

平成 21 年 3 月 13 日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007 年度～2008 年度
 課題番号：19540525
 研究課題名（和文） 格子状クラスタープラズマの生成とレーザーとの相互作用に関する研究
 研究課題名（英文） Study for a generation of a latticed cluster plasma and its interaction with strong laser field
 研究代表者 摂南大学・工学部・教授
 田口 俊弘 (90171595)

研究成果の概要：

本研究は、クラスターを格子状に配列させた状態に高強度レーザーを照射することでコヒーレントな現象を発生させることを目指し、それに向けての格子状クラスター生成手法の確立と解析用のシミュレーションコードの開発を目的とした。

レーザークラスター相互作用を解析するためのシミュレーションコード開発の成果としては、まず粒子間衝突過程と電離（衝突電離・電界電離）過程を含んだ効率の良い粒子コードの開発を行った。今回開発したコードにおいて、粒子間衝突効果はLangevin方程式を用いる方式により導入し、電離過程は電界電離がADK理論、衝突電離はLotzの公式を用いて導入した。開発したコードを用いてクラスターのエネルギー吸収や高速イオンのエネルギースペクトルなどを調べた。さらに、3次元化と並列化による大規模化も行った。

格子状クラスタープラズマ生成実験では、生成実験のためのモバイル真空チャンバーの製作を行った。製作したチャンバーは高さ約 20 cm、直径約 20 cm の円筒状である。プラズマ発生用、および微粒子プラズマ閉じ込め用の電極、エタノールガス導入機構、および微粒子供給装置を製作して取り付けた。またC60フラーレンのクラスターイオン生成実験のためのイオン源および回転電場型質量フィルタの製作を行い、イオン電流検出器を取り付けるためのXY可動ステージを購入した。これらの装置を用いて実験を行ったところ、微粒子プラズマの空間固定による格子状クラスターの生成は、直流放電ではうまくいかなかったが、冷陰極放電管用の45kHzインバータを利用した高周波電源を用いることで成功した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
19 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
20 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野： 数物系科学

科研費の分科・細目： プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード： レーザー、格子状クラスター、電離・衝突効果を含む粒子コード、
 モバイル真空チャンバー、回転電場型質量フィルタ

科学研究費補助金研究成果報告書

1. 研究開始当初の背景

近年、ナノ粒子であるクラスターを用いた実験が盛んに行われ、様々な応用が期待されている。クラスターとは数十個～数万個以上の原子の集合であり、分子の大きなものとも、ナノサイズの固体であるとも考えられる。研究代表者は、プラズマ物理の分野から、希ガスクラスターと高強度レーザーの相互作用をコンピュータシミュレーションにより解析した結果、単一クラスターに高強度レーザーを照射した時のレーザー共鳴吸収現象を発見し、レーザー光強度が閾値を越えるとレーザーからクラスターへのエネルギー吸収が飛躍的に増大することを示した。この現象はレーザー光強度とクラスターサイズに依存した閾値を持つ非線形現象であり、クラスター中の電子全体が一同となって運動をするマクロな運動である。

従来のレーザー・クラスタープラズマ研究で観測されている現象は、レーザーが1個1個のクラスターに作用して引き起こす現象の相関のない重ね合わせであり、クラスター間の相関は考慮されていなかった。これに対し、クラスター共鳴現象はクラスター内部の電子が外部電界に集団的に応答するマクロな現象であり、クラスターを周期的に配置して格子構造を形成すれば、非線形現象の協調性により相関性の高い運動を起こすことが期待できる。このようなマクロ構造の協調運動の応用としては、テラヘルツ光のような長波長電磁波のコヒーレント光源などが考えられる。

研究分担者（井上）は、物質分析の立場からクラスターの生成および分析に携わってきた。その実験過程において、クラスター中で放電を起こすことでクーロン結晶を作り出すことを試み、クラスターガスを放電させることでクラスターが電荷を持ち、そのクーロン反発力により1成分プラズマ（OCP）として格子を組むことを示した。この格子形成の際には自己サイズ調整機能によりクラスターのサイズの選別が行われるため、格子を組むクラスターのサイズがそろい、上記の共鳴吸収を応用するという観点からも好都合であることがわかっている。

以上の準備状況を元に今回の研究を実施した。

2. 研究の目的

(1) 「クラスター集団の微視的運動解析コードの開発とそれによる評価」

クラスターとレーザーとの相互作用は、超短時間に発生する高密度プラズマの挙動に関する問題であり、発生する高速電子・イオンの運動論的効果を考慮した解析が必要である。このような問題を解析するシミュレ

ーションとしてはプラズマ粒子コード（PICコード）が最適であるが、クラスタープラズマを解析するためには従来のPICコードに衝突・電離過程を含めなければならない。本研究では、PICコードに適した計算効率の良い衝突・電離過程の導入手法を開発し、さらにそれを大規模化することで格子状クラスター状態を解析することのできる大規模粒子コードを開発することを第1の目的とした。

(2) 「格子状クラスターの安定な生成法の開発と評価」

クラスターの集団運動からコヒーレント輻射などのマクロな物理的イベントを引き起こすには、クラスターの集団をできる限り周期的な構造にするのが良いと考えられる。この一つの方法がクラスターを放電等の手段で電離させることにより生成される1成分クーロン結晶（OCP）を生成する方法である。このクーロン結晶を安定に生成する手法の確立を目指すことを第2の目的とした。

3. 研究の方法

(1) 衝突・電離過程を含んだプラズマ粒子コード（PICコード）の開発のポイントは、[1] 計算効率を良くすること（粒子数に比例した計算量が望ましい）、[2] 大規模化を容易にする、即ちベクトル化・並列化ができることの2点である。

特に重要なのは[1]の計算効率である。分子動力学のような粒子法は、2体粒子間力を計算して運動を追跡するため、計算量が粒子数の2乗に比例する。これに対し、PICコードは粒子間力を計算するのではなく、粒子量を一旦格子量に置き換えて電場・磁場を格子量の時間発展で計算する。こうすれば、力の計算は粒子数に比例した計算量で済むため、分子動力学に比べてはるかに大きな粒子数を用いることができる。

しかし、場の計算の解像度が格子間距離で決まるため、衝突のような近距離相互作用の効果をフィルタリングしてしまう欠点を有する。このため、一般には低密度プラズマの解析に使われている。

近年、コンピューターパワーの増加により大きな領域を粒子コードで解析することが可能となり、必然的に高密度プラズマ解析へ応用されるようになった。このため、PICコードへの衝突効果の導入が研究されるようになり、様々な手法が提案されている。

本研究では、計算効率を上げるためLangevin方程式を基礎として、衝突効果と同等の確率論的な運動量変化を各粒子に与える方法を考案した。ただし、同種粒子の場合には全運動量と全エネルギーが保存されなければいけないので、運動量変化に所定の束

縛条件を課している。

レーザークラスター相互作用の解析には、電離の効果も重要である。クラスターは希ガス等の急冷で生成するため、生成直後は中性である。これに超短パルスレーザーを照射したときの過程を解析するには電離過程から解かなければいけない。本研究では、電界電離過程を ADK 理論で、衝突電離を Lotz の公式を用いて導入した。これらは計算の前準備が必要であるが、それぞれ粒子数に比例した計算量で済むため、大幅な計算量の増加にはならない。

これらの衝突・電離過程を導入したシミュレーションコードを作成した後、さらに格子状クラスターを解析するためには大規模化が必要である。このため、MPI を用いた並列計算や 3 次元化をほぼ 100% 近いベクトル化を達成しながら実現した。

(2) 格子状クラスター生成実験のために、モバイル真空チャンバーを製作した。これは将来大型レーザー研究施設に持ち込んでレーザー照射実験を行うことを視野に入れている。真空排気にはロータリーポンプを用いており、到達真空度は 10^{-1} Pa 程度である。放電時の真空度はポンプとチャンバーとの間に挿入したアングラバルブにより調整を行った。図 1 にチャンバー内部の構造図を示す。

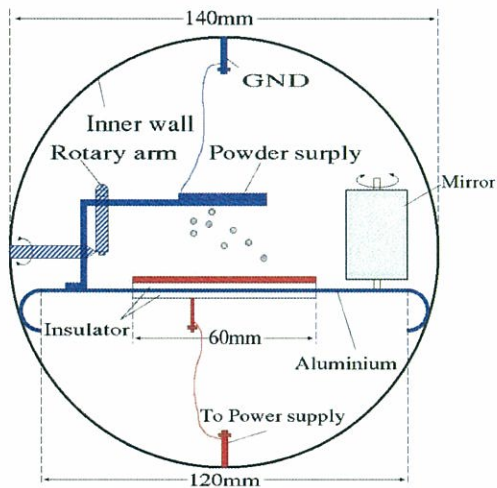


図 1 実験装置の模式図

微粒子供給器はステンレスメッシュを 5 枚重ね、中央に円形の穴を開けたアルミ板で上下からはさんだ構造となっている。下部の高圧電極板との間で放電を起こすためのグランド電位の電極としての役割も果たす。メッシュにはあらかじめ粒径約 30 ミクロンの酸化アルミ微粒子を充填しておき、上からロータリーアームを使って振動を与えることにより微粒子を放電領域へ散布する構造となっている。ダストプラズマを空間に閉じこめられるよう中央部のへこんだ漏斗状の電

界分布を得るため、高圧電極はスプリング状とした。図 2 にスプリング状電極を用いてアルコール雰囲気中で行った放電実験の様子を示す。浮遊するダストの観察には赤色レーザーポインタによるチンダル現象を利用した。



図 2 アルコール雰囲気中での放電の様子

以上の実験と並行してクラスターサイズ効果を定量的に見積もるための基礎技術として、回転電場型質量フィルタの開発を行った。その構造図を図 3 に示す。

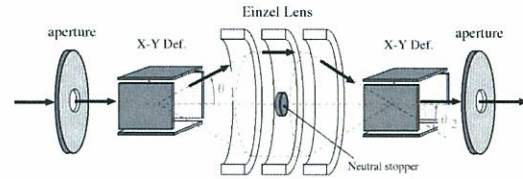


図 3 回転電場型質量フィルタ

4. 研究成果

(1) 上記の研究目的で述べたような原理に基づき、衝突・電離を含んだ大規模 PIC コードを作成し、動作させたことが本研究における重要な成果の一つである。ここでは、開発したコードを用いて行ったいくつかの解析結果について述べる。

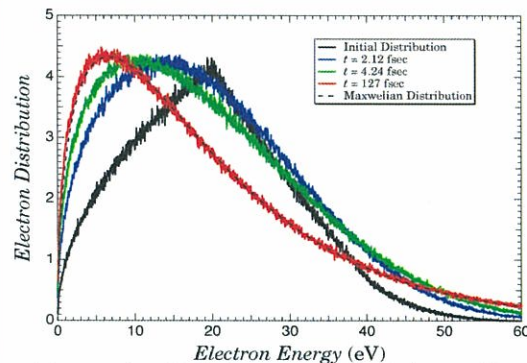


図 4 電子間衝突による平衡分布への漸近

図 4 は電子のエネルギー分布の時間変化であり、衝突効果の導入が正常に動作していることを示す例である。初期条件として黒い実線で示された非平衡分布を与えて計算したところ、時間がたつにつれて徐々に赤い実

線に漸近していった。ここで、黒い破線は初期分布と同じエネルギーを持つマクスウェル分布を示しており、衝突の効果で所定の平衡状態に漸近していることがわかる。同様に電離過程も理論的計算と比較することで動作を確認した。

この新しく開発した衝突・電離を含んだPICコードを用いて2つの問題を解析した。1番目は以前のコード(衝突・電離無し)を用いて見いだしたアルゴンクラスターにおける共鳴吸収現象である。図5にパルス幅100fsec、波長800nmの様々な強度のレーザーを直径38nmのアルゴンクラスターに照射したときの電子の平均エネルギーの時間変化を示す。ここでレーザーのピークは170fsecあたりにある。図よりわかるように強度が $7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ を境に電子エネルギーが急激に上昇することがわかる。

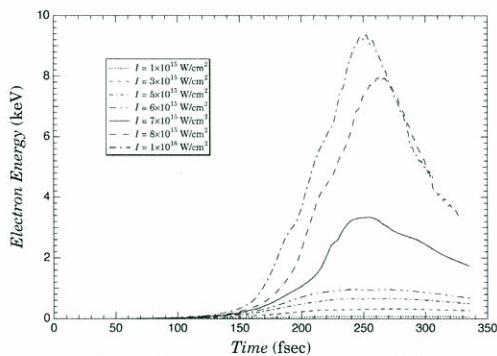


図5 電子エネルギーの時間変化

このエネルギー増加は研究代表者らが以前見いだした共鳴吸収と同じものであり、衝突・電離過程を含めても同様の効果があることが確認できたことになる。ただし、衝突等がない場合の閾値強度は $5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ に近かったので、閾値が増加したことになる。これは衝突の効果を含めることで加速しにくくなり、結果的に閾値が増加したものと考えられる。

もう一つの問題はイオンのエネルギー分布の解析である。米国メリーランド大学などの実験において、レーザークラスターで発生したイオンのエネルギー分布を観測したところ、レーザーの偏光方向(電界に平行な方向)とそれに垂直な方向で観測したイオンのエネルギー分布に差があることがわかった。

そこで、開発したコードを用いてアルゴンクラスターに高強度レーザーを照射したときのイオン分布の非等方性について調べた。図6に結果を示す。図は35nmのアルゴンクラスターにパルス幅60fsecのレーザーを照射したときに発生した高速イオンのエネルギー分布である。図6(a)はレーザー強度が $5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ の場合、(b)が $1.5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ の場合である。図で実線は平行成分、破線が垂直成分である。図を比較すると、(a)の低強度

の場合にはエネルギー先端を除いてはほぼ分布が同じなのに対し、(b)の高強度の場合には少しではあるが平行成分の方が多いことがわかる。

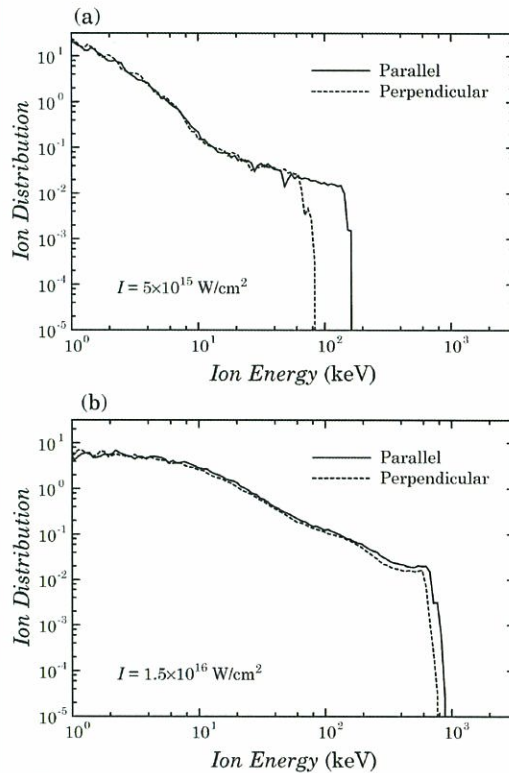


図6 イオンのエネルギー分布の非等方性

クラスターでのイオンの加速は電子に引き出されて起こるが、電子の加速はレーザー電界方向に優先的に起こる。しかし、加速が弱いときにはイオンの散乱などにより等方化して、レーザーパルス終了後は等方的に膨張する。即ち、イオンも等方的に加速される。これに対し、加速が強い場合には電子膨張が非等方となり、結果的にイオンの加速も非等方になるのである。

ここで、上記の共鳴吸収の果たす役割が重要となる。共鳴吸収は電子を大きく加速し、膨張の非等方化を増長させる方向に働く。前記の通り共鳴吸収の閾値が $7 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ であることは、図6(a)と(b)の相違が閾値よりも低いか高いかと一致している。これはこの考えを裏付けるものである。

ここまでのシミュレーションは、2次元コードによるものである。粒子コードは大きなメモリ空間と高速計算を必要とするため、パラメータを色々変更して現象の予測を立てるのには2次元計算で行わざるを得ないからである。クラスターは3次元の球状であるのに対し、2次元計算は円柱状を仮定することになるため、計算は不完全である。特に、円柱状電荷のポテンシャルは対数的で電子が長距離まで束縛状態にあることが問題となる。そこで、コードの3次元化に取り組ん

だ。3次元コードは衝突・電離計算などは2次元と同じで形状が3次元になっただけであるが、メモリー量をできるだけ軽減するために配列の共有化、対称性を用いた計算領域の縮小等を行い、合わせてMPIを用いた並列化を行った。

開発した3次元コードを用いて直径21nmの水素クラスターにパルス幅60fsecのレーザーを照射したときのエネルギー変化を調べたところ2次元と3次元では吸収量が大きく異なることがわかった。水素クラスターの場合もアルゴンと同様にレーザー強度の閾値が存在するが、3次元の場合には吸収が2次元ほど強くない、閾値に相当するジャンプも小さいことがわかった。また、2次元では閾値が $1.5 \times 10^{15} \text{W/cm}^2$ なのに対し、3次元では $0.8 \times 10^{15} \text{W/cm}^2$ と低かった。

前記のように2次元は円柱で、3次元は球である。レーザー電界は直線偏光のためレーザー光電界でクラスター表面に誘起される電界は球状である3次元の方が大きい。これが閾値が低い理由である。しかし、円柱電荷は到達距離が長いので、高速の電子でも長時間束縛され、大きな吸収が起こるのに対し、球状電荷では高速電子が束縛を離れてしまうため、総吸収量が下がってしまうと考えられる。

本研究では、格子状クラスターと高強度レーザーとの相互作用の解析を目的として衝突・電離過程を含んだ大規模粒子コードの開発を行ってきたが、これまでの成果でほぼ目的は達成されたと考えている。このような粒子コードは国内や米国・中国など諸外国でも盛んに開発されているが、効率を重視したという点では最も優れているコードの一つであると考えている。また、共鳴吸収の発見、およびそれとイオンスペクトルの非等方性との関連など、新たな発見もいくつか見いだし、当該分野でのインパクトは強いと考えられる。2次元と3次元の相違も興味深く、実際の格子状クラスターのレーザー照射実験への基礎は固めたと考えている。今後、引き続き研究を進め、実際の照射実験と格子状クラスターからのコヒーレント現象の解析を進める予定である。

(2) 放電用の電源としてDC電源、60Hz半波整流電源、冷陰極放電管用45kHzインバータの3種類を試した。結果としてエタノール圧力 $2.0 \times 10^1 \text{ Pa}$ 、放電電圧1kVpp、周波数45kHzのときにダストの浮遊を目視にて確認することができた。残念ながらインバータの出力が小さくて放電を長時間持続することができず、カメラ撮影には失敗した。今後、放電用の高周波電源の高出力化と浮遊するダストのマクロ撮影方法の確立が必要である。

また、回転電場型質量フィルタについては

単原子で1価のイオンビームとなることがわかっているXe⁺イオンビームを用いて特性評価実験を行い、図7のような結果が得られた。

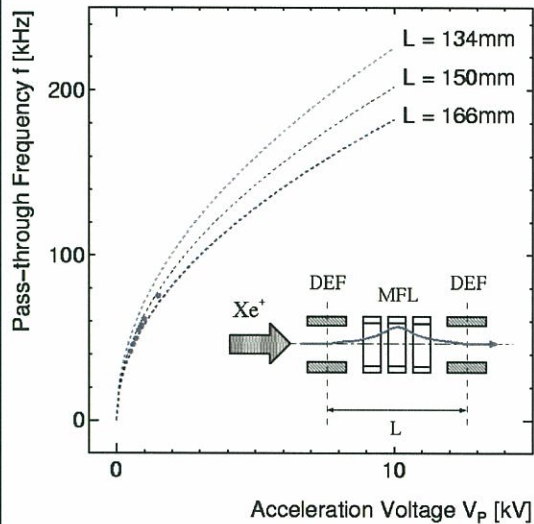


図7 Xe⁺イオンビーム電流の周波数特性

ほぼ(1)式の理論値どおりの通過周波数となっていることを確認することができた。

$$f = \frac{\Delta\phi}{2\pi} \cdot \frac{1}{L} \cdot \sqrt{\frac{2eV_p}{m}} \quad (1)$$

この実験と並行して図8のようなC₆₀クラスターイオンの発生源を作成し、C₆₀昇華温度を調べる実験を行ったところ、図9のような特性が得られた。このグラフから、400℃から450℃あたりが発生源の最適動作温度であることが確認された。引き続き、回転電場型フィルタと組み合わせた実験を行って行く予定である。

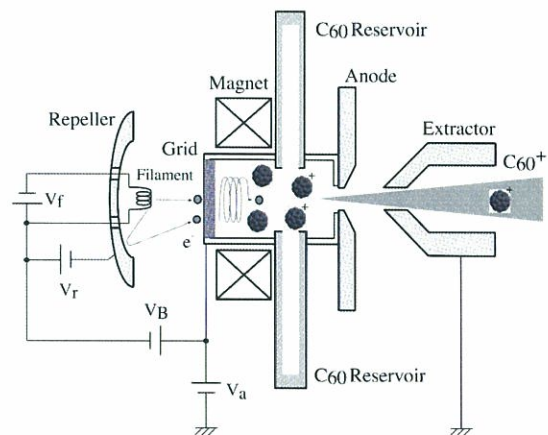
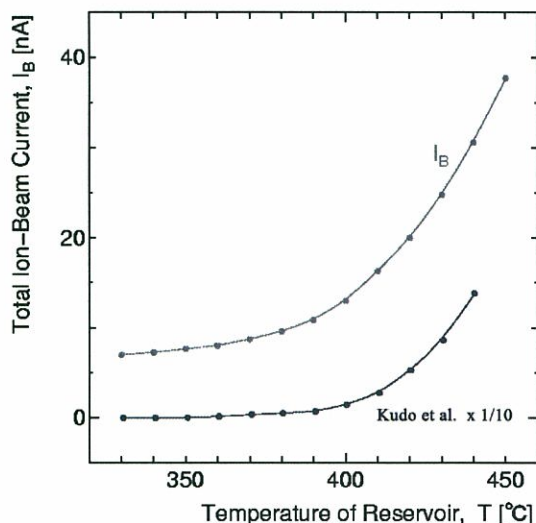


図8 C₆₀クラスターイオン発生源
図9 リザーバ温度に対する全イオン電流



5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

T. Miyagawa, K. Inoue, and M. Inoue
 “Oxygen Enhanced Surface Roughening of Si(111) Induced by Xe⁺ Ion Sputtering”
 Journal of Surface Analysis, 査読有り
 vol. 13, 2009, pp325-328.

[学会発表] (計 9 件)

T. Miyagawa, K. Inoue, and M. Inoue
 “Oxygen Enhanced Surface Roughening of Si(111) Induced by Xe⁺ Ion Sputtering”
 International Workshop for Surface Analysis and Standardization, iSAS-09,
 2009. 3. 18, Okinawa

T. Taguchi, T. M. Antonsen, H. Milchberg, ”
 Anisotropic energy spectra of fast ions generated by a laser-cluster interaction analyzed by a collisional PIC code”,
 American Physical Society, 50th Annual Meeting of the APS Division of Plasma Physics, 2008. 11. 18., Dallas

有馬智幸, 入江優, 井上雅彦
 「クラスターイオン銃の試作-回転電場型質量フィルタの特性評価-」
 2008年実用表面分析講演会 PSA-08,
 2008年10月14日, 東北大学

田口俊弘, T. M. Antonsen, H. Milchberg, 「レーザークラスター相互作用におけるイオンのエネルギースペクトル」, 日本物理学会秋期大会, 2008年9月22日, 岩手大学

井上雅彦

「C60 クラスターイオンビームの発生とその特性」

応用物理学会薄膜・表面物理分科会
 第36回薄膜・表面物理セミナー,
 2008年7月17日, 東京大学

K. Inoue, S. Temma, and M. Inoue,
 “Oxygen Effects on the Secondary Electron Emission from Si Surface Induced by Low Energy He⁺ and Xe⁺ Ions”,
 4th International Symposium on Practical Surface Analysis, PSA-07
 2007. 11. 25, Kanazawa.

S. Irie, T. Arima, and M. Inoue,
 “Development of C60 cluster ion gun with rotating field mass filter”,
 4th International Symposium on Practical Surface Analysis, PSA-07
 2007. 11. 25, Kanazawa.

T. Taguchi, T. M. Antonsen, H. Milchberg, ”
 Development of a collisional PIC code for an analysis of cluster plasmas”,
 American Physical Society, 49th Annual Meeting of the APS Division of Plasma Physics,
 2007. 11. 13., Orlando

田口俊弘, T. M. Antonsen, H. Milchberg, 「レーザー・クラスター相互作用における共鳴吸収」,
 日本物理学会第62回年次大会
 2007年9月21日 北海道大学

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田口 俊弘 (90171595)
 摂南大学工学部電気電子工学科 教授

(2) 研究分担者

井上 雅彦 (60191889)
 摂南大学工学部電気電子工学科 教授

(3) 連携研究者 (初年度は研究分担者)

坂和 洋一 (70242881)
 大阪大学
 レーザーエネルギー学研究センター 準教授