

4P013

波形整形ナノ秒パルスによる分子整列制御を用いた IBr同位体選択的イオン化

¹量研・関西, ²原子力機構, ³東大院・総合, ⁴東工大・理
○赤木浩¹, 熊田高之², 乙部智仁¹, 板倉隆二¹, 長谷川宗良³, 大島康裕⁴

Isotope-selective ionization utilizing IBr alignment with a switched nanosecond pulse

○Hiroshi Akagi¹, Takayuki Kumada², Tomohito Otobe¹, Ryuji Itakura¹, Hirokazu Hasegawa³,
Yasuhiro Ohshima⁴

¹ *Kansai Photon Science Institute QST, Japan*

² *Materials Sciences Research Center, Japan Atomic Energy Agency, Japan*

³ *Department of Integrated Sciences, The University of Tokyo, Japan*

⁴ *Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Japan*

【Abstract】 The molecular laser isotope separation utilizing the field-free alignment is a strong candidate for an isotope separation method of heavy isotopes because the isotope selectivity does not decrease significantly as isotope mass of isotopologues increases. In the present work, we investigate Br-isotope selective ionization of IBr utilizing the alignment and angular dependent ionization. Because IBr isotopologues can be easily ionized by the alignment pulse due to its low ionization potential, we perform the experiments using different alignment pulses (60-fs, 300-fs, and switched 6-ns pulses) to investigate the alignment pulse dependence of the isotope selectivity. When we use the 60-fs pulse with its intensity of 8×10^{12} W/cm², the ion yield ratio of $R = I(I^{81}\text{Br}^+)/I(I^{79}\text{Br}^+)$ varies in the range of 0.90 to 1.13, as a function of time delay between the alignment and ionization pulses. The selectivity increases ($R = 0.87$ - 1.22) for the longer (300-fs) pulse with the same peak intensity. For the switched 6-ns pulse, the isotope separation is realized ($R = 0.93$ - 1.06) at the intensity being one order of magnitude lower than the fs pulses (5×10^{11} W/cm²).

【序】 我々のグループでは、高効率の重元素同位体分離を目指して、レーザーによる分子整列制御を利用した同位体選択的イオン化の研究を行っている。高強度レーザーの光電場によって分子の向きが揃った状態（分子整列状態）を作り出すと、回転周期後に再び分子整列状態が現れる。異なる同位体を含む分子は異なる回転周期を持つため、再整列する時刻が異なる。この再整列時刻の同位体間の差を利用することで、同位体選択的な光イオン化反応を起こす。この手法は、重元素に対して分離効率が低下する既存のレーザー同位体分離とは大きく異なっており、重元素に適応した場合でも分離効率が低下しにくい、という特徴がある [1]。既に軽元素である窒素同位体分子 (¹⁴N₂ と ¹⁵N₂) の混合ガスを対象とした実験で、フェムト秒レーザー 1 パルス照射 [2]、並びに複数パルス照射 [3] による分子整列を利用した同位体選択的イオン化を実現した。

重元素を含む分子にフェムト秒パルスによる分子整列制御を適用する場合、イオン化ポテンシャルが低いため、容易にイオン化が起きてしまう、という問題点がある。そのため、フェムト秒パルスのレーザー強度を低く抑える必要があり、高度に分子整列した状態を得ることが難しい。本研究では、重元素である臭素同位体を含む、ヨウ化臭素分子 IBr を対象に、同じピーク強度の 60 fs パルスと 300 fs パルスで分子整列を行い、得られる選択性を比較した。さらに、低いピーク強度で分子整列を実現できる波形整形ナノ秒パルス [4-6] を用いた実験も行い、結果を比較した。

【実験方法】 チタンサファイア増幅器から出力されるフェムト秒パルス (中心波長 795 nm) のパルス幅を、パルス圧縮器のグレーティング間隔を変えることで 60 fs または 300 fs に調整した後、マイケルソン干渉計を用いて分子整列パルスとイオン化パルスの 2 パルスとした。波形整形ナノ秒パルスは、60 fs パルスで発生したプラズマにより、ナノ秒パルス (波長 1064 nm、パルス幅 6 ns) の後半部分を急峻に (立ち下り ~200 fs) 打ち消して形成した。真空チャンバー内に Ne と Xe の混合ガスで希釈した IBr 蒸気 ($I^{79}\text{Br} : I^{81}\text{Br} = 50.7 : 49.3$) をパルスバルブを用いて導入し、そのジェットに分子整列パルスとイオン化パルスを照射した。集光点でのピーク強度は、分子整列パルスが $8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (60 fs、300 fs パルス) または $5 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (波形整形 6 ns パルス)、イオン化パルスは $1.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ だった。2 パルス間の遅延時間を変えながら $I^{79}\text{Br}^+$ と $I^{81}\text{Br}^+$ イオン収量を測定し、収量比 $R = I(I^{81}\text{Br}^+)/I(I^{79}\text{Br}^+)$ の遅延時間依存性を求めた。

【結果・考察】 Fig. 1 は、(A) 60 fs パルスと (B) 300 fs パルスの結果である。最も収量比 R の変動が大きい、IBr の 1/2 回転周期 ($T_{\text{rev}}/2 \sim 150 \text{ ps}$) 付近の遅延時間に相当している。60 fs パルスでは R の変動範囲は 0.90~1.13 だったのに対し、同じピーク強度で 5 倍のパルス幅 (即ち 5 倍のパルスエネルギー) を持つ 300 fs パルスでは $R = 0.87 \sim 1.22$ と、選択性が向上した。作用時間が長い 300 fs パルス照射で、IBr がより分子整列することを反映している。フェムト秒パルスによる分子整列は、分子回転周期の 1/100 程度までパルス幅を伸ばしても進行することが理論計算で示されている [7]。IBr ($T_{\text{rev}} \sim 300 \text{ ps}$) に対しては 3 ps パルスまで伸ばすことができるため、さらに高い選択性が実現する可能性がある。

波形整形ナノ秒パルスによる分子整列を用いた実験でも、同位体選択的イオン化が実現した。フェムト秒パルスよりピーク強度が 1 桁以上低いにもかかわらず、収量比は $R = 0.93 \sim 1.06$ と、60 fs パルスの変動幅 ($R = 0.90 \sim 1.13$) に近い結果が得られた。今回の実験で、波形整形ナノ秒パルスだけでは IBr^+ イオンはほとんど生成しなかった。従って、波形整形ナノ秒パルスの強度を上げる余地が十分残されている。理論計算により、波形整形ナノ秒パルスの方が、フェムト秒パルスよりも高度な分子整列状態を実現できることが示されており [6]、より高い選択性が期待できる。

【参考文献】

- [1] H. Akagi, H. Ohba, K. Yokoyama, A. Yokoyama, K. Egashira, Y. Fujimura, *Appl. Phys. B* **95**, 17 (2009).
- [2] H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, *Appl. Phys. B* **109**, 75 (2012).
- [3] H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, *Phys. Rev. A* **91**, 063416 (2015).
- [4] J.G. Underwood *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 223001 (2003).
- [5] A. Goban, S. Minemoto, H. Sakai, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 013001 (2008).
- [6] H. Akagi, T. Kumada, T. Otobe, R. Itakura, H. Hasegawa, Y. Ohshima, *Appl. Phys. B* **124**, 14 (2018).
- [7] R. Torres, R. de Nalda, J.P. Marangos, *Phys. Rev. A* **72**, 023420 (2005).

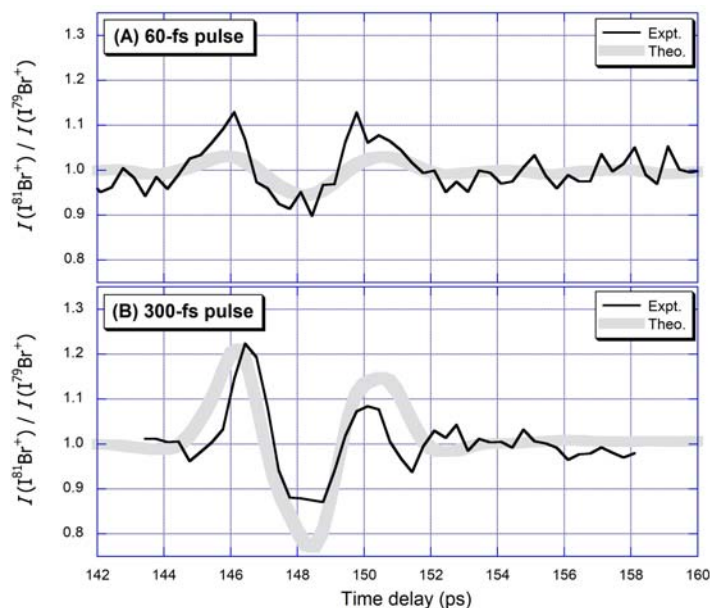


Fig. 1. Ion yield ratio $I(I^{81}\text{Br}^+)/I(I^{79}\text{Br}^+)$ obtained for (A) the 60-fs and (B) 300-fs alignment pulses.