

Development of Compact Picosecond Pulse Radiolysis System at Waseda University

Hiroyuki Nagai^{1A)}, Masaaki Kawaguchi^{A)}, Keita Komiya^{A)}, Tomoaki Nomoto^{A)}, Kazuyuki Sakaue^{A)}, Yoshio Kamiya^{A)}, Yoshimasa Hama^{A)}, Masakazu Washio^{A)}, Kiminori Ushida^{B)}, Shigeru Kashiwagi^{C)}, Ryunosuke Kuroda^{D)}

^{A)} Advanced Research Institute for Science and Engineering, Waseda University (RISE)

17 Kikui-cho, Shinjyuku-ku, Tokyo 162-0044, Japan

^{B)} The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

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

^{C)} The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University (ISIR)

8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan

^{D)} National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

AIST Tsukuba Central 2, Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

Abstract

A compact picosecond pulse radiolysis system has been developing at Waseda University, for studying primary processes of radiation chemistry. The system is composed of a photo-injector system and a picosecond all-solid-state laser system. An infrared (IR) and ultraviolet (UV) laser pulses are obtained from mode-lock Nd:YLF laser system, and used for generation of the white light continuum as a probe light and irradiation to the Cu cathode of a photocathode RF-gun, respectively. To improve signal-to-noise (S/N) ratio and time resolution in the stroboscopic measurement, the probe light was stabilized and the electron beam as the pump was focused on the sample cell. The results are described in this report.

早稲田大学におけるピコ秒パルスラジオリシスシステムの構築と現状

1. はじめに

ストロボスコピック法によるパルスラジオリシス(本稿では以降パルスラジオリシス法と記す)は、その時間分解能が測定装置自体の時間分解能に依存しないため、放射線化学反応初期過程を解明するにあたり極めて有用な手段である。しかしながら、パルスラジオリシスシステムには、大掛かりな施設及びスペース、またコストが必要とされていたため、これまで本研究室では比較的安価で且つコンパクトなピコ秒パルスラジオリシスシステムの構築を行ってきた。その結果、2003年に時間分解能26psのコンパクトなパルスラジオリシスシステムの構築に成功している¹⁾。今回、時間分解能に寄与する電子ビームサイズ、及びSN比に寄与する分析光の安定化によるシステムの改善について報告する。

また、サンプルセル中で生じる時間分解能劣化²⁾を軽減するための新光学系セットアップ、及びCs₂TeカソードRF-gunの導入³⁾等今後の展望について述べる。

2. システム構成

我々は、早稲田大学喜久井町キャンパスにRF-gunを基礎としたコンパクト加速器システムを構築し、

パルスラジオリシス実験及び軟X線生成実験⁴⁾を行っている。

本パルスラジオリシスシステムの構成図を図1に示す。分析光には、IRレーザー(Nd:YLF, 1047nm)を増幅し水セルに集光させ生成させた白色光を用いている。白色光には、長所として広波長領域(450~950nm)にて測定可能な点があり、様々な干渉フィルターを用いることでサンプルの極大吸収波長に適した光を取り出すことができる。また、ビーム源にはフォトカソードRF-gun (cathode:Cu)を用い、UVレーザー(262nm)を入射することにより電子ビームを生成した。IRレーザー及びUVレーザーは、同一レーザー(Pulrise-V)の基本波及び四倍高調波をそれぞれ

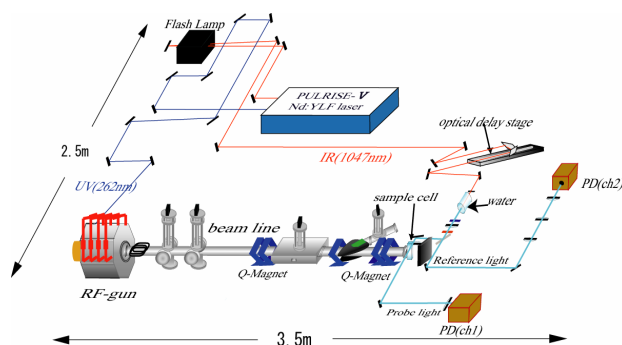


図1 コンパクトピコ秒パルスラジオリシスシステム構成図

¹⁾ E-mail: physik-albert@suou.waseda.jp

表 1: 電子ビームの主要パラメータ

Bunch length	10ps(FWHM)
Energy	3.5~4.5MeV
Charge/Bunch	~1nC
Cathode	Cu

表 2: レーザーの主要パラメータ

Pulse length	10ps(FWHM)
Wavelength	1047nm
Energy	1mJ/pulse

用いているため高精度での時間同期が可能である。
表 1、2に電子ビーム及びレーザーの主要パラメータを示す。

3. システムの改善

3.1 時間分解能の改善

本研究では、電子ビームに対し、分析光に光学遅延をかけその都度光の吸収量を観測するストロボスコピック法によって測定を行っている。その際システムの時間分解能は、電子ビームサイズ及びバンチ長、分析光サイズ及びそのパルス幅、さらにサンプルの屈折率に依存し、我々のシステムでの理論式は下記のように与えられる^[1]。

Time Resolution(estimated value)

$$\sigma = \sqrt{\sigma_{bd}^2 + \sigma_{Ls}^2 + n^2(\sigma_{bs}^2 + \sigma_{Ld}^2)} [ps]$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{bd} : \text{bunch length, } \sigma_{Ls} : \text{laser size} \\ \sigma_{bs} : \text{beam size, } \sigma_{Ld} : \text{laser pulse width} \\ n : \text{refractive index} \end{array} \right\}$$

上記パラメータの内、本研究室において相対的に影響が大きく比較的容易に変更可能なビームサイズについて、四極電磁石を用い更なる縮小化を行った。その結果を表 3に示す。これより、理論値で29[ps]から20[ps]へと時間分解能の向上が見込まれた。

表 3: 電子ビームサイズの比較 (σ_{bs})

	2003	現在
X 方向(rms)	7.6[ps]	3.5[ps]
Y 方向(rms)	10[ps]	3.8[ps]
分解能(理論値)	29[ps]	20[ps]

3.2 白色光の安定化

2項で述べたように、本システムでは分析光にレーザーと水を用いて生成した白色光を用いている。サンプルに電子ビームを照射し生成させた中間活性種の時間挙動は、白色光の吸収量によって測定する

ため、その強度安定化によりSN比の向上が期待される。そこで、白色光を集光及び輸送する際に用いていた平凸レンズによる収差の補正、さらに水セル長の最適化を行った。

(1) 収差の補正

平凸レンズを用いる際に、光の屈折率の波長依存による色収差、また光の入射位置に依存し生じる球面収差がそれぞれ生じる。これらを補正するため、白色生成直後のレンズに球面アchromaticレンズを、サンプルセルへの集光レンズに非球面レンズをそれぞれ用い収差の補正を行った。

(2) 水セル長の最適化

さらに、白色光生成に用いるセル長について、それまでの10mmに加え、30mm、50mmと変え安定度を測定した。白色光強度は、フォトダイオードで検出し、オシロスコープでの16回平均を1点として、その3点平均をプロットした。それぞれ80回連続で取得し全ての平均値で規格化した結果を図2~4に示

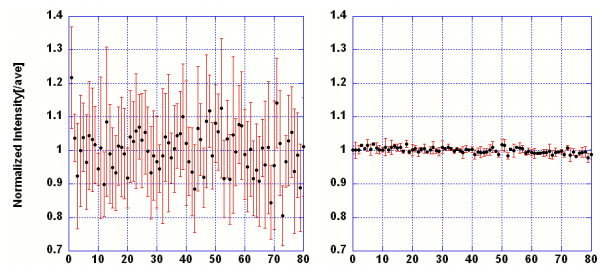


図 2 セル長: 10mm

図 3 セル長: 30mm

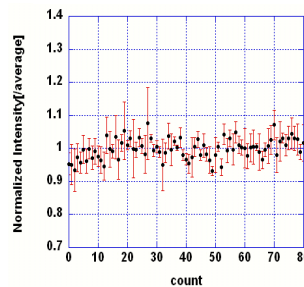


図 4 セル長: 50mm

す。比較のため、揺れを「error/平均値」として算出し、その結果を表 4 に示す。

これより、セル長30mm時が最も安定し、以前に比べ12%⇒2.1%と白色光安定度の改善に成功した。

表 4: 白色光安定度測定結果

セル長	10[mm]	30[mm]	50[mm]
揺れ	12[%]	2.1[%]	5.8[%]

4. システム評価実験と測定結果

上記の改善結果を評価するため、システムの評価試験を行った。サンプルには超純水を用い水和電子の時間挙動を測定し、その立ち上がりから時間分解

能を評価した。測定波長は水和電子の極大吸収波長である720nm^[5]を干渉フィルターにより取り出した。実験結果及び以前のシステムとの比較結果を図5、表5に示す。

これよりシステムの時間分解能及びSN比において大幅な向上を確認できた。

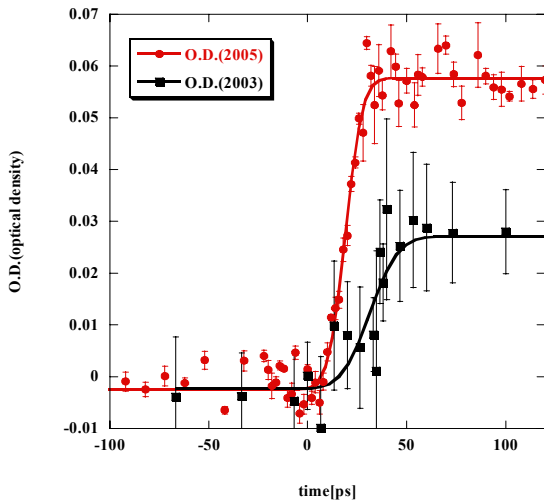


図5 水和電子のタイムプロファイル (720nm)

表 5:システムの改善結果

	旧システム	新システム
時間分解能	26ps	16ps
SN 比	6.7	26.4

5. まとめと今後の予定

本研究室ではコンパクトなピコ秒パルスラジオリシスシステムの構築を行っており、2003年には時間分解能26psのパルスラジオリシスシステムの構築に成功している。今回、より高精度な測定システムの構築を目的として、時間分解能の向上及びシステムの安定化について改善を試みた。その結果システム的大幅な向上に成功した。今後は本システムにより他媒質の放射線化学反応初期過程について解明を行っていくとともに、更なるシステムの向上についても平行して研究を行っていく予定である。

現在、我々は電子ビームと分析光を直交させ測定を行っている。しかし、サンプル中では分析光の速度はその屈折率に依存し、電子ビームと分析光の速度差から時間分解能の劣化が生じる^[2]。そのため、短いサンプルセル及び電子ビームと分析光の同軸入射が望ましいが、一方でSN比の低下という問題がある。また、同軸入射に近づけるほど、サンプルをビームラインの先端から離す必要があるため、空気中に取り出した電子ビームの広がり問題も生じる。そこで我々は、十分なサンプルセル長である長さ10mmのものを用い、サンプルをビームラインから離さずに与えることのできる傾斜角度を分析光につ

けた、新光学系セットアップを考えている。また、検出器の個体差を軽減するため、これまで別々のフォトディテクターにて検出していたリファレンス光と分析光を、同一のフォトディテクターにて測定を行う予定である。現在、及び新規セットアップ図を図6、7に示す。

さらに本研究室では、今年度RF-gunに関し現行のCuカソードに替え、量子効率の高いCs₂Teを導入予定である。それにより、より高い電荷量でのパルスラジオリシス実験が可能となり、更なるSN比の向上が期待される。

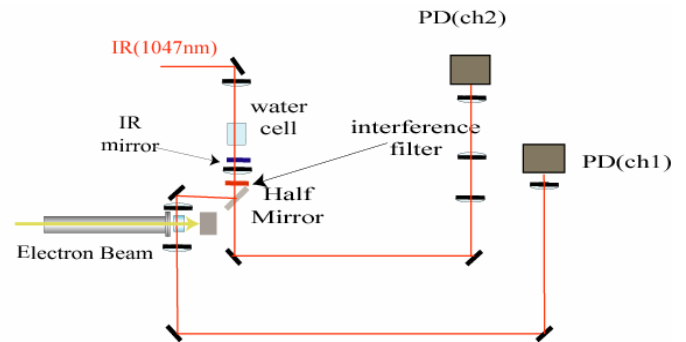


図6 現在の光学系セットアップ

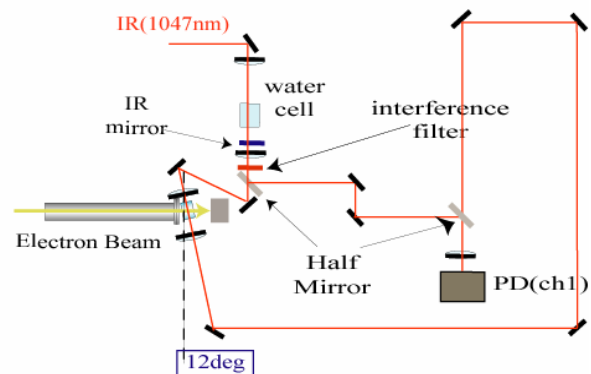


図7 新規光学系セットアップ

参考文献

- [1] M. Kawaguchi, et al., Nucl. Instr. and Meth. B 236 (2005) 425-431
- [2] J. Yang, et al., Radiat. and Chem., V. 75, Issue 9, Sep. 2006, p. 1034-1040
- [3] Y. Kamiya, et al., Proc. of this conference.
- [4] R. Moriyama, et al., Proc. of this conference.
- [5] 田畑米穂 著, 「放射線化学」(東京大学出版会)