

## 自己評価報告書

平成23年 5月 6日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008～2012

課題番号：20360423

研究課題名 (和文) 分子内カスケード同位体分離法の研究

研究課題名 (英文) Study on intra-molecular cascade isotope separation

研究代表者

横山 啓一 (YOKOYAMA KEIICHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・グループリーダー

研究者番号：60354990

研究分野：分子科学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：同位体分離・分子内部状態・量子制御・レーザー・波形整形

## 1. 研究計画の概要

波形整形赤外光パルスを用いて分子振動準位もしくは回転準位間の遷移を複数回繰り返すことにより同位体選択性を飛躍的に高める、という新しい同位体選択スキームの概念 (分子内カスケード同位体分離法) の実現可能性を探る。計算機シミュレーションによりカスケード効果の理論的検証及び最適パルス波形の探索を行う。また、赤外光パルスの代替として可視光パルスを用いたラマン散乱による同位体選択的多段階励起実験を行い、分子内カスケード同位体分離法の基礎過程の原理実証を目指す。

## 2. 研究の進捗状況

(1) 理論的研究 波形整形赤外光パルスによる振動励起ダイナミクスをシミュレートするために、計算方法の検討及びモデルの選定を行った。その結果、振動固有状態を基底とする緊密結合法と実空間グリッド上の波束として時間依存シュレディンガー方程式を解く方法を併用し比較することにした。モデルには、実際の放射性廃棄物として多く存在するヨウ化セシウム分子 (CsI) を選んだ。これらを実際に計算するプログラムを完成させ、それを用いて CsI ( $v=0 \rightarrow 1-4$ ) の振動励起におけるカスケードの効果を検証した [論文①、発表③]。また、回転準位を利用した分子内カスケード同位体選択において予想外の革新的優位性を発見し、特許を日米で出願した [特許①②]。また、その優位性の起源が量子論的拡散の効果であることを明らかにした [論文②、発表①②④]。

(2) 実験的研究 ①窒素分子を作業分子とする実験では、コヒーレントアンチストークスラマン散乱分光 (CARS) 法により内部状

態観察を行う。まず空気中フィラメンテーションによる白色光を用いて CARS 測定技術を獲得すると共に白色光パルス対の瞬時周波数差を利用した選択的振動励起を実証した [論文③]。さらに、時間分解 CARS による回転分布測定法を確立し、回転準位多段階励起実験を開始した。②ハロゲン分子を作業分子とする実験では、まずレーザー誘起蛍光分光による内部状態観察を行い、ヨウ素分子 B 状態からのラマン過程を初めて確認すると共に振動準位多段階励起を確認した [論文④]。さらに、より高感度の内部状態観察法として、光分解画像分光分析装置の整備を進めた。その後、多段階励起実験の対象系を振動準位から回転準位に変更したことに伴い、作業分子をハロゲン分子からリチウム分子に変更した。平成 22 年度は、ヘリウム希釈  $\text{Li}_2$  分子線発生技術の開発及び  $\text{Li}_2$  光分解画像分光に用いる狭帯域再生増幅レーザーシステムを設計製作し、設計通りの性能を達成した。

## 3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。理論的研究では振動準位多段階励起の計算で成果を上げるとともに、当初予想していなかった回転準位多段階励起の革新的優位性を発見することができた。実験的研究では窒素分子 CARS 法を使った多段階励起の実験準備を進め、ほぼ予定通り 22 年度には多段階励起実験を開始した。また、ヨウ素分子の振動多段階励起の確認に成功した。ただし、運動量画像分光による実験については、振動励起から回転励起への方針変更の影響により約 1 年遅れている。

#### 4. 今後の研究の推進方策

今後も分子内カスケード同位体分離法の原理に関する理論的及び実験的研究を進め、実現可能性を検討していく。特に、回転準位を利用するカスケード励起に関して、その物理的意義をより明確にすると共に実証を目指す。

(1) 理論的研究 回転あるいは分子配向の効果を取り入れた多段階励起の計算を行うなど、より現実的な系における分子内カスケード法の定量的な評価を目指す。

(2) 実験的研究 窒素分子及びリチウム分子の回転準位を利用する多段階励起実験に取り組み、同位体選択的な回転分布の移動の実証を目指す。窒素分子を用いる実験では、パルスの高強度化及びノイズの低減により分布移動の確認を目指す。リチウム分子を用いる実験では、回転分布測定技術を開発し、多段階励起実験に備える。

#### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

- ① Y. Kurosaki, K. Yokoyama, A. Yokoyama, "Quantum control study of ultrafast isotope-selective vibrational excitations of the cesium iodide (CsI) molecule", *Comp. Theo. Chem.* 963, 245-255 (2011). 査読あり
- ② K. Yokoyama, L. Matsuoka, T. Kasajima, M. Tsubouchi, A. Yokoyama, "Quantum control of molecular vibration and rotation toward the isotope separation", *Advances in Intense Laser Science & Photonics*, pp113-119 (2010). 査読無し
- ③ T. Kasajima, K. Yokoyama, L. Matsuoka, A. Yokoyama, "Vibration-selective coherent anti-Stokes Raman scattering with linearly chirped white-light pulses", *Chem. Phys. Lett.* 485, 45-48 (2010). 査読あり
- ④ L. Matsuoka, K. Yokoyama, A. Yokoyama, "Impulsive stimulated Raman transition on the B state of iodine molecules via repulsive states", *Phys. Rev. A* 79, 061404(R) (2009). 査読あり

[学会発表] (計22件)

- ① 横山啓一「QUADRA レーザーを用いた量子制御による新たな同位体分離技術への挑戦 (招待講演)」レーザー学会学術講演会第31回年次大会、2011年1月10日、調布
- ② L. Matsuoka, T. Kasajima, M. Hashimoto, K. Yokoyama, "Numerical study on quantum walks implemented on the cascade rotational transitions in a diatomic molecule", 9th Asian

international seminar on atomic and molecular physics, 2010年10月4日、ソウル

- ③ 黒崎譲、市原晃、横山啓一「同位体選択的振動励起における分子配向効果に関する理論的研究」第4回分子科学討論会、2010年9月14日、大阪
- ④ 横山啓一「同位体分離を目指した量子制御技術：原子力の課題に挑戦する分子科学 (特別講演)」原子衝突研究協会第35回年会、2010年8月9日、奈良

[産業財産権]

○出願状況 (計2件)

①

名称：分子の選択的励起方法およびこれを用いた同位体分離方法、同位体分析方法、分子の選択的励起装置、同位体分離装置

発明者：横山啓一、松岡雷士、赤木浩、笠島辰也、坪内雅明、横山淳

権利者：独立行政法人日本原子力研究開発機構

種類：特許権 (米国)

番号：12/923,444

出願年月日：2010年9月22日

国内外の別：外国

②

名称：分子の選択的励起方法およびこれを用いた同位体分離方法、同位体分析方法、分子の選択的励起装置、同位体分離装置

発明者：横山啓一、松岡雷士、赤木浩、笠島辰也、坪内雅明、横山淳

権利者：独立行政法人日本原子力研究開発機構

種類：特許権 (日本)

番号：特願 2009-220818、特開 2011-067754

出願年月日：2009年9月22日

国内外の別：国内