

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 4 月 30 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760685

研究課題名（和文）凝縮相中での誘導ラマン遷移による多段階振動励起

研究課題名（英文）Vibrational ladder climbing in condensed phase by stimulated Raman transitions

研究代表者

笠嶋 辰也（KASAJIMA TATSUYA）

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・研究職

研究者番号：10448045

研究成果の概要（和文）：

2年間の研究期間において、本研究で必要な振動 CARS 測定装置を完成させるところまで達成した。平成 22 年度（1 年目）は、当初予定していた設計に従って実験装置を構築したが、レーザー光強度が足りないため、振動 CARS 信号が検出できなかった。平成 23 年度（2 年目）は、光源と検出系を変更し実験装置の再構築を行った。

研究成果の概要（英文）：

A vibrational CARS measurement system has been completed. In the first year, the experimental setup was made up according to a plan. However, a vibrational CARS signal was not able to be detected because of poor intensity of the laser pulses. Therefore, in the second year, the experimental setup was rebuilt.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2011 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：振動多段階励起・誘導ラマン遷移・時間分解振動 CARS

1. 研究開始当初の背景

同位体分離は同位体間の質量差によって生じる同位体効果を利用して行われる。一般的に原子番号が大きな元素ほど同位体効果が小さくなるので、同位体分離が困難となる。例えば原子力発電のためのウラン濃縮には

遠心分離機が使われているが、分離操作 1 回当たりの分離効率が非常に低いので、同位体濃度を高めるためには分離操作を何度も繰り返す必要がある。これに対して、もっと省スペースで省エネルギーな同位体分離法として、筆者らは「分子内カスケード法」とい

う新しい方法を提案し、これの実現に向けて（気相中での）研究を行っている。

図1の横線は二原子分子ABとAB'の振動準位を表している。原子BとB'は同位体で、B'の方が重いとする。またABとAB'の基本振動数をそれぞれ v_1 、 v_2 とする。レーザーを使った従来の同位体分離法は v_1 と v_2 が異なっていることを利用してどちらか一方だけを選択的に振動励起するというものである。しかし元素Bの原子番号が大きくなるにつれて v_1 と v_2 の差が小さくなるので、分離効率が悪くなる。そこで従来法のように $v=0$ と1の間の遷移だけを使うのではなく、図1に示すように振動準位を順番に一段ずつ励起しながら、さらに各段でABのみを選択的に励起するという操作を繰り返せば、やがてABだけが高振動準位まで励起される。これが「分子内カスケード法」による同位体選択の原理である。つまり遠心分離機をカスケードする代わりに、振動励起を繰り返すことで分離効率を上げようということである。

この新手法の原理実証のために最初にクリアすべき課題は、多段階振動励起を上手く行えるようになるということである。そこで本研究では「多段階振動励起の実現」と、これに必要なパルス条件を系統的に調べることで「多段階振動励起手法の確立」を目指す。

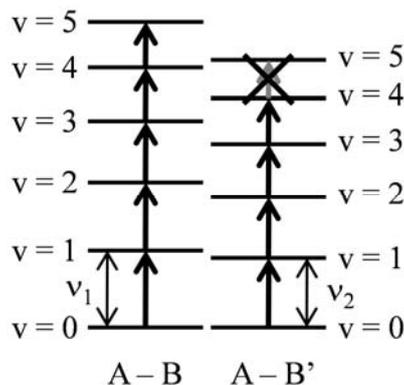


図1 分子内カスケード法による同位体選択スキーム。

2. 研究の目的

実現困難とされる「凝縮相中での同位体分離」の実現に向けて、要の過程である「凝縮相中での多段階振動励起」を行うための手法の確立を目指す。多段階振動励起は、線形チャープを掛けた広帯域レーザーパルス対（可視光領域）を使って、誘導 Raman 遷移を繰

り返すことで行う。そして、多段階振動励起の成否・効率に大きく寄与するであろうパルスとの相互作用時間等の最適条件について調べる。

具体的には「水中の二酸化炭素分子に対して誘導 Raman 遷移を使った多段階振動励起を実現させること」と「多段階振動励起を効率良く起こすためのパルス条件（線形チャープレートとパルス幅）を調べること」である。これによって多段階振動励起の手法を確立し、上手く制御できるようにしたい。

3. 研究の方法

実験手法は変形型の Coherent Anti-Stokes Raman Scattering (CARS) 分光法を使う。サンプルは炭酸水である。多段階振動励起は、線形負チャープパルス対を使って、パルス通過時間内に誘導 Raman 遷移を繰り返し起こすことで行う。チャープによって非調和性による振動準位間隔の変化に対応する。また、チャープによってパルス幅を変えることで、分子との相互作用時間を調整する。多段階振動励起の結果の観測は周波数領域・時間領域両方の CARS 測定によって行う。

初めに、実験装置を作製し、水中の二酸化炭素をサンプル分子に使う多段階振動励起が起こる条件を探す。多段階振動励起の方法には、中赤外光で多光子励起をする方法と可視光で誘導 Raman 遷移を繰り返す方法とがある。凝縮相中では溶質分子よりも溶媒分子によって中赤外光がたくさん吸収されてしまうというやっかいな問題が存在する。したがって本研究では可視光を使って誘導 Raman 遷移を繰り返す方法で多段階振動励起を行う [図2 (a)]。

誘導 Raman 遷移はポンプ光とストークス光と呼ばれる2つの光を使って、両者のエネルギー差を分子振動に共鳴させることで起こす。分子の振動準位はポテンシャルの非調和性によって、高振動準位になるにつれて準位間隔が狭くなる [図2 (a)]。これに対応しながら誘導 Raman 遷移を繰り返すために、両者のエネルギー差が時間とともに小さくなるようにポンプ光とストークス光に線形チャープパルスを掛ける [図2 (b)]。

また、チャープによるパルス幅の引き伸ばし量を変えることで分子との相互作用時間を調整する。これによって、相互作用時間と多段階振動励起の効率との関係について

て調べる。多段階振動励起の結果の観測には、周波数領域と時間領域の CARS 法を使う。

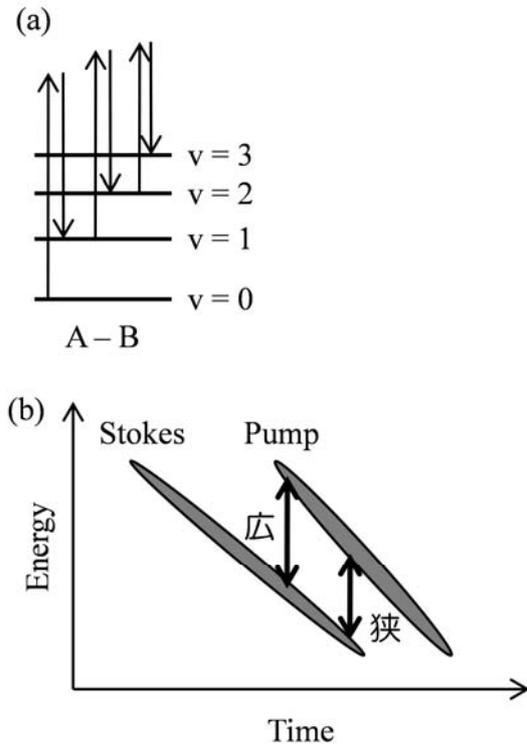


図 2 線形負チャープパルス対による多段階振動励起。

周波数領域 CARS 測定では、多段階振動励起による振動ポピュレーション分布に応じて複数のピークが観測される。時間領域 CARS 測定では、振動準位間隔の差の分だけエネルギーの異なる複数の CARS 信号が発生することでビート信号が観測される。

4. 研究成果

平成 22 年度（1 年目）において、当初予定していた設計に従って実験装置を構築したが、レーザー光強度が足りないため、振動 CARS 信号が検出できなかった。そこで平成 23 年度（2 年目）には、光源をレーザー発振器単体から再生増幅器と光パラメトリック増幅器（OPA）に変更して、光強度を増強した。当初の実験装置では、広帯域パルスをダイクロミックミラーで短波長側と長波長側に分離し、短波長側成分を持ったパルスをポンプ光とプローブ光として使い、長波長側成分を持ったパルスをストークス光として使っていた。これに対して、再構築版では、再生増幅器で発生させた光をストークス光と

して使い、ポンプ光とプローブ光には OPA 装置で波長変換した光を使うようにした。これによって、振動 CARS 信号発生に必要な光強度を十分に確保することができ、CARS 信号を確認できた。

次に、信号測定の S/N を良くするために、信号検出方法をロックイン検出法からフォトンカウンティング検出法に変更した。振動多段階励起が起こった場合の振動 CARS 信号波形の微妙な変化を正確に捉えるためには、S/N が少しでも良い方が有利となる。この変更によって、より高精度の計測が期待できる。以上のような、光源と検出系の導入によって、振動 CARS 測定装置を完成させることができた。

次のステップとしては、ポンプ光とストークス光を線形チャープパルスにし、両者の間の瞬時周波数差を時間的に変化させることで振動多段階励起を実現しようと考えているが、現時点ではまだ、振動多段階励起の兆候を捉えるには至っていない。

5. 主な発表論文等

（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 0 件）

〔学会発表〕（計 0 件）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

笠嶋 辰也 (KASAJIMA TATSUYA)

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・研究職

研究者番号：10448045

(2) 研究分担者
なし

(3) 連携研究者
なし