



講座 レーザー生成プラズマの新しい温度、密度領域における物性とシミュレーション

7. レーザープラズマ相互作用において問題となる物質状態に関する考え方のまとめ

7. Summary of New Modeling of Laser Plasma Interaction

米田 仁 紀

YONEDA Hitoki

電気通信大学レーザー新世代研究センター

(原稿受付：2013年7月1日)

7.1 はじめに

本講座では、比較的低温かつ高密度な条件での物質状態をシミュレーション上でどう取り扱うかについて、いくつかのケースを紹介してきた。各章において「～はまだ合わない」「～は今後の問題である」という文言が散見するように、このパラメータ領域ではそれはまだ完全ではない。各著者がそれぞれの分野において、うまくシミュレートできるところとできないところを明確にしているの、そのあたりを意識しながら読むと、より有益な情報が得られると思う。

ある種のシミュレーションでは現象を計算機上で再現することが重要であって、物理が合っていることは二の次となっている。低温で高密度という条件では、原子間力が強く、電子-電子相関が重要となり、それでいて原子は電子励起状態にあることになるので、正確に解くのが困難である。第一原理的な計算も行われるが、通常の固体物理学で使われている温度 $T=0$ の基底関数の組み合わせでは波動関数を構成できなくなるので、膨大な計算時間が必要になり、その結果、計算は粒子数などが限られた系でしか行われていない。

実験の精度が上がると、理論で用いられている物理モデルの検証がさらに進む。例えば、核融合研究や惑星科学の研究で最も盛んに研究が行われている水素では、低温から衝撃波圧縮を行った場合の 50～100 GPa のあたりで分子の解離やイオン化過程でもモデルが正確さを欠いていることなどが最近問題となり、議論が続いている。d 電子が物性の主となる中 Z 原子（原子番号が中程度の原子）以上に関しては、さらに複雑なため、詳細な議論はまだできていない。

もちろん、これらはすべてマイナーな問題であり、入力条件から計算された結果と実験観測のデータが近ければそれでいいのだという考え方もある。しかし、物理を理解する上では、まだまだ研究努力が必要で、そうでないと外挿した状態がどうなるのか、予測の信頼性がなくなってしまう。

このような観点から、この分野の研究をみる際には目的を理解することが必要である。本講座の 3～5 章にまとめられているように、EUV 発光応用やレーザー加工、超短パルスレーザーによる表面加工処理などの産業応用では、実験現象の総合的な再現や、今後の条件最適化などに答えを要求されていて、近いパラメータでの実験結果とシミュレーションの結果を比較・検証してシミュレーションの妥当性を確かめ、予測の信頼性を高めることが重要と考えられている。

レーザーを使った実験ではポンププローブ計測が行われているが、高密度領域はプローブ光の波長を紫外にしても臨界密度を超えていることもあり、いわゆる表面のみの観測になっている。これを打開するためには、境界のない条件を作って実験することもポイントであり、それが本講座第 6 章で取り扱われた、keV プラズマ内に固体を打ち込んだ状況になる。現在始められている X 線自由電子レーザーを用いた研究で、今後新たな結果が得られることが期待されている。

7.2 この領域の物性に関する問題

本講座の最初の章では、この領域のモデル化の難しさが述べられている。その本質は、これまでの 2 つの物理モデル（固体物理学とプラズマ物理学）の条件が適合しないことにある。例えば、固体物理モデルでは、原子の秩序性を無限長繰り返し、原子は電子的に基底状態にあることを仮定している。したがって、金属であれば伝導帯中に電子が共有され、自由電子様電子が光との相互作用で主となっていく。一方、プラズマモデルでは、完全イオン化、クーロン力が支配的になる状態で、デバイ遮蔽やプラズマ振動を取り扱う。これらの中間状態では、3 章で紹介されているように双方の外挿をしてつなぎ合わせようとするが、場合によっては外挿や重ね合わせが効かないことがモデル化とシミュレーションを困難にしている。

このような状況の中、大型計算機資源の助けもあって、

低Zの純物質に関して精度の高い予測ができるようになってきた。本講座第2章では、量子効果を含んだ分子動力学計算(QMD)が行われ、温度密度を決定すれば電子雲の特徴的な形状やエネルギー状態を予測できるようになったことが紹介されている。QMD計算で使われている方法においては、高密度のため2体ではなく多体の問題として解かなくてはならない状態を、Kohn-Sham理論[1]により密度汎関数を探し求め、置き換えるという密度汎関数理論が使われている。これは、最近の固体物理学では、デスクトップの計算機で計算できるほど一般的になっている方法である。

しかし、低温かつ高密度の状態では、密度汎関数の答えを求める際に、基底状態の波動関数ではなく、隣接原子の影響を受けた励起状態の波動関数の解を探しながら全体を表記する密度汎関数を求めることになる。そのため、繰り返し計算が多くなり、計算量として膨大なものになっている。それでも、遷移金属より低い原子に関しては、Warm Dense Matter領域の密度汎関数が求められるようになってきており、これは大きな進歩といえる。この汎関数が求まっていれば、様々な自己相関関数をとることで輸送係数や粘性などのマクロなパラメータを計算できるため、このパラメータ領域での現象予測にも有効な手段となっている。本講座第2章の著者であるMore氏が提唱した高密度プラズマの電気伝導度式(Lee-More model)は、このQMD計算の修正を受け、低温・高密度領域まで拡張して使えるようになった。それまで、電気伝導度はキャリア密度とその速度の低下を生み出すエネルギー移行や散逸で十分記述可能と思われてきたが、QMDの導入によって、一つの電子でも局在化と非局在化の性質を時間を分けて取ることが示され、伝導に関して新たな考えを必要とするスタートになった[2]。

したがって、あらゆる物質と広いパラメータ領域で計算機をフル活用して密度汎関数を求め、それらを元に、様々な物性値をテーブル化し、シミュレーションコードがそれを参照できるようにすれば、非常に精度の高いシミュレーションができることは間違いない。この講座の中で紹介されているシミュレーションでも、状態方程式や誘電率、導電率、音速などのパラメータが、しばしば仮定を含んだり、パラメータ的に外挿にあたる領域で使われているが、それらは、このテーブルによりかなり大きく改善できるはずだ。しかし、残念ながらそうはなっていない。これは、依然として以下の問題が残っているからだと思われる。

- (1) QMD計算では、現状では数百の原子数での計算に限られている。これは計算資源の問題である。1つの温度密度状態をスーパーコンピュータが数日かけて解く状態では、テーブル作成には膨大な時間がかかる。
- (2) 通常、この原子間力が強く影響を及ぼす系では、これまでプラズマで当たり前のこととして使われてきたSum ruleが成り立たない場合が出てくる。ある種の化学反応を起こす系で圧力-密度を論じるという状態になり、化学ポテンシャルも温度密度で大きく変わるパラメータ領域が出てくるため、現実的な状況を計算す

るには、さらに膨大なデータベースが必要になる。

- (3) 一様系では小さな体積でその境界を周期境界として計算をする手法が用いられるが、Warm Dense Matter領域では気液混合状態のような非一様系も取り扱う必要がある。この場合、計算する系の大きさで非一様性度合いが制限されるので、一般化するには大きな系での計算も必要になり、それには長さの3乗で計算量が増えてしまっており、現実的ではなくなる。

7.3 必要とされる新しい考え方

シミュレーションが現実をよく現すようになるのに伴って、内包される物理モデルの精度を上げていく必要がある。1つのパラメータに複数の物理モデルが存在することはざらにあるが、どのモデルが最も適切かを決定するには、シミュレーションの精度だけでなく、検証のための実験精度も向上させる必要がある。そのため、この領域で理論予測物性値と実験値を合わせる場合の精度を、従来よりも桁違いに改善する努力が行われている[3]。

厳しい議論が行われている研究分野では、実験である程度の範囲で検証されたモデルであっても、データの内挿部分でしか使うことができず、外挿で予測することが困難な場合も出てきている。前述の水素の状態方程式の問題でも、高压方向では、爆弾を使った実験が最も高いマーカーとなっているが、国によってはデータが参照できない場合もある。

このように述べると、よほどの専門家でない限り議論に参加できないように思えてしまうかもしれない。しかし、定量性をあまり厳密に問わなければ、要素物理過程をわかりやすい形で入れた物理モデルを使うこともある。例えばMurilloら[4]は、単純な一成分プラズマモデルを使って、高密度化による一般のプラズマ物理からの変更点や、何を求めればいいのかを紹介している。この中では、Poisson方程式、Boltzmann則から求められるDebye-Hückelモデルをもとに、ポテンシャル分布を一旦解き、そこから求められる電子の存在確率分布を見直すことで、低温・高密度状態のミクロスコピックな物理が明確にみえるようにしている。この存在確率関数は、そのまま解くと、原子間距離が近くなってくると負になってしまう。実際には、イオン半径程度で0になることが正しいと思われるので、補正関数を導入して調整している。この関数にも、物理的な描像が明らかなPair correlation関数、Direct correlation関数、Bridge関数を導入し計算することを提唱している。例えば、常温・常圧での固体密度を保ったまま、アルミニウムの温度を上昇させると、Friedel振動と呼ばれる現象が起きることがわかってきている[5]。この現象は、QMDの計算でも示されているが、前述の一成分モデルにおいても、各項の大きさを変えることで再現でき、どの要素物理が効いているのかが明らかなようになっていく。

また、この領域の状態では、ミクロスコピックな物理モデルの精度を上げるために、原子間力、化学結合力、振動エネルギー、電子運動エネルギーなどの要素を次々と入れてモデルを構築しても、それとは別次元のメゾスコピック

なスケールの特性が影響して、マクロなパラメータを決めてしまうことがある。このようなマルチスケールの現象を考える上では、対象となる粒子の平均自由行程とその系のもつ特性長を比較することが重要になる。超短パルスレーザーを用いて生成された Warm Dense Matter 実験などでは、密度の特性長より電子の平均自由行程が大きくなってしまいうため、輸送現象を起こしているものが局所的なパラメータでは決定できないこともありうる。本講座第4章で取り上げられている不思議なレーザー痕も、冷却時や再付着時の不安定性や音波などが影響していると考えられるが、表面波の影響を鑑みると、ビームスポットなどのもっと大きな境界条件で決まっていることもあるだろう。

ミクロ-メゾ-マクロの問題は、物理学共通の問題である。プラズマは「高温」という特性により、観測しやすい可視発光現象を伴うことが多く、原子物理的な考えもしやすい。一方、導電率は、レーザーの複素反射率などを計測で置き換えることができ、様々なポンププローブ手法による実験を行えると考えられる。そのような観点から、相互作用、状態方程式、輸送係数の依存性をもう一度見直してみると、さらに幅広い物理への展望が開けるのではないか。精度の高い理論、総合シミュレーションと実験の対比が出てくれば、プラズマ研究がこの問題に一石を投じることができると考えられる。

最後に、本講座第5章で議論されているような表面張力、界面の問題は、まだ始まったところである。バルク対表面の原子数を考えると、不純物が最も影響を与える場所も表面であり、鉄系の高温状態では酸素含有量が0.1%でも表面張力が大きく変化する。これらをどう取り込んでい

くかも、今後の問題となる。

7.4 まとめとして

以上、講座の最後としては長いまとめとなった。言い尽くせないことがまだまだあるが、それらについては別の特集や記事を参照してほしい。この第7章を頭に入れた上で、この講座の記事を再度読んでいただくと、興味がさらに増すだろうし、自分が挑戦できそうな研究課題もみつかるはずだ。この講座が、単にこれまで達成できた紹介だけでなく新しい発展に結びついてくれたら、記事の各著者にとっても喜びとなるだろう。

最後に、この章は、2013年6月にフランスで開かれた Warm Dense Matter に関する国際会議の現場で、最前線の研究者の意見を聞いたうえで執筆した。その後を含め、国際電話で長時間議論してくださった研究者の方々、講座の執筆者の方々に、この場をお借りして感謝申し上げます。

参考文献

- [1] W. Kohn and L.J. Sham, Phys. Rev. **140**, A 1133 (1965).
- [2] M.P. Desjarlais *et al.*, Phys. Rev. E **66**, 025401(R) (2002).
- [3] M.D. Knudson and M.P. Desjarlais, Phys. Rev. Lett. **103**, 225501 (2009). M.D. Knudson, *18th Biennial Intl. Conference of the APS Topical Group on Shock Compression of Condensed Matter held in conjunction with the 24th Biennial Intl. Conference of the Intl. Association for the Advancement of High Pressure Science and Technology*, **58**, Number 7 (2013)
- [4] M.S. Murillo, Phys. Plasmas **11-5**, 2964 (2004).
- [5] D. Saumon *et al.*, High Energy Density Phys. **8**, 150 (2012).



よねだ ひとし
米田 仁 紀

電気通信大学レーザー新世代研究センター教授、センター長、工学博士。レーザーと物質との相互作用研究を中心に、超短パルスレーザーからX線に至るまでの実験研究

を行っている。特に、最近では新しくできたX線自由電子レーザーを用いた物理研究を中心に基礎研究を行っている。これまでにパルスパワー技術、大口径エキシマレーザー開発などからダイヤモンド薄膜を用いた超高速高出力素子の開発、超高品質光学素子の精密計測など、レーザー科学や、Warm dense matter, プラズマフォトンクス、大型レーザーによる超強磁場発生実験、EUV, X線レーザーを用いた非線形光学などの高エネルギー密度科学に関わる幅広い研究を行っている。教育面では学生に危機・限界を体験させるプログラムを開発し、実践力をつけさせる若手育成なども行っている。