

令和 3 年 4 月 28 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03577

研究課題名（和文）表明プラズモン共鳴を用いた相対論的高強度レーザーの局所的増強の実現

研究課題名（英文）Local field enhancement of ultra intense laser by surface plasmon resonance

研究代表者

羽原 英明（HABARA, HIDEAKI）

大阪大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60397734

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）：本研究の目的は、近年大きく発展を続けるナノフォトニクス技術を高強度レーザーに適応し組み合わせることで、光による真空崩壊など非線形量子電磁力学の現象が期待できるような「超高強度場」を現状の技術で実現するための基礎技術を確認することである。本研究では大きな電場増強効果が期待できる表面プラズモン共鳴現象を最大限に利用するため、高強度レーザーで用いられる超短パルス広帯域光に共鳴条件を最適化した2段階回折格子を設計開発した。実際に高強度レーザー照射実験を行った所、表面プラズモン共鳴に特有な反射率計測が観測され、1段階の回折格子と比較すると非常に高い吸収率が得られたことが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

今までレーザー強度を向上するためにはレーザーを増幅してエネルギー密度を上昇させ、時間・空間的に圧縮することが行われてきた。一方本研究は全く別のアプローチを取り、光の本質である近接場やその共鳴現象を高強度レーザーに適応し、既存の高強度化技術と競合するのではなく、それらと併用する形で高強度化に資することが出来る。これによりレーザー加速の質的な革新をもたらす、コンパクトで高効率な商用的に競争力のある新規高エネルギー粒子源が実現できる可能性があり、将来見込まれているレーザー装置の高強度化技術と併せた超高強度場の実現など基礎科学への応用も強く期待できる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this research is to create an "ultra-high-intensity field" in which non-linear quantum electrodynamic phenomena can be expected by applying nanophotonics technology, which has been greatly developed in recent years, to high-intensity lasers. In this study, in order to make the best use of the surface plasmon resonance phenomenon, which is expected to have a large electric field enhancement effect, we designed and developed a two-stage diffraction grating with optimized resonance conditions for ultrashort pulse wideband light used in high-intensity lasers. When a high-intensity laser was irradiated on this grating, decrease of reflectance peculiar to surface plasmon resonance was observed, suggesting that a very high absorption was obtained as compared with a normal one-stage diffraction grating.

研究分野：高強度場、プラズマ科学

キーワード：高強度場 先進回折格子 広帯域光

## 1. 研究開始当初の背景

レーザーは時間・空間コヒーレンスに優れ、大きなエネルギーを小さな時間空間に閉じ込めることが可能で、非常に強い電磁場を作り出すことが可能である。80年代半ばのチャープパルス増幅法の提案を契機として出力  $10^{15}\text{W}$ 、集光強度が  $10^{22}\text{W}/\text{cm}^2$  に迫る高強度レーザーも実現されている。このレーザーを物質に照射することで超高温、超高压といった極限状態を作り出すことができ、いわゆる高エネルギー密度状態の科学として精力的に研究が行われている。現在、そのような極限性に着目し、実験的に殆ど調べられていない非線型量子電磁力学を研究する「高強度場の物理」が注目されている。典型的な非線型量子電磁力学現象である真空崩壊は、Schwinger 限界と呼ばれる高強度場（レーザー強度  $10^{29}\text{W}/\text{cm}^2$  に対応）が真空に存在すると、トンネル効果により電子・陽電子対を多数生成して真空が崩壊する現象であり、宇宙の初期状態やマグネター等のコンパクト天体などの極限・非平衡状態を理解する上で強い興味を持たれている。同時に高エネルギー粒子源の開発、特に粒子線がん治療等の医療応用に必要な数  $100\text{MeV}$  のイオン加速、非破壊検査や核燃料廃棄物の処理に期待されるガンマ線や陽電子線生成などが、レーザーを高強度化することで効率よく生成することが期待されている。

このような超高強度場を実現すべく、メガジュールクラスの高エネルギーレーザー励起による光パラメトリックチャープパルス増幅法や  $100$  万を超えるファイバーレーザーを結合（バンドル）して高強度化を行う研究が開始されているが、前者は大型で高品質な非線形結晶の作成、後者はコヒーレント結合技術の開発が必要であり、まだ実現のめどはついていない。さらにどちらにしても最終的に大型の光学素子を用いて集光して高強度場を作り出すことを前提としているので、粒子加速への応用・実用を考えると、装置のサイズや値段などにおいて従来の加速器への競争力は失われる。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、近年大きく発展を続けるナノフォトニクス技術を高強度レーザーに適応し組み合わせることで、光による真空崩壊など非線形量子電磁力学的現象が期待できるような「超高強度場」を現状の技術で実現するための基礎技術を確認することである。大きな電場増強効果が期待できる表面プラズモン共鳴現象を最大限に利用するため、高強度レーザーで用いられる超短パルス広帯域光に共鳴条件を最適化した 2 段回折格子を設計開発し、高強度レーザーの局所的な高強度化を実現するとともに、詳細な相互作用メカニズムを調べて相対論的プラズモニクスとして体系化していく。

## 3. 研究の方法

本課題で利用する回折格子を用いた表面プラズモン共鳴では、ある波長の光に対して単一の入射角を満たす場合のみ共鳴を起こす。実際はある入射角に対して共鳴が起こる波長広がりが存在し、その幅は表面の材質、厚さ、高さなど様々なパラメータに依存する。一方、本研究で用いる高強度レーザーは通常  $100\text{nm}$  以上の広帯域な波長幅を持つチタンサファイアレーザーであり、通常回折格子では一部しか共鳴条件を満たさず、レーザー強度の上昇があまり期待できない。そこで申請者は既にプラズモンの偶モードと奇モードを同時に励起し、互いに干渉することで広い波長帯域で共鳴条件を満たしかつ電場増強率が  $100$  倍近い 2 段回折格子構造を考案し論文として公表している [Mishima et al., J. Opt. Soc. Am. B 32 (2015) 1804]。

この 2 段回折格子を実際の超短パルスレーザーに最適化するよう時間領域差分 (FDTD) シミュレーションなどを用いてパラメータスキャンを行い、最適な構造や素材を決定する。そのパラメータを持った 2 段回折格子を電子ビームリソグラフィにて作成する。シリコン基板上に  $300 \times 300\mu\text{m}$  程度の大きさをパターンニングした後、数  $10\text{nm}$  程度の金属コートをし、所定の形状の金属回折格子を作成する。

作成した 2 段回折格子に高強度レーザー発振器から CW レーザーを取り出し、入射角を変化させながら回折格子に照射し、吸収率を分光計測する。その結果が FDTD シミュレーションに一致するかを確認する。一致しない場合は実験で得られた吸収分光の結果をシミュレーションにフィードバックし、共鳴・吸収を最大化するような 2 段回折格子のパラメータを探索していく。

パラメータ決定後、申請者の保持する  $2.5\text{TW}$  超短パルス高強度レーザーを照射し、表面プラズモン共鳴に依る高強度レーザーの電場増強効果の検証実験を行う。強度増強の計測は①レーザー強度に対する依存性があるレーザー加速高エネルギー電子のエネルギー計測、②レーザー強度に依存する表面金属のイオン化度を放射分光計測、することによって行う。同時に③メイン光と別波長でパルス幅のより短いプローブ光を同時照射し、表面の誘電率などの状態を分光エリプソメトリ計測にて計測する。これらにより表面状態と増強度の関係を詳細に計測し、より高強度なレーザーを用いた場合の影響やフォトニック結晶など 2 次元的なナノ構造をプラズモン共鳴ターゲットとして用いた場合の予測に必要なパラメータの取得を行う。

#### 4. 研究成果

##### (1) 時間差分領域法シミュレーションによる構造の決定とターゲット作成

時間差分領域法 (finite-differential time-domain: FDTD) 法とは 1996 年に Yee によって作られた数値計算手法である。ターゲットの形状に依存せず電磁場の時間発展を見ることができ、並列計算が容易であるという利点を持つ。回折格子など周期構造のターゲットについては計算負荷が小さい厳密結合波解析 (rigorous coupled-wave analysis: RCWA) 法もよく用いられているが、本研究では電磁場の時間発展を見るために FDTD 法を用いた。

本研究では波長 800 nm のチタンサファイアレーザーを使用し、実験系の都合上ターゲットへの入射角は  $10^\circ$  である。ダブルステップグレーティングと光のカップリングを表す数式は求まっていないため、FDTD シミュレーションによって反射率が最も低くなる形状を求めた。

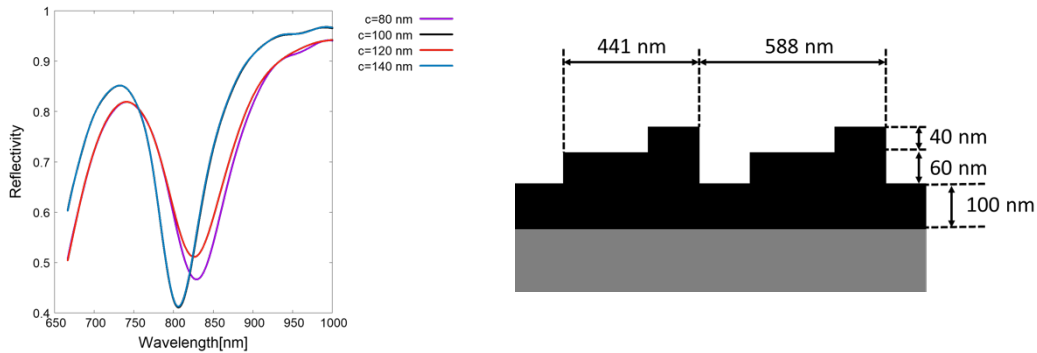


図 1 : (左) 反射率の波長依存性 (右) 最適化した構造パラメータ

図 1 左は FDTD シミュレーションの一例であり、構造パラメータを変化させたときの波長ごとの反射率を示したものである。このとき変化させたパラメータは図 1 右における上部構造のベース厚さ (図では 100nm) であるが、上部の構造による表面プラズモン共鳴によって 800nm 付近で反射率が減少していることがわかる。しかしよく見ると厚みによって反射率が減少する波長帯が 20nm 程度変わることがわかる。このようにパラメータを変化させることで反射率だけでなく共鳴波長も変わるため、様々なパラメータを変化させて最適化を行った結果が図 1 右のパラメータである。下部のグレーで記した箇所はシリコン基板であり、その上部の黒い構造が金で形成した微細構造である。

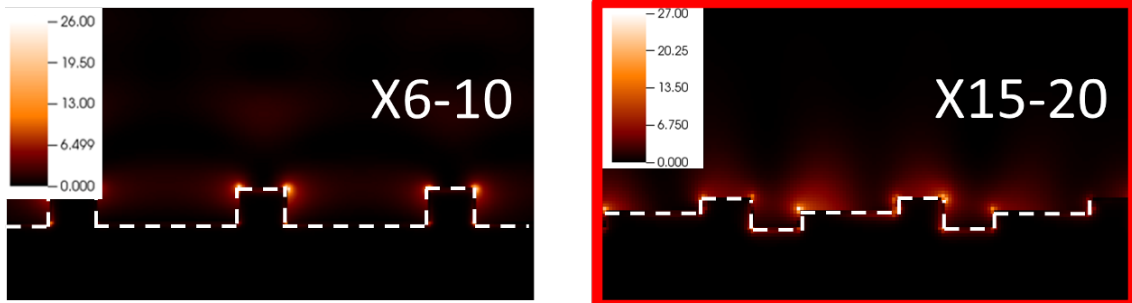


図 2 : (左) 1 段回折格子における電場増大率 (右) 2 段回折格子における電場増大率

図 2 はこのパラメータを用いて電場増強度を計算した結果である。左は通常の 1 段のグレーティングの場合であり、その電場増倍率はせいぜい数倍で、電場が増大される場所も非常に局所的である。一方右のダブルステップグレーティングでは、電場増強度は局所的には 30 倍程度、広範囲には 1.5-2.0 倍程度の増大率が示さ、1 段のグレーティングよりも広範囲で高い増倍率が得られることが示された。

シミュレーションで求めたパラメータをもとに、実際に電子ビームリソグラフィ法でターゲットを作成し、SEM で上面を観察したものが図 3 である。SEM での計測で、パラメータ通りのきれいな構造が形成されていることがわかる。我々はこれを再現良く形成するためのマーキング手法を確立し、およそ 80% 以上の生成再現率を得ることができた。

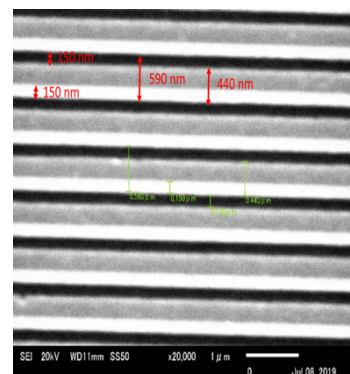


図 3 : 2 段回折格子の SEM 画像

## (2) レーザー実験

作成したターゲットを用い、レーザー実験を行った。まず実際に表面プラズモン共鳴が起きているかを、ターゲットがプラズマ化しない低強度の光を用いて反射率を測定した。このときレーザーの集光強度は $5.3 \times 10^6 \text{ W/cm}^2$ であり、入射角 $\theta$ を $10^\circ$ から $50^\circ$ まで $10^\circ$ 刻みで変化させ、その反射角方向の光の金平板に対する相対反射率スペクトルを計測した。入射角 $10^\circ$ の際の1段グレーティングとダブルステップグレーティングの結果を図4左に示す。ダブルステップグレーティングでは795 nmから800 nmに特徴的なディップを持っているのがわかる。図には示していないが同じ入射角でS偏光のレーザーを照射した場合にはこのような反射率スペクトルの構造は全く見られていない。また所定の入射角で最も低い反射率を示した。以上の結果より、作成したダブルステップグレーティングに $10^\circ$ の入射角で800 nmのレーザーを照射すると強い表面プラズモン共鳴を励起することが可能であることが示された。

次いで集光強度 $2.0 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ 、パルス幅40 fsの超高強度レーザーを使い、同様に反射率計測を行った。入射角は引き続き $10^\circ$ に固定した。このとき反射率計測として入射角を $10^\circ$ とし、その反射角方向の光の金平板に対する相対反射率スペクトルを計測した。その結果を図4左に示す。得られた反射率の低下より、ダブルステップグレーティングは金平板に対しておおよそ2.5倍、グレーティングは1.3倍の増大率があった可能性が示された。しかし、高強度実験での反射率は低強度レーザーを使った場合の結果と大きく異なっている。このとき高強度レーザーが持つ電場はおおよそ $10^{10} \text{ V/cm}$ であり、これは原子が電子を束縛するための電場の概算値 $10^9 \text{ V/cm}$ よりも大きい。したがってレーザーピークが到達する以前に表面近傍の金は電離されていると考えられる。表面がプラズマ化したと仮定した場合、共鳴条件が変化し、共鳴波長がシフトすることがFDTDシミュレーションの予測から得ることができたが、反射率の変化だけからでは共鳴波長のシフト量を推測することは困難であった。

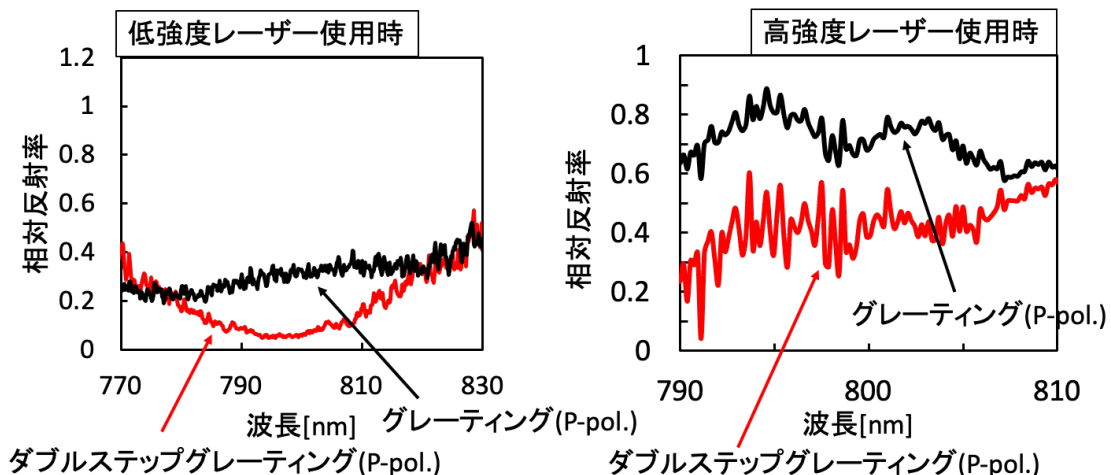


図4 (右) 低強度レーザーによる反射率計測 (左) 高強度レーザーによる反射率計測

結論として、本研究ではダブルステップグレーティングを考案し、実際に精度よく作成することに成功した。更にレーザーを使った実験において共鳴プラズモン共鳴と思われる反射率の低下を観測することができた。高強度レーザーを照射したときのプラズマ密度などの過渡的な表面状態が計測できれば、表面における電場増大率を推測することが可能になるということが新たに分かり、今後の検討課題である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 H. Habara et al.,	4. 巻 90
2. 論文標題 A ten-inch manipulator (TIM) based fast-electron spectrometer with multiple viewing angles (OU-ESM)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 63501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5088529	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 該当する

1. 著者名 羽原英明	4. 巻 47
2. 論文標題 超高強度レーザーによるギガガウス級磁場生成	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 レーザー研究	6. 最初と最後の頁 531-535
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Habara H., Lad Amit D., Nagami R., Singh Prashant Kumar, Chatterjee Gourab, Adak Amitava, Dalui Malay, Jha J., Brijesh P., Mishima Y., Nagai K., Sakagami H., Tata Sheroy, Trivikram T. Madhu, Krishnamurthy M., Tanaka K. A., Kumar G. Ravindra	4. 巻 11
2. 論文標題 Micro-optics for ultra-intense lasers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 035214 ~ 035214
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0038023	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 Margarone Daniele, Morace Alessio, Bonvalet Julien, Abe Yuki, Kantarelou Vasiliki, Raffestin Didier, Giuffrida Lorenzo, Nicolai Philippe, Tosca Marco, Picciotto Antonino, Petringa Giada, Cirrone Giuseppe A. P., Fukuda Yuji, Kuramitsu Yasuhiro, Habara Hideaki et al.	4. 巻 8
2. 論文標題 Generation of $\gamma$ -Particle Beams With a Multi-kJ, Peta-Watt Class Laser System	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Frontiers in Physics	6. 最初と最後の頁 343
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3389/fphy.2020.00343	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 林 宜章, Mihail Cernaianu, 田中 和夫, 羽原 英明	4. 巻 48
2. 論文標題 プラズマ粒子シミュレーションによる 薄膜プラズマミラーの反射率計測	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 レーザー研究	6. 最初と最後の頁 193-197
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 該当する

1. 著者名 羽原 英明, Tao GONG, 田中 和夫	4. 巻 49
2. 論文標題 超高強度レーザーの異常侵入を用いた爆縮プラズマへの高速加熱	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 レーザー研究	6. 最初と最後の頁 143-148
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 該当する

〔学会発表〕 計2件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 阿部健太郎、羽原英明
2. 発表標題 Surface Plasmon Resonance Of High Power Laser Field
3. 学会等名 2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 羽原英明
2. 発表標題 超高強度レーザーの異常侵入を用いた高密度コアプラズマの高速加熱
3. 学会等名 レーザー学会 (招待講演) (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------