



Title	レーザー照射ナノワイヤーアレイ中のエネルギー吸収・輸送過程に関する研究
Author(s)	田中, 大裕
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/105463
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

博士学位論文

レーザー照射ナノワイヤーアレイ中の
エネルギー吸収・輸送過程に関する研究

田中大裕

2025 年 12 月

大阪大学大学院工学研究科

論文要旨

本論文はレーザー照射ナノワイヤーアレイのエネルギー吸収・輸送過程を明らかにするため、本研究において必須となる高品質ナノワイヤーアレイの作製手法の開発、ピコ秒超高強度レーザー LFEX を用いたレーザー照射実験及び X 線自由電子レーザー施設 SACLA でのレーザー照射実験を中心として、理論・シミュレーションによる詳細な物理機構の検討を含めた研究をまとめたものである。

第 1 章では、ナノワイヤーアレイと呼ばれるナノ構造体が高エネルギー密度科学において有望なターゲット材料として注目されていることとその理論的背景と物理的考察を述べ、本研究の意義とその目的を示した。

第 2 章では、ナノワイヤーアレイとレーザーの相互作用を考えるうえで重要となる物理過程をまとめた。まず、高強度レーザー電場中での電子の運動の振る舞いに関して検討を行った。次にプラズマ中でのレーザーエネルギー吸収メカニズムを議論し、固体ターゲット中における加熱プロセスについてまとめた。そして、ナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収メカニズムについて、レーザー照射からの時間スケールによる詳細な検討を行った。

第 3 章では、ナノワイヤーアレイの作製手法についてまとめた。本研究では陽極酸化アルミニウム (Anodic Aluminum Oxide, AAO) をテンプレートとする手法を用いた。本手法により作製されるナノワイヤーアレイの空間パラメーターは、AAO の合成条件と電気めっきの条件で決定される。そこで筆者は AAO の合成条件の探索を通して、直径 40~400 nm、充填率 13~40% のナノワイヤーアレイの作製条件を見出した。また、銅とニッケルの電気めっきの条件も併せて考慮し、実験目的に応じた空間パラメーターを有するナノワイヤーアレイの作製手法を開発した。さらに、作製したナノワイヤーアレイの特性評価から不純物の少ないほぼ単結晶のナノワイヤーが作製されていたことを確認し、レーザー照射実験に使用するにあたり十分な品質であることを示した。

第 4 章ではピコ秒超高強度レーザー LFEX を用いた実験的研究についてまとめた。実験では超高温・超高密度状態の形成を示す He 様線がナノワイヤーアレイにおいて平板より多く観測され、ピコ秒レーザー照射条件下でもナノワイヤーアレイのエネルギー吸収増強が起きうることを示した。また、電子スペクトルに関しては、ターゲット前面において計測した電子の発生数はナノワイヤーアレイの方が大きい、ターゲット裏面側で観測された電子に関してはナノワイヤーアレイと平板は同程度であった。以上の実験結果を Particle in Cell シミュレーションの計算結果と比較した。その結果、ナノワイヤーアレイにおいて

はワイヤー間の真空による電子の移動の阻害と、ワイヤーごとに発生する強磁場による電子のトラップが引き起こされていることが分かった。この空間構造に由来する効果により、ピコ秒レーザーを用いた場合でもナノワイヤーアレイにおける効率的な高エネルギー密度状態の生成につながることを明らかにした。

第 5 章では X 線自由電子レーザー(X-ray free electron laser, XFEL)を用いた超高強度レーザー照射ナノワイヤーアレイに対する超高速時空間分解計測の結果をまとめた。XFEL と同期した超高強度レーザーを使用したポンプ・プローブ計測を平板及びナノワイヤーアレイターゲットに対して実施した。特にナノワイヤーアレイと基板の温度変化をそれぞれ評価するために、ナノワイヤーアレイと基板が別素材で構成される異素材ナノワイヤーアレイを用いた。ターゲット材質の K 吸収端近傍での X 線透過度計測を行い、温度変化に伴う X 線の透過度変化の計測を行った。その結果、レーザーによる急速な加熱、ナノワイヤーアレイの崩壊に伴う電子温度上昇、そしてプラズマが流体的に広がることによる冷却という過程でナノワイヤーアレイにおける電子温度が変化することを見出し、その時間スケールはレーザーのパルス幅 (30 fs) より非常に長い (10 ps 以上) ことが明らかになった。一方で、ナノワイヤーアレイの形状変化に関する計測を別途実施し、ナノワイヤーアレイはレーザー照射から 5 ps まではその形状を大きく損なわないことを示し、上記の解釈をよく説明する結果であった。以上より、超高強度レーザー照射によるナノワイヤーアレイのエネルギー吸収・輸送過程の包括的な理解を得た。

第 6 章は本論文のまとめとして、研究内容を総括した。

目次

第1章 序論	5
1.1 超高強度レーザーと高エネルギー密度物理学	5
1.2 構造体ターゲットの出現	7
1.3 ナノワイヤーアレイターゲットの出現	9
1.4 本論文の構成	11
第2章 超高強度レーザーとターゲットの相互作用	17
2.1 はじめに	17
2.2 レーザー電場中での電子の運動	17
2.3 超高強度レーザーとプラズマの相互作用による高速電子生成メカニズム	18
2.3.1 プラズマ中でのレーザー伝搬と古典吸収	18
2.3.2 表皮長さ	19
2.3.3 共鳴吸収	19
2.3.4 真空加熱	20
2.3.5 $J \times B$ 加熱	20
2.4 レーザー生成高速電子による固体加熱のメカニズム：等積加熱	20
2.5 ナノワイヤーアレイにおける加熱メカニズム	22
2.6 まとめ	24
第3章 実験用高品質ナノワイヤーアレイ作製手法の開発	28
3.1 はじめに	28
3.2 トップダウンとボトムアップアプローチ	28
3.3 ナノワイヤーアレイの作製	30
3.3.1 陽極酸化アルミニウムの形成	30
3.3.2 電気めっきによるナノワイヤーアレイの形成	32
3.4 作製条件の変更を通じた空間及び材質パラメーターの操作	34
3.4.1 陽極酸化条件によるナノワイヤーアレイの空間パラメーターの操作	34
3.4.2 電気めっき条件によるナノワイヤーアレイ材質の操作と特性評価	35
3.5 まとめ	39
第4章 ピコ秒 kJ 級レーザー LFEX を用いたレーザー照射実験	42
4.1 はじめに	42
4.2 実験セットアップ	43
4.3 実験結果	47
4.3.1 X 線自発光計測	47
4.3.2 レーザー照射ターゲットより放出された高速電子のスペクトル	48

4.4 実験結果の定性的解釈のための PIC シミュレーションによる解析.....	49
4.4.1 計算条件	49
4.4.2 各ターゲットにおいて形成された高エネルギー密度状態の評価	51
4.4.3 ナノワイヤーアレイ中の高速電子の挙動.....	53
4.4.4 1次元流体シミュレーションによるナノワイヤーアレイの形状変化の評価	55
4.5 まとめ	55
第5章 超高速 X 線シャドウグラフによるレーザー照射ナノワイヤーアレイ中の プラズマダイナミクスの評価.....	58
5.1 はじめに	58
5.2 実験条件	59
5.2.1 実験セットアップ.....	59
5.2.2 温度変化に伴う X 線透過度変化.....	60
5.3 X 線シャドウグラフの透過度較正.....	62
5.4 レーザー照射ナノワイヤーアレイの形状変化評価.....	66
5.5 X 線透過度変化を介したレーザー照射ターゲットの温度の時間発展の評価	67
5.5.1 レーザー照射平板における電子温度の時間発展の結果.....	67
5.5.2 Cu 単素材ナノワイヤーアレイにおける電子温度の時間発展の結果	71
5.5.3 Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイにおける電子温度の時間発展の結果.....	73
5.6 まとめ	79
第6章 総括	84
謝辞	86
業績目録	88
付録 A 陽極酸化アルミニウムの形成過程の詳細	94
A.1 はじめに.....	94
A.2 陽極酸化アルミニウムとその形成過程と特性.....	94
A.3 ナノホール配置のコントロール.....	95
付録 B FLYCHK コード	97
B.1 はじめに.....	97
B.2 FLYCHK についてとその特徴	97
B.3 FLYCHK の使用方法	98
付録 C SACLA での超高強度レーザー照射実験の流れ	101
C.1 はじめに.....	101
C.2 実験まで.....	101
C.3 実験中.....	102

第 1 章 序論

1.1 超高強度レーザーと高エネルギー密度物理学

1958 年に Townes らによりレーザーの基本原理が発明され¹、1960 年に Maiman らはルビーを用いた最初のレーザー発振を報告した²。以降、Q-switch³の発明などを通じてレーザー強度は増加してきた。一方でレーザー媒質の損傷の制約から、レーザー強度増強において停滞の時期が存在していた。そのような中で 1990 年代に Mourou らにより Chirped Pulse Amplification (CPA)法が開発された。以降、レーザーの強度は飛躍的に進歩し、いわゆる相対論的強度にまで到達するようになった⁴。図 1.1 に CPA 法の概念図を示す。CPA 法ではまず種光となる短パルスを入力をパルス伸長器により時間的に引き延ばされた Chirped pulse と呼ばれる状態にする。そして、Chirped pulse を増幅器に通して増幅させる。Chirped pulse は時間的に引き延ばされただけピーク強度が低く、増幅時の増幅器への損傷が軽減される。そして増幅された Chirped pulse を再びパルス圧縮器により短パルスに戻すことにより極短パルス超高強度レーザー光が得られる。

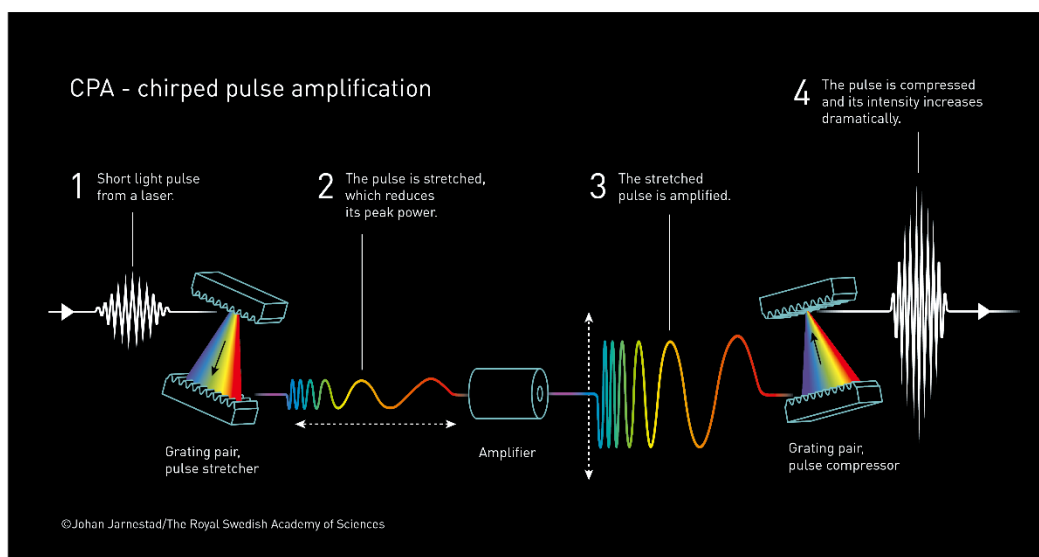
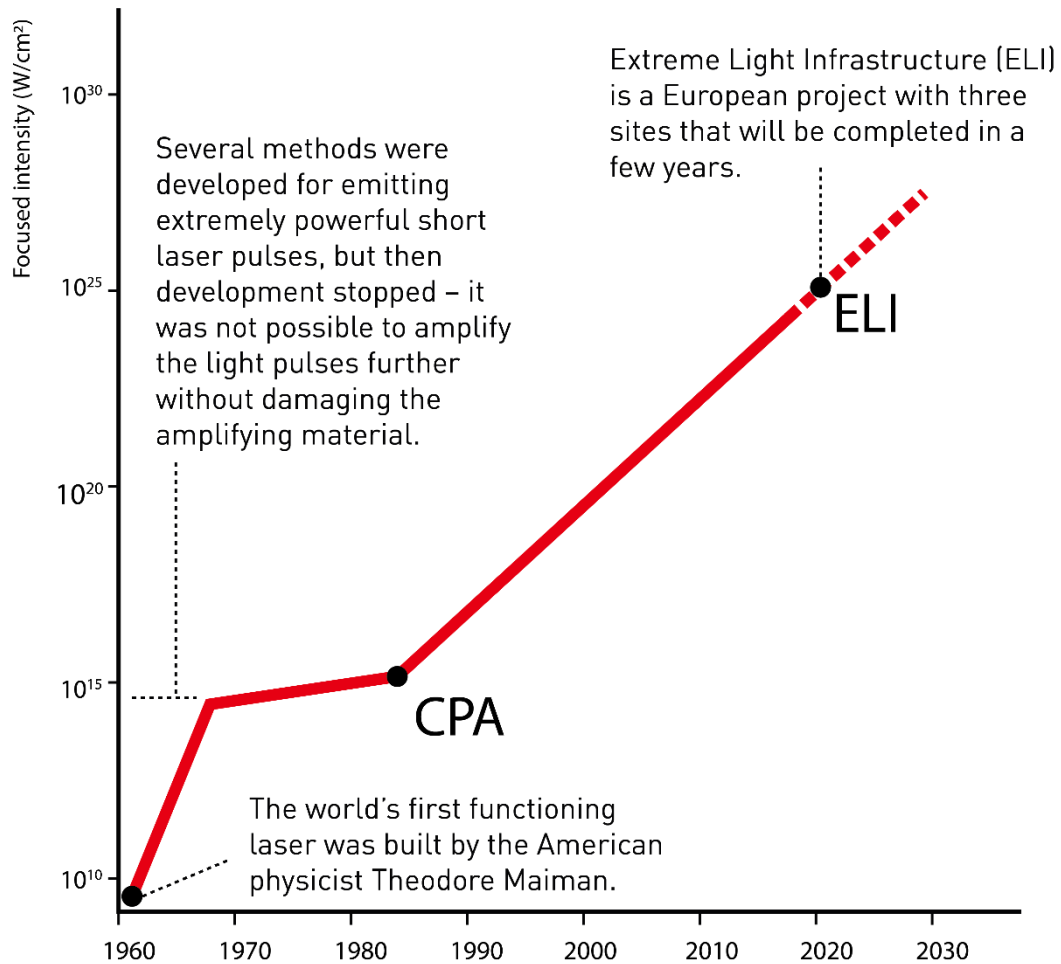


図 1.1 Chirped Pulse Amplification 法の概念図⁴

Towards ever higher intensities



©Johan Jarnestad/The Royal Swedish Academy of Sciences

図 1.2 レーザー強度増強の歴史⁵

CPA 法の発明以降もレーザー強度は増強を続けていき、その集光強度は 10^{23} W/cm^2 台にまで到達している。図 1.2 にレーザー強度増強の歴史を記す⁵。このようなレーザー強度の飛躍的な増強の結果マイクロメートルサイズの極めて小さな集光スポットに対して数十フェムト秒という極めて短い時間幅でエネルギーを付与することが可能となった。その結果、高温高密度状態を実験室上で生成する高エネルギー密度物理学が大きく進展すること

になり、高速点火方式核融合⁶⁻⁹やイオン加速¹⁰、X線源¹¹、中性子源^{12,13}などの多様な応用展開が図られている。

超高強度レーザーのパラメーターとして規格化レーザー強度 a_0 が用いられる。 a_0 は以下の式で与えられる。

$$a_0 = \frac{eE_0}{m_e \omega_L c}$$

なお、 e は電気素量、 E_0 はレーザー電場、 m_e は電子の質量、 ω_L はレーザーの周波数、 c は光速を表す。レーザー強度とレーザー電場の関係が $I = 1/2 \epsilon_0 c E_0^2$ で表されるので、 a_0 は次のようにレーザー強度と波長を用いて以下のようにも表される。

$$a_0 = 8.55 \times 10^{-10} \sqrt{I(\text{Wcm}^{-2})} \lambda(\mu\text{m})$$

上式 1.2 より、超高強度レーザーとしてよく用いられる波長 800 nm のチタンサファイアレーザーにおいて、 a_0 が 1 を超える強度は約 $2.1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ であり、これ以上の強度を相対論的強度と呼ぶ。

1.2 構造体ターゲットの出現

1.1 節で述べた応用展開を進めるための重要な課題として、レーザーエネルギーからプラズマへの変換効率の上昇がある。一方で、先述の CPA 法により実現された超高強度レーザーにはプレパルスと呼ばれる成分がメインパルスの前後に存在している¹⁴⁻¹⁶。図 1.3 に典型的な超高強度レーザーのパルス波形の概念図を示す。このプレパルスはメインピーク光の数ナノ秒から数ピコ秒前に存在している比較的強度の弱い光である。このうち、メインパルスの数ナノ秒前から存在する成分は自然放射増幅光 (Amplified Spontaneous Emission, ASE) に由来し、増幅器中で自然放出光が増幅されたものである。また、数十ピコ秒前から存在する成分は、パルス圧縮しきれなかった光に起因するペDESTALである。プレパルスの大きさを表す指標として、一般にコントラストが用いられる。コントラストは、メインパルスのピーク強度と、特定の時間におけるプレパルス強度との比で定義される。例えば、メインパルスの集光強度が 10^{18} W/cm^2 のレーザーにおいて、10 ps 前のコントラストが 10^{-8} であれば、その時刻のレーザー強度は 10^{10} W/cm^2 となる。

プレパルスの影響により、メインパルス到達以前に低密度のプリプラズマがレーザー照射試料（ターゲット）の前面に形成される。結果として、メインパルスが固体ターゲットと直接相互作用できず、レーザーエネルギーのプラズマへの変換効率は低いという課題が存在する¹⁷。

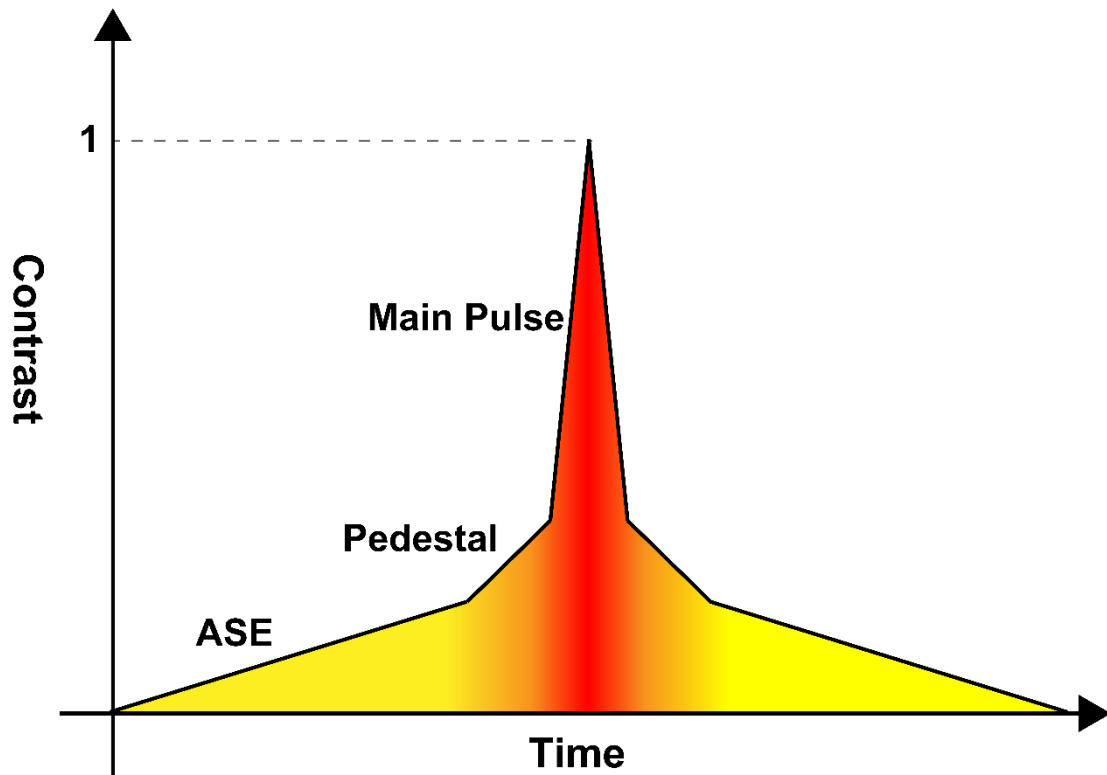
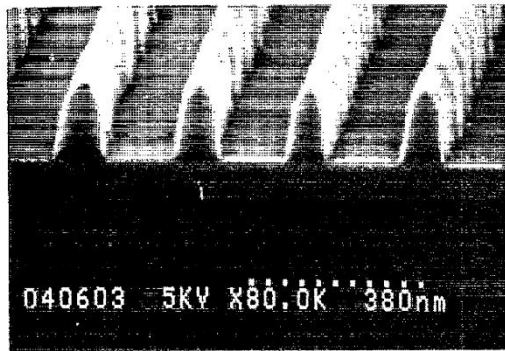


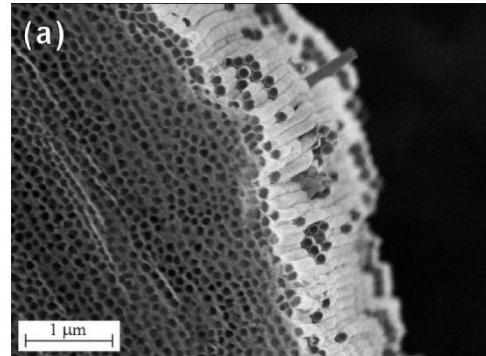
図 1.3 プレパルスの概念図

この問題に対処する手法の一つとして、ターゲット表面にナノメートル～マイクロメートルスケールの構造を付与した、構造体ターゲットを用いる手法が提唱されてきた。図 1.4 にこれまでに提唱されてきた構造体ターゲットの代表的な例を示す。例えば先駆的な研究として Murnane らは回折格子やナノサイズのクラスターに超高強度レーザーを照射することでそのエネルギー変換効率を高めることに成功した¹⁸。また、羽原らは回折格子の間隔を制御し表面プラズモン共鳴を引き起こすことで、高速電子の高エネルギー化に成功している¹⁹。ほかにもナノパーティクルの集合体を用いた研究²⁰や、ナノメートルサイズのチューブが集合したナノチューブアレイ^{21,22}、また平均密度が固体よりも小さなフォームターゲットなどが提案されてきた²³。

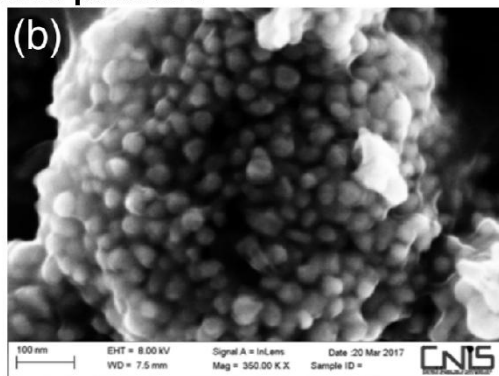
Grating



Nanotube



Nano particles



Foam

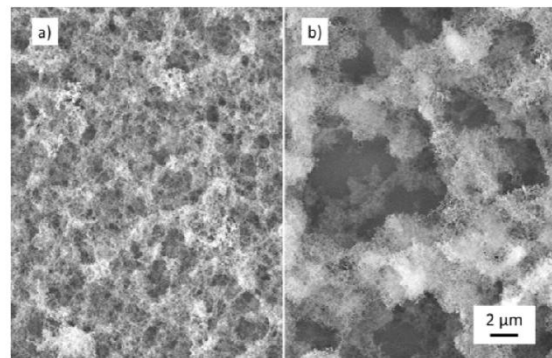


図 1.4 様々な構造体ターゲット。左上から時計回りに
グレーティング¹⁸、ナノチューブ²¹、フォーム²³、ナノパーティクル²⁰を示す。

1.3 ナノワイヤーアレイターゲットの出現

上記の各種構造体ターゲットの中でも、ナノワイヤーアレイと呼ばれる構造体ターゲットが近年特に注目されている^{17,24,25}。このナノワイヤーアレイと呼ばれるナノ構造体は直径がサブマイクロメートル以下のナノワイヤーが基板面に垂直に整列している構造体を指す。ナノワイヤーアレイの特徴は、高いアスペクト比を有する点と固体密度の 1/10 の密度を有する点にある。このような構造体に超高強度レーザーを照射すると、ナノワイヤー間の空隙をレーザー光が浸透していき、平板ターゲットに比較して広い面積を加熱することができる。その結果、平板ターゲットに比べて極めて高いエネルギー効率が実現される。さらに高いアスペクト比及び固体に近い初期密度のために、奥行き方向に大きな高エネルギー密度状態が形成できる。Purvis らは超高コントラスト・超高強度レーザーをナノワイヤーアレイに照射することで、レーザーエネルギー 0.5 J という小さなエネルギーで、2 GBar に相当する超高温・超高密度状態の生成に成功した¹⁷。また、Bargsten らは Ni-Co ナノワイヤーアレイを用いた実験により、レーザー光がナノワイヤーアレイの奥行き 5 μm

まで浸透し、その深さまで超高温・超高密度状態が形成されることを示した²⁵。なお、同等のレーザーを平板ターゲットに照射した際のレーザー光の侵入深さは、表皮長より 20 nm 程度であり、形成される超高温・超高密度状態の深さはサブ μm ほどであることが指摘されている²⁶。

以上のような特性からナノワイヤーアレイと超高強度レーザーを組み合わせ形成される高エネルギー密度状態は、その絶対的な圧力と大きな体積を生かした多様な応用展開が検討されている。例えば、Curtis らは重水素化ポリエチレン製ナノワイヤーアレイに対して超高強度レーザーを照射することで重水素同士での核融合反応を起こし、エネルギー当たりの中性子発生数の世界最高記録を達成した²⁷。さらに、先進核融合燃料として注目されている pB 反応に着目した研究も実施されている。レーザー照射ナノワイヤーアレイより加速されたプロトンを同じくナノワイヤーアレイ中のボロンに衝突させることによる、ピッチャー・キャッチャー方式を活用した α 線の発生が報告された²⁸。また、ナノワイヤーアレイを高輝度ポイント X 線源として活用する研究もおこなわれている。Hollinger らは金製ナノワイヤーアレイと超高強度レーザーを用いることで、レーザーエネルギーの約 18% を高輝度 X 線(光子エネルギー 1 keV 以上)に変換させることに成功している²⁹。

上記のような応用展開を進めるためには、ナノワイヤーアレイにおけるレーザーエネルギーの吸収・輸送過程の詳細な理解が不可欠である。このエネルギー吸収・輸送過程にはナノワイヤーアレイの空間ジオメトリ（ナノワイヤー直径、間隔、長さ、材質）に強く依存すると考えられている。Cristoforetti らはレーザー照射により放出された高速電子のスペクトルと Particle in Cell (PIC) シミュレーションの比較から、大きなナノワイヤー間隔を有するナノワイヤーアレイは粒子加速に適し、小さなナノワイヤー間隔を有するナノワイヤーアレイは超高温・超高密度状態の生成に適していると指摘した³⁰。Park らはナノワイヤーアレイと光が相互作用する面積が増大するにつれて、ナノワイヤーアレイからの反射光が減少することを示した³¹。

一方で、今までの研究には次の視点が欠けていた。1 点目はパルス幅の観点での研究である。近年のレーザー技術の発展からパルス幅がピコ秒の超高強度レーザーが開発・建設されてきた。同レーザーはレーザー核融合の高速点火方式における加熱用レーザーとして建設されたものである^{7,9}。エネルギー吸収効率の高いナノワイヤーアレイをピコ秒レーザーに導入することで、上記研究がより進展する可能性があるが、いまだにピコ秒レーザーをナノワイヤーアレイに用いた実験的研究は存在しない。

次に、これまでの研究の多くは時間積分計測と PIC シミュレーションの比較に基づい

ており、時空間分解計測による直接的な検証は限定的であったという点がある。超高強度レーザーによって生成される高エネルギー密度プラズマは、レーザースポット径と同程度の数十マイクロメートル、時間幅はピコ秒程度という極めて限られた時空間スケールをもつ。したがってその時空間発展を追跡することは従来の X 線ストリークカメラなどの計測器では困難であった。Humphries らは 1 ps の時空間分解能を有する超高速 X 線分光ストリークカメラにより、ピコ秒超高強度レーザーが照射されたナノワイヤーアレイにおける高エネルギー密度状態の時間発展を計測し、その物理メカニズムを評価した³²。しかし、得られた情報は空間的に平均されたものであり、時間分解能も十分ではなかった。依然としてナノワイヤーアレイにおけるレーザーエネルギーの吸収から緩和までの一連の過程は不明瞭である。今後、ナノワイヤーアレイを用いた応用展開を進めていくためには、レーザーエネルギーの吸収から緩和に至る一連の過程を時空間分解計測により明らかにし、それぞれの応用に対して最適なナノワイヤー空間パラメーターおよびレーザー条件を定量的に特定することが重要である。

1.4 本論文の構成

本論文は上述の課題に対してレーザー照射ナノワイヤーアレイのエネルギー吸収・輸送メカニズムを明らかにすることを目的とし、そのために実施した研究成果をまとめたものである。本論文は全 6 章で構成される。

第 1 章では序論として、超高強度レーザーの出現とそれに伴う高エネルギー密度物理学の発展、そして構造体ターゲット、特にナノワイヤーアレイの特徴と課題について整理したうえで、研究の位置づけを述べた。

第 2 章ではナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収・輸送過程を理解するために必要な物理メカニズムを整理した。まず、レーザー電場中での電子の運動の様子を説明した。これはレーザーからプラズマへのエネルギー変換には電子が大きな役割を担うためである。次に、プラズマ中でのレーザーエネルギー吸収メカニズムとして、古典吸収、共鳴吸収、真空加熱、 $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱などの代表的な機構を概説した。さらに、レーザー生成高速電子による固体ターゲットの加熱機構である等積加熱 (Isochoric heating) を説明し、その後ナノワイヤーアレイに特有のエネルギー吸収プロセスを、レーザー照射直後から緩和に至るまでのタイムステップごとに整理した。

第 3 章では、大阪大学レーザー科学研究所において筆者が開発した、空間パラメーターを任意に制御可能な高品質ナノワイヤーアレイ作製手法について述べた。ナノワイヤー

アレイにおけるエネルギー吸収は、ナノワイヤー直径・間隔・長さ・充填率などの空間パラメーターに強く依存する。本研究では、これらのパラメーターおよび材質を系統的に変化させることが可能なナノワイヤーアレイ作製プロセスの確立を目指した。多数あるナノワイヤーアレイ作製手法の中でも、筆者は陽極酸化アルミニウムをテンプレートとする作製方式に着目した。同手法では自己組織化によりナノワイヤーの直径や間隔を、電気めっきにより材質やナノワイヤー長さを操作することが可能である。作製手法の最適化を通して直径が 50 から 400 nm、充填率 13~40% のナノワイヤーアレイが作製可能となった。加えて作製したナノワイヤーアレイの特性評価を通じて、作製したナノワイヤーアレイは不純物が少なくほぼ単結晶で形成されていることを示した。

第 4 章ではピコ秒超高強度レーザーを照射したナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収・輸送過程の実験的研究に関する結果をまとめた。筆者は大阪大学レーザー科学研究所の Laser for Fast Ignition Experiment (LFEX)³³ レーザーを用いたナノワイヤーアレイへのレーザー照射実験と PICLS-2D³⁴ を活用した実験結果の解析を行った。LFEX レーザーはピコ秒という比較的長いパルス幅を有しかつキロジュール級のレーザーエネルギーを有する稀有なレーザー施設である。実験では超高温・超高密度状態の形成を示す He 線がナノワイヤーアレイにおいて平板より強く観測された。また、ターゲット表面より放出された高速電子を比較すると、ターゲット前面において計測した電子の発生数はナノワイヤーアレイのほうが大きい一方で、ターゲット裏面を抜けた電子においてはナノワイヤーアレイと平板は同程度であることが分かった。PIC シミュレーションとの比較から、ナノワイヤーアレイにおいてはワイヤー間の真空による電子の横方向移動の抑制及びワイヤーごとに発生する強磁場による電子のトラップが発生していることを明らかにした。このナノワイヤーアレイの構造に由来する効果により、ナノワイヤーアレイではエネルギーの散逸が防止され、効率的な高エネルギー密度状態形成につながることを明らかにした。

第 5 章では X 線自由電子レーザー(X-ray free electron laser, XFEL)^{35,36} を用いた、超高強度レーザー照射ナノワイヤーアレイに対する超高速時空間分解計測の結果をまとめた。XFEL はその高い時空間分解能から高エネルギー密度物理学における新たなプローブ光源として注目されている。筆者は XFEL と同期した超高強度レーザーを使用したポンプ・プローブ計測を平板ターゲットと、ナノワイヤーアレイに対して実施した。計測では時空間分解計測として XFEL によるシャドウグラフの撮像と、時間積分計測として X 線分光計測を実施した。ナノワイヤーアレイに関しては第 3 章にて説明したナノワイヤーアレイ作製手法を活用することで複数の空間パラメーターを有するナノワイヤーアレイを作製した。

さらに、ナノワイヤーアレイと基板における温度変化を独立に評価するために、ナノワイヤーアレイと基板が別素材でできている異素材ナノワイヤーアレイも併せて使用した。まずナノワイヤーアレイに特有の X 線の散乱に伴う X 線透過光強度減衰効果の定量評価を行い、X 線の透過度の較正を実施した。続いて、ナノワイヤーアレイの形状変化に関する計測を行い、レーザー照射から 5 ps まではナノワイヤーの形状を大きく損なわないことを確認した。さらに X 線の K 吸収端近傍での計測を行い、温度変化に伴う X 線の透過度変化の計測を行った。単素材ナノワイヤーアレイを用いた計測からはナノワイヤーアレイの空間パラメーターの差異による加熱の差を示す兆候が観測されたが、高密度側の基板での透過度変化の寄与が大きく、ナノワイヤーアレイにおける温度変化の評価は困難であった。そこで異素材ナノワイヤーアレイによるレイヤーごとの温度変化の評価を実施した。結果、ナノワイヤーアレイにおける温度の時間発展と、基板側への高速電子輸送のタイムスケールを得た。

第 6 章は本論文のまとめとして、研究内容を総括した。

参考文献

1. Quinn, L. et al. Infrared and Optical Masers, Phys. Rev. 112, 1940, (1958).
2. Maiman, T. H. Stimulated Optical Radiation in Ruby. Nature 187, 493–494 (1960).
3. McClung, F. J. & Hellwarth, R. W. Giant optical pulsations from ruby. J Appl Phys 33, 828–829 (1962).
4. Strickland, D. & Mourou, G. Compression of amplified chirped optical pulses. Optics Communications vol. 56 219–221 (1985).
5. Johan, J. Illustration: CPA – Chirped pulse amplification. The Royal Swedish Academy of Sciences (2018).
6. Johan, J. Illustration: Towards ever higher intensities. The Royal Swedish Academy of Sciences (2018).
7. Tabak, M. et al. Ignition and high gain with ultrapowerful lasers. Phys Plasmas 1, 1626–1634 (1994).
8. Kodama, R. et al. Fast heating of ultrahigh-density plasma as a step towards laser fusion ignition. Nature 412, 798–802 (2001).
9. Matsuo, K. et al. Petapascal Pressure Driven by Fast Isochoric Heating with a Multipicosecond Intense Laser Pulse. Phys Rev Lett 124, (2020).
10. Daido, H., Nishiuchi, M. & Pirozhkov, A. S. Review of laser-driven ion sources and their applications. Reports on Progress in Physics 75, 056401 (2012).
11. Albert, F. Principles and applications of x-ray light sources driven by laser wakefield acceleration. Phys Plasmas 30, (2023).
12. Pretzler, G. et al. Neutron Production by 200 MJ Ultrashort Laser Pulses. (1998).
13. Lan, Z. et al. Single-shot laser-driven neutron resonance spectroscopy for temperature profiling. Nat Commun 15, (2024).
14. Kiriya, H. et al. Status and progress of the J-KAREN-P high intensity laser system at QST. High Energy Density Phys 36, (2020).
15. Arikawa, Y. et al. Ultrahigh-contrast kilojoule-class petawatt LFEX laser using a plasma mirror. Appl Opt 55, 6850–6857 (2016).
16. Gaul, E. et al. Improved pulse contrast on the Texas Petawatt Laser. in Journal of Physics: Conference Series vol. 717 (2016).
17. Purvis, M. A. et al. Relativistic plasma nanophotonics for ultrahigh energy density physics. Nat

- Photonics 7, 796 (2013).
18. Murnane, M. M. et al. Efficient coupling of high-intensity subpicosecond laser pulses into solids. *Appl Phys Lett* 62, 1068–1070 (1993).
 19. Lad, A. D. et al. Luminous, relativistic, directional electron bunches from an intense laser driven grating plasma. *Sci Rep* 12, (2022).
 20. Ray, N. J., Yoo, J. H., Nguyen, H. T. & Feigenbaum, E. Designer Metasurfaces for Antireflective Applications Enabled by Advanced Nanoparticle Technology. *Adv Opt Mater* 10, (2022).
 21. Cristoforetti, G. et al. Laser-driven proton acceleration via excitation of surface plasmon polaritons into TiO₂ nanotube array targets. *Plasma Phys Control Fusion* 62, (2020).
 22. Gizzi, L. A. et al. Intense proton acceleration in ultrarelativistic interaction with nanochannels. *Phys Rev Res* 2, (2020).
 23. Prencipe, I. et al. Development of foam-based layered targets for laser-driven ion beam production. *Plasma Phys Control Fusion* 58, (2016).
 24. Rocca, J. J. et al. Ultra-intense femtosecond laser interactions with aligned nanostructures. *Optica* 11, 437–453 (2024).
 25. Bargsten, C. et al. Energy penetration into arrays of aligned nanowires irradiated with relativistic intensities: Scaling to terabar pressures. *Sci Adv* 3, (2017).
 26. Akli, K. U. et al. Laser Heating of Solid Matter by Light-Pressure-Driven Shocks at Ultrarelativistic Intensities. *Phys Rev Lett* 100, 165002 (2008).
 27. Curtis, A. et al. Micro-scale fusion in dense relativistic nanowire array plasmas. *Nat Commun* 9, 1077 (2018).
 28. Wang, P. et al. "Proton–boron fusion in femtosecond-laser-irradiated nanowire array target." *Phys. Plasmas* 32 (2025).
 29. Hollinger, R. et al. Efficient picosecond x-ray pulse generation from plasmas in the radiation dominated regime. *Optica* 4, 1344 (2017).
 30. Cristoforetti, G. et al. Transition from Coherent to Stochastic electron heating in ultrashort relativistic laser interaction with structured targets. *Sci Rep* 7, (2017).
 31. Park, J. et al. Absolute laser energy absorption measurement of relativistic 0.7 ps laser pulses in nanowire arrays. *Phys Plasmas* 28, (2021).
 32. Humphries, O. S. et al. Time evolution of transient plasma states from nanowire arrays

- irradiated at relativistic intensities. *Commun Phys* 3, (2020).
33. Miyanaga, N. et al. 10-kJ PW laser for the FIREX-I program. in *Journal De Physique. IV : JP* vol. 133 81–87 (2006).
 34. Sentoku, Y. & Kemp, A. J. Numerical methods for particle simulations at extreme densities and temperatures: Weighted particles, relativistic collisions and reduced currents. *J Comput Phys* 227, 6846–6861 (2008).
 35. Tono, K. et al. Beamline, experimental stations and photon beam diagnostics for the hard x-ray free electron laser of SACLA. *New J Phys* 15, (2013).
 36. Yabuuchi, T. et al. An experimental platform using high-power, high-intensity optical lasers with the hard X-ray free-electron laser at SACLA. *J Synchrotron Radiat* 26, 585–594 (2019).

第2章 超高強度レーザーとターゲットの相互作用

2.1 はじめに

本章では超高強度レーザーとターゲットの相互作用として、ターゲットへのレーザー照射に伴って生じる物理過程を議論する。まず、エネルギー吸収の基本を担う電子の挙動を解析的に導出する。次にレーザーとプラズマの相互作用による高速電子発生メカニズムとして、古典吸収、共鳴吸収、真空加熱、 $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱などの代表的機構をまとめた。そして、発生した高速電子によるターゲットの加熱メカニズム、等積加熱 (Isochoric heating) について説明する。最後に上記の知見を踏まえて、ナノワイヤーアレイにおける、先行研究で提唱されてきたエネルギー吸収・輸送メカニズムをまとめた。

2.2 レーザー電場中での電子の運動

まず、レーザーを直線偏光及び z 方向に伝搬すると仮定する。その時、レーザーの電磁波はそれぞれ次のように表される¹。なお、ベクトルポテンシャルを $\mathbf{A}(\varphi) = A_0 \sin \varphi \mathbf{e}$, $\varphi = kz - \omega t$ とした。

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = \omega A_0 \cos \varphi \mathbf{e}$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} = \frac{1}{c} \mathbf{E}$$

ここで、電子の運動方程式は以下の式の通りである。

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{P}}{dt} &= q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \\ p_x &= qE_x + qv_z B_y \\ p_y &= 0 \\ p_z &= qv_x B_y \\ \frac{d\gamma}{dt} &= qv_x E_x \end{aligned}$$

$\mathbf{P} = \gamma m \mathbf{v}$ は電子の運動量であり、 $\gamma = 1/\left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right)^{(1/2)}$ はローレンツファクター、 m_e は電子の質量、そして $\mathbf{v}$ は電子の速度を示し、 e は電気素量である。

規格化運動量として $\mathbf{u} = \mathbf{p}/m_e c$ を導入する。電子の x 方向及び z 方向の運動量は、

$$u_x = a_0 \sin \varphi$$

$$u_z = \frac{1}{2}u_x^2$$

となり、次のように x と z が得られる。

$$\frac{dx}{d\varphi} = \frac{dx}{dt} \frac{dt}{d\varphi} = \frac{\gamma v_x}{\omega} = \frac{cu_x}{\omega} = \frac{c}{\omega} a_0 \sin\varphi$$

$$x = \frac{c}{\omega} a_0 \cos\varphi$$

$$\frac{dz}{d\varphi} = \frac{dz}{dt} \frac{dt}{d\varphi} = \frac{\gamma v_z}{\omega} = \frac{c}{2\omega} a_0^2 \sin^2\varphi = \frac{c}{4\omega} a_0^2 (1 - \cos 2\varphi)$$

$$z = \frac{c}{4\omega} a_0^2 \left(\varphi - \frac{1}{2} \sin 2\varphi \right)$$

上式より、ドリフト速度 $v_d = a_0^2 / (4 + a_0^2)$ が得られる。電子はドリフト速度 v_d でレーザー進行方向に押し出されることになる。

2.3 超高強度レーザーとプラズマの相互作用による高速電子生成メカニズム

2.3.1 プラズマ中でのレーザー伝搬と古典吸収

超高強度レーザーがターゲットに照射されると、その表面は急激に加熱されプラズマが形成される。このプラズマ中でのレーザー光の伝搬は以下の分散関係によって表される²。ここで、 $\omega_p = (n_e e^2 / m_e \epsilon_0)^{1/2}$ はプラズマ周波数を表し、 k は波数を表す。なお、 n_e は電子密度、 ϵ_0 は真空中の誘電率を表す。

$$k^2 = \omega_L^2 - \omega_p^2$$

k はその定義から 0 以上でなければならないため、 $k < 0$ となる電子密度を有するプラズマ中ではレーザーは伝搬できない。また、 k が 0 の時の電子密度を特に臨界電子密度 n_c と呼び、レーザーのプラズマ中の伝搬を考えるうえで重要な指標の一つとして用いられてい

る。この臨界密度は以下の式で計算できる。なお、 λ_L はレーザーの波長である。

$$n_c = \frac{\pi m_e^2 c^2}{\lambda_L^2 e^2} \sim \frac{1.1 \times 10^{21}}{\lambda_L^2} (\text{cm}^{-3})$$

レーザーは臨界密度面まで侵入することになるが、この時レーザーの電場によりプラズマ中の電子が振動し、それらの電子がイオンと衝突することによる、レーザーエネルギーのプラズマへの分配が生じる。この過程は古典吸収と呼ばれ、レーザー強度が 10^{14} W/cm^2 で顕著となる加熱機構であることが知られている。一方で、さらにレーザー強度が強くなるとこの古典吸収の影響は低減していき、後述の加熱機構が顕著になっていく。これはプラズマ中での電子の衝突周波数は電子温度の-3/2 乗に比例していることによる³。以下に電子の衝突周波数 ν_{ei} を示す。

$$\nu_{ei} \approx 9.2 \frac{Z \ln(\Lambda) n_e (10^{20} \text{ cm}^{-3})}{T_e^{3/2} (\text{keV})} (\text{ns}^{-1})$$

この式から電子の高エネルギー化に伴って衝突周波数が低減していくことがわかる。

2.3.2 表皮長

2.3.1 節では、レーザー光は臨界密度以上の密度を有するプラズマに侵入しないと述べたが、スケール長が非常に短いプラズマの際にはレーザーの電場はわずかに浸透することが知られている。浸透したレーザーの電場は指数関数的に減少していき、電場が減衰しきるとき深さを表皮長 (Skin depth) と呼ぶ⁴。表皮長 l_s はプラズマ周波数と光速から計算され、 $l_s = c/\omega_p$ と表される。通常、表皮長は数十 nm のオーダーである。

2.3.3 共鳴吸収

超高強度レーザーが固体表面に照射された際に、プレパルス成分またはメインパルスの立ち上りの部分で固体表面には薄いプラズマが形成される。プラズマの温度の上昇に従い加熱における衝突の寄与が弱くなる。そのようなプラズマに対して p 偏光のレーザー光を斜入射によって照射すると、加熱機構は古典吸収から共鳴吸収へとシフトすることが知られている⁵。共鳴吸収はレーザーの臨界密度面近傍で生じる機構である。レーザーの偏光が p 偏光、つまり密度勾配に対して直交する向きに電場が振動しているとき、レーザーの電場はプラズマ中に浸透し電子プラズマ波を誘起する。そしてこの電子プラズマ波により電子が加速される。この共鳴吸収に最適なレーザーの入射角度は、レーザー光周波数と密度スケール長を用いて以下の式の通り求められる⁵。

$$0.8 = \sin\theta \left(\frac{\omega L}{c} \right)^{1/3}$$

2.3.4 真空加熱

共鳴吸収とは異なり、ほとんどプリプラズマが形成されない急峻な密度プロファイルを有する固体ターゲットに p 偏光レーザーを照射すると、レーザー光の電場の半サイクルで直接固体中の電子が引きはがされ、残りの半サイクルで固体中に電子が押し込まれる真空加熱が発生する⁶。加速された電子は表皮長を超えて固体内部に侵入していき、レーザー電場の影響を受けなくなる。この真空加熱は提唱者の名前をとり、**Brunel** 加熱とも呼ばれ、プリプラズマの発生が極力抑えられる超高コントラスト・超高強度レーザーを固体に照射した際に顕著になる。

2.3.5 $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱

先述の共鳴吸収及び真空加熱は p 偏光かつ斜入射レーザーが必要条件であった。しかし本節で説明する $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱は s 偏光レーザーでも直入射条件でも有効となる電子の加速機構である⁷。2.2 節で説明したように相対論的レーザー強度を超えたレーザー電磁場の下で運動する電子は $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ 項の影響が無視できない。 $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ 項の力によって電子は 8 の字に運動することになるが、臨界密度以上の密度領域にはレーザー光は侵入できない。よって臨界密度以上の領域ではレーザー光により電子は振動ができなくなる。その結果レーザー伝搬方向に電子は運動量を得ることになる。

この電子の加速機構によって加速される高速電子のエネルギースケリングが **Wilks** らにより提唱されている（ポンデロモーティブスケリング）。以下の式から高速電子のエネルギーとレーザー強度とを結び付けることができる¹。

$$T_{hot} = 0.511 \left(\sqrt{1 + a_0^2} - 1 \right) (MeV)$$

2.4 レーザー生成高速電子による固体加熱のメカニズム：等積加熱

2.3 節で述べたようなメカニズムによりエネルギーを得た電子は、高速電子として固体中のバルク電子を加熱することになる。この加熱機構は等積加熱と呼ばれている⁸⁻¹¹。等積加熱は主に次の 3 つの加熱機構による。以下の式 1 は、左辺が物体の温度変化を示し、右辺の

第一項から順に Drag heating, Resistive heating (Joule heating), Diffusive heating を示している。なお、 $j_h = en_h c$ は高速電子の電流を、 $n_h = \alpha n_c$ は高速電子の数密度を表す。

$$\frac{3}{2} n_c \frac{\partial T_c}{\partial t} = \frac{3}{2} \frac{n_h T_h}{\tau_e} + \frac{j_h^2}{\sigma(T_c)} + \frac{\partial}{\partial x} \left(\kappa(T_c) \frac{\partial T_c}{\partial x} \right) \quad (1)$$

図 2.1 に加熱機構毎の概念図を示す。Drag heating はレーザー生成高速電子がターゲット内部を進むときに、ターゲット内部の原子と衝突することによる加熱機構である。一般的に、超高強度レーザーによる生成される MeV 級の高速電子の平均自由行程は大きいため、高密度 ($\sim 10^{25}$ /cc) のターゲットにのみ有効な加熱過程である。Resistive heating は超高強度レーザー照射による高速電子の生成に伴い生じたターゲット内の電位差による戻り電流 (Return current) による抵抗加熱過程である。この加熱過程は戻り電流がターゲット前面に到達すると電位差が消滅することから、レーザー照射後すぐに有効な加熱過程である。また薄いターゲット (ターゲット厚み L に対して、レーザーのパルス長さ $L_p = c \times \tau$ (パルス幅) が $L < L_p/2$) であると、ターゲットに形成されたシース電場により裏面ぬけした電子が引き戻される Refluxing 機構が存在している¹⁰。この Refluxing 機構により電子がターゲット中で広がり加熱領域が拡大する。最後の Diffusive heating はターゲットのレーザー照射面に形成された高温のプラズマからの熱拡散過程である。

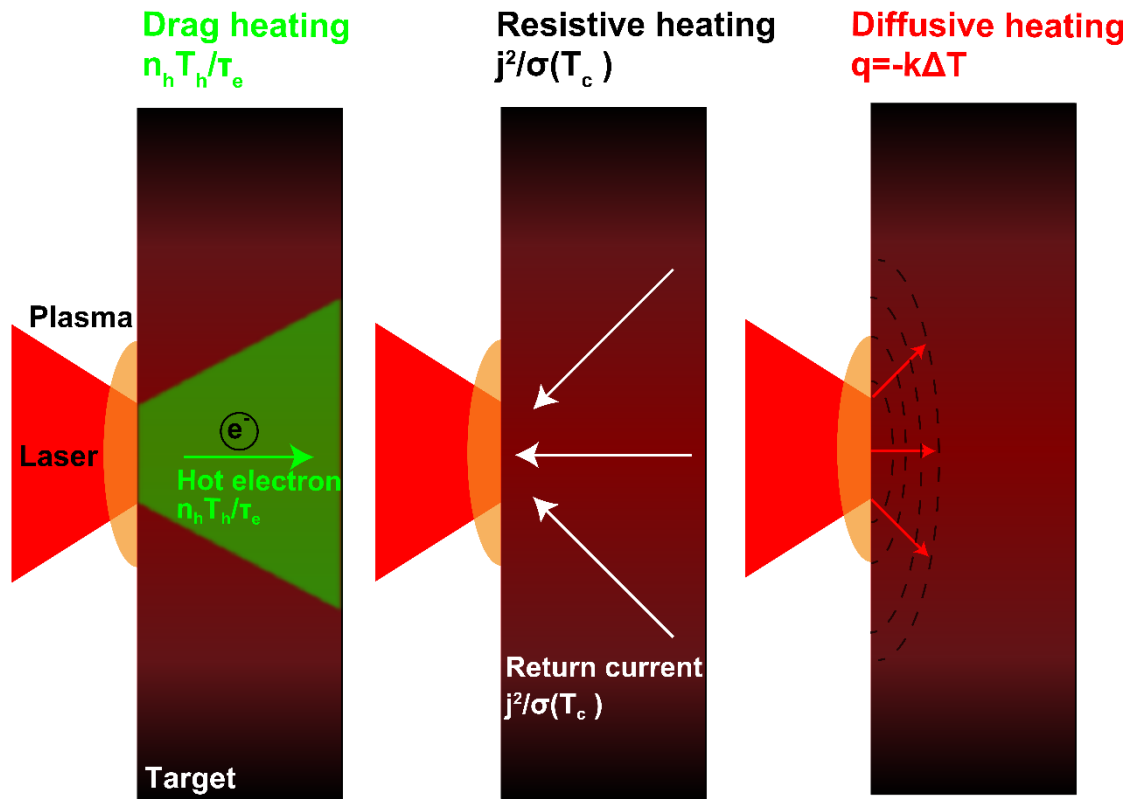


図 2.1 等積加熱における 3 つの加熱機構それぞれの概念図、左から Drag heating, Resistive heating, Diffusive heating を示す

2.5 ナノワイヤーアレイにおける加熱メカニズム

本節では、ナノワイヤーアレイにおける加熱機構の概要と、各メカニズムに関する先行研究の進展状況を整理する。図 2.2 にレーザー照射ナノワイヤーアレイの時間発展の概念図を示す。

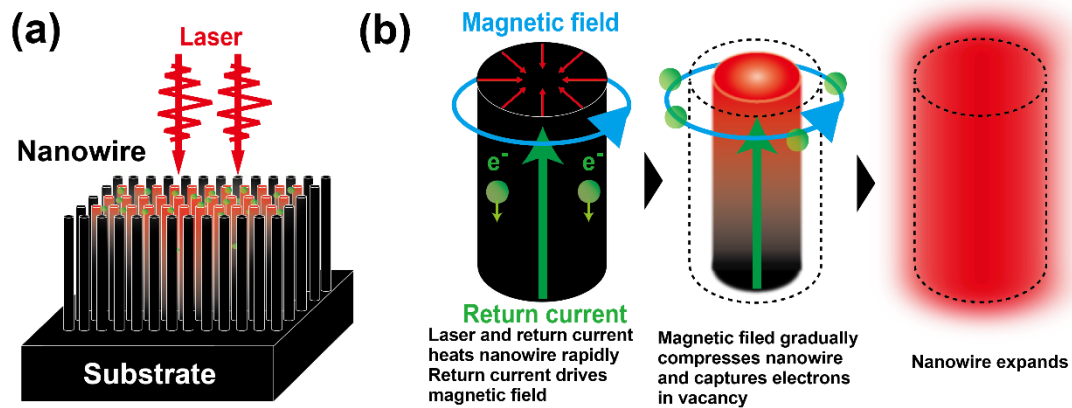


図 2.2 ナノワイヤーアレイにおける加熱機構の概念図。(a)巨視的な概念図と(b)ナノワイヤー1本に着目した加熱プロセスの概念図

まず、ナノワイヤー間の空隙に浸透してきたレーザー光によりナノワイヤーアレイ表面の電子が引きはがされる。それらの電子はナノワイヤー表面を沿って流れ、この電子の流れにより強いリターンカレントが駆動される¹²⁻¹⁴。このリターンカレントによりナノワイヤー内部には強い磁場が形成され、ナノワイヤーは加熱されるとともに径方向にピンチされて圧縮される。そして加熱・圧縮されたナノワイヤーのプラズマ圧力が磁場圧に打ち勝つと今度は膨張を開始する。膨張を始めたナノワイヤーは隣り合ったナノワイヤーと一体化していく。この一体化の過程で原子同士が衝突しその運動エネルギーが熱エネルギーに変換される¹⁵。ナノワイヤーが膨張をつづける過程で密度分布がなだらかとなり、ナノワイヤーごとの磁場は消滅していく¹⁶。最後には複数のナノワイヤーが一体のプラズマとなる。このプラズマは流体的な膨張及び輻射により冷却される。なお、このようなバルクプラズマは平板で形成されるプラズマに比べて体積が大きく、流体的に拡散されにくいいため冷却時間が輻射による冷却時間に比べて長いことが指摘されている¹⁷。

以下に各メカニズムにおける先行研究の結果を記載する。磁場について、Kaymak らは 3D-PIC シミュレーションを通じて $5 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$ のレーザーが照射されたナノワイヤーアレイには $100 \text{ MA}/\mu\text{m}^2$ の電流が流れ、それに伴い 10 kT もの磁場が形成されることを示した¹²。さらにこの磁場によりナノワイヤーが圧縮され、臨界密度の 1000 倍ほどまで径方向に圧縮される様子を観測した。さらに Curtis らは重水素ポリエチレンナノワイヤーアレイに対するレーザー照射実験により発生した中性子は、超高温まで加熱されたナノワイヤーが先述のピンチによって高密度にまで圧縮されたため、重水素による核融合反応が生じたとしている¹⁸。ナノワイヤーアレイに形成される磁場は Lecz らにより理論的に整理され、

ナノワイヤーの径や初期密度の初期条件ごとに使用可能なモデルが提唱された¹³。また、Liらによりレーザー照射初期はナノワイヤーアレイに沿って電子がガイドイングされるが、ナノワイヤーアレイの形状が大きく変化した場合でも、抵抗性磁場により電子のガイドイングが有効であると指摘された¹⁶。

形状変化に伴う温度上昇については、Humphriesらは超高速X線分光ストリークカメラによる電子温度の時間発展の計測結果から、ナノワイヤーアレイの形状変化に伴う電子温度のさらなる上昇が発生することを確認した¹⁵。

ナノワイヤーアレイの空間パラメーターによるエネルギー吸収への影響に関して、Cristoforettiらは、ナノワイヤーアレイの間隔の値によって高エネルギー密度状態の形成に適するジオメトリと、粒子加速に適するジオメトリが存在すると指摘した¹⁹。間隔が狭い場合はナノワイヤーで形成されたプラズマがすぐにナノワイヤー間の間隔を満たし、Stochastic heatingにより高温に加熱されるが、広い間隔のナノワイヤーアレイではプラズマに充填されにくく、レーザーの電場により粒子が加速されやすいためである。Bargstenらはナノワイヤーの長さがエネルギー吸収に与える影響を調べるために、Ni及びCoで構成されたナノワイヤーアレイを用いてレーザー光の浸透深さを計測した。その結果、レーザー光の浸透深さは5 μm であったことが報告された²⁰。さらにParkらは、入射したレーザー光の反射光が、光と相互作用する面積が増加するにしたがって減少していくことを実験的に明らかにした²¹。

一方で、これらの加熱機構の多くは時間積分計測結果とPICシミュレーションによる比較にとどまっている。1章で説明した通り、超高強度レーザーにより形成されるプラズマの時空間スケールは非常に短く小さい。そのため従来の時間分解計測機でその時間発展を追うことは困難であった。先駆的な試みとしてHumphriesらは時間分解能力が1 psの超高速X線分光ストリークカメラを用いて、レーザー照射ナノワイヤーアレイにおいて形成されたプラズマの時間発展を計測した。しかし、得られた情報は空間的に平均化されており、ナノワイヤーアレイにおいてはその構造に由来する効果が予想されることから、空間情報の欠落は問題である。また1 psの時間分解能はプラズマの時間発展をとらえるために決して十分とは言えなかった。そのため、いまだにナノワイヤーアレイにおいて形成されたプラズマの時空間発展の評価には不十分な点が多い。

2.6 まとめ

本章では、レーザーエネルギーの変換効率に関わる主要なメカニズムを整理した。まず、

エネルギー輸送を担う電子のレーザー電磁場中での運動を解析的に導出した。次に、古典吸収、共鳴吸収、真空加熱、 $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱といったレーザープラズマ相互作用に基づく高速電子生成機構を概説した。さらに、生成された高速電子による固体ターゲットの加熱機構として、等積加熱のモデルを紹介した。最後に、ナノワイヤーアレイに対して提唱されている各種エネルギー吸収メカニズムを整理し、それらの多くが時間積分計測と PIC シミュレーションの比較に基づくものであり、時空間分解計測による直接的な検証が十分ではないことを示した。

参考文献

1. Takabe, H. The Physics of Laser Plasmas and Applications-Volume 1. Springer, (2024).
2. Chen, F. F. Introduction to Plasma Physics. Springer Science & Business Media, (2012).
3. Craxton, R. S. et al. Direct-drive inertial confinement fusion: A review. *Phys Plasmas* 22, 110501 (2015).
4. 小方 厚, 菅 晃一 & 楊 金峰. レーザーとプラズマと粒子ビーム. 大阪大学出版会, (2012).
5. Michel, P. Introduction to Laser-Plasma Interactions Graduate Texts in Physics.
6. Brunel, F. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys Rev Lett* 59, 52–55 (1987).
7. Kruer, W. L. & Estabrook, K. J×B heating by very intense laser light. *Phys Fluids* 28, 430–432 (1985).
8. Kemp, A. J., Sentoku, Y., Sotnikov, V. & Wilks, S. C. Collisional relaxation of superthermal electrons generated by relativistic laser pulses in dense plasma. *Phys Rev Lett* 97, (2006).
9. Santos, J. J. et al. Fast electron energy deposition in aluminium foils: Resistive vs. drag heating. *European Physical Journal: Special Topics* 175, 71–76 (2009).
10. Sentoku, Y., Cowan, T. E., Kemp, A. & Ruhl, H. High energy proton acceleration in interaction of short laser pulse with dense plasma target. *Phys Plasmas* 10, 2009–2015 (2003).
11. 澤田 寛. 短パルス高強度レーザーによる等積加熱が拓く高エネルギー密度科学、レーザー等積加熱過程の解明－単色 X 線イメージングが明らかにした固体の加熱物理. *J. Plasma Fusion Res* 96, 451–457 (2020).
12. Kaymak, V., Pukhov, A., Shlyaptsev, V. N. & Rocca, J. J. Nanoscale Ultradense Z -Pinch Formation from Laser-Irradiated Nanowire Arrays. *Phys Rev Lett* 117, (2016).
13. LécZ, Z. & Andreev, A. Laser-induced extreme magnetic field in nanorod targets. *New J Phys* 20, (2018).
14. Ong, J. F., Ghenuche, P., Turcu, I. C. E., Pukhov, A. & Tanaka, K. A. Ultra-high-pressure generation in the relativistic transparency regime in laser-irradiated nanowire arrays. *Phys Rev E* 107, (2023).
15. Humphries, O. S. et al. Time evolution of transient plasma states from nanowire arrays irradiated at relativistic intensities. *Commun Phys* 3, (2020).
16. Li, B. et al. Transport of fast electrons in a nanowire array with collisional effects included. *Phys Plasmas* 22, (2015).
17. Hollinger, R. et al. Efficient picosecond x-ray pulse generation from plasmas in the radiation dominated regime. *Optica* 4, 1344 (2017).

18. Curtis, A. et al. Micro-scale fusion in dense relativistic nanowire array plasmas. *Nat Commun* 9, 1077 (2018).
19. Cristoforetti, G. et al. Transition from Coherent to Stochastic electron heating in ultrashort relativistic laser interaction with structured targets. *Sci Rep* 7, (2017).
20. Bargsten, C. et al. Energy penetration into arrays of aligned nanowires irradiated with relativistic intensities: Scaling to terabar pressures. *Sci Adv* 3, (2017)
21. Park, J. et al. Absolute laser energy absorption measurement of relativistic 0.7 ps laser pulses in nanowire arrays. *Phys Plasmas* 28, (2021).

第3章 実験用高品質ナノワイヤーアレイ作製手法の開発

3.1 はじめに

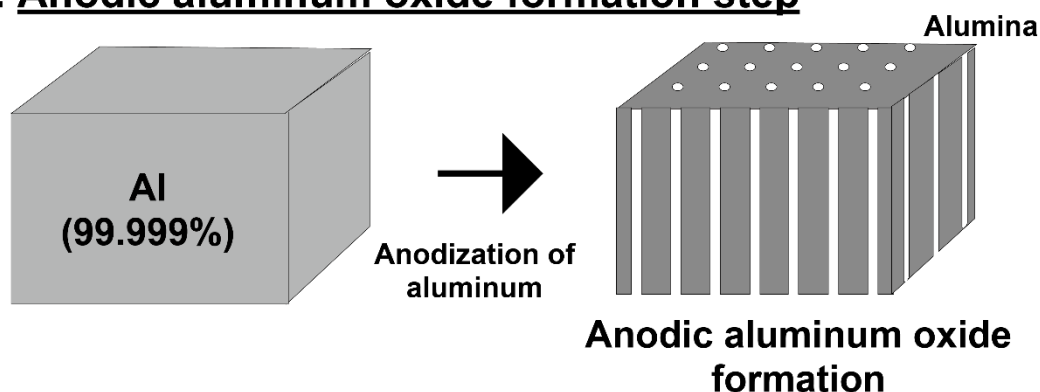
本章では、筆者が開発したナノワイヤーアレイの作製手法について述べる。まず、ナノワイヤーアレイの代表的な作製手法をトップダウンアプローチとボトムアップアプローチの枠組みで整理し、本研究で採用した陽極酸化アルミニウムを用いたテンプレート方式を位置づけた。次に、AAOの作製から電気めっきによるナノワイヤーアレイの形成、ターゲット形状への加工およびAAOのエッチングに至るまでの技術的詳細を述べる。さらに、陽極酸化条件によるナノワイヤー直径・間隔の制御および電気めっき条件による材質・長さの制御について示す。最後に、透過型電子顕微鏡観察、エネルギー分散型X線分光、制限視野電子線回折による特性評価の結果を示し、本研究で作製したナノワイヤーアレイがレーザー照射実験で用いるのにあたって支障がない品質であることを示した。

3.2 トップダウンとボトムアップアプローチ

ナノワイヤーアレイの作製手法は大きくトップダウンアプローチとボトムアップアプローチに大別される¹。トップダウンアプローチとは、電子線や紫外光、微細加工などで試料を削りだすことで構造を付与する手法である。この特性からトップダウンアプローチでは構造の制御が容易かつ正確であるという利点があり、幅広い分野で使用されている。一方で、加工時間が長かつその加工面積（ $\sim\text{mm}^2$ ）も小さいという課題がある。対してボトムアップアプローチは、試料の底部から原子を堆積させる手法である。このアプローチでは経済性に優れ大面積（ $\sim\text{cm}^2$ ）への加工が容易であるという利点を有する。しかし、構造の制御性はトップダウンアプローチに及ばないという課題がある。

以上に対して、テンプレート方式のナノワイヤーアレイ作製手法が存在する²。この手法では堆積する際に型としてナノ構造体を用いることで、ボトムアップアプローチより優れた構造制御性を有する。本研究ではテンプレートとして陽極酸化アルミニウム（Anodic Aluminum Oxide, AAO）を用いる作製方式を開発した。図 3.1 に AAO を用いたナノワイヤーアレイ作製工程の概要を示す。

I. Anodic aluminum oxide formation step



II. Electroplating step

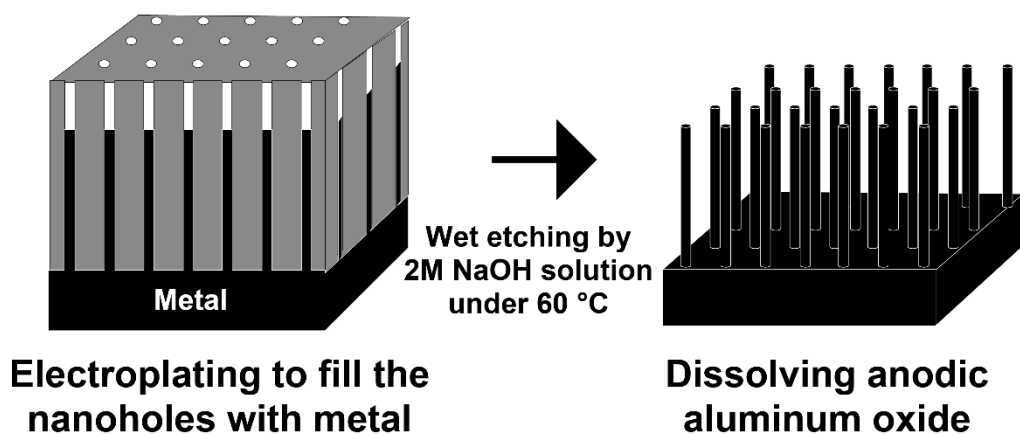


図 3.1 ナノワイヤーアレイ作製工程の概要

AAO はアルミニウム表面に陽極酸化と呼ばれる処理を施すことで形成されるアルミナである³。高純度アルミニウムに陽極酸化を施すことで、サブ μm ほどの微細なナノホールを有する AAO が得られる。この AAO に対して電気めっきを施し、基板を形成したのちにナノホールを金属で充填する。この AAO は水酸化ナトリウムに可溶であり、化学エッチングを施すことでナノワイヤーアレイの取り出しが可能となる。この作製過程から明らかであるように、ナノワイヤーアレイの空間パラメーターは陽極酸化条件によってナノワイヤーの直径及び間隔が、電気めっきによってナノワイヤーの材質と長さが操作可能である。

3.3 ナノワイヤーアレイの作製

3.3.1 陽極酸化アルミニウムの形成

AAO の形成には高純度アルミニウム（純度 99.999%）を使用した。アルミニウムは 25 mm 角に切り出されたのちに有機溶媒中で 10 分間超音波洗浄を行った。その後表面を平滑化するために電解研磨を実施した。電解研磨は 0°C まで冷却された電解研磨液中で 10 V の電圧を印加して行われた。電解研磨液は体積比 4:1 で混合されたエタノールと過塩素酸で構成されていた。

電解研磨後のアルミニウム片はエタノールで洗浄され、陽極酸化装置にて陽極酸化を実施した。図 3.2 (a)と(b)に陽極酸化装置の概要と外観を示す。

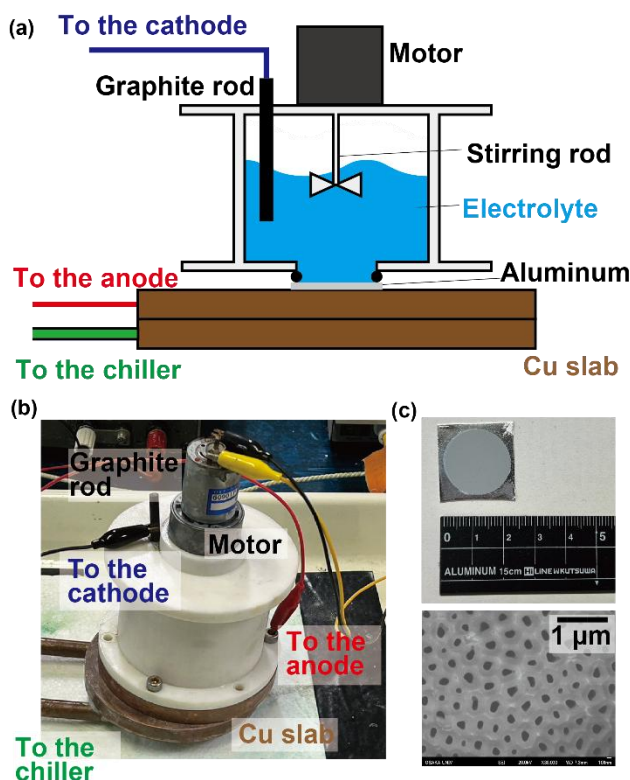


図 3.2 (a)陽極酸化装置の概要図と(b)陽極酸化装置の外観。
(c)陽極酸化装置を用いて作製した AAO の光学写真と電子顕微鏡像

陽極酸化は $2\text{Al} + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Al}_2\text{O}_3 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^-$ という反応式で表せる。陽極酸化装置はチラーによって任意の温度に保ち、蓋に接続したモーターによって電解液を攪拌しつつ行われた。図 3.2 (c)に作製した AAO の外観と走査型電子顕微鏡 JEOL JSM-7400F により撮影さ

れた電子顕微鏡像（SEM 像）を示す。

アルミニウム片には平滑化処理が施されているが、微小な凹凸や表面のゆがみなどが存在している。このようなアルミニウムから生成された AAO には、表面形状の影響を強く受けてナノホールの成長に不均一性などの不具合が生じる。この問題を解決するために、増田らにより提唱された 2 段階陽極酸化手法が存在する⁴。図 3.3 に 2 段階陽極酸化手法の概要を示す。

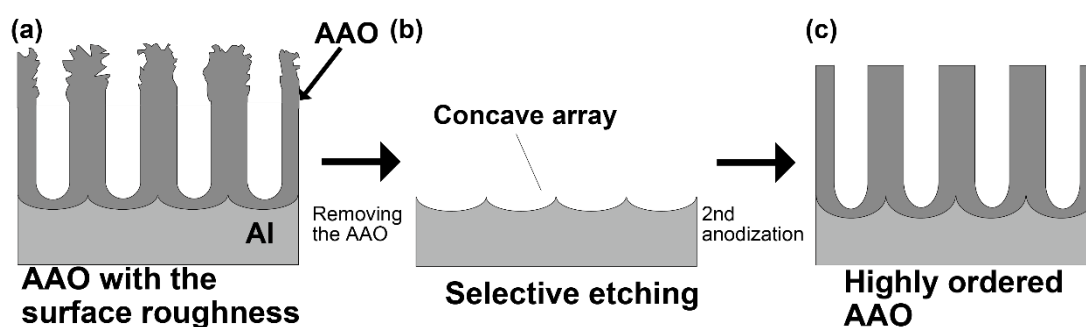


図 3.3 2 段階陽極酸化手法の概要図

同手法では短時間の陽極酸化を施し、ナノホールを一度成長させたのちにエッチングでその AAO を除去する。AAO が除去されたアルミニウム表面には Concave array というくぼみが規則的に配列しており、この表面に対して 2 回目の陽極酸化を施すことできれいにそろったナノホールの配置を有する AAO が作製できる。筆者は 1 回目の陽極酸化を 20～90 分施した。その後、同試料を 60℃のリン酸(6 wt%)と酸化クロム(VI) (1.8 wt%)の混酸溶液中に 5 時間エッチング浸し、エッチングを施した。その後 2 回目の陽極酸化を 4～18 時間実施することで均一に成長したナノホールを有する AAO を作製した。

AAO 薄膜は塩化銅水溶液中での化学エッチングによりアルミニウムを溶かすことにより取り出された。図 3.4 (a)に化学エッチングプロセスの概要図と 3.4 (b)に実際のプロセス中の写真を示す。化学エッチング前にマニキュアを AAO 形成面に塗布することで、エッチングによる試料の損傷を防いだ。化学エッチング後は純水により洗浄を実施した。

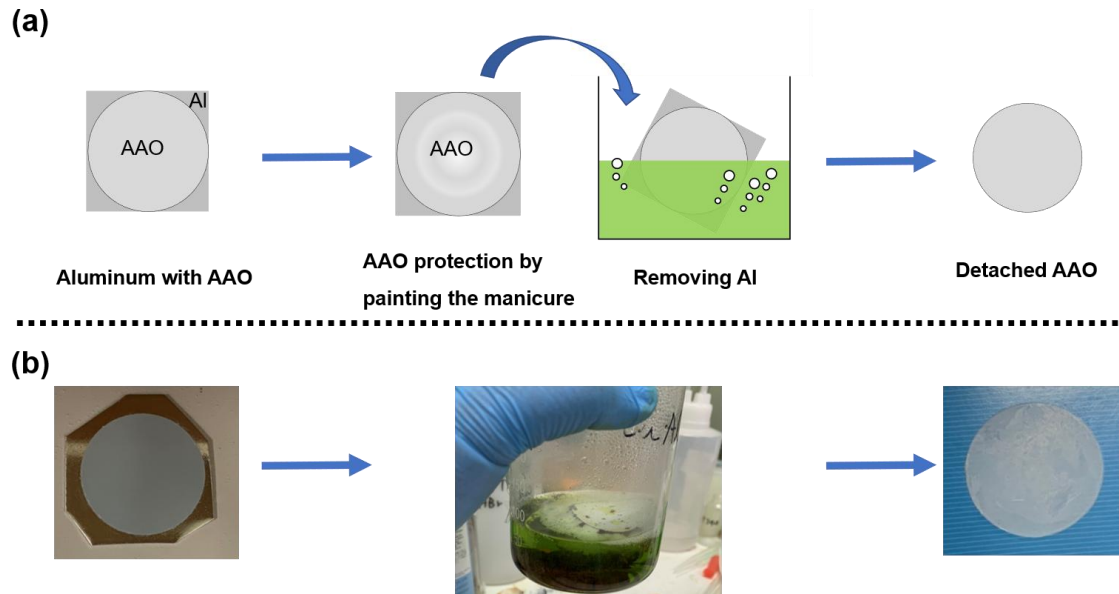


図 3.4 Al 除去プロセスの(a)概要図と(b)実際のサンプル写真

化学エッチング後の AAO のナノホール底部にはバリア層と呼ばれるごく薄いアルミナ膜が存在している。ナノワイヤーアレイ作製のためにはこのバリア層を除去する必要がある。筆者は液温 30℃の 20wt%リン酸溶液に AAO 薄膜のバリア層面を浮かばせることでバリア層を除去した。この時リン酸溶液上に浮かばせる時間を変えることでナノホールの径を操作することができる(詳細は 3.4 節に記す)。バリア層除去後にマニキュアをアセトンとエタノール及び純水による洗浄によって除去した。

3.3.2 電気めっきによるナノワイヤーアレイの形成

バリア層除去後に金属の蒸着をバリア層除去面に実施した。AAO は不導体であるため、電気めっきを行うためには導電面を形成する必要がある。蒸着はクロムを 20 nm をスパッタしたのちに金を 100 nm スパッタした。この時 50 nm 相当のスパッタを実施する度に 2 時間の冷却時間を設けた。AAO は水酸化ナトリウムに可溶であるが、熱を加えることでアモルファスから単体に変質することが知られている。結晶化したアルミナは水酸化ナトリウムに不溶のため後述のエッチング工程が実施できなくなる³。そこで熱による変性を最低限にするために蒸着にインターバルを設けて熱の伝わりを抑制する必要がある。

蒸着面形成後に電気めっきを実施した。電気めっき条件とその評価は 3.4 節に記す。電気めっき実施にあたっては基板とナノワイヤーアレイ形成をそれぞれ別個に行った。これは膜厚やナノワイヤー長さをコントロールするためである。電気めっきは基板側から実施した。基板形成時のナノワイヤーアレイの成長を防ぐために、ナノホール側にマニキュア

を塗布した。基板形成後に純水で洗浄しアセトンとエタノールでマニキュアを除去した。基板形成後にナノホール側の電気めっきを実施した。ナノホール側のめっきはナノワイヤーの成長を均一にするために 11 mm 径の O リングでめっき面積を固定した。電気めっき波形はパルス波形を採用した。これはパルス波形により電気めっき液の濃度がナノホールごとで偏ることを防ぐためであり、ナノワイヤーの成長速度を均一にするためである。

電気めっき実施後にフェムト秒レーザー加工装置を用いてターゲット形状への加工を実施した。図 3.5 (a)に加工方法の概要を示す。レーザー加工は化学エッチングにより AAO を溶かす前に行う必要がある。ナノワイヤーアレイに直接レーザーを照射した場合のターゲット表面の様子を図 3.5 (b)に示す。図より明らかなように、ナノワイヤーアレイにデブリの付着やナノワイヤーの熔融などが生じ、ターゲットの品質が著しく悪化する。そこで化学エッチングを行う前に、フェムト秒レーザーによる加工を実施することで、ナノワイヤーアレイへの損傷を防いだ。

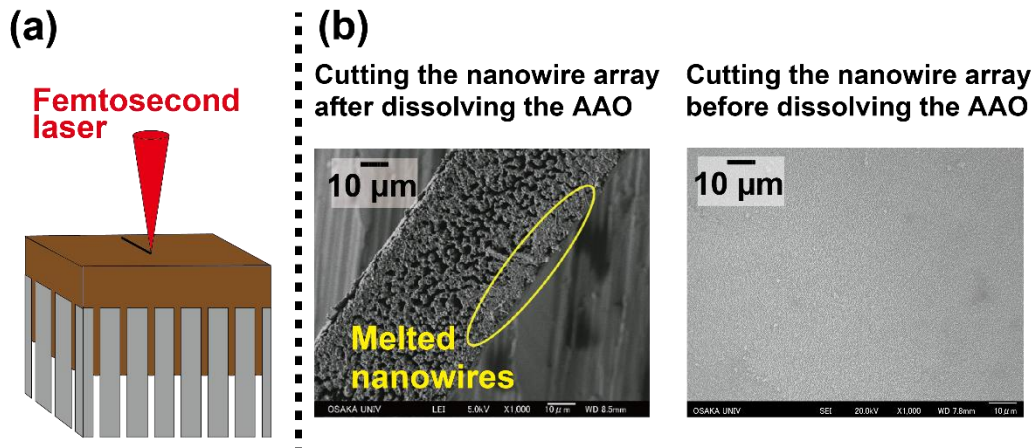


図 3.5 (a)ナノワイヤーアレイにおけるレーザー加工プロセスの概要図と(b)加工して取り出したナノワイヤーアレイの電子顕微鏡像、図左が直接フェムト秒レーザー加工を施したナノワイヤーアレイサンプルを示し、図右が化学エッチング前に加工を施したサンプルを示す。

レーザー加工後に温度 60°C の 2M 水酸化ナトリウム水溶液を用いた化学エッチングにより AAO を溶かした。水酸化ナトリウムエッチング後にサンプルを純水で 3 回以上洗浄を実施した。純水での洗浄後はサンプルをアセトンで 3 回以上洗浄し、ナノワイヤーアレイ中の水をアセトンに置換した。乾燥は超臨界ドライヤーを用いて実施した。大気中でナノワイヤーアレイを乾燥させると表面張力によりナノワイヤーアレイが凝集してしまい、ナノワイヤーアレイの表面形状に大きなダメージを与えてしまう。そこで超臨界ドライヤー

を用いた。超臨界ドライヤー中では表面張力が非常に弱い二酸化炭素の超臨界流体中で乾燥を行うため、表面張力によるナノワイヤーアレイの凝集を防ぐことが可能となる⁵。

3.4 作製条件の変更を通じた空間及び材質パラメーターの操作

3.4.1 陽極酸化条件によるナノワイヤーアレイの空間パラメーターの操作

ナノワイヤーアレイの空間パラメーターはレーザーエネルギーの吸収に強い影響を与えるため、パラメーター操作性が重要である。AAO のナノホールの直径は陽極酸化時の電圧に比例することが知られている³。そこで筆者は先行研究をもとに複数の陽極酸化条件を試すことで最適な作製条件を模索した。表 3.1 に陽極酸化条件(試薬、電圧、温度、ナノホール直径)をまとめた。

表 3.1 AAO 作製条件

試薬	陽極酸化電圧 (V)	温度 (°C)	ナノホール径 (nm)
シュウ酸 (0.3 M)	45–120	0 or 20	60–150
リン酸 (0.1 M)	180	0	200

また、図 3.6 (a)に平均のナノホール直径と陽極酸化電圧の関係に示す。ナノホール直径と陽極酸化電圧に線型の関係が見出され、これは先行研究と一致した³。またバリア層除去を行うリン酸エッチング工程の時間によっても、ナノホール直径を拡大することができる(ワイドニング)。図 3.6 (b)にナノホールの平均直径とリン酸エッチング時間のプロットを示す。リン酸に長く浸すほどエッチングによりナノホール径拡大と充填率が増加していく。図 3.6 (c)~(f)に作製した AAO とそれを型にして作製したナノワイヤーアレイの SEM 像を示す。上述のプロセスにより、ナノワイヤーアレイの直径は 40~400 nm、充填率は 13~40%まで操作することができた。

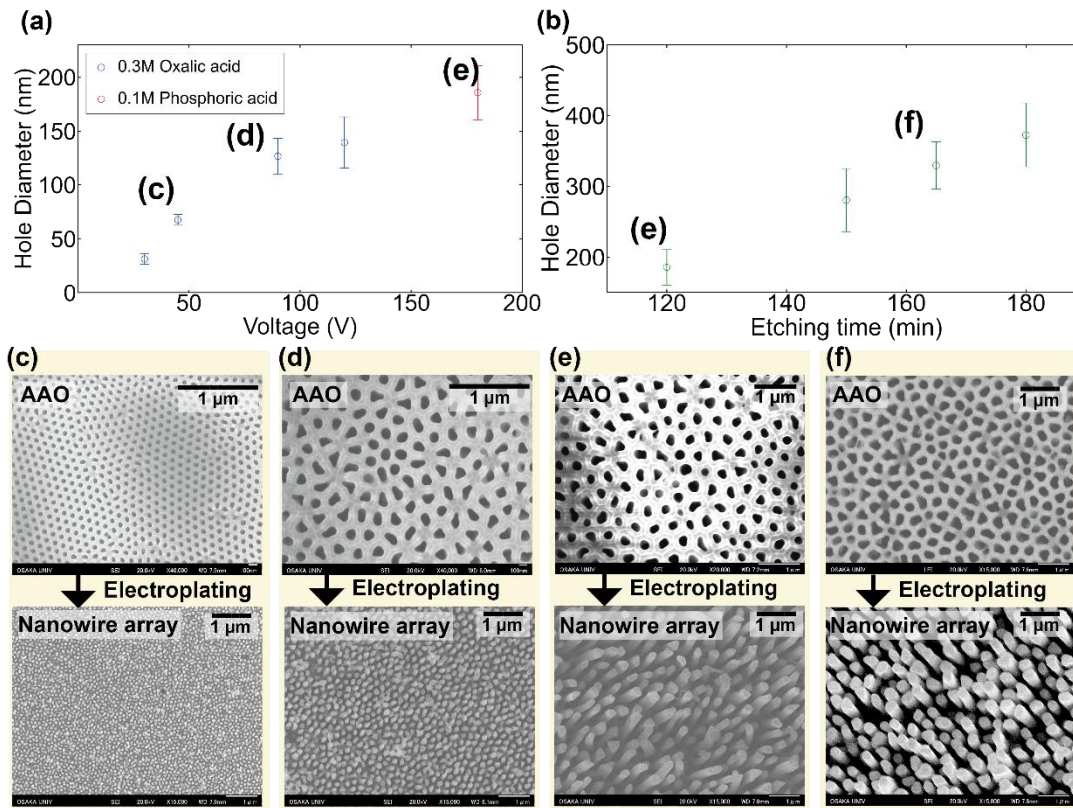


図 3.6 ナノホール径と(a)陽極酸化電圧のプロット及び(b)ワイドニング時間とのプロット。(e)~(f)作製した AAO とそれを型にして作製したナノワイヤーアレイの電子顕微鏡像

3.4.2 電気めっき条件によるナノワイヤーアレイ材質の操作と特性評価

ナノワイヤーアレイの材質は電気めっきにより操作した。レーザープラズマ実験ではレーザー照射ターゲットからの自発光 X 線計測がよく用いられていることから(例えば第 4 章における LFEX レーザー照射実験など)、ターゲットの材質が非常に重要である。また、本論文第 5 章の X 線自由電子レーザー施設 SACLA における X 線シャドウグラフ計測では、ターゲットの X 線の吸収特性を用いる。そのためターゲットの材質の操作性、不純物や欠陥の少なさは重要である。

筆者は銅とニッケルの 2 素材の電気めっき条件を探索した。銅を選択した理由は SACLA が有している時間積分計測器は銅を中心に整備されているためである。またサポートデータ用としてニッケルを採用した。ニッケルを選定した理由は銅と原子番号が近く、密度も同程度であるためである。図 3.7(a)に銅ナノワイヤーアレイ、(b)に Ni ナノワイヤーアレイの光学顕微鏡像と SEM 像を示す。

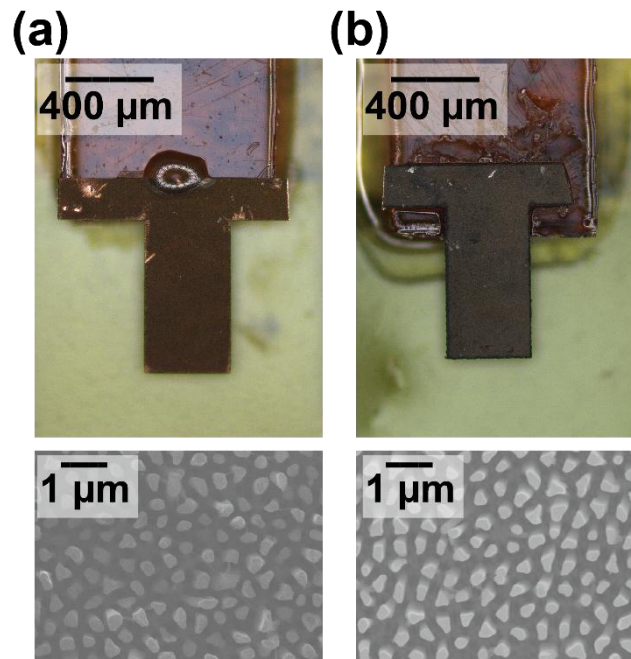


図 3.7 (a)銅製ナノワイヤーアレイと(b)ニッケル製ナノワイヤーアレイの
光学及び電子顕微鏡像

筆者は銅の電気めっき条件に関して、表面平滑性の改良を行った。これはX線シャドウグラフの観察時に基板面表面の凹凸が激しいとシャドウグラフ上にノイズとしてその凹凸が映り込んでしまう問題が生じたためである。そのため表面平滑性を向上するために、光沢剤と呼ばれる薬品を少量添加した。光沢剤にはポリエチレングリコール(400 ppm)、ヤヌスグリーン B(30 ppm)、塩化水素(60 ppm)、及びSPS(30 ppm)を用いた。図 3.8 (a)にSPSを添加しなかった銅電気めっき面表面のSEM像、(b)にSPSを添加した場合の銅電気めっき面のSEM像を示す。SPS以外を添加した場合の粒形は2~4 μmほどであったが、SPSを添加した場合はサブ μmほどまで粒径が減少した。

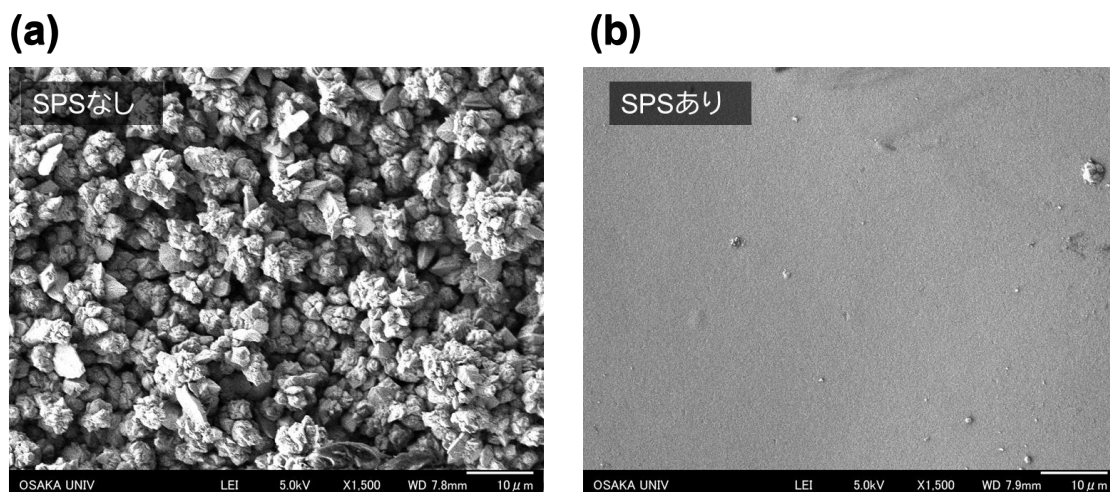


図 3.8 SPS 光沢材の有無による Cu 電気めっき面の表面状態の比較：(a) SPS 添加なし、(b) SPS 添加あり

筆者は透過型電子顕微鏡(TEM) JEOL JEM-2100F を用いて、エネルギー分散型 X 線分光計測(EDX)、制限視野電子線回折(SAED)観察を行い不純物と結晶性の評価を実施した。図 3.9(a)に作製した銅製ナノワイヤーの高角度散乱暗視野(HAADF)像を示す。また、図 3.9(b)～(d)は対応する元素マッピング像を示す。

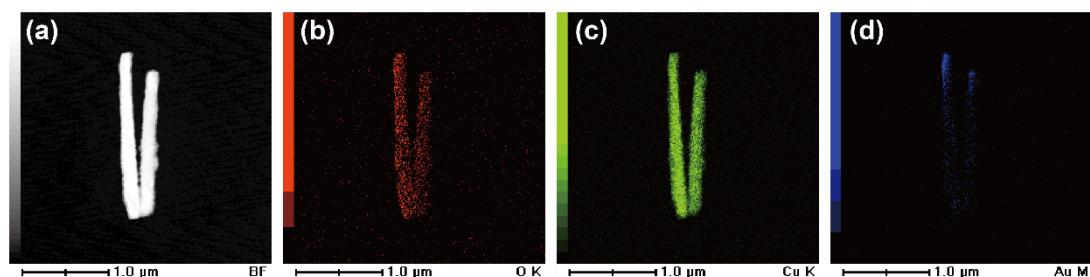


図 3.9 (a)銅製ナノワイヤーの高角度散乱暗視野像と
(b)酸素、(c)銅及び(d)金の元素マッピング像

筆者は不純物として酸素と窒素と塩素を評価した。酸素は保管時や純水での洗浄による表面の酸化によって形成され含まれていた可能性を考慮し、そのほか 2 元素は光沢剤の使用に起因して含まれていた可能性を考慮して選定した。酸素についてはナノワイヤー表面において一様に検出された。ナノワイヤーは洗浄工程で純水中に 10 分ほど浸されていた。この時間は先行研究における銅製ナノワイヤーの酸化時間 6 時間に比べて短く、水中での酸化の影響は十分小さい⁶。一方でナノワイヤーは作製後クリーンルーム大気中で 2 ヶ月

ほど保管されており、大気中での酸化が進展していた可能性がある。先行研究によると室温・大気環境中で 1000 時間保管されていた高純度銅の酸化被膜は 10 nm ほどであった⁷。このためナノワイヤーサンプルも同程度まで自然酸化膜が形成されていたと推定される。一方で酸化銅が 10 nm ほど存在していた場合でも、直径 200 nm の銅ナノワイヤーの密度は純粋な銅のみで構成されたナノワイヤーとほとんど変わらない。そのため影響は軽微であると見做せる。なお、そのほか 2 つの不純物に関しては、双方とも検出限界以下であった。

図 3.10 は銅ナノワイヤーの SAED パターンである。図中ナノワイヤーの下部から中部にかけては明確な単結晶の信号が観測された。一方でナノワイヤー上部では弱いフリンジパターンが観測された。EDX の計測結果からナノワイヤー下部において金が検出されていた。これは図中のナノワイヤー下部は付け根にあたり、上部はその先端にあたる。弱いフリンジパターンはナノワイヤー先端についた微粒子が原因である。以上よりナノワイヤーの大部分は銅の単結晶で構成されていたことがわかった。

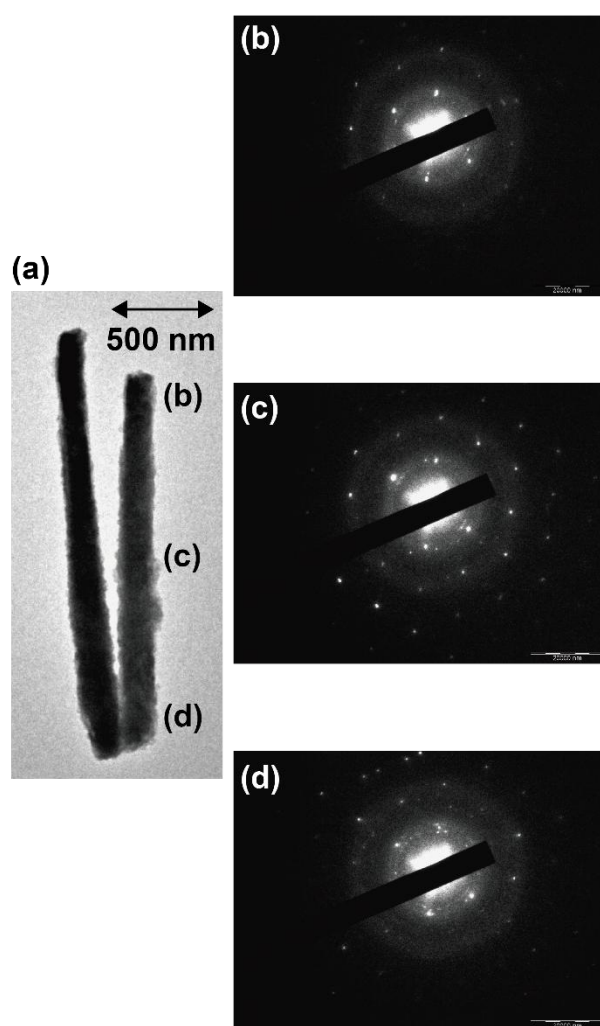


図 3.10 (a)銅製ナノワイヤーの透過型電子顕微鏡像と(b)～(d)各部位における制限視野電子線回折像

3.5 まとめ

本章では筆者が構築したナノワイヤーアレイの作製手法をまとめた。3.2 節でナノワイヤーアレイの作製手法を整理し、本論文で説明した作製手法を採用した理由を述べた。3.3 節では作製手法の技術的側面について詳細に解説した。3.4 節では作製条件によるナノワイヤーアレイのパラメーター操作と、作製したナノワイヤーアレイの特性評価の結果を述べた。以上より、筆者はパラメーター制御性と品質を兼ね備えたナノワイヤーアレイ作製手法を構築できたことを示した。次章以降で使用するナノワイヤーアレイターゲットは

すべて本手法を用いて作製されたものである。

参考文献

1. Anqi Zhang, Gengfeng Zheng & Charles M. Lieber. Nanowires. (Springer Cham, 2016).
2. Shingubara, S., Okino, O., Sayama, Y., Hiroyuki Sakaue, & Takayuki Takahagi, Ordered Two-Dimensional Nanowire Array Formation Using Self-Organized Nanoholes of Anodically Oxidized Aluminum. Jpn J Appl Phys 36, 7791 (1997).
3. Lee, W. & Park, S. J. Porous anodic aluminum oxide: Anodization and templated synthesis of functional nanostructures. Chemical Reviews vol. 114 7487–7556
4. Masuda, H. & Fukuda, K. Ordered metal nanohole arrays made by a two-step replication of honeycomb structures of anodic alumina. Science (1979) 268, 1466–1468 (1995).
5. Liang, Y., Zhen, C., Zou, D. & Xu, D. Preparation of free-standing nanowire arrays on conductive substrates. J Am Chem Soc 126, 16338–16339 (2004).
6. Xu, L., Yang, Y., Hu, Z. W. & Yu, S. H. Comparison Study on the Stability of Copper Nanowires and Their Oxidation Kinetics in Gas and Liquid. ACS Nano 10, 3823–3834 (2016).
7. Iijima, J. et al. Native oxidation of ultra high purity Cu bulk and thin films. Appl Surf Sci 253, 2825–2829 (2006).

第4章 ピコ秒 kJ 級レーザー LFEX を用いたレーザー照射実験

4.1 はじめに

近年のレーザーの高強度化に伴って極短パルス超高強度レーザーによっても高エネルギー密度状態の生成が可能となった。そして第1章でも述べた通り、レーザーエネルギー吸収効率向上のためにナノワイヤーアレイが用いられてきたが、比較的パルス幅が長いピコ秒レーザーをナノワイヤーアレイに照射した実験例は極めて少ない。ナノワイヤーアレイではナノワイヤー間の空隙がプラズマによって充填される前にレーザー光が侵入することで、奥行き方向に深い領域までエネルギーの付与が可能となり、エネルギー吸収効率が向上するという特性を有する。そのためパルス幅の長いピコ秒レーザーは不適であると考えられてきたためである。

一方で Kemp らのシミュレーションを用いた研究により、ピコ秒超高強度レーザーが照射されたナノワイヤーアレイでもエネルギー吸収効率が上昇することが指摘された¹⁾。Sedov らは直径が $3\ \mu\text{m}$ 、間隔が $2\ \mu\text{m}$ のマイクロワイヤーアレイへのピコ秒超高強度レーザー照射実験を行い、自発光 X 線強度の増強を観測した²⁾。以上からピコ秒超高強度レーザーにおいてもナノワイヤーアレイを活用できる可能性が考えられるが、ピコ秒レーザーとナノワイヤーアレイを組み合わせた実験的研究は存在しなかった。

本章では、ピコ秒超高強度レーザー照射ナノワイヤーアレイのエネルギー吸収・輸送メカニズムを解明することを目的として、大阪大学レーザー科学研究所のピコ秒 kJ 級レーザー装置 Laser for Fast Ignition Experiment (LFEX) レーザー³⁾を用いたレーザー照射実験の結果及び 2D-PIC シミュレーション PICLS-2D⁴⁾による計算結果を用いた実験的研究の結果について議論する。

実験では、ターゲットとして銅製ナノワイヤーアレイと参照用の銅平板を用いた。レーザー照射ターゲットからの自発光 X 線スペクトルおよび高速電子スペクトルをそれぞれのターゲットについて計測し、ナノワイヤーアレイと平板ターゲットにおけるエネルギー吸収特性を比較した。ナノワイヤーアレイの自発光 X 線の強度は $K\alpha$ 線と加熱線 (He-like など) の双方で平板よりも強いことが分かった。これはピコ秒レーザー照射条件下であっても、ナノワイヤーアレイ中において平板よりも大きな高エネルギー密度状態が形成されて

いたことを示す。また、ターゲット前面から放出された高速電子数もナノワイヤーアレイのほうが平板よりも高い高速電子の発生数を有していた。一方でターゲット裏面抜けの高速電子に関しては平板と同程度という結果であった。

上記の結果を解釈するために行った 2D-PIC シミュレーションではナノワイヤーアレイにおいて平板よりも大体積の高エネルギー密度状態が形成されていた様子が観測された。計算からもピコ秒レーザー照射ナノワイヤーアレイにおいて大体積の高エネルギー密度状態が形成されていたこと示された。また高電離した領域もナノワイヤーアレイのほうが平板よりも大きく、X 線分光計測の実験結果とコンシステントであった。次に電子の挙動について、ナノワイヤーアレイの構造に由来する表面電流の抑制及びナノワイヤーに沿って形成される磁場による電子の散逸抑制機構が存在することが明らかになった。最後に 1 次元流体コード ILESTA-1D によりプレパルスによるナノワイヤーアレイの形状変化に関する評価を実施した。メインパルス到達時までナノワイヤーアレイ構造が大きく変化していない可能性が高いことを示した。これらの結果から、裏面抜け高速電子数が平板と同程度であった理由は、メインパルス照射時にもナノワイヤーアレイ構造が保持されており、ナノワイヤー周囲に形成された強磁場による電子トラップ効果のためであると解釈される。

以上の結果からピコ秒レーザーであってもナノワイヤーアレイにおいて効率的な高エネルギー密度状態形成が可能であり、そのメカニズムがナノワイヤーの構造に由来するエネルギー散逸抑制効果であることが示せた。

4.2 実験セットアップ

本節では、LFEX レーザーを用いたナノワイヤーアレイ照射実験のセットアップについて述べる。実験は大阪大学レーザー科学研究所の LFEX レーザーで実施された実験では 8 回のレーザーショットを行った。本論文では代表的な 4 ショットの結果を示す。レーザー条件を表 4.1 に示す。

表 4.1 各ショットにおけるターゲット及び LFEX レーザーの条件

Target	Shot number	Laser energy (J)	Spot diameter (μm)	Peak intensity (W/cm^2)
Cu Nanowire	3742	600	84	1.0×10^{19}
Cu Nanowire	4205	754	137	4.8×10^{18}
Cu Foil	3743	562	83	9.8×10^{18}
Cu Foil	4204	724	139	4.5×10^{18}

レーザー波長は $1.051\ \mu\text{m}$ 、パルス幅は半値全幅(Full Width Half at Maximum, FWHM)で $1\ \text{ps}$ 、レーザー光は p 偏光であった。LFEX レーザーは4つのビームで構成され、Off-axis parabola (OAP)で4ビームが集光されてターゲットに照射された。レーザーの照射角度について、SN3743,3742 は 0° (レーザーがターゲット垂直に入射)、SN4204,4205 は計測器の干渉を避けるために 21° 入射であった。スポットサイズはX線ピンホールカメラで計測した。表中 4.1 に掲載のレーザー強度はレーザー波形をガウシアンと仮定して計算した。なお、SN4204 および 4205 はパルス幅が $1\ \text{ps}$ よりわずかに長かった可能性がある。LFEX レーザーのコントラストはメインパルスの $150\ \text{ps}$ 前で 10^9 であった⁵。

ターゲットには Cu 薄膜と Cu ナノワイヤーアレイの2種類を用いた。Cu 薄膜の膜厚は $20\ \mu\text{m}$ であった。Cu ナノワイヤーアレイの直径 $300\ \text{nm}$ 、充填率は 30% であった。図 4.1 にターゲットの概形図を示す。ターゲット下凸部分にレーザーは集光された。

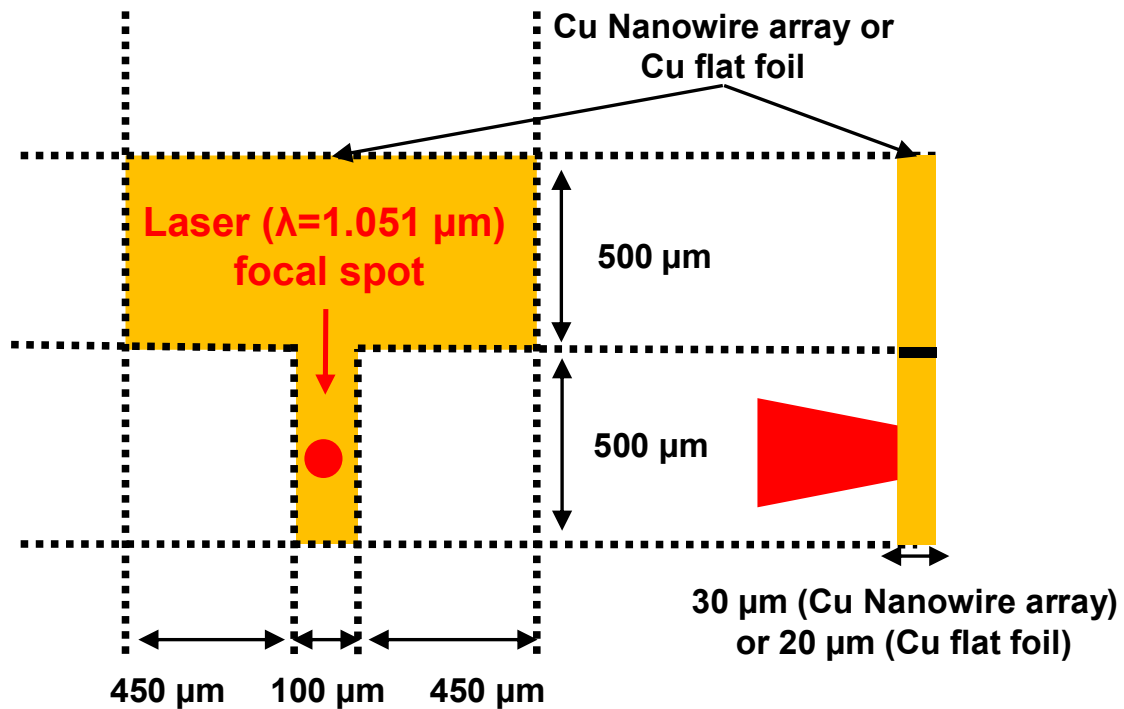


図 4.1 ターゲット概形図

計測器にはX線分光器、電子スペクトロメーター2台(Electron spectrometer, ESM1, ESM2)、X線ピンホールカメラを用いた。X線分光器はプラズマから発光するK殻X線の計測を行い、高速電子発生数および電離度を評価した。ESMは高速電子発生数の評価に用いた。X線ピンホールカメラはレーザーのスポットサイズの計測に用いた。図 4.2 に計測器のセットアップ図を示す。以下各計測の詳細を説明する。

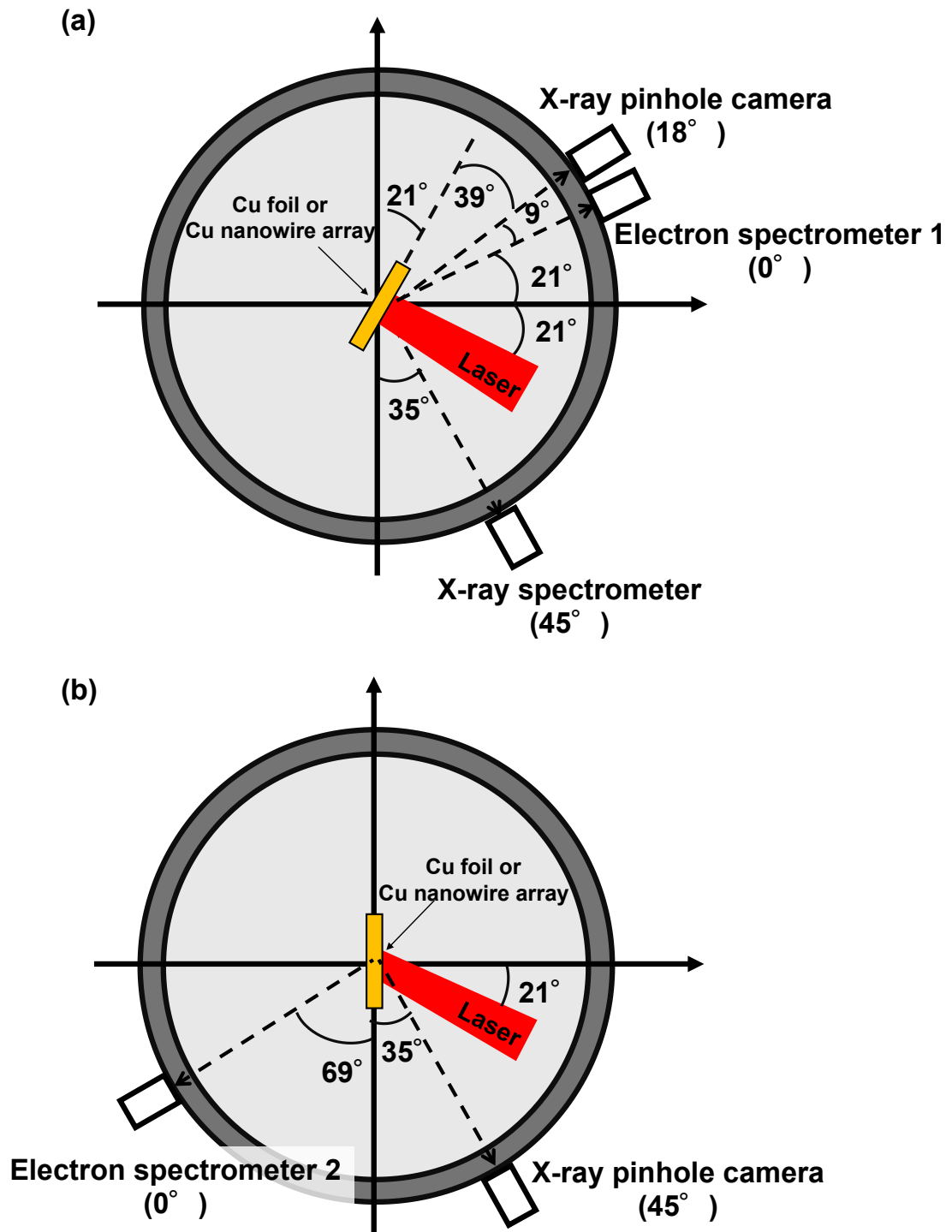


図 4.2 (a) SN3742 及び SN3743、(b) SN4204 及び SN4205 での実験セットアップ

X 線分光計測器は、高配向性熱分解グラファイト (Highly Oriented Pyrolytic Graphite, HOPG) 結晶とイメージングプレート (Imaging Plate, IP, IP Fujifilm BAS-MS) で構成されていた。X 線分光計のデータは、SN3742 と 3743 で取得した。なお、後述する ESM と X 線

ピンホールカメラ測定では同タイプの IP を使用した。X 線分光計の測定範囲は 7.4~8.4 keV で、Cu-K α 線と Cu-He α 線などの加熱線を観測した。K α 線は、K 殻遷移が起こると放出される。したがって、K α の収量は、常温の Cu 原子の K 殻電子の結合エネルギー（約 9 keV）よりも高いエネルギーを持つ高速電子と Cu 原子の衝突を示している。Li-like Cu サテライト線と Cu-He α 線は、高度に電離した Li 様または He 様 Cu 原子で遷移が発生したときに生成され、高温プラズマ状態の存在を示す。

高速電子スペクトルを測定するために、2 台の ESM を使用した。ESM1 は SN 3742 と 3743 に対してターゲットの前面からの高速電子を測定するために使用した。一方で ESM2 は SN 4203 と 4204 に対してターゲットの裏面からの高速電子を測定するために使用した。ESM は高速電子の進行方向に対して垂直な磁場を有しており、この磁場によって ESM へ侵入してきた高速電子の軌道を曲げて IP に衝突させることが可能となる。その結果、ESM では IP 上の位置が高速電子のエネルギーを示す。ESM1 と ESM2 のエネルギースペクトルは、それぞれ 1.7~10 MeV と 60 keV~2.5 MeV であった。また、ESM1 と ESM2 のピンホールサイズは、それぞれ 1 mm と 0.5 mm であった。

X 線ピンホールカメラではレーザーのスポットサイズを計測するために、レーザー照射ターゲットから放出された X 線をピンホールを通して IP に記録した。ピンホールサイズは 25 μm 、ピンホールカメラの倍率は 8.64 であった。

IP に記録された信号は IP スキャナー（GE ヘルスケア・ジャパン、Typhoon FLA-7000）で読み取り、IP に蓄積された信号を評価した。IP スキャンは、空間分解能 25 μm 、加速電圧 600 V、感度 1.0、ラティチュード 5 で実施した。レーザーショットと読み取り間の時間間隔は、各装置で 20~40 分に設定された。X 線分光器と ESM の計測結果については、IP で信号を読み取った後、時間経過による信号減衰の影響を考慮して IP の読み取り結果を補正した^{6,7)}。

4.3 実験結果

4.3.1 X 線自発光計測

図 4.3 に X 線分光器で計測した X 線の自発光計測結果を示す。

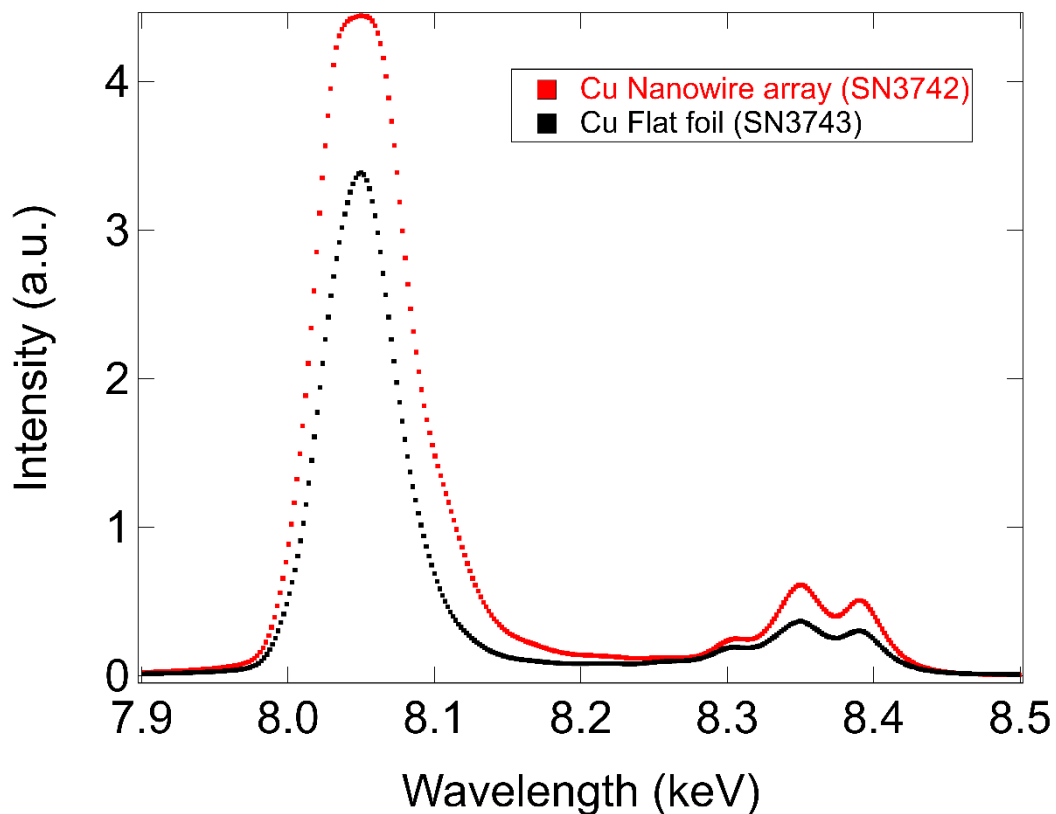


図 4.3 X 線自発光スペクトル。赤線がレーザー照射ナノワイヤーアレイからの、黒線はレーザー照射平板からの発光スペクトルを示す。

データの解釈にあたっては、レーザーエネルギーの差による X 線強度の違いを補正するために、バックグラウンドを差し引いた後、信号強度を各ショットのレーザーエネルギーで割って正規化した。また、IP 上の座標を光子エネルギーに変換するために、Cu-He α 線と Li 様 Cu サテライト線の 2 つのピークの値に基づいてスプライン補間を行い、ピクセル値を光子エネルギーに変換した。

ナノワイヤーアレイターゲットからの Cu-K α 信号は飽和しており、平板箔からの信号と定量的に比較することはできないものの、前者の信号強度は後者よりも強いことは明らかである。ナノワイヤーアレイにおける Cu-K α 信号強度の増強は、平板よりもナノワイヤーアレイ中の Cu 原子に衝突する高速電子数が多かったことを示している。さらに、Li 様 Cu

サテライト線信号と Cu-He α 線信号は、平板からの信号よりもナノワイヤーアレイからの発光強度のほうが高かった。そこで、Li 様 Cu サテライト線信号と Cu-He α 線信号の積分信号値を評価するために、マルチピークフィッティングを実施し、信号強度を比較した。その結果、ナノワイヤーアレイからの信号は平板箔からの信号よりも約 1.9 倍大きかったことが明らかになった。これは、ナノワイヤーアレイターゲットでは平板箔よりも多くの Cu 原子が加熱され、高価数までイオン化されていることを示している。4.2 節でも述べたように、この実験シリーズではさらに 4 つのデータショットを実行し、2 つのデータショットで自発光 X 線を測定した。これら 2 つのデータショットは、ここで説明したものと同じ傾向を示していた。

4.3.2 レーザー照射ターゲットより放出された高速電子のスペクトル

図 4.4(a)と(b)は、ターゲットより放出された高速電子スペクトルを示す。

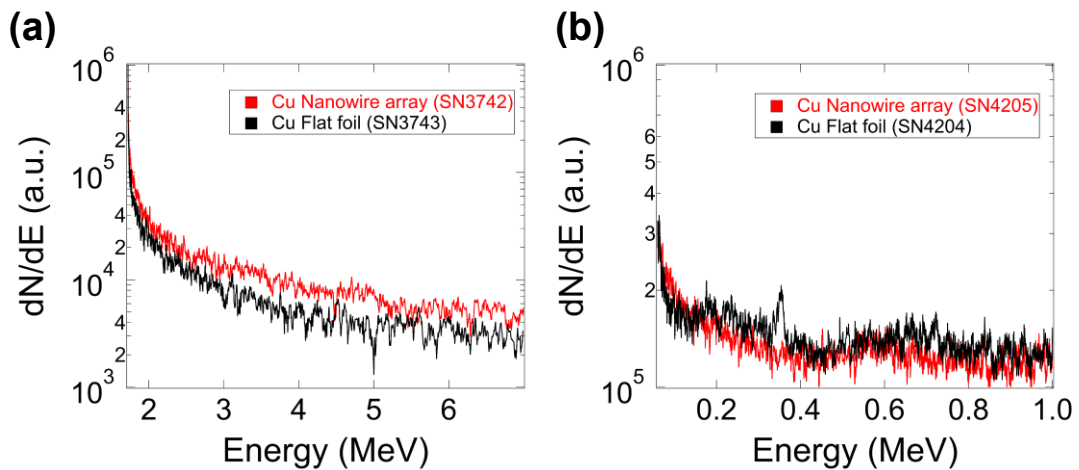


図 4.4 レーザー照射ターゲットより放出された高速電子のスペクトル : (a) SN3742 及び SN3743 ターゲット前面から放出された高速電子のスペクトル、(b) SN4204 及び SN4205 ターゲット裏面から放出された高速電子のスペクトル

前者が SN 3742 と 3743、後者が SN 4204 と 4205 のデータである。それぞれはターゲット前面および裏面から抜けて出てきた高速電子スペクトルを示している。スペクトル作成にあたって、 dN/dE 対エネルギーのプロットは、以下の手順で作成した。まず、信号領域の面積とそのピクセル値を抽出し、信号領域から背景領域のピクセル値を差し引いた。このとき、背景領域の面積は信号領域の面積と同じにそろえた。その後、ピクセル値を高速電子エネルギーに変換した。図 4.4(a)が示す通り、ナノワイヤーアレイの前面から放出される 1 MeV を超える高エネルギー高速電子の数は、平板より放出された高速電子数よりも

明らかに多かった。一方で、図 4.4(b)では、ナノワイヤーアレイの裏面から放出される高速電子数は平板の場合と大きな差はない。さらに、高速電子スペクトルを取得するために、さらに4回のデータショットを実施し、前述の傾向を再現した。

4.4 実験結果の定性的解釈のための PIC シミュレーションによる解析

4.4.1 計算条件

実験結果の物理的解釈を行うために、PICLS-2D シミュレーションコードを用いて計算を実施した。シミュレーションでは、スポット径を $20\ \mu\text{m}$ に設定し、ピーク強度は SN 4203 と 4205 の場合を想定した計算では $2 \times 10^{18}\ \text{W}/\text{cm}^2$ 、SN 3742 と 3743 を想定した場合は $1 \times 10^{19}\ \text{W}/\text{cm}^2$ とした。また、計算は大きなシミュレーションボックスと小さなシミュレーションボックスの2種類で実施した。それぞれの寸法は $60 \times 50\ \mu\text{m}^2$ と $60 \times 5\ \mu\text{m}^2$ であり、それぞれ 501×600 のセルに分割した。レーザーの時間ステップは 274 であり、ゼロ点 ($t=0$) をピークレーザー強度の 1.5 ps 前と定義した。各シミュレーションボックス内のナノワイヤーアレイターゲットは、長さ $20\ \mu\text{m}$ の Cu 基板と Cu ナノワイヤーアレイで構成されていた。ナノワイヤーの直径は 300 nm、長さは $10\ \mu\text{m}$ で、ナノワイヤー間のギャップは 500 nm であった。平板の厚みは $20\ \mu\text{m}$ であった。図 4.5 に、計算で使用したレーザーパルス形状とシミュレーションボックスの形状を示す。シミュレーションの境界条件は吸収境界条件であった。本シミュレーションの計算条件は計算リソースの制限により、必ずしも全ての条件が実験条件とは一致していない。しかし、計算の目的はナノワイヤーと超高強度レーザーとの相互作用の定性的な理解を検証することであるため、本計算では実験条件の厳密な再現に拘泥していない。なお、PICLS で使用された電離モデルは電界電離モデルと衝突電離モデルであり⁸、この計算では輻射の影響は考慮されていない。

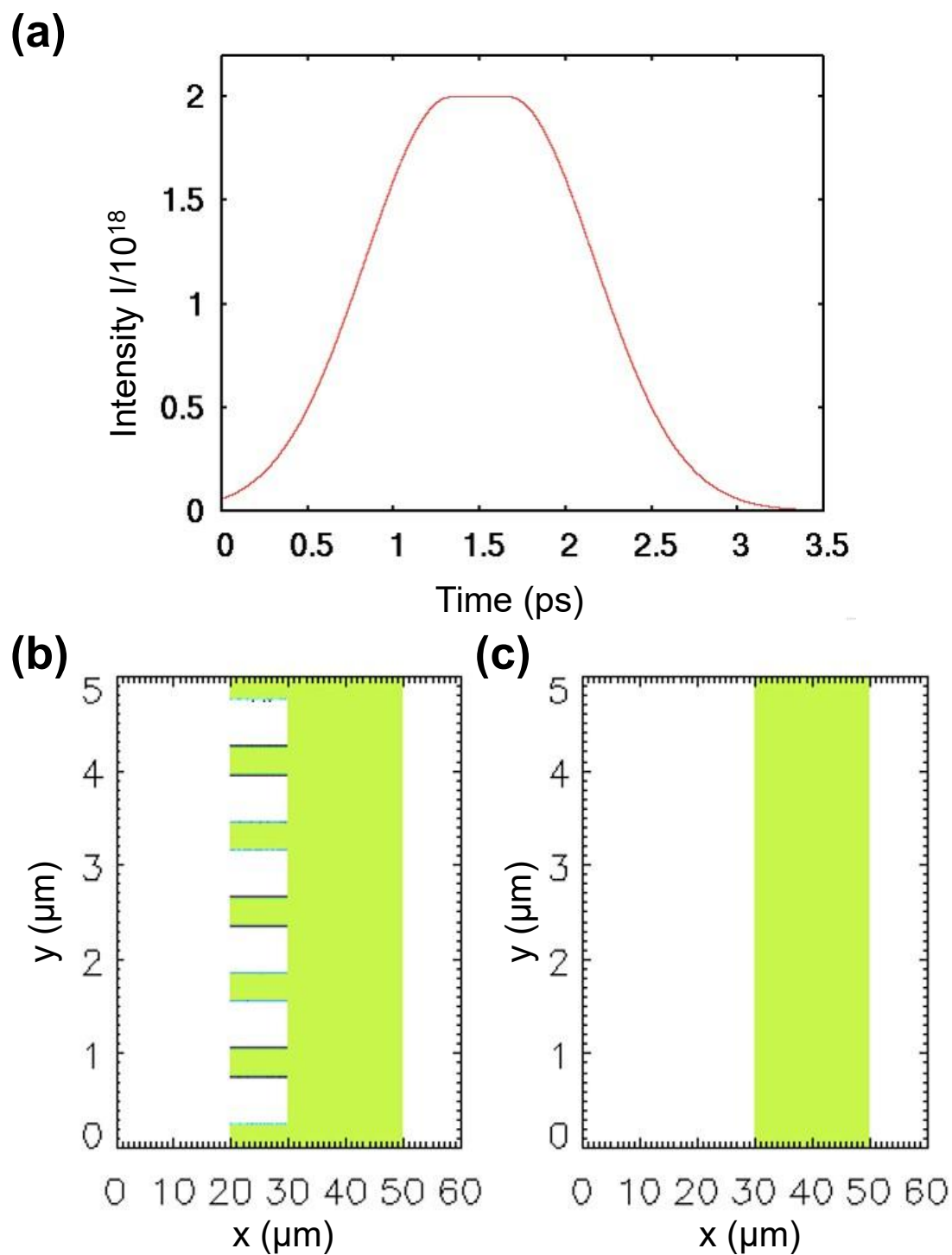


図 4.5 シミュレーションのセットアップ : (a)レーザー波形、小規模シミュレーションボックスにおける(b)ナノワイヤーアレイ及び(c)平板ターゲット

4.4.2 各ターゲットにおいて形成された高エネルギー密度状態の評価

図 4.6 (a)と(b)はそれぞれ、高レーザー強度条件下での $t=3.0$ ps におけるナノワイヤーアレイと平板のイオン圧力を示す。図 4.6 (c) は、シミュレーションボックス内の全領域の一次元ラインプロファイルを示す。

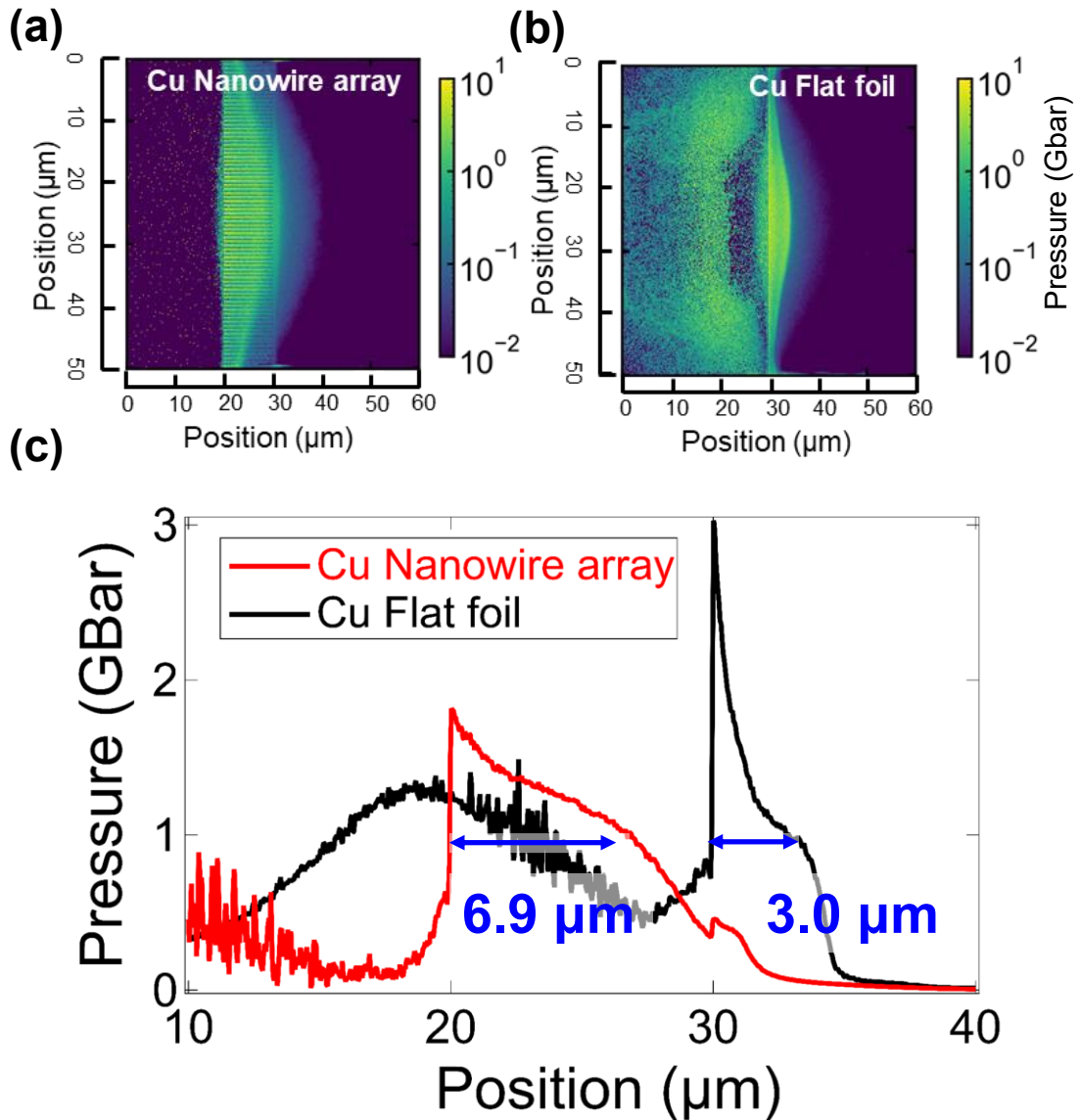


図 4.6 $t=3.0$ ps における(a)ナノワイヤーアレイ及び(b)平板のイオンエネルギー密度。(c)シミュレーションボックス全域にわたって平均化して取得した1次元ラインプロファイル

ラインプロファイルの取得により平均化されたエネルギー密度を比較すると、平板が最も高いピークエネルギー密度を有していた。一方でナノワイヤーアレイのエネルギー密度のピーク値は平板より低い値であった。これは、ナノワイヤーアレイではエネルギー密度

の低い真空領域とエネルギー密度の高いナノワイヤー領域が平均化されたためである。しかし、高エネルギー密度状態を有する領域の大きさで比較すると、ナノワイヤーアレイは深さ方向について平板より大きな高エネルギー密度状態を有していた。詳細な比較のために、それぞれのターゲット内に形成された高エネルギー密度状態 (1 GBar 以上) の大きさを計算した。その結果、ナノワイヤーアレイと平板ターゲット上の高エネルギー密度状態領域の長さは、それぞれ約 $6.9\ \mu\text{m}$ と $3.0\ \mu\text{m}$ であった。これは、ナノワイヤーアレイの特徴である体積的に大きな高エネルギー密度状態が、パルス幅の長いピコ秒レーザー照射条件下でも形成されたことを示す。

図 4.7(a) および (b) において、それぞれナノワイヤーアレイおよび平板ターゲットのレーザー照射から $3.0\ \text{ps}$ における電離度の分布を示す。

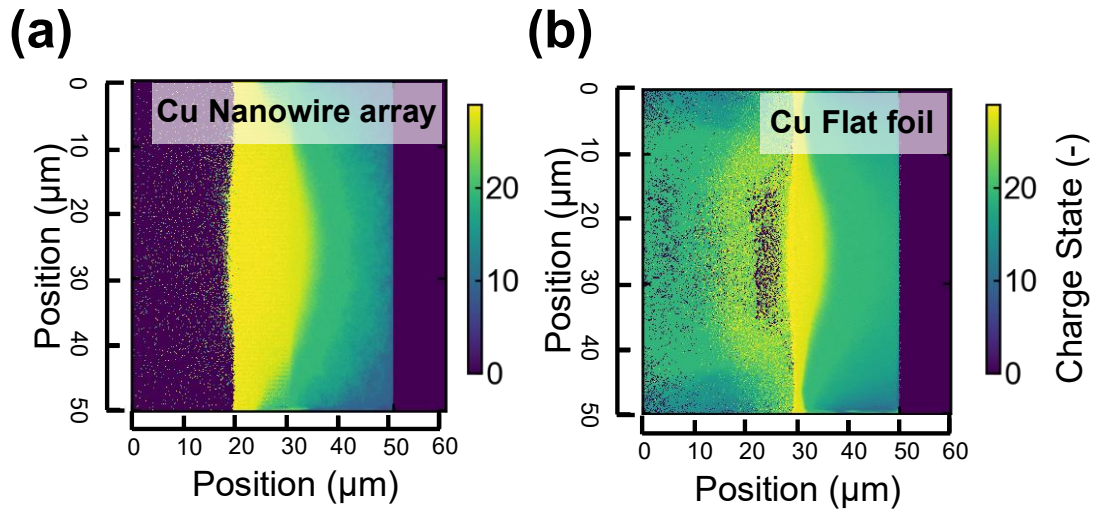


図 4.7 (a)ナノワイヤーアレイおよび(b)平板ターゲットの $t=3.0\ \text{ps}$ における電離度分布

高価数までイオン化された領域 ($Z \geq 27$, He 様イオン以上) の大きさをナノワイヤーアレイと平板で比較した結果、ナノワイヤーアレイは平板よりも 4 倍広い領域が高価数まで電離されていたことが分かった。この傾向は X 線分光計測を通して得られた実験結果、ナノワイヤーアレイからの Li 様 Cu サテライト線および He α 線強度が平板からの強度と比較して増加していた、と一致している。

また、両方のレーザー強度条件でナノワイヤーアレイと平板に吸収されたレーザーエネルギー量を計算した。レーザーエネルギー吸収率は、次の手順で計算された。まず、PICLS-2D によって計算された各セルのエネルギー密度を足し合わせることで、各シミュレーションボックスの総エネルギーを計算した。次に、シミュレーションボックス中

の総エネルギーを照射されたレーザーエネルギーで割ることで、吸収率を計算した。低レーザー強度条件下では、ナノワイヤーアレイは総レーザーエネルギーの 43% を吸収したが、平板のエネルギー吸収率は 15% であった。一方で高レーザー強度条件下では、ナノワイヤーアレイのエネルギー吸収率は 30% であり、平板ターゲットの吸収率は 10% 未満であった。

4.4.3 ナノワイヤーアレイ中の高速電子の挙動

図 4.8(a)~(d) は、それぞれ 0.8、1.2、1.6、2.0 ps における低レーザー強度条件下でのナノワイヤーアレイターゲットの電子密度分布を示す。図 4.8(e)~(h) は平板ターゲットにおける電子密度分布を示す。

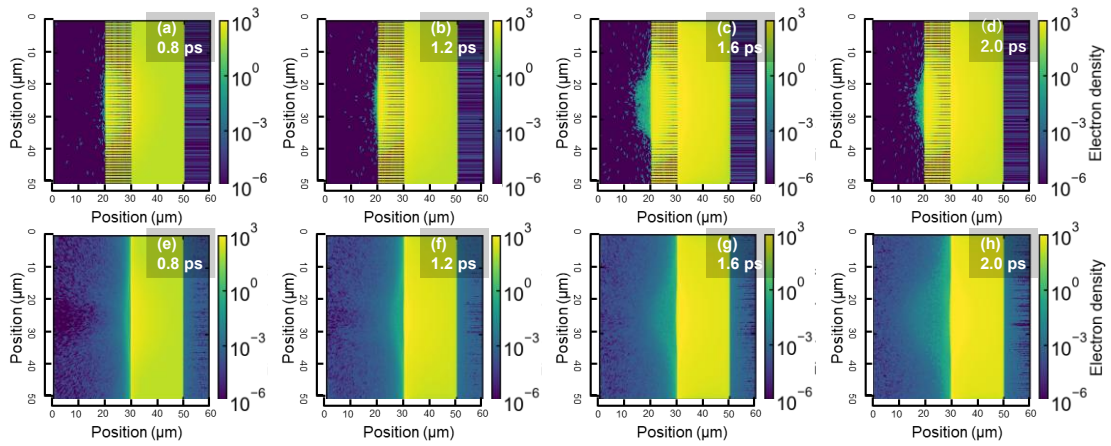


図 4.8 (a)~(d)それぞれ 0.8、1.2、1.6、2.0ps における低強度レーザー照射条件下でのナノワイヤーアレイターゲットの電子密度分布。(e)~(h) 対応する時刻における平板ターゲットでの電子密度分布

ナノワイヤーアレイでは、2.0 ps まで電子がレーザースポット周辺に分布している様子が観測できる。一方で平板においては、高速電子はターゲット表面に均一に分布していた。さらに、平板裏面への電子の浸透は、ナノワイヤーアレイよりも顕著なものであった。図 4.8 中のそれぞれのターゲット裏面に見える青い横縞裏面から放出される高速電子を示す。平板はナノワイヤーアレイよりも多くの電子を放出していることがわかる。

以上を比較すると、ナノワイヤーアレイで生成された高速電子は、主にターゲット前面の小さな領域に分布していることがわかる。ナノワイヤーアレイで観測された局所的なエネルギーおよび電子の分布は、ナノワイヤーアレイの構造により説明できる。構造のない平板では、表面に照射された超高強度レーザーによって生成された高速電子は、表面電流としてターゲット表面を横方向に自由に流れることができる。結果として、レーザーエネ

ルギーの大部分は高速電子を通じてターゲット表面の広い面積にわたって散逸される。しかし、ナノワイヤーアレイでは、ナノワイヤー間に真空の空隙が存在するため、電子は自由に動くことができない。そのため、表面電流によるエネルギー散逸は抑制され、高速電子はナノワイヤーアレイに沿ってターゲット奥行方向に移動することになる。

図 4.9 (a)と(b)は、それぞれ大規模シミュレーションボックスと小規模シミュレーションボックスにおける、低レーザー強度条件下での 1.5 ps におけるナノワイヤーアレイターゲットの磁場分布を示す。

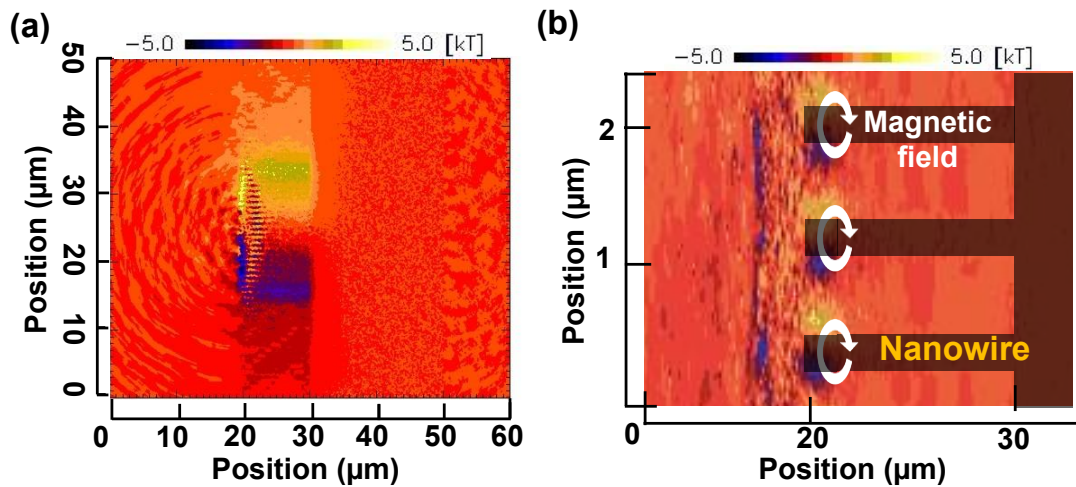


図 4.9 (a)大規模シミュレーションボックス及び(b)小規模シミュレーションボックスにおいて計算されたナノワイヤーアレイの磁場分布

磁場分布より、ナノワイヤーに沿って周期的な磁場が $X = 20 \sim 25 \mu\text{m}$ と $Y = 15 \sim 35 \mu\text{m}$ の範囲で生成されていることがわかる。この磁場はナノワイヤーアレイに沿って奥行方向へと流れる高速電子によって生成される⁹⁾。前述のように、高速電子はナノワイヤー間の空隙によりナノワイヤーに沿って移動せざるを得ない。この高速電子の流れはリターンカレントを発生させ、各ナノワイヤーに強い磁場を駆動する。この磁場の強度は約 3 kT で、1 MeV 電子のラーモア半径にして約 $1.5 \mu\text{m}$ に相当する。この強力な磁場は、ナノワイヤーアレイの空隙中に存在する高速電子を捕捉し、エネルギーの散逸を防いでいた。

結果として上記 2 つのメカニズムによりナノワイヤーアレイではレーザーエネルギーの散逸が抑制され、局所的な高エネルギー密度状態が形成可能となることがわかった。ナノワイヤーの構造に由来するこれらのエネルギー散逸抑制効果は、ワイヤーの構造が存在する限り有効である。この効果によってピコ秒レーザーを照射した場合でもナノワイヤーアレイは効率的に高エネルギー密度状態を形成することができた。

4.4.4 1次元流体シミュレーションによるナノワイヤーアレイの形状変化の評価

上述の議論は、ナノワイヤーアレイの構造がメインパルス到達まで維持されていた場合に有効である。メインパルス到達前にナノワイヤーアレイ構造が維持されたかを確認するために、1次元放射流体シミュレーションコード ILESTA-1D¹⁰を用いて、プレパルスがナノワイヤーアレイ構造に与える影響を評価した。ピーク強度が 2×10^{18} および $1 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ である時の LFEX のプレパルスを想定したレーザー波形で計算を実施した。図 4.10 は、ILESTA-1D で使用されたレーザーパルス形状を示す。

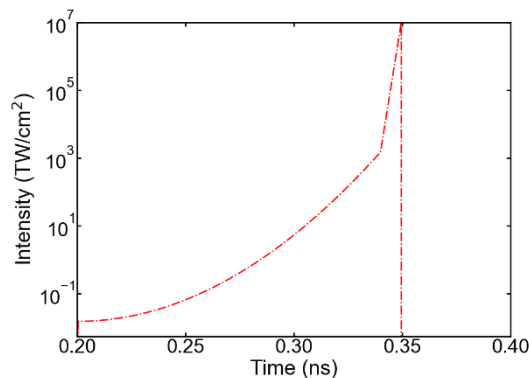


図 4.10 ILESTA-1D の計算で使用されたレーザー波形

ILESTA-1D の計算ではメインパルスの到達前に、ターゲット表面から $4 \mu\text{m}$ のところに臨界密度面が形成されていることが示された。さらに、プレパルスによる Cu 箔への衝撃波伝播距離も評価した。メインパルス到達時点において、衝撃波は表面から約 800nm まで到達していることが明らかにされた。これらは、メインパルス到達前にナノワイヤーアレイはその長さに比べて比較的表面($3\text{--}4 \mu\text{m}$)しかアブレーションされておらず、ナノワイヤーを伝わる衝撃波もワイヤーの根元までは到達していなかったことを示している。したがって、ナノワイヤーアレイの構造自体はメインパルスの到達時点でも維持されており、磁場や表面電流の効果が実験において有効であったことを示す。また、この結果は裏面から放出された高速電子を記録した ESM2 の計測結果を説明可能にする。ESM2 においてナノワイヤーアレイからの高速電子数の増加が観測されなかった理由は、ナノワイヤーアレイ構造が長時間維持されたことにより強磁場も維持され、この強磁場によりプラズマ中の電子がワイヤーと衝突を繰り返すことでエネルギーを失い、その結果として裏面抜け電子数が減少していたと解釈できる。

4.5 まとめ

本章では大阪大学レーザー科学研究所のピコ秒超高強度レーザー LFEX をナノワイヤー

アレイへ照射した実験結果と、PIC シミュレーションによる実験結果の解釈について示した。実験結果では、ナノワイヤーアレイでは平板に比べて Cu-K α 線と Cu-He α 線の発光強度が強かった。K α 線信号の増加は Cu 原子に多くの高速電子が衝突していたことを示し、ナノワイヤーアレイにおける高速電子発生数の増強を示す。さらに、Cu-He α 線強度の増加は多くの Cu 原子が高価数までイオン化されたことを示す。加えて、レーザー照射ナノワイヤーアレイの前面から放出された高速電子数は平板比で多かった。一方で、ナノワイヤーアレイターゲット裏面から放出された高速電子数は、平板より観測されたものと同程度であった。

上記結果の解釈のために行った 2D-PIC シミュレーションでは、ピコ秒超高強度レーザー照射条件下でもナノワイヤーアレイで平板より大きな高エネルギー密度状態 (1 Gbar 以上) が生成されることが示された。この結果は X 線分光計の実験結果と定性的に一致していた。さらにシミュレーションでは、レーザー照射ナノワイヤーアレイ内での局所的な電子の分布が観測された。これは、ナノワイヤーアレイ構造に由来する表面電流の抑制とナノワイヤーアレイに周期的に形成された磁場による高速電子の捕捉により説明される。ナノワイヤーアレイ構造によりナノワイヤー表面には真空の空隙が多数存在しており、ターゲット表面での電子の移動を阻害する。これにより電子を介したエネルギーの横方向への散逸が抑制される。また、磁場の発生はナノワイヤー間の空隙によってナノワイヤー方向に沿って高速電子が流れることにより駆動されるリターンカレントに起因する。この強力な磁場により、プラズマ中の電子は捕捉される。この結果、ナノワイヤーアレイ表面に生成されたプラズマのエネルギー散逸を抑制し、平板ターゲットよりも大きな体積の高エネルギー密度状態の生成に寄与する。ナノワイヤーアレイにおけるこれらのメカニズムは、比較的長いパルス幅 (ピコ秒程度) の条件においても有効であり、本章の結果はナノワイヤーアレイにおけるピコ秒超高強度レーザー照射の可能性を拓くものである。

参考文献

1. Kemp, A. J. et al. Absorption of relativistic multi-picosecond laser pulses in wire arrays. *Phys Plasmas* 28, (2021).
2. Sedov, M. V. et al. Features of the generation of fast particles from microstructured targets irradiated by high intensity, picosecond laser pulses. *Laser and Particle Beams* 37, 176–183 (2019).
3. Miyanaga, N. et al. 10-kJ PW laser for the FIREX-I program. in *Journal De Physique. IV : JP* vol. 133 81–87 (2006).
4. Sentoku, Y. & Kemp, A. J. Numerical methods for particle simulations at extreme densities and temperatures: Weighted particles, relativistic collisions and reduced currents. *J Comput Phys* 227, 6846–6861 (2008).
5. Morace, A. et al. Enhancing laser beam performance by interfering intense laser beamlets. *Nat Commun* 10, 2995 (2019).
6. Meadowcroft, A. L., Bentley, C. D. & Stott, E. N. Evaluation of the sensitivity and fading characteristics of an image plate system for x-ray diagnostics. *Review of Scientific Instruments* 79, 113102 (2008).
7. Tanaka, K. A. et al. Calibration of imaging plate for high energy electron spectrometer. *Review of Scientific Instruments* 76, 013507 (2005).
8. Mishra, R., Leblanc, P., Sentoku, Y., Wei, M. S. & Beg, F. N. Collisional particle-in-cell modeling for energy transport accompanied by atomic processes in dense plasmas. *Phys Plasmas* 20, 072704 (2013).
9. Kaymak, V., Pukhov, A., Shlyaptsev, V. N. & Rocca, J. J. Nanoscale Ultradense Z -Pinch Formation from Laser-Irradiated Nanowire Arrays. *Phys Rev Lett* 117, (2016).
10. Takabe, H. et al. Scalings of implosion experiments for high neutron yield. *Phys Fluids* 31, 2884–2893 (1988).

第5章 超高速 X 線シャドウグラフによるレーザー照射ナノワイヤーアレイ中のプラズマダイナミクスの評価

5.1 はじめに

第2章で述べた通り、超高強度レーザー照射ターゲットにおける時間分解計測の例は少ない。これは超高強度レーザーにより生成されるプラズマの時空間スケールは極めて短くかつ小さいものであるためである。時間分解計測の先行研究として、まず X 線ストリークカメラを用いたものがある。Nagel らは時間分解能がおよそ 7 ps の超高速 X 線ストリークカメラを用いて、超高強度レーザーが照射された Ti 平板の加熱過程の計測を行った¹。ナノワイヤーアレイにおいても、Humphries らによる超高速 X 線ストリークカメラによる計測例が存在する²。次に、干渉計を用いた例として Dulat らはレーザー照射グレーティングターゲットの形状変化を観測した³。これらの例は時間分解計測を成功させた数少ない例といえるが、依然として時間分解能は超高強度レーザーにより生成されたプラズマの時間発展の速度に追い付いていない。また、これらの計測には空間スケールの情報が含まれていないという課題があった。以上のような中で澤田らにより、X 線自由電子レーザー (XFEL) を活用したレーザー照射ターゲットにおける超高速時空間分解計測の手法が確立された^{4,5}。

XFEL は 2006 年に米国の Linac Coherent Light Source, LCLS によって初めて発振された X 線のレーザーである⁶。XFEL の特徴として、きわめて短い時間幅 (10 fs)、明るい輝度 (10^{11} photons/pulse) が挙げられる⁷。XFEL は様々な分野において超高速プローブ光源として利用されている。このような特徴を活用して、澤田らは超高強度レーザーと XFEL を同期させた超高速ポンプ・プローブ計測を実施した^{4,5}。詳細は実験条件の節で記すが、この手法では、時間分解能が 100 fs、空間分解能が 3 μm という従来の計測よりも高い分解能での計測が可能となる。本章では、この計測手法を活用したレーザー照射ターゲットにおける超高速時空間分解計測の結果について記す。

まず、ターゲットの X 線透過度の較正を行った。10 μm 厚銅平板において透過度の計測手法の妥当性を確認したのちに、ナノワイヤーアレイにおける X 線の散乱に起因する X 線透過光強度の減衰効果の定量的な評価を実施した。つぎにレーザー照射に起因するナノワイヤーアレイの形状変化の観測を行い、レーザー照射から 5 ps まではナノワイヤーアレイ

の構造が維持されることを確認した。最後に、ターゲットの温度変化をX線透過度の変化として観測を行い、電子温度と形成されたプラズマのサイズの時間発展を評価した。

5.2 実験条件

5.2.1 実験セットアップ

筆者はX線自由電子レーザー施設 SACLA のビームライン 2 (BL2) の実験ハッチ 6 (Experimental Hutch 6, EH6) において、複数のナノワイヤーアレイと参照用の平板を用いたレーザー照射実験を行った^{7,8}。図 5.1 に実験レイアウトを示す。本実験では、EH6 に設置された超高強度レーザーを 45°の入射角でターゲットに照射した後に、平行光の XFEL を 28°の入射角でターゲットに照射した。超高強度レーザーと XFEL 間の遅延時間 (Δt) を変えながらレーザー照射を実施した。

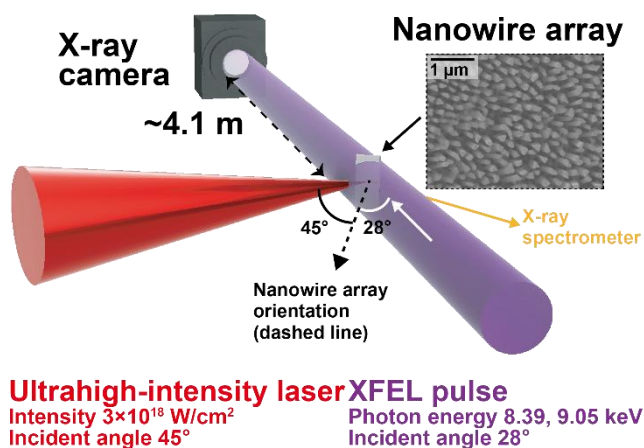


図 5.1 実験セットアップ

XFEL の光子エネルギーは 8.05、8.39、8.92、9.05、9.12、9.17 keV に設定し、XFEL の光子エネルギーのバンド幅は約 30 eV (FWHM)であった。また、パルスエネルギーは約 300 μJ であった。後述するように、レーザー照射されたターゲットの温度と密度の変化によるX線透過度の変化を観測するため、XFEL 光子エネルギーはターゲットの材質のK吸収端エネルギー (Cu:8.98 keV, Ni: 8.33 keV) 周辺の値で設定した。また、ナノワイヤーアレイの形状変化のみを観測するために、K吸収端から大きく離れた光子エネルギーとして 8.05 keV を採用した。超高強度レーザーは、 f 値が 10 の OAP から反射されて 45°の入射角でターゲットに照射された。超高強度レーザーのパルス幅は 30 fs、スポットサイズは約 $15 \times 20 \mu\text{m}^2$ 、波長は 800 nm、レーザーエネルギーは 0.8~1.2 J であった。筆者は、ピクセルサイ

ズが $6.5\ \mu\text{m}$ 、合計 2048×2048 ピクセルである 16 ビットのシンチレータベースの CMOS カメラ (Hamamatsu Photonics ORCA-Flash4.0 V2) を使用して XFEL シャドウグラフを撮影した⁹⁾。本実験で使用した X 線カメラの倍率は、カメラ前面の対物レンズにより決定され、本実験では 10 倍、20 倍、50 倍、100 倍の倍率を使い分けながら実験を行った。特に倍率が 20 倍の際のシステム全体の空間分解能は $3\ \mu\text{m}$ であった。XFEL のパルス幅は約 10 fs で、レーザーと XFEL 間の時刻不確実性は約 100 fs であった。X 線シャドウグラフの空間及び時間分解能は、これら 2 つの値から決定される。また、X 線分光計測などの時間積分計測も併せて実施した。

ターゲットには、Cu 単素材ナノワイヤーアレイ、Ni-on-Cu 異素材組み合わせナノワイヤーアレイ、そして $10\ \mu\text{m}$ Cu 平板を用いた。Cu 単素材ナノワイヤーアレイは基板とナノワイヤーアレイともに同じ素材 (Cu) でできているナノワイヤーアレイを指す。Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイは、ナノワイヤーアレイが Ni、基板が Cu でできたナノワイヤーアレイを指す。表 5.1 に各ナノワイヤーアレイの空間パラメーターを示す。

表 5.1 ナノワイヤーアレイの空間パラメーター

	直径 (nm)	ワイヤー長さ (μm)	充填率 (-)	基板厚み (μm)
Cu 単素材ナノワイヤーアレイ	200	3	0.13	5
Ni-on-Cu 異素材組み合わせナノワイヤーアレイ	200	3	0.13	5

5.2.2 温度変化に伴う X 線透過度変化

物質がレーザーや高速電子により加熱されると、その物質の K 吸収端付近での X 線の透過度が変化することが知られている。図 5.2 にその概要を示す。

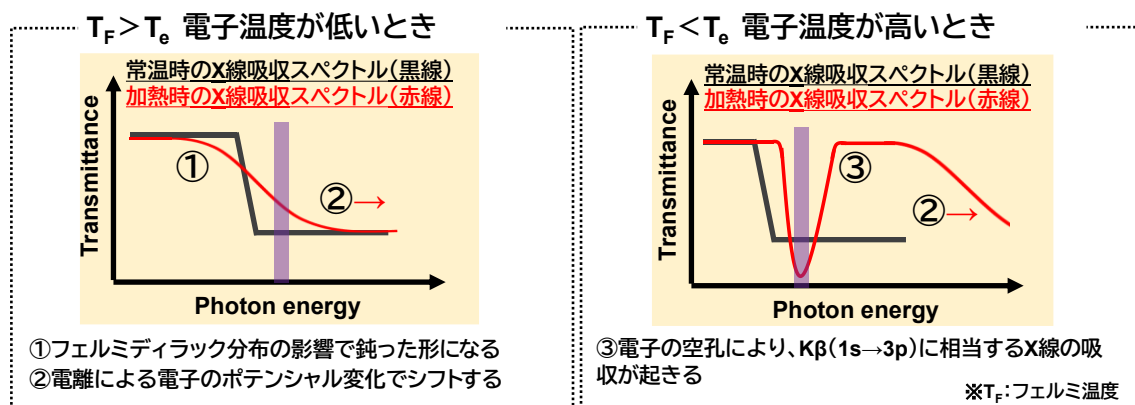


図 5.2 電子温度と X 線透過度変化の関係の概要図

以下ではフェルミ温度を基準にして策定した電子温度の領域ごとで用いた電子温度診断方法を説明する。

① 物質の電子温度 T_e がフェルミ温度 T_F よりも小さい場合 ($T_e < T_F$)

この時物質の K 吸収端付近の X 線透過度スペクトルはフェルミ・ディラック分布の影響により「鈍った」形状に変化する^{10,11}。吸収端付近の X 線吸収スペクトルは、自由電子の状態と内殻準位を結合する光電効果によって支配されている。K 吸収端の場合、空孔係数 $1-f(E)$ に従って X 線吸収断面積は変化する。 $f(E)$ はフェルミ・ディラック分布を示す。フェルミ・ディラック分布は軌道での電子の存在確率を示すことから、空孔係数は準位に電子が存在しない確率を示す。例えば空孔係数が大きければ電子が存在せず、K 殻からはじき出された電子が吸収されやすくなる、つまり透過度が下がる変化が生じる。物質の電子温度がフェルミ温度よりも低い場合に、電子はフェルミ・ディラック分布に支配されることから、この診断法はターゲットの電子温度がそれほど高くないときに有効である。さらに、フェルミ・ディラック分布の影響とは別に X 線吸収スペクトルが高光子エネルギー側にシフトすることが知られている。これは温度上昇による電離に伴った電離により、原子核の電子のポテンシャルが変化するためである。

② 物質の電子温度 T_e がフェルミ温度 T_F よりも大きい場合 ($T_e > T_F$)

①項で説明した電離による X 線吸収スペクトルの高光子エネルギー側へのシフトが生じるとともに、電離による Kβ 線に対応した吸収 (1s→3p) が生じる¹¹。以下で、本実験で使用した Ni ナノワイヤーアレイを例にとり説明する。Ni の Kβ 線は 8.27 keV であり、実験で使用した XFEL の光子エネルギーとは離れた値であるが、電離による X 線吸収スペクトルのシフトにより、8.39 keV でも X 線の吸収が観測さ

れるようになる。図 5.3 に衝突輻射原子核物理コード FLYCHK¹²により計算した電離度と Ni の X 線吸収スペクトルの対応を示す。電離の進展に伴って Ni の X 線吸収スペクトルが高光子エネルギー側にシフトしていき、それに伴い K β 線の吸収に対応した X 線透過度の減少が 8.39 keV の光子エネルギーで観測可能になる様子がわかる。

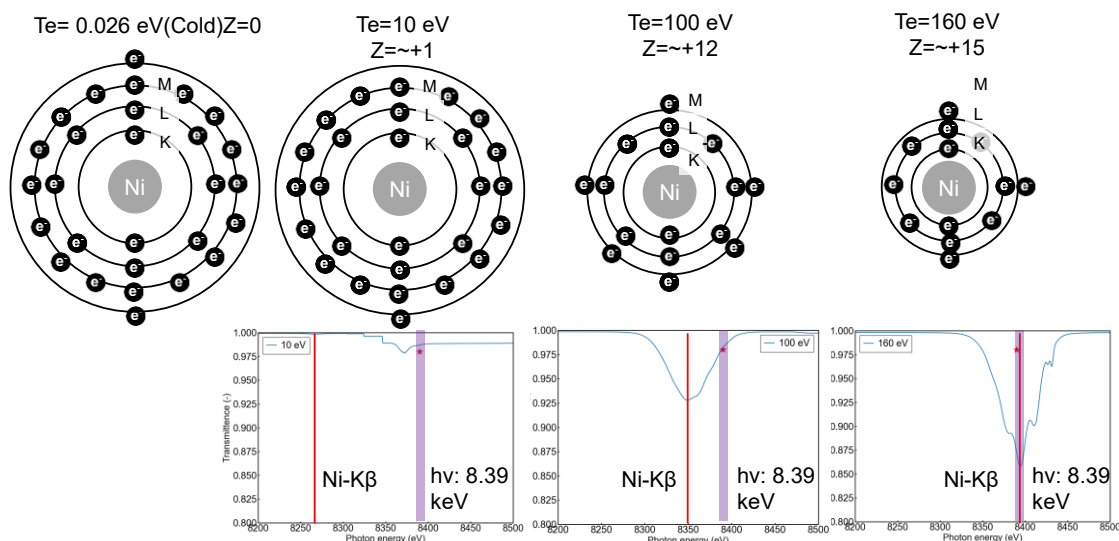


図 5.3 K β 線に対応した X 線吸収機構の概要図

以上の特性を踏まえて、筆者は XFEL の光子エネルギーをターゲットの材質の K 吸収端付近に設定することで、温度変化に伴う X 線透過度を測定できると着想した。本機構を用いた計測結果の詳細は 5.5 節で説明される。

5.3 X 線シャドウグラフの透過度較正

X 線シャドウグラフにおける透過度変化を観測するにあたって、まず X 線透過度の較正を行った。X 線シャドウグラフの透過度較正は対物レンズ 10 倍の条件で撮影した X 線シャドウグラフをもとに実施した。図 5.4 に倍率 10 倍における平板とナノワイヤーアレイの X 線シャドウグラフ、及びそれぞれの一次元ラインプロファイルを示す。

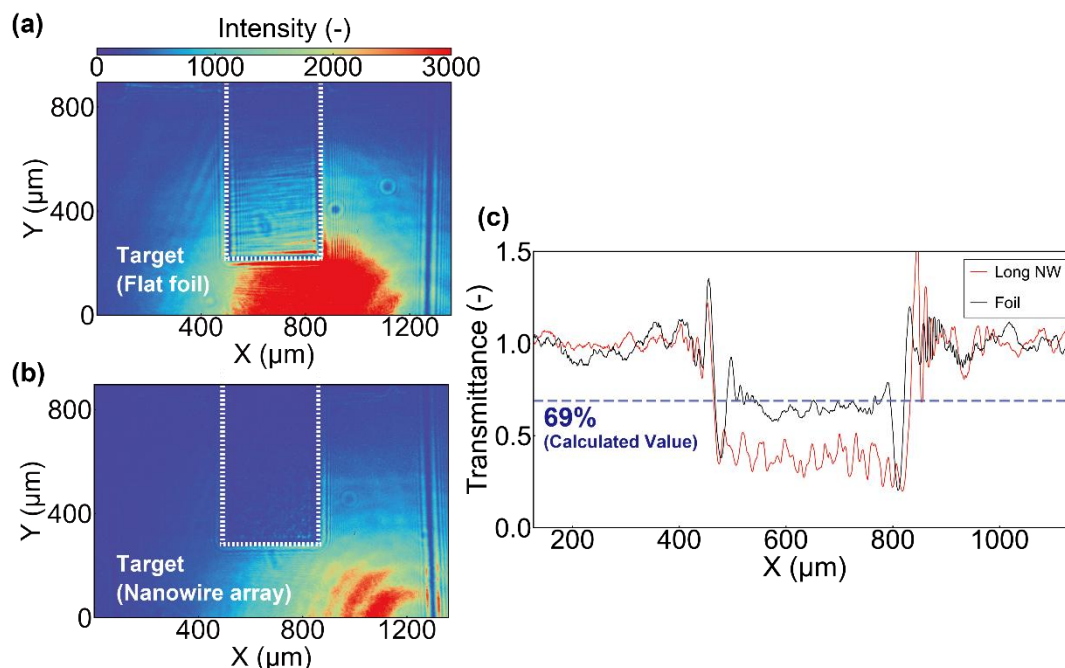


図 5.4 (a)銅平板と (b)長さ 13 μm の銅製ナノワイヤーアレイの倍率 10 倍で撮像した X 線シャドウグラフ像。(c)平板とナノワイヤーアレイの 1 次元ラインプロファイル。ラインプロファイルは、空間分解能に相当するサイズのメディアンフィルタを用いて平滑化されている。青い点線は CXRO¹³ のデータベースから計算された透過度の値を示している。

図 5.4 に示す Cu 平板と長さ 13 μm のナノワイヤーアレイの面密度はほぼ同じ値であったが、ナノワイヤーアレイのシャドウグラフでは、信号強度が平板よりも弱い様子が観察された。さらに 3 つの異なるナノワイヤーアレイターゲットすべてで X 線透過光強度の減少が観測された。この影響を定量的に比較するために透過光強度減衰を以下の手法で評価した。まず、シャドウグラフの信号を縦方向に 10 ピクセル(空間分解能~3 μm に対応)まで積算平均することにより、シャドウグラフ横方向にわたる X 線透過光強度の 1 次元 (1D) ラインプロファイルを取得した。次に、ダブルガウシアン近似を使用して、ターゲットが存在しない領域の 1D プロファイル信号からもともとの X 線透過光強度分布のプロファイル $I_0(x)$ を再構築した。そして、 $I(x)$ を $I_0(x)$ で割ることで、各ターゲットの 1D 透過度プロファイル $T(x) = I(x)/I_0(x)$ を取得した⁴。そして同じ手順をターゲットの垂直方向に適用していき、その平均値をターゲットの X 線透過度とした。各ターゲットの X 線透過度の誤差には、測定されたラインプロファイルの標準偏差を用いた。

表 5.2 に上記解析を行った結果をまとめた。

表 5.2 X 線透過度の計算値と実験値及びそれらの比較のまとめ

Target	T (Calculated)	T (Experimental)	Ratio { $T(\text{Experimental})/T(\text{Calculated})$ }
10 μm 厚 Cu 平板	0.69	0.66 ± 0.01	0.96 ± 0.01
ナノワイヤーアレイ 13 μm length and 13% fill factor	0.69	0.40 ± 0.02	0.58 ± 0.03
ナノワイヤーアレイ 3 μm length and 40% fill factor	0.71	0.53 ± 0.02	0.75 ± 0.03
ナノワイヤーアレイ 3 μm length and 13% fill factor	0.73	0.64 ± 0.03	0.87 ± 0.04

まず、平板の場合に得られた X 線透過度は、X 線光学センター（The Center for X-ray Optics, CXRO）のデータベースから計算された値とよく一致した、これはこの評価手法の妥当性を示す。なお、Cu 平板の厚みには、10%の誤差が存在していた。対照的に、同じ面密度を有する長さ 13 μm のナノワイヤーアレイでは X 線透過度が CXRO より得られた値から 42%減少していた。表 5 に示すように、すべてのナノワイヤーアレイで X 線透過光強度の減少が確認された。なお、ナノワイヤーアレイにおいて透過光強度の誤差が大きい原因としては、ナノワイヤーアレイ裏面に存在していた約数 μm の Cu 粒子による影響である。ナノワイヤーアレイにおいて観測された X 線透過光強度の減衰効果は、ナノワイヤーによる X 線の散乱によって発生する。平板とは異なり、ナノワイヤーアレイでは基板の表面に対して垂直なナノワイヤーが多数存在している。一部の入射 X 線は非常に小さな角度でナノワイヤーに入射し散乱する。散乱した X 線はカメラ前面のシンチレータに入射せず、結果として X 線透過光強度の減衰が生じる。

この効果を評価するために、規格化表面積(Normalized surface area, NSA)を導入した。NSA は $NSA \equiv \{\pi(d/2)^2 + \pi dh\} \times D$ と定義される。ここで、 h は X 線の浸透深さであり、各ナノワイヤーアレイのワイヤー長さの値を h として使用した。NSA を使用すると、ナノワイヤーの先端の面積だけでなく側面積も考慮可能となり、充填率を使用する場合よりも、ナノワイヤーと X 線の相互作用をより正確に評価することが可能である。図 5.5 に、各タ

ターゲットの NSA 値に対する、実験値と計算値の X 線透過度の比を示す。

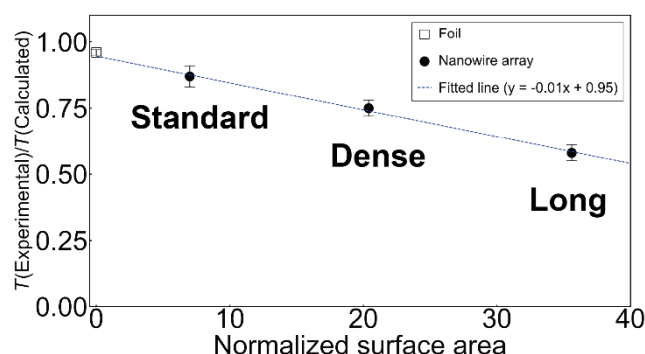


図 5.5 X 線透過度の実験値と計算値の比と NSA のプロット

図 5.5 より、NSA 値が増加すると計算値と実験値の乖離が大きくなることがわかる。さらに、ナノワイヤーアレイターゲットの透過度減衰効果と NSA の値を線形一次近似すると、裏面表面の粗さによる透過光減衰効果が 5%程度であると評価できた。

先述の効果は 5.5 節にて行う温度変化に伴う透過度変化の評価にとって極めて重要である。そこで筆者はレーザーショット後の画像をレーザーショットしていない画像 (XFEL のみで撮像した画像) で割り算を行い、比を取得することで透過度変化を求めた (ディバイド処理)。図 5.6 にデータ解析の一例を示す。

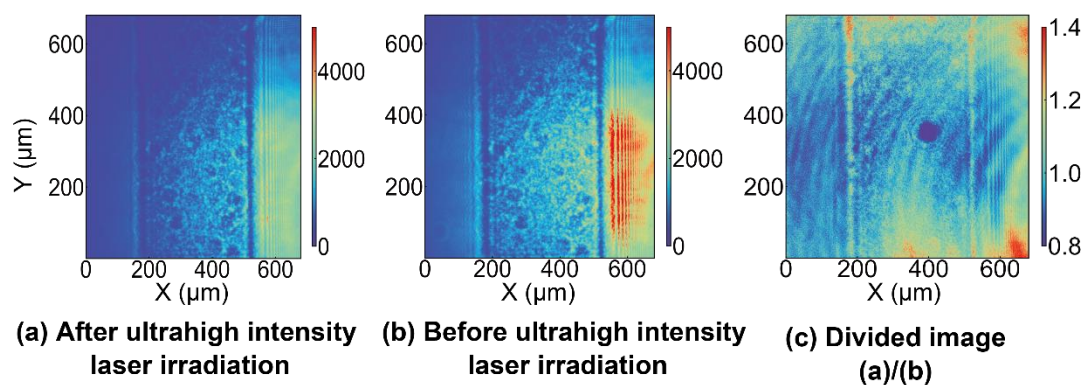


図 5.6 超高強度レーザー照射後(a)及び照射前の(b)のシャドウグラフ像。画像 a を b で割り 2 者の比を計算した (c) ディバイド像

一連のディバイド処理を通して X 線透過光強度の影響を最小限に抑えつつ透過度変化の評価に成功した。

5.4 レーザー照射ナノワイヤーアレイの形状変化評価

本節ではレーザー照射ナノワイヤーアレイのナノワイヤーの構造変化に着目した計測結果について説明する。1 章でも述べた通り超高強度レーザーにはプレパルスが存在しており、特に構造体ターゲットにおいてはプレパルスによる構造へのダメージが問題視されてきた¹⁴。筆者はこの課題に対してシャドウグラフによる実験的評価を実施した。前節 5.3 節で述べた通り、ナノワイヤーアレイには構造に起因する X 線透過光強度の減衰が存在していた。この効果はナノワイヤーによる X 線の散乱に起因するため、レーザー照射によりナノワイヤーの構造が変化した場合は X 線の散乱が弱まる変化が期待される。そこで、5.2.2 で説明した電子温度の変化による透過度の変化が生じない光子エネルギーでシャドウグラフを観察することで、ナノワイヤーアレイの形状変化に起因する X 線透過光強度の上昇が観測されると考えた。本計測は光子エネルギーを 8.05 keV に設定して実施した。計測結果を図 5.7 に示す。

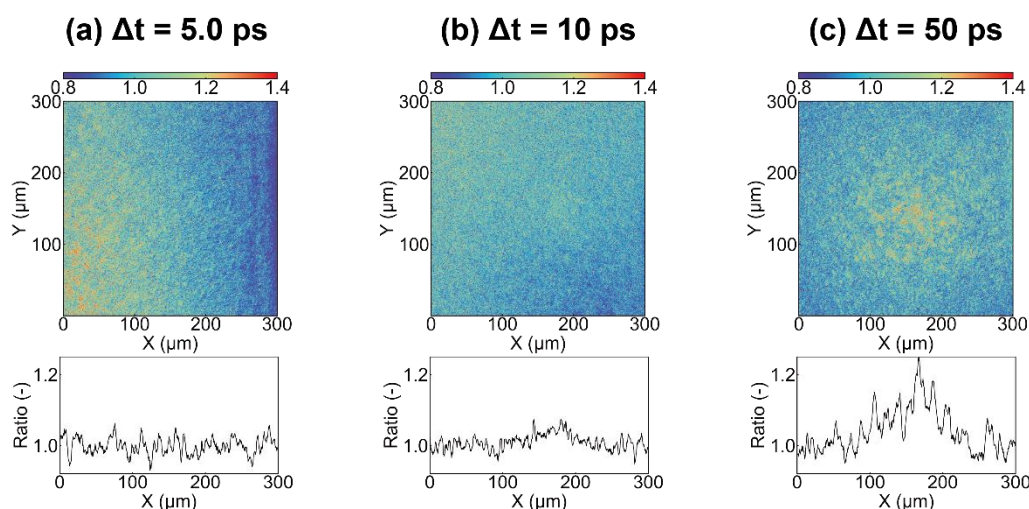


図 5.7 $\Delta t =$ (a) 5.0, (b) 10, (c) 50 ps で撮像されたナノワイヤーアレイの X 線シャドウグラフ画像と対応するラインプロファイル。

計測結果より、 $\Delta t = 5$ ps では透過光強度の上昇は観測されなかった。しかし、 $\Delta t = 10$ ps の際に透過光強度の上昇が観測され、 $\Delta t = 50$ ps で透過光強度上昇とその領域が大きくなる様子が観測された。これは、ナノワイヤーアレイにおいてはレーザー照射から 5 ps まではその構造が保たれていたことを示す。

一方で、先行研究では超高強度レーザー照射後 1 ps 以内の短時間でナノワイヤーアレイ

が完全に崩壊している様子が PIC シミュレーションにより観測されている¹⁵。本実験結果ではそれよりも長い時間ナノワイヤーアレイが形状を維持していたが、この原因は以下の理由で説明できる。

1 点目は超高強度レーザーのプレパルスの影響である。先述の PIC シミュレーションではナノワイヤーアレイ前面にプレプラズマが存在せず、レーザーがナノワイヤーアレイと直接相互作用していた。一方で本実験のパルスコントラストではプレプラズマが形成されており、レーザーとナノワイヤーアレイの直接の相互作用は生じていなかった。筆者はこのプレプラズマの厚みを一次元輻射流体コード ILESTA-1D¹⁶を用いて評価した。計算では計測されたプレパルスの波形により作成されたレーザー波形を用いた。このレーザーを平板ジオメトリに対し 45°の照射角度で照射した。その結果厚み 1 μm のプレプラズマが形成されている様子が観測された。実験ではナノワイヤーの前面に 1 μm のプレプラズマが存在し、その後方にナノワイヤーアレイが存在したと考えられる。

2 点目は使用したナノワイヤーアレイのサイズによる。本実験と同程度のレーザー強度に用いられるナノワイヤーアレイの直径は 100 nm 弱が多く、対して本実験で使用されたナノワイヤーアレイの直径は 200 nm である。波長 800 nm のレーザー光のスキン長は 20 nm ほどである。これは、細いワイヤーではレーザー照射とともにワイヤーの電子の大部分が電離してしまうに対して、太いワイヤーではその表面のみが電離することを示す。その結果、本実験で使用したナノワイヤーでは細いワイヤーで見られるような急速な電離は起きなかった。

5.5 X 線透過度変化を介したレーザー照射ターゲットの温度の時間発展の評価

5.5.1 レーザー照射平板における電子温度の時間発展の結果

まず、筆者は 5.2 節で説明した計測手法をナノワイヤーアレイに適用する上で、リファレンスタargetとして 10 μm 厚の銅平板ターゲットを用いて実験を行った。図 5.8 (a)及び(b)に光子エネルギーが 8.92 keV 及び 9.05 keV で撮像した X 線シャドウグラフの実験結果例と透過度変化領域中心で取得したラインプロファイルを示す。

(a) Cu 平板 8.92 keV $\Delta t=0.96$ ps (b) Cu 平板 9.05 keV $\Delta t=1.05$ ps

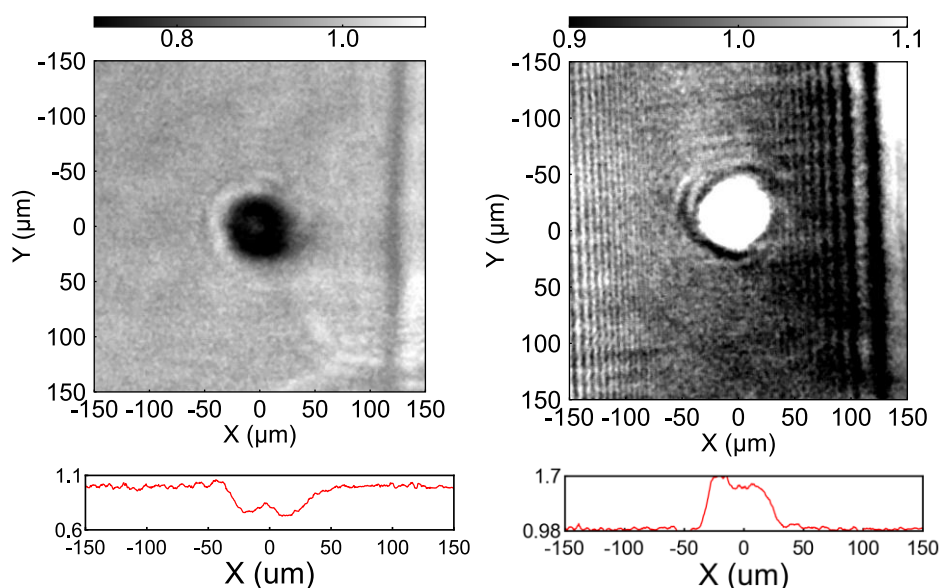


図 5.8 光子エネルギー(a) 8.92 keV 及び(b) 9.05 keV で撮像した、Cu 平板における X 線透過度変化像

5.2.2 節で述べた通り、8.92 keV は K 吸収端より少し低い光子エネルギーのため X 線透過度の減少が、9.05 keV では K 吸収端より少し高い光子エネルギーのため X 線透過度の増加が観測できる。9.05 keV は左右対称な透過度変化領域が形成されているのに対して、8.92 keV ではショットによっては画像右側に薄い「影」のような形で透過度が減少している様子が観測された。また、8.92 keV・9.05 keV の双方のラインプロファイルに着目すると、ピーク付近に凹みが確認できる。

8.92 keV の観察で見られた影状に見られた透過度減少は、 $K\beta$ 線に対応した吸収である。8.92 keV は銅の $K\beta$ 線の光子エネルギー(8.91 keV)に極めて近く、5.2.2 節で説明した電離による透過度減少が観測された可能性がある。また形状の異方性は、画像右方向は超高強度レーザーの進行方向であることから、レーザー進行方向に加速された電子が Cu 原子に衝突することで電離する、衝突電離に起因する。次に両光子エネルギーでの観察結果に見られるターゲットラインプロファイル中心の凹みは、レーザースポット中心の表層が高温に加熱されたことにより電離による透過度の減少が起きていたためである。表層では透過度減少が、その奥では K 吸収端付近の鈍りによる透過度上昇が同時に起きていたために、ラインプロファイルの中央が膨らむ (8.92 keV) あるいは凹む (9.05 keV) 形状になっていた。

次に、高速電子における加熱領域の拡大の評価のために、9.05 keV における透過度変化領域の大きさ（横幅）の時間発展を評価した。そのプロットを図 5.9 に示す。

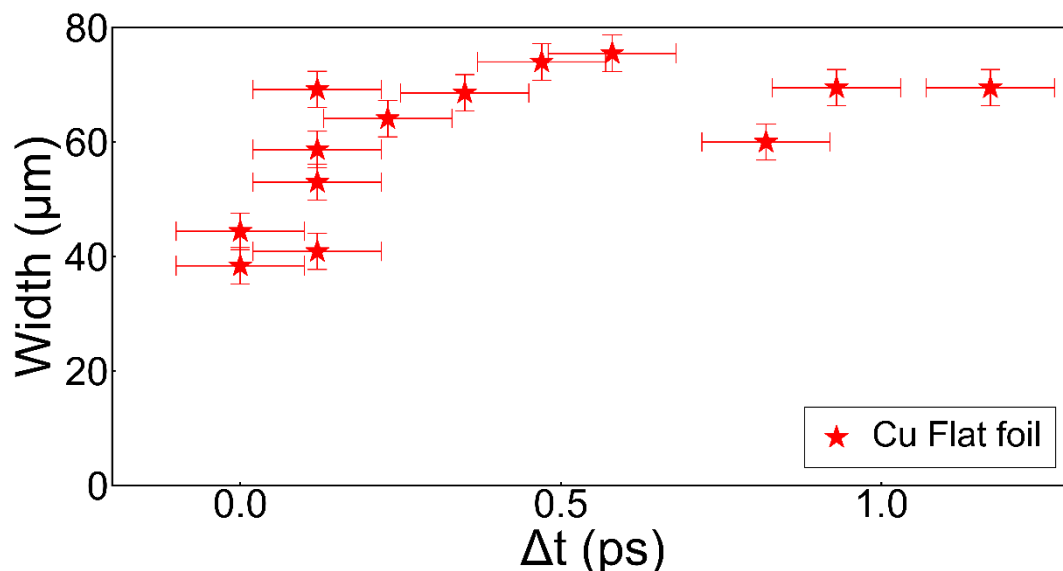


図 5.9 光子エネルギー9.05 keV での X 線透過度変化像の横幅の大きさの時間発展

空間スケールの計算にあたっては、まず透過度変化像中の空間勾配を 2D ガウシアンフィルターで除去したのち、スポットの中心で縦幅 10 px のラインプロファイルをターゲット横方向すべてで取得する。そして、ピークの 5%を閾値として定義し、それ以上の信号強度を有する箇所の幅を、透過度変化領域の横幅と定義した。双方の光子エネルギーで透過度変化領域すなわち加熱領域が広がっていく様子が観測できる。本結果を比較するために、同計測手法を用いた澤田らの先行研究と比較を実施した⁵。澤田らの実験では同程度の強度を有するレーザーを 2 μm の銅平板に照射した結果を使用しているが、彼らのターゲットで観測された透過度変化領域の大きさは 100～200 μm と本実験結果と大きく異なるものであった。この違いの原因はターゲット中における電子の Refluxing 機構にある¹⁷。2.4 節でも述べた通り、ターゲット厚みがレーザーのパルス長さ L_p （パルス幅と光速の積）の半分よりも小さいとき、シース電場を抜け出られない電子がターゲット中に引き戻される。この Refluxing 機構により電子はターゲット中で拡散し、加熱領域が広がる。本実験で用いた超高強度レーザーの L_p は $L_p=9 \mu\text{m}$ である。2 μm 平板は $L_p/2$ より小さく Refluxing 機構が生じる条件である。一方で 10 μm 平板は $L_p/2$ より大きく Refluxing 機構は発生しない。

図 5.10 に 9.05, 9.12, 9.17 keV で撮像したレーザー照射 10 μm 平板の透過度変化像を示

す。9.05 keV については $\Delta t=0$ ps から観測され始め、時間の進展とともに透過度変化領域が拡大する様子が観測される。一方で 9.12 keV での観測では $\Delta t=0.5$ ps から透過度変化が観測され始め徐々に広がる様子が観測された。さらに 9.17 keV では透過度変化は観測できなかった。

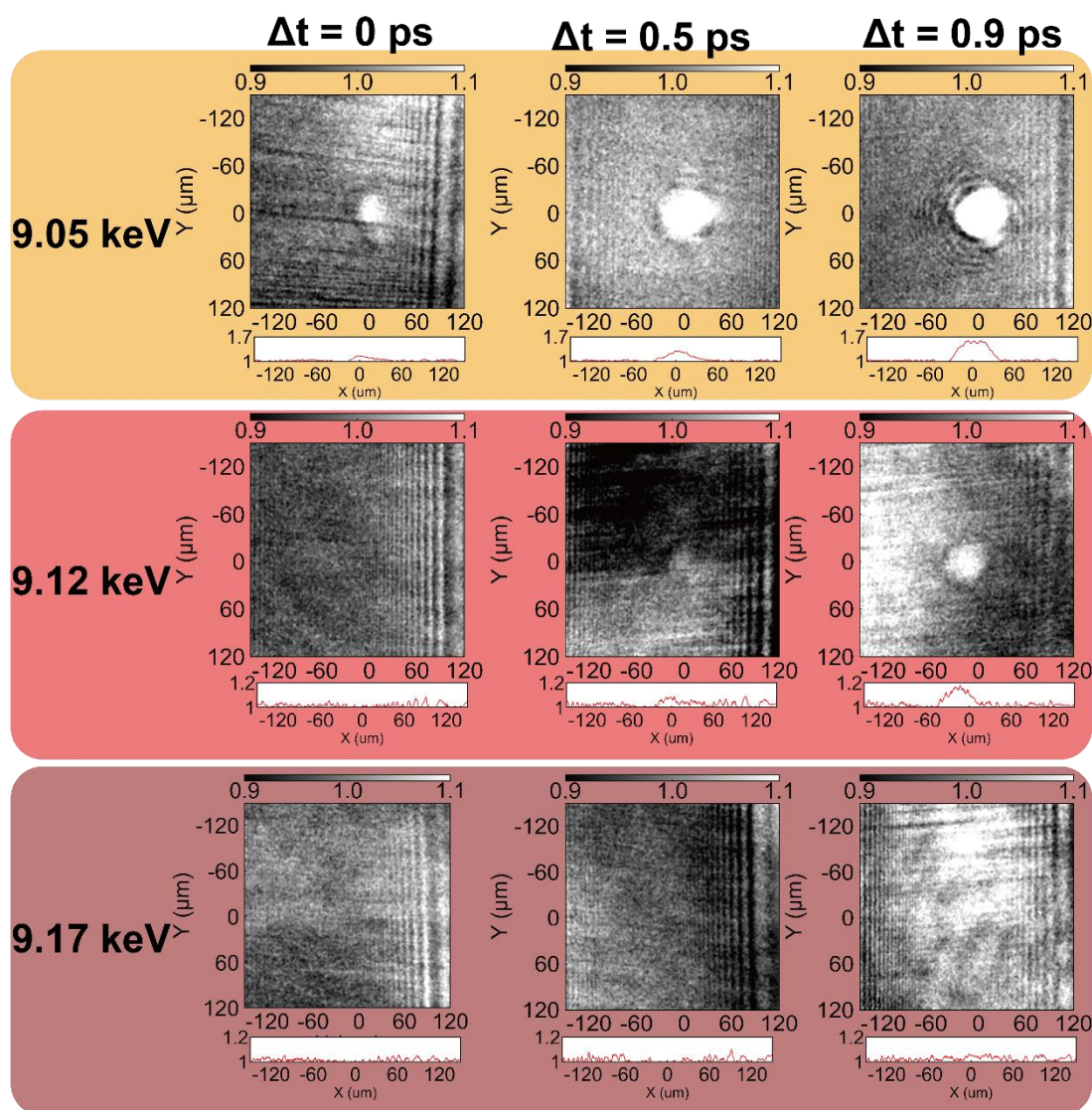


図 5.10 Cu 平板における透過度変化像のまとめ

まず、光子エネルギー9.17 keV において透過度変化が観測されなかったことより、平板の到達した最大電子温度を決定できる。図 5.11 に光子エネルギーごとの電子温度と空孔率の関係を示す。

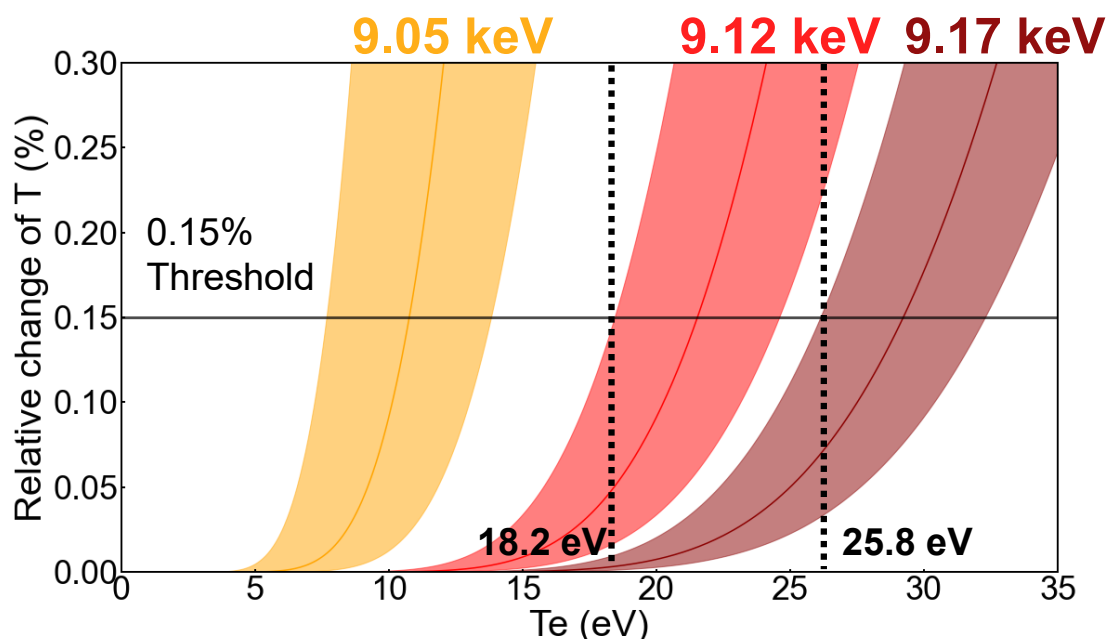


図 5.11 各光子エネルギーにおける、透過度変化と電子温度の関係。網掛けは光子エネルギーの揺らぎ (FWHM) を示す

この図から、9.12 keV 及び 9.17 keV での検出下限の値を比較することで、平板の最大電子温度は 18.2～25.8 eV であったことがわかる。また、9.12 keV で透過度変化の観測がレーザー照射から遅れたことは、レーザー照射後に電子温度が上昇していたことを示す。これは、拡散加熱による熱拡散を示す¹⁸。平板ターゲットでは高温低密度のプレプラズマからの拡散加熱により、高密度のターゲットが加熱されたと示唆される。

以上から、本実験系における平板ターゲットの加熱領域の大きさの時間発展やターゲットの電子温度の評価ができた。次節からはこの結果も用いつつ、ナノワイヤーアレイにおける加熱過程を議論する。

5.5.2 Cu 単素材ナノワイヤーアレイにおける電子温度の時間発展の結果

図 5.12 に光子エネルギー 9.05 keV において撮像したナノワイヤー長さ 3 μm のナノワイヤーアレイにおける透過度変化像を示す。まず、すべての光子エネルギーにおいて、透過度変化の発現にはレーザー照射時刻 ($\Delta t = 0$ ps) から有意に遅れて透過度が発現した。

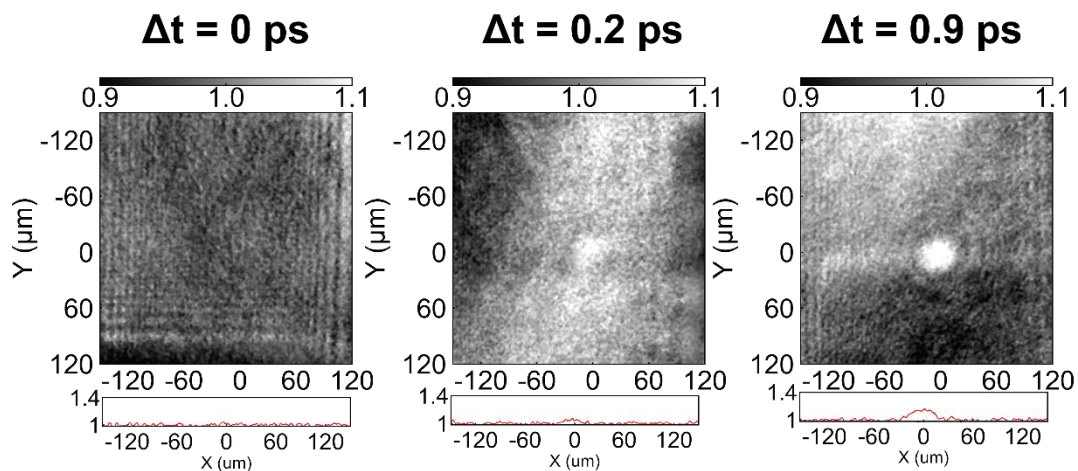


図 5.12 光子エネルギー9.05 keV で観測した Cu 単素材ナノワイヤーアレイにおける X 線透過度変化像

また、この透過度発現までのタイムラグは光子エネルギーが大きくなるほど大きくなった。図 5.13 に光子エネルギー9.17 keV において撮像したナノワイヤー長さ 3 μm のナノワイヤーアレイにおける透過度変化像を示す。

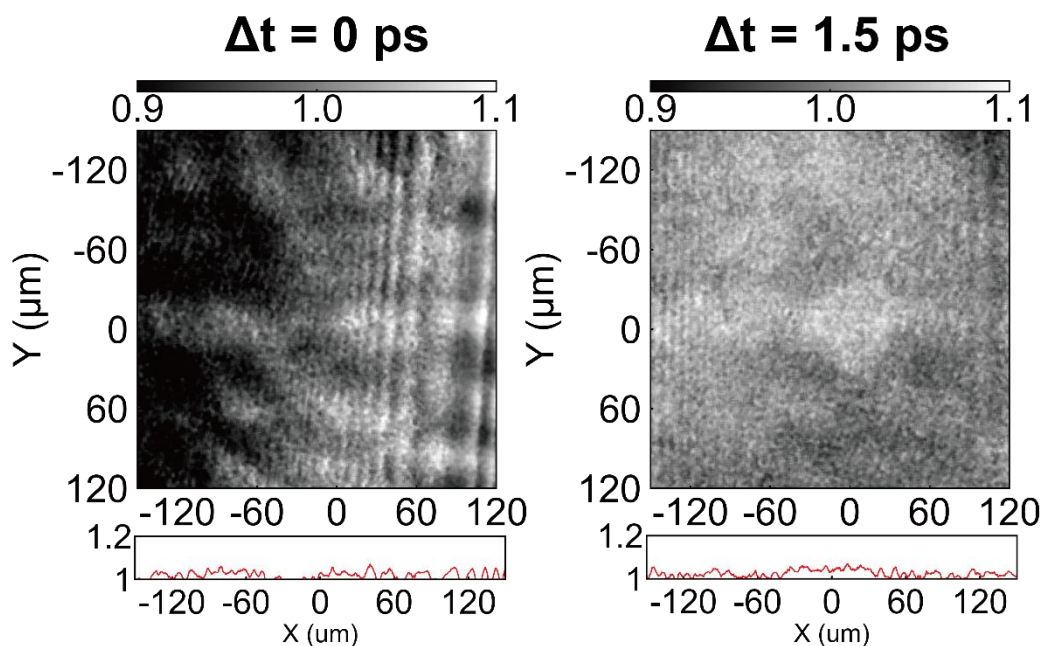


図 5.13 光子エネルギー9.17 keV で観測した Cu 単素材ナノワイヤーアレイにおける X 線透過度変化像

まず、ナノワイヤーアレイにおいて 9.17 keV において透過度変化が観測されたことは、平板が 9.12 keV までしか透過度変化が観測されなかったことと比較すると、ナノワイヤー

アレイのほうがより高い電子温度まで到達していたことを示す。一方でレーザー照射から透過度変化までの時間差は、様々な先行研究で指摘されているナノワイヤーにおける急速な加熱とは矛盾する結果である¹⁵。5.5.3 節でも説明する結果と合わせると、この透過度変化のタイムラグは高温低密度のナノワイヤーアレイプラズマから高密度の基板層への熱伝導のタイムスケールを示す。高い光子エネルギーになるほど透過度変化の発現に時間差が生じた現象も、ナノワイヤーアレイプラズマからの熱伝達による基板の電子温度上昇に時間がかかったと考ええると辻褄が合う。また、次節で述べるナノワイヤーアレイにおける透過度減少が観測されなかった原因としては、低密度のナノワイヤーアレイ側での透過度変化が高密度の基板側での変化にかき消されたためである。

以上から特に密度差が大きいターゲットを XFEL に導入する際は、大きな密度コントラストの影響を低減させる施策が必要となる。次節ではこの対策として、Ni-on-Cu 異素材組み合わせナノワイヤーアレイを用いた結果について説明する。

5.5.3 Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイにおける電子温度の時間発展の結果

図 5.14 に光子エネルギー 8.39 keV (Ni ナノワイヤーアレイ側の温度変化に着目した計測) において観測された Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイでの X 線透過度変化像を示す。

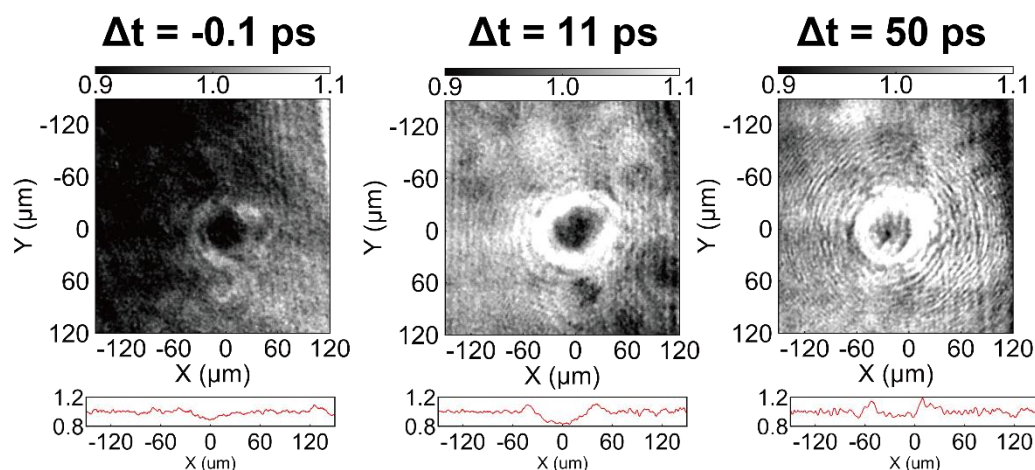


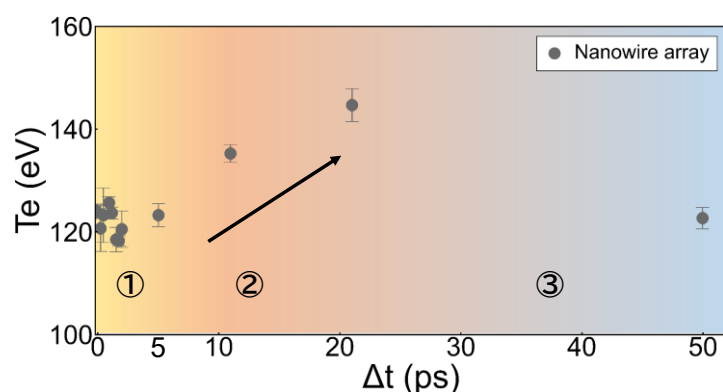
図 5.14 光子エネルギー 8.39 keV で観察した
Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイにおける X 線透過度変化像

$\Delta t = -0.1$ ps (± 0.1 ps のタイミング不確かさの範囲内)、超高強度レーザー照射開始直後に X 線透過度の減少が観測された。そして約 10 ps 後、この透過度減少はさらに顕著になり、透過度が減少した箇所の周囲を取り囲むように X 線透過度が上昇した領域（白いリング）観測された。そして、 $\Delta t = 50$ ps では X 線透過度がさらに上昇し、干渉縞が観測され

るようになる。

X 線透過度の減少は 5.2 節で説明した高温プラズマの形成による $K\beta$ 線に対応した X 線の吸収による。X 線透過度減少領域の周囲に形成された X 線の透過度が高い領域は、中心の高温プラズマから熱が伝わることにより形成された低温の領域を指す。

筆者は温度の時間発展を評価するために、各時刻の X 線透過度の値と FLYCHK の結果を比較することで最大電子温度 T_e の時間発展を求めた。最大電子温度の決定にあたっては、透過度変化のラインプロファイルから T_e が 160 eV 以下と仮定して、各時刻における X 線透過度の最小値と FLYCHK の計算結果を比較することで決定した。 T_e が 160 eV 以下と仮定した理由は、透過度変化のラインプロファイルの形状による。もし電子温度が 160 eV 以上となれば、透過度変化のプロファイルには透過度の減少と増加の両方が観測されるはずであるからである。図 5.15 に T_e と Δt のプロットを示す。プロットより、電子温度の挙動は以下の 3 段階に大別される。



- ①レーザーにより、ナノワイヤーは瞬時に最大で~120 eVまで加熱される（黄色）
- ②ナノワイヤーアレイの形状変化に伴い、電子温度が上昇する（赤色）
- ③膨張がさらに進展し、輻射や流体的に拡散することにより冷却される（青色）

図 5.15 電子温度と Δt のプロット、色分けは各フェイズにおけるナノワイヤーの挙動の目安を示す

- ① レーザーによる急速な加熱：レーザー照射直後に電子温度は 120 eV まで到達する。これは、レーザーによりナノワイヤーアレイが瞬時に加熱されたことを示す。その後 5 ps ほどまでその電子温度が保たれる。電子温度が増加も減少もせずに 120 eV 程度で保たれた原因としては、リターンカレントによる加熱と電子の散逸によるエネルギー損失が釣り合っていたためと考えられる。
- ② ナノワイヤーアレイの形状変化による電子温度の上昇： Δt が 10 ps を超えてから電

子温度は上昇をはじめ、 $\Delta t=20$ ps ほどで 145 eV に達する。これは、ナノワイヤーアレイの形状変化による。レーザー照射後、ナノワイヤーの内部の電子は磁場の影響によりワイヤー中心に移動する。この時径方向に電場が発生しイオンも併せて中心方向に収束していく¹⁹。このピンチ効果によりナノワイヤーアレイは圧縮されていき、時間が進むと膨張を始める。この一連の過程でのナノワイヤーアレイの圧縮に使われていた運動エネルギーが、内部エネルギーに代わり、結果としてナノワイヤーアレイの電子温度が上昇する²。

- ③ ナノワイヤーアレイプラズマの膨張による冷却： $\Delta t=50$ ps で電子温度は 120 eV まで低下していた。これは、ナノワイヤーアレイで形成されたプラズマが膨張を始めていく過程で流体的・輻射的に冷却されてしまうためである¹⁵。 $\Delta t=50$ ps において観測された回折縞は、プラズマの膨張に伴ってナノワイヤーアレイの崩壊が大きく進んだことによる表面の変形による⁵。

ナノワイヤーアレイの形状変化のタイムスケールは 5.4 節で述べた実験結果とも合致している。5.4 節で述べた通り、レーザー照射から 5 ps まではナノワイヤーアレイの形状は保たれていたが、10 ps を超えるとナノワイヤーアレイの形状が変化し始めた様子を観測した。このタイムスケールは、電子温度上昇のものと一致する。また、筆者はナノワイヤーアレイの形状変化のタイムスケールが、最大電子温度上昇のタイムスケールと合致しているかをニッケルの音速と比較した。 $T_e \approx 120$ eV, $Z \approx 13$ (FLYCHK による計算で推定した) としたときの音速 v_s は、 $v_s = \sqrt{Zk_bT_e/m_i}$ で与えられる。ここで、 k_b は ボルツマン定数で m_i はイオンの質量である。この時 v_s は ~ 50 nm/ps であった。収束波と膨張波は 200 nm のナノワイヤーを 4 ps ほどで広がり、膨張を開始する。観測された電子温度の上昇はレーザー照射から 5 から 10 ps の間であるため、音速での計算結果はそれより少し早い。音速による見積もりには磁場によるナノワイヤーアレイのピンチ効果は含まれておらず、実験で観測された値との乖離はこの影響による。

プラズマの冷却時間について、輻射による冷却時間 τ_{rad} と流体的に拡散されることによる冷却時間 τ_{hyd} を比較した。1 原子当たりの内部エネルギー U は次のように計算される。 $U=3/2Zk_bT_e$ 。ここで、 Z は電離度、 k_b はボルツマン定数、 T_e は電子温度を示す。 T_e はシャドウグラフにより評価された電子温度 145 eV を用い、 Z は FLYCHK により評価された平均電離度 14 を用いた。 τ_{rad} は U を輻射による熱損失で割ると計算できる。輻射による熱損失

は Z と同様に FLYCHK から計算でき、その結果 τ_{rad} は約 9 ps であった。一方で、 τ_{hyd} はプラズマサイズ $L(=3 \mu\text{m})$ をイオン音速 (60 nm/ps) で割ればよく、 τ_{hyd} は 50 ps と計算される。 τ_{hyd} は τ_{rad} よりも 6 倍ほど大きく、ナノワイヤーアレイに特有の輻射による損失が支配的な領域であった。

X 線シャドウグラフ計測に加えて、X 線分光計測からも T_e を評価した。図に Ni-K α 線付近の光子エネルギーにおける、ショット平均化された X 線分光計測の結果を示す。

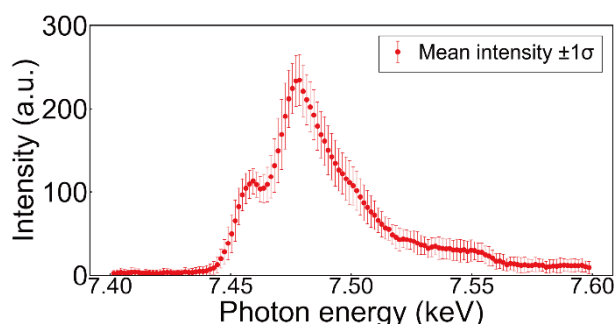


図 5.16 ショット平均されたレーザー照射ナノワイヤーアレイからの自発光 X 線スペクトル。エラーバーはショットごとの信号強度のばらつき（標準偏差）を示す。

スペクトル中には電離による電子順位の変化を示す K α 線のシフト (20~70 eV) が観測された。Szymańska らによる multiconfiguration Dirac-Fock 計算によると、20 eV の K α 線シフトは Ni の 13~14 価までの電離に相当する²⁰。この電離度の値は X 線シャドウグラフの計測結果と一致する。また、70 eV までシフトした K α 線は、L 殻まで Ni が電離されていたことを示す。この高価数までの電離はレーザー照射面付近の限られた数の Ni に起きていたと考えられる。一方で、本実験ではレーザー照射ナノワイヤーアレイの先行研究で観測されていた高電離を示す He 線などは観測されなかった。この原因は 5.4 節でも述べた通り、ナノワイヤー前面に形成されたプレプラズマにより、レーザーとナノワイヤーアレイの大部分が相互作用できなかったことによる。

ナノワイヤーアレイの形状変化に伴う電子温度上昇のメカニズムを探るために、PICLS を用いて 2D-PIC シミュレーションを実施した²¹。レーザーは、入射角 45°でパルス幅 30 fs (FWHM)、スポットサイズ 20 μm 、強度 $3 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ に設定された。シミュレーションボックスのサイズは 60×50 μm^2 の領域であり、この領域が 1500×1250 のセルに分割されていた。ナノワイヤーアレイの間隔は 500 nm、直径は 200 nm に設定した。レーザーのタイムステップは 180 であり、 t_0 ($t = 0 \text{ ps}$) はレーザーのピークがナノワイヤーの先端に到達した時間とした。計算資源の制約のために、計算は $t = 1.5 \text{ ps}$ まで実行した。

図 5.17 (a)に各時刻における電子温度分布を示す。

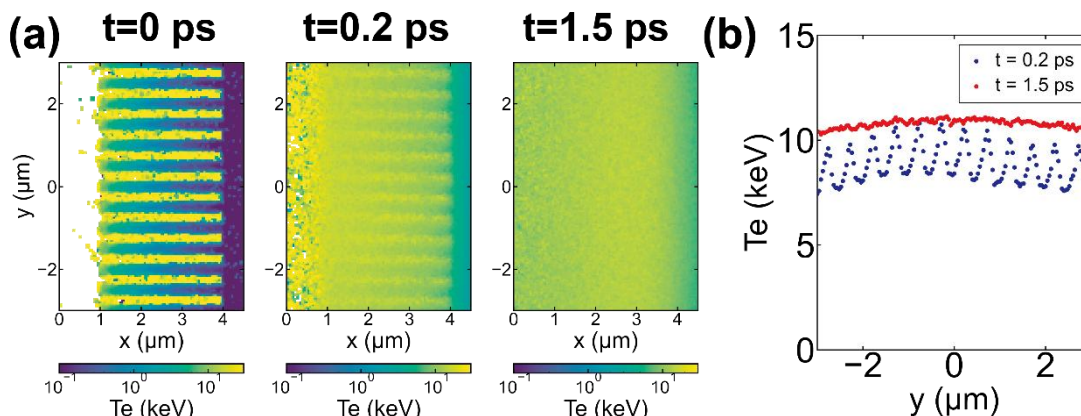


図 5.17 (a)各時刻における、PICLS により計算された電子温度分布と、(b) $t=0.2$ ps 及び $t=1.5$ ps における電子温度の平均ラインプロファイル

$t=0$ ps では、ナノワイヤーアレイ構造による周期的なパターンが観測された。時間経過により、これらの空間的なパターンは徐々に消失していき、ほぼ均一なプラズマが形成されている様子がわかる。これはナノワイヤーアレイの形状変化を示す。図 5.17 (b)は、 $t=0.2$ ps および $t=1.5$ ps での電子温度のラインプロファイルを示す。ラインプロファイルは、ナノワイヤーアレイが存在する領域 $1 < x < 4$ において、 x 方向に沿って平均化して取得した。計算では、 $t=0.2$ ps から $t=1.5$ ps の間で電子温度の上昇が観測された。これは、2D-PIC シミュレーションにおける電子温度の上昇がナノワイヤーの形状変化によるものであることを示している。しかし、シミュレーションで得られた電子温度は実験で評価された電子温度を大きく上回っていた。この原因の一つとして、今回のシミュレーションでは前面にプリプラズマが存在しないため、実験条件と比較してエネルギー吸収が増大した可能性が考えられる。

次に空間スケールについて議論する。図 5.18 に光子エネルギー 8.39 keV で観察を行った Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイの X 線透過度変化領域の横幅の時間発展を示す。比較として光子エネルギー 9.05 keV で観察を行った際の $10 \mu\text{m}$ 銅平板の結果も記載している。

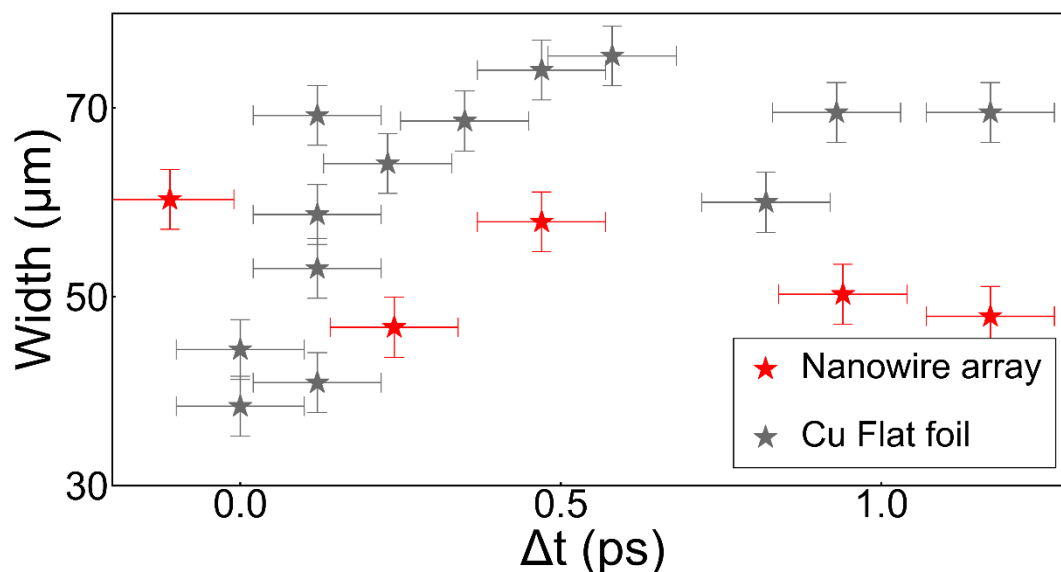


図 5.18 光子エネルギー8.39 keV で観察を行った Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイ及び 9.05 keV で観察を行った 10 μm 銅平板における X 線透過度変化領域の横幅の時間発展

5.5.1 節でも述べた通り、銅平板では X 線透過度変化の拡大の様子が観測されたのに対して、ナノワイヤーアレイでは X 線透過度変化領域が広がっていく様子は観測されなかった。これは、ナノワイヤーアレイ構造に由来する表面電流抑制と形成される磁場によるエネルギー散逸抑制効果で説明される。平板で観測された X 線透過度変化領域の拡大は、ターゲット表面付近で広がる高速電子によるものである。ナノワイヤーアレイにおいて X 線透過度変化領域の拡大がみられなかったことは、高速電子の拡散がナノワイヤーアレイ構造に由来する先述の 2 つの効果によって抑制されていたことを示す。また、ナノワイヤーアレイがレーザー照射直後から平板に比べて大きな X 線透過度変化領域を有していた原因は、ナノワイヤーアレイのエネルギー吸収率が高くレーザースポットの低強度部分でも十分に加熱されたためである。このことからナノワイヤーアレイにおいては横方向に狭い領域にエネルギーが集中していたことがわかる。

図 5.19(a)に光子エネルギー9.05 keV (Cu 基板側の温度変化に着目した計測) で観察を行った Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイの X 線透過度変化像を示す。Ni ナノワイヤーアレイとは異なり、透過度の減少ではなく透過度の増加が観測された。また、レーザー照射タイミングでは透過度変化は発現せず、0.2 ps の時間差を伴って発現した。光子エネルギー9.05 keV で X 線透過度変化が観測されたことは、電子温度が少なくとも 8 eV ほどまで上昇したことを示す⁵。また、0.2 ps の時間差はナノワイヤーアレイでのレーザー相互作用で生じた高速

電子の基板までの到達時間を表す。

図 5.19 (b)に Cu 単素材ナノワイヤーアレイのシャドウグラフの計測結果と、図 5.19 (c)に光子エネルギー9.05 keV で観察を行った Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイ及び Cu ナノワイヤーアレイの X 線透過度変化領域の横幅の時間発展を示す。

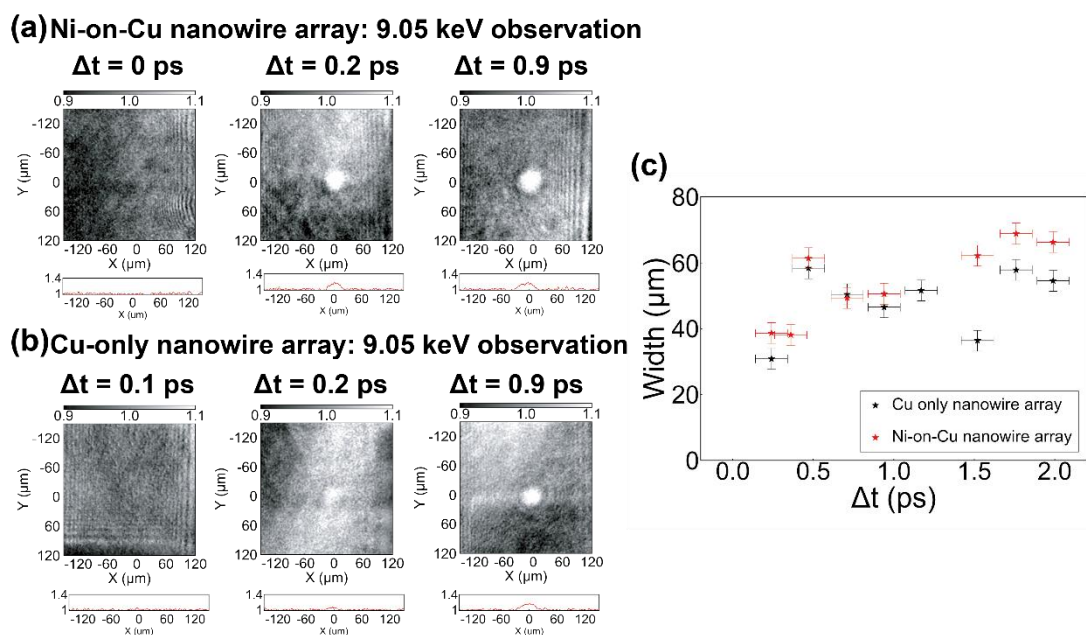


図 5.19 光子エネルギー9.05 keV で観察を行った(a) Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイ及び(b) Cu ナノワイヤーアレイの X 線透過度変化像と(c)それぞれの透過度変化領域の横幅の時間発展

双方のナノワイヤーアレイにおいて、0.2 ps の時間差が観測された。また、Ni ナノワイヤーアレイ層の観察とは異なり、Cu 単素材ナノワイヤーアレイ及び Ni-on-Cu 異素材組み合わせナノワイヤーアレイの Cu 基板でも透過度変化領域が拡大していく様子が観測された。この結果、密度差が大きいターゲットでは高密度側の変化が強く観測されてしまい、Cu ナノワイヤーアレイにおける透過度変化が高密度の基板側での透過度変化にかき消されてしまうことを示している。

5.6 まとめ

本章では筆者が理化学研究所の X 線自由電子レーザー施設 SACLA にて行った、レーザ

一照射ターゲットにおける超高速時空間化分解計測の結果を述べた。実験ではXFELと超強度レーザーを用いたポンプ・プローブ計測をレーザー照射ターゲットにおいて実施した。

実験では、まずX線の透過度較正をCu平板と3種類のCuナノワイヤーアレイに実施した。平板の結果はCXROの文献値とよく一致しており較正手法の妥当性を示せた。一方でナノワイヤーアレイではX線の吸収では説明できないX線透過光強度の減衰が観測された。その原因はナノワイヤーにおける入射X線の散乱であり、この影響を規格化表面積によって評価しナノワイヤーアレイとX線が作用する面積が増大するにしたがってX線の透過光強度が減衰することを示した。次に、レーザー照射に伴うナノワイヤーの形状変化を実験的に評価した。実験結果より、ナノワイヤーはレーザー照射から5 psまではその形状を保ち、10 ps時点で形状変化を始める様子が観測できた。

以上の評価を終えたのちに、レーザー照射ターゲットのX線透過度変化を観測した。まずナノワイヤーアレイとの比較のために、10 μm 厚の平板ターゲットにおけるデータセットを取得した。平板ターゲットでは高速電子の広がりによって、加熱領域が拡大していく様子が観測された。また、光子エネルギーを複数用いた計測により平板の電子温度は、18.2~25.8 eVと評価された。一方でナノワイヤーアレイについてはCu単素材ナノワイヤーアレイを用いた計測から、ナノワイヤーアレイのように密度差が大きいターゲットでは、高密度の部分の透過度変化の寄与が低密度部分の透過度変化の寄与をかき消してしまうことが分かった。

上記の対策として、ナノワイヤーアレイと基板部分を異なる素材で作ったNi-on-Cu異素材組み合わせナノワイヤーアレイを用いてこの問題を解決した。計測では、レーザー照射直後にナノワイヤーアレイにおける透過度減少が観測できた。この透過度の減少は電離の進展による $K\beta$ 線に対応する吸収であり、ナノワイヤーアレイにおいて高温のプラズマが形成されていたことを示す。観測された透過度の減少と原子核物理コードFLYCHKの計算結果を比較することで、ナノワイヤーアレイの最大電子温度の時間発展を求めた。ナノワイヤーアレイにおいて、①レーザーによる急速な加熱、②ナノワイヤーアレイの形状変化に起因する電子温度のさらなる上昇、③プラズマの膨張による冷却、といった一連のプロセスを観測した。②項のナノワイヤーアレイの形状変化のタイムスケールは前節で示したタイムスケールと一致しており、音速による見積もりともおおむね一致していた。さらに2D-PICシミュレーションにおいても、形状変化に伴う温度上昇が再現された。また、ナノワイヤーアレイにおいて形成されたプラズマのサイズは拡大することはなく、これはナノ

ワイヤーアレイ構造に起因するエネルギー散逸効果であり、第4章で予想した同効果を実験的に示すことに成功した。

Ni-on-Cu ナノワイヤーアレイにおいて、Cu 基板側に着目した観測も併せて実施した。Cu 基板の温度上昇はレーザー照射から 0.2 ps 遅れて発現した。これは高速電子が基板までに到達する時間を表す。また、ナノワイヤーアレイとは異なり、透過度の上昇のみを観測し、透過度変化領域の拡大の様子も観測した。これは Cu 単素材ナノワイヤーアレイときわめてよく似た挙動であり、Cu 単素材ナノワイヤーアレイにおいて高密度の基板側の透過度変化のみが観測されていたことを示す。

本章では、初めて行われたナノワイヤーアレイにおける時空間分解計測の結果を示した。この結果はナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収メカニズムの理解を深化させるのみではなく、今後のレーザー照射ナノワイヤーアレイを用いた応用展開を進めるうえでも重要な知見である。

参考文献

1. Nagel, S. R. et al. Two-dimensional time-resolved ultra-high speed imaging of K-alpha emission from short-pulse-laser interactions to observe electron recirculation. *Appl Phys Lett* 110, 144102 (2017).
2. Humphries, O. S. et al. Time evolution of transient plasma states from nanowire arrays irradiated at relativistic intensities. *Commun Phys* 3, (2020).
3. Dulat, A. et al. Femtosecond dynamics on the nanoscale of intense laser-induced grating plasma. *Phys Plasmas* 31, 070707 (2024).
4. Sawada, H. et al. Ultrafast time-resolved 2D imaging of laser-driven fast electron transport in solid density matter using an x-ray free electron laser. *Review of Scientific Instruments* 94, (2023).
5. Sawada, H. et al. Spatiotemporal dynamics of fast electron heating in solid-density matter via XFEL. *Nature Communications* 15, (2024).
6. Emma, P. et al. Femtosecond and Subfemtosecond X-Ray Pulses from a Self-Amplified Spontaneous-Emission--Based Free-Electron Laser. *Phys Rev Lett* 92, 74801 (2004).
7. Tono, K. et al. Beamline, experimental stations and photon beam diagnostics for the hard x-ray free electron laser of SACLA. *New J Phys* 15, (2013).
8. Yabuuchi, T. et al. An experimental platform using high-power, high-intensity optical lasers with the hard X-ray free-electron laser at SACLA. *J Synchrotron Radiat* 26, 585–594 (2019).
9. Kameshima, T. et al. Development of an X-ray imaging detector to resolve 200 nm line-and-space patterns by using transparent ceramics layers bonded by solid-state diffusion. *Opt Lett* 44, 1403 (2019).
10. Dorchies, F. et al. X-ray absorption K edge as a diagnostic of the electronic temperature in warm dense aluminum. *Phys Rev B Condens Matter Mater Phys* 92, (2015).
11. Hansen, S. B. et al. Fluorescence and absorption spectroscopy for warm dense matter studies and ICF plasma diagnostics. *Phys Plasmas* 25, (2018).
12. Chung, H. K., Chen, M. H., Morgan, W. L., Ralchenko, Y. & Lee, R. W. FLYCHK: Generalized population kinetics and spectral model for rapid spectroscopic analysis for all elements. *High Energy Density Phys* 1, 3–12 (2005).
13. Henke, B. L., Gullikson, E. M. & Davis, J. C. X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at $E = 50\text{--}30,000$ eV, $Z = 1\text{--}92$. *At Data Nucl Data*

- Tables 54, 181–342 (1993).
14. Ong, J. F., Zubarev, A., Berceanu, A. C., Cuzminschi, M. & Tesileanu, O. Nanowire implosion under laser amplified spontaneous emission pedestal irradiation. *Sci Rep* 13, (2023).
 15. Hollinger, R. et al. Efficient picosecond x-ray pulse generation from plasmas in the radiation dominated regime. *Optica* 4, 1344 (2017).
 16. Takabe, H. et al. Scalings of implosion experiments for high neutron yield. *Phys Fluids* 31, 2884–2893 (1988).
 17. Sentoku, Y., Cowan, T. E., Kemp, A. & Ruhl, H. High energy proton acceleration in interaction of short laser pulse with dense plasma target. *Phys Plasmas* 10, 2009–2015 (2003).
 18. Sawada, H. et al. Monochromatic 2D $K\alpha$ Emission Images Revealing Short-Pulse Laser Isochoric Heating Mechanism. *Phys Rev Lett* 122, (2019).
 19. Haines, M. G., A review of the dense Z-pinch. *Plasma Phys. Control. Fusion* 53 093001 (2011)
 20. Szymańska, E., Syrocki, Słabkowska, K., Polasik, M. & Rzakiewicz, J. The K x-ray line structures of the 3d-transition metals in warm dense plasma. *High Energy Density Phys* 20, 29–33 (2016).
 21. Sentoku, Y. & Kemp, A. J. Numerical methods for particle simulations at extreme densities and temperatures: Weighted particles, relativistic collisions and reduced currents. *J Comput Phys* 227, 6846–6861 (2008).

第6章 総括

本論文では、レーザー照射ナノワイヤーアレイ中のエネルギー吸収・輸送メカニズムを解明するために、ナノワイヤーアレイの作製技術の開発、ピコ秒超高強度レーザーを用いたレーザー照射実験、及び XFEL を用いた超高速時空間分解計測を実施した。以下に本論文の各章ごとで得られた結論をまとめた。

第1章では超高強度レーザーの出現から構造体ターゲット、特にナノワイヤーアレイが現在注目されている理由を述べ、同ターゲット内でのエネルギー吸収・輸送過程を調べる本研究の意義を述べた。

第2章では本研究の対象である、ナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収メカニズムとその理解に必要な物理機構を説明した。

第3章では、実験用の高品質ナノワイヤーアレイの作製手法について述べた。本研究では AAO をテンプレートとするナノワイヤーアレイ作製手法を採用した。まず、同手法の詳細をプロセスごとに説明した上で、ナノワイヤーアレイのパラメーター(直径・間隔・長さ・材質)の制御手法を述べた。直径と間隔は AAO の作製条件によって 40~400 nm、充填率 13~40%まで操作可能となった。また材質は Cu と Ni の2つを採用し、長さは電気めっき時間によってコントロールした。さらに、作製したナノワイヤーアレイの特性評価を通じてナノワイヤーアレイの大部分は単結晶であり、欠陥や不純物が少ないことが示せた。

第4章でピコ秒超高強度レーザーを用いてナノワイヤーアレイへのレーザー照射の実験的研究について記した。本章ではレーザー照射による自発光 X 線と高速電子スペクトル及び PIC シミュレーションの結果を用いて議論した。自発光 X 線計測から、ナノワイヤーアレイは平板よりも多くの箇所が高い電離度にあったことが観測された。また、電子のスペクトルから、ナノワイヤーアレイ前面から放出された高速電子数は平板よりも増加していた。一方でターゲット裏面から抜けて出てきた電子はナノワイヤーアレイと平板とで同程度であった。実験結果の定性的な解釈のために2次元 PIC シミュレーションによる解析を行った。ナノワイヤーアレイではその構造のために、表面電流の抑制と磁場による電子の捕捉がエネルギーの散逸を抑制されることがわかった。

第5章では、理化学研究所のX線自由電子レーザー施設 SACLA で行った超高速時空間分解計測の実験的研究の成果について記した。実験ではパルス幅 30 fs の超高強度レーザーをナノワイヤーアレイおよび 10 μm 厚銅平板ターゲットに照射し、遅延時間 Δt をおいて XFEL を照射し、X線シャドウグラフを撮像した。まず、シャドウグラフのX線透過度の較正を行ったうえで、超高強度レーザー照射実験を実施した。次にレーザー照射によるナノワイヤーアレイの形状変化に着目した計測を行った。その結果、ナノワイヤーアレイはレーザー照射から 5 ps まではその構造を大きく損なわないことを示した。温度変化によるX線の透過度変化を Cu 単素材ナノワイヤーアレイに対して実施したが、高密度の基板の影響で低密度のナノワイヤーアレイにおける温度変化の観測は十分にできなかった。密度差による問題を解決するために、Ni-on-Cu 異素材組み合わせナノワイヤーアレイを用いて、ナノワイヤーアレイおよび基板での温度変化を個別に評価した。Ni ナノワイヤーアレイでは、電離によるX線透過度の減少がレーザー照射直後から観測された。透過度の減少と FLYCHK の計算結果を比較することで、電子温度の時間発展を求め、ナノワイヤーアレイにおける加熱プロセスを明らかにした。さらにナノワイヤーアレイに形成されたプラズマが空間的に拡大しない様子を明らかにし、第4章で示したエネルギー散逸抑制効果を実験的に示した。

本研究から、ナノワイヤーアレイのエネルギー吸収・輸送過程はレーザーと相互作用する比表面積の増大以外にも、構造によるエネルギー散逸抑制効果及び形状変化に起因する電子温度のさらなる上昇が重要な役割を果たしていることが分かった。本研究でのレーザー照射実験に用いたナノワイヤーアレイはいずれも1種類の空間パラメーターのみである。今後の展望としては、第3章で構築したナノワイヤーアレイ作製手法を活用した、空間パラメーターごとのエネルギー吸収特性を調べていき、高エネルギー密度状態形成に最適なナノワイヤーアレイの空間パラメーターを見出す必要がある。また、本研究で扱ったナノワイヤーアレイにはランダムに配列しているものであるが、配列に整列性を持たせることでレーザー光がナノワイヤーアレイの根元奥深くまで浸透することが期待できる。今後はより積極的に構造を制御するナノワイヤーアレイの作製手法も必要である。本研究成果が今後のレーザー照射ナノワイヤーアレイ中でのエネルギー輸送の理解の一助となり、ひいては構造体ターゲットを用いた高エネルギー密度物理学の発展に少しでも寄与するものとなれば幸いである。

謝辞

まず、本研究を進める上で多大なるご指導・ご鞭撻をいただきました重森啓介教授に深甚なる感謝の意を表します。大型レーザー施設での実験、国内・国際学会での多数の発表、原著論文の執筆など多くの得難い機会を重森先生のもとで経験することができました。

本論文をまとめるにあたりご指導賜りました大石佑治教授、山ノ井航平准教授に深謝申し上げます。両先生からは本論文の執筆にあたって多数のご助言をいただきました。

続いて、ネバダ大学リノ校の澤田寛准教授に深く感謝申し上げます。澤田先生からは SACLA での実験結果の議論やデータ解析について多くの知見をご共有いただきました。

高輝度光科学研究センターの簗内俊毅主席研究員、犬伏雄一主幹研究員、及び理化学研究所放射光科学研究センターの宮西宏併研究員、末田敬一研究員(現 Ex-Fusion 社所属)に感謝申し上げます。XFEL や超高強度レーザーのオペレーションから、実験結果のディスカッションまで多岐にわたるご協力をいただきました。

レーザー技術総合研究所の染川智弘主任研究員に感謝申し上げます。ナノワイヤーアレイの加工に用いたフェムト秒レーザーの使い方を教えていただき、同設備を使用させていただきました。

関西大学大学院理工学研究科の新宮原正三教授、清水智弘教授に深く感謝申し上げます。両先生からはナノワイヤーアレイ作製手法につきまして、詳細なノウハウの伝授、作製手法改良の議論を行っていただき、特性評価では TEM も使用させていただきました。

大阪大学レーザー科学研究所の千徳靖彦教授に心から感謝申し上げます。千徳先生には PICLS を用いた計算およびその結果をもとに議論させていただきました。

本研究を行うにあたって素晴らしい研究環境をご用意いただきましたレーザー科学研究所の兒玉了祐所長に感謝申し上げます。

レーザー科学研究所の LFEX 班、P 班、T 班の皆様に感謝申し上げます。LFEX 班の皆様には LFEX レーザーのオペレーション、P 班の皆様にはプラズマ計測に関してご協力いただきました。T 班の皆様には、ご所有の超臨界乾燥機などの諸設備や実験スペースをお貸しいただき、またターゲット組み立てに関するアドバイスもいただきました。

前期課程在学時には弘中陽一郎特任准教授(現 Ex-Fusion 社所属)に実験結果に関して議論いただきました。深く感謝申し上げます。

亀山亜矢子様には本研究の遂行に当たって多くの事務的な手続きから日々の研究生活に

わたって非常に多くの面でサポートいただきました。深く感謝申し上げます。

大学院生活の多くを共にした研究室の学生、川崎昂輝博士、張佳琪博士、前田優斗様、玉川拓実様、池田智一様、伊藤嘉亮様、井手坂朋幸様、中辻千陽様、山田龍弥様、松浦壮太様、海老澤栄吾様、佐藤匠様、西井一朗様、本多拓也様、Rodrigo Romero Mondragon様、武島佳輝様、磯谷匠様、市瀬大輔様、上村守礼様、波多野直人様、堀本駿様、菅沼友音様に深く感謝申し上げます。

大学院生活を送るにあたって、音楽を通じて私生活を豊かなものにしてくれました合唱団(CancaoNova, Man de rart, 大阪大学男声合唱団)の皆様に感謝申し上げます。

最後に博士後期課程在学中に心身ともに支えてくださった家族に深く感謝を申し上げて結びの言葉とさせていただきます。

本研究は以下の支援を受けて実施されました。本研究は大阪大学レーザー科学研究所の共同研究(No. 2025B2-016SAWADA, 2024B2-019SAWADA, and 2023B2-018SAWADA)のもとで実施された。本研究は科研費(No. 23KJ1526, 17H02996)の支援のもとで実施された。本研究は National Science Foundation (No. 2010502) の支援のもとで実施された。LFEX での実験は大阪大学レーザー科学研究所の共同研究の枠組みで実施された(2019A-SHIGEMORI2018)。XFEL での実験は SACLA BL2 にて実施された (No. 2024A8013 and 2023A8015, 2023A8018, and 2021B8070)。筆者は SACLA 大学院生研究支援プログラムにサポートを受けていた。本研究の一部は JST SPRING (No. JPMJSP2138)の支援のもとで実施された。

本研究の実施にあたって次の財団より経済的な支援をいただきました。この場をお借りして深く感謝申し上げます。新日本奨学会(FY2021～2022)、天野工業財団(FY2023～2025)。

業績目録

主要論文 3 報

1. **D. Tanaka**, Y. Maeda, Y. Hironaka, K. Kawasaki, N. Higashi, N. Iwata, Y. Sentoku, R. Kodama, N. Ozaki, T. Somekawa, S. Shingubara, T. Shimizu, H. Sawada, and K. Shigemori, “Ultrahigh-energy density state in nanowire arrays irradiated with picosecond kilojoule-class ultra-intense laser”, AIP Advances 13, 125118 (2023)
2. **D. Tanaka**, H. Sawada, T. Idesaka, C. Nakatsuji, S. Matsuura, T. Sato, T. Somekawa, T. Yabuuchi, K. Miyanishi, K. Sueda, Y. Inubushi, Y. Sentoku, T. Shimizu, S. Shingubara, K. Kawasaki, N. Ozaki, K. Yamanoi, and K. Shigemori, “Experimental investigation on nanowire array irradiated with ultrahigh intensity laser at x-ray free electron laser facility SACLA: Fabrication of nanowire array target and its application to ultrafast time-resolved measurements”, J. Appl. Phys. 137, 125901 (2025)
3. **D. Tanaka**, H. Sawada, C. Nakatsuji, S. Matsuura, T. Idesaka, T. Sato, T. Honda, I. Nishii, S. Horimoto, Y. Takeshima, T. Somekawa, T. Yabuuchi, K. Miyanishi, K. Sueda, Y. Inubushi, Y. Sentoku, T. Shimizu, S. Shingubara, N. Ozaki, K. Yamanoi, and K. Shigemori, “Ultrafast plasma dynamics in laser-irradiated nanowire arrays probed with an X-ray free-electron laser”, Sci Rep (submitted)

その他の学術論文

4. K. Kawasaki, Y. Hironaka, Y. Maeda, T. Iwasaki, **D. Tanaka**, K. Miyanishi, H. Nagatomo, S. Fujioka, N. Ozaki, R. Kodama, T. Matsuoka, D. Batani, J. Trela, Ph. Nicolai, K. Shigemori, “The role of hot electrons on ultrahigh pressure generation relevant to shock ignition conditions”, High Energy Density Phys 37, 100892 (2020).
5. K. Kawasaki, **D. Tanaka**, H. Yamada, S. Ohmagari, Y. Mokuno, A. Chayahara, T. Tamagawa, Y. Hironaka, K. Yamanoi, M. Tsukamoto, Y. Sato, T. Somekawa, H. Nagatomo, K. Mima, K. Shigemori, “Direct-drive implosion experiment of diamond capsules fabricated with hot filament chemical vapor deposition technique”, Phys. Plasmas 28, 104501 (2021)
6. T. Tamagawa, Y. Hironaka, K. Kawasaki, **D. Tanaka**, T. Idesaka, N. Ozaki, R. Kodama, R. Takizawa, S. Fujioka, A. Yogo, D. Batani, Ph. Nicolai, G. Cristoforetti, P. Koester, L. A. Gizzi, K. Shigemori, “Development of an experimental platform for the investigation of laser-plasma interaction in conditions relevant to shock ignition regime”, Rev. Sci. Instrum.

- 93, 063505 (2022)
7. K. Kawasaki, G. Cristoforetti, T. Idesaka, Y. Hironaka, **D. Tanaka**, D. Batani, S. Fujioka, L.A. Gizzi, M. Hata, T. Johzaki, K. Katagiri, R. Kodama, S. Matsuo, H. Nagatomo, Ph. Nicolai, N. Ozaki, Y. Sentoku, R. Takizawa, A. Yogo, H. Yamada, and K. Shigemori, “Effects of hydrogen concentration in ablator material on stimulated Raman scattering, two-plasmon decay, and hot electrons for direct-drive inertial confinement fusion”, *Phys. Rev. Research* 5, 033051, (2023)
 8. G. Cristoforetti, P. Koester, S. Atzeni, D. Batani, S. Fujioka, Y. Hironaka, S. Hüller, T. Idesaka, K. Katagiri, K. Kawasaki, R. Kodama, D. Mancelli, Ph. Nicolai, N. Ozaki, A. Schiavi, K. Shigemori, R. Takizawa, T. Tamagawa, **D. Tanaka**, A. Tentori, Y. Umeda, A. Yogo, and L.A. Gizzi, “Multibeam Laser Plasma Interaction at Gekko XII laser facility in conditions relevant for Direct-Drive Inertial Confinement Fusion”, *High Power Laser Science and Engineering* 11, e24 (2023).
 9. K. Kawasaki, H. Yamada, H. Nagatomo, Y. Hironaka, K. Yamanoi, **D. Tanaka**, T. Idesaka, Y. Mokuno, A. Chayahara, T. Shimaoka, K. Mima, T. Somekawa, M. Tsukamoto, Y. Sato, A. Iwamoto, K. Shigemori, “Fabrication of nanocrystalline diamond capsules by hot-filament chemical vapor deposition for direct-drive inertial confinement fusion experiments”, *Diam Relat Mater* 135, 109896 (2023).
 10. C. Nakatsuji, K. Kawasaki, T. Idesaka, **D. Tanaka**, T. Sato, H. Nagatomo, Y. Sentoku, Y. Takagi, G. Cristoforetti, D. Batani, Ph. Nicolaï, N. Ozaki, A. Yogo, S. Fujioka, K. Shigemori, “Experimental investigation of the density-scale-length effects on laser–plasma instabilities toward the shock-ignition scheme in direct-drive inertial-confinement fusion”, *Phys. Plasmas* 32, 052710 (2025)
 11. H. Daido, T. Hirose, **D. Tanaka**, T. Sato, and K. Shigemori, “Characterization of a line-shaped molten iron pool produced by a line-focused single-mode CW laser with a prism technique”, *J. Laser Appl.* 37, 022015 (2025).
 12. C. Nakatsuji, Y. Takagi, G. Cristoforetti, S. Matsuura, T. Honda, **D. Tanaka**, D. Batani, T. Sato, S. Horimoto, H. Nagatomo, Y. Sentoku, Ph. D. Nicolaï, K. Taketoshi, N. Yamagata, N. Ozaki, A. Yogo, S. Fujioka, and K. Shigemori, “Differential sensitivity of stimulated Raman scattering and two-plasmon decay to spatial beam coherence and plasma scale length”, *Phys. Rev. E*, (in submission)

国内会議における発表

1. 田中大裕, 前田優斗, 弘中陽一郎, 川崎昂輝, 玉川拓実, 坂和洋一, 太田雅人, 江頭俊輔, 兒玉了祐, 尾崎典雅, 染川智弘, 宮西宏併, 末田敬一, 簀内俊毅, 犬伏雄一, 富樫格, 新宮原正三, 清水智弘, 佐々木涼, 重森啓介, 「超高エネルギー密度状態生成のためのナノワイヤーアレイ試料の開発」、第 38 回 プラズマ・核融合学会 年会 オンラインポスター発表 2021 年 11 月
2. 田中大裕, 澤田寛, 川崎昂輝, 井手坂朋幸, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 重森啓介, 「超高エネルギー密度状態下におけるナノワイヤーアレイ内でのエネルギー輸送に関する研究」、OPTO2022 オンラインポスター発表 2022 年 6 月
3. 田中大裕, 澤田寛, 川崎昂輝, 井手坂朋幸, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 重森啓介, 「超高エネルギー密度状態下におけるナノワイヤーアレイ内でのエネルギー輸送に関する研究」、第 14 回核融合エネルギー連合講演会、オンライン、ポスター発表、2022 年 7 月
4. 田中大裕, 澤田寛, 川崎昂輝, 井手坂朋幸, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 重森啓介, 「超高エネルギー密度状態下におけるナノワイヤーアレイ内でのエネルギー輸送に関する研究」、日本物理学会第 77 回秋季大会、東京工業大学大岡山キャンパス、口頭発表、2022 年 9 月
5. 田中大裕, 澤田寛, 川崎昂輝, 井手坂朋幸, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 重森啓介, 「超高エネルギー密度状態下におけるナノワイヤーアレイ内でのエネルギー輸送に関する研究」、レーザー学会第 43 回年次大会、ウインクあいち、口頭発表、2023 年 1 月
6. 田中大裕, 澤田寛, 川崎昂輝, 井手坂朋幸, 海老澤栄吾, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 末田敬一, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「X 線自由電子レーザー-SACLA を用いた超高エネルギー密度状態下におけるナノワイヤーアレイ内でのエネルギー輸送に関する研究」、レーザー学会第 44 回年次大会、日本科学未来館、口頭発表、2024 年 1 月
7. 田中大裕, 澤田寛, 川崎昂輝, 井手坂朋幸, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 重森啓介, 「Study on energy transport in nanowire arrays under ultra-high energy density states with X-ray Free Electron Laser, SACLA」、SACLA Users' Meeting 2024、SACLA Experimental Building、ポスター発表、2024 年 3 月

8. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「X 線自由電子レーザーSACLA を用いた超高強度レーザー照射ナノワイヤーアレイ中のエネルギー輸送に関する評価」、第 41 回プラズマ・核融合学会 年会、タワーホール船堀、口頭発表、2024 年 11 月
9. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「超高速 X 線シャドウグラフによるナノワイヤーアレイのプラズマダイナミクス計測」 レーザー学会学術講演会第 45 回年次大会、広島国際会議場、口頭発表、2025 年 1 月
10. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「Measurement of plasma dynamics in the laser-irradiated nanowire array via ultrafast time-resolved x-ray shadowgraph」、SACLA Users' Meeting 2025、SACLA Experimental Building、ポスター発表、2025 年 3 月
11. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「超高速 X 線シャドウグラフによるナノワイヤーアレイのプラズマダイナミクス計測」、日本物理学会 2025 年春季大会、オンライン、口頭発表、2025 年 3 月
12. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「超高強度レーザー照射実験用ナノワイヤーアレイの作成手法開発とそのレーザー照射実験への適用」 2025 年度応用物理学会関西支部第一回講演会、産業技術総合研究所関西センター、ポスター発表、2025 年 6 月
13. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介, 「Development of an XFEL platform for high-power laser-irradiated nanowire arrays」、光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2025 (OPTO2025) 大阪大学コンベンションセンター ポスター発表 2025 年 6 月
14. 田中大裕, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重

森啓介、「レーザー照射ナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収・輸送過程の超高速時間発展」、日本物理学会第 80 回年次大会、広島大学、東広島キャンパス、口頭発表、2025 年 9 月

15. **田中大裕**, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介、「レーザー照射ナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収・緩和過程の観測」、第 42 回 プラズマ・核融合学会 年会、京都工芸繊維大学、松ヶ崎キャンパス、口頭発表、2025 年 12 月
16. **田中大裕**, 澤田寛, 中辻千陽, 松浦壮汰, 佐藤匠, 西井一郎, 本多拓也, 堀本駿, 染川智弘, 簀内俊毅, 宮西宏併, 犬伏雄一, 千徳靖彦, 清水智弘, 新宮原正三, 山ノ井航平, 重森啓介、「超高速 X 線シャドウグラフを活用したレーザー照射ナノワイヤーアレイにおけるエネルギー吸収・緩和過程の観測」、レーザー学会学術講演会第 46 回年次大会、大阪南港 ATC O's 棟南館, 6 階会議室、口頭発表、2026 年 1 月（採録決定済み）

国際会議における発表

1. **D. Tanaka**, H. Sawada, K. Kawasaki, T. Idesaka, T. Somekawa, T. Yabuuchi, K. Miyamishi, Y. Sentoku, T. Shimizu, S. Shingubara, and K. Shigemori, “Study on energy transportation of nanowire array under ultra-high energy density state”, High Energy Density Science 2022 (HEDS2022), Pacifico Yokohama, Yokohama city, Japan, Poster, 2022,4
2. **D. Tanaka**, H. Sawada, K. Kawasaki, T. Idesaka, E. Ebisawa, C. Nakatsuji, S. Matsuura, T. Somekawa, T. Yabuuchi, K. Miyamishi, K. Sueda, Y. Inubushi, Y. Sentoku, T. Shimizu, S. Shingubara, K. Yamanoi, and K. Shigemori, “Study on energy transport in nanowire arrays under ultra-high energy density states with X-ray Free Electron Laser, SACLA”, International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications 2023 (IFSA2023) , Denver CO, USA, Oral, 2023,9
3. **D. Tanaka**, H. Sawada, K. Kawasaki, T. Somekawa, T. Yabuuchi, K. Miyamishi, K. Sueda, Y. Inubushi, T. Shimizu, S. Shingubara, K. Yamanoi, and K. Shigemori, “Study on energy transport in laser-irradiated nanowire arrays for creating ultra-high energy density states with X-ray Free Electron Laser, SACLA”, International Conference on High Energy Density Laboratory Astrophysics 2024 (HEDLA 2024) , Tallahassee, FL, USA, Oral, 2024,5

受賞歴

1. 第14回核融合エネルギー連合講演会若手優秀発表賞
2. レーザー科学研究所年末報告会 M2 ベストポスター賞
3. 大阪大学工業会 工業会賞
4. 2022年度 修士論文審査会優秀プレゼンテーション賞
5. プラズマ・核融合学会 第38回年会 若手学会発表賞（学生会員部門）
6. 日本原子力学会フェロー賞

付録 A 陽極酸化アルミニウムの形成過程の詳細

A.1 はじめに

第3章でも述べた通り、陽極酸化アルミニウム（Anodic aluminum oxide, AAO）を用いたナノワイヤーアレイ作製手法においては、ナノワイヤーアレイの空間パラメーターの内、直径と間隔が陽極酸化アルミニウムの合成条件で決定される。そのため、AAOの合成条件の拡充は実験で使用可能なナノワイヤーアレイの空間パラメーターの拡張と同義であり非常に重要である。本章では、AAO形成のメカニズムとパラメーターの特性をまとめた。

A.2 陽極酸化アルミニウムとその形成過程と特性

AAOはアルミニウム表面で陽極酸化処理を行うことで形成される酸化アルミニウム（アルミナ）の被膜である¹。この陽極酸化（Anodization）と呼ばれる処理は1857年にBuffにより初めて発見された²。Buffは水溶液中のアルミニウムに電気化学的に酸化処理をすることで、自然酸化膜以上の厚みを有する酸化膜が形成されることを発見した。この時の酸化処理は陽極側で行われることになるため、陽極酸化と呼ばれるようになった。

本論文で用いるAAOはナノサイズの穴（ナノホール）を有しているものであるが、陽極酸化の条件によっては穴が開いていないアルミナが形成される¹。この2者の差異は陽極酸化を行う溶液の違いによって生まれる。中性の溶液中で陽極酸化された場合、ナノホールが開いていないAAOが形成される。一方で酸性溶液中において陽極酸化を行った場合はナノホールを有するAAOが形成される。この違いは酸化アルミニウムが溶液中に解けるかどうか起因する。図A.1にナノポア構造形成の模式図を示す。

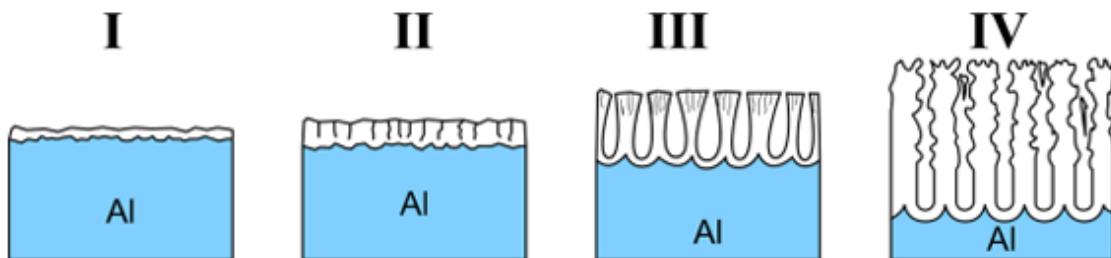


図 A.1 ナノホール形成の概念図¹

まず、アルミニウム上に薄い酸化アルミニウムの被膜が形成される。この被膜の体積膨張に伴い微小なクラックが被膜上に形成される。このクラックの底部には電場が集中するため、酸化アルミニウムが成長すると同時に、底部の陽極酸化アルミニウムが酸性溶液中に溶解していく。結果として、アルミニウム基板側に向かってホールが成長していき、ナノホール型の AAO が形成される。

また、このときのクラックの配列は印加する電圧によって変わることが知られている。これは、成長時の応力のバランスによって各ホールの配列が決定するため、印加する電圧が大きければ大きいほど大きなホールが形成される。なお、電圧と試薬には適した組み合わせがあることが実験的に検証されている¹。また、AAO の底部には薄いバリア層が存在している。このバリア層の厚みは印加する電圧により決定され、例えば 1.2 nm/V のスケーリングが報告されている¹。

A.3 ナノホール配置のコントロール

前節において述べた通りナノホールの配列は初期のクラックによる。この配列は応力が自然に釣り合うことによる自己組織化によって決定される。そのため、ホールの直径と間隔は独立に動かすことができず、またその配置も周期的なものではなかった。ホールの直径のみを操作する手法として、ワイドニング工程を本論文では採用した。ワイドニングではバリア層除去後も AAO リン酸溶液に着けることでホール径を拡大できる。一方で、この手法では直径のみが増加するため高充填率のナノワイヤーアレイしか得られないという課題があった。そこで、人為的に初期配列を与えて配列を制御する手法が存在する。例えば、柳下らは周期的な凸部構造を有するニッケル製のモールドによって、アルミニウムにパターンを施すことで周期的な配列を可能にしている³。また、Lai らは樹脂製のスタンプによりホールの配列を操作する手法を開発した⁴。このような手法を通じてナノワイヤーアレイの空間パラメーターは積極的に制御できる可能性があり、今後のパラメーター開拓の参考とされるべきである。

参考文献

1. AAO のレビュー論文として、例えば Lee, W. & Park, S. J. Porous anodic aluminum oxide: Anodization and templated synthesis of functional nanostructures. Chemical Reviews vol. 114 7487–7556
2. Buff, H. Liebigs Ann. Chem. 3, 265, (1857).
3. Yanagishita, T. Kato, A & Masuda, H. Preparation of ideally ordered through-hole anodic porous alumina membranes by two-layer anodization. Japanese Journal of Applied Physics Vol.56 035202, (2017)
4. Lai, KL., Hon, MH. & Leu, IC. Fabrication of ordered nanoporous anodic alumina prepatterned by mold-assisted chemical etching. Nanoscale Res Lett 6, 157 (2011)

付録 B FLYCHK コード

B.1 はじめに

第 5 章で用いた FLYCHK コードは高エネルギー密度科学で広く用いられている計算コードである。本付録ではこの FLYCHK コードの説明とその使用方法について記す。

B.2 FLYCHK についてとその特徴

FLYCHK は H.K Chung らにより作成された衝突輻射 (Collisional-Radiative, CR) モデルを使用した原子核物理計算コードである^{1,2}。FLYCHK は登録を行えばだれでも使える Web ベースの計算コードである。FLYCHK は点光源を仮定しており、原子番号や電子温度などの情報を入力すると、原子の電離状態や発光 X 線スペクトルを出力する。FLYCHK では、いくつかの過程を置くことで、計算負荷を抑えて計算を行えるようになっている³。

FLYCHK では、Super configuration モデルと呼ばれる、電子軌道の順位のうち主量子数 n (K,M,L 殻) のみを考慮しているものを用いている。また、計算対象のプラズマも弱結合を想定されている。そのため、低温高密度の Warm dense matter などの実験結果 (本論文では第 5 章におけるレーザー照射銅平板などが当たる) との比較には FLYCHK の計算結果の正確性は高くない。そのため、FLYCHK モデルが適用できるかの検討を常に行う必要がある。適用可能性を考える例として、第 5 章の実験結果 (Cu 平板と Ni ナノワイヤーアレイ) をもとに考える。プラズマの結合パラメーターを $\Gamma_e = (4\pi n_e/3)^{1/3} e^2 / k_B T_e$ とし、縮退度を $\Theta = k_B T_e / k_B T_F$ とする。以下の表 B.1 に第 5 章の実験結果から評価された電子温度から計算された各パラメーターをまとめた。計算にあたって用いた密度に関して、Cu 平板は 8.96 g/cc、Ni ナノワイヤーアレイは 1.16 g/cc の値を使用している。

表 B.1 レーザー照射ターゲットの結合パラメーターと縮退度の比較

	T_e (eV)	Γ_e (-)	Θ (-)
Cu 平板	18.2~25.8	1.28~1.22	0.36~0.38
Ni ナノワイヤーアレイ	120~145	0.31~0.33	6.2~6.7

表 B.1 に示す通り、Cu 平板は強結合の指標である $\Gamma_e = 1$ を超えており、縮退度も 1 を切っ

ている。そのため、FLYCHK の計算に用いられている仮定とずれており、実験結果の評価に用いることは難しい。一方でナノワイヤーアレイは弱結合かつ非縮退状態であるため、FLYCHK との比較に用いることが可能となっている。

B.3 FLYCHK の使用方法

本節では FLYCHK の使用方法を記す。Web サイトからログイン後に図 B.1 のようなページに遷移する。各パラメーターについては B.1 中に説明を記すが、それぞれの値を入力して、Run を押すと計算が開始され結果が出力される。エラーがなければ数秒ほどで計算が終わり、FLYSPEC に移ることができる。

The screenshot shows the FLYCHK web interface. On the left is a sidebar with a green background containing navigation links: 'Runfile Input', 'Parameter Input', 'Grid', 'History', 'Results', and 'Previous'. The main content area has a white background with various input fields and buttons. At the top, there's a header with the FLYCHK logo and 'Atomic Physics Division' and 'NIST V Division' logos. Below the header, there's a section for 'User: dtanaka'. The main input area is divided into several sections: 'Title of this run: Example_Ni13%' with a '計算のタイトル' label and 'Run FLYCHK' and 'Clear' buttons; 'Diagnostics output: ☐'; 'Nuclear Charge' with a dropdown set to '28' and '原子番号 Z'; 'Initial Condition' with a dropdown set to 'Non-LTE Steady State' and an 'upload file' button; 'System Evolution' with a dropdown set to 'Non-LTE Steady State' and a label 'LTEかNon-LTEかの選択'; 'Electron Temperature [eV] (max 10 values)' with 'Initial: 120', 'Final: 150', and 'Increment: 5' fields, and a label 'Initial eV~Final eV までIncrement eV 間隔で計算を行う'; 'Density Type' with a dropdown set to 'Mass' and '(max 10 values)' label, and 'Initial: 1.16', 'Final: ' fields, and a label '密度の種類、電子密度、イオン密度、密度'; 'Mixture' with 'Zmix:', 'Percent:', and 'Znum:' fields; 'Opacity' with 'Size (cm): 0.0003' and 'プラズマのサイズ(長さ)' label; 'Ion T_i [eV]' with 'T_i/T_e: ' and 'Fixed T_i: ' fields; '2nd T_e [eV]' with '2nd T_e: 3000000' and 'Fraction: 0.01' fields; 'Radiation T_r [eV]' with 'T_{rad}: ' and 'Dilution: ' fields; 'Radiation Field' with a file selection button; and 'EEDF' with a file selection button. At the bottom right, there's a label '高速電子のスロープ温度と、高速電子の含まれる割合' and 'Or history file: ☐'. At the bottom center, there's a '計算実行' label and 'Run FLYCHK' and 'Clear' buttons.

図 B.1 FLYCHK の計算条件入力画面。なお、これは Grid モードでの入力であるが、時間変化を持たせる History モードがある。また、Runfile Input からは計算条件を入力したテキストファイルをアップロードすることによっても計算可能である。

図 B.2 に FLYSPEC への遷移画面を示す。FLYSPEC では FLYCHK の計算結果を用いて、原子核の平均電離度や放出される X 線スペクトル、X 線透過度の計算に必要な光学的深さなどのパラメーターが出力される。例えば、平均電離度は General plot の Select output parameter より Mean ion charge を選択し、表示する x 軸に電子温度を選択すると、各電子温度における平均電離度が出力される。また X 線スペクトルは Spectra for specific E/λ ranges

の Intensity より確認することができる。なお、特性 X 線を FLYCHK の計算で観測するためには計算の初期条件に高速電子を含む必要がある（つまり、2nd T_e の値が必要）。また X 線透過度は同じく Spectra for specific E/ λ ranges の Optical Depth、光学的深さ l より計算される。透過度 T は $T=e^{-l}$ より求めることができるため、電子温度ごとの X 線透過度を計算することができる。

Input and output files ?		View files
General Plots ?	Select output parameter ▼	Select x-axis ▼
	Go to plots	
	Ionization Distribution	Go to plots
Spectra Synthesis ?	Spectra for specific E/ λ ranges	Go to spectra
	Approximate total emissivities of bound-bound transitions	Go to spectra

図 B.2 FLYSPEC の画面

以上を含めた FLYSPEC の計算結果は zip 形式でダウンロード可能であり、それを用いてデータ解析を行う。さらなる詳細や実験条件への適用例は公式のマニュアルや Web サイト上の計算結果例を参照してほしい。

参考文献

1. Chung, H. K., Chen, M. H., Morgan, W. L., Ralchenko, Y. & Lee, R. W. FLYCHK: Generalized population kinetics and spectral model for rapid spectroscopic analysis for all elements. High Energy Density Phys. 1, 3–12 (2005).
2. FLYCHK Website, (2025 年 12 月アクセス), <http://fnlte.nist.gov/FLY/>
3. Ralchenko, Y. Modern Methods in Collisional-Radiative Modeling of Plasmas. Springer (2016)

付録 C SACLA での超高強度レーザー照射実験の流れ

C.1 はじめに

本節では SACLA 施設における実験の流れについてまとめる。超高強度レーザー照射実験全般に言えるが、事前準備が最も重要である。本付録では、SACLA 実験の流れを時系列順にまとめた。今後の実験実施の参考としてほしい。

C.2 実験まで

ビームタイム採択後に施設側スタッフと打ち合わせを行い、計測関係（XFEL のパラメーターや計測器の種類、超高強度レーザー諸元など）を打合せする。当然、要望をリクエストしていないものを実験中に使用することはできないので注意する必要がある。この段階でどのような計測を行うかの情報をまとめて、それが可能かを施設側と協議する必要がある。なお、本実験では平行光を用いた X 線イメージングを用いたが、それとは別に Compound refractive lenses, CRL による高倍率計測も可能である¹。この場合は集光位置などを計算の上で施設側に伝える必要がある。

ターゲット準備に関して、SACLA ではターゲットホルダーの上にサンプルをマウントする必要がある。図 C.1 にターゲットホルダーとマウントしたターゲットの写真例を示す。レーザー照射ターゲットはカプトン土台に UV 硬化樹脂で固定されており、厚みが違うカプトンを組み合わせることで、下凸部が浮き上がる構造になっている。これは、ターゲットを直接カプトン土台に張り付けた際に、ターゲット背面へ UV 硬化樹脂が回り込んでしまうことを回避するためである。UV 硬化樹脂が裏面に回り込むとターゲットが 100 μm オーダーで浮き上がり、超高強度レーザーの集光位置がずれてしまうためである。なお、写真は 2024A 期までのホルダーであり、2025 年現在は新式のターゲットホルダーの使用が可能となっている²。ホルダーの構造は大きく変わらないため、計測手法を変えない限りターゲットの組み立て方式に特段の変更は必要ないと思われる。

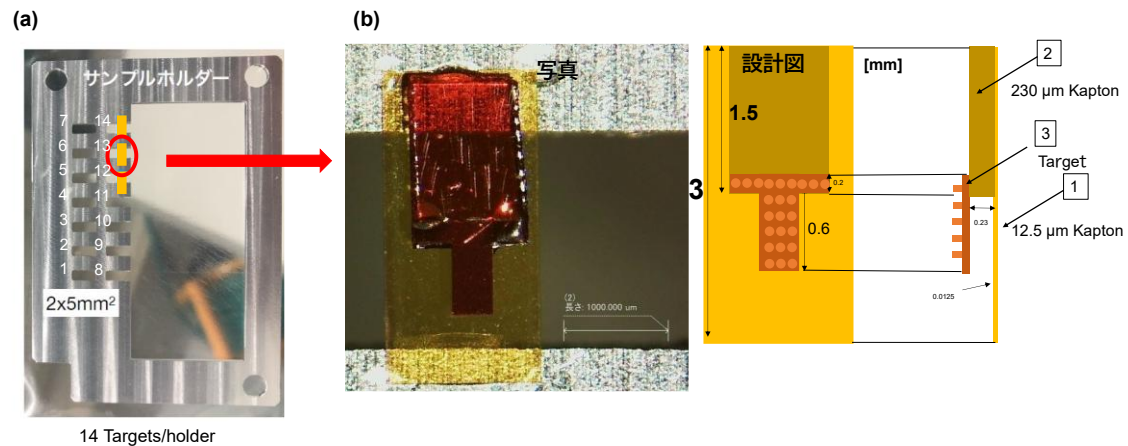


図 C.1 (a)ターゲットホルダーの外観と(b)ターゲットの組み立て例と設計図

C.3 実験中

ビームタイムの1～2日前に施設へ向かい、初日分のターゲットを引き渡す必要がある。その後はサンプルアライメントを行う必要がある。SACLA ではレーザー実験中にショットを円滑に行うために、ホルダーにマウントしたターゲットの座標を読みだしておく（サンプルアライメント）。サンプルアライメントはXFEL 側のカメラ（カメカメ）と500 TW のビームモニターの双方を用いて行う。図 C.2 にサンプルアライメント中の図を示す。ターゲットの x 及び y 座標を操作することでレーザーの集光位置（相互作用点）にターゲットを持っていき、その時の座標をメモする。このとき、カメラの視点の違いのためそれぞれのモニターでのターゲットの移動の向きが異なる点に注意する（GXII のターゲット設置と同じ）。これを翌日のレーザーショットで使用するターゲットすべてに行う。

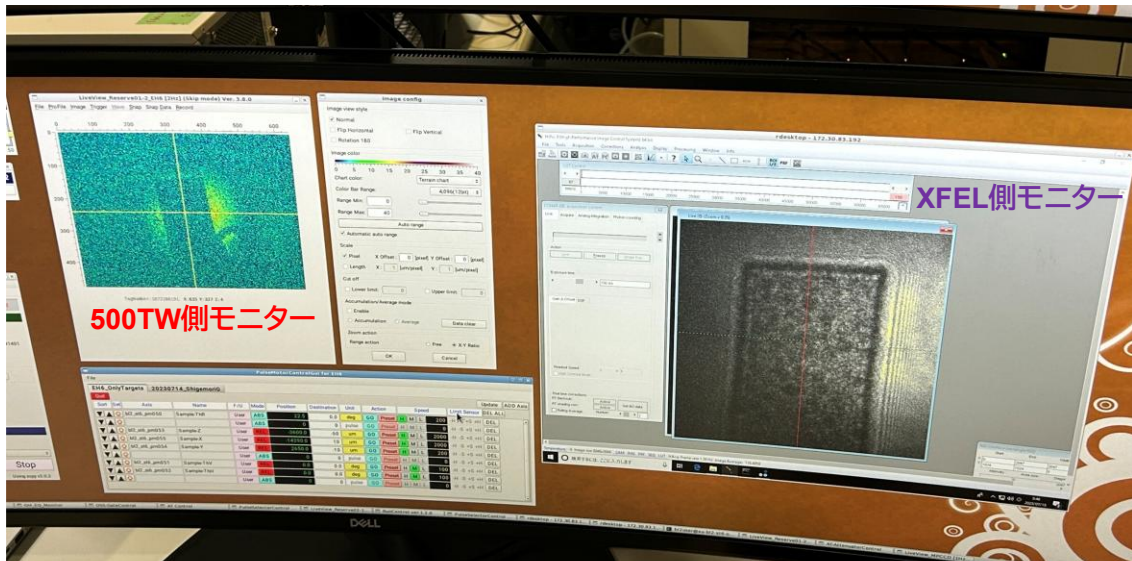


図 C.2 サンプルアライメント中のモニターの写真

次にレーザーショットについて記す。レーザーショットにあたっては、XFEL と 500 TW の時間差 Δt を決定する必要がある。施設側がその日の $\Delta t=0$ ps となる値を求めているため、その値を基準にディレイを決めていく。レーザーショットは PC からのコマンドを入力して行う。XFEL のみでシャドウグラフを撮像するときは、“xfel-only”を、XFEL と 500 TW を同時にショットする際には“joint”を入力すればよい。この時、500 TW のレーザーが問題なく出力可能かの確認が必要である（コマンドとは別の PC の表示を見ればよい）。ショット後はデータの保管とターゲットの移動を行う。ターゲットの移動はコマンドで行う。データの保管は X 線分光と電子スペクトルは Run 番号とともに自動で保存される。XFEL シャドウグラフと Cu-K α イメージャーの画像はショットごとに逐次保存する必要がある。実験データは SACLA の HPC サーバー上にあげられており、これらを自身の PC にダウンロードする必要がある。ショットのたびに手動ダウンロードするのでは時間がかかってしまうので、実験中に自動でダウンロードする体制を構築するとよい。例えば 2023 年度と 2024 年度は WIN-SCP を用いて自動的にクラウドにデータがアップロードされる体制を構築した。なお、X 線分光と電子スペクトルは.h5 ファイルで保存されているので注意してほしい。

参考文献

1. Maeda, Y. et al. Observation of ultra-high energy density state with x-ray free electron laser SACLA. High Energy Density Phys. 36, 100813 (2020).
2. Miyanishi, K & Yabuuchi, T, Platforms for XFEL experiments with high-power optical lasers, SACLA Users' Meeting 2025, (2025 年 12 月アクセス),
http://xfel.riken.jp/usersmeeting2025/pdf/Poster06_HighPowerLasers.pdf