

LPCVD法における希薄気体流れの数値予測

Numerical prediction for rarefied gas flow of the LPCVD process

小林 敏雄*・松本 裕昭*
Toshio KOBAYASHI and Hiroaki MATSUMOTO

1. はじめに

半導体などの機能材料の製造工程において製品の品質に及ぼす流れの影響の解析，製造の最適条件設定と流れの関係の解明が必要となってきた。これらの製造工程はシリコンウエハーの薄膜成長過程を例にとってみると，化学反応，蒸着や離脱といった表面問題，真空技術を用いた希薄流れの問題などいろいろな要因が組み合わさった複雑な流れ場となっている。この流れ場を厳密に予測することは難しく，現在のところ流れ場を単純化して解析がなされ始めた段階である¹⁾²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾。

シリコンウエハーの薄膜成長法にはMolecular Beam Eptaxi (MBE), Low Pressure Chemical Vapor Deposition (LPCVD) などの真空技術も盛んに用いられており，希薄な流れ場の解析もこれから必要になってくることが予測される。一般に減圧下，真空下では流体は連続流から中間流，分子流へと変化していく。この変化に伴い流れを支配する方程式も，Navier-Stokes方程式からBoltzmann方程式へと変化する。希薄流れの解析ではこのような広い範囲をサポートできる解析手法が望まれる。

そこで本研究では，中間領域の流れの解析に有力視されている，ダイレクトシミュレーション・モンテカルロ法 (DSMC) を用いてLPCVD反応炉内の流れの様子を数値予測することを試みている。これによって希薄な流れ場における計算手法の有効性を探るとともに，流れが薄膜成長過程に及ぼす影響の解析を行うための基礎プログラムを作成することが可能となった。

2. 計算手法

DSMCの計算手法の概要は，以下のようである。

計算対象領域を微小区間(セル)に分割し， $10^3 \sim 10^4$ オードの分子を配置する。各分子には位置に関する情報および速度に関する情報が与えられるが，分子間衝突，

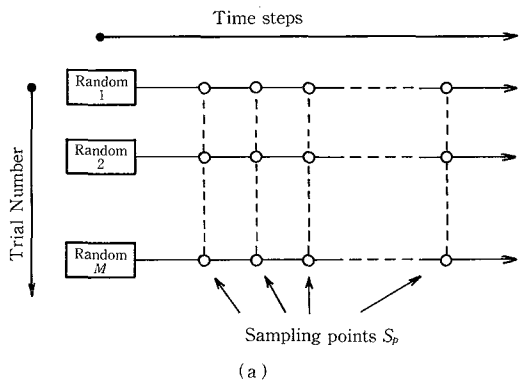
分子と固体壁(境界)の干渉は常に3次元であるので，速度情報は必ず3次元与える必要がある。初期に与えられた情報を基にすべての分子に対し，固体壁との干渉による位置，速度の変化，移動による位置の変化，分子間衝突による速度の変化をそれぞれ計算し値を修正する。同様の手続きを繰り返し，流れ場の密度 ρ ，速度 U ，温度 T を個々の分子情報を基に次式によりセルごとに計算する。

$$\rho = m \cdot N / V \tag{1}$$

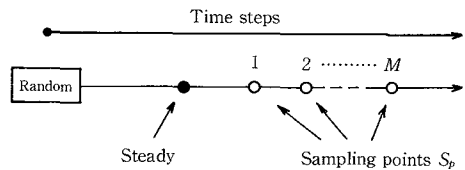
$$U = \left(\sum_{i=1}^N c_i \right) / N \tag{2}$$

$$T = \left\{ \sum_{i=1}^N (c_i^2 - U^2) \right\} / (3R) \tag{3}$$

ただし， m ， V ， N ， c_i ， N ，はそれぞれ分子質量，セル



(a)



(b)

図1 平均操作

*東京大学生産技術研究所 第2部

研究速報

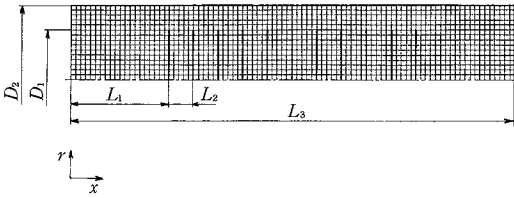


図2 計算対象流れ場とセル分割

ル体積, セルに含まれる分子数, 各分子速度ベクトル, ガス定数を示す。また, $c_i^2 = |c_i|^2$, $U^2 = |U|^2$ である。なお詳細は文献6)~8)を参照されたい。

式(1)~(3)から得られる巨視量は分子情報の平均操作により得られるのでその結果には統計的なゆらぎが存在する。このゆらぎの大きさは $1/\sqrt{N}$ 程度のものでかなり大きい。そこで, DSMC法では非定常問題では図1(a)に示すように乱数の初期値を変えてアンサンブル平均をとり, 定常問題では図1(b)に示すように定常達成後の時間平均をとる。サンプル回数を M とすれば, ゆらぎは $1/\sqrt{NM}$ 程度となる。 M を大きくすることによりゆらぎを小さくし, 実用上有用な解を得る。

3. 計算対象

計算の対象とした流れ場はLPCVDの反応炉をモデル化したものである。円筒容器内に無限小厚さのディスクが, 同心円状に11枚直列に配置されたものである。流れ場の軸対称性から計算領域を図2のようにとる。図中の各形状寸法比は以下のとおりである。

$D_2/D_1=3/2$, $L_1/D_1=1$, $L_2/D_1=1/4$, $L_3/D_1=9/2$ ただし, D_1 , D_2 はそれぞれディスク直径, 反応炉直径である。また管軸方向を x 軸, それに垂直な方向を r 軸とする。

表1 計算条件

Inlet condition	Uniform free stream $U_0=0.36$ $T=1.0$
Outlet condition	Perfect vacuum
Wall and Disks	Perfect diffuse reflection $T_w/T=2.0$
Molecular model	Hard sphere molecule
Knudsen number	$K_n=\lambda_\infty/D=0.1$

T : temperature in the upstream
 λ_∞ : mean free path in the upstream
 D : diameter of disk

4. 計算条件

計算は, 単原子分子, 剛体球分子モデルを用いて分子質量 m , 入口部における分子の平均自由行程 λ_∞ および最大確率熱速度 $1/\beta_\infty$ がそれぞれ1になるように無次元化されて行われる。また軸対称流れ場であるので重み係数を導入し計算領域に配置する分子数を少なくし計算時間の短縮化を行っている⁶⁾⁸⁾。

計算領域を図2に示すように x 方向に90, r 方向に15に正方形セルになるように等間隔に分割する。セルの1辺の大きさは, 入口部の初期時の平均自由行程 λ_∞ の半分としている。各セルには30個ずつの分子が乱数により一様に配置される。分子は初期時において熱平衡状態にあると仮定しMaxwell分布に従う熱速度が与えられ軸方向成分(x 方向)には一様流速 U_0 が加えられる。

境界条件としては, 入口は一様流入(U_0), 出口は完全真空としている。また管壁およびディスクはいずれも常に一定温度 T_w に保たれており完全拡散反射壁, すなわち壁から反射する分子は入射時の方向, 速度とはまったく無関係に, 壁温度の平衡状態に達して反射する壁とする。表1に計算条件を示す。

5. 結果および考察

計算は非定常問題とし乱数の初期値を31回変えて行い, アンサンブル平均操作により巨視量を計算した。図1(a)においてサンプリングポイント数は $S_p=100$ とし1500ステップまで計算した。1500ステップ時での流れ場における平均サンプル数は, 1セルあたり, 約 $M\bar{N}=700$ (M は試行回数, \bar{N} は1セルあたりの平均分子数)であった。したがって計算結果には, 数パーセントのゆらぎが存在していると考えられる。図3にサンプル数と計算結果の精度を示す。これは, 試行回数, 1回, 11回, 21回, 31回の場合の, 最終ステップ時の状態を用いて以下のように計算した。本計算は軸対称2次元流れとして解析しているので, 各分子から計算される円管内周方向速度の平均値 \bar{v}_θ は0になるはずである。図3は流れ場全体の平均周方向速度 \bar{v}_θ と $\bar{v}_\theta=0$ とした場合のその標準偏差 $v_{ar}[\bar{v}_\theta]$ を示している。ただし \bar{v}_θ および $v_{ar}[\bar{v}_\theta]$ は次式により計算している。

$$\bar{v}_\theta = \left(\sum_{i=1}^M v_{\theta i} \right) / M \tag{4}$$

$$v_{ar}[\bar{v}_\theta] = \left(\sum_{i=1}^M (v_{\theta i}^2 - \bar{v}_\theta^2) / M \right)^{1/2} \tag{5}$$

ここで M は流れ場の全セル数, $v_{\theta i}$ はセル円周方向速度成分をそれぞれ示す(ただし式(5)において $\bar{v}_\theta=0$)。図よりサンプル数(試行回数)が増すと標準偏差が減少し,

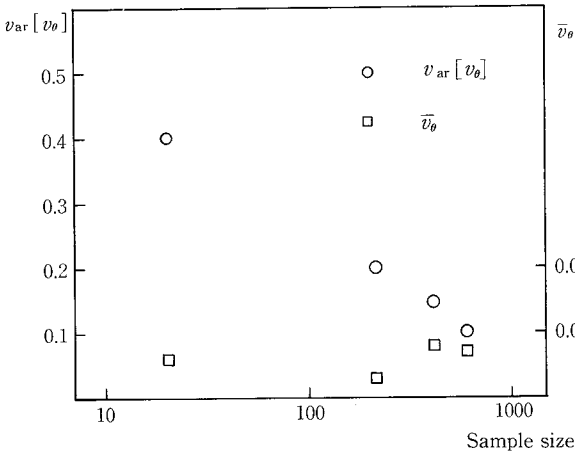


図 3 円周方向平均速度と標準偏差

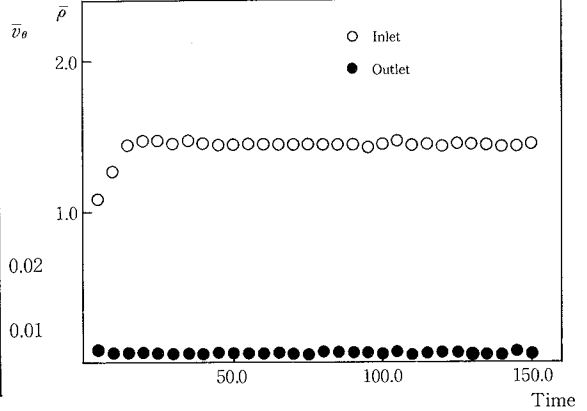


図 4 入口部, 出口部の平均密度の時間変化

計算精度が向上していることがわかる。しかしながら式(4)で計算される \bar{v}_θ の値は依然と存在しており、さらに多くのサンプル数が必要と考えられる。なお31回の試行により得られた結果では、 \bar{v}_θ は主流速度の約2%程度存在した。以下31回の試行のアンサンプル平均の結果について検討する。

図4に入口部, 出口部の断面内平均密度分布 $\bar{\rho}$ の時間変化を示す。図より入口部の密度は初期状態 $\bar{\rho}=1.0$ から時間と共に上昇し無次元時刻 $t=20$ 程度で飽和し, その値は $\bar{\rho}=1.42$ になっている。これは管路内にディスクが存在するため抵抗が大きくなり, 出口側に分子が流れにくくなっているためと考えられ, 図5の流れ場の密度分布が示すように入口部の密度が大きくなっていることに対応している。したがって希薄度を示すクヌッセン数 K_n は, ディスクの径 D_1 を代表長さにとりて初期時 $K_n=\lambda_\infty/D_1=0.1$ から $K_n=0.07$ 程度に変化している。

図5, 6に定常状態における流れ場の密度分布図および温度分布図を示す。ディスク近傍の密度, 温度は多少

のばらつきはあるが, 計算精度からみてほぼ一様となっていることが計算されている。

図7に各ディスクと干渉した単位時間, 単位面積あたりの分子数の平均値(平均フラックス \bar{F})を示す。図中上流側からディスク番号を1, 2, ……11としている。平均フラックスは下流側に行くに従って減少しており流出口の完全真空の条件が流れ場全体に大きく影響を及ぼしていることが考えられる。実際の反応炉ではディスクの配置位置によらない均一な膜成長が必要であるのでこれを数値予測するためには, さらに下流側にディスクを増やすか出口の圧力, 温度等の境界条件を規定する必要がある。

図8に同一ディスク面上の面上平均フラックス \bar{F} と標準偏差 $var[F]$ を示す。 \bar{F} , $var[F]$ は式(4), (5)を用いた。ただし式(5)中の平均値 \bar{F} は式(4)の値を用いている。図より F の分布にはばらつきがある。これはサンプル数の不足が原因のひとつと考えられるが, さらに検討する必要がある。例として7枚目のディスクの F のばらつきのようすを示す。

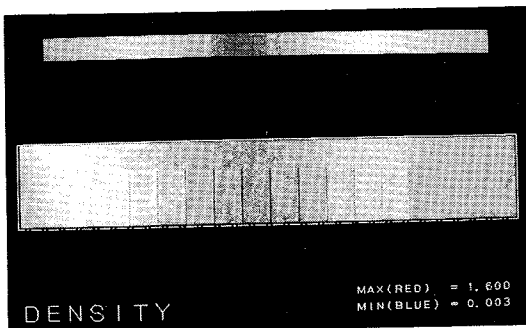


図 5 密度分布図

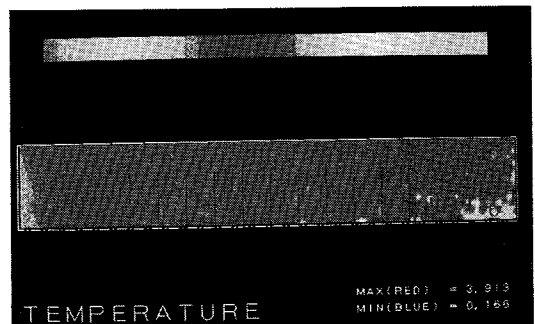


図 6 温度分布図

研 究 速 報

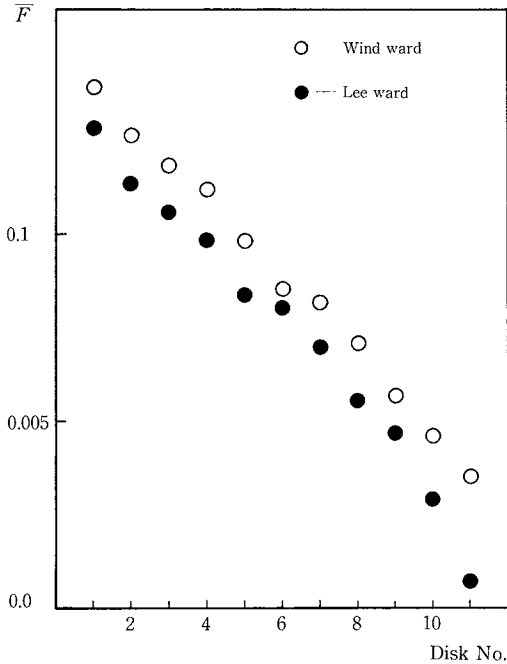


図 7 ディスク面上平均フラックス

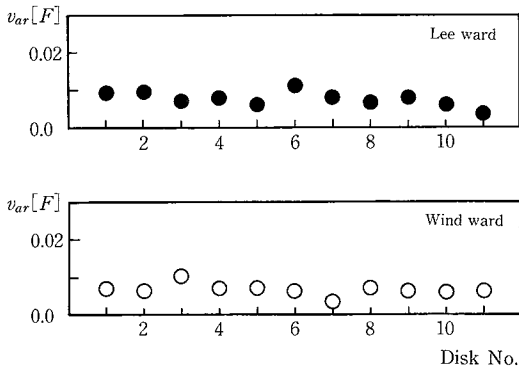


図 8 フラックス標準偏差

6. ま と め

DSMC法によりLPCVD反応炉内の流れの数値シミュレーションを行い流れ場の密度分布、温度分布、ディスクのフラックス等を試算した。計算結果は現時点における境界条件に対して定性的には流れ場を表現していると思われる。実際の反応炉内では、多原子分子、混相流であり、しかも化反応や表面反応が存在している。したがって計算結果の妥当性をみるためには、これらを表現する

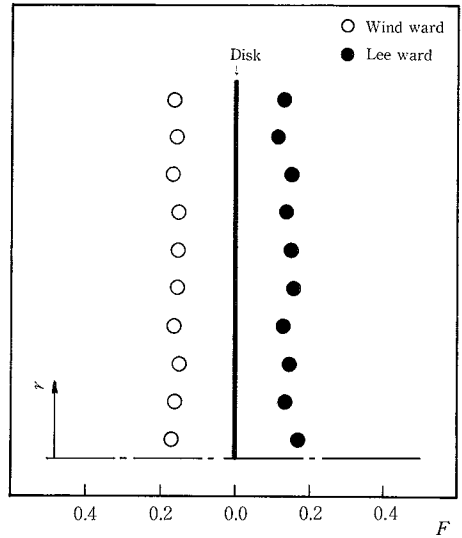


図 9 ディスク面上フラックス分布図

モデルを導入する必要がある。またモデルを導入する際には、モデル自体が持つ問題点を深く考察する必要がある。

近年重み係数の導入は物理的に好ましくない⁹⁾との論文もでており、DSMC法自体の持つ問題点の再検討、シミュレーション結果の妥当性の評価法などさまざまな問題を解決していかなければならないであろう。

本計算は株式会社日本クレイの御好意により、株式会社リクルートコスモスのクレイXMP-2システムで行われた。全計算時間は約5時間CPU要し、1セル、1ステップあたり 2.6×10^{-3} CPU secであった。

(1987年10月29日受理)

参 考 文 献

- 1) Wahl, G., Thin Solid Films Vol. 40 (1977), 13
- 2) Kuiper, A.F.T., et al., J. Electrochem. Soc. Vol. 129 No. 10, (1982) 2288
- 3) Chen, I., Thin Solid Films Vol. 41 (1983), 41
- 4) 太田, 平山, 機論(B), Vol. 52, No. 482 (1986)
- 5) 南部, 機誌, Vol. 89, No. 809 (1986.4), 445
- 6) Bird, G.A., Molecular Gas Dynamics, oxford univ. press. (1976)
- 7) 小林, 松本, 生産研究 Vol. 38, (1986.1), 65
- 8) 小林, 松本, 生産研究 Vol. 38, (1986.12), 620
- 9) Bird, G.A., Rarefied Gas Dynamics, proc. 12th Int. sym. (1980), 239