

## 産研テラヘルツ自由電子レーザー高強度化のための検討

### CONSIDERATIONS FOR INCREASING THE INTENSITY OF THE TERAHERTZ FREE-ELECTRON LASER AT SANKEN

川瀬啓悟<sup>#, A, B)</sup>, 武藤俊哉<sup>B)</sup>, 細貝知直<sup>B)</sup>, 羽島良一<sup>A)</sup>

Keigo Kawase<sup>#, A, B)</sup>, Toshiya Muto<sup>B)</sup>, Tomonao Hosokai<sup>B)</sup>, Ryoichi Hajima<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> KPSI, QST

<sup>B)</sup> SANKEN, the University of Osaka

#### Abstract

The Terahertz free-electron laser (FEL) at SANKEN, the University of Osaka, generates the most intense narrow-band terahertz pulses in the world. The maximum pulse energy reaches 260  $\mu\text{J}$  with the frequency of 4.3 THz. To increase the intensity further, we are planning to introduce the cavity-dump mechanism inside the FEL cavity. We briefly report on the recent considerations for the cavity dumping and the discussion of the enhancement cavity.

#### 1. はじめに

大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設では、L バンド電子ライナックで駆動するテラヘルツ領域の自由電子レーザー(THz FEL)が利用研究に供されている[1](注:2025年8月現在、加速器設置建屋改修のため利用一時停止中)。THz FEL は、37 ns 間隔で 150 から 200 パルス程度のパルス列(マクロパルス)として発生する。マクロパルスの繰り返しは 5 Hz である。加速器や FEL 装置が収納されている発生装置室内において、FEL 共振器内で発振した FEL パルスは、共振器ミラー中心の直径 3 mm の孔から一部が取り出され、真空光輸送ビームラインを通して遮蔽壁外の利用実験エリアへ運ばれる。ダイヤモンド窓を通して利用実験エリアに出てくる FEL の1つのパルスのエネルギーは、周波数 4.3 THz で 260  $\mu\text{J}$  に達する。また、THz FEL で発生される THz パルスは中心周波数が 3 から 6 THz まで連続的に可変で 20 %程度の帯域幅を持つ。このような他の THz 光源にはない高強度で中心周波数可変な狭帯域 THz パルス光源として、THz 領域における物性研究や非線形光学の研究などに利用されている[2-7]。

FEL の光源開発として、これまでに半導体表面を高強度近赤外レーザーで励起して THz パルスを反射させるスイッチを研究してきた。これを用いることで 200 パルス程度のパルス列から単一の高強度 THz パルスを取り出すことが可能となり、27 MHz の繰り返しで多数のパルスが照射されることによる熱的な蓄積効果を除いた高品質な高強度場応答計測が可能となった[8]。

FEL 共振器内の THz パルスは直径 3 mm の孔から外部へ取り出されている。そのため現在、結合度は 3 %程度である。この半導体反射スイッチを FEL 共振器内へ導入して共振器内の THz パルスをすべて外部へ取り出すキャビティダンプを実現することで、現在より 70 倍高強度な THz パルスの発生が期待できる。キャビティダンプの FEL への導入はこれまでにカリフォルニア大学サンタバ

ーバラ校(UCSB)の遠赤外 FEL で実証され[9]、現在ヘルムホルツセンタードレスデンロッセンドルフ研究所の FEL 装置 FELBE[10]、ラトバウト大学の FEL 施設 FELIX[11]にて研究開発が進められている。

現在、我々もキャビティダンプの導入に向けた設計研究を進めている。本発表では、現在までの検討内容を報告する。また以前、スタンフォード大学超伝導 FEL で試験された FEL パルス列の外部エンハンスメント共振器による高強度化[12, 13]についても議論する。

#### 2. レーザー駆動半導体スイッチ

高純度な半導体は一般にテラヘルツ領域においてよい透過媒質である。特に FEL のようなアンジュレータにより電子を振動させる平面に光が高く偏光している場合には、ブリュースター角で入射することでほとんど損失なく透過する。しかし、半導体のバンドギャップよりも高いフォトンエネルギーのレーザーパルスを表面に照射すると、電子-ホール対が多数励起され、テラヘルツ領域の光に対して吸収率が増加する。さらにレーザー強度を増加すると半導体表面の電子-ホール対の密度が増加し、金属表面と同等の振る舞いを示す。従って、テラヘルツ領域の光に対して高反射状態となる。ピコ秒程度のテラヘルツパルスの高透過状態から高反射状態へは、照射するレーザーのパルス長の時間スケールで遷移する。その後、高密度の電子-ホール対は再結合や拡散を通じて密度が減衰し、やがてレーザー非照射時の状態に戻る(Fig. 1)。この電子-ホール対密度の減衰は半導体の種類で大きく異なる。

利用実験エリアへ導かれた FEL マクロパルスの中からの単一の高強度 THz パルスを取り出しは、再結合による電子-ホール対密度の減衰が比較的高速な GaAs を用いることで実現できる。一方、非励起状態において GaAs に比べて広い周波数領域で高透過性を示す Si、Ge は、励起寿命が長いこと、パルス列からの単一パルスの取り出しには不向きである。

<sup>#</sup> kawase.keigo@qst.go.jp

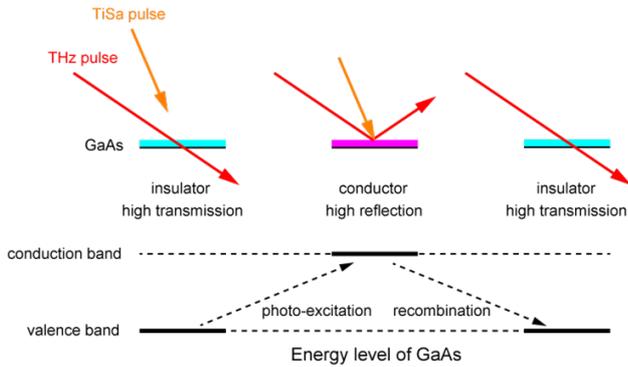


Figure 1: Schematics of the laser-activated semiconductor reflective switching.

### 3. キャビティダンプ FEL

レーザー駆動半導体スイッチをFEL共振器に導入し、キャビティダンプ機構を構築することで、これまでに1桁以上高い光強度の利用が期待できる。実際、カリフォルニア大学サンタバーバラ校(UCSB)の静電加速器を用いた遠赤外 FEL では、この手法を用いて光強度の増大を実現している。また最近ではラトバウト大学のFEL施設FELIXにおいて、高周波線形加速器で駆動される赤外FELに対してこの手法が導入されている。ヘルムホルツセンタードレスデンロッセンドルフ研究所の超伝導加速器を用いたFEL施設FELBEにおいても導入研究が進められている。

そのような状況の中、産研 THz FEL の高強度化のために、この手法の導入を提案し、詳細設計を進めている。この手法を実現することで、Fig. 2 に示すように、産研 THz FEL は世界最高強度のテラヘルツ実用光源となる。

キャビティダンプの場合、共振器中を周回するTHzパルスの1つであるから、取り出した後の残留パルスは無く、Si、Geなどの電子-ホール対密度の減衰が遅い物質でも問題はない。後述するように、むしろ4 THzよりも高い周波数領域において基板中の吸収が無視できないGaAsよりも適した材料である。

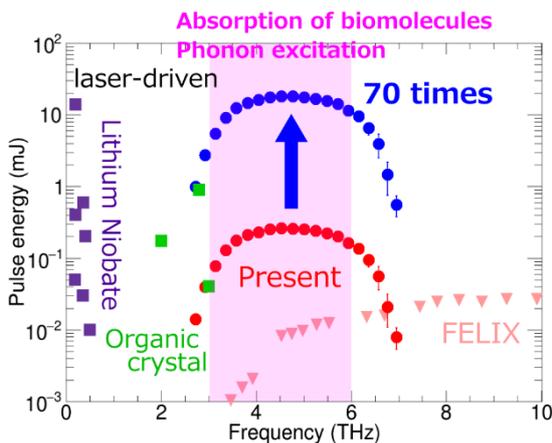


Figure 2: Frequency map of the intense THz sources in the world. The SANKEN THz-FEL effectively covers the frequency range from 3 to 6 THz, which is relevant for biomolecule absorption and phonon excitation.

## 4. 産研 THz FEL のキャビティダンプ設計

### 4.1 2 ウェスト FEL 共振器によるキャビティダンプ

FEL 共振器内に半導体基板を挿入する構成であることから、損失をできるだけ低減することが重要である。従って、ブリュースター角で周回する光パルスを半導体基板へ入射することが望ましい。そのためには、光の共振器モードのウェスト部分に基板を設置することが必要である。一方、パルス強度が増加すると THz パルスによる基板あるいは励起状態表面における非線形効果が問題となる事が考えられる。そのため、ある程度の大きさのウェストサイズとするために、現在の2倍の共振器長を持つ周回周波数 13.5 MHz の FEL の構成とその中への半導体スイッチの導入を検討した(Fig. 3)。

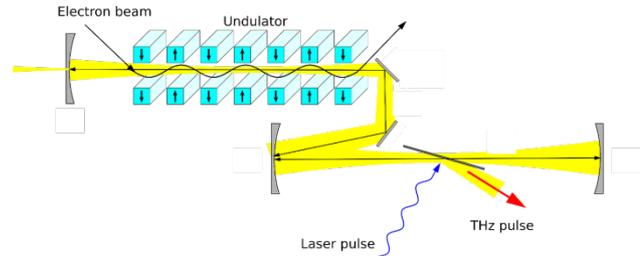


Figure 3: Schematic design of the two-waist FEL cavity with cavity dump mechanism.

ここでは、FEL 増幅するアンジュレータ領域の共振器モードのエンベロープを現在のものに保ったまま、新たに2つめのビームウェストを作る。これは以前に UCSB にて実施されている。本研究における詳細設計では、アンジュレータ上流側の共振器の球面鏡を現在のものを用いて、2つの球面鏡の焦点距離とそれらの位置をパラメータとして、上記の条件を満たす組み合わせを探索した(Fig. 4)。

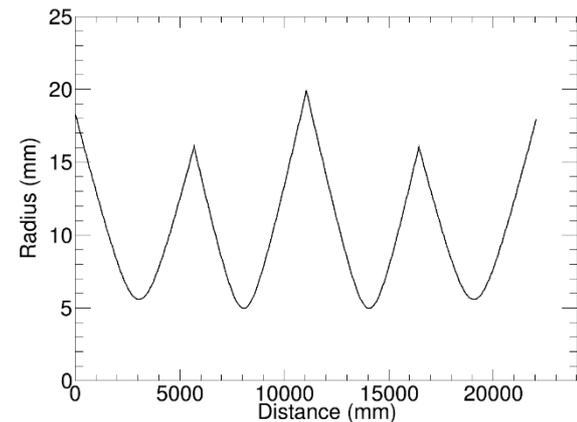


Figure 4: Beam envelope inside the two-waist FEL cavity. The calculated radius corresponds to the  $1/e^2$  radius of the fundamental gaussian beam with the wavelength of 100  $\mu\text{m}$ .

共振器長を2倍にして別のビームウェストを作る本設計の問題点は、装置が大型化して共振器長を確保する設置スペースが厳しい事、そしてミラー枚数の増加により、

光損失の増加である。前者については詳細設計により実現可能であることは確認できる。後者については、電子ビームのバンチ電荷が高く FEL のゲインが高いことから、損失をカバーできると考えている。

#### 4.2 従来の FEL 共振器内でのキャビティダンプ

より単純な設計は、ビームウェストへの半導体基板の挿入という条件を外すことで可能となる。この場合、現在の FEL 共振器内へキャビティダンプを導入できる(Fig. 5)。一方、利用可能な空間は限られており、半導体基板上でのビームサイズは比較的大きくなり、基板サイズと励起レーザーのビームサイズが大きくなるという問題点がある(Fig. 6)。また、ブリュースター角からのずれも検討する必要がある。

現在の共振器内にキャビティダンプを導入できる領域は、アンジュレタ下流の共振器ミラーの位置から 5 m のところにある FEL モードサイズを制限するスリットチャンバーの領域である。ここにはビーム軸方向に 220 mm の領域がある。この位置でのビームサイズは基本ガウスモードを仮定して、周波数 3 THz において  $1/e^2$  半径で 12 mm、4.3 THz で 10 mm である。そのため、入射角をブリュースター角である 74 度とする場合、横方向のビーム照射面サイズは 3 THz において直径 87 mm となる。

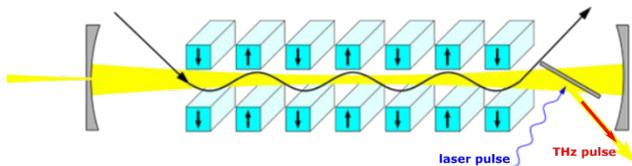


Figure 5: Cavity dump mechanism installed inside the present FEL cavity.

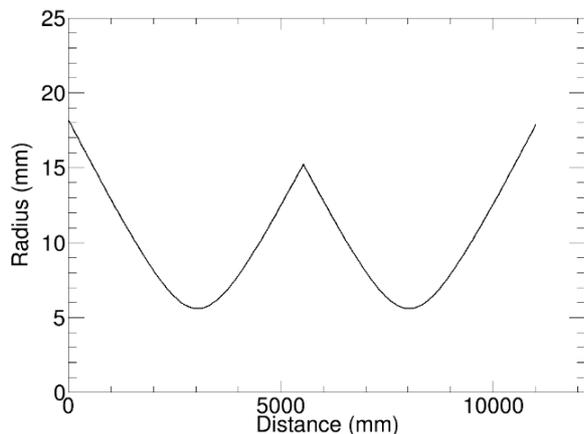


Figure 6: Beam envelope inside the present FEL cavity for 100-μm wavelength.

このような大面積に対して効率的にレーザーで表面を励起するためには、励起レーザーを斜入射することが考えられる。しかし、上記の領域にこのような励起レーザーの入射を実現する空間的余裕は無い。

別の方法として、あらかじめ横方向に扁平なビーム形状として入射することが考えられる。そうすることで、最小

限の光路で横方向に広い領域で半導体表面を励起することが可能である。

大面積にわたって半導体表面を励起する必要があるため、ここでは高いパルスエネルギーが得られる Q スイッチ動作の Nd:YAG レーザーを励起レーザーとして利用する。これまでのチタンサファイアレーザー励起による GaAs での半導体反射スイッチの研究結果より[8]、高反射状態への遷移に必要な照射強度は  $0.6 \text{ mJ/cm}^2$  である。吸収係数より Si の場合はこれよりも高い強度、Ge の場合はこれよりも低い強度で高反射状態への遷移が達成されることが考えられる。ここでは  $0.6 \text{ mJ/cm}^2$  を目安として、照射断面積  $12 \text{ cm}^2$  とすると、必要なパルスエネルギーは  $7.2 \text{ mJ}$  と見積もることができる。

FEL の入射角がブリュースター角よりもずれについては、半導体基板領域でのビームモードの波面曲率を考える。現在の FEL 共振器において半導体基板の導入を検討している位置での波面曲率は  $2.45 \text{ m}$  と評価できる。対してビーム半径は  $12 \text{ mm}$  であるから、その角度偏差は  $5 \text{ mrad}$  である。従って、この FEL 共振器において、非ウェストでの入射によるブリュースター角からのずれの影響は無視できると考えられる。

現在検討しているキャビティダンプの導入設計を Fig. 7 に示す。励起レーザーの入射については、チャンバー床面においたミラーで反射させて基板へ照射する光学系とすることで、キャビティダンプした THz パルスの光軸に干渉することなく入射でき、反射した励起レーザーもチャンバー天板に透過窓をおくことで、真空中から取り出すことができる。

#### Cavity-dumped pulse



Figure 7: Design of the switch layout to install the cavity dump mechanism into the present FEL cavity.

#### 4.3 スイッチ基板の検討

キャビティダンプのためのスイッチ基板として選定する半導体基板としては、入手可能性から GaAs、Si、Ge ウェハに絞って検討した。共振器中に挿入することからテラヘルツ領域で十分に小さな吸収係数を持つことが第1の必要条件となる。Figure 8 にこれらの吸収係数のテラヘルツ領域の周波数に対するプロットを示す[14]。この中で Si が最も吸収係数が小さく、Ge はそれに比べて 3 THz よりも高い周波数帯域において1桁大きな吸収係数を示す。GaAs は 4 THz 以上で急速に吸収係数が大きくなる。従ってキャビティダンプ用スイッチ基板として、テラヘルツ領域の吸収係数の見地からは、Si が第1の選択肢となり、Ge はその次となる。

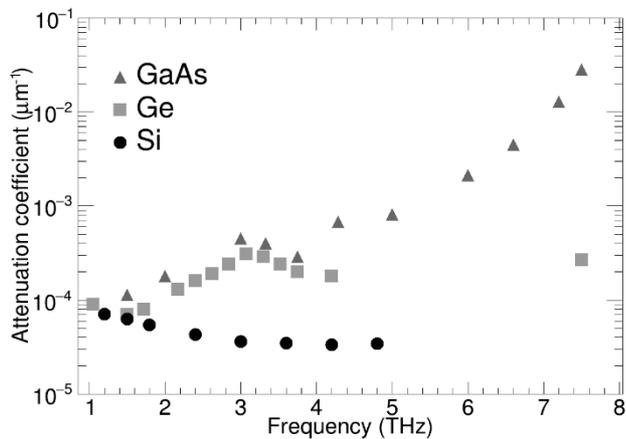


Figure 8: Attenuation coefficients of GaAs, Ge and Si at the THz frequency range. Calculated from the data in ref. [14].

次に半導体表面を励起する高強度パルスが得られる可視から近赤外領域における Si と Ge の吸収を考える。ここでは吸収係数の逆数である侵入深さで議論すると直観的にわかりやすい。光の侵入深さは線形領域においては、表面励起プラズマの有効厚さと考えることができる。侵入深さが大きすぎると必要なプラズマ密度を生成するためには高い光強度が必要となる一方、小さすぎる場合はプラズマ層が反射させるテラヘルツパルスの表皮深さより薄くなり、その一部が透過する。代表的な金属ミラーの表面材料である金の表皮深さは 3 THz の光に対して 45 nm であり、これが必要なプラズマ層の最小限の厚さの目安である。

高強度パルスとして比較利用しやすい波長は Nd:YAG レーザーの基本波長 1064 nm と 2 次高調波の 532 nm、それにチタンサファイアレーザーの 800 nm である。Si と Ge の可視から近赤外領域の波長に対する光の侵入深さをプロットしたものを Figs. 9, 10 に示す。Si の場合、1064 nm では 1.3 mm となり、一般的な半導体ウェハの厚さである 0.5 mm と比べて大きすぎる。800 nm では 9.0 μm、532 nm では 0.95 μm となり、Si の場合は Nd:YAG レーザーの 2 次高調波パルスで励起することがよいと考えられる。一方、Ge の場合、532 nm では侵入深さが 17 nm となり、テラヘルツパルスの表皮深さよりも浅くなる。1064 nm では侵入深さが 0.7 μm であるから、Ge の場合は Nd:YAG レーザーの基本波で励起することがよい。Si と Ge を比較した結果、プラズマ層の厚さ、すなわち単位励起光強度当たりの生成プラズマ密度の点では、Ge が第1の選択肢と考えられる。

以上より、本研究ではスイッチ基板と励起レーザーとの組み合わせとしては、Ge と Nd:YAG レーザーの基本波を第1の選択肢、Si と Nd:YAG レーザーの2次高調波を第2の選択肢として選定する。

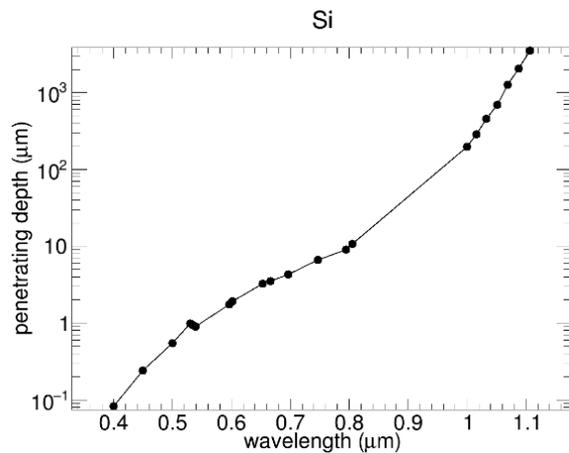


Figure 9: Penetrating depth of Si from visible to near infrared wavelength range. Calculated from the data in ref. [14].

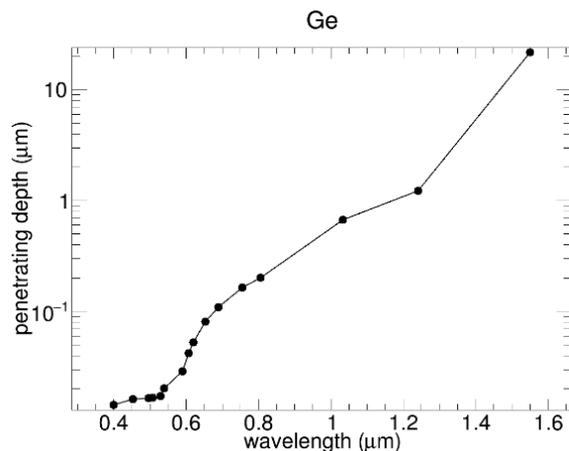


Figure 10: Penetrating depth of Ge from visible to near infrared wavelength range. Calculated from the data in ref. [14].

## 5. エンハンスメントキャビティの検討

FEL パルスの高強度化の研究のひとつとして以前、スタンフォード大の超伝導 FEL におけるエンハンスメントキャビティの研究がある[13]。FEL 共振器と同じ共振周波数を持つ外部共振器へ連続した FEL パルスを導入することで、共振器中でパルスが増強する形で重ね合わせられていき、ひとつの強いパルスが生成される。これを上記のキャビティダンプで取り出すことで、もとの FEL よりも高い強度の光パルスが利用できるものである。この場合、すでにある FEL 装置自体に改造を施すことなく高強度化が実現できる可能性がある。

5 Hz のマクロパルスで間欠的に発生する FEL については高繰り返しレーザーで用いられるフィードバック制御が適用できず、極端に大きなエンハンスメント因子を得ることができないが、数倍から数十倍の増大は十分に期待できる[13, 15]。

その他の問題点としては、FEL マクロパルスの再現性

と適切な共振器ミラーとなる部分反射鏡の入手可能性などが考えられる。

FEL マクロパルスの再現性は、スタンフォードの研究結果に見られるように、マクロパルスごとに外部共振器中に蓄積される光強度が大きく変化し、強度安定性に課題が見られる。しかしながら、産研 THz FEL の場合、スタンフォードの場合と比べて波長が 10 倍以上長いことから、再現性の問題は低減されることが期待できる。

適切な部分反射鏡の入手可能性の問題は、現在のところ、本手法を進める上で大きな問題である。THz 領域での低損失な部分反射性を持つ凹面鏡の構築は困難であると考えられ、外部結合部を平面部分反射鏡とするなどの検討が必要であり、詳細な設計研究は今後の課題である。

## 6. まとめ

本研究では大阪大学産業科学研究所 THz FEL の高強度化のためにキャビティダンプ機構の導入を提案し、2 ウェスト拡張共振器と既存共振器への機構の導入の2通りの手法を検討した。励起レーザーとしては Ge と Nd:YAG レーザーとを用い、スイッチ基板として Si、Ge を利用する。本提案が実現すれば、3 から 6 THz 領域において、世界最高強度のテラヘルツパルスを利用することが可能となる。また、エンハンスメントキャビティによるテラヘルツパルスの高強度化についても検討を始めた。

## 謝辞

本研究は文部科学省平成 30 年度光・量子飛躍フラッグシッププログラム次世代レーザー基礎基盤研究「自

由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源のための基礎基盤技術の研究」(課題番号 JPMXS0118070271) 及び日本学術振興会科学研究費助成事業(20K12491) の補助の下で実施している。

## 参考文献

- [1] K. Kawase *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A 960, 163582 (2020).
- [2] T. Kawasaki *et al.*, Sci. Rep. 9, 10636 (2019).
- [3] A. Irizawa *et al.*, Condens. Matter 5, 38 (2020).
- [4] M. Tsubouchi *et al.*, Sci. Rep. 10, 18537 (2020).
- [5] M. Nagai *et al.*, Commun. Phys. 6, 88 (2023).
- [6] T.N.K. Phan *et al.*, Opt. Lett. 49, 5039 (2024).
- [7] A.I. Osaka *et al.*, ACS Appl. Electron. Mat. 7, 1103 (2025).
- [8] K. Kawase *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A 1056, 168618 (2023).
- [9] S. Takahashi *et al.*, Appl. Phys. Lett. 95, 234102 (2009).
- [10] R. Rana *et al.*, Appl. Phys. Lett. 118, 01107 (2021).
- [11] T. Janssen *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 93, 043007 (2022).
- [12] P. Harr *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A 331, 612 (1993).
- [13] T.I. Smith *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A 393, 245 (1997).
- [14] E.D. Palik *ed.*, "Handbook of Optical Constants of Solids", (Academic Press Inc., 1985).
- [15] Y. Sumitomo *et al.*, "Toward Mid-IR FEL Pulse stacking for Peak Power Enhancement", Proc. PASJ2021, QST-Takasaki Online, Japan, Aug., 2021, pp. 942 – 945.