

次世代アト秒・フェムト秒
パルスラジオリシスに関する研究

Attosecond and femtosecond pulse radiolysis study

吉田 陽一 (YOSHIDA YOICHI)

大阪大学・産業科学研究所・教授



研究の概要

アト秒からフェムト秒の時間領域における超高速量子ビーム誘起反応を解明するために、最先端加速器・測定技術を活用し、高性能パルスラジオリシスを実現する。アト秒電子線パルス発生、ダブルデッカー電子ビーム、等価速度分光法等の新規の手法を開発し、時間分解能の向上を図るとともに、量子ビームと物質・材料の初期過程を明らかにし、新規材料開発に役立てる。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：パルスラジオリシス、量子ビーム誘起高速反応、短パルス電子ビーム

1. 研究開始当初の背景

パルスラジオリシスは、時間的に短い量子ビームパルス材料等の物質に照射し、材料のイオン化後に生じる超高速過程を分光学的に検出する方法であり、量子ビーム誘起現象を直接的に観測できる優れた方法である。このパルスラジオリシスの時間分解能は、電子線の場合、サブピコ秒程度であったが、微細加工などの量子ビームによる材料科学からの要請もあり、さらに短いフェムト秒・アト秒領域の現象の解明が急務となっている。

2. 研究の目的

次世代のアト秒・フェムト秒パルスラジオリシスの基盤を確立するため、アト秒・フェムト秒の電子ビーム発生、新規分光測定法を開発し、これまで不明であったアト秒・フェムト秒時間領域の量子ビーム誘起現象の解明を行う。

3. 研究の方法

これまでに、加速器の発生する最短の電子ビームは、100フェムト秒であった。さらに短くするために、最新鋭のレーザーフォトカソードRF電子銃を備えた電子線加速器を使用し、1フェムト秒以下の電子線パルスの発生を行う。さらに、時間分解能向上のために、加速器の性能の向上ばかりでなく、ダブルデッカー電子ビームシステムおよび等価速度分光法と呼ばれる新規の手法の実現を目指す。これらの開発要素を実装したパルスラジ

オリシス実験を行う。

4. これまでの成果

アト秒短パルス電子ビームの発生は、これまでに例がなく、新規の発生方法を考案した。RF電子銃のフォトカソードを200フェムト秒レーザー光パルスにより励起し、同時にRF電子銃を最適化することにより、0.5mm-mrad以下の極低エミッタンス・フェムト秒電子ビームの発生に成功した。さらに、このパルスを圧縮するために、磁場の高次効果を補正する、四極電磁石4台と六極電磁石2台から構成されたパルス圧縮装置を新設し、パルス発生実験の準備が整った。図1に示すように、シミュレーション結果では、630アト秒電子線パルスが得られている。

ダブルデッカー電子ビーム法は、電子線パルスと分析光パルスの時間ジッターをなくす優れた方法であり、パルスラジオリシスの時間分解能向上に重要な技術である。1台の加速器からいわゆる二階建て状に2つのビームを発生させ、その一つを分析光パルスに変換する。そのためには、電子ビームを精密に制御し、分析光パルスをうまく取出すことが必要

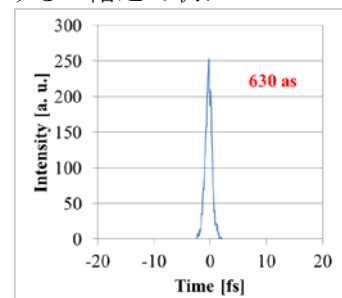


図1 アト秒電子ビーム

になる。そこで、2つの電子ビームを、独立して時間的・空間的に精密制御可能なシステムの構築、分析光パルスの強度の増強、光検出システムの改善を行った。その結果、初めてダブルデッカー電子ビームシステムによるパルスラジオリシス実験に成功した。

アト秒・フェムト秒時間領域では、サンプル中の電子線パルスと分析光パルスの速度差による時間分解能の劣化が無視できない。それを避けるためには、0.1 mm といった非常に薄いサンプルセルを用いる必要があり、実験的にはかなり困難となる。そこで、電子線パルスと分析光用のレーザーパルスの安定化を図ると共に、光伝搬・測定中に生じる温度、振動、風等による光強度の変動を補正するために、ダブルパルス法と呼ばれる光強度変動の補正技術を開発した。これにより、世界最高性能である240フェム秒の時間分解能を達成した。

サンプル中の電子線パルスと分析光パルスの速度差の問題を根本的に解決する方法として、等価速度分光法と呼ばれる手法の開発を行った。電子線パルスと分析光パルスに対して斜めに入射することにより、薄いサンプルを使用しなくても時間分解能の劣化が生じなく、かつ大強度の吸収シグナルが得られる。この時、電子線パルスの波面を進行方向に向かって回転する必要があり、その回転角はサンプルの屈折率によって決まる。アト秒・フェムト秒電子線パルスの時間幅を保ったまま、波面の回転を行うことは加速器技術上もかなり難しい問題であった。そこで、電子ビームの縦・横方向分布変調法を新たに考案し、任意の角度に回転可能なシステムの構築を行った。実際に、パルスラジオリシス実験に適応した所、時間分解能が、理論の通り向上することを確認した。

これまでに述べた成果を導入したパルスラジオリシス実験を開始しているが、特に240フェム秒の時間分解能による実験では、量子ビーム誘起初期過程に関する新しい成果が得られつつある。代表的な極性溶媒である水とアルコール中の余剰電子の挙動を詳

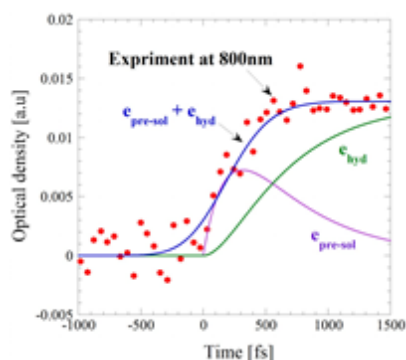


図2 フェムト秒領域における水和電子のダイナミクス

細に測定する事により、溶媒和前電子・溶媒和電子の生成過程を直接観測することに成功し、フェムト秒領域で起こる溶媒和のダイナミクスが明らかになった(図2)。捕捉剤の実験では、溶媒和前電子の前駆体であるドライ電子が大きな反応性を示すことが明らかとなった。また、アルカン等の非極性液体では、ラジカルカチオンと電子の挙動を詳細に測定し、励起ラジカルカチオンの存在を明らかにした。これにより、従来から言われてきたピコ秒領域におけるラジカルカチオンの時間挙動の実験値と理論値の不一致の問題を解決し、放射線化学分野での非極性溶媒における長年の問題を解決した。また、捕捉剤実験からは、非常に高速な電子移動現象を示唆する結果も得られている。

5. 今後の計画

今後、世界で最初の単発アト秒電子ビームの発生実験を行う予定である。この単パルス発生技術を、ダブルデッカー電子ビームシステムおよび等価速度分光法の新規な手法と結合させることにより次世代アト秒・フェムト秒パルスラジオリシスシステムの基盤を確立する。さらに、量子ビーム誘起初期過程に関しては、新規な知見が得られつつあり、今後のパルスラジオリシスの時間分解能の向上に従って、大きな進展が見込まれる。

6. これまでの発表論文等

- T. Kondoh, J. Yang, K. Norizawa, K. Kan, Y. Yoshida, "Femtosecond pulse radiolysis study on geminate ion recombination in n-dodecane", *Radiat. Phys. Chem.* **80**, 286-290 (2011).
- J. Yang, T. Kondoh, K. Kan, Y. Yoshida, "Ultrafast pulse radiolysis", *Nucl. Instrum. Method A* **629**, 6-10 (2011).
- J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, "Femtosecond pulse radiolysis and femtosecond electron diffraction", *Nucl. Instrum. Method A* **637**, S24-S29 (2011).
- K. Kan, J. Yang, A. Ogata, T. Kondoh, K. Norizawa, Y. Yoshida, "Multimode terahertz-wave generation using coherent Cherenkov radiation", *Appl. Phys. Lett.* **99**, 231503 (2011).
- J. Yang, T. Kondoh, K. Norizawa, Y. Yoshida, S. Tagawa, "Breaking time-resolution limits in pulse radiolysis", *Radiat. Phys. Chem.* **78**, 1164-1168 (2009).

ホームページ

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/bsn/yoshilab.htm>