



レーザー科学研究所
令和元年度（2019年度）

共同利用・共同研究成果報告書

(平成31年4月-令和元年3月)

ILE Annual Report of Collaborative Research
April 2019 - March 2020

令和2年9月発行
大阪大学レーザー科学研究所
Institute of Laser Engineering,
Osaka University,

はじめに

大阪大学レーザー科学研究所は、国内外の共同研究者の皆様と共に、レーザー技術を発展させ、レーザーが拓く人類未踏の世界を探求することで、イノベーションの源泉となる新学術や革新的技術の創生に努めています。レーザー技術をベースとした基礎及び応用として、レーザー科学・光量子科学に関する研究・教育を推進するとともに、共同利用・共同研究拠点として国内外の大学又は研究機関等の研究者の共同利用に供しています。皆様のご理解とご協力のもと、令和元年度もこれまで通り、光材料工学、光デバイス工学、レーザー工学ならびにテラヘルツフォトニクスやパワーフォトニクスなどを始めとしたレーザー科学やレーザー宇宙物理学やレーザー核融合などを含めた高エネルギー密度科学などの学際分野で多くの成果が得られました。これらの活動の成果を、共同研究成果報告書としてまとめましたので、ご高覧いただければ幸いです。

令和元年度も、コミュニティの拠点としても様々な連携活動が行われました。平成30年度末に日本学術学術会議コミュニティから提案した「パワーレーザーインテグレーションによる新共創システムの構築-社会的課題解決につながる超越状態を利活用したあらゆるスケールの構造機能の探究-」、令和2年度マスタープラン2020として位置付けられました。国際連携に関しては、5か国に設置した連携オフィスを活用した活動を推進いたしました。特に世界最高のピーク強度（10ペタワット）のレーザー施設ELI-NP（ルーマニア）との連携体制が強化され、連携オフィスの常設化ならびに相互施設を利用し連携が約束されました。また日米連携に関しては、日米政府間科学技術協定の新たな枠組みのもと、日米合同委員会が設置されました。そのもとで、米国パワーレーザー施設連携ネットワーク（LaserNetUS）との連携や核融合燃焼実験など新たな学術研究での連携がすすむことになりました。産業界との連携に関しては、产学協奏の場である IFE フォーラム、光エレクトロニクスフォーラム、パワーレーザーフォーラムの活動を推進いたしました。その結果、新たにもう1つの产学連携部門が設置され、合計4つの产学共同研究部門として研究開発を進めることになりました。加えて、令和元年9月には、レーザー核融合科学と応用に関する国際会議（IFSA）を大阪で開催いたしました。パワーレーザーフォーラムによるシンポジウムや世界のパワーレーザー施設を紹介する国際利用者会議ならびに国内研究機関との連携のもと市民を対象としたアウトリーチ活動を同時に開催し、1000名を超える参加者のもと盛会裏に進められました。

現在、新型コロナウイルスの影響は、学界においても大きなものとなっております。コロナ禍においても様々な工夫をすることで、令和2年度におきましても、レーザー科学ならびに高エネルギー密度科学を発展させ、より幅広いコミュニティの期待に応えることができる拠点活動を推進していきたいと思っております。ポスト・コロナ時代の新しい共同利用・共同研究拠点として、共同研究者の皆様と共に新しい学問領域を開拓するとともに社会に貢献していきたいと考えております。今後とも当拠点活動に対する皆様のご理解ご支援のほど、よろしくお願い申し上げます。

令和2年9月
大阪大学レーザー科学研究所長 児玉 了祐

目次 INDEX

レーザー宇宙物理学

2019A-KURAMITSU	Experimental investigation on electron-scale magnetic reconnection with high-power laser	藏満 康浩	大阪大学大学院工学研究科	P.6
2019A-MATSUKIYO	大型レーザーを用いた衝撃波リフォーメーションの実証	松清 修一	九州大学大学院総合理工学研究院	P.8
2019A-MORITA	レーザーアブレーションプラズマが駆動する磁気リコネクション研究	森田 太智	九州大学大学院総合理工学研究院	P.10
2019A-SANO	高分解能X線シャドウグラフ法を用いた強磁場による界面流体不安定の抑制条件の実験的検証	佐野 孝好	大阪大学レーザー科学研究所	P.12
2019A-YAMAZAKI	磁化プラズマ中を伝播する無衝突衝撃波の生成実験	山崎 了	青山学院大学理工学部	P.14
2019B2-TANAKA	誘導コンプトン散乱のレーザー実験に向けての研究	田中 周太	青山学院大学理工学部	P.16

超高压物性・惑星物理学

2019A-KATARZYNA2018	Laser shock experiments on water with increased pre-compression	Jakubowska Katarzyna	University of Bordeaux	P.18
2019A-KONDO	衝撃誘起高圧相転移条件の初期試料依存性に関する研究 その2	近藤 忠	大阪大学大学院理学研究科	P.21
2019A-OKUCHI	レーザー衝撃圧縮による氷惑星内部の実際の温度圧力条件での水の状態解析	奥地 拓生	岡山大学惑星物質研究所	P.23
2019A-OZAKI	Shock compression and equation-of-state measurements of titanium carbide up to 630 Gpa	尾崎 典雅	大阪大学大学院工学研究科	P.25
2019A-SHIGEMORI2018	超高強度レーザーによるギガバール圧力の発生とその特性に関する研究	重森 啓介	大阪大学レーザー科学研究所	P.27

超高強度磁場科学

2019A-AREFIEV	Enhanced laser-driven ion acceleration in a strong applied magnetic field	Alex Arefiev	University of California San Diego	P.28
2019A-NAGATOMO	磁場を利用した高速電子駆動衝撃波の生成実験	長友 英夫	大阪大学レーザー科学研究所	P.30
2019B2-TAGUCHI	超高強度レーザーと高密度プラズマの相互作用	田口 俊弘	摂南大学理工学部	P.32

量子ビーム科学

2019A-ARIKAWA	High current electron generation by beam by Fundamental/Second harmonics mixed LFEX	有川 安信	大阪大学レーザー科学研究所	P.34
2019A-NISHIMURA	Developments of Laser-driven Neutron Source in Osaka University	西村 博明	福井工業大学工学部	P.36
2019A-WOON	Heavy ion acceleration with noble metal coated large area suspended graphene	Wei-Yen Woon	National Central University	P.38
2019B2-FUKUDA	非平衡プラズマ中に発生する無衝突衝撃波を用いた陽子加速	福田 祐仁	量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所	P.40

2019B2-KITAGAWA_M	スピン偏極重水素化合物ターゲットの開発	北川 勝浩	大阪大学大学院基礎工学研究科	P.42
2019B2-KITAGAWA_Y	Development of fast-ignition fusion by using a high repetition laser and its industrial application	北川 米喜	光産業創成大学院大学	P.43
2019B2-MIYAMOTO	偏光ガンマ線とスピン偏極重水素標的による高指向性中性子発生に向けた研究	宮本 修治	兵庫県立大学高度産業科学技術研究所	P.45

プラズマ科学

2019A-BATANI	Generation of α -particle beams with LFEX and applications	Dimitri Batani	Centre Lasers Intenses et Applications (CELIA)	P.46
2019A-KOENIG	Heat transport in Magnetised High Energy Density Plasma	Michel Koenig	Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI)	P.49
2019B2-SUNAHARA	プラズマ対向材の数値モデリング	砂原 淳	School of Nuclear Engineering Purdue University	P.51
2019B2-YUGAMI	レーザー生成プラズマからのテラヘルツ波発生	湯上 登	宇都宮大学大学院地域創生科学研究科	P.53
2019C-NAGATOMO	高エネルギー密度科学のシミュレーションとデータビリティに関する研究会	長友 英夫	大阪大学レーザー科学研究所	P.54

テラヘルツ光科学

2019B1-ASAKAWA	実用化を目指すテラヘルツ波放射構造体最適化研究	淺川 誠	関西大学システム理工学部	P.56
2019B1-ITO	テラヘルツ波制御デバイスに向けた液晶材料の探索	伊東 良太	秋田県立大学システム科学技術学部	P.58
2019B1-MATSUI	有機半導体材料によるテラヘルツ高速スイッチング	松井 龍之介	三重大学院工学研究科	P.60
2019B1-MORITA	高強度THzパルスによるスピン制御	森田 健	千葉大学大学院工学研究院	P.62
2019B1-NISHIKAWA	機能性酸化物のエピタキシャル薄膜において基板の結晶格子が構造相転移に与える影響	西川 博昭	近畿大学生物理工学部	P.64
2019B1-TANI	メタマテリアルを活用した新たなテラヘルツ波発生素子の開発	谷 正彦	福井大学遠赤外領域開発研究センター	P.66
2019B1-TOKUDA	積層型メタルスリットアレイにおけるブルーシフトモードとスペクトル異常	徳田 安紀	岡山県立大学情報工学部	P.68
2019B2-ESTACIO	Optical properties of bulk zinc oxide single crystals for terahertz photoconductive antenna devices applications	Elmer Surat Estacio	University of the Philippines Diliman	P.70
2019B2-FURUTA	カーボンナノチューブフォレストメタマテリアルの形状効果と自己組織化形成プロセス	古田 寛	高知工科大学システム工学群	P.73
2019B2-KUWASHIMA	スピントロニクスTHz発生装置の励起に用いるレーザー光子ス光におけるモードの同時性	桑島 史欣	福井工業大学工学部電気電子工学科	P.75
2019B2-LEE	TCNQ導入による金属有機構造体化学センサの高感度化に関する研究	李 相錫	鳥取大学工学部電気情報系学科	P.77
2019B2-MAKINO	相変化材料を利用したテラヘルツ波デバイスの開発	牧野 孝太郎	産業技術総合研究所	P.79
2019B2-MURAOKA	レーザー-テラヘルツエミッショントンネル鏡による金属酸化物ヘテロ界面の仕事関数評価	村岡 祐治	岡山大学異分野基礎科学研究所	P.81
2019B2-NASHIMA	サブ10um径ワイヤーによる広帯域ワイヤーグリッド偏光子の作製	菜嶋 茂喜	大阪市立大学大学院工学研究科	P.83

2019B2-OTANI	超伝導メタマテリアルを組み込んだミリ波・テラヘルツ帯マイクロ波力学インダクタンス検出器の研究	大谷 知行	理化学研究所光量子工学研究センター	P.85
2019B2-YAMAHARA	テラヘルツ波分光計測による傾斜格子歪み希土類鉄ガーネット薄膜の誘電分極評価	山原 弘靖	東京大学工学系研究科	P.87

パワーレーザー科学

2019B2-INOUE	DPSS可視光パルスレーザー装置の開発	井上 峻介	京都大学化学研究所	P.89
2019B2-KAWATO-1	共振器内に損失を与える位置が非線形材料を挿入したモード同期レーザーの効率と発振スペクトルに与える影響に関する理論解析	川戸 栄	福井大学学術研究院	P.90
2019B2-KAWATO-2	励起光に起因する損失を考慮した青色半導体レーザー励起連続波チタンサファイアレーザーの高効率化	川戸 栄	福井大学学術研究院	P.92
2019B2-OOKUBO	ハイパワーレーザーのための広帯域な誘電体多層膜ミラーの基本設計	大久保 友雅	東京工科大学工学部	P.94

光学材料

2019B1-MURATA	中性子線ガラスシンチレータの特性改良に関する開発研究	村田 貴広	熊本大学大学院先端科学研究所	P.96
2019B1-PADAMA	Density functional theory investigation of hydrogen adsorption on ZnO (1010) surface	Allan Abraham Bustria Padama	University of the Philippines Los Baños	P.98
2019B1-RADUBAN	Investigation of LaF ₃ as a vacuum ultraviolet emitter for scintillator and laser applications	Marilou Cadatal-Raduban	Massey University	P.101
2019B1-SARUMAGO	Synthesis and characterization of Fe-doped ZnO microrods as picosecond UV scintillators	Roland Villano Sarmago	University of the Philippines Diliman	P.107
2019B1-SOMINTAC	Aluminum-doped zinc oxide thin films as potential UV scintillator materials	Armando Soriano Somintac	University of the Philippines Diliman	P.109
2019B2-FUJIMOTO	次世代高機能光ファイバデバイスの開発とその応用	藤本 靖	千葉工業大学工学部	P.112
2019B2-IWASA	新奇層状複合アニオン化合物を母材とした新規蛍光体の開発	岩佐 祐希	産業技術総合研究所	P.114
2019B2-KANABE	LFEXレーザーシステムの高性能化 -増幅システムの動特性解析に関する研究-	金邊 忠	福井大学学術研究院工学系部門	P.116
2019B2-MORI_YU	ホウ酸系非線形光学結晶の高品質・大型化	森 勇介	大阪大学大学院工学研究科	P.118
2019B2-MOTOKOSHI-1	繰返しパルス照射による光学材料のレーザー損傷しきい値	本越 伸二	レーザー技術総合研究所	P.120
2019B2-MOTOKOSHI-2	レーザー造形法によるシリカガラス構造形成	本越 伸二	レーザー技術総合研究所	P.122
2019B2-OGINO	Excitonic luminescence properties from new layered mixed-anion compounds with natural superlattice	荻野 拓	産業技術総合研究所	P.124
2019B2-PHAN	Research and development of ultraviolet laser and amplifier systems using Ce:LiCAF crystal	Pham Hong Minh	Vietnamese Academy of Science and Technology	P.126
2019B2-SALVADOR	Optical properties of MBE-grown GaAs epilayers on Si substrates before electron and gamma-ray irradiation	Arnel Salvador	University of the Philippines Diliman	P.131
2019B2-SASA	GaSb/InAsヘテロ構造からのテラヘルツ放射強度の評価	佐々 誠彦	大阪工業大学工学部	P.133
2019B2-SASAKI	光学材料、光学薄膜の損傷機構のパーコレーションモデル	佐々木 明	量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所	P.135

2019B2-YOSHIKAWA	高強度レーザーを用いた高機能性有機結晶創製法の開発	吉川 洋史	埼玉大学大学院理工学研究科	P.137
------------------	---------------------------	-------	---------------	-------

一般共同研究

2019A-PUREVJAV	Shock compression measurements of synthetic wadsleyite and ringwoodite single crystals	Narangoo Purevjav	岡山大学惑星物質研究所	P.139
2019B1-HABARA	高Z金属ワイヤ挿入による爆縮プラズマ中における高速電子の収束モデリング	羽原 英明	大阪大学大学院工学研究科	P.141
2019B1-MATSUMOTO	巨大分子薄膜・ネットワークのテラヘルツ分光と電気伝導メカニズム	松本 卓也	大阪大学大学院理学研究科	P.143
2019B2-FUJITA	CWファイバーレーザーを用いた加工	藤田 雅之	レーザー技術総合研究所	P.145
2019B2-FURUKAWA	超短パルスレーザー加工の統合シミュレーションコードの開発	古河 裕之	レーザー技術総合研究所	P.147
2019B2-FURUSE	透光性セラミックスの開発	古瀬 裕章	北見工業大学工学部	P.149
2019B2-HIROSE	幅射磁気流体力学シミュレーションによる降着円盤の研究	廣瀬 重信	海洋研究開発機構数理科学・先端技術研究センター	P.151
2019B2-MANABE	レーザー照明における高演色化の開発	眞鍋 由雄	津山工業高等専門学校総合理工学科	P.153
2019B2-MASADA	統計的アプローチで迫る太陽の内部熱対流 -太陽熱対流は局所駆動型か？冷却駆動型か？-	政田 洋平	愛知教育大学教育学部	P.155
2019B2-MATSUOKA	リヒトマイヤー・メッシュコフ不安定性における界面とバルク渦の非線形相互作用に関する研究	松岡 千博	大阪市立大学大学院工学研究科	P.157
2019B2-MORI_YO	Investigation of electromagnetic wave propagation and absorption with polarization controlled intense laser pulse	森 芳孝	光創成大学院大学	P.159
2019B2-NAKANO	混晶化したPr:CaF ₂ 透明セラミックス材料の開発	中野 人志	近畿大学理工学部	P.161
2019B2-NISHIHARA	ダブルレイヤーターゲットを用いたレーザー放射圧加速と相対論的リヒトマイヤー・メッシュコフ様不安定性	西原 功修	大阪大学レーザー科学研究所	P.163
2019B2-NISHIKINO	レーザー走査によるセンシング技術の高度化に関する研究	錦野 将元	量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所	P.165
2019B2-UTSURO	温度約1-10K の領域における重水素化水素HDプローブのNMR実験及び固体HD薄膜ターゲットの試作(NMR実験の最終報告)	宇津呂 雅彦	大阪大学核物理研究センター	P.167
2019B2-YAMADA	Study of high energy laser irradiation onto diamond shells	山田 英明	産業技術総合研究所	P.169
2019B2-YAMAMOTO	極低温冷凍機の高効率化に向けた希土類窒化物材料の開発	山本 孝夫	大阪大学大学院工学研究科	P.170
2019B2-YAMANAKA	中赤外レーザーによる軽元素同位体分析機器開発	山中 千博	大阪大学大学院理学研究科	P.172
2019B2-YOSHIDA	Er:ZBLANファイバーレーザー励起4μmFe:ZnSeレーザーの開発	吉田 実	近畿大学理工学部	P.174
2019C-HABARA	高繰り返しターゲット供給・アライメント・計測技術に関する研究会	羽原 英明	大阪大学大学院工学研究科	P.176

Enhanced laser-driven ion acceleration in a strong applied magnetic field

Alex Arefiev¹, Toma Toncian², Joao J. Santos³, Hiroki Morita⁴, Mao Takemura⁴, Chang Liu⁴,
Shuwang Guo¹, Jinyuan Dun¹, Alessio Morace³, and Shinsuke Fujioka⁴

¹Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California San Diego, US

²Institute for Radiation Physics, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Germany

³University of Bordeaux, Centre Lasers Intenses et Applications, France

⁴Institute of Laser Engineering, Osaka University, Japan

• INTRODUCTION

Several tens of MeV protons are generated from a laser-produced compact plasma in the laser-driven proton acceleration scheme. Laser-driven protons can be used for various applications. These applications require high flux and energetic protons as well as a high conversion efficiency from laser to protons. Experiments were performed to improve these parameters by using various target structures and laser conditions, e.g. an ultra-thin foil, micro-structured foil, long-pulse laser.

In the target normal sheath acceleration (TNSA) mechanism, an intense laser pulse interacts with a foil surface and generates relativistic electrons. A part of the electrons escapes from the foil to a vacuum and generate a strong sheath electric field at the rear surface of the foil. This sheath field accelerates protons from the rear surface of the foil to its normal direction. The relativistic electrons diverge generally in the lateral direction. This divergence weakens the strength of the sheath electric field.

Previous studies using two- and three-dimensional particle-in-cell simulations found that applying a strong axial magnetic field to the TNSA increases the maximum proton energy and coupling efficiency from the laser to protons [1, 2, 3]. The applied magnetic field provides two effects: (1) the magnetic field reduces the lateral divergence of the relativistic electrons and (2) the right-hand circular-polarized component of the incident laser continuously accelerates electrons gyrating in the magnetic field. Therefore, the applied magnetic field enhances the directionality and the strength of the sheath field, resulting in the generation of a high-flux and high-energy proton beams.

A strong magnetic field that can confine the relativistic electrons is required to realize this scheme experimentally. A laser-driven capacitor-coil can produce a 1-kT magnetic field [4, 5, 6]. The pulse duration of this magnetic field is about 1 ns, sufficiently long relative to the time scale of proton acceleration. It was confirmed in previous experiments that the magnetic field generated by

a laser-driven magnetic field can confine relativistic electrons within a small spot.

We attempted to demonstrate enhancement of the TNSA performance using a laser-driven capacitor-coil. However, the experimental results clarified that the maximum energy and the number of protons decreased by using a laser-driven capacitor-coil. In this report, we identify the sources of the proton beam degradation which were not considered by the previous numerical predictions.

• EXPERIMENTAL SETUP

The experiment was conducted at the GEKKO-XII (GXII) and LFEX facilities. Three GXII beams were used to generate a strong magnetic field. Each GXII beam, which has 800 ± 50 J of energy at 1054-nm wavelength, was focused to 50- μm diameter on one of the capacitor-plates of the target. When a single GXII beam was used, the laser-driven capacitor-coil generated 610 ± 30 T of magnetic field at the coil center at 1.5 ± 0.15 ns after the GXII peak. The coil has 500- μm diameter and 50- μm wire diameter.

The LFEX beam, which has 350 ± 50 J of energy and 1054-nm wavelength, was irradiated on a plastic (CH) foil to accelerate a proton beam via the TNSA. The CH foil was placed on 50- μm -thick tantalum, which protected the CH foil from radiation and plasma generated at the capacitor-plate. The energy spectrum of the laser-accelerated protons was measured with the Thomson parabola energy spectrometer. The energy spectra of the accelerated electrons were also measured at 21 degrees from the normal axis of the rear surface of the CH foil.

The aluminum shield was placed 5 mm behind the foil to protect the rear surface of the CH foil from illumination by the uncompressed light of the LFEX reflected at the RCF stack surface. The LFEX system emits an uncompressed light pulse ahead of a compressed main pulse. This uncompressed light is specularly reflected on the grating surface. The direction of the uncompressed light is tilted a little from that of the compressed light. Thus, the uncompressed light does not

hit the CH foil, but illuminates the RCF stack behind the CH foil 45 ns before the compressed pulse illumination. The reflected uncompressed light can heat the rear surface of the CH foil, reducing the TNSA performance.

• RESULTS

We measured the energy spectra of the proton beam, changing the delay between the magnetic field generation and proton acceleration. For the initial delay setting, the GXII and LFEX pulse peaks reached the targets simultaneously. A positive value for the delay means that the LFEX pulse peak arrives at the CH foil after the GXII pulse peak.

Figure 1 shows the energy spectra of (a) laser-accelerated protons and (b) electrons measured at -260 ps and +180 ps delays, without the application of the laser-driven capacitor-coil. The proton spectra were measured at the normal direction of the CH foil rear surface. All of the proton spectra have a detection limit at 6 MeV because the Thomson parabola energy spectrometer cannot detect protons with energies less than 6 MeV. The energy spectra without the laser-driven magnetic field showed the highest maximum energy and the largest number of accelerated protons. On the other hand, when a magnetic field was applied to the CH foil, the maximum energy and the number of protons decreased as the delay increased, as shown by the red and blue lines in Fig. 1. The degradation of the maximum energy and the number of protons indicate that the sheath electric field at the rear surface was weakened for unexpected reasons.

The energy spectra of the relativistic electrons were also observed at 21 degrees from the normal direction of the CH foil rear surface. In the low energy region below 1 MeV, the energy of the electron number peak shifted to higher energies compared to that without the magnetic field application as shown in Fig. 1 (b). This shift indicates the possibility of the existence of plasma around the CH foil. Plasma surrounding the CH foil can reduce the sheath electric field by Debye shielding, causing this shift.

When the laser-driven capacitor-coil was not irradiated by GXII beams, the LFEX laser interacts with a plasma at a sharp boundary between the CH foil surface and the vacuum because of a high laser pulse contrast of 10^{11} . When GXII beams irradiate the capacitor-plate of the laser-driven capacitor-coil, a hot plasma stream is incident on the CH foil from the laser-plasma interaction region on the capacitor-plate. LFEX interacts with this plasma stream around the CH foil, causing an energy shift of the relativistic electrons. The long-scale plasma may also decrease the number of low-energy components of the relativistic electrons. The low-energy component of less than 1 MeV is also strongly affected by electric and magnetic fields. Therefore, the relativistic electrons are decelerated and scattered by electromagnetic fields in a hot-plasma cloud, which decreases the number of laser-produced electrons entering the detector.

In summary, we found that the proposed scheme to enhance the proton acceleration by using a laser-driven capacitor-coil is quite sensitive to the hot electrons and X-rays produced by the high-power laser. The number and

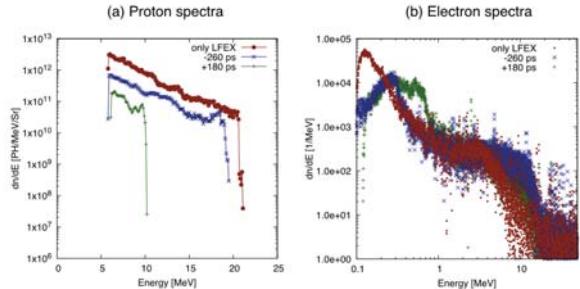


Fig.1. Energy spectra of laser-produced (a) protons and (b) electrons for no magnetic field (red •) and two delays: -260 ps (blue ×), and +180 ps (green +), where a delay is a temporal separation between the application of a magnetic field and the proton acceleration.

maximum energy of protons decreased by increasing the delay between the magnetic-field-generation laser pulse and the proton-acceleration laser. An energy shift to high energies was observed in the electron energy spectra as the delay increased. This result indicates the possibility of hot electron irradiation and X-ray preheating. In the future experiment, some experimental design should be tested for a successful enhancement of TNSA.

• ACKNOWLEDGEMENT

The authors wish to thank the technical support staff of ILE at Osaka University for assistance with the laser operation, target fabrication, and plasma diagnostics. This work was supported through Collaboration Research Programs by the Institute of Laser Engineering at Osaka University (Grant Nos. 2018A1-Arefiev and 2019A1-Arefiev) and the Collaboration Research Program between the National Institute for Fusion Science and ILE (NIFS12KUGK057, NIFS15KUGK087, NIFS17KUGK 111, and NIFS18KUGK118), the Japanese Ministry of Education, Science, Sports and Culture through Grants-in-Aid, the Osaka University Scholarship for Overseas Research Activities 2018, the DOE Office of Science under Grant No. DE-SC0018312, KAKENHI (Grant Nos. 15KK0163, 16K13918, and 16H02245) and the Matsuo Research Foundation.

• REFERENCES

- [1] A. Arefiev, T.Toncian, G.Fiksel, New Journal of Physics, 18, 105011 (2016)
- [2] J. J. Santos *et.al.* Physics of Plasmas, 25, 056705(2018)
- [3] K. Weichman, J. J. Santos, S. Fujioka, T. Toncian, A. V. Arefiev, Preprint at <https://arxiv.org/abs/2001.06117> (2020)
- [4] S. Fujioka *et.al.* Scientific Report, 3, 1170(2013)
- [5] J. J. Santos *et.al.* New Journal of Physics, 17, 83051(2015)
- [6] K. F. F. Law *et.al.* Applied Physics Letter, 108, 091104(2016)

High current electron generation by Fundamental/Second harmonics mixed LFEX

Yasunobu Arikawa

Institute of Laser Engineering, Osaka University

Energetic electrons generated by intense lasers are used in a wide range of experimental plasma physics scenarios, such as an electron or ion generation, X-ray sources in plasma physics and fast ignition inertial confinement fusion.

An improvement of electron generation efficiency brings a great progress in all of these researches. We describe here investigations of a new method of greatly improving the efficiency of laser-driven electron generation by modifying the harmonic structure and polarization of laser light before it strikes the conversion target. In this study, LFEX laser which has a wavelength of 1053 nm was converted to second harmonics with a wavelength of 527 nm with a conversion efficiency of up to 23% for over 100 J input energy, and create a two waves mixture of them. A unique optical layout was utilized; a thin LBO ($\text{Li}_2\text{B}_3\text{O}_5$) frequency converting crystal converts LFEX beam having 1053-nm wavelength to a second harmonics having 527-nm after focal optics just before a target.

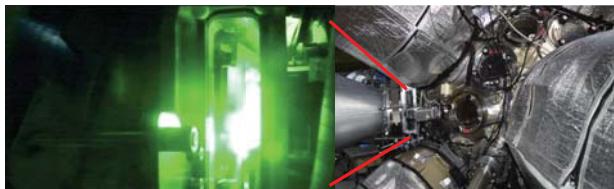


Figure 1 LFEX-Frequency converting system installed on GEKKO-XII system

Figure 1 shows a photo of frequency converting system installed on LFEX. The crystal can be installed and removed easily by a shot to a shot. Frequency converting of focusing beam was technically difficult since which contains various angle to the frequency converting crystal, and usually only a fraction of the laser beam is converted to second harmonics where crystal angle is matched to the laser axis, however by selecting LBO crystal and designing a thin (1.5mm) thickness, we realized the conversion of entire part.

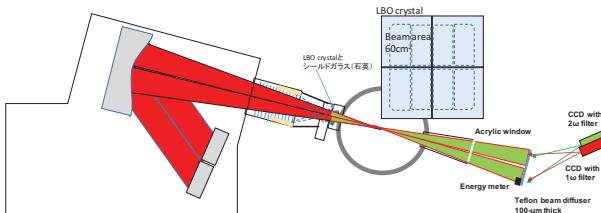


Figure 2 Experimental setup to measure the frequency

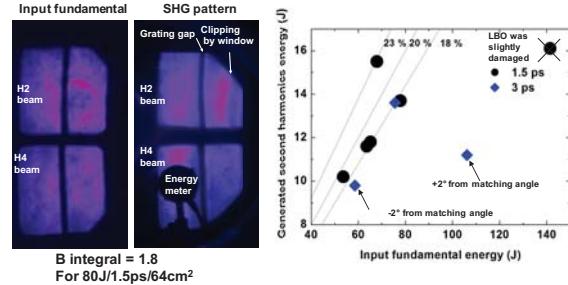


Figure 3 Left: The near field pattern of fundamental injecting LFEX to the LBO and that of second harmonics showing entire beam was successfully converted. Right the frequency conversion efficiency resulted in the experiment.

conversion efficiency. As shown in Fig2, the frequency conversion efficiency and damage limit of the system was evaluated. It resulted in frequency doubling at an efficiency of up to 23 % and produced a laser beam with a mixture of 1053-nm and 527-nm wavelength. The damage threshold was 140J/beam at LBO crystal for 1.5ps pulse duration. A theoretical calculation predicted that up to 50% conversion is possible with 0.5-mm thick (three times thinner than this time) LBO crystal thickness, and which can increase the damage threshold. As shown in Fig3 left, the input beam pattern was successfully entirely converted to second harmonics.

Besides the laser engineering, a new electron acceleration behavior physics was also found out by using the laser. A combination of two beams improved a number of electron detected was more than twice in less than 1 MeV energy region.

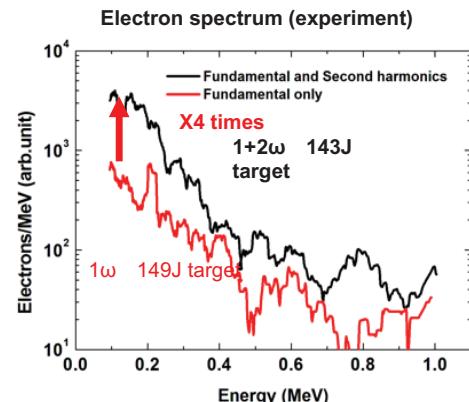


Figure 4 Electron energy spectrum for 1ω only and $1+2\omega$ mixing condition.

This result was agreed with proton energy spectrum and hard X-ray spectrum which confirmed the number of electron (current) was surely improved. The phenomena were explained theoretically; the second harmonics beam created high density plasma at laser –plasma interaction surface the fundamental beam can also interacted with the high density plasma. In addition, by mixing two color beams “8” motion circular polarization was created. These two unique conditions were considered to realized such excellent results.

Outcomes

1. Invited talk on international conference IFSA 2019
Osaka, Y. Arikawa, et al., “Second harmonics generation on LFEX”,
2. Funding; Grant in Aid B, “Study on efficient plasma heating by mixing of two-color lasers”

Acknowledgement

We greatly appreciated the support of LFEX team for developing of second harmonics generation system. We also thank Dr. Tsubakimoto developed a theoretical simulation code for expect laser frequency conversion of this situation.

レーザーアブレーションプラズマが駆動する磁気リコネクション研究 (2019A-MORITA)

森田太智,¹ 高木麻理子,² 西岡裕輝,² 枝本雅史,² 坂和洋一,³ 富田健太郎,¹ 佐野孝好³, 蔵満康浩,⁴ 山崎了,⁵ 田中周太,⁵ 松清修一,¹ 大平豊,⁶ 太田雅人,⁷ 江頭俊輔,⁷ 泉智大⁷, 境健太郎,⁴ 角地真,⁵ 瀬井柊人,⁵ 石坂夏樹,⁵ 杉山慧,⁵ 樋口琢己,² and 村上洋大²

¹ 九州大学大学院総合理工学研究院

² 九州大学大学院総合理工学府

³ 大阪大学レーザー科学研究所

⁴ 大阪大学工学研究科

⁵ 青山学院大学理工学部

⁶ 東京大学大学院理学系研究科

⁷ 大阪大学理学研究科

INTRODUCTION

磁化プラズマ中において、磁気リコネクションは、磁場構造の変化とともに磁気エネルギーからプラズマの熱エネルギーや運動エネルギーへの変換を伴う、非常に重要な物理過程である[1]。磁気リコネクションを理解するには、流体スケールにおける磁場の移流と、運動論的效果が重要となる微小な磁場拡散領域を同時に理解する必要がある。これまでに運動論的数値シミュレーションや流体シミュレーションを用いた研究や、衛星によるその場計測、太陽フレア観測等で磁気リコネクションが検証されているが、大きな空間スケールの違いを統一して理解することは難しい。レーザープラズマはその性質上、高温・高密度であり、他の放電プラズマを用いた室内実験と比較して高いベータ値を実現でき、様々なプラズマ計測を用いることで、これまでにないパラメータ領域で磁気リコネクションを検証できる。また、数ミリメートルの流体スケールの計測と1 mm以下の磁場拡散領域の計測が同時に可能である利点がある。しかし、レーザープラズマは空間的に微小で時間的に非定常なプラズマであるため、電磁場計測やプラズマの局所計測が難しい。

激光 XII 号レーザーを固体に照射したときに自己生成される磁場 (Biermann battery effect) 中で発生する磁気リコネクションを検証した。プラズマの自発光をイメージすることで、レーザー生成プラズマの密度構造を計測し、プラズマ生成、膨張、相互作用を可視化した。同時に、Nd:YAG レーザーをプラズマ中に集光照射してトムソン散乱光を分光計測することで、レーザー集光径程度の局所領域におけるプラズマパラメータを計測した。今年度は、昨年度 [2] に加え、二つの分光器を設置することで二方向からトムソン散乱光を計測し、磁力線に対して平行および垂直と二方向のパラメータを計測した。また、磁気リコネクションにより駆動されるジェットの排出方向に B-dot プローブを配置し、磁化されたジェットによる磁場変化の検出も同時に行った。

EXPERIMENT

実験は激光 XII 号レーザーのチャンバー II で実験を行った。出力エネルギー 600 J、パルス幅 1.3 ns の激光レーザーを厚さ 200 μm のターゲット表面に集光照射し、アブレーションプラズマを生成すると同時に、その周りに Biermann Battery effect ($\partial B / \partial t \propto \nabla T \times \nabla n_e$) により磁

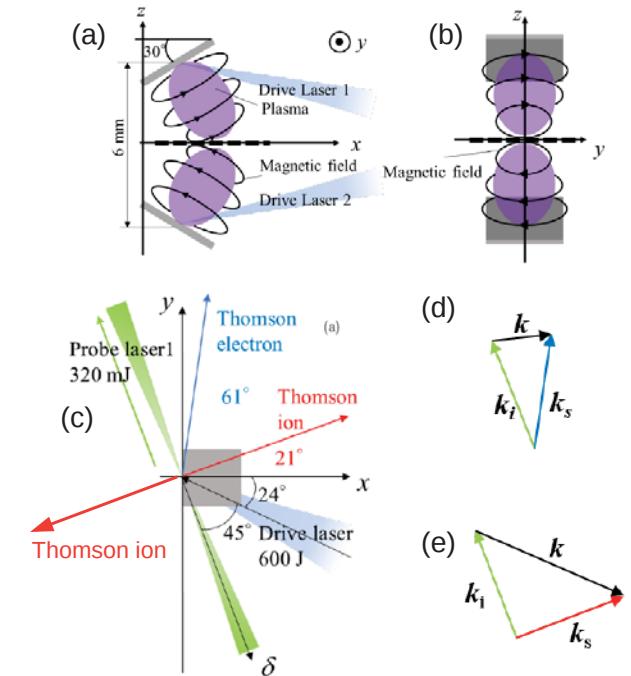


FIG. 1. (a), (b) のように、二枚のアルミニウム薄膜ターゲットを上下に 6 mm 距離を離して設置し、それぞれ激光レーザー 1 ビームずつで照射する。自己生成磁場は中間面で相互作用する。レーザートムソン散乱計測は、 δ 軸と反対方向に入射し、(c)–(e) のように、イオン項を 2 方向から、電子項を 1 方向から計測した。

場が自己生成される。ターゲットとレーザートムソン散乱計測の配置は図 1(a)–1(e) に示した。自己生成磁場は上下から互いに対向する方向に膨張するプラズマと共に移流され、中間面 ($z = 0$) で相互作用する。トムソン散乱計測は $z = 0$ 面内で計測した。計測方向は図 1(c)–1(e) に示すように、 $\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i$ 方向のパラメータが得られる。

また、磁気リコネクションにより駆動が期待されるジェット (y 軸方向) 排出方向に B-dot プローブを設置し、磁場変化を計測した。リコネクションによって排出される磁化プラズマは $\pm y$ において磁場が反転するはずであるため、 $y = -25 \text{ mm}, 13 \text{ mm}$ と 2 点で計測した。

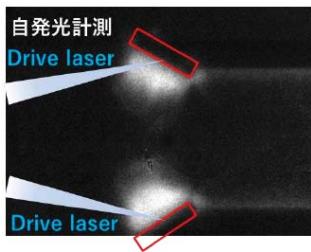


FIG. 2. レーザー生成プラズマからの熱制動放射 (波長 $\lambda = 450$ nm) の計測結果。上下のターゲットから対向するプラズマが生成されていることがわかる。

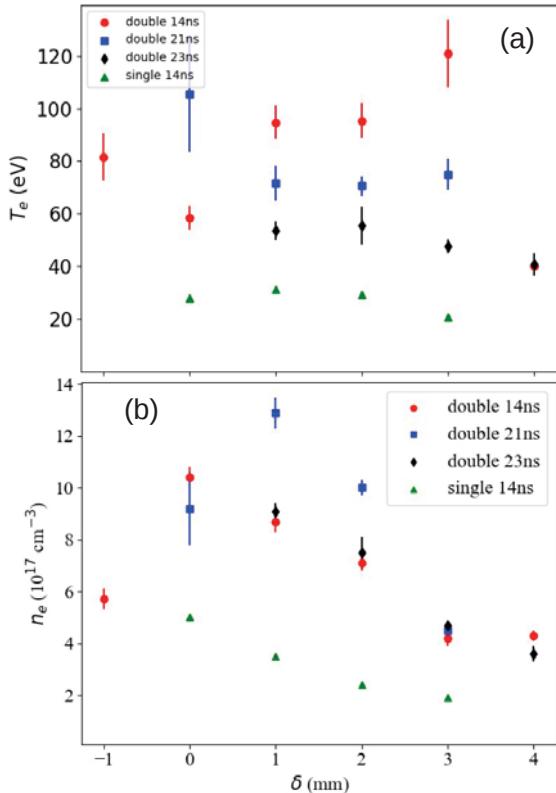


FIG. 3. レーザートムソン散乱の電子項計測から得られた (a) 電子温度と (b) 電子密度。横軸はプローブレーザーに沿った空間を示す。

RESULTS

図2に、 y 軸に沿って計測したプラズマの自発光 ($\lambda = 450$ nm における熱制動放射) の一例を示す。昨年度までの結果と同様、上下からプラズマが膨張し、中心付近で相互作用する様子がわかる。

図3(a)と3(b)は、それぞれ、レーザートムソン散乱の電子項計測から得られた電子温度と電子密度を示す。ターゲットの片側のみを照射した場合 ($t = 14$ ns) と比較し、上下のプラズマが衝突する場合は、どの時刻においても温度、密度ともに上昇していることがわかる。衝突初期の時間と考えられる $t = 14$ ns と比較し、21–23 ns では、密度

が大きく変わらない一方で、温度が急激に低下しているこ

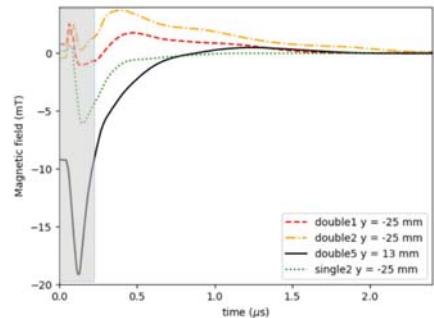


FIG. 4. $y = -25$ mm および 13 mm において、B-dot プローブにより計測した磁場変化 (B_z)。

とが分かる。これは、 $t = 14$ –21 ns の時間においてプラズマが急激に加熱されていることを示唆している。

また、ここでは載せなかったが、二方向からイオン項を計測し、2次元速度、温度計測も試みたが、プラズマ膨張に対して垂直方向の分光器は波長分解能が足りず、速度・温度変化を捉えるには至らなかった。しかし、二方向を計測することで、磁気リコネクションに特有のジェットの速度場や温度、速度の磁力線方向依存性を議論できる可能性があるため、来年度以降は、分光器を改善し、計測を行いたいと考えている。

B-dot プローブにより計測した磁場変化の z 成分を図4に示す。激光レーザー照射時の電磁ノイズが強いため、 $t < 0.2 \mu\text{s}$ での磁場変化を求めるのが難しい。そこで、得られた電圧信号に対し、 $t = 7.3 \mu\text{s}$ と十分磁場変化が小さい時刻から、 $-t$ 方向に積分することで、磁場変化を見積った。 $t \sim 0.5 \mu\text{s}$ 付近での磁場変化を比較すると、片側のみを照射した場合 (single) と比較し、両側のターゲットを照射した場合 (double) の磁場変化が増加していることがわかる。また、 $y = 13$ mm と -25 mm における計測では、それぞれ ΔB_z が反転して計測されていることから、プラズマに磁化した自己生成磁場を計測できていると考えられる。

ACKNOWLEDGEMENTS

レーザー運転、ターゲット製作及びプラズマ計測など、大阪大学レーザー科学研究所の職員からの技術支援に感謝いたします。本研究の一部は、JSPS 科研費 18H01232, 17H06202、および大阪大学レーザー科学研究所の共同利用・共同研究のもとに実施された。

-
- [1] E. G. Zweibel and M. Yamada, Annual Review of Astronomy and Astrophysics **47**, 291 (2009).
 - [2] T. Morita, K. Nagashima, M. Edamoto, K. Tomita, T. Sano, Y. Itadani, R. Kumar, M. Ota, S. Egashira, R. Yamazaki, S. J. Tanaka, S. Tomita, S. Tomiya, H. Toda, I. Miyata, S. Kakuchi, S. Sei, N. Ishizaka, S. Matsukiyo, Y. Kuramitsu, Y. Ohira, M. Hoshino, and Y. Sakawa, Physics of Plasmas **26**, 090702 (2019).

レーザー衝撃圧縮による氷惑星内部の実際の温度圧力条件での水の状態解析

奥地拓生

岡山大学惑星物質研究所

はじめに

氷(H_2O)は宇宙に最も大量に存在する固体の一つである。太陽系内外の惑星系には、このような固体が集合してできた「氷惑星」が数多く存在している。その代表的な例が、太陽系の惑星のなかで最も外側に存在する、天王星と海王星である(図1)。

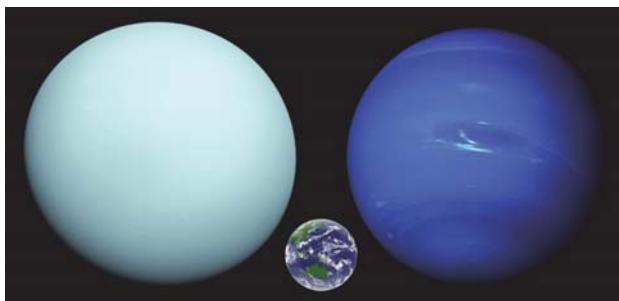


図1. ボイジャー2号により撮影された天王星(左)と海王星(右)。ともに地球の4倍の直径を持つ、巨大な氷惑星である(NASA)。

これらの氷惑星の周囲や内部には、低温から超高温、真空中から超高压に至るまでの多様な環境が存在しており、そこでは氷物質(H_2O およびその混合物)が多様な物性を示すことができると考えられている。天王星と海王星は、地球の4倍の大きさと15~17倍の質量を持ち、それらの主成分は、水に少し炭素と窒素が混じったものである。両惑星の内部は800万気圧、8000Kにも達する高い温度と圧力の世界になっている。1980年代に天王星と海王星に相次いで到達したNASAの探査機・ボイジャー2号の活躍により、これらの氷惑星が、地球の数十倍の強さの磁場を発生する源を内部に持つことが明らかにされた。このような強い磁場が作られるためには、氷惑星の内部を強い電流が流れていることが必要である。しかし、氷惑星の主成分は、電気をあまり通さない物質であり、惑星内部に電気伝導をもたらす物質の正体が謎のままであった。

高温高圧の条件では、 H_2O の化学的な反応性が劇的に上昇することから、物質の静的な圧縮用に開発されたダイヤモンドアンビルセル(DAC)を用いた圧縮と加熱による氷物質の計測が試みられてきたものの、氷惑星の内部の再現には至っていなかった。その一方で、レーザー衝撃圧縮法では、試料の圧縮、加熱、計測をほぼ同時にを行うために、水の高い反応性が引き起こす、容器などとの反応の問題を完全に回避することができる。そこで、我々はこの手法に

よって、惑星内部に存在する多様な氷物質の状態を、高温高圧その場で解析する研究を発展させてきた。これまでに、純粋な H_2O の液体および、 H_2O を主成分として炭素や窒素を少し含む混合液体の試料に対して、衝撃圧縮条件下での密度や光反射率の系統的な計測に成功しており、上記の電気伝導の謎の解明にも繋がる成果を得てきた[1] (図2)。

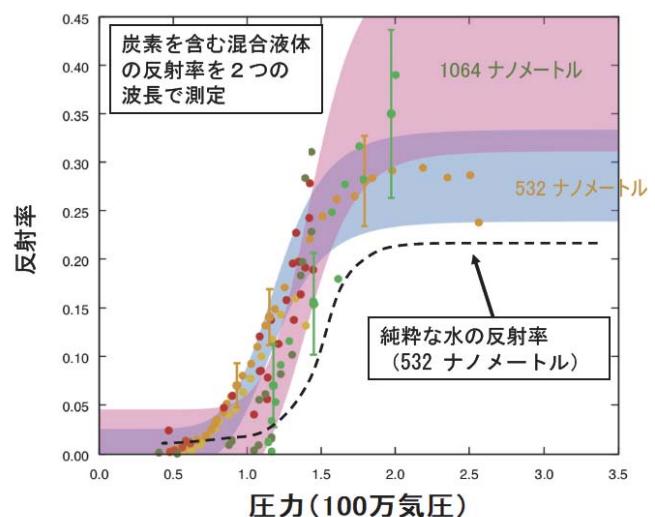


図2. レーザーで衝撃圧縮された純粋な H_2O と、炭素を含む混合液体の光反射率。圧力と共に反射率が上昇することから、氷惑星内部物質は金属状態だと考えられる (2020.7.12 岡山大・大阪大プレスリリースより転載)。

このように、レーザー衝撃圧縮は氷惑星内部の物質の研究に対して特に有効な手法になったと考えられるが、柔らかくて軽い H_2O 試料は圧縮されやすく、その際に温度が上がりすぎてしまう問題が、依然として残されている。これまでの H_2O の衝撃圧縮実験の研究では、ガス銃、レーザー、Zマシンなどの手法に共通して、比較的高温の状態のみが計測されてきた。例えば、純粋な H_2O を常温と常圧の状態から圧縮する、いわゆる基本ユゴニオ条件の下では、圧力が約 50GPa で既に天王星や海王星の内部の温度に届いてしまう。それ以上の圧力にまで圧縮を進めると、上記の図2の結果も含めて、惑星内部よりも高温の状態についての計測結果が得られることになる。我々の研究目的を最終的に達成するためには、この基本ユゴニオ条件よりも氷惑星内部の条件に近い低温側の圧縮状態を実現することが、特に重要な課題として残されていた。

実験手法

ダイヤモンドアンビルセル(DAC)を用いた予備圧縮の手法を用い、高密度化した出発試料をさらにレーザー衝撃圧縮することで、基本ユゴニオ条件よりも温度を下げる事ができる。我々はこの予備圧縮法を用いた実験をこれまで継続的に実施してきたが[2]、温度上昇の問題を充分に解決することはできていなかった。そこで DAC を用いた予備圧縮の手法を、常圧の密度が高い重水の試料に対して応用することで、従来の H₂O の結果よりもさらに低温の条件を達成する。重水(²H₂O)・重酸素重水(²H₂¹⁸O)をそれぞれ DAC で圧縮することで高密度・高インピーダンスの試料を作成した上で、それらを衝撃圧縮することで、温度上昇をより効率的に抑制する。激光 XII 号レーザーの出力は DAC の圧縮に対して充分なものではないので、試料を充分に圧縮するためには、ダイヤモンドアンビルの厚みに関する厳しい制約も生じる。その制約の下で 0.5~0.7 GPa に至る予備圧縮圧力を達成しており、重水試料群の初期密度を、常圧の軽水の 1.3~1.4 倍にまで上昇させることが可能と考えられる。

このターゲットに高強度レーザーを照射してその内部に衝撃波を発生させ、反射面の進行速度、つまり衝撃波速度の時間変化を、タイミングを同期させた VISAR (速度干渉計) で計測した。Qz を標準物質に用いたインピーダンスマッチングにより、試料の圧力・密度が決定できる[3]。また VISAR の反射光強度から波長 532nm での反射率を計測して、試料の電離状態の情報を得ることができる。さらに SOP (輝度温度計測) によって試料温度を計測して、各組成および各温度圧力条件における状態方程式と反射率を決定できる。以上の結果を総合して、惑星内部の温度圧力領域における氷物質の、密度と電離状態を捉える。昨年度までに、軽水の基本ユゴニオより 2000K 以上も低温であり、惑星内部の実際の条件にかなり近い計測を、重水を試料として行うことに成功している。今年度はデータ数の蓄積と、重酸素重水を試料とした計測を目指した。

結果例

図 3 に今年度の実験によって得られた、重酸素重水の予備圧縮試料についての計測の例を示す。昨年度の報告書に記載したとおり、詳細な DAC ターゲット構成要素の改良を積み重ねた結果、データの品質をさらに向上させることができた。現在これらのデータを解析中であり、過去に得られた結果との統合を進めている。

まとめ

これまでに得られた結果からは、惑星内部では水は単純に金属化するのではなく、自由電子が熱的に励起される半導体となって、光反射率が強い温度依存性を持つようになる可能性が強く示唆されている。高温高圧の重水の性質は、核融合実験の潜在的試料の評価に繋がる意義もある。以上の展開を踏まえて、今後も激光 XII 号レーザーの特色を活かした計測を継続・発展させてゆきたい。

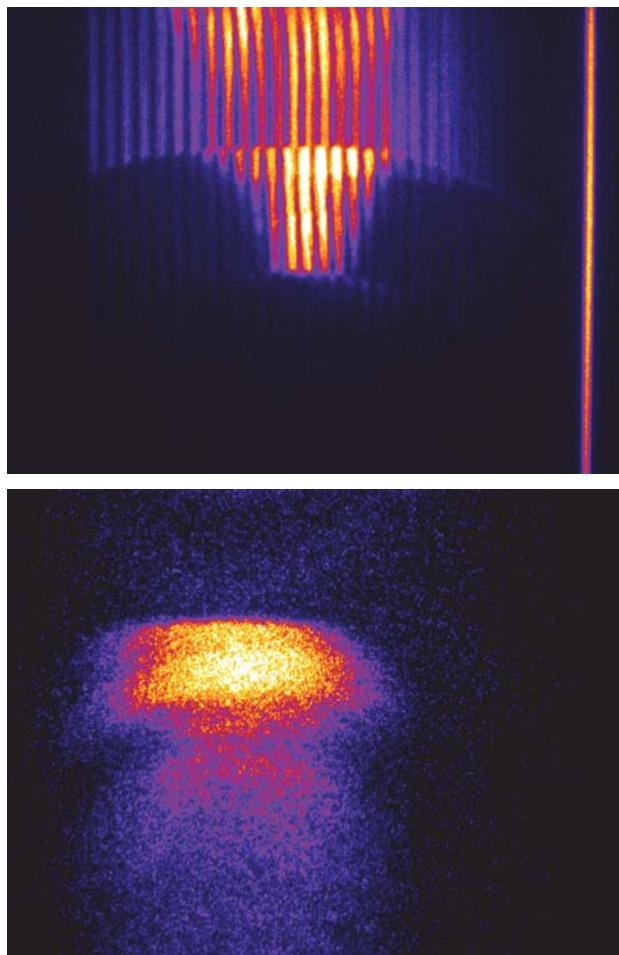


図 3. 重酸素重水の VISAR 計測結果の例(上)と SOP 計測結果の例(下)。掃引時間はいずれも 20 ns。衝撃波がレーザー側ダイヤモンド、Qz、試料、計測側ダイヤモンドを通過する時間がいずれも鮮明に記録されており、高精度の解析が可能である。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省 X 線自由電子レーザー重点戦略課題 “XFEL とパワーレーザーによる新極限物質材料の探索”、日本学術振興会科学研究費補助金(No. 17H01172)、および Quantum Leap Flagship Program (JPMXS0118067246)の助成を受けて行われました。

参考文献

- [1] M. Guaraguaglini, J.-A. Hernandez, T. Okuchi, P. Barroso, et al., Laser-driven shock compression of “synthetic planetary mixtures” of water, ethanol, and ammonia, *Sci. Rep.*, 9, 10155 (2019).
- [2] T. Kimura, N. Ozaki, T. Sano, T. Okuchi, et al., P-rho-T measurements of H₂O up to 260 GPa under laser-driven shock loading, *J. Chem. Phys.*, 142, 164504 (2015).
- [3] N. Ozaki, T. Sano, M. Ikoma, K. Shigemori, et al., Shock Hugoniot and temperature data for polystyrene obtained with quartz standard, *Phys. Plasmas*, 16, 062702 (2009).

Shock compression and equation-of-state measurements of titanium carbide up to 630 GPa

N. Ozaki^{1,2}, M. Hosomi¹, K. Miyanishi², N. Kamimura¹, K. Katagiri¹, S. Morioka¹, T. Sano², Y. Umeda^{1,2}, and R. Kodama^{1,2}

¹Graduate School of Engineering, Osaka Univ., Suita, Osaka 565-0871, Japan,

²Institute of Laser Engineering, Osaka Univ., Suita, Osaka 565-0871, Japan

INTRODUCTION

Titanium carbide (TiC) is a typical transition-metal carbide, attracting wide interest because of its super high hardness, high melting point, thermal stability, high oxidation resistance as well as metallic conductivity. The structure of single crystal TiC is NaCl type (B1) at standard pressure and temperature, and the bulk material is manufactured usually as a nickel-cobalt matrix ceramics, known to be a refractory superhard “cermet” with a hardness of 9-9.5 Mohs. Such cermets are used instead of a typical cemented carbide, tungsten carbide, in cutting tools, and are in the manufacture of resistors, capacitors, and other electronic components experiencing harsh high temperatures too.

The high-pressure and high-temperature equation-of-state (*i.e.*, Hugoniot) of TiC has been so far measured up to \sim 300 GPa with shock compression technique. Although a large number of studies demonstrate that NaCl type structure generally transforms into CsCl type (B2) under high pressures, the evidence of such transformation has not yet been seen in TiC because of fewer data above 200 GPa. For the same reason, the behavior of the Hugoniot near the shock melting has not been elucidated. Here we report the TiC Hugoniot up to 630 GPa measured in the laser-shock compression experiments on the GEKKO XII laser facility.

EXPERIMENT

The Hugoniot measurements for TiC were performed on the GEKKO XII laser facility at the Institute of Laser Engineering, Osaka University [1, 2]. The experimental setup and target assembly are shown in Fig. 1(a). The wavelength of the shock-driving laser was 527 nm or 351 nm, which is the second or third harmonics of the fundamental wavelength (1053 nm) of the neodymium-doped glass laser, respectively. The experiments used 3 to 6 laser beams of an approximately 2.5 ns square pulse duration with an on-target energy of up to \sim 680 J. The focal-spot diameter was typically 1000 μm or 600 μm with a flat-top intensity distribution, resulting in a planar shock front of more than 300 μm in the diameter.

Typical targets consist of a 30- μm thick polypropylene (CH_2) ablator, 40- μm aluminum (Al) baseplate, 50- μm *z*-cut α -quartz (SiO_2) EOS reference (*i.e.*, baseplate quartz in Fig. 1), and 10- μm TiC sample. The samples were polished on both sides. The TiC was sintered with Ni binder (matrix) material of 15 wt%. The grains were randomly oriented and the average size of the grains was \sim 5 μm . The initial mass density ρ_0 was 5.06 g/cm. As shown in Fig. 1(a), the TiC samples were fixed onto the left half of the baseplate quartz. Two quartz witnesses (*i.e.*, the rear and side quartzes) are glued onto the rear of the TiC and the right half of the baseplate quartz, respectively.

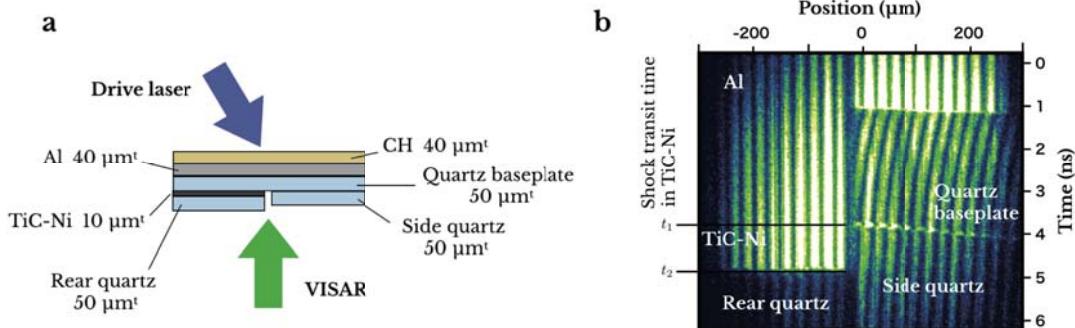


Fig. 1. (a) Target assembly. (b) Typical VISAR image. The time t_1 and t_2 correspond to the baseplate-SiO₂/TiC interface and the TiC/witness- SiO₂ interface, respectively. From the shock transit time $t_2 - t_1$ and the initial sample thickness, the mean shock velocity of TiC was obtained.

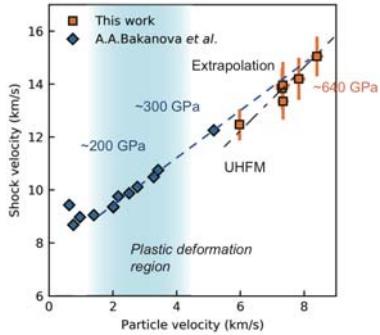


Fig. 2. Shock velocity vs. particle velocity.

We measured the shock velocities of TiC and quartz and performed the impedance matching analysis (IMA) [3] to determine a TiC Hugoniot point using the measured velocities and the known Hugoniot curves of quartz as reference material [4, 5]. The velocity measurements were made using two line-imaging velocity interferometers (VISARs) [6]. The VISAR probe, an injection-seeded Q-switched YAG laser, operated at 532 nm was irradiated onto the target from the rear side. The two line-VISARs allow us to resolve 2π -phase shift ambiguities in the interferometry image. The velocity sensitivities of the line-VISARs were 5.518 and 3.439 km/s/fringe under vacuum, respectively. Figure 1(b) shows a typical raw image of the VISAR measurement. The time resolution of the whole system that combined the streak cameras and the VISAR interferometer was around 50 ps. The time-resolved shock velocity of quartz was obtained from the interference fringe pattern of the line-VISARs, because quartz was transparent to the VISAR probe light (532 nm) at ambient pressure but shocked quartz became reflective at pressures of interest in this work; *i.e.*, above 100 GPa [7]. The measurement uncertainty of the time-resolved velocity was 1.5–3.0%. The time-integrated (mean) shock velocity of TiC was measured, because the TiC samples were not transparent. The mean velocity was obtained from the measurements of initial sample thickness and shock transit time. The right half of the target shown in Fig. 1(a) provided the arrival time (t_1) of shock wave to the SiO_2/TiC interface and the time-resolved quartz shock velocity. The left half of the target provided the arrival time (t_2) to the $\text{TiC}/(\text{rear}-)\text{SiO}_2$ interface. The shock transit time of TiC was obtained from the t_1 and t_2 .

RESULTS AND DISCUSSION

A total of six laser shots were conducted and the shock Hugoniot data for TiC were obtained in the pressure range between 380 GPa and 650 GPa. The shock velocity (U_s) – particle velocity (u_p) relationship is shown in Fig. 2 along with the previous low-pressure data by using a gas gun [8]. The laser experiment data agree with the extrapolation of the linear approximation of the gas-gun data within the uncertainty. The approximation line is $U_s = 7.622 + 0.8956 u_p$ (dashed). The laser data also agree with a shifted “universal Hugoniot of fluid metal”

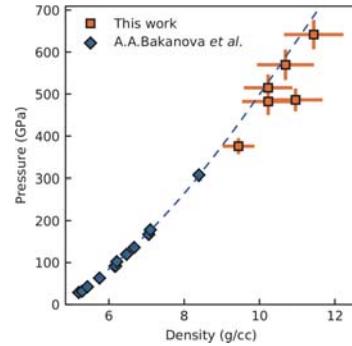


Fig. 3. Pressure vs. density.

(UHFM) line [9]. This is reasonable because the states of the shocked TiC could be high pressure and temperature liquid metal.

Figure 3 shows the Hugoniot relationship between pressure (P) and density (ρ). The symbols used in this figure are the same as in Fig. 2. Our experiments suggest that the TiC Hugoniot above ~ 350 GPa in the liquid range becomes systematically softer than that in the solid range.

ACKNOWLEDGEMENT(S)

The laser-shock experiments were conducted under the joint research project of the Institute of Laser Engineering, Osaka University. The authors would like to thank Y. Kimura at Osaka University for target preparation and the technical staffs of the GXII laser facility for their support for the experiments. This work was supported financially in part by JSPS KAKENHI (Grant Nos. 16H02246 and 18H04368) from Japan Society for the Promotion of Science (JSPS) and the Quantum Leap Flagship Program (Q-LEAP) grant no. JPMXS0118067246 from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science, and Technology (MEXT) (contract 12005014). This work was also partially supported by the Genesis Research Institute, Inc. (Konpon-ken, TOYOTA).

REFERENCES

- [1] N. Ozaki et al., Phys. Plasmas 11, 1600 (2004).
- [2] N. Ozaki et al., Phys. Plasmas 16, 062702 (2009).
- [3] Y. B. Zel'dovich and Y. P. Raizer, Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena (Academic Press, 1966).
- [4] S. Hamel et al., Phys. Rev. B 86, 094113 (2012).
- [5] M. D. Knudson and M. P. Desjarlais, Phys. Rev. B 88, 184107 (2013).
- [6] P. M. Celliers et al. Rev. Sci. Instrum. 75, 4916 (2004).
- [7] P. M. Celliers et al., Phys. Rev. Lett. 104, 184503 (2010).
- [8] A.A. Bakanova et al., Fiz. Zemli. 6, 58 (1995).
- [9] N. Ozaki et al., Sci. Rep. 6, 26000 (2016).

Shock compression measurements of synthetic wadsleyite and ringwoodite single crystals

Narangoo Purevjav and Takuo Okuchi

Institute for Planetary Materials, Okayama University

INTRODUCTION

Mineralogy of our Earth has been well known through seismology, experimental physics and chemistry etc. Mg_2SiO_4 polymorphs (α -phase as forsterite, β -phase as wadsleyite, and γ -phase as ringwoodite) are the major constituents of the Earth, forming the mineralogy of the upper mantle down to 660 km depth. Therefore, they have been also considered as the potential candidates for constituting the mineralogy of the large rocky planets' mantle, so called super-Earths, even if the temperature and pressure of the super-Earths' mantles are considered to much larger than those in our Earth's core. Hence, it is essential to study the Mg_2SiO_4 polymorphs at such extreme pressure and temperature conditions to understand their chemical and physical properties at the relevant conditions.

Forsterite is the most studied phase by shock compression among the Mg_2SiO_4 polymorphs [e.g., 1], while there are no data on wadsleyite and ringwoodite except a gas-gun study to be applied only for wadsleyite up to about 200 GPa pressure. Hence, we aim to obtain Hugoniot relations of wadsleyite and ringwoodite simultaneously, for the first time, by using laser-shock compression. We aim to obtain the Hugoniot relations of wadsleyite and ringwoodite at higher pressure and lower temperature conditions than that obtained for the forsterite in the previous works. Such conditions are implemented by about 10 % higher initial densities of wadsleyite and ringwoodite than forsterite.

EXPERIMENTAL METHOD

We conducted laser-shock compression experiments on single-crystals of wadsleyite and ringwoodite in order to avoid the effects of possible physical inhomogeneities of powder samples. Single crystals of wadsleyite and ringwoodite were synthesized by using scaled-up Kawai type multi anvil apparatus at their deep mantle conditions corresponding to the 15 – 21 GPa and 1000 – 1500 °C with over than 6 hours of heating duration [2,3]. Most importantly, the synthesized minerals were chemically, physically and optically homogenous and had suitable sizes for the intended experiments. We synthesized such crystals by our previously established a slow-cooling method [4]. Recovered crystals were up to 1 mm in sizes and confirmed to be chemically homogenous and free

from twinning, cracks and inclusions by means of optical, scanning electron microscopy, and x-ray diffraction methods in combination. The crystals were then doubly polished separately 50 – 100 μm in thickness and with lateral sizes of ($> 400 \mu m$)². They were glued together to form the sample targets which are pre-established suitable for the laser-shock experiments (Fig. 1).

The laser-shock experiments were conducted using GEKKO XII Glass laser system at Institute of Laser Engineering, Osaka University. We successfully measured 5 crystals of wadsleyite and also 5 crystals of ringwoodite samples at various shock strengths. Figure 1 shows the typical VISAR (Velocity Interferometer System for Any Reflector) image obtained for a wadsleyite. We also obtained streaked optical pyrometer (SOP) images simultaneously for determining the temperature of the experiments during the shock event.

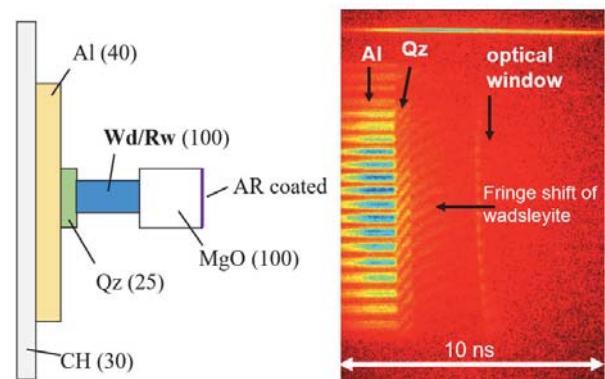


Fig.1. A representative of target assembly (left) and typical VISAR image (right). The target assembly consisted of polypropylene (CH), aluminum (Al), crystalline α -quartz (Qz), and single crystal of wadsleyite (Wd) or ringwoodite (Rw), and magnesium oxide (MgO) as optical window material. The numbers are the thicknesses of each component in micrometer scale. The target components were glued with an ultraviolet cure adhesive.

Such clear VISAR images allow us to determine accurate shock velocities of the reference material (quartz-Qz) and crystal from their fringe shifts induced by the shock wave, which used to determine the pressure

and density. The Qz was used as reference material for impedance mismatching analysis.

RESULTS

Figure 2 shows experimental relationships between the shock velocity versus the particle velocity of our representative wadsleyite crystal samples, together with forsterite crystals reported in the previous works.

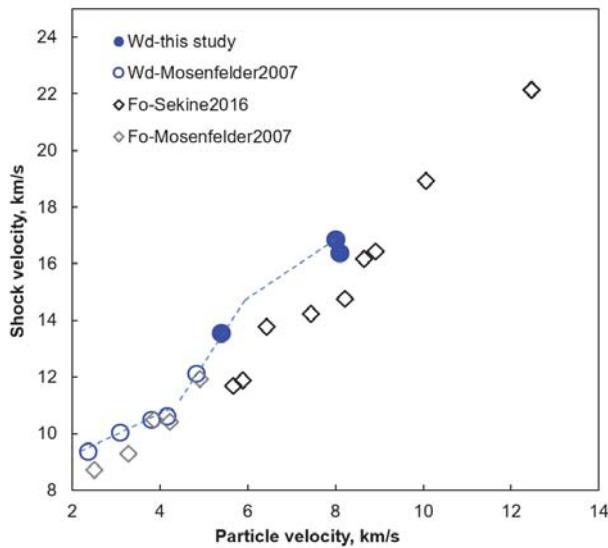


Fig.2. Summary of Hugoniot relationships of wadsleyite and forsterite. Blue circles denote Hugoniot data of wadsleyite, where the filled circles are laser-shock compression data of the present study and open circles are from Mosenfelder et al., 2007 by using gas-gun compression. Diamonds are for the forsterite (Fo) Hugoniot taken from Sekine et al., 2016 by using laser-shock (black) and Mosenfelder et al., 2007 (grey) by using gas-gun compression.

There are two characteristic discontinuities which were reported in forsterite Hugoniot at around 7 and 9 km/s in particle velocities (Sekine et al., 2016). Such discontinuities were speculated due to the phase transformation and or reactions. By combining our present wadsleyite data with previously reported wadsleyite Hugoniot obtained by gas-gun, we consider that wadsleyite Hugoniot has also two characteristic discontinuities at around 4 and 6 km/s in particle velocity. Since we observed visible fringe shifts for these wadsleyite data, such velocity discontinuity must be due the phase transformation or chemical reaction occurred during the laser-shock compression phenomena. For the moment, we are still analyzing the obtained laser-shock data. After finalizing the analysis, we able to discuss more detailed information regarding the wadsleyite and also the ringwoodite Hugoniot.

ACKNOWLEDGEMENTS

We thank to all the graduate students and supporting engineers at Osaka University for their help carrying out the laser shock experiments. This work has been supported in part by JSPS KAKENHI Grant Numbers 17H01172, 15J03633, and JSPS Post-doctoral Fellowships for Research in Japan No. P17331.

REFERENCES

- [1] T. Sekine, N. Ozaki, K. Miyanishi, Y. Asaumi, T. Kimura, B. Albertazzi *et al*: *Science Advance* 2:e1600157 (2016).
- [2] N. Purevjav, T. Okuchi, N. Tomioka *et al*: *Scientific Reports*, 6, srep34988 (2016).
- [3] N. Purevjav, T. Okuchi, X. Wang *et al*: *Acta Crystallography* B74, (2018).
- [4] T. Okuchi, N. Purevjav, N. Tomioka *et al*: *American Mineralogist* 100, 1483 (2015).
- [5] J. L. Mosenfelder, P. D. Asimow, and J. Ahrens, *Journal of Geophysical Research*, 112, B06208 (2007).

Heavy ion acceleration with noble metal coated large area suspended graphene:

2019-2020 Annual Report

Wei-Yen Woon¹, Yasunobu Arikawa², Akifumi Yogo², Yu-Tzu Liao¹, Takumi Minami³, Kentaro Sakai³, Takamasa Hihara³, Takahiro Nishimoto³, Masaki Takano³, Hiroki Makiyama³, Yuki Okuma³, Yuji Fukuda⁴, Masato Kanasaki⁵, and Yasuhiro Kuramitsu³

¹Department of Physics, National Central University, No. 300, Jhongda Rd., Jhongli, Taoyuan, 32001 Taiwan

²Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka, 565-0871 Japan

³Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka, 565-0871 Japan

⁴Kansai Photon Science Institute, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, 8-1-7 Umemidai, Kizugawa, Kyoto, 619-0215, Japan

⁵Graduate School of Maritime Sciences, Kobe University, Kobe, 658-0022 Japan

INTRODUCTION

Ion acceleration through laser-plasma is one of the promising technologies for realizing laboratory high energy physics, astrophysics, and table-top cancer therapy. In the target normal sheath acceleration (TNSA) configuration, protons and heavier ions can be accelerated to high energies through the strong electric field from the electron sheath. The electromagnetic field get severely attenuated beyond the skin depth when interacting with a solid target. Therefore, it is understandable that thin target is needed to achieve high ion energy. Recently, use of thin targets > 10 nm diamond like carbon film has demonstrate promising results for high energy ion acceleration [e.g., 1]. Although theoretical prediction indicated higher ion energy can be produced using a thinner target (~ 10 nm), fabrication of thinner suspended film is so far unsuccessful. Moreover, the accompany heating effect from the pre-pulse in the intense laser beam could effectively destroy the thin target before the interaction with the main laser if the thin target is not strong enough. Plasma mirrors and complicated optical path such as chirped standing wave acceleration (CSWA) configuration are usually needed to alleviate the detrimental effect from pre-pulse.

Graphene is the strongest two dimensional material. Moreover, the thickness of graphene film can be precisely controlled through chemical vapor deposition (CVD) and its subsequent transfer methods. Recently we have developed a residue free transfer method to achieve large area suspending graphene (LSG) on holey

substrates [2]. Preliminary test shots on LSG with systematically varying thicknesses have been conducted in LFEX in September 2018. It was clear that the 8-layer LSG samples were strong enough to survive pre-pulse without using plasma mirror, and was able to generate energetic protons and carbon ions. Moreover, we have developed a composite target structure scheme recently. By depositing other materials on the LSG, the LSG can act as supporting scaffold for any film that can generate any kind of ions in laser plasma acceleration. In the previous LFEX experiment conducted in July 2019, we focused on the acceleration of high Z Au ions using the above scheme.

EXPERIMENT

The experiment was performed with LFEX laser facility at Institute of Laser Engineering, Osaka University from 23rd to 25th July 2019. Irradiating an LSG with two beams of LFEX laser (energy ~ 350 J per beam, wavelength 1054 nm, pulse duration 1.5 ps and focal spot ~ 30 um, providing the peak intensity of $\lesssim 10^{19}$ W/cm $^{-2}$), energetic ions are generated. Figure 1(a) shows a schematic image of the laser and target configuration. The LSG was irradiated from the normal incidence direction. We measured the accelerated ions with a combined stack of radiochromic films (RCF) and CR-39, and with Thomson parabola (TP). The stack was placed along the laser axis with 40 cm distance from the focal spot to the front surface of the stack. The RCFs with different sizes provide fine energy resolution. Two TP were fixed outside of the chamber and an imaging plate (IP) and MCP+CCD was used as detector

respectively for respective TP. We use X-ray pinhole camera and electron spectrometer to monitor the LFEX focal spot and the electron temperature, respectively.

Figure 1(b) shows the scanning electron microscopy image of the 4-layer LSG deposited with 3 nm thick Au layer. The inset in Fig. 1(b) shows the 3 nm Au film was in the form of nano-particle layer with lateral size ~ 3 nm. Fig. 1(c) shows the Raman spectroscopy of the Au deposited LSG, indicating typical fingerprint of graphene with G band at 1580 cm^{-1} , 2D band at $\sim 2680\text{ cm}^{-1}$, and D band $\sim 1350\text{ cm}^{-1}$, probably originated from the doping effect of Au film. Besides that, a background hump in the Raman spectroscopy indicated the luminescence from Au nano-particles. Besides Au, we have mounted other material, PMMA and h-BN. We irradiate either the

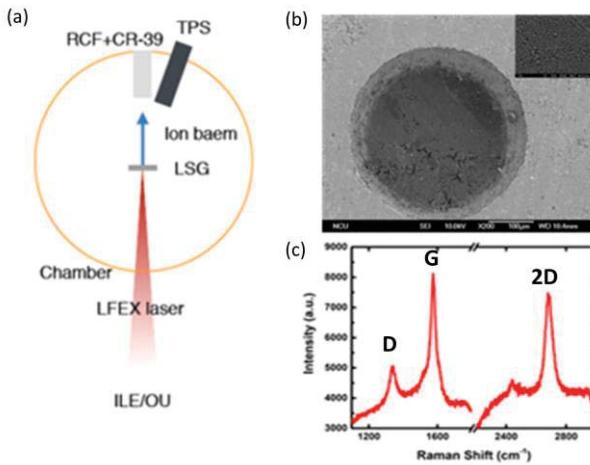


Figure 1 (a) schematics of the laser , detector, and target configuration. **(b)** the SEM image of the 3 nm Au deposited 4-LSG. **(c)** Ramam spectroscopy of the 3 nm Au/4-LSG target.

graphene side or the other material side with the LFEX laser. For instance, when we place the LSG on the laser side, we aim to accelerate the PMMA. On the other hand, when we place the PMMA on the laser side, we expect to use PMMA as fuel to accelerate LSG carbons.

RESULT

We have 9 effective shots with 4-layer LSGs and nanostructure targets suspended with LSG, where Au with different thickness from 10~100 nm, PMMA with different thickness, and single layer h-BN. Figure 2 shows the major result for successful demonstration on generation of high Z heavy ions. Figures 2(a) and 2(b) show the results with Thomson parabola spectroscopy from the shots on a 4 layer LSG deposited with 48 nm PMMA ($(C_5O_2H_8)_n$) and 100 nm Au, respectively. It is clear that the shot renders abundant protons, carbon oxygen ions with different charge states (C^{4+} , C^{5+} , C^{6+} and so on) in Fig. 2(a). Compared to the PMMA/LSG composite target, the 100 nm Au/LSG (4 layer LSG deposited with 100 nm Au layer) has distinctive feature in which there are tracks indicating high Z Au ions up to

charge state = 51 as shown in Fig. 2(b). Theoretical calculation of laser ion acceleration considering the stripping off effect from the intense electric field of laser predicts that for laser intensity up to 10^{21} W/cm^2 , M shell electrons could be stripped off as shown in Fig. 2(c) [3]. However, the intensity of LFEX laser is much lower than the above estimation. Our experimental results show much higher charge state than that predicted with field ionization model. While the physical mechanism of such high ionization state is under investigation, our experiment successfully demonstrates the acceleration of high Z heavy ions (Au in this case) and the ability of LSG as a target mount for nanostructured targets.

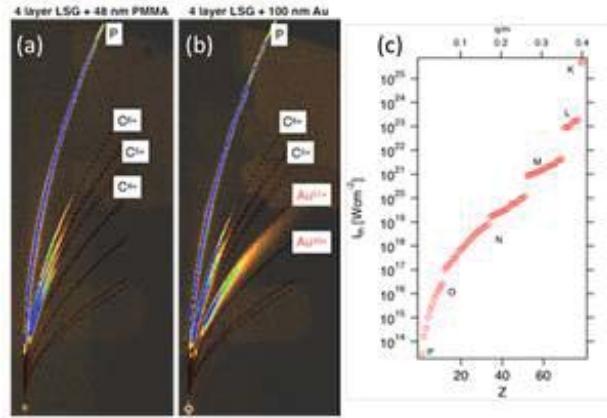


Figure. 2. **(a)** TPS of PMMA/4-LSG shot **(b)** TPS acquired for the 100 nm Au deposited 4-LSG shot. **(c)** Theoretical prediction for generation of ions with respective charge state.

ACKNOWLEDGEMENT(S)

We appreciate the technical support by the staff at the ILE. W. Y. W. like to acknowledge the financial funding from MOST 106-2212-M-008-003-MY3 from the ministry of science and technology of Taiwan.

REFERENCE(S)

- [1] I. J. Kim, K. H. Pae, I. W. Choi, C.-L. Lee, H. T. Kim, H. Singhal, J. H. Sung, S. K. Lee, H. W. Lee, P. V. Nickles, T. M. Jeong, C. M. Kim, and C. H. Nam, Physics of Plasmas 23, 070701 (2016).
- [2] N. Khasanah, N. Bolouki, T.-Y. Huang, Y.-Z. Hong, W.-L. Chung, W.-Y. Woon, C.-Y. Su, and Y. Kuramitsu, High Power Laser Science and Engineering 5, e18 (2017).
- [3] B. M. Penetrante and J. N. Bardsley, Phys. Rev. A 43, 3100 (1991).

実用化を目指すテラヘルツ波放射構造体最適化研究

浅川 誠、李 大治*、中嶋 誠**

関西大学システム理工学部物理・応用物理学科

* レーザー技術総合研究所

** 大阪大学レーザー科学研究所

はじめに

超短パルス電子バンチが引き起こすコヒーレント放射現象を利用したテラヘルツ光源は、小型かつ周波数可変・高出力光源として有望である。我々のグループは世界に先駆けエネルギー30keV、パルス幅1~3psの電子バンチを生成する小型光電電子銃を用いて100GHz帯のコヒーレント・スマスパーセル放射発生に成功した。またILE中嶋教授との連携により放射光エネルギーを効率良く放射体から取り出すことのできる独特的な構造を考案するに至った^[1]。

長周期グレーティングと短周期グレーティングを組み合わせた新しい放射構造では、平面波状のコヒーレントな放射光を出力できる可能性がある。これを実現するためには放射構造体の最適化が必要である。本研究では最適化技術を数値計算および実験の両面から確立することである。

数値計算技術の開発

放射構造体の最適化を行うには、電子バンチにより電磁波が長周期グレーティング表面で励起された後に短周期グレーティングに向かって導光され、短

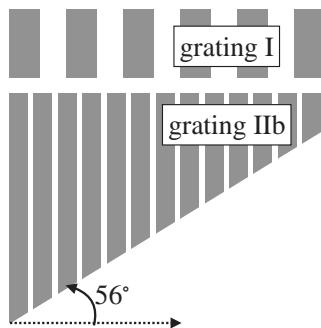


Fig.1. 2重グレーティング構造。grating I は放射発生に関与し、grating IIb は放射光の導光に関与する。

周期グレーティング端での回折により平面波状に放出される一連の複雑な過程を段階ごとに追跡しなければならない。これまでの研究で使用していた市販のシミュレーションコードでは一連の過程をアニメーションとして出力することができず、放射過程全体の把握をすることが難しかった。そこで2次元FDTDシミュレーションコードを開発し、放射過程全体をアニメーション化することで放射構造体の各パラメータが及ぼす影響を詳細に調べることとした^[2]。

Fig.1は2重グレーティング構造放射体の基本構造を示す。この装置では上部のグレーティングが通常のスマス・パーセル放射と同様な表面波を励起す

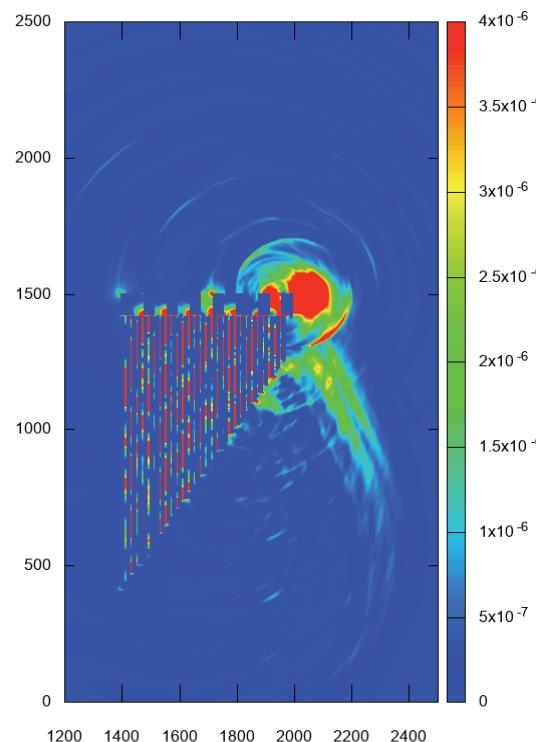


Fig.2. 2重グレーティング構造で発生した放射光強度（電場の2乗）の空間分布。

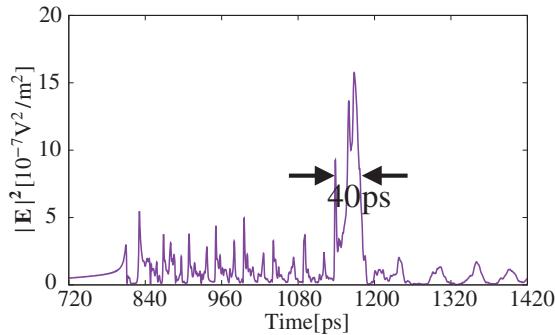


Fig.3. 観測点(2200,1100)における光強度の時間変化

るための遅波回路として働き、下部のグレーティングが表面波を導光するための導波回路として働く。

Fig.2は開発したFETDコードによるシミュレーション結果である。上部グレーティングの周期は4 mm、下部グレーティングの周期は1 mmとして計算を行った。電子バンチの加速エネルギーは30 keVである。上部グレーティングで誘起された表面波の大部分はギャップを介して下部のスリットに進み、下部グレーティングの下端から平面波として電子バンチ進行方向（図中では左から右向き）に自由空間に放出される。下端から放出された放射光（横軸2000～2300、縦軸600～1200の範囲の強度 2×10^{-6} 以上の領域）は進行方向には局在しており、進行方向に垂直な向きには概ね平面波的な分布を持っている。また通常のスミス・ペーセル放射が放出される上部グレーティングの上空部に向かっての放射はほぼ抑えられている。

Fig.3は、Fig.2における位置(2200,1100)での放射光強度の時間変化である。横軸1140 psから1180 psの間に放射光エネルギーが集中されており、2重グレーティング構造によりスミスペーセル放射光源が持つ問題点を克服することができるものと考えられる。

放射光発生実験の準備

シミュレーションコード開発に加え、本年度は放射光発生実験で用いる光電電子銃システムの整備を行った。Fig.4は光電電子銃システムの概要を示す。光電子はパルス幅100 fs、繰返し1 kHzのチタンサファイアレーザーの3倍高調波（266 nm）により励起される。3倍高調波の平均出力は250 mWである。また、陰極はタンクスチタンである。加速電圧が30 kVの場合、電子銃が出力できる最大の電子バンチ電気量は300 pCである。

電子バンチのパルス幅は電子バンチの電気量が高くなるにつれ伸長する。電気量が150 pCではパルス幅は0.9 ps程度であるが、300 pCでは3.1 psまで長くなる。しかしながら電子の速度は光速の35%程度であり、電子バンチの空間的な長さは最長でも0.4 mm程度である。したがってミリ波帯の放射光実験では電子バンチの長さは電磁波の波長より十分短いと言え、コヒーレント放射光の発生が期待できる^[3]。

将来的な放射光発生実験の高度化に向けて、電子

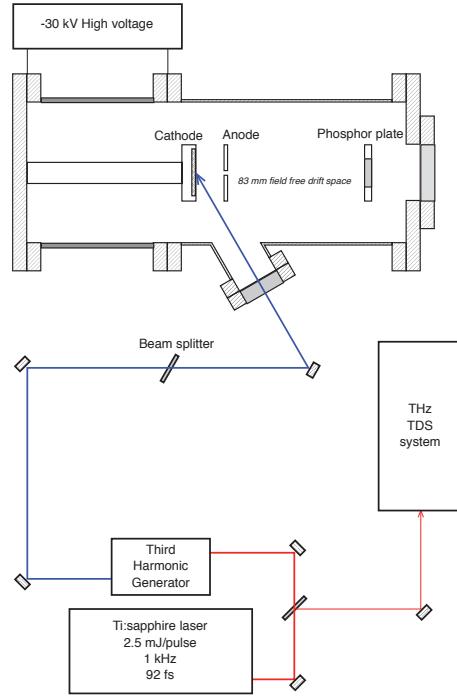


Fig.4. 光電電子銃システム

銃と同期したテラヘルツTDSシステム開発も開始した。本システム開発はレーザー研中嶋誠准教授の指導のもとで行われている。現在までにZnTe結晶で発生したテラヘルツ波をEOサンプリング方式で測定することができている。放射光の測定のためには真空容器内の放射光発生部分から、真空容器外のTDSシステムまでミリ波・テラヘルツ波を導光する光学系が必要であり、その設計・開発は今後の大きな課題である。

これらに加え、人工知能を利用した光電電子銃システム制御にも着手している。AIとしては現在のところGoogleが一般公開している汎用機械学習ライブラリを採用している。利用可能なAIのほとんどがプログラミング言語としてPythonを採用しており、本システムは画像データ取得・解析、機器制御など全ての部分をPython用に開発されたライブラリ群で構成されている。現段階ではターゲット上のレーザー照射位置を撮影し、1枚だけではあるが自動でミラー角度補正を行うことができる。今後は複数ミラーの制御ができるよう拡張するとともに、電圧・電流データなども含め実験を一括制御できるシステムに発展させる。

REFERENCES

- [1] D. Li, M. Nakajima, M. Tani, J. Yang, H. Kitahara, M. Hashida, M. Asakawa, W. Liu, Y. Wei and Z. Yang, *Scientific Reports*, **9**, Article number 6804 (2019).
- [2] 渋川誠、山下拓之、Tsun Him Chong、西村柚香、鐵川憧英、山口聰一朗、中嶋誠、第17回赤外放射応用関連学会年会予稿集 (2019)
- [3] M. Asakawa and S. Yamaguchi, FEL-2019 Proceedings, JACoW-FEL2019-TUP12 (2019)

高Z金属ワイヤ挿入による爆縮プラズマ中における高速電子の収束モデリング

羽原英明¹, 牧山大暉¹, 大熊祐輝¹, 長友英夫², 城崎知至³

¹大阪大学大学院工学研究科, ²大阪大学レーザー科学研究所, ³広島大学大学院工学研究科

INTRODUCTION

慣性核融合の高速点火では、爆縮コアプラズマでの加熱効率が低いことが問題の一つとして挙げられる。追加熱に用いられる高強度レーザーによって生成される高速電子は、コアプラズマを加熱する上で大きな役割を果たす。この高速電子は高密度プラズマと高強度レーザーの相互作用によって生成されるが、その高速電子は40度以上の大きな発散角を持っており、加熱効率が低い原因となっている。この問題を解決するために本研究では、物質の比抵抗率勾配に起因する自己生成磁場を用いて高速電子の発散角を抑えるために、中実球の中にNiワイヤーを挿入したターゲットを使用した。このターゲットを用いることで自己生成磁場による高速電子のコリメートを実験的に確認した。

EXPERIMENT SETUP

昨年度の結果より、X線ストリークカメラ(XSC)画像から推定される燃料コアが、最大爆縮時でもそれほど面密度が高くないため、高速電子が燃料コアにエネルギーを与えずに通り抜けた可能性があった。そのため、爆縮時の燃料球の面密度を向上させるために爆縮パルス波形をガウシアンパルスからテーラードパルス(3段パルス)に変更した。さらに昨年度の実験結果の詳細な解析から高速電子の放出角度が燃料コアの断面積よりも大きいことが推定されたため、高速電子の収束性を高めるためにテーパー形状のついたNiワイヤを注入し、高速電子の収束の効果を検証した。

ターゲット球には、阪大レーザー研で開発されたオレイン酸銅(Cu-oleate)中実球(直径190μm)に

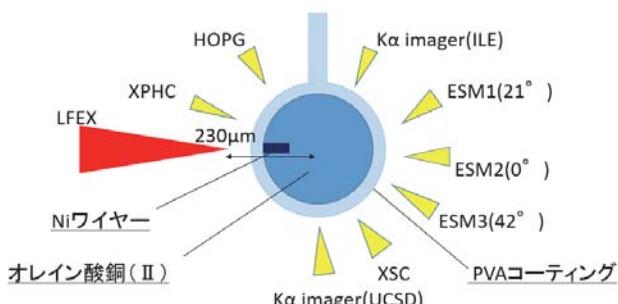


図1 実験セットアップ

Niワイヤー(直径25μm、長さ40μm)を挿入し、その球の表面をPVAでコーティング(厚さ30μm)したターゲットを用いた。

阪大レーザー研で行われた実験では、GXII(760J/beam, 2.0ns)、LFEX(300J/beam, 1.5ps)の二つのレーザーを用い、Niワイヤーの有無の2種類の条件で、LFEXのみとJoint shotを行った。これらの条件でどの程度の差が生じるか各計測器を用いることで検証を行った。

EXPERIMENT RESULTS

爆縮プラズマのパラメータを推測するため、2次元放射流体シミュレーションを用いてXSCの結果の再現を行った。この放射流体コードには我々が改良したレーザープラズマ不安定性(LPI)によって生成するhot electronによる燃料のプレヒートの効果が含まれており、以前の実験においてXSCの結果を再現するようプレヒートの度合いを調整した結果、X線ピンホール画像、銅イオン特性X線単色画像等他の実験結果も同時に再現したため、その計算による爆縮プラズマの面密度を実験値とした。今回も同様な手続きで計算を行った結果、爆縮パルスのエネルギーが約6割程度であるにも関わらず、ガウシアンパルスよりも3段パルスを用いた方が大きな面密度が得られる可能性が示された。

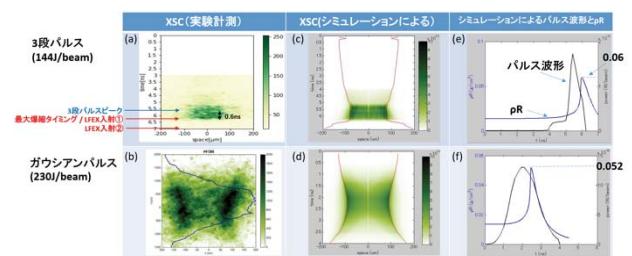


図2 (a-b)実験によって得られたX線ストリークカメラ画像、(c-d)2次元MHDシミュレーションで解析的に再現したX線ストリークカメラ画像、(e-f)シミュレーションによる面密度の時間発展(青)、黒線が爆縮パルス波形

次に、直径20μm、長さ50μmの円柱形、及びテーパー付き円柱形Niワイヤを挿入したターゲットと、挿入されていないターゲットのモノクロX線(8.02±0.02keV)のイメージング画像を比較すると、Niが

存在していると見られる部分でX線発光の抜けが確認でき、実際に高速電子がNiワイヤ中を伝搬している可能性が示された。さらにNi通過後に当たるコア領域と思われる部分で特に発光強度が50%程度増加していることが確認できたことから、Niワイヤによる高速電子が収束している可能性が示された。

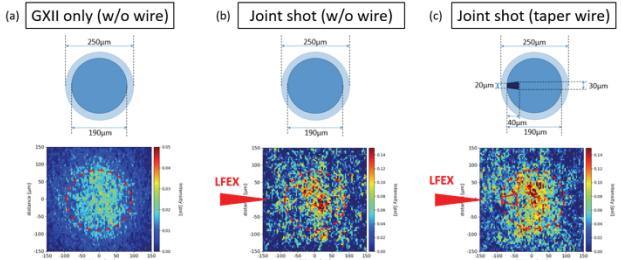


図3 (a) GXIIのみでの金属ワイヤなしターゲットのCuK α のイメージング画像、(b)Jointショットでの金属ワイヤなしのターゲットのCuK α のイメージング画像、(c)Jointショットでの金属ワイヤありのCuK α のイメージング画像

さらにHOPG結晶を用いた8keV前後のX線分光の結果から、ガウシアンパルスを使用したJointショットと比較して、3段パルスを使用したJointショットの発光量が30%程度増加していることから、XSCの解析で示されたようにガウシアンパルスでの爆縮に比べ面密度が増加し、高速電子がコア部分に衝突した割合が増加した可能性が考えられる。また、3段パルスを使用したJointショットについて金属ワイヤの有無で発光量を比較してみるとワイヤなしでのショットから発光量が47%増加していることが確認でき、金属ワイヤを挿入することで高速電子が自己生成磁場によって収束し、コア領域により多く衝突した可能性が示された。

CONCLUSION

これらの結果から、オレイン酸銅にNiワイヤーを挿入することで生じる比抵抗率の勾配由來の自己生成磁場により、高速電子の発散角を抑え、爆縮コアに誘導できた可能性があることが分かった。さらにNiワイヤの形状の最適化によってさらに収束が進み、よりプラズマが加熱される可能性が示された

ACKNOWLEDGEMENT(S)

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金(基盤研究S, 15H05751)によって行われた。

REFERENCE(S)

- [1] S. Kar, et al., Phys. Rev. Lett. 102, 055001 (2009).
- [2] A.P.L. Robinson and M. Sherlock, Phys. Plasma 14, 083105 (2007)

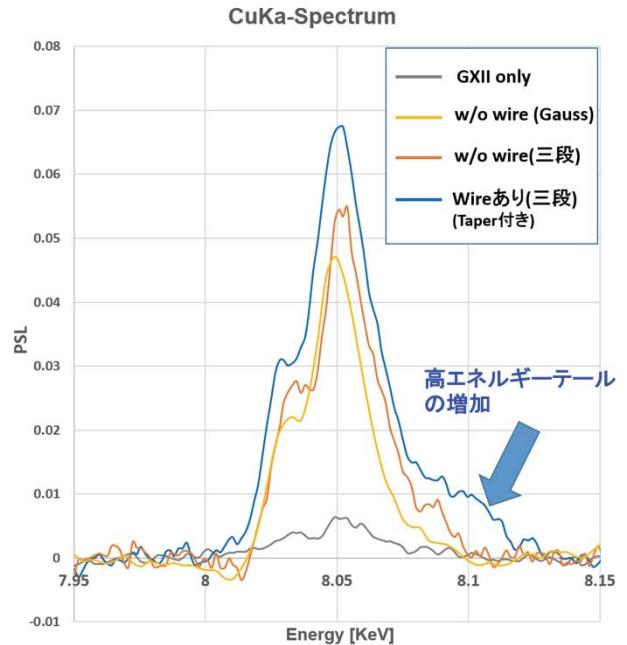


図4 各条件によるCuK α スペクトル、灰色線はGXIIのみ、黄色線はガウシアンパルスのJointショットで金属ワイヤなし、橙色線は3段パルスのJointショットで金属ワイヤなし、青色線は3段パルスのJointショットで金属ワイヤあり。

機能性酸化物のエピタキシャル薄膜において

基板の結晶格子が構造相転移に与える影響

西川 博昭¹⁾、伊美 拓哉²⁾、平岡 壮大²⁾、川山 巖³⁾

1) 近畿大学生物理工学部

2) 近畿大学大学院生物理工学研究科

3) 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

はじめに

エピタキシャル薄膜はバルクを作製不可能な物質の物性研究、強誘電体や強磁性体など機能性材料のデバイス化に有効であるが、結晶格子が基板から強力にロックされ、構造相転移に伴う物性制御およびそのデバイス応用がバルクとは大きく異なるという問題がある。また、このことを利用して、バルクでは得ることができない新物性を開拓することも期待できる。

一例として、SrTiO₃ (STO) の誘電特性は格子歪みによって大きな影響を受け、場合によっては強誘電性相転移を示すことが挙げられる[1]。我々は、STO 薄膜に対する基板からの格子歪みとして、一般的な格子定数変化のみに注目した圧縮・引っ張り歪みだけではなく、膜厚増加に伴って歪みが緩和する過程で発生する、対称性変化を伴う特殊な格子歪みによって強誘電性相転移を示すかどうかにも注目している。薄膜成長中における多様な巨大格子緩和を利用することで、STO 薄膜が強誘電性相転移を示すかどうか、様々な場合においてテラヘルツ放射を用いて調べることを最終的な目的として実験を行っている。今年度は、STO と同じペロブスクイト構造を持ち、格子定数が大きく異なる TbScO₃ (TSO、格子定数は 0.3950 nm で、0.3905 nm の STO とは約 1.14% の不整合がある)、TSO(110)基板表面へ STO 薄膜を実際に作製し、その表面形態と結晶構造を調べ、予備的にテラヘルツ放射測定を試みた。

実験

市販の TSO(110) 単結晶基板上にパルスレーザ堆積 (PLD) 法を用いて STO を成膜した。成膜時の条件は、基板温度 700°C、O₂ 分圧 0.2 Pa、レーザフルエンス 2 J/cm² である。この条件で膜厚 320 nm の STO 薄膜を堆積した。成膜速度はおよそ 2.5 nm/min である。薄膜堆積後は、O₂ 分圧 0.2 Pa を保った状態

にて 30 分かけて基板温度を室温まで冷却した。

得られた試料は原子間力顕微鏡 (AFM) で表面形態を、X 線回折 (XRD) の 2θ/θ測定にて結晶構造を、それぞれ調べた。テラヘルツ放射測定に際しては、STO 薄膜表面にギャップ幅 10 μm のダイポール型金電極を作製してこれを光伝導アンテナとし、波長 390 nm のポンプ光を用いた。

結果と考察

図 1 に、TSO(110)基板上に作製した STO 薄膜の AFM 像を示す。基板自体には明確なテラス・ステップ構造を得るために処理をしなかったため、得られた STO 薄膜はテラス・ステップ構造を示していないが、その表面は比較的平坦であり、均一で緻密な STO 薄膜を得ることができたと考えられる。

図 2 に同じ試料の XRD パターンを示す。TSO 基板のほかには STO の(h00)ピークのみが見られ、得られた STO 薄膜は[100]配向していることが確認できた。この測定結果から格子定数を見積もったところ、0.391 nm と、ほぼバルク STO と同じ値であり、エピタキシャル成長にともなう基板からの歪みの影響は緩和されている可能性がある。今後、基板との格子不整合とそれを緩和する膜厚との関係を詳しく

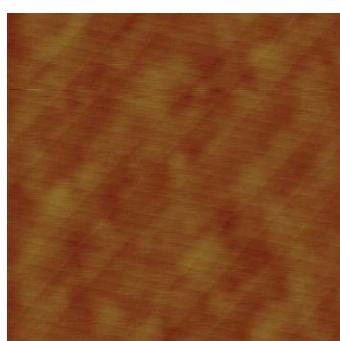


図 1 TSO(110)基板に成膜した STO 薄膜の AFM 像。
スキャンサイズは 2 × 2 μm²。

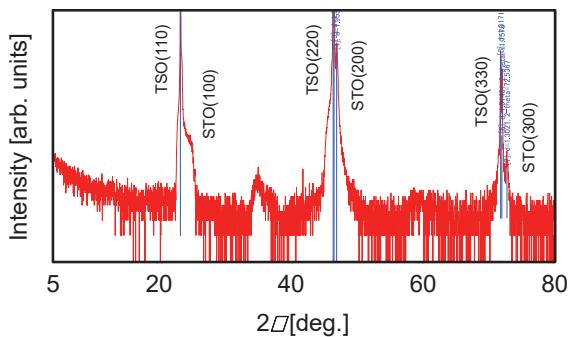


図 2 TSO(110)基板に成膜した STO 薄膜の XRD パターン。

ことが必要である。今後、STO 薄膜の成長条件の最適化や、ホール測定など他の評価手法を併用して、光伝導に伴うテラヘルツ放射の観測を目指す。

まとめ

これまでの研究において、エピタキシャル成長した STO 薄膜の格子歪み緩和と対称性変化に伴う誘電特性変化、強誘電性の発現について、テラヘルツ放射によって調べるための準備が整った。今後、共同研究を継続して、これらの研究を進めたい。

参考文献

- [1] J.H. Haeni et al., Nature, **430**, 758 (2004).

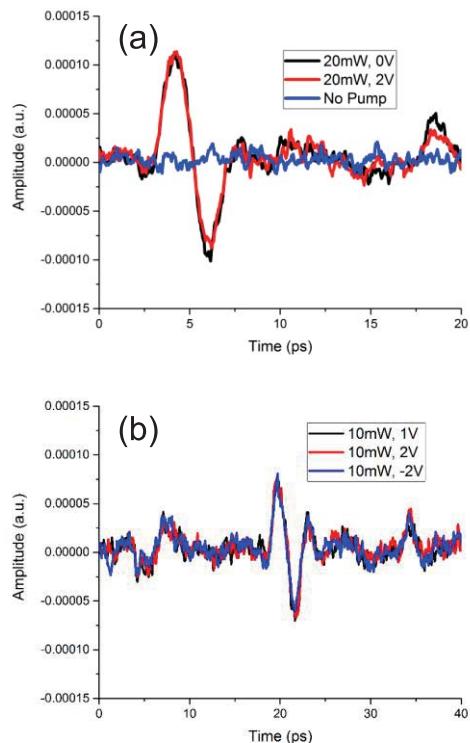


図 3 TSO(110)基板に成膜した STO 薄膜テラヘルツ放射における時間領域波形。

調べておく必要がある。

図 3 は、同じ試料からのテラヘルツ放射における時間領域波形で、(a)はバイアスの有無を、(b)はバイアスの正負を比較している。いまのところ、いずれの場合においても時間領域波形には明確なバイアス依存性がみられておらず、今回観測されたのは光励起キャリアの伝導ではなく、光整流等の 2 次の非線形光学効果によるテラヘルツ放射であると考えられる。光伝導が抑制された原因としては、STO 薄膜の欠陥・不純物等による移動度の低下やエキシトン形成による光電流の減少などが考えられる。テラヘルツ放射を用いて STO の強誘電性を観察するためには、光伝導によるテラヘルツ発生効率を改善する

Density functional theory based investigation of hydrogen adsorption on ZnO (10̄10) surface

Manuel M. Balmeo¹, John Symon C. Dizon¹, Erick John Carlo D. Solibet², Melvin John F. Empizo³, Arnel A. Salvador², Hiroshi Nakanishi⁴, Nobuhiko Sarukura³, and Allan Abraham B. Padama¹

¹ Institute of Mathematical Sciences and Physics, College of Arts and Sciences, University of the Philippines Los Baños, College, Los Baños, 4031, Philippines

² National Institute of Physics, University of the Philippines Diliman, Diliman, Quezon City 1101, Philippines

³ Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

⁴ National Institute of Technology, Akashi College, 679-3 Nishioka, Uozumi, Akashi, Hyogo 674-8501, Japan

INTRODUCTION

The increasing demands for functional materials and the current trends in device miniaturization have led to intensive research focused on improving material efficiency and durability for various applications. For example, the stability of zinc oxide (ZnO) crystal in radiation environments is the subject of previous works in relation to its application as a scintillator material. Bulk ZnO single crystal is an excellent scintillator because its emission lifetimes are similar regardless of the sample temperature. In a radiation environment, however, energetic particles can generate defects, damage, and/or penetrate the material which could alter its electronic and optical properties. For instance, it was found that hydrogen-ion (H-ion) irradiation of a bulk ZnO crystal on its (10̄10) surface has led to the decrease in the visible transparencies, red shifting of the emission peaks, shortening of the ultraviolet (UV) emission lifetimes, and suppression of the visible emission bands. These observations were then attributed to the generation of defects during irradiation and to the possible interaction of H-ions with the surface. These experimental results provide evidence that H-ions can modify the electronic properties of ZnO. Probing this phenomenon in the atomic scale will unravel the origin of the changes in the electronic properties and will establish mechanisms that will be useful in materials design. The interaction of hydrogen with ZnO surfaces has been investigated in the past using first-principles calculations. Previous investigations focused mainly on the catalytic performance of ZnO, its potential use as a gas sensor, and the modification of the properties of the material (induced metallicity). These reports did not examine the possible difference between the interactions

of hydrogen with ZnO and the impact of the species on the optical properties of the material.

In this regard, we investigate hydrogen (H) adsorption on ZnO (10̄10) surface by performing density functional theory (DFT) based calculations [1]. Specifically, we aim to provide comprehensive details on the adsorption of hydrogen on ZnO (10̄10) surface with information on its geometric structures and the analysis of the interactions between hydrogen and the surface atoms. The results are expected to provide more accurate prediction and new insights on how H modify the geometry and the electronic properties of ZnO for a much-needed understanding of ZnO's potential applications.

COMPUTATIONAL DETAILS

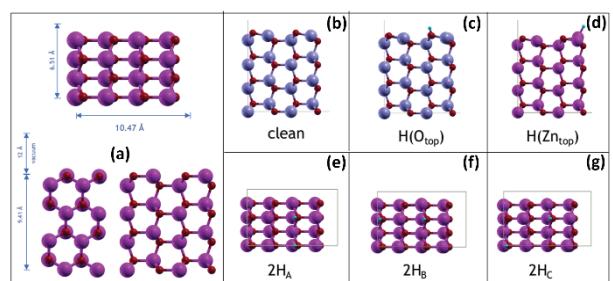


Fig.1. (a) Initial clean ZnO (10̄10) surface with the lattice parameters and schematic diagram of the (a) clean ZnO surface compared with (b) single H on top of O [H(O_{top})], (c) single H on top of Zn [H(Zn_{top})], and two H atoms on top of O atoms on different sites designated as (e) 2H_A, (f) 2H_B, and (g) 2H_C. Magenta, red, and cyan spheres represent Zn, O, and H, respectively.

We performed first-principles calculations based on DFT implemented in the open-source Quantum

ESPRESSO package. Vanderbilt pseudopotentials were used under the generalized gradient approximation (GGA) scheme using Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) as the exchange-correlation functional. A 2×2 supercell of four bilayers of ZnO (10\bar{1}0) was constructed to model the surface. Note that the bilayer consists of one layer of Zn atoms stacked with one layer of O atoms. A vacuum of 12 Å is added to replicate the surface. The calculated parameters of the clean surface such as the interlayer spacings and the Zn-O interatomic distances are in good agreement with previous works. Single and multiple H atoms are then simulated to be adsorbed on different geometric sites, as indicated in Fig. 1. Electronic band structures and density of states (DOS) were systematically obtained and plotted for each system.

RESULTS

Figures 2 and 3 show the electronic band structures and DOS of the clean ZnO (10\bar{1}0) and the H(O_{top}) system, respectively. Our results show an underestimation of the band gap for the clean ZnO surface – a limitation of standard DFT calculations. Nevertheless, the band features are identical to previous DFT investigations. On the other hand, the system becomes metallic when an H atom is adsorbed on the ZnO surface as revealed by the crossing of the minimum valence band crossing below the Fermi level.

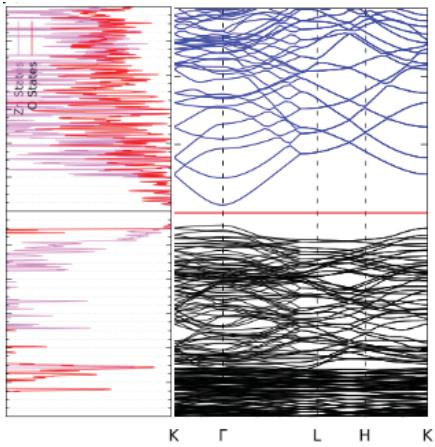


Fig. 2. Electronic band structure and DOS of a clean ZnO (10\bar{1}0) surface.

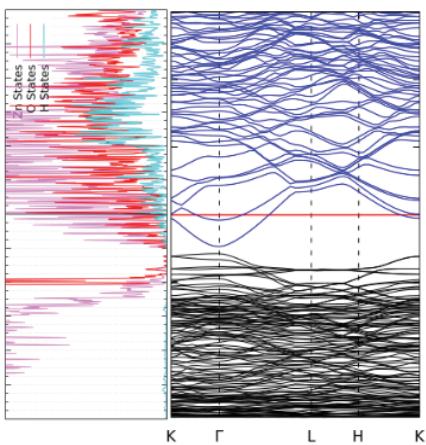


Fig. 3. Electronic band structure and DOS of H(O_{top})

system.

The adsorption energies for each structure were then calculated using the equation:

$$E_{ads,H} = \frac{E_{tot} - n \times E_H - E_{clean}}{n} \quad (1)$$

where E_{tot} is the total energy of the system, E_H is the total energy of one H atom, E_{clean} is the total energy of the clean ZnO (100) surface, and n is the number of H atoms present in the system. A summary of the results is shown in **Table 1**.

Table 1. Adsorption energies of H in each system where H atom(s) is/are adsorbed on specific geometric sites of the ZnO (100) surface.

System	Adsorption Energy (eV)
H(O _{top})	-2.50
H(Zn _{top})	-0.679
2H _a (O _{top})	-2.18
2H _b (O _{top})	-2.30
2H _c (O _{top})	-2.31
4H (O _{top})	-2.13
8H (O _{top} , Zn _{top})	-2.50

SUMMARY AND FUTURE WORK

We have analyzed the changes in the electronic properties of the ZnO (10\bar{1}0) surface in the presence of hydrogen. We found that a low concentration of H adsorbed at on top site of O atom of ZnO will result in the shifting of the conduction band below the Fermi energy level. This phenomenon is attributed to the ionic bonding between H and O, in which, the O atom receives charge from the adsorbed H atom. The conduction band which is dominated by the O atom, thus, shifts below the Fermi energy level. For H that is adsorbed at the on-top site of Zn, the interaction is characterized by covalent bonding. Derived states, with contributions from O, Zn, and H, are formed near the Fermi level. The involvement of O in the adsorption of H explains the retained forbidden region in the band structure of the system. We note that such overlapping of states between Zn and O likewise occurs in the valence band of the clean ZnO (100) surface. In the future, we will extend the analysis for systems with higher H coverage and implement corrections to obtain more accurate band gap measurements of the systems.

ACKNOWLEDGMENT

This work was supported by the Osaka University Institute of Laser Engineering through the Collaborative Research for the Laser Energetics Program Grant No. 2019B1-PADAMA.

REFERENCE

- [1] M. M. Balmeo et al., manuscript in preparation.

Investigation of LaF₃ as a vacuum ultraviolet emitter for scintillator and laser applications

Marilou Cadatal-Raduban^{1,2*}, Luong Viet Mui², Minh Hong Pham³, Toshihiko Shimizu², Nobuhiko Sarukura², and Kohei Yamanoi²

¹Centre for Theoretical Chemistry and Physics, School of Natural and Computational Sciences, Massey University, Albany, Auckland 0632 New Zealand

²Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871 Japan

³Institute of Physics, Vietnam Academy of Science and Technology, Hanoi, Vietnam

INTRODUCTION

Scintillators are the key components in detectors used for sensing high-energy radiation. As such, scintillators are used in a wide range of scientific, industrial, and technological fields. In many applications such as those involving time-of-flight measurements and in imaging, a fast-response detector is needed. Scintillation decay time dictates the timing resolution of the radiation detector. Therefore, a scintillator with a fast scintillation decay time along with a high photon yield is required. Scintillation decay time is fundamentally related to the photoluminescence decay time of the material. The scintillation decay time is approximately proportional to the wavelength cubed, which means that a fast-response scintillator usually has a short emission wavelength [1]. Therefore, scintillators emitting in the vacuum ultraviolet (VUV) region are being investigated in order to develop fast-response scintillators. Wide band gap fluoride crystals with band gap energies greater than 6 eV has short emission wavelengths in the VUV region especially when doped with rare earth (RE) ions such as trivalent neodymium (Nd³⁺) and erbium (Er³⁺) [2-5]. Photoluminescence from RE-doped fluorophosphate glass scintillators, such as 20Al(PO₃)₃-80LiF (APLF80), have also been reported to have fast nanosecond scintillation decay times and sufficient light yield for neutron detection. [6-9] Self-trapped exciton (STE) luminescence observed in undoped wide band-gap insulators such as BaF₂ [10], SrF₂ [11], CaF₂ [12] and their mixed compounds [13,14] also yield fast luminescence. In some fluoride materials such as CsF [15] and BaF₂ [10,16], cross luminescence (CL) or Auger free luminescence results to short emission wavelengths with very fast photoluminescence decay times [17]. We have previously reported the 172-nm emission from a Nd³⁺-doped lanthanum fluoride (Nd³⁺:LaF₃) crystal excited by the 157-nm emission of a F₂ laser where a fast

nanosecond photoluminescence decay time was observed. The photoluminescence was ascribed to allowed dipole transitions from the lowest level of the 4f²5d excited state configuration to the lowest (⁴I_{9/2}) level of the 4f³ ground state configuration. Similar photoluminescence characteristics were observed when the crystal was excited via step-wise absorption of 290 nm (third harmonics), femtosecond pulses from a Ti:Sapphire laser. In particular, the time-resolved photoluminescence spectra for both excitations were single exponential with a decay time of about 7 ns [18,19]. When the Nd³⁺:LaF₃ crystal was excited by the 51-nm wavelength emission of an extreme ultraviolet free-electron laser, we observed a peculiar behavior whereby the time-resolved photoluminescence spectra manifested fast and slow decay time components. As mentioned above, the fast decay component is important for scintillator applications. The origin of the double exponential photoluminescence decay time that was observed with EUV-FEL excitation is further investigated. By performing numerical simulations to reveal the electronic properties of LaF₃, the origin of the fast photoluminescence decay component is elucidated. Our results also suggest the possibility of achieving a fast decay time through CL in LaF₃.

Photoluminescence emission was obtained from a Czochralski method-grown Nd³⁺:LaF₃ single crystal. The crystal is a cuboid with optically polished facets, each measuring 1 cm. The crystal was placed inside a vacuum chamber maintained at a pressure of 10⁻⁵ Pa. The sample was excited by pulses from the extreme ultraviolet free electron laser (EUV-FEL) SCSS test accelerator. The laser pulses had a wavelength of 61 nm, pulse duration of 100 fs, pulse energy of 30 μJ, and repetition rate of 30 Hz. The pulses were focused onto the crystal by ellipsoidal and cylindrical mirrors. The mirrors had a working distance of 1 m, resulting to a beam spot size of 20 μm at the surface of the crystal. Photoluminescence from Nd³⁺:LaF₃ was collected and focused by MgF₂

lenses onto the entrance slit of a VUV Seya-Namioka spectrometer. The time-resolved photoluminescence spectrum was obtained using a VUV streak camera unit, which consisted of a holographic grating spectrometer with a groove density of 600 grooves/mm and a linear dispersion of 8 nm/mm. The effective F-number of the streak camera unit is 4.2. The detailed specifications and schematic diagrams of the spectrometer and streak camera system used in this work can be found elsewhere. [20] As a reference, the time-independent and time-resolved photoluminescence spectra of Nd³⁺:LaF₃ under F₂ laser excitation was also obtained. The F₂ laser emission had a wavelength of 157 nm and pulse duration of 5 ns.

The absorption spectra of LaF₃ were investigated by obtaining the room-temperature absorption spectrum of LaF₃ using the solid-state spectroscopy beamline (BL7B) of the synchrotron radiation facility (UVSOR-II) at the Institute for Molecular Science in Japan. Details of the beamline can be found in the activity report of the facility. [21] The experimental band gap of LaF₃ was obtained from the absorption spectra using a Tauc plot. All measurements were performed at room temperature.

The electronic band structure of LaF₃ was calculated based on Density Functional Theory (DFT) within the generalized gradient approximation (GGA) using the Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) hybrid functional including exact exchange, [22, 23] where 75% PBE exchange was mixed with 25% exact exchange (PBE0). The calculations were implemented in the Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) using plane-wave basis sets within the projector-augmented wave (PAW) method with a sufficiently high plane-wave basis cutoff of 500 eV. The valence band maxima in the band structure and DOS diagrams are shifted to zero energy.

The Green's function and screened Coulomb interaction (GW) approximation [24-27] was employed to calculate the absorption spectrum of LaF₃. This fully self-consistent quasiparticle calculation accounts for self-interaction corrections and can model excited state properties, such as absorption spectra. The changes in the exchange correlation potential are taken into account while the local field effects were neglected because microscopic changes to the periodic potential of the cell are negligible when modelling a perfect fluoride compound. [28] The absorption spectrum was extracted from the imaginary part of the frequency-dependent complex dielectric tensor, which represents the linear response of the system to an external electromagnetic field. The mathematical details for the relationship between the complex dielectric tensor and the absorption spectrum can be found elsewhere. [28]

Numerical simulations were performed to investigate the electronic properties of LaF₃ and illuminate the difference observed in the time-resolved photoluminescence spectra. Figure 1 shows the electronic band structure of LaF₃ calculated along the high symmetry lines of the first Brillouin zone. The valence band maximum and the conduction band

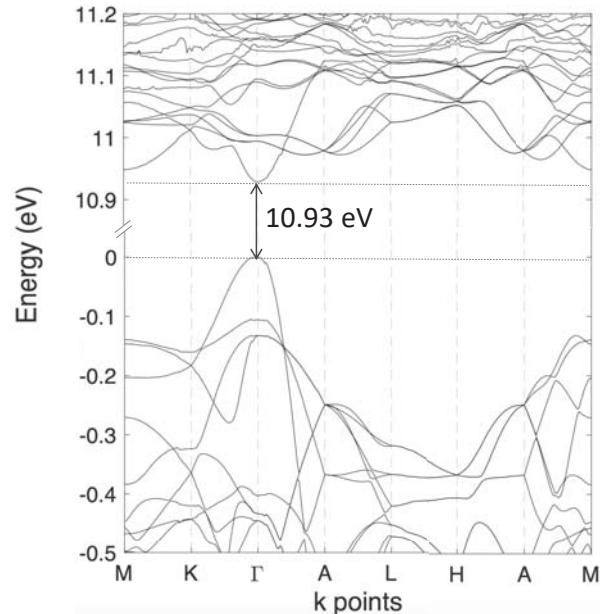


Fig. 1. Electronic band structure of LaF₃ showing a direct band gap at the Γ -point of 10.93 eV.

minimum are both located at the high symmetry gamma-point. Thus, LaF₃ has a calculated direct band gap energy (E_g) of 10.9 eV. This is higher than previously reported calculated band gap energy of 7.74 eV [29] using local density approximation (LDA). It is well-known that LDA underestimate band gap energies. Previous works have demonstrated that using hybrid functionals that incorporate a fraction of nonlocal Hartree-Fock exchange leads to results that are more consistent with experiments. [27, 28, 30] The band gap energy was also calculated using the GW approximation. The band gap using GW approximation is 10.8 eV. Figure 2 shows the experimental and numerical absorption spectra of LaF₃. The experimental band gap calculated from the absorption spectra is about 10.1 eV.

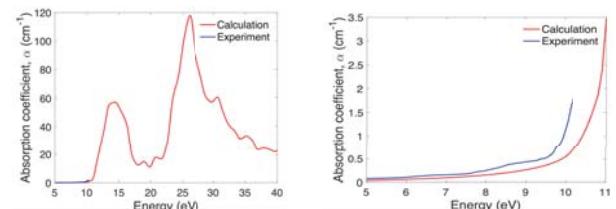


Fig. 2. Experimental and numerical absorption spectra. The figure on the right is a zoomed-in version of the figure on the left, focusing at the low energy range of the detector used in the experiment.

The density of states (DOS) of LaF₃ was calculated in order to obtain a more detailed understanding of the electronic band structure and transitions between valence and conduction bands. Figure 3 shows the DOS and site-projected DOS (PDOS) for the individual atomic contributions to the valence and conduction bands. The direct band gap transition originates predominantly from the F⁻ (2p) states of the valence band maximum and the La³⁺ (4f) states of the conduction band minimum. The

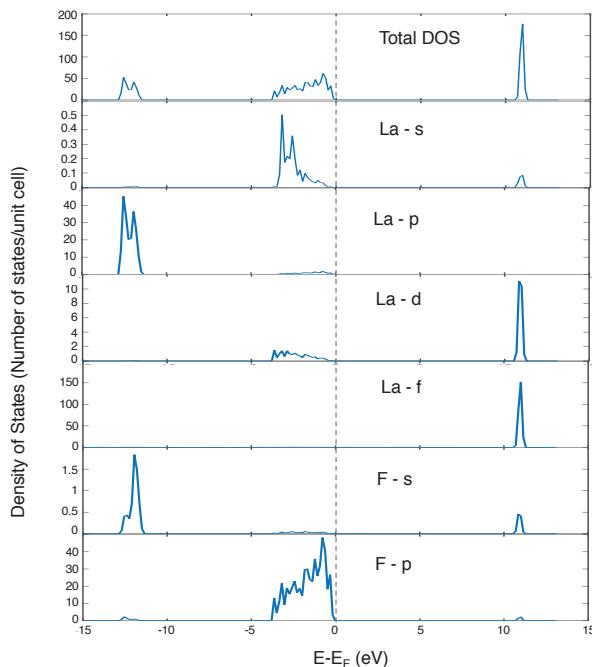


Fig. 3. DOS and PDOS for the individual atomic contributions to the valence and conduction bands.

width of the valence band is 3.5 eV. Examining the PDOS further reveals that the outermost core band originates mainly from the La^{3+} (5p) state. Therefore, the PDOS of LaF_3 alludes to the possibility of Auger-free luminescence or cross luminescence (CL). Partial CL in LaF_3 is feasible provided that the exciting photon has an energy of at least 22 eV in order to satisfy the third condition. The partial CL transition would be from the bottom of the valence band to the top of the outermost core band. The 61-nm excitation from the EUV-FEL is just enough to promote a hole from the top of the outermost core band to the bottom of the conduction band. An electron from the bottom of the valence band fills the hole in the outermost core band, resulting to the emitted CL photon with an energy of about 7.2 eV (172 nm), which corresponds to the photoluminescence emission peak observed [19]. This partial CL could account for the 1.9 ns fast decay time component observed in the time-resolved photoluminescence spectrum [19]. This also explains the faster rise time observed with EUV-FEL excitation. The slow decay time component observed in the time-resolved photoluminescence spectrum is due to the interconfigurational $4f^25d-4f^3$ transition in Nd^{3+} , which also explains the reason why the slow decay component is similar to the single exponential decay time obtained with the F_2 laser excitation. Interestingly, the energy difference between the bottom of the valence band and the top of the outermost core band (fast partial CL transition) is similar to the energy difference between the lowest level of the $4f^25d$ excited state configuration to the ${}^4\text{I}_{9/2}$ level of the $4f^3$ ground state configuration of the Nd^{3+} activator ion (slower interconfigurational transition). Therefore, only a single photoluminescence peak was observed. The schematic diagram of the electronic transitions in

Nd:LaF_3 resulting to the experimentally observed double exponential decay time is shown in Figure 4. The same figure also illustrates the proposed CL mechanism in LaF_3 . Experiments with undoped LaF_3 are being planned in the near future to understand the role of STE and whether the formation of STE contributes to the slow decay component. The planned experiments will also verify CL in LaF_3 . The presence of CL will enhance the potential of LaF_3 as a fast-response scintillator for many applications requiring a fast, high-energy radiation detector.

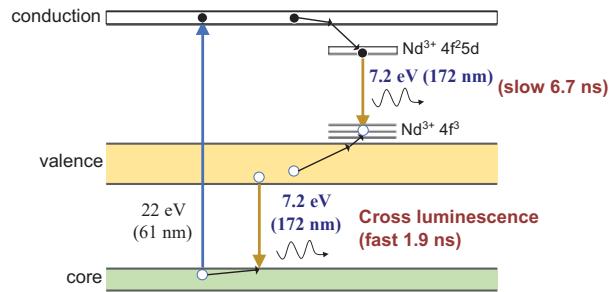


Fig. 9. Schematic diagram of the electronic transitions in Nd:LaF_3 resulting to the experimentally observed double exponential decay time, and the proposed CL in LaF_3 .

In conclusion, we investigated the photoluminescence properties of $\text{Nd}^{3+}:\text{LaF}_3$ under EUV-FEL excitation. In particular, the peculiar double exponential character of the vacuum ultraviolet photoluminescence peak with a fast decay time of 1.9 ns and a slow decay time of 6.7 ns was explored to exploit the possibility of developing a fast response scintillator. The slow decay component, which is of lesser importance, is due to interconfigurational $4f^25d-4f^3$ transition in Nd^{3+} . Meanwhile, the electronic structure of LaF_3 obtained from first principles DFT calculations using PBE0 as implemented in VASP reveal that the fast decay component could be due to partial CL as an electron from the bottom of the valence band fills the hole in the outermost core band. The experimental and numerical results allude to the potential of LaF_3 as a fast-response scintillator, through CL, for many applications especially those relying in time-of-flight measurements.

ACKNOWLEDGEMENT(S)

This research was funded by the Massey University Research Fund (MURF), the Strategic Research Excellence Fund (SREF 1000022242), The ILE and the Tohoku University Collaborative Research grant. The authors would like to thank the SCSS Test Accelerator Operation Group at RIKEN for their continuous support during this study. M. Cadatal-Raduban would like to acknowledge Mike Yap (Centre for Theoretical Chemistry and Physics, Massey University) for the technical support in using the SIMURG high performance computing cluster.

REFERENCE(S)

- [1] Yanagida, T.; Fujimoto, Y.; Yamaji, A.; Kawaguchi, N.; Kamada, K.; Totsuka, D.; Fukuda, K.; Yamanoi, K.; Nishi, R.; Kurosawa S.; Shimizu, T.; Sarukura, N. Study of the correlation of scintillation decay and emission wavelength. *Rad. Meas.* **2013**, *55*, 99-102.
- [2] Cadatal, M.; Furukawa, Y.; Ono, S.; Pham, M.; Estacio, E.; Nakazato, T.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Fukuda, K.; Suyama, T.; Yoshikawa, A.; Saito, F. Vacuum ultraviolet luminescence from a micro-pulling-down method grown Nd³⁺:(La_{0.9}Ba_{0.1})F_{2.9}. *J. Lumin.* **2009**, *129*, 1629-1631.
- [3] Arita, R.; Minami, Y.; Cadatal-Raduban, M.; Pham, M. H.; Empizo, M. J. F.; Luong, M. V.; Hori, T.; Takabatake, M.; Fukuda, K.; Mori, K.; Yamanoi, K.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Fukuda, K.; Kawaguchi, N.; Yokota, Y.; Yoshikawa, A. Significant blue-shift in photoluminescence excitation spectra of Nd³⁺:LaF₃ potential laser medium at low-temperature. *Opt. Mater.* **2015**, *47*, 462-464.
- [4] Cadatal-Raduban, M.; Shimizu, T.; Yamanoi, K.; Takeda, K.; Minh H. P.; Nakazato, T.; Sarukura, N.; Kawaguchi, N.; Fukuda, K.; Suyama, T.; Yanagida, T.; Yokota, Y.; Yoshikawa, A. Micro-pulling down method-grown Er³⁺:LiCaAlF₆ as prospective vacuum ultraviolet laser material. *J. Cryst. Growth* **2013**, *362*, 167-169.
- [5] Shimizu, T.; Cadatal-Raduban, M.; Yamanoi, K.; Takatori, S.; Kouno, M.; Pham, M.; Estacio, E.; Nakazato, T.; Sarukura, N.; Kawaguchi, N.; Fukuda, K.; Suyama, T.; Yanagida, T.; Yokota, Y.; Yoshikawa, A.; Saito, F. Er:LiCAF as potential vacuum ultraviolet laser material at 163 nm, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **2010**, *57*, 1204-1207.
- [6] Minami, Y.; Gabayno, J.L.; Agulto, V.C.; Lai, Y.; Empizo, M.J.F.; Shimizu, T.; Yamanoi, K.; Sarukura, N.; Yoshikawa, A.; Murata, T.; Guzik, M.; Guyot, Y.; Boulon, G.; Harrrison, J.A.; Cadatal-Raduban, M. Spectroscopic investigation of praseodymium and cerium co-doped 20Al(PO₃)₃-80LiF glass for potential scintillator applications, *J. Non-Cryst. Solids* **2019**, *521*, 119495.
- [7] Empizo, M. J. F.; Cadatal-Raduban, M.; Murata, T.; Minami, Y.; Kawano, K.; Yamanoi, K.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Guzik, M.; Guyot, Y.; and Boulon, G. Spectroscopic properties of Pr³⁺-doped 20Al(PO₃)₃-80LiF glasses as potential scintillators for neutron detection, *J. Lumin.* **2018**, *193*, 13-21.
- [8] Watanabe, K; Arikawa, Y.; Yamanoi, K.; Cadatal-Raduban, M.; Nagai, T.; Kouno, M.; Sakai, K.; Nazakato, T.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Nakai, M.; Norimatsu, T.; Azechi, H.; Yoshikawa, A.; Murata, T.; Fujino, S.; Yoshida, H.; Izumi, N.; Satoh,

- N.; Kan, H. Pr or Ce-doped, fast-response and low-afterglow cross-section-enhanced scintillator with ^{6}Li for down-scattered neutron originated from laser fusion, *J. Cryst. Growth* **2013**, *362*, 288–290.
- [9] Yamanoi, K.; Murata, T.; Arikawa, Y.; Nakazato, T.; Cadatal-Raduban, M.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Nakai, M.; Norimatsu, T.; Nishimura, H.; Azechi, H.; Fujino, S.; Yoshida, H.; Yoshikawa, A.; Satoh, N.; Kan, H. Luminescence properties of Nd^{3+} and Er^{3+} doped glasses in the VUV region, *Opt. Mater.* **2013**, *35*, 1962–1964.
- [10] Laval, M.; Moszynski, M.; Allemand, R.; Cormoreche, E.; Guinet, P.; Odru, R. et al. Barium fluoride inorganic scintillator for subnanosecond timing, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **1983**, *206*, 169–176.
- [11] Shendrik, Y.R.; Radzhabov, A.; Nepomnyashchikh, A.I. Scintillation properties of SrF_2 and $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$ crystals, *Tech. Phys. Lett.* **2013**, *39*, 587–590.
- [12] Mikhailik, V.B.; Kraus, H.; Imber, J.; Wahl, D. Scintillation properties of pure CaF_2 , *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **2006**, *566*, 522–525.
- [13] Yanagida, T.; Kawaguchi, N.; Fujimoto, Y.; Fukuda, K.; Watanabe, K.; Yamazaki, A. et al. Scintillation properties of LiF-SrF_2 and LiF-CaF_2 eutectic. *J. Lumin.* **2013**, *144*, 212–216.
- [14] Yanagida, T.; Fujimoto, Y.; Fukuda, K.; Kawaguchi, N.; Watanabe, K.; Yamazaki, A. et al. Ce-doped LiF-SrF_2 eutectic scintillators for thermal neutron detection produced at different solidification rates. *Opt. Mater.* **2013**, *35*, 1449–1554.
- [15] Moszynski, M.; Allemand, R.; Odru, M.L.R.; Vacher, J. Recent progress in fast timing with CsF scintillators in application to time-of-flight positron tomography in medicine. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **1983**, *205*, 239–249.
- [16] Myasnikova, A.; Radzhabov, E.; Mysovsky, A. *Ab initio* calculation of BaF_2 cross-luminescence spectrum, *J. Lumin.* **2009**, *129*, 1578–1580
- [17] Rodnyi, P.A.; Core-valence luminescence in scintillators, *Rad. Meas.* **2004**, *38*, 343–352.
- [18] Nakazato, T.; Cadatal-Raduban, M.; Yamanoi, K.; Tsuboi, M.; Furukawa, Y.; Pham, M.; Estacio, E.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Fukuda, K.; Suyama, T.; Yanagida, T.; Yokota, Y.; Yoshikawa, A.; Saito, F. $\text{Nd}^{3+}\text{:LaF}_3$ as a Step-Wise Excited Scintillator for Femtosecond Ultraviolet Pulses, *IEEE Transd. Nucl. Sci.* **2010**, *57*, 1208–1210.
- [19] Shinzato, Y.; Yamanoi, K.; Nishi, R.; Takeda, K.; Nakazato, T.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Cadatal-Raduban, M.; Fukuda, K.; Kurosawa, S.; Yokota, Y.; Yoshikawa, A.; Togashi, T.; Nagasono, M.; Ishikawa, T.; Vacuum ultraviolet fluorescence spectroscopy of $\text{Nd}^{3+}\text{:LaF}_3$ using femtosecond extreme ultraviolet free electron laser, *Appl. Phys. Exp.* **2013**, *6*, 022401.

- [20] Furukawa, Y.; Cadatal, M.; Yamanoi, K.; Takatori, S.; Pham, M.; Estacio, E.; Nakazato, T.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Kitano, K.; Ando, K.; Uchiyama, K.; Isobe, Y.; Fukuda, K.; Suyama, T.; Yanagida, T.; Yokota, Y.; Yoshikawa, A.; Saito, F. Development of vacuum ultraviolet streak camera system for the evaluation of vacuum ultraviolet emitting materials, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **2009**, 48, 096503.
- [21] Shigemasa, E. UVSOR Activity Report (2010) p. 25. <https://www.uvsor.ims.ac.jp/eng/activity/2010/>
- [22] Perdew, J.P.; Ernzerhof, M.; Burke, K. Rationale for mixing exact exchange with density functional approximations, *J. Chem. Phys.*, **1996**, 105, 9982-9985.
- [23] Carlo, A.; Barone, V.; Toward reliable density functional methods without adjustable parameters: The PBE0 model, *J. Chem. Phys.*, **1999**, 110, 6158-6170.
- [24] Aryasetiawandag, F.; Gunnarssonddag, O. The GW method, *Rep. Prog. Phys.*, **1998**, 61, 237-312.
- [25] García, A.M.; Valero, R.; Illas, F. An empirical, yet practical way to predict the band gap in solids by using density functional band structure calculations, *J. Phys. Chem. C*, **2017**, 121, 18862-18866.
- [26] Ziesche, P.; Kurth, S.; Perdew, J.P. Density functionals from LDA to GGA, *Comp. Mater. Sci.*, **1998**, 11, 122-127.
- [27] Luong, M.V.; Cadatal-Raduban, M.; Empizo, M.J.F.; Arita, R.; Minami, Y.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Azechi, H.; Pham, M.H.; Nguyen, H.D.; Kawazoe, Y. Comparison of the electronic band structures of LiCaAlF₆ and LiSrAlF₆ ultraviolet laser host media from ab initio calculations, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **2015**, 54, 122602.
- [28] Luong, M.V.; Empizo, M.J.F.; Gabyano, J.L.F.; Minami, Y.; Yamanoi, K.; Shimizu, T.; Sarukura, N.; Pham, M.H.; Nguyen, H.D.; Steenbergen, K.G.; Schwerdtfeger, P.; Cadatal-Raduban, M. Direct band gap tunability of the LiYF₄ crystal through high-pressure applications, *Comp. Mater. Sci.*, **2018**, 153, 431-437.
- [29] Lv, Z.; Cheng, C.; Cheng, Y.; Chen, X.; Ji, G. Elastic, thermodynamic and electronic properties of LaF₃ under pressure from first principles, *Comp. Mater. Sci.*, **2014**, 89, 57-64.
- [30] Shimizu, T.; Luong, M.V.; Cadatal-Raduban, M.; Empizo, M.J.F.; Yamanoi, K.; Arita, R.; Minami, Y.; Sarukura, N.; Mitsuo, N.; Azechi, H.; Pham, M.H.; Nguyen, H.D.; Ichiyanagi, K.; Nozawa, S.; Fukaya, R.; Adachi, S.; Nakamura, K.G.; Fukuda, K.; Kawazoe, Y.; Steenbergen, K.G.; Schwerdtfeger, P. High pressure band gap modification of LiCaAlF₆ *Appl. Phys. Lett.*, **2017**, 110, 141902.

Spray pyrolysis deposition of Al-doped ZnO thin films as potential UV scintillator materials

Erick John Carlo D. Solibet¹, Raymund C. Veloz², Melvin John F. Empizo³, Kohei Yamanoi³, Toshihiko Shimizu³, Elmer S. Estacio¹, Arnel A. Salvador¹, Nobuhiko Sarukura³, and Armando S. Somintac¹

¹ National Institute of Physics, University of the Philippines Diliman, Diliman, Quezon City 1101, Philippines

² Materials Science and Engineering Program, College of Science, University of the Philippines Diliman, Diliman, Quezon City 1101, Philippines

³ Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

INTRODUCTION

Among the potential scintillator materials, bulk zinc oxide (ZnO) crystals have been extensively studied because of their intense UV emissions and picosecond to nanosecond emission lifetimes at room and even higher temperatures [1]. However, despite these excellent properties, bulk crystals are difficult to form into thin micrometer plates which are typically required for high-resolution scintillators. Aside from micrometer thicknesses, potential scintillator materials should have excellent optical properties such as nanosecond to picosecond emission decays for better detection rates and appropriate (blue to UV) emission wavelengths and visible region transparency for spectral matching considerations. Although sparsely investigated, zinc oxide thin films also exhibit excellent scintillation properties which can be further developed to satisfy the conditions for potential scintillator materials.

Different fabrication techniques have then been implemented to produce a wide array of ZnO in the form of films and nanostructures. Among common physical vapor deposition techniques such as magnetron sputtering, pulsed laser deposition (PLD), and molecular beam epitaxy (MBE), the spray pyrolysis technique is one of the most convenient ways to synthesize ZnO films. Spray pyrolysis technique is a simple and versatile method to synthesize ZnO films at relatively low temperatures without any vacuum requirements and accurate gas concentrations. Furthermore, the technique utilizes cost-effective materials while affording ease and flexibility in varying the deposition parameters and doping concentrations.

In this regard, we investigate the optical properties of aluminum (Al)-doped ZnO thin films grown using spray pyrolysis technique. Al has been chosen as a dopant to further improve the ZnO emission lifetimes. More specifically, this work aims to identify and compare the photoluminescence (PL) emissions of

undoped and Al-doped ZnO thin films, to identify the effects of Al-doping on the thin film's optical emission, and to evaluate the viability of Al-doped ZnO thin films as potential scintillating materials.

METHODOLOGY

Undoped and Al-doped ZnO thin films were deposited on seeded glass substrates using spray pyrolysis technique. The glass substrates were then set on a digital hot plate which was placed 30 cm from the spray pyrolysis setup. This setup included an atomizer which sprays the substrates automatically with the precursor solution through a 0.5 mm nozzle every 15 s. For the seed layer preparation, the substrates were sprayed with 50 mL 50 mM zinc acetate dihydrate $[Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O, ZnAc]$ solution while being maintained at 350 °C for 60 min. The seeded substrates were subsequently annealed at 350°C for 20 min in ambient air to improve the seed layer crystallinity. For the undoped thin film preparation, a seeded substrate was sprayed with 200 mL ZnAc solution while also being maintained at 350 °C for 60 min. After film deposition, the sample was cooled naturally to room temperature before subsequent characterization. On the other hand, for the Al-doped thin film preparation, a similar method was implemented but with aluminum chloride ($AlCl_3$) being first added to the ZnAc solution. The appropriate amounts of $AlCl_3$ were based on the calculated molar percentage (mol %) concentration of Al ions present in the final 200 mL precursor solution. Samples with 3 and 5 mol % Al-doping concentrations were fabricated along with the undoped ZnO thin film.

PL spectroscopy was performed to investigate the undoped and Al-doped ZnO thin films deposited via spray pyrolysis technique. The experimental characterization was conducted using the frequency-tripled (290 nm) output of a Ti:sapphire laser system which was focused on the sample at an angle of 45° from the normal. For time-integrated PL (TIPL)

spectroscopy, the sample emission was collected through reflection geometry and was fiber-fed to a handheld spectrometer. For time-resolved PL (TRPL) spectroscopy, the sample emission was focused on an imaging spectrograph which was coupled to a streak camera and a high-resolution digital CCD camera. The spectral and temporal resolutions of the TIPL and TRPL setups were 1 nm and 10 ps, respectively. All spectroscopy measurements were obtained at room temperature.

RESULTS

Figure 1 shows the normalized TIPL spectra of the undoped and Al-doped ZnO thin films deposited via spray pyrolysis technique. The undoped and Al-doped films exhibit similar intense UV emissions and broad visible emissions around 381 nm (UV) and 540 nm (green), respectively. The UV emissions, which correspond to the near-band-edge emission of ZnO [1], are similar for the undoped and Al-doped samples. Considering the spectral resolution and fitting deviation, the UV emissions do not shift nor broaden with increasing doping concentration, and the peak positions and spectral linewidths remain constant around 381 and 28 nm, respectively. On the other hand, the visible emissions, which are associated with defects or impurities [1], slightly increase in intensity with Al-doping. Compared to the undoped sample, the 3 and 5 mol % Al-doped thin films have visible emissions which are higher by one order of magnitude. These results indicate that the undoped and Al-doped ZnO thin films fabricated by spray pyrolysis technique exhibit intense UV emissions and that Al-doping results in an increase in the films' defect-related visible emission intensities.

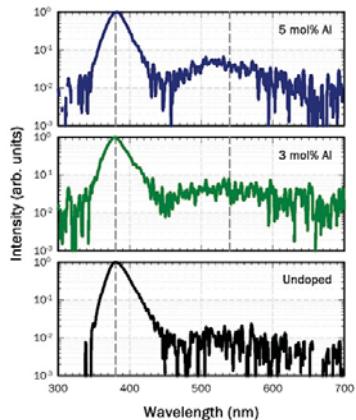


Fig. 1. TIPL spectra of undoped and Al-doped ZnO thin films deposited via spray pyrolysis technique

Figure 2 shows the normalized UV emission temporal profiles of the undoped and Al-doped ZnO thin films deposited via spray pyrolysis technique. Exponential functions are fitted to each profile to determine the corresponding emission lifetimes. Instead of the usual double exponential functions, the decaying parts of all profiles fit well to single exponential functions. The undoped, 3 mol % Al-doped, and 5 mol % Al-doped thin films have UV emission lifetimes of 28,

20, and 23 ps, respectively. The fast lifetimes are comparable to those of hydrothermal-grown ZnO nanorods (24 ps) [2] and intentionally doped bulk ZnO single crystals (15 to 130 ps) [3, 4] and can be largely attributed to the effective nonradiative recombination with the activation of nonradiative centers at room temperature [5-7]. Considering the instrumental resolution and fitting deviation, all samples exhibit similar emission lifetimes of 20 to 30 ps. These results reveal that the undoped and Al-doped ZnO thin films fabricated by spray pyrolysis technique exhibit fast picosecond UV emissions and that Al-doping does not affect UV emission lifetimes of the fabricated thin films.

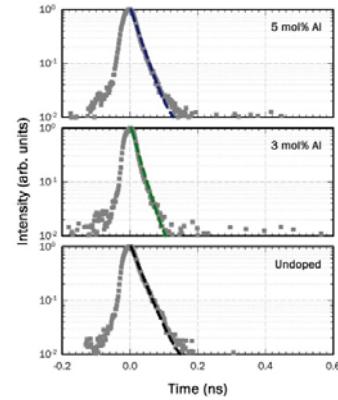


Fig. 2. UV emission temporal profiles of undoped and Al-doped ZnO thin films deposited via spray pyrolysis technique.

SUMMARY

We have reported the optical properties of Al-doped ZnO thin films deposited via spray pyrolysis technique. Both undoped and Al-doped thin films exhibit intense picosecond (< 30 ps) emissions in the UV region (381 nm). Additional investigations are currently underway to elucidate a precise relationship between Al-doping and optical properties of ZnO thin films. Our present findings nonetheless suggest that the spray-pyrolysis-deposited and intentionally-doped ZnO thin films can be used as ultrafast UV scintillators.

ACKNOWLEDGEMENT

This work was supported by the Osaka University Institute of Laser Engineering through the Collaborative Research for the Laser Energetics Program Grant No. 2019B1-SOMINTAC.

REFERENCES

- [1] H. Morkoç and U. Özgür, Zinc oxide: Fundamentals, materials and device technology (Wiley-VCH, Weinheim, 2009).
- [2] M. C. M. Angub et al., *J. Lumin.* **203**, 427 (2017).
- [3] T. Shimizu et al., *Appl. Phys. Express* **4**, 062701 (2011).
- [4] M. Kano et al., *J. Cryst. Growth* **318**, 788 (2011).
- [5] U. Özgür et al., *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3223 (2004).

- [6] W. M. Kwok et al., *Appl. Phys. Lett.* **87**, 223111 (2005).
- [7] T. Koida et al., *Appl. Phys. Lett.* **82**, 532 (2003).

メタマテリアルを活用した新たなテラヘルツ波発生素子の開発 (Development of new THz wave emission devices using metamaterial structures)

谷 正彦¹, 館岡 千鶴佳¹, Miezel Talara¹, Valynn Mag-Usara¹,
北原 英明^{1,2}, 古屋 岳¹, 中嶋 誠²

¹ 福井大学 遠赤外領域開発研究センター

² 大阪大学 レーザー科学研究所

1. はじめに

スピントロニックテラヘルツ (THz) 波発生素子は磁性(Ferro-magnetic)金属と非磁性(Non-magnetic)金属の薄膜2重層構造を持ち、光励起により磁性金属中で発生したスピントリオ流が非磁性金属に流れる際に、逆スピントリオホール効果による実電流が誘起されることを利用して THz 波を発生させる(Fig.1 参照)。1~1.6 μm 帯のファイバーレーザーを励起光源として利用でき[1]、素子構造が簡単で、大面積励起が可能であるなど、テラヘルツ波発生素子として有利な特性を備えている[2]が、従来から用いられている光伝導アンテナの効率にはまだ及ばないため、THz 波発生効率の改善が課題となっている。

本研究の目的は、光励起によるスピントリオ流を利用した高効率、広帯域なテラヘルツ (THz) 波発生素子 (スピントロニック THz 波発生素子) の開発である。そのために材料開発、薄膜構造の最適化、および素子形状にアンテナ構造やメタマテリアル構造を導入することによる放射効率の改善に取り組んでいる。アンテナ構造を導入することで、THz 波放射の空間への結合効率の改善および方向ゲインの改善を行うことができる。またメタマテリアル構造を導入することで、発生するテラヘルツ波の周波数を制御したり、メタマテリアル構造の共鳴周波数付近での発生効率を増強することを目指す。

前年度 (2018 年度) の共同研究では、磁性金属として Fe を、非磁性金属として Pt を用いたスピントロニック THz 波発生素子 (Fe/Pt 素子) の膜厚依存性および励起波長依存性などについての評価を行った。今年度 (2019 年度) の共同研究では、磁性金属

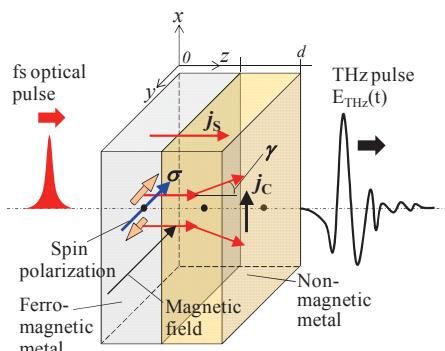


Fig. 1. Schematic diagram of spintronic THz emission from a bilayer consisting of ferromagnetic (FM) and non-magnetic (NM) thin films.

として Co を、非磁性金属として Pt を用いたスピントロニック THz 波発生素子 (Co/Pt 素子) の膜厚依存性、および Fe/Pt 素子との THz 波発生効率の比較を行った。

2. 素子作成および評価装置

Table 1 に示す 3 種類 (4 個) の Co/Pt 素子を試作した。基板には融解石英 (厚さ 0.5mm) を用い、室温下、超真空中でレーザースパッタリング法によって成膜した。比較に用いた Fe(2nm)/Pt(3nm) 素子は佐賀大学の郭其新教授のグループにより MgO 基板 (厚さ 0.5mm) 上に電子ビーム蒸着法により成膜したものである。

素子評価にはモード同期チタンサファイアレーザー (パルス幅が約 80 fs, 繰り返し周波数 82 MHz, 中心波長が 800 nm) を励起光源とするテラヘルツ時間領域分光システムを用いた。スピントロニック素子からの THz 波検出には LT-GaAs 基板のダイポール型光伝導アンテナを用いた。

Table 1. Spintronic THz devices made with Co/Pt bilayers

Sample No.	1	2	3	4
Co thickness [nm]	10	10	5	5
Pt thickness [nm]	2.5	5	5	5

3. 素子の評価結果

Fig. 2 に Co(10nm)/Pt(2.5nm) の素子 (Sample 1) と Co(10nm)/Pt(2.5nm) の素子 (Sample 2) からの THz 放射波形の比較を示す。この実験では、素子には Si 製の超半球レンズを装着 (基板側が Si レンズの平坦面に接触) し、約 15mT の磁場を印加し、平均 20mW のポンプ光を非磁性体側から入射させ測定を行った。この結果より Pt 膜厚は 2.5nm よりも 5nm の場合の方が THz 波放射効率が高いことがわかる。

Fig. 3 に Co(10nm)/Pt(5nm) の素子 (Sample 2) と Co(5nm)/Pt(5nm) の素子 (Sample 3 および Sample 4) からの THz 放射波形の比較を示す。この測定では、平均パワー 40 mW のポンプ光を非磁性体の Pt 側から入射し、基板側に放射される THz 波を測定した。

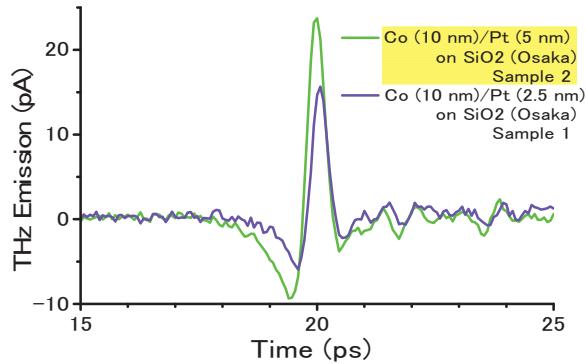


Fig. 2. THz emissions from Co(10nm)/Pt(2.5nm) (Sample 1) and Co(10nm)/Pt(5nm) (Sample 2) with Si hyper-hemispherical lens. The pump power was 20 mW.

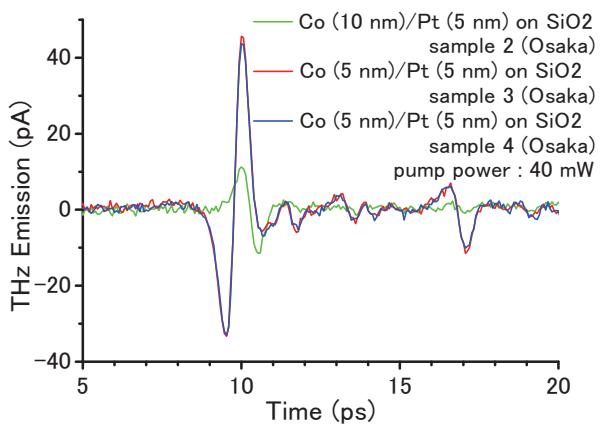


Fig. 3. THz emissions from Co(10nm)/Pt(5nm) (Sample 2), Co(5nm)/Pt(5nm) (Sample 3), and Co(5nm)/Pt(5nm) (Sample 4) without Si hyper-hemispherical lens. The pump power was 40 mW.

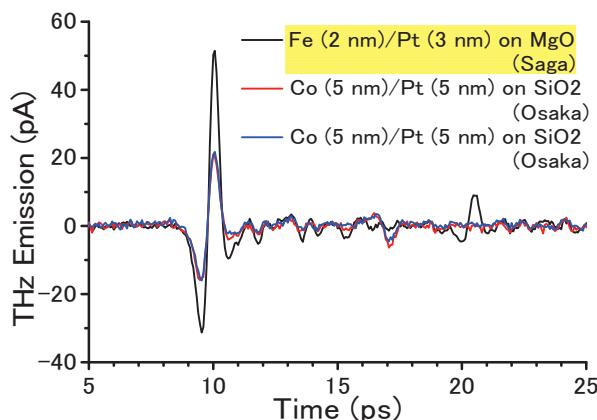


Fig. 4. THz emissions from Fe(2nm)/Pt(3nm) (from Saga University), Co(5nm)/Pt(5nm) (Sample 3), and Co(5nm)/Pt(5nm) (Sample 4) without Si hyper-hemispherical lens. The pump power was 20 mW.

また超半球 Si レンズは用いなかった。この結果から Co 膜厚 5nm、Pt 膜厚 5nm の場合のほうが、Co 膜厚 10nm、Pt 膜厚 5nm の場合よりも THz 波放射効率が高いことがわかる。以上の結果から Co/Pt 素子の最適な膜厚は、Co 膜厚約 5nm、Pt 膜厚約 5nm であるといえる。

Fig. 4 に Fe(2nm)/Pt(3nm) の素子（佐賀大学提供）と Co(5nm)/Pt(5nm) の素子（Sample 3 および Sample

4) からの THz 放射波形の比較を示す。この測定では平均パワー 40 mW のポンプ光を非磁性体の Pt 側から入射した入射し、基板側に放射される THz 波を測定した。また超半球 Si は用いなかった。この結果から膜厚が最適化された Fe/Pt 素子と Co/Pt 素子では、前者のほうが THz 波放射効率が高いことがわかる。ただし、THz 波放射効率は用いる基板や、成膜方法によっても大きく異なることが知られており、必ずしもこの結果が、材料特性として、Fe/Pt 素子のほうが Co/Pt 素子よりも THz 波放射効率が良いことを示しているとは限らないことに注意すべきである。

4. 構造を持った素子の設計・試作

素子形状が放射効率および放射スペクトルに与える影響を調べるために、Fig. 5 に示す形状の Co(5nm)/Pt(5nm) 薄膜素子を設計、試作した。今後これらの素子の評価を行い、次いでより複雑なメタマテリアル構造の設計と試作を行う。

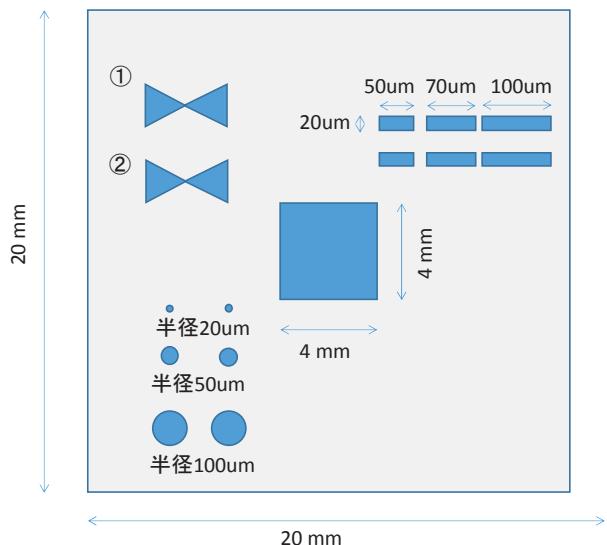


Fig. 5. Structures designed and fabricated Co(5nm)/Pt(5nm) spintronic bilayer devices on a fused silica substrate (thickness 0.5mm). The diabolo structure ① and ② has a length of 2 mm and the narrowest width is 50 μm and 200 μm, respectively.

4. まとめと今後の展望

本年度に行った素子の試作およびその評価結果から、基板と成膜方法に違いがあるものの、膜厚最適化した条件では、Co/Pt 素子よりも、Fe/Pt 素子のほうが THz 波放射効率が高いことが分かった。今後は Fe/Pt 素子と Co/Pt 素子それぞれにアンテナ構造およびメタマテリアル構造を導入し、THz 波放射効率および放射スペクトルに与える影響を評価する。

REFERENCES

- [1] Papaioannou, *et al*, IEEE Trans. Magnetics, **54**, 9100205 (2018).
- [2] Torosyan, *et al*, Scientific Reports, **8**, 1311 (2018).

積層型メタルスリットアレイにおけるブルーシフトモードとスペクトル異常

徳田安紀¹⁾, 坂口浩一郎¹⁾, 渡辺将伍²⁾, 中嶋誠³⁾

- 1) 岡山県立大学 情報工学部 情報通信工学科
2) 岡山県立大学大学院 情報系工学研究科 システム工学専攻
3) 大阪大学 レーザー科学研究所

1. はじめに

金属板に周期的に貫通した溝を切ったメタルスリットアレイは、そのスリット周期が電磁波の波長より短いとき、たとえその体積のほとんどを金属が占めても誘電体のような性質を示すことが知られている[1,2]。しかし、この擬似的な誘電体からなる積層構造における光学共鳴モードの振舞いは、必ずしもそれと等価な誘電体多層膜と同じではない[3-6]。

我々は、このような人工誘電体系が示す特異な性質をテラヘルツ波の制御に応用することを検討している[6-11]。本研究では、メタルスリットアレイで空気層を挟んだ構造の透過特性において、偶数次の共鳴モードが示すブルーシフト現象[3]に注目し、その振舞いに対する物理的メカニズムをシミュレーションを用いて明らかにした。

2. 構造とシミュレーション方法

図1に検討したメタルスリットアレイ構造の模式図を示す。上下のスリットアレイの構造は同一で、スリットの高さを h 、周期を d 、幅を w とし、上下のアレイ間のエアギャップ幅を s とした。

本研究では、時間領域有限差分 (Finite-Difference Time-Domain: FDTD) 法を用いて、金属部を完全導体と仮定し、 y 方向の磁場成分をもつ TM 波を z 方向に沿って垂直に入射させた場合の透過特性をいろいろなスリット幅に対してシミュレーションした。

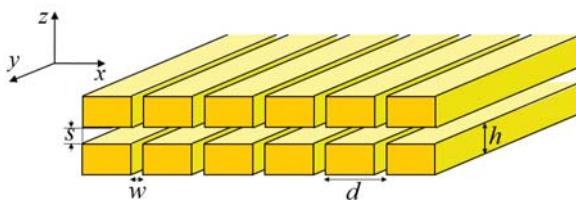


図1 二段型のメタルスリットアレイ構造

3. 結果と考察

3-1 ブルーシフトモードに対する臨界周波数

図2は、 $h = 1000 \mu\text{m}$ 、 $d = 500 \mu\text{m}$ 、 $w = 100 \mu\text{m}$ のメタルスリットアレイの二段構造に対する透過スペクトルのエアギャップ幅 s 依存性を示したものである。 c/d で与えられる回折限界周波数 f_{RW} 以下で強い共鳴モードがみられるが、 f_c で示した周波数以上で4次モードは二つのモードに分裂し、6次モードはエ

アギャップが広がるにつれ、その周波数が高くなっている、すなわちブルーシフトしていることが分かる。また、 s が 125 と $220 \mu\text{m}$ 付近でみられるモード消失現象は、ブルーシフトした4次と6次の偶数次モードが、それぞれ、その上の5次と7次の奇数次モードと周波数的にぶつかり、破壊的な干渉によって生じている[4]。

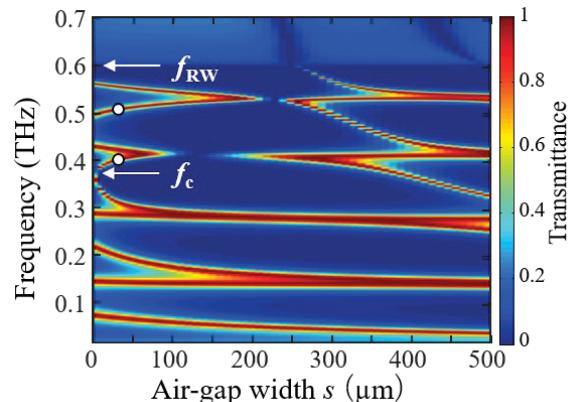


図2 透過スペクトルのエアギャップ幅依存性

最近の研究で、我々はこの臨界周波数 f_c が

$$f_c = c/2(d-w) \quad (1)$$

で表されることが示した[5]。ここで、 f_c に対応する偶数次モードのブルーシフトに対する臨界波長を λ_c とするとき、(1)式は、

$$\lambda_c/2 = d - w \quad (2)$$

と書き替えられる。(2)式から、ブルーシフトが生じるためには、共鳴波長の半分がメタルで上下を挟まれた導波路部分に収まる必要があることが分かる。

本研究では、この臨界周波数 f_c に関する物理的意味を視覚的に理解するために、FDTD シミュレーションにより磁場分布 H_y を計算した。図3に、図2において白丸でマークした位置の4次と6次モードに対する磁場分布の計算結果を示した。ここで、図中の矢印はスリットを繋ぐ横方向の導波路における磁場分布の節の位置を示す。

(2)式より、 f_c から高く離れた共鳴モードほどその半波長はメタルの部分の長さ $d - w$ より短くなり、分布の節の位置は導波路内に入り込むことが予想さ

れる。実際に、 f_c に近い4次モードに対する節の位置は導波路端に非常に近い位置にあるが[図3(a)]、 f_c より十分高い6次モードの節の位置は導波路内にかなり入り込んでいることが確認できる[図3(b)]。

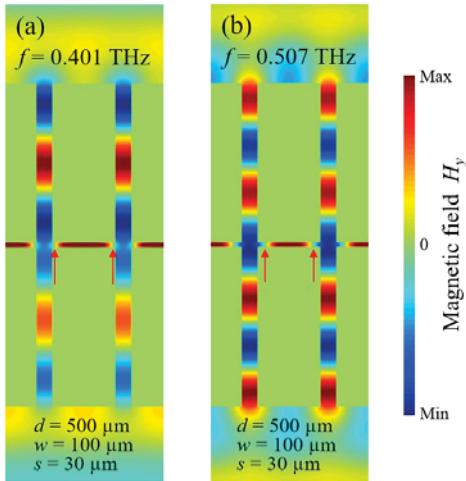


図3 共鳴モードの磁場分布 (H_y)。(a) 4次モード (0.401 THz)と(b) 6次モード (0.507 THz)。

3-2 透過スペクトルにおける異常

次に、わずかにギャップを開いた状態に対する透過スペクトルについて調べた。図4に、 $h = 1000 \mu\text{m}$, $d = 500 \mu\text{m}$ で、いろいろなスリット幅 w に対する $s = 0.4 \mu\text{m}$ の透過スペクトルを示す。図中に矢印で示したように、 w が 10 から 250 μm のスペクトルにおいて通常の透過スペクトルではみられない異常なディップがみられた。その周波数は w が広くなるにつれて上昇し、 w がスリット周期 d の半分の 250 μm で 0.6 THz、すなわち回折限界周波数 f_{RW} にほぼ一致している。そして、 $w = 300 \mu\text{m}$ では f_c は f_{RW} を超えるため確認できなくなっている。一方、 w が 0 に近づけば、 f_c は 0.3 THz、すなわち、 $f_{RW}/2$ に近づいていくように見える。

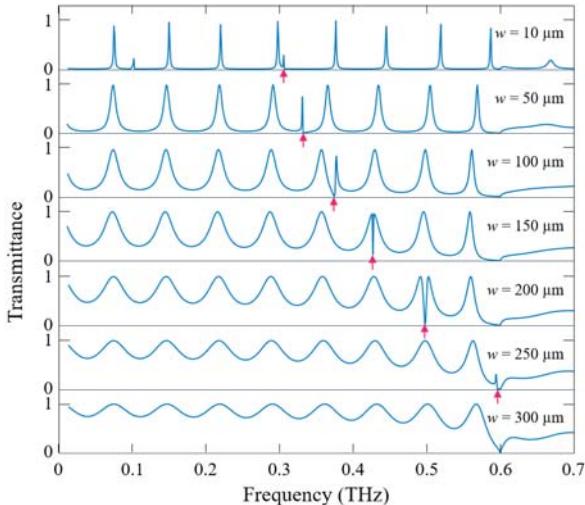


図4 透過スペクトルのスリット幅依存性 ($s = 0.4 \mu\text{m}$)

図5は、(1)式と図4のスペクトルから読みとった f_c の値をプロットしたもので、全ての w の値に対し

て極めてよく一致していることが分かる。これより、透過スペクトルにみられる異常なディップは偶数次モードのブルーシフトに起因していることが分かった。

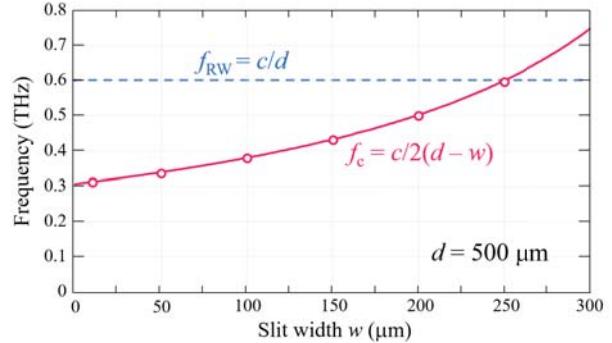


図5 偶数次モードのブルーシフトに対する臨界周波数 f_c のスリット幅依存性

4.まとめ

スリットの回折限界周波数以下で擬似的な誘電体とみなせるメタルスリットアレイからなる積層構造の透過特性のスリット幅依存性についてシミュレーションを用いて調べた。多段化したときに生じる偶数次モードのブルーシフトに対する臨界周波数を与える式の意味を磁場分布の計算から視覚的に明らかにした。また、透過スペクトルに現れる異常なディップの周波数は、その臨界周波数に一致することを示した。

謝辞

本研究の一部はJSPS科研費JP16K04982助成を受けて行った。

【参考文献】

- [1] J. T. Shen, P. B. Catrysse, and S. Fan, Phys. Rev. Lett., **94**, 197401 (2005).
- [2] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, K. Takano, T. Fukushima, and M. Hangyo, J. Appl. Phys. **115**, 243104 (2014).
- [3] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, K. Takano, Y. Yamaguchi, and T. Fukushima, Appl. Phys. Express, **9**, 032201 (2016).
- [4] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, Y. Yamaguchi, and K. Takano, AIP Advances **7**, 035209 (2017).
- [5] Y. Tokuda, K. Takano, K. Sakaguchi, K. Kato, M. Nakajima, and K. Akiyama, J. Appl. Phys. **123**, 183102 (2018).
- [6] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, S. Watanabe, K. Kato, K. Takano, M. Nakajima, and K. Akiyama, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 122004 (2019).
- [7] Y. Tokuda, H. Takaiwa, K. Sakaguchi, Y. Yakiyama, K. Takano, K. Akiyama, T. Fukushima, and M. Hangyo, Appl. Phys. Express, **5**, 042502 (2012).
- [8] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, K. Takano, T. Fukushima, and M. Hangyo, AIP Advances **2**, 042112 (2012).
- [9] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, T. Nishihara, K. Takano, T. Fukushima, and M. Hangyo, Appl. Phys. Express, **6**, 062602 (2013).
- [10] Y. Tokuda, K. Takano, Y. Yamaguchi, K. Sakaguchi, and M. Nakajima, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 030306 (2017).
- [11] Y. Tokuda, K. Takano, K. Sakaguchi, K. Kato, M. Nakajima, and K. Akiyama, AIP Advances **8**, 095305 (2018).

CW ファイバーレーザーを用いた加工

藤田雅之^{a,b}, 染川智弘^{a,b}, 河仲準二^b

^a レーザー総研, ^b 阪大レーザー研

はじめに

近年、ファイバーレーザーの高出力化と共に高輝度化が進み、連続波(CW)であっても $10\sim10^3$ W/cm² の照射強度を容易に実現することが可能となってきている。従来は加熱用光源としての CW レーザーであったが、光源の高輝度化によりアブレーションを伴う除去加工用としても使うことができるようになっている。

また、高速掃引を可能とするガルバノスキャナが市販されており、CW レーザーであっても試料に対してパルス的なレーザー照射を行うことができる。例えば、直径 1 mm のスポットを 10,000 mm/s で掃引すると、試料が感じるレーザー照射時間は 100 μs となる。ガルバノスキャナはパソコンで制御され、テンキーとマウスクリックで簡単に掃引速度を 4~5 衍にもわたって変えることができる。CW レーザーと高速掃引を組み合わせたプロセス技術が注目を集めている。

表面クリーニング

木材の塗装除去例を紹介する。図 1(a)に塗装前の木材(松)の表面、(b)に塗装後の表面を示す。この塗装面にスポット径 2 mm^Φで 154 W の CW レーザー光を集光し、掃引速度 2,250 mm/s で 20 mm 角の領域を照射した。試料が受けた照射パルス幅は約 0.9 ms に相当する。図 1(c)に照射時の様子を示す(30 fps の動画の一コマ)。炎が吹き上がって塗膜が除去されている状況が確認できる。図 1(d)に照射後の表面を示す。図 1(a)と比べると若干着色が見られるが、極端な炭化は起きていない。

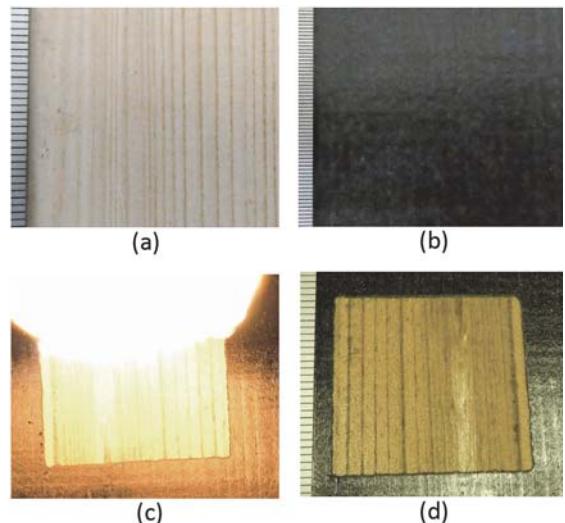


図 1 (a) 塗装前の木材(松)の表面、(b) 塗装後の表面、(c) レーザー照射中の様子、(d) レーザー照射後の表面。レーザースポット径は約 2 mm。

それでは、掃引速度を変えるとどうなるであろうか? 図 2 に同じ試料に対して掃引速度を 225~4,500 mm/s まで変化させて 154 W の CW レーザーを照射した結果を示す。掃引速度が遅い場合は木材の炭化が見られ、早すぎると塗装の除去が不完全となる。最適な条件を選ぶことにより、下地の材料を再利用可能な状態で塗膜の除去を行うことができる。

興味深いことに、図 2 (c)と全く同じ条件で錆び付いた鉄板にレーザーを照射すると、綺麗にサビが除去できることが確認された。試料の状態を図 3 に示す。高輝度の CW レーザーと高速掃引技術を組み合わせることで様々な試料の表面除去(表面のアブレーション加工)が可能となることが分かる。

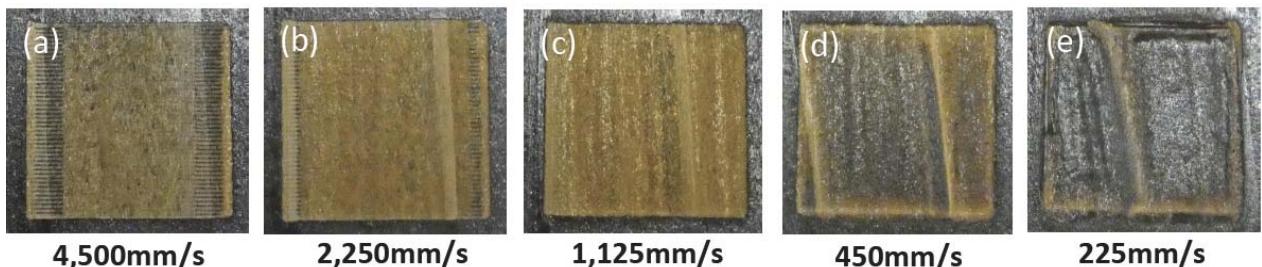


図 2 黒色に塗装された木材(松)に対して CW レーザーを掃引速度 (a) 4,500 mm/s、(b) 2,250 mm/s、(c) 1,125 mm/s、(d) 450 mm/s、(e) 225 mm/s で照射した結果。レーザースポット径は約 1 mm。



図3 図2(c)と同じ条件で鉄板のサビを除去した試料の表面写真。

コンクリートの溶融ビード形成

CW ファイバーレーザーの主要な用途として金属部材の溶接が挙げられる。同様のことをコンクリート等に対して行うことができるのでしょうか？コンクリートはセメントと骨材を混ぜて固めたものであり、その主成分はシリカ (SiO_2) である。レーザー光で溶融させることによりガラス化を誘起し、部材同士を接合できることが期待される。

金属溶接の条件出しにおいて、材料表面にビード（溶融部の盛り上がり）を形成して、その形成状態を確認する手法がある。同様のことをコンクリートに対して行ってみた。100 W のレーザー光を集光し掃引速度を変えながらビード形成を試みた。図7に掃引速度を、(a) 22.5 mm/s、(b) 11.3 mm/s、(c) 4.5 mm/s、(d) 2.3 mm/s、(e) 1.13 mm/s、(f) 0.45 mm/s と変えながら形成した溶融ビードの写真を示す。スポット径は 0.6 mm^φ であるため、照射強度は 35 kW/cm² となる。掃引速度 4.5 mm/s の場合、フルーエンスは約 4 kJ/cm² に相当する。図5に同じ加工試料表面を拡大して観察した合成写真（図4の(a), (c), (e)に相当）を示す。掃引速度が遅くなるに従って単位面積当たりの入熱量が増え、ビードの幅が広がりガラス化した盛り上がりが確認できた。

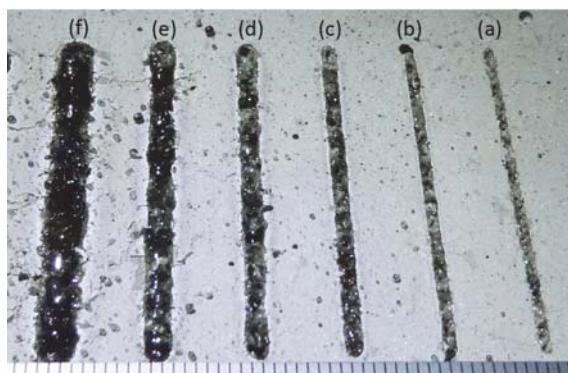


図4 掃引速度を (a) 22.5 mm/s、(b) 11.3 mm/s、(c) 4.5 mm/s、(d) 2.3 mm/s、(e) 1.13 mm/s、(f) 0.45 mm/s と変えながら形成したコンクリートの溶融ビード。

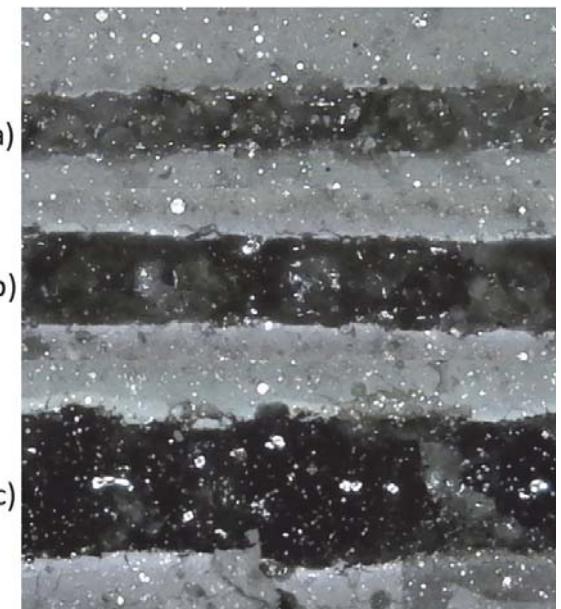


図5 図4(a), (c), (e)に相当するビードの拡大写真：掃引速度は(a) 22.5 mm/s、(b) 4.5 mm/s、(c) 1.13 mm/s。

まとめ

高速掃引を利用すると、CW レーザーであっても試料に対してパルス的なレーザー照射を行うことができる。例えば、直径 1mm のスポットを 10,000 mm/s で掃引すると、試料が感じるレーザー照射時間は 100 μs となる。見方を変えれば、CW レーザー光とガルバノスキャナを組み合わせ、掃引速度を変えることで試料に照射するフルーエンスを幅広く変化させることができると見える。先の例では、レーザー出力 100 W に対して照射フルーエンスは $100 \text{ W} \times 100 \mu\text{s} \div 1\text{mm}^2$ から、約 1.3 J/cm² に相当することになる。高輝度ファイバーレーザーはアブレーションを伴う除去加工用光源としても使うことができるようになり、その利用範囲を拡大しつつある。

謝辞

本研究の一部は大阪大学レーザーエネルギー学研究センターの共同利用・共同研究「超短パルスレーザーの開発、制御、ならびにその応用」のもとに実施された。

非平衡プラズマ中に発生する無衝突衝撃波を用いた陽子加速

福田祐仁¹、太田雅人²、江頭俊輔²、中川義治²、Tatiana Pikuz³、坂和洋一²

1. 量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所
2. 大阪大学レーザー科学研究所
3. 大阪大学先導的学際研究機構

INTRODUCTION

1990 年代後半から始まったレーザーイオン加速研究においては、現在に至るまで様々な加速手法が試みられているが、これが最適と誰もが認めるイオン加速手法は未だ定まっていない。一方、自然界において、宇宙に存在する天然のプラズマ加速器は、無衝突衝撃波を上手く利用することで荷電粒子を加速し、高エネルギー宇宙線を生み出している。従って、地上でレーザーを物質に照射して人工的に作り出したプラズマの中での粒子加速を効率よく行うのであれば、自然が採用する無衝突衝撃波加速 (Collisionless Shock Acceleration: CSA) の原理を利用することによって最も効率よく加速が行えるであろうと予想される。近年、ピコ秒～ナノ秒パルスレーザーを用いた無衝突衝撃波加速に関する研究が行われてきているが[1, 2]、フェムト秒パルスレーザーを用いた研究は、ほとんど行われていない。フェムト秒パルスレーザーは、より急峻な無衝突衝撃波を非平衡プラズマ中に発生させることが出来る事から、従来のピコ秒～ナノ秒パルスレーザーを用いた無衝突衝撃波加速では見られない加速機構が発現する可能性があり、興味深い。

本研究では、未踏領域と言える、フェムト秒パルスレーザー照射によって発生する非平衡プラズマ中に形成される無衝突衝撃波を用いて陽子（及び、炭素などの重イオン）を加速する手法の探索を行う。本研究は、「レーザー駆動粒子加速」と「レーザー宇宙物理学」の専門家がその物理的知見と独自技術を統合することを試みるものであり、これにより、宇宙線の加速機構の未解決問題についての理解の一助になることも期待される。

研究方法

昨年度、量研関西研 J-KAREN-P レーザー[3]と CH ターゲットを用い、レーザーエネルギー、及び、レーザーコントラストを変化させ、CSA に最適な密度・スケール長を持つプラズマを生成させ、イオンのエネルギースペクトルをトムソンパラボラで計測した。準単色の陽子線、及び、炭素線のエネルギースペクトルの観測に成功し、CSA が起こっていることを示唆する結果が得られている（図 1 参照）。この結果を踏まえ、今年度の実験においては、J-KAREN-P

から切り出したポンプレーザーで薄膜ターゲットを電離し、レーザーエネルギー、及び、レーザーパルス幅を変化させ、CSA に最適な密度・スケール長を持つプラズマを生成させた。J-KAREN-P メインレーザー ($\sim 5 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$) をこのプラズマに照射する事によって衝撃波を生成させ、陽子線、及び、炭素線を加速した。加速された電子とイオンのエネルギースペクトルをそれぞれ電子スペクトロメータ、及び、トムソンパラボラで計測した。また、C1 を含んだ薄膜 (CHCl) を用いた衝撃波加速を行い、C1 多価イオンが発する X 線を高分解能 X 線分光器で計測し、プラズマ温度・密度に関する情報を得ることで、衝撃波発生に関わる知見を得ることを試みた。

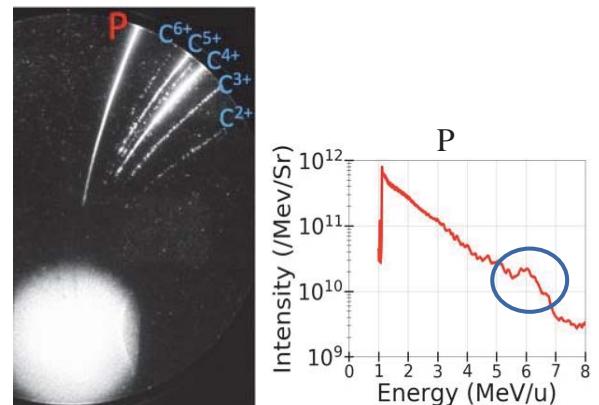


図 1. 2018 年度の J-KAREN 実験により得られた加速イオンのリアルタイム型トムソンパラボラによる観測画像（左）。陽子線のエネルギースペクトル（右）。6 MeV 付近に準単色イオンが存在することが確認できる。

結果

実験を 2020 年 2 月に実施した J-KAREN-P レーザー実験では、レーザーパラメータの変化に呼応した準単色イオン発生が見受けられた。また、高分解能 X 線スペクトルには、C1 多価イオンが発する X 線が観測され、レーザーパラメータの変化に呼応して、スペクトル形状に変化が見られた。実験データ解析に着手したばかりであるため、現時点では公表できるデータはない。今後、流体コード、および、粒子コー

ドを用いた計算機シミュレーションの結果と比較検討し、研究成果を学会等の場で公表してゆく予定である。

他の研究成果と今後の見通し

水素クラスター[4]を用いた J-KAREN-P レーザーによる、CSBA (= Converging Shock-induced Blow-off Acceleration) の原理[5]にもとづいた準単色高純度陽子線加速実験では、来年度以降、新たにカーテンを用いた fs オーダーの時間分解能を有する時間分解プラズマ発光計測を実施することを計画している。

上記研究以外では、激光 XII 号レーザーを用いた磁気リコネクション[6]によるイオン加速研究において、CR-39 検出器に観測されたエッヂピットの解析を進めた。その結果、窒素ガス 0.1 Torr をチャンバーに封入した際、キャパシターコイル[7]で発生した磁場により、1 MeV 程度の窒素イオンが加速されていることを示唆する結果が得られた。今後、さらなるデータ解析と追実験を予定している。

REFERENCE(S)

- [1] D. Harberberger. et al., *Nature Phys.* **8**, 95 (2012).
- [2] R. Kumar, et al., *Phys. Rev. ACCEL. BEAMS* **22**, 043401 (2019).
- [3] H. Kiriyama, et al., *Optics Letters* **43**, 2595 (2018).
- [4] S. Jinno et al., *Optics Express* **25**, 18774 (2017).
- [5] R. Matsui et al., *Phys. Rev. Lett.* **122**, 014804 (2019).
- [6] M. Hoshino and Y. Lyubarsky, *Space Sci. Rev.* **173**, 521 (2012).
- [7] S. Fujioka et al, *Sci. Rep.* **3**, 1170 (2013).

超短パルスレーザー加工の統合シミュレーションコードの開発

古河裕之¹⁾、長友英夫²⁾、三間國興³⁾、矢花一浩⁴⁾、藤田和久³⁾

¹⁾ レーザー総研、²⁾ 阪大レーザー研、³⁾ 光産創大、⁴⁾ 筑波大学計算科学研究中心

1. はじめに

超短パルスレーザー加工では、レーザーの吸収は厚さ數十 nm の層で生じ、ピコ秒のオーダーで変化する混相状態物質と、超短パルスレーザーとの相互作用の理解が重要である。この吸収過程とその後の輻射流体運動の結果である、アブレーションや溶融層の生成と凝固を記述する統合シミュレーションコードの開発を目指す。図1は、開発する統合シミュレーションコードの構造である。

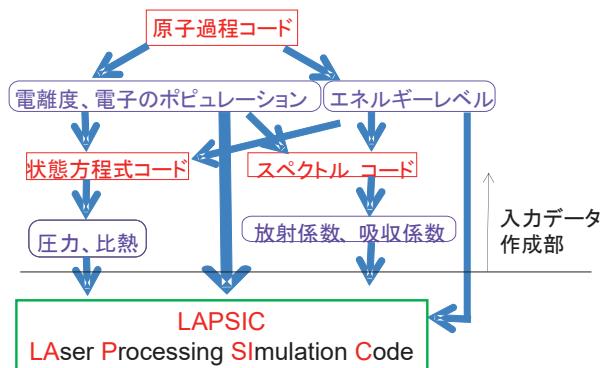


図1 開発する統合シミュレーションコードの構造

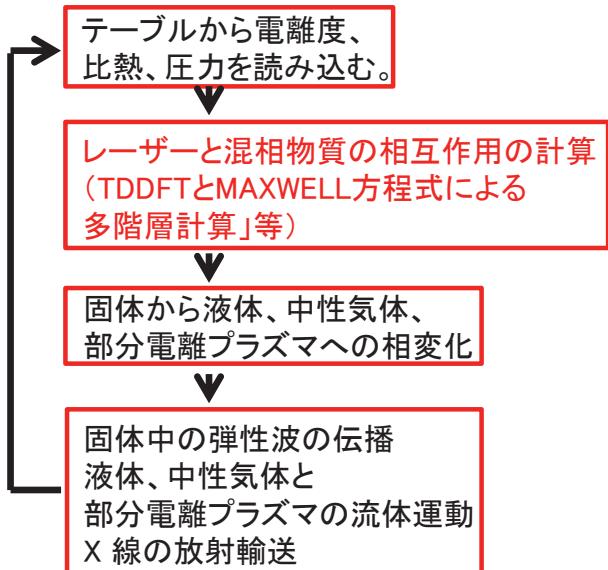


図2 LAPSIC シミュレーションの流れ

図2は、LAPSIC シミュレーションの流れであり、図3は、レーザー加熱に伴って生成される多階層状態の構造の1例である。

統合シミュレーションコードの開発においては、極めて重要な役割を果たしている混相状態とレーザーの相互作用の物理を解明し、モデル化することにより、色々な照射条件での短パルスレーザー加工に適用可能なシミュレーションコードの開発を目指す。

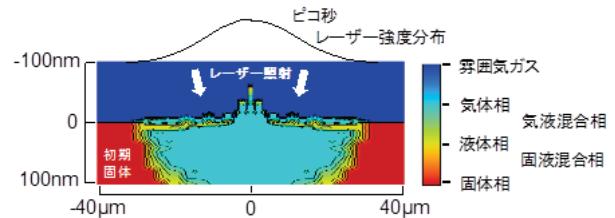


図3 レーザー加熱に伴って生成される
多階層状態の構造の1例

本年度は、固体とレーザーの相互作用の初期過程の解明に注視した。固体は、原子が結晶構造を組んでおり、電子の波動関数に周期性が表れ、所謂バンド構造を形成する。結晶中の電子の波動関数は、ブロッホの定理で表される関数形を持つ。

$$\varphi_\mu(\mathbf{r} - \mathbf{t}_n) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{t}_n) \varphi_\mu(\mathbf{r}) \quad (1)$$

第2章で、結晶中の波動関数の簡単な例として、クローニッヒ・ペニーモデルについて述べる。

2. クローニッヒ・ペニーモデル

レーザー場と相互作用する電子状態を記述する簡易モデルとして、図4のような井戸型の障壁が周期的に並んだポテンシャル中の電子状態を考えた。高さが V_0 で幅が b 、周期が $L = a + b$ の井戸型のポテンシャルで、幅 b は $b \ll a$ とすると、電子状態はポテンシャルの高さと幅の積 $V_0 b$ 、で決まる。積 $V_0 b$ はポテンシャル障壁の強さと呼ばれる。

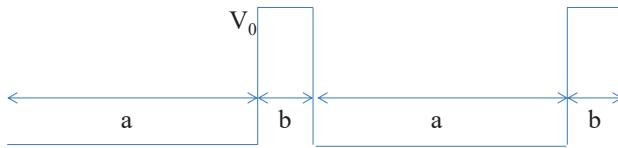


図 4 井戸型の障壁をもつポテンシャル

上記ポテンシャル中では以下のように比較的簡単に、conduction band ($E > V_0$) に相当する波動関数を求めることができる。電子のシュレディンガー方程式は以下のように書ける。

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{d^2\varphi_1(x)}{dx^2} = E \varphi_1(x) \quad 0 \leq x \leq a \quad (2)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{d^2}{dx^2} + V_0 \right] \varphi_2(x) = E \varphi_2(x) \quad -b \leq x \leq 0 \quad (3)$$

この場合、波動関数は、次のようになる。

$$\varphi_1(x) = C_1 e^{i\alpha x} + C_1^- e^{-i\alpha x} \quad 0 \leq x \leq a \quad (4)$$

$$\varphi_2(x) = C_2 e^{i\beta x} + C_2^- e^{-i\beta x} \quad -b \leq x \leq 0 \quad (5)$$

$$\alpha = \sqrt{2E} \quad (6)$$

$$\beta = \sqrt{2(E - V_0)} \quad (7)$$

周期境界条件とブロッホの定理から、次の関係式が導ける。

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 & -1 & -1 \\ \alpha & -\alpha & -\beta & \beta \\ e^{i\alpha a} & e^{-i\alpha a} & -\lambda e^{-i\beta b} & -\lambda e^{i\beta b} \\ \alpha e^{i\alpha a} & -\alpha e^{-i\alpha a} & -\lambda \beta e^{-i\beta b} & \lambda \beta e^{i\beta b} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_1^+ \\ C_1^- \\ C_2^+ \\ C_2^- \end{bmatrix} = 0 \quad (8)$$

$$\lambda = e^{ikL} \quad (9)$$

(8) 式が有意な解を持つためには、行列式が 0 でなければならぬ。

$$\begin{vmatrix} 1 & 1 & -1 & -1 \\ \alpha & -\alpha & -\beta & \beta \\ e^{i\alpha a} & e^{-i\alpha a} & -\lambda e^{-i\beta b} & -\lambda e^{i\beta b} \\ \alpha e^{i\alpha a} & -\alpha e^{-i\alpha a} & -\lambda \beta e^{-i\beta b} & \lambda \beta e^{i\beta b} \end{vmatrix} = 0 \quad (10)$$

(10) 式から(11) 式が得られる。

$$\begin{aligned} & \cos \sqrt{2E}a \cdot \cos \sqrt{2(E - V_0)}b \\ & - \frac{2E - V_0}{2\sqrt{E(E - V_0)}} \sin \sqrt{2E}a \cdot \sin \sqrt{2(E - V_0)}b \\ & = \cos kL \end{aligned} \quad (11)$$

Valence band の場合も同様にして、 E と k の関係式が求められる。(12) 式に示す。

$$\begin{aligned} & \cos \sqrt{2E}a \cosh \sqrt{2(V_0 - E)}b \\ & + \frac{V_0 - 2E}{2\sqrt{E(V_0 - E)}} \sin \sqrt{2E}a \sinh \sqrt{2(V_0 - E)}b \\ & = \cos kL \end{aligned} \quad (12)$$

図 5 は、 $V_0 = 1$ 、 $L = 7.6521$ (アルミの格子定数)、 $a = L \times 0.9$ 、 $b = L - a$ として得られたバンド構造である。

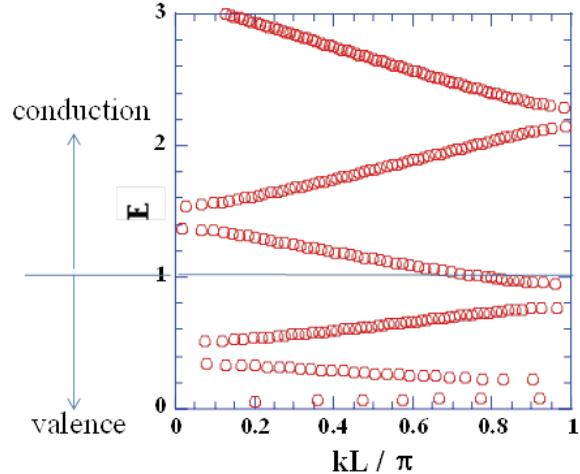


図 5 得られたバンド構造

3. 時間依存密度汎関数理論

超短パルス光と物質の相互作用、特にパルス光が照射した直後の電子状態や、光から電子へのエネルギー移行を正確に見積もるために有効な手法として、第一原理計算手法である時間依存密度汎関数理論が挙げられる[1]。本年度は、筑波大学計算科学研究中心の矢花教授にご講演いただき、高強度パルス光が物質中をどのように伝搬するのか、また光から物質中の電子にエネルギーが移行する様子について、有意義な知見を得た。図 6 は、時間依存密度汎関数理論による光の物質中での伝搬と吸収に関する解析の流れの概略図である。

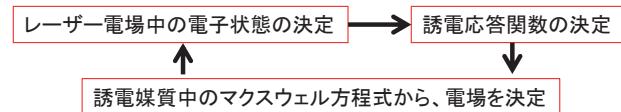


図 6 時間依存密度汎関数理論による光の物質中での伝搬と吸収に関する解析の流れの概略図

REFERENCE

- [1] 矢花一浩；レーザー研究 44 (2016) 789-793.

DPSS 可視光パルスレーザー装置の開発

井上竣介

京都大学化学研究所

可視光域のレーザーは、応用研究が多いが、直接発振する半導体レーザーが極めて少なく、レーザーの開発研究の進展が強く求められている。黄色域のレーザーは直接発振できるものは特に少ない。人体のヘモグロビンの吸収効率が高いことから、肌のシミとり用レーザーへの応用や、地球の電離層の Na の吸収ラインに合うことから 90nm 付近の強い光があれば天体望遠鏡の収差補正に用いられる光源としての応用がある。

特に、阪大の有川氏は、核スピン偏極のための 590nm 付近のレーザーの開発を行なっている。超高強度レーザーを核スピン偏極重水素標的に照射することで、偏極中性子が発生させることができる。この手法では重水素化有機結晶に、590nm 域の可視光レーザーを照射して励起三重項状態を生成し、電子スピン偏極状態を作り、さらに電子スピンから重水素核スピンのエネルギー差に相当する共鳴電磁波を照射することで重水素核スピンが偏極する。電子励起のために用いられる 590nm 域の可視光レーザーがスピンの偏極効率を決定する。

本研究では有川氏との共同研究として、レーザー装置としても新規性の高い 590nm 領域のハイパワー パルスレーザーの開発を行った。585nm-595nm のパルスレーザーで、パルス幅が $1\mu\text{s}$ 以上、パルスエネルギー 10mJ を目標としたレーザーを必要としている。従来法でこれを満たせることはできるのは、YAG レーザー 2 倍波励起のローダミン色素レーザーがあつたが、装置が大型で、かつパルス幅は 800ns 程度が限界であった。有川氏との共同研究で掲げた目標は、装置サイズは 1m 以下で可搬できる重量で、波長 $585\text{-}595\text{nm}$ で、パルス幅は $1\mu\text{s}\sim100\mu\text{s}$ で可変になること、パルスエネルギーは 2mJ 以上目標 10mJ 、繰り返し 50Hz 以上を掲げた。

半導体レーザー励起の固体レーザーを基本設計とし、半導体レーザーにパルス大電流を流して波形整形をすることで、目標を満たせる設計を行なった。図 1 と図 2 に示すように、 808nm 励起レーザーダイオードに大電流電源を MOSFET 式スイッチで波形整形し発振させ、 808nm の光をファイバーで伝送し、Nd:YAG に集光する。2 枚のミラーで挟んで、 1064nm と 1329nm のレーザー光が発振する。KTP 結晶によって和周波によって 589nm が発振する。 808nm レーザーを電気的に $10\mu\text{s}$ で切り出すことで 589nm のパルス幅整形が可能となった。2019 年度の我々の実験で、励起レーザーは温度によって波長が変化するた

め、 808nm にきっちり制御することがもっとも重要なことがあることがわかった。レーザーダイオードにかける電流値に対して、3.5 乗で、 589nm のレーザーエネルギーが出ることがわかった。 $100\mu\text{s}$ のパルス幅で 2mJ を達成したが、励起用レーザーダイオードのダメージ限界でパルス幅を $10\mu\text{s}$ まで縮め他場合は、 0.8mJ までしか出力できなかった。現在 808nm のレーザーを 4 台ファイバー結合によりパワーアップしており、2020 年度に目標が達成できる見込みである。



図 1 開発した 589nm レーザー発振の様子。

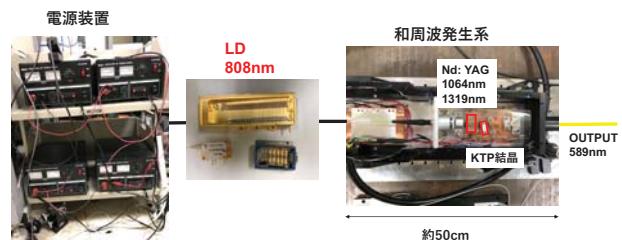


図 2 実験装置の構成。高電流電源と、ハイパワー 808nm レーザーダイオードと、固体レーザー発振波長変換装置からなる。

新奇層状複合アニオン化合物を母材とした新規蛍光体の開発

岩佐祐希¹ 萩野拓¹ 山ノ井航平²

1 産業技術総合研究所

2 大阪大学レーザー科学研究所

INTRODUCTION

LED や半導体レーザーのめざましい発展に伴い、白色光源への応用が期待されている。白色光源には青色LEDと黄色発光を示すYAG:Ce 蛍光体を組み合わせた2波長方式や、緑色(~520 nm)と赤色(~630 nm)に発光する蛍光体を組み合わせた3波長方式が用いられる。励起光源の出力性能が向上するに伴い、高出力プロジェクターや車載用照明などのデバイスが開発されている。このような高出力用途の応用では励起光の強度が増大した際に蛍光体の発光強度が飽和する、輝度飽和と呼ばれる現象が起こることが実用化の妨げとなっている。高出力用途の蛍光体には発光寿命が短く、高い発光効率を実現できる蛍光体が求められる。

発光中心元素のなかでも、Ce³⁺やPr³⁺の5d-4f遷移による発光は数10ナノ秒の非常に速い発光をもち、高速応答が求められるシンチレータ材などに応用されてきた。これらの発光は発光中心元素が受けける結晶場の影響を強く受けるため、母材中にユニークな結晶場を持つサイトを作り出すことができれば、従来の酸化物、フッ化物といった単純な化合物では得られなかった発光特性を示すことができると予想される。

本研究では母材として、複数のアニオンを含んだ層状複合アニオン化合物に着目した。これらの物質群は複数のアニオンに囲まれた多様なカチオンサイトを設計できることに加え、低次元の結晶構造に由来する秩序・無秩序構造を生み出すことができる[1]。これにより、特異なカチオンサイトの結晶場を用いた蛍光体に利用した例も報告されている。我々のグループでは、新規化合物としてペロブスカイト構造に由来する層状酸塩化物 Sr₂ScO₃Cl および Sr₃Sc₂O₅Cl₂を報告しており[2]、1つの物質中で複数のカチオン環境を有していることを見出してきた。本研究では、この層状無機化合物を母材に Ce³⁺をドープした際の発光特性についての新奇蛍光体材料開発を行った。

E

化合物の合成は固相反応法を用いて行った。SrCO₃, SrCl₂, Sc₂O₃, CeO₂を原料に用い、Sr サイトに対して 1-10% の Ce が置換するような化学量論比で秤量を行った。混合した試料は加圧式錠剤成型器を用いて 1 ton/cm³ の圧力をかけ、ペレット状に加工した。Ce の価数を調整するため、焼成は、大気中焼成

と還元雰囲気である N₂ 雰囲気焼成と H₂ 雰囲気焼成の3通り行った。合成後、XRD で構造の相同定を行った。発光特性の測定は、分光蛍光光度計(FP-8500、日本分光)を使用して測定した。

RESULT

図1にCeを5%ドープした試料のXRDパターンを示す。シミュレーションパターンと同等のパターンが得られ、不純物による目立ったピークも見られなかった。これらの結果より Ce をドープした Sr₂ScO₃Cl および Sr₃Sc₂O₅Cl₂ が合成可能であり、出発組成により2つの物質の結晶構造を制御できることを確認した。Ceの濃度が10%に近づくと Sr₂ScO₃Cl に Sr₃Sc₂O₅Cl₂ が混合することが分かった。

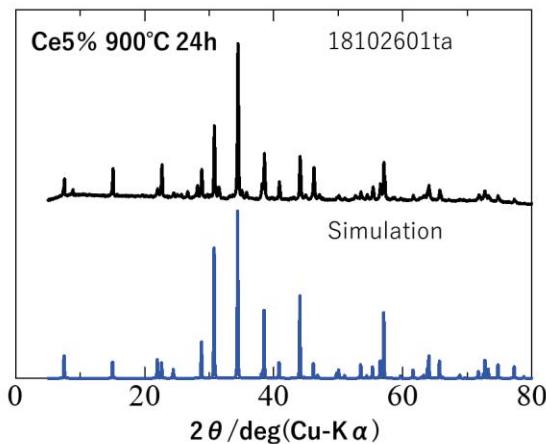


図1 Ce5%をドープした Sr₃Sc₂O₅Cl₂ の XRD パターン

次に図2に Sr₃Sc₂O₅Cl₂ の励起発光スペクトルを示す。大気中、N₂ 中で焼成した試料は、350 nm の紫外で励起すると、Ce³⁺ の 5d-4f遷移によるブロードな発光が 400~600 nm(ピーク 470 nm)で観測された。Ce5% 試料の発光強度は大気中焼成に比べ N₂ 焼成の試料が高いため、大気中試料では Ce の一部が発光を示さない Ce⁴⁺ となっていることが考えられる。H₂ 中で焼成した試料は発光のピーク波長が低エネルギー側へシフトしたスペクトルを示した。これは、より還

元的な H₂ 中で焼成したことにより、複数のカチオンサイトへ Ce が置換されたためであると考えられる。

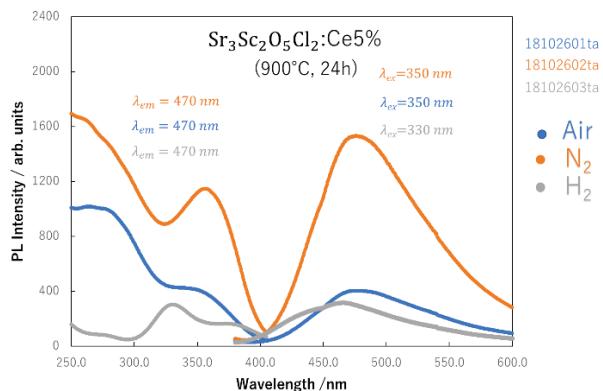


図 2 焼成雰囲気による励起発光スペクトルの比較

次に、結晶構造の違いによる励起発光スペクトルを比較した。図 3 に Sr₂ScO₃Cl(青)および Sr₃Sc₂O₅Cl₂(赤)の励起発光スペクトルを示す。いずれの試料も発光を示すことが分かった。発光波長はほぼ同一であったが、励起スペクトルはピーク位置が Sr₂ScO₃Cl の方が短波長であることが分かった。同様な発光スペクトルを示すことから、酸素と塩素が配位した Sr サイトに Ce が置換していることが示唆される。また、Sr₂ScO₃Cl および Sr₃Sc₂O₅Cl₂ 中での Ce-O 距離を比較するとそれぞれ 2.57 Å、2.56 Å であり、距離が短い Sr₃Sc₂O₅Cl₂ では結晶場分裂が増大したことによって、励起波長が低エネルギー側に現れたと考えられる。

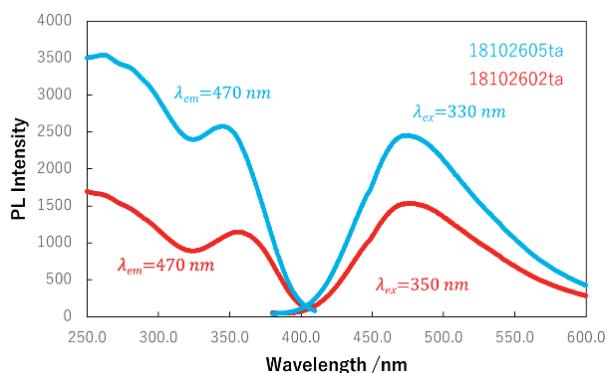


図 3 Sr₂ScO₃Cl(青)および Sr₃Sc₂O₅Cl₂(赤)の励起発光スペクトルの比較

以上より、新規層状酸塩化物 Sr₂ScO₃Cl および Sr₃Sc₂O₅Cl₂ に Ce をドープすることでの 400~600 nm にかけての Ce³⁺の 5d-4f 遷移によるブロードな発光が観測された。焼成雰囲気を制御することで発光効率および発光波長を制御できることを見出した。

今後は、これらの化合物の発光寿命を測定することと、Ce 以外の発光中心を用いることで他の発光波長を示す化合物を合成することを目指す。

ACKNOWLEDGEMENT(S)

本研究は大阪大学レーザー科学研究所の共同利用・共同研究「2019B2-IWASA」および科研費 18J01627 のもとに実施された。

REFERENCE(S)

- [1] H. Kageyama, et al., *Nat. Commun.* **2018**, *9* (1).
- [2] Y. Su, et al., *Inorg. Chem.* **2018**, *57* (9), 5615–5623.

LFEX レーザーシステムの高性能化 —増幅システムの動特性解析に関する研究—

金邊 忠, 河仲準二

福井大学 学術研究院 工学系部門 電気・電子工学講座
大阪大学レーザー科学研究所

1.はじめに

近年各国で核融合炉研究用レーザーが開発され、大出力が達成されている。核融合炉用レーザーに必要とされているパラメータは、レーザー光の出力エネルギー MJ、繰り返し率 10Hz、レーザー効率 10% の 3 つである。米国 LLNL では NIF が建設され、大阪大学では高速点火用 10PW 10kJ 級レーザー (LFEX) を用いた研究が行われている^[1]。

大出力ガラスレーザーは非線形屈折率効果の影響が無視できず、光学ノイズが成長してしまう。その成長を考慮したシステム設計が必要である。本研究では動特性計算を含んだシミュレーションコードの開発により、核融合炉用レーザーの動特性評価を進め、システムの最適化設計をする。

2. 非線形屈折率による位相遅れ

光電界 E 、光強度 I に対する屈折率 n は式(1)で表される。

$$\begin{cases} n(I) = n_0 + n_2 |E|^2 = n_0 + \gamma I(z) \\ \gamma = \frac{4\pi}{c} \cdot 10^7 \cdot \frac{n_2}{n_0} \end{cases} \quad (1)$$

ここで、 n_0 は線形屈折率、 n_2 は非線形屈折率、 γ は非線形屈折率係数である。式(1)の第 2 項によりレーザーの波面に位相の遅れが生じる。また、位相の遅れを rad 単位で表したもののが B 係数であり、式(2)で表される^[2]。

$$B = k\gamma \int_0^L I_{out}(z) dz \quad (2)$$

L は光路長、 $I_{out}(z)$ はレーザー進行方向 z に対する強度である。

3.2 次元増幅伝播シミュレーションコードの概要

増幅計算にはレート方程式を解析して得られた Frantz-Nodvik 方程式を使う^[3]。

$$I_{out}(z, t) = \frac{I_{in}(t - z/c)}{1 - [1 - \exp(-gz)] \exp\left(-\int_{-\infty}^{t-z/c} \frac{I_{in}(t')}{E_s} dt'\right)} \quad (3)$$

I_{in} は入力強度、 I_{out} は出力強度、 g は小信号利得係数、 E_s は飽和フルエンスである。

真空中に光を伝播させる自由空間伝播では FFT を用いて空間周波数を変調して計算した。

$$\begin{cases} \tilde{\psi}_0(K_x, K_y) = \iint \psi_0(x, y) \exp[-2\pi i(K_x x + K_y y)] dx dy \\ \tilde{\psi}_z(K_x, K_y) = \tilde{\psi}(K_x, K_y) \exp[-i\pi\lambda z(K_x^2 + K_y^2)] \\ \psi_z(x, y) = \iint \tilde{\psi}_z(x, y) \exp[2\pi i(K_x x + K_y y)] dK_x dK_y \end{cases} \quad (4)$$

4. Frantz-Nodvik 方程式による B 係数

図 1 に示すように、従来の B 係数の式は Lambert 則から導かれている。Lambert 則は exp 増幅であり利得の減少による飽和効果を含んでいない。核融合炉用レーザーは飽和領域での増幅計算を行っているので従来で用いていた B 係数の式では高い値を示し、数値誤差を有していた。増幅計算は Frantz-Nodvik 方程式が用いられ、飽和効果を含んだ増幅の式

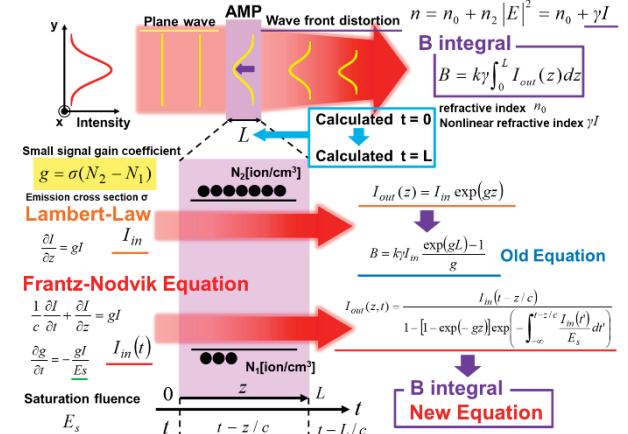


図 1. Lambert 則と Frantz-Nodvik 方程式による B 係数

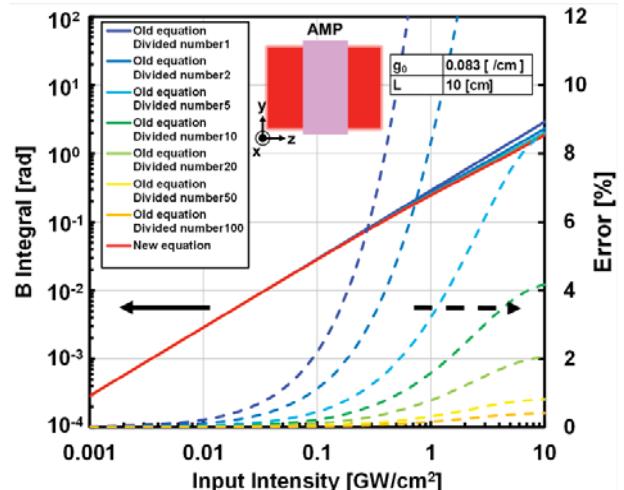


図 2. Lambert 則と Frantz-Nodvik 方程式による B 係数の比較

である。Frantz-Nodvik 方程式を用いることで、核融合炉用レーザーの解析に適した B 係数の式(5)を導いた。

$$B = k \cdot \gamma \cdot \frac{I_{in} \left\{ \ln \left[1 - \exp(-gL) + \exp \left(\int_{-\infty}^{t-L/c} \frac{I_{in}(t')}{E_s} dt' + gL \right) \right] - \int_{-\infty}^{t-L/c} \frac{I_{in}(t')}{E_s} dt' \right\}}{g \left[1 - \exp \left(- \int_{-\infty}^{t-L/c} \frac{I_{in}(t')}{E_s} dt' \right) \right]} \quad (5)$$

式(5)の飽和効果を確認する。従来の B 係数の計算を行う飽和増幅媒質の分割と、式(5)の B 係数の計算を行う飽和増幅媒質を比較する。LLNL で計画されている LIFE^[4] のレーザーシステム構成を参考に 2 次元増幅伝播コードを用いて計算する。増幅媒質を APG-1、入力波形を 20 次のガウス、パルス幅を 3.6[ns]、ビーム半径を 12.5[cm] とした。結果を図 2 に示す。分割数が多くなると飽和領域での誤差が少なくなっているため、式(5)は飽和効果を含んだ B 係数の式は有用であることを確認した。

4. 光学ノイズ源によるレーザー性能の検討

シミュレーション媒質の従来の計算手法は、一般的な光学系で用いられ実質的に厚みを持たず、伝播計算を行う Optical thin 条件の計算を用いていた。本研究では、媒質の厚みを考慮し段階的に伝播計算を行い、媒質内の変化を計算する Optical thick 条件の計算を導入した。Optical thick にすることで媒質内におけるより精度の高い非線形光学効果を考慮した計算が可能である。

ビーム全体が B 係数の影響により自己収束する効果を Whole beam self-focusing と言う。Optical thin と Optical thick 条件で媒質内における Whole beam self-focusing を確認した。この時の Optical thick を考慮した分割数を導出した。出力波形の指標は式(6)で表す。

$$A [\%] = \frac{I_N(x, y, z)}{I_{\max}(x, y, z)} \cdot 100 \quad (6)$$

I_N は分割数 N の強度、 I_{\max} は目標強度である。誤差 1[%] 以下を媒質内の Whole beam self-focusing を考慮したとする。結果を図3 に示す。入力強度が大きくなると B 係数が大きくなり Whole beam self-focusing の影響が大きくなるため分割数が必要となる。また、媒質長 L が大きくなると必要な分割数が増えることがわかる。入力強度 I_{in} 、非線形屈折率 γ 、ビーム半径 r 、媒質長 L で規格化ができた。

光学ノイズの影響によりレーザーの波面が不均一である場合、B 係数の影響により不均一性が増大する。このことを Beam break-up と言う。Optical thin から Optical thick にすることで媒質内の Beam break-up 効果を確認した。この時の Optical thick を考慮した分割数を導出した。結果を図4 に示す。入力強度が大きくなるにつれ分割数が必要になることがわかる。ノイズ径が大きくなることで必要な分割数が大きくなることがわかる。また增幅後の伝播によってノイズの影響が表れ、必要な分割数が変化することがわかる。

7. クリーンファクターに対する光学ノイズの計算手法

実際の光学媒質の光学ノイズ源を模擬するために、Cleanness Factor を採用した。

$$F = p' \frac{X^2}{N^2} \quad (7)$$

p' は単位面積当たりの光学ノイズ源のコロニー数、 X はノイズの総メッシュ数、 N は総空間メッシュ数である。

式(7)から光学ノイズ源を X 個配置する。光学ノイズ源を配置する中心座標は乱数を用いて決定した。各ノイズ源の面積は乱数を用いて分配する。光学ノイズ源の中心座標の周囲の座標に光学ノイズ源を置く候補にする。無作為に光学ノイズを広めていく光学媒質の光学ノイズ源を模擬する。光学素子のクリーン度の指標として Cleanness Factor F を定義した。 F が 10^5 以下であれば洗浄後の光学的にクリーンな状態であり、 10^3 以上であればディスク増幅器 1 年程度使用後の光学的に汚れた状態を示している。

6. まとめ

非線形屈折率効果の位相遅れである B 係数の飽和を含んだ式を導出し、その有用性を示した。媒質の計算手法を Optical thick で媒質中におけるそれぞれの非線形光学効果で必要な分割数を導出した。パラメータによる分割数の変化を確認した。光学素子のクリーン度の指標として Cleanness Factor F を定義した。光学ノイズ源の配置を乱数によって分配し、無作為に光学ノイズを広めていく光学媒質の光学ノイズ源を模擬する。

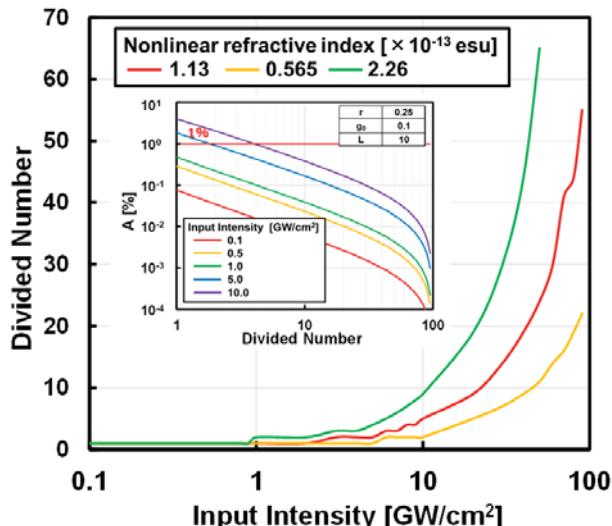


図3. Whole beam self-focusing の入力に対する規格化必要分割数

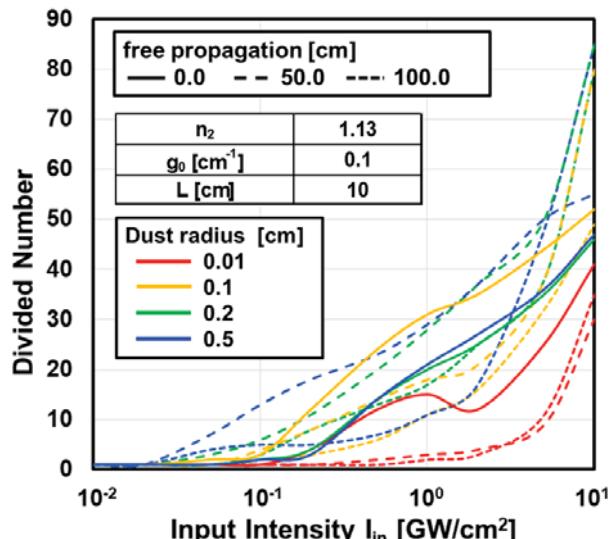


図4. Beam break-up の入力に対する規格化必要分割数

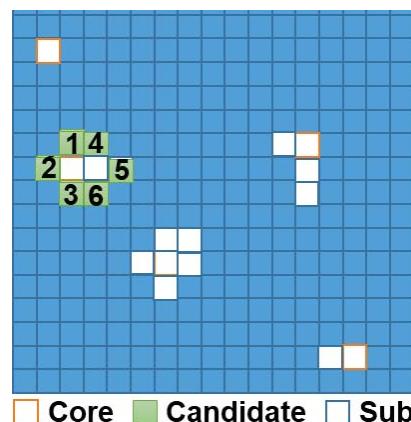


図5. Cleanness Factor による光学ノイズ源作成

参考文献

- [1] T. Kanabe : OPTRONICS, 31, 118(2012).
- [2] W. W. Simmons et al.: IEEE J. Quantum Electron, 17 (1981) 1727.
- [3] L. M. Frantz and J. S. Nodvik: Appl. Phys. 34 (1963) 2346.
- [4] A. Bayramian et al.: Fusion Sci. Technol. 60 (2011) 28.

Development of fast-ignition fusion by using a high repetition laser and its industrial application: 10 Hz target injection in counter illumination laser fusion

Y. Kitagawa, Y. Mori, K. Ishii, R. Hanayama, S. Okihara, O. Komeda¹, H. Suto¹,
Y. Umetani¹, H. Hirata¹, T. Motohiro², T. Hioki², H. Azuma³, A. Sunahara⁴,
Y. Sentoku⁵, Y. Arikawa⁵, Y. Abe⁵, S. Fujioka⁵, H. Sakagami⁶,
A. Iwamoto⁶, T. Ozaki⁶, E. Miura⁷, T. Johzaki⁸,
GPI, ¹Toyota Motor Corporation, ²Inst. Innov. Future Soc. Nagoya Univ., ³Aichi SRC,
⁴Purdue Univ. CMUXE, ⁵ILE, Osaka Univ., ⁶NIFS, ⁷AIST, ⁸Hiroshima Univ. Eng.

0.1 10 Hz injector

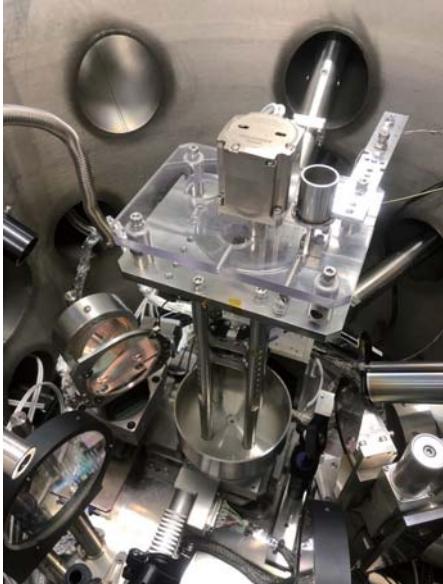


Figure 1: 10 Hz target injector in OIRAN Chamber.

We propose A kJ-class mini reactor CANDY for an engineering feasibility study of the power plant in the counter beam fast ignition scheme fusion. To develop the CANDY, we are performing fast ignition experiments using both single-shot petawatt lasers[1, 2, 3], and a high-repetition-rate laser-diode(LD)-pumped laser with counter beam configuration[4, 5]. In the last workshops, we had reported the CD beads injection at 1 Hz into the counter-propagating short pulse

lasers[6]. Now we have succeeded in 10 Hz injection of CD beads. It continues for longer than 10 minutes. Figure 1 shows the injector installed in the counter laser beams illumination “OIRAN Chamber” . A



Figure 2: Disk rotor with 200 large holes(upper in figure) rotates at 20 s period. Lower small holes are for monitoring the injection timing.

Pulse motor at the top, going round in 20 seconds, directly drives the disk rotor, which has 200 holes on the periphery, as shown in Fig. 2, to sequentially inject 1mm-diameter CD beads at 10 Hz into the laser illumination point. So that the initial velocity of a bead is 0.785 cm/s to the peripheral direction, or to x direction. Figure 2 shows two lines of holes on the disk. The upper hole lines are for injecting beads, while the lower holes are for monitoring the injection timing. Through the holes a LED right pulse synchronizes to an injected bead, which falls down to the laser focused point. On the target flight, two light sensors sequentially detect the passing times and cal-

culate the arriving time to the laser focused point, which is 18.0 cm down under the disk rotor. Then they command the laser system to trigger firing.

0.2 10 Hz engagement of bead target and detection

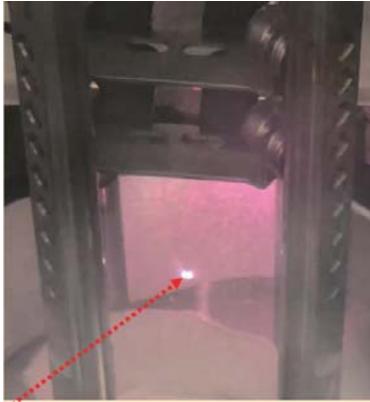


Figure 3: Two counter beams have just engaged one fallen bead at the chamber center. Red arrow shows two adjoined bright spots of the laser hits.

We have succeeded 10-Hz CD beads injection for longer than 10 minutes and repetitive fusion reaction. A chirped pulse amplified ultra-intense laser "BEAT LASER" is divided by a beam splitter into counter two beams and then focused onto the bead surface by a pair of two off-axial parabolic mirrors with focal lengths of 16.5 cm (f-number 2.58) onto the center of the bead injection chamber[5, 6]. So that the separation of two focal points is 1.0 mm, as shown by two adjoined two emission spots in Fig. 3. The wavelength is 800 nm and the total output is 200 mJ in 160 fs at 10 Hz operation.

Using second harmonic laser light, two-directional probe shadowgraph has succeeded in measure the 3 dimensional target position(to the laser axial, to the perpendicular and to the vertical direction, respectively). Since the bead diameter is 1 mm, the positioning deviation is allowed as long as is within 0.5 mm. Engaged beads rate was $396/1767 = 0.22$. Figure 4 shows during 4 min injection period, the standard deviation of the positioning is as Δx is 0.8335 mm and Δy is 0.8539 mm. Δz is also detected to be 0.1815 mm during 3 min. Because a feed-forward

system adjusts the hit timing, z is always within a strike zone. The resulting engagement rate will be $\sim 0.5/0.8335 \cdot 0.5/0.8539 \cdot 1.0 = 0.35$. The discrepancy is so far unresolved. Note that beads, injected out of the timing jitter limit of 15 ms, are not hit, which may explain missing shots of $1901-1767 = 134$.

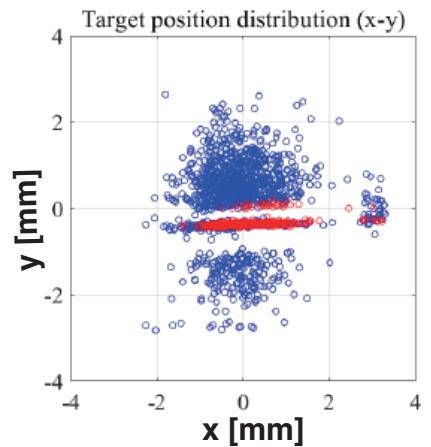


Figure 4: Bead target positioning on the focusing space, at the timing synchronized to the laser illumination. Total injected bead number is 1901 during 3 minutes. Blue 1767 points are captured with the detection system. Red 396 points are engaged by two counter beams. x is laser axial direction and y is perpendicular.

References

- [1] Y. Kitagawa *et al.*, 43rd APS DPP Invited, Oct. 29-11 Long Beach (2001).
- [2] Y. Kitagawa *et al.*, Phys. Rev. E **71**, 016403-1-5 (2005).
- [3] Y. Kitagawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **114**, 195002 (2015); Nuclear Fusion **57**, 076030 (2017).
- [4] Y. Kitagawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 155001 (2012).
- [5] Y. Mori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **117**, 055001 (2016).
- [6] O. Komeda *et al.*, Sci. Reports **3**, 2561 (2013).

CN 導入による金属有機構造体化学センサの高感度化に関する研究

古久根 伸吉¹, 中嶋 誠², 李 相錫¹

¹鳥取大学大学院持続性社会創生科学研究科, ²大阪大学レーザー科学研究所

1. 序論

1.1 化学センサとは

本研究では化学センサの作製及び評価を行う。化学センサは目に見えないガスを検知するセンサであり、自動車、警報機、エアコン、空気清浄機などに幅広く用いられている。近年では空気品質コントロールへの認知度向上や職場環境の安全規制増加、ワイヤレスセンサや MEMS センサの開発などにより市場規模を伸ばしている。本論文で扱う化学センサの中でも、小型化や高精度化に関してはガス吸着時の電気的変化を測定する電気式化学センサが期待されている[1]。

1.2 MOF の化学センサ応用

金属有機構造体 (MOF) は金属イオン (Metal) と有機配位子 (Organic) からなる有機-無機ハイブリッド材料であり、規則正しく並んだナノメートルオーダーの細孔を持つ多孔性材料である。また、様々な金属イオンとそれらを連結する架橋性の有機配位子の溶液をそれぞれ混合することで、ジャングルジム状の骨格構造を持つ結晶性の高分子構造を作る。MOF の特性として、熱安定性、結晶構造のコントロール、ガス選択性が挙げられる。MOF 薄膜の電気特性の変化を用いた化学センサとして最も新しい方式として MOF 薄膜の新規合成法を用いた方式がある。従来は金電極上に MOF の粉末をペーストしたものや、金電極上に金属イオンを溶かした溶液と有機配位子を溶かした溶液を交互に浸漬して MOF 薄膜を合成していた。新規手法としては、金属電極部分を合成に必要な金属イオンの電極に置き換えることで、有機配位子を溶かした溶液に浸漬する工程のみで MOF 薄膜を合成する。

1.3 MOF の電気特性

MOF の化学センサにおける課題として、導電性が低いことが課題として挙げられる。MOF を既存の多孔性材料と同じ扱いをする場合は、MOF を粉末状から Au などの電極にペーストして応用するので、電極依存の抵抗値からの変化量をガス吸着時に測定することになることから、 $1 \times 10^3 [\Omega]$ 程度の抵抗値になるため、実際に使用する場合を想定した化学センサとして応用が期待できる。逆に MOF 自体を新規のハイブリッド材料として、MOF 薄膜を電極として応用し、化学センサとして用いる場合には、膜厚や金属イオン-有機配位子の組み合わせにもよるが、実際の測定時には $1 \times 10^6 [\Omega]$ などの大きな抵抗値や

インピーダンスになる。化学センサとして用いるためにはこの MOF 薄膜の導電性の悪さが問題となる。そのため、如何にして MOF の導電性を向上させるかを考える必要がある。

1.4 TCNQ の導入

TCNQ (テトラシアノキノジメタン) は有機半導体分子である。電荷移動錯体の電子受容体分子として用いられ、有機薄膜トランジスタや有機 EL などの研究がされており、近年様々な電気応用がされている。MOF の骨格構造と結びつき導電性が上がるため、MOF に関する研究も応用が期待されている。MOF 薄膜を電気応用に用いることを可能にするほどの導電性の向上を行うことが可能となる。

1.5 本研究の目的

先に述べたように、センサ応用には MOF が絶縁体であるといった問題があり、MOF を用いた化学センサ応用は様々な方法が模索されている。しかし、MOF 薄膜に TCNQ の導入はされていない。そこで、本論文では絶縁体の MOF 薄膜に TCNQ を導入させることで導電性を上げ、応答電流のノイズを減少させ、MOF 薄膜を用いた化学センサの高感度化を行うことを目的とした。

2. デバイスの作製法

2.1 デバイスの作製フロー

図 1 に本研究で作成するデバイスの作製フローを示す。作製フローは大まかにを SiO₂ 基板上に Cu 薄膜を作製した後、MOF 薄膜を Cu 薄膜上に合成した後、MOF 薄膜を TCNQ 溶液に浸漬することでデバイスを作製する。評価方法としては SEM による結晶性の評価と湿度測定による化学センサの評価を行った。

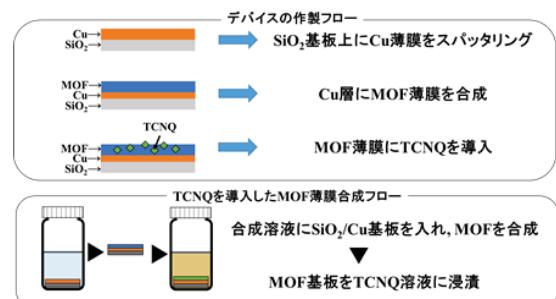


図 1. デバイスの作製フロー

2.2 合成する MOF の詳細

電気式化学センサの作製に用いるために、本研究では、銅イオンと 1,3,5-Benzenetricarboxylic acid(ベンゼントリカルボン酸)で構成される MOF である HKUST-1 を用いた。この MOF は CO_2 , H_2O , N_2 , C_2H_2 , などの吸着がされると言われており、合成も容易であることから基礎研究の MOF として多く用いられている。加えて、細孔内部に有機半導体を導入することによって、導電率をある程度制御することが可能な MOF である。以上のことより、HKUST-1 を今回用いる MOF とした。図 2 に骨格構造のモデル図を示す。

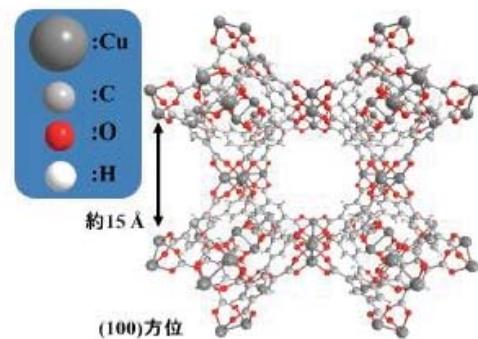


図 2. MOF (HKUST-1) 骨格構造のモデル

3. 実験結果・考察

3.1 MOF 結晶の評価

図 3 に HKUST-1 薄膜の表面 SEM 像を示す。表面 SEM 像より、 $10\mu\text{m}$ 程度の HKUST-1 結晶が得られた。TCNQ が導入された HKUST-1 結晶は結晶表面に $1\mu\text{m}$ 程度の TCNQ 結晶が得られ、TCNQ の導入が確認できた。

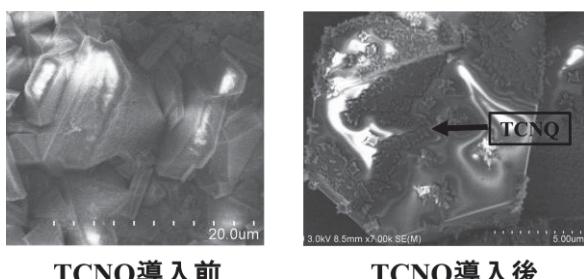


図 3. TCNQ 前後の HKUST-1 薄膜の SEM 像

3.2 湿度測定結果

本研究で化学センサとしての評価として湿度の変化による抵抗値の変化を測定した。測定を行った実験装置の概略図を図 4 に示す。湿度測定に作製したデバイスの湿度測定結果を図 5 に示す。横軸はガラスチャンバ内の水分量を示しており、縦軸は抵抗値を示す。図から読み取れるように 1200ppm 程度から 3500ppm 程度の湿度測定において、線形性のある結果が得られた。薄膜の抵抗は $40[\text{M}\Omega]$ 程度となり、抵抗測定におけるノイズが大きいため測定することができなかつたが、TCNQ を導入した

HKUST-1 薄膜の抵抗値は $24[\text{k}\Omega] \sim 25[\text{k}\Omega]$ となり、TCNQ の導入によって、HKUST-1 薄膜の抵抗値の測定が可能となったと考えられる。湿度測定結果としては、ガラスチャンバ内の H_2O 濃度が上昇した時にデバイスの抵抗値が上昇した。理由としては、HKUST-1 薄膜の細孔内に H_2O が吸着され、細孔内の H_2O が妨げとなり HKUST-1 薄膜の導電性が悪くなることで抵抗値が上昇したと考えられる。

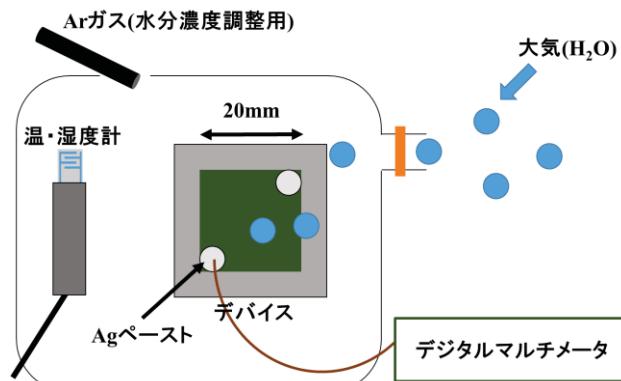


図 4. 湿度センサ測定装置概略

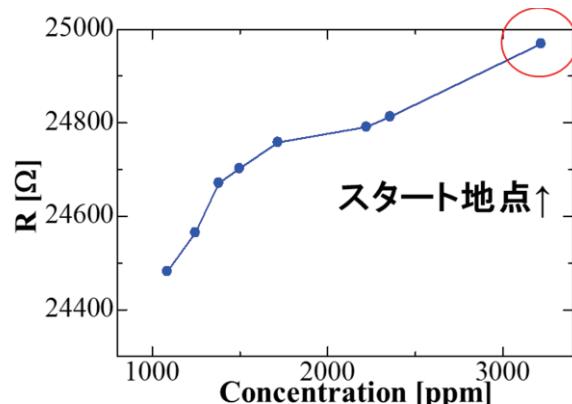


図 5. 湿度測定結果

4. 結論

本研究では絶縁体である HKUST-1 結晶に有機半導体分子である TCNQ を導入することで MOF の導電性を向上させ、応答電流のノイズを減少した。結果としては、水分濃度と抵抗値の変化に関する線形性が得られた。今後は TCNQ の濃度による抵抗値の変化を求めるために、濃度ごとの抵抗値の変化と、赤外分光装置 (FTIR) による TCNQ 導入量の測定を行うことで導入量の最適化と微細加工による化学センサの高感度化を行う予定である。

参考文献

- [1] K. Lauren, L. Kirsty, "Metal–Organic Framework Materials as Chemical Sensors," *Chemical Reviews*, vol. 112, No. 2, pp. 1105-1125, 2012.

相変化材料を利用したテラヘルツ波デバイスの開発

牧野孝太郎¹, 北原英明², 中野隆志¹, 中嶋誠²

産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門¹, 大阪大学レーザー科学研究所²,

Ge-Sb-Te(GST)合金に代表される相変化材料はDVD-RW等の市販の書き換え型光ディスクや、Optane相変化電気メモリ(phase change memory, PCM)に用いられており、加熱により制御可能なアモルファス-結晶相変化に伴う光学的・電気的な特性の変化を利用してデジタルデータの記録を実現している。図1に示すように、アモルファス相と比較すると、cubic相及びhexagonal相の結晶GSTはより高い反射率と低い電気抵抗値を有する。一旦生じた相変化は不揮発であり、それぞれの相は室温では数十年以上に渡り変化しないが、アニール及び融解と急冷により繰り返し制御が可能である。通常の合金GSTの相変化メカニズムに着目して開発された超格子型GST材料(interfacial phase change memory, iPCM)は、より省エネルギーで相変化動作し、書き換え可能回数も向上することが報告されている。さらに、特定の構造のiPCMはトポロジカル絶縁体やワイル半金属になりうるため、新奇なデバイス応用が期待されている。

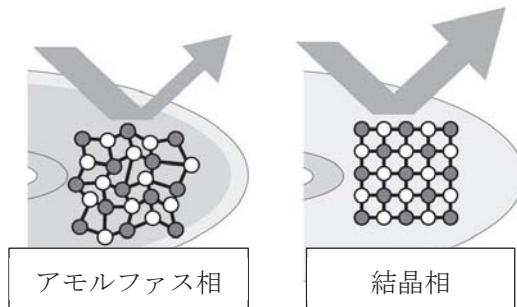


図1. 相変化材料を用いた光ディスク動作の原理。アモルファス相と結晶相では反射率が異なるため、この違いを利用して記録を実現している。

近年では相変化材料研究の中心は電気メモリの研究開発であるが、より最近ではディスプレイや光導波路の制御、光シナプスといったフォトニクス材料としての応用も活発化し、また、高周波の制御といった新しい応用も提案されつつある。このように、DCの電場からペタヘルツの可視光域まで、非常に幅広い周波数帯域の電磁波に対してアクティブな制御が可能である。しかし、高周波と赤外線の間の周波数帯域の電磁波、いわゆるテラヘルツ(THz)波における研究は乏しい。THz波は赤外線よりも波長が長く、透過性が高いことからセンシングやイメージング、また周波数の高さを活かした通信など様々な応用が提案されており、より簡便で安価な発生源や検出器の開発が求められている。我々は、これ

までに相変化材料を用いたテラヘルツ波の検出器応用の可能性[1]や、テラヘルツ波分光により超格子構造を有する相変化材料の構造の評価を行える可能性を示している[2]。しかしながら、テラヘルツ波帶でのGSTの相変化特性は未解明な部分が多く残されており、我々はGSTを用いたTHz波デバイス応用を見据え、GST相変化材料とTHz波の相互作用の解明を目指した研究を行った。本研究では相変化材料サンプルを産総研で作製し、測定と解析の一部を阪大レーザー研で行った。

実験では、THz-TDSによりGST合金材料における熱誘起の相変化がTHz波に対するレスポンスにどのような影響を及ぼすかを評価することで、THz波デバイス応用の可能性を確かめた。100 nmのアモルファス相Ge₂Sb₂Te₅薄膜をサファイア基板に成膜し、さらに保護層を設けた。150°Cから400°Cまでの異なる温度でアニールし、cubic相、hexagonal相、及び両方の結晶相が混在するサンプル薄膜を得た。サンプルの結晶性はX線回折測定により評価を事前に行った。アニールを行っていないサンプルはアモルファス構造であり、250°C以下でアニールしたサンプルは主にcubic相、350°C、400°Cでアニールしたサンプルはhexagonal相、300°Cでアニールしたサンプルはcubic相とhexagonal相をともに含む構造であった。

これらのサンプルに対し、透過型のTHz-TDS測定を行った。図1にそれぞれのサンプルで測定された透過率スペクトルを示す。アモルファス相サンプルはテラヘルツ波に対してほぼ透明であるが、アニール温度を増加させて透過率が徐々に下がり、cubic相のサンプルでは透過率が10~20%程度低下し、さらにhexagonal相では60%以上の大幅な透過率が観測された。また、測定の周波数範囲内ではおおよそフラットなスペクトル形状を示すことが明らかとなった。また、得られた時間領域信号を解析することにより複素屈折率、複素誘電率といった光学的・誘電特性を得ることができた。これらの値もアニール温度に応じて大きく変化することが確かめられた。この周波数に依らないフラットな吸収の変化や光学定数・誘電率の変化など、この測定で明らかとなった相変化が持たらす特性は、テラヘルツ波制御デバイスへの応用に望ましいものであり[3]、今後はプログラマブルなテラヘルツ波デバイスの開発を行う予定である。

一般に、GST相変化材料はアモルファス相から結晶相へと転移する150°C程度において可視光に対する透過率などの値が大きく変化する。しかし、本測定で得られたテラヘルツ波の透過率は300°C程度で大きく変化しており、可視光に対する性質とは異なることが明らかとなった。GSTは縮退したp型半導体であることから、

THz波に対する吸収や光学・誘電特性は主に自由キャリアによるものであることが考えられる。アモルファス相からcubic相、hexagonal相へと構造が変化する際にキャリアの濃度や移動度が徐々に向上するため、相変化に伴う透過率の減少はこの振る舞いを反映しているものと考えられる。このことを確かめるため、テラヘルツ波帯の電気伝導度を求め、自由電子の振る舞いにフォノンの散乱の影響を考慮したドリーデ-ローレンツ関数によるフィッティングより、DCのシート抵抗を推測した。

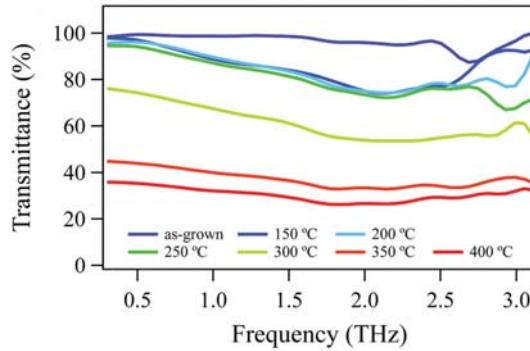


図1. アモルファス相、及びアニールにより得られた結晶相のGSTサンプルのテラヘルツ波帯透過スペクトル[3]。

図2にTHz-TDS測定より推測されたシート抵抗値のアニール温度依存性を示す。得られたシート抵抗値の変化はおおよそ電気測定により得られるシート抵抗値の変化と対応しており、したがって、周波数が非常に高いテラヘルツ波電場により測定された結果がDCでの測定と対応していることが確かめられた。この結果はテラヘルツ波に対する相変化材料は自由電子が主に寄与していることを示しており、また電気的特性が可視光に対する光学特性よりも密接に関連していることを意味している。なお、この解析では抵抗値がマイナスの値にならないように補正を加えている。また、THz電場での測定であるため、結晶相のサンプルに置いて結晶粒界での散乱の効果が小さく見積もられていることが考えられる。

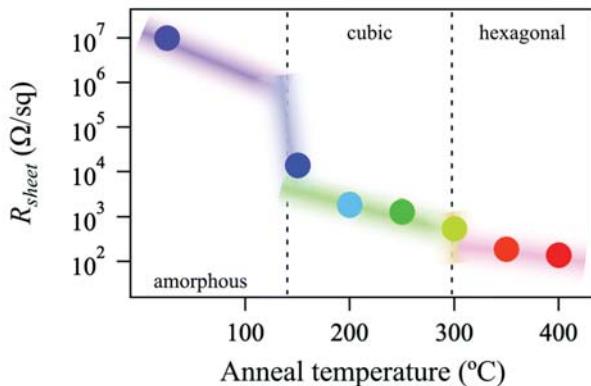


図2. テラヘルツ波測定により得られたDCシート抵抗のアニール温度依存性[3]。

このように、本研究ではTHz波発生分光測定によるiPCMの構造評価の可能性や、GST合金材料における相変化がTHz帯の光学的特性に及ぼす影響を評価

することに成功した[3]。相変化に伴い生じる大きな光学的特性のコントラストはテラヘルツ波デバイス・プラズモンックデバイスへの応用にとって有望なものである。今後はGSTやiPCM材料を使用したTHz波デバイスの実現に向けた研究を展開する予定である。

本研究はCREST JST (JPMJCR14F1)、JSPS科研費(JP16H03886, JP18H04515, JP18K14156,)の支援を受けて行った。

References

- [1] K. Makino, S. Kuromiya, K. Takano, K. Kato, M. Nakajima, Y. Saito, J. Tominaga, H. Iida, M. Kinoshita, and T. Nakano, ACS Appl. Mater. & Interfaces, **8**, 32408 (2016).
- [2] K. Makino, K. Kato, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, T. Nakano, and M. Nakajima, Opt. Lett. **6**, 1355 (2019).
- [3] K. Makino, K. Kato, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, T. Nakano, and M. Nakajima, J. Mater. Chem. C **7**, 8209 (2019).

リヒトマイヤー・メッシュコフ不安定性における界面とバルク渦の非線形相互作用に関する研究

松岡千博

大阪市立大学工学研究科

リヒトマイヤー・メッシュコフ不安定性 (RMI) [1, 2] を理解することは、プラズマ物理、宇宙物理、ICF 等において重要である。RMI の理論的研究では通常、界面の運動のみを解析することが多いが、実際の実験ではターゲットにおける defect が衝撃波通過時にバルクに微小な渦を残し、それらの微小渦が不安定界面と相互作用することが知られている [3]。バルク微小渦の渦度が小さくない場合には、界面との相互作用により、系全体が乱流状態になることもある。従って、界面がバルク渦によってどのような影響を受けるかを知ることは RMI を制御する上で非常に重要である。本研究では、バルク微小渦を点渦 [4, 5] で近似し、界面には渦層モデル [6, 7, 8] を適用して、RMI における非一様界面とバルク渦との非線形相互作用を理論的に調べた。その結果を報告する。

今、2 次元の非粘性・非圧縮の 2 種の密度を持った流体を考え、界面のところで密度と接線方向速度に飛びがあるものとして界面 $\mathbf{x} = \mathbf{X}$ を

$$\mathbf{X}(e, t) = [X(e, t), Y(e, t)]$$

で表す。ここで、 e ($-\pi \leq e \leq \pi$) は界面を parameterize する Lagrangian parameter である。系にバルク渦が存在するとき、任意の点 $\mathbf{x} = (x, y)$ における渦誘導速度 \mathbf{W} は

$$\mathbf{W} = \mathbf{W}_s + \mathbf{W}_p \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 $\mathbf{W}_s = (W_{s,x}, W_{s,y})$ は界面からの寄与を表し、 $\mathbf{W}_p = (W_{p,x}, W_{p,y})$ はバルク点渦による誘導速度を表す。界面の速度は

$$\frac{d\mathbf{X}}{dt} = \mathbf{W}|_{\mathbf{x}=\mathbf{X}} + \frac{\tilde{\alpha}\gamma}{2}t \quad (2)$$

によって与えられる。ここで、

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} &= \frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{u}^+ \cdot \nabla, \\ \mathbf{u}^+(e, t) &= \mathbf{W}|_{\mathbf{x}=\mathbf{X}} + \frac{\tilde{\alpha}\gamma}{2}t \end{aligned}$$

であり、 $\tilde{\alpha}$ は Atwood 数 $A = (\rho_2 - \rho_1)/(\rho_1 + \rho_2)$ (ρ_i は流体 i ; $i = 1, 2$ の密度、 $\rho_2 < \rho_1$ とする) で定義される人工的なパラメーター [6]、 γ は界面を渦層とみなしたと

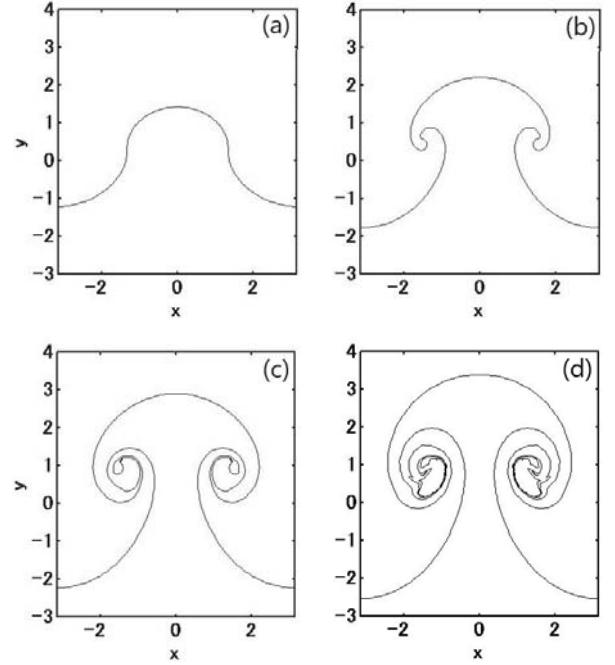


図 1: 点渦が存在しないときの RMI における不安定界面の時間。時刻 $t =$ (a) 2, (b) 4, (c) 7, (d) 10.1885.

きの渦層強さを表し、物理的には渦度に相当する。位置 $\mathbf{x} = \mathbf{x}_{p,i}$ にあるバルク点渦の速度は

$$\frac{d\mathbf{x}_{p,i}}{dt} = \mathbf{W}_s|_{\mathbf{x}=\mathbf{x}_{p,i}} + \mathbf{W}_p|_{\mathbf{x}=\mathbf{x}_{p,i}} \quad (i = 1, 2, \dots, N) \quad (3)$$

で与えられる。界面では圧力連続条件 (Bernoulli 方程式) が成り立ち、それを Lagrange parameter e で微分することにより、渦層強さ γ の発展方程式 [6]

$$\begin{aligned} \frac{d\gamma}{dt} &= \frac{2A}{s_e} \left(X_e \frac{dU}{dt} + Y_e \frac{dV}{dt} \right) \\ &- \frac{(1 + \tilde{\alpha}A)\gamma}{s_e^2} (X_e U_e + Y_e V_e) + \frac{A + \tilde{\alpha}}{4s_e} (\gamma^2)_e \end{aligned} \quad (4)$$

が得られる。ここで、下付き添え字 e は変数 e に関する微分を表し、 $s_e = \sqrt{X_e^2 + Y_e^2}$ である。バルクでは、速度ポテンシャル ϕ_i ($i = 1, 2$) について Laplace の方程式 $\Delta\phi_i = 0$ が成り立つ。方程式 (2), (3), (4) を連立して解くことにより、界面とバルク点渦の運動が決定される。

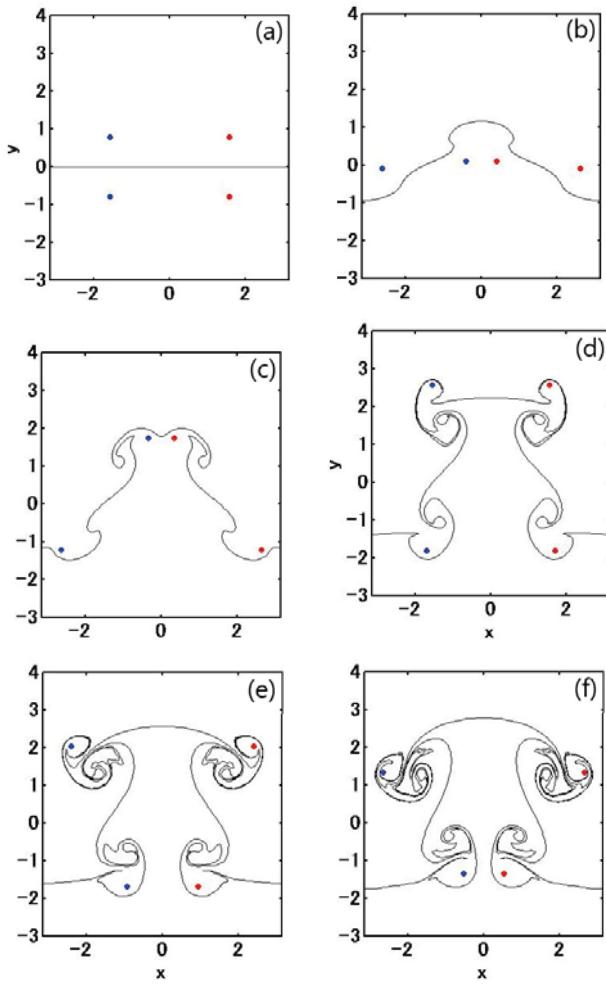


図 2: バルク点渦が存在するときの界面の時間発展の一例. 時刻 $t =$ (a) 0, (b) 2, (c) 4, (d) 6.9155, (e) 8.7765, (f) 10.265 が示されている. ここで, 赤と青の点はそれぞれ 1, -1 の強さを持った点渦を表している.

比較のため, 図 1 にバルク点渦が存在しないときの RMI の不安定界面の非線形発展を示した. 初期界面の形状は $y = 0$ (flat) である. 図 2 にはバルク点渦と界面の相互作用の一例を示した. 点渦の初期配置は図 1(a) に示されているとおりである. この初期配置は Cobos-Campos 等の線形解析をもとに設定している [9]. ここでは 4 個の点渦を配置した. 図 2 から明らかなように, バルク点渦が近づくにつれ, 界面は大きく変形し, 界面上には, もとのバブルとスパイク近傍に新しいサテライトバブルとサテライトスパイクが形成される. これらの形成により, 図 1 と図 2 でのほぼ同時刻における界面形状を比較すると, 点渦が存在する方の界面はより複雑な時間発展をしていることが見て取れる. 圧縮性を考慮した線形解析では, 点渦の存在により, 界面成長が抑制されるという結果が得られているが [9, 10], 非線形領域 (本研究) では, そのような効果は見られなかった. これは,

本研究が非圧縮モデルを採用していることと, 点渦強さがかなり大きい (± 1) ことが関係している可能性があると思われる.

参考文献

- [1] R. D. Richtmyer, Taylor instability in shock acceleration of compressible fluids, Commun. Pure Appl. Math. 13 (1960) 297-319.
- [2] E. E. Meshkov, Instability of the interface of two gases accelerated by a shock wave, Sov. Fluid Dynamics 4 (1969) 101-108.
- [3] A. Nikroo and D. Woodhouse, Bounce coating induced domes on glow discharge polymer coated shells, Fusion Technology 35 (1999) 202-205.
- [4] H. Lamb, Hydrodynamics, Dover, New York, 1932.
- [5] P. K. Newton, The N-vortex problem, Springer, New York, 2000.
- [6] C. Matsuoka, K. Nishihara, Vortex core dynamics and singularity formations in incompressible Richtmyer-Meshkov instability, Phys. Rev. E 73 (2006) 026304, 74 049902(E).
- [7] C. Matsuoka, K. Nishihara, Fully nonlinear evolution of a cylindrical vortex sheet in incompressible Richtmyer-Meshkov instability, Phys. Rev. E 73 (2006) 055304(R).
- [8] C. Matsuoka, K. Nishihara, Analytical and numerical study on a vortex sheet in incompressible Richtmyer-Meshkov instability in cylindrical geometry, Phys. Rev. E 74 (2006) 066303.
- [9] F. Cobos-Campos and J. G. Wouchuk, Analytical scalings of the linear Richtmyer-Meshkov instability when a shock is reflected, Phys. Rev. E 93 (2016) 053111.
- [10] F. Cobos-Campos and J. G. Wouchuk, Analytical scalings of the linear Richtmyer-Meshkov instability when a rarefaction is reflected, Phys. Rev. E 96 (2017) 013102.

偏光ガンマ線とスピン偏極重水素標的による高指向性中性子発生に向けた研究

宮本修治

兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所 NewSUBARU 放射光施設

レーザー駆動中性子発生に関するプロジェクト研究 A-setp により進行し、LFEX レーザーショット 1 発あたりで 10^6 の中性子が発生できるようになった。中性子ラジオグラフィイメージが取れるようになってきたが、まだ被写体の場所での中性子フラックスは不足している。ラジオグラフ被写体における中性子フラックスは、発生数と指向性で決定される。多くの中性子発生法はほぼ 4π 等方放射なのに対し、重水素を加速して、ベリリウムに当てて、核崩壊によって中性子を発生させる、いわゆるピッチャーキャッチャー型の発生方法は指向性があると期待されてきた。中性子の指向性は PHITS によるシミュレーション予測では前方には後方にくらべて 10 倍程度指向しているとされていたが、実験によると 2-3 倍しか指向しておらず、残念な結果となっている。

著者と阪大の有川氏による共同研究では、重水素を核スピン偏極させ、偏光ガンマ線を核スピン方向に合わせて照射すれば、重水素の偏極が保持されたまま中性子発生をすれば中性子の発生方向をスピン方向に限定することができるため、非常に高い指向性が得られる可能性があると考えている。

偏極重水素標的がまだ完成していないため、無偏極の重水素として重水を標的に、偏光ガンマ線照射を行った。図 1 はガンマ線エネルギーが 4MeV の時の中性子の放射方向をバブル計測器で計測した

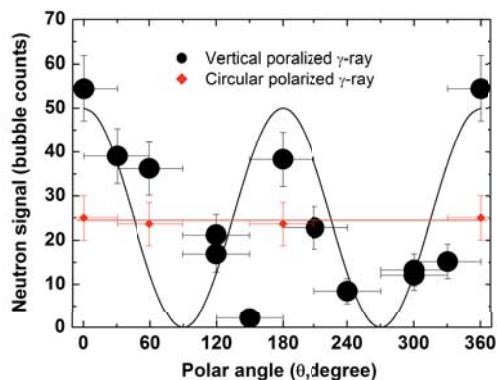


図 1 偏光ガンマ線 4MeV を重水に照射した時の中性子発生方向分布。ガンマ線方向を X 軸として、YZ 平面の角度、+Z 方向を 0 度とした時の角度分布を示す。

$\text{Sin}^2 \theta$ の方向分布を示しており、指向性が確認された。

一方、9MeV のガンマ線を照射し、発生する中性子

のエネルギーと分布を測定した。

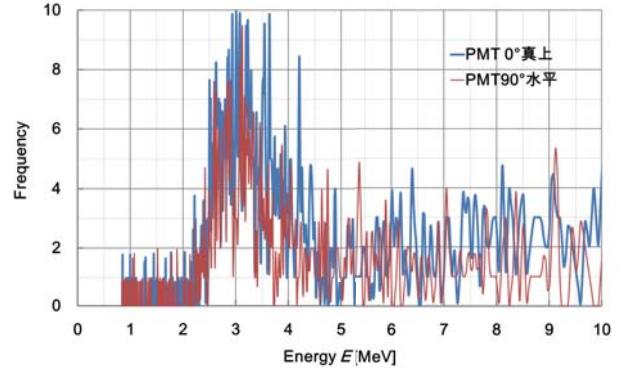


図 2 測定された中性子エネルギー分布と、+Z 方向と+Y 方向に置かれた中性子検出機の信号強度比較。

図 2 は 9MeV の偏光ガンマ線を重水に照射し、今度は中性子 TOF 検出器を 2 方向に置き、中性子エネルギーと、中性子発生数の差を比較した。重水素の光核反応特有の単色の中性子発生が認められた。しかしながら、+Z 方向（青色、 $\theta = 0$ 度）と+Y 方向（赤色、 $\theta = 90$ 度）では中性子カウント数はほぼ変わらず、指向性はみられなかった。ガンマ線エネルギーによって反応が変わり、指向性にも影響を与えることが示唆された。高エネルギーでは巨大共鳴のモードが変化することが知られており、影響が考えられる。重陽子 S 波 ($L=0$)、終状態相互作用無し、電気的双極子遷移の第 0 近似では 100 % 偏極になる。これに対して、高エネルギーになると、重陽子 D 波 ($L=2$)、生成された中性子・陽子の終状態相互作用、磁気双極子遷移、電気的四重極遷移による影響が考えられる。

Investigation of electromagnetic wave propagation and absorption with polarization controlled intense laser pulse

Yoshitaka MORI¹, Takayoshi SANO², Natsumi IWATA², Yasuhiko SENTOKU²

¹The Graduated School for the Creation of New Photonics Industries,

²ILE, Osaka University

INTRODUCTION

Electromagnetic wave propagation and absorption in plasma is one of the fundamental issues on plasma physics since its dawn in relation to wave dispersion relation in discharged materials [1]. Experiments of generation of laser-driven kT class magnetic field [2] have opened theoretical or simulation investigation of laser-plasma interaction with external magnetic field with density close to solid [3, 4]. Extensions of these theoretical or numerical estimations into experiment condition can lead to bulk solid plasma heating by laser pulse in potential.

In the previous ILE research collaboration FY2018, we have evaluated electromagnetic wave propagation and absorption of CO₂ laser pulse (wavelength of 10 μm) in plasma with solid density (0.1 g/cc for hydrogen) region under 10-kT class magnetic field. From this estimation, we found that, as far as the bulk slab density is confirmed, we can investigate external magnetic field from this dispersion relation. This result leads a possibility of probing an external magnetic field in the plasma. This is a promising result to investigate wave propagation experiments using CO₂ laser pulse because understanding of wave plasma interaction under strong magnetic field are enriched.

In this ILE research collaboration FY2019, in order to extend possibility of wave plasma interaction in the magnetized plasma, we have introduced counter illumination scheme that enables momentum conversion into the inertial energy. We have conducted two issues; (i) Theoretical investigation of ultrafast wave-particle energy transfer in the collapse of standing whistler waves [5] and thermonuclear fusion triggered by collapsing standing whistler waves in magnetized overdense plasma [6], (ii) Counter illuminating laser plasma interaction experiments with ultra-intense femto-second laser.

THERMONUCLEAR FUSION TRIGGERED BY COLLAPSING STANDING WHISTLER WAVES IN MAGNETIZED OVERDENSE PLASMA [6]

Thermal fusion plasmas initiated by standing whistler waves are investigated numerically by using two or one-dimensional (1D) Particle-in-Cell simulations. When a standing whistler wave collapses due to the wave breaking of ion plasma waves, the energy of the electromagnetic waves can transfer directly to the ion kinetic energy. The energy conversion efficiency to ions becomes as high as 15% of the injected laser energy, which depends significantly on the target thickness and laser pulse duration. The ion temperature could reach a few tens of keV or much higher if appropriate laser-plasma conditions are selected. This result inspires application for fusion reaction. For example, numerical simulations suggest that the neutron generation efficiency exceeds 10⁹ n/sr/J for DT plasma, which is beyond the current achievements of the state-of-the-art laser experiments. In conclusion, the standing whistler wave heating would expand the experimental possibility for an alternative ignition design of magnetically confined laser fusion, and also for more difficult fusion reactions including the aneutronic proton-boron reaction.

Following this result, we have discussed proposal of ultra-intense CO₂ laser and magnetized plasma interaction experiments in counter illumination with circular polarization.

(I) THEORETICAL INVESTIGATION OF

(II) COUNTER ILLUMINATING LASER PLASMA INTERACTION EXPERIMENTS WITH ULTRA-INTENSE FEMTO-SECOND LASER

The counter illumination with the ultra-intense laser pulses into an imploded pellet has a potential to lead a significant heating with Weibel instability that traps MeV fast electrons and can be mixed into the core thermal energy [6]. According to the previous experiments, a tailored-pulse-assembled core with a diameter of 70 μm is flashed by counterirradiating 110 fs, 7 TW laser pulses. Photon emission ($> 40 \text{ eV}$) from the core exceeds the emission from the imploded core by 6 times, even though the heating pulse energies are only one seventh of the implosion energy. The coupling efficiency from the heating laser to the core using counterirradiation is around 10% from the enhancement of photon emission [7]. These experiments reveal that plasma heating by counterirradiating scheme is promising, though, quantitative analysis and scaling toward ignition are open questions.

We are intended to verify physics related to counter illuminating scheme using repetitive Ti-Sapphire laser system Beat 0.2 J/100 fs/10 Hz 2 beam [8]. Figure 1 shows kick-off experiments of counter illumination into Ar gas target. Diagnostics for plasma temperature are under preparing.

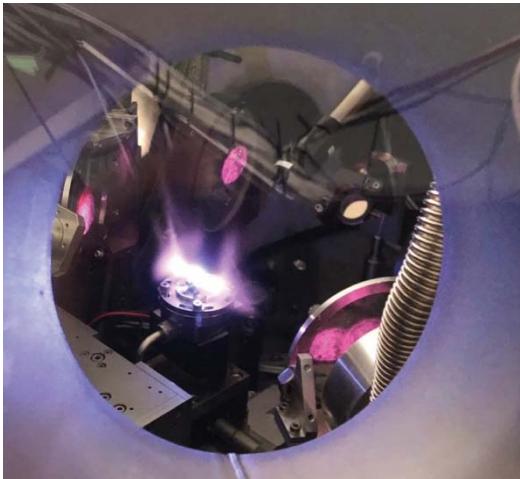


Fig. 1. Counter illuminating experiments Ar gas jet target.

ACKNOWLEDGEMENT(S)

This work was supported by JSPS KAKENHI B
19H01870.

REFERENCE(S)

- [1] F. F. Chen, Introduction to Plasma Physics and controlled Fusion 2nd ed, Springer (1984).
- [2] S. Fufigioka, et al., Sci. Report, **2**, 31 (2013).
- [3] Y. H. Yang et al., Appl. Phys. Letters **106**, 224103 (2015).
- [4] T. Sano et al., Phys. Rev. E **96**, 043209 (2017).
- [5] T. Sano et al., Phys. Rev. E **100**, 053205 (2019).
- [6] T. Sano et al. Phys. Rev. E, **101**, 013206 (2020).
- [7] Y. Mori et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 055001 (2016).
- [8] Y. Mori et al., Nucl. Fusion **57**, 116031 (2017).
- [9] Y. Mori et al., Nucl. Fusion **53**, 073011 (2013).

ホウ酸系非線形光学結晶の高品質・大型化

森 勇介

大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻

背景

非線形光学結晶 $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) は深紫外コヒーレント光の発生特性に優れ、半導体フォトマスクやウェハの検査光源に広く利用されている。近年、ガラス複合基板や炭素繊維強化プラスチックなど難加工性材料の微細加工に対して高出力深紫外レーザーが必要となってきており、ピコ秒パルス赤外光源を基本波に用いた深紫外光源開発を産学連携体制で進めている。今年度は平均出力 10W の波長 266nm 深紫外光を発生させ、5000 時間以上の長期安定動作を報告したが[1]、更なる高出力化に向けてビーム径の拡大によるレーザー損傷の回避が不可欠な状況となっている。そこで、本研究では大口径素子の供給を可能にする高品質・大型 CLBO 結晶の開発に取り組んだ。また、出力の増大に伴って CLBO 素子内で紫外光吸収に起因する温度勾配が形成され、熱位相不整合による変換効率の飽和、出力の立ち上がり遅延などが課題となっている[2]。本研究では深紫外ピコ秒パルス発生時に CLBO で生じる熱位相不整合の影響を明らかにし、開発を進めている高品質結晶の評価指標とすることにも取り組んだ。

実験・結果

CLBO は結晶を引き上げない TSSG 法 (Kyropoulos 法) を用いて、セルフフラックス溶液から成長させている。従来は Fig.1 に示すような固定式攪拌翼と坩堝回転を組み合わせた攪拌方法により高粘性溶液から高品質な結晶が得られるなどを報告してきたが、直径 150mm の坩堝から得られる結晶は低重量 (300 g 以下) のものに限られていた。流動解析の結果から、水平方向への成長が優先される対流環境が原因であることが分かり、鉛直方向の対流を強化する攪拌翼を導入したところ、昨年度は鉛直方向の成長が促進され、重量 621g の大型バルク結晶が得られた。今年度は装置に直径 200mm の大型坩堝を導入し、更なる結晶の大型化に取り組んだ。育成溶液ははフラックス組成比 $\text{Cs} : \text{Li} : \text{B} = 1.2 : 0.8 : 6.25$ となる Li-poor 組成原料を採用した。Li-poor 組成の優位性については、今年度 Applied Physics Express 誌にて、レーザー科学研究所の共同研究者との論文成果発表を行っている[3]。

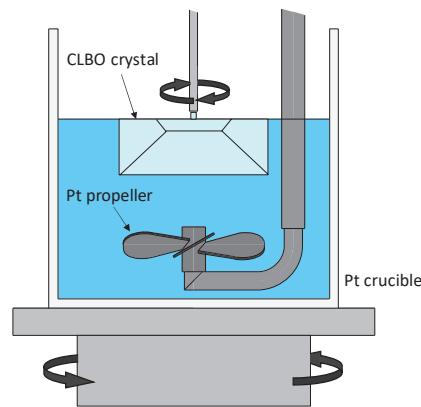


Fig.1 従来の CLBO 結晶育成法の様子

Fig.2 に示す成長履歴で 23 日間の結晶成長を行ったところ、Fig.3 の大きさ $a \times a' \times c = 161\text{mm} \times 90\text{mm} \times 65\text{mm}$ 、重量 1020g の大型単結晶の育成に成功した。水平方向 (a 軸両側分) の平均成長速度は 7.2mm/day であった。結晶内部にはマクロ、ミクロな欠陥が少

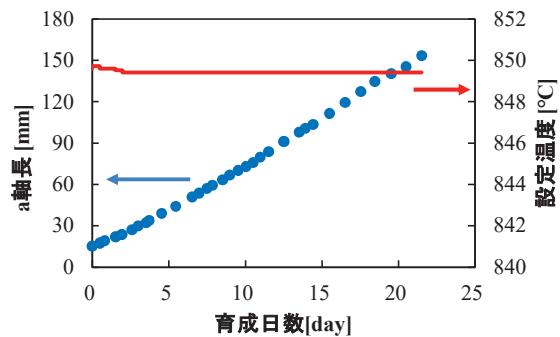


Fig.2 大型 CLBO 結晶の育成履歴

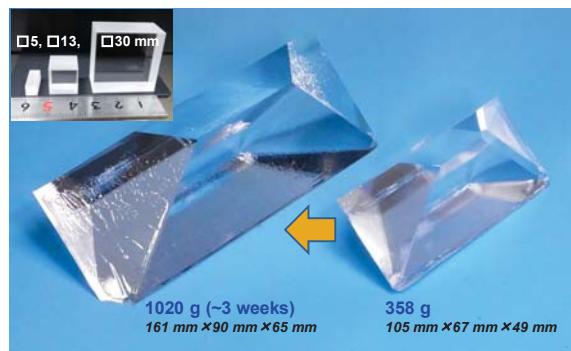


Fig.3 従来結晶と比較した大型 CLBO 結晶

ないことを確認している。大型結晶を実現することで、Fig.3にも示している大口径波長変換素子の作製が歩留まり良くできるようになり、紫外光のピークパワー密度を劣化閾値以下に抑えたまま高出力化が可能となる。現在、さらに垂直方向の成長を促進させることで、結晶重量が 1.5kg となる超大型結晶の作製に取り組んでいる。

次に、Fig.4 に示す利得変調方式の DFB-LD をシード光源に用いた近赤外固体レーザー（パルス幅 42ps, パルス繰り返し周波数 100kHz）の 2 倍波（波長 532nm, 最大平均出力 30W）を入力光とし、波長変換によって波長 266nm の深紫外光を発生させた。内部散乱を基準に評価した品質の異なる 2 つの CLBO から 266nm 光発生方位 ($\theta=62^\circ$, $\phi=45^\circ$, Type1 (ooe) の 10mm 長素子, Sample A (低品質結晶), Sample B (高品質結晶) を作製した。各素子を光学セル内で 150°C に加熱し、Ar ガスを流量 200mL/min で流しながら、脱水処理を施した。入出力特性を調べたところ、Fig.5 に示すように出力が 6.5W 程度（変換効率 43%）では結晶品質による違いは見られなかった。

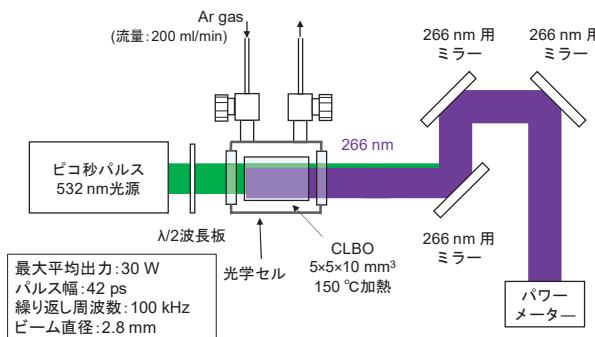


Fig.4 ピコ秒パルス光源を用いた 266nm 光発生試験

そこで、CLBO 素子の前に設けた半波長板を回転させて入射光を e 偏光状態に一時固定した後、紫外光を発生する o 偏光状態に 0.04 秒で回転させた際の平均出力の立ち上がり時間を測定した。ここでは、定常出力に到達するまでの時間（10%–90%）を立ち上がり時間と定義した。出力が 2.4W 時には、Sample A, B ともに 0.1 秒程度で出力が安定した。一方、Fig.6 に示すように、出力を 5.0W に増大すると Sample A は立ち上がりに 3.7 秒を要した。一方、Sample B では 0.2 秒で出力が安定し、定常状態となることが確認できた。Fig.7 に各平均出力に対する立ち上がり時間をまとめた結果を示す。出力が 6.5W の場合、Sample A は平均時間が 8.6 秒、Sample B は 2.6 秒と、約 3 倍以上の差が生じた。また、本測定は全て同一スポットで行ったが、Sample A では立ち上がり時間がばらつく傾向が顕著に見られた。以上のことから、立ち上がり特性は入出力特性で見られなかつた結晶品質の影響を大きく受けることが明らかになった。今後、本評価を活用して、熱位相不整合の影響が生じない高品質結晶の開発を進める予定である。

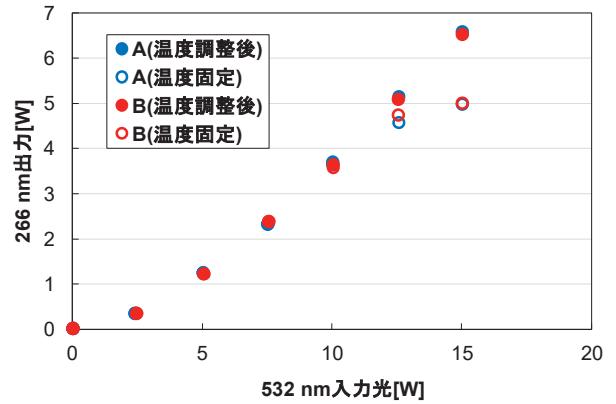


Fig.5 266nm 光発生における入出力特性

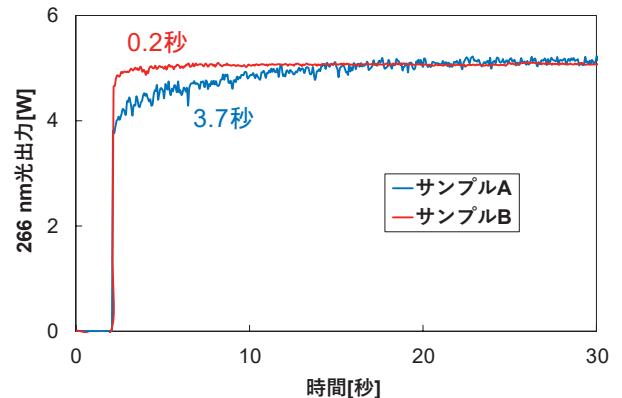


Fig.6 出力 5.0W における立ち上がり特性

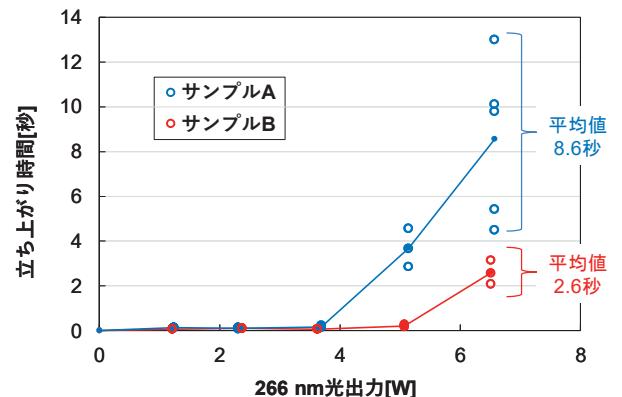


Fig.7 立ち上がり時間の 266nm 光出力依存性

謝辞

本研究は NEDO 「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」事業の支援の下で実施した。

REFERENCES

- [1] K. Kohno et al., OPTICS & PHOTONICS International Congress 2019, ALPS-1-01.
- [2] 折井庸亮他, レーザー研究 45, 580 (2017).
- [3] R. Murai et al., Appl. Phys. Express 12, 075501 (2019).

繰返しパルス照射による光学材料のレーザー損傷しきい値

¹本越伸二・²吉田実・³小川遼・⁴藤岡加奈・⁴吉村政志・⁴實野孝久・³森勇介

¹ レーザー総研・²近畿大学・³阪大工学研究科・⁴阪大レーザー研

初めに

高出力レーザー装置において、使用する光学素子のレーザー損傷は、装置性能を制限する大きな要因である。繰返しレーザーパルスによる損傷しきい値は、1パルスによる損傷しきい値に比べて、低くなることが知られている[1]。しきい値の低下は、繰返し周波数、パルス数に依存し、半分程度にまで下がることが報告されている。しかし、その原因については未だ明らかになっていない。

我々は、繰返しパルスによる損傷しきい値低下の原因を明らかにするために、時間間隔を変えた2パルスによる石英ガラス内部のレーザー損傷しきい値を評価し、2パルスの時間間隔が短くなるに従い損傷しきい値は低下することを明らかにした。その低下割合は、繰返しパルス照射による透過率低下と強い相関があり、レーザー誘起欠陥に起因することを示した[2]。さらに、欠陥の緩和促進を目的に、加熱保持した石英ガラスに対して、レーザー照射試験を行った。図1は、異なった加熱保持温度において、繰返しパルス照射をした時の透過率変化を示している。20,000パルス照射に対して、常温では照射開始時の82%まで透過率は低下しているのに対して、100°Cでは94%，200°Cでは90%で透過率低下を抑制できる結果を得た。興味ある点は、200°C加熱後常温に戻ったガラスに対して評価した結果、89%の低下で、加熱保持の場合と同様に透過率低下を抑制することである。これは、レーザー照射時の加熱に意味があるのではなく、照射前の熱処理により、石英ガラスが欠陥生成し難い状態に変わったことを意味する[3]。

本研究では、OH基含有量の異なった石英ガラ

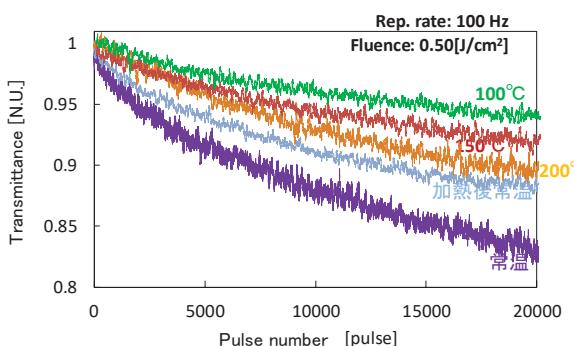


図1 繰返しパルス照射時の石英ガラス透過率の変化

ス材料に対して加熱処理を行い、繰返しパルス照射時の透過率および1パルス、2パルスによるレーザー損傷しきい値を評価し、含有OH基の振る舞いについて考察を行った。

評価方法

図2に繰返しパルス照射時の透過率を測定した光学配置図を示す。照射レーザー光源にはArFエキシマーレーザー（波長193 nm, パルス幅10 ns, 繰り返し周波数100 Hz）装置を用いた。レーザーパルスは焦点距離500 mmのレンズを用い、サンプル表面より8 mm内部でエネルギー密度0.5 J/cm²になるように調整した。繰り返しパルス照射時の入射、透過エネルギーを計測し、透過率変化を評価した。サンプルには、異なったOH含有量をもつ合成石英ガラス（30×30×30 mm³）2種を用意した。サンプルはヒーター上に設置し、常温と200°Cにおいて20,000パルス照射し透過率を計測した。サンプル表面温度は輻射温度計にて計測した。

測定結果

図3(a)と(b)に、それぞれサンプルA(OH含有量1000 ppm)とB(同<1 ppm)の測定結果を示す。サンプルAの場合、熱処理を行うことにより初期透過率が約5%高くなる結果が得られた。興味ある点は、常温では、レーザー照射を開始すると、わずかに透過率が上昇することである。レーザー照射でも熱処理と同じように、透過率を改善する効果が得られるものと考えられる。また、照射10,000パルス以上の透過率は、常温と熱処理で重なる結果が得られた。これらの結果から、熱処理を行うことで、製造時に存在していた欠陥は消失し、透過率は向上するが、レーザーパルスを照射することで新たな欠陥が生成されると考えられる。

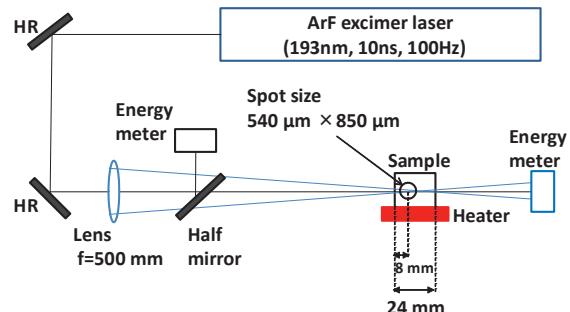


図2 繰返しパルス照射による石英ガラス透過率測定の実験配置図

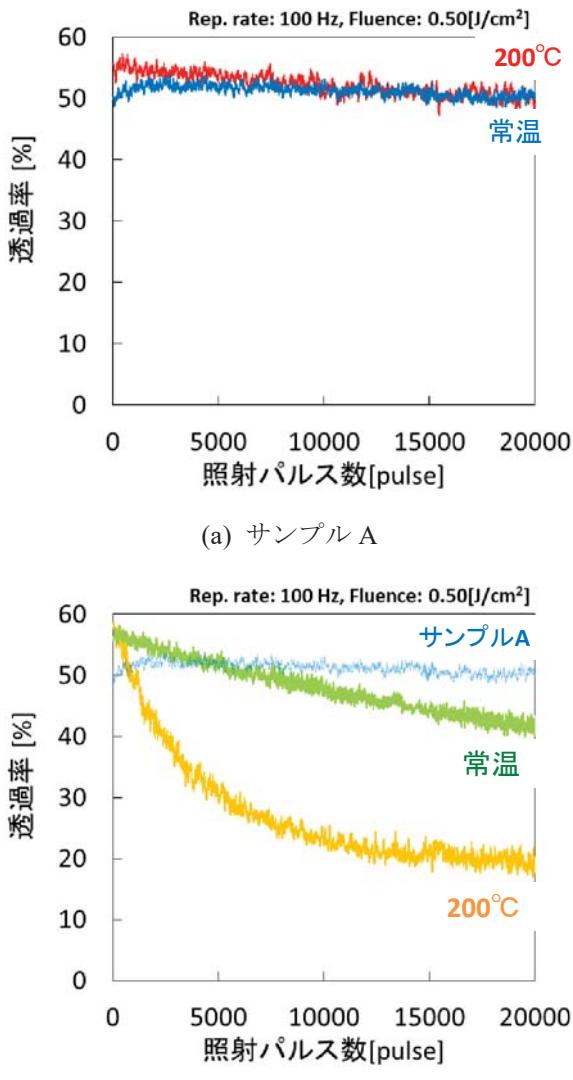


図 3 繰返しパルス照射による合成石英ガラスの透過率

サンプル B では、レーザー照射による透過率低下の割合がサンプル A に比べて大きい。また、熱処理を行うと、レーザー照射による透過率低下はさらに大きくなった。OH 基含有量の少ないサンプル B では、レーザー誘起欠陥の生成量が多く、その生成量は熱処理によってさらに増加すると言える。この結果より、熱処理の効果は石英ガラス種類によって大きく異なることが明らかとなった。

これらのサンプルの内部にレーザー光を集光し、1 パルスおよび 2 パルスの損傷しきい値を評価した。常温の場合、OH 基含有量に関係なく、2 パルスの損傷しきい値は 1 パルスと比べて約 20% 低下した。OH 含有量の多いサンプル A の場合、200°C の熱処理後の損傷しきい値は常温に比べて、1 パルスおよび 2 パルス共に約 5% 向上した。サンプル B では、1 パルスの損傷しきい値は熱処理前後で変わらなかったが、2 パルスの損傷しきい値は約 10% 低下する結果が得られた。これらの結果は、先述の透過率変化と良く一致する。200°C 加熱により急激に透過率低下が大きくなったサンプル B のみ損傷しきい値に差が表れたことになる。含有 OH 基および熱処理により石

英ガラスの化学結合にどのように影響するかについて、今後、微量分析を合わせて検討を行う。

まとめ

繰返しパルス照射時のレーザー損傷しきい値以下の原因を明らかにするために、OH 含有量の異なった合成石英ガラスを加熱処理したときの透過率変化およびレーザー損傷しきい値を評価した。繰返しパルスによる透過率は、OH 含有量および熱処理により大きく変化が異なることを明らかにした。今後、微量分析などをを行い、化学組成との関係を明らかにし、高耐力・長寿命の光学素子設計へ指針を与える。

謝辞

本研究は、大阪大学レーザー科学研究所共同研究課題として行われました。熱心な議論を頂いた諸先生に謝意を表します。

参考文献

- [1] J.-Y.Natoli, et al., Opt. Lett., **30**, 1315 (2005).
- [2] Y. Takemura, et al.: Extended Abstracts of the 24th Congress of the International Commission for Optics, Tokyo, Th2C-05 (2017)
- [3] 本越伸二他, 大阪大学レーザー科学研究所平成30年度共同研究報告書.

レーザー造形法によるシリカガラス構造形成

¹本越伸二・²吉田実・³藤岡加奈・¹坂本高保

¹ レーザー総研・²近畿大学・³阪大レーザー研

初めに

表面に構造を持つ光学素子、例えばフレネルレンズや回折格子など、は広く利用されている。しかし、これら光学素子の製作は、射出成型やプレス法、エッチング加工で行われている。この方法では、金型やマスクが必要となり、少ロットや試作を行うには向きである。

近年、3Dプリンティング(Additive Manufacturing)と称される「三次元造形」技術は大きな注目を集め、従来の模型製作から、医療用サンプル、土木・建築部品、さらには宇宙航空機器にまで応用範囲が広がっている。また、製造方法も、光造形だけでなく、安価な熱溶解積層や、金属などの粉末溶融なども行われている。

我々は、三次元造形技術により、表面構造を持つ光学素子の製作を目的として、シリコーンオイルにレーザー光を照射しシリカガラスの形成を試みた[1]。シリコーンオイルを構成するSiとメチル基CH₃との結合エネルギーは、105 kcal/molであり、波長272 nm以下の紫外光により切断できる。これまでに、シリコンウェハ上に塗布したシリコーンオイルに対して波長193 nmのエキシマレーザー光を照射することにより、照射エネルギー分布に依存した凸レンズが形成できることを明らかにした。また、波長800 nm、パルス幅100 fsのチタンサファイアレーザー光をシリコーンオイル内に照射することにより、オイル内部にゲル状の固化物質が形成されることを確認した。これは、近赤外の光であっても多光子遷移過程によりSiとCH₃間の結合を切断可能であることを示唆している。

2019年度は、設計した表面構造を形成するために、白色ランプ光と分光器で厚さ測定光学系を構築し、レーザー照射前のシリコーンオイル屈折率および厚さを評価した。

分光反射率による膜厚測定の原理[2]

シリコンウェハ上に厚さdのシリコーンオイルを塗布したときの表面反射率R_{total}は、

$$\begin{aligned} R_{\text{total}} &= |\rho_{\text{total}}|^2 = \frac{\rho_0^2 + \rho_1^2 + 2\rho_0\rho_1\cos2\delta}{1 + (\rho_0\rho_1)^2 + 2\rho_0\rho_1\cos2\delta} \\ &= 1 - \frac{8n_0n_1^2n_2}{(n_0^2 + n_1^2)(n_1^2 + n_2^2) + 4n_0n_1^2n_2 + (n_0^2 - n_1^2)(n_1^2 - n_2^2)\cos2\delta} \end{aligned} \quad (1)$$

で表される。ここで、 ρ は振幅反射率、 n は屈折率を表す。添え字の0, 1, 2は光が通過する各媒質と

媒質間の境界を示す。また δ は位相差であり、

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} n_1 d \quad (2)$$

で表される。ここで、 λ は波長であり、シリコーンオイルの屈折率n₁と厚さdが決まれば、波長に依存して表面反射率は周期的に変化することが分かる。今、空気/シリコーンオイル/シリコンウェハの屈折率は、n₀<n₁<n₂であるので、cos2δ=-1の時、反射率は最小となり、

$$R_{\min} = \left(\frac{n_2 - n_0}{n_2 + n_0} \right)^2 \quad (3)$$

また、cos2δ=1の時、最大反射率となる。

$$R_{\max} = \left(\frac{n_2 - n_0}{n_2 + n_0} \right)^2 \quad (4)$$

この最大反射率は、空気/シリコンウェハの場合の反射率と等しい。

シリコンウェハの屈折率は既知であるため、最小反射率よりその波長でのシリコーンオイルの屈折率が求まり、屈折率が求まることにより厚さが求まる。

膜厚測定光学配置と測定試料

図1に構築した厚さ測定光学系の配置図を示す。ハロゲンランプ(MORITEX, MHF-150L)から出射した光は、試料表面で反射し、焦点距離50 mmの凸レンズにより、ファイバ分光器(OceanOptics, USB2000)のファイバ端面に結像される。白色光の試料への入射角および反射角は約23°であった。

測定試料は、P型シリコンウェハ、およびウェハ上にシリコーンオイル(信越化学工業、KF-96)をスピンドル(ミカサ、1H-D3)を使い一様に塗布した。スピンドルの回転数を3500~7000 rpmの間で調整し、回転数と厚さとの関係を評価し

た。

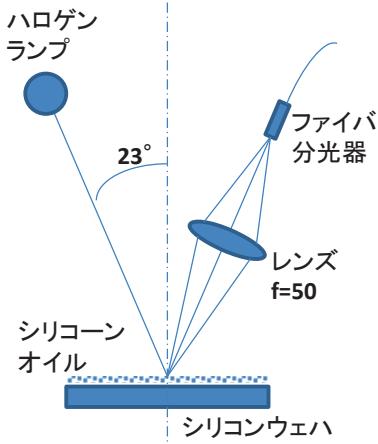


図1 シリコーンオイル厚さ測定光学配置

測定結果

異なるスピンコーラー回転数で塗布されたシリコーンオイルについて、分光反射率特性を計測し、求められた屈折率の長依存性(分散)を図2に示す。回転数が遅くなるに従い、プロットの数が多くなっていることから、膜厚が厚くなっていることが分かる。また遅い回転数では、屈折率が低く、分散も大きくなる結果となった。製造メーカーのカタログでは、温度 25°C の時のシリコーンオイルの屈折率は、1.403 (ナトリウム D 線: 589 nm) と示している[3]。また、石英セルに入れたシリコーンオイルの分光透過率特性から、可視波長域において屈折率分散はないことが確認されている。本研究では、屈折率は低く求まり、その傾向はシリコーンオイルが厚くなるほど顕著であることが分かった。

比較的屈折率の違いが小さい650nm付近のデータを使い、求められた厚さを図3に示す。横軸にスピンコーラー回転数、縦軸にオイル物理膜厚を示す。図3より、回転数を早くすると、塗布されるオイル厚さは薄くなることが分かった。

今後、レーザー照射後の屈折率、厚さを評価することにより、組成変化および収縮率を把握することにより、目標光学素子の表面構造に対するシリコーンオイル厚さおよび照射レーザー条件を明らかにする。

まとめ

レーザーを用いたガラスの三次元構造形成目的に、レーザー照射前のシリコーンオイルの厚さの評価を行った。白色ランプとファイバ結合型分光器を用いることにより、分光反射率特性を評価することにより、塗布されたシリコーンオイルの屈折率および厚さを求めた。求められた屈折率は、カタログ値に比べて低く、分散が大きいことが分かった。この原因是、オイルの吸収係数によるものと考えられる。可視領域のオイルの吸収係数は、 $10^{-6} \sim 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ と見積もっている。しかし、分光反射率特性には、そのオイル層を多重反射し干渉することによって得られることから、僅かな吸収による損失も反射率に影響を及ぼし、低い屈折率を導く要因になったと思われる。今後、微少吸収を考慮した屈折率を求める

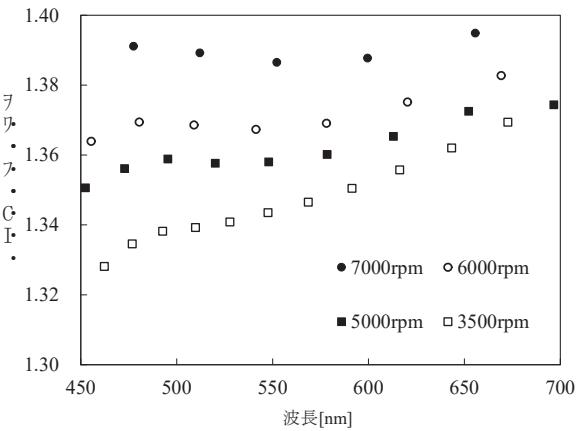


図2 塗布回転数に対するシリコーンオイル屈折率分散

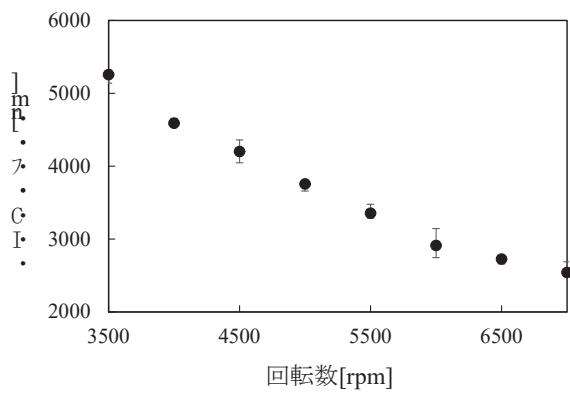


図3 塗布回転数に対するシリコーンオイル厚さ

解析法を導入し、屈折率および厚さ評価の精度向上を図る。また、レーザー照射後の固化したガラス層の屈折率および厚さを評価することにより、三次元構造形成に必要な基礎データを得る。

謝辞

本研究の一部は、公益財団法人天田財団より頂いた助成により行われた。

大阪大学レーザー科学研究所共同研究により実施された。

参考文献

- [1] 本越伸二他、大阪大学レーザー科学研究所平成30年度共同研究報告書。
- [2] 小檜山光信、光学薄膜の基礎理論（オプトロニクス、2003）124。
- [3] シリコーンオイル KF96 性能試験結果、信越化学工業(2003.9) p.14.

レーザーテラヘルツエミッショントン顕微鏡による 金属酸化物ヘテロ界面の仕事関数評価

村岡 祐治¹、福田 貴優²、川山 巍^{3,4}、斗内 政吉³

¹ 岡山大学異分野基礎科学研究所、² 岡山大学大学院自然科学研究科、

³ 大阪大学レーザー科学研究所、⁴ 京都大学大学院エネルギー科学研究所

背景

VO_2 は340Kで金属絶縁体転移(MIT)を示す。転移では結晶構造の変化を伴う。高温金属相はルチル型正方晶であり、低温の絶縁体相ではバナジウムイオンが c 軸方向に対をつくり单斜晶となる。MITでは仕事関数も変化する。その評価は電子状態の理解や VO_2 をベースにしたデバイス応用の研究にとって重要な情報となる。ところが、その重要性にもかかわらず、MITにおける VO_2 の仕事関数の変化はほとんど注意が払われていない。

Ko らはサファイア基板上の VO_2 薄膜を用いてケルビンプローブフォース顕微鏡(KFM)測定[1]を行い、絶縁体相から金属相への転移で仕事関数は0.15 eV増大することを示した。しかし、表面敏感なKFM測定では、その結果が膜の表面組成に強く影響されることが指摘されている。

最近、Zhu らは p 型GaN基板上に n 型の VO_2 膜を作製し、その p - n ヘテロ接合界面を用いて、MITにおける仕事関数の変化を調べた[2]。電流-電圧測定から見積もった界面のエネルギー障壁の高さから、仕事関数は絶縁体相から金属相への転移において0.2 eV変化するとした。KFMの結果とよく対応している。この研究は、接合界面で形成されているバンドオフセットの大きさの変化を通して仕事関数が評価できることを示している。

$\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ でも界面でヘテロ接合が形成される。このヘテロ接合では紫外光照射により、膜側に正の光起電力が発生する[3]。MITで VO_2 の仕事関

数が変化すれば、ヘテロ界面でのバンドオフセットの大きさが変わる。この時、光起電力の値(開放電圧 V_{oc})にも変化が生じるため、MITにおける V_{oc} の値をモニターすることにより仕事関数の変化を検出できると期待される。接合界面で仕事関数の変化をモニターできれば、界面におけるバンドオフセットの変動に由来するTHz波の発生も予想される。本研究ではTHz測定に先立ち、 $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ ヘテロ接合界面で発生する V_{oc} の温度依存性を調べ、MITにおける仕事関数の変化が観測できるかどうかを検証した。

実験

VO_2 薄膜の作製は、KrFエキシマレーザーを用いたパルスレーザー堆積法により行った。基板には $\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ を用いた。成膜時の基板温度は370 °C、酸素分圧は7 mTorrである。膜厚は30 nmであった。 VO_2 薄膜の電気抵抗測定はカンタムデザイン社のPPMSを用い、4端子法により行った。膜と基板間の界面接合特性は電流-電圧測定により評価した。また、紫外光照射下での面直方向の電流-電圧測定により、膜-基板間で V_{oc} が発生していることを調べた。 V_{oc} の温度依存性はPPMSを用いて行った。紫外光照射強度は107 W/cm²である。

結果と考察

作製した $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ の電気抵抗の温度依存性を図1に示す。温度の下げていくと2段転移を示

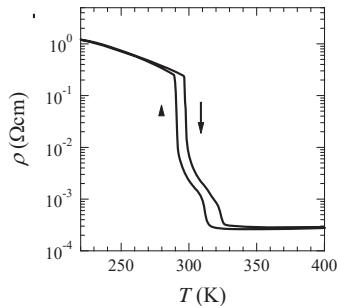


図 1 $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ の電気抵抗率の温度依存性

した。高温側の転移温度 T_{MI} は 313 K で、低温側は 291 K であった。低温側の T_{MI} は、面内で格子整合した $\text{VO}_2/\text{TiO}_2(001)$ エピタキシャル成長膜の結果とよく一致している。高温側の T_{MI} はバルクの値 (340K) に近い。膜の一部で面内格子歪が緩和していることを示している。表面近くに緩和相は形成されていると思われる。

図 2 に 260 K (絶縁体相)における、紫外光照射なしと照射下での面間 $I-V$ 測定の結果を示す。光照射前の測定結果から、明瞭な整流特性が観測でき、界面でヘテロ接合が形成されていることが分かる。紫外光を照射下すると光起電力が発生し、 $I-V$ カーブが下側にシフトした。開放電圧 V_{OC} の大きさは 0.4 V である。 V_{OC} の符号は膜側に正であることから、紫外光照射により膜にホールキャリアが蓄積されていることが分かる。340K(金属相)における光照射なしの $I-V$ 測定でも、絶縁体相同様の結果が得られており、界面でショットキーバリアが形成されていることを確認した。

図 3 に紫外光照射強度 107 W/cm^2 の下、 V_{OC} の温度依存性を示す。測定は 350 K から 250 K まで降温

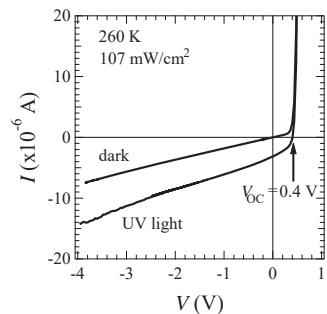


図 2 $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ における紫外光照射なしと照射下における面間電流-電圧特性

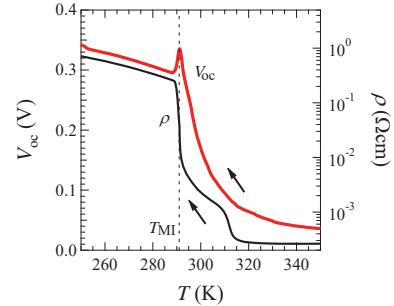


図 3 $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ における V_{OC} の温度依存性 (左軸) と光照射なしにおける降温時の電気抵抗率の温度依存性 (右軸)

過程で行った。 V_{OC} は温度低下とともに増加し、転移温度の 291 K で急激に減少した後、再び増加する様子を示した。291 K における急峻な減少は MIT と同期しているため、転移に伴う変化である。その変化量は 0.04 eV で、絶縁体相よりも金属相の方が大きい。これは、金属相への転移に伴い VO_2 のフェルミ準位が押し下げられたためであり、仕事関数が増加していることを示している。KFM の結果[1]と比べて、変化量は小さいが(KFM は 0.15 eV)、傾向は一致している。本研究は、ヘテロ接合界面の活用により VO_2 の相転移における仕事関数の変化が評価できることを示している。また、ヘテロ接合界面が VO_2 膜の MIT における仕事関数変化の評価法として有効であることを提示している。

まとめ

本結果から、接合界面の活用が VO_2 の相転移における仕事関数変化の評価法として有効であることがわかった。今後このヘテロ界面におけるバンドオフセットの変動を利用して、THz 波の発生の検出に取り組みたい。

参考文献

- [1] C. Ko *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces **3**, 3396 (2011).
- [2] Y. Zhou and S. Ramanathan, J. Appl. Phys. **113**, 213703 (2013).
- [3] Y. Muraoka *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **14**, L757 (2002).

混晶化した Pr:CaF₂ 透明セラミックス材料の開発

日野 維乃¹⁾、藤岡 加奈²⁾、中野 人志¹⁾

近畿大学理工学部¹⁾、阪大レーザー研²⁾

1. 研究背景・目的

金属などを高効率・高精度に加工するために可視域・短パルス・高出力レーザーの開発が望まれております。レーザー媒質の発光イオンとして Pr³⁺が有望である。母材としては、励起状態吸収と多フォノン緩和による非放射遷移損失を抑制するためにフッ化物が適しており、YLiF₄ や LuLiF₄ 結晶、及び ZrF₄ 系や AlF₃ 系ガラスファイバーが研究されてきました。これに対して、アルカリ土類金属フッ化物 (CaF₂, SrF₂) は高熱伝導率、弱い熱レンズ (凹レンズ)、広い蛍光スペクトル幅の特長を有し、等方性媒質であることからセラミックス量産化の可能性がある。しかしながら、アルカリ土類金属フッ化物では母材と発光元素である希土類元素の価数の違いにより発光元素がクラスター化し、発光強度が低下してしまう消光問題が起きるため、バッファー元素を添加しクラスター化による消光の抑制が必要である。^[1,2]

本研究では、母材を CaF₂、SrF₂ とし、バッファー元素 La³⁺ の添加による Pr³⁺ のクラスター化抑制効果を評価した。

2. 実験方法

セラミックス製作に用いる原料粉体は、液相法により母材となる CaF₂、SrF₂、発光元素となる PrF₃、バッファー元素となる LaF₃ をそれぞれ合成した。合成した粉体が目的の材料であることを X 線回折法で同定した。粒径は走査型電子顕微鏡 (SEM) で 20~300 nm 程度であることを確認した。

成形体は所望の組成になるよう各粉体を計量し、分散剤、バインダーを添加、乳鉢で均一混合・造粒後、乾式プレスにより製作した。添加した分散剤、

バインダーは有機物であるため熱分解や酸化反応を利用した脱脂によって成形体内部から取り除いた。その後、母材の融点 (CaF₂ は 1418 °C、SrF₂ は 1477 °C) より低い温度 900 °C で 5 時間、真空で焼結を行った。^[3] 焼結後、蛍光分光装置を用いて得られたセラミックスの蛍光スペクトル、蛍光寿命を測定した。

2. 結果および考察

焼結後のセラミックス外観を図 1 に、波長 445 nm で励起した時の蛍光スペクトルを図 2 に示す。

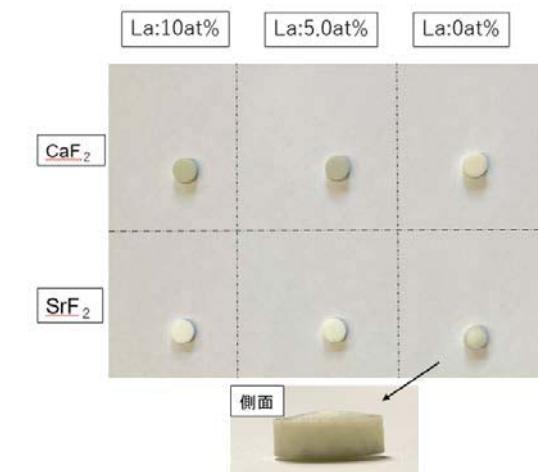


図 1 焼結後セラミックス外観

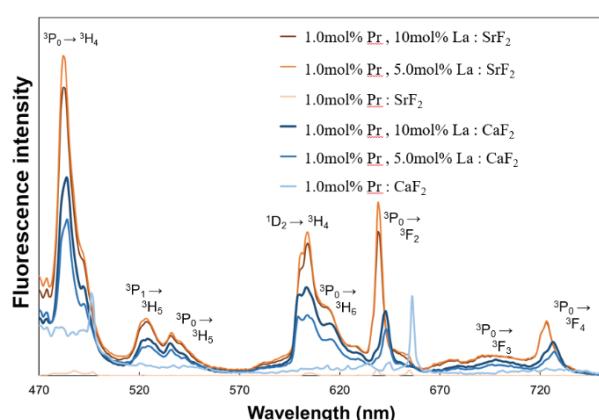


図 2 Pr:CaF₂, Pr:SrF₂ の蛍光スペクトル

図1からいずれのセラミックスも透明化には至っておらず、母材が CaF_2 であるサンプルでは黒色化、母材が SrF_2 であるサンプルでは中央部に膨らみが観測された。いずれの現象も有機物の除去が不十分であることが原因であると考えられる。これらを改善するためには、内部に残留している有機物を取り除く脱脂の条件の最適化を行うことが必要である。

図2から SrF_2 、 CaF_2 どちらの母材においてもバッファー元素である La の添加により蛍光強度が著しく強くなった。これらからバッファー元素 La 添加による Pr^{3+} のクラスター化抑制に効果を持つことが確認された。また、波長 630 nm 以下においてのスペクトル形状は CaF_2 、 SrF_2 母材ともに同等であるが、640 および 725 nm 近傍では SrF_2 母材の方が若干ブルーシフトしていることがわかった。これらから母材による蛍光ピーク波長の制御が期待できる。

次に波長 445 nm で励起した時のピーク波長 484 nm での蛍光の減衰曲線を図3に示す。指數関数でフィッティングし算出した蛍光寿命を表1に示す。表1からバッファー元素無添加のものは Pr^{3+} のクラスター化により蛍光寿命は 19.2 μs 、21.5 μs と短かつたが、バッファー元素を添加したものは 35.0~38.3 μs まで延長された。以上の蛍光強度と蛍光寿命の結果よりバッファー元素 La による Pr^{3+} のクラスター化抑制効果を確認できた。

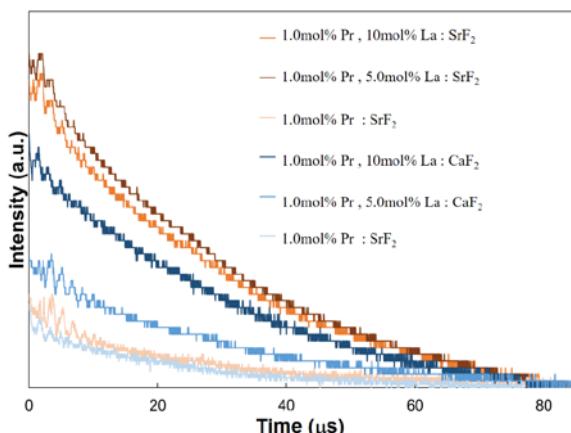


図3 蛍光の時間変化

表1 バッファー元素添加濃度による蛍光寿命への影響 (Pr 濃度はすべて 1.0mol%)

サンプル組成		蛍光寿命 [μs]
母材	La (mol%)	
SrF_2	10	35.0
	5.0	36.6
	0	19.2
CaF_2	10	38.3
	5.0	35.0
	0	21.5

また、バッファー元素 La の添加濃度に関しては、5.0mol%、10mol%で蛍光強度及び蛍光寿命に大きな差が見られないことから、発光元素 Pr^{3+} の濃度に対し、バッファー元素は 5 倍程度の添加で効果が得られることも確認できた。

4. 結論

可視域・短パルス・高出力レーザー用のセラミックレーザー媒質として期待できる Pr^{3+} イオンを添加した CaF_2 、 SrF_2 において、解決が必要とされていた Pr^{3+} イオンのクラスター化の抑制をバッファー元素として La を添加することで成功した。

また、La 添加濃度は Pr^{3+} に対し 5 倍以上であれば十分な効果が得られることも確認できた。

今後は更なる発光効率の改善のためバッファー元素添加濃度の最適化と発光元素 Pr^{3+} の濃度最適化を行う。また、セラミックス焼結については、黒色化を防止するため脱脂条件の最適化を行うとともに、レーザー発振を目指し、セラミックス内の散乱を低減し透明化を行なう。

参考文献

- [1] P. P. Fedorov, Butll. Soc. Cat. Cièn., Vol. XII, 349 (1991).
- [2] B. Herden, et al.: Chem. Phys. Lett. 620 (2015) 29-34..
- [3] 藤岡加奈 (2011) 博士論文 大阪大学.

ダブルレイヤーターゲットを用いたレーザー放射圧加速と 相対論的リヒトマイヤー・メッシュコフ様不安定性

西原功修^{1,2,3}、 Martin I. atys³, Sergei Bulanov³

¹ 大阪大学レーザー科学研究所, ² 大阪市立大学工学研究科, ³ ELI Beamlines

1. はじめに

超高強度レーザーの放射圧を用いたイオン加速[1]は大きな加速電場勾配を得ることができることから将来性が期待されている。現在、100MeVの陽子加速が実現している[2]。ビーム品質の向上、例えば単一エネルギービーム生成についても種々の提案がなされている[3]。本研究では、制御した相対論的 Richtmyer-Meshkov 様不安定性(以下相対論的 RM 様不安定性)を生じさせることにより、ビームの空間的広がりを抑制した単一エネルギーの陽子ビームが得られる可能性を示す。RMI は質量の異なる流体間のリップルのある界面に衝撃波が衝突すると透過(および反射)衝撃波波面にリップルが誘起され、リップル衝撃波の後面に生じる界面での速度シェアによって生じるが、相対論的流体では衝撃波波面での接線速度が保存されないため成長率は抑制される[4, 5]。

この相対論的 RM 様不安定性は、界面に摂動を加えた 2 層薄膜ターゲットと急峻な立ち上がりを持つ高強度レーザーとの相互作用によって生じる。界面の小さな初期摂動が相互作用によって増幅され、高密度の領域と低密度の領域が形成され、初期個体密度以上の高密度陽子ビームがレーザー放射圧によって加速される。この機構はこれまで提案された方法[3]と異なり、平均エネルギーが GeV 領域の、従来の加速器に比べ横方向エミタンスが 1 枝ほど小さく、良くコリメートされた陽子ビームが得られる。

2. シミュレーション条件と相対論的 R 様不安定

先に述べた加速機構を 2 次元の QED 効果を考慮した PIC シミュレーションコード EPOCH[6]を用いて明らかにした。仮定したレーザー波長とピーク強度は、それぞれ $1 \mu\text{m}$ と $1.37 \times 10^{23} \text{ W/cm}^2$ (規格化レーザー電場 $a_0 = eE_0/m_e\omega_0c = 315$)。レーザーのビーム幅(FWHM)は 10λ 、パルス幅は $8T$ レーザー周期(FWHM)、ただし立ち上がりのレーザー強度はガウス波形の 2.5 T からを仮定した。この早い立ち上がりは、例えば低強度部分をプラズマミラーなどでカットすることにより実現できる。

ターゲットは、個体密度の水素 $n_e = 5.36 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ ($48 n_c$) と同じ数密度の重水素からなる。したがって Atwood 数は $A = +/- 0.33$ である。それぞれの厚さは 1λ 。界面の摂動は、波長 5λ 、振幅 0.25λ の三角関数を与えた。シミュレーション領域は $80\lambda \times 40\lambda$ 。メッシュサイズは 0.01λ 、時間刻みは $6.7 \times 10^{-3} \text{ T}$ 。

初期プラズマ領域は、シミュレーション境界から 10λ ところにあり ($x = 0$)、レーザーがプラズマに到達した時刻を $t = 0$ とする。

初期プラズマ密度は、照射レーザー強度に対しては相対論的には透明であるが、急峻なレーザー強度立ち上がりパルスの動重力によってプラズマが圧縮され無衝突衝撃波(様)が形成される (Fig. 1a)。ターゲットはレーザー照射側が重い重水素、後面が軽い水素からなり、以降これを HL と呼ぶ。衝撃波は $t = 1.25\text{T}$ に界面に到達する (Fig. 1a)。したがって、平均的な衝撃波伝搬速度は $0.6c$ である。反射希薄波は Fig. 1c で観測される。衝撃波が重い流体から軽い流体に伝搬する場合には、軽い流体の衝撃波伝搬速度が速いため、一般的に界面のリップルに位相反転が生じる。この位相反転は、Fig. 1a と Fig. 1d の $y = +/- 2.5\lambda$ 、ならびに $y = +/- 5\lambda$ を比較すると明らかである。位相反転の結果、リップル振幅が小さいところが伸びされ ($y = +/- 1.25\lambda, 3.75\lambda$)、そこに低密度領域が形成されレーザー光が高密度領域を囲むようにして伝

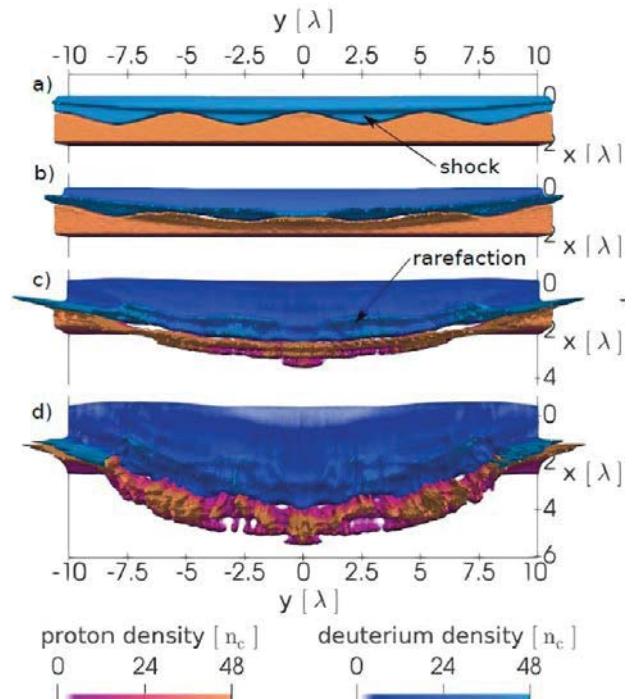


Fig.1. Nonlinear time evolution of relativistic Richtmyer-Meshkov like instability. Blue and red scales represent deuterium and proton densities with maximum value set to the initial density. Full density is indicated by the vertical height. Time instants at $1.25 \text{ T}, 3 \text{ T}, 5.5 \text{ T}$ and 8 T .

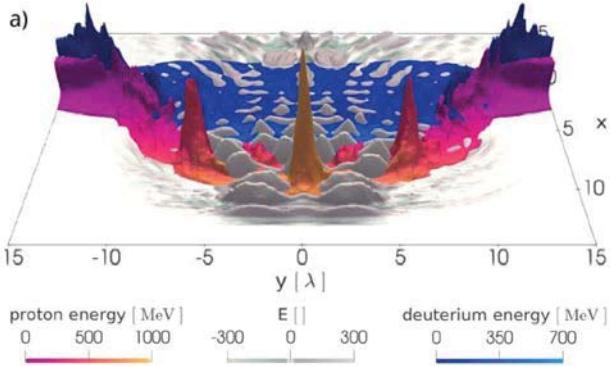


Fig.2 Spatial mean energy distributions of proton (red) and deuteron (blue) and laser electric field in z-direction at time $t = 14T$.

搬する。

Fig.2 に、このようにして形成された加速レーザー場に囲われた陽子の塊の空間密度分布（高さ）とその平均エネルギー分布（色）、およびレーザー電場の空間分布を示す。低密度領域を伝搬するレーザー場は自己収束により $a_0 = 500$ 以上に達し、初期に $x = 0$ と 5λ 附近にあった陽子の塊は、 $x = +/- 2.5\lambda$ 附近の陽子より高いエネルギーに加速され GeV 以上になる。また、相対論的 RM 様不安定性により形成された動重力ポテンシャルは陽子ビームの空間的拡がりを抑制し、 $y = 0$ 近傍の陽子の塊は観測した時間 $t = 47T$ でも拡散せずに塊として加速される。

このように HL の場合には、相対論的 RM 様不安定性によりコリメートされた準単色の高品質レーザー放射圧加速が実現できる可能性がある。一方紙面の関係上結果を示すことができないが、LH の場合にはこのようなコリメートされた効率的な加速は生じない。

3. 高品質陽子ビームのビーム性能

良くコリメートされた準単一エネルギー陽子ビームの品質を Fig. 3 に示す。エネルギー幅の拡がりは、時間 $t = 47T$ 以降、増加するが (Fig.3a)、単一エネルギーの構造はシミュレーションの最後まで保持される。さらに、平均エネルギーは徐々にではあるが増加し最大エネルギーに近づく。時間 $t = 47T$ での

平均ビームエネルギーは 1.88GeV に達し、帯域幅は 69 MeV である (Fig. 3b)。したがってエネルギー拡がりは約 3.8% である。

Fig. 3b) の赤線で表示した陽子ビームの角度拡がり分布を Fig. 3c に示す。角度拡がりは $2\theta = 0.65^\circ$ (FWHM)、したがってビームの立体角は 0.1mrad。規格化した横方向のエミタンスは

$$\varepsilon_{rms} = \sqrt{\langle y^2 \rangle \langle p_y^2 \rangle - \langle yp_y \rangle^2} / m_p c$$

= 0.046 mm-mrad。ここで m_p と p_y は陽子質量と y 方向の運動量。 ε_{rms} は陽子の位相空間 $y-p_y$ の面積に比例する。このエミタンスは、通常の加速器より 1 術小さい。またビームの横方向のエミタンスは実空間のビームの発散角によっても定義することができ、

$$\varepsilon_y = \frac{4}{N} \sqrt{\sum_i (y_i - \langle y \rangle)^2} \sqrt{\sum_i (\Theta_i - \langle \Theta \rangle)^2}$$

Fig.2b) の赤線ビームに対しては、発散角度の拡がりの 2 乗平均の平方根は $\Theta_{div} = 0.038$ rad、 $\varepsilon_{rms} = 0.218$ mm-rad である。たとえ 1.748 GeV から 2.77 GeV の広いエネルギー範囲でも $\Theta_{div} = 0.051$ rad、 $\varepsilon_{rms} = 0.372$ mm-rad であり、これらは他の報告されているシミュレーション結果[7]より 2 術も小さい。

参考文献

- [1] T. Esirkepov *et al*, Phys. Rev. Lett. **92**, 175003 (2004)
- [2] A. Higginson *et al*, Nat. Comm. **9**, 724 (2018).
- [3] F. Pegoraro *et al*, Phys. Rev. Lett. **99**, 065002 (2007); M. Chen *et al*, *ibid* **103**, 024801 (2009); M. L. Zhou *et al*, *ibid* **23**, 043112 (2016); X. F. Shen *et al*, *ibid* **118**, 204802 (2017).
- [4] (review papers) Y. Zhou, Phys. Repts. **723-725**, 1 (2017); K. Nishihara *et al*, Ph. Trans. R. Soc. A **368**, 1769 (2010).
- [5] F. Mohseni *et al* Phys. Rev D. **90**, 12, (2014).
- [6] T. D. Arber *et al* Plasma Phys. Control. Fusion **57**, 113001 (2015); C. P. Ridgers *et al* J. Comp. Phys. **260**, 273 (2014).
- [7] Y. J Gu *et al*, Phys. Plasmas **21**, 6 (2014).

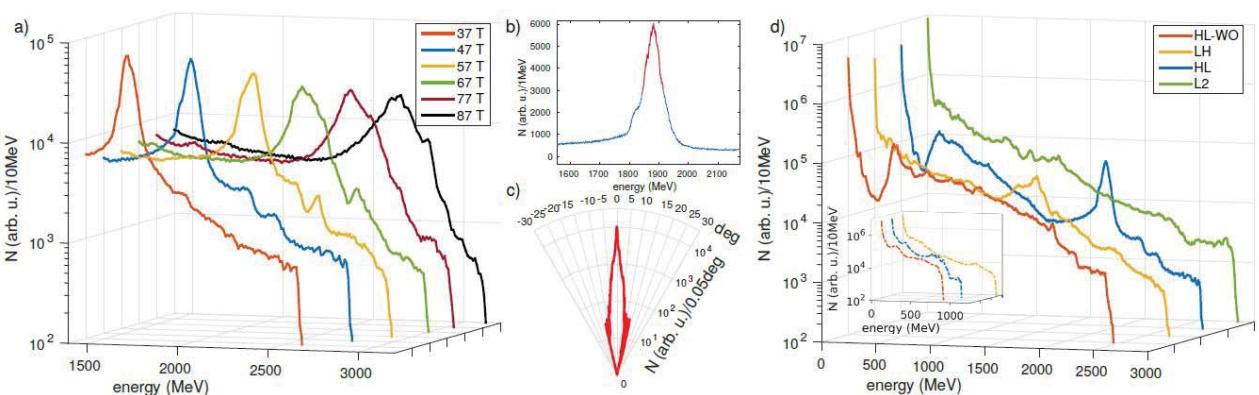


Fig. 3 a) Time evolution of the proton energy spectra, b) proton energy spectra at time $t = 47T$. c) its angular distribution, d) proton energy spectra (corresponding deuteron energy spectra in insert) for various targets at the same time.

レーザー走査によるセンシング技術の高度化に関する研究

錦野 将元¹、北村 俊幸¹、大橋 朋幸²、石野 正人²、山本 和久²

1 量子ビーム研究機構 関西光科学研究所

2 大阪大学 レーザー科学研究所

1. はじめに

可視光半導体レーザー(LD)ビームの走査による超小型プロジェクタが携帯型のフォーカスフリープロジェクタとして普及しつつあり¹⁾、走査型の照明も出現しつつある。一方、車載やロボット用としては、走行時の障害物検知のため赤外 LD ビームを走査する LiDAR が実用されている²⁻³⁾。さらにレーザー光によるワイヤレス給電や光空間通信も注目されている。センシング、照明、表示、給電、通信等が同一の可視光 LD と走査系で実現できれば、サイズやコストでドラスティックに削減でき普及を加速できることが期待できる⁴⁾。

このような観点から、大阪大学では、可視光半導体レーザー光走査による LiDAR および照明さらには IoT 照明ステーションの研究開発を行っている。一方、国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構(以下「量研」という。)では、量子ビーム応用技術開発の一環として、レーザーを用いた計測技術などの開発を進めている。

今回、本共同研究では、レーザー計測手法を深化させ可視光 LiDAR 等への展開をはかる。近年重要度の増している IoT 分野において、従来不可能であった多色 3D 情報についての評価手法を開発する。さらに LiDAR により検知した位置情報(含む動体)に基づき各種レーザー走査型出力機器の照射位置を制御する。

2 多色 3D-LiDAR の評価技術

本検証では、LiDAR 試作に先立ち、非走査での Time of Flight(TOF)測定での測距性能を評価した。TOF 測定は可視光 LiDAR 用光源として、プロードエリア(BA)型の赤色 LD、緑色 LD および青色 LD について行った。ここでターゲットはカラー色票であり、白・黒・赤・青・緑を用いている。

ToF 測定システムの構成は図 1 に示すとおりである。Function Generator(FG)の信号をベースに 15ns 程度のパルス幅で発振させたレーザー光を色票に

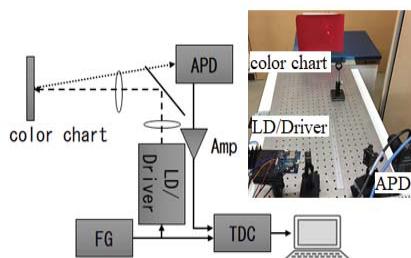


図 1 ToF 測定システム構成図

照射し、色票の反射光を Avalanche Photodiode(APD)で検知した。受光信号を增幅しオシロスコープで計測、また Time to Digital Convertor(TDC)基板によりこの信号と FG のトリガ信号との時間差を計測した。用いた LD の波長は、赤 638nm、緑 520nm、青 450nm であり、平均パルス光出力は 0.5mW とした。

図 2 に RGB の各 LD と各色票の距離に対する反射光強度を示す。図 2 の上側に示す、赤色 LD に対する各色票の受光出力は、緑・青・黒では TDC 基板の閾値である 2V 付近であったが赤・白は 9m 以下でアンプが飽和するほどの出力が得られた。真中に示す緑色 LD は白と緑が、下側に示す青色 LD は白の色票が高い出力を得られた。よって RGB-LD に対する各色票の判断には、白は RGB-LD 全てで高い反射光強度がある時、赤は赤色 LD のみ高い反射光強度がある時、緑は緑色 LD に高い反射光強度がある時、青は青色 LD に TDC 基板の閾値に近い反射光強度がある時にそれぞれ判別可能といえる。

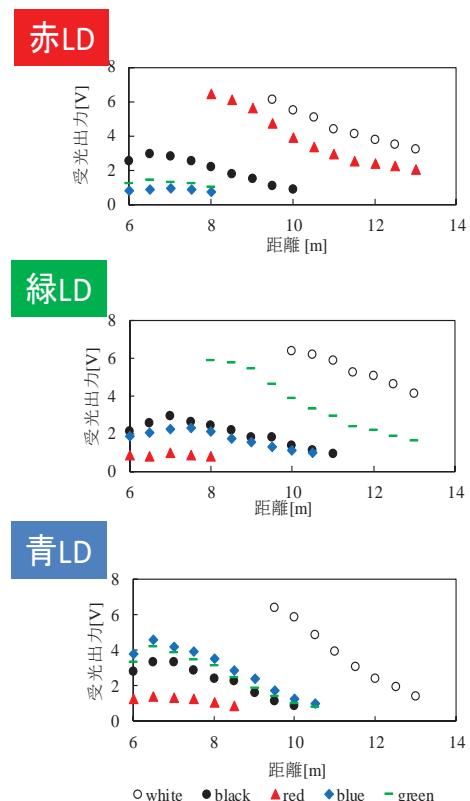


図 2 RGB-LD の距離に対する各色票の受信強度

3. LiDARによる移動体の位置検出

非走査 TOF 測定で選定した赤色発光の BA-LD を光

源とする2次元走査機構のLiDARを試作し、可視光3D-LiDARを得た。

図3は試作した赤色LD搭載3D-LiDARの外観(a)と動作時のビーム走査軌跡(b)を示す。LDは若干出力抑制して、パルスエネルギー5.7nJ、パルス幅2.5ns、繰り返し105kHzで動作させた。走査角度は、水平方向に210°、垂直方向に40°で、走査速度は垂直1.2kHz、水平20Hz、フレームレートは20fps、解像度は2590dot/frameである。

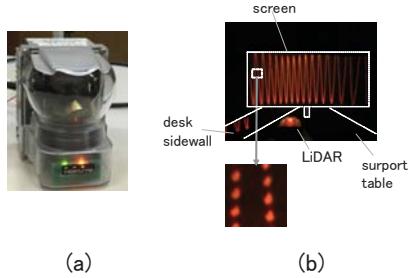


図3 試作した可視光 LiDAR(a)とビーム軌跡(b)

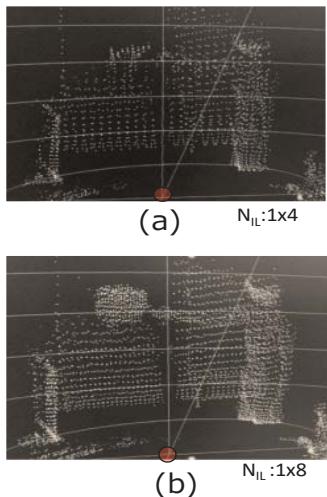


図4. モーションシーンの異なるインターレース(IL)での3D-LiDAR像

角度分解能を高めるためには、インターレースの手法を用いている。図4(a)および(b)は移動物検知としてモーションシーンに対する3D-LiDAR像を示す。インターレース数は(a)では $N_{IL}=4$ であり、(b)では $N_{IL}=8$ である。 $N_{IL}=4$ ではフレーム速度は5fpsで高速の移動物やモーションに追随可能であるが、角度分解能の低下により人・モノの判別がやや難しい。 N_{IL} を8まで上げると、速度は2.5fpsでやや高速性は劣るが、(b)に示すように人・モノの判別に十分な角度分解能が得られていることがわかる。今後振れ角限定や光走査系の高速化で、より高速かつ高解像度が可能となる。

4. 可視光 LiDARによる移動体へのレーザースポット照射（含む給電等）の原理検証

ハイブリッド構成ではあるが、可視光3D-LiDARで

位置検出した対象物へのスポット照射、さらには光給電も実現した。図5は可視光LiDAR信号で照射位置が制御された追隨型スポット照明を示す。(a)は原理検証用システムの構成、(b)は検出ターゲットであるミニチュアソーラーカーの太陽電池へのレーザー照射と追っかけ給電を示す写真である。可視光LiDARで検知した移動太陽電池の位置情報をスポット位置可変照明の2次元光走査デバイスに入力し、太陽電池のレーザー発電を実現した。

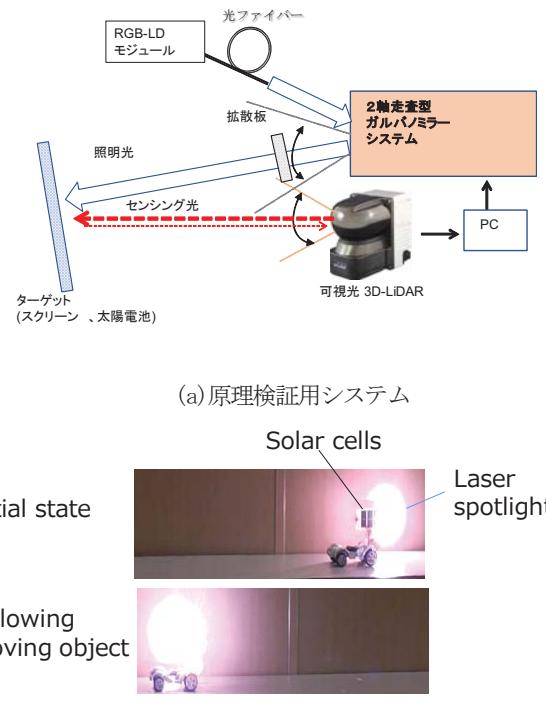


図5 移動太陽電池の位置検出と発電

5まとめと今後の展開

レーザー走査によるセンシング技術に関する高度化の研究として、可視光半導体を用いたLiDARの原理検証を行った。RGB3原色LDを用いたTOF実験の結果、十分実用可能な測距距離とカラーLiDARの実現可能性を検証できた。さらに可視LiDARで検出した位置への可変スポット照射を実現した。

今後、走査機構を有するRGB-LiDARによりカラー3D化を実現するとともに、色および人・モノ判定の精度を上げる。さらに同一LDでの照明との機能集積化の検討を行う予定である。

参考文献

- 1) 例えは黒田・山本編 「解説：レーザー照明・ディスプレイ」 オプトロニクス社 (2016)
- 2) M. Stern, et al.: Proc. 11th Microoptics Conference', 312–315 (2005)
- 3) H. Kawata, et al.: Proc. IEEE/RSJ Int. Conf. on Intelligent Robots and Systems(IROS), p.3277 (2005)
- 4) M. Ishino, T. Kitamura, A. Takamori, J. Kinoshita, N. Hasegawa, M. Nishikino and K. Yamamoto: Optical Review **26** (2019) 213.

Excitonic luminescence properties from new layered mixed-anion compounds with natural superlattice

Hiraku Ogino¹, Yuki Iwasa¹, Kohei Yamanoi², Toshihiko Shimizu², Sarukura Nobuhiko²

¹National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

²ILE, Osaka University

INTRODUCTION

Compounds which exhibit excitonic emission are important for optical applications such as new type of phosphor materials and very fast scintillators. Artificial superlattice was developed to achieve large oscillator strength for higher quantum confinement effect to enhance exciton binding energy and stable excitonic luminescence at room temperature. Such low-dimensional structures are usually fabricated using thin-film technology, however, it is difficult to fabricate structures of micrometer size or larger using these techniques. On the other hand, another class of wide band-gap semiconductor with such superlattice can be achieved by the stacking of different kinds of layers. In some layered compounds, excitonic luminescence is observed because their layered structure works as a quantum well, and increases the exciton binding energy through the quantum confinement effect. Such luminescence was reported in several chalcogenide oxide such as LaCuSO[1]. Previously we have investigated optical properties of other compounds, Sr₃Sc₂Cu₂S₂O₅[2] and Sr₂ScCuSO₃[3]. These compounds composed by semiconducting CuS layer and perovskite-related SrScO layers. In both samples sharp emission lines are observed near the band edge. The merit of these group of compounds are their chemical and structural flexibilities. In previous report, we have investigated luminescence properties of Ba₃RE₂Ag₂Se₂O₅(RE = Y, Lu)[4]. These compounds also shows excitonic luminescence with wavelength region from 400 ~ 600 nm. The emission wavelength of the compounds are different from those of CuS compounds because of narrower band gap of AgSe compounds.

Last year we characterized luminescence properties of new compounds Sr₃Sc₂Cu₂Se₂O₅ and Sr₂ScCuSeO₃.[5] These oxyselenides have similar crystal structure with those of oxysulfides, while the constituent element in the semiconducting layer is different. The band gap of these compounds are smaller than those of oxysulfides. In this year, we explored this system, and found new material Sr₃Sc₂Ag₂Se₂O₅ its structural parameters are refined by Rietveld analysis.

EXPERIMENTAL

Sintered bulk samples with nominal compositions of Sr₃Sc₂Ag₂Se₂O₅ were synthesized by solid state reactions starting from stoichiometric amounts of Cu, Se, Sc₂O₃, Sr, and SrO. As the starting reagents are moisture sensitive, the synthesis was carried out in a glove box under argon atmosphere. Powder mixtures were pelletized, sealed in evacuated quartz ampoules, and heated at 800–900 °C for 24 hours. Phase identification was performed using powder X-ray diffraction (XRD) with a Rigaku Ultima-IV. The XRD intensity data were collected in the 2 h range of 5–80 degree in steps of 0.02 degree using Cu-Kα radiation. Silicon powder was used as an internal standard. Diffuse reflectivity measurements were performed using a Shimadzu UV-2600 spectrophotometer equipped with an ISR-2600Plus integration sphere.

RESULTS AND DISCUSSIONS

Bulk samples of a new compound Sr₃Sc₂Ag₂Se₂O₅ were successfully synthesized by solid-state reaction

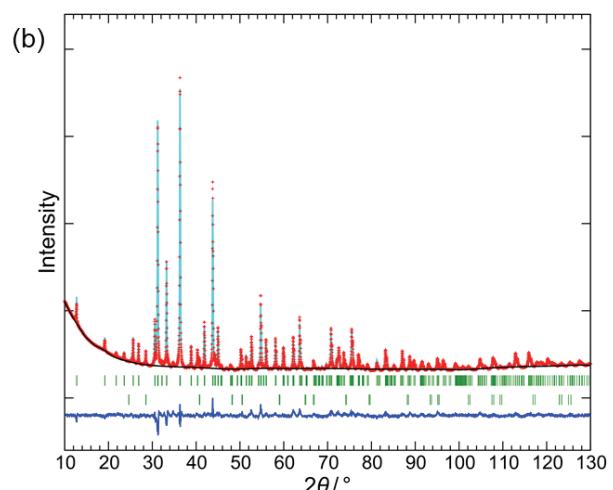


Figure 1. Results of the Rietveld analysis of Sr₃Sc₂Ag₂Se₂O₅. Red points represent the experimental patterns, cyan line the calculated patterns, and blue line the difference of these patterns.

method. Because the structural parameters of $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ have not yet been reported, their crystal structures were refined by Rietveld analysis.

We carried out the Rietveld analysis with a constant occupancy of 1.0 and atomic displacement parameter of 0.0127(6). Fig.1 and Table 1 show the results of the Rietveld analysis of $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$. The compound is almost single phase except for small amounts of SrSe impurities, and their space group is $I4/mmm$ isostructural to $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$ [17]. The lattice parameters are $a = 4.13402(5)$ Å and $c = 27.8080(5)$ Å for $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$, which are slightly larger than those of $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$.

The length of Ag-Se in $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ is 2.76 Å, while Cu-S and Cu-Se lengths in $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$ and $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ are 2.49 Å and 2.52 Å, respectively. The Ag-Se length is longer due to the larger ionic radii of Ag and Se.

Table 1. Refined parameters of $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$

atom	Occ.	x	y	z	U
Sc	1.0	0	0	0.07124(12)	0.0127
Ag	1.0	0.5	0	0.25	0.0127
Sr1	1.0	0.5	0.5	0	0.0127
Sr2	1.0	0.5	0.5	0.13298(8)	0.0127
Se	1.0	0	0	0.18431(7)	0.0127
O1	1.0	0.5	0	0.0793(2)	0.0127
O2	1.0	0	0	0	0.0127

$$a = 4.13402(5) \text{ \AA}, c = 27.8080(5) \text{ \AA}$$

$$R_{wp} = 3.127\%, R_p = 2.235\%, S = 0.4592, R_B = 9.716\%,$$

$$R_F = 7.509\%$$

Fig.2 shows the Tauc plots of the $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ together with related compounds $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$ and $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ calculated from the diffuse reflectance spectra at room temperature. The band gap energy was estimated by using Kubelka-Munk equation.

By linear extrapolation through fitting the absorption edge as shown by the dashed lines, the band gap values were determined to be 3.3 eV, 2.9 eV, and 2.4 eV for $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$, $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$, and $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$, respectively. The order of the band gap values for these compounds is consistent with that of the expected band gap energies from DFT calculations, although the absolute values are different. These band gap energies are significantly larger than those of bulk semiconductors such as Cu_2S (1.21 eV)[18], Cu_2Se (1.1

eV)[19], and Ag_2Se (~ 0.2 eV)[20], showing evidence of the quantum confinement effect in low-dimensional structures.

CONCLUSIONS

New layered mixed-anion compound $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Ag}_2\text{O}_5$ was successfully synthesized and the crystal structure was refined by Rietveld analysis. Band gap of the compound is narrower compared to related compounds $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$, $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ due to Ag substitution.

ACKNOWLEDGEMENT(S)

We thank to J. Ueda and S. Tanabe at Kyoto University for their assistance and fruitful discussions. This work was supported by JSPS Grant-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas “Mixed Anion” (Grant Number JP16H6439).

REFERENCE(S)

- [1] K. Ueda, S. Inoue, H. Hosono, N. Sarukura, M. Hirano, *Appl. Phys. Lett.* **78** (2001) 2333.
- [2] K. Otsuchi, H. Ogino, J. Shimoyama, K. Kishio, *J. Low Temp. Phys.* **117** (1999) 729.
- [3] H. Ogino, J. Shimoyama, K. Kishio, Y. Katsura, M. Tsuboi, K. Yamanoi, M. Cadatal-Raduban, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, *Appl. Phys. Lett.* **101** (2012) 191901
- [4] H. Ogino, Y. Katagi, J. Shimoyama, K. Yamanoi, M. Tsuboi, T. Shimizu, N. Sarukura, K. Kishio, *Opt. mat.* **36** (2014) 19781981
- [5] Y. Iwasa, H. Ogino, D. Song, K. Yamanoi, T. Shimizu, J. Ueda, S. Tanabe, and N. Sarukura, *Opt. Mater.* **84**, 205 (2018).

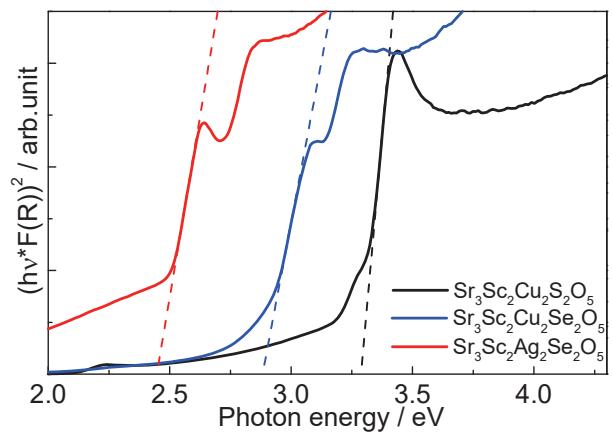


Figure 2. Tauc plots of the $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Ag}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ together with related compounds $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$, $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ at room temperature. The dashed lines show the extrapolation of the linear portion at band edges.

GaSb/InAs ヘテロ構造からのテラヘルツ放射強度の評価

佐々 誠彦

大阪工業大学 工学部 ナノ材料マイクロデバイス研究センター

1. はじめに

テラヘルツ (THz) 電磁波領域は 1 THz 前後の周波数帯に当り、高効率・高感度の受発光素子の開発が要求される未開拓な電磁波領域である。我々は、励起波長 800 nm のフェムト秒パルスレーザにより InAs 薄膜を励起することで、高価なバルク基板に代わる、より高強度な THz 放射素子が得られることを見いだした[1]。放射強度の増強機構が、薄膜構造による多重反射であることを明らかにし、反射層をもつ構造でさらなる高強度化が可能なことを示した。最近は、GaSb とのヘテロ接合を用いて、高エネルギー電子を InAs 中に注入することで、放射強度自身の増強が可能であることを見出した[2]。それまでの取り組みは励起波長 800 nm の光源に対する放射特性を対象にしてきたが、その波長に使用する光源のチタン・サファイアレーザは大型かつ高価であり、これを 1.56 μm 帯のファイバーレーザに置き換えることで、よりコンパクトで安価な THz 時間領域分光システムの構築が可能となる。そこで、励起波長を 1.56 μm に変えて THz 放射特性の評価を開始した。この波長で InAs を励起すると電子が得る過剰エネルギーは高々 0.4 eV 程度となり、より高い電子移動度を有する InSb (同励起波長での過剰エネルギーは約 0.5 eV) からの放射強度が InAs を上回ることが知られている[3-5]。これらの結果は、上述のように励起キャリアの初速度（初期エネルギー）と半導体のバンド構造が、その後の拡散過程に重要な役割を果たしていることを示している。そこで、1.55 μm 付近の長波長の光を励起光として使用した場合にも、大きな初速度が得られるよう、ヘテロ接合の利用が有効であると期待し、GaSb/InAs ヘテロ接合を使って放射強度特性を評価した。

しかし、初期的な結果では 800 nm 励起で得られたような薄膜での放射増強を得ることはできなかった。そこで、今年度は再度 800 nm と 1.56 μm 励起での特性の違いを検討することとした。

2. 励起エネルギーと放射特性の関係

図 1 は GaSb/InAs ヘテロ構造のテラヘルツ放射特

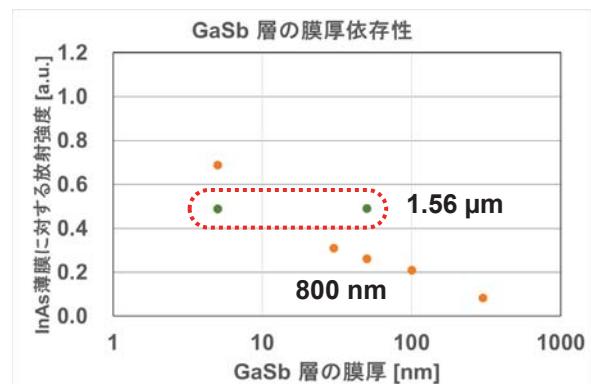


図 1 励起波長 800 nm および 1.56 μm で励起した GaSb/InAs ヘテロ構造の放射強度の GaSb 層厚依存性。

性を励起波長を変えて測定した結果である。800 nm の波長で励起した場合には、GaSb 層厚さに対して単調に減少するという明確な依存性が見られるのに対し、1.56 μm の波長で励起した場合には、放射強度は GaSb の厚さを変化させてもほとんど変化していないことがわかる。また、これらの試料の放射強度は InAs 基板の試料に比べても、放射強度は弱く、薄膜による増強効果も見られていない[6]。

この結果から励起波長の違いにより生ずる違いとして、光励起層での光吸収に着目したところ、1.56 μm での GaSb 層の吸収係数は、800 nm に比べて大きく減少することが判明した[7, 8]。吸収係数は吸収しようとする光の波長に対して、バンドギャップが小さい方が大きな値となる。そこで、励起層の物質のバンドギャップを GaSb より小さくし、そこで光吸収の増大効果を検討するため、それに対応する構造を作製した。

3. 実験内容

GaSb/InAs ヘテロ構造層で光吸収層の GaSb 層にバンドギャップの小さな InSb を加え、InGaSb 層 (In 組成約 0.2) として、光吸収の増大を図り、THz 放射特性を THz 時間領域分光法により測定した。

測定には、斗内研究室の THz 時間領域分光評価システムを使用した。励起レーザはファイバーレーザで励起波長 1.56 μm、ビーム径約 10 μm、励起強度は

約 80 mW である。受光素子には、スパイラル型アンテナをもつ LT-GaAs 光伝導スイッチを用いた。

InGaSb 層の導入により、発光強度が増加した試料も見られたが、素子構造との対応に、統一的な説明を行うことができない段階であり、さらなる評価を行う予定である。

放射（電界）強度の基準として InAs 薄膜のみの試料も作製しているが、その時間波形を図 2 に示す。時間約 23 ps に現れる第 1 のピークは、レーザーパルス励起により誘起された拡散電流による通常のテラヘルツ放射と見られる。図 3 には放射波が試料内をどのように進行するかを示している。第 1 のピークは図中①の過程に相当する。ところが、38 ps 以降に第 2 のピークが観測されている。この 2 つのピークの間隔（約 15 ps）から、第 2 のピークは、第 1 の放射で検出器とは反対の基板側に向かったものが、基板裏面で反射され、それが再び InAs 薄膜を透過して表面から放射されたものと考えられる（図 3②）。

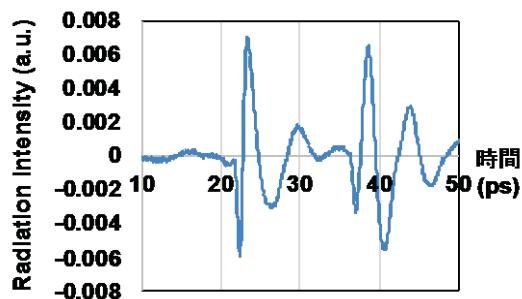


図 2 InAs 薄膜の放射（電界）強度時間波形。

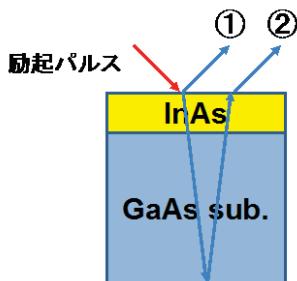


図 3 放射パルスの基板内での伝播経路。

4. 考察

図 2 に見られるように、第 1 ピークと第 2 ピークの強度は同程度である。この第 2 ピークは、図 3 に示す第 1 ピークに寄与する放射のうち、GaAs 基板側（図で下向き）に放射されたテラヘルツ波が InAs/GaAs 界面で反射されることなく、GaAs 基板に入射・透過して、GaAs 基板の底面で反射され、再び GaAs/InAs 界面を通過し、InAs を透過した後、表面から放射されたもの（図 3②）である。2 つのピークの強度が同程度であることは、下部へ放射されたテラヘルツ波が、従来は、InAs 薄膜と GaAs 基板の界

面で反射され、薄膜内の多重反射により、放射強度の増大に寄与していたものが、界面でほとんど反射を受けることなく、透過したため、この増強過程が働いていいことを示している。

現時点では、InAs/GaAs 界面で反射が低下した理由は明確ではないが、界面に高濃度 n-InAs 層を形成し、プラズマ反射層を形成するなど、界面での反射が増強される構造を作ることによって、放射強度を高めることができると考えられる。

まとめ

GaSb/InAs ヘテロ接合を使って、励起波長の違いによる放射特性の違いを 800 nm と 1.56 μm で評価した。励起波長が 1.56 μm の場合に、800 nm のときに強度増強に有効であった多重反射が見られない原因が、(InAs/GaAs 界面での反射の低下によることが)明らかになった。この結果は、界面での反射を増強する構造を作製することで、1.56 μm 励起でも高い放射が得られることを示唆している。

参考文献

- [1] S. Sasa, S. Umino, Y. Ishibashi, T. Maemoto, M. Inoue, K. Takeya, M. Tonouchi, "Intense Terahertz Radiation from InAs Thin Films", J. Infrared Milli Terahz Waves **32**, 646 (2011).
- [2] S. Sasa, M. Tatsumi, Y. Kinoshita, M. Koyama, T. Maemoto, I. Kawayama, and M. Tonouchi, "Enhanced Terahertz Radiation from GaSb/InAs Heterostructures", Int. Conf. on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, (IRMMW-THz)
- [3] M. Suzuki, M. Tonouchi, K. Fujii, H. Ohtake, and T. Hirosumi, "Excitation wavelength dependence of terahertz emission from semiconductor surface", Appl. Phys. Lett. **89**, 091111 (2006).
- [4] P. Gu, M. Tani, S. Kono, K. Sakai, and X.-C. Zhang, "Study of terahertz radiation from InAs and InSb", J. Appl. Phys. **91**, 5533 (2002).
- [5] R. Adomavicius, G. Molis, A. Krotkus, and V. Sirutkaitis, "Spectral dependencies of terahertz emission from InAs and InSb", Appl. Phys. Lett. **87**, 261101 (2005).
- [6] S. Sasa, R. Ohashi, D. Shimada, M. Koyama, T. Maemoto, I. Kawayama, and M. Tonouchi, "Terahertz Radiation Characteristics of GaSb/InAs Heterostructures", Int. Conf. on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures, Nara, Japan (2019).
- [7] D. E. Aspnes and A. A. Studna, "Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV", Phys. Rev. B **27**, 985 (1983).
- [8] M. Muñoz, K. Wei, and Fred H. Pollak, "Spectral ellipsometry of GaSb: Experiment and modeling", Phys. Rev. B **60**, 8105 (1999).

光学材料、光学薄膜の損傷機構のパーコレーションモデル

佐々木 明

量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所

1. はじめに

本報告書では、大阪大学レーザー科学研究所猿倉研究室で行っている、光学損傷の理論、シミュレーションに関する共同研究の成果と、その一環として行っているフィリピンマップア大学の教育、研究プログラムに対する協力の現状について報告する。

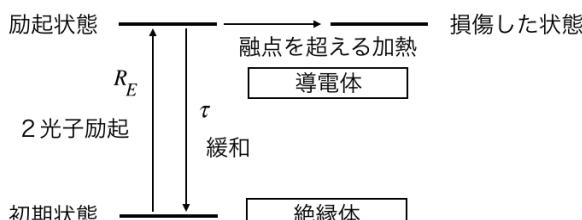
2. 光学損傷の研究

本共同研究の目的は、光学素子のレーザー光による損傷、光学損傷のメカニズムを明らかにし、光学素子の耐力を高めることを通じ、レーザーの性能の向上に貢献することである。

光学損傷には、材料中の光と原子、分子のミクロな相互作用がきっかけとなって、目に見える大きさのマクロな材料の破壊が起こるという特徴がある[1]。

本共同研究では、光学損傷を、レーザー照射による材料の絶縁体-導体転移と結びつけ、この現象を、それが起こる閾値を持つ、臨界現象として理解する可能性について、理論およびシミュレーションによる検討を行っている。

透明な光学材料が強いレーザー光にさらされると、二光子吸収などの過程を通じて伝導電子が生成すると考えられる(図1)。このことは、初期に絶縁体である光学材料のある場所が導体に変わる、導体転移することを意味すると考えられる。そして、導体となった光学材料は光を吸収して加熱され、その温度が融点を超えると材料の構造の破壊、損傷が起こると考えられる。



(図1) 光学材料と強いレーザー光の相互作用の原子過程モデル

伝導電子、あるいは励起された媒質原子のポピュレーションは、レート方程式、

$$\frac{dN_I}{dt} = -R_E N_I + \frac{N_E}{\tau}$$
$$\frac{dN_E}{dt} = R_E N_I - \frac{N_E}{\tau},$$

で表される。 N_I は基底状態、 N_E は励起状態のポピュ

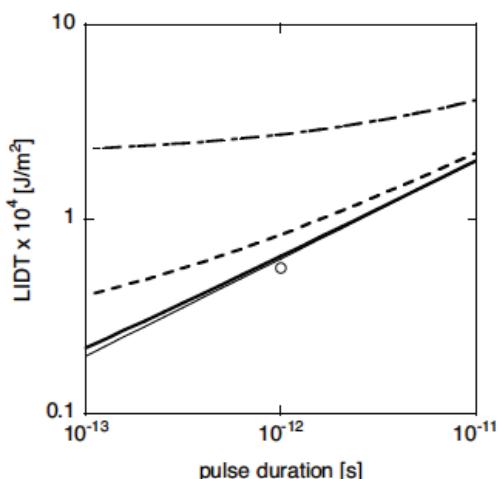
レーションを、 R_E は励起レート、 τ は励起状態の緩和時間である。

レーザー光の強度に空間的な不均一性があることなどを考慮すると、ポピュレーションは、材料の中で導体転移が起きた場所の割合を表すと考えられる。ここに、パーコレーション理論を用いると、ポピュレーションがある閾値を超えると、材料全体が導体転移すると考えられる。パーコレーションの閾値は、考える系の構造によって決まり、もし系が三次元の正方格子をなすと考えると 0.25 である [2]。

導体転移した材料中の伝導電子が、レーザーの電界によって加速されると、材料中に電流が流れると考えられる。短パルスレーザーで照射された材料では、ここに材料の抵抗値を与えて、ジュール加熱の大きさがわかり、材料の熱容量 ρc_v の値より、温度がどれだけ上がるかがわかる。そして、温度が ΔT 上がり、材料の融点を超えたら破壊すると考えて、フルエンスの形で損傷閾値が下のように表される。

$$F_{3D} = \sqrt{0.287 \frac{\hbar \nu}{\beta} \frac{\rho}{m_p M} t_{pulse}} + \frac{\Delta T \rho c_v}{A_p},$$

ここで、 β は二光子吸収の吸収係数、 $m_p M$ は材料の分子量、 t_{pulse} はレーザー光のパルス幅、 A_p は導体転移した材料の吸収係数[1/m]である。(図2)は、この理論による ZnSe のフルエンスの閾値(LIDT)が、実験結果ともよく合うことを示す。



(図2) ZnSe の損傷閾値の理論値(線)と実験値(○)。理論値は、ボーラン効果による吸収係数が 10^5(一点鎖線)、10^6(点線)、10^7(実線)の場合を示す。

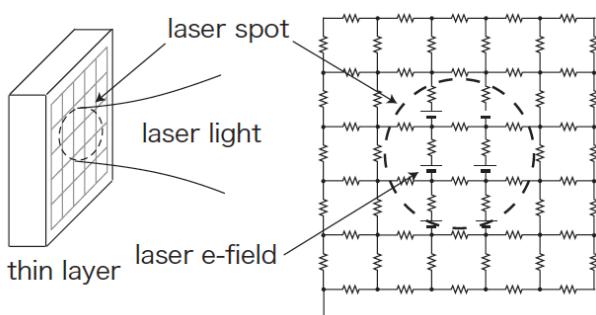
(図 2)は、フルエンスの閾値はパルス幅が 1 ps 程度よりも短い時は一定の値に近づき、長い時はパルス幅の 1/2 乗に比例するという、実験的にしばしばみられる依存性を再現している。

これまでの理論では、損傷閾値を、二光子吸収過程などによって生成した電子の密度が臨界密度を超えるといった、人為的な条件を用いて考えていたのに対して、この理論では、損傷閾値を、材料の導体転移という臨界現象と関連づけられて決まることが特徴である [3]。

光学材料中に生成した伝導電子による電流は、ポーラロン効果によって大きな抵抗を受ける [4]。従って、二光子吸収によって導体転移が起こると、すぐにレーザー光の大きなエネルギーが媒質に吸収されるようになり、加熱が起こり、材料の破壊が起こる。すなわち、導体転移は、降伏現象のような振る舞いを示す。

異なる光学材料でも、二光子吸収の断面積、密度、ポーラロン効果による吸収係数などの値が似通つていれば、損傷閾値は似たような値になる、すなわち解析の結果はトリビアルということになる。より現象を深く理解するためには、各種の物性定数の正しい値を知ることや、実験結果との詳しい比較を行うことが必要と考えられる。

また、本共同研究では、パーコレーションモデルと電気回路のモデルを組み合わせたシミュレーションを行っている [5]。(図 3)のように、光学薄膜、あるいは材料表面の損傷を考えるために、薄膜上に 2 次元のセルを配置し、レート方程式によってその状態を決める。各時刻において、励起状態のポピュレーション、あるいは平均的な導体領域の割合を求め、それに比例する確率によって、ランダムに、セルが絶縁性と導電性のいずれであるかを決める。



(図 3)パーコレーションモデルによる光学損傷のシミュレーションのモデル

次に、セルは直流の電気回路を構成すると考え、レーザーの電界を起電力として与え、材料の状態を抵抗の値として与え、回路方程式を解いて、電流を計算する。そして、セルの抵抗値から加熱の大きさを計算し、温度上昇を計算し、損傷に至るかどうかを計算するモデルをたてて、シミュレーションを行っている。レーザー光強度が最も強い場所から導体転移が始まるが、ある広がりを持った領域が導体転移して閉じた回路が作られることによって、大きな電流が流れるようになり、加熱が起こることが示される。すなわち、電子雪崩の発生が、パーコレーション現象として表される。また、セルが導体転移す

る条件として、レーザーの二光子吸収とともに、強い電界によるトンネル電離を考慮すると、ある場所で導体転移が起こることで局所的に電界が強められ、近隣の場所での導体転移が誘起されるようになり、セル間の相互作用が考慮される。

系に含まれるセルの一つにおいて、温度が融点を超えることを以って損傷が起こったとし、その時のフルエンスの値を損傷閾値とするが、その値はシミュレーションを実行するごとに異なるので、シミュレーションを多数回繰り返して、統計的に意味のある値を求める。シミュレーションは、実験で見られる、損傷閾値のばらつき、統計的な性質も再現することができると考えられる。このような方法により、現在、損傷閾値の材料の物性値に対する依存性や、損傷のモルフォロジーの解析を行っている。

3. フィリピンマプア大学の教育、研究プログラムに対する協力

本共同研究の一環として、フィリピン、マプア大学における物理学科の教育の充実、大学院の設立を目指すプロジェクトへの協力を実行している。フィリピンでは高い経済成長率が持続し、高い専門性を持つ人材への需要が高まっている。大学院において質の高い教育が行えるよう、それにふさわしい研究テーマの設定、研究のインフラストラクチャ、学生指導の方法を確立するための協力を実行している。初期の手法として、理論、シミュレーションを考え、テーマとして、光学損傷で扱っている、放電現象の統計物理を考え、具体的には雷現象の物理の解明をテーマとして学生指導に対する協力を実行している。将来のために、現地の産業、社会に役立つテーマの探索も実行している。

2019 年 10 月に現地を訪問してセミナー、指導、今後の方針についての議論を行う一方、Black board システムなどを活用して、遠隔でのセミナー、プログラミング指導を行うとともに、より生産的な方法を見出すための検討を行っている。

ACKNOWLEDGEMENTS

この共同研究を行うにあたり、大阪大学レーザー科学研究所センター、清水俊彦博士、ジャクリン・ガバイノ博士、メルビン・エンピゾ博士、ロン・ムイ博士ほかのメンバーの方との議論、および産業技術総合研究所加藤進博士との議論に感謝します。

REFERENCES

- [1] R. M. Wood, *Laser-Induced Damage of Optical Materials* (Institute of Physics Publishing, 2003).
- [2] D. Stauffer and A. Aharony, eds., *Introduction to Percolation Theory* (Taylor and Francis, Philadelphia, 1994).
- [3] B. C. Stuart, et al. Phys. Rev. E53, 1749 (1996).
- [4] S. Kato et al. Opt. Mater. 40, 10 (2015).
- [5] A. Sasaki et al. Phys. Rev. Lett. 105, 075004 (2010).

プラズマ対向材の数値モデリング

砂原 淳

Center for Materials Under eXtreme Environment (CMUXE),
School of Nuclear Engineering, Purdue University

はじめに

核融合炉においてプラズマ対向材は最も重要なコンポーネントの一つである。国際熱核融合炉(ITER)においてはプラズマを長時間安定して制御する技術確立が求められているが、炉心プラズマと並んで第一壁やダイバータ板など、プラズマ対向材の課題克服が重要になっている。第一壁やダイバータ板などのプラズマ対向材は炉心プラズマからの輻射や粒子に晒され内部損傷や特性変化が生じる。その結果、プラズマ対向材の特性変化は自身の特性劣化のみならず、輻射再放射や粒子の放出という形で他のプラズマ対向材や炉心プラズマにも影響を与える。同様の課題はレーザー核融合炉のプラズマ対向材にも言える。レーザー核融合炉心プラズマからの輻射は壁表面を加熱し、希薄気体の光電離を励起する。炉心の核反応で生じるアルファ粒子の入射は壁表面の欠陥生成、融解を引き起こす。プラズマデブリの入射は壁からの気体放出と合わせ、核融合炉内部環境に大きな影響を与える。さらにレーザー核融合炉では 10Hz 程度のパルス運転が想定されており、炉内環境は爆縮後、次の爆縮に備えて速やか(~100ms)に真空等の条件回復がなされなければならないが、この条件を保証するためには炉心プラズマとプラズマ対向材を含む炉内環境の時間発展を正確に理解する必要があり、プラズマ対向材が輻射や粒子などの種々の入力に対し、ミクロ（対向材の欠陥等）、マクロ（輻射の再放射や対向材表面のアブレーション等）にどのような時定数で応答するのか定量的に理解する必要がある。そのため、これらの諸過程を統一的に扱う数値シミュレーションの開発はレーザー核融合炉研究開発に必須である。また、このような過程を模擬するシミュレーションコードはレーザー核融合炉設計に留まらず、プラズマデブリ等を扱うプラズマ科学、産業応用において、重要なツールとなり得る。現象の複雑さに起因して、未だ実用コードの構築、現象の定量的理解は十分でないが、本共同研究でシミュレーションコードの開発を進めていく計画である。

本共同研究者等はこれまでレーザー生成プラズマ、EUV プラズマ、壁研究等を通じ、核融合プラズマと第一壁を含む系をマクロに取り扱うために一次元及び二次元の輻射流体シミュレーションコードを開発

してきた。また、アルファ粒子に入射に伴う壁内部の点欠陥生成という、ミクロ現象については分子動力学コードを開発してモデリングを進めてきた。本研究はこれらの研究を継続しつつより俯瞰した立場で解析環境を開発し、素過程間の関係性を意識するモデリングをすることで、より広い物性研究に資することを目指している。

光電離を生じさせる輻射環境

高温炉心プラズマから放射される輻射は周囲のガスを光電離する可能性がある。核融合炉内においては核融合燃料に DT が使われることに起因して、水素ガス雰囲気が支配的であると考えると、高温炉心プラズマからの輻射が周辺の水素を光電離することが容易に想像される。同様の環境が次世代半導体リソグラフィー用光源として期待される極端紫外(EUV)光源においても見られる。EUV 光源ではスズ液滴にレーザーを照射してプラズマを生成し、そこからの EUV(13.5nm)放射を得るものであるが、Mo/Si 反射ミラーを用いて放射された EUV 光を集光点へと集める。Mo/Si ミラーはレーザー生成スズプラズマや EUV 放射等、さまざまな要因で損傷するため、Mo/Si 反射ミラーの保護を目的に、真空容器内に水素ガスを導入し、レーザー生成プラズマによる Mo/Si ミラーへの直接的作用を抑制することが考えられている。しかしながら、水素ガス自体も 13.5nm を中心とする EUV 光を受けることで光電離し、発生する電子およびイオンが Mo/Si ミラーに影響を及ぼす。水素 H₂ の光電離断面積は単一光子光電離過程を考えると EUV 光 13.5nm(92eV)に対し、 $6.5 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ である。また、電離閾値 (H₂ のイオン化エネルギー) に至るまで断面積は入射 photon のエネルギーが小さくなるほど増加する。ここで H₂ に入射する EUV の強度を I₀、吸収強度を ΔI、H₂ ガスの密度を n_{H2}、単一光子光電離断面積を σ(E)、E は入射する光のエネルギー、d は相互作用長さとする。また、入射する EUV 光は 13.5nm を中心にスペクトルの広がりを持つため、光子エネルギーによる輻射強度への寄与の重みの違いを f(E) にて表す。この f(E) は波長積分すると 1 になるよう規格化されている。それらの変数は次の関係式を満たす。

$$\begin{aligned}\Delta I &= I_0 \left\{ 1 - \exp \left(-n_{H_2} d_{H_2} \int_0^\infty \sigma_{ph}(E) f(E) dE \right) \right\} \\ &\approx I_0 n_{H_2} d_{H_2} \int_0^\infty \sigma_{ph}(E) f(E) dE\end{aligned}\quad (1)$$

ここでは光学的に薄いとした。

実際の EUV 光源では、スズの液滴にレーザーを照射し、入射レーザーの 30-60% が輻射として放射される。輻射流体シミュレーションコード STAR2D[1]で計算される典型的な時間積分された輻射エネルギースペクトルは図 1 のようになる。

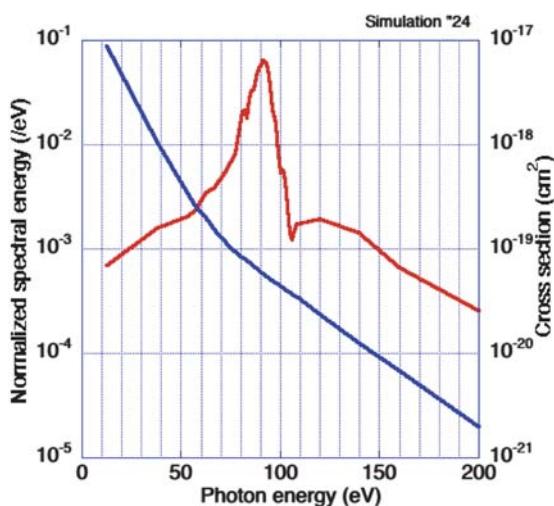


図 1 STAR2D で計算された時間積分輻射エネルギースペクトル（全エネルギーで規格化されている）及び光電離断面積。

図 1 より EUV13.5nm の 92eV を中心としたエネルギースペクトルとなる。同時に水素の光電離断面積を図 1 に示すと、高エネルギー側に向かって減少する曲線となる。両者を掛け合わせると図 2 のようにな

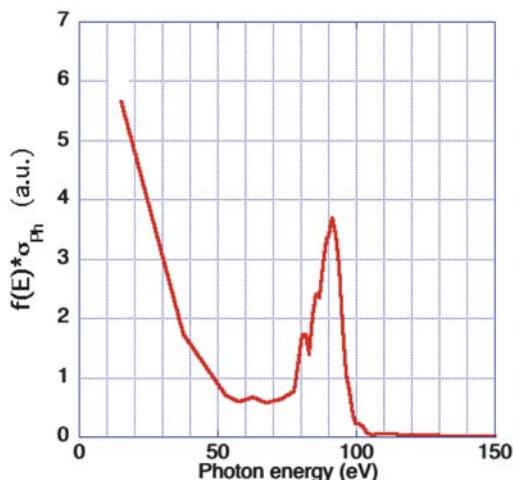


図 2 $f(E) \times \sigma_{ph}(E)$ の曲線。

り、92eV のピークに加え、光電離断面積が大きくなる低エネルギー側にもピークを持つことがわかる。このことから光電離に寄与する光子エネルギーは EUV の中心波長 13.5nm に相当する 92eV まわりだけでなく低エネルギー成分の寄与もあることがわかる。また輻射の規格化エネルギースペクトルで重み付けされた光電離断面積 σ_{eff}

$$\sigma_{eff} = \int_0^\infty \sigma_{ph}(E) f(E) dE \quad (2)$$

は $\sigma_{eff} = 2.6 \times 10^{-19} (\text{cm}^2)$ と計算された。温度 300 Kelvin で水素ガスの圧力を 1(Pa) と仮定すると、 $n_{H_2} = 2.45 \times 10^{14} (\text{cm}^{-3})$ であるから、実効的な輻射の平均自由行程 $\lambda_{mfp} = 1/(n_{H_2} \sigma_{eff})$ は $\lambda_{mfp} = 1.6 \times 10^4 (\text{cm})$ となり、室温で水素ガスの圧力を 100(mTorr) と仮定すると、 $n_{H_2} = 3.21 \times 10^{16} (\text{cm}^{-3})$ であるから、実効的な輻射の平均自由行程 $\lambda_{mfp} = 1/(n_{H_2} \sigma_{eff})$ は $\lambda_{mfp} = 120 (\text{cm})$ となる。レーザー強度 $1 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 、10ns のパルスを照射し、輻射変換効率を 50% とする。輻射が光源から等方的に広がるとすれば光源から 10cm 離れた地点の輻射強度は $8.0 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ に低下する。10ns 分の光子数を（平均光子エネルギー 57eV として） $1(\text{cm}^2)$ あたりの入射光子数を見積もると $8.8 \times 10^{16} (\text{cm}^2)$ となる。水素圧力 100 (mTorr) の場合の平均自由行程 $\lambda_{mfp} = 120 (\text{cm})$ であるから、入射光子数と平均自由行程から、光電離にて光電離直後に発生する電子密度 n_e は $n_e = 7.3 \times 10^{14} (\text{cm}^{-3})$ と見積もることができる。また光電離で発生する電子のエネルギーは入射エネルギーからイオン化エネルギー 15eV を差し引いた値であり、光電離で発生直後の電子は 40-50eV を中心に分布すると言える。

まとめ

本年度は 2 次元輻射流体シミュレーションを実施し、スズをターゲットとした極端紫外光源の条件で水素雰囲気中の光電離を評価した。本報告書に概要を示したように、光電離で発生する電子は炉壁に対して影響を及ぼしうる密度、エネルギーである。実際の時間応答では電子衝突緩和を考える必要があるが、輻射流体シミュレーションで計算された輻射場を基に、光電離で発生した電子の炉壁への影響の詳細を今後評価し、実験的な結果との比較を行っていく。

謝辞

本計算実施にあたり、大阪大学サイバーメディアセンター及び阪大レーザー研の計算機 SX を使用しました。ここにサイバーメディアセンター及び高性能計算機室に感謝致します。

参考文献

- [1] A. Sunahara et al., Plasma Physics and Controlled Fusion **61**(2019) 025002.

超高強度レーザーと高密度プラズマの相互作用

田口 俊弘

摂南大学理理工学部電気電子工学科

1. 2019 年度の共同研究概要

2016 年度までの共同研究で見出した強磁场中の電子ビーム不安定性に伴って起こる電子流のスタグネーションは、詳細な研究を進めた結果、非線形増幅された大強度ホイッスラー波のポンデラモーティブ力によるものであるとの結論を得た [1]。

しかしながら、磁場ガイドによる高速電子ビームの実験では、磁場の効果は十分あり、伝播に対して阻害する効果は示されていない。そこでこの結果が導かれるのはそれまでの解析で用いていた背景プラズマの電子密度が小さいのではないかと考えて、背景プラズマ密度と電子ビーム密度の比を 10 倍から 50 倍に増加させた解析を行った。しかし、プラズマが高密度になったときに考慮しなければならないのが背景電子がイオンと衝突することによる電気抵抗の効果である。そこで、2018 年度から、背景プラズマの運動方程式に衝突項がある場合の電子ビーム伝播解析を行い、これまで行ってきた無衝突プラズマでのシミュレーション結果との比較を行っている。

この結果、興味深い結果が見出された。衝突がないプラズマより、衝突を含めたプラズマ中で起こるワイベル不安定性（横方向の 2 流体不安定性）の方が成長率が大きくなるのである。通常、エネルギー散逸効果である衝突は成長率を下げる方向に働くが、ワイベル不安定性に関しては、抵抗がある方が成長率が増大するという興味深い結果が得られたのである。

そこで、2019 年度はこの増大のメカニズムを探るために、より詳細なシミュレーション解析から計算される成長率と摂動計算から得られた分散関係の解との比較を行った。

2. 抵抗性ワイベル不安定性の成長率増大メカニズム

衝突項を導入したハイブリッドコードから計算されるワイベル不安定性の成長率の一例を図 1 に示す。図 1 は、ビームの進行方向に垂直な方向（横方

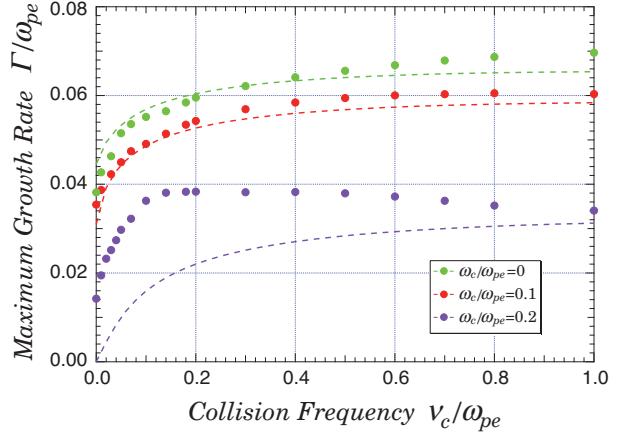


図 1. ハイブリッドコードと分散関係から得られた抵抗性ワイベル不安定性の最大成長率

向）に細長い形状のボックス中の 2 流体状態からスタートしたシミュレーション結果である。ここで、ビーム電子密度 n_h と背景プラズマ密度 n_0 の比は 1/50 にし、電子ビームの流束は $0.95c$ で背景電子はこの電流を打ち消すように初期速度を与えており、また、電子温度は 1keV である。このときに成長する横方向の摂動に対する不安定性がワイベル不安定性であるが、その成長率は、摂動の波数依存性があり、プラズマの温度が有限の場合には、ある波数で成長率が最大になる。図 1 はその最大成長率の衝突周波数 (ν_c/ω_{pe}) 依存性を示したものである。 ω_{pe} は背景プラズマ密度での電子プラズマ振動数である。ここで、緑、赤、紫の●がそれぞれ、磁場を印加したときのシミュレーション結果を示している。図を見てわかるように、成長率は磁場の強さ (ω_c/ω_{pe}) が強くなるにしたがって小さくなる。このことは、強磁場の印加がワイベル不安定性の抑制に効果的であることを示している。

一方、衝突がないときよりもあるときの方が成長率は大きく、衝突周波数が大きくなるほど成長率が増加することがわかる。そこで、この成長率の増加の物理的メカニズムを調べるために、流体近似を用いた分散関係を導出し、その有力な物理項の特定を試みた。

まず、単純に全ての流体方程式と Maxwell 方程式を摂動計算して分散関係を導出したが、強磁場中の 2 流体（電子ビーム流と背景プラズマ電子流）を解析しなければならないため、2 成分の 3 次元運動方程式が必要になる。このため、分散関係は多項式方程式ではあるが、次数が高いため、係数を書き下すのは難しい。さらに、数値計算で高次多項式の根を求めるとしても、広いパラメータ領域を計算するには、その数値計算の精度が重要になる。そこで、摂動解析から得られた行列式の展開に伴う多項式演算自体も数値計算で行い、計算は有効数字 180 衡程度の多倍長演算で行った。図 1 中の破線は、その結果から得られた最大成長率である。 $\omega_c/\omega_{pe}=0$ や 0.1 の場合には、シミュレーションと良く一致した結果が得られていることがわかる。なお、 $\omega_c/\omega_{pe}=0.2$ の場合には少し外れているが、成長率が低い場合には、シミュレーション結果からの增幅率計算の誤差が大きくなるという問題もあるため、より詳細な考察が必要である。

このように、強磁場を含めた線形解析はシミュレーション結果を十分再現することがわかったが、上記のような全ての摂動項を含めた分散関係では、どの様な物理的メカニズムが働いて成長率の増大が起こるのかを特定するのは難しい。そこで限定された条件下で無視できる項を落とした低次の分散関係を導出し、その結果からメカニズムの特定を試みた。

最も簡単なのは、衝突係数を 0 にした無衝突プラズマで、外部磁場も温度も 0 の場合である。さらに、Maxwell 方程式から高周波成分を出す変位電流項を落としたりして分散関係を求めるとき式のような周波数 ω に関する式が得られる。

$$\omega^2 = -\frac{(\omega_{ph}^2 u_h^2 / \gamma_h + \omega_{pc}^2 u_c^2 / \gamma_c) k_x^2}{c^2 k_x^2 + \omega_{ph}^2 / \gamma_h^3 + \omega_{pc}^2 / \gamma_c^3} \quad (1)$$

ここで、 ω_{ph} と ω_{pc} は電子ビーム密度と背景電子密度から計算したプラズマ周波数であり、 u_h と u_c はそれぞれの初期流速である。また、 γ_h と γ_c は相対論的ローレンツ因子である。この式は、周波数の 2 乗が負であることからわかるように、絶対不安定性を導きだす。これに対し、衝突の効果を入れるには、(1) 式の ω_{pc} を次式で置き換えればよい。

$$\omega_{pc}^2 \rightarrow \frac{\omega_{pc}^2 \omega}{\omega + i\nu_c / \gamma_c} \quad (2)$$

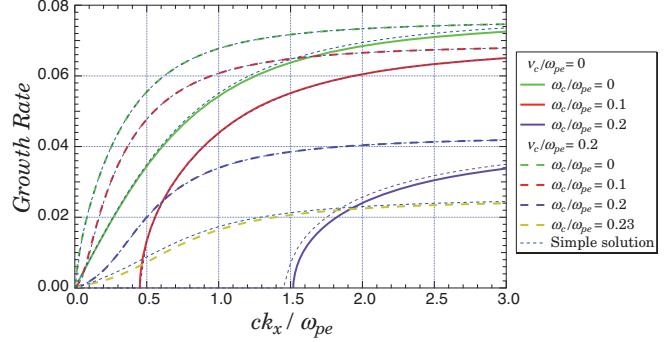


図 2. フル分散関係による成長率と
簡易分散関係による成長率の比較

この置き換えにより得られる分散関係から得た成長率を示したのが図 2 である。図で実線や破線は、全ての項を含めた分散関係（フル分散関係）から多倍長計算で求めた根であり、その付近に示した点線が簡易分散関係により求めた結果である。図より、簡易分散関係から得られる成長率が、十分な精度で計算できていることがわかる。

さて、衝突周波数が大きくて $|\omega/v_c| \ll 1$ という近似が成り立つ場合は、(1) 式の置き換えを $\omega_{pc}^2 \rightarrow \omega_{pc}^2 \gamma_c \omega / i\nu_c$ とすることができる。 ω_{pc}^2 は背景電子密度に比例するので、衝突周波数が大きくなると、実効的な背景電子密度が下がることになる。簡易分散関係 (1) をみると、分子の ω_{pc}^2 には流速の 2 乗が掛けられているので、 ω_{pc}^2 が下がっても ω_{ph}^2 の項が優勢なのであまり値が変わらないが、分母は電子ビーム密度による ω_{ph}^2 が小さいので、 ω_{pc}^2 が下がる効果が重要となり、結果的に成長率が増加することになる。分母のプラズマ振動数は、ビーム方向の応答に関与しているため、背景プラズマのレスポンスが弱まることがワイベル不安定性の成長率を上げている原因であるという結論になる。レスポンスの低下は抵抗により背景プラズマに生じる縦電場（ビーム伝播方向の電場）が増大することによるものなので、この大きな電場の変化により発生する大きな磁場がワイベル不安定性の増強につながったと考えられる。

さらに磁場をえたときには非線形発展による様々な構造形成が起こって電子ビーム伝播の様相も複雑化する。このあたりの詳細な解析が今後の課題である。

- [1] T. Taguchi, T. M. Antonsen, Jr. and K. Mima,
J. Plasma Phys., 83, 905830204, (2017).

温度約 1-10K の領域における重水素化水素 HD プローブの NMR 実験及び 固体 HD 薄膜ターゲットの試作(NMR 実験の最終報告)

宇津呂 雄彦, 中井 光男, 郡 英輝, 太田 岳史^B, 今野 巧^C, 井頭 麻子, 藤原 守

大阪大学核物理研究センター, 大阪大学レーザー科学研究所, ^B東京大学医学部附属病院放射線科,

^C大阪大学大学院理学研究科, 明治学院大学法学部

研究目的

核偏極 DT レーザー核融合[1,2]の実現可能性追求の 1 つのアプローチとして、T 崩壊熱の負荷下で固体 DT を偏極させる道筋を探る実験を行う。即ち熱伝導性能が優れた単結晶 HD[3]に T 崩壊熱を与えた際の想定温度である約 1~10K の領域における H 及び D の効率的核偏極法の開発の試みを次のように段階的に行う。(1) まず比較対象として固体 HD を模擬した極低温天然ゴムの H-NMR 実験、(2) 次に新たな比較対象としての KelF 壁プローブの F-NMR、及び(3) 最終目的として強磁性錯体により偏極させた極低温 HD プローブの H-NMR 実験、の 3 段階を順次行い、手法の有効性並びに問題点を明らかにする。更に、レーザー照射可能な無背壁固体 HD 薄膜ターゲット試料を試作する。

研究項目と今年度の成果

1) 複室式プローブセルによる N R 実験:

本研究の着想点は、約 1~10K の領域における H の効率的核偏極法として水素吸着性強磁性錯体を利用すること及び偏極測定 NMR に HD 吸着活性炭を用いることである。一方 D の偏極は RF 法[4]が可能である。2018 年の NMR 測定に用いた複室式プローブの構成を図 1 に示す。

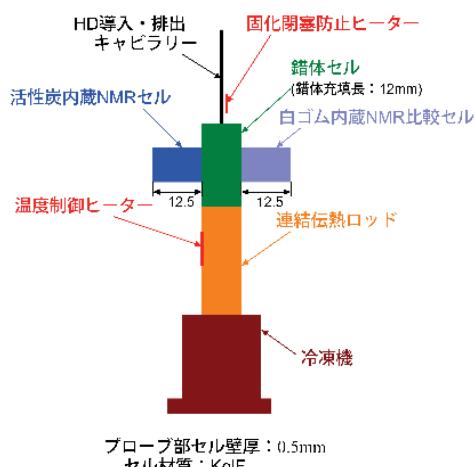


図 1. 複室式 偏極及び N R 測定プローブ
(multilocular probe cell 図中寸法単位は mm)

図 1 には描くのを省略したが、左右の各枝室の付け根部分にはそれぞれの枝室の内蔵試料に胴体内の磁性錯体粉末 $\text{Ni}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]_2$ が混入しないよう隔離するための活性炭膜を挿入した。活性炭膜の占有厚

さは約 1.5 mm である。

図 1 のセルを用いて行った初期段階の NMR 実験で明らかになった問題は、NMR 測定中は雑音防止のため冷凍機短時間停止の必要があり、H29 成果報告書に書いたように、これによる温度乱れが安定した NMR 測定を困難にすることである。その解決策は、HD 吸着用活性炭ペレットをプローブに内蔵することにより安定した NMR 測定が実現した。

図 1 の複室式セルを用いて H_2 凝縮温度下の天然白ゴムの H-NMR 実験から得られたピーク強度の結果は最後の図 4 に比較のために示してある。ピーク強度というのは、測定結果として得られた振幅及び位相の周波数に対するデータを次式の吸収及び分散でフィッティングして得た NMR absorption A_R と共に鳴幅 Δ_R を乗じてピーク強度 $I_R = A_R \Delta_R$ を計算し各 RUN に対してプロットする。

Fitting formulae to N R absorption and dispersion

$$R = R_{\text{BG}} + \frac{A_R}{1 + \{(X - X_{R0})/\Delta_R\}^2}, \quad \varphi = \varphi_{\text{BG}} + \frac{A_\varphi \cdot \{(X - X_{\varphi0})/\Delta_\varphi\}}{1 + \{(X - X_{\varphi0})/\Delta_\varphi\}^2}. \quad (1a) \text{ 及び } (1b)$$

これらの NMR ピーク強度が NMR 共鳴点に関する結果であることを常に確認するようにした。その方法は、電磁石電流値 I (A) を NMR 共鳴周波数 f_{NMR} (MHz) で除したパラメータ値 m (A/MHz) が妥当な値であることを確認することである。

後に図 4 に示す複室式プローブセルに内蔵の天然白ゴムの -N R 実験の結果は $f_{\text{NMR}} = 9.923\text{--}9.947$ MHz に対して $m = 0.18958 \pm 0.00018$ [A/MHz] の狭い帯域内にあった。図 4 の H_2 凝縮温度下の天然白ゴムから温度効果により冷凍機運転開始後約 100 分の時点での室温のピーク強度の約 3 倍に増大していることが判る。

2) 単筒型 eIF プローブセルによる F-N R 実験:

図 1 の NMR 比較セルの必要性は、冷凍機運転によるセル温度低下の効果と磁性錯体による効果とを識別するためにセル温度低下の効果の比較対象が必要なことである。これには必ずしも H-NMR でなくとも他の核種でもよいのであり、この着想から複室式セルを用いてセル壁 KelF の F-NMR を測定してみた。その結果、昨年度の成果報告書の Table 1 に示したように F-NMR がセル温度低下の効果を現わし、比較測定に使えることが判った。

そこで磁性錯体と活性炭ペレットを二階建てにしその間に隔離用の活性炭膜を挟んだ図 2 の単筒型

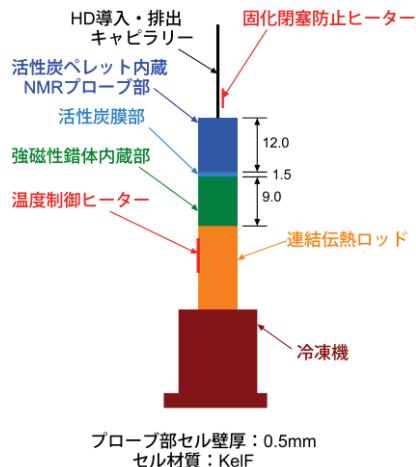


図2. 単筒型 偏極及びNMR測定プローブ
(Single tube probe cell 図中寸法単位はmm)

プローブセルに図1のセルから簡単化した。この単筒型プローブセルを用いてまずKelF壁のF-NMR測定を行った。フィッティングの結果はNMR共鳴周波数 $f_{\text{NMR}} = 9.793\text{-}9.824 \text{ MHz}$ に対して $m = 0.20113 \pm 0.00060 [\text{A}/\text{MHz}]$ と全て狭い幅に入っていた。

温度効果によるピーク強度の増大を見ると、水素凝縮なしに冷凍機運転開始後約100分で室温のピーク強度の約4倍に増大し、約200分では約8倍になり、プローブセルが小型简单化されたためH₂凝縮下の複室式プローブセルよりも大幅に早くプローブセル温度が降下することを示した。

3) 単筒型プローブ活性炭吸着HDのH-NMR実験:

そこでいよいよ最終目的の強磁性錯体と同一単筒セル内に内蔵の活性炭ペレットに吸着されたHDのH-NMR実験を開始した。NMR測定の前半は比較のためにKelF壁F-NMR測定を行い、HDがある程度活性炭ペレットに吸着後はH-NMR測定に切り替える計画で進めた。その経過を図3に示す。

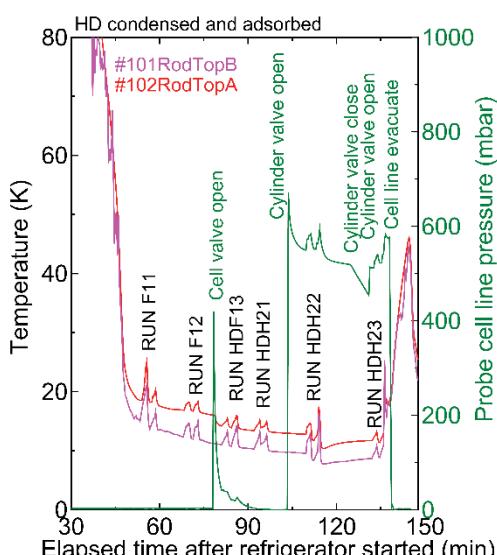


図3. 伝熱ロッド温度とHDガス圧の冷凍機運転時間に対する経過 (NMR測定中は冷凍機短時間停止)

まず各NMR測定の確認として、室温とRUN

F11-RUN HDF13のF-NMRの $m = 0.20027 \pm 0.00011 [\text{A}/\text{MHz}]$ の狭い幅に入っており、NMR共鳴周波数 f_{NMR} は冷凍機運転では9.801-9.811 MHz、室温では9.701-9.704 MHzであった。次にH-NMRの確認はNMR共鳴周波数 f_{NMR} が9.798-9.823 MHzに対して $m = 0.18936 \pm 0.00020 [\text{A}/\text{MHz}]$ の幅に入った。2つの m の比は2核種の核磁気モーメントの略逆比である。

これらのNMR共鳴に対するフィッティングの結果を天然白ゴムの結果と比較して図4に示す。

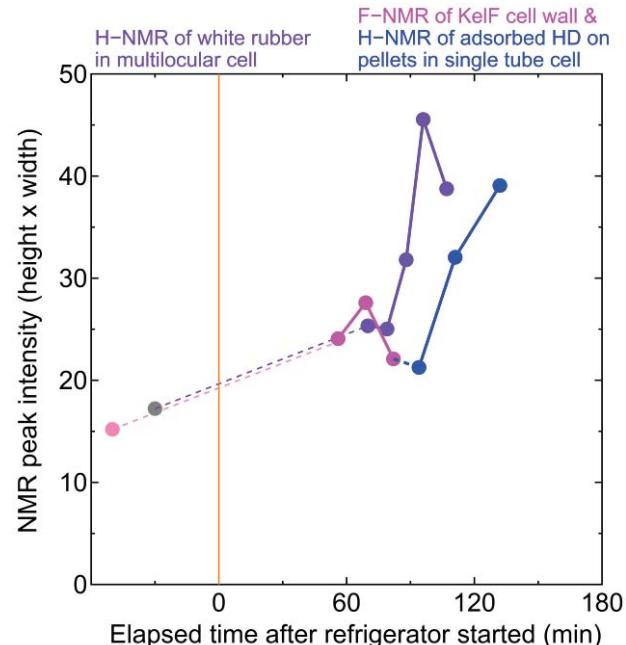


図4. F-NMR及び-H-NMRピーク強度の時間経過を天然ゴム-H-NMRのピーク強度と比較

図4で80-90分の所のピーク強度が低下しているのは室温HDガス導入による温度上昇の影響である。

図3に示したように、残念ながらRUN HDH23の測定終了直後にセルの気密度が損なわれ実験続行を断念した。図4で示された範囲で判断すれば、温度効果以外に特に錯体による効果は認められないと考えている。内部磁場がより大きい強磁性錯体で同様の実験を進めることができると推論される。

R2年度の計画

R2年度には、残る課題である改造型気相セル2号による無背壁固体HD薄膜ターゲットの試作をするとともに、最終年度の取り纏めを行う予定である。

本研究は大阪大学レーザー科学研究所の共同研究(2019B2-UTSURO)のもとに実施された。また、関西熱化学株式会社より活性炭ペレットの提供を受けたことを記して謝意を表する。

REFERENCES

- [1] P.C. Souers and P.A. Fedders: Phys. Rev. B41 (1990) 8643.
- [2] H. Paetz gen Schieck: Eur. Phys. J. 44 (2010) 321.
- [3] M. Utsuro et al.: Physica B 418 (2013) 36.
- [4] C.M. Bade: Ph.D. Thesis, College of Arts&Sci., Ohio Univ., March 2006.

テラヘルツ波分光計測による傾斜格子歪み希土類鉄ガーネット薄膜の誘電分極評価

山原 弘靖¹, 桑野 資基², 川山 巍²

東京大学工学系研究科¹, 大阪大学レーザー科学研究所²

はじめに

希土類鉄ガーネット ($R_3Fe_5O_{12}$; RIG) はフェリ磁常誘電体であり、ダンピング定数が非常に小さい ($\alpha \sim 10^{-5}$) ため、スピノン波（マグノン）伝搬材料として注目されている。バルクの結晶構造は立方晶に属するが、SmIG 薄膜（基板との格子不整合 1.2%、臨界膜厚 60 nm）においては、エピタキシャル歪みと緩和によって、コヒーレントな正方晶、傾斜歪構造 (20 nm 厚)、格子緩和した立方晶の三層が形成されることが原子分解能電子顕微鏡 (STEM) や X 線結晶構造解析（逆格子マッピング；RSM）により明らかになっている（図 1）。これまでに格子歪みに伴う磁性変化（磁気異方性制御）は報告されているが [1]、誘電分極についてはガーネット構造の電極材料が存在しない制約により明らかにされていない。空間対称性が破れた傾斜歪構造においては、誘電分極と磁化が共存し、ジャロシンスキー・守谷相互作用による電気磁気相関によってエレクトロマグノンの励起が期待される。本研究では、傾斜歪構造における誘電物性をテラヘルツ波分光計測により明らかにすることを目的とする。

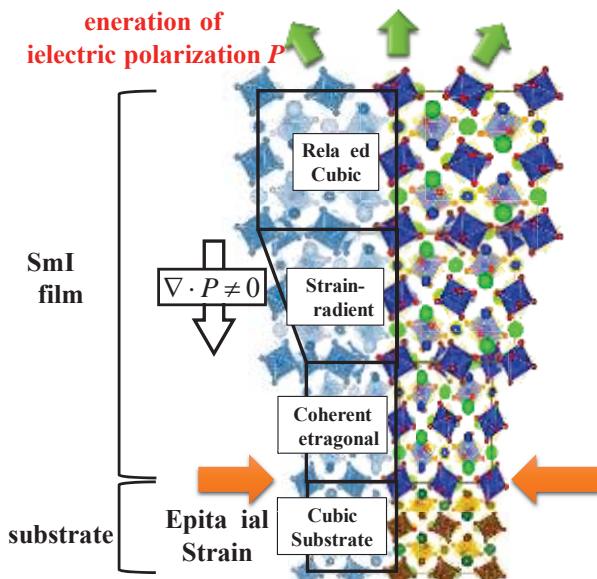


図 1. 傾斜歪み構造の概図

実験

SmIG 薄膜はパルスレーザー堆積法 (PLD 法) により作製した。SmIG は $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG)基板との格

子ミスマッチが 1.2%あり、転位が発生する臨界膜厚 $t_c = 60$ nm が算出される。本研究では 20 nm~150 nm の厚みの異なる SmIG 薄膜を作製した。SmIG 薄膜の結晶構造は X 線構造解析 (XRD) の逆格子マッピング (RSM) により評価した。その結果、 t_c 以下の膜厚では面内の格子定数が基板と一致し、軸比 $c/a = 1.03$ の正方晶に歪んでおり、一方、膜厚の増加に従い、面内の格子定数が基板と一致せず格子緩和した立方晶 SmIG 薄膜 ($c/a = 1.00$) の回折がみられた。膜厚が 80 nm の試料においては、正方晶と立方晶の SmIG 薄膜が共存し、連続的に格子緩和していることから傾斜歪み構造が存在することを示している。

試料の誘電物性計測にはテラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) と櫛型電極によるインピーダンス分光法を用いた。なお、RIG はテラヘルツ帯での吸収が非常に小さく、薄膜の分光測定は高い精度を要する。本研究において薄膜と基板は不可分であり、薄膜の誘電物性を知るために GGG 単結晶基板のテラヘルツ帯の誘電物性を明らかにする必要がある。そこで、GGG 基板の誘電物性を詳細に調べた結果について報告する。

結果と考察

図 2 に THz-TDS で計測した厚さ 0.5 mm の GGG(001)単結晶基板の透過率を示す。約 2.5 THz 附近に大きな透過率の減少が見られ、これはフォノンポラリトン分散曲線のギャップに対応するレストストラーレン反射によるものであることが知られている [2]。

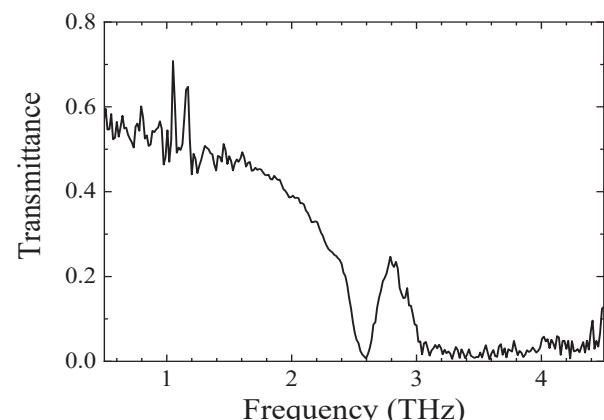


図 2. GGG(001)のテラヘルツ帯の透過率

さらに PLD 法で RIG 薄膜を作製する際には約 800°C に基板を加熱するため、加熱が GGG の誘電物

性に与える影響を検証した。図3にTHz-TDSにより計測した、加熱なし及び、大気中で300°Cまたは800°CでアニールしたGGG(001)の誘電率 ϵ を示す。加熱なしと300°Cの加熱試料の誘電率はほぼ一致しているが、800°Cの加熱試料では0.3~2.5 THzの周波数域で誘電率が2~4%減少した。従って、テラヘルツ波がGGG基板を透過する時間が0.1ps程度変化するため、GGG基板上のRIG薄膜評価する際にはGGG基板の特性変化を考慮しなければならないことが明らかとなっている。

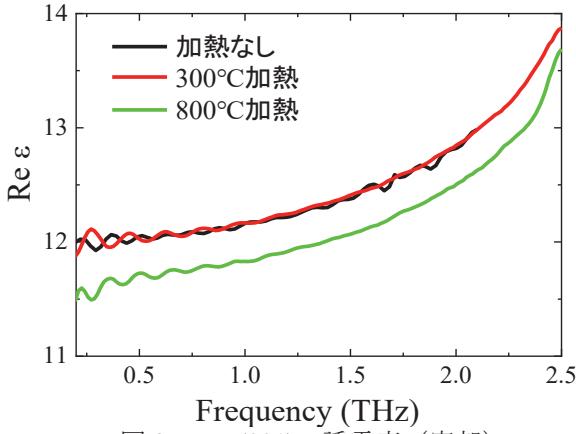


図3. GGG(001)の誘電率（実部）

次に誘電率の計測は電極幅/間隔が10 μm/10 μmのPt櫛型電極をフォトリソグラフィによりSmIG薄膜上に作製し、[110]方向の静電容量を計測した。図4に誘電率の膜厚依存性を示す。誘電率の計算にはFarnellらの方法を用いた[3]。GGG基板($t=0\text{ nm}$)において $\epsilon_s = 11.9$ が得られ、先行報告とほぼ一致している[4]。誘電率は t_c 付近で最大値を示しており、転位の存在や格子歪みが誘電率に寄与することを示唆している。

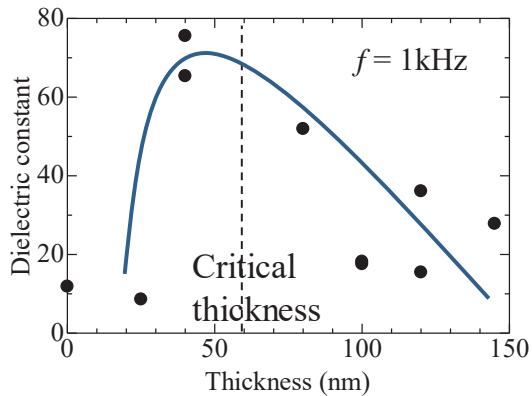
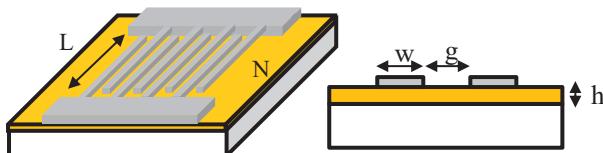


図4. 櫛型電極による誘電率測定の概図(上)とSmIG薄膜の誘電率膜厚依存性(下)

まとめと今後の展望

フェリ磁性常誘電体SmIG薄膜とGGG基板には1.2%の格子ミスマッチが存在し、薄膜に圧縮歪みが導入される。格子歪みと緩和が共存する膜厚では、空間対称性が破れた傾斜歪み構造が形成され、Flexoelectricityによる誘電分極が存在することが示唆される。今後はTHz-TDSを用いた誘電物性評価により、誘電分極と磁化が共存し、ジャロシンスキー・守谷相互作用による電気磁気相関によってエレクトロマグノンの励起が期待される。一方、テラヘルツ帯での吸収が非常に小さいRIG薄膜の分光測定を実施するにあたってはGGG基板の誘電物性を把握する必要がある。GGG(001)単結晶基板のテラヘルツ帯の透過スペクトルを詳細に調べた結果、成膜時の基板加熱によって0.3~2.5 THzの誘電率が2~4%減少することが明らかとなっている。従って、SmIG薄膜の誘電物性を評価する際はGGG基板の特性変化を考慮する必要があり、測定には課題が残っている。一方、櫛型電極によるインピーダンス測定の結果、臨界膜厚付近において誘電率が異常な増加を示しており、転位の存在や格子歪みの結晶学的因子と誘電率の相関が示された。

謝辞

本課題の一部は大阪大学レーザー科学研究所の共同利用実験のもとで実施されました。ここに深く感謝いたします。

REFERENCE(S)

- [1] H. Yamahara et al. J. Magn. Mag. Mat. 323, 3143 (2011).
- [2] M. Adachi et al., Phys. Rev. B, 89, 205124 (2014).
- [3] G. W. Farnell et al. IEEE Trans. Sonics Ultrason., 17 (1970) 188.
- [4] K. Krishna et al. Int. J. Chem Sci. 9 (2011) 239, R. D. Shannon et al. J. Appl. Phys. 67 (1990) 3798.

中赤外レーザーによる軽元素同位体分析機器開発

中山 千博¹, 時田 茂樹², 橋爪 光³, 村山 純平¹, 足立 裕美子⁴

¹大阪大学大学院 理学研究科, ²大阪大学レーザー科学研究所, ³茨城大学 理学部, ⁴大阪大学 理学部

INTRODUCTION

近年のリモートセンシングにより、月面極域の低温部分には、隕石などによって運ばれた水が固体として存在していると考えられるようになった。以降、惑星科学的な関心だけでなく、この月面水を宇宙開発の資源として利用することを想定した国際的な月面水の探査競争が開始されている。こういった月面水の起源、月面での挙動や存在可能時間などを明らかにするには、水の同位体測定が欠かせない。また月試料を微量地球に持ち帰るミッションでは、同位体分析に至るまでに地球水による「汚染」が無視できなくなるため、月面その場で同位体測定を行うことが望ましい。

我々は、月面上でレーザー同位体分析法により同位体分析を行うことを考えて、小型で高感度な装置開発を行っている。測定においては、惑星科学的に意味ある同位体精度として $\delta D \rightarrow 10\%$ 、 $\delta^{17,18}O \rightarrow 1\%$ 程度を得ることを想定している。ここで δ 値は、対象とする試料水と地球標準水(SMOW)の同位体比の差を表す数値で、マイナーヌード濃度 m に対するメジャーな同位体濃度 M の比を用いて以下のように表される。

$$\delta m = \left(\frac{(m)}{(M)}_{sample} - 1 \right) \times 1000 \quad [\%]$$

同位体比は、蒸発や化学反応により、変化することが知られており、これを同位体分別と呼ぶ。水素は同位体分別の激しい元素であり、基本的には太陽系内の水を分析するために、「軽い」太陽風の水素と、「重い」太陽系外周水（彗星など）の区別が行えればよい (Fig. 1)。一方で、酸素同位体の場合は、地球を形成したコンドライト隕石のもつ同位体組成範囲

で詳しく分析する意味があるため、より精密な分析精度が必要である。

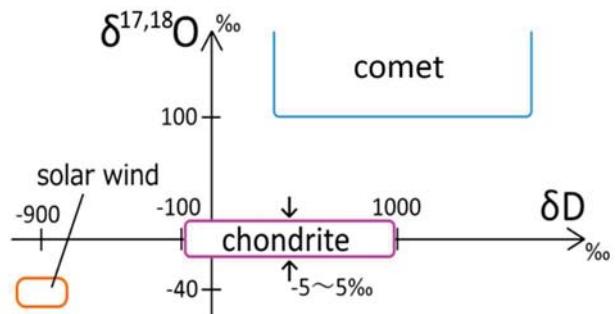


Fig.1 Hydrogen and Oxygen isotopes in the solar system.

測定の場の環境温度は、気体として存在する水蒸気の分圧に影響を与える。月の砂（レゴリス）の想定水分濃度を 0.5 wt% であるとし、測定機器として 0.1 wt% に対応する場合を考える。この場合、質量 1 g の月レゴリスから 50 μモルの水が抽出され、分析計の総容積を仮に 1000 cc と仮定すると、その水蒸気圧は 100 Pa と計算される。温度基準の飽和蒸気圧では、5°C で、871.8 Pa であるから、サンプル中の水分は基本的に水蒸気として存在する。我々の装置では、100-1000 Pa 程度の圧力を想定するので、1 g 程度のレゴリス回収で、目的量の月面水を回収することが期待でき、室温程度の測定温度で、同位体測定を行うことが可能と判断できる。

水蒸気の振動準位の吸収線は、光学的な下準位から上準位への光吸収であり、場合によってその下準位密度が、環境温度に従った熱分布により変化するため、吸収強度は温度依存性を持つことが知られている。このため、光学的な測定では、測定温度を一定にするか、複数の吸収線を組み合わせるなどして

温度補正を行いつつ、吸収強度を評価することが必要である。月面における測定においては、適切な蒸気圧を維持しつつ、かつ光学セル保温の為の電力を抑えることが必要であり、電子機器の安定性等を考慮すると、測定温度は地球における常温レベルを選択することが適切である。

EXPERIMENTS

本年度我々は、レーザー同位体分析計の宇宙機器としての基本仕様や熱設計などを検討した。また、JAXA、産総研、神栄テクノロジー社などと共同で開発した小型 CRDS (Cavity Ringdown spectrometer, 5cm cavity at 1.39 μm wavelength)、および既存の標準サイズ CRDS (50cm, @2.0 μm)、さらに TDLAS (Tunable diode laser absorption spectrometer, 37.5cm @2.7 μm) を用いて同位体濃度既知のアクアスタンダード試料の測定安定性などを調べた。

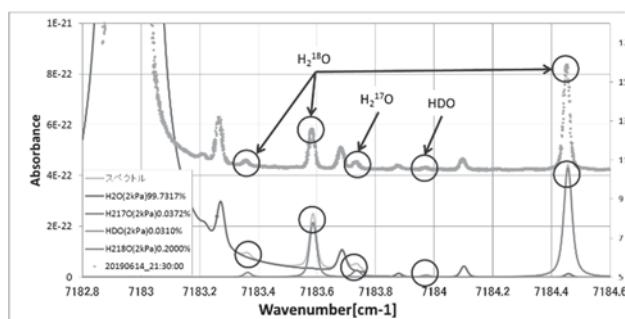


Fig. 2 Water isotope spectra at 1.39 μm with 5 cm CRDS (courtesy of Shinei-Technology Corp.). An aqua standard with $\delta D_{\text{SMOW}} = -44.4 \pm 0.2\%$, $\delta^{18}\text{O}_{\text{SMOW}} = -6.93 \pm 0.08\%$ was used. Measurement was performed with conditions of 2000 Pa and $28.3 \pm 0.31^\circ\text{C}$. Another intense absorption of HDO is observable outside of this figure at 7179.1 cm^{-1} .

Fig. 2 に小型 CRDS による水試料の測定例を示す。水の同位体計測としては、レーザー波長 1.39-1.4 μm (倍音領域) および 2.6-2.7 μm (基本モード領域) の CRDS/TDLAS 法が候補となる。前者は、光通信でよく使用される波長帯で、製作コストが安価である。しかし、5 cm の光セルでは、標準海水程度の

水試料を用いて、 δD 、 $\delta^{17,18}\text{O}$ のスペクトルを得ることはできるが、 $\delta^{17}\text{O}$ を正確に反映させることに難点があり、共振器長はなるだけ長くすることが望ましい。一方、後者は、 δD 、 $\delta^{17,18}\text{O}$ について、吸収強度が 1 ~2 枝強く、最も感度よく測定できる波長域であるが、高反射光学部品等の製作・評価にコストがかかる問題はある。

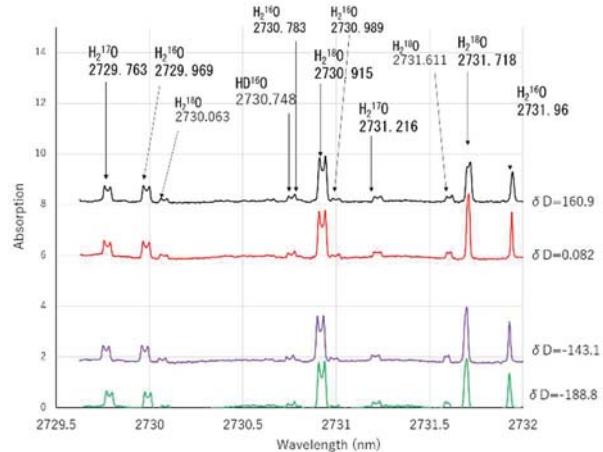


Fig. 3 TDLAS spectra at 2.7 micron wavelength for four aqua standards. D/H ratio was varied as $\delta D = 160.9$, 0.082, -143.1 and -188.8, respectively.

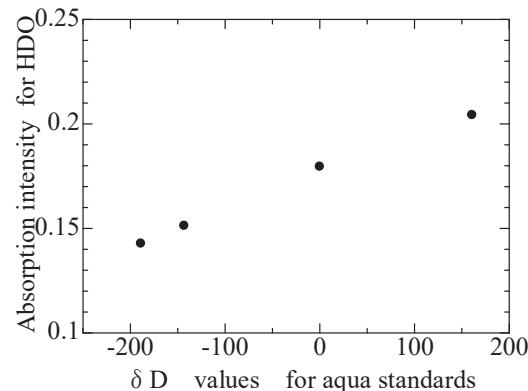


Fig. 3 Correlation of absorption intensity and δD values for aqua standards.

REFERENCE(S)

- [1] 山中, 橋爪, 村山: 月極域探査にむけたレーザー水同位体分析法の開発 宇宙科学技術連合講演会講演集 1F13 (JSASS-2019-4089) (2019)

Er:ZBLAN ファイバーレーザー励起 4 μm Fe:ZnSe レーザーの開発

吉田 実¹, 綱井 貴教^{1,2}, F. V. Potemkin³, 河仲 準二², 時田 茂樹²

近大電気電子¹, 阪大レーザー研², モスクワ大学³

1. はじめに

4 μm レーザー光は SO₂、CO₂に対して吸収が存在し、センシングやガス検出及び濃度測定に使用可能である。また、パルス化を行うことにより難加工材料への加工が期待される。

現在、4 μm レーザーとして量子カスケードレーザーの高出力化が進んでいる。しかし、量子カスケードレーザーは高ピークパワーパルスの発生は困難である。一方、高ピークパワーパルスの発生が可能な発振方法として光パラメトリック発振 (OPO) が一般的である。しかし、OPO は変換効率が低いという問題点がある。

高ピークパワーパルスの発生が可能であり、OPO に比べ高効率な発生方法として Er、Tm、Cr、Fe 等のイオンが添加された結晶による光源開発が、近年盛んに行われるようになった。特に 2 μm では Cr²⁺、4 μm では Fe²⁺イオンをドープした ZnSe レーザーが報告されている^[1]。本研究ではエルビウム添加フッ化物 (Er:ZBLAN) ファイバーから得られる 2.8 μm のレーザー光を励起光とし、Fe:ZnSe 結晶をレーザー媒質とした 4 μm レーザーの開発を行った。

2. CW 発振器

Fe:ZnSe 結晶を用いた 4 μm レーザー発振器の構成を図 1 に示す。最大出力が 5.03 W、発振波長 2.8 μm の Er:ZBLAN ファイバーレーザーを励起光源として用いた。最初に、4 μm のレーザー光の発振が可能であるのかを確認するために直方体結晶を用いた共振器を構成した。発振確認後、レーザーの出力効率を向上させるためにレーザー媒質を直方体結晶からブリュースターカット結晶に取り換え再度、共振器を構成した。

常温では Fe²⁺の蛍光寿命が 580 ns と短いため反転分布の形成に大きなエネルギーが必要となる。そのため、CW 発振は困難である。しかし、Fe²⁺イオンは低温下(80K)では蛍光寿命

が 65 μs となり、レーザー発振得るために必要なエネルギーは低下する。そのため、CW 発振が可能となる。

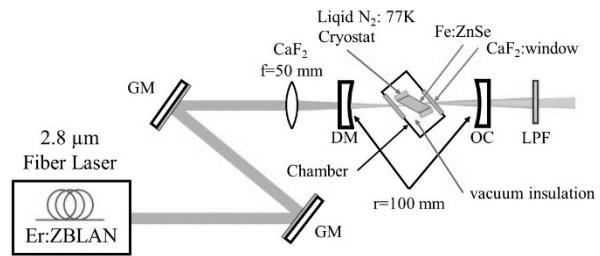


図 1: CW Fe:ZnSe レーザー発振器

3. CW 出力結果

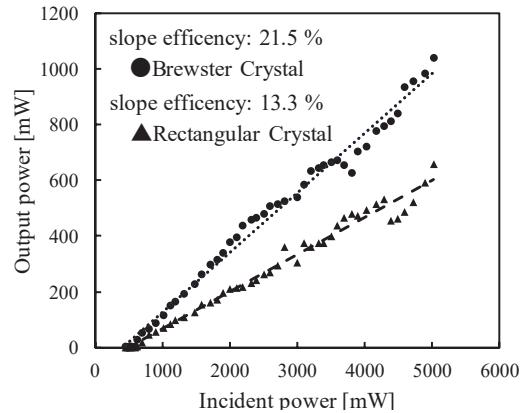


図 2: 入出力特性

構成した発振器より得られたレーザーの入出力特性を図 2 に示す。励起パワーに対するスロープ効率は直方体結晶を用いた場合では 13.3% となり、ブリュースターカット結晶を用いた場合では 21.5% となった。また、ブリュースターカット結晶を用いた共振器の発振閾値は 629 mW であった。本研究で用いた Fe:ZnSe 結晶の吸収率は 52% であり、励起波長と発振波長の関係より理論的なストークス効率は 70% となる。また、ブリュースターカット結晶を用いた共振器のスロープ効率とその他の効率より、量子効率、共振器

結合効率、レーザーモード結合率の合計は85%と計算できる。

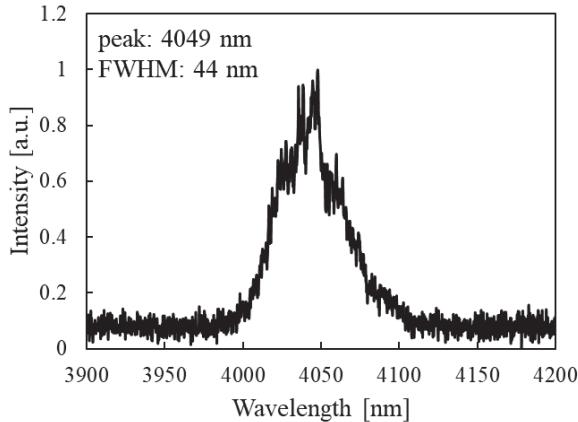


図3: 出力スペクトル

図3にCW発振時の出力スペクトルを示す。出力スペクトルのピーク波長は4049 nmであり、半値全幅(FWHM)は44 nmであった。CW発振時のスペクトルにも関わらず幅を持った波形が得られた。これは結晶媒質が不均一であったからであると考えられる。

4. Qスイッチナノ秒パルス

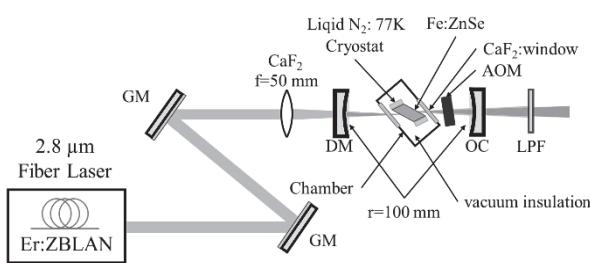
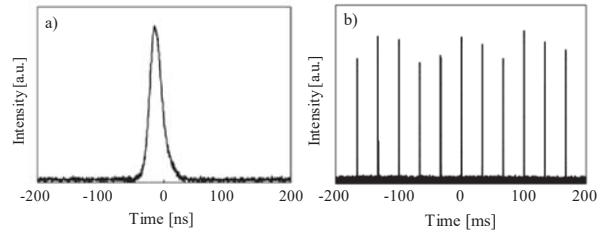


図4: ナノ秒パルスレーザー発振器

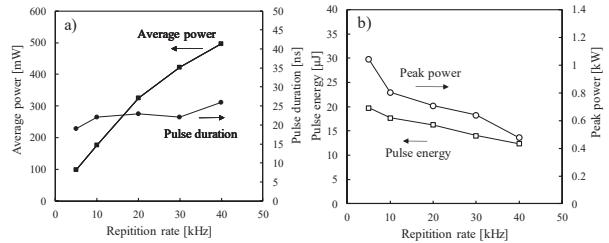
プリュースターカット結晶を用いて構成したCW共振器内にゲルマニウム結晶を用いた音響光学変調器(AOM)を挿入し、Qスイッチによるナノ秒パルスの発生を試みた。構成した実験系を図4に示す。同様に、測定したパルス波形を図5に、繰り返し周波数依存によるパルス特性を図6にそれぞれ示す。AOMを用いた共振器よりFWHMが20 nsのパルスを得ることができた。また、設定周波数と一致したパルス列の発生を確認した。図6より、繰り返し周波数を増加させると平均出力が増加し、40 kHzまでは安定したパルス列が確

認できた。40 kHzを超える場合には結晶にエネルギーが十分に溜まらないため安定したパルス列は発生しなかった。測定した周波数において5 kHz時に最大のパルスエネルギー19.8 μJを確認できた。これよりピークパワーは1.04 kWとなる。このピークパワーは現在報告されている中で最大の出力である^[3]。



a) パルス波形 b) パルス列

図5: 出力パルス波形



a) 平均出力とパルス幅

b) ピークパワーとパルスエネルギー

図6: 周波数依存パルス特性

5. まとめ

本研究では低温(80K)状態のFe:ZnSe結晶を用いた4μmレーザーの発振を行った。CW発振ではプリュースターカット結晶を用いた場合にスロープ効率21.5%を得た。また、結晶媒質が不均一であったために幅を持ったスペクトルが観測された。加えて、共振器内にAOMを挿入し、Qスイッチによるパルス化を行いピークパワー1.04 kWを達成した。

6. 参考文献

- [1] S. Mirov, V. Fedorov: *Laser and Photonics. Rev.* **4**, No. 1, pp.21-41 (2010).
- [2] Jonathan W. Evans: *Journal of Luminescence. Rev.* **188**, pp.541-550 (2017)
- [3] Jonathan W. Evans: *IEEE JOURNAL OF QUANTUM ELECTRONICS*, VOL.50, NO. 3, pp.204-209 (2014)

レーザー生成プラズマからのテラヘルツ波発生

湯上 登

宇都宮大学大学院地域創生科学研究所

高出力超短パルスレーザー($\sim \text{TW}$, $\sim 100 \text{ fs}$)をガス中に集光することによりプラズマが生成され、そこから周波数がサブテラヘルツ領域にある電磁波が発生する。その電磁波の放射方向はレーザー伝搬方向には発生せず、ある特定の角度をもって発生する。つまり、集光点を頂点とするコーン状放射となる。電磁波の周波数は広がっており、高周波の発生角度は小さく、低周波で発生角は大きくなることを特徴としている。

レーザーパルスが通過した後には、レーザー航跡場とよばれる電子プラズマ波が励起される。その周波数は、プラズマ周波数 ω_p に等しい。この周波数でプラズマ電子が振動しているので、そこから周波数 ω_p の電磁波が発生する。しかしながら、プラズマ中の電磁波の分散関係により、周波数 ω_p の電磁波は群速度が0であり、プラズマ中を伝搬できない。また、航跡場によって励起される縦振動電場では、横方向に電磁波が発生することになるが、そのような電磁波は観測されていない。さらに、封入ガス圧とレーザー強度から見積もられるプラズマ密度に対応するプラズマ周波数に対して、観測されている電磁波の周波数は2桁ほど小さい。

航跡場が励起する電場は、縦電場だけでなく横電場も発生することに注目した。航跡場の応用である電子加速の分野では、一般的にはレーザーの伝搬軸上での電場が注目される。縦電場が加速エネルギーに寄与し、かつ伝搬軸上でその電場が最大となり、横方向に単調に減少する。横電場は電子の収束に関与し、中心軸上ではゼロであり、レーザーの集光径程度で最大となり、その後単調に減少するプロファイルを持つ。この横電場での振動による電磁波の発を考えた。横電場による振動によって発生する電磁波もここでのプラズマ周波数と等しい周波数の電磁波であるので、伝搬できないが、プラズマ密度が中心軸上で最大で横方向に減少していることが縦電場での振動との大きな違いである。つまり、 $y=y_0$ での横電場 E_y で振動する電子は、振幅 $qE_y/m\omega_p^2(y_0)$ で振動する。つまり、電子は定常状態の密度より高密度と低密度の領域を振動する。高密度の領域では臨界密度よりオーバーデンスであるので電磁波は放射されないが、低密度側ではアンダーデンスであるので発生した電磁波は伝搬が可能である。もちろん、臨界密度に近いため衝突減衰によつ

て強く減衰は受ける。さらに、局所的なプラズマ密度の勾配が大きい箇所、例えばレーザー電場の強度によって電離度が大きくなる領域では最大振幅での密度が低くなるため、さらに強い放射が期待できる。

このような状況を2次元粒子コード(2DPIC)を用いて計算を行った。発生する電磁波の周波数スペクトルを図1に示す。プラズマから放射され真空中での電磁波の電場の時間波形をFFTを用いて解析を行った。電磁波のスペクトルはブロードである。レーザー伝搬軸である $y=0$ では電磁波の放射はほとんどみられず、 $y=40 \mu\text{m}$ で最大となる。これはレーザーの集光径に対応し、そこで横電場の強度が最大となることに対応している。図1中の四角で示されている周波数はピーク値である。横方向のプラズマ密度は、レーザー強度により電離度が段階的に変化する。例えば、計算では電離度が3から4に変化する箇所 $8.0 \times 10^{16} \text{ 1/cc}$ では、プラズマ周波数が2.5 THzに対応する。2から3では2.2 THz、1から2では1.8 THzであり、それぞれがスペクトルのピーク値に対応している。これらの結果より、上記のモデルによって発生周波数に関しては説明ができると考えている。

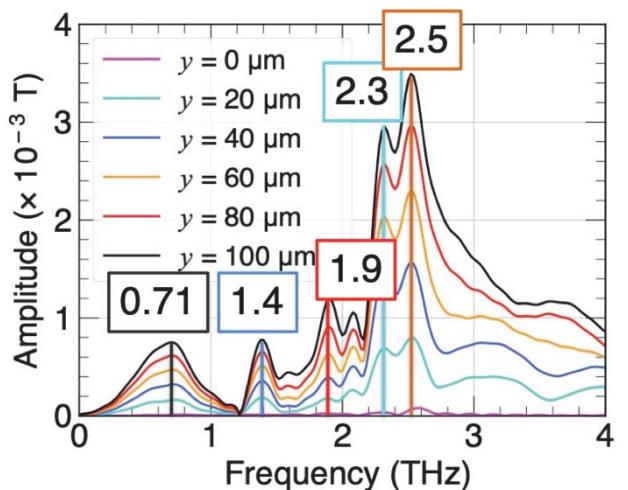


図 1

令和元年度大阪大学レーザー科学研究所共同研究（C 区分） 「高繰り返しターゲット供給・アライメント・計測技術に関する研究会」

羽原 英明

大阪大学大学院工学研究科

INTRODUCTION

本研究会の目的は数 Hz-kHz の高繰り返しレーザーに対応したターゲット供給・アライメント・計測技術を、国内の大学、企業の研究者間で情報交換を行い、高強度繰り返しレーザーを用いた様々な応用研究の実用化へ向けた取り組みを促進することである。近年、レーザーの高強度化に伴いレーザー核融合のみならず、高強度レーザーを使った量子線生成が精力的に行われている。これらの実用化のためには数 10Hz 以上での連続運転が必要であるが、そのような高繰り返し用レーザーが高輝度 LD 励起源の実現により現実のものとなってきている。また、レーザープラズマ方式による 100 kHz 繰り返しの EUV 光源も商用化され、より高い繰り返しに対応した技術が必要となってきている。さらに XFEL の発振により、レーザープラズマ研究のみならず幅広い分野で連続供給・アライメント・計測に対する需要が高まっている。このような状況を鑑み、大学の研究者のみならず企業の方にも参加を呼びかけて本研究会を立ち上げた。

WORKSHOP/SITE VISITING

第 1 回となる研究会を 2020 年 1 月 10 日（金）に光産業創成大学院大学にて行った。午前中に光産業創成大学院大学のレーザー及びターゲットインジェクションシステムの見学を行った。実機の見学と、実験の様子が撮影されたビデオを鑑賞し、参加者から多数の質問がなされ、関心の高さが伺えた。

午後より 8 件の講演が行われた。1 件目は核融合科学研究所の岩本先生より「インジェクション系の概要—高速点火レーザー核融合」というタイトルで報告が行われた。レーザー核融合の炉システムの概要が紹介され、要素技術の国内、海外での開発の状況が示された。海外では予算の関係で開発がストップした事例もあり、炉心の研究に比べ炉システムの研究が非常に立ち遅れているとの懸念が示された。特に高繰り返し運転に対応できない技術が一つでもあれば炉システムとしては成立しないため、各項目で相互矛盾が無いように開発を行っていくことの重要性が強調された。

2 件目は光産業創成大学院大学の森先生より「レーザー核融合用繰り返しターゲット供給システム開発の状況」というタイトルで報告が行われた。光産業創成大学院大学で行われているミニ核融合炉



Fig. 1. Group photo.

CANDY の説明がなされ、中性子生成用にビーズターゲット、レーザー核融合研究用にシェルターゲットが用いられ、それぞれの自由落下によるターゲットインジェクションに成功している。ビーズターゲットに関しては 1 Hz の繰り返しで 30 分以上の連続運転に成功し、連続的に中性子信号を得られたことが報告された。

3 件目は東京工業大学の長井先生より「高繰り返し用レーザーターゲット」というタイトルで報告が行われた。現状の EUV 光源の課題としてデブリの問題が指摘され、デブリを低減し稼働時間を拡大するため、ターゲットを合金化して質量を減少させ、質量比あたりの EUV 光強度の向上の取り組みを述べられた。さらにそのターゲットを液滴として射出し、レーザーショットにより EUV 光の連続発生が確認できたことが示された。

4 件目は茨城大学の辻先生より「位置計測法と軌道計算法」というタイトルで報告が行われた。プローブ光を射出されたレーザー核融合ターゲットに照射し、球ターゲットのアラゴススポットを計測することで、10 m の計測距離においても 0.3 μm の精度で位置測定が可能であることが示され、そこから軌道計算が可能であることが示された。さらにターゲットにレーザーを照射させるためのミラー制御の可能性と、ターゲットの軌道変更の可能性が報告された。

5 件目は大阪大学レーザー科学研究所の山ノ井先生より「レーザー核融合燃料インジェクション装置の開発」というタイトルで報告が行われた。レーザー核融合用のクライオターゲットのインジェクション装置の開発と、射出時のターゲット傾きの低減に関する取り組みに関して報告があった。加速管の



Fig. 2. Presentation.

研磨や振動の低減化、サバーのオイルコーティング等の改良を加えることによってターゲット射出が安定したことが示された。

6件目は量子科学技術研究開発機構の小島氏より「レーザー駆動イオン源の高繰り返し発生のためのターゲット開発」というタイトルで報告が行われた。量研機構で行われている高繰り返しイオンビーム生成用のターゲットとしてテープターゲットの開発が行われており、様々なテープ材料の利用が可能で、実際のイオン加速実験においてテープの巻き戻し及び水平駆動で長時間連続供給を実現していることが示された。同時に計測系の高繰り返し対応化を勧めていることが報告された。

7件目は兵庫県立大学の古賀先生より「ターゲットインジェクション装置開発状況」というタイトルで報告が行われた。阪大レーザー研で開発が行われていた高速点火レーザー核融合用ターゲットインジェクション実験装置を兵庫県立大に移設し、実験装置の立ち上げが行われたことが報告された。さらにターゲットを保護するサバーを改良しつつターゲットインジェクション実験を重ねていることが示された。

8件目は羽原より「高繰り返しレーザーに対応するターゲット供給システムとデータ処理技術」というタイトルで報告を行った。我々は高輝度X線源としてナノサイズのターゲットとレーザー相互作用実験を行っており、その基礎的研究として、ミクロンサイズの固体ターゲットを自由落下して供給する連続ターゲット供給装置を3Dプリンターで作成したことを報告し、さらに電子スペクトルの連続計測及びデータ処理手法の開発に関して報告を行った。

SUMMARY

講演の後、今後の計画として全員で議論が行われ、来年度以降の研究会代表として森先生が選任され、レーザー研の来年度の共同研究に申し込んだことが報告された。さらに今回日程の都合により不参加となったXFELや電子加速用のターゲット開発・インジェクション装置の研究者や、企業の方からの発表を招聘することが話し合われた。