

4-チオウラシルラジカルカチオン二量体の生成と構造 —パルスラジオリシス時間分解過渡吸収と過渡共鳴ラマン分光—

産研量子ビーム科学研究施設^a・産研励起材料化学研究分野^b

藤乗幸子^{a*}、小阪田泰子^b、藤塚 守^b

Formation and Structures of Thiouracil Dimer Radical Cation by during Pulse Radiolysis

Research Laboratory for Quantum Beam Science^a, Dept. of Material Excitation Chemistry^b

Sachiko Tojo^{a*}, Osakada Yasuko, Mamoru Fujitsuka^b

We have developed the nanosecond time-resolved resonance Raman spectroscopy (ns-TR3) during pulse radiolysis. The oxidation of 4-Thiouracil (4-TU) with hydroxyl radical (OH•) in aqueous solution lead to the formation of intermolecular σ -dimer radical cation (4-TU₂^{•+}) with two-center three-electron bond between two sulfur atoms (2c-3e S...S). The ns-TR3 spectrum of 4-TU₂^{•+} shows peaks at 155, 305 (2c-3e S...S stretching), and 439 cm⁻¹ (C-S and ring stretching), while the C=S and C-N stretching vibrations at 1126 and 436 cm⁻¹, respectively were not observed.

生体内抗酸化過程において硫黄化合物は重要な役割を担っている。含硫アミノ酸などの抗酸化機構を明らかにすることは生理学的酸化機構解明において重要である。本年度は、図1に示す4-チオウラシル(4-TU)のヒドロキシルラジカル(•OH)による一電子酸化反応をパルスラジオリシス時間分解過渡吸収と過渡共鳴ラマン分光により検討した。

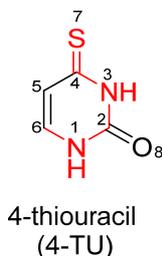


Figure 1. Molecular structures of 4-Thiouracil used in this study.

4-TU水溶液のパルスラジオリシス過渡吸収スペクトルを図2に示す。

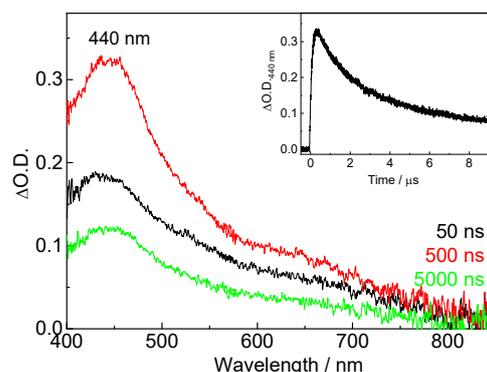
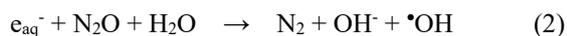
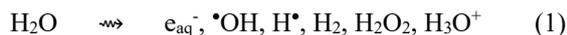


Figure 2. Transient absorption spectra obtained during pulse radiolysis of 4-TU (5 mM) in pH 7 MilliQ (N₂O atmosphere). Inset shows a time trace of the transient absorption at 440 nm.

•OHによる一電子酸化(式3)、二量化反応(式4)を経て440 nmに吸収を持つ分子間ダイマールラジカルカチオン4-TU₂^{•+}が生成した。

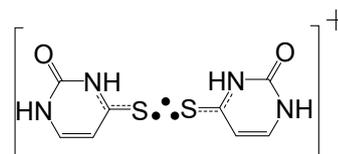


Figure 3. 4-TU₂^{•+} with two-center three electron S-S bond

* S. Tojo, 06-6879-8511, tojo@sanken.osaka-u.ac.jp

4-TU₂^{•+}は二中心三電子 S-S(2c-3e S··S)結合を有するσ型ダイマーラジカルカチオン(図3)と報告されている。4-TU₂^{•+}の構造をパルスラジオリシス時間分解ラマン分光により明らかにした。

Nd-YAGレーザーからの532 nm光(パルス幅5 ns)を電子線照射から500 ns後に照射、ノッチフィルターによりレーザ散乱を除去、12 mのファイバーで分光器に誘導、冷却型CCD検出器で、4-TU₂^{•+}の時間分解ラマンスペクトルを測定した。基底状態4-TUのラマンスペクトルとは大きく異なるラマンスペクトルが得られた(図4)。

4-TUでは436 cm⁻¹ (N-C stretching)、1126 cm⁻¹ (C=S stretching)、1233 cm⁻¹ (N-C stretching)、1620 cm⁻¹ (C=C stretching)が観測された(図4)。一方、4-TU₂^{•+}では436, 1126, 1233, 1620 cm⁻¹のシグナルは消失し、新たに155, 305, 439 cm⁻¹に過渡ラマンシグナルが観測された。すでに我々は4-TU₂^{•+}で観測された222, 295 cm⁻¹の過渡ラマンシグナルが2-TU₂^{•+}の2c-3eS··S結合の伸縮振動を観測している。帰属された。計算結果とも一致した。

4-TUおよび4-TU₂^{•+}の最適化構造とスピン密度を計算した。4-TUのC-S結合距離は1.633から1.171 Åに増加し、C-N結合距離は1.390から1.362 Åと減少し二量体によるS··S結合が形成され、図3の構造が示すことができた。4-TU₂^{•+}のスピン密度は2つのS上に局在化していることも示された。昨年報告した2-TU₂^{•+}の結果とも良い一致を示した(表1)。

今後タンパク質の酸化過程における含硫黄アミノ酸部位で形成される二中心三電子結合 S··S、2c-3e、N··S、O··Sの役割について、過渡ラマン分光により構造情報と速度論的知見を得ていく予定である。

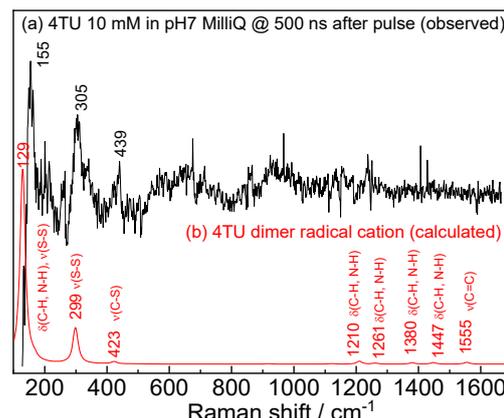


Figure 4. (a) ns-TR³ spectrum observed at 500 ns after an 8-ns electron pulse during the pulse radiolysis of 4-TU (5 mM) in N₂O-saturated aqueous solution. Probe: 532 nm (black). Red line shows the Raman spectrum of 4-TU₂^{•+} calculated by TDDFT at UB986/TZVP level.

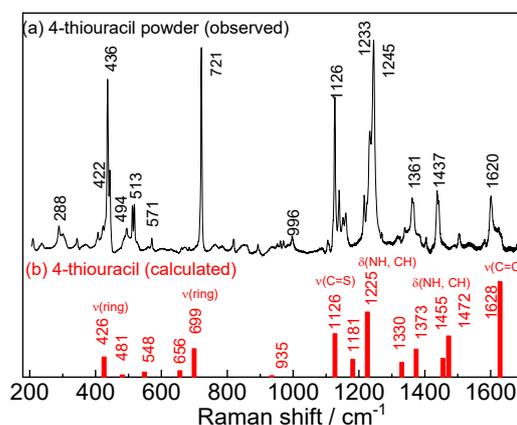


Figure 5. (a) Raman spectrum of neutral 4-TU powder. Probe: 355 nm (black). (b) Vertical red lines show the Raman peaks of 4-TU calculated by B3LYP/6-31G(d)

Table 1 λ_{\max} , S··S and C-S Raman shifts, S··S distance and Mulliken Spin Densities for 2-TU₂^{•+} and 4-TU₂^{•+}.

Dimer radical cation	λ_{\max} (nm)	ν_{S-S} (cm ⁻¹)	ν_{C-S} (cm ⁻¹)	S··S distance (Å)	spin density on S atom
2-TU ₂ ^{•+}	415	210, 295	441	2.893	0.451 0.512
4-TU ₂ ^{•+}	440	155, 305	439	2.924	0.495 0.495

フェムト秒電子線パルスを用いた超高速電子顕微鏡の開発

産研ナノ極限ファブリケーション研究分野^a

楊 金峰^{a*}、吉田陽一^a

Ultrafast electron microscopy with femtosecond electron pulses

Dept. of Advanced Nanofabrication, Sanken, Osaka University^a

Jinfeng Yang^{a*}, Yoichi Yoshida^a

An innovative relativistic femtosecond-pulsed electron microscope (UEM) was developed by combining a radio-frequency electron acceleration technology into high-voltage electron microscope. Both spherical and chromatic aberrations in UEM were integrated. TEM imaging of 40-nm-diameter gold nanoparticles with 3-MeV-energy femtosecond electron pulses were succeeded.

温度や圧力、光などの外部刺激によって、磁気的・電気的特性や原子配列が変化する構造相変化は、従来から極めて重要な研究課題となっている。それは、これらの構造変化を利用すれば、新物質・新機能の開拓、超高速かつ低エネルギーのデバイスの実現が期待されることから、世界中が注目している。従来、計測技術の制約からレーザーを使った分光法等を用いて、間接的に超高速の構造変化過程とその物質に対して多くの研究がなされてきたが、現実のデバイス開発や新規材料創成を見据えると、実時間と実空間での構造変化過程を直接的に測定することは、非常に重要である。

我々は、高周波(RF)加速器技術を利用して相対論的エネルギーの高強度フェムト秒電子線パルスを発生し、超高压パルス電子顕微鏡装置の研究開発を推進している[1]。Fig.1に、RF電子銃を用いた超高压パルス電子顕微鏡と相対論的フェムト秒電子線パルスを用いて観察した金ナノ粒子のTEM像を示す。レンズ系では、1970年に日立製作所が製作した2MVの電顕レンズを活用した。

今までは、フォトカソードRF電子銃を用いてエネルギーが3MeV、パルス幅が100fs、パルス当たり電子数が 10^7 個のフェムト秒電子線パルスの発生に成功した。また、このパルスを用いて直径200nmの金ナノ粒

子のTEM像観察と、単一パルス(Single-shot)を用いた微結晶の測定を行った。今年度は、球面収差と色収差の影響を実測し、それぞれの低減方法を確立した。その結果、RF電子銃から発生した相対論的フェムト秒電子線パルスを用いて、直径40nmの金ナノ粒子のTEM像の観察に成功した。

本研究は、文部科学省科学研究費補助金(基盤研究(A) 22246127(H22~24), 26246026(H26~28), 17H01060(H29-31), 21H04654(R3-6)と萌芽研究16K13687(H28~29))の支援を受けて行われた。

Reference

- 1) J. Yang et al., *Microscopy* **67**, 291-295 (2018).

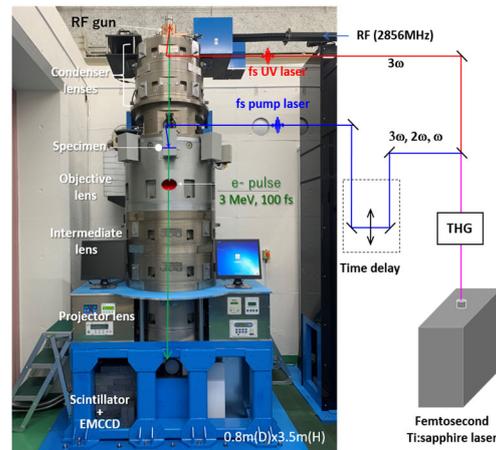


Fig 1. Ultrafast electron microscopy using RF electron gun.

* J. Yang, 06-6879-4285, yang@sanken.osaka-u.ac.jp

化学増幅型レジストモデル溶液のパルスラジオリシス

産研量子ビーム物質科学分野

岡本一将^{*}、古澤孝弘

Pulse radiolysis of resist model solution

Dept. of beam materials science, SANKEN

Kazumasa Okamoto^{*}, Takahiro Kozawa

The development of resist materials for the next generation EUV lithography has been continued. Chemically amplified resist has been used for the mass-production line of semiconductor devices. However, the detailed mechanism of acid generation mechanism in the excitation path using ionizing radiation as exposure source has not been clarified yet. In this study, we investigated the dynamics of excited states of *tert*-butyl phenyl carbonate as model of resist resin by using the pulse radiolysis method.

現在、半導体製品の製造において、リソグラフィ技術が集積化に必要な極微細加工に用いられている。近年、先端半導体製品の製造では、極端紫外線(EUV)を光源とする EUV リソグラフィの導入が開始された。現在リソグラフィで用いられるレジスト材料においては、より高開口数化した次世代の EUV リソグラフィに対応できる 10 nm 以下の解像性能を持つ材料開発が求められている。さらに 1 nm 以下の解像誤差(LER)が求められていることから、分子レベルでのダイナミクスの解明が重要となっている。

化学増幅型レジストが現在量産用として用いられている EUV レジスト材料である。EUV や電子線などの電離放射線が化学増幅型レジストに露光されると、イオン化により生じたホール電子対から酸生成が起こる。化学増幅型レジストには酸発生剤と呼ばれる添加剤が含まれている。電子が酸発生剤に捕捉され、酸のアニオンが生じ、またポリマーに生じたホール(ラジカルカチオン)から脱プロトンが起こり、酸が形成される。一方で、紫外線誘起の場合は直接酸発生剤が励起されるか、もしくはポリマーの励起状態からの電子移動反応¹⁾によって酸が生成する。

EUV 化学増幅型レジストでは、基本的に高濃度の酸発生剤を添加することで量子収率を増やして使用されている。酸発生剤の濃度の増加により、先に述べたイオン化反応機構だけでなく、酸

発生剤の直接励起やポリマーの励起状態から酸発生剤への電子移動反応が起こる励起状態起因の酸生成機構が考えられるが、²⁾その詳細は分かっていない。

そこで本研究では、炭酸 *tert*-ブチルフェニル (t-BuPh) を化学増幅型レジストのモデルとして用いて、酸発生剤を添加することで、励起状態のクエンチングについて調べた。実験は阪大産研 L-バンドライナックからの 26 MeV 電子線を照射源とするナノ秒パルスラジオリシス装置を用いた。予備実験の結果として、t-BuPh エキシマー発光の酸発生剤(TPS-nf)によるクエンチングが観察された。TPS-nf の電子捕捉反応も同時に起こるためより詳細な検討が必要である。引き続き研究を進めていく。

Reference

- 1) N. P. Hacker and K. M. Welsh: *Macromolecules* **24** (1991) 2137.
- 2) T. Kozawa et al.: *J. Vac. Sci. Technol.* **24** (2006) 3055.

^{*}K. Okamoto, 06-6879-8502, kazu@sanken.osaka-u.ac.jp

自発光植物種子の変異誘発

産研生体分子機能科学研究分野

長部謙二、永井健治

Mutagenesis of autoluminescence seeds

SANKEN (Institute of Industrial and Scientific Research)

Kenji Osabe, Takeharu Nagai

There are many bioluminescent organisms in nature, such as fireflies, bacteria and mushrooms, and the luminescent proteins from these organisms have been used for bioimaging of plants. We generated autoluminescent plants by introducing mushroom-derived autoluminescence genes into the plant genome. However, the current luminescence intensity is insufficient for applications that require high luminescence intensity, such as bioimaging. In this study, we will irradiate autoluminescent seeds with gamma- and electron beam to induce random mutations in the genome to identify mutant plants with enhanced luminescence. The enhanced luminescent plant can be used for improving the spatiotemporal resolution in bioimaging.

自然界には発光する生物が多数存在するが、その発光メカニズムを利用すれば様々な技術の開発につなげることができると期待される。そこで、我々は発光キノコであるヤコウタケの自発光遺伝子群を植物(シロイヌナズナ)に導入することで、植物の代謝物を利用し自ら発光することができる植物の作製にチャレンジした。しかし、発光強度が弱く、イメージングなどへ応用するために発光強度の増加が望まれる。本研究では、放射線により植物種子にランダムな遺伝子変異を誘発することで発光強度が増強された個体を作出することを目的とした。

放射線照射が生物のゲノムDNAに当たると線量に伴いDNAに損傷が起り、損傷したDNAを修復する際に稀に修復エラーが起き、ゲノムDNAの変異に至る。この変異が遺伝子あるいは遺伝子の制御に関連する塩基で起こると、植物の形質に影響することが報告されている(1)。放射線照射の線量を最適化することにより、致死量を超えない植物のゲノム変異を誘発し、発光遺伝子や発光に係る代謝産物の生合成の変化による発光強度が増加した個体を同定することを目指した。

照射実験の条件検討のため、野生型シロイヌナズナの種子に電子線を照射した。過去の実験報告を参考に線量の上限を検討するため、1200、2500、4900Gyの電子線を照射し、発芽と生存率を計測した。また、水に電子線照射することでフリーラジカルが生成されることが知れており(2)、そのフリーラジカルが

間接的にDNAに変異を誘発するため、乾燥状態の種子か、種子を水に浸して照射する条件も検討した。

結果として、照射していないコントロールの平均発芽率40.92%に対して、1200Gyでは36.78%、2500Gyでは31.51%、4900Gyでは17.58%であった。また、1200Gy、2500Gy、4900Gyの生存率はそれぞれ50%、5.67%、0%であった。種子を水に浸した状態で電子線を照射すると乾燥状態と比べて平均12.54%発芽率が低下したが、24.54%の生存率の上昇が見られた。種子内・外のフリーラジカルが発芽と生育に関係していることが報告されているが、今後実験の再現性を確認する必要がある。

本研究では遺伝子組換え体植物を放射線室で扱うため、共同研究開始と共に遺伝子組換え実験登録を申請した。現在も申請中だが、5月に遺伝子組換え体実験が承認されれば、6月1日から自発光植物の種子を用いた放射線照射実験が開始できる予定である。

Reference

- 1) Yamaguchi, H.: *Breeding Science* 68 (2018) 71.
- 2) Rai, K.K.: *Life-Basel* 13 (2023) 204.

電子ビーム照射によるプロドラッグの活性化とその薬理的評価

大阪大学産業科学研究所^a、理化学研究所 Spring-8^b、大阪大学大学院医学系研究科^c

山下泰信^{a,b*}、室屋裕佐^{a,b}、水田好雄^{a,b}、平井雄大^{a,b}、皆巳和賢^{a,c}、
譽田義英^{a,b}、小泉雅彦^{a,c}、細貝知直^{a,b}、鈴木孝禎^a

Activation of prodrugs by electron beam irradiation

SANKEN, Osaka University, Japan^a, RIKEN, SPring-8 Center, Japan^b

Graduate School of Medicine, Osaka University, Japan^c

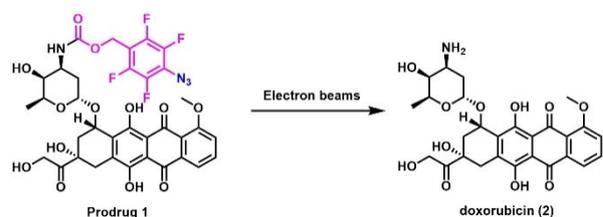
Yasunobu Yamashita^{a,b*}, Yusa Muroya^{a,b}, Yoshio Mizuta^{a,b}, Yudai Hirai^a, Kazumasa Minami^{a,c}, Yoshihide Honda^a,
Masahiko Koizumi^{a,c}, Tomonao Hosokai^{a,b}, Takayoshi Suzuki^a

Prodrugs are intrinsically inactive forms that are converted to active drugs by exogenous or endogenous stimulation and control the activity of drugs at tumor cells or tissues. In recent years, some reports have been published that prodrugs were spatio-temporally activated by X-rays.¹⁾ However, the tissue permeability of X-rays is too insufficient to be clinically applied for targeting deep lesions. Therefore, we thought that radiation that reaches at deeper tissues is available as a complementary method to X-rays. In this context, we focused on high-energy electron beams of tens to hundreds MeV which are nanosecond electron pulse (8 nanoseconds) and have superior properties in terms of tissue penetration and researched the potentials of electron beams for the prodrug activation. We use a RF linac²⁾ or a laser-driven electron acceleration facility as high energy electron beam sources.³⁾ In this study, we have achieved the activation of prodrugs by electron beams in vitro, and we have tested the electron beam-prodrug activation in cell-based assays and mouse experiments.

プロドラッグは、外因性または内因性の刺激によって活性な薬物に変換され、病巣における薬物の活性を制御する。最近、X線によるプロドラッグ活性化手法が報告され、X線は時空間制御可能な活性化トリガーとして注目を集めている。¹⁾しかし、X線は組織透過性が十分ではなく、体内深部におけるプロドラッグの活性化は困難である。したがって我々は、体内深部に到達可能な放射線が、X線を補完する手法として有用と考え、組織透過性の高い、高エネルギー電子線(10-100 MeV, ナノ秒電子パルス)に着目した。本研究では、RF LINAC²⁾およびレーザー駆動型電子加速器³⁾を用い発生させた電子線によるプロドラッグの活性化とその有用性を検証した。

電子線照射によるプロドラッグ活性化のPOC実験に、アントラサイクリン系抗がん剤であるドキソルビシン(2)のプロドラッグ1を用いた(図)。まず、1のリン酸緩衝溶液に電子線を照射したところ、2が生成することを確認した。また、1の活性化機構を調べるために

反応速度論解析を行った。その結果、(i)電子線照射によって溶液中の水分子から水和電子が発生し、(ii)これがアジド基を還元するとともに中間体へと誘導、(iii)最後にマスクの脱離と脱炭酸が起こることで、2が生成すると示唆された。さらに、電子線照射による1の活性化は、子宮頸がん細胞HeLaに対する細胞毒性および異種移植モデルマウスの腫瘍増殖抑制に有効であった。



Reference

- 1) M. Bradley et al., *Nat. Chem.*, **2021**, *13*, 805–810.
- 2) S. Kashiwagi et al., *Proceedings of APAC 2007*, 208-210.
- 3) T. Hosokai et al., *Scientific Reports*, **2019**, *9*, 20045.

フォトカソード RF 電子銃加速器における超短パルス電子ビーム発生とテラヘルツ計測

産研極限ナノファブ리케이션研究分野(吉田研)

菅晃一*, 神戸正雄, 米倉大樹, 楊金峰, 吉田陽一

Generation of ultrashort electron beam using photocathode RF gun linac and THz measurement

Dept. of Advanced Nanofabrication, ISIR, Osaka Univ.

K. Kan*, M. Gohdo, J. Yang, and Y. Yoshida

Ultra-short electron bunches with pulse durations of femtoseconds are applied to many scientific applications such as free-electron lasers, terahertz light sources, and pulse radiolysis. In this paper, measurements of laser modulation for short bunch generation are reported.

1. はじめに

フェムト秒のパルス幅を有する超短パルス電子ビームは、自由電子レーザーやレーザーコンプトンX線源、テラヘルツ光源など加速器物理において利用されている。一方で、超短パルス電子ビームは、パルスラジオリシス[1]や時間分解電子顕微鏡など放射線化学・物理化学分野の時間分解計測の研究にも応用されており、フェムト秒・ピコ秒の時間領域で誘起される超高速現象を観測するための重要なツールとなっている。

フェムト秒・ピコ秒電子ビームパルスは、1 psの逆数が1 THzに相当するため、テラヘルツ領域の電磁波研究にも利用されている。同時に、より短いパルス幅を持つ電子ビームは、電子ビームの分布をフーリエ変換することにより得られるバンチ形状因子から、より広帯域の電磁波を高強度で生成することがコヒーレント放射として知られている。電子ビームを用いたテラヘルツ波の発生は、自由電子レーザー、コヒーレント遷移放射、コヒーレントチェレンコフ放射、スミス・パーセル放射等により行われている。いずれの放射においても、コヒーレントな効果を利用した場合、得られるテラヘルツ波の周波数特性はバンチ形状因子に支配される。そのため、テラヘルツ放射が電子ビームパルス幅の診断および光源として利用されることがある。

本報告では、電子ビーム源として、フォトカソードRF電子銃加速器を用いた。電子ビーム発生には、Nd:YLFピコ秒レーザーからの紫外光パルス(パワー <1.7 mW、繰返し 10 Hz、波長 262 nm)もしくはフェムト秒レーザーからの紫外光パルス(パワー <80

mW、繰返し 960 Hz、波長 266 nm)を想定している。ピコ秒レーザーに関して、2022年4月時点は紫外光パルスとして1.7 mW(262 nm, 10 Hz)の出力が得られており、納入時(3.3 mW)の約50%までの出力に回復していた。しかし、2023年12月時点で、紫外光パルス出力は<0.3 mWと低下した。今後、電子ビームの電荷量の増強のためには、調整や保守が必要な状態にある。

フォトカソードRF電子銃にいずれかのレーザー(紫外光パルス)を入射し、光電子による電子ビームを発生している。レーザーと電子銃の間に反射型の変調ND(neutral density)フィルターを設置し、カソードに照射するレーザーのパルスあたりのエネルギー、つまり発生電荷量を調整した。また、加速器は、フォトカソードRF電子銃、加速管、磁気パルス圧縮器により構成される。パルス圧縮されたフェムト秒電子ビーム(エネルギー 35 MeV、繰返し 10 Hz、電荷量 <1 nC/pulse)を発生した。電子ビームエネルギー変調によりパルス圧縮を行うために、加速管における加速位相は100° 前後に設定した。発生したフェムト秒電子ビームを、高真空系のビームラインを隔てるチタン箔のビーム窓から低真空系の測定用真空チャンバーに取り出し、利用している。超短パルス電子ビーム発生のためのレーザー変調実験と電子ビーム由来のテラヘルツ電場計測の実験を行っている。

今年度は、レーザー変調を用いた超短パルス電子ビーム発生のための電子ビーム実験を行った。具体的には、レーザー変調による電子ビームエネルギー幅測定に関する実験を行った。

*K. Kan, 06-6879-4285, koichi81@sanken.osaka-u.ac.jp, koichi81kan@gmail.com

2. レーザー変調の実験と実験結果

レーザー変調の効果の最適化を行う場合は、光源として使用した場合のアンジュレータの発振波長と使用するレーザーの波長を一致させる必要がある。電子ビームエネルギー32.5 MeV ($\gamma \sim 64.6$)において、既存のレーザー波長800 nmを考慮し、アンジュレータの基本波の共鳴波長で800 nmを満たすような周期長を検討し、磁場周期長を6.6 mmの場合は、K値/磁場振幅が、0.15/0.25 Tであれば共鳴条件を満たす。

図1に、レーザー変調の実験の測定系を示す。電子ビーム発生では、フォトカソードRF電子銃加速器[1]からのフェムト秒電子ビームの発生を行った。フェムト秒レーザーの三倍高調波からの紫外光パルスをフォトカソードRF電子銃に入射し、光電子による電子ビームを用いた。パルス圧縮されたフェムト秒電子ビーム(エネルギー 32.5 MeV前後)を発生した。電子銃へのレーザー入射位相と加速管における加速位相は、それぞれ、 30° と 100° を用いた。発生したフェムト秒電子ビームをチタン箔のビーム窓から低真空中に取り出し、レーザー変調実験を行った。レーザー変調用のレーザーは、上流で分岐したフェムト秒レーザーの基本波を用いた。偏向時のエネルギー幅とビームプロファイル幅の関係として、35 MeV条件に対しては、 $R_{16} = 0.125$ mと見積もられた。

レーザー変調を行うためには、電子ビームとレーザーの軸を一致させ、かつ、アンジュレータ入射時刻を一致させる必要がある。金蒸着ペリクルにより、電子ビームとレーザーを同軸上に合流させた。軸調整については、測定系の脱着可能なスクリーンを用いた。入射時刻調整については、フェムト秒レーザーを光学遅延するとともに、脱着可能な電気光学結晶(ZnTe)におけるポッケルス効果を利用して、偏光測定により確認を行った。

図2に、電子ビームエネルギーが32.89 MeVの時のエネルギー幅の測定結果を示す。レーザー変調された電子ビームは、レーザーの存在する時間においてスライスのエネルギー幅が広がる。エネルギー幅測定を行うために、偏向磁石とスクリーンを用いて、測定される電子ビームプロファイルの幅がエネルギー幅に相当するとして、測定を行った。レーザーの有無によるエネルギー幅(ビーム径)の比をレーザー変調の効果(Modulation effect)とした。その結果、各入射時刻で10回ずつの測定で、フェムト秒レーザーの入射時刻0 psの時の内の1点でレーザー変調の効果が増加していることが分かり、変調の効果として1.17が

得られた。

3. まとめ

フォトカソードRF電子銃加速器における超短パルス電子ビーム発生とテラヘルツ計測を行っている。レーザー変調の効果として、最大で1.17が得られた。今後、安定性を向上すると同時に、アンジュレータやフェムト秒レーザーの最適化によりレーザー変調による超短パルス電子ビームの密度変調が期待される。

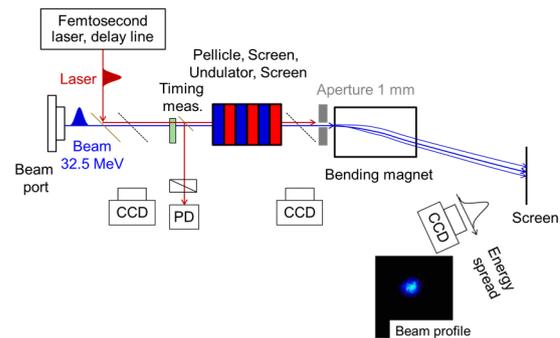


図1 測定系。CCD: CCDカメラ、点線: 脱着可能なスクリーン、PD: フォトダイオード。

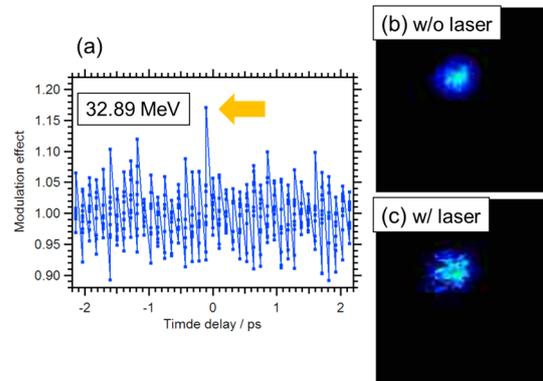


図2 測定結果。(a)変調の効果のレーザー入射時刻依存性、矢印の測定点のレーザー (b) 有 (c)無 によるビームプロファイルの結果。

Reference

- [1] J. Yang et al., Nucl. Instrum. Meth. A 637, S24 (2011).

加速器を用いた材料改質と新規機能性材料創製に関する研究

産研ナノ極限ファブ리케이션研究分野^a、阪大院工ダイキン協働研究所^b

菅晃一^a、大島明博^{ab}、吉田陽一^{a**}、佐藤数行^b、足達健二^b

Material modification using low energy electron beam

Dept. of Advanced Nanofabrication^a, Daikin Industries Joint Research Laboratory^b,

Koichi Kan^{a*}, Akihiro Oshima^{ab}, Yoichi Yoshida^{a**}, Kazuyuki Sato^b, Kenji Adachi^b

For modification of various polymer materials, high dose radiation by using a low energy electron beam accelerator was used at ISIR, Osaka University. It was found that the film surface of the silicon-based material used in this study is oxidized by radiation due to residual oxygen in the atmosphere, dissolved oxygen in the material, and atmospheric oxidation after irradiation, and becomes hydrophilic. It was found that this oxide layer was dissolved in ethyl alcohol, and the surface of the silicon-based material after dissolution was hydrophobic. In addition, it was found that the cross-linking reaction was progressing between the molecular chains inside the membrane, and the cross-linking threshold was found to be about 2MGy.

熱反応に変わるグリーン/ブループロセスとして、電子線(EB)照射による各種高分子の改質や機能性付与、キュアリング等の新たな工業プロセスが広く注目されている。有機材料に放射線照射を行うと、中間活性種たるラジカルが誘起され、近傍の分子鎖ラジカルと化学反応することで架橋/分解反応が起きる。例えば、架橋により高耐熱化・高強度化等の改質ができるほか、誘起されたラジカルにモノマーなどと反応させることにより、グラフトすることにより有用な機能性を付加できる。

本研究では、岩崎電気製の低エネルギー電子加速器(EC250/15/180L定格：250kV, 10mA)からのEBを用いて、各種有機・無機材料にEB照射を行い、各種モノマー等をグラフト反応させることによる親水あるいは撥水性等の機能付与の検討および

架橋による素材改質に関する研究を行った。本年は、フッ素系素材への非フッ素系/フッ素系モノマーのグラフトを検討したほか、シリコン系素材の架橋の検討を主に行った。

シリコン系素材を酸素濃度 100ppm 程度の窒素環境において EB 照射を 250keV, 3mA, 10m/min, 50kGy/pass の条件で 4MGy まで行った。照射後、大気中に取り出し、熱処理を行った。

本研究に用いたシリコン系素材は、膜表面に関しては、雰囲気中の残存酸素や素材中の溶存酸素、照射後の大気による酸化により放射線酸化し、親水化してしまうことがわかった。この酸化層は、エチルアルコールに溶解し、溶解後のシリコン系素材表面は疎水性を示すことがわかった。また、膜内部については、分子鎖間で架橋反応が進行していることが明らかとなり、架橋のしきい値は、約 2MGy であることがわかった。

最後に、本 EB 照射装置は、四国経済産業局から大阪大学産業科学研究所への無償貸付物品であり、有機材料への放射線グラフト重合や改質などのために使用している。この場で関係各位に感謝を申し上げます。



Fig.1 Functionalization of polymer materials by low energy and high dose electron beam

コバルトからの γ 線を用いた新規機能性材料創製に関する研究

産研ナノ極限ファブリケーション研究分野^a、阪大工学研究科ダイキン協働研究所^b

菅晃一^a、大島明博^{ab}、吉田陽一^{a**}、佐藤数行^b、足達健二^b

Development of functional materials using γ -rays irradiation

Dept. of Advanced Nanofabrication^a, Daikin Industries Joint Research Laboratory^b,

Koichi Kan^{a*}, Akihiro Oshima^{ab}, Yoichi Yoshida^{a**}, Kazuyuki Sato^b, Kenji Adachi^b

A radiation-induced graft-polymerization was studied for the purpose of improving the formability of the fluorine-based film. As a result of grafting reactions with trapped radicals or peroxy radicals using various fluorine-based monomers (C6SFA, C6SFMA, C6 olefin, H2pentene, 6FD), it was found that in this system, the grafting yields hardly differed greatly depending on types of radicals. Agglomerates occurred when the grafted pellets were molded as raw materials. This is probably because the liquid monomer is difficult to diffuse into the inside of the pellet, so the graft chains tend to grow on the pellet surface side, and the grafted chains formed a sea-island structure by self-assembly and phase separation during molding.

本研究ではフッ素系フィルムの成形性を改善することを目的として、グラフトの検討を行った。昨年度までに得られたESRでのラジカル挙動をもとに後照射法によるグラフト実験を行った。

各種フッ素系液モノマー（C6SFA, C6SFMA, C6olefin, H2penten, 6FD）を用いて、各種ペレットに γ 線照射後、試料を大気中に取り出し、捕捉ラジカルを過酸化ラジカル変えてグラフトさせた場合、そのまま捕捉ラジカルにグラフトさせた場

合に得られたグラフトペレットを熱成形した際の検討を行った。

過酸化ラジカル法も捕捉ラジカル法のどちらも本系では、グラフト率の挙動には大きな違いは観察されなかった。

Fig.1に成形後のSEM観察写真を示す。図からわかるように、グラフトペレットを原料として成形した場合、凝集物が生じていることがわかる。これは、ペレット内部まで液体モノマーが拡散しにくいいため、ペレット表面側でグラフト鎖が成長しやすく、熔融成形時にグラフト鎖同士が自己集合、相分離により海島構造を成形したものと考えられる。

以上の結果、ペレット内部までグラフト反応を誘起するために、モノマーのペレット内部への拡散時間を考量しペレットサイズや反応条件の管理を行う必要があることがわかった。

最後に、 γ 線照射実験にあたり、施設の福井様、古川様はご協力いただきました。感謝申し上げます。

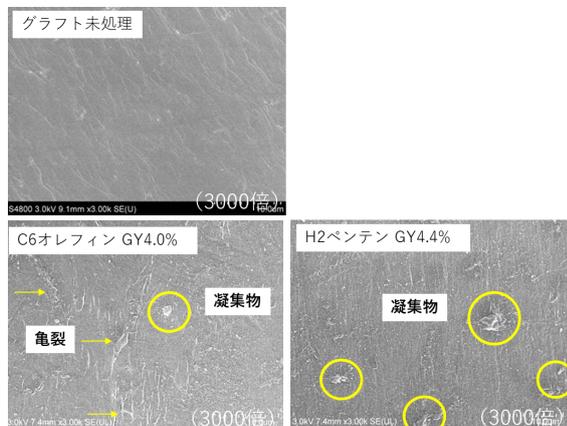


Fig.1 成形後のグラフト試料表面のSEM写真

イリジウム錯体をドーブした赤、緑、青色発光のラジオルミネッセンスポリマードット

産研励起材料化学研究分野^a、産研量子ビーム科学研究施設^b、高等共創研究院^c

Zouyue Liu^a、藤乗幸子^b、小阪田泰子^{ac}、藤塚守^a

Red, green, and blue radio-luminescent polymer dots
doped with heteroleptic tris-cyclometalated iridium complexes

Dept. of materials excitation chemistry^a, Research Laboratory for Quantum Beam Science^b Institute for
Advanced Co-Creation Studies^c

Zuoyue Liu^a, Sachiko Tojo^b, Yasuko Osakada^{a,c}, Mamoru Fujitsuka^a

In this study, we synthesized radioexcitable luminescent polymer dots (P-dots) doped with heteroleptic tris-cyclometalated iridium complexes that emit red, green, and blue light. We investigated the luminescence properties of these P-dots under X-ray and electron beam irradiation, revealing their potential as new organic scintillators.

Radiation is widely used in medicine, industry, and scientific research. For example, it is used in medical applications such as imaging and radiotherapy. Among these medical applications, linear accelerators are used to deliver radiation, including hard X-rays and electron beams, to visualize and induce cell death in targeted areas. There is substantial interest in using these technologies to develop novel imaging and therapeutic modalities by using photo-functional nanomaterials. In fact, recent studies have demonstrated the potential applications of radiation for photodynamic therapy and optogenetics by using photo-functional materials. Regarding photo-functional (e.g., radio-luminescent) nanomaterials for photo-induced therapeutic applications, scintillators are commonly used as the light-emitting materials. We and other research groups have developed radio-luminescent nanomaterials from inorganic and organic building blocks. For instance, we previously reported ~500-nm yellow emission from polymer dots (P-dots) by using hard X-ray irradiation at a 50-kVp tube voltage with a homoleptic tris-cyclometalated iridium complex.¹ However, the emission color and excitation radiation sources remain limited; thus, it is crucial to further develop these materials in terms of the emission color and radiation

source variation. Here, we have developed iridium complex doped P-dots that emit over a range of wavelengths and investigated their radioluminescence by using hard X-ray and an electron beam as excitation sources.

We synthesized three derivatives of heteroleptic tris-cyclometalated iridium complexes to develop three

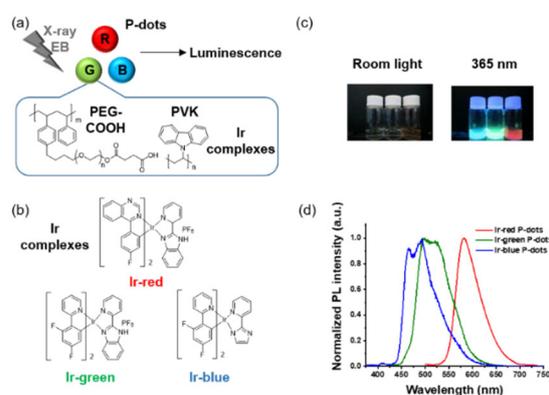


Figure 1. (a) Schematic of radiation-excited luminescence from **P-dots** doped with iridium complexes. (b) Chemical structures of iridium complexes. (c) Photograph of photoluminescence from **P-dot** solution under room light and 365-nm UV light irradiation. (d) Normalized photoluminescence spectra of **P-dot** solution excited at 365 nm.

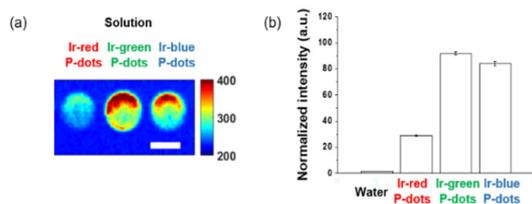


Figure 2. Hard X-ray excited luminescence of **P-dot** solutions. (a) X-ray luminescence image. Scale bar is 5 mm. (b) Image intensity quantification of water background, **Ir-red P-dots**, **Ir-green P-dots**, and **Ir-blue P-dots**.

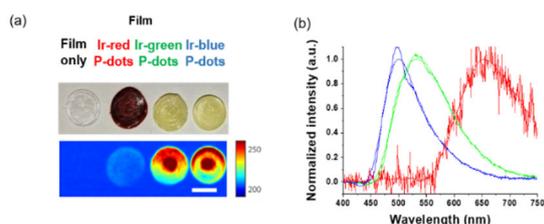


Figure 3. Hard X-ray excited luminescence of **P-dot** films. (a) Brightfield photograph (top) and hard X-ray luminescence image (bottom). Scale bar is 7 mm. (b) Hard X-ray luminescence spectra of **Ir-red P-dots**, **Ir-green P-dots**, and **Ir-blue P-dots** embedded in films.

color variations (red, green, and blue) of iridium complex doped P-dots (Figure 1a).

We investigated luminescence under radiation excitation (Figure 2). We placed the samples into a 96-well plate and irradiated them with hard X-rays (60 kVp tube voltage), whereas we observed the luminescence with an electron-multiplying charge-coupled-device (EM-CCD) camera. Hard X-ray beam was directed perpendicularly to the viewing axis, resulting in evident nonuniformity in the emission intensity. We counted the average emission from each well (Figure 2b). Consistent with the quantum yields of the samples under UV excitation, the Ir-green and Ir-blue P-dots exhibited more intense luminescence than Ir-red P-dots under hard X-ray excitation. We observed the same tendency for the film samples (Figure 3a). The hard X-ray luminescence spectra of the film samples indicate their emission in the red, green, and blue range (Figure 3b). We also conducted pulse radiolysis studies to investigate their emission under electron beam irradiation (Figure 4). We used an electron beam from

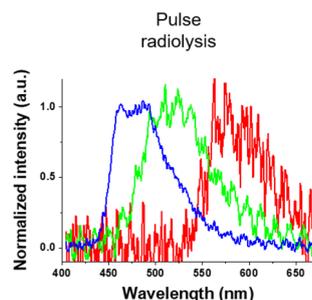


Figure 4. Luminescence spectra at 0 ns after an electron pulse with a gate time of 500 ns for **Ir-red P-dots** (red), **Ir-green P-dots** (green), and **Ir-blue P-dots** (blue).

a linear accelerator (28 MeV) as an excitation source and the resulting luminescence was detected with a multichannel spectroscopic detector. We clearly observed the luminescence spectra during pulse radiolysis (Figure 4). Under radiation excitation, hard X-ray and electron beams ionize H₂O in a manner that forms radicals and ionizing electrons. These ionizing electrons deposit energy into surrounding molecules, leading to further ionization or excitation, the latter of which can result in luminescence. These results clearly indicate that radiation-induced luminescence in visible light wavelengths from P-dots doped with heteroleptic tris-cyclometalated iridium complexes.

Reference

- 1) Y. Osakada: *Chem. Commun.* **49** (2013), 4319.

RF 電子銃 LINAC を用いた超高速電子計測手法の開発

レーザー科学研究所^a、産業科学研究所、

有川安信^{a*}、白神宏之^a、菅晃一^c

Development on ultra-fast electron measurement by using RF electron gun LINAC

Institute of Laser Engineering^a, Sanken^b

Yasunobu Arikawa^{a*}, Hiroyuki Shiraga^a, Koichi Kan^b

In laser fusion research, pico-second scale ultra-fast time resolution has been required for further understanding of nuclear fusion burning mechanism. We have been developing the ultra-fast time resolution detector by using electro optical reaction which has been utilized in SANKEN LINAC facility. In this year we tested newly developed fiber based optical system for our laser fusion application. We have succeeded to measure an impulse response of fiber optical system to be 35 ps which is longer than our expectation. By this experimental result we have improved our detector design.

レーザー核融合研究は50年の歴史の末に、ついに2022年12月に人類史上初、投入レーザーエネルギーを1.5倍上回る核融合エネルギー出力に成功した。これは米国リバモア研究所のNIF施設で成し遂げられたものであるが、我々大阪大学レーザー科学研究所もこの研究には多大な貢献を果たしてきた。特に我々が貢献を果たしているのが、超高速応答の核反応計測装置の開発である。現状のNIFでは核融合反応時間を積分した核融合反応の数(核融合反応生成中性子の数)しか計測できていない。今、時間分解能5秒以下で、中性子の発生数時間変化を詳細に計測することが求められており、その目標に向けて我々は新しい中性子計測器のコンセプトを発表した[Y.Arikawa, K.Kan et al, Rev. Scient. Instrum, (2020)]。この論文には阪大と産研と米国グループが協力している。

この計測にはElectro Optical (EO)反応が利用され、小さなEO結晶が用いられる。EO結晶をファイバー先端に接着して、ファイバーによる往復光路を通過して計測器に接続されている。超短パルスレーザーを波長ストレッチしたチャープ光をプローブとして用い、EO反応による信号強度変調を測定する。中性子がEO結晶に当たることでEO反応を引き起こす。信号受講部には波長分光計測を用いており、シングルショット

で超高速応答が実現しつつ、レーザー核融合特有の長距離からの遠隔地への信号伝送を実現する。

産研のRF電子銃LINACでは以前よりEO反応性超高速電子計測の開発で実績があり、以前から共同研究を続けてきた。産研においてEO反応が0.1ps以下であることはよく知られており、いくつかの手法が開発されておりシングルショット計測も実現しているが、これらはプローブレーザーの超短パルス性を維持するためにファイバーや光学系を極力用いない光学系が用いられている。レーザー核融合独特の技術課題は長距離光ファイバーを用いた上でもこれらの性能が維持できるかと言う点である。2022年度の産研の電子銃LINACを用いた実験では、RF電子銃LINACから1ピコ秒にバンチングされた電子パルス(エネルギー35MeV)をEO結晶であるZnTeに照射しつつ、プローブ光としてチタンサファイアレーザー(波長800nm,パルス幅~0.1ps)を用いた。最初は反射光学系を用いて、シングルショットでパルス幅1psの非常に綺麗な信号が出ることを確認した。その次に、プローブ光をファイバーを透過させてから実験を行った。

パルス広がり起こらないシングルモード光ファイバー(光が伝播するコア直径6 μ m)では伝送できる光量が小さくなり、レーザーパワーをあげるとファイバー入り口にダメージが入り光伝送できなくなった。こ

のようにシングルモードファイバーでは明瞭な信号が捉えられなかった。この問題を克服するには、入力レーザーの強度は下げて、チタンサファイアレーザー波長800nm用の光ファイバーレーザー増幅器を用いて、レーザー光をEO結晶通過後にさらにチャープさせてから増幅し、分光器で計測すれば光量の問題は克服可能である。

今回の実験ではこの設備の準備ができなかったため、伝送光量をあげるためにマルチモードファイバー(コア直径100 μm)で実験を行った。十分な信号が得られた。一方マルチモードファイバー内のモード分散(時間分解能を劣化させる要因)が発生し、使用した2mのファイバーでも35psの時間分解能劣化が発生した。それでもEO信号をファイバー装置で計測できたことは大変意義がある。すなわち、EO信号を光ファイバーで伝送することは可能であり、残された課題はマルチモードを許容値まで下げるためにファイバーの長さ×太さを小さくするか、シングルモードファイバーとアンプを用いた設計にするかのみである。これにより、我々のコンセプトは実現可能であると実験的に実証された。引き続き研究を続け、早期に目的とする性能を達成する計画である。

核融合炉用超電導磁石絶縁材料の照射効果に関する研究 —機械的特性の依存性—

工学研究科 環境・エネルギー工学専攻^a

秋山庸子^{a*}, 太田明左人^a

Irradiation Effect of Insulating Materials for Fusion Superconducting Magnet
– Temperature Dependence of Mechanical Strength –

Division of Sustainable Energy and Environmental Engineering, Graduate School of Engineering^a

Yoko Akiyama^{a*}, Asato Ohta^a

Insulating materials used in superconducting magnets for fusion reactors are exposed to radiation at the cryogenic temperature of liquid helium temperature (LHeT). In ITER, an experimental nuclear fusion reactor, uses glass fiber reinforced plastic (GFRP), which is a 3:2 mixture of epoxy resin (EP) and cyanate ester (CE) with excellent radiation resistance, as an insulating material that can maintain mechanical strength and insulation performance under such an environment. However, this composition was determined through strength tests at room temperature (RT) and liquid nitrogen temperature (LNT). In this study, the interlaminar shear strength (ILSS) of four types of insulating materials with different resin compositions was measured at RT, LNT, and LHeT before and after γ -ray irradiation. Based on the results, we evaluated the effect of resin composition on the absorbed dose dependence and temperature dependence of ILSS, to determine the optimal resin composition in consideration of mechanical strength at LHeT.

(10ポイント1行空ける)

1. はじめに

核融合炉用超電導磁石に使用される絶縁材料は、液体ヘリウム温度という極低温下で放射線に曝される。そのため、核融合実験炉 ITER では、このような過酷な環境下でも機械的強度や絶縁性能を維持できる絶縁材料として、エポキシ樹脂 (EP) と耐放射線性に優れたシアネートエステル (CE) を 3:2 で混合した樹脂を用いたガラス繊維強化樹脂 (GFRP) を採用している。しかし、この組成比は、主に室温 (RT) や液体窒素温度 (LNT) での強度試験を通して決定された値である。

そこで本研究では、樹脂組成の異なる 4 種類の絶縁材料を作製し、 γ 線照射・未照射試料に対し、RT, LNT, LHeT で層間せん断強度 (ILSS) を測定することで、樹脂組成が ILSS の吸収線量依存性、

温度依存性に与える影響を評価し、液体ヘリウム温度における機械的強度を考慮した最適な樹脂組成の検討を行った。

2. 実験方法

EPとCEの混合樹脂を、CEが0, 20, 40, 60 wt.%となるように調製し、積層したガラスクロスに真空含浸させ、加熱・硬化させることで4種類のGFRPを作製した。なお、CEが0 wt.%の樹脂については、硬化剤としてポリエーテルアミンを使用した。これらのGFRPを図1に示す形状に加工した。

これらのGFRPについて、⁶⁰Co線源を用いて室温、空气中で γ 線を照射した後、図2に示す装置を用いて、RT, LNT, LHeTでのILSS試験を実施した。

* Y. Akiyama, 06-6879-7897, yoko-ak@see.eng.osaka-u.ac.jp

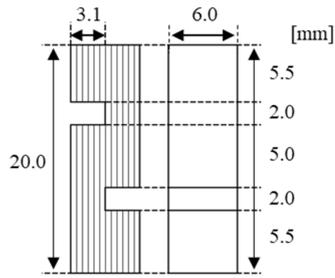


図1 ILSS試験片の形状

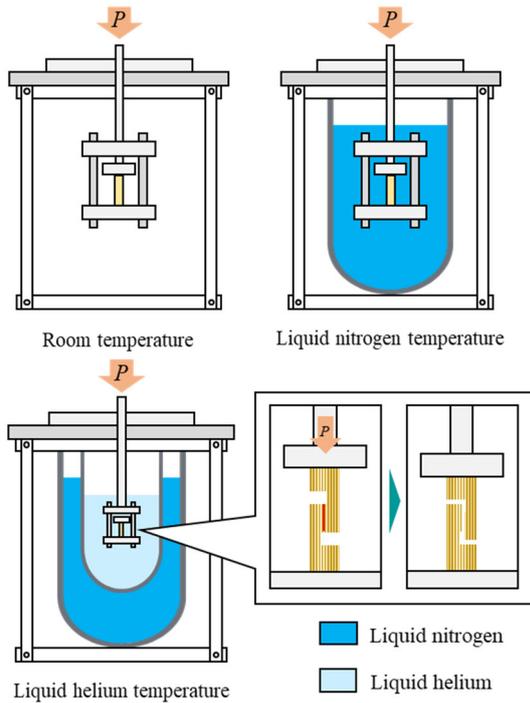


図2 ILSS試験装置の概略図

3. 結果と考察

実験結果を図3に示す。まず図3(a)と(b)の同組成の樹脂の比較を行うことで、ガンマ線照射前後のILSSの変化に着目すると、樹脂中のCEが0 wt.%のGFRPは γ 線照射によって平均ILSSが低下した一方で、CEが20 wt.%以上のGFRPは照射後も平均ILSSが低下しなかった。このことから、CEの添加は耐放射線性を高めることが確認された。これは、シアネート基の三量化反応で形成されるトリアジン環などが剛直な構造を形成するためと考えられる。

また、まず図3(b)に示した、10 MGy照射を行った温度依存性に着目すると、樹脂中のCEが0 wt.%の照射後GFRPは温度が低いほどILSSが高くなるのに

対し、CEが20 wt.%のGFRPは、RTからLNTにかけては温度が低いほどILSSが高くなるが、LHeTまで冷却するとILSSが低くなった。これは、EPのみの場合は主鎖や側鎖の切断により、分子鎖の自由度が向上するために照射後の極低温での応力緩和が起こることを示唆しており、一方でCEを添加することで樹脂内に剛直な分子構造が形成されて極低温においては脆化しやすくなることが考えられる。

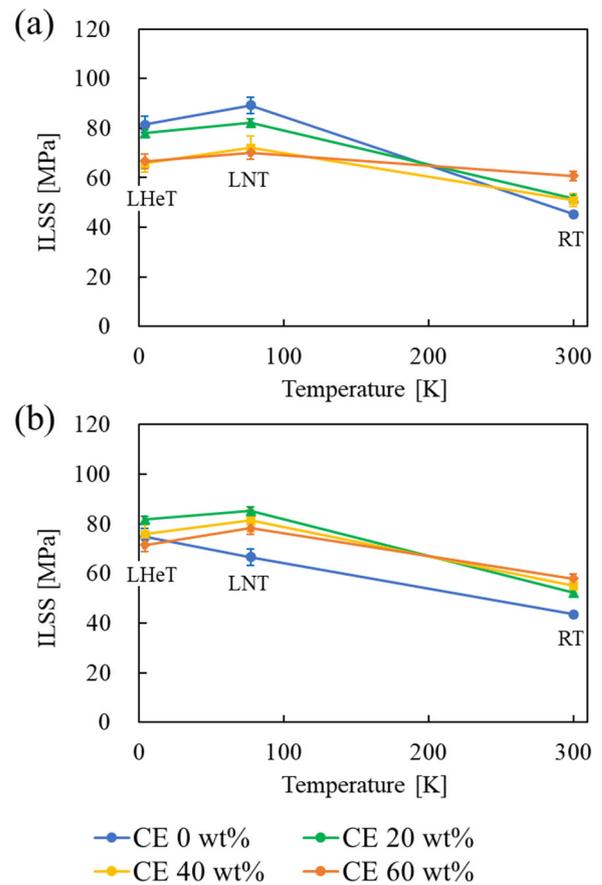


図3 CE/EP混合樹脂のガンマ照射前後の相関せん断強度(ILSS)；

(a) 0 MGy, (b) 10 MGy 照射後

4. まとめ

CEの添加は耐放射線性を向上させるが、低温脆化を促進することが示唆された。このことから、LHeTにおけるILSSを考慮した場合、CEの最適な割合はITERで採用されている40 wt.%よりも小さい可能性が示唆された。

多孔質有機塩結晶の空孔表面修飾

工学研究科 応用化学専攻 藤内研究室

成岡未来、岡弘樹、藤内謙光*

Void Surface Modification of Porous Organic Salt Crystal

Graduate School of Engineering, Department of Applied Chemistry, Tohna Lab.

Norimitsu Tohnai, Miki Naruoka, Kouki Oka

We have previously reported porous organic salts (POS) consisting of a disulfonic acid and a bulky triphenylmethylamine (TPMA) linked by a charge-assisted hydrogen bond. We found that POS is soluble in certain polar solvents and that the pore surface can be modified by introducing substituents to the phenyl group of TPMA. In this study, POS was prepared using a TPMA derivative with a vinyl group, and a post-synthesis method was constructed using the vinyl group exposed on the pore surface as the reaction point. Using this method, we tried to control the environment of the void surface in POS to control its function.

【緒言】これまで、我々は、ジスルホン酸と嵩高いトリフェニルメチルアミン(TPMA) がイオン性水素結合で連結した多孔質有機塩(POS) を報告してきた。

POS は特定の極性溶媒に可溶であり、TPMA のフェニル基に置換基を導入することで空孔表面を修飾可能であることを見出した。さらに本研究では、ビニル基が導入されたTPMA 誘導体を用いてPOS を作製し、空孔表面に露出したビニル基を反応点としたポストシンセシスを構築した。同手法により、POS における空孔表面の環境制御を試み、機能制御を行った。

【結果と考察】アゾベンゼンジスルホン酸(ABDS) とトリビニルフェニルメチルアミン(TvPMA) を1:2 の比率で混合して得られた有機塩は、鑄型分子にベンゾニトリルを用いて再結晶することで多孔質構造を構築した(Figure 1a)。単結晶X線構造解析により、得られた多孔質構造は、最大径20 Å の大きな空孔を有しており、空孔表面にビニル基が露出していることが確認された(Figure 1a 右)。続いて、空孔表面のビ

1b)、多孔質構造中のTvPMA 同士を共有結合で架橋し、イオン性水素結合のみで連結したPOS を多孔性超分子ポリマーへと変換することができた。さらに、ヒドロキシ基が置換したジチオール(ジチオエリトリール:DTE)を用いることで、空孔表面にヒドロキシ基を修飾した多孔質材料の作製に成功した。

さらにこれらの多孔質材料を用いたガス吸着測定

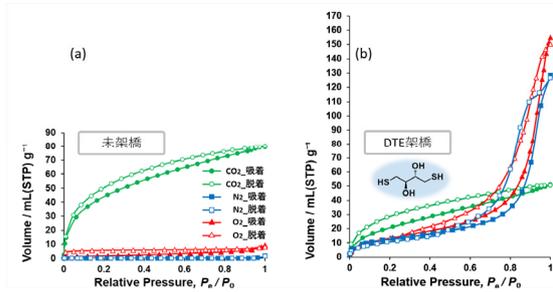


Figure 2. ガス吸着特性 (a) 未修飾 (b) DTE 架橋後を行った(Figure 2)。未修飾なもの比べ空隙率が低下し、ベンゼン環への遮蔽効果により二酸化炭素の吸着量が低下した。一方で、ヒドロキシ基との相互作用により、酸素および窒素に対する吸着量が大きく向上した。

以上のように、POSにおけるポストシンセシスを確立し、空孔表面の環境およびその機能の制御が可能であることを明らかにした。

Reference

- 1) N. Tohnai *et al*, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 10.1002/anie.202202597.

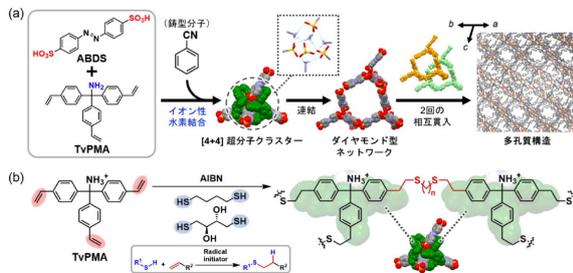


Figure 1. (a) 階層的な多孔質構造の構築 (b) チオール-エン反応による空孔表面修飾

*E-mail: tohnai@chem.eng.osaka-u.ac.jp

高強度赤外光照射による物質創成と新規物性発現

永井正也^a, 磯山悟朗^b

^a 大阪大学大学院基礎工学研究科, ^b 大阪大学産業科学研究所

我々は正方晶であるイットリア部分安定化ジルコニアに 4 THz のフォノンに共鳴した THz 光を照射することで、THz 誘起マルテンサイト変態を起こすことを初めて明確にした。この参照実験として、18 MeV 電子ビームを用いた 10.2 THz のテラヘルツビームを発生させ、マルテンサイト変態を引き起こさないことを明らかにした。

【研究目的】

Y_2O_3 が 3mol% 添加されたジルコニア (ZrO_2) は室温で正方晶だが、高温で立方晶に、クラックによる歪みなどで単斜晶へ相変態を示す。我々は最近この焼結体に 4 THz の TO フォノンに共鳴したテラヘルツ自由電子レーザーパルス照射すると、単斜晶へ相変態することを見出した。この TO フォノンの緩和先は分散関係より Z 点の音響フォノンに限定されており、これが相変態に直接寄与したと考えた。ラマン散乱分光によって照射痕では相変態が生じないことを確認したものの、熱誘起歪みによる相変態と明確に区別することができなかった。そこで我々は 10 THz の TO フォノンに共鳴したテラヘルツパルスを用いてこの仮説を検証した。

【実施内容】

大阪大学産業科学研究所のテラヘルツ自由電子レーザーは 15 MeV の電子ビームを用いて 3-8 THz の周波数可変パルス発生させる。一方で 18 MeV の電子ビームを用いると周波数領域が 11 THz に広がることを今回初めて見出した。そこで 10.2 THz の自由電子レーザーパルスを焼結体に照射した。照射痕でのラマン分光を行ったところ、相変態が起きていないことを確認した。10 THz の TO フォノンは分散関係より様々なフォノンに緩和することが予想される。したがってこの実験結果は特定のフォノンの緩和チャンネルがマルテンサイト変態に直接関与することを明確に示している。

【代表的な研究成果】

永井他 テラヘルツ誘起マルテンサイト変態における励起フォノン依存性, 日本物理学会 2023 年春季大会, 24aE2-6

テラヘルツ FEL をもちいた非線形光学応答の研究

中嶋誠^a, 王 有為^a, 太田雅人^a, 西谷 幹彦^a, 菅田 義英^b, 磯山悟朗^b

^a大阪大学レーザー科学研究所, ^b大阪大学産業科学研究所

テラヘルツ自由電子レーザー(THz-FEL)照射による非線形光学応答の探索を行い、本研究では、半導体をはじめとする固体試料において、テラヘルツ自由電子レーザーを照射することによって発生する高調波の観測を行った。単原子層構造物質として知られる二硫化モリブデン MoS_2 において、テラヘルツ帯の 3 倍波および 5 倍波の高調波の測定に成功した。基本的な特性について、実験的に明らかにした。

【研究目的】

FEL から発生する高強度テラヘルツ波パルスを用いて、テラヘルツ波領域における非線形光学応答、特に高調波発生過程を調べる。特に半導体に着目し、THz-FEL 光を照射することによって、生じる高調波の観測を行う。観測された高調波のスペクトル測定や基礎特性を明らかにする。ポストグラフェンとしても注目されている二硫化モリブデン MoS_2 の非線形光学応答について調べる。光領域における非線形光学効果との違いについて議論する。

【実施内容】

二硫化モリブデン MoS_2 はポストグラフェン材料としても期待される、原子層構造試料である。各層は van der Waals 力で結合し、三次元状の結晶となる。古くから潤滑剤として用いられているほか、太陽電池への応用も検討されている。バルクの MoS_2 は、約 1.3 eV のバンドギャップを持つ間接遷移半導体である。一方、単原子層 MoS_2 は、バンドギャップ約 1.8 eV の直接遷移半導体である。今回我々が用意した MoS_2 はラマン散乱スペクトルより 3 原子層であることが確認されている。FEL から出た中心周波数約 3.5 THz のテラヘルツ波パルスを軸外し放物面鏡で試料上に集光し、発生する高調波を DLATGS 焦電型検出器および MCT 検出器により観測する。放物面鏡の焦点近傍に、試料である MoS_2 を設置し、3.5 THz のテラヘルツ光を入射角度 45 度で入射した。高調波のスペクトルは検出器の前に挿入したマイケルソン干渉計を用いて干渉波形をフーリエ変換することによって取得する。図 1 に示すように 10 THz 近傍にピークをもつ信号の計測に成功した(赤: MoS_2 黒:シリコン基板)。励起強度の 3 乗に依存する励起強度依存性や結晶方位依存性を確認し、観測された信号が MoS_2 における 3 次高調波であることが確認された。

【代表的な研究成果】

“Observation of Third Harmonic Generation in Two-Dimensional MoS_2 Semiconductor Using Terahertz Free-Electron Laser” Y. Wang, V. C. Agulto, V. K. Mag-usara, M. Nishitani, G. Isoyama, M. Asakawa, M. Nakajima, 47th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2022) 9895747.

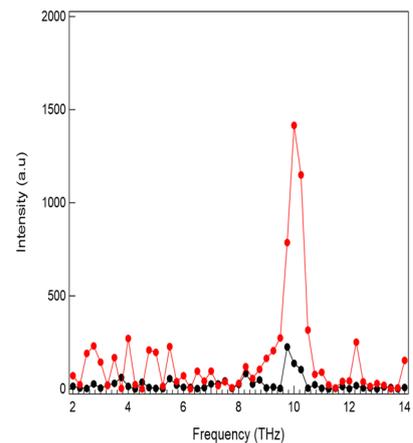


図 1 観測されたテラヘルツ帯 3 次高調波スペクトル

シンチレーションの前駆励起状態のパルスラジオリシスによる観測

越水正典^a, 室屋裕佐^b^a 静岡大学電子工学研究所, ^b 大阪大学産業科学研究所

パルスラジオリシスにより、シンチレータにおいて形成される励起状態の時間分解吸収スペクトルを観測した。今年の実験では、電子線強度依存性を解析することにより、一つの粒子線により生じる励起状態のダイナミクスと、複数の粒子線により形成される励起状態間相互作用に起因するダイナミクスとを切り分けることに成功した。

【研究目的】

シンチレータにおいて、放射線により生じた励起状態が、いかに効率よくシンチレーションを生じるかは、シンチレーション収率を決定する因子となる。この過程を解析し、無放射過程のダイナミクスなどを明らかにしながら、材料設計へとバックキャストし、より高いシンチレーション収率を有する材料を開発したい。そのため、本研究では、放射線励起での過渡吸収分光により、電子励起状態ダイナミクスを解析してきた。

シンチレータの多くの応用例では、単一の放射線粒子（あるいは光子）により形成される励起状態からのシンチレーションが用いられる。一方で、過渡吸収分光の際には、一定以上の強度のビームの使用が必須となる。そこで、過渡吸収時間プロファイルについて、電子ビーム強度を変化して取得した。

【実施内容】

図1にCe添加 $Y_3Al_5O_{12}$ の過渡吸収時間プロファイルを、図2にパルス線量145 Gyと48 Gyの場合での400 nmと700 nmでの吸光度比を示す。400 nsに渡る減衰において、400 nmの吸収に対応する励起状態は、より強いパルス線量でやや高速な減衰を示した。このことは、複数の電子線により生じたこの励起状態間の相互作用が無視できないことを示す。

【代表的な研究成果】

越水正典、室屋裕佐、「Ce添加 $Y_3Al_5O_{12}$ の過渡吸収分光における励起強度依存性」、第70回応用物理学会秋季学術講演会。

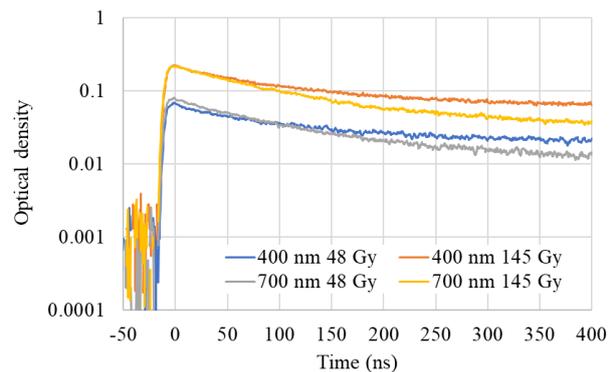


図1 Ce 添加 $Y_3Al_5O_{12}$ の過渡吸収時間プロファイル

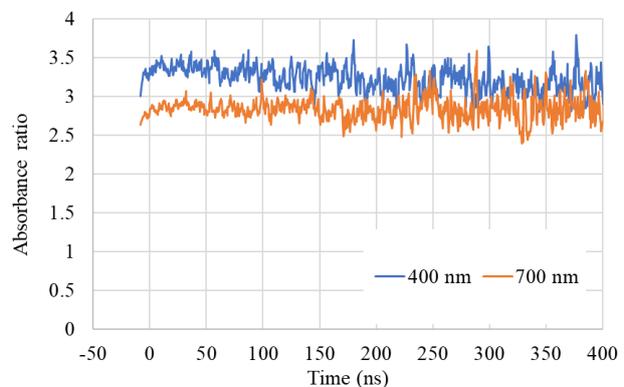


図2 パルス線量145 Gyと48 Gyの場合での400 nmと700 nmでの吸光度比

高分子系飛跡検出器内の放射線損傷形成機構

山内知也^a, 藤乗幸子^b, 小日向大輔^a, 貞光俊斗^a, 石原文太^a, 保田賢^a,

伊藤大洋^a, 宗晃汰^a, 金崎真聡^a

^a神戸大学・海事科学研究科, ^b大阪大学・産業科学研究所

飛程約 50 μm の 6 MeV/u Xe イオンを照射したポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) 検出器に及ぼすガンマ線照射効果を、30 から 200 kGy の吸収線量の範囲で調べた。線量率は 0.44 と 0.91、8.18 Gy/s であった。未照射では円柱形状を持つ Xe イオンのエッチピットは、表面近くでは半径が大きく、深い部分ではそれが小さくなるボトル形状をもつ表面近くの領域の損傷は大気中から供給される酸素の影響を受けていると考えられる。一方、半径の小さい深い領域での照射条件は真空中照射のそれに近いと考えられる。

【研究目的】

PADC 検出器は高い検出感度を有するエッチング型飛跡検出器であり、国際宇宙ステーションにおける宇宙線計測やレーザープラズマの診断等に利用されている。我々は PADC 中に形成されるイオントラックの構造と形成機構についての系統的研究を進めており、そこからより優れた記録特性を有する検出器開発のための基礎的知見を得ようとしている。

PADC のエッチング特性がイオントラックに沿って形成されるヒドロキシル基密度によって支配されており、それは照射誘起酸化反応によって生まれる。本研究では、ガンマ線照射を行うことで、PADC 中に生まれるラジカルと大気から供給される酸素との反応に関する知見を得る。

【実施内容】

ガンマ線照射を行わない場合、Xe イオンのエッチピットは円柱形状を持つ。照射を行うと表面近傍では酸素が届かない深部よりも放射線損傷が効率的に生まれ、バルクエッチング速度は高くなる。結果、ワインボトルのような異なる半径の円柱を繋いだ形状を持ったエッチピットが生まれる。ボディに対応する外周部とネックに対応する黒点が図 1 の写真のように見られる。黒点の半径はエッチングが進んだ状態ではエッチング時間に比例して大きくなる。その勾配は外周に比べると小さい。外周部の半径はエッチング初期にはその時間に比例するが、6 μm を越えると飽和し、さらにエッチングが進行するとそれは消失する。

同一の吸収線量であっても表面近くの損傷領域のバルクエッチング速度は線量率が低いほど高くなる傾向があり、これは照射誘起酸化反応の結果であろう。

【代表的な研究成果】

小日向ら『Xe イオンを照射した PADC 検出器のバルクエッチング特性に及ぼすガンマ線照射効果』第 35 回固体飛跡検出器研究会、神戸大学 2023.3.28-19.

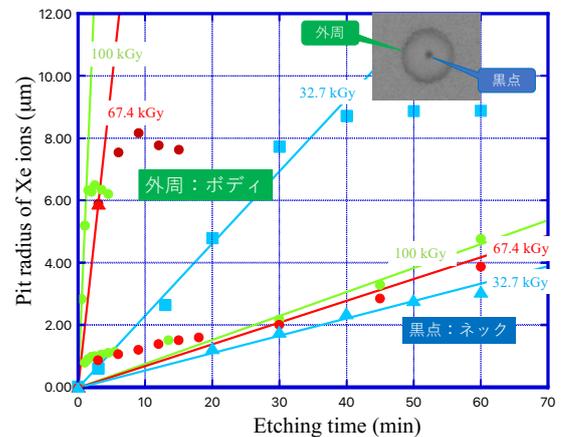


図 1 ガンマ線照射した PADC 中 Xe イオントラックから生まれるのエッチピット成長挙動 (線量率: 0.44 Gy/s)。

フォトクロミズム分子の三重項状態の研究

山路 稔^a, 藤塚 守^b, 小阪田泰子^b, 藤乗幸子^b
^a群馬大学大学院理工学府, ^b大阪大学産業科学研究所

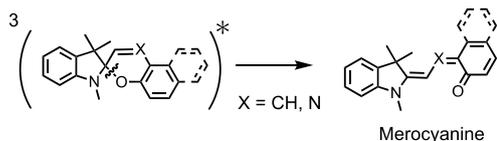
スピロピランは光照射により可逆的なフォトクロミズムが励起一重項状態で進行する。そのため直接光励起では三重項状態が形成されないため、三重項の反応性は未開拓であった。本研究ではトルエン溶液中の電子パルス照射により、溶媒からの三重項エネルギー移動により生成したスピロピランの三重項がメロシアニン体（着色体）に変化すること（フォトクロミズム）を見出した。

【研究目的】

固体および溶液相での光照射による分子内の光化学反応により可逆的に呈色変化を起こす現象はフォトクロミズムと呼ばれている。スピロピランは有機溶媒中の光照射により分子内で化学結合の解離および形成に伴う π 電子系の拡張反応が進行することにより、呈色するメロシアニン体を形成するフォトクロミズムを示す化合物として知られている。光励起によるフォトクロミズムは通常、励起一重項状態で完結するため、項間交差による三重項状態は形成されない。そのためフォトクロミズム分子の三重項状態は隠れた存在であり、クロミズムの反応性励起状態であるかどうかは不明である。本共同研究では放射線化学の手法を用いて溶媒分子からの三重項エネルギー移動により 3 種類のスピロピラン(Chart 1) の三重項を生成させ、三重項状態でもメロシアニン体を生成するクロミズム反応が進行するかどうかを検証した。

【実施内容】

図 1 にスピロピランのトルエン溶液に電子線パルス照射後観測された過渡吸収スペクトルを示す。得られた吸収スペクトルは直接光励起で生成する、それぞれのスピロピラン体の吸収スペクトルに一致した。以上の観測事実より、スピロピランの三重項状態も、メロシアニン体生成の反応性励起状態であることが実験的に検証された。



Scheme 1. Chromism of spiropyran in the triplet state to form merocyanine studied in this work.

【代表的な研究成果】

M. Yamaji, S. Tojo, T. Majima and M. Fujitsuka, Mesolysis of an asymmetric diphenyldisulfide radical anion studied by γ -ray and pulsed-electron radiolyses, *PhysChemChemPhys*, in press.

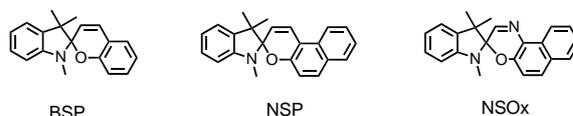


Chart 1. Molecular structures and abbreviations of spiropyranes used in this work.

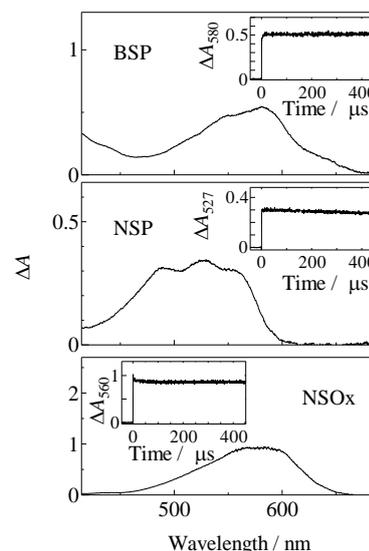


Figure 1. Transient absorption spectra at 100 ns upon electron pulsing of spiropyranes in Ar-purged toluene.

パルスラジオリシス法を用いた非均質反応場等での過渡現象に関する研究 ～水の分解ラジカルの反応の塩効果の解明と評価～

永石隆二^a, 桑野涼^a, 伊藤辰也^a, 神戸正雄^b, 楊金峰^b, 吉田陽一^b

^a日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター, ^b大阪大学 産業科学研究所

福島第1原発事故では冷却水に使われた海水中のハロゲン化物が水の放射線分解に影響を及ぼすため、汚染水中の生成物や溶存種の挙動を従来の均一反応計算で解析することは極めて困難である。従って、分解生成物の収量（G値）や放射線誘起反応の塩濃度依存性（塩効果）の評価・解明が急務である。そこで本研究では、電子線パルス（パルスラジオリシス法）による照射を行い、簡略化された基礎研究で用いるシンプルな水溶液による海水の放射線分解の再現性及び模擬性の評価を進めた。

【研究目的】

福島第1原発事故では冷却水に「海水」が使われ、その塩分が放射線分解による水素発生や腐食に重大な影響を及ぼすため、分解生成物（ラジカル・分子）の収量や反応の塩濃度依存性（塩効果）を解明し、科学的に合理性を有した解析・評価を実現することが急務である。その一環として本課題では、放射線誘起の反応速度の塩濃度（イオン強度）補正を実現するために、線形加速器（LINAC）の電子線を用いたパルスラジオリシス法による過渡反応データ取得を行っているが、今年度は、シンプルな水溶液による海水の再現性確認、Cl⁻による・OH捕捉の酸濃度依存性の解明・評価等を継続した。

【実施内容】

これまで、海水に異なる濃度で溶存する2つのハロゲン化物イオン（X⁻: Cl⁻, Br⁻）が水の分解生成物の水酸化ラジカル（・OH）と2段階で反応することを実証し、海水中の水の分解収量等を評価した。ここで、実験では（天然）海水の代わりに模擬海水やX⁻のみを含む単純な水溶液が用いられてきたため、海水の放射線分解の一連の過程が定量的かつ科学的に再現されていたかどうかは不明確である。従って、定常照射及びパルス照射による放射線分解の実験結果をもとに、模擬海水またはX⁻のみを含んだ水溶液を（天然）海水と比較して、海水の放射線分解の再現性及び模擬性を評価する必要がある。

パルス照射の結果として、海水中の・OH捕捉による二量体ラジカルイオン（・X₂）生成の過渡吸収を図1に示す。定常照射でのH₂発生等の実験では海水を用いてきたが、パルス照射の実験では初である。図には天然海水（赤線）、模擬（人工）海水（緑線）、X⁻のみを含んだ水溶液（青線）の結果が示されている。pH 6-8.5とイオン強度0.5-0.7 mol/Lで異なる3種類の結果は吸光度、時間変化の両面で良く一致した。これらの過渡吸収はこれまでの結果の通り、①と②の2段階で・OH捕捉が起きていることを示している。

【代表的な研究成果】

海水の放射線分解の再現性（実験・評価で重要）

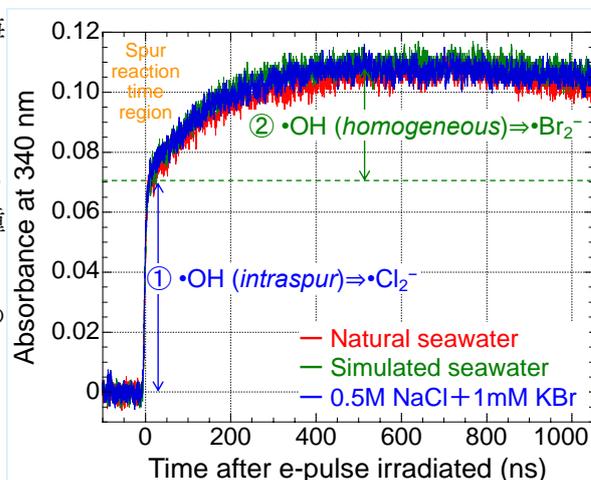


図1 海水中のハロゲン化物二量体ラジカルイオン生成（光路長 10 mm, pH=6-8.5, 空気溶存, 室温）

ガンマ線エネルギーの電気エネルギーへの変換 —キャパシタ型ガンマ線電池の開発—

大塚 哲平^a, 藤乗 幸子^b, 松岡 寛大^{1a}, 白井 利明^{2a}

^a近畿大学理工学部, ^b大阪大学産業科学研究所

原子番号（電子密度）が大きく異なる鉛とアルミニウムの薄板を電氣的に絶縁させて積層させたセルを γ 線電池として作製し、 γ 線照射によって電流・電圧を発生させることに成功した。最大出力電力は 2.4×10^{-7} W、放射線エネルギーの電気エネルギーへの変換効率は 1.1×10^{-5} %であることがわかった。

【研究目的】

高レベル放射性廃棄物の冷却期間における一時保管期間時に、廃棄物からは常に放射線、主にガンマ線が放出される。放出された放射線は廃棄物を収納する鉄鋼製キャニスター容器壁やコンクリート壁と相互作用することにより遮蔽されて、高い放射線エネルギーは熱エネルギーとして失われる。本研究は、この遮蔽体領域を利用し、放射線を遮蔽しつつ、そのエネルギーを電気エネルギーに変換し、放射線エネルギーの有効活用を行おうとするものである。

【実施内容】

γ 線照射実験の概略図を図1に示す。鉛（Pb）とアルミニウム（Al）（各 20 cm, 幅 10 cm, 厚さ 300 μ m）を電極とし、その間に絶縁体を挟んだものを1セルとした。このセルを30セル積層させた γ 線電池を作製した。絶縁体には高い耐放射性をもつポリイミド（125 μ m）を使用した。

大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設にてペンシル型の ^{60}Co 線源を用いて、照射距離5 cmで γ 線照射実験を行った。 γ 線照射中の γ 線電池に負荷抵抗10~1000 M Ω を接続し、電流・電圧値を測定した。

図2に得られたI-V曲線を示す。本実験により最大出力電力は 2.4×10^{-7} Wであることがわかった。

放射線と物質との相互作用のモンテカルロシミュレーション（日本原子力研究開発機構: PHITS）を利用して γ 線電池に付与された理論値と比較したところ、放射線エネルギーの電気エネルギーへの変換効率は 1.1×10^{-5} %であった。

【代表的な研究成果】

第59回アイソトープ・放射線研究発表会, 「キャパシタ型 γ 線電池の充電特性」, 1B01-04-03, 松岡寛大, 大塚哲平, 藤乗幸子

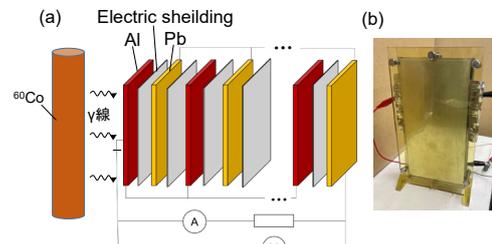


図1 γ 線電池照射体系の(a)概念図および(b)写真

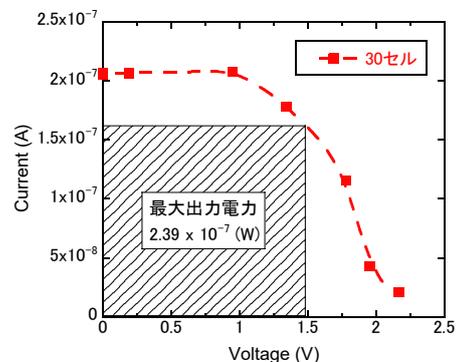


図2 その場 γ 線電池動作時のI-V曲線

電子スピン共鳴(ESR)法による γ 線照射効果の研究谷篤史^a, 藤乗幸子^b, 三輪泰大^a, 磯谷舟佑^a, 梶田侑弥^c^a神戸大学人間発達環境学研究科, ^b産業科学研究所, ^c京都大学理学研究科

ケイ酸をホスト分子とする「かご」構造にメタンやプロパンなどのゲスト分子を包接したシリカクラスレートのひとつ千葉石に γ 線を照射し、電子スピン共鳴(ESR)法を用いて測定したところ、有機ラジカルが隣接するかごの炭化水素分子から水素原子を引き抜く水素原子移動反応が 240 K 付近で観察された。ガスハイドレートにおける同様の反応より活性化エネルギーが大きいことから、かごを構成する材料やその結合の強さが反応速度に影響していることが示された。

【研究目的】

γ 線照射をしたプロパンガスハイドレートなどでは、放射線により生成する有機ラジカルが隣接するかごの炭化水素から水素原子を引き抜く分子間水素原子移動反応が観察されている (e.g., Ohgaki et al., 2008)。同様のかご構造を持つシリカクラスレートは、ケイ酸 (SiO_2) をホスト分子とするかご構造に炭化水素などのガスをゲスト分子として包接した化合物である。そのひとつの千葉石にはメタンやエタン、プロパン、イソブタンが包接されていることから (Scheidl et al., 2018)、 γ 線照射をした千葉石ではガスハイドレートと同様の水素原子移動反応が起こると予想される。

本研究では、 γ 線照射した千葉石を様々な温度で ESR 計測し、生成するラジカル種の同定とその増減から水素原子移動反応が起こるか評価した。また、反応の活性化エネルギーから、ガスハイドレートで見られる水素原子移動反応との違いについて議論した。

【実施内容】

露頭から採取した千葉石を直径約 2-3 mm に砕き、液体窒素 (77 K) に浸して γ 線照射した。120 K と昇温後室温での ESR スペクトルを計測し、ラジカル種の同定を行った。さらに、別試料を用いて 230, 240, 250 K で等温アニーリング実験を行った。

120 K ではエチル、イソプロピル、*tert*-ブチルラジカルなどが確認されたが、室温では *tert*-ブチルラジカルのみが残存していた。等温アニーリング実験では、*tert*-ブチルラジカル量は増加するが、エチルラジカルとイソプロピルラジカルは減少し、全有機ラジカル量はおよそ同じであった (図 1)。このことから、千葉石中でもイソブタンと他のラジカル間で水素原子移動反応が起こっていると考えられる。その活性化エネルギーは 43 ± 3 kJ/mol で、ガスハイドレートの場合より数 kJ/mol 大きいことから、かごを構成する材料やその結合の強さが反応速度に影響していることが示された。

【代表的な研究成果】

Yokoyama, Y., Isogai, S., Kusuki, K., Tani, A., Nishido, H. (2023) Hydrogen transfer reactions via organic radicals in gamma-irradiated chibaite. *Radiat. Prot. Dosimetry* (in review).

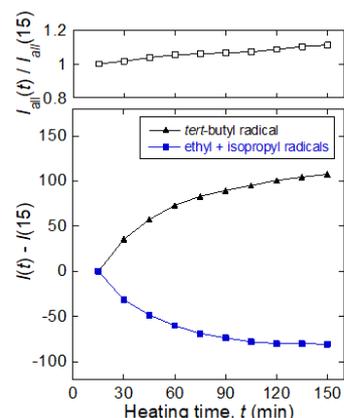


図 1 240 K での等温アニーリング実験における有機ラジカル量の変化。

課題番号：20222007

テラヘルツ自由電子レーザーを用いた 短パルスレーザー励起半導体表面キャリアダイナミクスの研究

川瀬啓悟^a, 誉田義英^b, 磯山悟朗^b

^a量子科学技術研究開発機構, ^b大阪大学産業科学研究所

フェムト秒レーザーで半導体ウェハ上に高密度キャリアを励起し、テラヘルツ自由電子レーザーのパルス列によりそのダイナミクスをプローブする。フェムト秒レーザーの照射タイミングと強度、テラヘルツ自由電子レーザーの波長やパルススペクトルを変化させることで本手法の応答特性の詳細を明らかにする。

【研究目的】

不純物の無い真性半導体の多くは、テラヘルツ領域の電磁波に対してよい透過媒質である。しかしながら、半導体バンドギャップよりも高いフォトンエネルギーを持つレーザーを半導体に照射することで光電吸収により表面に電子とホール伝導キャリアが励起され、そのキャリア密度に従って、テラヘルツ領域の電磁波を反射、あるいは吸収する。本研究では種々の半導体に対して、キャリア密度の時間発展を研究する。そのために、大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設に設置されているテラヘルツ自由電子レーザーとフェムト秒レーザーとを組み合わせることで、光励起半導体キャリアダイナミクスをマイクロ秒オーダーにわたって計測する。

【実施内容】

フェムト秒レーザーで半導体ウェハ上に高密度キャリアを励起し、テラヘルツ自由電子レーザーのパルス列によりそのダイナミクスをプローブする。フェムト秒レーザーの照射タイミングと強度、テラヘルツ自由電子レーザーの波長やパルススペクトルを変化させることで本手法の応答特性の詳細を明らかにする。

今年度は、直接遷移型半導体である GaAs と間接遷移型半導体である Ge, Si に対して、上記の手法による計測を実施した。GaAs においては、テラヘルツパルスに対して高反射となる高キャリア密度領域から数 ns の時定数で静的状態に戻ることを観測した。これに対し、Ge, Si においては、数 10 ns 以上の時定数を要する高キャリア密度の減衰と、数 μs の時定数で減衰するキャリア吸収を観測した。今後、これらの光励起キャリアによる反射、吸収についての定量的な評価を進めることで、光励起半導体キャリアダイナミクスの詳細を明らかにする。

【代表的な研究成果】

本共同研究により得られた代表的な研究成果として、40th International Free Electron Laser Conference (FEL2022)において研究発表し、Proceedings paper が受理された。

放射線に誘発される化学種への照射後 sub-ナノ秒に見える磁場効果

坂田洞察^a, 大和田明歩^a, 室屋裕佐^b, 山口光^a, 水田好雄^b, 細貝知直^b, 西尾禎治^a

^a大阪大学医学系研究科, ^b大阪大学産業科学研究所

本研究は放射線照射時に入射方向に対し平行な磁場を印加した際に発生する細胞の放射線増感作用のメカニズム解明の為に、放射線の水分解を介し生成される OH ラジカルの受ける磁場効果を実験的に明らかにする取り組みである。本研究の成果により、電子線照射中に磁場を印加する事で、DNA 損傷の原因となる OH ラジカルの収量が増加することを世界で初めて見出した。

【研究目的】

2019 年、平行磁場印加による放射線感受性の増感という新しい現象が発見された。有望な仮説の一つとして、放射線分解によって誘発された化学種が平行磁場の効果によって細胞殺傷能力の増強を促している事が考えられる。OH ラジカルペアは結合し過酸化水素が合成されるが、磁場中では OH ラジカルペアがスピンの偏極を受け三重項を取ることからこの結合が阻害される。

本研究では、パルスラジオリシスの手法を用い、電子線照射中の磁場印加によって OH ラジカルの収量が増加するかを確認する。

【実施内容】

産業科学研究所の L バンドライナックを用い、パルスラジオリシス実験を行なった。ナノ秒パルスシングルショットモードで約 28 MeV に加速した電子を、KSCN 主体の水溶液に照射した。照射軸上に 600 mT の平行磁場を発生させられる永久磁石を設置し、照射ビーム軸上に白色解析光を照射する。OH ラジカルを前駆体とする (SCN)²⁻ラジカルの吸収波長 472 nm の光の吸収を測定する事で、OH ラジカルの量を推定した。本研究では、KSCN 溶液の濃度依存性、S バンドライナックを用いたピコ秒パルスラジオリシスも実施した。

【代表的な研究成果】

推定した OH ラジカルの G 値を図 1 に示す。600 mT の平行磁場を印加する事で、収量が増大した。図 2 に収量の増加率を示す。照射直後に約 7% の増加を示し、その後時間と共に減少した。

本研究は、世界で初めて、照射中の磁場印加によって、DNA 損傷の原因となる OH ラジカルの収量が増加していることを示し、平行磁場印加中の細胞の放射線増感効果のメカニズムを調べる手掛かりを掴んだ。

本研究の成果は 2023 年 4 月に横浜で開催される、2nd ICRPT にて発表予定である。

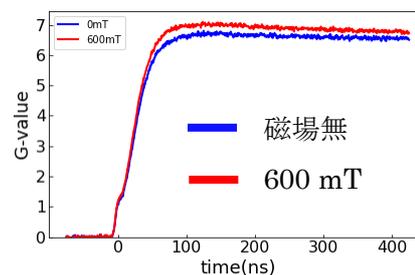


図 1 : OH ラジカルの G 値

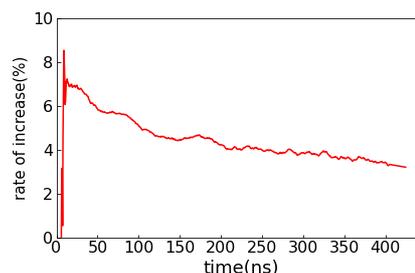


図 2 : G 値の増加量 (%)