

# テラヘルツ分析光を用いたパルスラジオリシスの研究

## PULSE RADIOLYSIS USING TERAHERTZ PROBE PULSES

菅晃一<sup>#</sup>, 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  
K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, I. Nozawa, T. Toigawa, K. Norizawa, H. Kobayashi, Y. Yoshida  
The Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR), Osaka University

### Abstract

Femtosecond pulse radiolysis has been developed at ISIR, Osaka University. Pulse radiolysis, which is transient absorption spectroscopy using electron beam as a pump source, is a powerful tool for observation of ultrafast phenomena. Pulse radiolysis of terahertz (THz) wave region would expand the variety of observed transient species. In the present study, pulse radiolysis using THz probe light was realized by a double-decker electron beam based on a photocathode RF gun driven by two UV laser pulses. The double-decker pulse radiolysis of THz wave region was applied on the observation of quasi-free electron in semiconductor of silicon.

### 1. はじめに

フェムト秒・ピコ秒領域の超短パルス電子ビームは、自由電子レーザー<sup>[1,2]</sup>、レーザーコンプトン X線発生、パルスラジオリシス<sup>[3,4,5]</sup>等の加速器物理、物理化学の研究に応用されている。そのため、超短パルス電子ビーム発生は、高品質な光源開発や時間分解計測における時間分解能向上のために不可欠となっている。これまでに阪大産研では、フェムト秒電子ビームとフェムト秒レーザーを用いて、フェムト秒時間分解能を有するパルスラジオリシス<sup>[6]</sup>が開発されている。一方では、ダブルデッカーパルスラジオリシス<sup>[7]</sup>と呼ばれるパルスラジオリシスの研究を行っている。ダブルデッカーパルスラジオリシスとは、時間的・空間的に分離した2つの電子ビーム（ダブルデッカー電子ビーム）を用いてパルスラジオリシスを行う手法である。この手法では、パルスラジオリシス測定において、前の電子ビームを分析光に変換し、後の電子ビームを試料励起用電子ビームとして用いる。これまでに、ダブルデッカーパルスラジオリシス法を用いて、可視領域におけるパルスラジオリシスを行い、本手法の有用性が示された。また、フェムト秒・ピコ秒電子ビームパルスは、1 psの逆数が1 THzに相当するため、テラヘルツ領域の電磁波研究にも利用できる。より短いパルス幅を持つ電子ビームは、電子ビームの分布をフーリエ変換することにより得られるパンチ形状因子<sup>[8]</sup>から、より高帯域の電磁波を高強度で生成できることがコヒーレント放射として知られている。電子ビームを用いたテラヘルツ波の発生は、コヒーレント遷移放射<sup>[7,8,9]</sup>、コヒーレントチェレンコフ放射<sup>[10,11]</sup>、スミス・パーセル放射<sup>[12]</sup>等により行われている。また、これらの電磁波はビーム診断、ビーム加速、励起・分析源としての応用が検討されている。もし、テラヘルツ波を分析光として利用した場合、測定波長が従来よりもかなり長波長であるテラヘルツ領域での過渡吸収が得られる。テラヘルツ領域ではプラズマ

周波数を用いて準自由電子密度を議論できるため、電子ビーム誘起のイオン化による過渡的な電子の準自由状態のダイナミクス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の解明に対しての新たな切り口が期待される。

そこで、本研究では、これまでに開発したダブルデッカーパルスラジオリシスを応用し、テラヘルツ分析光パルスを用いたパルスラジオリシスの研究を行った。テラヘルツ分光では、マイケルソン干渉計を利用した。

### 2. 実験装置

#### 2.1 ダブルデッカー電子ビームの発生

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<sup>[9]</sup>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を示す。本研究では、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う。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、図1(a)に示すように、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ー (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<sup>[13,14]</sup>。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。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する。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。電子ビームのパルス幅は、図2(a)に示すような、干渉計を用いたインターフェログラムの測定<sup>[9]</sup>により、 $<200$  fs と得られた。図1(b)に、レーザー入射光学系の写真を示す。

<sup>#</sup>koichi81@sanken.osaka-u.ac.jp

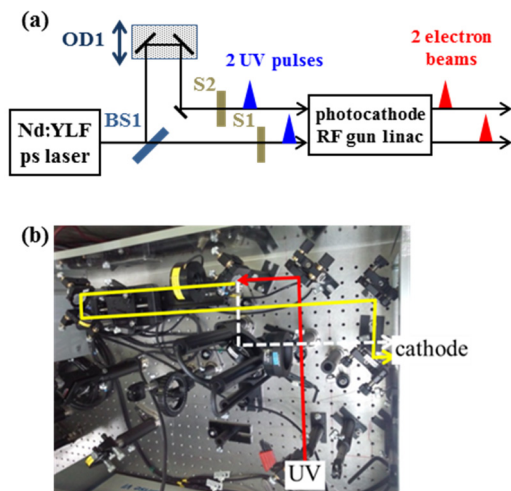


Figure 1: (a) Schematic diagram of generation of femtosecond double-decker electron beam. BS: a beam splitter; OD: an optical delay line; S: a shutter. (b) Picture of laser injection system for the photocathode RF gun linac.

## 2.2 パルスラジオリシス測定系

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。図 2 に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を示す。2 つの電子ビームの 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。本研究では、試料における 2 つの電子ビームの時間、空間的な分離は、それぞれ、2.1 ns、6 mm とした。時間的な分離は、電子銃における 2 つの電子ビームを発生するためのレーザー入射（加速）位相を同一にするために、加速 RF (S バンド、2.856 GHz、350 ps/1 周期) の 6 周期分とした。また、空間的な分離は、分析光発生用電子ビームが試料を照射しないように、6 mm とした。パルスラジオリシスでは、前の電子ビーム (L) をコヒーレント遷移放射によりテラヘルツ分析光パルスを生じた。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  $\mu\text{m}$  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<sup>[9,11,15]</sup>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 (BS) 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、ある時刻におけるテラヘルツ透過周波数スペクトルを得た。

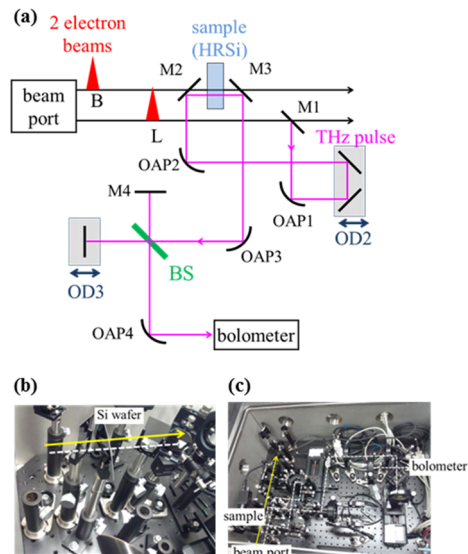


Figure 2: (a) Double-decker pulse radiolysis using double-decker electron beams for THz probe pulses. Beams of “L” and “B” were utilized for the generation of THz probe pulses and irradiation of a sample, respectively. OAP: an off-axis parabolic mirror, M: a plane mirror; BS: a beam splitter. (b) Picture of the sample irradiated by the pump beam (B, solid line) and beam for the generation of probe pulse (L, dashed line). (c) Picture of pulse radiolysis system in a low-vacuum chamber. Lines denote paths of electron beams and probes.

## 3. 実験結果と考察

パルスラジオリシスでは、高抵抗率シリコン (380  $\mu\text{m}$  厚) における電子ビーム照射による過渡的なテラヘルツ透過率の時間発展を観測した。測定は、水によるテラヘルツ波の減衰を防ぐために低真空中で行った。図 3 にテラヘルツ分析光を用いたパルスラジオリシスの測定結果を示す。図 3(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 (~20 ps)。また、図 3(b)に、分析光用光学遅延を 50 ps に固定した時のセンターバースト付近におけるインターフェログラムの測定結果を示す。インターフェログラムは、ボロメータ出力の分光用移動鏡 (OD3) 移動距離依存性であり、検出されるテラヘルツ波の周波数に応じて振動する様子が得られる。また、インターフェログラムのセンターバースト付近における変化の鋭さは、スペクトルの白色 (広帯域) 度合いを表す。この性質は、 $\delta$  関数のフーリエ級数は低次から高次までの級数を持つこと

に由来する。さらにインターフェログラムのフーリエ変換の線形性に基づき、 $L$ 、 $B$ 、 $LB$  を上記の電子ビーム条件における検出器出力とすると、テラヘルツ透過スペクトルの時間発展は、下記のように表される。

$$I = \mathcal{F}[LB - B], \quad (1)$$

$$I_0 = \mathcal{F}[L]. \quad (2)$$

ここで、 $I$  と  $I_0$  は、それぞれ、励起用電子ビームが有る時と無い時のテラヘルツ透過スペクトルを表す。 $\mathcal{F}$  は時間領域におけるインターフェログラムのフーリエ変換を表す。図 3(c)に、励起用電子ビームが有る時と無い時のテラヘルツスペクトル ( $I$ ,  $I_0$ ) を示す。計算では、図 3(b)により得られたインターフェログラムのフーリエ変換を行った。その結果、励起用電子ビームが有る時と無い時にテラヘルツ透過スペクトルに差が観測され、励起用電子ビームが有る時に透過スペクトル強度の減少が明らかとなった。ドルーデモデルでは、準自由電子密度を用いて、プラズマ周波数や媒質における屈折率の虚部を議論することができる。これまでに、凝縮相（ヘキサン等）においては、光励起による過渡的な準自由電子密度変化がテラヘルツ分光により議論されている<sup>[16]</sup>。本研究の場合、シリコン試料中に準自由電子が電子ビーム照射由来のイオン化により生成され（プラズマ周波数：増加）、テラヘルツ領域における屈折率の虚部（誘電損失）の増加によりテラヘルツ透過率の減少が確認された。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。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を行っていく。

#### 4. まとめ

ダブルデッカーパルスラジオリシスを拡張し、テラヘルツ分析光を用いたパルスラジオリシスの研究を行った。テラヘルツ分析光パルスにより、高抵抗率シリコンにおける電子ビーム照射による過渡的なテラヘルツ透過率減少が観測された。また、本研究により、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（過渡吸収分光法）の有効性が示された。今後、レーザー光の分析光パルスを用いたパルスラジオリシスと組み合わせることにより、ビーム照射によるイオン化後に生成する過渡的な電子について、新たな切り口から量子ビーム誘起反応の解明を行う。

本研究は、科研費（21226022、23109507、25870404、26249146）、受託研究（産総研）、基礎科学研究助成（住友財団）により支援を受けました。

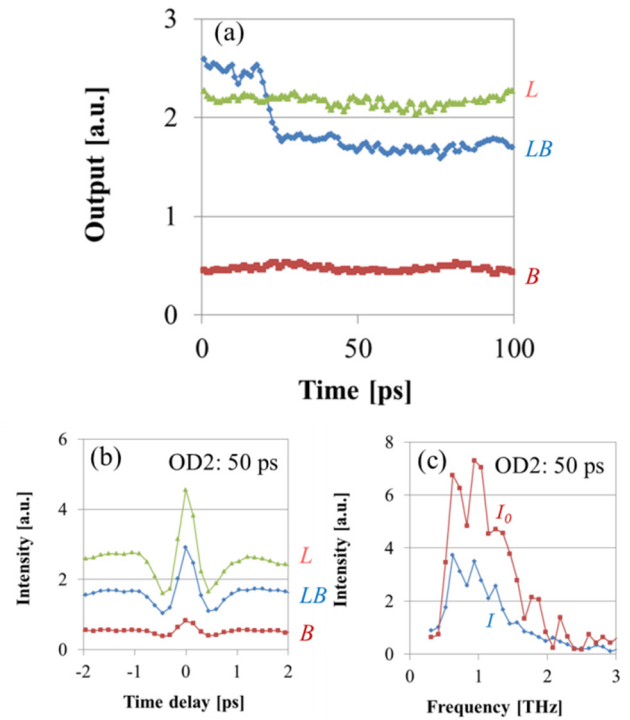


Figure 3: (a) Bolometer output as a function of the optical delay (OD2). Sample of high-resistivity silicon with a thickness of 380  $\mu\text{m}$  was investigated. Electron beam conditions for  $LB$ ,  $L$ , and  $B$  were controlled by the shutters. Decrease in output of  $LB$  was observed at a time of  $\sim 20$  ps. (b) Interferograms in the case of the optical delay (OD2) set to 50 ps, which is a condition of transient decrease in  $LB$ . Interferograms were obtained by adjusting the optical delay (OD3) for the THz spectroscopy. (c) Frequency spectra of  $I$  and  $I_0$  in the case of OD2 set to 50 ps according to Eq. (1) and Eq. (2).

#### 参考文献

- [1] A. F. G. van der Meer, Nucl. Instrum. Meth. A 528, 8 (2004).
- [2] H. Wabnitz et al., Phys. Rev. Lett. 94, 023001 (2005).
- [3] T. Kondoh et al., Radiat. Phys. Chem. 84, 30 (2013).
- [4] J. Yang et al., Nucl. Instrum. Meth. A 629, 6 (2011).
- [5] K. Kan et al., Rev. Sci. Instrum. 83, 073302 (2012).
- [6] T. Takahashi et al., Phys. Rev. E 50, 4041 (1994).
- [7] P. Kung et al., Phys. Rev. Lett. 73, 967 (1994).
- [8] R. Lai and A. J. Sievers, Phys. Rev. E 50, R3342 (1994).
- [9] I. Nozawa et al., Phys. Rev. ST Accel. Beams 17, 072803 (2014).
- [10] A. M. Cook et al., Phys. Rev. Lett. 103, 095003 (2009).
- [11] K. Kan et al., Appl. Phys. Lett. 99, 231503 (2011).
- [12] J. Urata et al., Phys. Rev. Lett. 80, 516 (1998).
- [13] J. Yang et al., Nucl. Instrum. Methods A 556, 52 (2006).
- [14] K. Kan et al., Nucl. Instrum. Methods A 597, 126 (2008).
- [15] K. Kan et al., Appl. Phys. Lett. 102, 221118 (2013).
- [16] E. Knoesel et al., Phys. Rev. Lett. 86, 340 (2001).