

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24年 4月 16日現在

機関番号：34428

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540515

研究課題名（和文）

低次元クラスター格子と高強度レーザー相互作用によるコヒーレント放射の研究

研究課題名（英文）

A research of the coherent radiation generated through an interaction between two dimensional atomic clusters and high intensity laser

研究代表者 田口 俊弘 (Toshihiro Taguchi)

摂南大学工学部電気電子工学科 教授

研究者番号：90171595

研究成果の概要（和文）：

本研究は、低次元クラスターとしてカーボンナノチューブ（CNT）を周期的に成長させたターゲットにレーザーを照射することでテラヘルツ電磁波を発生させることを目的とした。まず CNT 合成用反応容器を購入し、これを用いて色々な基板と触媒を用いた実験を行って CNT を周期的に配置する技術を開発した。一方、計算機シミュレーションにより周期的に配置された CNT にレーザー光を照射した時に発生する電磁波を解析し、基本波光と倍高調波の混合を照射することで低周波電磁波が励起できることを見いだした。

研究成果の概要（英文）：

The main purpose of this research is the generation of high power terahertz radiation from an interaction between carbon nanotubes and high intensity laser field. In the first year, we purchased a reaction chamber which is designed to synthesize single walled carbon nanotubes (SWCNT). This chamber has been used to determine the optimum conditions for the synthesis such as substrate material or surface catalysts. As a result, we obtained a method to arrange SWCNT periodically. At the same time, we have analyzed an interaction between carbon nanotubes and high power laser field through a computer simulation. As a result, it is found that the low frequency mode can be excited by the irradiation of a second harmonic laser with a fundamental laser simultaneously.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
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：レーザープラズマ、低次元クラスター、単層カーボンナノチューブ、高調波・低調波発生、自己組織化高分子膜

1. 研究開始当初の背景

CPA（チャープパルス増幅器）によるレーザーの高強度化はめざましく、小型のレーザーでも 10^{16}W/cm^2 を越える強度の光を発生

させることが可能となった。このような高強度レーザー光を物質に当てれば、その物質は瞬時にプラズマ化し、固体密度に匹敵する高密度・高エネルギー荷電粒子群が発生して、

そこから放射される高エネルギー粒子線、高強度電磁波は様々な分野で応用されている。

さて、電磁波の発生はミリ波帯ではクライストロンやマグネトロンなどの回路から発生させる方法が使われており、赤外線より短い波長領域では原子分子の固有振動を使ったレーザーが使われている。しかしその中間であるテラヘルツ帯域で高強度の電磁波を発生させる手法はまだ確立されておらず、様々な手法が提案され、実験されている。

その一つが上記の高強度レーザープラズマを使って発生させる方法であるが、テラヘルツ光はレーザー光よりも周波数が低いため、ゆっくりした電子振動を励起させる必要がある。このため、単にレーザーを当てただけではなく、レーザープラズマ相互作用の非線形効果を利用しなければならない。

本研究は、このテラヘルツ帯の低周波電磁波発生を、研究代表者が行ったレーザーと原子クラスターとの相互作用に関する計算機シミュレーション研究の結果から着想を得たものである。原子クラスターとは原子や分子の集合体であり、ナノ粒子とも大型の分子とも考えられるものである。このような粒子はレーザー波長よりも小さいため、固体にレーザーを照射した時のようなカットオフより内部に侵入し得ないという制限が無く、クラスター全体がレーザーと相互作用可能である。筆者らの以前の研究によれば、円筒状のクラスターにレーザーを照射するとレーザー光強度がある閾値を越えると共鳴吸収を起こし、大きな非線形電子振動が励起されることが分かっている。

そこで、この現象を積極的に利用するため、クラスターとして、カーボンナノチューブ(CNT)に着目した。本研究では球状のクラスターに対してこのCNTを低次元クラスターと呼んでいる。CNTを用いる利点は共鳴吸収が大きいことだけではなく、空中を漂っている原子クラスターでは考えられない、空間的周期構造を作り出すことが可能なことである。周期的に配置したCNTを作成することができれば、干渉の効果により発生する電磁波を増強することや指向性を向上させることが可能となり、高品質のテラヘルツ光源になると考えられる。

2. 研究の目的

本研究では、低次元クラスターであるカーボンナノチューブを周期的に配置して成長させたターゲットを作成し、これに高強度レーザーを照射することで高品質で高強度のテラヘルツ光を発生させることを最終目的とした。

しかし、単層カーボンナノチューブという多数のCNTを柱状に成長させる技術は存在するが、これを望みの間隔で周期的に配置す

る手法は無く、このため本研究では周期的にCNTを成長させる技術の開発を第1目的とした。また、これと平行してレーザー・クラスター相互作用を精度良く解析するための大規模計算機シミュレーションコードを開発して、発生する電磁波のスペクトル等を解析し、その結果最適な周期構造を決定することを第2目的とした。

3. 研究の方法

(1)カーボンナノチューブの周期的配列成長
CNTは成長基板上的触媒金属部分より成長するので、半径数ミクロンの触媒金属円板を規則的に成膜する方法として、高分子の自己組織化ハニカム膜をテンプレートにする方法を試みた。有機溶媒として人体に害毒のないレモズールを用いてポリスチレンの1.5%溶液を作り、ディップコート法によりスライドガラス上に塗布し、図1に示すように水蒸気を吹きかけながら乾燥させる。

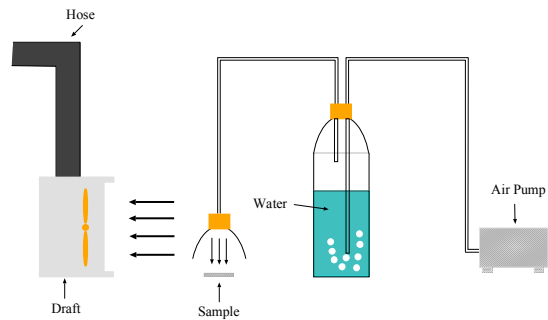


図1 自己組織化高分子膜の作製

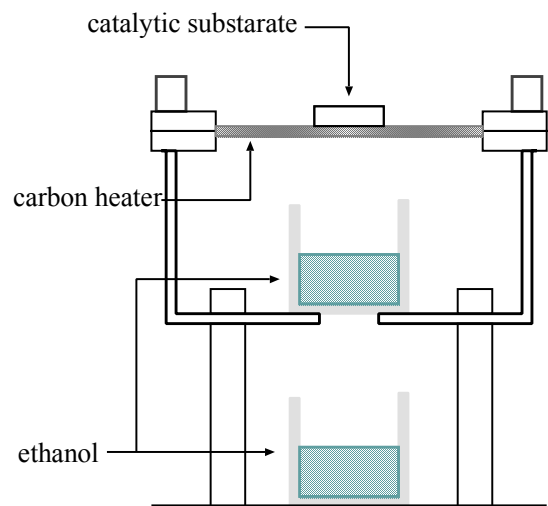


図2 CNT垂直配向膜 成膜装置の模式図

ハニカム膜が完成すればNiなどの触媒金属をコーティングし、高分子を除去することで基板表面に触媒金属の円板が周期的に配列

する。この後、この基板を図2に示すCVD装置に入れ、エタノール雰囲気中でCNT垂直配向膜を作製する。

(2) カーボンナノチューブと高強度レーザーの相互作用のシミュレーション

本研究を開始する以前に受けていた科研費「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」にて、すでにレーザー・クラスター相互作用の解析用にプラズマ粒子コードに衝突効果・電離効果（電界電離と衝突電離）を含めた静電粒子コードを開発していたので、これをさらに改良して、任意の原子からなるクラスターの電離過程の導入、並列化による高速化と、それをPCクラスターで動作させるためのライブラリ開発、および衝突過程をより精密にするための改良などを施した。この高密度レーザープラズマ解析用粒子コードを用いて高強度レーザーを円筒形の炭素クラスターに照射した際の挙動を解析した。特に本研究では電磁波の発生が問題となるので、放射源としての電子運動から発生電磁波の強度を解析するルーチンを加え、これを用いて電子振動のスペクトルや発生電磁波の強度分布を調べた。

4. 研究成果

(1) カーボンナノチューブの周期的配列成長
自己組織化膜の作製において、レゾールは人体に無害な点で期待していたが、うまく自己組織化が発生する条件を見つけないことができなかった。そこでよく用いられているクロロホルムを溶媒に用いることにした。それに伴い、クロロホルムの換気装置を自作した。文献に従い、2mg/mlの濃度でポリスチレンのクロロホルム溶液を作製し、図1の方法で成膜を行った。この膜にAuをコーティングし、走査型電子顕微鏡で観察した結果を図3に示す。

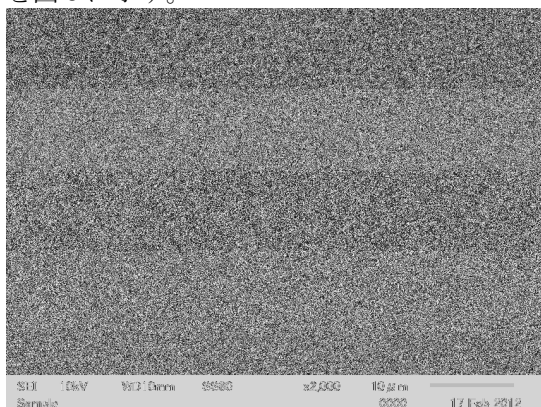


図3 ポリスチレン自己組織化膜のSEM写真

直径1~2ミクロン程度のマイクロセルが形成されていることがわかる。今回は基板を水平にして成膜したが、少し傾けて設置することで成膜時に溶液中に一方方向の流れを作ることによってセルの周期性やサイズの均一性が向上するものと期待している。

CNT成膜装置の性能チェックのため、Si基板に触媒であるFe薄膜をコーティングした基板を使い、図2のCVD装置でCNT薄膜を成膜した。走査型電子顕微鏡で断面観察を行った結果を図4に示す。

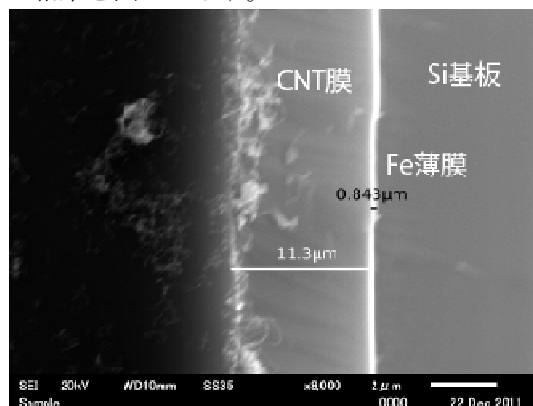


図4 CNT薄膜断面のSEM写真

0.843ミクロンのFe触媒表面に垂直に11.3ミクロンの高さでCNT膜が密集して成長していることが確認できた。

今後自己組織化膜の周期性が向上し、それをテンプレートとして金属触媒の円板を周期的に配列させることができれば、各触媒円板上に同様にCNTを垂直に成長させることができると考えられる。

(2) カーボンナノチューブと高強度レーザーの相互作用のシミュレーション

レーザーと低次元クラスターの解析には中性原子からスタートしてレーザー電磁場による電離現象を含めたプラズマの挙動を調べることでできるシミュレーションコードが不可欠である。レーザーパルスは100fsオーダーで非常に短く、この間に電離と相互作用が同時に起こるため、非平衡プラズマ相互作用を解く必要がある。この目的で良く用いられているのがプラズマ粒子コード(PICコード)である。PICコードは大量の粒子の運動を連立した運動方程式を使って解く手法であるが、粒子間相互作用は2体クーロン力を直接計算するのではなく、空間を適当な間隔で表現したグリッド(格子)を用いて解く。これにより、2体相互作用を直接計算する場合に必要な N^2 に比例した計算量(N は粒

子数)の計算は必要ではなく、粒子→格子→粒子という計算により、粒子数Nに比例した計算量で済む。

しかし、格子間隔を短くすると格子量計算に時間がかかるため、あまり細かくすることはできない。このため、2個の荷電粒子が接近した時に加わる大きな近接力は平滑化されて落ちてしまい、必然的に無衝突プラズマを解析することになる。

しかしクラスターは固体密度を持った粒子の集合体であるため、クラスター内部での粒子衝突を無視することはできない。そこで研究代表者は以前から粒子間衝突や電離過程等のマイクロプロセスをモンテカルロ的手法で効率良く導入したコードの開発に取り組んでおり、本研究でもこれを用いた。

さて、粒子状クラスターもカーボンナノチューブのような低次元クラスターもサイズ的には数十ナノメートル程度なのでレーザー波長に比べて十分小さい。このため、これまでの計算ではクラスター全体が感じるレーザー電場が計算領域全体でほぼ一様であると仮定していた。

しかし、周期的配置のCNTを解析する場合、CNT間の距離は数ミクロン程度あり、レーザーと相互作用するクラスター原子よりもはるかに大きな空間格子を導入しなければ解析ができない。このため、より大規模なシミュレーションを可能にするコード開発が必要となった。

最近の大規模計算機はパソコン(PC)クラスの小型コンピュータをネットワークを介して多数接続することで並列実行するクラスター計算機が主流となってきている。逆に言えば、安価なPCを多数用意すれば大規模な計算をすることが可能であり、大型計算機センターを利用する必要がない。粒子コードは大量の粒子の連立計算をするが、それぞれの計算が比較的独立しているため並列計算しやすいという利点がある。

しかし、格子計算を併用しているため、PC毎の計算を平均化するには格子を平均的に分割して並列化するか粒子を平均的に分割するかが問題となる。本研究のような局在化したクラスターの場合には格子を平均的に分割すると粒子がある領域に偏っているため粒子計算が平均化されない。しかし、今回はそこまでロードバランスを取ることはせず、格子の平均化による並列化を行った。これは、一つにはプログラムを簡単にするためであり、もう一つは、初期にプラズマが局在化していても、レーザー光吸収の後に膨張して広がるため最終的には粒子も平均化さ

れるからである。

しかし並列計算処理をするには、これまでのコードのようにFortranの基本文法で記述するだけではだめで、各PCに分散したメモリデータを相互にやりとりするメッセージ交換処理が必要である。最近の多くのプログラムはこの部分をMPIライブラリで実装することが多いので、本研究ではまずMPIライブラリを用いたコードの並列化を行った。

MPIライブラリはメッセージ交換機能をサブルーチンで実装させるものであるが、汎用性を高めるために様々なオプションがあり、これを直接プログラム中に埋め込むと見通しの悪いプログラムになってしまう。また、一旦書き換えたコードはクラスター計算機でのみ動作するコードになり、計算規模を小さくして単一のPCで動作させることができなくなる。

そこで、本研究では独自の拡張文法を策定し、それに準拠したプログラムを作成すればそれをMPIコードを含めたFortranプログラムに変換するプリプロセッサとライブラリを開発してこの問題を解決した。このプリプロセッサはオプションによりMPIを使用しないコードを生成することも可能であるため、単一のPCで動作させることも可能である。

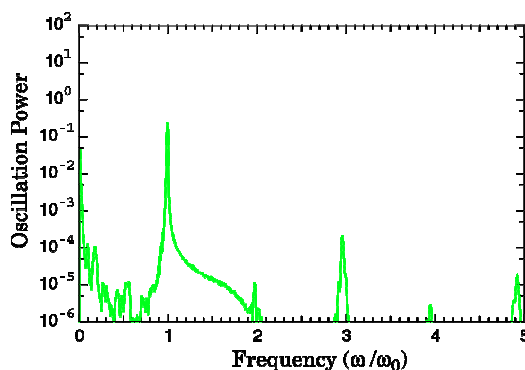


図5. 単一周波数レーザーの結果

以上の改良を施すことでクラスター計算機で動作する並列型粒子コードが完成したので、次にこれを用いてレーザーとCNTとの相互作用を計算した。計算は円筒状のクラスターを仮定しているため、円筒の長さ方向は一律の2次元計算を行った。まず、単一波長のレーザーを照射した場合のシミュレーション結果の一例を図5に示す。これは波長800nm、パルス幅150fsec、強度 $2 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ のレーザーを直径40nmの炭素円筒に照射した結果である。図はレーザーの偏光方向に振動する電子運動のスペクトルである。電子は電磁波のアンテナの役目を果たすので、この図は発生する電磁波のスペクトル分布を表

わすと考えられる。図より、レーザーの周波数 ω_0 に対し、奇数次 $((2n+1)\omega_0)$ のモードのみが発生していることが分かる。

奇数次のモードしか発生しないのは円筒が左右対称だからである。電子は炭素円筒から電離により発生するため、炭素イオンの静電力により引き戻される。すなわち、円筒形のポテンシャル井戸の中に閉じ込められていると考えられる。ポテンシャル $V(x)$ が対称であれば、偏光方向 (x 方向) で展開すると

$$V(x) = V_0 + V_2x^2 + V_4x^4 + L$$

のように偶数次の項だけが残る。このため、力 $F(x) = -\partial V/\partial x$ は奇数次の項のみとなり、これによって奇数次のみが発生する。

奇数次のみの高調波しか発生しないと言うことは、レーザー周波数より低い周波数の電磁波は励起できないことを意味する。そこで、別の波長のレーザーを同時に入射させることで変調を起こし、これにより低次波を励起する手法を試みた。

レーザーの振動数は原子の励起スペクトルで決まるため、あまり大きく変化させることはできないが、非線形結晶を通すことで倍高調波や3倍高調波に変換させることは可能である。そこで、倍高調波を同時に入射させることで低次モードを励起させることにした。すなわち、 $\omega_0 + \omega_0 - 2\omega_0$ のモードを励起させるのである。図6に結果の一例を示す。予想通り、偶数次のモードが現れている。また0次付近のピークも増大し、低次モード電磁波が発生していることも分かる。

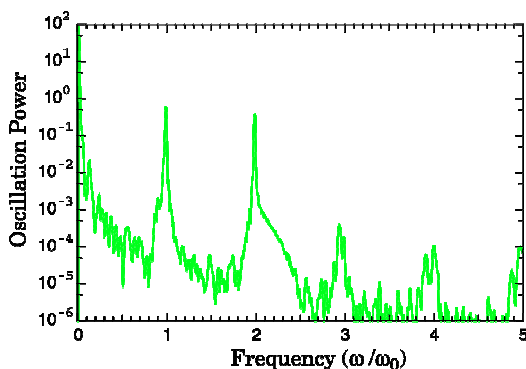


図6. 2周波数レーザーの結果

次に、入射レーザーの強度を変化させて発生する電磁波の強度変化を調べた。結果を図7に示す。ここでは、電子運動スペクトルから換算した電磁波強度を示している。

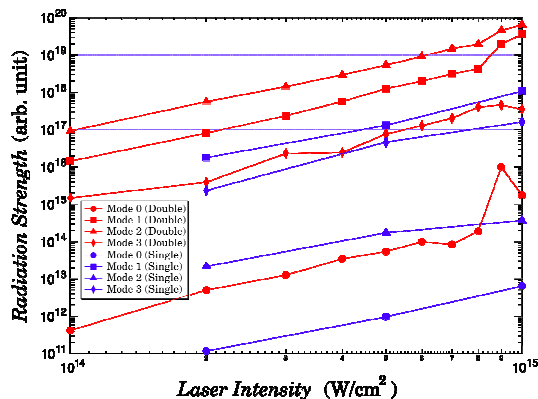


図7. 放射電磁波のレーザー強度依存性

これより、単一周波数 (青色, Single), 2周波数 (赤色, Double) ともに入射レーザー強度 I に対して、傾きは I^3 に近く、3次の非線形振動が最も有効に励起されている。また、2周波数の場合の0次モード (赤丸) が 10^{15}W/cm^2 の付近で大きく増大することが分かる。これは、以前のシミュレーション研究から見いだされたレーザークラスター相互作用があるレーザー強度を閾値として共鳴吸収を起こす現象によるものだと考えられる。

以上のことより、共鳴吸収を用いることで高い強度の低次周波光を発生させることが可能なが分かった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

- ① M. Inoue, M. Suganami, Y. Hashimoto, T. Iyasu, H. Saito, K. Moriguchi, T. Tanaka, "Application of Ionic Liquid Coating Method to Observation of Non-conductive Samples by a Mobile Scanning Electron Microscope for Elementary Science Education", Journal of Surface Analysis, 査読有, 18, 2011, 105-109.
- ② M. Inoue, T. Miyagawa, T. Iyasu, Y. Hashimoto, K. goto, R. Shimizu, "Measurement of Secondary Electron Yield by Charge Amplification Method", Journal of Surface Analysis, 査読有, 18, 2011, 110-113.
- ③ T. Taguchi, T. M. Antonsen Jr., J. Palastro, H. Milchberg, K. Mima, "Particle in cell analysis of a laser-cluster interaction including collision and ionization processes", Optics Express, 査読有, 18, 2010, 2380-2388.

〔学会発表〕(計 12 件)

- ① 田口俊弘, “高密度プラズマ中を伝播する電子ビーム解析のための 2 体衝突モデルとランジュバン方程式モデルの比較”, 日本物理学会, 2012 年 3 月 26 日, 関西学院大学
- ② 井上雅彦, “走査型オージェ電子顕微鏡を用いた二次電子利得の絶対計測: Au, Ag, Cu”, 表面分析研究会第 38 回研究会, 2012 年 2 月 9 日, 名城大学名駅サテライト
- ③ T. Taguchi, “Low frequency electromagnetic emission from an interaction between carbon nanotubes and two frequency lasers”, American Physical Society, 2011 年 11 月 16, 米国ソルトレークシティ
- ④ M. Inoue, “Application of Ionic Liquid Coating Method to Observation of Non-conductive Samples by Mobile Scanning Electron Microscope for Elementary Science Education”, International Symposium on Practical Surface Analysis, PSA-10, 2010 年 10 月 5 日, 韓国慶州
- ⑤ M. Inoue, “Measurement of Secondary Electron Yield by Charge Amplification Method”, International Symposium on Practical Surface Analysis, PSA-1, 2010 年 10 月 5 日 韓国慶州
- ⑥ T. Taguchi, “Harmonic generation induced by an interaction between carbon nanotubes and intense laser field”, American Physical Society, 2010 年 11 月 9 日, 米国シカゴ
- ⑦ 田口俊弘, “周期構造を持つカーボンナノチューブと高強度レーザーの相互作用”, 日本物理学会, 2010 年 9 月 23 日, 大阪府立大学
- ⑧ 田口俊弘, “ハイブリットコードを用いた相対論的電子ビーム伝播の解析”, 物理・天文・地球惑星 合同プラズマ科学シンポジウム, 2010 年 5 月 26 日, 幕張メッセ
- ⑨ M. Inoue, “Development of a Mobile Secondary Electron Microscope for Elementary Science Education”, 7th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials and Devices, 2009 年 12 月 8 日, 米国ハワイ州マウイ島
- ⑩ 井上雅彦, “絶縁体の二次電子収率測定 [1] パルス一次電子ビームの発生”,

2009 年度実用表面分析講演会, 2009 年 11 月 19 日, 山梨大学

- ⑪ T. Taguchi, “An interaction between strong laser field and carbon nanotubes”, American Physical Society, 2009 年 11 月 18 日, 米国アトランタ
- ⑫ 田口俊弘, “格子状クラスターとレーザーの相互作用”, 日本物理学, 2009 年 9 月 27 日, 熊本大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田口 俊弘 (Toshihiro Taguchi)
摂南大学理工学部電気電子工学科 教授
研究者番号: 90171595

(2) 研究分担者

井上 雅彦 (Masahiko Inoue)
摂南大学理工学部電気電子工学科 教授
研究者番号: 60191889

(3) 連携研究者

阪部 周二 (Shuji Sakabe)
京都大学化学研究所 教授
研究者番号: 50153903