

# 回帰機械学習を用いた純水の高圧スプレーで生じる 静電気量の予知技術

福岡 靖晃\*, 鈴木 洋陽\*, 森 竜雄\*, 一野 祐亮\*,  
瀬川 大司\*\*, 小林 義典\*\*, 宮地 計二\*\*, 清家 善之\*,<sup>1</sup>

(2021年9月21日受付; 2021年11月27日受理)

## Prediction Technique of Static Electricity Generated by High-Pressure Pure Water Spray Using Regression Machine Learning

Yasuaki FUKUOKA\*, Hiroharu SUZUKI\*, Tatsuo MORI\*, Yusuke ICHINO\*,  
Taishi SEGAWA\*\*, Yoshinori KOBAYASHI\*\*, Keiji MIYACHI\*\* and Yoshiyuki SEIKE\*,<sup>1</sup>

(Received September 21, 2021; Accepted November 27, 2021)

High-pressure spray cleaning is commonly used in the semiconductor device manufacturing process. In this study, a regression machine-learning algorithm was developed to predict generated static electricity, based on data from multiple sensors, to prevent electrostatic discharge (ESD) during high-pressure spray cleaning. As a countermeasure to ESD, generated current was suppressed by applying a high negative voltage to pure water, and by heating the water. A synergistic effect was achieved by combining these methods. We devised a system for predicting static electricity and avoiding ESD and made a regression machine-learning algorithm as a soft sensor for the system based on these data. Twenty-four regression machine-learning algorithms were prepared using the pressure of the spray and temperature of the pure water as control factors, and the flow rate and resistivity of the pure water, as observation factors, were evaluated in terms of root mean square error (RMSE), coefficient of determination, predicted speed and learning time. The results showed that the ensemble learner could be predicted with an RMSE value of 0.408  $\mu\text{A}$ . A coefficient of determination of 0.92, a prediction speed 13.0  $\mu\text{s}/\text{unit}$  or lower, and a learning time of 5.56 s.

### 1. はじめに

近年の科学技術の進歩により、半導体デバイスの需要は日増しに高まってきている。半導体デバイスの製造において、洗浄プロセスは製品の歩留まりに起因する重要な工程である<sup>1)</sup>。高圧スプレー洗浄は、加圧した純水を直径数十ミクロンのオリフィスからスプレーさせ、高速な微小液滴とし、それを洗浄対象物に衝突させる方式であり、フラットパネルディスプレイ等の半導体デバイス洗浄に広く使われている。しかしこの洗浄は比抵抗値の高い純水をスプレーする方法であるために、洗浄対象物

上で静電気障害 (ESD: Electro Static Discharge) が発生し、製品製造の歩留まりを低下させる課題がある<sup>1-6)</sup>。古くからこの課題を解決するために、製造現場では純水に  $\text{CO}_2$  ガスを注入させた炭酸水や純水に微量のアンモニアを溶解させた後、電気分解させたアルカリ水素水を用いて対策を行ってきた。しかしこれらの方法には純水を改質してしまうことやコストの問題がある。

我々はこれまでに高圧スプレー時に発生する静電気の特徴を調べ、スプレー圧力が高いほど静電気量が高くなり、液滴速度や液滴のサイズによって静電気の発生量が異なることを報告してきた<sup>2-3)</sup>。本論では、純水を用いた高圧スプレー洗浄時の ESD の防止を目的に、高圧スプレーで発生する静電気を把握するためにファラデーケージからアースに流れる電流を測定し、その特徴を把握した。そしてノズルに負極性の高電圧を印加し、純水に電子を注入することで、静電気量を制御できることを確認した。また純水を加温することで、高圧スプレーから発生する発生電流を抑えることができることを確認した。さらにスプレー圧力、純水の温度を制御因子とし、純水の流量、比抵抗値を観測因子とした 24 種の回帰機械学習で発生電流を予知し、その精度を確かめた。

キーワード：静電気障害, 回帰機械学習, 純水, 高圧スプレー

\* 愛知工業大学大学院工学研究科電気電子工学専攻  
(〒470-0392 愛知県豊田市八草町八千草 1247)

Electrical and Electronics Engineering Course, Graduate  
School of Engineering, Aichi Institute of Technology, 1247,  
Yachigusa, Yakusacho, Toyota, Aichi 470-0392, Japan

\*\* 旭サナック株式会社

(〒488-8688 愛知県尾張旭市旭前町 5050)

Asahi Sunac Corporation, 5050, Asahimae-cho Owariasahi,  
Aichi 488-8688, Japan

<sup>1</sup> y\_seike@aitech.ac.jp

DOI : <https://doi.org/10.34342/iesj.2022.46.1.8>

## 2. 飛行液滴の静電気特性と静電気制御技術

### 2.1 測定方法

高压スプレーされた純水の発生電流を測定する実験系を図1に示す。後に述べる回帰機械学習で用いるセンサーデータもこの実験系から取得する。また実験条件を表1に示す。イオン交換器で生成された純水は高压ポンプ(旭サナック: AF2800S)で1 MPaから10 MPaまで加圧され、ネコ目状のオリフィス形状のノズルより、65°の角度で扇状にスプレーされる。ノズルはアルミナセラミック製のチップをSUS316L製のケースで保持した構造で、PEEK (Polyetheretherketone)製のノズルブラケットで電氣的に浮いている状態にした。スプレーされた純水を試作のSUS304製のファラデーケージの内容容器で受け、その際に内容容器とアース間に発生する電流をエレクトロメータ(エーディーシー: 8252入力抵抗116Ω)で測定する。スプレー時の純水の比抵抗値は、純水生成後に比抵抗計(堀場製作所: HE-480R)で測定する。また、純水の圧力、水温、流量を、それぞれ圧力計(ifm efector: PN3051)、K型熱電対、流量計(キーエンス: FD-XS8)で測定する。それぞれの測定したデータをサンプリング時間1秒で30秒間データロガー(NI: cDAQ9174)に取り込み、PC(レ

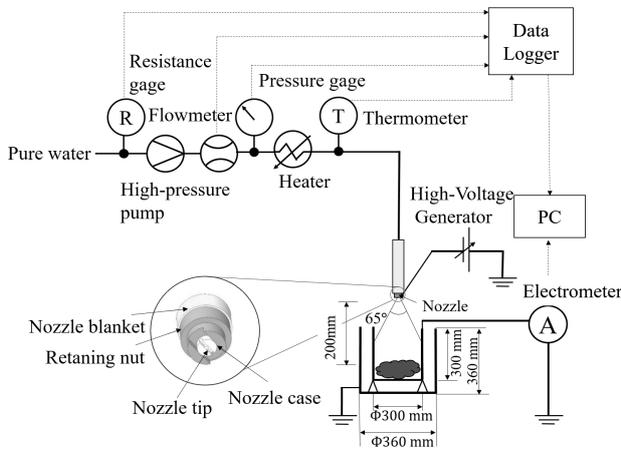


図1 実験系統図  
Fig.1 Experimental system.

表1 実験条件  
Table 1 Experimental Conditions.

Pressure [MPa]	1~10
Water Temperature [°C]	20.1~80
Applied Voltage [kV]	-10~0
Sampling interval [s]	1.0
Time of Measurement	30

ノボ: ThinkPad E580 i5-8265U CPU クロック周波数2.70 GHz)でデータ処理および回帰機械学習を行う。静電気の抑制はノズルケースに高電圧発生装置(松定プレジジョン: HEOPS-10B2)で、負極性の高電圧を印加しスプレーする前の純水のイオン量を制御する方法と、純水を80℃まで加温し、純水の比抵抗率を低下させる方法の2通りで行った。またこの2通りの方法を組み合わせて行った。

### 2.2 飛行液滴の静電気特性

まず回帰機械学習を行う前に、高压スプレーで発生する電流と純水の飛行液滴特性との関係を調査した。飛行液滴の速度と径の測定にはシャドー・ドップラー・パーティクル・アナライザー(KANOMAX社製)を用いた。この測定機は液滴の粒子速度と粒子径を同時に計測することが可能である。粒子速度は、LDV (Laser Doppler Velocimeter)でレーザー光の干渉性を利用して計測できる。粒子径は光束中を通過する影を利用して計測することができる。図2は図1の条件で圧力を1 MPaから10 MPaまで加圧した場合の発生電流およびシャドー・ドップラー・パーティクル・アナライザーでノズル真下から100 mmの位置で計測した飛行液滴速度と飛行液滴の体積平均径との関係を示している。電流の平均値は最大7.48 μAで正極性を示した。電流の正極性は、スプレーされた飛行液滴中の一部の純水が解離し、プロトン(H<sup>+</sup>)リッチの状態になっていることを示している。また飛行液滴が速いほど発生電流が大きくなり、体積平均径が小さくなるほど発生電流が大きくなる。これらの現象は浅野ら<sup>5)</sup>や渡辺ら<sup>6)</sup>の報告による液体の速度が速いほど帯電電量が大きくなることと一致している。宮地ら<sup>7)</sup>や菅野ら<sup>8)</sup>は飛行液滴の速度が速くなると小さなサイズの異物

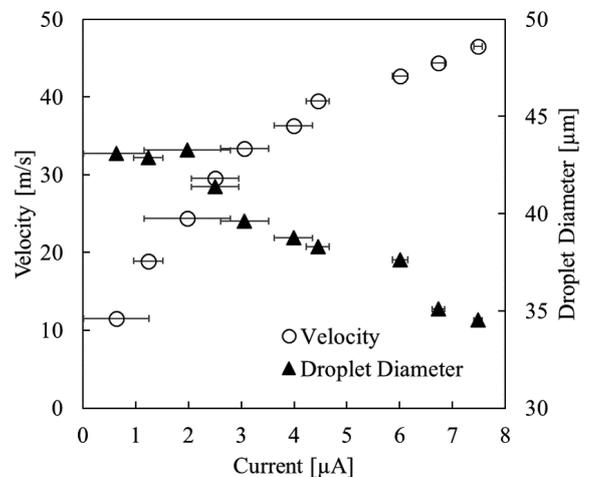
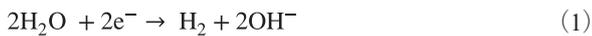


図2 高压スプレー時の静電気と液滴速度および液滴径の関係  
Fig.2 Relationship between flying-droplet velocity, flying-droplet diameter and generated current.

を除去できることを報告している。近年の半導体デバイスの微細化によって、微小パーティクルの除去のために飛行液滴の高速化が求められている。図2から分かるように飛行液滴速度が速くなると発生電流が増し、ESDが生じる可能性が高くなる。つまり高い洗浄力とESDの発生確率はトレードオフの関係にある。

### 2.3 静電気の制御技術

次に、ノズルのケース部に負極性の高電圧を印加し、純水に直接電子を注入させて発生電流を抑制する方法、純水を加熱し純水の導電率を高くさせることで発生電流を抑制する方法、これらの方法を同時に行う3通りの方法を試みた。ノズルケースに負極性の高電圧を印加し純水に電子を注入させる方法は、ノズルケースの表面と純水の界面で生じるショットキー効果もしくはトンネル効果によって説明できると考えている<sup>9)</sup>。式1に示すように、ノズル内部の純水の一部が負極性の電圧印加によって解離され、純水中にOH<sup>-</sup>基リッチな状態となっている。



このOH<sup>-</sup>基リッチとなった純水をスプレーすると、飛行液滴中のH<sup>+</sup>基と相殺されて、発生電流が減少すると考えている。

また純水を加熱した場合には、式2で示すように、水温が高くなるほど純水の活性化エネルギーが大きくなるために、純水の導電率 $\sigma$ が高くなり発生する静電気が減少すると推測している。

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{W}{k_B T}\right) \quad (2)$$

ここで $W$ は純水電導の活性化エネルギー、 $k_B$ はボルツマン定数、 $\sigma_0$ は定数、 $T$ は絶対温度である。

図3にスプレー圧力10 MPa時に、印加電圧を-10 kV

から0 kVおよび純水の温度を20.1°Cから80°Cまで変化させた場合のファラデーケージからアースに流れる電流値を示す。プロットは各条件下での電流値を示し、1条件あたり30秒間1秒ごとに測定したものを示している。近似曲面は局所回帰平滑法で算出し、決定係数は0.55であった。印加する負極性の電圧の絶対値が大きいほど電流は小さくなり、純水の温度が高い場合電流が小さくなった。また印加電圧と純水温度の間には交互作用が確認された。圧力10 MPaで電圧を印加していない場合の電流の平均値は7.48  $\mu\text{A}$ であるのに対して、-10 kVの電圧を印加した場合の電流の平均値は5.73  $\mu\text{A}$ であった。このことから-10 kVの電圧を印加した場合の電流は、印加していない場合と比較して23.3%減少した。また、水温が20.1°Cの場合、電流の平均値は7.48  $\mu\text{A}$ であるのに対して、純水を80°Cまで加熱した場合の電流の平均値は6.54  $\mu\text{A}$ であった。このことから純水を加熱した場合の電流は加熱しない場合と比べ12.6%減少した。上記二方法を組み合わせ、ノズルへの高電圧を-10 kV、純水を80°Cに加熱した場合、電流値は3.86  $\mu\text{A}$ であり、48.4%の電流が減少した。

## 3. 回帰機械学習による静電気発生量の予知

### 3.1 回帰機械学習のアルゴリズム

機械学習の目的は多量のデータから、その関連性を見だし、ルールに基づいた結論を下すことである。機械学習は複雑な系であっても統計的に関係を導き出せる一方多量のデータを必要とする<sup>10)</sup>。機械学習は一般に分類と回帰に分類される。本研究では目的変数を電流値、説明変数を測定した複数のセンサデータとして回帰機械学習を行う。測定したセンサデータから関数を生成し、二乗平均平方根誤差RMSE (Root Mean Square Error)、決定

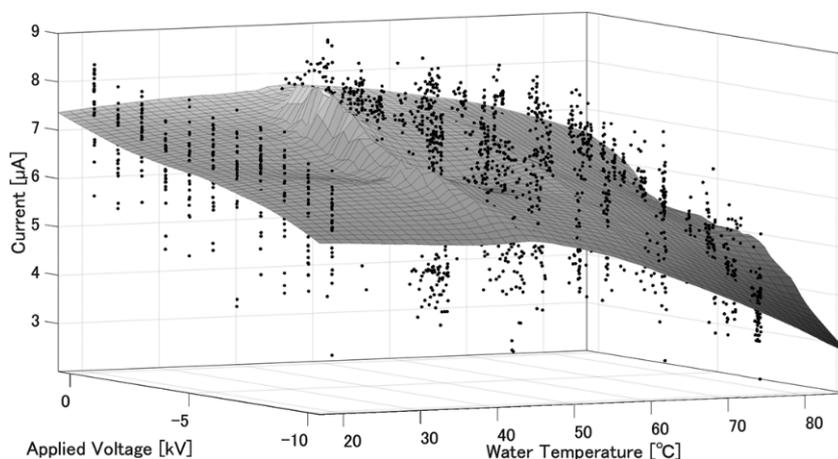


図3 高圧スプレー時のノズルへの印加電圧と純水温度に対する発生電流 (圧力10 MPa: 一定)

Fig.3 Generated current against nozzle applied voltage and pure water temperature during high-pressure spray (Pressure: 10 MPa constant).

係数, 学習時間などの評価項目から適切な学習方法を選定する. また機械学習には色々な手法があるが, 本論では市販のソフトウェア(MathWorks: MATLAB)を用いて, 線形回帰モデルで4種, 回帰木モデルで3種, サポートベクターマシンモデル(SVM)で6種, ガウス過程回帰モデルで4種, 木のアンサンブルモデルで2種, ニューラルネットワークで5種, 合計24種のアルゴリズムで回帰機械学習を行った. ただし各アルゴリズムにおいて, 主成分分析や細かなチューニングは行っていない.

### 3.2 回帰機械学習を用いた静電気予測の目的

図4は, 我々が考案している複数のセンサデータを取得し, 回帰機械学習を用いて, 発生する静電気を予知してESDを回避するためのシステムである. ESDは飛行液滴が洗浄対象物に着弾してから, デバイス上で瞬時に生じると考えられるために, 液滴から発生する静電気を予知し, 事前に対策できればESDの発生確率は下がる. 本報告では図4の回帰機械学習のアルゴリズムを用いたソフトセンサを作成する. ソフトセンサには図1に示す各測定器から得られた純水の圧力, 流量, 比抵抗値, 温度, 印加電圧の5因子のデータを説明変数とし, ファラデーケージとアース間に流れる電流値を目的変数とし

て, 回帰機械学習を用いた. 回帰機械学習に用いるデータは表1に示す水準で各条件同数測定したもので, 合計118,890点であり, そのうち80%のデータを学習用の教師データ, 20%のデータを検証用のデータとした.

### 3.3 回帰機械学習を用いた予測結果

測定したセンサデータを基に, 回帰機械学習を行った. 学習の評価は式3に示すRMSE値, 式4に示す決定係数 $R^2$ , データ1個あたりの予測時間, 学習時間の4項目とした.

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2}{n}} \quad (3)$$

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2} \quad (4)$$

ここで,  $y_i$ は検証データの実測値,  $\hat{y}_i$ は機械学習のアルゴリズムで得られた予測値,  $\bar{y}$ は予測値の総平均,  $n$ は検証データの数である.

検証結果を表2に示す. 本論では, 学習精度の高く予測時間が短い学習手法を最適な学習手法であると判断する. RMSE値は0.406  $\mu\text{A}$ から0.576  $\mu\text{A}$ の範囲でばらつき, 最もRMSE値の小さいアルゴリズムはガウス過程回帰

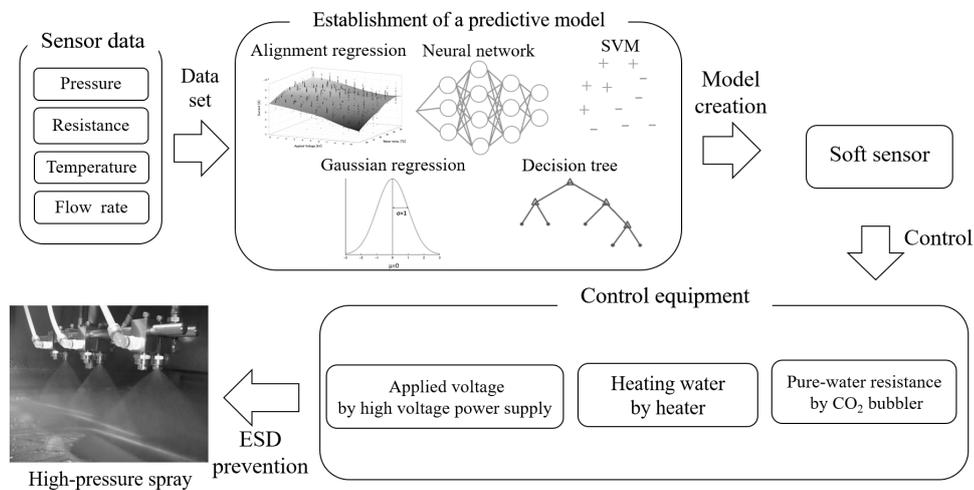


図4 考案した高圧スプレー時における回帰機械学習を用いたESD防止システム

Fig.4 ESD prevention system using regression machine learning during high-pressure spray cleaning.

表2 機械学習の手法と学習結果

Table 2 Machine-learning methods and training results.

Learning results	RMSE [ $\mu\text{A}$ ]	Coefficient of determination	Predicted speed [ $\mu\text{s}/\text{unit}$ ]	Learning time [s]
Linear regression (Linear)	0.572	0.92	2.63	5.18
SVM (Linear)	0.576	0.92	21.30	110.88
Ensemble (Bagging tree)	0.408	0.96	13.00	5.56
Gaussian process regression (Index GPR)	0.406	0.96	179.00	347.48
Narrow neural network	0.418	0.96	233.00	28.26

モデルであった。また決定係数はいずれのアルゴリズムも 0.92 から 0.96 の範囲であった。学習時間においては、線形回帰モデルの場合で 5.18 秒となり最も短く、ガウス過程回帰モデルの場合で 347.48 秒となり最も長かった。予測速度においては、線形回帰モデルでは 2.63  $\mu\text{s}/\text{unit}$  となり最も速い。これらの結果を踏まえ本測定においては、アンサンブルモデルでは、学習精度 RMSE 値は 0.408  $\mu\text{A}$  と高く、決定係数は 0.96 であり、学習時間は 5.56 秒となり比較的速く、予測速度も 1.30  $\mu\text{s}/\text{unit}$  で比較的速いため、総合的に最適な回帰機械学習アルゴリズムと判断した。以下にアンサンブルモデルで学習を行った際の結果を示す。図 5 に圧力に対する電流値の予測値と実測値を示す。圧力が上昇するにつれて、発生する電流も上昇している。圧力 10 MPa 時に予測値の最大値が 8.5  $\mu\text{A}$  に対して実測値の最大値は 9.5  $\mu\text{A}$  である。また図 5 の各設定圧力において、圧力センサで測定した圧力値はばらつき、変動幅がある。設定圧力 8 MPa から 10 MPa 時の圧力の変動幅は 7 MPa 以下の圧力の変動幅と比較して小さい。これは使用した高压ポンプは上下運動によって加圧させるプランジャー式ポンプであり、圧力が 8 MPa 以上になる場合、圧力変動を抑えるようにポンプ内のプラグ式アキュムレータで設定しているためである。次に図 6 にアンサンブル学習を行った時の圧力に対する電流値の残差を示す。データ  $i$  番目の残差  $r_i$  は式 5 で示され、実測値  $y_i$  と予測値  $\hat{y}_i$  との差であり式 5 で求められる。

$$r_i = y_i - \hat{y}_i \quad (5)$$

図 6 から残差は圧力が大きくなると大きくなるのが分かる。残差には圧力の要因以外にも、純水の温度、比抵抗値、純水の流量の要因も含まれる。このスプレー条件下で ESD が生じると仮定すると、測定される電流は正の極性を持つため、正の残差のみを考えればよい。負の残差は予測値よりも小さな実測値が生じたことを意味するため、ESD のリスクは小さくなる。圧力 10 MPa 時、正側の残差は最大 1.87  $\mu\text{A}$  で、標準偏差は 1.99  $\mu\text{A}$  である。また圧力 8 MPa 以下の残差において、突発的に残差が大きくなっている点が確認される。これは、圧力が 8 MPa より小さい時、プランジャーポンプの切り替えによって水圧が脈動し、圧力に差が生じる場合があるため生じたと考えている。

図 7 に純水の流量に対する電流の予測値と実測値を示す。高压スプレーの場合、設定圧力  $P$  と流量  $Q_f$  は式 6 のような関係があり、設定圧力と流量を独立に制御することはできない。

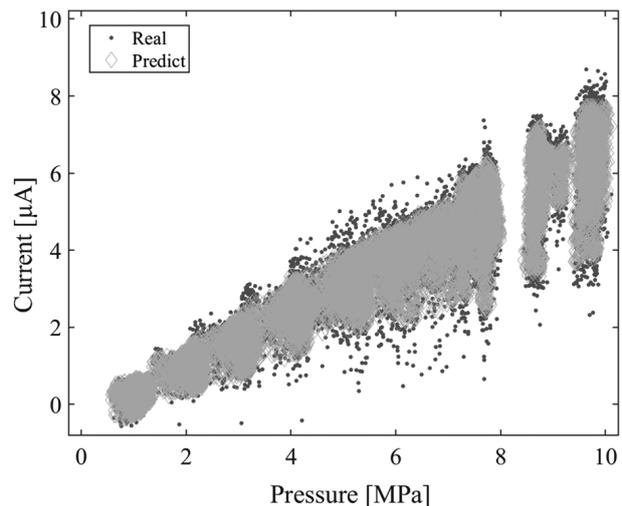


図 5 アンサンブル学習モデルにおけるスプレー圧力に対する電流の検証結果

Fig.5 Verification results of current against pressure in the ensemble-learning model.

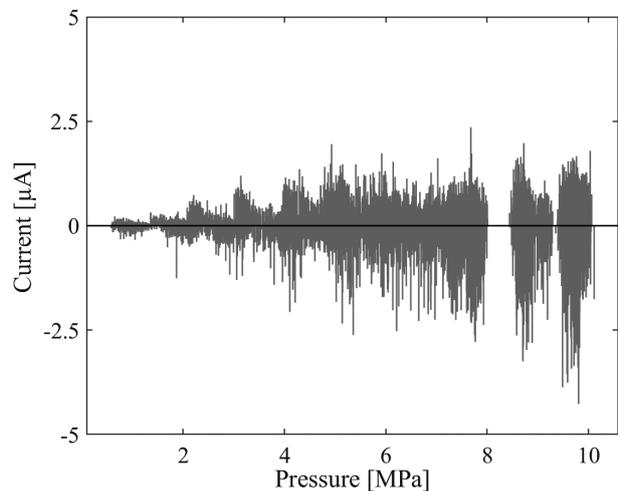


図 6 アンサンブル学習における圧力に対する電流の残差

Fig.6 Residuals of current against pressure in the ensemble-learning model.

$$Q_f = k \cdot Q_{ref} \sqrt{\frac{P}{P_{ref}}} \quad (6)$$

ここで、 $k$  は流量係数、 $Q_{ref}$  は設定圧力時の流量、 $P_{ref}$  設定圧力である。式 6 から分かるように高压スプレーにおける流量は圧力に依存しており、図 7 において発生電流は流量の増加に伴い静電気も増加している。通常の洗浄工程の中では一定のスプレー圧力で洗浄物に対しスプレーされる。そのため、高い圧力でスプレーをすれば流量が増し洗浄力も高まるが、ESD が生じるリスクも高まる。

図 8 に純水流量に対する静電気の残差を示す。純水の流量を因子とし、正の残差で評価した場合、流量の増加によって残差も大きくなる。流量 700 mL/min 以上では残差は大きくならない。ところどころ突発的に残差が 2

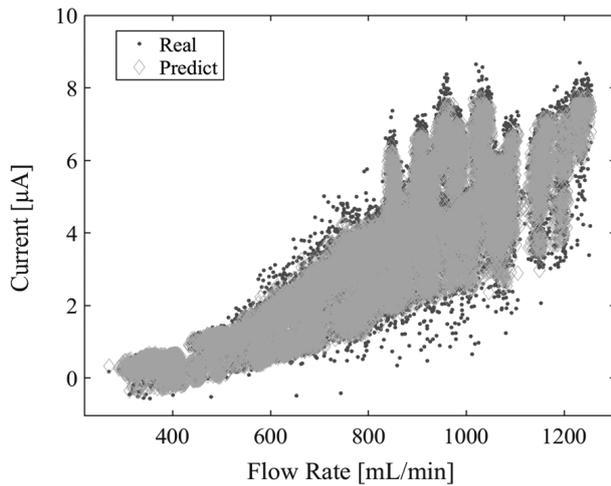


図7 アンサンブル学習モデルにおける純水流量に対する電流の検証結果

Fig.7 Verification results of current against pure water flow rate in the ensemble-learning model.

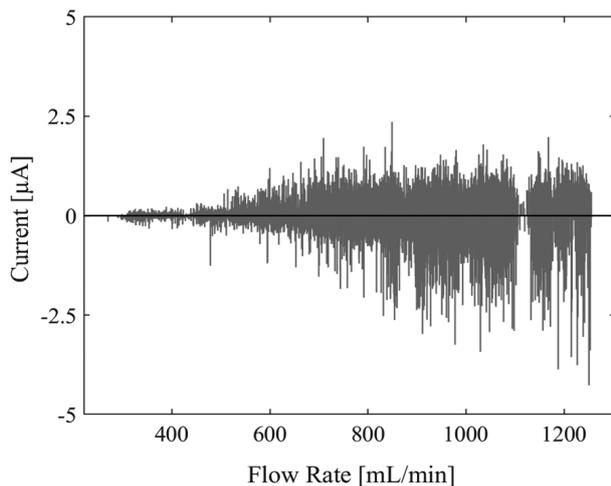


図8 アンサンブル学習モデルにおける純水流量に対する電流の残差

Fig.8 Residuals of current against pure water flow rate in the ensemble-learning model.

μA を超えることが確認できる。これもプランジャーポンプの切り替え時に生じたと推測される。これらの残差の大きさは実測値と予測値の差であることから、残差はESD のリスクの一つであり、残差を小さくすることはESD の予知に役立つと考える。

#### 4. まとめ

本研究では、高圧スプレー洗浄時のESDの防止を目的に、高圧スプレーでファラデーケージからアースに流れる電流を測定し、その特徴を把握した。そして、ノズルにキロボルトオーダーの負極性の高電圧を印加し、純水に電子を注入することで、高圧スプレーで発生する電流を抑制した。また純水を加温することで、高圧スプレ

ーから発生する電流を抑制した。これらの方法を組み合わせることで交互作用が得られ最大で48.4%の電流を抑制した。

さらにスプレー圧力、純水の温度を制御因子し、純水の流量、比抵抗値を観測因子とした24種の回帰機械学習アルゴリズムを用いて、静電気発生量の予測を行った。本論では、RMSE、決定係数、予測速度、学習時間を比較し、適切な学習手法を選定した。その結果、各アルゴリズムでの予測精度を示すRMSE値は0.406 μA から0.576 μA、決定係数は0.92 から0.96、予測速度は2.63 μs/unit から233.00 μs/unit、学習時間は5.18 秒から347.48秒の範囲であった。これらの回帰機械学習のうち、アンサンブルモデル学習は、RMSE 値が0.408 μA、決定係数0.96、予測速度は最も短く13 μs/unit、学習時間は5.56秒であった。以上のことから本論ではアンサンブルアルゴリズムを最も適切な回帰機械学習手法と判断した。アンサンブルモデルでの回帰機械学習を用いて発生電流の予測を行った結果、圧力10 MPaでスプレーした際の実測値の最大値の残差は1.0 μAで、ESDのリスクの一つである。今後発生電流を回帰機械学習で予知する場合には、できるだけ残差を小さくする必要がある。

#### 参考文献

- 1) 服部 毅：最先端半導体洗浄の課題と展望. 表面と真空, **61** (2018) 56
- 2) Y. Seike, Y. Fukuoka, T. Mori, T. Segawa, Y. Kobayashi and K. Miyachi: Clarification and Countermeasures of Electrostatic Discharge in High-Pressure Spray Cleaning During FlatPanel Display Manufacturing. Electrical Overstress / Electrostatic Discharge Symposium Proceedings, **42** (2020) 215
- 3) 福岡靖晃, 原田翔太, 日比信利, 綿貫裕太, 森 竜雄, 瀬川大司, 小林義典, 宮地計二, 清家善之: 多変量解析を用いた高圧スプレー洗浄時の静電気発生要因分析. RCJ 信頼性シンポジウム, **30** (2020) 5
- 4) 下川博文: 水の帯電測定法に関する一検討. 静電気学会誌, **15** (1991) 292
- 5) 浅野和俊: 純水・超純水の噴霧・接触・流動帯電とその制御. 電気学会論文誌, **108** (1988) 362
- 6) 渡辺茂男, 伊藤正一: パイプ内の液滴流速と電荷分布について (I). 静電気学会誌, **4** (1980) 300
- 7) 宮地計二, 黒河周平, 清家善之, 山本浩之, 小林義典, 土肥俊郎: 高圧マイクロジェットの洗浄力に関する研究—粒子挙動解析と洗浄実験による考察—. 精密工学会誌, **74** [10] (2008) 1074
- 8) 菅野 至: ウエハ洗浄技術. 表面技術, **50** (1999) 861
- 9) 大木義路, 大久保仁, 鈴置保雄, 穂積直裕: 誘電体現象論, p.202, オーム社 (2021)
- 10) 守屋 剛: 半導体製造における機械学習の活用. 応用物理, **90** (2021) 290