

[12P-47]

DEVELOPMENT OF SUB-PICOSECOND PULSE RADIOLYSIS AND SYNCHRONIZATION SYSTEM

Y.Muroya, T.Watanabe, T.Kobayashi, W.Wu, T.Ueda, K.Yoshii, M.Uesaka and Y.Katsumura

Nuclear Engineering Research Laboratory, The University of Tokyo
Shirakata-shirane 2-22, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1106, JAPAN

Abstract

A synchronization system for higher time-resolved pump & probe experiment has been developed at NERL 18MeV S-band linac, The University of Tokyo. The precision of the synchronization between sub-picosecond electron beam and femtosecond Ti:Sapphire laser has been measured after the completion of the system. The pulse radiolysis experiment has followed the experiment to confirm the total time resolution.

サブピコ秒パルスラジオリシス・同期システムの開発

1. 序論

東大院工原施 S-band トリプレットライナックでは、1998 年にフェムト秒高速量子現象研究施設が導入され、1999 年に完成した。フェムト秒極短電子パルスの生成、計測、放射線物理・化学への応用まで目的は多岐にわたる[1]。本研究の目的は、ピコ秒あるいはそれ以下で起こる液体の放射線誘起初期過程解明のため、18MeV ライナックと 0.3TW Ti:Sapphire レーザーからなる、ポンプ・プローブ方式（ストロボスコピック方式）による超高時間分解能パルスラジオリシスシステムを開発・活用することである。ストロボスコピック方式パルスラジオリシスシステムは、1968 年に Tront 大の J.W.Hunt らにより開発された[2]。原理は、ライナックより得られる電子パルス（ポンプ）を試料に照射して様々な反応性に富む化学種を生成させ、電子と同期した分析光（プローブ）の強度変化（吸光度）からこれらの濃度がわかるというものである。さらにポンプ・プローブ時間間隔を変えつつ吸光

度を測定することで、化学種濃度のダイナミックな時間挙動も追跡可能となる。従来は分析光にチェレンコフ光が用いられてきたが、最近のフェムト秒レーザーの技術進歩により、これを用いたシステムが計画・構築されるようになった。現在、東大、BNL、早稲田大学、住友重機、Pari-sud、大阪大学、ANL で類似プロジェクトの提案・進行がなされている。また、上記の前五者については、レーザーフォトカソード RF 電子銃を S バンドライナックに組み込んだシステムである。

2. サブピコ秒パルスラジオリシス・同期システム [3,4,5]

全体図を図 1 に示す。0.3TW レーザーを 2 つに分岐し、一つを 3 倍高調波 (263nm) 生成後レーザーフォトカソード RF 電子銃(BNL/KEK/SHI type : GUN IV)へ入射させ、残りは分析光に用いる。ライナック・レーザーは、Master Oscillator から供給されるマイクロ波(119MHz)を逡倍あるいは分周したものに同期させ、10pps で運転する。レーザー安定化のため、レーザー室は温度制御(1 以下)、クリーンルーム化(Class:10,000)を行い、ライナックまでの伝送は真空中で行う。

同期精度は、ジッター成分とドリフト成分からなるが、前者は主にクライストロンのパワー・位相変動およびレーザーオシレータ・基準 RF (79.33MHz)間ジッターに起因する。電子加速はフォトカソードの 1.6 セル加速空洞および 1 本の加速管で行うが、従来の 6MW クライストロン 2 台を用いた場合に生じた RF 間相互ジッターを大幅に低減するため、15MW クライストロンを導入し、RF を

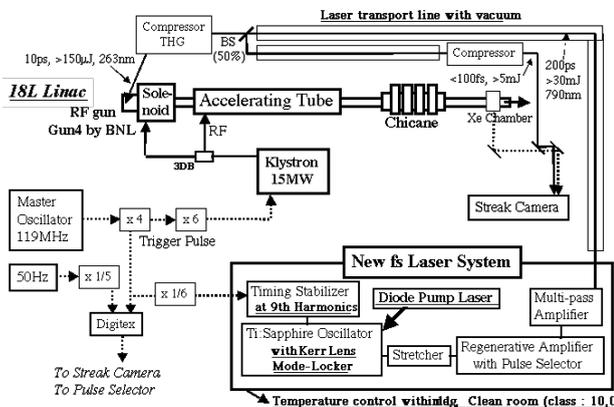


Fig. 1. Schematic diagram of sub-picosecond pulse radiolysis and synchronization system at NERL

2 つに分岐し供給する。また、RF のパルス毎パワー・位相変動についてもそれぞれ 0.5%(rms)、0.2deg(rms)まで向上している。これらのパラメータを基に計算コード PARMELA によるシミュレーションを既に行っており、電子のライナック通過時間ジッターは 300fs(rms)という結果を得ている。

レーザーオシレータについては、従来の強制モードロックから Kerr lens による自己モードロックを行い、また基準 RF の 9 倍高調波(713.7MHz)による共振長フィードバック制御により、従来数 ps であった基準 RF・レーザーオシレータ間ジッターを 100fs(rms)まで低減が可能である。以上から同期精度の設計値は $(300^2+100^2)^{1/2} = 320\text{fs(rms)}$ である。

さて、サブピコ秒・ピコ秒での実践的測定を可能にするためには、

- (I)高時間分解能化
- (II)測定波長領域の拡大
- (III)S/N 比確保：(i)ノイズ低減 (ii)信号強度増大

の 3 点が不可欠であるが、そのためには以下の項目を実現する必要がある。

- (a)電子・レーザーの短パルス化
- (b)電子パルスの高品質化 (RF ガン)
- (c)レーザーの白色パルス化
- (d)同期の高精度化
- (e)測定光学系システムの性能向上
- (f)短い照射セル、電子・レーザー速度差除去

(I)には(a)と(d)が直接影響を与え、非常に重要であるが、既にレーザーはフェムト秒、電子についてもシケイン磁気パルス圧縮器によりサブピコ秒パルスが得られ、問題ない。同期精度に関しては現在ピコ秒であり、サブピコ秒への向上が課題である。また、(II)については単色レーザーを水セル等に通して非線形効果を利用することで白色化は可能となるが、強度安定性が 10% 程度に悪化することが予想され、(III-i)のため参照光モニタによる補正、積算等を行う必要がある。これにより 2%以下の安定性が確保できると考えている。その際、時間軸に対する信頼性を損なわないため(d)の確保が重要である。ノイズは上記以外にも、電荷揺れによるパルス毎の信号強度変化、チェレンコフ光・電磁ノイズ等の影響が考えられ、この除去には(e)で対処する。(III-ii)に関しては、電子ビームの高輝度化が必要となり、フォトカソードにおける入力レーザー・RF の強度増大が必要となる。ただし、電荷量増大に伴うエミッタンス増大等は(a)にも関

係するため、フォトカソードの諸パラメータの最適化(b)が必要である[6]。また、照射試料中では電子・レーザーの速度差により時間差が生じるため、今後少なくとも現在より短いセルを用いることになるが、信号強度はセル長に反比例するため、電子の高品質化(b)に頼る必要がある。

3. 同期実験と考察

新同期システムにおける同期精度向上を行った。電子ビームより発生するチェレンコフ光と、分析用フェムト秒レーザーを共にストリークカメラ(FESCA200, Hamamatsu)に導き、以下の 2 通りについて約 2 時間にわたり同期実験を行った。

実験 1：シケインにおける電子ビーム圧縮なし、レーザーオシレータの基本波制御。

実験 2：電子ビーム圧縮あり、レーザーオシレータの 9 倍高調波制御。

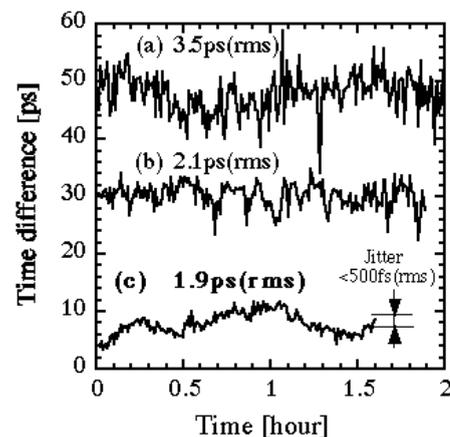


Fig. 2. Experimental results of synchronization. (a)Previous system, (b)Experiment 1, (c)Experiment 2

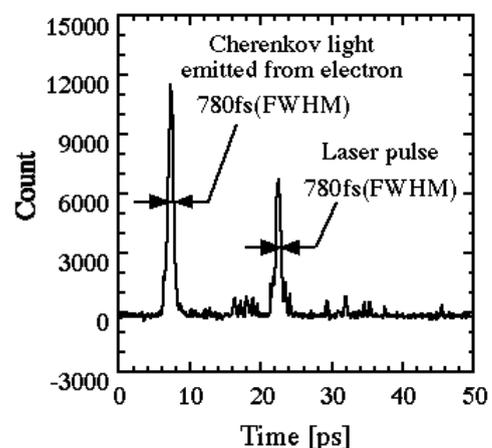


Fig. 3. Bunch shape of sub-ps electron beam and fs laser diagnosed by FESCA

尚、いずれもチェレンコフ強度を稼ぐため、ビーム出口に Xe チャンバを設けた。図 2 に実験結果を、従来の同期システム (6MW クライストロン 2 本、パルス圧縮あり、オシレータの基本波制御) による結果も合わせて示す。実験 1 での同期精度は 2.1ps(rms)であった。ドリフトがほとんど見られなかったのは、シケインによる電子パルス圧縮を行っていないため、レーザーオシレータにおけるジッターが同期精度に支配的であると思われる。実験 2 では 1.9ps(rms)であった。精度はわずかな向上に留まったものの、ジッター成分が著しく低減された。目測でも少なくとも P-P は 3ps 以下であり、15MW クライストロンおよびレーザーオシレータの高調波制御の効果が明らかである。しかしジッター低減の一方で、従来システムの結果にも見られる緩やかなドリフトが非常に顕著となり、これが同期精度をほぼ支配している。よって、同期精度の向上にはドリフト低減が最も効果的である。ドリフトの原因は加速管の温度変化にあると考え、これと RF 位相変動を同時モニタした。その結果、約 1 の温度変化は約 10deg の RF 位相変動に一致した。そこで、冷却系統に改良を施した。従来は加速管・クライストロンを同時に冷却していたが切り離し、加速管に新たな冷却系を加えることで温度変化を 0.01 以下(P-P)に抑えた。この条件下で再度実験を行うことを今後予定している。

さて実験 2 でストリークカメラにより得た同期プロファイルの一枚を図 3 に示す。計測されたパルス幅は、共にストリークカメラの 50ps レンジにおける時間分解能(約 700fs)であるため過大評価になるものの、少なくとも計測値以下が保証される。

4. パルスラジオリシス実験と考察

同期実験 1 の条件下において、測定光学系を組み上げ、パルスラジオリシス実験を行った。試料は純水および 1M HClO₄ を用い(1.8cm 長)、1ps 以下で生成すると考えられる水和電子を、レーザーの基本波長(790nm)において測定した。電子は 7ps(FWHM)、650pC/pulse、分析用レーザーは 100fs(FWHM)で、共に 10pps で運転した。測定領域は 300ps(3.33ps 刻み、90 点)である。実験結果を図 4 に示す。水和電子の過渡吸収およびプロトンとの反応が測定された。水和電子とプロトンとの反応速度定数は、 $1.0 \times 10^{10} [M^{-1}s^{-1}]$ である。よって反応時間領域は 100ps であり実験結果とよく一致する。ま

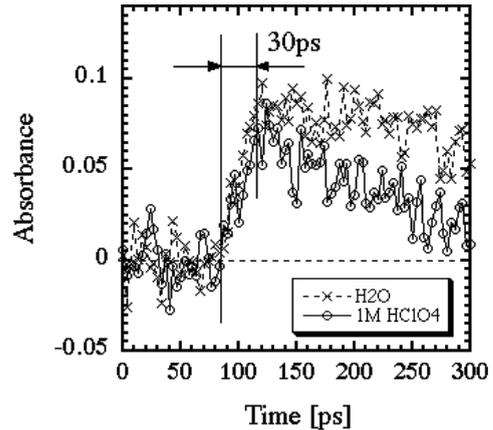


Fig. 4. Experimental results of pulse radiolysis
Sample : Water and 1M HClO₄, Dose : 0.55krad

た、水和電子の吸収立ち上がり時間から、パルスラジオリシスの時間分解能が約 30ps であることが確認された。理論的には電子パルス幅 dt_E 、レーザーパルス幅 dt_L 、同期精度 dt_J 、照射試料の電子・レーザー通過時間差 dt_{diff} より以下のように表され、実験結果と比較的よく一致する。

$$dt_{TOTAL} = dt_{diff} + (dt_E^2 + dt_L^2 + dt_J^2)^{1/2} = 28ps$$

20ps 程度は dt_{diff} によるものであり、2 章でも述べた電子パルスの高品質化、測定光学系の改善等により S/N 比向上が図られ次第、対策(f)を行うことで容易に時間分解能が向上可能である。

5. 結論

サブピコ秒パルスラジオリシス・同期システムの構築を行い、同期実験とパルスラジオリシス実験を並行して行った。同期精度は 1.9ps(rms)、パルスラジオリシス時間分解能は 30ps までを確認した。電子パルスの品質向上、同期精度向上、測定光学系改善によりさらなる時間分解能向上を目指す。

参考文献

- [1] M.Uesaka, K.Nakajima and Y.Katsumura et al, *Rad. Phys. Chem.*, in press
- [2] M.J.Bronskill, J.W.Hunt et al., *Rev. Sci. Instr.*, **41** (1970) 333
- [3] T.Watanabe, M.Uesaka and Y.Katsumura et al., *Proc. of 23rd Linear Acc. Conf.*, (1998) 426
- [4] J.Sugahara, M.Uesaka and Y.Katsumura et al., *Proc. of 24th Linear Acc. Conf.*, (1999) 296
- [5] Y.Muroya, M.Uesaka and Y.Katsumura et al., *Proc. of Part. Acc. Conf. '99*, (1999) 2602
- [6] T.Kobayashi et al., in these proceedings