

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	電気めっきにおける数値計算のための添加剤のモデル同定手法の開発
Title(English)	
著者(和文)	石井翼
Author(English)	Tsubasa Ishii
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11416号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:天谷 賢治,小酒 英範,中尾 裕也,原 精一郎,宮崎 祐介
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11416号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	システム制御 システム制御	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	石井 翼		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	天谷 賢治	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)		

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本研究では電気めっきにおける数値計算のための添加剤のモデル同定手法を開発した。本研究の目的はシリコン貫通電極(Through silicon via: TSV) 製造におけるめっき工程の設計や開発へ CAE を適用することである。本研究の第一の貢献は実験から計算まで一連のフレームワークの開発である。本研究で開発したフレームワークは電気化学測定装置、分極特性および添加剤モデル、そしてモデル同定手法により構成される。PEG を含む硫酸銅水溶液における銅めっきに対して開発したフレームワークを検証した。以下では開発したフレームワークについて概略を述べる。

めっき CAE フレームワークの開発。現在めっき工程への CAE の適用は十分に進んでいない。その要因として、実際の工程におけるめっき現象が十分に解明されておらず、不確定な要素を多く含むため実験室で得られた知見をそのまま適用できないためであると考えた。そこで本研究では産業におけるめっき工程について一連の CAE フレームワークを開発した。フレームワークの主な構成要素は電気化学測定装置、分極特性および添加剤モデル、およびモデル同定手法の三つからなる。

効率的な電気化学測定装置の開発。めっき工程で使用されるめっき液および添加剤は多種多様であり、それぞれについてモデル同定が必要である。そこで、開発する電気化学測定装置はモデル同定のための観測データを効率的に取得することを目的とした。開発した電気化学測定装置はフローセル内の試料濃度および流量を連続的に変化させることができる。この方法によりめっき現象の電位、濃度、および流速の依存性を効率的に評価することができる。

新しい分極特性および添加剤モデルの開発。従来研究ではモデル式内の定数や関数は物理的な知見や分子スケールの観察結果から推定されていた。このようなモデルはモデル式の柔軟性が低く、実験結果の定量的な再現性が悪い。めっき現象をブラックボックスモデルにより表現し、モデル式中の未知パラメータを観測データから同定した。ブラックボックスモデルを採用することによりモデルパラメータの数が大きく増加し、実験結果の定量的な再現性が改善した。

モデル同定手法の開発。電気化学測定中にはフローセル内および電極上の状態は時空間的に変化する。モデル同定のために反応が生じる電極上で時空間的な濃度および電流密度の分布が必要となるが、観測データから直接にそれらの分布を知ることはできない。本研究では数値計算を援用した逆解析手法により電極上で時空間的な濃度および電流密度の分布を評価すると同時にモデル同定を実施した。

開発したフレームワークの検証。PEG を含む硫酸銅水溶液における銅めっきに対して開発したフレームワークを検証した。硫酸銅水溶液における銅めっきの分極特性を濃度について線形、電位について区分線形な関数により表現し、関数内のパラメータを開発したモデル同定手法により同定した。さらに、代表的なサプレッサーである PEG を対象として、PEG の吸着および脱離についての定数および関数を同様のモデル同定手法により同定した。同定したモデルを観測データとは独立な検証データを用いて検証した。検証結果は一連のフレームワークが有効に機能することを示している。

以上のフレームワークについてモデリング手法の観点から特徴を述べる。本研究ではフローセル内作用電極周辺の濃度場を数値計算により解き、電極上の境界条件であるめっき析出および PEG の反応モデルを同定する。モデル同定に数値計算を援用することにより、電極表面の現象を取り出してそのモデルを同定することができる。このようにして得られたモデルは解析領域および境界条件の幾何的な条件について普遍性を持つ。したがって、フローセル実験により同定および検証されたモデルを実工程に適用することが可能である。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	システム制御 システム制御	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(工学)
学生氏名： Student's Name	石井 翼		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	天谷 賢治	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

In this study, we developed a model identification method of additive reaction for numerical simulation in electroplating. The purpose of this study is to apply Computer-Aided Engineering (CAE) to design and development of the plating process for manufacturing through silicon via (TSV). The contribution of this study is the development of a framework from experiment to simulation. The framework consists of an electrochemical measurement device, models of polarization characteristics and additive reaction, and a method of model identification. The framework was verified for copper electroplating in copper sulfate solution containing Polyethylene Glycol (PEG).

Various plating solutions and additives are used in the plating process. Numerical models are required for each solution and additive. The electrochemical measurement device developed in this study allows efficient measurement of observation data for the model identification. The developed device can continuously change the sample concentration and flow rate in the flow cell. This method can efficiently evaluate the effect of potential, concentration, and flow velocity on electrochemical phenomena.

In previous studies, constants and functions in numerical models were estimated from physical knowledge and observation at a molecular scale. The models have low flexibility and insufficient quantitative reproducibility of experimental results. In this study, the plating phenomena are represented by a grey-box model, and unknown parameters in the model are identified from the observed data. The grey-box model greatly increased flexibility and improves the quantitative reproducibility of experimental results.

During electrochemical measurement, states in a flow cell and on an electrode change spatiotemporally. The model identification needs spatiotemporal distributions of concentration and current density on an electrode. However, the distributions cannot be known directly from the observed data. In this study, the distributions are evaluated by an inverse analysis method with numerical simulation, and the numerical model is identified from the observation data.

The framework was verified for copper electroplating in copper sulfate solution containing PEG. Polarization characteristics of copper plating are expressed by a linear function for concentration and a piecewise-line function for potential, and parameters in the function were identified by the developed model identification method. Constants and functions for PEG adsorption and desorption are identified by the same model identification method. The identified models are verified with verification data independent of the observation data. The verification results show that the framework works effectively.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).