

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 21 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289367

研究課題名(和文) 波形整形レーザーパルスによる分子整列制御の回転コヒーレンス同位体分離への応用

研究課題名(英文) Application of molecular alignment technique with an intense shaped laser pulse to rotational coherence molecular laser isotope separation

研究代表者

赤木 浩 (AKAGI, Hiroshi)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・主幹研究員(定常)

研究者番号：70354818

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：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に対し、プラズマシャッターを利用した波形整形ナノ秒レーザーパルスによる分子整列技術を組み合わせた。波形整形ナノ秒パルス発生、およびそれを利用したN₂分子同位体分離実験により、本手法の原理実証を行った。さらに、重元素に対する有用性を示すため、I¹²⁷Br同位体分子(I¹⁷⁹BrおよびI¹⁸¹Br)に対する回転波束計算を行い、フェムト秒パルスを使った従来法より高い選択性が容易に実現することが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：We have proposed a laser isotope separation method utilizing molecular alignment and angular dependent ionization. In the present research, we applied a "switched" nano-second laser pulse for N₂ alignment. We demonstrated N₂ isotope selective ionization for 14N₂ and 15N₂ gas mixture. We demonstrated theoretically that isotope selective ionization for I¹⁷⁹Br and I¹⁸¹Br can be realized with the present approach.

研究分野：物理化学・同位体化学

キーワード：同位体分離 回転コヒーレンス 波形整形パルス 非共鳴多光子イオン化

1. 研究開始当初の背景

(1) 回転コヒーレンス同位体分離法の研究・開発の重要性

重元素に対する同位体分離技術の向上は、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・処分的高度化に繋がる。長寿命核種除去や有用元素回収の実現には、多量の同位体混合物を処理可能で、かつ高い同位体選択性を得られる手法が必要となる。本研究代表者らは、分子振動数の差を利用して同位体分離する、一般的な分子レーザー同位体分離法を軽元素 (Si) 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 [Ohba, Akagi ら、JJAP2008]。

しかし、一般的分子レーザー法は、対象元素の質量が大きくなると選択性が低下するという問題点がある。質量が大きくなると振動数差が減少するのが主因である。その解決のため、本研究代表者らは新しい原理に基づく“回転コヒーレンス同位体分離法”を考案した [赤木ら、特許(出願 2006)]。この手法は、同位体分子の回転周期差を利用して形成される同位体選択的な分子整列状態を利用する方法である (図 1)。回転周期差は、対象元素質量に対する依存性が小さい [Akagi ら、APB2009]。例えば等核 2 原子分子の場合、回転周期差は同位体質量の差に比例する [$\Delta T_{rot} \propto (m_a - m_b)$] が、質量 m_i には依存しない。従って、回転コヒーレンス同位体分離法は重元素の高効率分離法としての可能性を秘める。

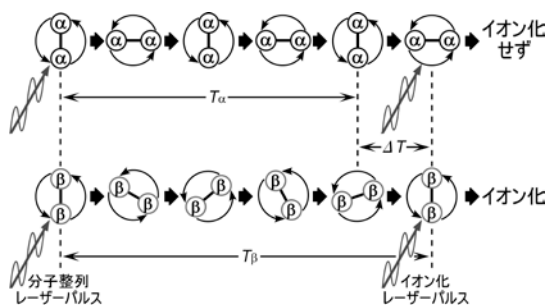


図 1. 回転コヒーレンス同位体分離法 の概念図

(2) これまでの実験結果および問題点

回転コヒーレンス同位体分離法の原理を、 N_2 分子の同位体混合ガス ($^{14}N_2/^{15}N_2$) に対するイオン化で実証した [Akagi, Kumada, Itakura, Hasegawa, Ohshima ら、APB2012]。直線偏光したフェムト秒レーザー (分子整列パルス) を混合ガスに照射して回転ラマン遷移を誘起し、分子軸の揃った分子集団を形成した。この分子整列状態は分子回転とともに崩れていくが、分子回転周期後に再び分子が整列する。この分子集団に対し、直線偏光・フェムト秒レーザー (イオン化パルス) を照射

し、非共鳴多光子イオン化を起こした。 N_2 分子は分子軸が偏光方向に揃った時にイオン化確率が最大になるという性質を持つため [Otohe ら、PRA2004]、整列した分子を優先的にイオン化できる。異なる同位体分子では回転周期に僅かな差が有るため、分子整列の時刻にズレが生じる。イオン化パルスの照射を、一方の同位体分子だけが整列する時刻に合わせて行うことで、同位体選択的なイオン化に成功した。

一方、 N_2 の実証実験で得られた選択性は ~ 1.2 と低く、理論的に期待される選択性の最大値 (~ 11) の $1/9$ 程度でしかなかった。その主因は、分子整列パルスでイオン化が起きないようにレーザー強度を低く抑える必要が有ることにある。分子整列パルスでのイオン化には同位体選択性が無いため、分子整列パルスのレーザーピーク強度を低く抑えてイオン化を避ける必要があり、高い分子整列状態を実現することは難しい。一般に、重元素分子はより低いイオン化ポテンシャルを有するため、この問題は、重元素分子に対してより顕著に現れる。従って、重元素同位体分離に適応する際の大きな障害となり得る。

この問題を避けるためには、分子整列パルスのピーク強度を低く抑えたまま、高い分子整列状態を得ることが重要となる。例えば、分子整列パルスを 4 分割してピーク強度を抑えることで、 N_2 同位体での選択性が ~ 2 に向上することを実証した [Akagi, Kumada, Itakura, Hasegawa, Ohshima ら、PRA2015]。しかし、分子整列を劇的に向上させるにはパルス分割数を大幅に増やす必要があり、光学システムの複雑化のため、現実的ではない。

(3) プラズマシャッターを用いた波形整形ナノ秒レーザーパルスを利用する理由

低いピーク強度で高い分子整列状態を得る方法として、プラズマシャッターを利用した波形整形ナノ秒レーザーパルスを用いる方法がある [Sussman ら、PRA2006]。この波形整形パルスは、フェムト秒パルスで発生したプラズマにより、ナノ秒レーザーパルス (パルス幅: 数ナノ秒) のパルス後半部分を急峻に (~ 100 fs) 遮断することで形成される (図 2 上図)。

この波形整形レーザー場中の分子集団は、徐々に強くなるレーザー場によって分子回転が抑制され、強制的にレーザー場方向に整列させられる。その後の急峻なレーザー場の消失によって、回転の制約がなくなり、自由に回転し始める。この分子集団の回転運動は初期位相が揃っているため、フェムト秒パルスによる分子整列と同様に、回転周期ごとに分子整列状態を形成する (図 2 下図)。この方法を OCS 分子に適応した場合、 $I_0 = 2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のピーク強度でより高い分子整列 (空間異方性 $\beta=0.92$) が実現された [Goban ら、PRL2008]。この結果を、 N_2 同

位体での実証実験 ($I_0 = 1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\beta = 0.11$) と比較すると、1/5 のピーク強度で 8 倍の分子整列が実現していることになり、イオン化を抑制しつつ高い分子整列状態が得られる。またパルス分割の場合と比べて、光学システムは非常に簡単である。この方法を用いれば、選択性の大幅な向上が実現できる可能性がある。

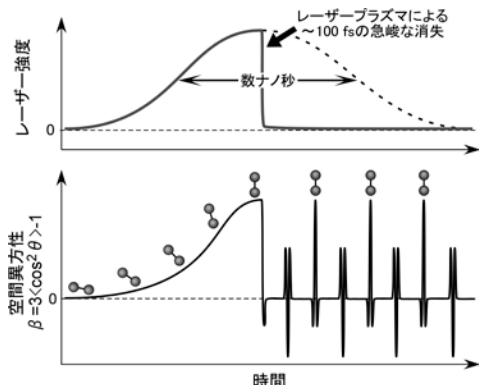


図2. プラズマシャッターによる波形整形レーザーパルスの、レーザー強度(上図)と分子整列状態(下図)の時間変化

2. 研究の目的

本研究の目的は、(1)波形整形ナノ秒レーザーパルスによる分子整列を利用して N_2 分子に対する同位体分離を実現し、同位体選択性を評価すること、(2)重元素同位体分離に対する有用性を明らかにすること、の2点である。

3. 研究の方法

具体的には、以下の4つを実施した。

- (1) 波形整形ナノ秒レーザーパルス発生システムの構築、並びに発生パルスの時間波形評価。
- (2) 波形整形ナノ秒パルスを用いた N_2 分子に対する窒素同位体分離実証実験。
- (3) N_2 回転波束計算を用いた窒素同位体分離の理論予測。
- (4) IBr 回転波束計算を用いた臭素同位体分離の理論予測。

4. 研究成果

- (1) 波形整形ナノ秒パルス発生システム構築、並びに発生パルスの時間波形評価

まず、波形整形ナノ秒レーザーパルス発生システムを構築した。直線偏光したナノ秒レーザーパルスとして、injection seeder 付 Nd:YAG レーザーの出力 (波長:1064 nm、時間幅 ~6 ns) を用いた。ナノ秒レーザーの光路上にセットしたエチレングリコールの液膜シート (厚さ数 10 μm 程度) にプラズマシャッター用のフェムト秒レーザーパルス (波長~800 nm、時間幅~60 fs) を照射することでプラズマを発生させた。プラズマシャッター

用パルスの照射時刻をナノ秒レーザーパルスのピーク時刻に合わせることで、発生したプラズマによってナノ秒レーザーパルスの後半部分を遮断し、波形整形ナノ秒パルスを作った。

発生した波形整形ナノ秒パルスの時間波形を評価するために、波形整形ナノ秒パルスとフェムト秒パルスを遅延時間を変化させながら非線形結晶 (BBO type I, 厚さ 0.2 mm) に照射し、発生する和周波光 (~455 nm) の強度を観測した (図3)。得られた波形整形ナノ秒パルスは、約 200 fs の時間幅でピークの 5% 以下の強度まで急峻に立ち下っており、5% 以下の強度のままの状態が 650 ps 程度まで持続していることが確認できた。すなわち、理想的な条件に近い波形整形ナノ秒パルスが発生できた。

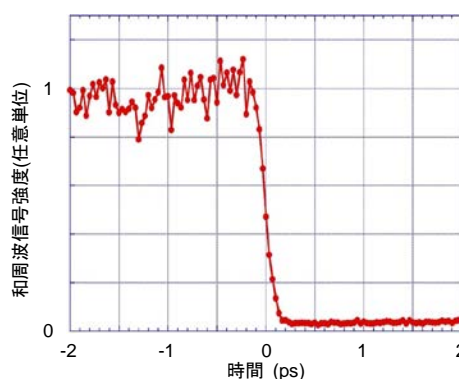


図3. フェムト秒レーザーパルスとの和周波発生によって観測された、波形整形ナノ秒レーザーパルスの時間波形

- (2) 波形整形ナノ秒パルスを用いた N_2 分子に対する窒素同位体分離実証実験

N_2 分子の同位体混合ガス ($^{14}\text{N}_2$ および $^{15}\text{N}_2$) に対して、プラズマシャッターによる波形整形ナノ秒レーザーパルスを利用した分子整列を適応し、同位体分離が実現することを実証した。 $^{14}\text{N}_2$ と $^{15}\text{N}_2$ の 1:1 混合ガスを Ar と He で希釈した上で、真空チャンバー内にパルスバルブを使用して導入した。そのガスジェットに対し、波形整形ナノ秒パルスとイオン化パルスをレンズで集光して照射した。イオン化パルス光の照射時刻を変えながら、飛行時間型質量分析装置で各同位体分子のイオン収量を測定した。その結果を図4の細線として示す。 $^{14}\text{N}_2^+$ イオン収量 (上図) および $^{15}\text{N}_2^+$ イオン収量 (中図) が遅延時間とともに変化していること、回転周期の違いでディップ (4~5 ps)、ピーク (8~9 ps) の現れる遅延時間が異なることが分かる。その結果、イオン収量比 ($^{15}\text{N}_2^+ / ^{14}\text{N}_2^+$, 下図) も遅延時間とともに、変化した。すなわち、遅延時間を選ぶことで、一方の同位体分子を優先的にイオン化できる。この結果は、本手法で、同位体分離が実現することを示している。

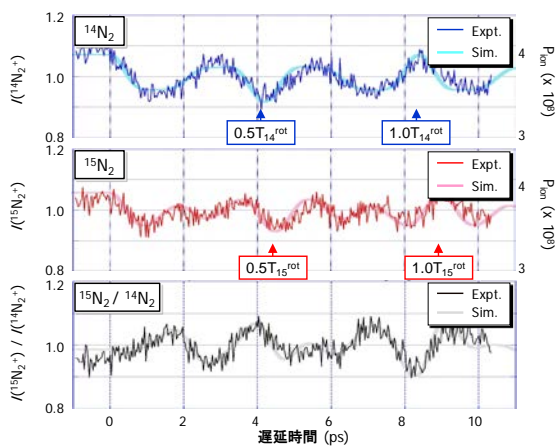


図4. 波形整形ナノ秒パルスを利用したN₂の窒素同位体分離実験結果(細線)と、理論計算結果(太線)。

(3) N₂ 回転波束計算を用いた窒素同位体分離の理論予測

N₂ 同位体分離実験の結果が妥当であることを示すために、時間依存シュレディンガー方程式に基づく回転波束計算を実施し、実験結果と比較を行った。図4の太線は、実験条件に近い条件(波形整形ナノ秒パルス強度 $I_0 = 6 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 、イオン化パルス強度 $I_0 = 6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 、分子回転温度 10 K)で回転波束計算を行った結果である。理論計算結果は実験結果を再現しており、本実験の妥当性を示している。

(4) IBr 回転波束計算を用いた臭素同位体分離の理論予測

本手法の重元素に対する有用性を示すために、より重い元素である臭素を含む2原子分子であるIBrの2つの臭素同位体分子

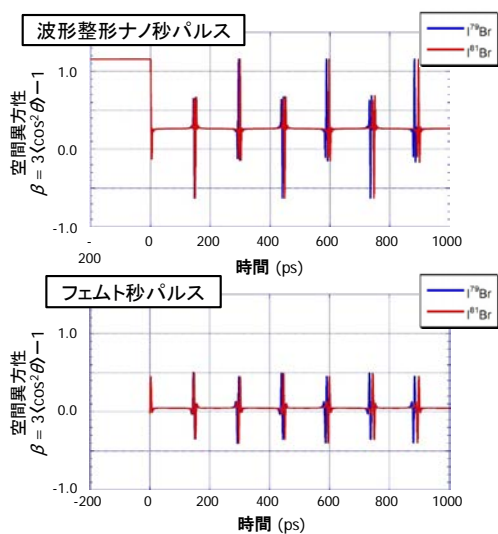


図5. IBr(回転温度 10 K)の空間異方性の時間変化。波形整形ナノ秒パルス(上図、 $I_0 = 2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$)とフェムト秒パルス(下図、 $I_0 = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)に対する計算結果。

(¹⁷⁹Br および ¹⁸¹Br) に対して回転波束計算を実施した。回転波束計算に必要な、IBr分子の分極率異方性は、時間依存密度汎関数理論に基づくシミュレーションにより算出した。図5は、波形整形ナノ秒パルス(上図、 $I_0 = 2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$)と、60フェムト秒パルス(下図、 $I_0 = 2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)でIBr(回転温度 10 K)の分子整列を行った場合の、分子の空間異方性の時間変化の計算結果である。レーザーピーク強度が1/10の波形整形ナノ秒パルスの方が、フェムト秒パルスよりも異方性の振幅が~2倍あり、分子整列度が高くなった。この結果は、波形整形ナノ秒パルスを利用すれば、IBrの分子整列度を、より低いピーク強度で高くすることが出来ることを示している。すなわち、本手法が重元素に対して有用であることを表している。

さらに、IBr分子のイオン化角度依存性を利用して、2つの臭素同位体分子(¹⁷⁹Brおよび¹⁸¹Br)のイオン収量、並びにイオン収量比の遅延時間依存性を算出した。IBr分子のイオン化角度依存性は、実験・理論予測ともに存在しないので、時間依存密度汎関数理論に基づくシミュレーションにより算出した(図6)。IBr分子軸とイオン化パルスの偏光が平行になったときにイオン化確率が最小となり、相対角度が~60°のときにイオン化確率が最大になることが分かった。このイオン化角度依存性を利用することで、IBr分子(回転温度 10 K)に波形整形ナノ秒パルス($I_0 = 2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$)を作用させた後、イオン化パルス(時間幅 60 fs、 $I_0 = 1.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)でイオン化した場合について、理論計算を行った。波形整形ナノ秒パルスとイオン化パルスの相対偏光角度を変えながら計算を行った結果、イオン収量比(¹⁸¹Br⁺/¹⁷⁹Br⁺)は、相対偏光角度0°の時に0.65~1.6の幅で変動し、最も変動が大きくなった。すなわち、波形整形ナノ秒パルスを利用すれば、高い同位体選択性の実現可能であることが明らかになった。

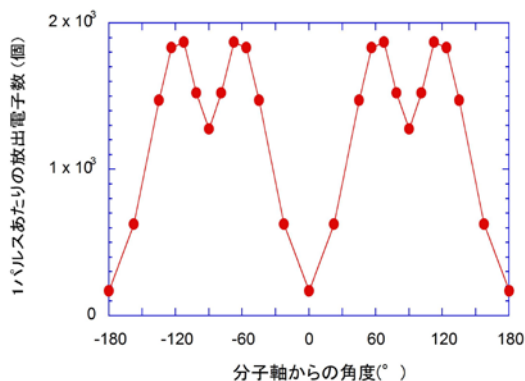


図6. 時間依存性密度汎関数理論に基づくシミュレーションによって算出されたIBrのイオン化角度依存性($I_0 = 1.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)。

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 2 件)

- ① 赤木 浩、「フェムト秒レーザーによる分子整列制御を利用した同位体選択イオン化」, *O plus E* Vol. 38, No. 5, pp. 427-431 (2016), 査読無
- ② H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, “Isotope-selective ionization utilizing field-free alignment of isotopologues with a train of femtosecond laser pulses”, *Phys. Rev. A* Vol. 91, No. 6, pp. 063416 (7 pages) (2015), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevA.91.063416

[学会発表] (計 10 件)

- ① H. Akagi, “Isotope-selective ionization utilizing molecular alignment and angular dependent ionization induced by femtosecond laser pulses”, Symposium on Diversity of Chemical Reaction Dynamics, 2017年7月14日、姫路じばさんビル(兵庫県姫路市)
- ② 赤木 浩、熊田高之、乙部智仁、板倉隆二、長谷川宗良、大島康裕「Switched ナノ秒レーザーパルスによる N₂ 同位体選択イオン化」第9回文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」シンポジウム、2017年1月24日、弘済会館(東京都千代田区)
- ③ 赤木 浩「fs レーザーによる分子整列制御を利用した同位体選択イオン化」レーザー応用技術 産学官連携成果報告会(平成28年度)、2016年11月24日、福井大学附属国際原子力工学研究所(福井県敦賀市)
- ④ H. Akagi, T. Kumada, T. Otake, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, “Isotope-selective ionization utilizing molecular alignment with shaped laser pulse; Current status of shaped laser pulse generation”, 32th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (化学反応討論会)、2016年6月1日、大宮ソニックシティー(埼玉県さいたま市)
- ⑤ H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, “Isotope-selective ionization utilizing molecular alignment and angular dependent ionization induced by intense laser field”, EMN Meeting on Light-Matter Interactions 2016, 2016年5月13日、Singapore (Singapore)
- ⑥ 赤木 浩、熊田高之、乙部智仁、板倉隆二、横山 淳、長谷川宗良、大島康裕「波形整形レーザーパルスによる分子配向

制御を利用した同位体選択的イオン化: 波形整形パルス発生状況報告」第14回同位体科学会研究会 2016年3月11日、産業技術総合研究所臨海副都心センター(東京都江東区)

- ⑦ 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 of N₂ isotopologues using femtosecond laser-induced molecular alignment”, Pacificchem 2015, 2015年12月16日、Honolulu (USA)
- ⑧ 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「フェムト秒パルス列による分子整列を利用した N₂ 同位体選択的イオン化」分子科学討論会 2015, 2015年9月18日、東京工業大学大岡山キャンパス(東京都目黒区)
- ⑨ 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: 複数パルス化による高選択性の実現」第13回同位体科学会研究会、2015年3月5日、産業技術総合研究所臨海副都心センター(東京都江東区)
- ⑩ H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, “Improvement in selectivity of isotope-selective ionization utilizing molecular alignment and angular dependent ionization”, 30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (化学反応討論会)、2014年6月4日、イーグレ姫路(兵庫県姫路市)

[その他]

ホームページ等

<http://www.kansai.qst.go.jp/organization-1-3.html>

1

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤木 浩 (AKAGI, Hiroshi)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・主幹研究員(定常)

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)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 物質科学研究センター・グループリーダー(定常)

研究者番号：00343939

乙部 智仁 (OTOBE, Tomohito)
国立研究開発法人量子科学技術研究開発
機構・関西光科学研究所 光量子科学研究
部・主幹研究員 (定常)
研究者番号：60421442

板倉 隆二 (ITAKURA, Ryuji)
国立研究開発法人量子科学技術研究開発
機構・関西光科学研究所 光量子科学研究
部・グループリーダー (定常)
研究者番号：80334241

大島 康裕 (OHSHIMA, Yasuhiro)
東京工業大学・理学院・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

(4) 研究協力者 なし