

OpenFOAM を用いたスピコートプロセスの 塗布シミュレーション事例紹介

篠崎明ⁱ

Introduction of Spin-coating Process Simulation Using Open FOAM

Akira SHINOZAKI

スピコートは半導体や光学機器などの分野で広く使われている薄膜を生成する手法である。基板上の配線や電極などの微細構造の影響を受け、一般に、生成される薄膜表面は必ずしも平にはならない。光学機器などでは薄膜表面の凹凸が製品スペックに影響することから、薄膜表面の凹凸サイズを小さくするために基板上の微細構造の形状やスピン条件の調整が行なわれる。この調整は実験・試作を中心に行なわれることが多い。本報では、実験・試作の負荷低減を目的とした流体シミュレーションの紹介として、基板上の微細構造の形状、スピン条件が薄膜表面の凹凸に与える影響について計算した事例を示す。

(キーワード): CFD, スピコート, OpenFOAM, interFoam, 微細構造, VOF 法

1 はじめに

スピコートは基板上に塗料を供給し、基板を高速回転させて薄膜を生成する手法である。膜厚の制御が容易であることや高品質な薄膜を生成できるなどの利点から、半導体の製造工程を中心に、Blu-ray などの記録メディア、レンズなどの光学機器といった様々な製品の薄膜生成工程で使われている。生成する薄膜は一般的に、膜厚が均質であることが望まれる。しかしながら、塗布面である基板には多くの場合、配線や光学的に必要な微細構造といった凹凸が存在し、この構造の影響を受けて生成された膜にも微小な凹凸が発生する。例えば、**図 1** に示すような一辺 5mm、厚さ 5 μ m の凸構造を 3mm 間隔で周期的に配置した四角形の基板表面に塗料を塗布するスピコートのシミュレーションを行なうと、**図 2** に示すように塗膜表面に中心から外側に向けて放射状の凹凸が発生することが予測される(シミュレーションでは計算量を抑えるため、基板の第一象限にのみ凸細構造を配置している)。なお、**図 2** に示している液膜高さとは**図 3**にあるように基準位置からの液面までの距離を指す。**図 2**の基準位置は基板の凸構造がない部分としている。**図 2**に示したシミュレシ

ョンで予測された塗膜の凹凸は数マイクロメートルから数百ナノメートル程度であるが、光学機器などの精密機器ではこのサイズの凹凸が製品のスペックに影響し、品質の低下を招く。最悪の場合、製品の不良となってしまふ。そこで塗膜表面の凹凸を発生さ

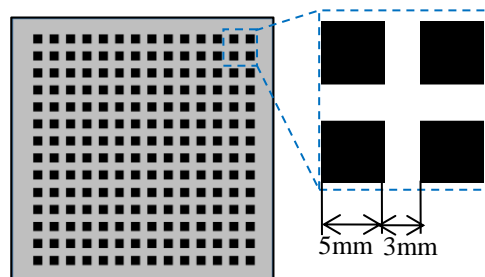


図 1 凸構造の配置 (黒色が厚み 5 μ m の凸構造部)

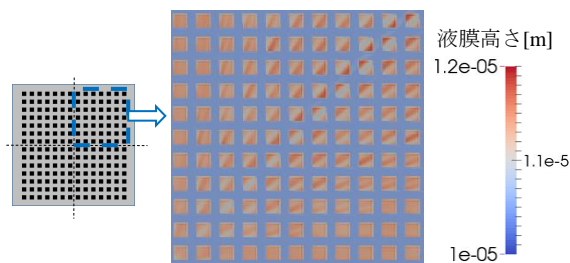


図 2 凸構造を持つ基板の塗布シミュレーション結果

ⁱ サイエンスソリューション部 デジタルエンジニアリングチーム チーフコンサルタント 博士 (工学)

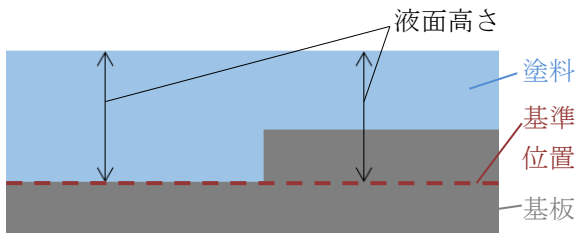


図 3 液膜高さ

せにくい基材上の凹凸形状の探索や製造条件（スピンレシピ）の探索のための実験，試作が必要となる。しかし，基板上に作りこむ構造の複雑化や要求される製品スペックの向上により，適切な微細構造の設計やスピンレシピの条件出しは必ずしも容易ではなく，実験，試作の負担が増大している。ここにシミュレーションが活用できれば非常に有益であるが，シミュレーションにはシミュレーションの難しさが存在する。

スピコートプロセスでは，一般的に基材の面方向のサイズは数センチメートルから数十センチメートルであるのに対して基材上の微細構造や生成される塗膜の厚みは数マイクロメートルから数ナノメートルである。サイズが小さい厚み方向の寸法でシミュレーションに用いるメッシュサイズが規定されるため，面方向の空間分割においてメッシュ数が増大し，計算負荷が非常に大きくなる。このため，微細構造を詳細にモデル化したスピコートの塗布シミュレーションは計算量の観点から困難なものとなる。解決策として計算の並列化，および，微細構造のうち影響が大きい構造のみを考慮し，その他の構造は再現しない簡略化があげられる。

みずほ情報総研では以前から，並列数がライセンスに制限されないオープンソースの OpenFOAM を用いて，並列化による計算パワーを確保し，また図 2 のように影響の大きい凹凸構造を抽出したモデル化により，スピコートプロセスの塗布シミュレーションを行なっている。以降では具体的なシミュレーション事例として，はじめに，凹凸構造がない平らな基板の塗布シミュレーションを紹介し，続いて，凸構造がある基板の塗布シミュレーションを紹介する。

2 計算条件

図 4 に示す立方体の計算領域において z 軸下側を塗布面（基板面上）と想定し， x 方向， y 方向および z 方向は大気開放された状態を想定した。具体的な境

界条件は，基板面である z 軸下側境界面を滑り無し条件とし， x 方向， y 方向および z 方向は圧力条件とし，大気圧（1[atm]）で固定としている。

基板の回転は，OpenFOAM の MRF（Multiple Reference Frame）機能を用いて計算している。回転の角速度は計算開始時から終了まで一定値とした。

基板上的の指定の領域に塗料（流体）を配置し，塗料の初期速度は 0[m/s]としている。

計算を行った OpenFOAM のバージョンは 2.4.0 である。ソルバーには非圧縮性の二相流（気液）を計算する InterFoam を用いた。気液界面（自由表面）の計算には VOF（Volume of Fluid）法が用いられている。

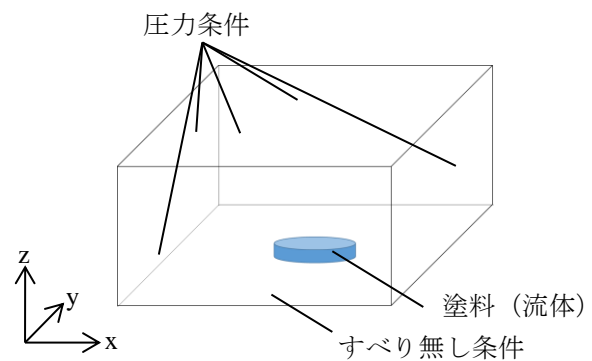


図 4 計算領域と境界条件

3 平らな基板の塗布シミュレーション

3.1 理論値との比較

図 4 に示した計算領域の中央に 10cc の流体を半径 40mm，厚さ 1.989mm の円筒状に配置し，ウエハの回転速度 2000rpm で 3 秒間回転させて流体を塗布する計算を行なった。計算に用いた流体の物性値を表 1 に示す。

表 1 流体の物性値

密度 kg/m^3	粘度 $\text{Pa} \cdot \text{s}$	表面張力 $[\text{N/m}]$
1000	0.01	0.03

図 5 に液面高さの時間変化の様子を示す。流体が平面方向に同心円状に広がっていき，計算領域全体に行き渡る様子が見られる。計算領域の対角線上（図 5 に示す AB）の液面高さ分布を図 6 に示す。ここでは基板表面を高さの基準（図 3 の基準位置）としているので，液面高さは膜厚に相当する。図 6 から，計算初期では中央部が厚く，流体が広がっていくにつれ，中央と端部の膜厚差（液面高さの差）が小さくなり全体的に均一な膜厚が生成されることが分かる。

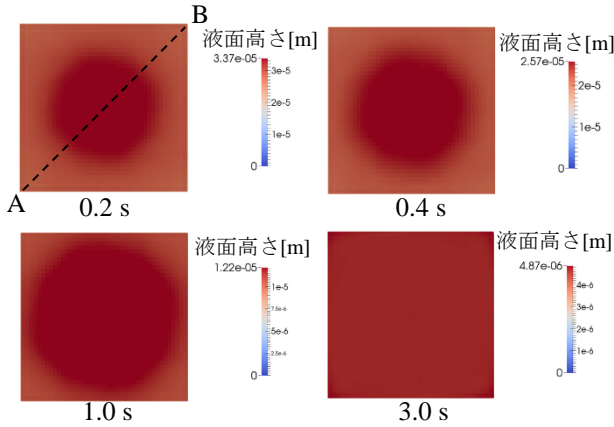


図 5 液面高さの時間変化
(カラーバーの上限は各時間の液面の最大値を表す)

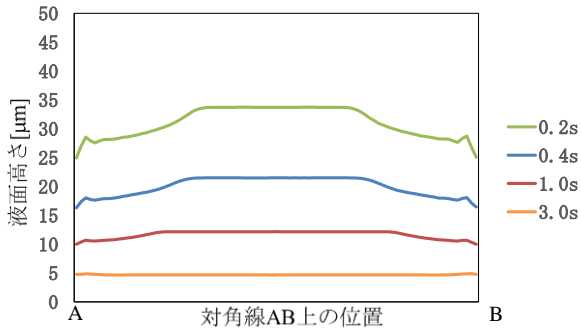


図 6 対角線 AB 上の液面高さ

平らな表面の基板では回転中の半径方向の流量について、粘性抵抗と回転による効果の釣り合いから理論式(式(1))¹⁾が提案されている。式(1)の q は流量、 v は半径方向流速、 h は膜厚、 ρ は密度、 ω は角速度、 r は半径方向位置、 η は粘度を表す。

$$q = \int_0^h v dz = \frac{\rho \omega^2 r h^3}{3\eta} \quad (1)$$

基板上の流体が同じ中心を持つ円筒状に広がっていき、膜厚は均一であると仮定すると、式(1)から厚みの時間変化が計算できる。図 5 や図 6 に示した OpenFOAM の計算結果の塗膜中央の膜厚変化と式(1)から求めた理論値の比較を図 7 に示す。OpenFOAM による計算では流体形状が必ずしも円筒状ではないことから理論値との定量的な差が生じているものの定性的な相関は取れており、粘性抵抗と回転による効果が適切に計算されていることが確認される。

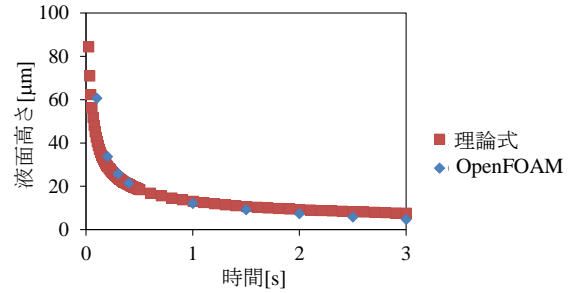


図 7 中心部の膜厚の時間変化

3.2 パラメータスタディ

液面高さ(膜厚)分布予測の検討事例として表 1 に示した条件を基準(条件 A)とし、流体の粘度を $0.02\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、 $0.005\text{Pa}\cdot\text{s}$ と変化させた条件および、角速度(回転速度)を 1500rpm 、 2500rpm と変化させた条件の計算結果を紹介する。表 2 に計算条件をまとめる。

表 2 計算条件(平らな基板)

	条件 A	条件 B	条件 C	条件 D	条件 E
密度 kg/m^3	1000	1000	1000	1000	1000
粘度 $\text{Pa}\cdot\text{s}$	0.01	0.02	0.005	0.01	0.01
表面張力 N/m	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
角速度 rpm	2000	2000	2000	1500	2500

図 8 から図 11 に条件 B, C, D, E の対角線上(図 5 に示した AB 線上)の液面高さの時間変化を示す。全条件とも初期では中央部の液面高さが高く、徐々に全体が均一な液面高さになるという傾向は一致している。しかしながら、平均液面高さの変化や中央部が平らになるまでの時間には違いが見られている。

図 12 に各条件の平均液面高さの時間変化を示す。粘度が低いほど(条件 C)、角速度が高いほど(条件 E)、早く液面が低下することが分かる。

図 13 には液面高さの最大と最小値の差を縦軸、平均液面高さを横軸にとって整理したグラフを示す。なお、図 8 から図 11 では計算領域の端で液面が盛り上がる部分が見られているが、これは境界による影響(計算上の影響)が懸念されることから、平均液面

高さ、と液面高さの最大、最小値の差の算出からは除外した。

図 13 (a)では粘度が低いほど、平均膜厚に対して最大値と最小値の差が小さくなる傾向が見られる。また、図 13 (b)では回転速度が高いほど平均膜厚に対する最大値と最小値の差が小さくなる傾向が見られている。すなわち、粘度が低いほど、回転速度が速いほど、すばやく液面高さが均一になると示唆される。

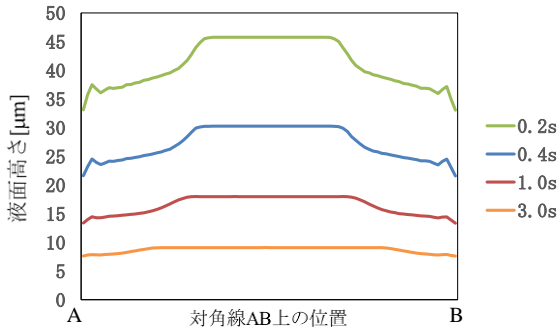


図 8 条件 B の対角線上の液面高さ

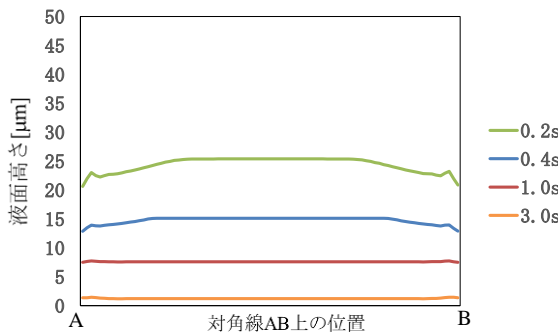


図 9 条件 C の対角線上の液面高さ

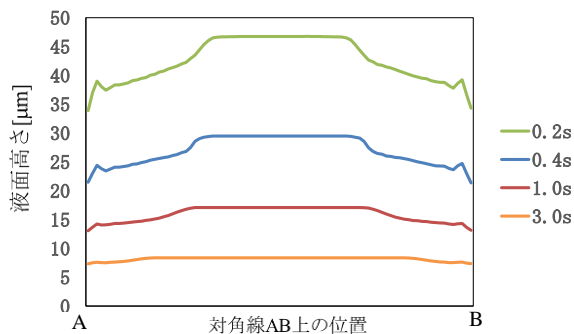


図 10 条件 D の対角線上の液面高さ

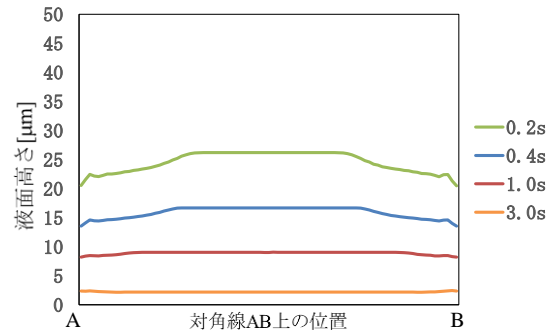


図 11 条件 E の対角線上の液面高さ

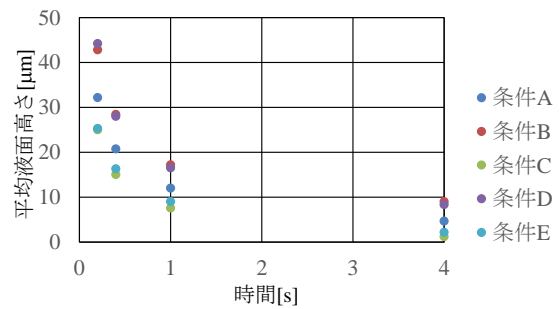
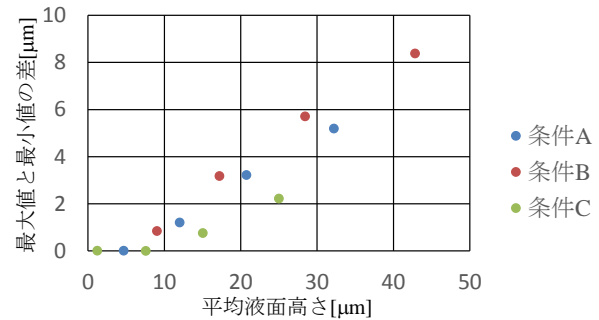
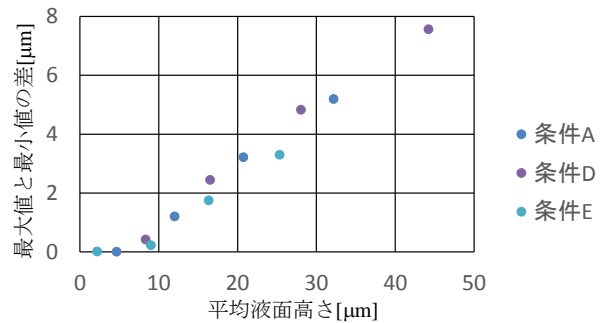


図 12 平均膜厚の時間変化



(a) 粘度違い



(b) 角速度違い

図 13 平均膜厚と最大-最小値の差

本計算では考慮していないが、実際のスピンドルでは塗布中（回転中）に溶媒が蒸発して流体の粘度が高くなり流動性が低下する。これにより液面形状が動きにくい状態になる。このため、スピン開始から早い段階で液面高さが均一になることは、塗膜の最終状態の液面高さの均一化に有用と考えられ、流体の低粘度化が有効な手段と示唆される。本計算からは角速度を上げることも有効と示唆される。しかし、角速度が上がると蒸発速度もあがり、より速く液面形状が動きにくくなると想定され、トレードオフの関係になるため、角速度を上げる効果については更なる検討が必要と考えられる。

4 凸構造がある基板の塗布シミュレーション

4.1 基準条件

一般に基板には配線などによる微細な凹凸構造存在する。以降では凸構造が存在する基板面に塗布する場合のシミュレーションの事例を紹介する。ここでは単体の凸構造が液膜の分布に与える影響に着目し、図 14 に示すように一辺 5mm、厚さ 1 μ m の凸構造一つを計算領域の第一象限に配置したモデルを用いる。なお、複数の微細構造の相互の影響に着目する場合には図 1 のような複数の凸構造を配置したモデルによる検討が適切である。3 章では流体の初期位置として計算領域中央に円筒状で配置したが、本章では計算領域全体に 100 μ m の均一な厚さの流体を配置する。これは、基板全面に流体が均一に広がったとしても、膜厚が薄くなる過程で凸部の影響により液面形状が不均一なることを想定したモデルである。

基準条件とする流体の物性値を表 3 に示す。ウエハの角速度は 2000rpm とし、回転時間（計算時間）は 0.1 秒間とした。

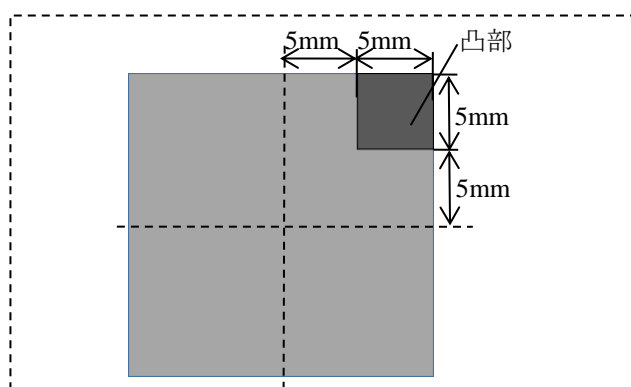
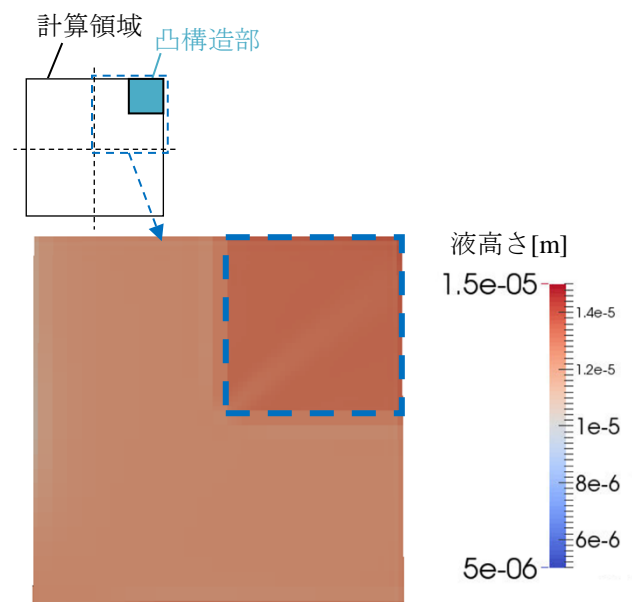


図 14 凸構造の配置

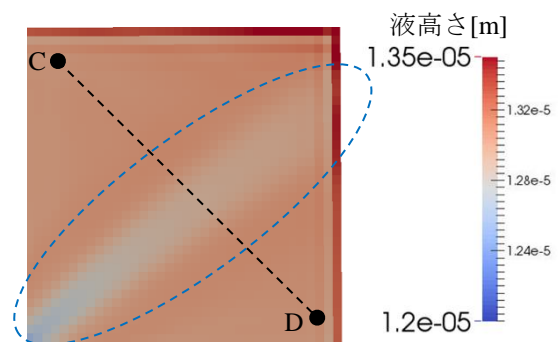
表 3 基準条件の物性値

密度 kg/m ³	粘度 Pa · s	表面張力[N/m]
1000	0.001	0.03

図 15 に 0.1 秒時の液面高さの分布を示す。ここでは凸構造がある第一象限のみを示す。なお、液面高さの基準位置は基板の凸構造が無い部分の高さとした。凸構造部では流体が乗り上げるため、他の領域に比べて液面が高くなっている。また、凸構造部では基板の内から外に向かっておおよそ対角線上に、筋上の凹みが現われており（図 15 (b)の青色点線部）、膜厚の均一性が損なわれている。



(a) 計算領域の第一象限



(b) 凸構造部 (a)の青色点線部) の拡大図

図 15 液面高さの分布(0.1 秒時)

凸構造部の対角線(図 15 (b)の CD 線上)の液面高さの時間変化を図 16 に示す。なお、計算領域の境界近くは液面形状が境界の影響を受けていると思われるため、C、D 点は境界の影響が小さいと見られるところまで内側に取っている。図 16 では、0.05 秒、0.07 秒、0.10 秒の各時刻においてグラフの中央部分に液面が薄くなる領域が見られる。これは、図 15 の青点線部の筋上の凹みである。液面高さがおおよそ一定となっている領域(図 16 中の r_d) の平均液面高さと中央部の凹み部分の最も液面が薄い部分との差分(0.10 秒であれば、図 16 中の Δd)を図 17 にプロットする。時間が進むにつれ差分(Δd)は大きくなっている。全体的な膜厚は時間と共に薄くなるので、膜厚に対して凹みの割合が大きくなっている。

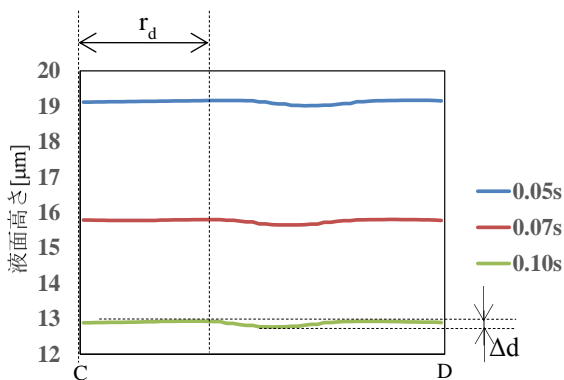


図 16 対角線の液面高さ分布

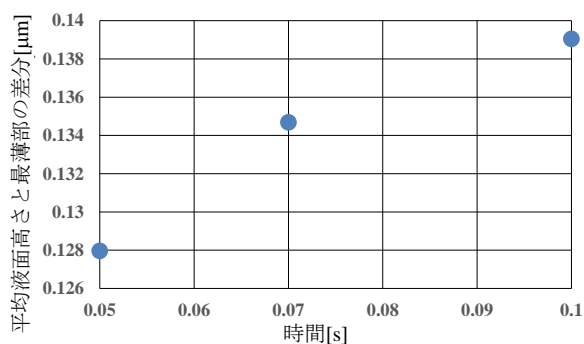


図 17 対角線上の平均液面高さ—最薄部の差分

ことを示している。凸構造のサイズに対して膜厚が大きいときは凸構造の影響は小さく、筋上の凹みも小さいが、膜厚が薄くなると凸構造の影響が強くなり現われてくることを示唆される。

4.2 パラメータスタディ

膜厚分布予測の検討事例として、凸構造部の高さ、

凸構造部の角部の形状を変化させたときの様子を紹介する。表 3 に示した条件を基準(条件 1)とし、凸構造部の高さを $1.5\mu\text{m}$ 、 $0.5\mu\text{m}$ に変化させた条件および、凸構造部の角部を図 18 のように鋭角にした条件について計算を行なう。表 4 に計算条件をまとめる。各条件とも計算時間は 0.1 秒とした。

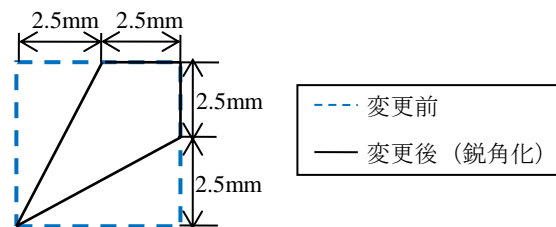


図 18 凸部の形状変更

表 4 検討条件(凸構造がある基板)

	条件 1	条件 2	条件 3	条件 4
密度 kg/m^3	1000	1000	1000	1000
粘度 $\text{Pa} \cdot \text{s}$	0.001	0.001	0.001	0.001
表面張力 N/m	0.03	0.03	0.03	0.03
角速度 rpm	2000	2000	2000	2000
凸構造高さ μm	1	1.5	0.5	1
角部形状	直角	直角	直角	鋭角

図 19 に各条件の 0.1 秒時の凸構造部の液面高さ分布を示す(条件 1 は図 15 に示している)のでここでは割愛する。各条件ともに内側から外側に向かって筋上の液膜の凹みが現われている。条件 1、条件 2、条件 3 の液面高さ分布の傾向は似ている。一方、角部を鋭角にした条件 4 では、対角線上に内側から外側に向かって筋上の凹みに加えて、凸構造部の淵で大きな液面の盛り上がりは凹みが発生しており、他の条件とは傾向が異なっている。このことから、角部の形状が液面高さ分布に大きく影響することが示唆される。

図 20(a)に条件 1、条件 2、条件 3 (凸構造の高さ違い)、図 20(b)に条件 1、条件 4 (角部形状違い)の対角線(図 19 に記載の CD)上の液面高さ分布を示す。条件 6 では凸構造部の幅が狭くなっているため、対

角線 CD を短くした対角線 C'D' の凸構造部分の液面高さを表示している。また、平均液面高さと最薄部の差分 (図 16 の Δd) の関係を図 21 に示す。

図 20 (a), 図 21 (a) の結果から、凸構造部が低くなると筋上の液膜の凹みも小さくなることが示唆される。凸構造部が低くなることは相対的に液膜が厚くなることに相当し、図 17 で示唆された液膜が厚いほど凸構造の影響が小さくなり筋状の液膜の凹みが小さくなる傾向とも相関が取れている。これらのことから、筋上の液膜の凹みを低減し、液膜高さの均一性を高めるためには凸構造部を低くすることが有用といえる。角部の形状を鋭角にした条件では、図 19, 図 20, 図 21 からわかるように筋上の液膜の凹みが顕著に大きくなった。角部の鋭角化は液膜高さの均一性を悪化させることが示唆される。

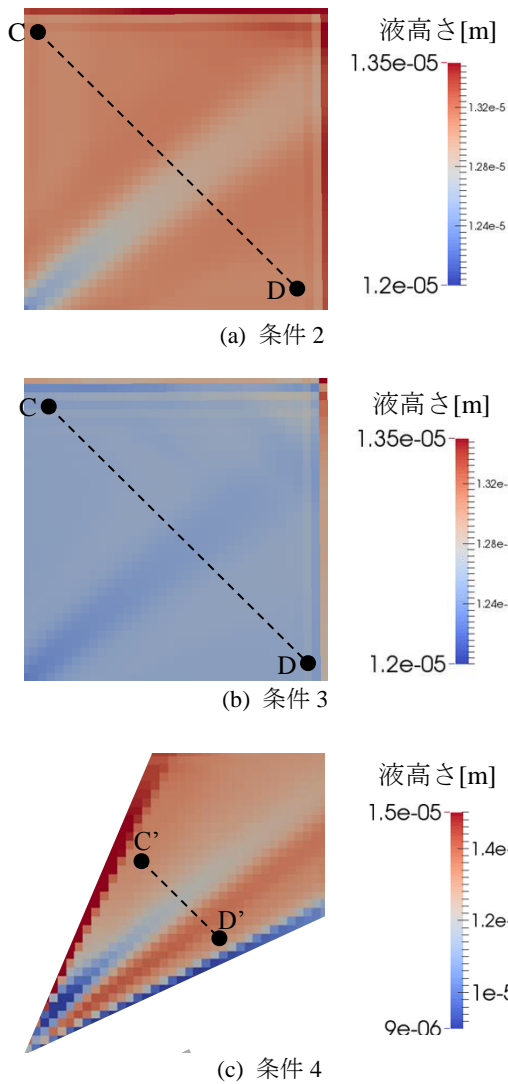


図 19 凸構造部の液面高さ分布

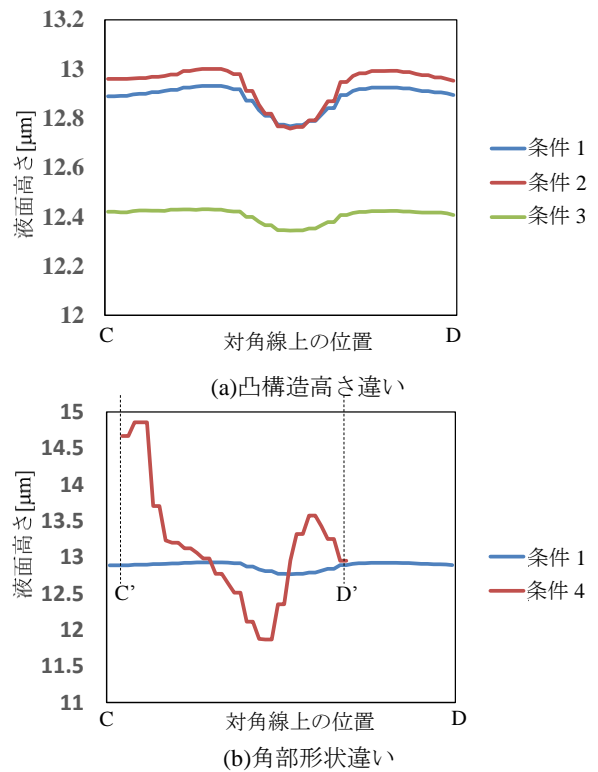


図 20 対角線上の液面高さ分布

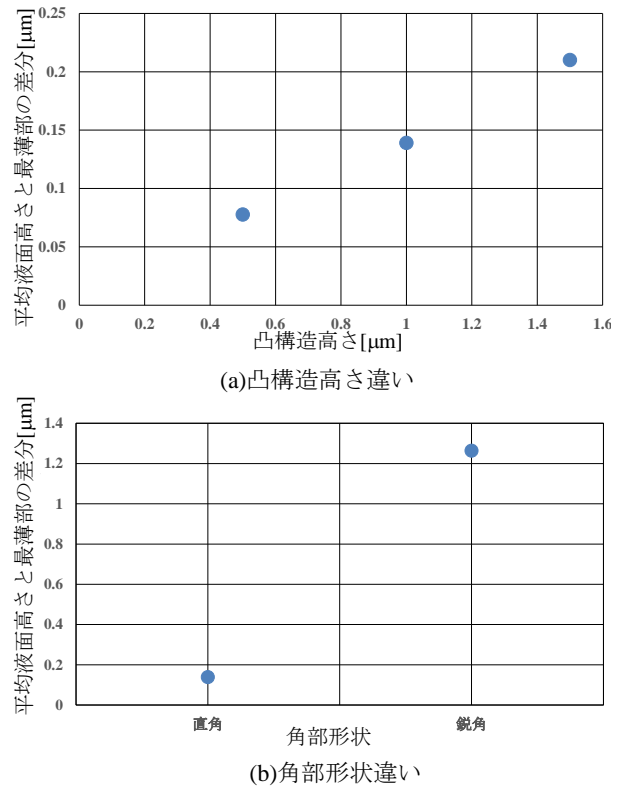


図 21 対角線上の平均液面高さと最薄部の差分

5 おわりに

本報ではスピコートプロセスの塗布シミュレーションの事例紹介として表面が平らな基板ならびに表面に凸構造がある基板を対象にした解析を紹介した。表面が平らな場合も凸構造がある場合も、回転速度、粘度、凸部の形状といった諸因子により液膜高さの均一性(表面の均一性)が影響を受けることが予測された。表面の不均一性は、たとえサブマイクロメートルレベルであっても、光学機器などでは不良の原因となるため、均一な表面になるような微細構造の形状、塗料物性、プロセス条件の探索はスピコート

における大きな命題である。本報で紹介したシミュレーションは上記の微細構造の形状や諸因子の条件探索が可能である。今後もシミュレーションの活用を促進させ、試作回数や実験回数の削減、高品質な製品の迅速な開発、ひいては“ものづくり”に貢献していきたい。

引用文献

- 1) Alfred G. Emslie, et.al. : Flow of a viscous liquid on rotating disk, Journal of Applied Physics, 29 (1958) 858-862.