

## フォトカソード RF 電子銃ライナックを用いた

### アト秒パルスラジオリシスの構築

#### DEVELOPMENT OF ATTO-SECOND PULSE RADIOLYSIS APPARATUS WITH PHOTO-CATHODE RF GUN ELECTRON LINAC

神戸正雄, 菅晃一, 近藤孝文, 楊金峰, 吉田陽一

Masao Gohdo, Koichi Kan, Takafumi Kondoh, Jinfeng Yang, Yoichi Yoshida

The Institute of Scientific and Industrial Research (I.S.I.R.), Osaka University

#### Abstract

Atto-second pulse radiolysis technique with a photo-cathode RF electron gun linac has been developed at I.S.I.R. Osaka University. Ultra high-time resolution pulse radiolysis will be a powerful technique for analyzing and understanding quantum beam induced reaction by direct observation of transient species. The highest time-resolution of this technique was 240 fs achieved in 2011 (I.S.I.R.) and the time-resolution was not enough to analyze the primary reaction dynamics. The required quality of an accelerated electron beam and its application on pulse radiolysis technique were discussed. It is possible to realize the atto-second pulse radiolysis from view points of accelerator technique and time-resolved spectroscopy.

#### 1. はじめに

パルスラジオリシスは放射線誘起化学反応の反応ダイナミクスを直接観測できる非常に有用で強力な手法である。パルスラジオリシスとは電離放射線を測定対象に照射し、観測対象空間における過渡種の濃度の時間変化を観測する手法である[1]。化学反応のみならず、半導体中やポリマー中の励起子や電荷移動等も観測対象となり得る。測定波長は紫外～可視～近赤外領域だけでなく、近年では中赤外領域の再開発、また、ラマン分光や時間分解マイクロ波伝導度測定との組み合わせもなされている。さらに最近ではテラヘルツ分光への展開も報告されている[2]。測定波長領域の拡張により測定対象となる現象が広がり、さらに有用な知見が得られるものと期待される。過去には静電型加速器も用いられてきたが、昨今では専ら線形加速器を用いたパルスラジオリシスが開発されている。特に、電子源にフォトカソード RF ガンをを用いた加速器の開発や開発計画が各地で行われている。これはフォトカソード RF ガンがコンパクトである上に、短パルス電子線を比較的容易に作り出せるというメリットによるものと考えられる。時間分解分光において、時間分解能は最も重要なスペックの 1 つであり、パルスラジオリシスの高時間分解能化には、加速器技術と時間分解分光技術の双方の進展が重要である。阪大産研では、フォトカソード RF ガン LINAC (図 1) を用いたフェムト秒パルスラジオリシス測定装置の開発に取り組んでおり、幸運にも時間分解能の更新に成功している。現状では 240 fs 程度の時間分解能をパルスラジオリシスにおいて実現できている[3]。

このような現状であるが、我々は究極の時間分解能としてアト秒パルスラジオリシスを提案する。放

射線誘起反応の初期過程は現状の時間分解能では明確に測定しきれているとは言えない。これまでの結果から、高時間分解能化に成功したことによって、時間分解能による制約により観測できなかった過渡種の直接観測が可能となってきており、さらなる時間分解能の向上が有意義であることを約束している。放射線(本稿では専ら加速電子線である)が媒質中に入射したときに起こる現象は「電離・イオン化」である。この電離する時間自体は見積もることが難しいものの、凝縮系における電離用パルスは 1 fs を切る程度までは十分に意味のある展開と考えられる。本稿では、アト秒パルスラジオリシスの実現に向けた取り組みと、実現に必要な条件、要素技術について報告し、考察する。

我々の LINAC は本年 1 月末に同じ産研内への移設の為、1 度シャットダウンを行った。移設に伴い、これまでよりも更に短い電子ビームの発生に向けた仕様変更も同時に行った。さらに、ビームポートの増設を行い、これまでの 2 ポートから 3 ポートとなった。増設したビームポートは磁気パルス圧縮器を備えておらず、取り出せる電子ビームは数ピコ秒程度と予想される。この電子ビームをイオン化源として、時間分解能 100 ps のパルスラジオリシス測定システムを新規に開発し、過渡種の  $10^{-10}$ ~ $10^{-6}$  秒の時間領域のダイナミクスの解析に活用する。超々高速領域だけでなく、継続する超高速反応の解明により、反応ダイナミクスのより詳細な理解が進むものと期待できる。本システムはシングルショットを基本とした、より効率的な測定システムとなる予定である。

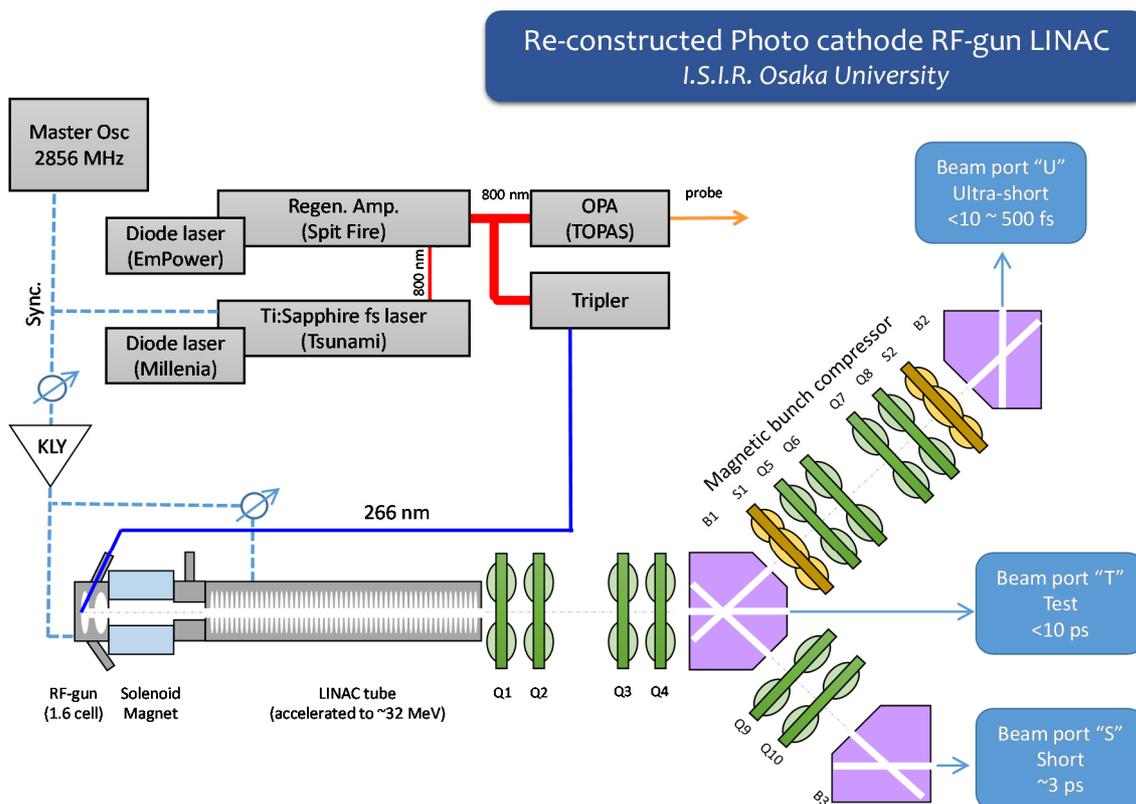


Figure 1: Schematic diagram of photo-cathode RF electron gun LINAC at ISIR Osaka University. The linac has been under reconstruction since Feb. 2014.

## 2. 極短パルス電子ビームの発生

パルスラジオリシスの時間分解能向上には電子ビームのパルス幅を短くすることが不可欠である。大雑把に言えば、時間分解能は電離用パルス源、本稿では加速電子ビーム、のパルス幅を超えることはできない。阪大産研では極短電子ビームの発生と発生したビームのパルス幅測定手法も含めて研究を行ってきた。最近、フォトカソード RF ガンでの発生電子ビームの低エミッタンス化と、磁気パルス圧縮により 10 fs より短いシングルバンチ電子ビームの発生に成功した[4]。パルス幅計測に用いたのはコヒーレント遷移輻射である。マイケルソン干渉計 (図 2) を用いて、コヒーレント遷移輻射 (CTR) の自己相関インターフェログラムを取得し、インターフェログラムの逆フーリエ変換により得られる CTR の周波数スペクトルから電子ビームのパルス幅を見積もった。ここで、電子バンチの形状としてガウス型の対称分布を仮定し、バンチ形状因子より予想される CTR の周波数スペクトルをフィッティングに用いた。これまで、ポロメーターを検出器として用いた干渉計の報告はあったが、我々は検出器をより短波長まで検出可能な半導体検出器 (MCT) を用いてインターフェログラムを取得した。数フェムト秒の電子ビームから発生する CTR の周波数スペクトルに対し、ポロメーターは十分な検出波長範囲を

持っていないが、MCT の利用により、短波長成分まで検出することができるよう改善できた。さらに、これまで行われているようなストリークカメラを用いた手法では、数フェムトまでの時間分解能は有していない。従って、自己相関法が最も信頼性の高い手法であると考えられる。また、自己相関法による限界パルス幅は特になく、検出器を CTR の輻射周波数に対して適切に選択することでアト秒領域までの電子ビームパルスについてパルス幅測定が実現可能である。

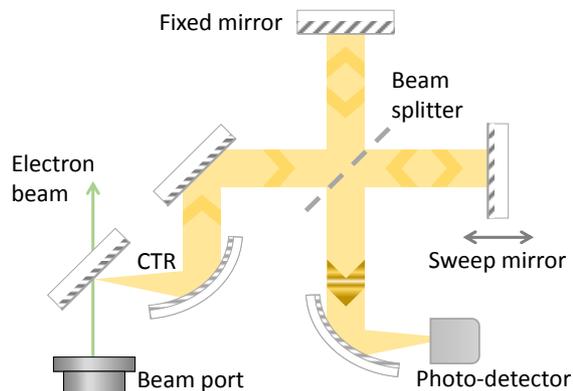


Figure 2: Schematic diagram of the Michelson interferometer for pulse width measurement measuring coherent transition radiation.

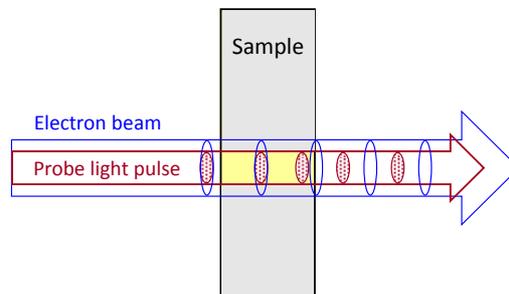
### 3. 極短電子ビームとプローブ光の等空間的・等時的制御

パルスラジオリシスには電離源となるパルス放射線の他に、現象の時間変化を観測するための分析光が必要である。産研では、フェムト秒レーザーと光パラメトリック増幅器 (OPA) を利用して波長変換した 100~120 fs 程度のレーザー光を分析光として用いたストロボ・スコピック法により高時間分解パルスラジオリシスを実現してきた。図 3a に示すように、パルスラジオリシスでは、分析光照射領域は電子ビーム照射領域であることが不可欠である。分析光が電子ビーム照射領域から外れると、過渡種の存在しない領域も観測することになり、結果として過渡種の濃度を過小評価することになり、正しい測定ができない。従って、電子ビームは測定サンプルの同じ場所 (等空間的制御) を通過し、かつ、分析光もまた、同様な条件を満たす必要がある。さらに、時間は電子ビームがサンプルに入射する時間に対して、分析光がどれだけ早く、あるいは遅く入射したかを制御 (等時的制御) する必要がある。ここで、電子ビームの位置はフォトカソードの中心からのズレ、RF ガンおよび加速管における電場の安定性、さらに、空間的に安定なビームもまた大きな影響を与える。アト秒パルスラジオリシスの実現に必要な諸元を表 1 に示す。パルスラジオリシスにおける時間分解能  $\Delta t$  は次式で与えられる。

$$\Delta t = \sqrt{t_{e\text{-beam}}^2 + t_{\text{probe}}^2 + t_{\text{jitter}}^2} + \frac{n_{\lambda} - 1}{c} L \quad (\text{式 1})$$

ここで、 $t_{e\text{-beam}}$ 、 $t_{\text{probe}}$ 、 $t_{\text{jitter}}$ 、 $n_{\lambda}$ 、 $c$ 、 $L$  はそれぞれ電子ビームのパルス幅、プローブ光のパルス幅、タイミングジッター、サンプルの測定波長  $\lambda$  における屈折率、光速、サンプルの厚み、である。現在の産研の装置において時間分解能は主に電子ビームのパルス幅と第 2 項によることが多い。式 1 の第 2 項は、サンプル中で電子ビームと光の進行速度の違いによる時間分解能の劣化である。相対論的エネルギーを

(a) Simple coaxial



(b) EVS

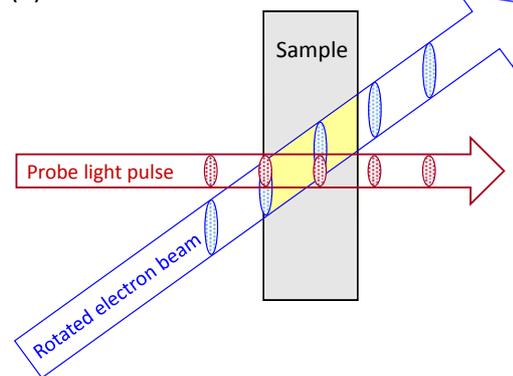


Figure 3: Optical alignment of pulse radiolysis (a) typical coaxial alignment, and (b) alignment for the equivalent velocity spectroscopy with rotated electron beam.

もつ電子ビームは媒質中でもほぼ光速で進行する。一方で、光は屈折率に依存した伝搬速度となり、常に光速より遅くなる (図 3a)。この伝搬速度の違いに基づく時間分解能の劣化を防ぐため、我々は既に「等価速度分光 (EVS) 法」と呼ばれる方法を考案し、原理実証を既に行った (図 3b) [5]。電子ビームパルスについては、我々は既に 10 fs 程度の電子ビームの発生に成功しており、この極短電子ビームパルスのパルスラジオリシスへの適用を行う。現在使用しているフェムト秒レーザーのパルス幅は 100 fs 程

Table 1: Required Properties of Electron Beam Generation and Probe Light for Atto-second Pulse Radiolysis

		ps	fs	as
Electron beam	pulse width / fs	500	100	0.5
	charge / nC	3	0.1	0.0005
	diameter / mm	3	1	0.1~0.05
	charge density / nC mm <sup>-2</sup>	0.42	0.13	0.06~0.25
Probe light	pulse width / fs	100	100	0.5
	timing jitter / fs	> 500	100	-
	sample thickness / $\mu\text{m}$	1	100	100
	detection limit (mO.D.)	1	1	0.1

度であるので、10 fs の電子ビームを用いた場合、式 1 の第一項が問題となる。これまでは  $t_{e\text{-beam}}$  が第一項において大きく寄与していたが、 $t_{\text{probe}}$ 、 $t_{\text{jitter}}$  とともに電子ビーム幅が短くなると考慮しなくてならなくなる。ここで  $t_{\text{probe}}$ 、 $t_{\text{jitter}}$  の両方を同時に小さくする方法として、ダブルデッカーパルスラジオリシス (DDPR) 法の実用化を進めている[6]。DDPR 法ではフォトカソードにフォトカソード励起用のレーザーパルスを 2 パルス入射し、ビームポートで 2 つの別々の電子ビームを発生させる (図 4)。ここで、2 つの電子ビームはターゲット位置において xy 平面上で数ミリ程度離れており、z 軸において数~数 10 ナノ秒程度離れている。z 軸上の分離はフォトカソードへの励起光パルスの入射時間差に基づく。ただし、2 つのビームは同じ加速位相で加速される必要があるため、時間差はマイクロ波の位相の整数倍の時間差 (350 ps の整数倍) でなければならない。他方、xy 平面上の位置の分離はフォトカソード上の励起位置に基づく。先行させた電子ビームはプローブ光の光源として用いる。光へと変換したパルスは、光学遅延ステージ等を経て、サンプルに入射する。プローブ光の入射位置はサンプルのイオン化源となる電子ビームと同軸とならなければならない。サンプルにはもう一方の電子ビームを入射させ、電子ビーム誘起反応の時間分解分光を実現する。ここで、プローブ光のソースも、反応誘起用電子ビームも 1 つのマイクロ波列でごく近い時間に加速された電子ビームであり、2 つのパルス間のジッターは非常に小さくなることが期待できる ( $t_{\text{jitter}} \approx 0$ )。また、この方法で得られるプローブ光のパルス幅は電子ビームのパルス幅よりは長くなるものの ( $t_{e\text{-beam}} \approx t_{\text{probe}}$ )、同程度のパルス幅までの光が得られる利点がある。従って、DDPR 法では式 1 第一項は  $\sqrt{2} t_{\text{probe}}$  と近似される。EVS 法と DDPR 法の組み合わせで時間分解能を概算すると、5 fs の電子ビームパルスの時に 7 fs 程度、500 as 程度の電子ビームを用いて 1 fs と概算できる。我々は既に DDPR 法の原理実証を行っており、可視~近赤外領域だけでなくテラヘルツ領域のパルスラジオリシスが可能であることを示した。電子ビームの光への変換手法により、プローブ光の選択幅が比較的広く、DDPR 法の有用な特徴となっている。電子ビームの光への変換手法はこれまでチェレンコフ輻射、CTR、等を用いてきたが、更なる手法の開発を継続的に行っている。ここで要点となるのは光強度と光パルスのパルス幅である。光強度は検出器との組み合わせによる部分もあり一概には言えないが、CTR はアト秒パルスラジオリシスのプローブ光ソースとして有力な手法と考えられる。例えば、チェレンコフ光を強く得ようとすると同媒質の密度を大きくするか、電子ビームの電荷量を大きくする必要があるが、これは極短電子ビーム発生の必要条件と相反する。一方で CTR では、電子ビームのパルス幅が短くなるほど強くなる性質があり、また光パルス幅も電子ビームと同程度と考えられる為、アト秒パルスラジオリシスに向いている。ただし、CTR によって得られる光パルスの波長領域と幅は電子ビームのパ

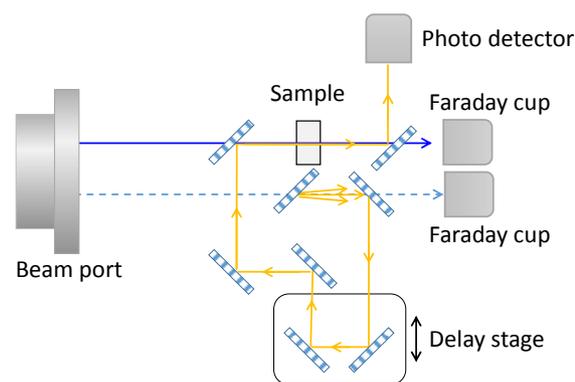


Figure 4: Optical alignment for double decker pulse radiolysis.

ルス幅に大きく依存する点に注意を要する。既存の光源ではアト秒パルスラジオリシスで必要となる極短光パルスを得ることは現状では難しいと考えられる。しかしながら、ダブルデッカー電子ビームの利用によりアト秒領域の光パルスを発生させることが可能となる見込みである。従って、アト秒電子ビーム発生に成功すれば、アト秒パルスラジオリシスは十分に実現可能と結論できる。

#### 4. S/N による測定限界

極短パルス電子ビームパルスを得るためには、パンチあたりの電荷を小さくすることが不可欠である。従って、イオン化により生じる過渡種の量が減少することが予想され、過渡吸収測定のス/N 比による測定限界を十分小さくする必要がある。これまでの継続的なノイズ削減により、現在のシステムにおいて少なくとも吸光度 0.0010 が、波長に依らず (260~1900 nm) に常に測定可能である。この 1 年半の間の改善で、S/N 比は約 10 倍になった。さらなる改善により、さらに 10 倍程度、つまり吸光度 0.00010 の S/N 比の実現を目指す。検出限界において問題となるのは、イオン化密度とサンプル長である (表 1)。現状においては 1ps 程度の時間分解能の時に吸光度 1 が測定可能で、この時の実験条件ではサンプル入射時の電荷密度は 0.42 nC/mm<sup>2</sup>、サンプル長 1.0 mm である。アト秒パルスラジオリシスで実現可能と見積もっている電荷密度は 0.06~0.25 nC/mm<sup>2</sup>、サンプル長 0.10 mm である。従って、現状の 1.7~7 倍程度の S/N を実現することでアト秒電子ビームを用いた時間分解吸光度測定が可能となる見込みである。アト秒電子ビームは電荷量を大きくできない、という制限があるものの、一方で小さなスポットに収束させやすい為、サンプル入射時に電荷密度としては現状の 1/2~1/7 程度となる。時間分解能の向上にはサンプル長は短いほうが EVS 法を用いている場合でも有利である。0.10 mm 程度のサンプル長は十分に扱いやすく、また吸光度としても現状の 1/10 であり、十分に実用的なサンプル長と考えられる。S/N 比の観点からは、更なる S/N 比の向上が望まれるものの実現可能性が高い範囲にあるといえる。

## 5. まとめ

フォトカソード RF 電子銃ライナックを用いたアト秒パルスラジオリシスの実現に向け、アト秒パルスラジオリシスの実現可能性を考察した。アト秒電子ビーム発生が実現されれば、イオン化誘起反応のイオン化源である電子ビームだけでなくプローブ光をも電子ビームから発生することができる為、アト秒パルスラジオリシスの実現は可能である。アト秒パルスラジオリシスの実現には、電子ビームをサンプルに収束させる、プローブ光と電子ビームの空間的制御も同時に実現する必要がある。また、ダブルデッカー電子ビームのパルスラジオリシスへの応用と等価速度分光法の実用化と同時に吸光度測定における S/N 比の向上を行う必要がある。

## 参考文献

- [1] James F. Wishart, B. S. M. Rao Eds., *Recent Trends in Radiation Chemistry* (World Scientific, 2010).
- [2] K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, I. Nozawa, T. Toigawa, K. Norizawa, Y. Yoshida "Pulse radiolysis using terahertz probe pulses", Proc. IPAC'14, Dresden, Germany, 676, (2014).
- [3] J. F. Yang, T. Kondoh, K. Kan, Y. Yoshida, Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. A, 629, 6 (2011).
- [4] I. Nozawa, K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, M. Gohdo, K. Norizawa, H. Kobayashi, H. Shibata, S. Gonda, Y. Yoshida, Phys. Rev. ST Accel. Beams 17, 072803, (2014).
- [5] J. Yang, K. Kan, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, Radiat. Phys. Chem., 78, 1106 (2009).
- [6] J. Yang, Y. Kuroda, K. Kan, T. Kondoh, T. Kozawa, Y. Yoshida, S. Tagawa, in Proc. IEEE Particle Accelerator Conf., Knoxville, TN, 1604 (2005).