

大阪大学 遠赤外・テラヘルツ自由電子レーザーを用いた利用研究

入澤明典

大阪大学産業科学研究所 〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘8-1

要旨

自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) は、電子線形加速器と挿入光源から発生する放射光を種光とし、レーザー由来の単色性、大強度性、短パルス性、偏光特性などとともに最大の特徴として波長可変性を有する。遠赤外・テラヘルツ (FIR / THz) 領域の FEL は、いわゆる“テラヘルツギャップ”を埋める強力な光源として、物質と電磁波との相互作用に新たな発見をもたらすことが期待される。本稿では、大阪大学産業科学研究所 (ISIR) THz-FEL のエンドステーションにおける実験環境を紹介し、最近の利用研究成果についていくつか紹介する。

1. はじめに

遠赤外線あるいはテラヘルツ波と呼ばれる電磁波は、ちょうど光と電波の中間に位置し、低エネルギー光子であると同時に高周波電波という両側面を持つ。そのため、理学、工学、医学など様々な分野で Hz (ヘルツ; 周波数), cm^{-1} (カイザー, ウェーブナンバー; 波数), m (メートル; 波長), eV (電子ボルト; エネルギー) と異なる単位が使われている。これらは波長のみがその他に対して反比例し, ISIR THz-FEL で発生することの出来る 3×10^{12} Hz すなわち 3 THz の電磁波は, 他の単位で表現すると式 (1) で示される関係にある。

$$3 \text{ THz} = 100 \text{ cm}^{-1} = 100 \mu\text{m} = 12.4 \text{ meV} \quad (1)$$

一般にはおおよそ 0.1 THz ~ 10 THz がテラヘルツ帯と呼ばれ, “テラヘルツギャップ” として技術的な側面で発展途上の周波数帯でもある。すなわち, 十分な強度, 安定性, 単色性もしくは広帯域性などの特徴を持つ光源や, 高感度, 高速応答, 広ダイナミックレンジ (線形性) を有する検出器の開発と同時に, 学術的な面でも電磁波と物質の新しい相互作用の発見が期待されている。光源としてはプランクの法則に従って黒体 (熱源) から放射される遠赤外線以外にも, ジャイロトロン等の真空管, ガス・固体レーザー, 超伝導素子・非線形光学素子等の固体素子など様々な発生手法が存在するが, その一つに本論文で取り上げる自由電子レーザーがあげられる。ISIR THz-FEL は, メガワット級のピーク強度を持つと同時に単色で波長可変なコヒーレント性の高いパルス光源であるため, 今回紹介するような物質とのユニークな相互作用を示すことがわかってきた。もともと, FEL は 1970 年代に中赤外領域で初めて発振に成功し¹⁾, 研究対象のナノ, サブナノサイズ化やピコ, サブピコ秒での変化を観察したいという目標に応じ

て X 線領域まで短波長化が進められてきた^{2,3)}。その一方で, 継続運転されてきた赤外 FEL 施設は大強度コヒーレント赤外光源としての側面から近年再び注目を集めており, 利用研究数の増加とともに, 海外では新規建設や拡張計画が見られるようになってきた⁴⁻⁷⁾。

2. 産研テラヘルツ自由電子レーザーの特徴

一般的な自由電子レーザーの原理や特徴は他の解説記事に譲るとして, 本論文では大阪大学産業科学研究所 (ISIR) の量子ビーム科学研究施設に設置されている自由電子レーザーについて特徴を述べる。施設は 1957 年に創立し, 1978 年に L バンド電子線形加速器が導入されてからすでに 40 年経過しているが, FEL として初めて発振に成功⁸⁾してから様々な高度化⁹⁻¹³⁾が行われた後, 日本で唯一の遠赤外・テラヘルツ領域の FEL として外部ユーザーを含めた利用実験による研究成果がいくつか報告されるまでに至った¹⁴⁻²³⁾。ビーム設備上流での高度化等に関する詳しい内容や共同研究者や外部利用者による研究成果はそれぞれの論文や解説で確認して頂くとし, 本論文では, 筆者が中心となって構築した利用環境とそれを用いて実施したいくつかの実験例について紹介する。

3. FEL を用いた実験に必要な利用環境の構築

最初に ISIR THz-FEL の典型的なビームパラメータを紹介する。Fig. 1 はパルス状に発生する ISIR-FEL の時間構造を示す。パルス列は 2 つの異なる時間的な階層構造から成り立ち, ここでは最小単位をマイクロパルス, ミクロパルスの集合したものをマクロパルスと呼ぶ。最も長い時間構造から説明すると, マクロパルスは 200 ms 間隔 (5 Hz) で発生し, その中に 100 個程度のマイクロパルスを内包する。マイクロパルスの間隔は FEL 発振モードによって異

なり、9.2 ns と37 ns である。この時間間隔は ISIR-FEL の特徴である電子バンチ（加速電子の塊）の高チャージ化を目的としたプレバンチングシステムの RF 周期によるものであり、9.2 ns 間隔はサブハーモニックバンチャーの108 MHz に由来し、37 ns 間隔は熱カソード型電子銃にインストールされている27 MHz グリッドパルサーに由来する。全ては Klystron の周波数1.3 GHz から導かれる0.77 ns 間隔の倍数である。使い分け方は、ISIR-FEL をプローブ光として利用する分光実験では安定度の高いマイクロパルス間隔9.2 ns のモード（108 MHz operational mode）を用い、物質への照射実験や非線形応答実験では1マイクロパルスあたりの光強度が高くなる37 ns 間隔のモード（27 MHz operational mode）を用いる。マイクロパルスのパルス幅は20 ps 程度であるが、ビーム調整のしかたによ

ては5 ps 程度にまで短くなることが確認されている。Fig. 2 にそれぞれの mode での FEL の波長分散のグラフを示す。単色性はモードで異なり、最もよい条件で108 MHz mode でバンド幅3%程度、27 MHz mode では10%程度である。逆に27 MHz mode で光強度最大になるよう調整を行うとパルス幅は5 ps 程度まで短くなり、複数の FEL 発振モードが共存するような複雑な波長スペクトルを示す。単色モードに比べて総光エネルギー量は増加するが、バンド幅は30~40%まで広がり、もはや単色光とはいえない状況になる。行おうとする実験が、使用する THz wave に短パルス性を求めるのか、単色性を求めるのかを明確にした上で FEL の調整を行う必要があることがわかる。本解説で紹介する実験では、物質との非線形応答を調べる実験を行う場合は27 MHz mode で、線形領域での分光測定実験には108 MHz mode を用いる。どちらの場合も最善の単色性と安定性を目指した調整を行っており、照射エネルギーは27 MHz mode で最大5 mJ/マクロパルス、108 MHz mode で最大1 mJ/マクロパルスである。

FEL の特性を活かした利用実験には光強度安定性、波長制御、および整った光学系が基本条件として必要である。光源強度に関しては、レーザー発振の本質的不安定性やビームコンディションにより、本施設 FEL 装置では最も良い状態でも10%程度の揺らぎが存在する。これは、線形領域での分光計測時だけでなく、非線形領域での照射実験時にも問題となってくる。時間分解ではない分光測定では安定光源の利用が原則であり、非線形領域での現象を観察する際は出来るだけ光強度の安定な条件下で照射時間内の平均値をもって議論するしか有効な手立てがないのが現状であるが、その際にもマクロパルスごとの光強度をモニターしておくことで実験条件の信頼性と再現性を確保することが可能である。特に、分光測定では光源と観測の相対強度を用いることでこの問題が解消できる。Fig. 3 に示すように、分光器を出た直後に低反射率（~5%）のビー

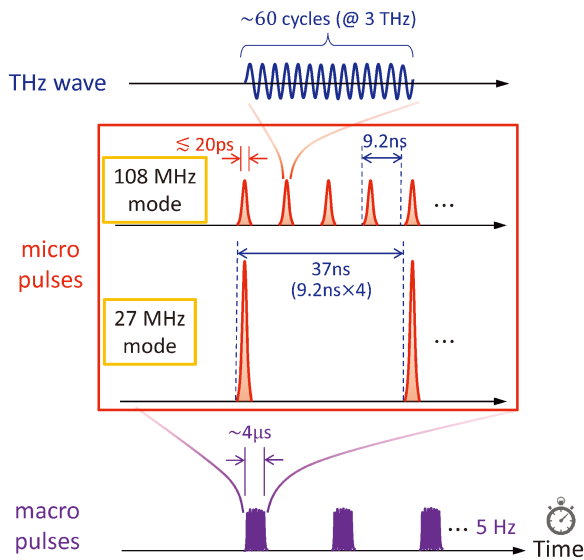


Fig. 1 (Color online) Time structure of the pulsed ISIR THz-FEL. The pulse structure is $\sim 4 \mu\text{s}$ in the macro-pulse and $\sim 20 \text{ ps}$ in the micro-pulse, respectively.

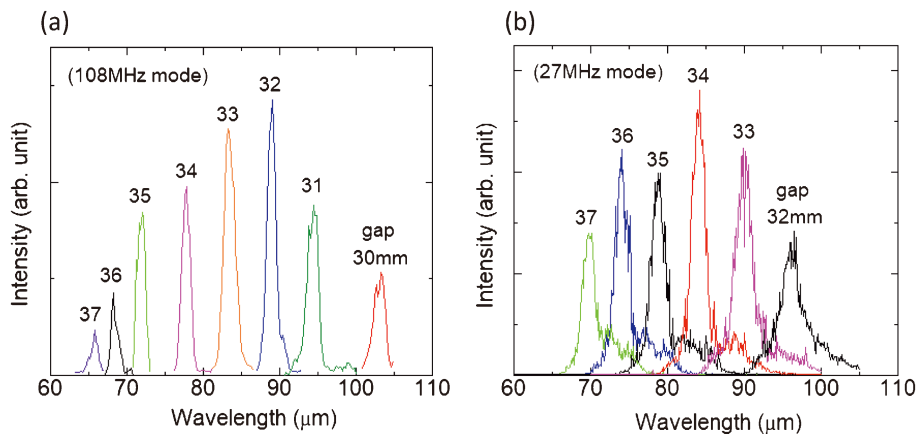


Fig. 2 (Color online) FEL spectra at various undulator gaps in different mode. (a) Spectrum at each gap of 30–37 mm in the 108 MHz mode; (b) Spectrum at each gap of 32–37 mm in the 27 MHz mode.

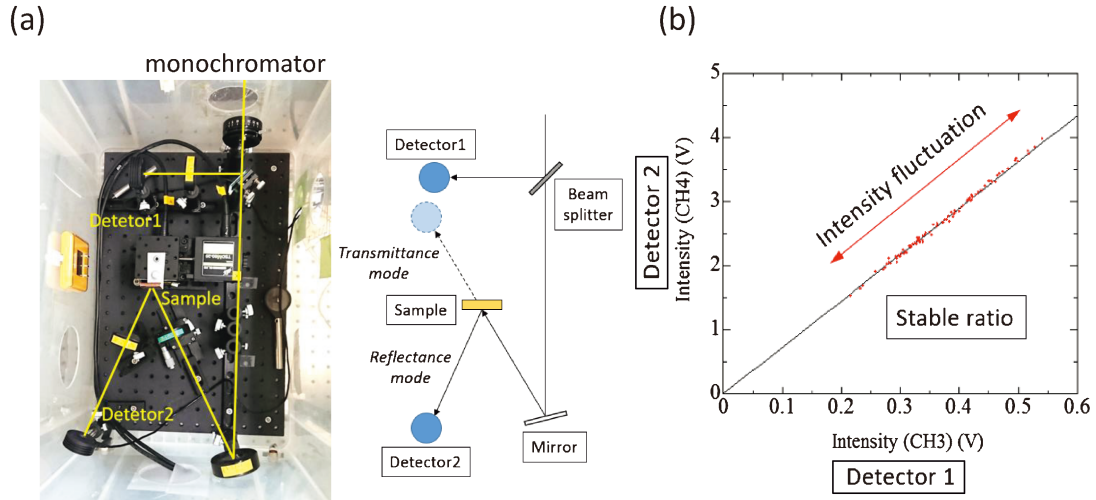


Fig. 3 (Color online) (a) Beam fluctuation monitoring system and (b) stability of sample-reference ratio.

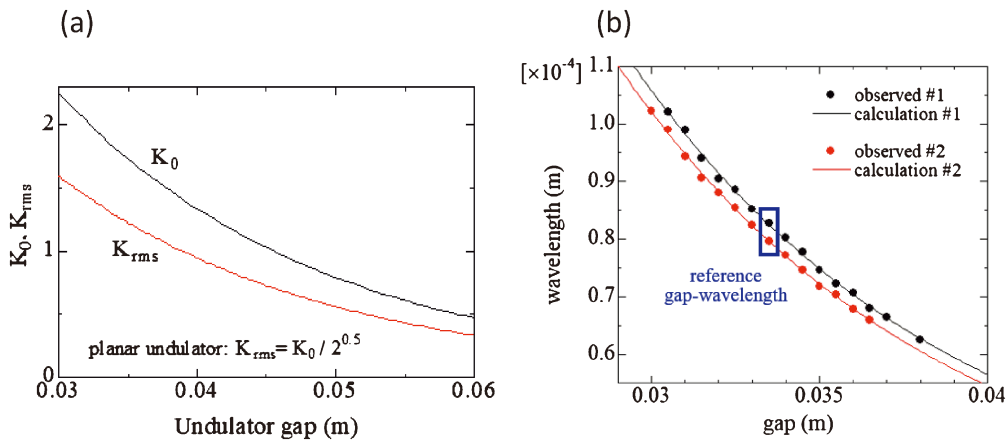


Fig. 4 (Color online) (a) Change in K value due to undulator gap and (b) measured and calculated results in wavelength with respect to undulator gap.

ムスプリッターを設置し、分岐した FEL のそれぞれの強度をパルスごとにモニターする。分光実験の際は試料からの透過もしくは反射光強度を同時計測する強度モニター値で規格化し、それをもって“安定な”光源による計測とする。すなわち、試料が線形応答の領域ではその比率(傾き)は一定で変化しない。また、非線形応答領域でも同様に、試料からの透過もしくは反射光強度を検出すると同時に対応するパルスごとの強度をモニターしておき、入力パルス光強度に応じてデータを再配列することによって非線形応答の閾値や閾値以上での挙動を精密に調べることが可能となる。次に、波長選択で必要となる分光制御に関しては、先に述べた強度モニターによる規格化と併せて連続した波長の掃引が重要となる。Halbach タイプのアンジュレータから放射される光の波長はアンジュレータの特性である磁場と形状に対して式 2, 3, 4 で示される関係が知られている。

$$\lambda_s = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} (1 + K_{rms}^2) \quad (2)$$

$$K_{rms} = \frac{K_0}{\sqrt{2}}, \quad K_0 = \frac{e}{2\pi mc} B_0 \lambda_u \quad (3)$$

$$B_0 = 2B_r \cdot \frac{\sin(\pi/4)}{\pi/4} \cdot \exp\left(-\pi \frac{g}{\lambda_u}\right) \cdot \left\{1 - \exp\left(-2\pi \frac{h}{\lambda_u}\right)\right\} \quad (4)$$

式 3 で示される K 値と呼ばれるパラメータは、式 4 で示されるようにアンジュレータを構成するマグネットの特性 (B_r : 磁場, g : ギャップ長, λ_u : 磁石周期長, h : 磁石の高さ) に関するパラメータを含む B_0 を含む形で表現され、利用運転時にも制御が容易なアンジュレータギャップの調整によって連続的に変更可能である。ISIR THz-FEL におけるマグネット及びアンジュレータギャップの実際のパラメータ値を用いて計算した K 値の変化を Fig. 4(a) に示す。放射されるテラヘルツ波の波長は、ここで計算された

K 値だけでなく、運転立ち上げ時毎に微妙に異なってくるローレンツ因子 γ に起因して変動する。Fig. 4(b) はアンジュレータギャップの変更にもなう実際に観測された放射テラヘルツ波長の変化と、実測値から求めたローレンツ因子を用いて計算された波長変化の図である。両者は非常に良く一致し、いったんアンジュレータギャップと放射波長の相関関数が決まるとギャップ値のみで目的の波長に設定できることが分かる。得られた FEL 光を分光測定に用いるためにはさらに回折格子型赤外分光器を通すことでバンド幅を 3% から 0.1% 程度に絞る必要がある。目的の波長に対してアンジュレータギャップと回折格子を連動してコンピュータ制御することで、単色テラヘルツ波を照射最大強度を保ったまま波長掃引が可能となる。Fig. 5 はこの波長掃引手法を用いて測定した大気中水蒸気の赤外吸収分光スペクトルと、同じ気圧・温度・湿度での HITRAN シミュレーションの結果である²⁶⁾。HITRAN は最大分解能での結果を示してあるが、これと比べてもより分解能の高い実測結果が得られている。このスペクトルの取得に要する時間は約 15 分で、THz-FEL 照射実験の際も、分光計測モードに切り替えることで照射前後での物質の変化をその場観察することが可能になる。FEL 輸送光学系に関しては、光取り出し部分 (coupling hole) から下流の分光器内部を含めた計 8 枚の集光光学系を見直し、ビームプロファイルの最適化を行ったことにより、単純なガウス型の強度分布を持つ THz-FEL 光を得ることに成功した。分光イメージング・顕微分光で用いる光学系の場合、真空槽の 1 inch Φ のダイヤ窓を通して得られるガウス分布の平行光束 THz-FEL は $F = 1.97$ (有効口径 $\Phi = 1$ inch, 焦点距離 $f = 50$ mm) のツルピカレンズで集光され、Fig. 6(a) の様な赤外カメラ像および強度プロファイルとなる。さらに詳しい焦点近傍でのビームプロファイルは、Fig. 6(b) で示す様にナイフエッジスキャンを x 軸および z 軸方向 (光軸方向) で行い確認した。その結果、レイリー長は 3.5 mm 程度と見積もられ、観察試料の厚みが 7 mm 程度までは明瞭な透過イメージが得られると期待できる。これにより顕微分光やイメージングの際の空間分解能が向上した。また、照射実験で用いる強集光光学系の場合、 $F = 1$ (有効口径 $\Phi = 1$ inch, 焦点距離 $f = 1$ inch) の軸外し放物面鏡を用いると焦点位置で半値全幅でおおよそ 200 μm のエリアに集光出来ることも確認しており、照射光密度に依存する非線形応答実験での定量的な考察が可能である。他にも偏光制御も行っている。ISIR THz-FEL はアンジュレータを用いて発生していることから約 97% の水平方向に電場振動する直線偏光となっている。この直線偏光を用いて Fig. 7(a) で示すように直交する位相の 90 度 ($\lambda/4$) ずれた直線偏光の合成により円偏光が作成できる。再合成された FEL を再びワイヤグリッド偏光子を通過させ、その回転角による透過強度の変化をみると、Fig. 7(b) で示すように光路差が位相差としてちょうど 0 もしくは 180 度

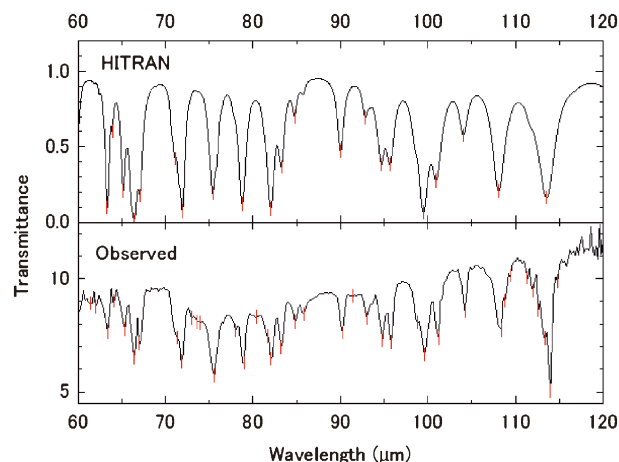


Fig. 5 (Color online) Water vapor absorption spectra by HITRAN simulation and THz-FEL spectroscopy.

($\lambda/2$) の場合には再合成された FEL は水平もしくは垂直の直線偏光であるのに対し、光路差を位相差 90 度 ($\lambda/4$) にすると、ほぼ強度変化のない円偏光状態が作成できている様子が観測された。フリースタンドのワイヤグリッド偏光子を用いることで光強度の減衰はわずかで、異方性やカイラリティを持つ物質のポンプ・プローブなど、これまでテラヘルツ領域では行われてこなかった新しい実験が可能となった。

4. 分光イメージング・顕微分光

以上の環境下において行われた、FEL の高強度性と単色性を活かした遠赤外・テラヘルツ領域での顕微分光、分光イメージングの開発について紹介する²⁰⁾。従来のストレージリング (SR) からの赤外放射光は、熱輻射に基づいた実験室光源と比べて輝度の点で有利であり²⁴⁾、微小領域での分光測定に力を発揮する²⁵⁾。しかし、絶対的な光量は十分ではなく、特に遠赤外領域で分光器を通して波長選択したうえでの 2D スキャン分光イメージングでは半日以上に及ぶ長時間の積算が必要となり、現実的ではなかった。THz-FEL は Fig. 8 に示すように強度、輝度ともに SR 赤外放射光と比べても桁も強く、単色化した FEL を用いても 1 点 1 パルスで計測可能なので、1 cm \times 1 cm のエリアをステップ $\Delta = 200 \mu\text{m}$ でラスタースキャンした場合 (2500 点を 5 Hz でスキャン)、約 8 分で 1 枚の 2 次元分光画像が得られる。

実際に行った CuO, Cu₂O 粉末希釈ペレットの分光イメージングを Fig. 9 に示す。polypropylene (PP) の粉末を基剤にそれぞれの粉末を 5 重量% の希釈状態でペレットに成形した。CuO は 61.5 μm , 67.0 μm に、Cu₂O は 68.0 μm に吸収がある。この 3 波長と特定の吸収がない 70 μm で単色化した FEL の波長を用いて透過イメージングを行

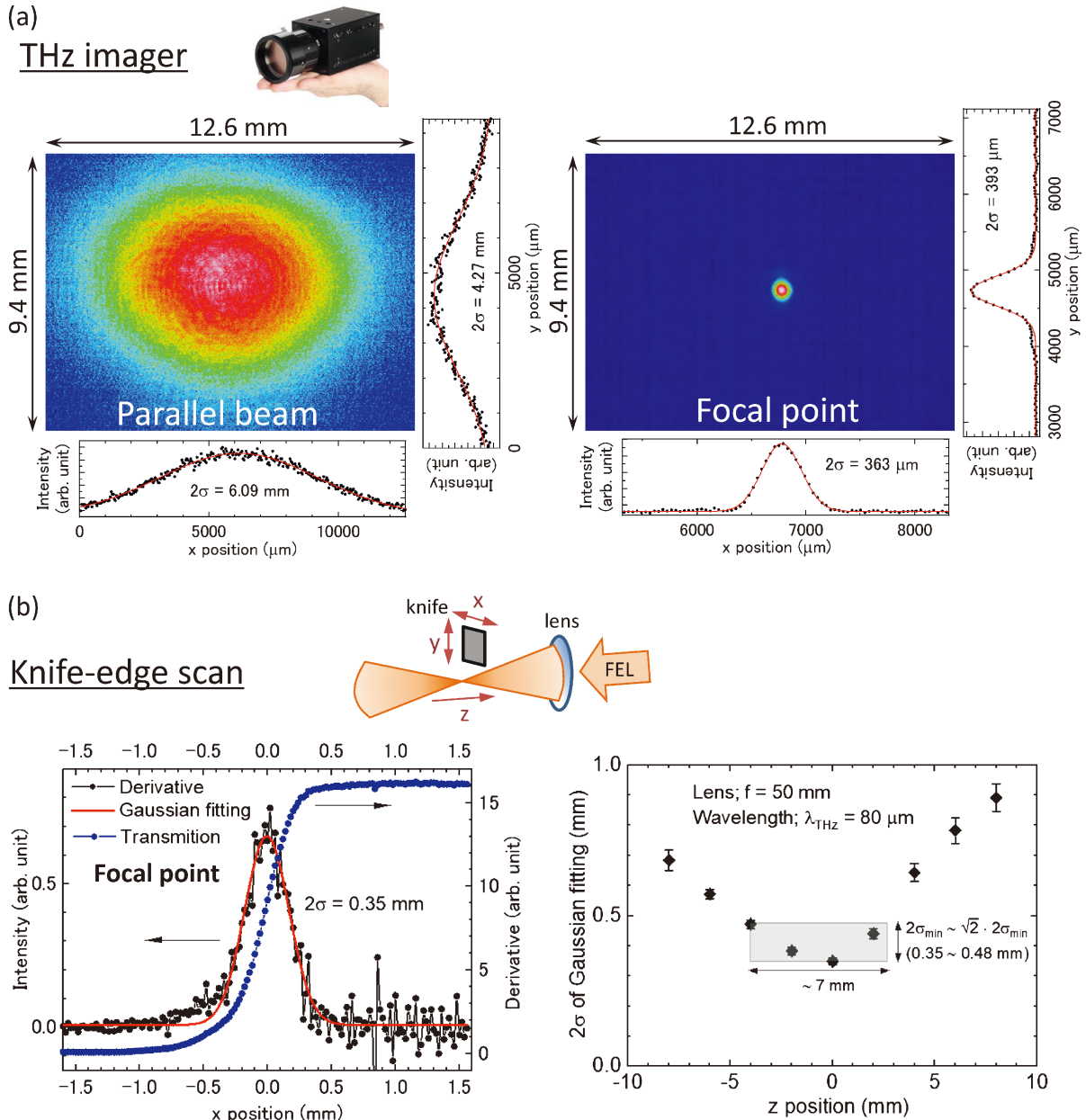


Fig. 6 (Color online) The beam spatial profiles of the ISIR FEL (a) taken with a THz camera for the parallel beam (left) and at the focal point (right), and (b) the spatial resolution measured with the knife-edge scan around the focal point.

った。それぞれの波長での吸収の有無に従ってイメージコントラストが明確に変化しているのが分かる。特に67.0 μm と68.0 μm ではたった1 μm の波長の違いでCuOとCu₂Oのコントラストが明瞭に反転しており、分光イメージングでの単色化したFELの有効性を如実に示している。次に、バーナーで炙ることにより複雑に表面酸化したCu基板で、反射配置での分光イメージング・顕微分光測定を行った (Fig. 10, 11)。まず、Fig. 10では、左半分のエリアは波長61.5 μm のみで反射が下がること分光イメージングで示されており、目視でも判別できるように黒色の

CuOが存在している。しかし、右半分はバーナー加熱による高温燃焼下での酸欠状態も影響して、可視像での見た目ほど単純ではない。全ての波長で反射が低くなるCuO、Cu₂Oの共存するエリア (青) と、全ての波長で基板Cuによる高い反射が得られるエリア (緑) とに分かれていると判断できる。また、X step 30, Y step 20-25付近の細いエリアは波長61.5, 66.0 μm では高い反射を、波長69.0 μm では低い反射を示すことから、Cu₂Oが主に存在するエリアと判断できる。目視では分からない複雑な酸化物の分布状況が分光イメージングによるその場観察によって明らか

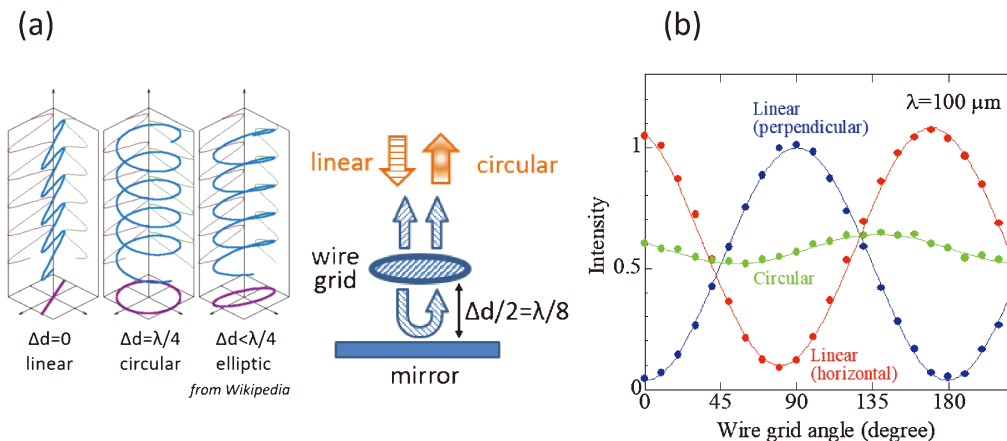


Fig. 7 (Color online) (a) Generation of circularly polarized light by re-synthesis of linearly polarized light and (b) confirmation of polarization degree of recombined THz wave by wire grid rotation.

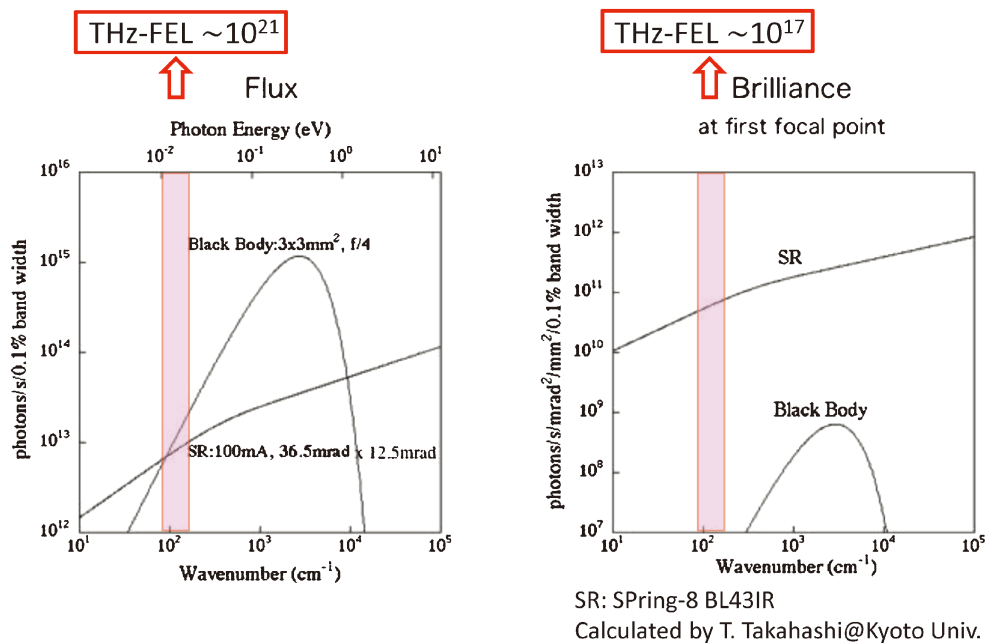


Fig. 8 (Color online) Comparison of photon density and luminance in SR (SPring-8 BL431R), blackbody radiation, and ISIR THz-FEL.

になる点が興味深い。また、Fig. 11で示すように、狙った任意の位置で1ピクセル単位での顕微分光スペクトルが取得可能であり、現在詳しい解析が進行中である。

次に、葉っぱのTHzイメージの波長依存と時間変化の観測を試みた (Fig. 12)。観測に選択したFEL波長は、大気中の水蒸気による吸収が無い領域である。葉の斑の部分近傍では、どの波長域でも新鮮な状態で光を良く透過する様子が見られる。これは次の実験結果も含めての考察であるが、斑の部分は水分や養分が上手く行き渡っていないことを示していると考えられる。実際、波長103 μmでの観測は最初に行ったイメージングであるが、その後の89 μm, 83 μmのイメージに比べ、透過度が高く見える。このことより、3波長でのイメージの違いは単に時間経過に

ともなう水分の蒸発による変化によるものではなく、透過率の波長依存による違いが見えているということが分かる。波長103 μmのイメージは最初と最後の2度測って再現を確認した。さらに、摘んだ直後と比べてどの程度水分が葉っぱの中に残っているのか観測することを目的にいくつかの波長で10時間大気中で放置した葉っぱのイメージングを行った (Fig. 13)。今回は時間に追われることがないので、波長は4波長選んである。さらに波長103 μmではFEL強度を変化させてイメージの変化も見た。まず、目をひくのは波長67 μmで依然葉全体で大きな吸収があるのに対し、波長103 μmではFELがほとんど透過して葉脈の構造が判別できない点である。この大きな波長依存性から、葉っぱのテラヘルツイメージングにおける透過率低

Pellet sample

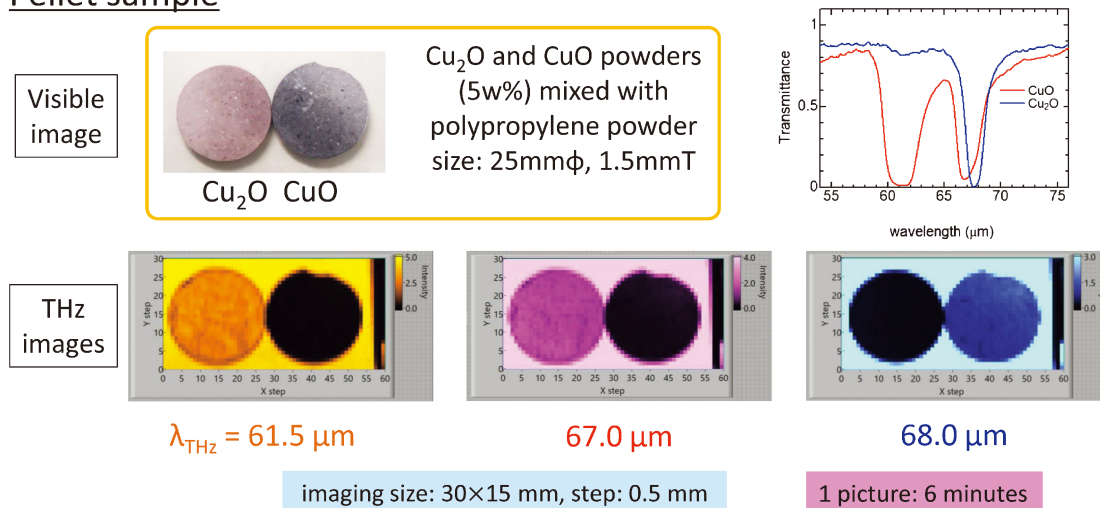


Fig. 9 (Color online) Comparison of transmittance spectra of Cu_2O and CuO , and 2D images of Cu_2O and CuO pellets collected in transmission at several THz wavelengths.

Plate sample

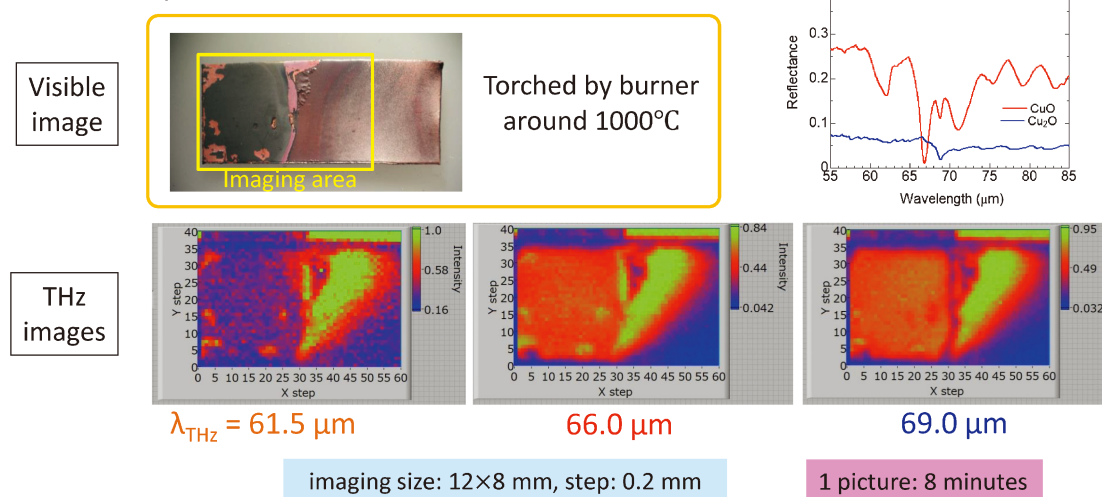


Fig. 10 (Color online) 2D images of Cu_xO sample collected in reflection alignment at several THz wavelengths.

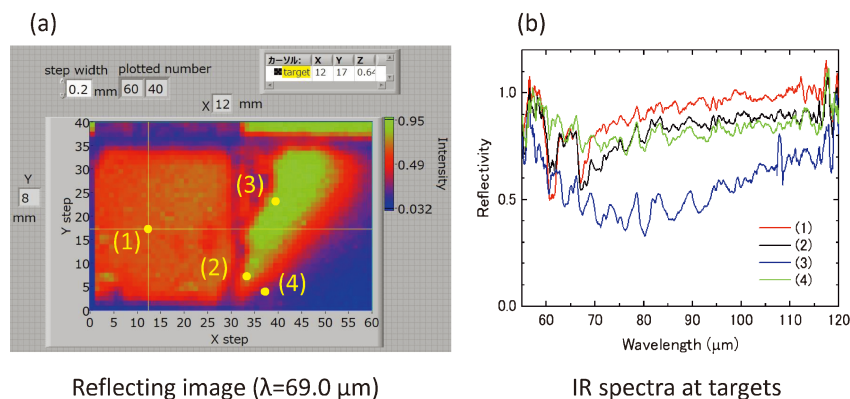


Fig. 11 (Color online) Reflectivities of Cu_xO at several points by in-situ micro-spectroscopy.

Leaf #1 (fresh)

Total measuring time within 30 minutes.

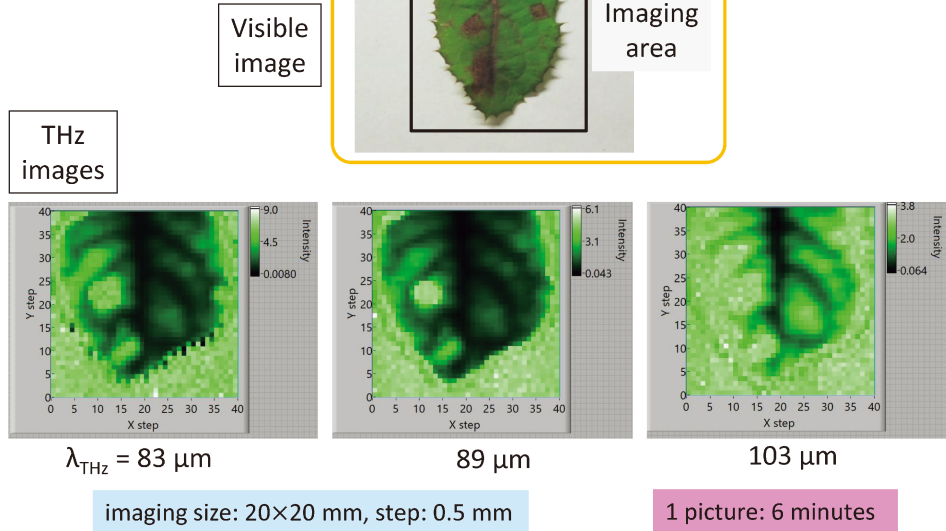


Fig. 12 (Color online) 2D images of a fresh leaf collected in transmission at different THz wavelengths.

Leaf #2 (dried)

Elapse 10 hours in air after picked.

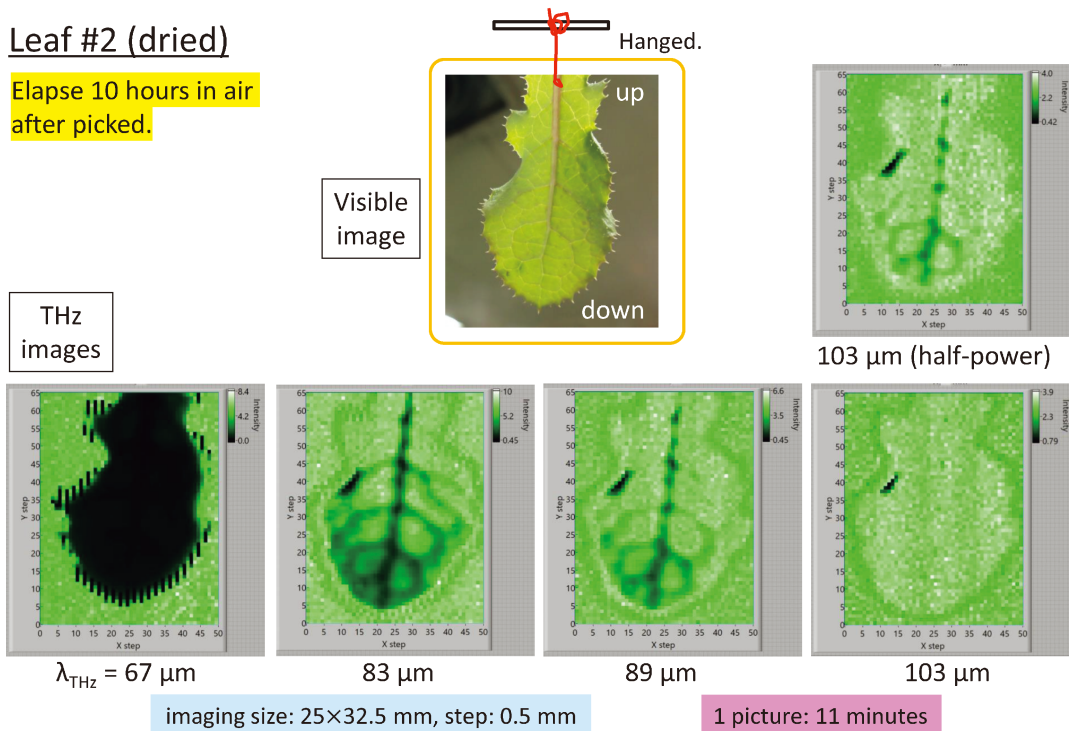


Fig. 13 (Color online) 2D images of a dried leaf collected in transmission at different THz wavelengths and different FEL powers.

下は水分によるだけではなく、葉脈中を流れる他の成分、すなわち養分なども原因であり、10時間たった葉の中の水分はほぼ蒸散していると考えられる。Fig. 12の摘み立て

の葉っぱでは、養分と水分は葉っぱ全体の葉脈に満遍なく行き渡っているが、Fig. 13で示した吊した状態で放置した葉っぱでは、水分が蒸発して行くに従い葉っぱの下方に養

分のみが濃縮されていった結果、イメージの濃淡が葉っぱの下方に偏ったと推測される。さらに興味深い点は、波長 $103\ \mu\text{m}$ で FEL 強度を半分に落としてイメージングを行った結果、見えていなかった葉脈構造が再び観測出来たことである。水分蒸発で残った養分が FEL 強度に対して非線形な透過率を示している可能性が考えられる。不揮発であろう養分の成分分析と葉っぱでの分布調査が今後の課題である。

5. 物質との相互作用（非線形応答）

THz-FEL は光源となる電子のパンチ構造を反映してパルス状に発生する。最小単位のパルス中には高密度の光子が存在し、電磁波としては大電場を局所的に与えることが可能となる。実際の集光条件下では、例えば波長 $\lambda = 70\ \mu\text{m}$ の時の実測値で $2\sigma = 65\ \mu\text{m}$ 程度にまで集光でき、入射 THz 波のエネルギーが $10\ \text{mJ}/\text{マクロパルス}$ の場合、最大で $7\ \text{MV}/\text{cm}$ ほどの電場強度となる。この様なパルス状の大電場下では物質は様々な非熱的非線形応答を示すことが期待され、ここでは半導体における非線形吸収応答と表面超微細構造形成の実験について紹介する。一般に半導体は電子のバンド構造にギャップを持ち、それに満たない光子エネルギーの電磁波にとっては透明な物質として振る舞い、ギャップエネルギーを超える電磁波に対しては電子励起をとまなう吸収応答を示す。しかし、これは通常の 1 光子吸収過程での話であり、強集光下では多光子吸収として知られる様な 1 光子のエネルギーを超えた励起を短時間に起こすことが可能である。同様の現象が THz・遠赤外領域の電磁波でも起こることが予想され、Fig. 14 (a) に示すように z-scan 法によって単結晶半導体シリコンで非線形吸収が観測された²⁷⁾。シリコンはバンドギャップが約 $1.1\ \text{eV}$ であり、用いた波長 $\lambda = 70\ \mu\text{m}$ 程度の THz-FEL が持つ光子エネルギー約 $18\ \text{meV}$ で換算すると実に 60 倍以

上のギャップを超える電子励起が起こったことになる。一般に用いられる近赤外領域の大強度パルスレーザーでの多光子吸収はせいぜい数光子であり、桁違いの光子数となる。一方で電波として考えると、THz-FEL のような波長の長いレーザーの場合は回折限界に近い集光条件下において空間的、時間的に揃った（コヒーレントな）電磁波として電場が合成され振幅増大し、結果として光子数で換算すると数十に相当する多光子吸収が実現しているものと考えられる。また、半導体シリコンではこの様に一定の光強度範囲で非線形吸収応答が可逆的、すなわち物質にダメージを与えることなく観測されるが、さらに大強度の THz-FEL を入射した（してしまった）場合に表面に不可逆的な変化を与える様子が観測された。当初、入力過多による単なるアブレーションダメージが出来た（穴が開いた）だけと放置していたが、あらためて実体顕微鏡下で可視像を観測すると全く予想外の周期構造が形成されていることが判明した。Fig. 14 (b) に波長 $\lambda = 82\ \mu\text{m}$ 、マクロパルスで 10 ショット照射したときの Si 表面に形成された縞状の構造を示す。まず思い浮かんだのは、光学系由来で生じた干渉パターンの可能性だったためがっかりしかけたが、光軸調整や光学窓の撤去後でも安定して観測されたため、FEL による本質的な現象と考えるに至った。半年ぐらい悩み、共同研究者らと議論した末に、これは近赤外領域のレーザーでは 1965 年にすでに存在が知られていた LIPSS (Laser Induced Periodic Surface Structure) と呼ばれているレーザー誘起表面微細構造に相当するものだと判明する²⁸⁾。先行研究では波長が $800\ \text{nm}$ の近赤外を中心としたレーザーのみであったが、発見から 50 年近くたって波長の大きく異なる $80\ \mu\text{m}$ 付近での LIPSS 生成を観測したことになる。LIPSS の縞の方向は常に FEL の偏光方向に平行であり、単にレーザー加工の様な熱的な現象のみでは説明できない。また、一般に光による観察や加工では回折限界により

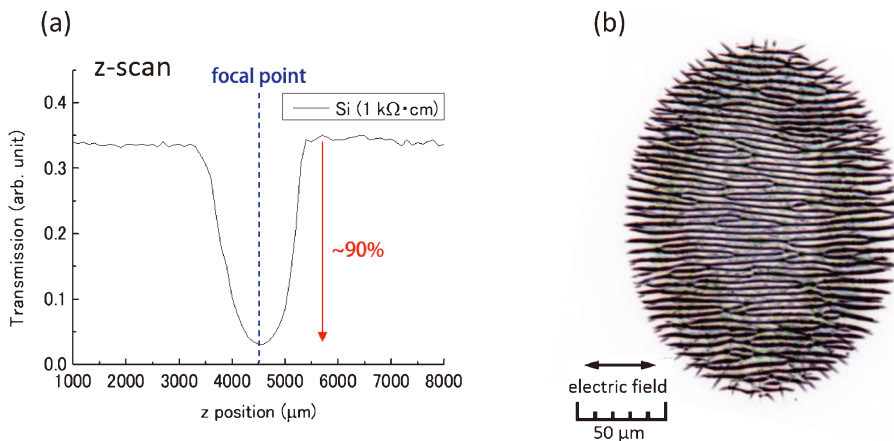


Fig. 14 (Color online) (a) Nonlinear absorption on Si wafer and (b) visible picture of LIPSS generated on Si wafer surface.

波長程度の空間分解能が最小値となるが、近赤外での LIPSS 間隔は波長以下の 0.4λ 程度まで観測されていた。このことより、超微細加工技術への応用とその生成機構の解明を目的に数々の実験及び理論面からの研究がこれまでなされてきたが、未だ解決に至っていない。遠赤外線という波長の大きく異なる領域で波長可変のレーザーによる LIPSS が発見されたことにより、観測の容易さも加わり実験及び理論の両面で大きく研究が前進することが期待される¹⁶⁾。加えて、THz-FEL での LIPSS 間隔は波長に換算すると 0.04λ にも及ぶ超微細構造であり、これまで近赤外レーザーでの研究で提唱されてきた表面プラズマを原因とするモデルなどでは説明できない。Fig. 15 (a), (b) で示すように、LIPSS の縞間隔は入力する光強度によって変化したり、波長とともに変化したりする。興味深いのは、Fig. 15 (c), (d) で示すように照射マクロパルス数によっても縞の間隔が変化する点である。マクロパルスは繰り返しが 5Hz (200ms 間隔) で、電子励起緩和よりも十分に長い時間スケールである。パルスショット数を変えて表面構造を観察すると、ショット数増加に伴い LIPSS が単に蓄積するような「重ね書き」ではなく、いったん消去されたのち再構成される様な「上書き」であるということが分かった。照射数を増加していくと、顕微鏡下でアブレーション

の痕跡が確認され、顕微 Raman 分光からは LIPSS の縞同士の間の表面で結晶性が向上しているとの観測結果もあり、マクロパルス単位で熱的な融解にまで到達している可能性が示唆される²⁹⁾。つまり LIPSS 生成現象は、縞間隔や方向の THz-FEL 電場特性に依存するという「非熱的」な性質とともに、上書きされながら照射パルス数に対する履歴現象をともなうという「熱的」な性質の両面を持ち合わせていることになる。また、Fig. 15 (c), (d) に示すように、照射エネルギーを変えた場合、波長を変えた場合、いずれの場合でも対数-対数プロットしたグラフで傾きがほぼ一定であるというべき乗則が成り立つ。先行研究の近赤外レーザーによる LIPSS 実験結果も再プロットしてみたところ、異なる物質でも同様のべき乗則が成り立っていることが示唆された。すなわち、用いるレーザーの波長や時間特性、照射対象物質の種類や状態、出来た LIPSS の間隔や形態がそれぞれで異なっている場合でも、LIPSS 生成現象には共通なスケーリング則が成り立っている可能性が高い。実は、これまでも LIPSS の生成に関して「自己組織化」というフレーズは何度か使われてきた。LIPSS 生成が、熱的開放系においてレーザーによる大エネルギー注入と拡散をともなう非平衡状態下で起こる現象³⁰⁾であるという観点から自然と「自己組織化にともなう散逸構造」

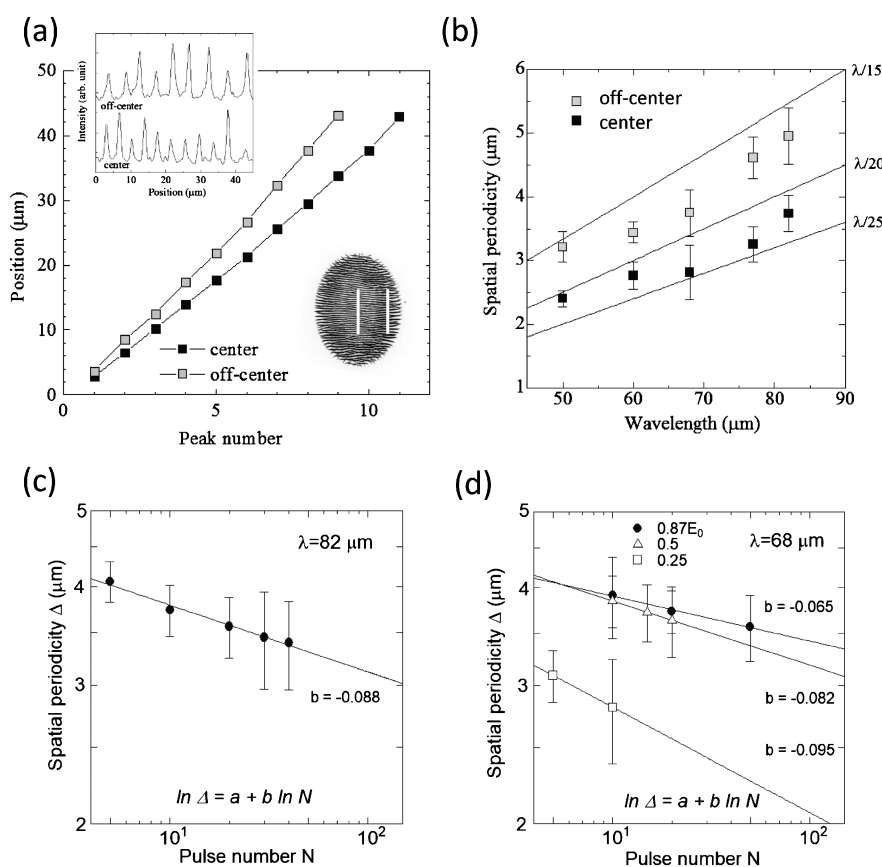


Fig. 15 (a) Position and (b) wavelength dependence of LIPSS periodicity. The changes in LIPSS periodicity vs number of irradiated pulses at a wavelength of $82\ \mu\text{m}$ (c) and of $68\ \mu\text{m}$ (d) at various intensities (log-log plot).

と考えられたのであろう。しかし、具体的な実験結果を用いて解析し、自己組織化臨界現象³¹⁾で見られるようなスケーリング則の成立を示したのは本研究が初めてであり、同様の実験が今後展開され、LIPSS生成メカニズムの理解がさらに深まることを期待したい。照射物体にどのような物性変化が起こっているのか、様々な手法を用いた研究が目下進行中であり、この摩訶不思議な現象が解明できることを楽しみにしている。

6. 他の照射実験および今後の展開

ここで紹介した研究以外にも、高分子化学やレーザー物理の観点から有機物、分子性化合物、生体物質を対象とした非熱的相変化や化学結合励起といったユニークな実験が展開されている。FEL発生自体の基礎研究も含め、コヒーレントな大強度単色パルス光の特性とそれを用いた物質との相互作用に関する研究といった光源開発と利用実験の両輪で研究展開できる条件が揃っている点で、電波と光の両方の特性を併せ持つテラヘルツ・遠赤外領域のFELは大変興味深い研究の場を提供する装置であるといえる。また、日本では他にも本特集で取り上げられている様に波長域の異なるFEL装置が複数箇所稼働中であり、遠赤外線からX線といった広範囲のエネルギー・波長領域で利用実験が行える環境にある。今後は、これら研究施設の相互利用・情報交換を進めながら様々な分野を超えた新しい科学研究の展開が期待される。最後に、本稿で取り上げたFELに限らず放射光施設での利用研究全般に言えることであるが、安定した利用実験環境は光源開発側の多大な尽力なくしては成り立たない。私を含め放射光の供給を受ける利用側の研究者は、光源の発生原理、特性、現状を出来るだけ学び、把握した上で実験環境整備に協力し、得られる実験結果の解釈と今後の課題、新しい展開の可能性を示すことが責務であり、忌憚のない言葉をもってフィードバックすることが光源開発側への幾ばくかの恩返しになると信じている。

謝辞

実験が円滑に行えるようFEL立ち上げ作業および調整をおこなって頂いた川瀬啓吾氏、久保久美子氏、古川和弥氏、岡田宥平氏、松門宏治氏に感謝します。加速器・FELに関する様々な知識・経験をご教授いただいた加藤龍好氏、柏木茂氏、藤本将揮氏、清紀弘氏、全炳俊氏、東谷篤志氏、築山光一氏、菅滋正氏、Stefano Lupi氏、Aldusto Marcelli氏に感謝します。全ての方の御名前を挙げることは出来ませんが、学内外の多数の方々が共同研究および利用研究の形でISIR THz-FELを利用し、様々な情報・議論を提示していただきました。この場をお借りして感謝します。

また、研究経費では、科研費、拠点・アライアンス経費

を含む大阪大学の運営費交付金、日本イタリア科学技術協力エグゼクティブ・プログラムでのイタリア政府による助成、分子科学研究所・京都大学による放射光施設利用経費支給や企業との共同研究費など、多方面から支えていただいております。関係各位に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) D. Deacon *et al.*: Physical Review Letters **38**, 892 (1977).
- 2) T. Shintake *et al.*: Nature Photonics **2**, 555 (2008).
- 3) T. Ishiakwa *et al.*: Nature Photonics **6**, 540 (2012).
- 4) A. Perucchi *et al.*: Review of Scientific Instruments **84**, 022702 (2013).
- 5) K. Buakor *et al.*: Proceedings of IPAC2017 **2763-2766**, WEPAB083 (2017).
- 6) S. Miginsky *et al.*: Proceedings of FEL2017 (Pre-Release), MOP048 (2017).
- 7) H.-T. Li *et al.*: Chinese Physics C **41**, 018102 (2017).
- 8) S. Okuda *et al.*: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **358**, 244 (1995).
- 9) R. Kato *et al.*: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **445**, 169 (2000).
- 10) S. Kashiwagi *et al.*: Physical Review Accelerators and Beams **12**, 120703 (2009).
- 11) K. Kawase *et al.*: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **726**, 96 (2013).
- 12) S. Suemine *et al.*: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **773**, 97 (2015).
- 13) A. Tokuchi *et al.*: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **769**, 72 (2015).
- 14) H. Hoshina *et al.*: Scientific Reports, 6:27180 (2016).
- 15) M. Nagai *et al.*: New Journal of Physics **19**, 053017 (2017).
- 16) A. Irizawa *et al.*: Applied Physics Letters **111**, 251602 (2017).
- 17) K. Makino *et al.*: Scientific reports **8.1**, 1 (2018).
- 18) T. Kawasaki *et al.*: Scientific reports **9.1**, 1 (2019).
- 19) S. Macis *et al.*: Condensed Matter **5.1**, 16 (2020).
- 20) A. Irizawa *et al.*: Condensed Matter **5.2**, 38 (2020).
- 21) S. Yamazaki *et al.*: Scientific reports **10.1**, 1 (2020).
- 22) T. Kurihara *et al.*: Scientific reports **10.1**, 1 (2020).
- 23) M. Tsubouchi *et al.*: Scientific reports **10.1**, 1 (2020).
- 24) S. Kimura *et al.*: Proceedings of 8th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation **CP705**, 416 (2003).
- 25) A. Irizawa *et al.*: Physical Review B **84**, 235116 (2011).
- 26) HITRAN: Atomic and Molecular Physics Division, Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics.
Online available: <http://www.hitran.org/>
- 27) A. Irizawa *et al.*: Potential of FEL in FIR-THz region, 2015 Autumn Meeting of The Japanese Physical Society, Osaka, Japan, 2015.
- 28) M. Birnbaum *et al.*: Journal of Applied Physics **36**, 3688 (1965).
- 29) 長島健, 入澤明典, 他: [8a-A410-7] Si基板表面のテラヘルツ帯自由電子レーザー誘起周期構造, 第78回応用物理学会秋期学術講演会, 2017.
- 30) I. P. N. Gregoire *et al.*: Self-organization in nonequilibrium systems, Wiley, New York, Vol. 191977, 1977.
- 31) P. Bak *et al.*: Physical Review A **43**, 364 (1988).

著者紹介



入澤明典

大阪大学産業科学研究所 助教

E-mail: irizawa@sanken.osaka-u.ac.jp

専門：固体物理，赤外放射光

【略歴】

2001年，京都大学大学院理学研究科博士後期課程化学専攻修了，博士(理学)取得。COE 研究員，日本学術振興会特別研究員，COE 特任助手，助手，助教，特任助教として大阪大学，神戸大学を経た後，2012年より現職。

User experiments using THz-FEL in ISIR Osaka University

Akinori IRIZAWA The Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR), Osaka University, 8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan

Abstract A free electron laser (FEL) is based on synchrotron radiation emitted from an insertion light source with an electron linear accelerator, and has characteristics such as wavelength tunability, monochromaticity, high intensity, pulse property, polarization property and the like. A FEL in the far infrared (FIR) / terahertz (THz) region is expected to bring new discoveries to the interaction between materials and electromagnetic waves as a light source covering the missing region so-called "terahertz gap". In this paper, after introducing the current experimental environments of the end station at ISIR THz-FEL, several recent research results are given.