

機関番号：24403

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2011

課題番号：20360421

研究課題名（和文） 強力なピコ秒コヒーレント放射光電場による物質内電荷移動の研究

研究課題名（英文） Study on the Charge Transfer in Matters Induced by the Intense Electric Field of the Picosecond Coherent Radiation

研究代表者

奥田 修一 (OKUDA SHUICHI)

大阪府立大学・産学官連携機構・教授

研究者番号：00142175

研究成果の概要（和文）：加速器からの高エネルギー電子バンチから放射されるコヒーレント放射による、ピコ秒単一極放射の光源システムを構築した。放射電場によって、電子、イオン、極性分子の動きや配向が誘起される可能性を探るために行った実験で、水、金属酸化物微粒子、植物系高分子の試料で透過スペクトルのパルス強度依存性が初めて確認された。ピコ秒パルス電子とこの放射電場によるパルスラジオリシス測定系を構築し、時間分解測定により、水分子の過渡的挙動に関連する情報が得られた。

研究成果の概要（英文）：A picosecond half-cycle light source system was established by using the coherent radiation generated from high-energy electron bunch of an electron linear accelerator. The motion and the orientation of polar molecules induced by the electric field of the light was investigated. The effect of the light intensity on the transmission spectra for water, metal oxide nanoparticles and high molecular materials of plants was first observed. The pulse radiolysis system using the picoseconds pulsed electrons and the pulsed light was established and was applied to the study of the transient phenomena on the behavior of water molecules.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,300,000	2,490,000	10,790,000
2009年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2010年度	3,000,000	900,000	3,900,000
年度			
年度			
総計	14,300,000	4,290,000	18,590,000

研究分野：量子線材料科学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：量子ビーム、テラヘルツ/赤外材料・素子、光源技術、加速器、光物性

## 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ（THz）周波数域の光子は、数ミリ電子ボルト程度のエネルギーを持ち、電子や分子などの集団の運動の励起、イメージングや薬物の検知など、応用分野が広い。半導体の電流をパルスレーザーでスイッチする光源やパラメトリック光源など、小型の光源が一般に利用されている（応用物理学会誌

Vol. 75, No. 2, 2006）。

高エネルギー電子バンチからのコヒーレント放射は、1989年東北大での観測以来、サブミリからミリ波領域で連続スペクトルを持つ、極めて高強度の新しい光量子ビーム源として期待されてきた。同じく加速器ベースの自由電子レーザー（FEL）とは相補的である。なかでもコヒーレント放射のユニーク

な特徴は、“発生源の、ピコ、サブピコ秒電子バンチの形状を反映した、極めて強力な単一極パルス放射光電場 (図 1)” が得られることである。この図に示した単色光と異なり、単一極でブロードバンドになる。この光を用いると、物質内に導入される短パルスの強力な電場により、電子、イオン、極性分子などの活性化エネルギーを超えた移動や配向が誘起できる。従来の小型 THz 光源では、印加できる電場が 100 kV/cm 程度と低いために、関連研究としては、高励起状態の気体原子 (Rydberg atom) を電離する研究が行われているのみであった。これに対しコヒーレント放射では、10 MV/cm 以上の電場強度が予想され、適用できる対象が飛躍的に広がる事が期待されるが、このような新しい研究のための光源が実現したという報告はない。

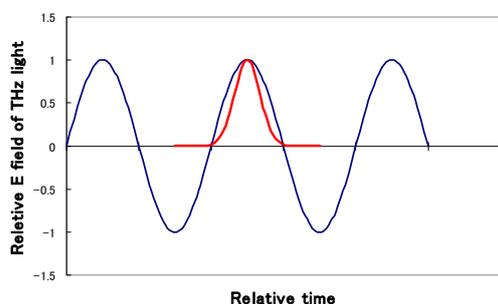


図 1 ピークで規格化したコヒーレント放射 (赤線) と単色光 (青線) の電場波形の例

われわれは、1990 年からコヒーレント放射の実験を行い、放射過程について明らかにすると共に (J. Ohkuma, S. Okuda et al., *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 1967)、世界にさきがけてコヒーレント遷移放射を利用した吸収分光測定を行ってきた (S. Okuda et al., *Nucl. Instrum. Meth. A*445 (2000) 267)。この研究では、強い吸収のある水の透過測定を行って、ミリ波域では世界最高となる波数分解能での測定に成功し、また植物などのイメージングも行った (S. Okuda et al., *Radiat. Phys. Chem.* 75 (2006) 93)。本研究の直前には、放射線架橋したポリエチレンの光学特性を調べる実験や、ポリビニルアルコール水溶液の放射線架橋にともなう水の挙動変化を調べる実験など、コヒーレント放射をプローブ光として放射線誘起反応を調べる新しい研究を行ってきた。これらの成果を、2007 年 9 月に日本で開催された 4th Int. Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy with Accelerator Based Sources, WIRMS 2007 で発表した。しかし各国とも装置開発の途上にあり、この会議でもコヒーレント放射の利用についての発表はほとんどなく、われわれの研究がさきがけとなるものである。従来の研究では、特にコ

ヒーレント放射の高い強度を活かして、水や水溶液における水分子の挙動についての情報が得られたことが重要である。

一方われわれは研究の初期より、強力な単一極放射光電場の優れた特徴に注目し、利用可能性の検討や学会発表を行ってきた。この新しい光源の実現には、シンクロトロン放射光や、遷移放射の利用などの特殊な光源配置が必要である。大阪府立大学では電子ライナックで準備研究を行ってきた。

放射の発生源となるピコ秒電子バンチとこの単一極放射光電場とを、同期をとって利用する試みはなされていなかった。これには高度な技術を必要とするが、大阪府立大学の電子ライナックでは、パルス電子ビーム励起で他の光源をプローブとするパルスラジオリス実験の実績があった。

## 2. 研究の目的

高エネルギー電子バンチからのコヒーレント放射は、サブミリからミリ波領域での、極めて高い強度の新しい光量子ビーム源として期待されている。本研究では、次に示す目的で、前述の研究背景に基づき、この光源を新たに確立すると共に、利用研究を行った。

- (1) 強力なピコ秒単一極放射光電場の発光源システムを構築し、物質中に誘起される電場の目標を 1 MV/cm とする。
- (2) ピコ秒電子バンチと同期のとれたピコ秒放射光電場および通常パルス光を印加できるパルスラジオリス測定系を構築する。
- (3) この光が誘起する、固体物質中での電子、イオンの電荷移動挙動についての知見を得る。さらに、水や水溶液中での水分子の挙動に関する知見を得るための時間分解吸収分光を行う。

## 3. 研究の方法

### (1) 概要

本研究では、加速器として京都大学原子炉実験所の 45 MeV L バンド電子ライナックと、大阪府立大学の 16 MeV S バンド電子ライナックを利用した。これらの加速器は構成が比較的単純で、ビーム制御が容易である。前者では、遷移放射による吸収分光系が設置されており、本研究で対象となる物質について広くサーベイし予備的測定を行った。後者では、ピコ秒コヒーレント放射光電場生成の条件を満足する、シンクロトロン放射光 (CSR) および遷移放射 (CTR) の光源を構築し、利用実験を行った。さらに、既に設置されているパルスラジオリス系と組み合わせ、ピコ秒パルス電子ビーム照射で誘起される水、水溶液中における放射線化学反応に、同期をとって放射光電場を印加し、反応場を変化させると共に、水の挙動についての情報を得る実験を行

った。

### (2) ピコ秒コヒーレント放射光源の構築

大阪府立大学の電子ライナックのビームを用いて、CSRおよびCTRの光源を構築し、ピコ秒単一極放射を生成した。偏向磁石をビーム輸送系の終端に設置し、CSRを取り出した。放射光源真空チェンバーでは、理想的な単一極放射の形成のために光源周辺の空間を広くするよう配慮した。同じ配置でCTR光源も準備した。この場合、アルミニウム箔からの前方放射と金コート反射鏡からの後方放射の重ねあわせを利用した。放射全体では円偏光であるが、放射方向依存特性から電場のそろった光成分を分離した。CSRは、光の質が良く集光しやすい、偏向ビームとの分離が容易であるなどの本研究に適した特性があるが、CTRでは比較的高い放射強度が得られ、安定であることから、後者を中心に利用した。

吸収分光のための放射光光学システムをビーム実験室内に配置した。分光は主に回折格子を用いて行った。光検出器に液体ヘリウム冷却シリコンボロメータを用いた。またパルスラジオリシス実験では、一部光路を変更してこのシステムを共用した。コヒーレント放射のスペクトル測定結果から、放射電場のパルス強度を見積もった。高強度の放射光電場によって、電子、イオン、極性分子の動きや配向が誘起される可能性がある試料に対してパルスラジオリシス吸収分光測定を行った。

### (3) 種々の試料の吸収分光測定

京都大学のCTR吸収分光計測系を利用して試料の基本特性を広くサーベイした。アルミニウム箔からの後方CTRを加速器室外に導き、Martin-Puplett型干渉計でスペクトルを測定した。測定波数域は主として $4\text{--}13\text{ cm}^{-1}$ であった。干渉計を出た直線偏光を集光し、試料を透過させた。光検出器は、液体ヘリウム冷却シリコンボロメータである。放射強度は安定しており、加速器室外で測定できる特徴がある。ただしこの施設では、加速器室内の限られた配置条件から、理想的なピコ秒放射の生成実験はできない。本研究では、この装置の特徴を活かして、広く測定対象となる固体、液体試料のサーベイを行った。大阪府立大学の電子ライナックによる光源では、回折格子を用いて吸収分光を行った。

測定対象としては、コヒーレント放射の電場によって、電子、イオン、極性分子の動きや配向が誘起される可能性がある、植物系高分子、イオン伝導材料、金属酸化物微粒子、水および水溶液を主として選び、透過スペクトルのパルス強度、パルス幅依存性を調べた。

## 4. 研究成果

本研究の結果次のような新たな成果が得

られ、また今後の展開が期待される。

### (1) パルス放射の発生システムとパルスラジオリシス測定システムの構築

このシステムの概要を図2に示す。大阪府立大学の電子ライナックからの、エネルギー10 MeVのビームを用いた。加速管の位相条件を変えてバンチ圧縮し、光源にまっすぐに輸送した。光源には主としてCTRを用いた。アルミニウム箔を放射源とし、電子ビームを集束した。後方の遷移放射を石英窓を通して取り出し、以後の光輸送系は空气中に設置した。測定結果をもとにビーム条件と光源配置を再検討し、最適化した。

コヒーレント放射電場の強度とパルス形状は、モデル電子バンチ形状を仮定して求められた。電子ビームのエネルギー10 MeV、バンチ当りの電荷量0.3 nC、バンチ長1 psとし、放射を物質内で直径5 mmに集束して、物質中において1 MV/cmの電場の生成が見積もられた。

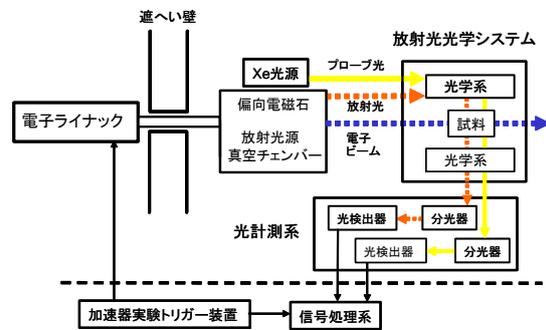


図2 ピコ秒コヒーレント放射光実験配置

電子ビーム、プローブとなるXeランプの光、コヒーレント放射を、同期をとって試料に入射するパルスラジオリシス測定で、試料として、水、水溶液を主に用いた。パルスコヒーレント光照射によって物質に誘起される過渡現象について明らかにするために、ポンプ・プローブ実験システムを構築した。電子ビームのパルス幅は $50\text{ ns}\text{--}4\text{ }\mu\text{s}$ である。放射光光学システムにおいて、パルス電子ビームと同期のとれたコヒーレント放射を時間的に遅延させ、パルスラジオリシス測定における水、水溶液の反応場に入射した。透過光強度を測定し、2種のプローブ光の吸収の変化を調べた。この測定で、複数の測定機器を加速器実験トリガー装置からの信号で動作させた。パルス放射を発生源の電子バンチと重ね合わせることは現状では困難であるので、マルチバンチ電子ビームの特徴を利用して、約10 cm離れた後続の電子バンチに対して遅延させた。ライナック電子ビームの時間構造を利用して、ピコ秒からミリ秒にわたる時間情報の取得が可能となった。

### (2) コヒーレント放射光源による吸収分光

京都大学および大阪府立大学の電子ライ

ナックによるコヒーレント遷移放射吸収分光計測系を利用して、ミリ波域で吸収分光測定を行った。放射電場によって、電子、イオン、極性分子の動きや配向が誘起される可能性を探るために、透過光スペクトルのパルス強度、パルス幅依存性を調べた結果、特に、水、金属酸化物微粒子、植物系高分子の試料で透過スペクトルのパルス強度依存性が初めて確認された。一例として、厚さ 3 mm 無水石英板で挟んだ厚さ 5 mm、公称粒径 26 nm のシリカ微粒子の結果を図 3 に示す。マイクロ波やミリ・サブミリ波は、焼結の際のエネルギー源として利用されるが、エネルギー吸収の基礎過程については十分理解されていない。この透過率曲線に見られる周期的な振動は、入射光と、無水石英板表面での反射光の干渉に起因する。試料による 20-30% の光吸収とその波数依存性が明らかになった。この図に示すように光強度を 1 桁変えると、数% の透過率の変化が観測された。この現象の再現性は、繰り返し測定により確認した。これは、光により物質中で何らかの変化が誘起されたこと、つまり非線形効果を示唆する。特徴的な単一極放射による効果の可能性もある。このような現象は、他の数種類の試料についても認められた。

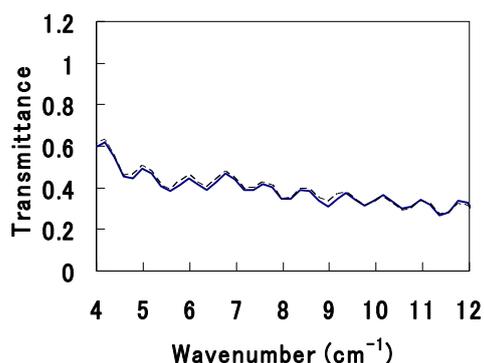


図 3 無水石英板ではさんだシリカ微粒子の光透過率測定結果（破線は最初の光強度、実線は 10 分の 1 の強度）

パルスラジオリシスシステムを利用した測定は初めて行われたが、測定結果の十分な解析を行うに至らなかった。しかし、放射線化学反応の、反応場としての水分子の移動、配向による反応の変化その際の水の挙動に関連した情報が得られたものと評価される。

### (3) 最近の研究の動向と今後の展開

一般の小型のテラヘルツ光源でも、単極に近い 1 サイクル光が得られる。1993 年には高励起状態の気体原子 (Rydberg atom) を電離する研究が行われて以来、特に研究の進展はなかったが、2010 年 9 月にローマで開催された IRMMW-THz 2010 国際会議で、われわれのほか日本の 3 件の関連報告があり、特に生体内水分子の挙動研究など新たな利用研究の

成果が報告された。加速器以外の通常光源での最大誘起パルス電場は 0.9 MV/cm である。これに対して、コヒーレント放射では、誘起電場の強度は、1 桁以上、エネルギーは 2 桁以上高くすることが可能で、極めて強力な光源による新しい研究分野の展開が近い将来期待される。本研究の成果は、このような新たな研究の先駆けとして位置づけることができる。

コヒーレント放射については、最初の観測からその利用研究について日本で先導的な研究が行われてきた。本研究を契機に、単一極放射の新たな開発と利用研究をめざして、研究協力体制の構築が重要である。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① S. Okuda, T. Kojima, R. Taniguchi, New Pump-Probe System Using the Coherent Radiation from a Linac Electron Beam at OPU, Proc. XXV Linear Accelerator Conf. (2010, Tsukuba, Japan) MOP015, 査読無
- ② S. Okuda, T. Takahashi, Absorption Spectroscopy for SiO<sub>2</sub> Particles by Using the Coherent Radiation Light Source, Proc. 35th Int. Conf. on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (2010, Rome, Italy), 査読無
- ③ S. Okuda, T. Kojima, R. Taniguchi, Characteristics of the Electron Linac Based Coherent Radiation Light Source at OPU, Proc. 1st Int. Particle Accelerator Conf. (2010, Kyoto, Japan) MOPEA033, 査読無
- ④ S. Okuda, T. Takahashi, Absorption Spectroscopy Using a Coherent Transition Radiation mm Wave Light Source, Infrared Phys. Technol. 51 (2008) 410-412, 査読有

[学会発表] (計 16 件)

- ① 奥田修一, 小嶋崇夫, 谷口良一, 高橋俊晴, 高強度コヒーレント放射が誘起する物質の変化, 日本原子力学会春の年会, 2011 年 3 月 30 日, 福井
- ② 小松大悟, 奥田修一, 小嶋崇夫, 谷口良一, 高橋俊晴, 高強度コヒーレント放射による酸化物微粒子の吸収分光, 日本原子力学会秋の大会, 2010 年 9 月 16 日, 札幌
- ③ 奥田修一, 坂本泰一, 小嶋崇夫, 谷口良一, 高橋俊晴, コヒーレント放射ポンプ・プローブ実験系の光源特性, 日本原子力学会秋の大会, 2009 年 9 月 18 日, 仙台

- ④奥田修一、坂本泰一、小嶋崇夫、谷口良一、高橋俊晴、コヒーレント放射ポンプ・プローブ実験系の特性、日本原子力学会春の年会、2009年3月24日、東京
- ⑤奥田修一、坂本泰一、小嶋崇夫、谷口良一、高橋俊晴、コヒーレント放射ポンプ・プローブ実験系の構築、日本原子力学会秋の大会、2008年9月6日、高知

[図書] (計1件)

- ①奥田修一、大阪府立大学における分野横断型研究の展開・21世紀科学研究所の挑戦、第4章：量子ビームの開発研究と誘起される反応の研究、pp.44-58、大阪府立大学21世紀科学研究機構編、大阪公立大学共同出版会、2010年

[その他]

研究成果に関するホームページ

[http://www.riast.osakafu-u.ac.jp/~housya3/seika\\_terahertz.html](http://www.riast.osakafu-u.ac.jp/~housya3/seika_terahertz.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

奥田 修一 (OKUDA SHUICHI)

大阪府立大学・産学官連携機構・教授

研究者番号：00142175

### (2) 研究分担者

谷口 良一 (TANIGUCHI RYOICHI)

大阪府立大学・産学官連携機構・教授

研究者番号：60155215

### (3) 研究分担者

小嶋 崇夫 (KOJIMA TAKAO)

大阪府立大学・産学官連携機構・助教

研究者番号：70360047