

フェムト秒レーザーの複数パルス照射による同位体選択的回転励起 (¹原子力機構・関西、²東大院・総合文化、³分子研) 赤木 浩¹、笠嶋 辰也¹、熊田 高之¹、 板倉 隆二¹、横山 淳¹、長谷川宗良²、大島 康裕³

Isotope-selective rotational excitation with a sequence of femto-second laser pulses

(¹JAEA-KPSI, ²Univ. of Tokyo, ³Institute for Molecular Science) ○Hiroshi Akagi¹,
Tatsuya Kasajima¹, Takayuki Kumada¹, Ryuji Itakura¹, Atsushi Yokoyama¹,
Hirokazu Hasegawa², Yasuhiro Ohshima³

[緒言] フェムト秒レーザーによる分子整列[1]と、高強度・フェムト秒レーザーによる角度依存イオン化[2, 3]を利用した同位体分離法の研究を、窒素同位体分子(¹⁴N₂と¹⁵N₂)の混合ガスに対して行っている。直線偏光したフェムト秒レーザーを照射すれば、非共鳴回転ラマン励起によって分子回転コヒーレント状態が形成され、その結果、レーザーパルス照射直後に、分子軸が偏光方向に揃った分子整列状態が形成される[1]。その分子整列状態は、時間の経過とともに崩れていくが、回転周期後に再び整列状態が回復する。回転周期は同位体分子で異なるため、再整列のタイミングが同位体分子で異なる[4]。一方の同位体分子だけが再整列したタイミングで、高強度の直線偏光・フェムト秒レーザーパルスを照射すれば、イオン化確率は分子軸と偏光方向の相対角度に依存するため[2, 3]、同位体選択的なイオン化が実現できる。これまでに、フェムト秒レーザーの1パルス照射による分子整列を利用することで、同位体選択的なイオン化を実証した[5]。また、フェムト秒レーザー4パルスを125.7 ps 間隔(¹⁴N₂の15周期、¹⁵N₂の14周期に相当)で連続的に照射することによって双方の同位体分子をより整列させることで、イオン化の同位体選択性を高く出来ることも示した[6]。

一方の同位体分子の回転周期(¹⁴N₂では8.38 ps、¹⁵N₂では8.98 ps)に間隔を合わせたフェムト秒レーザーパルス列を照射すれば、周期の合った同位体分子の回転ラマン励起が優先的に進行し[7]、一方の同位体分子だけが回転コヒーレンスを有する状態の形成が期待できる。本研究では、同位体選択的な回転コヒーレント状態を実現することを目的に、同位体混合ガスに対し、8.38 ps(= T_{14}^{rot})間隔あるいは8.98 ps(= T_{15}^{rot})間隔でのパルス列照射実験を行った。

[実験方法] フェムト秒レーザーパルス(中心波長 795 nm、パルス幅 60 fs)を、ビームスプリッターを利用して分子整列用パルスとイオン化用パルスに分けた後、分子整列用パルスを多段のマイケルソン干渉計[8]を通すことで連続する4パルスとした。真空チャンバー内に導入した¹⁴N₂/¹⁵N₂/Ar/He混合ガスジェット(混合比¹⁴N₂:¹⁵N₂:Ar=1:1:8:30、回転温度~30 K)に対し、分子整列用のパルス列とイオン化用パルスをレンズで集光して照射した。生成する¹⁴N₂⁺および¹⁵N₂⁺イオンを飛行時間型質量分析装置で同位体を選別して検出した。レーザー強度揺らぎから生じるイオン収量の揺らぎを補正するため、同時に検出されるAr⁺イオン収量で normalize を行い、各同位体イオン収量 $I(i\text{N}_2^+)$ ($i=14$ または 15)とした。

[結果と考察] Fig. 1 は、¹⁴N₂の回転周期($T_{14}^{rot}=8.38$ ps)間隔の4パルスを同位体混合ガスジェットに照射し、遅延時間 t の後にイオン化用パルスを照射して生成した各同位体イオンの収量 $I(i\text{N}_2^+)$ を t

に対してプロットした図である。照射パルス間隔が回転周期に一致する $^{14}\text{N}_2$ のイオン収量(赤・実線)は、回転 1/2 周期に相当する 4.2 ps 付近、および 1 周期に相当する 8.4 ps 付近で大きな振幅の振動を示すのに対し、照射パルス間隔が回転周期($T_{15}^{\text{rot}}=8.98$ ps)と異なる $^{15}\text{N}_2$ のイオン収量(青・破線)は小さな振幅の振動を示すだけである。一方、照射パルス間隔を $^{15}\text{N}_2$ の回転周期(T_{15}^{rot})に合わせると、今度は $I(^{15}\text{N}_2)$ に大振幅振動が現れた。このことから、予想通り、照射パルス間隔を回転周期に一致させる事で、狙った同位体分子の回転コヒーレント状態を選択的に作り出すことに成功した。

得られたイオン収量の遅

延時間依存性は、コヒーレントに回転励起された状態成分に関する情報を含んでいる。そこで、その遅延時間依存性のフーリエ変換を行うことで、コヒーレント成分に関する回転状態分布を求めた[9]。照射パルス間隔が $T_{14}^{\text{rot}}(=8.38$ ps) に等しいときの結果を Fig. 2 に示す。横軸は B_1c_0 を単位とした振動周期 $\Delta\omega_{J,J+2}$ である。相当するラマン遷移($J+2 \leftarrow J$)の下準位の回転量子数 J を上端に示してある。 $^{14}\text{N}_2$ は主に $J=10 \sim 14$ に分布しているのに対し、 $^{15}\text{N}_2$ は主に $J=1 \sim 3$ に分布している。従って、従って、望む同位体分子のみを選択的に高回転励起することで、同位体選択的な回転コヒーレント状態が実現されていることを示すことが出来た。

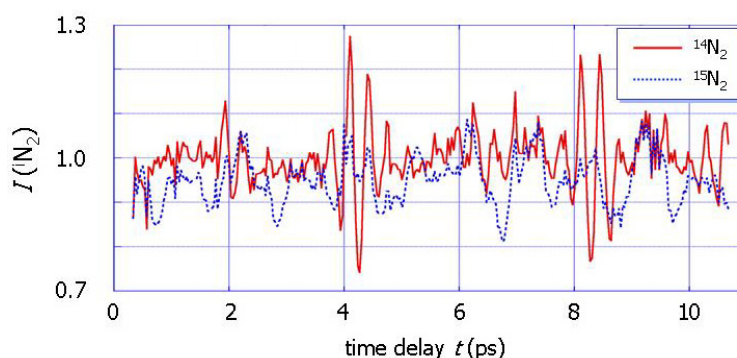


Fig. 1 $^{14}\text{N}_2$ の回転周期(8.38ps)間隔の 4 パルス照射によって生成した $^{14}\text{N}_2$ と $^{15}\text{N}_2$ の回転コヒーレント状態の、イオン収量 $I(\text{N}_2)$ のイオン化用パルス遅延時間依存性。赤・実線は $I(^{14}\text{N}_2)$ 、青・破線は $I(^{15}\text{N}_2)$ 。

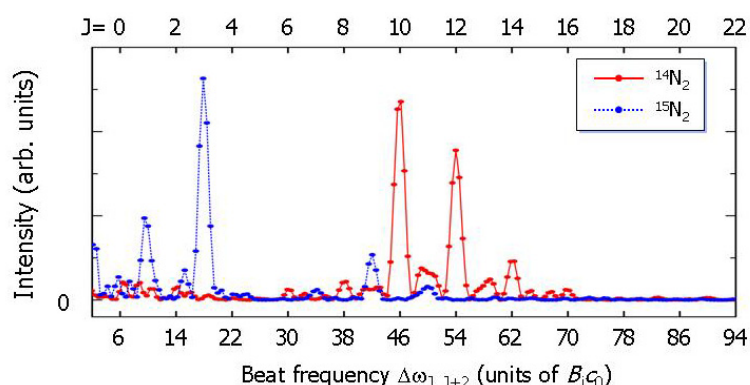


Fig. 2 $^{14}\text{N}_2$ の回転周期(8.38ps)間隔の 4 パルス照射の場合のイオン収量の遅延時間依存性に対するフーリエ変換パワースペクトル。横軸は B_1c_0 単位での振動周期。相当するラマン遷移($J+2 \leftarrow J$)の回転準位 J を上端に示してある。赤線は $^{14}\text{N}_2$ 、青線は $^{15}\text{N}_2$ に対する結果。

[参考文献]

- [1] H. Hasegawa and Y. Ohshima, *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 053002 (2008).
- [2] R. Itakura, H. Hasegawa, Y. Kurosaki, A. Yokoyama, and Y. Ohshima, *J. Phys. Chem. A*, **114**, 11202 (2010).
- [3] D. Pavičić, K.F. Lee, D.M. Rayner, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 243001 (2007).
- [4] H. Akagi, H. Ohba, K. Yokoyama, A. Yokoyama, K. Egashira, and Y. Fujimura, *Appl. Phys. B*, **95**, 17 (2009).
- [5] H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, *Appl. Phys. B*, **109**, 75 (2012).
- [6] H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, 第 28 回化学反応討論会学会要旨集 (2012).
- [7] S. Zhdanovich, C. Bloomquist, J. Floß, I. Sh. Averbukh, J.W. Hepburn, and V. Milner, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 043003 (2012).
- [8] C.W. Siders, J.L.W. Siders, A.J. Taylor, S.-G. Park, and A.M. Weiner, *Appl. Opt.* **37**, 5302 (1998).
- [9] F. Rosca-Pruna and M.J.J. Vrakking, *J. Chem. Phys.* **116**, 6579 (2002).