

機関番号：12201

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2008～2010

課題番号：20686005

研究課題名(和文) 高エネルギーテラヘルツ光源を用いた新しい極限物性科学の創成への挑戦

研究課題名(英文) Challenge of new extreme material science using high-energy THz source

研究代表者

東口 武史 (HIGASHIGUCHI TAKESHI)

宇都宮大学・工学研究科・准教授

研究者番号：80336289

研究成果の概要(和文)：研究課題を実現するために、高強度超短パルスレーザーやパルス放電により生成される制御されたプラズマを用い、卓上サイズのテラヘルツ電磁波源および極端紫外光源を開発した。テラヘルツ電磁波放射は、静電場が印加された大気中にレーザーを照射することにより光電界電離を誘起し、生成される電離面により誘起されるバースト電流から放射させた。また、カリウムを媒質とした放電励起マイクロプラズマによる極端紫外光源を実現した。カリウムイオンより、波長 40 nm 近傍において半値幅 8 nm の広帯域の強い発光が観測された。マイクロ放電の電流電圧特性より、ホローカソードの放電形態となっていると考えられる。原子構造計算との比較により、広帯域な発光は、主にカリウムの2価から4価イオンの3d-3p遷移に起因していることが分かった。

研究成果の概要(英文)：We have demonstrated table top terahertz electromagnetic wave source and extreme ultraviolet light source by using a controlled plasma produced by an ultrashort, intense laser pulse and pulse discharge. The terahertz radiation can be generated by the burst current produced by a laser created ionization front, which is induced an optical-field-induced ionization in air with a static electric field. The experimental results behave similarly to calculated results, and electric field amplitude of THz radiation increase with increase in applied voltage of a static electric field. We also have demonstrated a discharge-produced microplasma extreme ultraviolet source based on a pure potassium vapor. Potassium ions produced strong broadband emission around 40 nm with a bandwidth of 8 nm [full width at half-maximum (FWHM)]. The current-voltage characteristics of microdischarge suggest that the source operates in a hollow cathode mode. By comparison with atomic structure calculations, the broadband emission is found to be primarily due to 3d-3p transitions in potassium ions ranging from  $K^{2+}$  to  $K^{4+}$ .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
20年度	8,800,000	2,640,000	11,440,000
21年度	3,200,000	960,000	4,160,000
22年度	2,300,000	690,000	2,990,000
年度			
年度			
総計	14,300,000	4,290,000	18,590,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用光学・量子光工学

キーワード：テラヘルツ, 極限物性科学, 軟X線, 極端紫外, 吸収分光

### 1. 研究開始当初の背景

近年では、半導体ダイオードやレーザー、シンクロトン放射光、高密度プラズマ光源など様々な電磁波源により、マイクロ波帯から軟X線領域までの電磁波帯域をカバーすることが出来ている。その中でもマイクロ波帯からテラヘルツ電磁波帯の帯域は、超高速化学反応や生物学的プロセスを観測するのに有効な電磁波であると注目されている。しかしながら、現在利用されているテラヘルツ電磁波光源は変換効率が低く、出力が小さい。また、紫外線とX線の間位置する極端紫外光（ここでは、波長 0.2~100 nm 程度の波長域を呼ぶことにする。）は、光化学反応やナノテクノロジー、高密度プラズマ分析などへの応用が期待されているが、小型で高効率な光源は数例しか報告されていない。

様々な応用が期待されるこれらの光源を実現するために、高強度超短パルスレーザーやパルス放電により生成される高温高密度プラズマを制御することで、テラヘルツ電磁波および極端紫外光の発生に関する研究が行われている。

### 2. 研究の目的

本研究では、高強度超短パルスレーザーやパルス放電により生成される高温高密度プラズマを制御し、電磁波の未開拓領域であるテラヘルツ電磁波帯および極端紫外領域において、光源を実現することを目的とする。これらの光源を組み合わせることで、非線形固体物性ダイナミクスを観測を世界に先駆けて実現し、新たな診断技術の確立および新しい物性科学を創成できると考えている。

### 3. 研究の方法

テラヘルツ電磁波は光と電波の間にある電磁波スペクトルである。この領域の電磁波は光（赤外光や可視光）よりも物質透過性が大きく、電波よりも波長分解能が高い。この特長を利用し、基礎科学分野、産業分野、農業分野、医療分野などへの応用が期待されている。しかしながら、現在利用されているテラヘルツ電磁波源は変換効率が低く、出力が小さい。テラヘルツ電磁波を用いた応用研究の更なる発展のためには、広帯域かつ高出力のテラヘルツ電磁波源の開発を必要としている。

我々は、プラズマを用いた広帯域かつ高出力のテラヘルツ電磁波源を研究している。これは、DARC (DC to AC radiation converter) と呼ばれる光源であり、周波数可変性、パルス整形、広帯域、高出力などの利点を有する。1990年代後半にマイクロ波からミリ波の領域で原理実証実験が行われてきた。その後、電離面近傍でのプラズマ電子密度の時間変化に起因するチャープ電磁波の発生も報告

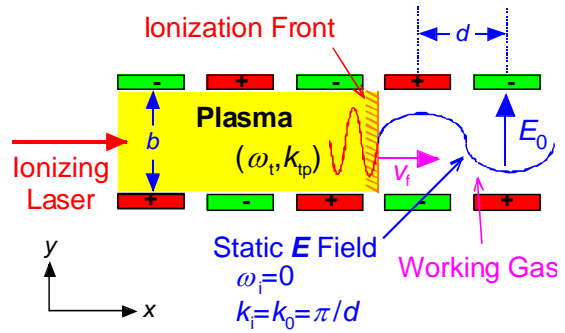


図 1 : DARC の概念図

されている。

図 1 は DARC の概念図である。正負交互に配置した電極対に電圧  $V_B$  を印加することによって、周期的に変化する  $E_y \approx E_0 \sin k_0 x$  なる静電界を励起する。ここで、 $k_0 = 2\pi/2d$  は周期静電場の波数、 $d$  は隣接電極間距離である。 $E_0$  は周期静電場の振幅であり、印加電圧  $V_B$  と電極間のギャップ長  $b$  を用いると  $E_0 \approx V_B/b$  と近似される。電極間に媒質（ガス媒質または半導体媒質）を満たし、電離用のレーザーを入射すると、レーザーは媒質を電離しながら速度  $v_f = c(1 - \omega_p^2/\omega_L^2)^{1/2}$  で  $+x$  の方向に伝搬する電離面を生成する。ここで、 $c$  は光速、 $\omega_p$  はプラズマ周波数であり、 $\omega_p = (e^2 n_p / \epsilon_0 m)^{1/2}$ 、 $\omega_L$  はレーザーの周波数である。ガス媒質などでは、 $\omega_p \ll \omega_L$  であるので、電離面はほぼ光速に等しい ( $v_f \approx c$ )。速度  $v_f$  で動いている電離面の系から静電場を見ると、電離面に電磁波が入射してくるよう観測される。従って、周期静電場と電離面後方のプラズマ中を伝搬する電磁波の位相は電離面において連続である。

DARC の放射周波数は電離面の系でも求めることができるが、実験室系でも直接求めることができ、直接求める場合はプラズマ中を伝搬する電磁波の分散関係と電離面における位相連続の式を用いる。プラズマ中の放射電磁波の周波数と波数は、プラズマ中の分散関係と位相連続の式の交点によって与えられる。電磁波はプラズマ中を伝搬して真空中に放射されるので、放射電磁波は真空中のプラズマの分散関係を満たす。放射電磁波が静止したプラズマ中から真空中に出る場合、周波数は保存され、波数のみが増加する。従って、DARC の放射周波数は、 $\omega \approx k_0 c / 2 + \omega_p^2 / 2k_0 c$  となる。このことから、放射周波数はプラズマの電子密度に比例し、電子密度が  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  程度のときにテラヘルツの周波数領域になることが分かる。

これらのことを踏まえ、静電場が励起された電極間に超短パルスレーザーを集光照射することで電離面を形成し、レーザー誘起パルス放電によって生じるバースト電流からのテラヘルツ電磁波放射を観測した。テラヘルツ電磁波の観測には、ポンプ・プローブサ

ンプリングシステムを用いた。

一方で、紫外光と X 線の間位置する極端紫外光は、光化学や分光学などの幅広い分野において研究が盛んに行われている。例えば、光化学反応を利用した光洗浄、表面改質、質量分析などには、紫外領域および真空紫外領域の光源が要求されており、重水素ランプや希ガスエキシマランプなどが開発されている。更に、波長の短い極端紫外領域では、次世代半導体リソグラフィ露光用光源である波長 13.5 nm の光源の研究開発が行われている。

しかしながら、波長 20 ~ 100 nm の領域では、波長 46.9 nm のネオン様アルゴンレーザーなどが開発されているものの、小型かつ高効率な光源は数少なく、未だに波長の空白域である。従って、この波長域の光源を開発することは、物理的・工学的に意義のあることである。また、この波長域の光は光子エネルギーが有機物の結合エネルギー (8 eV 程度) より大きいため、光化学反応を誘起することもでき、新たな光プロセスの可能性もある。この波長の空白域において光源を開発する方法には、シンクロトロン放射、レーザー生成プラズマ、放電生成プラズマなどが挙げられる。シンクロトロン放射光は、電波領域から X 線領域までをカバーする広帯域な光源であり、高輝度、高い指向性などの様々な利点を有する光源である。しかしながら、莫大なコストと巨大な施設を必要とするため、一研究機関が保持することは困難である。レーザー生成プラズマ光源は、レーザーをプラズマ媒質に集光照射することで生成される。光学系を用いることにより、任意の場所に局所的にエネルギーを供給することもできる。しかしながら、プラグイン電気効率が悪いのが難点になることもある。放電生成プラズマ光源は、電極間のプラズマ媒質に高電圧を印加することによりプラズマを生成する。電源と電極により構成されるため、装置は簡易である。また、放電生成プラズマ光源は、レーザー生成プラズマ光源よりもプラグイン電気効率は良いと予測される。特に、キャピラリーと呼ばれる細管を用いた放電生成プラズマは、キャピラリーの構造がジュール加熱に対し適切な抵抗値となることから、効率的にジュール加熱を起こすことができる。そのため、エネルギー注入効率が高い利点を有し、高効率な光源となる。更に、キャピラリー放電では生成されるプラズマの自由空間への膨張を抑制し、発光する多価イオンを高密度化することもできる。

1988 年に Mendelsohn 等によりアルカリ金属をマイクロ波放電により電子衝突励起された中性アルカリ金属からの極端紫外光を分光した例が報告されている。また、アルカリ金属の 1 価のイオンプラズマを電離ポテン

シャルが大きい希ガス様非線形媒質として用い、極端紫外領域の高次高調波を発生させる例も報告されている。アルカリ金属は蒸気化させやすく、以前からオープンを用いるガス化も行われ、非線形波長変換なども行われている。アルカリ金属プラズマの多価イオンも極端紫外領域にスペクトルを有している。従って、アルカリ金属を蒸気化し励起することにより、極端紫外光の発光媒質となることが期待される。

プラズマ中の多価イオンの再結合過程による極端紫外放射は、プラズマの電子温度や電子密度に依存し、スペクトル形状は大きく変わることが知られているが、アルカリ金属を用いる放電生成プラズマからの極端紫外放射特性についての報告例はほとんどない状況である。特に、アルカリ金属の中でも原子番号が小さなリチウムでは線スペクトルが優勢であり、原子番号が大きなセシウムでは広帯域スペクトルになることがレーザー生成プラズマの研究から容易に予測される。カリウムはアルカリ金属の中でも中間に位置すると同時に、かろうじて放射流体シミュレーションなどとの比較をしやすい材料である。

本研究では、アルカリ金属の中でカリウム固体金属を選び、これをパルスパワー技術により生成されるホローカソード放電様プラズマからの極端紫外光の放射特性の観測を行った。

カリウムが塗布されたキャピラリー電極を真空チャンバー内に設置し、高電圧パルスを印加することで生成されるカリウムプラズマからの極端紫外光を観測した。図 2 は実験装置である。キャピラリー構造をもつテフロンスペーサーをカリウムが固定された銅電極と銅製の平板電極で挟み込んだ。カリウム電極は直径がキャピラリーの直径程度、深さが数 100  $\mu\text{m}$  程度の穴があいており、ホローカソード形状になっている。これは、実験

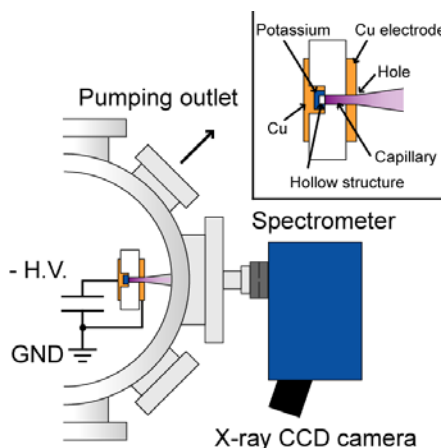


図 2 : 極端紫外光源の実験装置

前に多数回パルスパワー電源により動作させることによりアブレーションされて、カリウム電極の表面がクリーニングされるだけでなく、ホローカソード形状を自動的に形成している。キャピラリーの内径と長さのアスペクト比は1:2とし、キャピラリーの直径は0.1~2 mmとした。キャピラリーの直径が500  $\mu\text{m}$  の時に波長40 nm領域の極端紫外光のエネルギーが最大になるため、ほとんどの実験は直径500  $\mu\text{m}$ 、長さ1 mmのキャピラリーを用いた。陽極側は光が放射されるため、キャピラリーと同じ直径の光取り出し用の穴があいており、電極の厚さは1 mmであり、接地されている。

#### 4. 研究成果

ポンプ・プローブサンプリングシステムを用いて、DARC から放射されるテラヘルツ電磁波の時間波形を観測した。観測されたテラヘルツ電磁波の時間波形をフーリエ変換することで、周波数スペクトルを得た。ピーク周波数は、1.2 THz であり、DARC からのテラヘルツ電磁波が観測された。

また、図3は周波数が1.2 THzのテラヘルツ電磁波の電界強度のコンデンサ印加電圧依存性である。テラヘルツ電磁波の出力電圧は印加電圧に比例した。DARCの印加電圧と放射電磁波の電界強度との間には  $E_0 \sim E_{\text{THz}}$  の関係がある。ここで、 $E_{\text{THz}}$  は放射されるテラヘルツ波の電界強度である。このことから、 $E_{\text{THz}}$  は  $V_B$  に比例することが予想され、実験結果とも一致した。これらのことから観測した電磁波が DARC の放射であることに加えて、印加電圧を増加することで放射電磁波の出力電力を増加させることが出来ることが分かった。

これに加え、DARC は、周波数可変性、パルス整形、広帯域などの利点も有する。今後は、これらの特徴を明らかにし、様々な応用分野において活用できるよう研究を進める予定である。

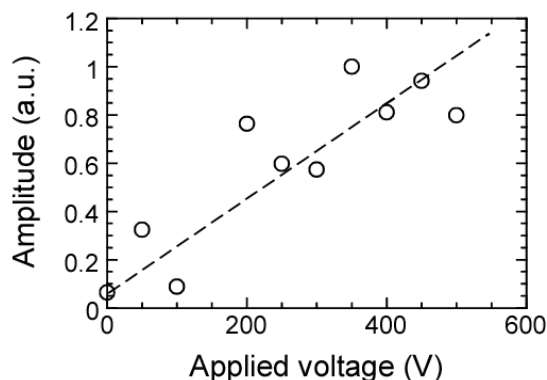


図3: テラヘルツ電磁波の電界強度の印加電圧依存性

パルスパワー電源 (最大電圧: 30 kV, 最大電流: 200 A, コンデンサの静電容量: 2 nF, 最大繰り返し周波数: 10 Hz) を用い、カリウムプラズマを生成した。電源は負極性であり、高電圧パルスはカリウム電極に印加した。放電電圧および放電電流はそれぞれ高電圧プローブおよびロゴスキーコイルにより計測され、アナログ周波数帯域500 MHz、サンプリング周波数2 GHzのデジタルオシロスコープを用いて時間波形を記録した。放電電圧は放電開始と共に増加し、放電時間が100 nsのときに印加される放電電圧は23~25 kVであった。電圧が23~25 kVに達したときに放電が開始され、放電電流は放電電圧が最大となる100 nsを境に急激に増加し、その後70 ns程度遅れて最大電流200 Aになる。放電電流波形は半波形状であり、持続時間は150~170 ns (FWHM) であった。

図4は時間積分された極端紫外スペクトルである。このとき、放電電圧は23 kV、最大放電電流は200 Aであった。図4(a)はキャピラリーの直径が1 mm (長さ2 mm)、図4(b)はキャピラリーの直径が500  $\mu\text{m}$  (長さ1 mm)でのスペクトルである。波長40 nm領域に帯域の広いスペクトルが観測され、カリウムの  $\text{K}^{2+} \sim \text{K}^{4+}$  の多価イオン共鳴線による発光の重ね合わせであることが明らかになった。この領域には、カリウムの共鳴線が多数存在している。これらに加えて、図4(a)のように、炭素、酸素、銅などの成分も同時に観測された。炭素や酸素はキャピラリー材料のアブレーションにより発生した線スペクトルである。この炭素の発光の共鳴線も波長40 nm領域の広帯域化に寄与している。酸素の発光線はキャピラリー材料だけでなく、カリウム電極の表面に付着している酸化物からの発光でもある。銅の発光は電極材料に起因している。

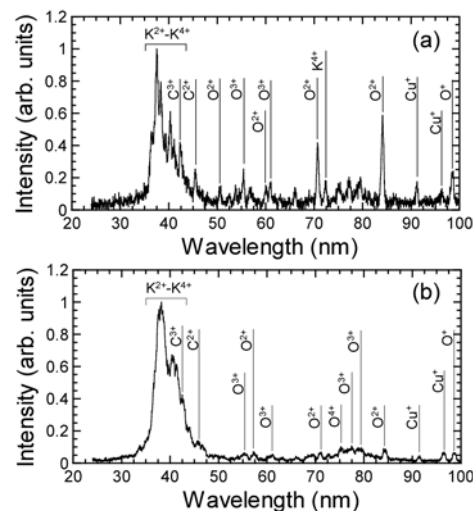


図4: 時間積分スペクトル (a) キャピラリー内径: 1 mm, (b) 500  $\mu\text{m}$

キャピラリーの直径が 500  $\mu\text{m}$  では、図 4(b) に示すように、波長 40 nm 領域のスペクトル強度が増加し、この領域の発光が支配的になった。一方、波長 50 ~ 100 nm 領域に多く見られた線スペクトル強度は、波長 40 nm 領域の発光と比べると相対的に弱いため、多く見られた線スペクトルは観測されなかった。ここでも、波長 40 nm 領域の発光はカリウムの多価イオンだけでなく、炭素の多価イオンも含めた共鳴線の重ね合わせである。このとき、帯域幅は 8 nm (FWHM) であった。発光強度が増加したのは、キャピラリーの内径が小さくなったことによる入力電力密度の増加に起因していると考えられるが、入力電力は評価できていない。

放射流体シミュレーションを行ない、ホローカソード放電様キャピラリー放電により生成したカリウムプラズマのプラズマパラメータを検討した。図 5 は実験結果と放射流体シミュレーションにより計算されたスペクトルである。計算には衝突-放射モデルを用いた。プラズマ媒質の構成元素はカリウム、炭素、酸素を仮定した。図 5 に示しているのは、実験結果に最も近い計算されたスペクトルであり、このことから、電子温度は 12 eV 程度であることが明らかになった。これは、観測された時間平均電子温度が 10 eV であることとほぼ一致している。このことから、数値シミュレーションはほぼ妥当であったと思われる。数値計算より、波長 40 nm 近傍の広帯域な発光は、 $\text{K}^{2+} \sim \text{K}^{4+}$  イオンの  $3d-3p$  遷移に起因していることが分かった。

この数値計算を用いて、変換効率の電子温度依存性を評価した。このことから、電子温度が 15 eV 程度で最大変換効率を実現できることが分かった。これは、放電電流に換算すると 220 ~ 250 A に対応する。以上のことから、カリウムを媒質としたキャピラリー放電生成プラズマの極端紫外光の放射特性を明らかにできたものと考えている。

本研究では、高強度超短パルスレーザーやパルス放電により生成される高温高密度プラズマを制御し、DARC からのテラヘルツ電磁波放射と、カリウムプラズマからの極端紫外光の観測を行った。今後は、これらの光源を組み合わせることで、非線形固体物性ダイ

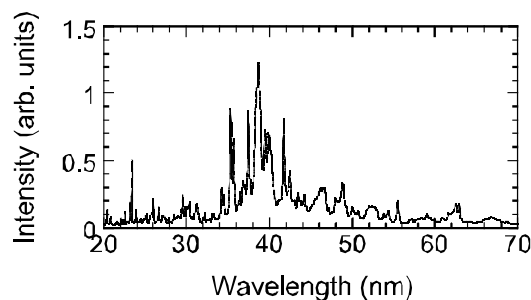


図 5：計算された時間積分スペクトル

ナミクスの観測を世界に先駆けて実現し、新たな診断技術の確立および新しい物性科学を創成に向けた研究に着手する予定である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① Takeshi Higashiguchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Hiromitsu Terauchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Spectral and temporal behavior of an alkali metal plasma extreme ultraviolet source for surface morphology applications", Applied Physics Letters, Vol. 98, pp. 091503-1-091503-6 (2011.3).
- ② Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Takamitsu Otsuka, Mami Yamaguchi, Keisuke Kikuchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Wataru Sasaki, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Microdischarge extreme ultraviolet source with alkali metal vapor for surface morphology application", Journal of Applied Physics, Vol. 109, pp. 013301-1-013301-6 (2011.1).
- ③ Takeshi Higashiguchi, Hiroaki Anno-Kashiwazaki, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, and Ryosuke Kodama, "Terahertz radiation in an optical-field-induced ionization in air with a pulsed electrostatic field", Proceedings of The IRMMW-THz 2010, p. Th-P.40 (1-2), (2010.9).
- ④ Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Wataru Sasaki, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Characteristics of extreme ultraviolet emission from a discharge-produced potassium plasma for surface morphology application", Applied Physics Letters, Vol. 96, pp. 131505-1-131505-3 (2010.4).
- ⑤ Noboru Yugami, Takeshi Higashiguchi, and Ryosuke Kodama, "Possibility of high power THz radiation via electromagnetically induced transparency at ion acoustic frequency region in laser-produced dense plasmas", Proceedings of SPIE, Vol. 7359, pp. 735911 (2009.5).



- ⑥ Takeshi Higashiguchi, Hideyuki Hasegawa, Hirofumi Nishimai, Noboru Yugami, and Patric Muggli, "Frequency upshift and radiation of the THz electromagnetic wave via an ultrashort-laser-produced ionization front", ADVANCED ACCELERATOR CONCEPTS: Proceedings of the Thirteenth Advanced Accelerator Concepts Workshop; AIP Conference Proceedings, Vol. 1086, pp. 701-706 (2009.1).

[学会発表] (計 6 件)

- ① Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Spectral and Temporal Behaviors of Alkali Metal Vapor Extreme Ultraviolet Sources for Surface Morphology Applications", 2010 International Workshop on Extreme Ultraviolet Sources, S12-2, University College Dublin, Dublin, Ireland (2010.11.15).
- ② Takeshi Higashiguchi, Hiroaki Kashiwazaki, Akinori Suzuki, Takamitsu Otsuka, and Noboru Yugami, "Terahertz radiation in an ultrashort-laser-induced discharge plasma in air", 52th Annual Meeting, APS Division of Plasma Physics, XP9.18, Hyatt Regency Chicago, Chicago, IL, USA (2010.11.12).
- ③ 東口 武史, 柏崎 宏明, 大塚 崇光, 宮澤 準, 大場 貴文, 鈴木 光騎, 湯上 登, 千徳 靖彦, 兒玉 了祐, 「超短パルスレーザー駆動パルス放電によるテラヘルツ放射」, 日本物理学会, 2010 年秋季大会, 23pQJ-2, 大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (大阪府堺市) (2010.9.23).
- ④ Takeshi Higashiguchi, Hiroaki Anno-Kashiwazaki, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, and Ryosuke Kodama, "Experimental observation of frequency up conversion of terahertz using laser produced plasmas", The 35th International Conference on Infrared, Millimeter and THz Waves (IRMMW-THz 2010), Th-P.40, Pontificia Universita'S. Tommaso d'Aquino (Rome, Italian Republic) (2010.9.9).
- ⑤ Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Compact extreme ultraviolet source by use of a

discharge-produced potassium plasma for surface morphology application", SPIE Optics+Photonics, 7802-27, San Diego Convention Center (San Diego, CA, USA) (2010.8.2).

- ⑥ Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Property of a hollow cathode discharge-produced microplasma extreme ultraviolet source with alkali metal vapor", European Physical Society 37th Conference on Plasma Physics, P2.230, National Centre for Plasma Science & Technology, Dublin City University (Dublin, Ireland) (2010.6.22).

[その他]

ホームページ等

<http://www.ee.utsunomiya-u.ac.jp/~photonics/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

東口 武史 (HIGASHIGUCHI TAKESHI)

宇都宮大学・工学研究科・准教授

研究者番号 : 80336289