

Equivalent Velocity Spectroscopy for Development of Femtosecond Pulse Radiolysis System

Takafumi Kondoh^{1,A)}, Jinfeng Yang^{A)}, Akira Yoshida^{A)}, Takahiro Kozawa^{A)}, Yoichi Yoshida^{A)}, Seiichi Tagawa^{A)}

^{A)}The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka Univ.

8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka, Japan, 567-0047

Abstract

For studies of electron beam induced ultra-fast reaction process, femtosecond (fs) pulse radiolysis is under construction. To realize fs time resolution, fs electron and analyzing light pulses and their jitter compensation system are needed. About a 100fs electron pulse was generated by a photocathode RF gun LINAC and a magnetic pulse compressor. Synchronized Ti: Sapphire laser have a pulse width about 160fs. And, it is significant to avoid degradation of time resolution caused by velocity difference between electron and analyzing light in a sample. In the 'Equivalent velocity spectroscopy' method, incident analyzing light is slant toward electron beam with an angle associated with refractive index of sample. Then, to overlap light wave front and electron pulse shape, electron pulse shape is slanted toward the direction of travel. As a result of the equivalent velocity spectroscopy for hydrated electrons, using slanted electron pulse shape, optical absorption rise time was about 1.4ps faster than normal electron pulse shape. Thus, the 'Equivalent velocity spectroscopy' is effective for femtosecond pulse radiolysis.

フェムト秒パルスラジオリシスシステム開発のための等価速度分光法

1. はじめに

電子線や深紫外光や放射光などが、次世代トップダウンナノ加工の光源として注目されている。露光面積の増大による、単位面積当りの強度の減少から、電子線リソグラフィーには化学増感レジストが用いられる。高エネルギー電子線は、レジスト中でイオン化を引き起こし、二次電子を発生させる。発生した二次電子は、レジスト中を拡散し、照射位置から離れた場所でも酸を発生させる。このことにより、不明瞭なパターンになる。電子線リソグラフィーにより20nm以下の微細加工を行う場合、二次電子の拡散効果を無視できない。二次電子の拡散距離の短いレジストや、添加剤の開発と探索が必要である。このために、電子線誘起反応や現象の初期過程を明らかにする必要がある。

電子線パルスラジオリシスは、この為の強力な手法である。電子線パルスラジオリシスでは、励起電子線がサンプル中に反応中間体を生成し、遅延時間をもった分析光により、時間分解分光測定を行う。電子線によって誘起された中間体の反応過程が測定される。電子線による二次電子発生と拡散は、非常に高速な現象であり、それを明らかにするためには、フェムト秒領域の時間分解能が必要となる。

大阪大学産業科学研究所 (ISIR) では、フェムト秒の時間分解能をもった電子線パルスラジオリシスシステムを開発している。フェムト秒の時間分解能を実現するためには、いくつかの重要な要件を満たさなければならない。

- (1) フェムト秒時間幅の励起電子線パルス発生。
- (2) 分析光パルスにフェムト秒レーザーを使用。

- (3) フェムト秒電子線パルスと、フェムト秒分析レーザー光パルス間の時間ジッターのフェムト秒精度の補正 [1,2]。

- (4) 電子線とレーザー光のサンプル中での速度差による時間分解能劣化の回避。

フェムト秒電子線パルスの発生のために、磁気パルス圧縮器を取り付けた、フォトカソードRF電子銃LINACを用いた。約100fs (r.m.s.) の時間幅の電子線パルスを発生させた [3]。分析光源には、Ti:Sapphireフェムト秒レーザーを用いた。パルスセレクターを用いたために、パルス幅は約160fsであった。励起電子線パルスと分析レーザー光パルス間の時間ジッターはフェムト秒ストリークカメラで測定し、補正する予定である。

サンプル中の電子線と分析光間の速度差による時間分解能の劣化は、フェムト秒領域では大変深刻な問題である。この劣化問題を回避するために、我々は、新規パルスラジオリシス技術「等価速度分光法」を考案した。そして、等価速度分光法の測定システムを構築した。

本研究の目的は、電子線パルスラジオリシスシステムの時間分解能の向上である。この目的のためには、等価速度分光法の確立が必須である。性能評価として、水和電子の過渡光吸収の時間プロファイルを800nmで測定した。等価速度分光法の利点と性能評価の結果を報告する。

2. 実験装置

¹ E-mail: t-kondo@sanken.osaka-u.ac.jp

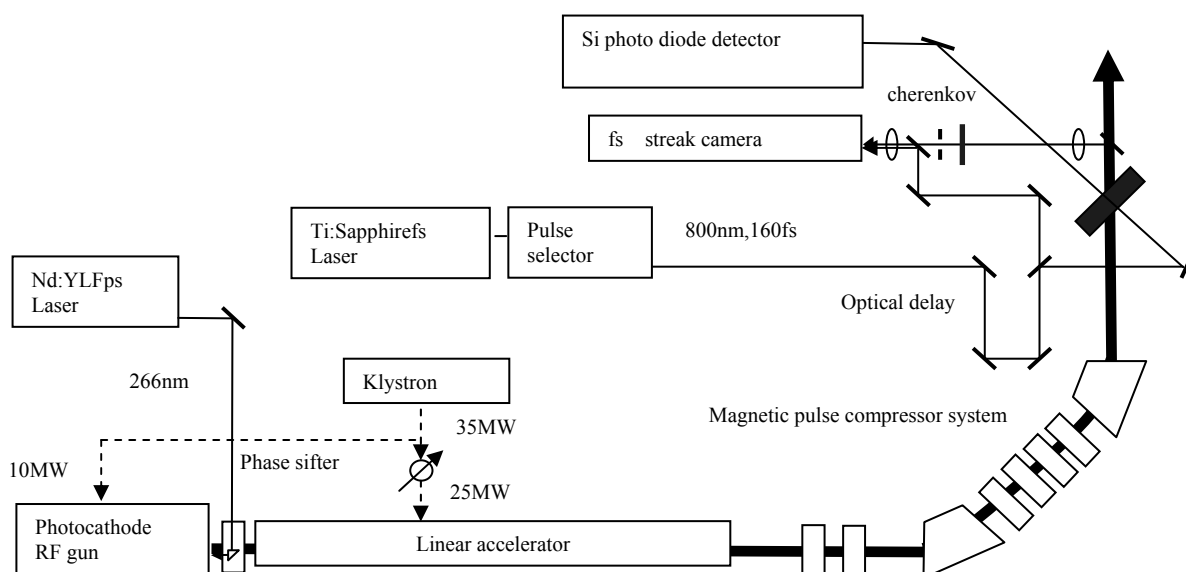


Fig.1 等価速度分光法を用いた新たなフェムト秒電子線パルスラジオリシスシステムの実験装置図

励起電子線パルスは、大阪大学産業科学研究所のレーザーフォトカソード高周波電子銃 s バンド LINAC を用いて発生させた。このフォトカソードは、無酸素銅製である。約 5ps のパルス幅の Nd:YLF レーザー (pulrise, Timebandwidth 社製) の四次高調波 (FHG: 262nm) を、銅表面にほぼ垂直にフォトカソードに入射した。2856MHz の高周波で駆動される 1.6 セル共振空洞から電子線が発生された。この電子線パルスは、2m の進行波加速管によって、エネルギー変調されながら、約 35MeV に加速された。加速された電子は磁気パルス圧縮器に入射し、最終的にはフェムト秒領域まで圧縮された。

規格化横エミッタンスは、パルスあたり 2nC の時、10mm-mrad であった。最短電子線パルス幅は、100pC/pulse のときで 98fs (r.m.s.) であった。磁気パルス圧縮器の出口で電子線パルスによって空气中で放射されたチェレンコフ光をフェムト秒ストリークカメラ (FESCA-200, C6138, 浜松ホトニクス) で測定しモニターした。この詳細は別の論文に報告されている [3]。

時間同期されたチタンサファイアフェムト秒レーザー (Tsunami, スペクトラフィジックス) を分析光源に用いた。レーザーの繰り返し周波数は、主発信器の周波数 (2856MHz) の 1/36 の 79.333MHz であった。10Hz 電子線パルスに同期したレーザーパルスのみを取り出すためにパルスセレクターを用いた。波長 800nm の分析光のパルス幅は、約 160fs である。分析レーザー光は、レーザー室から照射位置までチューブの中を約 40m 輸送された。光学遅延を通して分析光は、45度の入射角でサンプルに入射させた。サンプルを通った信号光は、高速 Si フォトダイオードによって検出された。

3. 等価速度分光法

屈折率 n のサンプル中での光の速度は $v_L = c/n$ である。高エネルギー電子線の速度は、サンプル中でもほぼ光速に等しい $v_e \sim c$ 。励起電子線パルスと分析光パルス間の速度差によって、サンプルに同時に入射しても時間分解能の劣化が生じる。

電子線パルスと分析レーザー光パルスが同じ方向でサンプルに入射する場合、この時間分解能劣化を回避するためには光学路長を短くする。フェムト秒時間分解能のためには、光学路長を非常に短くしなければならない。しかしながら、光学路長を短くすると、光吸収強度は非常に小さくなり、光吸収が測定できなくなる。

この決定的な問題を回避するために、我々は等価速度分光法を考案した。Fig.2 に、等価速度分光法の基本的概念を示した。電子線の分析光伝播方向についての速度成分とサンプル中での分析光の速度が等しくなるようにする。それゆえに、サンプルの屈折率が n のとき、電子線と分析レーザー光の間の入射角 θ は、 $\theta = \arccos(1/n)$ と表される。さらに、サンプル中で分析光パルスと電子線パルスが重なるように電子線パルスの形状を制御する。電子線パルス形状の制御には、2 個のベンディングマグネットと 4 個の四重極マグネットを用いて調整する。上記のことによって、時間分解能の劣化を回避する。

さらに、等価速度分光法における光学路長は、電子線とレーザー光の交差領域で決まる。光吸収測定において、ビームサイズが新たに重要な要素となる。光学路長は、サンプルセル長とは関係なくなる。等価速度分光法によって、時間分解能の劣化が回避され、フェムト秒の時間領域での光吸収測定が可能となる。

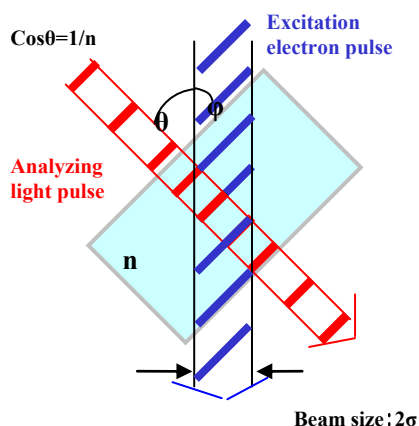


Fig.2 等価速度分光法概念図
サンプルの屈折率： n ，入射角： θ ，電子線パルス波面の傾き角： ϕ

4. 結果と考察

構築した等価速度分光法測定系の性能評価のために、水和電子の過渡光吸収を波長800nmで測定した。サンプルセルは、長さ2mmのものを用いた。励起電子線のビームサイズは、 $\sigma = 0.7\text{mm}$ であった。パルスあたりの電荷量は、0.85nCだった。電子線のエネルギーは約35MeVだった。

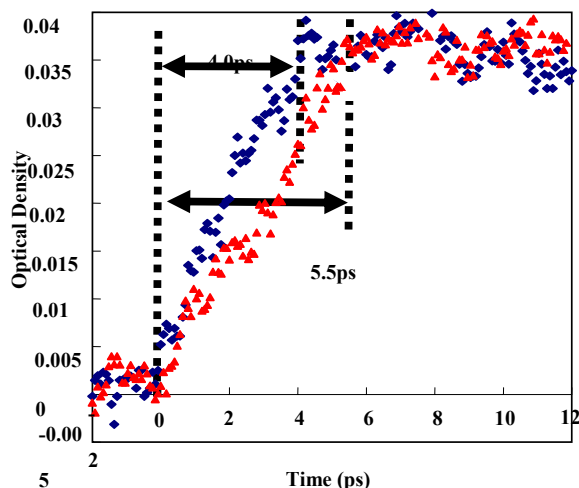


Fig.3 水和電子による光吸収の時間プロファイル。サンプルセル長：2mm，測定波長：800nm，電子ビームサイズ： $\sigma = 0.7\text{mm}$ ，電荷：0.85nC/pulse，エネルギー：35MeV

- (▲) 波面制御しない普通の斜め入射
- (◆) 波面制御を試みた場合

結果をFig.3に示す。Fig.3中の三角の点は、ただ斜めに入射させただけで、電子線の波面の制御は試みなかった場合の光吸収の時間プロファイルである。この場合の水和電子の光吸収の立ち上がり時間は、約5.5psと見積もられた。等価速度分光法のために、我々は電子線パルスのパルス形状制御を試みた。Fig.3中の四角の点は、等価速度分光法による光吸収の時間プロファイルである。この場合の光吸収立ち上がり時間は、約4.0psと見積もられた。等価速度分光法による光吸収立ち上がり時間の方が、普通の斜め入射の場合よりも約1.5ps早かった。

この結果は、等価速度分光法による時間分解能の向上を示す。等価速度分光法によって、より速い時間領域での測定が可能となるだろう。

単純な幾何学的考察から得られた式に基づいて、電子線パルスの波面が、約70度 ($\approx 70^\circ$) であると見積もられた。しかし、この値には信頼性がほとんどない。電子線パルス形状を制御したという実験的に直接測定したデータはまだない。電子線パルスの形状を測定する確かな方法を開発する必要がある。

5. まとめ

新たなパルスラジオリシス測定技術である、等価速度分光法を提案した。等価速度分光法のために、分析光レーザーパルスを、サンプルの屈折率で決まる角度だけ電子線に対して傾けてサンプルに入射させた。さらに、分析光パルスと電子線パルスがサンプル中で重なって進行するように、電子線パルス形状の制御を試みた。等価速度分光法は、サンプル中での時間分解能劣化を回避して光吸収測定を可能にする強力な手法である。水和電子の過渡光吸収の立ち上がり時間を性能評価として測定した。等価速度分光法による光吸収立ち上がり時間の方が、普通の斜め入射よりも1.5ps速かった。電子線によって誘起されるフェムト秒の時間領域での超高速現象を研究するために、等価速度分光法が必要である。

参考文献

- [1] Y. Yoshida, et al, Radit. Phys. Chem.,60(2001),313-318.
- [2] T. Kozawa, et al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. Sect. A 440(2000),251-254.
- [3] J. Yang, et al., PAC2005 proceedings, WPAP017