

# 有機ポッケルス EO 結晶を用いた電子バンチ電荷分布測定 (2) ELECTRON BUNCH CHARGE MEASUREMENTS WITH ORGANIC POCKELS EO CRYSTALS

岡安雄一<sup>\*A)</sup>, 小川奏<sup>B)</sup>, 松原伸一<sup>A)</sup>, 富澤宏光<sup>A)</sup>, 南出泰垂<sup>B)</sup>, 野竹孝志<sup>B)</sup>, 松川健<sup>C)</sup>  
Yuichi Okayasu<sup>\*A)</sup>, Kanade Ogawa<sup>B)</sup>, Shinichi Matsubara<sup>A)</sup>, Hiromitsu Tomizawa<sup>A)</sup>, Hiroaki Minamide<sup>B)</sup>,  
Takashi Notake<sup>B)</sup>, Takeshi Matsukawa<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup>JASRI

<sup>B)</sup>RIKEN

<sup>C)</sup>Ibaraki University

## Abstract

Ultra-short bunch length measurements have been demonstrated with inorganic Pockels EO crystals such as GaP and ZnTe in various FEL accelerator facilities, so far. However, GaP and ZnTe have their own absorption properties at  $\sim 11$  THz and  $\sim 5$  THz, respectively which are equivalent to a frequency domain of the Coulomb field associated to the electron bunch. Therefore, temporal resolution of the EO sampling method with inorganic crystals is limited by  $\sim 120$  fs (FWHM). On February 2012, we succeeded to measure the bunch charge distribution of the relativistic electron bunch via spectral decoding based EO sampling method with an organic Pockels EO crystal; 4-*N*, *N*-dimethylamino-4'-*N'*-methyl stibazolium tosylate (DAST) at EUV-FEL test accelerator facility, SPring-8/SACLA. Organic Pockels EO crystals with  $\pi$ -conjugation material, such as DAST, are expected to achieve  $10^{-15}$ s of ultra-fast response and a few tens fs (FWHM) of temporal resolution. Afterwards, we improve axis uniformity of organic Pockels EO crystals, crystal alignment to the electron bunch, surface polishing and anneal process techniques. In addition, an innovative THz detection scheme via surface Plasmon resonance will be introduced and discussed which realizes to prevent the measurement systems from radiation damages.

## 1. 導入

### 1.1 目的

極短電子バンチ ( $\sim 30$  fs [FWHM]) の非破壊・リアルタイム計測の実現を目指す。電子バンチのクーロン場をメタマテリアル媒質に表面プラズモン場を共鳴させる。これを電子バンチ軌道から隔離した、すなわち真空ダクト外で、有機ポッケルス EO 結晶を用いた電気光学サンプリング (Electro-Optic Sampling : EOS) 計測することにより、放射線損傷を極力抑えた、時間分解能数 10 fs (FWHM) での非破壊・リアルタイム計測を実現する。

### 1.2 背景

近年、短波長 X 線の生成を高輝度・高光束で実現すべく、世界の主要な X 線自由電子レーザー加速器施設において電子バンチの圧縮技術開発が進められている。SACLA においても、将来的には電子バンチのピーク電流を  $\sim 200$  A とし、バンチ長を  $\sim 3$  fs (FWHM) まで圧縮することが計算の上では可能である (但し、エネルギー 8.45 GeV、FEL 飽和効率  $10^{-4}$ )。電子バンチ長計測は、従来ストリークカメラや RF ディフレクターを用いた手法が採用されてきたが、いずれもバンチ破壊型計測であることから、seeded-FEL 発振等のバンチ毎のタイミング補正を要する実験には適さない。

2000 年初頭から、GaP や ZnTe といった無機ポッケルス EO 結晶を用いた EOS による、非破壊バンチ長計測技術が米国や欧州を中心に開発されてきた<sup>[1]</sup>。しかしながら、いずれの結晶を用いても、低周波数領域 (5 - 10 THz) から高周波数領域にかけて出現する顕著な THz

波の吸収特性により、EOS 計測の時間分解能は 120 fs (FWHM) 程度に制限されてきた。

他方で 1986 年に東北大学の岡田らにより開発された、巨大な非線形性・電気光学特性を有する有機非線形光学媒質の一つである 4-*N*, *N*-dimethylamino-4'-*N'*-methyl stibazolium tosylate (DAST)<sup>[2]</sup> は、0.8 - 1.3 THz の極めて狭帯域でのみ吸収特性を示し、また光整流により  $\sim 200$  THz までの広帯域で THz 波の高出力発生を可能とする。また  $\pi$  共役系有機材料の場合、一般に分子内の  $\pi$  電子が電場応答に寄与することから、 $10^{-15}$  s オーダーの応答速度と数 10 fs (FWHM) の時間分解能の実現が期待される。

Table 1: EUV-FEL 試験加速器の性能諸元

* 電子バンチ	
エネルギー	250 MeV
バンチ電荷量	$\sim 300$ pC
バンチ長	200 - 600 fs (FWHM)
繰り返し周波数	30 Hz
ピーク電流	$> 300$ A
* プローブレザーパルス	
バンド幅	5 nm (FWHM) 795 nm
パルスエネルギー	$5 \mu\text{J}$ ( $40 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ )
パルス長	5 ps (FWHM)
線形チャープ率	0.6 ps/nm
繰り返し周波数	30 Hz

\* okayasu@spring8.or.jp

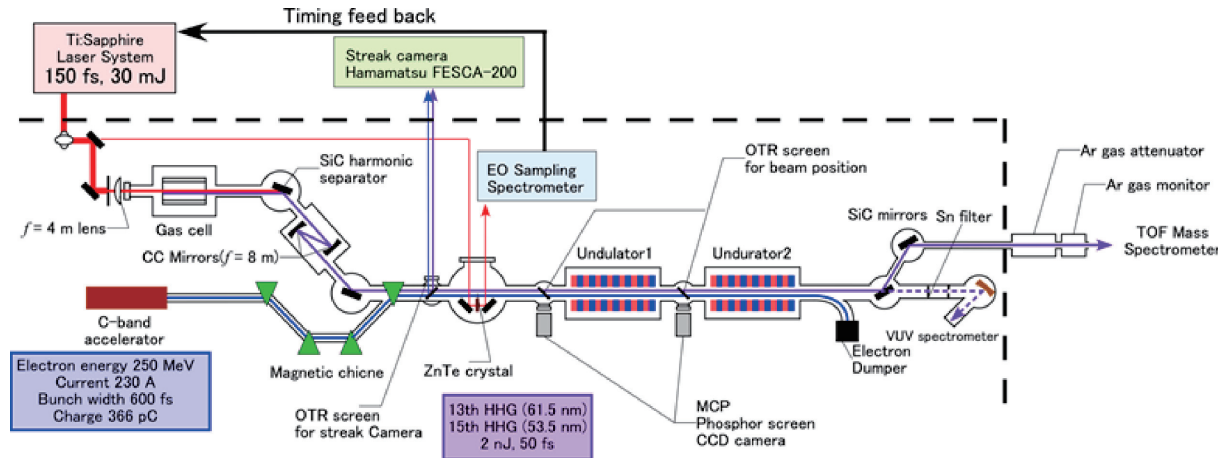


Figure 1: EOS setups installed for a seeded-FEL oscillation experiment at EUV-FEL test accelerator facility.

## 2. DAST 結晶による世界初の EOS 計測

### 2.1 実験条件

前述の背景を踏まえ、我々は 2012 年 2 月、SPRING-8/SACLA 附設の EUV-FEL 試験加速器にて、DAST を用いたスペクトラルデコーディングベースの EOS 計測を世界で初めて成功させた<sup>[3]</sup>。EOS 計測のセットアップを Figure 1 に示すとともに、EUV-FEL 試験加速器及びプローブレザー光源の性能一覧を Table 1 に示す。電子バンチと EO 結晶の位置合わせは、厚さ 0.5 mm の Ce:YAG 蛍光板と CCD カメラを用いて調整した。電子バンチとプローブレザーパルスのタイミングは、EO 結晶が格納されているチャンバーの上流に配置されている Optical Transition Radiation (OTR) スクリーンとストリークカメラを用いて粗調整を行った後、厚さ 1 mm の ZnTe 結晶を挿入し、CANDOX ディレイユニットで微調整を行いながら EO 信号捕捉を行った。ZnTe 結晶での EO 信号捕捉が確認された後、速やかに DAST 結晶へ切り替え、 $1/2\lambda$  波長板、偏光板を調整し、DAST 結晶を用いた EOS 計測に世界で初めて成功した。

### 2.2 結果

Figure 2 (a) に EOS 計測で使用した Ce:YAG 蛍光板、ポッケルス EO 結晶の一例を示す。EOS 計測チャンバーは一度に 5 個の結晶、蛍光板をマウントできる構造であり、写真では上から 3 つが DAST 結晶、上から 4 番目が ZnTe 結晶、一番下が Ce:YAG 蛍光板である。また ZnTe 結晶で計測された EO 信号強度スペクトルを Figure 2 (b) に、DAST 結晶で得られたスペクトルを Figure 2 (c, d) に示す。いずれのデータも実験条件はほぼ同一である。3 つのスペクトルにおいて、一点鎖線は分光器で観測されたオリジナルの EO 信号強度スペクトルであり、点線は電子銃を停止させた場合のバックグラウンド信号、実線はそれらの差分である。Figure 2 (c) と (d) は同一の DAST 結晶であるが、EOS 計測チャンバーにおける空間線量が異なり、その影響による違いが見えている。これについては後で解説する。(b) と (c) で EO 信号強度を比較すると、有機結晶では無機結晶に比べて早い応答速度で、2 倍近い信号強度が得られていることが判る。

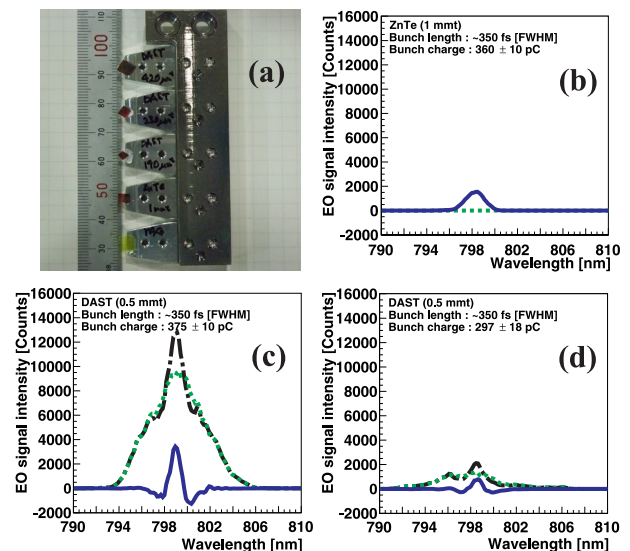


Figure 2: Pockels EO crystals and Ce:YAG phosphor mounted on a crystal ladder (a), EO signal intensity spectra with ZnTe (b) and DAST (c, d).

### 2.3 DAST-EOS 計測実現で得られた課題

#### \* 放射線損傷対策

前述の通り、Figure 2 (c) と (d) に示す DAST で得られた 2 つの EO 信号強度スペクトルは、EOS 計測チャンバーにおける空間線量が異なる。GAFCHROMIC<sup>®</sup> フィルムによる線量評価によるチャンバー表面の最大値は (c) で  $74.6 \pm 6.8$  Gy、(d) で  $255.8 \pm 66.8$  Gy であった。両者の比較から、DAST の EO 活性が空間線量に対して極めて影響を受けやすいことも判明した。空間線量の主な発生源は、EOS 計測チャンバーの 0.5 m 程上流に設置された OTR スクリーンモニターである。OTR スクリーン使用時に、二次電子が EOS 計測チャンバーが配置されている前方へ散乱し、真空ダクト内で電子バンチ軌道から物理的に退避させた DAST に照射されたことが判明した。Figure 2 (c) と (d) の点線で示した EO 信号のバックグラウンド強度分布は、プローブレザーを照射する、EO 結晶平面を定義する 2 軸方向の屈折率

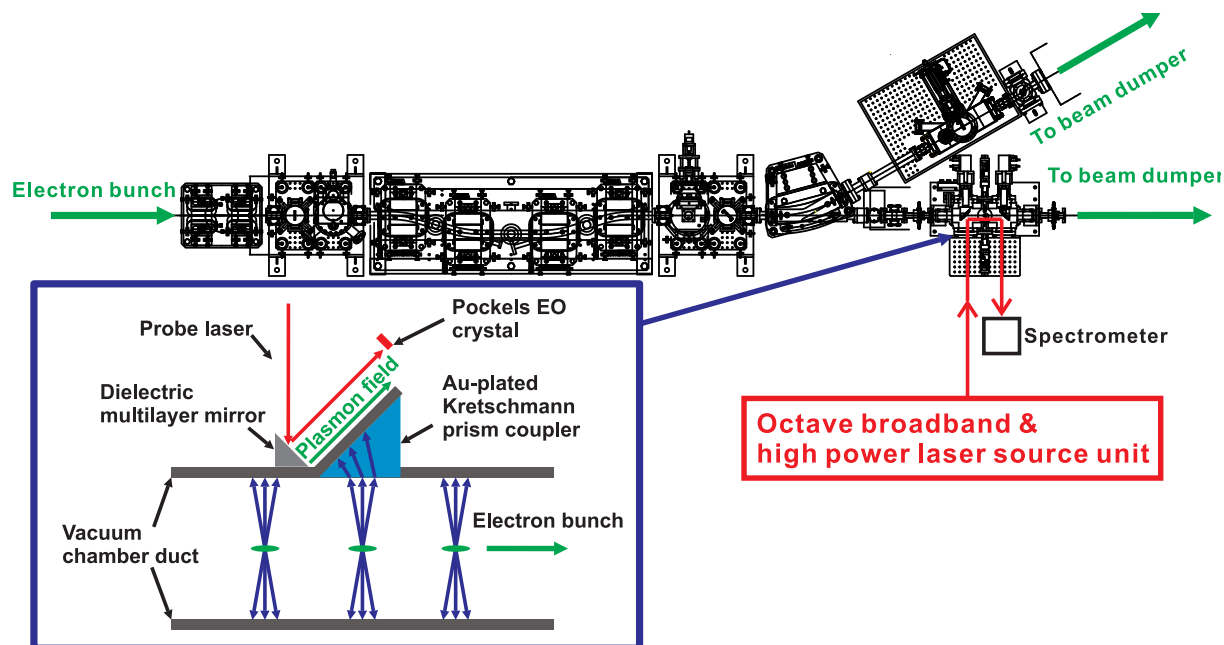


Figure 3: EOS measurement system via the surface plasmon resonance excitation at RF photocathode gun test accelerator facility, SPring-8/SACLA.

差分で記述される量であるが、空間線量の増加に伴い、この屈折率分散 (GaP や ZnTe 等の等方性結晶では存在し得ない成分) が変化したことが明らかになった。有機ポッケルス EO 結晶の放射線損傷を回避するためには、鉛などの遮蔽敷設に加え、本質的には EOS 計測系を電子バンチ軌道から物理的に隔離する必要がある。

#### \* 結晶軸精度の向上

Figure 2 (a) に示すように、EO 結晶は結晶ラダーに真空シール (2 液性エポキシ樹脂) で直接接合している。ラダーには結晶取り付け時に位置合わせをするための開先が機械加工されている。使用している ZnTe (JX 日鉱日石金属株式会社製) は面方位 (110) が  $\pm 0.25^\circ$  で管理されている。一方 DAST は結晶生成後に研磨等の加工を加えていないため、寸法、プローブレーザー照射面の面粗度も管理されていない。従って、結晶軸のアライメント (電子バンチ水平方向と DAST の b 軸は平行関係) に限らず、プローブレーザーパルスの照射方向と結晶面の垂直度が管理されず、結晶を透過したプローブレーザーパルスに位相リターデーションが加わり、結果として計測の S/N を悪化させる。このため、我々は DAST 結晶に表面研磨技術を導入・向上させ、表面粗さ (二乗平均粗さ) を 3 nm (rms) 以下に抑えることに成功している。また、結晶の整形技術、軸性を向上させるアニール処理についても技術開発を進めている<sup>[4]</sup>。2014 年下旬より、一連の導入技術に対する実証試験を SPring-8/SACLA 附設の RF フォトカソード電子銃試験加速器にて行う。

### 3. 表面プラズモン共鳴を介した EOS 計測の提案

電子バンチ起因のクーロン場を直接 EOS 計測する従来の手法から離れ、真空ダクトの一部にメタマテリアル

媒質を採用し、電子バンチ起因クーロン場で表面プラズモン場を共鳴 (Surface Plasmon Resonance : SPR) させ、電子バンチ軌道から離れた、真空ダクト外での EOS 計測を行う手法を提案する。

#### 3.1 原理

Figure 3 に SPR を介した EOS 計測の原理と、実証試験を計画している RF フォトカソード電子銃試験加速器におけるセットアップを示す。真空ダクトに金メッキを施したクレッチマン型プリズムカップラーを取り付ける。プリズムの角度は、クーロン場がメタマテリアル媒質である金メッキ面に入射する角度を予め計算で最適化する必要があるが、およそ  $45^\circ$  である。金メッキ面に平行にポッケルス EO 結晶を配置し、クーロン場により金メッキ面で励起された SPR で EO 効果を生じさせる。プローブレーザーパルスを SPR と同じタイミングで EO 結晶に照射し、透過したプローブレーザーパルスの位相リターデーションから、電子バンチの電荷分布を復調するものである。

EOS 計測に使用するプローブレーザーパルスに関しては、超広帯域 (300 nm) ・高出力 (10  $\mu$ J) で線形チャープ・矩形スペクトルの EOS 計測に特化したレーザーパルス光源の開発を既に開発している。EOS 計測における時間分解能  $T_{res}$  は、フーリエ限界パルス幅  $\tau_0$  とチャープパルス幅  $\tau_c$  を用いて  $T_{res} \cong (\tau_0 \tau_c)^{1/2}$  で与えられる。300 nm 以上の帯域 ( $\tau_0 \sim 2.6$  fs) で、300 fs 以下のチャープパルス幅、すなわち 1 fs/nm を実現する。

また、実証試験を行う RF フォトカソード電子銃試験加速器の代表的なパラメータは、エネルギー 65 MeV、バンチ電荷量 100 pC、バンチ長 30 fs (FWHM) である。

### 3.2 数値計算による SPR 場励起効率の評価

合成石英に  $0.2\ \mu\text{m}$  の金蒸着を施したクレッチマン型プリズムカップラーを仮定し、金蒸着面に対する THz 場 (クーロン場) の入射角と SPR の透過率 ( $S_{11}$ ) を計算した結果を Figure 4 に示す。電子バンチの条件は、前述の RF フォトカソード電子銃試験加速器のパラメータとした。計算で使用したコードは CST MICROWAVE STUDIO SUITE である。

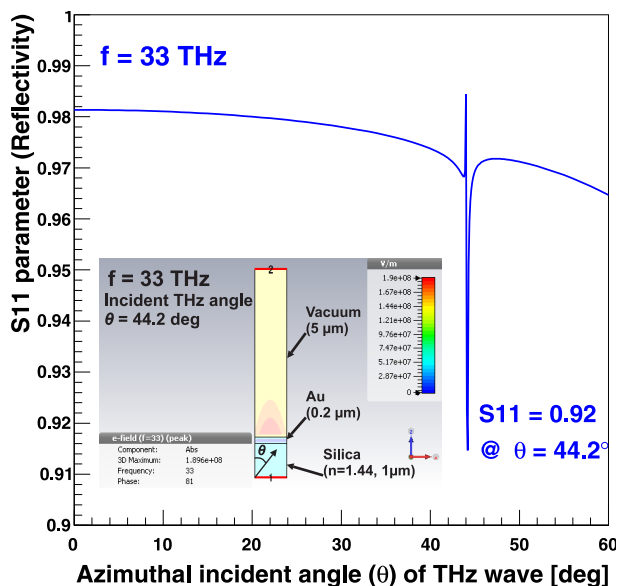


Figure 4: A tentative configuration of the gold-plated Kretschmann prism coupler for SPR and estimated  $S_{11}$  parameter for varied THz incident angle.

電子バンチ長 30 fs (FWHM) に対応する 33 THz のクーロン場を金蒸着面に対して  $44.2^\circ$  で入射した場合、誘起される SPR の強度は入射場の約 10 %、5 MV/m 程度と見積もられる。数 MV/m 程度の電場強度に対する EOS 計測は、これまでの経験から GaP や ZnTe といった無機ポッケルス EO 結晶では不可能であるが、DAST では既に実績がある。メタマテリアル媒質の選定、構造の最適化を図り、励起効率・THz 検波の S/N 向上を図る。

## 4. まとめ

2012 年 2 月に SPring-8/SACLA 附設の EUV-FEL 試験加速器にて、有機ポッケルス EO 結晶のひとつである DAST を用いた EOS 計測に世界で初めて成功した。

無機ポッケルス EO 結晶である ZnTe で計測された EO 信号強度に比べ、DAST のそれは約 2 倍大きく、且つ応答速度が早いことが確認された。一方で、放射線損傷による EO 信号強度の低下、結晶軸のアライメント・面粗度に伴う分光計測におけるバックグラウンド増加、すなわち S/N の悪化が課題となった。

後者については、有機ポッケルス EO 結晶のプロローブレーザー照射面に対して研磨を施し、面粗度を 3 nm (rms) に抑える技術を確認した他、結晶のアニール処理、整形処理の技術を開発・導入し対処した。一連の導入技術の実証試験を 2014 年下旬より開始する。有機ポッケルス EO 結晶の放射線損傷については、鉛遮蔽の敷設に

留まらず EOS 計測系自体を電子バンチ軌道から物理的に退避させることが本質的な解決策である。

このため、メタマテリアル媒質を蒸着したクレッチマン型プリズムカップラーを真空ダクトに取り付け、電子バンチ起因のクーロン場で SPR を励起させ、加速器の真空ダクト外で SPR を EOS 計測する手法を提案した。実証試験は SPring-8/SACLA 附設の RF フォトカソード電子銃試験加速器で実施を検討している。

現実的なモデル、加速器の運転パラメータを仮定し数値計算を行った結果、メタマテリアル媒質として金を  $0.2\ \mu\text{m}$  蒸着させ、蒸着面に対してクーロン場を  $44.2^\circ$  で入射すれば、励起される SPR の強度は 5 MV/m 程度得られることが判った。また 5 MV/m 程度の電場は無機ポッケルス EO 結晶では検波できないが、DAST では我々は検波実績がある。

## 参考文献

- [1] S. Cassalbuomi *et al.*, Phys. Rev. ST Accel. Beams **11**, 072802 (2008).
- [2] H. Nakanishi *et al.*, Proc. MRS Int. Mtg. Adv. Mater. **1**, 97 (1989).
- [3] Y. Okayasu *et al.*, Phys. Rev. ST Accel. Beams **16**, 052801 (2013).
- [4] H. Uchida *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 022601 (2012).