

PRESENT STATUS OF A PULSE RADIOLYSIS SYSTEM AT WASEDA UNIVERSITY*

Keita Komiya^{1A)}, Kazuyuki Sakaue^{A)}, Hiroyuki Nagai^{A)}, Tomoaki. Nomoto^{A)}, Yoshimasa Hama^{A)},
Akihiro Fujita^{A)} Masakazu Washio^{A)}
K. Ushida^{B)}, S. Kashiwagi^{C)}, Y. Kamiya^{D)}, R. Kuroda^{E)}

^{A)} Research Institute for Science and Engineering, Waseda University (RISE)
17, Kikui-cho, Shinjyuku-ku, Tokyo, 162-0044

^{B)} RIKEN

2-1, Hirosawa, Wako-shi, Saitama, 351-0198

^{C)} International Center for Elementary Particle Physics, The University Of Tokyo (ICEPP)
7-3-1, Hongou, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-0033

^{D)} The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University (ISIR)
8-1, Mihogaoka, Ibaraki-shi, Osaka, 567-0047

^{E)} Advanced Industrial Science and Technology (AIST)
1-1-1, Umezono, Tsukuba-shi, Ibaraki, 305-8568

Abstract

We have been developing a compact pulse radiolysis system using photo-cathode RF-Gun since 2003. To improve its performance, we have improved several optical systems. As a result, we get high time resolution and S/N ratio. However, it is very difficult to perform the experiment with very high accuracy, because the long time experiment, which induces the change of experimental conditions, must be required by the conventional experimental setup, so far. Therefore, we revised the measuring method and succeeded to shorten the measuring time. In this paper, we will report a present status of our system.

早稲田大学におけるパルスラジオリシスシステムの現状

1. はじめに

パルスラジオリシスとは、物質にパルス状の放射線を照射し、物質内に生成する短寿命中間活性種の時間挙動を観察し、放射線化学反応の初期過程を解明する実験手法で、放射線物理や材料科学分野だけでなく、近年では、産業分野や医療分野などへの応用も期待されている。

しかし、放射線化学研究におけるパルスラジオリシス実験への期待は高まっているものの、加速器などに代表される設備が大掛かりで、高価であるという問題があった。そのため、早稲田大学では、他の研究所に比べてコンパクトで比較的安価なシステムの構築を目指し、2003年よりRF電子銃を用いたパルスラジオリシスシステムの構築を始めた。

システムの性能向上のため、我々はビームオプティクス・レーザーオプティクスなどの光学系の改良を施してきた結果、2005年度までに高い時間分解能とS/N比を持つシステムの開発に成功した[1][2]。また、2006年度の実験では、長時間の測定による試

料の劣化を防ぐため、データ取得方法を見直し、測定時間の短縮に成功した。これらについて報告する。

2. パルスラジオリシスシステム

2.1 ポンプ・プローブ法

我々のパルスラジオリシスシステム(Fig. 1)はポンプ・プローブ法を利用している。PULRISE V(住友重機、Time Bandwidth社製)から発振されたUVレーザー(262nm)はRF電子銃に入射し、Cuカソードとの光電効果によって、電子ビームパルスを生じさせ、さらにRFによって高エネルギーに加速し、励起源として使用している。

また、同様に発振されたIRレーザー(1047nm)は、Flash Lampで増幅された後、水セルに導かれる。ここで、水との非線形光学効果によって白色光(650nm~1350nm)を生成し、分析光として使用する。このように同一パルスの基本波と高調波によって励起源と分析光を生成しているため、時間的な同期が取りやすいのが特徴である。

本研究室では、分析光に自動ステージを利用して

* Work supported by MEXT High Tech Research Project HRC707

¹ redsoul@suou.waseda.jp

光学遅延をかけることで、ストロボスコーピック法に基づいたポンプ・プローブ法を実践している。これにより、本システムの時間分解能が装置の性能に依存せず、電子ビーム及び分析光の時間・空間方向のサイズのみ依存するため、高い時間分解能での測定が可能となる。

2.2 データ取得

生成された白色光は、ハーフミラーによって試料セルを通過する分析光(I₁)と、通過しない参照光(I₂)に分けられ、それぞれの光強度をフォトディテクターで測定し、その強度比をO.D.として算出する。光学遅延のための自動ステージの移動や、RFノイズなどのバックグラウンドデータを測定するためのシャッターの開閉、さらに実際のデータ取得まで、LabVIEWプログラムを使用することで、全自動化している。以下に本パルスラジオリシスシステムのセットアップ図を示す。

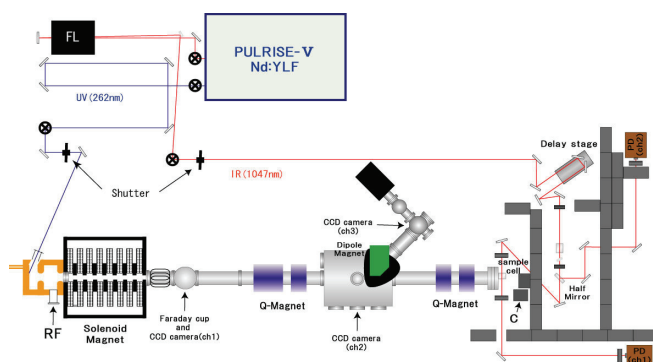


Fig. 1 Compact picosecond pulse radiolysis system at Waseda University (2006)

3. システム改良

3.1 システム評価実験

水の放射線化学反応については過去に広く研究されており、水に放射線を照射すると、ピコ秒以内に水と電子が生成し、寿命が数百マイクロ秒と長時間であることが確認されている。そのため我々は、システムの性能評価実験として、水と電子の過渡吸収測定を行い、時間分解能・S/N比・測定時間のそれぞれについて、性能向上のためのシステム改善を進めた。現在までのシステム改良の成果をTable 1に記す。ここで、2004年度については、現在のセットアップとは異なるセットアップで実験を行ったため、評価の対象からは外している。

Table 1 Performance of our pulse radiolysis system in 2003[1], 2005[2], and 2006

	2003	2005	2006
Time resolution [ps]	26	16	18
S/N ratio	6.7	26.4	8.6
Charge [nC]	1.4	0.95	0.67
Measurement time [h]	24	14	3.5

現在までの改良により、特に時間分解能と測定時間において、大幅な向上が見られる。S/Nについては、2006年で劣化しているが、これは電荷量の影響によるところが大きいと考えられる。

3.2 時間分解能

Fig. 2は水と電子のO.D.測定の結果である。時間分解能は下記Eq. 1の半値幅から定義した。さらに、先にも述べたように、本システムの時間分解能は、電子ビーム及び分析光の時間・空間方向のサイズのみ依存するため、四極電磁石によるビームサイズの縮小(Table 2)などの改善を施し、時間分解能を小さくすることに成功してきた。

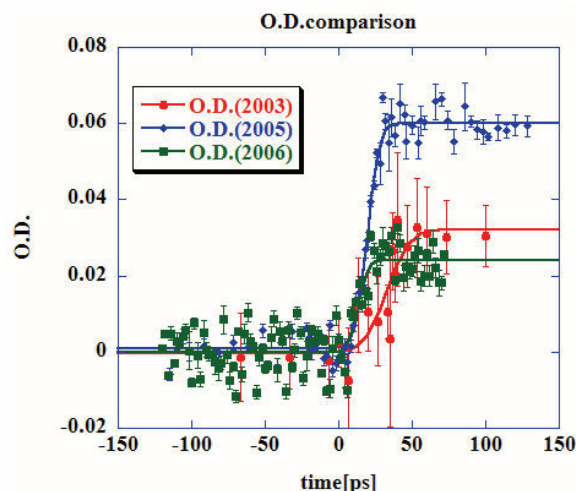


Fig. 2 Transient absorption kinetics of hydrated electrons measured at wavelength of 720nm

$$\sigma \text{ (Expectation Value)} = \sqrt{\sigma_{Bd}^2 + \sigma_{Ls}^2 + n^2(\sigma_{Bs}^2 + \sigma_{Ld}^2)} [\text{ps}]$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{Bd} : \text{bunch length}, \sigma_{Ls} : \text{laser size}, \sigma_{Bs} : \text{beam size}, \sigma_{Ld} : \text{laser pulse length}, \\ n : \text{refractive index}(1.3) \end{array} \right\}$$

$$\text{Time Resolution (Expectation Value)} = \sigma \times 2.3 \quad (\text{Eq. 1})$$

Table 2 Improvement of beam optics [1][2]

	each parameter [ps]				Time Resolution
	σ_{Ls}	σ_{Ld}	σ_{Bs}	σ_{Bd}	$\sigma(\text{expectation value})$
2003	0.6	4.8	7.6	6.0	14
2005	0.6	4.8	3.5	6.0	9.1

3.3 S/N

我々はシグナルを立ち上がり後のO.D.、ノイズを立ち上がり前の揺れの標準偏差とし、システムのS/Nを定義している。S/Nを向上させるためには、シグナルを増加させるか、ノイズを減少させるかの2つの方法が考えられるが、シグナル値については、励起源である電子ビームの電荷量に大きく依存してしまうため、大きな向上は期待できなかった。そこで、ノイズを減少させることを目的として、分析光である白色光の安定度の向上[2]及び、データ輸送方法の見直しなどを行った結果、S/Nの大幅な向上

に成功した。

白色光の安定度測定では、セル長を10mm、30mm、50mmと変え、生成された白色光の強度の揺れ率を測定した。測定された揺れ率はそれぞれ12%、2.1%、5.8%になった。測定結果をFig. 3に示す。これはセル長が10mmでは、焦点深度に対して十分でなく、50mmでは水の揺れの影響を受けることが原因と考えられる。このことから、セル長は30mmのものが適当であると判断した。

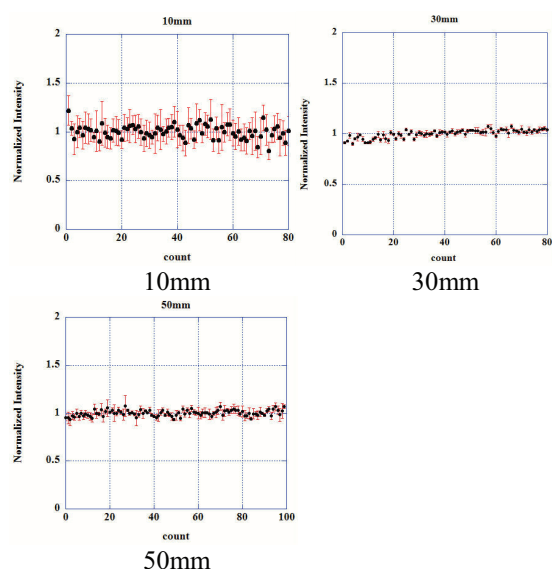


Fig. 3 Dependence of white light fluctuation on cell length[2]

また、2006年度の実験では、データ輸送方法を変えることにより、ノイズの影響を減少させることに成功した。それまでは、フォトディテクターで計測したアナログ信号を、制御室のオシロスコープまで輸送して取得していたため、サイクロトロンなどの影響を多く受けていた。そこで、PCを加速器室に設置し、リモートで制御することにより、アナログ信号でのデータ輸送距離が短くなり、ノイズの影響を減少させることに成功した(Fig. 3)。ここで、2006年度のS/Nが小さいことについては、電荷量の減少が主な原因と考えられる。ノイズの影響の減少はFig. 4から、明らかである。

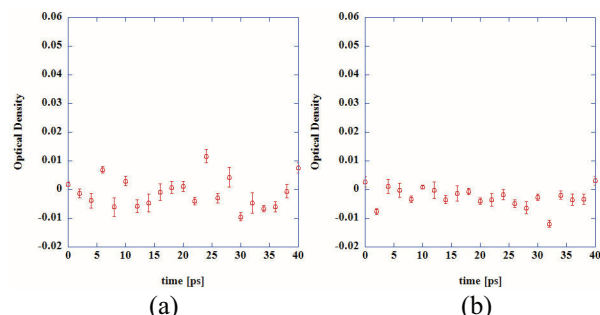


Fig. 4 The difference of noise value by data transportation (a) is by analogue and (b) is by digital

3.3 測定時間

2003年度のシステムでは、シャッターの開閉や、光学ステージの移動などの、データ取得のためのプロセスを手動で行っていたため、水和電子のO.D.取得のために、24時間を要していた。しかし、長時間測定による実験条件の変化などへの懸念から、即時時間の短縮が求められたため、2005年度までの実験で、LabVIEWプログラムによるデータ取得の全自動化を行い、測定時間を12時間まで短縮することができた。さらに、2006年度には、繰り返し周波数を5Hzから10Hzに変更し、ノイズの減少に伴う取得アベレージ数を下げることで、3.5時間まで短縮することができた。

4. まとめと今後の実験計画

2003年度からの実験で、放射線化学反応の初期過程の解明に十分な高い時間分解能とS/Nを持ち、コンパクトなシステムの構築し、その性能を向上させてきた。今後はこのシステムを利用したパルスラジオリシス実験を進めていく予定である。

また、現在早稲田大学では、RF電子銃のカソードをこれまでのCuカソードから、より量子効率の高いCs-Teカソードに変更する作業を進めている[3]。これにより、現在よりも高電荷量な電子ビームが見込めるため、より高いS/Nが期待されるだけでなく、種々の有機溶媒を試料にした本格的なパルスラジオリシス実験に取り組んでいくことができると期待される。

さらにこれと同時に、Xeフラッシュランプとモノクロメーターの導入で、ピコ秒オーダーの実験の事前準備実験としてのナノ秒オーダーでの実験を様々な波長帯域で行うことが可能なシステムの構築も現在進行中である。

5. 参考文献

- [1] M. Kawaguchi, et al., Nucl. Instr. and Meth. B 236 (2005) 425-431
- [2] H. Nagai, et al., Nucl. Instr. and Meth. B accepted.
- [3] A. Murata, et al., Proc. of this conference
- [4] 日本放射線化学会編, 「放射線化学のすすめ」(学会出版センター)