



Title	ピコ秒パルスラジオリシスの研究
Author(s)	住吉, 孝; Sumiyoshi, Takashi; 高橋, 嘉一 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 75, 155-160
Issue Date	1975-07-26
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41268">https://hdl.handle.net/2115/41268</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	75_155-160.pdf



# ピコ秒パルスラジオリシスの研究

住吉 孝\* 高橋 嘉一\* 沢村 貞史\* 片山 明石\*

(昭和49年9月30日受理)

## Picosecond Pulse Radiolysis Studies

Takashi SUMIYOSHI, Kaichi TAKAHASHI, Sadashi SAWAMURA  
and Meiseki KATAYAMA

(Received September 30, 1974)

### Abstract

A stroboscopic pulse radiolysis system is described which uses Čerenkov light produced by the fine structure pulses of a 45 MeV electron beam from the electron linear accelerator installed at Hokkaido University. Tests of this stroboscopic pulse radiolysis system are carried out using Čerenkov light without any samples. The Čerenkov light eliminated below 350 nm by a glass filter passed through a monochromator and is detected with a photomultiplier tube connected in a five stage configuration. Three types of signal are obtained and the light intensity is found to be highly satisfactory. The electron beam can be focused to about a 20 mm diameter at the sample position. A dose measured at this position is 46 rads per fine structure pulse.

### 1. 緒 言

物質への放射線の照射により生成する短寿命化学種を直接観測し、その物理化学的な性質を研究する有力な手段のひとつとしてパルスラジオリシス法がある。この方法は原理的には、強力な電子線などの放射線をきわめて短い時間内に物質に照射して、イオンやラジカルなどの寿命の短い化学種を高濃度に作り、それらの化学種の挙動を光吸収などの手段により観測するというものである。放射線は一般に加速器からのパルス状放射線が使用され、加速器としては、線型電子線加速器 (LINAC) やバンデグラフ型加速器が用いられる。通常のパルスラジオリシス装置の時間分解能は放射線のパルス幅 (観測可能な短寿命化学種の最短寿命はパルス幅と同程度である) 及び光学検出系の応答時間により制限を受け数ナノ秒程度である。しかしながら、水和電子生成、イオン再結合、スパー反応及び励起状態生成などの放射線化学における興味ある問題は 0.01 から 1 nsec の間に起こる。近年、Hunt<sup>1)</sup>らはストロボコーピックパルスラジオリシス法を用い 20 psec の時間分解能を得ている。彼らはこの方法により水和電子に関する研究を行ない、水和電子の初期収量や先駆体に関する興味ある結果を報告している<sup>2)</sup>。従って、ピコ秒領域のパルスラジオリシスは今後発展するにつれて多くの新しい知見を放射線化学や光化学の分野にもたらすものと期待される。本報告では、北大 45 MeV LINAC を線源として用いるストロボコーピックパルスラジオリシス法装置の概要と性能について述べる。

\* 原子工学科

## 2. 放射線源

放射線として北大 45 MeV LINAC より得られる 10 nsec 幅のパルス状電子線を用いる。ビームのピーク電流は約 1.5 A でビームは加速管出口で直径約 8 mm まで絞ることができる。加速管出口から 36 cm 離れた試料セルの位置におけるビームの直径は約 20 mm で、このときの微細構造の線量は 46 rad である。電子線の加速に周期 350 psec の S バンドマイクロ波を使用しており、加速に際して電子は集群作用を受けるため 10 nsec 幅の電子線パルスはパルス幅内で一様な強度の電子流から形成されているのではなく、幅が約 10 psec で間隔が 350 psec のおよそ 30 個の微細構造からできている。したがって試料に 10 nsec 幅のパルス状電子線を照射する事は幅が約 10 psec の微細構造電子線パルスを 350 psec の周期で約 30 個照射する事になる。1 微細構造電子線パルスのピーク電流は約 50 A である。

## 3. ストロボスコピックパルスラジオリシス法の原理

マイクロ秒あるいはナノ秒の時間分解能で行なう通常のパルスラジオリシス法では、透明石英管に液体の試料を入れ、放射線を照射し、側面より強力な分析光（キセノンランプの連続光など）で生成した化学種の光吸収を測定するのであるが、ピコ秒領域でのストロボスコピックパルスラジオリシスでは全く異なった方法が用いられる。それは LINAC から得られる 10 nsec パルス状電子線が微細構造を有していることを利用する方法である。分析光として用いるのは 45 MeV 電子線が空気を通過するときに発生するチェレンコフ光で、この光は電子線の微細構造と同じく幅 10 psec で間隔が 350 psec である。

チェレンコフ光は荷電粒子が物質中を通過する際、物質中の光の速度より大きい速度で進む場合に発生する。発生する条件は  $\beta$  を真空中の光の速度に対する荷電粒子の速度の比、 $n$  を物質の屈折率とすると、 $\beta n > 1$  である。チェレンコフ光は連続スペクトルをもち短波長側になるにつれて光強度は増大する。

チェレンコフ光を用いて光吸収を測定する場合の時間関係を図 1 に示す。上は微細構造電子線パルスとそれと同時に発生したチェレンコフ光で、下には電子線の照射により生成した短寿命化学種の濃度の時間変化が示されている。微細構造電子線パルスと同時に発生したチェレンコフ光は、ミラーを組合せた遅延系により電子線の微細構造より任意の時間だけ遅れて試料に分析光として入射する。試料セルを透過した一連のチェレンコフ光の総和が微細構造パルス照射一定時間後の光吸収シグナルを与える。遅延時間を変えることにより吸収の時間変化を、また分光器の波長を変えることにより吸収スペクトルを得ることができる。このようなストロボスコピックな方法では光学検出系は特別に速い応答を必要としないので通常のパルスラジオリシスで用いられるものでよい。ただし微細構造パルスを用いるため容易に測定され得る時間範囲はパルス照射後 0~350 psec に限定される。

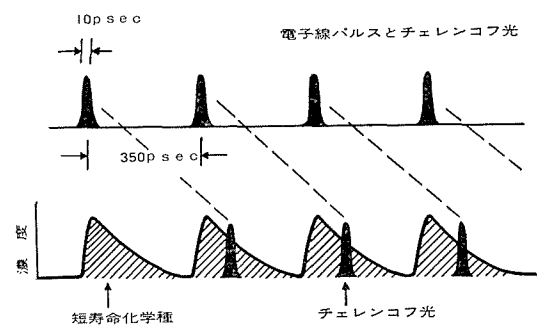


図 1 ストロボスコピックパルスラジオリシスの原理

#### 4. ストロブスコピーックパルスラジオリシス装置

チェレンコフ光の定量的な取扱いは Frank と Tamm<sup>9)</sup> によって行なわれ、荷電粒子が物質中を  $ds$  進んだときに物質に照射される全エネルギー  $dT_{\text{cer}}$  は次式で表わされる。

$$\left(\frac{dT}{ds}\right)_{\text{cer}} = \frac{4\pi^2 z^2 e^2}{c^2} \int \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2}\right) \nu d\nu \quad \text{ergs/cm} \quad (1)$$

ここで  $ze$  は荷電粒子の電荷、 $\nu$  は放出される電磁波の振動数である。 $\nu_1$  と  $\nu_2$  の二つの振動数間で放出されるチェレンコフ光は次の平均エネルギーをもつと考える。

$$h\bar{\nu} = \frac{h(\nu_1 + \nu_2)}{2} \quad (2)$$

従って単位長さあたり放出される平均光子数は次式より得られる。

$$\frac{1}{h\bar{\nu}} \left(\frac{dT}{ds}\right)_{\text{cer}} = \frac{4\pi^2 z^2 e^2}{hc^2} (\nu_2 - \nu_1) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2}\right) \quad \text{photons/cm} \quad (3)$$

空気 ( $n=1+2.773 \times 10^{-4}$ , 波長 580 nm) を媒体としたときに, 580 nm における 10 nm バンドのチェレンコフ光強度と電子エネルギーの関係を図 2 に示す。電子エネルギーが 30 MeV 以下ではチェレンコフ光強度は急激に減少し (3) 式から屈折率の大きい物質を媒体としなければならないことがわかる。

北大 45 MeV LINAC より得られる 10 nsec 幅パルスでは空気 1 cm 当り  $4.5 \times 10^9$  個の光子が発生する。光電子増倍管のショットノイズの標準偏差<sup>1)</sup>を 2% 吸収シグナルの 2% 以下にするために必要な光電子数は約

$$1/(0.02 \times 0.02)^2 = 6.25 \times 10^6$$

個である。

光学系の光透過率を 10%<sup>1)</sup>, 光電子増倍管の量子効率を 2% と仮定すると  $3.1 \times 10^9$  個の光子があれば十分である。これは 45 MeV 電子線が空気中を 7 cm 通過することによって得られる光子数である。

光学系が図 3 で示されている。図 4 は装置の主要部の配置である。電子線の微細構造により長さ 12 cm の空気中で発生したチェレンコフ光は最初の薄板ミラーによって 90° 進路をまげられる。電子線は 2 枚の薄板ミラーを通過して試料セルに入射する。チェレンコフ光は互いに 90° で面した一対の移動ミラーにより 180° まげられ、更にもうひとつの薄板ミラーにより 90° まげられ試料セルの電子線と同じ位置へ入射する。試料セルを透過したチェレンコフ光はミラーにより電子線から直角方向へ分離されて分光器へ集光される。2 枚の薄板ミラーは電子線の散乱を防ぐため 0.25 mm の厚さのガラス板に白金を蒸着したものをを用いている。

分析光の遅延時間は移動ミラーの電子線からの距離を変えることにより任意に設定できる。一対の移動ミラーの移動はパルスモーターで行なわれ、18 パルスで 1.0 mm 移動する。移動距離は

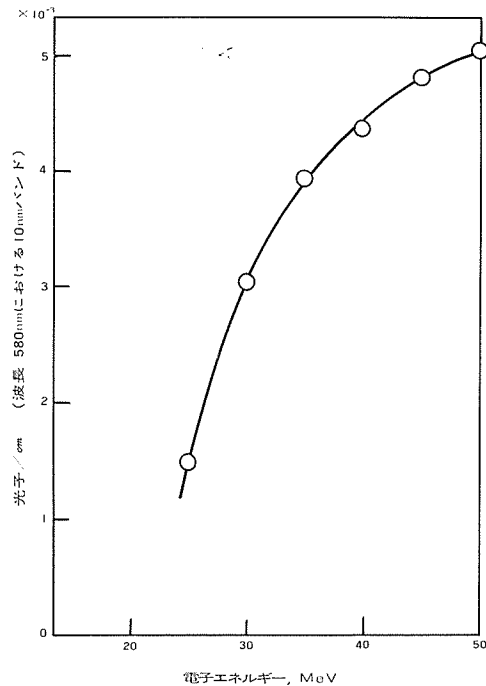


図 2 空気を媒体とするときの電子エネルギーとチェレンコフ光強度の関係

15 cm で、これによって光路が 30 cm 変わるので移動ミラーの移動による遅延時間は 1 nsec となる。従って、微細構造間隔 (350 psec) の 2 倍以上の遅延を行なって、2 つの微細構造間の吸収の減衰や生成化学種の寿命が長い場合の吸収信号のビルドアップも観測できる。

荷電粒子の進行方向に対するチェレンコフ光の放出角度  $\theta$  と物質の屈折率  $n$  との間には  $\cos \theta = 1/\beta n$  という関係がある<sup>4)</sup>。空気の屈折率 1.00028 と 45 MeV 電子線の  $\beta$  の値 0.99994 より  $\theta$  を求めると約  $1.2^\circ$  となりチェレンコフ光の広がりによる損失が大きいので円すい形レンズで平行にしたのち凸レンズで試料セルの中心に集光する。

分析に用いるチェレンコフ光は十分強くかつ試料セルの電子線照射部に焦点が合っていなければならない。また遅延系の光路の長さの変化による光軸の変化は出来るだけ小さい方がよい。そのため光学系の調整はレーザーを用いて注意深く行なわれる。移動ミラーの位置の変化に伴う光スポットのずれは、電子線から直角方向に約 4 m の地点で 2 cm 以内であり分光器及び光電子増倍管が設置される位置においてはきわめてわずかで実際上問題とならない。

分光器で定められた波長の光は光電子増倍管で電気的信号に変換される。信号は同軸ケーブルで伝送され、A/D 変換された後、ミニコンピュータに記憶され、平均化および吸収信号を得るため以下に述べる処理が行なわれる。吸収の時間変化および吸収スペクトルは D/A 変換器を通じオシロスコープ上で直接観測される。

## 5. 吸収信号の測定

1 個の微細構造電子線パルスの線量は非常に小さいので短寿命化学種による吸収 ( $S$ ) は分析に用いるチェレンコフ光 ( $I_0$ ) にくらべかなり小さいものとなる。また試料セルを通過した電子線によりバックグラウンドのチェレンコフ光 ( $I$ ) が発生する。そのため吸収信号は図 5 に示されるように光チョップにより得られた 3 種の信号より求められる。

A モード：吸収された分だけ弱くなった分析光とバックグラウンドの合計。

$$A = I_0 + I - S$$

B モード：電子ビームは試料セルに入射せず、分析光のみが試料セルを通過。

$$B = I_0$$

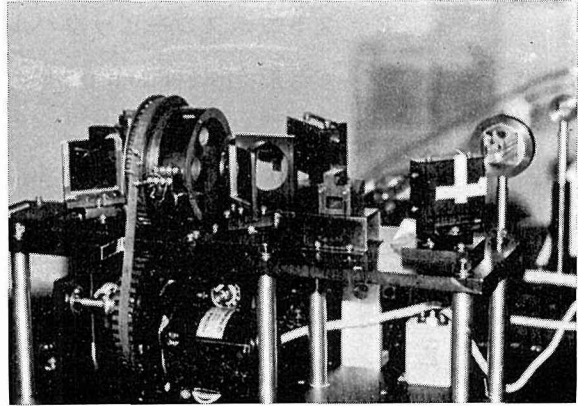


図3 ストロブスコピックパルスラジオリシス装置の光学系

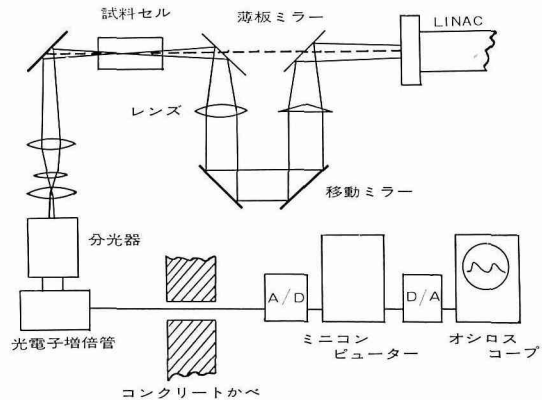


図4 ストロブスコピックパルスラジオリシス装置の配置

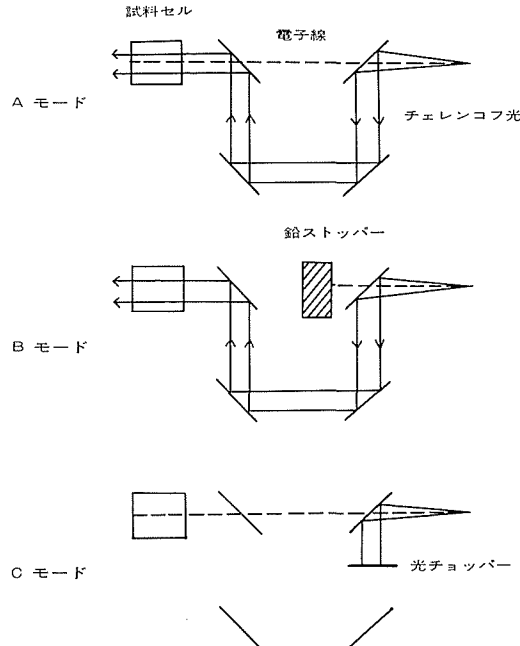


図5 吸収信号を得るために必要な3種の信号

C モード: 分析光がチョップされ、電子ビームのみが試料セルを通過。

$$C=I$$

吸収信号 ( $S$ ) は  $S=B+C-A$  より得られる。従って吸収の割合は  $S/B$  となる。

電子ビームを止める鉛ストッパーと光チョッパーは連動しモーターにより回転する。厚さ 6 cm の鉛ストッパーには発光ダイオードとフォトトランジスターの組合せによるマークセンサーが付属していて、ミニコンピューターが信号を取り込む際に A, B, C 各モードの指示を与えるとともに LINAC のトリガーともなっている。

## 6. チェレンコフ光の測定

実際に試料をおいて吸収スペクトルを測定する前に光学装置の性能を調べるため、試料をおかずに A, B, C 各モードの信号を観測した。チェレンコフ光はガラスフィルター (東芝 UV-35) により 350 nm 以下の紫外部をカットされ島津ボシュロム製強力モノクロメータにより単色光とされ光電子増倍管に入る。光電子増倍管は MS-9SY (東芝), R 136 (浜松テレビ) を用いた。電極段数はいずれも 10 段であるが、ダイナミックレンジを広げるために 5 段増幅として使用した。信号は第 6 ダイノードから長さ約 50 m のケーブルにより直接オシロスコープ入力端の 50  $\Omega$  負荷へ電流伝送され、負荷両端の電圧パルスをおシロスコープで観測した。図 6 は MS-9SY で得られた A モードでの信号の波形である。R 136 では印加電圧の増加に伴ない信号の飽和が見られた。

図 7 は A, B, C 各モードで得られた光信号のスペクトルである。信号強度が短波長側で増大しているのは、波長を  $\lambda$  とするとチェレンコフ光の強度が  $1/\lambda^3$  に比例するためである。また光電子増倍管の陰極感度やミラーとして用いている白金の反射率の波長依存性によりこのようなスペクトルとなる。点線は計算により求めたチェレンコフ光のスペクトルである。分析光として用

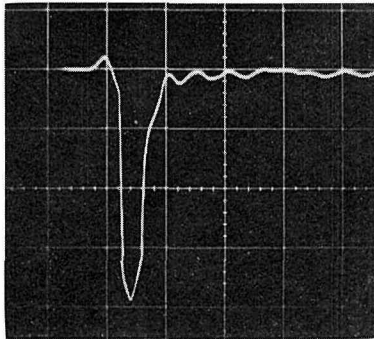


図6 MS-9SY 光電子増倍管で得られた A モード信号の波形  
波長 415 nm, H. V. -600 V  
たて軸 0.1 V/div  
よこ軸 100 nsec/div

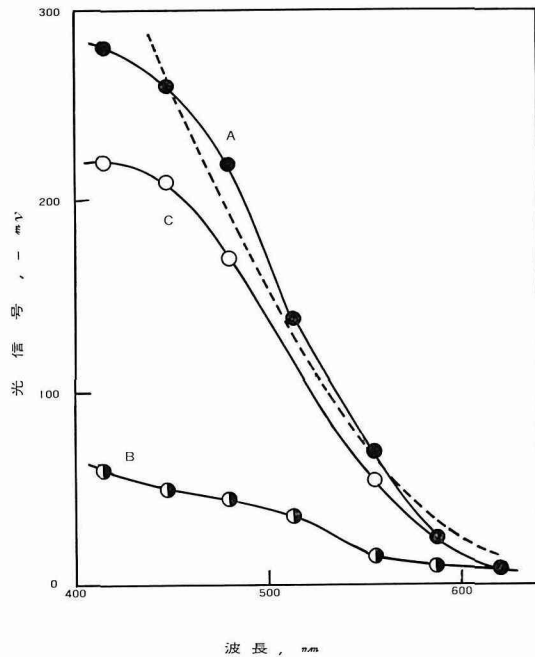


図7 A, B, C 各モードにおける光信号のスペクトル  
H. V. -800 V

いる B モードのチェレンコフ光信号がバックグラウンドのチェレンコフ光にくらべ弱いのは薄板ミラーの反射率が低いため、反射率の高い薄板ミラーを用いることにより数倍強くできることがわかった。このことからチェレンコフ光の強度は分析光として用いるのに十分であると考えられる。

## 7. ま と め

ピコ秒パルスラジオリシスを行なうために製作されたストロボコーピックパルスラジオリシス装置の概要を述べた。この方法は通常のパルスラジオリシス法と異なり 45 MeV 電子線が空气中で発生するチェレンコフ光を用いるものである。分析光およびバックグラウンドのチェレンコフ光の強度とスペクトルが測定され、その結果分析光は十分強いことが明らかにされた。

## 謝 辞

本研究は、三菱財団自然科学研究助成金により行なわれたものである。

本装置の光学系の製作を担当し、光軸調整法を御指導下された島津製作所神谷忠氏、および 45 MeV LINAC の運転を指導された谷田弘明技官に感謝の意を表します。

## 文 献

- 1) Bronskill, M. J., Taylor, W. B., Wolf, R. K., and Hunt, J. W.: Rev. Sci. Instrum., 41 (1970), p. 333.
- 2) Wolf, R. K., Bronskill, M. J., Aldrich, J. E., and Hunt, J. W.: J. Phys. Chem., 77 (1973), p. 1350.
- 3) Frank, I. M., and Tamm, I. G.: Dokl. Akad. Nauk, SSSR, 14 (1937), p. 109.
- 4) Jelley, J. V.: Čerenkov Radiation, (1958), p. 5, Pergamon Press, London.