

DEVELOPMENT OF PICO-SECOND PULSE RADIOLYSIS SYSTEM USING SC PROBE LIGHT

Ryosuke Betto^{#,A)}, Yuji Hosaka^{A)}, Koichi Ogata^{A)}, Yohei Kawauchi^{A)}, Kazuyuki Sakaue^{A)},
Ryunosuke Kuroda^{B)}, Shigeru Kashiwagi^{C)}, Kiminori Ushida^{D)}, Masakazu Washio^{A)},

^{A)} Research Institute for Science and Engineering, Waseda University
3-4-1 Okubo, Shinjuku, Tokyo, 169-8555

^{B)} Advanced Industrial Science and Technology,
1-1-1, Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8658

^{C)} Research Center for Electron and Photon Science, Tohoku University
1-2-1, Mikamine, Taihaku, Sendai, Miyagi 982-0826

^{D)} The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)
2-1, Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198

Abstract

Pulse radiolysis is one of the most important and powerful means for detecting transient and relaxation phenomena and following their behavior in irradiated systems. We have been studying on pulse radiolysis system with Cs-Te photo cathode RF-gun at Waseda University. Stable short pulse white light generation is a key for the pulse radiolysis system. Recently, it can be generated by Photonic Crystal Fibre(PCF) in which laser field is high enough for producing nonlinear optical effect and produces a white spectra short pulse, called Super Continuum (SC). Then we firstly tried to apply SC light as a candidate for a probe-light in pico-second pulse radiolysis system. Its S/N ratio and time resolution are 38, 22ps(rms) respectively.

SC 分析光を用いたピコ秒パルスラジオリシスシステムの構築*

1. はじめに

半導体リソグラフィにおける放射線微細加工技術、核燃料再処理過程、架橋反応を利用した材料性能の向上、生命工学、放射線によるがん治療など、様々な場面で放射線が利用されており、放射線化学の研究は今後ますます重要視されるであろう。放射線による化学反応は主にイオン化から始まり、熱化電子の生成、ラジカルの反応など、通常の化学反応とは異なる反応を示すことが知られており、このような超高速の物理化学的反応を直接観測する最も有力な方法として、パルスラジオリシス法が知られている。

パルスラジオリシス法とは、主に加速器等で生成されたパルス放射線を試料物質に照射し、誘起されたラジカルや溶媒和電子などの短寿命中間活性種を吸光法や発光法で観測する手法である。近年、レーザーや加速器の性能向上により、時間分解能はピコ秒やフェムト秒のオーダーとなっている。

しかしながら、パルスラジオリシスシステムには大掛かりな施設及びスペース、またコストが必要であるため、本研究室ではこれまで比較的安価で且つコンパクトな BNL-Type フォトカソード RF 電子銃を用いた吸光法パルスラジオリシスシステムの構築を行ってきた。2007 年度には Cs-Te カソードを新たに

に導入し、電荷量の向上を見せている。今回は、分析光の新たな候補とし SuperContinuum (以後 SC) 分析光を導入し、その特徴と評価、並びにピコ秒パルスラジオリシスシステムの S/N 比と時間分解能の改善点と今後の課題について報告する。

2. システム構成要素

2.1 Cs-Te フォトカソード RF-gun

本研究室では、早稲田大学喜久井町キャンパスにフォトカソード RF-gun を基礎としたコンパクト電子加速器を構築し、ビーム診断実験、パルスラジオリシス実験、及び軟 X 線生成実験を行っている。フォトカソード RF-gun はビームの時間構造が入射レーザーによって制御できるため、容易にピコ秒電子パルスを生じ、空洞の高電場により即座に相対論的エネルギーまで加速されるので、空間電荷効果によるエミッタンスの増大を防ぐことができる。2007 年度には Cs-Te カソード蒸着、2009 年度には電子ビームのマルチパルス化を行い、実験に適切な bunch 数・電荷量を自由に選択できるようになった。パルスラジオリシスシステムにおいては、ナノ秒分解能で 10bunch、ピコ秒分解能では 1bunch の電子ビームを用いている。1bunch における電子ビーム及び入射 UV の主要パラメータを Table.1、2 に示す。RF-gun のより詳細な情報に関しては、本研究室の鈴木氏の研究^[1]を参照されたい。

bttou.ryosuke@akane.waseda.jp

*Work supported by JSPS Grant-in-Aid for Scientific Research (A)1001690 and JST Quantum Beam Program

Table.1 : 電子ビーム主要パラメータ

Bunch length	~10ps
Energy	4.0MeV
Charge/Bunch	~5nC

Table.2 : UV レーザー主要パラメータ

Pulse duration	~10ps
Energy	10 μ J
Wave length	262nm

2.2 SuperContinuum 分析光

SuperContinuum とは、その名の通り幅広いスペクトルをもった白色光であり、最近では Photonic Crystal Fibre(PCF)と呼ばれる屈折率導波型ファイバにレーザーを入射することによって光を閉じ込め、高エネルギー密度の状態にして非線形光学効果を生じさせ、生成することができる。

PCF とは石英ガラス製のファイバに、蜂の巣上に規則的にエアホールを配列させて作られた特殊なファイバ(Fig.1)で、コアと周囲のエアホール層の屈折率差により伝播を可能にしている。ピコ秒領域での非線形光学効果は誘導ラマン散乱が支配的であると考えられ、スプリットステップフーリエ法を用いたシミュレーション^[2]が広く行われている。今回我々が用いた PCF(NKT-Photonics)のパラメータを Table.3 に示す。

パルスラジオリシスシステムへの導入に先立ち、SC 分析光の生成実験を行った。入射レーザーは UV 生成にも用いられる IR レーザー(Pulrise-V)を使用している。実験セットアップ及び SC 分析光スペクトルを Fig.2、3 に示す。

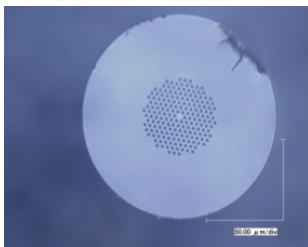


Fig.1 : PCF クラッド部断面図

Table.3 : PCF 主要パラメータ

Material	Pure silica
Zero-dispersion wavelength	1047nm
Core diameter	5 μ m
Total length	10m

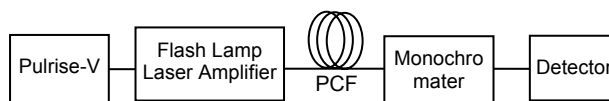


Fig.2 : SC 分析光生成実験セットアップ

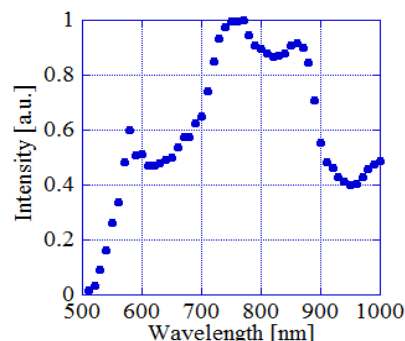


Fig.3 : SC 分析光スペクトル

Pulrise-V は Nd:YLF 結晶による波長 1047nm の受動モードロック式パルスレーザーであり、RF 周波数 2856MHz と同期した 119MHz で CW パルスを発振している。これをフラッシュランプ励起増幅器により約 2000 倍まで増幅し、集光した後に PCF に入射される。この条件で 530nm~1000nm の SC を観測することができる。従来は水セルに大強度 IR を入射し白色光を得るといった手法であったが、このとき得られる光は 700nm~900nm^[3]であったため、大きく改善している。PCF は、入射レーザーの Average power がある一定の閾値に達すると端面破壊することが実験で確認されており、より短波長領域までのスペクトルを得るためには入射レーザーの Average power を抑えつつ Peak power を増強する必要がある。現在、1 パルスでの SC 分析光実験を行っており、更なる改善を見せている。

また、ビーム入射位置にピンポイントに分析光を入射することが必須命題であるパルスラジオリシスにおいて、0.1mm 以下にまで容易に集光できる SC 分析光は理想的な光源である。この事実は、電子ビームのサイズを SC 分析光と同程度まで収束することができれば、Signal をますます増大させることが可能であることを示唆している。

3. システム評価実験と測定結果

SC 分析光を用いた Strobe-scopic 法のピコ秒パルスラジオリシスシステムを、Fig.4 に示す。Strobe-scopic 法とは分析光に光学遅延ステージを設置することにより静的にプロファイルを取得することによって、ディテクターの時間分解能を超越した測定を可能にした手法である。

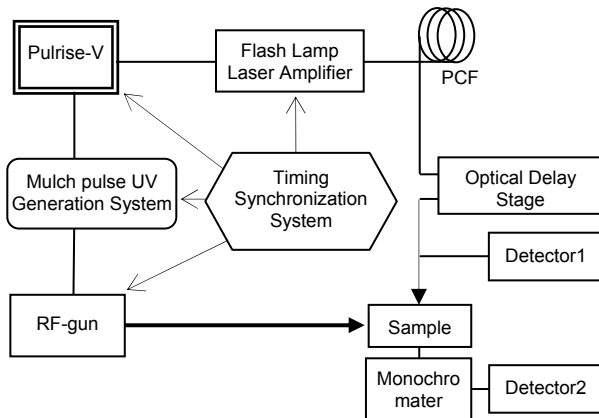


Fig.4 : Stroboscopic 法によるピコ秒分解能パルスラジオリシスシステム概略図

試料サンプルとしては Ar バブリングを施した超純水試料を用いた。放射線誘起により超純水中では水和電子が生成されるが、水和電子の生成時間は照射後 540fs であり、ピコ秒の領域ではステップ関数とみなすことができる。ディテクターには Si フォトダイオード (Thorlab 製・時間分解能 1ns) を 2 つ用いている。これは試料セル入射前と入射後の相関をとり、パルスの強度揺れによる誤差を加味するためである。

水和電子の最大吸収波長 720nm におけるシステムの時間分解能及び S/N 評価実験の結果を Fig.5 に示す。結果、S/N に関しては 22 (2007 年度) から 38 (2010 年度) へ倍近く向上している。これは、SC 分析光のセル入射における制御性能の向上によるものと、電子ビームの電荷量増強によるものであると考えられる。

時間分解能に関しては、12ps (σ) から 22ps (σ) に劣化している。

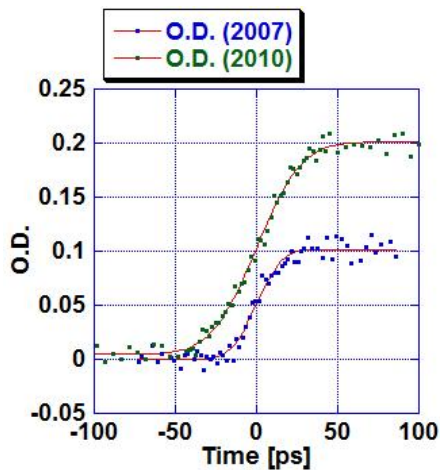


Fig.5 : ピコ秒分解能パルスラジオリシスシステム立ち上がり (blue:2007、green:2010)

ストロボスコピック法による時間分解能の理論値は、以下の式で導出することができる。

Time Resolution (estimated value)

$$\sigma = \sqrt{\sigma_{bd}^2 + \sigma_{ss}^2 + n^2(\sigma_{bs}^2 + \sigma_{sd}^2)} [ps] \quad (1)$$

$$\left\{ \begin{array}{ll} \sigma_{bd} : \text{bunch length} & \sigma_{ss} : \text{SC size} \\ \sigma_{bs} : \text{Beam size} & \sigma_{sd} : \text{SC pulse width} \\ n : \text{refractive index} \end{array} \right\}$$

このパラメータの中で測定により既知であるものは、Beam size、SC size である。Beam size 測定結果を Table.4 に示す。SC size は試料セル位置で 10 μm (rms) と非常に小さいことが分かっている。それぞれの値と今回得られた時間分解能 22ps(rms) を式(1)に代入すると、残るパラメータは bunch length と SC pulse width のみとなる。これらのパラメータに関しては今年度、ストリークカメラを用いた測定を行う予定であり、時間分解能に関する完全な議論が可能となる。しかしながら、今回の結果から推察するに、SC pulse width、bunch length 共に Pulrise-V のパルス幅 10ps から 2 倍程度広がっていることが予想される。

Table.4 : 電子ビームスポットサイズ

Beam size X	1.7mm(rms)	5.6ps
Beam size Y	1.0mm(rms)	3.3ps

4. まとめと今後の予定

我々は、SC 分析光生成実験並びにピコ秒パルスラジオリシス導入実験を行った。SC 分析光生成実験においては、530nm~1000nm の指向性・安定性の高い光を確認することができた。なお、SC の性質上、レーザー波長 1047nm を中心にスペクトルが広がっていくため、IR 領域スペクトル測定も今後の課題である。ピコ秒パルスラジオリシス導入実験では、S/N 比 38ps と従来に比べ大きく改善したが、時間分解能に関しては 22ps(rms) と劣化している。今後は、ストリークカメラを用いた SC パルス幅、電子ビームバンチ長測定を行い、理論的時間分解能を導出し、分析光の入射方法や電子ビームの性能改善に努めていく予定である。

参考文献

- [1] T.Suzuki et al., "The Study of Beam Physics with Photo Cathode RF-gun at Waseda University", Proceedings of the 64th The Physical Society of Japan, Tokyo, March. 27-30, 2009
- [2] Wei Jin et al., "Effect of frequency chirping on super-continuum generation in dispersion flattened and dispersion decreasing fibre"
- [3] H Nagai et al., "Development of Compact Picosecond Pulse Radiolysis System at Waseda University", Proceedings of the 3rd Annual Meeting of Particle Accelerator Society