

## 対向する非定常超音速噴流の挙動に関する数値計算

福岡寛, 木下稔基\*, 梅津郁朗\*\*

Numerical Analysis of Behavior on Opposing Unsteady Supersonic Jets  
in a Flow Field with Shields

Hiroshi FUKUOKA, Toshiki KINOSHITA\*, Ikurou UMEZU\*\*

Collision dynamics of opposing unsteady supersonic jets injected in background gas with shock waves were calculated to simulate double pulsed laser ablation. Since the jets are deflected by collision and the motion of debris is ballistic. This characteristic can be used to reduce the number of debris when shields are mounted in front of substrate. The flow of jets through installed shields is complicated by the interaction between shields and jets, and between shields and shock waves. We investigate influence of shield position on the shock waves and the jets by numerical calculations. Axisymmetric two-dimensional compressible Euler equations were solved using the finite volume method by using ANSYS Fluent 14.0.0 code. The shields with slit was mounted parallel to the direction of initially injected jets. In order to investigate the influence of shield position on the shock waves and the jets, the shield position and background gas pressure were adopted as parameters. The jets and shock wave are deflected by collision and they can pass through the slit of shields. The passed shock wave reflects at the substrate mounted behind the slits and it forces back the jet to decrease the jet velocity. The shield position governs the velocity and amount of the jet that reach the substrate.

## 1. 緒 言

高出力パルスレーザーをターゲット材料表面に照射すると、原子、分子およびイオンなどの蒸気群が爆発的に放出され、材料表面がエッチングされる。この現象は Laser ablation(LA) と呼ばれる。LA によって放出された蒸気群はプルームと呼ばれ、ターゲット材料表面より垂直方向に超音速で噴射される。そのため、衝撃波がプルーム前方に形成される。

Pulsed Laser Ablation(PLA) は LA によって放出されたプルームをターゲット材料表面と平行に設置した堆積基板に衝突させることで基板上にナノ結晶を堆積させ、薄膜を生成する手法である<sup>[1-5]</sup>。PLA において基板には衝撃波が初めに衝突する。基板に衝突した衝撃波は反射し、衝撃波後方を進展しているプルームと干渉する。衝撃波には通過した点の圧力、密度および温度を上昇させる特性があるため、プルーム内の物理量を変化させ、ナノ結晶の凝集過程に影響を与える。そのため、衝撃波およびプルームの挙動を解明することは高品質のナノ結晶薄膜を生成する上で

重要である。

PLA において数百 nm から数  $\mu$  m の粒子がプルームの放出直前にレーザー照射点から放射状に放出される。この大粒径粒子はデブリと呼ばれ、ターゲット材料表面がレーザー照射直後に比較的低温で熔融されることで生成される。デブリはプルーム後方を進展し、生成した薄膜表面に堆積する。デブリは薄膜を構成するナノ結晶と比べて非常に大きいため、生成した薄膜表面に付着することで薄膜の構造観察が困難になり、性能の劣化につながる。この問題を解決する方法として Eclipse 法が提案された。Eclipse 法とはターゲット材料表面と堆積基板の間に遮蔽板を設置することで基板に到達するデブリを除去する方法である<sup>[6-7]</sup>。

2 台のレーザーを対面したターゲット材料表面に照射することで、それぞれのターゲット材料表面から対向したプルームが放出される。対向したプルームは互いに衝突し、混ざり合うことで複合ナノ結晶構造をもつプルームとなる。これを基板に衝突させることで複合ナノ結晶を堆積させ、複合ナノ結晶薄膜を生成する。この方法は Double

\* 機械制御工学専攻 2 年

\*\* 甲南大学理工学部

Pulsed Laser Ablation(DPLA) と呼ばれ, Umezu らによって提案された<sup>[8-9]</sup>. DPLA において PLA と同様にデブリが薄膜表面に付着するが, この問題を解決する方法は提案されていない.

そこで基板に到達するデブリを除去するために, 我々は DPLA の流れ場中にスリットを持つ遮蔽板を設置する方法を提案した. 遮蔽板の設置により衝撃波とプルームおよびプルーム同士の相互作用に加え, 遮蔽板とプルームおよび遮蔽板と衝撃波の相互作用が生じ, 非常に複雑な流れ場となる. そのため, 実験により遮蔽板を設置した DPLA における衝撃波およびプルームの挙動を明らかにすることは困難である. また, 実験により遮蔽板の設置位置が薄膜の堆積量を左右することが確認されている.

本研究では複雑な LA 過程を簡易化するために LA によって放出されるプルームを非定常超音速噴流と置き換えた. 本研究は遮蔽板の設置位置を変化させた場合における噴流および衝撃波の挙動を解明し, その影響について数値解析を用いて調べることを目的とする. また, 基板に到達する噴流量から薄膜の堆積量の傾向を明らかにする. さらに遮蔽板による基板上的遮蔽距離を考慮した検討も行う.

## 2. 数値解析法

本研究では汎用流体解析ソフト ANSYS Fluent を用いて数値解析を行った. 支配方程式は式 1 に示す二次元軸対称圧縮性オイラー方程式を用い, 有限体積法を用いて離散化を行った.

$$\frac{\partial U}{\partial t} + \frac{\partial F}{\partial x} + \frac{\partial G}{\partial r} + H = 0, \quad (1)$$

式 (1) 中の従属変数ベクトル  $U$ , 非粘性ベクトル  $F$  および  $G$ , 軸対称ベクトル  $H$  はそれぞれ式 (2) に示す.

$$U = \begin{pmatrix} \rho_b \\ \rho_s \\ \rho_g \\ \rho u \\ \rho v \\ e \end{pmatrix}, \quad F = \begin{pmatrix} \rho_b u \\ \rho_s u \\ \rho_g u \\ \rho u^2 + p \\ \rho uv \\ (e+p)u \end{pmatrix}, \quad G = \begin{pmatrix} \rho_b v \\ \rho_s v \\ \rho_g v \\ \rho uv \\ \rho v^2 + p \\ (e+p)v \end{pmatrix}, \quad H = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} \rho_b v \\ \rho_s v \\ \rho_g v \\ \rho uv \\ \rho v^2 + p \\ (e+p)v \end{pmatrix}, \quad (2)$$

ここで  $\rho$ ,  $u$ ,  $v$ ,  $p$  および  $e$  はそれぞれ密度,  $x/D$  方向の速度,  $r/D$  方向の速度, 圧力および単位体積当たりの内部エネルギーを表す. 下付き文字  $b, s$  および  $g$  はそれぞれ雰囲気ガスの成分である He, 噴流の成分である Si および Ge を表す. また, 圧力  $p$ , 温度  $T$ , 音速  $a$  および独立変数は式 (3) および (4) に示す関係が成り立つ. ここで  $\gamma$  は比熱比である.

$$e = \frac{p}{\gamma - 1} + \frac{\rho}{2}(u^2 + v^2), \quad (3)$$

$$a^2 = \gamma RT = \gamma \frac{p}{\rho} = \gamma(\gamma - 1) \left( \frac{e}{\rho} - \frac{1}{2}(u^2 + v^2) \right), \quad (4)$$

時間の離散化には 4 次のルンゲクッタ法を用いた. 2 次風上差分である Flux-Difference Splitting スキームを Roe の近似を用いて行った.

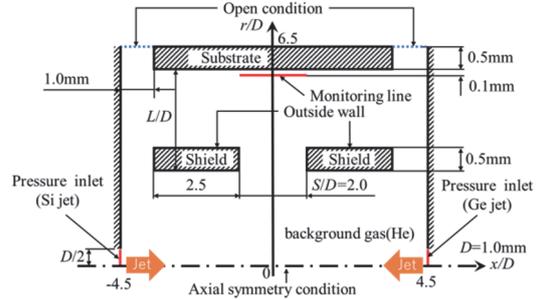


Fig.1 Flow field for computation and boundary conditions

Table1 Initial condition of Si and Ge jet

Jet	specific heat ratio[-]	Gas constant[J/kg*K]
Si	1.6102	522.93
Ge	1.6451	339.4
Gauge total pressure[Pa]	Initial gauge pressure[Pa]	Total temperature[K]
18238500	911925	319578
19454400	911925	819790

Table2 Shielding distance

$L/D$ [-]	2	2.5	3	3.5	4
Shielding distance[mm]	1.5	0.33	5.0	4.6	3.5

図 1 は DPLA の計算領域および境界条件を示している. LA によって放出されるプルームに対応する Si および Ge 噴流は対称軸中央付近で衝突し, 遮蔽板の間に設けられたスリットを抜けて堆積基板に到達する. 計算領域は噴流入口直径である  $D=1\text{mm}$  で無次元化した. 境界条件として流入口以外の左右端, 遮蔽板および基板に壁条件を与えた. 計算モデル上端の  $r/D=6.5$  および下端の  $r/D=0$  はそれぞれ開放条件および軸対称条件とした. Si および Ge 噴流は圧力流入によって与える. 表 1 は Si および Ge 噴流の流入条件を示す. 流入条件は実験から算出したプルームの初期速度  $18000\text{m/s}$  となるように決定した. Si および Ge 噴流はそれぞれ  $x/D=-4.5$  および  $4.5$  に設置された圧力流入口より  $t=0\text{ns}$  において噴射され,  $50\text{ns}$  後に停止する. これはプルームが LA によって瞬間的に噴射されることに対応している. 雰囲気ガスには He を用い, その初期温度は  $300\text{K}$  とした. 遮蔽板は図 1 に示すように流入口と基板との間に設置した. 遮蔽板の設置位置が衝撃波および噴流の挙動に与える影響を調べるためにスリット間距離  $S/D$  を  $2.0$  と固定し, 基板-遮蔽板間距離  $L/D$  および雰囲気ガス圧  $P_b$  をパラメーターとした.

遮蔽板の効果を検討するため, 放射状に進展するデブリが遮蔽板によって除去される基板上的範囲を遮蔽距離とした. 遮蔽距離は基板-遮蔽板間距離  $L/D$  に依存しており,  $L/D$  と遮蔽距離の関係を図 2 に示す.

格子依存性の評価はグリッド幅を  $D/10$ ,  $D/20$  および  $D/30$  と変化させて行った. その結果, 噴流の進展速度に

グリッド幅が与える影響は小さく、計算コスト削減のため、 $D/10$  (0.1 mm) を採用した。また、グリッドのアスペクト比は1とした。基板に到達する噴流の観察は基板付近の計測線で行う。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 代表的な流れ場

図 2(a)-(h) は基板 - 遮蔽板間距離  $L/D=3.0$  および雰囲気ガス圧  $P_b=1000\text{Pa}$  における代表的な流れ場を示している。これは He の質量分率に等密度線図(白線)を重ねた図である。He の質量分率および等密度線図はそれぞれ噴流および衝撃波に対応する。図中の矢印は衝撃波の進展方向を示す。図 2(a) に示す  $t=145\text{ns}$  において左右の流入口から Si および Ge 噴流の噴射が確認できる。また、衝撃波はそれぞれの噴流前方に形成され、放射状に進展することが確認できる。図 2(b) に示す  $t=230\text{ns}$  は対向する衝撃波が流れ場中央付近で互いに衝突する瞬間を示している。また、衝撃波は遮蔽版下部にも衝突することが確認できる。図 2(c) に示す  $t=836\text{ns}$  より衝撃波はスリットを通過し、基板に到達した瞬間を示している。また、噴流の先頭位置はスリット付

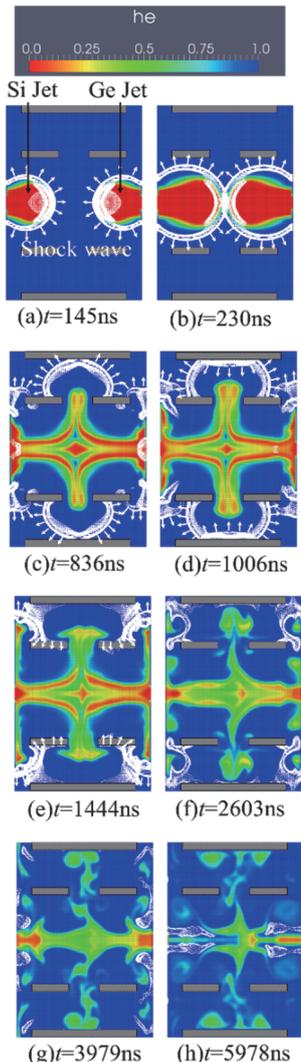


Fig.2 He mass fraction and density contours for  $L/D=3.0$  and  $P_b=1000\text{Pa}$

近に確認できる。これは噴流が流れ場中心付近で互いに衝突し、遮蔽版下部からの反射衝撃波によって基板方向に押し出されたためである。図 2(d) に示す  $t=1006\text{ns}$  において衝撃波の進展方向が反転したことが確認できる。これは衝撃波が基板に衝突した後、反射したためである。この反射した衝撃波を基板からの反射衝撃波と呼ぶ。図 2(e) に示す  $t=1444\text{ns}$  において基板からの反射衝撃波は遮蔽版上部に衝突したことが確認できる。また、噴流の先頭位置は図 2(d) よりも遮蔽板に近いことが確認できる。これは基板からの反射衝撃波によって噴流が押し戻されたためである。図 2(f) に示す  $t=2603\text{ns}$  より噴流が基板に到達したことが確認できる。これは遮蔽版上部で反射した衝撃波によって誘起された速度により、噴流が基板方向に進展したためであると考えられる。図 2(g)-(h) は基板に衝突後の噴流の挙動を示している。これらより、基板に衝突した噴流は反射することなく、基板上を左右に進展することが確認できる。

基板に衝突する衝撃波および噴流を定量的に観察することはそれぞれの基板に衝突する噴流量およびその進展速度を明らかにするうえで重要である。図 3 は計測線中心における  $r/D$  方向の速度および Si と Ge の質量分率の時間変化を示す。図中の赤の実線および青の一点鎖線はそれぞれ  $r/D$  方向の速度および Si と Ge の質量分率の合計を示す。図 3(c), (f), (g) および (h) はそれぞれ図 2(c), (f), (g) および (h) に対応する。図 3 に示す  $t=836$  および  $2107\text{ns}$  においてパルス状の速度上昇が確認できる。この速度上昇は図 2(c) に示す、衝撃波の基板衝突のタイミングとはほぼ一致することから、基板に衝突する衝撃波によって誘起されたことがわかる。また、 $t=2107\text{ns}$  における速度上昇は遮蔽版上部からの反射衝撃波により誘起された速度であると考えられる。図 3(g) に示す  $t=3953\text{ns}$  においてピークとなる滑らかな速度上昇が確認できる。この速度上昇と同時に質量分率も上昇していることが確認できる。このことより、この速度上昇は噴流の通過によるものであると考えられる。一方、質量分率の上昇は図 3(h) に示す  $t=5978\text{ns}$  においても確認できるが、同じ時刻において速度の上昇は確認できない。このことから、噴流は  $r/D$  方向の速度成分をもたないため、基板に沿って進展していると考えられる。

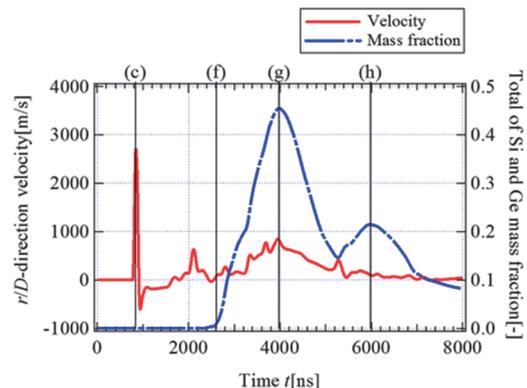


Fig.3 Relation between mass fraction, velocity and time for  $L/D=3.0$  and  $P_b=1000\text{Pa}$

3. 2 遮蔽板の設置位置が流れ場に与える影響

前節より噴流は、遮蔽板上部からの反射衝撃波によって誘起された速度により、基板方向に進展することがわかった。そこで本節では遮蔽板の設置位置が衝撃波および噴流の進展に与える影響について調べる。図4は雰囲気ガス圧  $P_b=1000\text{Pa}$  とし、基板 - 遮蔽板間距離  $L/D=2.0, 3.0$  および  $4.0$  と変化させた場合の代表的な流れ場を示す。図4(a), (d) および (g) は衝撃波が基板に到達した瞬間を示している。衝撃波は  $L/D$  を変化させた場合においてもほぼ同時に基板に到達することがわかる。これより、衝撃波の進展速度は遮蔽板の設置位置にほとんど依存しないと考えられる。一方、噴流の先頭位置と基板間の距離は  $L/D$  を大きくするにつれ、近くなることを確認できる。このことより、 $L/D$  を大きくすることで、噴流の進展速度が早くなったことがわかる。遮蔽板下部からの反射衝撃波は中央付近で衝突した噴流と干渉する。反射衝撃波が噴流と干渉するタイミングは  $L/D$  を大きくすることで早くなる。そのため、噴流は膨張する前に衝撃波と干渉し、スリット間から押し出されることで加速されたと考えられる。図4(b), (e) および (h) は基板からの反射衝撃波が遮蔽板上部に到達した瞬間を示している。これらより噴流の先頭位置と基板の間の距離が  $L/D$  を大きくするにつれ、近くなることがわかる。このことより、噴流は  $L/D$  を大きくすることで基板からの反射衝撃波によって押し戻されにくくなることがわかる。このことより、噴流は  $L/D$  を大きくすることで加速されるためであると考えられる。図4(c), (f) および (i) より

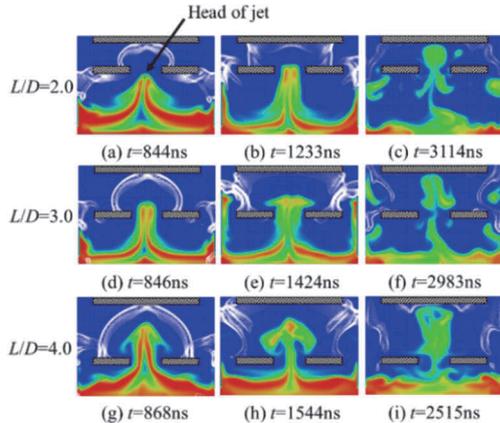


Fig.4 Typical flow with increasing  $L/D$  for  $P_b=1000\text{Pa}$

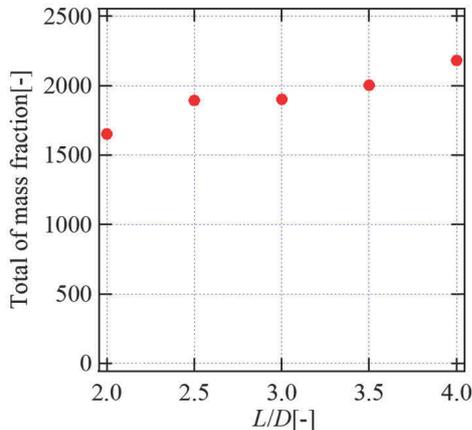


Fig.5 Relation between total mass fraction and  $L/D$  for  $P_b=1000\text{Pa}$

り噴流が基板に到達したことが確認できる。これより、スリットを通過した噴流量は  $L/D$  を大きくするにつれ、多くなることをわかる。そのため、基板に到達する噴流量は  $L/D$  の影響を受けると考えられる。

図5は雰囲気ガス圧  $P_b$  を  $1000\text{Pa}$  とし、基板 - 遮蔽板間距離  $L/D$  を  $2.0 - 4.0$  と変化した場合の質量分率の合計を示す。ここで質量分率の合計は計測線を通過した Si および Ge の質量分率を合計した値である。図5より  $L/D$  を大きくするにつれ、質量分率の合計値は多くなることをわかる。これは  $L/D$  を大きくすることでスリットを通過する噴流量が多くなったためであると考えられる。この結果より  $L/D$  を大きくすることで基板に到達するプルームの量は多くなり、実験における薄膜の堆積量が増加すると考えられる。

3. 3 雰囲気ガス圧が流れ場に与える影響

前節より雰囲気ガス圧  $P_b=1000\text{Pa}$  と固定した場合、基板に到達する噴流量は  $L/D$  を大きくすることで多くなることをわかった。次に雰囲気ガス圧  $P_b$  が基板に到達する噴流量に与える影響について調べる。一般的に雰囲気ガス圧を高くすることで噴流の進展は阻害される。ここでは雰囲気ガス圧  $P_b=1000, 1200$  および  $1400\text{Pa}$  と変化させる。図6は計測線を通る Si および Ge 噴流の質量分率の合計値と雰囲気ガス圧  $P_b$  の関係を示している。図6より雰囲気ガス圧の上昇により質量分率の合計値は減少傾向にあることがわかる。これは噴流の進展は雰囲気ガス圧が高くなることにより阻害され、基板に到達する噴流量が少なくなったと考えられる。

薄膜の堆積量を見積もるうえでデブリが除去される範囲である遮蔽距離を考慮することは重要である。薄膜は基板中央にピークをもつガウス分布状で基板上に堆積する。そのため、図7に基板 - 遮蔽板間距離  $L/D=3.0$  および雰囲気ガス圧  $P_b=1000\text{Pa}$  における計測線を通る質量分率の合計をガウス分布に従って分散させたグラフを示す。遮蔽距離は表2より  $5\text{mm}$  である。そのため、遮蔽距離を考慮した基板に到達する質量分率の合計値は図中の斜線部に対応し、その値は  $1766.03$  であった。

次に基板 - 遮蔽板間距離  $L/D$  および雰囲気ガス圧  $P_b$  を変化させた場合について調べる。図8は基板 - 遮蔽板間距

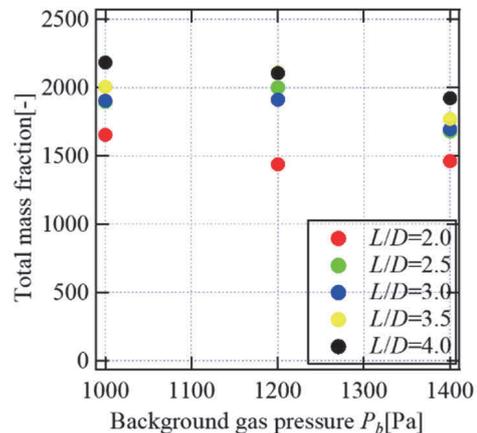


Fig.6 Relation between total mass fraction in monitoring line and background gas pressure  $P_b$

離  $L/D$  を変化させた場合の遮蔽距離を考慮した質量分率の合計値と雰囲気ガス圧の関係を示す。これより、遮蔽距離を考慮した質量分率の合計値は  $L/D=3.5$  において他の条件より大きくなることがわかる。そのため、雰囲気ガス圧  $P_b=1000, 1200$  および  $1400\text{Pa}$  の場合、遮蔽距離を考慮した薄膜の堆積量は基板 - 遮蔽距離  $L/D=3.5$  において多くなると期待できる。

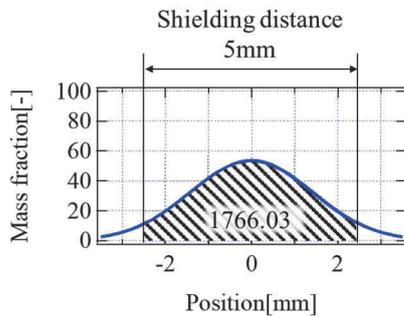


Fig.7 Distribution mass fraction for  $L/D=3.0$  and  $P_b=1000\text{Pa}$

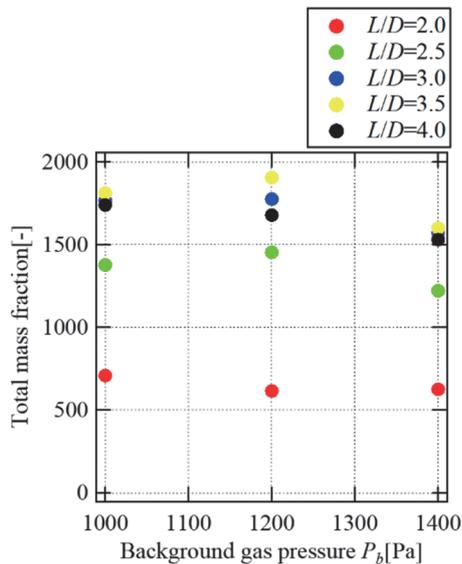


Fig.8 Relation between total mass fraction at shielding distance and background gas pressure  $P_b$

#### 4. 結 言

本研究では複雑な LA 過程を簡易化するために LA によって放出されるプラズマを非定常超音速噴流と置き換えた。本研究は遮蔽板の設置位置を変化させた場合における噴流および衝撃波の挙動を解明し、その影響について数値解析を用いて調べることを目的とする。また、基板に到達する噴流量から薄膜の堆積量の傾向を明らかにする。さらに遮蔽板による基板への遮蔽距離を考慮した検討も行った。その結果を以下に述べる。

(1) 噴流前方に形成された衝撃波は基板に衝突し、反射することがわかった。噴流は基板からの反射衝撃波によって押し戻されることがわかった。一方、反射衝撃波は遮蔽板上部で反射し、押し戻された噴流の進展を助長することがわかった。このことより、衝撃波によって誘起される速度と噴流の進展の方向が一致する場合

にその進展を助長し、対抗する場合に阻害することがわかった。

- (2) 雰囲気ガス圧  $P_b=1000\text{Pa}$  において衝撃波の進展速度は遮蔽板の設置位置にほぼ依存しないことがわかった。一方、スリットを通過した噴流は  $L/D$  を大きくすることで加速することがわかった。
- (3) 計測線を通じた Si および Ge の質量分率の合計は  $L/D=2.0$  から  $4.0$  と大きくすることで多くなることがわかった。
- (4) 雰囲気ガス圧  $P_b=1000, 1200$  および  $1400\text{Pa}$  の場合、計測線を通じる質量分率の合計は雰囲気ガス圧の上昇により減少傾向にあることがわかった。また、遮蔽距離を考慮した質量分率の合計値は  $L/D=3.5$  において他の条件より大きくなることがわかった。そのため、薄膜の堆積量は基板 - 遮蔽距離  $L/D=3.5$  において多くなると期待できる。

#### 参考文献

- [1] J. C. Miller, Laser ablation, Springer Series in Material Science 28, Springer-Verlag, 1994.
- [2] Michael N. R. Ashfold, Frederik Claeyssens, Gareth M. Fuge and Simon J. Henley, Pulsed laser ablation and deposition of thin films, Chemical Society Reviews, 33.1, pp. 23-31, 2004.
- [3] Douglas B. Chrisey and Graham K. Hubler, Pulsed Laser Deposition of Thin Films, John Wiley & Son, 1994.
- [4] V. Ya. Bratus, S. M. Okulov, É. B. Kaganovich, I. M. Kizyak, and É. G. Manoliv, ESR Studies of Nanocrystalline Silicon Films Obtained by Pulsed Laser Ablation of Silicon Targets, Semiconductors, 38, pp. 621-625, 2004.
- [5] I. Umezu, S. Yamamoto and A. Sugimura, Emission induced by collision of two plumes during pulsed laser ablation, Applied Physics A, 101, pp. 133-136, 2010.
- [6] K. Kinoshita, I. Hiroshige, and K. Takeshi, Improved Surface Smoothness of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  Films and Related Multilayers by ArF Excimer Laser Deposition with Shadow Mask “Eclipse Method”, Japanese journal of applied physics, 33, L417, 1994.
- [7] A. Marcu, C. Grigoriu, W. Jiang, & K. Yatsui, Pulsed laser deposition of YBCO thin films in a shadow mask configuration, Thin Solid Films, 360, pp. 166-172, 2000.
- [8] I. Umezu, N. Sakamoto, H. Fukuoka, Y. Yokoyama, K. Nobuzawa and A. Sugimura, Effects of collision between two plumes on plume expansion dynamics during pulsed laser ablation in background gas, Applied Physics A, 110, pp. 629-632, 2012.
- [9] I. Umezu, S. Yamamoto and A. Sugimura, Emission induced by collision of two plumes during pulsed laser ablation, Applied Physics A, 101, pp. 133-136, 2010.