

[F18p39]

## DESIGN OF FEMTOSECOND PULSE RADIOLYSIS AND LASER PHOTOLYSIS SYSTEM

T.Watanabe, Y.Muroya, N.Chitose, J.Sugahara, O.Urabe, T.Ueda, K.Yoshii,

M.Uesaka and Y.Katsumura

Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1106, Japan

**ABSTRACT** Subpicosecond pulseradiolysis and femtosecond laser photolysis system have been designed. The system consists of the S-band linac with the laser photocathode rf gun, the femtosecond laser and the femtosecond streak camera. Precision of the system is discussed in details from viewpoint of timing jitter at several rf components and finally between electron pulses and laser pulses. Furthermore, the introduction of the state-of-the-art technologies and their improvements for the system are proposed.

### フェムト秒パルスラジオリシス・レーザーフォトリシスシステムの設計

#### 1. はじめに

東大院工原施ライナックでは従来より放射線化学パルスラジオリシス実験を行ってきた。パルスラジオリシス法とは2つの同期したパルスを使うポンプ&プローブ分析の代表的な手法のひとつであり、電子パルス(ポンプ)の照射によって誘起された短寿命中間活性種の過渡現象を、発光やレーザー光など(プローブ)の吸収の時間的变化を追跡することで解明していく手法を言う。フェムト秒パルスラジオリシス法において時間分解能向上を目指す場合、ポンプ・プローブパルスの時間ジッターの低減が最重要課題であり、未だ1 ps(FWHM)を切るシステムは存在していない。世界的にはBNL [1], Orsay[2]、大阪大学[3]などが挙げられるが、商品ベースのA/O素子を用いた強制モード同期を使用しているため電子パルスとレーザー光との時間ジッターはrmsで3 ps程度である。

本研究では、レーザーフォトカソードrfガン用光パルスと分析光パルス両方を供給できるフェムト秒レーザーを用いた新たなシステムの構築を目的とする。このシステムでは、フェムト秒(含サブピコ秒、以下同様)オーダーの電子パルス、100 fsレーザーパルスをフェムト秒時間領域で高精度に制御し、全体としてフェムト秒時間領域の分解能を持たせることを目標としている。

#### 2. 同期システム

当施設において、サブピコ秒電子パルスの発生が可能な2つのSバンドライナック(35L、18L)それぞれがT<sup>3</sup>(Table-top Terawatt)レーザーと3~4 ps(rms)程度の精度で制御されるシステムを構築した(図1参照)[4,5]。35Lライナックは熱電子銃を用い、18Lライナックはレーザーフォトカソードrfガンを使用している。

システムを構築した際の精度評価基準としてレーザーパルスと電子パルスの時間間隔を統計処理する手法を用いた。つまり、レーザーパルスと、電子ビームが空気中で発生する空気チェレンコフ光をストリークカメラに導き、それらの時間間隔のばらつきの分布を求めた。フェムト秒ストリークカメラによって計測した、レーザー及び35Lライナックの発生したフェムト秒電子パルスのチェレンコフ光の像を図2に示す。図2と同様の分布図を多数取得し、電子ビームとレーザーとの時間間隔を統計処理した結果、35Lとレーザーとの時間ジッターは3.7 ps(rms)であった。同様に、18Lとレーザーとは3.5 ps(rms)であった。18Lにおいて統計処理を行った際のヒストグラムを図3に示す。図3より、電子パルスとレーザーパルスの時間間隔が、ある値を中心にガウス分布に近似できる統計的揺らぎを生じていることがわかる。この分布の拡がり

によって、ジッターを評価した。また、ジッターを数値で表す際には、分布を正規分布と仮定し、rmsを使った。

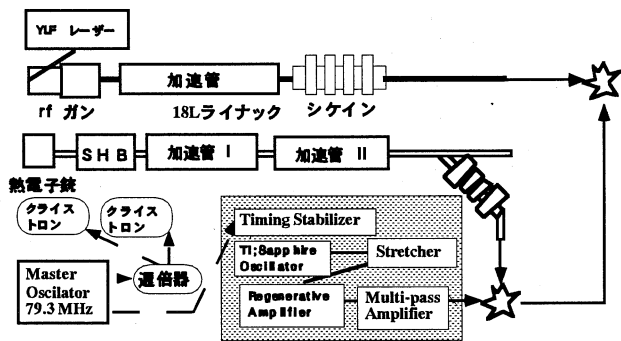


図1 ツインライナック、 $T^3$ レーザー同期システム

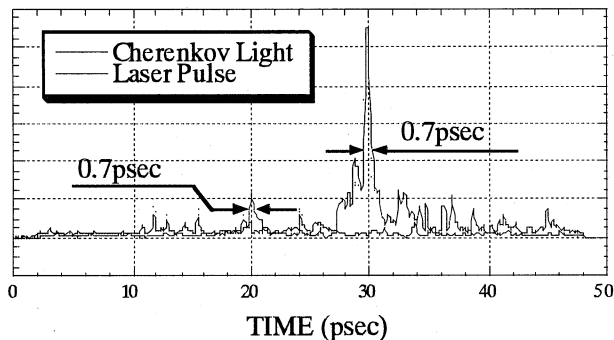


図2 35Lサブピコ秒電子・レーザーパルス同期像 (フェムト秒ストリークカメラ像)

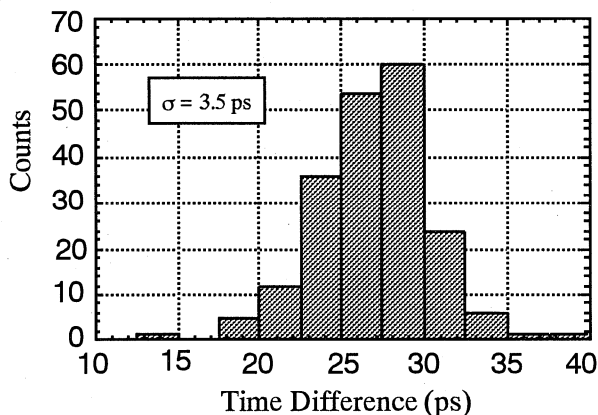


図3 18L・ $T^3$ レーザー同期ヒストグラム

35L、18Lライナックそれぞれにおける主なジッター要因と概略ジッター値を表1に挙げた。

現在の商品ベースレーザーオシレータでは強制モード同期と Kerr レンズモード同期の2種類の方式が採用されている。前者では前述のとおり 3ps (rms)のジッターを持ち、更に18Lにおいてはガン用YLFレーザーと $T^3$ と

の相互間ジッターも生じる。ライナックにおいては、rfを増幅・変調・供給するクライストロンにおけるジッターが存在する。レーザーオシレータでジッターは公称値  $\leq 3$  ps (rms) である。rf周波数変換のジッターは  $\leq 100$  fs (rms) と把握されている[6]。本ライナックでの実測値 3.5 ~ 3.7 ps (rms) には、レーザーオシレータでのジッターとライナックでのrfジッターが支配的と考えられ、後者は 2 ps (rms)前後であることが推定される。また、熱電子銃から発生する電子パルスはエネルギーが低い (90 keV) のため、35LにおいてSHB及びブリアンチャー、加速管バンチャーセクションを通過する非相対論的電子はほぼいつも安定加速rf位相に乗る。一方、レーザーフォトカソードrfガンから発生する電子は既に10psに圧縮され、相対論であるため (3 MeV)、加速管において安定位相に乗らず、rfジッターがそのままエネルギージッターとなり、磁気パルス圧縮器中で軌道ジッターとなり、最終的には電子・レーザー内の時間時間ジッターとなる。18Lとレーザーとの同期について、2つのレーザーオシレータを使用しているにも関わらず、35Lとレーザーとの同期と有意な差がないことは解析中である。

表1 35L、18L同期モードにおけるジッター要因

ジッター要因	35L vs $T^3$	18L vs $T^3$
レーザーオシレータ	○ $\leq 3$ ps(rms)	○ $\leq 3$ ps(rms)
2つのレーザーオシレータ間	×	○
クライストロン	○ 数 ps	○ 数 ps
2台のクライストロン間	○ 数 ps	○ 数 ps
ライナック中でのrf位相	△ 自己位相制御	○ 数 degree
周波数変換器	○ $\leq 100$ fs(rms)	○ $\leq 100$ fs(rms)
電子・光学素子の量子ゆらぎ	○ ?	○ ?

○ 有、× 無、△ 有意ではない

以上の実績と考察から、分解能 400 fs(rms)、900 fs (FWHM) のシステムを目指す設計を行った。

### 3. 10 ps 時間分解能パルスラジオリシス実験

現状のピコ秒同期システムを用いて、パルスラジオリ

シス実験を開始した。電子ビームのパルス幅 10 ps、ライナックとレーザーとの同期の時間分解能は 9 ps (FWHM) で、水和電子の過渡現象を測定した。

#### 4. フェムト秒パルスラジオリシス・レーザーフォトリシスシステム

新たに設計中であるフェムト秒パルスラジオリシス・レーザーフォトリシスシステムを図 4 に示す。ここでは 2 台のレーザーオシレータ間のジッター要因を除去するために、ひとつのレーザーを使用しビームスプリッターで 2 つに分けることとした。

新システムでは基本モードはフェムト秒レーザーと rf ガン付き 18 L ライナックとの同期運転を行うが、熱電子銃付き 35 L ライナックとの同期運転も実施する。また、パルスラジオリシス実験時以外は、レーザー機器をレーザー本体室に収納し、そこでフェムト秒レーザーフォトリシス実験を行う。

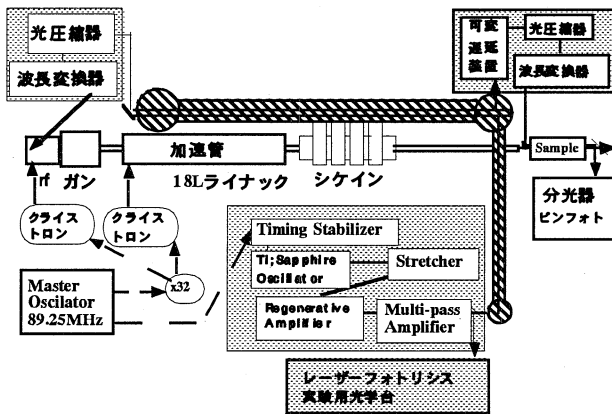


図 4. 新パルスラジオリシスシステム

レーザーオシレータにおけるジッターの低減は新たなシステムにおいても最重要課題である。このジッターはオシレータのモード同期法により異なる。現状では強制モード同期で  $\leq 3$  ps、Kerr レンズモード同期で  $\leq 2$  ps、受動モード同期 SESAMI 方式で  $\leq 100$  fs [7] であることが報告されている。また、オランダの FEL 装置 FELIX では受動モード同期によっても 400 fs (rms)、900 fs (FWHM) が報告されている [8]。オシレータにおけるジッターはモード同期における要因に加え、タイミング安定器による要因が挙げられる。前者は物理的応答速度限界と温度・湿度などの環境による。例えば Kerr レンズモード同期の場合、

2、1°C 以内に温度制御すればそれぞれのジッターは 2、1 ps (rms) 以内と言われている。後者はミラー微調整の動的機構による。これら事項を注意深く高精度に設計・制御していけば、ジッターをフェムト秒時間領域に低減可能であると考えられる。クライストロンの電圧変動による加速 rf 位相ジッターも詳細に検討中である。

これらの考察に基づき、表 1 に挙げた様々なジッター要因を区別して評価・低減していく。

#### 5. まとめ

サブピコ秒ツインライナックとフェムト秒 T<sup>3</sup> レーザーとのピコ秒同期運転の実績に基づき、フェムト秒パルスラジオリシス・レーザーフォトリシスシステムを設計し、システムの時間分解能について考察した。更に、各ジッター要因の定量的評価及び改善策を考察し、システム全体の 1 ps 以下の同期時間分解能の達成を目指す。

#### 謝辞

本研究での高エネルギー加速器研究機構・中島一久助教授、原研関西研の神門正城氏、小瀧秀行氏、酒井文雄氏、出羽英紀氏、近藤修司氏の協力に感謝します。

#### 参考文献

- [1] <http://www.chemistry.bnl.gov/>
- [2] J. Belloni, Univ. of Paris-Sud, personal communication.
- [3] T. Kozawa et al., Proc. of 22nd Linear Acc. Meet., Sendai (1997), 281-283.
- [4] M. Uesaka, T. Watanabe et al., J. Nucl. Mater., 248 (1997), 380-385.
- [5] M. Uesaka, T. Watanabe et al., Proc. of EPAC98, (Stockholm, 1998), in press.
- [6] 小林克行, フェムト秒テクノロジー研究機構, personal communication.
- [7] 小林克行他, 第 59 回応用物理学会学術講演会, (1998), 17aY6.
- [8] D. Oepts et al., Proc. of 6th Advanced Accelerator Concepts workshop (Baltimore, July, 1998), in press.