



| | |
|--------------|---|
| Title | ターゲット特性による超高強度レーザー生成高速電子の制御に関する研究 |
| Author(s) | 三島, 陽介 |
| Citation | 大阪大学, 2015, 博士論文 |
| Version Type | VoR |
| URL | https://doi.org/10.18910/53997 |
| 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

ターゲット特性による
超高強度レーザー生成高速電子の制御に関する研究

三島陽介

2015 年 7 月

大阪大学大学院工学研究科

研究概要

本論文は、著者が大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻博士後期課程在学中におこなった“ターゲット特性による超高強度レーザー生成高速電子の制御に関する研究”の成果をまとめたものである。

近年の超高強度レーザーは大型のものはペタワット出力のピコ秒パルス、テーブルトップレーザーはテラワット出力のフェムト秒パルス幅をもち、それらの集光強度は 10^{21} W/cm² に達するシステムも登場してきている。このような大出力のレーザーを物質に照射した場合、メガエレクトロンボルト (MeV) 級の高エネルギー電子、イオンが容易に加速され、それに付随した X 線、 γ 線が発生する。

超高強度レーザー生成高速電子スペクトル制御は高品質な荷電粒子ビームの生成において重要である。本研究では、高速電子温度がターゲット電子密度に依存するシミュレーション予測に基づき、ターゲット材料の選択によって高速電子の平均エネルギーを制御できる可能性について検証した。また、ナノ構造ターゲットの利用により高速電子の生成効率が向上したとする研究例が多数報告される中、著者は、従来用いられてきたランダム構造ではなく周期構造をもつターゲットに着目し、レーザーエネルギーの大部分を表面プラズモンの励起に変換することで、高速電子をより効率良く生成する手法に着目し研究をおこなった。

本論文は以下の 5 章で構成される。

第 1 章は“序論”であり、高強度レーザー照射によって生成された高エネルギー粒子の応用について、また、ターゲット特性 (材質と表面構造) によって高速電子スペクトルが制御できる可能性について説明した。

第 2 章は“プラズモニクスの概要”であり、ナノ構造ターゲットの表面で発生する表面プラズモンと局在プラズモンについて説明し、それらを高強度レーザー領域へ応用する試みに関して述べた。

第 3 章では、“ターゲット材料の選択による高速電子スペクトルの制御”について述べた。Ponderomotive の温度スケーリング式から、高強度レーザーと臨界密度プラズマとの相互作用で生成される高速電子の温度はレーザー強度に応じた値をもつとされている。一方、高コントラストなレーザー条件下ではプレプラズマの膨張が抑制されるため、臨界密度以上をもつプラズマから超高強度レーザー加速される高速電子の温度がターゲット材質に依存するという新しい温度スケーリングが示された。本研究では、この新しい温度スケーリングの予測に基づき、電子密度の異なるターゲット材料を選択することによって電子温度を制御する試みをおこなった。高コントラストレーザーシステムを用いて実験をおこなった結果、得られたターゲット材料ごとの電子温度は Ponderomotive スケーリングに近い値を示し、それらに生じた温度差はプレプラズマの電離度と電子密度に起因する可能性が示された。

第 4 章では、“ナノ構造ターゲットを用いた表面プラズマ波励起による高速電子の高効率生成”について述べ、グレーティング本数密度、レーザー波長と入射角が共鳴条件を満たすとき、励起された表面プラズマ波が高速電子生成に及ぼす影響に関して実験・シミュレーションの両面から評価をおこなった。電子フラックスの角度分布を計測した結果、共鳴条件を満たすターゲットではそれ以

外のターゲットと比較して大きな信号強度が観測された．続いて，電磁場シミュレーションがなぜ負の誘電率をもつ物質を考慮することができるのかについて説明し，表面プラズモンの性質を再現した．さらに，電磁場シミュレーションから求めた表面プラズモンによる電場増強の効果を粒子シミュレーションへ間接的に組み込むことで，実験から得られた高速電子の角度分布とその利得を再現することができた．

第5章では本論文をまとめ，総括をおこなった．

目次

| | | |
|-------|---------------------------------|----|
| 1 | 序論 | 1 |
| 1.1 | はじめに | 1 |
| 1.2 | 超高強度レーザー生成高エネルギー粒子の応用 | 1 |
| 1.3 | 超高強度レーザーとプラズマの相互作用 | 3 |
| 1.4 | ナノ構造ターゲットを用いた高エネルギー粒子生成研究の現状と課題 | 6 |
| 1.5 | 高強度レーザー領域における表面プラズモンの応用 | 7 |
| 1.6 | 本研究の目的 | 8 |
| 1.7 | 本論文の構成 | 8 |
| | 参考文献 | 9 |
| 2 | プラズモニクスの概要 | 13 |
| 2.1 | 表面プラズモン | 13 |
| 2.1.1 | 表面プラズモンの概要 | 13 |
| 2.1.2 | 実験による表面プラズモンの観測 | 16 |
| 2.1.3 | FDTD シミュレーションを用いた表面プラズモンの再現 | 17 |
| 2.2 | 局在プラズモン | 20 |
| 2.2.1 | 局在プラズモンの概要 | 20 |
| 2.2.2 | ナノ領域の誘電関数 | 20 |
| 2.2.3 | FDTD シミュレーションを用いた局在プラズモンの再現 | 22 |
| 2.3 | 定在プラズモンモードの概要 | 22 |
| 2.3.1 | 回折プラズモンの分散関係 | 23 |
| 2.3.2 | 矩形回折格子のフィルファクターとモード発生との関係 | 25 |
| 2.4 | プラズモニクスの高強度レーザー領域への応用 | 27 |
| 2.5 | まとめ | 29 |
| | 参考文献 | 31 |
| 3 | ターゲット材料の選択による高速電子スペクトルの制御 | 33 |
| 3.1 | はじめに | 33 |
| 3.2 | 高強度レーザーと急峻な密度勾配をもつプラズマの相互作用 | 33 |
| 3.2.1 | 高速電子温度のプラズマ電子密度に対する依存性 | 33 |
| 3.2.2 | 材料選択による高速電子スペクトル制御への可能性 | 35 |
| 3.2.3 | 粒子シミュレーションを用いた電子スペクトル制御の予測 | 36 |
| 3.3 | 高コントラストレーザーパルスと金属薄膜ターゲットの相互作用 | 39 |

| | | |
|-------|-------------------------------------|----|
| 3.3.1 | 実験セットアップ | 39 |
| 3.3.2 | 電子スペクトル計測結果 | 39 |
| 3.3.3 | プロトンスペクトルの計測結果 | 42 |
| 3.4 | まとめ | 43 |
| | 参考文献 | 44 |
| 4 | ナノ構造ターゲットを用いた表面プラズマ波励起による高速電子の高効率生成 | 47 |
| 4.1 | はじめに | 47 |
| 4.2 | グレーティングを利用した表面プラズマ波の励起 | 47 |
| 4.3 | グレーティングターゲットの評価と作製 | 49 |
| 4.4 | 高強度レーザーとグレーティングフィルムの相互作用 | 53 |
| 4.4.1 | 実験セットアップ | 53 |
| 4.4.2 | 高速電子の角度分布計測結果 | 55 |
| 4.4.3 | 高速電子エネルギースペクトル計測結果 | 57 |
| 4.5 | シミュレーションを用いた実験結果の考察 | 57 |
| 4.6 | まとめ | 63 |
| 5 | 総括 | 69 |
| | 謝辞 | 71 |
| A | プラズモン定在波の励起を用いた高強度レーザー生成高速電子の効率向上 | 73 |
| A.1 | はじめに | 73 |
| A.2 | プラズモンモードを満たすグレーティングターゲットのパラメータ評価 | 73 |
| A.3 | ナノリソグラフィ装置を用いたグレーティングターゲットの作製 | 75 |
| A.4 | 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験 | 77 |
| A.4.1 | 実験セットアップ | 77 |
| A.4.2 | 低強度 CW レーザーを用いた反射率測定 | 80 |
| A.4.3 | 高強度レーザーを用いた高速電子の角度分布計測結果 | 80 |
| A.4.4 | ESM 計測結果 | 82 |
| A.4.5 | 反射率計測結果 | 83 |
| A.4.6 | シミュレーションを用いた実験結果の考察 | 84 |
| A.5 | まとめ | 86 |
| | 参考文献 | 87 |
| B | MEEP シミュレーションの概要 | 89 |
| | 参考文献 | 93 |

目次

| | | |
|---|-------------------|-----|
| C | ダブルステップグレーティングの概要 | 95 |
| | 参考文献 | 98 |
| | 研究業績 | 100 |

1 序論

1.1 はじめに

本章では、超高強度レーザー照射によって生成される高エネルギー粒子の応用例とそれらの生成機構について述べる。また、ターゲット材料や表面構造などの“ターゲット特性”による超高強度レーザー生成高速電子スペクトル制御の研究背景と本研究の目的について述べる。

1.2 超高強度レーザー生成高エネルギー粒子の応用

高強度レーザープラズマ相互作用で生成される高速電子、高エネルギーイオン、硬 X 線 (γ 線) などの高エネルギー粒子は、研究機関における高エネルギー密度物理などの最先端の研究から、実社会における産業機械の開発用途にまで幅広い応用が考えられている。高速電子の応用先としては、航跡場加速を用いた生成準単色ビームによる高密度プラズマ診断、プラズマフォトリックデバイスを用いたビーム制御、レーザー核融合への応用などが挙げられる [1, 2]。一方、高エネルギーイオンと硬 X 線は、プラズマ中の電磁場計測、加速器へ入射するための高輝度粒子線源、粒子線のブラッグピークを利用したがん治療の研究などの研究例が挙げられる [3, 4, 5]。これらの研究では、高エネルギー粒子ビームのスペクトル単色化、高フラックス化、ビーム指向性の向上などが重要な研究課題として考えられている。

本節では、超高強度レーザー照射によって生成される高エネルギー粒子応用の代表例として、“レーザー核融合”と“粒子線のブラッグピークを用いたがん治療の研究”について述べる。

レーザー核融合

核融合には大きく分けて慣性閉じ込め方式と磁場閉じ込め方式がある。磁場閉じ込め方式では希薄なプラズマ (密度 $\sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$) を比較的長時間 ($\sim 1 \text{ s}$) 保持するのに対し、慣性閉じ込め方式では高密度なプラズマ (密度 $\sim 10^{26} \text{ cm}^{-3}$) を非常に短時間 ($\tau \sim 10^{-12} \text{ s}$) 保持することで核融合を引き起こす。核融合が連続して起こる“点火”に関する要件はローソン条件から求められ、重水素 (D: Deuterium) と三重水素 (T: Tritium) の核融合反応では、点火を起こすために必要なプラズマ密度 n と閉じ込め時間 τ の条件は $n \times \tau = 10^{14} \text{ s/cm}^3$ (温度条件: 約 4 keV) とされている [6]。

レーザー核融合とは高強度レーザーを用いた慣性閉じ込め核融合のことを指す。照射方式は“直接照射”と“間接照射”に分類され、また直接照射における点火方式は“中心点火”と“高速点火”に分けられる [7, 8]。レーザー核融合では、主に重水素と三重水素が封入された燃料球がターゲットとして用いられる。高強度レーザーを多方向からターゲットに球対称照射し、燃料球の表面からアブレーションプラズマが噴き出す。噴き出したプラズマの反作用の力が中心方向に働いて燃料を圧縮し、コアプラズマがローソン条件の求める密度・温度積以上になれば点火が起こる。中心点火方式ではレーザーパルスによる爆縮のみでコアプラズマの球対称性と温度の点火条件を満たさなけれ

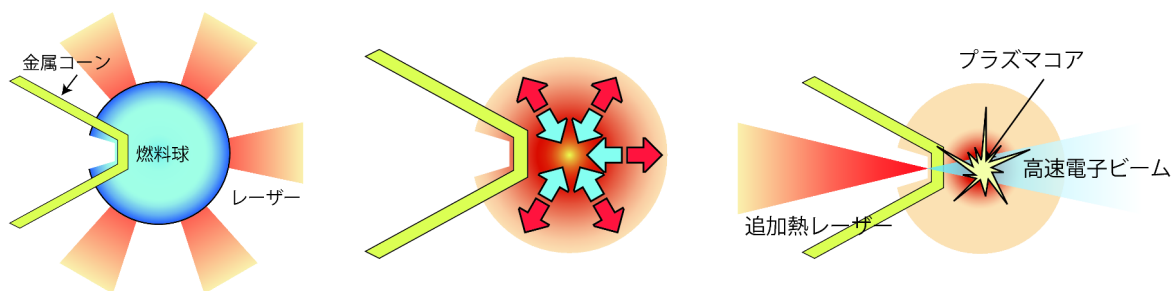


図1 金属コーンを用いた高速点火核融合 (直接照射) の概念図

ばならない。高速点火方式では、爆縮時に追加熱用レーザーパルス照射し、高速電子ビームをコアプラズマの火付け役として利用する。このとき、燃料球に金属コーンが付いたターゲットを用いる場合は、爆縮時のプラズマがコーン内へ入り込むのを抑えることでレーザー光導波路を確保し、同時に電子ビームをガイディングさせることができる [9]。これにより、点火に必要なコアプラズマの球対称性が緩和され、爆縮で形成されたホットスポットを追加熱電子が加熱・燃焼させることで一気に点火状態に至る。図1に金属コーンを用いたレーザー核融合の高速点火核方式の概念図を示す。このとき、高速電子のエネルギーが数 100 keV ~ 数 MeV の場合、コアプラズマに付与できるエネルギー効率が最も高くなることが実験とシミュレーションから予測されている [10, 11]。また、コアプラズマを通過できる高速電子の個数が多いほど加熱効率が向上するが、そのエネルギーが高すぎる場合は加熱自体が起こらない。したがって、レーザー核融合高速点火方式では、燃料プラズマへ入射する高速電子ビームスペクトルの制御が重要である。

一方、プロトン及びイオンビームをコアプラズマの追加熱源として用いる方式も考えられており [12]、図2にイオンビームを用いた高速点火核融合の概念図を示す。最も基本的な手法としては、Target Normal Sheath Acceleration (TNSA) を用いた方法が挙げられる。この加速機構では、高強度レーザーパルスを厚み数 μm のターゲットへ照射したとき、高速電子がターゲット裏面から真空中へ放出されることによりターゲット裏面と真空境界において荷電分離が生じ、形成されたシース電場によって高エネルギーイオンが加速される。このとき、高エネルギーイオンはターゲット裏面方向に指向性をもって加速されるので、湾曲させた薄膜ターゲットを用いることで、コアプラズマ位置へイオンビームを収束させることができる。この場合も、イオンビームのエネルギースペクトルを制御し、コアプラズマを効率的に加熱する工夫が必要である。

粒子線のブラッグピークを利用したがん治療の研究

高エネルギーイオンの応用例としてはがん治療装置の開発が挙げられる。電子線、X線、 γ 線を物質中へ照射したとき、それらは物質内部を伝搬しながらエネルギーを次第に失う。このとき、周囲へのエネルギー付与量は浅い位置で大きく、深い位置になるほど小さくなる。一方、プロトンや重イオンビームなどが物質中を伝搬する場合、速度が遅くなるほど周囲に与えるエネルギー量が大きくなる“ブラッグピーク”と呼ばれる特性をもつ。特に重イオン線はプロトンと比較して物質内

1.3 超高強度レーザーとプラズマの相互作用

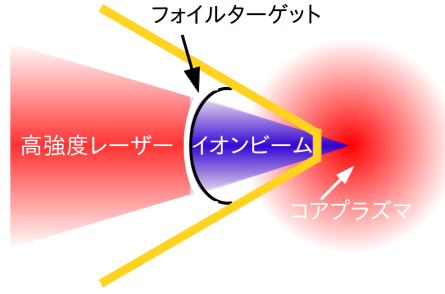


図2 イオンビームを用いた高速点火核融合の概念図

部における散乱の影響が少ないため、人体の深い位置に潜む腫瘍やがんなどの病巣を選択的に治療する研究に役立つ。現在、がん治療装置で用いられているイオンビームは線形加速器によるものが主流であるため、加速電場の勾配が比較的小さく、高エネルギーを得るために装置を大型化しなければいけない問題があった。高強度レーザーを用いた加速器は従来型と比較して加速勾配が数桁大きいいため、装置の小型化が期待できる。がん治療装置の実用レベルでは 200 MeV 以上のプロトン最大エネルギーが必要であると試算されており、より高エネルギーのイオンビームを生成するための研究が現在も活発に続けられている [3]。

このように、高エネルギー粒子を用いた上記の研究において、最終目標 (レーザー核融合の点火及びがん治療に必要なイオン最大エネルギー) を達成するには、より高エネルギー・高フラックスの粒子ビーム生成が必要である。近年では、固体ターゲット表面にナノメートルスケールの微細な構造をもたせた場合、平板ターゲットと比較して光の反射率が減少し、レーザーエネルギーの吸収率が飛躍的に向上する結果が多数報告されており、高エネルギーかつ高フラックスの粒子ビーム生成による研究応用が期待されている [13, 14]。このとき、超高強度レーザーとプラズマの相互作用によって生成される高エネルギー粒子の生成機構を理解することが、粒子ビームのスペクトル制御を実現するために重要といえる。そのため、次節で高強度レーザーとプラズマの相互作用の概要について述べ、次々節でナノ構造ターゲットを用いた高エネルギー粒子生成の現状と課題について述べる。

1.3 超高強度レーザーとプラズマの相互作用

プラズマ中の電子はイオンがもつ正電荷との電気的中性を保つためイオンとの間を常に往復振動しており、その振動数は電子密度に依存する。電子密度 n_e のプラズマ中におけるプラズマ周波数 ω_p は

$$\omega_p = \left(\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_0} \right)^{1/2} \quad (1.1)$$

1.3 超高強度レーザーとプラズマの相互作用

であらわされる [15, 16, 17]. e は電子の素電荷量, ϵ_0 は真空の誘電率, m_0 は電子の静止質量を示す. レーザー電場によって振動する電子の速度が真空中の光速に近い値となったとき, 相対論的な取り扱いが必要になり, Lorentz 因子 γ を導入して相対論的なプラズマ周波数 ω_p^{rel} は

$$\omega_p^{\text{rel}} = \left(\frac{n_e e^2}{\gamma \epsilon_0 m_0} \right)^{1/2} \quad (1.2)$$

と書き換えられる. ここで, γ は粒子のもつ速度 v と光速 c の比から

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{|v|}{c} \right)^2}} \quad (1.3)$$

であらわされる. プラズマ中の分散関係式は

$$\omega^2 = \omega_p^2 + c^2 k^2 \quad (1.4)$$

のようにあらわされる. ω はレーザー電場の角周波数, c は光速, k は波数ベクトルである. $\omega > \omega_p$ では k が実数となって式 (1.4) が成立するため, レーザー光はプラズマ中を伝搬できる. しかし, $\omega < \omega_p$ となると k が虚数解をもち, レーザー光はプラズマ中をそれ以上伝搬することができなくなる. $\omega_p = \omega$ とすると臨界密度 n_c は

$$n_c = \frac{m_0 \epsilon_0 \omega^2}{e^2} \quad (1.5)$$

と導かれる. 式 (1.5) は μm を単位としたレーザー波長 $\lambda_{\mu\text{m}}$ でも表現することができ

$$n_c = \frac{1.11 \times 10^{21}}{\lambda_{\mu\text{m}}^2} [\text{cm}^{-3}] \quad (1.6)$$

となる.

Lorentz 因子 γ は, 規格化されたレーザーの電場振幅

$$a = \frac{eA}{m_0 c}, \quad A = \frac{E_0}{\omega} \quad (1.7)$$

を用いて, 円偏光と直線偏光それぞれに対して

$$\gamma = \sqrt{1 + a^2} \quad (\text{Circular}) \quad (1.8)$$

$$\gamma = \sqrt{1 + \frac{a^2}{2}} \quad (\text{Linear}) \quad (1.9)$$

のようにあらわせる．ここで， A はベクトルポテンシャル， $E_0 = |\mathbf{E}_0|$ である．直線偏光の場合， γ はレーザー集光強度 I を用いると

$$\gamma = \left(1 + \frac{1}{2} \frac{I_{18}}{I_r}\right)^{1/2}, \quad I_r = \frac{1.37}{\lambda_{\mu m}^2} \quad (1.10)$$

とあらわせる．ここで I_{18} は I を 10^{18} W/cm² で規格化した値である．また，レーザー光のピーク電場 E_0 ，磁場 B_0 もレーザー集光強度 I を用いてあらわすことができ，それぞれ

$$E_0 = 2.74 \times 10^{12} \sqrt{I_{18}} \quad [\text{V/m}] \quad (1.11)$$

$$B_0 = 9.16 \times 10^7 \sqrt{I_{18}} \quad [\text{Gauss}] \quad (1.12)$$

となる．

J×B 加熱

光波には輻射圧が存在し，それがプラズマに加えられる場合の力を Ponderomotive 力という． $\mathbf{E} = E_L(x) \times (\sin \omega_0 t) \hat{y}$ であらわされる直線偏光の電場がプラズマ中へ伝搬したとき，発生する Ponderomotive 力 f_{pon} は

$$f_{\text{pon}} = -\frac{m_e}{4} \frac{\partial}{\partial x} v_L^2(x) (1 - \cos 2\omega_0 t) \hat{x} \quad (1.13)$$

となる [18]．ここで， $v_L = eE_L/m_e\omega_0$ であり，第一項目の直流成分はプラズマ中の電子を奥方向へ押し出す働きをし，第二項目の振動成分はプラズマの加熱に寄与する．高速電子はレーザー軸方向に加速され，この吸収機構を $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱という．電子がもつエネルギーは Ponderomotive ポテンシャルと同等と考えられ，電場が円偏光をもつときの電子温度は

$$T_e = m_e c^2 \left[\left(1 + \frac{I_{18} \lambda_{\mu m}^2}{1.37}\right)^{1/2} - 1 \right] \quad (1.14)$$

のように特徴づけられる [19]．

Brunel 吸収

高強度レーザー光を固体に斜め入射したとき、メインパルス到達時に固体表面に急峻な密度勾配が存在する、もしくは密度に不連続な分布がある場合、レーザー光の振動電場は臨界密度以上のプラズマ中から電子を真空中に引き出し、その電子を再びプラズマ中に押し返すことができる。このとき、レーザー電場によって振動する電子の速度は $v_{osc} = eE/m_e\omega$ である。プレプラズマが存在しない条件において、レーザー光が p 偏光でターゲット垂直方向に対して入射角 θ で入射したとき、プラズマへのエネルギー吸収率は

$$f = \frac{\eta}{2\pi} \frac{v_{osc}^3}{v_L^2 c \cos \theta} \quad (1.15)$$

とあらわされる [20]。ここで、 $v_L = eE_L/m\omega$ 、 E_L はレーザー電場、 c は光速、 v_{osc} はレーザー電場 E_L のターゲット垂直成分である E_0 に振られる電子の振動速度である。ここで、 η は最小で 1.57、最大で $\eta = 1.75(1 + 2v_T/v_{osc})$ となり、 v_T は電子の熱振動速度である。

1.4 ナノ構造ターゲットを用いた高エネルギー粒子生成研究の現状と課題

ナノ構造ターゲットを用いた場合、平板ターゲットに対して高フラックスの高速電子及び高エネルギーイオンが生成されることが広く知られている。しかし、プレパルス軽減に対して特別な対策を講じていないシステムのレーザーコントラストは 10^6 程度と非常に低いため、 10^{18} W/cm^2 以上のレーザー強度ではナノ構造ターゲットが破壊されてしまう [21]。それゆえ、プレパルス抑制の開発がなされていない年代におこなわれた研究では、 $10^{15} \sim 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 程度の比較的レーザー強度が低い場合において、ナノスフィアやナノホールアレイ、ナノロッドなどのナノ構造ターゲットを用いて数 10 倍の X 線利得が得られるなどの報告が主流であった [22, 23, 24]。近年では、プレパルスを抑制する種々の方法が研究されており、非線形光学結晶を用いた Optical Parametric CPA (OPCPA) を導入してコントラスト 10^{11} を達成した例や [25]、ダブルプラズマミラーの活用によってコントラストを 10^{12} まで高めた結果も報告されており [26, 27]、高強度レーザー領域においてもプレパルスを大幅に抑制した実験が可能になっている。現在では、 10^{18} W/cm^2 を超えるレーザー強度でもナノ構造の効果が実証されてきている [28]。これらの実験で得られた利得は、構造表面に強い局所電場が生じる“電場集中”や、構造先端で電場が増強される“lightning rod effect”などによるものと説明されている [29]。このような構造の効果をを用いた信号増強に関しては、実験とシミュレーションの両面で非常に多くの報告例があり、現在では、ナノ構造を用いた実験による信号増加は既知の事実であるといえる。ナノ構造ターゲットを用いて現状得られている利得をさらに上回るためには、エネルギー吸収率を最適とするナノ構造パラメータの決定方法や、なぜ吸収率が高くなるのかを説明できる理論の構築が必要である。

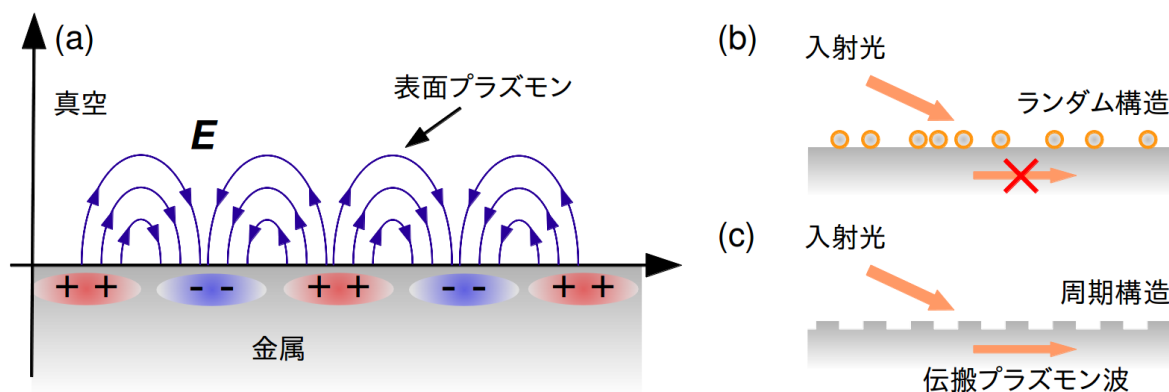


図3 (a) 表面プラズモンの模式図，ターゲット表面がナノスケールの (b) ランダム構造と (c) 周期構造をもつときの表面プラズモンの様子．表面構造が周期構造をもつとき，表面プラズモンが励起される．

1.5 高強度レーザー領域における表面プラズモンの応用

現状以上に粒子ビームのフラックスを増加させる手法として，ナノ領域における光理論である“プラズモニクス”で表現される“表面プラズモン”の利用が挙げられる．図3(a)に表面プラズモンの模式図を示す．ここで“表面プラズモン”とは，金属に外部電場が加わったとき，金属表面を伝搬するプラズマ波のことであり，このプラズマ波を励起することによってレーザーエネルギー吸収率を高めることができる．しかし，表面プラズモンのターゲット界面方向における波数は伝搬光よりも常に大きいため，これを励起するには回折光を用いることが必要である．これまで報告されてきたナノ構造ターゲットの研究では，主に図3(b)に示すような“ランダム配置”された構造が用いられており，これでは表面プラズモンを励起することはできない．一方，図3(c)に示すような“周期構造”をもつグレーティングターゲットを用いた場合，界面方向の波数整合を満たすことによって表面プラズモン共鳴を起こし，高速電子を効率良く生成することができる．ここで，波数整合について具体的に述べると，レーザー入射角，レーザー波長，グレーティング本数密度の組み合わせが第2章で述べる“共鳴条件”を満たすことをいう．このとき，レーザーエネルギーの大部分が表面プラズモン励起に変換されるため，共鳴条件を満たす入射角において反射光の急激な減少がみられる．

近年，この“表面プラズモン共鳴”を高強度レーザー領域に応用しようとする動きがみられる．2004年にJ. Kupersztzychらがテスト粒子の軌道追跡による簡単な数値計算によって，表面プラズマ波による電子加速の有効性を提案し[30]，2007年にはM. Raynaudらが2次元PICシミュレーションを用いて，表面プラズモン共鳴の条件を満たすグレーティングターゲットの方が，平板ターゲットを用いた場合よりも高エネルギーの電子加速が可能であるという結果を説明している[31]．その後，レーザー強度 $10^{15} \sim 10^{16} \text{ W/cm}^2$ におけるグレーティングターゲットを用いた表面プラズモン励起の研究では，2008年にS. Kahalyらが反射率ほぼゼロパーセントの完全光吸収とX線

1.6 本研究の目的

発生量の増加を計測した例 [32], 2010 年に G. Hu らがレーザー鏡面反射方向に鋭い電子ジェットを確認した例など [33], 表面プラズモン共鳴関連の研究が次々と報告され始めた. 表面プラズモン共鳴を 10^{18} W/cm² 以上の高強度レーザー領域に応用するには, メインパルス光が到達する時点においてグレーティング形状を保持できていることが必要であり, コントラストが高いレーザーの使用が必須となる. そして遂に, 2013 年に T. Ceccotti らが強度 10^{19} W/cm² の高強度レーザー領域において, ダブルプラズマミラーを用いた超コントラスト (10^{12}) 条件下のもと, 薄膜マイラーグレーティングターゲットを用いて, 平板ターゲットに対して約 2.5 倍のプロトンカットオフエネルギーを得ることに成功した [27].

1.6 本研究の目的

これまでおこなわれた研究では, グレーティングターゲットと平板ターゲットを比較したときの利得を求めており, このとき得られた結果には“ナノ構造による増倍効果”と“表面プラズモン励起による増倍効果”の 2 者が同時に含まれていることになる. ここで, ナノ構造による増倍効果とは, 電場集中や lightning rod effect による効果のことである. つまり, ナノ構造ターゲット同士を比較して“ナノ構造による増倍効果”を排除した信号量を比較しなければ, 表面プラズモンの励起による増倍効果を評価することはできない. また, Brunel 吸収はプレプラズマのスケール長によって吸収に最適な入射角をもつことが知られており, グレーティングターゲットと平板ターゲットを比較した場合では, それぞれ異なる入射角に対して Brunel 吸収の最適値をもつため, この場合も表面プラズモン励起による増倍効果を観測することはできない [34]. 本研究では, 超高強度レーザー領域において, 純粋な表面プラズモン共鳴による増倍効果に関する理解を深めることによって, 現状以上の高エネルギー及び高フラックスの高速電子ビームを発生させることを目的とした.

1.7 本論文の構成

本論文は全 5 章で構成される.

第 2 章では, “プラズモニクスの概要”について述べる.

第 3 章では, “ターゲット材料の選択による高速電子スペクトルの制御”について述べる. 近年, 高コントラストレーザーシステムを用いてプレプラズマの発生を抑えたとき, 高速電子ビームのスペクトルがターゲット材料に依存するという予測が報告されている. 本章では, ターゲット材料選択による高速電子スペクトルの制御可能性について, 実験と粒子シミュレーションの両面から述べる.

第 4 章では, “グレーティングターゲットを用いた表面プラズマ波励起による高速電子の高効率生成”について述べる. 表面プラズモンの共鳴条件を満たすグレーティングターゲットとそれ以外のグレーティングターゲットを用いたときの信号量増倍を比較し, ナノ構造自体による増倍の可能性を排除した, 純粋な表面プラズモンによる増倍効果を評価したことについて述べる.

第 5 章では, 以上の研究成果を総括する.

参考文献

- [1] M. Tabak, J. Hammer, M. E. Glinsky, W. L. Kruer, S. C. Wilks, J. Woodworth, E. M. Campbell, and M. D. Perry, “Ignition and high gain with ultrapowerful lasers” . *Phys. Plasmas* **1**, 1626(1994).
- [2] 兒玉了祐, “レーザー核融合と高エネルギー密度プラズマ科学” . プラズマ核融合学会誌 **81**, 105(2005).
- [3] J. Fuchs, P. Antici, E. DHumieres, E. Lefebvre, M. Borghesi, E. Brambrink, C. A. Cecchetti, M. Kaluza, V. Malka, M. Manclossi, S. Meyroneinc, P. Mora, J. Schreiber, T. Toncian, H. Pepin, and P. Audebert, “Laser-driven proton scaling laws and new paths towards energy increase” . *Nature Phys.* **2**, 48(2006).
- [4] E. L. Clark, K. Krushelnick, J. R. Davies, M. Zepf, M. Tatarakis, F. N. Beg, A. Machacek, P. A. Norreys, M. I. K. Santala, I. Watts, and A. E. Dangor, “Measurements of Energetic Proton Transport through Magnetized Plasma from Intense Laser Interactions with Solids” . *Phys. Rev. Lett.* **84**, 670(2000).
- [5] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, M. D. Rosen, R. W. Falcone, “Ultrafast X-ray Pulses from Laser-Produced Plasmas” . *Science* **251**, 531(1991).
- [6] 高村秀一, “カラー図解プラズマエネルギーのすべて” , (社) プラズマ核融合学会 (編), 日本実業出版社, 東京, 2007.
- [7] 内田岱二郎, “プラズマ物理入門” 丸善株式会社, 東京, 1977.
- [8] M. H. Key, “Status of prospects for the fast ignition inertial fusion concept” . *Phys. Plasmas* **14**, 055502 (2007).
- [9] R. Kodama, P. A. Norreys, K. Mima, A. E. Dangor, R. G. Evans, H. Fujita, Y. Kitagawa, K. Krushelnick, T. Miyakoshi, N. Miyanaga, T. Norimatsu, S. J. Rose, T. Shozaki, K. Shigemori, A. Sunahara, M. Tampo, K. A. Tanaka, Y. Toyama, T. Yamanaka, and M. Zepf, “Fast heating of ultrahigh-density plasma as a step towards laser fusion ignition” . *Nature* **412**, 798 (2001).
- [10] A. Okabayashi, T. Yabuuchi, H. Habara, and K. A. Tanaka, “Monte-Carlo Simulations for Heating of Superdense Matter by Relativistic Electrons” . *J. Plasma Fusion Res. SERIES* **8**, 1222 (2009).
- [11] M. H. Key, M. D. Cable, K. G. Estabrook, B. A. Hammel, S. P. Hatchett, E. A. Hinkel, J. D. Kilkenny, J. A. Koch, W. L. Kruer, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, R. W. Lee, B. J. MacGowan, A. Mackinnon, J. D. Moody, M. J. Moran, A. A. Offenberger, D. M. Pennington, M. D. Perry, T. J. Philips, T. C. Sangster, M. S. Singh, M. A. Stoyer, M. Tabak, G. L. Tietbohl, M. Tsukamoto, K. Wharton, and S. C. Wilks, “Hot electron production and heating by hot electrons in fast ignitor research” . *Phys. Plasmas* **5**, 1966

- (1998).
- [12] J. C. Fernandez, B. J. Albright, F. N. Beg, M. E. Foord, B. M. Hegelich, J. J. Honrubia, M. Roth, R. B. Stephens, and L. Yin, “Fast ignition with laser-driven proton and ion beams” , Nucl. Fusion **54**, 054006 (2014).
 - [13] Z. Yang, L. Ci, J. A. Bur, S. Lin, and M. Ajayan, “Experimental Observation of an Extremely Dark Material Made by a low-density nanotube array” . Nano Lett. **8**, 446 (2008)
 - [14] T. Nishikawa, H. Nakano, H. Ahn, and N. Uesugi, “X-ray generation enhancement from a laser-produced plasma with a porous silicon target” . Appl. Phys. Lett. **70**, 1653 (1997)
 - [15] 藪内俊毅, “超高強度レーザー生成高速電子伝搬に及ぼす自己励起電場及び磁場の影響に関する研究” , 大阪大学大学院, 博士論文 (2007).
 - [16] T. Hideaki, “ Relativistic Motion of Charged Particles in Ultra-Intense Laser Fields” , J. Plasma Fusion Res. **78**,341 (2002).
 - [17] Shalom Eliezer, “The Interaction of High-Power Lasers with Plasmas” , (Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia, 2002).
 - [18] W. L. Kruer and Kent Estabrook, “ $J \times B$ heating by very intense laser light” , Phys. Fluids. **28**, 430 (1984).
 - [19] S. C. Wilks, W. L. Kruer, M. Tabak. and A. B. Langdon, “Absorption of Ultra-Intense Laser Pulses” , Phys. Rev. Lett. **69**, 1383 (1992).
 - [20] F. Brunel, “Not-So-Resonant, Resonant Absorption” , Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
 - [21] 近藤公伯, “プラズマ研究の発展に寄与する最新レーザー技術” , J. Plasma Fusion Res. **83**, 619 (2007).
 - [22] H. Masuda and K. Fukuda, “Ordered Metal Nanohole Arrays Made by a Two-Step Replication of Honeycomb Structures of Anodic Alumina” . Science **268**, 1466 (1995)
 - [23] S. Mondal, I. Chakraborty, S. Ahmad, D. Carvalho, P. Singh, A. D. Lad, V. Narayanan, P. Ayyub, and G. R. Kumar, “Highly enhanced hard x-ray emission from oriented metal nanorod arrays excited by intense femtosecond laser pulses” . Phys. Rev. B **83**, 035408 (2011)
 - [24] G. Kulcsar, D. AlMawlawi, F. W. Budnik, P. R. Herman, M. Moskovis, L. Zhao, and R. S. Marjoribanks, “Intense Picosecond X-Ray Pulses from Laser Plasmas by Use of Nanostructured ”Velvet” Targets” . Phys. Rev. Lett. **84**, 5149 (2000)
 - [25] H. Kiriya, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, H. Sasao, M. Tanoue, S. Kanazawa, D. Wakai, F. Sasao, H. Okada, I. Daito, M. Suzuki, S. Kondo, K. Kondo, A. Sugiyama, P. R. Bolton, A. Yokoyama, H. Daido, S. Kawanishi, T. Kimura, and T. Tajima, “High temporal and spatial quality petawatt-class Ti:sapphire chirped-pulse amplification laser system” . Opt. Lett. **35**, 1497(2010).
 - [26] A. Levy, T. Ceccotti, P. D'Oliveira, F. Reau, M. Perdrix, F. Quere, P. Monot, M.

- Bougeard, H. Legadec, and P. Martin, “Double plasma mirror for ultrahigh temporal contrast ultraintense laser pulses” . *Opt. Lett.* **32**, 310(2007).
- [27] T. Ceccotti, V. Floquet, A. Sgattoni, A. Bigongiari, O. Klimo, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, F. Baffigi, L. Labate, L. A. Gizzi, L. Vassura, J. Fuchs, M. Passoni, M. Kveton, F. Novotny, M. Possolt, J. Prokupek, J. Proska, J. Psikal, L. Stolcova, A. Velyhan, M. Bougeard, P. DOliveira, O. Tcherbakoff, F. Reau, P. Martin, and A. Macchi, “Evidence of Resonant Surface-Wave Excitation in the Relativistic Regime through Measurements of Proton Acceleration from Grating Targets” . *Phys. Rev. Lett.* **111**, 185001(2013).
- [28] M. A. Purvis, V. N. Shlyaptsev, R. Hollinger, C. Bargsten, A. Pukhov, A. Prieto, Y. Wang, B. M. Luther, L. Yin, S. Wang, and J. J. Rocca, “Relativistic plasma nanophotonics for ultrahigh energy density physics” . *Nature Phys.* **7**, 796 (2013)
- [29] P. P. Rajeev, P. Taneja, P. Ayyub, A. S. Sandhu, and G. R. Kumar, “Metal Nanoplasmas as Bright Sources of Hard X-Ray Pulses” , *Phys. Rev. Lett.* **90**, 115002 (2003).
- [30] J. Kupersztych, M. Raynaud, and C. Riconda, “Electron acceleration by surface plasma waves in the interaction between femtosecond laser pulses and sharp-edged overdense plasmas” , *Phys. Plasmas* **11**, 1669 (2004)
- [31] M. Raynaud, J. Kupersztych, C. Riconda, J. C. Adam, and A. Heron, “Strongly enhanced laser absorption and electron acceleration via resonant excitation of surface plasma waves” , *Phys. Plasmas* **14**, 092702 (2007)
- [32] S. Kahaly, S. K. Yadav, W. M. Wang, S. Sengupta, Z. M. Sheng, A. Das, P. K. Kaw, and G. R. Kumar, “Near-Complete Absorption of Intense, Ultrashort Laser Light by Sub- λ Gratings” , *Phys. Rev. Lett.* **101**, 145001 (2008)
- [33] G. Hu, A. Lei, W. Wang, X. Wang, L. Huang, J. Wang, Y. Xu, J. Liu, W. Yu, B. Shen, R. Li, and Z. Xu, “Collimated hot electron jets generated from subwavelength grating targets irradiated by intense short-pulse laser” , *Phys. Plasmas* **17**, 033109 (2010)
- [34] P. Gibbon and A. R. Bell, “Collisionless Absorption in Sharp-Edged Plasmas” , *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1535 (1992)

2 プラズモニクスの概要

近年、金属表面やナノ構造内に光を閉じ込め、強力な電場集中を生み出す“プラズモニクス”の研究が進んでいる。本節では、プリズムやグレーティング構造を用いて励起できる“表面プラズモン”と、ナノサイズの金属であれば常に局所電場が励起される“局在プラズモン”について説明する。

2.1 表面プラズモン

2.1.1 表面プラズモンの概要

金属中に外部電場が加わったとき、自由電子は主に電子密度から決定される振動数をもつプラズマ振動をおこなう。この振動はバルク金属中では電場の振動方向と波の伝搬方向が同じ“縦波”である。ここで金属の表面に注目すると、自由電子の縦波振動に付随した横波の表面電場が発生する。プラズモニクスの世界では、プラズマ振動のことを“プラズモン”と呼び、これに伴う表面電場のことを特に伝搬型の“表面プラズモン”と定義している [1]。表面プラズモンはエバネッセント波であるため表面から垂直方向遠方へは伝搬せず、光を表面に閉じ込めながら伝搬するので、金属表面に強力な光エネルギーを集中することが出来る。

表面プラズモンが金属表面に存在するための条件について説明する [2, 3]。媒質 1 ($z \geq 0$) と媒質 2 ($z \leq 0$) が $z = 0$ で界面に接していると仮定する。このとき、それぞれの媒質の誘電率を ϵ_1 , ϵ_2 とし、透磁率を μ_1 , μ_2 とする。界面に沿って x 方向に伝搬し、界面から遠ざかるごとに指数関数的に減衰する電磁場の y 方向成分は、媒質 1, 2 において

$$S_1 = S_0 \exp[i(k_x x - \omega t)] \exp(-\gamma_1 z) \quad (z \geq 0) \quad (2.1)$$

$$S_2 = S_0 \exp[i(k_x x - \omega t)] \exp(\gamma_2 z) \quad (z \leq 0) \quad (2.2)$$

とあらわせる。式中の S は TM 波 (P 偏光) のときは磁場に、TE 波 (S 偏光) のときは電場に対応する。 k_x は界面方向の波数であり、電磁波が界面に局在するためには γ_1 , γ_2 がともに正の実数でなくてはならない。ここで Maxwell 方程式は

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (2.4)$$

であり、式 (2.1) と式 (2.2) は TE 波では電場の、TM 波では磁場の界面における接線成分が連続であって、かつ、式 (2.3) と式 (2.4) から、電束密度と磁束密度の法線成分に対する境界条件は、

$$\epsilon_1 \frac{\partial S_1}{\partial z} = \epsilon_2 \frac{\partial S_2}{\partial z} \quad (\text{TM 波}) \quad (2.5)$$

2.1 表面プラズモン

$$\mu_1 \frac{\partial S_1}{\partial z} = \mu_2 \frac{\partial S_2}{\partial z} \quad (\text{TE 波}) \quad (2.6)$$

と書ける．よって式 (2.5) と式 (2.6) から条件は

$$\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} = -\frac{\gamma_2}{\gamma_1} \quad (\text{TM 波}) \quad (2.7)$$

$$\frac{\mu_1}{\mu_2} = -\frac{\gamma_2}{\gamma_1} \quad (\text{TE 波}) \quad (2.8)$$

のように導かれる．式 (2.7) から，表面プラズモンが存在するには2つの媒質のどちらかが負の誘電率をもつことが条件である．ここで，金属は可視光から赤外光の領域で，プラズマはプラズマ周波数以下の周波数領域で負の誘電率をもつので，表面プラズモンが存在可能である．式 (2.8) では負の透磁率が存在条件となる．近年メタマテリアルで負の透磁率を実現する研究がおこなわれているが，一般的には，光の周波数領域において μ は真空の透磁率 μ_0 と等しいため，TE 波では表面プラズモンは存在し得ない．

伝搬光と表面プラズモンがエネルギー結合するためには条件を満たす必要がある．それは，両者の光が単純に空間的に重なるだけではなく，それらの角周波数 ω と波数 k が一致することである．つまり，分散関係上で伝搬光と表面プラズモンが交点をもつときにおいてのみ，表面プラズモンを励起することができる．伝搬光が誘電率 ϵ_d の誘電体側から誘電率 ϵ_m の金属へ照射されたとき，表面プラズモンの波数 k_{SP} は

$$k_{\text{SP}} = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_d + \epsilon_m}} \quad (2.9)$$

とあらわされ，ここで k_0 は入射光の波数である．通常，大気もしくは真空側から光が照射されるため $\epsilon_d = 1$ であり，かつ金属の誘電率 ϵ_m は負の値をもつので，式 (2.9) 右辺の平方根の値は1より大きくなることから $k_{\text{SP}} > k_0$ である．つまり，表面プラズモンは入射光よりも波数が常に大きく，伝搬光を金属ターゲットへ照射するだけでは両者がエネルギー結合することはない．

入射光と表面プラズモンをエネルギー結合させるための方法の一つとしてプリズムを用いる方法があり，図 1(a) に伝搬光とプリズムの配置を示す． k を波数， ω を角周波数， c を真空中の光速とすると，真空中の光の分散関係は $k = \omega/c$ とあらわすことができ，この分散関係をライトラインという．屈折率 n をもつ媒質中では光速が c/n となって波数 $k = n\omega/c$ となり，この分散関係をプリズムライトラインという．図 1(b) に伝搬光と表面プラズモンの分散関係を示す．横軸はレーザー光を角度 θ でプリズムへ入射したときのプリズム底面方向の波数成分であり，そのときの波数は $k_x = kn \sin \theta$ とあらわせる．つまり， $\theta = 0^\circ$ (垂直入射) のときは $k_x = 0$ ， $\theta = 90^\circ$ (グレージング角) のときは分散中のプリズムライトライン上に位置する．伝搬光の接線成分の分散曲線は常にライトラインの左側に位置し，表面プラズモンの分散曲線は常にライトラインの右側にある．この

2.1 表面プラズモン

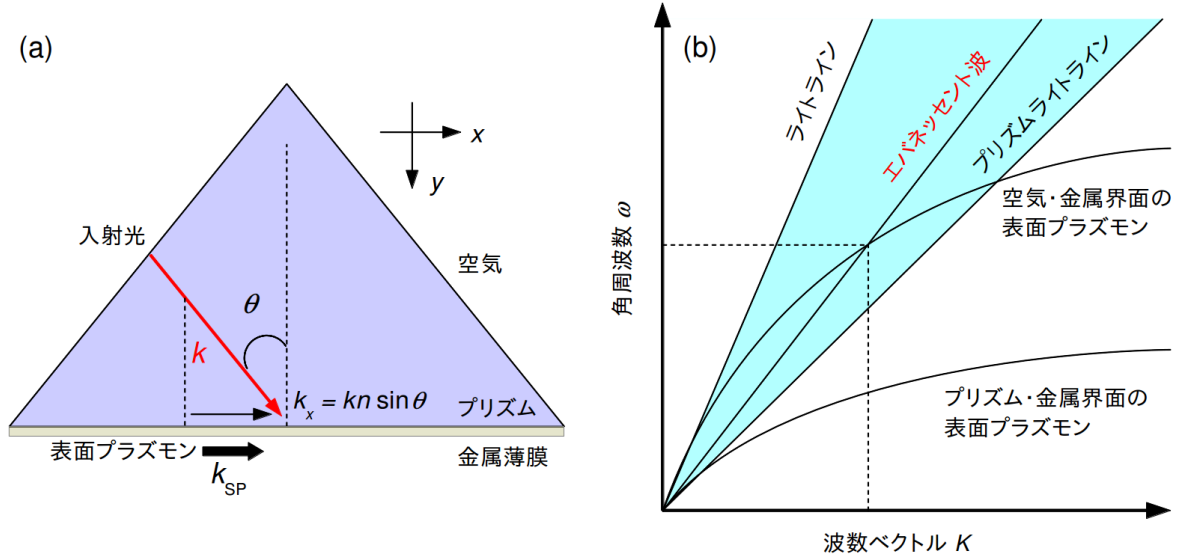


図1 (a) 入射光・プリズムの配置と (b) プリズムを用いた時の伝搬光と表面プラズモンの分散

とき、媒質の屈折率を大きくしただけでは表面プラズモンの分散曲線も同様に右側へシフトするだけなので、両者の交点は得られない。表面プラズモンの分散関係をシフトさせずに光の波数を大きくするにはエバネッセント波の利用が必要である。伝搬光を臨界角 θ_c 以上の角度でプリズムへ入射したとき全反射と同時にプリズム底面側にエバネッセント波が染み出し、これが表面プラズモンと空間的かつ分散上で重なった場合に両者は初めてエネルギー結合できる。このときの表面プラズモンの共鳴条件は

$$k_{SP} = \frac{\omega}{c} n \sin \theta \quad (2.10)$$

となる。プリズムを利用した表面プラズモン共鳴の実用的な手法としては、プリズムを金属表面にごくわずかな距離 (数 10 nm) で設置する Otto 配置と、プリズム底面に金属薄膜を蒸着して扱いやすくした Kretschmann 配置が存在する。

表面プラズモンを励起するもう一つの方法として、グレーティングの利用が挙げられる [4]。図 2(a) に入射光とグレーティングの配置を示す。誘電体グレーティングの場合は、プリズムと置き換えるだけで表面プラズモンを励起することができ、誘電体内の界面方向の波数成分 k_x は

$$k_x = k_0 \sin \theta + mK \quad (2.11)$$

となる。ここで、 m は回折次数、 $k_0 = \omega/c$ は真空中の波数、 $K = 2\pi/\Lambda$ は格子ベクトル、 Λ はグレーティング周期である。 $k_x > k$ であるとき、グレーティング底面において全反射によりエバ

2.1 表面プラズモン

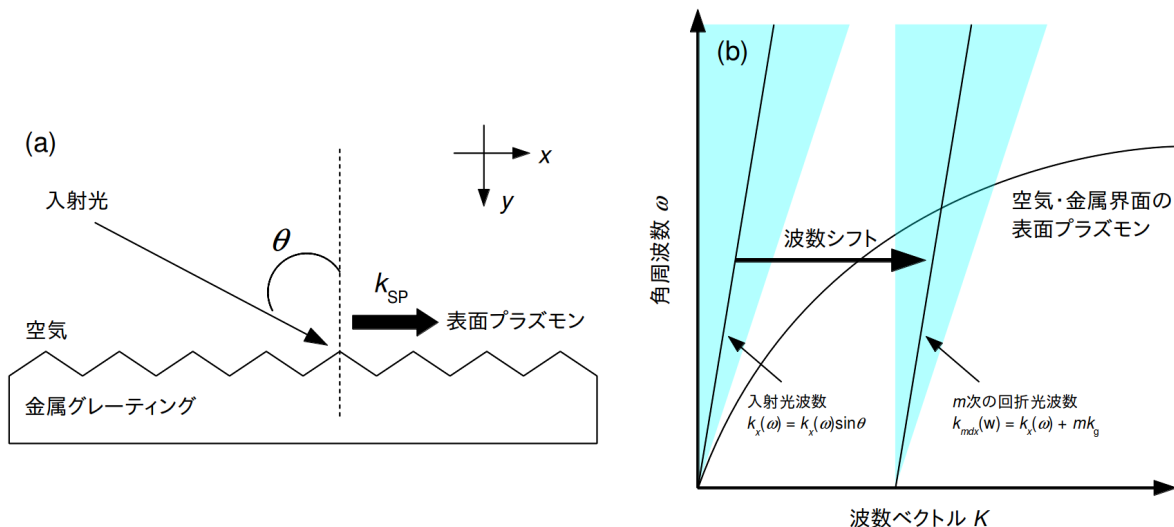


図2 (a) 入射光・グレーティングの配置と (b) グレーティングを用いた時の伝搬光と表面プラズモンの分散関係

ネッセント波が発生し、その波数が k_{SP} と等しい場合、表面プラズモン共鳴が起こる。このとき、式 (2.9) と式 (2.11) から波数マッチングの式は

$$k_0 \sin \theta + \frac{2\pi}{\Lambda} = k_{SP} \quad (2.12)$$

とあらわせる。また、グレーティングが誘電体でなく金属である場合も同様に表面プラズモンを励起できる。表面プラズモンと入射光の分散関係を図 2(b) に示す。金属グレーティングへ伝搬光を入射した場合、界面方向の波数は誘電体グレーティングと同様に格子定数 Λ の整数倍だけシフトされ、表面プラズモンの波数 k_{SP} との波数整合が可能である。

2.1.2 実験による表面プラズモンの観測

表面プラズモンの励起にはレーザー光のようなコヒーレント光源は必要でない。したがって、ハロゲンランプなどの Continuous Wave (CW) 光をもつ光源を用い、グレーティングターゲットからの反射光を広範囲のスペクトルに渡って計測すると、表面プラズモンの励起による反射率の急激な減衰を観測しやすい。図 3(a) に表面プラズモン共鳴を観測するためのセットアップ例を示す。ハロゲンランプ光源を偏光子を用いてグレーティングターゲット (Spectrogon 社製: G1350 15×60×10 NIR) へ P 偏光で垂直入射し、反射光をハーフミラーを介して、分光器でスペクトル計測する。図 3(a) のインセットに示す画像は Atomic Force Microscope (AFM) 計測結果であり、グレーティングは厚さ数 mm のガラス基板上に本数密度 1350 lines/mm、振幅 40 nm の正弦波形状をもち、表面は Au コーティングされている。入射波の偏光軸が P, S 方向のときの反射光スペクトル結果を図 3(b) に示す。P 偏光では波長 765 nm において、表面プラズモンが励起されている

2.1 表面プラズモン

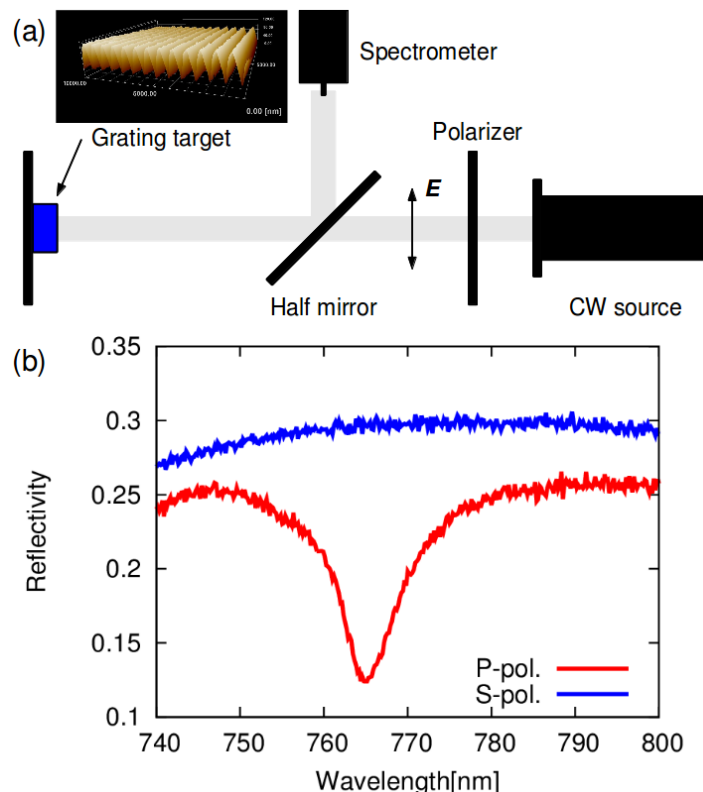


図3 (a)CW光を用いた反射率実験のセットアップ．ハロゲンランプ光源から偏光子を通過したP偏光をもつ光波をハーフミラーを介してグレーティングターゲットへ垂直入射し，ファイバー型分光器で反射光スペクトルを計測した．グレーティングの本数密度は1350 lines/mmで，表面形状は約40 nmの振幅をもつ正弦波構造である．(b)垂直入射における反射率の偏光方向依存性．P偏光では波長765 nmにおいて表面プラズモン共鳴の特徴である，急激な反射率の減少がみられる．一方，S偏光では一切の反射率減少がみられない．

証拠である反射率の急激な減少が確認できる．一方，S偏光では反射率の減少が一切確認できず，表面プラズモンを励起できていないことがわかる．

2.1.3 FDTDシミュレーションを用いた表面プラズモンの再現

電磁場解析手法の一つであるFinite difference time domain(FDTD)シミュレーションの概要について説明する[2]．この手法では，図4に示すYee格子と呼ばれる微小な格子状に互い違いに配置された電場・磁場の値を用いて，電磁波の時間発展を計算することができる．一例として， z 軸方向の磁場 H_z と電場 E_z を導出する．式(2.3)のAmpere式から H_z 成分を抽出すると

$$-\left(\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y}\right) = -\mu \frac{\partial H_z}{\partial t} \quad (2.13)$$

となり，微分の項を差分化して表現すると

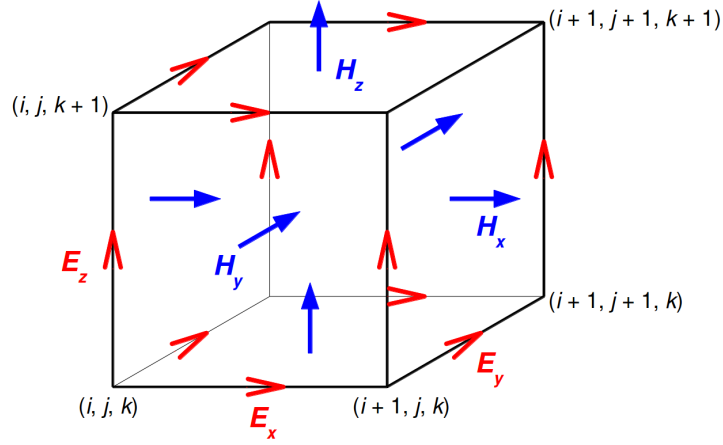


図4 Yee 格子に割り当てられた電場と磁場の配置.

$$\begin{aligned}
 & - \left(\frac{E_y|_{i+1,j+\frac{1}{2},k}^n - E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^n}{\partial x} - \frac{E_x|_{i+\frac{1}{2},j+1,k}^n - E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^n}{\partial y} \right) \\
 & = -\mu \frac{H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^{n+\frac{1}{2}} - H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^{n-\frac{1}{2}}}{\partial t}
 \end{aligned} \tag{2.14}$$

となる．ここで，上付きの n は時間，下付きの (i, j, k) は空間座標を示す．式 (2.14) をまとめると，磁場に関する次ステップ解は

$$\begin{aligned}
 H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^{n+\frac{1}{2}} &= H_z|_{i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k}^{n-\frac{1}{2}} - \left(\frac{\Delta t}{\mu \Delta x} \right) \left(E_y|_{i+1,j+\frac{1}{2},k}^n - E_y|_{i,j+\frac{1}{2},k}^n \right) \\
 &+ \left(\frac{\Delta t}{\mu \Delta y} \right) \left(E_x|_{i+\frac{1}{2},j+1,k}^n - E_x|_{i+\frac{1}{2},j,k}^n \right)
 \end{aligned} \tag{2.15}$$

となり，同様にして，電場の式は

$$\begin{aligned}
 E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^n &= E_z|_{i,j,k+\frac{1}{2}}^{n-1} + \left(\frac{\Delta t}{\epsilon \Delta x} \right) \left(H_y|_{i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - H_y|_{i-\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} \right) \\
 &- \left(\frac{\Delta t}{\epsilon \Delta y} \right) \left(H_x|_{i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - H_x|_{i,j-\frac{1}{2},k+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} \right)
 \end{aligned} \tag{2.16}$$

とあらわせる．

次に，空間 2 次元の FDTD シミュレーションを用いてグレーティングターゲット表面に励起されるプラズモン波を模擬した例を示す [5]．中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスをもつ本数密度 500 lines/mm、振幅 100 nm の正弦波形状をもつ Au グレーティングに対して入射角 40° で P 偏

2.1 表面プラズモン

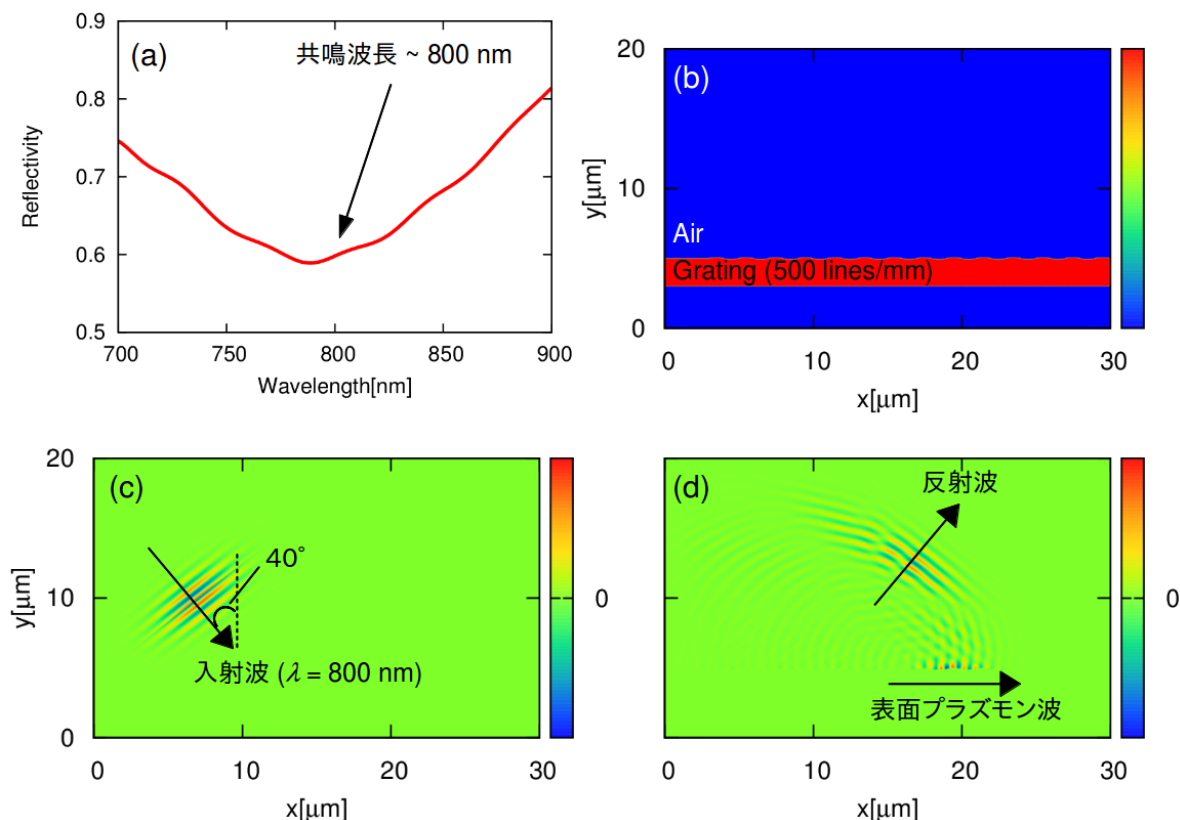


図5 本数密度 500 lines/mm, 振幅 100 nm の正弦波グレーティングターゲットに対して, 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスをもつ入射波を 40° 入射したときの FDTD シミュレーション結果. (a) 反射率, (b) グレーティングターゲットの空間分布, (c) 磁場分布の z 軸成分で, グレーティングターゲットに入射波が伝搬する様子, (d) 反射波と共に, ターゲット表面を伝搬する表面プラズモン波の様子.

光入射し, プラズモン共鳴角における反射率の急激な減少と, 表面プラズモン波の励起を観測した. ここで, 式 (2.12) から計算される 500 lines/mm の共鳴角は約 40° で, シミュレーションで設定した入射角の値と一致する. 図 5(a) に反射率分布を示し, $\lambda = 800$ nm 付近で反射率の減少がみられ, 表面プラズモンが励起されていることが確認できる. 図 5(b) に空气中に配置されたグレーティングターゲットの空間分布, 図 5(c) に磁場分布の z 軸成分における入射波の伝搬の様子, そして, 図 5(d) に反射波と表面プラズモン波の伝搬の様子を示す. 表面プラズモン波は伝搬と共に金属への吸収ロスによってエネルギーを失い, やがて消失する. このときの伝搬長は光の波長と金属種類によって決定される. 例えば, レーザー波長が 500 nm のとき, 吸収ロスが比較的大きい金属である Al では伝搬長が $2 \mu\text{m}$ であるが, 吸収ロスが小さい金属である Ag を用いると, 伝搬長は $20 \mu\text{m}$ である [1].

2.2 局在プラズモン

2.2.1 局在プラズモンの概要

伝搬型の表面プラズモンに対して、金属の局所に増強電場が生じるプラズモンを局在プラズモンという [2]。このプラズモンではナノサイズの金属へ光を入射したとき、両者は常にエネルギー結合し、金属の誘電率が共鳴条件を満たすとき、分極が非常に大きくなって強い局所電場が発生する。このとき、伝搬光も同時に放射されるが、強力な電場は金属表面に近い近接場領域に局所的に閉じ込められる。

一様な誘電体中にある金属微小球へ光を照射したときに、金属表面に誘起される電場の増強度について単純な系を考えた場合、(1) 球の直径が光の波長よりも十分小さく、球の位置によって空間的な遅延が無いこと、(2) 場が時間的に変動しない静電場であること、の 2 点を仮定すれば、微小球表面で静電場が最大となる位置における入射場を含めた電場強度の増強度 $\eta^2 = |E_{\max}/E_0|^2$ は

$$\eta^2 = \left| \frac{3\epsilon_1}{\epsilon_1 + 2\epsilon_2} \right|^2 \quad (2.17)$$

となる。ここで金属微小球と誘電体の誘電率はそれぞれ ϵ_1 , ϵ_2 である。直径 20 nm の銀、金の微小球に対して、式 (2.17) から求まる η^2 の波長依存性を図 6(a), (b) にそれぞれ示す。 η が最大値をとるのは式 (2.17) の分母 $(\epsilon_1 + 2\epsilon_2)$ が 0 に近い値をもち、かつ ϵ_1 の虚部が小さい値をもつときである。図 6(a), (b) から銀は波長が約 380 nm で $\eta^2 = 170$ 、金は波長が約 540 nm で $\eta^2 = 18$ を示しており、局在プラズモンの共鳴波長は材質に依存した値をもつことがわかる。

2.2.2 ナノ領域の誘電関数

金属の誘電率を表現するモデル式の一つとして Lorentz の調和振動子モデルがあり、このモデルでは自由電子の運動方程式は

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} + m\Gamma \frac{d\mathbf{r}}{dt} + m\omega_0^2 \mathbf{r} = -e\mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t) \quad (2.18)$$

のようにあらわされる。ここで、 r は電子の平均位置からの変位、 m は電子の質量、 e は電子の電荷、 ω_0 は固有振動数、 $\mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t)$ は外部電場である。式 (2.18) の解は

$$\mathbf{r} = \frac{q}{m} \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2 - i\Gamma\omega} \mathbf{E}_0 \quad (2.19)$$

となる。電子分極 $\mathbf{P} = -Nq\mathbf{r}$ 、電束密度 $\mathbf{D} = \epsilon_L \epsilon_0 \mathbf{E} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ を用いると、ローレンツの誘電関数 $\epsilon_L(\omega)$ は

2.2 局在プラズモン

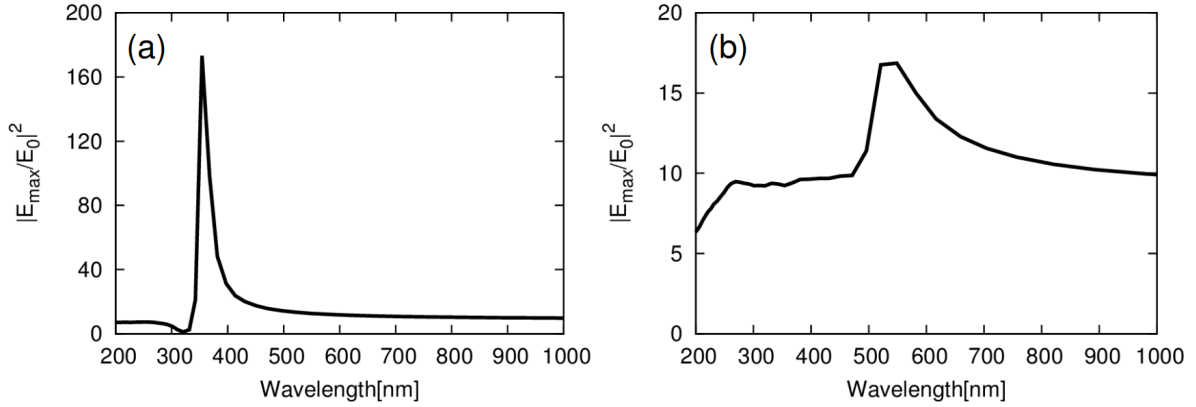


図6 直径 20 nm のサイズ効果を考慮した (a)Ag 微小球表面の電場増強度と (b)Au 微小球表面の電場増強度

$$\epsilon_L(\omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \quad (2.20)$$

となる．ここで， N は単位体積あたりの自由電子の個数， $\omega_p^2 = Nq^2/m\epsilon_0$ はプラズマ周波数である．ドルーデの誘電関数 $\epsilon_D(\omega)$ は式 (2.18) 中の調和振動の項を 0 として

$$\epsilon_D(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \quad (2.21)$$

とあらわされる．

金属の大きさがナノサイズの場合，電子の平均自由行程が金属微粒子の径を上回り，電子が粒子表面に衝突し散乱が発生するため，バルクの場合と比較して誘電率にずれが生じる．このときの減衰定数 Γ は，バルクの減衰定数を Γ_{bulk} ，フェルミ速度を v_F ，粒子径を r として

$$\Gamma = \Gamma_{\text{bulk}} + A \frac{v_F}{r} \quad (2.22)$$

とあらわせる．定数 A は粒子の形状と理論式によって異なり，1 前後の値をとる．ドルーデの誘電関数を考えたとき，バルク金属の誘電関数を ϵ_{bulk} とすると，サイズ効果を含んだ誘電関数 ϵ_ω は

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\text{bulk}} + \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma_{\text{bulk}}\omega} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\Gamma\omega} \quad (2.23)$$

となる [2]．銀，金の微小球に対する式 (2.23) の計算結果を図 7(a), (b) にそれぞれ示す．図からは半径が 1 nm の場合ではバルク金属に対して誘電率が大きくシフトしている様子がわかる．したがって，局在プラズモンの電場増強度と共鳴波長は，金属材料だけでなく，そのサイズにも依存す

2.3 定在プラズモンモードの概要

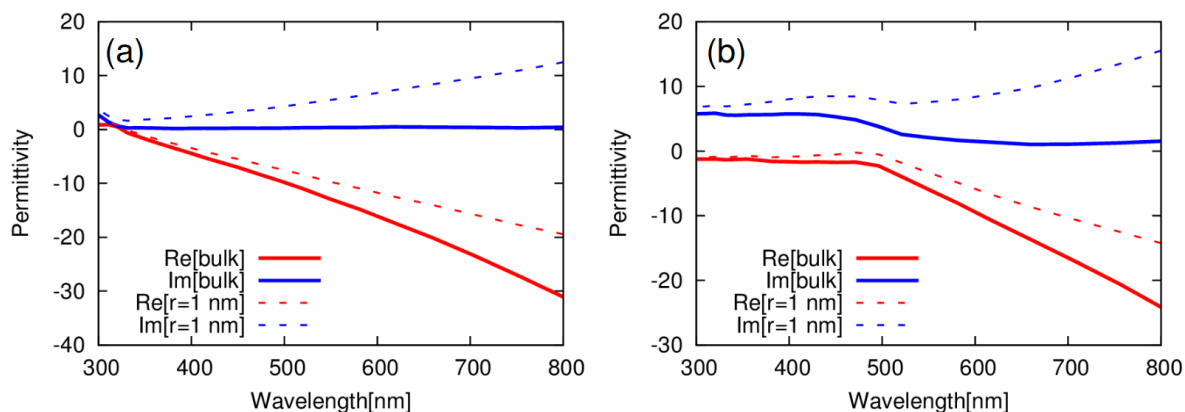


図 7 バルク金属と半径 1 nm 球における (a) 銀の誘電率と (b) 金の誘電率

ることが理解できる．最近の研究結果では，直径数 100 nm のナノディスクターゲットを用いたときの共鳴波長は，ディスク直径の大きさに対して比例しレッドシフトする傾向が実験的に示されている [6]．しかしながら，微小金属の誘電率は材質・大きさだけではなく，金属の構造，周囲媒質の誘電率，さらには金属が保持されている基板からも影響を受ける．つまり，実際の複雑な系では電場増強度は単純な解から求まらず，また，金属ターゲットの実効的な誘電率も得ることも困難なのである．したがって，一般的には，シミュレーションを用いて表面電場の光周波数応答を計算し，最適なナノ金属構造を求めるプロセスをたどることになる．

2.2.3 FDTD シミュレーションを用いた局在プラズモンの再現

ここで，2 次元 FDTD シミュレーションを用いてナノディスク形状に対する局在プラズモン共鳴の励起を模擬する．直径 200 nm，厚み 20 nm をもつ Au ナノディスク構造を空气中に配置し，中心波長 716 nm をもつガウシアンパルスを垂直入射したときの電場強度分布 $|E/E_0|^2$ を観測した．図 8(a) に反射率分布を，(b) に電場強度分布を示す．反射率は $\lambda = 716$ nm で極小値を示し，このとき局在プラズモンが励起されていることが確認できる．また，電場強度分布から入射電場が最大 12 倍まで増強されていることがわかる．このように，特定の光波長に対して，局在プラズモン共鳴は局所電場の増大を示す．

2.3 定在プラズモンモードの概要

レーザー光を金属表面へ斜め入射したとき，表面プラズモンは金属表面の前方と後方の両側に伝搬し，その伝搬長はレーザー波長と金属材質に依存する．つまり，前節で言及した表面プラズモン共鳴は，片側に伝搬する表面プラズモンを励起する条件について述べたものである．レーザー光をグレーティングターゲットへ垂直入射すると，特定の波長において前方・後方へ伝搬する表面プラズモンの回折波が分散関係上で交点をもつ．このとき，それぞれの表面プラズモン波が干渉し，分散上にエネルギーギャップが生じることがある．これらのギャップ両端ではモードと呼ばれる定在

2.3 定在プラズモンモードの概要

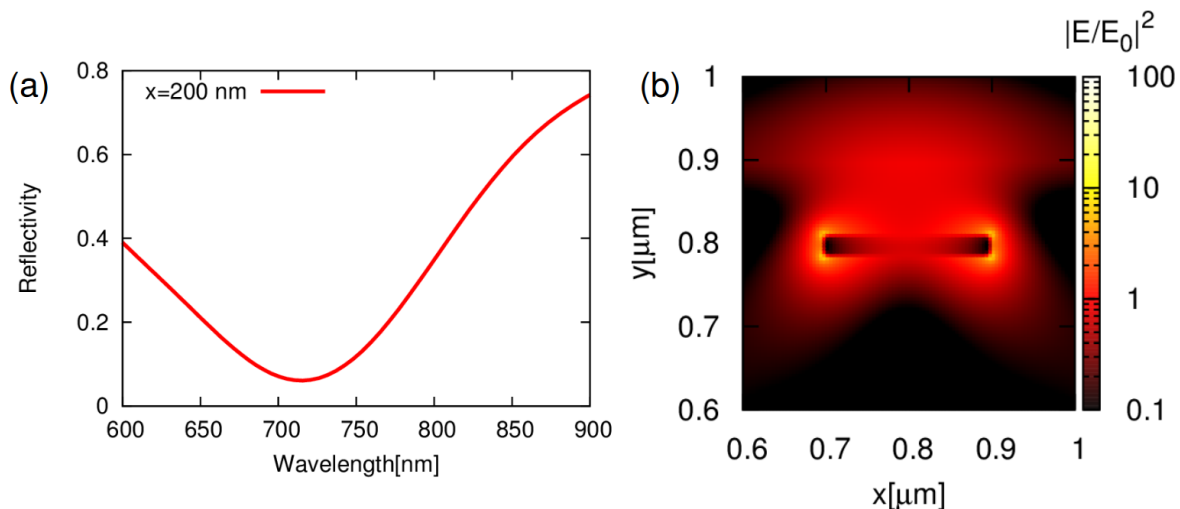


図8 直径 200 nm, 厚み 20 nm の Au ナノディスクターゲットに平面波を照射したときの (a) 反射率と (b) $\lambda = 716$ nm における電場増強度 $|E/E_0|^2$

波が生じ、通常の表面プラズモンと比較して、より大きな光エネルギーを金属表面に集中できる可能性がある。

2.3.1 回折プラズモンの分散関係

式 (2.11) では入射光が回折された形になっているが、これをプラズモン波が回折された形に書き直すと

$$k_{\text{SP}} + m'K = k_0 \sin \theta \quad (2.24)$$

と表記できる [7]. 図 9(a) に平板ターゲットにおける表面プラズモンの分散関係を示す. 前方と後方に伝搬する 2 つの表面プラズモンが存在し、平板ターゲットにおけるそれらの分散曲線はどちらもライトラインの下に位置することが確認できる. 一方, 図 9(b) にグレーティングターゲットにおける分散関係を示す. 2 つの表面プラズモンはそれぞれ回折され, 波数がゼロ (垂直入射) のとき, 前方伝搬光と後方伝搬光の 1 次回折光が分散関係上で交点をもつ. このとき, グレーティングの表面形状によっては両者が干渉を起こし, バンドギャップをもつ場合がある. バンドギャップの形成には 2 次回折光成分が必要とされるが, グレーティングの表面形状が正弦波の場合は 2 次回折成分が小さいためバンドギャップは形成されにくい. 通常, グレーティングの作製方法としては 2 光波干渉法が一般的とされるが, 近年では, レーザー 2 波長に対して 2 光波干渉法を計 2 回繰り返すことによって, 周期を 2 つもつ "biharmonic" グレーティングの作製が幅広くおこなわれている. "biharmonic" グレーティングでは, 短波長側における周期の 1 次回折成分が, 長波長側における周期の 2 次回折成分に対応するため, 単一の正弦波グレーティングと比較して非常に大きな 2

2.3 定在プラズモンモードの概要

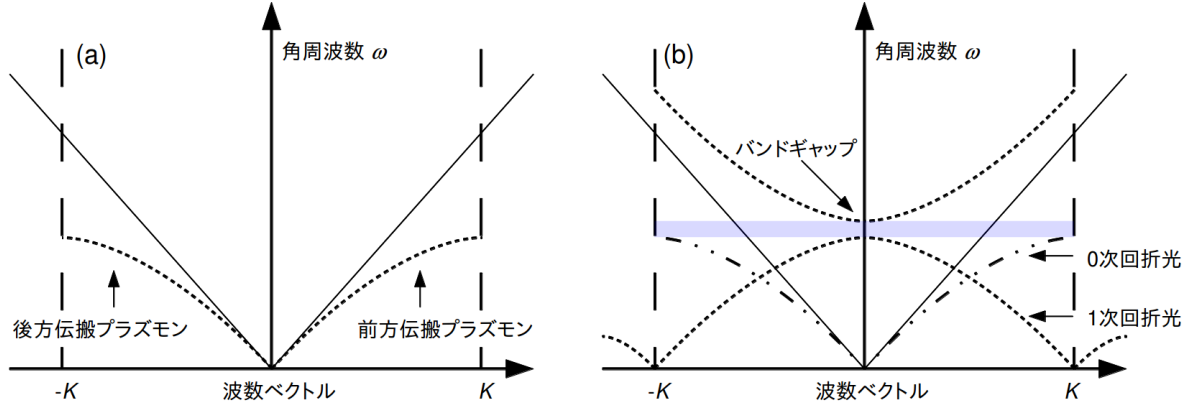


図9 (a) 平板ターゲットにおける表面プラズモン波の分散関係. 前方と後方に伝搬する表面プラズモンはライトラインの下側に位置するため, 外部入力光により励起することができない. (b) グレーティングターゲットにおける回折された表面プラズモン波の分散関係. 表面プラズモンの分散が波数ベクトルの軸に対して正負の方向にシフトしており, 回折光が分散上で交点をもつ位置において, グレーティングの表面形状によってはエネルギーギャップが発生する可能性がある.

次回折成分をもち, 大きなバンドギャップを生成することができる [8, 9].

矩形形状の回折光に関しては, 限定的な場合に限り, Barnes らによりバンドギャップの中心波長と波長幅の解析式が得られている [10]. グレーティング形状の式 $f(x)$ を

$$f(x) = a \sin(\kappa x) + b \sin(2\kappa x) \quad (2.25)$$

とおき, a, b は基本波と2倍波の振幅とする. この振幅が非常に小さいとき, バンド幅 $\Delta\omega^2/c^2$ は

$$\frac{\Delta\omega^2}{c^2} = \left(\frac{\omega_+}{c}\right)^2 - \left(\frac{\omega_-}{c}\right)^2 = \frac{4\kappa^2 b}{\sqrt{-\epsilon_1 \epsilon_2}} \left(1 - \frac{7}{2}(\kappa b)^2\right) \quad (2.26)$$

で得られ, 中心波長 $\overline{\omega^2}/c^2$ は

$$\frac{\overline{\omega^2}}{c^2} = \frac{1}{2} \left(\left(\frac{\omega_+}{c}\right)^2 + \left(\frac{\omega_-}{c}\right)^2 \right) = \left(\frac{\omega_0}{c}\right)^2 (1 - (\kappa b)^2) \quad (2.27)$$

となる. ここで, ω_+ と ω_- は高エネルギー側と低エネルギー側の角周波数, ω_0 は平板金属における表面プラズモンの角周波数である. これらの式を用いると形状パラメータに対するバンドギャップの傾向を知ることができるが, 任意のグレーティング表面形状に対して必ずしも適応できるわけではなく, 実際のバンドギャップ計算には FDTD シミュレーションが必要である.

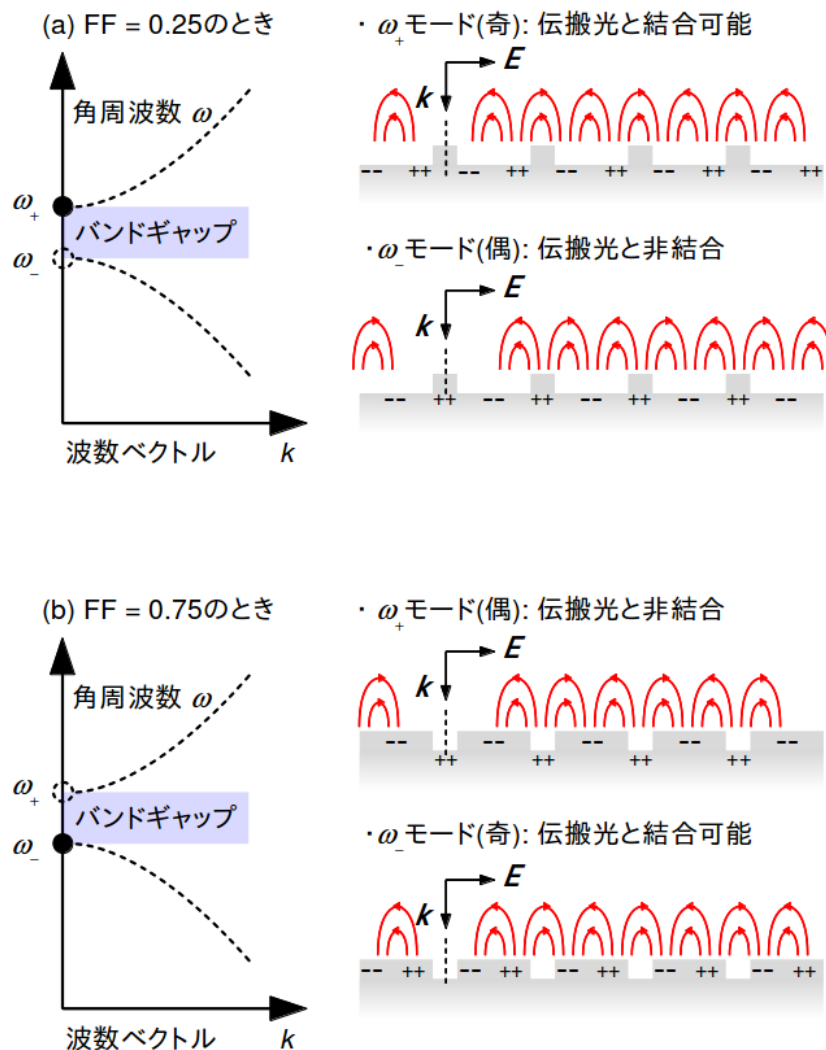


図 10 (a) $FF=0.25$, (b) $FF=0.75$ の矩形回折格子に対する定在プラズモンモードの分散関係と電荷分布. 波数ゼロ, 回折されたプラズモン波の交点で角周波数が最も小さい位置において, $2K$ 成分をもつ $FF=0.25$ と $FF=0.75$ ではバンドギャップが発生する. $FF=0.25$ では基準線に対して非対称な電荷分布をもつ ω_+ モード, $FF=0.75$ では ω_- モードが伝搬光と結合できる.

2.3.2 矩形回折格子のフィルファクターとモード発生の関係

矩形グレーティングの溝周期に対する凸部分の面積比を Fill Factor(FF) といい, 定在波プラズモンモードはグレーティングの FF に大きく依存する [11]. 前述の通り, 分散関係上にバンドギャップが存在するためには, グレーティングの基本周波数成分 (K 成分) と共に, 第 2 高調波成分 ($2K$ 成分) が必要である. このとき, $FF = 0.25$ と 0.75 では $2K$ 成分が最も大きくなり, $FF = 0.5$ では $2K$ 成分がゼロとなる [2, 7]. 波数ゼロ, 回折されたプラズモン波の交点で角周波数が最も小さい位置における, $FF = 0.25, 0.75$ の分散関係とモードの電場分布の概要を図 10(a) と (b)

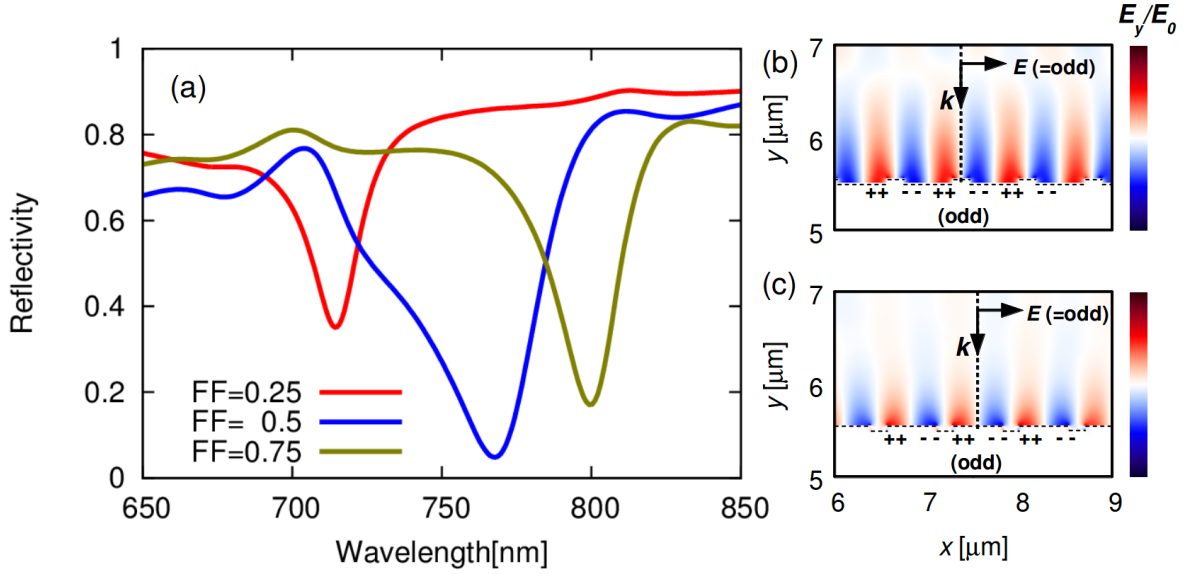


図 11 (a) 本数密度 1400 lines/mm, 深さ 50 nm, FF=0.25, 0.5, 0.75 をもつ矩形グレーティングの反射率. (b) 波長 720 nm, FF=0.25 における奇モードの y 方向電場分布. (c) 波長 800 nm, FF=0.75 における奇モードの y 方向電場分布

にそれぞれ示す. バンドギャップの両端に 2 つのモードが存在し, 角周波数が大きい方を ω_+ モード, 小さい方を ω_- モードという. 図 10(a) に示す FF = 0.25 の場合, ω_+ モードの電荷分布はグレーティング上の基準線に対して左右非対称 (奇) であるのに対し, ω_- モードでは左右対称 (偶) であることがわかる. 伝搬光の電場は左右非対称であるので, ω_+ モードだけが励起されることになる. 同様に, 図 10(b) に示す FF = 0.75 の場合, ω_- モードの電荷分布は左右非対称であるのに対し, ω_+ モードでは左右対称である.

ここで, FDTD シミュレーションを用いた矩形グレーティングのモード励起を模擬する. 本数密度 1400 lines/mm, 深さ 50 nm でそれぞれ FF = 0.25, 0.5, 0.75 のグレーティングターゲットに対して, P 偏光を垂直入射する. 図 11(a) に反射率分布のシミュレーション結果を示す. 図 10 に示したとおり, バンドギャップを生じない FF = 0.5 に対して, FF = 0.25 では短波長側に, FF = 0.75 では長波長側に反射率ディップをもつことがわかる. 波長 720 nm のときの FF = 0.25 と, 波長 800 nm のときの FF=0.75 の奇モードにおける電場分布をそれぞれ図 11(b)(c) に示す. どちらの電場分布もグレーティングの基準位置に対して左右非対称 (奇) であることが確認できる.

また, 矩形グレーティングの場合, 分散関係上の交点でバンドギャップが発生するかは, 矩形形状が, 該当する高調波成分をもつかどうかによって依存する. 図 12 に回折された表面プラズモンの分散関係におけるバンドギャップの存在条件を示す. 前方・後方伝搬するプラズモン波がそれぞれ正負の次数の回折を生じ, それらの分散が交点をもつ位置においてバンドギャップが発生する可能性がある. 交点位置の括弧内の数字はそれぞれの分散の回折次数を示しており, 矩形グレーティングがそれらの値の差に対応する高調波成分をもつときバンドギャップが発生する.

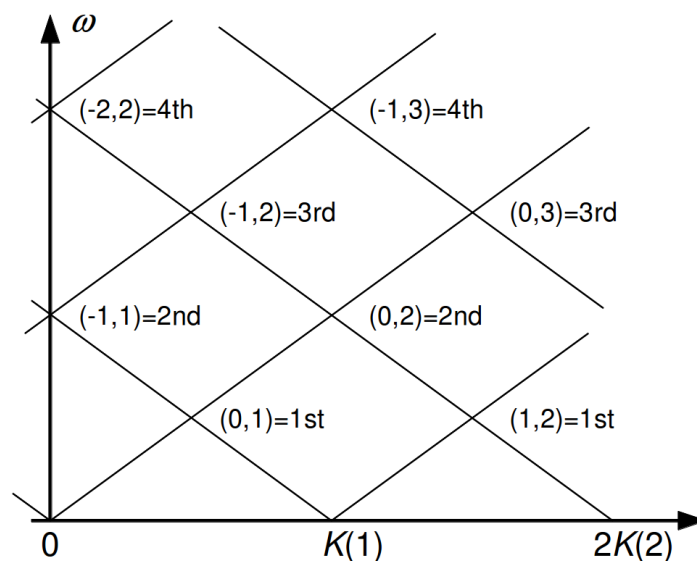


図 12 回折された表面プラズモンの分散関係におけるバンドギャップの存在条件．それぞれの直線は各回折次数に対する分散を示し，交点位置における括弧内の数字は回折次数をあらわしている．矩形グレーティングが回折次数の差に対応する高調波成分をもつ場合，その交点位置はバンドギャップが発生する．

2.4 プラズモニクスの高強度レーザー領域への応用

第 1 章で説明したように，高強度レーザー領域におけるナノ構造ターゲットを用いた研究は幅広くおこなわれている．例えば，エネルギー 10 J，パルス幅 0.6 ps，コントラスト 10^8 と比較的输出の大きいレーザーシステムで，フォームターゲットを用いた結果の方が平板ターゲットの場合よりも 3 倍大きい X 線フラックスを計測した例や [12]，集光強度 10^{16} W/cm²，パルス幅 30 fs のフェムト秒レーザーで，ナノロッドターゲットを用いた結果の方が平板ターゲットの場合よりも 43 倍大きい X 線フラックスが計測された例などが存在する [13]．これらのナノ構造ターゲットはすべてランダム配置であって，それらの実験で得られた利得は，構造表面に強い局所電場が生じる”電場集中”や，構造先端で電場が増強される”lightning rod effect”などによるものと説明できる．このような構造の効果をを用いた信号増強の例は，実験とシミュレーションの両面で非常に多く存在するものの，現在では，ランダム配置のナノ構造を用いた実験による信号増加は既知の事実であるといえる．ナノ構造ターゲットを用いて現状の利得を上回るためには，エネルギー吸収率を最適とするナノ構造パラメータの決定方法や，なぜ吸収率が高くなるのかを説明できる理論の構築が必要である．

2013 年に T. Ceccotti らが強度 10^{19} W/cm² の高強度レーザー領域において，ダブルプラズマミラーを用いた超コントラスト (10^{12}) 条件下のもと，薄膜マイラーグレーティングターゲットを用いて，平板ターゲットに対して約 2.5 倍のプロトンカットオフエネルギーを得たことについて第

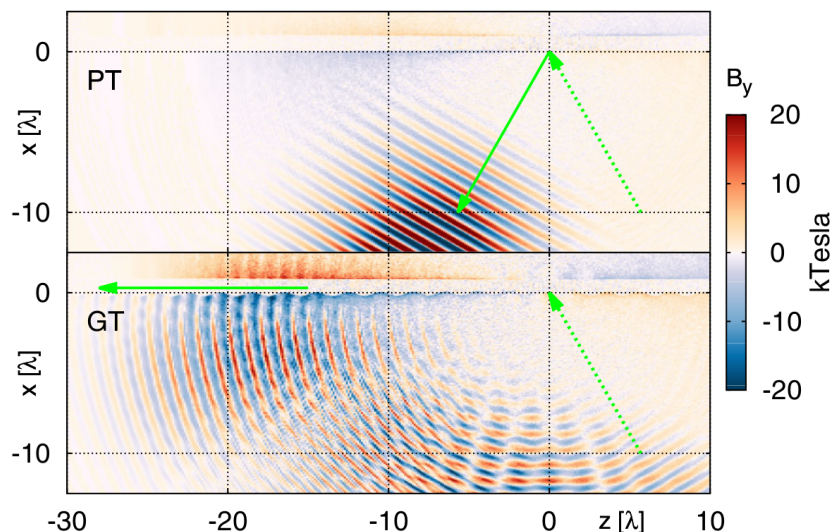


図 13 参考文献 [14] の図 5 から引用した 2DPIC シミュレーション結果. 厚み $0.8 \mu\text{m}$ の平板ターゲット (PT) とグレーティングターゲット (GT) へ入射角 30° でパルス入射したときの紙面垂直方向の磁場 B_y 成分を示している. 実線が入射光伝搬方向を示し, 点線が反射光伝搬方向を示している. 文献では, “グレーティングターゲットではターゲット表面に伝搬する波と反射光がみられるが, 平板ターゲットでは反射光成分しかみられない”と説明されているが, 表面波とされる波は正負の振動成分を一切もたず, 単純な表面電流であると考えられる.

1 章で既に述べた [14]. しかし, T. Ceccotti らの報告にはいくつかの疑問点が存在する. 1 つ目は, レーザー入射角を 10° から 50° まで変えたときのプロトンのカットオフエネルギー計測結果において, 平板ターゲットとグレーティングターゲットが共に入射角 30° でエネルギーピークをもつ点が挙げられる. このとき, 表面プラズモンの共鳴角は 30° であるので, グレーティングターゲットがこの入射角においてエネルギーピークをもつのは正しいことであるが, 平板ターゲットも同じ角度でピークをもっているため, 両者のエネルギーピークは Brunel 吸収 (真空加熱) の入射角依存性が原因であると考えられる [15]. Brunel 吸収はプレプラズマのスケール長によって吸収に最適な入射角をもつことが知られており, グレーティングターゲットと平板ターゲットを比較した場合には, Brunel 吸収による影響を排除することができない. 疑問点の 2 つ目は, 共鳴条件を満たす入射角 30° において, 超高コントラスト (10^{12}) と比較的低コントラスト (10^8) のショットで得られたターゲット裏面におけるプロトン信号を比較したとき, 低コントラストショットの結果の方が高フラックスのプロトンが計測されている点である. また, 高コントラストショットの場合に得られていた回折光による信号が, 低コントラストショットでは無くなっていることから, 低コントラストショットではメインレーザーパルスの到達前にグレーティング表面の構造が破壊されていた可能性が高い. したがって, グレーティング形状が破壊され, 表面プラズモンが励起されない場合の方がプロトンの信号が強く出るといふ, 理論からの予測と食い違う結果が示されたことになる.

最後の疑問点は, PIC シミュレーションの結果が表面プラズモン共鳴を模擬できているのかという点である. 図 13 に T. Ceccotti らの文献 [14] の図 5 に示されている 2DPIC シミュレーショ

2.5 まとめ

ン結果を示す．厚み $0.8\ \mu\text{m}$ の平板ターゲット (PT) とグレーティングターゲット (GT) へ入射角 30° でパルスを入射したときの紙面垂直方向の磁場 B_y 成分を示しており．点線が入射光伝搬方向を示し，実線が反射光伝搬方向と表面波伝搬方向を示している．文献中では”グレーティングターゲットでは表面に伝搬する波が観測されているのに対して，平板ターゲットでは反射光しか観測されていない”と主張されているが，図中の表面伝搬波は図 5(d) に示したような正負の振動成分を一切もたないので，表面電流ではないかと推測される．また，この文献 [14] は，PIC シミュレーションで表面プラズモン共鳴を模擬できている他の文献として [16] や [17] などを挙げている．文献 [16] と [17] はどちらも PIC シミュレーションでグレーティングターゲットを用いたときに励起される表面プラズモンの増倍効果を平板ターゲットと比較した結果を報告している．文献 [16] はレーザー強度を 10^{15} から 10^{20} まで変えたときグレーティングターゲットで得られる電場増強度を示し，文献 [17] はレーザー強度 $10^{19} \sim 10^{20}$ のとき，グレーティングターゲットで得られるイオン加速の効率向上を示している．しかし，ナノ構造ターゲットを用いると電場集中や lightning rod effect などの構造自体の効果によって信号増強が得られるため，表面プラズモン共鳴の寄与を正確に評価するには，構造パラメータの異なるグレーティングターゲット同士で比較をおこなうことが必要である．もし，グレーティングターゲットと平板ターゲットを比較して信号の増倍が得られたとしても，その結果にはナノ構造自体による信号増強の効果や Brunel 吸収の効果などが含まれるため，純粋な表面プラズモンの効果を評価することはできない．

本研究では，純粋な表面プラズモン共鳴の効果を評価するため，異なる構造パラメータをもつグレーティングターゲット同士の結果を比較し，ナノ構造による信号増強効果と Brunel 吸収の入射角依存性などの可能性を排除した実験と考察をおこなう．また，これまでの研究報告はすべて片方へ伝搬する表面プラズモンの励起による信号増強に関するものであり，両側へ伝搬する表面プラズモンを励起した”定在プラズモンモード”を用いた信号増強の研究は実験，シミュレーション共に報告された例がない．したがって，本研究では，純粋な表面プラズモン効果を評価することに加えて，定在プラズモンモードを高強度レーザー領域に初めて応用した研究について報告する．

2.5 まとめ

本章では，プラズモニクスの概要について説明した．まとめは以下の通りである．

1. プラズモニクスの概要として，表面プラズモンと局在プラズモンの性質と有用性，励起方法について説明した．表面プラズモンは，プリズムまたはグレーティングを用いることにより，伝搬光と表面プラズモンが分散関係上で交点をもつことによってエネルギー結合が可能となることについて述べた．局在プラズモンは，レーザー光照射によって常に励起することが出来るが，ナノ構造形状，材質，レーザー波長が条件を満たす場合は最大エネルギー吸収が得られることについても述べた．
2. 表面プラズモン波はターゲット表面において，レーザー光の進行方向と逆方向のそれぞれに伝搬しており，両者を同時に励起するとき分散関係上にバンドギャップが生じることについて

2.5 まとめ

て述べた。また、バンドギャップ両端で励起される定在波プラズモンをモードとよび、その励起条件はグレーティング形状に大きく依存することについて述べた。

3. ナノ構造ターゲットの既存の研究例と、プラズモニクスを高強度レーザー領域に応用する試みについて述べた。近年報告されている高強度レーザー領域での表面プラズモンの研究では、グレーティングターゲットを用いたほうが平板ターゲットよりも信号増強が得られることについて報告されているが、異なる構造パラメータをもつグレーティングターゲット同士を比較しない限りはナノ構造自体の増倍効果と Brunel 吸収の入射角依存性などの可能性を排除できないため、表面プラズモン共鳴の純粋な増倍効果を検証できない点について述べた。

参考文献

- [1] W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Evvesen, “Surface plasmon subwavelength optics” , Nature **424**, 824 (2003).
- [2] 岡本隆之, 梶川浩太郎, “プラズモニクス-基礎と応用” , (講談社, 2010 年).
- [3] 永島圭介, “表面プラズモンの基礎と応用” , J. Plasma Fusion Res. **84**, 10 (2008).
- [4] 河田聡, 高木俊夫, “表面プラズモン共鳴センサとは” , 蛋白質 核酸 酵素 **37**, 10 (1992).
- [5] A. F. Oskooi, D. Roundy, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, and S. G. Johnson, “MEEP: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method” , Comp. Phys. Commun. **181**, 687 (2010)
- [6] I. Zoric, M. Zach, B. Kasemo, and C. Langhammer, “Gold, Platinum, and Aluminum Nanodisk Plasmonics: Material Independence, Subradiance, and Damping Mechanisms” , ACSNano **5**, 2535 (2011).
- [7] T. Okamoto, J. Simonen, and S. Kawata, “Plasmonic band gap of structured metallic thin films evaluated for a surface plasmon laser using the coupled-wave approach” , Phys. Rev. B **77**, 115425 (2008).
- [8] A. Kocabas, S. S. Senlik, and A. Aydinli, “Plasmonic band gap cavities on biharmonic gratings” , Phys. Rev. B **77**, 195130 (2008).
- [9] A. Kocabas, G. Ertas, S. S. Senlik, and A. Aydinli, “Plasmonic band gap structures for surface enhanced Raman scattering” , Opt. Express **16**, 12469 (2008).
- [10] W. L. Barnes, T. W. Preist, C. Kitson, J. R. Sambles, N. P. K. Cotter, and D. J. Nash, “Photonic gaps in the dispersion of surface plasmons on gratings” , Phys. Rev. B **51**, 164 (1995).
- [11] 岡本隆之, “プラズモニクバンドギャップレーザー” , レーザー研究 第 **34** 巻第 **5** 号, 359 (2006).
- [12] A. L. Lei, K. A. Tanaka, R. Kodama, G. R. Kumar, K. Nagai, T. Norimatsu, T. Yabuuchi, and K. Mima, “Optimum Hot Electron Production with Low-Density Foams for Laser Fusion by Fast Ignition” , Phys. Rev. Lett. **96**, 255006 (2006).
- [13] S. Mondal, I. Chakraborty, S. Ahmad, D. Carvalho, P. Singh, A. D. Lad, V. Narayanan, P. Ayyub, and G. R. Kumar, “Highly enhanced hard x-ray emission from oriented metal nanorod arrays excited by intense femtosecond laser pulses” , Phys. Rev. B **83**, 035408 (2011)
- [14] T. Ceccotti, V. Floquet, A. Sgattoni, A. Bigongiari, O. Klimo, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, F. Baffigi, L. Labate, L. A. Gizzi, L. Vassura, J. Fuchs, M. Passoni, M. Kveton, F. Novotny, M. Possolt, J. Prokupek, J. Proska, J. Psikal, L. Stolcova, A. Velyhan, M. Bougeard, P. D. Oliveira, O. Tcherbakoff, F. Reau, P. Martin, and A. Macchi, “Evidence

- of Resonant Surface-Wave Excitation in the Relativistic Regime through Measurements of Proton Acceleration from Grating Targets” , Phys. Rev. Lett. **111**, 185001 (2013)
- [15] P. Gibbon and A. R. Bell, “Collisionless Absorption in Sharp-Edged Plasmas” , Phys. Rev. Lett. **68**, 1535 (1992)
- [16] A. Bigongiari, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, and A. Macchi, “Efficient laser-overdense plasma coupling via surface plasma waves and steady magnetic field generation” , Phys. Plasmas **18**, 102701 (2011)
- [17] A. Bigongiari, M. Raynaud, C. Riconda, and A. Heron, “Improved ion acceleration via laser surface plasma waves excitation” , Phys. Plasmas **20**, 052701 (2013)

3 ターゲット材料の選択による高速電子スペクトルの制御

3.1 はじめに

一般的に、高強度レーザーメインパルスがターゲットに到達する時刻では、プレパルスがつくりだした低密度プラズマがターゲット表面を覆っているため、レーザーメインパルスは臨界密度プラズマと相互作用して高速電子を生成し、その温度はレーザー強度のスケーリング式から決まる。一方で、超高コントラストレーザーシステムを用いた場合、プレパルスが引き起こすアブレーションプラズマの噴き出しが抑制され、プレプラズマの密度勾配が急峻に保たれるためレーザーパルスの侵入長がプレプラズマのスケール長を超え、臨界密度以上の高密度プラズマ位置で相互作用が起こる可能性がある。

本章では、電子温度がターゲット電子密度に反比例する温度スケーリングの予測を基にし、高コントラストレーザーシステムを用いてアブレーションプラズマの噴き出しを抑制した状態において、ターゲット材料の選択によって高速電子スペクトルを制御できる可能性について実験と考察をおこなったことについて述べる。

3.2 高強度レーザーと急峻な密度勾配をもつプラズマの相互作用

3.2.1 高速電子温度のプラズマ電子密度に対する依存性

レーザーシステムのコントラストが ($\leq 10^6$) 程度と比較的低い場合、レーザー集光強度 10^{19} W/cm² ではプレパルスの強度は 10^{13} W/cm² となって金属のアブレーションしきい値を超えてしまうため、メインレーザーパルスがターゲットに到達する時点では、ターゲット表面と真空境界の急峻な密度プロファイルが既に崩れている可能性が高い [1]。このとき、生成される高速電子の温度は式 (1.14) であらわされる Ponderomotive スケーリングから得られる [2]。一方、OPCPA [3] やプラズマミラー [4] などのプレパルス抑制技術が開発されたこともあり、コントラストが最大 10^{12} まで達するレーザーシステムも登場している [5]。このような超高コントラストレーザーシステムを用いた場合、メインレーザーパルス到達前のプラズマ膨張を極力抑え、ターゲット表面の密度勾配を急峻に保つことができる。 ω をレーザーの角周波数、 c を光速とするとレーザーパルスのプラズマへの侵入長 l は $l \sim c/\omega$ であらわされるが、この長さがプラズマスケール長を上回る場合、レーザーパルスは臨界密度以上の密度プラズマと相互作用することができる。

Chrisman らは 2DPIC シミュレーションを用いて、表面が低密度プラズマに覆われたコーンターゲットへ高強度レーザーパルスを入射したとき、臨界密度プラズマから加速された高速電子の温度は Ponderomotive スケーリングに従うが、時間経過と共にレーザーパルスがプレプラズマ中の電子を前方に積み上げながら進行し、急峻化した密度勾配をもつプラズマから加速された高速電子の温度はターゲット電子密度に反比例するという結果を示した [6, 7]。このスケーリングでは、高速電子の温度 T_e は

3.2 高強度レーザーと急峻な密度勾配をもつプラズマの相互作用

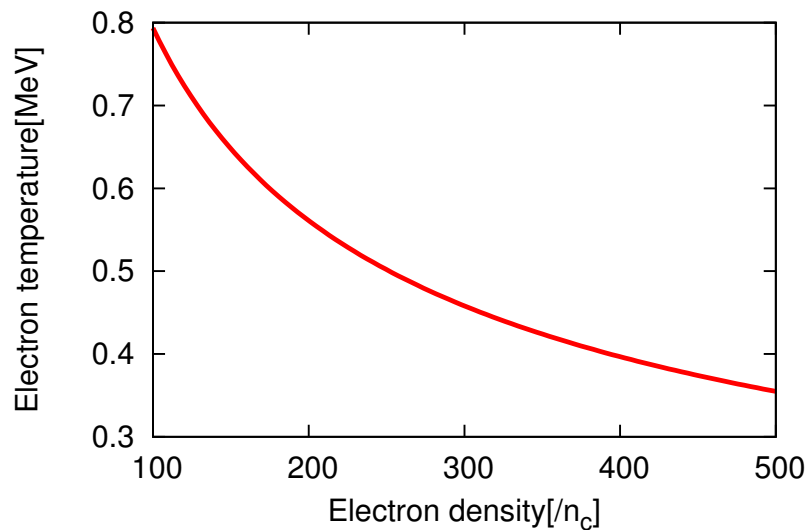


図1 レーザー強度 10^{20} W/cm², 波長 $0.8 \mu\text{m}$ において, 式 (3.1) の Chrisman スケーリングから求めた電子温度の固体密度に対する依存性. 電子温度はターゲット電子密度の 0.5 乗に依存する.

$$T_e = m_e c^2 (\gamma - 1) \left(\frac{\gamma n_c}{n_e} \right)^{1/2} \quad (3.1)$$

とあらわされ, m_e は電子質量, γ はローレンツ因子, n_c は臨界密度, n_e は電子密度である. 式 (3.1) から, Chrisman スケーリングでは高速電子の温度はターゲット電子密度の 0.5 乗に依存する. レーザー強度 $I = 10^{20}$ W/cm², 波長 800 nm として計算したターゲット電子密度に対する電子温度の変化を図 1 に示す. このとき, シミュレーション結果ではレーザーから高速電子へのエネルギー変換効率はターゲット電子密度にほとんど依存しないことから [6], 高コントラストレーザーを用いてプレプラズマを抑制したとき, ターゲット選択によって高速電子のエネルギースペクトルを制御できる可能性がある.

表 1 Al, Cu, Au の材料特性

| | Al | Cu | Au |
|---------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 原子番号 | 13 | 29 | 79 |
| イオン密度 [/cm ³] | $6.02 \times 10^{22} (= 34.5n_c)$ | $8.45 \times 10^{22} (= 48.8n_c)$ | $5.90 \times 10^{22} (= 34.1n_c)$ |
| 電子密度 [/cm ³] | $7.78 \times 10^{23} (= 447n_c)$ | $2.45 \times 10^{24} (= 1400n_c)$ | $4.63 \times 10^{24} (= 2660n_c)$ |

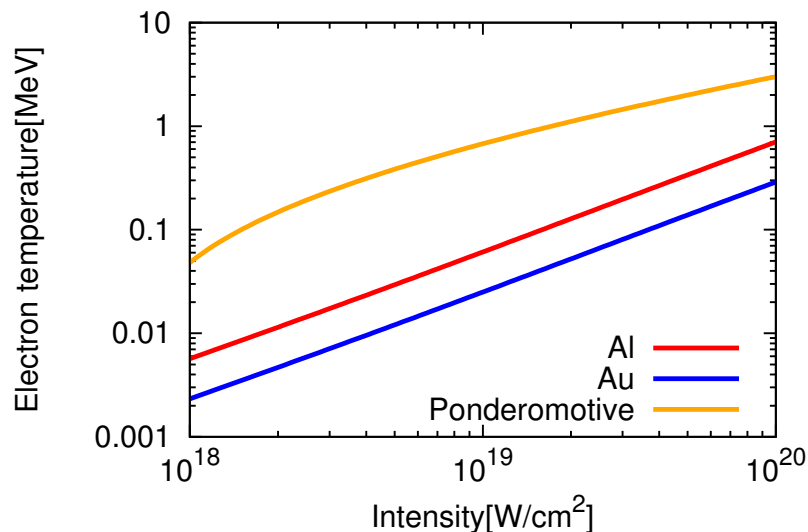


図 2 ターゲット材料が Al と Au, レーザー波長 800 nm のとき, 式 (3.1) の Chrisman スケーリングから計算される電子温度のレーザー強度に対する依存性と Ponderomotive スケーリングの比較. レーザー強度 10^{19} W/cm² では, Ponderomotive スケーリングが 1 MeV であるのに対して, Al では 70 keV, Au では 20 keV といった非常に低い値が得られる.

3.2.2 材料選択による高速電子スペクトル制御への可能性

金属材料の一例として, Al, Cu, Au の原子番号, イオン密度, 電子密度を表 1 に示す. ここで, イオン密度は原子核の個数密度, 電子密度は束縛電子と自由電子をすべて足し合わせた電子の個数密度である. また, 表中の電子密度には波長 800 nm のプラズマ臨界密度 ($n_c = 1.73 \times 10^{21}$ /cm³) に対する倍数表示を併記している. レーザー波長を 800 nm としたとき, 式 (3.1) を用いて計算した電子温度のレーザー強度依存性を図 2 に示す. レーザー強度 10^{19} W/cm² のときの値に注目すると, Ponderomotive スケーリング値は 1 MeV であるのに対して, Chrisman スケーリングから計算される Al と Au の電子温度はそれぞれ 70 keV, 20 keV と極めて低い値を示している.

ここで, Chrisman らが用いた PIC シミュレーションは高強度レーザー電場や電子衝突によるターゲット材料の電離効果を考慮しておらず, レーザーパルスと完全電離プラズマの相互作用を模擬している [6]. このとき, 入射レーザーから生成電子へのエネルギー変換効率は, シミュレーション結果ではターゲット電子密度に依らず一定値が得られているが, 物質の電離過程を考慮した場合は, ターゲット材料間で異なる値が得られるはずである. したがって, 上記のようなスケーリングのモデル間から得られた大きな電子温度差が実験で観測されるかは不明である. 一方, Haines らは, 臨界密度以上のプラズマとレーザーパルスが相互作用したとき, 電子が受ける加速距離が臨界密度プラズマの場合よりも短くなることにより Ponderomotive スケーリング値より低い電子温度が得られることを理論から予測している [8]. したがって, まずイオン化を考慮したシミュレー

3.2 高強度レーザーと急峻な密度勾配をもつプラズマの相互作用

シミュレーションを用いて電子温度がターゲット密度に依存することを確認し、その後ターゲット材料の選択によって高速電子スペクトルを制御する実験をおこなった。

3.2.3 粒子シミュレーションを用いた電子スペクトル制御の予測

まず、イオン化を考慮したシミュレーションを用いて、高速電子の温度がターゲット電子密度に依存することの確認をおこなった。ネバダ大学リノ校の千徳靖彦教授、広島大学の城崎知至准教授にご協力をいただき、PIC シミュレーション (PICLS1D) を用いて、様々な条件における高速電子スペクトル、電子密度、電離度の検討をおこなった。PICLS1D コードは高強度のレーザー電場と粒子衝突によるイオン化を考慮した 1 次元 PIC コードである [9, 10]。シミュレーション条件は、レーザー強度 10^{19} W/cm²、パルス幅 80 fs、波長 $\lambda_L = 800$ nm、Al, Cu, Au ターゲットの厚みをそれぞれ 2, 10, 2.5 μm 、初期電離度 2、セルサイズ 100 cell/ λ_L 、粒子数を 200 個/cell としてイオンを固定配置している。初期電子密度分布は、プレプラズマのスケール長を 0.3 μm とし、ターゲット表面 ($x = 22\mu\text{m}$) で電子密度が $5n_c$ となるように配置した。レーザー周期 $t_L = 2.73$ s であり、時刻 $t = 65t_L$ において固体内部の位置で計測した電子スペクトルのシミュレーション結果を図 3 に示す。このとき、ターゲット裏面のシース電場に引き戻される往復電子を複数回カウントしているため、厚みが最も薄い 2 μm の Al ターゲットで電子個数が最も高い結果が得られている。図 3 の結果では、電子スペクトルのスロープ温度は各ターゲット材料に対して変化がみられず、すべて 0.45 MeV 程度であった。このとき、レーザー強度 10^{19} W/cm² における Ponderomotive スケーリング値が 0.7 MeV であるのに対して、ターゲット表面に配置した電子密度 $5n_c$ に対する Chrisman スケーリング値が 0.48 MeV であり、シミュレーション結果のスロープ温度 0.45 MeV とほぼ同値であった。また、図 4(a) に電子密度分布、図 4(b) に電離度分布のシミュレーション結果を示す。このとき、電離度分布の凹凸は入射波と反射波が起こす定在波の位置に相当している。プレプラズマ領域 ($x \leq 22 \mu\text{m}$) では、最大電離度が Al, Cu, Au ターゲットに対してそれぞれ 12, 14, 27 と高い値を示す一方で、固体密度領域 ($x \geq 22 \mu\text{m}$) では、電子密度と電離度は初期値からほとんど変化がみられなかった。したがって、レーザー強度 10^{19} W/cm² の入射パルスでは、設定した密度分布をもつプレプラズマを十分に排斥できず主にプレプラズマと相互作用したため、プレプラズマ表面の電子密度 $5n_c$ に対応する Chrisman スケーリング値が得られたと考えられる。今回用いたシミュレーション条件では、入射レーザーパルスが固体密度プラズマと相互作用していないため、ターゲット固体密度に依存する電子スペクトルの変化を観測することができていない。

次に、レーザー強度を 10^{20} W/cm² とし、プレプラズマを一切配置せず入射レーザー電場と固体密度プラズマとの直接相互作用を模擬し、ターゲット密度に依存する電子スペクトルを明確に観測することを目的としたシミュレーションをおこなった。各ターゲット厚みは 5 μm で一定として、ターゲット裏面へ到達した電子を熱速度まで減速させて反射させる吸収境界を用いることによって、電子が粒子の観測線を何度も往復する影響を抑えた。ここで、ターゲット表面は $x = 5 \mu\text{m}$ である。図 5 に時刻 $t = 50t_L$ において固体内部の位置で観測した電子スペクトルのシミュレーション結果を示す。各ターゲットにおける電子スロープ温度はおおよそ 0.25 MeV であり、レーザー強度 10^{20} W/cm² に対する Ponderomotive 値である 3.0 MeV と比較して一桁以上低い値が得られた。

3.2 高強度レーザーと急峻な密度勾配をもつプラズマの相互作用

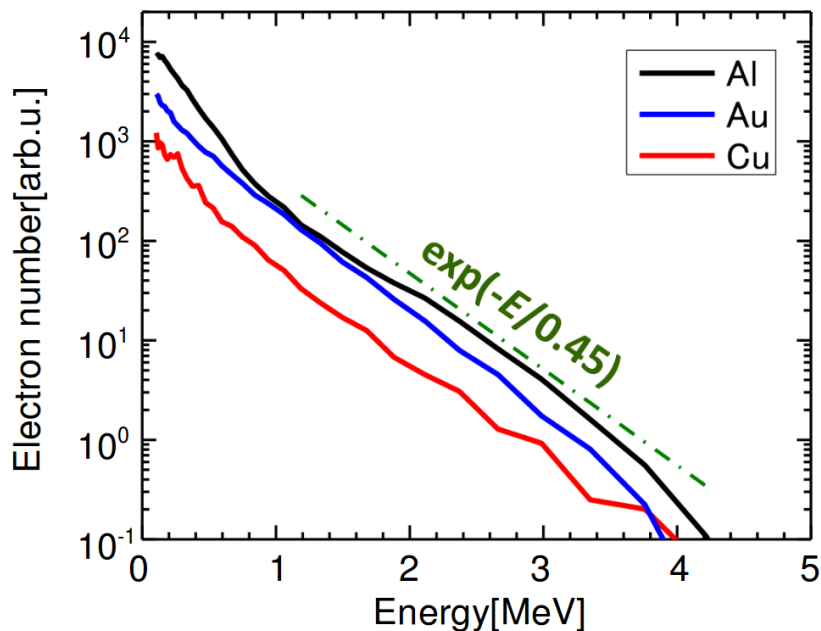


図3 レーザー強度 10^{19} W/cm², パルス幅 80 fs, 波長 800 nm のとき, Al, Cu, Au ターゲットにおける電子スペクトルの PIC シミュレーション結果. 電子温度にはターゲット材料依存性がみられず, すべて約 $T_e=0.45$ MeV で一定である.

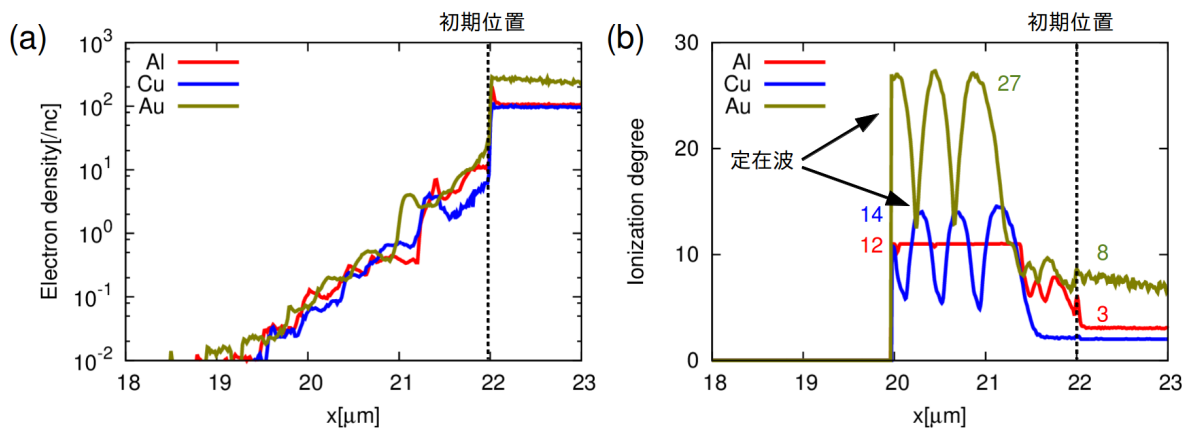


図4 レーザー強度 10^{19} W/cm², パルス幅 80 fs, 波長 800 nm のとき, Al, Cu, Au ターゲットにおける (a) 電子密度, (b) 電離度のシミュレーション結果. 固体密度領域 ($x \geq 22$ μm) における電子密度と電離度は初期値からほぼ変化がないことから, 入射レーザーパルスは主にプレプラズマと相互作用していると考えられる.

3.2 高強度レーザーと急峻な密度勾配をもつプラズマの相互作用

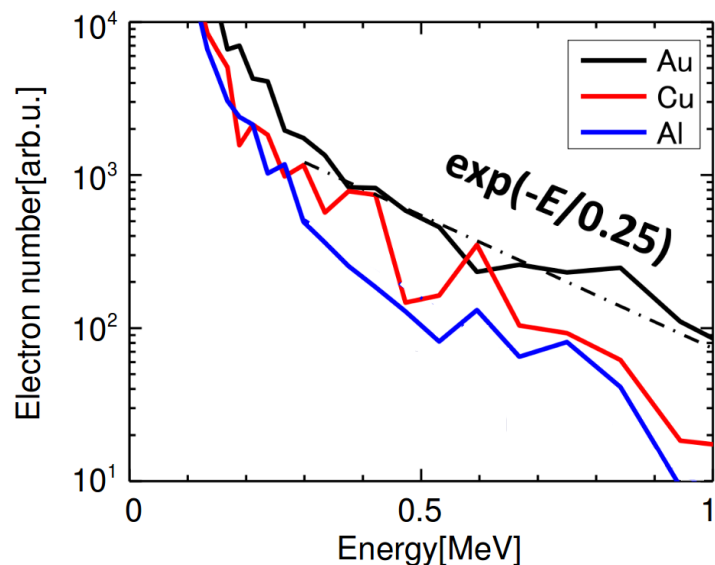


図5 レーザー強度 10^{20} W/cm², パルス幅 80 fs, 波長 800 nm のとき, Al, Cu, Au ターゲットにおける電子スペクトルの PIC シミュレーション結果. 各ターゲットの電子温度は約 0.25 MeV であり, Al, Cu, Au ターゲットにおける Chrisman スケーリング値がそれぞれ 0.28 MeV, 0.22 MeV, 0.19 MeV であり両者に一致がみられる. このとき, Ponderomotive スケーリング値は 3.0 MeV である.

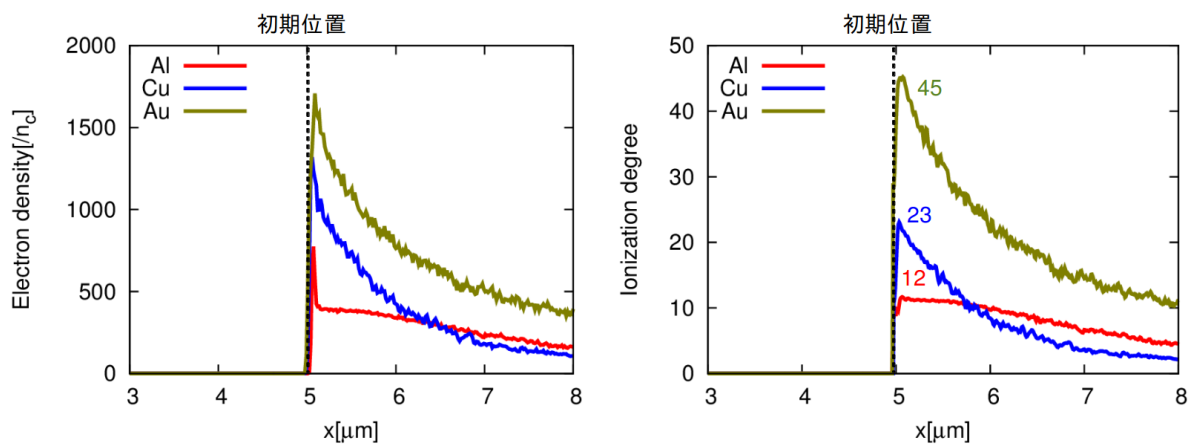


図6 レーザー強度 10^{20} W/cm², パルス幅 80 fs, 波長 800 nm のとき, Al, Cu, Au にターゲットにおける (a) 電子密度, (b) 電離度のシミュレーション結果. 高強度レーザー電場と固体密度のターゲットが直接相互作用することにより, 固体表面の電子密度が非常に高くなっている. 固体表面における電離度最大値は, Al, Cu, Au ターゲットでそれぞれ 12, 23, 45 である.

3.3 高コントラストレーザーパルスと金属薄膜ターゲットの相互作用

このとき、Chrisman スケーリング値は、Al, Cu, Au ターゲットに対してそれぞれ 0.28 MeV, 0.22 MeV, 0.19 MeV であり、これらの値はシミュレーションから得られた温度 0.25 MeV と近い値であった。図 6(a) に電子密度分布、図 6(b) に電離度分布のシミュレーション結果を示す。図 6(a) では、高強度レーザー電場によるターゲットのイオン化が進んだ結果、固体表面において非常に高い電子密度が得られている。また、図 6(b) では、Cu, Au ターゲットの固体表面 ($x = 5 \mu\text{m}$) における電離度の最大値がそれぞれ 23, 45 であり、レーザー強度 10^{19} W/cm^2 の結果と比較すると約 2 倍の値が得られている。以上の結果から、レーザーパルスが固体密度プラズマと相互作用する場合、生成される高速電子の温度はターゲット電子密度に依存することが確認できた。

3.3 高コントラストレーザーパルスと金属薄膜ターゲットの相互作用

3.3.1 実験セットアップ

原子力研究開発機構、関西光科学研究所が所有する高コントラストレーザーシステム (J-KAREN:JAEA-Kansai Advanced Relativistic ENgineering) を用いて実験をおこなった [11, 12]。レーザーシステムのパラメータは、エネルギー 20 J、波長 800 nm、パルス幅 80 fs で、レーザー集光強度は $5 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ である。J-KAREN システムはレーザーコントラスト向上のために OPCPA を導入しており、メインパルスの 400 ps 前でコントラスト 10^{10} を達成している [11, 12]。図 7 に実験セットアップを示す。レーザーパルスは入射角 45° でターゲットに P 偏光入射する。計測器は、レーザー軸方向に Electron spectrometer(ESM)、ターゲット裏側垂直方向に Online Time of Flight(TOF) のプロトンスペクトロメータを配置した。ESM ではコリメータを通過した電子に磁場をかけ、ローレンツ力によって電子の軌道を曲げたあと、Imaging Plate(IP, 富士フイルム株式会社: BAS-SR2025) で信号を検出する。このとき、運動エネルギーによって検出器上に電子が到達する距離が異なることを利用してスペクトルを計測できる [13]。プロトンスペクトロメータでは、検出器にプラスチックシンチレータと Multi-Channel Plate(MCP) を利用し、プロトンの信号をシンチレータの発光から MCP で電気信号に変換し、オシロスコープを介して検出している。プロトンのエネルギースペクトルは荷電粒子が検出器に到達する時間差を利用して計測される [14]。Online-TOF を用いる利点は、CR39 を用いたときのようにショットごとに化学的処理をおこなう必要がなく、実験と平行しながらスペクトルを得られることである。ここで、プロトンのエネルギースペクトルは高速電子スペクトルと相関をもつため、両者を比較することによって、高速電子の情報をより深く解析することができる。ターゲットは Al($=2 \mu\text{mt}$), Cu($=10 \mu\text{mt}$) と Au($=2.5 \mu\text{mt}$) を用いた。前節で述べた Chrisman スケーリングに基づけば、電子密度が高い Au, Cu, Al ターゲットの順番に電子温度が低くなるはずである。

3.3.2 電子スペクトル計測結果

電子スペクトル計測結果を図 8(a) に示す。Al, Cu, Au ターゲットを用いたときの電子温度をそれぞれ $T_{\text{Al,exp}}$, $T_{\text{Cu,exp}}$, $T_{\text{Au,exp}}$ とおくと、 $T_{\text{Al,exp}} = 2.02 \text{ MeV} (\pm 0.02 \text{ MeV})$, $T_{\text{Cu,exp}} = 1.71 \text{ MeV} (\pm 0.04 \text{ MeV})$, $T_{\text{Au,exp}} = 1.47 \text{ MeV} (\pm 0.04 \text{ MeV})$ であった。ここで、括弧内の値はフィッ

3.3 高コントラストレーザーパルスと金属薄膜ターゲットの相互作用

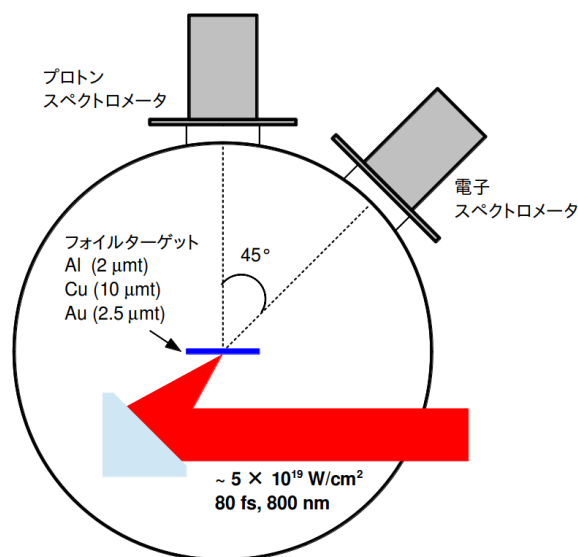


図 7 Chrisman スケーリングを実証するための J-KAREN レーザーシステムを用いた実験セッアップ図. レーザーシステムのパラメータは, エネルギー 20 J, 波長 800 nm, パルス幅 80 fs で, レーザー集光強度は $5 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ である. レーザー軸に設置した Electron spectrometer(ESM) を用いて高速電子のスペクトルを計測し, ターゲット裏面垂直方向に配置した Online Time of Flight 型プロトンスペクトロメータを用いてプロトンのカットオフエネルギーを計測した.

ティング誤差を示す. 実験結果から Al, Au ターゲット間では, $T_{\text{Al,exp}}/T_{\text{Au,exp}} = 1.4$ の電子温度差が生じた. このとき, Au ターゲットショット時のエネルギーは, Al, Cu ターゲットの場合と比較して 20 %程度小さかったため, Au ターゲットショット時に生成された電子の個数が相対的に低くなっている. また, Chrisman スケーリングでは電子密度 $n_e = 1000 n_c$ のターゲットに対して $T_e = 34 \text{ keV}$ となり, 実験値と比較して 1 桁以上低い値が得られるはずである. ここで, レーザー強度 $5 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ の Ponderomotive スケーリングから計算される電子温度 T_{pon} は, Al, Cu ターゲットショット時のレーザー強度に対しては $T_{\text{pon}} = 2.02 \text{ MeV}$, Au ターゲットショット時のレーザー強度に対しては $T_{\text{pon}} = 1.80 \text{ MeV}$ である. したがって, 実験結果は Chrisman スケーリングではなく Ponderomotive スケーリングに近い値であるため, ターゲット間で生じた電子温度差は電子密度以外の要因から生じていると考えられる.

1DPICLS シミュレーションを用いて, 各ターゲット間で電子温度差が生じた原因を考察した. レーザーパラメータは実験条件と同一 (レーザー強度 $5 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$, パルス幅 80 fs, 波長 800 nm) であり, 各ターゲット (Al, Cu, Au) の厚みは全て 2 μm とした. 初期条件における電子密度分布は, プレプラズマのスケール長を 0.3 μm , ターゲット表面 ($x = 22 \mu\text{m}$) で臨界密度 n_c となるようにした. また, 初期電離度を 2, セルサイズを 100 cell/ λ , 1 セルに 200 個の粒子を配置している. 時刻 $t = 65t_L$ における各ターゲットに対する電子スペクトルのシミュレーション結果を図 8 に示す. シミュレーションから得られた Al, Cu, Au ターゲットにおける電子温度を

3.3 高コントラストレーザーパルスと金属薄膜ターゲットの相互作用

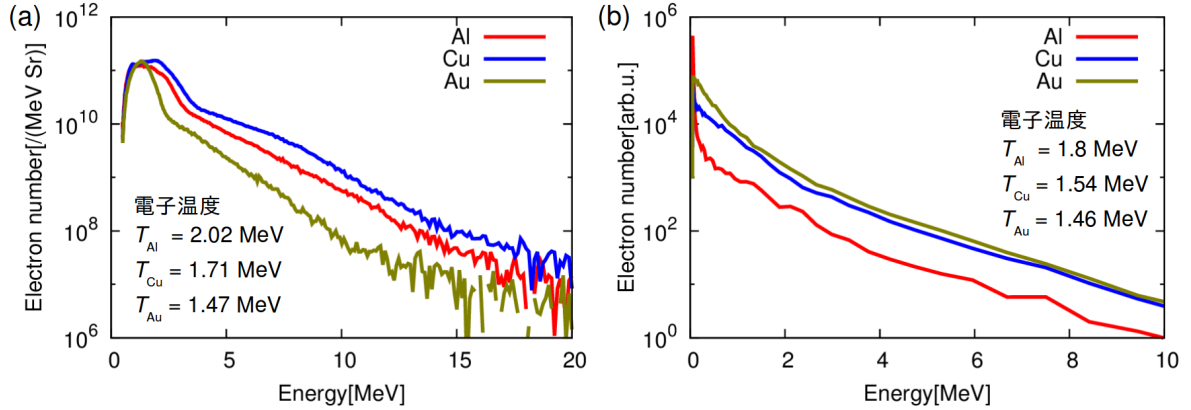


図8 各ターゲット材料に対する電子スペクトルの (a) 実験結果, (b) PIC シミュレーション結果. 実験とシミュレーションの双方において, 電子温度が高い順から $T_{\text{Al}} > T_{\text{Cu}} > T_{\text{Au}}$ となり, ターゲット電子密度が高いほど電子密度が低くなる傾向がみられた. 実験結果において, Au ターゲットに対するショットエネルギーは他ショットと比較して 20 %低いので, 電子個数が相対的に低くなっている.

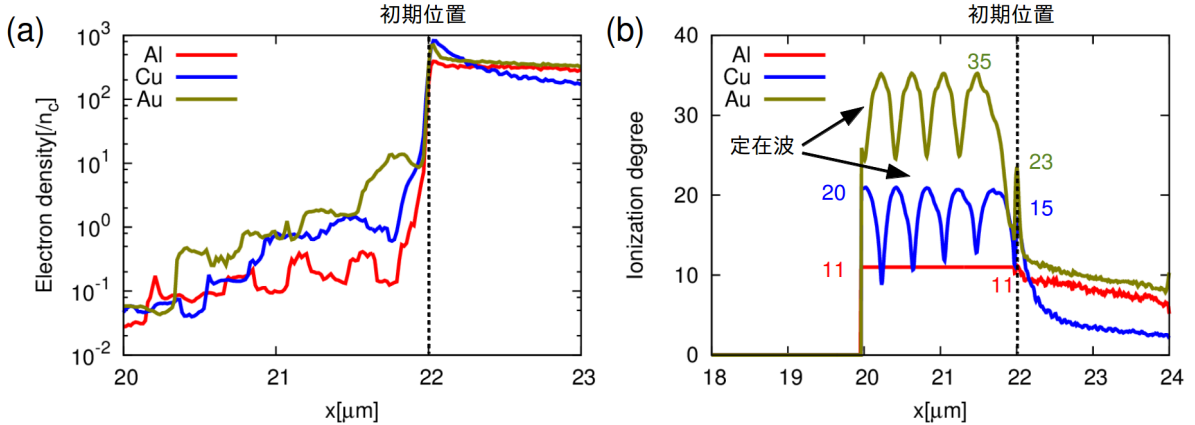


図9 (a) 電子密度プロファイルのシミュレーション結果, (b) 電離度プロファイルのシミュレーション結果. プレプラズマ領域 ($x \leq 22 \mu\text{m}$) において各ターゲットの電離度平均値を取ると, Al, Cu, Au ターゲットでそれぞれ 11, 15, 35 であった.

それぞれ $T_{\text{Al,sim}}$, $T_{\text{Cu,sim}}$, $T_{\text{Au,sim}}$ とおくと, $T_{\text{Al,sim}} = 1.8 \text{ MeV} (\pm 0.1 \text{ MeV})$, $T_{\text{Cu,sim}} = 1.54 \text{ MeV} (\pm 0.03 \text{ MeV})$, $T_{\text{Au,sim}} = 1.46 \text{ MeV} (\pm 0.03 \text{ MeV})$ であった. このとき, Al と Au ターゲット値の Ponderomotive スケーリング値に対する比をとると, 実験結果では, $T_{\text{Al,exp}}/T_{\text{pon}} = 1.0$, $T_{\text{Au,exp}}/T_{\text{pon}} = 0.8$, シミュレーション結果では, $T_{\text{Al,sim}}/T_{\text{pon}} = 0.9$, $T_{\text{Au,sim}}/T_{\text{pon}} = 0.8$ であり, 両者に良い一致がみられた.

次に, 図 9(a) に電子密度分布のシミュレーション結果を示す. プレプラズマ領域 ($x \leq 22 \mu\text{m}$) では, 高 Z 物質であるほど電子密度が高い一方で, 固体密度領域 ($x \geq 22 \mu\text{m}$) では, 各ターゲットで電子密度が一定であることがわかる. また, 図 9(b) に電離度分布のシミュレーション結果を

3.3 高コントラストレーザーパルスと金属薄膜ターゲットの相互作用

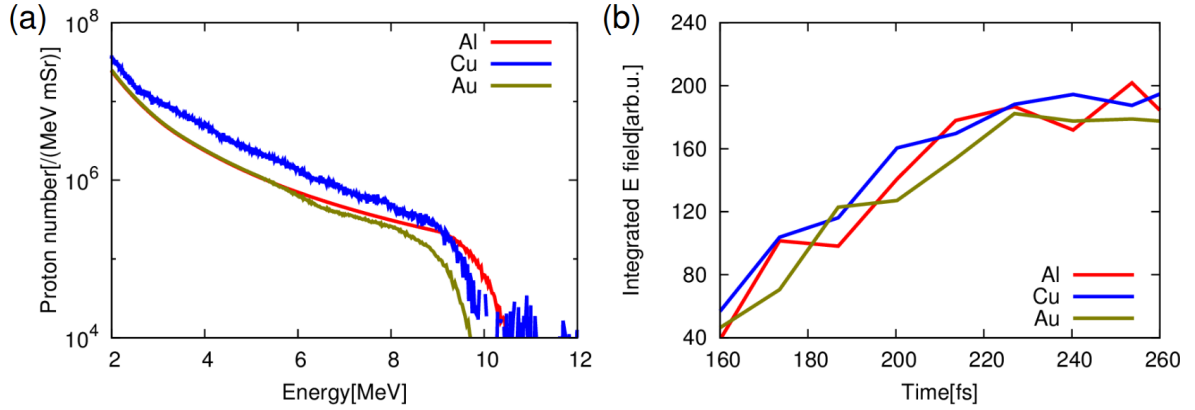


図 10 (a) プロトンスペクトルの実験結果と (b)PIC シミュレーションから導出したシース電場積分値の時間発展。プロトンの最大エネルギーは、ターゲット材料によらず全て 10 MeV であった。また、シースポテンシャルの大きさもターゲット間で一定であることから、各ターゲットにおいて発生した高速電子の個数と温度の積が等しいと考えられる。

示す。プレプラズマ領域 ($x \leq 22 \mu\text{m}$) における各ターゲットの平均電離度を取ると、Al, Cu, Au ターゲットでそれぞれ 11, 15, 35 であった。また、図 9(b) では固体密度領域 ($x \geq 22 \mu\text{m}$) における電離度は、プレプラズマ領域 ($x \leq 22 \mu\text{m}$) における値に対して相対的に低くなっていることがわかる。したがって、高強度レーザーパルスは主にプレプラズマと相互作用し、ターゲットが高 Z 物質であるほどプレプラズマの電離度及び電子密度が高いので、プレプラズマから加速される電子の個数が増加することに伴いそれらの平均エネルギーが下がる。つまり、入射レーザーパルスのエネルギーが高速電子へ平均的に移ったと仮定した場合、プレプラズマ中の臨界密度以下の領域におけるプラズマ電子個数が多いほど、加速電子全体がもつ平均エネルギーが低くなるので電子温度が減少する ($T_{\text{Al}} > T_{\text{Cu}} > T_{\text{Au}}$) のだと考えることができる。

3.3.3 プロトンスペクトルの計測結果

図 10(a) にプロトンスペクトルの実験結果を示す。プロトンの最大エネルギーは各ターゲット間で差が無く、いずれも 10 MeV であった。ここで、高エネルギーのプロトンはターゲット裏面のシース電場によって加速されたものであり、この電場の大きさ E_{sheath} は

$$E_{\text{sheath}} = \frac{kT_e}{el_0} \propto \sqrt{N_e T_e} \quad (3.2)$$

とあらわされ、 k はボルツマン定数、 T_e は電子温度、 l_0 はデバイ長、 e は素電荷、 N_e はシースを形成する電子個数である [15]。ターゲット裏面で形成されるシース電場の最大値は数 $\text{MV}/\mu\text{m}$ に達する。式 (3.2) より、プロトンの最大エネルギーは高速電子の個数と温度の積に依存するので、シース電場の大きさとプロトン最大エネルギーを比較することで高速電子の情報を評価することができる。PIC シミュレーションから得られた電場分布を $x = 24 \sim 44 \mu\text{m}$ にわたって積分し、各

3.4 まとめ

計算時間 (= 160 ~ 260 fs) に対するポテンシャル (電場の積分値) の大きさをプロットした結果を図 10(b) に示す. ポテンシャルの時間発展は各ターゲットに対して一定であることが確認できる. つまり, プロトン最大エネルギーとシースポテンシャルの大きさがターゲット間で一定であるから, 各ターゲットにおける高速電子の個数と温度の積が等しいと考えられる.

3.4 まとめ

本章では, ターゲット選択による高強度レーザー生成高速電子スペクトルの制御に関する研究について述べた. そのまとめは以下の通りである.

1. "Chrisman" スケーリングは, ターゲットプレプラズマが希薄な場合, もしくは, 高強度レーザーパルスがプレプラズマ中の電子を排斥することで急峻化した密度勾配のプラズマと相互作用した場合, 高速電子の温度がターゲット電子密度に依存するスケーリングであり, この予測に基づいて, ターゲット選択による高速電子スペクトル制御の実験をおこなった.
2. 高コントラスト (10^{10}) なレーザーシステムを用いてプレプラズマの発生を抑制し, 各ターゲット (Al, Cu, Au) の高速電子スペクトルを計測した. 実験とシミュレーションから得られた Al と Au における温度値の Ponderomotive 温度に対する比は, 実験では $T_{\text{Al,exp}}/T_{\text{pon}} = 1.0$, $T_{\text{Au,exp}}/T_{\text{pon}} = 0.8$ であるのに対し, シミュレーション結果では, $T_{\text{Al,sim}}/T_{\text{pon}} = 0.9$, $T_{\text{Au,sim}}/T_{\text{pon}} = 0.8$ であり, 両者に良い一致がみられた.
3. プロトンスペクトルの計測結果では, 最大エネルギーは各ターゲット (Al, Cu, Au) に対して全て 10 MeV であって, 材料依存性はみられなかった.
4. ターゲット裏面に発生するシース電場の大きさは高速電子の個数と温度の積に依存する. このとき, 実験から得たプロトンの最大エネルギーとシミュレーションから得たシースポテンシャルの大きさがターゲット間で一定であったことから, 各ターゲットにおいて発生した高速電子の個数と温度の積が等しいのでないかと考えられる.

参考文献

- [1] N. Mamiko, “Laser-Driven Ion Acceleration with Thin-Foil Target” , J. Plasma Fusion Res. **88**, 5-12 (2012).
- [2] W. L. Kruer and Kent Estabrook, “ $J \times B$ heating by very intense laser light” , Phys. Fluids. **28**, 430 (1984).
- [3] V. Bagnoud, J. D. Zuegel, N. Forget, and C. L. Blanc, “High-dynamic-range temporal measurements of short pulses amplified by OPCPA” , Opt. Express **15**, 5504 (2007).
- [4] A. Levy, T. Ceccotti, P. D. Oliveira, F. Reau, M. Perdrix, F. Quere, P. Monot, M. Bougeard, H. Lagadec, and P. Martin, “Double plasma mirror for ultrahigh temporal contrast ultraintense laser pulses” , Opt. Lett. **32**, 310 (2007).
- [5] T. Ceccotti, V. Floquet, A. Sgattoni, A. Bigongiari, O. Klimo, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, F. Baffigi, L. Labate, L. A. Gizzi, L. Vassura, J. Fuchs, M. Passoni, M. Kveton, F. Novotny, M. Possolt, J. Prokupek, J. Proska, J. Psikal, L. Stolcova, A. Velyhan, M. Bougeard, P. D. Oliveira, O. Tcherbakoff, F. Reau, P. Martin, and A. Macchi, “Evidence of Resonant Surface-Wave Excitation in the Relativistic Regime through Measurements of Proton Acceleration from Grating Targets” , Phys. Rev. Lett. **111**, 185001 (2013)
- [6] B. Chrisman, Y. Sentoku, and A. J. Kemp, “Intensity scaling of hot electron energy coupling in cone-guided fast ignition” , Phys. Plasmas **15**, 056309 (2008).
- [7] R. Mishra, Y. Sentoku, and A. J. Kemp, “Hot electron generation forming a steep interface in superintense laser-matter interaction” , Phys. Plasmas **16**, 112704 (2009).
- [8] M. G. Haines, M. S. Wei, F. N. Beg, and R. B. Stephens, “Hot-Electron Temperature and Laser-Light Absorption in Fast Ignition” , Phys. Rev. Lett. **102**, 045008 (2009).
- [9] Y. Sentoku, A. J. Kemp, “Numerical methods for particle simulations at extreme densities and temperatures: Weighted particles, relativistic collisions and reduced currents” , J. Comput. Phys. **227**, 6946 (2008).
- [10] Y. Sentoku, E. d’Humières, L. Romagnani, P. Audebert, and J. Fuchs, “Dynamic Control over Mega-Ampere Electron Currents in Metals Using Ionization-Driven Resistive Magnetic Fields” , Phys. Rev. Lett. **107**, 135005 (2011).
- [11] H. Kiriya, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, H. Sasano, M. Tanoue, S. Kanazawa, D. Wakai, F. Sasano, H. Okada, I. Daito, M. Suzuki, S. Kondo, K. Kondo, A. Sugiyama, P. R. Bolton, A. Yokoyama, H. Daido, S. Kawanishi, T. Kimura, and T. Tajima, “High temporal and spatial quality petawatt-class Ti:sapphire chirped-pulse amplification laser system” , Opt. Lett. **35**, 1497-1499 (2010).
- [12] K. Ogura, M. Nishiuchi, A. S. Pirozhkov, T. Tanimoto, A. Sagisaka, T. Zh. Esikepov, M. Kando, T. Shizuma, T. Hayama, H. Kiriya, T. Shimomura, S. Kondo, S. Kanazawa, Y.

- Nakai, H. Sasao, F. Sasao, Y. Fukuda, H. Sakaki, M. Kanasaki, A. Yogo, S. V. Bulanov, P. R. Bolton, and K. Kondo, “Proton acceleration to 40 MeV using a high intensity, high contrast optical parametric chirped-pulse amplification/Ti:sapphire hybrid laser system”, *Opt. Lett.* **37**, 2868 (2012).
- [13] K. A. Tanaka, T. Yabuuchi, T. Sato, R. Kodama, Y. Kitagawa, T. Takahashi, T. Ikeda, Y. Honda, and S. Okuda, “Calibration of imaging plate for high energy electron spectrometer”, *Phys. Rev. Sci. Ins.* **76**, 013507 (2005).
- [14] A. Yogo, H. Daido, A. Fukumi, Z. Li, K. Ogura, A. Sagisaka, and A. S. Pirozhkov, “Laser prepulse dependency of proton-energy distributions in ultraintense laser-foil interactions with an online time-of-flight technique”, *Phys. Plasmas* **14**, 043104 (2007).
- [15] S. P. Hatchett, C. G. Brown, T. E. Cowan, E. A. Henry, J. S. Johnson, M. H. Key, J. A. Koch, A. B. Langdon, B. F. Lashinski, R. W. Lee, A. J. Mackinnon, D. M. Pennington, M. D. Perry, T. W. Phillips, M. Roth, T. C. Sangster, M. S. Singh, R. A. Snavely, M. A. Stoyer, S. C. Wilks, and K. Yasuike, “Electron, photon, and ion beams from the relativistic interaction of Petawatt laser pulses with solid targets”, *Phys. Plasmas* **2**, 2076 (2000).

4 ナノ構造ターゲットを用いた表面プラズマ波励起による高速電子の高効率生成

4.1 はじめに

高強度レーザーとナノ構造ターゲットとの相互作用に関する研究では、レーザー強度が $10^{15} \sim 10^{17} \text{ W/cm}^2$ と比較的低い範囲における報告が数多く存在する．これまで報告されている平板ターゲットに対して得られた X 線フラックス利得について例を挙げると、P. P. Rajeeve らが Cu ナノスフィアターゲットを用いて 13 倍の利得 [1]、H. Masuda らが Al ナノホールアレイターゲットを用いて 30 倍の利得 [2]、S. Mondal らが Cu ナノロッドを用いて 43 倍の利得 [3]、G. Kulcsar らが Ni ベルベットターゲットを用いて 50 倍の利得を達成している [4]．実験と並行して、粒子シミュレーションによるナノ構造ターゲットの研究も活発におこなわれている [5, 6]．近年では、OPCPA やプラズマミラーなどのプレパルスレベル低減に関する技術開発が進んだこともあって、 10^{18} W/cm^2 以上の高強度レーザー領域においてもナノ構造ターゲットを用いた実験が成立している [7, 8]．ナノ構造ターゲットで得られるエネルギー吸収率の向上は、ナノ構造化による“相互作用体積の増加”と“局所的な電場集中”などが原因として考えられている [9]．一方、さらなるエネルギー吸収率向上を目指す研究に関しては、構造パラメータ選択によるエネルギー吸収の最適化が一例として挙げられるが、現状と比較した飛躍的な吸収率向上の方法としては不十分である．

本章では、周期構造をもつターゲットとしてグレーティングに注目し、共鳴条件を満たすレーザーパラメータ選択で表面プラズモンを励起することによって、高強度レーザー生成高速電子へのエネルギー変換効率を向上させる研究をおこなったことについて述べる．

4.2 グレーティングを利用した表面プラズマ波の励起

表面プラズモンを励起させるための波数整合について説明する．第 2 章で述べたように、表面プラズモンの波数は伝搬光よりも常に大きい値をもつので、単純にレーザー光をターゲットへ入射するだけでは励起することができない．表面プラズモンの励起方法の一つにはグレーティングターゲットを用いて、界面方向における回折光と表面プラズモンの波数整合をおこなう方法が挙げられる．このとき、入射光の真空・ターゲット界面における波数は $k_0 + 2\pi/d$ であらわされる．ここで、 k_0 は入射光の波数、 $2\pi/d$ はグレーティングによる波数シフト量、 d はグレーティングの溝周期を示す．これより、ターゲット表面における入射光と表面プラズモンの波数整合の式は

$$k_0 \sin \theta + \frac{2\pi}{d} = k_{\text{SP}} \quad (4.1)$$

である．ここで、 θ はレーザー入射角、 k_{SP} は表面プラズモンの波数である．この条件を満たす θ を共鳴角 θ_{SP} とすると、

$$\theta_{\text{SP}} = \sin^{-1} \left[\pm \left(-\sqrt{\frac{\epsilon_t}{\epsilon_t + 1}} + m \frac{\lambda}{d} \right) \right] \quad (4.2)$$

と書ける．ここで、 ϵ_t は金属誘電率の実部、 m は回折次数である．式 (4.2) は、プラズマの誘電率を考慮した形にも書き直すことができる．ターゲットプラズマの電子密度を n_e 、臨界密度を n_c とすると、共鳴角 θ_{SP} は

$$\theta_{\text{SP}} = \sin^{-1} \left[\pm \left(\sqrt{\frac{1 - n_e/n_c}{2 - n_e/n_c}} + m \frac{\lambda}{d} \right) \right] \quad (4.3)$$

となる．レーザー波長 800 nm に対する Au の誘電率 $\epsilon = -22.1 + 1.78i$ の実部を用いると、式 (4.2) から求まる共鳴角の値は、500, 1000 lines/mm において、それぞれ $\theta_{\text{SP}} = 38.3^\circ$, 12.7° である．したがって、レーザー入射角がこれらの共鳴角と同じであるとき、レーザーエネルギーの高効率吸収に伴うレーザー反射率の急激な減少が得られる．

続いて、表面プラズモンの分散関係式を求める．プラズマの屈折率 N は、プラズマの電子密度を n とすれば、

$$N = \sqrt{1 - \left(\frac{n}{n_c} \right)} \quad (4.4)$$

とあらわせる．式 (4.4)、プラズマ周波数をあらわす式 (1.1)、誘電率 $\epsilon = \Re[n + i\kappa]^2$ を用いると、表面プラズモン波数の式 (2.9) は、媒質の誘電率 $\epsilon_d = 1$ として、

$$\frac{k_{\text{SP}}^2 c^2}{\omega^2} = \frac{(\omega^2 - \omega_{pe}^2)}{2\omega^2 - \omega_{pe}^2} \quad (4.5)$$

のように変形でき、これはプラズモンの分散関係そのものである．J. Kuperszlych らは、相対論領域における表面プラズモンの取り扱いに関して言及しており、そのときの分散関係は

$$\frac{k_{\text{SP}}^2 c^2}{\omega^2} = \frac{(\omega^2 - \omega_{pe}^2/\gamma_{\text{eff}})}{2\omega^2 - \omega_{pe}^2/\gamma_{\text{eff}}} \quad (4.6)$$

とあらわされる [10, 11]．ここで、ローレンツ因子 γ_{eff} は

$$\gamma_{\text{eff}} = \sqrt{1 + \frac{a_{\text{eff}}^2}{2}} = \sqrt{1 + \frac{0.85^2}{2} I_{18} \lambda_{\mu\text{m}}^2 \eta^2} \quad (4.7)$$

であり、 a_{eff} は規格化強度、 I_{18} は 10^{18} W/cm² で規格化したレーザー強度、 $\lambda_{\mu\text{m}}$ は μm 単位の

4.3 グレーティングターゲットの評価と作製

レーザー波長, η^2 は電場増強度を示す. ターゲットの固体密度を定数 α を用いて $n = \alpha n_c$ とおけば, プラズモン共鳴角 θ_{rel} は式 (4.2) から

$$\theta_{\text{rel}} = \sin^{-1} \left(\sqrt{\frac{1 - \alpha \sqrt{1 + \frac{0.85^2}{2} I_{18} \lambda_{\mu\text{m}}^2 \eta^2}}{2 - \alpha \sqrt{1 + \frac{0.85^2}{2} I_{18} \lambda_{\mu\text{m}}^2 \eta^2}}} - \frac{\lambda}{d} \right) \quad (4.8)$$

のように表現することができる. ここで, レーザー強度 $I_{18} = 10$, レーザー波長 $\lambda = 800 \text{ nm}$, グレーティング周期 $d = 2 \mu\text{m}$ とすると, $\alpha = 20, 43, 50, 100$ のとき, 電場増強度 η^2 に対するプラズモン共鳴角の変化を図 1 に示す. 式 (4.8) では, α が大きいほど式 (4.8) 中の α を含む項の値が大きくなるため, η^2 に対する θ_{rel} の変化が小さくなる.

次に, $\eta^2 = 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8$ としたとき, ターゲットの固体密度 $n = \alpha n_c$ に対するプラズモン共鳴角 θ_{rel} の変化を図 2 に示す. このとき, それぞれの増強度 η^2 の値に対して, ターゲット電子密度が大きいほど共鳴角 θ_{rel} の値が収束していることがわかる. したがって, 図 1, 2 の結果から, ターゲット密度 α の値が大きく, 増強度 η^2 の値が小さいほど共鳴角 θ_{rel} の値は収束する. 実際のターゲット固体密度は $\sim 1000 n_c$ と十分大きいので問題ないが, PIC シミュレーションをおこなう場合はターゲット電子密度を $10 \sim 100 n_c$ 程度の低い値に設定することが多いので, 共鳴角 θ_{rel} の振幅が無視できなくなる恐れがある.

4.3 グレーティングターゲットの評価と作製

ターゲットとして本数密度 500 lines/mm (Gr500), 1000 lines/mm (Gr1000), 厚さ $76 \mu\text{m}$ のポリエステル基板をもつグレーティングフィルム (エドモンド・オプティクス・ジャパン株式会社, Gr500: # 54509, Gr1000: # 40267) を用いた. 図 3 に Gr500 の Atomic Force Microscope (AFM, 株式会社キーエンス: VN8000) 画像を示す. 表面形状は正弦波構造であり, それぞれのグレーティングがもつ正弦波振幅は 100 nm であった.

Gr500 と Gr1000 の各ターゲットに対して, FDTD シミュレーションである MIT Electromagnetic Equation Propagation (MEEP) コードを用いて表面プラズモン共鳴条件の確認をおこなった [12]. MEEP はマサチューセッツ工科大学で開発された FDTD シミュレーションのフリーソフトウェアである. シミュレーションでは, 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルス, 異なる本数密度をもつグレーティングターゲットへ 40° 入射し, 前方伝搬する表面プラズマ波の最大強度と光反射率を観測した. 前方伝搬する表面プラズマ波の規格化された最大強度, 反射率のグレーティング本数密度に対する依存性を図 4(a) に示す. 表面プラズマ波の強度は 500 lines/mm でピークをもつことから, レーザー波長 800 nm , 入射角 40° では 500 lines/mm が共鳴条件を満たすことがわかる. ここで, 2000 lines/mm (Gr2000) の本数密度でも反射率の急激な減少がみられるのは, Gr2000 が後方伝搬する表面プラズマ波に対して共鳴条件を満たすからである. Gr500 を用いたとき, ガウシアンパルスとグレーティングが相互作用した位置から十分遠方における電場強度分布のシミュレーション結果を図 4(b) に示す. 共鳴条件を満たさない本数密度では表面伝搬波の存在は

4.3 グレーティングターゲットの評価と作製

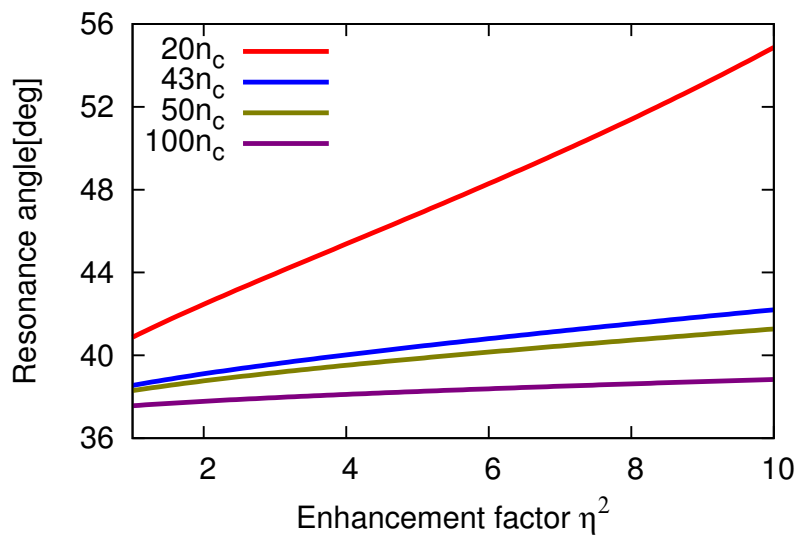


図1 レーザー強度 $I_{18} = 10$, レーザー波長 $\lambda = 800 \text{ nm}$, グレーティング周期 $d = 2 \text{ }\mu\text{m}$ のとき, $\alpha = 20, 43, 50, 100$ における, 電場増強度 η^2 に対するプラズモン共鳴角 θ_{rel} の変化. α が大きいほど式 (4.8) 中の α を含む項の値が大きくなるため, η^2 に対する θ_{rel} の変化が小さくなる.

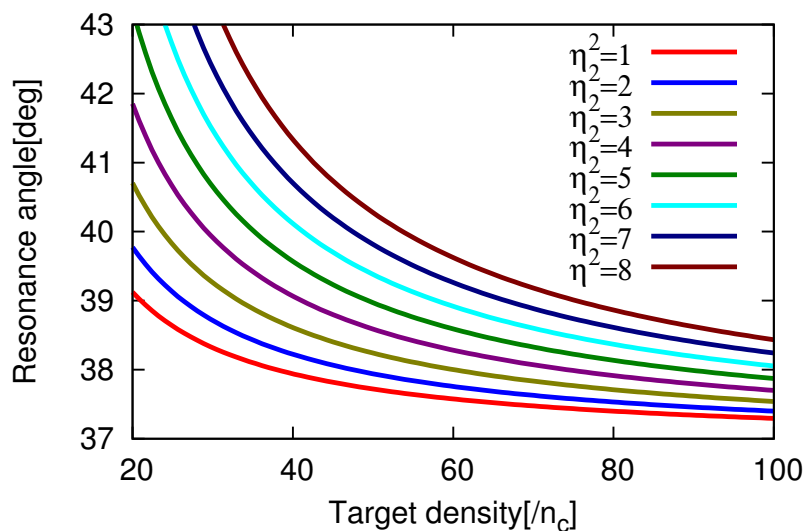


図2 レーザー強度 $I_{18} = 10$, レーザー波長 $\lambda = 800 \text{ nm}$, グレーティング周期 $d = 2 \text{ }\mu\text{m}$ のとき, 電場増強度 $\eta^2 = 1 \sim 8$ における, 電子密度 $n = \alpha n_c$ に対するプラズモン共鳴角 θ_{rel} の変化. α が大きいほど θ_{rel} の値が収束し, 逆に η^2 の値が大きいほど θ_{rel} の収束が悪くなる.

4.3 グレーティングターゲットの評価と作製

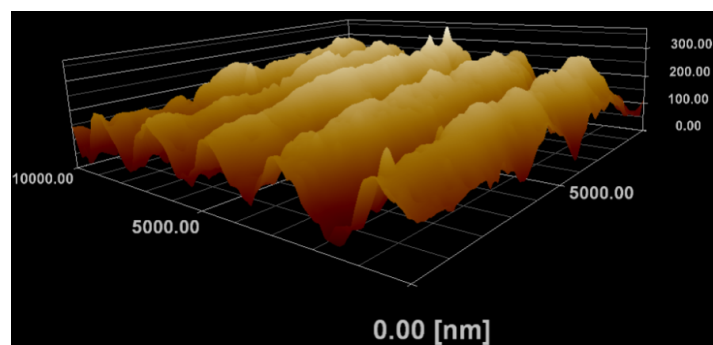


図3 本数密度 500 lines/mm をもつグレーティングターゲットの AFM 画像．表面形状は振幅 100 nm をもつ正弦波構造である．

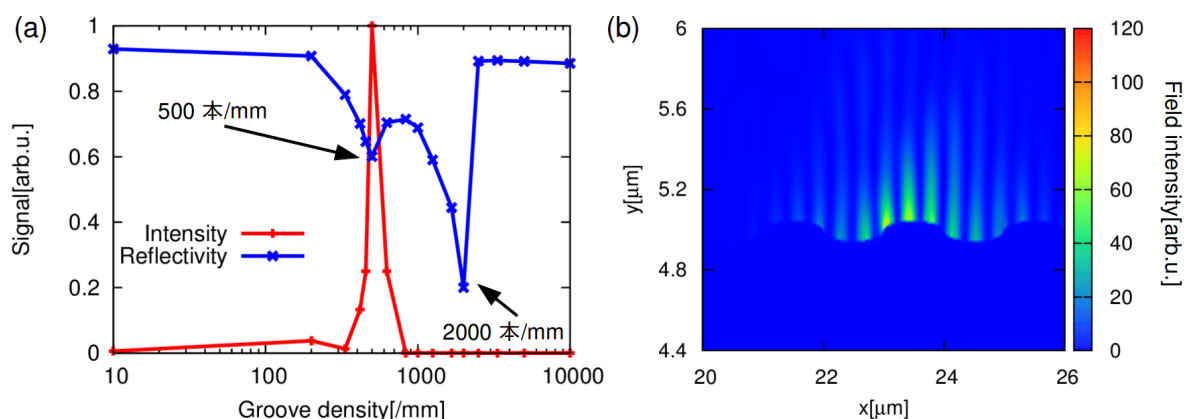


図4 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスをもつグレーティングターゲットへ 40° 入射したときの (a) 前方伝搬する表面プラズマ波の最大強度と光反射率, (b) Gr500 における表面プラズマ波．共鳴条件を満たす Gr500 では前方伝搬プラズマ波の強度ピークと反射率の急激な減少が得られている．また, Gr2000 でも反射率の減少がみられるのは, 後方伝搬プラズモンの共鳴条件を満たしているからである．

一切確認できなかった．

表面プラズモンを励起するには, ポリエステル製グレーティングフィルムの表面を金属コーティングする必要がある．ここで, 摂南大学理工学部井上雅彦教授にご協力いただき, 真空蒸着装置を使用させていただいた．蒸着源の加熱方法には, 金属を電子ビーム照射で加熱し蒸発させる“Electron Beam(EB) 蒸着”と, 抵抗加熱ボートで金属を加熱し蒸発させる“抵抗蒸着”の2種類がある．今回使用した蒸着方式は抵抗蒸着であり, その蒸着方式の模式図を図5に示す．この蒸着方式では, 真空チャンバ内に外部入力端子を挿入し, 電極間へ配置した Mo ボート上に乗せた金属細線を加熱し蒸発させることでターゲット下面に金属薄膜を形成させる．真空蒸着終了後は, 熱をもつ薄膜金属が酸化物となる恐れがあるため, 化学的に安定な元素である Au を蒸着源として選択した．一方, グレーティングフィルムはポリエステル製であるため, 輻射及び伝導熱によって表

4.3 グレーティングターゲットの評価と作製

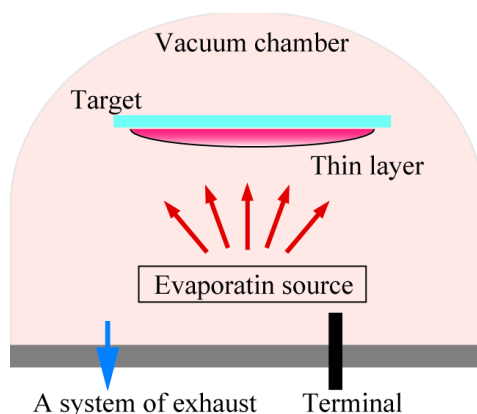


図 5 抵抗蒸着の模式図. この蒸着方式では, 真空チャンバー内に外部入力端子を挿入し, 電極間へ配置した Mo ボート上に乗せた金属細線が加熱し蒸発させることで, ターゲット下面に金属薄膜が形成される.

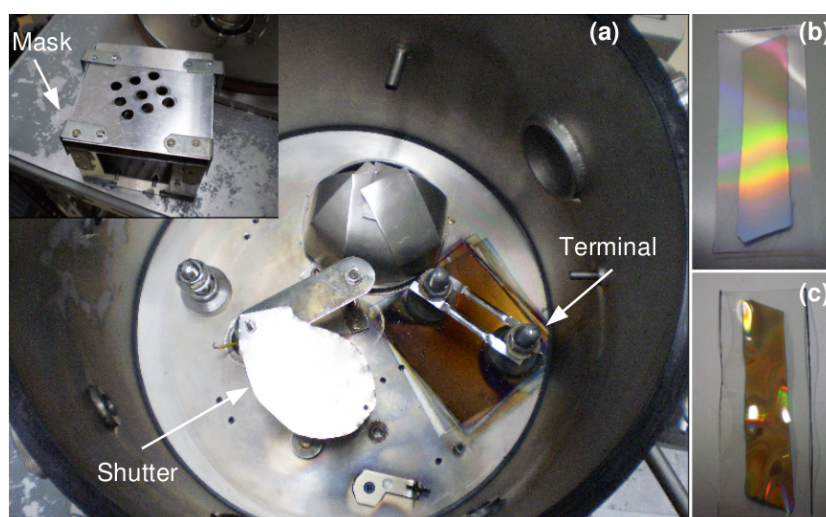


図 6 (a) 摂南大学で使用した蒸着実験装置のチャンバ内部の写真. 電極間に設置された Mo ボート上の Au 細線は 1000°C 以上まで加熱される. インセットにはポリエステルフィルムを熱から守るためのマスクを示す. 蒸着の結果, コーティングが成功した例を (b) に, 熱による変形で失敗した例を (c) に示す.

面形状が変形してしまう可能性がある. 例えば, ポリエステルの一種である PET(PolyEthylene Telephthalate) のガラス転移点 (固体が流動的になる温度) は約 80°C である. 熱によるダメージを防ぐには, Mo ボート上で発生する輻射と伝導熱からポリエステルフィルムを守るマスクの作製が必要になる. 図 6(a) に実験チャンバ内部とマスクの写真を示す. シャッターは蒸着開始の初期時間で蒸発を開始する不純物を取り除くために使用される. マスクは 2 段構造になっており, 1 段目で輻射熱を遮蔽し, 2 段目に空いた細かい穴の位置にフィルムを配置することで伝導熱を防ぎつつ蒸着をおこなう. チャンバ内の真空度を $7.5 \times 10^{-5}\text{Pa}$ で保持し, 蒸着源を 1000°C 以上に加熱

4.4 高強度レーザーとグレーティングフィルムの相互作用

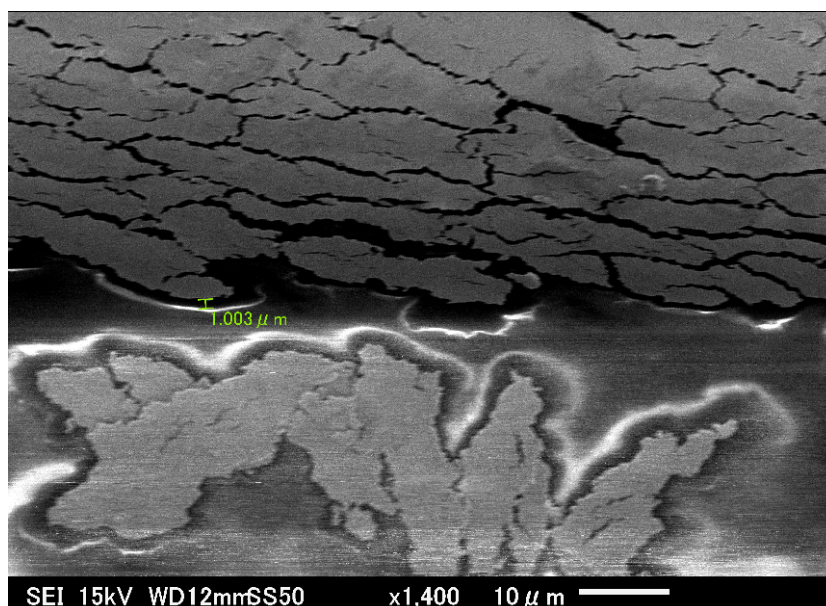


図 7 破断したグレーティングフィルム表面の SEM 画像. 成膜された Au の厚みは $1\ \mu\text{m}$ であった.

する工程を約 5 分間おこなった. 蒸着が成功したフィルムの例を図 6(b) に, 熱で変形したフィルムの失敗例を図 6(b) に示す. 蒸着後のフィルムを破断し, 断面を観察することによって成膜された Au の厚みを SEM 観察した結果を図 7 に示す. この画像から, Au の膜厚は約 $1\ \mu\text{m}$ であることが確認できた.

4.4 高強度レーザーとグレーティングフィルムの相互作用

4.4.1 実験セットアップ

TIFR(Tata Institute of Fundamental Research) の G. R. Kumar 教授らとの共同研究により, 高コントラストフェムト秒レーザーシステムを用いて, 表面プラズモン共鳴による高効率電子ビーム生成の実験をおこなった. レーザーシステムのパラメータは, エネルギー $200\ \text{mJ}$, パルス幅 $30\ \text{fs}$, 波長 $800\ \text{nm}$, P 偏光で, $f/3$ の光学系によってスポット径 $5\ \mu\text{m} \times 8\ \mu\text{m}$ に集光したレーザー集光強度は $10^{19}\ \text{W}/\text{cm}^2$ である. 表面プラズモンを励起するため, レーザーパルスの直線偏光軸とグレーティング周期方向を一致させている. ここで, レーザープレパルスレベル時間発展の計測結果を図 8(a) に示す. レーザーシステムのコントラストは, メインパルスのナノ秒前では 10^{-8} , $10\ \text{ps}$ 前で 4×10^{-8} であって, 一般的なフェムト秒レーザーシステムの場合 (10^{-6}) と比較すると十分高コントラストであるといえる [8]. グレーティングターゲットは Gr500 と Gr1000 で, 表面は膜厚 $1\ \mu\text{m}$ で Au コーティングされている. また, 厚み $2.5\ \mu\text{m}$ の Au 平板ターゲットをグレーティングターゲットとの比較として用いた.

表面プラズモン共鳴を用いた高速電子ビーム生成に関して,

4.4 高強度レーザーとグレーティングフィルムの相互作用

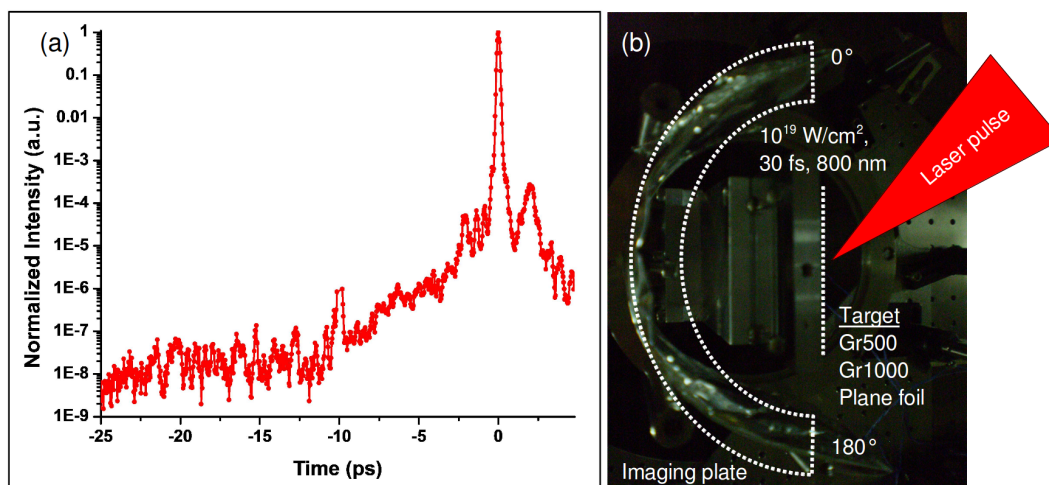


図 8 (a)TIFR の高コントラストフェムト秒レーザーシステムのプレパルスレベル時間発展, (b) 表面プラズモンを用いた高強度レーザーによる高速電子ビーム生成実験セットアップ (実験 (1)). レーザーシステムのコントラストは, メインパルスのナノ秒前では 10^{-8} , 10 ps 前で 4×10^{-8} である. ターゲット裏面に放出される高速電子ビームの角度分布を IP で計測した.

1. Imaging plate(IP, 富士フィルム株式会社: BAS-SR2025) を用いたターゲット裏面に放出される高速電子ビームの角度分布の計測
2. Electron spectrometer(ESM) を用いた高速電子エネルギースペクトル計測

をおこなった. 市販のグレーティングは厚さ数 mm のガラス基板をもつことから, 内部での電子散乱が問題となるため, ターゲット裏面における電子ビームの観測は報告された例がない [13], したがって, フィルム型グレーティングを用いて, ターゲット裏面から放出される高速電子を計測するのは実験 (1) が世界で初めてである. また, ターゲット裏面から加速されるプロトンのエネルギースペクトルに関しては報告例が存在するが [14], 電子スペクトルの計測はこれまでおこなわれたことが無く, これも実験 (2) が初めてとなる,

実験 (1) のセットアップを図 8(b) に示す. IP をターゲット裏面から 6 cm 離れた位置に配置し, 後面 180° 全体を覆うことによって, 高速電子ビームの放出角度分布を計測した. 放出角度の定義として, 図 8(b) 中において, IP の上側を 0°, 下側を 180° としている. レーザー直接光, 散乱光, X 線などのノイズ信号を取り除くため, IP 表面は Al フィルターによって保護されている. Al フィルターの厚みは, Gr500, Gr1000 ターゲットでは $165 \mu\text{m}$, 平板ターゲットに対しては $11 \mu\text{m}$ としており, それらの電子に対するエネルギーしきい値は, それぞれ 175 keV, 10 keV である. ここで, P 偏光, 入射角 40° のレーザーパルスは, Gr500 に対して表面プラズモンの共鳴条件を満たしている.

実験 (2) のセットアップを図 9 に示す. ターゲット裏面の 40°, 90°, 150° の方向に ESM を合計 3 台配置し, 高速電子エネルギースペクトル計測をおこなった. それぞれの ESM はターゲット裏面から 13.0 cm(40° 方向), 22.0 cm(90° 方向), 21.5 cm(150° 方向) 離れた位置に配置されてい

4.4 高強度レーザーとグレーティングフィルムの相互作用

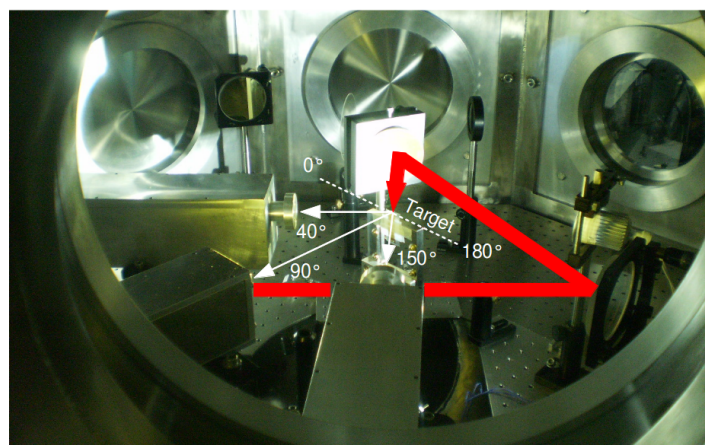


図 9 ESM セットアップ (実験 (2)). ターゲット裏面の 40° , 90° , 150° の方向に ESM を合計 3 台配置し，高速電子エネルギースペクトル計測をおこなった．ESM に搭載されている磁石は 0.1 T の磁場強度をもち，エネルギー範囲 $0.1 \sim 7.0\text{ MeV}$ の電子が計測可能である．

る．ESM に搭載されている磁石は 0.1 T の磁場強度をもち，エネルギー範囲 $0.1 \sim 7.0\text{ MeV}$ の電子が計測可能である．

4.4.2 高速電子の角度分布計測結果

ターゲット裏面に放出された高速電子ビームを計測した IP 画像結果を図 10 に示す．このとき，図 10(a), (b), (c) は P 偏光を用いたときの Gr500, Gr1000, 平板ターゲットの結果を，図 10(d) は Gr500 に対して S 偏光を用いたときの結果を示している．また，図 10(c) の平板ターゲットは 4 ショット積算，図 10(d) の Gr500(S 偏光) の結果は 5 ショット積算の結果を示している．共鳴条件を満たす (a)Gr500 の画像では，共鳴条件を満たさない (b)Gr1000 の画像に対する信号強度の大幅な増加がみられる．また，Gr500 と Gr1000 では 2 方向に伝搬する電子ビームが存在し，それぞれのピーク値を示す角度は 150° と 40° である．このような 2 方向への電子ビーム生成に関しては，文献 [15] において，その加速機構に関しては言及されていないものの，PIC シミュレーションでグレーティングターゲットを模擬したときに発生することが報告されている．グレーティングターゲットの表面構造が正弦波であること，それぞれのビーム伝搬方向がターゲット裏面垂直に対してほぼ対称であることから，2 つの電子ビームはグレーティングの正弦波形状に対する表面加速によって生成されたものだと考えられる [16]．一方，(c) 平板ターゲットでは，レーザー軸方向 ($=130^\circ$) に一つの信号ピークが得られただけであったことから，グレーティングターゲットで得られた 2 つの電子ビームは表面構造の効果によるものと考えられることができる．また，Gr500 に対して S 偏光パルスを照射した図 10(d) の結果では，平板ターゲット同様にレーザー軸方向に一つの信号ピークしか得られておらず，信号強度も図 10(a) の P 偏光の結果と比較して非常に小さいことから，Gr500 における信号増倍は表面プラズモン共鳴による影響であるといえる．

図 10 の各ターゲットに対する IP 画像のラインプロファイルを取った結果を図 11 に示す．ここ

4.4 高強度レーザーとグレーティングフィルムの相互作用

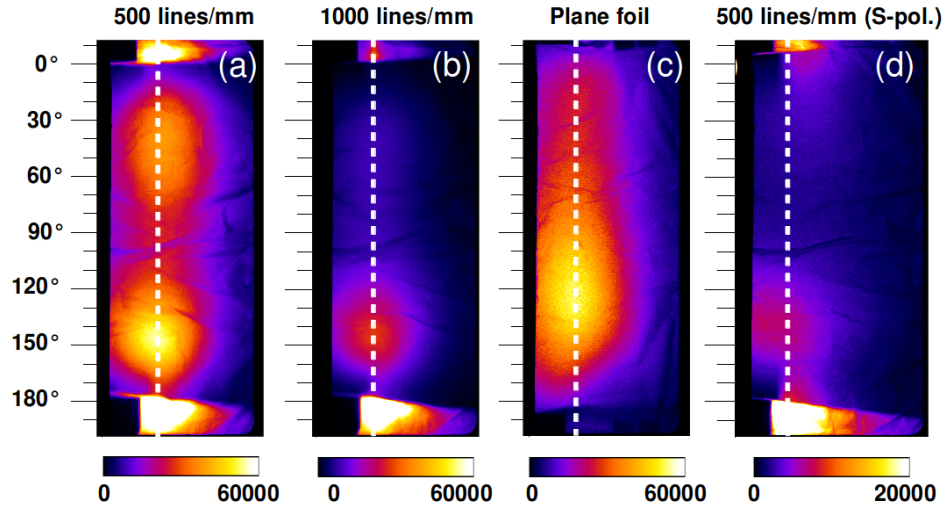


図 10 ターゲット裏面に放出された高速電子ビームを計測した (a)Gr500, (b)Gr1000, (c) 平板ターゲット, (d)Gr500(S 偏光) における IP 画像結果. Al フィルターの厚みは, (a), (b), (d) では $165\ \mu\text{m}$, (c) に対しては $11\ \mu\text{m}$ としており, それらの電子に対するエネルギーしきい値は, $175\ \text{keV}$, $10\ \text{keV}$ である. また, (c) は 4 ショット, (d) は 5 ショット積算の結果を示している.

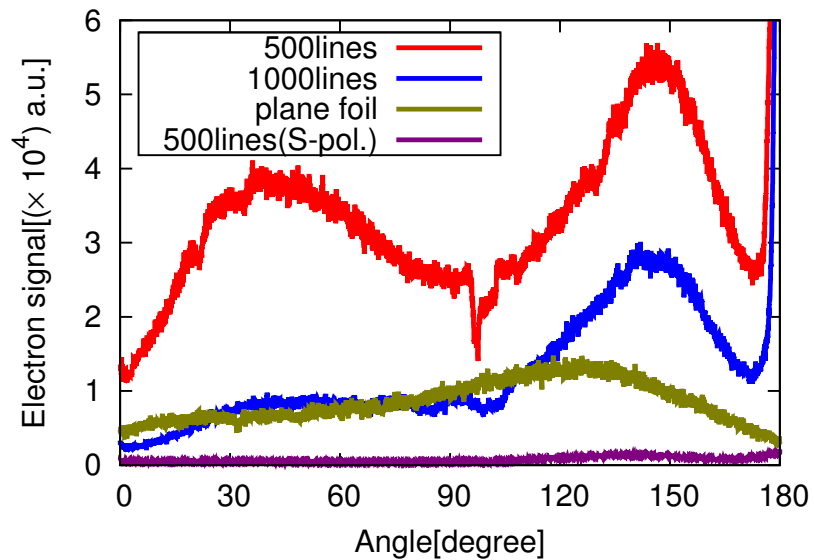


図 11 図 10 における各ターゲットに対する IP 画像のラインプロファイル. 150° では, Gr500 は Gr1000 の約 2 倍, 平板ターゲットの約 5.8 倍の信号量増加を示している.

4.5 シミュレーションを用いた実験結果の考察

では、平板ターゲット、Gr500(S 偏光ショット) の積算ショット結果を 1 ショット分の信号量へ変換した結果を示している。図 11 の結果から、 150° では、Gr500 は Gr1000 の約 2 倍、平板ターゲットの約 5.8 倍の信号量増加を示している。つまり、グレーティング同士の比較から、表面プラズモン効果による増倍率は 2 倍であることがわかる。

4.4.3 高速電子エネルギースペクトル計測結果

図 12(a) に Gr500 と平板ターゲットにおける 90° 方向の電子スペクトル計測結果を示す。 90° では Gr500 が平板ターゲットに対して電子個数の明らかな増倍が示し、得られた個数比は 16 倍であった。また、Gr500 の電子温度は 75 keV であり、平板ターゲットで得られた 13 keV に対して 5.8 倍の増倍が得られた。図 12(b) に 150° 、 40° 方向における Gr500 の電子スペクトル計測結果を示す。ここで、Gr500 と共に平板ターゲットを用いた 20 ショット積算の計測もおこなったが、IP の信号が検出しきい値よりも低かったためスペクトルは得られなかった。Gr500 の 150° 方向と 40° 方向における結果では、電子個数の積算はほぼ同値であったが、電子温度はそれぞれ 93 keV、133 keV であり、 90° 方向において Gr500 で得られた温度 (= 75 keV) よりも高い結果が得られた。

4.5 シミュレーションを用いた実験結果の考察

まず始めに、CW レーザーにおける光反射率を MEEP を用いてシミュレーションした。空間サイズは $20\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$ 、セルサイズは 20 nm である。Au グレーティングの周期は $2\ \mu\text{m}$ (=Gr500)、 $1\ \mu\text{m}$ (=Gr1000)、表面形状を振幅 100 nm の正弦波として、中心波長 800 nm のガウシアンパルスターゲットへ 40° 入射させた。Gr500 に対して、CW レーザー、10 Hz 集光レーザーパルスを用いた実験結果と、MEEP シミュレーションで求めた反射率の入射角依存性を図 13 に示す。CW レーザーの結果は Ti-Sapphire レーザーの Oscillator を使用したとき、10 Hz 集光レーザーパルスの結果は $f/3$ で集光したときのレーザーエネルギー (nJ 級) をパワーメーターで計測したものである。図 13 から、CW レーザー、集光パルス、FDTD シミュレーションのすべての結果において、反射率が入射角 40° で最小値を示し、表面プラズモンの特徴があらわれている。レーザー入射角 40° における Gr500 と Gr1000 の電場強度分布のシミュレーション結果を図 14 に示す。図中の実線は入射光、点線は反射光の伝搬角度を示している。共鳴条件を満たす Gr500 では、励起された表面波がグレーティング界面を伝搬する様子が確認できる。

次に、セルサイズを 20 nm から 10 nm へとさらに細かくして FDTD シミュレーションを再度おこない、各ターゲットにおける電場強度分布を比較することで、ナノ構造自体による増倍と表面プラズモンによる増倍の効果を厳密に評価した。ナノ構造の効果 (局在プラズモン) による増倍の大きさは、ターゲット材料とその周囲の誘電率、ターゲット形状、レーザー波長との関係から決まる。ここではターゲットとして、本数密度 333 lines/mm(Gr333)、Gr500、Gr1000 のグレーティングと平板ターゲットを用いている。ガウシアンパルスとグレーティングターゲットが相互作用している時刻における電場強度分布に関して、図 15(a) に平板ターゲット、(b) に

4.5 シミュレーションを用いた実験結果の考察

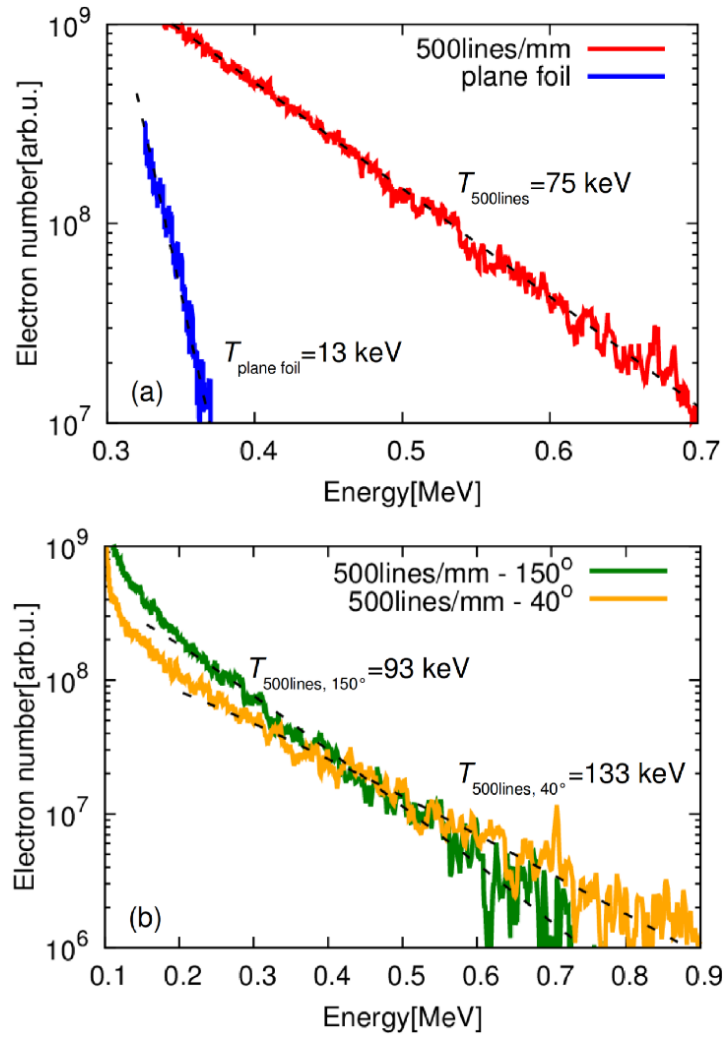


図 12 グレーティングターゲットと平板ターゲットの裏面側における (a)90° 方向, (b)40° と 150° 方向の電子スペクトル計測結果. 90° 方向では, Gr500 は平板ターゲットに対して 5.8 倍の温度比と 16 倍の電子個数比を示している. また, 40° と 150° 方向では, それぞれの温度が 93 keV, 133 keV であって, 90° 方向の結果よりも高い値が確認された.

Gr1000, (c) に Gr500, (d) に Gr333 の結果をそれぞれ示す. 各ターゲットにおける電場強度ピーク値の比は, 平板ターゲットと比較した場合, Gr333 と G1000 が $\eta^2 = 270/190 \approx 1.42$, Gr500 が $\eta^2 = 540/190 \approx 2.84$ であった. Gr333 と Gr1000 は共鳴条件を満たさないで, ナノ構造による増倍率が 1.42 倍, Gr500 は共鳴条件を満たすので, 表面プラズモンとナノ構造の効果を合わせた増倍率が 2.84 倍となる. したがって, 純粋な表面プラズモンによる増倍率は Gr500 と Gr333 もしくは Gr1000 との比から $540/270=2$ 倍である.

以上のように, FDTD シミュレーションでは表面プラズモン共鳴を再現できていることがわかる. しかし, PIC シミュレーションで表面プラズモン共鳴を模擬できるかに関しては, T. Ceccoti らが 2DPIC シミュレーションを用いて表面プラズモンを再現したと主張しているが, 表面プラズマ波と説明されている場合は正負の振動成分を一切もたず, 表面プラズモンの特徴をあらわしていない. また, グレーティングターゲットと平板ターゲットを比較して信号の増倍が得られたとしても, (1) 電場集中や lightning rod effect などのナノ構造自体による増倍が得られること, (2) Brunel 吸収はプレプラズマのスケール長によって吸収に最適な入射角をもつのでターゲット間で異なる吸収率が得られることから, 得られた結果からナノ構造自体による信号増強の効果と Brunel 吸収の効果を分離することができない.

表面プラズモンの存在条件は, 光照射する対象のターゲットが負の誘電率をもつことであり, シミュレーションにはターゲット物質ごとの特性を考慮できることが求められる. ここで, PIC シミュレーションでは, 誘電率 ϵ , 電場を E を用いて, 電束密度 D を $D = \epsilon E$ としてあらわしている. 通常, ϵ は真空の誘電率であるため, 計算ループ内においてターゲット物質の特性は一切考慮されていない. また, ϵ に負の値を直接入力すると電磁場の値が単調増加するため, 適切な解を得ることができない. 一方, FDTD シミュレーションでは, 分極密度 P を用いて電束密度の式を $D = \epsilon E + P$ のように拡張して計算をおこなう. したがって, FDTD シミュレーションでは分極密度 P を介して負の誘電率を考慮できるため解を発散させることが無く, 表面プラズモンを模擬することができる.

FDTD シミュレーションを用いて, ターゲットが負の誘電率をもつときに限り表面プラズモンが励起されることを証明する. 金属ターゲットは光領域において負の誘電率をもつことが一般的に知られているが, 誘電率の正負による表面プラズモンの有無を評価するためには, レーザー波長 800 nm に対して正と負の誘電率をもつ金属を選択する必要がある. ここで, Au と W の誘電率実部の波長に対する依存性を図 16(a) に示す. これら 2 種類の金属を比較すると, Au は可視領域から赤外領域にかけて負の誘電率をもつ一方で, W は波長 800 nm 付近において正の誘電率をもっている. また, レーザー波長 800 nm における誘電率実部は, $\Re[\epsilon_{Au}] = -22.1$, $\Re[\epsilon_W] = 4.47$ である. したがって, FDTD シミュレーションにおいて Au と W のグレーティングターゲットを模擬すれば, 表面プラズモン共鳴の有無を観測することができる. MEEP を用いて, 中心波長 800 nm の連続光波を P 偏光で Gr500 へ 40° 入射させるシミュレーションをおこない, z 軸方向の磁場分布を観測した. 図 16(b) に Au ターゲット, (c) に W ターゲット, (d) にプラズマターゲットを模擬したときの結果を示す. Au ターゲットでは, グレーティング表面を伝搬するプラズマ波が明確に模擬されている. 一方で, W ターゲットでは表面プラズマ波の伝搬が確認できないことから, 表

4.5 シミュレーションを用いた実験結果の考察

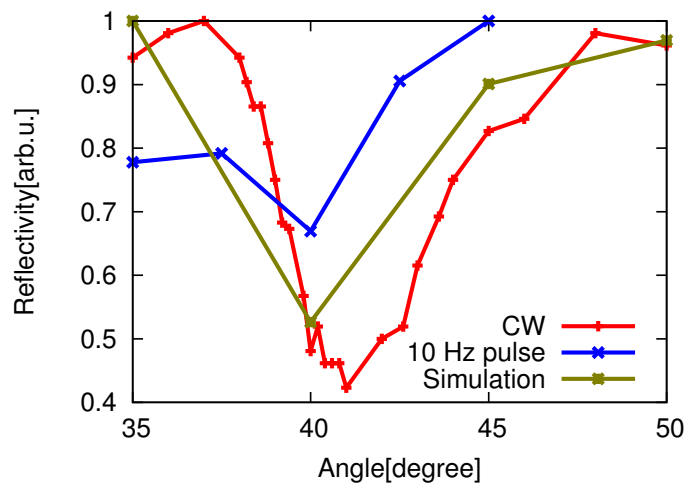


図 13 Gr500 ターゲットに対する, CW レーザー, $f/3$ 集光 10Hz レーザーパルスの実験と FDTD シミュレーションにおける反射率の入射角依存性. 実験では, Oscillator の連続光と $f/3$ で集光したパルスの反射光をパワーメーターで計測した. シミュレーションでは, 中心波長 800 nm のガウシアンパルスグレーティングターゲットへ P 偏光入射させている.

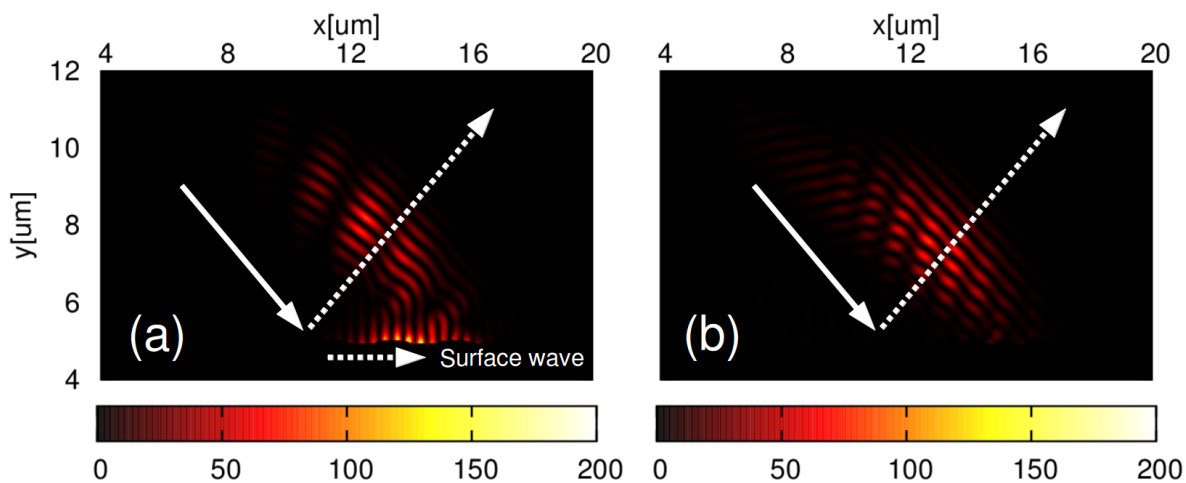


図 14 中心波長 800 nm のガウシアンパルス各グレーティングターゲットへ 40° で P 偏光入射させたときの (a)Gr500, (b)Gr1000 の電場強度分布の FDTD シミュレーション結果. 実線は入射光, 点線は反射光の伝搬角度を示す. 共鳴条件を満たす Gr500 では表面波が励起され, 共鳴条件を満たさない Gr1000 では一切の表面波励起が観測されていない.

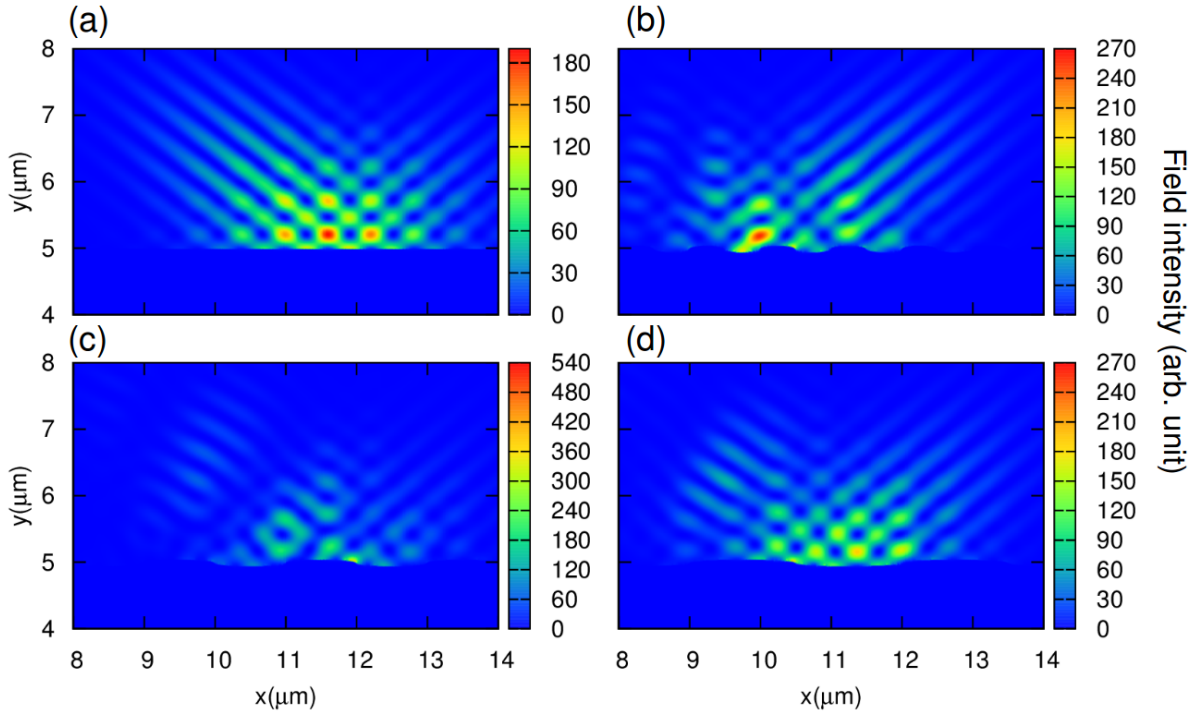


図 15 FDTD シミュレーションを用いた, (a) 平板ターゲット, (b)Gr333, (c)Gr500, (d)Gr1000 の電場強度分布. 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスを入射角 40° で P 偏光入射させ, 入射パルスとターゲットが相互作用している時点における結果を示している.

面プラズモンはターゲットが負の誘電率をもつ場合に限り存在することが証明された. また, プラズマターゲットは電子密度 $44 n_c$ の屈折率 $\epsilon = -43$ を模擬しており, この場合も負の誘電率をもつので表面プラズマ波が観測されている.

続いて, PIC シミュレーションを用いて, 実験で得られた電子個数の角度分布, 電子スペクトルを再現する. シミュレーションコードはカリフォルニア大学バークレー校で開発されたフリーの PIC コードである, XOOPIC(Object Oriented PIC on X-windows) を用いた [17]. レーザーパルス幅 30 fs, 波長 800 nm, スポットサイズ $8 \mu\text{m}$, 集光強度 10^{19} W/cm^2 の P 偏光パルスをターゲットへ 40° 入射した. シミュレーションの空間サイズは $19.2 \times 19.2 \mu\text{m}$, セルサイズは $\lambda/64 = 12.5 \text{ nm}$ である. ターゲットは厚み $1 \mu\text{m}$, 電子密度 $43 n_c$ の H で構成されており, 配置した粒子数は 100 particles/cell である. XOOPIC はターゲットを完全電離プラズマとして模擬し, 電束密度を真空の誘電率を用いて $D = \epsilon E$ とあらわすため分極電流の項が考慮されておらず, 表面プラズモンを再現することができない. ここで, さきほど FDTD シミュレーションで求めた電場増強度 $\eta^2 = 2$ を PIC の入射レーザー強度に反映させることで, 表面プラズモンによる増倍を間接的に再現する. 具体的には, Gr500 に対するレーザー強度を $2 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ とした. このとき, 入射レーザー強度を増倍したことが表面プラズモン共鳴による電場増強を厳密に模擬しているわけではないことに注意する.

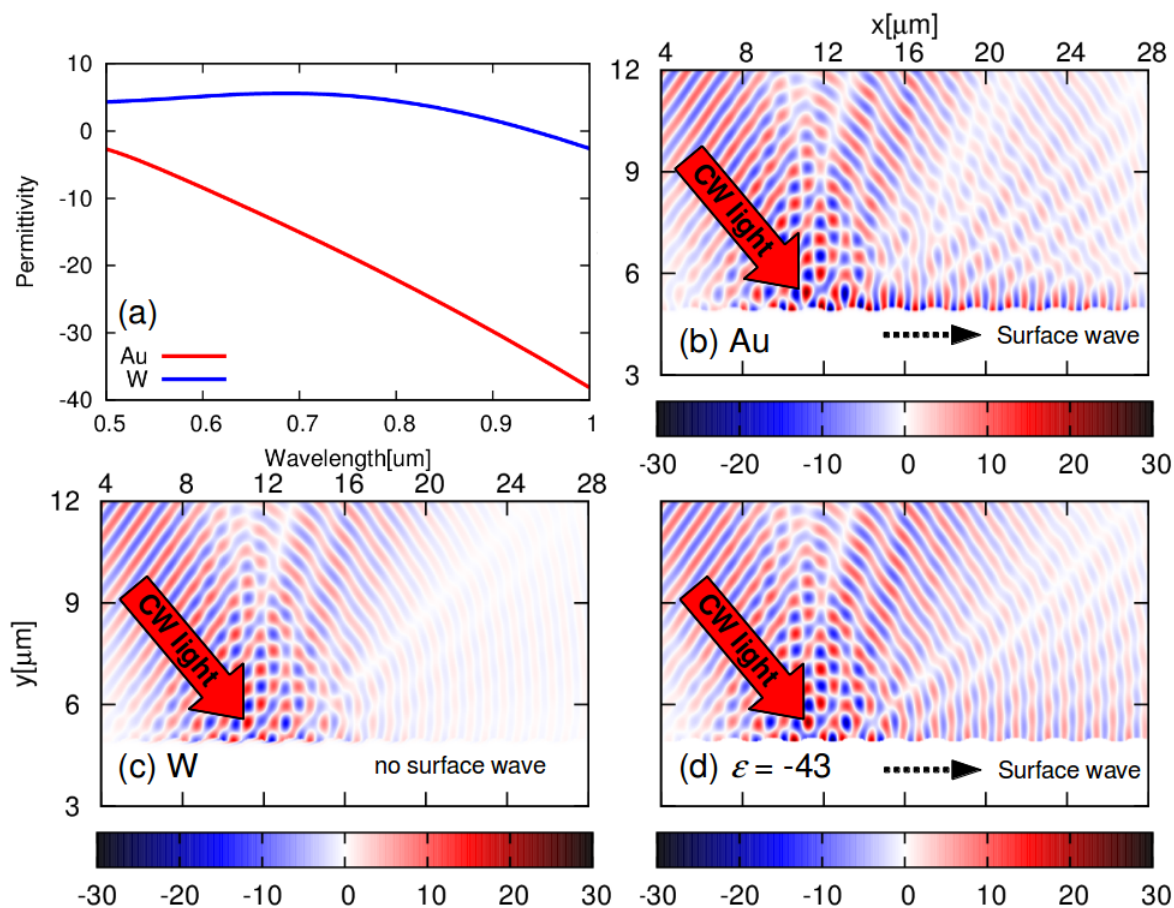


図 16 (a) 光波長に対する Au と W の誘電率実部, 中心波長 800 nm の連続光波を P 偏光で Gr500 へ 40° 入射させたとき, z 軸方向における (b) Au ターゲット, (c) W ターゲット, (d) プラズマターゲットそれぞれの磁場分布のシミュレーション結果. Au は可視領域から赤外領域にかけて負の誘電率をもつ一方で, W は波長 800 nm 付近において正の誘電率をもつ. レーザー波長 800 nm における誘電率実部は, $\Re[\epsilon_{\text{Au}}] = -22.1$, $\Re[\epsilon_{\text{W}}] = 4.47$ である. Au ターゲットとプラズマターゲットでは, グレーティング表面を伝搬するプラズマ波が明確に模擬されている. 一方で, W ターゲットでは表面プラズマ波の伝搬が確認できない. プラズマターゲットは電子密度 $44 n_c$ の誘電率 $\epsilon = -43$ を模擬している.

4.6 まとめ

入射レーザーパルスがターゲットと相互作用している時刻における電場強度のシミュレーション結果を図 17 に示す。図 17(a) は Gr500, (b) は平板ターゲットの結果であり、カラーバーのスケールは 10^{20} W/cm² で規格化した値を示している。図 17 の結果から、Gr500 と平板ターゲットの比較による電場強度の比は $\eta^2 = 0.8/0.3 \approx 2.67$ であり、FDTD シミュレーションで得られた 2.84 倍と一致がみられた。

図 18 に (a)90°(ターゲット裏面垂直方向), (b)130°(レーザー軸方向) における, Gr500 と平板ターゲットを用いたときの電子スペクトルのシミュレーション結果を示す。図 18(a) に示した 90° 方向の電子スペクトルは図 12 に示した実験スペクトルと同じ傾向がみられた。また, シミュレーションから得られた 10 倍の電子個数利得は, 実験で得られた 16 倍の増倍とおおよその一致がみられた。図 18(b) に示した 130° 方向の電子スペクトルは, 高温成分のスロープ温度に注目すると, Gr500 では 1.40 MeV(± 77 keV), 平板ターゲットでは 704 keV(± 21 keV) であった。ここで, 式 (1.14) に示した Wilks のスケーリングを用いると, それぞれのレーザー強度に対応する値は, 1.42 MeV(2×10^{19} W/cm²), 706 keV(10^{19} W/cm²) であり, シミュレーション結果から求めたスロープ温度と非常に良い一致がみられた。したがって, グレーティングターゲットを用いたとき, 生成される高速電子は, ナノ構造表面の強い局所電場が電子に及ぼすポンデロモータイプ力によって加速された可能性がある [18]。

ターゲット裏面に放出された高速電子の放出角度に対する個数分布の Gr500 と Gr1000 におけるシミュレーション結果を図 19 に示す。ここでは, ターゲット裏面から 2 μ m の位置に到達した電子を観測しており, エネルギーの低い熱電子を排除するため 2 MeV 以上のカウント電子の結果を示している。シミュレーションの結果, 電子個数の角度分布はおおよそ 150° と 30° にピークをもち, 図 11 に示す実験結果と同様の傾向がみられる。また, 150° に注目すると, 電子個数の比は Gr500/Gr1000=約 3 倍であり, IP 画像のラインプロファイル結果から得られた利得 2 倍とおおよその一致がみられた。

4.6 まとめ

本章では, 表面プラズモン共鳴を用いた高強度レーザー生成高速電子スペクトルの制御に関する研究について述べた。そのまとめは以下の通りである。

1. レーザー波長 800 nm, 入射角 40° に対して表面プラズモン共鳴条件を満たす本数密度 500 lines/mm, 1000 lines/mm のグレーティングと平板ターゲットを用いて, ターゲット裏面における高速電子ビームの角度分布とエネルギースペクトルを計測した。
2. 電子ビームの角度分布計測の結果, 500 lines/mm と 1000 lines/mm では表面構造の影響によって 150° と 40° の 2 方向に信号のピークが得られ, それらの信号量を比較すると, 500 lines/mm では 1000 lines/mm の 2 倍の利得が得られた。また, ターゲット裏面垂直方向のエネルギースペクトルの結果, 500 lines/mm では平板ターゲットと比較して 16 倍の個数増倍が得られた。

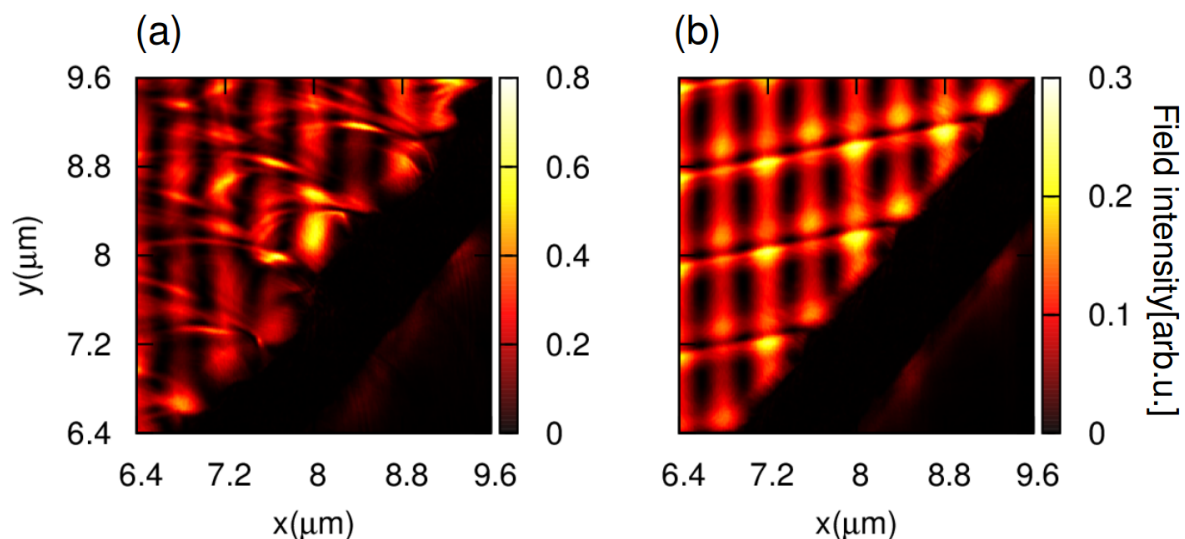


図 17 入射レーザーパルスがターゲットと相互作用している時刻における (a)Gr500, (b) 平板ターゲットの電場強度シミュレーション結果. ここで, 表面プラズモン共鳴による増倍を模擬するため, Gr500 に対するレーザー強度を $2 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ としている. カラーバーのスケールは 10^{20} W/cm^2 で規格化した値を示している.

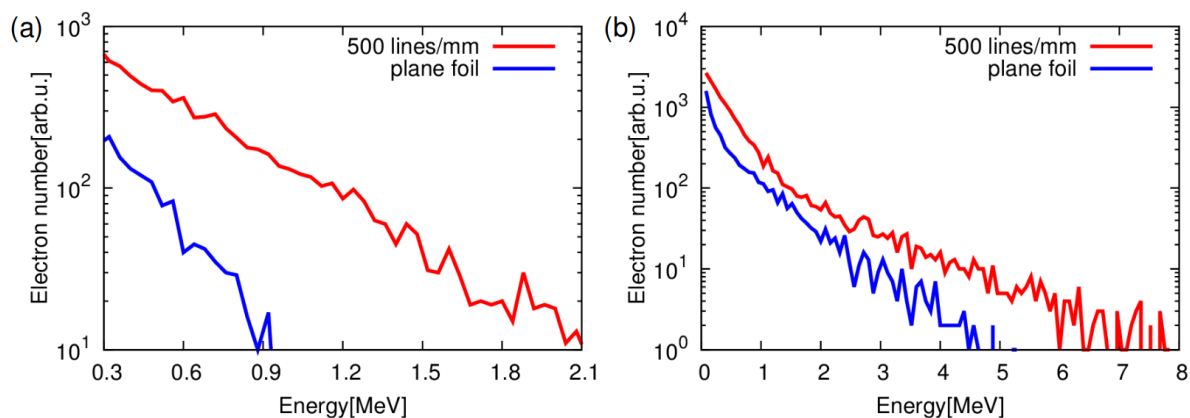


図 18 XOOPIC コードでシミュレーションした (a)90°(ターゲット裏面垂直方向), (b)130°(レーザー軸方向)における, Gr500 と平板ターゲットを用いたときの高速電子スペクトル観測結果. 90° で得られた 10 倍の電子個数利得は, 実験で得られた 16 倍の増倍とおおよその一致がみられた. 130° で得られた Gr500 と平板ターゲットの電子温度はスケールリングから求めた値と一致した.

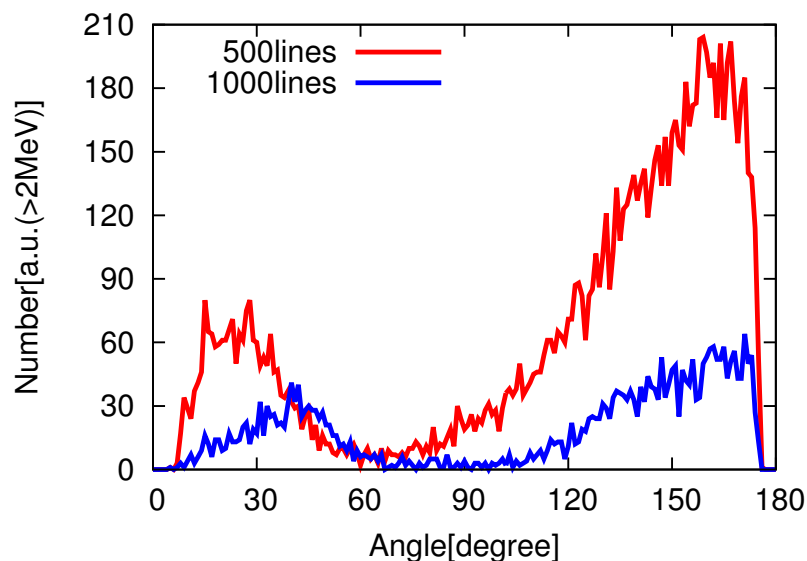


図 19 XOOPIC コードでシミュレーションした高速電子個数の角度分布の結果．ここで，表面プラズモン共鳴による増倍を模擬するため，各ターゲットに対するレーザー強度を，Gr500 では $2 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ ，G1000 では 10^{19} W/cm^2 としている．

3. MEEP コードを用いた電場強度分布のシミュレーション結果から，プラズモン共鳴による増倍は 2 倍，ナノ構造による増倍は 1.42 倍であることが示された．
4. PIC シミュレーションでは，ターゲット材料の分極計算を介した負の誘電率効果を考慮していないため表面プラズモンを再現することができない．この問題の解決方法として，FDTD シミュレーションから求めた表面プラズモン共鳴による 2 倍の増倍を PIC シミュレーションの入力レーザー強度に反映させた．
5. 表面プラズモンの増倍を考慮した PIC シミュレーションによる電場強度を求めた結果，Gr500 と平板ターゲットの比較により得られた電場強度の比 $\eta^2 = 0.8/0.3 = 2.67$ は FDTD シミュレーションで得られた強度比 2.84 倍と一致がみられた．レーザー軸方向の電子スペクトル結果では，表面プラズモンの増倍を考慮したレーザー強度における Ponderomotive 温度がシミュレーション結果から求めたスローブ温度と非常に良い一致をみせた．また，電子個数の角度分布では，シミュレーションで得られた電子の個数比 Gr500/Gr1000=約 3 倍は，IP 画像のラインプロファイル結果から得られた利得 2 倍とおおよその一致をみせた．

参考文献

- [1] P. P. Rajeev, P. Taneja, P. Ayyub, A. S. Sandhu, and G. Ravindra Kumar, “Metal Nanoplasmas as Bright Sources of Hard X-Ray Pulses” . *Phys. Rev. Lett.* **90**, 115002 (2003)
- [2] H. Masuda and K. Fukuda, “Ordered Metal Nanohole Arrays Made by a Two-Step Replication of Honeycomb Structures of Anodic Alumina” . *Science* **268**, 1466 (1995)
- [3] S. Mondal, I. Chakraborty, S. Ahmad, D. Carvalho, P. Singh, A. D. Lad, V. Narayanan, P. Ayyub, and G. R. Kumar, “Highly enhanced hard x-ray emission from oriented metal nanorod arrays excited by intense femtosecond laser pulses” . *Phys. Rev. B* **83**, 035408 (2011)
- [4] G. Kulcsar, D. AlMawlawi, F. W. Budnik, P. R. Herman, M. Moskovis, L. Zhao, and R. S. Marjoribanks, “Intense Picosecond X-Ray Pulses from Laser Plasmas by Use of Nanostructured ”Velvet” Targets” . *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5149 (2000)
- [5] L. Cao, Y. Gu, Z. Zhao, L. Cao, W. Huang, W. Zhou, X. T. He, W. Yu, and M. Y. Yu, “Enhanced absorption of intense short-pulse laser light by subwavelength nanolayered target” . *Phys. Plasmas* **17**, 043103 (2010)
- [6] L. Cao, Y. Gu, Z. Zhao, L. Cao, W. Huang, W. Zhou, H. B. Cai, X. T. He, W. Yu, and M. Y. Yu, “Control of the hot electrons produced by laser interaction with nanolayered target” . *Phys. Plasmas* **17**, 103106 (2010)
- [7] M. A. Purvis, V. N. Shlyaptsev, R. Hollinger, C. Bargsten, A. Pukhov, A. Prieto, Y. Wang, B. M. Luther, L. Yin, S. Wang, and J. J. Rocca, “Relativistic plasma nanophotonics for ultrahigh energy density physics” . *Nature Phys.* **7**, 796 (2013)
- [8] P. K. Singh, I. Chakraborty, G. Chartterjee, A. Adak, A. D. Lad, P. Brijesh, P. Ayyub, and G. R. Kumar, “Enhanced transport of relativistic electrons through nanochannels” . *Phys. Rev. Spec. Topics - Accelerators and Beams* **16**, 063401 (2013)
- [9] P. P. Rajeev, P. Taneja, P. Ayyub, A. S. Sandhu, and G. Ravindra Kumar, “Metal Nanoplasmas as Bright Sources of Hard X-Ray Pulses” . *Phys. Rev. Lett.* **90**, 115002 (2003)
- [10] J. Kupersztych, M. Raynaud, and C. Riconda, “Electron acceleration by surface plasma waves in the interaction between femtosecond laser pulses and sharp-edged overdense plasmas” . *Phys. Plasmas* **11**, 1669 (2004)
- [11] A. Macchi, F. Cornolti, F. Pegoraro, T. V. Lisekina, H. Ruhl, and V. A. Vshivkov, “Surface Oscillations in Overdense Plasmas Irradiated by Ultrashort Laser Pulses” . *Phys. Rev. Lett.* **87**, 205004 (2001)
- [12] A. F. Oskooi, D. Roundy, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, and S. G. Johnson,

- “MEEP: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method” , *Comp. Phys. Commun.* **181**, 687 (2010)
- [13] G. Hu, A. Lei, W. Wang, X. Wang, L. Huang, J. Wang, Y. Xu, J. Liu, W. Yu, B. Shen, R. Li, and Z. Xu, “Collimated hot electron jets generated from subwavelength grating targets irradiated by intense short-pulse laser” . *Phys. Plasmas* **17**, 033109 (2010)
- [14] T. Ceccoti, V. Floquet, A. Sgattoni, A. Bigongiari, O. Klimo, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, F. Baffigi, L. Labate, L. A. Gizzi, L. Vassura, J. Fuchs, M. Passon, M. Kveton, F. Novotny, M. Possolt, J. Prokupek, J. Proska, J. Psikal, L. Stolcova, A. Velyhan, M. Bougeard, P. D. Oliveria, O. Tcherbakoff, F. Reau, O. Tcherbakoff, F. Reau, P. Martin, and A. Macchi, “Evidence of Resonant Surface-Wave Excitation in the Relativistic Regime through Measurements of Proton Acceleration from Grating Targets” . *Phys. Rev. Lett.* **111**, 185001 (2013)
- [15] M. Raynaud, J. Kupersztich, C. Riconda, J. C. Adam, and A. Heron, “Strongly enhanced laser absorption and electron acceleration via resonant excitation of surface plasma waves” . *Phys. Plasmas* **14**, 092702 (2007)
- [16] H. Habara, K. Adumi, T. Yabuuchi, T. Nakamura, Z. L. Chen, M. Kashihara, R. Kodama, K. Kondo, G. R. Kumar, L. A. Lei, T. Matsuoka, K. Mima, and K. A. Tanaka, “Surface Acceleration of Fast Electrons with Relativistic Self-Focusing in Preformed Plasma” . *Phys. Rev. Lett.* **97**, 095004 (2006)
- [17] J. P. Verboncoeur, A. B. Langdon, and N. T. Gladd, “An object-oriented electromagnetic PIC code” . *Comp. Phys. Commun.* **87**, 199 (1995)
- [18] S. C. Wilks, W. L. Kruer, M. Tabak, and A. B. Langdon, “Absorption of Ultra-Intense Laser Pulses” , *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1383 (1992).

5 総括

本論文では，“ターゲット材料選択によって超高強度レーザー生成高速電子のスペクトルを制御する研究”，“ターゲット表面のナノ構造により高強度レーザー領域において表面プラズモンを励起することで高速電子生成効率を増大させる研究”に関して説明した．以下に，本論文の各章ごとに得られた結論について述べる．

第1章は序論であり，ターゲットの材質選択によって高速電子スペクトルを制御する手法について紹介した．また，ナノ構造ターゲットを用いるとレーザーエネルギーの吸収率が平板に対して増加する研究が多数報告されているが，本研究では従来の“ランダム配置”ではなく“周期構造”ターゲットを用いて表面プラズマ波を励起することで，“ナノ構造の効果”を超えるエネルギー吸収率を達成する方法について概説した．

第2章では，金属ターゲット表面のプラズマ振動が横波の電場振動に変換された“表面プラズモン”と，ナノサイズの金属表面に局所的な強い電場が発生する“局在プラズモン”について述べた．表面プラズモンは入射伝搬光より常に波数が大きいいため，平板ターゲットでは両者がエネルギー結合することはないが，グレーティングターゲットを用いた波数シフトによって，両者の相互作用が可能になることについて説明した．

第3章では，ターゲット選択により高強度レーザー生成高速電子のスペクトルを制御できる可能性をシミュレーションで確認したことについて述べ，高コントラストレーザーを用い，Al, Cu, Auの異なる密度をもつターゲットで電子温度が変化することを実験的に確かめた．電子スペクトル計測の結果，AlターゲットではAuターゲットの約1.4倍の電子温度が得られた．衝突と電場による電離効果を含めた2DPICシミュレーションを用いた結果，ポンデラモーティブスケーリングに対するAlとAuの電子温度は，実験では1.0倍と0.8倍，シミュレーションでは1.0倍と0.9倍で結果が一致した．また，シミュレーション結果から，原子番号が大きいターゲットほどプラズマ中の電離度と電子密度が高いために，高強度レーザーに加速される電子個数が多く，高速電子の平均エネルギーが低くなったのではないかと推測される．一方，プロトン最大エネルギーの結果は材料間で変化が見られなかったことは，プロトンを加速するシースポテンシャルの大きさが材料間で同じことから説明され，結果として加速電子の温度と個数の積が材料間で一定であったことが示された．

第4章では，グレーティングターゲットを用いた高強度レーザー生成高速電子の絶対個数を増加させる方法について説明した．周期構造をもつグレーティングターゲットで波数マッチングをおこない，高強度レーザーを用いた実験において，表面プラズモン共鳴条件を満たす場合(= 500 lines)は非共鳴の場合(= 1000 lines)に対して約2倍の高速電子フラックスを発生した．ターゲット表面方向へ伝搬する表面プラズモンはFDTDシミュレーションで再現され，表面電場の増強度2倍が得られた．PICシミュレーションで表面場の増強を再現するために，増強度2倍(= 2×10^{19} W/cm²)を共鳴条件を満たす500 linesに適用した結果，500 linesが1000 linesに対して約3倍の電子個数を発生した．この電子増倍は実験で得られた利得とほぼ同値であり，表面プラズモンを

励起することで“ナノ構造効果”以上のエネルギー吸収率を生み出す手法を示すことができた。

本研究では、ターゲット特性 (=材質と表面構造) による超高強度レーザー生成高速電子の制御によって、ターゲット選択で高速電子の平均エネルギーを変化させる手法、ターゲットに表面構造をもたせて電子の絶対個数を増加させる手法について説明した。これらの高速電子スペクトル制御に関する理解は、高エネルギービーム物理や高輝度 X 線の発生、がん治療などの医療応用が考えられ、所望の品質をもつ荷電粒子ビームを生成する研究に関して非常に有益であると考えられる。

謝辞

本研究の遂行に際し、終始懇篤なる御指導、御鞭撻を賜りました田中和夫 教授に心から謝意をあらわします。

研究を進めるにあたり、終始変わらぬ御指導、御助言を頂きました羽原英明 准教授に深く感謝致します。

博士課程在学中に御指導賜りました上田良夫 教授、飯田敏行 教授、兒玉了祐 教授、中井光男 教授、村上匡且 教授、白神宏之教授、西村博明 教授、加藤裕史 准教授、尾崎典雅 准教授、河仲準二 准教授、坂和洋一 准教授、藤岡慎介 准教授、長友英夫 准教授、有川安信 講師、伊庭野健造 助教、佐野孝好 助教、Lee Heun Tae 助教に心から謝意をあらわします。

本研究をおこなうにあたり、素晴らしい研究環境を御提供下さいました大阪大学レーザーエネルギー学研究センター長の疇地宏 教授に深厚なる謝意をあらわします。

高コントラストフェムト秒レーザーシステムを用いた実験のサポート、研究に関する有益な議論、投稿論文の添削をして下さった、タタ基礎研究所の G. Ravindra Kumar 教授、M. Krishnamurthy 教授、J. Jha 博士、Amit D. Lad 博士、P. Brijesh 博士、Indranuj Dey 博士、Prashant K. Singh 氏、Amitava Adak 氏、Gourab Chatterjee 氏、Malay Dalui 氏、Sheroy Tata 氏、T. Madhu Trivikram 氏、M. Sheikh 氏、Soubhik Sarkar 氏、Deep Sarkar 氏に深く感謝いたします。

原子力研究開発機構関西光科学研究所の J-KAREN レーザーシステムを用いた実験に関して、活発な議論と実験のサポートをして下さった近藤公伯 教授、西内満美子 博士、福田佑仁 准教授 (九州大学大学院)、余語覚文 准教授 (大阪大学大学院)、Alexander S. Pirozhkov 博士、小倉浩一 博士、谷本壮 助教 (高知工業高等専門学校) に感謝いたします。

PICLS シミュレーションコードを用いた結果を提供くださったネバダ大学の千徳靖彦 教授、広島大学の城崎知至 准教授に深く感謝いたします。

成膜装置の使用を快諾して下さい、表面プラズモン研究に関して御協力を頂きました、摂南大学理工学部の井上雅彦 教授、田口俊弘 教授に深く感謝いたします。

ナノリソグラフィ装置を用いた実験に関してサポートして下さい、産業科学研究所ナノテクノロジー設備供用拠点の法澤公寛 特任助教、柏倉美紀 特任研究員に深く感謝いたします。

ZnO ナノワイヤーの製作方法に関してご指導いただいた九州大学の岡田龍雄 教授、中村大輔 准教授に感謝いたします。

本研究の遂行において、素晴らしい助言をくださった、中新信彦 博士、西田明憲 博士、今亮 博士、岡林篤紀 博士、水田好雄 博士、澤井清信 氏、嶋田和浩 氏、長田将典 氏に深く感謝いたします。

日々の研究生活において、活発な議論と惜しみない御協力を頂きました、岩脇智行 博士、河野卓也 氏、大石達也 氏、御前成吾 氏、森岡朋也 氏、森田澄 氏、大本直輝 氏、木久山健士郎 氏、西村清秀 氏、天野祐基 氏、永見亮介 氏、柴田怜 氏、影山慶 氏、彭明超 氏、黒田和孝 氏、仁井大心 氏、林宜章 氏、白石亮平 氏、小田浩之 氏、高木一茂 氏、山下真直 氏、植松祐仁 氏、中口真之介 氏、久保田善大 氏、塚本太郎 氏、吉田有佑 氏、今村圭佑 氏、辻井章紘 氏、村上莉穂 氏、八幡航

大 氏，山内智輝 氏をはじめ，多くの方々に感謝致します。

博士課程の研究生生活を経済面からサポートしてくださった，一般財団法人中西奨学会に感謝いたします。

最後に，心身共に私を支えてくださった両親，並びに研究生生活を支えてくださいました全ての方々に心から感謝致します。

付録A プラズモン定在波の励起を用いた高強度レーザー生成高速電子の効率向上

A.1 はじめに

グレーティングターゲットの本数密度，レーザー波長，入射角の組み合わせが共鳴条件を満たすとき，表面プラズモンが励起されることについては前章で述べた．この場合，入射レーザー光は前方及び後方のいずれか片側へ伝搬する表面プラズモンとエネルギー結合したことになる．表面プラズモン波は伝搬と共にエネルギーを失いやがて消失してしまうので，前方と後方へ伝搬する表面プラズモンを同時に励起することができれば，より大きなエネルギーを表面に集中させられるはずである．このとき，回折したプラズモン波分散の交点上でバンドギャップが生じ，ギャップの両端ではモードという定在波を励起することができる．

本章では，分散ギャップ端で生じるプラズモン定在波を高強度レーザー領域に拡張し，高速電子ビームの高効率生成に関して研究をおこなったことについて述べる．

A.2 プラズモンモードを満たすグレーティングターゲットのパラメータ評価

グレーティングターゲットの準備を考えたとき，高強度レーザーシステムの仕様に合わせた構造パラメータを決める必要があるため，既製品では条件を満たすことができない．したがって，任意の構造パラメータに対応できるナノ構造の作製方法を選択しなければならない．構造周期が $1\ \mu\text{m}$ 以下の微細加工をおこなう場合，2 光波干渉法，電子ビームリソグラフィ，イオンビーム加工法などの方法が挙げられる [1, 2]．グレーティングの表面構造を正弦波形状とした場合，その加工方法としては 2 光波干渉法が広く利用されており，一般的な光学メーカーが作製するホログラフィックグレーティングがそれに当たる．しかし，この方法では多くの場合，正弦波振幅の細かな設定要求を満たすことができない．また，イオンビーム加工法では曲面加工の設計に対する細かいパラメータ決めが難しく，長期間に及ぶトライアンドエラーが必要になる．一方，グレーティング形状が矩形格子であれば，CAD(Computer aided design) 入力に基づいた正確な位置決め加工をおこなう電子ビームリソグラフィで作製可能である．したがって，高強度レーザー実験に用いるグレーティングターゲットの表面構造は矩形形状とした．

グレーティングターゲットを作製する前に，高強度レーザー波長 $800\ \text{nm}$ において最適なエネルギー吸収を示す構造パラメータを導出する必要がある．グレーティングターゲットを用いた表面プラズモンの波数整合の式は，金属の誘電率を ϵ_m ，回折次数を m ，入射角を θ ，波長を λ ，グレーティング周期を d とすると，

$$\sin \theta + m \frac{\lambda}{d} = \pm \sqrt{\frac{\epsilon_m}{1 + \epsilon_m}} \quad (\text{A.1})$$

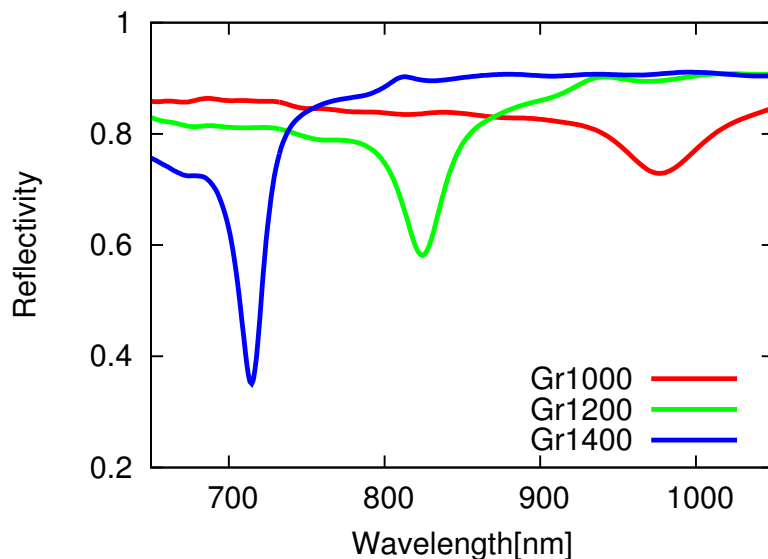


図 1 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスグレーティングターゲットへ垂直入射したときの反射率シミュレーション結果。モード波長は Gr1000, Gr1200, Gr1400 に対してそれぞれ 980 nm, 830 nm, 720 nm を示す。構造パラメータは $FF = 0.25$, 矩形深さ h はすべて 50 nm としている。

となる。式 (A.1) の右辺は 1 に近似でき、 $m = 1$, $\theta = 0$ とすると、モード波長 $\lambda = d$ となるので、理論式上ではレーザー波長がグレーティング周期と同じであれば、定在波プラズモンが発生することになる。しかし、実際には式 (A.1) で求めた波長を中心として分散上にギャップが生じるので、モード波長は単純な式計算で求めることができず、FDTD シミュレーションを用いてモード波長を求める必要がある。

FDTD シミュレーションを用いて、高強度レーザーシステムの波長 800 nm において最適なエネルギー吸収を示す構造パラメータの導出をおこなった。空間サイズは $20 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$, セルサイズは 8 nm, 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスグレーティングターゲットへ垂直入射し、反射光スペクトルを観測した。グレーティングターゲットの周期 d (本数密度 $= 1/d$) を 1000 nm (1000 lines/mm: Gr1000), 840 nm (1200 lines/mm: Gr1200), 714 nm (1400 lines/mm: Gr1400) とし、それぞれの矩形深さ h はすべて 50 nm とした。また、グレーティング周期に対する凸部分の比率である FF (Fill factor) を 0.25 の一定値とした。Gr1000, Gr1200, Gr1400 における反射率のシミュレーション結果を図 1 に示す。反射率が極小値を示す波長値から、モード波長は Gr1000, Gr1200, Gr1400 に対してそれぞれ 980 nm, 830 nm, 720 nm であり、これらの値はグレーティング周期とほぼ一致している。3 種類の周期を比較した結果、Gr1200 が示すモード波長 830 nm がレーザー波長 800 nm に最も近いので、ターゲットに用いるグレーティングの本数密度は 1200 lines/mm とする。

次に、レーザー波長 800 nm に対して最適な吸収率を示す矩形深さを導出するため、深さ $h =$

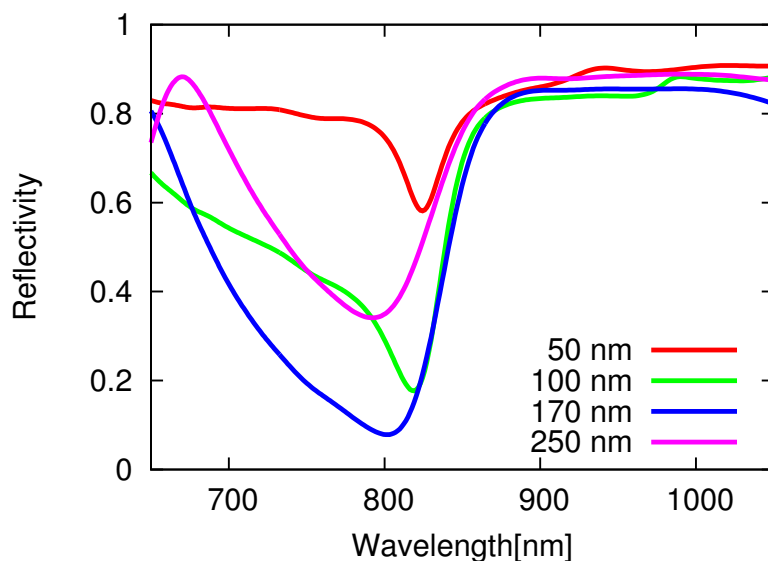


図 2 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスグレーティングターゲットへ垂直入射したときの反射率シミュレーション結果。レーザー波長 800 nm において最適なエネルギー吸収を示す矩形深さは 170 nm であった。構造パラメータは $FF = 0.25$ 、本数密度はすべて Gr1200 としている。

50, 100, 170, 250 nm として再度シミュレーションをおこなった。それぞれの深さにおける反射率のシミュレーション結果を図 2 に示す。吸収率が最適でかつモード波長が 800 nm に最も近い矩形深さは 170 nm であるので、高強度レーザー実験に用いるグレーティングターゲットのパラメータは $FF = 0.25$ 、周期 $d = 840$ nm (Gr1200)、深さ $h = 170$ nm とした。

A.3 ナノリソグラフィ装置を用いたグレーティングターゲットの作製

大阪大学産業科学研究所，ナノテクノロジー設備供用拠点の法澤公寛特任助教，柏倉美紀特任研究員に御協力いただき，ナノリソグラフィ装置でシリコンウェハを用いたグレーティングターゲット作製をおこなった。リソグラフィ前に必要な試料の前工程として，

1. ダイヤモンドカッターを用いて 4 インチ N 型 Si ウェハ (ヤマナカヒューテック株式会社) を 2 cm 角 (リソグラフィ装置の試料ホルダー用サイズ) に加工する。
2. ウェハ表面に付いたほこりをブローで除去後， O_2 プラズマクリーナー装置を用いて表面状態をさらに改善させる。
3. ウェハ中心にレジスト液 (ZEP520A) の液滴を落とし，スピンのコーターで表面全体に広げる。コーターの設定回転数は，(1) 回転数 300 rpm (revolution per minute) で 3 秒間，(2) 3000 rpm まで 5 秒間でスローブ的に変化させ，(3) 3000 rpm を 60 秒間持続させる。
4. 温度 180°C に設定したオープン上でウェハを 3 分間加熱し，レジストを焼き固める。

A.3 ナノリソグラフィ装置を用いたグレーティングターゲットの作製

というような作業が必要である。準備した試料表面に電子ビームを照射し、設定値通りのナノ構造を描画する。電子ビームリソグラフィ装置 (日本電子株式会社: JSM6500F) の作業工程を説明すると、

1. 位置決めの基準箇所に予め傷をつけた Si ウェハを試料ホルダー上に固定し、リソグラフィ装置の試料室に設置する。
2. 試料室の真空引きを開始し、ロッドを用いて試料室中のホルダーをリソグラフィ装置中心部分へ挿入し、高真空に達するまで 15 分間のタイマーをかける。
3. リソグラフィ装置横に備え付けられた PC を操作し、CAD(Computer aided design) ソフト上でナノ構造の詳細な図面を作成する。
4. 真空引き開始から 15 分後、電子銃のガンバルブを開放し、ファラデーカップ上に電子ビームを照射して電流値が 30 pA となるように出力を調整する。
5. 倍率を 5 万倍に拡大し、Si ウェハ上につけた傷上でビーム焦点を合わせる。焦点調整後、レジストが均等に塗られている部分にビーム照射先を合わせ、CAD ファイルに基づいたビームドローを開始する。

というような過程を経ることになる。描画フィールドの最小単位は $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ である。描画速度は電子ビームの設定ドーズ [μs] に依存し、通常 12 フィールド/時間程度であるので、1 mm 角 (10×10 フィールド) の描画には 8 時間程度を要する。描画終了後、大気開放して試料室から取り出した Si ウェハを現像液 (ZED-N50) に浸すと、電子ビーム照射により結合が切られたレジスト部分のみが溶解し、Si 表面の光沢が構造としてあらわれる。現像時、レジストが溶け出す速度は溶液温度に依存し、所望の寸法を得るには常温と冷蔵 ($=10^{\circ}\text{C}$) 液を使い分けトライアンドエラーを繰り返す必要がある。現像後、液をブロワーで飛ばし、光学顕微鏡を用いて構造が正確に描画されているか確認する。

試料観察の結果から所望の寸法が得られたことを確認した後、スパッタリング装置または EB(Electron beam) 蒸着装置を用いて試料表面の金属コーティングをおこなう。一般的に、スパッタリングよりも EB 蒸着の方が表面精度が数桁高い薄膜が得られる。ここで、定在波プラズモンの観測に用いるグレーティングターゲットでは矩形構造の表面粗さは特に問題とならないため、今回はスパッタリング装置を用いて金属コーティングをおこなった。スパッタリング装置 (キヤノンネルバ株式会社: EB1100) の操作工程は、

1. 大気開放した試料室から試料ホルダーを取り出し、ネジとワッシャーでウェハをホルダー上に固定し、ホルダーを再び試料室へ戻して真空引きを開始する。
2. スパッタリング出力 ($= 300\ \text{W}$)、時間 ($= 5$ 分程度)、スパッタリング源 (Au, Cr, Pt) と試料間距離 ($= 300\ \text{mm}$) などを入力し、スパッタリングを開始する。本スパッタリングの前にプレスパッタリングで厚さ 2 nm 程度の Cr を成膜すると、他のスパッタリング源との接着力が強くなり Si ウェハから薄膜が剥がれにくくなる。

A.4 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験

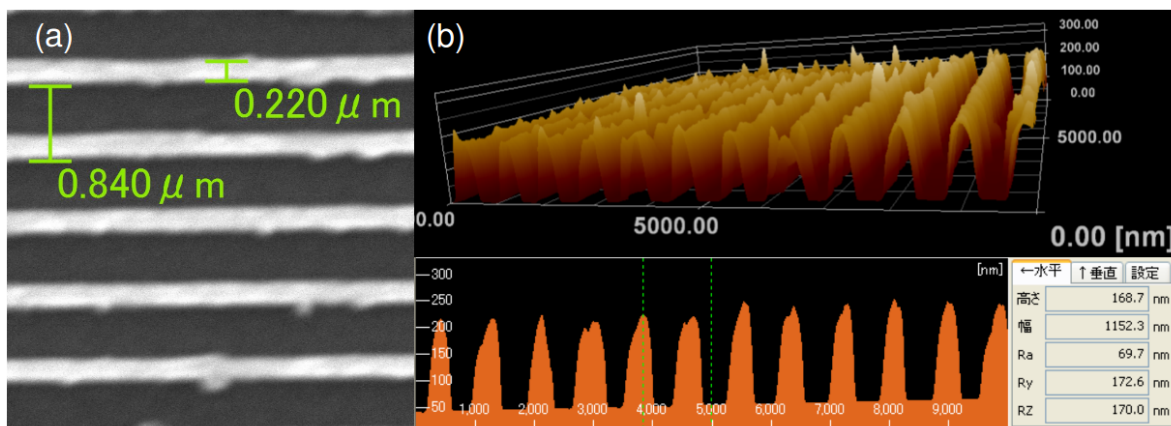


図3 ナノリソグラフィ装置で作製したグレーティングターゲットの (a)SEM 画像, (b)AFM 画像. SEM 画像から観測された周期 $840\ \text{nm}$, $\text{FF} \approx 0.26$ と, AFM 画像から観測された矩形深さ $168.7\ \text{nm}$ は設定値と一致する.

というような過程を経る. Cr と Au の成膜レートは, ターゲットサンプル間距離が $100\ \text{mm}$ のときは $28.4\ \text{nm/min}$ と $14.3\ \text{nm/min}$, $300\ \text{mm}$ のときは $15.6\ \text{nm/mm}$ と $5.9\ \text{nm/mm}$ である. このとき, ターゲットサンプル間距離が大きいほど試料面との成す角が小さいスパッタ粒子数が多くなり, 膜厚の均一性が改善される. この後, ウェハを剥離液 (ZDMAC) に浸けてレジストをすべて除去 (リフトオフ) し, ウェハ表面を再度金属コーティングして全体を金属膜で覆えばグレーティングターゲットが完成する.

ナノリソグラフィ装置を用いて作製したグレーティングターゲットの SEM(Scanning electron microscope) 観察, AFM(Atomic force microscope) 観察をおこなった結果を図 3(a)(b) にそれぞれ示す. ここで, 設定したグレーティグターゲットの構造パラメータは, レーザー波長 $800\ \text{nm}$ において最適なエネルギー吸収を示す $\text{FF} = 0.25$, 本数密度 $1200\ \text{lines}$ (周期 $840\ \text{nm}$), 矩形深さ $170\ \text{nm}$ である. 図 3(a) の SEM 画像から観測された周期 $840\ \text{nm}$, $\text{FF} = 220/840 \approx 0.26$ は, ナノリソグラフィの設定値と完全に一致していることがわかる. また, 図 3(b) の AFM 画像から観測された矩形深さ $168.7\ \text{nm}$ は設定値 $170\ \text{nm}$ と一致している.

A.4 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験

A.4.1 実験セットアップ

TIFR(Tata Institute of Fundamental Research) の G. R. Kumar 教授らとの共同研究により, 高コントラストフェムト秒レーザーシステムを用いて, 定在波プラズモンの励起による高効率電子ビーム生成の実験をおこなった. レーザーシステムのパラメータは, エネルギー $800\ \text{mJ}$ ($= 400\ \text{mJ on target}$), パルス幅 $30\ \text{fs}$, 波長 $800\ \text{nm}$, P 偏光, $f/3$ の光学系でスポット径 $6\ \mu\text{m} \times 8.5\ \mu\text{m}$ に集光したレーザー強度は $3 \times 10^{19}\ \text{W/cm}^2$ である. 定在波プラズモンを励起するため, レーザーパルスの直線偏光軸とグレーティング周期方向を一致させている. このとき, レーザーパルスを

A.4 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験

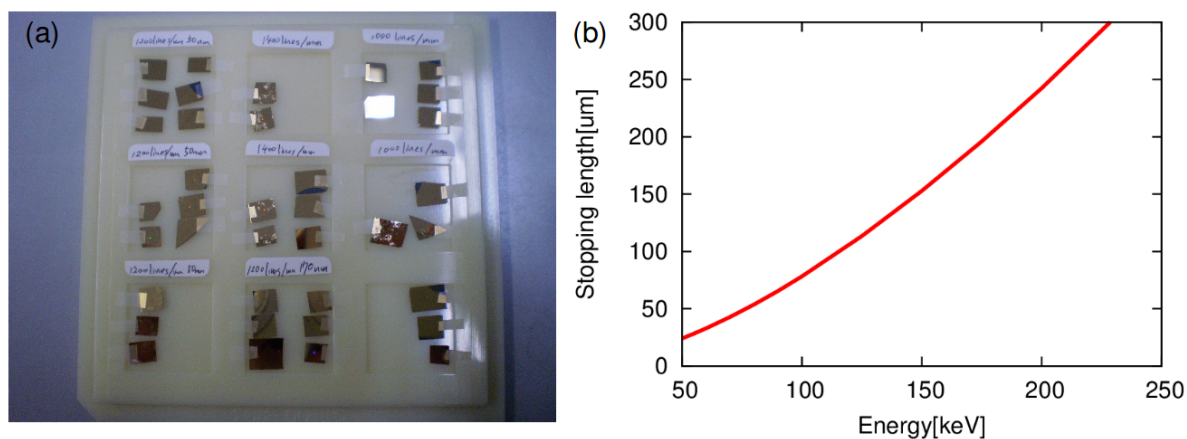


図4 (a) ナノリソグラフィ装置で作製したグレーティングターゲット写真, (b)estar から参照した Si 材料の厚みに対する電子の侵入長. グレーティングの構造パラメータは Gr1000, Gr1200-50, Gr1200-170, Gr1400 である. estar の結果から, 約 100 keV 以上のエネルギーをもつ電子のみが Si ターゲット裏面を通過することができる.

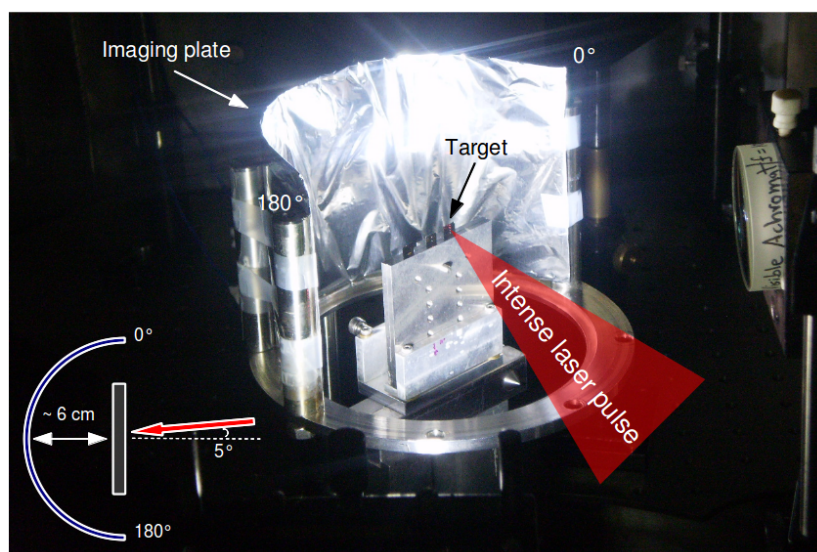


図5 IPを用いたターゲット裏面に放出される高速電子ビームの角度分布計測のセットアップ. レーザー強度 $3 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$, パルス幅 30 fs, 波長 800 nm, P 偏光で, $f/3$ の光学系でスポット径 $6 \mu\text{m} \times 8.5 \mu\text{m}$ に集光した. このとき, レーザーパルスターゲットに垂直入射すると戻り光が非線形光学素子を破壊する恐れがあるため, レーザー入射角は 5° とした.

A.4 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験

ターゲットに垂直入射すると戻り光が非線形光学素子を破壊する恐れがあるため、レーザー入射角は 5° とした。ナノリソグラフィ装置を用いて作製したグレーティングターゲットの写真を図 4(a) に示す。これらのターゲットは FDTD シミュレーションで求めた構造パラメータを参考にしており、プラズモンモードの共鳴条件を満たすステップ深さ 170 nm の Gr1200(Gr1200-170)、共鳴条件を満たさない深さ 50 nm の Gr1000, Gr1200(Gr1200-50), Gr1400 を用いた。ここで、高強度レーザーパルスショット用のグレーティング描画面積は 1 つにつき $300\ \mu\text{m} \times 300\ \mu\text{m}$ としている。Si ウェハ厚みは $100\ \mu\text{m}$ で表面は Au コーティングされている。ナノ構造との比較のため、表面を Au コーティングした Si ウェハを平板ターゲットとして用いた。ここで、The National Institute of Standards and Technology (NIST) が発表している、物質中における電子の阻止能データ表 (estar) から引用した電子の Si 厚みに対する侵入距離の変化を図 4(b) に示す。ターゲットの Si ウェハ厚みは $100\ \mu\text{m}$ であるため、約 100 keV 以上のエネルギーをもつ電子のみがターゲット裏面を通過することができる。

定在波プラズモンの励起による高速電子ビーム生成の実験では、

1. Imaging plate(IP) を用いたターゲット裏面に放出される高速電子ビームの角度分布計測
2. Electron spectrometer(ESM) を用いたターゲット裏面垂直方向の高速電子エネルギースペクトル計測
3. パワーメータ、スペクトロメータを用いた反射光パワー、スペクトル計測

をおこなった。実験 (1) のセットアップを図 5 に示す。IP をターゲット裏面から 6 cm 離れた位置に配置し、後面 180° 全体を覆うことによって、高速電子ビームの放出角度分布を計測した。放出角度の定義として、図 5 において、IP の上側を 0° 、下側を 180° としている。レーザー直接光、散乱光、X 線などのノイズ信号を取り除くため、IP 表面は Al フィルターによって保護されている。Al フィルターの厚みは、グレーティングターゲットと平板ターゲットに対してそれぞれ $22\ \mu\text{m}$, $11\ \mu\text{m}$ とし、それらの電子に対するエネルギーしきい値はそれぞれ 15 keV, 10 keV である。実験 (2) では、ターゲット裏面垂直の 90° 方向に対して ESM を設置し高速電子エネルギースペクトル計測をおこなった。ESM に搭載されている磁石は 0.1 T の磁場強度をもち、エネルギー範囲 0.1 ~ 7.0 MeV の電子が計測可能である。実験 (3) では、ターゲット表側の高強度レーザー反射光をペリクルビームスプリッターで 2 方向へ分割し、反射パワーをパワーメータで、反射スペクトルをファイバー型スペクトロメータで同時計測した。透過率 1 %, 30 % の ND フィルターを用い、計測スペクトルがサチュレーションしないように気を付けた。また、同時計測した反射パワーの結果を用いることによって、高強度レーザーパルスがグレーティング面に適切にショットしていることのクロスチェックをおこなうことができる。レーザー波長 800 nm に対してプラズモンモード条件を満たすパラメータ (Gr1200-170) のグレーティングターゲットを用いた場合、反射スペクトルにおいて 800 nm 付近の信号が減少することが見込まれる。高強度レーザー領域において反射スペクトルからモード励起の証拠が得られれば、世界初の研究結果となる。

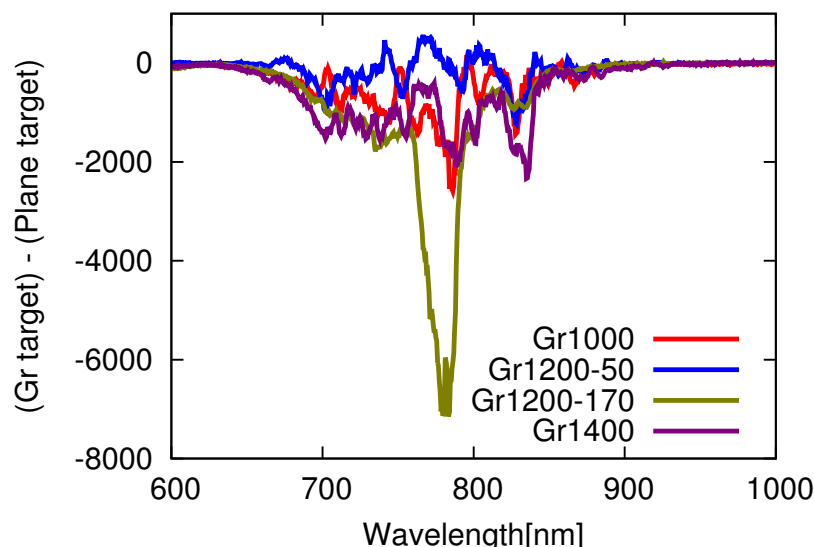


図6 CW レーザーをターゲットへ垂直入射したときの反射光スペクトル．縦軸は、グレーティングターゲットから平板ターゲットの計測スペクトルを差し引いた結果を示している．バンド幅を広げた Super continuum 光をターゲットへ垂直入射している．波長 800 nm 付近で明らかな反射光信号の減衰を示したのは Gr1200-170 だけであり、この構造パラメータがプラズモンモードの共鳴条件を満たしていることがわかる．

A.4.2 低強度 CW レーザーを用いた反射率測定

高強度レーザー実験の前に CW レーザーを用いて反射スペクトルを計測し、設定した構造パラメータが波長 800 nm でモード励起されることの確認をおこなう．バンド幅 50 nm のレーザー光をガラス中に集光し、バンド幅を広げた Super continuum 光をターゲットへ垂直入射した．図 6 に各ターゲットの反射スペクトルを示す．ここで縦軸は、各グレーティングターゲットで計測した反射スペクトルから平板ターゲットの信号を差し引いた値を示している．図 6 から、波長 800 nm 付近で明らかな反射光信号の減衰を示したのは Gr1200-170 だけであり、この構造パラメータがプラズモンモードの共鳴条件を満たしていることがわかる．

A.4.3 高強度レーザーを用いた高速電子の角度分布計測結果

Gr1000, Gr1200-50, Gr1200-170, Gr1400, 平板ターゲットにおいて、ターゲット裏面に放出された高速電子ビームを計測した IP 画像結果をそれぞれ図 7(a)(b)(c)(d)(e) の順番に示す．ここで、平板ターゲットは 6 ショット積算の結果を示している．共鳴条件を満たす (c)Gr1200-170 では、他のターゲットに対して信号強度の大幅な増加がみられ、得られた信号は非常にブロードな分布を示している．ブロードな信号が得られた一つの可能性としては、厚さ 100 μm に及ぶ Si ウェハ上における電子散乱の影響が考えられる．一方、(a)Gr1000, (b)Gr1200-50, (d)Gr1400 では 1 ピーク信号が得られ、そのピーク位置はおよそ 30° と 150° であった．平板ターゲットでは裏面

A.4 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験

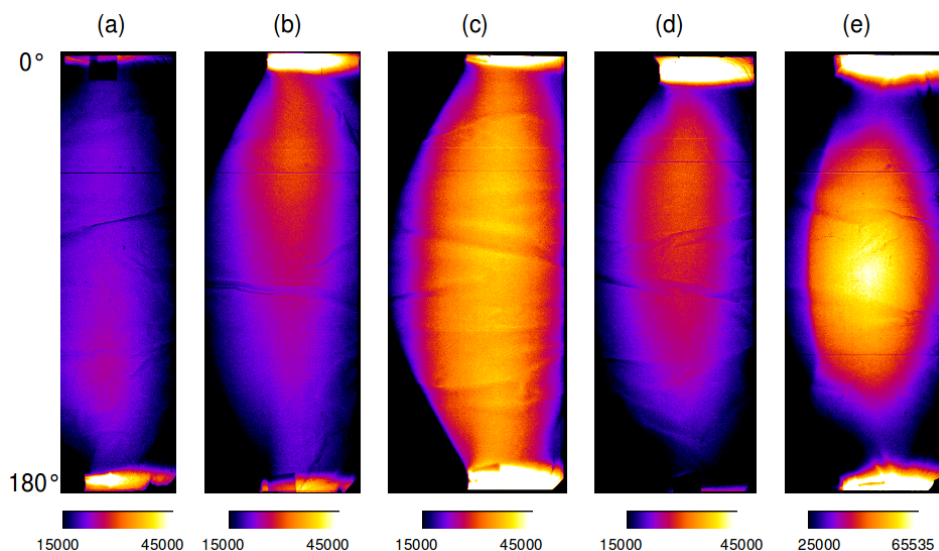


図 7 高強度レーザーパルス照射によりターゲット裏面に生じた (a)Gr1000, (b)Gr1200-50, (c)Gr1200-170, (d)Gr1400, (e) 平板ターゲットの電子個数角度分布. 共鳴条件を満たす Gr1200-170 では, 他のターゲットに対して信号強度の大幅な増加がみられ, 非常にブロードな信号分布が観測された.

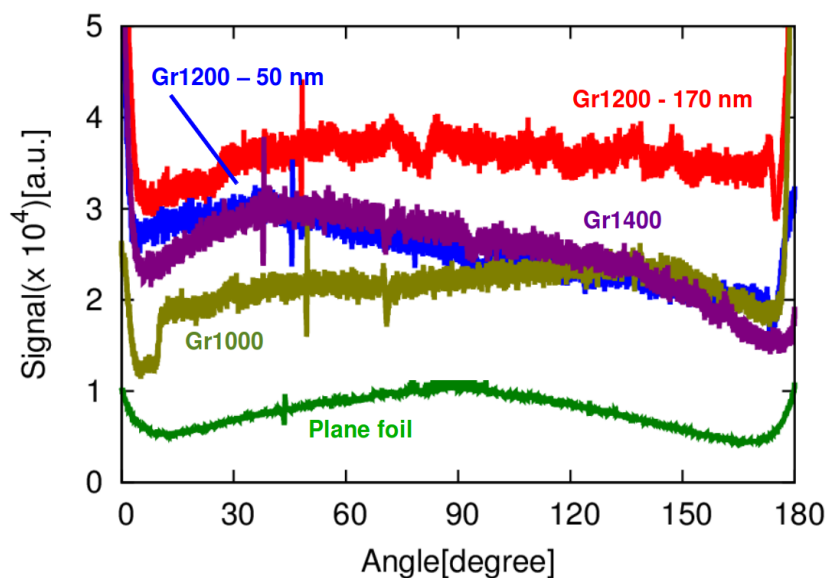


図 8 各ターゲットに対する IP 画像のラインプロファイル. 共鳴条件を満たす Gr1200-170 は他のターゲットと比較して高い信号量を示す一方で, 共鳴条件を満たさない Gr1000, Gr1200-50, Gr1400 はほとんど同じ信号量を示した.

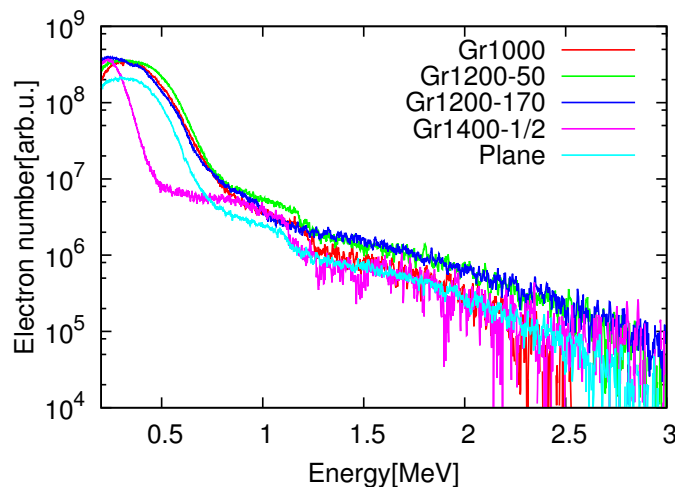


図9 ターゲット垂直裏面方向 (90°) で計測したエネルギースペクトル結果. ここで, Gr1400 に対するショットではエネルギー 400 mJ から 300 mJ に減少し, パルス幅 25 fs から 40 fs に拡張している. また, 縦軸はすべて 1 ショット変換した値を示している. Gr1000, Gr1200-50, Gr1200-170 の信号量に顕著な差はみられない.

垂直方向 (90°) にピーク位置がみられることから, 高速電子ビームはグレーティングの矩形構造の影響により, 2 方向にビームが生じたのではないかと考えられる. また, Gr1200-170 では 2 方向に発生したビームが重なりをもつことで, ブロードな信号に見えている可能性も否定できない. 図7の各ターゲットに対する IP 画像のラインプロファイルを取った結果を図8に示す. ラインプロファイルの結果から, 共鳴条件を満たす Gr1200-170 は他のターゲットと比較して全体的に信号量が多く, 120° - 150° 付近では, 共鳴条件を満たさないグレーティングターゲットの約 2 倍の信号量が得られた. また, 共鳴条件を満たさない Gr1000, Gr1200-50, Gr1400 は平板ターゲットよりも信号量が多いものの, グレーティング間の結果に大きな違いはみられなかった.

A.4.4 ESM 計測結果

ターゲット垂直裏面方向 (90°) で計測したエネルギースペクトル結果を図9に示す. ここで, Gr1400 に対するショットではエネルギー 400 mJ から 300 mJ に減少し, パルス幅 25 fs から 40 fs に拡張している点に注意する. スペクトル計測では, グレーティングターゲットに 5 ショット, 平板ターゲットに 9 ショットをおこなったが, 図9の縦軸はすべて 1 ショット変換した値を示している. Gr1400 ではレーザー強度が半減したこともあって, 他のターゲットと比較して明らかに小さい値を示している. グレーティングターゲットでは平板ターゲットと比較して大きな電子個数がみられるものの, 共鳴条件を満たす Gr1200-170 では特に顕著な電子個数の増大は確認できず, Gr1000, Gr1200-50 とほぼ同等の信号量が得られた.

A.4 高強度レーザーによるプラズモンモード励起実験

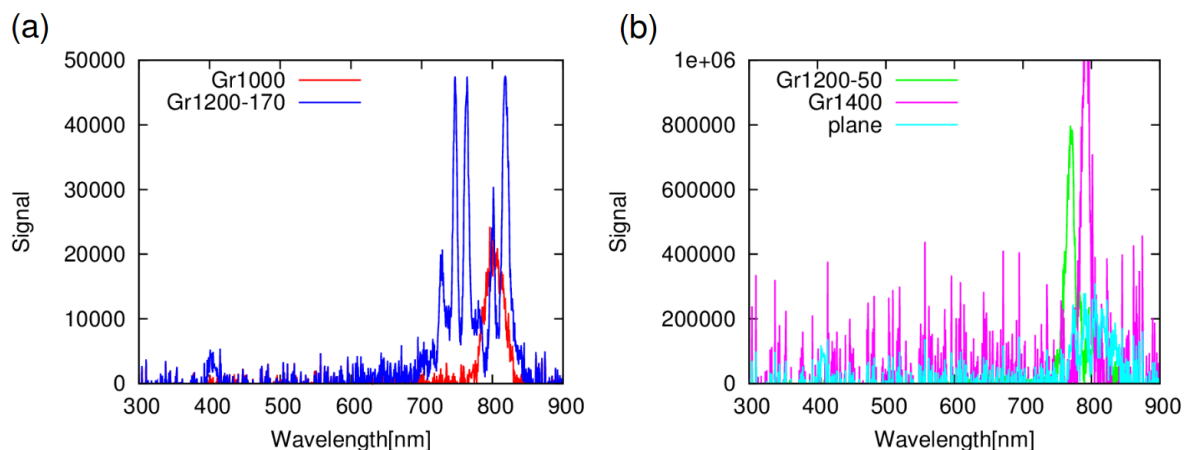


図 10 (a)Gr1000, Gr1200-170, (b)Gr1200-50, Gr1400, 平板ターゲットの反射光スペクトル計測結果. 縦軸は ND フィルターの透過率を考慮した値を示している. Gr1200-170 の反射スペクトルのみ反射率の減少 (約 780 nm) を示しているが, ショットごとにおける縦軸の振れ幅が大きい.

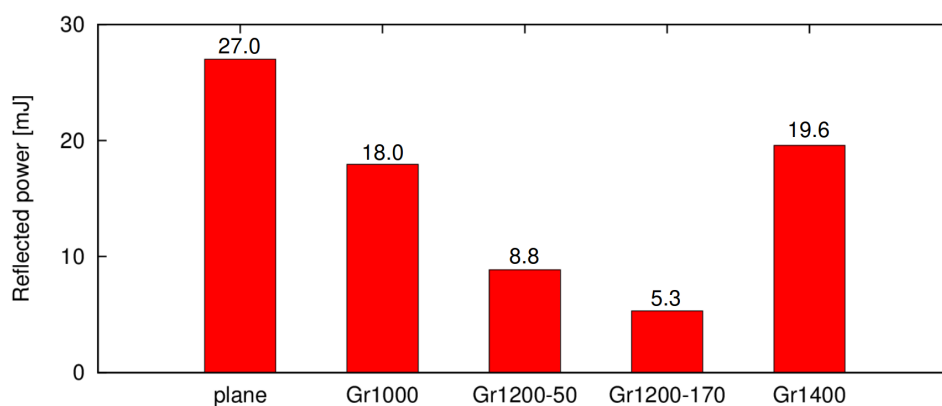


図 11 パワーメータで計測した各ターゲットにおける反射パワーの結果. それぞれの値は 27.0(平板ターゲット), 18.0(Gr1000), 8.8(Gr1200-50), 5.3(Gr1200-170), 19.6(Gr1400) であり, 定在波プラズモンを励起する Gr1200-170 で最も低い反射パワー値が示された.

A.4.5 反射率計測結果

ターゲット表側の反射レーザーパルスのスペクトルに関して, 図 10(a) に Gr1000, Gr1200-170, (b) に Gr1200-50, Gr1400, 平板ターゲットの結果を示す. それぞれのショット計測には異なる透過率の ND フィルターを用いているので, 縦軸はそれぞれの透過率で規格化した値を示している. 図 10(a) における Gr1200-170 の結果では, Gr1200-170 だけが波長約 780 nm で反射率の減少を示すことから, 定在波プラズモン励起が観測されているように見える. このとき, 図 10(a) と (b) の縦軸の値が 1 桁程度離れていることがわかる. これは, ファイバー型スペクトロメータを用いた

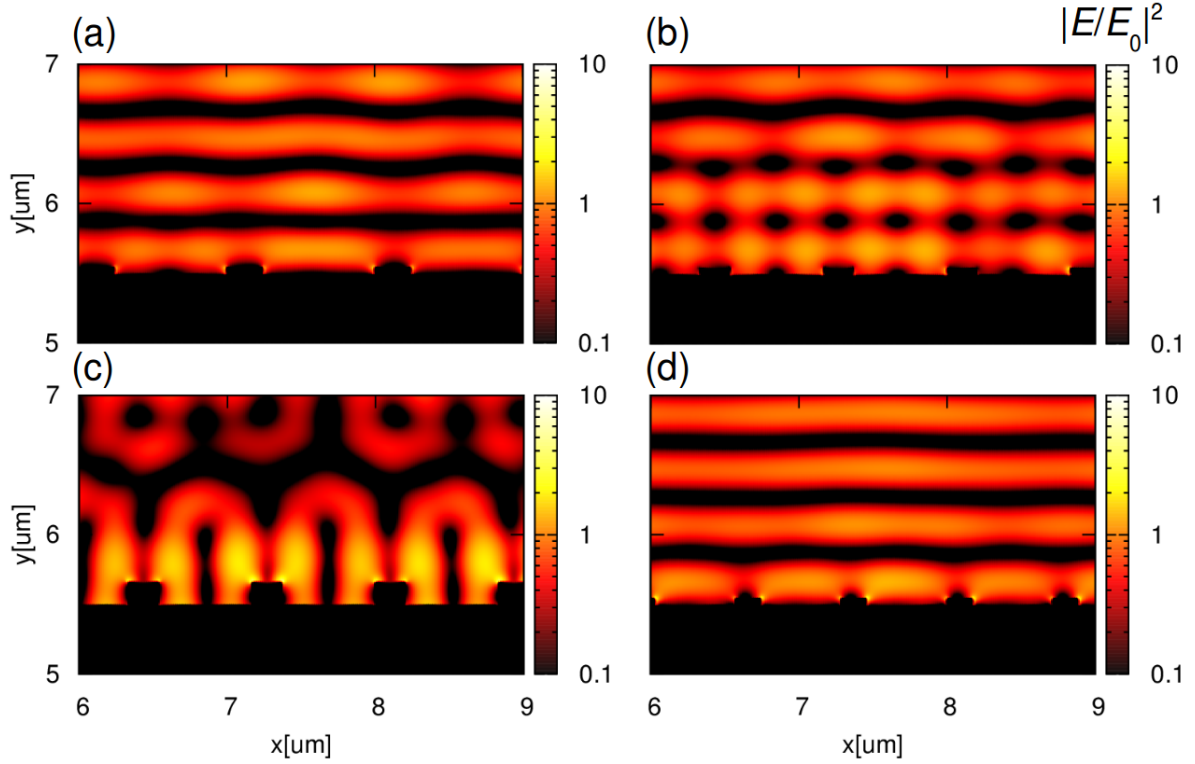


図 12 中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスグレーティングターゲットへ垂直入射したときの (a)Gr1000, (b)G1200-50, (c)Gr1200-170, (d)Gr1400 の電場強度分布シミュレーション結果.

反射光スペクトル計測において、ファイバーの直前にディフューザー (拡散板) を設置して信号を平均化しなかったため、ショットごとの縦軸の振れ幅が大きいことを示している。

一方、パワーメータで計測した各ターゲットにおける反射パワーの結果を図 11 に示す。それぞれの値は 27.0(平板ターゲット), 18.0(Gr1000), 8.8(Gr1200-50), 5.3(Gr1200-170), 19.6(Gr1400) であり、定在波プラズモンを励起する Gr1200-170 で最も低い反射パワー値が示された。したがって、超高強度レーザー領域において、共鳴条件における反射率の急激な減少を計測することで表面プラズモン励起の存在を示すことができた。

A.4.6 シミュレーションを用いた実験結果の考察

FDTD シミュレーションを用いて、定在波プラズモンの励起による電場強度の増大を評価した。設定したシミュレーションパラメータは前節と同様であり、中心波長 800 nm をもつガウシアンパルスグレーティングターゲットへ垂直入射したときの Gr1000, G1200-50, Gr1200-170, Gr1400 の電場強度分布シミュレーション結果を図 12(a)(b)(c)(d) に示す。それぞれの入射電場 E_0 に対する強度の最大値を比較すると、 $|E/E_0|^2 = 2.5$ (Gr1000), 3(Gr1200-50), 8(Gr1200-170), 5(Gr1400) であり、レーザー波長 800 nm における最適な構造パラメータをもつ Gr1200-170 が最

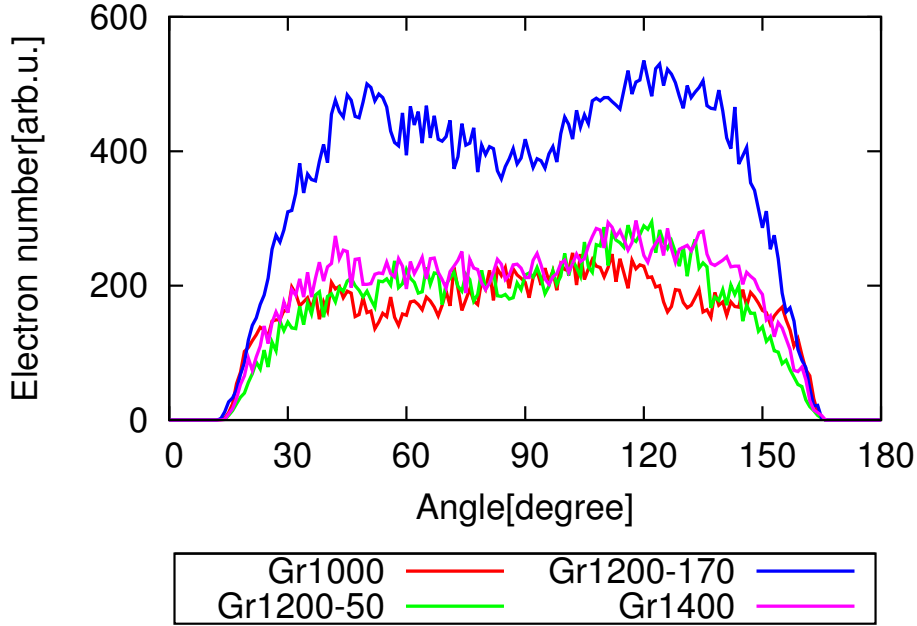


図 13 PIC シミュレーションによる電子個数の角度分布結果. Gr1000, Gr1200-50, Gr1400 のシミュレーション結果は, 実験結果と同様の個数分布をもつ. 120° 付近では, 共鳴条件を満たす Gr1200-170 が他のターゲットと比較して約 2 倍の個数増加を示し, 実験結果と一致するが, 30°-90° 付近に関しては, 実験結果を再現しなかった.

も大きな電場強度を示した. また, 図 12(c) の Gr1200-170 における電場強度分布では励起された定在波が明確に現れている. したがって, 定在波プラズモン励起された増強電場の影響によって, 高速電子の個数が増加したことがわかる.

第 4 章において, PIC シミュレーションでは表面プラズモンの存在条件である“負の誘電率”を考慮できないことについて述べた. ここで, FDTD シミュレーションで求めた最大電場強度は $|E/E_0|^2 = 8(\text{Gr1200-170}), 5(\text{Gr1400})$ であり, この 1.6 倍の比率を“表面プラズモン励起による増倍”と仮定し, Gr1200-170 に用いるレーザー強度を 1.6 倍として PIC シミュレーションをおこなった. レーザーパルス幅 30 fs, 波長 800 nm, スポットサイズ $4 \mu\text{m}$, 集光強度 $3 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ の P 偏光パルスをターゲットへ垂直入射させた. シミュレーションの空間サイズは $19.2 \times 9.6 \mu\text{m}$, セルサイズは $\lambda/100 = 8 \text{ nm}$ である. ターゲットは厚み $1 \mu\text{m}$, 電子密度 $40 n_c$ の H で構成されており, 配置した粒子数は 100 particles/cell である. ここで, 表面プラズモン共鳴による増倍を考慮するため, Gr1200-170 の入射レーザー強度を $5 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ とした.

PIC シミュレーションによる電子個数の角度分布結果を図 13 に示す. 定在波プラズモンの共鳴条件を満たさない Gr1000, Gr1200-50, Gr1400 はほぼ同一の個数分布をもち, 図 8 に示した IP 画像計測結果のラインプロファイルと同様の結果であった. また, 120° 付近では, 共鳴条件を満たす Gr1200-170 が他のターゲットと比較して約 2 倍の個数増加を示しており, これも実験結果と一致する. しかし, 30°-90° 付近に関しては, 実験結果ではグレーティング間で信号量がほぼ同一

A.5 まとめ

であったことに対して、シミュレーションでは Gr1200-170 が他のターゲットの約 2 倍の個数が得られており、実験結果を再現しなかった。実際、Gr1200-170 の実験では、図 12(c) に示す電場強度分布のような定在波プラズモンが励起されることによって、電子信号が増倍されているはずである。つまり、定在波プラズモン励起による電場強度の増倍を PIC シミュレーションの入力レーザー強度に反映させる方法では、実験結果を再現するのは困難であり、この問題を解決するにはシミュレーション内の計算手法を改善する必要がある。

A.5 まとめ

本章では、定在波プラズモン励起を用いた高強度レーザー生成高速電子の効率向上に関する研究について述べた。そのまとめは以下の通りである。

1. レーザー波長 800 nm に対してプラズモンモードを示すグレーティング構造パラメータを FDTD シミュレーションを用いて評価し、Gr1200-170 が波長 800 nm に対して最適吸収を示す結果が得られた。電子ビームリソグラフィ装置を用いて、Si ウェーハ上にグレーティング構造を描画したターゲットを作製した。共鳴条件を満たすターゲットとして Gr1200-170、非共鳴を示すターゲットとして Gr1000, Gr1200-50, Gr1400 のグレーティングターゲットを高強度レーザー実験用として作製した。
2. CW レーザーを用いて反射スペクトルを計測した結果、FDTD シミュレーションから最適であると予測した Gr1200-170 だけが波長 800 nm に対して明らかな反射光信号の減衰を示した。
3. ターゲット後方に放出された高速電子の角度分布を計測した結果では Gr1200-170 が他のグレーティングと比較して大きな信号強度を示したが、エネルギースペクトル計測結果では各グレーティング間に明確な差は見られなかった。また、反射率スペクトルの結果では Gr1200-170 だけが波長 800 nm 付近で反射率の凹みを示したものの、ディフューザーを用いて信号を平均化しなかったため、ショットごとの信号振れ幅が大きかったが、反射パワーの計測結果では Gr1200-170 が最も低い値を示し、超高強度レーザー領域においてプラズモン励起の特徴を定性的に観測することができた。
4. FDTD シミュレーションを用いて波長 800 nm における各ターゲットの電場強度を比較した結果、Gr1200-170 における強度分布は明確な定在波を示し、その強度値はグレーティングと比較して 1.6 倍程度大きかった。この増倍率を PIC シミュレーションの入力レーザー強度に反映し電子個数の角度分布を計算した結果、 120° 付近では実験結果と一致がみられたが、それ以外の角度では実験結果を再現しなかった。これは、現状の PIC シミュレーションでは定在波プラズモンを再現できないことが問題であり、今後は問題解決のため計算手法を見直す必要がある。

参考文献

- [1] A. Kocabas, S. S. Senlik, and A. Aydinli, “Plasmonic band gap cavities on biharmonic gratings” . *Phys. Rev. B* **77**, 195130 (2008)
- [2] D. Sammito, G. Zacco, P. Zilio, V. Giorgis, A. Martucci, J. Janusonis, and F. Romanato, “Design and fabrication of a light trapping method for photovoltaic devices based on plasmonic gratings” . *Microelectron. Eng.* **98**, 440 (2012)
- [3] A. F. Oskooi, D. Roundy, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, “MEEP: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method” . *Comp. Phys. Commun.* **181**, 687 (2010)

B MEEP シミュレーションの概要

MEEP(MIT Electromagnetic Equation Propagation) は MIT によって開発された FDTD シミュレーションのフリーソフトである。特徴としては、(1)1D, 2D, 3D, 円筒座標系の空間設定が可能, (2) 並列計算可能, (3) 誘電率・透磁率の分散をもつ物質設定が可能, (4) 吸収境界:PML(Perfectly Matched Layer) と周期境界: Bloch-periodic boundary の設定が可能である。また, 反射・透過スペクトルの計算, モードの導出, 電磁場分布が計算可能で, 出力ファイルはテキスト形式及び HDF5(Hierarchical Data Format) ファイルとして取り扱われる。

続いて, MEEP の簡単な動作方法について説明する。公式ページ^{*1}にダウンロード用ファイルとインストール方法が記載されているが, 最も簡単なインストール方法は, Linux(特に Ubuntu)を導入することであり, Ubuntu のインストールに関しては公式ページ^{*2}に詳細が書かれている。Ubuntu がセットアップされていれば,

```
apt-get install meep h5utils
```

とタイプするだけでインストールが完了する。

公式ページに記載されている “直線導波管” の計算例について説明する。ソースファイル (.ctl) は

```
1 (set! geometry-lattice (make lattice (size 16 8 no-size)))
2 (set! geometry (list
3 (make block (center 0 0) (size infinity 1 infinity)
4 (material (make dielectric (epsilon 12))))))
5 (set! sources (list
6 (make source
7 (src (make continuous-src (frequency 0.15)))
8 (component Ez)
9 (center -7 0))))
10 (set! pml-layers (list (make pml (thickness 1.0))))
11 (set! resolution 10)
12 (run-until 200
13 (at-beginning output-epsilon)
14 (at-end output-efield-z))
```

である。MEEP の文法は Scheme というプログラム言語に基づいている。1 行目は $(x = 16) \times (y = 8)$ の 2 次元空間を設定している。長さの単位は後述する MEEP 単位であり, z 方向の長さはゼ

^{*1} (<http://ab-initio.mit.edu/wiki/index.php/Meep>)

^{*2} (<https://ubuntulinux.jp/home>)

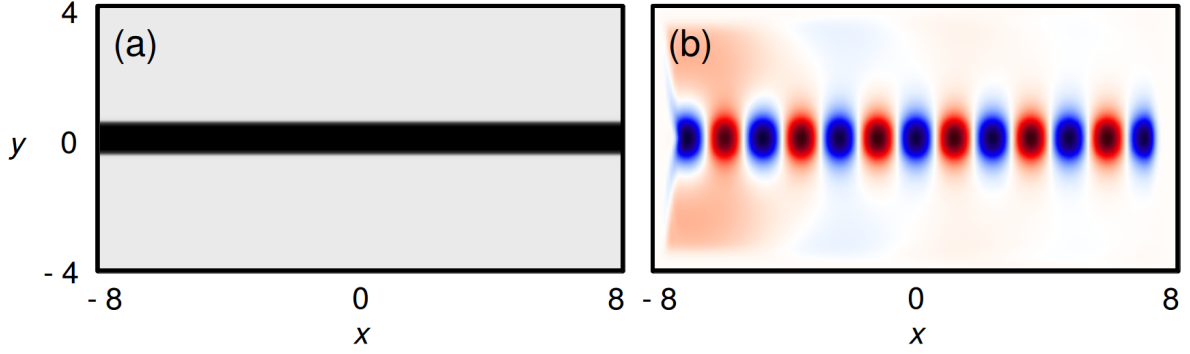


図1 (a) 導波管の誘電率分布, (b) $t = 200$ 単位時間における電場分布の z 成分.

口としている．2-4 行目では，大きさ $\infty \times 1 \times \infty$ ，誘電率 12 をもつ矩形構造を中心 $(0, 0)$ に配置することを意味している．5-9 行目では，中心周波数 0.15 で z 方向に電場成分をもつ点光源を中心 $(-7, 0)$ に配置している．10 行目は，厚み 1.0 の PML 層を計算空間内側に配置している．11 行目では，単位長さを 10 セル分割している．12-14 行目では，200 単位時間だけ計算を実行し，計算初期に誘電率分布を，計算終了後に z 成分の電場分布を出力することを意味している．図 1(a) に導波管の誘電率分布を，(b) に計算終了直後 ($t = 200$ 単位時間) における電場分布の z 成分を示す． $(x, y) = (-7, 0)$ に配置された点光源が導波管に沿って $+x$ 方向に伝搬していく様子がみえる．

MEEP は光速 c を 1 として扱い，計算値をすべて無次元量であらわしている [1]．ここで，任意の MEEP 単位長さ a を導入すると，周期 $T = c/a$ (周波数 $f = 1/T$) の単位をもち，波長 λ は $\lambda = a/f$ となる．本章では，一般的な複素誘電関数の式から MEEP の複素誘電関数の式へ変換する方法，MEEP で用いる金属材料の特性パラメータについて述べる．

まず，文献 [2] で取り扱われている誘電関数について述べる．複素誘電率 $\epsilon_r(\omega)$ は

$$\epsilon_r(\omega) = \epsilon_r^{(f)}(\omega) + \epsilon_r^{(b)}(\omega) \quad (\text{B.1})$$

のようにバンド間効果 (自由電子起因) の項 $\epsilon_r^{(f)}(\omega)$ とバンド内効果 (束縛電子起因) の項 $\epsilon_r^{(b)}(\omega)$ に分けてあらわすことができる．バンド間効果の項 $\epsilon_r^{(f)}(\omega)$ は

$$\epsilon_r^{(f)}(\omega) = 1 - \frac{\Omega_p^2}{\omega(\omega - i\Gamma_o)} \quad (\text{B.2})$$

であらわされるドルーデモデルに対応し，バンド内効果の項 $\epsilon_r^{(b)}(\omega)$ は

$$\epsilon_r^{(b)}(\omega) = \sum_{j=1}^k \frac{f_j \omega_p^2}{(\omega_j^2 - \omega^2) + i\omega \Gamma_j'} \quad (\text{B.3})$$

であらわされるローレンツモデルに対応している．ここで， ω_p はプラズマ周波数，振動子 (周波数

ω_j , 振動子強度 f_j , 保持時間 $1/\Gamma_j$) の波数は k , 振動子 (振動子強度 f_o , 減衰定数 Γ_o) が生ずるバンド間遷移に起因するプラズマ周波数は $\Omega_p = \sqrt{f_o}\omega_p$ である．最終的に得られる複素誘電関数は

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{f_1\omega_p'^2}{\omega^2 + i\Gamma_1'\omega} + \sum_{j=2}^n \frac{f_j\omega_p'^2}{\omega_{o,j}'^2 - \omega^2 - i\Gamma_j'\omega} \quad (\text{B.4})$$

となる．一方, MEEP で用いられる複素誘電関数は,

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty - \sum_{j=1}^n \frac{\sigma_{L,j}\omega_{L,j}^2}{\omega_{L,j}^2 - \omega^2 - i\Gamma_{L,j}\omega} \quad (\text{B.5})$$

であり, $\omega_p[\text{eV}]$ はプラズマ周波数, f は振動子強度, $\Gamma[\text{eV}]$ は各振動子の減衰周波数, $\omega_o[\text{eV}]$ は各振動子の共鳴周波数を示す．

MEEP で複素誘電関数のパラメータを設定するためには, 式 (B.5) を式 (B.4) へ変換する必要がある．これは, 式 (B.5) 中のパラメータを

1. $\omega_{L,1} = 1e^{-20}$ (式 (B.5) 第 2 項目の $j = 1$ の項をドルーデモデル表記とするため．)
2. $\omega_{L,j \leq 1} = \omega_{o,j \leq 1}'$
3. $\epsilon_\infty = 1$
4. $\Gamma_{L,j} = \Gamma_j'$
5. $\sigma_{L,j \leq 1} = \frac{f_j\omega_p'^2}{\omega_{L,j}^2}$

のようにおくと, 式 (B.5) を式 (B.4) へ変換できる．このとき MEEP 単位に必要な入力情報を得るために, パラメータ (ω_p , Γ , ω_o)[eV] を $h/2\pi$ で割ってエネルギーから角周波数の単位へ変換すること, それらの値をさらに $2\pi c/a$ で割ることが必要である．

MEEP 単位長を $1 \mu\text{m}$ とすると, Au の誘電率は

```

(define myAu (make dielectric (epsilon 1)
(polarizations
(make polarizability
(omega 1e-20) (gamma 0.042747) (sigma 4.3014e+41))
(make polarizability)
(omega 0.33472) (gamma 0.19438) (sigma 11.363))
(make polarizability)
(omega 0.66944) (gamma 0.27826) (sigma 1.1836))
(make polarizability)
(omega 2.3947) (gamma 0.7017) (sigma 0.65677))
(make polarizability)
(omega 3.4714) (gamma 2.0115) (sigma 2.6455))
(make polarizability)
(omega 10.743) (gamma 1.7857) (sigma 2.0148))
)))

```

とあらわせる．ここで，上記の変換式を参考にして Au のローレンツモデル第 1 項目を計算すると， $\omega_{L,1} = \omega_{o,1} \div h/2\pi \div 2\pi c/a = 0.334720$ ， $\Gamma_{L,1} = \Gamma_1 \div h/2\pi \div 2\pi c/a = 0.194379$ ， $\omega_L = f_1 \omega_p'^2 / \omega_{L,1}^2 = 11.3629$ となって，同じ値が得られる．また，W の誘電率は

```

(define myW (make dielectric (epsilon 1)
(polarizations
(make polarizability
(omega 1e-20) (gamma 0.05162) (sigma 2.3421e+41))
(make polarizability)
(omega 0.80978) (gamma 0.42747) (sigma 9.3624))
(make polarizability)
(omega 1.5462) (gamma 1.0332) (sigma 7.8945))
(make polarizability)
(omega 2.8875) (gamma 2.6874) (sigma 9.6272))
(make polarizability)
(omega 6.0475) (gamma 4.7071) (sigma 8.0514))
)))

```

のようになる．

参考文献

- [1] A. F. Oskooi, D. Roundy, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, and S. G. Johnson, “MEEP: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method” . *Comp. Phys. Commun.* **181**, 687 (2010).
- [2] A. D. Rakic, A. B. Djurisic, J. M. Elazar, and M. L. Majewski, “Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices” . *Appl. Opt.* **37**, 5271 (1998).

C ダブルステップグレーティングの概要

表面プラズモン波は、金属の自由電子の縦波振動に付随した横波の表面電磁波であり、金属表面に光エネルギーを閉じ込めることができる [1]。また、レーザー光をグレーティングターゲットへ垂直入射したときレーザー波長と構造パラメータが共鳴条件を満たすならば、表面プラズモン分散上にエネルギーギャップが生じ、ギャップ端ではさらに大きな光エネルギーを金属表面に集中できる可能性がある。このとき、表面形状が矩形 [2] 及び正弦波 [3, 4] のそれぞれに対するモード解析研究が報告されている。表面プラズモン共鳴または定在プラズモンモードを用いた電場増強の応用例を挙げると、バンドギャップを利用したプラズモニックレーザー [5, 6]、スフィア構造やディスク構造を用いた表面増強ラマン散乱 (Surface enhanced raman scattering: SERS) の効率向上 [7, 8, 9]、生物または化学的な光学検出に用いられるセンサー [10]、LED (Light emitting diode) や太陽光発電パネルなどの効率改善に寄与する光起電デバイス開発 [11, 12, 13, 14] などがある。これらの研究は応用対象が別々だが共通の目的をもっている。それは“光エネルギー吸収率の向上”と“光誘起電場の増大”を実現するプラズモニック構造をつくり出すということである。本章では、これまで報告されてきたグレーティングと比較したとき、さらに大きい光電場の増強を示す“ダブルステップグレーティング”の特性について述べる。

本章で提案する“ダブルステップグレーティング”は2種類の深さステップをもつグレーティング構造のことを指し、図 1(a) にシングルグレーティング、(b) にダブルステップグレーティングの構造を示す。構造周期は d 、凸部分の幅が w であり、シングルグレーティングの深さが h 、ダブルステップグレーティングの深さがそれぞれ h_1 , h_2 である。ここで、ダブルステップ構造は2種類の FF (= 0.25, 0.75) をもつので、分散ギャップ端に生じる2つのモード両方を励起することができる [13]。

FDTD シミュレーションを用いてダブルステップグレーティングの反射率分布と電場強度の評価をおこなった。空間サイズは $20\ \mu\text{m} \times 15\ \mu\text{m}$ 、セルサイズは $8\ \text{nm}$ である。中心波長 $800\ \text{nm}$ のガウシアンパルスグレーティングターゲットへ垂直入射させた。グレーティングターゲットは周期 d (本数密度 = $1/d$) を $714\ \text{nm}$ ($1400\ \text{lines/mm}$: Gr1400)、周期に対する凸部分の比率である FF を 0.25 とし矩形深さを変化させたときの反射率を観測した。

ステップ深さ (h (シングル), h_1 (ダブル)) を変化させたときの反射率のシミュレーション結果を図 1(c)(d) にそれぞれ示す。ここで、ダブルステップ深さは $h_2 = 50\ \text{nm}$ で一定としている。図 1(c)(d) から、(c) のシングルステップでは分散ギャップ端の片側モードしか励起されないが、(d) のダブルステップではギャップ端の両側モードを励起されることがわかる。また、ダブルステップで励起される長波長側のモード波長は深さ h_1 が大きいほどレッドシフトする傾向がみられる。次に、ステップの深さを $h = h_1 = 100\ \text{nm}$ としたとき、図 1(c)(d) から得られたモード波長 (シングルステップでは $710\ \text{nm}$ 、ダブルステップでは $904\ \text{nm}$) を入力ガウシアンパルスの中心波長とし、それぞれのグレーティングにおける電場強度分布をシミュレーションした。図 2(a) に短波長側モード励起時のシングルステップ、(b) に長波長側モード励起時のダブルステップにおける電場

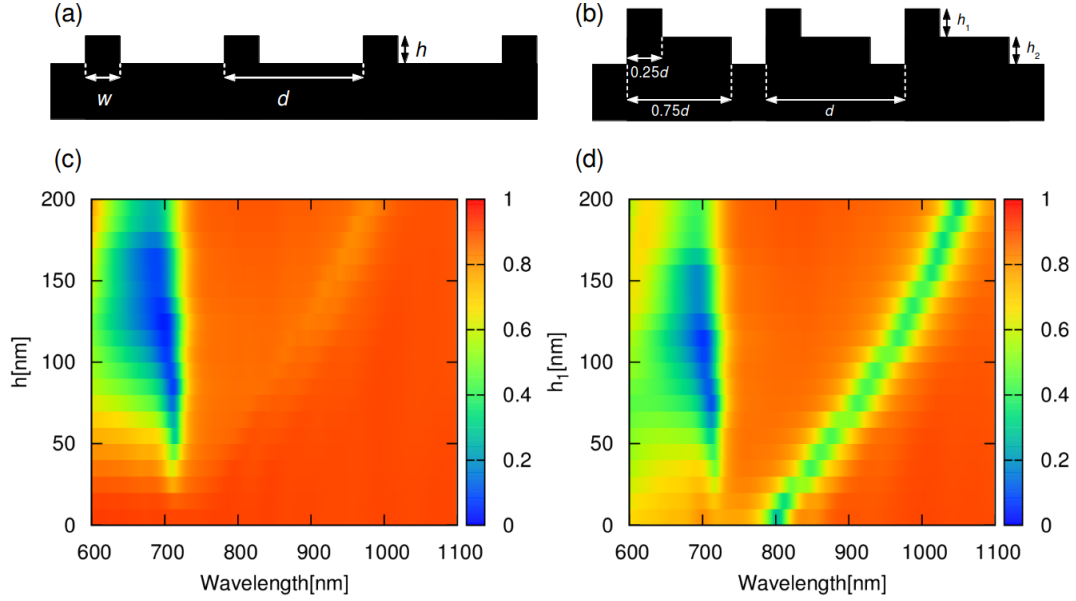


図1 (a) シングルステップ, (b) ダブルステップグレーティングの構造. ステップ深さ (h , h_1) を変化させたときの (c) シングルステップ, (d) ダブルステップにおける反射率のシミュレーション結果を示す. ここで, ダブルステップの $h_2 = 50$ nm で一定としている. (c) シングルステップでは分散ギャップ端の片側モードしか励起されないが, (d) ダブルステップではギャップ端の両側モードを励起されることがわかる. また, ダブルステップで励起される長波長側のモード波長は深さ h_1 が大きいほどレッドシフトする傾向がみられる.

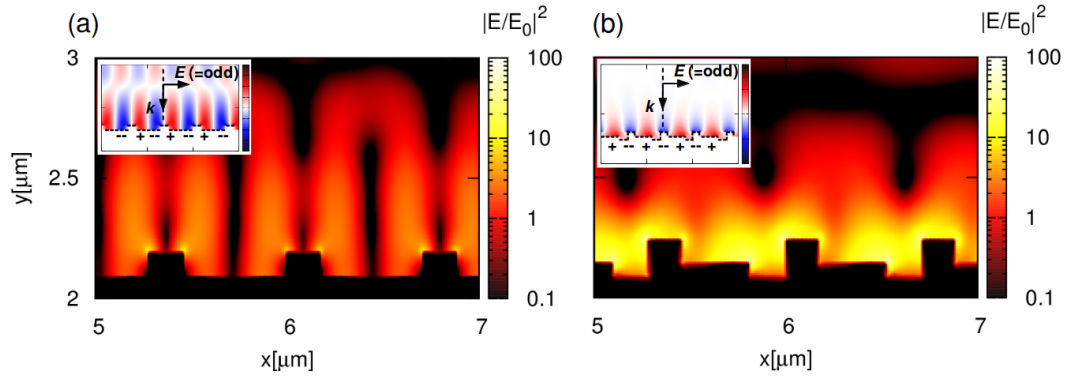


図2 (a) 短波長側モード ($\lambda = 710$ nm) 励起時のシングルステップ, (b) 長波長側モード ($\lambda = 904$ nm) 励起時のダブルステップにおける電場強度分布のシミュレーション結果. 図中インセットには y 軸方向の電場分布のシミュレーション結果を示す. 電場ベクトルの向きに注目すると, シングルステップは左右非対称 (奇) でダブルステップは左右対称 (偶) であり. 伝搬光は左右非対称である. ダブルステップは2種類の FF をもつのでギャップ端の偶モードを励起できる.

強度分布のシミュレーション結果を示す．また，図中インセットには y 軸方向の電場分布のシミュレーション結果を示している．空間の y 軸に基準線を設けたときグレーティング表面の電場分布に注目すると，(a) のシングルステップでは電場ベクトルが左右非対称 (奇) に向いている一方で，(b) のダブルステップでは電場ベクトルが左右対称 (偶) に向いている．伝搬光の電場ベクトルは左右非対称であるので，通常は図 2(a) の奇モードしか励起できないのだが，ダブルステップは 2 種類の FF をもつのでギャップ端のもう片側の偶モードを励起することができる．また，ダブルステップの偶モード励起時の方が，シングルステップと比較して電場強度の値が大きいことがわかる．

参考文献

- [1] W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen, “Surface plasmon subwavelength optics” . *Nature* **424**, 824 (2003).
- [2] T. Okamoto, J. Simonen, and S. Kawata, “Plasmonic band gaps of structured metallic thin films evaluated for a surface plasmon laser using the coupled-wave approach” . *Phys. Rev. B* **77**, 115425 (2008).
- [3] W. L. Barnes, T. W. Preist, S. C. Kitson, and J. R. Sambles, “Physical origin of photonic energy gaps in the propagation of surface plasmons on gratings” . *Phys. Rev. B* **54**, 6227 (1996).
- [4] A. Kocabas, S. S. Senlik, and A. Aydinli, “Plasmonic band gap cavities on biharmonic gratings” . *Phys. Rev. B* **77**, 195130 (2008).
- [5] T. Okamoto, F. HDhili, and S. Kawata, “Towards plasmonic band gap laser” . *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3968 (2004).
- [6] F. HDhili, T. Okamoto, J. Simonen, and S. Kawata, “Improving the emission efficiency of periodic plasmonic structures for lasing applications” . *Opt. Commun.* **284**, 561 (2011).
- [7] M. Guilot, H. Shen, B. Fremaux, O. Peron, E. Rinnert, T. Toury, and M. L. Chapelle, “Surface enhanced Raman scattering optimization of gold nanocylinder arrays: Influence of the localized surface plasmon resonance and excitation wavelength” . *Appl. Phys. Lett.* **97**, 023113 (2010).
- [8] Y. Chu, M. G. Banaee, and K. B. Crozier, “Double-Resonance Plasmon Substrates for Surface-Enhanced Raman Scattering with Enhancement at Excitation and Stokes Frequencies” . *ACS Nano* **4**, 2804 (2010).
- [9] M. Shioi, H. Jans, K. Lodewijks, P. V. Dorpe, L. Lagae, and T. Kawamura, “Tuning the interaction between propagating and localized surface plasmons for surface enhanced Raman scattering in water for biomedical and environmental applications” . *Appl. Phys. Lett.* **104**, 243102 (2014).
- [10] J. M. Yuen, N. C. Shah, J. T. Walsh, Jr., M. R. Glucksberg, and R. P. V. Duyne, “Transcutaneous Glucose Sensing by Surface-Enhanced Spatially Offset Raman Spectroscopy in a Rat Model” . *Anal. Chem.* **82**, 8382 (2010).
- [11] Y. Liu and J. Kim, “Polarization-diverse broadband absorption enhancement in thin-film photovoltaic devices using long-pitch metallic gratings” . *J. Opt. Soc. Am. B* **28**, 1934 (2011).
- [12] D. Sammito, G. Zacco, P. Zilio, V. Giorgis, A. Martucci, J. Janusonis, and F. Romanato, “Design and fabrication of a light trapping method for photovoltaic devices based on plasmonic gratings” . *Microelectron. Eng.* **98**, 440 (2012).

- [13] 岡本隆之, “プラズモニクバンドギャップレーザー” . レーザー学会誌「レーザー研究」, 第 34 巻第 5 号, 359(2006).
- [14] D. Lu, E. Rengnath, Y. Cui, Z. Wang, Y. Ding, and W. Park, “Interaction of two plasmon modes in the organic photovoltaic devices with patterned back-electrode” . Appl. Phys. Lett. **102**, 241114 (2013).

研究業績

主要論文

1. 三島陽介, 羽原英明, P. K. Singh, A. Adak, G. Chatterjee, A. D. Lad, P. Brijesh, M. Dalui, 井上雅彦, J. Jha, S. Tata, T. M. Trivikram, M. Krishnamurthy, G. R. Kumar, 田中和夫, 「高強度レーザー誘起表面プラズモン共鳴による高速電子の高効率生成」, 『レーザー研究』, 掲載可 (2015).
2. Y. Mishima, H. Habara and K. A. Tanaka, “Two plasmonic mode excitation using a double step rectangle grating”, Journal of the Optical Society of America B, doc. ID 237285 (posted 13 July 2015, In press).
3. 三島陽介, 羽原英明, 岩脇智行, 木久山健志郎, 河野卓也, 森岡朋也, 森田澄, 西内満美子, 余語覚文, A. S. PIROZHKOV, 福田佑仁, 小倉浩一, 谷本壮, 近藤公伯, 千徳靖彦, 城崎知至, 藪内俊毅, 田中和夫, 「高コントラストレーザーにより生成される高速電子スペクトルの材料依存性」, 『レーザー研究』, 第 41 巻第 1 号, (2013).

国際会議報告

【査読有り】

1. Y. Mishima, H. Habara, P. K. Singh, A. Adak, G. Chatterjee, A. D. Lad, S. Tata, P. Brijesh, M. Dalui, T. M. Trivikram, J. Jha, M. Krishnamurthy, G. R. Kumar, M. Inoue, T. Morioka, R. Nagami, T. Yabuuchi and K. A. Tanaka, 『Multiple electron beam generation with plasmon resonance field』, 『The 12th Asia Pacific Physics Conference (APPC2012)』, Chiba, Japan (Aug. 2013), Oral

【査読無し】

1. Y. Mishima, H. Habara, P. K. Singh, A. Adak, G. Chatterjee, A. D. Lad, Y. Amano, P. Brijesh, M. Dalui, M. Inoue, J. Jha, T. Morioka, R. Nagami, S. Tata, T. M. Trivikram, T. Yabuuchi, M. Krishnamurthy, G. R. Kumar, and K. A. Tanaka, 『Efficient electron beam production by strongly intensified fields of surface wave excitation』, 『International Conference on High Energy Density Sciences 2014 (HEDS2015)』, Osaka, Japan (Apr. 2015), Poster
2. Y. Mishima, H. Habara, P. K. Singh, A. Adak, G. Chatterjee, A. D. Lad, S. Tata, P. Brijesh, M. Dalui, T. M. Trivikram, J. Jha, M. Krishnamurthy, G. R. Kumar, M. Inoue, T. Morioka, R. Nagami, T. Yabuuchi and K. A. Tanaka, 『Enhanced surface field induction via high intense laser and grating interaction』, 『International Symposium on Non-equilibrium Plasma and Complex-System Sciences (IS-NPCS)』, Osaka, Japan (Feb. 2014), Poster

3. Y. Mishima, H. Habara, T. Iwawaki, K. Kikuyama, T. Kono, T. Morioka, K. Morita, T. Yabuuchi, M. Nishiuchi, A. Yogo, A. S. Pirozhkov, Y. Fukuda, K. Ogura, T. Tanimoto, K. Kondo, Y. Sentoku, T. Johzaki, and K. A. Tanaka, 「Control of Fast Electron Spectra with Different Target Materials」, 『International Conference on High Energy Density Sciences 2012 (HEDS2012)』, Kanagawa, Japan (Apr. 2012), Poster
4. Y. Mishima, H. Habara, Y. Sentoku, T. Iwawaki, K. Kikuyama, T. Kono, T. Morioka, K. Morita, Alexander S. Pirozhkov, Y. Fukuda, M. Nishiuchi, K. Ogura, T. Tanimoto, A. Yogo, K. Kondo, and K. A. Tanaka 「Z dependence study on proton and fast electron measurement」, 『ASHULA start up workshop』, Ishikawa, Japan (Nov. 2011), Oral
5. Y. Mishima, H. Habara, Y. Sentoku, T. Iwawaki, K. Kikuyama, T. Kono, T. Morioka, K. Morita, Alexander S. Pirozhkov, Y. Fukuda, M. Nishiuchi, K. Ogura, T. Tanimoto, A. Yogo, K. Kondo, and K. A. Tanaka 「Material dependence of laser accelerated electrons temperatures」 『Plasma Conference 2011』 No. 24P167-B, Ishikawa, Japan, , (Nov. 2011), Poster
6. Y. Mishima, H. Habara, Y. Sentoku, T. Iwawaki, K. Kikuyama, T. Kono, T. Morioka, K. Morita, Alexander S. Pirozhkov, Y. Fukuda, M. Nishiuchi, K. Ogura, T. Tanimoto, A. Yogo, K. Kondo, and K. A. Tanaka 「Atomic number dependence of laser accelerated electrons temperatures」, 『The 12th Symposium on Advanced Photon Research』, No. 36, Kyoto, Japan (May. 2011), Poster

国内会議報告

1. 三島陽介, 羽原英明, 木久山健志郎, 森岡朋也, 「レーザー加速された電子の温度の原子番号に対する依存性」, 『第 6 回非線形テクノサイエンス講演会』, 大阪大学中之島センター, 2011 年 3 月, 口頭発表