

Present Status of FEL-SUT: IR-FEL Research Center of Tokyo University of Science

Takayuki IMAI^{1,A)}, Kozi NAKAI^{A)}, Yasuhiko FURUTA^{A)}, Tetsuo SHIDARA^{B)}, Mitsuhiro YOSHIDA^{B)}, Tetsuo MOROTOMI^{C)}, Keiichi HISAZUMI^{C)}, Yoshihiro OGI^{A)} and Koichi TSUKIYAMA^{A)}

^{A)} Tokyo University of Science

2641 Yamazaki, Noda, Chiba, 278-8510

^{B)} High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki, 305-0801

^{C)} Mitsubishi Electric System & Service

2-8-8 Umezono, Tsukuba, Ibaraki, 305-0045

Abstract

The IR-FEL Research Center of Tokyo University of Science (FEL-SUT) was established to develop high performance IR-FEL and new photo science by use of it. The center has MIR-FEL device which consists of an RF gun with a thermionic cathode, an alpha magnet, an S-band linac and a permanent magnet undulator combined with an optical resonance cavity of hole-coupling mode. It has been operated providing FEL light of the wavelength range from 4 to 16 μm for various application experiments. We present the status of FEL-SUT in this paper.

東京理科大学・赤外自由電子レーザー研究センターの現状

1. はじめに

東京理科大学・赤外自由電子レーザー研究センターは、科学研究費補助学術創成研究費による研究プロジェクト「赤外自由電子レーザーの高性能化とそれを用いた光科学」（平成11-15年度）の拠点として設立され、自由電子レーザー装置の開発研究とともに、赤外FEL光の波長可変、高出力、短パルスという特長を生かした物質科学、生命科学の光利用研究を推進している^[1-3]。図1に研究センターの全体図と設置されている主な実験装置を示す。

本稿では、中赤外自由電子レーザー装置（発振波長：4-16 μm ）とその利用研究の現状について、平成16年度の成果を中心に報告する。

2. 中赤外自由電子レーザー(MIR-FEL; Mid-Infrared Free Electron Laser)

研究センターには、線形加速器を用いた中赤外自由電子レーザー(MIR-FEL; Mid-infrared Free Electron laser)が設置されている。発振波長は4-16 μm で、光利用実験に用いられている。その構成は、熱カソードRF電子銃 (LaB6単結晶カソード) と α 電磁石の入射部、S-band加速管 (3m)、ビーム輸送部とアンジュレータ (Halbach-type 水平型、磁極: SmCo)、光共振器である。通常電子ビームのエネルギーを40MeVで運転し、4~9.5 μm 程度を供給する。それより長い波長を供給する場合は電子ビームのエネルギーを下げる。同一電子ビームエネルギーでの発振波長範囲内では、アンジュレータギャップを変化さ

ることで波長変更が可能で、実験者が各実験室から遠隔操作もできる。FEL光はパルス幅2psのミクロパルスが350ps間隔の時間構造を持ち、1つのマクロパルス (1-2 μs) を形成する。パルスの繰り返しは最大5Hzである。平成16年度のMIR-FELの運転時間は約1900時間で、利用実験時間は約1350時間である。

3. 利用研究

平成16年度のFEL利用実験のテーマと実験グループの所属機関の一覧を以下に示す。

- 振動励起による光異性化の研究
 東京理科大学理工学部、理学部
- FELによるアンモニア分子の振動励起過程
 東京理科大学理学部
- FELによるCD₃I光解離経路の操作
 東京理科大学理学部
- FELを用いた芳香族分子クラスターイオンの赤外振動分光装置の開発
 東京大学大学院理学系研究科
- 銅表面上のCO₂水素化反応における並進運動および振動励起の寄与の研究
 東京大学大学院理学系研究科
- FEL赤外多光子誘起による紫外・可視時間分解分光
 東京大学大学院理学系研究科

¹ E-mail: timai@rs.noda.tus.ac.jp

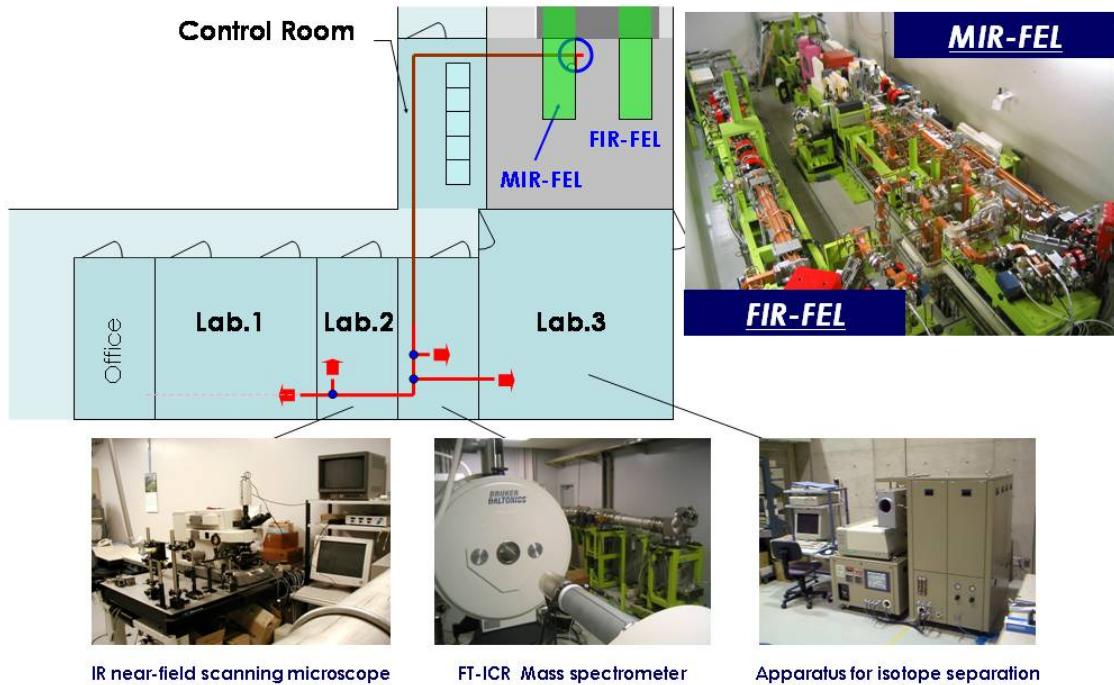


図1：東京理科大学・赤外自由電子レーザー研究センターの全体図と主な実験装置

- ・自由電子レーザーを光源とした赤外近接場顕微鏡の開発
大阪大学大学院工学系研究科
- ・FTMS- FELSUTによる生体高分子イオンの多光子解離に関する研究
産総研生命科学情報研究センター
- ・半導体の非線形光学効果の測定－非線形可視発光
東京理科大学理学部

以下に、いくつかのテーマについて研究成果を述べる。

3.1 振動励起による光異性化の研究

FELは強力な単色パルス光を発生し波長が連続可変であることから、レーザー同位体分離や異性体分離にとって理想的な光源である。FEL-SUTでは既に、同位体分離について、 SiF_3X (X: 置換基) をターゲット材料とした一連の実験を行い、置換基がフェニルである場合、FEL照射のみで Si^{28} を98%以上まで濃縮することに成功し^[4]、選択的多光子励起による結合切断が新しい型の化学プロセス開発の途を開くことを示した。

その一つの試みとして、異性体分離実験を行い 3-Bis(trifluoromethyl)benzene 及び 4-Bis(trifluoromethyl)benzene の混合物気体に 1253cm^{-1} の FEL 光を照射することで、1,3-Bis(trifluoromethyl)benzeneのみを選択的に分解

できることを実証した^[5]。さらに光異性化についても、1,2-Dichloroethyleneのトランス異性体及びシス異性体単体を用い、各々反応を起こすことを実証した。図2は、トランス異性体にFEL光を照射することによりシス異性体が生成された実験結果である。

これらの研究成果は、同位体分離、異性体分離及び光異性化が赤外FELの特定波長を使うことにより可能であると同時に、同位体的及び異性体的な純度を必要とする医薬品や高付加価値化学薬品分離技術への応用可能性を示すものである。

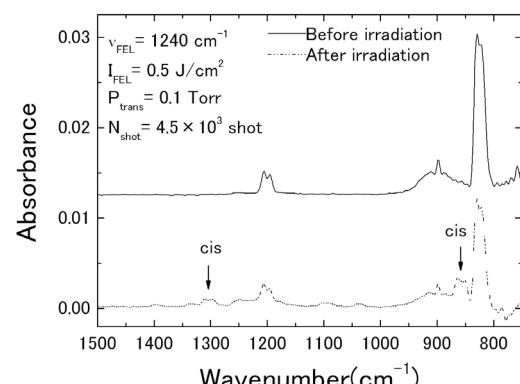


図2 : Dichloroethyleneのトランス異性体にFEL (1240cm^{-1}) 照射した場合の吸収スペクトルの変化

3.2 赤外自由電子レーザーによるアンモニア分子の振動励起過程

赤外レーザー光による小さな気相分子の振動励起は、赤外多光子吸収過程やそれに付随する分子内・間エネルギー再分配過程の詳細を追跡する上で最も基礎となる事項である。MIR-FELからの光と色素レーザーからの光の同時照射による共鳴多光子イオン化（Resonance Enhanced Multi-Photon Ionization; REMPI）の実験を、過去に行なったNOやCOといった2原子分子からさらに進め、小さな多原子分子を代表する分子の一つであるアンモニアを対象に行った。

FEL波長依存性ならびにREMPIスペクトルを広範囲に渡り観測することで、振動・回転量子数までの帰属に成功した。特に基底状態の対称変角モード ν_2 （約952 cm⁻¹）の振動励起においては、FELの波長を最適化することでladder climbingにより2量子数まで励起可能であることが示された。

これはFEL-SUTが赤外+紫外二重共鳴法の光源として応用可能であることを証明する結果ともなった。

3.3 半導体の非線形光学効果の測定－非線形可視発光

FELは、中赤外域で波長可変な赤外振動励起光源、高周波電場が容易に得られる高尖頭出力光源という特徴を持つ。このことから有機分子や固体結晶に容易に非線形光学効果を誘起できると考えられる。特に、コヒーレント格子振動と共に鳴した新たな種類の非線形光学効果の発現可能性があり興味深い。そこで、FEL励起による非線形可視発光の検出を目的と

して実験を行った。試料としては格子振動への共鳴は期待できないが有機固体試料と比べてFEL光に対して損傷閾値が高いと期待される無機半導体結晶を用いた。

ノンドープのZnSe, ZnTe, CdS, CdSe, GaAs, SiCについて8-10 μmの赤外FELによる励起を行い、ZnSeとCdSについて可視バンド端発光を観測した（図3）。発光強度は励起光強度の40乗-70乗に比例し、長波長ほど発光強度が強いことから、終状態や中間状態に共鳴した多光子励起過程でなく、ponderomotiveポテンシャルによって加速された電子による衝突電離過程によって自由な電子正孔対がなだれ的に生成された現象であると結論した。同様の現象は阪大FELグループによってもZnSeで観測されているが、CdSでの観測は初めてであること、不純物発光が見られず、非線形過程の次数が40乗-70乗とはるかに大きいことが本実験の特徴である。ZnTe, CdSe, GaAs, SiCでは損傷閾値以下の励起では可視発光は観測されなかつたが、発光のメカニズムは半導体の種類に依存しないので、不純物濃度のわずかな違いが影響している可能性がある。

4. 今後の予定

科研費プロジェクト期間、そして昨年度はFEL装置のメンテナンスを最小限にとどめ、装置運転と光利用実験を続けてきた。今年度はRF電源、装置冷却水等のメンテナンスを行い、装置の高性能化、安定化を図る予定である。また利用研究については、引き続き各グループの実験をすすめ、中赤外領域における分子科学の基礎研究を中心とした研究活動を推進していく。

謝辞

平成17年度より高エネルギー加速器研究機構との間で共同研究が始まり、加速器運転、技術開発について協力を得ている。戸塚機構長、神谷加速器研究施設長、榎本加速器第三研究系主幹、および入射器グループの皆様の御支援、御指導に感謝致します。

参考文献

- [1] Haruo Kuroda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**, Suppl-1, 1 (2002).
- [2] 中井浩二. 「赤外自由電子レーザー利用技術の展開」 Isotope News 2004年12月号
- [3] T.Imai, et al., "Status of FEL-SUT: IR-FEL Research Center of Tokyo University", Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, URL: <http://www.kasokuki.com/lam29>
- [4] K.Nomaru et. al., *Nucl. Inst. and Meth.*, **A507**, 552 (2003).
- [5] S.Gorelik, K. Nomaru and H. Kuroda, " Selective separation of positional isomers under the action of infrared free electron laser", *Appl.Phys.Lett.*, **85**, No.19, 4529 (2004).

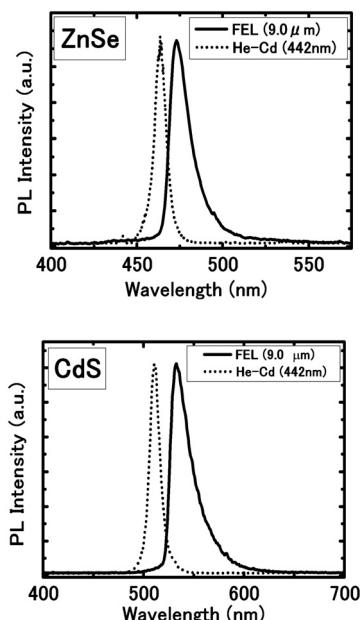


図3: F E L 9 μm 励起とHeCdレーザー442nm励起の発光スペクトル（発光ピーク波長と発光スペクトル形状に違いが見られる）