

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：34428

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540543

研究課題名(和文)自己組織化表面構造と高強度レーザー相互作用による放射プラズマセルの生成

研究課題名(英文)Generation of radiation cells by using an interaction between a self-organized surface structure and a high intensity laser

研究代表者

田口 俊弘 (Taguchi, Toshihiro)

摂南大学・理工学部・教授

研究者番号：90171595

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、微細な周期構造を持ったプラズマ「放射プラズマセル」を自己組織化ハニカム膜に高強度レーザーを照射することで生成し、そこからテラヘルツ波のような低周波電磁波をコヒーレントに発生させる技術開発を目的とした。まず必要な周期を持つ自己組織化膜の安定な作製実験を試み、広い領域で周期性を保つ構造を持つための条件を見いだした。一方、放射プラズマセルからの低周波電磁波の発生スペクトルやその干渉効果などは計算機シミュレーションにより解析し、強度に応じて低周波が発生することを見いだした。さらに、カーボンナノチューブを非対称に配置することで、より簡単に低周波光を発生させることが可能性であることも見いだした。

研究成果の概要(英文)：The main purpose of this research is the generation of coherent low frequency radiation, such as THz light by using a periodically aligned micron-order plasma boxes, which are produced by the strong laser irradiation on a synthesized honeycomb film. We call this structured plasma as a "radiative plasma cell." This film is produced by a self-organized process. We have been developing a stable method to make the honeycomb film with an arbitrary period. As a result, we found the conditions to synthesize the film with a wide range periodicity.

On the other hand, we have conducted several simulation runs in order to find the conditions for the incident laser and the periodic target to optimize the emitted radiation intensity. In addition, we also calculate the asymmetrically aligned carbon nanotubes to generate a low frequency radiation more easily. This idea is verified by a computer simulation and this structure is expected to be a new target to generate a low frequency radiation.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：高強度レーザープラズマ発生 放射プラズマセル カーボンナノチューブ 粒子シミュレーション 自己組織化膜 テラヘルツ

## 1. 研究開始当初の背景

最近、固体表面反応の自己組織化現象を利用した、ミクロン単位の周期性を持つ表面立体構造の形成が報告されている。これによれば高分子反応の非線形性を利用することで穴の開いた箱を周期的に並べたようなハニカム構造を作ることが可能である。研究分担者(井上)の研究によれば箱の中に他の物質を埋め込む可能性も示されている。

これに対し、研究代表者(田口)の計算機シミュレーション研究によれば、カーボンナノチューブ(CNT)に高強度レーザーを照射すると、その非線形相互作用によって、レーザー光が大きく吸収され、反応したCNTから低周波の電磁波が発生することが見いだされていた。

そこで、図1のように自己組織化ハニカム構造にCNTを埋め込んだターゲットを作製し、これに高強度レーザーを照射すれば、個々のハニカム構造がプラズマ化し、そこからの電磁波放射が干渉してコヒーレント光が発生すると期待される。この高強度レーザーによりプラズマ化したハニカム構造を「放射プラズマセル」と名付け、この放射プラズマセルの生成とそれを利用したコヒーレント電磁波放射を目指すのが、本研究課題の背景である。

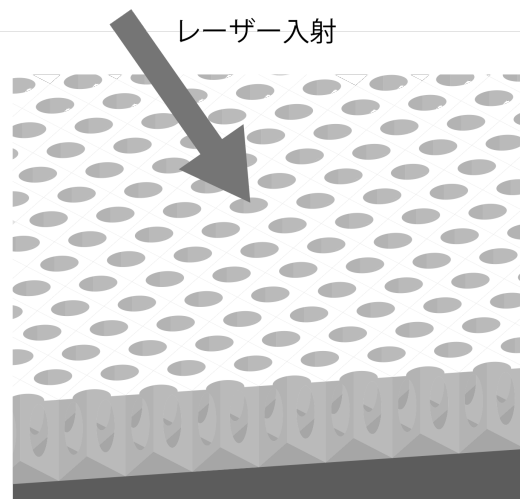


図1. ハニカム構造

## 2. 研究の目的

自己組織化ハニカム構造は、作製事例が報告されているとは言え、レーザー照射実験で要求される周期構造を自由に作れるかどうかは鍵である。これには、基板の選択、ハニカム膜の材料、作製環境など色々な組み合わせを試みる必要がある。そこで、本研究では、研究分担者の実験研究により、安定に望みどおりの構造を持つ自己組織化ハニカム膜を作り出すことを第1目的とした。

一方、研究代表者は、粒子コード(PICコード)による計算機シミュレーションを用いた高強度レーザーとプラズマの相互作用研究に携わっていて、本研究開始までに受けてい

た科研費「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」などで、衝突や電離過程までを含んだ粒子コードを開発し、CNTを初めとする固体と高強度レーザーの相互作用解析を行っていた。ただ、粒子コードは計算機の負荷が大きいため、大規模計算となる。今回提案した放射プラズマセルの形成をシミュレーションするには、ミクロンオーダーのセルを数周期並べた構造のシミュレーションが必要であり、並列化された計算機コードが必須であった。また、初期の固体状態から計算を開始するには、中性物質との相互作用の導入も必要である。そこで、中性物質の光学的性質を含んだ大規模並列粒子コードの開発から開始し、完成した並列粒子コードを用いて、放射プラズマセルからの放射光解析(強度、スペクトル、角度分布など)をすると共に、より効率の良い放射を得るためのターゲット構造の提案を目的として研究を行った。

最終的に、研究代表者の結果を元に提案した構造を分担者が製作し、これを連携研究者のレーザー施設に持ち込んで、レーザー照射実験を実施するための検討を行うのが最終目的である。

## 3. 研究の方法

### (1) 周期構造を持った自己組織化膜の作成

周期的構造を持つ薄膜を作るためには自己組織化現象を利用する。自己組織化高分子膜は微小な水滴が高分子溶液表面で自然に配列する現象を利用して作る、空孔がハニカム状に配列した膜である。

最初は、ハニカム膜の生成条件を調べることに重点を置き、ガラス基板およびシリコン基板を用いて、水をくぐらせて加湿した空気を高分子表面に吹き付ける方法で構造形成の傾向について調べた。構造解析には走査型電子顕微鏡を、また組成分析には、電子顕微鏡に付属しているエネルギー分散型X線分光装置を用いた。

次に、高分子溶液の密度と構造形成の傾向について調べた。さらに、加湿空気の流速と湿度、反応室の温度をより正確に制御できる実験装置を準備した。空孔を周期的に配列させるために基板を傾けて溶液表面に流れを生じさせ、ランダムに発生した空孔を凝集させることを試みた。加湿空気の湿度および基板傾斜角をパラメータとして種々の条件で実験を行い、周期的構造形成との関連性について調べた。

### (2) 並列化粒子コードの改良とそれによる放射プラズマセルの解析および最適化

本研究を開始する以前から、すでに高強度レーザーとCNTとの相互作用を衝突効果・電離効果(電界電離と衝突電離)を含めて解析が可能な並列化静電粒子コードを開発していたので、これを電磁粒子コードに改良し

て大規模シミュレーションを実施した。本研究では、基本的に超短パルスレーザーとの相互作用を考えているため、レーザー照射前の中性固体状態から計算を開始して、電離過程を経た後の放射プラズマセルの構造形成を模擬する必要がある。そこで、中性固体とレーザーとの相互作用も含めるような改良も行った。

同時にこの粒子コードの実行のため、摂南大学に設置したクラスターコンピュータの CPU 数の増強を図り、より大規模な計算を行なった。また、これまで、MPI 並列化を容易にするためのプリプロセッサの開発を行ってきたが、プログラムの巨大化、複雑化に伴って、このプリプロセッサもさらに高度化し、汎用性を高めたり、より複雑な記述ができるよう、書式の改良も行った。

本研究では、この改良したプリプロセッサで記述した並列化電磁粒子コードを用いてハニカム構造を持つ固体ターゲットに高強度レーザーを照射して生成される放射プラズマセルの性質と、それから発生する電磁波のスペクトル解析を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 周期構造を持った自己組織化膜の作成

平成 24 年度においては、安全性を考慮して高分子溶液としてポリスチレンとポリアクリルアミドのレモゾール溶液を用いていたが、十分に溶解しないため、レモゾールの代わりにクロロホルムに変更し、十分な溶解度が得られるようになった。水をくぐらせて加湿した空気を吹き付けるだけでは高分子溶液表面に空孔ができなかったため、反応室を製作し、高湿度下で乾燥空気を吹き付けることで空孔ができることがわかった。空孔が形成されるようになったので、ハニカム膜に触媒金属であるオスミウムをコーティングし、アセトン中で超音波洗浄することで空孔部のみにオスミウムを残し、CNT 膜の形成実験を行った。X線分光により、空孔部のみに炭素が体積していることを確認した。従って、本研究の提案手法で CNT の周期的な構造形成が原理的には可能であることがわかった。

平成 25 年度では、ハニカム膜の空孔サイズのばらつきを無くし、かつ空孔が発生している領域の面積を広くすることを目的として、加湿空気の制御（定常的な流れの確保、流量・湿度・温度の制御）に対して検討を行った。まず、ドラフター内部に加湿器から試料に向かって空気がスムーズに流れていくような通路を確保できるよう、前年度の反応室を改造した。また、小型の反応室を別途製作し、これと比較を行った。これは小型にする方が、より速く温度・湿度が定常状態に達するのではないかと考えたためである。また、高分子溶液中の界面活性剤の濃度についてもいくつかの条件で比較を行った。結果をま

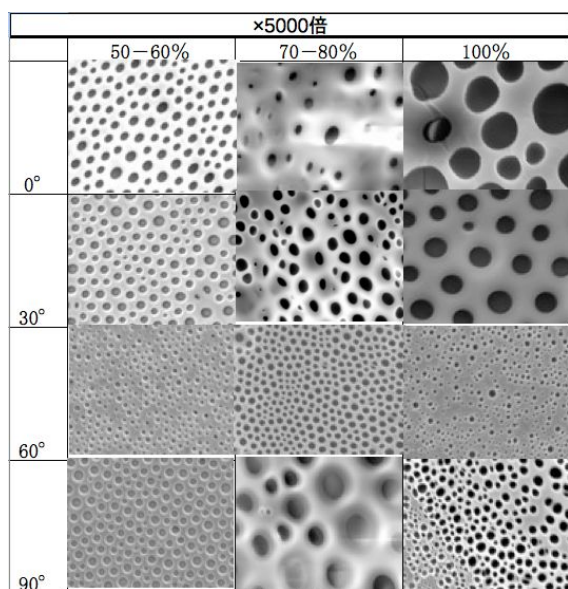
とめると、まず反応室は小型の方が良い。高分子溶液はポリスチレン 0.2g + ポリアクリルアミド 0.02g + クロロホルム 50mL のものが最も良い結果が得られた。

前年度までにハニカム構造形成のためのおおよその条件が定まってきたが、まだ空孔サイズにばらつきが多く、周期的構造はごく狭い領域でしか実現できていなかった。平成 26 年度は、これまでの実験結果をベースとして、さらに実験装置の改良と最適成膜条件の探索を行った。まず、ドラフトチャンバーの中に設置するミニチャンバー（反応容器）を製作し、ヒーターと加湿器を取り付け、チャンバー内の温度と湿度を一定に保てるようにした。また、エアポンプを取り付け、一定の流速（2.5 L/min）で加湿空気を試料に吹きかけられるようにエアポンプをミニチャンバーに取り付けた。ポリスチレン（0.2g）とポリアクリルアミド（0.02g）のクロロホルム溶液（50mL）をアルコールで超音波洗浄したガラス基板に 2mL 滴下し、基板表面に高分子溶液の膜をコーティングした。基板は傾斜角を調整できる試料台にセットし、ミニチャンバー内で加湿空気を 2 分間吹き付け、高分子溶液の表面に微小水滴を結露させ、空孔を形成させた。ノズルと基板表面との距離は約 5mm であった。空孔を周期的に並べるには、高分子溶液が凝固するまでに何らかの外力により液面に流れを生じさせ、ランダムに発生した空孔を凝集させる必要がある。今回は基板を傾斜させることでこの外力を作った。パラメータとして、基板の傾斜角（0～90°）とミニチャンバー内の湿度（50～100%）を系統的に変化させて色々な条件下で自己組織化膜の形成実験を行った。できあがった自己組織化膜は走査型電子顕微鏡（1000 倍および 5000 倍）により評価を行った。実験結果をまとめると、まず、吹き付ける加湿空気の湿度は低い方（～50%）が広範囲に均一な空孔サイズの膜が形成される。また、加湿空気の湿度が高くなると空孔のサイズが大きくなるということがわかった。

基板傾斜角については 60° 付近で広範囲に均一なサイズの空孔が形成される傾向が見られたが、基板表面にコートされた溶液の厚みにも影響を受けるため、かなりばらつきが多かった。今後は溶液のキャスト量や膜厚を正確に制御し、均一で周期的な空孔が並ぶ領域の面積の拡大を目指したい。

表 1 に、これまで作製したハニカム膜のパラメータ依存性を写真で示す。

表 1 . 自己組織化高分子膜の走査電子顕微鏡写真 . 基板傾斜角( 縦 )と加湿空気の湿度( 横 )をパラメータとしている .



(2) 並列化粒子コードの改良とそれによる放射プラズマセルの解析および最適化

平成 24 年度においては、まず中性固体の光学的応答をシミュレーションするために、束縛電子の効果を含めた粒子コードの開発を行った。通常、束縛電子の振動数はプラズマ振動数やレーザーの振動数よりかなり高いため、粒子コードの基本アルゴリズムである陽解法で解くには時間ステップを非常に短くしなければならない。しかし、束縛電子の効果の導入では電子の振動中心の時間的変動が計算できればいいので、束縛電子の振動は陰解法で時間発展させ、レーザー強度が十分高くなったときに、これを電離させて自由電子として取り扱えるようにコードを改良した。この結果、レーザーが透明媒質に侵入する場合の屈折率の効果も粒子コードに導入することができた。作成したコードを用いて周期的に配置されたカーボンナノチューブ(CNT)に高強度レーザーを照射したときに発生する電磁波のスペクトル解析を行った。結果の一例を図 2 に示す。

図は、横軸が X 方向の周波数、縦軸が Y 方向の周波数である。周波数は、レーザーの周波数で規格化しているが、この計算では CNT の周期をレーザー波長と一致させている。また、CNT は Y 方向に周期性を持ち、レーザーは X 方向に平面波で入射した。図で、横に平行な成分は周期的な CNT から発生する電磁波の干渉により選択されたモードである。一方、原点から放射状に広がっているのは、レーザー強度が強くてプラズマ化した状態からランダムに発生したモードである。レーザー強度を上げると、周期的なモードの成分

は小さくなり、ランダムモードが優勢になる。ここでは、パラメータを最適化するところまでには至らなかったが、CNT の周期やレーザーの強度に依存して様々なスペクトルパターンが現れることがわかった。

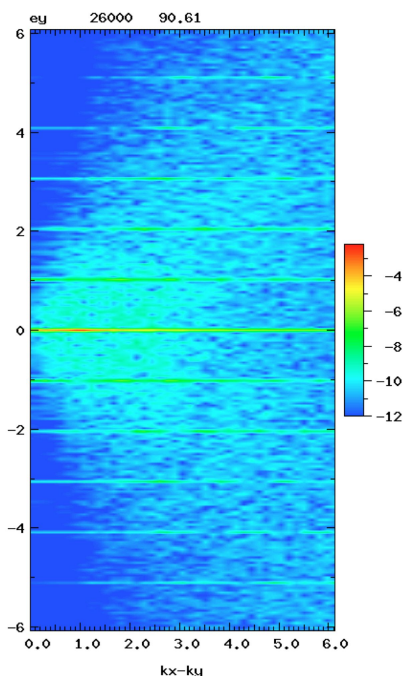


図 2 . 周期的に配置された CNT から放射された電磁波のスペクトル強度分布

そこで、平成 25 年度には、この周期的に配置した CNT に高強度レーザーを照射したときに、発生する電磁波のスペクトルをより詳細に調べ、そのレーザー光強度依存性や入射角度依存性を調べた。特に、低周波モードの発生を目標に、レーザー強度、周期性、などのパラメータを変えてシミュレーションを行った。その結果、低周波モードが発生することは確認できたが、そのスペクトルを十分に分解して、発生する低周波電磁波の周波数を特定するには至らなかった。この問題の最大の要因は、シミュレーションのシステムサイズである。このとき、シミュレーションの解像度を上げるため、どちらかといえば、空間解像度を上げた。しかし、現在研究室で所蔵する計算機の性能で可能なグリッド量では、空間サイズが限られてしまう。基本波の周波数より十分小さい周波数を持つ低周波モードを、シミュレーション結果のフーリエ変換を使って調べるには、シミュレーション全体の領域を大きくする必要があり、より大規模のシミュレーションが必須である。

このことから、平成 26 年度は、クラスターコンピュータの CPU と内蔵メモリの増強を行った。しかし、予算の問題もあり希望する低周波モードを解像できるほどの増強はできなかった。このため、並列化アルゴリズムの改良やプリプロセッサの改良を行うとともに、より効率の良い低周波発生のための放射体の構造に関する研究を行った。

そもそも、本研究の原点は、レーザー・クラスター相互作用である。クラスターとは、ナノサイズの微粒子のことで、アルゴンなどの希ガスを急冷することにより生成されるものである。これにレーザーを照射すれば、その非線形相互作用で高調波は発生するが、照射レーザーの振動数の奇数倍、すなわち奇数次モードのみ発生する。なぜなら、クラスターは球形をしているため、その束縛ポテンシャルが対称で、粒子に加わる力が反対称になるからである。低周波モードは、レーザーの振動数から比べれば、0次モードと見なされるので、偶数モードの発生が必要である。このため、現在実験が行われているレーザー・クラスター相互作用によるテラヘルツ波の発生は、2波長レーザー、すなわち、基本波と倍高調波レーザーを同時に照射するなどの工夫を必要としている。

しかし、対称性に由来するのだから、対称性を壊した非対称な粒子を使用すれば解決すると考えられる。本課題では、CNTという、平面に並べた固体ターゲットを使用しているため、ターゲット形状の製作には柔軟性がある。研究分担者と議論した結果、CNTをバンドル状に基板の上に成長させるための触媒のコーティング形状を変えれば、望みの形状にすることが可能であるという結論に達した。

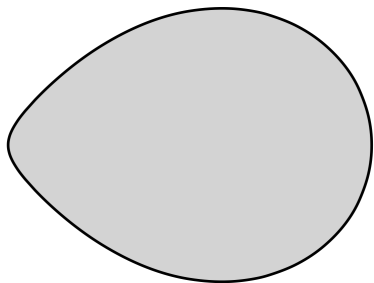


図3．シミュレーションに使用した卵形

そこで、一例として、図3のような卵形に配置したCNTにレーザーを照射したときの低周波電磁波発生をテーマとして研究を行った。卵形を選んだのは、円形とそれほど大きな違いがないので、製作が容易だからである。図3の卵形にバンドルしたCNTにレーザーを照射したときのシミュレーションを行って得られたスペクトルを図4に示す。

図4は20nmの卵形のCNTに $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ のレーザーを照射したときのスペクトルである。横軸は、レーザーの周波数で規格化している。すなわち、1がレーザー一周波数である。図よりわかるように、4次や6次の高調波が発生し、0次の強度も高い。同じサイズの円形CNTでは、4次や6次のモードは発生せず、0次の強度も低かった。この結果から、卵形にバンドルされたCNTを周期的に並べ、そこにレーザー照射を行うことで、高強度のコヒーレントな低周波光の発生が期待できることがわかった。

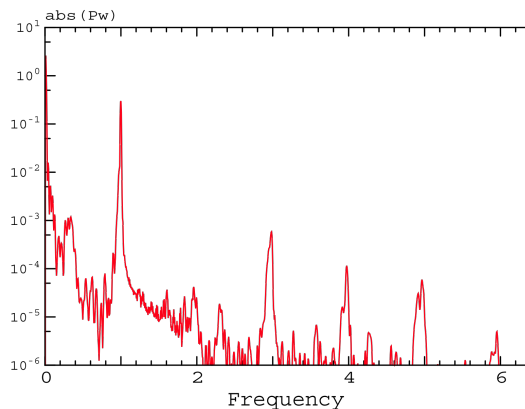


図4．卵形CNTから発生した電磁波スペクトル

### 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 4件)

Qing Jia, K. Mima, Hong-bo Cai, T. Taguchi, H. Nagatomo, and X. T. He  
“Self-generated magnetic dipoles in weakly magnetized beam-plasma system”

Phys. Rev. E 91, (2015), 023107-1-7.  
(査読あり)

井上雅彦

“電池駆動モバイル走査型電子顕微鏡の開発”

ケミカルエンジニアリング Vol.59, No.3 (2014)pp.186-190. (査読無し)

井上雅彦, 菅波昌宏

“走査電子顕微鏡を用いた水生微生物観察のための簡易試料前処理法”

J. Surf. Anal. Vol.19, No.2, (2012)pp.81-84. (査読あり)

S. Inoue, S. Tokita, K. Otani, M. Hashida, M. Hata, H. Sakagami, T. Taguchi, and S. Sakabe

“Autocorrelation Measurement of Fast Electron Pulses Emitted through the Interaction of Femtosecond Laser Pulses with a Solid Target”

Phys. Rev. Lett. 109, (2012) 185001-185005 (査読あり)

[学会発表](計 17件)

田口俊弘, T. M. Antonsen, 三間 園興  
“磁化ビームプラズマ相互作用におけるホイッスラー波の増幅”

日本物理学会, 2015年3月21日, 早稲田大学, 東京都新宿区

田口俊弘, T. M. Antonsen, 三間 園興,  
“Control of the Weibel instability and structure formation by a strong magnetic field”,

PLASMA2014 Symposium  
2014年11月19日, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市  
田口俊弘, T. M. Antonsen, 井上雅彦,  
“Generation of lower harmonic radiation by a strong laser plasma interaction with asymmetrically bundled carbon nanotubes”,  
American Physical Society, 2014年10月29日, ニューオーリンズ(米国)  
植垣悠馬, 山口義和, 井上雅彦  
“モンテカルロシミュレーションを用いた二次電子収率によるRu/RuO<sub>2</sub>の酸化膜厚推定の試み”,  
2014年度実用表面分析講演会 PSA-14,  
2014年10月27日, 時の栖, 静岡県御殿場市  
朴商云, 井上雅彦  
“二次電子分光法による全固体 Li イオン二次電池の表面電位計測”,  
2014年度実用表面分析講演会 PSA-14,  
2014年10月27日, 時の栖, 静岡県御殿場市  
田口俊弘, T. M. Antonsen, 三間園興  
“高強度磁場中における電子ビーム不安定性の非線形発展”,  
日本物理学会, 2014年3月30日, 東海大学, 神奈川県平塚市  
田口俊弘, 三間園興  
“Suppression of the Weibel instability by an application of a strong magnetic field”,  
HEDS in Asia 2014, 2014年1月20日, 釜山(韓国)  
田口俊弘  
“Kinetic simulations of intense laser plasma interaction and their applications”,  
US-Japan JIFT Workshop 2013  
2013年11月22日 核融合科学研究所, 岐阜県土岐市  
田口俊弘, 井上雅彦, T. M. Antonsen Jr.,  
“Selective emission of low frequency electromagnetic wave due to an interaction between strong laser field and single-walled carbon nanotubes”,  
American Physical Society,  
2013年11月14日, デンバー(米国)  
田口俊弘, T. M. Antonsen, 三間園興  
“Suppression of beam merging and hosing instabilities in the magnetized fast ignition”, IFSA2013  
2013年9月10日, 奈良公会堂, 奈良県奈良市  
山口義和, 井上雅彦  
“二次電子収量係数(k, )導出用解析ソフト”,  
日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会第153回研究会

2013年9月3日, ファインセラミックセンター研修室, 愛知県名古屋市  
山口義和, 後藤敬典, 井上雅彦, 志水隆一,  
“全二次電子収率のモンテカルロシミュレーション”,  
日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会第152回研究会  
2013年5月14日, ニューウェルシテイ湯河原, 静岡県熱海市  
田口俊弘, 三間園興  
“外部磁場中でのワイベル不安定性における運動論効果”,  
日本物理学会, 2013年3月27日, 広島大学, 広島県東広島市  
田口俊弘, 井上雅彦, T. M. Antonsen, Jr.,  
“Simulation study of radiation enhancement through an interaction between periodically aligned carbon nanotubes and an intense laser”,  
American Physical Society  
2012年10月31日, プロビデンス(米国)  
後藤敬典, 井上雅彦, 山内幸彦, 田沼繁夫,  
“二次電子の利得を通常のSEMなどで正確に計測する試みと低速一次電子照射による二次電子のエネルギー分布”,  
日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会第149回研究会  
2012年9月28日, 名古屋大学, 愛知県名古屋市  
田口俊弘, 三間園興, 坂上仁志, 城崎知至, 長友 英夫, 砂原淳  
“超高強度レーザープラズマにおけるワイベル不安定性の外部磁場による安定化”, 日本物理学会, 2012年9月18日, 横浜国立大学, 神奈川県横浜市  
後藤敬典, 井上雅彦, 田沼繁夫, 山内幸彦,  
“F.Cup と試料電流による二次電子利得の推測と二次電子の特性; エネルギー分布, オージェ遷移, 損失”,  
第39回表面分析研究会, 2012年6月25日, 古河電気工業(株)横浜研究所講堂, 神奈川県横浜市

## 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