れ場から列 I, 列 II を 1 つずつ含むように計算領域をとり図 3 (a) ~ (c) のようにセルに分割する。ここでセルの体積はすべて同じとしている。図中形状寸法比は以下のとおりである。

$$d_2/d_1 = 2.0, L_1/d_1 = 0.5, L_2/d_1 = 1.0$$

$$\theta_1 = \frac{\pi}{6}, \theta_2 = \frac{\pi}{3}$$

また吹き出し口は、中心部から放射状に等間隔にあり、中心部に一番近い吹き出し口は $0.15d_1$ 、ピッチは $0.1d_1$ である。

5. 計算条件

計算は S_iH_4, F_2, He_e の 3 種類のガスを想定して行った。分子間ポテンシャルはすべて剛体球ポテンシャルとし、化学反応は無視している。壁面境界条件は主に拡散反射壁を用い、図 3 (b) の ②~⑥部に適用した。①部は鏡面反射壁としている。また図 3 (c) に示すようにリア

クター内周方向には周期条件を課す。すなわち B 部から流出した分子は B' からの流入、B' からの流出は B への流入として取り扱う。流入条件としては、3 種すべてのガスに一様流入条件を課し、出口に対しては、速度、温度の勾配を零とし、密度は入口との密度比を一定として与えた。無次元化は、流入口における S_iH_4 の分子の平均自由行程 λ_1 、最大確率熱速度 C_{m1} で無次元化した。ここに C_{m1} は $C_{m1} = \sqrt{2kT/m_1}$ である。また今回の計算ではすべての分子を単原子分子として取り扱う。表 1 に計算条件、表 2 に境界条件、をそれぞれ示す。

6. 計算結果

図 4 (a)(b)(c) に流れの下流側から見た流れに垂直な断面の密度分布を示す。(a)(b)(c) はそれぞれ S_iH_4, He_e, F_2 である。表示した結果は、流れ場内の分子総数の時間変化が十分小さくなった後(無次元時刻 1.00, ステップ数 2000) に時間平均をとったものである。サンプル数は 1 セルあたり約 10^3 である。また表示断面は、入口部(断面 6), 入口部とウエハーの中間部(断面 10), ウエハー部(断面 15) である。いずれの図も、流入断面で、流入

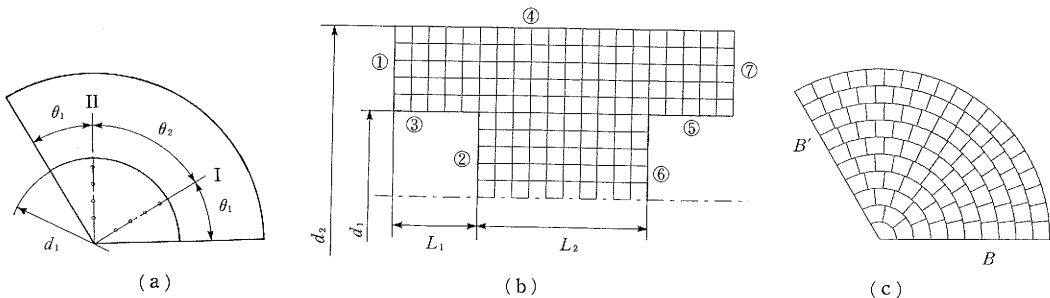
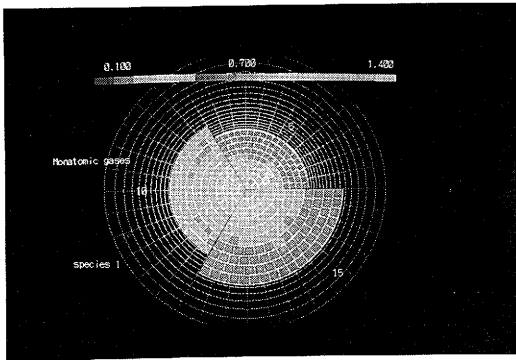
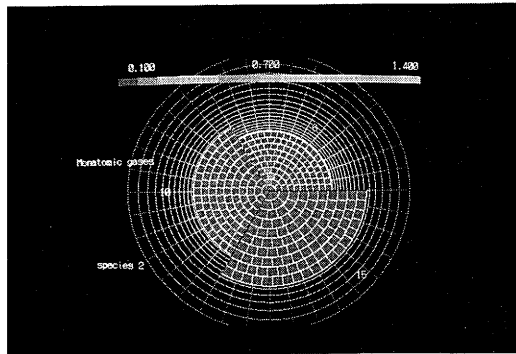


図 3 計算領域図

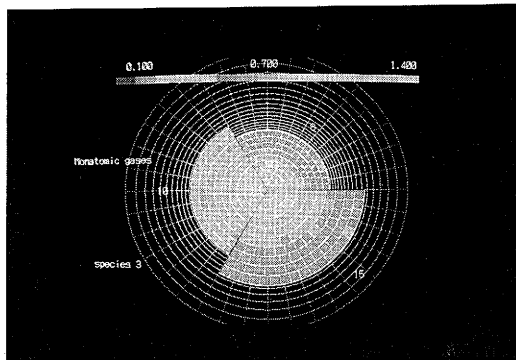
研 究 速 報



(a) ガス 1 密度分布



(b) ガス 2 密度分布



(c) ガス 3 密度分布

図 4

部の密度が高いが、下流に行くに従ってかなり速く拡散、混合していることが予測されている。また中心部で密度が高くなっている。これは、図 3 (a) に示すように中心部セル近傍に流入口が集中しており、また中心部の流速が非常に遅くなっているためと考えられる。実際の CD リアクターでは、膜成長過程は、反応ガスの流入口の取

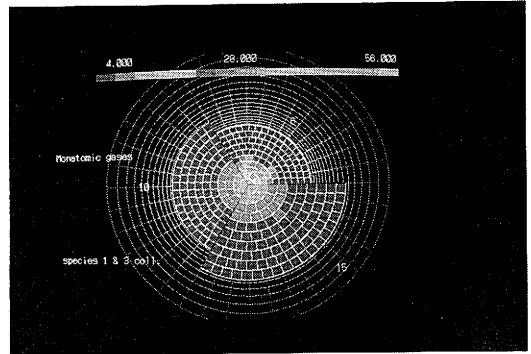


図 5 ガス 1-3 の衝突数分布

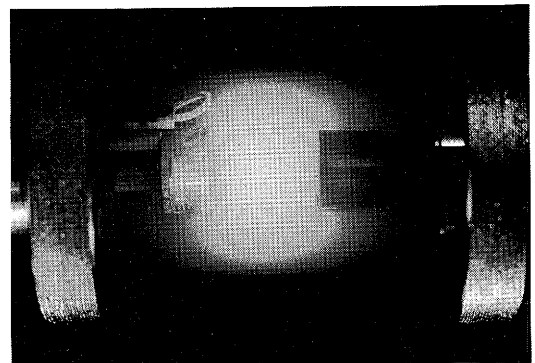


図 6 可視化実験

り付け位置、個数流入口断面と、ウエハー面との距離、流入口と出口部の圧力比等に大きく依存するとの報告¹²⁾もある。今後これらをパラメータにした計算を行い、実験との比較を検討していく必要がある。

図 5 に S_2H_4 、 F_2 のセル内で生じた単位時間あたりの衝突回数¹³⁾の分布図を示す。 S_2H_4 と F_2 が比較的早い時期に混合することが予測できる。可視化実験¹⁴⁾によれば流入口直後で、 S_2H_4 、 F_2 が激しく反応しており、計算は定性的には、これを表現していると考えられる。半那らの可視化実験の写真を図 6 に示す。

7. ま と め

DSMC法により CD リアクター内ガス混合の数値シミュレーションを試みた。現時点では、まだ非常に簡単なモデルを構築したにすぎない。しかし工学的に見た場合簡単なモデルで、どこまで実際の現象、傾向をとらえることができるかを探ることも重要と思われる。今後実験との対比も十分行い、より良いモデルの導入と検討も必要であろう。なおリアクター内可視化実験の写真は、東京工業大学工学部像情報工学研究施設の半那研究室の

御好意によるものである。ここに感謝する。

(1988年10月26日受理)

参 考 文 献

- 1) 半那, 小門, 清水, 化誌, 11, 1987
- 2) 半那, 徳弘, ほか3名, 電子写真誌, 26-3, 1987

- 3) Bird, G.A., Molecular Gas Dynamics, oxford univ. press, 1976
- 4) 小林, 松本, 生産研究, 40-1, 2988, 1988
- 5) Nanbu, K. J. Phys. SoC. Jpn. 52-10, 1983
- 6) 津田, モンテカルロ法とシミュレーション, 培風館, 1977

