

金基板上に作製したクロロベンゼン多層膜の光誘起脱離過程の観測
(原子力機構) ○佐伯盛久

【序】同位体分離は重水の製造に代表されるように様々な産業分野で利用される技術であり、今までに数々の手法が開発されている。レーザー分離法はその同位体分離技術の1つであり、同位体シフトにより電子遷移の吸収波長がわずかに異なることを利用して特定の同位体だけを多波長多段階励起によりイオン化する原子法と、振動遷移の吸収波長が異なることを利用して特定の同位体を含む分子だけを振動励起した後に分解する分子法が主に研究されてきた。しかし、いずれの手法でも多段階励起過程を利用するため、エネルギー効率はあまりよくない。そこで、発表者は1光子過程によるレーザー分離法を開発することを目的として、固体表面に吸着した分子に紫外光を照射し、電子基底状態から電子励起状態の振動励起準位への吸収波長の違いを利用して特定の同位体を含む分子だけを光脱離させる分離法を考案した。本研究ではこの手法の可能性を追究するために、ナノ秒レーザーを用いて金基板上に作製したクロロベンゼン(C_6H_5Cl)多層膜の光脱離を試み、同位体間($C_6H_5^{35}Cl$ および $C_6H_5^{37}Cl$)での違いを調べたので報告する。

【実験方法】本研究のために製作した実験装置を図1に示す。まず冷却部の試料台の上にアセトンで洗浄した金基板を設置し、装置内を真空引きしてから、金基板を550 K程度まで加熱して表面を清浄化する。次に、基板を160 Kまで冷却し、その温度を保ったまま試料導入部から蒸気を吹き付けてクロロベンゼン多層膜を基板上に作製した後、さらに基板を135 Kまでゆっくりと冷却する。そして、色素レーザー光の二次高調波発生により得られる紫外レーザー光を作製したクロロベンゼン多層膜に照射し、それにより生じる光脱離生成物を四重極質量分析計を通して検出した。なお、レーザーの繰り返しは1Hzに設定した。検出したシグナルは1M Ω インピーダンスのンプにより増幅し、オシロスコープにより観測した。

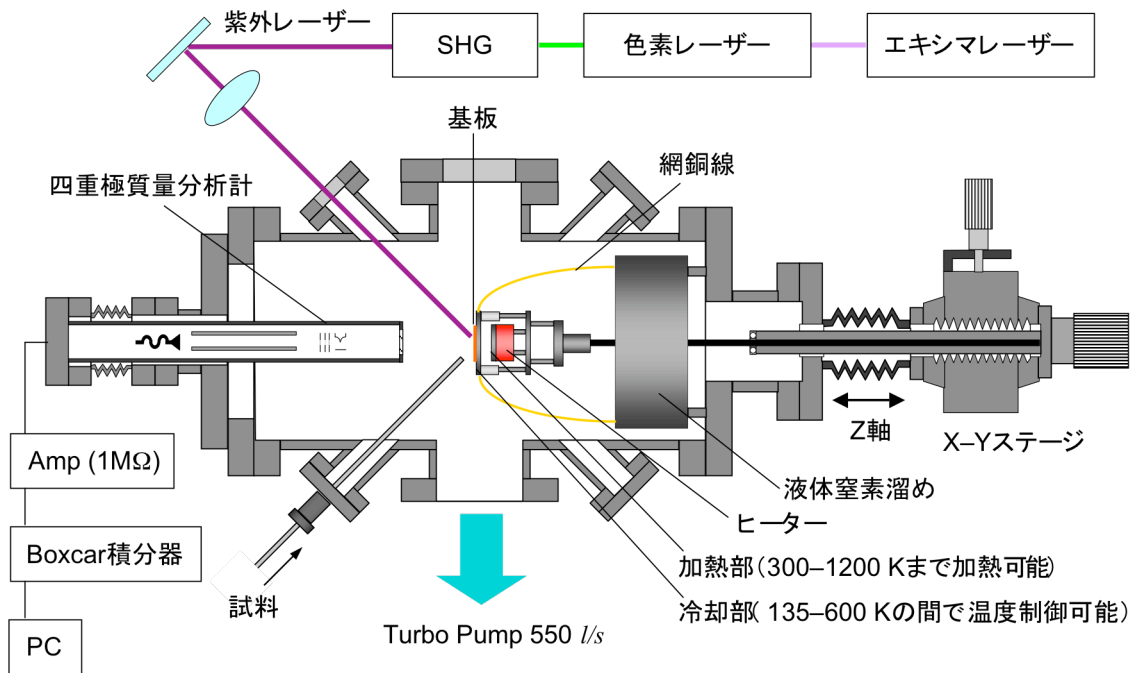


図1 実験装置

【結果と考察】図2に261 nmの紫外レーザー光を照射した時に得られた $C_6H_5^{35}Cl$ の光脱離シグナルの時間変化を示す。この波長付近にはクロロベンゼンの S_1 状態の振動励起準位が多数存在しており、それらの準位への励起エネルギーが脱離エネルギーに変換されることにより光脱離が起こったものと考えられる。図2より、 $C_6H_5^{35}Cl$ の光脱離には2種類の過程が関与しており、2 ms程度で減衰する早い過程と9 ms以上にわたって脱離し続ける遅い過程に分類できることがわかる。一方、試料を観察するとレーザー照射終了後もしばらくの間青白く発光しており、261 nm付近の紫外光を吸収してクロロベンゼン多層膜はりん光を発することがわかった。凝縮相におけるクロロベンゼンのりん光発光過程はよく調べられており、それによとりん光発光過程も ~ 3 msの寿命をもつ早い成分と ~ 12 msの寿命をもつ遅い成分に分類でき、それぞれ $S_0 \leftarrow T(\pi, \sigma^*)$ 遷移と $S_0 \leftarrow T(\pi, \pi^*)$ 遷移に帰属されることが知られている[1,2]。これらのりん光発光過程の寿命が今回観測された光脱離過程の寿命とほぼ一致していることより、クロロベンゼンは S_1 状態から T_1 状態へ無輻射過程により速やかに緩和した後、 T_1 状態からりん光発光または分子間振動モードへのエネルギー移動によりゆっくりと緩和していくものと考えられる。そして、分子間振動モードへのエネルギー移動の結果、光脱離が起こったものと予想している。

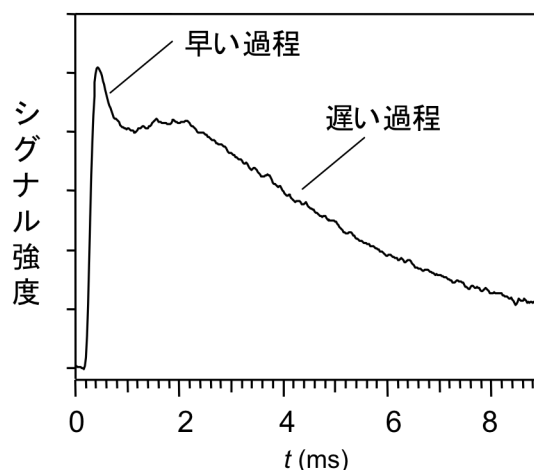


図2 光脱離シグナルの時間変化

さらに、同位体間で光脱離する吸収波長に違いがあるか確認するために、 $C_6H_5^{35}Cl$ および $C_6H_5^{37}Cl$ の光脱離シグナルをモニターしながら、257.5–262.5 nmの領域で波長掃引を行い、光脱離スペクトルを測定した。その結果、図3に示すように $C_6H_5^{35}Cl$ 、 $C_6H_5^{37}Cl$ のどちらの場合でも259.1 nmおよび260.8 nm付近で脱離効率が最大になる2つのブロードなバンドが観測され、この実験条件では脱離効率が波長に依存して変化することが確認できた。しかし、バンドの位置は同位体間でほとんど変化せず、同位体分離を行うためにはさらなる工夫が必要であることがわかった。

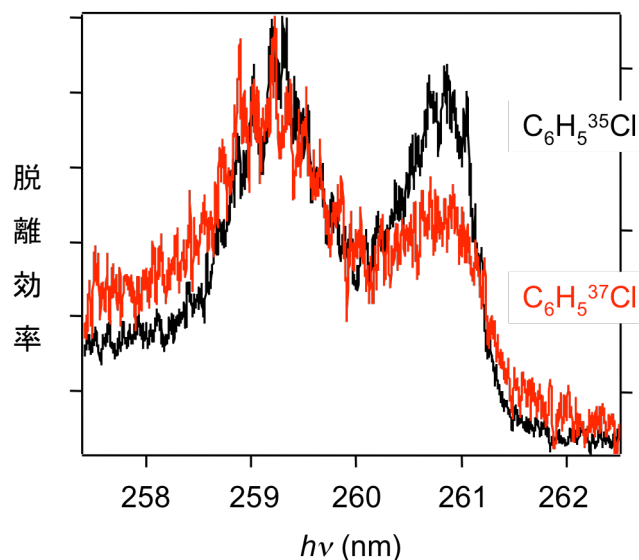


図3 光脱離スペクトル

[1] T. Takemura *et al.*, Chem. Phys. 68 (1982) 171.

[2] Y. Liu *et al.*, J. Chem. Phys. 121 (2004) 11000.

※本研究は科学研究費補助金（若手研究(B)）の補助を受けて行った。