

## 乾式除害装置のシミュレーション

### Simulation of Dry-Type Gas Abatement System

相澤 幸宏\*      長坂 徹\*  
AIZAWA Yukihiko      NAGASAKA Toru

当社乾式除害装置<sup>1,2)</sup>において、除害塔内の温度および濃度分布を予測するシミュレータ SSGA シリーズを開発した。SSGA による計算結果は実験値をよく再現する。SSGA の活用により実機での実験を大幅に減らすことができ、また安全性あるいはコストの観点から実施困難な条件を検討することもできる。SSGA によるシミュレーションの結果は実際の除害装置の設計エンジニアリングに活用されている。

We developed simulators SSGA series. SSGA predicts the temperature and gas concentration profiles in our dry-type gas abatement system<sup>1,2)</sup>. The results of SSGA are in good agreement with experimental results. Using SSGA, we reduce experiments and development costs. Moreover, we can use SSGA easily at the very difficult conditions to experiment. The results of SSGA are reflected to design our dry-type gas abatement systems.

#### 1. はじめに

半導体市場の伸長に伴い、その排ガスを処理する乾式除害装置に対して、1) 幅広いガス条件（ガス種・流量など）への対応、2) 除害剤交換コストの低減、3) 安全性向上等のシステムの改良が求められている。これらの課題は従来実験によるデータ採取によって解決されてきたが、特に大型装置の実験や安全性にかかわる実験はコストや安全性の面から実現が困難なものもある。これらの問題を効率よく解決するため、除害塔の温度、濃度分布を予測するシミュレータ SSGA シリーズを開発した。本報告では SSGA 本体およびそのエンジニアリングへの活用事例について報告する。

#### 2. 対象装置

##### 2.1 基本構成

乾式除害装置の基本構成を Fig. 1 に示す。断面積一定の縦型円筒容器（除害塔）内の除害剤充てん層に窒素、水素あるいはそれらの混合ガスで希釈された処理対象ガスが上部から流入し、除害剤と気固反応を行い除去される。この反応により熱と反応生成物が発生する。発生した熱によって除害剤充てん層の温度が上昇する。除害剤充てん層の温度上昇は熱伝達により除害塔壁の温度の上昇をもたらす。除害塔壁は外気との間

\* 開発・エンジニアリング本部つくば研究所シミュレーションセンター

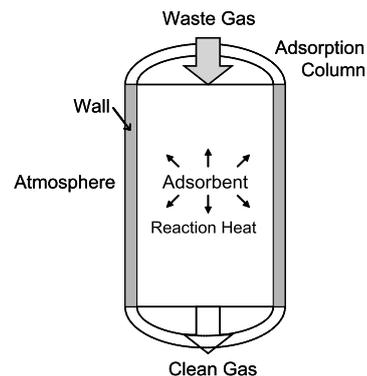


Fig.1 A schematic diagram of a dry-type gas abatement system.

の熱伝達により冷却される。

##### 2.2 装置の種類

当社乾式除害装置には大別して2種類の用途のものがある。SSGA シリーズはいずれの用途のシミュレーションも行うことができる。

##### (1) プロセス用除害装置

主に半導体製造装置からのプロセス排気ガスを対象とした装置である。低濃度のガスを連続して長時間流すことが想定されている。連続的にガスを流し続けた場合に最終的に到達する除害塔内の最高到達温度が、安全な範囲に収まるように設計される。

##### (2) ベント排気用除害装置

主にシリンドーキャビネットやカードル交換時のベ

ントパーズ排気を対象とした装置である。ガスの総量は少量ではあるが、数秒という短時間に高濃度かつ高流速のガスが流入する。パーズされる配管容積・排気ガスの初期圧力・排気時間・パーズ回数などの排気側装置の仕様をもとに、1回の容器交換の全工程を通じて除害塔内の最高到達温度が安全な範囲に収まるように設計される。

### 3. 計算方法

#### 3.1 基礎方程式

計算の簡略化のため以下の仮定を置く。

- 除害反応は以下の形式の気固反応を仮定する。



A(g) : 処理対象ガス

B(s) : 除害剤反応成分

P(g) : 反応生成ガス

S(s) : 除害剤反応後成分

- 円周方向に流速・温度および濃度分布はない。(円筒2次元問題)
- 壁の半径方向および円周方向に温度分布はない。(1次元問題)
- 充てん層における圧力損失を無視する。
- 気固反応は容積反応モデル<sup>3)</sup>に従う。
- 気相は理想気体の状態方程式に従う。
- 気体・除害剤および塔壁の定圧比熱は一定とする。
- 塔壁の密度と熱伝導率は一定とする。
- 外気は温度一定の空気とする。

基礎方程式は次のようになる。

- (1) 気相全体の物質収支

$$\varepsilon_b \frac{\partial \rho_f}{\partial t} = -\frac{\partial(\rho_f u)}{\partial z} + r_A + r_P \quad (1)$$

- (2) ガス成分の物質収支

$$\varepsilon_b \frac{\partial(\rho_f y_i)}{\partial t} = -\frac{\partial(\rho_f u y_i)}{\partial z} + D_{iz} \frac{\partial^2(\rho_f y_i)}{\partial z^2} + D_{ir} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial(\rho_f y_i)}{\partial r} \right) + r_i \quad (i=A, P) \quad (2)$$

ここで

$$r_A = -C_{B0} k_v C_A^m (1-X) = -C_{B0} k_v (\rho_f y_A)^m (1-X) \quad (3)$$

$$r_P = a_p r_A \quad (4)$$

- (3) 剤反応率

$$\frac{\partial X}{\partial t} = a_A k_v (\rho_f y_A)^m (1-X) \quad (5)$$

- (4) 気相エネルギー方程式

$$\varepsilon_b C_{pf} \frac{\partial(\rho_f T_f)}{\partial t} = -C_{pf} \frac{\partial(\rho_f u T_f)}{\partial z} + \lambda_{fz} \frac{\partial^2 T_f}{\partial z^2} + \lambda_{fr} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T_f}{\partial r} \right) - h_{fs} A_{fs} (T_f - T_s) \quad (6)$$

- (5) 固相エネルギー方程式

$$\rho_s C_{ps} \frac{\partial T_s}{\partial t} = \lambda_{sz} \frac{\partial^2 T_s}{\partial z^2} + \lambda_{sr} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T_s}{\partial r} \right) + h_{fs} A_{fs} (T_f - T_s) + (C_{B0} k_v (\rho_f y_A)^m (1-X)) \Delta H_A \quad (7)$$

- (6) 壁エネルギー方程式

$$\rho_w C_{pw} \frac{\partial T_w}{\partial t} = \lambda_w \frac{\partial^2 T_w}{\partial z^2} + h_{wf} A_{wf} (T_f - T_w) + h_{ws} A_{ws} (T_s - T_w) - h_{wc} A_{wc} (T_w - T_c) \quad (8)$$

- (7) 気体の状態方程式

$$\rho_f = \frac{P}{RT_f} \quad (9)$$

#### 3.2 有効熱伝導率および熱伝達率

有効熱伝導率および熱伝達率はそれぞれ以下の式により推算した。

- (1) 気体の半径方向有効熱伝導率<sup>4)</sup>

$$Pe_{fr} = \left( \frac{1}{10} + \frac{2/(3\varepsilon_b)}{Pr \cdot Re} \right)^{-1} \quad (10)$$

$$\lambda_{fr} = \frac{C_{pf} \rho_f u d_p}{Pe_{fr}} \quad (11)$$

- (2) 気体の軸方向有効熱伝導率<sup>4)</sup>

$$Pe_{fz} = \left( \frac{0.73\varepsilon_b}{Pr \cdot Re} + 0.5 \left/ \left( 1 + \frac{9.7\varepsilon_b}{Pr \cdot Re} \right) \right. \right)^{-1} \quad (12)$$

$$\lambda_{fz} = \frac{C_{pf} \rho_f u d_p}{Pe_{fz}} \quad (13)$$

ここで  $\rho_f$ ,  $u$  はガス入口の値で代表し、塔内の熱伝導率は一定とする。

- (3) 気体と壁の間の熱伝達率<sup>4)</sup>

$$h_{wf} = 0.6 Pr^{1/3} Re^{1/2} \frac{\lambda_f}{d_p} \quad (14)$$

- (4) 剤の有効熱伝導率<sup>4)</sup>

$$\lambda_{sr} = \lambda_{sz} = \lambda_f \sqrt{(1-\varepsilon_b)} \left( \frac{2}{1 - \frac{\lambda_f B}{\lambda_s}} \left( \frac{1 - \frac{\lambda_f}{\lambda_s} B}{1 - \frac{\lambda_f B}{\lambda_s}} \right)^2 \right) \times \ln \left( \frac{\lambda_s}{\lambda_f B} \right) - \frac{B+1}{2} - \frac{B-1}{\left( 1 - \frac{\lambda_f B}{\lambda_s} \right)} \quad (15)$$

ただし、ここで

$$B = 1.25 \left( \frac{1 - \varepsilon_b}{\varepsilon_b} \right)^{10/9} \quad (16)$$

(5) 剤 - 壁間の熱伝達率<sup>4)</sup>

$$h_{ws} = \frac{2.12\lambda_{sr}}{d_p} \quad (17)$$

(6) 壁 - 環境間の熱伝達率<sup>5)</sup>

$$\frac{(\overline{Nu})_c}{(\overline{Nu})_p} = 1 + 0.428 \left[ \frac{l/r_o}{(\overline{Nu})_p} \right]^{5/6} \quad (18)$$

$$(\overline{Nu})_p = \left( \frac{Pr}{2.4 + 4.9\sqrt{Pr + 5Pr}} \right)^{1/4} Ra_l^{1/4} \quad (19)$$

(7) 剤 - ガス間の熱伝達率<sup>6)</sup>

$$Nu = 2 + 1.1Pr^{1/3}Re^{0.6} \quad (20)$$

### 3.3 解析方法

SSGA では離散化法は有限体積法，時間微分は完全陰解法，対流項スキームには一次風上法を使用している。

### 3.4 計算パラメータの決定

SSGA では容積反応モデルの反応速度定数をはじめとして反応系固有の種々のパラメータを設定しなければならない。これらのパラメータは実験的に求める必要がある。ただし、この場合の実験はSSGAに与えるパラメータが求められればよいので小規模でよく、また一つの反応系についてパラメータの決定は一回でよいので従来の実機による実験に比べると非常に低コストで済む。

Fig. 2にパラメータ設定用の実験装置の概略を示す。内径43.0 mm，外径46.9 mmの試験カラムに除害剤を50～100 mm（反応系により充てん高さは異なる）充てんし，除害剤がほぼ完全に破過するまでガスを流し，その間熱電対により試験カラム中心部の温度変化を，FT-IR（ガス種によっては他の分析機器を用いる場合もある）により出口濃度を連続的に測定す

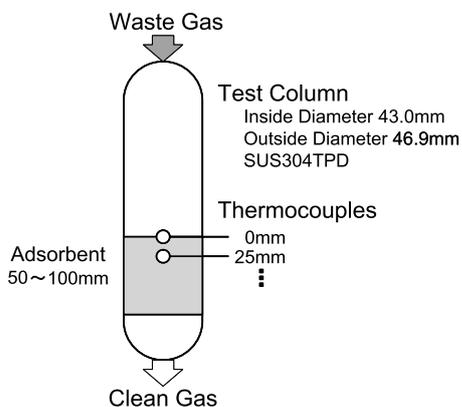


Fig.2 Equipment for breakthrough test.

る。実験は入口濃度および空塔速度を変えて数回行われる。得られた結果から計算に必要なパラメータを求める。Fig. 3に示すように，適切なパラメータが設定されていれば破過曲線の計算結果は実験値とよく一致する。

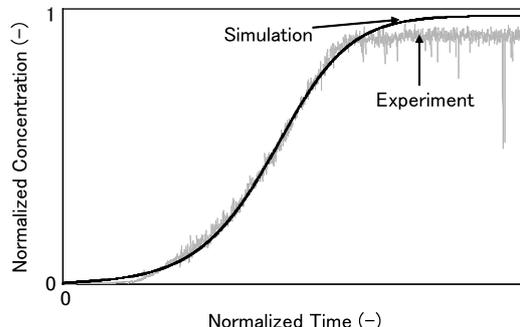


Fig.3 Comparison of the breakthrough curves between experimental result and simulation.

## 4. 計算結果とその活用事例

以下に実機ベースのパラメータを与えた計算結果の例を示す。

### 4.1 プロセス用除害装置

Fig. 4はプロセス用除害装置においてSiH<sub>4</sub>を除害した場合の除害塔中心部の温度変化の計算値と実験値を比較したものである。各測定深さでの最高到達温度および最高到達時間について両者はよく一致している。

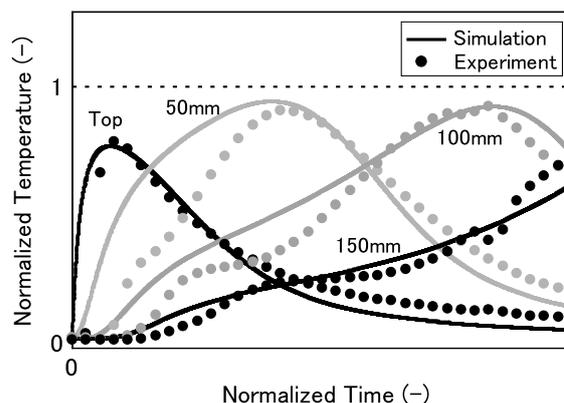


Fig.4 Temperature profiles of SiH<sub>4</sub> adsorption column.

### 4.2 ベント排気用除害装置

SSGA はベント排気用除害装置のシミュレーションにも使用できる。Fig. 5にSiH<sub>4</sub> 10 kg 充てんの47 L シリンダーを当社製シリンダーキャビネット NACS-GII に接続し，容器取り付け時のバッチパージを行った際の除害塔中心部の温度変化について示す。

各パージ開始時および終了時の温度について計算結果は実験結果をよく反映している。パージ中の温度変

化については計算結果の立ち上がりがほぼ垂直で実験より高温に達しているが、これは除害装置に至るまでの配管や希釈による拡散の影響を考慮せず、ガス濃度をステップ状に与えているためである。これはベントパージ排気の除害装置への流入として理論上考えられる最悪のケースであり、保安機器という性格上エンジニアリング時の評価用の入力としてこのような条件を与えている。

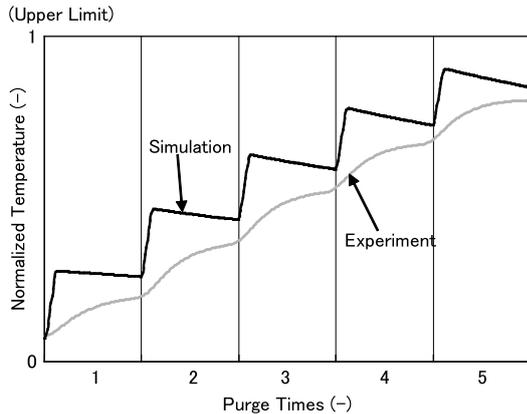


Fig. 5 Temperature profiles at 10 kg / 47 L SiH<sub>4</sub> vent purge on NACS-GII.

#### 4.3 除害装置設計時の評価ツールとしての使用

シミュレーションでは実際には危険で実験を行えない条件なども計算できるため、設計時における処理ガスの流量条件の決定の際にも活用されている。Fig. 6, Fig. 7にその例を示す。SiH<sub>4</sub>用の除害剤について、剤の性質からプロセス用除害装置向けに安全に使用できる管理温度（連続運転時の最高到達温度）が設定された。そこでSSGAによりその条件を満たす流量を求めた。Fig. 6, Fig. 7は当社除害塔 JGS100型における処理ガス流量の異なる2つのケースでの除害塔中心部温度変化の計算結果である。図中の Upper Limit は今回設定された管理温度である。Fig. 6の条件では最高到達温度が管理温度より低くなったが、処理ガス流量をこれより20%増やした Fig. 7の条件では管理温度を上回る結果となった。これらの計算結果は実際の定格流量の設定に活用されている。

#### 5. まとめ

SSGA の計算結果は破過曲線および温度挙動に対して実験結果をよく再現した。特に温度挙動とその最高到達温度は除害装置の設計において重要な情報となる。SSGA を使用することで、設計のための除害剤のデータ採取は小型の試験カラムによる数条件の実験のみでよくなり、従来実機あるいは試験装置によって数

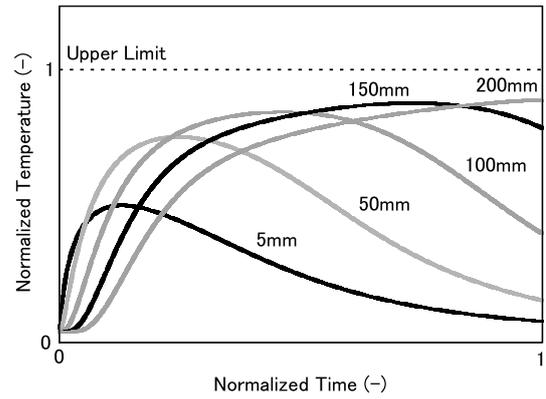


Fig.6 Temperature profiles at continuous operation simulation on rated flow rate SiH<sub>4</sub> with JGS100 column.

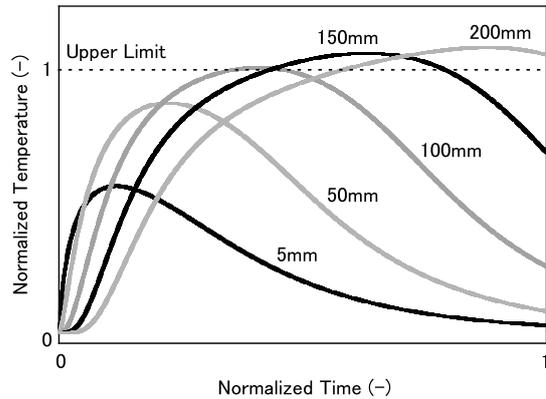


Fig.7 Temperature profiles at continuous operation simulation on over 20% flow rate from rated flow rate SiH<sub>4</sub> with JGS100 column.

多くの実験により設計基礎データの採集を行っていたのに比べ開発コストを大幅に減らすことができた。SSGA はベント用除害装置にも活用できその設計コストも大幅に減らすことができた。

また、シミュレータでは実際には危険あるいは高コストのため実験が非常に困難なケースについても安全かつ安価に実施できるため、定格条件の設定やトラブル時の装置状態の解析ツールとしても活用が期待できる。

#### 参考文献

- 1) 富田修康. 日本酸素技報. (19) 59 (2000).
- 2) 富田修康. 日本酸素技報. (21) 50 (2002).
- 3) 化学工学会編. 化学工学便覧. 改定6版. 東京, 丸善, 1999, 950-955.
- 4) Anthony G. Dixon ; David L. Cresswell. *AICHE J.* 25 (4), 664-673 (1979).
- 5) 日本機械学会. 伝熱工学資料. 改定第4版. 東京, 丸善, 1986, 71.
- 6) Wakao N.; S. Kaguei. Heat and mass transfer in packed beds, One Park Avenue, New York, USA, Gordon and Breach Science Publishers, 1982, p293.

記号			$T_i$	温度	K
$A_{ij}$	伝熱面積	$m^2/m^3$	$t$	経過時間	s
$a_i$	反応量論係数	mol/mol-adsorbent	$u$	空塔速度	m/s
$C_A$	ガス反応成分濃度	mol/kg-adsorbent	$z$	塔軸方向座標	m
$C_{B0}$	除害剤初期濃度	mol/kg-adsorbent	$\epsilon_b$	空隙率	-
$C_{p_i}$	定圧比熱	$kJ/(mol \cdot K)$	$X$	剤反応率	-
$D_{ij}$	ガス拡散係数	$m^2/s$	$y_i$	ガス濃度	mol/ $m^3$
$d_p$	剤径	m	$\Delta H_A$	除害反応熱	kJ/mol
$h_{ij}$	熱伝達率	$kW/(m^2 \cdot K)$	$\lambda_i$	熱伝導率	$kW/(m \cdot K)$
$k_v$	反応速度定数	$m^{3m}/(s \cdot mol^m)$	$\lambda_{ij}$	特定軸方向の熱伝導率	$kW/(m \cdot K)$
$l$	除害塔高さ	m	$\rho_s$	剤密度	$kg/m^3$
$m$	気体反応次数	-	$\rho_f$	ガス密度	mol/ $m^3$
$Nu$	ヌセルト数	-	$\rho_w$	除害塔壁密度	mol/ $m^3$
$(Nu)_c$	鉛直円柱平均ヌセルト数	-	添字		
$(Nu)_p$	鉛直平板平均ヌセルト数	-	$f$	ガス	
$P$	ガス圧力	kPa	$s$	剤	
$Pe_{fi}$	ペクレ数	-	$w$	塔壁	
$Pr$	プラントル数	-	$c$	環境	
$R$	気体定数	$J/(mol \cdot K)$	$r$	半径方向	
$Ra_l$	レーレー数	-	$z$	除害塔軸方向	
$Re$	レイノルズ数	-	$A$	除害対象ガス	
$r$	半径方向座標	m	$P$	反応生成ガス	
$r_i$	生成速度	mol/( $s \cdot m^3$ )			
$r_o$	除害塔外径	m			