

DEVELOPMENT OF THE FEMTOSECOND PULSERADIOLYSIS

Takafumi Kondoh[#], Jinfeng Yang, Koichi Kan, Yoichi Kuroda, Susumu Takemoto, Akira Asano, Akira Yoshida,
Yoichi Yoshida, and Seiichi Tagawa,
The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University,
8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka, JAPAN, 567-0047

Abstract

The femtosecond pulse radiolysis is developed in the Osaka Univ. for elucidate the initial process of the electron induced ultra fast phenomena. To realize the femto second time resolution, generating the femto second electron pulse, using the femto second laser for analyzing light pulse, compensate the timing jitter between the electron pulse and the analyzing laser light pulse, and avoid the degradation of time resolution caused by the velocity difference between the high energy electron and the light in the sample. The system which measures timing jitter of the electron beam pulse and the analyzing laser light pulse with the femtosecond streak camera was incorporated. It proposes the method of measuring an angle of the slanted electron bunch which used a streak camera with the equivalent velocity spectroscopy method. It reports the overview and the principle of the built timing jitter compensation system. It introduces the double pulse method to reduce the influence of the long period fluctuation of probe laser light intensity in case of the optical absorption measurement.

フェムト秒パルスラジオリシスの開発

1. 背景と目的

今日では電子線がナノファブリケーションの光源として着目されている。電子線ナノファブリケーションの為には、電子線が誘起する物理的・化学的な初期反応過程を解明する必要がある。パルスラジオリシスは、励起電子線パルスと分析光パルスを物質に入射して時間分解分光測定を行う事で、電子線によって生成された中間活性種の反応過程を追跡する測定手法である。電子線による物質の物理・化学反応の初期過程を明らかにするために、フェムト秒時間分解能のパルスラジオリシスを開発している。フェムト秒の時間分解能を実現する為には、フェムト秒電子線パルスを発生し、フェムト秒パルス分析光を利用し、電子線と分析光の時間ジッターをフェムト秒ストリークカメラで補正し、試料中での電子線と光の速度差による時間分解能劣化を回避する必要がある。磁気パルス圧縮器を取り付けた、フォトカソード RF 電子銃 LINAC を最適化することにより、既に 98fs (rms)の電子線パルスの発生に成功している[1]。分析光にはフェムト秒レーザーを用いている。試料中の光速と電子線の速度差による時間分解能劣化を回避する為、電子線と分析光にサンプルの屈折率に依存した角度を付けた「等価速度分光法」の測定光学系を構築している (Fig.1)。等価速度分光法の性能評価として、水和電子の光吸収時間挙動を測定した結果、等価速度分光法が時間分解能向上に非常に有効であることが明らかとなった。

2. 実験装置と要素技術開発

フェムト秒励起電子線パルスの発生には、フォトカソード RF 電子銃、S-band 進行波型加速管、磁気パルス圧縮器から構成される阪大産研フォトカソード RF 電子銃 LINAC を用いた。分析光には、同期した Ti:Sapphire フェムト秒レーザーの基本波の 800nm を用いた。分析光パルス幅は、電子ビームに同期したパルス列を切り出すために、パルスセクターを使用したので約 160fs であった。

(1) 等価速度分光法

屈折率 n の試料中で光速は $v_L=c/n$ となる。一方加速された電子線パルスは試料中でもほぼ光速に近い。このため、電子線と分析光が平行の配置では、同時に入射しても、サンプルから出るまでに電子線パルスが先行する。その結果、サンプルの長さと同屈折率に応じた時間分解能の劣化が生じる。

この時間分解能劣化を避けるために、等価速度分光法と呼ぶ全く新しい手法を開発した。等価速度分光法では、試料中で分析光の速度と電子線の速度の分析光進行方向成分が等しくなるように角度 θ だけ斜めに入射する。 θ には、サンプルの屈折率を n として $\theta = \arccos(1/n)$ の関係がある。電子線が通る距離を多くする事で、見かけ上の速度を等しくする。さらに電子線パルスの波面を制御し進行方向に対して傾いたパルスを入射させる。それにより、電子線と分析光の交差する領域で、光学遅延 $\tau = 0\text{fs}$ のとき、分析光パルスと電子線パルスはぴったりと重なって進行し、その後別れる。等価速度分光法による時間分解能の低減は、電子線パルスと分析光パルス

[#]t-kondo@sanken.osaka-u.ac.jp

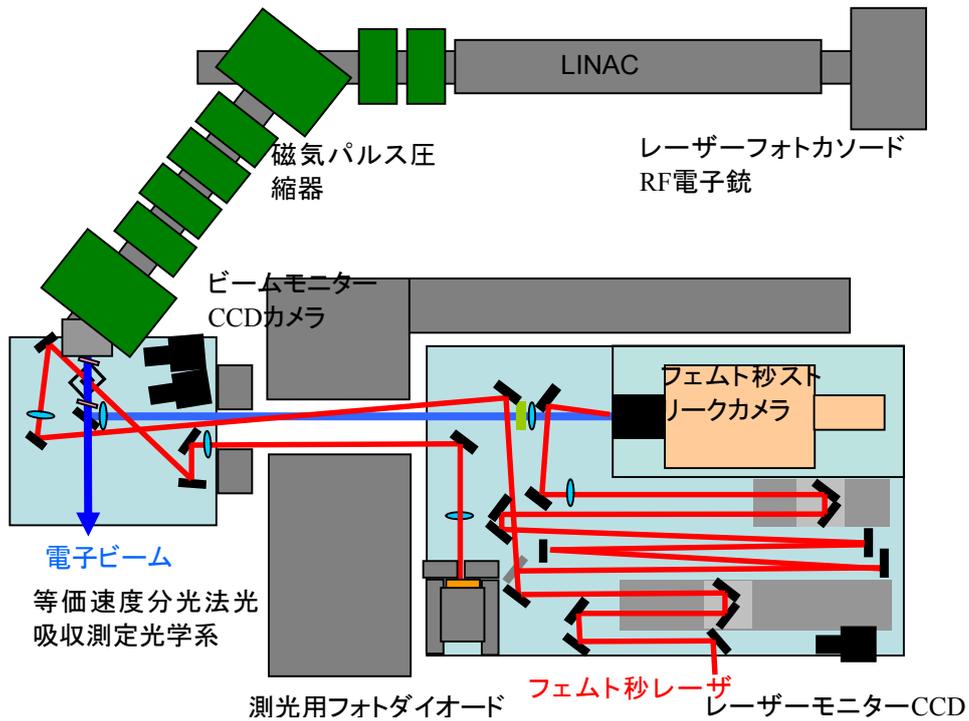


Fig.1 フェムト秒パルスラジオオリシス光学系（等価速度分光法+フェムト秒ストリークカメラジッター補正システム光学系

の重なる程度に依存する。このため、電子線パルスの波面の傾きを制御する必要がある。電子線パルス波面は、磁気パルス圧縮器内での電子の軌道の長さを調節することにより制御する。これを精密に制御するためには、電子線パルス波面の傾きを正確にリアルタイムで測定する必要がある。ストリークカメラを利用した電子バンチ3次元形状をリアルタイムに測定する手法を今回提案した。

(2) 時間ジッター補正

フェムト秒電子線パルスラジオオリシスでは、物質の励起源には加速器が発生させる電子線パルスを用い、分析光には、同期したレーザー光パルスを用い

る。どちらも 2856MHz で動作する基準発振器に同期されて、そこからそれぞれの駆動トリガーを作っているの、基本的には同期している。しかし、フェムト秒の時間領域では、例えば電子線に対して、レーザーパルスのランダムなわずかな時間ジッターが無視できなくなる。光吸収の時間挙動を測定する場合に、この効果は、横軸の位置の不確かさを増大させる。電子線パルスとレーザー光パルスの時間ジッターを補正するためにフェムト秒ストリークカメラを用いる。フェムト秒ストリークカメラに、電子線パルスが空気中で放射するチェレンコフ光と分析レーザー光パルスを入射させる。今回、等価速度分光法とジッター補正光学系をあわせて構築した。そ

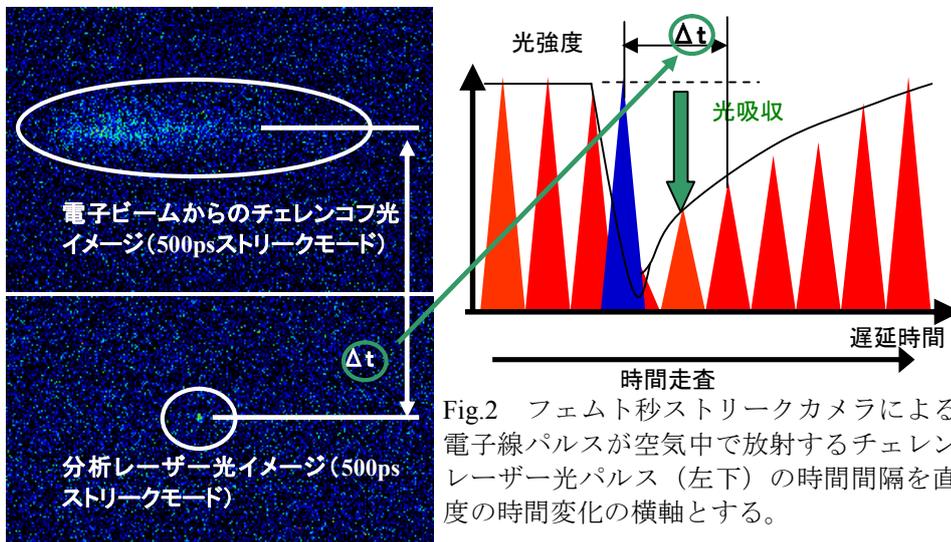
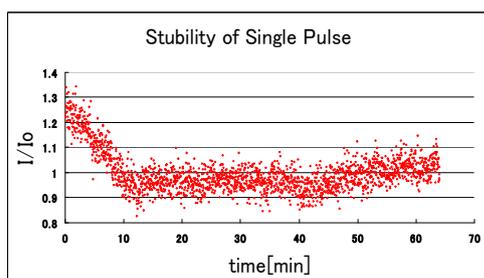
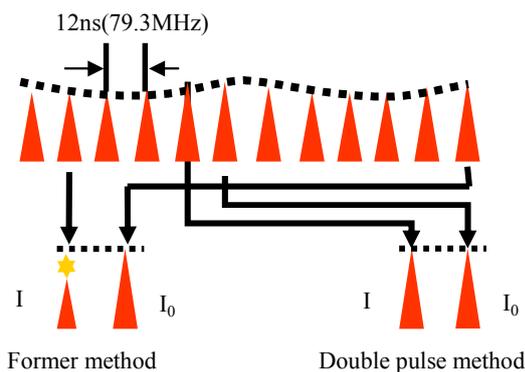


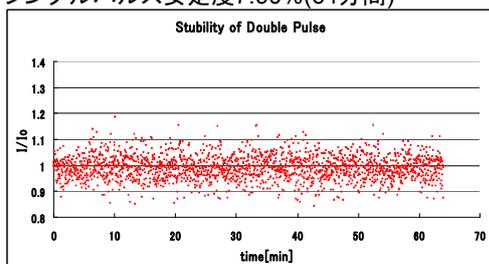
Fig.2 フェムト秒ストリークカメラによるジッター補正の概念図。電子線パルスが空気中で放射するチェレンコフ光（左上）と、分析レーザー光パルス（左下）の時間間隔を直接測定し、直接光吸収強度の時間変化の横軸とする。

の図を Fig.1 に示す。サンプル位置において、電子ビームと分析レーザー光は決まった角度で交差し、そのタイミングを調整する光学遅延に加えて、 $\tau = 0$ fs で同時にストリークカメラに入射するように、距離を調整する光学遅延を設置した。フェムト秒ストリークカメラによるジッター補正の概念を Fig.2 に示した。左上の図は、電子線パルスが空気中で放射するチェレンコフ光をフェムト秒ストリークカメラの 500ps レンジで測定したストリーク像である。左下の図は、分析レーザー光パルスをフェムト秒ストリークカメラの 500ps のレンジで測定したストリーク像である。これらは、別々に測定したストリーク像であるが、これらを一つのストリーク像として測定し、そのスポット距離から直接時間情報を測定する。これを光吸収強度の時間変化の横軸とする。この技術により、フェムト秒ストリークカメラの時間分解能で、電子線と分析光の時間ジッターを直接補正し、時間原点を定めることができる。

(3) ダブルパルス法



シングルパルス安定度7.90%(64分間)



ダブルパルス安定度4.75%(64分間)

Fig.3 ダブルパルス法の概念図 (上図)。1 時間のレーザーパルスの強度変化 (中図)。ダブルパルスによるドリフト成分の除去 (下図)。

電子線パルスラジオリシスの時間分解能を向上するためには、時間情報の精度向上だけでは不十分である。Fig.2 右図に示した、縦軸の光吸収強度も精度の向上が必要である。光吸収強度の精度を悪化させる大きな要因として、励起電子線電荷量の揺らぎと、分析光レーザー強度の揺らぎがある。光吸収測定では、電子線の照射しておらず活性種が存在しない時の参照光強度 I_0 と、電子線を照射して活性種が存在するために光吸収された光強度 I から、光学密度 OD を計算する。光吸収強度の測定精度を向上させるためのダブルパルス法の概念を Fig.3 に示す。従来の方法では、一番初めに参照光 I_0 を測定し、それぞれの光吸収強度を計算していた。その場合、レーザー強度のドリフトや振動などの長周期変動成分が、光吸収強度の変動成分として測定精度を悪化させる。ダブルパルス法は、79.3MHz でロックされたレーザーパルス列から、パルスセクターにより切り出した数パルスのうち、電子線が照射される直前のパルスを参照光 I_0 とし、電子線が照射された場合の光吸収強度を計算する。Fig.3 の中図は、レーザー強度の 60 分間の変化である。ドリフトや長時間の変動成分が現れている。安定度は 7.9%であった。これに対して、ダブルパルス法を用いた場合を下図に示す。ドリフトと長周期揺らぎ成分が除かれて、安定度は、4.75%に向上した。ダブルパルス法を最適化することにより、更なる光吸収強度測定の精度向上を目指す。

4. まとめ

フェムト秒電子線パルスラジオリシスを開発している。フェムト秒の時間分解能を実現するために、いくつかの要素技術を開発している。等価速度分光法では、斜入射と電子線パルス波面の制御が必要であるため、波面測定方法を考案した。フェムト秒ストリークカメラにより、電子線パルスと分析レーザー光の時間ジッターを測定する光学系を構築した。電子線が空気中で放射するチェレンコフ光を測定した。また、分析レーザー光もストリークモードで測定した。ストリーク像から時間情報を直接測定して光吸収測定における時間分解能を向上する。光吸収強度の測定精度を向上するために、ダブルパルス法を用いた。個々のレーザー光強度は、60 分で 7.9%だったが、ダブルパルス法によりドリフトや長周期強度揺らぎが低減し、安定度は 4.75%にまで向上した。フェムト秒パルスラジオリシスのためのいくつかの要素技術が発展している。

参考文献

- [1] J. Yang, T. Kondoh, K. Kan, T. Kozawa, Y. Yoshida, S. Tagawa, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 556(2006)52-5