

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 4 月 23 日現在

機関番号：14401
研究種目：若手研究(B)
研究期間：2013～2014
課題番号：25870404
研究課題名(和文) テラヘルツ領域のパルスラジオリシスに関する研究

研究課題名(英文) Pulse radiolysis in terahertz range

研究代表者

菅 晃一 (Kan, Koichi)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：60553302

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、1台の加速器から時間・空間的に異なる2つの電子ビーム(ダブルデッカー電子ビーム、エネルギー：32 MeV)を発生した。電子ビームを、試料励起用とテラヘルツ分析光発生に利用し、半導体(高抵抗シリコン)において電子ビーム誘起時に生成する準自由電子による過渡的なテラヘルツ波透過率減少を観測できることが分かった。また、微細構造電極を有する大口径光伝導アンテナを応用してフェムト秒電子ビームが放射するテラヘルツ分析光(コヒーレント遷移放射)に対して従来よりも高度な分光手法(時間領域分光)を適用できることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In this study, two electron beams with energy of 32 MeV, which are called as "double-decker electron beams", were generated. Pulse radiolysis using terahertz (THz) probe pulses was developed based on the electron beams used as irradiation and probe sources. Transient decrease in transmittance of semiconductor (high-resistivity silicon) was observed in THz range when the electron beam induced quasi-free electrons in the semiconductor. Techniques of advanced spectroscopy for THz probe pulses emitted from electron beams were developed using a large-apertured photoconductive antenna with microstructured electrodes. Feasibilities of time-domain measurement of coherent transition radiation, which is emitted from a femtosecond electron beam, were indicated.

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：超短パルス電子ビーム パルスラジオリシス テラヘルツ波 光伝導アンテナ

1. 研究開始当初の背景

量子ビーム誘起超高速反応の解明は、重粒子線治療や原子炉水化学の分野だけでなく、将来的には EUV 光源誘起のイオン化を含めた反応解析が重要となるナノファブリケーションの分野からも、強い要請がある。これまでに、申請者らの研究グループでは、量子ビーム誘起超高速反応の測定手法の一つである、放射線誘起反応を解析可能な過渡吸収時間分解分光（パルスラジオリシス）の開発を行ってきた。ポンプ・電子ビームパルスおよびレーザーからのプローブ・光パルスを用いて、電子ビーム照射による溶媒電子の生成過程が測定された。また、国内外のパルスラジオリシス研究においても、レーザー由来のプローブ光のため、測定波長は紫外～近赤外までの測定に限定されてきた。しかし、測定波長が、従来よりも長波長であるテラヘルツ領域で行われた場合、電子ビーム誘起のイオン化による過渡的な電子の擬自由状態・周りの分子との配向（溶媒和）構造についての新たな知見が得られると共に、量子ビーム誘起反応全貌の解明に対して前進が期待される。

また、これまでに、申請者らの研究グループでは、プローブ・テラヘルツ波として応用可能な、電子ビームを用いた<0.7 THz のテラヘルツ波発生・計測を行ってきた。一方では、1 台の加速器から 2 つの電子ビームを発生する”ダブルデッカー加速器”を応用し、片方のビームをポンプ・電子ビームとして、片方のビームを空気中チェレンコフ放射による可視プローブ光に変換し、可視領域におけるダブルデッカーパルスラジオリシスを構築した。そのため、本研究では、上記の電子ビームによるテラヘルツ波発生・計測技術およびダブルデッカーパルスラジオリシスを応用し、テラヘルツ領域の測定波長へ拡大したパルスラジオリシスの構築が可能となった。

2. 研究の目的

本研究は、ピコ秒時間分解能を有する、試料励起用電子ビームおよび分析光テラヘルツ波を用いたテラヘルツ領域のパルスラジオリシスを構築および電子ビームが放射するテラヘルツ電場の新規な分光手法開発を目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、テラヘルツ領域のパルスラジオリシスの構築および電子ビームが放射するテラヘルツ電場の新規な分光手法の開発を行うために、大阪大学産業科学研究所に既設のフォトカソード RF 電子銃加速器[1]を用いて、研究を行った。それぞれの研究における研究方法・成果の詳細を「4. 研究成果」に示す。

4. 研究成果

テラヘルツ領域のパルスラジオリシスの構築

テラヘルツ分析光パルスを用いたパルスラジオリシスを行うために、まず、ダブルデッカー電子ビーム[2]の発生を行った。図 1 にダブルデッカー電子ビームの発生原理およびプローブ・テラヘルツ波を用いたパルスラジオリシス測定系を示す。本研究では、図 1(a) に示すように、フォトカソード RF 電子銃ライナックを用いて、電子ビーム発生を行った。従って、レーザーからの光パルスにより生成する光電子が電子ビームとなる。そこで、カソード駆動用の Nd:YLF ピコ秒レーザーからのパルス光をビームスプリッタ (BS1) により分岐した。適宜光学遅延 (OD1) を調節した 2 つの紫外光パルス (262 nm) をフォトカソードに入射した。レーザーからの光出力は、180 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 、パルス幅: 5 ps、繰り返し: 10 Hz であった。また、加速器は、フォトカソード RF 電子銃、加速管、磁気パルス圧縮器により構成される[1]。そのため、加速およびパルス圧縮された 2 つのフェムト秒電子ビーム (エネルギー: 32 MeV) を発生した。ダブルデッカー (2 つの) 電子ビームは時間的に分離され、また、ビーム出口では空間的に異なる位置に出射した。前と後の電子ビームの電荷量は、それぞれ、460、320 pC/pulse であった。適宜シャッター (S) を用いて、個々の電子ビームを発生した。そこで、図 1(b) に示すように、ダブルデッカー電子ビームをテラヘルツ領域のパルスラジオリシス測定系に利用した。電子ビームのパルス幅は、干渉計を用いたインターフェログラムの測定[3]により、<200 fs と得られた。発生した 2 つの電子ビームをパルスラジオリシス測定で使用する際は、時間的に早い電子ビームをテラヘルツ分析光パルスに変換し、遅い電子ビームを試料励起用ビームとして利用した。つまり、電子ビームの L および B は、それぞれ、分析光テラヘルツ波発生用電子ビーム、試料励起用電子ビームを表す。過渡吸収時間プロファイルを得るために、テラヘルツ分析光は時間遅延 (OD2) を調節し、試料励起用電子ビーム (B) と同時に試料 (高抵抗率シリコン、HRSi、380 μm 厚) へ入射した。さらに、透過したテラヘルツ分析光パルスを、マイケルソン干渉計[3]により分光を行った。干渉計内では、入射したテラヘルツ分析光パルスは、ビームスプリッタ (BS3) により分岐され、片方は固定鏡 (M4)、もう片方は分光用移動鏡 (OD3) により反射され、液体ヘリウム冷却シリコンボロメータによりテラヘルツ波の強度を測定した。分光用移動鏡の時間遅延を掃引し、自己相関の波形であるインターフェログラムを計測した。また、インターフェログラムのフーリエ変換により、電子ビーム照射後のある時刻における試料のテラヘルツ透過スペクトルを得た。

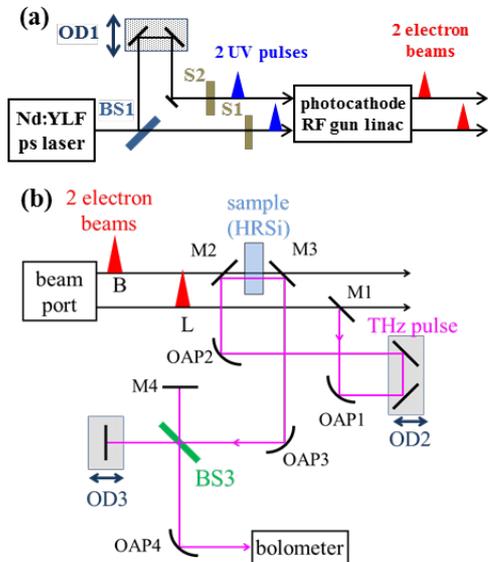


図 1. (a)ダブルデッカー電子ビームの発生原理および(b) 分析光テラヘルツ波を用いたパルスラジオリシス測定系。

図 2 に、試料が高抵抗率シリコンの場合の、テラヘルツ分析光パルスラジオリシスにより得られた結果を示す。図 2(a)に、ボロメータ出力の分析光遅延時間 (OD2) 依存性を示す。ただし、分光用移動鏡 (OD3) は、ビームスプリッタ (BS3) における多重反射の影響を考慮し、センターバーストの最大強度が得られる位置から 4 ps 離れた位置に固定した。データの、 L と B は、それぞれ、分析光発生用の電子ビームと試料励起用電子ビームのいずれかを発生した時のボロメータ検出器出力を示す。 LB は、2 つの電子ビームを同時に発生した時の検出器出力である。つまり、2 つの電子ビームを発生し、分析光パルスが励起用電子ビームよりも遅く試料に入射したときに、過渡的なテラヘルツ透過率の減少が LB で観測される ($OD2 = \sim 20$ ps)。さらに分析光遅延時間 (OD2) を電子ビームの入射前後における試料のテラヘルツ透過スペクトルを取得するために固定した。分光用移動鏡 (OD3) の時間遅延を掃引し、前述の L 、 B 、 LB に対するインターフェログラムのフーリエ変換により、電子ビーム照射前後の試料のテラヘルツ透過スペクトルを得た。図 2(b) と図 2(c) に、電子ビームの入射前および後における励起用電子ビームの有無による過渡的なテラヘルツ透過スペクトル (それぞれ、 I 、 I_0) を示す。解析では、インターフェログラムおよびフーリエ変換の線形性から解析を行った[4]。図 2(b) ($OD2 = 0$ ps) では、励起用電子ビームの有無にかかわらず、透過スペクトルの差は大きくない。しかし、図 2(c) ($OD2 = 50$ ps) では、プローブ・テラヘルツ波が電子ビームよりも後に試料を透過する条件であり、かつ、励起用電子ビームが有る時 (I) にテラヘルツ透過スペクト

ル強度の減少が明らかとなった。また、本研究により、2 つの電子ビームを用いた時間分解 (分解能: 数 ps)・周波数分解 (範囲: 0.5~2 THz) のテラヘルツ分析光を用いたパルスラジオリシスの有効性が示された[4]。今後、テラヘルツ分析光を用いたパルスラジオリシスの測定系の高度化・最適化により、電子ビーム誘起による半導体中および凝縮相における準自由電子の観測とダイナミクスの研究への展開が期待される。

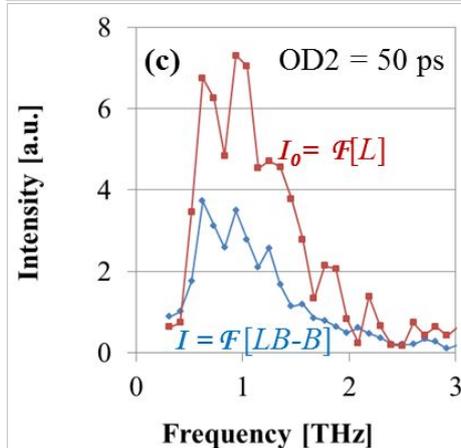
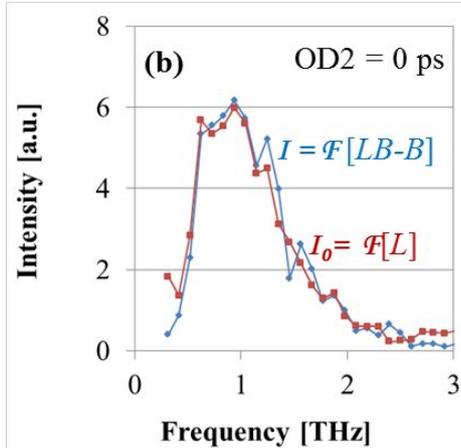
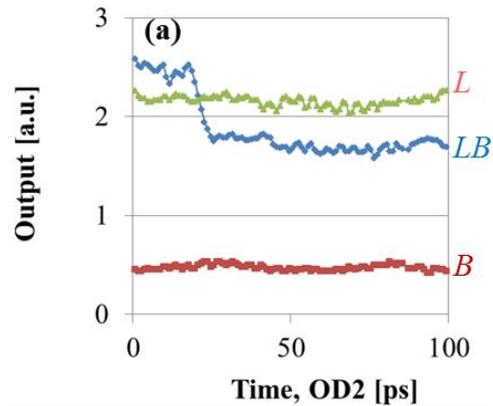


図 2. (a)ボロメータ出力の分析光遅延時間 (OD2) 依存性。電子ビームの入射(b)前および(c)後におけるポンプ・電子ビームの有無による過渡的なテラヘルツ透過スペクトル。

電子ビームが放射するテラヘルツ電場の新規な分光手法の開発

前述のように、テラヘルツ領域のパルスラジオリシスでは、干渉計を用いた周波数領域の測定を行ってきた。しかし、テラヘルツ分光で多く利用されている時間領域分光法[5]を電子ビーム測定系で利用することができた場合、過渡的な複素屈折率変化まで議論することが可能となる。そのため、本研究では、電子ビームが放射するテラヘルツ電場の新規な分光手法の開発について検討を行った。また、申請者らのグループでは、微細構造電極によりラジアル偏光特性を有する大口径光伝導アンテナ (photoconductive antenna, PCA)を用いたテラヘルツ発生[6]を行ってきた。そのため、本アンテナを利用し、電子ビームが放射するコヒーレント遷移放射 (coherent transition radiation, CTR) によるテラヘルツ電場の検出の可能性を模索した。

図3に、CTRの時間領域測定系および測定結果を示す。パルスラジオリシスの系と同様に、パルス圧縮されたフェムト秒電子ビーム(1つのビーム、エネルギー: 32 MeV)を利用した。図3(a)に示すように、空気中でCTR[3]を発生し、電子ビームが平面鏡(Mirror)を通過する際に放射されるCTRをPCAに導いた。コリメートされたラジアル偏光テラヘルツ波であるCTRをPCAの鏡面研磨側から入射した。また、適宜光学遅延したフェムト秒レーザーをPCAの電極側に照射した。電極から出力される光誘起電流を、アンプ(50 Ω 終端、ゲイン 500)とオシロスコープにより計測した。図3(b)に、シングルスキャンによる光誘起電流のフェムト秒レーザー遅延時間依存性を示す。電子ビームの電荷量とフェムト秒レーザーのエネルギーは、それぞれ、170 pC/pulse と 21 μJ/pulse であった。3回のシングルスキャンを重ねて示している。現段階では不安定性があるが、PCAにおけるテラヘルツ電場と光キャリア生成のためのレーザー入射タイミングが一致した時に、再現よく光誘起電流が増加する様子が観測された。その結果、電子ビームのパルス形状に相当するCTRの電場波形を時間領域で測定可能であることが明らかとなった[7]。今後、本手法のパルスラジオリシスにおける分光手法への適用、より短パルスのレーザーを用いた広帯域のテラヘルツ検出が期待される。

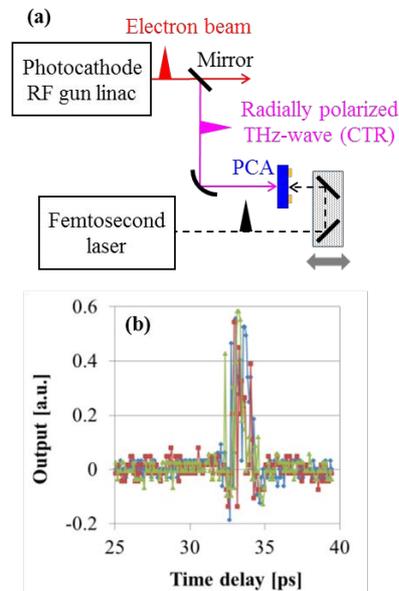


図3. (a) CTRの時間領域測定系および (b)測定結果。

<引用文献>

- [1] J. Yang et al., Nucl. Instrum. Methods A 556, 52 (2006); K. Kan et al., Nucl. Instrum. Methods A 597, 126 (2008).
- [2] K. Kan et al., Rev. Sci. Instrum. 83, 073302 (2012).
- [3] K. Kan et al., Appl. Phys. Lett. 99, 231503 (2011); I. Nozawa, K. Kan et al., Phys. Rev. ST Accel. Beams 17, 072803 (2014); 菅晃一ら、電気学会論文誌 C 134, 502-509 (2014).
- [4] K. Kan et al., MOPRI036, the 5th International Particle Accelerator Conference (IPAC'14) (2014).
- [5] M. Tani et al., Jpn. J. Appl. Phys. 36, L1175 (1997); S. Kono et al., Appl. Phys. Lett. 79, 898 (2001).
- [6] K. Kan et al., Appl. Phys. Lett. 102, 221118 (2013).
- [7] 菅晃一ら、22pDE-3、日本物理学会第70回年次大会 (2015).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3件)

Radially polarized terahertz waves from a photoconductive antenna with microstructures, K. Kan, J. Yang, A. Ogata, S. Sakakihara, T. Kondoh, K. Norizawa, I. Nozawa, T. Toigawa, Y. Yoshida, H. Kitahara, K. Takano, M. Hangyo, R. Kuroda, H. Toyokawa: Appl. Phys. Lett., 102, 221118 (2013).

Measurement of < 20 fs bunch length using coherent transition radiation, I. Nozawa, K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, K. Norizawa, H. Kobayashi, H. Shibata, S. Gonda, and Y.

Yoshida, Phys. Rev. ST Accel. Beams 17, 072803 (9 pages) (2014).
フォトカソード高周波電子銃ライナックからの超短パルス電子ビームを用いたテラヘルツ波発生、菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、柴田裕実、吉田陽一、電気学会論文誌 C 134, 502-509 (2014).

[学会発表](計 12 件)

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、“超短パルス電子ビームの発生・計測およびその利用”、SAOT05、第 10 回日本加速器学会年会、8 月 2 日-6 日、名古屋大学(2013).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、萩行正憲、黒田隆之助、豊川弘之、“誘電体管多モードテラヘルツ波による電子ビーム加速・減速の研究”、SUP004、第 10 回日本加速器学会年会、8 月 2 日-6 日、名古屋大学(2013).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、“テラヘルツ領域パルスラジオリシス開発のための研究”、F19、日本原子力学会「2013 年秋の大会」9 月 3 日-5 日(2013).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、“ダブルデッカーパルスラジオリシスの開発と応用”、P-23、第 56 回放射線化学討論会、9 月 27 日-29 日、広島大学(2013).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、“テラヘルツ領域のパルスラジオリシスによる半導体中準自由電子の観測”、D32、日本原子力学会「2014 年春の年会」3 月 26 日-28 日、東京都市大学(2014).

菅晃二、“アト秒電子線パルスの発生と応用展開”、30aSA5、日本物理学会第 69 回年次大会、3 月 27 日-30 日、東海大学(2014).

K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, I. Nozawa, T. Toigawa, K. Norizawa, H. Kobayashi, Y. Yoshida, “Pulse radiolysis using terahertz pulse”, Thu-E3-2, Advanced Lasers and Their Applications (ALTA) 2014, May 7-10, Jeju, Korea (2014).

K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, I. Nozawa, T. Toigawa, K. Norizawa, Y. Yoshida, “Pulse radiolysis using terahertz probe pulses”, MOPRI036, the 5th International Particle Accelerator Conference (IPAC'14), Jun. 15-20, Dresden,

Germany (2014).

K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, I. Nozawa, T. Toigawa, K. Norizawa, Y. Yoshida, M. Hangyo, R. Kuroda, H. Toyokawa, “Simulation study on electron beam acceleration using coherent Cherenkov radiation”, TUPME036, the 5th International Particle Accelerator Conference (IPAC'14), Jun. 15-20, Dresden, Germany (2014).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、“光電導アンテナを用いた電子ビーム電場時間波形の観測”、SAP076、第 11 回日本加速器学会年会、8 月 8-12 日、青森(2014).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、法澤公寛、小林仁、吉田陽一、“テラヘルツ分析光を用いたパルスラジオリシスの研究”、SUP017、第 11 回日本加速器学会年会、8 月 8-12 日、青森(2014).

菅晃二、楊金峰、小方厚、近藤孝文、神戸正雄、野澤一太、樋川智洋、吉田陽一、“光伝導アンテナを用いた電子ビーム電場の時間領域計測”、22pDE-3、日本物理学会第 70 回年次大会、3 月 21 日-24 日、早稲田大学(2015).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菅 晃一 (KAN, Koichi)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：60553302