

水中における物体面の
超高速パルス加熱に関する研究

上野 一郎

目次

1. 序論	4
1.1 本研究の背景	4
1.2 高速伝熱に関する従来の研究	6
1.2.1 工学的領域(熱工学)における高速加熱に関する研究	6
1.2.2 理学的領域(固体物理)における高速加熱に関する研究	7
1.2.3 従来の工学的及び理学的領域の狭間における高速伝熱に関する研究	8
1.3 本研究の目的及び概要	11
2. 実験	12
2.1 実験概観	12
2.2 液体金属加熱実験	15
2.2.1 実験条件	15
2.2.2 実験結果	15
2.2.3 考察	17
2.3 固体物質加熱実験	25
2.3.1 実験条件	25
2.3.2 実験結果	25
2.3.3 考察	28
3. ナノ秒パルス加熱における伝熱問題	39
3.1 Fourier's law と非 Fourier 効果(Non-Fourier effect)	39
3.2 ナノ秒オーダーの伝熱における Non-Fourier effect の寄与	41
3.2.1 数値計算モデル	41
3.2.2 計算結果及び考察	42
4. 熱流体現象物理モデル	47
4.1 物理モデル	47
4.1.1 温度場の記述	47
4.1.2 核生成温度に関する考察	48
4.1.3 衝撃波の発生及び伝播	50
4.2 実験結果との比較及び考察	54
5. 結言	58

A. 付録	59
A.1 主要記号表	59
A.2 35mm 一眼レフカメラによる Si - 水系及び Si - 空気系加熱実験の観察	60
A.3 Si - 水系での衝撃波発生に関する補足	62
参考文献	64
謝辞	70

1. 序論

1.1 本研究の背景

相変化を含む伝熱現象の研究，いわゆる沸騰現象に関する研究は原子力発電の技術開発とほぼその歩みを共にし，約半世紀に渡り実験的・理論的研究が精力的に行われてきている．その進歩，知見の蓄積は現在における原子力発電の発展から見れば大きな成果を挙げたと言えるであろう．また，熱交換プラントや電子機器の冷却など，潜熱の授受を含む相変化現象は工学的に非常に重要な意味を持ち，今後もマイクロマシンやコンピュータチップの冷却から宇宙ステーションでの熱交換に至るまで，非常に広い領域において応用されるであろう．

一方で，時空間的にパラメータが複雑に絡み合う現象である沸騰現象は，その物理は未だ十分に解明されておらず，非線形解析が最近導入されるなど，今後更に新たな領域に突入していくものと思われる．

未解明の領域のひとつとして，時間スケール，エネルギースケール拡大時の現象が挙げられる．近年の工業或いは工学の広い分野に於いて，マイクロ (10^{-6}) 或いはナノ (10^{-9}) スケールの現象，更にはメガ (10^6) 或いはギガ (10^9) オードの高速性を持った工学的・技術的問題に強い関心が寄せられている．エネルギーや加工技術に関連した分野について見ると，より高い，より速い熱移動現象に対する技術開発が不可欠となっており，超高速非平衡伝熱現象に関する研究が重要になってきている．特に近年のレーザー技術の発展により，高速高出力エネルギー供給技術の普及が急速に広がっており，このような高速高出力エネルギーを熱源とした場合に起こる現象は，通常極めて短時間の内に生起し，非常に急激な温度変化をもたらす，その結果として非常に高い熱流束が発生すると共に，莫大な熱エネルギー供給による被加熱物質の急激な熱膨張と相変化による衝撃的な圧力（衝撃波）の発生といった従来の沸騰現象には見られない種類の熱流体現象が現れる．こうした問題はレーザー加熱の問題に限らず，例えば液体水銀をターゲットとした中性子発生装置，超伝導マグネットの遮断時における過渡現象など，実際の技術課題として既に顕在化しているものである．更に工業的分野のみならず，未だに記憶に新しい雲仙普賢岳の噴火時，あるいはチェルノブイリ原子力発電所における事故時に発生し甚大なる被害をもたらした蒸気爆発現象の基本的な物理過程にも含まれる．また，レーザー加熱に限ってみても，そこにはレーザー光の金属表面での反射や金属内への浸透の非定常問題，光と電子・電子と金属格子の相互作用の問題，金属プラズマ発生の問題，非フーリエ効果など，量子スケールあるいはミクロスケール伝熱として重要であるが未だ十分に理解の進んでいない学術的課題が含まれている．本研究はそうした従来の熱工学の範疇に無い高速の熱流体現象の物理について，その基本的要素である伝熱・相状態・流体運動の挙動及びその相互関係を理解，解明することを目的として行われたものである．

本研究に於いては，水中において液体金属或いは固体金属（または物質）を高出力のパ

ルスレーザーで瞬時に加熱し、その際に生起する現象について実験的、理論的研究を行った。従来空気中において電気的あるいはレーザー加熱により高速加熱しその際発生する衝撃波やプラズマについては広く研究が為されている。古くは例えば exploding wire (細線爆発)の研究などがこれであり、1960 年前後から研究が盛んに行われた。同種の高速加熱の研究であっても、水中の実験は核生成の問題や固液界面挙動の問題が介在し、空气中或いは真空中の場合より遙かに多くの興味深い問題が含まれる。しかし、従来この種の問題は液体の過熱限界あるいは核生成に関連して為された研究が主であり、加熱時間(現象を区分する代表時間)としてマイクロ秒程度の現象速度に限られている。本研究はこれまで伝熱工学の分野において為されてこなかったナノ秒程度の現象を研究対象とする全く新しい領域における研究であると言え、その物理が従来熱工学に用いられてきた知識の時間的延長を適用して良いのか、あるいは特殊な扱いが必要であるのか等、基本的知見を与える基礎研究と位置付けられる。

以下、従来行われてきた高速伝熱に関する研究について、その現象の代表時間及び研究内容により概観し、本研究の位置付けを明らかにする。

1.2 高速伝熱に関する従来の研究

1.2.1 工学的領域（熱工学）における高速加熱に関する研究

通常の沸騰現象よりも大きい加熱速度を与えることによって実現する高速伝熱に関する研究は、主に液体の過熱限界問題、核生成問題などの熱流体現象に焦点が当てられてきた。加熱方法としてコンデンサーに蓄電したエネルギーを一気に試験伝熱体に放電する電気加熱あるいは開発初期におけるレーザーによる加熱が採用され、マイクロ秒オーダーの加熱時間を実現している。以下、その主なものを挙げる。高速伝熱において比較的低速加熱速度による実験（加熱速度 10^5K/s 程度以下）については、Hall and Harrison(1966)、桜井・塩津(1977)などがあるがここでは割愛する。

水中における物体の高速度加熱に関する研究の先駆けとして、水中ヒューズや高圧点源の開発または爆発規模の評価を行う目的により、それまで空気中において行われてきた強烈な自発光及び衝撃波の発生を伴う線爆発現象を大気圧下の水中で行う水中線爆発に関する研究（e.g., Buntzen(1962), Baker and Warchal(1962), Kersavage(1962)、北島ら(1967)、元木・行村(1976)）が 1950 年代以降行われた。

その後、Skripov によって熱物理における液体の過熱限界に関する基礎研究として水あるいは有機溶媒中にて金属細線の電気的高速加熱を実現し、最高加熱速度 10^6K/s において瞬間写真撮影及び細線温度変化の追跡により、液体の爆発的相変化は細線温度が均質核生成温度 (Homogeneous nucleation temperature) の理論値とほぼ同じ温度に到達する瞬間に生起するとした(e.g., 1970,1974)。また、バブルジェットプリンタにおける技術開発に関連して、有機液体中にて金属薄膜を周期的パルス通電加熱した際の発泡核密度の時間変化測定及び発泡生起温度に関する研究が浅井により行われた。また、熱工学における均質及び不均質核生成理論に基づき、温度勾配の存在する場における不均質核生成理論を初めて構築し加熱速度と核生成温度の関係式を導入、更に気泡成長プロセスに関する理論モデルを提案した(e.g., 浅井 1990, Asai 1991)。一方、蒸気爆発現象の物理機構解明を目的として、その高速伝熱・相変化に焦点を当てた研究が最近 20 年近くに渡り精力的に行われている。Board, Duffey らは加熱源としてパルス長さ数十 μm ~ 数 ms の Ruby laser を用い水中において金属薄膜を加熱し、最高加熱速度 $10^6 \sim 10^7\text{K/s}$ を実現し、加熱レーザー強度・系圧力(大気圧 ~ 10MPa)・バルク液体のサブクール度と、生起する相変化現象、特に生成する蒸気層厚さの関係を求めた(Board *et al.* 1971, Duffey *et al.* 1973)。Derewnicki は水中にて金属細線を大気圧から 1MPa の系圧力下にて加熱速度 $10^6 \sim 10^7\text{K/s}$ により加熱し、加熱時の平均熱流束を求め、また気泡生成の瞬間写真撮影と併せて、系圧力と核生成温度、発泡核密度の関係について議論している(e.g., 1983,1985)。Iida らは金属薄膜を有機液体あるいは水中において 10^7K/s オーダーまでの加熱速度での電気加熱を実現し、加熱時の伝熱面温度及び熱流束と発泡核密度の関係を求めた。加熱速度が 10^7K/s オーダーに達すると、極めて多くの均一な小気泡が伝熱面を覆うように発生（「キャビア状発泡」と呼んでいる）、ゆらぎによる核生成に起因した沸騰

現象であるとしている(e.g., Iida *et al.* 1994, Iida *et al.* 1995) . 以上の研究は, 加熱速度として $10^6 \sim 10^7 \text{K/s}$ の範囲で実験を行っており, 主にバルク液体の相変化, 核生成問題に焦点を当てている .

1990 年代になって, 同じく蒸気爆発現象の物理機構解明を目的として, Shoji らによって水中での金属細線通電加熱実験が行われ, 従来の研究において最高加熱速度となる 10^{10}K/s を実現した(e.g., Shoji *et al.* 1995, 庄司ら 1996) . 細線温度が水の均質核生成温度に到達した瞬間に爆発的な相変化が生起し, 最大 20MPa もの衝撃的圧力が発生すると報告し, 現象代表時間オーダーの変化により, 生起する熱流体現象が大きく異なる事が実験的に初めて確認された . また最高 2000 万駒毎秒の高速撮影に成功, 更に実験結果に基づき衝撃波発生モデルを構築した .

1.2.2 理学的領域 (固体物理) における高速加熱に関する研究

レーザー技術の急速な発展によって, より短時間により高エネルギーを安定して供給出来る装置が出現し, それまで理論においてのみ展開が可能であった量子伝熱の世界に実験的研究の可能性を持ち込み, 物理・応用物理の領域での高速加熱に関する研究が盛んになった . 研究のほとんどは空気中あるいは真空中での金属・半導体の加熱をその対象としている . ここでは従来理学的領域, 特に固体物理に関する領域で行われた高速加熱に関する研究を概観する . 時間オーダーとしてはピコ秒・フェムト秒以下となり, このような時間領域では, エネルギー移動の緩和時間と現象の代表時間が近づくに連れマクロな熱流体は生起せず, 光子 (photon) - 電子 (electron) 間相互作用や電子 - 格子 (lattice) 間相互作用といったミクロな領域における伝熱が現象を支配するようになる .

1950 年代に, 電子 - 格子間相互作用に関して, 両者の温度が Fermi 分布関数及び Bose 分布関数により別々に記述されるとし, 両者間相互作用の結合定数 (electron-phonon coupling factor) を導出した (Kaganov *et al.* 1957) . その後, Anisimov *et al.* (1975) によって, その結合定数を用いた電子及び格子に関する結合非線形時空間拡散方程式によりその温度場の記述が行われた .

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \lambda_e \nabla^2 T_e - G \cdot (T_e - T_l) + W(z, t) \quad \text{for electron}$$

$$C_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} = G \cdot (T_e - T_l) \quad \text{for lattice}$$

(1.2.1)

ここで, $W(z, t) [\text{W/m}^3]$: 時空間的内部発熱項 (加熱レーザー強度に対応), $C [\text{J/K m}^3]$: 熱容量, $\lambda [\text{W/m K}]$: 熱伝導率, $G [\text{W/m}^3 \text{K}]$: 電子 - 格子結合定数, 添字 e : 電子, l : 格子 . すなわち, レーザー光による加熱は電子のみに生じ, かつ, 電子により熱拡散が行われる . 電子 - 格子間相互作用 (結合定数 G により記述) により格子にエネルギーが移動する, というものである . その後フェムト秒あるいはピコ秒パルスレーザーの出現より実験的研究

が押し進められ、それらの実験結果より更に理論モデルの改善が図られた。

Bronson ら(e.g., Fujimoto *et al.* 1984, Bronson *et al.* 1987, Bronson *et al.* 1990)は、厚さ 20 ~ 300nm の金薄膜を空气中フェムト秒パルスレーザー加熱した際の励起電子の緩和及び電子 - 格子間熱移動に関し、従来レーザー照射面のみで行われていた加熱時の反射光強度変化測定法 (Pump & Probe method) を薄膜の加熱レーザー (Pump laser) 光照射面及び裏面の両面において行った実験的研究により励起電子の熱移動による緩和と phonon 放出による緩和の切り離しを可能にし、フェムト秒オーダーにおいては熱の移動は電子気体のみによって行われ、その移動速度は電子の Fermi 速度とほぼ等しいとの結論を導出した。また、Pump & Probe method により前述の電子 - 格子間相互作用結合定数 G を求められるとの報告 (Allen 1987)を元に、数種の金属及び化合物の結合定数を求めた。更に Elsayed-Ali らによって被加熱物質の結晶状態による励起電子の緩和への影響が報告された(e.g., Elsayed-Ali *et al.* 1987, Elsayed-Ali *et al.* 1991)。その後、工学の世界においても熱伝導に関する基礎研究として、Qiu らによって量子伝熱に関する研究が行われた。すなわち、前述の Kaganov *et al.* (1957)、Anisimov *et al.* (1975)により提案された電子 - 格子間相互作用を考慮した熱拡散方程式 (著者らは 'Two-step model'と呼ぶ)において、自由電子理論を用いて比較的高温の領域 (Debye 温度近傍またはそれ以上) での結合定数 G の理論近似式を求め、上記の過去の実験結果とよい合致を得た (Qiu and Tien 1992)。更に Two-step model において用いられる電子の「有効熱伝導率」が薄膜厚さに強く依存することを理論的に示し (Qiu and Tien 1993b)、その後 Pump & Probe method を用いて実験的に確認した (Qiu 1995)。また、Boltzmann 輸送方程式を用いて電子によるエネルギー輸送に関する支配式を導出し、Hyperbolic 型の Two-step model を確立した (Qiu and Tien 1993a)。

1.2.3 従来の工学的及び理学的領域の狭間における高速伝熱に関する研究

1980 年初期から、それまで理論・実験ともに困難であった量子伝熱と Fourier 熱伝導方程式により記述される伝熱の狭間領域であるナノ秒オーダーの伝熱に関する物理の実験的研究がナノ秒パルスレーザーを用いて行われるようになった。ここでまず、空气中或いは真空中における固体面の高速レーザー加熱に関する研究を概観し、その後行われた水中加熱に関する研究を概観する。

空气中または真空中におけるナノ秒パルス加熱

1980 年代に入り、短時間に高出力のエネルギーを狭い領域 (レーザー光の coherent 性を利用) 供給出来るレーザーを物質加工に用いようとする動きが盛んになる。特にコンピュータの驚異的な発展を支持すべく半導体物質の加工に注目が集まった。レーザーを照射した物質内における熱移動及び相変化といったマクロな熱流体現象の理解を目的としつつ、現行の加熱源より短い時間において加熱を実現するため、加熱源としてそのパルス長さが電子 - 格子間相互作用の緩和時間に対して比較的長く、かつ従来の電気加熱より短い加熱時間を実現するナノ秒オーダーのパルスレーザーを採用した。これにより、工学の領域に

においても、従来にない短い時間における現象と対峙することになる。

半導体加工に関連して、シリコンなどをパルス加熱した際の温度変化及び相変化、すなわち融解/凝固(再結晶)の動力学について Pump & Probe method を用いて実験的理論的に研究が行われた (e.g., Lowndes 1982, Lowndes and Jellison 1984, Tsao *et al.* 1986, Jellison *et al.* 1986a, Jellison *et al.* 1986b, Wood and Geist 1986a, 1986b, Lowndes *et al.* 1987, Xu *et al.* 1995b) .
ここでこれらの実験的研究により、パルス加熱中における反射率変化履歴すなわち反射率の温度依存性及び相依存性に関する有益な知見が蓄積された。

その後、レーザー加熱による物質の気化またはプラズマ化を扱う研究が盛んになり、固液気3相の熱流体挙動を扱う理論モデルが提案され (e.g., Singh and Narayan 1990, Aden *et al.* 1990, Aden *et al.* 1992, Ho *et al.* 1995) 更にプラズマ形成及びプラズマによるレーザー光吸収 (e.g., Dawson *et al.* 1969) を考慮したレーザーによる物質気化の理論的研究が行われた (e.g., Aden *et al.* 1993, Vertes *et al.* 1994, Ho *et al.* 1996) , 若干の実験的研究も行われた (e.g., Aden *et al.* 1992, Bennett *et al.* 1995) .

水中における高速加熱

加工における被加熱物質の相変化を含む問題に加えて、ここ 10 年ほどの間に水中における物質のナノ秒パルスレーザー加熱に関する研究が主にアメリカ、ドイツ、そして日本で各 1 大学において行われている。まず UC Berkeley において、ハードディスクのレーザークリーニング等への応用、またその際に見られる高速伝熱に関する基礎研究として、レーザー加熱により生じる温度場に関し空気中での薄膜加熱による温度場の考察及び反射率の温度変化測定が行われ (Park *et al.* 1993, Xu *et al.* 1995a) , そこで得られた物性値等の測定結果を踏まえて、Univ. of Konstanz と共同で水中加熱に関する研究を行った。彼らは水中(または有機液体中)加熱実験において Pump & Probe method を初めて採用し、加熱により生じるナノ秒オーダーの高速伝熱における熱伝導問題や相変化、核生成等の熱流体現象について成果を上げている。比較的弱い強度の Pump laser 光 (KrF excimer laser: $\lambda_{pump} = 248\text{nm}$, FWHM $\sim 20\text{ns}$) を用い、また、従来は Pump laser と同一レーザーを用いていた Probe laser に Pump laser と波長の異なる連続光 (He-Ne laser: $\lambda_{probe} = 632.8\text{nm}$) を採用して、長時間に渡る反射光強度変化測定を可能にした。被加熱物質として厚さ $0.25\mu\text{m}$ の Cr を用い、Pump laser 光照射面のみにおける Probe laser 反射光強度測定において、Probe laser 光入射角度及び偏光状態の測定信号変化への寄与に関する実験的研究、及び液 - 固界面に微小な蒸気泡が存在する場合の反射率変化への寄与に関する理論的考察を行い、空気中加熱の際には見られなかった反射光強度の急激な減少(後に詳述)は、Probe laser 光波長と同オーダーのサイズを持つ蒸気泡による Probe laser 光の散乱に起因するとした (Yavas *et al.* 1993, 1994b, Yavas *et al.* 1994a) . また、異なる系圧力下において Pump laser 光照射面及び金属薄膜裏面の両面における反射光強度測定及び薄膜内の熱伝導問題の解析により、薄膜表面温度履歴の評価及び上記 Probe laser 光散乱が生じる限界系圧力の測定を行った (Park *et al.* 1995, Park *et al.* 1996) . また、Kim *et al.* (1996) は気泡成長の非接触測定法の一つとして Michelson

interferometry を採用した。

更に Yavas *et al.* (1997) は、約 50nm 厚の銀を被加熱物質とし、表面プラズモン (surface plasmon: e.g., Kretschmann and Raether 1968, Herminghaus and Lerderer 1990) を Probe として薄膜上での蒸気泡生成のより精密な測定を実現、加熱面上に存在する半径約 10nm の蒸気泡を検知可能と報告した。また、同一条件の繰り返し実験により加熱領域における蒸気泡密度の時系列変化を再構築し、更に同じく surface plasmon を用いて、急激な蒸気泡生成により発生する圧力を測定した。また、レーザー加熱時に発生する圧力に関して、その測定を 'mirage effect' を利用した光学的測定法を考案し、圧力発生は加熱時に水中に形成される過熱液層内での蒸気泡発生によると報告した (Park *et al.* 1996)。

以上の研究群は、ナノ秒オーダーの熱流体现象における伝熱・相状態・流体挙動をそれぞれ独立して捉え、一つ一つを非常に繊細に考察したものであり評価に値するが、それぞれの相互関係を捉えるには至っておらず、熱流体挙動の総合的な物理の考察は行われていない。

1.3 本研究の目的及び概要

本研究は、従来工学的領域の高速伝熱研究においてほとんど報告例のなかった、ナノ秒オーダー高速加熱により誘起される水中または空気中における熱流体现象に関して、第2章以下に述べる実験及び数値計算モデルによってその基本要素である伝熱特性、相状態、流体挙動それぞれの基本挙動及びそれらの相互関係の把握を目的とし、蒸気爆発現象や超伝導状態破壊、中性子発生ターゲットなどに見られる高速の過渡現象を理解するための基礎研究として位置付ける事が出来る。

実験においては、水中での高速伝熱研究においてほとんど報告例の無かったナノ秒オーダーの高速伝熱に関して、自由界面を有する液体金属 (Hg)、及び rigid な界面を持つ固体物質 (Si) を被加熱物質として採用し、液体 - 液体系、液体 - 気体系、固体 - 液体系、固体 - 気体系におけるナノ秒パルス加熱を実現し、高速度現象観察や発生圧力の測定、被加熱物質の温度及び相状態の測定を行う。その結果を基に、特に高速加熱時に生じる衝撃的圧力発生に注目し、それに至るまでの様々な物理、すなわち伝熱現象の評価、被加熱物質の熱流体挙動 (空気中加熱でのプラズマ形成、または水中加熱での相変化及び界面挙動など)、2体接触問題 (水中加熱) における伝熱、被加熱物質に接触する液体の相変化を含む熱流体挙動について考察を行う。

以下、第2章にて水銀加熱実験及びシリコン加熱実験に関し結果及び考察を示し、第3章にて当該実験条件での伝熱問題に関して考察を行う。第4章にて高速加熱時に生起する熱流体挙動に関する物理モデルを提案し、本実験結果との比較及び考察を行う。

2. 実験

2.1 実験概観

ここでは本研究におけるナノ秒パルスレーザー加熱に関する実験について、自由界面を有する(1)液体金属加熱、及び rigid な界面を有する(2)固体物質加熱について記述する。

(1)液体金属加熱に関しては、被加熱物質として液体水銀 (Hg) を採用し、従来報告例の無い高速パルス加熱時に生起する熱流体現象の観察を中心に、自由界面を有する系における現象の特徴を詳細に見ていく。

(2)固体物質加熱に関しては、被加熱物質として単結晶シリコン (Si) を採用し、現象観察及び '1.2' で紹介した Pump & Probe method を用いて加熱時の伝熱特性の把握及び界面での熱流体挙動の測定を行った。

以下(1), (2)に共通する実験装置類について述べる。

加熱用レーザー装置

本研究における全実験は、Nd:YAG レーザーの2倍波 ($\lambda_{pump} = 532\text{nm}$)をナノ秒パルス加熱源として用いた。パルス幅は約 13ns (FWHM)、パルス径 $\phi \approx 5\text{mm}$ であり、レーザー強度 F に関し $5.0 \times 10^1 \sim 1.5 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ の範囲で実験を行った。仕様を Table 2.1.1 に示す。レーザー強度については、以下に記述するパワーメーターにより検定を行った光検出器を用いて測定した。以下本論文においては、加熱用レーザーを Pump laser として記述する。

Table 2.1.1 Specifications of Nd:YAG laser

Product Name	Continuum Powerlite 7000
Output Wavelength	532 nm
Pulsewidth	13 ns (FWHM)
Divergence (full angle for 86 % of energy)	0.45 mrad
Beam Pointing Stability	100 μrad
Energy Stability (shot-to-shot for 99.9% of pulses)	$\pm 3.5\%$
Power Drift (from average for 8 hours with $\Delta T_{\text{room}} < \pm 3\text{K}$)	$\pm 5.0\%$
Beam Spacial Profile (fit to Gaussian)	(perfect fit would have a coefficient of 1)
Near Field (<1m)	0.70
Far Field (∞)	0.95

レーザー用パワーメーター

光検出器による Pump laser のエネルギー測定の検定を行う際に用いるレーザーエネルギー測定装置である。レーザー光受光面を含む Head 部と本体部により構成されている。その

仕様を Table 2.1.2 に示す .

Table 2.1.2 Specifications of Laser Power/Energy Monitor

• Main Body

Product Name	Ophir Optronics LTD. NOVA
Input Ranges	15nA-1.5mA
Electrical Accuracy	± 0.1% ±20pA: new ± 0.3% ±50pA: after 1 year
Electrical Input Noise Level	500nV or 1.5pA + 0.0015% of input range @3Hz
Analog Output	0-1V with 11-bit (0.05% resolution)
Analog Output Accuracy	± 0.2% ± 1mV relative to display

• Head Part

Product Name	Ophir Optronics LTD. 30A-P
Max Power	30W
Max Averaged Power Density	50W/cm ²
Absorber Type	P type, volume absorber

光検出器

レーザー加熱実験においては、前述したパワーメーターによって実験前に検定を行った光検出器を用いてそれぞれのパルスエネルギーを測定する。受光部に遮断周波数 1.5GHz の Si PIN フォトダイオード（浜松ホトニクス社製 S5973, S5973-01）を採用し、高速デジタルオシロスコープ（sampling rate: ~2GSa/s）により測定を行う。Table 2.1.3 にフォトダイオードの仕様を示す。

Table 2.1.3 Specifications of Si PIN Photodiode

Product Name	S5973	S5973-01
Window Type	borosilicate glass	lens type borosilicate
Effective Area of Sensor	0.12 mm ²	
Available Wavelength Range	320 nm-1000 nm	
Cutoff Frequency	1.5 GHz	

圧力検出装置

圧力計測は、高速加熱時に生じる衝撃波の検知及びその伝播の様子を検出する目的において行う。本実験では、PVDF 圧電素子を用いて測定を行った。素子設置位置を変化させ、

圧力波伝播時の減衰を調べ、被加熱物質表面すなわち圧力発生位置での圧力値を評価した。PVDF 圧電素子の仕様を Table 2.1.4 に示す。

Table 2.1.4 Specifications of PVDF Pressure Transducer

Product Name	IMOTEC GmbH PVDF-Nadelhydrophon (80-0.5-4.0)
Sensitivity	0.365 pC/bar
Capacity	239 pF
Rise time	< 50ns

実験容器

被加熱物質はすべてアクリル製の矩形容器中で加熱される。Pump laser 光径約 5mm に対して壁面及び水表面における圧力波の反射等の影響を抑えるために内寸 100mm × 100mm × 100mm の立方体の容器を採用した。レーザーパルス光入射窓には、BK7 光学用 A 級製（両面に波長 532nm の光に対する反射防止膜 (Anti-Reflected Coat) をコーティングしたもの）を用い、窓表面におけるレーザー光エネルギー損失を最小限にした。

ここで記述した以外の装置に関しては、以下各実験系の説明の際に適宜加える。

2.2 液体金属加熱実験

2.2.1 実験条件

ここでは液体金属の水中あるいは空気中でのナノ秒パルス加熱実験に関して記述する。被加熱金属として水銀を採用し、実験容器中に水銀のみ、または水銀及び蒸留水を層状に配置した。圧力発生及び界面挙動への影響を調べるために水銀層厚さを 5mm ~ 20mm に、蒸留水層厚さを 5mm ~ 40mm に変化させ、大気圧・室温 (20°C) 下で静止界面に上方より垂直に Pump laser を 1 パルスだけ照射する。本実験の場合、金属表面の加熱時間は数十 ns 程度であるが、生起する現象は比較的長時間にわたり観察されるものがある。従って、現象観察は撮影速度の異なる 2 種類の高速度撮影装置を用いて行った。すなわち、水銀 - 水界面の挙動といった比較的長時間 (ms オーダー) にわたる現象は撮影速度 2,066fps, シャッタースピード 1/10,000 秒の高速度ビデオカメラを用い、衝撃波の発生・伝播及び蒸気泡の成長・崩壊といった短時間 (数百 ns ~ 数百 μ s) での現象は高速度カメラを用い、撮影速度 10,000fps ~ 8,000,000fps, 露光時間 190ns 以下で撮影した。両装置による撮影とも若干の俯角による撮影を行い、撮影用光源はメタルハライドライトを用いた。

レーザー照射により発生する衝撃的圧力は照射点より約 9mm の位置に固定した PVDF 圧電素子により検出した。照射領域は容器中央に位置するので、発生圧力の検知に際し容器側壁あるいは水表面による衝撃波の反射波の影響はない。

なお水温に関しては、サブクール度の影響を調べるため 20°C ~ 60°C に変化させたが、水温上昇により水銀の溶解度が大きくなり、そのためレーザー光の水層における吸収が増大するため、実験系の質自身が大きく変化してしまう。そこで水温は 20°C で一定とし、レーザー照射直前に実験容器に静かに注入して各実験を行った。

実験装置の概略図を Fig. 2.2.1 に示す。

2.2.2 実験結果

界面挙動

ここでは水中における液体金属のレーザー加熱により誘起される、水銀 - 水自由界面の挙動について論じる。Fig. 2.2.2 に自由界面挙動の例として、水銀層厚さ 10mm, 水層厚さ 50mm, レーザー強度 $F=1.4 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ の場合の結果を示す。各フレームの下の数字は、レーザー照射時を時刻 $t = 0$ とした時の時間経過を示している。各フレーム内左上方に見える水平線分は水銀表面からの高さが 10mm の地点を示しており、表面から約 10mm 地点に垂直に見えるニードル形のは PVDF 圧電素子の先端部である。前述の通り Pump laser 光は上方より表面に対し垂直に照射する。照射後、加熱領域上に半球形の蒸気泡が急速に成長・崩壊する (Fig. 2.2.2: 第 2, 3 フレーム)。崩壊後、蒸気泡が成長した領域において界面の隆起が始まり、水銀液柱が形成される (Fig. 2.2.2: 第 4 フレーム以降)。この水銀液柱は $F=1.0 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ 以上の場合に形成される事が確認された。

Fig. 2.2.2 と同一条件下における現象の蒸気泡崩壊及びそれに続く水銀表面隆起の初期段階のより詳細な様子を Fig. 2.2.3 に示す．これは高速度カメラを用い，撮影速度 10,000fps，露光時間 190ns で撮影したものである．各フレームの上下に記してある時間は Fig. 2.2.2 の場合と対応しており，レーザー照射開始からの経過時間を示している．照射面上に形成された半球形の蒸気泡は側面から潰れ始める．固体面近傍での気泡崩壊時に見られるような固体面に向かう microjet の形成 (Knapp *et al.* 1970) は本実験条件下では確認されなかった．蒸気泡上部は崩壊時においても最後まで残り，蒸気泡が潰れた後表面から離脱する．水銀界面の隆起は蒸気泡崩壊時から確認され (Fig. 2.2.3: 第 4 フレーム以降)，この界面隆起及び水銀液柱は，レーザー加熱により発生する照射領域上での衝撃波の反作用により形成されるものと考えられる．レーザー強度 F の減少に従い，生成蒸気泡の大きさ・成長速度・崩壊の度合い，更に界面隆起及び液柱高さも減少する．界面隆起及び水銀液柱高さの Pump laser 光強度 F への依存性を，異なる水銀層厚さ ΔHg に対し Fig. 2.2.4 に示す．界面挙動に関して，水銀層厚さの影響はほとんど確認されなかった．

界面隆起及び水銀液柱の形成はまた，水層厚さに関しても強い依存性を持つ．水銀層厚さ 5mm，水層厚さ 5mm の場合における界面挙動の様子を Fig. 2.2.5 に示す．加熱面上における半球形の蒸気泡の形成は見られず，その代わり爆発的蒸発が観察される．また，水 - 空気界面においても同様の jet の形成が見られるが，これは Fig. 2.2.2，Fig. 2.2.3 など水層厚さが充分厚く，照射領域上に半球形蒸気泡が形成される場合でも見られる．この jet 形成は，水中爆発の実験において報告されている界面挙動 (Chahine 1977, Blake and Gibson 1981) と同様，水銀 - 水界面近傍での急激な相変化により発生する圧力波が水 - 空気界面に到達して生じるものと思われる．この水 - 空気界面における強い擾乱により水銀液柱は鉛直方向に成長出来なくなる．従って本実験系においては特に指示無き限り，この擾乱の影響がほとんど見られない充分な厚さを持つ水層厚さ 50mm の条件で行った．以上の水銀界面挙動を引き起こす，レーザー加熱による衝撃波の発生については次節で述べる．

衝撃波発生及び伝播

レーザー加熱直後における衝撃波発生の典型例を，異なる撮影速度及び異なる Pump laser 光強度 F について Fig. 2.2.6 に示す．(i)では $F=1.4 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ の場合 (図中左側) (Fig. 2.2.2，Fig. 2.2.3，Fig. 2.2.5 と同一条件)，(ii)では $F=2.0 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ の場合 (同右側) について，それぞれ (a) 40,000fps (図中上部)，(b) 1,000,000fps (同中部)，(c) 4,000,000fps (同下部) の撮影速度による観察結果を示している．(a)，(b)に関しては露出時間 150ns，(c)では 100ns で撮影を行っており，各フレームに付記している時間は前述のものと同様，レーザー照射時刻を $t = 0$ とした時間経過を示す．レーザーのパルス長さは約 13ns (FWHM) であるため，各結果において第 1 フレームのみレーザー照射を捉えている．

Fig. 2.2.6 (i)-(a)及び(ii)-(a)より，照射領域上に核生成・蒸気泡生成が比較的長時間にわたり観察される．Pump laser 光の強度に従い生じる相変化現象の強度も変化するが，その定

性的な現象特性，すなわち蒸気泡の生成 (i)-(a), (ii)-(a) , 衝撃波の発生・伝播 (i)-(b),-(c) , (ii)-(b),-(c)) は, Pump laser 光強度の変化による大きな差異は無い．そこで以下, Fig. 2.2.6(i) の場合を主に用いて現象特性の説明を行う．

Fig. 2.2.6(a)において, 照射後の比較的長時間にわたる半球形蒸気泡生成の様子を示す．半径方向の成長に比べて高さ方向の成長が極めて大きい．生成後の崩壊の様子は Fig. 2.2.3 に示した通りである．また, 成長する蒸気泡の上部に微小蒸気泡が柱状に発生し, 時間とともに消滅する．この微小蒸気泡はレーザー光が水中を通過した事により発生するものではなく, Fig. 2.2.6(b)で示す通り衝撃波の通過に伴い発生するものである．次にレーザー照射により発生する衝撃波の伝播の様子を Fig. 2.2.6 (b)に示す．照射直後に照射領域上方に衝撃波が形成され (図中第 2 フレームの矢印参照．第 3 フレーム以下伝播していく様子がわかる) , 約 $1.7 \times 10^3 \text{m/s}$ の速度で伝播する．衝撃波伝播速度は当該実験条件内においてレーザー強度に依らずほぼ一定である．伝播に伴い端部が減衰し, また衝撃波面中心部後方において前述の微小蒸気泡の形成がはっきり観察される．この微小泡形成は, 衝撃波面の前後における急激な圧力変化に伴うものと考えられる．また, 界面上の照射領域は写真中で黒く写っており, 数 μs 経過後に蒸気泡の成長開始が観察される．次に, Fig. 2.2.6(c)に衝撃波発生及び伝播初期の様子を示す．第 2, 第 3 フレームに見られるように, 衝撃波は発生直後, 照射レーザースポットとほとんど同一の形状をもち, ほぼ平面波の形を保ったまま数 mm 伝播する．その後, 端部が曲率を持ち始め, 波面後方に微小蒸気泡の形成が始まる．

次に加熱で生じる衝撃波に関し, PVDF 圧力計による発生圧力の測定例を, 光検出計による加熱レーザーパルスの測定例とともに Fig. 2.2.7 に示す．圧力計を照射面から約 9mm の地点に固定した場合の測定値であり, 照射後約 $5\mu\text{s}$ の時刻において検知している．衝撃波は照射後 100ns 以内に発生していることが高速度写真により観察されるので, 衝撃波の検知時刻は衝撃波の伝播時間とほぼ等しいと見なせる．なお, 圧力信号の負圧部分は焦電効果によるものである(高山(編), 1995)． Fig. 2.2.8 に圧力計の位置を変えて測定した際の検知圧力値と検知時刻を示す．発生圧力は伝播時間に対し指数関数的に減衰しており, 圧力発生地点での圧力値は外挿により, 約 9mm の位置での測定値の約 1.6 倍と推定される．

2.2.3 考察

衝撃波発生

ここでは, 水中での液体金属のパルスレーザー加熱による衝撃波発生について考察を行う．発生圧力のレーザー強度及び水銀層厚さへの依存性を Fig. 2.2.9 に示す．ここで示す圧力値は, 水銀表面のレーザー照射地点から約 9mm の位置に固定した圧力計により検知したものを, ‘2.1’ で述べたように圧力発生点における値に外挿した値を用いている．図中の実線は, 本論文 ‘4.1’ で詳述する衝撃波発生物理モデルにより得られた, 水中での水銀のレーザー加熱における発生圧力値を示している．このモデルでは, 金属表面温度が水の均質核生成温度に達した瞬間に, 被加熱金属表面近傍における水側の過熱液層が瞬時に相変化を

起こし、その非常に大きな密度変化が衝撃波発生を支配する、との仮定に基づいている。すなわち被加熱金属の相変化を考慮していないモデルである。測定値は低 F 値領域においてはモデルによる予測値とほぼ同じオーダーの圧力値を示すが、高エネルギーを加えるに従い予測値を大きく越える値を示している。以上の衝撃波発生物理モデルに関しては第 4 章において詳述する。加えて、同図中に同条件において固体金属（銅）表面を加熱した場合の発生圧力測定外挿値(Ueno *et al.* 1997a)を示す。低 F 値領域においては、両者についてほぼ同様の F 値依存性が見られるが、高 F 値領域では F 値に従い発生圧力が非常に大きくなる。これは高エネルギーの照射により銅の相変化が生じ、圧力発生への寄与が加わるためと思われる。

Fig. 2.2.10 に示す通り、銅を水中で加熱した際に生じる現象を高速度写真により観察した結果、銅加熱の場合にも水銀加熱の場合とほとんど同質の現象、すなわち(a)比較的長時間にわたる照射面上での蒸気泡の形成（図中左側）、及び(b)照射後の衝撃波の発生（同右側）が生じることが確認された。しかしその現象の定量的性質は、同レーザー強度に関して比較を行うと水銀加熱の場合と比較してはるかに弱いものとなっており、圧力測定値も液体金属加熱の場合と比較して約 10 分の 1 を示している。液体金属加熱の場合、金属の持つ小さい蒸発潜熱、低い沸点等熱的物性を考慮して、液体金属自身の相変化も高速加熱時の圧力発生に寄与するであろうと考えられ、前述の物理モデルによる予測値よりも高い圧力が発生している理由と考えられる。しかしながら自由界面を有する液体金属の場合、レーザー加熱時の伝熱特性の測定が非常に困難であるため、現在のところその伝熱量の測定は行っておらず、今後の課題となっている。

空気中における水銀加熱実験

空気中での金属面のレーザー加熱は、従来固体金属面に関しては多くの実験的理論的研究がなされており（‘1.2.3’ 参照）、金属の相変化が圧力発生に大きく寄与するとの報告があるが、液体金属のパルス加熱に関しては報告例が非常に少なく、その熱流体挙動に関しては未知の部分が多い。ここでは、液体金属をレーザー加熱した場合に生じる現象を理解するための基礎実験として、その質量・圧縮性が大きく異なる空気中での水銀加熱を行い、水中の場合と同様に高速度写真によりその挙動の観察を行った。

本実験において、Pump laser 光強度 F 、水銀層厚さ ΔHg などの実験条件は水中での加熱実験と同条件で行った。 $\Delta Hg = 10\text{mm}$ の水銀を $F = 1.4 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ のレーザー強度で加熱した際の現象を、異なる撮影速度で、若干の俯角により撮影した結果を Fig. 2.2.11(i)（図中左側）に示す。比較のため、同レーザー強度、同撮影速度による水中での水銀加熱の観察結果を Fig. 2.2.11(ii)（同右側）に示す。繰り返しになるが、照射するレーザーパルスは第 1 フレームにのみ検知される。Fig. 2.2.11(i)-(a)に撮影速度 10,000fps での比較的長時間にわたる観察結果を示すが、水中加熱で見られたような照射領域上での蒸気泡の生成は見られず、Pump laser 光スポットとほぼ同形の擾乱が観察されるのみである。この擾乱は時間と共に若干増

幅している。次に、撮影速度 2,000,000fps による照射後初期段階の観察結果を Fig. 2.2.11 (i)-(b)に示す。レーザー照射直後から照射面上において、レーザーパルスとほぼ同じ直径を持つ柱状の光放出体が形成され、減衰しながら照射領域上に数 μs 留まる。また、空気中の加熱においても図中に矢印で示す通り、光放出体の上方に衝撃波が観測される。水中での衝撃波と異なり大きな曲率を持って伝播しており、その伝播速度は平均 $1.5 \times 10^3 \text{m/s}$ 以上である。

この光放出は高速高エネルギー照射に伴う水銀の高温プラズマ形成によるものと考えられる。レーザーエネルギーのプラズマによる吸収、及びそれに伴うプラズマ放射伝熱により、水銀表面へのエネルギー供給が被加熱面表面のみでの吸収より促進される (Ho *et al.* 1996) 事から、パルス加熱下でのプラズマ形成の有無は伝熱特性を把握するために必要不可欠な要素となる。水中での加熱においては、水層の存在が水銀の蒸発・プラズマ化を抑制するため、このような照射領域上における数 μs 継続する光の放出は見られない。照射直後にわずかながら微小な揮点が照射領域上に確認される (Fig. 2.2.11(ii)-(b) 第1フレーム) が、プラズマとの関係は現在のところ把握出来ていない。ただし、ごく僅かな金属蒸気のイオン化によりプラズマ吸収が誘起される (Ho *et al.* 1996)ことを考えると、水中加熱の場合におけるプラズマ化の有無の確認が現象評価に対し非常に重要な役割を果たすと思われる。繰り返しになるが、自由表面を有する液体の性質のため、強い非定常状態における液体金属の温度変化測定は非常に困難ではあるが、水銀のレーザー加熱時における伝熱の詳細な把握及びより高速での観察が現象の物理的機構の解明に必要不可欠であり、今後の課題となる。

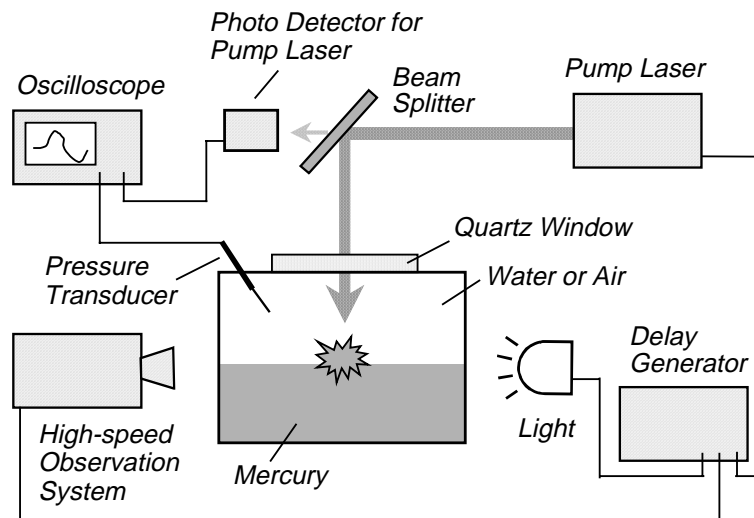


Fig. 2.2.1 Schematic layout of experimental apparatus for nanosecond pulsed laser heating of Mercury.

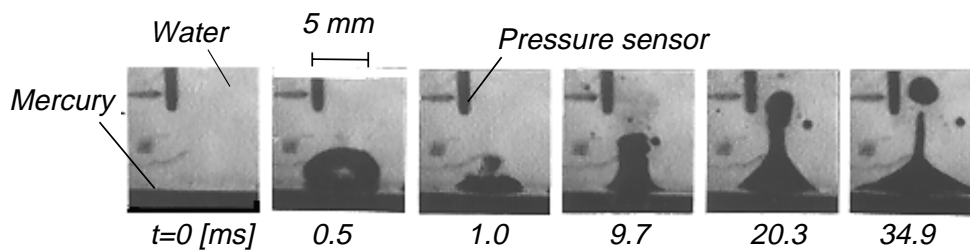


Fig. 2.2.2 Mercury surface behavior within a relatively long period in the case of heating with $F = 1.4 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ taken by high-speed video camera [shutter speed: $100 \mu\text{s}$]. Mercury layer thickness $\Delta H_g = 10 \text{ mm}$ and water layer thickness $\Delta H_{\text{H}_2\text{O}} = 50 \text{ mm}$.

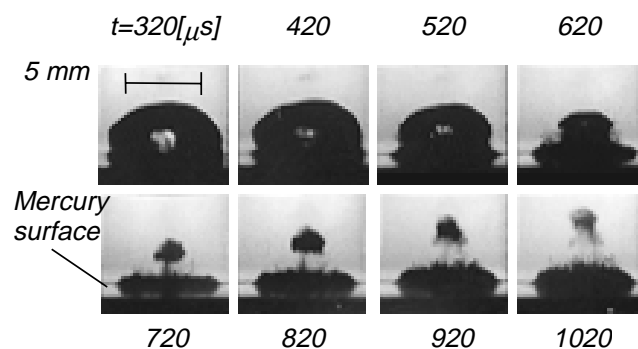


Fig. 2.2.3 Detail aspects of bubble collapse on the mercury surface in the case of heating with $F = 1.4 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ (same condition as shown in Fig. 2.2.2) taken by high-speed camera with a frame speed of 10,000fps [exposure time: 190ns].

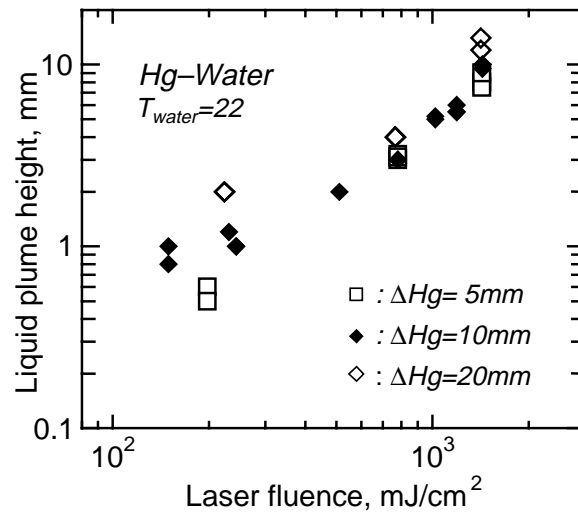


Fig. 2.2.4 Maximum height variation of surface rise with laser fluence F for the different mercury layer thickness in the case of $\Delta H_2O = 50\text{mm}$.

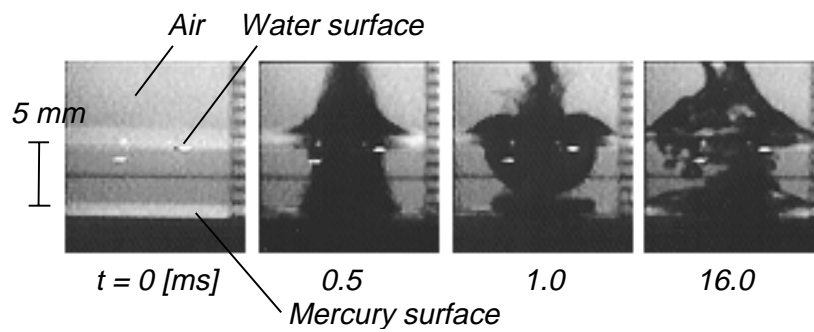


Fig. 2.2.5 Mercury surface behavior under thin water layer ($\Delta H_2O = 5\text{mm}$) in heating with $F = 1.4 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ (same condition as shown in Fig. 2.2.2 and Fig. 2.2.3).

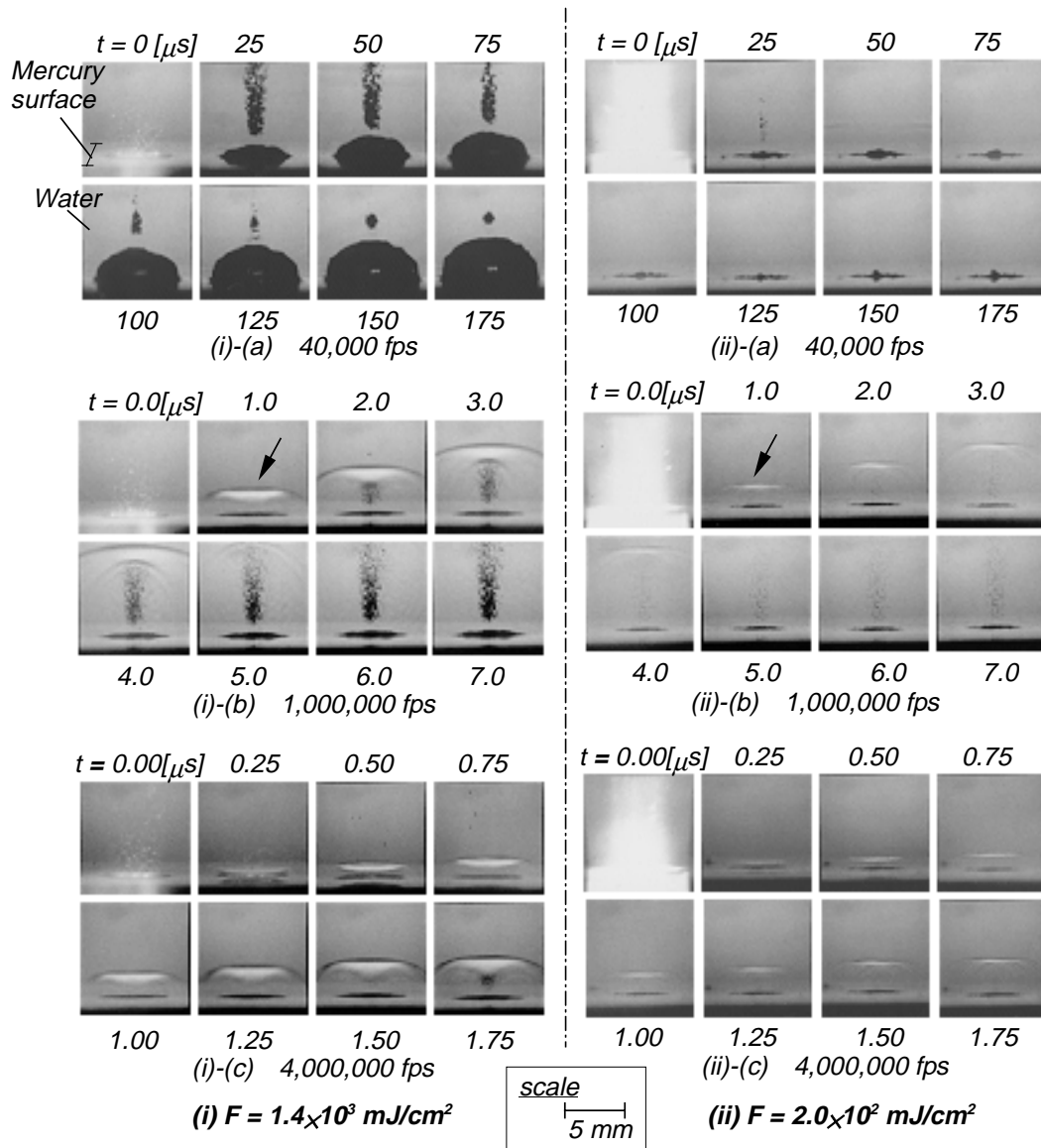


Fig. 2.2.6 Bubble formation and shock wave generation/propagation in heating with (i) $F = 1.4 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ (on the left hand side) and (ii) $F = 2.0 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ (on the right) taken with frame speeds of (a) 40,000fps [exposure time: 150ns], (b) 1,000,000fps [150ns] and (c) 4,000,000fps [100ns] in the system of $\Delta H_g = 10\text{mm}$ and $\Delta H_{2O} = 50\text{mm}$. All photographs were taken with a little depression angle.

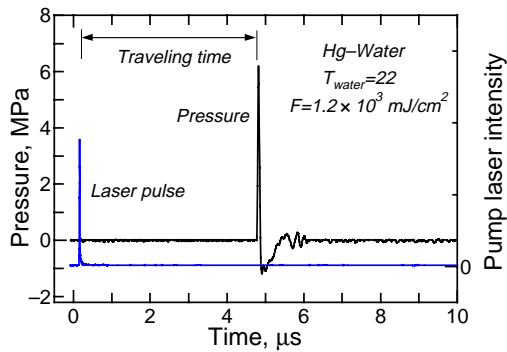


Fig. 2.2.7 Typical pressure signal and pump laser light profile.

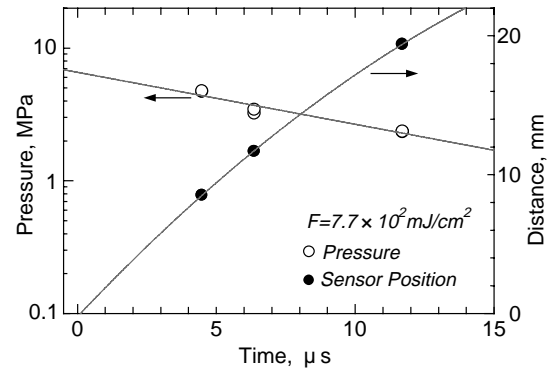


Fig. 2.2.8 Shock wave propagation.

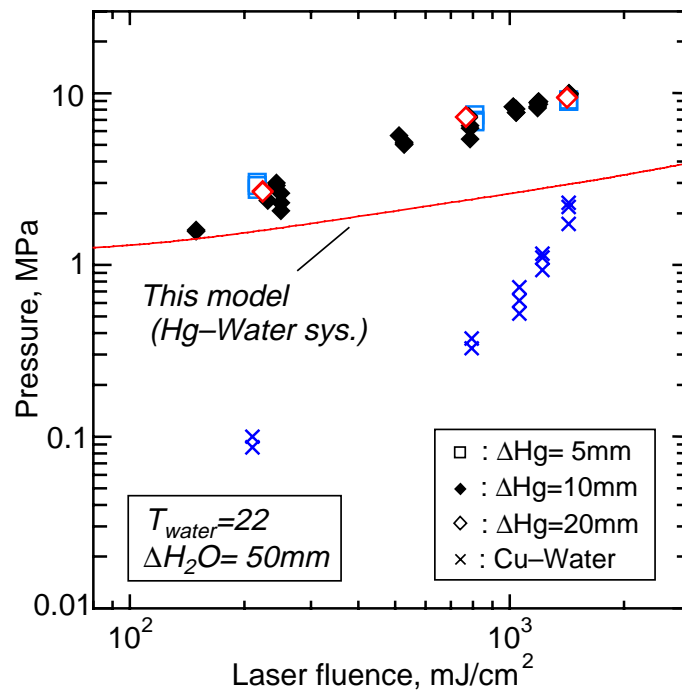


Fig. 2.2.9 Generated pressure dependence upon pump laser fluence F . Plotted values are equivalent to the extrapolated pressure values which would be measured at the surface. Solid line in the figure indicates the theoretical result of pressure generation in heating of Hg in water, which is described in detail in Chap. 4.

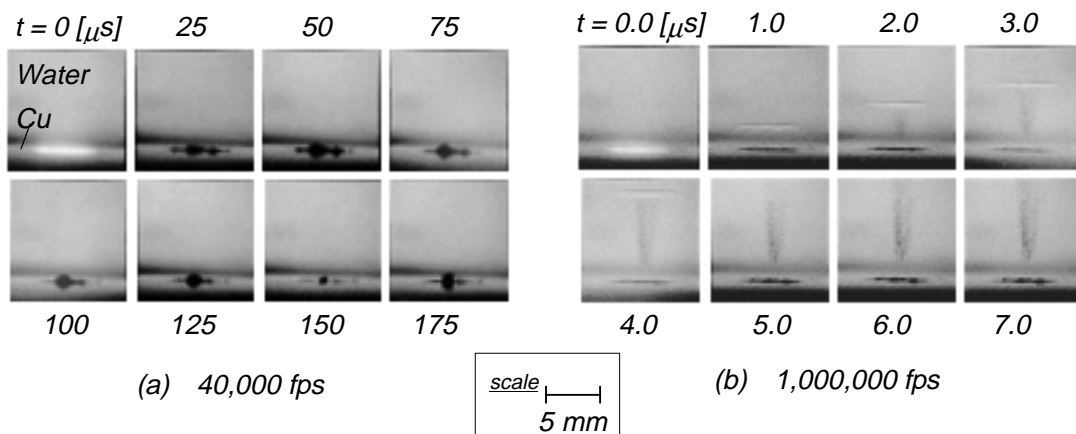


Fig. 2.2.10 Solid copper surface heating in water with $F = 1.4 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ taken with frame speeds of (a) 40,000fps [exposure time: 150ns] and (b) 1,000,000fps [150ns].

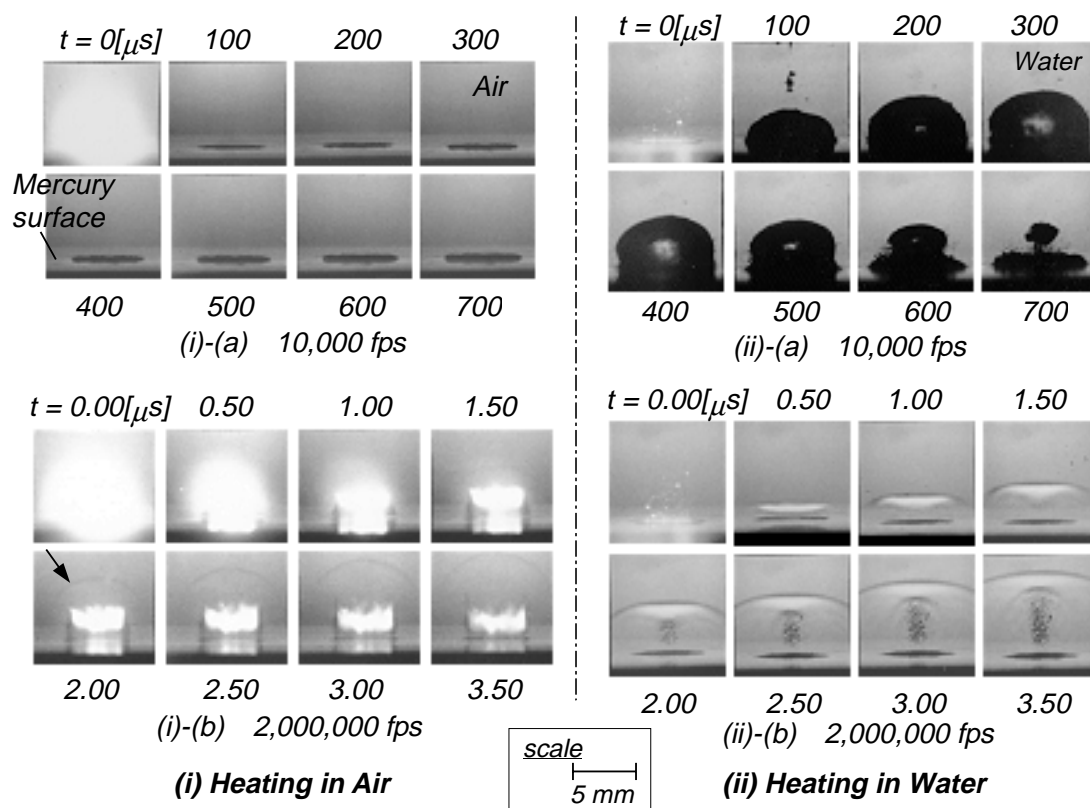


Fig. 2.2.11 Mercury surface heating with (i) in air (on the left hand side), comparing with the case of (ii) in water (on the right) taken with frame speeds of (a) 10,000fps [exposure time: 150ns] and (b) 2,000,000fps [150ns]. Pump laser fluence $F = 1.4 \times 10^3 \text{mJ/cm}^2$ for both cases.

2.3 固体物質加熱実験

2.3.1 実験条件

レーザー加熱時における界面での熱流体現象を理解するために、測定を容易にする目的により被加熱面として固体物質(Si)を用い、物質の持つ光学的物性値の温度依存性を利用して被験物質表面の温度変化や相変化を検出する Pump & Probe method (本論文 ‘1.2.2’ 参照) を採用して水中固体物質レーザー加熱実験を行った。

実験装置の概略を Fig. 2.3.1 に示す。反射光強度変化 (Time-Resolved Reflectance signal \equiv TRR signal) 測定用の光源 (以下 Probe laser と記述) として、Pump laser と波長が異なり p 偏光連続光である He-Ne レーザー ($\lambda_{probe} = 632.8\text{nm}$, $\phi \approx 1\text{mm}$, Divergence (full angle for 86 % of energy): 0.79mrad , 強度 $\approx 7\text{mW(TEM}_{00})$) を採用した Pump laser 照射領域の中心に Probe laser 光を照射し、本論文 ‘2.1’ にて記述した光検出器 (Photo detector for Probe laser: 以下 ‘Probe detector’) をある一定角度に固定してその反射光強度時系列変化を検出する。Probe laser 光入射角は約 10° で実験を行った。この程度の入射角においては光学的物性値はほぼ垂直入射の場合と同じとなる (Yavas *et al.* 1994b)。また、Probe laser 光強度は約 5mW と Pump laser と比較して非常に弱く、Probe laser 照射による熱流体現象生起への寄与は無視出来る。Probe detector の光検出面の直前には、偏光板及び波長 550nm 以下の光を遮断する sharp-cut filter を設置し、Si 表面近傍での Pump laser 散乱光を除去する。反射光強度変化測定と同時に、別の光検出器 (Photo detector for Pump laser: 以下 ‘Pump detector’) を用いて Pump laser 光強度測定を行い、加熱エネルギーの評価及び Probe laser 反射光強度変化の履歴追跡の基準とする。

現象の観察は、高速度カメラを用いて撮影速度 $10,000,000\text{fps} \sim 20,000,000\text{fps}$ 、露光時間 20ns ($10,000,000\text{fps}$ の場合) 及び 10ns ($20,000,000\text{fps}$ の場合) により行い、Pump laser 照射後初期段階における表面近傍での現象を捉えた。光源にはキセノンランプを用いた。また、図中には省略しているが、実際には本実験系も液体金属加熱系と同じく Delay generator によりその時間系をコントロールし、また、液体水銀加熱時と同じく発生する衝撃波を PVDF 圧電素子により検出する。初期温度条件として Si - 水系、Si - 空気系ともに 300K とした。

2.3.2 実験結果

高速度撮影結果

従来の研究において報告例の無い、高速パルスレーザー加熱時の高速度撮影を行い、Pump laser 照射直後における Si 表面の様子を観察を行った。Fig. 2.3.2 に $F = 2.0 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の条件において (i) 水中加熱系 (図中左側)、(ii) 空気中加熱 (同右側) に関して Si 表面に対して水平方向から観察した結果を示す。図中の黒い板状のものが今回実験に用いた Si 基板で、厚さ 0.6mm である。撮影は (a) $10,000,000\text{fps}$ [exposure time: 20ns] (図中上部)、(b) $20,000,000\text{fps}$

[10ns] (同下部) の撮影速度で行った。まず(i)水中加熱の場合、(a)における結果より衝撃波は照射領域と同サイズの平面波面を持ち、水中での音速とほぼ同じである約 $1.5 \times 10^3 \text{m/s}$ の一定速度により伝播する(図中矢印)。発生時刻を逆算すると Pump laser 照射直後近傍に発生しているのがわかるが、この撮影速度では詳細な時刻特定は難しい。また、照射面からの衝撃波伝播にやや遅れて Si 基板背面からも衝撃波が発生しているのが観察される。更に時間的空間的に拡大して観察したのが(i)-(b)であるが、一定速度での伝播がより詳細に確認出来る。一方(ii)空気中加熱の場合においても、(a)に示した結果から、弱いながらも照射領域と同サイズの衝撃波が発生しているのが確認出来た(図中矢印)。伝播速度は約 $3 \times 10^2 \text{m/s}$ であり、やはり空気中における音速とほぼ同速度を持つ。この場合も衝撃波発生時刻は、Pump laser 光照射直後近傍であることが逆算より求められる。次に高エネルギー強度 F の Pump laser 光を照射した場合の現象観察結果を Fig. 2.3.3 に示す。水中加熱の場合を Fig. 2.3.3(i)に(図中左側)、空気中の場合を(ii)に(同右側)、また Pump laser 光強度に関し、 $F = 3.8 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合を(a)に(図中上部)、 $7.1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合を(b)に示す(同中部)。(i)水中加熱に関しては、Pump laser 光の空間的強度分布を反映して、発生する衝撃波の強度に差異は見られるものの、衝撃波の発生・伝播(図(i)-(a)、(i)-(b)中矢印)において定性的にほぼ同等の現象が見られる。特に衝撃波伝播速度に関しては、Fig. 2.3.2 の場合も併せて F に依らず一定で伝播している様子が分かる。一方、(ii)空気中加熱においては、 F 値を高くすると Fig. 2.3.2 の条件では観察出来なかった Si 自身の相変化が生起するようになる(図(ii)-(a)、(ii)-(b)中矢印)。シリコン蒸気の生成量に空間的分布が見られるが、これは Pump laser 光の空間的強度 Profile に依るものである。(ii)-(b) $F = 7.1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合には、Si 蒸気の成長速度は約 $3 \times 10^3 \text{m/s}$ にも達し、空気中の音速を遙かに超えている。この Si 蒸気は時間の経過により拡散し、その背後において衝撃波が伝播している様子が確認出来た(Fig. 2.3.3(ii)-(b2)(図中右下部))。

以上の高速度現象観察により、水中及び空気中加熱ともに高速加熱により衝撃波が発生する事、また、特に高 F 値による加熱においてはバルク相物質の特性によって誘起される現象が大きく異なる事が確認された。すなわち、当該時間オーダーにおいて高速加熱により誘起される流体挙動としては、バルク相物質の対流はほとんど見られず、バルク物質の慣性が支配的である事、及びバルク相物質の圧縮性により生じる衝撃波が主要な流体挙動となる事が確認された。

反射光強度変化測定例

実験は、現象の把握を明確にするために水中及び空気中において同加熱条件で行った。この反射光強度測定装置系により検出される Si - 水系、Si - 空気系における波形の例を、Pump laser 光検知開始時刻を $t = 0$ とし $F = 5.1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合について Pump laser 光の波形も併せて Fig. 2.3.4 に示す。ここで、本実験条件における反射光強度変化は Pump laser 光強度 F により定量的には変化するが定性的にほぼ同一と見なせる結果を得た事を付記して

おく．図中の上 2 つの波形が反射光強度変化を示し，上が Si - 空気系，2 番目が Si - 水系における波形である．

まず空気中加熱について波形変化を見る．空気中での加熱では，反射光強度は Pump laser 照射開始後増加し，その後次第に減少，約 200ns 後には加熱前と同強度 $Int_{0,Air}$ にまで回復する．この傾向は Jellison *et al.* (1986a)によるシリコン加熱の結果と一致する．この波形変化は以下のような物理過程により説明出来る．すなわち，加熱開始後の反射光強度上昇は，Si 温度上昇に伴う誘電率の変化によって反射率が上昇することに依る．その後 Si 内での温度拡散により Si 表面温度が下がり，それにより反射率が低下，ある程度時間が経ち温度が充分拡散して表面温度が初期温度に回復すると反射光強度が初期値に戻るといふ過程である．

反射光強度が最大となる時刻は，低 F 値領域においては F を増加するに従い遅くなり，高 F 値領域においては F に従い早くなる．この結果に関しては，水中加熱の場合も含めて ‘2.3.3’ において考察する．また，本実験条件中，Pump laser 光強度に関し $F > 8 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合においては，反射光強度は上昇後初期値 $Int_{0,Air}$ より低い値まで落ち，照射後 Si 表面性状の変化が肉眼でも確認出来る． $F < 8 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ では加熱前後の定常状態において反射光強度はほぼ同一であり，従ってその表面性状にほぼ変化は無いと見なせるであろう．以上のように，空気中での加熱において反射光強度変化は Si の温度変化に基づく反射率変化を示しているものと考えられる．

一方水中加熱においては，反射光強度が加熱開始後に上昇した後，急激に強度が落ち込み，初期値 $Int_{0,Wtr}$ 以下まで降下する．その後次第に反射光強度は初期値に向かって回復していき，数 ms 経過後に $Int_{0,Wtr}$ に戻る．空気中加熱と同様，波形変化を追跡していくと，まず加熱開始直後の反射光強度上昇は空気中の場合と同じく Si の温度上昇に伴う反射率増加によるものと考えられる．反射光強度の急激な降下は，水の相変化によって Si 表面に生成した半径 $R \approx \lambda_{probe} / 2\pi n_{liq} \equiv R_{Mie}$ (ここで， n_{liq} : 液体の屈折率) 程度の大きさまで成長した蒸気泡による Mie scattering (Siegel and Howell 1972) に起因するものと考えられ(Yavas *et al.* 1994, Yavas *et al.* 1997)，その後，曲率を有する衝撃波面による屈折及び Si 表面における成長した蒸気泡による散乱により強度降下が続く．また急激な降下後の反射光強度の回復は，衝撃波の通過後，Si 表面の蒸気泡の凝縮あるいは崩壊に伴い散乱が弱まり，完全に凝縮した段階で反射光強度が一定に落ち着く．ここで反射光強度の急激な降下に関して，従来は理論的考察により Mie scattering によるものとの考えが示されてきたが，Fig. 2.3.2 及び Fig. 2.3.3 に示した高速度撮影の結果から水中及び空気中ともに衝撃波が発生していること，Fig. 2.3.4 により，空気中加熱の場合水中加熱の際に見られた反射光強度の急激な降下が見られないことから，水中加熱系における反射高強度の急激な降下は発生する衝撃波に依るものではなく，Si 表面上における水の相変化に依るものである事が本研究により初めて観察結果を含めて確認された．Pump laser 強度 F が大きくなるに従い，反射光強度が降下後初期値近傍に回復するのにより長い時間がかかるが，これは F の増加に伴い蒸気泡成長速度及び生成量が増加すると考えられ，Probe laser 光の散乱が激しくなることに依ると思われる．また F

> $5.1 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ の領域においては、照射後 Si 表面を観察すると加熱領域の表面性状が変化しており、反射光強度は上昇・降下後に初期値 $Int_{0,Wtr}$ まで回復せず、初期値より低い値で一定値を取る。

2.3.3 考察

現象初期における反射光強度変化

次に加熱直後の反射光強度変化の様子をより詳細に見ていく。Fig. 2.3.5 に Fig. 2.3.4 の場合と同条件での波形の拡大図を示す。実際には Probe laser 光の波長に対して Si - 水系での表面における反射率の方が高い ($Int_{0,Wtr} > Int_{0,Air}$) のであるが、比較を容易にするために加熱前の反射光強度を Si - 水系での値に等しくなるよう offset し、 $Int_{0,Wtr} = Int_{0,Air} = Int_0$ として示している。

空气中加熱、水中加熱ともに、Pump detector による Pump laser 光検知後約 10ns (図中 t_{rise}) に反射光強度が上昇を開始している。また、空气中と水中において反射光強度降下履歴が全く異なるのがわかる。

ここで注目すべきは、両系において反射光強度上昇開始時刻及びその上昇率がほぼ同一である点である。これは両系での初期の温度変化履歴がほぼ同じオーダーであることを示していると考えられる。従ってナノ秒オーダーの伝熱においては、加熱に対してその境界条件はさほど支配的には効かないと考えられる。ただし、後述するがこの時間オーダーの高速加熱における Pump & Probe method による被加熱物質表面温度の評価は Pump laser 光強度 F が大きくなるに従い不確実性を増すため、注意が必要である。

さて、水中加熱における反射光強度変化履歴に関し、図中に t_{peak} として示している時刻から強度降下を開始する。すなわち、前述の通り半径 $R \geq R_{Mie} \approx 80\text{nm}$ のサイズを持つ蒸気泡による Probe laser 光散乱 (Mie scattering) が時刻 t_{peak} に開始するものと思われる。Pump & Probe method を採用した本実験系においては厳密な核生成開始時刻の決定は難しいが、核生成開始は $t_{rise} \sim t_{peak}$ 間に存在すると考えられる。

現象の実時間評価

次に現象履歴の正確な把握を行うために、Pump laser 光強度及び反射光強度を検知する際に測定装置系に起因して含まれる時間遅れを考慮する。ここで発生する時間遅れとして、Fig. 2.3.6(a) に概略的に示すように以下のものが考えられる。すなわち、Pump laser 及び Probe laser の光路飛行時間、光検出器内における時間遅れなどである。

いま Pump laser 光が Pump detector の光検出面の直前に到達する実時刻を $t = t_0$ とする。その後 Pump laser 光が Pump detector から被加熱物質である Si 表面に到達するまでの所要時間を $t_A = d_1 / c$ とおく。また Probe laser 光の Si 表面から Probe detector までの飛行時間を $t_B = d_2 / c$ とおく。ここで d_1, d_2 はそれぞれ Pump detector ~ Si 表面間距離、Si 表面 ~ Probe detector 間距離であり、 c は光速である。Pump detector は beam splitter のすぐ背後に位置しており、 t

= t_0 を Pump laser 光検出実時刻と見なす事が出来る．また，Pump detector 及び Probe detector において，光を検出面で検出してからオシロスコープに信号を送るまでの時間をそれぞれ Δ_A 及び Δ_B とおく．更に Pump laser 光照射開始から Si における温度変化開始までの時間遅れを τ_1 ，温度変化開始から光学的物性値変化開始までの時間遅れを τ_2 と仮定する．以上の仮定により，Fig. 2.3.6(b)に示す通り，Fig. 2.3.5 における t_{rise} ，すなわちデジタルオシロスコープにより表示される反射光強度変化開始時刻は $t_{rise} = (t_A + t_B) + (\Delta_B - \Delta_A) + (\tau_1 + \tau_2)$ と記述出来る．ここで $(t_A + t_B)$ は距離 d_1 及び d_2 の測定より評価出来る．また，光検出器による時間遅れ差 $(\Delta_B - \Delta_A)$ は，Fig. 2.3.6(a)において両検出器を光路中にある 2 つの beam splitter の背後に置き Pump laser 光を測定，更に両検出器の位置を入れ替えて再度測定し，2 つの beam splitter 間距離を測定することにより算出出来る．

このようにして評価した $(\tau_1 + \tau_2)$ 以外の時間遅れ $\text{time-lag} = (\Delta_B - \Delta_A) + (t_A + t_B)$ 及び，Fig. 2.3.5 に示した Si - 水系における t_{rise} ， t_{peak} の Pump laser 光強度に関する分布を Fig. 2.3.7 に示す．その結果， t_{rise} の分布と上記 $\text{time-lag} = (\Delta_B - \Delta_A) + (t_A + t_B)$ の分布はほぼ一致しており，従ってデジタルオシロスコープによる表示時刻 t_{rise} は Pump laser 光による Si 照射開始実時刻とほぼ等しい事がわかる．すなわち，時間 $(t_{peak} - t_{rise})$ は Pump laser 光による Si 照射開始から 80nm オーダーの蒸気泡生成までの実時間経過にほぼ相当する．また，空气中加熱の場合についても，Probe laser 反射光強度の上昇開始と Pump laser 光照射開始が対応する．ここで，本実験における測定系においては， $(\tau_1 + \tau_2)$ の詳細な評価を行うには分解能が充分でないことを示唆しておく．

図中の実線は ‘3.2’ に記述した 1 次元非定常放物型熱伝導方程式を Si - 水系に適用し，Si 表面温度が大気圧下での水の均質核生成温度の理論値 $T_{HN} \approx 576\text{K}$ に到達する時刻 t_{HN}^* を示している（‘4.1’ にて詳述）．数値計算結果によると，Pump laser 光強度 $F < 1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ においては表面温度が T_{HN} に達していない．また，前述の 80nm オーダー蒸気泡生成時刻の実験結果 $(t_{peak} - t_{rise})$ は $F > 1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ においては時刻 t_{HN}^* 以後に見られる．更に Si 表面温度が T_{HN} に達しない $F < 1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ においても Probe laser 光の散乱が生じている．以上の結果より Si 表面における水蒸気の核生成は T_{HN} 近傍あるいはそれ以下のある過熱温度において生起すると考えられる．しかしながら，前述の通り，時刻 $(t_{peak} - t_{rise})$ はあくまでもある大きさを持つ蒸気泡が Si 表面に現れた時刻を示しており，水の相変化が生起した時刻を示すものではないため，本実験結果によって正確な核生成時刻及び温度を導出するのは困難であると言わざるを得ない．実験的に正確な核生成温度及び核生成時刻を求めるには，高速加熱における表面温度のより高分解能な測定法が必要となり，今後の課題となる．

最後に，‘4.1’ に詳述する温度場の数値計算により求めた $t = t_{HN}^*$ における水側領域における過熱液層厚さ δ_l^* を Fig. 2.3.8 に示す．蒸気泡形成の初期においては，蒸気泡は過熱液層内で形成されると考えられ（e.g., van Stralen and Cole 1979, Carey 1992），従って核生成時における過熱液層厚さの把握は，蒸気泡の大きさの上限を与えることとなる．数値計算によると当該実験条件においては，時刻 $t = t_{HN}^*$ において数十 nm の過熱液層が形成されているこ

とになる．従って，この時刻で形成し得る最大蒸気泡半径は，壁面表面に半球形に生じるとすると数十 nm となり，前述した Probe laser 光に対する Mie scattering が生じる球半径の threshold, $R_{Mie} \approx 80\text{nm}$ とオーダーがほぼ一致している．

Probe laser 反射光強度変化と Pump laser 光強度 F の関係について

次に，Fig. 2.3.5 に示した，Pump laser 照射による Probe laser 反射光強度増加量 ΔI_{nt} に関して考察を行う．反射光強度は Pump & probe method の原理に基づくとその時刻における反射率を決定する被加熱物質の表面温度に対応し，水中加熱の場合には ΔI_{nt} は Probe laser 光散乱開始時刻における表面温度となる．しかしながら，高エネルギー照射の場合には ΔI_{nt} は常に表面温度そのものとの対応を示さなくなる．Fig. 2.3.9 (a)に F による反射光強度変化の様子（図中上部の曲線群）及び Pump laser 光波形を， $F = 1.0 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ ， $3.6 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ ， $9.7 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合について示す．また， ΔI_{nt} の F への依存性を，水中加熱の場合（図中 null marks）及び空气中加熱の場合（同 solid marks）を Fig. 2.3.9(b)に示す．図中には参考データとして Fig. 2.3.7 に示した水中加熱に関する実験結果 ($t_{peak} - t_{rise}$) に加えて，空气中加熱における反射光強度上昇開始から降下開始までの時間の測定結果も示している．

まず，(a)図について．反射光強度の上昇開始時刻は各 F 値においてほぼ一定であるが，上昇率（反射光強度変化の 1 次微分項）は F の増加に伴い一旦は増加するが高エネルギーになると再び下がりだす傾向が見られる．このような傾向は空气中加熱に関しても同様のものが見られ，バルク相の物質に依らず，Si のレーザー加熱の際に現れるものと考えられる．これは本実験系のように高エネルギーを極めて短時間に物質に照射した場合，被加熱物質内に急峻な温度分布が生じるためによるものと考えられる．電磁気学での波動の界面における反射は，接触する 2 体の複素屈折率の違いによってその反射率が決定するが，この場合各物体はそれぞれ一定の複素屈折率を有するとの仮定がある．すなわち各物体内に温度分布は存在しないとの仮定の下での反射を扱っている．本実験系においては，ナノ秒オーダーの時間内に nm オーダーの空間温度分布を誘起し，それに伴う急峻な光学物性値すなわち誘電率の分布が物体内に生じる．ここで誘電率の変化が反射率を決定するに十分な空間的スケールにおいてまで到達していなかったと仮定可能な場合，表面温度以下の代表温度により決定される反射率により波動の反射が起こることとなる，すなわち表面温度に対応する反射率と，ある誘電率の分布により決定する実反射率が異なってくる可能性が考えられる．これまでに温度分布の存在する系での波動の反射に関する過去の研究がほとんど無く，このような高速伝熱に付随する光学的物性の変化に関しては，各物質に関し今後更に研究が必要であると考えられる．

また，(b)により示す反射光強度降下開始までの強度変化分 ΔI_{nt} は図より明らかなように， ΔI_{nt} は水中加熱系・空气中加熱系とも $F \approx 3.3 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2 \equiv F^*$ に極大値を持つ分布をしており，図中 ($t_{peak} - t_{rise}$) もほぼ同様な傾向を示す．水中加熱においては Probe laser 光の散乱は前述の通り表面に生成する蒸気泡により決定されるため，(a)により示した反射率増加の表面

温度増加に対する時間遅れが存在すると考えると、表面がある温度に達し $R \approx R_{Mie}$ の蒸気泡が出現した瞬間に、反射率増加が時間遅れを含んだまま Probe laser 光は散乱され始めることになり、反射光強度の増加は低く見積もられる、と考えられる。また空気中加熱においては、Pump laser 光照射中は水中加熱の場合と同様、反射率増加が時間遅れを含んでおり、照射終了後温度が充分拡散する過程で反射率変化が表面温度に対応、そのまま温度拡散に伴い反射光強度が低下するものと考えられる。

以上の光学物性値の変化に関する仮定を考慮すると、水中加熱系に関し以下のように本実験結果を説明出来る。すなわち、 F は物質の加熱速度の大きさに対応し、 $F < F^*$ においては、 $R \approx R_{Mie}$ の蒸気泡出現時刻はほぼ一定、かつその時刻における表面温度は F に従い高くなる。 $F > F^*$ においては上記の通り光学物性値変化と表面温度変化との差が生じ、 $R \approx R_{Mie}$ の蒸気泡出現時刻は F に従い短くなる。また、Fig. 2.3.7 に示したように $F > F^*$ においては蒸気泡出現時刻 ($t_{peak} - t_{rise}$) と数値計算結果 t_{HN}^* がほとんど同じ勾配を有していることから、 $F > F^*$ における表面温度は $F = F^*$ における反射光強度降下開始時刻での蒸気泡出現温度とほぼ一定値となっていると考えられる。ただし、あくまで上記の仮定に基づくものであるので、繰り返しになるが高速伝熱における光学物性値変化に関する更なる知見蓄積が今後の課題である。

衝撃波発生

水中における Si 加熱によって生じる圧力値の実験結果 P_{max} を Pump laser 光強度 F に対し Fig. 2.3.10 に示す。ここで P_{max} は、Pump laser 光照射領域から約 9mm の位置に PVDF 圧電素子を固定して測定した圧力値を、水銀加熱の結果と同様、衝撃波の伝播を考慮して圧力発生点における値に外挿したものを示している。図中には $F < 3 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の領域における結果が示されていないが、これは発生圧力が PVDF 圧電素子の測定能力以下であるために外挿値を算出出来なかったことによる。実際には mirage effect を利用した測定により、結果を示していない低 F 値領域においても圧力波が発生しバルク液中を伝播していることを確認している(付録 3, Fig. A-3.2 参照)。また、図中には Fig. 2.3.7, Fig. 2.3.8 に示した Probe laser 光散乱開始時刻 ($t_{peak} - t_{rise}$) 及び数値計算による Si 表面温度が水の均質核生成温度に到達する時刻 t_{HN}^* 、更に数値計算により得られた時刻 $t = t_{HN}^*$ における水領域での過熱液層厚さ δ_l^* を示している。前述の通り、蒸気泡形成初期において蒸気泡は過熱液層内で形成されると考えられ(e.g., van Stralen and Cole 1979, Carey 1992)、また、液体中での高速加熱により誘起する圧力発生はバルク液体の急激な蒸気泡形成に依ること(Yavas *et al.* 1997, 本論文 '4' 冒頭でも記述)を考慮すると、高速伝熱場における熱流体挙動は、加熱開始後十数 ns の時刻でのたかだか厚さ数十 nm 程度の過熱液層の相変化が支配することとなる。図中には更に本論文 '4.2' にて示す衝撃波発生物理モデルによる Si - 水系での発生圧力予測値 P_{th} を示している。衝撃波に関する測定結果と物理モデルによる結果の比較・考察に関しては '4.2' に詳述する。

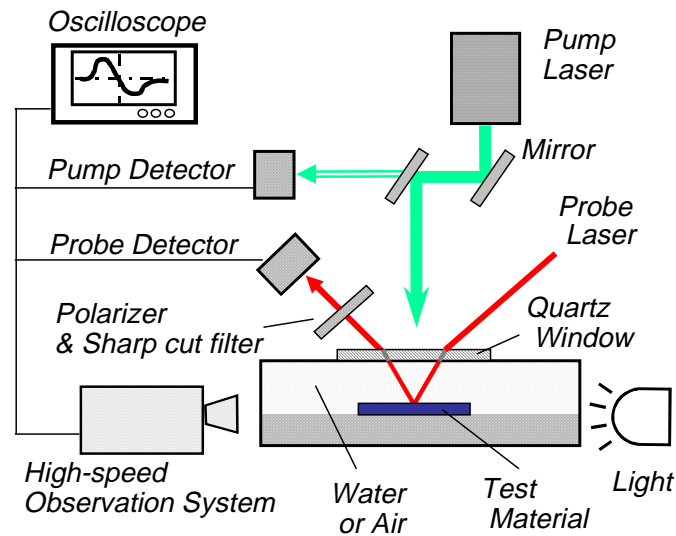


Fig. 2.3.1 Schematic layout of experimental apparatus for nanosecond pulsed laser heating of Si. For the sake of brevity the pressure transducer and delay generator which triggers all component of this system are omitted in the figure.

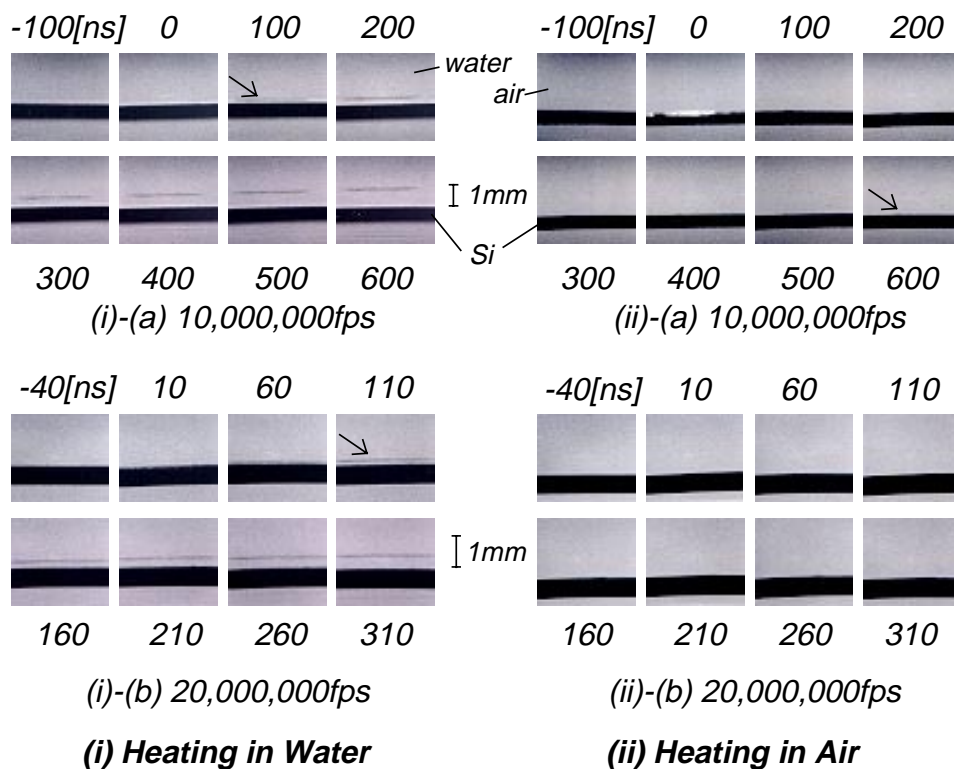


Fig. 2.3.2 Shock wave generation/propagation in heating of Si with $F = 2.0 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ in the case of (i) in water (on the left hand side) and (ii) in air (on the right) taken with frame speeds of (a) 10,000,000 fps [exposure time: 20ns] (on the top), (b) 20,000,000fps [10ns] (on the bottom). All photographs were taken with an angle parallel to the Si surface. Thickness of Si workpiece is 0.6mm.

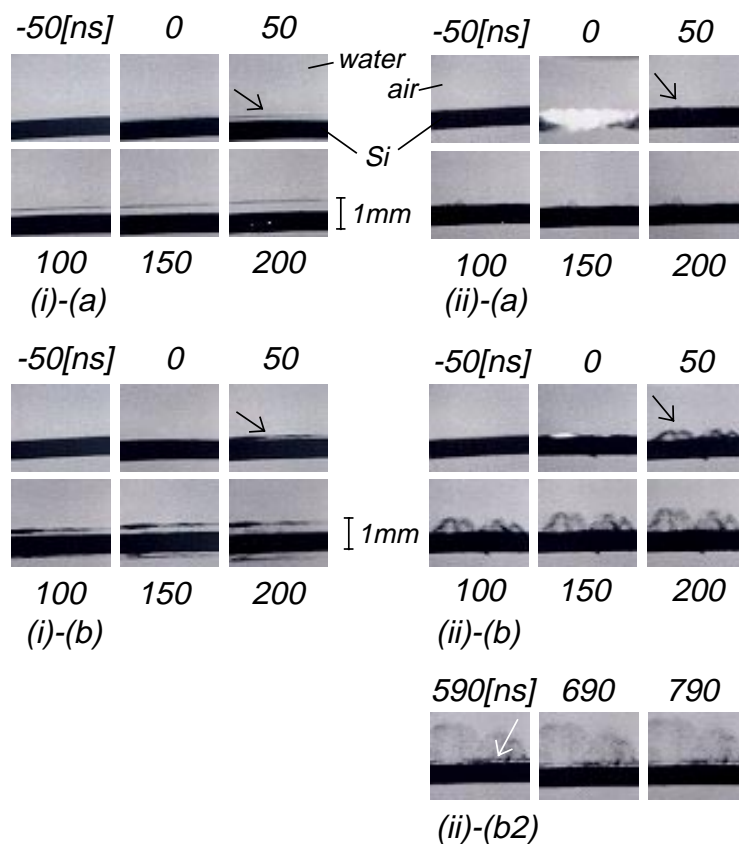


Fig. 2.3.3 Shock wave generation/propagation and Si vaporization in heating of Si in the case of (i) in water (on the left hand side) and (ii) in air (on the right) with the pump laser fluence $F =$ (a) $3.8 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ (on the top) and (b) $7.1 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ (middle) taken with frame speeds of 20,000,000fps [exposure time:10ns]. Arrows in (i)-(a) and (i)-(b) indicate the generated shock wave and those in (ii)-(a) and (ii)-(b) indicate the Si vapor. In (ii)-(b2) the later stage of induced phenomenon in the same case of (ii)-(b) Si-air system is shown. Arrow indicates the shock wave. All photographs were taken with an angle parallel to the heated Si surface.

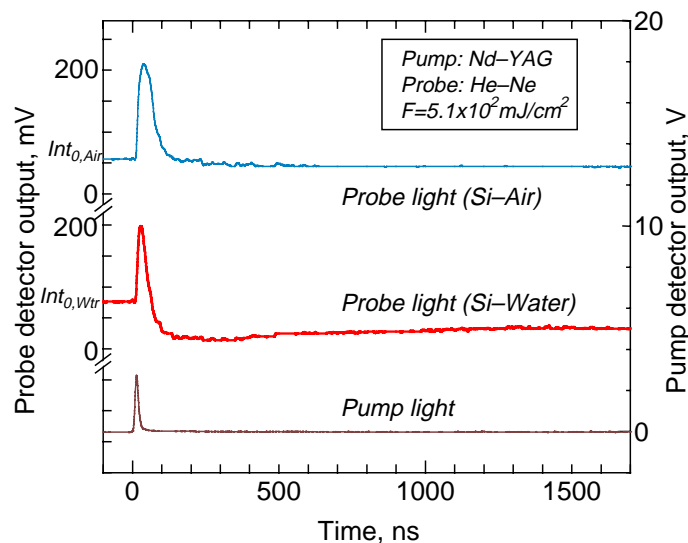


Fig. 2.3.4 Time-resolved reflectance (TRR) signals (top and middle) of probe laser in the case of heating with $F = 5.1 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$. Top curve and the middle indicate the cases of Si-air system and of Si-water system, respectively. The bottom shows the pump laser light profile.

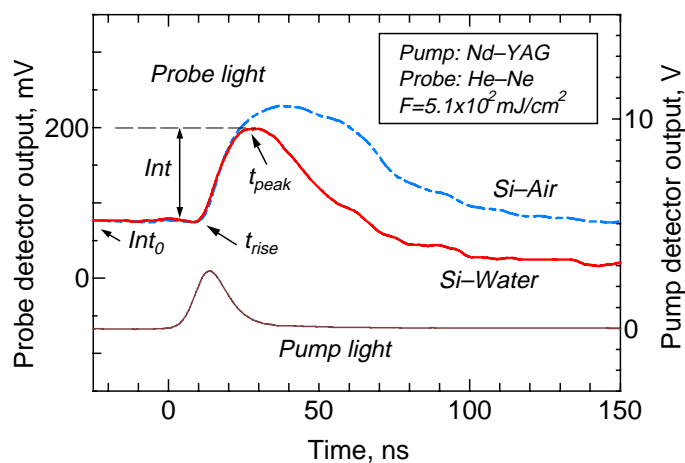


Fig. 2.3.5 Detail of reflectance signals in the same case of Fig. 2.3.4. Note that TRR signal detected in the Si-air system is offset to coincide with the preceding intensity in the Si-water system for the sake of convenience for comparison.

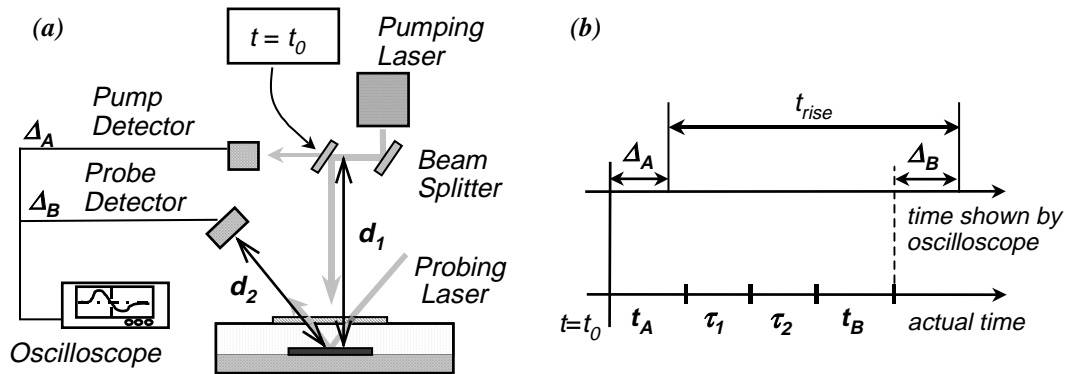


Fig. 2.3.6 (a) Schematic of time-lags due to light travels along the paths of pump laser and probe laser and those due to photo detectors. Δ_A and Δ_B indicate time-lags involved in pump detector and probe detector, respectively. (b) Estimation of time-lags involved in the measuring system. $t_A (=d_1/c)$ and $t_B (=d_2/c)$ are equivalent to flight time along d_1 and d_2 , respectively.

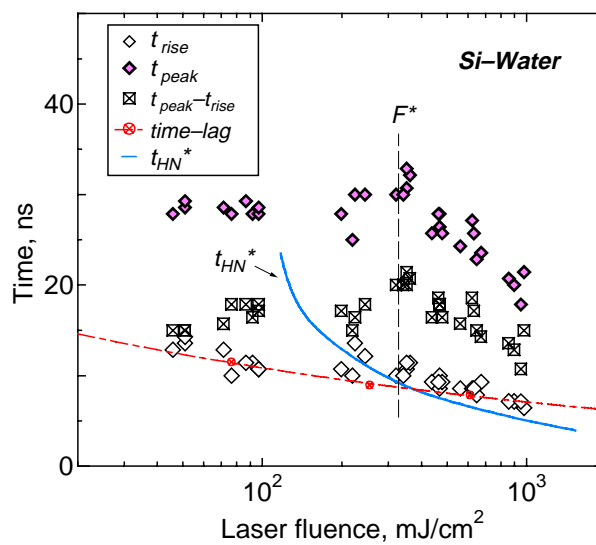


Fig. 2.3.7 Variations of t_{rise} (time when TRR signal rises), t_{peak} (time when TRR signal reaches maximum), $t_{peak} - t_{rise}$ and time-lag $(\Delta_B - \Delta_A) + (t_A + t_B)$ lied in the measuring system as shown in Fig. 2.3.6 in Si-water system. Solid line indicates the numerical results of time when Si surface temperature reaches T_{HN} of water, which is described in Chap. 4.

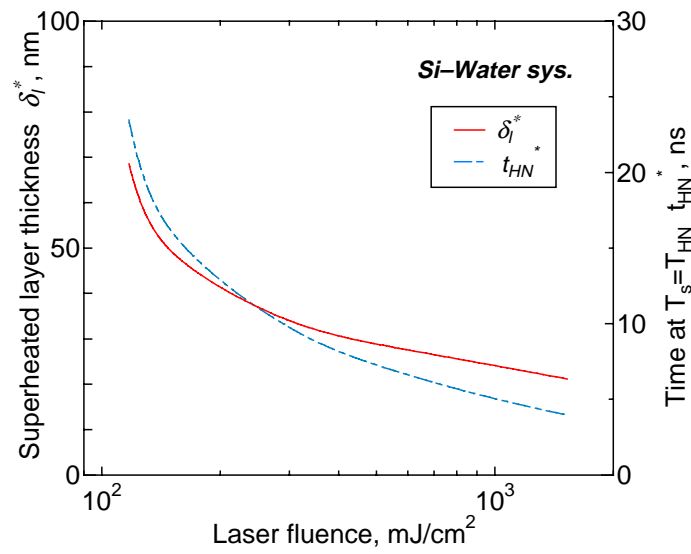


Fig. 2.3.8 Numerical result of superheated layer thickness δ_l^* in water region when Si surface temperature T_s reaches T_{HN} . In the figure numerical result of time, t_{HN}^* , when $T_s = T_{HN}$, which is shown in Fig. 2.3.7, is also plotted.

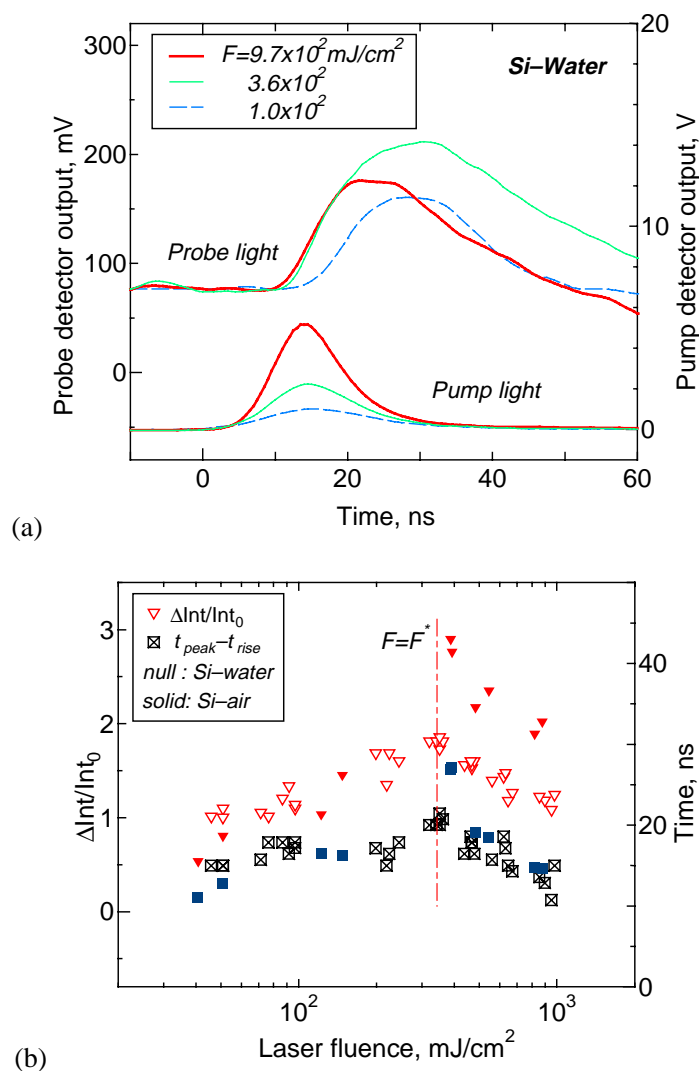


Fig. 2.3.9 (a) TRR signal increasing rate depending upon the pump laser fluence F in the case of Si-water system. In increasing of F , certain hysteresis lies in the dependency of TRR signal intensity increasing rate upon F . (b) TRR signal intensity increment, ΔInt , distribution versus the laser fluence F detected in Si-water system and Si-air system. Experimental results of time of ($t_{peak} - t_{rise}$) for both cases are also plotted. Null marks and solid ones indicate the results in Si-water system and in Si-air system, respectively. Almost the same tendency is observed in those distributions versus F .

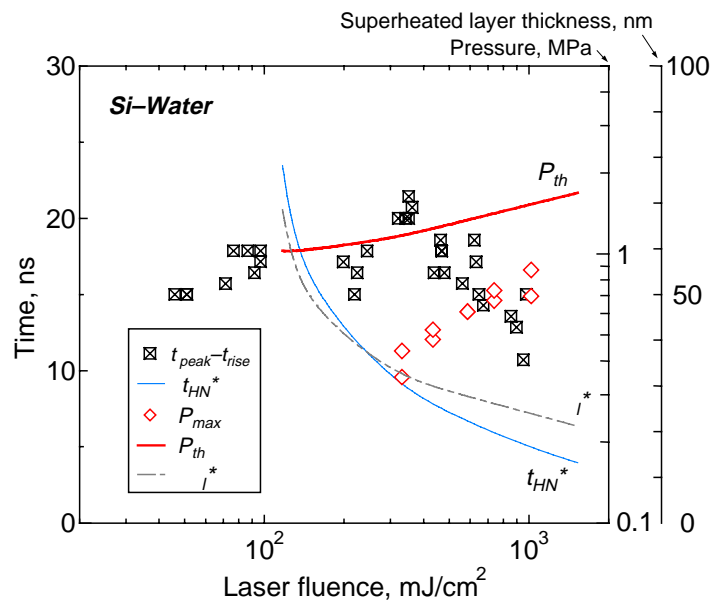


Fig. 2.3.10 Experimental results of pressure values which are extrapolated equivalent to be measured at the heated surface P_{max} , and numerical result of generated pressure P_{th} obtained from physical model which is described in Chap. 4 in detail. Experimental results of $(t_{peak} - t_{rise})$ and numerical nucleation time t_{HN}^* , as shown in Fig. 2.3.7 and Fig. 2.3.8 are also shown. In addition, numerical result of superheated layer thickness of water at surface temperature reaches T_{HN} of water, δ_l^* , is indicated.

3. ナノ秒パルス加熱における伝熱問題

ここでは、当該実験条件において生起する伝熱問題に関する考察を行う。考えられる伝熱の形態は、熱伝導・熱対流・放射・量子伝熱であるが、‘2.2’ 及び ‘2.3’ に示した液体金属加熱及び固体物質加熱の実験結果より対流伝熱は無視出来、また、放射は当該時間オーダーにおいてはその寄与は無視出来る。以下、熱伝導及び量子効果について、その寄与を考察する。

3.1 Fourier's law と非 Fourier 効果 (Non-Fourier effect)

いわゆる通常の時間オーダーにおける熱移動を記述する際に、ある時刻ある場所における熱流束 q はその時刻・場所の温度勾配 T に比例する事が知られている。これが Fourier's law であり、熱伝導率を λ として次のように記述出来る。

$$q(\mathbf{r}, t) = -\lambda \nabla T(\mathbf{r}, t) \quad (3.1.1)$$

Fourier's law により記述される熱流束を、温度場を記述する熱伝導方程式 (内部発熱: ω)

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot q = \omega \quad (3.1.2)$$

に代入したものを放物型熱伝導方程式 (Parabolic Heat Conduction Equation) と言い、下記の形となる。

$$\rho c \left(\frac{\partial T}{\partial t} \right) + \nabla \cdot (-\lambda \nabla T) = \omega \quad (3.1.3)$$

ここにおける温度 T は「電子温度」=「格子温度」の状態にある、いわゆる緩和した温度を示す。このような場合、現象の代表時間が電子-格子間相互作用における熱緩和時間より遙かに長く、熱の伝播速度が無限大と見なせる場合は Fourier's law が適用されることになる。

一方、現象代表時間が緩和時間に近づいた場合或いは緩和時間よりも短くなった場合には、有限の熱伝播速度を考慮しなければならなくなり、Fourier's law は破綻する。Fourier's law が破綻した際に生じる伝熱挙動を一般に「非 Fourier 効果 (Non-Fourier effect)」と呼ぶ。‘1.2.2’において Non-Fourier effect のモデルの一つである、電子温度場と格子温度場を別々に記述し結合定数 G によりそれぞれの温度場を結合するいわゆる ‘Two-step model’ を紹介したが、Non-Fourier effect に関する研究の歴史は古く、1940年代まで遡る。熱緩和時間 τ を考慮し、熱流束を以下のようにおいた (Cattaneo 1948, 1958)。

$$q(\mathbf{r}, t + \tau) = -\lambda \nabla T(\mathbf{r}, t) \quad (3.1.4)$$

ここで q を t に関して Taylor 展開し 2 次以上の微小項を無視すると、

$$q(\mathbf{r}, t) + \tau \frac{\partial q(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\lambda \nabla T(\mathbf{r}, t) \quad (3.1.5)$$

となる (Özisik and Tzou 1994, Bai and Lavine 1995)。これを Cattaneo's equation と呼び、この

方程式から得られる q を前述の熱伝導方程式 Eq. (3.1.2) に代入・整理したものを双曲型熱伝導方程式 (Hyperbolic Heat Conduction Equation) と呼ぶ。

$$\rho c \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \tau \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} \right) + \nabla \cdot (-\lambda \nabla T) = \omega + \tau \frac{\partial \omega}{\partial t} \quad (3.1.6)$$

以下，当該実験条件に前述した伝熱形態を適用し考察を行う。

3.2 ナノ秒オーダーの伝熱における Non-Fourier effect の寄与

3.2.1 数値計算モデル

熱緩和時間のオーダーとしては理論的に、代表的な金属で $\tau_{metal} \sim 10^{-14}$ [s] (Maurer 1969, Kumar and Vradis 1994), 液体で $\tau_{liquid} \sim 10^{-13}$ [s] (Nettleton 1960) であると言われている。本研究における代表時間 t^* と比較すると $t^* \gg \tau_{metal}, \tau_{liquid}$ ではあるが、高出力レーザー加熱の場合、熱伝導方程式における発熱項 ω の時間微分項の寄与 (Eq. (3.1.6): 右辺第 2 項), または、2 体接触問題における過去の Non-Fourier effect に関する研究において、界面における熱流束が 10^{11}W/m^2 を越えると Non-Fourier effect が顕著になるとの報告 (Maurer and Thompson 1973) があることから、ここで本研究における実験条件での伝熱挙動に関して、Fourier's law と Non-Fourier effect の寄与度を考察する。

考察する対象は、[1]放物型熱伝導方程式 (Eq.(3.1.3)), [2]双曲型熱伝導方程式 (Eq.(3.1.6)), 及び[3]電子 - 格子結合型温度拡散方程式、すなわち Two-Step model (Eq.(1.2.1)) である。被加熱金属として、熱緩和時間など物性値に関し広く研究が行われている金 (Au) を用い、Fig. 3.2.1(a)に示す系において 1 次元非定常熱伝導問題を考える。すなわち、被加熱物質 (Au) とバルク物質 (水) が接触している系において、バルク物質側から加熱用レーザー (Pump laser) を照射する。

ここで、[2]における熱緩和時間は、Au に対して $\tau_{metal} = 3.0 \times 10^{-14}$ 秒 (Kumar and Vradis 1994), 水に対しては物性値として文献には出ていないが、上記 Nettleton(1960)を元に $\tau_{liquid} = 1.0 \times 10^{-13}$ 秒と仮定した。また[3]における電子 - 格子間相互作用結合定数 G [W/m³K]は、今回の研究では室温下での物質加熱であることから、Qiu and Tien (1992,1993a)らによる、自由電子近似モデル

$$G = \frac{\pi^2 m_e n_e v^2}{6 \tau(T_e) T_e}$$

ここで、 $\tau(T_e)$ [s]: 温度 T_e における電子の平均自由時間, m_e [kg]: 電子質量, n_e [m⁻³]: 電子数密度, v [m/s]: 音速。

に対して Wiedemann-Franz's law を適用した形である、

$$G = \frac{\pi^4 (n_e v k_B)^2}{18 \lambda_e}$$

ここで、 k_B [J/K]: Boltzmann's constant, λ_e [W/m K]: 電子の熱伝導率。

を用いる。 n_e 及び v に関しては、Kittel (1996) に依った。

また、最近の研究においては、 10^{10}W/cm^2 を越える高エネルギー可視光レーザーに対して水によるエネルギー吸収が無視できなくなるとの報告がある (Longtin and Tien 1997) が、本研究においてはその領域にまで達していないため、バルク水層は Pump laser 光に対して透明であると仮定する。すなわち Pump laser 光は被加熱物質によってのみ吸収されるものとし、

被加熱物質と接触している水または空気は被加熱物質からの熱伝導のみによって加熱される．よって内部発熱項 ω は被加熱金属における熱伝導方程式にのみ現れる．更に単位時間あたりの Pump laser 光強度 $I(t)$ [W/m^2] は被加熱物質内において指数関数的に減衰するとし (Beer's law) , 減衰の度合いを表す係数である吸収係数 (absorption coefficient) κ は光学物性値である消衰係数 k (extinction coefficient) を用いて

$$\kappa = \frac{4\pi k}{\lambda}$$

ここで, λ [m]: Pump laser 波長 .

と表せるとする (van de Hulst 1957) .

表面での反射率を R とすると内部発熱項は以下のように記述できる .

$$\begin{aligned} \omega(x,t) &= I(t) \cdot (1-R) \kappa \exp(-\kappa x) && \text{in liquid metal or solid material} \\ \omega(x,t) &= 0 && \text{in water or air} \end{aligned} \quad (3.2.1)$$

また, 被加熱物質に関しては当該レーザーパルスの総エネルギーを F [J/m^2] とすると,

$$F = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt = \int_0^{t_l} I(t) dt .$$

ここで単位時間あたりの Pump laser 光強度 $I(t)$ に関しては, 光検出器 ('2.1' にて詳述) で測定した結果を用いて, 簡単のため, 時間的プロファイルを三角形で近似したものを採用する . Fig. 3.2.1(b) に測定結果と近似した強度プロファイルを示す . 単位時間あたりのレーザー光強度 I が最大になる時刻を t_p , I がゼロになる時刻を t_l とすると次のように記述出来る .

$$\begin{aligned} I(t) &= \frac{2F}{t_l t_p} t && : 0 \leq t \leq t_p \\ &= \frac{2F}{t_l (t_l - t_p)} (t_l - t) && : t_p \leq t \leq t_l \\ &= 0 && : t_l \leq t \end{aligned} \quad (3.2.2)$$

実験結果との比較により以下の数値計算においては $t_p = 10\text{ns}$, $t_l = 26\text{ns}$ とし, 従ってパルス幅 (FWHM) は 13ns となる .

また, 2 体接触界面での温度移動において時間遅れは存在しないと仮定し, 境界条件として 2 体の表面温度は等しくかつ熱流束一定とした .

3.2.2 計算結果

Fourier's law を適用した放物型熱伝導方程式, 熱緩和時間を考慮した Cattaneo's eq. を適用した双曲型熱伝導方程式, 及び電子 - 格子間相互作用を考慮した Two-step model に対し, Au - 水系において当該実験条件における数値計算を行った . 初期温度を $T = 300\text{K}$ とし, 光学物性値は当該実験条件における Pump laser 光波長 $\lambda_{\text{pump}} = 532\text{nm}$ に対し, λ_{pump} 近傍の波長

における値(Palik(*ed.*) 1985)から内挿し, $k = 2.186$, $R = 0.64$ を用いた. Fig.3.2.2 に温度場の例として $F = 1.5 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ により加熱した場合での, 時刻(a) $t = 50 \text{ ps}$, (b) $t = 50 \text{ ps}$, 5 ns , 10 ns における温度分布を示す. ここで図中 $x = 0$ が Au - 水界面位置であり, $x < 0$ 領域が Au 側となる. (a) 50 ps においては放物型と双曲型でほとんど一致した分布を示しており, Two-step model による Au の lattice 温度は界面近傍では前者 2 つの結果より低い値を示している. しかし温度浸透厚さは Two-step model による結果の方が大きくなっているのが特徴である. 50 ps という時間オーダーにおいて既に双曲型と放物型の結果がほぼ一致していることから, 熱緩和は十分に生じており, また当該実験条件における加熱レーザー強度の領域では, Eq. (3.1.6) 右辺第 2 項に示される内部発熱項の時間微分項 $\tau(\partial\omega/\partial t)$ の寄与も極めて小さいとの結果が得られた. Two-step model での electron 温度は, その温度変化が放物型, 双曲型の約 2 倍となっているが, (b) で示すように時間の経過に従いほぼ一致する方向に近づいていく. ナノ秒オーダーに至ると 3 者の結果はほとんど一致する傾向が見られ, 加熱開始後初期に見られた温度浸透厚さの差異も消失している. ただし, この時刻では依然 Pump laser 光による加熱が続いているため Two-step model における lattice 温度は electron 温度と若干の差が見られる. 次に水の相変化が生じないとの仮定の下, 各モデルにおいて Au 表面温度がある温度(水の均質核生成温度 $T_{HN} \approx 576 \text{ K}$) に到達する時刻 t_{HN}^* を Fig. 3.2.3 に示す. Two-step model に関しては界面の lattice 温度を用いた. 前述の通り, 放物型(図中 'Fourier')の結果と双曲型(同 'Hyperbolic')の結果はほぼ一致しており, Two-step model による結果に数百 ps 程度の遅れが見られた. 以上の計算に関し, 水の緩和時間として $\tau_{liquid} = 1.0 \times 10^{-12}$ 秒及び 1.0×10^{-11} 秒を用いて計算を行ったが, 結果にほとんど差異が見られなかった事を付記しておく. また, Pump laser 光に対する吸収係数の温度変化に関連して計算を行っているが, その結果及び考察は '4.2' において詳述する.

以上のように, 当該現象代表時間オーダー及び Pump laser 強度に関しては, 高速加熱中ほぼ十分に熱的に緩和している状態であると考えられ, 従来の Fourier's law を適用し得ると考えられる. しかしながら, 従来の研究において屈折率や消衰係数など光学物性値の温度依存性はほとんど報告されていないことから, 本計算モデルでは被加熱物質表面における反射率を一定としており, 現実の温度上昇に伴う反射率増加は反映していない. ただし, 消衰係数変化の温度場への寄与に関しては, 第 4 章において記述する. また一方で, 高エネルギー照射時には光子の吸収及び反射に寄与する被加熱物質側の電子密度の不足による反射率の低下という状況が生起する可能性があり, より詳細な伝熱を把握する上で電子 - 光子間相互作用及びそれによる光学物性値の変化特性の理解が必要不可欠な要素となるであろう.

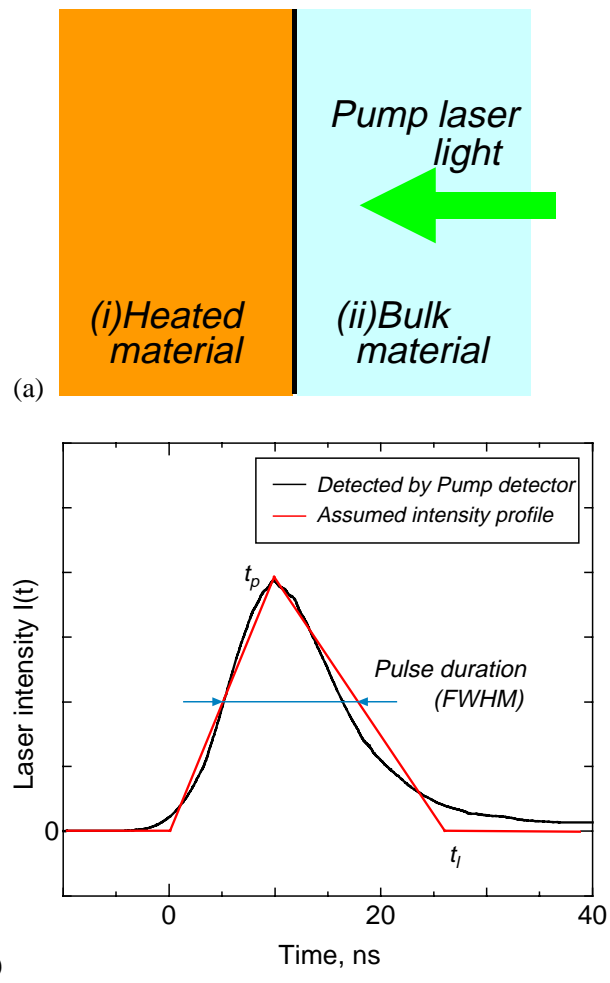


Fig. 3.2.1 (a) Schematic of the system for numerical calculations of 1-D heat conduction problem. (b) Pump laser intensity profile measured by Pump detector (black line) and assumed laser intensity profile for numerical model (red). Pulse duration is assumed 13 ns FWHM.

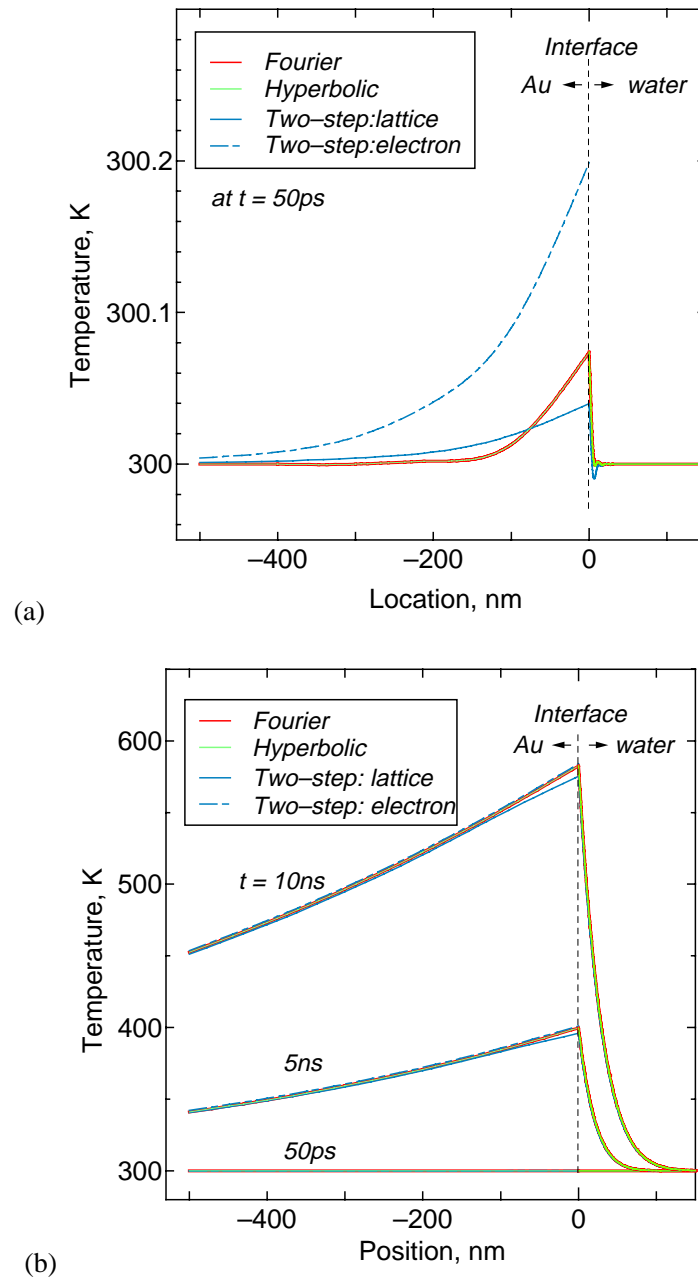


Fig. 3.2.2 Numerical results of 1-D heat conduction problem, in heating with $F = 1.5 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$, consisted of Fourier's law (Parabolic heat conduction eq.), Hyperbolic heat conduction eq. and Two-step model in Au-water system. Position $x = 0$ is equivalent to the interface of Au and water. (a) Temperature distributions at $t = 50$ ps. (b) Temperature distributions at 50ps, 5ns and 10ns.

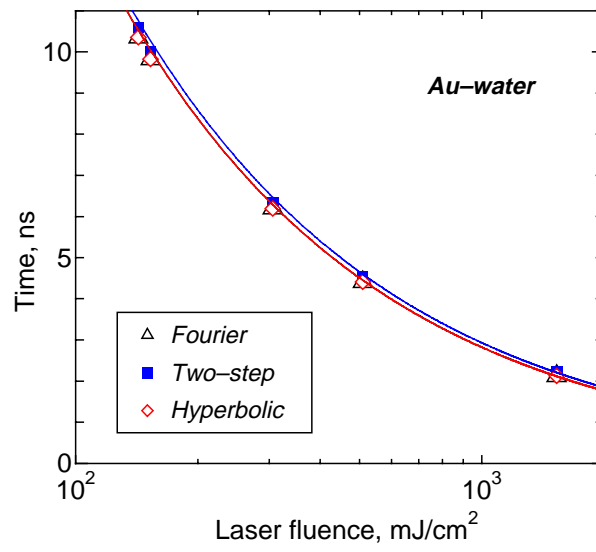


Fig. 3.2.3 Numerical results of the time when Au surface temperature reaches the homogeneous nucleation temperature T_{HN} of water under the atmospheric pressure. Noted that the results in the cases of Fourier's law and of Hyperbolic heat conduction eq. are almost equivalent.

4. 熱流体现象物理モデル

高速高エネルギー加熱により誘起される現象の重要な要素として衝撃波の発生が挙げられる。通常のゆっくりした沸騰現象では対流が生じるため問題にならないが、現象における時間オーダーが短くなればなるほどバルク相の慣性及び圧縮性が支配的になり衝撃波が生じる。ここでは高速伝熱に付随する熱流体挙動の物理機構について考察し、その物理モデルを提案する。

液体中における物質の高速加熱により衝撃波が発生する事実は、‘1.2’にも述べた通り過去の研究によりいくつか報告されており、バルク液体が相変化し得るエネルギーを急激に加えた場合、過熱状態のバルク液体が相変化することにより衝撃波が発生する (Shoji *et al.* 1995, 庄司ら 1996, Ueno *et al.* 1997b), また、圧力発生はバルク液体の相変化に支配され、被加熱物質の熱膨張の寄与は非常に小さいとの報告 (Yavas *et al.* 1997) がされている。ここでも、バルク液体の急激な相変化により衝撃波が発生するとの基本機構を考え、その定量的な評価を行う。そのために以下、温度場の記述、相変化の基準すなわち核生成温度に関する考察及び衝撃波の発生・伝播に関するモデル化を行う。

4.1 物理モデル

4.1.1 温度場の記述

東京大学グループにおける過去の圧力発生モデルにおける温度場の記述は、1次元熱伝導方程式において2体接触界面温度上昇率一定の境界条件を用いるもの(電気加熱系: Shoji *et al.* 1995, 庄司ら 1996), 同じく界面熱流束一定のもの(レーザー加熱系: Ueno *et al.* 1997b)であった。しかし‘3.2’に詳述した通り、レーザー加熱系において温度場は時空間分布を持つ内部発熱項 $\omega(x,t)$ を含む非線形熱伝導方程式により記述される。従って数学的に温度場の解を求めるのは非常に困難となるため、ここでは数値的に温度場を解き圧力発生モデルに組み込む。また本研究における現象の時間オーダー及び入射エネルギー強度 (Pump laser 光強度) に関しては放物型及び双曲型熱伝導方程式あるいは Two-step model による温度場の記述はほぼ一致することから(‘3.2’参照), 初期温度条件を $T_{\zeta} = T_{wtr} = T_0$ とおいて (ζ : heated material, Hg or Si) 下記の放物型熱伝導方程式を採用する。また、被加熱物質及びバルク液体層 (水層) における相変化は生起しないと仮定している。

$$(\rho c_p)_{\zeta} \frac{\partial T_{\zeta}}{\partial t} + \frac{\partial q_{\zeta}}{\partial x} = \omega(t, x) \quad \text{in heated material}$$

$$(\rho c_p)_{wtr} \frac{\partial T_{wtr}}{\partial t} + \frac{\partial q_{wtr}}{\partial x} = 0 \quad \text{in water}$$

$$q_{\zeta} = -\lambda_{\zeta} \frac{\partial T_{\zeta}}{\partial x}$$

ここで，添字 ζ 及び W_{tr} はそれぞれ被加熱物質領域，水領域を表し， ξ は添字 ζ 及び W_{tr} を示す．内部発熱項 ω 及び ω 中の単位時間当たりのレーザー強度 $I(t)$ に関しては本論文‘3.2’における記述 Eqs. (3.2.1), (3.2.2)と同様のものを使い，反射率 R 及び吸収係数 κ は室温における Hg (Palik(ed.) 1991)または Si の物性値(Palik(ed.) 1985)を用いる．

4.1.2 核生成温度に関する考察

バルク液体の急激な相変化により支配される圧力発生の理論モデルにおいては，相変化温度すなわち核生成温度 T_{Nu} の決定が不可欠である．従来の圧力発生理論モデルとしては，水中における細線加熱の際の圧力発生に関して，発生圧力が表面温度上昇率に依存するモデル (Shoji *et al.* 1995, 庄司ら 1996)，また水中での金属箔パルスレーザー加熱系において界面熱流束一定の境界条件を用いて発生圧力が界面熱流束に依存するという数学的モデル (Ueno *et al.* 1997b)が挙げられ，ともに実験結果に基づき，細線表面温度がバルク液体（水）の均質核生成温度 T_{HN} に達した瞬間に相変化が起こると仮定している．

また，物質の水中マイクロ秒パルス加熱の際に生じる，被加熱物質表面近傍のバルク液体中に温度場が存在する系における不均質核生成問題に関する理論的実験的研究が Asai (1991)により行われ，核生成温度に関する理論モデルが提案された．ここで Asai 理論を当該ナノ秒パルス加熱問題に適用し核生成温度を算出する．Asai 理論は従来一様温度場で記述されていた均質核生成及び不均質核生成問題を温度勾配の存在する系に拡張したものである．従来の均質核生成及び不均質核生成においては，核生成頻度 J [$\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$]によってその度合いが記述される(Carey 1992)．

$$J_{Homo}(T) = N_l \left(\frac{3\sigma_l(T)}{\pi m_l} \right)^{\frac{1}{2}} \exp[G(T)] \quad \text{Homogeneous nucleation}$$

$$J_{Hetero}(T, \theta) = N_l^{\frac{2}{3}} \varphi \left(\frac{3\sigma_l(T)}{\pi m_l \phi} \right)^{\frac{1}{2}} \exp[\phi G(T)] \quad \text{Heterogeneous nucleation}$$

(4.1.1)

ここで，

$$G(T) = -\frac{16\pi\sigma_l(T)^3}{3k_B T (p_v(T) - p_\infty)^2}$$

$$p_v(T) = p_{sat}(T) \exp\left[\frac{p_{sat}(T) - p_\infty}{N_l k_B T} \right]$$

$$\phi \equiv \frac{2 + 3 \cos \theta - \cos^3 \theta}{4}$$

$$\varphi \equiv \frac{1 + \cos \theta}{2}$$

であり， N_l [m^{-3}]：液体分子数密度， m_l [kg]：液体分子質量， $p_{sat}(T)$ [Pa]：温度 T における飽

和圧力, $p_v(T)$ [Pa] : 蒸気相圧力, p_∞ [Pa] : 系圧力, $\sigma_l(T)$ [N/m] : 表面張力, θ [rad] : 接触角, k_B [J/K] : Boltzmann's constant .

Asai は金属箔の電気加熱による高速伝熱において, 伝熱面の法線方向に1次元の温度場を仮定し, 核生成頻度を空間的に積分することで, 場における全空間核生成頻度 $K(t)$ を算出 (Eq. (4.1.2)), 加熱面近傍の温度場を次のように1次近似 (Eq. (4.1.3)) して上記 $G(T) = G(T(z,t))$ 及び $J_{Homo}(T) = J_{Homo}(T(z,t))$ を伝熱面表面温度 $T_w(t)$ により展開した .

$$K(t) = \int_0^\infty J_{Homo}(T(z,t)) dz + J_{Hetero}(T_w, \theta) - J_{Hetero}(T_w, 0) \quad (4.1.2)$$

$$T(z,t) = T_w(t) - \frac{q_w(t)z}{\lambda_l} \quad (4.1.3)$$

$$G(T(z,t)) \approx G(T_w(t)) - \frac{G'(T_w(t)) \cdot q_w(t)z}{\lambda_l}$$

$$J_{Homo}(T(z,t)) \approx J_{Homo}(T_w(t)) \exp\left[-\frac{q_w(t)G'(T_w(t))z}{\lambda_l}\right]$$

ここで伝熱面が平面でかつ接触角に関し $\theta < \pi/2$ ならば J_{Homo} が支配的になることを用いて, $K(t)$ に関し近似式 Eq. (4.1.4) を得た .

$$K(t) = \frac{\lambda_l J_{Homo}(T_w(t))}{q_w(t)G'(T_w(t))} \quad (4.1.4)$$

更に時刻 t_g 近傍での表面温度を次のように線形近似し (Eq. (4.1.5)), $G(T_w(t))$ を T_g の周りで展開すると $K(t)$ は更に次のように近似される (Eq. (4.1.6)) .

$$\begin{aligned} T_w(t) &= T_g + T_w(t_g) \cdot (t - t_g) \\ T_g &= T_w(t_g) \end{aligned} \quad (4.1.5)$$

$$K(t) = \frac{\lambda_l J_{Homo}(T_g)}{q_w(t_g)G'(T_g)} \exp\left[G'(T_g)T_w(t_g) \cdot (t - t_g)\right] \quad (4.1.6)$$

ここで時刻 t_g を次のように選ぶと t_g が核生成時刻, T_g が核生成温度となる . すなわち, 核生成時刻及び核生成温度を決定する方程式が Eq. (4.1.7) で示される .

$$\frac{S_h \lambda_l J_{Homo}(T_g)}{q_w(t_g) T_w(t_g) G'(T_g)^2} = 1 \quad (4.1.7)$$

ここで S_h : 伝熱面面積 .

温度算出に必要な温度場に関する情報 (界面熱流束及び表面温度上昇速度) は, 本論文 '4.1.1' に示した1次元放物型熱伝導方程式により記述される温度場を数値的に解いた値を用いた . Fig. 4.1.1 に Asai 理論を Si - 水系に適用した結果 $T_{Nu,Asai} = T_g$ 及び, 表面温度が $T_{Nu,Asai}$ に到達する時刻 $t_{Nu,Asai} = t_g$ を示す . また図中には従来の熱力学により求められる均質核生成温度 $T_{HN,12}$ (核生成頻度 $J = 1 \times 10^{12} [\text{m}^{-3}\text{s}^{-1}]$ における温度) 及び当該ナノ秒レーザー加熱におい

て Si 表面温度が $T_{HN,12}$ に達する時刻の数値計算結果 t_{HN}^* を示す。Asai 理論によると、ナノ秒パルス加熱を実現する当該実験系においては、核生成温度 T_{Nu} は、当該実験条件における比較的高い Pump laser 光強度領域では $T_{HN,12}$ より約 10K 高い値になるが、 $F < 1 \times 10^2 \text{ mJ/cm}^2$ の低エネルギー入力の場合、核生成条件を満足せず核生成は生起しないとの結果が得られ理論は破綻する。また、核生成が生起する F 領域においては、核生成時間 $t_{Nu,Asai}$ は表面温度が $T_{HN,12}$ に達する時刻 t_{HN}^* とほぼ一致しており、このような高エネルギー入射系では 10K 程度の核生成温度の差異は核生成時刻には顕著な影響は与えない。

4.1.3 衝撃波の発生及び伝播

本論文 ‘2.3.3’ に記述した通り、本研究における Si - 水系レーザー加熱実験において Si 表面での核生成は水の均質核生成温度 T_{HN} 近傍のある過熱温度で核生成が開始、特に本実験条件での低 Pump laser 光強度では T_{HN} より低い過熱状態にて核生成が開始しているとの結果を得た。しかしながら、実験結果の記述において述べた通り、本実験系により得られるデータはある大きさの蒸気泡が形成される時刻を表すものであり核生成時刻そのものではないこと、また、上述の Asai 理論についての考察の際に述べた通り、10K 程度の温度差であればナノ秒オーダーの核生成時刻にはそれほど大きな影響が無いことから、ここでは被加熱物質の表面温度が水の均質核生成温度に到達した時点で瞬間的に自発的相変化が生じるとの仮定を用いる。

温度場、核生成における仮定も含めて、本モデルにおける圧力発生及び伝播に関する仮定を Fig. 4.1.2 及び以下に示す。

- [1] バルク水領域は Pump laser 光に対して透明であり、従って水領域は Pump laser により加熱された被加熱物質（この場合 Hg 及び Si）からの熱伝導により加熱される。また、被加熱物質は当該時間領域においては界面挙動及び相変化は生起しない。
- [2] 被加熱物質表面温度が水の均質核生成温度 $T_{HN} = T_{HN,12}$ に到達した瞬間に、水の過熱領域（過熱層厚さ δ_i^* ）が瞬間的に相変化する。
- [3] 相変化に費やされる熱量は、水が相変化するまでに過熱状態で蓄えられたエネルギーに等しい。
- [4] 過熱液層は極めて不安定な状態で維持されており、従って相変化は瞬時に生起する。
- [5] 初期蒸気層の厚さは相変化の瞬間の過熱液層厚さに等しい。また、蒸気層内の温度・圧力は一様であり、温度はその圧力における飽和温度とする。
- [6] 衝撃波は Mach k ($k: \text{const.}$) で伝播し、また衝撃波の厚さは無視出来るとする。衝撃波面（位置 $x = l$ ）～ 蒸気 - 水界面間に存在する液体は圧縮状態にあり、一様速度 u によって移動する。また、圧縮液体の圧力は蒸気層の圧力と等しいとし、状態は Tait の式（高山(編) 1995)により記述されるとする。

以上の仮定を基に、圧縮液体領域に関し質量保存・運動量保存・エネルギー保存各式及び状態方程式を記述する。

(a) 質量保存式

瞬時に発生した蒸気層において、微小時間 Δt の間にその厚さが $\Delta\delta_v$ だけ増加したとすると、質量保存は以下のように記述される。

$$\rho_l(p)\Delta\delta_v - \rho_v(p)\Delta\delta_v = \rho_l(p) \cdot u\Delta t.$$

この式より、微小時間の極限を取ると

$$u = \left(1 - \frac{\rho_v(p)}{\rho_l(p)}\right) \frac{d\delta_v}{dt} \quad (4.1.8)$$

が得られる。ここで ρ_l 及び ρ_v はそれぞれ圧縮液体領域及び蒸気領域の密度を、 p は蒸気層及び圧縮液体領域の圧力を表す。

(b) 運動量保存式

1次元非粘性圧縮性流体の運動量保存の式は以下のように記述出来る。

$$\frac{\partial(\rho_l(p)u)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_l(p)u^2)}{\partial x} = -\frac{dp}{dx}.$$

この式を圧縮液体領域 $[\delta_v, l]$ について積分すると以下の式を得る。

$$\rho_l(p) \cdot u \left(k \cdot a - \frac{d\delta_v}{dt} \right) = p - p_\infty \quad (4.1.9)$$

ここで l は衝撃波面の位置（被加熱物質表面位置を $x=0$ とおく）を、 a は室温・大気圧での水中における音速を表し、 k は本実験結果に基づき、Hg 加熱の場合は $k=1.1$ 、Si 加熱の場合は $k=1.0$ の一定値を取るとする。

(c) エネルギー保存式

被加熱物質表面温度が T_{HN} に到達した瞬間の水領域における温度分布を、‘4.1.1’ に記述した通り放物型熱伝導方程式を Hg - 水系及び Si - 水系に適用して求める。次に仮定 [2] より、加熱開始後から蒸気層形成までの瞬間（ $t=t_{HN}^*$ ）までに過熱液層に蓄えられる熱量は次のように表せる。

$$\Delta Q = \int_0^{\delta_v^*} \rho_l c_p (T(t_{HN}^*, x) - T_{sat}) dx \quad (4.1.10).$$

一方、仮定 [3] より、過熱液層が相変化する際に消費する熱量は

$$\Delta Q = \rho_{l,\infty} h_{fg}^* \delta_v \quad (4.1.11)$$

となる。ここで h_{fg}^* は平均蒸発潜熱として $h_{fg}^* = (h_{fg,\infty} + h_{fg}(p))/2$ と定義する値である。また、相変化の瞬間においては、蒸気層厚さ δ_v は $t=t_{HN}^*$ における過熱水領域厚さ δ_v^* に等しい。バルク液層の初期温度条件（サブクール度）による影響は Eq. (4.1.10) に現れる。すなわち初期条件として液温があるサブクール度を持っていた場合、その初期温度から飽和温度に至るまでに加えられた熱量は相変化に必要な熱量として寄与せず、顕熱として消費される。

Eq. (4.1.10) 及び Eq. (4.1.11) より、蒸気層成長速度について以下の近似式を得る。

$$\frac{d\delta_v}{dt} \equiv \frac{\delta_v}{t_{HN}^*} = \frac{\Delta Q}{\rho_{l,\infty} h_{fg}^* t_{HN}^*} = \frac{\int_0^{\delta_l^*} \rho_l c_p (T(t_{HN}^*, x) - T_{sat}) dx}{\rho_{l,\infty} h_{fg}^* t_{HN}^*} \quad (4.1.12).$$

(d) 状態方程式

圧縮水の状態方程式として Tait's equation を採用する .

$$\frac{p+B}{p_0+B} = \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^n \quad (4.1.13).$$

ここで , 水に対し , $B = 299[\text{MPa}]$, $n = 7.415$ の定数を用い , p_0 及び ρ_0 に対し , 飽和温度温度における値を用いる .

Eq. (4.1.8)及び Eq. (4.1.9)より , 発生圧力に関して以下の支配方程式を得る .

$$\rho_l(p) \cdot \left(1 - \frac{\rho_v(p)}{\rho_l(p)} \right) \cdot \frac{d\delta_v}{dt} \left(k \cdot a - \frac{d\delta_v}{dt} \right) = p - p_\infty \quad (4.1.14).$$

ここで Eqs. (4.1.10) ~ (4.1.13)を用いて Eq. (4.1.14)の両辺について収束計算を行い , 発生圧力値 $p = P_{th}$ を求める .

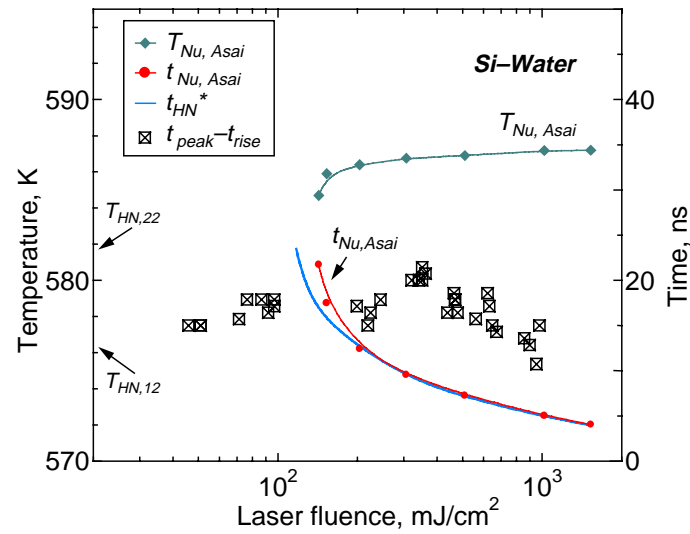


Fig. 4.1.1 Theoretical nucleation temperature $T_{Nu,Asai}$ derived from heterogeneous nucleation theory in the field with temperature distribution by Asai (1991) and nucleation time variation in the case of Si-water system versus Pump laser fluence F . In the figure conventional homogeneous nucleation temperature $T_{HN,12}$ and numerical results of nucleation time t_{HN}^* when Si surface temperature reaches $T_{HN,12}$ in the same Si-water system are shown.

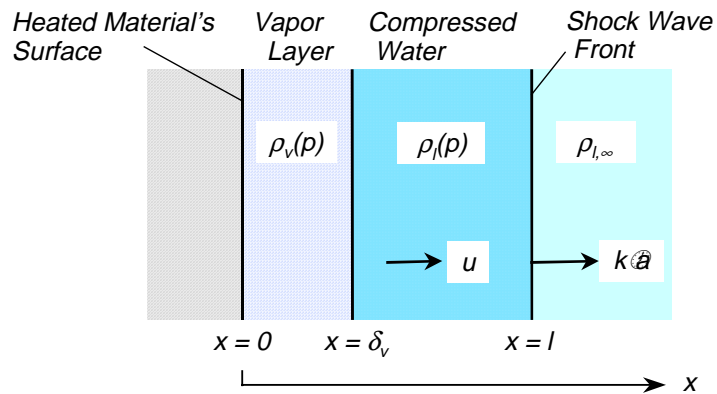


Fig. 4.1.2 Assumed one-dimensional condition for physical model of pressure generation/propagation.

4.2 実験結果との比較及び考察

ここで本モデルによる計算結果と実験結果との比較を行う．Fig. 4.2.1 に本モデル Eq. (4.1.14)を初期温度 300K の Hg - 水系及び Si - 水系に適用した結果 $P_{th,Hg}$ 及び $P_{th,Si}$ と，‘2.2’ 及び ‘2.3’ で記述した水中における Hg 及び Si 加熱の実験結果 P_{max} を Pump laser 光強度 F に対して示す．温度場の記述に関し，内部発熱項 ω における光学物性値として，

$$\begin{aligned} R = 0.70, \quad k = 3.89 & \quad \text{in Hg-water system (Palik(ed.) 1991)} \\ R = 0.23, \quad k = 0.0436 & \quad \text{in Si-water system (Palik(ed.) 1985)} \end{aligned}$$

を用いた．

水銀加熱に関しては，水銀層厚さ 10mm の結果のみを示している．ここで P_{max} は，Fig. 2.2.8 と同様に圧力の伝播を考慮して圧力発生点における値に外挿したものである．また，図中には 1 次元熱伝導問題の数値計算により算出した Hg 及び Si 表面温度が水の均質核生成温度に到達する時刻 $t_{HN,\zeta}^*$ ($\zeta = \text{Hg or Si}$)，及び時刻 $t = t_{HN,\zeta}^*$ における水領域での過熱液層厚さ $\delta_{l,\zeta}^*$ を示している．圧力発生に関する物理モデル結果は Hg 加熱の場合は過小評価を，Si 加熱の場合においては過大評価をしている．また，発生圧力の F 値依存性は，Hg 加熱 Si 加熱共に実験結果よりもその傾きが小さくなっているのが分かる．

これは次のように説明出来ると考える．まず Hg 加熱においては，‘2.2’ で示した水中加熱の高速観察から，Pump laser 光照射によりバルク水だけでなく小さい潜熱を持つ水銀の相変化も生起していると考えられ，低 F 値では寄与の小さかった水銀相変化が高 F 値照射によりその寄与が次第に大きくなり，発生圧力値が高くなっていくものと考えられる．しかし，後述するが，高速加熱における 2 体接触伝熱問題，特に相変化が生起する機構の解明無くして，圧力発生における 2 相の相変化の寄与度の評価は非常に困難であると思われる．

Si 加熱に関しては，本モデルによる予測値と実験値が Hg 加熱の場合と較べてその大小関係が逆転しているが，予測値の F 値依存性はほぼ同一の傾向を示している．まず発生圧力値のモデル値と実験値の大小関係が逆転する事に関して，本論文 ‘2.3’ に示した通り，Si 水中加熱の場合衝撃波の発生はほとんど水の急激な相変化のみに支配されると考えられる．ここで本物理モデルにおいては，衝撃波発生の trigger となる相変化の発生条件として核生成温度に関し F に関わらず $T_{Nu} = T_{HN} (= T_{HN,12})$ を仮定している．しかしながら，実験結果による Probe laser 光散乱開始時刻と熱伝導数値計算結果から，少なくとも本実験条件における低 F 値領域では加熱面温度が T_{HN} より低い温度で核生成が生じていると思われる．従って低 F 値加熱に関しては，本モデルにおける仮定では相変化が生じる際に消費される熱エネルギーを過大評価しており，理論結果が実際の圧力値よりも高い値を示していると考えられる．‘2.3’ において記述した通り $F < F^*$ においては F 値が大きくなるに従い半径 $R \approx R_{Mie} \approx 80\text{nm}$ 大の蒸気泡出現時の Si 表面温度は上昇していると思われ，演繹的に核生成温度は F に従い上昇していると考えられる．一方 $F > F^*$ においては理論結果は実験値に近づく傾向にある．この傾向を説明する要因の一つとして， $F > F^*$ では Fig. 2.3.7 に関する考察において述べた

通り、核生成温度が T_{HN} に漸近していき、従って物理モデルでの仮定に近づいていく事に依るものと考えられる。また更に、実験結果と物理モデル結果の間でその F に対する勾配が異なるが、これは ‘2.3’ において高速度写真による観察結果によって示したように、高エネルギー照射により Si の相変化が生じ、Hg 加熱の場合と同様、バルク液体の相変化に加えて被加熱物質の相変化による衝撃波の発生が寄与しているものと考えられる。

ここで水中での高速加熱による圧力発生に関し非常に重要な要素の一つとして、2 体接触伝熱問題における相変化の詳細な criteria が挙げられる。加熱エネルギーの違いによって核生成温度 T_{Nu} が異なる場合、過熱液層厚さは変化し、従って相変化における熱エネルギーの蓄積量も異なってくることから発生圧力も変化すると考えられる。また、高エネルギーを照射した場合や、液体金属 - 水系のように被加熱物質自身が低沸点かつ小さい潜熱で蒸発するもの場合に特に重要な要素として、高速加熱中において被加熱物質と、非常に薄い領域で過熱状態になるバルク液層とどちらが熱力学的に不安定であるか、すなわち 2 体の熱的物性によってどちらが先に相変化が生じるのか。また、本モデルにおいては過熱液層全体が瞬時に相変化するとの仮定を用いているが、実際の現象において相変化が生じる初期厚さはどの程度なのか。更に、一方が相変化することで系の自由エネルギーが下がり、もう一方が過熱状態にある場合には、不安定であるその過熱状態が維持出来なくなり、もう一方においても相変化が生じる、などの可能性も考えられる。本モデルにおいては水側の相変化のみが圧力発生に寄与するとの仮定を設けているが、高速加熱により生起する相状態の記述に関して上述の要素を踏まえたより詳細な物理機構の把握が必要であると考えられる。そのために、高速伝熱における液体の核生成温度の熱力学的理論の確立、より詳細な核生成温度及び時刻、更に、生成した蒸気の成分構成の実験的把握が相変化及び圧力発生の理解に必要不可欠であり今後の課題となる。

次に、圧力発生における温度場の影響について考察する。ここでは特に吸収係数 κ の影響、すなわち消衰係数 k の影響を考える。相変化が圧力発生を支配する、高速加熱に誘起される熱流体现象においては、加熱時の温度場の詳細な把握が必要であり、そのためには内部発熱項 ω における光学物性値の温度依存性の詳細な把握が不可欠である。実際の現象においては、加熱によって温度勾配が被加熱物質内に生じ、それにより光学物性値が被加熱物質内で変化する事が考えられる。ここでは、そのうち熱伝導方程式内の内部発熱項に関わる吸収係数に注目し、温度場への影響、また生起する衝撃波発生への影響に関し、Si - 水系において本物理モデルの数値計算により考察を行う。‘2.3’ 及び本節 Fig. 4.2.1 に示した本計算においては、1 次元熱伝導方程式を解くにあたり Pump laser 光波長 $\lambda_{pump} = 532\text{nm}$ に対する消衰係数として Palik(ed.)(1985)から $k = 0.0436$ を用いた。Si の光学物性値の温度依存性に関する文献はほとんど見られないが、a-Si においては $\lambda_{HeNe} = 632.8\text{nm}$ に対して k は温度上昇に伴い大きくなるとの報告(Xu *et al.* 1995a)があることを踏まえて、ここでは $k = 0.0436$ の他に $k = 0.04, 0.06, 0.1$ の場合について計算を行った。各場合における Si 表面温度が水の均質核生成温度 $T_{HN} = T_{HN,12}$ に到達する時刻 $t = t_{HN}^*$ 、その時刻における過熱液層厚

さ δ_i^* 及びそれぞれの温度場から求められる発生圧力値 P_{th} を Fig. 4.2.2 に示す t_{HN}^* 及び δ_i^* は k が大きくなるに従い小さくなり、 P_{th} は k に従い大きくなる。Xu *et al.*(195a)によると、a-Si に関しては k の温度依存性は指数関数的であり、この依存性が Si - Nd:YAG laser($\lambda_{pump} = 532\text{nm}$)に適用出来るとすると、本モデルにおいて圧力発生の間までに表面温度は約 580K まで上昇していることになるため、 k の値は室温の場合の約 2.5 倍に達していると考えられる。この場合発生圧力は室温での k を用いた計算結果と比較して約 10%程度高い圧力が発生すると予測される。

現実の現象においては、しかしながら、温度上昇に伴い反射率 R も増加し内部発熱量は小さくなるため、一概に温度上昇により内部発熱項が大きくなるとは考えられない。また‘2.3’にて記述した被加熱物質内に急峻な温度勾配が存在する場合における反射率決定の有効深さの変化や、温度勾配のある被加熱物質内部での電磁波の吸収・反射率の変化すなわち被加熱物質内における電磁波吸収の割合の空間的变化等、温度場を記述するための光学物性の相互関係は非常に複雑に絡み合っており、光学的高速加熱においてより詳細な温度場を把握するためには、電磁波の反射に関する物理機構の解明及び加熱の対象となる各物質の光学物性値の詳細な温度依存性の把握が必要不可欠であると考えられる。

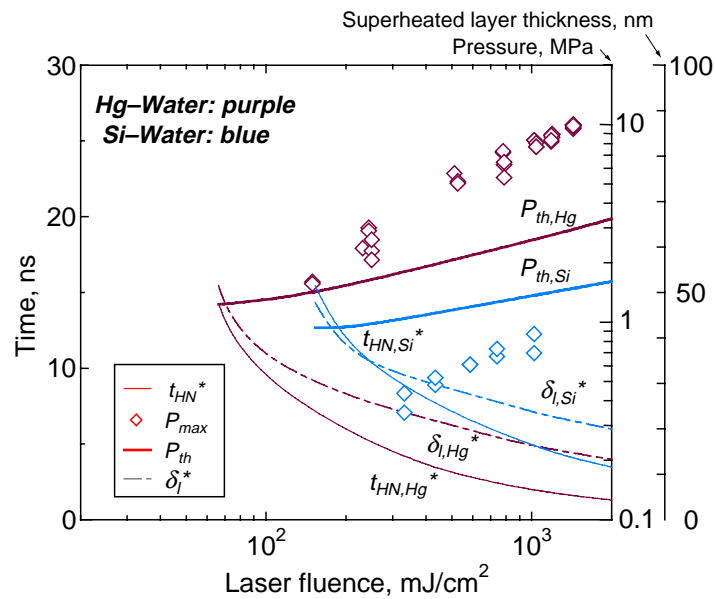


Fig. 4.2.1 Comparison between theoretical results of pressure generation P_{th} and experimental results of pressure values which are extrapolated equivalent to be measured at the heated surface P_{max} in Hg-water system and in Si-water system. Numerical nucleation time t_{HN}^* and numerical result of superheated layer thickness of water at surface temperature reaches T_{HN} of water, δ_l^* , for both systems are also indicated.

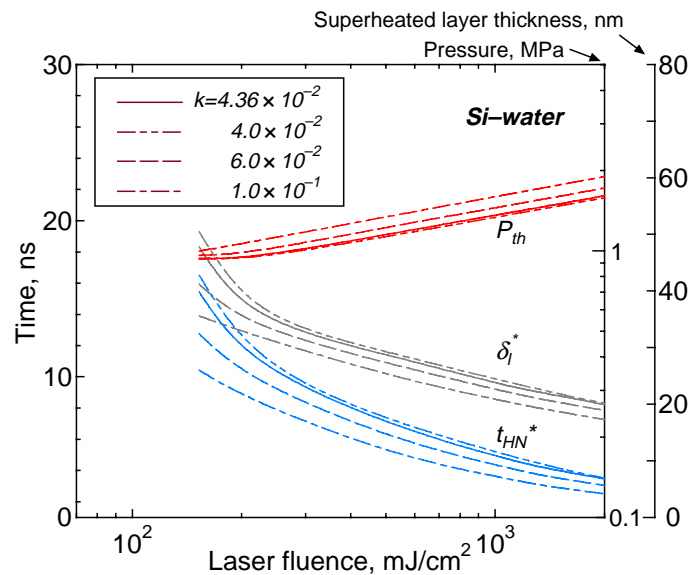


Fig. 4.2.2 Influence of extinction coefficient k upon temperature field induced by laser heating and upon pressure generation in Si-water system.

5. 結言

従来の熱工学の範疇に無いナノ秒パルス加熱により誘起される熱流体現象に関し、その基本要素である伝熱・相状態・流体運動の各特性及び相互関係の把握を目的としてナノ秒レーザー加熱実験及び数値計算を行った。具体的には、自由界面を有する液体金属 (Hg)、及び固体物質 (Si) を被加熱物質として、Nd:YAG レーザー ($\lambda = 532\text{nm}$, $\sim 13\text{ns}$ FWHM) を用い水中において加熱した際に生起する熱流体現象に関し考察を行った。また比較検証のため空気中においても同様の実験を行った。

まず実験により、以下の現象が生起する事を明らかにした。

水銀の水中加熱においては、レーザー照射直後、照射面に水銀または水の急激な相変化が生じ平面衝撃波が形成される事、照射後数百 μs の間に半球型蒸気泡が成長し、ms オーダーに渡り水銀界面の隆起や水銀液柱の形成が観察される事を明らかにした。これに対し空気中加熱の実験では、加熱直後から照射面上にプラズマが数 μs に渡り形成される事、プラズマ形成に伴い衝撃波が発生するものの、水中の場合と異なり水銀面の大きな変動挙動が見られない事が明らかとなった。

一方、固体シリコン面の加熱実験においては、従来行われていた空気中加熱では Si の熱膨張や相変化により圧力波が形成される事を初めて高速度観察により確認した。水中加熱においては水銀加熱の場合と同様、加熱直後に、従来の高速加熱実験では見られなかった衝撃波が形成される事、その衝撃波はほぼ水の音速で伝播する事、この衝撃波は水の急激な相変化により誘起されるものであり、Si 自身の熱膨張の寄与は小さい事、また、水の相変化は Si 表面の温度が水の均質核生成温度近くで生起している事を明らかにした。

以上の実験結果を基に、当該時間領域における熱流体現象の物理に関し、以下の事を明らかにした。

- ・当該実験条件における伝熱は、主に熱伝導が支配し、対流伝熱及び放射伝熱は無視出来る事、また量子伝熱の寄与は非常に小さい事を明らかにした。また、当該条件における時間及びレーザー強度においては十分に熱緩和しており、Fourier's law により記述される熱伝導を適用出来る。ただし、熱伝導方程式における内部発熱項の記述に関しては、含まれる光学物性値の温度依存性の詳細な把握が今後の課題となる。

- ・相状態に関して、水中加熱の場合、急激な加熱により被加熱面近傍のバルク水には非常に薄い領域にて過熱状態が形成され、表面温度が水の均質核生成温度 T_{HN} 近傍に達した時点でバルク液層において核生成が生じる。ただし、低沸点・低潜熱を有する液体金属が被加熱物質である場合には、金属自身の相変化も生起しており、後述の衝撃波発生に大きく寄与しているが、その寄与度の評価は液体金属の非常伝熱場測定法の確立が必要であり、今後の課題となる。

- ・流体運動に関して、当該時間オーダーにおいては前述の通り対流は生じず、バルク相物質の慣性及び圧縮性が挙動を支配する。特に水中加熱の場合、従来の工学的領域における、伝熱及び相変化のみにより記述される熱流体現象と大きく異なり、急激な密度変化を伴う水の相変化によって衝撃波が生じる事、すなわち、高速伝熱によって非常に強い流体挙動を誘起する事を明らかにした。

以上の伝熱・相状態・流体運動に関して得られた知見に基づき、パルス加熱によって生起する温度場、核生成、衝撃波発生というプロセスを経る熱流体現象の物理モデルを提案した。

A. 付録

A. 1 主要記号表

a	sound velocity of water [m/s]
c	specific heat [J/kg K]
h_{fg}	latent heat of vaporization [J/kg K]
l	location of shock wave front [m]
p	pressure [Pa]
q	heat flux $\equiv -\lambda(\partial T/\partial x)$ [W/m ²]
Q	total heat [W]
t	time [s]
T	temperature [K]
T_{HN}	homogeneous nucleation temperature of liquid [K]
T_{sat}	saturation temperature [K]
u	velocity of compressed liquid [m/s]
x	position [m]

Greeks:

δ_l^*	superheated layer thickness in water[m]
δ_v	vapor layer thickness [m]
λ	thermal conductivity [W/m K]
ρ	density [kg/m ³]
τ	thermal relaxation time[s]
ω	heat source[W/m ³]

Subscripts:

Air	air region
l	liquid phase of water
Si	silicon region
v	vapor phase of water
Wtr	water region
∞	bulk (ambient region)

A. 2 35mm 一眼レフカメラによる Si - 水系及び Si - 空気系加熱実験の観察

ここでは、Si - 水系及び Si - 空気系におけるレーザー加熱の高速度撮影に先立ち、35mm 一眼レフカメラにより現象を撮影したものを Fig. A-2.1 に示す。(i)水中加熱及び(ii)空气中加熱に関し、Pump laser 光強度(a) $F = 1.5 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ 、(b) $F = 5.1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ により加熱を行った。撮影は市販の 35mm 一眼レフカメラを用い、焦点距離 105mm F2.5 のレンズに接写リングを付けて、暗室において絞り開放により行った。シャッタースピード：B (Bulb) により Pump laser 光自身を光源として撮影した。従って Pump laser 光が Si を照射している間のみ観察される。撮影に使用したフィルムは ISO1600 のもので、フィルム現像の際 3200 相当まで増感した後プリントした。

全ての写真において、Pump laser 光は画面左から右に向かって照射され、Si 表面に対し約 45° の角度により撮影している。ただし、(i)では若干斜め上方から、(ii)では若干斜め下方からの観察となっている。(i)、(ii)ともに絞り開放で撮影しているため被写界深度が浅く、照射領域近傍以外では焦点不一致によるボケが見られる。空气中加熱においても、空气中に舞っている塵のために Pump laser 光が散乱されているのがわかる(図中(ii)-(b)照射領域右側参照)。

(i)水中加熱においては、照射領域に Pump laser 光の強度分布が認められ、同心円状の発光部が見られる。Pump laser 光強度によりその発光の強さが異なっているのが確認されるが、際だった定性的差異は観察されない。一方(ii)空气中加熱においては、照射領域一帯にて散乱光のような粒状輝球が見られるが、これがどのような現象を表しているのかは現時点では定かではない。また、 F 値による性状の違いはほとんど認められなかった。また、(i)、(ii)両系において、3.2 及び 3.3 にて示した衝撃波や蒸気泡といった熱流体挙動は明確には観察されなかった。

一眼レフカメラによる撮影ではシャッター開放で撮影を行うため、Pump laser 光照射期間における多重露光写真となり、現象の詳細な解析は非常に難しい。しかしながら、高速度カメラと異なり Pump laser 光照射を確実に捉えることが可能であり、高速度撮影と併せて現象解析に関する一情報となり得ると考えられる。

より高速の物理現象を解析するに当たって、より短い露光時間及びより速い撮影速度を持つ高速度カメラ、より高輝度かつより短時間発光を実現する光源の開発が切望される。

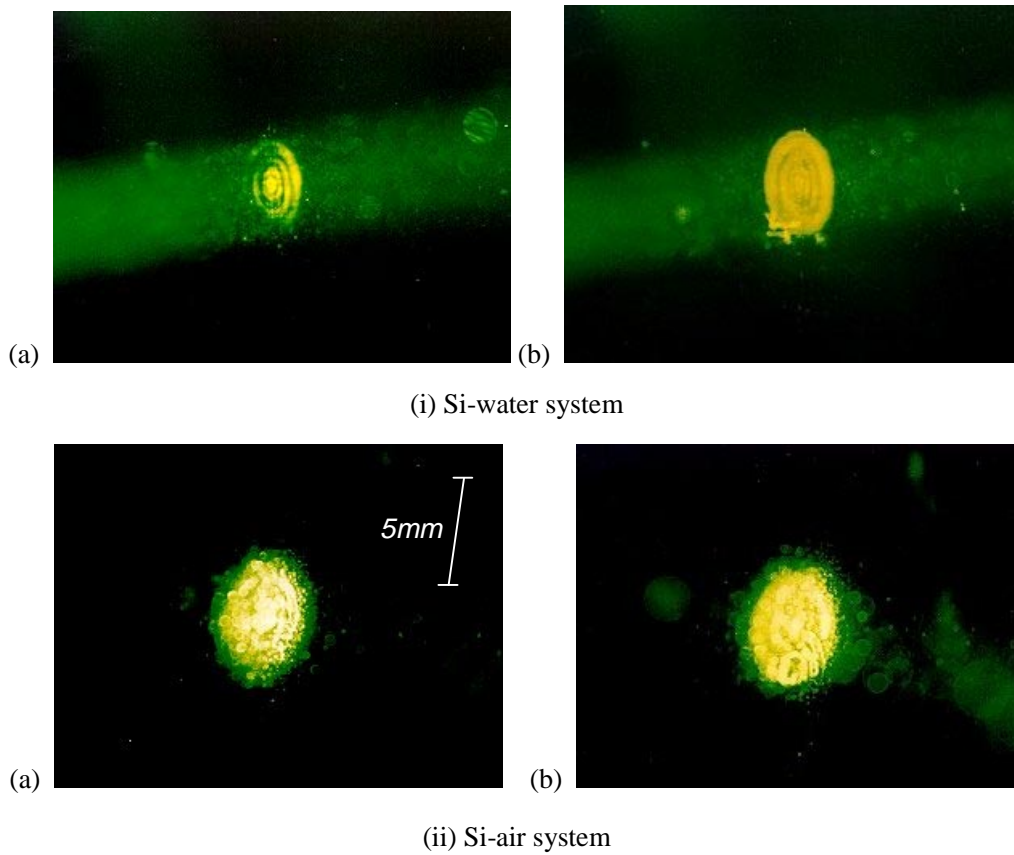


Fig. A-2.1 Photographs of Pump laser heating area on Si surface (i)in water and (ii)in air in the case of heating with (a) $F = 1.5 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ and (b) $F = 5.1 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$, respectively, taken by 35mm SLR camera. Shutter speed is B(bulb) and ISO 1600 film is used. The film is sensitized in developing.

A.3 Si - 水系での衝撃波発生に関する補足

ここではナノ秒パルスレーザー加熱により誘起する衝撃波の発生及び伝播に関し、特に Si - 水系における実験結果 Fig. 4.2.1 に示した P_{max} について補足説明をする。PVDF 圧電素子を用いた発生圧力検出においては、その感度により低い F 値における圧力値を充分感知出来なかった。しかしながら圧力波は実際には発生しており、高い F 値による加熱によって発生する圧力波同様、水中での音速に近い速度で伝播している。Fig. A-3.1 に圧力波検出に用いた実験装置の概略図を示す。本補足実験は、光が媒質中を伝播する際に光学的に高密度の方へ屈折する、いわゆる 'mirage effect' を利用している (Park *et al.* 1996b)。被加熱物質である Si 表面からある距離において表面に対し平行に Probe laser 光を照射し、一定位置に固定した Probe detector により検出する。大きな密度勾配を有する圧力波が水中を伝播する際、水中に refractive index の勾配を誘起する事になり、その結果 Probe laser 光の光路にずれが生じることになる。Fig. A-3.2 に異なる Pump laser 光強度 F に対する mirage effect の測定結果を、異なる Probe laser 光 ~ Si 表面間距離 d について示す。図中上部に (i) $d = d_0 \approx 1.2\text{mm}$ における検知結果を、中部に (ii) $d = d_0 + 4.0\text{mm}$ における結果を、ともに $F = 5.4 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$, $1.8 \times 10^2 \text{mJ/cm}^2$ の場合に関し示す。図中下部にはそれぞれの Pump laser 光強度の Profile を示している。Pump laser 光照射後、衝撃波が Probe laser 光路を横切るまでは Probe detector の出力は一定値を保っており、衝撃波面が光路を横切ることにより Probe laser 光の屈折が生じて Probe detector による検出量が減少する。衝撃波の通過後、光学物性値が通過前の値に回復し、Probe laser 光強度測定値も通過前の出力値に回復する。ここで両 F 値の場合に関して、(i) ~ (ii) 間の距離差 4mm 及び Probe laser 光強度測定値減少開始の時刻差を考慮すると、衝撃波の伝播速度は約 $1.5 \times 10^3 \text{m/s}$ となり、水中の音速にほぼ等しく、また 2.3 に示した実験値とも合致する。また、Probe laser 光強度測定値が減少している時間 (Pump detector 出力減少開始 ~ 回復終了) と、Probe laser 光のビーム径 $\phi \approx 1\text{mm}$ から同様の圧力波伝播速度が得られる。図中に示した両 F 値に関してほぼ同一の履歴を経ていることから、PVDF 圧電素子では検知できなかった低 F 値による加熱においても高 F 値による加熱時に生じる衝撃波とほぼ同速度を持つ衝撃波が発生していることが確認された。しかしながら、PVDF 圧電素子による測定では上記の F 値に関する検出圧力値は大きく異なっているのに対して、mirage effect を利用した本測定法では Probe laser 光強度測定値の変化量はほとんど一致しているため、発生圧力値の定量的評価は難しく、knife edge の導入、Probe laser 光径内での空間的強度分布の詳細な把握など、測定法の改善が必要である。

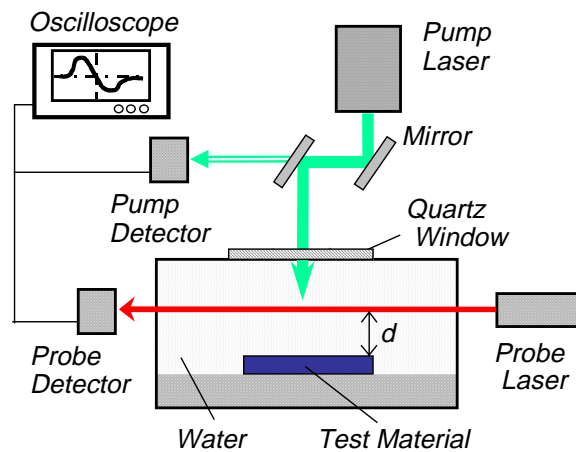


Fig. A-3.1 Schematic layout of experimental apparatus for detecting the pressure propagation by use of 'mirage effect'. Probe laser light path is set to be parallel to the Si surface and the angle of Probe detector is fixed.

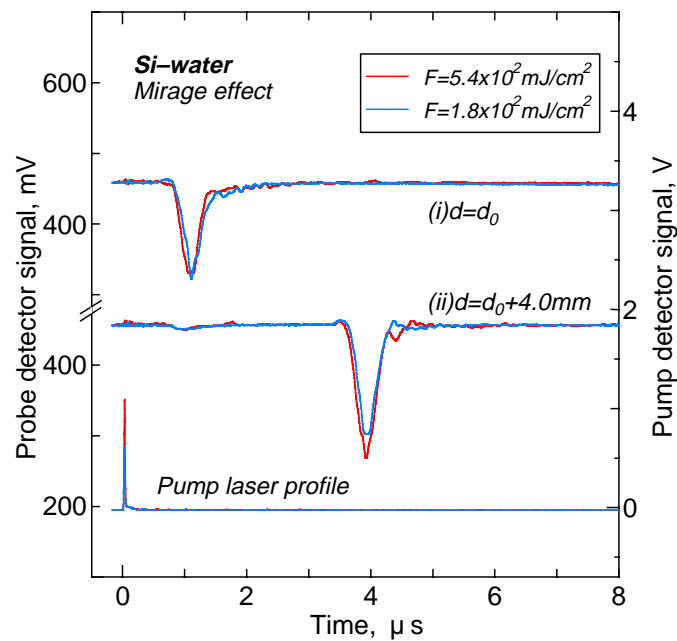


Fig. A-3.2 Mirage effect on the pressure propagation in water. Top and middle curves are the profiles of He-Ne laser intensity detected by photo detectors located at (i) $d = d_0 \approx 1.2\text{mm}$ from the Si surface and at (ii) $d = d_0+4.0\text{mm}$, respectively. The bottoms show the pump laser profiles of each Pump laser intensity F .

参考文献

[1] 水中における高速電気加熱実験に関する文献

線爆発関連

Baker, L., Jr. and Warchal, R. L., Studies of Metal-Water Reactions by the Exploding Wire Technique, *Exploding Wires*, Plenum Press, **2**, pp.207-223 (1962).

Buntzen, R. R., The Use of Exploding Wires in the Study of Small-Scale Underwater Explosions, *Exploding Wires*, Plenum Press, **2**, pp.195-205 (1962).

Kersavage, J. A., Pressure Environments Created by Wires Exploded in Water, *Exploding Wires*, Plenum Press, **2**, pp.225-233 (1962).

北島ら, 金属導線の放電による衝撃波の発生機構, *塑性と加工*, **8**, pp.111-116 (1967).

元木・行村, 水中の金属線爆発に伴う状態変化, *電気学会論文誌 A*, **96**, pp.221-228 (1976).

液体の過熱限界, 核生成関連

Skripov, V. P. and Pavlov, P. A., Explosive Boiling of Liquids and Fluctuation Nucleus Formation, *High Temp.*, **8**, pp.782-787 (1970) [translated from *Teplofizika Vysokikh Temperatur*, **8**, pp.833-839 (1970)].

Skripov, V. K., *Metastable Liquids*, John-Wiley and Sons, New York, (1974).

Derewnicki, K. P., Vapour Bubble Formation During Fast Transient Boiling on a Wire, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **26**, pp.1405-1408 (1983).

Derewnicki, K. P., Experimental Studies of Heat Transfer And Vapour Formation in Fast Transient Boiling, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **28**, pp.2085-2092 (1985).

浅井, 超高熱流束パルス加熱沸騰における気泡力学, *博士論文(東京大学工学部)*, (1990).

Asai, A., Bubble Dynamics in Boiling Under High Heat Flux Pulse Heating, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **113**, pp.973-979 (1991).

Iida, Y. *et al.*, Boiling nucleation on a very small film heater subjected to extremely rapid heating, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **37**, pp.2771-2780 (1994).

Iida, Y. *et al.*, Pressure Dependency of Bubble Nucleation and Heat Transfer Behaviors When A Film Heater Immersed in Ethanol Is Heated Extremely Rapidly, *Proc. A Multidisciplinary International Seminar on Intense Multiphase Interactions*, pp.213-221 (1995).

Shoji, M. *et al.*, Pressure Generation by Rapid Heating of a Metal Wire in Water, *Proc. A Multidisciplinary International Seminar on Intense Multiphase Interactions*, pp.201-206 (1995).

庄司ら, 水中における金属細線の超高速加熱と衝撃波の発生, *日本機械学会論文集 B*, **62**, pp.2331-2337 (1996).

[2] 空气中或いは真空中における固体面の高速レーザー加熱に関する文献

量子伝熱 (Two-step model) の基礎

Kaganov, M. I., Relaxation between Electrons and the Crystalline Lattice, *Soviet Physics JETP*, **4**, pp.173-178 (1957).

Anisimov, S. I. *et al.*, Electron Emission from Metal Surfaces Exposed to Ultra-Short Laser Pulses, *Soviet Physics JETP*, **39**, pp.375-377 (1975).

Allen, P. B., Theory of Thermal Relaxation of Electrons in Metals, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, pp.1460-1463 (1987).

ピコ秒 , フェムト秒オーダーのパルスレーザー加熱 (量子伝熱 , 非フーリエ効果)

Fujimoto, J. G. *et al.*, Femtosecond Laser Interaction with Metallic Tungsten and Nonequilibrium Electron and Lattice Temperatures, *Phys. Rev. Lett.*, **53**, pp.1837-1840 (1984).

Bronson, S. D. *et al.*, Femtosecond Electronic Heat-Transport Dynamics in Thin Gold Films, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, pp.1962-1965 (1987).

Bronson, S. D. *et al.*, Femtosecond Room-Temperature Measurement of the Electron-Phonon Coupling Constant λ in Metallic Superconductors, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, pp.2172-2175 (1990).

Elsayed-Ali, H. E. *et al.*, Time-Resolved Observation of Electron-Phonon Relaxation in Copper, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, pp.1212-1215 (1987).

Elsayed-Ali, H. E. *et al.*, Femtosecond Thermorefectivity and Thermotransmissivity of Polycrystalline and Single-Crystalline Gold Films, *Phys. Rev. B*, **43**, pp.4488-4491 (1991).

Qiu, T. Q. and Tien, C. L., Short-Pulse Laser Heating on Metals, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **35**, pp.719-726 (1992).

Qiu, T. Q. and Tien, C. L., Heat Transfer Mechanisms During Short-Pulse Laser Heating of Metals, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **115**, pp.835-841 (1993a).

Qiu, T. Q. and Tien, C. L., Size Effects on Non-Equilibrium Laser Heating of Metals, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **115**, pp.842-847 (1993b).

Qiu, T., Temperature Measurements during Femtosecond Laser Heating of Metal Films, 第1回日本伝熱学会講習会「温度計測と問題点」(東京, 1995), pp.55-64 (1995).

ナノ秒オーダーのパルスレーザー加熱 (伝導伝熱 , 相変化)

[実験的研究]

Lowndes, D. H., Time-Resolved Optical Transmission and Reflectivity of Pulsed-Ruby-Laser Irradiated Crystalline Silicon, *Phys. Rev. Lett.*, **48**, pp.267-271 (1982).

Lowndes, D. H. and Jellison, G. E., Jr., Time Resolved Measurements During Pulsed Laser Irradiation of Silicon, in: *Semiconductors and Semimetals*, **23**, eds.: Wood, R. F. *et al.*, Academic, Orlando, FL, pp.313-404 (1984).

Tsao, J. Y. *et al.*, Direct Measurements of Liquid/Solid Interface Kinetics during Pulsed-Laser-Induced Melting of Aluminum, *Appl. Phys. Lett.*, **48**, pp.278-280 (1986).

Jellison, G. E., Jr. *et al.*, Time-resolved reflectivity measurements on silicon and germanium using a pulsed excimer KrF laser heating beam, *Phys. Rev. B*, **34**, pp.2407-2415 (1986a).

Jellison, G. E., Jr. *et al.*, Fundamental Aspects of Pulsed-Laser Irradiation of Semiconductors, *SPIE*, **710**, pp.24-34 (1986b).

Lowndes, D. H. *et al.*, Solidification of Highly Undercooled Liquid Silicon Produced by Pulsed Laser Melting of Ion-Implanted Amorphous Silicon: Time-Resolved and Microstructural Studies, *J. Mater. Res.*, **2**, pp.648-680 (1987).

Singh, R. K. and Narayan, J., Pulsed-Laser Evaporation Technique for Deposition of Thin Films: Physics and Theoretical Model, *Phys. Rev. B*, **41**, pp.8843-8859 (1990).

Aden, M. *et al.*, Laser-Induced Vaporization of a Metal Surface, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **25**, pp.57-65 (1992). (理論計算も含む)

Park, H. K. *et al.*, Transient Optical Transmission Measurement in Excimer-Laser Irradiation of Amorphous Silicon Films, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **115**, pp.178-183 (1993).

Xu, X. *et al.*, Transient Temperature During Pulsed Excimer Laser Heating of Thin Films Obtained by Optical Reflectivity Measurement, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **117**, pp.17-24 (1995a).

Xu, X. *et al.*, Heat Transfer in Excimer Laser Melting of Thin Polysilicon Layers, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **117**, pp.708-715 (1995b).

Bennett, T. D. *et al.*, Near-Threshold Laser Sputtering of Gold, *J. Appl. Phys.*, **77**, pp.849-864 (1995).

[理論的研究・数値計算]

Dawson, J. *et al.*, Optical Absorption and Expansion of Laser-Produced Plasmas, *Phys. Fluids*, **12**, pp.875-882 (1969).

Wood, R. F. and Geist, G. A., Theoretical Analysis of Explosively Propagating Molten Layers in Pulsed-Laser-Irradiated *a*-Si, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, pp.873-876 (1986a).

Wood, R. F. and Geist, G. A., Modeling of Nonequilibrium Melting and Solidification in Laser-Irradiated Materials, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, pp.873-876 (1986b).

Aden, M. *et al.*, Laser-Induced Vaporization of a Metal as a Riemann Problem, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **23**, pp.655-661 (1990).

Aden, M. *et al.*, Laser-Induced Vaporization of a Metal Surface, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **25**, pp.57-65 (1992). (実験も含む)

Aden, M. *et al.*, Laser-Induced Plasma Formation during Pulsed Laser Deposition, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **26**, pp.1545-1553 (1993).

Vertes, A. *et al.*, Modeling the Thermal-to-Plasma Transitions for Cu Photoablation, *IBM J. Res. Develop.*, **38**, pp.3-10 (1994).

Ho, J. R. *et al.*, Computational Study of Heat Transfer and Gas Dynamics in the Pulsed Laser Evaporation of Metals, *J. Appl. Phys.*, **78**, pp.4696-4709 (1995).

Ho, J. R. *et al.*, Gas Dynamics and Radiation Heat Transfer in the Vapor Plume Produced by Pulsed Laser Irradiation of Aluminum, *J. Appl. Phys.*, **79**, pp.7205-7215 (1996).

[3] 液体中における固体面の高速レーザー加熱に関する文献

Board, S. J. *et al.*, D. H., An Experimental Study of Energy Transfer Processes Relevant to Thermal Explosions, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **14**, pp.1631-1641 (1971).

Duffey, R. B. *et al.*, Measurements of Transient Heat Fluxes And Vapour Generation Rates In Water, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **16**, pp.1513-1525 (1973).

Yavas, O. *et al.*, Optical Reflectance and Scattering Studies of Nucleation and growth of Bubbles at a Liquid-Solid Interface Induced by Pulsed Laser Heating, *Phys. Rev. Lett.*, **70**, pp.1830-1833 (1993).

Yavas, O. *et al.*, Enhanced Acoustic Cavitation Following Laser-Induced Bubble Formation: Long-Term Memory Effect, *Phys. Rev. Lett.*, **72**, pp.2021-2024 (1994a).

Yavas, O. *et al.*, Optical and Acoustic Study of Nucleation and Growth of Bubbles at a Liquid-Solid Interface Induced by Nanosecond-Pulsed-Laser Heating, *Appl. Phys. A*, **58**, pp.407-415 (1994b).

Park, H. K. *et al.*, Optical Probing of The Temperature and Pressure Transients at a Liquid/Solid Interface due to Pulsed Laser-Induced Vaporization, *Proc. SPIE Int. Soc. for Optical Eng.*, **2498**, pp.32-40 (1995).

Park, H. K. *et al.*, Optical Probing of The Temperature Transients during Pulsed-Laser Induced Boiling of Liquids, *Appl. Phys. Lett.*, **68**, pp.596-598 (1996a).

Park, H. K. *et al.*, Pressure Generation and Measurement in The Rapid Vaporization of Water on a Pulsed-Laser-Heated Surface, *J. Appl. Phys.*, **80**, pp.4072-4081 (1996b).

Kim, D. *et al.*, Interferometric Study on the Growth of Pulsed-Laser-Generated Submicron Bubble Layer on a Solid Surface, *ASME Proc. 31st National Heat Transfer Conf. (Houston, Texas 1996)*, **4**, pp.69-77 (1996).

Ueno, I. *et al.*, Laser Pulse Heating of Metal Surface in Water, *Proc. 4th World Conf. on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics (Brussels, 1997)*, **4**, pp.2027-2033 (1997b).

Yavas, O. *et al.*, Bubble Nucleation and Pressure Generation during Laser Cleaning of Surfaces, *Appl. Phys. A*, **64**, pp.331-339 (1997).

[4] 液体面の高速レーザー加熱に関する文献

Naugolnykh, K. A. *et al.*, Laser Stimulated Instabilities of Waves in a Subsurface Layer of a Liquid, *in: Nonlinear Waves in Active Media*, ed.: Engelbrecht, J., Springer-Verlag, Berlin, pp.127-132 (1989).

Ueno, I. *et al.*, Pressure Generation by Laser Pulse Heating of Liquid Metal in Water, *Proc. Int. Seminar on Vapor Explosions & Explosive Eruptions -AMIGO-IMI- (Sendai, 1997)*, pp.143-148 (1997a).

[5] その他

沸騰現象 , 核生成に関する文献

van Stralen, S. and Cole, R., *Boiling Phenomena*, I, Hemisphere (1979).

Carey, V. P., *Liquid-Vapor Phase-Change Phenomena*, Taylor & Francis (1992).

Surface plasmon に関する文献

Kretschmann, E. and Raether, H., Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light, *Zeitschrift für Naturforschung*, **23**, pp.2135-2136 (1968).

Herminghaus, S. and Leiderer, P., Surface Plasmon Enhanced Transient Thermoreflectance, *Appl. Phys. A*, **51**, pp.350-353 (1990).

Non-Fourier effect に関する文献

Cattaneo, C., Sulla Conduzione de Calore, *Atti del Semin. Mat. e Fis. Univ. Modena*, **3**, pp.83-101 (1948).

Cattaneo, C., A Form of Heat Conduction Equation Which Eliminates the Paradox of Instantaneous Propagation, *Compte Rendus*, **247**, pp.431-433 (1958).

Nettleton, R. E., Relaxation Theory of Thermal Conduction in Liquids, *Phys. of Fluids*, **3**, pp.216-225 (1960).

Maurer, M. J., Relaxation Model for Heat Conduction in Metals, *J. Appl. Phys.*, **40**, pp.5123-5130 (1969).

Maurer, M. J. and Thompson, H. A., Non-Fourier Effects at High Heat Flux, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **95**, pp.284-286 (1973).

Kumar, S and Vradis, G. C., Thermal Conductivity of Thin Metallic Films, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **116**, pp.28-34 (1994).

Özisik, M. N. and Tzou, D. Y., On the Wave Theory in Heat Conduction, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **116**, pp.526-535 (1994).

Bai, C. and Lavine, A. S., On Hyperbolic Heat Conduction and the Second Law of

Thermodynamics, *Trans. ASME J. Heat Transfer*, **117**, pp.256-263 (1995).

光学，放射及び物性値に関する文献

van de Hulst, H. C., *Light Scattering by Small Particles*, John Wiley and Sons (1957).

Siegel, R. and Howell, J. R., *Thermal Radiation Heat Transfer*, McGraw-Hill (1972).

Palik, E. D. (ed.), *Handbook of Optical Constants of Solids, I*, Academic Press (1985).

Palik, E. D. (ed.), *Handbook of Optical Constants of Solids, II*, Academic Press (1991).

Kittel, C., *Introduction to Solid State Physics (7th ed.)*, John Wiley and Sons (1996).

Longtin, J. P. and Tien, C. L., Efficient Laser Heating of Transparent Liquids using Multiphoton Absorption, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **40**, pp.951-960 (1997).

水中爆発，Cavitation に関する文献

Knapp, R. T. *et al.*, *Cavitation*, McGraw-Hill (1970).

Chahine, G. L., Interaction Between an Oscillating Bubble and a Free Surface, *Trans. ASME J. Fluids Eng.*, pp.709-716 (1977).

Blake, J. R. and Gibson, D. C., Growth and Collapse of a Vapour Cavity Near a Free Surface, *J. Fluid Mech.*, **111**, pp.123-140 (1981).

衝撃波に関する文献

高山(編), 衝撃波ハンドブック, Springer-Verlag Tokyo (1995).

謝辞

本研究を行うに当たり、学部時代から数えて7年間に渡って終始懇切丁寧な御指導を頂いた東京大学大学院工学系研究科 庄司正弘教授に心から謝意を表します。御指導のみならず、国際学会を始め、数々の学会に参加する機会を与えて頂いたことは、著者にとって非常に大きな刺激となり、研究を行う上で計り知れない力となった事をここに記しておく。

同大学院工学系研究科 丸山茂夫助教授には、本研究を行うに当たり、量子の世界を導入した伝熱工学の世界に関し、実験・理論に渡り数々の貴重な御助言を頂いた。丸山先生との議論により、常に広い視野の必要性を覚える事が出来た。

同大学工学部 生産技術研究所の西尾茂文教授、同大学院工学系研究科の松為宏幸教授、松本洋一郎教授には、本論文をまとめるに当たり伝熱工学のみならず、化学工学、流体工学の観点から多くの有益な御指摘、御助言を頂いた。

同大学院工学系研究科 機械工学専攻 伝熱・蒸気工学研究室の横谷定雄助手、井上満助手、渡辺誠技官には、本研究における実験に関し、また物品購入等の事務処理に関し全面的にお世話になった。著者の未熟な実験技術にも関わらず暖かく御指導いただいたお陰で本論文をまとめるに至った。著者が研究に没頭出来たのも諸氏のお陰である。

本研究における高速度写真撮影において、固体面加熱に際し、同大学工学部総合試験所 高速度カメラ室の津野隆夫助手、中村美雄技官にその経験豊富な技術と共に多大なる御助力をいただいた。また、液体金属面加熱においては、高速度写真撮影装置使用に関し、東京工業大学 井上晃教授（当時）、吉澤善男教授、Dr. Sang-Ryoul Lee（当時）に寛大かつ献身的な御協力をいただいた。

本研究における実験を行うにあたり、東京大学大学院工学系研究科機械工学専攻 修士課程の伊藤浩二氏、高木勇人氏、井田徳昭氏に御世話になった。彼らの辛抱強い協力が無ければ本研究での実験遂行は困難であった。心より感謝すると共に彼らの今後の更なる活躍を祈る。

伝熱・蒸気工学研究室の先輩諸氏、学友達との活発な議論・他愛のない雑談が本研究を行うにあたり著者にとって非常に重要な活力源であった。著者と全く違う視点からの物の見方など、常に刺激を受け、新鮮な気持ちで研究を行う事が出来た。心から謝意を表す。

また、著者と共に、時に楽しいまた時に辛い時間を過ごしてくれた友人・知人達に心から感謝する。彼ら彼女らとの時間により著者がどんなに支えられたか計り知れない。

最後に、両親そして弟妹全員に心から感謝する。著者が本論文執筆に至る事が出来たのも、家族の深い理解、有形無形の支持があればこそである。