

令和 5 年 6 月 11 日現在

機関番号：34428

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05371

研究課題名(和文)液膜レーザープラズマのテラヘルツ波放射機構の解明

研究課題名(英文)Study on mechanism of THz wave radiation from laser plasma of liquid films

研究代表者

長島 健(Nagashima, Takeshi)

摂南大学・理工学部・教授

研究者番号：60332748

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：ダブルパルス励起水膜ターゲットからのテラヘルツ波放射機構を調べるため、時間分解シャドウグラフ測定及び時間積分発光像を取得したところ、衝撃波波面とレーザーパルスの相互作用がテラヘルツ波増強に関与していることがわかった。衝撃波とレーザーパルスの相互作用を詳細に調べるため、ダブルパルス励起空気ターゲットからのテラヘルツ波放射測定を実施した。テラヘルツ波偏光状態のオフセット位置依存性から、テラヘルツ電場は衝撃波波面に垂直であることがわかった。以上の観測結果をもとに、光パルス励起衝撃波波面からのテラヘルツ波放射として、空気プラズマ中の急峻な電子密度勾配によって誘起される過渡電流モデルを提案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

衝撃波波面からのテラヘルツ放射現象を(代表者の知る限り)初めて観測した。これは誘起された急峻な電子密度勾配を持つレーザープラズマ中に生じる過渡電流による放射であることを示した。今後、バイアス電圧印加や2色光パルス励起を適用することでさらなる放射テラヘルツ波強度の増強や新規現象の発現が期待できる。本研究のテラヘルツ波放射実験は、レーザーパルス照射により発生した衝撃波の密度構造及びその高速時間変化を調査する手段として利用できる。複数のプリパルスを用いることで衝撃波どうしの相互作用についてシャドウグラフ観察をはじめとする従来の分析法では得難い知見が得られる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：To investigate the mechanism of terahertz wave emission from a double-pulse excited water film target, time-resolved shadowgraph and time-integrated emission images were obtained. The results indicate that interactions between the shockwave-front and the laser pulse are responsible for the enhancement of terahertz emission.

The interaction between shockwaves and laser pulses were investigated in detail by terahertz emission measurements from a double-pulse-excited air target. The offset position dependence of the terahertz polarization state indicates that the terahertz electric field is perpendicular to the shock wavefront.

Based on these observations, we propose a model in which transient current induced by the steep electron density gradient at the shockwave front excited by fs optical pulses generates the terahertz emission.

研究分野：テラヘルツ波工学

キーワード：テラヘルツ波 衝撃波 レーザープラズマ 水 気体

1. 研究開始当初の背景

周波数が 0.1 ~ 10 THz 程度の電磁波であるテラヘルツ波は、物質中の自由キャリア、格子振動等がテラヘルツ波に対し特徴的な応答を示す。テラヘルツ波領域の分光は各種材料の非破壊分析に有用である。また無線通信周波数の高周波数化による帯域増大の必要性からも、各種テラヘルツ波光源の開発が精力的に進められてきた。

中でもフェムト秒光パルス誘起プラズマ (以降、レーザープラズマと呼ぶ) からのテラヘルツ波発生が 1990 年代前半に報告されて以降、この方式の可能性・有用性が継続的に調査されてきた。光伝導アンテナや非線形結晶といった固体素子へのフェムト秒光パルス照射によってもテラヘルツ波パルスが発生するが、素子の損傷のため照射レーザー強度には限界がある。このため得られるテラヘルツ強度には上限がある。これに対し、レーザープラズマは投入するレーザー強度や照射時間に制約がなく、より高強度なテラヘルツ波発生が期待できる。

これまでに気体、原子クラスター及び固体ターゲットにレーザー照射して発生するレーザープラズマからのテラヘルツ波放射が調べられてきた。一連の研究から、ターゲットの原子密度が高く、レーザープラズマ密度が高いほど放射テラヘルツ波強度が増大する傾向があることが示唆された。固体ターゲットからは高強度 THz 波が得られるが、照射部は損傷するので、常にフレッシュな面に照射するためショットの度にターゲットを移動する。このためターゲットを箔やテープにする必要から物質を自由に選択できず、さらに照射で飛散したターゲット (デブリ) が周囲の光学部品を劣化させる問題もあり、実際には物性測定光源としては用いられていない。

そこで代表者は、液体ターゲットに着目した。液体は連続供給が容易であるだけでなく、固体に近い密度なので高強度 THz 波放射の可能性もある。液体である水をターゲットに用いた場合、やはりテラヘルツ波パルスを放射することが代表者らのほか、数グループで確認されていたが、高強度化のための最適条件については明らかでなかった。さらに代表者らは水レーザープラズマから、放射テラヘルツ波が特異な偏光特性を持つことなどを見出し、従来のレーザープラズマからのテラヘルツ波放射モデルでは説明できないことなどがわかってきた。

2. 研究の目的

水レーザープラズマからのテラヘルツ放射について、放射強度の向上を念頭に、その放射機構を明らかにする。

次節で述べるように水レーザープラズマからのテラヘルツ波放射現象ではテラヘルツ波高強度化に衝撃波が関与しているとの知見を得た。

水ターゲットに光パルスを照射した場合、ターゲット手前の空气中、ターゲットから放出されたミスト中及びターゲット内部で衝撃波が発生し複雑な状態になる。そこで、当初の予定にはなかったが、空気ターゲットを使用した。レーザープラズマから発生した空气中を伝播する衝撃波に光パルスを照射することで放射されるテラヘルツ波パルスの緒特性を測定し、衝撃波とレーザーパルスの相互作用を調べることを目的とした。

3. 研究の方法

実験装置

図 1 に使用した光学系の概略図を示す。励起パルスレーザーにはチタン-サファイア再生増幅システム (中心波長 800 nm, パルス幅 35 fs, 繰り返し周波数 1 kHz) を使用した。出力されたパルスをプリパルス (電場は y 方向に偏光, 0.2 mJ/pulse) とメインパルス (x 方向に偏光, 0.4 mJ/pulse) に分割した後、長距離光学遅延を用い最大で約 15 ns の遅延時間  $\Delta t$  を付

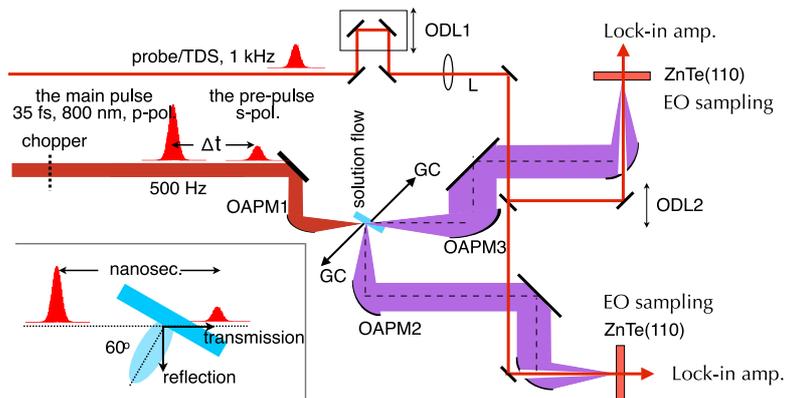


図 1 光学系の概略図。

与した。この後、メインパルスの一部を分割して後に述べる電気光学サンプリングのプローブ光パルスを取り出した。最終的にプリパルス及びメインパルスを焦点距離 50.8 mm, 直径 25.4 mm の軸外し放物面鏡にほぼ同軸に入射させ、水膜あるいは大気中で集光した。

大気中に照射した場合、集光点近傍のプラズマ発光像から集光スポット直径は約  $8 \mu\text{m}$  と見積もられた。レイリーの分解能に基づくビーム直径  $2 \times 0.61 \lambda/\text{NA} \sim 7.8 \mu\text{m}$  (中心波長  $\lambda=800 \text{ nm}$ , 放物面鏡の開口数  $\text{NA}=0.125$ ) と矛盾しない値になっている。レイリー長は  $63 \mu\text{m}$  程度と見積もられる。

プリパルスは軸外し放物面鏡の直前に設置されたピエゾ素子駆動ステージ上の平面反射鏡により放物面鏡に導入されるが、この平面反射鏡を電氣的制御により傾けることでプリパルスの集光位置を  $\mu\text{m}$  オーダの精度で変化させた。メインパルスの集光位置を原点とし、プリパルスの集光位置が水平方向 (x 方向) に  $\Delta x$ , 鉛直方向 (y 方向) に  $\Delta y$  であるとき、オフセット ( $\Delta x, \Delta y$ ) と表す (図 2 参照)。なお、空気中でプリパルスとメインパルスを個別に照射した場合、ともに  $z=0 \mu\text{m}$  を中心とするレーザプラズマが観測された。このことからプリパルスとメインパルスはエネルギーが異なるが、z 方向には同一位置に集光されていることがわかる。

メインパルスにより生成されたレーザプラズマから放射されたテラヘルツ波パルスを軸外し放物面鏡 (焦点距離 101.6 mm, 直径 50.8 mm) で厚さ 1 mm の ZnTe(110) 結晶に集光し、電気光学サンプリングによって電場波形を測定した。

ターゲットが水の場合にはレーザーパルス透過方向と、それと直交する方向に放射されるテラヘルツ波を測定した。空気ターゲットの場合にはレーザーパルス透過方向に放射されるテラヘルツ波を測定した。いずれの場合も、軸外し放物面鏡の直前にはワイヤグリッド偏光子 2 枚を設置し、テラヘルツ波パルスの偏光状態を決定できるようにした。実験は全て大気中で実施した。

本研究では水ターゲットとして以下のような膜を使用した。対向するノズルから蒸留水をポンプによって射出し 2 つの水流を衝突させることで、水の膜 (以降、水膜と記す) が形成される。水膜はほぼ鉛直面内に形成される。我々の研究グループの実験条件では水膜の厚みは  $20 \mu\text{m}$  弱になっている。鉛直方向に長い楕円形に近い形になっており、短軸の長さは  $5 \text{ mm}$  程度、長軸の長さは  $15 \text{ mm}$  程度である。水膜中央近傍の水の流速は  $6 \text{ m/s}$  程度と見積もられる。光パルス繰り返し周波数が  $1 \text{ kHz}$  の一般的な高強度フェムト秒レーザーの場合、次の光パルスが照射されるまでに水は  $6 \text{ mm}$  程度移動する。励起光パルスビーム直径は通常  $6 \text{ mm}$  よりも十分に小さいため、常にフレッシュな面に光パルスが照射されることになる。なお水膜表面での反射率を低下させ内部に光パルスが効率よく入射するよう、メインパルスを p 偏光にし、入射角を  $60$  度に設定した (図 1)。

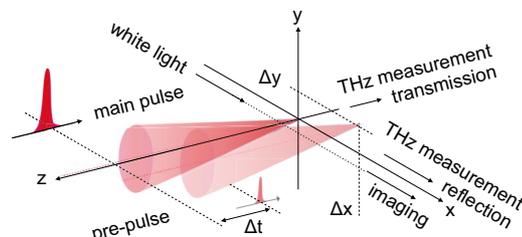


図 2 プリパルスのメインパルスのオフセット及び遅延時間の概略図 (文献[1]より転載)。

### ダブルパルス励起水膜ターゲットのシャドウグラフ及び発光像

代表者らは以前に水膜ターゲットにプリパルスを照射後  $\Delta t$  だけ遅延したメインパルスを照射するダブルパルス照射により、遅延時間  $\Delta t$  を最適化することで放射テラヘルツ波強度 (電場の 2 乗) が大きく増大することを見出していた[2]。このことを詳細に調べるため、テラヘルツ波が増強される条件で、プリパルスだけを照射し、背景光のピコ秒白色光パルスを x 軸方向から入射して得られた時間分解シャドウグラフを取得した結果を図 3 の左列に示す。上からピコ秒白色光パルスの遅延時間が  $2.0$ ,  $4.7$  及び  $9.7 \text{ ns}$  のときのシャドウグラフである。衝撃波は空気中またはターゲットから放射された水飛沫からなるミストの中を伝播している。黒い点線が衝撃波波面を示している。図 3 の右列には、シャドウグラフ測定と同じ位置で得られた時間積分発光像を示す。遅延時間  $4.7 \text{ ns}$  における発光像に描いたオレンジ及び赤の矢印はそれぞれ衝撃波波面及び液膜表面上にあるレーザー集光点での発光を指している。これらの位置で高密度あるいは高電子温度のレーザープラズマが発生していることがわかる。いずれの時間遅延でもレーザー集光点で強い発光が観測されるが、衝撃波波面上での発光は遅延時間によって異なっている。遅延時間  $4.7 \text{ ns}$  でテラヘルツ波強度は最大になる。発光強度とテラヘルツ強度

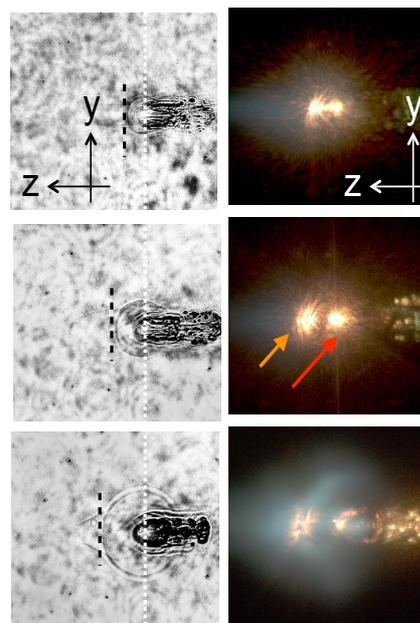


図 3 水膜ターゲットの (左) プリパルス後の時間分解シャドウグラフ (右) プリ及びメインパルス照射時の発光像。白色背景光パルス及びメインパルスの遅延時間は  $2.0$ ,  $4.7$  及び  $9.7 \text{ ns}$  (文献[3]より転載)。

には相関があり、衝撃波波面とレーザーパルスの相互作用がテラヘルツ波放射機構に関与していることが示唆された。

### 水膜ターゲットからの放射テラヘルツ波の偏光状態

増強機構に関する情報の獲得を目指し、プリパルス照射位置（オフセット）を変えながらテラヘルツ波の偏光状態を調べた。結果の一例として、オフセット $(\Delta x, \Delta y) = (+11 \mu\text{m}, 0 \mu\text{m})$ のときのテラヘルツ電場のx成分( $E_x$ )及びy成分( $E_y$ )の波形を図4に示す。このときの時間遅延 $\Delta t$ は4.7 nsであり、テラヘルツ波強度はこのオフセット位置では最大であった。図4から放射テラヘルツ波パルスが楕円偏光になっていることがわかった。その楕円率及びヘリシティ（回転方向）はオフセット位置によって変化することを見出した。

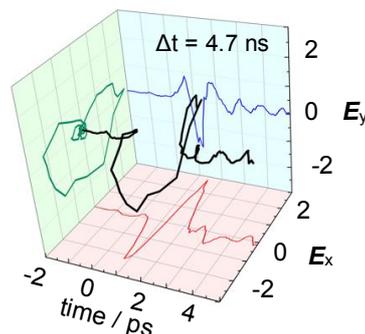


図4 ダブルパルス励起水膜ターゲットからのテラヘルツ波パルスの時間波形（文献[3]より転載）。

### 空気プラズマからの衝撃波

水膜ターゲット使用時は、液膜前に大気中を伝播する衝撃波が生じるとともに、液膜中にはキャビテーション泡が発生する。これらがメインパルスと相互作用するため、テラヘルツ波放射現象は複雑になる。そこで、衝撃波とレーザーパルスの相互作用を明らかにする目的で、水膜を取り去り、プリパルス照射によって生じた衝撃波のみが存在する状況を作り、その波面へメインパルスを照射して放射テラヘルツ波を観測した。

図5はプリパルス照射後、遅延時間14.7 nsでプリパルスと直交するピコ秒白色光パルスを背景光に用いた時間分解シャドウグラフである。中央に白く見える部分はプリパルスによる空気プラズマである。その周囲の空气中を伝播する衝撃波面が観測された。

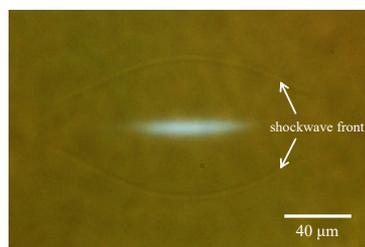


図5 プリパルス照射空気ターゲットの14.7 nsにおける時間分解シャドウグラフ。

### 空気プラズマからの放射テラヘルツ波強度及び偏光状態のオフセット依存性

プリパルス照射後、時間遅延4.7 nsのメインパルス照射により発生したテラヘルツ波パルスの偏光状態のオフセット位置依存性を図6に示す。この結果を時間分解シャドウグラフ測定結果と比較したところ、放射テラヘルツ波は衝撃波面がメインパルス照射位置に到達したとき強度が増大することがわかった。

放射テラヘルツ波は直線偏光に近く、その偏光方向はメインパルス照射位置における衝撃波波面の法線方向をxy面に射影した方向と一致した。このことから放射テラヘルツ電場方向は衝撃波波面と垂直であることが示唆された。

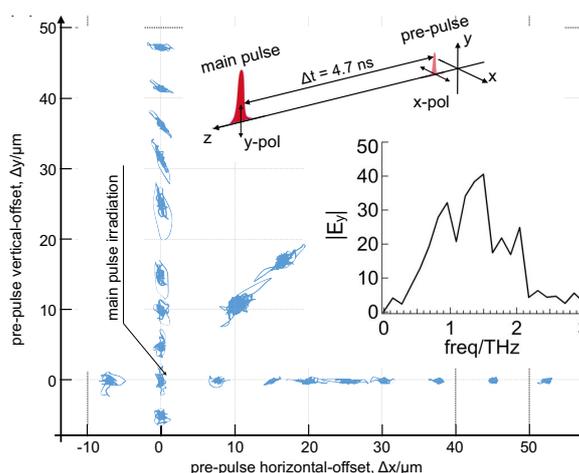


図6 遅延時間4.7 nsのメインパルス照射により発生したテラヘルツ波パルスの偏光状態のオフセット位置依存性。（文献[1]より転載）。

### レーザー照射衝撃波波面からのテラヘルツ波放射機構

前節の観測結果から光パルス励起衝撃波波面からのテラヘルツ波放射として、以下に示す空気プラズマ中の急峻な密度勾配によって誘起される過渡電流モデルを提案した。

衝撃波面では空気密度 $\rho$ に大きな勾配がある。Sedov-von Neumann-Taylor point strong explosion理論を用いて解析したところ、本研究で用いたプリパルス強度の場合、衝撃波面上で $\rho/\rho_0 \sim 6$  ( $\rho_0$ は大気圧の空気密度)である。波面の外側は大気なので $\rho/\rho_0 = 1$ であるが、この密度の遷移幅は

大気分子の平均自由行程 ( $\sim 70$  nm) 程度と予想される。

プリパルスで生成された衝撃波波面にメインパルス (強度  $2 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> 程度) が照射されると、トンネルイオン化により波面近傍 (波面とその外側の空気の一部) にレーザープラズマが誘起される。レーザー強度が十分高いため、プラズマ密度は空気密度程度 ( $\sim 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>) になる。波面は密度が高いため、メインパルスによるトンネルイオン化が効率よく生じ、プラズマ密度は大きい。対して同時にプラズマ化される波面に接する大気の部分ではプラズマ密度は小さい。

つまり生成されたプラズマ中に急峻な密度勾配が生じる。波面内側から外側へ電子が拡散することで生じる過渡電流

$$\mathbf{j} = -eD\nabla n$$

( $D$  は拡散係数,  $n$  はプラズマ密度,  $e$  は電子の電荷量) がテラヘルツ波パルス電場

$$\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t}$$

の発生源と考えられる。過渡電流の方向は密度勾配の方向、すなわち波面に垂直な方向になる。以上のモデルによれば、放射テラヘルツ波パルスは直線偏光になり、その電場方向はメインパルス照射位置での衝撃波面法線の観測面 ( $xy$  面) への射影と平行になる。これらは実験結果と一致する。

#### 4. 研究成果

ダブルパルス励起水膜ターゲットからのテラヘルツ波放射機構を調べるため、放射テラヘルツ波強度及び偏光状態のメインパルス遅延時間依存性及びオフセット位置依存性を測定した。時間分解シャドウグラフ測定及び時間積算発光像の測定結果と合わせ、衝撃波波面とレーザーパルスの相互作用がテラヘルツ波増強に関与していることがわかった。

衝撃波とレーザーパルスの相互作用を詳細に調べるため、ダブルパルス励起空気ターゲットからのテラヘルツ波放射測定を実施した。テラヘルツ波強度のメインパルス遅延時間依存性から、メインパルスが衝撃波面に照射されるとき強度が増大することを見出した。さらにテラヘルツ波偏光状態のオフセット位置依存性から、テラヘルツ電場は衝撃波波面に垂直であることがわかった。

以上の観測結果をもとに、光パルス励起衝撃波波面からのテラヘルツ波放射として、空気プラズマ中の急峻な密度勾配によって誘起される過渡電流モデルを提案した。

#### 参考文献

(いずれも代表者らの原著論文)

- [1] H. Huang, T. Nagashima, and K. Hatanaka, "Shockwave-based THz emission in air," *Opt. Express* **31**(4), 5650 (2023).
- [2] H. Huang, T. Nagashima, W. Hsu, S. Juodkazis, and K. Hatanaka, "Dual THz Wave and X-ray Generation from a Water Film under Femtosecond Laser Excitation," *Nanomaterials* **8**(7), 523 (2018).
- [3] H. Huang, S. Juodkazis, E. G. Gamaly, T. Nagashima, T. Yonezawa, and K. Hatanaka, "Spatio-temporal control of THz emission," *Commun. Phys.* **5**(1), 134 (2022).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Huang Hsin-hui、Nagashima Takeshi、Hatanaka Koji	4. 巻 31
2. 論文標題 Shockwave-based THz emission in air	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 5650 ~ 5650
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.478610	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Huang Hsin-hui、Juodkazis Saulius、Gamaly Eugene G.、Nagashima Takeshi、Yonezawa Tetsu、 Hatanaka Koji	4. 巻 5
2. 論文標題 Spatio-temporal control of THz emission	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 134
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s42005-022-00914-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Hosokawa Chikai、Hashida Masaki、Nagashima Takeshi、Inoue Shunsuke、Sakabe Shuji	4. 巻 103
2. 論文標題 Development of intense terahertz light source for forming periodic structures on material surface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Electronics and Communications in Japan	6. 最初と最後の頁 3 ~ 8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/ecj.12284	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takenaka Keisuke、Shinohara Naoki、Hashida Masaki、Kusaba Mitsuhiro、Sakagami Hitoshi、Sato Yuji、Masuno Shin-ichiro、Nagashima Takeshi、Tsukamoto Masahiro	4. 巻 119
2. 論文標題 Delay times for ablation rate suppression by femtosecond laser irradiation with a two-color double-pulse beam	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 231603 ~ 231603
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0073671	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	畑中 耕治  (Hatanaka Kohji)	中央研究院應用科學研究中心(台湾)	中央研究院應用科學研究中心 〒115-29 台北市南港區研究院路二段128號
研究協力者	黄 心慧  (Huang Hsinhui)	中央研究院應用科學研究中心(台湾)	中央研究院應用科學研究中心 〒115-29 台北市南港區研究院路二段128號

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------