

[F18p38]

Fundamental Research of Subpicosecond Time Resolved X-Ray Diffractometry

Harano H., Kinoshita K., Uesaka M., Yoshii K. and Ueda T.

Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo,
22-2 Shirakata-Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-11, Japan

ABSTRACT

We have proposed a new pump and probe technique, subpicosecond time resolved X-ray diffractometry, which enables the direct observation of the lattice movement, namely the temporal change of the three-dimensional atomic arrangement in the transient phenomena of the subpicosecond order. This technique uses a subpicosecond electron pulse from a linac which produces the coherent FIR transition radiation on an aluminum foil as a pump pulse and the characteristic X-ray in a copper foil as a probe pulse. The time delay between these two pulses is controlled only through adjustment of the path length of the pump pulse, so this technique has an intrinsic advantage that there is no time jitter which may cause serious problems in adding up accumulated results. Preliminary experiments for this technique have been performed using the subpicosecond S-band electron linac at Nuclear Engineering Research Laboratory of Univ. of Tokyo and several results have been obtained such as the characteristic evaluation of the transition radiation, the Bragg spot of single crystals on the imaging plate and so on. The generation of the subpicosecond X-ray pulse was also confirmed numerically using the EGS4 code.

サブピコ秒時間分解 X 線回折法の基礎研究

1 はじめに

近年の加速器やレーザ等の分野における極短パルス発生に関する技術の進歩により、例えば、フェムト秒パルスレーザを用いたフェムト秒レーザポンプ&プローブ分光法といったような極短パルスを用いた新手法による動的物性研究が盛んになってきている。東大院工系原施の S バンドツインライナックでは、700 fs[1] 及び 440 fs[2] の極短電子シングルバンチパルスが発生可能であり、導入予定の X バンドライナックでは設計段階で 100 fs [3] が発生可能と予測されている。本研究ではこれらの極短電子パルスを用いた新手法、サブピコ秒時間分解 X 線回折法を提案する。本手法では、電子パルスからの遷移放射 [4] などの様々な放射光を励起用ポンパルスとして用い、銅ターゲットへの電子パルス照射により発生する特性 X 線を分析用プローブパルスとして使用する。そしてポンパルス入射により生じる

格子状態、即ち 3 次元的原子配列の経時的変化の直接観測を X 線回折により動的に行なう。本研究では EGS4 コード [5] を用いた数値シュミレーションにより、X 線プローブパルスの特性評価を行なった。また S バンドライナックにて本手法に対する予備実験を行なったので紹介する。

2 シュミレーション

本手法では KX 線を、電子パルスを銅ターゲットに照射することで発生する。この時、KX 線発生の原因となる K 殻空孔は、「制動放射による K 殻光電効果」と「電子が直接 K 殻電子を散乱」という二通りの過程により生成する。後者はデフォルトの EGS4 では無視されているが、前者が二段階反応であるため銅ターゲットのサイズが小さくなると後者の割合が大きくなる。一方、CuKX 線 (エネルギー 8.1keV、波長 1.5Å) の銅中での減衰長が 20 μ m 程度であることを考え

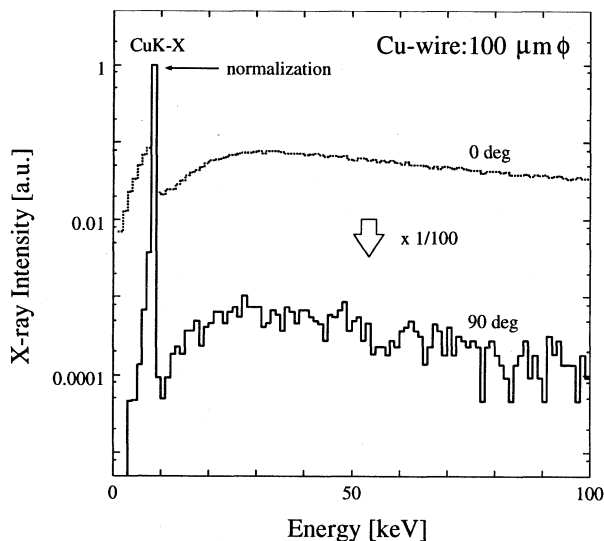


Fig.1 Comparison of (a) forward-emitted and (b) side-emitted X-ray spectra.

ると、銅ターゲットのサイズは十分小さい必要がある。従ってここでは後者を考慮した拡張版のEGS4[6]を用いた。計算ではターゲットとして銅線を仮定し、その軸に垂直に pencil ビーム状の35MeV 単色電子ビームが入射するものとした。

100 μm ϕ の銅線を用いた場合の、前方放出X線と側方放出X線のスペクトルの比較をFig.1に示す。両者はKX線のピーク位置で規格化してある。バックグラウンドの割合について、側方放出X線の方が前方放出X線より二桁以上小さいことが判る。これは特性X線は等方的に発生するのに対し、制動放射は強い前方指向性を持つことによる。従って側方からのX線を利用することで高S/N測定が可能である。またEGS4のユーザコードにてステップ毎の移動時間を積算していくことでCuKX線のパルス波形を計算した。前方放出されたKX線のパルス波形をFig.2に示す。ここでは入射電子パルス幅は無視した。また

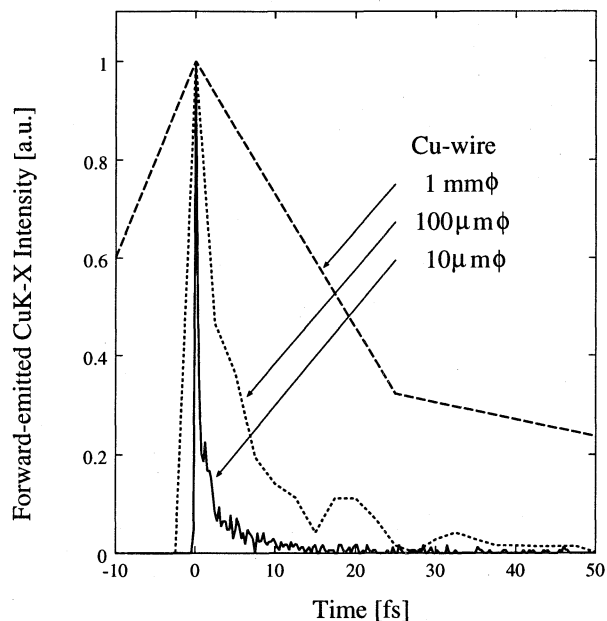


Fig.2 CuK-X pulse shapes for various sizes of copper wire.

K殻に空孔が生じてからKX線を放出するまでの時間(寿命)は銅の場合、1 fs程度である[7]ため本計算では無視した。KX線のパルス幅は実際の入射電子バッチのパルス幅よりも十分小さく、この方法にてサブピコ秒X線パルスが発生可能であることが確認できた。Table.1に計算結果をまとめる。S/N比とは、KX線強度と150keV以下のX線(KX線以外)強度の比をとったもので、X線測定にIPを使う場合を想定してラフに評価したものである。また、一電子パルス当り試料単結晶表面に届くKX線の数、並びにBragg斑を形成するのに必要な照射時間もラフに評価し示してある。但し、X線回折の効率として1/100、電子ビームの条件として繰り返し数10PPS、一電子パルス当りの電荷量を1 nCを仮定した。Table.1より銅線の径が100 μm 程度の時、サブピコ秒X線パルスが本手法に十分な強度、S/Nにて発生可能であることが判る。

Table.1 Summary of the calculated results.

Diameter of Copper Wire	10 $\mu\text{m}\phi$	100 $\mu\text{m}\phi$	1 mm ϕ	10 mm ϕ
Pulse Duration	0.2-0.3 fs	2-3 fs	20-30 fs	-
S/N Ratio	~ 7	~ 6	~ 0.4	~ 0.003
KX-rays on Sample	~ 10	~ 200	~ 500	~ 500
Irradiation Time	~ 3 hrs	~ 10 mins	~ 5 mins	~ 5 mins

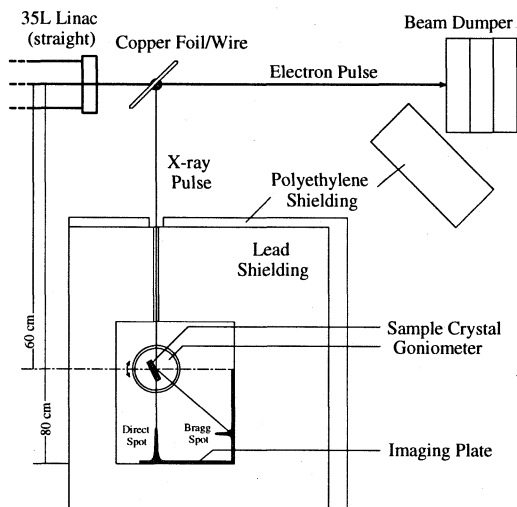


Fig.3 Experimental setup of the X-ray diffraction at NERL linac.

3 実験

これらの計算結果を踏まえ、原施のSバンド電子ライナックを用いた予備実験を行なったので紹介する。実験体系を Fig.3 に示す。試料単結晶はゴニオメータ上に設置し、X線回折像取得用のイメージングプレートとともに鉛遮蔽体中に収めた。また光中性子遮蔽の為、ビームダンプ(カーボンブロック)の周辺及び鉛遮蔽体の外側にポリエチレンを設置した。X線パルスはライナックからの電子パルスを銅線又は銅箔に入射させて発生させ、鉛遮蔽に設けた5mm幅のスリットを通して試料表面に導かれる。なお電子ビームの条件は、電子エネルギー 28MeV、パルス幅 1nsec のマルチバンチパルス、繰り返し数 50PPS であり、パルス当たりの電荷量は 1nC 弱、ビームサイズは 5mm ϕ 程度であった。

Fig.4 に約 20 分間の照射により Si(111) 面に対して得られた CuK α 線による回折像 ($\theta_B=14.235\text{deg}$) を示す。X線発生には厚さ 15 μm^t の銅箔を用いた。銅箔からの直接 X 線による (Direct Spot) とそれが Si 単結晶に遮られて生じた影 (Shadow Spot)、さらに Bragg 像 (Bragg Spot) が確認できる。この Bragg 像は $\theta_g=14.0-14.75\text{deg}$ の範囲でのみ現れた。同様にして GaAs(400)、NaCl(200) についても回折像を取得した。また X 線発生に 100 $\mu\text{m}\phi$ の銅線を用いることで Si(111) 面に対して、CuK $\alpha_{1,2}$ による回折線の分離に成功した。

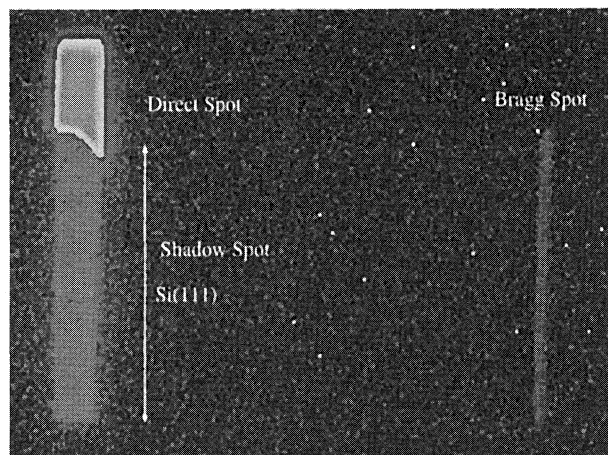


Fig.4 Si(111) diffraction image for 15 μm^t copper foil.

4 まとめ

極短ポンプパルス入射により生じる格子状態の過渡的变化の直接観測を、サブピコ秒 X 線プローブパルスを用いた X 線回折により動的に行なうサブピコ秒時間分解 X 線回折法を提案し、東大院工系原施のサブピコ秒電子ライナックにおけるその実現可能性について EGS4 コードを用いて検討した。またライナックにおける予備実験の結果、Si 等の代表的な単結晶に対し CuKX 線による回折像を取得した。

参考文献

- [1] M.Uesaka et al., Phys. Rev. E **50**, 3068 (1994).
- [2] M.Uesaka et al., Proc. of APAC'98 (in press).
- [3] A.Takeshita et al., Nucl. Instrum. and Methods **B** (1998) (in press).
- [4] T.Watanabe et al., Proc. of APAC'98 (in press).
- [5] W.R.Nelson et al., SLAC-265 (1985).
- [6] KEK Proc. 97-16 p32 and private communications with Y.Namito of KEK.
- [7] S.T.Manson et al., Atomic Data and Nuclear Data Tables **14**, 111 (1974).