

[08-A01]

Development of Subpicosecond Electron Pulse and Its Application for Ultra Fast Phenomena.

S. Tagawa, T. Kozawa, S. Seki, and Y. Yoshida

The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University
8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567, Japan

Subpicosecond electron pulses were generated by using the pulse-compressed system of the L-band linac, at ISIR Osaka univ. The subpicosecond pulse radiolysis had been started by using the subpicosecond electron pulse. To obtain high time-resolution, the femtosecond laser system and the timing detection system were used. The new science on the ultra-fast phenomena will be advanced by using the system.

ライナックからの短パルス利用の現状と超高速現象への今後の応用

1.はじめに

パルスラジオリシスをはじめとする短パルス利用は、放射線科学の発展に大いに寄与してきた。これは、時間分解で各種の現象や反応を観測することにより、放射線と物質の相互作用のダイナミクスを調べ、さらにはその基礎過程を理学、工学、医学等の広い分野に役立てようとするものである。

放射線によって物質にエネルギーが与えられてから、最初の現象(初期過程)を経て、最終生成物が生成するまでのすべての過程を知ることは、多くの研究者が求めてきた理想であるが、そのためには、アト秒(もしくはフェムト秒)の時間分解能が必要であると思われる。パルスラジオリシスの時間分解能は、比較的早い時代に(1970年頃)ピコ秒の時代を迎えた。その後、多くの革新的な装置の開発やその利用がなされたが、時間分解能に関しては、30年近く停止していたことになる。

最近、この時間分解能が久しぶりに向上しはじめた。これまでの実用的な時間分解能は50ピコ秒程度であったが、現在の最高記録は阪大産研の2ピコ秒になっている。さらに、加速器の性能や測定技術の向上により、いよいよフェムト秒の時間分解能が可能となってきた。

この進歩を可能としたのは、以下の3つの重要なポイントが可能になったためである。

- 1) フェムト秒・サブピコ秒単バンチ電子線パルスの発生
- 2) フェムト秒レーザーと電子ライナックの同期運転
- 3) 時間ジッター検出

そこで、これらのポイントの重要性および阪大産研におけるこれらの開発状況や今後の計画を報告する。さらに、超高速現象測定法の放射線科学や材料科学への今後の応用に関して検討を行った。

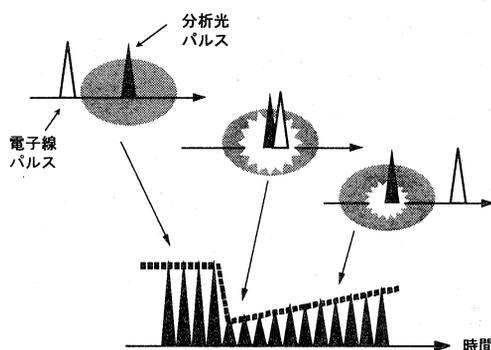


図1 高速過渡光吸収測定のためのトロボスコピック法の原理

2. フェムト秒レーザーとライナックの同期

パルスラジオリシスは、放射線によって誘起される短寿命中間活性種等を検出し、その反応機構や電子状態を調べることが可能であり、量子ビーム誘起化学初期過程(もしくは放射線化学初期過程)にとって非常に重要な手段となっている。活性種を検出するためには、分光的手法を用いるが、大きく分けて、時間分解発光測定と時間分解吸収測定との2つがある。得られる情報量の多さからは、吸収分光の方が優れており、多くのパルスラジオリシスの装置では、主に吸収測定が行われている。

ピコ秒パルスラジオリシスでは、高速応答性のある光検出器を使うことは、困難となる。今までに、ピコ秒領域の吸収測定では東京大学でストリークカメラを用いた測定を除いて、ほとんどが図1に示すストロボスコピックと呼ばれる方式を用いている。これは、非常に短いパルス励起源(放射線)とパルス分析光を用いて行う方式で

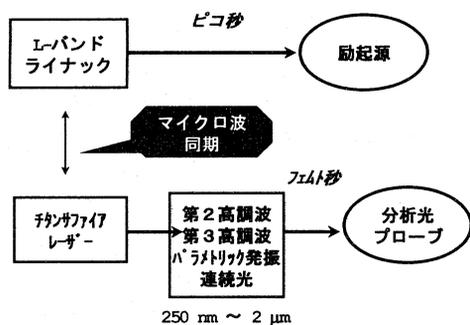


図2 ピコ秒電子線パルスとフェムト秒レーザーを同期させたピコ秒パルスラジオリシスシステム

あり、時間分解能は、光検出器の時間分解能に依存せず、パルスの幅に依存する。

従来のストロボスコピック法では、分析光として励起源である電子線パルスが発生するチェレンコフ光を用いるのが一般的であった。(ピコ秒の電子線パルスから発生する分析光パルスは、ピコ秒の時間幅を持つ。)しかしながら、最近ではチェレンコフ光の代わりにレーザーが利用できるようになった。これは、マイクロ波を介して、市販のレーザーシステムとライナックの同期運転が可能になったためである。

図2は、阪大産研で行われているフェムト秒レーザー同期ピコ秒パルスラジオリシス(日常的な運転での時間分解能; 50ピコ秒)のコンセプトを示している。阪大産研Lバンドライナックからの35MeV電子線単パルス(半値幅20ピコ秒)を励起源とし、分析光として、フェムト秒チタン・サファイアレーザー(パルス幅: 60fs)を使用した。ライナックとレーザーは27MHzのマイクロ波を介して同期運転され、その時間ジッターは10ピコ秒以内である。

光過渡吸収の時間プロファイルを得るためには、電子線パルスに対するレーザーパルスの時間的位置を任意に変える必要がある。本システムでは、一般的な光学遅延の代わりに、RFの電氣的遅延回路(フェーズシフター)を使用した。

レーザーを分析光に使用する場合は、レーザー光の強度が大きくデータのS/Nが向上すること、実験のセットアップが容易になり複雑な実験体系の構築が可能になる点、及び、レーザーの非線型効果を使うことにより、250~1500nmの広い範囲での分光が可能になる点である。特に、後で述べるように、電子線パルスがフェムト秒化されると、そのビーム強度は低下す

ることが予想されるが、その際、チェレンコフ光の強度はさらに弱くなる。また、時間分解能をえるために、実験体系はかなり複雑になる。

3. サブピコ秒短パルスの発生

阪大産研では、Lバンドライナックからのピコ秒電子線単パルスを磁気パルス圧縮することにより、サブピコ秒のパルスを得ることに成功した。実験のセットアップおよび磁気パルス圧縮の原理については、すでに昨年に報告しているので、詳細は省略するが、参考までに図3に示した。

一般的には、より加速周波数の高いSバンドライナックを用いてパルス圧縮を行うほうが効率がよいとされるが、パルスラジオリシス等の測定に用いる際には、中間活性種を検出するためには、ある程度の活性種の生成濃度を確保する必要があり、そのために、電子線パルスの強度(パルスあたりの電子数)も強いものが必要とされる。Lバンドライナックは、ももとのパルス強度が大きいため(Sバンドの10倍以上)、パルス圧縮によるロス分(多くはスリットなどでカットされる。)を考慮しても、十分にパルスラジオリシスに必要な電荷量(数ナノクーロン以上)を得ることができた。

4. サブピコ秒パルスラジオリシス

阪大産研では、サブピコ秒の電子線とフェムト秒レーザーによるサブピコ秒パルスラジオリシスを開始している。

サブピコ秒の時間領域で問題になるのは、サブピコ秒の電子線パルス間の時間ジッターである。時間分解

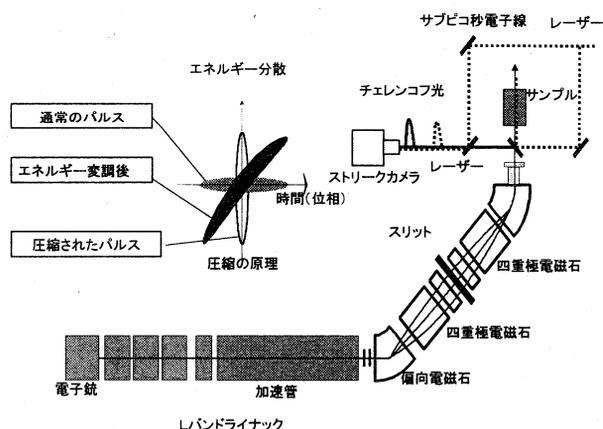


図3 Lバンドライナックによるサブピコ秒パルスの発生とタイミング検出の原理

能を得るためには、時間ジッターを1ピコ以下(できれば数百フェムト秒)にする必要がある。現有の装置によるマイクロ波同期では、その同期精度は得られていない。現在、レーザー技術は目覚しく進歩しており、プロトタイプのレーザーでは、100フェムト秒に近い同期が得られている。

本システムでは、同期の問題を解決するために、タイミングディテクションシステムを開発した。図3にシステムの原理を示したが、電子線パルスの発生するチェレンコフ光とレーザーパルスの時間間隔をパルス毎にストリークカメラにより測定する。この方式では、時間軸に対する時間ジッターの影響はなくなり、ストリークカメラの精度が時間分解能を決める。(これ以外にも、時間分解能として、パルス幅やサンプルの厚みがある。)

図4に、サブピコ秒パルスラジオリシスにより測定した水和電子の過渡吸収時間プロファイルを示す。本図では、水和電子の吸収が2ピコ秒で立ち上がっている。水和電子の生成時間は数百フェムト秒と推定されるので、本図の立ち上がり時間は、ほぼ装置の時間分解能に相当していると考えられる。

阪大産研では、さらに短い時間領域の測定を目指しているが、フェムト秒の時間領域では、電子線パルスの電荷量がピコ秒パルスより少なくなることに加え、サンプルの厚みが短くなることから、吸収の測定はかなり困難となると思われる。そのために、電子線パルスおよびレーザーの強度や位置の安定性の向上などを中心にシステムの改良が行われる予定である。

また、産研では、別にレーザーフォトカソードRF電子銃を搭載したSバンドライナックによるパルスラジオリシスシステムの開発も平行して進められている。詳細に関しては別に発表があるが、パルスラジオリシスの高時間分解能化に対するメリットも多く、今後注目すべき方法であると思われる。

5. 超高速現象への応用

現在、ピコ秒パルスラジオリシスを用いて、放射線化学の初期過程、イオン・電子・励起状態の反応挙動、電子構造の緩和過程等の研究が行われているが、フェムト秒パルスラジオリシスが可能になることで、量子ビームと材料の相互作用における基礎過程、超高速緩和過程等の研究がさらに大きく進展することが期待されている。以下にいくつかの具体例について述べる。

原子力や宇宙分野では、耐放射線材料の開発が重要となる。今までに、各種の耐放射線性高分子が開発されてきたが、高分子の放射線劣化のメカニズムのす

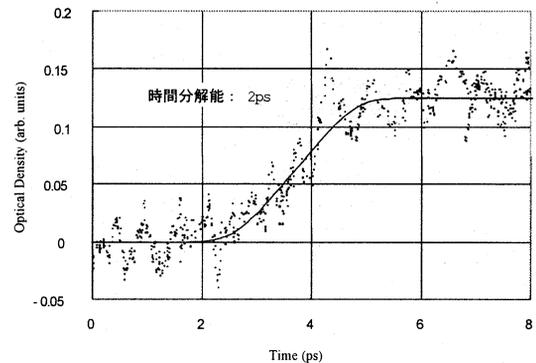


図4 サブピコ秒電子ビームで計測した水和電子の過渡吸収

べてが明らかにされているわけではない。特に、時間の早いところでの分解機構はいまだ不明であるが、その時間領域で分解を決めてしまうような重要な反応が起きている。サブピコ秒・フェムト秒の時間領域のパルスラジオリシスを行うことで、それらが解明され、より放射線に強い材料の開発が可能になる。

産業では、今後重要とされる分野に、半導体製造における次世代のリソグラフ技術がある。現在の半導体微細加工は、Si基盤に塗布されたレジストとよばれる有機系材料上に光(レーザー)を用いてパターンを描くことが基本となっている。光を使う限り、加工精度は干渉等の問題で波長によって制限される。次世代微細加工技術では、光のかわりに放射線(電子線・X線)が使われる予定である。パルスラジオリシスを用いることにより、レジスト中に誘起される反応解析を行い、レジストの材料設計が可能となる。さらに、進んで、短パルスを活かした時間制御によるレジストプロセスの開発の可能性も秘めている。

生物・医学の分野でも超高速現象を調べるのが今後重要になってくる。放射線による細胞死、突然変異、染色体異常などのDNAに対する放射線影響は、いわゆる水の放射線分解で生成するラジカルによる比較的長時間領域の遅いラジカル反応等を中心にした放射線の間接効果が重要であると一般的に思われてきた。しかし、実際にはDNAの近辺で起こる非常に速い放射線の間接効果やDNAに対する放射線の直接効果についてもその重要性が最近認識され始めている。それに伴い、超高速過程の直接的な測定も重要になってきている。今後の発展が期待される分野である。