

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 5月 25日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21740396

研究課題名（和文） 量子統計理論に基づく暖温高密度物質の物性研究

研究課題名（英文） Studies on the properties of warm dense matter based on quantum-statistical theories

研究代表者

北村 光 (KITAMURA HIKARU)

京都大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：60335297

研究成果の概要（和文）：固体金属に高強度・超短パルスレーザーを照射した際に生成される暖温高密度状態における電子構造、光吸収係数、衝突緩和率などを、量子統計理論に基づいて解析した。具体例として、固体リチウムの内殻電子を真空紫外自由電子レーザーで励起した際、強度 $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ 以上で吸収飽和と非線形透過が起こることを示した。また、単純金属の光吸収係数をエネルギーバンド計算に基づいて評価する方法を開発し、固体ナトリウムの紫外からX線領域にわたる光吸収係数を算出した。

研究成果の概要（英文）：Electronic structures, photoabsorption coefficients and collisional relaxation rates in laser-produced warm dense matter have been analyzed with quantum-statistical theories. Absorption saturation and nonlinear transmission of a vacuum ultra-violet laser pulse through solid lithium have been demonstrated for an intensity greater than $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$. We have also developed a method based on energy-band calculations to evaluate photoabsorption coefficients of simple metals for photon energies from ultra-violet to x-ray regions.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|---------|-----------|
| 2009年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 2010年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 2011年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 2,100,000 | 630,000 | 2,730,000 |

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：暖温高密度物質、高強度レーザー、金属、電子励起、吸収飽和、量子統計理論

1. 研究開始当初の背景

暖温高密度物質 (Warm Dense Matter, WDM) とは、固体に近い密度をもち、温度がおよそ千度から百万度程度の物質状態を指す。これは、自然界では惑星や褐色矮星の内部状態に相当し、実験室では固体への超短パルスレーザー照射などによって過渡的に生成される。

WDM 科学は、室温の固体と高温のプラズマとの中間状態を対象とする境界分野として、欧米を中心に 1990 年代頃から実験・シミュレーションの両面から研究が進展し始めた。近年は我が国でも、レーザープラズマの実験研究者を中心とした研究が精力的に行われるようになっている。

加えて、兵庫県において我が国初の X 線自由電子レーザー (XFEL) の建設が進んでいる (2012 年 3 月より供用開始となった)。XFEL は高強度・超短パルスで空間コヒーレンスの高い全く新しい X 線であり、固体中の内殻電子を伝導帯へ共鳴的に高密度励起した、かつてない WDM 状態を実現し、X 線光学へ展開する可能性が期待される。このような高いエネルギー密度をもつ固体の物性を理解するための微視的理論を開発する必要がある。

WDM 科学は、液体金属物理とも深い関連がある。後者の典型例として流体水銀の研究がある。流体水銀を加熱膨張させ、室温の金属液体から臨界点 (温度 1751 K) を経て絶縁性気体にいたる物性変化が精密に測定されてきた。代表者は近年、膨張流体水銀の状態方程式を、ミクロな量子化学計算とマクロな統計物理学理論を組み合わせて構築した [H. Kitamura, J. Chem. Phys. 126, 134509 (2007)]。これは WDM の理論研究に向けた第一歩であるともいえる。

2. 研究の目的

暖温高密度物質は、温度や密度の変化に応じて、金属-非金属転移や固体-液体-気体転移のような相転移現象を引き起こす。その相境界や臨界点などの物性値を、与えられた元素に応じて予言することのできる理論は、これまで確立されていない。その理由の一つは、原子間相互作用そのものが、密度や温度などに応じて大きく変化し、単純な二体力では表されないからである。WDM は一種のプラズマともみなせるが、完全には電離していないため、イオン内部の電子構造が物性値に大きく反映される。このような部分電離状態を、プラズマ物理学の理論だけで記述することは困難である。

WDM は、高強度・超短パルスレーザーを固体に照射し、電子を瞬時に加熱することによって生成できる。その際の多電子励起・緩和過程は、量子非平衡ダイナミクスとよばれる統計力学の重要なテーマでもある。

本研究は、こうした未開拓の研究領域である暖温高密度物質の物性 (熱力学・輸送特性、光学的性質など) を総合的に解明するための量子統計理論の開発を目的とする。

3. 研究の方法

WDM の物性を理解するため、(1) 量子化学的手法を用いた電子状態計算、(2) 密度行列を用いた多電子系の運動方程式、(3) 固体のバンド計算、といった複数の手法を組み合わせた理論を開発し、単元素の金属について計算機シミュレーションを行う。

(1) クラスタモデルによる量子化学計算

電子が部分的に励起した固体を模擬するため、数十個の原子からなるクラスタの模型

を用いて、量子化学的手法 (分子軌道法) に基づいて、励起状態での波動関数を直接計算する。局在した内殻正孔の記述に適しており、XFEL による内殻励起状態を扱うのに特に有効である。

(2) 密度行列理論による電子ダイナミクス

上述のクラスタモデルを、電子系の密度行列に対する量子統計力学的な運動方程式と組み合わせることによって、レーザー照射された固体中で引き起こされる電子の励起・緩和過程を解析する方法論を確立する。

(3) 固体のバンド理論による光吸収係数の計算

原子数が有限のクラスタ計算では、エネルギー準位が離散的となり、バルク結晶のエネルギーバンド構造を正確に再現することができない。そこで、エネルギーバンド理論に基づき、光吸収係数を広範な光子エネルギーに対して直接計算する方法を並行して開発する。

4. 研究成果

(1) 電子励起と衝突緩和のシミュレーション

固体金属に高強度・超短パルスレーザーを照射した直後には、原子核は結晶構造を保ったまま、電子系のみがフェルミ面上に励起された WDM 状態が予想される。平成 21 年度は、照射直後の数十フェムト秒間における電子系の状態変化 (電子の光吸収と誘導放出、電子間衝突緩和、オーজে崩壊など) を追跡するための時間発展方程式を構築した。この方法は、固体をクラスタで模擬し、非制限ハートリー・フォック法によって分子軌道のエネルギー準位と波動関数を求めた上で、各準位間の遷移を、量子統計力学に基づく密度行列運動方程式によって記述するものである。さらに、得られた方程式をマルコフ近似のもとで単純化し、電子占有数に関するレート方程式の形に帰着させることに成功した。この方程式は、計算機を用いて容易にシミュレーションが行える上、電子励起にともなって系全体のポテンシャル構造が変化し、エネルギー準位がシフトするといった多電子効果を考慮している点で、希薄プラズマで用いられる従来のレート方程式を固体密度領域へ拡張したものとなっている。

具体例として、K-吸収端に近い波長の真空紫外 (VUV) レーザーを固体リチウムに照射した場合のシミュレーションを実行した。その結果、電子励起とともに内殻エネルギーバンドが低下し、十フェムト秒程度の間吸収端が高エネルギー側にずれ、吸収係数が急激に減少することを見出した (図 1)。実験的には、高強度 VUV レーザーを照射したスズにおいて、吸収飽和が起こり、透過率が非線形に増大する現象が確認され (文献④)、本研究

結果で見出された吸収係数の瞬間的低下が、飽和吸収を引き起こす要因となっている可能性が示唆される。

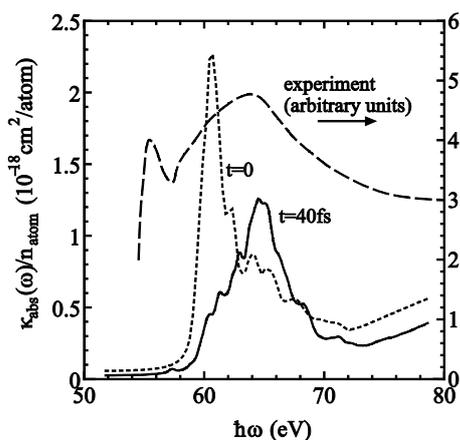


図1. リチウムに波長 60eV, 強度 10^{14} W/cm², パルス幅 40 fs のレーザーを照射する前 (点線) と後 (実線) の吸収係数の変化 (左軸)。破線はR. Haensel ら(1970)による照射前の実測値 (任意単位, 右軸)。

(2) VUV レーザーの非線形透過

平成22年度は、(1)で述べた固体リチウムの系に対して、照射するVUVレーザーの強度を変化させた場合のシミュレーションを系統的に行った。その結果、照射強度が大きいほど、K殻吸収端シフトが顕著に起こり、光吸収係数が短時間に急激に減少する傾向を見出した。得られた数値データを時間・空間に関して積分することによって、厚さ200nmの固体サンプルに入射したレーザー光の透過率を計算した。その結果、入射強度が約 10^{13} W/cm² を超えると、急激に透過率が增大することを見出し (図2)、錫サンプルを用いた実験で観測されたのと同様の非線形透過現象を、定性的に再現することができた。

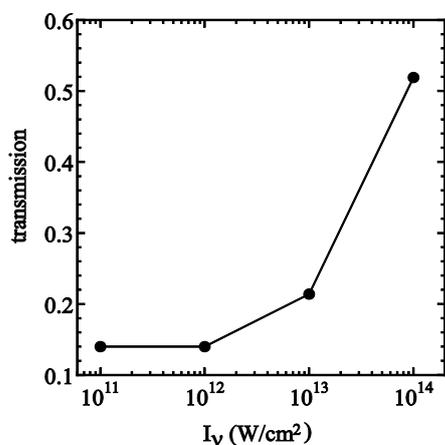


図2. 厚さ 200nm のリチウムに波長 60 eV, パルス幅 40 fs のレーザーをさまざまな強度

で照射した際の透過率の振る舞い。

(3) 内殻電子励起にともなうバンドギャップの拡大

上記項目(2)で述べたシミュレーションでは、電子相関や遮蔽の取り扱いが現象論的であるという問題点がある。この点を改善しながら、吸収端が高エネルギー側へシフトする物理的理由をより一般的見地から明らかにすることを目的とした解析も行った。具体的には、原子中心に強く局在した内殻電子と広がった平面波軌道をもつ価電子からなる固体金属のモデルを立て、密度行列運動方程式中の衝突項を通じて、電子間の交換相互作用に静的な遮蔽を取り入れ、内殻帯と価電子帯のエネルギーシフトを解析的に計算した。その結果、内殻電子の励起にともなう生ずる局在した正孔からの引力によって、内殻帯のエネルギーが大きく低下し、バンドギャップが実効的に増大することを示した。この結果は、半導体の電子-正孔プラズマで観測されているバンドギャップの縮小と逆の傾向である点が興味深く、両者の差異は正孔の空間的局在性に起因することを示した。

(4) バンド理論による単純金属の広域光吸収スペクトル計算

平成23年度は、エネルギーバンド理論に基づいて、固体金属の光吸収係数を広範な波長域にわたって計算する手法を開発した。具体的には、内殻電子の波動関数に孤立原子のハートリー・フォック計算値を援用し、伝導電子の波動関数はOPW (直交化平面波) を基底としたバンド計算で最適化し、両状態間のすべての双極子遷移確率を数値計算した。伝導電子に対する一電子ポテンシャルは、電子ガスの交換効果を含む遮蔽ハートリーポテンシャルで近似しているが、昨年度実施したクラスターモデルでの計算と比べて、今回のバンド計算はバルク固体の性格をより正確に反映しており、なおかつ、より重い元素・高いエネルギー領域での計算を可能とする。

具体例として、ナトリウム結晶の光吸収係数を 20-2000 eV の波長領域で計算し、米国NISTの提供するデータベースと比較した (図3)。その結果、スペクトルの全体的傾向はおおむね再現できたが、特に 20eV 付近での吸収係数の値に有意なずれがあり、また、今回得たスペクトルには結晶構造の異方性を反映した微細構造が見られた。また、本計算では、フェルミエネルギー付近での通常バンド計算と比べて、OPW 基底の数をかなり多くとるの必要があり、約 7000 基底を用いた計算で、K 殻吸収スペクトルはほぼ収束に向かうことがわかった。

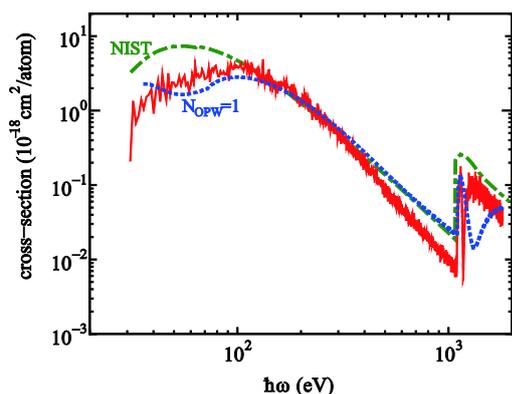


図3. 固体ナトリウムの光吸収断面積。実線はバンド計算、点線はOPW基底数が1個だけの近似。一点鎖線はNISTデータベース。

NISTのデータベースを含めて、一般に固体のX線吸収係数は、孤立原子の計算で代用して評価することが妥当とみなされているが、本研究のように、固体のバンド計算を通じてその妥当性を直接評価しようとした試みは少ない。今回の計算結果は、固体とX線の相互作用に関する既存のデータに依然として検証の余地がある可能性を示唆している。

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5件)

- ① H. Kitamura, Rapid energy-level shifts in metals under intense inner-shell photoexcitation, *High Energy Density Physics* **8**, 66 (2012), 査読有, DOI: 10.1016/j.hedp.2011.11.007
- ② H. Kitamura, Band-gap enhancement in core-excited metals, *Europhys. Lett.* **94**, 27005 (2011), 査読有, DOI: 1209/0295-5075/94/27005
- ③ H. Kitamura, Rate equation for intense core-level photoexcitation and relaxation in metals, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 115601 (2010), 査読有, DOI: 10.1088/0953-4075/43/11/115601
- ④ H. Yoneda, Y. Inubushi, T. Tanaka, Y. Yamaguchi, F. Sato, S. Morimoto, T. Kumagai, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, H. Kitamura, and R. Kodama, Ultra-fast switching of light by absorption saturation in vacuum ultra-violet region, *Opt. Express* **17**, 23443 (2009), 査読有,

<http://www.opticsinfobase.org/oe/home.cfm>

- ⑤ H. Kitamura, Multiple K-shell excitation of lithium clusters: Implications for hollow-atom solids, *Chem. Phys. Lett.* **475**, 227 (2009), 査読有, URL: www.elsevier.com/locate/cplett

[学会発表] (計13件)

- ① H. Kitamura, Quantum-chemical approach to the phase transitions in expanded fluid metals, International Conference of Theoretical and Computational Chemistry, Rotorua, New Zealand, December 9-13, 2011
- ② H. Kitamura, Nonlinear transmission of a VUV free-electron-laser pulse through metallic targets, International Workshop on Structure and Dynamics of Nano-objects using short wavelength radiation, Kyoto, October 3-7, 2011
- ③ 北村光, 金属中内殻電子の高密度励起にともなうバンドギャップの拡大, 日本物理学会2011年秋季大会, 富山大学, 2011年9月24日
- ④ H. Kitamura, Rapid energy-level shifts in metals under intense inner-shell photoexcitation, International Workshop on Warm Dense Matter, Pacific Grove, California, USA, June 5-8, 2011
- ⑤ 北村光, X線自由電子レーザーを用いた金属の内殻励起におけるエネルギー準位シフトの理論, 日本物理学会第66回年次大会, 新潟大学, 2011年3月26日
- ⑥ H. Kitamura, Simulations of highly excited condensed matter, France-Japan Joint Workshop on High Energy Density Science, Les Houches, France, January 9-14, 2011
- ⑦ H. Kitamura, Atomic and cluster physics for warm dense matter, 2nd UK-Japan Winter School in High Energy Density Science, Edinburgh, United Kingdom, January 5-8, 2011
- ⑧ 北村光, 米田仁紀, 真空紫外自由電子レーザーによる金属の高強度内殻励起: 吸収端の超高速シフト, 日本物理学会2010年秋季大会, 大阪府立大学, 2010年9月23日
- ⑨ H. Kitamura, Density-matrix approach to core-level photoexcitation of metals, X-Ray Frontiers Workshop, KITP, Santa Barbara, USA, August 13,

- 2010
- ⑩ H. Kitamura, Core-level photoexcitation of metals by intense XFEL: Quantum kinetics and nonlinear photonics, X-ray Science in the 21st Century, Santa Barbara, USA, August 2-6, 2010
- ⑪ 北村光, 米田仁紀, X線自由電子レーザーによる金属の高密度内殻励起・緩和過程のシミュレーション, 日本物理学会第65回年次大会, 岡山大学, 2010年3月20日
- ⑫ H. Kitamura, Simulation of intense core-level photoexcitation and relaxation in metals irradiated by X-ray free-electron lasers, 京都大学GCOE シンポジウム「対称性の破れと量子現象」, 京都大学, 2010年2月15-17日
- ⑬ 北村光, 米田仁紀, 高密度内殻励起したホロー原子固体の電子構造と安定性, 日本物理学会2009年秋季大会, 熊本大学, 2009年9月25日

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等
<http://statphys.scphys.kyoto-u.ac.jp/~kitamura/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

北村 光 (KITAMURA HIKARU)

京都大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号: 60335297

(2) 研究分担者
()

研究者番号:

(3) 連携研究者
()

研究者番号: