

長波長赤外領域における数サイクル FEL パルスによる気体、固体の発光現象 EMISSION PHENOMENA OF GASES AND SOLIDS BY FEW-CYCLE FEL PULSES IN LONG-WAVELENGTH INFRARED

羽島良一^{#, A)}, 全炳俊^{B)}, 大垣英明^{B)}

Ryoichi Hajima^{#, A)}, Heishun Zen^{B)}, Hideaki Ohgaki^{B)}

^{A)} QST, Kizugawa, Kyoto

^{B)} Kyoto Univ., Uji, Kyoto

Abstract

Free-electron laser oscillators operating in the superradiant regime produce ultrashort pulses that contain only a few cycles of the electric field of light. Succeeding in the generation of such FEL pulses at the Kyoto University FEL facility (KU-FEL), we have initiated experiments to explore intense light field science in the mid-infrared and long-wavelength infrared regions, which have been difficult with conventional solid-state lasers. In the experiments, we observed laser-induced breakdown of gases and photoluminescence from a ZnSe plate. In this paper, we report the experimental results followed by a discussion of the mechanism of these emissions, considering the differences in the FEL operation modes (thermal cathode mode or photocathode mode).

1. はじめに

超放射 (superradiance) は、放射場で結合した多数の原子が協働して光を放出する現象として、1954 年に R. Dicke がその存在を予言し[1]、その後、HF ガスの発光として実験的に観測された[2]。超放射では、放射に寄与する原子数を N とした時に、放射のピーク強度が N^2 に比例し、放射のパルス幅が $1/N$ に比例するという特徴がある。

自由電子レーザー (Free-Electron Laser; FEL) においても、FEL 発振に寄与する電子数 (N) の二乗でピーク強度が増大し、 $1/N$ に比例してパルス幅が短くなる現象があり、R. Bonifacio らは、これを超放射 FEL と呼んだ[3]。共振器型 FEL では、一定の条件を満たすときに、超放射発振が現れ、光の電場周期を数サイクルしか含まない超短パルスが生成されることが、理論解析、数値解析で示され、実験でも確認されている[4]。

共振器型 FEL の超放射発振では、FEL パルスを集光した時の光強度が、原子や分子にトンネル電離を生じる強度 (およそ 10^{13} W/cm²) を超え、これを用いた強光子場科学研究の展開が可能となる。数サイクルの光パルスをを用いた強光子場科学研究は、チタンサファイアレーザー (波長 0.8 μm)、Yb レーザー (波長 1 μm)、および、これらレーザーを波長変換して得られる中赤外パルスをを用いた実験が行われているが、長波長赤外 (8-15 μm) の実験は未開拓である。波長可変の FEL は、長波長赤外にて強光子場科学研究を可能とするユニークな光源である。

われわれは、超放射領域で動作する共振器型 FEL で発生する数サイクルパルスを利用した中赤外、長波長赤外領域の強光子場科学の開拓を目指した研究を進めている。本稿では、強光子場反応による気体、固体の発光実験について報告する。

2. 気体の発光実験

2.1 熱陰極運転における窒素の放電発光

京都大学の FEL 施設である KU-FEL は、電子銃の動作モードの切り替えによって、熱陰極運転、光陰極運転の二通りの運転が可能である[5, 6]。熱陰極運転では、2856 MHz の繰り返しで最大 60 pC の電荷をもったバンチが加速され、光陰極運転における繰り返しとバンチ電荷は 29.75 MHz、200 pC である。KU-FEL を超放射領域で動作させることで、約 10 μm の波長において、熱陰極運転では 6.7 サイクル、光陰極運転では 4.2 サイクルの超短パルス生成が確認されている[7]。実験ステーションで測定したマイクロパルスエネルギーは、それぞれ、4 μJ 、30 μJ である (マクロパルスにおける最大値)。

2020 年までに KU-FEL でおこなった実験にて、このような超短パルスを大気中で集光した際、熱陰極運転では破裂音を伴う放電発光が観測されたが、光陰極運転では放電発光が起こらないという結果が得られた。パルスエネルギー、集光強度ともに大きな光陰極運転で放電発光が見られないのは、なぜだろうか。これを調べるため

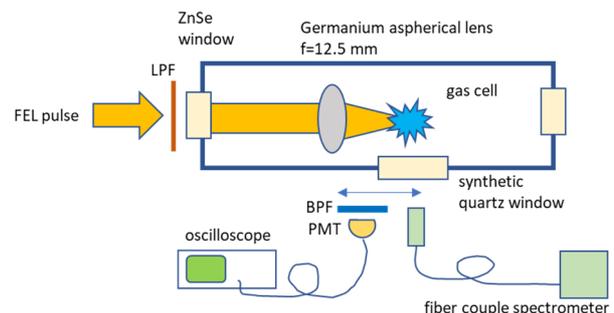


Figure 1: Experimental setup for the laser induced gas breakdown measurements.

[#] hajima.ryoichi@qst.go.jp

に実験と考察を行った。

実験体系を Fig. 1 に示す。FEL の高調波をカットするためのロングパスフィルター (7.3 μm -LPF, Edmund #68-662) と赤外窓 (AR コート付き ZnSe) を通してガスセルに入射した FEL パルスを、セル中に設置した非球面レンズ (AR コート付き Ge, $f=12.7$ mm, Edmund #89-607) で集光した。ガスからの発光は合成石英窓を通して観測し、ファイバークップル分光器 (ASEQ LR1-B) によるスペクトル測定、および、バンドパスフィルタと光電子増倍管 (PMT, Hamamatsu Photonics R1477) を使った発光の時間波形測定を行った。ガスセルに充填する気体は窒素、アルゴン、大気を用いたが、ここでは窒素の結果を報告する。KU-FEL は熱陰極運転であり、波長は 10.3 μm 、パルスエネルギーはマクロパルス終端で 4 μJ 、パルス時間幅 270 fs (FWHM)、集光スポットサイズは 13 μm ($1/e^2$ 半径) である。

Figure 2 に圧力 1.7×10^5 Pa の窒素の放電発光スペクトル (波長ごとの感度補正前のデータ) を示す。データベース [8] を参照して発光線を同定したところ、多くの発光線は窒素原子の 1 価イオン (N-II) の励起準位に対応付けることができた。図中緑の矢印で示したブロードなスペクトルは、窒素分子の励起準位間の遷移 ($C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$, $B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$) に対応する波長領域であるが、それぞれの遷移に含まれる回転準位ごとの発光線は分離できていない。

次に、バンドパスフィルタなしで測定した発光の時間波形を Fig. 3 に示す。発光が起こるタイミングは、FEL マクロパルスに対して一定ではなく、確率的な事象が発光を支配していることが示唆される。また、発光はマイクロ秒オーダーの減衰時間を示している。ガス圧を 0.6×10^5 から 1.7×10^5 Pa の範囲で変えた実験では、ガス圧が高いほど発光頻度が大きくなる結果となった。

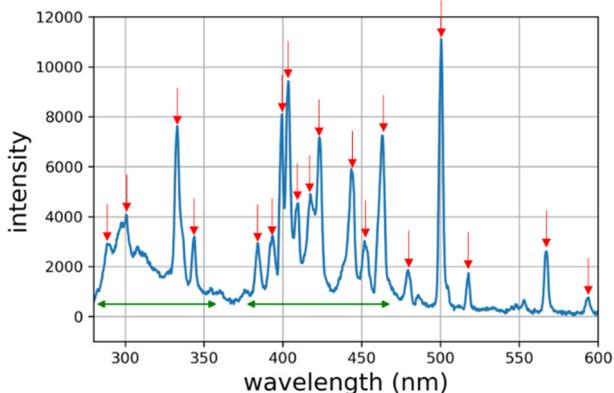


Figure 2: Emission spectrum of laser-induced breakdown from nitrogen gas at 1.7×10^5 Pa before sensitivity calibration. The red arrows are emission lines for nitrogen atomic ions (N-II). The green arrows correspond to emission bands of nitrogen molecules ($C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ and $B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$).

2.2 放電発光メカニズムの考察

レーザーによる気体の放電発光は、レーザーが発明された直後から実験が行われており、レーザー波長、パルス長に対する集光強度の閾値が求められている。これ

らの実験結果は、以下のメカニズムで説明できる [9]。

- (1) まず、気体原子の電離により種電子が生成する (多光子吸収などレーザー由来、あるいは、宇宙線などの自然放射線由来)
- (2) レーザー光子、原子、電子の三体衝突 (逆制動放射) により電子が加速される
- (3) 加速した電子が原子へ再衝突し電離電子の増倍が起こる
- (4) 電子の増倍の結果、電子密度が臨界値を超えると放電が生じる

宇宙線由来の電離は、大気中において ~ 2 event/s/cm³ とされており [10]、FEL のパルス長とスポットサイズでは無視できるので、放電の種電子はレーザー由来と考えてよい。ガス圧の増大で放電頻度が大きくなる点も、上記のメカニズムで定性的に説明できる。しかしながら、窒素のガス圧 10^5 Pa、電離電子の温度 100-300 eV の場合について、断面積データベース [11] を用いて FEL ミクロパルス (270 fs) 中での電子と分子の衝突回数を求めると、1.5-2.1 回となり、単一マイクロパルスでは雪崩的な電子増倍が起こらない。したがって、実験で観測された放電は、多数のマイクロパルスからなるパルス列において、電子増倍が徐々にビルドアップした結果であると考えられる。

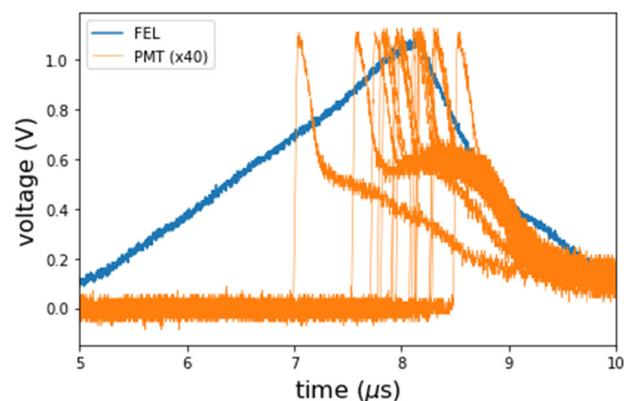


Figure 3: Waveforms of FEL macropulse and emission from breakdown of nitrogen gas (1.0×10^5 Pa, no filter at PMT).

パルス列における電離電子のビルドアップは、パルス間における電子拡散とも関係する。プラズマデータベース (拡散係数) [12] を用いて、マイクロパルス間隔での電子の拡散を計算すると、熱陰極運転のパルス間隔 (350 ps) で、集光スポット中心の電子密度が 14% に減少し、光陰極運転 (パルス間隔 33.6 ns) では、電子密度が 10^{-8} となることが示される。光陰極運転で放電発光が見られないのは、パルス間の電子拡散の効果によるものと考えられる。

ところで、強光子場で電離した電子はレーザー場で加速を受けるが、この時、レーザーの 1 サイクルの間に電子が受け取るエネルギーがポンドロモティブ・エネルギー (U_p) である。 U_p は集光強度と波長の 2 乗の積に比例するので、同一集光強度では、波長 10 μm のレーザーは 1 μm のレーザーに比べて、100 倍大きな U_p となる。われわれの実験条件では、 $U_p=66$ eV となり、生成した種電子は逆制動放射による電子加速を経ずとも再衝突電離を行うことができる。このような場合について、上記の放電発光のプロセスを修正する必要があるかどうか、

さらに検討を行う必要がある。

2.3 光陰極運転における大気の放電発光

光陰極運転において、非球面レンズ (ZnSe、 $f=12.7$ mm, Thorlabs AL72512-E3) を用いて大気中で FEL パルスを集光したところ、破裂音を伴う放電発光は見られなかったが、光電子増倍管 (PMT、Hamamatsu Photonics R2658) による測定では、発光が観測された。実験条件は、FEL 波長 $8.7 \mu\text{m}$ 、パルス幅 150 fs、ピーク集光強度 $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ である。Figure 4 は、波長 337 nm のバンドパスフィルタ (Edmund #89-607) を挿入した時の PMT 波形を FEL 波形とともにプロットしたものである。マイクロパルス毎に発光が生じ、次のマイクロパルスまでに減衰している様子が見える。 337 nm の発光は、窒素分子の蛍光であり、 $\text{C}^3\Pi_u$ から $\text{B}^3\Pi_g$ への、それぞれ最低回転準位間の遷移に対応する。波長 $1.6 \mu\text{m}$ の固体レーザーを用いた実験では、窒素の 337 nm の発光がトンネル電離電子収量の計算値と一致することが確認されている[13]。Figure 4 において、FEL パルス列の強度に対して、PMT の信号が非線形に変化しているのは、 337 nm の発光がトンネル電離に由来していることを示唆している。

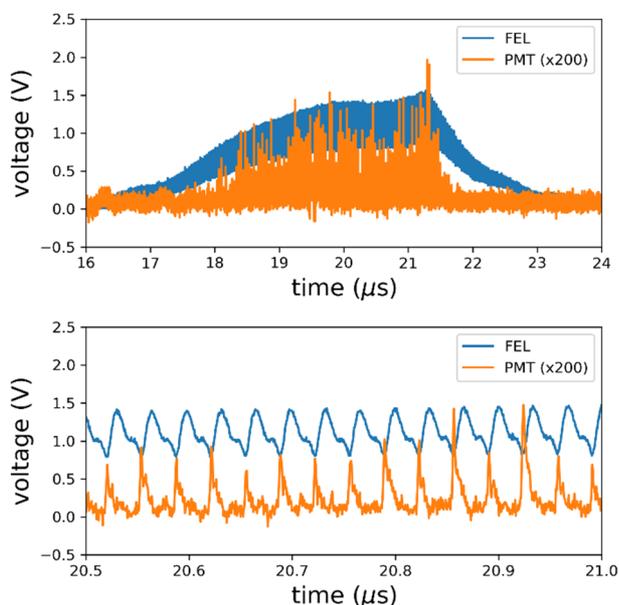


Figure 4: Waveforms of FEL pulse and PMT signals with a bandpass filter of 337 nm .

3. 固体の発光実験

KU-FEL の光陰極運転にて ZnSe 平凸レンズ ($f=50.1$ mm, Thorlabs LA7656-E3) を用いて ZnSe 板 (厚さ 4 mm) に FEL パルスを集光したところ、Fig. 5 に示すように波長 479 nm にピークを持つ発光が観測された。実験条件は、前節と同じである。この発光の波長は、ZnSe のバンドギャップ (2.7 eV) にほぼ等しいため、半導体のフォトルミネセンス (PL) と考えられる。PL は、半導体の価電子帯中の電子が光を吸収することで伝導帯へ遷移し、直後に伝導帯の電子と価電子帯のホールが再結合する際に生じる発光である。伝導帯と価電子帯の間の直接

再結合の他に、不純物準位や励起子を介した発光もある。

半導体の PL は、赤外 FEL を使った過去の実験でも観測されているが、PL の時間波形や PL 強度と FEL 強度の相関は実験ごとに異なっている。東京理科大学 FEL の実験 (波長 $9.0 \mu\text{m}$ 、繰り返し 2856 MHz) では、ZnSe からの PL 発光がマイクロパルス中で 1 回起り、FEL 強度の 74 次に比例する PL 発光強度が観測された[14]。この実験結果は、半導体の不純物準位に存在する電子が光子場で加速され、衝突電離を繰り返すことで起こるアバランシェ・ブレイクダウンで説明でき、高繰り返しの FEL パルスにおいて、マイクロパルスをまたいだ電子増倍が起こっていることを示している。一方、阪大 FEL 研の実験 (波長 $10\text{-}11 \mu\text{m}$ 、繰り返し 22 MHz) では、GaAs からの PL がマイクロパルス毎に観測され、PL の強度は FEL 強度の 4 乗に比例する結果であった[15]。ここでも、レーザー場により加速された電子の衝突電離がバンド間の遷移に寄与していると考えられるが、マイクロパルス毎のビルドアップは起こらず、PL はマイクロパルス毎に発光、減衰している点で、理科大の実験と異なる。

われわれが KU-FEL で観測した PL についても、時間波形や発光と FEL パルス強度の相関を詳しく調べることで、発光のメカニズムを理解できるであろう。今後の実験にて詳しいデータを取得する予定である。

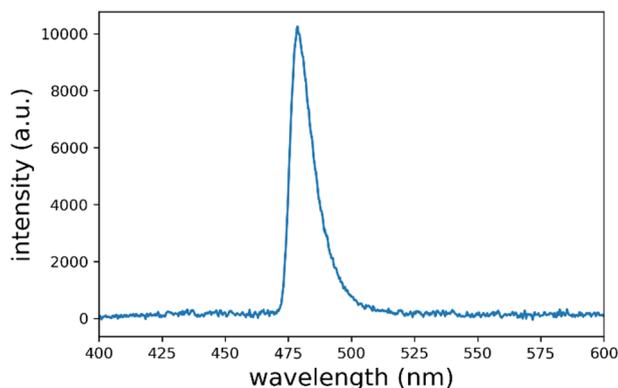


Figure 5: Emission spectrum from a ZnSe plate irradiated with FEL pulses.

4. まとめと今後の計画

KU-FEL において、数サイクル FEL パルスを用いた気体、固体からの発光現象を観測した。気体の発光では、熱陰極運転 (2856 MHz) と光陰極運転 (29.75 MHz) で、異なる発光現象が観測された。それぞれの発光は、再衝突電離による電子の雪崩的増倍からの放電発光 (熱陰極運転)、強光子場によるトンネル電離に由来する窒素分子の蛍光 (光陰極運転) と考えられる。また、光陰極運転では、ZnSe からのフォトルミネセンスが観測された。

今後は、これらの発光現象をさらに詳しく調べるとともに、トンネル電離した光電子の分光測定、気体、固体からの高調波発生実験を行う予定である。波長可変、高繰り返しの共振器型 FEL が、強光子場科学に新しい展開をもたらすことを期待する。

謝辞

本研究は、文部科学省の光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP、JPMXS0118070271)、京都大学ゼロエミッションエネルギー研究拠点(ZE2022B-23)、科研費(22H03881)の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] R.H. Dicke, Phys. Rev., **93**, 99 (1954);
doi:10.1103/PhysRev.93.99
- [2] N. Skribanowitz, I.P. Herman, J.C. MacGillivray and M.S. Feld, Phys. Rev. Lett., **30**, 309 (1973);
doi:10.1103/PhysRevLett.30.309
- [3] R. Bonifacio, F. Casagrande, G. Cerchioni, L. Salvo Souza, P. Pierini and N. Piovela, La Rivista del Nuovo Cimento, **13**, 1 (1990);
doi:10.1007/BF02770850
- [4] R. Hajima, Atoms, **9**, 15 (2021);
doi:10.1103/PhysRevE.51.5147
- [5] H. Zen, H. Ohgaki, R. Hajima, Phys. Rev. Accel. Beams, **23**, 070701 (2020);
doi:10.1103/PhysRevAccelBeams.23.070701
- [6] H. Zen, H. Ohgaki, R. Hajima, Appl. Phys. Express, **13**, 102007 (2020);
doi:10.35848/1882-0786/abb690
- [7] H. Zen, H. Ohgaki, R. Hajima, arXiv:2208.11091 [physics.acc-ph];
doi:10.48550/arXiv.2208.11091
- [8] NIST Basic Atomic Spectroscopic Data,
<https://physics.nist.gov/PhysRefData/Handbook/Tables/nitrogentable2.htm>
- [9] M. Young and M. Hercher, J. Appl. Phys., **38**, 4393 (1967);
doi:10.1063/1.1709137
- [10] W.M. Lowder and H.L. Beck, J. Geophysical Research, **71**, 4661 (1966);
doi:10.1029/JZ071i019p04661
- [11] NIST Electron-Impact Cross Sections for Ionization and Excitation Database,
<https://www.nist.gov/pml/electron-impact-cross-sections-ionization-and-excitation-database>
- [12] Plasma Data Exchange Project,
<https://nl.lxcat.net/home/>
- [13] N. Saito, N. Ishii, T. Kabai and J. Itatani, Opt. Exp., **26**, 24591 (2018);
doi:10.1364/OPTICA.6.001542
- [14] E. Tokunaga *et al.*, Opt. Rev., **17**, 341 (2010);
doi:10.1007/s10043-010-0062-z
- [15] N. Mori *et al.*, Physica B, **314**, 431 (2002);
doi:10.1016/S0921-4526(01)01435-1