

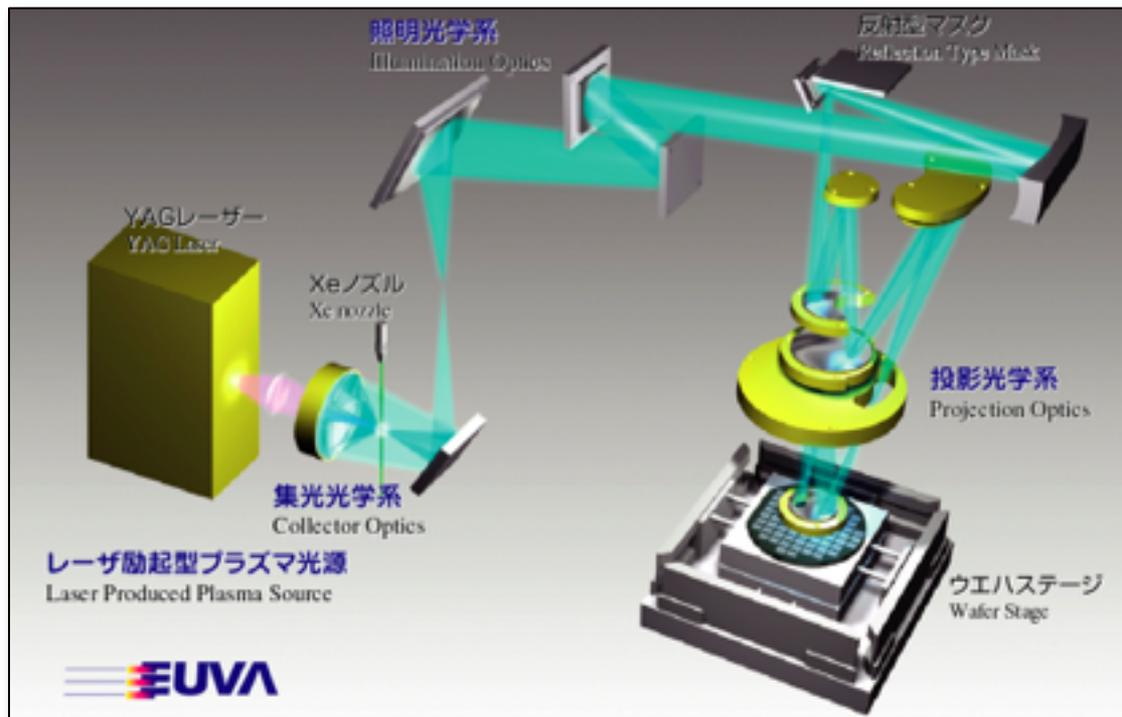
レーザーアブレーションによる 粒子発生 of 物理・数理モデル

量研機構 佐々木明

*本研究は、科研費挑戦的萌芽研究(26610195)、NEDOの支援を受けて行われた。

EUV光源の研究

- ・半導体リソグラフィの微細化のため、レーザープラズマを用いた、波長13.5nmのEUV光源の開発が進められている。
- ・高出力化のために、シミュレーションによるプラズマの高度な制御が重要になっている。



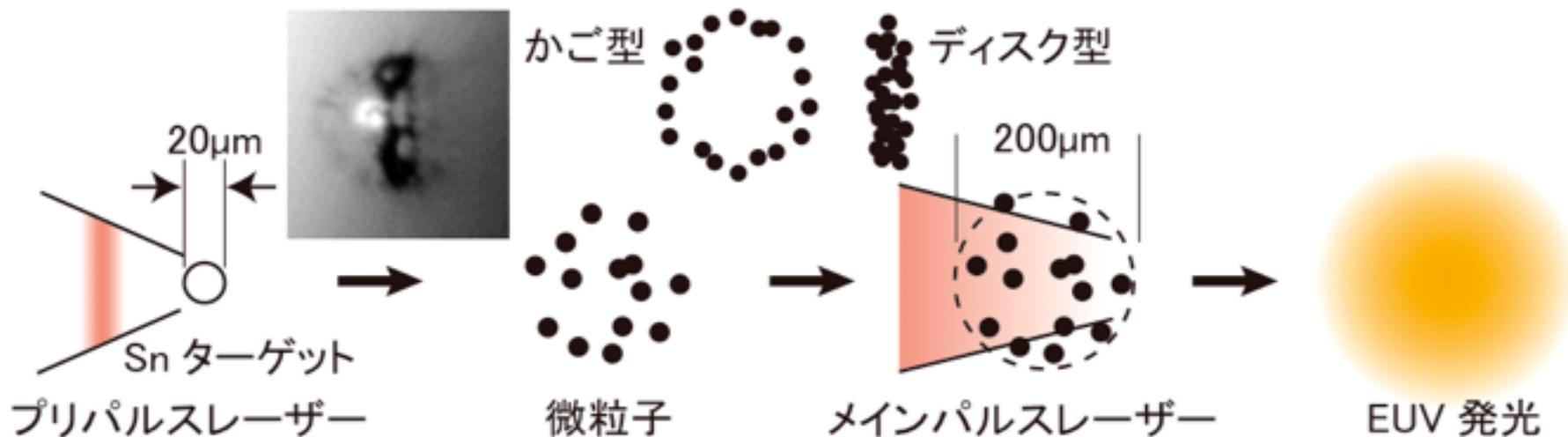
スズ液滴ターゲット

出力 $\geq 200\text{W}$

変換効率 $\geq 5\%$ ₂

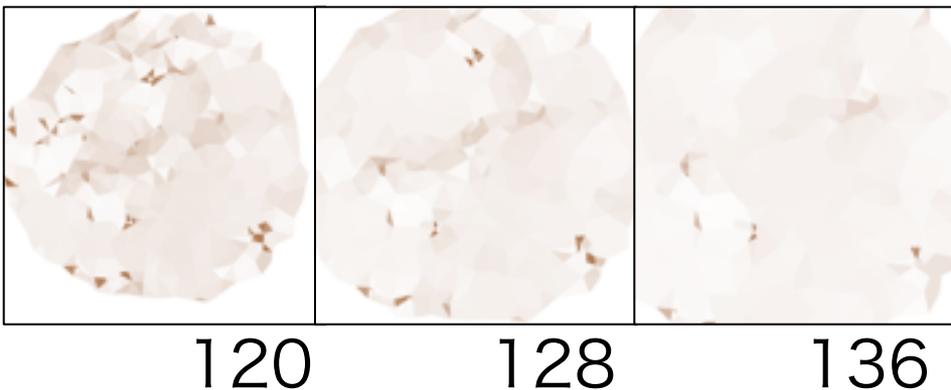
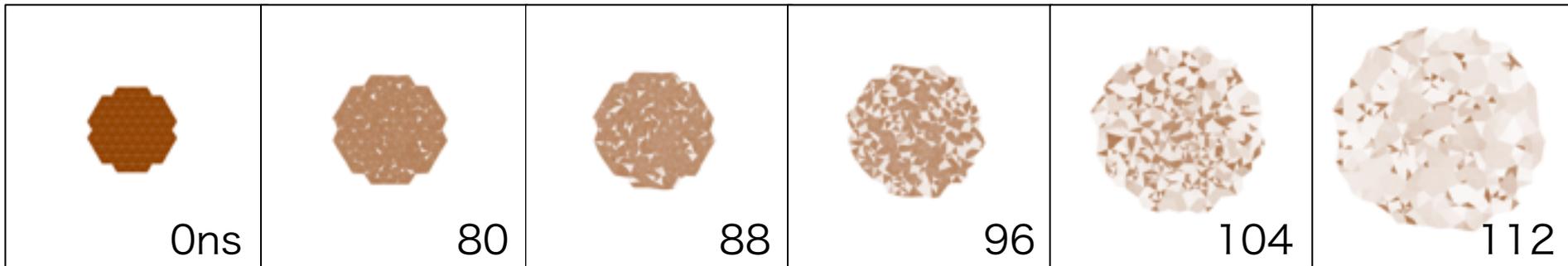
EUV光源プラズマの性質

- ・プリパルスレーザー照射によって、スズ液滴を微粒子に分散し、それをメインパルスレーザーで加熱することで、均一な低密度プラズマが生成すると考えられている。
- ・微粒子のサイズや空間分布は、条件によって異なり、シミュレーションで微粒子の特性を求めることが重要である。



シミュレーションによるスズ液滴の膨張のイメージ

- スズ液滴を加熱すると、はじめに内部に気泡が発生、それが成長して粒子に分散する過程を経て気相に転移する。



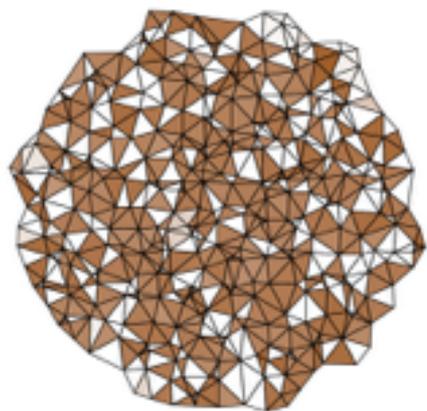
液相と気相が混在する状態の物性、液相、気相が支配的となる状態間の転移が流体の性質に与える影響を評価する必要がある。

研究の動機

- ・ 粒子の分布（個々の粒子の大きさの分布、全体の広がりなど）、粒子が生成する条件を明らかにする。
- ・ 粒子が存在する媒質の物性（流体としての性質や輸送係数）を明らかにする。
- ・ EUV光源の特性の評価のために、レーザーの吸収のモデルを構築し、吸収率、生成するプラズマの温度、密度を求める。レーザーが効率的に吸収される条件を明らかにする。
- ・ 輻射流体シミュレーションと統合する。
- ・ デブリの発生を再現する。
- ・ 高強度レーザープラズマ相互作用実験でのプリパルスの効果を明らかにする。

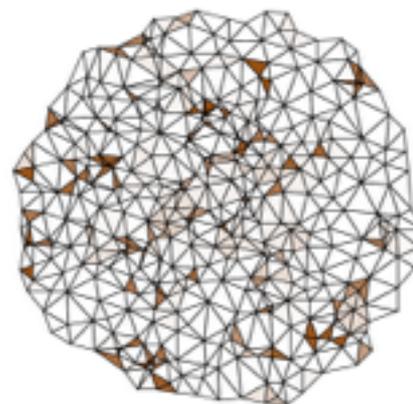
液相と気相のスズの分布による物性の変化

液相中に気泡が存在する



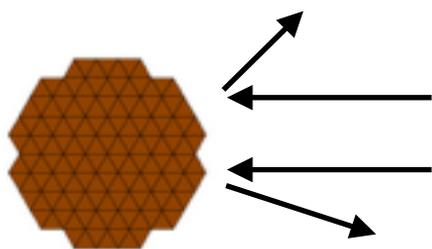
気泡流
非圧縮性
電気伝導性

気相中に粒子が存在する



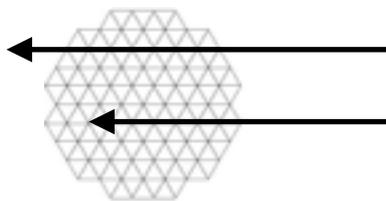
噴霧流
圧縮性
絶縁性

金属液滴



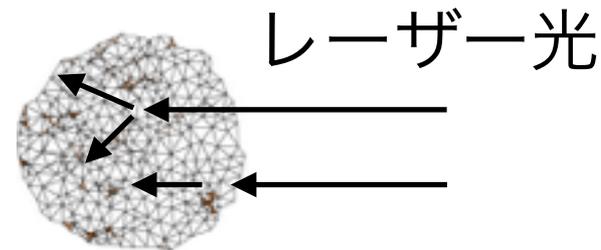
表面で反射
吸収率低い

蒸気



透過
吸収率低い

微粒子の雲



散乱を繰り返す
吸収率高い

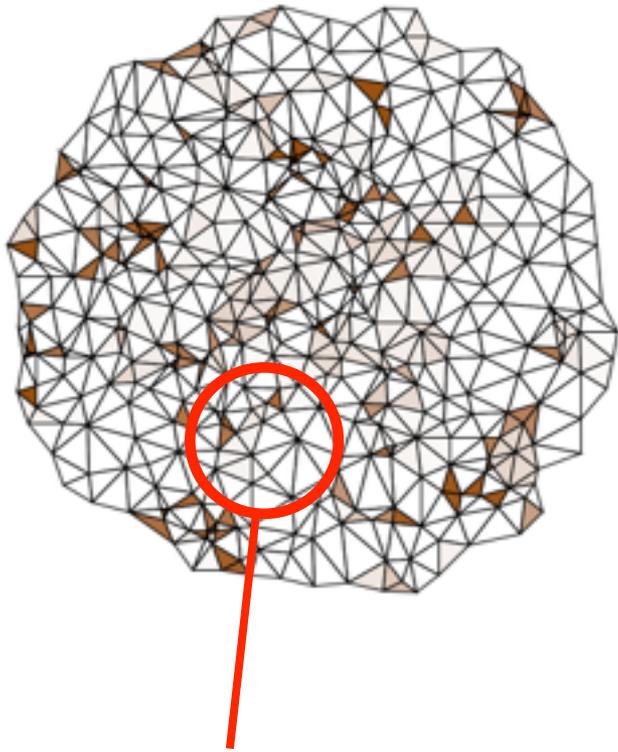
レーザーアブレーションの物理モデル

- ・従来のレーザープラズマのシミュレーションは、均一なプラズマが生成することを想定している。
- ・実験では、しばしば粒子発生が認められる。粒子発生が起こることを示す物理モデルが存在するはずと考えた。
- ・ファンデルワールス状態方程式は、熱平衡状態で、相分離が起こることを示す。
- ・相分離を表現できる数理モデルを考えた。

レーザーアブレーションの数理モデル

- ・ 分子動力学シミュレーションは、相転移の素過程を計算できるが、扱える時間、空間スケールが限られる。
- ・ 粒子手法（SPH、MPS、DEM）は、粒子の占める体積が分からないので、状態方程式を評価することができず、温度一定、密度一定などの制約が課される。
- ・ 流体手法でも、システムサイズの大きな変化、物質の分布の偏り（粒子や気泡）を捕捉する必要がある。
- ・ メッシュの動的再配置を行うラグランジ流体シミュレーションを用いると、粒子や気泡のダイナミクスを計算できると考えた。

レーザーアブレーションのマクロモデル



流体の各々の場所での気液の分布は、熱平衡状態における相分布に従うとする。

- ・ 相転移現象は、詳細計算（分子動力学）で調べられているが、計算量が過大で、実験と比較するためには流体モデルを用いる必要がある。

仮定

粒子の分布はスケールフリー性を持ち、任意の時間・空間分解能でモデル化できる。

既存の相転移のモデルを運動する流体に当てはめることができる。

流体シミュレーションの基本方程式

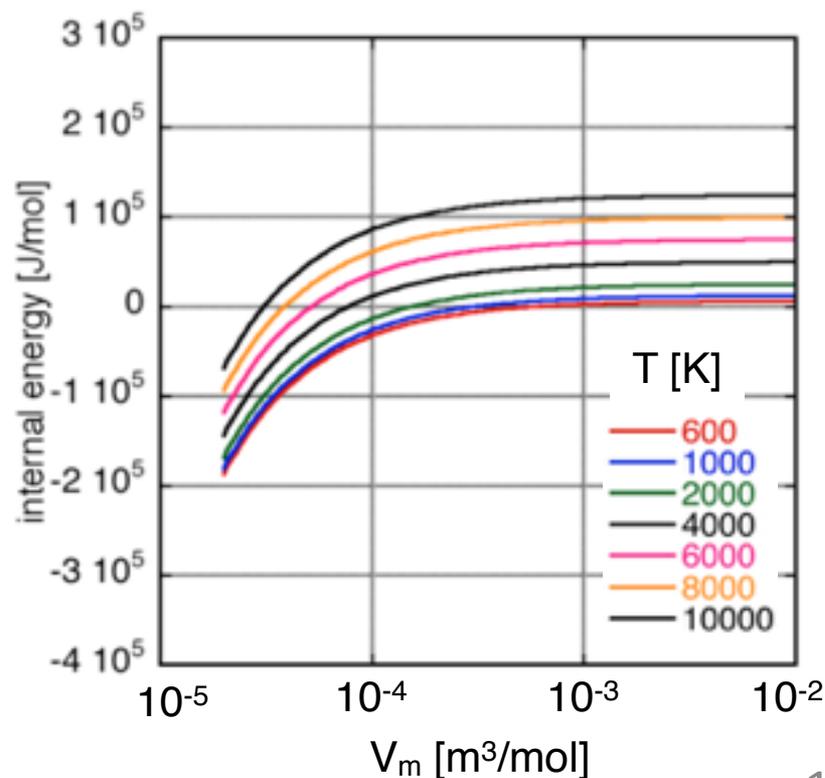
$$\rho \frac{d\mathbf{u}}{dt} = -\nabla P \quad \text{運動方程式}$$

$$dU_m = dQ_m - PdV_m \quad \text{エネルギー方程式}$$

$$P = \frac{RT}{V_m - b} - \frac{a}{V_m^2} \quad \text{ファンデルワールス状態方程式}$$

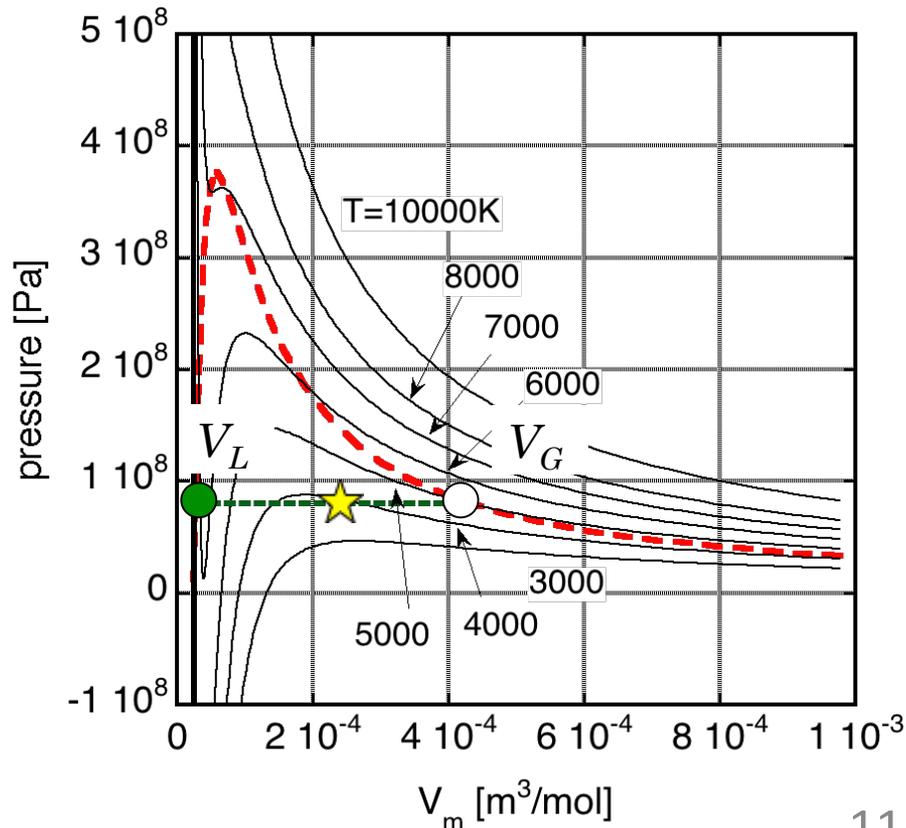
$$U_m = A_m + TS_m = \frac{3}{2}RT - \frac{a}{V_m}$$

- ・ 圧力、内部エネルギーが解析的に与えられる。
- ・ 気相、液相に対応する状態を与え、その間の相転移の条件を求めることができる。



相転移モデル

- ・ 状態方程式が与えられると、マクスウエルの規則により、*圧縮、膨張した時に相転移が起こることが示され、圧力の辿る軌跡が求まる（*各時刻で熱平衡状態を仮定）。
- ・ 転移の過程で、媒質は一様な状態にはならず、一定の割合を持つ気相と液相の部分に分離する。
- ・ ラグランジ流体シミュレーションのセルの分割によって、正しい気液の比を実現することを考えた。



流体シミュレーションの数値計算手法

2次元ラグランジ流体シミュレーション

- ・ 流体とともに動く三角形格子、有限体積法
- ・ 保存形、一次精度
- ・ クランクニコルソン陰解法

タイムスプリッティング

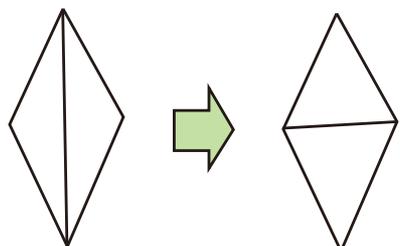
- ・ ひとつのタイムステップの中で、流体運動の計算と、求められた温度、密度に対する相転移の計算を交互に行う。

セルの動的再配置

- ・ セルの分割、融合処理で格子の破綻を回避するとともに相転移を扱う。

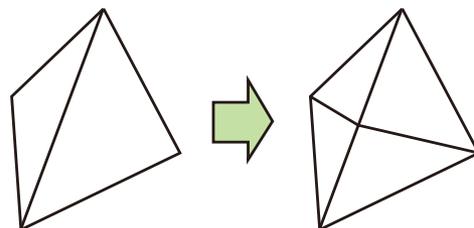
セルの動的再配置

セルの歪みの大きさを数値的に評価し、質量とエネルギーを保存するように、セルを分割、融合する。



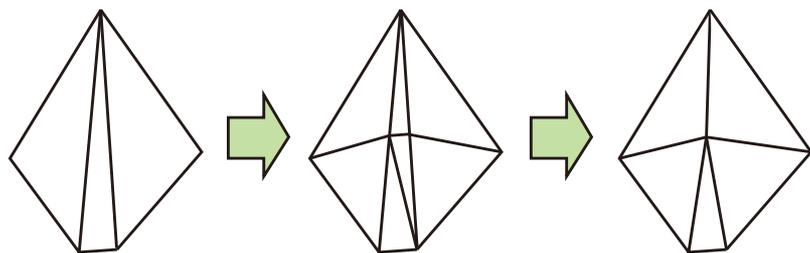
再接続

セルの接続方向を変える



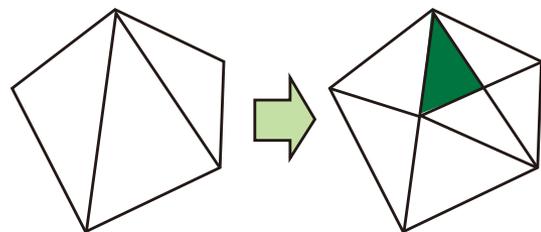
分割

2つのセルを4つに分割



切断と融合

細長いセルを中間で分割したのち接近した格子点を融合

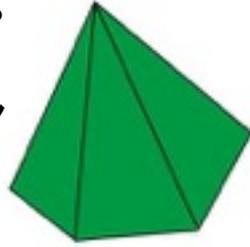


相転移

ひとつのセルを液相のセルと気相のセルに分割し、全体で正しい気液の比になるようにする。

相転移の計算方法

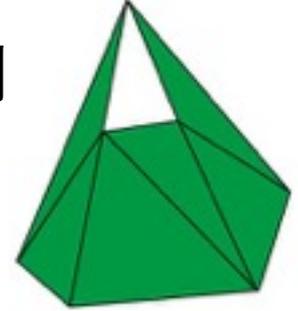
タイムスプリッティングの処理



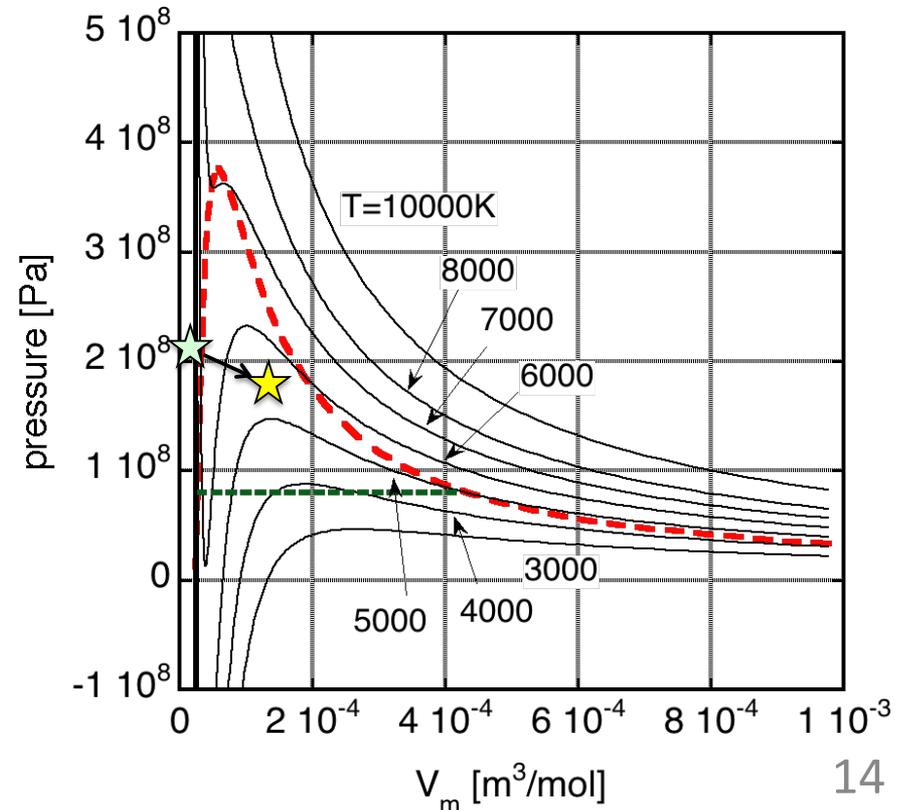
流体運動
熱や仕事



相転移
セル分割

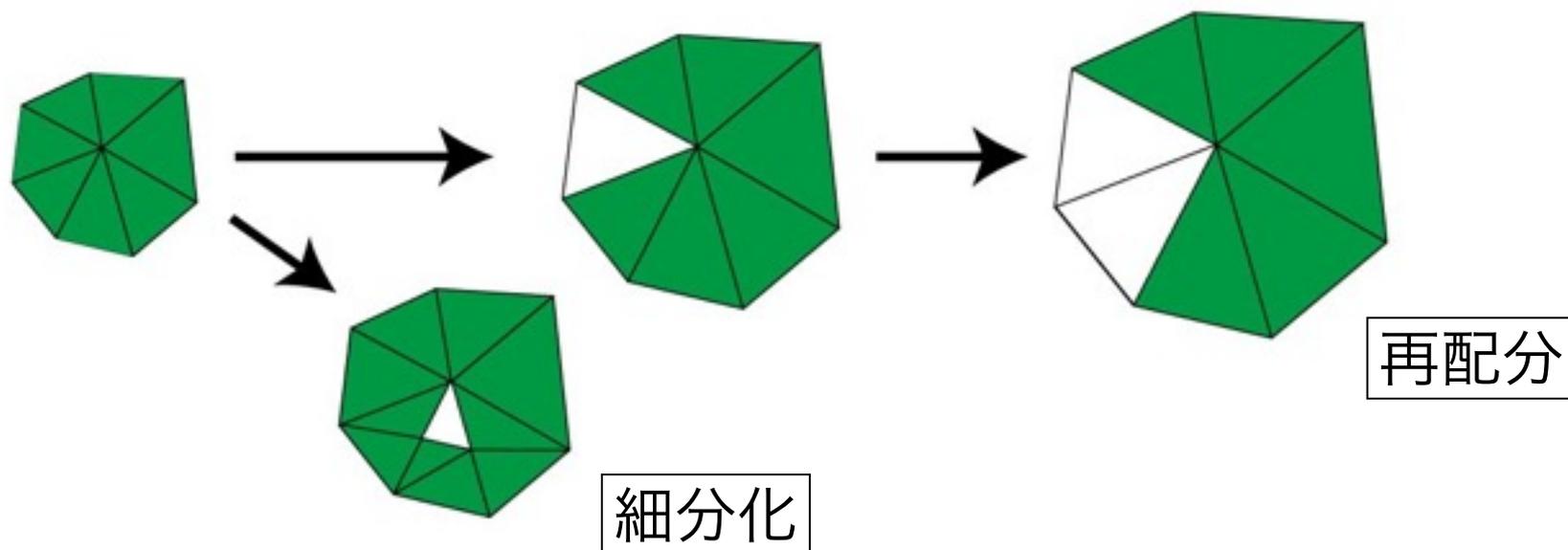


- ・ 流体運動の計算後、断熱条件で相転移を考える。
- ・ 内部エネルギーと体積の保存を考え、転移後の温度、気相、液相の比を求める。
- ・ 潜熱を考慮する。



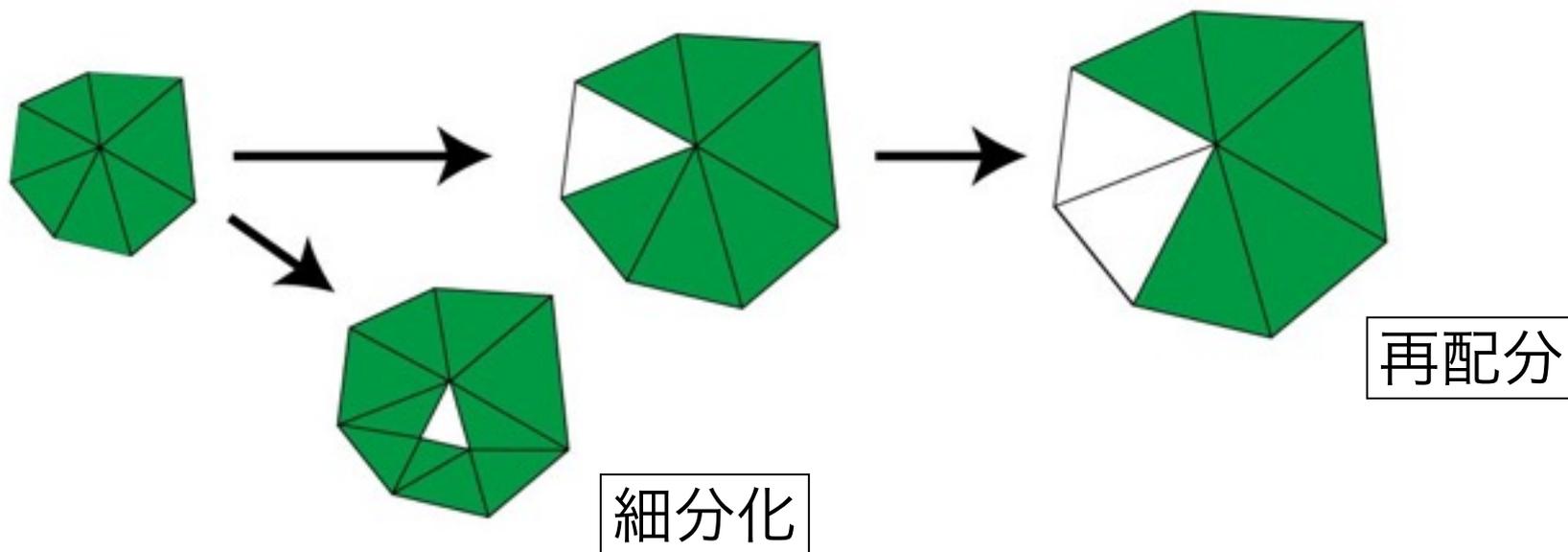
再配分と細分化（追加の相転移の処理）

- セルの分割を繰り返すと、セルの数が急激に増加して計算困難となる。
- 格子点を共有するセルの集合について、気液の割合が正しくなるように質量、内部エネルギーを再配分する。
- 気液のセルの数を増減して、蒸発、凝縮の際の気泡、粒子の成長を表現する。



再配分と細分化（追加の相転移の処理）（続き）

- 相転移を考える時は、複数のセルをスーパーセルとしてひとつのセルであるように考える。
- スーパーセルの中の質量やエネルギーの分布は任意に変えて良いとする（個々の気泡や粒子の形状は変化する）。
- 細分化では、ひとつのセルに質量や空隙を集めた上で、その内部を分割して粒子や気泡を生成する。



表面張力の導入

- ・ セルの境界が気液の界面に対応するので、流体運動に対する表面張力の効果を直接考慮できる。
- ・ 各格子点の間には $\gamma (1-T/T_c)$ の表面張力が作用する。
(表面があれば力が作用し、曲率を考える必要はない)
- ・ 表面エネルギーを評価できるが、その値はほとんどの場合小さい ($r \geq 1 \mu\text{m}$)。粒子や気泡の発生は、物理的な核生成条件よりも計算上の制約で決まる。
(気泡、粒子の体積の割合がセルの0.16%以上)

モデルの検証

- ・ 理論との比較。

基本的な保存関係の検証のみ可能。

- ・ 実験との比較。

レーザーアブレーションの実験を検討中。

比較のためにレーザープラズマの完全なモデルが必要。

- ・ シミュレーションとの比較

簡単な問題について、通常の1次元モデルと比較する。

状態方程式の効果、構造形成の効果を検証する。

テスト計算の条件

- ・ スズの円柱を均一に加熱する条件で、温度、密度の時間発展を計算した。

初期条件

直径 $20\mu\text{m}$

密度 $5.5 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$

温度 $2,000 \text{ K}$

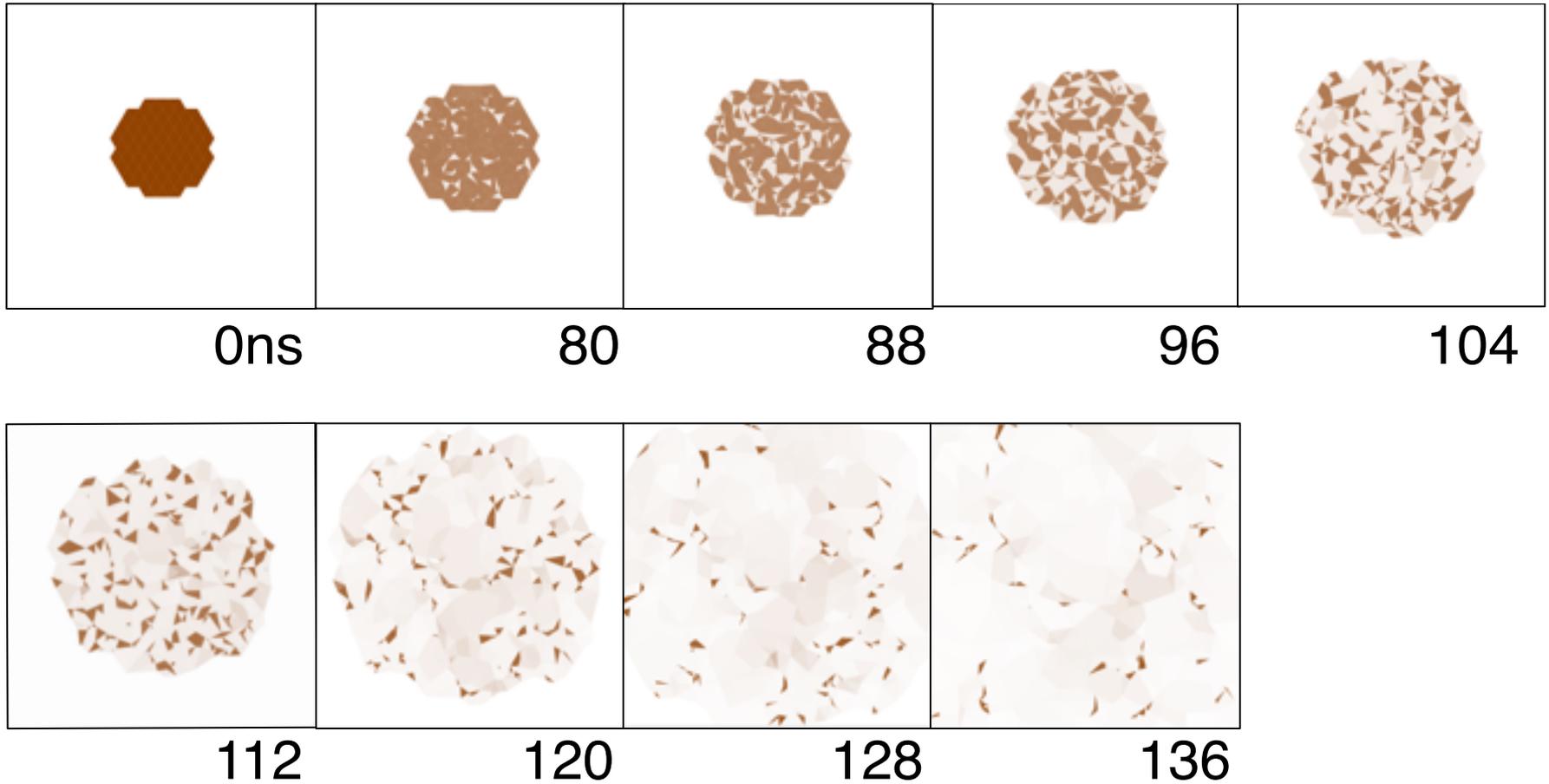
加熱の強さ $1.5 \times 10^{12} \text{ W/mol}$ ($1,000\text{K}/10\text{ns}$)

媒質全体を均一に加熱すると考えた。

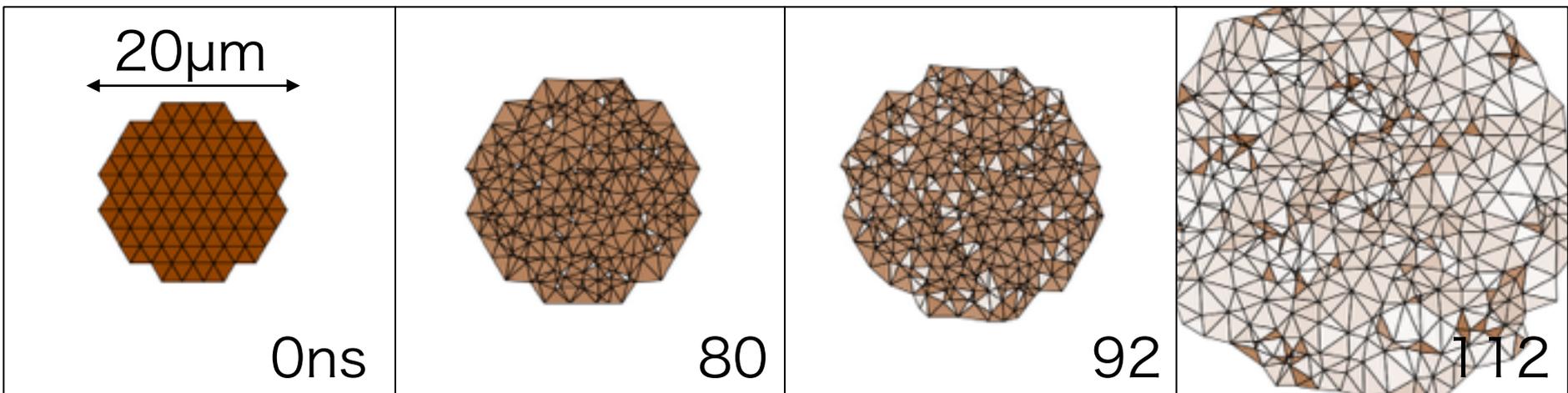
- ・ 最終的に全体が気化するという答えが分かっている問題。

スズ液滴の膨張（細分化と表面張力を追加）

- 媒質が気体転移することで急激な膨張が始まる。



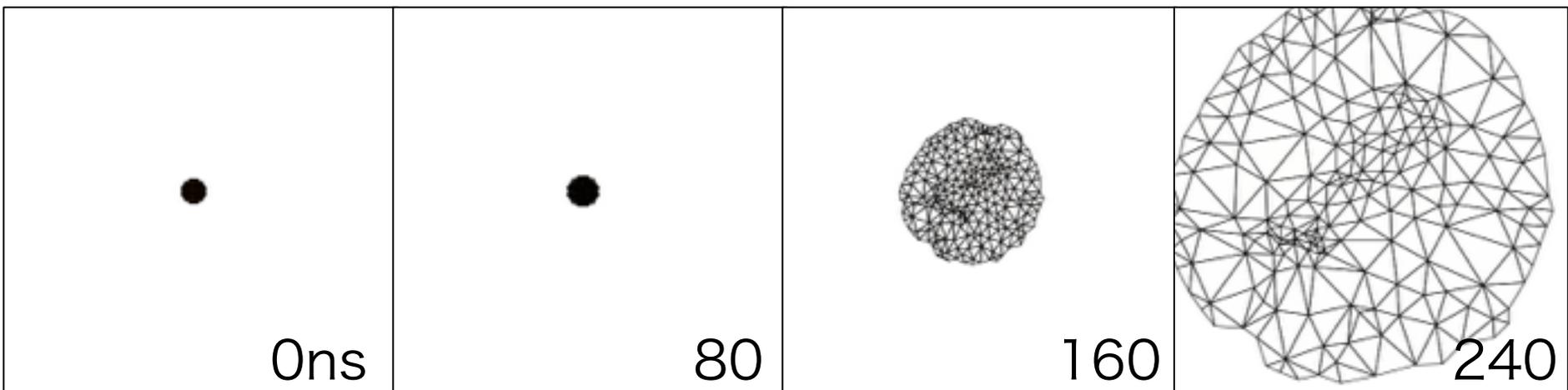
加熱されたスズ液滴の膨張（表面張力導入前）



初期の状態

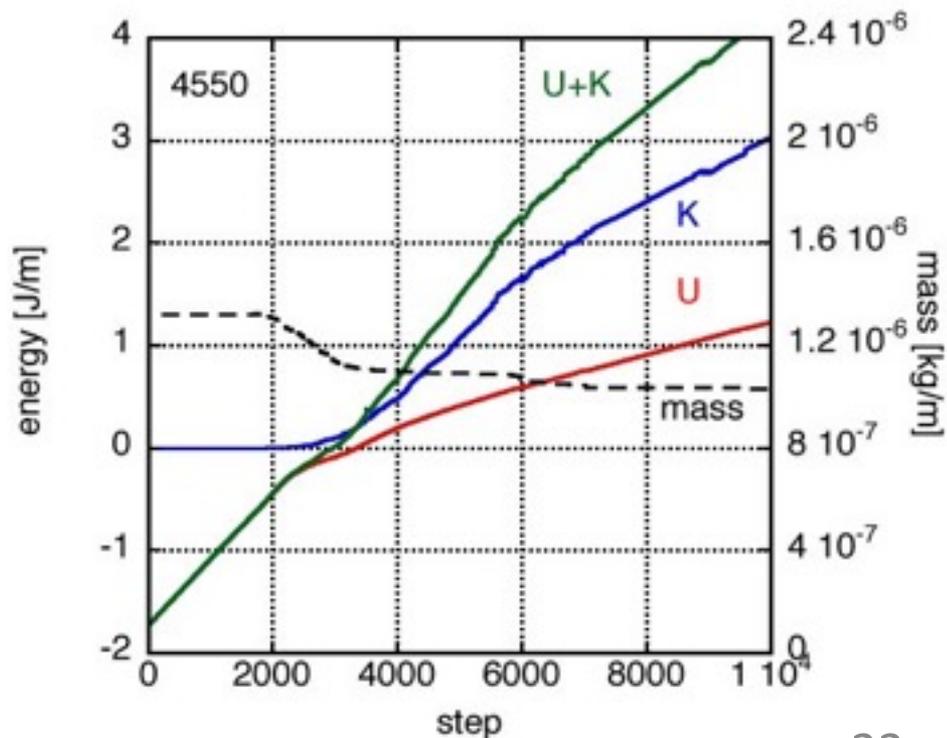
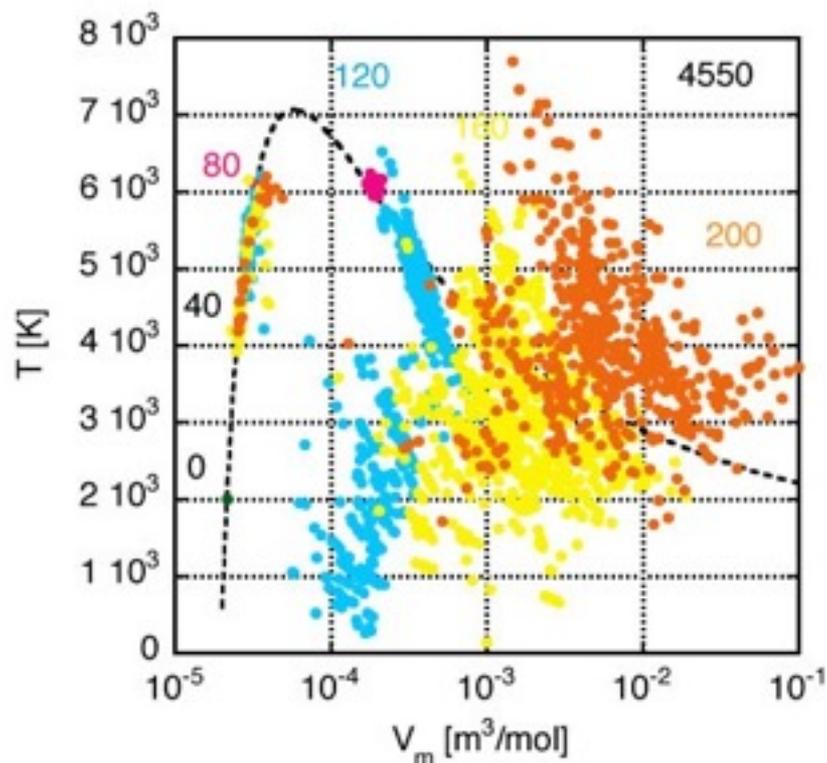
気泡の生成

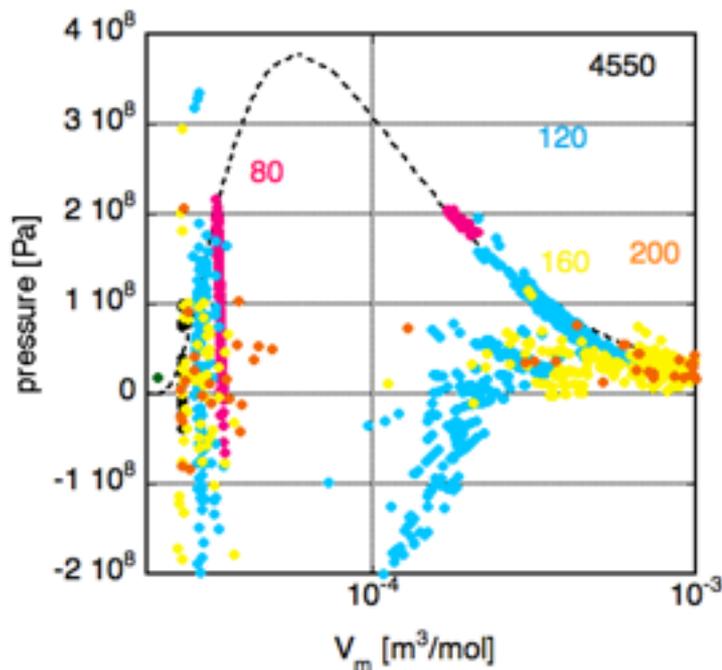
分散する粒子



結果

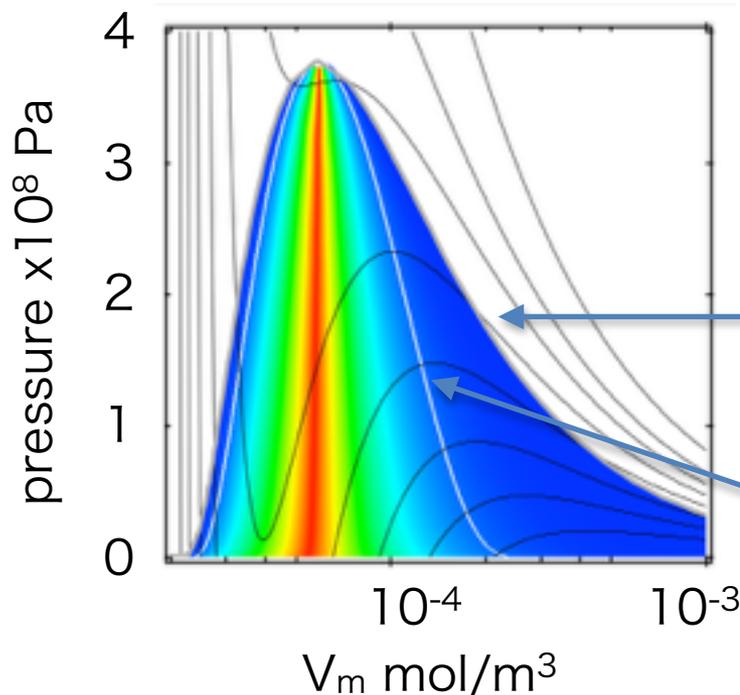
- ・ スズ円柱は気液相転移を経て膨張する。
- ・ 非平衡な過熱状態を経て気化する。
- ・ エネルギー、質量の保存に10-20%の誤差がある。





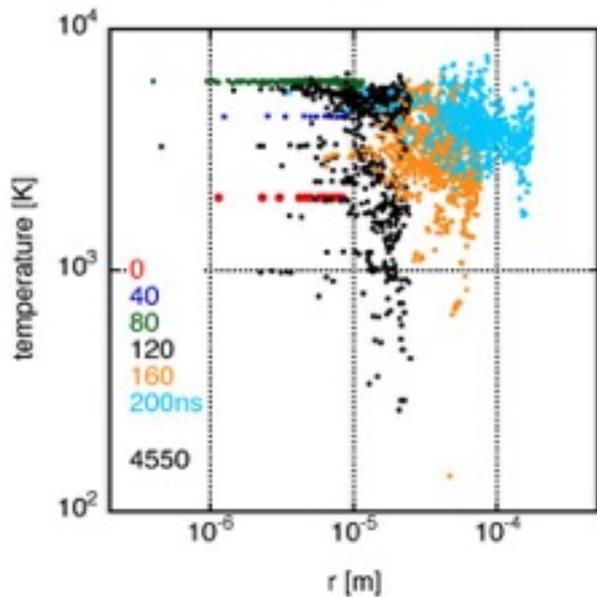
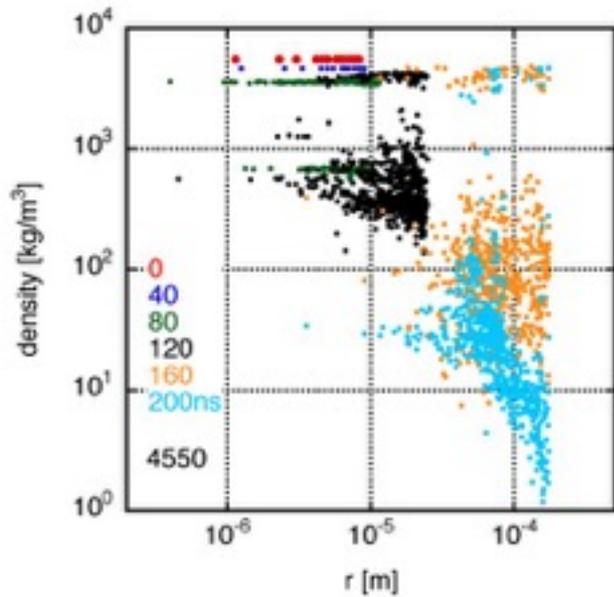
- ・ 共存領域に入ると媒質は気相と液相に分離する。
- ・ 粒子の体積が小さすぎると分離できない。
- ・ 相転移できるセルの質量に下限が設定されている。

→モデルの妥当性の検証、改良が必要である。

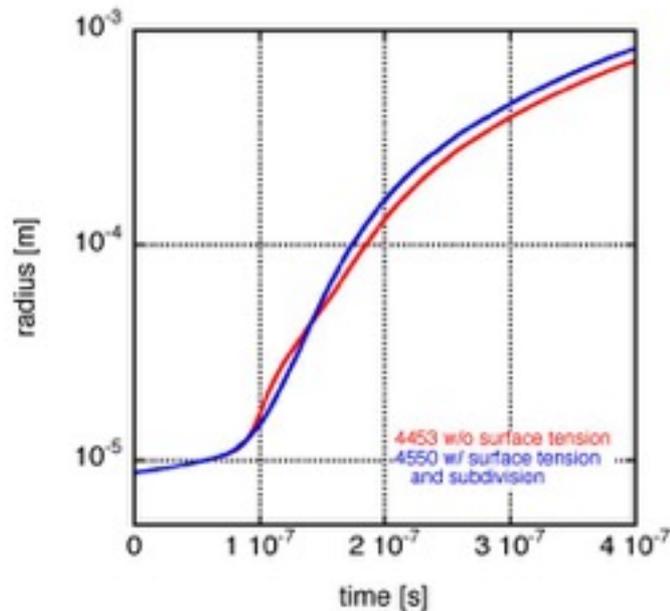


カラーが共存領域

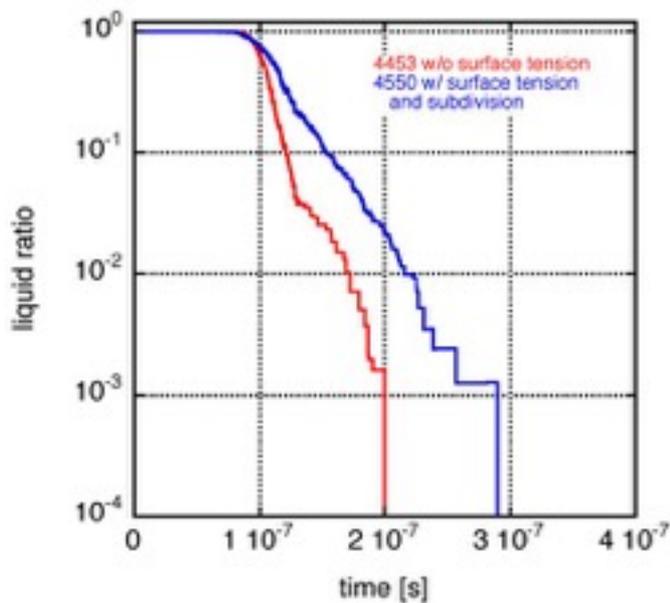
粒子、気泡の体積比4%



- ・ ラグランジセルの密度と温度の分布。
- ・ 温度にばらつきがある。
- ・ 気液相転移が起こると潜熱が放出され、その領域の温度は周囲のセルと異なることになる。



- 表面張力を考慮しても膨張の特性はほぼ同じ。
- 液相の割合は指数的に減少。
- 表面張力があるとより多くの粒子が残留する。

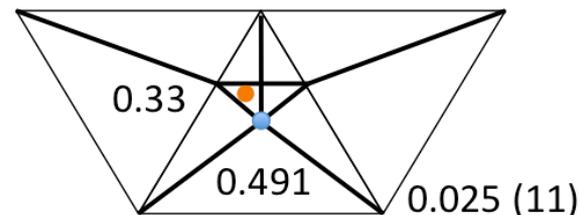
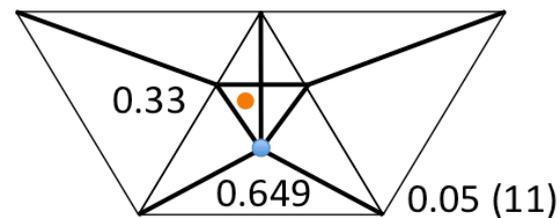
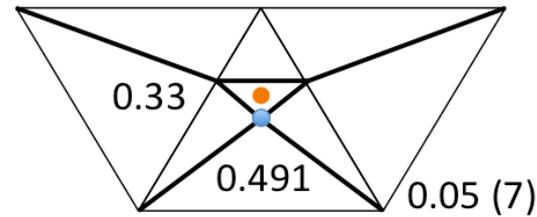
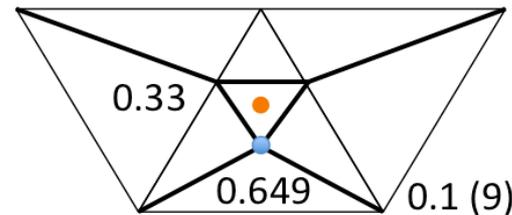
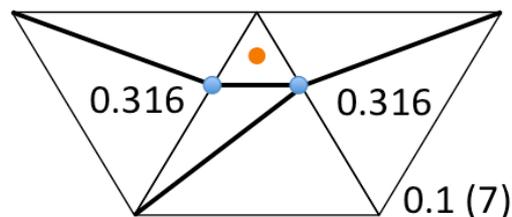
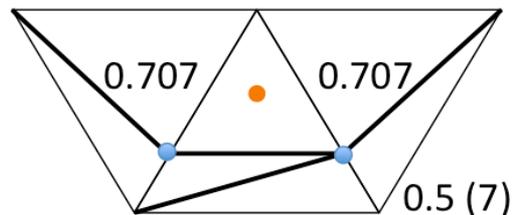


まとめと今後の課題

- ・メッシュの動的な再配置を行う2次元ラグランジ流体シミュレーションコードを開発した。
- ・スズ液滴を加熱し、最初に気泡が生成し、粒子へと分解し、最後は蒸発する条件で、テスト計算を行った。
- ・表面張力を導入した。
- ・セルの細分化を導入した。
- ・適当な条件において、理論的、実験的な検証を行う。
- ・レーザープラズマの物理（特にレーザーの吸収）を取り入れ、EUV光源の解析に応用する。
- ・セルの分割、融合における確率的な物理量の分配、質量、エネルギーの保存の改善のための最適化を行う。

セルの分割方法の改良

- ルールベースで、
気液の比が4-96%
の範囲で分割する。
(セルの歪みの低
減を重視)



- 「分割後の格子点の位置、セルに
分配される質量、エネルギーを最
適化する」ことで、表面張力を考
慮し、エネルギーの保存を改善で
きると考えられる。