

溶媒の誘電率の時間変化を取り入れたイオン化分布の時間発展の試行的計算

Simulation study of spatial distribution of energy deposition due to ionizing radiation and its time-evolution considering time-dependent permittivity of solvent

*神戸 正雄¹, 菅 晃一¹, 楊 金峰¹, 吉田 陽一¹

¹大坂大学 産業科学研究所

超高時間分解パルスラジオリシスの解析のため、熱化後の放射線誘起反応初期過程のシミュレーションをモンテカルロ法により行い、誘電率の時間変化の考慮の有無での過渡種の時間発展の違いを検討した。

キーワード: 放射線誘起化学反応, 初期過程, シミュレーション, 反応ダイナミクス, 初期分布

1. 緒言

溶液中の放射線誘起化学反応は、電離放射線によるイオン化は親分子から電離した電子が2次イオン化等を経て、運動エネルギーを失い、つまり熱化した時点からを考慮することが多い。この熱化した電子の分布は、後に引き続くジェミネート再結合反応や、これを逃れたフリーイオン収率に直接的に影響を与える因子であるため、放射線化学反応の初期過程を解明する上で重要である。これまでも熱化分布に関する考察はされてきており、特に水やアルカン類はそれぞれガウス型、指数関数型の分布と推定されると報告されている。

これまでパルスラジオリシス等の時間分解分光により実験的に調べられてきたのも主に熱化後の挙動である。近年、電子ビームパルスの極短パルス化が進展し、パルスラジオリシスの時間分解能の向上が見込まれる状況となっており、熱化過程が観測可能かは不明であるものの、よりイオン化直後からの観測が可能になることが期待される。媒質の電場に対する応答は誘電率として特徴づけられる。溶液においては、電子分極、原子分極、配向分極により誘電率は構成されており、それぞれの電場応答の時間領域が大きく異なり、つまり、誘電率には周波数依存性がある。従って、これまで考慮されてこなかった媒質の誘電応答の時間発展を考慮した場合、過渡種の挙動にどのような影響が現れるかを予め検討することは、意義がある。この検討は計測結果の解析だけでなく、各時間領域での濃度分布が得られるため最終的に実験結果と付き合わせるによりシミュレーション手法として確立されることが望ましい。

本研究は、放射線誘起反応初期過程のシミュレーションを行い、誘電率の時間変化の考慮の有無での過渡種の時間発展の違いを検討することを目的とした計算コードの開発状況を報告する。

2. 方法

モンテカルロ法によるシミュレーションコードを新規に開発し、計算に用いた。熱化後の初期分布として、任意の幅を持つガウス分布または指数関数分布を任意の親カチオン分子との距離を与えて用いた。溶媒和前電子、溶媒和電子生成、ジェミネートイオン再結合等の反応を考慮し、クーロン場下での拡散運動として、電子やカチオンの生存確率の時間発展を計算した。なお、本研究では熱化分布自体の理論的な導出はせず、任意に定めた熱化分布を初期分布とした取り扱いを行った。

*Masao Gohdo¹, Koichi Kan¹, Jinfeng Yang¹, Yoichi Yoshida¹

¹Sanken, Osaka Univ.