

レーザー誘起周期的ナノ構造の形成機構に関するシミュレーション

坂上仁志



はじめに

物質表面に非常に強力なレーザーを照射すると、レーザーのエネルギーが物質に吸収されて、その表面はプラズマ化します。そのように強力で、かつ光が僅か0.01ミリメートルしか進まない程の100兆分の3秒という極短い時間のレーザーパルスで金属表面に何度も繰り返し照射すると、周期的で微細な構造が、種も仕掛けもないにもかかわらず自発的に形成されます。この微細構造の格子間隔は、1マイクロメートル（マイクロはミリの1,000分の1）以下であるため、一般にはナノ構造（ナノはマイクロの1,000分の1）と呼ばれており、多くの工学的応用が期待されています。例えば、このナノ構造を摺動（しゅうどう）機械部品の表面に作成できると、金属部品同士の摩擦が低減されて製品の高効率化や長寿命化につながります。また、金属表面への塗料を用いない着色や強い撥水性の付加などの高機能化も期待されています。

この現象は、多くの実験により報告されており、ナノ構造がどのように形成されるかについても、多くの形成機構が提案されていますが、まだ完全には解明されておらず未知なことも多いため、2

次元電磁粒子コードのシミュレーションにより、その形成機構を解析しました。

電磁粒子コード

レーザーによる物質のプラズマ化では、様々な分子・原子過程や衝突緩和過程等を介して電離／再結合が起こるので、電離度の異なるイオンが共存し、かつ個々のイオンの電離度そのものも時間的に変化してしまいます。このため、このプラズマ化の過程を厳密に再現し、周期的ナノ構造の形成をシミュレーションすることは、計算が余りにも複雑になってしまうため現実的ではありません。しかし、強力なレーザーの照射によって金属表面にプラズマが生成され、そのプラズマとレーザーの相互作用が周期的ナノ構造の形成に重要な役割を果たしているのなら、最初から理想的なプラズマ状態であると仮定した解析でも、その物理現象のエッセンスは解明できると考えられます。このような解析のための強力な手法が、電磁粒子コードを用いたシミュレーションです。

さて、電磁粒子コードでは、荷電粒子である電子及びイオンの運動と電場及び磁場の時間発展をすべて自己無撞着（じこむどうちゃく）に扱って、膨大な数の荷電粒子を用いてシミュレーションを行います。また、電場及び磁場は、空間格子を系に導入して、その格子点上でのみ定義します。次に説明するシミュレーションでは、典型的な値として、 40×7 マイクロメートルの真空領域のX軸方向の中央に 12×7 マイクロメートルの金属の表面に生成されたプラズマ状態を模擬したプラズマを導入し、全体を $2,000 \times 360$ の空間格子で表現して、電子とイオンの合計で4千万個の荷電粒子を用いています。0.5ピコ秒（ピコはナノの1,000分の1）までのシミュレーションをするためには、少しずつ時間を進める計算を19,000回繰り返すことが必要になりました。

シミュレーション結果

まず、レーザーの電場が振動する方向である偏光面が2次元シミュレーション空間に平行なレーザー（P偏光レーザー）を入射したときの様子を

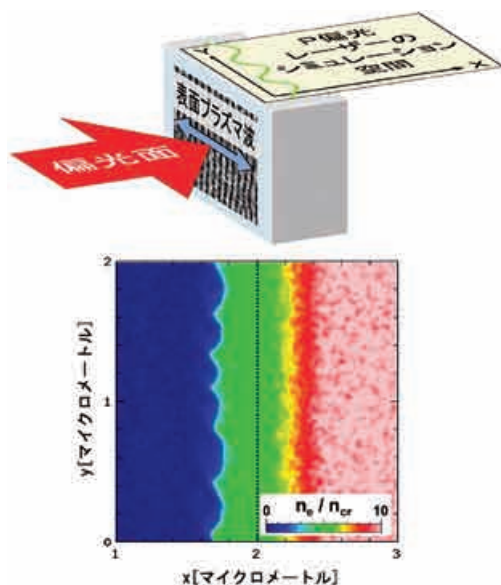


図1：P偏光レーザーの様子（上）と電子密度（下）

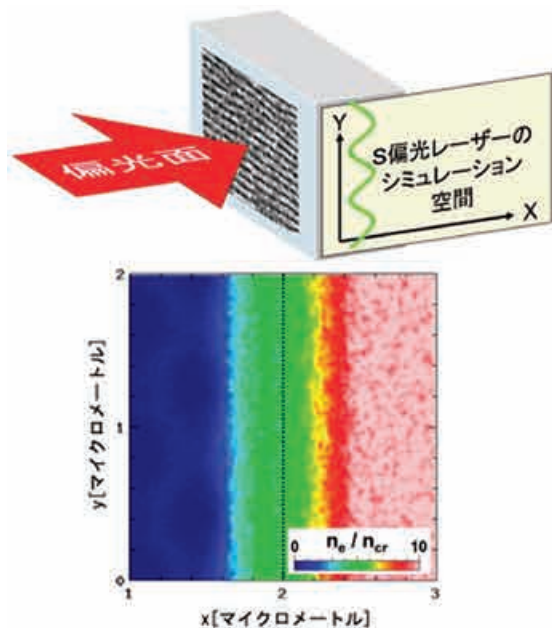


図2：S偏光レーザーの様子（上）と電子密度（下）

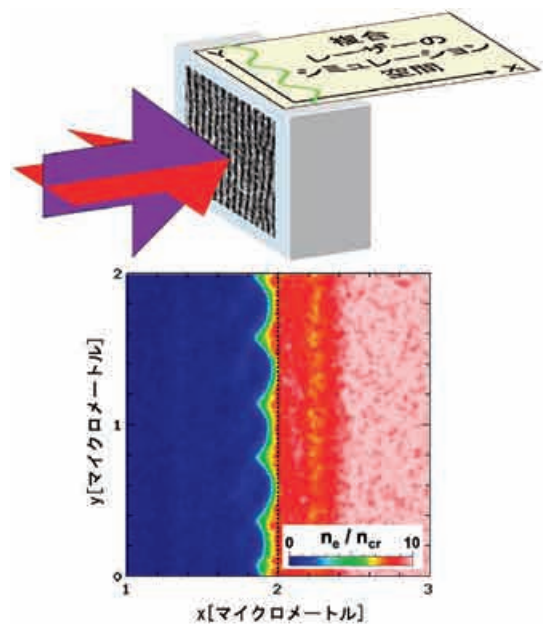


図3：複合レーザーの様子（上）と電子密度（下）

図1上図に示します。このとき、シミュレーション空間上に緑の波線で示されたような周期的な突起が形成されたとすると、実際には、シミュレーション空間とは垂直な方向に一樣な溝構造が形成されたことを意味します。波長800ナノメートルのP偏光レーザーを左から入射したときの0.35ピコ秒後における電子密度 (n_e) 分布を図1下図に示します。なお、 n_{cr} はレーザーがプラズマ中に侵入できなくなる密度であり、臨界密度と呼ばれています。また、初期の金属表面の位置を点線で示しています。金属を模擬したプラズマから噴き出したプラズマ部に周期的な突起が生成されていることがわかります。このシミュレーション結果を解析し、レーザー電場により直接励起された表面プラズマ波と、その結果として誘起される不安定性などにより周期的ナノ構造が形成されるという、新しい形成機構を示すことができました。次に、レーザーの偏光面がシミュレーション空間に垂直なレーザー（S偏光レーザー）の場合を図2上図に示します。このとき、シミュレーション空間上の構造は、レーザー偏光面に平行な溝構造となります。同様に電子密度分布を図2下図に示しますが、このとき構造は生成されませんでした。これら二つのシミュレーション結果は、実験における周期的ナノ構造が、レーザー偏光面に対して直交することに対応しています [1]。更に、波長800ナノメートルのP偏光レーザー（赤矢印）と400ナノメートルのS偏光レーザー（紫矢印）を同時に入射した場合を図3上図に、電子密度分布を図3下図に示します。2本のレーザーでプラズマを

押すので、あまりプラズマは噴き出していません。P偏光レーザーだけの場合より規則正しく、かつ間隔が少し長い周期的ナノ構造が、波長800ナノメートルのレーザー偏光面に垂直な方向に形成されていますが、これは、実験と同様の結果です [1]。シミュレーション結果を解析したところ、レーザーフィラメンテーションと呼ばれる自己形成されたレーザー電場の空間的強弱分布が、このときの周期的ナノ構造の形成に重要な役割を果たしていることがわかりました。

おわりに

ナノ構造形成のようなレーザー加工を完璧にシミュレーションするためには、物質のプラズマ化を始めとして種々の複雑な物理現象を総合的にシミュレーションしなければならず、困難を極めます。しかし、物質がプラズマになる過程は重要ではなく、最初から「理想的なプラズマありき」と仮定しても十分妥当性があるなら、電磁粒子シミュレーションを用いて興味のある物理現象を再現でき、多くの有用な知見を得ることができると考えられます。

なお、本研究成果は、京都大学化学研究所の橋田昌樹准教授との共同研究によるものです。

（基礎物理シミュレーション研究系 教授）

参考文献

[1] M. Hashida, Y. Furukawa, S. Inoue, S. Sakabe, S. Masuno, M. Kusaba, H. Sakagami, and M. Tsukamoto, *J. Laser Appl.* 32, 022054 (2020)