

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

Y.Mizutani, K.Hori, T.Yamamoto, M.Miki,  
\*\*Y.Izumi, S.Seki, T.Kozawa, \*K.Ushida, Y.Yoshida, S.Tagawa

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

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

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

### Abstract

A new picosecond pulse radiolysis system is developed at the Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University. The system is composed of the 38MeV linear accelerator for a irradiation source and the Ti-sapphire laser for an analyzing light source. The electron pulses (FWHM = 20ps) and the Laser pulses (FWHM = 60fs) are synchronized with a radio frequency 27MHz. The wavelength region of the analyzing light is extended to 300 ~ 1500nm by using a self-phase modulation light which is produced by a regenerative amplifier. The present time resolution of the system is within several ten picoseconds.

### フェムト秒レーザー同期による

### 新しいピコ秒パルスラジオリシスシステムの開発

#### 1. 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、その際に生じる電子、イオンラジカル等の短寿命中間活性種の時間挙動を直接的に測定する方法である。パルスラジオリシス法の測定手法の一つとして、1968年にトロント大学のJ.W.Huntらにより考案されたストロボスコピック法により、パルスラジオリシス法の時間分解能は飛躍的に向上した。ストロボスコピック法とは、測定対象の中間活性種の寿命よりも短いパルス幅の励起源と分析光の二つのパルスを用意し、両パルスの時間間隔を連続的に変化させることにより吸収の時間プロファイルを得る方法である。ストロボスコピック法における時間分解能は、励起源および分析光のパルス幅に依存する。従来のストロボスコピック法は分析光に電子線が発生するチェレンコフ光を用いていた。しかしながら、チェレンコフ光は短波長ほど強度が高いという特性上、赤外領域に吸収をもつ中間活性種の測定は不可能であった。

そこで、広い波長範囲を確保し、高時間分解能を得るために分析光としてフェムト秒チタンサファイアレーザ

ーを用いたパルスラジオリシスシステムの開発を行ってきた。一方、分析光には白色光をつかうのが好ましい。そこで本システムでは、YAGレーザー励起による再生増幅アンプを用いることでチタンサファイアレーザーの強度をあげ、白色光の利用可能なシステムを開発した。白色光を採用することで連続的に300nm~1500nmの広い波長範囲での分光が可能となった。

#### 2. システムの概要

Fig.1に本システムを示した。中間活性種を生成させるための励起源に阪大産研L-band 38MeVライナックからの単パルス電子線(半値幅 20 ps)を、また分析光としてフェムト秒チタンサファイアレーザー(半値幅 60 fs)を用いた。レーザーは81MHzで発振しており、さらに外部の高周波と同期が可能である。ライナックとレーザーに同じ高周波を供給する基準発振器を設け、さらに、同期回路を設けることで、単パルス電子線とフェムト秒レーザー単パルスの同期を可能にした。

分析光の波長は、白色光を用いることで300~1500nmの波長を得ることができる。これに加え、基本波の

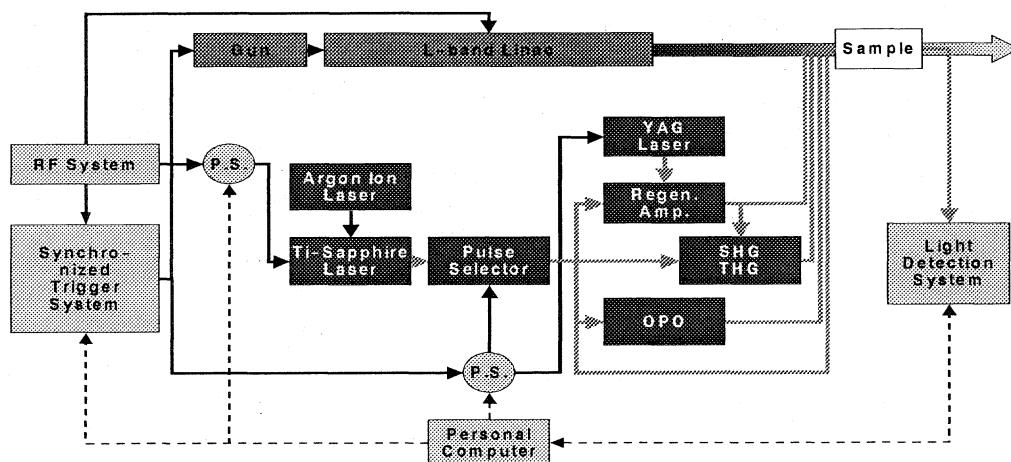


Fig.1 レーザー同期によるピコ秒パルス

#### ラジオリシスのシステム

SHG(第二高調波)、THG(第三高調波)、OPO(光パラメトリック発振)を組み合わせること約 200nm~2000nm までの広い波長範囲の確保が可能となる。サンプルに入射する電子線と分析光はサンプルにたいして同軸に入射する配置をとることで、時間分解能の低下を防いでいる。

#### 3. 白色光の発生

白色光は強い光を物質に入射させることで発生する。その光は 300~1500nm まで連続的に広い波長範囲にわたるので、パルスラジオリシスにとって有効な分析光である。

そこで本システムでは新たに YAG レーザー励起の再生増幅アンプを用いた。YAG レーザーは波長 532nm、出力 50mJ で運転される。再生増幅アンプはストレッチ、再生増幅部、コンプレッサーから構成されており、再生増幅部では、チタンサファイアの結晶を YAG レーザーで励起するようにキャビティが構成されている。再生増幅部のキャビティにオシレーターとしてフェムト秒チタンサファイアレーザーを入射することで誘導放出を促し、基本波が増幅される。増幅されたチタンサファイアレーザーを重水、石英板等の媒質に集光させることで

パルス幅約 100fs の白色光を得ることが可能である。

#### 4. 同期および光遅延

L-band ライナックは 108MHz を基準とした 1.3GHz で運転される。一方、分析光のチタンサファイアレーザーは 81MHz で発振する。また、チタンサファイアレーザーにはピエゾ素子を用いた Lock-to-Clock が備え付けられており、外部からの参照周波数に対してレーザーキャビティを調節することが可能である。両者を同期させるために、27MHz をもとにして 108MHz と 81MHz をつくり、それぞれライナックとチタンサファイアレーザーに供給した。

Fig.2 は白色光発生のためのシステムである。YAG レーザーは連続運転 (12Hz) をする。再生増幅アンプの再生増幅部に備え付けてある 2 個の Q スイッチにより、81MHz の連続パルスから電子線単パルスと同期した 1 つのパルスの切り出しが可能となる。再生増幅アンプの Q スイッチは、YAG レーザーとも連動する必要があるため 12Hz で運転する。その結果、増幅された 12Hz のフェムト秒レーザー単パルスを得ることが可能になる。

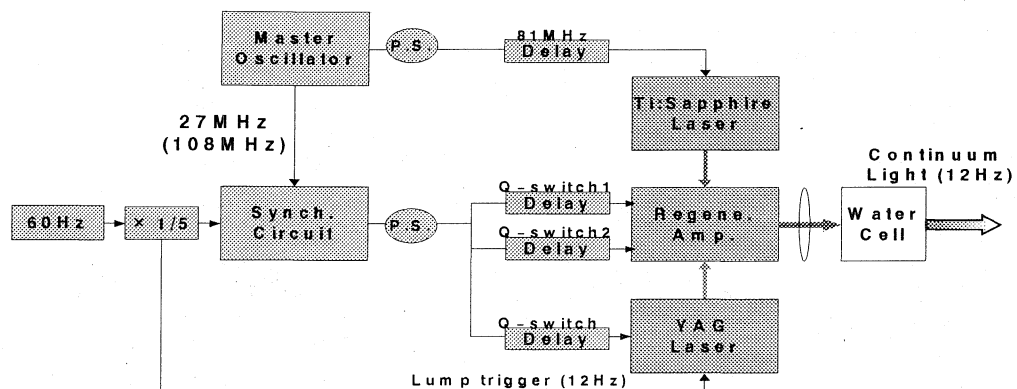


Fig.2 白色光発生のためのレーザーシステム

ストロボスコピック法を使うために電子線と光パルスの時間間隔を連続的に精度よく変化させる必要がある。従来の方法では光遅延装置が用いられていたが、放射線場でのアライメントということを考慮して、本システムでは高周波の電氣的遅延装置(フェイズシフター)を用いた。すなわち、チタンサファイアレーザーに供給する81MHzの高周波電送ラインにフェイズシフターを設けることで、チタンサファイアレーザーの位相をライナックに送る高周波に対して連続的に変化できるようにした。また、白色光を発生させるためのYAGレーザーのQスイッチ、再生増幅アンプのQスイッチにもチタンサファイアレーザーと同じ位相で変化するフェイズシフターを設けることで白色光の安定化を目指した。

### 5. 測定例

Fig.3は、本システムを使用して測定した例である。液体のn-ドデカン(C<sub>12</sub>H<sub>14</sub>)を照射したものである。ドデカンは照射した際にイオン化を起こし、液体中に電子とドデカンのラジカルカチオンが生成する。その後、生成した電子とラジカルカチオンは再結合する。Fig.3で示したような再結合過程を解析することにより、放射線化学初期過程の解明につながるのである。その他の測定例は当日報告する。

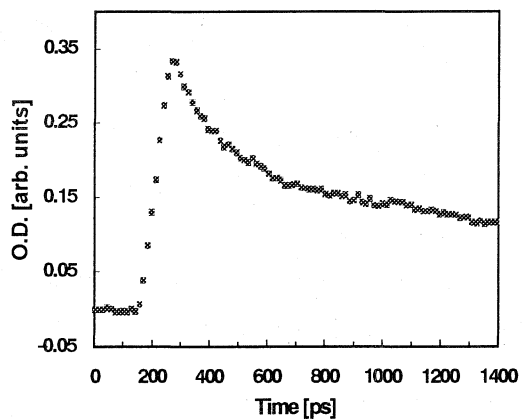


Fig.3 液体ドデカン中で測定したカチオンラジカルの時間的挙動 (820nm)

### 6. 今後の発展

現在、阪大産研 L-band ライナックでは磁気パルス圧縮によるサブピコ秒の電子線パルスの発生に成功しており、サブピコ秒電子線を励起源に用いることでパルスラジオリシス法の時間分解能の向上が可能となり、未知の現象の解明が期待される。

### 【参考文献】

- 1) J.W.Hunt et al., Rev.Sci.Instrum.,41(1970)333.
- 2) Y.Yoshida et al., Proc. 21<sup>st</sup> LINEAR ACCERATOR MEETING(Tokyo, Japan),80(1996)