高強度レーザー誘起表面プラズモン共鳴による高速電子の高効率生成

三島 陽介¹, 羽原 英明¹, Prashant K. SINGH², Amitava ADAK², Gourab CHATTERJEE²,
Amit D. LAD², P. BRIJESH², Malay DALUI², 井上 雅彦³, J. JHA², Sheroy TATA²,
T. Madhu TRIVIKRAM², M. KRISHNAMURTHY², G. Ravindra KUMAR², 田中 和夫¹

¹大阪大学大学院 工学研究科電気電子情報工学専攻 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1)

²タタ基礎研究所 核物理原子物理学専攻 (〒400-005 ムンバイコラバホミババ通り1)

³摂南大学 理工学部電気電子工学科 (〒572-8508 大阪府寝屋川市池田中町17-8)

Efficient Production of Fast Electron Via Surface Plasmon Resonance Induced by Intense Laser Light

Yosuke MISHIMA,¹ Hideaki HABARA,¹ Prashant K. SINGH,² Amitava ADAK,² Gourab CHATTERJEE,²
Amit D. LAD,² P. BRIJESH,² Malay DALUI,² Masahiko INOUE,³ J. JHA,² Sheroy TATA,² T. Madhu TRIVIKRAM,²
M. KRISHNAMURTHY,² G. Ravindra KUMAR,² and Kazuo A. TANAKA¹

¹Division of Electronic, Information, and Energy Engineering, Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

²Department of Nuclear and Atomic Physics, Tata Institute of Fundamental Research, 1 Dr. Homi Bhabha Road, Colaba, Mumbai 400 005, India

³Department of Electrical and Electronic Engineering, Faculty of Science and Engineering, Setsunan University, 17-8 Ikedanakamachi, Neyagawa, Osaka 572-8508, Japan

(Received May 12, 2015)

High-energy electrons are generated when a high intensity(10^{19} W/m²), 30-femtosecond laser pulse irradiates a grating target at the resonant condition of surface plasmon excitation. The number of observed electrons for the grating target is 16 times higher than that for a plane foil target. A finite difference time domain simulation demonstrates a sharp dip of reflectivity by surface plasmon excitation at this condition, and a particle-in-cell simulation well reproduces the trend of electron energy spectra measured in the experiment. The acceleration mechanism of the fast electrons can be explained by $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ acceleration, based on the agreement of the measured slope temperatures with those provided by numerical scaling laws.

Key Words: Intense laser, Surface plasmon resonance, Fast electron, Grating

1. はじめに

集光強度が 10^{18} W/cm²を超える高強度レーザーパルスとプラズマの相互作用によって加速される電子のエネルギーはMeV(メガ電子ボルト)に達し、その挙動を知るには相対論的な取り扱いを必要とする。この高速電子は高エネルギー密度物理や準単色ビームを用いた高密度プラズマ診断、次世代エネルギーとして期待されるレーザー核融合やプラズマフォトリックデバイスを用いたビーム制御といった観点からも精力的に研究がおこなわれている^{1,2)}。また、高強度レーザー照射時に高速電子と同様に生成される高エネルギーイオン・硬X線は、ブラッグピークを利用した粒子線がん治療、放射性同位元素の生成、実験室宇宙物理、加速器へ入射する高輝度粒子線源として及びプラズマ中の電磁場計測などに用いら

れている³⁻⁵⁾。上記応用の達成に向けて、高強度レーザー生成高エネルギー粒子ビームのさらなる高輝度化が求められている。

ターゲット表面にナノ構造をもたせた場合、平板ターゲットと比較して、生成される高速電子のフラックスが大幅に増加する研究が多数報告されている。ナノ構造の一例として挙げられるナノワイヤー⁶⁾、フォーム⁷⁾、マイクロスフィア⁸⁾などは、一般的に全てランダム構造である。一方、2光束干渉法などで作製されるグレーティング^{9,10)}は高精度の周期構造をもち、生じる回折光は構造パラメータの選択によって容易に制御することができる。

レーザー光を金属ターゲットへ照射したとき、固体中では自由電子の共鳴振動で縦波のプラズモンが発生する。このとき、固体表面に発生する“表面プラズモン”は

横波であり、かつ、入射レーザー光の偏光方向がP偏光のとき入射面上でレーザー光とプラズモンの振動方向が一致するため、両者はエネルギー結合できる可能性がある。しかし、ターゲット界面方向のプラズモン波数は入射レーザー光より常に大きい値をもつため、レーザー光を平板金属ターゲットへ入射しただけでは表面プラズモンを励起することができない。一方で、レーザー光をグレーティングターゲットへ照射した場合、回折光のターゲット界面方向の波数は溝周期の大きさに反比例してシフトするため、波数シフトさせた回折光と表面プラズモンの位相整合をおこなうことで、両者のエネルギー結合が可能となる。より具体的には、レーザー波長、入射角、グレーティング本数密度の組み合わせが共鳴条件を満たす場合、表面プラズモンを励起(Surface Plasmon Resonance: SPR)することができる¹¹⁾。SPRは低強度レーザー領域では、励起された表面電場による信号増強に利用され、表面増強ラマン散乱などの生物・センサー用途から、高輝度LED、高効率太陽電池などの産業用途にまで幅広い応用が期待されている¹²⁻¹⁴⁾。

SPRの高強度レーザー領域への応用に関する研究例としては、T. CeccottiらがSPRを用いた高エネルギープロトン加速を実験的に示し¹⁵⁾、M. Raynaud¹⁶⁾らとA. Bigongiari^{17,18)}らがそれぞれ表面電場の増強や効率の高い高速電子生成をシミュレーションから示した報告などが挙げられる。高強度レーザーとナノ構造ターゲットが相互作用した場合、ナノ構造内に強い電場が生じる「電場集中」や構造の突起上に局所的な増強電場が生じる「lightning rod effect」などの「構造の効果」によるエネルギー吸収率の増加が考えられる。したがって、SPRによる増強を評価するには「構造の効果」を分離した考察が必要である。しかし、上記の研究報告ではグレーティングターゲットと平板ターゲットの単純比較に終始しており、「構造の効果」と「SPRの効果」が混在した評価にとどまっている。

本研究では、高強度レーザー領域において、SPRを利用した高速電子ビームの高効率生成に関する成果を報告する。SPRの共鳴条件を満たす状態において、グレーティングターゲットへ高強度フェムト秒レーザーパルス照射し、ターゲット裏面に加速された高速電子ビームのスペクトル計測をおこなった。SPRの共鳴条件における電場の増強度がFDTDシミュレーションとPICシミュレーションで再現されたこと、実験で観測された高速電子スペクトルはPICシミュレーション結果と相関がみられたことを紹介し、高強度レーザー領域におけるSPRの有効性について説明する。

2. 高強度レーザーとグレーティングターゲットの相互作用で発生する高速電子スペクトルの計測

インドのタタ基礎研究所が所有する高強度フェムト秒レーザーシステムを用いて実験をおこなった。集光強度は 10^{19} W/cm²、パルス幅は30 fs、波長は800 nmである。ターゲットは本数密度500本/mmのグレーティングと厚

み2.5 μ mのAu薄膜ターゲットを用いた。ここで、グレーティングは厚さ76 μ mのポリエステル基板上に振幅100 nmの正弦波形状をもち、表面は厚み1 μ mでAuコーティングされている。Fig. 1に実験セットアップを示す。高強度レーザー光をP偏光でターゲットへ40°入射し、ターゲット裏面垂直方向に加速された高速電子ビームのスペクトルをElectron spectrometer (ESM) で計測した¹⁹⁾。ESMは磁場強度0.1 Tの磁石で電子の軌道を曲げることで、0.3–7.0 MeVのエネルギー範囲の計測が可能である。高強度レーザーシステムのコントラストはメインパルスの10 ps前で 4×10^{-8} 、Amplified Spontaneous Emission (ASE) レベルは 10^{-8} である。これは過去のナノ構造ターゲットを用いた実験(10^{-6} 程度)²⁰⁾と比較して高コントラストであるため、高強度メインパルス到達時点にグレーティング形状が保持されていると考えられる。

グレーティングターゲットを用いたとき、表面プラズモンの共鳴条件は

$$\sin \theta + \frac{\lambda}{d} = \pm \sqrt{\frac{\epsilon}{1 + \epsilon}} \quad (1)$$

とあらわされる。ここで、 θ はレーザー入射角、 λ はレーザー波長、 d はグレーティング周期、 ϵ は金属誘電率の実部を示し、正負の符号はそれぞれ前方伝搬プラズモン波と後方伝搬プラズモンに対応する。また、ターゲットがプラズマの場合、共鳴条件は

$$\sin \theta + \frac{\lambda}{d} = \pm \sqrt{\frac{1 - n_e/n_c}{2 - n_e/n_c}} \quad (2)$$

と書き直すこともできる。ここで、 n_c は固体ターゲットの電子密度、 n_e はプラズマの臨界密度である($\lambda = 800$ nmで $n_c = 1.73 \times 10^{21}$ cm⁻³)。本研究では、「構造の効果」と「SPRの効果」を示すグレーティングターゲットと一切の増強効果をもたない薄膜ターゲットとの電子スペクトルの比較をおこなった。

グレーティングターゲットと薄膜ターゲットの高速電子スペクトル計測結果をFig. 2に示す。スペクトルを指数関数でフィッティングしたスロープ温度結果はグレーティングでは80 keV (± 0.3 keV)、薄膜ターゲットは13.6 keV (± 0.3 keV)である。ここで括弧内の値はフィッティング誤差を示す。グレーティングは薄膜ターゲットに対して約16倍の個数増倍を示した。また裏面にイメーシングプレート置いて電子の放出分布を計測すると、同様に5.8倍の信号強度の増加が得られた²¹⁾。Fig. 2のイ

Fig. 1 Experimental setup. Electron spectrometer (ESM) is installed along the target normal to measure the spectrum of the emitted fast electron beam.

Fig. 2 Electron spectra for grating and plane foil targets in the experiment. The inset shows the higher energy component of the spectrum of the grating target.

ンセットにグレーティングにおける電子スペクトルの高エネルギー部分を示し、そのスロープ温度は480 keV (± 30 keV)であった。

3. シミュレーションを用いた表面増強電場と高速電子スペクトルの評価

Finite Difference Time Domain (FDTD) シミュレーション²²⁾を用い、グレーティングが示す「構造の効果」と「SPRの効果」による増強度を評価した。中心波長800 nmのガウシアンパルスをグレーティングターゲットへ40°入射したとき、得られた反射率と前方伝搬プラズモンの電場増強度の本数密度に対する依存性をFig. 3に示す。Fig. 3より、500本/mmのときにSPRの共鳴条件を満たすため、反射率の急激な減少と前方プラズモン波の電場増強が発生した。また、2000本/mmでも反射率の減少がみられるが、これは後方伝搬プラズモンの共鳴条件を満たすためである。次に本数密度333, 500, 1000本/mmのグレーティングと平板ターゲットにおける電場強度分布のシミュレーション結果をFig. 4に示す。それぞれの本数密度における強度分布の最大値を比較した結果、平板

Fig. 3 FDTD simulation results: Dependence of the intensities of reflected and forward propagating waves on the groove density of grating targets.

Fig. 4 Intensity distributions of electric field on the surface of (a) plane target, (b) 1000 lines/mm, (c) 500 lines/mm and (d) 333 lines/mm in the FDTD simulation.

Fig. 5 Intensity distributions of electric field for (a) 500 lines/mm grating and (b) plane foil target in the PIC simulation. The scale bar shows the value normalized by 10^{20} W/cm².

ターゲットに対して、333, 1000本/mmの増強度は $\eta^2 = 270/190 = \text{約}1.42$ 倍であり、500本/mmの増強度は約2.84倍であった。ここで、上記の増強度はそれぞれ「構造の効果($\eta^2 = 1.42$)」と「構造とSPRの両方の効果($\eta^2 = 2.84$)」に対応し、かつ本数密度500本/mmは333, 1000本/mmの間であるため、純粋なSPRによる増倍率は2倍となる。

続いて、高強度レーザーとグレーティングの相互作用を模擬するため、2次元のParticle-In-Cell (PIC) シミュレーションをおこなった²³⁾。セルサイズを $\lambda/64 = 12.5$ nm、ターゲットをH⁺とし、配置する粒子個数を100 particles/cell、固体密度を $43n_c$ とし、厚みを1 μm とした。ここで、PICでは金属固有のパラメータから計算される誘電分極の効果を含まないため、SPRによる電場増強をシミュレーションできない可能性がある。実際、本論文で用いたXOOPIC^{21,23)}では表面を伝播するプラズモン波は空間分解能を十分小さく(数nm)とった場合でも観測できなかった。本論文ではPICがSPRを再現しないことを前提とし、FDTDシミュレーションから導出した2倍のSPRによる増強度を用い、グレーティングターゲットに対するレーザー強度を 2×10^{19} W/cm²とした。他のパラメータは実験条件と同じである。Fig. 5にグレーティングターゲットと平板ターゲットの相互作用時の電場強度分布のシミュレーション結果を示す。ターゲット表面の電場強度値を比較した結果、グレーティングターゲットは平板ターゲットに対して2.67倍の利得を

Fig. 6 Electron spectra for grating and plane foil targets along the target rear normal in the PIC simulation.

示した。この結果はFDTDシミュレーションで得た2.84倍とほぼ一致している。しかし、Fig. 5の結果では表面プラズマ波の波動的な電場分布は観測されておらず、また、2倍の入射レーザー強度を用いることがSPRによる局所電場の増大を直接模擬しているわけではないことに注意する。Fig. 6に電子スペクトルのPICシミュレーション結果を示す。グレーティングと平板ターゲットのスロープ温度はそれぞれ465 keV (± 8 keV) と229 keV (± 11 keV)である。ここで、Fig. 2の実験結果とFig. 6のシミュレーション結果を比較すると、それぞれのスペクトルの傾向は良い一致がみられる一方で、シミュレーション結果の方が両方のターゲットに関して共にスロープ温度が高いことがわかる。最も単純な比較として、両者の平板ターゲットのスロープ温度を比べた場合であっても、実験結果の13.6 keVに対してシミュレーション結果は229 keVであり、大きく異なっている。この差は、計算機の制限により実験とシミュレーションのターゲット厚みが80倍異なっている上、シミュレーションがターゲット裏面近傍の電子を計測した結果であるのに対し、実験は固体ターゲット裏面に生じる電磁場の影響を受けた後に計測器に辿り着いた電子のスペクトルを計測した結果であることが原因と考えられる²⁴⁾。しかしながら、PICシミュレーションにおけるグレーティングターゲットと平板ターゲットの電子個数比は10倍であり、実験結果の16倍とおおよその一致がみられ、かつスペクトルの傾向が一致することから、2つの結果には相関があると考えられる。また、グレーティングのスペクトルの高温成分に対するスロープ温度は、実験値の480 keVとシミュレーション値の465 keVに一致がみられた。Fig. 7にレーザー軸方向スペクトルのシミュレーション結果を示す。グレーティングターゲットと平板ターゲットは2温度成分を示し、これらの高温成分のスロープ温度はそれぞれ1.40 MeV (± 77 keV) と704 keV (± 21 keV)であった。ここで、加速電子の平均エネルギーとレーザー場が電子に及ぼすボンデロモティブ力が等しいとみなしたスケーリングを用いると²⁵⁾、レーザー強度 10^{19} W/cm²と 2×10^{19} W/cm²に対するスケーリング値は706 keVと1.42 MeVであり、シミュレーション結果との一致がみ

Fig. 7 Electron spectra for grating and plane targets along the laser axis in the PIC simulation.

られ、グレーティングターゲットを用いたとき、生成される高速電子は、ナノ構造表面の強い局所電場が電子に及ぼすボンデロモティブ力によって加速された可能性がある²⁵⁾。

4. 結 論

本研究では、表面プラズモンの共鳴条件を満たした状態において、高強度レーザーとグレーティングターゲットの相互作用で加速される高速電子の高効率生成に関する報告をおこなった。高速電子スペクトル計測の結果、グレーティングターゲットを用いた場合は薄膜ターゲットに対して約16倍の個数比が得られ、PICシミュレーションから得られた10倍の数値とほぼ一致した。したがって、FDTDシミュレーションで計算した増強度をPICシミュレーションの入射レーザー強度に取り入れることで、グレーティングと平板ターゲットの実験結果から得られた高速電子数の倍増を定性的に説明することができた。FDTDシミュレーション結果から、500 lines/mmでは反射率の急激な減少と表面電場の増大が同時に得られ、表面プラズモン共鳴の特徴的な性質が示された。また、レーザー軸方向におけるスペクトルの高温成分スロープ温度がボンデロモティブのスケーリング値と一致した。表面構造上の強い局所電場によるボンデロモティブ力が高速電子を加速した可能性を示した。

この研究は、初めて高強度レーザー領域において、「構造による効果」と「SPRによる効果」を分離した上で表面プラズモン共鳴の有効性を評価しており、今後、ナノ構造を用いた高効率・高品質なビーム生成の研究に応用が期待される。

謝 辞

本研究は、科学研究費補助金(基盤研究A(22246122)、基盤研究B(23360412))、X線自由電子レーザー重点戦略研究課題(12005014)、アジア研究教育拠点事業・高強度フォトンを用いる高エネルギー密度状態の科学(ASHULA)の支援を受けておこなわれた。

参考文献

- 1) M. Tabak, J. Hammer, M. E. Glinsky, W. L. Kruer, S. C. Wilks, J. Woodworth, E. M. Campbell, and M. D. Perry: *Phys. Plasmas* **1** (1994) 1626.
- 2) R. Kodama: *J. Plasma Fusion Res.* **81** (2005) 105.
- 3) J. Fuchs, P. Antici, E. D. Humieres, E. Lefebvre, M. Borghesi, E. Brambrink, C. A. Cecchetti, M. Kaluza, V. Malka, M. Manclossi, *et al.*: *Nature Phys.* **2** (2006) 48.
- 4) E. L. Clark, K. Krushelnick, J. R. Davies, M. Zepf, M. Tatarakis, F. N. Beg, A. Machacek, P. A. Norreys, M. I. K. Santala, I. Watts, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 670.
- 5) M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, M. D. Rosen, and R. W. Falcone: *Science* **251** (1991) 531.
- 6) G. Chatterjee, P. K. Singh, S. Ahmed, A. P. L. Robinson, A. D. Lad, S. Mondal, V. Narayanan, I. Srivastava, N. Koratkar, J. Pasley, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 235005.
- 7) A. L. Lei, K. A. Tanaka, R. Kodama, G. R. Kumar, K. Nagai, T. Norimatsu, T. Yabuuchi, and K. Mima: *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006) 255006.
- 8) H. A. Sumeruk, S. Kneip, D. R. Symes, I. V. Churina, A. V. Beloipetski, G. Dyer, J. Landry, G. Bansal, A. Bernstein, T. D. Donnelly, *et al.*: *Phys. Plasmas* **14** (2007) 062704.
- 9) S. Kahaly, S. K. Yadav, W. M. Wang, S. Sengupta, Z. M. Sheng, A. Das, P. K. Kaw, and G. R. Kumar: *Phys. Rev. Lett.* **101** (2008) 145001.
- 10) W. M. Wang, Z. M. Sheng, and J. Zhang: *Phys. Plasmas* **15** (2008) 030702.
- 11) W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen: *Nature* **424** (2003) 824.
- 12) A. Polyakov, S. Cabrini, S. Dhuey, B. Harteneck, P. J. Schuck, and H. A. Padmore: *Appl. Phys. Lett.* **98** (2011) 203104.
- 13) J. Dostalek and J. Homola: *Sensors and Actuators B* **129** (2008) 303.
- 14) J. M. Yuen, N. C. Shah, J. T. Walsh, M. R. Glucksberg, and R. P. V. Duyne: *Anal. Chem.* **82** (2010) 8382.
- 15) T. Ceccotti, V. Floquet, A. Sgattoni, A. Bigongiari, O. Klimo, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, F. Baffigi, L. Labate, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **111** (2013) 185001.
- 16) M. Raynaud, J. Kuperszlych, C. Riconda, J. C. Adam, and Heron: *Phys. Plasmas* **14** (2007) 092702.
- 17) A. Bigongiari, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, and A. Macchi: *Phys. Plasmas* **18** (2011) 102701.
- 18) A. Bigongiari, M. Raynaud, C. Riconda, and A. Heron: *Phys. Plasmas* **20** (2013) 052701.
- 19) K. A. Tanaka, T. Yabuuchi, T. Sato, R. Kodama, Y. Kitagawa, T. Takahashi, T. Ikeda, Y. Honda, and S. Okuda: *Rev. Sci. Instrum.* **76** (2005) 013507.
- 20) P. K. Singh, I. Chakraborty, G. Chatterjee, A. Adak, A. D. Lad, P. Brijesh, P. Ayyub, and G. R. Kumar: *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **16** (2013) 063401.
- 21) Y. Mishima, H. Habara, P. K. Singh, A. Adak, G. Chatterjee, A. D. Lad, S. Tata, P. Brijesh, M. Dalui, T. M. Trivikram, *et al.*: *The 12th Asia Pacific Physics Conference, Chiba, July (2013)* p. 339.
- 22) A. F. Oskooi, D. Roundry, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, and S. G. Johnson: *Comp. Phys. Commun.* **181** (2010) 687.
- 23) J. P. Verboncoeur, A. B. Langdon, and N. T. Gladd: *Comp. Phys. Commun.* **87** (1995) 199.
- 24) H. Habara, K. Ohta, K. A. Tanaka, G. R. Kumar, M. Krishnamurthy, S. Kahaly, S. Mondal, K. Bhuyan, R. Rajeev, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **104** (2010) 055001.
- 25) S. C. Wilks, W. L. Kruer, M. Tabak, and A. B. Langdon: *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992) 1382.