

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 4日現在

機関番号：82110

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656594

研究課題名（和文） 回転コヒーレンスを利用したレーザー同位体分離の原理実証と重元素への実現性評価

研究課題名（英文） Demonstration test of laser isotope separation utilizing rotational coherence and its applicability evaluation for heavy isotopes

研究代表者

赤木 浩 (AKAGI HIROSHI)

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・研究副主幹

研究者番号：70354818

研究成果の概要（和文）： 回転コヒーレンス同位体分離法の原理実証を、窒素分子の同位体混合ガス ($^{14}\text{N}_2$ と $^{15}\text{N}_2$) に対するフェムト秒レーザーの2パルス照射-イオン化実験によって行い、同位体分離が実現可能である事を示した。また、同位体選択性の向上のため、以下の2つを実施し、その効果について確認すると同時に、重元素同位体への適応可能性を検討した。(1)分子整列用のフェムト秒パルスレーザーの複数回照射、(2)窒素分子の回転温度を低下させるためのガスジェット条件の最適化。

研究成果の概要（英文）： We have demonstrated a new laser isotope separation method utilizing molecular rotational coherence. In the demonstration, isotope selective ionization for a gas mixture of nitrogen isotopologues ($^{14}\text{N}_2$ and $^{15}\text{N}_2$) has been realized by two-pulse irradiation of femto second laser, indicating that the present method is applicable as an isotope separation method. Additionally, we have tested the following two subjects, to improve the isotope selectivity and to examine the possibility for heavy isotopes. (1) A pulse-train irradiation of femto-second laser pulses for the molecular alignment, and (2) optimization of the gas jet conditions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,300,000	990,000	4,290,000

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：同位体分離、回転コヒーレンス、フェムト秒レーザーパルス、非共鳴多光子イオン化

1. 研究開始当初の背景

重元素に対する同位体分離技術は、使用済み核燃料からの長寿命核種の除去や、有用元素の回収など、高レベル放射性廃棄物の処理・処分の高度化に繋がる。長寿命核種除去や有用元素回収には、多量の同位体混合物を処理可能で、かつ目的外同位体の混入を限りなく0%に近づけられる手法が必要である。本研究代表者らは、分子振動数の差を利用して同位体を分離する、一般的な分子レーザー同位体分離法を軽元素（ケイ素）に対して適

応し、高選択性を実現しつつ、多量の同位体混合物を処理できることを実証した。

しかし、一般的な分子レーザー法は、重元素に対しては選択性が低下するという問題がある。対象元素の質量が大きくなるのに伴い、分子振動数の差が減少することが主な原因である。近年、分子振動を利用した新規手法が幾つか提案されているが、重元素に対しても選択性が低下しない手法は無い。分子振動を利用した方法では、元素質量が大きくなると選択性が低下する傾向が必然的に残

るため、同位体分離の根本原理を変えた、新しい手法を探る必要がある。

本研究代表者らは、新しい原理に基づく分離法“回転コヒーレンス同位体分離法”を考案した。これは、分子の回転周期差を利用する。回転周期差は元素質量に対する依存性が小さく、重元素に対する適応可能性を有する。

2. 研究の目的

重元素に対して高選択的な同位体分離が実現すれば、放射性廃棄物の処理・処分的高度化に繋がる。分子レーザー同位体分離法は高い選択性が実現されやすく、重元素に対する高選択的分離を実現する有力候補の1つと考えられる。しかし、一般的な分子レーザー法を重元素に対して適応した場合、軽元素に比べて選択性が大幅に低下する、という問題点がある。それを解決するために、最先端の分子制御技術を駆使し、重元素に対しても高選択的なレーザー同位体分離の実現を目指す。

本研究代表者らが提案する回転コヒーレンス同位体分離法は、対象元素の質量が大きくなっても選択性が低下しにくい、という利点がある。本研究では、この手法による同位体分離の実現、ならびに重元素に対する有用性を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

窒素分子(N_2)の同位体選択的イオン化を研究対象とし、以下の2点を行った。(1)原理実証実験、(2)重元素同位体への適応、ならびに選択性向上のための、条件最適化。

(1)原理実証実験は、高真空中に導入した窒素同位体混合ガスに対し、直線偏光・フェムト秒パルスレーザーの連続した2パルスを照射する。2パルス目の照射時刻を変えながら各同位体分子のイオン収量を測定し、同位体選択的イオン化が可能であることを示す。

(2)では、重元素同位体への適応、ならびに選択性向上、を目指して、以下の2つを行った。①分子整列用レーザーパルスの複数パルス化、②ガスジェット条件の最適化。

4. 研究成果

(1)回転コヒーレンス同位体分離法の原理実証

マイケルソン干渉計などの光学系、ならびに計測システムの構築を行った後、原理実証実験を行った。フェムト秒レーザーパルス(チタンサファイア再生増幅器出力、 $\lambda=795\text{nm}$ 、 $\Delta\tau=60\text{fs}$)を、マイケルソン干渉計を通すことで連続する2パルスとし、レンズを用いて真空チャンバー内に集光して照射した。集光点には、窒素同位体混合ガス($^{14}N_2$ および $^{15}N_2$)をアルゴンで希釈したものが、ジェット状にして導入してある。1パルス目のレーザー照射によ

り、同位体分子の分子回転ラマン過程を誘起し、回転周期ごとに分子整列が起きる回転波束を作り出した。同位体分子で回転周期が異なるため、分子整列する時刻が異なる。2パルス目の照射で、非共鳴多光子イオン化した。非共鳴多光子イオン化は、分子整列状態に依存するため、同位体選択的なイオン化が実現できる。パルス間の遅延時間に対する各同位体分子のイオン収量の変化を測定した。期待通り、2つのパルス間の遅延時間に応じて、 $^{14}N_2$ と $^{15}N_2$ のイオン収量に変化し[図1(a)]、収量比が0.85~1.22の間で変化することを明らかにした[図1(b)]。すなわち、本手法で同位体が原理的に分離可能である事を実験的に示すことに成功した。

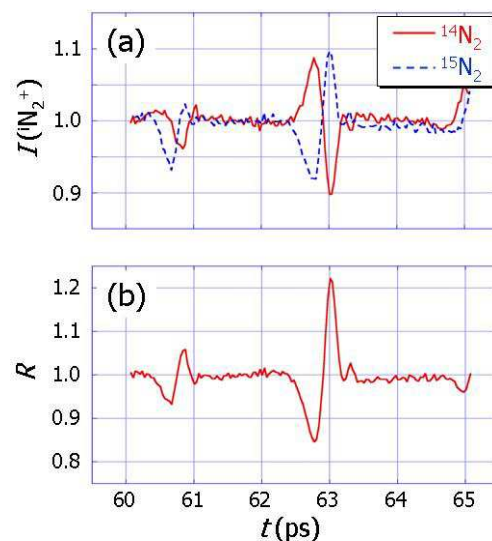


図1 (a) $^{14}N_2^+$ (赤線)および $^{15}N_2^+$ (破線)イオン収量の遅延時間 t 依存性。(b)イオン収量比 $R = I(^{15}N_2^+)/I(^{14}N_2^+)$ の t 依存性。

(2)重元素同位体への適応、選択性の向上のための条件最適化

①分子整列用レーザーの複数パルス化

(1)原理実証実験において、より高い同位体選択性を目指し、分子整列用レーザーパルスのピーク強度を高くすることを試みた。しかし、競合する非共鳴多光子イオン化の割合が高くなるため、高い選択性は得られなかった。この問題は、より低いイオン化ポテンシャルを有する重元素同位体分子において、より深刻になり得る。そこで、イオン化を抑制しながら高い選択性を実現するために、分子整列用パルスを干渉計を利用して4分割して照射することを試みた。

4分割パルス生成のための干渉計(図2)を構築した後、実験を行った。 $^{14}N_2$ の15回転周期と、 $^{15}N_2$ の14回転周期がほぼ同じ時刻(～125ps)に表れることを利用して、125ps間隔で4パルス、直線偏光・フェムト秒パルスレ

ザーを照射した。その結果、1パルス照射のときとの比較で、選択性を約2倍程度、高くすることに成功した。

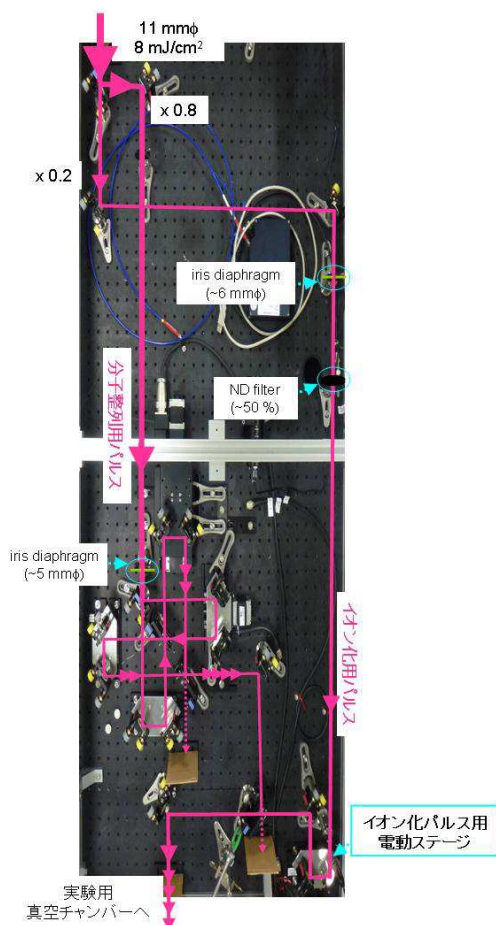


図2 4連続パルスによる分子整列のための実験システム

②ガスジェット条件の最適化

窒素同位体分子の回転温度が低下すると、より低いレーザー強度で高い分子整列度が実現することが判っている。そこで、回転温度が低くなるように、ガスジェット条件の最適化を行った。具体的には、混合ガスを希釈する希ガスの種類、混合比、ガス導入用のパルスバルブの動作タイミングなどの条件を最適化した。1パルス分子整列による同位体分離実験を行い、ガスジェット条件の最適化による選択性への影響を確認した。

その結果、窒素同位体分子の回転温度は、最適化以前の ~ 100 Kから、 ~ 20 K程度にまで低下した。選択性は、最適化により、以前の3倍程度に改善した。

③選択性向上に関する評価、ならびに重元素への適応可能性

窒素同位体分子に対して実施した、上記2条件の最適化の結果から、①と②を組み合わせる際に期待される選択性を推定した。遅延

時間を変化させると、同位体選択性が $0.5\sim 2$ 程度の振幅で変化する、と推定した。

分子整列用パルスを複数パルス化することで、1パルスのときに比べてピーク強度が低くなった。その結果、分子整列に対して競合する非共鳴多光子イオン化の寄与は半分以下になった。イオン化の寄与は、低イオン化ポテンシャルを有する重元素同位体分子に対して適応した場合、より深刻であると推測できる。複数パルス化によってその寄与が小さくなったため、重元素同位体分離の実現可能性が高くなった、と評価した。

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1件)

- ① H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, "Isotope-selective ionization utilizing molecular alignment and non-resonant multiphoton ionization", *Appl. Phys. B* Vol. 109, No. 1, pp. 75-80 (2012), 査読有, DOI:10.1007/s00340-012-5222-3

[学会発表] (計6件)

- ① H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, "Molecular laser isotope separation without tunable lasers —Isotope-selective ionization utilizing molecular alignment and angular dependent ionization—", International Conference on Laser Applications in Nuclear Engineering (LANE'13), 2013年4月24日、Yokohama, Japan
- ② 赤木 浩, 笠嶋辰也, 熊田高之, 板倉隆二, 横山 淳, 長谷川宗良, 大島康裕, 「フェムト秒パルスレーザーによる分子回転制御を利用した同位体選択的イオン化」、第11回同位体科学研究会、2013年3月14日、東京・産総研 臨海副都心センター
- ③ H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, "Isotope Selective Ionization of N_2 Isotopologues utilizing Rotational Coherence and Angular Dependent Ionization", 第72回岡崎コンファレンス "Ultimate control of coherence", 2013年1月8日、岡崎市・岡崎カンファレンスセンター
- ④ H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa,

- and Y. Ohshima, "Isotope-selective ionization using four-pulse alignment", 28th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (化学反応討論会)、2012年6月7日、九州大学・筑紫キャンパス
- ⑤ 赤木 浩、笠嶋辰也、熊田高之、板倉隆二、横山 淳、長谷川宗良、大島康裕、「分子配列制御を利用した同位体選択的イオン化」、分子科学討論会 2011、2011年9月23日、札幌・札幌コンベンションセンター
- ⑥ 赤木 浩、笠嶋辰也、熊田高之、板倉隆二、横山 淳、長谷川宗良、大島康裕、"Isotope-selective ionization using laser molecular alignment", 第27回化学反応討論会、2011年6月9日、東京工业大学・大岡山キャンパス

[その他]

ホームページ等

<http://www.apr.kansai.jaea.go.jp/aprc/app-ils.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤木 浩 (AKAGI HIROSHI)

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・研究副主幹

研究者番号：70354818

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者

熊田 高之 (KUMADA TAKAYUKI)

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・研究主幹

研究者番号：00343939

板倉 隆二 (ITAKURA RYUJI)

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・研究副主幹

研究者番号：80334241

大島 康裕 (OHSHIMA YASUHIRO)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・教授

研究者番号：60213708

長谷川 宗良 (HASEGAWA HIROKAZU)

東京大学・総合文化研究科・准教授

研究者番号：20373350