

Development of picosecond pulse radiolysis system at Waseda University

T. Kuribayashi^{A)}, K. Ushida^{B)}, S. Kashiwagi^{C)}, M. Kawaguchi^{A)}, R. Kuroda^{A)}, Y. Hama^{A)}, M. Washio^{A)}

^{A)} Advanced Research Institute for Science and Engineering (RISE), Waseda University
3-4-1 Okubo, Shinjyukuku, 162-0044

^{B)} RIKEN (The Institute of Physical and Chemical Research)
2-1 Hirosawa, Wako, Saitama, 351-0198

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

Abstract

A compact pulse radiolysis apparatus using a BNL-type s-band photocathode RF gun is now under development at Waseda University. Stroboscopic pulse radiolysis technique is a powerful tool for the investigation of the primary processes of radiation chemistry. The system consists of 10 ps electron pulse from a 3.5-5.0 MeV RF-gun and 10 ps Nd:YLF laser pulses are used as irradiation source and analyzing light, respectively. The ps laser are synchronized with the electron pulses. The time resolution of about 30 ps was estimated from the time-dependent behavior of hydrated electron.

早大フォトカソードRFガンを用いたパルスラジオリシスのシステム構築

1. はじめに

パルスラジオリシス（パルス放射線分解）法とは、パルス放射線の照射によって対象系内に生じる短寿命中間体に関して、その中間体に特有な物理化学的性質のどれかに着目して直接に時間分解観測する実験法の総称である。1960年に初めて適用例が報告されて以来、放射線作用特有の中間体である電子や正イオンならびに励起種やラジカルなどの挙動、物性に関して新しい知見がつぎつぎと得られてきた。現在ではパルスラジオリシス法は放射線化学的立場のみならず反応化学や構造化学の分野およびさまざまな応用分野において貴重なデータを提供する有用な実験法として利用されている。

我々、早稲田大学理工学総合研究センター鷺尾研究室では励起源にフォトカソードRFガンからの電子ビームと分析光源にNd:YLFレーザー（IR光）を水セルに照射して生成させた白色光を使った過渡吸収分光法と呼ばれるコンパクトで常時実験できるシステムの構築を進めている。

2. ナノ秒パルスラジオリシス

2-1 実験セットアップ

我々はまず定常光であるHe-Neレーザー（波長：632.8nm）を分析光に用いたナノ秒パルスラジオリシスシステムの開発を行った。試料にはミリキュー（無添加）とミリキュー（過塩素酸添加）を用い、電子線照射によって試料内に生成する水和電子のナノ秒からマイクロ秒領域における時間挙動の測定を行い、水和電子と過塩素酸の反応速度定数を

求め評価を行った。石英セルにおさめた試料にRF電子銃からの電子ビームを照射し、試料内に水和電子を生成させる。試料内に生成した水和電子によって、石英セルに入射させているHe-Neレーザーの強度は一部吸収され強度変化を起こす。この強度変化の時間挙動をフォトダイオード（S1722-02 Hamamatsu photonics）によって検出し、オシロスコープにモニターする。

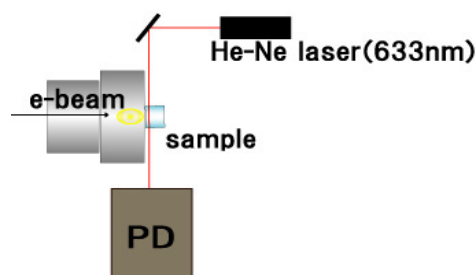


図1, ナノ秒パルスラジオリシスセットアップ

2-2 実験結果

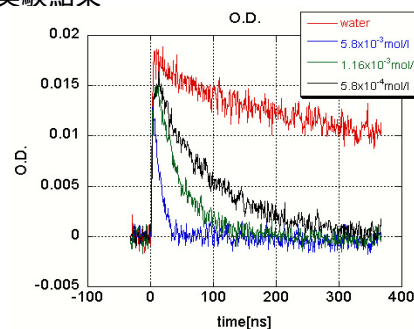


図2, 水和電子に対する過塩素酸のスキャベンジャー効果

我々はこのシステムから水和電子のナノ秒からマイクロ秒領域における時間挙動を得た。

この時間挙動からまず、水和電子の擬一次反応と過塩素酸のスクベンジー効果から、水和電子と溶質分子（過塩素酸）との反応速度定数を求めたところ、過去の文献値（参考文献[3]参照）との一致が見られた。

3 . ピコ秒パルスラジオリシス

3 - 1 白色光生成実験

分析光源としてIR光（波長：1047nm）をレンズで集光して、フローセルに照射し、非線形光学効果によって生成される白色光のスペクトル測定を行った。得られた白色光はパルスラジオリシスの分析光源に利用している。

使用したセルはフローセルを用いた。この白色光パルスはIR光を水セルに集光させる非線形光学現象により発生させている。集光するレンズの焦点距離は300mmで、長い焦点距離のものの方が安定に生成される事が確認された。測定波長領域は400nm～1000nmと広範囲になっている。

また、分析光として利用する際はフォトディテクターの前に干渉フィルター（今回は720nmのもの）をいれて分析光として利用した。

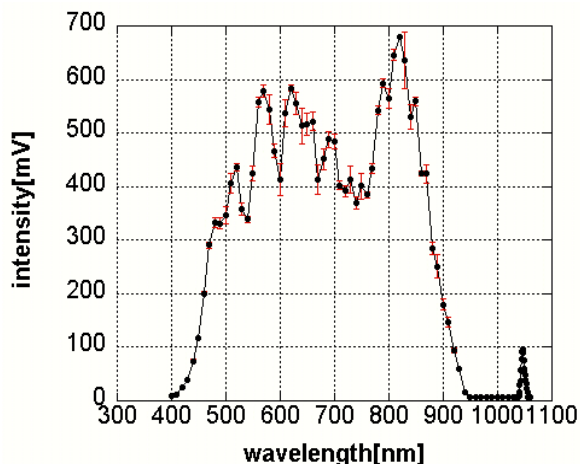


図3 , 白色光スペクトル

3 - 2 実験セットアップ

現在、我々はピコ秒パルスラジオリシスシステム（ストロボスコピック法）の構築を行っている。

ストロボスコピック法とは、分析光にパルス光を用い、ディレイラインによって分析光の試料への入射時間を調整し、各々の時間における光吸収を最終的に一つのグラフにすることで中間活性種の時間挙動を評価する方法である。

我々のシステムでは分析光に水セルに集光して生成させた白色光パルスを用いている。ストロボスコピック法では電子ビームと分析光の同期が重要となってくるが、我々のシステムでは同期を取るため、電子ビームと白色光生成に用いるIR光を同じ発生源にしている。

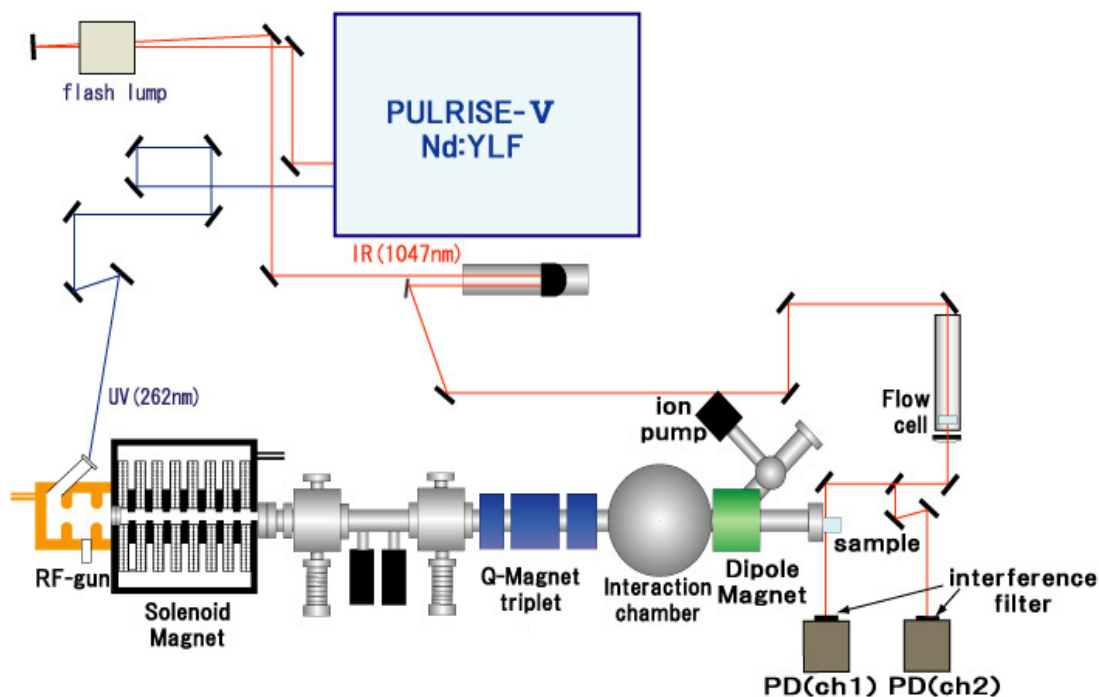


図4 , ピコ秒パルスラジオリシスシステム

また、コンパクトなシステムであるため、光路を短くしタイミングジッターを小さくすることが可能である。

分析光は白色光を用いて、フォトダイオードの直前に干渉フィルター（720nm）を入れて光路を組んだ。試料にはヘリウムガスでバブリングし、真空に引いたミリキューを用い、水和電子の立ち上がりを測定し、システムの時間分解能の評価を行った。

3 - 3 実験結果

測定された水和電子の立ち上がりを図5に示す。この立ち上がりの実験値から時間分解能を評価したところ26.9[ps]であった。

また、下式のように電子線と白色光のそれぞれの

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

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma_{bd} : \text{バンチ長}, \sigma_{Ls} : \text{レーザースポットサイズ} \\ \sigma_{bs} : \text{ビームサイズ}, \sigma_{Ld} : \text{レーザーパルス幅} \\ n : \text{屈折率} \end{array} \right\}$$

$$T(\text{時間分解能}) = \times 2\sqrt{2/n^2} \text{ [ps]}$$

バンチ長、スポットサイズを定義し、二つの関数のconvolutionによって応答関数を求め時間分解能の理論値を計算したところ、30.6[ps]となり、実験値と非常に近い値となった。このことから、我々のシステムは約30psの時間分解能を持っているということがわかる。

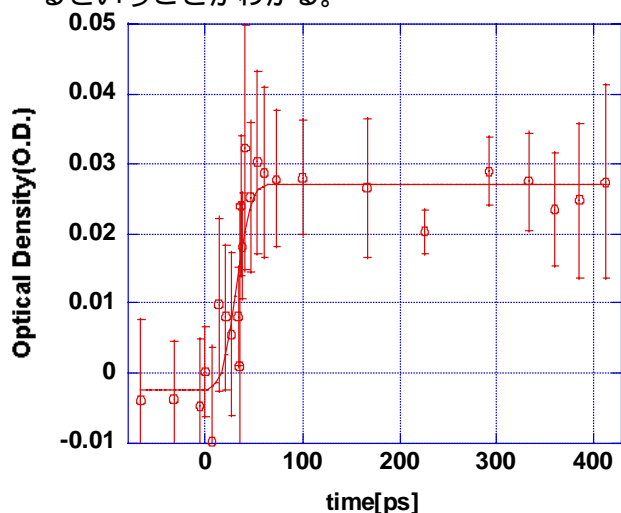


図5 , 水和電子のtime profile

4 . まとめと今後の予定

これまでの実験により、ナノ秒パルスラジオリシスが成功し、ストロボスコピック法による予備実験では当研究室のシステムが約30psの時間分解能をもっていることも分かった。

今後の予定として、ビームライン下流部分を拡張し、電磁石でビームを曲げて、鷲尾研パルスラジオ

リシシステムが他の実験と共存し、常時実験できるシステムを現在構築中である。

また、分析光源である白色光発生においても太鼓型のセルを使って、より安定した白色光を生成させて、最適なセルの形状を模索する予定である。

セットアップは図6にまとめておく。

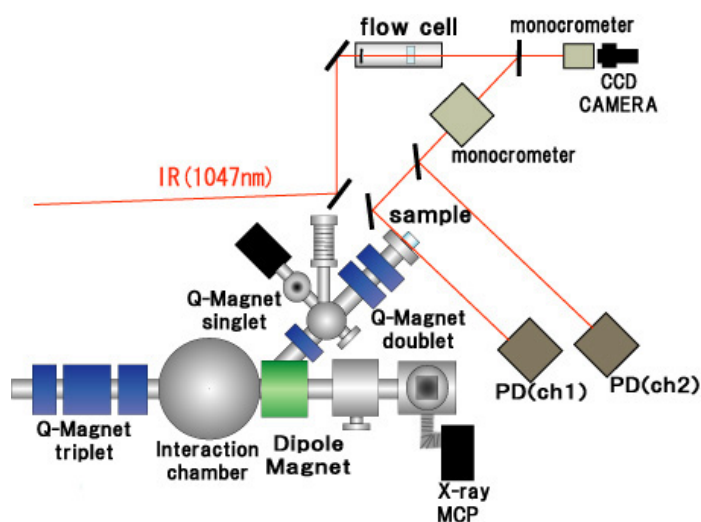


図6 , 新規ビームラインセットアップ

参考文献

- [1] Yasusi Aoki "A new chemical analysis system using a photocathode RF gun", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 455(2000)99-103
- [2] 鷲尾方一, " フォトカソードRF電子銃による高品質電子ビームの生成 ", 日本物理学会誌 Vol . 55 , No.3 , 2000
- [3] K.Y.LAM and J.W.Hunt "PICOSECOND PULSE RADIOLYSIS-FAST ELECTRON IN CONCENTRATED SOLUTIONS OF SCAVENGERS IN WATER AND ALCOHOLS" int.J.Radiat.Phys.Chem.1975,Vol.7,pp.317-338.
- [4] 日本化学会 第4版実験化学講座 11 反応と速度