

PROGRESS OF THE EQUIVALENT VELOCITY SPECTROSCOPY METHOD FOR FEMTOSECOND PULSE RADIOLYSIS BY PULSE ROTATION AND PULSE COMPRESSION

Takafumi Kondoh ^{#,A)}, Koichi Kan, Jinfeng Yang, Yoichi Yoshida, Hitoshi Kobayashi, Tomohiro Toigawa, Kimihiro Norizawa, and Atsushi Ogata

^{A)} The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University
8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka, 567-0047

Abstract

電子ビーム誘起超高速反応の研究のために、アト秒・フェムト秒パルスラジオリシスを開発している。パルス幅 100fs の電子パルスは、フォトカソード RF 電子銃加速器と磁気パルス圧縮器の最適化により発生される。しかしアト秒時間分解能の達成には、サンプル中での電子と分析光の間の速度差に起因した時間分解能の劣化の問題を解決することが本質的に必要である。等価速度分光法では、分析光は電子線に対して、サンプルの屈折率に関係した角度傾けて入射し、電子パルスは光パルスと重なって伝搬するように進行方向に対して回転する。これまでは、30MeV 電子線のフェムト秒へのパルス圧縮とパルス回転の両立は困難だった。しかし、電子ビーム縦横変調法により電子パルスの圧縮とパルス回転の両立に成功し、等価速度分光法の原理により時間分解能は、1.2 ps まで向上した。

電子パルス回転と圧縮によるフェムト秒パルスラジオリシスのための等価速度分光法の進展

1. はじめに

放射線化学は、次世代リソグラフィや放射線治療でますます重要となる。次世代半導体リソグラフィでは加工の微細化のために露光源が短波長化し、レジスト材料中にイオン化を引き起こすので、放射線化学が重要となる。また、人体に対する放射線影響は、生体内の水の放射線分解によって生成された OH ラジカルや水和電子の寄与が大きい。イオン化された電子の熱化、解離性電子付着、ジェミニネートイオン再結合などの放射線化学初期過程は、原子や分子を高エネルギー電子が通過するアト秒領域から始まる。その全貌を解明するために、アト秒時間分解能を目指してパルスラジオリシスの時間分解能を向上している。

パルスラジオリシスは、試料中に発生した活性種の挙動を直接観測するための強力なツールである。パルスラジオリシス過渡吸収分光法では、パルス化した放射線を試料に照射し、試料中に誘起された活性種の光吸収を分光器またはバンドパスフィルターで分光し、フォトダイオードで検出しオシロスコープで記録する。検出器やオシロスコープの時間分解能を超える高い時間分解能が要求される場合は、ストロボスコピック法（ポンププローブ法）を用いる。ストロボスコピック法では、パルス分析光を用いて、電子線パルスに対する分析光パルスのタイミングをスキャンし、分析光パルスの全光量を積分測定する。この手法により、フォトダイオードやオシロスコープの応答速度に依存しない高い時間分解能の測定ができる。ストロボスコピック法パルスラジオリシスの時間分解能を決める要因は、電子線のパルス幅、

分析光のパルス幅、電子線パルスと分析光パルスの時間ジッター、試料中の電子線と光の速度差に起因した時間分解能劣化である。電子線のパルス幅は、フォトカソード RF 電子銃加速器と磁気パルス圧縮器により、最短で 98 fs である。分析光のパルス幅は、フェムト秒レーザーとパルスセクターを用いることにより、約 150 fs である。電子線パルスと分析光パルスは時間ジッターは約 60 fs である。

電子線パルスラジオリシスの場合、重大な問題がある。高エネルギー電子線は試料に入射してもほぼ光速で通過するが、分析光は試料の屈折率により $v_1 = c/n$ のように速度が遅くなる、ここで v_1 は試料中の光速度、 c は真空中の光速度、 n は試料の屈折率を意味する。この影響のため、たとえ試料前面に同時に入射しても試料の後面では電子が先に射出し、分析光は遅れて出る。このことから電子線パルスラジオリシスでは試料中で時間分解能の劣化を生じる。 $g(L)$ と表すこの時間分解能劣化は、同軸配置において $g(L)=L/c(1-1/\beta n)$ で表され、ここで、 L は試料光路長、 $\beta = c/v_e$ であり、 v_e は電子の速度を意味している。水の屈折率は 1.33 であり、1 cm の試料で 11 ps の時間分解能劣化が生じる。

等価速度分光法は、この $g(L)$ の問題を解決する方法である[1]。等価速度分光法の原理は、試料に屈折率で決まる角度で電子線と分析光を入射し、電子線パルスを進行方向に対して斜めにすることにより、試料中で電子線と分析光が重なって伝搬することにより $g(L)$ の問題は解決される。

これまでの研究では、パルスを回転するために、加速管の高周波位相をパルス圧縮条件からシフトすることにより、エネルギー変調を与えてパルス回転

した。しかしこの方法では、パルス圧縮条件から外れてしまうために、全くパルス圧縮できないという困難があった。このため、1 cm 光路長の試料を用いた等価速度分光法パルスラジオリシスの時間分解能は、6.4 ps だった。電子線パルスを回転する方法として、デフレクティングキャビティが提案されたが、100 fs の電子線パルスを得るためには、ビーム径を 30 μm に収束しながら空洞から試料まで輸送する必要があり、電子ビームのエネルギーや電磁石の収束力が不足することが分かった。

そこで、電子ビームをパルス圧縮しながらパルス回転する方法として、電子ビーム縦横変調法が新たに考案された。電子ビームの縦横変調法では、電子銃の 68 度ポートから斜めに入射することにより、電子ビームはカソード表面から進行方向に対して傾きを持って発生する。この電子ビームパルスを磁気パルス圧縮器で圧縮した後、最終収束電磁石でビーム径を収束することによりパルス傾斜角度をコントロールする手法である。

この論文では、等価速度分光法に必要な電子線パルスの圧縮と回転を両立するために考案された電子ビーム縦横方向変調法を用いて、電子ビームのパルス幅と回転角度を測定し、時間分解能評価のために電子ビームパルスの角度と水和電子の光吸収立ち上がり挙動を測定した結果を報告する。

2. 実験装置

等価速度分光法パルスラジオリシスシステムは、フォトカソード RF 電子銃加速器、磁気パルス圧縮器、分析光レーザーシステム、時間同期装置、測定光学システムから構成される。

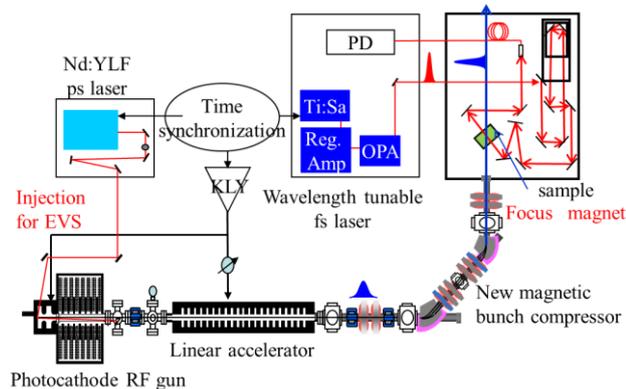


図 1 : 等価速度分光法パルスラジオリシスシステム

ピコ秒 Nd:YLF レーザー (Timebandwidth) の 4 倍高調波 262 nm、パルス幅 5 ps のレーザー光を銅カソードに照射することにより 2 nC、5 ps のパルス電子線を発生した。BNL-typeIV のフォトカソード RF 電子銃が用いられた。発生した電子ビームパルスは、2 m の進行波型加速管により 32 MeV まで加速される。加速管では、加速とパルス圧縮をするためのエネルギー変調を行う。磁気パルス圧縮器は、2 極電磁石 2 台、4 極電磁石 4 台、6 極電磁石 2 台から構

成されている。加速管で与えられたエネルギー変調と磁気パルス圧縮器による電子軌道の調整により、5 ps のパルス幅の入射電子線は、最短で 98 fs の電子線パルスに圧縮される。磁気パルス圧縮器の下流には、電子ビームを収束するために 2 台の 4 極電磁石を設置した。

分析光レーザーシステムは、外部同期装置を組み込んだ波長可変チタンサファイアフェムト秒レーザーシステム (スペクトラフィジックス社製) から構成される。電子ビームは、最終収束電磁石の後、30 μm のチタンフォイルを通して、空气中で石英キュベット中の試料に照射される。分析光は光学遅延路を通り、試料中に電子線と同軸に入射する。試料を通った光は、光ファイバーを通り Si-APD 浜松ホトニクス社製 S2382 で検出された。検出された信号は、オシロスコープ (Lecroy : WaveRunner 6100A) で記録された。電子線と重なる分析光パルスの光強度を I とし、その 1 周期前の分析光パルスの光強度を I_0 とする、ダブルパルス法を用いた。光吸収強度は、 $O.D.=\ln(I_0/I)$ で計算した。ダブルパルス法を用いることにより、ドリフト、振動、気流などの低周波の変動や、検出器の個体差による影響を低減することができた。

電子ビームのパルス幅と回転角度は、空气中的チェレンコフ放射光をストリークカメラ (浜松ホトニクス社製 FESCA-200) により測定した。時間分解能は FWHM で 200 fs typ. である。ストリーク像の領域内で各画素の光強度の最小二乗法により、傾斜角度を求めた。傾斜電子パルスのパルス幅は、パルスの中心線に対する電子パルスの分布をガウスフィットすることにより求めた。

3. 結果と考察

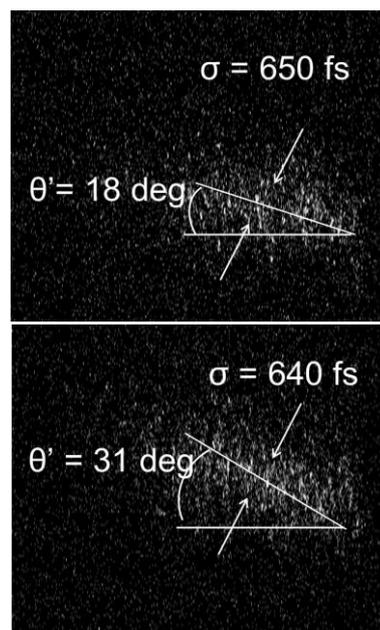


図 2 : 電子ビーム縦横変調法を用いた場合のストリークカメラ像 (縦軸は時間方向分布)

ストリークカメラ像の横と縦のスケールを校正し、縦軸は光速で規格化して、 $Lz = ct$ として縦と横で同スケールとなるように変換したストリークカメラ像を図 2 に示した。上側は角度最小 18 度の場合の電子パルス像を示しており、パルス幅は 650 fs r.m.s だった。下側は 31 度の場合の電子パルス像であり、パルス幅は 640 fs だった。電子線パルス幅と進行方向に対する角度を計測した結果、電子ビーム縦横変調法では約 650 fs にパルス圧縮をしたまま電子線パルスを回転できることがわかった。

等価速度分光法パルスラジオリシスの時間分解能を評価するために、水和電子の光吸収の時間挙動を測定した。水和電子は、水に電子線を照射した時にイオン化されて生じた過剰電子の周りに水分子が配向した準安定構造体であり、720 nm に過渡吸収スペクトルピークを持ち、生成時間は 540 fs と求められている。水和電子の光吸収立ち上がり時間は非常に早く、等価速度分光法の時間分解能評価に最適である。

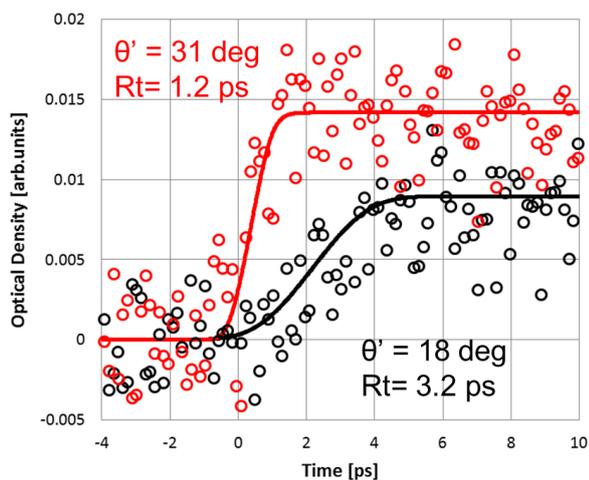


図 3 : 800 nm で測定した水和電子光吸収立ち上がり挙動 (黒) 電子パルス角度 18 度の場合 (赤) 31 度の場合。

図 3 に光路長 1 mm の試料に電子線を照射し、800 nm で測定した水和電子の光吸収立ち上がり挙動を示した。黒○は最低角度 18 度パルス幅 650 fs の場合、赤丸は、角度 31 度パルス幅 640 fs の場合の実験結果をそれぞれ示している。図の一点は、50 回の測定結果を積算し平均化したものを表している。18 度の場合 10 - 90 % の立ち上がり時間は 3.2 ps であり、一方 31 度の場合 1.2 ps となり、時間分解能の顕著な向上が見られた。電子線パルス幅はどちらも約 650 fs であり、時間分解能の向上は電子パルスの角度によるものである。この結果から、等価速度分光法パルスラジオリシスの時間分解能は 1.2 ps まで向上した。1 cm の試料を用いた場合でも、2.8 ps まで向上した。

図 4 に電子線パルス傾斜角と電子線パルス幅、水和電子光吸収立ち上がり時間の関係を示した。電子線パルス角度を 18 度から 46 度まで変更しても電子

線パルス幅は、約 650 fs のままであった。等価速度分光法を用いた場合の電子線パルス角度と時間分解能の劣化の理論曲線を実線で示した。理論的には屈折率に関係した 41 度で最小となるが、実験ではばらつきが大きく 31 度で測定した場合に最小の立ち上がり時間 1.2 ps を得た。定性的には角度の変化に対して最小値を取るという等価速度分光法の挙動を示した。電子線パルスの回転とパルス圧縮を両立し、等価速度分光法の原理実証に成功した。



図 4 : 電子ビームパルス幅、水和電子光吸収立ち上がり時間と電子ビーム回転角度

4. 結論

電子ビームの縦横変調法により電子ビームの 650 fs へパルス圧縮と 18 - 46 degree の電子パルス回転の両立に成功した。電子ビーム縦横方向変調法を用いることにより、6.4 ps に留まっていた等価速度分光法パルスラジオリシスの時間分解能は、1.2 ps まで向上した。

5. 謝辞

この研究は、文部科学省の科学研究費補助金により補助されました。産業科学研究所量子ビーム科学研究施設の加速器を利用し、同施設の山本保さん、末峰昌二さんに感謝いたします。鷲尾教授と田川教授から、パルスラジオリシスに関する多くの助言を頂きました。

参考文献

- [1]J. Yang et.al., Radiat. Phys.Chem.78(2009)1164-1168
- [2]K. Kan et. al., Proceedings of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, (2011)TUPS092