

高強度コヒーレント放射による吸収分光

ABSORPTION SPECTROSCOPY BY USING THE HIGH-INTENSITY COHERENT RADIATION

齊藤秀輝^{#A)}, 奥田修一^{A)}, 高橋俊晴^{B)}
Hideki Saito^{#A)}, Shuichi Okuda^{A)}, Toshiharu Takahashi^{B)}
^{A)} Osaka Prefecture Univ.
^{B)} Kyoto Univ.

Abstract

The pulse intensity of the coherent radiation from high-energy electron bunch is very high. The electric field of the half cycle light of the characteristic broadband radiation can give an intense pulsed electric field into a matter, inducing the transfer of the electrons or the rotation of the polar molecules. In this research, using the coherent transition radiation light source by the electron beams at an energy energy of 46 MeV of an L band electronic linear accelerator (linac) at Kyoto University, the absorption spectroscopy was performed in a millimeter wavelength region for several kinds of samples. The transmission spectrum of light was measured, and the influence of light intensity was investigated. The wavenumber dependence of the transmittance of light of the sample of silica nanoparticles 5 mm thick sandwiched with two non-aqueous quartz plates 3 mm thick. was investigated. When the light intensity was changed, the change of the transmittance at several percent was observed. This suggests that a certain change was induced in the sample by the incident radiation. Such phenomenon was observed for several other samples. In order to investigate the effect of the intensity of light, the transient phenomenon needs to be investigated. The system to analyze this phenomenon was developed using the Osaka Prefecture 16 MeV S band electron linac.

1. はじめに

サブミリ波からミリ波 (THz の周波数領域) における光は、物質にミリ電子ボルト程度のわずかなエネルギー遷移を誘起する。室温でも起こる電子や原子などの集団的振る舞いを観察する上で重要である。また、分子の回転運動、振動の低周波数成分、水素結合のような分子間振動、分子間のねじれや回転運動などから分子構造や運動状態についての情報を得ることができる。小型の THz 光源として半導体や超伝導体の電流を短パルスレーザーでスイッチする光源が開発され、広く分光測定が行われている。

電子線加速器の高エネルギー電子バンチからのコヒーレントなシンクロトロン放射光や遷移放射は、サブミリ波からミリ波の領域で連続スペクトルを持つ。東北大学[1]やわれわれのグループなどによって観測されて以来、極めて高強度の光源としての開発や利用研究が行われてきた[2-6]。京都大学原子炉実験所 (KURRI) では、L バンド電子ライナックを用いて、コヒーレント遷移放射による吸収分光系が確立された[7]。比較的簡単な配置で種々の物質に対して吸収分光を行うことができる特徴がある。一般の小型のテラヘルツ光源と比較して、極めて強度が高い。

コヒーレント放射による単一極の半サイクル光は、物質中に最大 50 MV/cm のパルス電場を与えて、コヒーレントでブロードバンドという光の特徴により、
[#] mx106004@riast.osakafu-u.ac.jp

電子や極性分子の挙動が制御できると考えられる。この過程はレーザーの多光子吸収とは異なる。生体内の水分子の挙動を極短時間でパルスの制御したり、生物の巨大分子の特定部分に電子移動を誘起するなど、光の新たな作用による研究の進展が期待される。

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た。その後研究の広がりにはなかったが、2010 年 9 月ローマでの IRMMW-THz 2010 国際会議で、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。最大誘起パルス電場は 0.9 MV/cm であった。これに対して、コヒーレント放射の半サイクル光による誘起電場の強度は、1 桁以上、エネルギーは 2 桁以上高く、極めて強力な光源として期待される。水は光の強い吸収体であり、また厚みのある対象には高い強度の光が必要になる。

本研究では、先駆けとなる研究として KURRI のコヒーレント遷移放射光源でナノサイズの SiO₂ 微粒子を試料として吸収分光実験を行った。特に光強度を変化させることでどのような変化が観測されるかを示すことを目的とした。

2. コヒーレント THz 放射の特性

コヒーレント放射の放射過程の概念図をFigure 1に示す。シンクロトロン放射や遷移放射の過程において、高エネルギー電子バンチから連続スペクトルを持つ放射が発生する。このうち電子バンチと同程度かより長い波長に注目すると、各電子からの放射の位相がそろって放射電場が重なり、バンチ内電子の全電荷量の2乗に比例した強度の放射が得られる。インコヒーレントの場合に比べて、「バンチ内の電子の数」倍だけ（約10桁）強度が増大する。放射のスペクトルは電子バンチの形状に依存し、サブミリからミリ波領域に広がる。この光源には、高いパルスピーク強度、高い平均強度、コヒーレンス、ブロードバンド（周波数が選択できる）などの特徴がある。

1 個の電子バンチから得られる放射は、シンクロトロン放射の場合、基本的にバンチのパルス形状を反映した放射電場となる。このような単一のパルス電場からなる半サイクル光は、フーリエ成分からなる連続のスペクトルを持ち、広帯域である。吸収分光のほか、物質を半サイクル光電場によってコヒーレントに、集団的に励起することができる。

Electron bunch

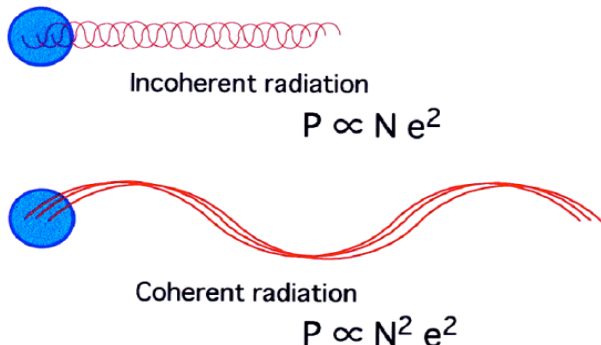


Figure 1: The radiation process of the coherent radiation.

3. 実験方法

KURRI 電子ライナックを実験に用いた。ビームのエネルギーは 46 MeV、マクロパルス幅は 10 ns から 4 μs、パルス繰り返しは可変で、通常は 13 Hz、マクロパルス電流 100 mA であった。真空中に置かれたアルミニウム箔から後方に放射されたコヒーレント遷移放射を真空容器内の金コート鏡で輸送した。

吸収分光測定系の概念図を Figure 2 に示す。光スペクトルの測定には、KURRI の高輝度ミリ波 THz 放射分光装置を利用した。コヒーレント放射は、真空容器の光学窓を通して加速器室外の実験室へ輸送した。マーチンパレット型干渉計から出た光は直線偏光で、直径 8 mmφの光コリメータの位置に集束した。試料は、このコリメータのすぐ後方に置い

た可動ステージ上に設置した。検出器は、液体ヘリウム冷却のシリコンボロメータである。

マイクロパルス光は、電子ビームのマクロパルスの間に一定の時間間隔で繰り返され、パルス列を形成する。ライナックからの実験用トリガー信号で動作するロックインアンプにより、光の平均強度を得た。この系で真空窓の後の光路は空気中にある。光透過率は、試料がある場合とない場合の各 3~4 回の放射のスペクトルの測定結果を平均して求めた。1 つのスペクトルの測定には約 10 分要した。

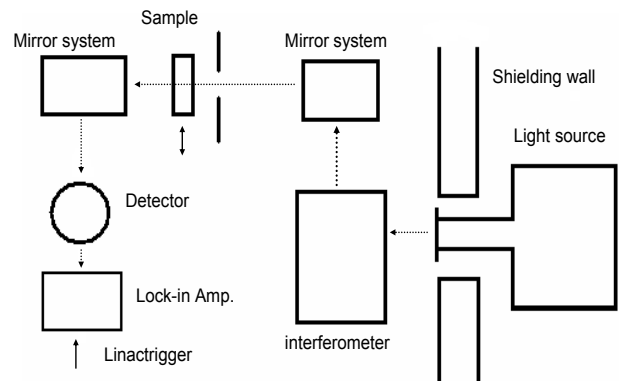


Figure 2: Schematic diagram of the absorption spectroscopy system.

Figure 2 に示した検出器で光強度をモニタしながら、高い放射強度が得られるようにライナックの動作条件を最適化した。ライナックで加速した後、まっすぐな方向にビームを輸送した。最適な運転条件を得るために、加速器のマイクロ波要素とビーム輸送のための磁場装置の条件を最適化した。この過程で、放射強度は、高強度のビームを得るための通常の条件と比べて 2 から 3 桁増加した。この運転条件に関する定量的な評価は行っていないが、加速管での比較的強いバンチ圧縮を伴うと考えられる。

4. 吸収分光実験の結果

試料がない場合の典型的な光源のスペクトルの測定結果を 3 つ重ねたものを Figure 3 に示す。波数分解能は 0.1 cm⁻¹ であった。4~13 cm⁻¹ の範囲において、光強度の変動による誤差は±2~3%に収まり、非常に安定なスペクトルが得られた。

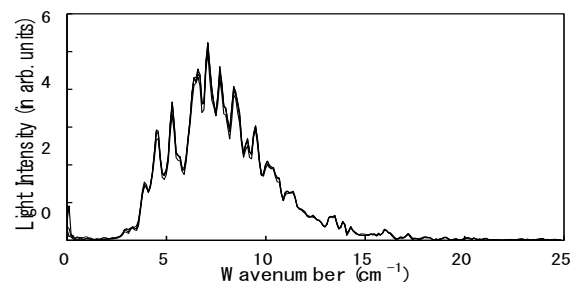


Figure 3: The spectrum of the coherent radiation (3 results overlapped).

光強度が比較的低いほかの波数領域においては、誤差はかなり大きくなる。しかしこれは、検出器窓にスペクトルのフィルターを置くことで抑えることができる。光源の詳細は文献 7 に報告した。スペクトル形状を決める主な要因は、電子バンチの形状である。L バンドライナックからのビームにおけるバンチ長は、通常 10 ps より長く、これは 3 mm の長さ、または 3 cm^{-1} の波数に対応する。コヒーレント放射の強度は、電子バンチ長より短い波長ではかなり低い。10 cm^{-1} を超える波数でも比較的高い放射強度があり、これは、上に述べたような強いバンチ圧縮が起きていることを示唆する。スペクトル形状は、光路において別の要因でわずかに変化する。周期的なスペクトル上の振動は、真空容器の光学窓内での入射光と反射光の干渉による。放射強度は、測定のためのプローブ光としては十分に強い。本測定では、最大 3 桁の増幅率を持つ検出器の増幅率は使用していない。このことから、試料の光透過率が 10^{-6} かそれより低い場合でも測定には十分な強度があることがわかる。

試料には SiO_2 のナノ粒子を利用した。 SiO_2 ナノ粒子(Nanophase Tech. Corp.)は、一次粒径 26 nm、二次粒径 530 nm である。Figure 4 に示すように、厚さ 3 mm 無水石英板で挟んで試料の厚さを 5 mm とした。 SiO_2 ナノ粒子に対する光の透過率の波数依存性の結果を Figure 5 に示す。

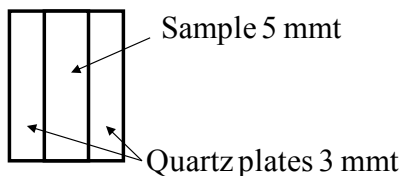


Figure 4: Schematic diagram of the sample holder.

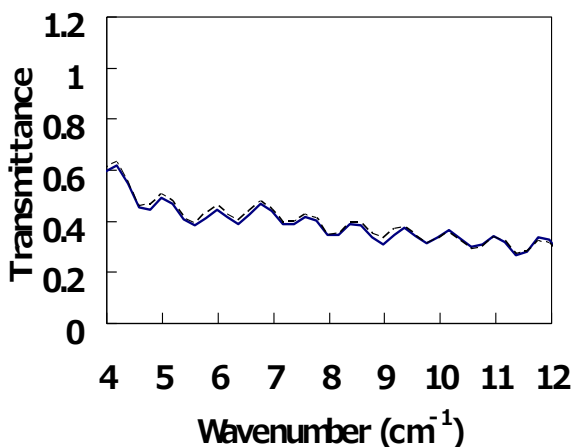


Figure 5: The wavenumber dependence of the transmittance measured for the SiO_2 nanoparticle in the sample holder.

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。この測定で、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 桁変えることで、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、光によりナノ粒子内に何らかの変化が誘起されたことを示唆する。特徴的な半サイクル光による効果の可能性があるが、光のパルス波形に関して光源の条件と計測の条件が十分把握できていないことからこれは確認されていない。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。

Figure 2 の実験配置では、干渉計を出た光を試料に入射するので、測定中の光パルス形状の変化によって入射光のピーク強度が変化する。このため、光強度依存性の結果がマイクロパルスピーク強度による変化であるとする正確な情報が得られない。この問題を解決するために、現在 Figure 6 に示す測定系に変更して実験を行っている。

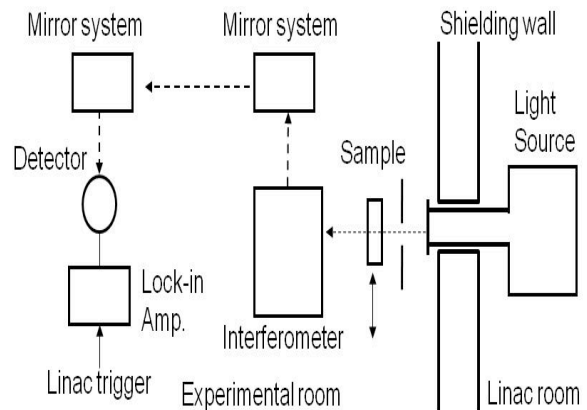


Figure 6: Schematic diagram of the absorption spectrometry system for the intensity dependence measurement.

マイクロ波やミリ波、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。この現象の解明のために、大阪府大の電子ライナックで、ポンプ・プローブ実験を行っている。

5. まとめと今後の課題

KURRI の L バンド電子ライナックで確立されたコヒーレント遷移放射光源による吸収分光系で、 SiO_2 ナノ粒子の吸収分光を行った。入射光強度を 1 桁変化させて実験を行い、光透過率に数%の変化が認められた。半サイクル光との関係は明らかではない。今後最適な条件で実験を行うとともに新たな時間分解測定系で、過程の解明を行う。

この研究の一部は、京都大学原子炉実験所の共同利用研究として、2008-2010 年度科学研究費(20360421)によって、また平成 25 年度 KEK 大学等連携支援事業の支援によって行われた。

参考文献

- [1] T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka and M. Ikezawa, *Phys. Rev. Lett.* 63 (1989) 1245.
- [2] T. Takahashi, T. Matsuyama, K. Kobayashi, Y. Fujita, Y. Shibata, K. Ishi and M. Ikezawa, *Rev. Sci. Instrum.* 69 (1998) 3770.
- [3] K. Yokoyama, Y. Miyauchi, S. Okuda, R. Kato and T. Takahashi, *Proc. 20th Int. Free-Electron Laser Conf. (Williamsburg, USA, 1998)* pp. 17-18.
- [4] S. Okuda, M. Nakamura, K. Yokoyama, R. Kato and T. Takahashi, *Nucl. Instrum. Meth. A*445 (2000) 267.
- [5] S. Okuda, M. Takanaka, M. Nakamura, R. Kato, T. Takahashi, S. Nam, R. Taniguchi and T. Kojima, *Radiat. Phys. Chem.* 75 (2006) 903.
- [6] T. Takahashi, *J. Particle Accelerator Soc. Japan* 2 (2005) 11.
- [7] S. Okuda and T. Takahashi, *Infrared Phys. Technol.* 51 (2008) 410.