

微細構造体に浸入する極少流体の界面流動に関する挙動解析

群馬大学大学院理工学府 助教 矢野絢子

1. 研究背景および目的

半導体の製造工程やマイクロデバイス開発の分野においては微細加工後の微細構造物の洗浄や表面処理にウェット処理が用いられることが多く、製品の性能品質に直結する極めて重要な技術となっている。例えば、DRAM で用いられるキャパシタ構造や近接する素子間のリーク電流を防ぐシャロートレンチアイソレーション構造などでは、加工精度の向上に伴い構造体の微細化や複雑な三次元化が進み、構造体の深層化や高アスペクト化が進んでいる。しかしながら、このような高アスペクト比の構造体において、エッチング液などの供給や表面処理後などでは、必要な部分にまで正確に薬液を注入する技術が求められている。また、逆に薬液を取り除く工程では、液体の表面張力による微細構造体の変形や倒壊が発生する問題が生じている。しかしながら、微細構造体への液体の浸入や表面の膜形成、その除去等に関する統一的な研究は十分行われていないのが現状である。例えば、これらの微細構造体は様々な物性の酸化膜や金属膜などが利用されており、微細構造体の材質や表面性状との関連なども明確ではなく系統的な評価が求められる。そこで本研究では、隙間の幅やノズルから供給する流量、また隙間を形成する微細構造の材質や表面粗さの条件を変えることによって変化する液体浸入の様子を観察することにした。

2. 実験装置

図 1 に実験装置の概略図を示す。ガラスキューブを光学ステージに固定し、それらの隙間を調整して実験に使用した。シリンジポンプを用いて一定流量で超純水を供給し、滴下された液滴がその隙間に浸入する様子を側面からカメラで撮影した。また、本実験における座標系と変数および寸法を図 2 に示す。1 辺が 15mm の立方体のガラスキューブを 2 つ使用

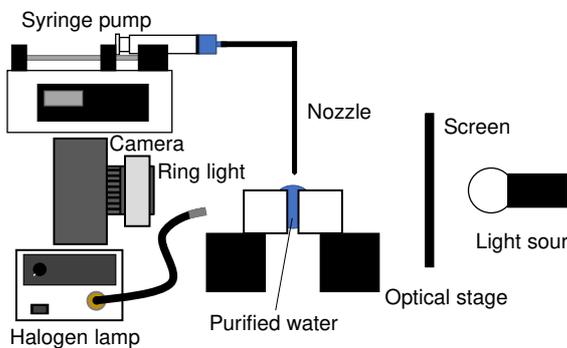


Fig. 1 Experimental equipment

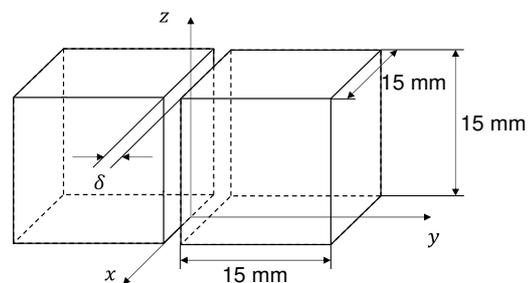


Fig. 2 Schematic image of coordinate systems

し、それらの隙間を δ [mm]とした。また微細構造の材質を変える実験では一方のガラスキューブを同サイズの銅に置き換えた。光源は市販の電球を使用し、トレーシングペーパーによるスクリーンを用いてバックライト法で撮影を行った。銅を用いた実験では側面からの観察ができなくなるため、光源側のガラスキューブのみを銅に置き換え、カメラ側にリングライトとハロゲンランプを設置して撮影した。

3. 実験結果および考察

3・1 平行な隙間への液滴浸入実験

供給する流量を $Q=60\mu\text{l}/\text{min}$ に固定し、微細構造の隙間の条件を $\delta=0.08, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5, 1.0\text{mm}$ に設定した6通りで実験を行った。観察された液滴の浸入挙動の時間変化を図3に示す。隙間に浸入した液体の概形を10秒ごとにプロットしている。隙間 $\delta=0.08\text{mm}$ では液滴が滴下されると左右に液体が広がり、まずガラスキューブの上面が液体で満たされ、その後側面に沿って全体に浸入していく様子が観察された。次に、隙間 $\delta=0.1\text{mm}$ から 0.5mm では液滴が滴下されると円形状を保ちながら、鉛直方向へ徐々に伸び、底面に到達した後、底面の左右に広がり、側面、上面の順に液体が浸入していく様子が観察された。それに対して、隙間 $\delta=1.0\text{mm}$ においては液滴が滴下されると円形状を保ちながら鉛直方向へ伸びていくが、滴下された液体が一定の大きさを超えるとひとまとまりとなって底面に移動する。その後、底面の左右に広がり側面に到達するが、液体は上面に向かっては浸入しない。その後、新たな液滴が滴下されると初めの滴下時と同様の挙動を繰り返した。

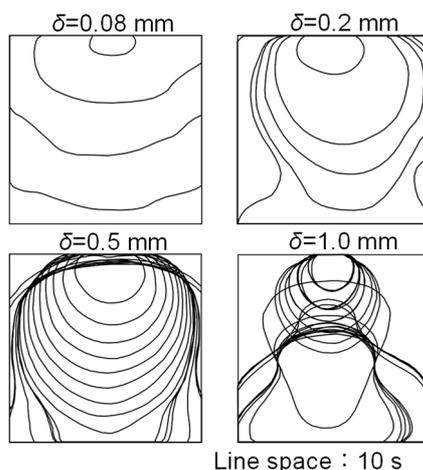


Fig. 3 Time laps images of droplet penetration behavior

このときの液滴が浸入した時間と面積比の関係を表したグラフを図4に示す。横軸は時間、縦軸は液体が浸入した面積をガラスキューブの面積で除して100をかけた面積比 S [%] である。隙間が大きくなるとグラフの傾きが小さくなっており、液体の浸入する速度が遅くなっていることがわかる。ここで隙間の幅と液体が浸入した面積比の最大値の関係を表したグラフを図5に示す。このグラフから隙間が大きくなると液体が浸入した面積比の最大

値は小さくなっており、微細構造内全体に液体が浸入しにくくなるのがわかる。これらの現象は液体の界面に対する面積を小さくしようとする表面張力がガラスキューブの表面に対する面積を小さくさせたためだと考えられる。また、隙間が大きくなると微細構造内の体積が大きくなることから微細構造内を液体が満たすためには隙間が小さいときよりも多くの液体が必要となり、液体の浸入する速度が遅くなったと考えられる。さらに、微細構造内の液体の質量も大きくなることから重力の影響も大きく受け、液体が鉛直方向に伸びる現象になったと考えられる。

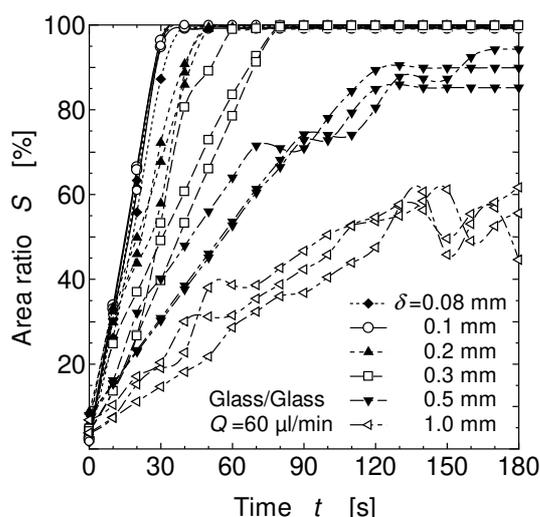


Fig. 4 Relationship between time and area ratio

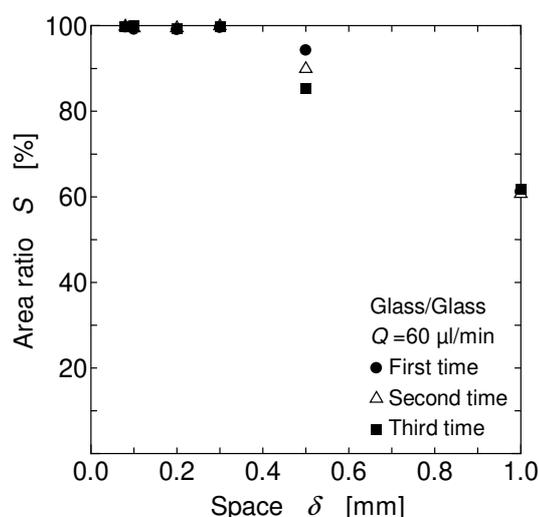


Fig. 5 Relationship between space and maximum area ratio

3・2 液体供給流量を変えた場合の液滴浸入実験

微細構造の隙間の条件を $\delta=0.08, 0.1, 0.5\text{mm}$ に設定した 3 通りで、それぞれノズルから供給する流量を変えて実験を行った。すべての隙間において流量に関係なく、3・1 節で述べた挙動と似た液体の浸入挙動が観察された。また、流量が多くなると液体の浸入する速度が速くなるのがわかった。さらに、これらの結果より流量に関係なく、隙間が小さい場合は微細構造内全体に液体を満たせるが、隙間が大きい場合は全体に液体が浸入しにくいことがわかった。供給する流量は液体の浸入する速度に影響を与えるが、液体の浸入挙動に対しては影響が小さいことが考えられる。したがって、この実験からも隙間の幅が液体の浸入挙動に大きく関わっていることがわかった。

3・3 銅の表面粗さと粗さの方向が異なる隙間への液滴浸入実験

微細構造の材質および表面粗さを変化させるため、1 辺が 15mm の銅の表面を番手の異なるサンドペーパーで削ったものを使用した。サンドペーパーの番手は #180, #500, #1000, #2000 の 4 種類を使用した。各番手のサンドペーパーで削った銅の表面の算術平均粗さ Ra の数値を銅の粗さの方向に対して垂直方向と平行方向の 2 方向で測定し、その結果を図 6

に示す。番手が大きくなると算術平均粗さが小さくなっている。また垂直方向に測定した場合は粗さの方向に逆らっているため粗さの方向に沿って平行方向に測定したデータと比較すると Ra が大きくなっている。

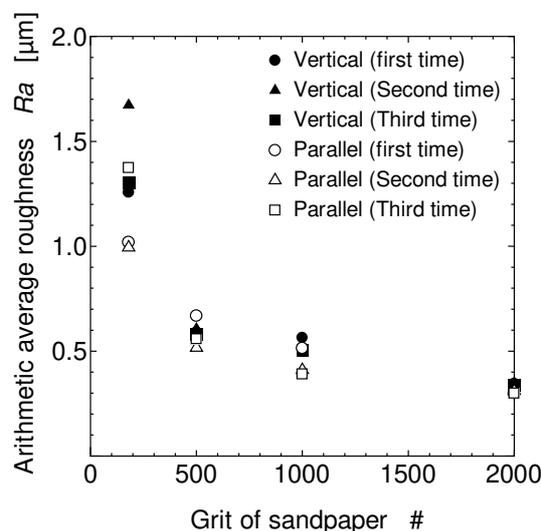


Fig. 6 Relationship between grit of sandpaper and arithmetic average roughness

ここで微細構造の条件を隙間 $d=0.1\text{mm}$ 、供給する流量 $Q=100\mu\text{l}/\text{min}$ に固定し、銅の表面粗さを変化させて実験を行った。銅を削った方向によって表面粗さが異なるため、表面粗さの方向を縦方向と横方向の 2 通りで実験を行った。#1000 で削ったときの液滴の浸入挙動の時間変化を図 7 に示す。縦方向の場合は液滴が滴下されると鉛直方向に伸び、液体が縦長の形となり、銅の底面まで到達する。その後、底面の左右に広がり、側面と上面に向かって液体が浸入していくが限度があり、上面の両端には到達せず銅全体を液体で満たすことができない様子が観察された。また表面が粗いほど液体が縦方向に伸びる特有の浸入形体となった。液体の浸入挙動は粗さの方向と算術平均粗さの数値に影響されると考えられる。それに対して、横方向の場合は液滴が滴下されるとすぐに左右に液体が広がっていき、上面が液体に満たされた後、側面に沿って液体が下降していき銅全体に液体が浸入する様子が観察された。これは算術平均粗さの数値に関係なく、すべての条件において観察された。この結果より、ガラスキューブの場合と銅の場合で液体の浸入挙動は異なるが、銅の表面粗さを横方向にすることで同等量の液体を微細構造内全体に満たす効果があると考えられる。銅を縦方向に設置した場合の液滴が浸入した時間と面積比の関係を表したグラフを図 8 に示す。比較のためガラスキューブのみを使用した場合の結果も一緒にプロットしている。表面粗さのある銅に比べて表面が平らなガラスキューブの方がグラフの傾きが大きく、液体の浸入する速度が速いことがわかる。ガラスキューブの場合と銅の場合で液体の浸入する速度が異なることから速度は微細構造内の材質や表面の状態によって影響される。しかし、銅の Ra を変化させた場合は液体の浸入速度に大きな差が見られないため、算術平均粗さの

数値による速度への影響は小さいと考えられる。

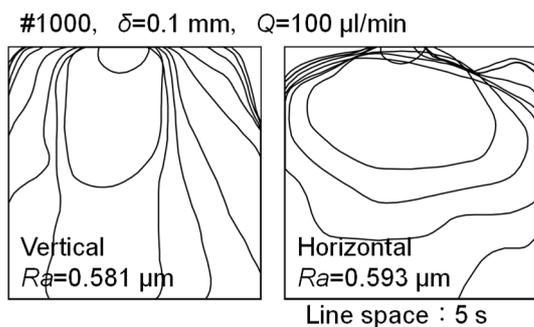


Fig. 7 Time change of droplet penetration behavior in vertical and horizontal

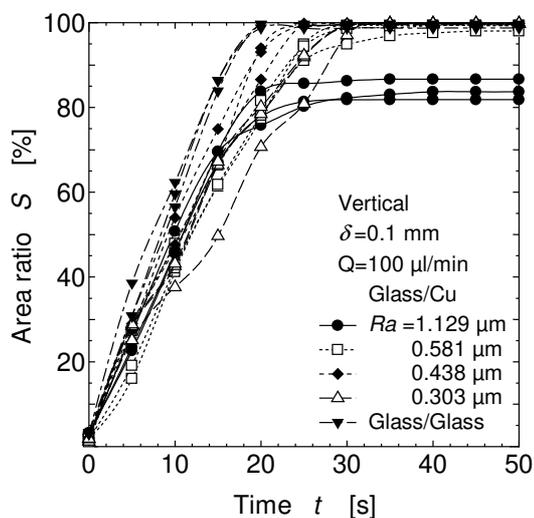


Fig. 8 Relationship between time and area ratio in vertical

4. 結言

隙間の幅や供給する流量, また隙間を形成する微細構造の材質や表面粗さを変化させることにより液体の挙動の観察を行った. 以下に得られた結果を示す.

- (1) 隙間が狭いほどより速く, より微細構造内全体に液体が浸入する.
- (2) 供給する流量が多いほど液体の浸入する速度は速くなるが, 流量の浸入挙動への影響は小さい.
- (3) 表面粗さの方向によって液体の浸入挙動は大きく変化する.
- (4) 表面粗さが縦方向の場合は粗いほど液体の浸入挙動への影響が大きい, 横方向の場合は粗さの影響は小さい.