小特集

新しい計測法で拡がる微粒子プラズマの世界

Expanding World of Complex Plasmas by Means of New Diagnostics

1. はじめに

1. Introduction

林 康明 HAYASHI Yasuaki 京都工芸繊維大学電気電子工学系 (原稿受付:2017年7月7日)

微粒子プラズマの研究は、古くは宇宙塵の地球からの観 測や理論を中心とした研究から始まっている.1980年前後 から、宇宙探査機ボイジャーが外惑星系からの映像を地球 に送るようになり、太陽系内での宇宙塵の挙動に関心が高 まってきた[1].一方、1980年台後半から、半導体集積回 路製造工程の薄膜作製・加工プラズマプロセスでの微粒子 発生による生産歩留り低下の問題が大きくなり[2]、応用 分野の研究者も多数参入するようになって、プラズマ中で 微粒子に働く力の解析が進められた.さらに1994年には、 プラズマ中で負帯電した微粒子が結晶状に配列する"クー ロン結晶"が世界の3ヵ所で独立に発見されてから[3]、 固体物理とも関連した基礎科学の分野における関心が急速 に高まった.

微粒子プラズマによるクーロン結晶は、"一成分プラズ マ"の強結合状態として、理論的には1986年に予測されて いる[4].白色矮星内部や金属結晶も強結合一成分プラズ マの例であるが、微粒子プラズマでは粒子の挙動を実験室 で直接観測できるところに研究上の魅力がある.強結合一 成分プラズマの系を理論と実験の両側面から確かめること により、白色矮星内部や金属結晶中のイオンの挙動につい ての理解も進む.

プラズマ中の一般的な荷電粒子,電子やイオンを直接的 に観察することは難しいが,大きな負イオンでもある微粒 子は,レーザーの散乱光からその位置を可視化することが できる.つまり,プラズマ中の荷電粒子の挙動をビデオ画 像から直接的に容易に解析することができ,クーロン結晶 が発見された後,相転移現象[5],カオス[6],ソリトン [7],臨界現象[8] など,微粒子プラズマを利用した基礎 的物理の解明をめざした研究が進められた.

ところで、イメージセンサを用いた画像解析技術の近年 の進歩は目覚ましい.1990年代はCCD(電荷結合デバイ ス)が主流であったが、2000年代に入り、CMOS(相補型金 属酸化膜半導体)を用いたイメージセンサが台頭してき て、高密度・高感度・低価格化が加速し、最近はスマート フォンでもきれいな動画が簡単に記録できるほどになって きた.CMOS イメージセンサは、周辺電子回路との相性も よく、CMOS の LSI 製造プロセスをそのまま流用できるた め、微細化・低消費電力化や量産が可能となる.一方、 CMOS イメージセンサの欠点である、ノイズや画素毎の感 度のばらつきの課題は、フォトダイオードの改良や周辺回 路の工夫で解決が図られた.また、2000年代に入って裏面 照射(BSI)技術が登場して配線層によるフォトダイオー ドに対する光遮蔽の問題が解決し、CCDに代わるイメージ センサとして民生用で広く利用されるようになってきた.

微粒子プラズマの研究において微粒子の観測に利用する イメージセンサはそれほど特別な感度は必要とせず,市販 のカメラでも十分な解析が行える.また,微粒子プラズマ の実験は小型で簡単な装置でも行え,さほどの困難もなく 始めることができる.しかし,これまでの微粒子プラズマ 研究の流れの上で展開していくためには,新しい発想とそ れに応じた装置の開発が必要である.

本小特集では、それぞれ特徴を持ち独自のアイデアに基 づいて実施された、微粒子プラズマの実験装置、計測・解 析方法に関する最近の研究をまとめている.2章は、バウ 衝撃波や非一様磁場中でシア流れを生成することを目的に 実験装置を製作し、レーザー光散乱により微粒子を観測し

Kyoto Institute of Technology, Kyoto, KYOTO 606-0962, Japan

author's e-mail: hayashiy@kit.ac.jp

て解析を行った結果である (齋藤和史, 宇都宮大学).3章 は、プラズマ中の微粒子が磁化する1テスラを超える強磁 場中で、微粒子の挙動を観測した結果が紹介される(E. Thomas Jr., Auburn University).4章は、薄膜で利用され ているエリプソメトリ(偏光の複素振幅の変化を解析)を 微粒子のレーザー光散乱に適用したミー散乱エリプソメト リの説明と、新しい計測法としてのイメージング・ミー散 乱エリプソメトリについて最近の実験結果が示される (林康明、京都工芸繊維大学).5章では、プラズマ中のナ ノ粒子の生成とその計測・解析法について、提案と実施例 が述べられる(L. Boufendi, University Orleans).最後の6 章では、微粒子プラズマの診断・解析法に関して、プラズ マ・メタマテリアルの概念や測定法を利用した新しい方法 が提案される(酒井道、滋賀県立大学).

本学会誌でも、ダスト(微粒子)プラズマをテーマとし た小特集は何度か企画されてきたが[9]、今回は、上記の ように、新しい発想による計測・観測・解析法および実験 方法を中心に、その研究成果をまとめている.

ダストプラズマの研究は、欧米では基礎的な研究が盛ん である.このような研究成果の発表の場となっている大き なダストプラズマの国際会議は International Conference on Physics of Dusty Plasmasで、1996年より3年ごとに開催 されている。第8回目が、本年5月にチェコのプラハでが 開催された.次回の第9回目は2020年で、モスクワでの開 催が決まっている。米国では、Workshop on the Physics of Dusty Plasmas が3年毎に開催されている.第14回目が 2015年にアラバマ州の Auburn 大学で実施され,第15回目 は2018年にメリーランド州ボルチモアで行われる予定であ る.日本でも,Workshop on Fine Particle Plasmas (微粒子 プラズマ研究会)が毎年,核融合科学研究所で開催されて おり,本年12月には第18回目が行われる.このように,微 粒子プラズマの研究は変わらず盛んであり,研究にたずさ わる者は,まだまだ新しい発見と展開があると考えてい る.新たな発想で,微粒子プラズマの分野だけにとどまる ことなく,基礎物理や応用物理を揺るがすような成果が将 来においてもたらされることを期待している.

参 考 文 献

- [1] C.K. Goertz, Rev. Geophys. 27, 271 (1989).
- [2] G.S. Selwyn, Jpn. J. Appl. Phys. 32, 3068 (1993); Y. Watanabe and M. Shiratani, Jpn. J. Appl. Phys. 32, 3074 (1993).
- [3] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. 33, L804 (1994); J. H. Chu and Lin I, Phys. Rev. Lett. 72, 4009 (1994);
 H. M. Thomas *et al.*, Phys. Rev. Lett. 73, 652 (1994).
- [4] H. Ikezi, Phys. Fluids. 29, 1764 (1986).
- [5] H. M. Thomas and G. E. Morfill, Nature 379, 806 (1996).
- [6] Lin I, W. Juan *et al.*, Science **272**, 1626 (1996).
- [7] T.E. Sheridan *et al.*, Phys. Plasmas 15, 073703 (2008).
- [8] H. Totsuji, J. Plasma Fusion Res. 82, 693 (2006).
- [9] 例えば, プラズマ・核融合学会誌 73,1220 (1997); プラ ズマ・核融合学会誌 78,293 (2002).

小特集 新しい計測法で拡がる微粒子プラズマの世界

ダイナミックに運動する微粒子の計測 2.

2. Measurements of Dust Particles in Dynamic Motion

齋藤和史 SAITOU Yoshifumi 宇都宮大学学術院 (原稿受付:2017年8月29日)

プラズマ中の µm サイズの帯電微粒子の運動は、可視光レーザーの散乱光を用いることによって直接肉眼に よって観測可能である.これは、レーザー光が微粒子によってミー散乱されることによる.ここでは、著者らの 行った微粒子流によるバウ衝撃波生成の観測,磁場との相互作用によるダイナミックな循環運動,軸対象磁場中 におけるシア回転等の実験を例に、レーザーの散乱光を用いた微粒子の計測の実際について述べる.

Keywords:

complex plasma, dust particle, laser light, Mie scattering, diagnostics, bow shock, dynamic circulation, magnetic field

2.1 はじめに

クーロン結晶として知られるプラズマ中における微粒子 の作る結晶構造の存在が1986年に Ikezi によって理論的に 予測され[1,2], 1994年にはHavashiら複数の研究者により ほぼ同時個別的に実験室において見出された[2,3].以来, 微粒子プラズマは微小重力下を含む世界各地で行われてい る.

微粒子プラズマの特徴の一つは, 可視光レーザーの散乱 光を用いて,電子やイオンに比べて桁違いに大きな質量を 持つ個々の微粒子の挙動を可視化できることにある.

そこで、我々がこれまでに行ってきた微粒子プラズマの いくつかの実験を例に[4-7],可視光レーザーを用いた微 粒子の計測の実際を中心に述べる.

2.2 可視光レーザーの微粒子による散乱

微粒子プラズマの最大の特徴は、個々の微粒子を肉眼で その場で観測できることにある. 微粒子プラズマの実験で は微粒子の振る舞いを可視化するために可視光レーザーが 用いられる.以前は赤色の半導体レーザーが用いられるこ とが多かったが、最近ではより視認性に優れた緑色半導体 レーザーの入手が比較的容易になったこともあり、赤色 レーザーに替わって用いられることも多い.実験に用いら れる微粒子の直径は数µm~数十µmの単分散球であるこ とが多いので、可視レーザー光の微粒子による散乱はミー 散乱の領域にあると考えられる(ミー散乱の詳細は本小特 集第4章や[8]等を参照).図1に,直径5µmの微粒子球 (屈折率=2.0を仮定)による赤色レーザー(波長 650 nm) と緑色レーザー(波長 532 nm)のミー散乱強度分 布を示す[9]. 直径5µm 程度の微粒子は, 我々の実験でよ く用いているものの一つである.

Utsunomiya University, Utsunomiya, TOCHIGI 321-8585, Japan

 $\frac{\mathrm{d}Q}{\mathrm{d}t} = \sum_{j} I_{j} = 0$

平衡状態における微粒子は.

ン電流をはじめ、微粒子に流れ込む、あるいは微粒子から 流れ出る,あらゆる種類の電流である.電流 Ii の内,電子 電流とイオン電流以外を無視できるとき,半径 a の微粒子 は.

を満たす電荷Qに帯電する.ただし, I; は電子電流やイオ

(1)



図1 粒径5µm, 屈折率2.0の球による, 波長532 nm (図中の黒 色線)の緑色レーザー光と650 nm (図中の灰色線)の赤色 - ザー光のミー散乱による相対強度の散乱角分布の計算 $\boldsymbol{\nu}$ 値.レーザー光は180度方向から0度方向に向かって入 射. 散乱角が0度の強度を1として、各角度における相対 強度を対数表示した.

author's e-mail: saitou@cc.utsunomiya-u.ac.jp

$$Q = Z_{\rm d} e = 4\pi\varepsilon_0 a\phi \quad (<0) \tag{2}$$

に帯電する[10,11]. ただし, e (< 0) は素電荷, ϵ_0 は真空の誘電率, λ_D はデバイ長, ϕ は微粒子の表面電位であり, $a \ll \lambda_D$ を仮定した. 我々の実験においては $Z_d \sim 10^4$ であると見積もられている.

微粒子はシース電場による静電気力と重力が釣り合う高 さに、ほぼ2次元的に分布する.そのため、微粒子を照射 するレーザー光を扇状に2次元的に拡げて用いることが一 般的である.それによって、2次元的に分布している微粒 子の層全体を広く一様に照射するのである.扇状に広げる ためにはシリンドリカル・レンズ等が用いられることもあ るが、我々の実験ではレーザー光の輝度分布が一様となる ラインジェネレータ・レンズを用いている.

扇状に広げられたレーザー光が個々の微粒子によって散 乱されるが,その散乱光を静止画や動画として記録するた めにカメラを用いている.カメラは,真空容器外に設置す ることが多い.レーザー光の入射方向とカメラの光軸の成 す角θは,微粒子の分布を歪なく記録するためにθ=90 度に近い角度が望ましいことが多い.覗き窓とレーザー入 射窓の位置関係等の装置による制約や,装置内でのレー ザー光の迷光による S/N 比の悪化を避けるため,可能な範 囲で望ましい位置関係に設置しているのが現状である.

未知の大きさの微粒子を用いたとき,あるいは,実験的 に微粒子の大きさを計測したい場合には,波長が既知の レーザー光の散乱光強度の角度分布を測定し,ミー散乱に よる散乱光強度の角度分布についての計算結果と比較する ことによって可能となる.ただし,計測可能な粒径がレー ザー光の波長によって制約を受ける.

以下の2.3~2.5節では、これまでの我々の実験的研究を 例に、可視光レーザーの散乱光を用いた微粒子計測の実例 を示す.すべての実験においてプラズマは数~数十Pa程度 のアルゴン・ガスに周波数が13.56 MHzで出力が数W程度 の radio frequency (rf)信号を印加して生成した. 典型的な プラズマ・パラメータは、電子密度 $n_e \sim 10^{14} \text{ m}^{-3}$ 、電子温 度 $T_e \sim$ 数eVであった.また、2.4節と2.5節においては、永 久磁石を用いている.実験装置の詳細等については、それ ぞれの実験に該当する文献を参照されたい.

2.3 バウ衝撃波形成実験

いわゆる衝撃波の形成については微粒子プラズマにおい てもこれまでにいくつか報告されている[12].水面を行く 船の舳先から出る船首波,地球磁場に吹き付ける太陽風 等々ではバウ衝撃波が形成されていることが知られている [13]. 微粒子プラズマの流れにおいて,流れ中に障害物を 置くことでバウ衝撃波を形成することができる[4].

地上実験における帯電微粒子は,接地された金属平板面 に形成されたプラズマ-シース境界にほぼ2次元的に浮揚 している.実験装置の途中には,接地された針状の導体障 害物を置く. 微粒子流がない場合には,障害物の周りには 微粒子が全く存在しないボイドが円形に形成される.実験 脚注† これらには「空騒ぎ」という意味がある由. 装置を傾けることにより、傾きに沿った重力の分力を利用 して微粒子に流れを与えることができる.この実験では、 幅約3 cm程度の流れを生成した.微粒子を障害物から十分 離れたところから流すことによって、障害物近傍では、中 性粒子との相互作用によってほぼ終端速度となっている.

ダスト音波速度に対して微粒子の流れの速さのマッハ数 がM = 0.8で亜音速の場合, **図2**(a)に示すように微粒子は ボイドの周りを層流状に流れているが, **図2**(b)と(c)のよ うにM > 1と超音速になると,上流側にバウ衝撃波が形成 されていることがわかる.このとき,**図2**(d)に示すよう に,高さ方向への微粒子の顕著な移動はなく,ほぼ同一の 2次元平面上で起きている現象であることがわかる.

この実験においては、扇状に薄く広げられたレーザー光 は、同一水平面に2次元的に浮揚して流れている微粒子 を、障害物の近傍において広く全体を照射するように、ガ ラス管の外側から照射している.カメラは、障害物のほぼ 直上に、金属板面の法線ベクトルと光軸とが、おおよそ一 致するように設置している.微粒子流の流域面積が広いた め、主となる観測領域を中心にレーザー光を照射してい る.流速が遅い場合には個々の微粒子が点状に、流速が早 い場合には速さと露光時間に応じた長さの線状に写ってい ることがわかる.

2.4 ダイナミックな循環の実験

カップに注いだ緑茶や紅茶に茶葉が混じることがあり, スプーン等で掻き回すと茶葉が中心部に集まってくる[7]. "tempest in a teacup"(あるいは"a storm in a teacup^{"脚注†}) とも呼ばれるこの現象については,アインシュタインの論 述[14]等も知られているが,流体力学のエクマン境界層と いう概念を使って説明できる.

微粒子プラズマに磁場を印加すると,磁場によって微粒



 図2 針状導体障害物の周りにおける微粒子流の様子.マッハ数 M=0.8 (a), 1.6 (b), 2.0 (c)の場合をそれぞれ上から見たもの.図中心やや左よりにある白い点が障害物である. 障害物の周りには微粒子の存在しないボイド領域が流線形状に広がっている.(d)はM=1.3のときに障害物の上流側を側面から見たものである.Ref.[4]のFig.3をAPSの許諾を受けて使用. 子集団が回転運動することが知られている.我々の研究に おいて,軸を鉛直にした直径約50mmのガラス管に,直径約50mm,表面磁場約0.3Tの永久磁石によって径方向に ほぼ一様な磁場を印加することで,微粒子が"tempest in a teacup"における茶葉によく似た運動をする現象を見出し た[5,7].

この場合の磁場は上向きであり,磁石の中心はガラス管 軸の中心と一致している.図3に示すように,印加する磁 場が6mTの場合には微粒子はガラス管の底面の外側付近 に集まっているが,0.12Tになると底面付近にほぼ一様に 分布し,さらに,0.15Tとなると分布に劇的な変化が生じ ることがわかる.すなわち,微粒子が全体的に厚みのある 円盤状に分布する.水平面において,微粒子はガラス管軸 の周りを反時計回り方向に循環している.ガラス管軸をほ ぼ通る子午面内において,底面付近では外から内側に向 かって,上側では内から外に向かって微粒子が循環運動を している.微粒子は噴出しながらも水平面内では反時計 回りの循環をしている.その一方で,微粒子の分布の最底 面の中心付近には,ほとんど動かない微粒子が点状に写っ ている.

ティーカップの中で掻き回された茶葉は,掻き回されて いる流体の運動のマーカーであるとみなせるが,ここでの 微粒子の循環における微粒子は,流体運動の単なるマー カーではない. 微粒子それ自体が運動の主役となってい る.

この実験においては、薄く扇状に広げたレーザー光の広 がりの方向が微粒子の分布の、ほぼ子午面と一致するよう に置いてその面における微粒子の運動を捉えている.カメ ラの光軸は子午面の法線ベクトルとできるだけ一致し、か つ、ガラス管面によるレーザー光の反射(図3(c)で縦に長 く伸びる5~6本程の縦の明るい線がガラス管面による反 射光である)が微粒子の分布と可能な限り重ならないよう に設置している.図3(c)においては、中心部から噴出して いる微粒子と周辺下部において循環している微粒子を明瞭



図3 径方向にほぼ一様な磁場中における微粒子の運動. ガラス 管底面付近の磁場が6mT(a),0.12T(b),0.15T(c)の場 合の、ほぼガラス管軸を通る子午面での運動を示す. 各図 底面の点線はガラス管の底面に相当する. Ref. [5]のFig.2 を APS の許諾を受けて使用.

にする必要があるため、微粒子密度の高い中心下部にある 個々の微粒子が分解されていないように見えるが、適度な 画像処理をすれば分解可能である.

2.5 非一様磁場中のシア流れ実験

流体中の非線形現象の一例として、テイラー・クエット 流の実験がある[15].同軸円筒の間に粘性の高い流体を入 れて内側と外側の円筒を、軸の周りでそれぞれ回転させる と、回転方向や回転速度に応じて流体が様々な構造を示す ことが知られている.

前節とは異なり,直径 5.5 mmの円筒形で表面磁場が 0.14 T の小さな永久磁石で実験領域に軸対称で非一様な磁 場を上向きにして印加した.磁石は,下部の接地電極の下 側,実験領域の中心に置かれている.このとき微粒子は, 水平面内においては図4(上)に示すように分布し,子午面 内においては図4(下)に示すように分布した[6].同一の 水平面内において,内側の境界に位置する微粒子は時計回 りに,外側の境界に位置する微粒子は反時計回りに循環し た.両境界に挟まれた微粒子は全体としては定まった軌道 運動をしていない.子午面における分布の形状こそ違え, この状況は,テイラー・クエット流を彷彿とさせるものが あると考える.両境界における循環運動の速度を制御でき れば,間に分布する微粒子に,水平面内あるいは子午面内 において非線形的な運動を惹起できるのではないかと期待 しているところである.

この実験においては、水平面における微粒子の運動を観 測する場合には扇状に薄く広げたレーザー光を水平に照射 し、子午面における微粒子の分布を観測する場合にはレー ザーの広がりが子午面と一致するように照射している.カ メラは、水平面の観測では装置の直上に置き、子午面の観



図4 軸対称で非一様な磁場を用いた際の,水平面(上)と子午 面(下)における微粒子の分布.分布の中心部にはボイド が形成されている.上側の水平面の分布において斜交して いる黒い線は、rfのパワー電極として用いている金属メッ シュである.Ref.[6]のFig.2(a)とFig.3の差し込みを一枚 の図に加工の上、AIPの許諾を受けて使用.

測では子午面をほぼ正面に見るように置いた.この場合に も、上面と側面のいずれの画像においても微粒子の速さと 露光時間に応じて個々の微粒子が明瞭に分解されて記録さ れていることがわかる.

2.6 まとめ

個々の粒子の運動を視覚的にリアル・タイムで捉えるこ とができる微粒子プラズマについて,実験的研究で従来か ら一般的に用いられてきた可視光レーザーの散乱光を用い る方法について,我々の実験結果を例として用いて述べ た. 微粒子プラズマの実験においては,これらの画像デー タとプローブ計測等から得られる情報,さらには,シミュ レーション結果との比較検討をする等して研究を行ってい る.

この計測方法は、出力が高々数十~100 mW 程度の半導 体レーザーを用いることで十分可能である.ミー散乱光の 強度分布も、我々の実験条件の範囲ではあまり角度に依存 せず、実験装置の制約がなければ自由に観測する方向を選 ぶことができる.また、少なくとも我々のこれまでの研究 においては、個々の微粒子を特定できれば良いため散乱光 の強度や偏光を計測する必要がなく、光軸などの細かな調 整もあまり必要ではない.さらに、低出力レーザー光の場 合には、質量の大きな帯電微粒子との相互作用を無視でき るので、対象に擾乱を与えることなく計測ができる.これ らの理由により、低出力レーザーの散乱光を用いた非接触 計測は微粒子プラズマ研究の発展に大いに寄与している.

一方, 微粒子の分布が2次元的に大きな広がりを持って いる場合や3次元的に分布している場合に,分布の全体像 を照射するには,特に低出力のレーザー光を用いている場 合には聊か心もとないこともなくはない.このような場合 には,扇状に広げた赤色,緑色,青色等の異なる波長の複 数のレーザー光を互いに平行に,あるいは互いに交差する ように設置するなどして用いることで,微粒子を立体的に 観測することも行われている.レーザー光ではなく大きな 照射面積を持つ高輝度のLEDを用いて微粒子集団を照射 し,観測することなども行われている.

ミー散乱は微粒子の粒径に依存して散乱強度が大きく変 わるため、散乱強度の角度分布から粒径の計測や推定に用 いることができる.その一方、装置のビュー・ポートと レーザー光源やカメラの位置関係で観測方向を制限される 場合も無きにしも非ずである.そのような場合には、鏡や 光ファイバーを用いるなどして極力死角をなくす努力がさ れている.

最近の研究動向として、微粒子の粒径がより小さなナノ 粒子を用いた研究(本小特集の第5章を参照されたい)や、 複数の粒径の微粒子を混合した研究[16] なども増えてき ており、新しい計測方法が求められている.

謝 辞

本章で例示した研究成果のほとんどは著者一人で成し得 たものではありません.ここに、ご指導いただいた先生方 に深く謝意を表します:バウ衝撃波に関する実験は横浜国 立大学石原修教授(現,中部大学学長),名城大学上村鉃雄 教授(核融合科学研究所名誉教授),横浜国立大学中村良 治先生(当時)との共同研究成果を基にしたものであり(以 下、僭越ながら既出の方の所属と敬称は基本的に省略させ ていただきます),成果の一部は AOARD (No.104158,代 表·石原),科研費基盤(A)(No.23244110,代表・京都工 芸繊維大学・林康明教授,分担・齋藤他),科研費挑戦的 萌芽 (No.24654188, 代表・齋藤) によって得られたもので す. また, 微粒子のダイナミックな循環に関する実験は石 原教授との共同研究成果を基にしたものであり、成果の一 部は AOARD (No.FA2386-12-1-4077, 代表・石原), 科研 費基盤(A)(No.24244094,代表·林,分担·齋藤他),科 研費挑戦的萌芽(No.24654188,代表・齋藤)によって得ら れたものです. さらに, 非一様磁場に関する成果の一部は JSPS 科研費基盤(A) (No.24244094, 代表・林, 分担・齋藤 他) によって得られたものです.

最後に、本稿の執筆を強く御勧めくださった会誌編集委 員の先生に厚く御礼申し上げます.

参考文献

- [1] H. Ikezi, Phys. Fluids **29**, 1764 (1986).
- [2] 足立 聡 他: J. Plasma Fusion Res. 83, 130 (2007).
- [3] 例えば Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. 33, L804 (1994) や H. Thomas *et al.*, Phys. Rev. Lett., 73, 652 (1994)など.
- [4] Y. Saitou et al., Phys. Rev. Lett. 108, 065004 (2012).
- [5] Y. Saitou and O. Ishihara, Phys. Rev. Lett. 111, 185003 (2013).
- [6] Y. Saitou, Phys. Plasmas 23, 013709 (2016).
- [7] Y. Saitou and O. Ishihara, J. Plasma Phys. 80, 869 (2014).
- [8] G. Mie, Ann. Phys. 25, 377 (1908).
- [9] サイバネットシステム(株)、「Maple コンテンツ」から ミー散乱 http://www.cybernet.co.jp/maple/tech/engineering/050_Mie1.html#MapleAutoBookmark1 以下で 公開されているコードを著者の責任において改変して 使用.
- [10] 石原 修:プラズマ物理科学 (電気書院, 2014) pp. 241-245.
- [11] Y. Nakamura and O. Ishihara, Phys. Plasmas 16, 043704 (2009).
- [12] 例えば A. Melzer et al., Phys. Rev. E 62, 4162 (2000).
- [13] 例えば岡 光夫: J. Plasma Fusion Res. 90, 687 (2014).
- [14] A. Einstein, Naturewissenschaften 14, 223 (1926).
- [15] 例えば C.D. Andereck *et al.*, J. Fluid Mech. 164, 155 (1989).
- [16] 例 え ば F. Wieben and D. Block, Abst. 8th Intern. Conf. Phys. Dusty Plasmas, p. 71 (Prague, 2017).

小特集 新しい計測法で拡がる微粒子プラズマの世界 3. 磁化された微粒子プラズマ実験における粒子輸送のモデル化

3. Modeling of Particle Transport in the Magnetized Dusty Plasma Experiment

THOMAS Edward, Jr.

Physics Department, Auburn University, U.S.A. (原稿受付:2017年8月29日)

10年以上の間、磁場の印加は微粒子プラズマの特性に大きく影響し得るとされ、強磁場中における微粒子プ ラズマの物理を探る実験装置がいくつか造られた.2年以上前,オーバーン大学の MDPX 装置は強磁化プラズマ 中の微粒子プラズマを探る最新設備となった. 最近の実験で, 1.5 T より強磁場では微粒子が境界における金網の 空間構造と同一のパターンを形成し得ることが示された. 強制的秩序構造中における半離散的な粒子運動の観測 と定性的に一致する数値シミュレーション結果を議論する.(抄訳)

Keywords:

magnetized dusty plasma, complex plasma, transport

3.1 はじめに

微粒子プラズマは、電子、イオン、中性粒子、そして帯 電した固体の「ダスト」粒子から成る4成分のプラズマ系 である. 典型的な実験室実験の場合, 微粒子の大きさは, 直径で0.5から10 µmの範囲となり得る. 微粒子プラズマの 鍵となる特徴は、周りを取り囲むプラズマから電子やイオ ンによって微粒子が正味の電荷を獲得することである.こ の正味の電荷q_dは典型的には負であり,素電荷の数百から 数千倍となり得る.しかしながら、微粒子の質量が電子や イオンに比べて大きいため、ミクロンサイズの微粒子の電 荷質量比は、電子の電荷質量比に対して相対的に10-11か ら10-12倍となり得る.

過去30年間の微粒子プラズマ研究に関して、プラズマ中 の微粒子に対する磁場の影響を調べることを企図した装置 はほんのわずかしかない.これは、微粒子の電荷質量比の 小ささが一つの重要な理由である.系の磁化の程度を記述 するために、サイクロトロン周波数と衝突周波数の比とし て定義されるホールパラメータが多くの場合、用いられる [1, 2].

微粒子プラズマに関しては, ホールパラメータは次式で 与えられる:

$$H = \frac{\omega_{\rm cd}}{\nu_{\rm nd}} = \frac{q_{\rm d}B}{m_{\rm d}} \left(\frac{3m_{\rm d}}{4\gamma\pi m_{\rm n}v_{\rm tn}Na^2}\right) \sim \frac{q_{\rm d}B}{Na^2} \sim \frac{B}{aP} \qquad (1)$$

ここに、w_{cd}は微粒子の電荷と磁場の積を微粒子の質量 m_dで割ったものとして与えられるダストサイクロトロン 周波数である. ν_{nd}は、イプシュタインドラッグ—中性ガス 中を動く球体に働くドラッグ力-から導かれる、幾何学因

子γ~1を含んだ微粒子-中性粒子の衝突周波数であり、 中性原子の質量 mn,中性原子の速度 vn,中性ガスの数密 度N, 微粒子の半径a, 微粒子の質量m_d である. 微粒子は 球形のコンデンサとして働く電気的に浮いた物体で、それ 故, 微粒子の電荷は $q_d = 4\pi\epsilon_0 a \varphi$ と微粒子の半径に比例す る. ただし、 ϵ_0 は自由空間の誘電率、 φ は微粒子の表面電 位である.中性ガスの数密度Nは中性ガスの圧力Pに正比 例するので,ホールパラメータは,磁場,微粒子半径,中 性ガスのという3つの実験パラメータに変更され得る.

微粒子プラズマにおいて磁場の効果を観測するために は, 強磁場, 小さい微粒子, 低い中性ガス圧力を組み合わ せて行う実験である必要があることが結論付けられる. ミ クロンサイズの粒子を直接的に視覚化する可能性を維持す るためには、ホールパラメータ基準は、 圧力 P < 10 Pa に対 して磁場 B≥1T で実験を行うことを要求している.これ は、実験的に挑戦し甲斐のあるレジームであり、プラズマ と微粒子プラズマを特徴づける新しい診断手法に加えて, 多くの場合,超伝導磁場のシステムの開発が必要とされ る.過去10年以上に渡って微粒子プラズマが磁場によって 如何に影響を受けるのかを理解しようと努力された実験と しては、日本[3]、ロシア[4]、ドイツのマックス・プランク 研究所[5]とキール大学[6,7]以外にはほとんどない.

本研究では,最近稼働を始めた米国のMagnetizedDusty Plasma Experiment (MDPX) 装置から得られた実験結果 の解析が紹介される. MDPX 装置を用いた, 強磁場中のプ ラズマで形成される新しいタイプの強制的秩序構造の観測 についての最近の研究が報告される. この構造の一つの特 徴は、この秩序構造を通じて微粒子の運動が準離散的で階

Physics Department, Auburn University, Auburn, Alabama, U.S.A.

author's e-mail: etjr@auburn.edu

原文(英文)は http://www.jspf.or.jp/Journal/PDF_JSPF/jspf2017_12/jspf2017_12-586en.pdf で公開されている.

段状であることである[8].本章では、この階段状の運動 を模擬するために、単一粒子の粒子シミュレーションが開 発される.モデルと実験的観測が、定性的に良く一致する ことが示される.この研究は、本章の最後で述べる、より 複雑な多粒子モデルの開発を動機付けるものである.

本章の構成は次の通りである. 3.2節では, MDPX 装置 と実験のセットアップについて述べる. 3.3節では, モデル と数値計算結果について述べる.最後に3.4節では, 結果に ついての簡単な議論と将来計画を述べる.

3.2 MDPX 装置

MDPX 装置は,磁化プラズマ中と,これまでの磁化微粒 子実験の設計と経験に基づいた,磁化微粒子プラズマ中に おける帯電微粒子の物理を研究するために建設された最新 の施設である.MDPX 装置は適応性に富む強磁場研究機器 であり,微粒子プラズマ研究コミュニティと基礎プラズマ 研究コミュニティのために,オープンアクセスのマルチ ユーザ施設としての機能を果たす役目がある.MDPX 装置 は2つの主要な構成要素から成る:(a)磁場を生成するた めに使われる超伝導コイル系と(b)マグネットの中に挿入 され,プラズマ実験に使われる八角形の真空容器である. MDPX 装置の簡単な纏めは以下で与えられる.装置の,よ り広範な説明は以前の論文で与えられている[9,10].

マグネットには「開放ボア」設計思想が使われていて, 19 cm の空隙で上下に分離されたクライオスタット部と, 軸方向に 157 cm の広がりを持った,中心部に直径 50 cm の冷却されていないボアとがある. クライオスタットは, 上半分に2つと下半分に2つの合計で4つの超伝導コイル を含んでいる.コイルは独立に制御できるので、磁場配位 は、高い一様性を持つモードから2T/mの線形勾配を持つ モードを含む、いくつかの形状で運用することができる. クライオスタット全体は回転支持台に取り付けられてお り,重力場と磁場が一直線上にある場合(すなわち g || B) から重力場と磁場が互いに直交する向きの場合(すなわち $\vec{g} \perp \vec{B}$)までの配置での実験を可能にしている。開放ボア構 想は,稼働時に実験者がマグネットの中心部分に対して, 径方向からも軸方向からもアクセスできること、それに よって最大限の診断時のアクセスができることを意味す る.

真空容器の主要部は八角形構造をしており,高さ 127 mm×幅102 mmの大きさの,プラズマへのアクセス ポートを四組備えている.真空容器の内径は356 mm,外 径は432 mmで,内側(軸方向)の高さは178 mmである. 直径342 mmの一組の平行平板電極を用い,13.56 MHz で 出力10 W までの高周波(rf)加熱電力で容量結合プラズマ が生成される.とはいえ,実験に依るが,一つの電極で電 力を供給し,もう一つの電極を接地ないしは電気的に浮か せた状態にして,典型的には1から3 W の高周波を印加し て行っている.下部電極は幅が150 mmであり,微粒子を 閉じ込めるために中心部に深さ3.2 mmの窪みがある.上 部電極には,プラズマが見えるように146 mmの貫通孔が ある.この貫通孔は,ほとんどの場合には織金網かITO (酸化インジウムスズ: Indium Tin Oxide) でコーティング されたガラス板で覆われている.

本論文で説明される実験は、 $g \parallel \vec{B}$ 配置の一様磁場を使用した.下部電極には 1.5 から 2.0 W の rf 電力が供給され、中心部の孔が金網で覆われた上部電極は電気的に浮いていた.2 つの電極は62 mm隔てられており、直径~2.0 ミクロンの微粒子の微粒子プラズマは、下部電極の上 20 mm に浮遊していた.アルゴンプラズマが生成され、中性ガスの圧力が $P = 18 \operatorname{Pa}(135 \operatorname{mTor})$ のとき、($B = 0 \operatorname{T}$ で微粒子がない場合の)イオンと電子の最大密度は $n_i \approx n_e \sim 8 \times 10^{15} \operatorname{m}^{-3}$ であり、電子温度は $T_e \sim 2 \operatorname{eV}$ であった.電極配置の概略図は図1に示されている.

ここで観測されたことの一つは、磁場が $|B| \ge 1.5$ Tで実験が行われたときの、浮遊する微粒子における秩序構造の 形成であり、それは金網と同一の空間構造をしていた.こ れが測定されたことは大変な驚きであった.なぜなら、微 粒子は上部電極の下~40 mm に浮遊していたからであ る.この距離は、以下を含む多くのプラズマの特性長より もかなり大きいからである:デバイ長(~0.3 mm)、イオ ン-中性粒子衝突の平均自由行程(~1 mm)や電子-中性 粒子衝突の平均自由行程(~10 mm).それにもかかわら ず、B = 2.5 Tにおいて、図2(a)の単一フレームで示されて いるように、微粒子の空間配置は微粒子雲が広がっている 領域に渡って相当に一様である.

図2(b)は、粒子の運動を明らかにするために毎秒1007 レームで記録された像100枚の和を表している.大多数の 粒子が空間に固定されている一方で、黒枠で囲まれた領域 の粒子のように、少数の粒子は動いている.矢印で示され



図1 MDPX セットアップの概念図と写真.上部電極と下部電極 は金網の位置として示されている.微粒子は下部電極の上 方に単層で浮かぶ.本研究で議論される実験に関しては、 電極間の間隔は62 mmであった.画像は上端のカメラで記 録された.





図2 (a)プラズマ中に浮いている粒子が規則的な秩序構造を形成したことを示す単一フレームの画像。(b)100枚のビデオフレームを組み合わせた最大強度から成る合成画像。矢印付きの黒枠は、右から左に動いている粒子の位置を示している。矢印は、運動中に粒子が停止する輝点を指している。粒子は運動中に常に停止するわけではないことに注意する。画像の左側では、粒子は下側に動いている。

ている輝点は,粒子の運動が一つの固定点から別の固定点 へと階段状であり,粒子の運動が束の間,停まる場所であ る.図3は単一粒子の運動を計測したものである.粒子は 一つの固定点から別の固定点へ急に動き,少しの間,固定 点に捕捉されたままとなることがわかる.これは,右から 左へ(x方向に)ドリフトしている粒子である.本論文でモ デル化されるのは,将にこのタイプの運動である.

3.3 準離散的な粒子運動のモデル

強制的秩序構造(すなわち, 微粒子格子)をもたらす詳 細なメカニズムは依然として不明確であるが, 粒子の運動 が模擬されて実験による計測と比較される,そのような数 値モデルを開発することはそれでも可能である.いくつか の自由パラメータはあるものの,モデルはMDPXや他の強 磁場微粒子プラズマ実験でなされた観測を指針とする.

3.3.1 モデルの開発

モデルの開発に関しては6つの主要基準が考慮される.

- 1) 粒子の運動は x-y 平面内に制限される; すなわち, 模 擬される粒子は重力と鉛直に釣り合っており, 一定の 電荷をもつ;
- 2) 粒子は, MDPX 装置の実験での幾何学配置と一致する ように, z 方向(紙面に垂直で重力場と平行)を向いた 一様磁場中に置かれる;
- 8)格子の構造は局所的な2次元のポテンシャル井戸としてモデル化される;
- 4) 粒子は、微粒子プラズマで広く用いられているもので あり、以前の論文で説明されているイプシュタインの ドラッグ力に基づいた中性粒子のドラッグ力を受ける [11-14];
- 5) 粒子は, MDPX[15]や他の磁化微粒子プラズマ実験 [3,16,17]で観測されているように, イオンの *E*×*B* ドリフトによって駆動される, 方位角方向の回転を受 ける;
- 6) 粒子は有限のキネティック温度を持つことが許される;

上記に関して,基準1)と2)はモデルのジオメトリーを 確立する.基準3)から,格子捕捉ポテンシャルの関数形が 作られ,それは次の(2)式で与えられる:

$$\varphi_{\text{trap}}(x, y) = A \left\{ \exp\left[\frac{\cos\left(k_{\text{grid}}x\right)}{\sigma}\right] + \exp\left[\frac{\cos\left(k_{\text{grid}}y\right)}{\sigma}\right] \right\}$$
(2)

A, σ , k_{grid} の値は2つの基準を満たすように選ばれる: (a)ポテンシャル井戸の深さは $\varphi \sim 2 \text{ mV}$ (すなわち, Ref. [8] の**図9**に示されている有効ポテンシャルの,およそ5 倍大きい)および, (b) L_{grid} を金網の線の中心から中心の 間隔として $k_{grid} = 2\pi/L_{grid}$. 粒子に働く電気的な力はこのと き次式から計算される: $\vec{F}_{elec} = -q_d \nabla \varphi_{trap}$.水平(x)方向 に沿った捕捉ポテンシャルのモデルは**図4**に示されてい る.

基準5)に関しては、イオンのドラッグ力として(3)式 で与えられる関数形が用いられる.この形は、イオンから 微粒子への運動量輸送を模擬するため、方位角方向(¢を 単位ベクトルとして)における **その場その場**の力を規定



図3 プラズマ中を準離散的に階段状に運動している単一粒子に 関する粒子位置の画像.図2にあるように、輝点は粒子の 運動がほとんど停止する位置である.最も明るいピークの 間隔は金網の空間構造と一致している.



図5 プラズマ中を運動する際の粒子が階段状の運動を示している単一粒子シミュレーションからの出力. 粒子は (x/Lgrid, y/Lgrid) = (8, 2)から出発し、大まかには反時計回り に動いている.

するために選択される.

$$\vec{F}_{\rm rot} = \alpha \frac{r}{r_{\rm C}} \hat{\varphi} \tag{3}$$

ここに、 α は循環している微粒子の運動エネルギーから 見積もられる力の強さであり、有効力を定義するために循 環の半径で割り算されている.シミュレーションでは $\alpha = 8 \times 10^{-16}$ N である.シミュレーションでは、r はシミュ レーション領域の中心(x, y) = (0, 0) から測られており、 $r_{\rm C}$ は回転の減衰に関するスケーリングパラメータで $6L_{\rm grid}$ に 設定されている.

基準6)に関しては、各時間ステップにおいて熱的分布 の効果を模擬するため、微粒子には追加的にランダムな速 度が与えられる.この速度は、シミュレーションにおいて 固定された粒子の速度分布が Ref.[8]の図7に示されてい る速度分布と同等となるように、Gauss型ノイズ分布関数 から選ばれる.シミュレーションで用いるパラメータの纏 めが表1に与えられている.



図6 微粒子の電荷の関数としての準離散的階段状運動の比較. 各線は実行回数が100回のシミュレーションを表す.各曲線における個々のピークは、粒子が一つ以上のステップを作った特徴的な結果が得られたシミュレーションが実行されたことを意味している.q=q0における平らな線は、粒子が常に捕捉されていることを意味している.粒子の電荷の減少に伴って静電捕捉の強さが減少し、粒子がより閉じ込められなくなっている.



図7 (a) [シミュレーション]3連続のステップに関する粒子のトラジェクトリを示すプロット.(b) [シミュレーション]空間位置の関数としての出力された粒子の速度のプロット.(c) [シミュレーション] 「カメラ」のサンプリングレートである Δt=0.01 sを用いて再加工された速度対位置のプロット.(d) [実験] プラズマ中の直径2ミクロンの粒子に関する速度対位置のプロット.

表1 MPDZにおける粒子運動のモデルで用いられたパラメータ.

粒子パラメータ:											
直径, 2a	2.0 μm										
電荷, $q_{\rm d}$	5200 e										
質量, <i>m</i> _d	$9.2 \times 10^{-15} \text{ kg}$										
フラスマパラメータ:											
電子温度, <i>T</i> e	3 eV										
イオン温度, T _i	1/40 eV										
プラズマの数密度, n	$3 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$										
ガス種,	Argon										
中性圧力, P	3.3 Pa (100 mTorr)										
モデルパラメータ:											
格子間隔, L _{grid}	0.84 mm										
磁場, B	2.0 T										
幅パラメータ, σ	0.3 m/s										
振幅, A	$6 \times 10^{-5} \mathrm{V}$										
循環パラメータ,α	$8\!\times\!10^{-16}\mathrm{N}$										

単一粒子の運動はニュートンソルバーで模擬される. 粒 子は短い時間ステップ,すなわち *Δt*~1 µsec.,に渡って一 定の加速度で動くことが仮定されている.上記で定義され た基準を用いれば,一般化された運動方程式である(4)式 は,磁場中の粒子の動力学を決めるように解くことができ る.このシミュレーションにおいて興味を持っている粒子 は直径 2 マイクロメータのシリカであるので最後の項は他 の項に比べて小さく,そのため,直接的な磁場の効果(例 えばジャイロ運動)がこのシミュレーションにおいて観測 されることは期待されないことに注意する.

$$\vec{F} = m_{\rm d} \frac{d\vec{v}_{\rm d}}{dt} = \vec{F}_{\rm cirl} + \vec{F}_{\rm neutral-drag} + q_{\rm d} \vec{E}_{\rm trap} + q_{\rm d} \vec{v}_{\rm d} \times \vec{B}$$
(4)

3.3.2 モデルから得られた結果

3つの異なるケースについてのシミュレーション結果が 示される.最初のケースは**図5**に示されているが,単一粒 子に関するシミュレーションで,10秒のシミュレーション 時間の間に観測された階段状の運動の一例である.この場 合,粒子は位置(x/L_{grid} , y/L_{grid})=(8,2)から出発する.粒子 は間もなくこの初期位置から動き,様々な整数格子点,例 えば等の位置で短い間「捕捉」される.この結果は,**図2** (b)で見られた粒子の運動と一般に矛盾しない.これらの 結果は,プラズマ中における粒子の一般の循環運動をも示 している.

最近のMDPX装置での研究から,通例の軌道運動制限電 荷モデルで見積もられるよりも,微粒子の電荷が低いかも しれないことが示されている[18,19].したがって,微粒子 の電荷の変化の仕方が,微粒子の階段状の運動にどのよう に影響を及ぼし得るのかを理解することに関心があった. この場合,微粒子の電荷を変えた400回の異なるシミュ レーションを実行することで比較を行える.各シミュレー ションでは粒子は同じ開始位置にあるが,初速度はガウス 分布からランダムに取得される.各シミュレーションは, シミュレーション時間で4秒間実行され,循環力は用いら れない.図6に示されている結果では、曲線の各「ピーク」 は、実行したシミュレーションの内、粒子が開始位置から 階段状に移動したものを表している.粒子の電荷が減少す るにつれて、移動する粒子の数が大いに増加していること が示されている.実験と比べた場合、図2(b)で観測され ているように、粒子雲のいくつかの部分には固定された粒 子が(ほとんどは中心部分であるが)あり、その一方で、雲 の外側の部分では粒子が動いている.

シミュレーションでは、粒子が浮いている領域のいたる ところでプラズマ条件は一様であると仮定している.格子 構造のスケールサイズが L_{gdir} =0.84 mm と小さい上に、強 磁場でのプラズマを診断するという難しい課題であること も併せて、プラズマパラメータを計測することは困難であ る.しかしながら、もしプラズマパラメータに何らかの空 間変化があるならば、それは粒子の電荷の変化を引き起こ すかもしれない.したがって、シミュレーション結果は、 粒子の電荷がどのように変えられているのであろうかとい うことを考える指針を与えるかもしれない.

最後のシミュレーション結果は, 粒子の階段状の運動に ついての,実験とシミュレーションの定性的な比較であ る. 図7は粒子の水平運動の拡大図である. 図7(a)には、 粒子のx-yトラジェクトリが示されている. 粒子は右から 左へ動いており, x_{norm} = x/L_{gdir} =3, 2, 1 近傍で止まってい ることが示されている.これは、図3に描かれた粒子のト ラジェクトリと似ている. 図7(b)は、水平位置の関数と しての粒子速度について、シミュレーションからの直接的 な出力である.しかしながら、この方法は実験と比較する には最善ではないと判定された.なぜなら、実験データは 毎秒100フレームで記録され、位置に対する速度を得るた めに5箇所に渡った移動平均が用いられているからであ る. したがって、実験とシミュレーションを比較するため には、シミュレーションのデータは0.01秒毎に(すなわち、 100 Hz で) 再度サンプルし直され, 位置決めは実験データ と同じアルゴリズムを用いた速度を計算するために利用さ れる.これは図7(c)に示されており、この図が、図7(d) に示されている同等の実験の図と比較されるべきものであ る.

3.4 議論

実験データとシミュレーションデータの直接的に定量的 な比較はまだできないが、二つの結果が多くの類似性を共 有していることや、MDPX装置における微粒子の挙動に何 らかの洞察を与え得ることは既に明らかである.まず、シ ミュレーションは、実験と類似した定性的結果を与え得る モデルを構築することが可能であることをはっきりと示し ている.これらの結果は、粒子の循環についての自己無撞 着な説明がないという事実によって制限されているもので はあるものの、粒子捕捉に関してポテンシャル井戸の周期 構造を用いることは、まったく合理的であると思われる. 確かに、これらのポテンシャル構造が如何にしてプラズマ 中で形成されるのかを、完全に説明し理解するためには、 さらなる理論的な進展が必要であることは明らかである. 二番目に重要な結果は,観測されたダイナミクスを決定 する際に粒子の電荷の果たし得る役割である.3.3節で述 べたように, 微粒子の電荷がこれまで予測されてきていた ものよりも小さいかもしれないという証拠が増えつつあ る. 捕捉ポテンシャルは粒子に電気的な力を生じさせるの で,電荷が減少するにつれて粒子の閉じ込め効果が少なく なることは驚くべきことではない.

本研究を継続するには、より堅牢で多粒子を用いた取り 組みが必要とされる.この初期研究は捕捉ポテンシャルの 形成がより高度なモデルのために合理的な出発点であるこ とを実証している.次のステップは、捕捉行動における粒 子間相互作用の役割について調べることを実行するため に、捕捉ポテンシャル構造を我々の研究室の分子動力学 コード[20]で具体化することである.けれども本研究は、 MDPX 装置における粒子のダイナミクスを理解する試み に対して将に良い出発点を与えている.

謝 辞

本研究は米国エネルギー省(DE-SC0016330)と米国国立 科学財団(NSF-1613087)からの研究助成金によって支援 されている.著者は全てのMDPX研究チームからの支援に 対して謝意を表します.

(翻訳:齋藤和史)

参考文献

- [1] J. Carstensen et al., Phys. Rev. Lett. 109, 135001 (2012).
- [2] E. Thomas Jr. et al., J. Plasma Phys. 80, 803 (2014).
- [3] N. Sato et al., Phys. Plasmas 8, 1786 (2001).
- [4] M. M. Vasil'ev et al., J. Exp. Theo. Phys. Lett. 86, 358 (2007).
- [5] M. Schwabe et al., Phys. Rev. Lett. 106, 215004 (2011).
- [6] S. Knist et al., Contrib. Plasma Phys. 51, 769 (2011).
- [7] B. Tadsen *et al.*, Phys. Plasmas **21**, 103704 (2014).
- [8] E. Thomas Jr. et al., Phys. Plasmas 22, 113708 (2015).
- [9] C.E. Miller *et al.*, IEEE Transactions on Applied Superconductivity **24**, 1 (2014).
- [10] E. Thomas et al., J. Plasma Phys. 81, 345810206 (2015).
- [11] P. Epstein, Physical Review 23, 710 (1924).
- [12] A. Piel and A. Melzer, Plasma Phys. Control. Fusion 44, R1 (2002).
- [13] B. Liu et al., Phys. Plasmas 10, 9 (2003).
- [14] M. Puttscher and A. Melzer, Phys. Plasmas 21, 123704 (2014).
- [15] E. Thomas Jr. et al., Phys. Plasmas 23, 055701 (2016).
- [16] U. Konopka et al., Phys. Rev. E 61, 1890 (2000).
- [17] P.K. Kaw et al., Phys. Plasmas 9, 387 (2002).
- [18] M. Puttscher et al., Phys. Plasmas 24, 013701 (2017).
- [19] B. Lynch, Ph.D. Dissertation, Auburn University (2017).
- [20] R.A. Jefferson *et al.*, Phys. Plasmas 17, 113704 (2010).

●●● 小特集 新しい計測法で拡がる微粒子プラズマの世界

4. ミー散乱エリプソメトリ

4. Mie-Scattering Ellipsometry

林 康明

HAYASHI Yasuaki 京都工芸繊維大学電気電子工学系 (原稿受付:2017年7月1日)

レーザー光の散乱を利用した微粒子の計測・解析法であるミー散乱エリプソメトリについて、その原理を説 明し、プラズマ中に捕捉された微粒子の成長過程を実際にモニタリングし解析を行った例を紹介する.また、光 検出器にイメージセンサを用いたイメージング・ミー散乱エリプソメトリの有用性と展開されている研究につい て述べる.

Keywords:

plasma, ellipsometry, Mie scattering, dusty plasma, fine particle, imaging, imaging ellipsometry

4.1 はじめに

微粒子を観察・測定するとき,光散乱,特にミー散乱理 論に基づいた解析の方法がよく用いられる.単に光強度だ けを観測する場合もあるが,偏光を利用すると,密度だけ でなく粒径についての情報も得られる.しかし,偏光を用 いた計測法でも,偏光比のみを測定する場合が多い.光波 の特性には振幅だけでなく位相も含まれるので,散乱光の 偏光について,振動二成分の振幅比(偏光比)と共に位相 差も求めることができる.したがって,光散乱に関する情 報を得るのに,偏光比だけでなく,偏光状態を示す上記2 つのパラメータを用いれば,散乱対象の微粒子に関する情 報がより詳しく得られることになる.

こうしたアイデアは以前にもあったが[1],多分散の場 合も含めて微粒子が成長する過程を実際に観測して解析 し,その有用性が確かめられたのは20年ほど前で[2-5], その方法はミー散乱エリプソメトリと呼ばれた.その後, ミー散乱エリプソメトリやそれに類似した光散乱計測法に ついて,いくつかの実施例が報告されている[6-8].

一方,最近のイメージセンサの発展に促されて,エリプ ソメトリにおける光強度測定を,単一の光電変換素子から その集積体であるイメ-ジセンサに置き換え,二次元画像 を利用するミー散乱のイメージングエリプソメトリが開発 されてきた[9,10].この技術は現在,開発が進行中である が,今後,大型装置でのダストの観測や,微粒子プラズマ における物理現象を解析する上で大きな役割を果たすこと が期待される.

本章では、ミー散乱エリプソメトリの簡単な説明からは じめて、実際的な応用例を紹介し、新しい展開としてのイ メージング・ミー散乱エプソメトリについて述べる. 4.2 ミー散乱エリプソメトリの原理

4.2.1 ミー散乱エリプソメトリとは

球形 微粒子による光散乱の式は、1908年に、ミー (G. Mie)によって厳密解が求められた[11].ミーの式で は、球形粒子による散乱波の複素振幅(実振幅と位相を含 む)を解いている.そこで、入射光の偏光状態が与えられ ているとき、散乱波の散乱面に水平な偏光成分と垂直な成 分について複素振幅の比を取ると、散乱に関する情報、す なわち微粒子の粒径や光学定数に関する情報が複素数の形 で得られることになる.

ところで、「エリプソメトリ」は、薄膜の膜厚と屈折率 を精確に測定する方法として、薄膜を作製する技術者や研 究者によく知られている.鏡面基板上に透明(あるいは半 透明)な薄膜が堆積した試料の表面において、一定の角度 で光が入射すると多重反射によって干渉が生じ、反射光の 強度は薄膜の膜厚や屈折率に依存する.入射する光を光波 として扱うと、入射面に平行な方向(*p*方向)とそれに垂直 な方向(*s*方向)の振動成分で反射光の実振幅や位相が異 なる.そこで、一定の偏光状態にある光を入射し、反射光 の偏光状態を測定して、*p*、*s*方向の複素反射率の比を取る と、反射に関する情報、すなわち薄膜の膜厚や光学定数に 関する情報が複素数の形で得られる.

このように、光の反射と散乱には、光波の偏光状態の変 化において対応があり、薄膜のエリプソメトリに倣って ミー散乱エリプソメトリと呼ばれるようになった.光散乱 エリプソメトリや、レイリー・ミー散乱エリプソメトリと 呼ばれる場合もあるが、散乱光の偏光状態が複雑に変化す る粒径、すなわち光の波長程度以上でミー散乱が顕著に表 れる粒径に適用すると多様な解析が可能となる.一方、波

Kyoto Institute of Technology, Kyoto, KYOTO 606-0962, Japan

author's e-mail: hayashiy@kit.ac.jp

長程度以下の範囲において粒径だけを求めるのであれば, 例えば散乱光強度の二振動成分比の測定だけでよい.つま りこうした測定値はその範囲の粒径に対して単調関数であ り,粒径と一対一の関係がある.エリプソメトリのように 複素数の絶対値と偏角の二つのパラメータを用いる必要は ない.

4.2.2 ミー散乱エリプソメトリの解析方法

ミー散乱エリプソメトリ測定の構成を図1に示した[2]. 光波の振動成分を,散乱面に平行なp方向とそれに垂直な s方向に分ける. それぞれの複素振幅を入射光について Ep, Es とし,反射光についてさらにEp', Es'とする. す ると,ミー散乱理論で定義されている散乱振幅関数Sp, Ss(文献[12]では S_1 , S_2 としているが,ここではこのような 表記にする)の比は,

$$Sp/Ss = (Ep'/Ep)/(Es'/Es)$$
$$= (Ep'/Es')/(Ep/Es)$$
$$= \chi'/\chi$$
$$= \tan \Psi \cdot e^{i\Delta}$$
(1)

となる. ここで, _X', _X は入射光, 散乱光の偏光状態を表す 複素数である. また, 薄膜での反射を測定するエリプソメ トリと同様に, 散乱光と入射光の偏光状態を表す複素関数 の比を, 偏光解析パラメータ *Q*, *A* を用いて表す. ただし, 完全偏光を扱うため, まず, 散乱対象として単一あるいは 単分散の微粒子について考える.

例えば、入射光が方位角(散乱面からの角度)45°の直線 偏光のとき、 $\chi = 1$ であるので、 $Sp/Ss = \chi'$ となる、つまり、 反射光の偏光状態を測定すれば、tan $\Psi \cdot e^{id}$ 、すなわち、微 粒子に関する情報が得られることになる.

散乱光の偏光状態は、例えば、偏光プリズム(検光子)を 回転させて通過する光の強度変化を解析すれば求められ



図1 ミー散乱エリプソメトリ測定の構成.(文献[2]Fig.2より 引用)

る.一方、 Ψ 、 Δ の値は、球形微粒子の屈折率と粒径の他、 波長と散乱角が与えられれば、ミー散乱理論から計算でき る.こうして、測定の結果を計算によるシミュレーション と比較して、最も近い場合の物理量の組み合わせを選び出 すことになる.このとき、粒径や波長、散乱角を変化させ て多数の Ψ 、 Δ を測定すれば、より確かな解析が行える.

なお,異なった粒径の微粒子が存在する多分散の場合 は,個々の微粒子について(1)式からΨ, Δの値を求め,一 旦4個のストークスパラメータに変換し,それらの和を 取って多分散の4個のストークパラメータを決め,さらに それから微粒子群としての偏光解析パラメータΨ,Δを与 える[2].

4.3 ミー散乱エリプソメトリによる微粒子成長 過程のモニタリングと解析

4.3.1 凝集による成長[3]

不活性のアルゴンガスのプラズマ中に、カーボンの超微 粒子(粒径数十 nm)を投入すると、微粒子同士が衝突して 凝集する.その過程においてミー散乱エリプソメトリ測定 を行った結果が図2(a)で、二次元座標(Ψ, Δ)上に示され ている.図2(b)は計算によるシミュレーションで、測定 結果に最も適合した結果が示されている.シミュレーショ ンでは、微粒子の粒径分布を対数正規分布と仮定し、その 幾何標準偏差を一定値1.5として、平均粒径の増大に伴う (Ψ, Δ)の軌跡(トラジェクトリー)を求めている.散乱角 (θ)および微粒子の光学定数(n)の値を変化させており、 測定結果にフィッテングさせた値として、n = 2.3 - i 0.35、 $\theta = 91°$ が得られている.

さらに、測定と計算の結果との対応から粒径を、また光 散乱強度の変化から微粒子の密度を求め、その時間変化を 示したのが図3である.この結果では、超微粒子投入後800 秒を境に、測定位置において微粒子密度が増大から減少に 変化し、同時に粒径の増加が始まっている.空間ごとの測 定からは、測定点の付近に微粒子が集合し、一定の密度に 達したところで凝集が開始したことがわかっている.

4.3.2 コーティングによる成長[3,4]

3.1と同じ装置を用い,今度は反応性のメタンプラズマ 中にカーボンの超微粒子を投入し,その後の変化をミー散 乱エリプソメトリで測定した結果が,図4に示されてい



図2 アルゴンプラズマ中での微粒子成長過程のミー散乱偏光解 析測定(a)とシミュレーション(b).(文献[2]Fig.3より引 用)

る. 図2と比較すると、変化が全く異なっている. 粒径分 布を再び対数正規分布と仮定し、n = 1.5,幾何標準偏差 $\sigma = 1.1$ とすると、最初のループは測定値に近いトラジェク トリーを示す(図5(a)).しかし、2番目のループは実験 値の方が大きいループを示している.したがって、微粒子 の粒径分布の広がりが成長と共に小さくなると仮定すれば 実験結果を再現できそうである.そこで、粒径分布の広が りが小さくなる場合として、メタンプラズマから分解した 炭化水素系ラジカルが表面に堆積することにより微粒子が 成長すると仮定したモデルを考え、最初のみ対数正規分布 を取り、その後は、粒径分布関数が粒径について線形の軸 上をシフトするとして計算を行うと、実験結果をうまく再 現できている(図5(b)).

さらに測定と計算の対応から粒径を求め、また密度を算 出した結果が、図6に示されている。約2500秒まで粒径が 時間と共に直線的に増加しているが、その後は成長速度が 減少傾向に転じていることがわかる。また、微粒子の密度



図3 アルゴンプラズマ中での微粒子成長過程における粒径と密度の変化.(文献[2]Fig.4より引用)



図4 メタンプラズマ中での微粒子成長過程のミー散乱偏光解析 測定.(文献[3]Fig.2より引用)

は指数関数的に減少しているが、2500秒付近を境に減少が 抑えられている.

4.4 イメージング・ミー散乱エリプソメトリ

図1に示したミー散乱エリプソメトリ測定の装置では, 受光部の光検出器に光電子増倍管が用いられている. イ メージセンサはフォトディテクタの二次元集積体でもあ り,画素毎に光強度のディジタルデータを取得すれば,究 極的には画素毎にミー散乱エリプソメトリの解析ができる ことになる.実際には検出感度・精度の点から,多数の画 素をまとめて一つの検出器として扱い,一定の画素領域ご とに区切って,ミー散乱エリプソメトリの解析を二次元の 空間で行う.こうした方法を,イメージング・ミー散乱エ リプソメトリと呼ぶ.

ところで、受光部にイメージセンサを用いる場合、対象 を観察するのに十分な広さの視野を設ける必要があり、回 転による変調は光源側で行った方が適当である.また、多 分散の微粒子などを観測する場合、4つのストークスパラ メータが一度に測定できる測定法が望ましく、それには回 転波長板方式が適している.そこで、図1のような回転検 光子方式ではなく、偏光子部側に回転波長板と偏光子を、 検光子部側に固定検光子とイメージセンサを用いた回転波 長板方式を利用する方が適していると言えよう.



図5 メタンプラズマ中での微粒子成長過程のミー散乱偏光解析 のシミュレーション.(文献[3]Fig.6より引用)



図6 メタンプラズマ中での微粒子成長過程における粒径と密度の変化.(文献[4]Fig.4より引用)

核融合装置のような大型のプラズマ装置において,真空 槽内に発生する微粒子をミー散乱エリプソメトリにより観 測するとき,真空槽の外に設置される光検出器と測定点と の間がメートル単位の長い距離になる.散乱光を光検出部 に集光することが必要となるが,この場合,その光軸調整 は一般に困難である.そこで,ある程度の集光の後,イ メージセンサの画像で散乱対象を確認しながら光軸調整を 行い,同時に測定を行う方法が提案された.

図7は、核融合装置のダイバータ付近に発生するダスト を観測するために作製したイメージング・ミー散乱エリプ ソメトリ装置を、予備実験用のプラズマ装置に設置した図 である.ワイヤグリッド偏光子、集光レンズおよびミラー のユニット(これらは真空槽内に設置可)から1.4 m離れた 位置にイメージセンサを内蔵したビデオカメラを置き、プ ラズマ中の微粒子をビデオカメラで確認する.偏光子部側 は波長532 nmのレーザー、回転波長板と偏光プリズ ムからなり、プラズマ中に捕捉された微粒子は直径 2.25±0.05 μ mのジビニルベンゼンの球形微粒子である.測 定の結果、n = 1.56、散乱角90°として計算を行った (Ψ, Δ)の値と対応がとれていることが確認された.

4.4.2 空間粒径分布の解析[13]

4.1の実験と同じ回転波長板型のエリプソメトリ装置を 用いて,高周波プレーナマグネトロンプラズマ中[14]で結 晶状に配列した微粒子(図8)の観測が行われた.上部に 水平方向の層が形成され,その層毎に横長で画素領域を区 切り,イメージング・ミー散乱エリプソメトリによる解析 が行われた.微粒子には,直径2.74±0.09 μm のジビニルベ ンゼン球形ポリマーが用いられた.

水平に並ぶ下から4つの層に於いて、同じ層内の10~20 個分の微粒子を含む範囲内(1320画素)の光強度について、 波長板方位角の関数として求められた.その関数の離散 フーリエ変換により5個のフーリエ係数を求め、さらにそ れから偏光解析パラメータ Ψ 、 Δ が得られた.一方、 n = 1.56とし、粒径を2.65 µmから2.83 µmまで0.01 µm 毎に変化させて計算を行い.そのトラジェクトリーが求め られた.ここで、測定の結果に最も近いトラジェクトリー から、散乱角として88°が得られた.測定の結果を計算によ るトラジェクトリーと比較し、微粒子の粒径は上の層よ り、2.70、2.74、2.75、2.77 µmとなった.下の層ほど粒径が 大きくなることは力の均衡から説明が可能であり、 0.01 µm 程度のわずかな違いで微粒子が層毎に分離してい ることがこの実験より明らかになった.

4.5 まとめ

微粒子の粒径が散乱光の波長に比べて十分小さい場合, ミー散乱の式は、レイリー散乱の式に漸近する.レイリー 散乱では、散乱光強度は粒径の6乗に比例するので,可視 光のレーザー光を用いる場合は、数十 nm 以下の微粒子に ついての観測は困難である.一方,数百 nm を超える微粒 子については、ミー散乱理論の式にしたがい、ミー散乱エ リプソメトリの角度 Ψ , Δ は粒径に対して敏感かつ複雑に



図7 イメージング・ミー散乱エリプソメトリ装置の構成とプラ ズマ実験装置.(文献[9]Fig.2より引用)

-				- T-10		1000	1000	11 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	A DAME TO A						1. and 1. and 1.	-				1000	11111	1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 -		N. N.		
										 									-							
																			٠.							
														•					۰.							
					•				1																	
					ς.								*					•	. *							
			۰.																							
	•								•			٠				•										
																								•		
							•																			

図8 プラズマ中で結晶状に配列する微粒子(上部は水平方向に 層をなし、下部は垂直方向に列をなしている).

変化する. 粒径や散乱角, 波長などが変化する条件で (Ψ,Δ)を測定し, その変化を示すトラジェクトリーの形状 を,計算による結果と照らし合わすことにより, 微粒子の 粒径・粒径分布や光学定数についての情報を詳細に得るこ とができる.

光検出器にイメージングセンサを用いることにより,微 粒子の分布や配列状態を確認しながら,ミー散乱エリプソ メトリの測定を2次元空間で行える.これを,遠隔からの ミー散乱エリプソメトリ測定や,粒径など物理量の空間分 布の解析に利用することができる.さらには,検出感度の 高いイメージセンサを用いたり測定方法の工夫により,空 間中に捕捉された単一微粒子の形状に関する測定も不可能 ではない.

参考文献

[1] R. M. A. Azzam and N. M. Bashara, *ELLIPSOMETRYAND POLARIZED LIGHT* (Amsterdam, North Holland, 1989) p.155.

- [2] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. 33, L476 (1994).
- [3] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. 33, 4208 (1994).
- [4] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. 33, L804 (1994).
- [5] K. Tachibana *et al.*, Plasma Sources Sci. Technol. 3, 314 (1994).
- [6] M. Shiratani et al., J. Appl. Phys. 79, 1104 (1996).
- [7] S. Hong and J. Winter, J. Appl. Phys. 100, 064303 (2006).
- [8] S. Groth et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 48, 465203 (2015).

- [9] Y. Hayashi et al., IEEE Trans. Plasma Sci. 44, 1032 (2016).
- [10] F. Greiner *et al.*, Plasma Sources. Sci. Technol. 21, 065005 (2012).
- [11] G. Mie, Ann. d. Physik. 25, 377 (1908).
- [12] H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (New York, Dover, 1981) p.125.
- [13] Y. Hayashi et al., Proc. 8th International Conference on the Physics of Dusty Plasmas, May 20-25, 2017, Prague, Czech Republic.
- [14] Y. Hayashi *et al.*, Plasma Sources Sci. Technol. **19**, 034019 (2010).

小特集 新しい計測法で拡がる微粒子プラズマの世界 5. プラズマ中のナノ粒子とナノ粒子計測に関する応用

5. Nanoparticles in Plasmas and Applications for Nanoparticles Metrology

HÉNAULT Marie¹⁾, BOUDHIB Mohamed¹⁾, WATTIEAUX Gaëtan²⁾, LECAS Thomas¹⁾ and BOUFENDI Laïfa¹⁾* ¹⁾GREMI, University of Orléans, France, ²⁾LAPLACE, Université Paul Sabatier, France

(原稿受付:2017年8月29日)

本章は、微粒子プラズマの知識を用いたナノ粒子の特徴付けについて得られた結果の概要を与える. 実際、ナノ粒子の平均サイズと数密度は、ナノ粒子によってプラズマと放電の電気的パラメータに誘発される変更から推論され得る. これらの結果は、マルチアングルのレーザー散乱によって与えられる結果とよく一致していることが示される. 例えば、これらを組み合わせ、複素屈折率やフラクタル次元のような、別の性質にアクセスすることが可能である. 最後に、プラズマが維持されている限りにおいて粒子は気相に捕捉され続け得るので、レーザー誘起ブレークダウン分光法 (LIBS)を用いて、それらナノ粒子の化学組成を決定することが可能である. これらの特徴全ては、例えば、ナノ粒子の毒性を決定することに大いに使えるものである.

Keywords:

low-pressure plasma, dusty plasma, nanoparticles, nanoparticles characterization, metrology, sedimentation, LIBS

5.1 はじめに

異なる化学組成のナノ粒子(NPs)が,基礎知識[1-4]に 関して,ならびに,材料科学[5-7],マイクロエレクトロ ニクス[8-10],フォトニクス[11],生物学[12-14],医学 [15-17],環境[18]等のような種々の応用に関して,研究 者のより一層の注目を集めつつある.これらのナノ粒子 は,その性質がバルク材料とは全く異なっており,かつ, ナノ粒子のサイズに依存しているというユニークさ故に統 合的に扱われている.望んだサイズと,従って望んだ性質 に効率よく仕立てるため,プラズマ気相中におけるそれら 粒子の核生成と成長のメカニズムを理解するために多大な 努力が捧げられている.

ナノテクノロジーの驚異的な発展に伴い,生成されたナ ノ材料やナノ粒子のリスクに関連した疑問が増している. 事実,それらのサイズ範囲のために,NPs は人体組織に深 く滲入することができるため,深刻な健康問題を誘発する かもしれない[19].その毒性は,サイズやサイズ分布,結 晶相,形態,化学組成…等々のようなNPsの異なる特性に 関係している.

実際, ナノテクノロジーの発展は, NPsの検知や選別方 法に関する大きな需要を引き起こしている.したがって本 論文の目的は, プラズマが維持されている限りプラズマ気 相中に注入・捕捉され得るNPsの特性評価に関する堅固な ツールを構築するために, 低圧力の冷たいプラズマが如何 に用いられ得るのかを示すことにある.先行研究[20]は, ナノ粒子がプラズマ中で成長あるいはプラズマ中に注入さ れたとき,プラズマパラメータへのナノ粒子の劇的な効果 を前面に押し出している.事実,それら粒子は,現れるや 否や電子を付着させて,プラズマや放電の全ての電気的な パラメータを変更する.これら変化すべてはナノ粒子によ るものであり,ナノ粒子の検知や特性評価を与える重要な 情報を含んでいる.

はじめに,実験のセットアップとオペレーションの条件 についての記述を与える.次に,プラズマ体積に渡っての 平均的なナノ粒子のサイズと数密度を決めるために用いた 電気的方法について記す.これらの結果は,レーザー光の 散乱によって得られた結果と比べられる.第四のパート は,プラズマ支援堆積法を用いた粒子のサイズ分布の決定 に充てられる.最後に,レーザー誘起ブレークダウン分光 法(LIBS)を用いて NPs の化学組成が決定される.

5.2 実験のセットアップ

本研究を行うために、容量的に結合した容量放電誘導プ ラズマが用いられた. 直径 6 cm でギャップ 5 cm で隔てら れた 2 枚の平行平板から成り,一端が 10 cm の立方体セル に入れられた. 高周波 (RF) 13.56 MHz の発生器が,整合 回路を通じて上部電極にパワーを供給し、下部電極は接地 されている. 4 つの面が窓となっており、プラズマと、下 部のプラズマシース近傍に捕捉される粒子を観測すること を可能にしている. オペレーションの条件は次の通り:化 学的反応や微粒子 NPsの変化を避けるためにアルゴンのみ が用いられる. 圧力は,20から 100 Pa で変化し、RF パワー

1) GREMI, University of Orléans, 14 Rue d'Issoudun, 45067 Orléans Cedex2, France

2) LAPLACE, Université Paul Sabatier, 118 Route de Narbonne 31062 Toulouse, France

corresponding author's e-mail: laifa.boufendi@univ-orleans.fr

は2から10Wで変化する.

5.3 結果と議論

NPsの平均サイズと密度を推定する電気的方法は,電子 密度と自己バイアスの変化に基づいている.事実,失われ た電子は,球状コンデンサと考えられるナノ粒子に付着す る.もし,それら粒子が球状で同じサイズであると仮定す るならば,結果としてそれら粒子は同じ電荷を持つ.電子 密度の変化は

$$\Delta n_{\rm e} = \frac{4\pi\varepsilon_0}{\varrho} (V_{\rm p} - V_{\rm d}) r_{\rm d} n_{\rm d} \tag{1}$$

と書ける. ただし, V_P, V_d, r_d, n_d, e は, それぞれプラズ マポテンシャル, 微粒子のポテンシャル, 平均半径, 密度, 素電荷である. また, 自己バイアスの変化は, パワー電極 への帯電粒子種フラックスの変化に

$$\Delta V_{\rm DC} = -\frac{2.4\pi e^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2k_{\rm B}}} \frac{n_{\rm i}\overline{s}}{\sqrt{V_0 T_{\rm i}}} \frac{V(V_{\rm P} - V_{\rm d})}{\left(1 + \frac{S_{\rm G}}{S_{\rm S}}\right)C} r_{\rm d}^2 n_{\rm d}$$
(2)

のように関係付けることができる[21]. ただし, n_i ,V, V_0 , T_i , \bar{s} , S_G , S_A ,C は, それぞれイオン密度, プラズマ 体積,パワー電極に面したシースによるポテンシャル低 下,イオン温度,平均のシース幅,接地電極とパワー電極 の(実効)面積,反応装置内の浮遊容量の和である.

自己バイアス電圧の変化は、低域通過フィルターを用い ることによってパワー電圧から推定される.電子密度の変 化は、RF電圧波形とパワー電極への電流波形から推定さ れる電子密度の時間発展から推定される[22].図1は、ア ルゴンと非常に良く混合された反応前駆体としてのアセチ レンを用いた反応装置内で成長する、炭素粒子の平均サイ ズと数密度の時間発展を与える.これらの結果は、シラ ン-アルゴンガス混合プラズマ中で成長するシリコン粒子 に関するもの[23]と同じ傾向を示している.

図2は、プラズマに注入された酸化亜鉛粒子について、 電気的方法とマルチアングルレーザー光散乱で得られた平 均サイズの比較を示している.二つの方法で、かなり良く 一致している.



図1 アセチレンーアルゴン混合ガスの RF プラズマ中における、 炭素微粒子 NPs の密度と平均サイズと時間発展.

この図は、粒子がプラズマ中に注入されるとき、プラズ マは粒子の破砕には非常に効果的であるということも強調 している.実際、ここで二つの方法で与えられた平均サイ ズは、単一のナノ粒子に相当する.

これら二つの方法間での良い一致は, NPs の複素屈折率 やフラクタル次元のような別の特性へ近づく道を開く.現 時点で,この研究は途上にある.

堆積速度の計測は NPs のサイズ分布の決定を可能にす る. プラズマが消されたとき,捕捉効果は消滅し,重力,お よび,ガス粒子との相互作用による摩擦力の下でナノ粒子 は落下する[24]. この堆積速度は

$$v(t) = \tau g\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}\right) \tag{3}$$

で与えられ,その時定数τは

$$\tau = r_{\rm d} \frac{\rho}{4p\left(1 + \frac{\pi}{8}\right)} \sqrt{\frac{\pi k_{\rm B} T}{8m_{\rm n}}} \tag{(4)}$$

である.ただし, ρ , p, m_n は, それぞれナノ粒子材料の密度, ガスの圧力, ガスの原子質量である. 5 τ の後, NPs は, ナノ粒子の半径に比例する限界の一定速度 $v_1 = rg$ に達する.したがって, NPs がこの限界速度に達するよりも十分大きな距離だけ離れた位置に,もし二つのレーザービームが位置すれば,終端速度を計測することが可能であり,延いては NPs の半径を推定することが可能である.図3 は, ナノ粒子のサンプルの典型的なサイズ分布を与える.この種の解析は,例えば電子顕微鏡によって得られるものに比べて遥かに正確である.数百万個の NPs を一度に解析する可能性がある[25].

最後に、レーザー誘起ブレークダウン分光法によって、 ナノ粒子の化学組成を得ることが可能である.実際、プラ ズマはそれら粒子の良いトラップなので、それ故、パルス 状の高強度レーザーを用いてそれらを光らせ、生成された マイクロプラズマからの発光を解析することが可能である [26].この方法を用いると、ヘリウムプラズマ中で、密度 が7×10⁻¹⁵ kg/m³と同じくらい小さいという条件におい て、直径 50 nm 程度の酸化亜鉛 NPsの特性を明らかにする



図2 平均粒子サイズの電気的方法とレーザー光散乱法による比較.

Special Topic Article

ことが可能であった.図4は20個の連続したレーザーパル スから得られた典型的なスペクトルを与える.

この図は、一つのレーザーパルスに対して良い信号対雑 音比のスペクトルを得ることが可能であることを示してい る.したがって、ナノ粒子を構成している全ての化学成分 を同定することが可能である.

5.4 結論

本章では、プラズマ気相中に捕捉されたナノ粒子の特性 評価に関して、如何にすれば低圧力プラズマが用いられ得 るかについて示した.実際、「微粒子プラズマ」コミュニ ティによってこの20年間に獲得された膨大な知識を利用す ることが可能である.それら粒子がプラズマ中で成長ある いはプラズマ中に注入されたとき、NPs はプラズマや放電 の電気的なパラメータに劇的な変化をもたらす.微粒子へ 電子が付着することによるこれらの変化は、それら粒子の 平均サイズや数密度についての情報を含んでいる.これら の結果はマルチアングルレーザー光散乱によって得られた 結果と良く一致している.それ故、その二つの方法の組み 合わせが複素屈折率やフラクタル次元を決めるために利用 することを可能にする.プラズマが維持されている限りに おいて粒子は捕捉され得るので、それら粒子の化学組成が LIBS 法のお陰で確定することができる.

(翻訳:齋藤和史)

参 考 文 献

- [1] M. Hirt et al., Phys. Plasmas 11, 5690 (2004).
- [2] A.V. Ivlev et al., Phys. Rev. E 68, 026405 (2003).
- [3] Y. Nakamura and H. Bailung, Rev. Sci. Instrum. **70**, 2345 (1999).
- [4] J. Winter, Plasma Phys. Controlled Fusion 46, B583 (2004).
- [5] P. Roca i Cabarrocas *et al.*, Plasma Phys. Controlled Fusion **46**, B235 (2004).
- [6] S. Veprek et al., Appl. Phys. Lett. 66, 2640 (1995).
- [7] D. Zhou et al., J. Appl. Phys. 83, 540 (1998).
- [8] G.S. Selwyn et al., J. Vac. Sci. Technol. A9, 2817 (1991).
- [9] R.M. Roth et al., Appl. Phys. Lett. 46, 253 (1985).
- [10] ITRS, Technical Report, (2009). https://www.semiconductors.org/main/2009_international_technology_ roadmap_for_semiconductors_itrs/
- [11] L.D. Negro et al., Physica E 16, 297 (2003).
- [12] M. Bruchez et al., Science 281, 2013 (1998).
- [13] W.C. Chan et al., Science 281, 2016 (1998).
- [14] S. Wang et al., Nano Letters. 2, 817 (2002).
- [15] S. Sengupta et al., Nature 436, 568 (2005).
- [16] N.Y. Shi et al., Pharm Res. 18, 1091 (2001).
- [17] T. Siegemund et al., Int. J. Dev. Neurosci. 24, 195 (2006).
- [18] See for example: B. Nowack and T.D. Bucheli, Environ.



図3 プラズマ支援堆積法(実線)と透過型電子顕微鏡(ヒスト グラム)によるナノ粒子のサイズ分布.



図4 連続した20のレーザーパルスから得られた典型的な LIBS スペクトル.

Pol. 150, 5 (2007).

- [19] C. Buzea et al., Biointerphases 2, MR17 (2007).
- [20] L. Boufendi et al., J. Vac. Sci. Technol. A 14, 572 (1996).
- [21] G. Wattieuax et al., Phys. Plasmas 18, 093701 (2011).
- [22] M. Hénault et al., Phys. Plasmas 23, 023504 (2015).
- [23] L. Boufendi and A. Bouchoule, Plasma Sources Sci. Technol. 3, 262 (1994).
- [24] P.S. Epstein, Z. Physik, 54, 537 (1929).
- [25] G. Wattieaux *et al.*, J. Physics: Conference Series, 304, 012021 (2011).
- [26] Ch. Dutouquet *et al.*, Spectrochimica Acta Part B **83-84**, 14 (2013).

小特集 新しい計測法で拡がる微粒子プラズマの世界 6. プラズマ・メタマテリアル研究における計測法と 微粒子プラズマへの応用

6. Diagnostics of Plasma Metamaterials and Their Application to Dusty Plasmas

酒井 道 SAKAI Osamu 滋賀県立大学 工学部 (原稿受付: 2017年9月18日)

プラズマ中に固体物質を含有する微粒子プラズマは、新しい光学的機能性材料(電磁波材料)として注目され盛んに研究されているメタマテリアルと比較すると、その構成要素の概観だけでなく、基本的概念やスケールにおいて共通点が多い.すなわち、いずれにおいても、全体の構造の中に非常に多くの、そして同様の形状をした構成要素が空間的に分散している.そこで、メタマテリアルに関する計測の考え方や手法を微粒子プラズマ計測への応用することが考えられる.本章ではメタマテリアルにおけるパラメータ測定法の概要と、その微粒子プラズマ計測への応用について説明する.

Keywords:

Dusty plasma, metamaterial, bandgap, parameter retrieval

6.1 はじめに

物質や事柄を診断しようとするとき,我々はどのような 手段を用いて,どのように診断結果を下しているかを考え てみる.例えば,我々の目には識別できる小ささの限界が あるので,より細かく観察したい場合には光学顕微鏡を用 いる.しかし光学顕微鏡にも"回折限界"があって,光の 波長以下の分解能を備えることは原理的に困難である.そ こで,さらに細かく観察したい場合には,その波動性にお いて十分波長が短い電子顕微鏡を用いる.そのように異な る手段を採用して空間分解能を上げる努力により,明らか となってきた科学的な知見は数限りなく多い.

一方で,科学的な内容以前の話となって恐縮であるが, 「木を見て森を見ず」ということわざがある.森は木がたく さんあって成り立っているものであるので,森がどのよう な様子か知るために,その構成要素である木を詳しく調べ てみる,というアプローチをしてみよう.すると,1本1 本の種類や様子は明らかになるものの,それらを列挙する だけでは森全体の様子を正確に表現したことにはならな い.森には高木も低木もあり,その他の生物も関連しなが ら1つの森という生態系を形作っている.すなわち,先に 挙げたことわざの指摘するところは,個々の微視的な視点 から明らかになる事柄だけでなく,巨視的に全体を見渡す ことでようやくわかってくる内容についても着目する必要 がある,という意味になる.

上記で議論した2つの立場,すなわち微視的視点と巨視 的視点の区別をもう少し科学的に明確にするためには,次

The University of Shiga Prefecture, Hikone, SHIGA 522-8533, Japan

のような尺度を持ち出すことが有効である(図1):「対象 とする物質の構成要素のサイズ(あるいは観測したい最小 単位)と,診断するために用いる波動の波長は,どちらが

(a) For image capture of constituent elements



(b) For spatially-averaged property



図1 波の波長と構成要素のサイズの関係.(a)波長が要素サイズより短い場合.構成要素の形状までイメージとして再構成できる.(b)波長が要素間距離より長い場合.構成要素の空間積分効果に基づくパラメータを持つ均一な物質として観測される.

author's e-mail: sakai.o@e.usp.ac.jp

大きいか?」. 例えば通常の結晶構造を診断する場合, 透 過型電子顕微鏡では, 配列している原子の像まで見える が, この場合は用いている電子線のド・ブロイ波長が原子 の大きさと同程度か小さいからである. 一方, 光学顕微鏡 では原子配列像まで観察することはできず, 光の反射・屈 折・吸収現象(すなわち, 屈折率により生じる形状把握) を観察するが, この場合は原子の大きさよりも光の波長の ほうが数100倍以上長い.

このような波長と構成要素の大小関係の議論は,最近盛 んに研究されているメタマテリアル[1,2]の分野で重要視 されている視点に反映されている.メタマテリアル科学に おいては,電磁波や音波といった波動の媒質として,一見 奇妙な形の構成要素が多数整列した構造を取り上げる.各 要素の空間周期は波長より短く,構造全体は波長より十分 大きい.すなわち,波としては,その細かな構造を微視的 には"認識"せず,しかし,巨視的には空間積分値として (空間積分操作の結果)それらが成す全体が極めて異常な (例えば,屈折率が負となるような)特性を示す.より正確 には,微視的な構造は集中定数回路素子として働き,巨視 的な特性を議論するときには分布定数回路として取り扱っ て(集中定数回路は,分布定数回路内に挿入される素子と 見なす),そしてメタマテリアルの特異な性質を理解しよ うというものである.

著者は微粒子プラズマの研究[3]を積極的に行ったこと は無いが,この分野においても,この微視的視点と巨視的 視点の両方が採用されてきたと理解している.本小特集の これまでの章においては,粒子サイズよりも波長の短い レーザ光を使って,その散乱特性からプラズマ中の粒子に ついて診断する手法が紹介されている.そして,微粒子プ ラズマの微粒子集団の不安定性波動伝搬に関する一連の研 究は,微粒子プラズマを巨視的な視点で観察していること に相当する.さらに,最近報告された微粒子プラズマ中の 微粒子同士が構成するネットワーク構造の解析の研究[4] に関しても,微視的視点と巨視的視点がうまく融合されて いる.

本報告では、以上の点を鑑みて、巨視的に微粒子プラズ マを観察する視点に立って、微粒子サイズや微粒子間の間 隔が、プローブとして作用する波動の波長より小さい場合 にどのような診断が可能となるか、について説明する.著 者の理解の範囲内では、これまでに微粒子プラズマ中の波 動伝搬(不安定性波動ではなく、外部励起の電磁波の伝搬) について理論的な報告はいくつかある[5]ものの、実験的 な実証は極めて少なく(あるいは存在せず)、今後の研究 テーマとして大変魅力的な要素を含んでいると考えている.

以下,本報告の構成について述べる.まず,6.2節で,関 連する内容として,メタマテリアルやプラズマの構造内を 伝搬する電磁波動について説明し,そこで電磁波動をプ ローブとして使用して内部パラメータを求めた例について 述べる.そして,6.3節で,プラズマ中に微粒子が存在する ときに,どのような電磁波の伝搬が考えられるか,それに よりどのように微粒子プラズマが診断できるかについて, これまでの研究成果から検討する.さらに,微粒子プラズ マが,メタマテリアルの概念を取り入れて,新たな電磁波 媒質となる可能性についても触れる.

6.2 メタマテリアルやプラズマの構造内を伝搬 する電磁波とその診断への応用

6.2.1 特異な内部構造を持つ電磁波媒質の研究の経緯

まず,メタマテリアル研究の歴史的な経緯について,簡 単に振り返る.1990年代にフォトニック結晶,すなわち, 周期的な屈折率変調構造(誘電体を整列させたり,バルク の誘電体に周期的な穴をあけたりして実現)が電磁波の伝 搬制御に有効であること(禁制帯の出現や)が理論的に提 案され[6],さらに実験的に実証(マイクロ波帯および光領 域)された[7]のを受けて,人工的な構造によって電磁波の 伝搬を制御する研究が盛んとなった.この研究において は,微細構造の周期が半波長に相当するとき最初の禁制帯 が現れ,それ以上の周波数帯で高次の禁制帯が現れるが, 半波長相当の周波数よりも低い場合にも,誘電率が負の場 合には局在プラズモン現象による低群速度帯(フラットバ ンド)が現れる[8,9].

この流れを受けて、2000年前後に、単位構造にさらなる 機能性(共振機能や遮断機能)を追加することで、さらに 高度な制御性(例えば、負誘電率・負透磁率・負屈折率現 象や、クローキング(隠れ蓑)現象)が付加できることが わかってきた[1].このようなメタマテリアル研究の進展 と同時に、1960年代から知られていた金属表面に伝搬する 表面プラズモン現象を局在化・高機能化・集積化させる技 術(プラズモニクス[10])も進展した.ちなみに、著者の 知る限り、表面プラズモン現象[11]よりも早くにプラズマ 表面の表面波伝搬現象はすでによく調べられており[12]、 プラズマ波動の研究が今日のプラズモニクス分野の隆盛の 端緒となっていると考えている.

現在では、電磁波に対してだけではなく、音波に対して もメタマテリアル構造が設計できることがわかっている [13]が、本報告では良く調べられている電磁波に対するメ タマテリアルのみを取り上げる.しかし、音波メタマテリ アルのアナロジーから、微粒子プラズマ中の縦波成分(不 安定性波動を含む)[3]について検討することは、また新た な微粒子プラズマ・メタマテリアルを生み出す可能性があ り、注目に値すると思われる.

6.2.2 波動によるメタマテリアルの診断手法

先に述べたように、メタマテリアルは特異なパラメータ を持った電磁波媒質である。そのメタマテリアルの特異な パラメータを電磁波で診断していることも事実であり、卵 が先か鶏が先か、の堂々巡りの議論になる危険性がある。 しかしながら、現状では、特異な現象の観察と電磁波診断 結果が良い一致を見ていることから、両者が同時に進行し ていると理解いただければ幸いである。

2000年に、メタマテリアルにより負の屈折率状態が実現 できる、という提案が行われた.それを受けて、電磁波が 通常の屈折方向とは逆方向(負の方向)に屈折する現象が すぐに実験で確認された[14].このときには、数値計算に よって実験結果の妥当性が示されたが、その後、「パラ メータ抽出法 (parameter retrieval method)」[15]が報告 されて,それによりメタマテリアルのパラメータ (屈折率, インピーダンス,誘電率,透磁率等)が特定された.ただ し,パラメータ抽出法自体は,従来からある散乱行列等を 用いたネットワークアナライザの手法を値 (屈折率等)が負 となる領域にも適用可能としたものであり,すでに確立され ていたマイクロ波工学[16]の知見の範疇にあるとも言える.

パラメータ抽出法[15]を詳細に説明する(図2).以下 に述べる理由で,我々は波動(構造に入射する波と透過す る波)の振幅と位相の両方を観察する必要がある.屈折率 は複素数であり,実部が波動の位相の変化を,虚部が波動 の振幅の変化(符号によって増幅か減衰を示す)を,それ ぞれ表現している.「屈折」というと,境界面への斜め入 射時に,どれくらい折れ曲がるか,という現象だと頭に思 い浮かぶが,それは境界面の前後での位相速度(あるいは 波数と言ってもよい)の連続性を満たすようにスネルの法 則が働くためであり,それは屈折率の実部により表現され る.一方,プラズマなどの損失性の媒質を扱う場合,屈折 率の虚部を扱う必要もある.結果として,2つの変数を得 るためには2つの情報が必要であり,ネットワークアナラ イザあるいは同様の測定法を用いて,透過波の振幅と位相 の両方を測定する必要がある.

そして、実は、この測定を、構成が同様で長さが異なる 2つの状態について行う必要がある.すなわち、ある構造 と波長が1つ分余分にあるものでは、位相情報が360度 回って同様となり、振幅変化が少ない場合に違いを見出す のが難しくなる.同様に、1つの対象に対して解析してみ ると、波長が短いものから長いものまで解がいくつも出て きてしまう.そこで、中身は同じであるが長さが異なる2 つのものを用いて、得られる結果が重なる解を採用すれ ば、それが唯一の結果となる.

さて,誘電率と透磁率を求めるには,まだ情報が足りない.そこで,入射波と透過波に加えて,反射波の振幅と位相の情報も用いることになる.反射波は構造内の屈折率情



図2 パラメータ抽出法[15]の説明図.(a)何もない場合.(b)対 象物体がある場合.屈折率 N_xの実部と虚部を求めるだけな ら、透過波の振幅変化(A'/A)と位相変化(Δφ')から求める ことができるが、屈折率の構成要素である誘電率と透磁率 の各々実部と虚部を求めるためには、反射波の(A"/A)と位 相変化(Δφ")も情報として必要になる. 報を反映しない,と思われるかもしれないが,インピーダ ンスに関する情報を得ることができて,屈折率とインピー ダンスがわかると,誘電率と透磁率を得ることができる.

以上で説明したように、パラメータ抽出法においては、 内部を調べようとしておらず、"森"全体を見渡そうとし ている.従って、内部の構造が異なるものについても全く 同じ測定結果が得られる可能性はある.逆に言うと、メタ マテリアルの研究においては、巨視的に観測できるパラ メータが最も重要で、そのパラメータを実現するためには (塵が積もるように全体に効いてくる) 微視的構造をどの ように設計するか、というスタンスを取っている.

6.2.3 プラズマ・フォトニック結晶におけるパラメータ測定 プラズマ・フォトニック結晶の測定結果は、まず最初に 微粒子プラズマ診断に電磁波を用いるために重要と思われ る.すなわち、プラズマの周期構造を作製して、その構造 が電磁波伝搬に与える影響を調べており、プラズマ中に周 期的に整列する微粒子による周期構造の効果を調べる場合 とほぼ等価の状況と言えるからである.次章に詳細に示す が、プラズマからみて「ポジ型」(多くのプラズマが整列す る場合)と「ネガ型」(1つのバルクプラズマの中に誘電体 が整列する場合)を区別する必要があり、以下で述べる例 はポジ型に関するものである.

我々は、2次元構造を持つ電極を用いて、やや圧力の高 い条件を設定して、実験的にミリ間隔の周期を持つプラズ マ柱を2次元的に配列することに成功した[17].そこに、 ミリ波を照射して、透過波の限定された周波数域に現れる 信号現象と、理論的に予測される禁制帯の位置が一致する ことを見出した.この現象を用いて、以下のようにプラズ マ柱内の電子密度を診断した.結果として後でわかるよう に、該当するプラズマがバルク状態で存在するとき、遮断 周波数は 30 GHz 程度であり、それによる電磁波の減衰は 電子の衝突性で決まる屈折率の虚部で与えられ、それほど 大きくない、しかし、禁制帯が生じることにより、その周 波数域においては反射量が増大して透過信号が減少する効 果が加わり、それは屈折率の実部の空間変調効果(すなわ ち、プラズマ内外で生じる電子密度の強弱の大きさ)によ り決まる.従って、禁制帯の部分で電磁波の透過量の減少 を調べることで、通常の透過測定等では検出できないよう な電子密度の診断が可能となる.

我々は、ミリ波の伝搬方向に17列と31列にプラズマ柱数 を変化させて、透過波の減少量と理論計算結果を比較した (図3).すると、いずれの結果においても、電子密度は 1×10¹³ cm⁻³ 程度と推定された.パラメータ抽出法の説明 で述べたように、他の解(例えば、電子密度はそれほど高 くないものの、電子温度が高く衝突性のプラズマである場 合)が存在しうる状況において、1つの効果による振幅が 減衰する現象であることを確認するには、電磁波の伝搬方 向に対象物の長さを変えることが有効であり、適切な診断 が行えたと考えている.

6.3 微粒子プラズマ診断への応用

先に述べたように、微粒子プラズマの構造とメタマテリ



図3 プラズマ柱の列数の変化による禁制帯(矢印部)の深さの 変化の様子[17].縦軸の2つの透過率(図2における A'A)から複素誘電率を介して電子密度を算出した.この 導出においては、位相情報を用いていないので、もう一つ のパラメータである電子温度は考慮できていない(電子温 度ゼロ、すなわち無衝突状態を仮定).

アル(特に,プラズマとメタマテリアルの複合体)の構造 には類似性があり,微粒子プラズマの診断に対して,波長 の長い電磁波を用いて,巨視的特性を明らかにすることが できる可能性がある.

6.3.1 共鳴性の無い誘電体微粒子の場合

まず、通常の微粒子プラズマのように、特に共鳴性の無 い誘電体粒子の場合について考える。この場合は、フォト ニック結晶状に正確に整列する必要があり、かつプラズマ 媒質から見るとネガ型構造となる(図4)[9]. ここで,ω は角周波数, a は格子定数, c は光速, Γ·X·M は正方格 子の格子点(挿入図参照)を表す.(a),(b)のいずれの 場合も,空間周期は2.5mmであり,第1禁制帯の位置 (~62 GHz) はほとんど同様の位置である. クーロン結晶 の場合は、ネガ型に相当する.大きな違いは、プラズマ周 波数(約28GHz)以下の領域に見られ、ポジ型の場合はフ ラットバンド(群速度がほぼゼロの分枝)に加えて、ごく 低周波の領域にも伝搬波が存在するのに対して、ネガ型の 場合はフラットバンド以外は存在しない.より物理的な表 現としては, ネガ型の場合には, 本来伝搬不可の遮断領域 であるにも関わらず, 空孔の間をホッピングする電磁波 モードとしてフラットバンドが現れることになる.

フォトニック結晶においては、その特性は精密な空間周 期構造であるほど明確に効果が表れる.アモルファス構造 をもつフォトニック結晶の提案もあるものの、著者らの実 験検討では、構造が乱れるとその解析自体が難しくなるこ とがわかっている.従って、正確に整列している場合に禁 制帯などの効果が良く観察されるし、逆に明確な特徴が出 ない場合には構造内に乱れがあることが推定される.

すなわち,測定においては,以下の点に留意して進める ことが必要となる.

- ・空間周期程度の波長の電磁波を使う
- ・理論解析(解析的な平面波展開法,電磁波の数値計算
 等,ある程度確立された手法)との比較が必要
- そして,診断の結果明らかとなる特性として,以下のも



図4 プラズマの2次元周期構造によるTE波(2次元面に平行に 電界,垂直に磁界が存在)の分散関係(バンド図)[9]. (a)ポジ型構造(プラズマ柱)と(b)ネガ型(プラズマ内空 孔)構造の分散関係の変化を示す.

のが挙げられる.

- ・構造の推定(間隔,格子の種類),それらの動的性質を 明らかにできる
- ・電子密度(遮断密度を超える場合にも推定可)

6.3.2 共鳴性 (メタマテリアル特性)の有る微粒子の場合

使用する電磁波に対して共鳴性がある粒子の場合には, パラメータ抽出法が適用可能で,その場合には空間積分効 果が重要となるので,逆に言うと精緻に整列する必要は必 ずしもない.しかし,メタマテリアルの分散関係は千差万 別であり,より理論モデルの構築を注意深く行う必要があ り,専門的な知識が求められる.なお,メタマテリアル科 学の分野から見ると,うまくメタマテリアル特性を観察で きる場合,構造を外部制御可能な動的メタマテリアルとし て,新規性と進歩性が顕在化すると期待される. すなわち,測定においては,以下の点に留意して進める ことが必要となる.

- ・空間周期よりも十分長い波長の電磁波を使う
- ・どのような共鳴性があるか (プラズモン現象を含み),
 について仮説を持ちながら,理論モデルを構築する必要がある

そして,診断の結果明らかとなる特性として,以下のも のが挙げられる.

- ・構造の推定(間隔,格子の種類),それらの動的性質を 明らかにできる
- ・電子密度(遮断密度を超える場合にも推定可)

なお,最近,石原らにより,表面プラズモン共鳴現象を 取り入れた場合の詳細な理論構築に関する報告[18]が行 われたので,そちらも参照されたい.

6.4 まとめと今後の展望

以上のように、微粒子プラズマ診断にメタマテリアルの 概念や測定法を適用することは、両者の構造の類似性から 広く可能性がある.技術的な問題として、微粒子プラズマ が真空チャンバーの中に存在することがほとんどであるの で、電磁波の透過する窓を選定する必要あり、またアクセ スの制限が生じる点はあるものの、原理的な問題は存在せ ず、今後世界的にも実験報告が出てくると予想される.

そして、この新規の診断法の研究が進むと、微粒子プラ ズマを新たなメタマテリアル形態と見なすことも可能とな る.メタマテリアル科学の分野から見たときの一番大きな 利点は、機能性粒子の空間配置をある程度自在に変化させ ることができる点と考えられる.このような学際的な検討 が進むことも期待される.

謝辞

ここで用いた研究結果は、京都大学名誉教授の橘邦英先 生と当時の京都大学大学院生の坂口拓生さんとの共同研究 により行われたものであり、謝意を示します.研究の実施 は、科学研究費補助金(若手研究(B)(16740314)ならび に特定領域研究(15075206))により行われました.

参 考 文 献

- [1] J.B. Pendry *et al.*, IEEE Trans. Microwave Theory Tech. **47**, 2075 (1999).
- [2] L. Solymar and E. Shamonina, *Waves in Metamaterials* (Oxford University Press, Oxford, 2009).
- [3] P.K. Shukla and A.A. Mamun, *Introduction to Dusty Plasma Physics* (CRC Press, Boca Raton, 2001).
- [4] I. Laut *et al.*, Phys. Rev. E **89**, 023104 (2014).
- [5] M.L. Mitu et al., J. Appl. Phys. 114, 113305 (2013).
- [6] E. Yablonovitch, Phys. Rev. let. 58, 2059 (1987).
- [7] W.M. Robertson et al., Phys. Rev. Lett. 30, 2023 (1992).
- [8] V. Kuzmiak and A.A. Maradudin, Phys. Rev. B 55, 7427 (1997).
- [9] O. Sakai and K. Tachibana, IEEE Trans. Plasma Sci. 35, 1267 (2007).
- [10] F. Forstmann and R.R. Gerhardts, *Metal Optics Near the Plasma Frequency* (Springer-Verlag, Berlin, 1986).
- [11] E. N. Economou, Phys. Rev. 182, 539 (1969).
- [12] A.W. Trivelpiece and R.W. Gould, J. Appl. Phys. 30, 1784 (1959).
- [13] J. Li and C.T. Chan, Phys. Rev. E 70, 055602(R) (2004).
- [14] R.A. Shelby et al., Science 292, 77 (2001).
- [15] D.R. Smith *et al.*, Phys. Rev. E **71**, 036617 (2005).
- [16] L.F. Chen *et al., Microwave Electronics* (Wiley, Chichester, 2004).
- [17] T. Sakaguchi et al., J. Appl. Phys. 101, 073305 (2007).
- [18] S.V. Vladimirov and O. Ishihara, Phys. Rev. E 94, 013202 (2016).

7. まとめ

7. Summary

 三 重 野 哲 MIENO Tetsu
 静岡大学創造科学技術大学院 (原稿受付:2017年7月14日)

7.1 はじめに

微粒子プラズマ研究と関連して、かつて、強結合プラズ マ理論が検討され、中性子星、矮星など超高密度状態物質 との関連が研究された.星間雲や惑星状星雲内では、水素 (分子, 原子, イオン)と共に帯電微粒子が大量に存在し, その役割が観測から解明されようとしている[1,2].近年, 月面探査、火星探査、小惑星探査において、帯電表面微粒 子(レゴリス)の影響が課題となっており、安全な宇宙探 査において,帯電微粒子の影響を十分検討する必要が出て きている. 核融合プラズマ研究においては, 壁で発生した 金属微粒子が、熱照射の変性を受けながら、壁面に付着し たり、プラズマ内へ入射する現象が見られている[3,4]. こ の微粒子は、炉内にて蓄積する傾向を持っている.よって、 閉じ込めへの影響を抑え、その効率的な除去方法が必要と される.一方,集積回路(CPU,メモリーなど)の大量製 造において、半導体・金属微粒子の発生が、連続製造にお ける障害となっている. 微粒子発生を的確にモニターし, その正確な除去方法が求められている[5].

このように理学から工学にわたって、微粒子プラズマの 基礎研究は、早急な進展が求められている[6,7].しかしな がら、それらの現象は複雑性、多様性を持っているため、 単純なモデルでは記述できない.よって、種々のモデルの 構築と正確な測定の研究が必要である.

この小特集では,近年の研究として,磁場中微粒子プラ ズマの流体的あるいはデジタル的な運動が紹介されている (第2章と第3章)[8].核融合装置内のダスト計測と関連 したミー散乱エリプソメトリが,第4章に示されている. 微粒子サイズが nm 領域にある場合の計測方法やメタマテ リアルを含むプラズマでの計測方法が第5章と第6章に示 されている.

以下, 微粒子プラズマと関連した計測方法をまとめる.

7.2 微粒子プラズマ研究に使われる測定方法

主な計測方法について箇条書きする.

◎ビデオカメラ法:安価に微粒子の画像を記録できる. ズームアップレンズを使い,0.1 mm程度の空間分解能と

Shizuoka University, SHIZUOKA 422-8529, Japan

30コマ/sの時間分解能を持つ. 垂直面内あるいは水平 面内のクーロン結晶のマクロな様子を記録できる[9].

◎顕微カメラ法:分解能 0.1 mm 以下のミクロな現象の記 録には、やや高額なカメラが必要である. 焦点距離が長 く、拡大機能のある長焦点カメラが利用可能である. こ の方法で、1 µm 程度の分解能が可能であり、高速度カメ ラを付けることも可能である. 粒子の振動は 10 Hz 以下 の場合が多く、その運動解析がこの方法で可能である. しかし、狭い領域を高速に記録するためには、その部分 での高い散乱光量が必要である. レーザーなどの収束光 による散乱が利用される.

図1は、長焦点カメラを用いて微粒子の運動を記録した例である.垂直面で、毎秒100コマの画像を記録し、10 画像を重ねた像である.直径8µmのSiC 微粒子がAr プラズマ中で、定常的に円運動している様子が分かる (SELMIC 社 SEL-LWD100レンズを使用).

- ◎3次元画像測定:カメラの原理として,焦点深度内の2 次元画像の記録がなされる.しかし,複眼型レンズを使い、3次元画像の記録が可能である.密度の小さい微粒 子プラズマの場合,この3次元画像解析を行うことがで きる[10].
- ◎エリプソメトリ法:プラズマ中微粒子の成長のその場測 定として、ミー散乱エリプソメトリ法があげられる(第 4章参照).微粒子の散乱に伴うレーザー光の偏光状態 の変化を実振幅比と位相差で測定することにより、微粒 子の粒径が精確に評価できる.さらに、イメージング・ ミー散乱エリプソメトリにより、遠隔での観測や粒径空 間分布の解析が可能となっている.
- ◎ミー散乱計測法:微粒子の直径のその場測定法として、 種々の型が用いられている[11].レーザー波長に近い直 径にて強い散乱が得られるが、散乱の角度依存性、波長 依存性や偏光から微粒子の大きさを測定できる.
- ◎プローブ法:プラズマ諸量のその場測定には、ラング ミュアプローブ、ダブルプローブ、RFプローブが用いら れる.しかし、通常の実験装置では、プローブ直径≫デ バイ長であり、微粒子近傍のシースを高分解に測定する

author's e-mail: Mieno.tetsu@shizuoka.ac.jp



図1 (a) SiC 微粒子がAr プラズマ中で円運動をしている様子. 毎秒 100 コマで記録し, 10 コマを重ね合わせてある.
 (b) 画像の対角方向断面の輝度分布.

ことはできない.また,プローブ周りの電場が系を乱したり,微粒子を排除したりする.現状では,マクロな条件のモニターや波動・振動の検出に使われている.

- ◎レーザープローブによる測定:微粒子周りの電場,磁場,原子密度については、制御されたレーザーの利用が考えられる.第5章では、LIBS法を用いた微粒子の化学成分測定が記述されている.今後、レーザー誘起蛍光法などの利用が考えられる.微粒子周りの電場を乱すこと無く測定することは難しい.
- ◎微粒子の帯電量測定:直接測定方法は数少ない.第5章 に述べられているように,重力,電場,粘性に基づいた,

落下運動分析が主流である.

7.3 今後の展望

微粒子プラズマ中微粒子の個々の運動や集団運動につい て、その動きがマクロであり、また、固有周波数が低いた め、正確な測定がなされ、興味深い現象が見出されて来た. これらは、固体結晶の相転移現象、コロイド結晶における バンド構造などと対応される現象である.一方、荷電粒子 周りの電場構造は正確に測定できていない.電場の乱れを 最小にして測定する方法の開発が必要である.

ミー散乱測定では, さらなる詳細な測定が可能となるで あろう.そして, 粒子シミュレーションとの対応で, 微粒 子プラズマの種々のモデルが解明されていくであろう.

実験室を離れた宇宙での現象との対比も必要になってく ると思う.月に見られる微粒子の漂流層や火星で発生する 砂嵐は,帯電粒子と密接に関係があり,これらの粒子のシ ミュレーションが重要である.

さらに遠方における,ブラックホール,中性子星,ク エーサー,矮星内部の粒子構造は,量子的計算の域を出な い.これらの星々からの電磁波信号の詳細な分析により, 内部の実像が見えてくるであろう.

参考文献

- [1] 平下博之: プラズマ・核融合学会誌 87,85 (2011).
- [2] 西山正吾: プラズマ・核融合学会誌 87,89 (2011).
- [3] 冨田幸博,田中康規:プラズマ・核融合学会誌 87,149 (2011).
- [4] 大野哲靖,朝倉伸幸:プラズマ・核融合学会誌 87,153 (2011).
- [5] Ed. A. Bouchoule, *Dusty Plasmas* (John Wiley & Sons, New York, 1999).
- [6] Ed. V.N. Tsytvich et al., Elementary Physics of Complex Plasmas (Springer, Berlin, 2008).
- [7] 石原 修: プラズマ物理科学 (電気書院, 2014).
- [8] Y. Saitou, Phys. Plasmas 23, 013709 (2016).
- [9] Y. Hayashi, K. Tachibana, J. Vac. Sci. Technol. A 14, 506 (1996).
- [10] A. Sanpei et al., Jpn. J. Appl. Phys. 56, 080305 (2017).
- [11] 白谷正治,渡辺征夫:プラズマ・核融合学会誌 73,1240 (1997).

∞~∞∞ 小特集執筆者紹介 ~∞∞∞∞∞



林康明

現在の所属:京都工芸繊維大学電気電子工学 系教授.工学博士.京都大学原子核工学修士を 修了後,真空技術の会社に勤務し,大学に転職 して約25年,とうとう来年3月で定年.この

間,プラズマの物理や応用の面白さを経験.研究分野は,微粒 子プラズマ,ナノカーボン材料.学問への未練は捨て難く,余 力のある限り今後も研究や教育に携わっていく予定.



齋藤和史

九州大学理学部物理学科卒業.九州大学大学 院総合理工学研究科博士前期課程修了.九州 大学大学院総合理工学研究科博士後期課程単 位取得退学.博士(理学).現在,宇都宮大学

学術院助教. 基礎プラズマ物理学を中心に, 最近は微粒子プラ ズマの実験やシミュレーションを行っている.



THOMAS Edward, Jr.

米国アラバマ州オーバーン大学物理学部門the Charles W. Barkley and Lawrence C. Wit 教授. フロリダ工科大学て学士,マサチューセッツ 工科大学で修士,オーバーン大学でPh. D.を取

得.実験やコンヒュータシミュレーションによるプラズマ物 理領域,とりわけ微粒子プラズマに焦点を当てた研究に興味 を持つ.現在,NASA,NSF,米国エネルキー省からの支援を受 けている.国際電波科学連合(URSI), University Fusion Association メンバー.米国物理学会フェロー.

HÉNAULT Marie

GREMI, University of Orléans

BOUDHIB Mohamed

GREMI, University of Orléans

WATTIEAUX Gaëtan

LAPLACE, Université Paul Sabatier

LECAS Thomas

GREMI, University of Orléans



BOUFENDI Laïfa

オルレアン大学工科学校(フランス).1952年 アルジェリアのエル・エウルマ生まれ.アル ジェリア大学卒業.アルジェリア大学にて学 士(1977年),修士(1982年)取得.オルレアン

大学にて博士 (PhD) (1994年) と学位授与権認証 (1999年) を 取得. 現在, オルレアン大学教授であり, 電離媒体エネルギー 研究グループ (Groupe de Recherche sur l'Energetique des Milieux Ionises: GREMI) の研究者である.



酒井 道

滋賀県立大学工学部・教授. 滋賀県立大学工 学部地域ひと・モノ・未来情報研究センター のセンター長を兼務. シャープ株式会社,京都 大学助手・講師・准教授を経て現職. プラズ

マを用いたメタマテリアルの研究に加えて、最近はネット ワーク解析に関する研究にも着手している.



みえの てつ 哲

静岡大学創造科学技術大学院・教授.1984年 東北大学大学院工学研究科・博士(工学).東 北大学助手,静岡大学助手,助教授を経て現 職.プラズマ科学,炭素ナノ材料,宇宙環境科

学に関する実験研究を行っている.