

---

レーザー科学研究所

平成30年度

# 共同利用・共同研究成果報告書

(平成30年4月-平成31年3月)

ILE Annual Report of Collaborative Research

April 2018 – March 2019

---

平成31年3月



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究することで、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。

平成 30 年度には、大阪北部地震などの影響もあり、拠点活動への影響も懸念されましたが、皆様のご理解とご協力のもと、これまで通りパワーレーザーによる高エネルギー密度科学など学際的な分野、テラヘルツフォトニクス、パワーフォトニクス、光材料を始めとした光科学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。さらに平成 30 年度は、従来の共同研究に加え产学連携、国際連携においても大きな進展がありました。産業界との連携に関しては、実験棟の 1 つをオープンイノベーション プラットフォームとして整備し产学共創を推進する環境を整えるとともに、产学協奏の場として IFE フォーラム、光エレクトロニクスフォーラムに次いでパワーレーザーフォーラムを立ち上げました。また新たに 2 つの产学連携部門が設置され合計 3 つの部門が組織連携の下で研究開発を進めています。一方、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国際的なハブ機能を強化しました。特に日米に関しては、レーザーによる高エネルギー密度科学分野が日米政府間科学技術協定の新たな枠組みとして位置付けられました。

令和元年度におきましても、レーザー科学を発展させ、より幅広いコミュニティの期待に応えることができる国際的な拠点活動を推進していく予定です。そのために学内外の関係機関との連携を深めるとともに、产学連携部門のさらなる新設など組織・施設の充実を図ります。また国際連携に関しては、拠点と連携した世界のパワーレーザー施設を紹介する国際利用者会議を初めて開催し、また日米合同委員会をスタートさせる予定です。共同研究者の皆様と共に共同利用・共同研究拠点として、レーザーを利用した新しい学問領域を開拓し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。

令和元年 6 月  
大阪大学レーザー科学研究所長 児玉 了祐

# 目次

\* はじめに

\* 平成30年度共同利用・共同研究者リスト

\* 平成30年度共同利用・共同研究成果報告

論文題目	課題番号	代表者氏名
<b>1. 大型レーザー装置利用実験</b>		
1-1 Enhanced laser-driven ion acceleration in a strong applied magnetic field	2018A1-AREFIEV	AREFIEV Alex
1-2 水素化物の超高压物性計測および新奇物性探索に関する研究	2018A1-EINAGA	榮永 茉利
1-3 Systematic understanding of magnetic field generation mechanism in laser-driven capacitor-coil target	2018A1-FUJIOKA	藤岡 慎介
1-4 Blast waves interaction as a star progenitor	2018A1-KOENIG	KOENIG Michel
1-5 マルチピコ秒間の相対論的放射圧による臨界面の超高速運動	2018A1-KOJIMA	小島 完興
1-6 衝撃誘起高圧相転移の条件の初期試料依存性に関する研究	2018A1-KONDO	近藤 忠
1-7 グラフェンを用いた高エネルギーイオン加速	2018A1-KURAMITSU	藏満 康浩
1-8 無衝突衝撃波のマルチスケール構造の精密測定	2018A1-MATSUKIYO	松清 修一
1-9 Intense Low-Energy Neutron Source Using High Power Lasers	2018A1-MIRFAYZI	Mirfayzi, S. Reza
1-10 外部印加磁場による磁気リコネクションの検証	2018A1-MORITA	森田 太智
1-11 レーザー駆動MeV中性子による大型構造物ラジオグラフィ性能向上の実証実験	2018A1-NISHIMURA	西村 博明
1-12 窒化ケイ素のポストスピネル相の探索	2018A1-NISHIYAMA	西山 宣正
1-13 レーザー衝撃圧縮による水惑星内部の実際の温度圧力条件での水の状態解析	2018A1-OKUCHI	奥地 拓生
1-14 Zeeman spectroscopy with magnetized high-energy-density plasma	2018A1-POLLOCK	Bradley Pollock
1-15 キャパシタコイルターゲットを用いた磁気リコネクション粒子加速	2018A1-SAKAWA	坂和 洋一
1-16 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	2018A1-SANO	佐野 孝好
1-17 ケイ酸塩の惑星内部における融解挙動の解明	2018A1-SATO	佐藤 友子
1-18 レーザー衝撃圧縮下の惑星材料物質の分光観測：隕石衝突による惑星大気海洋形成モデルの構築	2018A1-UMEDA	梅田 悠平
1-19 磁化プラズマ中を伝播する無衝突衝撃波の生成実験	2018A1-YAMAZAKI	山崎 了
1-20 ペタワットレーザーによる磁気リコネクション現象の検証と粒子加速への応用	2018A1-YOGO	余語 嘉文
<b>2. 高出力レーザー先進基盤技術</b>		
2-1 LFEXレーザーシステムの高性能化	2018A3-KANABE	金邊 忠
2-2 Yb:YAGマイクロチップレーザー発振器の開発	2018A3-YAMAKAWA	山川 考一
2-3 Ndドープレーザー媒質を軸としたCaF <sub>2</sub> 透明セラミックス材料の開発	2018A3-YOSHIDA	吉田 実
<b>3. レーザー材料・光学材料評価</b>		
3-1 Investigation of the electronic and optical properties of fluoride crystals for laser applications	2018B1-HARRISON	HARRISON, John Andrew
3-2 Laser System Development using Gain Medium of Glass doped Rare earth Element	2018B2-DJAMAL	Mitra Djamal
3-3 次世代高機能光ファイバデバイスの開発とその応用	2018B2-FUJIMOTO	藤本 靖
3-4 透光性YAGセラミックス材料の開発	2018B2-FURUSE	古瀬 裕章
3-5 Percolation approach to laser-induced damage of optical materials	2018B2-GAMMAG	Rayda Gammag

	<u>論文題目</u>	<u>課題番号</u>	<u>代表者氏名</u>
3-6	Rapid growth of KDP crystal at constant temperature and supersaturation	2018B2-GUZMAN	Luis A. Guzman
3-7	レーザー放電回路のリグニン分解への応用(水中ストリーマー放電によるリグニンの中性・常温分解)	2018B2-JITSUNO	實野 孝久
3-8	Development of radiation tolerant optical glass materials	2018B2-KAEWKHAO	Jakrapong Kaewkha
3-9	Fabrication of novel transparent ceramics for scintillation materials	2018B2-KUROSAWA-1	黒澤 俊介
3-10	Optical properties of Gd-containing scintillation material in the UV or VUV region	2018B2-KUROSAWA-2	黒澤 俊介
3-11	ホウ酸系非線形光学結晶の高品質・大型化	2018B2-MORI.YU	森 勇介
3-12	レーザー造形法によるシリカガラス構造形成	2018B2-MOTOKOSHI-1	本越 伸二
3-13	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	2018B2-MOTOKOSHI-2	本越 伸二
3-14	超高速時間分解能を持つ発光材料としての複合アニオン化合物の開発	2018B2-OGINO	荻野 拓
3-15	Research and development of ultraviolet laser and amplifier systems using Ce:LiCAF crystal	2018B2-PHAM	Pham Hong Ming
3-16	Spectroscopic study of Praseodymium and Cerium co-doped APLF glass as improved neutron scintillator	2018B1-RADUBAN	Marilou Cadatal-Raduban
3-17	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	2018B2-SASAKI	佐々木 明
3-18	Development of a photodetector based on hydrothermal-grown zinc oxide nanorods	2018B1-SOMINTAC	Armando Soriano SOMINTAC
3-19	中赤外レーザーによる軽元素同位体分析機器開発	2018B2-YAMANAKA	山中 千博
3-20	高効率に作動する極低温冷凍機用の窒化物材料の合成	2018B2-YAMAMOTO	山本 孝夫
3-21	エルビウムドープZBLANファイバを用いた中赤外モード同期レーザーの開発	2018B2-YOSHIDA	吉田 実
3-22	X線位相イメージングに向けた相分離構造を有する共晶体シンチレータの開発	2018B2-YOSHIKAWA.A	吉川 彰
3-23	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	2018B2-YOSHIKAWA.H	吉川 洋史

#### 4. レーザー開発

4-1	連続波モード同期レーザーの効率に対する共振器内部損失を与える位置の影響に関する理論的解析	阪大レーザー研 完成2	2018B2-KAWATO-1	川戸 栄
4-2	半球型共振器連続波レーザーの高効率化		2018B2-KAWATO-2	川戸 栄
4-3	高密度励起による青紫色レーザーダイオード励起連続波チタンサファイアレーザーの高効率化		2018B2-KAWATO-3	川戸 栄
4-4	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		2018B2-OOKUBO	大久保 友雅

#### 5. テラヘルツ研究

5-1	カーボンナノチューブメタマテリアルのテラヘルツ応答	2018B2-FURUTA	古田 寛
5-2	テラヘルツ波発生を用いたレーザーカオスにおける縦モードの同時性の研究	2018B2-KUWASHIMA	桑島 史欣
5-3	ガスセンサとしての有機金属構造体におけるIR波及びTHz波の透過特性に関する研究	2018B2-LEE	李 相錫
5-4	グラフェンを用いた複合構造体における電磁特性研究	2018B1-LI	李 大治
5-5	サブ10 μm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	2018B2-NASHIMA	菜嶋 茂喜
5-6	ハイドロキシアパタイトの誘電特性評価	2018B1-NISHIKAWA	西川 博昭
5-7	相変化材料を利用したテラヘルツ波デバイスの開発	2018B1-MAKINO	牧野 孝太郎
5-8	有機・無機半導体ハイブリッド・システムによるアクティブ・テラヘルツ・メタマテリアルの開発	2018B1-MATSUI	松井 龍之介
5-9	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	2018B1-MATSUMOTO	松本 卓也
5-10	高強度THzパルスを利用したスピinn制御	2018B1-MORITA	森田 健
5-11	レーザーテラヘルツエミッショニ顕微鏡によるTi <sub>x</sub> V <sub>1-x</sub> O <sub>2</sub> /TiO <sub>2</sub> :Nb(001)ヘテロ接合界面の評価	2018B2-MURAOKA	村岡 祐治
5-12	宇宙マイクロ波背景放射測定に向けたサブミリ波帯時間領域分光装置の開発と光学素子の評価	2018B2-OHTA	大田 泉

論文題目	課題番号	代表者氏名
5-13 テラヘルツ分光法によるLiイオン内包フラーーエン[Li+@C60](PF6)の物性研究	2018B2-OTANI	大谷 知行
5-14 GaSb/InAsヘテロ構造からのテラヘルツ放射強度の評価	2018B1-SASA	佐々 誠彦
5-15 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	2018B1-TANI	谷 正彦
5-16 メタルスリットアレイの擬似誘電体的性質とそのテラヘルツ光制御への応用	2018B2-TOKUDA	徳田 安紀
5-17 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	2018B2-YAMAHARA	山原 弘靖
<b>6. レーザー応用</b>		
6-1 量子ビーム源の開発、制御ならびにその応用に関する研究	2018B2-FUJITA	藤田 雅之
6-2 レーザー駆動繰り返し中性子発生用ターゲット駆動装置の開発	2018B2-INOUE	井上俊介
6-3 繰り返しレーザーによる高速点火核融合の開発と産業応用	2018B2-KITAGAWA	北川 米喜
6-4 レーザー照明における高演色化の開発	2018B2-MANABE	眞鍋 由雄
6-5 Material design and synthesis of ZnO-polymer nanocomposites (ZnO-PNCs) for photonic applications	2018B2-SARMAGO	Roland V. Sarmago
6-6 ダイヤモンド球殻への高エネルギー照射に関する研究	2018B2-YAMADA	山田 英明
<b>7. 高エネルギー密度科学</b>		
7-1 レーザー衝撃圧縮による超高ひずみ速度変形メカニズムの研究	2018B2-KAWAI	川合 伸明
7-2 長波長偏光制御レーザーを用いた強磁場プラズマ中の電磁場伝搬・吸収の検証	2018B2-MORI.YO	森 芳孝
7-3 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	2018B2-MURATA	村田 貴広
7-4 超短パルスレーザーを用いた原子運動過程の実時間計測	2018B2-NAKAMURA	中村 一隆
7-5 大強度パルスパワー発生装置による隕石衝突模擬のための飛翔体加速手法の開発	2018B2-TAMURA	田村 文裕
7-6 温度約110Kの領域における重水素化水素HDプローブのNMR及び固体HD薄膜の作成方法	2018B2-UTSURO	宇津呂 雄彦
<b>8. 理論・シミュレーション研究</b>		
8-1 高密度爆縮プラズマ中における抵抗率勾配における強磁場生成のモデリング	2018B1-HABARA	羽原 英明
8-2 Radiation MHD simulations of accretion disks	2018B2-HIROSE	廣瀬 重信
8-3 レーザーブレイクダウンプラズマに関するシミュレーションコード開発	2018B2-KATO	加藤 進
8-4 超強密度成層MHD熱対流計算で迫る太陽黒点の形成機構	2018B2-MASADA	政田 洋平
8-5 磁場による流体不安定性の抑制に関する研究	2018B2-MATSUOKA	松岡 千博
8-6 アブレーションによるブルームの発生と膨張のシミュレーション解析	2018B2-SUNAHARA	砂原 淳
8-7 超高強度レーザーとプラズマの相互作用	2018B2-TAGUCHI	田口 俊弘
8-8 誘導コンプトン散乱のレーザー実験に向けての研究	2018B2-TANAKA	田中 周太
8-9 レーザー生成プラズマからのテラヘルツ波発生	2018B1-YUGAMI	湯上 登
<b>9. 研究会</b>		
9-1 レーザープラズマ科学のための最先端シミュレーションコードの共同開発・共用に関する研究会	2018C-JOZAKI	城崎 知至

## 平成30年度 共同利用・共同研究 採択課題一覧

区分	No.	課題番号	氏名	所属	研究課題
大型 レーザー <sup>装置利用実験</sup>	1	2018A1-AREFIEV	Alex AREFIEV	University of California - San Diego	Enhanced laser-driven ion acceleration in a strong applied magnetic field
	2	2018A1-EINAGA	榮永 茂利	大阪大学基礎工学研究科付属極限科学センター	水素化物の超高压物性計測および新奇物性探索に関する研究
	3	2018A1-FUJIOKA	藤岡 慎介	大阪大学レーザー科学研究所	Systematic understanding of magnetic field generation mechanism in laser-driven capacitor-coil target
	4	2018A1-KATARZYNA	Jakubowska Katarzyna	University of Bordeaux	Behavior and optical properties of materials of planetological interest (water and carbon) at Megabar pressures.
	5	2018A1-KOENIG	Koenig Michel	LULI -France	Blast waves interaction as a star progenitor
	6	2018A1-KOJIMA	小島 完興	京都大学化学研究所 先端ビームナノ科学センター	マルチビーム間の相対論的放射圧による臨界面の超高速運動
	7	2018A1-KONDO	近藤 忠	大阪大学大学院理学研究科	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
	8	2018A1-KURAMITSU	藏満 康浩	大阪大学大学院工学研究科	グラフェンを用いた高エネルギーイオン加速
	9	2018A1-MATSUKIYO	松清 修一	九州大学大学院総合理工学府	無衝突衝撃波のマルチスケール構造の精密測定
	10	2018A1-MIRFAYZI	Mirfayzi, S. Reza	Queen's University Belfast	Intense Low-Energy Neutron Source Using High Power Lasers
	11	2018A1-MORITA	森田 太智	九州大学大学院総合理工学府	外部印加磁場による磁気リコネクションの検証
	12	2018A1-NISHIMURA	西村 博明	福井工業大学/大阪大学レーザー科学研究所	レーザー駆動MeV中性子による大型構造物ラジオグラフィ性能向上の実証実験
	13	2018A1-NISHIYAMA	西山 宣正	東京工業大学フロンティア材料研究所	窒化ケイ素のポストスピネル相の探索
	14	2018A1-OKUCHI	奥地 拓生	岡山大学惑星物質研究所	レーザー衝撃圧縮による惑星内部の実際の温度圧力条件での水の状態解析
	15	2018A1-POLLOCK	Bradley Pollock	Lawrence Livermore National Laboratory	Zeeman spectroscopy with magnetized high-energy-density plasma
	16	2018A1-SAKAWA	坂和 洋一	大阪大学レーザー科学研究所	キャバシタコイルターゲットを用いた磁気リコネクション粒子加速
	17	2018A1-SANO	佐野 孝好	大阪大学レーザー科学研究所	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
	18	2018A1-SATO	佐藤 友子	広島大学大学院理学研究科	ケイ酸塩の惑星内部における融解拳動の解明
	19	2018A1-SHIGEMORI	重森 啓介	大阪大学レーザー科学研究所	超高強度レーザーによるギガバルル圧力の発生とその特性に関する研究
	20	2018A1-UMEDA	梅田 悠平	大阪大学大学院工学研究科	レーザー衝撃圧縮下の惑星材料物質の分光観測：隕石衝突による惑星大気海洋形成モデルの構築
	21	2018A1-YAMAZAKI	山崎 了	青山学院大学理工学部 物理・数理学科	磁化プラズマ中を伝播する無衝突衝撃波の生成実験
	22	2018A1-YOGO	余語 覚文	大阪大学レーザー科学研究所	ペタワットレーザーによる磁気リコネクション現象の検証と粒子加速への応用
高出力レーザー <sup>装置技術開発</sup> 先	23	2018A3-KANABE	金邊 忠	福井大学学術研究院工学系部門 電気・電子工学講座	LFEXレーザーシステムの高性能化
	24	2018A3-YAMAKAWA	山川 考一	量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所	Yb:YAGマイクロチップレーザー発振器の開発
	25	2018A3-YOSHIDA	吉田 実	近畿大学理工学部電気電子工学科	Ndドーブレーザー媒質を軸としたCaF <sub>2</sub> 透明セラミックス材料の開発
中型装置利用 <sup>共同研究</sup>	26	2018B1-ANDREW	HARRISON, John Andrew	Institute of Natural and Mathematical Sciences, Massey University	Investigation of the electronic and optical properties of fluoride crystals for laser applications
	27	2018B1-HABARA	羽原 英明	大阪大学大学院工学研究科	高密度爆縮プラズマ中における抵抗率勾配における強磁場生成のモデリング
	28	2018B1-LI	李 大治	レーザー技術総合研究所	グラフェンを用いた複合構造体における電磁特性研究
	29	2018B1-MAKINO	牧野 孝太郎	産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門	相変化材料を利用したテラヘルツ波デバイスの開発
	30	2018B1-MATSUI	松井 龍之介	三重大学大学院工学研究科	有機・無機半導体ハイブリッド・システムによるアクティブ・テラヘルツ・メタマテリアルの開発
	31	2018B1-MATSUMOTO	松本 卓也	大阪大学大学院理学研究科	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
	32	2018B1-MORITA	森田 健	千葉大学大学院工学研究院	高強度THzパルスを利用したスピニ制御
	33	2018B1-NISHIKAWA	西川 博昭	近畿大学生理工学部医用工学科	ハイドロキシアバタイトの誘電特性評価
	34	2018B1-RADUBAN	Marilou Cadatal-Raduban	Institute of Natural and Mathematical Sciences, Massey University	Spectroscopic study of Praseodymium and Cerium co-doped APLF glass as improved neutron scintillator
	35	2018B1-SASA	佐々 誠彦	大阪工業大学工学部電気電子システム工学	GaSb/InAsへテロ構造からのテラヘルツ放射強度の評価
	36	2018B1-SOMINTAC	Armando Soriano SOMINTAC	National Institute of Physics, University of the Philippines Diliman	Development of a photodetector based on hydrothermal-grown zinc oxide nanorods
	37	2018B1-TANI	谷 正彦	福井大学遠赤外領域開発研究センター	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
	38	2018B1-YUGAMI	湯上 登	宇都宮大学大学院工学研究科	レーザー生成プラズマからのテラヘルツ波発生
	39	2018B2-DJAMAL	Mitra Djamal	Institut Teknologi Bandung	Laser System Development Using Gain Medium Doped Rare Earth Element
	40	2018B2-FUJIMOTO	藤本 靖	千葉工業大学工学部電気電子工学科	次世代高機能光ファイバデバイスの開発とその応用
	41	2018B2-FUJITA	藤田 雅之	レーザー技術総合研究所	量子ビーム源の開発、制御ならびにその応用に関する研究
	42	2018B2-FURUSE	古瀬 裕章	北見工業大学工学部	透光性YAGセラミックス材料の開発
	43	2018B2-FURUTA	古田 寛	高知工科大学・システム工学科	カーボンナノチューブメタマテリアルのテラヘルツ応答
	44	2018B2-GAMMAG	Rayda Gammag	Department of Physics, Mapua University	Percolation approach to laser-induced damage of optical materials
	45	2018B2-GUZMAN	Luis A. Guzman	茨城工業高等専門学校	Rapid growth of KDP crystal at constant temperature and supersaturation
	46	2018B2-HIROSE	廣瀬 重信	海洋研究開発機構 数理科学・先端技術研究分野	Radiation MHD simulations of accretion disks
	47	2018B2-INOUE	井上 優介	京都大学化学研究所	レーザー駆動繰り返し中性子発生用ターゲット駆動装置の開発
	48	2018B2-JITSUNO	實野 孝久	大阪大学レーザー科学研究所	レーザー放電回路のリグニン分解への応用（水中ストリーマー放電によるリグニンの中性・常温分解）
	49	2018B2-KAEWKHAO	Jakrapong Kaewkhaow	Nakhon Pathom Rajabhat University	Development of radiation tolerant optical glass materials
	50	2018B2-KATO	加藤 進	産業技術総合研究所 電子光技術研究部門	レーザーブレイクダウンプラズマに関するシミュレーションコード開発
	51	2018B2-KAWAI	川合 伸明	熊本大学パルスパワー科学研究所	レーザー衝撃圧縮による超高ひずみ速度変形メカニズムの研究

区分	No.	課題番号	氏名	所属	研究課題
一般共同利用	52	2018B2-KAWATO-1	川戸 栄	福井大学工学研究科電気・電子工学	連続波モード同期レーザーの効率に対する共振器内部損失を与える位置の影響に関する理論的解析 阪大レーザー研 完成2
	53	2018B2-KAWATO-2	川戸 栄	福井大学工学研究科電気・電子工学	半球型共振器連続波レーザーの高効率化
	54	2018B2-KAWATO-3	川戸 栄	福井大学工学研究科電気・電子工学専攻	高密度励起による青紫色レーザーダイオード励起連続波チタンサファイアレーザーの高効率化
	55	2018B2-KITAGAWA	北川 米喜	光産業創成学院大学 光エネルギー分野	繰り返しレーザーによる高速点火核融合の開発と産業応用
	56	2018B2-KUROSAWA-1	黒澤 俊介	山形大学理学部	Fabrication of novel transparent ceramics for scintillation materials
	57	2018B2-KUROSAWA-2	黒澤 俊介	東北大未来科学技術共同研究センター	Optical properties of Gd-containing scintillation material in the UV or VUV region
	58	2018B2-KUWASHIMA	桑島 史欣	福井工業大学工学部電気電子工学科	テラヘルツ波発生を用いたレーザーカオスにおける縦モードの同時性の研究
	59	2018B2-LEE	李 相錫	鳥取大学工学部	ガスセンサとしての有機金属構造体におけるIR波及びTHz波の透過特性に関する研究
	60	2018B2-MANABE	眞鍋 由雄	津山工業高等専門学校・総合理工学	レーザー照明における高演色化の開発
会員研究	61	2018B2-MASADA	政田 洋平	愛知教育大学教育学部理科教育講座	超強密度成層MHD熱対流計算で迫る太陽黒点の形成機構
	62	2018B2-MATSUOKA	松岡 千博	大阪市立大学大学院工学研究科	磁場による流体不安定性の抑制に関する研究
	63	2018B2-MORI.YO	森 芳孝	光産業創成学院大学	長波長偏光制御レーザーを用いた強磁場プラズマ中の電磁場伝搬・吸収の検証
	64	2018B2-MORI.YU	森 勇介	大阪大学大学院工学研究科	ホウ酸系非線形光学結晶の高品質・大型化
	65	2018B2-MOTOKOSHI-1	本越 伸二	レーザー技術総合研究所	レーザー造形法によるシリカガラス構造形成
	66	2018B2-MOTOKOSHI-2	本越 伸二	レーザー技術総合研究所	緑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
	67	2018B2-MURAOKA	村岡 祐治	岡山大学異分野基礎科学研究所	レーザーテラヘルツエミッション顕微鏡によるTi <sub>x</sub> V <sub>1-x</sub> O <sub>2</sub> /TiO <sub>2</sub> :Nb(001)へテロ接合界面の評価
	68	2018B2-MURATA	村田 貴広	熊本大学教育学部	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
	69	2018B2-NAKAMURA	中村 一隆	東京工業大学フロンティア材料研究所	超短パルスレーザーを用いた原子運動過程の実時間計測
	70	2018B2-NASHIMA	菜嶋 茂喜	大阪市立大学大学院工学研究科	サブ10 μm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
	71	2018B2-OGINO	荻野 拓	産業技術総合研究所 電子光技術研究部門	超高速時間分解能を持つ発光材料としての複合アニオン化合物の開発
	72	2018B2-OHTA	大田 泉	甲南大学理工学部	宇宙マイクロ波背景放射測定に向けたサブミリ波時間領域分光装置の開発と光学素子の評価
	73	2018B2-OOKUBO	大久保 友雅	東京工科大学工学部機械工学科	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
	74	2018B2-OTANI	大谷 知行	理化学研究所 光量子工学研究領域	テラヘルツ分光法によるLi <sup>+</sup> 内包フラーレン[Li <sup>+</sup> @C <sub>60</sub> ](PF <sub>6</sub> ) <sup>-</sup> の物性研究
	75	2018B2-PHAM	Pham Hong Ming	Institute of Physics, Vietnam Academy of Science and Technology	Research and development of ultraviolet laser and amplifier systems using Ce:LCAF crystal
	76	2018B2-SARMAGO	Roland V. Sarmago	National Institute of Physics, College of Science, University of the Philippines - Diliman	Material design and synthesis of ZnO-polymer nanocomposites (ZnO-PNCs) for photonic applications
	77	2018B2-SASAKI	佐々木 明	量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所	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
	78	2018B2-SUNAHARA	砂原 淳	Center for material under extreme environment School of Nuclear Engineering Purdue University	アブレーションによるブルームの発生と膨張のシミュレーション解析
	79	2018B2-TAGUCHI	田口 俊弘	摂南大学理工学部電気電子工学科	超高強度レーザーとプラズマの相互作用
	80	2018B2-TAMURA	田村 文裕	長岡工業高等専門学校	大強度パルスパワー発生装置による隕石衝突模擬のための飛翔体加速手法の開発
	81	2018B2-TANAKA	田中 周太	青山学院大学理工学部 物理・数理学科	誘導コンプトン散乱のレーザー実験に向けての研究
	82	2018B2-TOKUDA	徳田 安紀	岡山県立大学情報工学部情報通信工学科	メタルスリットアレイの擬似誘電体的性質とそのテラヘルツ光制御への応用
	83	2018B2-UTSURO	宇津呂 雄彦	大阪大学核物理研究センター	温度約1-10 Kの領域における重水素化水素HDプローブのNMR及び固体HD薄膜の作成方法
	84	2018B2-YAMADA	山田 英明	産業技術総合研究所 エネルギー・環境領域先進パワーエレクトロニクス研究センター	ダイヤモンド球殻への高エネルギー レーザー照射に関する研究
	85	2018B2-YAMAHARA	山原 弘靖	東京大学工学系研究科	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
	86	2018B2-YAMAMOTO	山本 孝夫	大阪大学大学院工学研究科ビジネスエンジニアリング専攻	高効率に作動する極低温冷凍機用の窒化物材料の合成
	87	2018B2-YAMANAKA	山中 千博	大阪大学大学院理学研究科	中赤外レーザーによる軽元素同位体分析機器開発
	88	2018B2-YOSHIDA	吉田 実	近畿大学理工学部電気電子工学科	エルビウムドープZBLANファイバを用いた中赤外モード同期レーザーの開発
	89	2018B2-YOSHIKAWA.A	吉川 彰	東北大金属材料研究所	X線位相イメージングに向けた相分離構造を有する共晶体シンチレータの開発
	90	2018B2-YOSHIKAWA.H	吉川 洋史	埼玉大学大学院理工学研究科	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
	91	2018C-JOZAKI	城崎 知至	広島大学大学院工学研究院	レーザープラズマ科学のための最先端シミュレーションコードの共同開発・共用に関する研究会

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

Alexey Arefiev,<sup>1</sup> Toma Toncian,<sup>2</sup> Joao J. Santos,<sup>3</sup> Hiroki Morita,<sup>4</sup> K. F. Farley Law,<sup>4</sup> Daniil Golovin,<sup>4</sup> Satoru Shokita,<sup>4</sup> Takato Mori,<sup>4</sup> Morace Alessio,<sup>4</sup> Akifumi Yogo,<sup>4</sup> and Shinsuke Fujioka<sup>4</sup>

<sup>1</sup>*Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California, San Diego*

<sup>2</sup>*Institute for Radiation Physics, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf*

<sup>3</sup>*University of Bordeaux, Centre Lasers Intenses et Applications*

<sup>4</sup>*Institute of Laser Engineering, Osaka University*

## INTRODUCTION

Laser-driven proton sources can deliver several tens of MeV particle energies from the compact, transient accelerating structure generated by laser-matter interactions at relativistic intensities. The future development of novel applications such as fast proton ignition requires improvements in the proton energy, beam divergence, and laser to proton energy conversion efficiency.

In target normal sheath acceleration (TNSA)[1], an intense laser pulse irradiating a flat solid-density target heats electrons and sets up a picosecond-duration and up to TV/m sheath field that gradually accelerates protons off the target surface. The proton beam quality is thus linked to the hot electron spectrum and the density distribution and lifetime of the sheath.

We have carried out two-dimensional and three-dimensional particle-in-cell simulations[2, 3] which indicate that nanosecond-duration sub-kT magnetic fields, accessible by capacitor-coil targets developed at ILE[4], suppress lateral sheath electron transport, increase electron heating and could deliver enhanced TNSA performance.

Experiments at the LFEX laser facility will be aimed at measuring for the first time the impact of an applied kT-level magnetic field on laser-driven proton acceleration in the TNSA regime. The LFEX laser facility is the only facility capable of generating a nanosecond-duration kT-level magnetic field, can simultaneously drive TNSA, and is also uniquely suited for investigating factors which affect the sheath dynamics such as electron heating and lateral transport. The capabilities of the LFEX laser facility will allow us to conduct a proof-of-principle experiment into the effects of strong magnetic fields in TNSA, including a magnetic field strength scan to observe the onset of magnetic field effects.

## EXPERIMENTAL SETUP

We used three GXII beams to generate a strong magnetic field and a single LFEX to accelerate proton beam via TNSA in this experiment. Experimental geometry is shown in Fig.1. Each GXII beam, which has  $800 \pm 50$  J of energy in 1054 nm of wavelength, is focused on capacitor-coil within xx of spot size. The capacitor-coil target might generate  $\sim 2$  kT at coil center 1.2 ns after GXII peak with 500  $\mu\text{m}$  of coil diameter and 50  $\mu\text{m}$  of wire diameter[5]. LFEX, which has  $350 \pm 50$  J of energy in 1054 nm of wavelength, is irradiated to CH

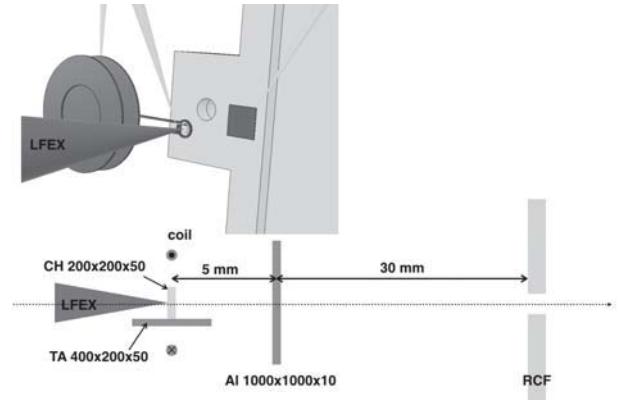


FIG. 1. Experimental setup for 3D design and 2D geometry. CH foil as a proton source was put on tantalum, which protect CH foil from some radiation. These targets are placed at the center of a coil. CH foil and tantalum's dimension are  $200 \times 200 \times 50 \mu\text{m}$  and  $400 \times 200 \times 50 \mu\text{m}$ . An aluminum foil was put 5 mm away from CH foil. It also protects CH foil from radiation. RCFs put 30 mm away from aluminum detect the proton beam. RCFs have a hole at center to pass the proton to Thomson parabola spectrometer.

foil. CH foil was on a tantalum shield to be protected from radiation and a plasma generated on capacitor-coil. Accelerated proton beam was measured on a radiochromic film(RCFs) at 35 mm far from the foil. RCFs have a hole at its center, the spectra of a proton beam through the hole was measured by Thomson parabola ion spectrometer. The spectra of the accelerated electron were also measured. The aluminum shield put 5 mm away from the foil protects the rear surface of the foil from radiation.

## RESULTS

Figure 2 shows the plots of maximum proton energy against the delay. 0 ps of a delay represents that GXII and LFEX reach the targets at the same time. A positive delay means that LFEX comes after the peak of GXII. An inset figure in Fig.2 shows the measured proton image without a capacitor-coil target. The maximum energy of this proton was 21.6 MeV. The lowest energy was 5.8 MeV with an application of B-field.

The acceleration energy of proton decreased with the delay between GXII and LFEX. The delay corresponds to the strength of magnetic field so that magnetic field rises when

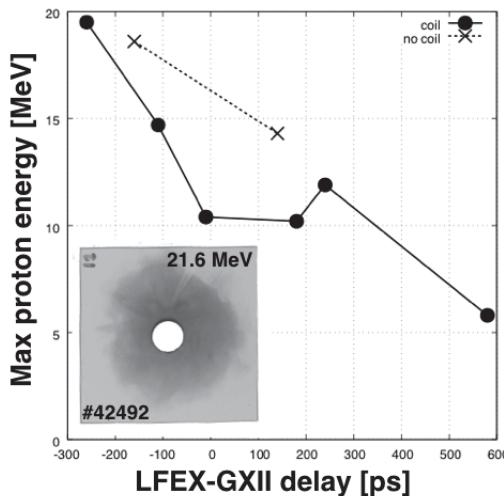


FIG. 2. Maximum proton energy against the delay between GXII and LFEX. Maximum proton energy decrease with the delay. Circles and solid line represent the proton energy using a coil. Crosses and dashed line represent the proton energy using only plates. Positive delay corresponds to that LFEX reaches the target after the peak of GXII beams. An inset figure shows the proton image obtained with only LFEX. The number in a figure shows the shot ID.

the delay increases. We expect that the maximum energy of the proton beam would increase with the delay in theory. However, the maximum energy of the proton beam decreased against our expectation. This decrease might be caused by the effect of radiation from a capacitor plate irradiated by GXII beams. The energy of three GXII beams is high enough to generate high energy x-ray. The high energy x-ray can heat a rear surface of the proton source, causing a deformation of the rear surface. A sheath electric field weakens due to the deformation of a rear surface generates and leads to lower acceleration.

The proton energy increased a bit at 230 ps. We hope this increase was the effect of the applied magnetic field.

We also carried out the experiments using the capacitor plates which do not have a coil to confirm the effect of radiation. In this case, the maximum proton energy was higher than proton energy in case of using a coil. These results indicate the radiation from the coil itself can heat the proton source apart from capacitor plates.

A large current flows in a coil after the laser irradiation. Ohmic heating due to the large current leads a coil expansion. The expanding coil may touch the tantalum shield and proton source. The experiment in other geometry was also performed to remove the possibility of a contact.

The clear change in proton images was observed changing the coil position. Figure 3 shows each target geometry and the obtained proton images. The proton source was put at the center of a coil in an original arrange as shown in Fig.3(a). The proton image measured having 9.9 MeV of maximum proton energy at -10 ps was clear pattern (Fig.3(b)). In the other arrange, the proton source was put at 250  $\mu$ m away from the

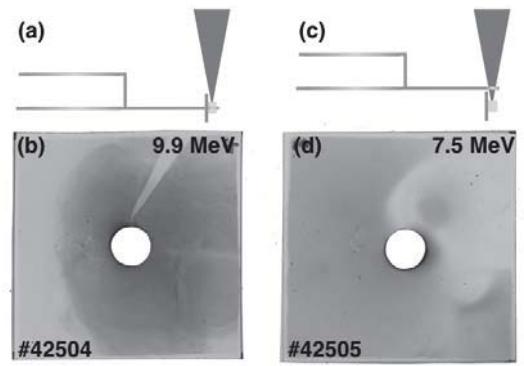


FIG. 3. Target arranges and obtained proton images. A proton source was put at a center of a coil in an original arrange(a). In this case, clear proton pattern having 9.9 MeV of maximum energy was observed at -10 ps(b). In the other arrange, a proton source was put 250  $\mu$ m away from a center of a coil(c). The apparent difference in a proton image was observed at -30 ps. However, the maximum energy of proton (7.5 MeV) was lower than (c). Numbers shown in proton images represent a shot ID each other.

center of a coil as shown in Fig.3(c). The proton image measured at -30 ps on this arrange have a characteristic pattern shown in Fig. 3(d). It seems that the protons are collimated at the top right of a hole. However, the maximum energy of proton in this geometry was 7.5 MeV, lower than the energy in the original arrange. The radiation from a coil itself may still have caused this decrease.

## SUMMARY

In summary, the proton acceleration using a capacitor-coil in this experiment is pretty sensitive to the influence of radiation which is generated when GXII laser irradiates a capacitor-coil target. The acceleration energy of proton decreased with the delay between GXII and LFEX. This was caused by the radiation from a capacitor plate. And a decrease of proton energy was suppressed using only the capacitor plates. Results indicate the radiation from the coil itself can heat the proton source.

The evident change in proton images was observed changing the coil position. However, the maximum energy of proton was still small due to radiation.

We used the shield for generated radiation, but it did not work in this experiment. For the future experiment, we need to improve the counterplan of the generated radiation.

- 
- [1] S. C. Wilks, et.al, Phys. Plasmas, **8**, 542 (2001),
  - [2] A. Arefiev, et.al, New J. Phys. **18**, 105011 (2016),
  - [3] J. J. Santos, et.al, Phys. Plasmas, **25**, 056705 (2018),
  - [4] S. Fujioka, et.al, Sci. Rep. **3** (2013), p. 1170,
  - [5] K. F. F. Law, et.al, Appl. Phys. Lett. **108**, 091104 (2016),

# 水素化物の高圧物性計測および新奇物性探索に関する研究

榮永茉利<sup>1</sup>, 森岡信太郎<sup>2</sup>, 清水克哉<sup>1</sup>, 奥地拓生<sup>3</sup>, 佐野孝好<sup>4</sup>,  
宮西宏介<sup>3</sup>, 梅田悠平<sup>2</sup>, 児玉了祐<sup>2,3</sup>, 尾崎典雅<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup> 大阪大学基礎工学研究科附属極限科学センター, <sup>2</sup> 大阪大学大学院工学研究科,  
<sup>3</sup> 岡山大学惑星物質研究所, <sup>4</sup> 大阪大学レーザー科学研究所

## はじめに

水素は宇宙で最もありふれた元素であるが、単体およびその化合物は他の物質とは全く異なる特徴的な挙動や物性を示すことが知られている。例えば近年では、硫化水素  $H_2S$  が静的な高圧下(おおよそ 150 万気圧)において、203 K というこれまでの記録を大きく上回る超伝導転移温度を示すとの報告がなされている[1]。また、当該研究代表者を中心とした研究グループにより、超伝導転移を示す圧力・温度領域における結晶構造が実験的に明らかにされている[2]。他にも様々な水素化物において、超高压下の構造相転移や金属化、超伝導化の予測が第一原理計算によってなされている。しかしながら、静的圧縮技術では到達困難な圧力領域のものもあるため、新たな挑戦的試みも肝要となってきた。

本研究では、水素化合物の高温高圧下の反応過程や、構造相転移および相関係を解明するための手がかりを得ることを目指して、高強度レーザーを用いた動的圧縮実験を開始した。当該年度では、常温常圧で固体である  $MgH_2$  を用いて、レーザー衝撃圧縮法を用いた基本ユゴニオ計測を行うと共に、ダイヤモンドアンビルセルに封入して液化させた  $H_2S$  試料を用いた予備実験も初めて実施した。

## 実験

激光 12 号 (GXII) レーザーシステムを用いて、レーザー衝撃圧縮実験を行なった。パルス幅は 2.5 ns、波長 527 nm または 351 nm、集光スポット径は 1 mm または 600 μm であった。速度干渉計 VISAR (Velocity Interferometer System for Any Reflector)と放射温度計 SOP (Streaked Optical Pyrometer)を用い、衝撃波速度 ( $U_s$ )と衝撃温度 ( $T$ )を計測した。粒径 3 μm の粉末をプレスすることによって作成した  $MgH_2$  試料を用いた。試料ごとのポロシティをあらかじめ測定し、10-15 %の範囲内のものを実験に用いた。作成した試料は可視光に対して不透明である為、YAG (532 nm) レーザーをプローブとした VISAR によって試料内部を伝播する衝撃波を直接計測することは不可能であった。そこで、Fig. 1 のような試料中の衝撃波伝搬時間を精度よく測定するためのターゲットアセンブリを採用し、平均衝撃波速度を決定することでユゴニオデータを取得した。

ターゲットにおいて、CH はアブレーター、アルミニウムはプローブ光の反射材としての役割を果たす。レーザー照射側の α-クオーツ ( $SiO_2$  結晶、以下クオ

ーツと記述) は、インピーダンスマッチング法を使用して状態量を決定するための標準物質である。また、被測定試料の裏面に貼り付けたクオーツと試料の横に配置したポリスチレンを用いて、衝撃波が  $MgH_2$  を伝搬中の衝撃圧力の減衰効果を推量とともに、 $MgH_2/Qz$  界面に到達時刻を正確に決定した。この最裏面のクオーツには波長 532 nm の光に対する無反射コーティングを施した。

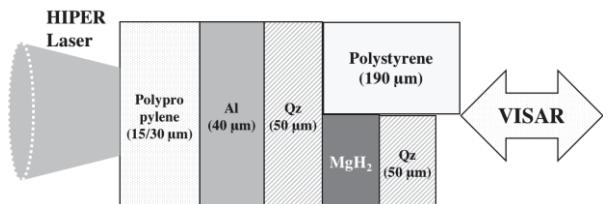


Fig. 1 ターゲット概念図

## 結果と考察

本実験によって、先行研究[3]では取得がなされていない、最大 350 万気圧 (350 GPa) までの超高压データを得ることができた。VISAR 画像において、 $MgH_2$  中において、衝撃波が空間的に一様に伝搬しており、衝撃波伝搬速度を精度よく決定可能であることがわかった。先に述べたような衝撃波速度の補正を行って得られた我々のデータと、ポロシティの異なる試料を用いた低圧領域の先行研究のデータを

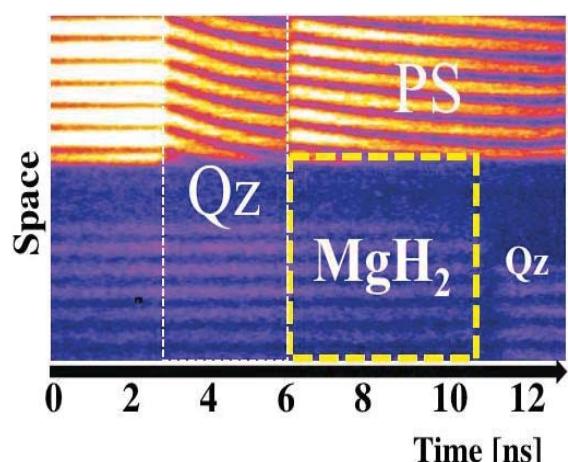


Fig. 2 VISAR 画像の例

比較したものを Fig. 3 に示す。それぞれのユゴニオ圧縮曲線の違いは、よく知られたポロシティモデルで説明可能であることがわかった。

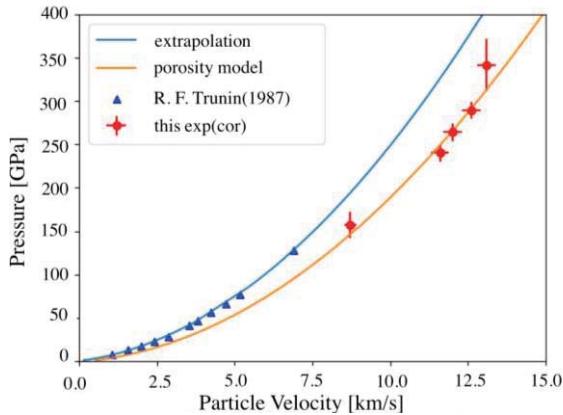


Fig. 3 粒子速度と圧力の関係

### 結論と今後の展望

本研究によって、常温常圧で固体の水素化物のユゴニオ状態方程式計測の手法を確立することができたとともに、既存の報告に比べて 2 倍以上高い 300 GPa 領域のデータを取得できることがわかった。今後の展望としては、MgH<sub>2</sub> に関して、SOP 取得データをさらに解析することで衝撃温度を決定し、静的超高压データと比較検討するなど、圧力-温度相図の理解を進めていく予定である。また、今回得られた状態方程式データに加えて、反射率計測実験や、レーザー波形を適切に制御することによる低エントロピー圧縮実験を行う。

常温常圧で気体の硫化水素に対して衝撃圧縮を行うためのターゲット開発と予備実験も行った。Fig. 4 に示すようなプリコンプレッションターゲットを用いて、液体窒素で冷却したセルに、気体の H<sub>2</sub>S を吹き付けて一度固体化し、圧力をかけてから常温に戻すことで液体として封入した。予備圧力としては 0.2 MPa 付近で安定したターゲットを実現できた。このターゲットに対して予備実験を行い、データ取得が可能であることがわかった。

今度、高圧高温領域の相関係を解明することにより、これまでの H<sub>2</sub>S の静的超高压実験や理論計算による結果と比較して、MgH<sub>2</sub> と同様に相図や状態方程式

の理解を進める予定である。

### 謝辞

安全で円滑な実験の遂行にご尽力頂きました受入研究者の佐野考好助教、並びに大阪大学レーザーエネルギーセンターの皆様に感謝致します。また、本研究は、JSPS 科研費 16H02246 及びコンボン研究所の支援のもとで、進められました。

### REFERENCES

- [1] A. P. Drozdov *et al.*, Nature **525**, 73-77(2015)
- [2] M. Einaga *et al.*, Nature Phys. **12**, 835-858(2016)
- [3] R. F. Trunin, M. V. Zhernokletov, N. F. Kuznetsov, Yu. N. Sutulov, Fiz. Zemli. **11**, 65-70 (1987)

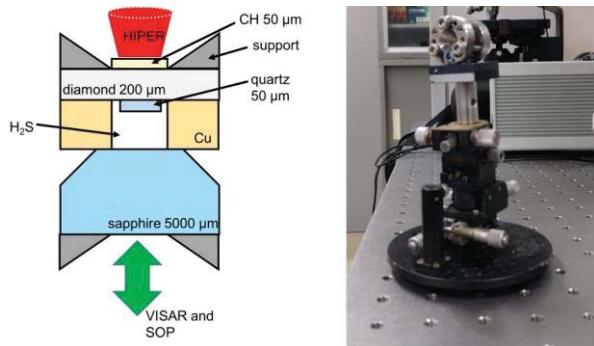


Fig. 4 (左)プリコンプレッションターゲット概念図と(右)プリコンプレッションターゲットの写真

# Probing ultrafast motion of critical surface pushed by multi-pico-second relativistic radiation pressure

Sadaoki Kojima<sup>1</sup>, Yogo Ochiai<sup>2</sup>, Shunsuke Inoue<sup>1</sup>, Yasunobu Arikawa<sup>2</sup>, Masayasu Hata<sup>2</sup>, Natsumi Iwata<sup>2</sup>, Scott Wilks<sup>3</sup>, Gregory Elijah Kemp<sup>3</sup>, Yuan Ping<sup>3</sup>, Andreas Kemp<sup>3</sup>, Tony Link<sup>3</sup>, Tammy Ma<sup>3</sup>, Shigeki Tokita<sup>2</sup>, Alessio Morace<sup>2</sup>, Hideo Nagatomo<sup>2</sup>, Tomoyuki Johzaki<sup>2</sup>, Tetsuo Ozaki<sup>4</sup>, Shohei Sakata<sup>2</sup>, Seung Ho Lee<sup>2</sup>, King Fai Farley Law<sup>2</sup>, Kazuki Matsuo<sup>2</sup>, Hiroki Morita<sup>2</sup>, Masaki Hashida<sup>1</sup>, Yasuhiko Sentoku<sup>2</sup>, Shinsuke Fujioka<sup>2</sup> and Shuji Sakabe<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute for Chemical Research, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto 611-0011, Japan

<sup>2</sup>Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

<sup>3</sup>Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California 94550, USA

<sup>4</sup>National Institute for Fusion Science, 322-6 Oroshi, Toki, Gifu 509-5292, Japan

## INTRODUCTION

Relativistic electron (RE) acceleration by a high-intensity laser is an important to produce fusion plasma heating and TNSA proton acceleration etc. Dependence of RE kinetic energy distribution on laser intensity has been studied<sup>1,2</sup>. However, effects of pulse duration did not be taken into account in the previous works. A material and plasma are continuously irradiated by relativistic laser pulse over multi-pico-second in the recent kilojoule-class PW laser facilities such as LFEX in Japan, LMJ-PETAL in France, OMEGA-EP and NIF-ARC in US. We observed generation of super-ponderomotive relativistic electrons (SP-REs) in multi-ps laser-plasma interaction using ultra high contrast LFEX laser pulse in our previous experiment.

We clarified that self-generated static electric and magnetic fields are essential for the generation of SP-REs with the help of particle-in-cell (PIC) simulations. In the first stage, SP-RE are generated by a combination of a laser field and a quasi-static self-generated electric field<sup>3</sup> in the acceleration region. In the second stage, the SP-RE energy is boosted furthermore by the loop-injected-direct-acceleration (LIDA) mechanism<sup>4</sup>, where SP-REs are kicked back again to the acceleration region by a strong quasi-static Mega-Gauss magnetic field generated spontaneously at the critical surface. Amplification of the spontaneous magnetic field up to Mega-Gauss strength takes several picoseconds. We found in the PIC simulation that generation of spontaneous quasi-static magnetic fields synchronizes with the expansion of the critical surface heated by the continuous PW laser irradiation. This has not been recognized in the previous studies<sup>5,6</sup>. We have developed a model to describe the ultra-fast hydrodynamics of a PW laser-heated plasma<sup>7</sup>. In this research, we experimentally verify the following two numerical findings. (1) Sudden growth of spontaneous

magnetic field growth. (2) Synchronization between the SP-RE generation timing and the plasma expansion timing. The measurements will be compared with the PIC and the model calculations.

LFEX laser pulses will be stacked temporally with arbitrary delays between the beams. In this study, a single beam (case A: 1.2 ps FWHM pulse duration and peak intensity of  $2.5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) and stacked beams (case B: 3.0 ps FWHM pulse envelope and peak intensity of  $3.0 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) will be used. The energy distribution of REs emanated from the target to the vacuum was measured with an electron energy analyzer located 20.9° from the incident axis of the LFEX laser. Time evolution and spatial profile of the magnetic field will be observed by a time-gate camera with time-jitter-less 500 fs optical probe laser. Ultra-fast motion of laser-plasma interaction surface will be observed by Frequency-Resolved Optical Gating (FROG) technique.

## POLARIZATION GATING FROG (PG-FROG)

The FROG with high temporal resolution and high wavelength resolution has been designed in the collaboration with Dr. G. E. Kemp of LLNL. In the FROG, a pulse is divided into a signal pulse (transmission) and a gate pulse (reflection) using a 70R/30T beam splitter. The signal pulse is incident into the Glan-Taylor polarizer. The first polarizer transmits only p-polarized component, and the transmitted pulse is focused into the nonlinear medium (NLM) using a cylindrical lens ( $f=70$  mm). The gate pulse rotates the polarization of the signal pulse by the optical Kerr effect in the NLM. Birefringence is induced only when gate pulses are present. After re-collimating the signal pulse with a cylindrical lens ( $f=70$  mm), the desired signal is separated using an analyzer. In our configuration, the extinction ratio is about  $10^4$  or more when Glan-Taylor polarizers pair has crossed arrangement. A cylindrical lens with 130 mm focal length relays an image on NLM

to a camera with keeping temporal profile, while the autocorrelation signal is spectrally resolved by a holographic diffraction grating (reflective grating) with 1200 Grooves/mm and a cylindrical lens with 150 mm focal length.

## LFEX EXPERIMENT

The first LFEX experiment was held last November. One LFEX beam delivered 230 J of 1.053  $\mu\text{m}$  wavelength laser light with a 3.3 ps duration (FWHM). The spot diameter on a target was 30  $\mu\text{m}$  of the full width at half maximum (FWHM), and about 60% of the laser energy was contained in this spot. The peak intensity of one beam was  $3.9 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ . The contrast ratio of the LFEX laser pulse was 109 at 1.2 ns before the main pulse. The main beam was focused on an aluminum-coated optically polished BK7 glass by an f/10 off-axis parabolic mirror. A typical FROG signal was observed when a filter with an appropriate optical density was installed in the CCD camera (Fig. 4). From this signal, the pulse width was estimated to be 3.3 ps (FWHM), which agreed with the result of single shot autocorrelator. Moreover, the spectral width is estimated to be 1.6 nm (FWHM). This value indicates that spectrum narrowing occurs in the disk amplifier. (The spectral width is approximately 2 nm before passing through the disk amplifier.)

When we removed the neutral density filter of the CCD camera, a weak red shift component produced by plasma motion was observed. The most shifted component shifted about 7 nm from the center wavelength. This value strongly depends on the degree of ionization and the degree of ionization estimates about 7 to 8 from spectrum shift. This corresponds to the degree of ionization calculated by corresponding laser intensity for over-the-barrier ionization of aluminum.

## ACKNOWLEDGEMENTS

The authors thank the technical support staff of the Institute of Laser Engineering (ILE) at Osaka University for assistance with laser operation, target fabrication, plasma diagnostics. This work was supported by the Collaboration Research Program between the NIFS and ILE at Osaka University, the ILE Collaboration Research Program, and by the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) through Grants-in-Aid for Scientific Research (Nos. 24684044, 24686103, 70724326, 15K17798, 25630419, 16K13918, and 16H02245), the Bilateral Program for Supporting International Joint Research of the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS), and Grants-in-Aid for Fellows from JSPS (Nos. 14J06592, 17J07212, 18J11119, 18J11354 and 15J00850).

## REFERENCES

- <sup>1</sup> G. Malka and J.L. Miquel, Phys. Rev. Lett. **77**, 75 (1996).
- <sup>2</sup> S. Wilks, W. Kruer, M. Tabak, and A. Langdon, Phys. Rev. Lett. **69**, 1383 (1992).
- <sup>3</sup> A. Sorokovikova, A. V. Arefiev, C. McGuffey, B. Qiao, A.P.L. Robinson, M.S. Wei, H.S. McLean, and F.N. Beg, Phys. Rev. Lett. **116**, 155001 (2016).
- <sup>4</sup> A.G. Krygier, D.W. Schumacher, and R.R. Freeman, Phys. Plasmas **21**, 023112 (2014).
- <sup>5</sup> N. Iwata, K. Mima, Y. Sentoku, A. Yogo, H. Nagatomo, H. Nishimura, and H. Azechi, Phys. Plasmas **24**, 073111 (2017).
- <sup>6</sup> A. Yogo, K. Mima, N. Iwata, S. Tosaki, A. Morace, Y. Arikawa, S. Fujioka, T. Johzaki, Y. Sentoku, H. Nishimura, A. Sagisaka, K. Matsuo, N. Kamitsukasa, S. Kojima, H. Nagatomo, M. Nakai, H. Shiraga, M. Murakami, S. Tokita, J. Kawanaka, N. Miyanaga, K. Yamanoi, T. Norimatsu, H. Sakagami, S. V. Bulanov, K. Kondo, and H. Azechi, Sci. Rep. **7**, 42451 (2017).
- <sup>7</sup> N. Iwata, S. Kojima, Y. Sentoku, M. Hata, and K. Mima, Nat. Commun. **9**, 1 (2018).

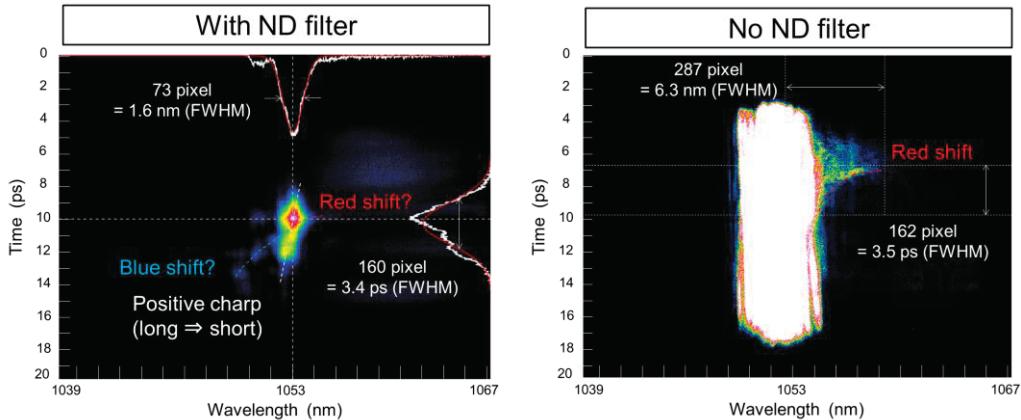


Figure 2 (Left) Typical FROG signal (Right) Red shift component

# Report of Zeeman spectroscopy experiment with magnetized silicon plasma

C. Liu<sup>1</sup>, B. Pollock<sup>2</sup>, Y. Arikawa<sup>1</sup>, S. Sakata<sup>1</sup>, S-H. Lee<sup>1</sup>, K. F. F. Law<sup>1</sup>, K. Matsuo<sup>1</sup>, H. Morita<sup>1</sup>, Y. Ochiai<sup>1</sup>, J. Nishibata<sup>1</sup>, R. Takizawa<sup>1</sup>, H. Azechi<sup>1</sup>, John D. Moody<sup>2</sup>, S. Fujioka<sup>1</sup>

1.Institute of Laser Engineering, Osaka, Japan,

2.Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, Unite States.

## Introduction

In this research we tried to measure Zeeman splitting in the soft X-ray range emitted from a magnetized silicon plasma produced by laser. Silicon is one of the abundant materials of the universe and Zeeman splitting is a measure of the magnetic field in astronomical observation. We used a capacitor coil target to generate a kilo-tesla level seed field and compress the seed field by laser driven implosion. According to hydrodynamic calculations, a peak field of 10 kT can be achieved on GEKKO-XII. This strength is close to what is found on the surface of a white dwarf. The X-ray spectrum measured in the laboratory will be compared with astronomical observations. This is also a technique for measuring very strong magnetic fields generated in the laboratory.

## Experimental purpose

We focus on Zeeman spectroscopy of soft X-rays emitted from a magnetized high energy density plasma of 10 kT field in this research. The goal of this experiment design is to observe a nonlinear Zeeman effect in the laboratory. This is an important physics for determining the magnetic field strength from the astronomical spectrum. Silicon is one of the abundant materials of the universe. We intended to observe the change in the spectral shape emitted from the laser-generated magnetized silicon plasma in the soft X-ray region with changing the magnetic field strength. It is

difficult to accurately calculate nonlinear Zeeman effect other than hydrogen and hydrogen like ion. The laboratory experiments are essential for identifying nonlinear effects in multi-electron atom systems. Based on our laboratory measurements, we try to find Zeeman splitting lines in astronomical data. This behavior may reveal how laboratory astrophysics contributes to traditional astronomical research.

## Experimental design

According to the actual experimental arrangement, during the FO-03 experiment series target shots has been divided into 2 parts, which are magnetic-field measurements and the Zeeman effect measurements.

In the magnetic-field measurement experiment, we used a capacitor coil target as the main target, and an Al foil as the source of proton shadowgraph. The experiment schematic is shown in Fig. 1(a). The magnification of the image on the RCF is 15x.

In the spectra measurement experiment, two capacitor coil targets were used to generate seed field to compress a ~10 kT strength strong magnetic field. A SiO<sub>2</sub> foam (5 mg/cc) filled polyimide cylinder was placed at TCC as the main target. The spectra were observed by a EUV spectrometer. The experimental design is shown in Fig. 1(b).

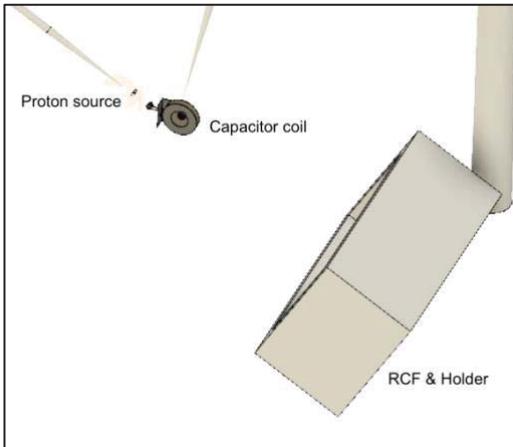
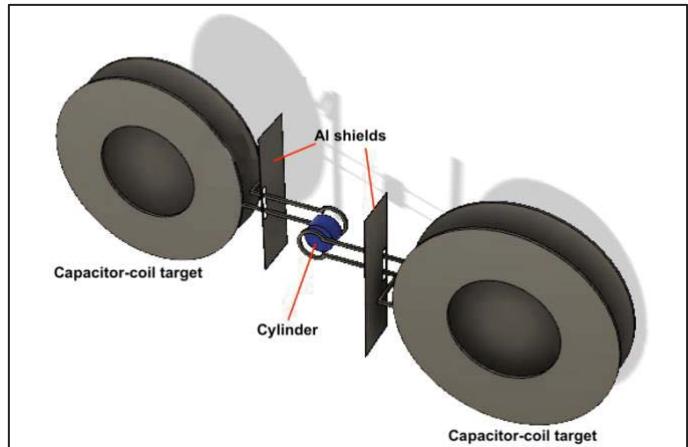


Figure 1 (a). B-field measurement



(b) Spectra measurement

### Experiment and preliminary results

The primary experiments were performed in two days 4 shots. The B-field measurement experiments were performed on 14th February and the spectra measurement are performed on 15th February.

In the experiments of B-field generation, with a LFEX time delay of 290 ps (~325 ps before the GXII implosion beams peak) we got a comb shape pattern on the RCF (Fig. 2), which indicate a existence of B-field. Simulations will be performed to estimate magnetic field strength in the

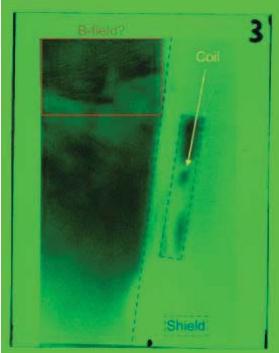


Figure 2. RCF result

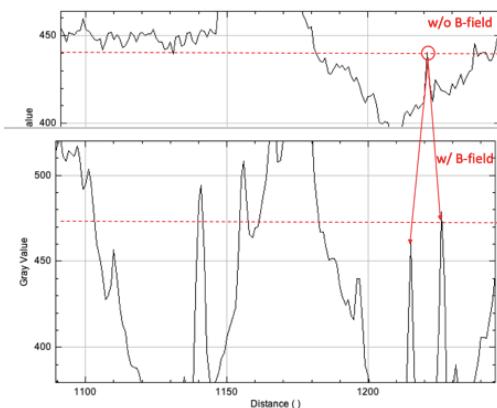


Figure 3. A probable splitting future.

We can find several probable Zeeman splitting peaks in the spectra measurement experiment. An example is shown in Fig. 3. A Roughly estimation of the peak energy is around ~80 nm. Next step we will try to calculate the plasma parameter, confirm the energy range of the potential Zeeman splitting lines, identify the elements and transitions. The comparisons between these lines, calculational and astronomical ones

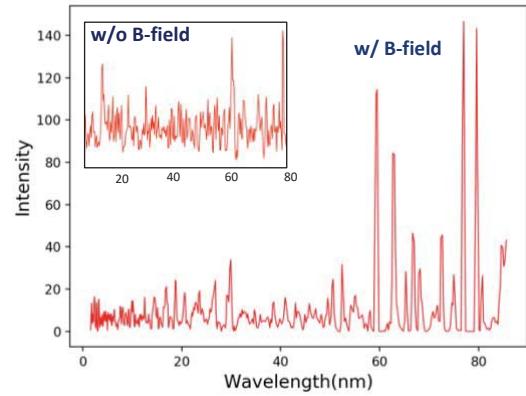


Figure 4 EUV data

will also be done in the future.

In addition, the original spectral data there is a background noise. It makes some trouble to identify possible splitting lines. The noise is due to the instrument problems in the EUV spectrometer. However, it can be removed with FFT method (Fig. 4). The more detailed results will come out shortly.

### Reference

- [1] S. Fujioka et. al., Sci. Rep. 3, 1170 (2013).
- [2] K. M. Vanlandingham et al. Astron. J. 130, 734-741 (2005).

- [3] D. T. Wickramasinghe et al. MON NOT R ASTRON SOC. 356(4), 1576-1582(2005).
- [4] J. Liebert et al. Astron. J. 126(5), 2521(2003).
- [5] B. N. Murdin et. al., Nat. Comm. 2466 4:1469 (2013).

# 磁気リコネクション実験

坂和洋一<sup>1</sup>, 江頭俊輔<sup>2</sup>, 太田雅人<sup>2</sup>, 泉智大<sup>2</sup>, Rajesh Kumar<sup>2</sup>, 檜原崇正<sup>3</sup>, 境健太郎<sup>3</sup>, 牧山大暉<sup>3</sup>, 延命佑哉<sup>3</sup>, 大熊祐輝<sup>3</sup>, 佐野孝好<sup>1</sup>, 森田太智<sup>4</sup>, 金崎真聰<sup>5</sup>, 福田祐仁<sup>6</sup>, 松尾一輝<sup>2</sup>, K. F. F. Law<sup>2</sup>, 落合悠悟<sup>2</sup>, A. Morace<sup>1</sup>, 藤岡慎介<sup>1</sup>, 余語覚文<sup>1</sup>, 羽原英明<sup>3</sup>, 蔵満康浩<sup>3</sup>, 尾崎典雅<sup>3</sup>, 富田健太郎<sup>4</sup>, 松清修一<sup>4</sup>, 山崎了<sup>7</sup>, 森高外征雄<sup>8</sup>, 星野真弘<sup>9</sup>

1 大阪大学 レーザー科学研究所 大阪府吹田市山田丘 2-6

2 大阪大学 大学院理学研究科 大阪府豊中市待兼山 1-1

3 大阪大学 大学院工学研究科 大阪府吹田市山田丘 2-1

4 九州大学 大学院総合理工学研究院 福岡県春日市春日公園 6-1

5 神戸大学大学院海事科学研究科 兵庫県神戸市東灘区深江南町 5-1-1

6 量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門 関西光科学研究所 木津川市梅美台8-1-7

7 青山学院大学 理工学部 神奈川県相模原市中央区淵野辺5-10-1

8 核融合科学研究所 岐阜県土岐市下石町 322-6

9 東京大学 理学研究科 東京都文京区本郷 7-3-1

## はじめに

磁気リコネクションとは、プラズマ内で反平行の磁力線がつなぎ変わる現象で(図 1(a))、この時に磁場のエネルギーが粒子の運動エネルギーに変換される。これにより生成されるプラズマイオンのアウトフロー流体速度  $v_{out}$  は、アルフベン速度  $v_A = B / (4\pi M_i n_i)^{0.5}$  ( $B$  は磁場強度、 $M_i$  はイオン質量、 $n_i$  はイオン数密度) にまで加速される[1]。

宇宙では、ガンマ線バースト、宇宙ジェット、パルサー、超新星残骸衝撃波など、様々な天体で高エネルギー粒子が作られている。そのため、宇宙空間は Maxwell 分布を持つ熱的プラズマの温度を遥かに超える、ベキ乗のエネルギースペクトルを持つ非熱的粒子 宇宙線で満たされている。しかし、その起源や加速機構は現在でも未解決である。宇宙プラズマの標準的な粒子加速機構として無衝突衝撃波に加えて磁気リコネクションによる加速がある。一例として、太陽フレアでは 10-100 keV のエネルギー帯で、磁気リコネクションによる加速が観測されている。これらの磁気リコネクションは、加速粒子の速度が非相対論的な速度をもつ非相対論的リコネクションである。一方、中性子星のパルサー風領域や、マグネター、ブレーザーと呼ばれる強磁場天体等では、強磁場プラズマ中で  $v_A$  がほぼ光速となるため ( $v_{out} \sim v_A \sim c$ )、相対論的なリコネクションによる粒子加速がおこり、これが宇宙線加速機構の 1 つであると考えられて

いる[2]。

我々は、高出力・高強度のパワーレーザーを用いて宇宙物理学の要素物理を明らかにすることを目的とした、レーザー宇宙物理学を推進している。レーザー実験では、多くの受動的・能動的な計測器を同時に用いることによって、巨視的・全体的な情報と微視的・局所的な物理量を同時に得る事ができるという長所を持つ。このような特徴を生かし、約 10 年前からパワーレーザーを用いた磁気リコネクション実験が国内外で行われようになった。しかしこれらはほとんどが、非相対論的な領域での実験である。宇宙線加速の物理機構解明につながる相対論的磁気リコネクションの実験には、 $v_A \sim c$  を満たすためのキロテスラ (kT) を超える強磁場が必要となるため、実験は困難である。

近年、ナノ秒の高出力レーザーとキャパシタコイルターゲット(CCT: 図 1(b)参照)を用いることによって、kT 級の準定常磁場発生が可能となった[3]。本研究では、相対論的磁気リコネクションによる粒子加速を実証するための基礎知見を得る事を目的として CCT を用いた実験を行った。

## 実験方法

高出力レーザーを CCT に照射する事により、2 枚の電極間で 高速電子の発生に伴う電位差が生じ、電流が流れ、kT 級の準定常磁場が生成される(図 1(b))。実験では、Ni 製の 2 つの

CCT を用いて、反平行磁場を生成した(図 1(c))。真空容器を 1Torr 以下の雰囲気ガスで満たし、レーザー照射面に生成されるアブレーションプラズマからの輻射により、雰囲気ガスプラズマを生成した。同時に、コイル部分の膨張により上下方向からのプラズマ流(インフロー: 図 1(a)参照)を生成し、これが磁化された雰囲気ガスプラズマと磁力線を押しつけ、磁気リコネクションが発生する。その結果、 $v_{out} \sim v_A$  に加速されたプラズマアウトフローが、図 1(c)の左右方向に生成される。

実験は、激光 XII 号 HIPER (Nd:ガラスレーザー、波長 = 1053 nm ( $\omega$ )、パルス幅 = 1.3 ns、エネルギー ~700 J/beam、ビーム数 < 12 本、強度 >  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>) を用いて、雰囲気ガスとして窒素またはヘリウムを 0.01 - 1 Torr 封入して行った。計測は、レーザー軸に対して垂直方向からの光学プローブレーザー (Nd:YAG, 532 nm, ~10 ns) を用いた干渉・シャドウ計測、および、波長 450 nm の自発光計測を、ICCD カメラ、ストリーカカメラ、フレーミングカメラを用いて行った。またトムソン散乱 (TS) プローブレーザーと加分散型トリプルグレーティング分光器を用いた協同トムソン散乱イオン項計測を ICCD によって行い、プラズマパラメーターを計測した。また、プラズマのアウトフロー方向に設置したトムソンパラボラ (TP) を用いイオンのエネルギー分布計測、ラジオクロミックフィルム (RCF) と CR-39 のスタックを用いた粒子計測、さらに 2 つの 3 軸 b-dot プローブを用いた磁場計測を行った(図 2)。本実験ではトムソンパラボラに高電圧を印可しなかったため、イオン種の同定はできなかった。

## 実験結果とまとめ

図 1(c)に示した 2 つのコイル先端間距離 L を 100 μm と 300 μm に設置した時、干渉計測から、両コイル間がそれぞれ約 1 ns と 3 ns においてプラズマで満たされた。従ってインフロー速度は~100 km/s となる。コイル半径 = 150 μm、L = 100 μm を用い、コイル中心に約 1 kT の磁場が生成されると仮定すると、両コイル先端間の中央部の磁場強度は ~250 T となる。また b-dot プローブ計測より、雰囲気ガス封入時には、電極間ポテンシャルの遮蔽に起因する生成磁場の低下が観測された。トムソンパラボラの検出器として設置し、イオンが照射された CR-39 を、強アルカリ溶液によってエッチング処理することによって腐食孔(エッチピット)が得られた。エッチピットが球面形状を示していたこと

から、イオンの飛程  $R_0$  はエッティングによる溶出厚 (G) 程度となる [4]。 $R_0 \sim G < 2 \mu\text{m}$  としてトムソンパラボラで検出されたイオンの価数とエネルギー  $E_i$  の上限を算出すると、反平行磁場配位で窒素 0.1 Torr 封入時には、1 価の窒素イオンで  $E_i < 800 \text{ keV}$  が得られた。このエネルギーから、 $n_i \sim 3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  の窒素プラズマ、~35 T の磁場中でリコネクションが発生し、 $N^+$  が  $v_{out} \sim v_A$  に加速されたと考えられる。

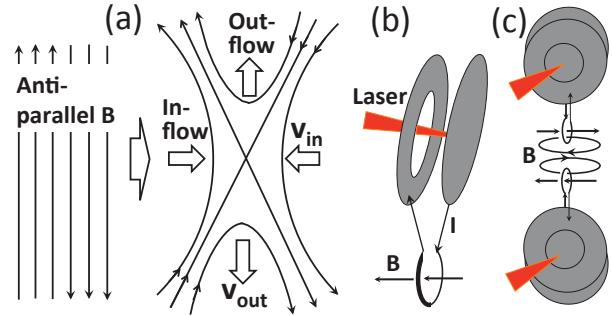


図 1. (a) 磁気リコネクションの概略。(b) キャパシタコイルタ-ゲット (CCT) を用いた磁場生成と(c) 磁気リコネクション実験の概念図。

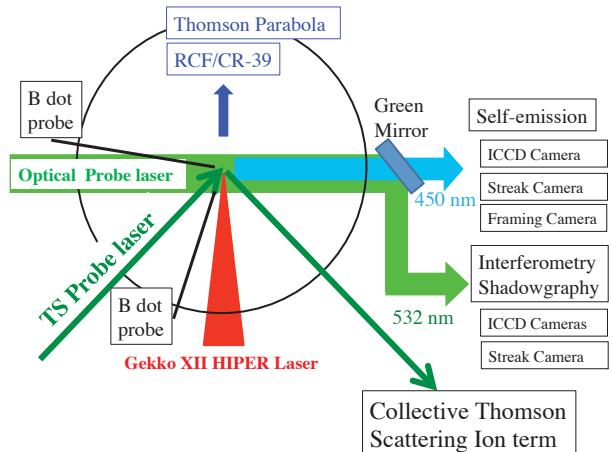


図 2. 激光 XII 号 HIPER レーザーを用いた実験セットアップの概略 (Top-view)。

## 参考文献

- [1] M. Yamada et al, Rev. Mod. Phys. **82**, 603 (2010).
- [2] M. Hoshino and Y. Lyubarsky, Space Sci. Rev. **173**, 521 (2012).
- [3] S. Fujioka et al, Sci. Rep. **3**, 1170 (2013).
- [4] 金崎真聰 他、J. Plasma Fusion Res. **88**, 261 (2012).

# レーザー衝撃圧縮下の惑星材料物質の分光観測： 隕石衝突による惑星大気海洋形成モデルの構築

梅田悠平<sup>1</sup>、尾崎典雅<sup>1</sup>、福井敬也<sup>1</sup>、宮西宏併<sup>2</sup>、関根利守<sup>1</sup>、佐野孝好<sup>2</sup>、兒玉了祐<sup>1,2</sup>、冬木正紀<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 大阪大学大学院工学研究科、<sup>2</sup> 大阪大学レーザー科学研究所、<sup>3</sup> 畿央大学

## はじめに

惑星や彗星に対する隕石衝突によって発生する、隕石物質または惑星表層物質の脱ガス・脱水反応は、惑星の海洋や大気の形成に大きく貢献したと考えられている。例えば、隕石中には炭酸塩鉱物（カルサイト、マグネサイト）や含水鉱物（サーペンティン、ゲーサイト）などが一定量含まれているため、超高速隕石衝突（一般的な衝突速度は 10 km/s 超）によって生じる高圧・高温の極限環境下においては、衝突反応

（分解）生成物として、炭酸塩鉱物からは二酸化炭素（and/or 一酸化炭素）などのガス成分、含水鉱物からは水などが発生することが予想される。しかしながら、隕石衝突現象において支配的な圧力領域である 100 GPa 超の状態方程式データは不足している。

本研究では隕石中や惑星表層に普遍的に存在する炭酸塩鉱物であるカルサイト ( $\text{CaCO}_3$ ) に着目した。衝撃圧縮下におけるカルサイトの圧力・温度計測と分光スペクトル観測を行い、物性量と化学反応データを取得し、炭酸塩鉱物の衝撃脱ガス反応が起こる温度圧力条件やその時間進展を明らかにすることが目的である。

本年度の実験では、カルサイトのユゴニオデータの取得を中心に行い、圧力 200 GPa から 1 TPa における圧力・温度データを 7 点取得することに成功した。さらに衝撃圧縮中のカルサイトにおける自発光分光スペクトルデータの取得にも成功した。

## 実験手法

カルサイトに対して、レーザー駆動の衝撃波を伝搬させることによって、隕石衝突下における極限環境下の脱ガス・脱水反応を再現した。衝撃圧縮中の試料について、(i) 速度干渉計 (Velocity Interferometer System for Any Reflector : VISAR) を用いた衝撃波速度計測、(ii) 自発光輝度温度計 (Streak Optical Pyrometer : SOP) を用いた温度計測、(iii) 分光器を用いた発光スペクトル計測を行った。

試料は単結晶のカルサイト (1 cm 角結晶) を用意し、4 mm 角、厚さ 500 μm へ加工を行った。ターゲット構成はレーザー照射側からアブレーターとして CH、標準物質として Al と Qz、試料の  $\text{CaCO}_3$  を用いた。Qz は Qz-真空界面の反射を防止するために AR コーティングを行った。本実験ではユゴニオ計測用 (Fig. 1) と分光計測用 (Fig. 2) の 2 種類の構造のターゲットを使用した。

## 実験結果

カルサイトの衝撃波速度と粒子速度の関係を Fig. 3、圧力と密度の関係を Fig. 4 に示す。衝撃波速度と粒子速度の関係について、先行研究による低圧側データ (<100 GPa) [1] と本実験データの近似直線（点線）を比較すると、両者に違いがあることが明らかになった。この領域（圧力 100–200 GPa）における  $U_s$ - $u_p$  関係の変化は、カルサイトの状態変化や化学反応の発生を示唆する結果であり、先行研究[2]によって予測されている、 $\text{CaCO}_3$  の脱炭酸反応や  $\text{CaO}$  のメルト化の圧力域と調和的である。また、カルサイト中を伝搬する衝撃波面からのプローブ光の反射が 11.5 km/s を超えると観測されたことから、カルサイトの金属化開始圧力はおよそ 195 GPa である。

## 謝辞

本研究は大阪大学レーザー科学研究所での共同研究として実施されました。激光 XII 号に関わる職員の方々の支援に感謝致します。また、本実験におけるターゲット作成・実験オペレーションなどを中心となって行った修士学生の福井敬也君をはじめ、他共同研究者の方々に感謝致します。

## 引用文献

- [1] N. G. Kalashnikov et al., Physics of the Solid Earth, 2, 23-29 (1973).
- [2] B. Ivanov and A. Deutsch, Physics of the Earth and Planetary Interiors, 129, 131-143 (2002).

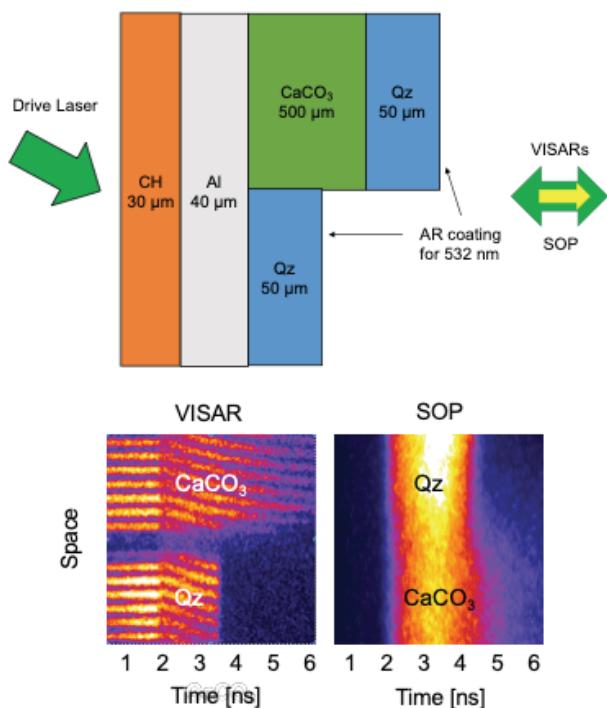


Fig. 1 ユゴニオ計測用セットアップと得られた VISAR・SOP データ

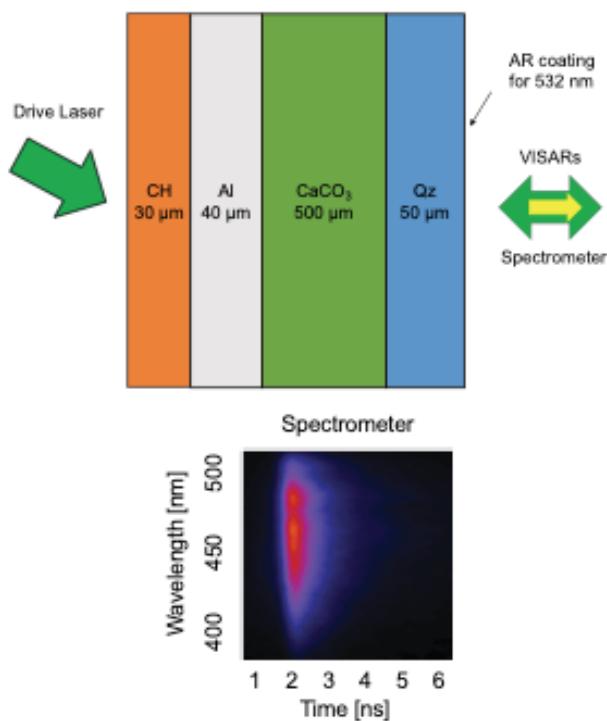


Fig. 2 分光計測用セットアップと得られた分光データ

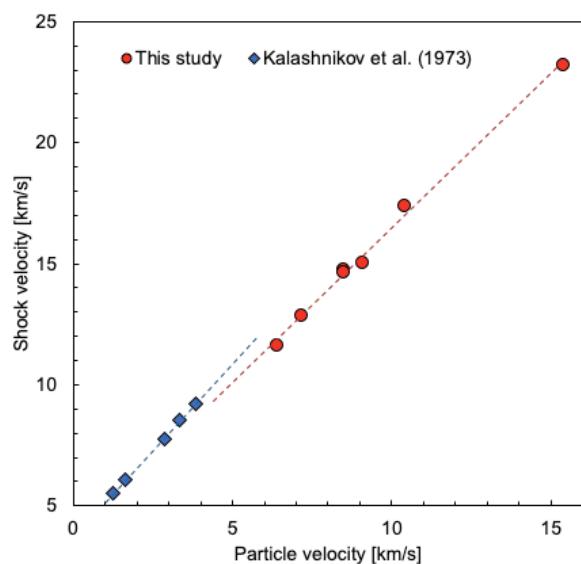


Fig. 3 衝撃波速度と粒子速度の関係

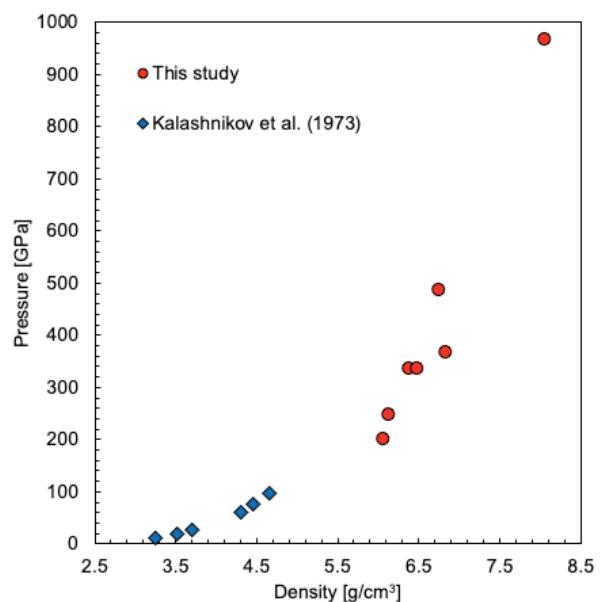


Fig. 4 圧力と密度の関係

# PW レーザーによる磁気リコネクション現象の検証と粒子加速への応用

代表者：余語 覚文

大阪大学レーザー科学研究所

プラズマ中において、互いに反対方向の磁場が接触して消失すると、磁力線の繋ぎ替え＝リコネクションが起こる。磁気リコネクションの結果、消失した磁場のエネルギーがプラズマの加熱や粒子の加速につながるので、あえてラフな表現をすれば、間接的ではあるが「磁場が荷電粒子を加速する」と言える。近年の研究[Hoshino, PRL 108 (2012) 135003]では、宇宙に点在するいくつかの磁気リコネクションイベントを粒子が渡り歩くことで複数回の加速を受けるという、宇宙線の統計的な加速機構が提唱されるなど、粒子加速の観点からも興味深い。

よく知られた Sweet-Parker モデル [Parker, Cosmical Magnetic Fields: Their Origin and their Activity, Oxford University Press (1979)] では、図 1 の上下 (y 方向) で接近したプラズマの磁場同士が消失して、横方向 (x 方向) にプラズマ圧力の勾配が発生し、これにより荷電粒子が加速される。しかしながら、理論研究[Speiser, J. Geophys. Res. 70 (1965) 4219, Zenitani and Hoshino, Astrophys. J. Lett. 562 (2001) 63, Bulanov, PPCF 59 (2017) 014029] では、現象が極めて激しくなると、粒子の動きは 3 次元的になることが提唱されている。図 1 の磁気消失領域の厚さ ( $\delta$ ) の方向 (紙面奥向き) には電流シートと呼ばれる領域が発生し、生じる誘

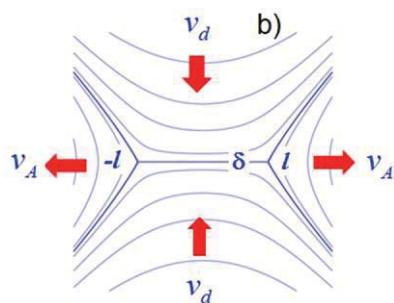


図1:Sweet-Parker モデルにおける電流シート。

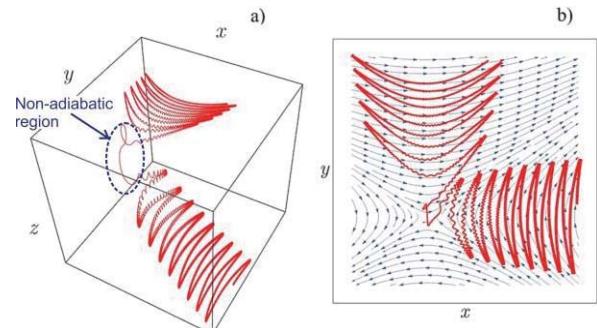


図2:Non-adiabatic 領域における荷電粒子のドリフト運動からの逸脱。図は[Bulanov, PPCF 59 (2017) 014029]より、ただし青字は代表者が追記。

導電場 ( $E$ ) は

$$c \nabla \times B = 4\pi J + \partial E / \partial t \quad (1)$$

と与えられる。このとき、右辺第 1 項の対流電流 ( $J$ ) が無視できるような早い過程が発生したとすると、左辺の磁場が右辺第 2 項の変位電流 ( $\partial E / \partial t$ ) に効率的に変換されることになる。その時の電子の動きを図 2 に示す。電子は磁力線の回りをドリフト運動しながら (adiabatic な近似の成り立つ状態で) 押されていくが、磁気消失点近傍ではドリフト運動から逸脱する。すなわち non-adiabatic と言える条件下であり、 $z$  方向への加速を受ける。ただし、non-adiabatic 領域のスケール・時間は共に有限であり、領域外へ出ると再びドリフト運動に戻るが、その軌道は  $z$  方向へシフトする。したがって、non-adiabatic 領域が発生すると、イオンの加速は、(a) 誘導電場(式 1)による  $z$  軸上方向、あるいは、(b)  $z$  軸下方向へ傾いたアウトフロー方向への異方向性を生じることが予想される。

しかしながら、この non-adiabatic 領域近傍で加速現象の解析解を得ることは困難を伴う [Berezinskii et al., Astrophysics of Cosmic Rays,

North Holland/Elsevier (1990)】。また、実験的に non-adiabatic 領域を直接測定した例はまだ無い。

そこで本研究では、相対論的な集光強度を持つ 2 本のレーザーを僅かにずらして並行に照射することで、それぞれのレーザーが誘起する磁場同士を接触させてリコネクションを起こす。ここでは、 $10^{19} \text{ Wcm}^{-2}$  のレーザーとプラズマとの相互作用により、 $1\text{-}10 \text{ kT}$  の磁場を誘起することができるため、non-adiabatic 領域が発生する可能性は十分にある。

実験の概要を図 3 に示す。集光強度 $\sim 1 \times 10^{19} \text{ Wcm}^{-2}$ 、パルス幅 1.5 ps のレーザー 2 本を、上下に  $50 \mu\text{m}$  離して集光している。2 本のレーザー共に上から見て  $42^\circ$  の角度を付けて入射しているが、従来から知られているイオン加速機構 (TNSA) [Macchi et al., Rev. Mod. Phys. 85 (2013) 751] では、レーザー方向にかかるわらず薄膜の裏面垂直方向にイオンが加速される。図 3 には、エネルギー 12 MeV の陽子と考えられるイオンの空間分布を示すが、中央にみられる成分は TNSA 機構によるものと説明できる。しかしながら、その右側 (レーザー進行方向寄り) に測定された明らかに異なる成分は説明できない。(この成分は、レーザーを 1 か所に集光した場合には測定されないことを確認した。) 前述した non-adiabatic 領域の発生に伴う誘導電場は、レーザー進行方向に発生することが予想 [Gu et al., PRE 93 (2016) 013203, PoP 22 (2015) 103113] されており、この仮定の下ではイオンはレーザー進行方向に加速を受ける。したがって、イオンの異方成分は磁気リコネクションによって発生したことが示唆される。ただし、non-adiabatic 領域の誘導電場のみで 12 MeV の加速が生じたのか、TNSA などほかの加速機構と相補的に加速が生じたのは定かではない。

そこで 2018 年度の実験では、まずレーザーおよびターゲットの条件を 2017 年度と同一に設定して、再現性の確認を試みた。ところが、2017 年度と同じパラメータ設定下では、図 4 に示すようにターゲット進行方向のみにイオンが加速され、再現性は確認できなかった。この時、LFEX レーザーフロントエンド部には昨年度とは異なる発振器システムならびにプリパルス除去機構 (過飽和吸収体の厚さ変更) が使

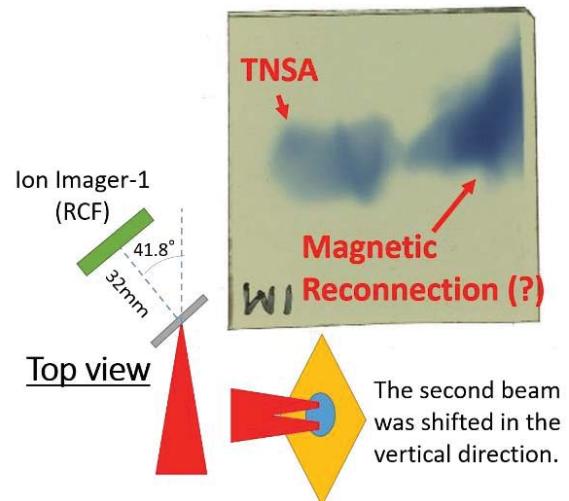


図 3: 2017 年の陽子(12 MeV)の空間分布。



図 4: 2018 年の結果、セットアップは図 3 と同じ。

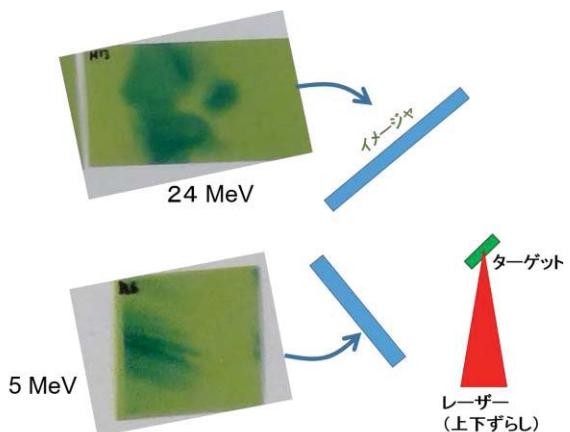


図 5: コントラストを変更した結果

用されており、プロントエンド部におけるプリパルス測定では昨年と同様のコントラスト性能が確認されていたが、フルパワー増幅後のコントラストは測定されておらず、昨年度と異なるのではないか、という予想を成し得ると考えた。

そこで、あえてコントラストを 3 桟悪くし、フォ

ーム薄膜の厚さを半分( $50 \mu\text{m}$ )にしたところ、ターゲット裏面方向に、これまで見られなかつた特徴的な分布が現れると共に、ターゲット側面方向にもイオンが測定された。前者のターゲット裏面方向のイオンはエネルギーが 24 MeV であり、昨年の結果よりも大幅に大きい。non-adiabatic 領域の誘導電場が強くなったと考えられる。一方、ターゲット側面方向のイオンも今回初めて測定されたものであり、アウトフロー方向への加速が同時に起きていると考えることができる。

詳細な検討は今後実施するが、磁気リコネクションおよびそれに伴うイオン加速は、ターゲット密度に強く支配される、逆に言えば制御できる、ということを示す実験結果が得られた意義は大きいと考える。

# LFEX レーザーシステムの高性能化 —熱光学歪の均一化に関する研究—

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

次世代エネルギー源として核融合の開発が進んでおり、米国 LLNL では核融合研究施設 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<sup>[1]</sup>。本研究は主増幅部のフラッシュランプ励起によって発熱が生じ、その熱から発生する熱光学歪の除去のための冷却手法について熱光学解析を行った。

## 2.レーザー増幅システム

NIF と LFEX の主増幅部を図 1 に示す。核融合研究用高出力レーザーとして繰り返しを必要とせず、1shot ベースの設計である。レーザー増幅器はフラッシュランプを用いている。レーザー媒質はブリュースター角配置である。フラッシュランプの励起速度の不均一性と媒質のエンド効果によってレーザー媒質内の蓄積エネルギーに差が生じる。励起に使用されなかったエネルギーは熱エネルギーに変換され、発熱量の違いから、レーザー断面方向に温度差が生じる。温度差の式を式(1)に示す。

$$\Delta T = Q_{ST} \cdot \chi \cdot \frac{1}{c \cdot D} \dots \quad (1)$$

$\Delta T$  は温度差[°C],  $Q_{ST}$  は蓄積エネルギー密度[J/cm<sup>3</sup>],  $\chi$  はエネルギー利用係数,  $c$  は比熱[J/g°C],  $D$  は密度[g/cm<sup>3</sup>]を表す。この状態でレーザーを媒質に透過させるとレーザー断面方向に光路差が生じる。光路差の式を式(2)に示す。

$$\frac{dS}{dT} = \frac{dn}{dT} + (n-1) \cdot \frac{1}{L} \cdot \frac{dL}{dT} \dots \quad (2)$$

$dS/dT$  は光路長の温度係数[10<sup>-6</sup>/°C],  $dn/dT$  は屈折率の温度係数[10<sup>-6</sup>/°C],  $n$  は媒質の屈折率,  $(1/L)dL/dT$  は線膨張係数[μm/m°C],  $L$  は光路長[μm]を表す。式(1)と式(2)により熱光学歪<sup>[2]</sup>が発生し式(3)に示す。

$$\Delta \lambda = \frac{dS}{dT} \cdot \Delta T \cdot L \dots \quad (3)$$

$\Delta \lambda$  は光学波面歪[μm]を表す。熱光学歪はレーザー品質の低下を引き起こし、レーザーショットレートの制限要因となる。

## 3. 热光学歪の均一化手法

熱光学歪を低減するには、レーザー断面方向の温度差を緩和させる必要がある。表 1 に熱光学歪の発生と低減するための方法を示した。まず媒質に投入する熱量  $Q_{TH}$  を求める。NIF と LFEX のリアルなゲイン分布<sup>[2]</sup>に従った熱量分布にする。NIF は 12%, LFEX は 2% のゲイン分布になっている。その後、三次元 CAD ソフト Solidworks flow simulation を用いてレーザー媒質 1 枚当たりの非定常熱解析を行う。媒質はリン酸塩ガラスの LHG-8 を用いた。媒質のサイズは LFEX のリアルサイズである 46 × 81 × 4 [cm<sup>3</sup>] とし理想的な分布を得るために媒質の側面に断熱材を設置

した。媒質の初期温度は 20[°C] に設定し、1 秒で熱量の投入を完了させた。冷却ガスは N<sub>2</sub> ガスを用い冷却温度を 19~20[°C], 冷却時間を最大 7200[s], ガスの流速を 1[m/s] に設定した。冷却終了条件として、媒質の温度は周囲温度の 0.13[°C] 以下、媒質 1 枚当たりの波面歪量は 0.0025[μm] 以下の達成が必要とする。

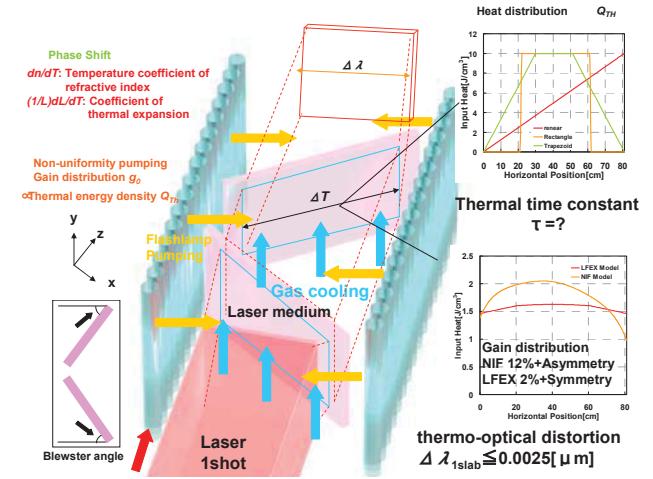


図 1. 主増幅部の熱光学歪緩和の概念図

表 1. 热光学歪の評価値

Input heat		Real model	
APMLAB experiment		$W = \chi$	
Wavefront distortion: $W[\mu\text{m}]$		$g_0$	
Gain coefficient: $g_0[\text{cm}^{-1}]$			
Heat energy per stored energy $x$		$Q_{TH} = \chi \cdot Q_{ST}$	
<b>Cooling</b>		<b>Laser Material</b>	
1. Heat removal	$h = \frac{Nu \cdot K}{t}$ $Nu = 0.037 \cdot Pr^{0.4} \cdot Re^{0.8}$ $\frac{\partial T}{\partial t} = K \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}$	<b>LHG-8</b>	<b>Size</b> 46×81×4 cm
2. Thermal relaxation		<b>Initial temperature</b> 20 °C	<b>Heat input time</b> 1 s
		<b>Cooling Method</b> N <sub>2</sub> gas	
		<b>Temperature</b> 19~20 °C	
		<b>Cooling Time</b> 7200 s	
		<b>Flow Rate</b> 0~10 m/s	
<b>Thermo-optical</b>		<b>Cooling end condition</b>	
Temperature coefficient of refractive index $dn/dT$		1. Slab average temperature	
Coefficient of thermal expansion $(1/L)dL/dT$		≤ Ambient temperature + 0.13°C	
$\Delta \lambda = \left( \frac{dn}{dT} + (n-1) \frac{1}{L} \frac{dL}{dT} \right) \cdot \Delta T \cdot L$		2. $\Delta \lambda_{slab} \leq 0.0025 \mu\text{m}$	

## 4. NIF と LFEX のスラブ配置

図 2 に NIF と LFEX のスラブ配置<sup>[3]</sup>を示す。NIF はパワー・アンプで 5 スラブ 2 パスとメイン・アンプで 11 スラブ 4 パスの増幅を行い合計 54 スラブ分の増幅を、LFEX はメイン・アンプで 8 スラブ 4 パスの増幅を行い合計 32 スラブ分の増幅を行っている。波面歪量の計算はスラブごとに発生する波面歪量の和で合計される。NIF と LFEX の波面歪量は図 2 の式で想定できる。上の式は単純に全波面歪量を足し合わせた計算で、下は端スラブの反転、つまり偶数回パスと奇数回パスで端スラブの波面歪量が打ち消される効果を考えた式になっている。

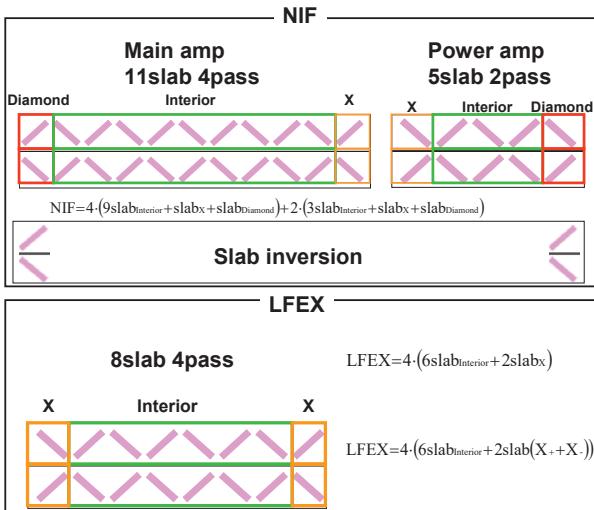
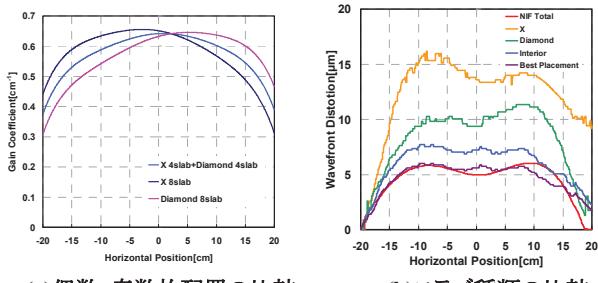


図2.NIFとLFEXのスラブ配置

### 5. NIFの波面歪量

図3(a)にスラブの奇数枚配置と偶数枚配置のゲイン係数の比較を示す。端スラブでは奇数枚配置は偶数枚配置に比べて23%のゲイン分布の均一化が可能で左右対称な分布に出来ることを示す。図3(b)にスラブを54枚並べた時の波面歪量を示す。X配置なら16[μm],ダイアモンド配置なら10[μm],インテリア配置なら8[μm],NIF Totalなら6[μm]の波面歪量が生じることを示す。Best Placementは図2の下の効果を用いた計算結果で、端スラブの波面打ち消し効果でX配置とダイアモンド配置の波面歪量が0になるとすると、NIFの波面歪量はインテリアスラブ42枚分しか効いていない計算になる。Best Placementの線はNIF Totalの線と似た線となっておりNIFの波面歪量<sup>[4]</sup>の計算は下の効果を使用していると考えられる。



### 6. 冷却結果

図4にLFEXとNIFモデルの時間経過に対するスラブ平均温度と波面歪量緩和を示す。冷却はN<sub>2</sub>ガス1[m/s]を20[°C], 19.5[°C], 19[°C]の3パターンで行った。グラフの線から冷却ガス温度を0.5[°C]下げるごとに温度緩和時間が6000[s], 4000[s], 2000[s]と減少した。スラブ平均温度を減らすのが目的ならガス温度を下げれば解決できることがわかる。NIFはLFEXと比べて利得分布が大きいため、波面歪量の目標値0.0025[μm]を2時間では達成できなかった。

### 7.繰り返し動作の評価

リン酸塩ガラスLHG-8は媒質の熱伝導率が低いため内部の熱が取り出せず、媒質の熱破壊が発生する問題がある。図5に熱伝達係数が一定値の時のショットレートと熱破壊限界の関係を示す。媒質ではLHG-8よりAPG-1の方が熱に強く、励起法ではフラッシュランプ励起よりLD励

起の方が10倍以上も熱影響を少なく出来る。現状フラッシュランプ励起は媒質の種類や熱伝達係数を変えて0.1~0.01Hz程度のショットレート改善が見込める可能性がある。

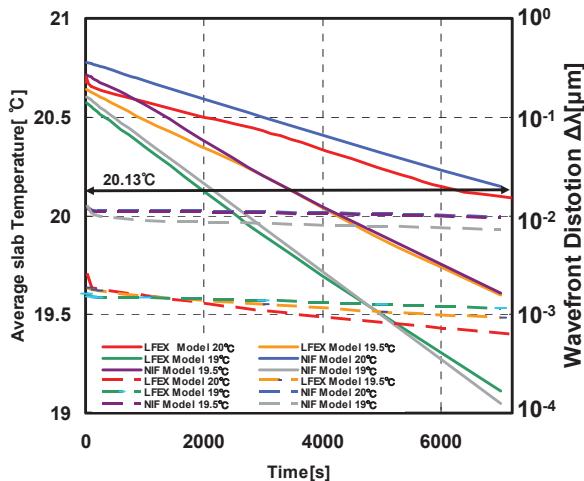


図4. 波面歪量と熱緩和割合の関係性

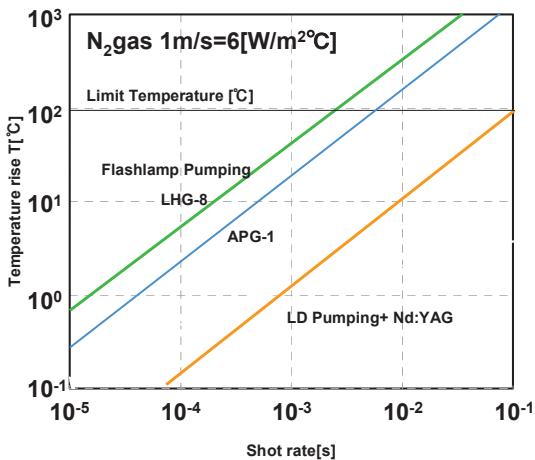


図5. 繰り返し動作の熱緩和

### 8.まとめ

本研究ではNIF、LFEX増幅部のフラッシュランプ励起不均一性で発生するゲイン分布を配置によって均一化し波面歪量を減少させる方法と波面歪量の計算を説明した。NIFの波面歪量はインテリアスラブ42枚分の波面歪量の和に近いことを示した。リアルモデルの温度と波面歪量の目標値達成の時間を求めた。ショットレートを変えた時の媒質や励起の種類によって決まる熱破壊限界を示し、フラッシュランプ励起の限界を示した。

### 参考文献

- [1] T.Kanabe :OPTRONICS, **31**, 118(2012).
- [2] J.M.EGGLESTON *et al.*:IEEE J. QUANTUM ELECTRONICS, **20**, NO 3, 289 (1984).
- [3] John T. Hunt, "National Ignition Facility Performance Review 1998," UCRL-ID-138120-98 NIF-0025088, June, (1999).
- [4] D.L.Brown, G.T.Mannell, "Thermal Analysis of the Large Close Packed Amplifiers in the National Ignition Facility(NIF)," UCRL-JC-120211 L-19595-2 PREPRINT, June 1,(1995).

# 高出力超短パルスレーザーための Nd: CaF<sub>2</sub> 透明セラミックスの開発

吉田 実<sup>1</sup>、藤岡 加奈<sup>2</sup>、横関 海翔<sup>1</sup>

<sup>1</sup>近大電気電子、<sup>2</sup>阪大レーザー研

## はじめに

高出力超短パルスレーザーは、学術、産業、医療等幅広い分野で利用されており、レーザー加速器への応用や次世代レーザー加工機などを実現するためには、更なる高出力化、超短パルス化が望まれている。

本研究では、高出力超短パルスレーザー用の媒質として期待されている Nd:CaF<sub>2</sub> 透明セラミックスの開発を行う。Nd:CaF<sub>2</sub> は発振波長(1055nm)の半値全幅が数十 nm と広いことが報告されており[1]、サブピコ秒增幅が可能である。また、適度な誘導放出断面積、比較的長い蛍光寿命、高い熱伝導率等の特長をもち、さらに屈折率の温度依存性 ( $dn/dT$ ) が負である。しかし、Nd:CaF<sub>2</sub> では、Ca<sup>2+</sup> と Nd<sup>3+</sup> の価数の違いに起因する Nd<sup>3+</sup> のクラスター化のため消光が起きることが知られており、Y<sup>3+</sup>などのバッファーアイオンの添加によりクラスター化を抑制することが必要である。本研究では、多元素添加が容易なセラミックス技術の利点を活かし、バッファーアイオンの種類、添加濃度の最適化を行い、レーザーグレードの Nd:CaF<sub>2</sub> セラミックス製作を目指す。

## 実験方法

CaF<sub>2</sub> は、CaCl<sub>2</sub> 水溶液中に KF 水溶液を滴下し合成した。合成した CaF<sub>2</sub> を水洗い後、乾燥し、焼結に用いる CaF<sub>2</sub> 粉体を得た。CaF<sub>2</sub> に添加する Nd<sup>3+</sup>、Y<sup>3+</sup> は CaF<sub>2</sub> と同様の手順で NdF<sub>3</sub>、YF<sub>3</sub> および Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub> 粉体として製作した。製作した粉体を用いて (1) CaF<sub>2</sub>、(2) Nd 0.5at%: CaF<sub>2</sub>、Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub> 粉体を用いて (3) Nd 0.5at%、Y 10at%: CaF<sub>2</sub>、NdF<sub>3</sub> と YF<sub>3</sub> 粉体を用いて (4) Nd 0.5at%、Y 10at%: CaF<sub>2</sub> となるように調整し、ボールミルを用いて超純水と混合した後、スリップキャスト法で成型体を製作した。(1) から (4) の成型体を大気中 800°C で 1 時間、大気中 800°C で 20 時間、大気中 850°C で 20 時間と He 中 850°C で 20 時間焼結した温度上昇、降下速度はいずれも 100°C/h で行った。

## 実験結果

得られた (a) CaF<sub>2</sub>、(b) YF<sub>3</sub>、(c) NdF<sub>3</sub>、(d) Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub> 粉体の電子顕微鏡(SEM) 画像を図 1 に示す。透明化には 300 nm 程度の粉体が適しているが、CaF<sub>2</sub>、NdF<sub>3</sub> の

粒子径は約 100 nm であった。一方、YF<sub>3</sub> と Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub> は目標の粒子径 300 nm に近いものが得られた。

(a) ~ (d) 粉体の X 線回折(XRD) 結果を図 2 に示す。CaF<sub>2</sub> は、CaF<sub>2</sub> 結晶の International Centre for Diffraction Data (ICDD) と一致したことより CaF<sub>2</sub> であることが確認できた。NdF<sub>3</sub> は、ICDD から 0.2° 程度のシフトがあり結晶格子の歪が予測されるが、NdF<sub>3</sub> であると考えられる。

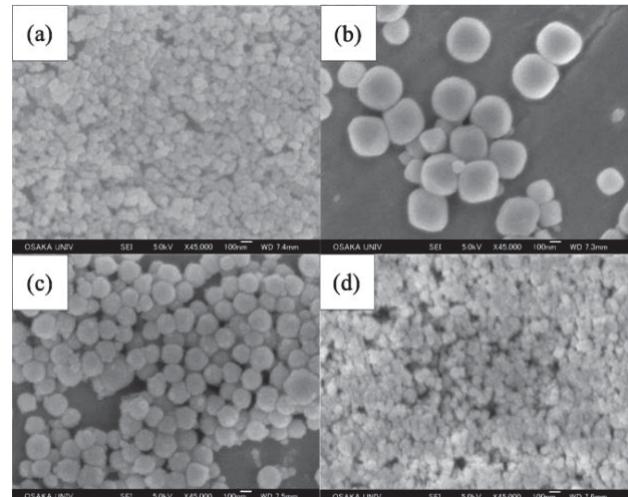


図 1 合成で得られた粉体の SEM 画像  
(倍率×45000)

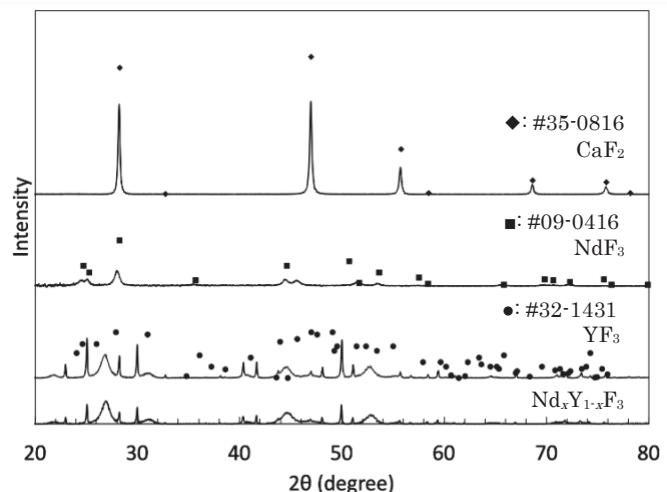


図 2 粉体の XRD 結果

YF<sub>3</sub>、Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub>は一致するICDDがなく、物質の同定ができなかった。

(1)～(4)サンプルをそれぞれの条件で焼結したもの写真を図3に示す。焼結したサンプルは透光性が得られなかつた。(1)～(4)サンプル以下の通りである。

(1) Ndを添加しないCaF<sub>2</sub>

(2) Nd 0.5 at.%: CaF<sub>2</sub>

(3) Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub>粉体を用いたNd 0.5 at.%, Y 10 at.%: CaF<sub>2</sub>

(4) NdF<sub>3</sub>とYF<sub>3</sub>粉体を用いたNd 0.5 at.%, Y 10 at.%: CaF<sub>2</sub>

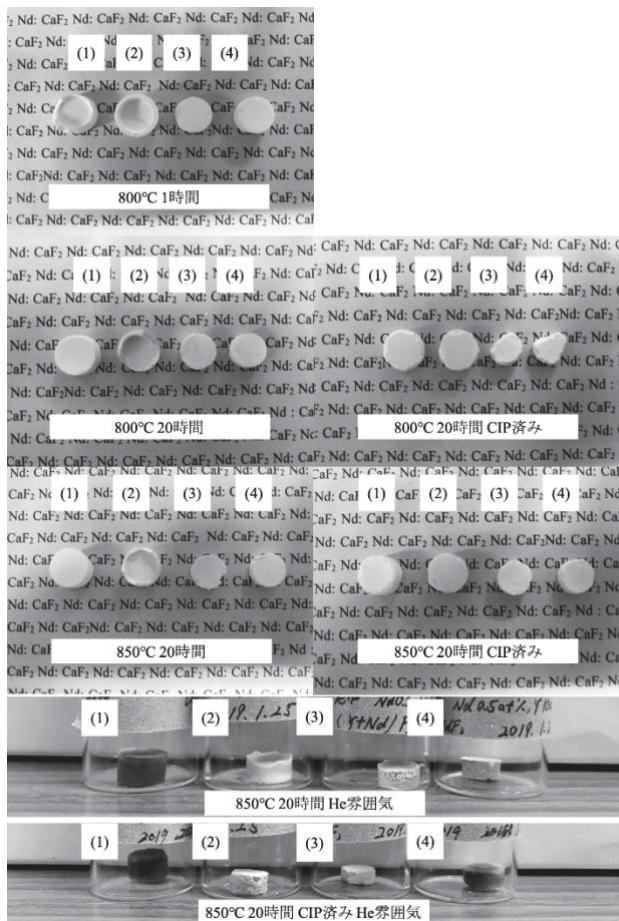


図3 焼結したセラミックス画像

製作した成形体、および焼結したセラミックスとCaF<sub>2</sub>結晶との密度比数値をそれぞれ表1、表2に示す。表内に番号は図3と同様である。

表1 成形体の密度比

サンプル数	密度比 (%)			
	(1)	(2)	(3)	(4)
1	42.5	57.6	33.4	32.9
2	-	59.8	36.6	32.7
3	-	63.0	32.5	32.3
4	-	-	-	34.2

表2 セラミックスの密度比

最高温度 (°C)	保持時間 (h)	CIP(あり:○, なし:×)	雰囲気	密度比 (%)			
				(1)	(2)	(3)	(4)
800	1	×	大気	79.9	88.5	56.6	56.0
800	20	×	大気	72.4	88.4	67.0	69.5
800	20	○	大気	76.7	61.5	58.8	75.5
850	20	×	大気	89.4	89.0	76.2	81.1
850	20	○	大気	78.5	73.9	81.2	84.8
850	20	×	He	80.8	99.1	90.2	72.7
850	20	○	He	82.2	81.1	82.8	79.3

## 考察

本研究で製作したNd添加CaF<sub>2</sub>セラミックスで透光性について考察する。まず、今回用いた材料粉体の粒子径は、100 nm程度であったが、このような場合、粒子の表面自由エネルギーが大きく、粒子同士が近づくことができずに粒子の最充填が難しくなる。そのため、成形体のCaF<sub>2</sub>結晶に対する密度比は30~60%に留まつた。成形体の密度を向上するには、CaF<sub>2</sub>の粒子径を300 nm程度まで成長させることが必要であり、今後は、粒子の合成条件の最適化や高温高圧下で粒子成長を促す効果のある水熱法など試みる。次に透光性の改善策として、CaF<sub>2</sub>へのNd、Yの添加方法を検討する。本研究ではCaF<sub>2</sub>、NdF<sub>3</sub>、YF<sub>3</sub>粉体もしくはCaF<sub>2</sub>、Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub>粉体を原材料粉体として製作し、成形体はそれらの粉体を混合して製作したが、CaF<sub>2</sub>、NdF<sub>3</sub>、YF<sub>3</sub>を同じ溶液内で同時に合成を行うことで、CaF<sub>2</sub>とNdF<sub>3</sub>、YF<sub>3</sub>が混晶化する際に粒子よりミクロな構造で3種の結晶が存在し、相の不均一が起こりにくくなるのではないかと期待される。

## まとめ

CaF<sub>2</sub>、YF<sub>3</sub>、NdF<sub>3</sub>、Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub>粉体を合成し、バッファー元素Yを添加したNd:CaF<sub>2</sub>セラミックスの焼結を行なつた。バッファー元素の有無にかかわらず透光性のあるセラミックスは得られなかつた。用いたCaF<sub>2</sub>粉体の粒子径が小さかつたこととYF<sub>3</sub>、NdF<sub>3</sub>、Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub>の合成生成物に原因があると考えられる。今後、水熱法などを利用した粒子成長の検討やYF<sub>3</sub>、NdF<sub>3</sub>、Nd<sub>x</sub>Y<sub>1-x</sub>F<sub>3</sub>の合成条件の最適化を行ない、セラミックスの透光性向上を目指す。

## 参考文献

- [1] L. B. Su, et al., "Spectroscopic properties and CW laser operation of Nd, Y-codoped CaF<sub>2</sub> single crystals." Laser Phys. Lett. 10, 035804 (2013).

# Investigation of the electronic and optical properties of fluoride crystals for laser applications

John A. Harrison<sup>1</sup>, Marilou Cadatal-Raduban<sup>1</sup>, Luong Viet Mui<sup>2</sup>, and Nobuhiko Sarukura<sup>2</sup>

<sup>1</sup>School of Natural and Computational Sciences, Albany, Auckland 0632 New Zealand, <sup>2</sup>Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871 Japan

## INTRODUCTION

Fluoride crystals have long been recognized as excellent short-wavelength solid-state laser host materials in the vacuum ultraviolet (VUV) and ultraviolet (UV) regions especially when doped with trivalent rare-earth ions such as cerium ( $\text{Ce}^{3+}$ ) and neodymium ( $\text{Nd}^{3+}$ ) [1-4]. When used as laser materials, knowing the optical and electronic properties of the laser active crystal is important to determine energy transfer mechanisms that either inhibit or enhance laser emission. However, theoretical and experimental investigations of these properties are limited. For example, previous calculations have underestimated the band gap energy of fluoride crystals while experiments have not implemented different conditions such as varying pressure or temperature [5]. Moreover, the optical properties of fluoride crystals such as absorption coefficient, refractive index, or transmission under high pressure are not investigated both theoretically and experimentally. In order to achieve efficient laser systems and photonic applications, theoretical studies with better approximation are important to understand the material's salient features and to aid the crystal's growth and development. This project studied the electronic and optical properties of lithium yttrium fluoride ( $\text{LiYF}_4$ ). Through numerical calculations, we determined this crystal's prospects as a VUV laser host material.

## METHODOLOGY

The numerical calculations used are based on density functional theory (DFT) using Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) hybrid functionals. The calculations employ plane-wave basis sets and projector-augmented wave (PAW) pseudopotentials as implemented within the Vienna Ab initio Simulation Package (VASP). The exchange-correlation interactions are described by the generalized gradient approximation (GGA) with (PBE0) hybrid functional [6-8]. The plane-wave basis cutoff is 500 eV.

The crystal unit cell volume is initially optimized using the Murnaghan equation of state to fit the curve of the total energy as a function of volume [9]. The lattice constants are then obtained from the optimized volumes

to compute for the electronic band structures and optical properties of the fluoride crystal. For the band structure and density of states (DOS) diagrams, the k-points are chosen following the first Brillouin zone [10]. All valence band maxima of the resulting diagrams are also shifted to zero. For the optical properties, the complex dielectric function was first obtained. The refractive index, absorption coefficient, and optical transmittance were derived from the complex dielectric function. In the calculations, the excitonic effect is ignored, while the local field effect is considered.

## RESULTS AND DISCUSSIONS

Figure 1 shows the electronic structure of  $\text{LiYF}_4$ . Both the valence band maximum and the conduction band minimum are situated at the  $\Gamma$  point. It has a direct band gap energy of 11.09 eV.

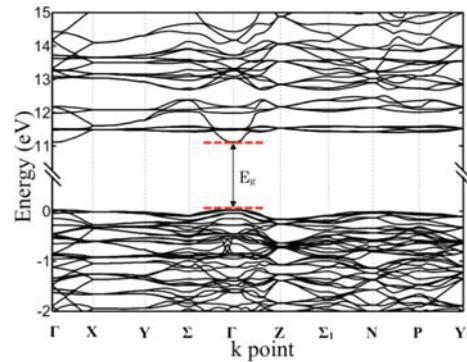


Fig. 1. Simulated electronic band structure of the  $\text{LiYF}_4$  crystal at equilibrium.  $\text{LiYF}_4$  has a direct band gap of 11.09 eV at the  $\Gamma$  point.

The total and partial densities of states (DOS) of the  $\text{LiYF}_4$  crystal are shown in Fig. 2. Three bands can be observed from the total DOS in the range of - 25 to 16 eV. The bands from - 22.62 to - 17.64 eV are due to the F 2s and Y 4p orbitals. On the other hand, the valence band from - 3.46 to 0 eV is mainly derived from the F 2p orbital, while the conduction band from 10.70 to 16 eV is mainly derived from the Y 4d orbital. The Li 2s orbital has minor contributions to both valence and conduction bands. The direct band gap of  $\text{LiYF}_4$  originates from the transition from F 2p of the valence band maximum to Y 4d of the conduction band minimum.

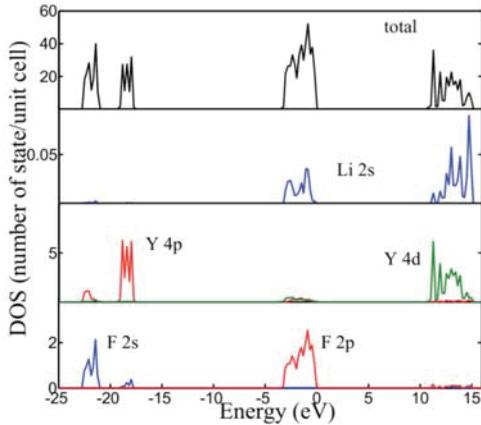


Fig. 2 Total and partial DOS of the  $\text{LiYF}_4$  crystal at equilibrium. With a minor contribution from Li 2s, the valence and conduction bands of  $\text{LiYF}_4$  are mainly derived from F 2p and Y 4d, respectively.

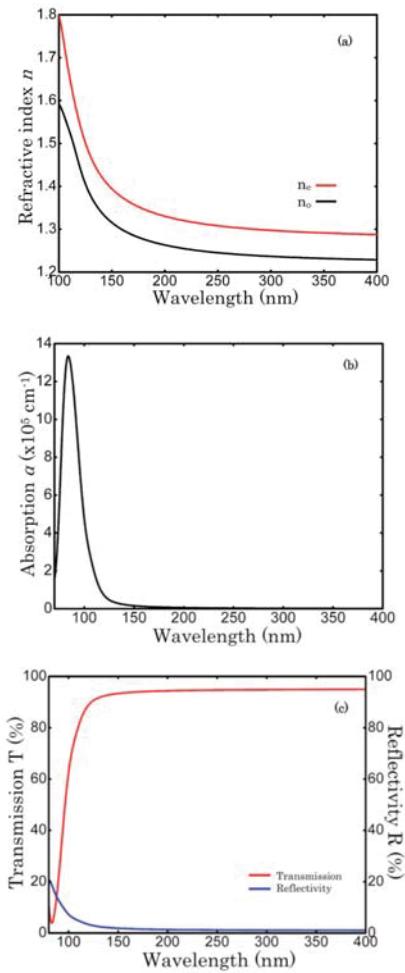


Fig. 3 (a) Refractive index, (b) absorption coefficient, and (c) transmission and reflectivity of the  $\text{LiYF}_4$  crystal.  $\text{LiYF}_4$  has a maximum refractive index of 1.60, an absorption edge at 121 nm, and high transparency up to the visible region.

The refractive index, absorption coefficient, reflectivity, and transmittance of the  $\text{LiYF}_4$  crystal are shown in Fig. 3. Its refractive index has similar ordinary

( $n_o$ ) and extra-ordinary ( $n_e$ ) components. The calculated refractive indices confirm that  $\text{YLiF}_4$  is a positive birefringent crystal where the extra-ordinary refractive index  $n_e$  is greater than the ordinary refractive index  $n_o$ . The maximum refractive indices are 1.6 and 1.8 for ordinary and extra-ordinary components, respectively. These occur at 100 nm. The ordinary and extra-ordinary refractive indices become constant at 1.22 and 1.30, respectively, for wavelengths longer than 400 nm. Our calculations differ by around 13 % compared with the experimental refractive index for wavelengths ranging from 225 to 2600 nm (0.48 to 5.51 eV) [11]. The difference could be due to the temperature of the sample during the experiment as the refractive index decreases significantly with temperature [12]. Our calculations are done at 0 K, while the experiments were done at liquid nitrogen temperature (77 K) [11].  $\text{LiYF}_4$  has an absorption band in the VUV region from 100 to 200 nm. We will perform future experiments to confirm these absorption bands.  $\text{LiYF}_4$  is highly transparent down to the VUV region with an absorption edge around 121 nm.

## CONCLUSIONS

The electronic band structure and optical properties of a perfect  $\text{LiYF}_4$  crystal were calculated based on DFT using PBE0 hybrid functional. This crystal was found to have a  $289.31\text{-}\text{\AA}^3$  crystal volume and 75.04-GPa bulk modulus, which are all close to the reported experimental values.  $\text{LiYF}_4$  was also determined to have an 11.09-eV direct band gap originating from the F 2p to Y 4d transition. Experimental investigations based on the present results are expected in the near future.

## ACKNOWLEDGEMENT

This work was supported by the Osaka University Institute of Laser Engineering (ILE) through the Collaborative Research Program Grant No. 2018B1-HARRISON.

## REFERENCES

- [1] Z. Liu, K. Shimamura, K. Nakano, Na Mujilatu, T. Fukuda, T. Kozeki, H. Ohtake, and N. Sarukura, Jpn. J. Appl. Phys. 39, L88 (2000).
- [2] J. Ehrlich, P. F. Moulton, and R. M. Jr. Osgood, Opt. Lett. 4, 184 (1979).
- [3] K. Yamanoi, Y. Minami, R. Nishi, Y. Shinzato, M. Tsuboi, M. V. Luong, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, M. C. Raduban, M. H. Pham, H. D. Nguyen, Y. Yokota, A. Yoshikawa, M. Nagasano, and T. Ishikawa, Opt. Mater. 35, 2030 (2013).
- [4] P. W. Dooley, J. Thøgersen, J. D. Gil, H. K. Haugen and R. L. Brooks, Opt. Commun. 183, 451 (2000).
- [5] W. Y. Ching and Y. N. Xu, Phys. Rev. B. 63, 115101 (2001).
- [6] G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B 47, 558 (1993).
- [7] G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B 49, 14251

(1994).

[8] G. Kresse and J. Furthmüller, *Comput. Mat. Sci.* 6,

15 (1996).

[9] V. G. Tyuterev, and N. Vast, *Comput. Mater. Sci* 38,  
350 (2006).

[10] W. Setyawan, and S. Curtarolo, *Comput. Mater. Sci.*  
49, 299 (2010).

[11] N. P. Barnes and D. J. Gettemy, *J. Opt. Soc. Am.* 70,  
1244 (1980).

[12] R. M. Waxler and G. W. Cleek, *J. Res. Natl Bur.  
Stand. A* 77, 755 (1973).

# Percolation approach to laser-induced damage of optical materials

Jacque Lynn Gabayno<sup>1,2</sup>, Nobuhiko Sarukura<sup>1</sup>, Rayda Gammag<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute of Laser Engineering, Osaka University, Osaka, Japan 565-0871

<sup>2</sup>Mapua University, Intramuros, Manila, Philippines 1004

## INTRODUCTION

Optical damage limits the performance of high-power laser systems. In the non-linear crystals used for frequency conversion for example, the intensity of the laser is critical because high efficiency is obtained at high intensities, however the risk of causing damage also increases.

The optical damage can be initiated by local absorption due to inhomogeneities, defects, and impurities in the material. Previous studies [1] identified the effect of multiphoton excitation of short laser pulses that can cause damage by increasing the electron density. Kato et al. [2] investigated optical damage based on a rate-equation model. From these studies, electrical breakdown due to the laser's strong electric field has been considered to cause the development of the optical damage. To date, the critical behavior optical damage, including the experimentally observed transition to  $\tau^{1/2}$  ( $\tau$  pulse duration) dependence of damage fluence remains unexplained.

## METHODOLOGY

Based on the theory of coarse graining and the model developed by Sasaki et al. [3] for electric discharge, a macroscopic cell representation of a material was adapted in the percolation model of optical damage. Each of the cells can change randomly between two possible states, i.e. insulator or conductor depending on the laser intensity. This behavior was investigated in the context of two-photon absorption by an optical material, representing the transition from insulator to conductor using a rate equation. The interaction between the laser field and the free electrons were considered using a circuit model. The current and power dissipation through the cells were measured. The temperature change from joule heating was obtained based on the heat capacity and density of the material. The spatial and temporal evolution of optical damage were investigated.

## RESULTS AND DISCUSSION

The development of the damage from insulator to conductor transitions for several time steps between 100

fs to 1.2 ps is shown. Color maps represent the voltage distribution in the 2D lattice. Cell sites of equal voltage are drawn by the contours. The electric potential distribution is uniform at the start of a pulse as shown, and the cell transition from insulator to conductor states is localized at the region irradiated by the laser. As the current in the cells percolates, the conductor cell sites develop gradually outward of the laser spot. This is coupled with some distortion in the voltage distribution shown by the contour lines and consequently in the laser field. The damaged cell sites generally originate from the center as shown.

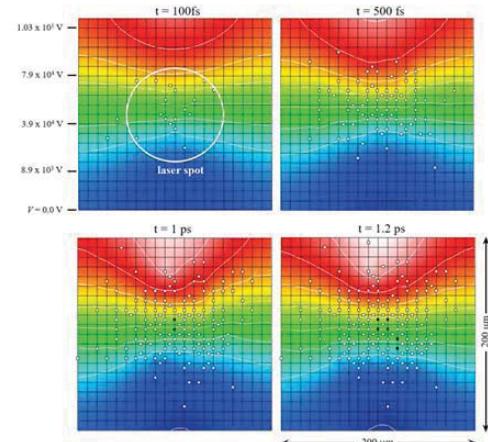


Fig. 1. Simulation of laser-induced damage in a thin film, with white squares represent a conducting cell, black squares represent a damaged cell due to joule heating.

## ACKNOWLEDGEMENT(S)

The investigators greatly acknowledge the ideas and kind support of Prof. A. Sasaki for this collaboration effort.

## REFERENCE(S)

- [1] B. C. Stuart, et al., Physical Review Letters, **74**, 2248 (1995).
- [2] S. Kato, et al., Opt. Materials Express, **6**, 396 (2016).
- [3] A. Sasaki, et al., Physical Review Letters, **105**, 075004 (2010).

# レーザー放電回路のリグニン分解への応用（水中ストリーマー放電によるリグニンの中性・常温分解）

實野孝久

## 社団法人大太陽エネルギー利用推進研究会

### 概要

レーザー用高電圧パルス放電技術を応用した水中ストリーマー放電により、植物のリグニンを水溶性肥料に変換して農業に応用することを目指す。不溶性のリグニンを、ストリーマー放電で可溶化することで節水農法の液体肥料としての応用を開拓する。

### 1. はじめに

現在の世界の人口は 70 億人を超え、その人口を石油の大量消費による現代農業で養っているが、肥料・農薬を含めた現代農業のすべての工程が石油に依存しているため、石油価格の長期的な上昇に伴う食糧価格の上昇が今後の大きな社会的騒乱要因となることが予想される。このような騒乱を防ぐためには、石油に依存しない農法が必要である。また、長期的な気候変動の影響により、農耕に適した地域が減少することが予想されるため、乾燥地で石油に依存しない農業を行う必要が生じている。

その新しい農法の一部に石油に依存しない肥料の作製法が挙げられる。植物の体を構成するリグニンは非常に普遍的な素材であるが、その活用は材木や燃料などの限られた用途しかなかった。一方でリグニンを堆肥として分解すると農業用肥料が得られるが、その作成には時間を要し、かつ固形肥料しか得られず、肥料として用いるには農地に運んで農機で土に鋤きこむことが必要であった。また、リグニンの分解は白色腐朽菌を用いれば中性・常温・常圧で可能であるが、人工的に分解するためには強酸・強アルカリ・高温／高圧・白金触媒等が必要であり、費用が嵩んでいた。このリグニン分解を中性・常温・常圧で行えると乾燥僻地の小規模農家でも化学肥料に頼らずに済む。望ましいのは散布が容易な液体肥料を得られると、節水農法である養液滴下灌漑と組

み合わせられるため、活用範囲が広がることが期待出来る。

### 2. 実験装置

本研究で使用した放電回路はこれまでにパルス放電を行う窒素レーザーや炭酸ガスレーザーの励起回路に使用されていたもので、特に大きな変更は加えていない。今回使用した回路では電源側のパルス電圧の立ち上がりは約  $50 \mu\text{S}$ 、出力電圧は約 20kV である。繰り返しは電源容量で決まるが、最大で 1Hz 程度であった。このパルス電圧を水中に保持したシス（鞘）付きの針端電極に、小さなスパークギヤップを介して印加した。このギヤップの役割は、針端電極に印加される電圧の立ち上がりを早くし、ストリーマー放電の発生を促進するためである。もう一方の接地側電極は平板の金属板を使用し、電界の集中を防いでいる。このような電源回路と放電容器を使用し、中性リグニン粉末や粉碎した木片や落ち葉の粉末を真水に懸濁した溶液を用い、概ね 1Hz 程度でストリーマー放電を行うことにより、水溶化した溶液を得ることができた。状況に応じて過酸化水素やアニリンを添加した。

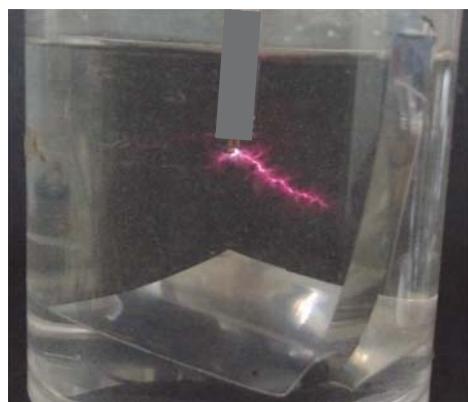


図 1 水中ストリーマー放電（純水中）

### 3. 分解実験

この水中放電により、リグニン粉末や木片の粉末が水溶液化したものをろ過し、液体状の水溶液を得ることができた。この時リグニンの残留分を秤量して分解率を求めたが、1回の処理で約30%の重量が水溶液化しており、処理時間を延ばしてもこの分解量は増加しなかった。しかし、この残渣を再び真水に溶解して分解処理を行うと、さらに30%が減少することが確認できた。この結果から、分解は水中で平衡状態に達するとそれ以上進行しなくなっていることが推測される。水中ストリーマー放電の様子を図1に、リグニンが分解した溶液の写真を図2に示す。

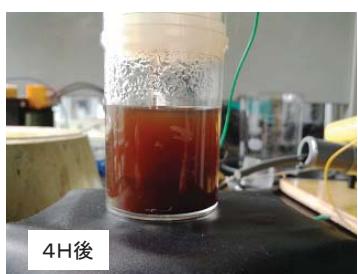


図2 リグニンの水溶液化

分解生成物の分析を試みたが、有機物の種類が多くて、正確な成分分析ができていない。多くのフェニル基を含む物質が存在していることは確認できた。また、従来の水耕栽培などで使用される肥料濃度計(ECメーター)で計測したが、計測値は出なかった。従って、従来の肥料成分と言われる電気伝導

成分は豊富ではないことが判明した。より正確な成分分析を現在佐賀大学で実施しており、追って結果が得られるものと考えられる。

### 4. 栽培試験

この分解生成物の肥料としての効果を検証するため、培養土を用いてメランポジウムの栽培を行った。同一の「花の土」を入れた複数の鉢に苗を植え、ある程度のサイズまで育った後に、水のみ、市販肥料、10~1000倍に希釀した分解生成液を与えて育成した。肥料成分は週に1度で、その他の日は水のみを与えた。肥料成分を与える前と4週間経過した後の育成状態では明らかに100倍希釀液を与えたものが大きく成長しており、培養土を用いる場合には花の育成に効果的であることが確認できた。

この分解生成物は培養土のような肥料成分が含まれた土では、市販肥料より植物の成長を促す効果が認められたが、ECメーターでは計測できないことから、培養土中の細菌により植物の成長を促す成分が生成されていることが想定された。そこで、培養地に肥料成分を含まない「赤玉土」を使用し、同様の栽培試験を行った。この試験ではチングンサイを使用し、発芽から77日までを追跡した。水のみでは非常に貧弱な成長であるが、市販肥料は十分に大きくなっている。しかし、500倍希釀液を使用した鉢では市販肥料より劣るが、明らかに水のみよりは成長しており、養分のない土でも植物の育成効果があることが判明した。

肥料成分としては培養土では強く、赤玉土では中程度の効果があることが証明できた。リグニン分解液は液体状態で土壤に散布できるため、今度展開を予想している摘果灌漑を用いた乾燥地農法に適している。乾燥僻地の住民が農業生産物の残渣を滴下感概に適した液体肥料として使用できることになり、乾燥地での農業の普及に大きな利益を生じるため、今後も継続して研究を推進していきたい。

#### 研究協力者

徳村啓雨：(株) レーザー応用技研

徳本家康：佐賀大学農学部

# レーザー造形法によるシリカガラス構造形成

<sup>1</sup>本越伸二・<sup>2</sup>吉田実・<sup>3</sup>藤岡加奈

<sup>1</sup> レーザー総研・<sup>2</sup>近畿大学・<sup>3</sup>阪大レーザー研

初めに

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ている。紫外線硬化材料と紫外線ランプ（レーザー）光を用いて、照射、積層する三次元造形の研究は、1980 年代に既に実施されている[1]。しかし、レーザー光源が高価であったために広く利用されることはなかった。光源の低価格化、性能向上に加え、制御ソフトや機構部の進歩により一般ユーザーでも容易に利用できるようになり、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。

光学分野において、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不向きである。そのため、光学分野への三次元造形技術の適応が期待されている。

Deubel らは、フォトレジスト膜を積層することにより、三次元構造を持つフォトニッククリスタルの製作を行い、光学分野への可能性を示した[2]。Kotz らは、紫外線硬化樹脂に  $\text{SiO}_2$  粉体を混ぜた粉体を用いて、紫外線照射により三次元構造を造形し、その後 1300°C に加熱することにより樹脂を蒸散しガラス三次元造形を得ている[3]。Nguyen らは、 $\text{SiO}_2$  ナノ粒子を含んだシリカゲルインクを合成し、サブミリメートルのノズル先端より任意のパターンに書き込み、1500°C に熱処理することにより透明ガラスを形成している[4]。これらの報告はともにガラスの三次元造形を可能にするものであるが、最終的に高温熱処理が必要であり、精密な構造を維持することが困難である。

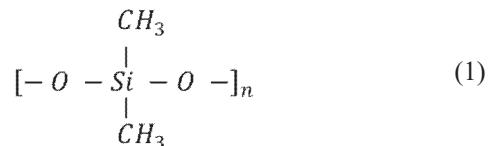
Murahara らは、シリコーンオイルに紫外線ランプを照射することにより、 $\text{SiO}_2$  膜を形成することを報告した[5]。潮解性結晶表面に形成された  $\text{SiO}_2$  膜は保護膜なり、ほぼ水を浸透しない高密度に形成されている。しかしながら、ランプ光であるため、化学反応に時間を要し、また微細な膜形成には至っていない。ランプ光をレーザー光に替えることにより、短時間で  $\text{SiO}_2$  が形成することが可能となり、微細な構造形成も期待できる。

本研究は、基板上に塗布したシリコーンオイルにレーザー光を照射することにより、ガラス三次元

構造を形成することを目的に、その基礎実験を行った。

## 反応原理

シリコーンオイルの化学構造式は、



で表される。この Si と C の化学結合を切断し、他の Si または O と結合することにより、 $\text{SiO}_2$  構造が形成される。Si と C の結合エネルギーは、105kcal/mol であることから、波長 272nm 以下の紫外光を照射することにより、切断が可能となる。

本研究で使用したシリコーンオイルの分光吸収特性を図 1 に示す。波長 400nm 以上では吸収がなく透明なオイルである。波長 280nm 付近より吸収が現れ、短波長になるに従い増加する。そのため、本研究では波長 193nm の ArF エキシマレーザーと、波長 800nm、パルス幅 100fs の Ti サファイアレーザーの多光子吸収過程を用い、シリカガラス形成の確認を行った。

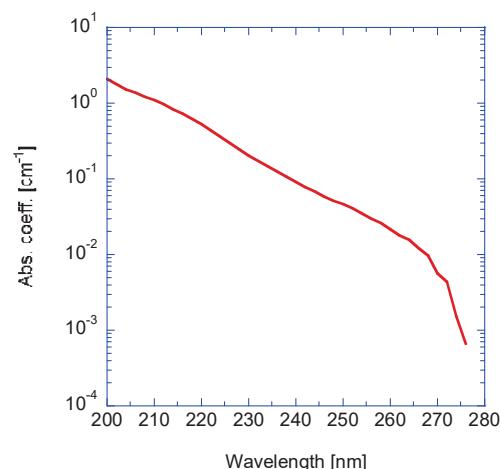


図 1 シリコーンオイルの吸収係数

## ArF エキシマレーザー照射

照射レーザー光源には、波長 193nm の ArF エキシマレーザー装置 (LAMBDA PHISIK 社 COMPeX-

100) を用いた。パルス幅 10ns, 繰返しパルス周波数は最大 100Hz まで調整が可能である。パルス最大エネルギーは 75mJ である。出射ビーム径は  $10 \times 25\text{mm}^2$  であるため、試料の大きさに合わせて、ハーフアーチャーにより大きさを調整した。

シリコーンオイルをディップ法により、シリコーンウェハ上に数 $\mu\text{m}$  厚で塗布し、レーザーパルスを  $7.2\text{mJ/cm}^2$  のエネルギー密度で 5 万パルス照射した。照射後、残留したシリコーンオイルを有機溶剤で洗浄除去した結果を図 2 に示す。直径約 5mm の凸レンズが形成されている。シリコーンオイルはシリコン表面上に一様に塗布されていたことから、照射エキシマレーザー光の強度分布により固化した厚さが異なり、凸状のガラスが形成されたものと考えられる。

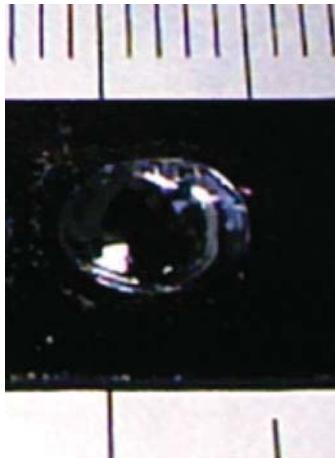


図 2 ArF エキシマレーザー照射によりシリコンウェハ表面に形成されたシリカレンズ

### フェムト秒レーザー照射

レーザー装置には、中心波長 800nm、パルス幅 100fs の Ti:サファイアレーザー装置 (Spectra Physics 社 Hurricane) を使用した。出射したレーザーパルスは、再生増幅器によりエネルギーを増加した後、複数のミラーで集光レンズ ( $f=150\text{mm}$ ) に導かれた。レンズ透過後のエネルギーは 135mW (繰返し周波数 1kHz) であり、大気中の集光点でのエネルギー密度は  $1.7\text{J/cm}^2$  と求まった。

シリコーンオイル 3.5g を満たしたサンプル管 ( $12\phi \times 35\text{mm}$ ) に、レーザーパルスをオイル液面法線から照射した。レーザー照射の集光点は、オイル液面より下 5 mm の位置に設定し、30 分間照射した。図 3 にレーザー照射後のサンプル管の様子を示す。オイル全体に茶色の靄が掛かり、液面上部には更に濃い物質が存在していることが確認できる。またレーザー照射 (図中の輝点はアラインメントレーザー) 位置には黒色化した物質の存在が確認できる。レーザー照射により、黒色化した原因は、①Si または C ナノ粒子の生成、②オイル中不純物の燃焼が考えられる。照射後さらに 30 分放置すると、上部に浮遊していた黒色 (茶色) の物質がオイル下に沈殿す

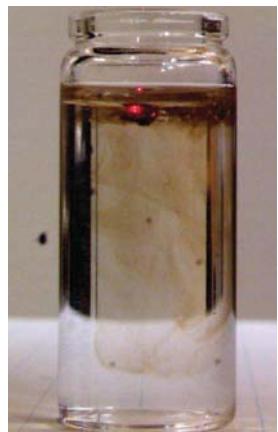


図 3 フェムト秒レーザー照射によるシリコーンオイル変質

ることが確認できた。レーザー照射により生成された  $\text{SiO}_2$  を含めたナノ粒子は、オイルの粘性により、すぐに凝集し、ゲル状になったと言える。結果として、超短パルスレーザー光により多光子吸収過程により、シリコーンオイルを分離し、 $\text{SiO}_2$  を生成することが可能であることが確認された[6]。 $\text{SiO}_2$  以外にも、Si 粒子、C 粒子の存在も考えられるため、照射レーザーの条件等最適化が必要である。

### まとめ

本研究は、レーザー三次元造形法により、ガラス光学素子形成の可能性を確認するために行われた。今後、レーザー条件の最適化とともに、微細構造形成の試験を行う。

### 謝辞

本研究の一部は、公益財団法人日本板硝子材料工学助成会および公益財団法人天田財団より助成を頂いた結果が含まれています。

大阪大学レーザー科学研究所共同研究により実施されました。

### 参考文献

- [1] 中井孝・丸谷洋二：レーザー研究， 16 (1987) 14.
- [2] M.Deubel, G.V.Freymann, M.Wegener, S.Pereira, K.Busch, C.Soukoulis: Nature Materials 3 (2004) 444.
- [3] F.Kotz, K.Arnold, W.Bauer, D.Schild, N.Keller, K.Sachsenheimer, T.M.Nargang, C.Richter, D.Helmer, B.E.Rapp: Nature 544 (2017) 337.
- [4] D.T.Nguyen, C.Meyers, T.D.Yee, N.A.Dudukovic, J.F.Destino, C.Zhu, E.B.Duoss, T.F.Baumann, T.Suratwala, J.E.Smay, R.D.-Sperars: Adv. Mater. 29 (2017) 1701181.
- [5] M.Murahara, T.Funatsu, Y.Okamoto: Proc. of SPIE 5647 (2005) 224.
- [6] 特願 2018-193247

# 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

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

<sup>1</sup> レーザー総研・<sup>2</sup>近畿大学・<sup>3</sup>阪大工学研究科・<sup>4</sup>阪大レーザー研

初めに

ミラー、レンズなどの光学素子に高強度を持つレーザー光を照射すると、破壊現象を引き起こすことがある。これを「レーザー損傷」と称し、高出力レーザー装置の性能を制限する大きな要因になっている。多くの研究機関、光学素子メーカーでは、レーザー損傷の発生する最低エネルギー密度（レーザー損傷しきい値）を上げる努力が日々行われている。

1 パルスによるレーザー損傷しきい値に比べて、繰返しパルスでは低いしきい値となる[1]。しきい値の低下は、繰返し周波数、照射パルス数に依存し、半分程度にまで下がることが報告されている。その原因については、熱の蓄積、応力や歪み、微小損傷、欠陥生成など、様々な議論がされている。ナノ秒パルスレーザーの研究では、薄膜材料の吸収係数や熱伝導率の違いが損傷しきい値の低下と関係があることから、熱蓄積によるものとまとめている[2,3]。しかしながら、近年、急速に利用が進んでいるフェムト秒パルスレーザーにおいても、繰返しパルスにより損傷しきい値が低下することが報告されている[4]。フェムト秒パルスレーザーは、高いパルス強度を持つが平均エネルギーは低いため、上記のような熱の蓄積ではないと考えられる。

我々は、熱以外の損傷しきい値低下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た。

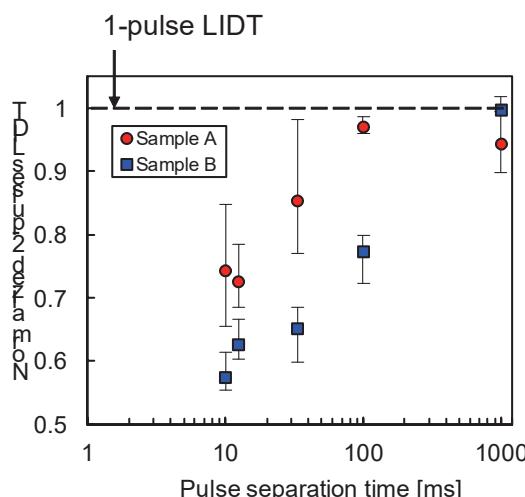


図1 異なった間隔の2パルスに対する石英ガラス内部損傷しきい値[5]

その結果、図1に示すように、2パルスの損傷しきい値は、パルスの時間間隔が短くなるに従い低下し、その変化は石英ガラス内の不純物濃度が多いほど大きくなることを示した[5]。また、その損傷しきい値の低下の割合は、繰返しパルス照射による透過率低下と強い相関があることを明らかにした[5]。この結果は、2パルス照射によるレーザー損傷しきい値の低下の要因は、透過率低下と同じレーザー誘起欠陥によるものであることを示唆している。

一方、ガラス材料内に生じた欠陥は、照射終了後、長時間かかり消滅し、元の透過率に戻る。また欠陥消滅の時間はガラス温度に依存し短くなることが報告されている[6]。

本研究では、高温条件下において欠陥の再結合を促進し、石英ガラスの透過率低下を抑制することを目的に、加熱保持した石英ガラス材料への繰返しパルスレーザー照射試験を行った。

## 評価方法

図2に透過率測定実験の光学配置図を示す。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のレンズを用いてサンプル表面より8 mm内部で、エネルギー密度0.5 J/cm<sup>2</sup>になるよう調整した。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。サンプルには合成石英ガラス

(25×30×24 mm<sup>3</sup>)を用意し、ヒーター上に設置した。レーザー照射前のサンプル表面温度を輻射温度計にて計測し、常温、100°C、150°C、200°Cの順番に加熱を行い、それぞれの温度において20,000パルス照射し透過率を計測した。また、200°Cの試験終了後、自然冷却の後、加熱後常温として再試験を行った。

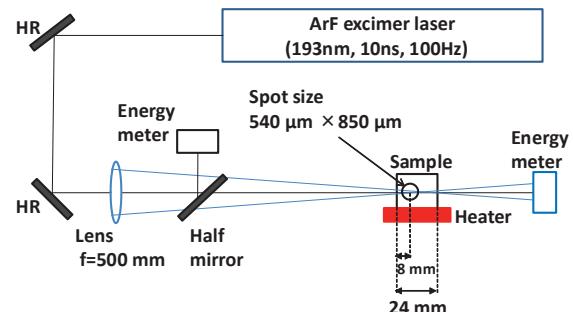


図2 繰返しパルス照射による石英ガラス透過率測定の実験配置図

## 測定結果

図3に測定結果を示す。図の透過率は、照射開始時で規格化した値である。石英ガラスの保持温度に関わらず照射パルス数の増加に従い透過率は減少した。20,000パルス照射後、常温では照射開始時の82%まで透過率が減少するのに対して、100°C加熱保持では94%の低下に抑えられた。これは予測していた加熱により欠陥再結合が促進されたことを示している。しかしながら、更に保持温度を150°C、200°Cに増加した場合では、温度增加に伴い透過率低下は大きくなる結果となった。つまり、石英ガラスの透過率低下を抑制するためには、最適な保持温度があることが明らかになった。更に、加熱後常温時の測定では、加熱前常温に比べ、透過率低下は約8%抑制されている。この結果は、石英ガラスの加熱の効果は欠陥の再結合の促進だけでなく、欠陥が生成しにくい改質することを意味している。今後詳細な分析、評価が必要である。

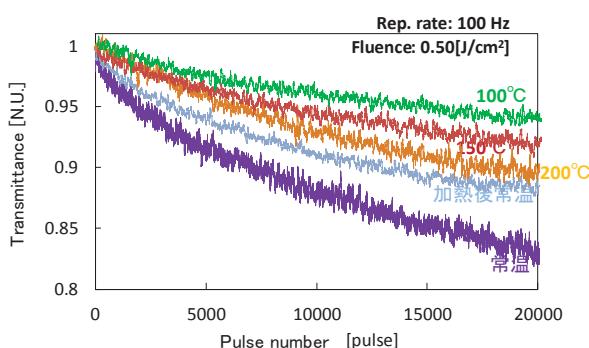


図3 繰返しパルス照射時の石英ガラス透過率の変化

## まとめ

紫外線レーザー照射により生成される石英ガラス内部の欠陥について、レーザー照射時のガラス保持温度との関係を評価した。レーザー誘起欠陥の生成を抑制する最適な温度があることが分かった。また、一度加熱した石英ガラスは常温においても欠陥が生成されにくくなることが分かった。

## 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] 本越伸二他、核融合研究 **68**, 243 (1992).
- [3] S.Motokoshi, et al., Jpn. J. Appl. Phys., **33**, L1530 (1994).
- [4] K.Starke, et al., Proc. of SPIE, **5273**, 388 (2004).
- [5] Y. Takemura, et al.: Extended Abstracts of the 24th Congress of the International Commission for Optics, Tokyo, Th2C-05 (2017)
- [6] 豊田新：地球化学, **32**, 130 (1998)

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

Hiraku Ogino<sup>1</sup>, Yuki Iwasa<sup>1</sup>, Kohei Yamanoi<sup>2</sup>, Toshihiko Shimizu<sup>2</sup>, Sarukura Nobuhiko<sup>2</sup>

<sup>1</sup>National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

<sup>2</sup>ILE, 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, Sr<sub>3</sub>Sc<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>5</sub>[2] and Sr<sub>2</sub>ScCuSO<sub>3</sub>[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 Ba<sub>3</sub>RE<sub>2</sub>Ag<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(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 succeeded to synthesize their relative compounds Sr<sub>3</sub>Sc<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and Sr<sub>2</sub>ScCuSeO<sub>3</sub>. 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 investigated detailed luminescence properties of these newly found oxyselenides. Luminescence properties, decay kinetics of the excitonic

luminescence and their temperature dependence was investigated.

## EXPERIMENTAL

Sintered bulk samples with nominal compositions of Sr<sub>2</sub>ScCuSeO<sub>3</sub> and Sr<sub>3</sub>Sc<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>O<sub>5</sub> were synthesized by solid state reactions starting from stoichiometric amounts of Cu, Se, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 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 650–900 °C for 24–100 hours, followed by slow cooling to room temperature. 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. The luminescence were measured with fiber spectrometer (StellerNet Inc., Blue-Wave). The luminescence spectra and decay times for each sample were measured using a spectrograph (groove density 600 gr/mm) with a focal length coupled to a streak camera unit (Hamamatsu C1587) and a charge-coupled device camera. The samples were excited by the third-harmonic generation (THG) of a Ti:sapphire laser operating at 290 nm. The luminescence spectra were collected at temperatures between 6.5 and 300 K.

## RESULTS AND DISCUSSIONS

Figure 1 shows the emission-decay time maps measured by a streak camera. The sharp luminescence with short decay time of several tens ps were observed at 3.07 eV (405 nm) in both materials at 6.5 K. The decay time,  $\tau_1$  and  $\tau_2$ , were evaluated by following equation.

$$I(t) = A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)$$

where  $A_1$  and  $A_2$  are constant,  $\tau_1$  and  $\tau_2$  are decay constant ( $\tau_1 < \tau_2$ ). The decay constant of  $\tau_1$  was ~20 ps and  $\tau_2$  was over 100 ps. Because  $A_1$  was over 10 times

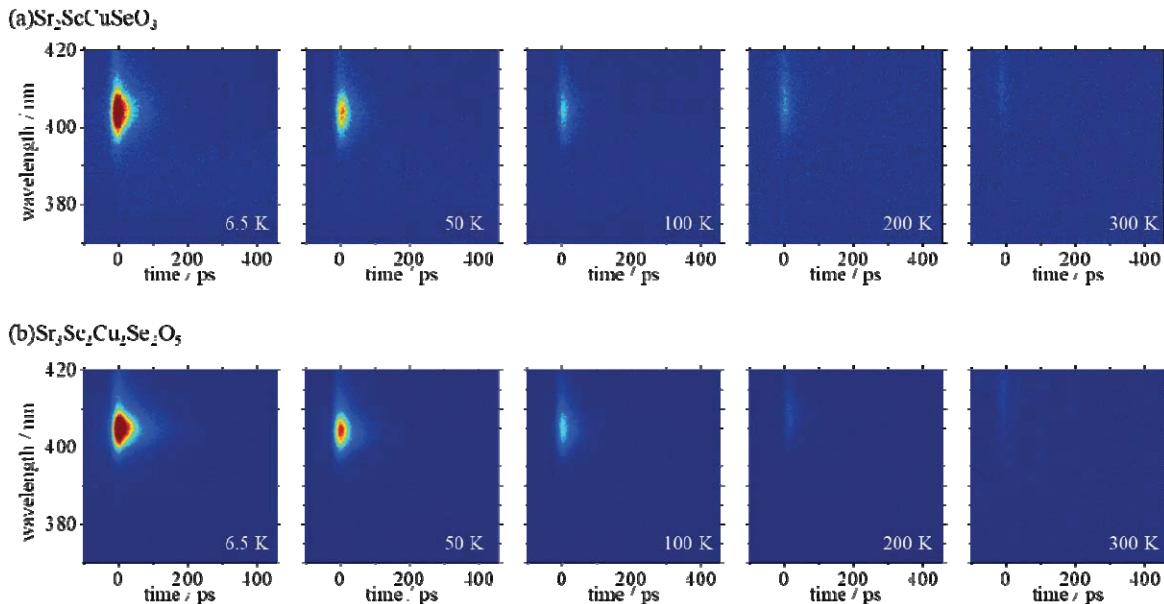


Fig. 1 The emission decay time maps at 370 nm–420 nm of (a)  $\text{Sr}_2\text{ScCuSeO}_3$  and (b)  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ .

larger than  $A_2$  at all temperature,  $\tau_1$  is the main components of the luminescence. The decay constants,  $\tau_1$ , were evaluated as 25–30 ps at 6.5 K. The decay constants of both compounds were decreased with increasing the temperature, however, due to the time resolution of instrument the constants above 50 K were not possible to obtain. These decay properties are similar to that of  $\text{Sr}_2\text{ScCuSO}_3$  and  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$ . These very fast decay have advantage to several applications such as fast scintillators.

Figure 2 shows the temperature dependence of the peak energy of  $\text{Sr}_2\text{ScCuSeO}_3$  and  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ . The peak energy of luminescence were shifted to lower energy with increasing the temperature as well as similar materials[10][14]. The peak energy at room temperature were 3.01 eV for  $\text{Sr}_2\text{ScCuSeO}_3$  and 2.98 eV for  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ . These emission energy were corresponding to the absorption peak at 3.1 eV in figure 3. The peak energy of  $\text{Sr}_2\text{ScCuSeO}_3$  shows also smaller temperature dependence than that of  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ .

The optical properties of the compounds in this study were almost similar to those of  $\text{Sr}_2\text{ScCuSO}_3$  and  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{S}_2\text{O}_5$  except for emission energy. According to these results, the fast excitonic luminescence can be controlled its emission energy by selecting composition of the material. This makes us flexible to design an application like scintillator.

## CONCLUSIONS

New layered mixed-anion compounds,  $\text{Sr}_2\text{ScCuSeO}_3$  and  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ , were successfully synthesized and their luminescence properties were investigated. The excitonic luminescence were observed at even room temperature. The decay time of luminescence were 30 ps at 4.5 K and decreased with increasing temperature. The  $\text{Sr}_2\text{ScCuSeO}_3$ , which have longer distance between semiconductor-layer than  $\text{Sr}_3\text{Sc}_2\text{Cu}_2\text{Se}_2\text{O}_5$ , shows smaller temperature dependence. These fast excitonic luminescence can be controlled its

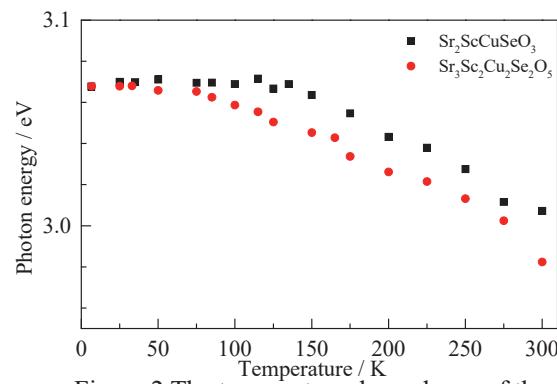


Figure 2 The temperature dependence of the peak energy of the emission.

emission energy by selecting composition of the material.

## ACKNOWLEDGEMENT(S)

This work was supported by many collaborators. 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. Otzschi, 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

# Spectroscopic study of Praseodymium and Cerium co-doped APLF glass as improved neutron scintillator

**Marilou Cadatal-Raduban<sup>1</sup>, John A. Harrison<sup>1</sup>, Melvin John F. Empizo<sup>2</sup>, Takahiro Murata<sup>3</sup>, Yuki Minami<sup>2</sup>, Keisuke Kawano<sup>2</sup>, Kohei Yamanoi<sup>2</sup>, Toshihiko Shimizu<sup>2</sup>, Nobuhiko Sarukura<sup>2</sup>, Malgorzata Guzik<sup>4</sup>, Yannick Guyot<sup>5</sup>, and Georges Boulon<sup>5</sup>**

<sup>1</sup>Institute of Natural and Mathematical Sciences, Albany, Auckland 0632 New Zealand, <sup>2</sup>Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871 Japan, <sup>3</sup>Faculty of Education, Kumamoto University, 2-40-1 Kurokami, Chuo-ku, Kumamoto 860-8555 Japan, <sup>4</sup>Faculty of Chemistry, University of Wroclaw, ul. Joliot-Curie 14, Wroclaw 50-383 Poland, <sup>5</sup>Univ Lyon, Université Claude Bernard Lyon1, CNRS, Institut Lumière Matière, Villeurbanne 69622 France

## INTRODUCTION

Efficient detection of scattered neutrons is crucial for realizing the potential of inertial confinement fusion as a sustainable energy source. The efficiency of the nuclear fusion event is derived from the plasma areal density that can be measured using several methods, the most desirable of which is down-scattered neutron diagnostics. Therefore, a scintillator having a response time of less than 20 ns and high quantum efficiency for the scattered neutrons is needed. Lanthanide ions, known for their wide emission bands in the vacuum ultraviolet and ultraviolet regions, have been used as activator dopants in APLF [1]. The fluorescence band of optically-activated lanthanides translates to shorter lifetime in the order of  $\lambda^3$  [2], which could satisfy one of the above-mentioned criteria for an efficient scintillator. Lanthanide ions singly-doped with APLF yield faster response times than either Ce-doped lithium silicate glasses or the glass scintillator GS2 where decay lifetimes range from 50 to 70ns [3]. The decay time profiles of singly-doped APLF vary depending on the concentration and species of the activator ions, which are 4-6.6 ns with Nd<sup>3+</sup> [4], 5.8-31ns with Er<sup>3+</sup> [4], 16-19.3ns with Pr<sup>3+</sup> [5], and 23.3-40 ns with Ce<sup>3+</sup> [6] with radioactive, optical, or x-ray excitation. However, there is a usual tradeoff between short decay time and therefore fast response and emission intensity, which can result to very fast detector but with poor light throughput. Therefore, this project investigates the effects of codoping APLF with Pr<sup>3+</sup> and Ce<sup>3+</sup> ions. We evaluate the optical characteristics based on photoluminescence excitation (PLE), photoluminescence spectroscopy (PL), and time-resolved photoluminescence (TRPL) analyses for fixed Pr<sup>3+</sup> and Ce<sup>3+</sup> concentration ratio in the host glass. We selected Ce<sup>3+</sup> as co-activator due to its high fluorescence yield [7] and Pr<sup>3+</sup> dopant for its short decay

time [5]. Singly-doped APLFs with either Ce<sup>3+</sup> or Pr<sup>3+</sup> have been recently shown to be capable of discriminating down-scattered neutrons against background X-rays, primary neutrons, and gamma signals in inertial confinement fusion investigations [8]. Although codoping of lanthanides with other host materials has been reported for phosphor displays in the visible to near infrared [7], this study focuses on the spectral and temporal responses in the UV region. Some of the expected 4f5d $\rightarrow$ 4f transitions of Pr<sup>3+</sup> fall below 200nm so the optical characterizations of singly-doped Pr<sup>3+</sup> or Ce<sup>3+</sup> APLF and codoped APLF were also examined using the spectroscopy beamline (BL7B) of the Institute of Molecular Science (IMS, Japan) Ultraviolet Synchrotron Orbital Radiation (UVSOR) facility. It is shown that in comparison to singly-doped APLF, codoping can provide 4 times improvement in response time due to Pr<sup>3+</sup> luminescence. The fast response time is attributed to a fast energy transfer from the 4f5d level of Pr<sup>3+</sup> and the 5d level of Ce<sup>3+</sup>. With four times improvement in response time, this material may enable very fast detection of secondary neutrons in inertial confinement fusion.

## EXPERIMENT

Two singly-doped and one codoped 20Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-80LiF + xPrF<sub>3</sub> + yCeF<sub>3</sub> (x=0, 1; y = 0, 0.5) samples were prepared by the melt-quenching method described in [2]. Namely, these were: APLF+1Pr0Ce, APLF+0Pr1Ce, and APLF+1Pr0.5Ce. The precursor materials consisted of high-purity aluminum metaphosphate (Al(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>), lithium fluoride (LiF), 6Li-enriched LiF, praseodymium fluoride (PrF<sub>3</sub>) and cerium fluoride (CeF<sub>3</sub>) powders. All the starting materials were mixed in a glassy carbon crucible and were melted for 0.5h at 1100°C in nitrogen atmosphere. The glass melts were cooled to 400°C and were

subsequently annealed near the glass transition temperature. The glasses were cooled down to room temperature, and finally were cut into 22 mm diameter  $\times$  6 mm thickness disks and polished on both sides to an optical finish.

The spectral properties of APLF+1Pr0Ce, APLF+0Pr1Ce, and APLF+1Pr0.5Ce were characterized using PLE and PL measurements under 200nm excitation at the IMS-UVSOR facility. The PL spectra were also measured under 217nm excitation using the fourth harmonics of Ti-sapphire regenerative amplifier at room temperature. The photoluminescence lifetime was measured with the same excitation at 1kHz repetition rate and 100fs laser pulse duration focused on the APLF glass surface. The luminescence was collected and focused onto an imaging spectrograph with streak camera and digital CCD camera attachments.

## RESULTS AND DISCUSSIONS

The spectral characteristics were evaluated for singly-doped and codoped samples. Figure 1 shows the PL spectra under 217nm excitation for singly-doped and codoped APLF glasses. Two distinct luminescence peaks are attributable to each dopant emissions. The asymmetric luminescence band from 220 to 285nm corresponds to the  $4f5d \rightarrow 4f$  transition of  $Pr^{3+}$ . The luminescence intensity at 238nm is more intense than at 260nm for both APLF80+1Pr0Ce and APLF80+1Pr0.5Ce samples. The luminescence peak at 337nm is ascribed to the  $5d \rightarrow 4f$   $Ce^{3+}$  transition. From PL spectra, we can discriminate the respective luminescence of each activated ion and measure the respective response times.

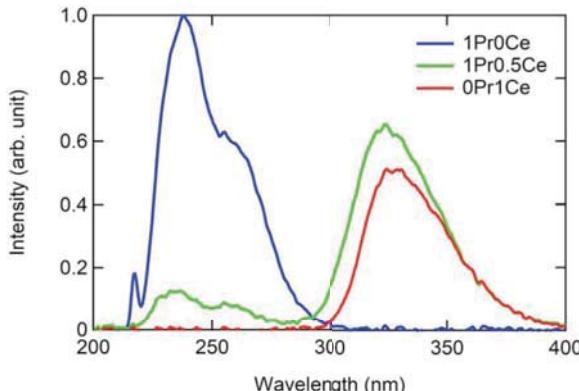


Fig. 1. PL spectra of APLF+1Pr0Ce APLF+0Pr1Ce, and APLF+1Pr0.5Ce under 217 nm excitation.

Figure 2 shows the streak camera images of the fluorescence for singly-doped and codoped APLF samples under 217nm excitation. A single exponential function was used for fitting each respective decay profiles. The fluorescence decay time is 17.7ns for APLF80+1Pr0Ce and 30.6ns for APLF80+0Pr1Ce luminescence. With codoping, the luminescence lifetime of  $Pr^{3+}$  around 270 nm is improved to 5.5ns. This

response time is four times (4x) shorter than the APLF80+1Pr0Ce sample and the 19.6ns lifetime previously obtained of APLF+Pr3+ [5] under similar concentration, optical excitation, and temperature condition. For the  $Ce^{3+}$  luminescence, the decay time has somewhat broadened to 35ns but the emission intensity was increased. From the luminescence observations, we can infer that the 5d energy level of  $Ce^{3+}$  is the more efficient at light-emitting state than the 4f5d levels of  $Pr^{3+}$  in codoped APLF supporting the possibility of energy transfer between the two excited levels. Measurements are underway to investigate further the transfer mechanism and co-activation process brought by codoping.

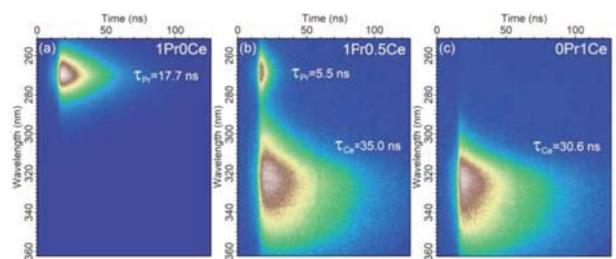


Fig. 2. Streak camera images of photoluminescence around 270 and 330 nm of (a) APLF+1Pr0Ce, (b) APLF+0Pr1Ce, and (c) APLF+1Pr0.5Ce under 217nm excitation. The fluorescence decay times of singly-doped APLF are 17.7ns for  $Pr^{3+}$  and 30.6ns for  $Ce^{3+}$  luminescence. The luminescence lifetime of  $Pr^{3+}$  is 5.5ns and of  $Ce^{3+}$  is 35ns for codoped APLF.

## CONCLUSIONS

In summary, we have investigated the spectral properties of  $Pr^{3+}$  and  $Ce^{3+}$  codoped APLF glass. We were able to discriminate the luminescence band from each ion and achieved 5.5ns decay time in  $Pr^{3+}$  luminescence. This is four times improvement of singly-doped APLF.  $Ce^{3+}$  was found to be the more efficient light-emitting state than  $Pr^{3+}$  in codoped APLF. Fast response time in  $Pr^{3+}$  and increased emission intensity of  $Ce^{3+}$  is attributed to a fast energy exchange from the 4f5d level of  $Pr^{3+}$  and the 5d level of  $Ce^{3+}$ . The energy transfer mechanism and co-activation needs further investigation, but with four times improvement in response time, codoped APLF may find application as a fast scintillator for inertial confinement fusion.

## ACKNOWLEDGEMENTS

This work was supported by the Osaka University Institute of Laser Engineering (ILE) through the Collaborative Research Program Grant No. 2018B1-RADUBAN, by the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS) through the Grants-in-Aid for Scientific Research (KAKENHI) Grant No. 16K06725, and by the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) through the Program for Creation of Research Platforms

and Sharing of Advanced Research Facilities (Photon Beam Platform).

## REFERENCES

- [1] K. Watanabe, Y. Arikawa, K. Yamanoi, M. Cadatal-Raduban, T. Nagai, M. Kouno, K. Sakai, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, A. Yoshikawa, T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, N. Izumi, N. Satoh, H. Kan, *J. Cryst. Growth* 362, (2013) 288-290.
- [2] T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, Y. Arikawa, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Azechi, K. Kamada, Y. Usuki, T. Suyama, A. Yoshikawa, N. Sato, and H. Kan, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 57, 3 (2010) 1426-1429.
- [3] D.C. Wilson, W.C. Mead, L. Disdier, M. Houry, J.L. Bourgade, and T.J. Murphy, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A Accel. Spectrom. Detect. Assoc. Equip.*, 488, (2002) 400–409.
- [4] K. Yamanoi, T. Murata, Y. Arikawa, T. Nakazato, M. Cadatal-Raduban, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, T. Norimatsu, H. Nishimura, H. Azechi, S. Fujino, H. Yoshida, A. Yoshikawa, N. Satoh, and H. Kan, *Opt.Mater.* 35, (2013) 1962–1964.
- [5] M.J.F. Empizo, M. Cadatal-Raduban, T. Murata, Y. Minami, K. Kawano, K. Yamanoi, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Guzik, Y. Guyot, Georges Boulon, *J. Lumin.* 193, (2018) 13-21.
- [6] K. Yamanoi, T. Murata, T. Yanagida, Y. Fujimoto, M.J.F. Empizo, K. Iwano, Y. Iwasa, R. Arita, Y. Minami, Y. Arikawa, T. Shimizu, N. Sarukura, T. Norimatsu, H. Azechi, S. Fujino, H. Yoshida, N. Satoh, and H. Kan, *Sensors Mater.* 27, 3 (2015) 229–235.
- [7] R. Guan, L. Cao, Y. You, and Y. Cao, *J. Nanomater.* 2015, (2015) 549208.
- [8] Y. Arikawa, K. Yamanoi, T. Nakazato, E.S. Estacio, T. Shimizu, N. Sarukura, M. Nakai, H. Hosoda, T. Norimatsu, Y. Hironaka, H. Azechi, N. Izumi, T. Murata, S. Fujino, H. Yoshida, K. Kamada, Y. Usuki, T. Suyama, A. Yoshikawa, N. Satoh, and H. Kan, *Rev. Sci. Instrum.* 81, (2010) 10D303.

# 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

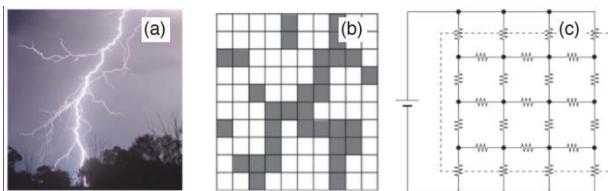
## 1. はじめに

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、それによって、将来の、光学素子の耐力を高め、レーザーの性能、信頼性を高める研究・開発に貢献することである。

光学損傷は、レーザーの発明当時から研究されているが、複雑な現象で、メカニズムの解明は不十分である。光学損傷の特徴は、材料中の原子の多光子吸収、欠陥による吸収などのミクロな過程がきっかけとなって、目で見える大きさのマクロな材料の破壊が起こることで、損傷の発生には確率的な性質が強く、予想よりもはるかに低いレーザー強度で損傷が発生することもあり、その特性をよく理解することは、レーザー装置を適切に運用するためにも重要である。

光学損傷は、放電、ブレークダウン現象の一つであると言われることがある。雷放電のような放電、ブレークダウン現象において、ミクロな原子分子過程がきっかけになり、複雑な経路を通って、放電が突然発生すること、マクロな現象が起こることに関し、本研究の研究代表者は、図1のように、現象の特性が、統計モデルの一つであるパーコレーションモデルによって表現されることを示した[1,2]。

光学損傷の場合は、材料中の原子の多光子吸収、欠陥による吸収などのミクロな過程によって伝導電子が発生し、それがレーザー光の電界によって加速されて電子雪崩が起きることを経て、材料の損傷が起こると考え、本研究では、パーコレーションの考え方に基づき、光学損傷の特性の理論、シミュレーションによる解析を試みることにした。



(図 1) 放電のパーコレーションモデルの模式図。  
(a) 大気中の放電の例、(b) セルでの表現、(c) 電気回路での表現。

## 2. 光学損傷の理論的研究

強いレーザー光を照射された光学材料の内部では、伝導電子が生成されると考えられる[3,4]。その具体的な過程には、エキシトンやポーラロンが関与するもの、欠陥が関与するものなど、さまざまなもの

のが考えられるが、それを抽象化、一般化すると、原子状態を初期状態と励起状態の二つで表した、図2のような原子過程モデルで表すことができると考えられる。

初期状態の光学材料は絶縁体で透明であるが、伝導電子が生じると、その場所が局所的に導電体に転移し、光を吸収するようになると考えられる。そして、それによって融点を超える温度まで加熱されると、材料の構造の破壊、損傷に至ると考えられる。



(図 2) 光学材料の原子過程モデル

図2のような原子過程において、初期状態、励起状態、損傷した状態の分布、ポピュレーションは、レート方程式で表される。

均一な媒質の中では、レート方程式は、各場所でのそれぞれの状態の割合を与える。しかしいま、まれな現象を対象として、かつそれがそれぞれの場所で確率的に発生すると考えると、レート方程式を解いた結果は、空間の中で、それぞれの状態が実現している領域、ここではすなわち絶縁体と導電体の領域の体積の割合に対応すると考えられる。

パーコレーションの理論は、単純な立方格子を考えた場合、空間に絶縁体と導電体の領域が分布しているときに、もしも導電体の領域割合が、2次元で約0.5以上、3次元では約0.25以上であったとすれば、考えている領域全体が導電体になると言ふ。

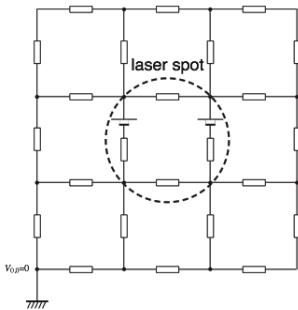
いくつかの光学材料については、二光子励起の吸収断面積や、それによって生成した、導電体の状態の光の吸収係数などの量が求められている。それを用いると、レーザー光を照射した時の加熱の大きさを評価することができ、それから損傷閾値のレーザー強度の大きさを推定することができる。また、励起状態からの緩和のレートが、励起のレートよりも十分小さい場合、損傷閾値のレーザー強度が、パルス幅の1/2乗に比例すると言う、実験でしばしば観測されている特性をも求めることができる。そこで本研究では、現在、ZnSeなどの材料について、パーコレーション理論で求められた損傷閾値とそのパラメータ依存性について、比較を行い、モデルの検証を進めている[5,6]。

### 3. 光学損傷のシミュレーション

パーコレーション理論は、0次元の物性値としての光学損傷の閾値を与えるが、実際の損傷の発生には、局所的な損傷が周囲へと発展する過程、すなわち材料の各場所の間で起こる相互作用、それによって生成する損傷のモルフォロジーも重要である。放電の生成においては、例えば、伝導電子が生成しドリフトすることで周囲の電界が歪み、電子が加速され、衝突電離などを経て増倍され、電子雪崩に発展することが知られている。そこで本研究では、損傷の時間的、空間的な発展を扱うシミュレーションのモデルを構築することにした。

シミュレーションのモデルは、電気回路の言葉でパーコレーション現象を表すモデルで、以前の放電のシミュレーションのモデル[1,2]をもとに、図3に示す抵抗ネットワークからなる電気回路のモデルを考えた。計算量の制約から、まず、薄膜などを想定して2次元のモデルを構築した。材料の特性を直流抵抗で表し、印加されたレーザーの電界を各要素に直列に挿入した起電力で与えた。そして、電気回路の方程式を解くことによって、各場所の電流、電界の値を求めた。

各抵抗の値は、絶縁体に当たる高い状態と、導電体に当たる低い状態の2値のいずれかとし、初期状態では高く、強いレーザー光の照射で二光子励起が起こったら、低い値に転移するとした。そして転移が起こる抵抗は、レート方程式で与えられる確率をもとにランダムに選択されたとした。



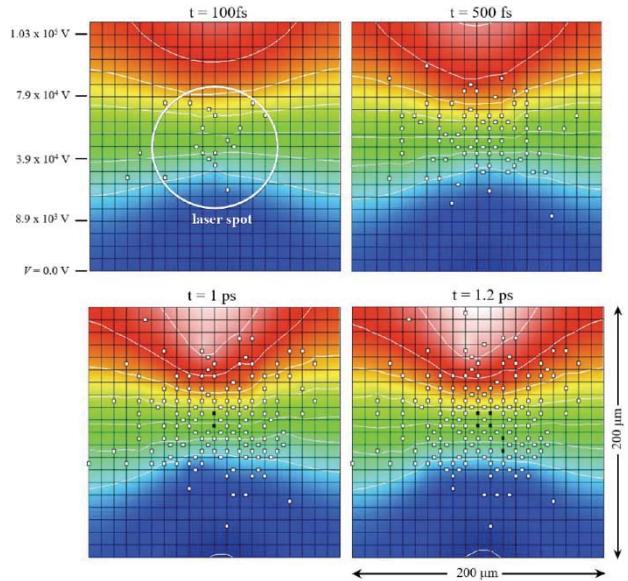
(図3) 光学材料の  
2次元の電気回路モデル

このモデルでは、ただ一点で絶縁体から導電体への転移が起こっても電流は流れない。周囲の要素でも導電体への転移が起こり、電流の経路ができることによって初めて大きな電流が流れるようになる。それはまた電界の歪みを引き起し、その大きさはレーザーの電界と同程度になるため、レーザーの直接の効果に加えた導体転移を起こす。このようにして最初に導電体への転移が起こった場所から現象が周囲に波及するという点で、要素間の相互作用も記述する。これによって、回路モデルは、電子雪崩の特性も適切に再現すると考えられる。

さらに、回路モデルは、レーザー光の電界によって駆動された電流が抵抗を流れることでジュール加熱が起こることも表現し、それによる各部の温度の上昇の計算を経て、損傷の発生も評価することができる。

具体的にテスト計算を行った結果を図4に示す[7]。ミラーの中央部に、時刻0 sより強度が一定のレーザー光を照射したとして、損傷の時間発展の計算を行った。タイムステップごとに、各セルにおける

二光子励起（および緩和）の確率を求め、乱数を用いて各セルの状態を評価した。同時に、タイムステップごとに回路方程式を解き、電流、電圧の分布を計算した。そしてその操作を繰り返し、現象の時間発展を解析した。



(図4) シミュレーションの結果のスナップショットの例。ミラー表面の電流、電圧の分布、各セルの状態等を示す。丸はレーザースポットを、白い四角は励起状態にあるセル、黒い四角は損傷されたセル、それ以外は初期状態にあるセルを示す。

### 4. 光学損傷のシミュレーション

パーコレーションの理論はスケールフリーであり、光学損傷がパーコレーションで説明できることが証明されれば、ミクロな原子過程がマクロな損傷を引き起こすことが説明できることになる。

今後、ここで示した光学損傷のモデルを、理論および実験の結果によって確立し、光学材料の高耐力化、より良い特性をもつ光学材料の設計を行い、レーザー技術の進歩に貢献したい。

### 謝辞

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・マ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。

### 参考文献

- [1] A. Sasaki et al. Phys. Rev. Lett. 105, 075004 (2010).
- [2] A. Sasaki et al. Jpn. J. Appl. Phys. 55, 026101 (2016).
- [3] S. Kato et al. Opt. Mater. Exp. 6, 397 (2016).
- [4] S. Kato et al. Opt. Mater. 40, 10 (2015).
- [5] B. C. Stuart, et al. Phys. Rev. E 53, 1749 (1996).
- [6] D. M. Simanovskii, et al. Phys. Rev. Lett. 91, 10761 (2003).
- [7] J. L. Gabayno, et al. Phys. Rev. E submitted.

# A potential photodetector device based on zinc oxide nanorods hydrothermally grown on a *p*-type silicon substrate

Erick John Carlo D. Solibet<sup>1</sup>, Raymund C. Veloz<sup>2</sup>, Melvin John F. Empizo<sup>3</sup>, Maria Cecilia A. Angub<sup>2</sup>, Horace Andrew F. Husay<sup>1</sup>, Keisuke Kawano<sup>3</sup>, Toshihiko Shimizu<sup>3</sup>, Elmer S. Estacio<sup>1,2</sup>, Arnel A. Salvador<sup>1,2</sup>, Nobuhiko Sarukura<sup>3</sup>, and Armando S. Somintac<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> National Institute of Physics, University of the Philippines Diliman, Diliman, Quezon City 1101, Philippines

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

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

## INTRODUCTION

Continuous development of optoelectronic devices has translated to significant success in various fields of science and technology such as gravitational wave detection, advanced medical terahertz (THz) imaging, modern solar cell technologies, and high-power laser systems. As the widely used optoelectronic devices, photodetectors are regarded as one of the most integral because of their ability to precisely convert electromagnetic radiation to usable electronic signals. To contend with the decreasing scale of modern devices, recent investigations have mainly focused on utilizing nanomaterials for device fabrication [1]. Since the device performance depends largely on the inherent characteristics of the material components, material selection and device design are important towards the development of low-cost and efficient photodetectors. On the other hand, zinc oxide (ZnO) is a readily available II-VI semiconductor compound which is similar to gallium nitride (GaN) in terms of properties and applications. Its wide and direct band gap (3.37 eV) and large exciton binding energy (60 meV) enable intense and efficient ultraviolet (UV) emissions at room or higher temperatures [2]. Different fabrication procedures have then been implemented to produce a wide variety of ZnO films and nanostructures. Among these techniques, the hydrothermal growth method is a simple and versatile way to synthesize ZnO nanostructures. Unlike physical vapor deposition methods such as magnetron sputtering, pulsed-laser deposition (PLD), and metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD), hydrothermal growth involves fabrication at low temperatures using tabletop equipment without any vacuum requirements and precise gas concentrations.

In this regard, we report the fabrication and characterization of a potential photodetector device

based on ZnO nanorods hydrothermally grown on a *p*-type silicon (Si) substrate. Vertically aligned ZnO nanorods are synthesized directly on a seeded *p*-type Si substrate using hydrothermal growth method. The direct growth of highly-oriented nanostructures on a *p*-type semiconductor wafer is beneficial for mass production and integration. A heterojunction device with vertical geometry also allows the possible injection of higher currents [3] into the device and the improvement of the emission efficiency [4] with the increase in the material density or surface-to-volume ratio. Moreover, a very thin aluminum (Al)-doped ZnO film is also deposited on top of the nanorods to allow contact among the nanorod tips by creating a continuous layer above the nanostructures. Compared with previous investigations, this work specifically aims to identify the structural, optical, and electrical properties of the fabricated *p-n* heterojunction, to assess its performance as a potential UV photodetector, and to provide important insights on *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction device fabrication.

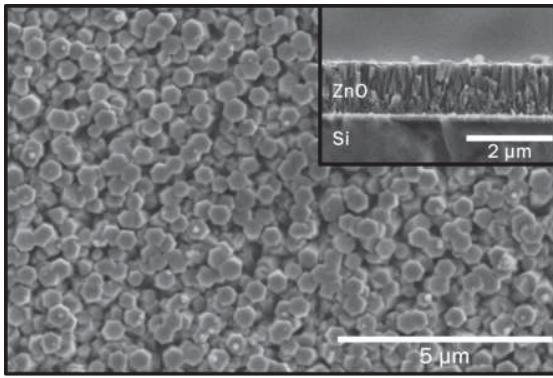
## FABRICATION

A *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction was fabricated based on ZnO nanorods hydrothermally grown on a seeded (100) Si substrate. The *p*-type Si substrate was initially cleaned using trichloroethylene ( $C_2HCl_3$ ), acetone ( $C_3H_6O$ ), and methanol ( $CH_3OH$ ) solvents through successive ultrasonication. A thin ZnO seed layer was subsequently deposited on the substrate surface via spray pyrolysis technique. The substrate was sprayed with 50 mL 50 mM zinc acetate dihydrate [ $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ , ZnAc] solution every 15 s while being maintained at 350 °C for 60 min. ZnO nanorods were then synthesized on the seeded Si substrate through hydrothermal growth method. The substrate was submerged into a 200 mL mixture of 25 mM ZnAc and 40 mM hexamethylenetetramine [ $(CH_2)_6N_4$ , HMTA] aqueous solutions. After heating at 85 °C for 180 min, the

substrate was removed from the ZnAc-HMTA mixture, was rinsed with deionized water, and was dried in air. A 2.0 mole percentage (mol %) Al-doped ZnO thin film was soon deposited on top of the ZnO nanorods also via spray pyrolysis technique. The nanorods were sprayed with a 100 mL mixture of 50 mM ZnAc and 1 mM aluminum chloride ( $\text{AlCl}_3$ ) aqueous solutions and were annealed at 500 °C for 30 min. Silver (Ag) contacts were deposited on the backside of the Si substrate, while indium (In) contacts were patterned as a grid with 0.3 mm finger width and 1.0 mm finger spacing on top of the Al-doped thin film.

## CHARACTERIZATION

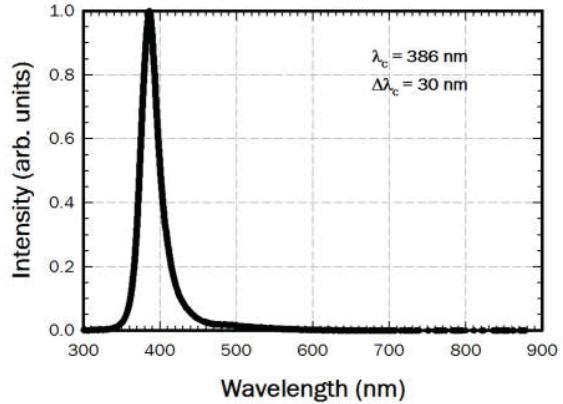
Figure 1 shows the plan-view and cross-sectional SEM images of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. The sample surface is occupied by hexagonal rod-like structures which have average widths of 480 nm and share common sides and boundaries. These nanostructures appear to be the hydrothermal-grown nanorods since there are no clear distinctions between the nanorods and the Al-doped thin film due to their relative thicknesses (i.e., the nanorod layer is much thicker than the thin film layer). Standing perpendicular to the substrate surface, the nanorods have average lengths of 1.15  $\mu\text{m}$  which is also the apparent thickness of the ZnO nanorod-thin film layer. These observations suggest that the heterojunction's ZnO layer is predominantly made up of vertically aligned, hexagonal ZnO nanorods.



*Fig. 1. SEM images of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. The heterojunction's ZnO layer is predominantly made up of vertically aligned, hexagonal ZnO nanorods.*

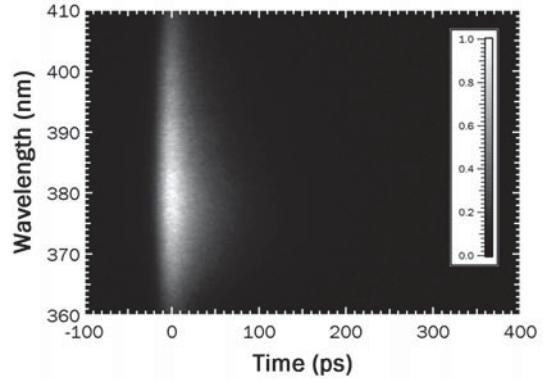
Figure 2 depicts the TIPL spectrum of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. The heterojunction exhibits only an intense UV emission which has a peak position at 386 nm (3.21 eV) and a spectral linewidth of 30 nm. This UV emission which corresponds to the near-band-edge ZnO emission [2] is slightly red-shifted compared with the usual room-temperature ZnO emission at  $\sim$  380 nm (3.26 eV). Strong or broad visible emissions, which are typically manifested by various defects in ZnO nanostructures and thin films, are also not observed. These results suggest that the heterojunction is fabricated with ZnO nanorods exhibiting good optical

quality.



*Fig. 2. TIPL spectrum of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. The heterojunction only exhibits an intense UV emission with a peak position ( $\lambda_c$ ) at 386 nm and a spectral linewidth ( $\Delta\lambda_c$ ) of 30 nm.*

Figure 3 shows the UV emission intensity distribution of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. The heterojunction exhibits intense and fast characteristic UV emission at room temperature. From this intensity distribution, the UV emission profile which is integrated from a 30 nm spectral region around the peak position is shown in Fig. 4. A single exponential function is fitted on the decaying part of the profile to determine the UV emission lifetime. The observed lifetime is faster than those reported for undoped bulk ZnO crystals (1 to 3.5 ns) [5] and comparable to intentionally doped bulk ZnO (3.1 to less than 100 ps) [6, 7] under UV excitation. These observations suggest that the heterojunction is fabricated with ZnO nanorods exhibiting a relatively fast decay (response) time.



*Fig. 3. UV emission intensity distribution of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. The heterojunction exhibits an intense and fast characteristic UV emission at room temperature.*

Figure 5 compares the current-voltage (*I*-*V*) curves in the reverse bias region of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction with and without UV illumination. In this operation quadrant of photodetectors, the heterojunction has higher currents with UV illumination resulting in an average contrast (photo-to-dark current) ratio of 1.21.

From 0 to -1.0 V, the measured currents are also linearly dependent on the applied voltage wherein the slope is equal to the inverse of resistance ( $1/R$ ). Aside from higher currents, the heterojunction exhibits a lower 13 k $\Omega$  resistance (i.e., higher conductivity) with UV illumination compared to the 19 k $\Omega$  resistance without UV illumination. These results indicate that the heterojunction responds to incident UV light and that similar *p-n* heterojunction designs can be used as potential UV photodetectors.

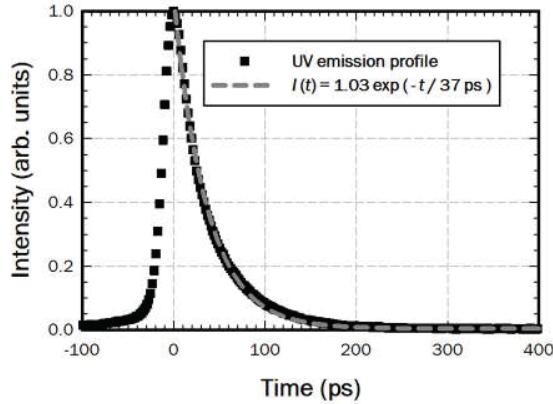


Fig. 4. UV emission profile of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction. By fitting a single exponential function on the decaying part of the profile (broken gray lines), the heterojunction has been found to exhibit a UV emission lifetime of 37 ps.

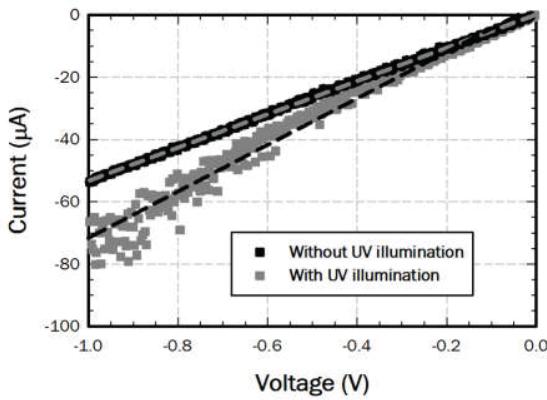


Fig. 5. *I-V* curves in the reverse bias region of the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction with and without UV illumination. In this operation quadrant of photodetectors, the heterojunction has higher currents with UV illumination resulting in an average contrast (photo-to-dark current) ratio of 1.21.

## SUMMARY

We have reported the fabrication and characterization of a potential photodetector device based on ZnO nanorods hydrothermally grown on a *p*-type Si substrate. The fabricated heterojunction is predominantly made up of 1.15  $\mu$ m long and 480 nm wide vertically aligned, hexagonal ZnO nanorods above the Si substrate. In addition, the nanostructures also exhibit hexagonal wurtzite crystal structure and intense

37 ps, 386 nm emission without any defect-related visible emissions. With good rectifying current-voltage behavior, the hydrothermal-grown ZnO nanorods form a *p-n* junction with the Si substrate. Furthermore, the fabricated *p*-Si/*n*-ZnO heterojunction responds to the incident UV light resulting in an average contrast ratio of 1.21 along with currents higher and resistance lower than without illumination. Similar heterojunction designs are therefore suggested to be used as potential fast-response UV photodetectors since the present approach can easily produce a high density of ZnO nanorods on larger Si wafers and is compatible with the current Si-based technologies. Additional investigations on the utilization of hydrothermal-grown ZnO nanorods as viable photodetector materials are nevertheless anticipated in the future.

## ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by the Osaka University Institute of Laser Engineering through the Collaborative Research Program Grant No. 2018B1-SOMINTAC and by Osaka University through the International Joint Research Promotion Program. This particular investigation was also performed in part under the auspices of the Department of Science and Technology Philippine Council for Industry, Energy and Emerging Technology Research and Development (DOST PCIEERD) and the National Research Council of the Philippines (NRCP).

## REFERENCES

- [1] H. Chen, H. Liu, Z. Zhang, K. Hu, and X. Fang, *Adv. Mater.* **28**, 403 (2016).
- [2] H. Morkoç and U. Özgür, *Zinc oxide: Fundamentals, materials and device technology* (Wiley-VCH, Weinheim, 2009).
- [3] S. W. Lee, H. D. Cho, G. Panin, and T. W. Kang, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 093110 (2011).
- [4] D. C. Kim, W. S. Han, H. K. Cho, B. H. Kong, and H. S. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 231901 (2007).
- [5] M. Tanaka, M. Nishikino, H. Yamatani, K. Nagashima, T. Kimura, Y. Furukawa, H. Murakami, S. Saito, N. Sarukura, H. Nishimura, K. Mima, Y. Kagamitani, D. Ehrentraut, and T. Fukuda, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 231117 (2007).
- [6] T. Shimizu, K. Yamanoi, K. Sakai, M. Cadatal-Raduban, T. Nakazato, N. Sarukura, M. Kano, A. Wakamiya, D. Ehrentraut, T. Fukuda, M. Nagasono, T. Togashi, S. Matsubara, K. Tono, A. Higashiya, M. Yabashi, H. Kimura, H. Ohashi, and T. Ishikawa, *Appl. Phys. Express* **4**, 062701 (2011).
- [7] M. Kano, A. Wakamiya, K. Sakai, K. Yamanoi, M. Cadatal-Raduban, T. Nakazato, T. Shimizu, N. Sarukura, D. Ehrentraut, and T. Fukuda, *J. Cryst. Growth* **318**, 788 (2011).

# 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<sup>1</sup>, 時田 茂樹<sup>2</sup>, 橋爪 光<sup>3</sup>, 村山 純平<sup>1</sup>, 新述 隆太<sup>1</sup>

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

## INTRODUCTION

長らく月は無水の岩石天体だと考えられてきたが、Saal et al. (2008)<sup>[1]</sup>をはじめに、月岩石の一部の鉱物やガラスの中に水が発見され<sup>[2]</sup>、月マントル中に、存在した内部水であると推測されている。また、リモートセンシング技術の発達により、月極域表面近傍には微量の水が存在する（0.5%～20% 推測値）ことが示唆されている<sup>[3][4]</sup>。しかし正確な水の存在する位置や量は定かではなく、月面その場観測が期待されている。これは、微量水のサンプルリターンでは、多量にある地球水による汚染が回避できないからであり、さらには月面における水の起源や存在時間を知るために水の同位体測定が望ましい。

宇宙機搭載可能な装置として、レーザー同位体分析法は、軽量に構成されるので有利である。これは同位体分子ごとによって吸収波長がわずかに異なることを利用し、測定物質の数密度決定や同位体分析を行う手法であり、既に地上では半導体レーザーを用いた光学分析計が微量水分計測用や同位体測定用として広く普及している。本研究では、惑星科学的に意味ある精度を保ちつつ、宇宙機搭載用の軽量かつ堅牢な同位体分析装置を実用化することを目的としている。安定な水素同位体はDとHの2種類で、蒸発時などで質量同位体分別効果が大きいことが特徴である。そのため測定では大まかに10%程度の精度があれば、彗星起源(D rich)なのか地球的か、あるいは太陽風(H rich)の影響が大きいかを知ることができる。より詳細には、酸素同位体<sup>16</sup>Oと<sup>17</sup>O、<sup>18</sup>Oを用いて、それぞれのδ値(標準海水からの偏差)をとることで、質量分別作用と太陽系における起源の違いを区別することができる。す

なわち、彗星起源を区別するためには10%、コンドライト隕石の起源を区別するためには1%の精度が要求される。

本年度は、2.7μm帯のTDLAS(Tunable Diode Laser Absorption Spectrometer)について、水素同位体、酸素同位体の測定精度の検証を行った。また同位体を一度測定すると、セル内に吸着残留した同位体による影響が次回の測定に発現する(memory効果と呼ぶ)ため、その影響の調査を行った。

## EXPERIMENTS

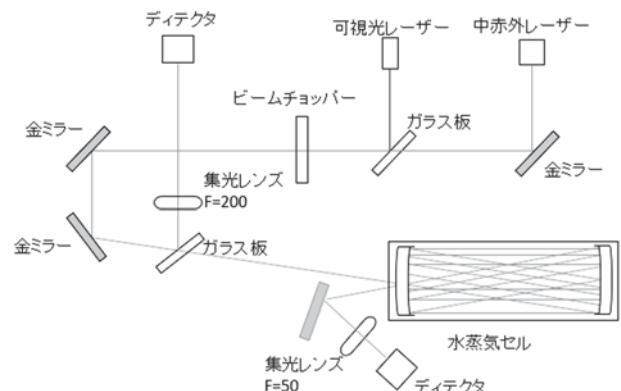


Fig.1 Configuration of TDLAS (2.7μm). Herriott Type mirrors with focal length of 0.2m were set for a vapor cell of 300 mm in length and at 70 mm in diameter. Typical pressure in vapor cell was set to 2000 Pa. Optical signals were detected with lock-in amplifiers at 200Hz.

実験配置図をFigure.1に示す。レーザーはDFB-260290(Nanoplus社)を用い、温度制御で2729.5nm～2734.5nmを掃引する。水蒸気セル(容積1350cm<sup>3</sup>)には、試料投入用のinletが設けてあり、一度に水50μリットルをセルに封入することができる。レーザーは、チョッパーによる振幅変調および直接変調による周波数変調が可能であるが、以下の実験

ではすべて振幅変調(200Hz)で位相検波計測を実施した。入射光とセルを通過した出射光についてその比をとり、吸光度とした。すなわち、

$$-\ln\left(\frac{I_{out}}{I_{in}}\right) = \sigma(\lambda)nL$$

ここで、 $I_{out}$ : 出射光、 $I_{in}$ : 入射光、 $\sigma(\lambda)$ : 波長 $\lambda$ における吸収断面積、 $n$ : 同位体数密度、 $L$ : 光路長。なお、今回の光路長は 240cm であった。

## RESULTS

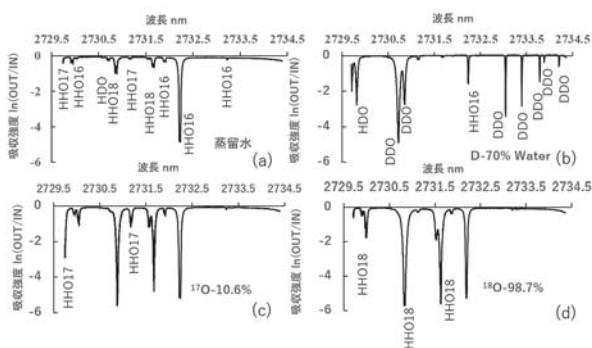


Fig. 2. Water isotope spectra for (a) distilled water, (b) D-70% (HDO42%) , (c)  $^{17}\text{O}$  enriched 10.6% and (d)  $^{18}\text{O}$  enriched 98.7%. Temperature and pressure was set to 18°C and 2000 Pa, respectively.

蒸留水および同位体を濃縮した試料水に対する赤外吸収スペクトルを Fig. 2 に示す。得られたスペクトルを HITRAN データーベースと比較しつつ、濃度に応じて増大するピークを識別した。蒸留水では弱くて観察されない同位体ピークが、高濃度試料では観測されていることがわかる。

一般に光学測定では、吸収線ごとに飽和特性が異なり、高吸収域で濃度を決定する場合は、注意が必要であるが、用いるレーザーで各同位体分別能力があることは確認できた。ただし、今回使用する波長域、光路長で計測する限り、HDO の強い吸収は、2730.728nm でのみ観測でき、積分強度で計測する場合は隣接する HHO (2730.68 nm) とのピーク分離が必要である。しかしながら、ピーク位置で評価する場合は、HDO 濃度 8.4%までは濃度に対し、線形に増加する結果が得られた。一方、HH $^{18}\text{O}$ に対しては、2730.915 nm および 2731.718 nm の吸収で同様な濃度

に対する線形性が見られた。

一方、定量性については、2931.920 nm にある HH $^{16}\text{O}$  のピークを基準に、2731.143 nm の HH $^{17}\text{O}$ , 2731.675nm の HH $^{18}\text{O}$  の吸収線を用いて、研究室の蒸留水の標準海水(SMOW)からのずれを評価すると、 $\delta^{17,18}\text{O}_{\text{試料}} = \{(^{17,18}\text{O}/^{16}\text{O})_{\text{試料}} / (^{17,18}\text{O}/^{16}\text{O}_{\text{SMOW}}\} - 1 \times 1000 = \text{permil}$  (千分率) で表せ、およそ  $\delta^{17}\text{O} \sim -1.30\text{‰}$ ,  $\delta^{18}\text{O} \sim -15.5\text{‰}$  程度の値が得られた。ただし、温度や圧力の変動に伴いバラツキが大きくなることも確認できた。

また濃度の異なる試料を連続測定する際に問題となるいわゆる「メモリー効果」を検証した。

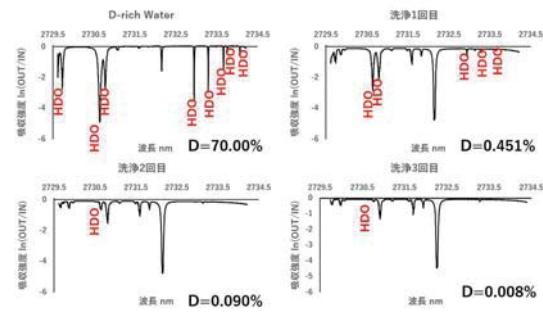


Fig.3. Investigation of memory effects for HDO lines.

$\text{D}_2\text{O}70\%$ の試料を測定した後、蒸留水試料を繰り返し測定して、HDO の吸収線の変化を追跡した結果を Fig. 3. に示す。結果は、3 回の蒸留水測定後に、吸収スペクトルが、蒸留水のものと一致した。実際は、加熱した乾燥ヘリウムガスを通過させるなどして、光学セルを洗浄することを考えている。

## ACKNOWLEDGEMENT(S)

本研究は科研費 16K13875、ILE 共同研究費、および JAXA イノベーションハブなどの支援を受けた。

## REFERENCES

- [1] A. E. Saal et al. (2008), *Nature*, **454**, 192-195.
- [2] K. L. Robinson and G. J. Taylor, (2014), *Nature geoscience*, 7, pp.401-408.
- [3] M. T. Zuber et al., (2012) *nature* **486**, 378-381.
- [4] J. Haruyama et al., (2008) *Science* **322**, 5903.

# 高効率に作動する極低温冷凍機用の窒化物材料の合成

山本孝夫<sup>1</sup>、高橋彗多<sup>1</sup>、藤枝俊<sup>1</sup>、清野智史<sup>1</sup>、中川貴<sup>1</sup>、増山新二<sup>2</sup>、藤岡加奈<sup>3</sup>

<sup>1</sup>阪大工学研究科、<sup>2</sup>大島商船高専、<sup>3</sup>阪大レーザー科学研究所

## はじめに

極低温の生成に広く普及している GM (Gifford-McMahon) 冷凍機の高性能化は、様々な分野で波及効果が予測されるため、その実現が強く望まれている。例えば、GM 冷凍機は寒剤の製造に利用されているため、レーザー分野においては冷却が必要な発振器への貢献が期待できる。GM 冷凍機は、冷媒ガスの断熱圧縮により極低温を生成し、蓄冷器に冷熱を蓄える仕組みになっている。従って、GM 冷凍機の性能は、蓄冷器の性能を強く反映する。GM 冷凍機の高性能化に向けて、体積比熱の大きな蓄冷材の開発が望まれている。

希土類窒化物 ( $\text{LnN}$ :  $\text{Ln} = \text{Nd}, \text{Gd}, \text{Tb}, \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Er}$ ) とそれらの固溶体は、 $\text{NaCl}$  型構造を有し、6~70 K のキュリー温度  $T_C$  において 2 次の磁気相転移を示す強磁性体である。本研究グループは、希土類窒化物が大きな磁気モーメントを有していることに着目して体積比熱を調べた結果、それらは  $T_C$  近傍で大きな磁気比熱を示すことを明らかにした [1,2]。また、 $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  の二元系窒化物の Er 組成  $x$  を変化させることにより、 $T_C$  は 4~12 K の温度範囲において任意に調整可能である。さらに、それらはステンレス鋼と同程度の熱伝導度を示す。そのため、 $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物は GM 冷凍機の蓄冷材として非常に有望である。

最近、本研究グループは、市販の 0.1 W の GM 冷凍機を用いて  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物の実装試験を行った [3]。典型的には蓄冷器は 2 段構造で、1 段目は Pb で構成され、2 段目は  $\text{HoCu}_2$  で構成される。 $\text{HoCu}_2$  の替わりに様々な組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  を充填し、4.2 K

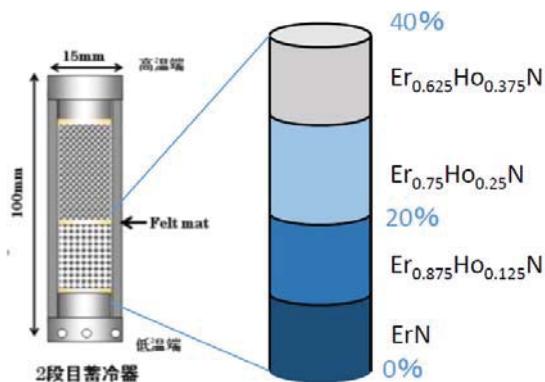


Fig. 1 優れた冷凍能力が期待される GM 冷凍機用の蓄冷器の模式図。異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物を積み重ねた構造。

での冷凍出力が最適となる蓄冷器の構成を検討した。その結果、図 1 に示すように、高温端側から低温端側にかけて  $T_C$  が段階的に低下するよう異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物を積み重ねることにより、GM 冷凍機の冷凍能力が飛躍的に向上する可能性を見出した。しかし、上述の蓄冷器を構築して検証試験を行うには、蓄冷器に高密度で充填することが出来る球状の材料が必須となる。そこで、本研究では、球状の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}$  合金粉末を出発素材として用い、形状を保持して組成の異なる  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物粉末を作製することを目的とする。

## 実験

球状の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}$  合金粉末 ( $x = 0.625, 0.875, 1$ ) を出発原料とし、それにレーザー研所有の熱間等方加圧装置 O2-Dr.HIP (Kobelco Co. Ltd.) を用いて 1550°C および 200 MPa の比較的高温および高圧の  $\text{N}_2$  中で 2 h 保持することで窒化試料を作製した。Cu 管球を用いた X 線回折測定により窒化試料の結晶構造を調べた。また、形態評価のために SEM 観察を行った。

## 結果と考察

図 1 に、異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}$  合金粉末から得た窒化試料の X 線回折パターンを示す。すべての回折

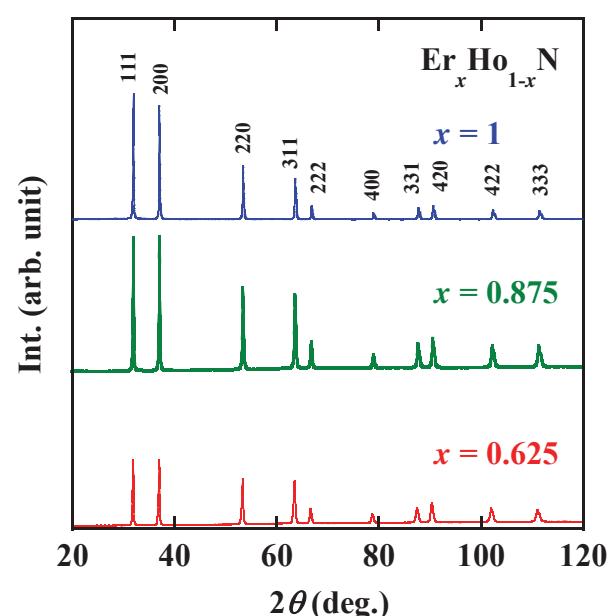


Fig. 2 異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  合金粉末から得た窒化試料の X 線回折パターン。

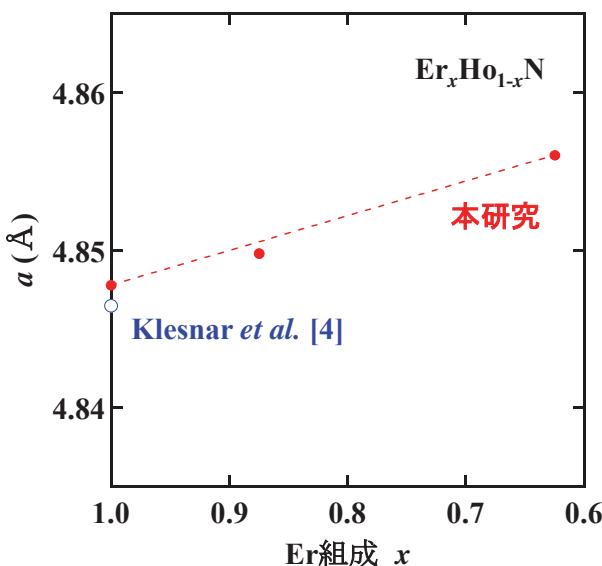


Fig. 3  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物の格子定数  $a$  の Er 組成  $x$  依存性。比較のために既報[4]の値も示す。また、Er と Ho のイオン半径の差から予測される格子定数の変化を点線で示す。

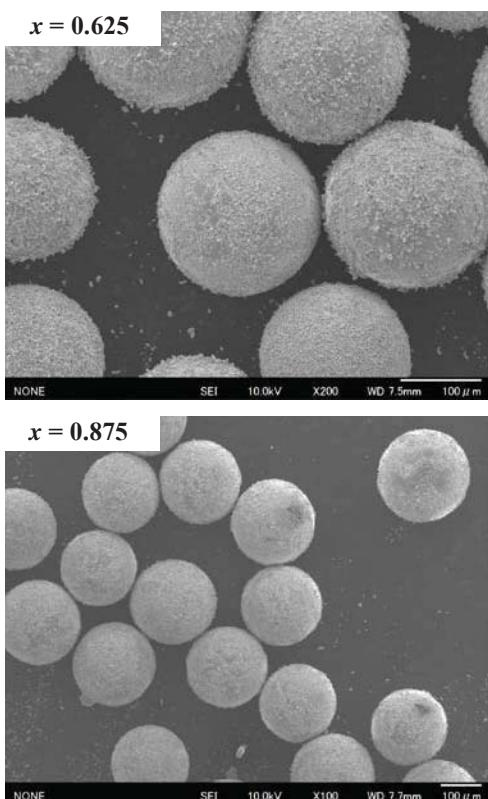


Fig. 4 異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物の SEM 像。

ピークは  $\text{NaCl}$  型構造で指数付け出来る。つまり、熱間等方加圧装置を用いた比較的高温および高圧での窒化処理により単相の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  合金窒化物が得られた。Er 組成  $x$  の減少に伴い回折パターンは全体的に低角度側にシフトし、格子は膨張する。そこで、X線回折パターンから求めた格子定数の Er 濃度  $x$  依存性を図 3 に示す。比較のために、 $\text{ErN}$  の既報の格子定数も示す。 $x=1$  における格子定数は、既報と近い値を示す。希土類元素のイオン半径は、ランタノイド収縮により、原子番号が大きいほど小さくなる。つまり、原子番号 67 の Ho は原子番号 68 の Er よりも大きなイオン半径を有する。図中に点線で示した Er と Ho のイオン半径の差から予測される格子定数の変化と実験データはほぼ一致することより、Er 濃度  $x$  の減少に伴う格子定数の増加はランタノイド収縮に起因する。

異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}$  合金粉末から得た窒化試料の SEM 像を図 4 に示す。どちらの組成の試料においても、球状の粉末が観察された。つまり、出発素材の形状は窒化処理後も保持される。窒化処理により、球状粉末の表面は微細粒子で覆われるが、ヘプタン中での超音波洗浄で取り除けることも確認された。従って、異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  合金窒化物の球状粉末の作製に成功した。

### まとめ

熱間等方加圧装置を用いた比較的高温および高圧での窒化処理により、異なる組成の  $\text{Er}_x\text{Ho}_{1-x}\text{N}$  窒化物の球状粉末の作製に成功した。これらを適切に積み重ねて蓄冷器を構築することにより、GM 冷凍機の特性向上が期待される。

### REFERENCES

- [1] T. Nakagawa, T. Arakawa, K. Sako, N. Tomioka, T. A. Yamamoto, T. Kusunose, K. Niihara, K. Kamiya, and T. Numazawa, *J. Alloys Comp.* **408-412** (2006) 191.
- [2] S. Nishio, T. Nakagawa, T. Arakawa, N. Tomioka, and T. A. Yamamoto, *J. Appl. Phys.* **99** (2006) 08K901.
- [3] T. Nakagawa, T. Miyauchi, T. Shiraiishi, S. Seino, T. A. Yamamoto, Y. Fujimoto, and S. Masuyama, *J. Phys.: Conf. Ser.* **897** (2017) 012008.
- [4] H. P. Klesnar and P. Rogl, *High Temp.-High Pressures* **22** (1990) 453-457.

# 超短パルスを用いた高非線形ファイバーによる スーパー・コンティニューム光の発生

吉田 実<sup>1</sup>, 綱井 貴教<sup>1,2</sup>, 井上 遥<sup>2</sup>, 合谷 賢治<sup>2</sup>, 時田 茂樹<sup>2</sup>, 河仲 準二<sup>2</sup>

近大電気電子<sup>1</sup>, 阪大レーザー研<sup>2</sup>

## はじめに

エルビウムのエネルギー遷移により発振する  $2.8 \mu\text{m}$  のレーザー光は水への吸収が大きいため生体処置のデバイスとして期待されている。個体レーザーや光学結晶を用いた波長変換など、波長  $2.8 \mu\text{m}$  のレーザーを発振させる方法はいくつか存在するが、大型、低効率などの問題がある。現在、これらの問題を解決可能な発振器としてフッ化物ファイバーを用いたオールファイバー共振器の研究が進められている。オールファイバー共振器の作成にはフッ化物ファイバー (ZBLAN) に Fiber Bragg Grating(FBG) を書き込み、特性を評価する必要がある。FBG による特性を正確に評価するためには  $2.8 \mu\text{m}$  を含む広帯域の光が必要であり、ファイバーに入射可能な中赤外領域の広帯域光は非線形光学効果により発生するスーパー・コンティニューム光のみである。本研究では、リング型のフェムト秒パルス発振器を作成し、高非線形ファイバーにフェムト秒パルスを入射させることによるスーパー・コンティニューム光の発生を試みた。

## リング型共振器

リング型共振器の構成を図 1 に示す。LD から発生させた  $980 \text{ nm}$  の光をポンプ光とし、エルビウムのエネルギー遷移により  $1550 \text{ nm}$  のレーザー光を発振させた。共振器をリング型に構成し、偏波コントローラー(PC)の調整を行った。

リング型共振器内の導波路で非線形偏波回転が発生し、偏波を調整することでモード同期されたフェムト秒パルスが出力される。

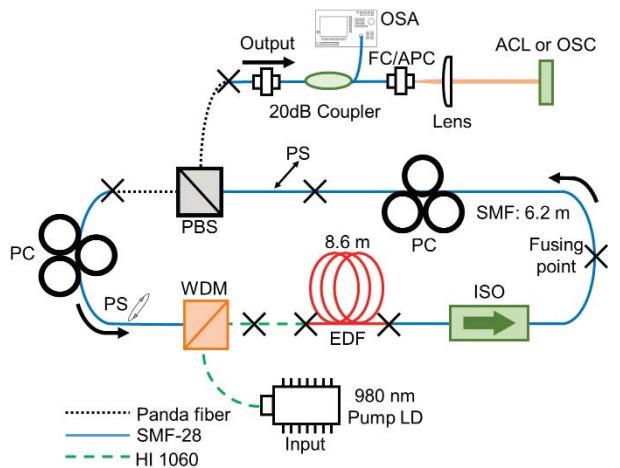


図 1: リング型共振器

## フェムト秒パルス

リング型共振器より得られた光を  $20\text{dB}$  カップラにより分岐し Optical Spectrum Analyzer(OSA) を用いて測定したスペクトルを図 2 示す。同様にオートコリレーターを用いて測定した自己相関波形を図 3 に示す。スペクトルと自己相関測定時の励起入力は  $400 \text{ mW}$ 、平均出力は  $68.3 \text{ mW}$  であった。繰り返し周波数は  $13.9 \text{ MHz}$  であり共振器の光路長と一致した。また繰り返し周波数よりパルスエネルギーは  $4.91 \text{ nJ}$  と計算できる。今回測定されたパルスはパルス幅  $291 \text{ fs}$  のノイズライクパルスであった。

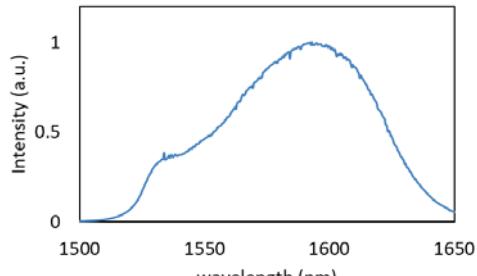


図 2: スペクトル

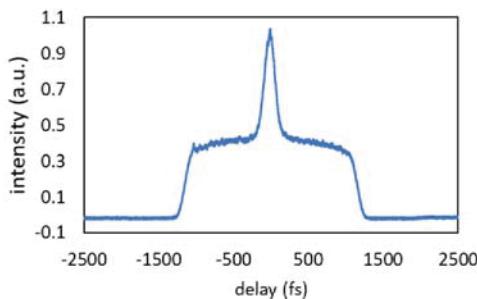


図 3: 自己相関

## スーパーコンティニューム光

スーパーコンティニューム光発生のための実験系を図 4 に示す。非線形光学効果を発生させる媒質として、中赤外領域の光を透過可能な ZBLAN ファイバーを用いた。リング型共振器より得られた超短パルスをレンズで集光させ、ZBLAN ファイバーに入射させた。ZBLAN ファイバーを透過する前後のスペクトルを図 5 に示す。ZBLAN ファイバー透過前後ではスペクトル幅の変化はなかった。

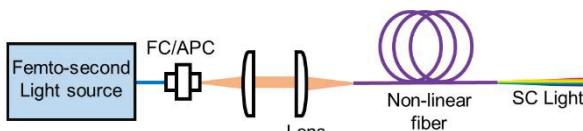


図 4: SC 光発生装置

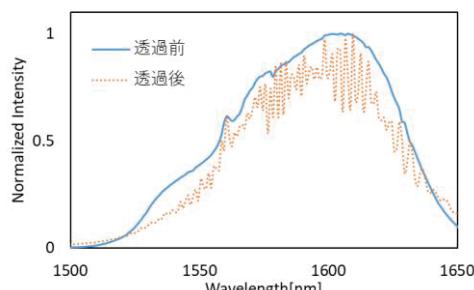


図 5: ZBLAN 透過前後のスペクトル

## 成果と今後の計画

リング型共振器を作成しモード同期による超短パルスを発生させた。得られた超短パルスは自己相関波形からノイズライクパルスであると判断される。ノイズライクパルスは共振器内で生成と崩壊を繰り返すマルチパルスの一種である。得られたノイズライクパルスを ZBLAN ファイバーに透過させ、非線形光学効果によるスーパーコンティニューム光の発生を試みたがスペクトルの拡がりは確認できなかつた。これは SC 光を発生させるための入射光の強度が不十分であったためと考えられる。

来年度の実験では非線形ファイバーに入射させる光の強度をスーパーコンティニューム光の発生が報告されているパルスエネルギー 40 nJ 以上まで増幅し、ノイズライクパルスによるスーパーコンティニューム光の発生を試みる[1]。同様に、非線形光学効果を発生させる方法として ZBLAN ファイバーの 200 倍以上の非線形屈折率を有するカルコゲナイトグラスフォトニック結晶ファイバーを用いて実験を行う予定である。

## 参考文献

- [1] Supercontinuum generation; (140.3510) Lasers, fiber; (190.4370) Nonlinear optics, fibers

# モード同期レーザーの損失を与える位置が効率に及ぼす影響に関する理論解析

小林 亮<sup>†</sup>, 片岡 俊二<sup>†</sup>, 青柳 優宇<sup>††</sup>, 柴田 真志<sup>††</sup>, 前田 隼哉<sup>††</sup>, 川戸 栄<sup>†††</sup>  
 †福井大学工学研究科 電気・電子工学専攻 〒910-8507 福井県福井市文京 3-9-1  
 ††福井大学工学部 電気・電子工学科  
 †††福井大学学術研究院 工学系部門  
 河仲 準二<sup>††††</sup>  
 ††††大阪大学レーザー科学研究所

## はじめに

フェムト秒からピコ秒域のパルス幅を持った超短パルスレーザーは、比較的小さなエネルギーの出力から高いピークパワーを得るといった特徴などから、加工・医療・通信・測定など、様々な分野で応用されている。高出力超短パルスレーザーの応用分野を拡大するためには、装置の価格低減が必要となる。このためには、安価な光学素子を利用した装置構成の単純なレーザーがふさわしく、複雑な增幅器を用いずに、単純な発振器の高出力化が望ましい。発振器の高出力化のためのキャビティダンプは、安価な光スイッチを用いるとその挿入損失に起因して効率が低下する。高出力化に起因する損失を回避するにはチャーピングモード同期が有効であるが、高分散かつ安価な光学素子を利用する、その損失に起因して効率が低下する。高出力化のためには、これらの挿入損失の影響を解析する必要がある。このため、共振器内部で損失を与える位置がモード同期レーザーの効率に及ぼす影響について理論解析を行った。

## シミュレーション方法

本研究では、拡張された非線形シュレディンガ方程式[1]、

$$T_R \frac{\partial A(T,t)}{\partial T} = \left\{ g \left( 1 + \frac{1}{\Omega_g^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) - l_c - s[A(T,t)] + \left( i \frac{1}{2} \beta_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} - i\delta |A(T,t)|^2 \right) \right\} A(T,t) = 0 \quad (1)$$

を用いた。ここで、モード同期を可飽和損失 $s_0$ 、飽和パワー $P_{sa}$ の高速過飽和吸収体でモデル化した。 $g$ 、 $s[A(T,t)]$ 、 $\delta$ は、それぞれ利得、高速可飽和吸収体による吸収損失、非線形係数であり、

$$g = g_o / (1 + P/P_{sa}) \quad (2)$$

$$s[A(T,t)] = s_0 / (1 + |A(T,t)|^2 / P_{sa}) \quad (3)$$

$$\delta = 2\pi L n_2 / \lambda_0 S \quad (4)$$

と定義した。また、式(2)における不飽和利得 $g_o$ は吸収を考慮した励起パワー $P_{pump}$ を用いて、[2]

$$g_o = \sigma \tau (f_1 + f_2) \frac{\eta_p P_{pump}}{h \nu_p} r_p(r, z) - N_{tot} f_1 \sigma \quad (5)$$

と表せる。(1)~(5)で用いた記号については表1に示す。

表1 式(1)~(5)で用いた記号

$T_R$	共振器往復時間	$A$	電場包絡線
$\Omega_g$	利得帯域幅	$l_c$	共振器損失
$\beta_2$	2次分散	$P$	共振器内部でのパワー
$P_{sat}$	利得飽和パワー	$L$	結晶長
$n_2$	非線形屈折率	$\lambda_0$	中心波長
$S$	ビーム断面積	$\sigma$	誘導放出断面積
$\tau$	蛍光寿命	$\eta_p$	励起量子効率
$f_1$	下準位ボルツマ ン分布	$f_2$	上準位ボルツマ ン分布
$h$	プランク定数	$\nu_p$	励起周波数
$r_p$	励起光分布関数	$N_{tot}$	全イオン数

利得は利得媒質で与え、損失は出力鏡と高速可飽和吸収体で与えた。自己位相変調は利得媒質で与えた。共振器内の2次分散はGTIチャーピングミラーでまとめて与えた。数値解析の手法としてスプリットステップフーリエ法を用いた。解析に用いたパラメータは、文献[3]を参考にした。利得媒質は、Yb;YAGを想定し、利得帯域幅は半値全幅で7.6 nm、利得スペクトル形状はローレンツ型とした。利得媒質の結晶長を1 mm、非線形屈折率を $69 \mu\text{m}^2/\text{GW}$ とした。利得媒質のレーザー光のビーム断面積は結晶内で一定とし、 $1000 \mu\text{m}^2$ とした。高速可飽和吸収体のパラメータは、可飽和損失を1とし、飽和パワーを5 kWとした。繰り返し周波数は61.7 MHzとした。出力鏡の透過率は20%、残留損失は5%とした。変化させるパラメータとしては、吸収に対する励起パワーを0.3W~6.2Wの範囲で計算を行った。パルスの共振器往復回数は10000回とし、集束の判定は最終的な往復回数のパルス波形とその半分の往復回数での波形の2乗誤差が1%以下であることを収束の条件とした。出力パワーは式(1)から得られた結果を用い、励起パワーは式(5)から導出し、その比をとることで光-光変換効率の導出を行った。

## シミュレーション結果

シミュレーションでは、損失を定在波共振器の①利得媒質透過前、②往路利得媒質透過後、③往路利得媒質透過後に与え、効率がどう変化するか調べた。図1に損失を片道でのみ与えた場合の励起パワーに対する光-光変換効率のグラフを示す。

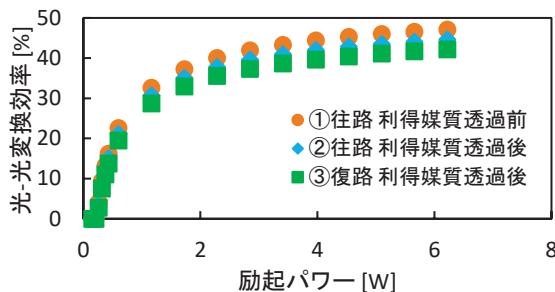


図1 損失を片道で与えた場合の光-光変換効率に対する励起パワー依存性

損失を片道で与えた場合、3点の中で共振器内部パワーが最も低い往路の利得媒質透過前の位置に損失を挿入すると効率が他の2点よりも高くなつた。

定在波共振器では、一般的に損失を片道のみで与えるというのは難しい。より現実的なモデルで考えるために、損失を往復で与えたモデルでシミュレーションを行つた。ここでは利得媒質の位置に対して、(a)OC側で与える場合と(b)HR側で与える場合の2パターンを想定した。図2に損失を往復で与えた場合の光-光変換効率に対する励起パワー依存性のグラフを示す。

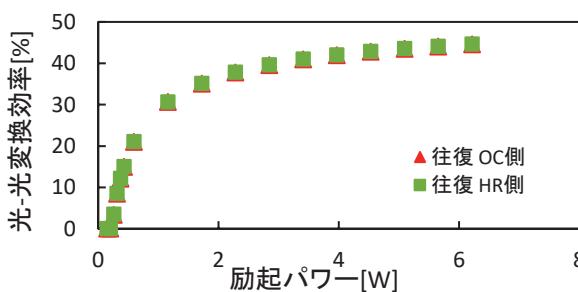


図2 損失を往復で与えた場合の光-光変換効率に対する励起パワー依存性

図2から、往復で損失を与えた場合は片道で損失を与えた場合と異なり、効率に違いはほとんど見られなかつた。これはOC側で損失を与える場合には、共振器内部パワーの最も高い復路利得媒質透過前と、最も低い利得媒質透過前の2点で与えているため、平均を取ると往路利得媒質透過後の内部パワーとほぼ同じになるためだと考えられる。

定在波共振器と異なり、進行波共振器ならば、利得媒質の前後にのみ損失が与えられる。この条件でもシミュレーションを行つた。また図3にそのときの光-光変換効率に対する励起パワー依存性のグラフを示す。

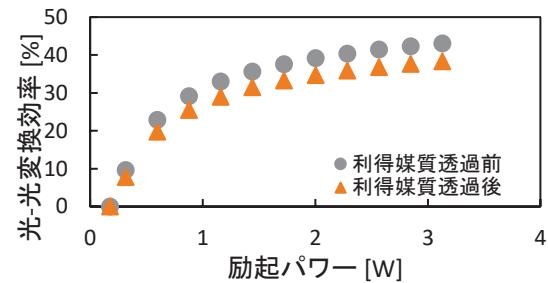


図3 進行波共振器で損失を与えた場合の光-光変換効率に対する励起パワー依存性

図3から、定在波共振器において片道で損失を与えた場合と同様に、進行波共振器においても利得媒質透過前の共振器内部パワーが小さい位置で損失を与えた方が高い効率が得られた。このことから進行波共振器の場合は、損失を与える位置によってその影響を低減できることが確認できた。

## まとめ

本研究では、共振器内部で損失を与える位置がモード同期レーザーの効率に及ぼす影響に関して理論解析を行つた。定在波共振器と進行波共振器では片側で与えた場合、共振器内部パワーが最も低い往路の利得媒質透過前の位置に損失を挿入すると効率が最も高くなることが確認できた。また、定在波共振器において往復で損失を与える現実的なモデルを考え、同様に効率と損失を与える位置の関係について解析を行い、効率と損失を与える位置による違いを明らかにした。

今後の展望として、解析により得られた条件を元にキャビティダンプの機構を取り入れたシミュレーションを行い、効率に関する解析を行うことが挙げられる。

## 参考文献

- [1] Herman A. Haus, “Mode-Locking of Lasers”, IEEE journal on selected topics in quantum electronics, Vol.6, No.6, November/December 2000
- [2] W. P. Risk. “Modeling of longitudinally pumped solid-state lasers exhibiting reabsorption losses,” J. Opt. Soc. Am. B/Vol.5, No.7/July 1988.
- [3] S. Matsubara, M. Takama, M. Inoue, S. Kawato, Y. Ishida, “Generation of 65-fs ultrashort pulses at 1030-nm center wavelength directly from Kerr-lens mode-locked Yb:YAG laser”, Proceedings of CLEO2010, CTuV2 (2010).

# 半球型共振器連続波 Yb:YAG レーザーの高効率化

小林 亮<sup>†</sup>, 片岡 俊二<sup>†</sup>, 青柳 優宇<sup>††</sup>, 柴田 真志<sup>††</sup>, 前田 隼哉<sup>††</sup>, 川戸 栄<sup>†††</sup>

<sup>†</sup>福井大学工学研究科 電気・電子工学専攻 〒910-8507 福井県福井市文京 3-9-1

<sup>††</sup>福井大学工学部 電気・電子工学科

<sup>†††</sup>福井大学学術研究院工学系部門

河仲 準二<sup>††††</sup>

<sup>††††</sup>大阪大学レーザー科学研究所

## はじめに

超短パルスレーザーの応用分野の開拓のために、装置の小型化と高効率化を安価に行なうことは課題の一つとされている。例えば、短共振器のモード同期レーザーの効率を安価に向上できれば、周波数コム光源の単位モードあたりのパワーの増大が容易となり、測定精度の向上を安価に実現できる。小型レーザーの高効率化を実現するための基礎的なデータを入手するために、本研究では半球型共振器連続波レーザーの高効率化を目指す。そのために、効率面で優れた特性を持つレーザー媒質として注目されている Yb:YAG 結晶を用いた。理論解析から得たモード体積とビーム重なりの最適条件を元にレーザーを試作し、入出力特性を計測することで、試作したレーザーの光-光変換効率を評価した。

## 光-光変換効率

光-光変換効率  $\eta_{oo}$  は、励起パワーに対してどれだけ出力パワーを取り出せるかを表したものである。 $\eta_{oo}$  は次の式で表される。

$$\eta_{oo} = \frac{P_{out}}{P_p} = \eta_a \eta_p \eta_q \eta_c \frac{S}{F} \quad (1)$$

$P_{out}$ 、 $P_p$  はそれぞれ出力パワー、励起パワーであり、 $\eta_a$  は吸収効率、 $\eta_p$  は励起量子効率、 $\eta_q$  は原子量子効率、 $\eta_c$  は結合効率、 $S$  はレーザー光子指数、 $F$  は励起光子指数である。<sup>[1]</sup>また、発振閾値を  $P_{th}$  とすれば、

$$P_{th} = \frac{h\nu_p V_{eff}}{2\eta_a f \sigma_{eff} \tau} (L_i + T + 2N_1^0 \sigma_{eff} l) \quad (2)$$

となる。 $h\nu_p$  は励起エネルギー、 $V_{eff}$  がモード体積、 $l$  は結晶の長さ、 $f$  はレーザーの上準位と下準位のボルツマン分布、 $\sigma_{eff}$  は誘導放出断面積、 $\tau$  は蛍光寿命、 $L_i$  は共振器内部損失、 $T$  は出力鏡透過率、 $N_1^0$  は励起されていないときのレーザー下準位の反転分布密度である。また、 $P_{out}$  は次の近似式で示される。

$$P_{out} \sim \eta_s (P_p - P_{th}) \quad (3)$$

(3)式から高効率化のためには発振閾値の低減が必要となる。発振閾値の低減のため、励起光のモード体積が最小になるようなビーム径に対して、レーザー光のビーム径を調整することが重要である。また Yb:YAG 結晶のような準四準位レーザー媒質は、レーザーの下準位に原子の分布があり、それに起因する下準位吸収損失がある。本研究では、高密度励起による高利得化で下準位吸収損失の効率への影響を低減し、高効率化を目指す。

## 実験条件

図 1 に本研究で使用した半球型共振器を示す。

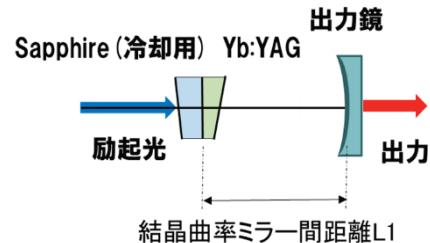


図 1 本研究で使用した半球型共振器

共振器の設計のため、理論解析から光-光変換効率が最大となるような条件を解析した。励起光源としては Ti:sapphire レーザーを使用し、励起光のビーム品質  $M^2$  は実測値から光学台に対して、垂直方向で 1.2、水平方向で 1.1 である。励起光の最小スポット半径は実測値から垂直方向で 10.9 μm、水平方向で 9.7 μm である。最大励起パワーは 0.75 W、最大集光強度は 217 kW/cm<sup>2</sup>、励起波長はレーザー上準位に直接励起でき、高効率化が望める 968 nm とした。

本研究で用いた Yb:YAG 結晶は冷却効率を向上させるために Sapphire 結晶が接着されており、ドープ濃度は 20at.%、5 mm 角で厚さ 1 mm の結晶を使用した。結晶の吸収効率は 96%、結晶の温度は 20°C とし

た。出力鏡は直径がハーフインチで、曲率半径 50 mm、透過率 2%、4.5%、5%の 3 種類を使用した。

理論解析から、励起光に対してレーザー光を最適化することで光-光変換効率は最大励起パワー 0.75 W、出力鏡透過率 5%、発振波長 1050 nm のときに最大で 78.8%が見込めることが分かった。またその時の結晶曲率ミラー間距離は 49.64 mm であり、そのときの垂直方向のレーザー光ビーム半径 14.3  $\mu\text{m}$ 、水平方向のレーザー光ビーム半径 13.7  $\mu\text{m}$  が見込めることが分かった。

## 実験結果

設計結果とともに共振器を作成した。まず結晶-曲率ミラー間距離を変化させ、最大励起パワー 0.75 W、出力鏡透過率 5%のときにレーザー光出力が最大になるように共振器の最適化を行い、そのときの励起光とレーザー光の入出力特性を測定した。実験結果と理論計算を図 2 に示す。

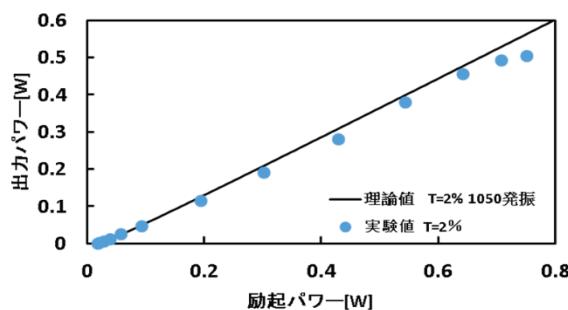


図 2(a) レーザーの入出力特性  $T=2\%$

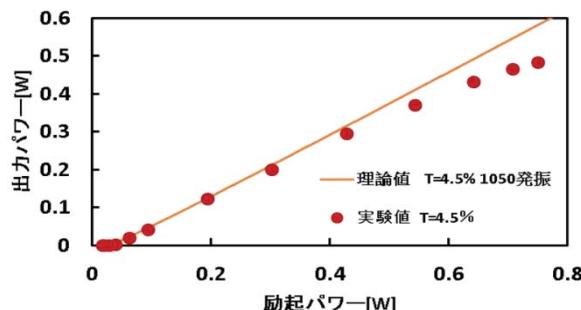


図 2(b) レーザーの入出力特性  $T=4.5\%$

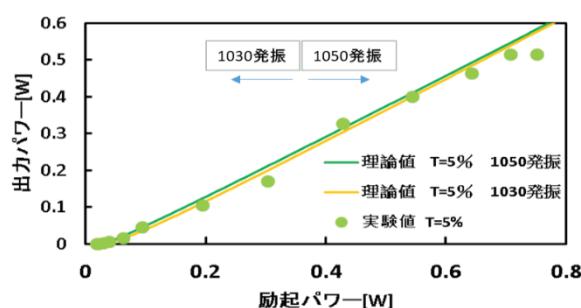


図 2(c) レーザーの入出力特性  $T=5\%$

実験から最大出力が得られたのは、 $T=2\%$ のとき最大出力 510 mW、 $T=4.5\%$ のとき最大出力 484 mW、 $T=5\%$ のとき最大出力 516 mW が得られた。 $T=2\%$ のとき、レーザー光発振波長は 1050 nm であり、最大励起パワーに対する光-光変換効率は 67.3% であった。 $T=4.5\%$ のとき、レーザー光発振波長は 1050 nm であり、最大励起パワーに対する光-光変換効率は 64.5% であった。 $T=5\%$ のとき、レーザー光発振波長は励起パワーが低いときは 1030 nm、励起パワーが高いときは 1050 nm であり、最大励起パワーに対する光-光変換効率は 68.7% であった。また、実験で最大の効率が得られたのは、 $T=5\%$ のときで光-光変換効率 76.1% だった。これは過去に我々が達成した Ti:sapphire レーザー励起 V 型共振器連続波 Yb:YAG レーザーの効率に迫る結果である。<sup>[2]</sup>最大励起パワーのときに効率が最大となるように設計したが、図 2 のように励起パワーが低い時は理論値とほぼ一致しているのに対して、励起パワーが高い時に出力が上がらず理論値からずれていることが分かる。今後はこの原因を調査するため励起波長 940 nm での実験結果と比較を行いたい。

## まとめ

本研究では、半球型共振器連続波レーザーの高効率化を目指し、実験と理論解析を行った。理論解析から、 $T=5\%$ 、最大励起パワー 0.75 W のときに最大で光-光変換効率 78.8% が得られた。実験から  $T=5\%$ 、励起パワー 0.43 W のときに最大で光-光変換効率 76.1% が得られた。理論解析では最大励起パワーのときに最大の効率が得られたが、実験では励起パワーが高くなるにつれ、理論値と実験値がずれてレーザーの出力が上がらなかった。今後は励起波長を 940 nm にえたときの結果と比較し、高出力化につなげていくことが必要になる。

## 参考文献

- [1] W. P. Risk. “Modeling of longitudinally pumped solid-state lasers exhibiting reabsorption losses,” J. Opt. Soc. Am. B/Vol.5, No.7/July 1988.
- [2] Shinichi Matubara, Tsutomu Ueda, Sakae Kawato, and Takao Kobayashi, “Highly Efficient Continuous-Wave Laser Oscillation in Microchip Yb:YAG at Room Temperature”, Japanese Journal of Applied Physics Vol. 46, No. 7, 2007, pp. L132–L134.

# 青色半導体レーザーを用いた高密度励起 連続波 Ti:sapphire レーザーの効率に関する理論解析

片岡俊二<sup>†</sup>, 柴田正志<sup>††</sup>, 小林亮<sup>†</sup>, 青柳祐宇<sup>††</sup>, 前田準哉<sup>††</sup>, 川戸栄<sup>†††</sup>, 河仲準二<sup>††††</sup>

<sup>†</sup>福井大学大学院工学研究科気電子工学専攻, <sup>††</sup>福井大学大学院工学部電気電子工学科, <sup>††</sup>

<sup>†</sup>福井大学学術研究院工学系部門, <sup>††††</sup>レーザー科学研究所

はじめに

Ti:sapphire レーザーは超短パルスレーザーの代表ともいえるレーザーである。超短パルスレーザーは様々な分野への応用が期待されているが、励起光源が固体レーザーであるため、レーザー装置が複雑かつ大型で高価という課題がある。近年、GaN 系半導体レーザーの長波長化が可能となり、半導体レーザー励起 Ti:sapphire レーザーの研究も盛んに行われるようになっている。

現在報告されている青色半導体レーザー励起連続波 Ti:sapphire レーザーの光-光変換効率は 8.98%[1]、これに対し緑色半導体レーザー励起の場合は 21.6%[2]が報告されている。青色半導体レーザーと比較して、緑色半導体レーザーは結晶への吸収効率が高いため光-光変換効率が高いが、出力が数倍低く価格も 1 枠以上高い。このため、半導体レーザー励起連続波 Ti:sapphire レーザーにおいて、安価で高出力な青色半導体レーザーを用いて高効率化を目指すのが相応しいと考えた。そこで、本研究では高密度励起による高利得化を用いて、青色半導体レーザーを用いた連続波 Ti:sapphire レーザーの高効率化に関する理論解析を行った。

## 光-光変換効率

まず、レーザーの光-光変換効率  $\eta_{oo}$  は、

$$\eta_{oo} = \frac{P_{out}}{P_p} = \eta_a \eta_p \eta_q \eta_c \frac{S}{F} \quad (1)$$

で与えられる。式(1)は、励起光パワー  $P_p$  に対しどれだけ出力光パワー  $P_{out}$  を取り出せるかの割合である。表 1 に式で用いた記号を示す。

表 1 式で用いた記号

$\eta_{oo}$	光-光変換効率	$h$	プランク定数
$P_{out}$	出力光パワー	$v_L$	レーザー光周波数
$P_p$	励起光パワー	$V_L$	レーザー光モード体積
$\eta_a$	励起光吸収効率	$t$	結晶長
$\eta_p$	励起量子効率	$f$	レーザー上準位のボルツマン分布の和
$\eta_q$	原子量子効率	$r_p(x,y,z)$	励起光空間分布関数
$\eta_c$	結合効率	$\Phi_0(x,y,z)$	レーザー光空間分布関数
$S$	レーザー光子指数	$T_{oc}$	出力鏡透過率
$F$	励起光子指数	$L_i$	共振器内部損失
$S/F$	励起光とレーザー光の重なり具合	$\eta_s$	スロープ効率
$\sigma_{eff}$	誘導放出断面積	$P_{th}$	発振閾値
$\tau_f$	半光寿命	$V_{eff}$	励起光とレーザー光のモード体積
$P_L$	レーザー光パワー		

$S$  はレーザー光子指数、 $F$  は励起光子指数を拡張したものであり、 $S/F$  は励起光とレーザー光の重なり具合を表し、次の式で表される[3]。

$$S = \frac{2\sigma_e \tau_f P_L}{h v_L V_L / l} \quad (2)$$

$$F = \frac{1}{\int_0^1 \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f r_p(x,y,z) V_L \varphi_0(x,y,z)}{1 + f S V_L \varphi_0(x,y,z)} dx dy dz} \quad (3)$$

式(1)において、結合効率  $\eta_c$  は次の式で表される。

$$\eta_c = \frac{T_{oc}}{T_{oc} + L_i} \quad (4)$$

$T_{oc}$  は出力鏡透過率、 $L_i$  は共振器内部損失である。結合効率  $\eta_c$  は共振器内の損失に対する出力鏡透過率  $T_{oc}$  の最適化が必要である。また、出力光パワー  $P_{out}$  は次の式で近似できる。

$$P_{out} \sim \eta_s (P_p - P_{th}) \quad (5)$$

$\eta_s$  はレーザー光のスロープ効率、 $P_{th}$  は発振閾値である。光-光変換効率  $\eta_{oo}$  を向上させるためには、レーザー光のスロープ効率  $\eta_s$  を上げ、発振閾値  $P_{th}$  を下げる方が望ましい。しかし、発振閾値  $P_{th}$  は励起光とレーザー光のモード体積  $V_{eff}$  に比例する。発振閾値  $P_{th}$  を下げるためモード体積  $V_{eff}$  を小さくすると、励起光とレーザー光の重なり具合  $S/F$  が悪くなり、光-光変換効率  $\eta_{oo}$  が低下する。このため、光-光変換効率  $\eta_{oo}$  の向上には、モード体積  $V_{eff}$  と出力鏡透過率  $T_{oc}$  を最適な条件にする必要がある。

## 解析条件

青色半導体レーザーを用いた高密度励起連続波 Ti:sapphire レーザーの高効率化を行うために、出力 3.5 W の青色半導体レーザーを用い、励起光のモード体積を最小とすることで集光強度  $I_p$  を高め解析を行う。また、励起光源である青色半導体レーザーは、ビーム品質  $M^2$  が悪く非点収差があるため、解析ではビーム径及びビーム品質が垂直、水平方向で異なる楕円モデルを用いた。

まず、励起光のビーム品質  $M^2$  は、出力 3.5 W の青色半導体レーザーの実測値より、垂直方向 1.39、水平方向 13.5 とした。また、励起光波長は実測値より 448 nm とした。発振閾値  $P_{th}$  を低減させ、かつ集光強度  $I_p$  を高めるため、結晶内で励起光のモード体積が最小となるように励起光のスポット半径を垂直

方向  $14 \mu\text{m}$ , 水平方向  $43 \mu\text{m}$ とした。レーザー結晶として、イオンドープ濃度  $0.25 \text{ wt.\%}$ , FOM=200 のブリュースターカットされた  $5 \text{ mm}$  角の Ti:sapphire 結晶で解析を行った。励起光吸収率  $\eta_a$  は実測値より  $78.5\%$  とし、誘導放出断面積  $\sigma_{eff}$  は  $30 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ , 蛍光寿命  $\tau_f$  は  $3.2 \mu\text{s}$ , 励起量子効率  $\eta_p$  は  $100\%$ , レーザー光波長  $\nu_L$  は  $765 \text{ nm}$  とした。

次に、共振器内部損失  $L_i$  は実験結果で得られた出入力特性の発振閾値  $P_{th}$  から見積もった値を用いた。発振閾値付近では出力鏡透過率  $T_{oc}$  の変化に対してモード体積が変わらないと仮定し、得られた発振閾値と出力鏡透過率の関係から共振器内部損失を見積もった。比較した結果、共振器内部損失は  $4\sim10\%$  の間と見積もれた。よって、共振器内部損失  $L_i$  を  $4\%, 6\%, 8\%, 10\%$  と変化させ比較を行う。また、高密度励起として青色半導体レーザー 1 つ当たりの集光強度を  $I_p=200 [\text{kW/cm}^2]$  とし、集光強度  $I_p$  を  $200, 400, 800 [\text{kW/cm}^2]$  と変化させ、同様に比較を行う。さらに、高効率化のためには、出力鏡透過率を最適な条件にすることも必要であるため。出力鏡透過率  $T_{oc}$  を  $2, 5, 10, 15, 20\%$  と変化させ、同様に比較を行う。

## 解析結果

結晶内の励起光ビーム半径  $W_p$  とレーザー光ビーム半径  $W_L$  の比  $W_L/W_p$  を光軸方向で分布させることで、光-光変換効率  $\eta_{oo}$  はビーム径比  $W_L/W_p$  の関数となる。図 2, 3 に、集光強度  $I_p$  及び共振器内部損失  $L_i$  を変化させた時の、出力鏡透過率  $T_{oc}$  ごとの光-光変換効率  $\eta_{oo}$  をビーム径比  $W_L/W_p$  の関数として示す。

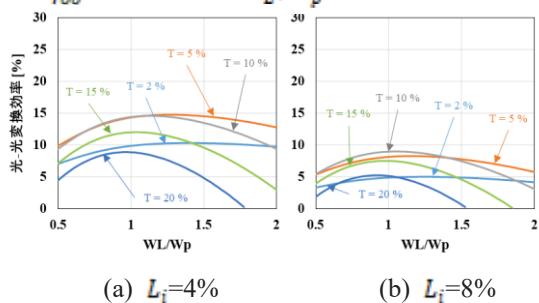


図 2 集光強度  $I_p=200 [\text{kW/cm}^2]$  の場合のビーム径比に対する光-光変換効率

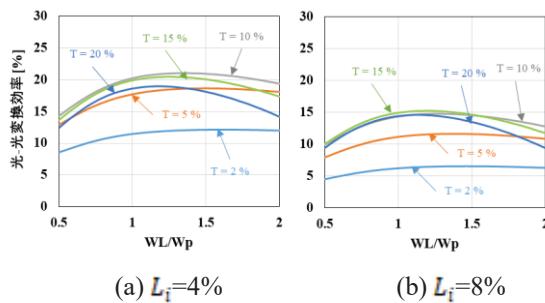


図 3 集光強度  $I_p=400 [\text{kW/cm}^2]$  の場合のビーム径比に対する光-光変換効率

図 2(a)は集光強度  $I_p=200 [\text{kW/cm}^2]$ , 共振器内部損失  $L_i=4\%$  の場合のビーム径比に対する光-光変換効率であり、図 2(b)は集光強度  $I_p=200 [\text{kW/cm}^2]$ , 共振器内部損失  $L_i=8\%$  の場合のビーム径比に対する光-光変換効率である。同様に、図 3(a), 3(b)は集光強

度  $I_p=400 [\text{kW/cm}^2]$ , 共振器内部損失  $L_i=4\%$ ,  $L_i=8\%$  の場合のビーム径比に対する光-光変換効率である。

励起光の集光強度  $I_p=200 [\text{kW/cm}^2]$  の場合、共振器内部損失  $L_i=4\%$ , 出力鏡透過率  $T_{oc}=5\%$  のとき、光-光変換効率が  $14.5\%$  である。これに対して、集光強度  $I_p=400 [\text{kW/cm}^2]$  の場合、共振器内部損失  $L_i=4\%$ , 出力鏡透過率  $T_{oc}=10\%$  のとき、光-光変換効率が  $21.1\%$  と効率が向上している。同様に共振器内部損失  $L_i=8\%$  の場合も効率が向上している。この事から、高密度励起を用いた高利得化により、青色半導体レーザー励起連続波 Ti:sapphire レーザーの高効率化が可能であると考えられる。さらに、集光強度  $I_p=400 [\text{kW/cm}^2]$  の場合では、共振器内部損失  $L_i=4\%$ , 出力鏡透過率  $T_{oc}=10\%$  のとき光-光変換効率が  $21.1\%$  と、緑色半導体レーザー励起の世界最高効率  $21.6\%$  と同等の効率が得られた。また、集光強度  $I_p=800 [\text{kW/cm}^2]$  の場合も、緑色半導体レーザー励起の世界最高効率同様の効率が得られることが効率計算から得られた。図 4 に集光強度  $I_p=800 [\text{kW/cm}^2]$ , 共振器内部損失  $L_i=8\%$  の場合の出力鏡透過率  $T_{oc}$  ごとのビーム径比に対する光-光変換効率を示す。

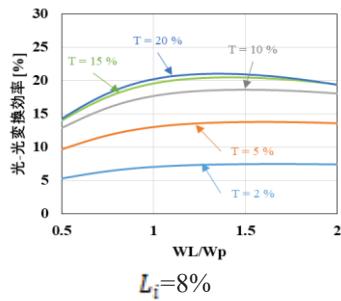


図 4 集光強度  $I_p=800 [\text{kW/cm}^2]$  の場合のビーム径比に対する光-光変換効率

共振器内部損失  $L_i=8\%$ , 出力鏡透過率  $T_{oc}=20\%$  のとき光-光変換効率が  $21.1\%$  と同様の効率が得られた。この事から、損失が高い場合でも高密度励起による高利得化が高効率化に有効であると考えられる。

## まとめ

青色半導体レーザーを用いた高密度励起連続波 Ti:sapphire レーザーの効率に関する理論解析を行った。解析により、青色半導体レーザーを用いた高密度励起は、集光強度  $I_p=800 [\text{kW/cm}^2]$  の場合、共振器内部損失  $L_i=8\%$ , 出力鏡透過率  $T_{oc}=20\%$  のとき、光-光変換効率  $\eta_{oo}$  は  $21.1\%$  が望める。

## 参考文献

- [1] P. W. Roth, et al. "Power scaling of a diode-laser-pumped Ti:sapphire laser," Opt. Express 20 (18), pp. 20629-20634, August 2012.
- [2] K. Gurel, et al. "Green-diode-pumped femtosecond Ti:Sapphre laser with up to 450 mW average power," Opt. Express 23 (23), pp. 30043-30048, November 2015.
- [3] W. P. Risk, "Modeling of longitudinally pumped solid-state lasers exhibiting reabsorption losses," J. Opt. Soc. Am. B 5(7), pp.1412-1423, July 1988.

# カーボンナノチューブメタマテリアルのテラヘルツ応答

古田寛 Adam Pander, 中嶋誠

高知工科大学、大阪大学レーザー科学研究所

## はじめに

カーボンナノチューブ (CNT) は、グラフェンシートによる同心円筒状構造の炭素同素体で、軸方向への電流耐性や熱伝導性に優れる。CNT が基板上に高密度垂直配向成長した CNT フォレストの構造異方性を表す面白い特徴として、CNT 軸方向からの入射光に対し幅広い波長での光学・電磁場吸収に優れ、紫外から赤外領域で光吸収率が 0.98 - 0.99 と黒体に最も近い材料として応用に期待が寄せられている。Titova らは基板に水平配向配置した CNT にフェムト秒パルスレーザを照射し、CNT 軸方向に偏光したテラヘルツ波放出を報告し、CNT の一次元性異方性、非線形光学特性は、新機能を発現するメタマテリアルの構成要素として非常に有望である。

熱エネルギー回生に、メタサーフェースを利用する場合には、吸収効率を挙げなければならない課題があり、CNT フォレスト黒体は吸収率の高さからナノロッドメタマテリアル電極材料として有望な材料と言える。我々は、CNT フォレストをメタマテリアル形状にパターンングした CNT メタマテリアルを作製[1]し、スプリットリング型レゾネータ (SRR) 電極構造で、SRR 形状により光反射が減少する現象を見出し、SRR 容量結合による CNT での光吸収増大と説明した[1]。また、霜柱状 CNT フォレストをフィッシュネット穴あけ加工することで、赤外反射、透過率がともに大きく減少し、フィッシュネット形状の炭素導電膜電極構造体により、入射電磁波が高効率に吸収され、赤外光の高効率吸収が起きていると結論した[2]。熱エネルギー回生用電極への応用に向けては、特定波長の電磁波に応答するメタマテリアル電極が必要であり、CNT 成長密度および配向性を制御する課題がある。

本研究では、CNT フォレストについて、テラヘルツ吸収・赤外線・可視光の光学特性を明らかにすることで、CNT フォレストを用いた熱マテリアルの基礎特性を明らかにすることを研究の目的とした。

## 方法

配向性が異なり高さを 20μm にそろえた CNT フォレストを合成した。断面 SEM 観察により配向性を評価し、積分球を用いて UV/VIS 全反射スペクトルを評価した[1]。CNT を完全導体と仮定し、CNT 配向性の異なる CNT フォレストをモデル化し、FDTD

計算プログラム MEEP を用いて、反射率・透過率を計算し実験結果と比較した。

## 結果と考察

図 1 に、断面 SEM 像を示す。図中(d, f, h)は配向性が高く、その他は配向性が低かった。UV/VIS 全反射スペクトルと比較すると、配向性の低い試料は可視域長波長領域での反射率が高く、配向性の高い試料は紫外から可視に至る全領域で反射率が高くなつた。

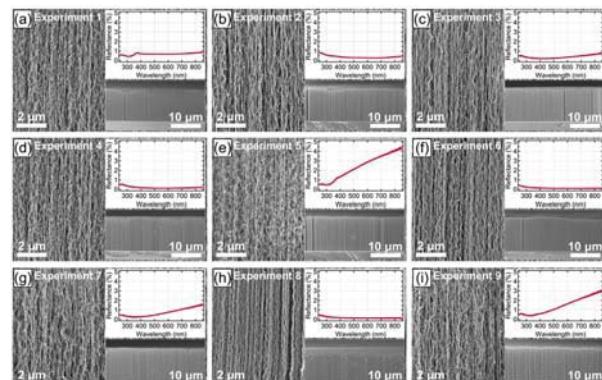


図 1. 高さ 20μm に調整し合成した CNT フォレストの断面 SEM 像と紫外可視全反射率スペクトル[1]

図 2 に、カーボンナノチューブを導体とし、入射光電界方向  $E_z$  に対する配向性(軸の配向方向  $x, y, z$  をそれぞれ  $A_x, A_y, A_z$  と表す)を(a)  $E_z \perp A_x$  (b)  $E_z \perp A_y$  (c)  $E_z \parallel A_z$  としたときの、透過率、反射率、吸収率スペクトルを示す。垂直配向 CNT は(a)  $E_z \perp A_x$  に対応し、短波長から長波長に至るまで、反射率の低い CNT フォレストの特徴をよく表した反射スペクトルが得られた。高い配向性を持つ CNT フォレストは高い吸収率、低い反射率を持つことが知られている。どの配向性でも吸収率が低く得られているのは、CNT の導電性を理想的な導体と仮定し計算しているためである。(a)の垂直配向 CNT フォレストでの低い反射率が、CNT の軸への光の反射が、基板方向に向かって進み、反射することができないことをよく表している。そして、(c)の入射光と CNT 軸方向が平行して配置されているケースについて、100nm 以上の長波長において、反射率が上がっており、入射光の振動電界に、CNT 軸上の電子が追随するプラズモンによる反射であると考えた。低い配向率を持つ CNT フォレストについて、長波長側で

反射率が上がる計算結果が、図1に示した全反射率の、低配向CNTフォレストが示した、長波長領域での高い反射率スペクトルをよく説明した。CNTフォレスト内には様々な配向性を持つCNTが含まれており、低い配向性のCNTフォレストには、基板に平行な、つまり入射電界と平行なCNTの成分が多く含まれているため、低配向CNTの長波長領域での反射率の上昇がもたらされたと考えた。

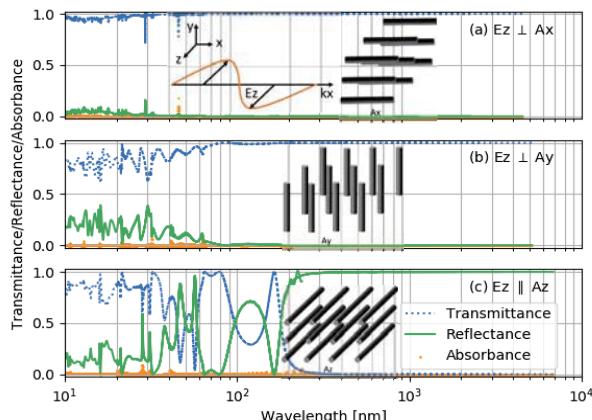


図2. 配向性の異なるCNTフォレストの透過/反射/吸収率スペクトル (a)  $E_z \perp A_x$  (b)  $E_z \perp A_y$  (c)  $E_z \parallel A_z$

## まとめ

高さをそろえ配向性の異なるCNTフォレストの全反射率を測定し、基板に対し垂直に配向した高配向CNTは、紫外から可視にわたり低い反射率が得られ、低い配向性のCNTフォレストは長波長領域での反射率の上昇を測定した。FDTD計算により、垂直配向CNTフォレストでは、反射光の方向が基板方向に限定されるため反射率が低く、基板に平行方向に配向した(ランダムCNT)フォレストでは、CNT軸上でのプラズモン形成により、長波長領域での反射率が上昇したと結論した。

## 謝辞

高知工科大学大学院基盤工学コースを卒業された宮地弘樹氏には実験に尽力いただいたので深く感謝申し上げる。本研究の一部は大阪大学レーザー学研究所共同利用研究2018-B2FURUTAの支援を受けて行ったので深く感謝申し上げる。本研究の一部は科研費基盤C(JP 17K06205)の支援を受けた。

## 引用文献

- [1] A. Pander, K. Ishimoto, A. Hatta, and H. Furuta, “Significant decrease in the reflectance of thin CNT forest films tuned by the Taguchi method”, Vacuum 154 (2018) 285-295.
- [2] H. Miyaji, A. Pander, K. Takano, H. Kohno, A. Hatta,

M. Nakajima, and H. Furuta, “Optical reflectance of patterned frost column-like CNT forest for metamaterial applications”, Diam. Relat. Mater. 83 (2018) 196-203.

# ガスセンサとしての有機金属構造体の作製と IR 波及び THz 波の透過特性

古久根 伸吉, 李 相録

鳥取大学大学院持続性社会創生科学研究科工学専攻

## 1. 序論

### 1.1 Metal-Organic Frameworks (MOF)とは

金属有機構造体(MOF)とは金属イオンと有機配位子からなるハイブリット材料で、規則的に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。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を混合することで、三次元の骨格構造を持つ結晶を作る。MOFの骨格構造は、金属イオンと有機配位子のサイズや種類を変更することにより、従来の多孔性材料(活性炭やゼオライトなど)にはできない分子レベルの構造制御が可能である。この設計の自由度の高さから、MOFは分子レベルの細孔サイズや形状の制御が可能となっている。また合成法は容易であり2つ以上の相互作用点(配位結合や水素結合部位)を持つ有機配位子と金属イオンを有機配位子のみまたは金属イオンと有機配位子のみの溶液をゲスト分子存在下において混合することでMOF結晶を得られる。そして多くの場合室温・常圧化で(水熱合成等の例外もある)混合を行う。すると即座に構成要素同士が配位結合し、自己組織化することにより均一な骨格構造が得られる。

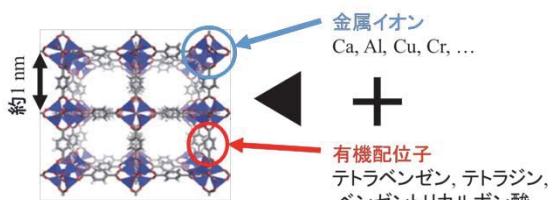


Fig. 1.MOF 結晶の概略図

### 1.2 MOF のデバイス応用に関して

MOFの比表面積は10,400 m<sup>2</sup>/gにも達しており、固体材料における比表面積は他材料と比較しても非常に有用性がある。加えて、特定の吸着分子に合わせて細孔の大きさと機能性が制御できることもMOFの優れた点である。MOFはこのような高い比表面積や機能性を利用した天然ガスの貯蔵や気相分離、触媒、クロマトグラフィー、ドラッグデリバリーなどの幅広い応用において期待されている。そして、安価な無機半導体の特性と有機ポリマーの製造の容易さを持つ新材料としてナノエレクトロニクスの分野においても注目を集めている。ガスセンサにおいては高い比表面積を生かした作製が容易なセンサとして近年MEMS技術を用いたMOFのセンサの研究[1]が行われており、本研究ではガスセンサの

作製のために、様々なガスを封入させたMOFのガス吸着ディップを測定することで、MOFのガスセンサとしての特性を解明し、ガスセンサ応用を実現することを目的として実験を行った。

## 2. デバイスの作製法

本研究ではCuイオンと1,3,5-ベンゼントリカルボン酸 btc からなる HKUST-1 を使用した。HKUST-1 薄膜を以下のように合成した。合成手順の概略を Fig. 3 に示す。まずエタノールに btc を溶解させた合成溶液を作製する。合成溶液とは別に、SiO<sub>x</sub> 基板上にスパッタリング法を用いて Cu を堆積させ、Cu/SiO<sub>x</sub> 基板を作製する。合成溶液を入れたバイアルを電気炉で 50 °Cまで加熱し、合成溶液中に Cu/SiO<sub>x</sub> 基板を浸漬する。このまま一定時間浸漬し続けると、Cu 基板上に HKUST-1 薄膜が合成される。その後硬化樹脂(PDMS)をスピンドルコーターを用いて基板上に塗布し、リフトオフを行った。

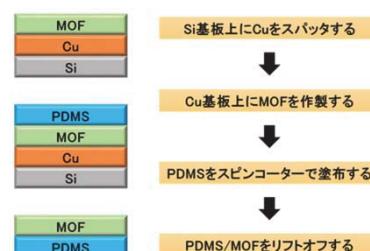


Fig. 3. HKUST-1 薄膜の合成

Table 1 HKUST-1 薄膜の合成条件

Cu 膜厚 [nm]	配位子濃度 [mol/L]	浸漬時間 [h]
500	0.0048	12

Table 2 PDMS の塗布条件

スピンドルコーターの回転速度[rpm]	スピンドルコーターの回転時間[s]
400	30

### 3. 実験結果・考察

#### 3.1 結晶性評価

##### 3.1.1 SEMによる結晶性評価

Fig. 4 に作製したデバイスの SEM 像を示す。Fig. 4 より、デバイスの表面に HKUST-1 多結晶薄膜が得られた。

##### 3.1.2 X線回折(XRD)による結晶性評価

Fig. 5 に作製したデバイスの XRD による回折結果を示す。XRD の測定結果より PDMS 剥離前後に HKUST-1 のピークが確認できるため、デバイス上に HKUST-1 薄膜が存在することがわかった。

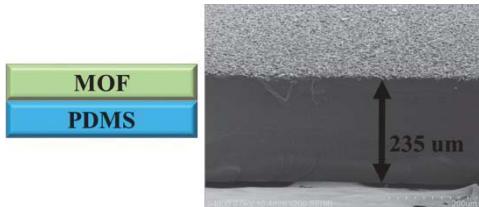


Fig. 4. 作製したデバイスの SEM 像

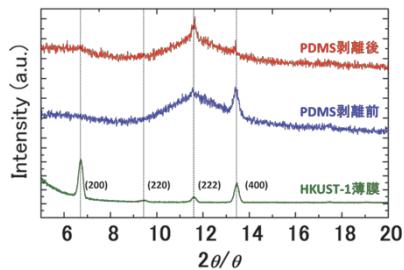


Fig. 5. 作製したデバイスの X 線回折結果

#### 3.2 ガスセンサとしての評価

##### 3.2.1 ガスの吸着方法

MOF のガス吸着方法としてはグローブボックス内に  $\text{CO}_2$ , Ar,  $\text{N}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$  ガスをそれぞれ置換し、上記のデバイス作製法で示した MOF/PDMS 基板をグローブボックス内に暴露する。その後 MOF/PDMS 薄膜上に PDMS を用いてガスを封入することで MOF 薄膜にガスを吸着させた。

##### 3.2.2 THz 波による透過特性

THz 波による吸収ピークを Fig. 6 に示す。いずれの THz 透過特性も十分なディップを得られずデバイスのガス吸着特性が確認できないことが分かる。

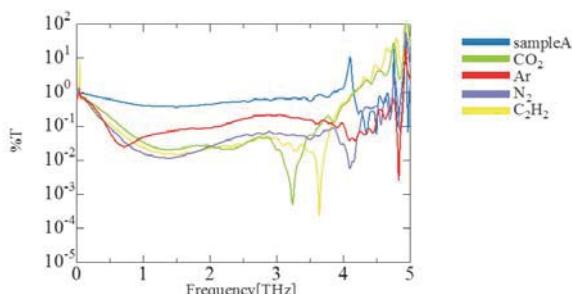


Fig. 6.  $\text{CO}_2$ , Ar,  $\text{N}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$  ガスの THz 透過特性  
(sampleA はガス吸着を行っていないデバイス)

##### 3.2.3 FTIR による透過特性

Fig. 7 に  $\text{CO}_2$  のデータベースの FTIR の透過特性を示す。Fig. 8 に今回の実験で  $\text{CO}_2$  を吸着させたデバイスの透過特性を示す。吸収ディップを比較すると、ガス吸着を行ったデバイスには  $\text{CO}_2$  と同じ透過特性が得られなかった。他のガスもデータベースと比較したが、同じ吸収ディップを得られなかった。原因としては、ガスの封止に使用した PDMS からガスが漏れてしまったと考えられる。また、ガス吸着を行う HKUST-1 薄膜の膜厚が吸収ディップを確認できるほど厚くないといったことが考えられる。

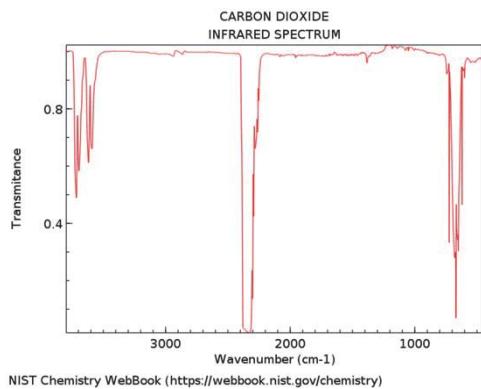


Fig. 7. データベースにおける  $\text{CO}_2$  透過特性[2]

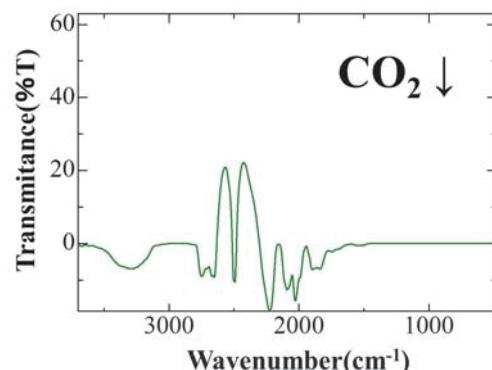


Fig. 8.  $\text{CO}_2$  ガス吸着デバイスの透過特性

### 4. 結論

MOF のガス吸着特性の解明とガスセンサ作製のために FTIR, THz による透過測定を行った。しかし、PDMS でのガス封止方法や MOF の膜厚がガス吸着ディップが得られなかった原因であると考えられる。今後は別の樹脂によるガス封止を行うことで、MOF のガスセンサの作製を実現していく必要がある。

### REFERENCES

- [1] K. Lauren, L. Kirsty, "Metal–Organic Framework Materials as Chemical Sensors," Chemical Reviews, vol. 112, No. 2, pp. 1105–1125, 2012.
- [2] NIST Chemistry WebBook, SRD 69, 2018.

# テラヘルツ分光測定による相変化材料の評価

牧野孝太郎<sup>1</sup>, 加藤康作<sup>2</sup>, 中野隆志<sup>1</sup>, 中嶋誠<sup>2</sup>

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

Ge-Sb-Te(GST)合金に代表される相変化材料は市販の書き換え型光ディスクや相変化電気メモリ(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。

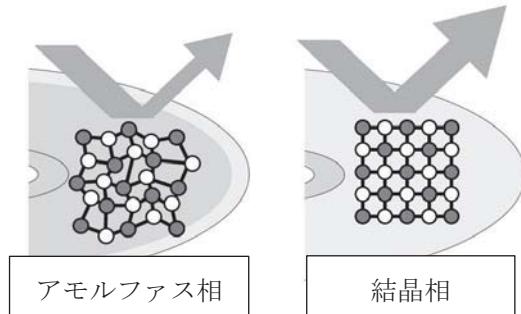


図1. 相変化材料を用いた光ディスク動作の原理。アモルファス相と結晶相では反射率が異なるため、この違いを利用して記録を実現している。

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。したがって、相変化材料は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。

まず、iPCM材料に対してTHz波発生分光測定を行った。この測定では、3層および20層のiPCM薄膜に対してフェムト秒レーザーパルスを照射し、発生したTHz波を観測した。その結果、20層のサンプルと比較して、3層のサンプルから発生したTHz波パルスの方が強度が強く、またレスポンスが速いことが明らかになった。また、フェムト秒レーザーパルスの偏光に依存せず、放出されるTHz波パルスは常にp偏光であったことから、光励起によって生じたキャリアの変調がサンプル表面(この場合は保護層との界面)に生じたバンドベンディングに沿って駆動されることでTHz波が生じていると考えられる。比較のため合金アモルファス及び結晶のGST薄膜も用い同様の測定を行い、発生するTHz波の強度は非常に弱いことを確かめており、iPCMの構造に起因する電子のダイナミクスの違いがTHz波の発生効率・メカニズムに寄与していると考えられる。

これまでの電子顕微鏡による原子の直接観察により、層を積み重ねるにつれて超格子構造が崩れる傾向があることが確認されている。したがって、20層サンプルでは層を積み重ねたことにより超格子構造が崩れ、光励起により誘起されるキャリアの変調が抑制され、THz波の強度が弱まるとともにレスポンスが低下した可能性が考えられる。また、各層はTe原子で終端されているため、層間にはファンデルワールスギャップが存在している。ファンデルワールスギャップを超える場合のキャリアの輸送特性はまだ未解明な部分が多いが、光励起キャリアのコーヒーレンズが失われることは十分に予想される。この効果はキャリアのレスポンスの速さに起因し、結果として3層サンプルからより速いTHz波の応答が得られた可能性が考えられる。これらの考察より、THz波発生分光測定をTHz波時間領域分光法(THz-TDS)と組み合わせて用いることで[1]、iPCM膜の構造の非破壊・非接触な検査が可能になると見込まれる[2]。

次に、THz-TDSによりGST合金材料における熱誘起相変化が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 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ 薄膜をサファイア基板に成膜し、その一部をアニールすることで、cubic相、及びhexagonal相のサンプル薄膜を得た。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、cubic 相のサンプルでは透過率が 10%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。

このスペクトル形状は自由キャリアを記述するドーレーデモデルでよくフィットすることができ、また GST は縮退したp型半導体であることから、吸収は主に自由キャリアによるものであることが示唆される。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。このデータを元に、光学定数や誘電率などを求め、GST における相変化が THz 帯の光学的性質に及ぼす影響を評価した。周波数に依らないフラットな吸収の変化など、この測定で得られた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る[3]。

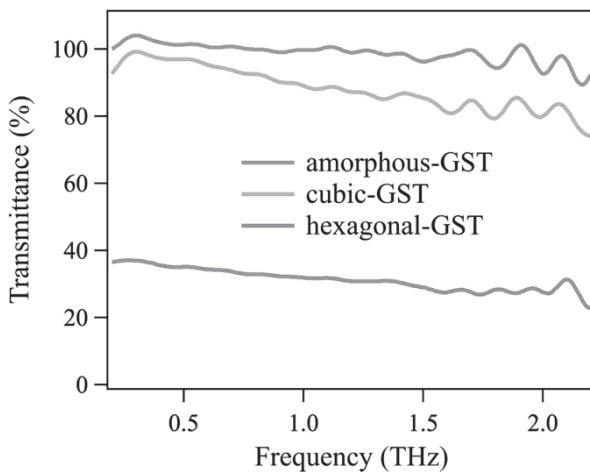


図 1. アモルファス、cubic、hexagonal 相の GST サンプルのテラヘルツ波帯透過スペクトル[3]。カープはそれぞれ上からアモルファス相、cubic 相、hexagonal 相のサンプルで計測された結果を示している。

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。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・プラズモニ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. Accepted.
- [3] K. Makino, K. Kato, Y. Saito, P. Fons, A. V. Kolobov, J. Tominaga, M. Nakajima, and T. Nakano, Proceedings of PCOS 2018, 59 (2018).

# レーザーテラヘルツエミッショントラベルミクロン顕微鏡による $Ti_xV_{1-x}O_2/TiO_2:Nb(001)$ ヘテロ接合界面の評価

村岡 祐治<sup>1</sup>、福田 貴優<sup>2</sup>、山原 淩太<sup>3</sup>、川山 巍<sup>4</sup>

<sup>1</sup> 岡山大学異分野基礎科学研究所、<sup>2</sup> 岡山大学理学部、<sup>3</sup> 大阪大学大学院工学研究科、

<sup>4</sup> 大阪大学レーザー科学研究所

## 背景

$VO_2$  は 340K で構造相転移を伴う金属絶縁体転移(MIT)を示す。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、これまでに研究例は数少なく、加えて報告されている結果は整合性に欠ける。サファイア基板上の  $VO_2$  薄膜を用いて行ったケルビンプローブフォース顕微鏡(KFM)測定[1]では、絶縁体相から金属相への転移で仕事関数は増大する。しかし、バルク試料を用いた紫外光電子分光(UPS)測定では減少する傾向が示されている[2]。不一致の原因には試料の表面状態の違いが関係していると思われる。表面状態は試料の作製状況や形状(薄膜、バルク)、吸着物などによって変わりうる。表面状態の違いは、KFM や UPS のような表面測定の結果に差異を与える要因となる。外因的要素を排除した表面を用いることができれば理想だが、その実現は容易ではない。

本研究では  $VO_2/TiO_2:Nb(001)$  膜の界面に着目した。 $VO_2/TiO_2:Nb(001)$  膜では界面で接合が形成される[3]。MIT で  $VO_2$  の仕事関数が変化すれば、界面で電子移動が起こり、バンドオフセットの大きさが変化する。その様子をテラヘルツ(THz)波の強度 THz  $d$  変化でモニターできるのではないかと考えた。つまり、仕事関数の変化の様子を THz 波の強度変化により明らかにできると予想した。そのためには、まず、 $TiO_2$

基板自体、および  $VO_2/TiO_2:Nb(001)$  接合界面からの THz 波発生を検出する必要がある。そこで本研究では  $TiO_2$  基板、および、 $VO_2/TiO_2:Nb(001)$  接合界面での THz 波の検出を試みた。

## 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  $TiO_2(001)$  および  $TiO_2:Nb(001)$  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 5-10 nm であった。 $VO_2$  薄膜の電気抵抗測定はカントムデザイン社の PPMS を用い、4 端子法により行った。これらの実験は岡山大学で実施した。

THz 実験は大阪大学でおこなった。フェムト秒 Ti: サファイアレーザー (780 nm、82 MHz、パルス幅 100 fs) を光源に、光伝導アンテナには LT-GaAs の dipole 型と spiral 型を用いた。測定は 300K で行った。

## 結果と考察

作製した  $VO_2/TiO_2:Nb(001)$  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、約 290K で MIT がおこり、電気抵抗値が 2 ケタ以上急峻に変化した。転移温度はバルクの 340K よりも低い。これは界面での格子整合(面内格子ミスマッチは 0.86 %)により膜の面内格子が伸ばされ、それに伴い面直の  $c$  軸長が圧縮されたためである[4]。転移温度の低下は面内で格子整合したエピタキシャル成長膜の形成を示している。

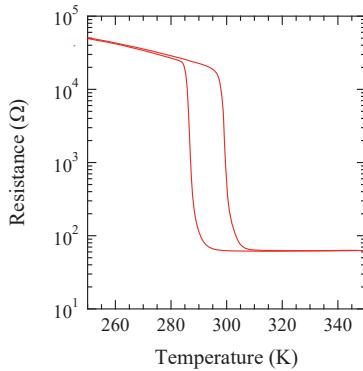


図 1  $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$  の電気抵抗の温度依存性

図 2 に  $\text{TiO}_2(001)$  および  $\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$  基板のみの THz 放射を調べた結果を示す。光源の出力や周波数を変化させても、THz 波の発生は観測できなかった。同様の実験を  $\text{VO}_2/\text{TiO}_2(001)$  と  $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$  に対して行ったが、いずれの場合も、THz の発生は検出できなかった（図 3）。 $\text{TiO}_2$  基板表面には数  $\text{MV}/\text{cm}$  と十分な電界  $E$  が生じている。 $J = en\mu E$  であることを考慮すると、THz が検出できなかったのは、 $\text{TiO}_2$  の電子や正孔の移動度が小さいためと推察される。 $\text{TiO}_2$  の移動度は電子で  $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  程度で、正孔はこれよりも小さい。GaN などの半導体の移動度と比べると 2 ケタ近く低い値である。移動度の小さい物質では電流密度  $J$  とその時間変化率が小さくなるので THz は発生しにくい。THz の発生には、移動度の大きな基板を用いることが望ましい。例えば、GaN 基板が候補となる。電子移動度が  $800 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  と  $\text{TiO}_2$  に比べ 2 ケタ大きい GaN では、表面から THz 放射が観測されている[5]。この基板上には  $\text{VO}_2$  膜が作製でき、界面に接合が形成される[6]。 $\text{VO}_2/\text{GaN}$  基板の接合界面を用いれば、MIT にともなう仕事関数の変化を THz 放射強度の変化から調べることができる。今後の実験として計画をしている。

## まとめ

$\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$  接合界面で発生するテラヘルツを検出し、 $\text{VO}_2$  の MIT に伴う仕事関数の変化を調べることを試みた。しかし、本実験では  $\text{TiO}_2$  基板自体、および  $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$  接合界面からの THz 発生を検出できなかった。その原因が小さな  $\text{TiO}_2$  の電子移動度にあると考え、 $\text{TiO}_2$  に比べて大きい電子移動度を持つ基板を用いる必要性を考えた。今後は  $\text{TiO}_2$

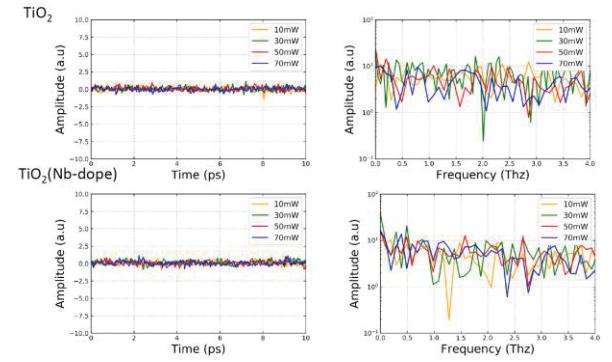


図 2  $\text{TiO}_2(001)$  基板（上段）と  $\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$  基板（下段）の 300K における THz 放射の光源出力および周波数依存性

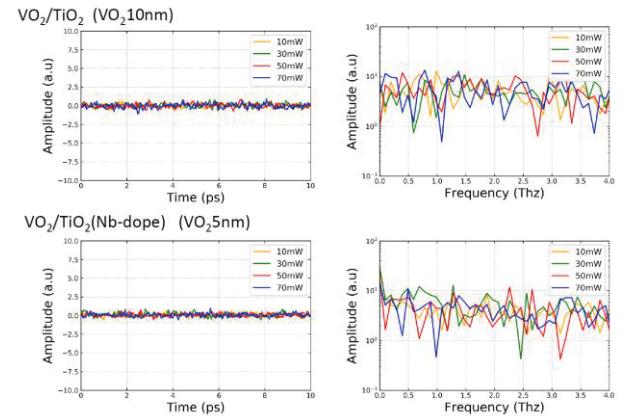


図 3  $\text{VO}_2/\text{TiO}_2(001)$ （上段）と  $\text{VO}_2/\text{TiO}_2:\text{Nb}(001)$ （下段）の 300K における THz 放射の光源出力および周波数依存性

より電子移動度が 2 ケタ大きい GaN 基板を用いて、 $\text{VO}_2/\text{GaN}$  接合界面での THz 放射と MIT に伴う THz 放射の強度変化を調べる予定である。

## 参考文献

- [1] C. Ko *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces **3**, 3396 (2011).
- [2] H. Yin *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces **3**, 2057 (2011).
- [3] Y. Muraoka *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **14**, L757 (2002).
- [4] Y. Muraoka and Z. Hiroi, Appl. Phys. Lett. **80**, 583 (2002).
- [5] Y. Sakai *et al.*, Sci. Rep. **5**, 13860 (2015).
- [6] Y. Zhou and S. Ramanathan, J. Appl. Phys. **113**, 213703 (2013).

# 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<sup>1</sup>, Valynn Mag-Usara<sup>1</sup>, 北原 英明<sup>1</sup>, 古屋 岳<sup>1</sup>, 中嶋 誠<sup>2</sup>

1 福井大学 遠赤外領域開発研究センター  
2 大阪大学 レーザーエネルギー学研究センター

## 1. はじめに

光伝導アンテナや非線形光学結晶をフェムト秒レーザーで励起することで、テラヘルツパルス波を発生することができる。光伝導アンテナや非線形光学結晶に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や偏光を制御できることができることが知られている。これまでも申請者と受け入れ研究者の中嶋誠准教授の研究グループとは、非線形光学結晶(GaAs)上にメタマテリアル構造を導入し、テラヘルツ波の第2高調波発生の効率を増強することを試みたりしている。

一方、最近スピントロニクスなテラヘルツ波発生素子が注目を集めている(図1参照)。この素子は磁性金属と非磁性金属の薄膜2重層構造を持ち、磁性金属中で発生したスピントロニクスなテラヘルツ波発生素子の薄膜構造に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、発生効率を増強できる可能性がある。

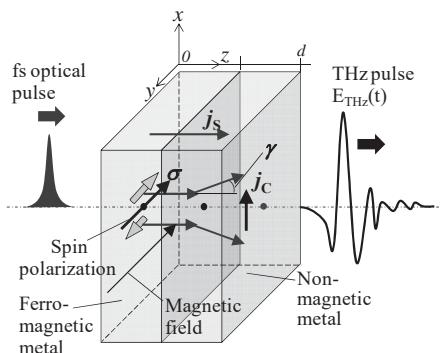


Fig. 1. Schematic diagram of spintronic THz emission from a bilayer consisting of ferromagnetic and non-magnetic thin films.

本研究では、メタマテリアル構造をテラヘルツ波発生素子に導入することで、発生するテラヘルツ波の周波数を制御したり、発生効率を増強することを目指す。特に新たに開発する金属スピントロニクスなテラヘルツ波発生素子に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、共鳴周波数でのテラヘルツ波発生効率の増

強を試みる。

本年度は、磁性金属としてFeを、非磁性金属としてPtを用いた金属2重層の金属スピントロニクスなテラヘルツ波発生素子としての基本特性を明らかにするため、膜厚依存と起波長依存を調べた。

## 2. 素子作成および評価装置

膜厚依存性を調べるために、FeとPtの膜厚が異なる5種類の素子を作成した。素子作成には佐賀大学の郭其新教授のグループの協力を得て、0.5mm厚のMgO基板上にFe膜がMgO基板側、Pt膜が表面側になるように、電子ビーム蒸着法により作成した。作成した膜厚の組み合わせを表1に示す。

表1. 試作したFe膜とPt膜の膜厚組み合わせ。  
○がついている組み合わせを試作した。

	Fe 2 nm	Fe 2.5 nm	Fe 3 nm
Pt 2 nm	○		○
Pt 2.5 nm		○	
Pt 3 nm	○		○

また、励起波長依存性の測定には、Kaiserslautern大学のRené Beigang教授およびPhotonics Center, KaiserslauternのGarik Torosyan博士に提供していただいた、スピントロニクス素子(MgO基板上にエピタキシャル成長したFe(2nm)/Pt(3nm))の素子を用いた。素子評価にはテラヘルツ時間領域分光法を用いた。評価装置の模式図をFig.1に示す。レーザー光源として、膜厚依存性評価にはMenlo Systems社のC-Fiber Laserを、励起波長依存性評価には、さら

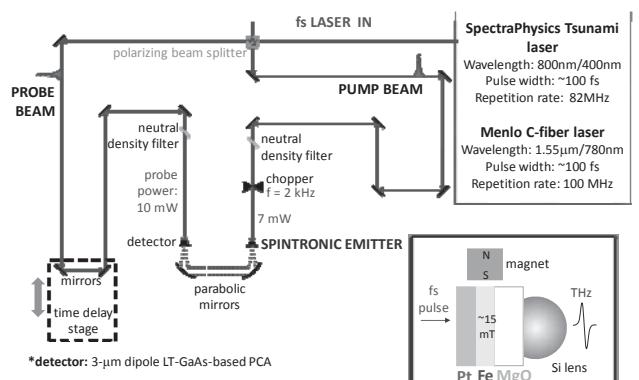


Fig. 2. Experimental setup for evaluation of spintronic THz emitters.

SpectraPhysics 社の Tsunami Laser と SHG モジュールを用いた。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。

### 3. 素子の評価結果

Fig. 3 に膜厚が異なる 5 つの素子から得られた THz 波の時間波形を示す。励起レーザー波長は 780nm で、励起パワーは 7mW である。Fig. 3 に示されるように、最大の THz 波強度は Fe 膜厚 3nm、Pt 膜厚 2nm が最適でありことがわかる。

Fig. 4 に、Fe 膜厚 2nm、Pt 膜厚 3nm の素子を、励起レーザーを波長 400nm と 800 nm、および 780nm と 1550nm の場合で得られた THz 波の時間波形を示す。Fig. 4 に示される結果より、これらの波長において、励起レーザーパワーが同じであれば、ほとんど THz 波の放射効率に変化がないことがわかる。

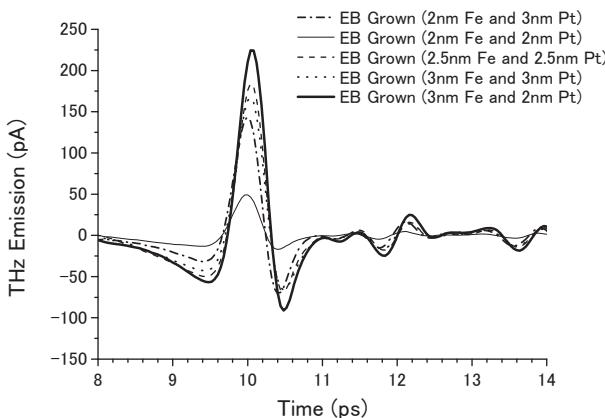


Fig. 3. Thickness dependence of THz emission from spintronic Fe/Pt bilayer.

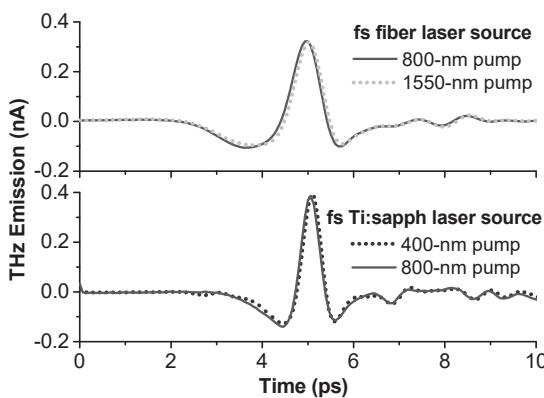


Fig.4. Wavelength dependence of THz emission from Fe(3nm)/Pt(2nm) spintronic bilayer.

### 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、Fe/Pt 金属二重層のスピントロニック素子の基本特性、すなわち最適な膜厚および励起波長依存を評価することができた。今後は最適化された、Fe/Pt

金属二重層にメタマテリアル構造を導入し、スピントロニック素子からの THz 波放射に対するメタマテリアルの影響を評価する。

### 謝辞

素子作成にご協力いただいた、佐賀大学の郭其新教授およびその研究室の方々、また、Kaiserslautern 大学の René Beigang 教授および Photonics Center, Kaiserslautern の Garik Torosyan 博士に感謝いたします。また膜厚依存の評価実験に協力いただいた福井大学大学院工学研究科博士後期課程の Miezel Talara さんに感謝いたします。

### REFERENCE(S)

- [1] Torosyan, *et al*, Scientific Reports, Vol. 8, 1311 (2018) (DOI:10.1038/s41598-018-19432-9)

# メタルスリットアレイ積層構造への誘電体挿入効果

徳田安紀<sup>1)</sup>, 坂口浩一郎<sup>1)</sup>, 渡辺将伍<sup>1)</sup>, 加藤康作<sup>2)</sup>, 中嶋誠<sup>2)</sup>

1) 岡山県立大学 情報工学部 情報通信工学科

2) 大阪大学 レーザー科学研究所

## 1. はじめに

金属板に周期的に溝を切ったメタルスリットアレイは、スリット端での回折限界周波数以下で擬似的な誘電体として働き、その等価屈折率はスリット周期とスリット幅の比で決まり、原理的には1から∞の全ての屈折率範囲で変えられる[1]。

我々は、このメタルスリットアレイの多段構造の光学的性質を調べ[2-5]、それらを利用してテラヘルツ波を制御することを検討している[6-8]。本研究では、メタルスリットアレイの二段構造に誘電体を挿入したとき、透過特性がどのように変わるかについてテラヘルツ時間領域分光法 (THz Time-Domain Spectroscopy: THz-TDS) による測定を行い、結果を時間領域有限差分法 (Finite-Difference Time-Domain: FDTD) に基づいたシミュレーションにより解釈した[9]。

## 2. スリットアレイの構造と透過スペクトルの測定

図1に検討した二段型のメタルスリットアレイ構造の断面図を示す。上下のスリットアレイの構造は同じで、スリットの高さを  $h$ 、周期を  $d$ 、幅を  $w$  とし、上下のアレイの間隔を  $s$  とした。実験では真鍮板をワイヤ放電加工して作製した  $h = 1000 \mu\text{m}$ ,  $d = 500 \mu\text{m}$ ,  $w = 150 \mu\text{m}$  のスリットアレイを用いた[8]。

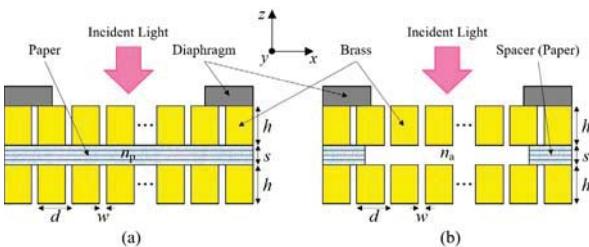


図1 実験系の断面図。中間層は(a)コピー紙 (屈折率  $n_p = 1.4$ ) と(b)エアギャップ (屈折率  $n_a = 1.0$ )。

図1(a)のように上下のアレイ間に横ずれがない状態で、屈折率  $n_p$  が 1.4 で 1 枚の厚さが約 100  $\mu\text{m}$  のコピー用紙を複数枚挿入した構造に対して、TM 波 (磁場成分が  $y$  方向) を垂直に ( $z$  方向に沿って) 入射させた場合の透過スペクトルを THz-TDS 法を用いて測定した。比較のために、図1(b)のように同じ枚数のコピー用紙をスペーサとして用いて、エアギャップに対するスペクトルも測定した。

## 3. 結果と考察

### 3-1 透過スペクトルの測定結果

図2(a)の赤の実線は、10枚までの挿入枚数  $N$  に対する透過スペクトルを示す。また、黒の点線は対応したエアギャップに対する透過スペクトルを示す。なお、ゼロギャップ ( $N=0$ ) に対する黒の実線は  $h=2000 \mu\text{m}$  の単体試料に対する透過スペクトルである。また、図2(b)と2(c)は、それぞれ、横軸に挿入枚数  $N$  をとったコピー用紙とエアギャップに対するスペクトルマップである。ここで、各モードは  $h=2000 \mu\text{m}$  のスリットアレイに対するモード次数  $m$  ( $= 0, 1, 2, \dots$ ) を用いて  $D_m$  で表した。

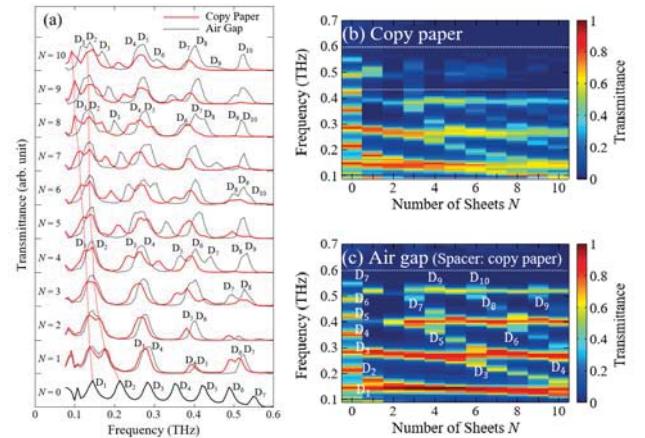


図2 透過スペクトルの測定結果。(a)挿入枚数  $N$  に対する透過スペクトル。(b)コピー用紙挿入に対するスペクトルマップと(c)エアギャップに対するスペクトルマップ。

どちらの場合も、 $c/d$  ( $c$  は光の速さ) で決まる回折限界周波数  $f_{RW}$  の 0.6 THz 以下、すなわちメタマテリアル条件下 ( $\lambda > d$ ) で強い Fabry-Perot 的な共鳴モードが観測された[5]。しかし、図2(b)のコピー用紙を挟んだ構造では 0.45 THz 以上のモードは強く減衰していることが分かる。

### 3-2 FDTD シミュレーションによる解釈

実験結果を理解するために、等価な構造に対してアレイ間距離  $s$  を 0 から 1000  $\mu\text{m}$  まで 2  $\mu\text{m}$  刻みで変化させたときの透過スペクトルを FDTD シミュレーションを用いて計算した。図3(a)はメタルスリット部以外は全て空気 ( $n_a = 1.0$ ) の場合、図3(b)はコピー用紙の挿入実験に対応するスリット間のみが誘

電体 ( $n_p = 1.4$ ) である場合、そして図 3(c)はメタルスリット部以外は全て誘電体 ( $n_p = 1.4$ ) である場合のスペクトルマップである。

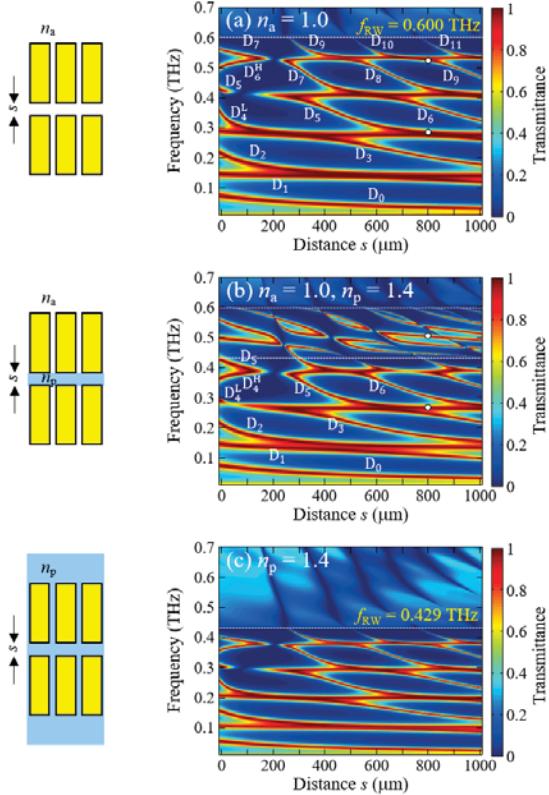


図 3 スリット間距離  $s$  に対する透過スペクトルマップの FDTD 計算結果。(a)  $n_a = 1.0$ , (b)  $n_a = 1.0, n_p = 1.4$ , (c)  $n_p = 1.4$ .

エアギャップに対する図 3(a)の計算結果は、モード消失の位置も含めて図 2(c)の実験結果と基本的によく合っている。ここで、 $s = 100$  と  $200 \mu\text{m}$  付近のモード消失は、それぞれ、 $D_5$  モードとブルーシフトした  $D_4$  モード、および  $D_7$  モードとブルーシフトした  $D_6$  モードとの干渉によることが分かっている[3,5]。一方、図 3(c)の場合の回折限界周波数は  $c/n_{pd}$  になるので、図 3(a)を  $0.600 \text{ THz}$  から  $0.429 \text{ THz}$  に圧縮した特性になっていることが分かる。

ここで、コピー用紙の挿入に対応した図 3(b)の計算結果を見ると、 $0.43$  と  $0.60 \text{ THz}$  の間でのモードの振舞いはループ状の特性[4]を示すなど非常に複雑になっている。これは、内側のスリット端での回折限界周波数が  $0.429 \text{ THz}$  に下がったことによると考えられる。すなわち、 $0.429 \text{ THz}$  以下ではどちらのスリット端でも回折は生じないので通常の共鳴特性が観測されるが、 $0.429$  と  $0.600 \text{ THz}$  の間では内側のスリット端で回折が生じるため、アレイ間領域では回折波が干渉し、複雑な透過特性を示すと考えられる。

この現象を視覚的に確かめるために、FDTD シミュレーションにより磁場  $H_y$  の振幅分布を計算した。図 4 は図 3(a)と 3(b)において白丸でマークした  $s = 800 \mu\text{m}$  の 4 点における振幅分布を示す。

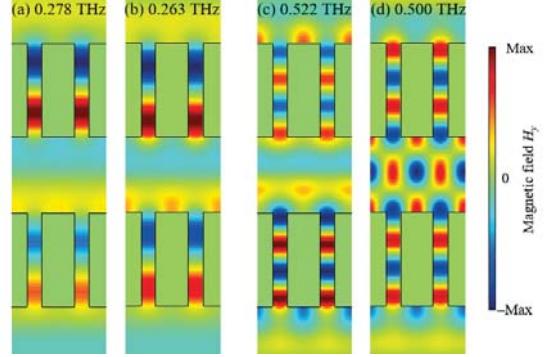


図 4 中間層 ( $s = 800 \mu\text{m}$ ) の屈折率が(a)(c) 1.0 と(b)(d) 1.4 の場合の共鳴モードの磁場の振幅分布

低次のモードに対しては、空気層(図 4(a))でもコピー用紙(図 4(b))でも、ほぼ同じ分布パターンを示している。これは共鳴周波数がともに  $0.429 \text{ THz}$  より十分低いため回折が生じていないためである。しかし、共鳴周波数が  $0.429 \text{ THz}$  以上の高次のモードに対しては、中間層が空気層(図 4(c))とコピー用紙(図 4(d))との場合で明らかに分布パターンは異なっている。これは図 4(d)の中間層では 1 次の回折波による干渉が生じているためである[9]。

なお、図 2(b)の実験結果で  $0.45 \text{ THz}$  以上のモードは強く減衰しているのは、実験試料の構造ばらつきにより回折条件が乱れているためと考えられる。

#### 4.まとめ

THz 帯で擬似的な誘電体とみなせるメタルスリットで誘電体を挟んだ構造の透過スペクトルを THz-TDS 法を用いて測定した。結果は FDTD シミュレーションにより解釈された。

#### 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, H. Takaiwa, K. Sakaguchi, Y. Yamaguchi, K. Takano, K. Akiyama, T. Fukushima, and M. Hangyo, Appl. Phys. Express, **5**, 042502 (2012).
- [7] Y. Tokuda, K. Sakaguchi, T. Nishihara, K. Takano, T. Fukushima, and M. Hangyo, Appl. Phys. Express, **6**, 062602 (2013).
- [8] Y. Tokuda, K. Takano, Y. Yamaguchi, K. Sakaguchi, and M. Nakajima, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 030306 (2017).
- [9] Y. Tokuda, K. Takano, K. Sakaguchi, K. Kato, M. Nakajima, and K. Akiyama, AIP Advances **8**, 095305 (2018).

# ラマンライダーによる海上観測

染川智弘<sup>A,B</sup>, 倉橋慎理<sup>A</sup>, 藤田雅之<sup>A,B</sup>, 河仲準二<sup>B</sup>

<sup>A</sup> レーザー総研, <sup>B</sup> 阪大レーザー研

## はじめに

日本の領海・排他的経済水域は国土面積に比べて12倍程度と広く、海底熱水鉱床、メタンハイドレートなどの海底資源開発や、温室効果ガスであるCO<sub>2</sub>を海底地層に圧入して大規模削減を目指すCCS(Carbon dioxide Capture and Storage)等の有効な海底利用が計画されている。海底開発では資源探査手法の開発だけでなく海洋生態系・環境への影響評価が必要とされており、広大な海底を効率よくモニタリングするために、水中のガスからのラマン信号を利用して位置情報を得る水中ガスラマンライダーの研究開発を行っている<sup>1)</sup>。

本手法を用いた海中モニタリングの実施に向けて、船舶搭載型の海上ラマンライダーシステムを開発した。本報告では海上ラマンライダーシステムを用いた竹富島近海での海上観測結果を報告する。

## 竹富島近海でのライダー観測

石垣島を中心とした八重山諸島にある竹富島の近海には、水深が20mと比較的浅い海底からメタンガスを70%程度含む火山性ガスの湧出があり、竹富島海底温泉と呼ばれている。平成30年の2月19日～23日の5日間にわたって、竹富島近海で海上観測実験を実施した。

図1に漁船に搭載した海上ラマンライダーシステムを示す。漁船の左側前方にライダーシステムを設置し、ロープと木材で漁船に固定している。

波長355nm、出力120mJ、繰り返し20Hzのレーザーパルスを鉛直下向きに海中に照射し、海中からの散乱光を直径20cmの望遠鏡で集め、光ファイバーで光路30cmの分光器に導いた。分光器の測定ポートにはラマンスペクトル計測用の電子冷却CCDカメラと、ライダー信号を計測する光電子増倍管(PMT)を搭載した。分光器の光路上に設置したミラーの出し入れによってCCDとPMTの検出機器を切り替えることが可能である。

海上での観測を想定し、塩害防止のため望遠鏡部以外のレーザー本体・電源、分光システム、オシロスコープなどは密閉型の容器内に設置し、除塩フィルター付きのファンで容器内の気を強制循環して排熱できるようにした。ファンを動作させた状態では、実験室環境下で温度上昇は2°C/h程度であり、数時間にわたって安定したレーザー出力を得ることに成功した。また、温度上昇によるCCDカメラなどの測定機器に不具合も生じないことを確認し

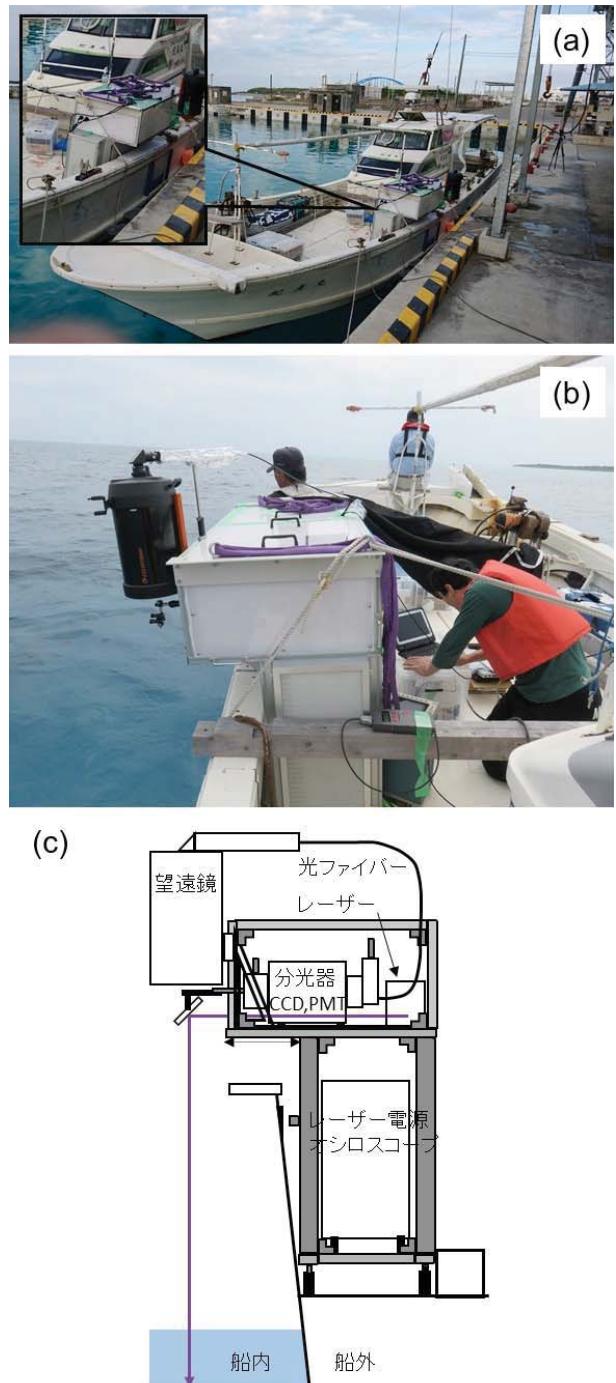


図1 (a)船舶搭載型海上ラマンライダー装置、(b)海上ラマンライダー観測の様子、(c)海上ラマンライダー装置の概要図

た。本ライダーシステムは 2.8 kVA の小型の可搬型インバータ発電機 1 台で全システムの動作が可能であるため、船上での利用も容易である。

## 実験結果および考察

図 2(a)に海上ラマンライダーシステムを用いた竹富島海底温泉でのラマンスペクトルの測定結果を示す。測定は 1000 回積算で実施した。 $\square 3400\text{ cm}^{-1}$  に見られる信号が水の対称伸縮振動によるラマン信号であるが、水の変角振動のラマン信号である $\square 1600\text{ cm}^{-1}$  では、ノイズが大きく識別が困難である。また、メタンの $2897\text{ cm}^{-1}$  でのラマン信号も検出できていない。本スペクトル計測システムでは、信号の時間分解計測を行っていないために、海面からの反射成分も信号として取り込んでいる。実験中は波による太陽光の反射、散乱が時々刻々大きく変化するため、背景光雑音成分のゆらぎが大きく、メタンガスなどの微弱なラマンスペクトルの識別が困難であることがわかった。

図 2(b)に海上ラマンライダーシステムを用いた水のラマン信号である $3405\text{ cm}^{-1}$  のライダー信号を示す。測定は 1000 回積算で実施した。水のラマンライダー信号は、レーザーの水の伝搬による減衰と信号受光での距離の 2 乗に相当する減衰波形を示し、海面付近ではレーザーと望遠鏡の視野が重ならないために信号が 0 になっている。水深が 20 m 程度の竹富島海底温泉のライダー信号は図 2(b)の挿入図に示すように水深に相当する位置にピークが見られる。また、水深が $3\square 4\text{ m}$  程度である石垣港のライダー信号にも同様の水深に相当するピークが見られる。水のラマン波長での観測するために、海底面からの反射信号は観測されないはずであるが、波長 355 nm での水のラマン波長 ( $\square 403\text{ nm}$ ) は水中の伝搬によ

る強度減衰が小さいために、それぞれの水深で生じた水の前方ラマン散乱の合計が海底面で反射してピークが生じていると考えられる。水のラマンライダー信号は、対象ガスの濃度を評価するための較正信号として測定していたが、さらに海底面の測距にも利用できることがわかった。

## まとめ

広大な海底を効率よくモニタリングする水中ガスラマンライダーシステムの開発を行い、竹富島近海で海上観測を実施した。今後は対象ガスと水のラマンライダー信号を同時に取得するシステムの開発や、波の影響を軽減させる方法、時間分解機能付きの ICCD カメラを検出器に用いて、海中からのラマン散乱成分のみを測定する方式などの改善策を検討する予定である。

## 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。

## 参考文献

- [1] T. Somekawa, A. Tani, and M. Fujita: Appl. Phys. Express 4 (2011) 112401.

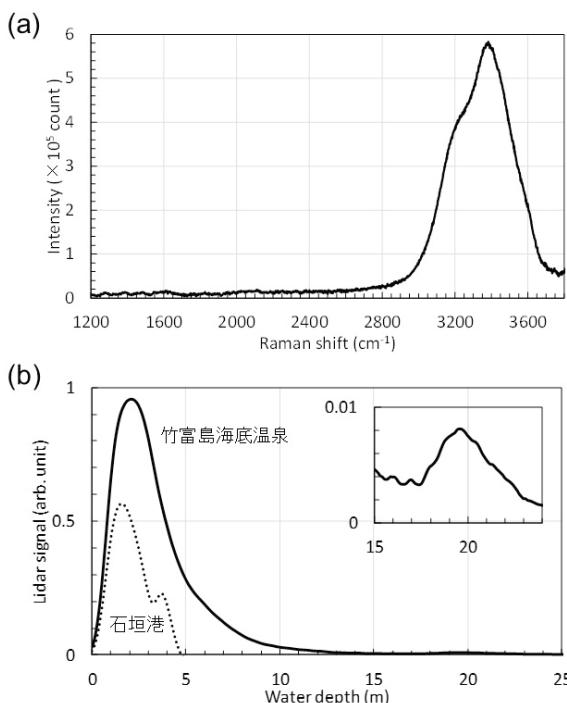


図 2 石垣島近海での海上ラマンライダーによる(a)ラマンスペクトル、(b) $3405\text{ cm}^{-1}$  のラマンライダー信号

# レーザー駆動繰り返し中性子発生用ターゲット駆動装置の開発

井上竣介

京都大学化学研究所

## 研究目的

繰り返しレーザーの高出力化が進み、繰り返しレーザー駆動中性子の研究が盛んに行われるようになってきた。大阪大学レーザー研究所の有川氏らのグループでは京都大学のT6レーザー(0.5J)、スペインCLPUのVEGA-IIレーザー(5J)を用いて、10Hzの中性子連続発生実験に成功している。次はVEGA-IIIの実験が決まっており、今後はJ-KAREN-PやELI-Beamlineでの実験も計画されている。

現状はターゲットの交換で連続照射回数が決まっている。10Hz レーザーの場合わずか 1000 秒で 10,000 発を撃ちきってしまう。それに対応できるよう 10,000 発以上の連続ターゲット供給ができるようなターゲットの開発が急務である。

## 研究成果

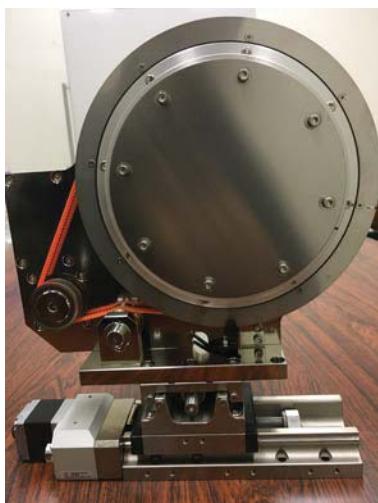
京都大学で使用してきた回転型ターゲット駆動装置を改良し、光核反応中性子発生に特化したターゲット駆動装置を開発した。スペインサラマンカの VEGA-II レーザーでの実験用に設計を行なった。モーター・ケーブル、真空フィードスルー装置を高真空仕様にした図 1(a)。回転ターゲットにレーザーを集光し高エネルギーX線を発生させ、そのX線を重水に作用させて、光核反応で中性子を発生させる実験セットアップで用いる。回転ターゲット材料は、高エネルギー電子を発生させるために出来るだけ Z 番号が高く、また安価に研磨ができる使い捨てにできるステンレスを採用した。図 1(b)は照射後のターゲットであり、頻繁に交換ができるようになった。図 1一枚ターゲットあたり 1000 ショットを実施し、交換した。現状の円盤サイズでは 3000 ショットが限界である。もう一回り大きな円盤を利用する事で 10,000 ショットも可能である。ターゲット面の凸凹があれば、レーザーの集光強度がショットごとに変わってしまう。この実験では凹凸を 5μm 程度に抑える必要があった。凹凸はステンレス板の研磨精度と、回転軸の歪みで決まっており、この実験に十分な精度が達成できた。位置変位計を用いて実測を行なったところ凹凸は 2μm 程度であった。

## 現在取り組み中の回転ターゲット装置

この装置を応用して、連続駆動プラズマミラーを設計している。双極面パラボラを採用する事で、レーザーの集光強度を向上させる事ができる装置を設計

している。VEGA-III レーザーでの使用を念頭に、汎用的に使える装置を設計している。長焦点パラボラ

(a)



(b)



(c)

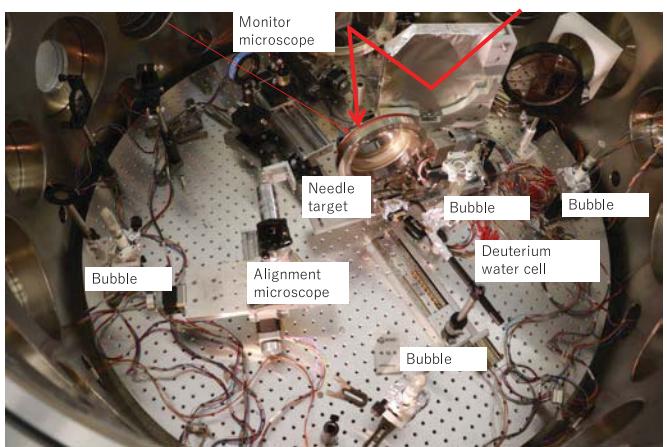


図 1 中性子発生用回転ターゲット(a)と、照射後のステンレス板(b)、スペイン VEGA-II レーザーの実験での実際の使用風景

ミラーの光を双極面プラズマミラーに照射すると、

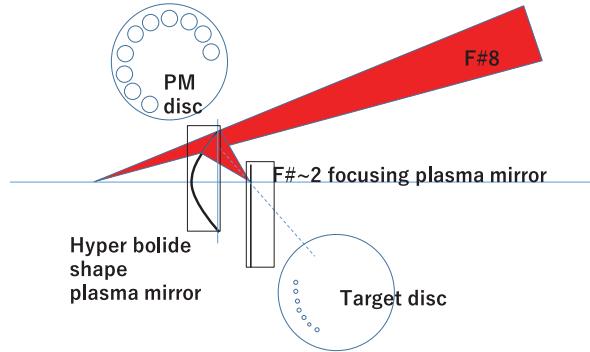


図 2 新型回転ターゲットによる集光プラズマミラーと回転ターゲットの概念図

パラボラミラーの F 値を下げる事ができ、集光強度を高める事ができる。レーザーエネルギーの高い VEGA-III 装置ではチャンバーのサイズが大きく、またターゲットデブリからパラボラミラーを守るために、長焦点距離( $F=8$ )のパラボラが用いられている。中性子発生のためには集光強度を 10 倍高めたいとい要望があり、F 値 2 程度まで小さくする必要がある。大口径の短焦点距離のパラボラミラーの製造はコスト的に現実的ではない。そこで連続回転プラズマミラーを検討している。図 2 に示す概念図は、設計中の回転ターゲット装置である。第一に回転駆動双極面プラズマミラー（アクリル製）があり、第二に図 1 のターゲット装置があり、これらが同期して同時に駆動している。回転対称双極面は反射により集光 F 値を小さくする事ができ、回転駆動をさせることができる。これにより VEGA-III の集光強度を 10 倍高め、しかも 10,000 発の連続運転ができるようになる。現在も開発を継続している。

# レーザー照明における高演色化の開発

眞鍋 由雄<sup>1</sup>, 嶋田 賢男<sup>1</sup>, 石野 正人<sup>2</sup>, 山本 和久<sup>2</sup>

1 津山工業高等専門学校 総合理工学科

2 大阪大学 レーザー科学研究所

## 1. はじめに

現在、既存照明装置の蛍光灯から省エネに優れた固体照明装置に移行している。しかし、固体発光素子は離散的な発光スペクトルを有するので、演色性は連続スペクトルである標準光源に比べて非常に低い。また、既存光源（白熱電球や蛍光灯）に比べても低い。固体発光素子の高演色化の一例として、大阪大学レーザー科学研究所の中の山本和久教授らの研究グループでは、4波長半導体レーザーによる光源で演色性を改善した報告がされている[1]。また、申請者は、LEDの場合白色LEDに赤色、緑色単色LEDを加色した報告がある[2]。

また、第5世代移動通信システムや高精細8K映像システムなどの次世代映像システムの実用化が現在進んでいる。これらのシステムを用いた視覚を利用する官能検査システム、例えば、遠隔作業や手術など、色再現で実現されるシステムでは厳しい照明環境条件が要求されるので、この視覚利用の照明システムでは高演色性の機能をもち、かつ省エネで軽量小型のレーザー照明が重要なキーデバイスとなると考えられる。

本研究では、山本和久教授らの研究グループの基幹設備と申請者の演色性の改善技術の融合により、波長選択の容易なLEDにおいて加法混色による発光スペクトル合成で、レーザー照明の演色性の改善の先行検討を行ない、レーザー照明の実用課題であるレーザー波長の数や光源の波長間隔などの諸特性と演色性の関係について再検討することを目的とする。本年度は、3色ないし4色単色LEDの構成で特殊演色評価数(R9)を加法混色法を用いて計算し、実験で検証確認すると共に、その結果を基に半導体レーザーを用いて実験的に確認する。

## 2. 加法混色による発光スペクトル合成

固体発光素子の各光源の発光スペクトルから得られた三刺激値 $X_i, Y_i, Z_i$ ( $i$ :各光源、ここではb:青色、g:緑色、r:赤色、y:黄色または橙色)による各光源の色度座標 $x_i, y_i$ は、式(1)となる[3]。

$$x_i = \frac{X_i}{X_i + Y_i + Z_i}, y_i = \frac{Y_i}{X_i + Y_i + Z_i} \quad (i = b, g, r, y) \quad (1)$$

また、各光源の刺激値 $Y_i$ が各光源の印加電力に相關し、その混合係数を $a_i$ とすると、加法混色して得

られた色度座標 $x, y$ は式(2)となる。

$$x = \frac{\sum a_i \cdot X_i}{\sum a_i \cdot (X_i + Y_i + Z_i)}, y = \frac{\sum a_i \cdot Y_i}{\sum a_i \cdot (X_i + Y_i + Z_i)} \quad (2)$$

さらに、各光源の初期値となる三刺激値をもとめると、所望の色度座標における各光源の印加電力を求められ、合成された発光スペクトルが得られる。この発光スペクトルを使ってJIS Z8726に基づいて演色性を評価した。

## 3. レーザー照明、LED光源の構成

本研究で使用したLEDは、日亜化学工業株製の青色:NE2B757GT(464 nm)、緑色:NE2G757G(522 nm)、赤色:NCSR119B-V1(631 nm)、橙色:NJSA172B(608 nm)を使った。光源の概略図を図1に示す。光源の基本構成は、アルミニウム基板上に銅箔の配線層、LEDと配線層とを半田で接続するための開口部で配線上に配置されたレジスト層、およびLEDである。各色LEDは2個ずつ並列に接続し、定電流電源で式(2)から求めた電流値で駆動制御した。また、半導体レーザー(LD)光源は、461 nm, 522 nm, 588 nm, 635 nmを使用した。

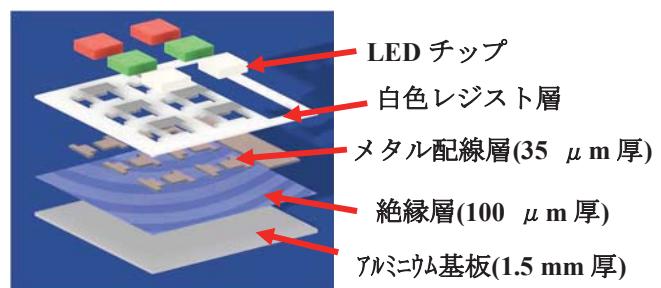


図1 LED光源の基本構成

## 4. 演色性の予測と実験結果

式(2)から求めた発光スペクトルの合成から、色度座標 $(x, y) = (0.28, 0.28)$ から $(0.4, 0.4)$ までの範囲で、特殊演色評価数R9を計算した。計算結果を図2、3に示す。図2は青色、緑色、赤色LEDの3色合成で求めたR9、同様に図3は青色、緑色、赤色、及び橙色の4色合成で求めたR9である。3色LED構成のR9(図2)は、みてわかるように、広範囲の色度座標においてR9の値は-100であった。この

傾向は、3色LEDを構成する各LEDのピーク波長を変えても同様の結果を得られた。一方、4色LED構成のR9（図3）は、広範囲の色度座標領域において、 $R9 > 80$ の値を示した。最大値は95.5に達した。この値は、申請者が白色LED、緑色、

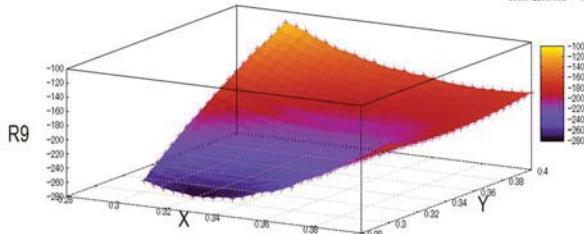


図2 3色LED構成のR9の予測値

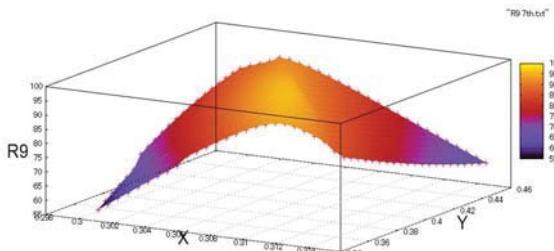


図3 4色LED構成のR9の予測値

赤色LEDの構成で示した値(97.7)と同等であった[2]。図2、3で得られた結果を基に、色温度6000K、DUV0付近の色度座標で、3色LED構成と4色LED構成のLED光源で光学測定を行った。図4に3色LED構成、図5に4色LED構成の発光スペクトルを示す。図4の3色LED構成の場合、

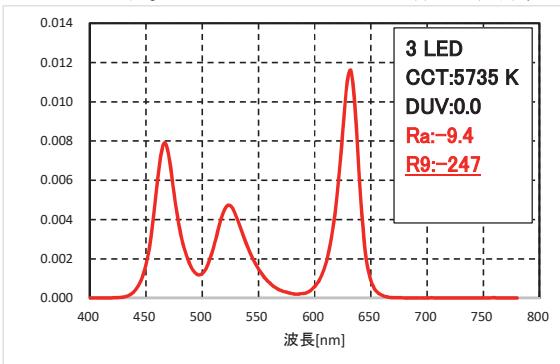


図4 3色LED構成の発光スペクトル

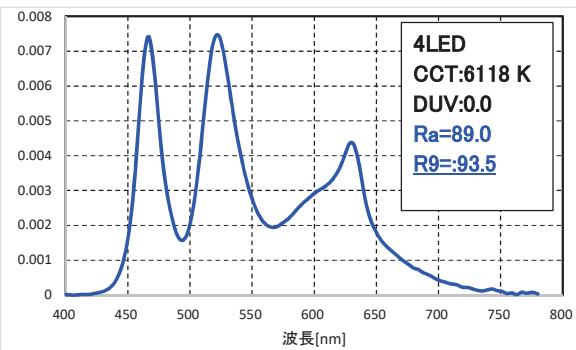


図5 4色LED構成の発光スペクトル  
R9=-217であったが、4色LED構成の場合、

$R9=93.5$ を得た。単色LEDの構成で高いR9を得ることを検証できた。一方、図2、図3で示した予測結果を用いて現有の半導体レーザーを用いてR9の検証実験を行った。図6に青色、緑色、赤色の3色LD構成、図7に青色、緑色、赤色、黄色の4色LD構成の5000K、DUV0色度座標付近における照度計の出力波形のスペクトルを示す。ここで、このスペクトルは照度計の出力波形を示し、各半導体レーザーの発光形状を示したものでない。

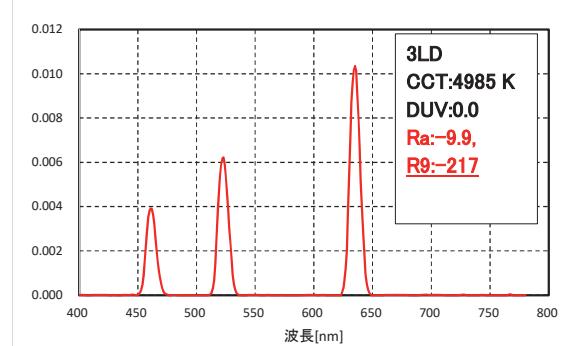


図6 3色LD構成の照度計出力スペクトル

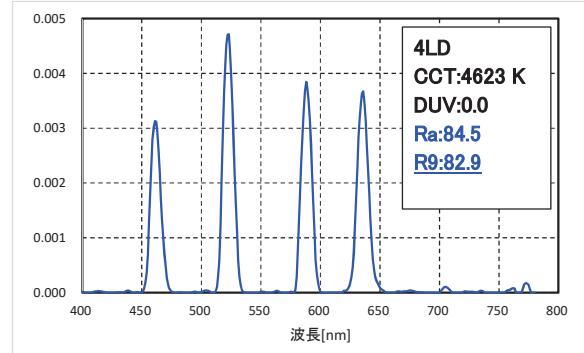


図7 4色LD構成の照度計出力スペクトル  
4色LD構成の場合、 $R9=82.9$ に達した。3色LD構成の場合、LEDと同様に負の値であった。

## 5.まとめと今後の計画

本年度は単色LEDまたは半導体レーザーによる演色性改善の取り組みを始め、特殊演色評価数（R9）について、単色LED、半導体レーザーとともに4光源の場合、加法混色法で予測された高い値を得た。しかし、白色LEDを用いた場合で得た演色性の値に達していない。来年度、演色性の向上だけでなく、多波長の半導体レーザーの構成を求める。さらに、高い演色性を得る波長選択の理論が不明なので、高演色性のレーザー照明の実用化に向けた研究を行う予定である。

## 参考文献

- [1] J.KINOSHITA et.al,The 5<sup>th</sup> Laser Display and Lighting Conf.(LDC'16) (2016).
- [2] 熊崎 竣二 他, 2018年照明学会全国大会  
① -P-02.
- [3] 照明学会編、“照明工学”(オーム社,2015)pp. 173-174.

# Material design and synthesis of ZnO-polymer nanocomposites (ZnO-PNCs) for photonic applications

Roland V. Sarmago<sup>1,2</sup>, Verdad C. Agulto<sup>2</sup>, Melvin John F. Empizo<sup>2</sup>, Keisuke Kawano<sup>2</sup>, Kloudene A. Salazar<sup>1</sup>, Yuki Minami<sup>2</sup>, Kohei Yamanoi<sup>2</sup>, Toshihiku Shimizu<sup>2</sup>, and Nobuhiko Sarukura<sup>2</sup>

<sup>1</sup>National Institute of Physics, University of the Philippines Diliman, Quezon City 1101, Philippines

<sup>2</sup>Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

## INTRODUCTION

Polymer nanocomposites (PNCs) are hybrid materials which consist of nanoparticles dispersed in a polymer matrix. Compared to stand-alone bulk materials, PNCs offer substantial property enhancement and improved performance in terms of processability, flexibility, mechanical strength, thermal stability, and chemical resistance. Zinc oxide (ZnO), a potential constituent material of PNCs, has attractive properties such as non-toxicity, biocompatibility, high surface-to-volume ratio, UV absorption, visible transparency, and affordability. Hence, ZnO-PNCs are promising luminescent materials for various photonic applications such as phosphors, scintillators, sensors, and LEDs.

In this study, the structural and optical properties of ZnO-polyvinylpyrrolidone (ZnO-PVP) composite are investigated. PVP is a water-soluble, nonionic polymer and it is used in this study because it exhibits strong interaction with the ZnO surface. The stability of the ZnO-PVP composite in terms of morphology, crystallinity, and photoluminescence is evaluated after it has been subjected to a heated environment. Based on the observed properties of the ZnO-PVP composite, a potential application of this material is proposed.

## EXPERIMENTAL

The fabrication of the ZnO-PVP composite involved two steps: 1) hydrothermal growth of ZnO and 2) dip-coating of the ZnO rods in PVP. For the hydrothermal growth, zinc acetate dihydrate [99.5%,  $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ] and hexamethylenetetramine [99.0%,  $(\text{CH}_2)_6\text{N}_4$ ] were used as precursors and Si (100) wafer as the substrate. Aqueous 8-mM solutions of the precursors were mixed to produce the growth solution wherein the Si substrates were submerged. The growth solution was heated at 90 °C for 2 h, after which the substrates were removed, washed with deionized water, and were left to dry in ambient air. For the dip-coating in PVP, the Si substrate with the deposited ZnO rods was submerged in an aqueous PVP solution (10,000 MW) for

1 h while being heated at 50 °C. After dip-coating, the composite was harvested from the solution, washed with deionized water, and dried in air.

Different structural and optical characterization techniques were implemented to investigate the ZnO-PVP composite. The structural properties of the composites were studied using scanning electron microscopy (SEM) and x-ray diffraction (XRD) measurement. The optical properties of the composites were also characterized using time-integrated photoluminescence (TIPL) and time-resolved photoluminescence (TRPL) spectroscopies. The surface interactions between ZnO and PVP were investigated using Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy. The material characterizations were performed before and after subjecting the ZnO-PVP composite to a heated environment at 300 °C for 2 h in order to evaluate the stability of the composite against heat.

## RESULTS

Figure 1 shows the SEM image of the ZnO-PVP composite. The ZnO rods of the composite are randomly oriented and distributed on the Si substrate. The average length and width of the rods are  $7.4 \pm 1.7 \mu\text{m}$  and  $1.9 \pm 0.4 \mu\text{m}$ , respectively.

Figure 2 shows the XRD patterns of the ZnO-PVP composite before and after heating at 300 °C for 2 h. The diffraction peaks are indexed to the reflections of hexagonal wurtzite ZnO and the lattice constants are calculated to be  $a = 3.24 \text{ \AA}$  and  $c = 5.20 \text{ \AA}$ . No peaks associated to impurities or other phases can be observed. Based on the similar XRD spectra, heating at 300 °C has no apparent effect on the degree of crystallinity of the composite.

Figure 3 shows the TIPL spectra of the ZnO-PVP composite before and after heating. The composite exhibits an intense UV emission centered at 392 nm and a broad visible emission between 470-700 nm. After heating, the visible emission is reduced and shifted in center wavelength from 557 nm to 574 nm while the intense UV emission is retained. Hence, it can be inferred that the UV emission of the composite is stable against heat at 300 °C.

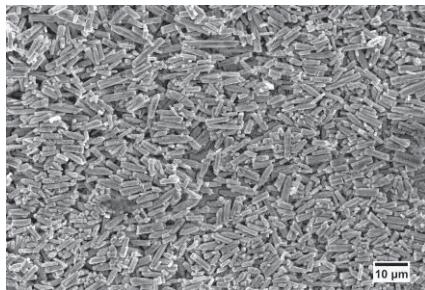


Fig. 1. SEM image of the ZnO-PVP composite.

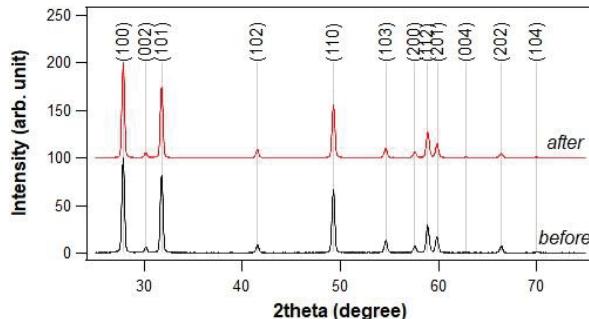


Fig. 2. XRD patterns of the ZnO-PVP composite before and after heating at 300 °C for 2 h.

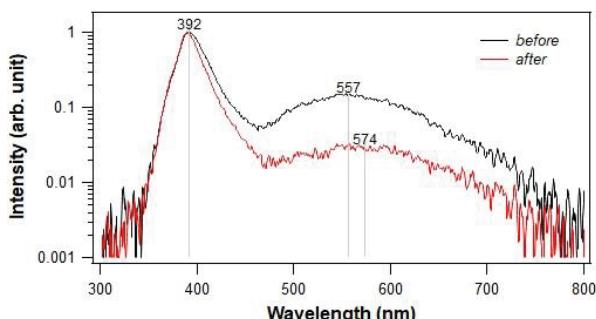


Fig. 3. TIPL spectra of the ZnO-PVP composite before and after heating at 300 °C for 2 h.

Figure 4 shows the UV emission profiles of the ZnO-PVP composite before and after heating. The decay profiles can each be fitted to a single exponential function with a time constant representing the emission lifetime. The UV emission lifetimes of the composite before and after heating are determined to be  $28 \pm 10$  ps and  $30 \pm 10$  ps, respectively. There is no significant difference in the lifetimes, hence, the UV emission lifetime is also stable.

Figure 5 shows the FTIR transmittance spectra of PVP and of the ZnO-PVP composite before and after heating. PVP exhibits an absorption band between 3100 and 3600  $\text{cm}^{-1}$ , which corresponds to O-H stretching due to adsorbed water molecules, and four bands due to its functional group vibrations located around 2942, 1651, 1429, and 1276  $\text{cm}^{-1}$  which are assigned to  $\text{CH}_2$  asymmetrical stretching, C=O stretching, CH<sub>2</sub> bending, and C-N stretching, respectively. Before being subjected to heat, the ZnO-PVP composite exhibits the O-H stretching band as well and an absorption band around 870  $\text{cm}^{-1}$  associated with the C-O vibration which can be attributed to hydrothermal reaction intermediates. After heating, the O-H stretching and C-O vibration bands are no longer present which can be due to the

removal of adsorbed water and reaction intermediates, respectively. The ZnO-PVP composite exhibits the C=O stretching band associated with PVP which confirms the successful adsorption of PVP to the ZnO surface. Even after heating at 300 °C, the C=O stretching band is still present indicating that there is no degradation of surface interaction between ZnO and PVP at this temperature.

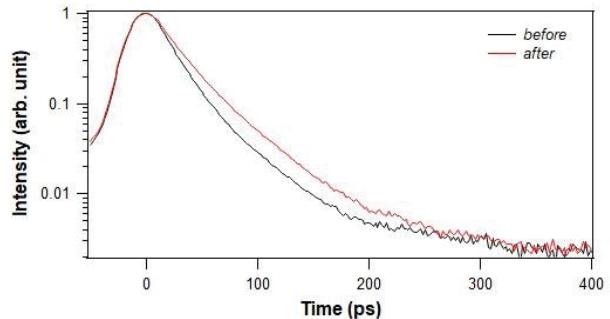


Fig. 4. UV emission profiles of the ZnO-PVP composite before and after heating at 300 °C for 2 h.

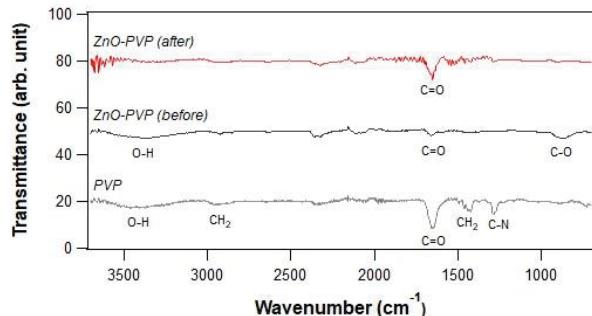


Fig. 5. FTIR transmittance spectra of the ZnO-PVP composite before and after heating at 300 °C for 2 h.

## CONCLUSION

The structural and optical properties of ZnO-PVP composite are investigated. The crystal structure, UV emission, UV emission lifetime, and surface interactions of the composite are stable regardless of heating at 300 °C. With intense UV emission and ultrafast UV emission lifetime, the ZnO-PVP composite is a potential UV phosphor. Further evaluation of the composite properties under different conditions, such as at higher temperatures and aqueous environments, is anticipated in the future.

## ACKNOWLEDGEMENTS

This work was supported by the Osaka University Institute of Laser Engineering Collaborative Research Program Grant No. 2018B1-SARMAGO and the Osaka University International Joint Research Promotion Program.

## REFERENCE

- [1] V. C. Agulto, M. J. F. Empizo, K. Kawano, K. A. Salazar, Y. Minami, K. Yamanoi, T. Shimizu, A. C. C. Yago, R. V. Sarmago, and N. Sarukura, Optical Materials, **86**, 12 (2018).

# レーザー衝撃圧縮による超高ひずみ速度変形メカニズムの研究

川合伸明

熊本大学 パルスパワー科学研究所

## 緒言

物質の弾性一塑性転移応力を表す降伏強度は、顕著なひずみ速度依存性を示し、ひずみ速度が  $10^5$  /s 以上にも達する衝撃圧縮下においては、静的な材料試験で得られる値の数倍も大きくなる。実際、金属材料では数百 MPa、無機材料では十数 GPa の降伏強度を示すことも珍しくない。この超高ひずみ速度変形における降伏強度の著しい上昇は、塑性変形を支配する転位の移動速度より、応力・ひずみを伝える衝撃波の伝播速度が速いことが原因であるとされている[1]。つまり、転位の運動は、急激な応力場変化に対する時間緩和現象として降伏強度に影響を及ぼしていることになる。このような応力緩和機構としての塑性変形ダイナミクスを検証するためには、km/s オーダーの衝撃波速度で伝播する格子ひずみの時間変化過程を理解する必要がある。これまでには、分子動力学法などを用いた数値シミュレーションにより検討[2]が進められてきた。しかし、近年、実験技術の発展により、実験的なアプローチも展開され始めている[3]。

以上の背景から、本研究では、格子ひずみの変化過程を実験的に測定することにより、衝撃波の伝播により生じる高応力・超高ひずみ速度変形下での塑性変形機構を評価・解明することを目的としている。本稿では、CaF<sub>2</sub> 単結晶に対して実施した、放射光パルス X 線とテーブルトップ型ハイパワーレーザーとを組み合わせた、ポンプ・プロープ型レーザー誘起衝撃圧縮下ナノ秒時間分解 X 線回折実験の結果について報告する。尚、単結晶試料の入手性、リファレンスとなる単結晶バルク体の衝撃圧縮データの存在[4]などから、CaF<sub>2</sub> を本実験の試料として選定している。

## 実験方法

本実験における時間分解 X 線回折実験は、高エネルギー加速研究機構（KEK）の放射光施設である PF-AR の NW14A ビームライン[5]で行った。NW14A では X 線パルスセレクターと X 線シャッターにより放射光 X 線 1 パルス（パルス幅 100 ps）を取り出すことが可能となっている。NW14A に設置される装置は、電子バンチの蓄積リング周回周波数を基準に制御され、ポンプ光となるパルスレーザーと X 線パルスとのディレイ調整は 100 ps 以下のジッターで任意に設定可能となっている。X 線のエネルギー値およびエネルギー幅も調整可能であり、本研究では 16

keV にピークを持つエネルギー幅 dE/E=15% の白色 X 線を用いた。X 線照射サイズは 0.45 mm × 0.25 mm であり、透過ラウエ回折像を 2 次元 CCD により取得した。レーザー誘起衝撃波発生用のポンプ光には、レーザー強度 1 J/pulse、パルス幅 10 ns、波長 1064 nm の Nd:YAG レーザーおよび、レーザー強度 16 J/pulse、パルス幅 12 ns、波長 1064 nm の Nd:ガラスレーザーを用いた。レーザーの集光径は X 線照射サイズより大きい 500 μm とした。試料として (100) および (111) にそって切り出された CaF<sub>2</sub> 単結晶（以後それぞれ CaF<sub>2</sub>[100]、CaF<sub>2</sub>[111] と表記）を用いた。試料サイズは 5-mm 角、厚さ 0.05 mm である。1 J/pulse のレーザー照射時には、資料の照射面側に 6-μm 厚の Al を、16 J/pulse のレーザー照射時には、25-μm 厚の PET フィルムを接着し、アブレーターとして用いた。各アブレーターにレーザーを集光照射することによりアブレーションさせ、その反作用として衝撃波を試料内部に伝播させた。本実験では、厚み方向より十分に広い領域に平面衝撃波を伝播することにより、マクロには 1 軸ひずみ圧縮状態が達成される条件とした。

## 結果と考察

Fig. 1 に本実験により取得された透過ラウエ回折像を示す。図中の(a), (b) はレーザー照射前の状態であり、(c), (d), (e), (f) はレーザー照射後 4 ns の状態で取得された回折像である。また、(c), (d) におけるレーザー強度は 1 J/pulse であり、(e), (f) では 16 J/pulse である。CaF<sub>2</sub>[100], CaF<sub>2</sub>[111] いずれの試料においても、レーザー強度が 1 J/pulse の条件下においては、20 方向（径方向）高角度側（外側）に新たな回折点が現れていることが分かる。本実験で行った白色 X 線によるラウエ回折では、結晶構造に異方的なひずみが生じた時に回折点が移動する。(c), (d) に見られるように全ての回折点が一様に高角度側にシフトしている状態は、結晶構造が一軸方向に縮んでいることに相当する。このことから、この衝撃圧縮条件では、結晶格子というミクロの状態でも一軸ひずみ状態が達成されており、応力・ひずみ緩和の生じていない弹性変形領域の格子応答を観測した結果であるといえる。一方、(e), (f) においては、全ての回折点がシフトとブロードニングが混在している状態となっている様子が分かる。加えて、シフトの方向が回折点により異なる様子も観察できる。これらの結果から、16 J/pulse の照射条件における衝撃圧縮状態では、マクロには一軸ひずみ状態ではあっても、結晶格子レベルではもはや一軸ひずみを維持

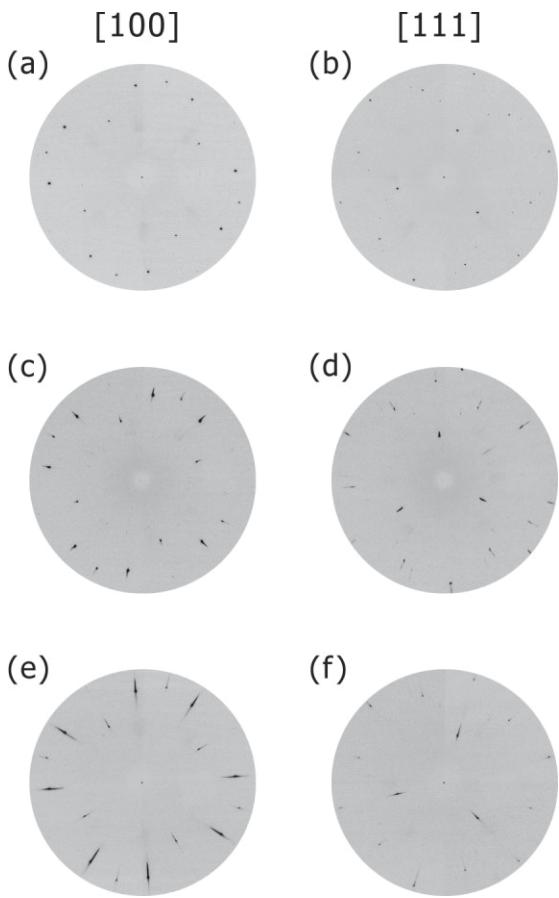


Fig. 1. Two-dimensional Laue diffraction patterns of  $\text{CaF}_2$  [100]-oriented crystal ((a), (c), (e)) and  $\text{CaF}_2$  [111]-oriented crystal ((b), (d), (f)). (a) and (b) are patterns obtained before laser irradiation. (c), (d) and (e), (f) are obtained at about 4 ns after irradiation of 1 J/pulse and 16 J/pulse laser, respectively.

することができず、結晶子の回転や不均一変形により応力・ひずみ緩和が生じている、つまり降伏後の塑性ひずみが生じている状態の格子応答を観測した結果であると考えられる。

本実験により、衝撃圧縮下における降伏前後の状態における格子応答の様子を、X線回折により観測することに成功した。しかし、本測定は透過法であるがゆえに、回折画像は衝撃波伝播方向のひずみ分布状態が重畠したものとなっている。今後は、レーザー速度干渉計を用いた衝撃波プロファイル計測を実施することにより、衝撃波伝播方向におけるマクロなひずみ分布状態の情報を取得し、本回折画像と比較することにより、格子ひずみの衝撃波伝播方向における空間分布ならびに、その時間発展を明らかにしていく予定である。また、塑性変形領域においては、各回折点のシフト方向の違いから、結晶の回転やすべりの方向を明らかにし、結晶方向と衝撃波伝播方向の関係も含めた、塑性変形のメカニズム解明に繋げていきたいと考えている。

## 謝辞

KEK, PF-AR, NW14A ビームラインでの時間分解 X 線回折実験の実施にあたり、自治医科大学の一柳光平氏、KEK 物質構造科学研究所の足立伸一氏、

野澤俊介氏、深谷亮氏、船守展正氏、東京工業大学フロンティア材料研究所の中村一隆氏、筑波大学の興野純氏、高木壮大氏に協力を頂いた。

## 参考文献

- [1] M. A. Meyers, *Dynamic Behavior of Materials* (Wiley, New York, 1994).
- [2] B. L. Holian et al., *Science* **280**, 2085 (1998).
- [3] D. Milathianaki et al., *Science* **342**, 220 (2013).
- [4] T. Sekine and T. Kobayashi, *Phys. Chem. Minerals* **38**, 305 (2011).
- [5] K. Ichiyangai et al., *Appl. Phys. Lett.* **91**, 231918 (2007).

# Wave propagation and absorption in plasma with a strong magnetic field driven by a polarization controlled long-wavelength laser pulse

Yoshitaka MORI<sup>1</sup>, Takayoshi SANO<sup>2</sup>

<sup>1</sup>The Graduated School for the Creation of New Photonics Industries,

<sup>2</sup>ILE, 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. For discharge plasma with density less than solid density, plasma production or its heating have been conducted in external magnetic field using plasma dispersion relation such as cyclotron resonance [1]. For plasma with density beyond the solid density, most wave-plasma interactions were conducted without the external magnetic field.

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.

The 1 kT magnetic field provides cyclotron resonant frequency that corresponding to the CO<sub>2</sub> laser; wavelength of 10 μm. Therefore, the laser-plasma interaction with CO<sub>2</sub> laser under kT-class magnetic field can expect experimental investigation of plasma heating of bulk solid plasma. The purpose of this study is an estimation of electromagnetic wave propagation and absorption of CO<sub>2</sub> laser pulse (wavelength of 10 μm) in plasma with solid density (0.1 g/cc for hydrogen) region under 10-kT class magnetic field. This estimation is supposing a tuning polarization of CO<sub>2</sub> laser pulse.

## THEORITICAL MODEL

To investigate wave propagation in plasma under external magnetic field, a simple setup is proposed as shown in Fig. 1. The uniform external magnetic field normalized by cyclotron resonant magnetic field B<sub>ext</sub>/B<sub>c</sub> is induced in the slab plasma with thickness of laser wavelength. The induced laser pulse contains linear polarization combined with both right-hand and left-hand circular polarized waves. The induced laser pulses (linear polarization: right-hand circular polarization and left-hand circular polarization) propagate through the

plasma in relation to the plasma dispersion relation described in Eqs. (1-3).

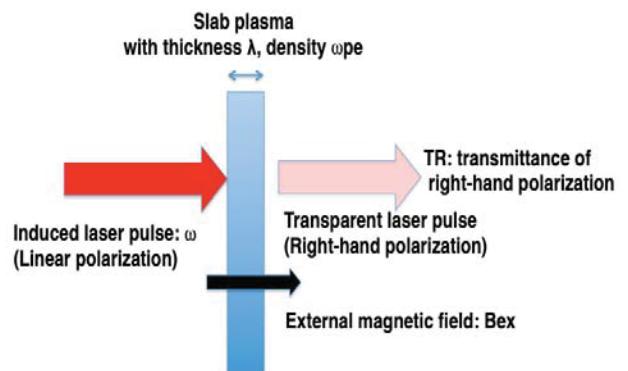


Fig. 1. Schematics of wave propagation

$$T_R = 2/(N_R + 1), T_L = 2/(N_L + 1) \quad (1),$$

$$N_R = \{1 - (\omega_{pe}/\omega)^2 / (1 - \omega_{ce}/\omega)\}^{1/2} \quad (2),$$

$$N_L = \{1 - (\omega_{pe}/\omega)^2 / (1 + \omega_{ce}/\omega)\}^{1/2} \quad (3),$$

where, T<sub>R,L</sub> is transmittance of Right-hand or Left-hand laser pulse, N<sub>R,L</sub> is refractive index of Right-hand or Left-hand laser pulse, ω<sub>pe</sub>/ω is electron density normalized by laser frequency, ω<sub>ce</sub>/ω is cyclotron frequency normalized by laser frequency, respectively.

## RESULTS

The transmittance of right-hand part increases as a function of external magnetic field in relation to the plasma density. Figure 2 shows result of Eq. (1,2) as a function of external magnetic field. Here we consider right-hand part that provides cyclotron resonance. By considering CO<sub>2</sub> laser with wavelength of 10 μm, the cut-off density is 1.1x10<sup>19</sup> n/cc, the cyclotron resonant magnetic filed B<sub>c</sub> is 1.07 kT, and  $(\omega_{pe}/\omega)^2 = 2364$  corresponds to solid density 0.086 g/cc of hydrogen. These values are within scope on experiments.

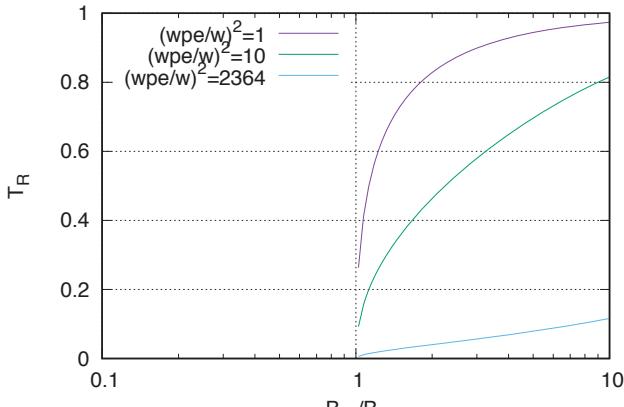


Fig. 2. The transmittance of right-hand wave.

From Fig. 2, the  $T_R$  depends on normalized electron density:  $\omega_{pe}/\omega$ . Therefore, when the bulk slab density is confirmed, we can investigate external magnetic field from this dispersion relation. This relation leads to probe an external magnetic field in the plasma. By considering collisions in the slab plasma, we can evaluate more sophisticated dispersion relation that relevant for the experiments.

#### ACKNOWLEDGEMENTS

We thank Prof. S. Fujioka, THR group of IIE, Osaka University.

#### REFERENCES

- [1] F. F. Chen, Introduction to Plasma Physics and controlled Fusion 2<sup>nd</sup> ed, Springer (1984).
- [2] S. Fujioka, et al., Sci. Report, **2**, 31 (2013).
- [3] Y. H. Yang et al., Appl. Phys. Letters **106**, 224103 (2015).
- [4] T. San et al., Phys. Rev. E **96**, 043209 (2017).

# 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

## INTRODUCTION

レーザー核融合において、爆縮プラズマでの燃料面密度  $\rho R$  の測定・評価は必要不可欠である。その中で、点火燃焼に必要とされる高  $\rho R$  領域まで対応できる散乱中性子計測に基づく最も優れた測定方法の原理が提案されたものの、実現は不可能と見なされていた。その理由は、一次中性子に比べて数量が圧倒的に少なく、また、エネルギーも低く、中性子検出器に対して X 線や一次中性子よりも遅れて到着する散乱中性子を弁別して検出するためのシンチレータに要請される条件が極めて過酷なためであった。

そこで、著者らの研究グループは、レーザー核融合の急速進展に対応すべく、高  $\rho R$  領域まで計測可能で原理が非常に優れている散乱中性子測定法を採用した新規計測システムの開発に取り組んだ。その結果、これまでに、著者ら独自の研究成果を基盤に材料設計を行い、レーザー核融合における爆縮プラズマを診断するために必要不可欠な散乱中性子計測用新規  $\text{Pr}^{3+}$  ドープ  $20\text{Al}(\text{PO}_3)_3\text{-}80\text{LiF}$  ガラスシンチレータの開発に成功している(特許第 5158882 号)。この成果によって、世界各国から切望される中、新規開発した計測システムの実用化が進んでいる。さらに、この分野を先導するためには、様々な条件で発生させた爆縮プラズマの診断に対応できるように、低  $\rho R$  でも検出可能となる高効率・高感度化、散乱中性子の弁別能を高めるために応答特性の高速化に関する研究開発も必須である。このような特性を兼ね備えた高性能中性子線ガラスシンチレータは、レーザー核融合という特殊分野にとどまらず、セキュリティ、ガン治療、インフラ非破壊検査、など実社会でも極めてニーズが高く、中性子を利用した様々な分野でも実用化に対する強い要請がある。

本研究では、レーザー核融合の爆縮プラズマ診断という特殊用途のみならず、セキュリティ、ガン治療、インフラ非破壊検査、など幅広い分野において開発が切望されている中性子線シンチレータの開発を最終目的として、これまでに著者らの研究グループが独自の材料設計戦略に基づいて見出した中性子線検出用ガラスシンチレータにおいて、深紫外蛍光を示す賦活剤  $\text{Pr}^{3+}$  に対して賦活助剤を codoping させて、真空紫外領域における賦活助剤から賦活剤  $\text{Pr}^{3+}$  への高効率エネルギー移動によって、より高輝度かつ高速応答性を有する高性能中性子線ガラスシンチレータ材料の開発研究を行う。

## EXPERIMENTAL PROCEDURE

本研究では、APLF80 マトリクスガラスに対して  $\text{PrF}_3$  を 1 mol% 一定として、 $\text{CeF}_3$  を 0 – 2 mol% の範囲で変化させたサンプルを調製した。比較のために、 $\text{PrF}_3$  をドープせずに 1 mol%  $\text{CeF}_3$  サンプルも調製した。各種高純度試薬を所定の組成に精秤・混合し、グラッシーカーボンルツボを用いて、窒素気流中、950 – 1000 °C, 30 min で溶融・急冷した後、アニールを施してバルクガラスを得た。得られたバルクガラスを平行平面に切り出し、両面に対して鏡面研磨を行い、測定用試料とした。

APLF80+ $\text{Pr}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$  ガラスの光学特性について、自然科学研究機構分子科学研究所の極端紫外光研究施設のビームライン BL7B を利用して評価を行った。ガラスサンプルを真空チャンバーにマウントし、 $10^{-6}$  Pa に保持した後、放射光を照射して励起を行った。得られたルミネセンスを分光器に光ファイバーで導いて CCD カメラまたは光電子増倍管で検出した。APLF80+ $\text{Pr}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$  ガラスの蛍光寿命については、チタンサファイアレーザの 4 倍高調波 (217 nm, 150 fs, 1 kHz) を励起起源として真空紫外ストリーキュラーシステムによって計測・評価を行った。

## RESULTS

Fig. 1 に APLF80+ $\text{Pr}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$  ガラスの吸収スペクトルを示す。430 – 500 nm において  $\text{Pr}^{3+}$  の 4f-4f 遷移に基づく吸収ピークが確認された。また、350 nm よりも短波長域に  $\text{Ce}^{3+}$  による強い吸収も確認された。

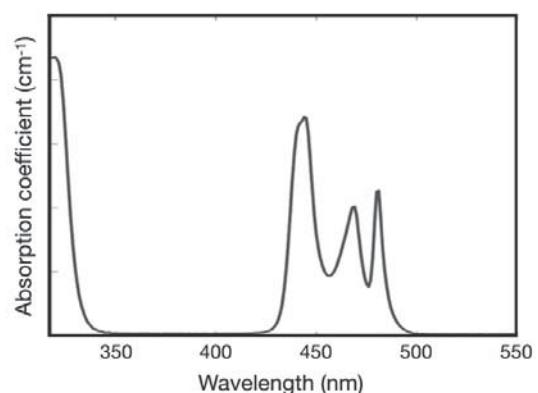


Fig. 1. Absorption spectrum of APLF80+ $\text{Pr}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$  glass.

APLF80+Pr<sup>3+</sup>,Ce<sup>3+</sup>ガラスのフォトルミネセンススペクトルを測定した結果、270 nm 付近に Pr<sup>3+</sup>の 5d 準位から 4f 準位への遷移に基づく蛍光が観測され、同時に 300 – 360 nm に Ce<sup>3+</sup>の 5d 準位から 4f 準位への遷移に基づくブロードな蛍光も観測された。Ce<sup>3+</sup>の濃度が高くなるに従い、Pr<sup>3+</sup>の蛍光強度は減少した。一方で、Ce<sup>3+</sup>の蛍光強度はほとんど変化せずに一定の値を示した。

Fig. 2 に APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup>ガラスのディケイプロファイルの一例を示す。得られたディケイプロファイルに対してフィッティングを行なって蛍光寿命を算出した。

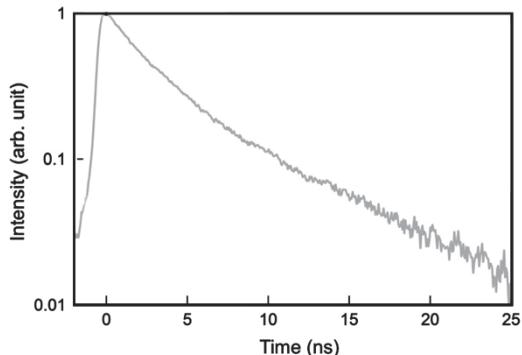


Fig. 2. Decay curve of Pr<sup>3+</sup> luminescence peak at 263 nm from APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup> glass under 217 nm excitation.

Fig. 3 に蛍光寿命と CeF<sub>3</sub> 量の関係を示す。APLF80+Pr<sup>3+</sup>ガラスの蛍光寿命は 19 ns であるのに対して、APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup>ガラスでは Ce<sup>3+</sup>濃度が高くなるに従って、短くなる傾向を示した。本研究で調製した APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup>ガラスにおいて CeF<sub>3</sub> の codoping 量が最も高い 2 mol% のサンプルにおいて最も短い 0.4 ns が得られ、高速応答性能の向上に成功した。

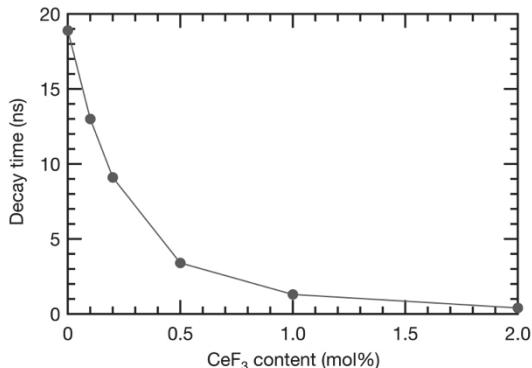


Fig. 3. Relationship between the decay time and CeF<sub>3</sub> content in APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup> glass.

## DISCUSSION

APLF80 ガラスにドープした Pr<sup>3+</sup>の紫外蛍光波長域は Ce<sup>3+</sup>の励起波長域と重なるので、Pr<sup>3+</sup>から Ce<sup>3+</sup>へのエネルギー移動が生じると推察される。実際に、APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup>ガラスにおける Ce<sup>3+</sup>の紫外蛍光に対する励起スペクトルの波形が APLF80+Ce<sup>3+</sup>ガラスに対して変化していることが観測された。さらに重要な現象として、Pr<sup>3+</sup>も Ce<sup>3+</sup>も励起される 200 nm で APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup>ガラスを励起すると Pr<sup>3+</sup>からの蛍光は観測されず、Ce<sup>3+</sup>のみ蛍光が観測された。このことからも、Pr<sup>3+</sup>から Ce<sup>3+</sup>へのエネルギー移動が生じていることが推察される。加えてストリークカメライメージでは、Pr<sup>3+</sup>蛍光と比較すると Ce<sup>3+</sup>蛍光からのライズタイムに相対的な遅れが観測され、この結果からも Pr<sup>3+</sup>から Ce<sup>3+</sup>へのエネルギー移動が生じていることが示唆された。

このように codoping 効果によって、APLF80+Pr<sup>3+</sup>, Ce<sup>3+</sup>ガラスでは高速応答性能を有していることが明らかとなり、このような高速応答性能はリアルタイムでの中性子トモグラフィへの応用も期待される。高速応答性能の向上に成功した一方で、蛍光強度の低下が認められたので、今後 codoping 効果についてエネルギー移動の過渡現象について詳細な分析を加えるとともに、新たなアプローチについても並行して検討を進め、高速応答性能を維持しながら、さらに発光量を高める研究開発を継続して進める。

# 超短パルスレーザーを用いた原子運動過程の実時間計測

中村一隆

東京工業大学科学技術創成研究院フロンティア材料研究所

## はじめに

圧力や温度に依存した平衡状態での物質の構造は多くの物質で詳細に調べられている。しかし、非平衡状態における物質構造や、構造相転移するときのミクロスケールでの原子運動のダイナミクスは、その過程がナノ秒時間スケール以下と非常に短いために、よく分かっていない。衝撃圧縮法は、短時間に超高压状態を発生できることから、物質構造変化のダイナミクス研究に適している。特に、レーザー衝撃圧縮法とパルス光源（レーザーパルスやX線パルス）を観測に用いることで構造相転移の速度や転移経路を調べることも可能である。たとえば、放射光施設で発生するX線パルスとレーザー衝撃圧縮法を組み合わせることで、過渡的な超高压状態を100psの時間分解能を持つX線構造解析することが可能である。我々は、約10GPaの衝撃圧縮下のビスマス単結晶が約5nsの圧縮過程内にI相構造からV相構造に途中の高圧構造(II, III相)を経ずに直接構造変化するのに対して、圧力解放過程においては、V-III-II-I相と順次構造変化すること実時間測定により明らかにした[1]。このように、構造変化の速度や通過する相の経路を調べることは可能であるが、構造転移する際の原子運動の方向や経路という原子ダイナミクスを調べるためには、さらに高速の計測が必要不可欠である。ビスマス単結晶の場合、光学フォノンの振動周期は約300fsであり、それよりも高時間分解計測が必要である。本研究では、フェムト秒レーザー（パルス幅50fs以下）を用いたフェムト秒時間分解過渡反射光強度測定法により、構造変化の起因となる原子運動のダイナミクス（励起および緩和過程）を実時間計測により明らかにすることを目的と

している。さらに、量子力学モデルを構築し、量子状態の時間発展を密度演算子形式により計算し、理論的に説明するとともに、レーザー衝撃圧縮法との組合せ測定の可能性を探ることを目的としている。

## 研究内容と成果

これまでにバルクの半導体単結晶n-GaAsを試料として、サブフェムト秒の精度で相対位相をロックしたフェムト秒パルス対を用いた、ポンプ・プローブ型の過渡反射光強度測定により、電子フォノン結合系のコヒーレント制御に成功している[2]。その際に、ポンプパルス対の光偏光は平行の設定してあり、パルス間隔が100fs程度までの範囲では、光干渉および電子干渉の影響を観測している。本年度は、パルス対の光偏光を垂直に設定し、光干渉の影響が消滅するのかどうかを検証した。

フェムト秒レーザーパルス（中心波長800nm、パルス幅～50fs）を用いた、ポンプ・プローブ型の過渡反射光強度測定により光学フォノンをコヒーレントに励起し、その原子運動の様子を実時間で計測した。反射光強度はヘテロダイイン測定を行い、electro-opticalサンプリングした。実験は東京工業大学フロンティア材料研究所の装置を用いて行った。シングルパルス励起で、ポンプ・プローブ過渡反射率計測を行うと、8.7THzと7.7THzのLOフォノンおよびLOフォノンプラズモン結合振動（LOPC）により振動が観測される。位相制御ポンプパルス対は、ポンプ光パルスを自家製のマイケルソン型干渉計システムを用いて生成した。この際、各アームに波長板と偏光子を設置し、各パルスの偏光方向を制御できるように改良した。本年度は、直交偏光条件でのダブルパルス励起実験を行った。

## 謝辞

本研究を行うにあたって、大阪大学レーザーレーザー科学研究所の共同利用研究に加えて、以下の研究支援を受けている：科学研究費補助金 15K13377, 17H02797, 17K19051、東京工業大学フロンティア材料研究所共同利用研究、熊本大学パルスパワー科学研究所共同利用研究。

## 参考文献

- [1] J. Hu et al, Appl. Phys. Lett., **103**, 161904 (2012).
- [2] S. Hayashi et al., Sci. Rep. **4**, 4456 (2014).

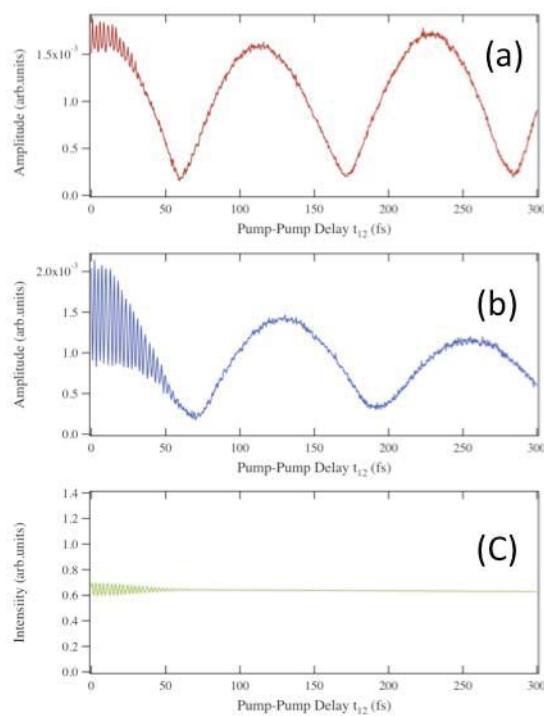


図1 ダブルポンプ励起による LO フォノン(a)およびLOPC 振動(b)振幅の変化。横軸はダブルポンプ時間間隔で、ポンプ間の光学干渉を(c)に示す。

ダブルポンプ励起による LO フォノン(a)およびLOPC 振動(b)振幅の変化を図1に示した。(c)にパルス対の光学干渉の様子を示したが、直交偏光であるために、パルス重なりによる干渉は非常に小さいことが分かる。LO フォノンの強度は、ポンプパルス対間隔を変化させることで、コヒーレント制御できていることが分かる。また、光パルスが重なる時間領域でも光干渉による非常に小さな変調だけが観測され、平行偏光の場合のような電子状態の干渉は抑制されていることが分かった。LO フォノン強度は、ポンプパルス間隔がフォノン振動周期の整数倍のときに増幅され、半整数倍のときに抑制されている。密度行列形式を用いた量子力学計算を行うと、この現象はフォノンのコヒーレンスが保持されているために、はじめのパルスで励起されたフォノンと二つ目のパルスで励起されたフォノンが区別されないために、建設的な干渉あるいは破壊的な干渉が起こっているためであることが示された。

# 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 及び固体 HD 薄膜の作成方法(VI)

宇津呂 雄彦, 中井 光男<sup>A</sup>, 郡 英輝<sup>B</sup>, 太田 岳史<sup>C</sup>, 今野 巧<sup>D</sup>, 井頭 麻子<sup>E</sup>, 藤原 守

<sup>A</sup> 大阪大学核物理研究センター, <sup>B</sup> 大阪大学レーザー科学研究所, <sup>C</sup> 名古屋大学大学院理学研究科,

<sup>D</sup> 東京大学医学部附属病院放射線部, <sup>E</sup> 大阪大学大学院理学研究科, <sup>E</sup> 明治学院大学法学院

## 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として、固体 HD を模擬した極低温プローブ及び磁性錯体により偏極させた極低温 HD プローブの H-NMR 実験を段階的に行い、手法の有効性並びに問題点を明らかにする。さらに、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) 実験装置構成 :

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。当初想定した実験装置構成を図 1 に示す。

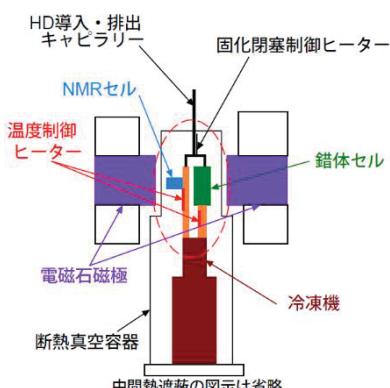


図 1. 本研究の当初の計画に係る実験装置構成。  
(朱破線内のプローブ部は実験結果に基づき図 2 及び 4 に改善)

### 2) 固体 HD 模擬マイクロプローブの NMR 実験 :

本研究の初期の NMR 実験は、最も単純な丸棒型プローブとそれに巻いた NMR コイルを用いて安定した proton H の NMR パターンが得られる実験手法と測定条件を確立することであった。この初期の実験から冷凍機の運転及び温度モニターの作動が NMR 測定に大きな外乱をもたらすことが判り、NMR データ採取中はこれらを一時的に停止することで安定した H-NMR データが得られるようになつた。これらの測定条件の解明は固体 HD を模擬した天然白ゴムの H-NMR 測定を通して行われた。

NMR 測定結果は NMR パターンの振幅及び位相から座標変換により absorption  $R$  及び dispersion  $\varphi$  を算出し、それぞれに次の理論式をフィッティングしてパラメータ値を得る手順であり ( $\varphi'$  は  $\varphi$  の余角)、得られたパラメータ値の幾つかを Table 1 に示した。

### Fitting formulae to NMR absorption and dispersion

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

まず Table 1 の最初の段に室温白ゴムの H-NMR パターンから得られたパラメータ値を示した。

次に HD 凝縮温度領域の低温 NMR 実験に進む為にプローブ部の断熱遮蔽などの改善を行った。その詳細は前報までの一連の報告書に述べてある。Table 1 の第二の段は模擬プローブの白ゴムに NMR コイルを直巻きして測定した室温及び HD 液化温度における H-NMR パラメータである。振幅  $A_R$  の値にプローブを極低温に下げた効果が認められる。

### 3) 複室式プローブによる NMR 実験 :

初期段階の実験により得られた次の問題は NMR 測定のための冷凍機短時間停止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 吸着用活性炭をプローブに内蔵して安定

Table 1: NMR data fitting parameters.

Date&RUN	Nucleus & Probe temp.	$R_{BG}$ $\times 10^{-5}$	$A_R$ $\times 10^{-5}$	$\Delta_R$	$X_{R0}$	$A_\varphi$ (degrcc)	$\Delta_\varphi$	$m = (I/F)_{NMR}$ [A/MHz]
2015.11.09 BBG02	H RT	0.309	2.40	9.49	272.5	24.0	9.49	0.19007
2017.01.07 RUN21	H RTVac	1.40	0.968	7.07	170.5	-13.7	2.0	0.19021
2017.06.18 RUN10	H LT	2.30	3.42	14.14	185.5	24.3	14.14	0.18979
2018.03.11 RUN03	H RTVac	4.17	1.73	4.47	100.5	-44.8	2.24	0.18952
2018.03.10 RUN14	H LT	6.40	7.62	4.47	100.5	32.9	4.47	0.18962
2018.10.25 RUN04	F RTVac	0.530	0.194	2.24	109.5	-22.2	1.73	0.20148
2018.10.25 RUN17	F LT	0.497	0.804	1.41	50.5	27.7	1.41	0.20176

したNMR測定を図ることにした。その結果、次の段階のNMRプローブにはHD偏極用の強磁性錯体、NMR安定測定用のHD吸着活性炭、さらに参考測定NMR用の模擬プローブとして白ゴム、以上3種類の試料を内蔵することになる。当初は図1に示した如く、HD偏極用錯体セルはNMR用セルとは切り離した構造で計画していたが、この構造の具体化にはHD流路を極低温下で遠隔操作により切り替える機構が必要になる。この困難な課題を回避するため、これら3種類の試料を一つのセルに一体化する構造を考え、図2に示す複室式プローブに至った。

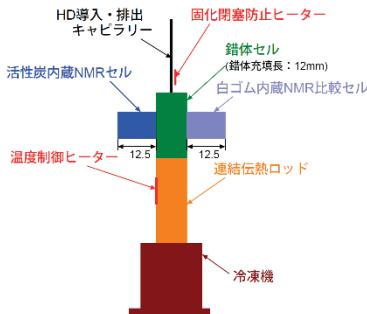


図1の○部分を改善した複室式プローブセル  
プローブ部セル壁厚：0.5mm  
セル材質：KeIF

## 図2. 複室式 HD 偏極及び NMR 測定プローブ

さらに、これまでのNMR実験ではH26成果報告書記載のPCベース・ポータブルNMR偏極測定装置[5]を用いて行ってきたが、このPC方式ではNMRシャシー内の複数のモジュールをシャシー外のPCから制御するので、データ収集速度が劣る。そこでH29年度末にシャシー内に組み込めるコントローラーを新たに用意した。この方式によりデータ収集速度が今までの約3倍速くなり、従って短時間冷凍機停止による測定データのS/N比が大幅に改善された。

Table 1の第三段には、上述の複室式プローブによる白ゴムの室温及びHD液化温度でのH-NMRをNMRシャシー内コントローラーを用いて測定し、得られたパラメータ値を示した。ここでも明らかに極低温効果による振幅 $A_R$ の増大が認められる。

### 4) 再び単筒型プローブによるNMR実験：

次にH30年度の試みとして、白ゴムプローブの必要性は活性炭吸着HDのNMRとの比較対象が役割であり、もしプローブセルの壁材質KeIFに含まれるFのNMR測定が可能ならば、白ゴムプローブは必要が無くなる。そこで複室式セルを用いてKeIFプローブセル壁のF-NMRを測定した。図3にこの実験時の温度プロットを示すとともに、Table 1の最下段には得られたF-NMRのパラメータを示した。右端のパラメータ $m$ の値は電磁石電流値をNMRパターンの中心周波数で除した数値であり、電磁石電流対磁場の比例関係によってこの数値はNMR核の磁気モーメントにおおよそ反比例する（厳密には電磁石電流値対磁場は僅かに弯曲している）。Table 1のHとFとの $m$ 値の比は核磁気モーメントの逆比に近い。

こうしてプローブのKeIF壁のF-NMRが測定可能と判ったので、再び単筒型プローブセルを用いることにして、これに強磁性錯体及びHD吸着活性炭ペレットを二階建てに装荷した図4に示すプローブセルを組み立てた。H30年度内に図4のプローブセルによる強磁性錯体偏極HDの活性炭ペレット吸着H-NMR測定を行うべく目下準備を進めている。

レットを二階建てに装荷した図4に示すプローブセルを組み立てた。H30年度内に図4のプローブセルによる強磁性錯体偏極HDの活性炭ペレット吸着H-NMR測定を行うべく目下準備を進めている。

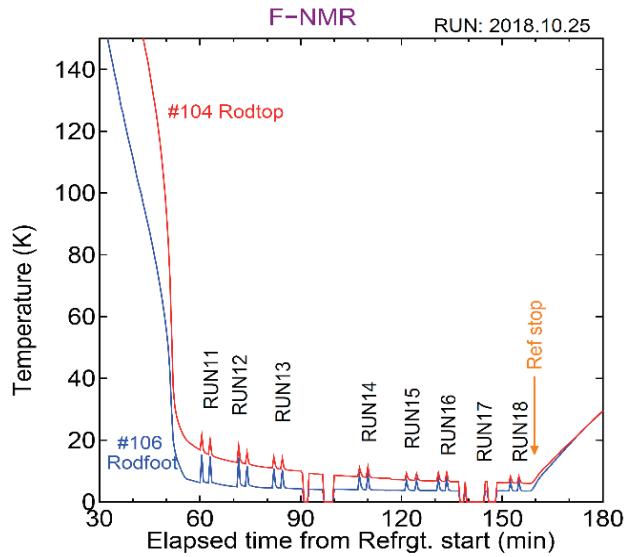


図3. KeIF製複室セルの冷凍機短時間停止 F-NMR 実験

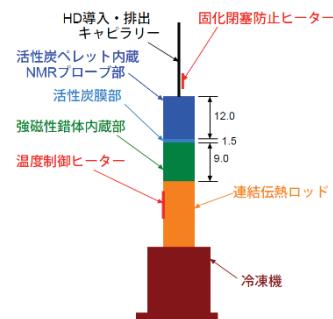


図1の○部分を再度改善した単筒型プローブセル  
プローブ部セル壁厚：0.5mm  
セル材質：KeIF

## 図4. 単筒型 HD 偏極及び NMR 測定プローブ

### H31年度の計画

H31年度には、H27年度成果報告書に述べた改造型気相セル2号による無背壁固体HD薄膜ターゲットの試作を進める予定であり、NMR実験及び無背壁固体HD薄膜作成実験共に本研究の最終年度とする予定である。

本研究は大阪大学レーザー科学研究所の共同研究(2018B2-UTSURO)及び学振科学研究助成挑戦的萌芽研究(課題番号 16K14528)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.
- [5] T. Ohta et al.: Nucl. Instrum. Methods A 633(2011)46.

# 高密度爆縮プラズマ中における抵抗率勾配における強磁場生成のモデリング

羽原英明<sup>1</sup>, 牧山大暉<sup>1</sup>, 長友英夫<sup>2</sup>, 城崎知至<sup>3</sup>

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

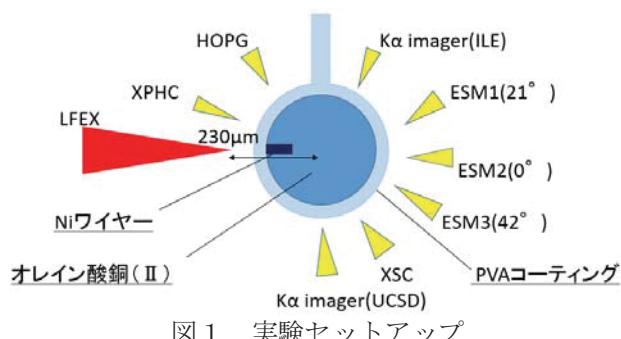
## INTRODUCTION

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度以上の大さ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ルを実験的に確認した。

## EXPERIMENT SETUP

先行研究では二つの異なる電気抵抗率の物質を用いると二つの物質の抵抗率の勾配によって生じる自己生成磁場によって高速電子が収束されるという効果が報告されている。本研究では、それらの先行研究を応用して、オレイン酸銅中実球にNiワイヤーを挿入することでサンドイッチ構造を作成した。このターゲット球に高強度レーザーを照射することで生成される自己生成磁場による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

K<sub>α</sub> imagerの観測結果からNiワイヤーを挿入したときにより強い発光が見られることを確認することが出来た。これにより、Niワイヤーとオレイン酸銅の抵抗率によって生じる自己生成磁場によって爆縮コアに到達した高速電子の量が増加した可能性があることが示された。

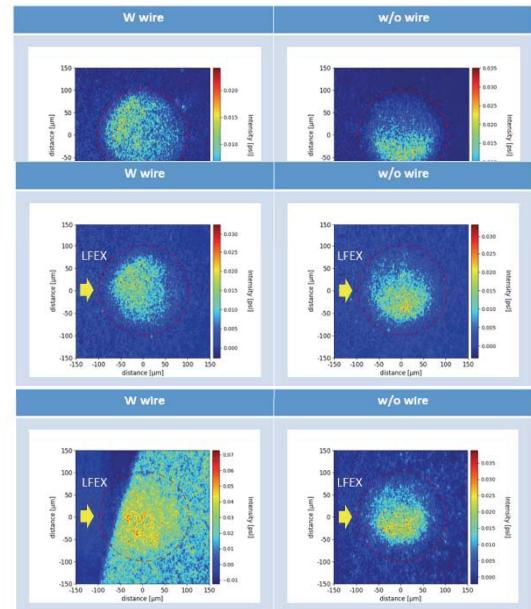


図2 K<sub>α</sub> imagerの観測結果

また、ESMの結果では、爆縮コアの加熱に寄与する低エネルギー域の電子の割合が0度から21度の範囲で増加していることが確認できた。このことから、抵抗率の勾配によって生じる自己生成磁場によって高速電子がガイディングされていることが確認することが出来た。

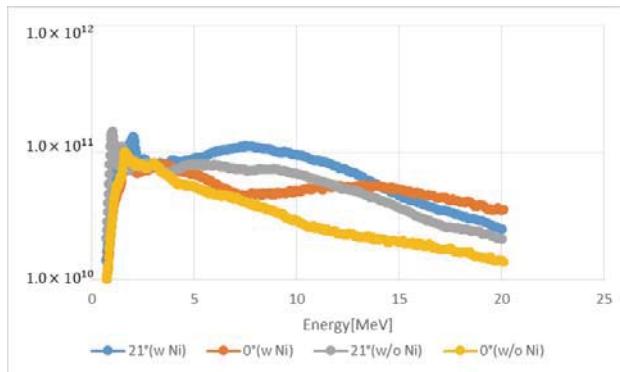


図3 ESMの計測結果（低エネルギー域）

## 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来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。

## 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)

# 輻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

国立研究開発法人海洋研究開発機構 数理科学・先端技術研究分野

## 研究の意義・目的

降着円盤は、活動銀河核・コンパクト星・原始星などさまざまな重力天体の周囲に形成され、そこでの活動現象を担う天体として重要な研究対象である。降着円盤は、主にその温度に応じて多様で興味深い性質を持つ。例えば、ブラックホール周囲の降着円盤の中心部では、非常に高温になるためガス圧よりも輻射圧が支配的になる。また、白色矮星周囲の降着円盤では、水素電離に起因するオパシティの強い温度依存性が降着率の時間変動を引き起こす、など。したがって、降着円盤の温度を決める熱力学を正確に取り扱うことは、降着円盤の物理を理解する上で極めて重要である。

これまでの多くの降着円盤研究において基礎となっている「標準モデル」は、Shakura & Sunyaev (1973)が提案した $\alpha$  モデルである。 $\alpha$  モデルは、幾何学的に薄い降着円盤のモデルであるが、そこでは垂直構造を決める力学的・熱的タイムスケールが、動径構造を決める粘性タイムスケールよりも十分短いことが特徴である。そのため、 $\alpha$  モデルでは、垂直構造を支配する力学方程式と熱方程式には定常解を仮定した上で、動径構造の時間発展方程式 (= 面密度 $\Sigma$  の拡散方程式) を解くことになる。このときの動径方向の拡散係数は、垂直構造の定常解から抽出される、面密度 $\Sigma$  と (垂直方向に積分した) シアストレス $T_{\phi}$  の間の関係式によって決まる。「熱平衡曲線」と呼ばれるこの関係式 $T_{\phi} = T_{\phi}(\Sigma)$  は、したがって、降着円盤全体の構造と進化を支配する極めて重要な熱力学関係式である。

ところで、 $\alpha$  モデルでは、垂直方向に積分したシアストレス $T_{\phi}$  と圧力 $P$  の間に比例関係を仮定している。この仮定は次元解析に基づくものであるが、シアストレスを生み出しているであろう複雑な乱流プロセスを比例係数 $\alpha$  という単一のパラメータに押し込めることができたことで、 $\alpha$  モデルは、見通しがよく取り扱いやすい解析的モデルとなった。一方で、降着円盤の物理の根幹と言えるシアストレスの物理をパラメタライズしている $\alpha$  モデルを用いた議論には限界がある。

現在では、ガスが十分電離している場合にシアストレスを生み出すのは、磁気回転不安定性(MRI)が駆動する磁気乱流であることが明らかになっており (Balbus & Hawley 1991)。一方、本研究において昨年度から取り扱っているように、ガスの電離が不十分な場合には、自己重力不安定(GI)が駆動する乱

流がシアストレスを生み出す場合もある。近年の計算機の発達によって、こういった磁気乱流や重力乱流を数値計算によって直接解像することが可能であり、したがって、 $\alpha$  モデルに頼ることなく、シアストレスをその第一原理から取り扱うことが出来るようになった。ただし、最初に強調したように、降着円盤の熱力学を正しく取り扱うためには乱流計算と同時に輻射輸送も解く必要があり、その点において問題はそれほど簡単ではなく、数値的に困難な課題も多い。実際、これまで数多くのシミュレーション研究がなされているが、そのほとんどにおいて等温プロセスが仮定されたり、簡略化した冷却関数が用いられたりしている。

これに対し、本研究では、独自に開発した3次元輻射磁気流体力学計算コードを用いて、降着円盤の垂直構造を支配する力学方程式と熱方程式の双方を直接数値計算によって解く。これにより、降着円盤の力学的性質とともに熱的性質、さらにはそれらの性質の間の関係を明らかすることで、降着円盤の物理を総合的に理解することが本研究の目的である。また、降着円盤の基本的熱力学関係式である「熱平衡曲線」も、本研究の成果として、第一原理から一意に得されることになる。

## 研究手法

本研究では、降着円盤内における、(a)MRI あるいは GI の非線型時間発展に伴う乱流駆動とその散逸、(b)ガス一輻射間の運動量交換・エネルギー交換、(c)円盤表面へのエネルギー輸送、のすべてを自己矛盾なく解くための、3 次元輻射磁気流体力学計算を行う。ただし、計算量削減のため、輻射輸送に関しては Flux-limited diffusion 近似を用いる。また、降着円盤全体を扱うのではなく、ある半径での動径スライスをシアリングボックス (Hawley, Gammie, & Balbus 1995) で近似して、その内部での局所的降着流を再現する(ただし、垂直方向の重力は考慮する)。これは、 $\alpha$  モデルと同様の幾何学的に薄い降着円盤を考え、その垂直構造の定常解を解いていることに相当する。

具体的な計算手順としては、このシミュレーションボックスに、ガス・磁場・輻射を適当に分布させた上で計算を開始し、系の時間発展を観察する。中心天体からの距離 $r$  (あるいは角速度 $\Omega(r)$ ) を固定すると、このシミュレーションでの基本パラメータは、ボックス内のガスの総量を表す面密度 $\Sigma$ だけである。もし、系が、熱時間よりも十分長い時間に

渡って（統計的）定常状態になれば、与えた面密度  $\Sigma$  に対して、安定な垂直構造（密度、圧力などの垂直分布）と、それに対応するシアストレス  $T_{\phi}$  が得られたことになる。このようなシミュレーションを、面密度  $\Sigma$  を変えて複数行うことで、熱平衡曲線  $T_{\phi} = T_{\phi}(\Sigma)$  を数値的に求めることができる。

以上を、中心天体からの距離  $r$  を変えて行うことと、熱平衡曲線の  $r$  依存性も求まる。本研究のシミュレーション自体は局所的な降着流を再現するものであるが、前節で述べたように、得られた熱平衡曲線  $T_{\phi} = T_{\phi}(\Sigma, r)$  を用いて、降着円盤全体の面密度分布  $\Sigma(r, t)$  の時間発展も議論出来るようになる。

### シミュレーションセットアップ

今年度も、昨年度に引き続き、原始惑星系円盤を対象とした計算を行った。特に、シミュレーションボックスの位置を中心星から 15 から 90 天文単位 (AU) の間で変えた計算を行い、降着流の振る舞いが中心星からの距離と面密度の双方にどのように依存するかを調べた。

可視光照射による加熱だけで、乱流散逸がない場合、赤道面近傍のガスの温度はおよそ 10K 程度と非常に低温になる。これに乱流散逸を加えても、ガスの温度は高々数百 K 程度までにしかならない。したがって、十分な電離が必要な MRI による乱流は期待できないが、代わりに GI による乱流が駆動される可能性がある。そこで、磁場方程式は解かずに、自己重力ポアソン方程式と輻射流体力学方程式を連立して解くシミュレーションを実行した。

シミュレーションにおける物理パラメータは、中心星からの距離  $r$  と面密度  $\Sigma$  のみである。中心星からの距離が遠いほど、角速度（および速度シア）が小さくなり、かつ、中心星の可視光照射による加熱も小さい状況になる。（可視光照射の照射角は簡単のため、 $\theta = 0.02$  で一定とした。）面密度  $\Sigma$  は、初期の Toomre パラメータ  $Q := c_s \Omega / \pi G \Sigma$  ( $c_s$  は音速、 $\Omega$  は角速度、 $G$  は重力定数) がおよそ 0.1 から 1 の間に相当する範囲で変化させた。

### 重力乱流研究における本研究の位置づけ

Toomre パラメータ  $Q$  が 1 以下というのが、降着円盤で軸対称音波が自己重力により不安定化する条件である (Toomre 1964)。ガス圧とコリオリ力が自己重力に対抗しうるため、分子に  $c_s$  と  $\Omega$  が現れている。重力は基本的に遠距離力であり、降着円盤における GI の自然な帰結としてスパイラル構造の密度波（以下、密度波）が知られている。一方、Gammie (2001) は、GI の別の帰結として乱流（以下、重力乱流）もありうることを、降着円盤の局所数値計算によって示した。Gammie (2001) は、さらに、冷却時間が回転周期に比べて十分長いと重力乱流が維持され、短いとガス塊が形成されることも示した。Gammie (2001) 以降、自己重力が働く降着円盤の局所数値計算は数多く行われている。特に、Gammie (2001) が示した重力乱流／ガス塊形成の条件については、定量的に賛否両論があり決着に至っていない。ただし、GIにおいては温度に対応する  $c_s$  が最も重要な物理量の一つであるにもかかわらず、これまでに行われた

研究のほとんどで、Gammie (2001) が採用した冷却時間一定の簡略化した冷却関数が用いられており、実際に起こる物理過程を再現しているとは言えない。これに対し、本研究では、輻射輸送方程式を解いて現実的な冷却過程を再現しており（可視光照射加熱も含む）、この問題にも最終的な決着をつけることが期待される。

### 主な結果

1. 初期に GI 線形不安定な場合、層流からほぼ軸対称な非線形密度波が現れる。この密度波における自己重力の度合いは、 $\Sigma$  が大きいほど、あるいは、 $r$  が大きく冷却時間が短いほど、大きい。
2. 上記の軸対称密度波はある程度成長すると非軸対称モードに関して不安定となって分裂する。最終的に、系は熱的にバランスの取れた重力乱流に落ち着くか、または、自己重力で束縛されたガス塊が形成される。
3. 重力乱流／ガス塊形成の境界は、 $\Sigma - r$  のパラメタースペースに置いて、「初期の Toomre パラメータ値が 0.2 に相当する  $\Sigma$ 」、と  $r=75\text{AU}$  に現れる（それぞれその値を超えるとガス塊が形成される）。
4.  $r=75\text{AU}$  は、冷却時間が  $1/2\pi$  回転周期まで短くなる半径である。すなわち、冷却が効きすぎることで、熱的なバランスが取れた重力乱流が維持されず、ガス塊が形成されることになる。また、そのような半径に近い場所では、いったん重力乱流に落ち着いたとしても、冷却時間が短いために密度の振幅が大きい乱流となり、結局ガス塊が形成されるケースが見られる。
5.  $\Sigma$  が十分大きい場合は、初期の層流における自己重力の度合いが大きいために、半径（すなわち冷却時間）にかかわらず、ガス塊が形成される。言い換えると、熱的にバランスの取れた重力乱流に落ち着くには、そもそも熱の発生が少なすぎるということになる。
6. ガス塊が形成されるケースでは、中心における質量集中が大きくなり、水素分子の解離温度を超えると、ガスの比熱比が下がってガス圧では自己重力を支えきれなくなるため、逃走的収縮が起こる。

以上の内容をまとめた論文は、Monthly Notices of the Royal Astronomical Society 誌に受理されている。

### REFERENCES

- Balbus S. A., Hawley, J. F., 1991, The Astrophysical Journal, 376, 214  
 Gammie C. F., 2001, The Astrophysical Journal Letters, 553, 174  
 Hawley J. F., Gammie C. F., Balbus S. A., 1995, The Astrophysical Journal Letters, 440, 742  
 Shakura N. I., Sunyaev R. A., 1973, Astronomy and Astrophysics, 24, 337  
 Toomre A., 1964, The Astrophysical Journal Letters, 139, 1217

# 太陽内部熱対流の非局所性に関する考察

政田洋平

愛知教育大学 教育学部理科教育講座

## INTRODUCTION

太陽対流層の底と表面には 6 桁以上に及ぶ密度差が存在するため、対流層には 100Mm のジャイアントセルから、1000Km サイズの粒状斑まで、様々なスケール（マルチスケール）の対流渦が混在していると考えられている。これは対流セルのサイズが、局所的な圧力スケール長に依存して決まるとする「混合距離理論」に基づく描像である（図 1）。

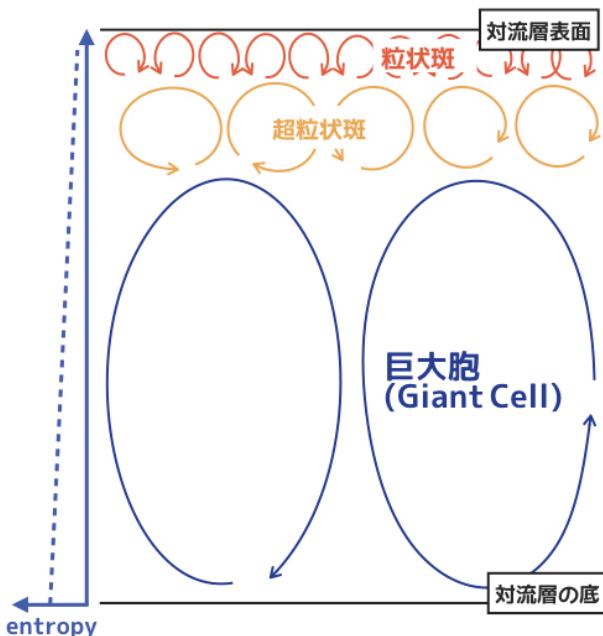


図 1. 太陽のマルチスケール熱対流描像

このような太陽熱対流のマルチスケール描像や、その根拠を与える混合距離理論の正しさは、光球や対流層浅部での対流スペクトルを調べることで、観測的に検証できると信じられている（Hathaway et al. 2010）。しかし実は、理論的に期待されるような対流スペクトルは、観測では見つけられていないのが現状である。

太陽熱対流における観測と理論の間の不整合の中で、現在特に問題になっているのは、ジャイアントセルの存在が期待される空間スケール [O(100)Mm の波長域近傍] に、その証拠を見つけることができない点である (eg., Hathaway et al. 2015)。混合距離理論は光球直下で約 100m/sec の速度を持つジャイアントセ

ルの存在を予言するが、実際にはそれより 2 枠小さな対流速度しか観測できないと主張する研究結果も存在する (Hanasoge et al. 2012)。

これらの観測結果は、対流層深部に対流の駆動スケールが存在しないこと、つまり太陽熱対流が局所的な super-adiabaticity ではなく、非局所的な太陽表面での冷却によって駆動されている可能性を示唆する (e.g., Spruit 1997; Cosette & Rast 2016; Nelson et al. 2018)。冷却によって駆動される熱対流は図 2 のようにブルーム状の形態をとり、断熱的大気を「慣性」に従って落ちていく (Brandenburg et al. 2016)。

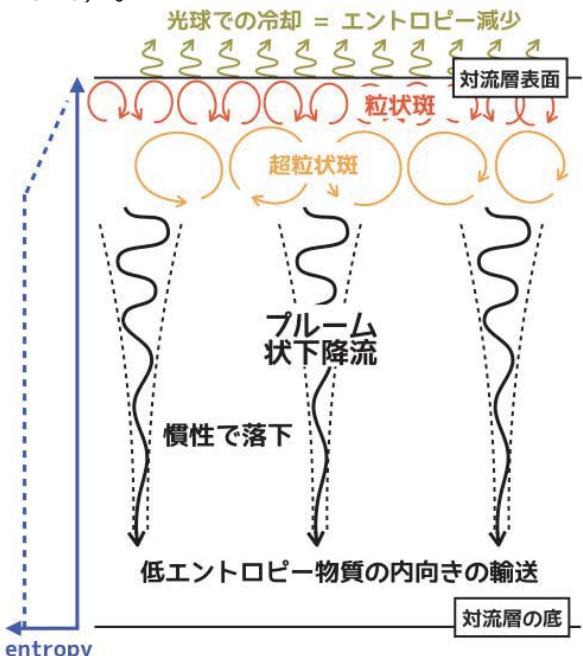


図 2. 冷却駆動のブルーム熱対流

## SETUP & RESULT

対流層のエントロピー分布の違いが表層スペクトルに及ぼす影響を定量的に理解するために、MHD 热対流シミュレーションを使って、局所駆動型と非局所駆動型（冷却駆動型）の熱対流モデルの違いを調べた。

図 1 と 2 の左側の青線は、両モデルのエントロピー分布の概略図である。局所駆動型のモデルは、対流層全域が対流不安定（エントロピー

勾配が全域で負 : polytrope 指数  $m=1.4995$ ) である一方, 冷却駆動型のモデルは, 表層冷却を模擬し, 対流層上部のみが対流不安定 (断熱領域は  $m=1.5$ , 冷却層は  $m=1.4995$ ) になるよう設定している。

図3は計算の結果得られた, 対流層表面[(a)と(b)]と垂直断面[(c)と(d)]でのエントロピー擾乱の分布である。冷却駆動型のモデルは, 小さな対流セルが支配的であるのに対し, 局所駆動型のモデルは対流層底部の圧力スケール長で特徴づけられるような大きな対流セルが顕著に成長していることがわかる。

垂直断面からは, 対流層全体のプラズマの動きが見てとれる。冷却駆動型のモデルの場合, 表面でエントロピーを失った冷却ブルームが対流層深部を貫いて落ちていく。一方、局所駆動型のモデルでは対流層全域が不安定になり, 対流混合が起きていることがわかる。

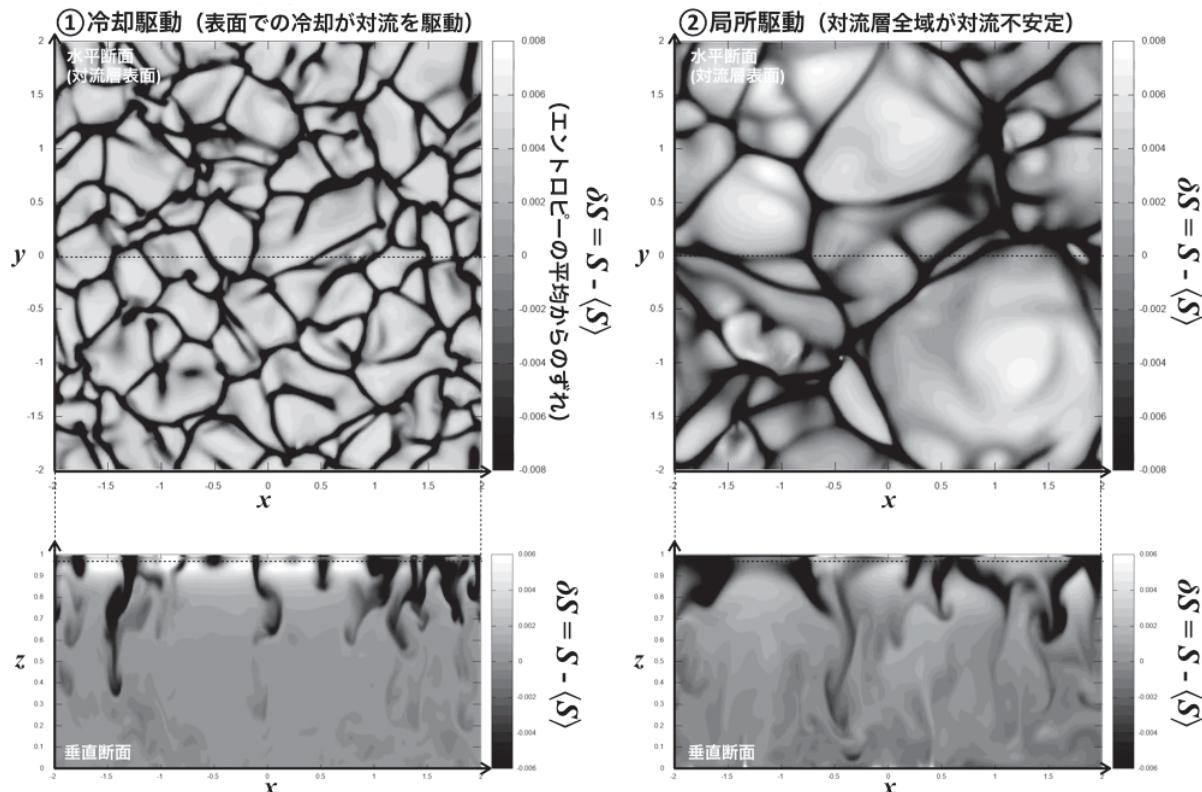


図3. シミュレーション結果（左が冷却駆動モデル, 右が局所駆動モデル）

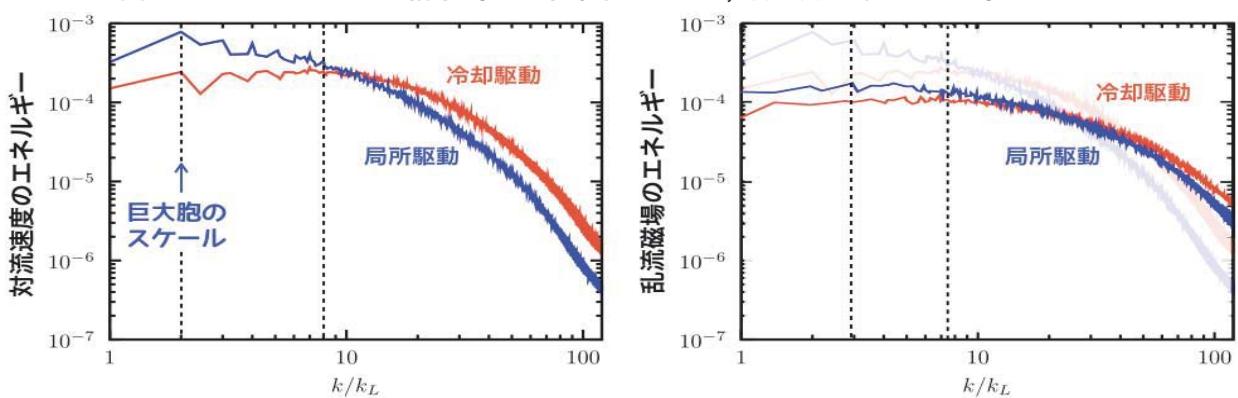


図4. 対流のエネルギースペクトル（左）と磁気エネルギー スペクトル（右）

両モデルの, 運動エネルギーと磁気エネルギーのスペクトルを図4に示した。冷却駆動のモデルの場合, 確かにジャイアントセル付近にスペクトルの盛り上がりは現れず, 観測と整合的になることがわかった。

本研究ではMHD計算を行なっており, 図4のように表面磁場のエネルギースペクトルの情報も得られている。両モデルの磁気エネルギースペクトルの間の顕著な違いを見出し, 太陽表面観測へフィードバックすることで, 太陽内部熱対流の駆動メカニズムを理解するため足がかりを得ることが次の目標である。

## REFERENCE(S)

- [1] Spruit (1997), MmSAI, 68, 397
- [2] Hathaway et al. (2015), ApJ, 811, 105
- [3] Cosestte & Rast (2016), ApJL, 829, L17
- [4] Nelson et al. (2018), ApJ, 859, 117

# 磁場による流体不安定性の抑制に関する研究

松岡千博

大阪市立大学工学研究科

近年、強い磁場の存在が流体不安定性を抑制するという実験結果が報告されている [1]. その抑制のメカニズムを知ることは、磁気乱流の性質を知ることと等価であり、核融合の制御や宇宙規模で起こる乱流、例えば超新星爆発後の残留物中に生じる乱流の性質等を知る上で非常に重要である。電磁流体（MHD）において、流体界面を挟んで速度と磁場の接線成分に飛びがあると、そこには渦度とともに電流が誘導され、界面上に電流が流れているような渦層、すなわち電流渦層 (current-vortex sheet) が形成されることがわかっている。特に、磁場を初期に界面に平行にかけると、渦層のもつ流体の運動エネルギーが磁場のエネルギーに転嫁され、界面近傍に強い磁場が誘導されるとともに、ケルビン・ヘルムホルツ不安定性が抑えられることなどが示された [2, 3]. このような流体と磁場との相互作用は電流渦層という概念を用いてはじめて明らかにされたもので、Matsuoka 等の論文 [2] では、その数学的モデルの導出や適用範囲、それを用いた領域全体の磁場の復元に関する詳細な数学的議論がなされている。本研究では、磁気リヒトマイヤー・メッシュコフ不安定性 (MHD RMI) [4] と磁気ケルビン・ヘルムホルツ不安定性 (MHD KHI) の 2 種の不安定性について、磁場が界面形状に与える影響を調べ、2 つの不安定性の違いを比較した。

今、速度と磁場に飛びがあるような 2 つの流体（2 次元）の界面を考える。このとき、支配方程式は、1. 界面  $\mathbf{x} = (x, y)$  の時間発展、2. 渦層強さ（界面を挟んだ速度シアーの大きさ）の時間発展、3. 磁場  $\mathbf{B}$  の時間発展の 3 つを連立して解くことによって得られる。界面速度  $d\mathbf{x}/dt = (dx/dt, dy/dt)$  は

$$\frac{dx}{dt} = U + \frac{\tilde{\alpha}x_\theta}{2s_\theta}\gamma, \quad \frac{dy}{dt} = V + \frac{\tilde{\alpha}y_\theta}{2s_\theta}\gamma, \quad (1)$$

で与えられる [5]. ここで、 $d/dt$  は、ラグランジュ微分である。平均速度  $(U, V)$  は Biot-Savart 則 (Birkhoff-Rott 方程式) [6] より

$$q^* = U - iV = \frac{1}{2\pi i} PV \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\gamma(\theta') s_\theta(\theta') d\theta'}{z(\theta) - z(\theta')}, \quad (2)$$

と書ける。ここで  $A \equiv (\rho_2 - \rho_1)/(\rho_1 + \rho_2)$  は Atwood 数、 $\tilde{\alpha} = \tilde{\alpha}(A)$  ( $|\tilde{\alpha}| \leq 1$ ) は  $A$  の関数であるような人工パ

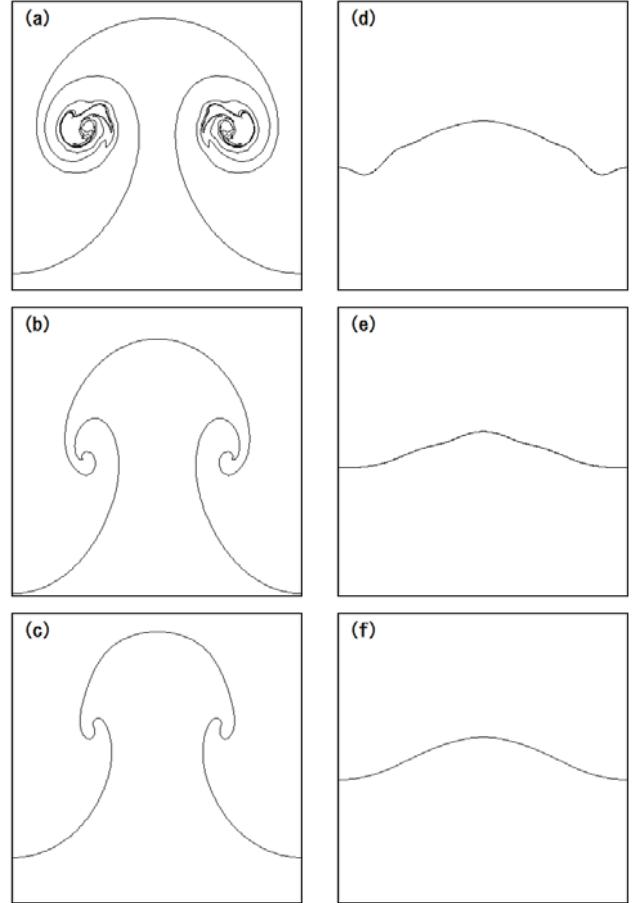


図 1: アルフベン数の違いによる界面発展の違い (MHD RMI). ここで、 $R_A^2 = (a) \infty (b) 1000 (c) 100 (d) 10 (e) 1 (f) 0.1$ . アトウッド数は  $A = 0.2$  である.

ラメータ、 $q^* = U - iV$  は複素速度で、PV は主値積分を表し、下付き添え字  $\theta$ （界面をパラメetrizeするパラメータ）はその変数に関する微分を表す。また、 $\gamma$  は単位長さあたりの循環を表し、渦層の強さに相当する。

オイラー方程式を変形すると、 $\gamma$  に関する発展方程式

$$\begin{aligned} \frac{d\gamma}{dt} &= \frac{2A}{s_\theta} \left( x_\theta \frac{dU}{dt} + y_\theta \frac{dV}{dt} \right) \\ &- \frac{(1 + \tilde{\alpha}A)\gamma}{s_\theta^2} (x_\theta U_\theta + y_\theta V_\theta) + \frac{A + \tilde{\alpha}}{4s_\theta} (\gamma^2)_\theta \\ &+ \frac{1}{R_A^2 s_\theta} (\langle \mathbf{B} \rangle \cdot \mathbf{j}_s)_\theta, \end{aligned} \quad (3)$$

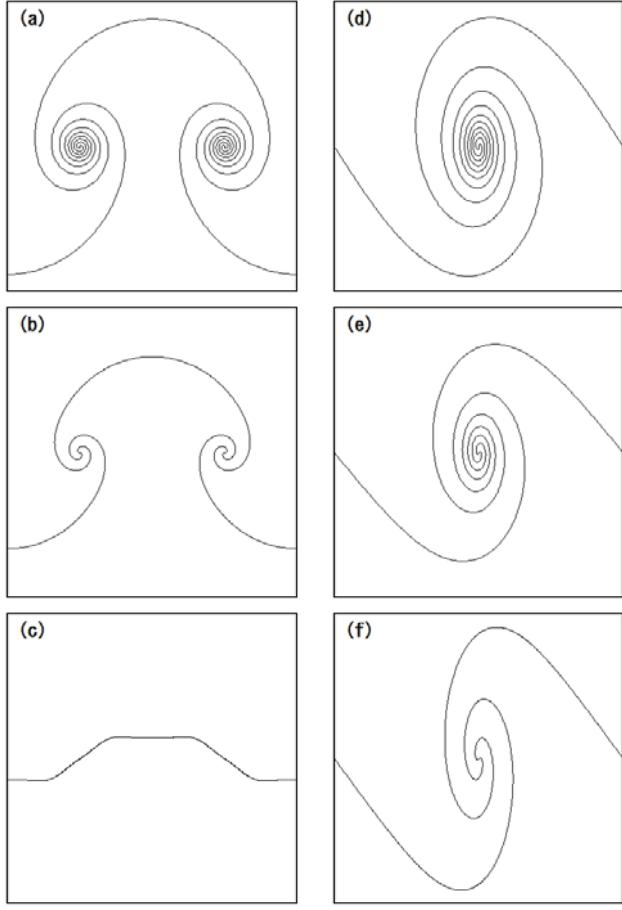


図 2: MHD RMI (a) - (c) と MHD KHI (d) - (f) の界面発展の違い。ここで、アルフベン数は  $R_A^2 = (a)$  と (d)  $\infty$ , (b) と (e) 1000, (c) と (f) 10 で、アトウッド数はすべて  $A = 0$  と設定されている。

が得られる。ここで、 $\langle \mathbf{B} \rangle$  は 2 つの磁場の平均、 $j_s \equiv \mathbf{B}_1 - \mathbf{B}_2$ ,  $R_A^2 \equiv (2B_0^2/[\mu(\rho_1 + \rho_2)v_{lin}^2])^{-1/2} = v_{lin}/v_a$  は磁気力と慣性力の比を表す量でアルフベン数と呼ばれる。この中で、 $v_a$  は Alfvén 速度、 $v_{lin}$  は pure RMI の線形成長速度で、衝撃波通過後の速度シアー  $\delta v_{1,2}^*$  を用いて  $v_{lin} = (\rho_1\delta v_1^* - \rho_2\delta v_2^*)/(\rho_1 + \rho_2)$  と書ける [7]。また、誘導方程式より

$$\frac{dB_i^t}{dt} = \frac{\tilde{\alpha} \mp 1}{2s_\theta} \gamma B_{1,\theta}^t + \frac{B_i^t}{s_\theta} \left( q_\theta^t \pm \frac{\gamma_\theta}{2} \right), \quad (4)$$

という結果が得られる。ここで  $B_{i,\theta}^t = \partial B_i^t / \partial \theta$  ( $i = 1, 2$ )、 $q_\theta^t$  は速度の接線成分の  $\theta$  微分で上側(下側)の符号は流体  $i = 1$  ( $i = 2$ ) に対応している ( $i = 1$  は界面の下側)。方程式 (1), (2), (3), (4) を連立させて解くことにより、(非一様) 電流渦層の非線形発展を記述することができる。

初期条件は MHD RMI に関して

$$x(\theta, 0) = \theta, \quad y(\theta, 0) = 0; \quad \gamma(\theta, 0) = -2 \sin \theta, \quad (5)$$

### MHD KHI について

$$\begin{aligned} x(\theta, 0) &= \theta + a_0 \sin \theta, & y(\theta, 0) &= -a_0 \sin \theta; \\ \gamma(\theta, 0) &= 2; & a_0 &= 0.1, \end{aligned} \quad (6)$$

と設定する。初期一様磁場は MHD RMI, MHD KHI とともに

$$\mathbf{B}_j(\theta, 0) = \hat{\mathbf{e}}_x, \quad (j = 1, 2) \quad (7)$$

である。ここで、 $\hat{\mathbf{e}}_x$  は  $x$  方向の単位ベクトルである。

図 2 にアルフベン数  $R_A$  を変えたときの MHD RMI における界面形状を示した。アルフベン数無限大は通常の完全流体の渦層に対応しており、この値を小さくするにつれて界面の巻き上がりは抑えられ、やがて安定な振動解へと移行する。 $R_A^2 = 0.1$  は線形振動と区別がつかない。

図 2 に MHD-RMI と MHD-KHI における様々なアルフベン数の界面発展の違いを示した。同じ  $R_A$  でも、MHD-KHI の方が磁場の影響が少ない(巻きが強い)ことがわかる。これは、渦層としての力が KHI の方が RMI より強いことを表している。つまり、KHI は MHD にくらべ、磁場からの影響を受けにくい。

### 参考文献

- [1] O. A. Hurricane et al., Nature **506**, 343 (2014).
- [2] C. Matsuoka, K. Nishihara and T. Sano, J. Non-linear Sci. **27**, 531 (2017).
- [3] C. Matsuoka, K. Nishihara and T. Sano, High Energy Density Phys. **31**, 19 (2019).
- [4] R. D. Richtmyer, Commun. Pure Appl. Math. **13**, 297 (1960); E. E. Meshkov, Sov. Fluid Dyn. **4**, 101 (1969).
- [5] C. Matsuoka and K. Nishihara, Phys. Rev. E **73**, 026304 (2006).
- [6] G. Birkhoff, Proc. Sympo. Appl. Math. **XIII**, 55 (1962); N. Rott, J. Fluid Mech. **1**, 111 (1956).
- [7] K. Nishihara, J. G. Wouchuk, C. Matsuoka, R. Ishizaki and V. V. Zhakhovskii, Pilos Trans. Roy. Soc. A **368**, 1769 (2010).

# アブレーションによるプルームの発生と膨張のシミュレーション解析

砂原 淳、城崎 知至<sup>1)</sup>、長友英夫<sup>2)</sup>

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

<sup>1)</sup>広島大学大学院工学研究科

<sup>2)</sup>大阪大学レーザー科学研究所

## 1. はじめに

核融合炉第一壁の問題は、レーザー核融合、磁場閉じ込め型の方式を問わず炉工学において重要な研究課題である。実際の炉壁は X 線やアルファ粒子、プラズマデブリ等の熱インパルスを受け、ミクロには材料の損傷、マクロにはプルーム生成、輻射の吸収、再放射過程が生じ、核融合炉内環境に影響する。そのため、核融合炉の工学的設計には第一壁材料のミクロとマクロの特性理解が重要である。我々は一壁材料の特性理解を進めるため、ミクロ解析ツールとしての分子動力学シミュレーション、マクロ解析ツールとしての輻射流体シミュレーション開発を行い、これら開発したシミュレーションコードを用いて第一壁材料の熱応答など、素過程のモデリングを行なっている。平成30年度は二次元輻射流体シミュレーションコードの開発を中心に研究を行った。

### ・ 2. 輻射流体シミュレーションの問題点

二次元の輻射流体シミュレーションコードの開発を進めている。輻射流体シミュレーションがカバーする計算対象は、第一壁のマクロな熱応答以外にもレーザー爆縮、レーザー加工、極端紫外光源開発、など幅広い。計算対象のパラメータ空間の広さ、(密度、温度、現象時間) に対応するだけでなく、精度の高い計算を行う必要がある。このため、我々は2次元一流体二温度モデルで保存量の完全保存を達成するスキームの開発を行なった。流体の基礎式を保存型で表すと、次式のようになる。

$$\frac{\partial U}{\partial t} + \nabla \cdot F = 0 \quad (1)$$

ここでUは保存量のベクトルであり、密度、運動量、全エネルギー(=内部エネルギー+運動エネルギー)からなる。Fはラックステンソルである。流体が

一温度の場合、圧力Pと密度  $\rho$ 、内部エネルギーEまたは温度Tの関係を与える状態方程式が  $P = P(\rho, E)$  で与えられるならば、流体の式は式(1)及び状態方程式で閉じた形となり、保存量の時間発展が求められる。しかしながら、レーザープラズマでよく利用される典型的な状態方程式は  $P = P(\rho, T)$  の形をとることが多い。この場合は変数Tが一つ増えることに対応して、状態方程式から別途  $E = E(\rho, T)$  の関係式を導入して、TとEの変換を毎ステップごとに行う必要がある。さらに通常、レーザープラズマはレーザー吸収エネルギーが電子に選択的に付与されることにより電子温度とイオン温度が異なる二温度状態になり易いため、二温度に対応した状態方程式として、イオン圧力、電子圧力をそれぞれ  $P_i, P_e$  として、 $P_i = P_i(\rho, T_i)$ ,  $P_e = P_e(\rho, T_e)$  のイオン、電子のそれぞれの状態方程式を導入しなければならない。ここで、 $T_i$  はイオン温度、 $T_e$  は電子温度である。また、イオン及び電子の内部エネルギーとそれぞれの温度を関係づけるため、状態方程式から  $E_i = E_i(\rho, T_i)$ ,  $E_e = E_e(\rho, T_e)$  の関係を使う必要がある。このような二温度で保存型の流体方程式を解くために、従来は式(1)の保存型流体方程式と二温度の状態方程式、内部エネルギーと温度の相互変化を解いてきた。しかしながら、一般的な状態方程式用いて内部エネルギーと温度の相互変換を行う際に発生する数値誤差や、数値的な収束の不安定性などによる困難さにより、十分な頑強性を確保できずにいた。

一方で、非保存型の流体方程式に基づくコードは流体方程式中でエネルギー式の代わりに温度の発展方程式を用いることができるため、独立変数として密度  $\rho$ 、速度  $v$ 、温度  $T_i, T_e$  を用いて状態方程式  $P_i = P_i(\rho, T_i)$  及び、 $P_e = P_e(\rho, T_e)$  を使って式が閉じる。一般的の密度と温度の二温度状態方程式と流体方程式を組み合わせる形で流体の発展が解け、温度とエネルギーの相互変換も必要ないため、現在に至るまでレーザープラズマシミュレーションの多くで採

用されてきた。しかし、非保存型流体方程式に基づく故に質量、運動量、全エネルギーの空間積分量が保存されずに誤差が蓄積してしまい、長時間の計算が精度良く行えないという問題を抱えてきた。これらの問題に対し、我々は保存型方程式とイオンと電子の温度の時間発展方程式を二温度状態方程式と組み合わせることで、従来の方法よりも格段にロバストで高精度でありながら、密度、運動量、全エネルギーの保存量に関する空間積分は時間的に保存するという計算手法を見出し、テスト計算を行った。

### ・3. 完全保存二温度2次元輻射流体計算

我々が採用いた計算方法の概要を以下に示す。まず、保存型流体方程式(1)を解くことで、各計算メッシュごとにイオンと電子を合わせた内部エネルギー  $E = E_i + E_e$  を求める。次に式(2)に示すように、イオンと電子の温度発展方程式を非保存型で解く。非保存型解法の典型例として、CIPなどのセミラグランジュ系の手法を採用すれば、温度の発展方程式は2段階解法となり、まず、移流を解いてから、非移流項を解くことになる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial T_i}{\partial t} + \nabla T_i &= -\frac{p_{thi}}{\rho c_{vi}} (\nabla \cdot u) \\ \frac{\partial T_e}{\partial t} + \nabla T_e &= -\frac{p_{the}}{\rho c_{ve}} (\nabla \cdot u) \end{aligned} \quad (2)$$

ここで  $u$  は速度ベクトルである。時刻  $n$  の温度  $(T_i, T_e)^n$  は既知であるため、移流を解くことで移流後の温度  $(T_i^*, T_e^*)$  が求まる。そして、非移流項を解くが、このとき、イオン、電子の非移流項はともに  $(\nabla \cdot u)$  を共通項として持つ。この  $(\nabla \cdot u)$  を変化させると、最終的に得られる時刻  $n+1$  における温度  $(T_i, T_e)^{n+1}$  も変化するが、その際、状態方程式から得られる内部エネルギー  $E$  と  $T$  の関係を使い、保存型流体方程式解法で得られた内部エネルギー  $E$  と非保存温度発展方程式と状態方程式を通じて得られた内部エネルギー  $E'$  が一致するように  $(\nabla \cdot u)$  を反復計算により求めた。

### ・3. 計算結果

完全保存二温度2次元輻射流体計算のテストとして、金の平板にレーザーを照射した時の2次元的なプラズマ膨張を計算した。状態方程式は金の二温度状態方程式を用い、円筒座標系で円筒の軸に沿ってレーザーを右から金の平板に対して垂直に照射した。図1にプラズマ温度分布を示す。

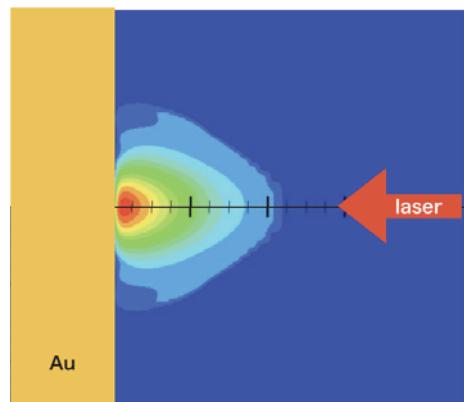


図1 金に波長  $1.06 \mu m$  のレーザーを垂直入射したときのプラズマ温度分布

このテスト計算における質量、内部エネルギー、運動エネルギー、全エネルギー（内部エネルギー+運動エネルギー）の空間積分の時間変化を図2に示す。レーザーピーク時刻は  $t=12\text{ns}$  であり、まだこの時刻では膨張する金プラズマは計算領域内に全てとどまっている。そのため、質量及び全エネルギーは一定であり、内部エネルギーの減少分が運動エネルギーの増加分に等しくなっていることが分かる。

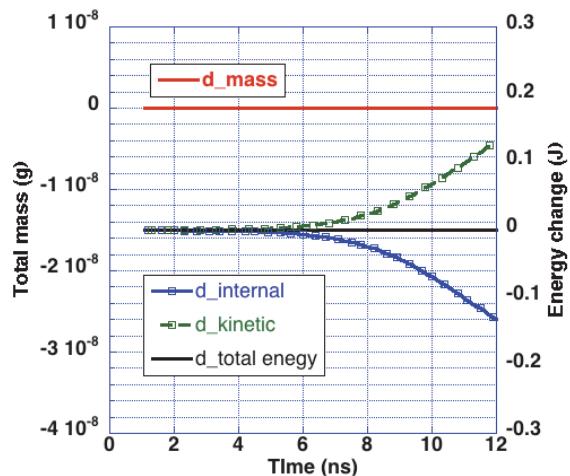


図2 質量、内部エネルギー、運動エネルギー全エネルギーの空間積分の時間変動量

### 4. まとめ

開発した計算手法の検証を続けるとともに、今後、炉壁第一壁及び炉内環境計算に適用していく

謝辞 本研究の一部は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。また、大阪大学サイバーメディアセンター SX-ACEを用いて計算された。

# 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

摂南大学理物理学部電気電子工学科

## 1. 2018 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場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ィ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]。

2017 年度から、この大強度ホィッスラー波が背景プラズマに及ぼす影響、特に無衝突衝撃波のような大きな構造形成や、それがコヒーレントなイオン加速に発展するかどうかについての解析を、従来用いていたハイブリッドコードから背景電子やイオンも粒子として取り扱う粒子コードに拡張することで行ったが、粒子の流出入境界と場の量の開放境界を同時に成立させることができ難しく、あまり長時間の計算をすることができなかった。

2018 年度は、2017 年度に引き続き、この開放境界を持つ粒子コードの改良を行って、無衝突衝撃波の形成とイオン加速の解析を行った。加えて、新しい課題として、背景プラズマ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た。

## 2. 開放境界条件を用いた電子ビーム伝播解析用粒子コードの開発とイオン加速の解析

本研究は、最近その有効性が確かめられている磁場印加型の高速点火核融合における電子ビーム伝播解析から始まっている。高速点火型レーザー核融合とは、超高強度レーザー照射により発生した高速電子が、圧縮された燃料コアを追加熱して燃焼を促すというスキームであるが、この電子ビームを強磁場印加することでガイドしながら燃料コアに到達させることで、到達率を上げて燃焼効率を向上させようとするものである。最近の実験結果によれば、磁場を印加しない場合に比べて磁場を印加した方が中性子の発生量が上がることが確認されている。

しかし、本研究の解析により示された、強磁場印加下でのビーム不安定性に伴う大強度ホィッスラー波の発生は、電子ビームガイドを期待して印加した磁場が返って電子ビームのスムーズな流れを阻止する結果となることを意味する。もちろん、印加磁場の強さや電子ビームと背景プラズマの密度比などのパラメータに依存するため、一概にうまくいかないという結論にはならないが、高速点火への応用においては、パラメーターの範囲を注意深く検討しなければならないことを示唆している。しかし、強磁場下での電子ビーム伝播によりホィッスラー波のような電磁波が発生することや、スタグネーションによる大きな電子密度変動が起きることは、宇宙における問題や高速イオン発生装置開発まで、様々な方面への応用の可能性が考えられる。

本研究は、論文 [1] まででは、イオンは静止していると仮定し、背景電子は流体として取り扱うハイブリッドコードを用いていたが、大強度ホィッスラー波発生に伴う背景プラズマ中の衝撃波のような大規模構造形成からイオン加速までを解析するためには、単に流体としてのイオンの集団運動をコードに加えるだけでは不十分であり、イオンの速度分布に応じた解析、運動論効果が必要になる。このため、イオン運動も粒子化したフル粒子コードが必要となるが、電子ビーム伝播問題を解析するための粒子コードには粒子の出入りを自由に行える開放境界条件が必要である。これまで用いてきたハイブリッドコードは、ビーム電子のみを粒子として取り扱っていたため、その境界における影響は限定的で、電子の出入による場への影響は小さく、境界付近での流体場や電磁場に簡単な減衰領域を設けて揺動の過度な増大を抑えるだけで十分であった。

しかし、背景プラズマも粒子として取り扱うには、粒子コードにおける開放境界条件の導入が必要となる。そこで、2017 年度にはオーロラ発生の起源である電子ビームの突入によるダブルレイヤを解

析するための開放境界粒子コードを参考にして、背景イオンと背景電子も開放境界条件とした粒子コードを開発し、解析を行ったが、粒子の流入出に伴う不安定性が思うように抑制できなかった。今年度も引き続き様々な抑制方法を試みて、ある程度までは抑えられることができたが、ビーム密度が高くて不安定性の成長率が速い場合には、境界付近での大きな密度変動を完全に抑えきれず、大きな構造形成を長時間持続するには至らなかった。この問題解決のため、引き続きコードの改良を行う予定である。

### 3. 抵抗性ワイベル不安定性の解析

上記のように、強磁場下では電子ビーム不安定性に伴って、大強度のホィッスラー波が発生して、電子ビーム流が停滞することがわかったが、実際の実験では高速点火核融合での磁場ガイド効果が有効で、燃焼率の向上が報告されている。本研究での解析と実際の実験を比較したときの一つの问题是、背景プラズマの密度である。これまでの研究では、ビーム電子密度と背景プラズマ密度の比を10%としていて、ビーム電子密度が比較的高い。これに対し、高速点火核融合では、金コーンのような密度の高い領域を電子ビームが通り抜けていくため、密度比が小さい解析が必要となる。

ところが、背景プラズマの密度が上がると別の問題が出てくる。背景プラズマ中での衝突効果である。背景プラズマが金のような高Z物質の場合、イオンによる背景電子の散乱が大きくなつて無視できなくなる。そこで今年度は、新たに背景電子の運動に衝突項を加えた高速電子伝播解析を行った。

衝突項を導入したときの重要な課題の一つは、背景プラズマに電気抵抗が存在するために、「抵抗性」ワイベル不安定性が起こることである。ワイベル不安定性とは、ビームの進行方向に垂直な電磁場が成長する横方向の2流体不安定性のことであるが、衝突がある方が成長率が増大することがわかっている。例えば、流体解析で得られた成長率と、運動論効果を入れて得られた成長率を比較すると、運動論効果を入れた方がランダウ減衰の効果で成長率が高い。これはシミュレーションでも確認されている。背景プラズマに衝突項を導入することは、成長率増大の効果を陽に加えることになるが、これは抵

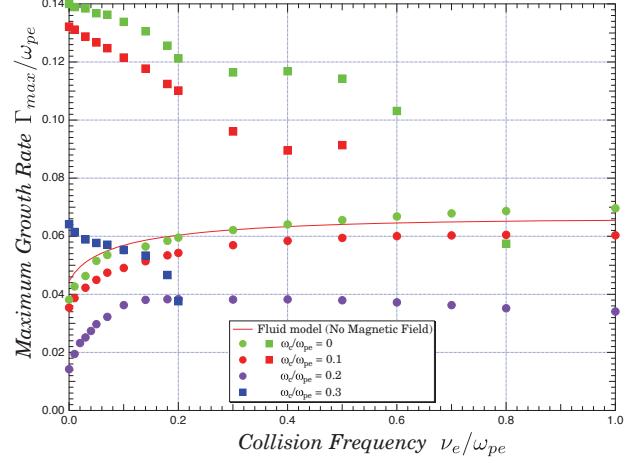


図1. ハイブリッドコード解析により得られた抵抗性ワイベル不安定性の最大成長率

抗の効果を入れた流体解析でも裏付けられている。そこで今年度は、流体として取り扱っている背景電子の運動方程式に衝突項を導入したハイブリッドコードを用いて、ワイベル不安定性の成長の様子から增幅率を計算した。結果を図1に示す。ここで、ビームと背景電子の温度は共に1keVとし、ビーム電子と背景電子密度の比は2%である。図1には、簡単のために背景電子密度のプラズマ周波数( $\omega_{pe}$ )で規格化した衝突周波数を一つのパラメータとして変化させ、フーリエ変換したモード解析から得られた最も成長が速いモードの成長率を示している。

図1で、●で示したモードは計算の初期から成長する線形成長モードであり、■で示したモードはある程度時間が経過してから成長する2次成長モードである。図1よりわかるように、外部磁場の値(規格化値 $\omega_c/\omega_{pe}$ )が大きくなるほど成長率が下がることがわかる。また、抵抗の効果は2次成長に対して顕著であり、抵抗の存在により、様々な非線形効果が抑制されることがわかる。加えて磁場を印加すれば、さらに不安定モードを抑えることができることもわかる。

この他、電子ビーム入射型のハイブリッドコードを用いて衝突項を含めたビーム伝播解析を行い、磁場を加えることでワイベル不安定性も含めた2流体不安定性が完全に抑制されることなどを確認したが、2次不安定性の成長や抑制のメカニズムなども含め、より詳しい解析は今後の課題である。

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

# 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<sup>1</sup>, 山崎了<sup>1</sup>, 蔵満康浩<sup>2</sup>, 坂和洋一<sup>3</sup>

1 青山学院大学理工学部, 2 大阪大学大学院工学研究科, 3 大阪大学レーザー科学研究所

## INTRODUCTION

本研究はレーザー・プラズマ非線形相互作用の一つである「誘導コンプトン散乱」についての理論的な研究である。この研究を通して誘導コンプトン散乱に伴う現象を正しく理解し、さらに、その現象をレーザー実験によって検証することを目指す。誘導コンプトンは、研究代表者が専門としてきた天体現象への応用も考えられる相互作用である。

太陽の電波バーストや、パルサーからの電波パルス、さらに高速電波バーストなど、いくつかの天体からは非常に高輝度の放射が観測される。ここで高輝度というのは、光子の占有密度ないしは、輝度温度という量で特徴付けられ、黒体放射や高エネルギー粒子からのシンクロトロン放射などのインコヒーレントな放射では説明困難な輝度を持つということである。天体からのこのような放射は天然のレーザー発振と言え、そもそもその放射機構が今なお研究の対象である[1]。

ただし、ここで注目するのは放射機構ではなく、高輝度放射光の伝播過程である。その中でも特に「誘導コンプトン散乱」に注目する。高輝度放射は天体周辺のプラズマや星間プラズマと誘導コンプトン散乱を起こすことが期待される。宇宙物理において、我々は宇宙のはるか彼方で起こる現象を主に電磁波として観測し、放射するプラズマの性質を予測し、天体の周辺で起こる極限的物理現象を説明するという手法が取られる[2]。一方、放射された電磁波が伝播時に起こすプラズマと電磁波の非線形相互作用の痕跡、つまり、散乱光からも、天体周辺のプラズマ状態を予測することが可能である[3]。しかし現状、観測される電磁波と誘導コンプトン散乱光とを比較できるほど、この現象の明確な理解に至っているとは言えない。

一方で、レーザーを用いたプラズマと電磁波の相互作用に関する研究は古くから行われてきた。高輝度放射を実現できるレーザー光は、プラズマとの様々な非線形相互作用が期待される。その中でも誘導コンプトン散乱に関する実験は 1970 年代の前半にも行われており、それ以降も何度か実験の報告がある。我々が注目する「誘導コンプトン散乱された散乱光の振る舞い」を調べた研究があるが、実験結果は定性的な説明に留まっている[4]。多くの非線形相互作用から誘導コンプトン散乱が抜き出されているかという点で、解消するべき疑問がある。誘導コンプトン散乱のレーザー実験の可能性について議論し、誘導コンプトン散乱光の非線形発展を調べる。

## 研究方法

代表者らの過去の研究で誘導コンプトン散乱の非線形段階で見られるスペクトルの変化を扱った[5]。これまでの研究では[5]の方法を拡張することで最近の実験室レーザーを用いてどのような結果が得られるかを計算した。特に、利用可能性のあるレーザーについてそれらを調べて、予想されるスペクトルを計算した。この内容は現在論文にまとめている。

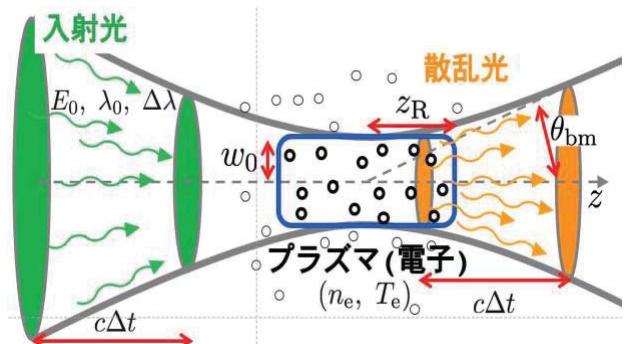


図 1: 実験室での誘導コンプトン実験の概念図。ガウスビームのレイリー領域で、散乱体となるプラズマ中の電子と相互作用する。

図 1 のようにガウスビームのレイリー領域での誘導コンプトン散乱を考える。入射光のエネルギー  $E_0$ 、中心波長  $\lambda_0$ 、バンド幅  $\Delta \lambda$ 、パルス幅  $\Delta t$ 、ウェスト幅  $w_0$  を利用可能性のあるレーザーについてまとめたのが表 1 である。これらのレーザーパラメータの違いにより、どのようなプラズマ(電子密度  $n_e$  と温度  $T_e$ )に対して、誘導コンプトンが他の非線形相互作用に対して卓越するかどうかを調べることができる。

表 1

パラメータ	J-KAREN-P	NCU100TW	LFEX
エネルギー[J]	10	3.3	400
中心波長[nm]	820	810	1053
バンド幅[nm]	50	35	3.3
パルス幅[fs]	30	30	1500
スポット径[um]	0.67	4.3	50

誘導コンプトンのレーザー実験の可能性を議論するのに必要なレーザーパラメータ : J-KAREN-P(関西光科学研究所)[6]、NCU100TW(台湾国立中央大学)[7]、LFEX(大阪大学)[8,9]。

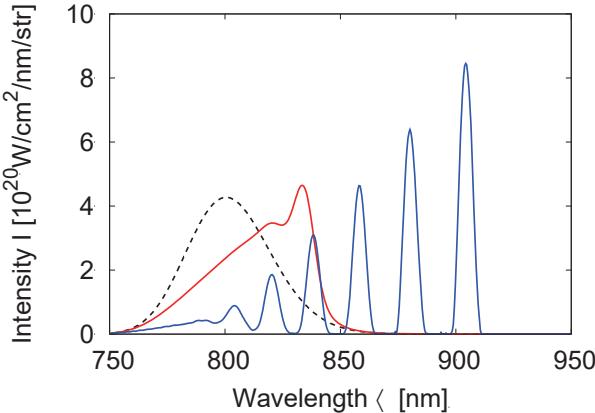


図 2: 台湾の国立中央大学にある NCU100TW レーザーのパラメータに対して予想される誘導コンプトン散乱光のスペクトル。黒点線が初期のスペクトルで、赤線が密度  $10^{17}\text{cm}^{-3}$  のプラズマに照射した場合の散乱光、青線が密度  $10^{18}\text{cm}^{-3}$  のプラズマに照射した場合の散乱光。

図 2 では、スペクトルがガウス分布をしたガウスビームを考える(黒点線)。ガウスビームのレイリー領域に散乱体があると考えて、その(電子)密度が  $10^{17}\text{cm}^{-3}$  の時が赤線、 $10^{18}\text{cm}^{-3}$  の時が青線のような散乱光スペクトルとなる。誘導コンプトン散乱は散乱過程なので光子数は保存するが、コンプトン過程により電子にエネルギーを渡す。そのために長波長側にスペクトルが変形していく。散乱が十分起った状態である青太線のスペクトルは誘導コンプトン散乱によって、線スペクトルを複数伴う特徴的なスペクトルになっている。

図 2 では誘導コンプトン散乱が卓越するような状況が暗に仮定されている。本年度の研究ではどのような状況で、誘導コンプトン散乱が他の(非線形)プラズマ過程に比べて卓越するのかを調べた。レーザーパラメータについては、実験装置ごとに決まっているため、我々が調整できるのはプラズマの密度と温度である。次の四つの条件について調べた。

- ① 誘導コンプトン散乱が起こる。
- ② Debye 長が中心波長より長い。
- ③ バンド幅がプラズマ振動数よりも長い。
- ④ バンド幅が誘導コンプトン散乱に特徴的な線スペクトルよりも大きい。

①は図 1 に見られるようなスペクトルの変形が確認できるかどうかの条件。②は non-collective scattering になるための条件。③は誘導ラマン散乱が卓越しないための条件[10]。④は[5]で導出した方程式の適用限界に関する条件になっている。

## 結果

J-KAREN-P については、電子温度  $T_e \sim \text{keV}$  のプラズマに対して、電子数密度  $10^{15}[\text{cm}^{-3}] < n_e < 10^{17}[\text{cm}^{-3}]$  のプラズマであれば、誘導コンプトン散乱が卓越すると考えられる。NCU100TW については、電子温度  $T_e \sim 10\text{keV}$  のプラズマに対して、電子数密度  $10^{17}[\text{cc}^{-1}] < n_e < 10^{18}[\text{cc}^{-1}]$  のプラズマであれば、誘導コンプトン散乱が卓越すると考えられる。LFEX については、図 1 のような実験において、誘導コン

プトン散乱を観測するのは困難であることがわかった。

## 結論と今後の発展

レーザーパラメータによって、必要となるプラズマのパラメータ範囲は何桁も変動することがわかる。上記①-④のそれぞれの条件は、レーザーパラメータと複雑に絡み合っているために一概には言えないが、現状では大型の大エネルギーレーザーよりも、高強度短パルスレーザーが誘導コンプトン散乱の実験に適したレーザーパラメータを持つことがわかった。

幅広いレーザーパラメータの領域で普遍的に誘導コンプトン散乱が確認されるかどうかというの興味深い問題であるため、激光 XII や LFEX といったハイパワーレーザーを適用できるようなセットアップがないか、理論的に模索している。これを次年度の共同利用・共同研究の内容にしようと考えている。

一方、誘導コンプトン実験を次年度の J-KAREN-P 実験に申請中である。うまくプラズマパラメータを調整することで、誘導コンプトン散乱の性質が世界で初めて実証される可能性がある。散乱光のスペクトルを計測するために必要となる計測器も競争的資金(青山学院大学アーリーイーグル研究支援制度)すでに購入済みである。

## ACKNOWLEDGEMENT(S)

本研究の一部は、青山学院大学アーリーイーグル研究支援制度の支援によって行われた。

## REFERENCE(S)

- [1] Melrose, D. B., *Rev. Mod. Plasma Phys.* **1**, 5 (2017).
- [2] 田中周太、天文月報、2013 年 **106** 卷 1 号
- [3] Tanaka, S. J., & Takahara, F., *Prog. Theor. Exp. Phys.* 123E01 (2013).
- [4] Decroisette, M., Peyraud, J., & Piar, G., *Phys. Rev. A*, **5**, 1391 (1972).
- [5] Tanaka, S. J., Asano, K., & Terasawa, T., *Prog. Theor. Exp. Phys.* 073E01 (2015).
- [6] Kiriyama, H. et al. *Opt. Lett.* **43**, 2595 (2018)
- [7] Hung, T.-S., et al., *Appl. Phys. B: Lasers and Optics* **177**, 1189 (2014)
- [8] Kawanaka, J., et al., *Journal of Physics Conference Series*, **112**, 032006 (2008)
- [9] Arikawa, Y., et al., *Appl. Opt.* **55**, 6850 (2016)
- [10] Galeev, A. A., & Syunyaev, R. A., *Soviet Phys. JETP*, **36**, 669 (1973)

# レーザー生成プラズマからのテラヘルツ波発生

湯上 登

宇都宮大学大学院工学研究科先端光工学専攻

高強度超短パルスレーザーをガス中に集光することによりプラズマが生成され、そこから電磁波が発生する。発生する電磁波の周波数はテラヘルツ領域であり、放射方向はレーザー伝搬方向を0度としたとき、ある特定の角度をもって発生し(集光点を頂点とするコーン状放射)、高周波の発生角度は小さく、低周波では大きくなることを特徴としている。

レーザーパルスのポンデロモーティブ力によってレーザー後方部に誘起される電子プラズマ波はレーザー航跡場と呼ばれ、それに伴う振動電流が電磁波放射源である。レーザー航跡場の周波数はプラズマ周波数に等しく、結果的に電磁波の放射周波数はプラズマ周波数に等しい。生成されるプラズマは、空間的にガウシアン型のレーザーにより生成されるので径方向に密度分布を持つプラズマである。径方向に密度分布を持つプラズマから放射される電磁波は、電子密度の変化の目安となる特性長 $L$ とskin depth $\sigma=c/\omega_p$ が $\sigma \gg L$ となるため、プラズマ中の空間的減衰から逃れプラズマ外部へ伝搬することが可能である。ここで、 $\omega_p$ はプラズマ周波数である。また、密度勾配が大きいほど特性長 $L$ は小さくなるので、レーザー生成プラズマからの放射電磁波は空間強度分布を持つレーザー電離による径方向の急峻な密度勾配が重要である。放射周波数は径方向のプラズマ密度で決定されるので、最大プラズマ周波数よりも低い周波数の電磁波が放射される。航跡場中の振動はレーザー伝搬方向の振動であるので、発生する電磁波の放射方向は径方向であるが、航跡場には径方向の成分も持つため、電磁波の発生方向もそれに伴い変化する。

プラズマからの電磁波解析に2次元粒子シミュレーションを用いる。強度 $2.7 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ 、パルス幅120 fs、波長800 nm、集光径40 μm、z偏光を持つガウシアンレーザーがx方向に伝搬している。 $N_2$ ガスを使用し、最大プラズマ周波数は8.2 THzである。

Fig.1 (a) にプラズマ周波数(solid line)及びy方向の密度勾配の大きさ(dotted line)のy方向プロファイルを示す。横軸はy方向の位置を示し、縦軸は左側がプラズマ周波数(THz)、右側は電子密度勾配の大きさを示す。レーザーは径方向に空間強度分布を持つため、プラズマ周波数は径方向に対して密度分布を持つ。また障壁抑制電離に従い、 $N_2$ ガスは最大4倍まで電離する。径方向の倍数の変化する位置では密度変化が生じ、急峻な密度勾配が4箇所形成される。また、急峻な電子密度勾配の位置に対応するプラズマ周波数はそれぞれ1.8, 4.7, 6.6, 7.8 THzである。

Fig.1 (b) に集光点から半径200 μm、角度20°の $N_2$ ガス中で観測した放射電磁波 $cB_z$ の周波数スペクトルを示す。横軸は周波数(THz)を示し、縦軸は振幅スペクトル(V/m)を示す。放射電磁波の放射周波数は最大プラズマ周波数8.2 THzよりも低い4つのピークを持ち、ピーク周波数はそれぞれ2.2, 5.0, 6.4, 7.9 THzである。これらのピーク周波数はFig.1 (a) の急峻な密度勾配の位置でのプラズマ周波数に対応している。

Fig.2に放射電磁波の周波数スペクトルの角度分布

を示す。1 THz近傍の電磁波が5~15°の方向に放射され、それより高い周波数である1.8 THz近傍の電磁波は、5~10°の方向、さらに高周波である2.2 THz近傍では3~7°と、高周波になるに従い、放射方向がレーザー伝搬軸に近づくという、実験結果に従う結果となっている。

ミュレーション結果は、実験で得られている結果を説明できる結果であった。今後は実験で計測可能な1 THz以下の低周波領域での放射特性の解析を行う予定である。

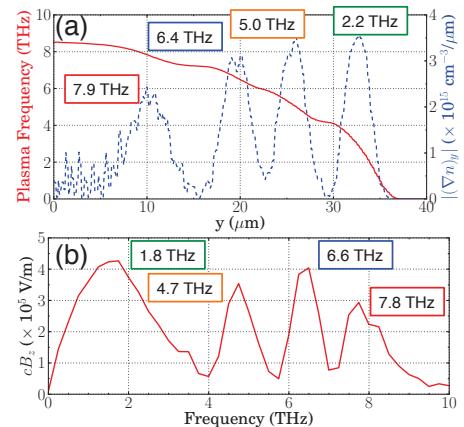


Fig.1 : Relationship between the plasma frequency at a steep density gradient and radiation frequency.

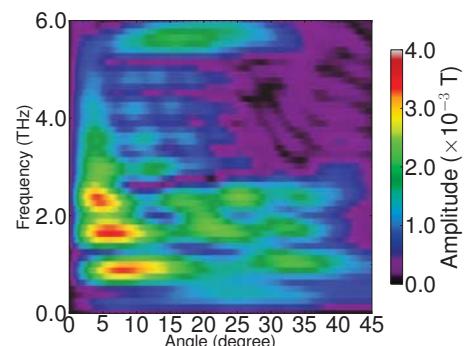


Fig.2 : Contour plot of radiation spectral intensity as a function of angle and frequency.

# レーザープラズマ科学のための最先端シミュレーションコードの 共同開発・共用に関する研究会

広島大学 城崎 知至

## 背景・目的

レーザープラズマ物理研究の進展に伴い、理論・シミュレーション解析で考慮すべき物理モデルは多様化している。また、実験における空間・時間スケールと実際にシミュレーション可能なスケールのギャップを埋めるための多階層化、多スケールに拡張したコードでの解析が必要な場合も多くなっている。一方で、この分野に携わる研究者人口は少ないだけではなく、領域横断した理論・シミュレーション研究者の繋がりは、非常に限定的であった。以上の状況を踏まえ、関連研究者が個々に旅費を工面して参加するボランティア形式の会合として、本研究会は平成21年度にスタートした。その後、この分野の将来性、ソサエティの広がりを考え、さらに発展させていくことが望ましいと考え、H24年度からレーザー研のユーザー会の活動と連携させながら活動を活発化させていくことが望ましいと考え、H24年度からレーザー研の共同研究として研究会を実施し、多くの参加者が集まり、活発な議論が行われてきた。また、この中から個別の共同研究への進展もみられている。

以上の状況を踏まえ、レーザープラズマに関するシミュレーション研究者が一堂に会し、最新の研究成果や数値計算法について議論・情報交換が行える場を設けることによって、よりレーザープラズマのシミュレーション研究の活性化を図ることを目的として、H30年度も継続申請し、研究会を開催した。具体的目的としては、関連研究者の情報共有、共同開発、コード共用、共同研究を通じて、研究成果を上げることを目指している。

## H30年度研究会の概要

開催時期・場所：平成31年1月7-8日、阪大レーザー研 研究棟大会議室で開催

参加者総数：30名以上（うちレーザー研外15名）、発表件数：17件

本年度は、相対論的超高強度レーザープラズマ相互作用関連8件、輻射流体関連2件、数値解法2件、ディープラーニング1件、レーザーブレイクダウン近傍の低強度レーザーと固体物質との相互作用3件の発表が行われた。

研究会冒頭の千徳教授(阪大レーザー研)発表では、千徳教授が開発し、相対論レーザープラズマ相互作用のシミュレーションに広く用いられている相対論電磁粒子コード(picls; PIC code)の開発状況の説明後、物理モデルやシミュレーションパフォーマンスに対する要望を研究会参加者に問い合わせ、今後必要となる開発項目のリストアップが行われた。本会の目的である「コードの共同開発・共用」において、コアコード開発者が主体となり、利用者の要望を取り入れ開発計画を立てていくことは重要であり、他のコードも含め、今後も本会において継続的に進めていくことが望まれる。

昨年度に続き、産総研 加藤研究員 発案の低強度レーザーと物質相互作用に関するセッションを設けた。セッション冒頭の導入として、加藤研究員よりレーザー媒質のような固体物質中のブレークダウンから光学的損傷に至る現象の解明や気体中のブレークダウン現象の解明を目的とした理論・シミュレーション研究の重要性・現況が報告された。続いての岐阜大 小野助教からは、加工等で用いられる低強度レーザーと固体物質の相互作用での電子-フォノン系のエネルギー緩和過程における非平衡性に着目した研究結果が報告された。着目している現象とそれに関する既往研究の紹介を経て、Boltzmann方程式を用いた非平衡電子-フォノン分布の時間発展計算に基づいた緩和過程の解析結果が示された。既往の研究では電子系やフォノン系に対して平衡分布を仮定した2温度モデルによる緩和計算が主体であり、この計算結果から電子-フォノン結合定数が求められている。この2温度モデルによる結果と非平衡性を考慮したBoltzmann計算結果を比較すると、2温度モデルの方がエネルギー緩和速度を過大に評価し、その結果、結合係数を過小評価することが示された。ハイパワーレーザープラズマ相互作用分野でも、高エネルギー電子・イオン生成等により平衡分布からのずれが重要となり、運動論的扱いが必要となる現象が多くある。扱う現象は異なるがスキーム的には共通する部分も多く、興味深い発表であった。ただし、エネルギー空間のみを取り扱った計算であり、実空間依存性を考慮して解くことは計算負荷が大きく、現状ではできないとのことである。この点はハイパワーレーザープラズマ相互作用シミュレーションでも同様の課題であり、精度を保ったまま近似モデルを導入し計算負荷を削減していくスキームの開発が必要であると考えられる。また、パーコレーションモデルによる光学材損傷計算についてQST 関西の佐々木研究員から報告があつ

た。これまで雷の解析に用いたパーコレーションモデルが光学材損傷計算にも使用可能であることが示された。そのなかで、いかにパーコレーションモデルを適用するかにおいて、現象をいかにモデル化するか？その発想が重要であるとのメッセージを若手研究者に投げかけていた。

個別発表においては、レーザー加工におけるアブレーションプラズマの情報から照射材の違いを読み取るディープラーニングに関するもの(阪大 平山氏)や、数値解法に関して相対論 Fokker-Planck 衝突項の保存性と対称性を維持した数値解法(阪大レーザー研 白戸氏)や光線追跡法の開発状況(名大 大津氏)の他、相対論レーザープラズマ相互作用による粒子加速や印加磁場の効果、新たなイオン加速手法の提案、流体近似領域から運動論的領域への過渡領域の取り扱い法など、多彩な報告がなされ、活発な議論が行われた。

最後に、今回の開催の機会を与えていただいた阪大レーザー研の共同研究・共同研究拠点のサポートに感謝致します。研究会には、基本、各自予算で参加いただいておりまが、財源のない方のサポートに本共同研究予算を利用させていただきました。

## 研究会プログラム

### レーザープラズマ科学のための最先端シミュレーションコードの共同開発・共用に関する研究会

日 時:平成 31年 1月 07 日(月)13:30 ~ 1月 8 日(火)17:00

会 場:大阪大学レーザーエネルギー学研究センター 研究棟(I棟-3階) 大会議室

#### 1月 07 日 (月)

【13：30～15：00】 セッション1 司会 城崎 知至（広大院工）

13:30 レーザー生成高エネルギー密度プラズマのシミュレーションを進めるために必要なことは何？

千徳 靖彦 阪大レーザー研

14:00 核融合プラズマの数値計算における保存則と対称性

白戸 高志 阪大レーザー研

14:30 ディープラーニングによるレーザーアブレーションのリアルタイムセンシングに関する研究

平山 哲太 阪大レーザー研

15：00～15：30 休憩

【15：30～17：00】 セッション2 司会 畑 昌育（阪大レーザー研）

15:30 抵抗性ワイベル不安定性に対する外部磁場効果

田口 俊弘 摂南大理工

16:00 レーザー駆動無衝突衝撃波の上流加熱とイオン加速

三間 国興 光産創大

16:30 収束磁場によるレーザー加速電子ビームの高強度化

城崎 知至 広大院工

#### 1月 08 日 (火)

【9：00～10：30】 セッション3 司会 長友 英夫（阪大レーザー研）

加藤 進 産総研

09:00 未定

09:30 ボルツマン方程式に基づく非平衡電子フォノン分布の時間発展シミュレーション

小野 順太 岐阜大工電気電子

10:00 光学材料の損傷のパーコレーション理論解析

佐々木 明 量研機構関西

10：30～10：45 休憩

【10：45～11：45】 セッション4 司会 千徳 靖彦（阪大レーザー研）

10:45 古典力学と量子力学におけるポンデロモーティブ効果の普遍性 Fokker 瀬戸 慧大 ELI-NP/IFIN-HH

11:15 曲率プラズマへのレーザー照射位置変化による高速電子生成への影響 沖田 圭司 阪大院工

11:45～13：15 昼食

【13：15～14：45】 セッション5 司会 坂上 仁志（阪大レーザー研）

畠 昌育 阪大レーザー研

13:15 超高強度レーザーによる高価数重イオン加速

13:45 バブル爆縮による高エネルギー密度物理研究 - 核融合から1線レンズまで -

村上 匡且 阪大レーザー研

Myles ZOSA 阪大レーザー研

14:15 MD simulation of Micro-Bubble Implosion

14：45～15：00 休憩

【15：00～16：30】 セッション6 司会 城崎 知至（広大院工）

15:00 レーザー核融合における光線追跡法によるレーザー吸収シミュレーションの高精度化

大津 貴志 名大院理

15:30 高強度レーザープラズマ相互作用の流体シミュレーションに対する影響

畠中 健 阪大院工

16:00 流体コードへの非局所電子熱伝導モデルの導入

長友 英夫 阪大レーザー研

【16：30～】 自由討論