

[P8-10]

## Development of Laser Synchronized Picosecond and Subpicosecond Pulse Radiolysis System

Akinori SAEKI, Takahiro KOZAWA, Shu SEKI, Tamotsu YAMAMOTO,  
Shoji SUEMINE, Yoichi YOSHIDA and Seiichi TAGAWA

*The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University*  
8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan

### Abstract

In order to research primary processes of radiation chemistry, a pulse radiolysis system using femtosecond laser has been developed at the Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University. By using subpicosecond electron beam and femtosecond white light continuum, measurements with the high time resolution and the wide wavelength region were carried out. Furthermore, for the stabilization of the system and better S/N ratio of data, some improvements have been made.

### レーザー同期ピコ秒・サブ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とは、パルス状の放射線により生成された電子・ラジカル等の短寿命中間活性種の時間挙動を、発光あるいは吸収などを測定することにより、その放射線化学初期過程を明らかにする方法である。しかし、従来は、測定装置自体の時間分解能の制限により、ナノ秒以下の高速過渡現象を測定することは不可能であった。そこで、装置つまり光検出器やオシロスコープの時間分解能に依存しない測定方法として、1968年、トロント大学のJ.W.Huntらは時間分解光吸収分光であるストロボスコピック法を考案した<sup>1)</sup>。ストロボスコピック法とは、パルス励起源とパルス分析光との時間間隔を変化させながら、その都度光の吸収量を測定する方法である。この方法の時間分解能を決める要因は、励起源のパルス幅、分析光のパルス幅、両者の時間間隔の揺れ、サンプルセルの長さである。したがって、時間分解能を向上するには、これらの値を小さくすればよい。また、ストロボスコピック法が開発された当初は350ピコ秒毎のパルス列になった電子線を用いていたため、実質的に350ピコ秒以上の寿命を持つ活性種の測定は不可能であった。そこで、アルゴン国立研究所、東大、阪大等ではSHPBを用いてシングルパルスを発生させることで、長寿命の中間活性種の測定が可能になった。現在はこれ

らの大学および研究所で、放射線化学初期過程の研究が進められている。

従来のストロボスコピック法では、分析光として電子線が気体中を通るときに発生するチェレンコフ光を用いていた。しかし、チェレンコフ光は長波長にいくほど強度が落ちるため、波長800nm以上の測定は困難であった。

そこで阪大産研では、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。レーザーとライナックは、マスターオシレーターからのRFにより同期されている。フェムト秒レーザーを用いる利点として、(1)パルス幅が非常に小さく、将来の高時間分解能パルスラジオリシスシステムに適用できる(2)基本波は740~850nmであるが、SHG(第二高調波)・THG(第三高調波)・OPO(光パラメトリック発振)等の各種非線形効果、および再生増幅器により増幅させた基本波を水などの入ったセルに集光することにより発生する白色光(400~1000nm)を用いることで、250~2500nmでの連続した波長領域での測定が可能になる(3)基本波と白色光は可視領域にあるためアライメントが比較的容易なことなどが挙げられる。

現在、測定可能な段階にあるシステムとして、ピコ秒基本波システム、ピコ秒白色光システム、サブピコ秒基本波システムがある。本研究ではこれらのシステムを用いてジェミネートイオン再結合など

の放射線化学初期過程の研究を行なうとともに、システムの安定性やSN比向上のための開発を平行して行なっている。

## 2. 各システムの概要

### 2.1 ピコ秒基本波システム

分析光にチタンサファイアレーザー (Tsunami, パルス幅 60 フェムト秒) からの基本波 (740~850nm)、励起源に阪大産研 L-band ライナックからの電子線 (パルス幅 20 ピコ秒, 28MeV) を用いている。ストロボスコピック法による測定を行なうためには、単パルス電子線と単パルスレーザーを精度よく同期させなければならない。チタンサファイアレーザーには、外部参照の RF に同期した発振を可能にさせる Lock-To-Clock 回路とピエゾ素子が組み込まれており、加速器からの 81MHz RF を参照して同期している。

このシステムでは基本波を用いるため、分析光の強度が安定している。したがって SN 比のよい測定が可能である。しかし、測定波長領域が限定される。また、遅延装置に Phase Shifter (電気的遅延装置) を用いることで、光学系のセットアップが容易である。

### 2.2 ピコ秒白色光システム

図 1 にピコ秒白色光システムを示す。分析光には再生増幅器で増幅した基本波を水セルに集光させて得られる白色光 (パルス幅 100 フェムト秒、波長領域 400~1000nm)、励起源に阪大産研 L-band ライナックからの電子線 (パルス幅 20 ピコ秒、28MeV) を用いている。

レーザーシステムは Ar-Ion レーザー、チタンサファイアレーザー、Nd:YAG レーザーおよび再生増幅器から構成される。Nd:YAG レーザーはフラッシュランプで照射してから発振するまで約 200 マイクロ秒要するため、トリガージェネレーターの改良と Delay により、ほかのシステム全体を 200 マイクロ秒遅らせている<sup>13)</sup>。

遅延装置に従来は Phase Shifter を用いて、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 に対して変化させていたが、レーザーの安定化のため、現在は Optical Delay (光学的遅延装置) を使用している。

サンプルを通過した分析光はミラーで導き、モ

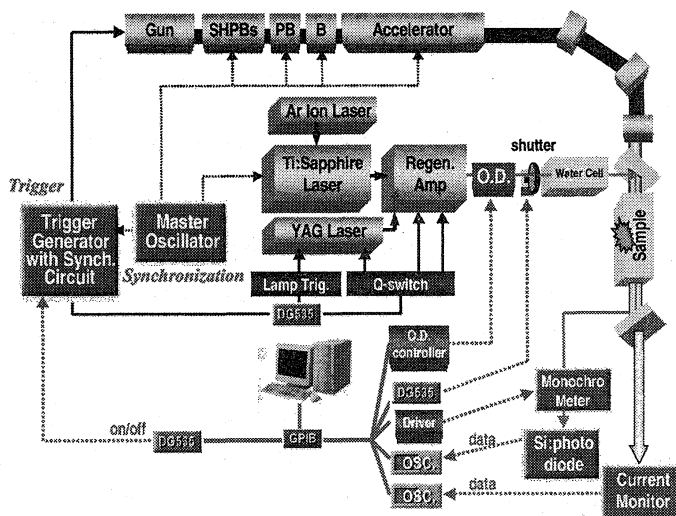


図 1 レーザー同期ピコ秒白色光システム

ノクロメーターで分光した後、シリコンフォトダイオードで測定する。また、電荷量のばらつきから生じる信号強度の違いを補正するために、各測定における電荷量をカレントモニターで測定している。ビームおよびレーザーの On/Off, Optical Delay の駆動およびデータの取り込みと処理はすべて GPIB を経由してコンピューターに接続し、制御と測定を行なっている。この装置の時間分解能は約 30 ピコ秒である。

### 2.3 サブピコ秒基本波システム

図 2 にサブピコ秒基本波システムを示す。分析光にチタンサファイアレーザー (Tsunami, パルス幅 60 フェムト秒) からの基本波 (740~850nm)、励起源に阪大産研 L-band ライナックからの電子線を磁気パルス圧縮により圧縮した電子線 (パルス幅 1 ピコ秒以下、28MeV) を用い<sup>14)</sup>、時間分解能 2 ピコ秒を達成している<sup>14)</sup>。しかし、このシステムでは、時間分解能を上げるため 2mm セルを使用しており、そのため得られる信号強度が低く、SN 比が悪くなる。時間分解能を上げるには、サンプルセルをさらに薄くする必要があり、また、吸収量の少ないサンプルについて測定を行なうためにも、システムの SN 比を改善しなければならない。そこで、現在はレーザーおよび電子線の位置揺らぎに対するデータ補正システムを増設している。

時間ジッター補正システムとは、電子線から発生するチェレンコフ光とハーフミラーで分けたレーザーの一部をストリークカメラに入射させ、その時間差を直接的に測定するシステムである。データは

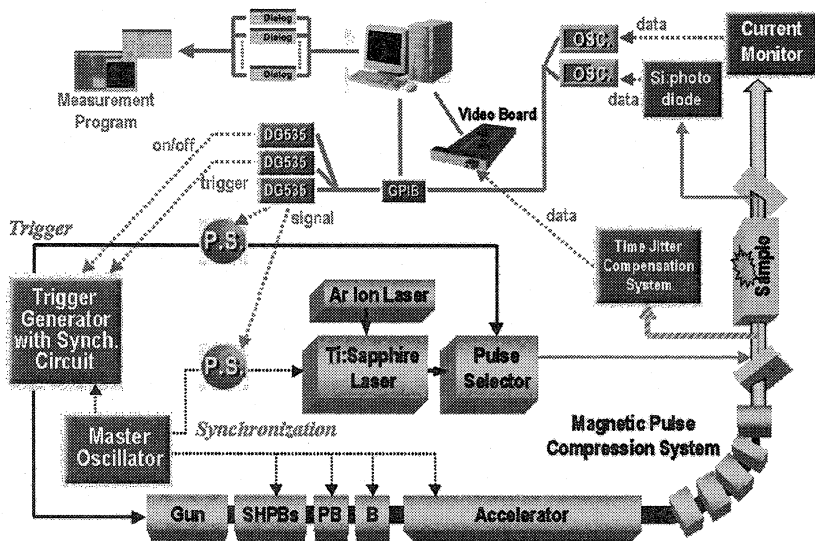
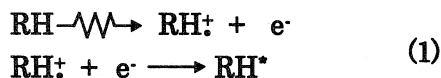


図2 レーザー同期サブピコ秒基本波システム

ビデオ信号として得られ、従来はそれをオシロスコープで処理していた。しかし今回から、ストリークカメラからのデータをコンピューターに組み込んだビデオボードに転送し、ボードからメモリーに読み込むことで、より正確な時間情報を測定することが可能になった。また、今後のシステム増設に備えるためと測定時間の短縮のため、測定プログラムを新たに製作し、導入した。プログラムはC++で記述し、C++の特徴であるクラス機能を使って制御機器のモジュール化を行なっているため、システムの増設および独立性に優れている。各機器は、プログラム上で対応する各々のダイアログによって制御し、測定ダイアログが各モジュールに命令を送ることで測定を可能にしている。

### 3. 実験と測定結果

溶媒中に電子線が入射すると、イオン化によってカチオンラジカルと電子が生成される。非極性溶媒中では、熱化した電子とカチオンラジカルは、クーロン相互作用により再結合して励起状態になる。



この反応はジェミネートイオン再結合と呼ばれ、ピコ秒のオーダーの反応である。ジェミネートイオン再結合反応は、放射線化学初期過程を理解するために非常に重要である。

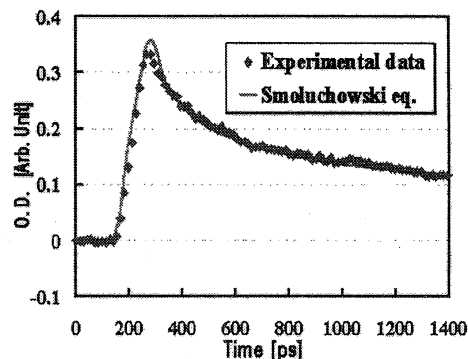


図3 n-ドデカンカチオンラジカルの時間プロファイル (820nm)

そこで、前述の3つのシステムを用いて、ジェミネートイオン再結合の測定を行ない、カチオンラジカルと電子の生成過程の研究を行なっている。

測定結果の一例として、図3にピコ秒基本波システムを用いて測定した、n-ドデカンカチオンラジカル820nmにおける時間プロファイルを示す。電子線が入射してカチオンラジカルが生成され、時間とともに再結合過程で減少していく様子が測定された。

### 4. まとめ

阪大産研では、ピコ秒基本波・ピコ秒白色光・サブピコ秒基本波パルスラジオリシスシステムを用いて放射線化学初期過程に関する研究を行なっている。また、さらに高時間分解能・広波長領域での測定・データのSN比の向上に向けて開発を進めている。

### 参考文献

- [1] J.W.Hunt et al., Rev. Sci. Instr. 41(1970)333.
- [2] T.Yamamoto et al., Proc.23<sup>rd</sup> Linear Accelerator Meeting in Japan(1998)
- [3] T.Kozawa et al. Nucl. Instrum. Meth. (1999) in press
- [4] T.Kozawa et al., Proc.Particle Accelerator Conf., New York, USA, 1999 in press