回転基板上の液膜流に発生する模様に関する研究*

富 樫 盛 典^{*1}, 阿 部 康 夫^{*1}, 松 浦 宏 育^{*2}
太 田 隆 司^{*3}, 東 人 士^{*4}

A Study on Flow Patterns of a Liquid Film on a Rotating Substrate

Shigenori TOGASHI^{*5}, Yasuo ABE, Hiroyasu MATSUURA,
Takashi OHTA and Hitoshi AZUMA^{*5} Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.,
502, Kandatsu, Tsuchiura, Ibaraki 300-0013 Japan

Uniformly making a liquid film on a rotating substrate is of great practical importance. However, despite its frequent use in practical processes, the liquid film on a large-size substrate has never been examined. We have thus visualized the flow patterns of a liquid film on a large-size substrate (650 mm × 830 mm). There are two kinds of flow patterns on the liquid film: a turbulent-transition flow pattern or a striped flow pattern. We measured the effects of the change of kinematic viscosity of the liquid, the flow rate of the nozzle, and the angular velocity of the substrate on the striped flow pattern. Moreover, we devised a new equation to predict the onset point of the striped flow pattern. And it was found that the predicted onset point agrees well with the measured one.

Key Words: Flow Visualization, Transition, Boundary Layer, Viscous Flow, Liquid Film, Rotating Substrate, Striped Pattern

1. 緒 言

回転している基板の中心に設置したノズルから液体を流すと、液体は遠心力によって放射状に広がって基板上に液膜を形成する。この原理は、半導体やディスプレイ製造プロセスにおいて、フォトレジストを基板上に均一に塗布する工程、および基板上の異物を洗い流す洗浄工程などに広く応用されている。また燃料や農薬の散布等のプロセスでは、回転基板の端部から液膜を空气中に放出し、空気とのせん断力で液膜を分裂させる微粒化方法としても広く用いられている。

回転基板上の液膜流の挙動に関しては Emslie ら⁽¹⁾ の先駆的な研究がある。Emslie ら⁽¹⁾ は初期の液膜形状がどのようなものであっても、回転によって液膜は速やかに均一になることを示した。また、松本ら⁽²⁾ および小原ら⁽³⁾ は、液膜流の自由表面を考慮した 2 次元軸対称流れの数値解析を実行して、液膜形成過程に及ぼす表面張力の影響を明らかにした。さらに、液膜がある程度、基板

上に広がった後は一次元解析でも十分に流動を記述できることを示した。これらの研究では、いずれも液膜は時間が経過すると均一になることが示されている。しかし、ノズルから流す流量や基板の回転数などの条件を変えると、必ずしも液膜が均一に広がらず、液膜に模様が発生する場合がでてくる。

このような液膜が均一に広がらない例として以下に示す研究が行われている。東・星野⁽⁴⁾ は静止基板上を流れる放射状液膜流れの液面の性状を観察し、乱流遷移による模様が発生することを示した。さらに東ら^{(5), (6)} は直径 400mm の回転円板に対して、円板の回転が乱流遷移の過程および遷移位置に及ぼす影響を実験および線形安定性理論によって明らかにした。また、基板表面のぬれ性を変えた研究として、渡辺ら⁽⁷⁾ は超はっ水性表面を有する静止円板上の液膜流では、アクリル円板と比較しての乱流遷移が抑制されることを示している。一方、棚沢ら^{(8)~(10)} は、直径 50~200mm の回転している円板の端部で起こる液体の微粒化および繊維化の研究の一環として、円板の端部付近で液膜に発生する模様を滴状、繊維状、膜状の 3 種類に分けて、各々についてその発生条件を検討した。

以上述べてきた研究では、対象にしている基板の直径が最大でも 400mm と比較的小さく、形は円形のものに限定されている。しかし工業的に用いられている製造プロ

* 原稿受付 1999 年 11 月 25 日。

^{*1} 正員, (株)日立製作所 機械研究所(☎ 300-0013 土浦市神立町 502)。^{*2} (株)日立製作所 生産技術研究所(☎ 244-0817 横浜市戸塚区吉田町 292)。^{*3} 正員, (株)日立製作所 ディスプレイグループ(☎ 297-0037 茂原市早野 3300)。^{*4} (株)日立製作所 ディスプレイグループ

E-mail: togashi@merl.hitachi.co.jp

セスでは、基板サイズの大型化が進んでおり、形状も矩形状のものが多く存在しているのが現状である。そのため、基板サイズの大型化によって液膜流がどのような挙動を示すのかを調べることが、均一な液膜を形成する上で重要になってきた。

そこで本研究では、従来よりも大型の基板を対象にして、回転基板上的液膜流の模様を可視化することにより、以下の(1)～(3)に示す研究を行った。(1)液膜流に発生する模様の観察と分類、(2)液の粘性係数、ノズルの流量、および基板の回転数を変えた場合に、液膜流に発生する模様の観察と考察、(3)これらの結果に基づく次元解析的な考察により、液膜流に発生する模様の位置を予測する式の構築を行った。

おもな記号

D	: ノズル直径
H	: ノズル高さ
n	: 基板の回転数
N	: 放射状筋模様の発生本数
Q	: 流量
r	: 半径方向座標
r_s	: 放射状筋模様の発生半径
R	: 円板の半径
Re	: レイノルズ数
s	: 放射状筋模様の発生ピッチ
u	: 半径方向の液膜の速度
u_m	: 半径方向の液膜内の平均流速
We	: ウェーバ数
z	: 基板鉛直方向座標
δ	: 基板上的液膜厚さ
δ_s	: 放射状筋模様発生位置での液膜厚さ
μ	: 液体の粘性係数
ρ	: 流体の密度
θ	: 液と基板の接触角
σ	: 表面張力
ω	: 基板の回転角速度

2. 液膜流に発生する模様の可視化

2・1 可視化方法 図1に基板を回転させるスピンの装置の模式図を示す。スピン装置には基板を水平姿勢に保持する吸着回転台、吸着回転台を支持する回転軸、および回転駆動モータが設置されている。また、吸着回転台に保持された基板の側方及び下方を取り囲むようにカップが配置されており、基板上から周囲へ飛散する液を回収し排液できるようになっている。

図2に基板上的液膜流の可視化方法の模式図を示す。基板は、650mm×830mmの矩形の透明ガラス(対角線の半分の長さ527mm)で、厚さが0.7mmのものを使用した。また基板の表面は0.1 μm 程度の微小なうねりまで取

り除いた高精度な研磨仕上げがされている。基板の中心には直径Dが4.35mmで、高さH=60mmの液体噴射ノズルを設置した。実験では基板を所定の回転角速度 ω に設定し、基板の回転が定常状態になったところで、ノズルから所定の流量Qを流して液膜の状態を観察した。実験に使用した液体は、①粘性係数 μ が1 mPa・sの水、②水とグリセリンを1:1の比で混合して粘性係数 μ を5 mPa・sにした液、の2通りのものを用いた。また基板および液はともに透明であるため、基板上的液膜流の模様が非常に見えにくいいため、液に黒色の水性染料を混入して着色した。なお、液体の物性値が大きく変化しないように、加えた染料はごく微量とした。さらに、ガラス基板の裏面にも白い紙を張り付けて、その紙上に同心円状

Fig.1 Schematic of spinner.

Table 1 Experimental condition.

Case	Q ($\mu\text{m}^3/\text{s}$)	μ (mPa・s)	ρ (kg/m^3)	σ (mN/m)	θ ($^\circ$)
1	9.2	5	1124	66.0	36.2
2	32.5	5	1124	66.0	36.2
3	50.0	5	1124	66.0	36.2
4	9.2	1	998	71.8	31.6
5	50.0	1	998	71.8	31.6

Fig.2 Schematic of experimental apparatus.

Fig.3(a) Photograph of liquid film flow for $\mu = 5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$, $\omega = 31.42 \text{ rad/s}$ and $Q = 50.0 \mu \text{ m}^3/\text{s}$ (CASE 3).

Fig.3(b) Enlarged photograph around pattern 1

(a) $\omega = 20.94 \text{ rad/s}$.

(b) $\omega = 31.42 \text{ rad/s}$.

Fig.4 Photographs of liquid film flow for $\mu = 5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ and $Q = 9.2 \mu \text{ m}^3/\text{s}$ (CASE1).

の目印を 50mm 間隔で描き、筋模様の発生位置を目視である程度観察できるように工夫した。可視化した液膜流の映像の記録には、CCD カメラ (SONY CCD-VX1) および光学カメラ (MINOLTA α -5xi) の両方を用いた。

計測は表 1 に示すように、液の流量 Q 、液の粘性係数 μ の条件を変えた 5 ケースを行った。また、液の表面張力 σ は水性染料で着色した後の液をデュヌーイ式表面張力計で測定した値を示している。なお、各ケースに対して、基板の回転角速度を、 $\omega = 0 \sim 31.42 \text{ rad/s}$ (回転数 $n = 0 \sim 5 \text{ Hz}$ に相当) の範囲で変えて計測を行った。

2・2 可視化された液膜模様の分類 静止基板上に液を供給した場合の液膜流の状態を観察したところ、今回の実験範囲内では跳水現象のような気液界面の盛り上がりや乱れは発生せず、なめらかな液膜を形成して流れた。しかし基板を回転させると、液膜流には以下に示す 2 種類の模様が発生することがわかった。図 3 (a), (b) および図 4 (a), (b) に回転基板上的液膜流を可視化した写真の一例を示す。基板の回転角速度を徐々に大きくしていくと、まず Pattern 1 に示す「放射状にひろがる筋」の模様 (図 3, 4) が基板上に発生しはじめる。この筋模様のうち、黒く見えている部分には液が流れているが、白く見えている部分には液がない状態である。さらに基板の回転角速度を大きくすると、Pattern 1 に示す模様の内側に、Pattern 2 に示す「しわ状」の模様 (図 3 (a), (b)) が発生していることがわかった。

まず最初に、図 3 中の Pattern 2 に示す「しわ状」の模様について考える。この模様は、基板の回転角速度 ω が小さいときには見られず、 $\omega = 31.42 \text{ rad/s}$ (回転数 $n = 5 \text{ Hz}$) と高速にしたときに観察された模様であり、基板中心からの距離 $r = 50 \sim 100 \text{ mm}$ の間で発生している。この模様の発生位置が、東ら^{(5), (6)}によって研究された遷移による模様の発生位置に近いこと、および模様の形状が「しわ状」になっていること等より、この模様は乱流遷

移によるものであると推測される。しかし本研究ではその詳細については現在検討中であり、液膜の不均一性がより顕著に表れている Pattern 1 の模様の主眼をおいているため、ここではその詳細には触れないことにする。

次に Pattern 1 の模様について考える。Pattern 1 の模様は、前述の Pattern 2 の模様の外側に発生する「放射状にひろがる筋」の模様（以下、放射状筋模様と呼ぶことにする）である。このような放射状筋模様は、基板の回転による遠心力の作用、および基板中心から遠ざかるにつれて液膜厚さが薄くなって表面張力により液が凝集して流れようとする作用、とによって発生していると考えられる。この放射状筋模様は、棚沢ら^{(8)~(10)}によって研究された繊維状模様に相当していると考えられる。棚沢ら⁽¹⁰⁾は直径（2 R）が 50~200mm の回転している円板の端部で起こる筋模様の発生ピッチ s と発生本数 N を、雨だれ現象における滴下から平滑流への遷移過程の類推により、式（1）、（2）を提案している。

$$s = 7.66 \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R \omega^2}} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$N = \frac{2\pi R}{s} \quad \dots\dots\dots (2)$$

式（1）中の σ は表面張力、 ρ は流体の密度、 R は円板の半径を表わしている。図 5 に CASE 1, 3, 4 の実験結果より求めた発生ピッチ s と式（1）を用いて求めた発生ピッチ s の比較を示す。ただし、円板半径 R に対しては筋模様の発生半径 r_s を用いた。実験結果および式（1）より計算した結果はほぼ一致している。このことから、Pattern 1 に示す模様は、棚沢ら⁽¹⁰⁾によって研究された模様に相当していると考えられる。

2・3 放射状筋模様の考察 次に基板の回転角速度 ω 、流量 Q 、および液の粘性 μ を変えた場合に、放射状筋模様の発生位置の変化を調べた結果を示す。

図 6 は液の粘性 $\mu = 5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ を一定にして、 $Q = 9.2, 32.5, 50.0 \mu\text{m}^3/\text{s}$ の 3 種類について、基板の回転角速度を $\omega = 0 \sim 31.42 \text{ rad/s}$ の範囲で変えた場合の実験結果を示している。筋模様の発生位置は周方向にばらつきがあるため、写真およびビデオの映像記録から発生位置を読みとり、その平均値を示している。この結果から、基板の回転角速度 ω を大きくすると、筋模様の発生半径 r_s は小さくなることがわかる。また、液の流量 Q を多くする方が、筋模様の発生半径 r_s が大きくなることがわかる。

図 7 は流量 $Q = 9.2 \mu\text{m}^3/\text{s}$ を一定にして、液の粘性を $\mu = 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ と $5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ の 2 種類について、基板の回転角速度を $\omega = 0 \sim 31.42 \text{ rad/s}$ の範囲で変えた場合の実験結果を示している。この結果から、液の粘性係数 μ を大きくする方が、筋模様の発生半径 r_s が大きくなることがわかる。

以上をまとめると、①基板の回転角速度 ω を小さくする、②流量 Q を多くする、③液の粘性係数 μ を大きくする、と放射状筋模様の発生半径 r_s は大きくなることがわかった。なお実験では矩形基板を用いたが、本実験範囲内では矩形と円板との差はないものと考えられる。

Fig.5 Experimental and predicted data for pitch of striped flow pattern.

Fig.6 Experimental data for $\mu = 5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$.

Fig.7 Experimental data for $Q = 9.2 \mu\text{m}^3/\text{s}$.

Fig.8 Schematic of film flow on a rotating substrate.

3. 放射状筋模様の発生位置の予測式

棚沢ら⁽¹⁰⁾は、直径が50～200mmである比較的小さいサイズの円板に対して、回転円板の端部から発生する放射状筋模様の発生ピッチ s と発生本数 N に対して式(1)，(2)を提案した。しかし、今回のような大型基板の場合には、液膜が基板端部に到達する手前で放射状筋模様が観察されることがわかった。そのため、この模様が基板上のどの位置で発生するのかを特定する必要があるが生じてきた。棚沢ら⁽¹⁰⁾の研究からでは、模様の発生半径 r_s を求めることはできないため、以下に示す次元解析的考察から、放射状筋模様の発生半径 r_s の予測式を構築することを試みた。

放射状筋模様の発生半径 r_s を筋模様が発生する位置での液膜厚さ δ_s で無次元化したものは、ウェーバ数 We およびレイノルズ数 Re の関数であるとする、式(3)のように書くことができる。

$$\frac{r_s}{\delta_s} = k We^a Re^b \quad \dots\dots\dots (3)$$

式(3)中の k は無次元の比例定数を、 a と b は指数を表わしている。またウェーバ数 We 、およびレイノルズ数 Re は式(4)，(5)のように定義した。

$$We = \frac{\rho \delta_s u_m^2}{\sigma} = \frac{\rho}{\sigma \delta_s} \left(\frac{Q}{2\pi r_s} \right)^2 \quad \dots\dots\dots (4)$$

$$Re = \frac{\rho \delta_s u_m}{\mu} = \frac{\rho}{\mu} \frac{Q}{2\pi r_s} \quad \dots\dots\dots (5)$$

なお図8に示すように筋模様の発生半径 r_s での液膜厚さ δ_s は棚沢ら⁽¹⁰⁾が求めた式(6)を用いた。

$$\delta_s = \left(\frac{3\mu Q}{2\pi \rho \omega^2 r_s^2} \right)^{1/3} \quad \dots\dots\dots (6)$$

次に、式(3)中の定数 k ， a ， b を可視化実験の結果から決定することを試みた。その結果、今回の実験の範囲($We < 0.2$ ， $Re < 40$)では、式(7)に示すように、 $k=32$ ， $a=-0.05$ ， $b=0.30$ に決めると、比較的良好に可視化実験の結果を再現できた。

$$\frac{r_s}{\delta_s} = 32 We^{-0.05} Re^{0.30} \quad \dots\dots\dots (7)$$

式(7)に式(4)～(6)を代入して、放射状筋模様の発生半径 r_s を求めたものと、可視化実験から求めた放射状筋模様の発生半径 r_s を比較した結果を、図9，10

Fig.9 Experimental and predicted data for $\mu=5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$.

Fig.10 Experimental and predicted data for $Q=9.2 \mu\text{m}^3/\text{s}$.

に示す。図中のシンボルは実験結果を、実線は予測式(7)を用いて結果を示している。その結果、予測式(7)は、 $\pm 12\%$ の精度で可視化実験の結果を再現できていることがわかった。

以上のことより、予測式(7)を利用することにより、対象とする基板サイズに対して、基板上の液膜流に放射状筋模様を発生させずに均一な液膜を形成するために必要な液の表面張力 σ 、液の粘性係数 μ 、流量 Q 、および基板の回転角速度 ω などの条件を見出すことが可能になった。なお、実験では矩形基板を用いたが、本実験の結果は、円板にも適用できるものと考えられる。

今後は、基板表面のぬれ性、およびノズル設置高さの影響についても検討を進めていく予定でいる。

4. 結 論

本研究では、従来サイズよりも大型の基板を対象にして、回転基板上の液膜流の模様を可視化することにより、以下の結論を得た。

- (1) 基板の回転角速度を徐々に大きくしていくと、放射状筋模様が基板上に発生しはじめる。さらに基板の回転角速度を大きくすると、放射状筋模様の内側に、乱流遷移によると推定される模様が発生する。
- (2) 放射状筋模様の発生位置は、液の粘性係数を大きくする、流量を多くする、基板の回転角速度を小さくすると、それぞれ基板中心から遠ざかることがわかった。

- (3) 放射状筋模様が発生する位置を予測する式(3)を次元解析的な考察から構築した。今回の実験範囲では、予測式(3)のそれぞれの定数を、 $k = 32$, $a = -0.05$, $b = 0.30$ とすると、 $\pm 12\%$ の精度で可視化実験の結果を再現できる。

文 献

- (1) Emslie, A.G., Bonner, F.T. and Peck, L.G., J. Appl. Phys., 29(1958), 858-862.
- (2) 松本洋一郎・小原拓・照屋功・大橋秀雄, 機論, 54-499, B (1988), 569-574.
- (3) 小原拓・松本洋一郎・島本憲夫・大橋秀雄, 機論, 55-514, B (1989), 1640-1648.
- (4) 東恒雄・星野達郎, 機論, 50-452, B (1984), 974-981.
- (5) 東恒雄・布部誠, 機論, 55-516, B (1989), 2139-2147.
- (6) 東恒雄・曾雄偉, 機講論, 96-9, (1996), 357-358.
- (7) 渡辺敬三・栗原毅・上田耕一, 機講論, 96-9, (1996), 361-362.
- (8) 棚沢泰・宮阪芳喜・梅原正彦, 機論, 25-156, (1959), 879-888.
- (9) 棚沢泰・宮阪芳喜・梅原正彦, 機論, 25-156, (1959), 888-896.
- (10) 棚沢泰・宮阪芳喜・梅原正彦, 機論, 25-156, (1959), 897-905.