

令和元年6月14日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03904

研究課題名(和文) 圧力波フォーカシングを利用した高純度シリコンクラスタービーム生成技術の高度化

研究課題名(英文) Development of high purity silicon cluster beam generation technology using pressure wave focusing

研究代表者

長谷川 純 (Hasegawa, Jun)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：90302984

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：高エネルギー加速器の候補クラスターイオン源の一つとしてレーザーアブレーションクラスター源を開発し、生成クラスターのサイズ分布とフラックス波形がクラスター形成条件にどのように依存するかを詳細に調べた。レーザーアブレーションによってシリコンまたはアルミニウムの蒸気を発生させ、高圧ヘリウムガスで急冷することによって、蒸気中の原子数に対して約0.1%の効率で約100個の構成原子を有するクラスターをレーザーパルス当たり1000億個以上生成できることを示した。また、ヘリウムガス圧力とクラスター源の内部構造を変えることで、クラスターサイズ分布とフラックス波形をある程度制御できることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、加速可能なイオンの比電荷に原理的な制約がない誘導加速シンクロトロンが発明され、核子あたり1MeV以上の高エネルギーまでクラスターイオンを加速することが原理的に可能になった。この新技術により、巨大な分子であるクラスターイオンを固体物質の内部まで深く照射することが可能になれば、従来の単原子イオンビームによる材料改質やイオン注入、がん治療とは全く異なる放射線効果を基盤とした量子ビーム科学の新しいフロンティアが拓かれると期待されている。本研究は、レーザーアブレーション技術を用いたクラスター生成手法について幅広い動作条件のもとでその特性を調査し加速器用クラスター源としての成立性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We developed a laser ablation cluster source as one of the candidate cluster ion sources for high energy accelerators, and investigated in detail how the size distribution of the generated clusters and the flux waveform depend on the clustering conditions. We showed that by generating a vapor of silicon or aluminum by laser ablation and quenching with high pressure helium gas, 100 billion or more clusters composed of about 100 constituent atoms per laser pulse can be generated with an efficiency of about 0.1% with respect to the number of atoms in the vapor. In addition, we clarified that the cluster size distribution and the flux waveform can be controlled to some extent by changing the helium gas pressure and the internal structure of the cluster source.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：クラスタービーム レーザーアブレーション 飛行時間質量分析 金属クラスター 共有結合クラスタ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

クラスターと呼ばれるナノメートルサイズの巨大な分子を高エネルギーまで加速し固体物質に照射すると、従来の単原子イオンビームによる表面改質やイオン注入とは異なる放射線効果を与えることができる。これは、クラスター照射により物質中に極めて局所的に形成された高エネルギー密度状態の緩和過程が、単原子イオン入射の場合とは異なると考えられるためである。クラスターイオンの加速実験はフランスのオルセー核物理研究所をはじめ国内外の研究機関において行われてきたが、その加速エネルギーは最大でも核子あたり 50~60 keV 程度であり、従来は物質表面との相互作用が主な研究対象であった。近年、加速可能なイオンの比電荷に原理的な制約を持たない誘導加速シンクロトロンが発明され、クラスターの加速エネルギーの飛躍的な向上(核子あたり 1 MeV 以上)が見込まれている。この新しい粒子加速技術により、高エネルギーの巨大クラスター(C_{60} 等)を固体物質の内部まで照射することが原理的に可能になり、量子ビーム科学の新しいフロンティアが拓かれようとしている。

高エネルギークラスターを基盤とした量子ビーム科学を展開する上で重要な課題は、サイズの揃ったクラスターを効率的に生成し、加速器に供給する技術の確立である。近年、楕円体キャビティー内の低温ヘリウムガス中を伝播・集束する圧力波(衝撃波)によりレーザーアブレーション蒸気を短時間・高密度で閉じ込めて急速に冷却し、サイズ分散の小さいクラスターを効率的に生成する新しい技術が提案された。しかし、キャビティー内に誘起される圧力波とアブレーション蒸気の相互作用やクラスター形成の詳細なメカニズムは未知である。また、背景ガスの温度や圧力、アブレーション用レーザーの照射強度といったクラスター源の動作条件と、生成されるクラスターのサイズ分布や生成・輸送効率との相関も明らかでない。

2. 研究の目的

本研究は、レーザーアブレーション蒸気の高時間分解計測と生成クラスターの質量(サイズ)分析を同時に行うことで、キャビティー内での蒸気ブルームの挙動と生成クラスターのサイズ分布との相関を明らかにし、レーザーアブレーション型クラスター源の加速器への適用可能性を検討することを目的とした。生成されたクラスターの諸特性(サイズ分布、フラックス量、パルス幅等)がクラスター源の動作条件(背景ガス圧力、レーザーの照射強度等)にどのように依存するかを詳細に調べることで、最終的に加速器用クラスターイオン源の設計指針を得ることを目指した。

3. 研究の方法

本研究の実施にあたり、クラスター生成試験装置(図1)を新たに構築した。100 mJ 級の Nd:YAG レーザーを回転する円盤状のシリコンまたはアルミの標的に照射してアブレーションを起こし、生じた蒸気を外部から供給されるヘリウムにより冷却してクラスター生成を行った。クラスター源としては比較的低い背景ガス圧(≤ 1 kPa)で動作するタイプと、高い背景ガス圧(≥ 1 MPa)で動作するタイプの2種類を開発した。生成されたクラスターはヘリウムの流れによりキャビティー出口から噴出し、2段のスキマーを通じて下流に輸送される。クラスター源内部(キャビティー)でのアブレーション蒸気の観測には、高速フレーミングカメラを使用した。また、アブレーション蒸気により背景ガス中に駆動される圧力波を観測するために He-Ne レーザーの回折を用いた波面位置検出装置を構築し、様々な条件下での圧力波の伝播速度を計測した。さらに高時間分解の飛行時間質量分析(TOF-MS)装置を開発し、クラスター生成試験装置の下流に設置した。TOF-MS 装置では、クラスター源から運ばれたシリコンまたはアルミのクラスターを ArF エキシマレーザーによりイオン化し、生じたクラスターイオンを進行方向に垂直に印加した静電場(~ 20 kV)で加速して、マイクロチャンネルプレート(MCP)により検出した。TOF-MS に加え、マイカ基板上にあらかじめ蒸着したクラスターを原子間力顕微鏡(AFM)で観測することでクラスターのサイズ分布の解析も行った。

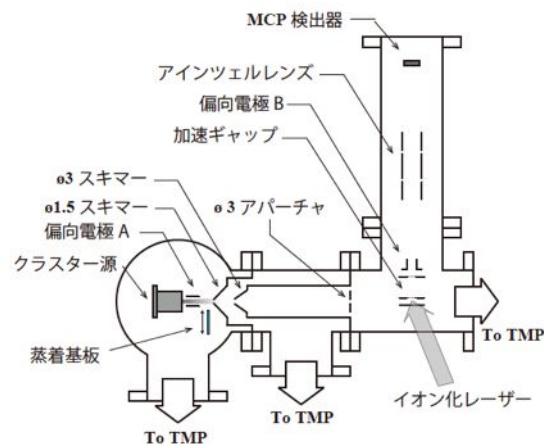


図1: クラスター生成試験装置。

4. 研究成果

高速イメージングカメラにより、背景ヘリウムガス中を進展するシリコン蒸気ブルームの様子を詳細に観測し、背景ガス圧およびキャビティー形状に対するブルームの挙動変化を調べた。背景ガス圧が 100 Pa の時のアブレーション蒸気ブルームの進展の様子を図2に示す。ブルーム前方に明るい発光領域が現れるが、これはブルームの進展が背景ガスによって抑制され、ブルームの運動エネルギーが熱エネルギーに変換された結果によるものだと考えられる。背景ガス圧

を上げるとブルームの進展距離はさらに抑制される(図2下).ブルーム周縁部の背景ガスと熱交換が盛んな領域でクラスターが主に生成されると考えられるため,背景ガス圧に応じて適切な位置にキャビティー出口を設置することが,クラスタービームの効率的な取り出しには重要であることがわかった.

アブレーション蒸気中で生成されるシリコンクラスターのサイズ分布について,背景ガス圧と,シリコン標的上のレーザーのスポットサイズ(フルエンス一定)に対する依存性をAFMにより調べた.マイカの結晶上に堆積させたシリコンクラスターをAFMで観測したものを図3に示す.表面の凹凸分布から,シリコンクラスターのサイズ分布を推定した.背景のヘリウム圧力が100 Paのときより,200 Paまたは300 Paの時のほうがクラスターの平均サイズは大きくなり,クラスター源の出口から取り出されるクラスターの量は圧倒的に多くなることが分かった(図3下).300 Paになると,平均サイズの上昇とともにサイズ分布の幅が増加する様子が見られた.100 Paの時にクラスターがほとんど得られなかったのは,おそらくクラスターがキャビティーの出口を通過し,下流の検出部まで輸送される効率が低下したためであると考えられる.さらに,レーザースポット径が約1 mmと約3 mmの時を比較すると,3 mmの時の方がクラスターの平均サイズは小さく分布も狭くなるという興味深い結果も得られた.高速フレーミングカメラによりアブレーション蒸気の発光の時間変化を取得したところ,スポット径3 mmの時(より1次元的な膨張)の方がアブレーション蒸気ブルームの進展速度が大きいことが分かった.このことから,蒸気ブルームの進展速度や初期の幾何学的形状がブルームの温度密度の時間履歴,つまりクラスター生成に強く影響することがわかった.

TOF-MSを用いたクラスターのサイズ分布計測では,シリコンの代わりにアルミをレーザー標的に用いた.クラスター源下流で得られるクラスタービームのフラックスについて,動作パラメータ(ヘリウムガス圧,アブレーションレーザー強度)やクラスター源の構造(滞留室サイズ,ノズル形状)に対する依存性を詳細に調べた.TO F-MSについて偏向電場の最適化を行い,構成原子数が200程度までのアルミクラスターのサイズ分布を正確かつ高感度で測定することに成功した(図4上).TOF-MS用のArFエキシマレーザーの照射のタイミングを変化させることで,アルミクラスターのサイズごとのフラックス波形を求めた(図4下).フラックス波形より,クラスタービームのパルス幅(FWHM)は100 μ s程度であり,クラスターのサイズにはあまり依存しないことがわかった.

ヘリウムガスの供給にパルス電磁バルブを用いることで1-3 MPaの高い背景ガス圧のもとでアルミクラスターの生成を行ったところ,背景ガス圧が1 MPa以上になるとクラスターの生成効率が大幅に上昇し,圧力の増加とともにより大きなクラスターが生成される

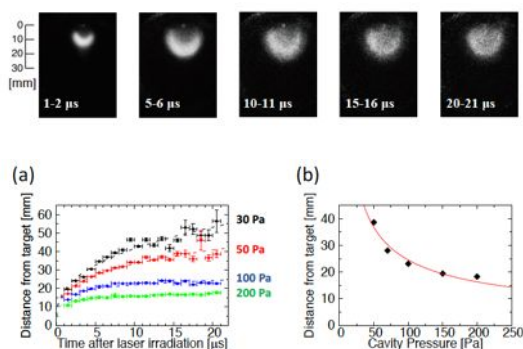


図2: アブレーションブルームの挙動.

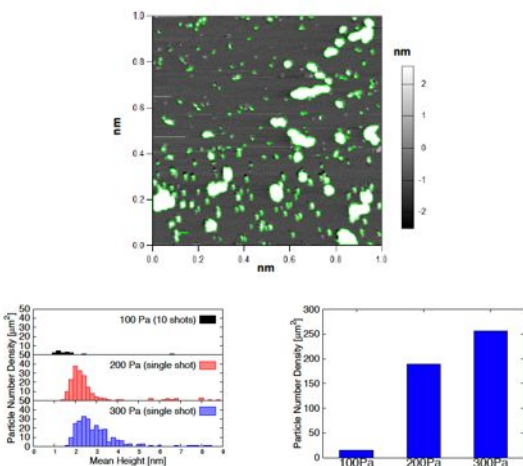


図3: シリコンクラスターのAFM像とサイズ分布.

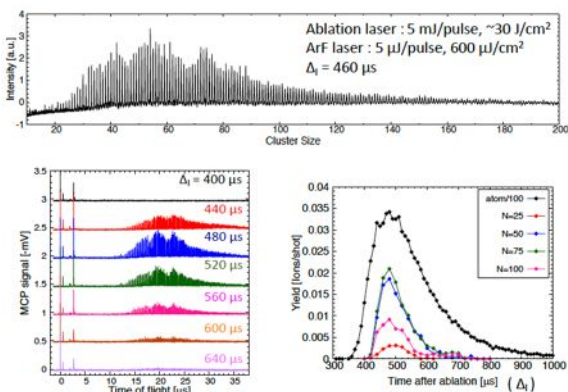


図4: Al クラスターのサイズ分布とフラックス波形.

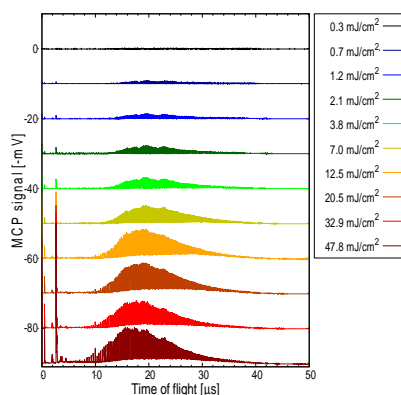


図5: Al クラスターサイズ分布のイオン化レーザー照射強度依存性.

傾向が見られた。一方、圧力が大きすぎると下流側の圧力の上昇によりノズルから出るヘリウム噴流の指向性が落ち、クラスタービームのパルス幅も広がることがわかった。

クラスター生成量のアブレーションレーザー強度に対する依存性については、アルミ標的表面の初期状態に強く影響されるため、クラスター生成量を最大にする最適なレーザー強度を決定することは本研究ではできなかった。今後、より清浄な表面を持つアルミ標的を準備するなどの工夫が必要である。一方、イオン化用レーザーについては、クラスターのサイズ分布が光解離効果により照射強度に応じて変化する様子が観測された(図5)。この結果から、求められるクラスターサイズに応じて、イオン化レーザーの強度を最適化することが重要であることがわかった。

キャビティー出口のノズルで形成されるヘリウムジェットの指向性によりクラスターの輸送効率が左右されると考えられることから、コニカルノズルの開口角を変えた比較実験を行なったが、クラスターフラックス量の変化に一貫した傾向が見られなかった。これは、供給ガス圧の増加に伴う背圧の上昇により流れ場が動作条件とともに複雑に変化することが原因と考えられ、今後のより詳細な検討が必要である。

以上の結果より、レーザーアブレーション型クラスター源におけるシリコンおよびアルミのクラスター生成の特性を詳細に明らかにすることができた。本研究の開始当初は、比較的低い背景ガス圧(≤ 1 kPa)のもとでクラスターを生成することを試みたが、アブレーション蒸気を膨張させることで蒸気内の原子密度が急速に減少し、原子間の衝突頻度が低下するため、大量のクラスターを効率的に生成することは困難であることが分かった。アブレーション蒸気の膨張は下流におけるクラスタービームのパルス幅の増加(フラックスの低下)も招く恐れがあり、加速器入射用のクラスター源にはこの生成手法は適切でないことがわかった。一方、高い背景ガス圧(≥ 1 MPa)での動作に対応したクラスター源(図6)では、アブレーション蒸気はキャビティー(滞留室)内ではほとんど膨張せず、周囲のヘリウムガスとの比較的緩やかな熱交換により冷却される。原子密度が高いまま保たれるため原子間の衝突頻度も高く、クラスターが効率的に生成されると考えられる。さらに、クラスターはコニカルノズルで形成された指向性の良い超音速のヘリウム噴流によって下流に運ばれるため、クラスター輸送効率の観点からもこの生成手法には利点が多い。一方、クラスターのサイズ分布は原子数(N)が数個から最大で200ぐらいまで広がっており、その制御性はあまり高いとは言えず、特定のサイズのクラスターだけを加速することを考えるとあまり効率的ではないこともわかった。クラスターの生成メカニズムについても、滞留室内での熱交換やノズル内で加速膨張による断熱冷却がそれぞれの程度クラスター生成に寄与しているのがまだ不明である。ただし、現時点において、本研究で開発したクラスター源におけるクラスター生成率(アルミ原子に対する特定のサイズのクラスターの生成量割合)は0.1%程度を達成しており、アルミ原子のフラックス量から見積もると、パルスあたり $10^{11} \sim 10^{12}$ 個程度のクラスターを供給できる能力をすでに有することがわかっており、これは加速器側の要求を十分に満たしている。

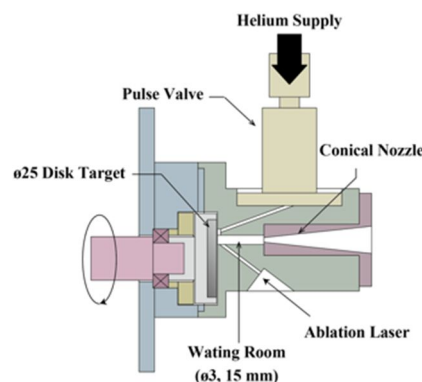


図6：レーザーアブレーション型クラスター源(高ガス圧タイプ)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

Y. Ishikawa, J. Hasegawa, K. Horioka, Y. Iwata, "Influence of hydrodynamic behavior of laser ablation plume on cluster formation", Energy Procedia, 査読あり, 131, 2017, 319-325, DOI: 10.1016/j.egypro.2017.09.458.

R. Chiba, Y. Ishikawa, J. Hasegawa, K. Horioka, "Time evolution of laser-ablation plumes and induced shock waves in low-pressure gas", Physics of Plasma, 査読あり, 24, 2017, 063520, DOI: 10.1063/1.4986085

〔学会発表〕(計7件)

Y. Ishikawa, J. Hasegawa, K. Horioka, "Mass separated particle flux from a laser-ablation metal cluster source", 22nd International Symposium on Heavy Ion Fusion and Beam-Driven High Energy Density Science, 2018.

石川裕太, 長谷川純, 堀岡一彦, "レーザーアブレーション金属クラスター源におけるフラックス計測", 第35回プラズマ・核融合学会年会, 2018.

石川裕太, 長谷川純, 岩田康嗣, 堀岡一彦, "希薄ヘリウム中のレーザーアブレーションにより生成されるシリコンクラスターのサイズ測定", Plasma Conference, 2017.

石川裕太, 長谷川純, 岩田康嗣, 堀岡一彦, "希薄ヘリウム中におけるレーザープラズマの挙動とクラスター生成の相関", 日本物理学会2016年秋季大会, 2016.

石川裕太, 松尾寛昭, 長谷川純, 岩田康嗣, 堀岡一彦, “レーザーアブレーションクラスター源におけるクラスター生成とプルームの流体的特性との相関”, プラズマ・核融合学会第33回年会, 2016.

松尾寛昭, 石川裕太, 長谷川純, 堀岡一彦, “希薄な背景ガス中を進展するレーザーアブレーションプルームの位置分解分光計測”, プラズマ・核融合学会第33回年会, 2016.

Y. Ishikawa, J. Hasegawa, K. Horioka, Y. Iwata, “Influence of hydrodynamic behavior of laser ablation plume on cluster formation”, 5th International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems (INES-5), 2016.

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：岩田 康嗣

ローマ字氏名：Iwata Yasushi

所属研究機関名：国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名：エレクトロニクス・製造領域

職名：招聘研究員

研究者番号(8桁)：80356534

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。