

## 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

## Material Property and Simulation Methods Applicable to Laser Produced Plasmas in the New Density and Temperature Region

### 1. はじめに

#### 1. Introduction

大道博行, 佐々木 明<sup>1)</sup>

DAIDO Hiroyuki and SASAKI Akira<sup>1)</sup>

日本原子力研究開発機構敦賀本部レーザー共同研究所, <sup>1)</sup>日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門

(原稿受付: 2013年4月25日)

#### 1.1 はじめに

読者の中には標記タイトルの“新しい”という言葉に奇異な印象を持たれる方も少ないと思われる。本章では今なぜ“新しい”か、を含めて本講座の趣旨を述べることにする。さて1960年、最初のレーザー発振が報告されてから、すぐにレーザーを様々な物質に照射する研究が始まっている[1]。高出力レーザーを気体に照射すると、レーザー電場により絶縁破壊が起こり可視光のスパークが観測され、1963年パリで開催された量子エレクトロニクス国際会議(IQEC)で大きな話題となった[2]。その直後、高強度レーザーを固体物質に照射しプラズマが発生することが報告されている[3]。これらの成果は、種々枝分かれして、それぞれ独自の発展を遂げつつある高出力レーザーの応用研究の原点と言っていいであろう。一方、レーザー自身の高性能化も進んだ。モード同期法等、周波数域、空間周波数域のモード制御技術、または時間・空間域の形状制御法が発展し、空間的には単一モードで波長程度の集光サイズ、時間的には広いスペクトルモード間の高い位相相関により極短パルスで高いピーク出力のものが現れ、レーザー集光技術の高性能化、目的に応じた多様化と相まって物質への高度な照射も可能になってきた[4, 5]。さらに1985年のチャープパルス増幅法の発明[6]により時間幅フェムト秒、ピークレーザー強度>数TWのレーザーが信頼性の高い固体レーザー技術により製作可能となった。1990年代に入り小型実験室規模の高強度場科学研究[7]を筆頭に、多

くの科学分野で用いられるようになった。それらの中で、フェムト秒パルスによるナノ構造創製や3次元加工技術などは、近い将来の産業利用をめざしてレーザー照射実験が活発に行われており、同時に理論的研究も進んでいる[8-10]。

一方、連続発振のレーザーも溶接、溶断の用途を中心に高性能化が進んでいる。近年、レーザーダイオード、増幅器の励起法、冷却法の高性能化により薄型ディスクレーザー[11]、ファイバーレーザー[12]が相次いで高出力化に成功した。それらの小型、高効率、シンプルな構成、メンテナンスフリー、光学素子の高耐力化等の性能が評価され、自動車等の工場生産に大規模に用いられるようになってきた[13]。ところで連続したレーザー光の照射は他の熱加工源と単純な比較はできない。これまで開発された多くの優れた熱加工技術と比較しても、レーザー法には他の熱源ではありえない時間・空間的に高速、繊細な変調が可能であることから、連続光源、準連続光源として新たな加工コンセプトのもと、新たな加工分野を形成しつつある[14, 15]。すなわち高度に制御されたレーザー照射により物質の様々な時間・空間スケールの応答に対応した自在な照射の下で革新的な加工が可能になりつつある。この観点に基づくとフェムト秒パルスレーザーやミリ秒パルスレーザーを用いた穴あけ加工にその先駆的な適用例[16-18]があるが、時間・空間的に異なった照射領域における加工メカニズムの究明と、その知見に基づくレーザー照射の最適

Applied Laser Technology Institute, Japan Atomic Energy Agency, Tsuruga, FUKUI 914-8585, Japan,

<sup>1)</sup> Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency, KYOTO 619-0215, Japan

authors' e-mail: daido.hiroyuki@jaea.go.jp, sasaki.akira@jaea.go.jp

化は今後、益々重要な課題になると考えられる。以上述べてきた高出力レーザーを物質に照射することによる物質の改変には、アブレーションとともに起こる電離過程が大なり小なり必ず含まれており、この意味でレーザープラズマが研究対象になる。このようにレーザープラズマは近年、科学研究、産業の中で様々な分野に広がりつつある。その一方で、レーザー照射により有用な現象が見つかる、経験的事実の積み重ねによる技術開発が一気に進み、現象の解明が追いつかないといった現実も見受けられる。

本講座では、この章に引き続き各分野の専門家によるレーザープラズマの新しい展開が紹介される。レーザーと物質との相互作用に関する古くから調べられてきた知見、ならびに最近得られた知見を整理し、広がりつつあるレーザープラズマの境界領域が“新しい領域”における“新しい知見”、“新しい課題”として浮かび上がってくることを期待したい。このようなプラズマ生成の科学的知見に基づいた高度に制御されたレーザー照射法の開拓は学術的意義が大きいだけでなく、その知見を基礎にしたレーザー加工等の産業利用に今後大きな発展が見込める。この点を強調する目的で、あえて“新しい”を講座のタイトルに使用した。

## 1.2 広がりつつあるレーザープラズマの境界領域

### 1.2.1 ナノ秒レーザーパルスによるプラズマの発生

まず、レーザー核融合で想定されているような、時間幅がナノ秒のレーザーでターゲット物質を照射する場合を考え、これまで標準的に用いられてきた理論に基づいて、そのプラズマ生成過程について検討する。一般にレーザー照射によりターゲット表面からプラズマが噴出する時、入射するレーザーのパワーと噴出するプラズマが持ち去るパワーとの間に瞬時に釣り合いが成り立つことが本質と考えることにより、現象は単純化され、定常的なターゲット物質の噴出と、一次元的なプラズマの温度、密度の分布を考えることができる。電子熱伝導の効果によって、プラズマの温度は膨張部において一様となり、密度は、等温膨張の相似解に従い、ターゲット表面から指数関数的に減少する分布を持つ[19, 20]。高温のプラズマがターゲット表面から噴出する反作用（ロケット作用）として、アブレーション

ン圧力が発生する[21]。このような考え方は、慣性核融合のターゲットの爆縮の考え方の基本になり、レーザープラズマの多くの現象を説明するのに成功を収めてきた。

### 1.2.2 レーザー照射初期の物理過程

現在では、1.1はじめに示したように、様々な加工技術など多くの分野でレーザープラズマが深く関与している。このような応用において、固体物質がレーザー照射を受けると、液相、気相の状態への相転移や、電離過程を伴ってプラズマ化する。精度を要求する高度な加工では、溶融、蒸発、凝固と関連するプラズマの過程を詳しく理解して制御することが重要となる。

レーザー核融合の実験において、レーザー光の照射初期のビーム強度パターンに不均一性が存在すると、プラズマの噴出による表面の質量分布の不均一性が生じる。これはイニシャルインプリントと呼ばれ、レーザー核融合の高密度爆縮にとって有害な効果をもたらすことが示されている[22]。このようなプラズマの現象は、レーザー照射初期のごく短時間に起こる過渡的現象で、かつ空間スケールも微細な現象であることから、その実験的な解析にはしばしば特別な技術が必要である。例えば、イニシャルインプリント現象については、レーザー照射初期のアブレーションに伴うきわめてわずかな質量の変化を軟X線レーザーによるプローブ計測で捉える試みが行われている[23, 24]。

一方、このようなプラズマに着目した理論研究も行われている。Anisimovらは、アブレーションの初期過程における熱伝導の性質に注目し、ターゲット物質を、熱伝導の特性や、レーザーが照射された時の初期電子の生成およびレーザー光の吸収の特性ごとにカテゴリーに分けて解析し、溶融や蒸発が起こる界面に不安定性が起こる可能性を理論的に指摘した[5]。このようなプラズマの特性をシミュレーションするには、相転移過程の温度や密度の3次元空間分布の急速な変化や、その確率論的な振る舞いを取り扱うが必要になる。

図1はプラズマ生成過程の一例を示す。レーザー照射により、はじめに、多光子過程やレーザー電界による電離で自由電子が生成し、自由電子はレーザーの電界でさらに加速され、固体中の格子と衝突しターゲット物質は加熱される。次に、ターゲット物質は溶融、蒸発し、一部プラズマ

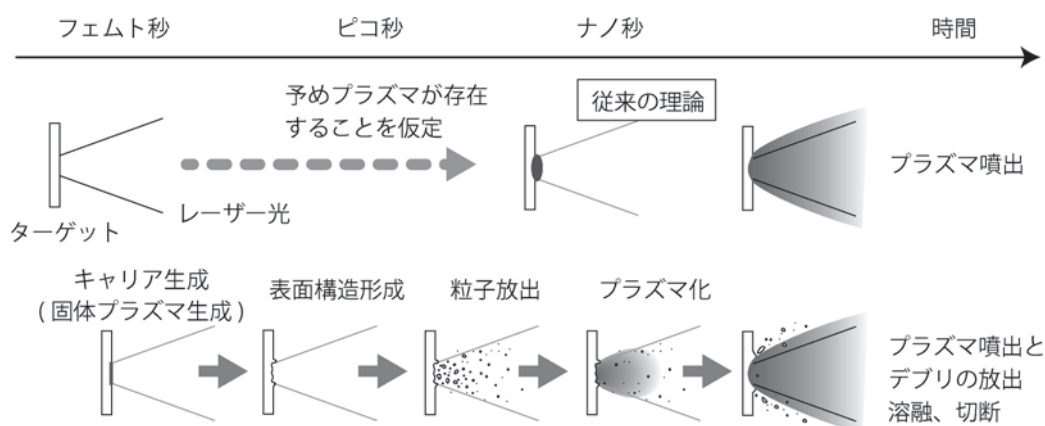


図1 レーザー照射によるプラズマ生成のメカニズム。

化した高温の粒子が発生し、それらの粒子とレーザー光の相互作用によって、密度の低下したガス状のプラズマブルームが生成する。レーザー照射後のスポットにみられる痕跡や、発生するデブリなどから、照射領域とその周辺で複雑な物理過程が存在することが類推される。

なお、図1のような、表面の構造形成や粒子発生などの現象は、レーザー照射プラズマにおいて常にこのような順序で発生するというよりは、むしろ、レーザー核融合、EUV光源、レーザー加工それぞれの照射条件において、異なった現れ方をする。レーザー光で固体ターゲットを照射した場合、強度の強いスポット中心部ではプラズマが生成する一方で、周辺部からは、溶融したターゲット物質のデブリとしての放出が起こる場合もある。

実際、矢部らはナノ秒レーザーをアルミニウムターゲットに照射して得られる照射領域からのデブリの空間分布の観測結果と、独自に開発したシミュレーションコードによる結果を比較対比することにより、レーザープラズマとその周辺の複雑な過程の説明に成功している[25]。関連する研究として、ナノ秒レーザー照射により、例えば材料表面に流した水の中にプラズマを生成し、その圧力により材料の応力分布を制御することを目的にしたピーニングへの応用がある[26,27]。また長年に亘り研究されてきたEUV(極端紫外)光源の最近の話題の一つに、短パルスプリパルスとナノ秒メインパルスを組み合わせた照射による高効率EUV光発生技術がある[28]。これは1990年代、軟X線・EUVレーザーで用いられ、発振波長を広げ、高効率化に貢献した手法と同様なものであり[29]、低強度プリパルス照射で放出されるプラズマや中性粒子とメインパルスとの相互作用を、望まれるパラメータのレーザープラズマの高効率生成のために積極的に利用したものである。

### 1.2.3 レーザーによる溶接・切断技術の物理過程

溶接、切断などのレーザー加工においては、ターゲット物質の溶融、蒸発とデブリの発生などが、空間的に移動しながら、時間的にはできるだけ定常的に起こるように、種々の条件を設定することが求められる。連続出力レーザーによる溶接現象のX線管を用いたりリアルタイム観測[30]や大型放射光施設SPring-8を用いた同様の研究もある[31]。また第一原理計算による金属の溶融・蒸発現象の初期過程のシミュレーション[32]、伝熱特性のシミュレーション[33]、流体モデルによる伝熱・対流シミュレーションなどが行われている[34,35]。

### 1.2.4 超短パルスレーザー

レーザーのパルス幅、フェムト秒から数ピコ秒までの超短パルスレーザー照射による微細構造の生成に関しても研究は進んでいる[36,37]。例えば波長以下の空間的構造形成やナノメートルサイズの粒子発生の観測があり、生成機構の検討も行われている[9]。一方、主として超高速過程の直接観測の観点から、レーザー照射面の極微小な変位の測定を可能にしたパルス幅数ピコ秒の軟X線レーザーを用いた干渉計測[38]、レーザー照射により物質中の格子の崩れていく様子[39,40]や溶融の初期過程の直接観測[40]がレーザープラズマからの超短パルス内殻遷移X線を用いた

時間分解X線回折によって観測されている。また、超短パルス高強度レーザー照射によって地上では容易に発生できない物質状態の発生が可能になる。例えば固体の炭素にレーザーを照射することにより瞬時に液体にする。同時に反射率の測定を行い、電気抵抗を評価する実験が行われ話題になったことがある[41,42]。超短パルスレーザーの固体への照射により、固体の規則的構造を保ちつつ、電離を起こしている状態、すなわち固体とプラズマの両方の性質を有するWarm Dense Matter[43]のような地上ではきわめて特殊な状態を生成することも可能であり、種々工夫を凝らした研究が行われている。このようにレーザーにより様々なプラズマを自在に生成することが可能になり、多種多様な研究が可能になっている。これも研究の境界が“新しい領域”に広がりつつあることを示している。

## 1.3 本講座の対象

### 1.3.1 広い範囲のレーザープラズマ相互作用

図2にはレーザーの時間幅を横軸にして、本講座のテーマをリストアップした。まず非熱的領域に注目してみよう。パルス幅数ピコ秒以下の超短パルスレーザーの場合は2の液体を通過することなく、直接物質が剥がれていくことなども提唱されている[44]。またそれを用いて、ナノメートルスケールの微細構造形成や微粒子生成などの新しい応用が可能になり[45,46]、固体物性の立場でのモデリング、シミュレーションも行われるようになった[47]。

レーザー照射時に熱伝導が支配的になる高強度レーザー光の固体ターゲット照射においては、照射部の高密度・高温プラズマと同時に固体、液体状態のデブリの放出が観測されている。応用分野の必要に応じてレーザー照射時間に比べ時間スケールの桁違いに長い周辺部の溶融、剥離現象も物理的に把握していくことが求められている。連続光を用いたレーザー加工(溶接、切断)においては固体の溶融、蒸発がほぼ連続的かつ定常的に起きており、パルスレーザー照射における照射周辺部の物理過程と重なる部分や異

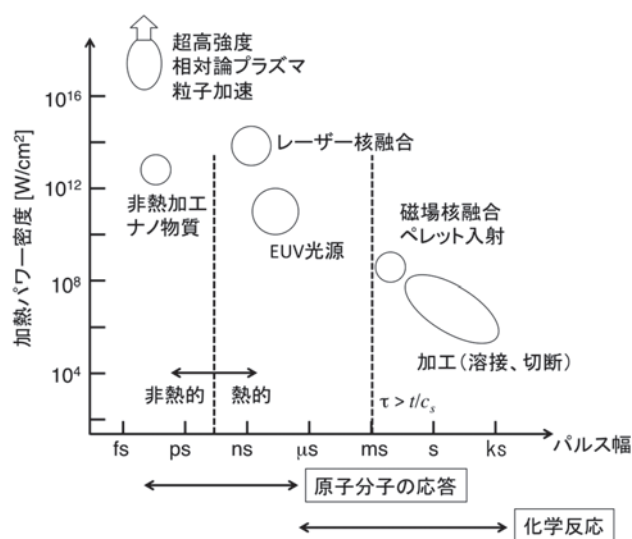


図2 本講座で取り扱う課題を、照射レーザーの強度とパルス幅および、現象のタイムスケールに対するマップ上ですす。

なる部分など、興味深い課題も様々浮かび上がってくる。有意義な課題抽出のためにも、これら各レーザー照射時間幅と対応する物質の特徴的な時間応答を整理しておくことは価値があると思われる[48]。一方、磁場閉じ込め核融合の核融合プラズマ密度を上げることが目的であるペレットインジェクション技術における射出ペレット（固体物質）とその周囲の高温プラズマによる溶発過程は、中性ガスの熱的シールドによる比較的緩やかな熱の移動による溶融・蒸発過程とするモデルがよく成り立っているとされている[49]。固体からプラズマへ転移していく過程にはレーザー加熱と共通する部分、共通しない部分があり、それらを比較対比することによって有用な知見が得られることが期待される。例えばレーザー加熱による固体と液体、気体境界における熱伝導など、インジェクションにおける物理過程との比較は興味深い。この研究の主たる目的である核融合燃料の供給とともに、それを用いたプラズマの計測技術としての研究開発が活発に進められており[49,50]、広い意味での熱源によるプラズマ生成に、異分野間の交流による“新しい知見”がもたらされることを期待したい。

### 1.3.2 シミュレーションの対象

ここで述べた諸点に留意して周辺分野を眺めると、固体物性や、熱流体の立場での、レーザーと物質の相互作用の研究も活発に行われている。図1にもう一度着目する。およそパルス幅数ピコ秒以下の領域では、非熱的な相互作用によって初期のプラズマが生成する。この過程について、第一原理に基づくポテンシャルの仮定のみに基づく分子動力学からマクロな物理量の関係を物理の法則に基づいて把握する所謂現象論的な手法も含むモデリングが行われている[32]。ミリ秒より長いパルス幅では、ターゲット物質の溶融、蒸発を経て、固体物質が連続的にプラズマ状態へと遷移する過程のモデル化、シミュレーションが行われている[25,35]。これらの計算は、実験と連携し、観測結果と比較しながら行うことが可能であり、それを通じて、各領域のより深い理解と、より広い応用可能性を展望することが可能になるものと期待される。プラズマ物理学が対象とする広い温度、密度領域の中における、本講座の対象領域を図3に示す。地上で通常見ることのできる固体密度周辺の広い温度範囲を取り上げており、古くからある対象でありながら、“新しい観点”、“新しい計測”、“新しいシミュレーション手法”を導入することにより、“新たな挑戦”の対象となっていることを講座の中で示していきたい。

### 1.4 本講座の構成

以上の問題意識の下に、本講座では、以下の構成にした。本講座の目的および取り上げる対象を第1章で論じ、以後の各章の基礎となる物理を第2章で論じるとともに、実験と緊密に結びついたシミュレーションを中心に種々の分野の事例を第3章から第5章にわたり紹介し、第6章でまとめを行い、同時に今後の課題等を提示する。各章の表題と執筆者は以下のとおりである。

1. はじめに（大道、佐々木）本章
2. プラズマの状態方程式（モア）

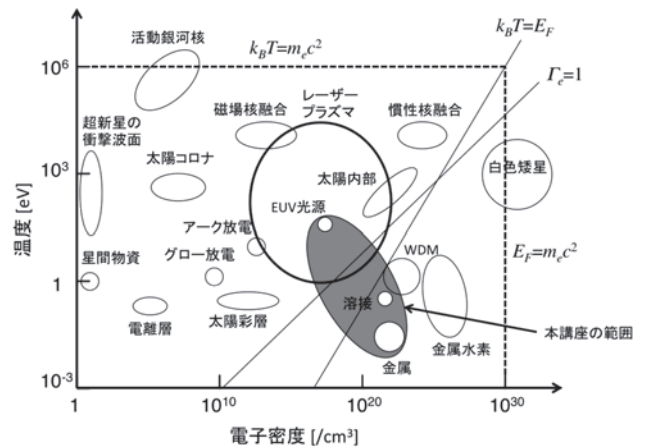


図3 プラズマ物理学の種々の研究課題が対象とする温度、密度範囲と、今回の特集で主に取り扱われるレーザープラズマの範囲および、各章で議論される代表的な応用のうち、放射流体が問題となるEUV光源や、熱流体として扱われる加工（切断、溶接）が対象とする領域を示す。

3. EUV光源やICFにおけるレーザープラズマ相互作用の初期過程（砂原）
4. 固体物性からみたレーザーアブレーション（富田）
5. レーザー加工のシミュレーション（村松、山田、山下、杉原）
6. 磁場閉じ込め核融合におけるペレット溶発の物理と応用（坂本）
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（米田）

### 参考文献

- [1] T.P. Hughes, *Plasma and Laser Light* (Adam Hilger Ltd, London, 1975), and references cited therein.
- [2] P.D. Maker *et al.*, *Proc. 3rd International Conference on Quantum Electronics*, Paris (New York, Columbia Univ. Press, 1964) Vol. 2, 1559.
- [3] F. Haught and D.H. Polk, *Phys. Fluids* **9**, 2047 (1966).
- [4] M. von Allmen and A. Blatter, *Laser-Beam Interactions with Materials*, 2nd Edition, (Springer Berlin, Heidelberg, New York, 1995).
- [5] S.I. Anisimov and V.A. Khokhlov, *Instabilities in Laser-Matter Interaction* (CRC Press Boca Raton, London, Tokyo, 1995).
- [6] D. Strickland and G. Mourou, *Opt. Commun.* **56**, 219 (1985).
- [7] 例えば大道博行：レーザー研究 **31**, 698 (2003).
- [8] 橋田昌樹 他：レーザー研究 **33**, 514 (2005).
- [9] 橋田昌樹 他：第78回レーザー加工学会講演論文集 **87** (2012).
- [10] P. Balling and J. Schou, *Rep. Prog. Phys.* **76**, 036502 (2013).
- [11] A. Giesen and J. Speiser, *Proc. SPIE* **8547**, 85470B (2012).
- [12] D.J. Richardson *et al.*, *J. Opt. Soc. Am.* **B27**, B63 (2010).
- [13] 佐藤彰生：第78回レーザー加工学会講演論文集 **25** (2012).
- [14] 片山聖二：レーザー加工学会誌 **13**, 259 (2006) および 片山聖二：レーザー加工学会誌 **15**, 35 (2008).
- [15] 新井武二：レーザー加工学会誌 **15**, 255 (2008).
- [16] B.N. Chichkov *et al.*, *Appl. Phys.* **A63**, 109 (1996).
- [17] A.H. Khan *et al.*, *Optics and Lasers in Engineering* **44**, 826

- (2006).
- [18] C. Momma *et al.*, *Opt. Commun.* **128**, 101 (1996).
- [19] 例えば M. Murakami, *Phys. Plasmas* **12**, 062706 (2005).
- [20] M. Murakami *et al.*, *Phys. Plasmas* **12**, 062706 (2005)およびその参考文献を参照.
- [21] 例えば B.H. Ripin *et al.*, *Phys. Fluids* **23**, 1012 (1980).
- [22] C.J. Pawley *et al.*, *Phys. Plasmas* **6**, 565 (1999).
- [23] M.H. Key *et al.*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **54**, 221 (1995).
- [24] D.H. Kalantar *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3574 (1996).
- [25] 矢部 孝：レーザー研究 **26**, 788 (1998).
- [26] 佐野雄二 他：レーザー研究 **26**, 793 (1998).
- [27] 佐野雄二：表面技術 **60**, 698 (2009).
- [28] T. Akiyama *et al.*, *J. Plasma Fusion Res. SERIES*, Vol. 8, 496 (2009).
- [29] H. Daido, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 1513 (2002).
- [30] 松縄朗, 片山聖二：レーザー研究 **26**, 783 (1998).
- [31] T. Yamada *et al.*, *Proc. 12th Int. Symp. Laser Precision Micro-fabrication* (2011) paper number #11-055 Tu3-O-7, Att 0091
- [32] 大村悦二, 宮本 勇：レーザー研究 **26**, 800 (1998).
- [33] 例えば, 大中逸雄：コンピューター伝熱・凝固解析入門 (丸善, 1985).
- [34] 田中 学 他：プラズマ・核融合学会誌 **87**, 522 (2011).
- [35] 杉原健太 他：第25回数値流体力学シンポジウム C08-1, 2011年12月 大阪大学.
- [36] 平尾一之, 邸建栄編：フェムト秒テクノロジー基礎と応用 (化学同人, 2006)
- [37] 板倉政明：第77回レーザー加工学会講演論文集 (2012年5月) p.129.
- [38] 富田卓朗 他：レーザー研究 **40**, 592 (2012).
- [39] A. Rousse *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 17 (2001).
- [40] K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, R1517 (2004).
- [41] D.H. Reitze *et al.*, *Phys. Rev. B* **45**, 2677 (1992).
- [42] N. Bloembergen, *Nature* **35**, 110 (1992) (News and Views).
- [43] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **81**, 172 (2005).
- [44] B.J. Demaske *et al.*, *Phys. Rev. B* **82**, 064113 (2010).
- [45] 藤田雅之, 橋田昌樹：プラズマ・核融合学会誌 **81**, Suppl., 195 (2005).
- [46] H. Azuma *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, L1172 (2004).
- [47] D. Perez and L. J. Lewis, *Phys. Rev. B* **67**, 184102 (2003).
- [48] A.H. Zewail and J.M. Thomas, *4D Electron Microscopy* (Imperial College Press, 2010) page 3.
- [49] 坂本隆一, 星野光保：プラズマ・核融合学会誌 **83**, 560 (2007).
- [50] N. Tamura *et al.*, *プラズマ・核融合学会誌* **78**, 837 (2002).



だい どう ひろ ゆき  
大道博行

1981年3月大阪大学大学院工学研究科博士課程修了。工学博士。大阪大学レーザー核融合研究センターにて超高出力レーザーを用いたX線レーザー等の研究に従事。2000年より(特)原研関西研(現在(独)原子力機構原子力機構・関西光科学研究所)にて極短パルス超高強レーザーを用いた高強度場科学研究, 高エネルギー粒子発生とその利用研究に従事した。2009年より新設された(独)原子力機構・敦賀本部レーザー共同研究所にてレーザーの原子力エネルギー開発への応用とそれを通じた産業利用, それらの基盤的研究およびデータベース構築をめざした研究開発に従事している。



さ さ き あきら  
佐々木明

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門研究副主幹。主な研究分野：レーザー生成プラズマを用いたEUV光源やX線レーザーの原子過程, プラズマの複雑性の数理モデルとシミュレーションの研究を行っています。趣味：再生可能エネルギーの研究。かつて同じように夢のエネルギーといわれながら, 置くだけで発電し, 燃料不要, 騒音, 排気ガスもなく, 既存のエネルギー源と考えがまったく違うエネルギー源の出現に関心を持っています。



## 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

# 2. レーザープラズマ相互作用における状態方程式

## 2. Equation of State for Laser-Matter Interaction

MORE Richard

Lawrence Berkeley National Laboratory

(原稿受付：2013年4月25日)

本章では、高強度レーザーで照射された固体媒質の爆発的な膨張過程を記述する、状態方程式 (Equation of State: EOS) について、その研究の歴史や現状、今後の課題について述べる。状態方程式は、物質がどのように加熱され、蒸発、電離するか、熱エネルギーがどのようにプラズマの膨張の運動エネルギーに変換されるかを、シミュレーションで予測するために欠かせない情報である。

### Keywords:

equation of state, dense plasma, laser plasma, ablation, evaporation

### 2.1 はじめに

この講座では、レーザープラズマ相互作用における状態方程式 (Equation of State: EOS) とは何か? 何のために用いられるか? ここでいう状態方程式が、大学で学ぶ、以下の簡単な理想気体の状態方程式、

$$pV = Nk_B T, \quad (1a)$$

$$E = \frac{3}{2} Nk_B T, \quad (1b)$$

とどのように違うかや、理想気体の状態方程式(1)の起源、およびその限界について考える。ここで、 $p$  は気体の圧力、 $V$  は気体が入っている容器の体積、 $N$  は容器の中の気体分子の数、 $E$  は気体分子の運動エネルギー、 $k_B$  はボルツマン定数、 $T$  は温度である。

#### 2.1.1 高温の空気

1804年にナポレオン・ボナパルトは、パリの新しい科学技術の高等教育機関を軍の支配下に置き、その名称をエコール・ポリテクニクに変えた。ナポレオンがこの新しい学校の教授の幾人かに「熱気球でどれだけの重量のものを浮揚できるか? 熱気球で大砲を運搬できるか?」と質問したとしても、自然なことだろう。

当時モンゴルフィエ兄弟によって新しく開発された熱気球は、人を乗せて浮揚し、戦場の偵察をするために使われていた。もし熱気球で大砲を浮揚させることができ、高速で移動できれば、フランス軍に対して、計りしれない利点があったと考えられる。ナポレオンが本当にそのような質問をしたかどうかは定かでないし、もししていたとしても内容は秘密 ("secret d'Etat") として扱われたかもしれない。しかし真実はどうであれ、エコール・ポリテクニクの教授や学生達の研究によって、高温の気体の科学は、フランスで急速に発展した。

熱力学は、あらゆる物質に対して当てはまる熱エネルギーの一般的な物理学である。式(1)に示す気体の法則、状態方程式は、空気の特徴を記述する。ジョセフ・ゲイ・リュサックによりはじめて式(1)が発表され、ついでラザール・カルノーと、ニコラ・レオナルド・サディ・カルノーの親子によって熱力学という学問が発展した。これら3人はエコール・ポリテクニクの教授や学生であった。

(1)式によれば、空気の密度は  $N/V = p/k_B T$  のように温度に反比例する。熱気球の中の空気は外界に対して開放されているから、内部の圧力は大気圧とほぼ等しい。しかし、内部の気体の温度が高ければその密度は小さくなり、周囲の気体より軽くなるので気球は浮揚することができる[1]。熱気球の大きさには限界があり、中の気体の温度にも実用的な限界がある。いずれにしても、ナポレオンの質問に答えるためには、高温の空気の状態方程式の情報が必要であった。

#### 2.1.2 高温の蒸気

蒸気タービンは大型の機械で、発電用に用いられている。蒸気タービンを設計する技術者は、式(1)のそれとは大きく異なっている、水と蒸気の状態方程式を知っている必要がある。冷媒蒸気表 (steam table) と呼ばれて出版されている表があり、その中には、液体から蒸気へ相転移する状況も含め、1600Kまでの温度範囲において、実測された水の状態方程式のデータが記載されている[2]。

大型の蒸気タービンでは、再生 (regenerative)、再熱 (reheating) と呼ばれる方式が用いられている。再生とは、タービンを駆動し、膨張、冷却された蒸気のエ너ギーを、水の加熱、蒸発に使うエネルギーの一部として使う方式を指し、再熱とは蒸気を再加熱することで、タービン翼ができるだけ乾燥した状態を保ちながら、蒸気から効率的にエネルギーを取り出す方法を指す。その技術が重要な理由

は、水滴がタービン翼に付着すると損傷を引き起こすからである。発電のコストにおいては、1%の向上でも大きな経済的な効果があるから、これらの技術は検討するに値し、蒸気の状態方程式を知って活用することは重要である。

### 2.2 レーザーで加熱された物質に対する現代の状態方程式

現代の科学技術においても物質の状態方程式の情報は必要である。例えば、レーザーによる切断、穴あけ加工において、2つのレーザーパルスで短い時間間隔をおいて照射すると最もよい結果が得られることが知られている(図1)[3]。例えば加工する物質を、鋼からタングステンへと変えたような場合に、最もよい結果を得るためには、レーザーのパルスエネルギーと時間間隔を変える必要があるだろう。切断、穴あけの品質と速度を向上させるために、実験的には、試行錯誤が行われるが、高温の金属および金属蒸気の状態方程式があれば、コンピュータシミュレーションによる最適化もできるようになる。試行錯誤的な実験を主とする研究開発でも、コンピュータシミュレーションは、実験結果の正しさを確認したり、どのようなレーザーを購入するかを決めるために役立てられている。

日本原子力研究開発機構では、主に鋼を対象として、レーザー光の吸収、溶融、蒸発過程を考慮して、レーザー切断、溶接の数値モデリングを行っている。このようなシミュレーションの結果は、原子炉容器や冷却管などに用いられる材料の高温での熱物性値(状態方程式、熱伝導率、表面張力、溶融の潜熱)の値に依存する[4-7]。

また、次世代の半導体リソグラフィ技術の開発のために行われた、レーザー生成プラズマを用いた極端紫外(EUV)光源の研究開発[8]の中で、パンチアウトターゲットという、プリパルスレーザー照射に伴って発生する衝撃波でSnの薄膜を破碎して発生した蒸気、あるいは微粒子をメインパルスレーザーで加熱する方法が見出された(図2)[9]。Snの状態方程式は、蒸気の温度、密度をコンピュータシミュレーションで評価するためにも重要である。

2009年から2012年にかけて、米国ローレンスリバモア研究所で行われた、核融合点火実証キャンペーン(National

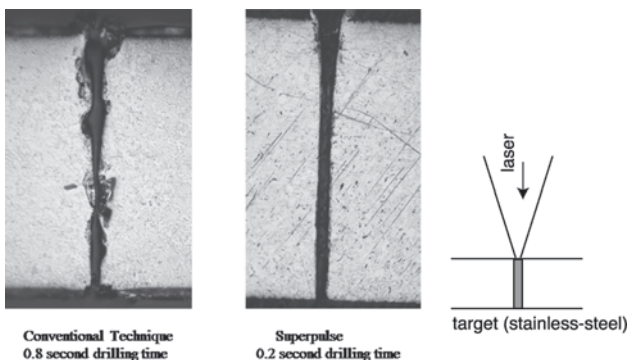


図1 レーザーによる穴あけ加工によるダブルパルス照射の利点。厚さが0.1 cmのステンレス鋼の板に、直径約40 μmの穴あけを行なった例を示す。左図は、800個のナノ秒パルス照射による結果、右図は200個のダブルパルス照射による結果を示す。

Ignition Campaign) では、NIF レーザーを用いた慣性核融合の実験において、いまだに期待された点火が実現されていない。この原因はまだ明らかではないが、核融合ターゲット物質中の状態方程式の不確定性もその理由の一つではないかといわれている[10]。もし実験条件の設計において用いられた状態方程式が十分正確でなければ、レーザー爆縮されたプラズマが、DT 燃料の点火に必要な温度、密度に至らない可能性がある。

その他の状態方程式データが重要な役割を果たす応用分野として、実験室における衝撃波実験、燃焼実験、磁場閉じ込め核融合におけるペレット入射[11, 12]、X線レーザー等が挙げられる。図3は、核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)の実験において撮影された、燃料ペレット入射の瞬間を捉えたスナップショットである。入射後時間が経過してプラズマが膨張する過程は、装置の中の磁場強度分布によって決まるが、初期のペレットのアブレーションの過程は、高密度の固体物質が蒸発する過程で

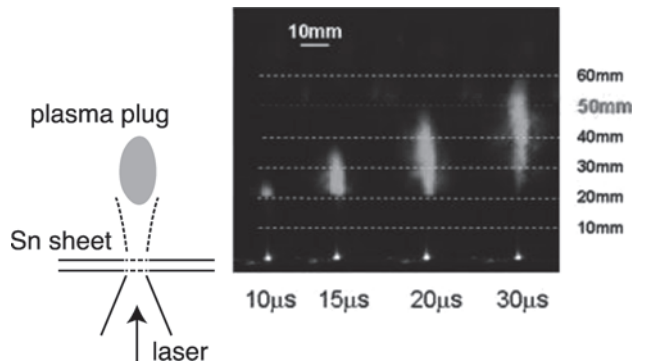


図2 レーザー光を照射し、Sn 薄膜をパンチアウトして生じたプラズマの雲の挙動。レーザー光は下から照射され、プラズマ雲が上向きに伝播する。第2パルスレーザーで加熱する際のプラズマを示す。プラズマのダイナミクス(速度、大きさ、密度)は、レーザーパルスの条件とSnの状態方程式から決まる。

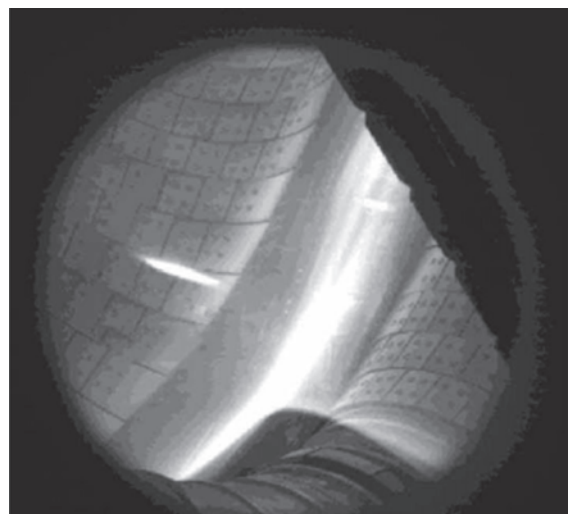


図3 核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)に高速で入射されるペレットの様子。ペレットには燃料(H<sub>2</sub>)や、トレーザー用の不純物が含まれる。入射初期のペレットの挙動は、高温プラズマ環境における、ペレット物質の状態方程式に敏感である。背後の曲線状に発光している部分はLHDの内壁である。

あり、明らかに状態方程式に敏感である。すでに、アブレーションの過程の詳細な計測が行われている。

これとは別に、パルスパワー放電を用いて、キャピラリーや水中に閉じ込められた高温、高密度プラズマを生成する実験が行われている。これらの実験のモデリングは、状態方程式と放電媒質の電気伝導度のモデルとを組み合わせで行われている[13, 14]。現在実験の解析は、既存の状態方程式データを用いて行われているが、実験の結果はデータの精度、信頼性の向上に役立つとも考えられる。

恒星や惑星の内部構造を理解するために、これらの星の内部に存在する物質、H, H<sup>-</sup>, He の混合物や, Fe, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの状態方程式が必要である。このため、レーザープラズマを使った状態方程式の実験は、Takabe らが実験室天文学と呼ぶ新しい研究分野の基本的な部分になっている[15]。

## 2.3 レーザープラズマ相互作用実験における状態方程式の役割

### 2.3.1 物質がどれだけ高温になるかを知る

典型的なレーザープラズマ相互作用実験で、初期にレーザーのエネルギーはターゲット表面の表皮厚さ (10<sup>-6</sup> cm) 程度の領域に吸収される。このエネルギー、すなわち、 $E_{\text{dep}} = \text{レーザーのエネルギー} / \text{加熱される物質の質量}$ 、によってターゲットの温度が上昇する。その大きさは比熱により、

$$kT \sim E_{\text{dep}} / C_v, \quad (2)$$

と表される。定積比熱  $C_v$  は、状態方程式の重要な要素であるが、与えられたレーザーエネルギーで到達しうる最高の温度を決定する。高温プラズマは、温度に応じて光、紫外線、時にはX線さえも放射して、自身で膨張、冷却する。これらのことから、比熱の値は、短パルスレーザー励起によるX線源やEUV光源などの応用のために重要である。

### 2.3.2 物質がどれだけ高速で運動するかを知る

レーザーで加熱された媒質は高い圧力を発生するので、すみやかに膨張する。プラズマの膨張速度は、媒質の種類で決まる音速の数倍程度である。音速は、物質の状態方程式より、

$$C_s^2 = (dp/d\rho)_S, \quad (3)$$

と表される。この式で、音速は、その二乗が、エントロピー  $S$  を一定とした場合の圧力の密度に対する微分で表されている。

### 2.3.3 物質がどれだけ温度、密度状態になりうるかを知る

現在のレーザープラズマ相互作用実験では、様々な照射配置を用いることで予め設定した流体運動を実現できるようになっている。慣性核融合を実現する目的では、水素燃料を高密度に爆縮する実験が行われている。衝撃波実験では、衝撃波の速度を測定することによって、比較的容易に物性の詳細な情報が得られる。他のガスパフやプラズマブルームにおいて、密度が既知のプラズマを作る実験が行われている。これらのプラズマは光源としても用いられる。

ガスパフから生成するプラズマの密度、温度は照射レーザーのエネルギーやパルス幅によって決まるが、詳細な条件は高温物質の状態方程式に強く依存する。

## 2.4 高温物質の状態方程式

化学燃焼の火炎の温度は最高で 2000–3000 K であるのに対して、レーザー照射プラズマはより高い温度に加熱され得る。このような高い温度を測る時は、電子ボルト (1 eV = 11605 K) の単位を用いるのが便利である。

1 eV 以上の温度では、いかなる物質も溶融するため、物質の強度や結晶構造は意味をもたないし、ほぼすべての物質は蒸発するので、表面張力も働かないと考えられる。ほとんどの分子は解離する。

もっとも重要な効果は電離であり、自由電子と正電荷からなる高密度プラズマが生成する。プラズマが加熱されると電子温度が上がるが、電離度も高くなる。ある電子温度  $k_B T$  において、プラズマの電離を一歩進めるためには、通常  $k_B T$  よりも十分大きいエネルギーが必要であり、電離状態は必ず決まる値となる。

一般に、電子温度が  $5Z^2 \text{ eV}$  以上になるとプラズマは完全電離状態 ( $Z^* = Z$ ) になる。

### 電離状態の評価のための近似式

温度  $T$  では、原子は、軌道電子が次々とはぎ取られて、価数  $Z^*$  のイオンのイオン化ポテンシャル  $I(Z, Z^*)$  が  $k_B T$  の数倍であるような状態まで電離する。

$$I(Z, Z^*) \cong 13.6 Z^{*2} / n^2 \text{ eV}, \quad (4)$$

$$p \cong (Z^* + 1) kT / V_a,$$

$$E / \text{atom} \cong 1.5 (Z^* + 1) kT + E_i(Z^*). \quad (5)$$

式中で、 $Z^*$  は原子 1 個あたりの自由電子の数、あるいは電離度を、 $Z$  は原子番号、 $n$  は最外殻電子の主量子数を示す。圧力、エネルギーの式中で、 $Z^*$  に比例する項は自由電子の運動の寄与を、 $+1$  の項はイオンの運動の寄与を示す。 $E_i(Z^*)$  は、原子を  $Z^*$  価まで電離するために必要なエネルギーであり、エネルギーの中で最も大きく寄与する。イオン化ポテンシャルは、

$$I(Z, Z^*) = \Delta E_i / \Delta Z^*$$

のように表され、(4)式は近似式である。

### 2.4.1 より正確な電離状態の評価

QMD (Quantum Molecular Dynamics : 量子分子動力学法) は、高密度プラズマ中での原子構造と状態方程式を計算するために非常に役立つ現代的な手法である[16]。QMD は粒子シミュレーションのひとつで、シミュレーションボックスの中に多数の原子を有し、原子に対して現実的な境界条件で計算を行うが、非常に長い計算時間を必要とする。高速の計算機を持つ専門の研究者が使用すると、固体物理および衝撃波の実験データにより検証されているように、高温プラズマの状態方程式その他の特性を高

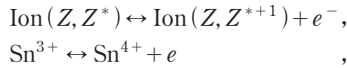


精度で求めることができる。

1949年に、Feynman, Metropolis, Teller[17]らは、次のようにトーマスフェルミ電子ガス理論を、高温プラズマ中の原子の電離の記述に適用する方法を考案した。原子は密度で決まる半径の球状のセルに閉じ込められているとし、静電エネルギーは自己無撞着場の方法で決まるとした。この方法は単純だが、より正確な方法で求めた値と誤差が10-15%以下で一致するため、現在も有用と考えられている。しかし、現在の研究者はより正確な方法について検討している。

さらに新しい量子セル法では、球状セルに入っている一つの原子を考える (Lieberman[18,19], Faussurier および Blancard[20,21], Blenski[22]らを参照)。セルの大きさは、この方法でも原子の密度から決定される。電子状態は自己無撞着ポテンシャル下での、シュレディンガー方程式またはディラック方程式を解いて求める。ポテンシャルは、有限温度フェルミ統計を使って求めた電子状態への分布より、電子の電荷密度を求めて計算する。この理論の原子に関する部分は相対論的量子力学を用いているが、球状セルの境界条件の決め方に不確定性があるため現在も研究が続けられており、その問題点が Chihara[23,24], More [25], Blenski[22]らによって議論されている。このセルモデルは、基本的に1電子の量子力学であるため、エネルギー単位の微細構造は考慮されない。

これらとは別の方法に、もともと宇宙物理で用いられたサハ方程式を用いる方法がある。この方程式では、実測された原子の各電離状態 (例えば  $\text{Sn}^0, \text{Sn}^{1+}, \text{Sn}^{2+}$  など) の原子データに基づき、例えば、



のように、電離過程を化学反応のように考える。サハ方程式を用いると、原理的には、正確な原子データによって電離度が正確に評価できると考えられるが、励起状態については十分な情報が得られないのが普通であり、特に複雑な多電子原子についてはその傾向が強い。また、近傍に存在する原子との相互作用は、密度効果と呼ばれるが、一般に近似的に取り扱われる。

#### 2.4.2 密度効果 (強結合, フェルミ・ディラック統計, 圧力電離)

プラズマ中の局所的なイオンの配置を考えた密度効果についての研究は、Brush-Sahlin-Tellerによって始められ、Hansen[26], Dewitt, Ichimaru[27,28]らによって1成分プラズマ (OCP) の理論にまとめられている。この理論は、上述の球状セルモデルが正当であることを示すとともに、モデルをより現実的なものとするための試みに対して重要な役割を果たしている。

自由電子のフェルミ統計は、固体物理ではよく知られている[29]。フェルミ統計は、通常の固体密度では、温度が10 eV 程度のフェルミエネルギーまでの状態方程式等の金属の物性に、大きな影響を与える。

圧力電離は、固体においてよく知られている現象である

[29,30]。孤立原子は、低密度、低温では、通常中性であるが、固体中では、外殻電子を伝導帯に放出し、正イオンになり得る。共通の伝導帯へ励起される電子は、通常フェルミ統計に従う。通常の固体密度よりもずっと密度が高くなると、より多くの電子が伝導帯に励起されて、実効的なイオンの価数も大きくなる。

#### 2.5 固体の温度 1 eV への加熱

温度が1000 Kまでの固体の熱的な特性は、前世紀の初頭に既に調べられており、興味ある5つの近似的な法則が求められていた。

その第1は、融点が音速の二乗に比例する法則、

$$T_m \sim AM_p C_s^2, \quad (6)$$

である。ここで  $AM_p$  は原子量、 $C_s$  は音速である。このような関係が生じる理由は、分子の化学結合が強く、物質が硬ければ、そのような固体中では音速が速く、同時に溶融も起こりにくいことにある。(図4 a) に示す、いろいろな物質における音速と融点の関係からわかるように、式(6)は近似的な関係である。図では、融点の温度は、原子一個あたりの erg ( $=10^{-7}$  J) で表したエネルギーを、gram で表した原子質量で割ったものになっている。音速は縦波と横波で異なり、また結晶の方向によっても異なるので、式(6)は非常に正確ではないが、それでもなお凝縮系における機械的特性と熱的特性の一般的な関係を記述している。

第2の法則は沸点の温度は融点の温度の通常1.7倍ということである。この関係の精度の限界も(図4 b) に示されている。

第3の法則は、溶融における一原子あたり eV で表した潜熱は、eV で表した融点の温度に等しく、沸騰の潜熱は沸点の温度の10倍ということである。この比率はすべての物質でほぼ同じである。その理由は、溶融や沸騰の際のエントロピーの変化は、固相あるいは液相における典型的な原子の配置の変化によっているからである。この点では、固体の結晶構造の違いや、液体の構造の違いはあまり大きな違いを生じない。

第4の法則は、温度を eV で表し、一原子あたり (eV/atom) の単位で表した時の、固体の定積比熱は、ほとんどの物質でおよそ3ということである(図4 d)。この法則は、デュロン・プティの法則として知られ、3という値は、固体を構成する原子が平衡位置からずれて小さく振動した時の、運動エネルギーとポテンシャルエネルギーの寄与がほぼ等しいことによる。この法則は温度が室温程度 (0.025 eV) において成り立つ。より低温では、Einstein と Debye によって最初に示されたように、量子効果によって比熱は減少する。原子番号の小さい物質では、室温でも量子効果が現れる(図4 d)。このことは、原子一個あたりの比熱が、

$$\delta E_{\text{thermal}} \sim 3k_B T/\text{atom}, \quad (7)$$

であることを意味する。この値は式(1 b) に表した理想気体における値の2倍であり、その違いは液体や固体中の原

子は、振動に伴うポテンシャルエネルギーと運動エネルギーの両方をもつことによる。

最後の第5の法則は、高温の固体の圧力に対するもの、

$$p(\rho, T) = p_0(\rho) + \gamma \rho \delta E_{\text{thermal}}, \quad (8)$$

でグリユナイゼンの法則と呼ばれる。γはグリユナイゼン定数と呼ばれ（図4e）を参照，その値は1～3である。式（8）において，第1項， $p_0(\rho)$ は冷たい圧縮圧力で，固体の中の原子の間に働く反発力に起因し，固体の圧縮率から決まる。第2項は高温固体に起こる追加の圧力で，高温の物質中の音波に伴う気体の圧力と考えることができる。

これらの法則が成り立つことは，およそ1000 Kまでの温度の領域では，実験によって確認されている[29, 30]。これ以上の圧力では，実験データは完全とはいえず，更なる研究が必要である。そして，実際に応用に用いる状態方程式データは，これらの知られている法則と整合性をもつことが必要である。

現代の実験的な研究は，2つの方向で行われている。その一つはダイヤモンドアンビルセルでの圧縮とレーザーでの加熱を組み合わせた，固体-固体相転移の研究であり，もう一つは衝撃波実験で，圧縮・加熱された媒質中の，衝撃

波の伝播速度や物質のエネルギー密度を測定する研究である[31]。ただし，この短い講座の中ではこれらの広い実験研究を紹介することはできない。

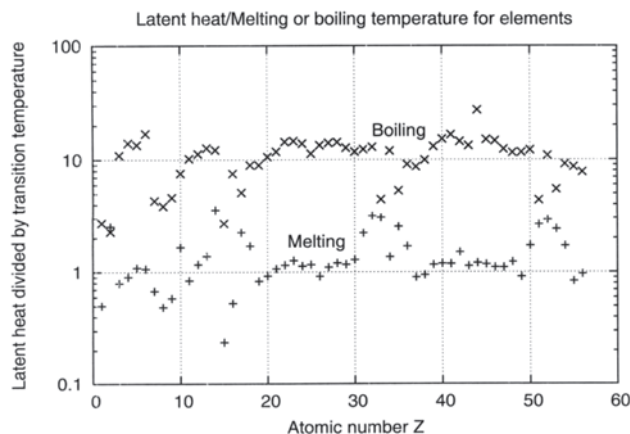


図4c 潜熱と転移温度の関係の原子番号に対する依存性。一原子あたりの溶融の潜熱は，融点の温度とほぼ等しく，蒸発の潜熱は沸点の温度のおよそ10倍であることを示す。

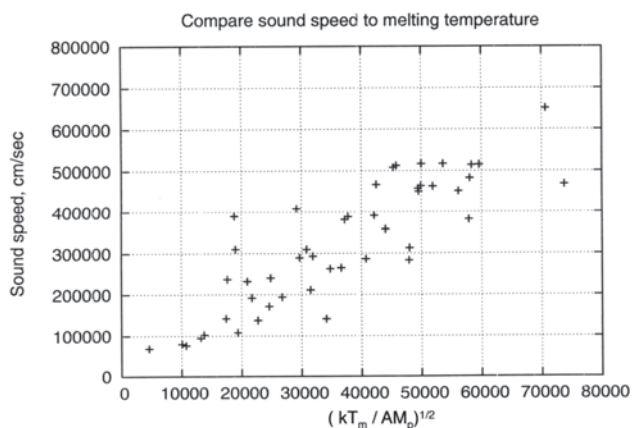


図4a 固体の音速  $c_s$  [cm/s]と融点の関係。図横軸で融点を  $(kT_m/AM_p)^{1/2}$  の形で示す。ただし  $T_m$  は融点， $AM_p$  は原子量である。図は，力学的な量である音速  $c_s$  と熱的な特性の関係を示す。多くの場合，音速は結晶構造に依存し，伝播方向によって異なるので，関係は近似的なものである。

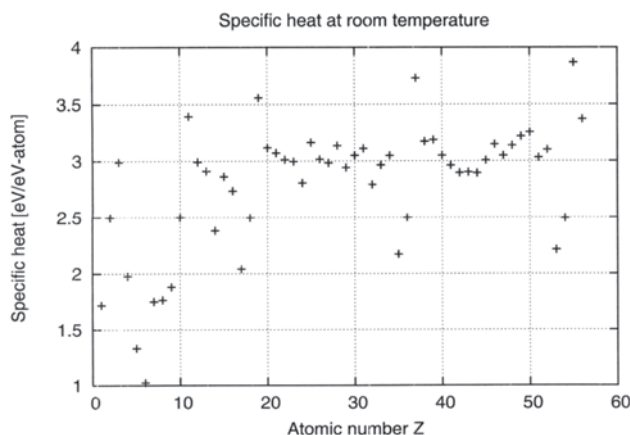


図4d 原子の比熱が一原子あたりおよそ3 eVとするデュロン・プティの法則に従うことを示す結果。この傾向は，Debye温度以上，室温程度では多くの物質に当てはまる。高温では，イオン化が起こると比熱は顕著に大きくなる一方，完全電離した低原子番号原子では小さくなる傾向を示す。

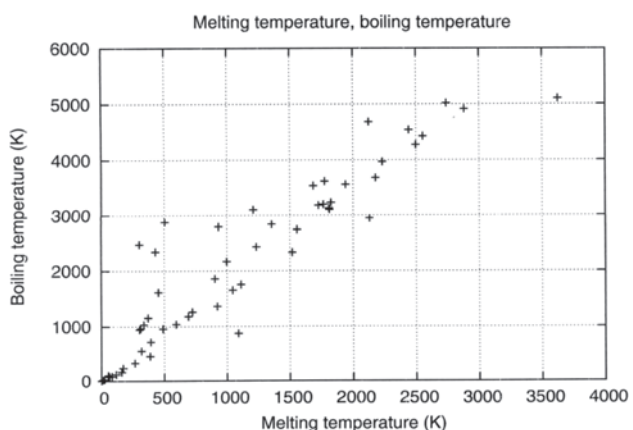


図4b 融点と沸点の比例関係。

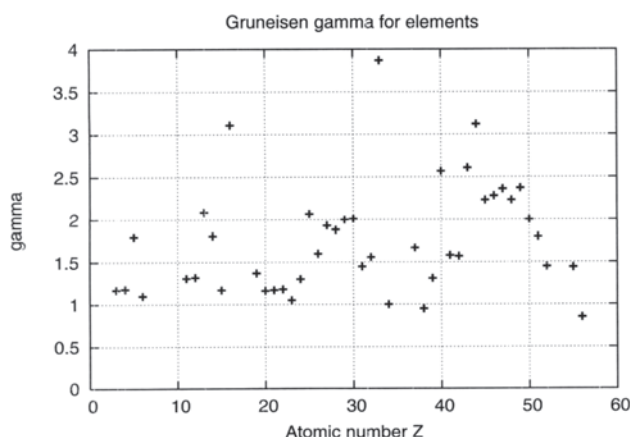


図4e 高温固体のグリユナイゼンγ定数（式8）。

## 2.6 溶融、蒸発および臨界点

状態方程式は1000 Kから10 eV, すなわち100,000 Kまでの温度範囲で用いられるので, 溶融や液体-気体相転移を取り入れることは重要である. もしこの温度領域での物性定数が正確に知られていない場合は, 状態方程式は理論的に求めるか, よりよく理解されていると考えられている物質のデータからのスケーリングで求めなければならない.

これらの領域では, いかなる方法を用いて状態方程式を求めたとしても, 気相と液相が同時に共存するような, 二相状態が存在することを考慮しなければならない. 内部エネルギー  $E$ , エントロピー  $S$  に対して, ヘルムホルツの自由エネルギー  $F = E - TS$  を基にする現代の状態方程式では, 二相領域の境界は, マクスウェルの規則に従い, 液相と気相の密度から計算することができる. 液相の密度  $\rho_L$  と気相の密度  $\rho_V$  は, 次の連立方程式を満たす.

$$p(\rho_L, T) = p(\rho_V, T) \quad \text{かつ} \quad g(\rho_L, T) = g(\rho_V, T),$$

ここで,  $g = F + p/\rho$  はギブスの自由エネルギーである. この非線形連立方程式は特別な方法によって解かれる. 実際には, 二相領域において物質は例えば気体と小さな液滴からなり, 物質の特性は低密度の境界における気体の密度  $\rho_V$  と, 高密度の境界における液体の密度  $\rho_L$  における値の線形結合で表される. この時表面張力は, 液体を球形の液滴の形を保つように働き, それゆえ液相部分の圧力は気相領域の圧力よりも高く, 密度も  $\rho_V < \rho < \rho_L$  となる.

流体力学においては, 物質は局所熱平衡であることを仮定し, 密度と圧力は各場所で決まった値をもつと考える. 高密度, 高温の媒質は, 通常流体の応答時間よりも早く熱平衡状態になるので, この仮定は多くの場合適当である. しかしながら, 蒸発や凝縮の速度は遅く, 蒸発の平衡状態を仮定することは正しくない可能性がある. したがって将来の流体シミュレーションでは, 非平衡の蒸発の動力学と流体力学を組み合わせることが課題になると考えられる. また, 参考文献[4-7]の中の議論にあるように, 流体運動に対する表面張力の効果も重要である. これらの特性は室温程度の温度領域で液体になる物質ではよく理解されているが, 1000 K 以上の高温における, Sn, Al, Au などの金属の分子, 負イオンなどの特別な状態の生成を伴う液体-気体相転移は, 興味のある研究課題である.

## 2.7 液体-液体相転移

高圧のリンにおいて実験的に観測されている顕著な液体-液体相転移は, 局所的な原子の秩序の急激な変化によって起こるとされ, 今後の研究の可能性について示唆を与える重要な例である[32, 33]. X線回折測定によれば, 液体中の近傍分子の配置の急激な変化が観測され, 二つの区別される液相の間の転移が存在することはほぼ間違いないとされている. いくつかの分子媒質において, 同様の液体-液体相転移がはっきりと存在する. 最近の文献ではセリウム[34]やシリコン[35]等で, 液体-液体相転移の存在が捉えられている. レーザープラズマの立場では, より高温の金属中で類似の転移が存在するかが問題と考えられる.

## 2.8 状態方程式データの取り扱い方法

状態方程式データの数表は, たくさんの数値が並んだテーブルである. 典型的なテーブルは密度について60-100点, 温度について50点程度のデータをもっているが, 計算機の進歩により, 特に二相領域付近での分解能を高めた, より大規模なテーブルが作られるようになっている.

状態方程式データの表を作成する際には, 異なる温度, 密度領域での複数の種類のデータ, 高温での電離と, 低温での固体における諸関係を整合性を持って繋ぎ合わせることに実際上の課題になっている. 少なくとも, 圧力とエネルギーの2変数は, 温度, 密度平面内における, 固体-液体の溶融の境界に対応する曲線上で連続である必要がある. 熱力学的な整合性は直ちに検証することができる. 文献[36]に示すように, QEOS (Quotidian Equation of State: 常用状態方程式) では, 異なるモデルの間の接続のために, 融点  $T_M(\rho)$  のような与えられた境界において, 値が正確に一致するような関数形を用いるようにしている. すなわち QEOS では, 高温固体の5つの法則と, イオン化について Thomas-Fermi 理論を用い, 固体, 液体, 気体からプラズマにつじつまの合う記述を用い, 相境界で諸量が自動的に一致するようにしている. 最近の QEOS の応用では, より多くのパラメータの調整によって, 実験との一致が改善している.

また, 状態方程式を実際にプラズマ流体シミュレーションで用いる場合には, テーブルのデータを内挿で求める場合の誤差もしばしば問題になる.

## 2.9 例

この章の結論として, 図5に, Al の状態方程式を示す. 図では gram で表した単位質量あたりの内部エネルギー  $E(\rho, T)$  を, 固体密度付近で, 温度, 密度の関数として示す. 液相, 気相の二相領域は, 相境界をマクスウェルの規則に従って求めることによって, はっきりと示されている. 結果を詳しく調べると, 驚くべきことに, このような単純な金属においても, 液体-液体相転移が存在することがわかる.

この液体-液体相転移は,  $\text{Al}_2$  分子の圧力による解離に起因する. 分子とその解離は, 従来の Al の状態方程式のモデルには含まれていない. 図5に示した状態方程式は拡張した QEOS [36]によって求められたものであるが, 本手法のもつ柔軟性によって, Desjarlaisらによる QMD 計算[16]の結果に可能な限り近い結果を得ることができている.

図5の状態方程式は, 温度 0.6 eV において臨界点を持つ. この値は元の QEOS モデルによる値, 1.2 eV [36] よりもかなり低い. QMD 計算の結果は, 低い方の値を示すが, 実験的に検証することが必要である. このことは, 温度 0.5~5 eV の Warm Dense Matter 領域では, 基本的な熱物性値もまだ完全も確立されていないといわざるを得ないことを示している.

## 2.10 将来の状態方程式の研究

最後に, 将来の状態方程式の研究, その計算のためのモ

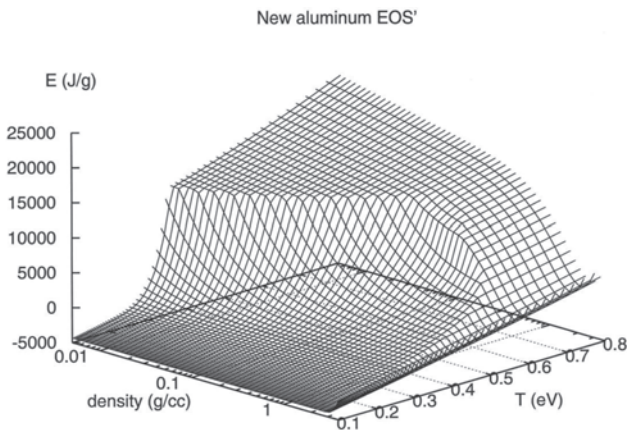


図5 新たに計算されたアルミニウムのEOSにおける内部エネルギー  $E(\rho, T)$ 。液体-気体の二相状態に注目して示す。相境界には、分子の解離に起因する、小さな構造が見られる。これは理論的に予測されているが、実験的には確認されていない、液体-液体相転移に対応する。

デルや手法について述べておきたい。最も重要な課題は、非平衡の効果を状態方程式に取り入れることであろう。高温では、輻射との結合により、電子状態、電離状態は非平衡になると考えられる。また低温 ( $< 10$  eV) でも、液体-気体相転移の時間は、流体運動の時間スケールよりも長く、非平衡状態になると考えられる。これらの効果を研究するためには、原子の衝突輻射モデルや分子動力学シミュレーションが用いられる。

実験研究でも、短パルスレーザーを用いたポンププローブ実験で、短パルスレーザーで加熱されたターゲットの流体運動の初期過程を観測するなどの新しい手法が試みられている。Yonedaらによって、表面で反射されたプローブ光の偏光は、わずかな表面の動きにも敏感なことが確かめられ、既知のレーザーの吸収エネルギーに対するプラズマの膨張速度に関する情報が得られている[37]。このように、実験研究に対しては、いつでも、従来の実験技術で得られる範囲外の条件における物性値を収集し、評価することが求められている。

## 謝辞

本章を執筆するにあたり、G. Faussurier, S. Libby, M. Desjarlais, H. Kitamura 他多くの研究者からの示唆に感謝する。日本語への翻訳は主に A. Sasaki によって行われた。

[翻訳: 佐々木 明]

## 参考文献

- [1] 竹内 淳: 高校数学でわかるボルツマンの原理 (講談社, 2008).
- [2] J. Keenan *et al.*, *Steam Tables* (John Wiley & Sons, New York, 1969). (冷媒蒸気表は、Handbook of Chemistry & Physics m にも記述されているが、単位は BTU (British Thermal Units) で、温度を華氏、圧力を 1 平方インチ当たりポンドで表している).

- [3] A. Forsman *et al.*, *J. Appl. Phys.* **98**, 033302 (2005).
- [4] T. Yamada *et al.*, *Proc. 19th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-19-44128* (2011).
- [5] S. Yamashita *et al.*, *Proc. 19th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-19-43939* (2011).
- [6] K. Sugihara *et al.*, *Proc. 20th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE-20-54185* (2012).
- [7] T. Yamada *et al.*, *J. Laser Micro/Nanoengineering* **7**, 244 (2012).
- [8] K. Nishihara *et al.*, *Phys. Plasmas* **15**, 056708 (2008).
- [9] T. Ando *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **47**, 293 (2008).
- [10] "Science of Fusion Ignition on NIF", DOE report LLNL-TR-570412, May 22, 2012.
- [11] R. Sakamoto *et al.*, *Nucl. Fusion* **44**, 624 (2004).
- [12] M. Goto *et al.*, *Plasma Phys. Control. Fusion* **49**, 1163 (2007).
- [13] T. Sasaki *et al.*, *J. Phys. Conference Series* **112**, 042026 (2008).
- [14] T. Sasaki *et al.*, *Laser Part. Beams* **24**, 371 (2006).
- [15] H. Takabe, *Progr. Theor. Phys. Supplement* **143**, 202 (2001).
- [16] A. Mattson *et al.*, *Modeling Simul. Mater. Sci. Eng.* **13**, R1 (2005).
- [17] R. Feynman *et al.*, *Phys. Rev.* **75**, 1561 (1949).
- [18] D. Liberman, *Phys. Rev.* **B20**, 4981 (1979).
- [19] D. Liberman, *JQSRT* **27**, 335 (1982).
- [20] C. Blancard and G. Faussurier, *Phys. Rev. E* **69**, 016409 (2004).
- [21] S. Kiyokawa, *J. Phys. Soc. Japan* **24**, 4708 (1995).
- [22] J.-C. Pain *et al.*, "Equation of State of Dense Plasma Mixtures", *to be published*.
- [23] J. Chihara, *J. Phys. Condensed Matter* **12**, 231 (2000).
- [24] J. Chihara, *Prog. Theoret. Phys.* **111**, 339 (2004).
- [25] R. More, *Advances in Atomic and Molecular Physics* **21**, 305 (1985).
- [26] J.-P. Hansen and I. McDonald, *Theory of Simple Liquids* (Academic Press, London, 1976).
- [27] H. Kitamura and S. Ichimaru, *J. Phys. Soc. Japan* **67**, 950 (1998).
- [28] S. Ichimaru and S. Ogata, *Elementary Processes in Dense Plasmas*, (Addison-Wesley, Reading Mass., 1995).
- [29] N. Mott and W. Jones, *Theory of the Properties of Metals and Alloys* (Dover Publications, New York (1958).
- [30] N. Ashcroft and N. Mermin, *Solid State Physics* (Holt, Rinehart and Wilson, New York, 1976).
- [31] V. Fortov, "Extreme States of Matter", Springer-Verlag, Berlin (2011) 加えて Mozhnie udarnie volni i eksperimental'nie sosshoyaniya beshchestba, Nauchnaya lektsiya pri vruchenii, bol'shoi mezdunarodnoi zolotoi medali im. A. Einsteina po fizike, Izdatel'stvo "Bukos", Moskva, Kosmodamianskaya nab. も参照。
- [32] Y. Katayama *et al.*, *Nature* **403**, 170 (2000).
- [33] H. Tanaka, *Phys. Rev. E* **62**, 6968 (2000).
- [34] A. Cadien *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 125503 (2013).
- [35] M. Beye *et al.*, *Proc. National Academy of Sciences* **107**, 16772 (2010).
- [36] R. More *et al.*, *Phys. Fluids* **31**, 3059 (1988).
- [37] H. Morikami *et al.*, *Phys. Rev. E* **70**, 035401 (2004).



MORE Richard

米国 Wisconsin 州生まれ。経歴：1968年，Ph.D カリフォルニア大学ラ・ホヤ校，1968-76年ピッツバーグ大学助教授，准教授，1977-99年 米国国立リバモア研究所 (サイエンティスト，グループ長，ディビジョン長)，1999-2005年総合研究大学院大学・核融合科学研究所教授，それ以降，米国国立ローレンス・バークレイ研究所，リバモア研究所，サンディア研究所コンサルタント。専門分野：レーザープラズマ，原子物理，核融合。趣味：コンピュータと，中国の算盤や，日本の亀嵩算盤を使った，数論。



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

### 3. EUV 光源や ICF におけるレーザープラズマ相互作用の初期過程 —レーザーアブレーション—

#### 3. Initial Process of Laser-Plasma Interaction in the Extreme Ultra-Violet Light Source and the Inertial Confinement Fusion Plasmas — Laser Ablation —

砂原 淳

SUNAHARA Atsushi

公益財団法人レーザー技術総合研究所

(原稿受付：2013年4月26日)

物質にレーザーを照射すると、照射された物質表面は気体やプラズマとなって噴出する。この“レーザーアブレーション”の時間発展を記述する計算機シミュレーションのモデルについて考える。レーザーアブレーションにおいてターゲットとなる物質はレーザー照射開始時に固体や液体であることが多く、レーザー照射により気体やプラズマへと状態が変化する。そのため、レーザー照射初期の固体状態からプラズマ状態に至るまでの幅広い密度・温度領域カバーするモデルが必要になる。本章ではレーザーアブレーションの計算機シミュレーションで広く用いられている輻射流体力学モデルをベースに、物質の状態方程式や電子の輸送、電子とイオンまたは格子振動とのエネルギー緩和、レーザーの伝播、吸収、輻射輸送など、重要な物理過程の扱い方について説明する。さらに、固体状態からプラズマ状態までの幅広い密度・温度領域をどのように記述するかについて述べる。また、レーザー照射された物質がレーザーパルス初期にどのように電離してプラズマ状態に至るのかを自由電子の発生を中心に簡潔に述べる。

#### Keywords:

nano-second laser ablation, radiation hydrodynamic simulation, two-temperature model, thermal conduction, radiation transfer

#### 3.1 はじめに

極端紫外 (Extreme Ultra-Violet: EUV) 光源やレーザー核融合プラズマにおけるレーザープラズマ相互作用の初期素過程のモデリングの現状と課題を示すのが本章の目的である。EUV光源であれば金属であるスズのドロップレット (液体または固体)、レーザー核融合であれば内側の DT の核融合燃料層と外側のプラスチック (CH) アブレーターからなる燃料ペレットにレーザーを照射する。いずれも初期にはプラズマでない状態からプラズマへと時間発展する。このレーザー照射初期のプラズマ生成やその後の時間発展はどのように扱うべきだろうか。

本章ではまず、どのようにプラズマが生成されるのか？という問題について、自由電子の生成を中心に記述する。ここでは多光子吸収やトンネル電離、逆制動放射が重要になる。続いて、プラズマの時間発展をどのように計算するかについて、現状のモデルを説明する。ここではターゲットにレーザーが照射され、吸収されたレーザーエネルギーがどのように物質中に広がり、物質の密度や温度の変化に結びつくのかを輻射流体力学モデルをベースに考える。そして初期にはプラズマではない状態からプラズマ状態まで

の幅広い領域の物性をどのように統一的に記述するかについて考える。

#### 3.2 自由電子の生成

プラズマ状態を固体、液体、気体に次ぐ第4の物質の状態として例える際、我々はプラズマを“電離している状態”として他の3つの状態と区別している[1]。レーザー生成プラズマという場合、レーザーをターゲット物質に照射し、電離度が低い物質状態から高い状態へと遷移させることこそがレーザーによるプラズマ生成過程といえる。金属のように金属内の原子間を比較的自由に動くことができる電子 (これを伝導帯電子、または完全にポテンシャルフリーではないが、原子間を自由に動けるといって自由電子と呼ぶことにする) が存在する場合はレーザーを照射する以前から、ターゲット物質にはある程度の電離度があり、物質内に自由電子が既に存在するものとして以後のレーザー吸収の素過程を考えればよい。しかし、伝導帯に電子が存在せず、禁制帯にのみ存在する誘電体の場合には“最初の1個目の自由電子”がどのようにできるかを考える必要がある。その場合の電離はレーザー強度にもよる

Theory and Computation team, Institute for Laser Technology, Suita, OSAKA 565-0871, Japan

author's e-mail: suna@ile.osaka-u.ac.jp

が、多光子吸収 (Multi-photon absorption) によって生じることが多い[2].  $\epsilon_I$  をイオン化に必要なエネルギーポテンシャルギャップ, 光子のエネルギーを  $h\nu$  とすると,  $m > \text{int}[\epsilon_I/h\nu + 1]$  の条件を満たす  $m$  個以上の光子が同時に遷移に寄与することにより, 禁制帯から伝導帯への電子の遷移が生じる.  $1\ \mu\text{m}$  の波長の光子はほぼ  $1\ \text{eV}$  のエネルギーを持つから, 物質のエネルギーギャップが  $10\ \text{eV}$  程度であるとすると,  $10$ 個以上の光子が同時に遷移に寄与する必要がある. ほとんどの場合で最初の自由電子を生成する物理過程は多光子吸収である[2]が, 現実のターゲット物質には不純物が含まれていることが多く, もっと小さいエネルギーギャップが生じ,  $1$  個の光子でも自由電子を生成する場合もある.

一方, レーザー強度がさらに高くなり, 電子が束縛されているポテンシャル障壁そのものが電場の影響を受けて歪むと, ポテンシャル障壁が実効的に低くなる. このとき電子はトンネル効果により, ポテンシャル障壁の外に出ることが可能になる. これをトンネル電離 (tunnelionization) または電界電離 (field ionization) という.

多光子吸収, トンネル電離のどちらも光電離吸収過程である. Keldysh は Keldysh parameter  $\gamma$  と呼ばれるフリーパラメータを導入して多光子電離とトンネル電離レートを統一的に扱う式を導いた[3]. Keldysh parameter  $\gamma$  は

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t} = \frac{\omega\sqrt{2m_e I}}{e\mathcal{E}} = \sqrt{\frac{I}{2U}} = \frac{1}{2K_0 F}, \quad (1)$$

で与えられ,  $\omega$  はレーザーの (角) 周波数,  $\omega_t$  は電子がポテンシャルをトンネルする周波数,  $\mathcal{E}$  は振動電場の振幅,  $K_0 = I/(h\omega)$  はイオン化ポテンシャル  $I$  のイオン化に必要な光子  $h\omega$  の数,  $F = F = \mathcal{E}/(\kappa^2 \mathcal{E}_a)$ ,  $\kappa = \sqrt{I/I_H}$ ,  $\mathcal{E}_a = m_e^2 e^5 / h^4 = 5.14 \times 10^9\ \text{V/cm}$ ,  $I_H = 13.6\ \text{eV}$  である[4]. また,  $U$  はポテンダモータティブポテンシャル (ponderomotive potential) であり,  $U = e^2 \mathcal{E}^2 / (4m_r \omega^2)$ ,  $m_r = m_e/2$  である. よって,  $\gamma = \{(\text{イオン化ポテンシャル}) / (\text{ポテンダモータティブポテンシャル})\}^{1/2}$  ともいえる.  $\gamma \ll 1$  であるほど, トンネルする電子からみると, 定常的なレーザーの電場がかかり, ポテンシャル障壁が下がることによってトンネル電離が生じやすくなる. 反対に  $\gamma > 1$  では多光子電離が生じやすい. また, トンネル電離では最外殻の電子から電離するが, 多光子吸収電離では主量子数  $n_p$  が小さい程断面積が大きく, 内殻からの電離が生じる. プラズマ生成の際, 電離以外の過程を含めた電子の数密度  $n_e$  の時間発展は次の式で与えられる[5].

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \nu_i n_e + W_m I^m n - \nu_a n_e - \nu_R n_e + \nabla(D \nabla n_e). \quad (2)$$

ここでは多光子吸収を考え, 電離  $m$  個の光子によって  $m h\nu > \epsilon_I$  となるから, 電離レートは  $W_m I^m$  とする.  $n$  を中性粒子またはイオンの数密度,  $\nu_i$  は衝突電離レート,  $\nu_a$  は電子付着レート,  $\nu_R$  は再結合レート, 最後は拡散項である. 多光子吸収またはトンネル電離によりひとたび自由電子が生成されると, レーザーの電場で振られた自由電子が

中性粒子またはイオン粒子と衝突することにより振動エネルギーを熱化してエネルギーを得る. この過程を逆制動放射 (Inverse-bremsstrahlung) という. エネルギーを得た電子は原子に衝突し, 電子衝突電離 (electron impact ionization) して, 電子数は増加する. そのとき, 励起やイオン化に使われる以上のレーザーエネルギー吸収が生じると, 電子衝突電離が連続的に生じ, 雪崩的に電離が進む. これを電子雪崩 (electron avalanche) という. これにより自由電子数が急速に増加し, 初期プラズマが生成される.

### 3.3 輻射流体力学モデル

レーザーアブレーションを記述する流体近似のモデルとして次に示す一流体二温度の輻射流体力学モデル, または単に二温度モデル (Two Temperature Model) [6, 7] が広く用いられている.

$$\frac{D\rho}{Dt} = -\rho \nabla \cdot \mathbf{v}, \quad (3)$$

$$\frac{D\mathbf{v}}{Dt} = \nabla(p_i + p_e), \quad (4)$$

$$\rho c_{vi} \frac{DT_i}{Dt} = -p_{\text{thi}} \nabla \cdot \mathbf{v} - Q_{ei}, \quad (5)$$

$$\rho c_{ve} \frac{DT_e}{Dt} = -p_{\text{the}} \nabla \cdot \mathbf{v} + Q_{ei} + \nabla \cdot (\kappa_e \nabla T_e) + S_e. \quad (6)$$

$\rho$  は質量密度,  $\mathbf{v}$  は速度,  $T_i$ ,  $T_e$  はそれぞれ格子振動 (phonon) またはイオン (ion) の温度, 電子 (electron) の温度である.  $p_i = p_i(\rho, T_i)$  は格子振動またはイオンの圧力,  $p_e = p_e(\rho, T_e)$  は電子圧力であり,  $p_{\text{thi}} = p_{\text{thi}}(\rho, T_i) = T_i \left( \frac{\partial p_i}{\partial T_i} \right)_\rho$ ,  $p_{\text{the}} = p_{\text{the}}(\rho, T_e) = T_e \left( \frac{\partial p_e}{\partial T_e} \right)_\rho$  と定義される. これらはそれぞれ密度, 温度の関数として, 状態方程式モデルに基づいて与えられる.  $Q_{ei}$  は電子と格子振動またはイオンと電子とのエネルギーの衝突緩和 (relaxation),  $S_e$  はレーザー加熱, 輻射加熱など, 単位体積あたり単位時間あたりの外部から電子へのエネルギー入力を表す.  $\kappa_e$  は電子の熱伝導度 (thermal conductivity) である.  $c_{vi} = c_{vi}(\rho, T_i)$ ,  $c_{ve}(\rho, T_e)$  はそれぞれ, イオンと電子の比熱 (specific heat) である. これも圧力と同じく, 密度・温度の関数としてモデルで与えられる.

この一流体二温度モデルは, 電子とイオンを一体となって動く流体とみなし, イオンまたは格子振動と, 電子のそれぞれのエネルギー式を考えるため, 電子間, イオン間 (または格子振動間) のエネルギー緩和時間より長い時間スケールを扱うのに有効である. 電子とイオンで電荷分離が生じるような場合や, フェムト秒レーザー照射時に, 電子がマクスウェル分布になる緩和時間よりもレーザー照射のパルス幅が短かい場合など, 明らかに適用範囲外の問題を除き, 多くの問題に適用されている. しかし現実には, 式の中で使われる圧力や比熱, 熱伝導係数やレーザー吸収率等の物性値が正しく与えられるか? という大きな問題が

ある。物性値データが計測され、データベース化されていることもあるが、往々にしてデータが限られていたりする。これらを順に考察する。

### 3.3.1 状態方程式

レーザーアブレーションのシミュレーションの状態方程式は Quotidian Equation of State:QEOS[8] が広く使われている。また、いくつかの物質については Los Alamos 研究所の SESAME テーブル[9] が利用できる。比熱や熱伝導係数などの物性値については産業技術総合研究所の分散型データベースも利用できる[10]。いずれにしても、固体からプラズマまでの全てを精度よくカバーする状態方程式のモデルは未だ探求されつづけており、詳細は本講座第2章を参照していただきたい。

### 3.3.2 電離度

次に電離度について考える。レーザープラズマ中の電離度は Collisional Radiative Steady State (CRSS) に基づいて計算されることが多い[11]。これはプラズマ中の衝突過程、輻射過程を考慮したレート方程式を定常を仮定して解くもので、高密度極限では局所熱平衡 (Local thermal equilibrium: LTE) になり、低密度極限ではコロナ平衡 (Corona Equilibrium: CE) になる[12]。図1にシンプルな CRSS で計算したアルミの電離度を示す。高密度低温度側では LTE であるが、高温もしくは低密度になると相対的に輻射過程が衝突過程に比べて無視できなくなり、衝突輻射平衡 (Collisional Radiative Equilibrium: CRE) になる。さらに低密度になると衝突で励起され、放射脱励起するコロナ平衡になる。コロナ平衡になると電離度は密度に依存しなくなる。図から、密度・温度領域は LTE, CRE, CE の3つの領域に分かれることがみて取れる。固体のターゲットにレーザーを照射すると最初は LTE の状態にあるが、加熱され、膨張したプラズマは CRE 領域に向かう。ほとんどのアブレーションでは固体 (典型的なイオン密度  $10^{22} \text{ cm}^{-3}$ ) から膨張気体もしくはプラズマ (典型的なイオン密度  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) に一気に膨張するが、温度が低いままであれば LTE ですべてをカバーできる。

LTE であればいくつかの方法で比較的簡単に電離度を計算できる。例えば、 $T = T_e$  として Saha-Eggert 方程式

$$\frac{n_e n_{r+1}}{n_r} = \frac{2U_{r+1}(T)}{U_r(T)} \left( \frac{m_e k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left( -\frac{I_r - \Delta I_r}{k_B T} \right), \quad (7)$$

で与えられる[13]。 $U_r$ ,  $U_{r+1}$  はそれぞれ  $r$  価,  $r+1$  価のイオンの分配関数 (partition function) である。 $n_r$  は  $r$  価に電離した原子の数密度で、 $r=0$  は中性原子、 $r=1$  は1価電離した原子を意味する。 $n_e$  は電子の数密度を表す。 $I_r$  は  $r$  価から  $r+1$  価へ電離する際のイオン化エネルギー、 $\Delta I_r$  はイオン化ポテンシャルの低下 (potential lowering) である。 $\hbar$  はプランク定数、 $m_e$  は電子の質量である。実際に電離度を求めるには分配関数  $U_r$ ,  $U_{r+1}$  が必要である。

また、LTE で固体ターゲット等のような高密度の場合には Thomas-Fermi モデルに基づいた電離度評価も可能であり、電離度のフィッティング公式等が利用可能である

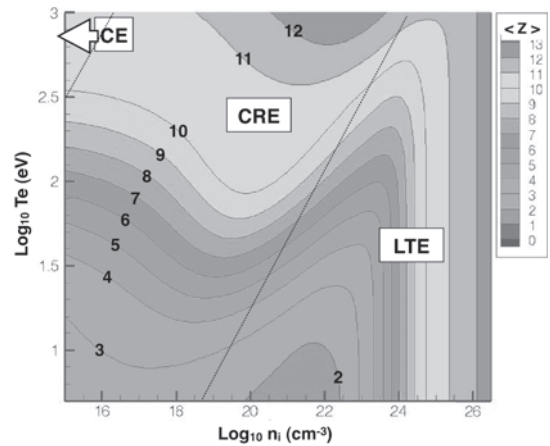


図1 CRSS による Al の平均電離度  $\langle Z \rangle$  の計算例。LTE, CRE, CE に分かれる。破線は領域の区分がわかりやすいように付けたものである。

[11]。そこで、現実的なレーザーアブレーションのシミュレーションでは初期プラズマは Saha-Eggert や Thomas-Fermi モデルで電離度を計算し、低密度、高温部分は CRSS で計算したものに切り替えるということになる。CRSS が原理的にはすべての密度・温度領域をカバーするはずであるが、すべての準位間のレート係数を正確に考慮することは容易でない。

### 3.3.3 電子の衝突周波数

次に、熱伝導やレーザー吸収など、多くのモデルで登場する電子の衝突周波数  $\nu$  について考えてみる。実際の計算では電子と相互作用する相手が格子振動なのか、それともイオンなのかで計算に使用する物性が大きく異なるが、それらをつないで、固体からプラズマまでを統一的に扱う。

物質状態が固体であれば電子と格子振動との衝突が生じ、電子-格子振動の衝突周波数は

$$\nu_p = K \frac{e^2}{\hbar v_F} \frac{k_B T_i}{\hbar}, \quad (8)$$

となる。 $v_F$  は縮退した電子気体のフェルミ面における速度で  $v_F = (3\pi^2 n_e)^{1/3} \hbar / m_e$  である。 $n_e$  は電子の数密度、 $K$  は実験を再現するように調整されるパラメータである。Ramis [14] によれば Al で  $K = 18.8$  である。また物質がプラズマであれば電子とイオンとの衝突が支配的となり、電子とイオンの衝突周波数は

$$\nu_e = \frac{4\sqrt{2\pi} Z n_e e^4 \ln \Lambda}{3\sqrt{m_e} (k_B T_e)^{3/2}}, \quad (9)$$

で与えられる。現実の計算では固体から、固体とプラズマの中間に位置するいわゆる Warm Dense Matter 領域を経てプラズマに至るすべてを計算する必要がある場合が多い。固体からプラズマ領域までをカバーする電子の衝突周波数  $\nu$  を統一的に記述することは容易でなく、現実的な方法としては、 $\nu_p$  と  $\nu_e$  の調和平均を採るとするのが一つの方法である[15]。この場合、電子と格子振動との衝突周波数  $\nu$  は



$$\nu^{-1} = \nu_p^{-1} + \nu_e^{-1}, \quad (10)$$

とする。また、実際の計算では電子-電子衝突も考慮する必要があるのである[16]。

### 3.3.4 電子熱伝導

次に電子熱伝導について考える。熱伝導率  $\kappa_e$  は一般に

$$\kappa_e(T_e) = \frac{1}{3} C_e(T_e) v(T_e) \ell(T_e) n_e, \quad (11)$$

で与えられ[17]、 $C_e$  は単位体積あたりの電子の定積熱容量で  $C_e = \rho c_{ve}$  である[17]。  $\ell$  は粒子の平均自由行程  $\ell = v_{th}/\nu_e$  である。  $v_T$  は熱速度である。  $v = v_T$  として、式(12)変形すると

$$\kappa_e(T_e) = \frac{C_e v_T^2}{3\nu_e}, \quad (12)$$

となる。熱速度  $v_T^2 = k_B T_e$  より、電子-イオン衝突周波数が支配的なプラズマ極限では  $\kappa_e(T_e) \propto T_e^{5/2}$  となる。電荷中性条件等が考慮されるため、まったく同じ式にはならないが、Spitzerの電子熱伝導係数と同じ形、 $\kappa_{\text{Spitzer}} = \kappa_0 n_e k_B^2 T_e / (m_e \nu_{\text{Spitzer}})$  になる[15]。また、金属の固体などでは縮退していることを考慮し、電子熱伝導係数は

$$\begin{aligned} \kappa_e(T_e, T_i) &= \frac{C_e}{3\nu_e} \left( v_F^2 + \frac{3k_B T_e}{m_e} \right) \\ &= \frac{\pi^2 n_e k_B^2 T_e}{6\nu_e \varepsilon_F} \left( v_F^2 + \frac{3k_B T_e}{m_e} \right), \end{aligned} \quad (13)$$

と見積もられる[7]。ここで、電子比熱  $C_e = (\pi^2/2) n_e k_B^2 T_e / \varepsilon_F$ 、 $\varepsilon_F$  はフェルミエネルギー、 $\varepsilon_F = \frac{1}{2} m_e v_F^2$  である。

### 3.3.5 電子とイオンの温度緩和

電子とイオンとの温度緩和は係数  $\gamma$  を用いて  $Q_{ei} = \gamma(T_i - T_e)$  と表される。ここで  $\gamma$  は

$$\gamma = \frac{3m_e k_B \nu_e}{m_i^2}, \quad (14)$$

で与えられ[15]、 $m_i$  はイオンの質量である。  $\nu_e$  に  $\nu_{\text{Spitzer}}$  を代入すれば、プラズマにおける電子-イオンの緩和係数になる[18]。

### 3.3.6 輻射輸送

次に輻射輸送について概要を記す。より丁寧な解説は文献[19]を参照されたい。輻射輸送は一般的には空間3次元、運動量空間3次元の6次元の位相空間でボルツマン方程式を解くことになるが、計算負荷が大きすぎて現実的でない。そのため、何らかの近似を用いて輻射輸送を現実的な精度で解くという方法が採られる。

輻射輸送の0次と1次のモーメント式は次のように表される。

$$\frac{\partial E_\nu}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{F}_\nu = 4\pi\eta_\nu - c\chi_\nu E_\nu, \quad (15)$$

$$\frac{\partial \mathbf{F}_\nu}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{P}_\nu = -c(\chi_\nu + \sigma_s) E_\nu, \quad (16)$$

ここで  $E_\nu$  は輻射エネルギー  $h\nu$  の輻射エネルギー密度であり、 $\mathbf{F}_\nu$  は輻射エネルギー流束、 $\mathbf{P}_\nu$  は輻射テンソルである。  $4\pi\eta_\nu$  は放射率、 $\chi_\nu$  は吸収係数、 $\sigma_s$  は散乱係数である。このままだと式が閉じないため、テンソル  $\mathbf{P}_\nu$  をEddingtonテンソル  $\mathbf{f}_\nu$  を用いて  $\mathbf{P}_\nu = \mathbf{f}_\nu E_\nu$  と表すようにする。輻射場が等方的であれば  $\mathbf{f}_\nu = (1/3)\mathbf{I}$  となる。 $\mathbf{I}$  は単位テンソルである。等方的な輻射場  $\mathbf{f} = (1/3)\mathbf{I}$  を仮定し、さらに  $\frac{\partial \mathbf{F}_\nu}{\partial t} = 0$  とすると最も簡単な拡散近似における輻射輸送の式を導出することができる。

$$\frac{\partial E_\nu}{\partial t} + \nabla \cdot (D_\nu E_\nu) = 4\pi\eta_\nu - c\chi_\nu E_\nu. \quad (17)$$

ここで、 $D_\nu = \frac{c}{3\chi_\nu}$  である。しかしながら、輻射場が等方的と仮定したために、非等方的な極限ではエネルギー流束を正確に評価することができない。そのため、電子熱伝導の時と同様に、非物理的な解を避けるための熱束制限を行う。輻射の場合には  $F_\nu = cE_\nu$  が自由エネルギー流束となるから、完全等方的な輻射場を仮定したエネルギー流束  $q$  と調和平均をとることにより、

$$D_\nu = \frac{c}{3\chi_\nu + \frac{|\nabla E_\nu|}{E_\nu}}, \quad (18)$$

とする。これにより、輻射場が等方的極限 ( $|\nabla E|/E \ll 1$ ) と非等方極限の両極限で物理的に正しい解を得ることができる。このモデルは熱束制限拡散近似 (Flux-limited diffusion approximation) とよばれ、簡便であるが、ほどほどの精度で計算できるとして広く使われている。

また、輻射輸送方程式の右辺に用いる放射率 (emissivity)、吸収率 (absorption coefficient) は輻射輸送を解く際に非常に重要であるが、ここでは割愛する。文献[12]に詳しい記述がある。

### 3.3.7 レーザー吸収

レーザーを金属に照射すると、レーザーは臨界密度 (critical density) までしか伝播しない。  $z$  方向に伝播する直線偏光のレーザー電場を  $E(z)$  は

$$\frac{\partial^2 E(z)}{\partial z^2} + \frac{\varepsilon(\omega, z)\omega^2 E(z)}{c^2} = 0, \quad (19)$$

のヘルムホルツ方程式に従う。ここで  $\omega$  はレーザーの (角) 周波数、 $\varepsilon(\omega, z)$  は誘電関数である。  $z > 0$  を金属とすると、電場  $E(z)$  は金属表面  $Z = 0$  で  $E(z = 0)$  として、

$$E(z) = E(0) \exp\left(-\frac{z}{\delta}\right), \quad (20)$$

で減衰する。ここで、金属における電場の侵入深さ、即ちスキン長  $\delta$  は  $\delta = i \frac{1}{\varepsilon^{1/2}} \frac{c}{\omega}$  となる。プラズマの誘電関数は

$$\begin{aligned} \varepsilon &= 1 + \frac{4\pi\sigma}{\omega} = 1 - \frac{\omega_{pe}}{\omega(\omega + i\nu)} \\ &= \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 \end{aligned} \quad (21)$$

$$= \left(1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega_{pe}^2 + \nu^2}\right) + i \left(\frac{\nu \omega_{pe}^2}{\omega^3 + \nu^2 \omega}\right), \quad \times \left(\frac{2\pi}{3m_e k_B T_e}\right)^{1/2} n_e \sum_i z_i^2 n_i g_i,$$

である。ここで  $\omega$  はレーザーの周波数、 $\omega_{pe}$  はプラズマ周波数、 $\nu$  は電子の衝突周波数である。これからスキン長  $\delta$  は  $\nu/\omega \ll 1$  かつ  $\omega/\omega_{pe} \ll 1$  のときに

$$\delta = \frac{c}{\omega_{pe}}, \quad (22)$$

となる。複素屈折率  $\tilde{n} = \sqrt{\tilde{\epsilon}} = n + ik$  を考えると

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon_1 + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}}{2}}, \quad (23)$$

$$k = \sqrt{\frac{-\epsilon_1 + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}}{2}}, \quad (24)$$

となり、これからターゲット表面における反射率  $R$  が求まる。

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}. \quad (25)$$

ここからレーザーの吸収率  $\alpha$  は  $\alpha = 1 - R$  によって

$$\alpha = 1 - R = 1 - \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2} = \frac{2k^2}{(n-1)^2 + k^2}, \quad (26)$$

と見積もることができる[20]。また、ターゲットの加熱  $Q_L(z, t)$  は

$$Q_L(z, t) = \frac{1}{2} Re\{\sigma(z, t)\} |E|^2, \quad (27)$$

でありターゲット表面におけるレーザー強度を  $I(z=0, t)$  とすると

$$Q_L(z, t) = baI(z=0, t) \exp(-bz), \quad (28)$$

となる[21]。ここで  $b = 4\pi k/\lambda$  で、 $\lambda$  はレーザーの波長である。

加熱されたターゲット表面が噴き出して比較的低密度気体/プラズマが生成されるとレーザーの臨界密度以下の状態が現れる。そこでは逆制動放射によってレーザーが吸収される。逆制動放射は自由電子が中性原子やイオンなどにより散乱される際に光を出す制動放射の逆過程である。電子-中性原子との衝突における吸収係数  $\kappa_{IB}^{en}$  は

$$\kappa_{IB}^{en} = \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T_e}\right)\right] \sum_j Q_j n_e n_j, \quad (29)$$

与えられ[22, 23]、 $j$  は中性粒子の種別、 $Q_j$  は電子が  $j$  原子と衝突する間に光を吸収する断面積であり、 $10^{-36} \text{ cm}^5$  のオーダーである。 $n_j$  は中性原子の数密度である。電子とイオンの衝突による逆制動放射吸収係数  $\kappa_{IB}^{ei}$  は

$$\kappa_{IB}^{ei} = \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T_e}\right)\right] \frac{4e^6 \lambda^3}{3hc^4 m_e} \quad (30)$$

で、 $z_i$  と  $n_i$  はイオンの価数と密度、 $\lambda$  はレーザーの波長、 $g_i$  はガウントファクターである。

### 3.4 逆制動放射の電子密度スケール長依存性

レーザー光の吸収の問題はレーザープラズマ応用において重要である。例えば EUV 光源ではレーザーのエネルギーをプラズマに吸収させ、EUV 発光として取り出すのが、レーザーから EUV 光への高い変換効率が求められるため、レーザー吸収率が十分高いことが不可欠である。アブレーションプラズマの密度分布を  $n(x) = n_{crit} \exp(-x/L)$  と仮定する。ここで  $n_{crit}$  は臨界密度であり、レーザー波長によって決まる。 $L$  は電子密度のスケール長である。真空側よりレーザーが入射し、伝播するに従い、プラズマの密度上昇とともに、レーザー吸収量は増加する。レーザー光は臨界密度まで到達すると反射され、真空側へと跳ね返り、再びエネルギーをプラズマに付与しながら真空側へと戻っていく。逆制動放射を仮定して全体の吸収率  $\alpha_{abs}$  を

$$\alpha_{abs} = \frac{I_{in} - I_{out}}{I_{in}} = 1 - \exp\left(-\int_0^L \kappa_{IB} dz\right) \quad (31)$$

として定義する。ここで  $I_{in}$ ,  $I_{out}$  はそれぞれ、プラズマに入射するレーザー強度、吸収されずプラズマから反射されて出て行く際のレーザー強度である。 $n_e = 0$  から  $n_{crit}$  まで積分すると

$$\alpha_{abs} = 1 - \exp\left\{-\frac{8}{3} \frac{\nu_{ei}(n_{crit})L}{c}\right\} \quad (32)$$

となる[25]。ここではレーザーはターゲット面に対して垂直に入射するものとした。斜め入射の場合は垂直軸から  $\theta$  だけ斜めに入射したとするとレーザー光は臨界密度  $n_{crit}$  まで到達できなくなり、 $n_e = n_{crit} \cos^2(\theta)$  までしか入射しなくなる。局所的な逆制動放射の吸収率は密度の2乗に比例するから臨界密度が低下すると吸収率も減少する。そのため、平板ターゲットにレーザーを入射するのと球ターゲットを照射するのではレーザーの吸収率は大きく異なる。

またレーザー吸収率はレーザー波長に大きく依存する。図2に Nd:YAG レーザー (波長 1.06  $\mu\text{m}$ ) と、CO<sub>2</sub> レーザー (波長 10.6  $\mu\text{m}$ ) をの吸収率をスケール長  $L$  と電子温度の関数としてプロットする。

図2より、Nd:YAG に比べ、CO<sub>2</sub> レーザーは極端にレーザーの吸収率が低いことが見て取れる。これは Nd:YAG に比べて臨界密度  $n_{crit}$  が2桁小さいためである。そのため、CO<sub>2</sub> レーザーで十分なレーザー吸収を得ようとする、スケール長  $L$  を増加させるしかない。一次元の等温膨張を仮定すると、スケール長  $L$  は音速と膨張時間の積で決まるため、レーザーのパルス幅を増加させると増加する。即ち、ロングパルスの方がレーザー吸収率は増大しやすいと考えられる。しかしながら、実際には一次元膨張と見なせる

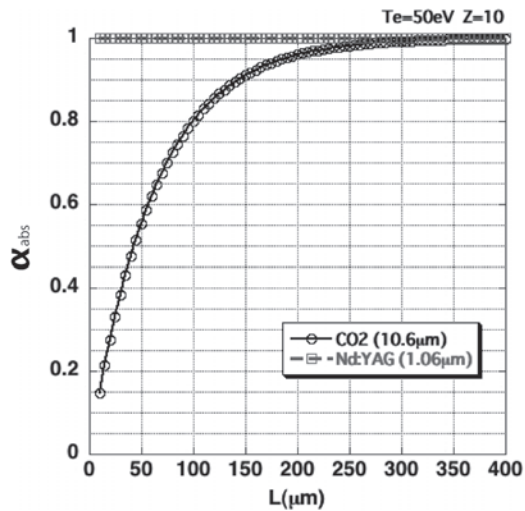


図2 Nd:YAGレーザーとCO<sub>2</sub>レーザーのレーザー吸収率のスケール長依存性. 温度は  $T_e = 50$  eV に設定した.

(プラズマの膨張サイズ)  $\ll$  (レーザーのスポットサイズ) が成立するのは比較的短いレーザーパルスに限られ, ロングパルスでは1次元円柱的な膨張ではなく, 3次元球のようにプラズマは広がる. そのためレーザーパルスを増加させてもスケール長  $L$  が増加しにくくなる. 次世代の半導体リソグラフィ用の光源として開発が進んでいる EUV 光源ではメインのレーザーとしてCO<sub>2</sub>レーザーを用いるため, 吸収率を増加させるために, 別のレーザーで長いスケール長  $L$  のプラズマを生成してからCO<sub>2</sub>レーザーを照射するダブルパルス照射が考案されている [26].

### 3.5 電子熱伝導と輻射輸送の組み合わせ

高い原子番号を持つ物質では一般的により多くの光が放射されるために電子熱伝導よりも輻射によるエネルギー輸送が支配的になる. 輻射の平均自由行程は電子よりも長くなる事が多い. そのため, 低い原子番号の物質, 例えばプラスチック等に高い原子番号の物質を微量添加し, より高密度領域に吸収されたエネルギーを運ばせるようにすることもできる. 図3にプラスチックターゲットの例を示す. 右からレーザーをターゲットに照射するとアブレーションプラズマが真空側に膨張する. これは電子熱伝導によりアブレーションが駆動される例である.

次にプラスチックに微量 (原子数比3%) の臭素(Br)を添加したターゲットにレーザーを照射すると図4のようにアブレーションが2段階で生じる. まず, レーザーエネルギーが臨界密度付近で吸収され, 吸収されたエネルギーが電子熱伝導により運ばれる. 加熱されたプラズマ中の臭素が多く放射を出し, 輻射によってエネルギーがより高密度方向に運ばれる. これにより左側のアブレーションフロントが高密度側に形成される. このアブレーションは輻射によって駆動されている.

この2段階アブレーション構造全体をダブルアブレーション構造と呼ぶ. 2段階の密度構造をもつダブルアブレーション構造はこの例のように高  $Z$  物質を添加する場合だけでなく, 中~高  $Z$  のターゲットにナノ秒のレーザー

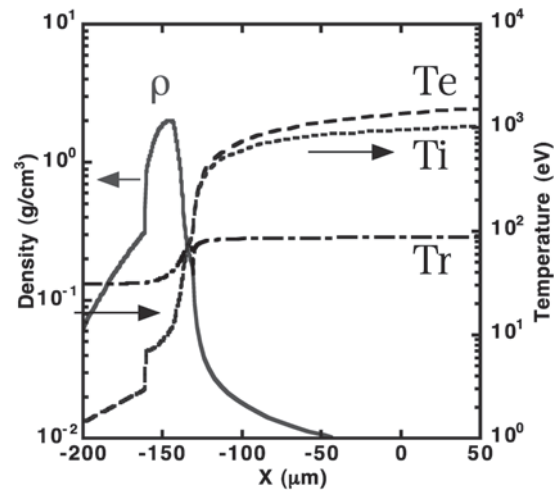


図3 プラスチック (CH) ターゲットに右から波長  $0.53 \mu\text{m}$  のレーザーを照射した際の密度  $\rho$ , イオン温度  $T_i$ , 電子温度  $T_e$ , 輻射の輝度温度  $T_r$  分布 [27].

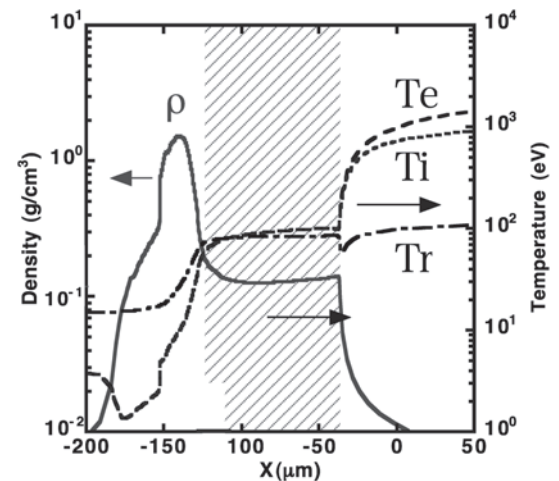


図4 臭素を原子数比3%添加した臭素化プラスチックターゲットに右から波長  $0.53 \mu\text{m}$  のレーザーを照射した際の密度  $\rho$ , イオン温度  $T_i$ , 電子温度  $T_e$ , 輻射の輝度温度  $T_r$  分布 [27].

を照射すると形成される. 図4の斜線部分 (2つのアブレーション間の距離) は時間的に発展する. レーザー核融合ではこのダブルアブレーション構造を流体不安定性の抑制に用いる研究が進んでいる [27]. また, レーザー加速など薄膜をターゲットを用いる実験でも, 超高強度レーザーのプリパルスによってダブルアブレーション構造が出現することが計算で確認されている [28].

### 3.6 まとめ

レーザープラズマの初期プラズマ生成からその後の時間発展に至るまでの計算に必要な物理モデルを簡潔に述べた. 輻射輸送における輻射の放射率, 吸収率や状態方程式で原子過程がきわめて重要になるが, 本章ではほとんど割愛した. また工学的応用で重要になるレーザー吸収率の問題と, 輻射を用いたアブレーション構造の制御について記述した. レーザープラズマ相互作用における初期プラズマ生成のモデルは改良が続けられており, 今後さらに精度が上がりていくと思われる.

## 参考文献

- [1] S. Eliezer and Y. Eliezer, *The Fourth State of Matter* (IOP Pub., 2001).
- [2] 三上勝太, “光学材料レーザー損傷の温度依存性に関する研究” 博士学位論文 (大阪大学大学院工学研究科., 2013).
- [3] L.V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* **20**, 1307 (1965).
- [4] V.S. Popov, *Physics-Uspekhi* **47**, 855 (2004).
- [5] L.J. Radziemski and D.A. Cremers, *Laser-induced plasmas and applications* (Marcel Dekker Inc., 1989).
- [6] S.I. Anisimov *et al.*, *Soviet Physics JETP* **39**, 375 (1974).
- [7] S. Eliezer, *The interaction of high-power lasers with plasmas* (Institute of Plasma Physics Pub., 2002).
- [8] R.M. More *et al.*, *Phys. Fluids* **31**, 3059 (1988).
- [9] S.P. Lyon and J.D. Johnson, Los Alamos National Laboratory Tech. Rep. No. LA-UR-92-3407 (1992).
- [10] <http://riodb.ibase.aist.go.jp/TPDB/DBGVsupport/>
- [11] D. Saltzmann, *Atomic Physics in Hot Plasmas* (Oxford University Press, 1998).
- [12] 浜口智志他: プラズマ・核融合学会編『プラズマ原子分子過程ハンドブック』第9章, 第10章, 第14章 (大阪大学出版会, 2011)
- [13] H.W. Drawin and P. Felenbok, *Data for plasmas in local thermodynamic equilibrium* (Gauthier-Villars., 1965).
- [14] R. Ramis *et al.*, *Computer Physics Communications* **183**, 637 (2012).
- [15] K. Eidmann *et al.*, *Phys. Rev. E* **62**, 1202 (2000).
- [16] P.S. Shternin and D.G. Yakovlev, *Phys. Rev. D* **74**, 043004-1-8 (2006).
- [17] C. Kittel: キッテル固体物理学入門 第8版 (丸善, 2005).
- [18] L. Spitzer Jr., 完全電離気体の物理 *Physics of Fully Ionized Gases* (コロナ社, 1963).
- [19] 大西直文: プラズマ・核融合学会誌 **88**, 467 (2012).
- [20] 新井武二: レーザー加工の基礎工学 (丸善, 2006).
- [21] R. Fang *et al.*, *Materials Transactions* **51**, 1156 (2010).
- [22] X.L. Mao *et al.*, *J. Appl. Phys.* **74**, 4915 (1993).
- [23] A. Bogaerts and Z. Chen, *Spectrochimica Acta Part B* **60**, 1280 (2005).
- [24] B. Wu and Y.C. Shin, *J. Appl. Phys.* **99**, 084310-1-8 (2006).
- [25] W.L. Kruer, *The Physics of Laser Plasma Interactions* (Frontier in Physics., Westview press, 2003).
- [26] K. Nishihara *et al.*, *Phys. Plasmas* **15**, 056708-1-11 (2008).
- [27] S. Fujioka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 195001-1-4 (2004).
- [28] A. Sunahara and K.A. Tanaka, *Fusion Eng. Des.* **85**, 935 (2010).



すな はら あつし  
砂原 淳

公益財団法人レーザー技術総合研究所理論・シミュレーションチーム研究員。大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了。博士 (工学)。専門はレーザー核融合や極

端紫外光源プラズマなど, レーザー生成プラズマの理論・数値シミュレーション。



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

## 4. 固体物性からみたレーザーアブレーション

### 4. Laser Ablation: From the Viewpoint of Solid State Physics

富田卓朗

TOMITA Takuro

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部

(原稿受付：2013年5月21日)

三次元微細加工や非熱加工など、他の加工法にはない独特の加工技術としてフェムト秒レーザーアブレーションが注目を集めているが、その基礎的な物理過程はほとんどわかっていないのが現状である。また、フェムト秒レーザー照射は非常に短い時間（ $\sim 100$  fs）で非常に高いエネルギー（ $\sim 10^9$  J/cm<sup>3</sup>）を微小な領域（ $\sim 1$   $\mu$ m<sup>3</sup>）に注入できる唯一の手法であることから、局所的に高温・高密度状態を生成する手段として利用できる可能性もある。そこで、本章では、フェムト秒レーザー照射によって自発的に固体表面に形成されるレーザー誘起ナノ周期構造や、フェムト秒レーザー照射による物性改質、また、フェムト秒レーザー照射によって誘起される衝撃波と、それに伴う残留応力について、最近の研究を紹介するとともに、これらの結果からレーザー生成プラズマの新領域開拓についての展望を述べる。

#### Keywords:

femtosecond laser ablation, Coulomb explosion, laser-induced nanostructure, Raman spectroscopy, transmission electron microscopy, high density plasma, shock wave, warm dense matter

#### 4.1 レーザーアブレーションの歴史的背景

レーザーアブレーションとは、レーザー照射により固体材料表面が切断、除去、変形、改質される現象のことであり、1960年のMaiman[1]によるルビーレーザー発明後、まもなくの1962年にBreechとCross[2]によってメリーランド大学における分光学の国際会議で初めて発表された。その後、穴あけ、切断から、表面における自発的構造形成などの形態変化に留まらず、レーザー照射による物性改質などに至るまで様々な現象が報告されるようになった[3-5]。アブレーションに用いるレーザーとしては1990年頃までは連続波やナノ秒のパルスレーザーを用いた研究がほとんどであり、その加工・改質過程は二温度モデルなどの熱的なプロセスで説明されてきた。

一方、1990年代に入ると自己モード同期とチャープパルス再生増幅法による高強度フェムト秒レーザーが市販されるようになり、フェムト秒レーザーを用いた加工・改質が注目を集めるようになった。フェムト秒レーザーは数fs～数100fs（フェムト秒）の時間幅で強力な光パルスを発生することのできるレーザー光源であり、再生増幅システムを使用することでテーブルトップクラスのレーザーでもmJ（ミリジュール）クラスの高強度なフェムト秒パルスを容易に発生することができる。この強い光電場を用いることで物質の化学結合を非熱的に切断することが可能になり、フェムト秒レーザー加工という新しい応用分野が開拓されつつある[6,7]。

また、フェムト秒レーザー照射では、光によって励起された電子エネルギーが格子に緩和するよりも早く、照射が完了するため、強い照射によって、高温・高圧力状態をつくり出すことが可能である。このフェムト秒レーザー照射によってつくり出される過渡的な状態は固体密度（ガラスを例にとると2～3 g/cm<sup>3</sup>）程度で数千Kの高温に達することもある。この状態はプラズマ物理学におけるwarm dense matter (WDM) 状態に迫るものであり、巨大惑星内部の状態に匹敵する[8,9]。つまり、フェムト秒レーザー照射は惑星内部における物質状態を模擬する手段として用いることができる可能性があり興味深い。

そこで、本章では、フェムト秒レーザー用いた加工・改質法について述べるとともに、その基礎過程およびレーザープラズマとの関連およびその将来展望について述べる。

#### 4.2 フェムト秒レーザーアブレーションによる非熱的加工

フェムト秒レーザー加工がナノ秒や連続波のレーザー加工と大きく異なる点の一つは、パルス幅が非常に短い（ $\sim 100$  fs）ため、レーザー照射中の熱拡散が非常に小さいということである。レーザーアブレーションに伴う詳細な熱拡散の解析は他の文献[10]に詳しく書かれているので詳細は割愛し、ここでは、パルス時間幅の間に起こる熱拡散長をフェムト秒とナノ秒のレーザーを例にとって比較する。

一般に、拡散長  $l_{\text{diff}}$  は、 $\kappa$  を拡散係数、 $\tau$  をレーザーのパルス幅とすると、

$$l_{\text{diff}} = \sqrt{2\kappa\tau}$$

で与えられる。たとえば、室温における鉄の拡散係数  $\kappa$  は、 $2.3 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$  程度であるので、拡散長  $l_{\text{diff}}$  は 100 fs のパルス幅では 2.1 nm、10 ns のパルス幅では 0.68  $\mu\text{m}$  となる。したがって、熱によって変質される領域はフェムト秒レーザーの方が約 2 桁も小さいことになる。他の物質においても拡散係数によって拡散長は異なるが、フェムト秒レーザーの方で拡散長が約 2 桁小さいことは基本的には変わらない。また、フェムト秒レーザーによる拡散長 (2.1 nm) はフェムト秒レーザーを用いた最小加工サイズ (~200 nm) に比べて十分に小さいので、実質的にはフェムト秒レーザー加工における熱的影響は無視できる [10]。ただし注意しておきたいのは、フェムト秒レーザー加工でも熱的影響が無視できない場合もあるということである。ここで述べた状況はフェムト秒レーザー照射によって材料除去が速やかに行われることを仮定しており、照射強度や照射フルエンスの空間分布を適切に選択しないと熱影響は小さくできない。一般に、熱影響は照射強度が強すぎても弱すぎても大きくなるため、その中間の適切な領域を選択することが熱影響の少ない加工を実現するためには必須である。

一方で、フェムト秒レーザーを用いた加工においては熱拡散の抑制のみならず、加工プロセスそのものにもナノ秒や連続波のレーザーによるプロセスとは大きな違いがある。図 1 に示すように、ナノ秒や連続波のレーザーにおいてはレーザー被照射部が加熱され、蒸発することにより材料の除去が起こる。それに対し、フェムト秒レーザーにおいては、クーロン爆発と呼ばれる光励起によって生じる原子間結合の直接的な切断によって材料の除去が起こる。具体的には、フェムト秒レーザー光のような強い光電場が固体表面に入射すると、原子間の結合に関与する電子が直接剥ぎ取られる。残されたイオンはクーロン力によって反発し、固体表面から飛散する。通常、ナノ秒や連続波の加工では電子励起のあと、電子格子相互作用を通じて、熱エネルギーが格子に伝達されることで加工周辺部への熱影響を生じるが、クーロン爆発によるアブレーションは、ピコ秒

以下の時間領域で起こるので、格子へのエネルギー緩和が起こるよりも早く被照射部の除去が起こり、周囲への熱影響がほとんど生じない。このように、クーロン爆発は、フェムト秒レーザーに特有の高光電場下のみで起こるアブレーションプロセスの一つである [11]。これらのことから、フェムト秒レーザー加工が非熱的加工と呼ばれているゆえんである。フェムト秒レーザーによる非熱的加工の一例として、参考文献 [12] に挙げるホームページの画像が興味深い。この画像によると、フェムト秒レーザー照射によってマッチ棒の先端部 (火薬部) が発火することなく切断できている。それに対し、フェムト秒レーザー照射以外のレーザー照射では、マッチ棒の先端部は発火してしまう。これは、フェムト秒レーザーが通常の加工法と比べて、加工部周辺にほとんど熱影響を与えない加工法であることの好例である。

### 4.3 レーザー誘起ナノ周期構造

レーザー誘起ナノ周期構造は通称“リップル構造”と呼ばれ 1965 年に Birnbaum がルビーレーザーの光をゲルマニウム表面に照射することで発見した [13]。リップル構造は一般に光の電場方向に垂直に形成され、周期は照射レーザーの波長にほぼ等しいことが知られていた。リップル構造の生成メカニズムについては理論、実験の両面から活発に研究がなされ、1980 年代前半頃には Sipe らによって入射光と固体表面からの散乱光、および表面電磁波との干渉によって発生するとする説が提唱され、幅広く受け入れられている [14-17]。このモデルによると、形成されるナノ周期構造の周期は、

$$\Lambda = \frac{\lambda}{1 \pm \sin \theta}$$

となる。ここで、 $\Lambda$  は生成されるナノ構造の周期、 $\lambda$  は入射レーザー光の波長、 $\theta$  はレーザーの入射角である。分母の  $\pm$  は、半導体ではプラスをとり、金属ではマイナスをとることが知られている。具体的には、半導体ではリップル構造形成中にサンプル表面で前方散乱が起こることで、光入射方向と同方向に表面電磁波が伝搬する。一方で、金属ではリップル構造形成中にサンプル表面で後方散乱が起こることで、光入射方向と逆方向に表面電磁波が伝搬する [5, 18]。

しかし、近年のフェムト秒レーザーの照射実験により、このモデルでは説明できない照射波長の数分の一 (1/2 以下) の周期をもつリップル構造が数多く報告されてきている [19-21]。レーザー加工分野では、レーザーの波長程度の周期をもつリップル構造のことを“粗いリップル構造 (coarse ripple)”，フェムト秒レーザー照射特有の波長の数分の一の周期をもつフェムト秒レーザー照射特有のナノ周期構造のことを“細かいリップル構造 (fine ripple)”と呼んでいる。図 2 に我々がフェムト秒レーザー照射によって単結晶シリコンカーバイド (SiC) 上に作製したリップル構造の走査型電子顕微鏡像を示す。照射に用いたフェムト秒レーザーの波長は 800 nm、照射パルスエネルギーは

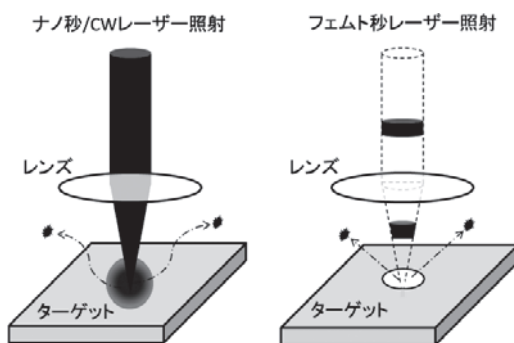


図 1 ナノ秒や連続波 (CW) レーザーによるレーザーアブレーションとフェムト秒レーザーアブレーションの違い。

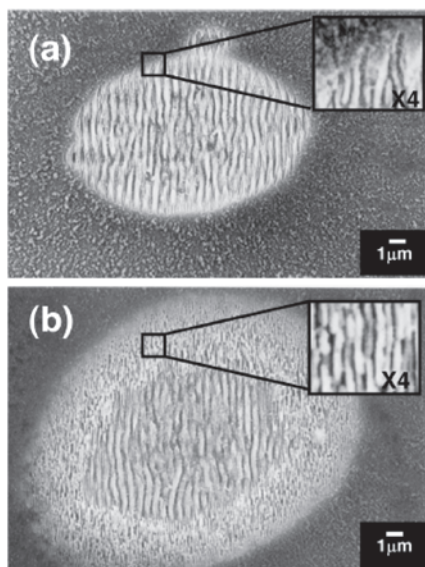


図2 フェムト秒レーザー照射したSiC表面の走査型電子顕微鏡像 (a)粗面化していない ( $Ra:0.0002 \mu\text{m}$ ) 基板上的ナノ周期構造. 中心部に粗い ( $\sim 500 \text{ nm}$ ) 周期構造のみが観測される. (b)粗面化した ( $Ra:0.005 \mu\text{m}$ ) 基板上的ナノ周期構造. 中心部の粗い周期構造に加え, 周辺部に細かい ( $\sim 250 \text{ nm}$ ) 周期構造も観測される. (参考文献[23]より)

$3 \mu\text{J}$ , 照射パルス数50である. 粗いリップル構造が中心部, 細かいリップル構造が周辺部に形成されており, 照射レーザー光のビームプロファイルはガウス型をしていることから, 各リップル構造が局所フルエンスに応じ, 明確な境界をもって形成されていることがわかる[22]. さらに, 図2 (a)は初期表面粗さ ( $Ra$ ) が  $0.0002 \mu\text{m}$  (平坦な試料), 図2 (b)は初期表面粗さが  $0.005 \mu\text{m}$  (粗い試料) のSiCに対して照射したものであるが, 粗い試料上へは細かいリップル構造が大面積でできているのに対し, 平坦な試料上へは細かいリップル構造がほとんどできていない. 一方で, 粗いリップル構造の形成面積は両方の試料でほぼ同じ, すなわち粗いリップル構造の形成閾値は初期表面粗さの影響を受けないことがわかる. このことから, 細かいリップル構造の形成は, 表面凹凸によるポテンシャル変調の影響により, 光励起キャリアが局在化するためであることが示されたが, その詳細な過程は明らかになっていない[23]. また, これまでは複数パルスの照射がリップル構造形成に必須であると考えられていたが, 必ずしもそうではないことがシリコン基板へのフェムト秒レーザー照射によって明らかになっている[24].

このように, 細かいリップル構造の生成については特に活発に議論が行われており, 様々なモデルが提唱されているがいずれも統一的な理解に至ってはいない. 現在, 議論されているモデルとしては,

1. 自己組織化モデル[25-27]
2. パラメトリック緩和モデル[28]
3. 表面プラズモンモデル[29, 30]

などがある. これらの詳細については, 各参考文献に譲るが, 以下にそれぞれの特徴を簡潔に示す.

1のモデルにおいては, フェムト秒レーザー照射によ

て生じる非平衡状態から緩和する際に自己組織化が起こるとするものである. イオンスパッターにおいてもフェムト秒レーザー照射と同様の構造が生じることから[31], フェムト秒レーザー照射におけるナノ構造生成についても同じメカニズムによるものであるとしている. しかし, フェムト秒レーザー照射に伴う自己組織化現象が具体的にどのような物理的過程によって生じているかは明らかにされておらず, 今後明らかにすべき課題も多い.

次に, 2のパラメトリックモデルにおいては, 入射レーザー光が表面プラズマ波にパラメトリック緩和する過程を考慮することによってフェムト秒レーザー照射による周期構造形成を説明するモデルで, 特定の強度範囲ではこのモデルで説明できることがわかっている. しかし, ナノ周期構造の形成ダイナミクスをどのように説明するかなどの問題点も残されている.

3の表面プラズモンモデルでは, フェムト秒レーザー励起によって固体表面に表面プラズモンポラリトンが生成され, それが周期的構造形成に繋がるとするものである. このモデルも, 精力的に検討され, 計算と実験的とのよい一致が見られているが, 強励起領域での分岐 (bifurcation) 現象などこのモデルでは説明が難しい実験事実もあり, 今後の解明が期待される.

最後に, レーザー波長程度の周期をもつナノ周期構造でも, 古典的な干渉モデルで説明できないものが報告されてきており[32], レーザー誘起ナノ周期構造の生成メカニズムに関する議論は今後も活発に続くものと予想される.

#### 4.4 フェムト秒レーザー照射による物性改質

ここまではフェムト秒レーザーを加工閾値近傍の強度で照射した場合の表面形状変化について説明してきた. フェムト秒レーザー照射に伴って形状のみならず物性の変化も起こることがよく知られている. また, フェムト秒レーザーアブレーション過程を理解するためには表面形状のみならず物性の観点からのアプローチも重要である. しかし, これまで, フェムト秒レーザー照射に伴う物性変化を議論した研究は形状変化を議論した研究と比較して非常に少なかった. その中で, 我々は, 共焦点顕微鏡ラマン分光システムと透過型電子顕微鏡観察を用いてレーザー誘起ナノ周期構造の物性分析を行ったのでその結果を紹介する.

ラマン散乱の励起光源としては波長  $488 \text{ nm}$  の半導体レーザーを用い, 測定系の空間分解能は約  $1 \mu\text{m}$  であった. ラマン測定の結果, 図3 (a)に示すように粗いリップル構造上で単結晶  $4\text{H-SiC}$  のピークに加え, 矢印で示す位置に, アモルファスシリコン (a-Si), アモルファス炭素 (a-C) の D バンドおよび G バンド, アモルファスシリコンカーバイド (a-SiC) のピークが確認できた. さらに, 細かいリップル構造上でも粗いリップル構造と同様に, 単結晶  $4\text{H-SiC}$ , a-Si, a-C, a-SiC のピークが確認できた. また, 粗いリップル構造と比較すると細かいリップル構造でアモルファス相からの信号がより強いことが明らかになった[33]. このアモルファス相の深さ方向の分布を議論するため透過型電子顕微鏡を用いた観察を行った. その結果, アモルファス相の厚

さは数 10 nm でナノ周期構造の表面に沿ってほぼ一様に分布し、それより内部では単結晶の SiC のみが観測された [34].

また、SiC 以外の材料においても、同様の傾向は観測されている。井澤らは、図 4 に示すように、シリコンにピークフルエンス  $0.21 \text{ J/cm}^2$  でフェムト秒レーザーパルスを 20 発照射した断面の透過型電子顕微鏡観察を行った。この結果から、フェムト秒レーザー照射部に数 10 nm 程度の均一なアモルファス層が生成されていることがわかる。特に、このアモルファス層の厚さは照射レーザーフルエンスや照射パルス数にほとんど依存しなかったということは注目に値する。これらの結果から、フェムト秒レーザー照射に伴う表面のアモルファス化や相分離現象は単結晶 SiC に限った現象ではなく、シリコンなどの他の物質でも観測されるフェムト秒レーザー照射によって普遍的に起こる現象と考えられる [35].

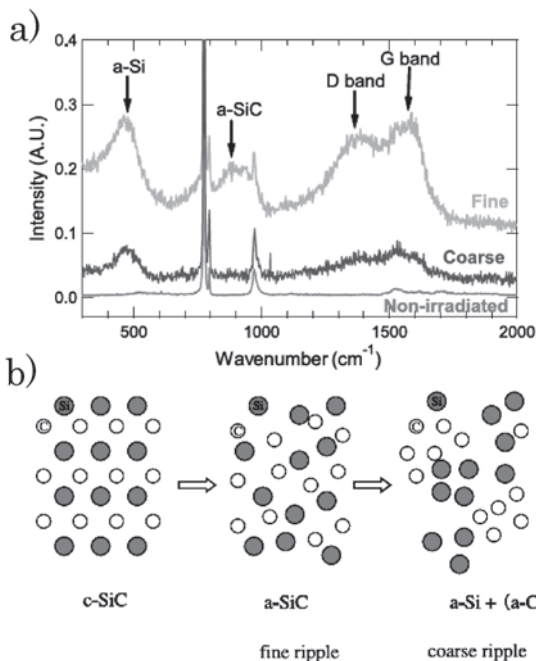


図 3 (a) フェムト秒レーザー照射した SiC 基板表面のラマンスペクトル (Fine: 細かいリップル構造, Coarse: 粗いリップル構造, Non-irradiated: 未照射部). (b) フェムト秒レーザー照射によって引き起こされる相分離の概念図 (参考文献 [33] および [34] より).

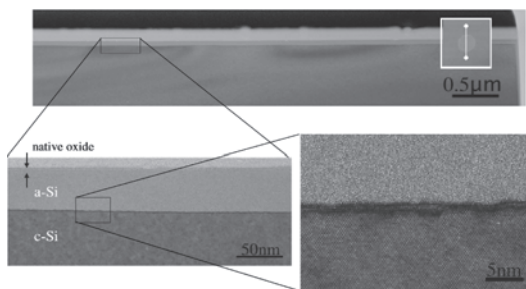


図 4 単結晶シリコン表面にピークフルエンス  $0.21 \text{ J/cm}^2$  でフェムト秒レーザーパルス 20 発照射した断面の透過型電子顕微鏡像 (参考文献 [35] より).

さらに、我々はフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる物性改質を局所電気伝導度制御技術に展開する研究も開始している [36]. 図 5 にシリコンカーバイドの電極間にフェムト秒レーザー光を照射して改質した部分の抵抗を測定した結果を示す。照射フルエンス  $5.0 \text{ J/cm}^2$  から  $6.7 \text{ J/cm}^2$  において抵抗値が二桁以上も劇的に変化していることがわかる。このような不連続な抵抗値の変化は図 3 において述べたフェムト秒レーザー照射に伴う相分離との関連からも興味深い。さらに、フェムト秒レーザー照射に特有の内部加工 (改質) 技術と、フェムト秒レーザー照射に伴う電気伝導特性変化を上手く組み合わせれば、フェムト秒レーザー照射による半導体の三次元回路作製技術に繋がる可能性もあり、今後の発展が期待できる。

#### 4.5 フェムト秒レーザーを用いた透明材料の内部加工

フェムト秒レーザー照射に特徴的な現象として、前述の非熱的加工に加え、透明材料内部の加工が挙げられる。フェムト秒レーザー光は非常に強い光電場、すなわち高い光子数密度をもった光であるため、集光部において、多光子吸収が発生する。多光子吸収によって伝導帯に生成された電子は、光電場によって加速され、アバランシェイオン化を引き起こす [37]. アバランシェ過程による大量の電子生成によって、結晶格子が不安定になり、透明材料内部で空洞化や、物性改質を引き起こす。ここで、再度強調しておきたいことはフェムト秒レーザー照射による内部加工・改質は集光部を材料内部に調整し、適切な照射条件を選択すれば「表面に影響をまったく与えることなく」、「透明固体材料の内部を三次元的に加工・改質可能」であるということである。このことを活かし、フェムト秒レーザーを用いた感光性樹脂の三次元造形 [38] や、フェムト秒レーザー支援エッチング [39] 等が活発に研究されている。

また、我々は単結晶 SiC の内部にフェムト秒レーザー照射を行い、被照射部の断面 TEM 観察およびラマン分光計

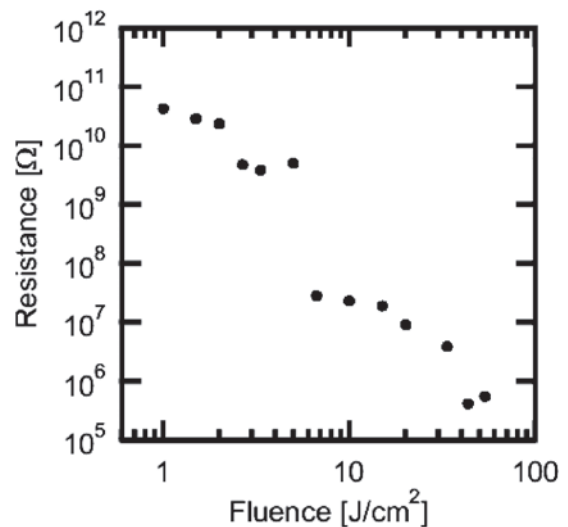


図 5 フェムト秒レーザー改質部における電気抵抗の照射フルエンス依存性 (参考文献 [36] より).



測を行った[40, 41]. 図6 (a)に示すように, サンプル表面からフェムト秒レーザー内部に集光照射し, 照射点をライン状に走査することで直線状の改質部を数本作り, そのうちの一本の断面を観察した. 図中では光の進行方向を $k$ , 光電場の方向を $E$ , 観察方向を目で示している. 図6 (b)はこの改質部の透過型電子顕微鏡像であり, フェムト秒レーザーをSiC内部に集光照射した部分においてIからVに示すような5つのグループに別れて光の進行方向に改質部が存在していた. さらに, それぞれの改質部の中には150 nmと300 nmの周期をもった歪み構造が周期的に分布しており, この歪の方向は光電場に平行であった. この内部周期構造はTaylorらによって報告されているナノプラズマモデルによって説明できる可能性があり現在検討を進めている[42, 43].

この改質部周辺において顕微ラマンによるマッピング測定を行ったところ,  $782.5 \text{ cm}^{-1}$ に観測されるSiCの縦波光学フォノンモードに対応するピークにシフトが観測された(図6 (c)). このピークシフトから, フェムト秒レーザー照射によるSiCの内部改質部には, 最大で1.4 GPaの圧縮応力, もしくは最大で0.4 GPaの引張応力が残留応力として働いていることが明らかになった. また, ラマンピークの幅も図6 (d)に示すように広がっていることから, 応力の分布(偏り)があることも明らかになった. これらの残留応力はフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる衝撃波の痕跡であるものと考えられる.

衝撃波そのものを観測する試みとして, 早崎らは, 可視光のポンププローブイメージングによって, 図6に示すような, フェムト秒レーザー照射直後から周辺に広がる衝撃波のイメージングに成功している[45]. 図7はガラスにパルスエネルギー50 nJで800 nm, 45 fsのフェムト秒レーザー光を照射後の様子を観察したもので, 位相像(上段)と振幅像(下段)が得られている. この図からわかるように衝撃波は, フェムト秒レーザー光を照射後, 同心円状に広がっていている. 最近では, フェムト秒レーザー光を多焦点で照射し, 衝撃波の伝搬形状を制御することで, フェムト秒レーザー加工の新たな制御パラメータを導入する試みも行われつつある[46].

#### 4.6 内部照射技術を用いた高密度プラズマ生成への期待

これまではフェムト秒レーザー照射によって固体表面および内部に生じる不可逆かつ半永久的な変化を, 主に終状態, つまり現象が完了した状態から議論してきた. 本節では, これらの結果を踏まえ, フェムト秒レーザー照射によって過渡的に生じる物質状態について議論を行うとともに, 過渡状態を直接捉える試みについて紹介する.

フェムト秒レーザー照射後, 光吸収やimpact ionizationによってキャリアが励起される. 励起されたキャリアはキャリア・キャリア散乱(電子・電子散乱など)やキャリア・フォノン散乱(電子・格子相互作用など)を経て, オージェ再結合や輻射再結合, またはキャリア拡散等によって, キャリアそのものが消滅するか, もしくはキャリ

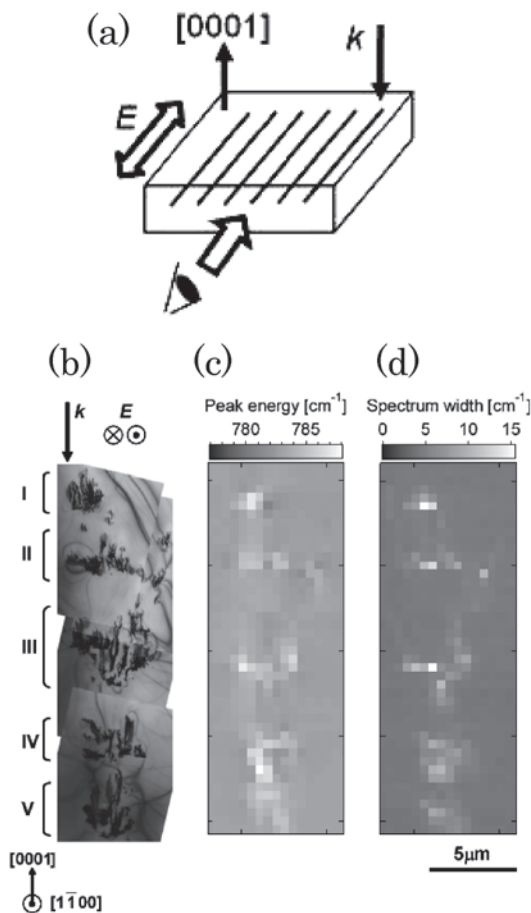


図6 (a)フェムト秒レーザー内部改質部における物性評価の概念図.  $k$ は光の進行方向,  $E$ は光電場方向であり, サンプル断面に数本のライン状改質部を作製した. その断面を目の方向から観察した((b)-(d)). (b)SiC内部へフェムト秒レーザー照射を行った箇所の透過型電子顕微鏡像. IからVに示すような5つのグループに別れて光の進行方向に改質部が存在していた(光は紙面の上から下に入射し, 光電場は紙面に垂直である). (c)(b)と同部分におけるラマンピーク位置. (d)(b)と同部分におけるラマンスペクトル幅(参考文献[41]より, 観測の概念図は参考文献[44]から引用).

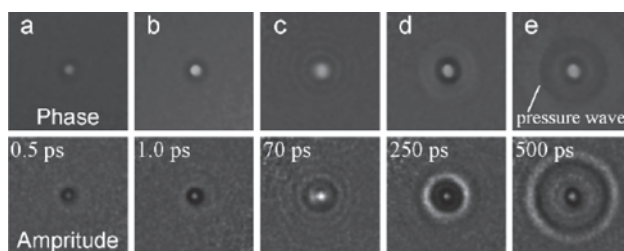


図7  $t =$  (a) 0.5 ps, (b) 1 ps, (c) 70 ps, (d) 250ps, (e) 500 ps におけるプローブパルスの位相(上段)および振幅像(下段)パルスエネルギーは $E = 50 \text{ nJ}$ , イメージサイズは $8.3 \mu\text{m} \times 8.3 \mu\text{m}$ . (参考文献[45]より).

アが移動することによって励起領域から存在なくなり, 被照射領域におけるキャリア密度が減衰する. また, 励起領域において, キャリア密度が減衰する途中で, 前述したようなアブレーションや熱拡散, 再結晶化が生じる[47]. 特に, 前節で述べた透明固体材料内部へのフェムト秒レ

ザー照射においては、光吸収や impact ionization によってキャリアが励起されても内部であるため、原子や電子の飛散が起こらず、エネルギーは散逸することができない。その結果、エネルギーが被照射領域に留まることで電子温度が極めて高い状態になっている。その後、電子エネルギーが格子エネルギーに変換され、高温度・高圧力状態が生じる。具体的には、サファイア結晶内部に 100 nJ, 800 nm, 200 fs のフェムト秒レーザーパルスを集光照射すると圧力 10 TPa, 温度  $5 \times 10^5$  K 程度になっていることが予測されている[48]。フェムト秒レーザー照射で生じる、このような高温度・高圧力状態は warm dense matter (WDM) 状態より 2 桁程度密度が低いが、WDM に迫る状態といっても過言ではないだろう。さらに、このような状況が実現する前後での温度の上昇および下降率は  $10^{18}$  K/s と急速な加熱・冷却プロセスとなっていることも指摘されている[48]。この極限的な高温度・高圧力状態とそれに伴う急速な加熱・冷却プロセスは非常に小さな体積 ( $\sim 0.2 \mu\text{m}^3$ ) でかつ、非常に短時間 ( $\sim$  数 10 ps) の間しか存在しないが、それでも、このような高温度・高圧力条件を比較的簡便につくり出せることの意義は大きい。また、フェムト秒レーザー照射後の急速な冷却プロセスを経て常温常圧状態に戻る段階で、高温相の凍結による新物質創成が起こる可能性もあり興味深い。

上記のような理由からもフェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの理解は重要であり、その過渡状態の観測には様々な試みがなされている。特に、可視光をプローブとして用いた研究は比較的以前より行われている[49]。しかし、可視光を用いたプローブではフェムト秒レーザーアブレーションに伴うプラズマの噴出によって視野が遮られてしまい、観測できる照射フルエンス領域が限られてしまう。そこで、我々は、近赤外フェムト秒レーザーポンプ・軟X線プローブの時間分解反射率イメージング、および干渉イメージング光学系を構築し、フェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの観測を行なっている。軟X線はレーザーアブレーションに伴うプラズマ噴出に対してほぼ透明であるため、プラズマの影響を受けずに固体表面を観測するのに適している[50]。現在、我々はアブレーションフロントの膨張や照射フルエンスに敏感に依存して変化するアブレーション過程の観測に成功している[51]。一方で、絶縁体[52]、半導体[53]や金属[54]などにおけるフェムト秒レーザーアブレーションプロセスのシミュレーションも近年活発に行われるようになってきた。このように実験、理論の双方からの検討が進むことによって、フェムト秒レーザーアブレーションの新領域を切り拓き、他分野との融合研究に繋がっていくものと期待している。

#### 4.7 おわりに

本章では、フェムト秒レーザーアブレーションについて、その特徴と今後の可能性について述べてきた。1章ではレーザーアブレーションの歴史的背景を、2章ではフェムト秒レーザーアブレーションによる非熱的加工について述べた。また、3章では近年注目を集めているレーザー誘

起ナノ周期構造の生成について述べ、4章でそれらの物性分析とフェムト秒レーザー照射を用いた動的な物性改質の可能性について述べた。最後に、5章でフェムト秒レーザーに特有の内部照射技術を用いた改質と衝撃波の発生について説明したあと、6章では内部集光照射による高密度プラズマ生成への期待について述べる。

このようにフェムト秒レーザープロセッシングへの期待は急速に高まっている。一方で、フェムト秒レーザーアブレーションプロセス、特に、フェムト秒レーザー照射によって生じる高温度・高圧力状態とそこからの緩和過程についてはほとんど明らかにされていないのが現状である。これらを明らかにするためには、レーザー照射中や照射直後におけるプラズマ状態の診断や、被照射材料が照射直後の極限的な非平衡状態から平衡状態に緩和するまでの原子状態に関する研究など、幅広い分野からの統一的な議論が不可欠になるであろう。

#### 参考文献

- [1] T.H. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960).
- [2] F. Breech and L. Cross, *Appl. Spectroscopy* **16**, 59 (1962).
- [3] J.C. Miller, *AIP Conf. Proc.* **288**, 619 (1993).
- [4] 電気学会編：レーザーアブレーションとその応用（コロナ社，1999年）。
- [5] D. Bäuerle, *Laser processing and Chemistry* (Springer, Berlin, 2000), 3rd ed.
- [6] 藤田雅之，橋田昌樹：応用物理 **73**, 178 (2004).
- [7] 橋田昌樹他：応用物理 **75**, 451 (2006).
- [8] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **81**, Suppl. 172 (2005).
- [9] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **83**, 624 (2007).
- [10] 松尾繁樹：レーザープロセッシング応用便覧（増原宏編，NGT，2006年）p. 385-393.
- [11] N.M. Bulgakova *et al.*, *Laser Ablation and its Application*, (C.R. Phipps eds., Springer, 2006) p.17.
- [12] 例えば，<http://www.hokuhoku.ne.jp/rmec/16pdf/10.pdf>
- [13] M. Birnbaum, *J. Appl. Phys.* **36**, 3688 (1965)
- [14] J.E. Sipe *et al.*, *Phys. Rev. B* **27**, 1141 (1983).
- [15] J.F. Young *et al.*, *Phys. Rev. B* **27**, 1155 (1983).
- [16] J.F. Young *et al.*, *Phys. Rev. B* **30**, 2001 (1984).
- [17] Yu. V. Vigant *et al.*, *Sov. Phys. JETP* **64**, 123 (1986).
- [18] 南 志昌，豊田浩一：レーザー研究 **28**, 824 (2000).
- [19] N. Yasumaru *et al.*, *Appl. Phys. A* **76**, 983 (2003).
- [20] A. Borowiec and H.K. Haugen, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4462 (2003).
- [21] P. Rudolph and W. Kautek, *Thin Solid Films* **453-454**, 537 (2004).
- [22] T. Tomita *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, L444 (2006)
- [23] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 153115 (2007)
- [24] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 013104 (2008).
- [25] M. Henyk *et al.*, *Appl. Phys. A* **69**, S355 (1999).
- [26] J. Reif *et al.*, *Appl. Phys. A* **92**, 1019 (2008).
- [27] J. Reif *et al.*, *Phys. Stat. Solidi C* **6**, 681 (2009).
- [28] S. Sakabe *et al.*, *Phys. Rev. B* **79**, 033409 (2009).
- [29] G. Miyaji and K. Miyazaki, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 123102 (2007).

- [30] G. Miyaji and K. Miyazaki, *Opt. Express*, **16**, 16265 (2008).  
 [31] P. Sigmund, *J. Mater. Sci.* **8**, 1545 (1973).  
 [32] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. A*, **105**, 89 (2011).  
 [33] M. Yamaguchi *et al.*, *Appl. Phys. A* **99**, 23 (2010).  
 [34] T. Tomita *et al.*, *Appl. Phys. A* **100**, 113 (2010).  
 [35] Y. Izawa *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 5791 (2006).  
 [36] M. Deki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 133104 (2011).  
 [37] L. Jiang and H.L. Tsai, *Int'l. J. Heat Mass Transfer* **48**, 487 (2005).  
 [38] S. Kawata *et al.*, *Nature* **412**, 697 (2001).  
 [39] A. Marcinkevičius *et al.*, *Opt. Lett.* **26**, 277 (2001).  
 [40] T. Okada *et al.*, *J. Appl. Phys.* **106**, 054307 (2009).  
 [41] M. Yamamoto *et al.*, *Appl. Phys. Express* **3**, 016603, (2010).  
 [42] V.R. Bhardwaj *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 057404 (2006).  
 [43] R. Taylor *et al.*, *Laser Photon. Rev.* **2**, 26 (2008).  
 [44] T. Okada *et al.*, *Mater. Sci. Forum* **725**, 19 (2012).  
 [45] Y. Hayasaki *et al.*, *Opt. Express* **19**, 5725 (2011).  
 [46] Y. Hayasaki *et al.*, *Opt. Mater Express* **2**, 691 (2012).  
 [47] S.K. Sundaram and E. Mazur, *Nature Mat.* **1**, 217 (2002).  
 [48] S. Juodkazis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 166101 (2006).  
 [49] K. Sokolowski-Tinten *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 224 (1998).  
 [50] 富田卓朗他：レーザー研究 **40**, 592 (2012).  
 [51] T. Tomita *et al.*, *Opt. Express* **20**, 29329 (2012).  
 [52] D. Perez and L.J. Lewis, *Phys. Rev. B* **67**, 184102 (2003).  
 [53] P. Lorazo *et al.*, *Phys. Rev. B* **73**, 134108 (2006).  
 [54] L.V. Zhigilei *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **113**, 11892 (2009).



とみ た たく ろう  
富田卓朗

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部 助教。主な研究分野：光物性，半導体物理，光物理，特に，光照射によって固体表面及び内部に生じる不安定状態とその緩和過程に興味を持っている。趣味は，水泳，釣り，読書。最近は育児（2歳の双子）に追われ，釣りに行く時間が取れない。釣りの代わりにスーパーの鮮魚コーナーに立ち寄るのが趣味になりつつある。



## 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

### 5. レーザー加工のシミュレーション

#### 5. Numerical Simulation of Laser Processing

山田知典, 山下 晋, 杉原健太, 村松壽晴

YAMADA Tomonori, YAMASHITA Susumu, SUGIHARA Kenta and MURAMATSU Toshiharu

(独)日本原子力研究開発機構敦賀本部レーザー共同研究所

(原稿受付: 2013年5月21日)

レーザー加工プロセスには、時間、空間スケールの異なる多くの物理機構が存在するため、複雑さや計算の難しさから、十分に解明されているとは言い難い。本章では、こうしたレーザー加工時の複合物理現象の解明に向けて開発されてきたシミュレーションモデルを紹介する。さらに、筆者らが開発を行った数値シミュレーションコード (SPLICE) を用いたレーザー溶接・切断の数値シミュレーション結果と、放射光高輝度単色 X 線を用いた高精度実験やレーザーによる厚板鋼材切断試験の結果との比較対比を通じて得られた知見・課題等について紹介する。

#### Keywords:

laser welding, laser cutting, one-fluid model, multiphase flow, phase change

#### 5.1 はじめに

原子力発電所をはじめとした原子力施設、放射線取扱施設等では、作業者の被ばく低減などの観点から、遠隔操作により安全に作業することが望まれている。レーザーは、出力密度制御や局所加工性、遠隔操作性に優れるため、一般産業分野において今後最も期待される技術の一つであるが、原子力分野での活用はそれにも増して期待される。本章ではその中でとりわけ重要なレーザー加工に絞って主として筆者らの研究開発を紹介する。レーザー加工プロセスには、時間、空間スケールの異なる多くの物理機構が存在するため、複雑さや計測の難しさから、既往研究だけでは、十分に解明されているとは言い難い。こうしたレーザー加工時の複合物理現象の解明に向けた取り組みとして、数値シミュレーションと、それに連携した高精度実験によるレーザー加工技術高度化に向けた取り組みの一端を紹介する。

#### 5.2 レーザー加工プロセスにおける複雑な物理現象とその数値シミュレーション

レーザー加工時の溶融・凝固現象のリアルタイム観測のため X 線透過法を用いた材料内部の観察が行われ、内部の大きな流れ場や、気泡、Keyhole などの可視化には成功している [1, 2]。しかしながら、X 線管では単位スペクトル幅あたりの強度が弱いこともあり、固液 (固体と液体) の界面など密度差の小さい界面の像は明瞭に撮影することはできない。更に、一般に溶融池内部の詳細な温度分布等の物理量計測が困難であるため、実験だけで現象を把握することは非常に難しく、測定値との比較対比により実験との対

応可能な数値シミュレーションと合わせた評価が重要となる。次にその一例として、固液界面を扱ったシミュレーションの例を紹介する。

図 1 に示すようにレーザーにより溶融が起こり、熱伝導で溶融領域が周囲に膨張する。溶融池の中では対流が起こり、それが溶融池の膨張等にも影響を及ぼす。固液界面とはこの溶融池の境界のことで、レーザー加工の基礎的パラメータとして重要であり、シミュレーションにおいても、その解法がキーポイントとなる。図 1 に示す溶融池表面は平らではないが、Wang ら [3] は、溶融池表面を平面と仮定してシミュレーションを行い、対流の渦は界面近傍で生じ、それが熱伝導や球状の溶融池形成を促すことを明らかにした。しかし、溶融池界面挙動は内部流動場に対し大きな影響を与えると考えられるため、フラットな溶融池界面は内部流動場の詳細を明らかにするには不十分である。これに対し、溶融池界面の変動を考慮した研究もある。Ha

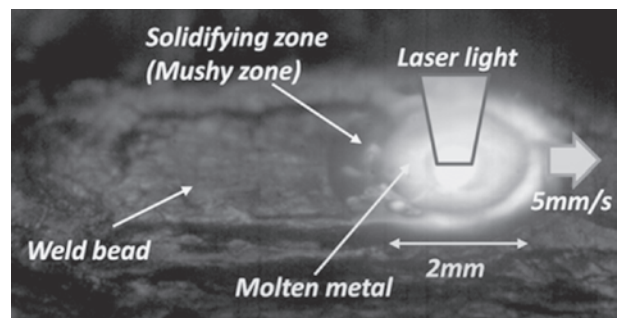


図 1 高速度カメラによるレーザー溶接中の溶融池 (Molten metal) とビード (Weld bead) 形成挙動の撮影結果。

ら[4]は、界面追跡手法にVOF (Volume of Fluid) 法[5]を用い、溶融池界面の幅と深さが、界面変動を考慮しない場合の結果と比較し、界面変動を考慮した場合は溶融時の界面振動によりわずかに広く深くなることを明らかにした。ここでVOF法とは、計算セル内での気相と液相の体積比率により相界面を捕獲する方法であり、これにより各相での密度や粘性係数などの物性値を定義することができる。

深溶込み溶接の複雑な現象のシミュレーションも行われている。Kiら[6,7]は、Level-Set法[8]を用い、溶融池界面変動、蒸発反跳力、レーザーの多重反射を考慮したKeyhole生成シミュレーションモデルを開発し、近似のない界面変動及びKeyhole挙動の再現に成功した。ここでKeyholeとは、図2に示すようにレーザーを移動しながら深溶け込み溶接をする際、照射レーザー強度を上げると( $10^6 \text{ W/cm}^2$ 以上[9])、レーザー照射部にプラズマが発生し、深く細い穴があいたような状態ができることであり、それを追うように深い溶融池が生じるものである。

野口ら[10]はVOF法を用いて、Kiらと同様にレーザーの多重反射、材料の蒸発、蒸発反跳力を考慮した熱流体解析手法を提案し、Keyhole形成過程における穴壁面の吸収レーザーパワー分布の変化、溶融金属の流速分布の変化および材料の違いによる加工穴形状の違いなどを検討した。これらの研究は、いずれも気液(気体と液体)界面のみを対象とした二相流体問題であるため、溶接母材の溶融・凝固やその周囲雰囲気ガスとの相互作用を取り扱うことはできない。また、Level-Set法を用いた場合には、自由表面が陰的表現のため、Level-Set関数の再初期化の過程で非物理的な体積変動が生じるなど、物理量が保存しないといった問題がある。レーザー溶接・切断においては、シールドガス、アシストガスを用いるため、溶融池界面と周囲雰囲気ガスとの相互作用を考慮する必要がある。また、溶融・凝固過程の再現と、多くのマルチスケール複合現象を内包するため大規模計算が必須となる。したがって、非常に計算効率の高い気液固の三相を統一的に扱えるシミュレーションモデルを構築することが必要となる。

以上の要請を満たすために筆者らの研究では、気液二相流の数値シミュレーションモデルとして、各相を同一の方程式系で統一的に解く一流体モデルを採用した。この一流体モデルに対する離散化として、Xiaoらが提案した有限体

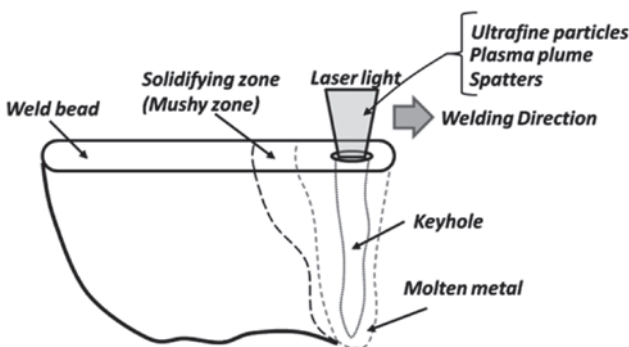


図2 パワー密度が高い場合に形成されるKeyhole型の深溶込み溶接の模式図。

積法に基づくマルチモーメント離散化モデルであるVSIAM3[11,12]を用いている。本研究では以下に示す理由により、VSIAM3を採用した。

- ・他のマルチモーメント数値計算モデルに比べ、計算セルの表面と中心にだけステンシルを配置するため、比較的計算コストが低い。
- ・有限体積法に基づいているため、質量や運動量などの物理量が厳密に保存する。
- ・界面追跡スキーム(流体率関数の移流スキーム)に、流体の保存性と界面形状の精度に定評のあるTHINC/WLIC法[13,14]を採用した。この手法では界面の拡散が生じないため、Level-Set法における界面の再構築を必要とせず、かつ流体率が完全に保存する。ここで流体率とは、計算メッシュ内の各相の流体が占める割合である。
- ・気液それぞれの相の境界面が大きく変化するような場合に直交座標系を用いて複雑な境界面を表すことができるため界面変形による計算格子の再構成の必要がなく、数値誤差や数値不安定性を低減することが可能である。

### 5.3 主要現象のモデリング

#### 5.3.1 支配方程式

レーザー照射により形成される溶融池は流体として取り扱うことができるため、非圧縮粘性流体を仮定する。支配方程式は、連続の式、Navier-Stokes方程式、エネルギー方程式で記述される。

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0, \quad (1)$$

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + \frac{\partial u_i u_j}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial x_j} (2\mu D_{ij}) + g_i + F_i, \quad (2)$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + u_i \frac{\partial T}{\partial x_i} = \frac{1}{\rho C_v} \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \frac{Q}{\rho C_v}, \quad (3)$$

ここで、重複する添え字は特に断らない限り総和規約をとることとし、 $u_i, T, \rho, p, \mu, C_v, \lambda, Q, D_{ij}, g_i = (0, 0, -g), F_i$ はそれぞれ、速度ベクトル、温度、密度、圧力、粘性係数、比熱、熱伝導率、熱源、速度歪テンソル、重力加速度、外力項である。

また、固相・気相・液相といった多相流体を表現するため、VOF法により各種流体を識別している。VOF関数 $\phi$ の支配方程式は次式となる。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \frac{\partial (u_i \phi)}{\partial x_i} - \frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0, \quad (4)$$

式(4)により、 $\phi$  ( $0 \leq \phi \leq 1$ , 1:流体内部, 0:それ以外の領域)を用いて各計算セルにおける物性値 $Y$ (密度、粘性係数、比熱等)は次のように表される。

$$Y(\phi) = Y_S \phi_S + Y_L \phi_L + Y_G (1 - \phi_S - \phi_L), \quad (5)$$

ここで、添え字 $S, L, G$ はそれぞれ固相、液相、気相を表す。

溶融池界面では、レーザー照射により照射点とその周囲の温度勾配により、界面の接線方向の応力が駆動力となる

Marangoni 対流が生じる (図 3)。この効果を次式により考慮した [15, 16]。

$$F_i = \sigma \kappa n_i - \frac{\partial \sigma}{\partial T} \left[ (I_{ij} - n_i n_j) \frac{\partial T}{\partial x_j} \right], \quad (6)$$

$n_i$  は流体界面に垂直な単位法線ベクトル,  $\kappa$  は曲率,  $\sigma$  は表面張力係数,  $I_{ij}$  は単位行列であり,  $n_i, \kappa$  はそれぞれ次のように表される。

$$n_i = \frac{\partial \phi / \partial x_i}{|\partial \phi / \partial x_i|}, \quad \kappa = -\frac{\partial n_i}{\partial x_i}, \quad (7)$$

式(6)右辺第一項は、表面張力の法線方向に関する寄与、右辺第二項は界面上での表面張力勾配の寄与である (Marangoni stress)。

### 5.3.2 相変化モデル

液相線、固相線の決定には温度回復法 [17] を用いる (図 4)。この手法により相変化量の経時変化が推算でき、この体積変化量を本手法では流体率変化として直接的に扱う。固体から液体への潜熱放出量は次式で定義する。

$$Q_s = \rho \Delta V \Delta g L, \quad (8)$$

ここで、 $\Delta V$  は計算セル体積、 $\Delta g$  は固相 (液相) 率の変化、 $L$  は融解 (凝固) 潜熱である。

計算手順

- ① 相変化のない場合の温度分布を求める。
- ② 1 単位時間ステップ内での液相線温度  $T_L$  からの温度降下 ( $\Delta T = T_L - T$ ) を求める。
- ③  $\Delta T > 0$  ならば物質は凝固し、物質の温度は液相線温度  $T_L$  へ回復する。従って、

$$Q_s = \rho C_p \Delta V \Delta T, \quad (9)$$

- ④ 最終的に、物質率の変化量  $\Delta g$  が得られる。

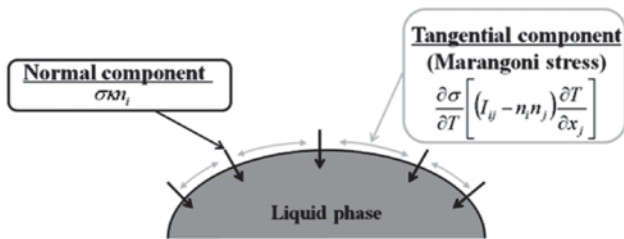


図 3 表面張力モデルの模式図。

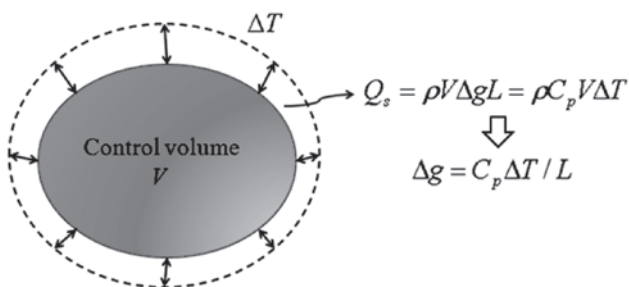


図 4 温度回復法の模式図。

$$\Delta g = C_p \Delta T / L, \quad (10)$$

- ⑤ 本手法では相変化量  $\Delta g$  が流体率変化量  $\Delta \phi$  と同等とし、流体率へ加える。

$$\phi = \phi \pm \Delta \phi. \quad (11)$$

### 5.3.3 固相表現方法

固相に関しては、Hirt らによって提案された FAVOR (Fractional Area Volume Obstacle Representation) 法 [18, 19] により表現する。体積占有率および面積開口率をそれぞれ  $A, A_x, A_y, A_z$  とし、 $A = 1 - \phi_s$  とする。これにより固体の外部は 1 であるから通常の計算が行われ、内部では 0 であるから固体として扱われる。

以上より、固相にレーザー等による熱源が加わり融点を超え相変化が起きる時、温度回復法により液相率が時々刻々増加し、その分だけ固相率が減少する。毎ステップ  $A = 1 - \phi_s$  を定義しなおせば固液界面の時間変化が追跡できる。ここで、固相率とは、計算メッシュ内の各相の固体が占める割合である。

### 5.3.4 レーザー入熱モデル

レーザー照射による物質中への入熱モデルとしては、次式に示す Bouguer-Lambert-Beer 法則 [20] が知られている。

$$q(x, y, z, t) = (1 - R) q_0(x, y, t) \exp(-az), \quad (12)$$

従って、式(3)右辺第二項の  $Q$  は次式となる。

$$Q = -\frac{dq}{dz} = -(1 - R) q_0 \alpha \exp(-az), \quad (13)$$

ここで  $R, \alpha$  は波長依存の反射率および吸収係数を表す。また、それらはレーザー照射による入熱、相変化、化学反応により変化する。入射光強度は空間関数  $f(x, y)$  (本研究では母材表面上での入熱プロファイルを表す) および時間関数  $g(t)$  の積:  $q_0 = q_m f(x, y) g(t)$  で表される。本研究では、時間関数  $g(t)$  は一定とし、空間関数  $f(x, y)$  は、(14)式で表されるガウス分布を用いた。 $R$  と  $\alpha$  は物質とその相を特定し、温度を限定するとデータとして与えられる定数であるが、実際はレーザーと被照射物質の時々刻々と変化する相互作用により、相が複雑に変化し、それに対応して入熱が決まる複合的な複雑な現象である。そこで、本研究では、5.4節に示す実験結果に合致するように反射率  $R$ , 吸収係数  $\alpha$  を人為的に選んでいる。レーザーと被照射物との相互作用の物理的詳細は課題となっている。

$$f(x, y) = \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{r_0^2}\right), \quad (14)$$

ここで、 $r_0$  および  $q_m$  はそれぞれレーザー照射半径、レーザー出力密度 [ $W/m^2$ ] である。

### 5.4 溶接・切断のシミュレーションと実験結果

図 5 に大型放射光施設 SPring-8 の高輝度単色 X 線を用いた吸収コントラストイメージング法により観測されたアルミニウム合金中の溶融池内流動場の実験配置を示す。単色

で超高強度であることから溶融池境界がリアルタイムで鮮明に撮影できるのが特徴である。図6に実験結果を示す。図中の時間は、レーザー照射開始時を $t=0$ としている。試験片表面には、トレーサー粒子（炭化タンタル）を散布し、出力260 Wでレーザーを照射した。トレーサー粒子は、溶融池内対流により中心から斜め下方向に移動した後、再び中心付近で上昇している様子が確認された。また、レーザーを照射し続けると、溶融金属内部で気泡が発生した。気泡は、対流や浮力により溶融池内部を移動したが、凝固速度が非常に速いため、試験片内部に閉じ込められ、溶接欠陥となった。

図7に、図6と同等の条件でのSPLICE (residual Stress control using Phenomenological modeling for Laser welding repair process In Computational Environment) コードによる数値シミュレーション結果を示す。レーザー入熱により母材が溶融し溶融池が形成された。矢印は流体の速度の方向と大きさを示し、等高線表示は温度分布を示す。図中の速度分布より、気液界面の中央へのレーザー入熱により母材が溶融し、溶融池が形成され、Marangoni効果によって、その加熱された部分から界面の接線方向に沿うように固相界面への流れが生じていることがわかる。これは、固液界面での温度差に起因するものであり、固液界面近傍で最大となった。また、溶融池内には、固液界面に衝突して生じる強い渦と、溶融池中心で生じる比較的弱い渦の2つの渦が形成された。図6の対流挙動とは若干異なるが、実験ではトレーサー粒子を母材表面に散布しているため、その溶融にレーザーのエネルギーが消費され、その残りがアルミニウムの溶融に寄与することになっているのも異なった現象が生じている原因の一つと推測される。多様なパラメータでの比較対比が望まれる。

このようにして金属の溶融・凝固過程を実験とシミュレーション結果とを比較対比しつつ計算コードの精度を高めている。次にこのコードをレーザーによる厚板金属切断に適用した例を紹介する。レーザー厚板切断とは、レーザー光と同軸方向に強いガス流を発生させ、そのガス流でレーザー照射により生じた溶融金属を吹き飛ばしながら高速で切断する手法である。図8にレーザー切断の数値シミュレーション結果を示す。温度分布の等高線に、固体金属表面、溶融金属表面、流体の速度ベクトルを重ねて表示

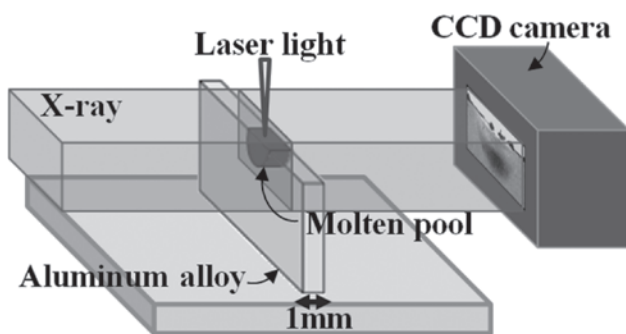


図5 試験片にレーザー照射した際に形成する溶融池と単色X線による観察。

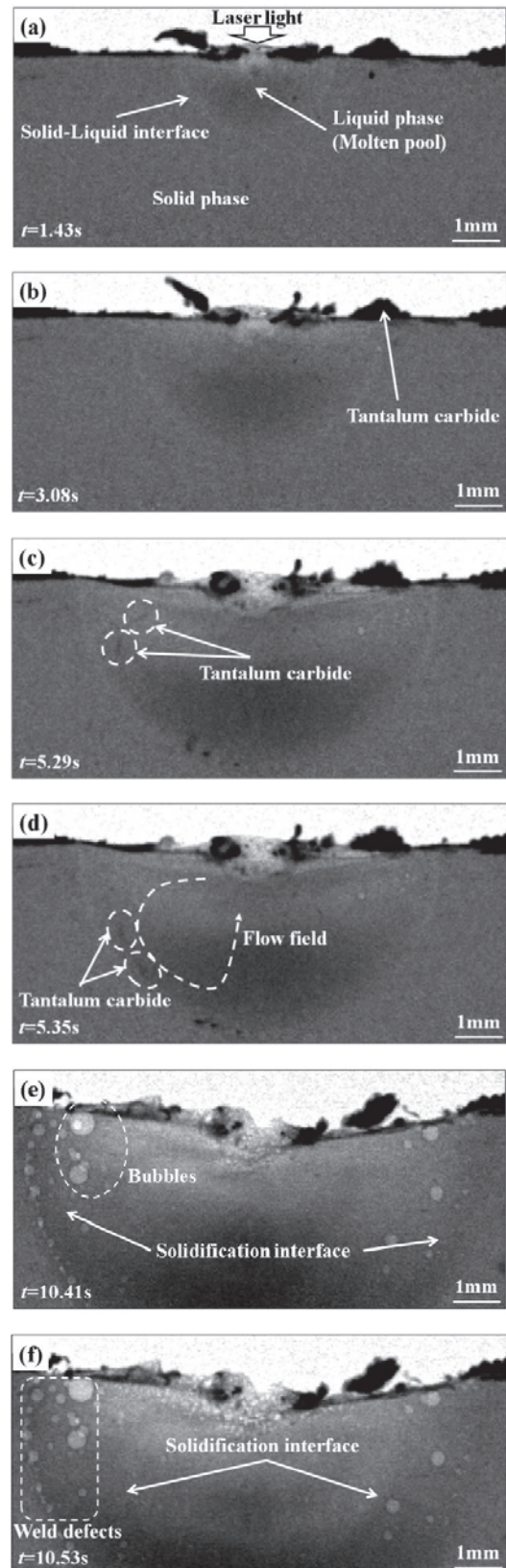


図6 高輝度単色X線を用いた吸収コントラストイメージング法による溶融池内観測[21,22]。撮影の時間分解能を考慮し、材料表面で変化が起こった瞬間をレーザー照射開始( $t=0$ )と仮定した。ここでレーザー照射時間は10秒である。(a)~(f)は照射開始から1.43秒、3.08秒、5.29秒、5.35秒、10.41秒、10.53秒後の像である。(e)~(f)は加熱時間10秒後の凝固過程を示しており、レーザー照射中に発生した気泡(Bubbles)が試験片内部に閉じ込められ、溶接欠陥(Weld Defect)となった。

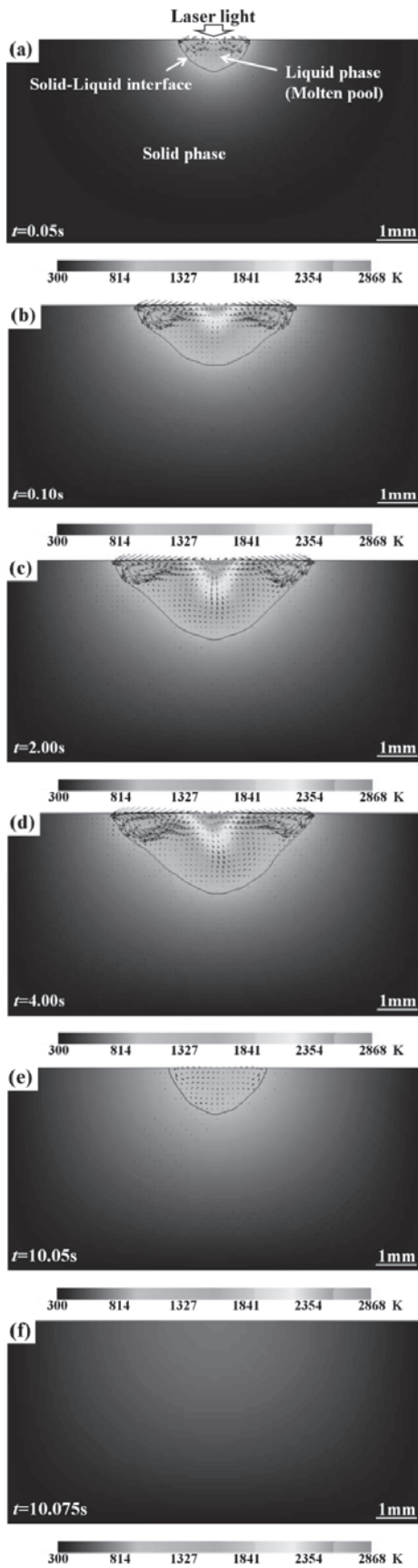


図7 数値シミュレーションによる溶融池の境界（固体 - 液体の境界）と液体内の対流[23,24]。実験と同様に10秒間レーザー照射を行った。(a)~(f)は照射開始から0.05秒, 0.10秒, 2.00秒, 4.00秒, 10.05秒, 10.075秒後の像である。計算では、界面を冷却しているため、実験と比較して速く凝固が完了している。

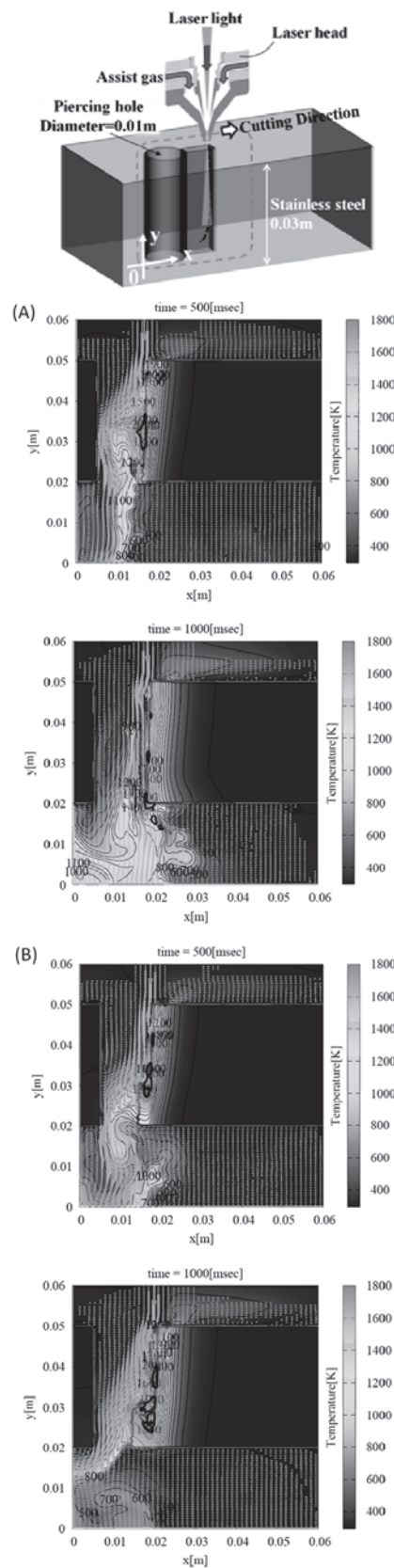


図8 厚板のレーザー切断シミュレーション[25,26]。最上段が切断配置図。(A),(B)はそれぞれ順な切断, 切断残りの生じた切断過程を示す。ピアシングホール (Piercing hole) の一端に照射されたレーザーが切断方向 (Cutting direction) に移動することにより、溶融が生じ、その溶融物をガスにより除去しつつ切断は進行する。ここで切断対象物の物性値として純鉄の溶融金属流体物性データを使用。



している。レーザー加工ヘッドの移動速度  $V_s$  (切断速度) およびアシストガス  $U_g$  速度は下記のように設定した。

・ケース A:  $V_s = 200$  [mm/min],  $U_g = 10$  [m/sec].

・ケース B:  $V_s = 300$  [mm/min],  $U_g = 10$  [m/sec].

ケース A では、切断速度が遅いため、レーザー入熱は板裏部分へ直ちに伝熱される。入熱により溶融した金属は、アシストガスにより直ちに外部に排除され、新たに露出した固相表面にレーザー入熱されるという過程を経て切断フロントが形成された。しかしながら、ケース B のように切断速度が極端に速くなると、切断開始点の板裏部分への伝熱遅れが生じ、融点に達しないため固相のまま残存する。この固相は、溶融金属の排出を妨げるため、レーザー照射直下に溶融金属が留まることになり、板裏への貫通が遅延する。一度貫通してしまえば、固体金属は残熱の影響で溶けやすくなるため、ほぼ定期的に切断フロントが形成されるが、伝熱遅れにより固相のまま残存した金属は切断残りとなる。このような切断残りが生じることは、実際のレーザー切断試験でも確認されている (図 9)。

この切断バージョンのシミュレーションコードを用いて、レーザーパワー、切断厚さ、切断スピードの関係を実験結果のそれらと比較する試みも行っており、切断スピードが比較的速い領域での両者の一致が得られている。その一方で切断スピードの遅い領域でのシミュレーションの課題も浮かび上がってきている [27]。このシミュレーションにより、所定の厚さの鋼材等の切断に必要なレーザーパワー、切断スピード等が一定の信頼性のもと予測できる可能性があり、課題を明確にしつつ、着実に開発を進め整備していく所存である。

## 5.5 おわりに

数値シミュレーションを利用することにより、実験計測だけでは困難なレーザー溶接・切断中の金属内部の現象を再現でき、実験結果との比較・検討により、現象の定量評価が可能となる。また、近年は高出力ファイバーレーザー

の開発により、それらを導入した厚板の溶接・切断などの試験が活発に行われているが [28]、数値シミュレーションの利用は、目的とする厚みに対し必要となる出力の選定に役立つとともに、溶接・切断の可否を決定する一つの指標となる。現状では、実験とシミュレーションにより典型的な現象に対して定性的な解釈が可能になったことが成果として確認できる。今後物理モデルの高度化、関連する物性値のデータベース化を進めることにより、汎用性の高い、実際のレーザー加工に対しても役立つシミュレーションコードの開発をめざしたい。

## 参考文献

- [1] 木下圭介 他: 溶接学会論文集 25, 18 (2007).
- [2] Y. Arata *et al.*, Trans. JWRI 14-2, 17 (1985).
- [3] H. Wang *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys 39, 4722 (2006).
- [4] E.J. Ha and W.S. Kim, Int. J. Heat and Fluid Flow 26, 613 (2005).
- [5] D.B. Kothe *et al.*, AIAA paper 96, 0859 (1996).
- [6] H. Ki *et al.*, Metall. Mater. Trans. A 33A, 1817 (2002).
- [7] H. Ki *et al.*, Metall. Mater. Trans. A 33A, 1831 (2002).
- [8] M. Sussman, J. Comp. Phys. 114, 146 (1994).
- [9] S. Fufinaga *et al.*, J. Phys. D, 33, 492 (2000).
- [10] 野口 暁 他: レーザ加工学会誌 14, 113 (2007).
- [11] F. Xiao, J. Comp. Phys. 195, 629 (2004).
- [12] F. Xiao, J. Comp. Phys. 213, 31 (2006).
- [13] F. Xiao, Int. J. Numer. Meth. Fluids 48, 1023 (2005).
- [14] K. Yokoi, J. Comp. Phys. 226, 1985 (2007).
- [15] M. Lappa, CMC 2, 51 (2005).
- [16] H. Haj-Hariri and Q. Shi, Phys. Fluids 9, 845 (1997).
- [17] 大中逸雄: コンピュータ伝熱・凝固解析入門 鑄造プロセスへの応用 (丸善株式会社).
- [18] C.W. Hirt, J. Wind Engineering and Industrial Aerodynamics 46-47, 327 (1993).
- [19] 森川泰成: 日本建築学会学術講演梗概集 D 環境工学, 497 (1992).
- [20] E.N. Sobol, *Phase Transformations and Ablation in Laser-Treated Solids* (A Wiley-interscience publication, Hoboken, New Jersey, 1995).
- [21] T. Yamada *et al.*, Proc. Visual-JW2012, JWP-33, 67 (2012).
- [22] T. Yamada *et al.*, JLMN, 7, 244 (2012).
- [23] S. Yamashita *et al.*, Q. J. Jpn. Weld. Soc., 29, 48s (2011).
- [24] 山下 晋 他: 第25回数値流体力学シンポジウム, C08-2, (2011).
- [25] K. Sugihara *et al.*, Proc. 20th Int. Conf. Nucl. Eng., ICONE 20-54185, (2012).
- [26] 杉原健太 他: 第25回数値流体力学シンポジウム, C08-1, (2012).
- [27] 杉原健太 他: 原子力学会2013年春の年会講演予稿集, A01, 1 (2013).
- [28] 例えば, 大道博行 他: 第77回レーザー加工学会講演論文集, 9 (2012).

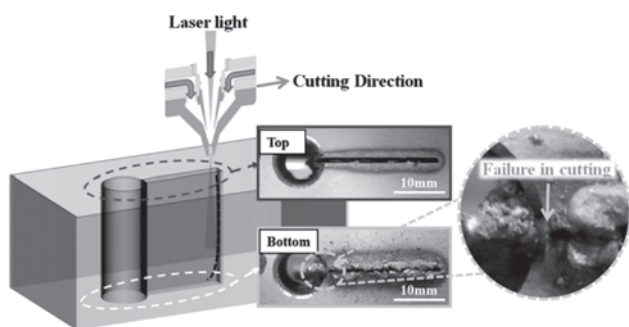
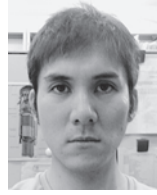


図 9 レーザー切断後の試験片表面 (レーザー照射面) および裏面 [25, 26]。切断速度が速いため、裏面に切断残り (Failure in cutting) と矢印で示した部分が生じた。



やま だ とも のり  
山田 知典

2010年3月大阪大学大学院 工学研究科 マテリアル生産科学専攻 博士後期課程修了(博士(工学))。2010年4月より日本原子力研究開発機構敦賀本部レーザー共同研究所, 博士研究員。2013年4月より日本原子力研究開発機構敦賀本部レーザー共同研究所, 任期付研究員。現在に至る。主な研究分野は材料工学。



やま した すすむ  
山下 晋

日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門熱流動研究グループ研究員。東京工業大学大学院総合理工学研究科博士後期課程修了(博士(工学))。専門は数値流体力学。現在はシビアアクシデント時における炉内状況の数値流体力学的研究に従事。



すぎ はら けん た  
杉原 健太

2011年3月東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻博士課程修了, 博士(工学)。2011年4月より日本原子力研究開発機構敦賀本部レーザー共同研究所, 博士研究員。2013年5月より現在, ライス大学研究員。主な研究分野: 数値流体力学, HPC, GPU 計算, 気液二相流, 流体構造練成解析。



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

## 6. 磁場閉じ込め核融合におけるペレット溶発の物理と応用

### 6. Elementary Press and Applications of Pellet Ablation in Magnetically Confined High Temperature Plasma

坂本隆一, 後藤基志

SAKAMOTO Ryuichi and GOTO Motoshi

核融合科学研究所

(原稿受付: 2013年6月21日)

磁場閉じ込め核融合炉における燃料供給手段として考えられている固体水素ペレット入射法の粒子供給特性を支配する二つの素過程, すなわち『固体水素の溶発過程』と『溶発プラズモイドの均質化過程』について紹介する. 高温プラズマ中で溶発する固体水素ペレットは, 電子やイオンといった粒子が運ぶ熱流束によって溶発され, 溶発後形成される高密度プラズモイドは閉じ込め磁場の影響を受けながら背景プラズマへ均質化していくことから, レーザー照射によるプラズマ生成過程とは大きく異なる側面を持つ. 固体水素ペレット入射による粒子供給素過程の物理について解説するとともに, 溶発過程の観測手法(プラズマの分光計測)や固体水素ペレットの入射技術も紹介する.

#### Keywords:

fusion reactor, fueling, solid hydrogen pellet injection, ablation

#### 6.1 磁場閉じ込め核融合装置における粒子供給

磁場閉じ込め核融合炉では, 電荷を帯びた核融合生成物, すなわち, アルファ粒子(ヘリウム)がもつエネルギーでプラズマを加熱する状態(自己燃焼状態)の定常維持を行い, 外部からのプラズマ加熱は必要なくなる(もしくは, かなり小さな割合となる). 一方で, 燃料となる水素同位体(重水素および三重水素)は, 核融合反応に伴ってヘリウムと中性子に変換されていくため, 燃焼領域(コア部)への継続的な水素同位体の供給が燃焼プラズマを維持するための重要な制御手段となっている. また, 核融合反応生成物であるヘリウムがプラズマ中に蓄積すると, 燃料希釈によって核融合反応率を低下させ, 燃焼プラズマの維持に支障を来すために, 燃料供給に加えてヘリウムの速やかな除去も重要な課題である. しかしながら, 既存のプラズマ装置における『燃焼を伴わない』高温プラズマ実験では, 燃料減少とヘリウム除去の問題が生じないことに加えて, プラズマサイズが小さく, 密度も低いために, 中性粒子(ガスパフヤリサイクリング)による粒子供給が有効に働くことから, 粒子供給やヘリウム除去に関わる課題が燃焼プラズマにおいて本質的に重要であるにもかかわらず, 未だその重要性は十分に認識されていない.

核融合炉における燃焼率(供給粒子数に対する核融合反応する粒子数の割合)は数%程度[1,2]と想定されており, 燃焼する粒子数の数10倍から100倍程度の粒子数( $\sim 10^{23}$  atoms)を供給する必要がある. そもそも, 粒子の供給はプラズマ外部から行う必要があるが, プラズマ密度が低い周

辺部から, より密度が高いコア部へ燃料を供給しなければならないため, 拡散的描像ではコア部へ粒子を供給することができない. この核融合炉における粒子供給の問題を解決するためには, 内向きの対流などによる粒子輸送の補償が必要となる. その一方で, 内向きの対流はヘリウム除去と相反するばかりでなく, プラズマ壁相互作用によってプラズマ周辺部で発生する不純物のプラズマコア部への蓄積などを引き起こす. この相反する要求を緩和させるためには, コア部への直接粒子供給が最も有効である. 高温プラズマへの直接粒子供給法の候補として, 中性粒子ビーム入射(NBI)や固体水素ペレット入射を用いた粒子供給が挙げられる. NBIは加熱装置であると同時に, コア部へ粒子を供給できるために高温プラズマへの粒子供給法としては非常に有効であり, これまでの高温プラズマ実験の進展に大きく寄与してきた. しかしながら, 核融合炉への粒子供給を想定すると核融合出力よりも大きな入射電力が必要となるため, 炉では粒子供給手段として使用することはできない. 固体水素ペレット入射法は, 1 km/s程度に加速した固体水素の粒をプラズマ中へ入射させる粒子供給法であり, 高温プラズマに曝されて溶発しながら飛翔して粒子をプラズマへ供給する. 現時点では, ペレット入射法は核融合炉への粒子供給を想定できる唯一の粒子供給法と考えられている. 核融合炉における粒子供給特性を理解するためには, 高温プラズマに曝される固体水素の溶発素過程の理解が重要であり, 1970年代から理論・実験の両面から研究が続けられてきている[3,4]. 本章では, 固体水素ペレット

入射による粒子供給の素過程について解説する。

## 6.2 固体水素ペレットによる高温プラズマへの粒子供給素過程

固体水素ペレット入射による粒子供給は『固体水素の溶発過程』と『溶発プラズモイドの均質化過程』の二つの素過程により記述される。ペレット粒子供給研究の初期においては、固体水素の溶発過程を明らかにすることによって、粒子供給特性の理解が試みられてきた。しかしながら、ペレットの溶発位置と実効的な粒子供給分布が必ずしも一致しない実験結果が示され、粒子供給特性を理解するためには、固体水素ペレットが何処で溶発したかだけではなく、溶発した粒子によってペレット周囲に形成される高密度のプラズマ塊（プラズモイド）が背景プラズマへ均質化していく過程も考慮することが重要であることが明らかとなった。ここでは、高温プラズマへの固体水素ペレット粒子供給特性を記述する二つの素過程を説明する理論モデルの概要とその実験的検証を紹介する。

### 6.2.1 ペレット溶発

高温プラズマ中に入射された固体水素ペレットはプラズマからの入熱を受けて溶発するが、プラズマからの入熱量と固体水素の昇華エネルギーから推定される寿命（マイクロ秒）よりもはるかに長い寿命（ミリ秒）を持つ。そのため、高温プラズマ中に高速で入射されたペレットは、溶発しながらプラズマ中へ深く（数10 cm から1 m）侵入し、コアプラズマへ粒子を供給することが可能である。固体水素ペレットが高温プラズマ中でも比較的長い寿命を持つことは、ペレットが溶発してペレット周囲に広がる溶発雲（中性ガス）が、プラズマからの熱流束を遮蔽していると考えることによって、説明することが可能である。溶発雲によってプラズマからの熱流束が遮蔽され、固体水素ペレットの溶発が抑制される点は、エネルギーを担うものが粒子（電子やイオン）であることに起因している。

ペレット溶発を記述するモデルは、1970年代後半にP.B. Parks[5]らやS.L. Mirola[6]らによって構築され、中性ガス雲遮蔽モデル（Neutral Gas Shielding: NGSモデル）と呼ばれている。簡略化を大胆に行っているにも関わらず、様々な装置におけるペレット入射実験の結果を大まかに説明できることから、その後、様々な現実的な影響を考慮した詳細なモデルが提唱されたにも関わらず、最も広く受け入れられている。P.B. ParksらのモデルとS.L. Mirolaらのモデルは解法に差異があるものの、取り扱っている溶発物理の描像はほとんど同様である。すなわち、プラズマからの熱流束を受けてペレットが溶発し、ペレットの周囲に中性の溶発雲が等方的に広がる。プラズマからの熱流束は溶発雲で遮蔽され、大部分の入熱は溶発雲を加熱することに費やされるため、固体水素ペレット表面に到達する熱流速の割合は無視できるほど小さく、溶発現象は熱流束の遮蔽に最低限必要な粒子量が固体水素ペレットの溶発率になるように自己調整されている。このことを利用してNGSモデルでは、プラズマからの熱流束を遮蔽するために必要な溶発雲を形成するために必要な粒子量として溶発率を求めてお

り、固体から気体への相変化に伴う複雑な現象を直接考慮することなく溶発率を求めている。

入射粒子の質量、温度、密度を  $m$ ,  $T$ ,  $n$  とすると、プラズマからのエネルギー束は  $n\sqrt{T^3/m}$  に比例するので、イオンと電子の温度が等しい水素プラズマを想定すると、イオンと電子が担うエネルギー束の比は  $q_e/q_i \sim \sqrt{m_i/m_e} \sim 42$  となり、ペレットに流入するエネルギー束は電子が支配的である。ただし、添字の  $e$  と  $i$  はイオンと電子を表す。さらに、中性ガス中におけるイオンの損失関数は電子のそれに比べると大きいので、イオンのエネルギーは中性ガス中では電子に比べて急激に減衰し、ペレット表面まで到達できない。したがって、電子の熱流束のみが溶発に寄与すると仮定している（図1）。さらに簡単のため、マックスウェル分布している熱化プラズマの電子のエネルギー分布を、 $E_e = 2T_e$  の単色エネルギーで近似している。溶発した水素原子は溶発雲（中性ガス）としてペレット周囲に広がるが、中性ガスであることから磁場の影響を受けず、ペレットを中心とした同心球状に広がると仮定し、現象は半径方向の1次元の関数で記述している。また、ペレットの移動に伴う背景プラズマの変化の時間スケール ( $>10^{-6}$  s) に比べて溶発雲が形成される時間スケール ( $\sim 10^{-7}$  s) は十分に速いことから、溶発現象は準定常近似が成り立っている。このような仮定のもと、溶発雲の動態は質量保存、運動量保存、エネルギー保存の式および理想気体の状態方程式は次式で表される。

$$\rho v r^2 = \frac{G}{4\pi}, \quad (1)$$

$$\rho v \frac{dv}{dr} + \frac{dp}{dr} = 0, \quad (2)$$

$$\rho v \frac{d}{dr} \left( \frac{\gamma}{\gamma-1} \frac{kT}{m} + \frac{v^2}{2} \right) = Q \frac{dq_e}{dr}, \quad (3)$$

$$p = \frac{\rho}{m} kT. \quad (4)$$

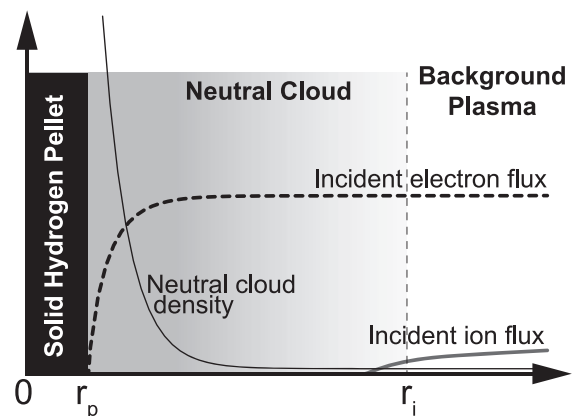


図1 固体水素ペレットの周囲に球状（等方的）に広がる中性溶発雲内の中性ガス密度分布とイオン・電子熱流束分布。  $r_p$  と  $r_i$  はそれぞれ、ペレット半径と、中性溶発雲のイオン化半径を示す。プラズマから流入するイオン熱流束は中性遮蔽雲で遮蔽され、固体水素表面まで到達しないため、中性ガス遮蔽モデルでは、電子の熱流速による固体水素の溶発のみを考慮している。

ここで、 $m$  は溶発粒子の平均質量、 $v$  は溶発雲の流速、 $p$  は溶発雲の圧力、 $T$  は溶発雲の温度、 $\gamma$  は比熱比、 $G$  は溶発率、 $Q$  は電子のエネルギー損失 ( $dq_e/dr$ ) が溶発雲の加熱に用いられる割合である。溶発雲への入射電子は、電離や励起といった非弾性過程によってエネルギーを失うと同時に弾性散乱を受け、溶発雲を膨張させる加熱源となる。このとき、電子のエネルギー損失関数を  $L(E)$ 、後方散乱と小角散乱を考慮した実効後方散乱断面積を  $\hat{\sigma}_T(E)$  とすると、入射電子の溶発雲中でのエネルギー減衰は次式で表される。

$$\frac{dq_e}{dr} = \frac{\rho}{m} q_e \left( \hat{\sigma}_T(E) + 2 \frac{L(E)}{E} \right), \quad (5)$$

上記の方程式 (1) - (5) が溶発雲の動態を表す方程式系となる。P.B.Parksらは、固体水素の昇華エネルギーはプラズマからの熱流束に比べて十分小さいことから、固体水素表面における熱流束と温度が  $q_e(r_p) = 0$ ,  $T(r_p) = 0$  になる境界条件の下で上式を解き、固体水素ペレット半径の縮小速度が下式でスケールできることを示した。

$$\frac{dr_p}{dt} = 6.64 \times 10^{-4} T_e^{1.64} n_e^{-\frac{1}{3}} r_p^{-\frac{2}{3}}, \quad (6)$$

ここで、 $T_e$  [keV]、 $n_e$  [ $m^{-3}$ ] はプラズマの温度、密度。 $r_p$  [mm] は球状ペレットの半径である。このモデルは大胆な単純化を行っているにもかかわらず、多くの装置における実験結果を大まかに説明できることが知られている [7, 8]。

現実的な条件を考慮したモデルを構築する多くの試みがなされてきた (詳細はレビュー論文 [4] を参照)。例えば、(1) 電子の熱流束にマクスウェル分布を考慮、(2) 磁場に沿って入射する電子の熱流束を考慮、(3) 溶発雲の電離に伴う高密度プラズモイドの形成とそれが磁力線に沿って広がることを考慮、などの多くのモデルが提唱されてきた。モデルで考慮している仮定によって、推定される溶発雲 (モデルによっては、溶発雲が電離して生じる溶発プラズモイドも考慮している) の特性は大きく異なるにもかかわらず固体水素の溶発率はモデルにあまり依存せず、大胆に単純化した初期のNGSモデルと同程度であり、必ずしもより詳細な物理モデルを考慮することによって、実験結果を再現できるとはいえない。このことは、固体水素の昇華エネルギーが小さいために、電子の熱流束の遮蔽に必要な溶発雲が常に維持されるように自己調整されていることに起因している。

一方で、極端な条件下、例えば、加熱 (中性粒子ビーム加熱や波動加熱) に起因する高エネルギー粒子が存在する場合は、溶発雲による高エネルギー粒子の遮蔽が十分でなく、固体水素ペレットの溶発がNGSモデルによる予測よりも促進される結果が得られており [9-12]、高エネルギー粒子による溶発を考慮した溶発モデルが提案され [10, 13, 14]、その妥当性が実験結果によって検証されている。

### 6.2.2 ペレット溶発プラズモイドの均質化過程

ペレットが溶発してペレット周囲に形成される中性の溶発雲は、プラズマからの熱流束によってさらに加熱され、

高密度の溶発プラズモイドを形成する。溶発プラズモイドは電離しているため磁力線に沿って広がり、背景プラズマへと均質化することによって粒子供給を行う。したがって、ペレットが溶発した磁気面上にペレット粒子が蓄積し、ペレット入射前後の密度分布の差から求められる実効的なペレット粒子供給分布はペレット溶発分布と一致することが期待される。しかしながら、高加熱入力した高温プラズマでは、溶発発光計測によるペレット溶発位置はNGSモデルによる予測で説明できるにも関わらず、実効粒子供給分布が浅くなり、粒子供給効率が低下することが実験的に明らかになっている [11, 15, 16]。この現象は、ペレットが溶発して形成される高密度の溶発プラズモイドが即座に低磁場側 (大半径外向き) へドリフトし、ペレット溶発位置から粒子が吐き出されているという作業仮説の下、ASDEX-Uupgradeにおいて高磁場側 (トーラス内側) からペレットを入射する実験が行われ、溶発プラズモイドが大半径外側に移動することによって、コア部へ粒子が供給されることが示された [17]。その後、多くのトカマク装置において、高磁場側からのペレット入射実験が行われ、溶発プラズモイドの低磁場側 (大半径外向き) へのドリフト輸送が検証されている [18-22] (詳細はレビュー論文 [4] を参照)。このような溶発プラズモイドのドリフト挙動を説明する物理機構として、 $\nabla B$  ドリフトモデル (図 2) が最も受け入れられている [23]。溶発プラズモイドの圧力を  $p_0$ 、背景プラズマの圧力を  $p_\infty$  とすると、トーラス効果による  $\nabla B$  ドリフトによって、溶発プラズモイド内で電子とイオンは上下反対方向に動き (荷電分離)、垂直電流  $j_{\nabla B} = 2(p_\infty - p_0)/RB$  が生じる。開回路条件下では電流  $j_{\nabla B}$  はイオン分極電流  $j_{pol} = (n_0 m_i / B^2) dE/dt$  によってキャンセルされる。但し、 $m_i$  はイオン質量、 $E$  は  $j_{\nabla B}$  によって生じる電場。このため、溶発プラズモイドはドリフト速度  $dv_d/dt = (dE/dt \times B)/B^2 = 2(p_\infty - p_0)/Rn_0 m_i$  で加速される。このモデルでは、溶発プラズモイドが磁力線に沿ってトーラス方向に広がると同時に低磁場側にドリフトするこ

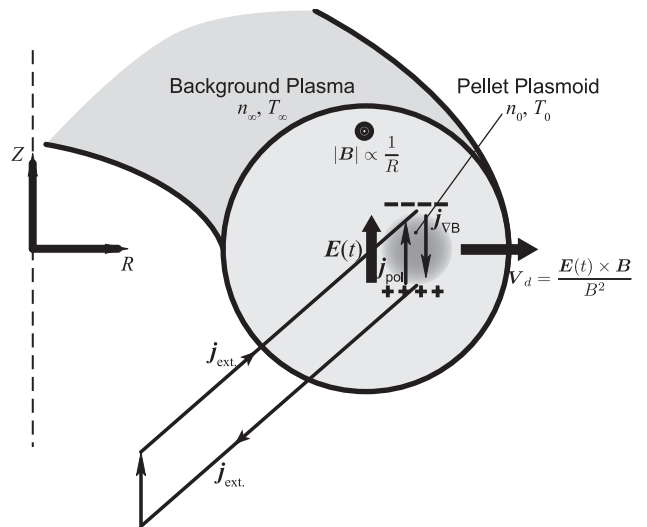


図 2 トーラスプラズマ中に形成された溶発プラズモイドのドリフト輸送機構の模式図。

とによって背景プラズマに均質化していき、 $p_{\infty} = p_0$  になるまで加速を受けることになるが、より正確にプラズモイドの均質化過程を記述するためには、プラズモイド加速の減衰を考慮する必要がある。プラズモイドがトーラス方向に広がると、閉じ込め磁場の回転変換によってプラズモイド内の電場と荷電分離の方向が変化し、プラズモイド内には荷電分離を補償する電流が流れ、電場を小さくすることに寄与し、プラズモイドの減衰に寄与する[24, 25]。さらに、荷電分離した溶発プラズモイドの正と負に帯電した部分に接続する磁力線がオーバーラップすることによって、プラズモイド外の磁力線に沿って流れる抵抗性電流による荷電分離の補償の重要性も指摘されている[26-28]。外部電流を考慮すると、垂直電流  $j_{\perp B}$  は分極電流  $j_p$  と外部電流  $j_{\text{ext}} = \sigma E$  の和でキャンセルされるので、溶発プラズモイドのドリフト速度  $v_d$  は

$$\frac{dv_d}{dt} = A \frac{2(n_0 T_0 - n_{\infty} T_{\infty})}{R n_0 m_0} - \frac{\sigma B^2}{m_0 n_0} v_d \quad (7)$$

で表される。ここで、右辺第1項(プラズモイドの加速項)乗じてある  $A < 1$  は内部電流による減衰、右辺第2項  $\sigma B^2 v_d / (m_0 n_0)$  は外部電流による減衰を表す。この外部電流は、磁力線の接続長が短くなる低次の有利面において大きなプラズモイドの減衰を引き起こす原因となり、実験によってもモデルの妥当性が検証されている[28, 29]。なお、トカマク装置では外部電流によるプラズモイド減衰が支配的であるが、ヘリカル装置では磁場構造の3次元性に起因して内部電流の影響が相対的に支配的になることが示されている[30]。

### 6.3 ペレット粒子供給素過程の分光診断

水素ペレット溶発雲は非常に強い光を放出する。この光の強度、特にバルマー  $\alpha$  線強度が水素原子の電離レートに比例するとみなし、その時間変化からプラズマへの粒子供給空間分布を見積もるという解析が従来行われてきた。しかしながら、電離レートが発光線強度にほぼ比例するとみなすことができるのは、プラズマが比較的密度の低い電離進行プラズマであるという条件を満たす場合であり[31, 32]、それを確認するためには溶発雲内にどのようなプラズマが生成しているのかを知る必要がある。

そのような目的には分光計測が有用である。溶発雲からの発光を分光計測して得られたスペクトルを図3に示す[33]。このスペクトルが示す注目すべき特徴は、顕著な線スペクトルの広がり、強い連続光である。前者は明らかに、高密度に起因するシュタルク広がりである。バルマー  $\alpha$  線とバルマー  $\beta$  線の広がりからそれぞれ電子密度を見積もると、バルマー  $\alpha$  線から求めた値の方が2倍程度大きい。発光線に自己吸収の影響がある場合、吸収係数はプロファイル中心の方が大きいため、見た目の広がりが大きくなる。バルマー  $\alpha$  線はバルマー  $\beta$  線よりも自己吸収の影響が大きいため、観測される広がりが真の広がりよりも大きくなっていることが後の解析により明らかとなった。自己吸収の影響が少ないバルマー  $\beta$  線のシュタルク広がりの大き

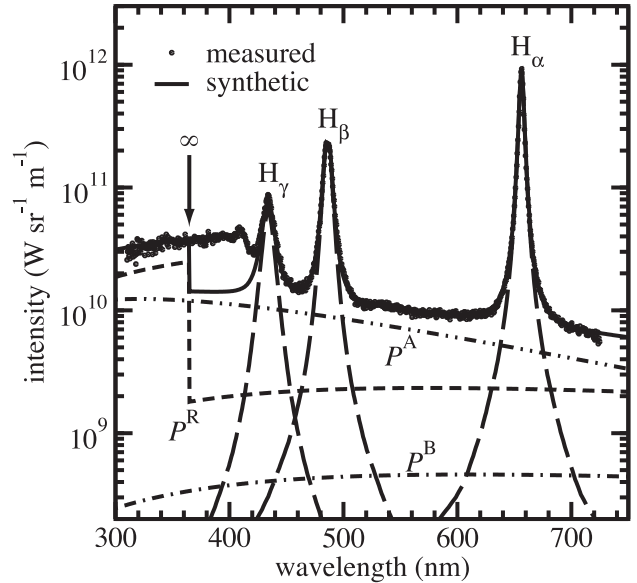


図3 観測されたスペクトルの例と完全局所熱平衡の下でのフィッティングの結果。線プロファイルには文献[34]のシュタルク広がりを与えられている。連続光成分  $P^A$ ,  $P^R$  および  $P^B$  はそれぞれ、輻射付着、輻射再結合に伴う成分および制動放射成分を示す。[33]より引用。

さから電子密度の値として  $2.1 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$  が得られた。

連続光については、輻射再結合に伴う発光や制動放射光では観測されるプロファイル(波長依存性)を再現できない。ここでは、水素原子に自由電子が付着し負イオンを生成する際に余剰エネルギーを光として放出する過程、輻射付着過程に伴うものが主な連続光の成分であることが見いだされた。輻射付着過程は光の吸収により負イオンから電子が剥がされる過程、つまり、光脱離過程の逆過程であり、光脱離断面積[35]から求められるそのスペクトルは電子温度に敏感である。溶発雲の観測で得られたスペクトルは電子温度 1 eV 程度でよく再現されることが明らかとなった。

以上の解析により電子密度と電子温度が求められた。電子密度が高いため、励起準位は局所熱平衡にあると予想される。その場合、励起準位  $p$  の占有密度  $n(p)$  は次のサハ・ボルツマンの式[32]で表されるはずである。

$$n(p) = p^2 \left( \frac{h^2}{2\pi m_e k T_e} \right)^{3/2} \exp\left( \frac{R}{p^2 k T_e} \right) n_e n_i \quad (8)$$

ここで、 $h$ ,  $k$  および  $R$  はそれぞれ、プランク定数、ボルツマン定数およびリュードベリ定数である。この式においてイオン密度、つまり陽子密度が未知であるが、今対象としているプラズマは純粋な水素のプラズマであるとして差し支えないであろうから、イオン密度は電子密度と等しいと置くことができる。その場合、式(8)から  $p = 4$  準位の密度を求め、バルマー  $\beta$  線の自然放出係数(アインシュタインの A 係数)および光子のエネルギーを乗ずれば、単位体積あたりの発光強度が求められる。この結果と計測値との比からプラズマの体積 ( $1.6 \times 10^{-5} \text{ m}^3$ ) が得られた。

一方、輻射付着過程に伴う連続光放射パワー  $\rho^A$  は光の振動数  $\nu$  の関数として次のように表される。

$$\rho^A(\nu) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{h^4}{m_e^{3/2} c^2} \frac{1}{2} \left( \frac{1}{kT_e} \right)^{3/2} \times \exp\left(-\frac{h\nu - \chi_H}{kT_e}\right) \sigma_{\text{det}}(\nu) \nu^3 n_H n_e. \quad (9)$$

ここで、 $\chi_H$  は負イオンの電子脱離エネルギー、 $\sigma_{\text{det}}(\nu)$  は負イオンの光脱離断面積、 $n_H$  は原子密度である。単位波長あたりの放射パワー  $P^A(\lambda)$  は次のように変換される。

$$P^A(\lambda) = \rho^A(\nu) \frac{\nu^2}{c}. \quad (10)$$

上で求めたプラズマ体積を乗ずれば観測される強度に等しくなるはずであり、計測値との比較により式(9)内で未知であった原子密度の値として  $1.7 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$  が求められた。サハ・ボルツマンの式を基底状態まで適用するとイオン密度と原子密度との比が得られる。これを上記の解析結果と比較するとよく一致する。このことは基底状態も含めた局所熱平衡、いわゆる完全局所熱平衡が成立していることを意味する。先に、プラズマ中で負イオンが生成されていることが示された。負イオン状態も原子との間に局所熱平衡が成立しているとする、負イオン密度はイオン密度の1%程度であり、プラズマ全体の電荷バランスに影響を与えるほどではないことが確認できる。

以上の解析により、電子密度(イオン密度)、電子温度、原子密度およびプラズマ体積が求められ、プラズマが完全局所熱平衡にあることも示された。その上でもう一度発光線強度と電離レートとの関係について考えてみる。上で述べたように発光線強度が電離レートにほぼ比例するのは電離進行プラズマの場合であり、実際のプラズマは電離と再結合がバランスする電離平衡プラズマであるため、そのような比例関係は仮定できない。実際には、電離と再結合がほぼバランスすることで上で求めた性質のプラズマが定常的に存在しているがほんのわずかに電離の方が優勢で、それは拡散等により背景プラズマ中へ流れ出す粒子を補っていると考えられる。今の計測では電離と再結合との差を検出できるほどの精度はないため、実際単位時間にどの程度の量の粒子がプラズマに供給されているのかを求めることは困難である。

当初の電離レートを精度よく求めるという目標は達成されていないが、溶発雲内で活発に原子過程が生じている領域のプラズマについて詳しい情報が得られた。とくに、完全局所熱平衡が成立しているという事実は、シミュレーションを行う上で原子過程についての取り扱いを簡略化することに大きく貢献するため重要である。また、溶発雲内部の空間構造を知るために進行中であるイメージ計測[36]においてもその威力を発揮している。

#### 6.4 ペレット入射技術

ここでは、固体水素ペレットをどのように生成し、プラズマ中に入射するのか簡単に説明する。コア粒子供給を実現するためには、ペレットのプラズマへの侵入長が十分に深い必要がある。固体水素のプラズマへの侵入長  $\lambda$  (m)は、

プラズマの小半径、温度、密度、ペレットの粒子数、入射速度をそれぞれ  $a$  (m)、 $T_e$  (keV)、 $n_e$  ( $10^{20} \text{ m}^{-3}$ )、 $m_p$  ( $10^{20} \text{ atoms}$ )、 $v_p$  (m/s) とすると、

$$\lambda/a = 0.079 T_e^{-5/9} n_e^{-1/9} m_p^{5/27} v_p^{1/3}, \quad (11)$$

でスケールされる[8]。ペレット侵入長を決める4つのパラメータのうち、ペレット入射条件として最適化可能なパラメータはペレット粒子数(サイズ)と入射速度であるが、ペレット粒子数はプラズマ密度の上昇に直接影響を及ぼし、ターゲットプラズマの条件から受動的に決まるパラメータであることを考慮すると、ペレット入射速度のみがペレット粒子供給特性を最適化するパラメータとなる。また、核融合炉での粒子供給を想定すると定常運転が重要であり、数Hz程度の繰り返し数で定常的に固体水素ペレットを入射し続けることが必要となる。

これまで、様々な方式のペレット入射装置が開発されて来たが[37]、最もコンベンショナルなペレット入射法は『その場生成ニューマチックパイプガン方式』である[38]。このペレット入射法は、バレル(ステンレス鋼製パイプ)の一部を固体水素三重点温度以下に冷却しておき、そこへ水素ガスを流すことによって、固体水素ペレットを生成する。その後、加速ガス(高圧の水素もしくはヘリウムガス)を印加することによって、膨張するガスの流れによってペレットを加速する。ペレットサイズはパイプの内径と冷却幅で固定され、冷凍部には可動部がないために、安定かつ信頼性の高いペレット入射が可能である。その一方で、ペレット射出後に次のペレットを生成するためには数10秒~1分程度の時間がかかるために、数Hzで連続入射を行うためには多くのバレルを並列に設置する必要がある[39]。また、ペレットの入射速度は加速ガスの音速に比例した値( $= 2\sqrt{\gamma kT/m}/(\gamma-1)$ )で制限されるために、到達可能なペレット入射速度は最大で $< 1.5 \text{ km/s}$ 、典型的には $1.0 \text{ km/s}$ 程度である。

核融合炉における定常ペレット粒子供給を可能とする定常固体水素ペレット生成法として、クライオシリンドラ方式の固体水素生成法がある[40]。この方法では、予め固体水素を冷却したクライオシリンドラ内で生成しておき、必要に応じてピストンで固体水素を押し出し・切断してペレットを形成するために、クライオシリンドラの容量分のペレットを連続生成することが可能である。特に、ピストンの代わりにスクリーを用いて固体水素を押し出す方式では、固体水素の生成と同時にガスの供給が可能のため、完全に定常的な固体水素ペレットの生成が可能である[41, 42]。ペレット加速方法としてはニューマチック加速方式と遠心加速方式のいずれとも組み合わせることが可能である。ニューマチック方式は先に述べた通り信頼性の高い射出が可能であるが、核融合炉への適用を想定すると、加速ガス処理が短所となる。遠心加速方式は高速で回転する回転体の遠心力を用いてペレットを加速する方式である[43]。高繰り返しで $1.0 \text{ km/s}$ のペレットを連続的に加速が可能であり、加速ガスを必要としない点が核融合炉を想定した場合の利点となっている。しかしながら、原理的に固体水素ペ

レットと高速回転する機器との接触があるために、ペレットの損傷が避けられず、射出の信頼性がニューマチック加速方式に比べて劣る。

$\nabla B$  ドリフトによる粒子供給特性改善を期待して、トーラス内側からのペレット入射を行う場合は、曲がったガイド管を利用してペレットをトーラス内側へ輸送する必要がある。ガイド管内壁とペレットの接触に伴うペレットの破損を避けるために、ペレット速度を抑制しなければならない。最大速度はガイド管途中にある屈曲部の半径等によって変わるが、おおよそ 0.3–0.5 km/s 程度であり [44, 45]、既存のペレット入射技術で到達可能なペレット速度よりも遅いために、既存のペレット加速方法で対応可能である。一方、核融合条件（大サイズ、高温）のプラズマでは、ペレットの溶発位置が相対的に浅くなり、既存の技術で容易に達成できる 1.0 km/s 程度のペレット入射速度では、プラズマ周辺部にしか粒子を供給できないため、燃焼プラズマの維持に必要な粒子供給ができない可能性がある [1]。さらに、浅い侵入長に起因して、 $\nabla B$  ドリフトによる粒子供給特性改善だけでは十分な粒子供給ができない可能性も指摘されている [46]。高速ペレット入射の必要性は核融合研究の初期から指摘されており、1980年代から高速ペレット入射技術に関する研究が行われていたが、前述の  $\nabla B$  ドリフトによる粒子供給特性改善の発見以降、技術開発のモチベーションは低下していた。しかしながら、核融合プラズマへの粒子供給を想定すると、やはり既存の技術を超えた高速ペレット入射が必要になるかもしれない。そのための方策として実績があるペレット加速法は、2段ガスガン方式である [47]。この加速原理はニューマチック加速を2段にしたもので、まず、ニューマチック加速で駆動したピストンでシリンダ内のガスを断熱圧縮して高温高圧の（すなわち、音速が速い）ガスを生成し、次に、その高温高圧のガスを加速ガスとして用いてペレットを加速する。最大 4 km/s までの原理実証実験が行われた実績がある [48]。さらに速いペレット入射速度が必要な場合、革新的な加速法が必要となる。その候補としては電磁飛翔体加速装置 (ElectroMagnetic Launcher; EML) のひとつであるルールガンが挙げられる。ルールガンはニューマチック加速のように到達速度を制限する要素がないために高速射出の可能性はあるものの、これまで実績がある速度は 8 km/s 程度である [49]。また、これまで固体水素を加速した実績は無く、加速時に働く応力による固体水素の破壊、レールの摩擦によって生じる不純物のプラズマへの混入、繰り返し射出特性、加速に要するエネルギー消費量など、明らかにしなければならないことが多く残されている。

## 6.5 まとめ

高温プラズマへの粒子供給をめざした固体水素ペレット入射の素過程となる、『固体水素の溶発過程』と『溶発プラズモイドの均質化過程』について説明を行った。高温プラズマ中における固体水素ペレットの溶発現象では、プラズマからの熱流束を担う電子やイオンは溶発雲（ペレットが溶発して周囲に形成される中性ガス）との衝突により遮

蔽され、固体水素表面に到達エネルギーは非常に小さくなる。そのため、固化温度が  $\sim -260^\circ\text{C}$  であり、昇華エネルギーがきわめて小さいにもかかわらず、プラズマからの大きな熱流束に曝されながらも、固体水素ペレットは比較的長い寿命 ( $\sim 1$  ms) を有する。そのため、高温プラズマ内部へ侵入し、粒子を供給することが可能である。このように、高温プラズマ中の固体水素ペレット溶発挙動は中性ガスによる遮蔽効果によって律速されている。さらに、溶発雲はプラズマからの熱流束によってさらに加熱し続けられ、高密度プラズモイドを形成し、閉じ込め磁場の影響を強く受けながら背景プラズマに均質化していく点は磁場閉じ込めプラズマによる固体水素ペレット溶発特有の現象と思われる。

## 参考文献

- [1] R. Sakamoto *et al.*, Nucl. Fusion **52**, 083006 (2012).
- [2] M. Nishikawa *et al.*, Fusion Eng. Des. **87**, 466 (2012).
- [3] S.L. Milora, Nucl. Fusion **35**, 657 (1995).
- [4] B. Pégourié, Plasma Phys. Control. Fusion **49**, R87 (2007).
- [5] P.B. Parks and R.J. Turnbull, Phys. Fluids **21**, 1735 (1978).
- [6] S.L. Milora and C.A. Foster, IEEE Transactions Plasma Sci. **6**, 578 (1978).
- [7] W.A. Houlberg *et al.*, Nucl. Fusion **32**, 1951 (1992).
- [8] L.R. Baylor *et al.*, Nucl. Fusion **37**, 127 (1997).
- [9] Y. Nakamura *et al.*, Nucl. Fusion **32**, 2229 (1992).
- [10] B. Pégourié *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **47**, 17 (2005).
- [11] R. Sakamoto *et al.*, Nucl. Fusion **41**, 381 (2001).
- [12] M. Hoshino *et al.*, Plasma Fusion Res. **1**, 033 (2006).
- [13] Y. Nakamura *et al.*, Nucl. Fusion **26**, 907 (1986).
- [14] B.V. Kuteev *et al.*, Nucl. Fusion **35**, 1167 (1995).
- [15] L.R. Baylor *et al.*, Nucl. Fusion **32**, 2177 (1992).
- [16] P.T. Lang *et al.*, Nucl. Fusion **36**, 1531 (1996).
- [17] P.T. Lang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 1487 (1997).
- [18] L.R. Baylor *et al.*, Fusion Technol. **34**, 425 (1998).
- [19] J. de Kloe *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 2685 (1999).
- [20] L.R. Baylor *et al.*, Phys. Plasmas **7**, 1878 (2000).
- [21] JET Team, Nucl. Fusion **41**, 1327 (2001).
- [22] L. Garzotti *et al.*, Nucl. Fusion **50**, 10 (2010).
- [23] V. Rozhansky *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **37**, 399 (1995).
- [24] V.A. Rozhansky *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **46**, 575 (2004).
- [25] I. Yu. Senichenkov *et al.*, Nucl. Fusion **46**, 788 (2006).
- [26] B. Pégourié *et al.*, Nucl. Fusion **47**, 44 (2007).
- [27] F. Köchl, "Modelling of Transport and Pellet Fuelling in ITER-relevant Plasmas" 2008 PhD Thesis, Vienna University of Technology.
- [28] N. Commaux *et al.*, Nucl. Fusion **50**, 025011 (2010).
- [29] R. Sakamoto *et al.*, Nucl. Fusion **53**, 063007 (2013).
- [30] A. Matsuyama *et al.*, Nucl. Fusion **52**, 123017 (2012).
- [31] M. Goto *et al.*, Phys. Plasmas **9**, 4316 (2002).
- [32] T. Fujimoto, *Plasma Spectroscopy* (Oxford University Press, Oxford, 2004).
- [33] M. Goto *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **49**, 1163 (2007).
- [34] C. Stehlé and R. Hutcheon, Astron. Astrophys. Suppl. Ser. **140**, 93 (1999).



- [35] A.W. Wishart, Mon. Not. R. Astron. Soc. **187**, 59 (1979).
- [36] G. Motojima *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **83**, 093506 (2012).
- [37] S.K. Combs, Rev. Sci. Instrum. **64**, 1679 (1993).
- [38] J. Lafferranderie *et al.*, Proc. 14th Symposium on Fusion Technology **2**, 1367 (1986).
- [39] M. Hoshino *et al.*, Fusion Eng. Des. **81**, 2655 (2006).
- [40] S.K. Combs *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **56**, 1173 (1985).
- [41] I. Viniar and S. V. Skoblikov, Instrum. Exp. Tech. **43**, 722 (2000).
- [42] R. Sakamoto and H. Yamada, Plasma Fusion Res. **4**, 002 (2009).
- [43] C. Andelfinger *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **64**, 983 (1993).
- [44] S.K. Combs *et al.*, Fusion Eng. Des. **58**, 343 (2001).
- [45] S.K. Combs *et al.*, Fusion Eng. Des. **75**, 691 (2005).
- [46] B. Pégourié *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **51**, 124023 (2009).
- [47] A. Reggiori *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. A **6**, 2556 (1988).
- [48] P. Kupschus *et al.*, Proceedings of the 16th Symposium on Fusion Technology **1**, 268 (1990).
- [49] A. Yamori, Bulletin of Institute of Space and Astronautical Science **117**, 1 (2001).



さか もと りゅう いち  
坂本 隆一

核融合科学研究所ヘリカル研究部准教授。LHDにおいて固体水素ペレット入射実験を行ってきた。最近は炉設計分野に踏み込み、核融合炉への燃料供給シナリオ構築に向けた研究やプラズマ壁相互作用に関する研究も進めている。



ご とう もと し  
後藤 基志

核融合科学研究所高温プラズマ物理研究系准教授，国立天文台ひので科学プロジェクト准教授併任。専門分野はプラズマ分光学。最近琵琶湖の近くに引っ越して田舎暮らしを満喫中。



## 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だから、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ふ。

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氏ら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なれば、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いて、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、データの挿入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ったため、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。

マイクロ-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と。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下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).



よねだひとき  
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。