

レーザー誘起衝撃波を利用したナノ粒子処理技術の基礎研究

筑波大学 システム情報系

助教 嶋村 耕平

(平成 27 年度奨励研究助成 AF-2015224)

キーワード：レーザー誘起衝撃波、ナノ粒子処理技術、半導体プロセス

1. 研究の目的と背景

半導体表面やシリコン基盤などに付着するナノオーダーの金属等微小粒子を除去することは、ナノテクノロジーなど様々な産業界において重要な課題である。レーザーは物理的な形状の制約を受けず、単位面積当たりのエネルギー付与が極めて高い。そこで、レーザー誘起プラズマによって生成される衝撃波を利用したこれら粒子の除去技術が検討されている。しかし、衝撃波による粒子の着脱構造について、特に合力と回転モーメントがどのように働くかを理解するためには詳細な数値計算モデルが必要である。レーザープラズマによる金属粒子除去技術は、国内ではあまり例がなく欧米研究機関にて活発に進められている。米・クラーク大学の Cetinkaya らによる実験では、シリコンウェハの数ミリ上でレーザー誘起プラズマを生成させて、基盤上の微粒子を除去させることに成功している。これらは衝撃波の強さを決める雰囲気圧力やレーザー集光点の位置などに依存することが分かっている。

一方で粒子法によるプラズマ・衝撃波に関する研究は、JAXA や NASA などの宇宙工学分野で盛んに研究が進められている。特に、大気圏再突入時には機体周りの温度が数千度におよぶため、衝撃波とプラズマの干渉が機体保護には重要な課題である。豪・シドニー大の Bird や米・カリフォルニア大の Modest や JAXA 小澤らによって空気中の詳細反応コードが開発されており、本研究はこれら計算コードを参考に開発を進めている。

本研究では、レーザー誘起プラズマにより発生するプラズマとそれによって生成される衝撃波の干渉現象を模擬するため、モンテカルロ法をベースとした粒子数値コードの開発・検証を目的とする。

2. 計算方法

2.1 計算コードの概要

本研究では 1 次元解析であり第一図に概念図を示す。計算では計算領域を小さな細胞(セル)に分割し、中性粒子、電子、イオンの各粒子を流体としてではなく全て粒子として扱う fully kinetic PIC 法を用い、Boltzmann 方程式の計算には確率解法である DSMC 法を用いた。

時間刻みは粒子の移動と衝突を別々に捉えられる分離の原理が満たされるように、クーラン条件を満たし、かつ最も周波数の高い電子-中性粒子の弾性衝突が捉えられるように $t=10^{-13}$ s とした。

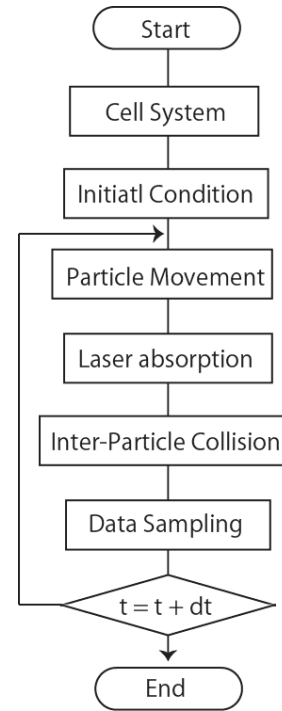


図 1 計算コード概要

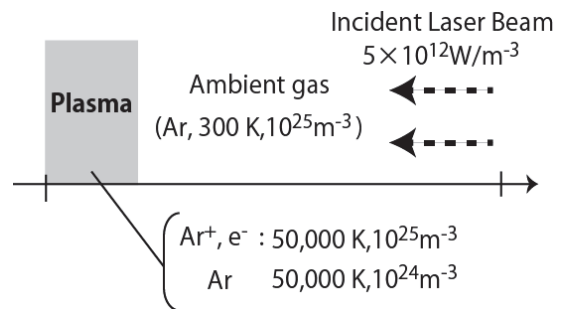


図 2 計算モデル

計算領域は一次元で Bird のサブセル法を用いており、5mm の幅の中でセル幅 1nm である。これはデバイ長よりも十分小さな値である。時間 $t=0$ では計算領域 $0 < x < 1.5 \text{ mm}$ に電子とイオンを含むプラズマが存在し、それ以外の領域には Ar 中性粒子が存在する。荷電粒子は空間的に一様でマクスウェル分布にあると仮定した。このため電子とイオンの初期数密度は $5 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ であり、全ての粒子の温度をプラズマ中では $kT_e = 5 \text{ eV}$ と与えた。 $t > 0$ で $x = +\infty$ から炭酸ガスレーザー ($\lambda = 10.6 \text{ } \mu\text{m}$, 50GW) を照射するとした。レーザーの出力や波長は実験と同じ値

を用いており、 $S=S_0\exp(-t/\tau)$ で与えられる。 $t>0$ で放電波面はレーザー照射方向に向かって伝播する。本研究で用いた炭酸ガスレーザーの波長では多光子吸収過程は起こらず、逆制動放射過程による自由電子の加速が起こる。プラズマ中でのレーザー吸収は Beer-Lambert 則を用いており、逆制動放射によるエネルギー吸収係数は電子温度と密度の関数として表すことが出来る。1) 密度や温度などのバルクなパラメータは NGP 法 を用いて求めている。放電現象を伴う粒子法における自由電子の運動は、運動方程式を時間発展させることで位置と速度を求める。高周波プラズマではポアソン方程式とマクスウェル方程式を連立させて、空間中の電界と電位を決定している。2) しかし、レーザーやミリ波などの電磁波では、マクスウェル方程式を時間発展させることに大変な計算コストがかかり、荷電粒子は流体として扱われている。3) 最近ではミリ波放電プラズマと強磁場との干渉によってフィラメント上のプラズマが発生する現象を電磁界は FDTD を解き、粒子はモンテカルロ法を用いて計算している。4) ただし計算コストが莫大であるため 1D3V であり、限定的な物理現象の解明に用いられている。

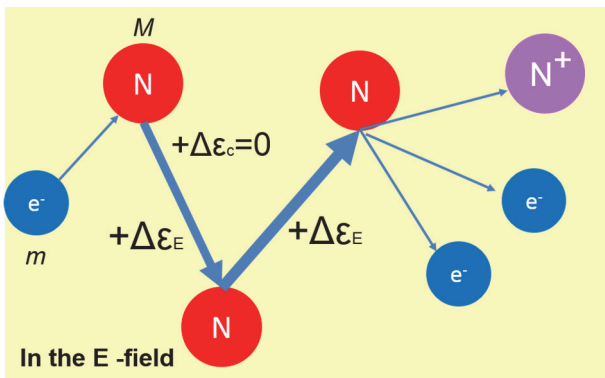


図3 電子生成と中性粒子との衝突

レーザー放電の場合は電子加速についてある程度簡単な仮定を置くことで、比較的計算コストを抑えることができる。まずレーザー光子の1つのエネルギーが電離エネルギーに対して十分小さいため、マイクロ波中の電子運動の扱いと同様に古典力学で扱う。電子のエネルギーは数 eV 程度であるため、磁界の効果は電界に比べて小さく電界の効果のみを考える。電子と重粒子の衝突周波数に比べて、2桁程度レーザー周波数が十分高いことから、電子は重粒子との衝突後から次の衝突の間に、振動によるエネルギー付与を受けていると考えられる。また電子と重粒子の質量差を考えれば、衝突による電子のエネルギー変化はほぼ無視できるほど小さい。したがって、衝突そのものによるエネルギー変化はなく、衝突の度に電子の並進方向と電界の相対的な角度が変化するため、電子には振動によるエネルギーの増減がある。電子がレーザー電界によって加速された分のエネルギーは、運動方程式からあるいは電子のボルツマン方程式から、電界をレーザー強度の関数に置き換え

て以下のように与えられる。

$$\Delta\epsilon = 6.34 \cdot 10^{13} \frac{S}{\omega^2 + \nu_c^2}$$

ここで S はレーザー強度である。粒子衝突のルーティンの中で、電子と重粒子の弾性衝突が起こった際に電子にエネルギーを付与する形で電子の加速を行った。5) 本研究では、南部らの最大衝突法を用いて衝突判定を行う。電子と中性粒子の衝突におけるタイムステップは $dt < 1/N$ (N =衝突の種類, 27) としなければならない。Ar, Ar+, Ar*(準安定準位), e- の4つの粒子を考慮して、準安定準位は電子との衝突のみを考慮し、8種類の衝突を考える。励起準位において準安定準位は寿命が 1 s 程度と計算時間に比べて十分長いので、累積電離を考慮した。他の励起準位は衝突後、次の衝突までに脱励起すると仮定した。分光実験からアルゴンの二価電離はほとんど確認できなかったため、今回は考慮していない。6) 衝突断面積は南らの電子-アルゴン衝突断面積を利用している。7) 粒子の弾性衝突と非弾性衝突、生成消滅過程には、衝突電離、累積電離、放射再結合、三体再結合を考慮している。8) 9) 10) 三体結合は通常断面積としてではなく、反応レート k として表せるが、相対速度と衝突断面積の積 $k = g\sigma$ として取り扱った。11) Ar-Ar+の衝突と荷電粒子同士のクーロン衝突には南部の理論を利用した。12) 13) 乱数発生法には Mersenne Twister 乱数を衝突判定に用いた。14) この乱数の発生周期は 219937-1 回 (約 106000 回) で、本計算のトータル時間での乱数発生回数 (約 1010 回) より十分に長いので、乱数発生周期は計算結果に影響を及ぼさない。

3. 計算結果

図4に数値実験から得られた電子と中性粒子の数密度分布の時間履歴を示す。衝撃波がレーザーの照射してくる x 方向に向かって伝播しているのが再現できている。また電子密度分布のピークは、計算開始直後に最も高く、LSD 波が伝播するにしたがってピーク値が低下している。衝撃波の背後を荷電粒子が追従しており、時間発展に伴い電子密度分布のピークが衝撃波面から離れる現象は、LSD 終了時に見られる傾向である。15) 16)

レーザー照射から 1.0 us までの時間で数値実験とシャドウグラフ法による結果を比較した。図5に数値実験と可視化実験による LSD 波面の時間履歴を示す。計算結果と可視化実験はそれぞれ実線と点で示しており、概ね両者が一致しているのが分かる。

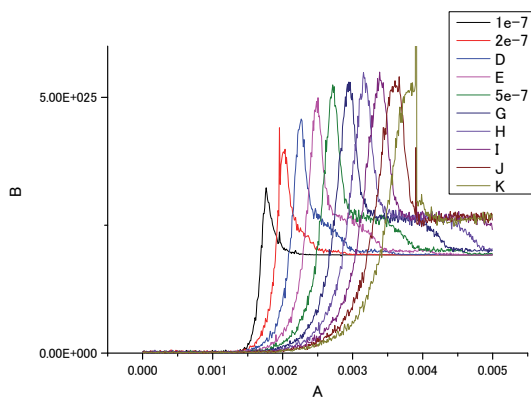
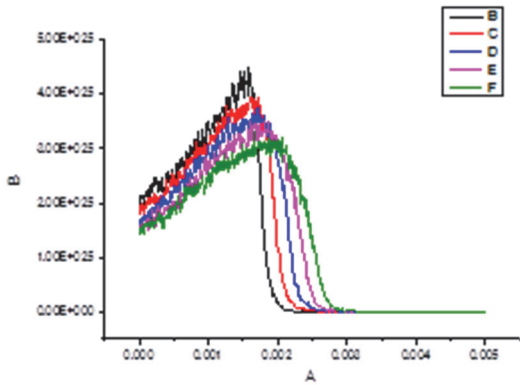


図 4 電子密度の空間分布時間履歴

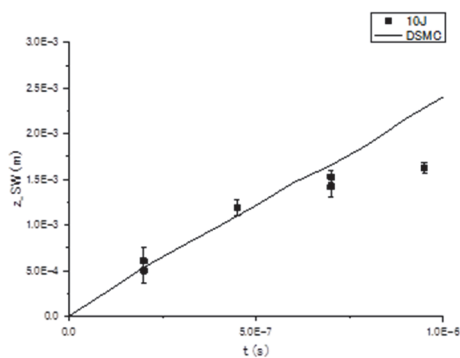


図 5 衝撃波面時間履歴と実験結果との比較

4. まとめ

今回の独自のレーザー吸収法を用いた計算コード開発により従来粒子法での計算負荷の高さにより困難であった大気圧レーザープラズマと衝撃波の再現に成功した。現状一次元であるが、今後は二次元のモードに拡張し、ナノ粒子とターゲット物質、衝撃波との干渉現象をシミュレーションで再現できる技術を確認する。このような非接触によるレーザーを用いたナノ粒子を除去する技術は国内において研究例が少なく、また実用には分子レベルでの現象解明が必要である。その点で、航空宇宙工学分野で開発された粒子法コードにより分子レベルでの現象解明が期待できる。本研究は、電磁波と高速流体を伴う現象に広く活用でき、レーザー加工技術やレーザー誘雷などへの応用が期待できる。

謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団からの奨励研究助成 (AF-2015224) を受けて実施したことを付記すると共に、記して深甚なる謝意を表す。

参考文献

- 1) T. W. Johnston, and J. M. Dawson, "CORRECT VALUES FOR HIGH-FREQUENCY POWER ABSORPTION BY INVERSE BREMSSTRAHLUNG IN PLASMAS," *Physics of Fluids*, vol. 16, no. 5, pp. 722-722, 1973.
- 2) K. Denpoh, and K. Nanbu, "Self-consistent particle simulation of radio frequency CF4 discharge: Effect of gas pressure," *Japanese Journal of Applied Physics Part 1-Regular Papers Short Notes & Review Papers*, vol. 39, no. 5A, pp. 2804-2808, May, 2000.
- 3) B. Chaudhury, J.-P. Boeuf, and G. Q. Zhu, "Pattern formation and propagation during microwave breakdown," *Physics of Plasmas*, vol. 17, no. 12, Dec, 2010.
- 4) M. Takahashi, and N. Ohnishi, "Computational studies for plasma filamentation by magnetic field in atmospheric microwave discharge," *Applied Physics Letters*, vol. 105, no. 22, pp. 5, Dec, 2014.
- 5) K. Nanbu, "SIMPLE METHOD TO DETERMINE COLLISIONAL EVENT IN MONTE-CARLO SIMULATION OF ELECTRON-MOLECULE COLLISION," *Japanese Journal of Applied Physics Part 1-Regular Papers Short Notes & Review Papers*, vol. 33, no. 8, pp. 4752-4753, Aug, 1994.
- 6) K. Shimamura, K. Komurasaki, J. A. Ofosu, and H. Koizumi, "Precursor Ionization and Propagation Velocity of a Laser-Absorption Wave in 1.053 and 10.6- μ m Wavelengths Laser Radiation," *Ieee Transactions on Plasma Science*, vol. 42, no. 10, pp. 3121-3128, Oct, 2014.
- 7) M. Hayashi, 2003 *Bibliography of Electron and Photon Cross sections with Atoms and Molecules Published in the*

20th Century — Argon, NIFS-DATA-72, Toki, Japan

- 8) J. Vlcek, "A COLLISIONAL - RADIATIVE MODEL APPLICABLE TO ARGON DISCHARGES OVER A WIDE-RANGE OF CONDITIONS .1. FORMULATION AND BASIC DATA," *Journal of Physics D-Applied Physics*, vol. 22, no. 5, pp. 623-631, May 14, 1989.
- 9) D. J. Kennedy, and S. T. Manson, "PHOTOIONIZATION OF NOBLE-GASES - CROSS-SECTIONS AND ANGULAR-DISTRIBUTIONS," *Physical Review A*, vol. 5, no. 1, pp. 227-&, 1972.
- 10) T. G. Owano, C. H. Kruger, and R. A. Beddini, "ELECTRON-ION 3-BODY RECOMBINATION COEFFICIENT OF ARGON," *Aiaa Journal*, vol. 31, no. 1, pp. 75-82, Jan, 1993.
- 11) K. Nanbu, and K. Denpoh, "Monte Carlo collision simulation of positive-negative ion recombination for a given rate constant," *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 67, no. 4, pp. 1288-1290, Apr, 1998.
- 12) K. Nanbu, and Y. Kitatani, "AN ION-NEUTRAL SPECIES COLLISION MODEL FOR PARTICLE SIMULATION OF GLOW-DISCHARGE," *Journal of Physics D-Applied Physics*, vol. 28, no. 2, pp. 324-330, Feb, 1995.
- 13) K. Nanbu, "Theory of cumulative small-angle collisions in plasmas," *Physical Review E*, vol. 55, no. 4, pp. 4642-4652, Apr, 1997.
- 14) M. Matsumoto, and A. Nishimura, "Dynamic creation of pseudorandom number generators," *Monte Carlo and Quasi-Monte Carlo Methods 1998*, pp. 56-69, 2000.
- 15) K. Shimamura, J. A. Ofosu, K. Komurasaki, and H. Koizumi, "Predicting propagation limits of laser-supported detonation by Hugoniot analysis," *apanese Journal of Applied Physics*, vol. 54, no. 1, pp. 5, Jan 2015.
- 16) K. Shimamura, K. Hatai, K. Kawamura, A. Fukui, A. Fukuda, B. Wang, T. Yamaguchi, K. Komurasaki, and Y. Arakawa, "Internal structure of laser supported detonation waves by two-wavelength Mach-Zehnder interferometer," *Journal of Applied Physics*, vol. 109, no. 8, 2011.