

Measurement System of Femtosecond Pulse Radiolysis Based on Photocathode Linac

Susumu Takemoto^{1,A)}, Takafumi Kondoh^{A)}, Jinfeng Yang^{A)}, Yoichi Yoshida^{A)}

^{A)} ISIR, Osaka University

8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047 Japan

Abstract

Femto second pulse radiolysis system is developed in ISIR using a laser photo-cathode RF gun S-band LINAC. For achievement of femto second time resolution, we developed the measurement system called 'Equivalent velocity spectroscopy'. Degradation of time resolution by velocity difference between an electron and light in a sample was avoided by the equivalent velocity spectroscopy. In the equivalent velocity spectroscopy, analyzing light incident on a sample with angle θ ($\cos \theta = 1/n$), and the wave front of an electron pulse was adjusted.

フォトカソードRF電子銃ライナックを用いた フェムト秒パルスラジオリシスの測定システム

1. はじめに

阪大産研ではレーザーフォトカソードRF電子銃ライナックを用いて、フェムト秒パルスラジオリシスの開発を行っている。フェムト秒時間分解能を達成するために、等価速度分光法と呼ぶ測定システムを開発し、サンプル中での光と電子の速度差による時間分解能の劣化を回避する。これは、分析光をサンプルの屈折率(n)に応じた角度 θ ($\cos \theta = 1/n$)で入射させ、同時に電子線とレーザーパルスが重なるように、電子線の波面の傾きを調整する。今回、電子線と分析光レーザーパルスの時間ジッターを直接測定し、高精度に補正するために、新たにフェムト秒ストリークカメラを用いて、ジッター補正システムを構築した。

2. パルスラジオリシス

2.1 パルスラジオリシス法による高時間分解能光吸収測定

これまでのパルスラジオリシスでは、ストロボスコピック法と呼ばれる量子ビームをレーザーとを同時に試料へ平行に入射させ、その試料の放射線化学初期過程をレーザー光を分析光として光吸収から見る方法が行われてきた。[Fig.1]

この方法は、電子ビームパルスのタイミングから、時刻tずらしたレーザーパルスを入射させ、電子ビームによるイオン化や励起によって生じる中間活性種濃度の時間変化を、tを変化させて過渡光吸収を測定する事によって調べる。

その-t秒からtまでの吸収強度の変化は、吸収が

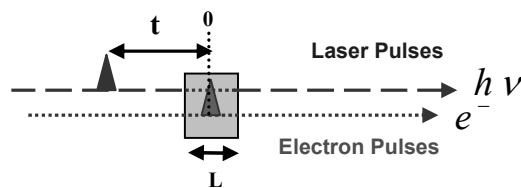


Fig.1 ストロボスコピック法

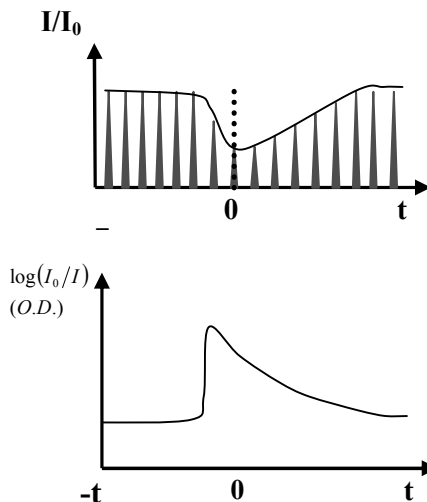


Fig.2 ストロボスコピック法における光吸収測定イメージ

あるときをIとして、吸収のないときの I_0 で割って、対数を取る。[Fig.2]吸収の時間経過として示す。

又、O.D.は

$$\log I/I_0 = \epsilon c L \quad [\text{eq.1}]$$

ϵ :モル吸光係数、 c :中間活性種濃度、 L :光路長である。この時注目したいのは、吸収強度はLに依

¹ E-mail: susumu81@sanken.osaka-u.ac.jp

存しているという事である。

2.2 パルスラジオリシスの時間分解能決定要因

パルスラジオリシスにおいて時間分解能を決定する要因としては、1,電子線のパルス幅(Δt_e)、2,分析光のパルス幅(Δt_L)、3,電子線と分析光の時間ジッター(Δt_j)、4,サンプル中での光と電子の速度差($g(L)$)である。

$$g(L) = \frac{L}{c} \left(n - \frac{1}{\beta} \right) \quad [\text{eq.2}]$$

n :媒質中の屈折率、 β : v/c (平行入射の場合) 又、これらの関係を式で表すと

$$\Delta t_{\text{Pulseradiolysis}} = \sqrt{\Delta t_e^2 + \Delta t_L^2 + \Delta t_j^2} + g(L) \quad [\text{eq.3}]$$

である。つまり、 $g(L)$ を減らす事が最も有効である事がわかる。この時にeq.2より、速度差 $g(L)$ を小さく取ろうとすると、光路長 L を短くする必要がある。しかし、eq.1から同時にO.D.も減少してしまう事になる。つまり、時間分解能を向上させようとするれば、同時に吸収強度も低下させてしまう。

3. フェムト秒パルスラジオリシスにおける等価速度分光法とフェムト秒ストリークカメラによる時間ジッター補正

3.1 等価速度分光法の基本概念

そこで導入したのが等価速度分光法である。[Fig.3]これは、媒質の屈折率に応じて、レーザーに対して電子ビームに角度 θ をつけ、それぞれの光路長を変えることで、媒質中での速度を等価にするというものである。同時に、レーザーとの波面を揃えるために、電子ビームの波面を傾ける、速度差 $g(L)$ を0に近づける。

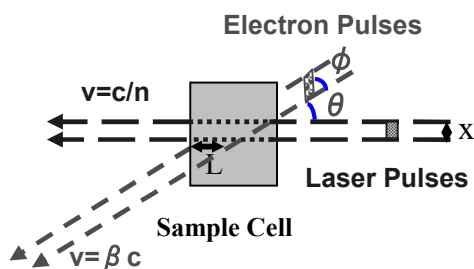


Fig.3 等価速度分光法

この時、角度 θ と屈折率 n の関係は、
 $\cos \theta = (1/n)$ [eq.4]
与えられる。

3.2 計測装置

フェムト秒電子線を発生する加速器についてはRef.[1]を参照。更に、レーザーについては、フェムト秒レーザーを使用、レーザーと電子ビームの時間

間隔を200fsの時間分解能を持つストリークカメラ

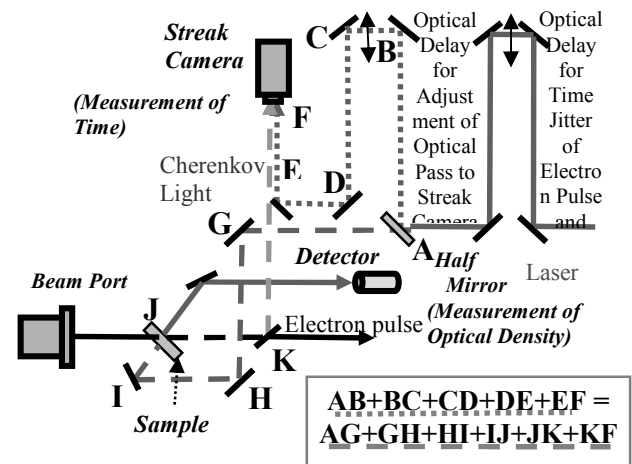


Fig.4 フェムト秒パルスラジオリシスにおける等価速度分光法とジッター補正システム

で計測、サンプル中での吸収強度をフォトダイオードを用いてそれぞれ計測する。[Fig.4]

3.3 ジッター補正システム

サンプル位置での電子線に対する分析光パルスのタイミングを調整、時間スキャンを行うために、光学遅延を配置した。今回、電子線と分析光レーザーパルスの時間差を直接測定するためにフェムト秒ストリークカメラを用いた測定システムを組み込んだ。概要をFig.4に示す。サンプルを通過した後の分析光を分岐するのは、光吸収を測定する上で光强度的に不利なので、サンプル入射前に分析レーザー光を分岐した。この場合には、サンプルでのタイミングを直接反映するように光学系を設計し組み立てる必要がある。そこで、新たにストリークカメラのパス調整用の光学遅延を用いて、Fig.1の $AB+BC+CD+DE+EF$ と、 $AG+GH+HI+IJ+JK+KF$ が同じになるように設定した。

3.4 電子ビームの波面制御

電子ビームについても、レーザーとの重なりを最適化するために、Fig.3のように波面を ϕ 傾ける必要がある。パルス制御についてはFig.5に示す。Nd:YLFpsレーザーからの紫外光が、Photocathode RF

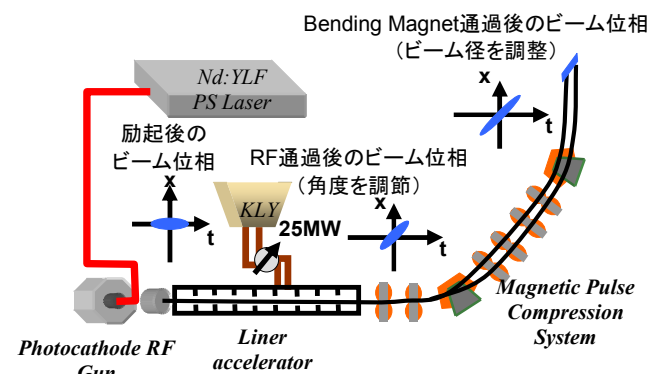


Fig.5 電子ビームの波面制御

Gunに入射され、光電効果により電子が発生する。Liner acceleratorで高周波の位相を調節してやり、sin波によって電子ビーム中の速度分布を変調する。その後、磁気圧縮器によって電子ビームの軌道を調整し、等価速度分光に必要な電子ビームパルスを生成する。

4. ダブルパルス法

ダブルパルス法とは、時間的に近い二つのレーザーパルスを切り出して、一つを分析光、一つを参照光にする事により、S/N比を向上させる手法である。時間的に近いパルスを切り出す事により、強度のドリフト成分と、機械的振動などの長周期揺らぎ成分を取り除く事が可能となる。従来のシングルパルスをFig.6、ダブルパルスの安定性をFig.7にそれぞれ示す。

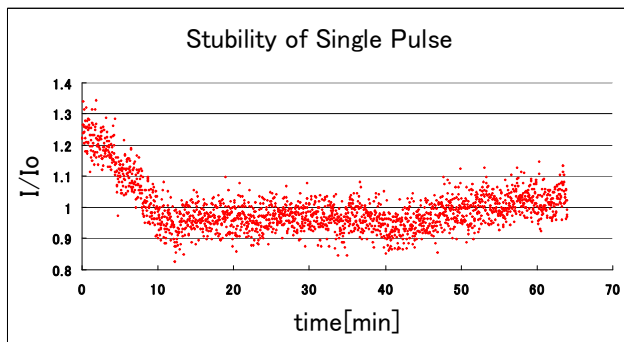


Fig.6 シングルパルスの強度の安定度

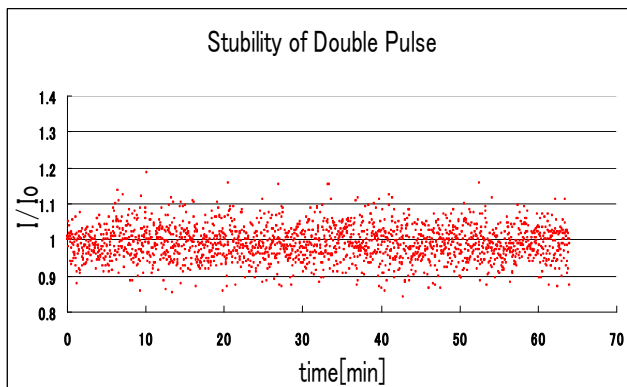


Fig.7 ダブルパルスの強度の安定度

シングルパルスでは、64分間2000shotでの安定度は7.9%であったが、ダブルパルスでは、同じ条件での安定度は4.75%であった。これらの結果より、ダブルパルス法を用いた法が、約3%安定度が向上した事が言える。

5. レーザーの位置安定性

電子ビームと分析光の重なりが光吸収に影響を与えるので、分析光を長距離輸送した場合の、サンプル付近でのレーザーの位置の安定性が重要となる。以下に、分析光のサンプル位置での横軸の変動を

Fig.8、縦軸の変動をFig.9にそれぞれ示す。

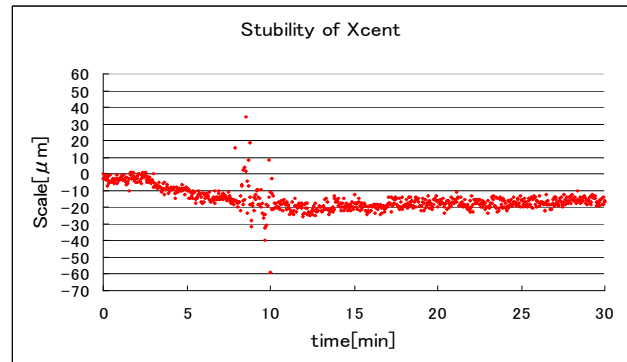


Fig.8 サンプル位置での分析光の横軸変動

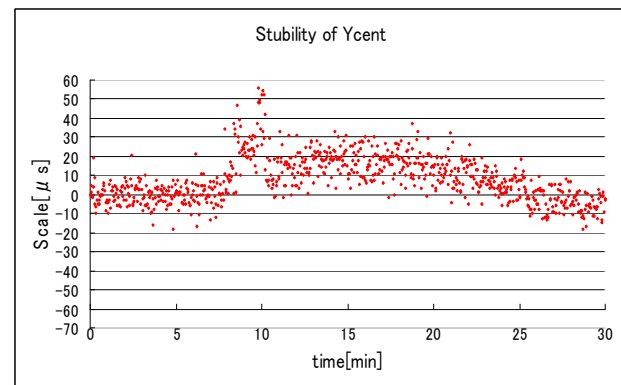


Fig.9 サンプル位置での分析光の縦軸変動

30分間の測定では、どちらも数十μmに変動を抑える事がわかった。ダブルパルスでは、安定度は向上する結果は得られたものの、短い時間で見ると、広がりが見られるため、短時間での更なる安定度の向上を図る必要がある。

6. まとめ

等価速度分光法では、従来のパルスラジオリシスでの、時間分解能と吸収強度の両立を果たす可能性がある。ダブルパルス法では、64分間での測定では安定度が約3%向上したが、短時間で見た時に、更なる安定度の向上を図る必要がある。ビームと分析光の重なりを示すために行なった、サンプル位置での、分析光の安定度測定は30分間では数十μmであった。

参考文献

[1] J. Yang, T. Kondoh, T. Kozawa, Y. Yoshida, S. Tagawa, "Pulse radiolysis based on a femtosecond electron beam and a femtosecond laser light with double-pulse injection technique" Radiation Physics and Chemistry2005