3A01

フェムト秒パルス列による分子整列を利用した N_2 同位体選択的イオン化

(1原子力機構・関西、2東大院・総合文化、3東工大院・理工) ○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 ionization utilizing molecular alignment of N_2 isotopologues with a train of femtosecond laser pulses

([1]JAEA-KPSI, [2]Univ. of Tokyo, [3] Tokyo Institute of Technology) ○Hiroshi Akagi [1], Tatsuya Kasajima [1], Takayuki Kumada[1], Ryuji Itakura [1], Atsushi Yokoyama[1], Hirokazu Hasegawa [2], Yasuhiro Ohshima [3]

[序] フェムト秒レーザーパルスによる分子整列[1]とイオン化の角度依存性[2, 3]を利用した同位体分離の研究を、窒素同位体分子($^{14}N_2$ と $^{15}N_2$)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パルス(分子整列パルス)を照射すれば、非共鳴回転ラマン励起により、N_2 同位体分子の回転コヒーレント状態が形成される。その結果、パルス照射直後には分子軸が偏光方向に揃った分子整列状態が形成され、さらに、整列状態と反整列状態(分子軸が偏光に対して垂直方向に揃った状態)を回転周期ごとに繰り返す[1]。等核 2 原子分子の回転周期は、剛体回転子近似の元では、次式に示すように同位体の原子質量数 i に比例する。

$$T_{\mathrm{i}}^{\mathrm{rev}} = \mathrm{i} \times \frac{2\pi^2 m_{\mathrm{u}} r^2}{h} \qquad (1)$$

ここで m_{u} は原子質量定数、r は核間距離、h はプランク定数である。即ち、$T_{\mathrm{i}}^{\mathrm{rev}}$ は同位体分子ごとに異なるため、ある特定の時間後に、一方の同位体分子が整列し、もう一方が反整列した状態が形成される[4]。このタイミングで直線偏光したフェムト秒パルス(イオン化パルス)を照射し、非共鳴多光子イオン化する。そのイオン化確率は、分子軸がイオン化パルスの偏光に対して平行になる時に高くなるため[2]、同位体選択的なイオン化が実現する。1 つの分子整列パルスによる実験で、イオン化パルスまでの遅延時間 t_{delay} を変えることで、イオン収量比 R [= $I(^{15}N_2^+)/I(^{14}N_2^+)$] を 0.85～1.22 の範囲で変化させられることを示した[5]。

両方の同位体分子の分子整列度をより高くすることが出来れば、より高い同位体選択性が得られる。本研究では、分子整列をフェムト秒レーザーパルス列で行うことで、より高い同位体選択性を実現することを目指す[6]。分子整列パルス列のパルス間隔 T_{interval} を、対象分子の回転周期に一致させて照射すれば、分子整列度が高くなることが報告されている[7]。

[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パルスとイオン化パルスに分けた後、分子整列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パルスを得た。真空チャンバー内に導入した$^{14}N_2/^{15}N_2$/Ar/He混合ガスジェット(混合比 $^{14}N_2:^{15}N_2:Ar=1:1:8:30$、回転温度～10 K)に対し、分子整列パルス列とイオン化パルスをレンズで集光して照射した。集光点での分子整列およびイオン化パルスのレーザーピーク強度は、それぞれ 8×10^{12} および 3×10^{13} W/cm^2 であった。生成する$^{14}N_2^+$および$^{15}N_2^+$イオンを飛行時間型質量分析装置で選別した上で検出し、各同位体イオン収量$I(^iN_2^+)$(i=14または15)とした。

[結果と考察]　Fig. 1(a)はパルス間隔 $T_{interval}$ を T_{14}^{rev} (= 8.38 ps)に合わせた場合の $I(^{14}N_2^+)$ と $I(^{15}N_2^+)$、Fig. 1(b)はその比 R の結果である。比較のため、1 つの分子整列パルスでの結果を Fig. 1(e) と (f) に示す。$T_{interval} = T_{14}^{rev}$ では、1 パルス条件より $I(^{14}N_2^+)$ の振幅が大きく、逆に $I(^{15}N_2^+)$ の振幅が小さくなる[Fig. 1(a)]。これは、パルス間隔が回転周期と合う $^{14}N_2$ の分子整列度が高くなった反面、回転周期と合わない $^{15}N_2$ の分子整列度が低下したことを示している[9]。その結果、R の振幅[Fig. 1(b)]は 1 パルス[Fig. 1(f)]とほとんど変わらない。

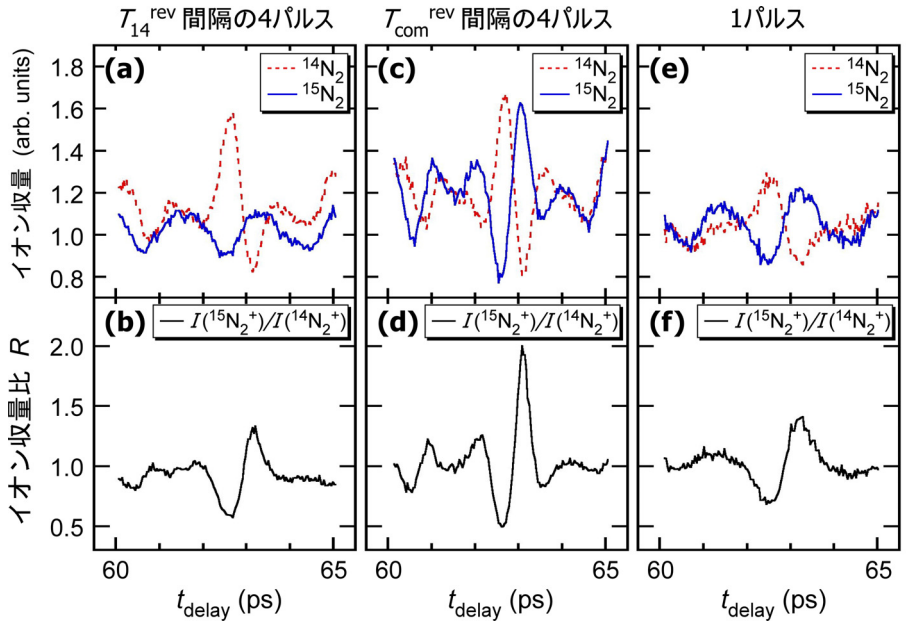

Fig. 1　(a) $T_{interval} = T_{14}^{rev}$ の場合の各同位体イオン収量と、(b) 収量比の遅延時間依存性。(c) $T_{interval} = T_{com}^{rev}$ の場合のイオン収量と、(d) 収量比。(e) 1 つの分子整列パルスでのイオン収量と、(f) 収量比。

一方で、式(1)の関係から、$^{14}N_2$ と $^{15}N_2$ は次式に示されるような共通の回転周期を持つ。

$$T_{com}^{rev} = 15T_{14}^{rev} = 14T_{15}^{rev} \quad (= 125.7 \text{ ps}) \qquad (2)$$

従って、$T_{interval} = T_{com}^{rev}$ では、パルス間隔が両方の同位体分子の回転周期に一致するため、選択性が向上することが期待される。そのパルス間隔での実験結果が Fig. 1(c)と 1(d)である。期待した通り、$I(^{14}N_2^+)$、$I(^{15}N_2^+)$ 共に振幅が大きくなり[Fig. 1(c)]、その結果、R の振幅[Fig. 1(d)]が 1 パルス照射時[Fig. 1(f)]の約 2 倍になった。R の変化範囲は 0.49～2.00 であった[6]。即ち、$T_{interval} = T_{com}^{rev}$ のパルス列を用いることで高い選択性が実現した。

本研究では 4 つのパルスから成るパルス列を用いたが、さらにパルス数を増やせば、より高い選択性が期待できる。時間依存シュレーディンガー方程式に基づく理論計算により、R の変化範囲のパルス数依存性を予測した。12 パルスまで増やした場合、R が 0.31～3.0 の範囲で変化し、より高い選択性が発現することが判った[6]。

[参考文献]

[1] H. Hasegawa and Y. Ohshima, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 053002 (2008).
[2] D. Pavičić, K.F. Lee, D.M. Rayner, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 243001 (2007).
[3] R. Itakura, H. Hasegawa, Y. Kurosaki, A. Yokoyama, and Y. Ohshima, *J. Phys. Chem. A* **114**, 11202 (2010).
[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, *Phys. Rev. A* **91**, 063416 (2015).
[7] J.P. Cryan, P.H. Bucksbaum, and R.N. Coffee, *Phys. Rev. A* **80**, 063412 (2009).
[8] C.W. Siders, J.L.W. Siders, A.J. Taylor, S.-G. Park, and A.M. Weiner, *Appl. Opt.* **37**, 5302 (1998).
[9] J. Floβ and I.Sh. Averbukh, *Phys. Rev. A* **86**, 021401 (2012).