

[1 a-10]

DEVELOPMENT OF A NEW PICOSECOND PULSE RADIOLYSIS SYSTEM BY USING PICOSECOND ELECTRON PULSES AND FEMTOSECOND LASER PULSE.

Y. Yoshida, Y. Mizutani, T. Yamamoto, M. Miki, *K. Ushida,
S. Seki, T. Kozawa, **Y. Izumi, Y. Honda, S. Okuda, and S. Tagawa

The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University
8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567, Japan

*Institute of Physical and Chemical Research
2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-01, Japan

**Department of Nuclear Engineering, Osaka University
2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565, Japan

A new picosecond pulse radiolysis system for absorption spectroscopy has been developed at the Institute of Scientific industrial Research, Osaka University. The system is composed of a 35 MeV L-band electron linac and a Ti-sapphire femtosecond laser. The pulse widths of the electron pulse and the laser pulse are 20 ps and 60 fs, respectively. The stroboscopic method is adopted in the system. The electron beam is used for irradiation source and the laser pulse is used for the analyzing light. The laser pulse is completely synchronized with the electron pulse and the time-difference between the two pulses is controlled with electric delay, so called phase shifter. The present time resolution of the system is several tens picoseconds, which will be improved to femtosecond order by a next plane on the femtosecond linac.

ピコ秒電子線パルスとフェムト秒レーザーパルスを用いた 新しいパルスラジオリシス法の開発

はじめに) パルスラジオリシス法とは、パルス化された放射線を物質に照射しその後起こる反応を分光的に測定する方法であり、短寿命活性種の検出が可能であることから、初期過程を研究する手法として非常に優れている。ピコ秒パルスラジオリシスに関しては、ライナックを用いたシステムが、Huntのストロボスピック法以来、いくつか作られてきており、アルゴンヌ方式、東大ツインライナック方式、LL方式等が知られている。本システムでは、Lバンドピコ秒ライナックを励起源に用いているが、従来の方式と異なる点は、分析光としてフェムト秒レーザーを使用したことである。その意図は、250～2000 nmの広い範囲での分光を可能とするためであった。最近、最初のデータが出始めたので、それらも併せて、本システムの概要を報告する。

システムの概要) Fig.1に新しく開発されたレーザー同期によるピコ秒パルスラジオリシスのシステム図を示す。阪大産研Lバンドライナックからの35 MeV電子線単パルス(半値幅20ピコ秒)を励起源とし、分析光として、アルゴンイオンレーザー励起のフェムト秒チタン・サファイアレーザーを基本として使用した。ライナックとレーザーはマイクロ波を介して完全に同期運転が可能となっている。ライナックの単パルスは、ライナックガンに供給されるトリガーのタイミングによって作られる。一方、レーザーはCW運転されており、パルスセクターにより単パルスを切り出しを行っている。パルスセクターの後方には、SHG(第2高調波発生)、THG(第3高調波発生)、OPO(オプティカルパラメトリック発振)、再生増幅アンプが設置されており、広い波長領域の分析光の発生が可能となっている。電子ビームとレーザー光は、サンプルに同

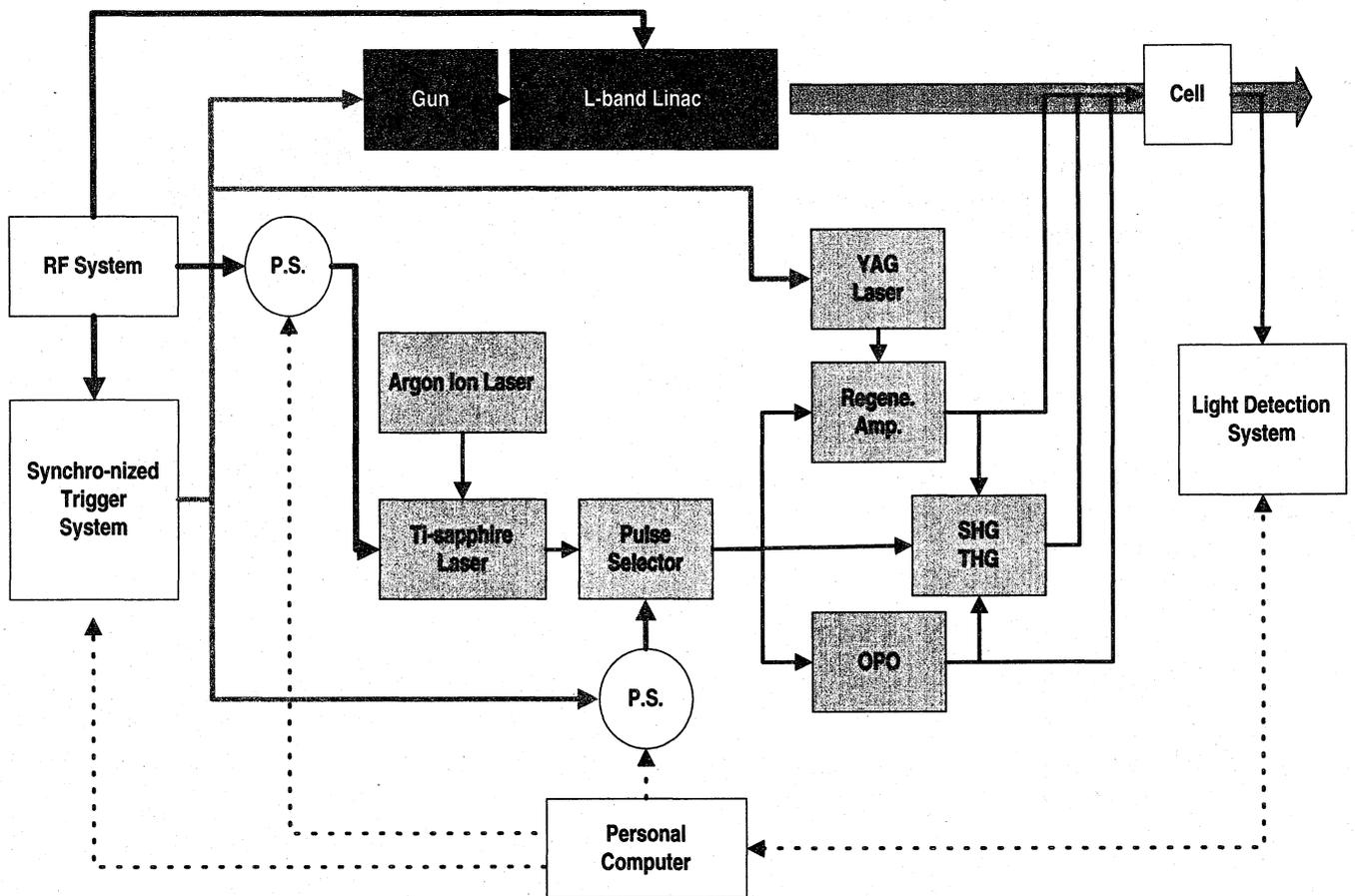


Fig. 1 Block diagram of a new picosecond pulse radiolysis system

軸方向から入射する配置をとっており、電時間分解能の低下を防いでいる。サンプルセルを通過したレーザー光は、光検出部に導かれる。システムのすべてのコンポーネントは、パソコンにより制御される。

同期およびレーザーパルスの遅延)ライナックからの電子線パルスは、ライナックの加速管をドライブするマイクロ波 (1.3GHz) に原理的には完全同期する。一方、チタン・サファイアレーザーは、内部のモードロッカー (AO) を駆動する RF (81MHz) に同期する。そこで本システムでは、27MHzの RF をオシレータ源として、その36 逡倍および3 逡倍の RF を、加速管およびレーザーに供給するシステムとした。さらに、同期回路を 27 MHz で駆動し、ライナックのガンおよびパルスセレクターにトリガーを供給することにより、両パルスの切り出し位相を合わせた。しかしながらレーザーの時間ジッターは、環境等の各種の要因により不安定になること

が知られている。そのために、RF を基準にしたレーザーキャビティー長の調整機構 (Lock to Clock) が装備されており、安定性の向上をはかっている。

時間分解の吸収測定のためには、電子線パルスに対するレーザーパルスの時間的位置を任意に変える必要がある。本システムでは、一般的な光学遅延の代わりに、RF の電氣的遅延回路 (フェーズシフター) を使用した。すなわち、レーザーに供給する RF の位相をライナックに供給する RF に対して連続的に変化させられるようにした。ちなみに、パルスセレクターに供給するトリガー系にもフェーズシフターを挿入し、切り出しの安定性をはかっている。

同期回路等の詳細については、山本ら (阪大産研) が別に報告しているので、そちらを参照していただきたい。

分析光)従来の多くのピコ秒パルスラジオリシスでは、分析光として電子線パルスの発生するチェレン

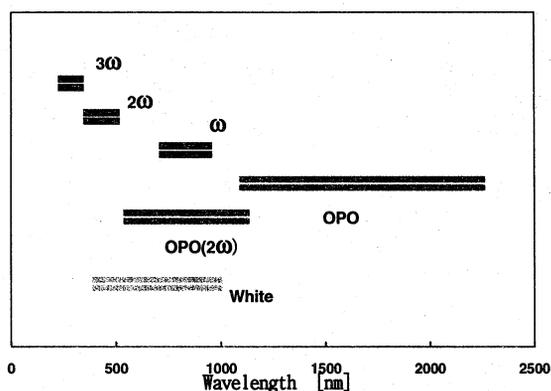


Fig.2 Available wavelength for transient absorption spectroscopy in a new picosecond pulse radiolysis

コフ光パルスを用いていた。しかしながら、強度等の問題で、利用できる波長範囲が限られていた。先に述べたように、本システムの特徴は、レーザーの非線形効果を利用することにより、紫外から赤外にいたる広い波長範囲の分析光を利用できる点である。Fig.2に示したように、フェムト秒チタン・サファイアレーザーの発振波長範囲は、720~900nm (ω)である。その第2高調波 (SHG: 2ω) および第3高調波 (THG: 3ω) を用いることに紫外部の測定が可能となる。またオプティカルパラメトリック発振 (OPO) により 1000nm 以上の測定が可能となる。さらに、OPO 光の SHG の使用や、再生増幅アンプによる白色光 (連続光) の発生により、波長設定を容易にし、ほぼ連続的な分析光が得られる。

測定例) Fig.3に本システムで測定したn-ドデカン中でのカチオンラジカルの時間挙動の一例を示す。観測波長は 830nm であるが、その半値幅は約 20nm 程度ある。これは、チタン・サファイアレーザーの発振幅に対応する。吸収の立ち上がり時間から求めた時間分解能は約 50ピコ秒程度である。

本カチオンラジカルの減衰過程は、いわゆるジェミニネートイオン再結合過程を見ていることになり、このデータの解析から放射線化学初期過程の解明を行うことが可能である。その他の測定例については、当日報告する。

今後の発展) レーザーの進歩は非常に早く、今後

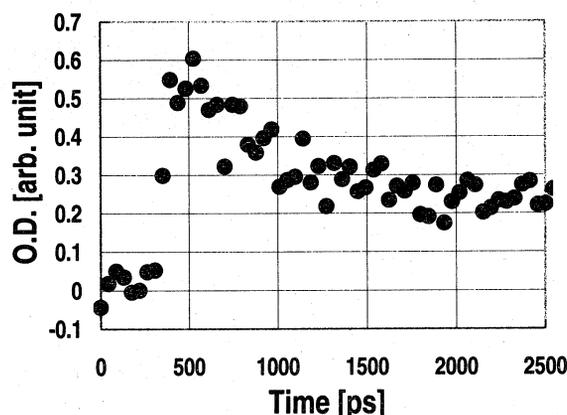


Fig. 3 Typical decay of n-dodecane cation radical obtained by the new picosecond pulse radiolysis system monitored at 830 nm.

様々な波長での分光が可能になると期待されている。現段階では、OPA (オプティカルパラメトリック増幅) により、10 μ mまでのフェムト秒パルスを発生できる製品が販売されている。この赤外領域のピコ秒パルスラジオリシスを行うことにより、電子の挙動や分子の振動励起の緩和過程に関連した現象を調べることが可能となる。

また、現在の電子線パルスのパルス幅は数10ピコ秒であるが、阪大ではパルス圧縮法によりとりあえず1ピコ秒程度のピコ秒電子線パルスを発生させる計画があり、時間分解能の向上を目指したいと考えている。さらに、次の段階として、フェムト秒電子線パルス化が実現すれば、いよいよフェムト秒パルスラジオリシスの時代に突入すると期待される。

[参考文献]

- 1) Y. Yoshida et al., Nucl. Instrum. Meth., A327, 41 (1993).
- 2) S. Tagawa, et al., Abst. Int. Workshop of Femto. Tech. (FST'96) (Tsukuba, Japan), 31-32 (1996).
- 3) Y. Yoshida et al., Proc. 7th Int. Symp. Advanced Nuclear Energy Research, (Takasaki, Japan), 87(1996).