

Title	レーザー同位体分離における光反応過程に関する研究
Author(s)	足立, 智
Citation	大阪大学, 1991, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3085224
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

レーザー同位体分離における
光反応過程に関する研究

平成3年1月

足立 智

レーザー同位体分離における
光反応過程に関する研究

平成3年 1月

足立 智

内 容 梗 概

本論文は著者が大阪大学大学院工学研究科電気工学専攻博士前期、後期課程において行なったレーザー同位体分離における光反応過程に関する研究成果をまとめたものである。

レーザーによる同位体分離では、単色性に優れたレーザー光により標的同位体のみを選択的に励起・電離・回収し濃縮を達成する。実用的なレーザー同位体分離システムでは、複数のレーザー光が原子を選択励起・電離しながら、長尺の原子蒸気ビーム中を伝播することになる。効率の高い分離システムを実現するためには、多段階電離による光反応過程を最適化することが重要である。例えばウラン原子には可視域だけでも 10^3 を越える遷移が存在し、これらのうちから最も効率のよい電離が可能となる遷移の組合せを決定しなければならない。また選択された遷移に対し、イオン化効率や選択性が高く、しかも高い原子および光子の利用率が得られるレーザー光強度やパルス幅などレーザー照射条件を決定しなければならない。

これら光反応過程の最適化のためには、多波長レーザー光と多準位原子系とのコヒーレントな励起ダイナミクスと、レーザービーム伝播特性を研究する必要がある。

コヒーレント励起ダイナミクスの研究では、レーザー照射条件などシステム設計に対する目安を得ることと、励起スキームや原子の分光学的特徴に合わせた高効率励起法を検討することを目的とした。そこで超微細構造や空間縮退などの原子の分光学的特徴を含めた多段階電離のモデルを構築し、それに基づいたシミュレーションコードを開発して、効率的なコヒーレント励起ができるいくつかの目安を導いた。またモデル計算と実験との対比を行ないつつ、基底準位と準安定準位からの同時励起、超微細構造を有する遷移に対する高効率励起法など新しい手法を開発し、それらの効果を検討した。

またレーザービーム伝播特性の研究では、共鳴同位体と近共鳴同位体の両方が存在する同位体分離状況で、伝播に伴うレーザー光特性の変化とイオン化効率や選択性など同位体分離性能に及ぼす効果を評価することを目的とした。このためまず時間的伝播効果に着目して、各同位体によるパルス波形変化のメカニズムを実験とモデル計算との対比を行ないつつ明らかにした。さらに両同位体存在下でのレーザービーム伝播におけるパルス波形変化を計算しうるシミュレーションコードを開発し、イオン化効率、選択性に対する伝播効果の影響を考察した。

本論文は6章から構成されている。

第2章ではレーザー同位体分離における光反応過程で考慮すべきエネルギー準位の空間縮退や超微細構造の効果を考察し、これらの効果を取り入れた4波長3段階電離スキームのモデル化を行ない、開発したコヒーレント励起ダイナミクスシミュレーションコードについて述べた。またその計算コードを用いて、高効率でコヒーレントな励起を行なうためのいくつかの目安を導いた。

第3章では光反応過程の基本的パラメーターである同位体シフト、超微細構造、励起準位の寿命など原子の分光データの測定結果について述べている。また遷移の双極子モーメントに関しては、Rabi floppingを利用した新しい測定法を開発した。

第4章では励起効率の向上を目的として、3種類の異なる励起法について考察した。まず基底準位だけでなく、準安定準位に熱励起されている原子をも同時に励起する場合について考察し、2光子共鳴条件が成立すると、population trappingの効果によりイオン化効率が減少することを実験とモデルの両者から示すとともに、population trappingを避けて生成イオン量を増大させる方法について検討した。

ついで標的同位体が広い超微細構造を有し、通常の強い単色光による飽和広がりを利用するだけでは、十分なイオン量が期待できない場合に対し、レーザー光の周波数をパルス内で掃引し、高速断熱通過を利用して励起する方法を提案した。2準位原子系において安定した完全な反転分布が得られる掃引周波数幅、掃引速度、ラビ周波数の定量的条件を示した。

最後に同位体シフトが非常に小さい場合や標的同位体の超微細構造が他の同位体のスペクトルに重なっている場合の選択的励起法として、核スピンの有無による遷移の選択則の違いを利用する方法を実験的に検討し、Gd原子を用いてその有効性を実証した。

第5章ではレーザービーム伝播特性に関して、共鳴、近共鳴同位体によるパルス波形変化のメカニズムを実験とモデルの両面より考察し、3段階電離法に適用するシミュレーションコードを開発した。計算コードを用いて同位体分離における伝播効果のイオン化効率、選択性への影響を評価し、分離チャンバーの光軸方向長さの設計指標となる有効伝播長を提示した。

第6章は結論であり、以上の研究において得られた結果をまとめ、本論文の総括とした。

目 次

第1章	結 論	1
§ 1-1	歴史的背景	1
§ 1-2	原子法レーザー同位体分離の原理	3
§ 1-3	システム設計上での問題点	5
§ 1-4	研究の目的	10
	参 考 文 献	14
第2章	レーザー同位体分離における光反応過程の基本的考察	16
§ 2-1	は じ め に	16
§ 2-2	選択励起反応	16
2-2-1	同位体シフト	17
2-2-2	超微細構造	18
§ 2-3	多段階光電離過程	21
§ 2-4	光反応過程のモデリング	26
2-4-1	空間縮退の影響	28
[1]	静的解析	30
[2]	モデルでの取り扱い	33
2-4-2	超微細構造の影響	34
[1]	静的解析	34
[2]	モデルでの取り扱い	36
§ 2-5	励起ダイナミクスシミュレーションコード	38
§ 2-6	高効率励起に関する考察	43
2-6-1	励起パルスのタイミング	43
2-6-2	励起パルス波形と励起スペクトル	44
2-6-3	ドップラー広がりの影響	47
2-6-4	Rabi周波数とイオン化率の最適組合せ	50
§ 2-7	む す び	53
	参 考 文 献	55

第3章	光反応過程の基本的パラメーターの測定	56
§ 3-1	はじめに	56
§ 3-2	同位体シフト、超微細構造定数	56
§ 3-3	励起準位の緩和時間	62
§ 3-4	遷移双極子モーメント	64
§ 3-5	むすび	68
	参考文献	70
第4章	多段階電離法における励起効率の向上	71
§ 4-1	はじめに	71
§ 4-2	準安定準位に熱励起された原子の利用	71
4-2-1	Population Trapping	71
4-2-2	G d 原子を用いたPopulation Trappingの観測	74
4-2-3	Population Trappingに関する考察	78
§ 4-3	高速断熱通過を利用した高効率励起	84
4-3-1	高速断熱通過	84
4-3-2	高速断熱通過を利用した超微細構造の励起	93
	[1] 解析モデル	93
	[2] 計算結果と考察	94
§ 4-4	選択則を利用した高効率励起	98
§ 4-5	むすび	104
	参考文献	106
第5章	レーザー同位体分離におけるレーザーパルス伝播特性	108
§ 5-1	はじめに	108
§ 5-2	近共鳴状態にある同位体による伝播効果	109
5-2-1	N a 蒸気中でのレーザーパルス伝播実験	109
5-2-2	近共鳴効果に関する考察	114
§ 5-3	共鳴状態にある同位体による伝播効果	118
5-3-1	Rabi振動によるパルス波形変化	118

5-3-2	パルス伝播シミュレーションコード	120
5-3-3	共鳴効果に関する考察	126
§5-4	3段階電離法における伝播効果の影響	130
5-4-1	原子系と入射パルス条件	130
5-4-2	イオン化効率と選択性に及ぼす影響	135
§5-5	むすび	139
	参考文献	140
第6章	結 論	141
	謝 辞	145
	業 績 目 録	146

第1章 緒 論

レーザーの高エネルギー密度と高単色性を利用した選択的光励起により、同じ元素のうちの特定の同位体のみエネルギーを与えて、他の同位体と分離する方法はレーザー同位体分離 (Laser Isotope Separation: LIS) と呼ばれている。レーザー同位体分離の特徴は、原理的には1段で同位体を完全に分離でき、従来の気体拡散法や遠心分離法などの統計的分離法のような巨大なカスケードを必要としないこと、水素、リチウムなどの軽元素からウランやプルトニウムなどの重金属まであらゆる同位体の分離に適用できることである。1980年代に入って、レーザーの出力、効率、経済性、信頼性などの向上により、工業的なレーザー同位体分離が期待されるようになってきた。

ここでは、レーザーによる同位体分離の歴史的背景、原理と研究の現状をまとめ、実用化での問題点を明らかにして本研究の目的を述べる。

§ 1-1 歴史的背景

吸収スペクトルに現われる同位体間でのわずかな差(同位体シフト)を同位体分離に利用しようとの考え方は、同位体の発見以来存在してきた。同位体の光化学的分離に成功した最初の報告は、KuhnとMartinによるもの¹⁾である。彼らは、アルミニウム電極間の放電火花から運よく適切な波長であった281.618nmの光を見つけ、これを用いて天然ホスゲン中の $\text{CO}^{35}\text{Cl}_2$ を解離した。実用規模での光化学的同位体分離の最初の試みは、水銀の同位体分離²⁾であった。あらかじめ分離された水銀同位体を含んだ水銀電極間の火花からの光を用いて、天然の水銀蒸気中の同じ同位体を励起して、同時に存在していた水蒸気と反応させ HgO を生成させた。この方法は広く離れた少数の吸収線をもつ水銀の吸収スペクトルの特に単純な特性を利用した方法であり、他の元素に一般には適用できない。光化学的同位体分離法を少なくとも実験室規模ですべての元素に対して適用できるようにするためには、高単色性と波長可変性を備えたレーザーの発明を待たねばならなかった。1966年に臭素の同位体分離についてなされたTiffanyらの先駆的実験³⁾以来、レーザーを用いた選択励起とそれに続く分離・回収法について精力的な研究が行なわれ、ほとんどすべての元素

について実験室規模での同位体分離が報告されている。

現在、工業的規模で同位体分離が行なわれているのは、重水素の分離とウラン濃縮である。重水素は重水炉における中性子減速剤として利用するために、化学的な方法によって大量に製造されている。軽水炉燃料としては天然ウラン中に0.7%存在する ^{235}U を3%にまで濃縮する必要があり、ガス拡散法や遠心分離法で濃縮が行なわれてきた。レーザーによる重水素の分離はカナダでプラントの概念設計が実施されたが、現状のレーザー技術では経済性の点で化学法を越えることは困難な見通しである。一方レーザーウラン濃縮法はガス拡散法はもちろんのこと遠心分離法を凌ぐ経済性を達成しうる可能性があり、レーザー同位体分離の最も重要な応用として期待され、各国で大規模な研究開発が行なわれている。ウラン濃縮に関する技術的先進国はアメリカであり、戦時中に重水素の発見者であるUreyをリーダーとする研究チームがウラン有機化合物の光分解による濃縮を試みている⁴⁾。

レーザーによるウラン濃縮は、対象をウラン原子とするか、ウラン化合物とするかにより、原子法(AVLIS)と分子法(MLIS)に大別される。ウラン原子は可視域に多くの吸収線を持ち、色素レーザーを用いれば ^{235}U を比較的簡単に選択励起できる。しかし原子蒸気を得るには高温が必要であり、化学反応性に富むため取り扱いが困難である。一方、ウラン化合物の中では UF_6 が最も高い蒸気圧を示し、化学的にも安定で、取り扱いが容易である点で有利であるが、吸収スペクトルに同調しうるレーザー波長の点から選択励起が難しいという欠点があった。

原子法レーザーウラン濃縮に関しては、アメリカではローレンス・リバモア研究所(LLNL)が中心となって研究が行なわれてきた。1970年代に色素レーザーとHgランプを用いた2段階電離によるウラン濃縮実験⁵⁾に成功して以来、大規模な研究開発がなされてきた⁶⁾⁻⁸⁾が、実用研究に入った1980年以降はデータの公開はなされていない。わが国では1975年から大阪大学が研究に着手し、色素レーザーと窒素レーザーを用いた2段階電離法により50倍の濃縮を報告した⁹⁾。その後日本原子力研究所でも研究が開始され、マクロ量の濃縮を確認している¹⁰⁾。

分子法は、アメリカではロス・アラモス研究所(LANL)を中心に研究されてきた。 UF_6 では、吸収断面積と同位体シフトの点から16 μm 付近の ν_3 バンドを励起する方式が適切であるが、室温では吸収バンド幅に比べて同位体シフトがはるかに小さく、そのため超音速ノズル等で断熱膨張させ50K程度に冷却する必要がある。

当初は赤外レーザーにより選択的に振動励起し、紫外レーザーによって励起された分子を解離に導く2段階解離法（IR-UV方式）が研究されたが、UV光を照射すると振動励起されていない分子も解離するという非選択的な光反応が生じ、分離係数はたかだか2程度であった。ついで強力なラマンレーザーの開発とともに、全て赤外レーザーによって選択励起と解離を行なう赤外多光子解離法が開発された。日本では理化学研究所がこの方式で最近分離係数4を得ている。

このようにアメリカでは原子法と分子法の2つの方式を並行して研究してきたが、1985年にエネルギー省は原子法レーザー同位体分離をウラン濃縮の次世代生産技術として正式決定し、LLNLを中心に1000tSWU/年相当のパイロットプラント（FSEDF: Full Scale Engineering Demonstration Facility）を建設して経済性の実証を行なっている。この決定を受け、日本でも産・学・官の協力のもとに1987年にレーザー濃縮技術研究組合が設立され、原子法による1tSWU/年相当のプラントの建設を目指している。

§ 1-2 原子法レーザー同位体分離の原理

原子法によるレーザー同位体分離の基本原理を図1-1示す。電子ビームを金属ウランに照射して加熱し、原子蒸気ビームを発生させ、レーザー光を照射する。原子蒸気ビーム中には原子核の質量、大きさ、形、スピンの違いにより僅かにスペクトルが異なる原子（同位体、例えばウランであれば ^{235}U と ^{238}U ）が存在し、その同位体シフトを利用して特定の同位体の吸収線にレーザー光の周波数を同調する。吸収線とレーザー光の周波数が一致している同位体原子はレーザー光からエネルギーを吸収し、励起状態となる。さらに同じ原子を第2、第3のレーザー光で励起すれば、励起状態にある原子は次々と高い励起状態に励起され、レーザー光から吸収したエネルギーがイオン化ポテンシャルを越える内部エネルギーとなり電子とイオンに分離する。このような選択的励起反応は原子だけでなく分子にも適用できるが、分子の場合は振動エネルギーの増大により、イオン化よりも解離で終わる。分離された標的同位体のイオンは、電場および磁場のいずれか、またはそれらの組合せで偏向され、回収板に入射し付着させられ回収される。

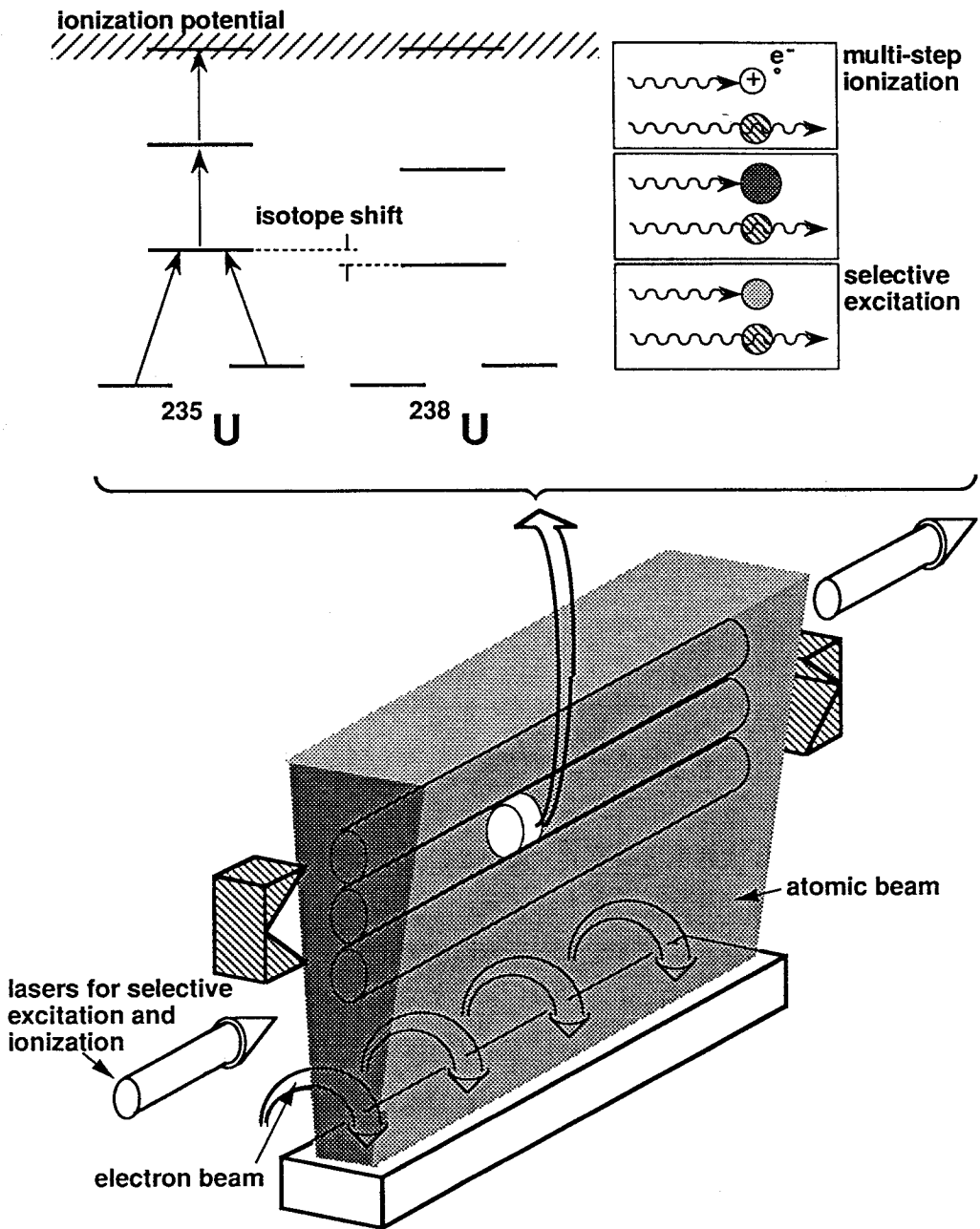


図 1 - 1 原子法レーザー同位体分離の原理
 スペクトルの僅かな違いを利用して、標的 isotop (^{238}U)
 にのみエネルギーを与えて励起・電離・回収し、非標的
 isotop (^{235}U) と分離する。工業的には長尺の原子蒸気
 ビームを発生させ、レーザー光を長距離伝播させながら
 原子を励起・電離する。

さらに工業的に大量の濃縮物質を生産するためには、図1-1下段のように長尺の原子蒸気ビームを発生させ、レーザー光を長距離にわたって伝播させながら、選択励起を行ない同位体を分離することになる。レーザー法の実用にあたっては、分離の経済性を向上させることが最も重要である。このためには高効率で安定に動作するレーザー装置や、効率のよい原子蒸気発生装置を開発すると同時に、発生した蒸気と入射したレーザー光子を有効に利用するようなシステム設計が必要となる。

応用面で最も重要なレーザーウラン濃縮について考えてみる。

ウランの場合、電子ビーム加熱による原子蒸気ビーム発生のコストが、分離システム全体のコストの約40%を占めるため⁷⁾、発生させた蒸気を有効に利用する必要がある。発生した原子蒸気速度はおよそ 10^5 cm/s程度であるから、回収板の高さを例えば10 cmとすると、発生した原子蒸気すべてにレーザー光が照射されるためには、10 kHz程度の繰り返しレーザーに要求される。このような高い繰り返し発振ができ、かつ高出力のレーザーは現状では銅蒸気レーザーのみである。したがって分離用レーザーとしては、銅蒸気レーザー励起色素レーザーが最も有望である。銅蒸気レーザーは発振波長が510 nmであるため、色素レーザーの波長は色素の励起効率の高い570 nm~650 nm程度となり、ウランの第1イオン化ポテンシャルが6.18 eVであることを考え合わせると励起・電離スキームは3段階電離となる。さらに電子ビームで高温に加熱された金属ウランから発生するウラン原子蒸気中では、すべての原子が基底準位に存在するわけではなく、エネルギーの低い 620 cm⁻¹の準安定準位にも熱励起されている。2500 K程度では基底準位に47%、 620 cm⁻¹の準安定準位に28%、さらに高い 3800 cm⁻¹の準安定準位に10%程度が励起されている¹¹⁾。したがって経済性を発揮するためには、基底準位にある原子だけでなく、少なくとも1つ以上の準安定準位からも原子を励起することが必要となる。その場合励起・電離スキームは図1-1上段に示した4波長3段階電離スキームとなる。

§ 1-3 システム設計上での問題点

効率のよいレーザーウラン濃縮システムを設計する際に考慮すべき点は以下の通りである。

(1) ウラン原子には可視域だけでも 10^3 を越える遷移が存在し、これらのうちから最も効率のよい電離が可能となる遷移の組合せを決定しなければならない。このためにはウラン原子のエネルギー準位や遷移に関する分光学的データの集積が必要である。

(2) 選択された遷移に対し、イオン化効率や選択性が高く、しかも高い原子および光子の利用率が得られるレーザー光強度やパルス幅などレーザー照射条件を決定しなければならない。このためには実験だけでなく、多段階光反応過程のモデルを構築し、シミュレーションコードを開発してシステム設計に対し、指針を与えることが重要である。

(3) 原子蒸気ビーム中でレーザー光により生成された標的同位体を、選択性を損なうことなく効率よく回収できる電極配置や電磁界印加方法を決定しなければならない。この際蒸気中での衝突現象による選択性の低下やプラズマ中での電界・磁界分布を考慮する必要があり、衝突断面積に関するデータの集積とともに回収過程を模擬するシミュレーションコードを開発して、システム設計の指針を得ることが重要である。

これらについて少し詳細に議論する。

(1) 分光学的データの集積

レーザー同位体分離システムを設計する上で必要な分光データは、

- | | |
|---------------|--|
| (1) 準位のエネルギー値 | (2) 準位の J 値 |
| (3) 準位の寿命 | (4) 同位体シフト |
| (5) 超微細構造定数 | (6) 遷移双極子モーメント ($\propto \sqrt{\text{励起断面積}}$) |
| (7) 電離断面積 | |

などである。これらの数値は原子に帰属するものであるから、どの準位の組合せを採用するかでレーザーで励起・電離される効率の理論的上限が決定される。経済性を向上させるには、用いるレーザーの波長域で寿命がパルス幅に比べて長く、かつ入射するレーザー光のエネルギーを少なくするために遷移の双極子モーメントの大きな準位を選ぶことが重要である。また多段階で効率よく励起された原子が電離の断面積が小さいために、ボトル・ネック状態に陥りイオン量の低下を招かないよう十分電離断面積は大きくなってはならない。ウランでは通常電離断面積は励起断面積に比べて3桁程度小さいため、断面積が大きい自動電離準位が用いられる。

またウランでは濃縮すべき ^{235}U には超微細構造が存在する。超微細構造は電子の軌道角運動量と原子核スピンとの相互作用により生じ、1つの準位が分裂し多数の共鳴線が出現するものである。ウランの超微細構造はほとんど測定された報告がないが、その幅やスペクトル形状が励起効率に大きく影響するため重要である。同位体シフトが選択性に大きく影響するデータであることは言うまでもない。

以上のような分光学的データを基礎にして、高効率が期待できる準位の組合せを選択し、その励起ダイナミクスを考慮して最終的に採用すべき準位を決定することになる。現状ではこれらのデータがウランとガドリニウムに関して十分に取得されているとは言いがたい。

(2) 光反応過程 (レーザーと原子の相互作用)

光反応過程はレーザー同位体分離の中心となるプロセスである。多波長の強いレーザー光が原子と相互作用するため、多準位の原子系を考えレーザー光とそれより誘起される原子分極の位相をも考慮したコヒーレントな励起ダイナミクスをモデル化しなければならない。また入射したレーザー光は原子蒸気ビーム中を共鳴・近共鳴状態で伝播していく際、伝播距離とともにレーザー光波形や強度が変化する。長尺の原子蒸気ビーム全体にわたって、イオン化効率、選択性、蒸気利用率、光子利用率を最適化しなければならない。

コヒーレント励起ダイナミクスの研究は1970年代後半から活発に行なわれ、多段階共鳴励起については多くの論文が発表されている¹²⁾。しかしレーザー同位体分離で必要となる、同位体原子の存在やエネルギー準位の超微細構造、空間縮退等を含めた多段階励起のダイナミクスを取り扱ったものはない。また図1-1に示したような基底準位だけでなく準安定準位からも同時に励起するスキームでのレーザー同位体分離を目的とした研究もない。同位体分離を目的としたコヒーレント励起ダイナミクスでは、

- より少ないレーザー光のエネルギーで最大のイオン量を得るための、各段のレーザー光のパルス幅およびパワーバランスの設定
- 電離速度とレーザー光強度とのマッチング
- 超微細構造、空間縮退、ドップラー広がり等の励起ダイナミクスに及ぼす影響などを明らかにして、システム設計に対する指針を与えると同時に、イオン化効率

の向上を目指して

- 基底準位にある原子だけでなく、準安定準位に熱励起されている原子をも同時に励起し利用する方法
- 超微細構造によって広がったスペクトルをもつ標的同位体原子をすべて励起する方法
- 同位体シフトが非常に小さい場合に有効な励起法

などを考える必要がある。これらの問いに答えるには多波長レーザー光と多準位原子系とのコヒーレント相互作用のモデルを構築し、モデルに基づいたシミュレーションコードを開発し、モデル計算と実験との対比を行ない、モデルおよびコードの信頼性を確立することが肝要である。

コヒーレント励起ダイナミクスの研究は、レーザー光に対し原子がどのように応答するかという問いに答えてはくれるが、それはレーザー伝播方向の原子蒸気の厚みを考慮しない相互作用領域中の1点での解答である。工業的なレーザー同位体分離の経済性を向上させるためには、長距離にわたり発生させた原子蒸気中の全相互作用領域で効率のよい励起が行えなくてはならない。そのためには原子のレーザー光に対する応答の結果として現われてくるパルスエネルギーの減少や非線型屈折率効果によるパルス波形変形などの時間的伝播効果、自己位相変調によるレーザー周波数の変化、自己集束や自己発散などの空間的伝播効果等のレーザー光自体の変化を考慮することが重要となる。レーザービームの伝播特性に関しては、イオン化や準位の寿命などの緩和のない、閉じた2準位原子系に対し、共鳴状態で、自己誘導透過現象¹³⁾やソリトン¹⁴⁾を取り扱った研究は多い。近共鳴状態での伝播効果については自己集束¹⁵⁾や自己発散¹⁶⁾に関するものが比較的古くからある。また自己位相変調やパルス波形変化など周波数領域、時間領域の伝播効果についてもGrischkowskyらによる報告がある¹⁷⁾。しかしこれらはすべて単一の現象のみを対象とし、それぞれの現象を理想的な系について取り扱ったものであり、レーザー同位体分離のように共鳴同位体と同位体シフトだけ離れた近共鳴同位体の両方が存在し、しかも多数のレーザー光を同時に入射して多段階励起を行なうような複雑な系での伝播効果についての報告は著者の知る限り1件もない。入射したパルスのエネルギーの吸収長に比べて、伝播効果によるイオン化効率や選択性の低下が著しく起こる特長的な長さ(有効伝播長)が短い場合、伝播光学系に位相共役鏡など変化を補償するも

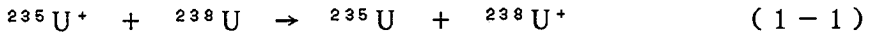
のを導入する必要がある大きな問題となる。

以上の観点からレーザービーム伝播効果の研究についても、励起ダイナミクスと関連させたモデルを構築し、シミュレーションコードを開発することが重要である。伝播効果は伝播距離に対する蓄積的な効果であるため、実験と比較することは困難で実験に関する論文は少ないが、モデルを確立するためには実験とモデル計算の比較も重要である。

(3) イオン回収

レーザー光と相互作用している原子蒸気ビーム中では中性原子、励起原子および電離されたイオンと電子が混在し、弱電離プラズマを形成している。分離を完成させるためには電界や磁界などにより原子蒸気中から偏向させ電極板上に回収しなければならない。

選択励起・電離過程で生成されたイオンや電子のエネルギーは0.5 eV以下と小さく、プラズマのデバイ長は極めて小さい。したがってプラズマにより電界がシールドされ静電界による回収は困難とされている。RF電界や磁界との併用なども考えられているが、最終的な回収方法はまだ決定されていない。また選択励起・電離により生成された $^{235}\text{U}^+$ が、回収のため電界等により偏向されて原子蒸気ビームを横切る際、電離されない多数の中性原子と衝突を起こし、



のように電荷の移行が起こる。この電荷移行衝突の断面積の大きさ如何で蒸気密度の上限値が決まる。システムの分離能力は蒸気密度が高いほど大きいから、電荷移行衝突断面積がシステムの分離能力を決定すると言える。ウランは複雑な電子配置をもつため、電荷移行衝突断面積の理論的な導出は困難であり、精力的な実験研究が行なわれている。しかしまだ信頼される数値は得られていない¹⁸⁾。

このような状況からイオン回収過程についても原子蒸気ビーム中での原子衝突現象やプラズマの効果を考慮したシミュレーションコードを開発し、イオン回収性能を評価してシステム設計に対する指針を与えることが重要である。

ウラン原子の分光学的データや原子衝突断面積の測定など、分離システム設計の基礎となる物性データの集積が現在も精力的に行なわれている。これらのデータは分離システムを構成する各装置の設計値に互に関連している。実際の実験装置は、例えば(2)で得た高効率励起のための目安に従い、(1)で得たデータの中から高効率励起が期待できる準位の組合せを抽出し、(3)の研究により得られた効率的なイオン回収法を用い、すべての装置の特性を考慮して設計されることになる。

§ 1-4 研究の目的

§ 1-3で述べたレーザー同位体分離システムを設計する上での問題点の中から、本研究ではレーザー同位体分離の中心のプロセスであるレーザー光と原子との相互作用、すなわち光反応過程を取り上げた。研究の内容は多波長レーザー光の存在下で、多準位原子系とのコヒーレント励起ダイナミクスに関するものと、レーザービーム伝播特性に関するものである。

コヒーレント励起ダイナミクス研究における目的は、第1に標的の同位体と他の同位体を含む原子蒸気を対象とし、超微細構造や空間縮退などの原子の分光学的特徴を含めた多段階電離のモデルを構築し、それに基づいてシミュレーションコードを開発して、レーザー照射条件などシステム設計に対する目安を得ることである。第2にモデル計算と実験との対比を行ないつつ、基底準位と準安定準位からの同時励起、超微細構造を有する遷移に対する高効率励起法など新しい手法を開発し、それらの効果を検討することである。実験では金属ウランの代わりにガドリニウム原子を用いた。ガドリニウム原子には表1-1に示すように7種の同位体が存在し、質量数235と238の同位体のみを考慮すればよいウラン原子に比べて複雑ではあるが、表1-2に示すように融点やイオン化ポテンシャルなどガドリニウムはウランとよく似た物性値を示し、エネルギーの低い準安定準位を有することやウランと同じ4波長3段階励起・電離スキームが適用できることなど本研究で開発したモデルの正当性を評価する上で都合がよい。ガドリニウムは核分裂反応を制御することを目的として、酸化物の形で軽水炉燃料の中に可燃性毒物として添加されている。ガドリニウムの同位体の中で ^{157}Gd は熱中性子の吸収断面積が極めて大きいことから、 ^{157}Gd を濃縮して使用すればウラン燃料の燃焼効率を高めうるとの予想もあ

て、 ^{157}Gd の濃縮自体大きな意義を有している。

レーザービーム伝播特性に関しては、共鳴同位体と近共鳴同位体の両方が存在す

表 1-1 Gd 同位体の自然存在比と熱中性子吸収断面積

同位体	存在比 (%)	吸収断面積(barn)
^{152}Gd	0.20	1,100
^{154}Gd	2.15	85
^{155}Gd	14.9	61,000
^{156}Gd	20.47	1.5
^{157}Gd	15.68	254,000
^{158}Gd	20.9	2.5
^{160}Gd	21.7	0.77

表 1-2 U, Gd の物性値

熱的特性 \ 材料	U	Gd
融点 (K)	1406	1585
沸点 (K)	4135	3600
融解熱 (kJ/mol)	12.4	10.1
蒸発熱 (kJ/mol)	423	312
密度 (g/cc)	18.7	7.89
イオン化ポテンシャル (eV)	6.18	6.15

る同位体分離状況で、伝播に伴うレーザー光自体特性の変化とイオン化効率や選択性などの同位体分離性能に及ぼす効果を評価することである。このためまず時間的伝播効果に着目して、各同位体によるパルス波形変化のメカニズムを実験とモデル計算との対比を行ないつつ明らかにした。さらに両同位体存在下でのレーザービーム伝播におけるパルス波形変化を計算しうるシミュレーションコードを開発し、イオン化効率、選択性に対する伝播効果の影響を考察した。

本論文は6章から構成されている。

第2章ではレーザー同位体分離における光反応過程で考慮すべきエネルギー準位の空間縮退や超微細構造の効果を考察し、これらの効果を取り入れた4波長3段階電離スキームのモデル化を行ない、開発した励起ダイナミクスシミュレーションコードについて述べた。またその計算コードを用いて、高効率でコヒーレントな励起を行なうためのいくつかの目安を導いた。

第3章では光反応過程の基本的パラメーターである同位体シフト、超微細構造、励起準位の寿命、遷移の双極子モーメントなど原子の分光データの測定結果について述べている。また遷移双極子モーメントに関しては、Rabi floppingを利用した新しい測定法を開発した。

第4章では励起効率の向上を目的として、3種類の異なる励起法について考察した。まず基底準位だけでなく、準安定準位に熱励起されている原子をも同時に励起する場合について考察し、2光子共鳴条件が成立すると、population trappingの効果によりイオン化効率が減少することを実験とモデルの両者から示すとともに、population trappingを避けて生成イオン量を増大させる方法について検討した。

ついで標的同位体が広い超微細構造を有し、通常の強い単色光による飽和広がりを利用するだけでは、十分なイオン量が期待できない場合に対し、レーザー光の周波数をパルス内で掃引し、高速断熱通過を利用して励起する方法を提案した。2準位原子系において安定した完全な反転分布が得られる掃引周波数幅、掃引速度、ラビ周波数の定量的条件を示した。

最後に同位体シフトが非常に小さい場合や標的同位体の超微細構造が他の同位体のスペクトルに重なっている場合の選択的励起法として、核スピンの有無による遷移の選択則の違いを利用する方法を実験的に検討し、Gd原子を用いてその有効性を実証した。

第5章ではレーザービーム伝播特性に関して、共鳴、近共鳴同位体によるパルス波形変化のメカニズムを実験とモデルの両面より考察し、3段階電離法に適用するシミュレーションコードを開発した。計算コードを用いて同位体分離における伝播効果のイオン化効率、選択性への影響を評価し、分離チャンバーの光軸方向長さの設計指標となる有効伝播長を提示した。

第6章は結論であり、以上の研究において得られた結果をまとめ、本論文の総括とした。

第1章の参考文献

- 1) W.Kuhn and H.Martin, Naturwiss. 20, 772 (1932); Z. Phys. Chem. B 21, 93 (1933).
- 2) M.Zelikoff, L.M.Aschenbrand and P.H.Wyckoff, J. Chem. Phys. 21, 376 (1953).
- 3) W.B.Tiffany, N.W.Moos and A.L.Schawlow, Science 157, 40 (1967).
- 4) H.C.Urey, Rep. Prog. Phys. 6, 48 (1939).
- 5) S.A.Tuccio, J.W.Dubrin, O.G.Peterson and B.B.Snavely, IEEE J. Quantum Electron. QE-10, 790 (1974).
- 6) Laser Application in Isotope Separation, LLNL-TB-067.
- 7) Business Development Opportunities in Laser Applications in Isotope Separation, LLNL-TB-068.
- 8) Laser Program Annual Report LLL (1974)~(1980).
- 9) H.Niki, Y.Izawa, H.Otani and C.Yamanaka, Technol. Repts. Osaka Univ. 28, 465 (1978).
- 10) 丸山、加藤、鈴木、有沢、柴, 昭和60年日本原子力学会 H-30.
- 11) L.J.Radziemski, Jr., S.Gerstenkorn and P.Luc, Opt. Commun. 15, 273 (1975); H.D.V.Böhm, Dissertation Universität Hamburg, 1977; Report GKSS 77/E/39 (1977).
- 12) B.W.Shore, The Theory of Coherent Atomic Excitation (Wiley, New York, 1990).
- 13) L.Davidovich and J.H.Eberly, Opt. Commun. 3, 32 (1971); H.M.Gibbs, S.L.McCall and G.J.Salamo, Phys. Rev. A 12, 1032 (1975); R.E.Slusher and H.M.Gibbs, Phys. Rev. A 5, 1634 (1972).
- 14) J.D.Gibbon and J.C.Eilbeck, J. Phys. A 5, L122 (1972); D.J.Kaup, Phys. Rev. A 16, 704 (1977); S.L.McCall and E.L.Hahn, Phys. Rev. Lett. 18, 908 (1967).
- 15) D.Grischkowsky, Phys. Rev. Lett. 24, 866 (1970); A.Javan and P.L.Kelley, IEEE J. Quantum Electron. QE-2, 470 (1966); Ph.Kupeck, M.Comte, J.P.Marinier, J.P.Babuel-Peyrissac and C.Bardin, Opt.

Commun. 65, 306 (1988).

- 16) D.Grischkowsky and J.A.Armstrong, Phys. Rev. A 6, 1566 (1972).
- 17) D.Grischkowsky, E.Courtens and J.A.Armstrong, Phys. Rev. Lett. 31. 422 (1973); D.Grischkowsky, Appl. Phys. Lett. 25, 566 (1974); H.Nakatsuka, D.Grischkowsky and A.C.Balant, Phys. Rev. Lett. 47, 910 (1981); M.E.Crenshaw and C.D.Cantrell, Phys. Rev. A 39 (1989), Opt. Lett. 13, 381 (1988); J.C.Diels and E.L.Hahn, Phys. Rev. A 8, 1084 (1973).
- 18) 仁木秀明、井澤靖和、大谷博康、山中千代衛, 電気学会論文誌 第102-C巻, 45 (1982).

第2章 レーザー同位体分離における 光反応過程の基本的考察

§ 2-1 はじめに

光反応過程はレーザー同位体分離の中心となるプロセスである。この過程では多波長の強いレーザー光が原子と相互作用するため、多準位の原子系を考え、レーザー光とそれより誘起される原子分極の位相をも考慮したコヒーレントな励起ダイナミクスをモデル化し、高効率励起のためにレーザー照射条件を最適化する必要がある。本章では高効率励起を実現するために、レーザーと原子の相互作用における空間縮退、超微細構造、ドップラー広がりなどの影響およびシミュレーションモデルでの取り扱いを考察する。また開発したシミュレーションコードについても述べる。さらに開発した計算コードを用いて、高効率励起が可能となるレーザー照射条件について幾つかの目安を示す。

分離対象となる原子の分光学的データが集積され、具体的な励起・電離スキームを決定することができれば、実際のレーザー系のパラメーターを提案することが可能であるが、それよりもっと一般的な高効率コヒーレント励起の目安を示すことが本章の目的である。本章で行なった考察と得られた結果は、すべての原子について応用できるものである。

§ 2-2 選択励起反応

ウランの同位体分離では、通常単色性に優れたレーザー光により、 ^{238}U と標的同位体である ^{235}U の同位体シフトを利用して選択的に ^{235}U を励起する。またレーザー光強度を高くして飽和広がりを起こし、超微細構造をもつ ^{235}U の広がったスペクトル全体を励起する。ガドリニウムの同位体分離では、同様の飽和広がりを利用した励起法の他に第4章で述べる核スピンの有無による選択則の違いを利用した励起法が考えられる。本節ではこれらの選択的励起法を可能としている原子スペクトルの特徴である同位体シフトと超微細構造についてのまとめる。

2-2-1 同位体シフト

同位体の原子核は互いに原子番号が等しく質量数が異なるので、一般に原子スペクトル線の周波数は同位体によって僅かに異なる。その差である同位体シフトは図 2-1¹⁾に示すように水素原子が最も大きく、H、He⁺、Li²⁺等の水素型原子では理論と実験との一致はよい。原子核の質量をM、電子の質量をmとすると、両者はクーロン力を受けて重心のまわりを周回運動するので、電子の換算質量 m_e は

$$m_e = \frac{mM}{m+M} \quad (2-1)$$

となる。従って主量子数 n_1 と n_2 の2準位間の遷移周波数は

$$\nu = \frac{m_e}{m} Z^2 R_\infty \left(\frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2} \right) \quad (2-2)$$

で与えられる。ここでZは原子番号、 R_∞ は $M = \infty$ に対するRydberg定数(10973.7 32cm^{-1})である。式(2-1)、(2-2)より水素型原子の同位体シフトは、

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{m\Delta M}{M_1 M_2}, \quad \Delta M = M_2 - M_1 \quad (2-3)$$

で表わされる。

多原子分子ではその運動は多体問題になるので、同位体シフトは単純な式(2-3)では表わされず、実際重い原子に対して式(2-3)から予想される値に比べてはるかに大きい。それは原子核の体積がほぼその質量数に比例して大きくなることによる体積効果であると考えられるが、核の電荷分布が球形であると仮定した値よりも大きい。また原子番号が変わるにつれて同位体シフトの大きさは不規則に変わる。そこで体積効果の原因として単に電荷分布の大きさに違いだけでなく、原子核の変形効果、圧縮効果、表面効果あるいは分極効果も含まれると考えられている。しかし各々の原子の同位体シフトを正確に計算できる理論はまだない。従って重い原子の同位体分離のためには、各スペクトル線の同位体シフトの実測値を求めておく必要がある。ウラン原子ではシフト量は 0.3cm^{-1} ($\sim 9\text{GHz}$)程度²⁾で質量効果の100倍大きい。

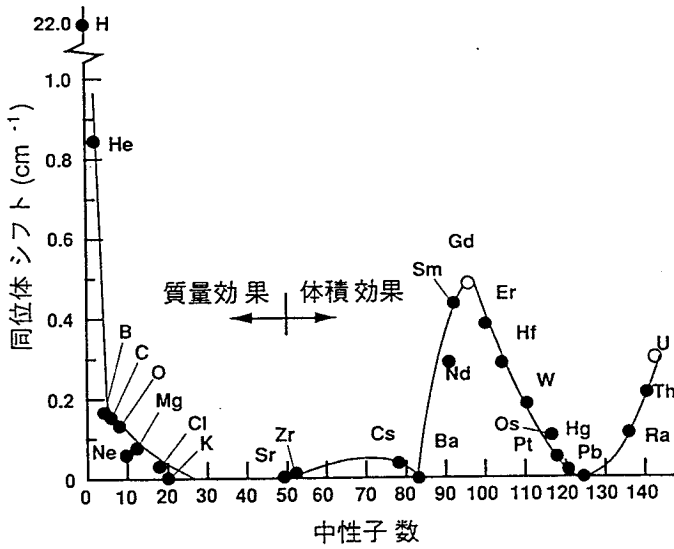


図 2-1 中性子数と同位体シフトの関係

2-2-2 超微細構造

分解能の大きな分光器を使って、1つの多重線成分を調べてみると多くの原子スペクトルにおいて、これらの成分線のいずれもが、さらに極端に狭い間隔で隣り合っている数個の成分に分裂していることがわかる。この分裂を超微細構造という。分裂の最大幅は高々 2 cm^{-1} 程度、すなわち可視スペクトル領域では 0.04 nm と小さく、多くの場合これよりはるかに小さい³⁾。

超微細構造は原子核の磁気モーメント、四重極モーメントと電子との相互作用の結果生じる。Z：陽子数、N：中性子数、I：核スピンの、 μ ：核磁気モーメント、Q：核四重極モーメントとすると、 μ とIは原子核の対核子で決定され次のような経験則⁴⁾が知られている。

- | | |
|--------------------------------|------------------------|
| Zが偶数、Nが偶数 (even - even nuclei) | : $I = 0, \mu = 0$ |
| Zが偶数、Nが奇数 (even - odd nuclei) | : $I = j, \mu = g_1 I$ |
| Zが奇数、Nが偶数 (odd - even nuclei) | |

ここで j は不対核子の合成モーメント、 g_I は核 g 因子である。また核四重極モーメント Q は核閉殻内での不対プロトンと核が球形でないことから生じる。

電子の軌道角運動量 L とスピン S とから核外電子の全角運動量 J を合成したのと同様に、核スピンを考慮にいたれたベクトルを構成する必要がある J と I とを合成しベクトル F をつくる。これに属する量子数は

$$F = J + I, J + I - 1, \dots, |J - I| \quad (2-4)$$

の範囲の値をとり、そのため超微細構造分裂単位の数は $2J + 1$ ($J < I$ の場合) または $2I + 1$ ($J > I$ の場合) となる。また超微細構造分裂した単位を表わす良い量子数は F となる。 F に対する選択則は J に対するのと同じ選択規則があてはまり

$$\Delta F = \pm 1, 0 \quad \text{ただし } F = 0 \rightarrow F' = 0 \text{ は禁制遷移} \quad (2-5)$$

となる。

$\mu \neq 0$ 、 $Q \neq 0$ の原子核は電子と相互作用 (磁氣的相互作用と電氣的相互作用) し、その相互作用エネルギーは量子数 J 、 I 、 F に対し、Casimir の式

$$W(J, I, F) = \frac{C}{2} A + \frac{\frac{3}{2} C(C+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} B \quad (2-6)$$

$$C \equiv F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$$

で与えられる。ここで A 、 B は超微細構造定数と呼ばれる。式 (2-6) の第 1 項は原子核の磁気モーメントによる超微細構造分裂を表わし、第 2 項は電気四重極モーメントによる超微細構造分裂を表わしている。

また超微細構造をもつ同位体に対して各吸収成分の強度は

$$S(F \rightarrow F') \propto (2F+1)(2F'+1) \begin{Bmatrix} J & F & I \\ F' & J & 1 \end{Bmatrix} \quad (2-7)$$

となる。ここで $\{ \}$ は Wigner の $6j$ シンボル⁵⁾ である。

7 種の同位体から成る Gd の吸収スペクトルと超微細構造の 1 例を図 2-2 に示す。この遷移は下準位が 9D_2 (0 cm^{-1})、上準位が 9F_2 (17381 cm^{-1}) で

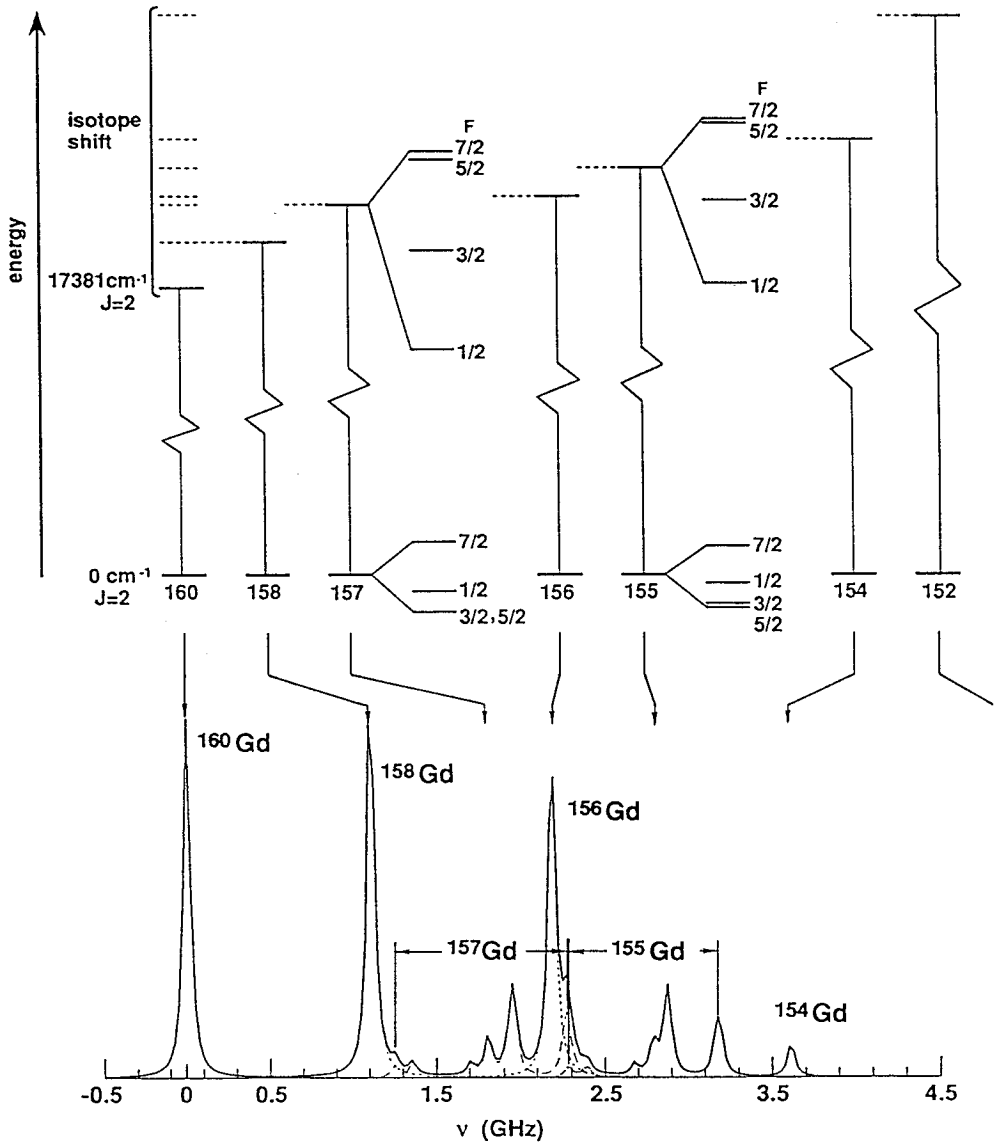


図 2-2 Gd のエネルギー準位の分裂と超微細構造 ($0 \text{ cm}^{-1} - 17381 \text{ cm}^{-1}$)
核スピン $I \neq 0$ をもつ同位体では、電子軌道角運動量 J をもつ
1 つの準位が原子核のスピン I との相互作用により、 $2J + 1$ 個
($J < I$ の場合) または $2I + 1$ 個 ($J > I$ の場合) の準位に分
裂する。図では超微細構造分裂部分は 10 倍のエネルギースケール
で描いている。

あり、第3章§3-2に述べるGdの吸収スペクトル測定実験から得た 0 cm^{-1} と 17381 cm^{-1} の超微細構造定数および ^{160}Gd を基点とした同位体シフトを用いて、式(2-6)、(2-7)を計算し求めたスペクトルである。偶数質量をもつ同位体(^{160}Gd 、 ^{158}Gd 、 ^{156}Gd 、 ^{154}Gd 、 ^{152}Gd)は、核スピン $I=0$ のため各準位は分裂しないが、奇数質量をもつ ^{157}Gd と ^{155}Gd は核スピン $I=3/2$ をもつため、核スピン I と電子の軌道角運動量 J との相互作用により、 $2 \times 3/2 + 1 = 4$ 個に上下準位が分裂する。図2-2のエネルギー準位では各同位体シフトに比べ、分裂部分は10倍のエネルギースケールで描いている。この分裂のため、 ^{157}Gd と ^{155}Gd は1つのピークをもつスペクトルとはならず、各々広い周波数範囲に散在する10本のスペクトルとなる。

ウランでは標的同位体である ^{235}U が核スピン $I=7/2$ をもち、そのスペクトルは超微細構造を示す。 ^{238}U は $I=0$ であるため、単一ピークをもつ1本のスペクトルである。基底準位($5f^36d7s^2\ ^5L^0$)は $J=6 (> I)$ であるため、 ^{235}U の基底準位は $2I+1=8$ 個の準位に分裂する。上準位の J 値が5、6、7であれば遷移は起こるが、その場合上準位も各々 $F=3/2 \sim 17/2$ 、 $F=5/2 \sim 19/2$ 、 $F=7/2 \sim 21/2$ の8個の準位に分裂している。したがって超微細構造は各々21本、22本、21本のピークをもつ複雑なスペクトルとなる。

§2-3 多段階光電離過程

物質を光によって励起すると、その励起エネルギー準位に分布数密度の変化と、その遷移が起きた準位間に分極が生じる。誘導された分極は、遷移の(またはそれに近い)周波数で振動するので、励起状態を規定するにはその振動の位相を知る必要がある。また一般に原子、分子、固体中の励起子などの素励起が多数集合した系では、原子間の位相関係が規則的な状態にあるか、ランダムな状態にあるかによりマクロな分極の大きさが決まる。即ち原子系の励起状態のコヒーレンスがマクロな分極の大きさを決めることになる。なおここで言う原子間の励起状態のコヒーレンスとは、原子間の状態関数の相関の大きさという意味で用いている。具体的には励起原子の振動双極子モーメントの和と言ってもよい。

一般に励起ダイナミクスを最も正確に記述するためには位相維持過程(coherenc

e) と位相破壊過程 (relaxation) の両方を扱える密度行列による運動方程式 (一般化されたブロッホ方程式ともいう) を使う必要がある。もし衝突が無視でき、レーザー光のコヒーレンスがよければ、誘導吸収や誘導放出がインコヒーレントな緩和よりも励起ダイナミクスに強く影響し、その極限では密度行列による運動方程式は Schrödinger 方程式と等価となる。また逆の極限として位相関係があまり重要ではなく、緩和が励起ダイナミクスを支配する場合には rate 方程式に書き下される。それに伴い扱う変数の数もかわる。N 単位原子系において密度行列による方程式では N 個の実変数と $N(N-1)/2$ 個の複素変数の和 (N^2 個の実変数) であるが、Schrödinger 方程式では N 個の複素変数になり、rate 方程式では N 個の実変数になる。

レーザー同位体分離では高強度、高単色性をもつレーザーで原子を多段階励起する。そのためコヒーレントな励起ダイナミクスを扱うことになり、密度行列による方法が適切である。しかし寿命、イオン化による分布数密度自体の緩和、およびドップラー広がりによる分極の緩和などコヒーレンスを乱す要因が存在し、レーザー同位体分離における励起ダイナミクスを解明するためには、各方程式の記述できる限界を評価し、どの形式がふさわしいかを決定しておく必要がある。それはまたコヒーレンスが励起にいかに関与するかを知ることに等価であると考えられる。

以上の観点からコヒーレンスが励起に与える影響を Bloch 方程式と Wilcox-Lamb による rate 方程式とを用いて計算し比較した。Wilcox-Lamb 法での rate 方程式の各単位密度変化の rate⁶⁾ は式 (2-8) で与えられる。

$$R = \frac{1}{4} \Omega^2 \left(\gamma + \frac{1}{\tau_c} \right) / \left[\left(\frac{\gamma}{2} + \frac{1}{\tau_c} \right)^2 + \Delta^2 \right] \quad (2-8)$$

ここで γ はイオン化率 (= 電離速度の逆数)、 $1/\tau_c$ は弾性衝突による緩和速度、 Ω は Rabi 周波数 ($\propto \sqrt{I}$) である。

レーザーで励起する場合、コヒーレンスの緩和としては衝突による位相の乱れ、イオン化による上準位密度の損失、さらにドップラー広がりによる位相の平均化が考えられる。

まずイオン化がコヒーレンスの緩和に与える影響を考察する。

図 2-3 は 2 単位原子系において Rabi 周波数 $\Omega = 0.5 \text{ GHz}$ で励起し、最上準

位からのイオン化率 γ を変化させたときの各準位の分布数密度の時間発展を示しており、左側 (a) が Bloch 方程式による計算結果、右側 (b) が rate 方程式による結果である。ここで Rabi 周波数とはレーザー光強度の平方根に比例する量であり、レーザー光に対する原子の応答速度を表わす。

(a)、(b) を比較すると $\gamma > \Omega$ の領域では両方程式とも同様の結果となり、 $\gamma \geq 10 \Omega$ では両者の区別はつかなくなる。 $\gamma < \Omega$ では各準位の分布数密度の時間発展は著しく異なる。分布数密度の振動 (Rabi oscillation, Rabi flopping) と瞬時的な分布反転の 2 つはコヒーレント領域特有の現象である。しかし rate 方程式はほぼ Bloch 方程式による平均の分布数密度の時間発展を示しており、最終的なイオン量を求めたいときには rate 方程式による計算で十分である。 $\gamma \sim \Omega$ 付近では、(a) と (b) ではイオンの生成速度に僅かな差が見られるが、(a)、(b) とともにこのとき最もイオンの生成速度が速い。

多準位原子系では、直感的に上段にいく程 Rabi 周波数 Ω を大きくしてやれば、効率よく励起できるように思われる。そこで $\gamma = a \Omega_2 = a^2 \Omega_1$ とし、係数 a を $\sqrt{2}$, 2, 4, 10 と変化させた場合の各準位の分布数密度の時間発展を図 2-4 に示す。各準位の分布数密度、イオン量、イオン化速度に (a)、(b) では差が見られる。準位数を増加させる程この違いは顕著になる。

また位相を考慮できる Bloch 方程式のみが表わせ、位相を考慮できない rate 方程式が表わすことのできない励起ダイナミクスの 1 例を図 2-5 に示す。図 2-5 は 3 準位入型の励起スキームでの励起ダイナミクスであり、U や G d の同位体分離において基底準位にある原子だけでなく、準安定準位に熱励起されている原子をも利用する場合にはこの励起スキームを用いる。このスキームでは 2 光子共鳴状態で 2 つの下準位に population がトラップされ、レーザー光強度を強くしても最大 1/2 の原子しかイオン化できない。この現象は準安定準位に熱励起された原子をも利用する際、問題となるため第 4 章 4-2 で詳しく議論する。その他 Bloch 方程式のみが記述できる効果としては AC シュタルク効果等がある。

ドップラー広がりによる影響については 2-6-1 で述べる。

衝突による効果はイオン化と同様の方法で方程式に導入できるため結果としては γ を $1/\tau$ に置き換えたものに等しくなる。レーザー同位体分離で分離能力を最大に発揮するには、発生蒸気中の原子数は多いほどよい。しかし原子が多いと電離さ

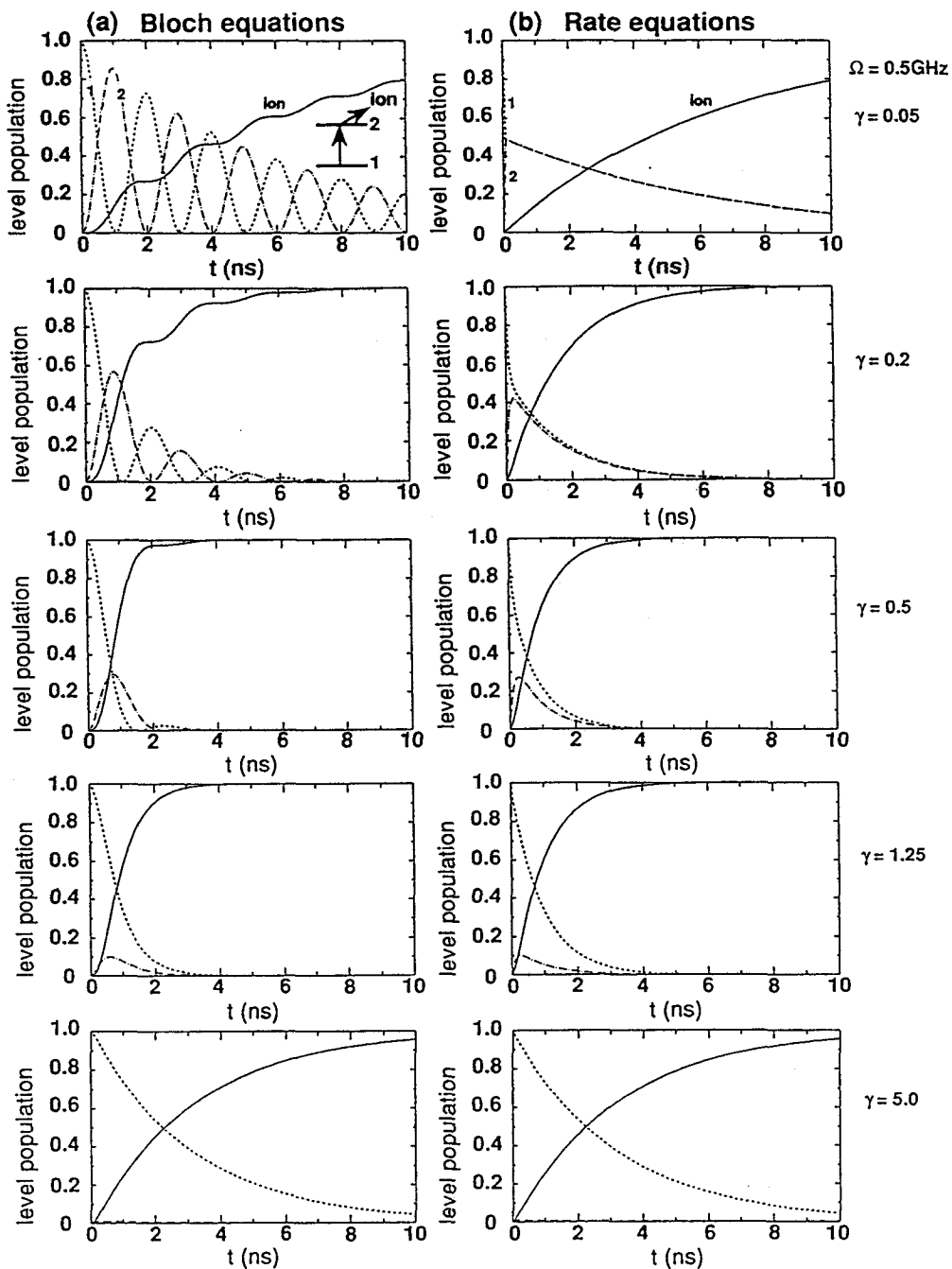


図 2-3 コヒーレント励起とインコヒーレント励起の比較 (2 準位系)
 (a)はBloch方程式、(b)はWilcox-lambのrate方程式による各準位密度の時間発展。 $\gamma < \Omega$ では(a)でRabi振動と瞬間的な反転分布が見られる。(b)は単調に変化してはいるが、(a)の結果の平均を表わしている。 $\gamma \sim 10 \Omega$ では(a)と(b)の結果は区別できない。

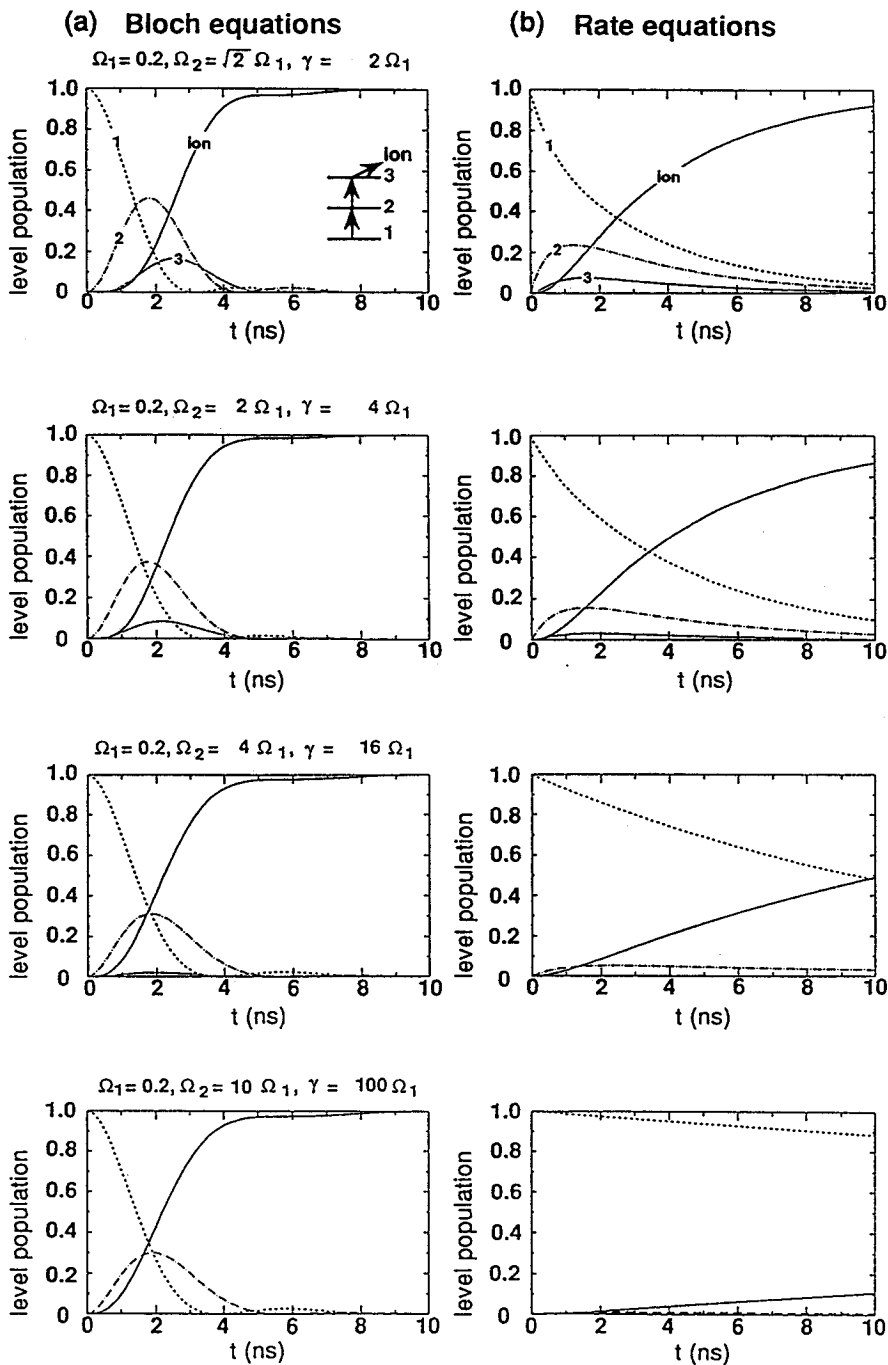


図 2 - 4 コヒーレント励起とインコヒーレント励起の比較 (3 準位系)
 (a)はBloch方程式、(b)はWilcox-lambのrate方程式による各準位密度の時間発展。図 2 - 3 における(a)と(b)の類似点は消失する。多くの準位が関係する多段階励起になるほど(a)と(b)の違いは顕著になる。

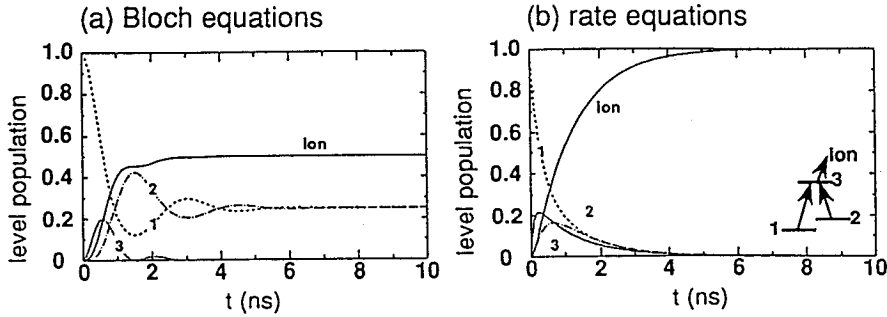


図2-5 コヒーレント励起とインコヒーレント励起の比較(3準位λ型)
 (a)では1/2の原子しかイオンにできない現象が、2光子共鳴条件で起こる。(b)ではいかなるパラメーター領域でもそのような現象は現われない。

れた標的 isotop 体イオンとイオン化されていない非標的 isotop 体原子との衝突があまりにしばしば起こり、電荷移行⁷⁾を起こしてしまうので、レーザー照射領域での原子数は最大 10^{13} atoms/cm³ 程度に抑えられる。 10^{13} atoms/cm³ 程度の薄い原子蒸気であり、しかも原子蒸気ビームを用いるために衝突の効果は重要でない。

以上の考察よりレーザー同位体分離においてはコヒーレンスの緩和としてイオン化が重要であり、多段階電離スキームを用いる場合 rate 方程式ではその励起ダイナミクスは記述できず、Bloch 方程式によってのみ記述できることが明らかになった。

§ 2-4 光反応過程のモデリング

レーザー同位体分離では、レーザー光の原子による吸収、誘導放出が衝突、自然放出等の脱励起よりも励起ダイナミクスに強く影響するコヒーレントな領域で励起が行なわれる。さらに多段階励起を行なうため、高効率励起に関係するレーザー系、原子系のパラメーターは非常に多くなる。このためレーザーと原子の相互作用の基本モデルを構築し、シミュレーションコードを開発してモデル計算を行ない、レーザー光照射条件などシステム設計上の指針を与えることは、レーザー同位体分離の効率追求の上で不可欠である。

レーザー同位体分離における光反応過程、すなわちレーザーと原子の相互作用をモデル化する場合、緒論でも述べたとおり2つの事柄を考える必要がある。1つは

入射レーザー光に対して原子がどのように応答するか、言い換えればレーザー光により励起され、分極・準位密度がいかに発展していくかである。もう1つは原子の応答の結果生じた分極が源となって発生する光により、伝播していくレーザー光自体がどのように変化していくかである。これら2つのテーマをレーザー同位体分離に関連させるとき、空間縮退、超微細構造、ドップラー広がりなどの原子系の特徴と、パルス幅、レーザー光強度などのレーザー系の特徴を入力とする図2-6に示す基本モデルが考えられる。この基本モデルでは、レーザー系と原子系の特徴を入力として考え、密度行列方程式を用いて、励起された多準位原子系の応答を計算する。その応答とは各準位密度、生成イオンの時間変化および準位間に誘導された分極の時間変化である。実験と対比させるには、周波数方向での平均、すなわちドップラー広がりを考慮する必要がある。これらの原子の応答が、伝播していくレーザー光にどのように影響し、レーザー光自体を変化させるかをMaxwell方程式により計算する。さらに変化させられたレーザー光によって、次の微小体積にある原子は前とは異なる応答を示し、レーザー光へ影響を及ぼす。このように伝播方向(z方向)に対して繰り返し原子の応答とレーザー光の変化を考えていく。

この基本モデルの入力として示したレーザー系、原子系のパラメーターの中で、UやG dの同位体分離において前提条件となっている事柄や自明な事柄をここで簡単に整理しておく。

UやG dのレーザー同位体分離では、分離用レーザーとして銅蒸気レーザー励起色素レーザーが開発されている。銅蒸気レーザーの発振波長は510.6 nmであるため、励起される色素レーザーの発振波長は用いる色素に依存するが、励起効率の高い570 nm~650 nm程度と考えられる。U, G dの第一イオン化ポテンシャルが6.2 eV程度であるため、励起・電離スキームは3段階電離法となる。したがって必要なレーザーは基底準位に存在する原子のみを利用する場合で3台、準安定準位に熱励起されている原子も利用し効率を上げるには4台以上必要となる。

レーザーは光子の利用効率を向上させるため原子蒸気中を長距離伝播させる。長距離伝播をさせない場合であれば、対向にレーザーを入射させ、ドップラーフリーで高效率励起が行なえるが、伝播させながら多段階励起をおこなうため同一方向に重ねて入射する必要がある。

レーザーの空間強度分布は、レーザービームの自己集束や自己発散など原子との

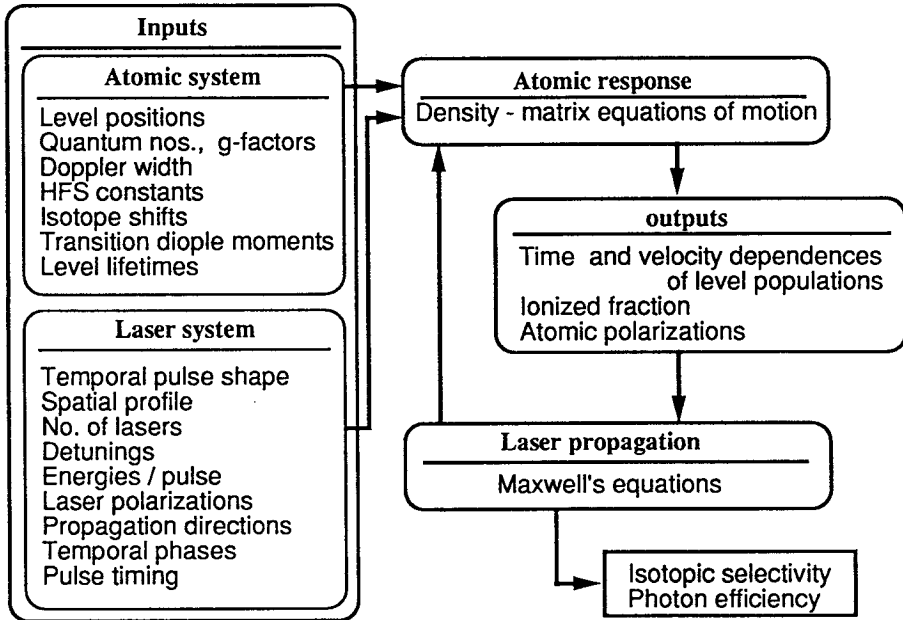


図 2 - 6 レーザー同位体分離の光反応過程のモデリング

相互作用領域および励起強度の急激な変化を起こす効果を抑制する必要から、極めて均一にすべきである。

レーザーの周波数と遷移の共鳴周波数との差 (detuning) は、基本的には 0 である。遷移の Bohr 周波数にレーザーを同調させた場合が、一般に最も励起効率が高いからである。しかし超微細構造など共鳴周波数が分散している場合には必ずしも detuning = 0 でイオン量が最大になるとは限らず、用いるレベルの超微細構造の形や広がり依存する。

ここでは空間縮退、超微細構造のモデル化についての考察を行なう。

2 - 4 - 1 空間縮退の影響

量子数 J で特定される 1 つの単位は $2J + 1$ 重に縮退しており、ゼーマン効果で知られるように磁場をかけると

$$m = J, J - 1, \dots, -J \quad (2 - 9)$$

の $2J + 1$ 個のサブレベルに分裂する。ある準位間の遷移を考えた場合、縮退している量子数 m で特定されるサブレベル間では、レーザー光の偏光状態との関係で次の遷移則が成立する。許容される遷移は

直線偏光に対し、 $\Delta m = 0$
 ただし $J' = J$ のときは $m = 0 \rightarrow m' = 0$ は禁制
 右回り円偏光に対し、 $\Delta m = +1$ (2-10)
 右回り円偏光に対し、 $\Delta m = -1$

のみであり、またその許容遷移を駆動する Rabi 周波数も、遷移行列要素の大きさにより異なる。これら遷移行列要素は Wigner-Eckart の理論⁵⁾より、

$$\begin{aligned} \langle J'm | d_q | Jm \rangle &= \frac{1}{\sqrt{2J'+1}} \langle Jm, 1 q | J'm' \rangle \langle J' || d || J \rangle \\ &= (-1)^{J'-m'} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ -m' & q & m \end{pmatrix} \langle J' || d || J \rangle \end{aligned} \quad (2-11)$$

と書ける。ここで $\langle J m, 1 q | J' m' \rangle$ は Clebsch-Gordan 係数⁵⁾、 $\langle J' || d || J \rangle$ は Wigner の $3j$ シンボル⁵⁾ である。1例として (2-11) 式を直線偏光 ($q = 0$) に対し、書き下すと式 (2-12) となる。

$$J' = J + 1 \text{ のとき } \sqrt{\frac{(J-m+1)(J+m+1)}{(2J+3)(2J+1)(J+1)}} \quad (2-12)$$

$$J' = J \text{ のとき } \frac{m}{\sqrt{(2J+1)(J+1)J}}$$

$$J' = J - 1 \text{ のとき } \sqrt{\frac{(J-m)(J+m)}{(2J+1)J(2J-1)}}$$

[1] 静的解析

空間縮退している準位間での遷移の様子を図 2-7 (a) ~ (f) に示す。縮退しているサブレベルの 1 つ 1 つは量子数 m で表わされ、各サブレベルに対し図中に数字で示した。太線はサブレベル間で起こる励起を示し、細線は寿命などによる上準位からの緩和を表わす。レーザー光を吸収して起こる遷移は式 (2-6) に示した選択則に従うが、衝突による励起や寿命・衝突による緩和は点線で示すように、 $\Delta m = \pm 1, 0$ を満たすすべてのサブレベルに対して起こる。

図を見てわかるように、空間縮退をした準位においては、レーザー光の偏光との関係で必ずしもすべてのサブレベルにある原子が励起されるとは限らない。例えば図の (a) は直線偏光のレーザーで $J = 1 \rightarrow J' = 1$ の遷移を起こす場合で、この場合上下準位の J 値が同じであり選択則 (2-10) 式より、遷移 $m = 0 \rightarrow m' = 0$ は禁制となる。そのため下準位の $m = 0$ のサブレベルにある原子は上準位に励起されない。また直線偏光で $J = 2 \rightarrow J' = 1$ の遷移を起こす場合 (b) では、同じく選択則 (2-10) 式より $m = \pm 2$ の 2 つのサブレベルにある原子は励起できない。したがって下準位にある原子の最大 60% しか上準位に励起できず、系から取

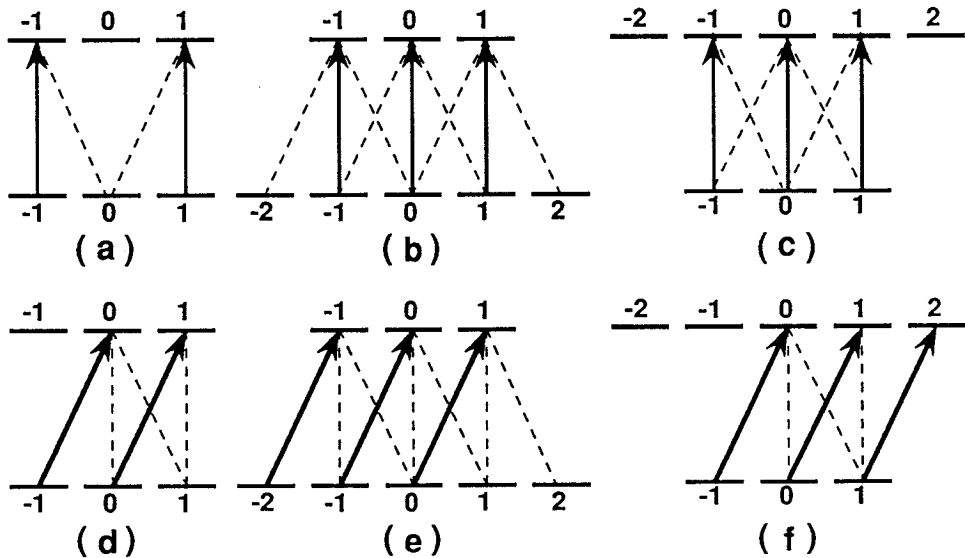


図 2-7 偏光と励起されるサブレベル
 (a)~(c)は直線偏光励起、(d)~(f)は右回り円偏光励起。
 上下準位の J 値の組合せにより、上準位へ励起されない
 サブレベルの数が変わる。

り出せるイオン量も最大60%となってしまいます。このように偏光との関係で選択則からどうしても励起できないサブレベルが存在する。これらの静的解析の結果を表2-1⁸⁾にまとめた。

したがって例えば図2-8に示すように、多段階励起において $J=1 \rightarrow J=1 \rightarrow J=1$ と各準位を選び、かつ円偏光で励起すると各ステップ毎に1つのサブレベルにある原子が励起されず、3ステップ目では全く励起されなくなる。

以上の静的解析によると、下準位（基底準位）のサブレベルには初期に同じ確率で原子が分配されているため、1つのサブレベルでも上準位と結合できなければ、 $1/(2J+1)$ だけ原子が励起されず、しいては系から取り出せるイオンの数とその分減少する。効率的な励起をおこなうためにはイオン化への多くの経路をもつ準位を選択する必要がある、

表2-1 励起されないサブレベルの数

transition $J \rightarrow J'$	no. of accessible sublevels	no. of inaccessible sublevels	
		linear	circular
$J' = J + 1$	$2J + 1$	0	0
$J' = J$	$2J$ $(2J + 1)$	1 (0)	1
$J' = J - 1$	$2J - 1$	2	2

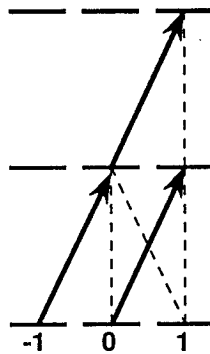


図2-8
偏光を用いた多段階励起
($J=1 \rightarrow J=1 \rightarrow J=1$)
このような準位と偏光との組合せを選ぶ
と3段階目以降原子は全く励起されない。

$$J \rightarrow J + 1 \rightarrow J + 2 \rightarrow J + 3 \rightarrow \dots \quad (2-13)$$

$$J \rightarrow J + 1 \rightarrow J \rightarrow J + 1 \rightarrow \dots$$

が効率的であり、

$$J \rightarrow J - 1 \rightarrow J - 2 \rightarrow J - 3 \rightarrow \dots \quad (2-14)$$

は選択すべきでないことが明らかである。これらの静的解析の結果は励起の詳細に依存しない。すなわち励起レーザーのパルス波形や励起法に依存せず、選択則のみで決定されてしまう。それだけに高効率な同位体分離を行なうためには、採用する準位の選択において式(2-13)は必ず考慮する必要がある。

空間縮退している準位間での励起ダイナミクスを考える場合には、縮退した準位はエネルギーには差が無いので、単に各サブレベル間の遷移の双極子行列要素の大きさの違いのみを考慮すればよい。

分布数密度の時間変化の1例として、図2-9に $J = 6 \rightarrow J' = 6$ について直線偏光励起の場合を示す。空間縮退の効果として、分布数密度の時間変化の平均化とビートの出現が見られる。その結果平均化された分布数密度変化には特長的な時間

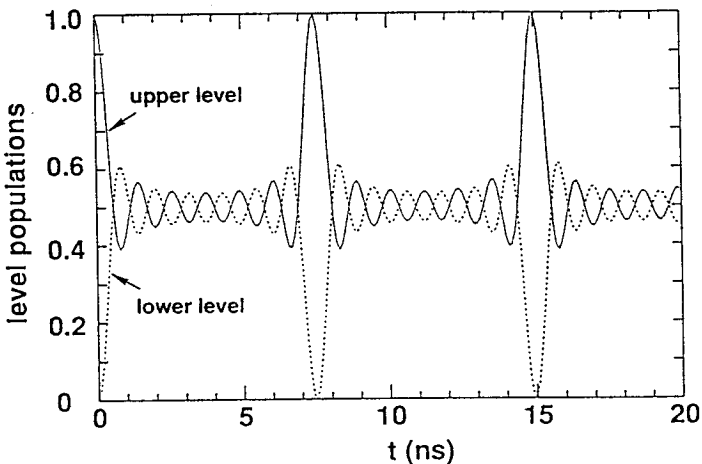


図2-9 直線偏光励起された遷移 $J=6 \rightarrow J'=6$ での上下準位密度の時間発展
準位密度の平均化とビートが見られる。

スケールが存在する。

空間縮退はドップラー広がりと同様に、分布数密度における振動を平均化してしまふ効果があるが、空間縮退の場合はハミルトニアンに対角成分、すなわち分布数密度についての平均化であり、ドップラー広がりの方は非対角成分、すなわち分極についての平均化であるところが異なる。さらに空間縮退により取り得る双極子行列要素は、方向量子化により離散的であるためビートが生じると考えられる。

[2] モデルでの取り扱い

単位の空間縮退を考慮した励起ダイナミクスモデルは、図2-7(a)~(f)で点線で示した衝突や自然放出によるサブレベル同士の結合が無視できれば、単に縮退のない単位間の遷移の足し合わせで実現できる。図2-10を例にとると、サブレベルから構成される4波長3段階電離スキームをその基本式で計算し、7組についてその計算結果をたし合わせる。点線で示した禁制遷移については遷移行列要素の大きさを0として計算すればよい。

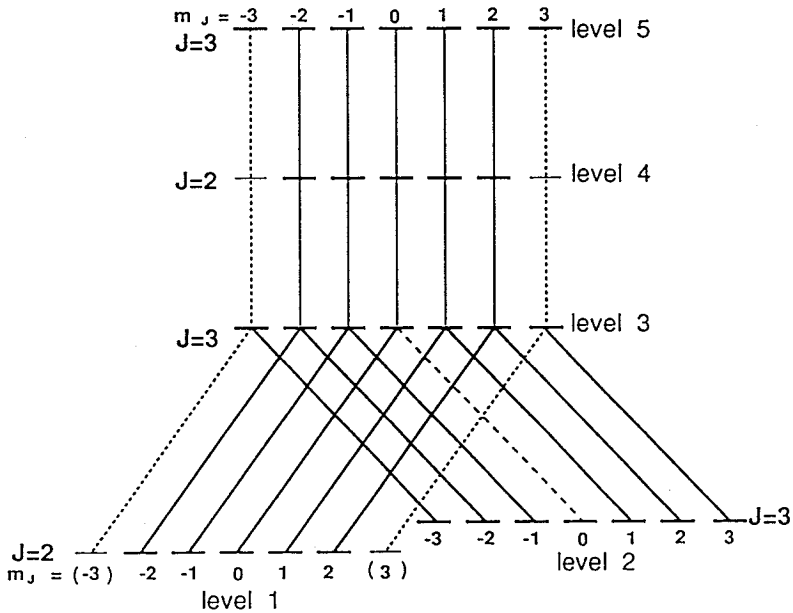


図2-10 4波長3段階電離スキームでの空間縮退の取り扱い
 細線で描いたサブレベルは仮想レベル。点線は実際には起かない遷移で、双極子行列要素を0として計算することにより、この系全体を7組の5-state systemの集合と見なせる。

G d や U では、第 3 章 § 3 - 3 で示すように励起準位の寿命は数 1 0 0 n s 程度とパルス幅に比べて長いため寿命による緩和の影響は小さい。また $1 0^{13} \text{ c m}^{-3}$ 程度の原子密度でかつ原子蒸気ビームを用いるため衝突による効果も無視できる。したがって G d や U を分離対象として計算する場合この簡略化は正当性をもつ。

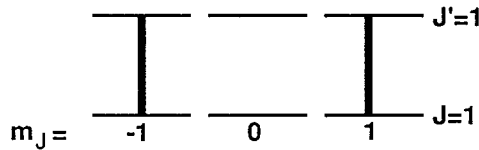
2 - 4 - 2 超微細構造の影響

[1] 静的解析

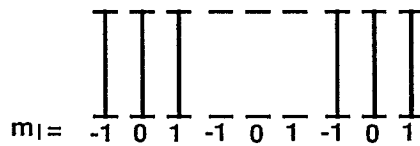
超微細構造をもつ $I \neq 0$ の同位体の励起ダイナミクスを考える場合、以下の 3 点について考慮する必要がある。

- (1) 超微細相互作用により選択則が変化し、レベル同士が複雑に結合する。
- (2) 各レベル間の遷移の Rabi 周波数が異なる。
- (3) 遷移の共鳴周波数が僅かずつ異なる。

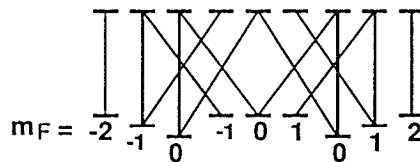
(1) については、すでに 2 - 2 - 2 で述べたように核スピン I と軌道角運動量 J との相互作用に起因する。この様子を図 2 - 1 1 に示す。図 2 - 1 1 において、最



(a) 核スピン $I = 0$ の場合



(b) 核スピン $I = 1$ をもつが、
J と I がカップリングしていない場合



(c) J と I がカップリングしている場合

図 2 - 1 1 超微細構造をもつ同位体での遷移
(直線偏光で励起した場合)

上段の図は核スピン $I = 0$ で $J = 1$ の下準位から $J' = 1$ の上準位への励起における遷移のパターンを示している。上下準位の J 値が 1 であるため、各々 $2J + 1 = 3$ のサブレベルが縮退しており、直線偏光で励起した場合 $m_J = 0 \rightarrow m_{J'} = 0$ の遷移は禁制である。したがって下準位に存在する原子の $2/3$ しか励起されない。中段の図は、同位体が核スピン $I = 1$ をもつが、超微細相互作用しない（または相互作用が非常に弱い）場合の遷移パターンに相当する。この場合原子核は系のハミルトニアンを変化させないため、核スピンは 1 つのサブレベルに $2I + 1$ 個の自由度を導入したにすぎず、 m_J で表わされる 1 つのサブレベルが $2I + 1$ 個の m_I で表わされるサブレベルの集合と考えることができる。この I と J がカップリングを起こしていない状態では、系を表わすのに良い量子数は J と m_J のままである。超微細相互作用（ I と J のカップリング）は、準位のエネルギー値をシフトさせるとともに、 m_J と m_I で表わされる状態を混合し、 m_F で表わされる状態をつくる。そのため直線偏光で励起した場合、 $\Delta m_F = 0$ となる遷移が起こる。その結果最下段の図を見てわかるように、下準位のすべてのサブレベルから上準位に至る遷移が起きる。このように超微細構造が無いときよりも超微細構造がある方が上準位に至るより多く経路が出現する。この事実は選択則を利用した同位体分離の原理であり、第 4 章 § 4-4 で実験により明らかにした。

表 2-2⁹⁾ に超微細構造がある場合とない場合での励起されないサブレベルの数を示す。

表 2-2 励起できないサブレベル数

transition $J \rightarrow J'$	超微細構造なし		超微細構造あり	
	linear	circular	linear	circular
$J' = J + 1$	0	0	0	0
$J' = J$	1 (0)	1	0	1
$J' = J - 1$	2	2	2	3

(0) for $J = \text{half odd integer}$

(2) については、各遷移の双極子行列要素が異なることに起因している。核スピ
ン $I \neq 0$ の場合、

$$\langle J'I'F'|d||JIF\rangle = (-1)^{J'+I'+F'+1} \sqrt{(2F'+1)(2F+1)} \left\{ \begin{matrix} J' & F' & I' \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\} \langle J||d||J\rangle \delta_{I'I} \quad (2-15)$$

であり、さらに量子数 F で表わされる各レベルは $2F+1$ 個のサブレベルに縮退し
ており、これらの双極子行列要素は

$$\langle J'I'F'm|d_q||JIFm\rangle = (-1)^{F'-m} \begin{pmatrix} F' & 1 & F \\ -m' & q & m \end{pmatrix} \langle J'I'F'|d||JIF\rangle \quad (2-16)$$

で与えられる。ここで $\left\{ \begin{matrix} J' & F' & I' \\ F & J & 1 \end{matrix} \right\}$ は $6j$ シンボル⁵⁾、 $\begin{pmatrix} F' & 1 & F \\ -m' & q & m \end{pmatrix}$ は $3j$ シンボル⁵⁾ である。

(3) については、超微細構造分裂の相互作用エネルギーに依存しており、共鳴
周波数差はCasimirの式(2-6)で与えられる。

[2] モデルでの取り扱い

超微細構造をモデル化する場合、上で述べた(1)~(3)のうち(1)につい
ては非常に難しい問題を含んでいる。例として $I = 3/2$ をもつ同位体の $J = 1/2 \rightarrow J = 1/2$ の遷移について考察する。(図2-12)

図2-12に示すように2準位間の遷移は2-state間の遷移の単なる和ではなく
8の字型の4-stateが関与する遷移も含まれている。この4-stateを含む励起ダ
イナミクスを記述するには17個の実数変数を扱うことになる。4波長3段階電離
のようにさらに上準位までを含む励起スキームを考える場合、変数の数は膨大とな
り(例えば N -stateを含むならば、実数変数の数は N^2+1 個)、それらを解くこ
とは困難である。

この問題に対し、準位1(量子数 J)から準位2(量子数 J')の遷移を考える
とき、表2-3に示すとおり超微細構造内では

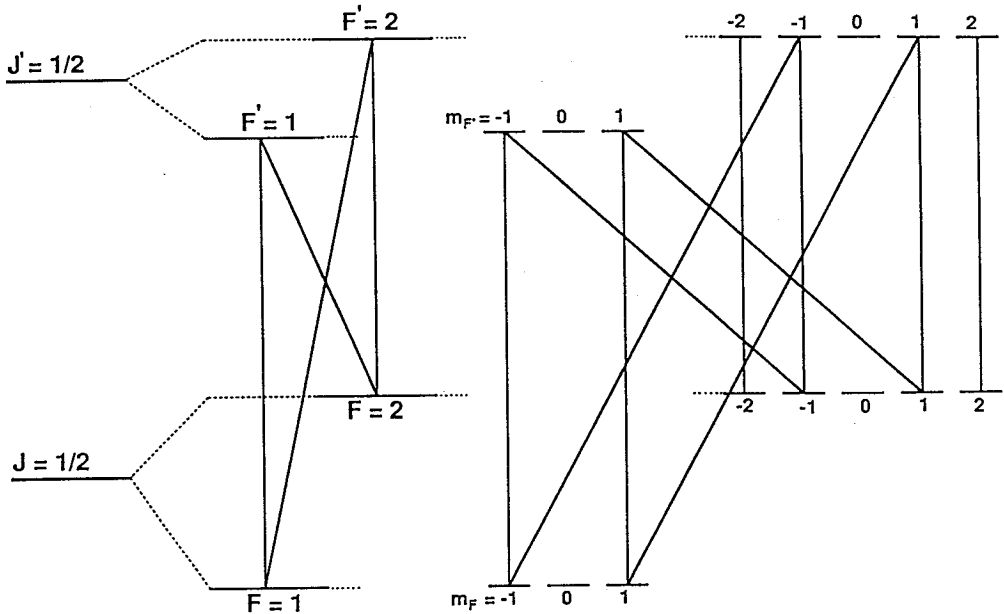


図 2-12 $J=1/2 \rightarrow J'=1/2, I=3/2$ における超微細構造
 単なる 2 準位系の集合ではなく、選択則が変わるために
 複雑な遷移が起こる。閉じた系も出現する。

$$\begin{aligned}
 J' = J - 1 \text{ のとき} & \quad F' = F - 1 \\
 J' = J \text{ のとき} & \quad F' = F \\
 J' = J + 1 \text{ のとき} & \quad F' = F + 1
 \end{aligned}
 \tag{2-17}$$

の遷移が最も強いという事実を利用する。例えば U では基底準位の J 値は 6 であるが、効率を考慮して式 (2-6) に従い $J = 7$ に励起する場合、上準位の F 値が下準位の F 値 + 1 となる遷移の強度が、全体の 90% 近くを占めている。この傾向は J 値が大きくなるほど強くなる。この最も強い遷移強度をもつ遷移のみを考慮することで、4 波長 3 段階電離スキームの場合でも、すべて 5-state system の集まりとみなすことができ 1 組の基本式で励起ダイナミクスを精度よく計算できる。遷移強度が弱いとして無視した遷移を考慮すると、閉じた系ができる。例えば図 2-12

では、 $(F=1, m_F=-1) - (F=2, m_F=-1) - (F=1, m_F=-1) - (F=2, m_F=-1)$ は閉じた系を構成している。このような閉じた原子系での励起ダイナミクスについては研究された報告はなく、遷移強度が無視できない程度に強くなると各遷移の位相関係が重要になってくる可能性もある。そこで無視した遷移の影響については第4章 § 4-3 高速断熱通過で考察した。

表 2-3 超微細構造内での各遷移強度の比

I	J	J'	F'=F-1	F'=F	F'=F+1
$\frac{3}{2}$ (Gd)	2	1	69.3	28.0	2.7
	2	2	17.7	64.6	17.7
	2	3	0.5	13.3	86.2
	3	3	9.7	80.6	9.7
	3	4	0.2	7.6	92.2
	4	4	6.0	88.0	6.0
	4	5	0.1	4.9	95.0
	5	5	4.1	91.8	4.1
$\frac{7}{2}$ (U)	5	4	80.2	18.4	1.4
	5	5	15.5	69.0	15.5
	5	6	0.7	13.4	85.9
	6	6	11.5	77.0	11.5
	6	7	0.3	10.1	89.6
	7	7	8.8	82.4	8.8
	7	8	0.2	7.8	92.0

§ 2-5 励起ダイナミクスシミュレーションコード

§ 2-4 までの基本的考察より、開発した励起ダイナミクスシミュレーションコードについて簡単に述べる。

現在最もレーザーによるUやGdの濃縮において、最も有望とされている銅蒸気レーザー励起色素レーザーを光源とするシステムを考える場合、分離対象であるUやGdの第一イオン化ポテンシャル($\sim 6.2 \text{ eV}$)とレーザーの波長(570~650 nm)から、励起・電離のスキームは4波長3段階電離スキームとなる。そ

図 2-13 に示したモデルを考えた。

コヒーレント励起ダイナミクスでは Einstein の A, B 係数ではなく、Rabi 周波数が最も重要なパラメーターとなる。コヒーレント相互作用の領域では原子・光コヒーレンス系とも呼ぶべき一体系がもつ固有振動数で応答速度が決定される。この固有振動数が Rabi 周波数¹⁰⁾である。Rabi 周波数とレーザー光強度との関係は

$$\Omega = \frac{p}{h} E = \frac{p}{h} \sqrt{\frac{8\pi I}{c}} \quad (2-18)$$

で与えられる。ここで E はレーザー電場の振幅の大きさ、p は遷移双極子モーメント、h はプランク定数、I はレーザー光強度である。コヒーレント励起を特徴づけるこの Rabi 周波数は、

(1) 相互作用の強さ

(2) 単位密度の振動の周波数

の 2 つの意味をもつ重要なパラメーターである。Rabi 周波数を実際のレーザー光強度に換算するには、式 (2-18) からわかるように遷移双極子モーメント p が必要である。U や G d では遷移の双極子モーメントはほとんど報告されていない。また Rabi 周波数と時間の積が同じであれば、励起ダイナミクスは同じになる。すなわち各単位密度や分極の時間変化は同じふるまいを呈する。この 2 つの理由から励起ダイナミクスシミュレーションコードの開発にあたっては、レーザー光強度そのものではなく Rabi 周波数を用いる。

図 2-13 において Ω_k ($k = 1, 2, 3, 4$) は準位 k から準位 $k + 1$ へ励起するレーザーの Rabi 周波数、 Δ_k ($k = 1, 2, 3, 4$) は次式で定義される励起レーザー光の周波数と遷移の Bohr 周波数との差 (detuning) である。

$$\begin{aligned} \Delta_k &= \nu_{\text{Laser}} - \nu_{k, k+1} \\ &= \nu_{\text{Laser}} - (E_{k+1} - E_k) / h \end{aligned} \quad (2-19)$$

また各励起準位からの緩和 γ_k ($k = 3, 4, 5$) を考えた。Heisenberg picture から得られるレーザーに対する原子の応答は、次の基本式で表わすことができる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [H_{\text{atom}} + H_{\text{coherence}}, \rho] + \rho_{\text{random}} \quad (2-20)$$

ここで H_A は原子の自由ハミルトニアン、 $H_{\text{coherence}}$ はレーザーとの相互作用ハミルトニアン、 ρ_{random} は緩和項である。電気双極子による相互作用のみを考え、かつ衝突や寿命による緩和を省略して書き下すと式 (2-21) となる。

式 (2-21) で ρ_{kk} は準位 k の分布数密度を表わし、 ρ_{lm} ($l < m$) は準位 l と準位 m 間の位相関係に依存した量で原子間のコヒーレンスを表わす。

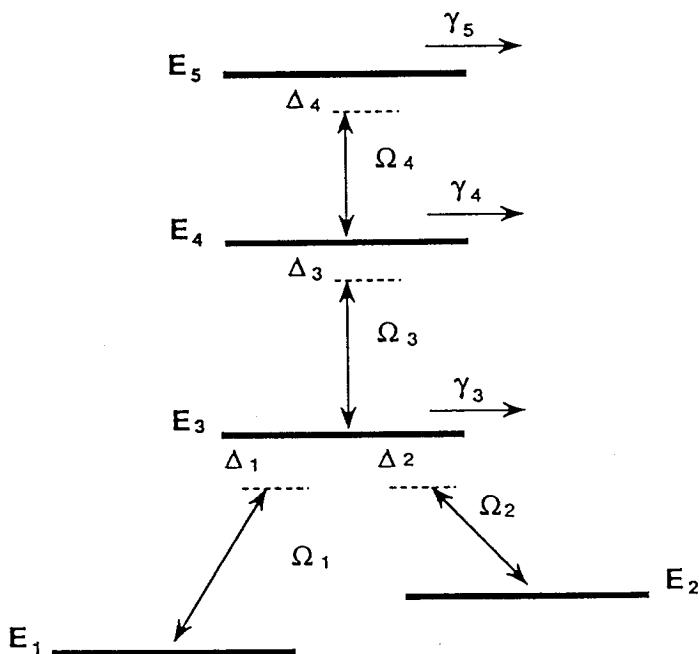


図 2-13 4 波長 3 段階電離スキーム
U や G d では銅蒸気レーザー励起色素レーザーを用いて、この励起・電離スキームで同位体の分離が行なわれる。

準位 1 の分布数密度

$$\dot{\rho}_{11} = \frac{1}{2}i\Omega_1(\rho_{13} - \rho_{31})$$

準位 2 の分布数密度

$$\dot{\rho}_{22} = \frac{1}{2}i\Omega_2(\rho_{23} - \rho_{32})$$

準位 3 の分布数密度

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{33} = & \frac{1}{2}i\Omega_3(\rho_{34} - \rho_{43}) - \frac{1}{2}i\Omega_2(\rho_{23} - \rho_{32}) \\ & - \frac{1}{2}i\Omega_1(\rho_{13} - \rho_{31}) - \gamma_3\rho_{33}\end{aligned}$$

準位 4 の分布数密度

$$\dot{\rho}_{44} = \frac{1}{2}i\Omega_4(\rho_{45} - \rho_{54}) - \frac{1}{2}i\Omega_3(\rho_{34} - \rho_{43}) - \gamma_4\rho_{44}$$

準位 5 の分布数密度

$$\dot{\rho}_{55} = -\frac{1}{2}i\Omega_4(\rho_{45} - \rho_{54}) - \gamma_5\rho_{55}$$

イオン

(2-21)

$$\dot{\rho}_{\text{ion}} = \gamma_5\rho_{55}$$

$$\dot{\rho}_{12} = -\{i(\Delta_1 - \Delta_2)\}\rho_{12} + \frac{1}{2}i(\Omega_2\rho_{13} - \Omega_1\rho_{32})$$

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{13} = & -\left(i\Delta_1 + \frac{\gamma_3}{2}\right)\rho_{13} \\ & + \frac{1}{2}i(\Omega_1\rho_{11} + \Omega_3\rho_{14} - \Omega_1\rho_{33} + \Omega_2\rho_{12})\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{14} = & -\left\{i(\Delta_1 + \Delta_3) + \frac{\gamma_4}{2}\right\}\rho_{14} \\ & + \frac{1}{2}i(\Omega_3\rho_{13} + \Omega_4\rho_{15} - \Omega_1\rho_{34})\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{15} &= - \left\{ i(\Delta_1 + \Delta_3 + \Delta_4) + \frac{\gamma_5}{2} \right\} \rho_{15} + \frac{1}{2} i(\Omega_4 \rho_{14} - \Omega_1 \rho_{35}) \\
\dot{\rho}_{23} &= - \left(i\Delta_2 + \frac{\gamma_3}{2} \right) \rho_{23} + \frac{1}{2} i(\Omega_2 \rho_{22} + \Omega_1 \rho_{21} + \Omega_3 \rho_{24} - \Omega_2 \rho_{33}) \\
\dot{\rho}_{24} &= - \left\{ i(\Delta_2 + \Delta_3) + \frac{\gamma_4}{2} \right\} \rho_{24} + \frac{1}{2} i(\Omega_3 \rho_{23} + \Omega_4 \rho_{25} - \Omega_2 \rho_{34}) \\
\dot{\rho}_{25} &= - \left\{ i(\Delta_2 + \Delta_3 + \Delta_4) + \frac{\gamma_5}{2} \right\} \rho_{25} + \frac{1}{2} i(\Omega_4 \rho_{24} - \Omega_2 \rho_{35}) \\
\dot{\rho}_{34} &= - \left(i\Delta_3 + \frac{\gamma_3}{2} + \frac{\gamma_4}{2} \right) \rho_{34} \\
&\quad + \frac{1}{2} i(\Omega_3 \rho_{33} + \Omega_4 \rho_{35} - \Omega_1 \rho_{14} - \Omega_2 \rho_{24} - \Omega_3 \rho_{44}) \\
\dot{\rho}_{35} &= - \left\{ i(\Delta_3 + \Delta_4) + \frac{\gamma_3}{2} + \frac{\gamma_5}{2} \right\} \rho_{35} \\
&\quad + \frac{1}{2} i(\Omega_4 \rho_{34} - \Omega_1 \rho_{15} - \Omega_2 \rho_{25} - \Omega_3 \rho_{45}) \\
\dot{\rho}_{45} &= - \left\{ i\Delta_4 + \frac{\gamma_4}{2} + \frac{\gamma_5}{2} \right\} \rho_{45} + \frac{1}{2} i(\Omega_4 \rho_{44} - \Omega_3 \rho_{35} - \Omega_4 \rho_{55})
\end{aligned}$$

この計算コードを実験との比較や同位体分離に適用するためには、超微細構造、準位の縮退を取り入れる必要がある。これらのモデルでの取り扱いについては、§ 2-4ですでに考察を行なったのでここでは新たに述べない。

次にシミュレーションコードのフローチャートを図 2-14 に示す。Rabi 周波数やパルス波形などの初期パラメーター設定後、各同位体（7つの同位体について計算可能）、超微細分裂した各準位 F、さらに磁気サブレベル m、ドップラー広がり を考慮するために各周波数 δ について繰り返し計算を行ない、各準位の分布数密度の時間発展等を出力する。ここで開発した励起ダイナミクスシミュレーションコードは次節以下で用いている。

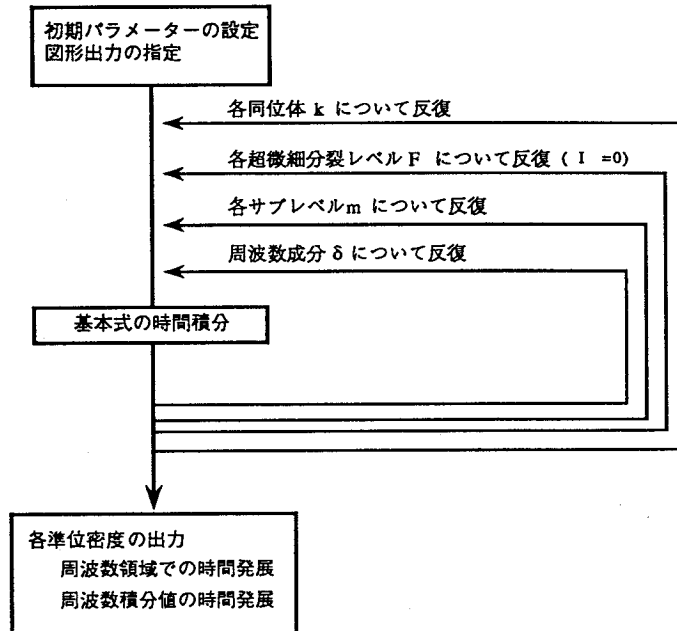


図 2-14 励起ダイナミクスシミュレーションコードのフローチャート

§ 2-6 高効率励起に関する考察

2-6-1 励起パルスのタイミング

多段階電離法により同位体分離を行なう場合、レーザーのタイミングとしては大別して

- (1) 時間遅れ (~パルス幅) をつけて照射
- (2) 同時照射

の 2 つの場合が考えられる。物理的には (1) の場合は各段毎の励起を別々に考えることができ、2 準位原子系の集合と見なせる。一方 (2) の場合は多準位原子系を 1 つの単位として、その中で縮退や超微細構造などを扱う必要がある。解析の困難さの点では (2) に比べて (1) の方がはるかに易しい。

励起準位の寿命がパルス幅に比べ短ければ、(2) の方がイオン化率の点で有利であるのは明白である。もし寿命による緩和を無視できたとしても以下の理由により (2) の方が有利である。

時間遅れをつけて照射すると、その時間遅れの間には縮退の効果、レーザーの強度ゆらぎ、周波数ゆらぎ等のコヒーレンスを乱す効果によって分極が減衰してしまい、上準位に $1/2$ 程度しか励起されなくなる。N 段で電離に至るとすれば、(1) の場合 $(1/2)^N$ の原子しかイオンとして取り出すことができない。一方(2) の場合は上述の飽和効果が起きないため、すべての原子をイオンとして取り出すことが可能である。

2-6-2 励起パルス波形と励起スペクトル

励起ダイナミクスモデル化として、おもに原子系の取り扱いについて述べたが、ここでは入力として与えられるレーザーパルス波形とその励起スペクトルについて述べる。

2 準位系での基本式において、励起パルスを矩形波としたとき唯一解析解が見いだせ、上準位の分布密度は

$$|C_2(T)|^2 = \left\{ \Omega^2 / (\Omega^2 + \Delta^2) \right\} \sin^2(\sqrt{\Omega^2 + \Delta^2} T / 2) \quad (2-22)$$

となる。ここで T は矩形パルスの幅、 Δ は離調、 Ω はピークの Rabi 周波数である。上式で $\Omega < \Delta$ とすると

$$|C_2(T)|^2 \sim \Omega^2 / \Delta^2 \sin^2(\Delta T / 2) \quad (2-23)$$

と近似できる。これに対し矩形波のフーリエ変換は、

$$|E(T)|^2 = 4E_0^2 / \Delta^2 \sin^2(\Delta T / 2) \quad (2-24)$$

となり、式(2-23)と同様の形をしている。図2-15に励起スペクトルとレーザー波形のフーリエ変換スペクトルとの関係を示す。図2-15(a)は5 ns の矩形パルスで2準位系原子を励起した場合の励起スペクトルである。0.5 ns 毎の密度を点線で示し、2.5 ns と5 ns の時の上準位密度を実線で示した。時刻0から5 ns とパルス幅が長くなるに従って、励起される周波数範囲も狭くなっ

ていく様子がよくわかる。(b)は5 ns 矩形パルスをフーリエ変換したスペクトル、すなわちレーザーのスペクトルである。(a)、(b)より励起スペクトルがレーザー波形のフーリエ変換スペクトルになっていることがよくわかる。

レーザーについては完全にコヒーレントであると仮定しているので、図2-16 (a)に示すようにモードロックレーザーで励起する場合、パルス列の各パルスの位相が合っている場合のみを扱うことができる。

超微細構造のように広い範囲に散在するスペクトルを励起するには、高強度のレーザー光をスペクトルの適当な位置に固定して、飽和広がり効果により励起する一般的な方法よりも、図2-16 (a)に示したモードロックレーザーのパルス列のように、レーザーのスペクトル自体を広げて励起する方法がより有効であると考えられる。(a)に示したパルス列では幅1 GHz ($\sim 1/1 \text{ ns}$) 内で200 MHz ($\sim 1/5 \text{ ns}$) 間隔でモードができるくし型のスペクトルができるため、(b)、(c)に示すように広い周波数範囲にわたって励起することができる。パルスに

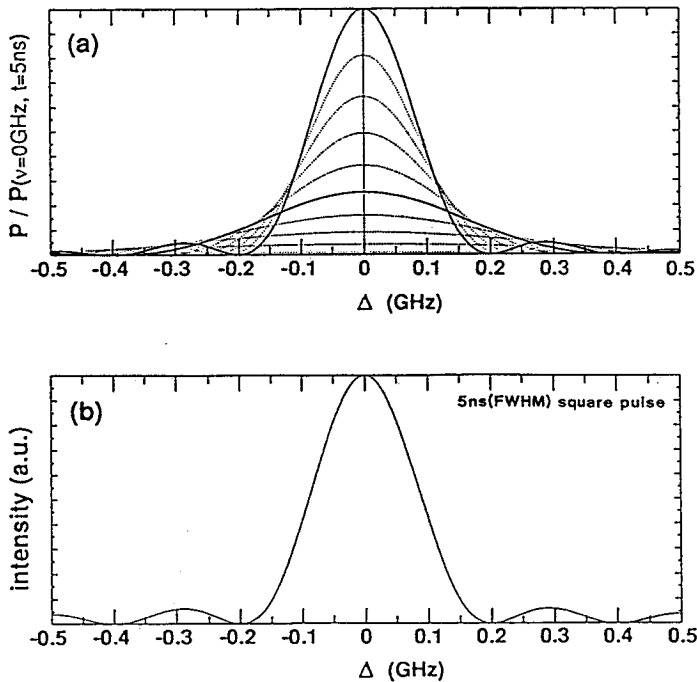


図2-15 レーザー波形と励起スペクトル
 (a) 矩形パルス (FWHM=5 ns) で励起した場合の励起スペクトル (上準位密度) の変化
 (b) 矩形パルス (FWHM=5 ns) のフーリエ変換スペクトル

振幅変調をかけて広い周波数範囲にわたり励起する方法については、詳細な研究がすでにGoldbergら¹¹⁾によりなされている。

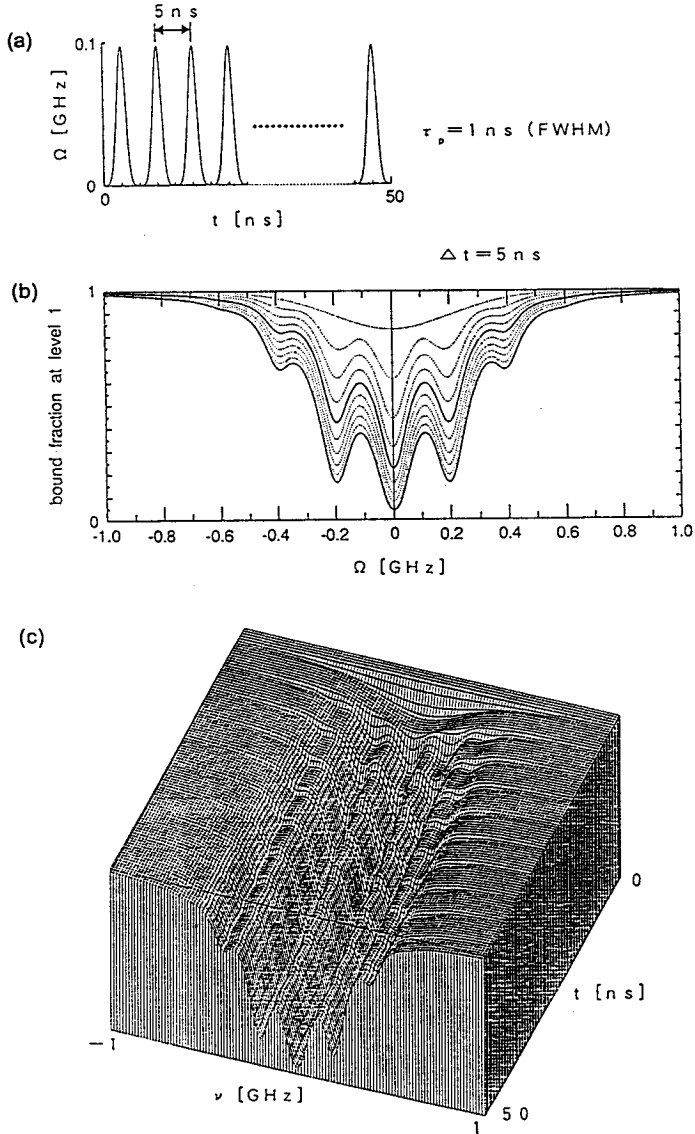


図 2 - 1 6 位相の合ったパルス列による励起
(a)モードロックレーザーのパルス列

(b)下準位密度の変化

(c)(b)の3次元図。パルス数の増加に従い、そのパ
ワースペクトルと同じ形で励起が進行する。

2-6-3 ドップラー広がりの影響

コヒーレント励起特有のRabi振動の周波数は2準位原子系では $\sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$ で与えられる。ここで Ω は共鳴状態にある原子の感じるRabi周波数、 Δ はレーザー周波数と遷移の共鳴周波数の差 (detuning) である。従ってドップラー広がりをもつスペクトルの場合、共鳴している原子群とドップラー広がり以外の翼の完全には共鳴していない原子群とではRabi周波数が $\sqrt{\Omega^2 + \Delta^2} / \Omega$ 倍異なり、分極の変化を通じて分布数密度の平均化として作用する。

ドップラー広がりの影響を知るために、3準位原子系において $\Omega_1 = \Omega_2$ として各準位密度の時間発展を計算した。イオン化は最上準位から、イオン化率 $\gamma = 0.02$ GHzで起こるとした。図2-17は完全にレーザー周波数を原子の吸収線に共鳴させ、かつドップラー広がりを考慮しない場合について示している。Rabi周波数を大きくしていくと各準位密度の振動周期は短くなるが、準位密度変化の包絡線は同じであり、イオン量に変化は見られない。すなわちこの場合励起ダイナミクスはイオン化率に支配されているといえる。

図2-18は図2-17と同じ条件で、ドップラー広がりを考慮した場合について示した。ドップラー幅は、半値全幅で0.2 GHzとした。 $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.04$ GHzでは、ドップラー広がりをもつ吸収線の中の一部しか励起できず、全体としてのイオン量は低い。Rabi周波数を増加させるにつれて、吸収線全体を励起できる様になりイオン量は増加する。すなわち飽和広がりを利用して、広がった吸収線のより広い周波数成分を励起し、イオン量を増加させることができる。しかし $\Omega_1 = \Omega_2 = 1.0$ GHzの場合のように、 $\Omega \gg$ ドップラー幅となると吸収線全体が完全に共鳴するようになり、ドップラー広がりが無いと考えた図2-17と変わらなくなる。

以上のことからドップラー広がりをもつ吸収線全体を励起するには、Rabi周波数をドップラー幅 (半値全幅) 程度にすることが必要であることがわかる。Rabi周波数をさらに大きくすれば、すべての原子をイオン化できるが同位体分離では、非標的同位体との同位体シフトとの関係でRabi周波数の上限が決まる。

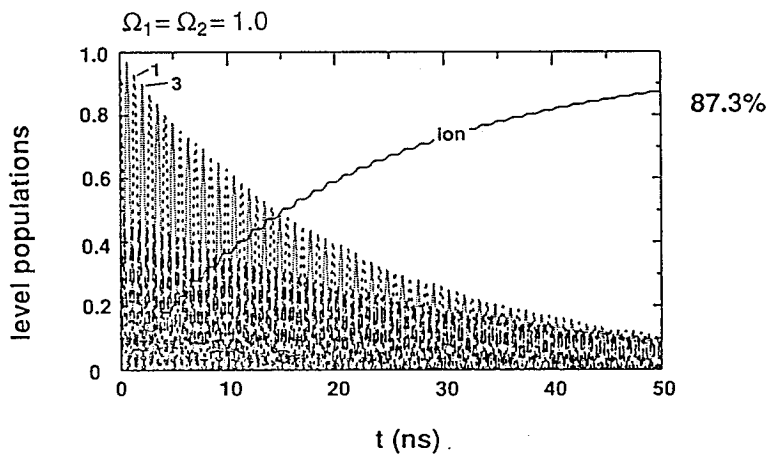
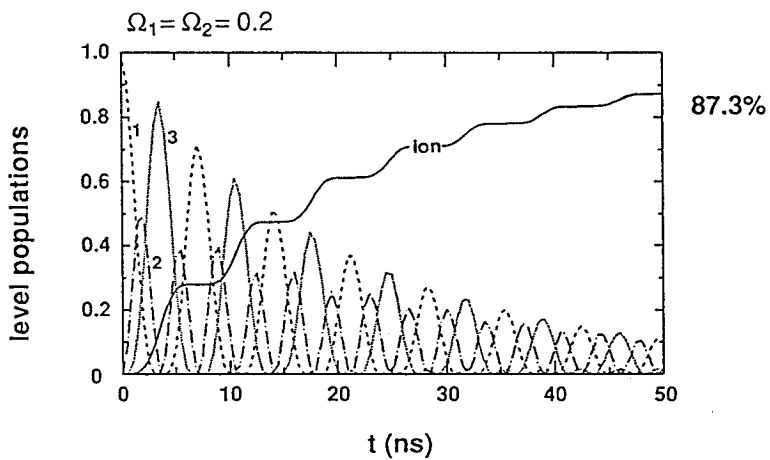
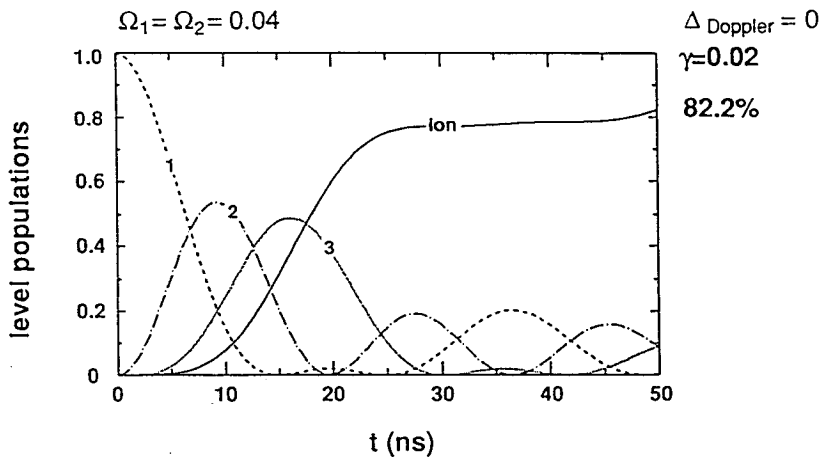


図 2-17 ドップラー広がりのない場合の各準位密度の時間発展

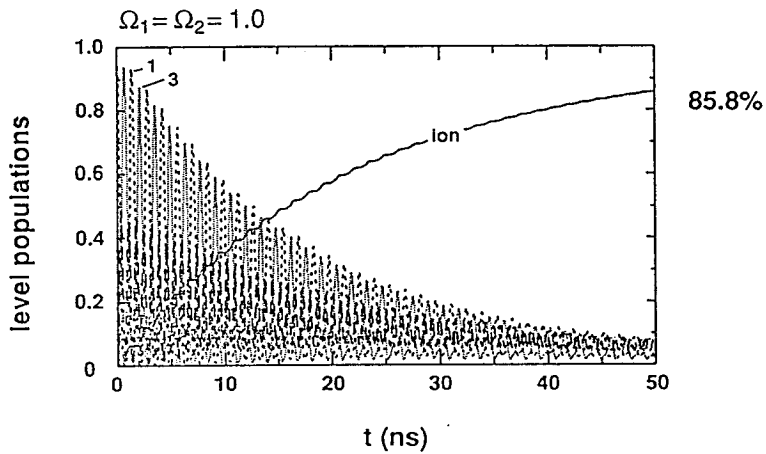
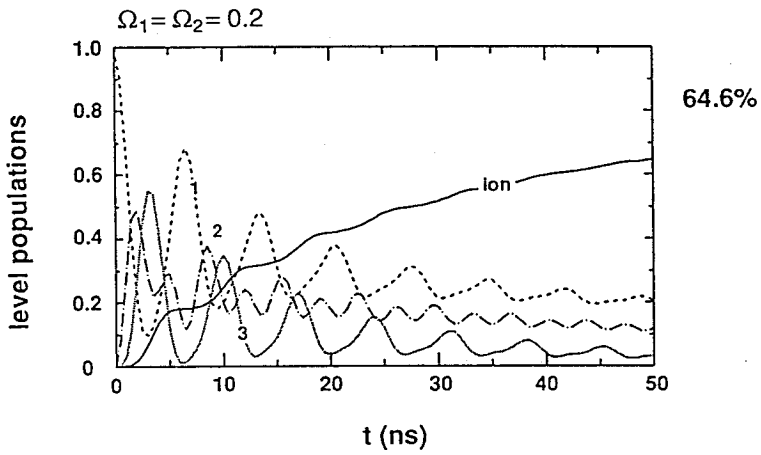
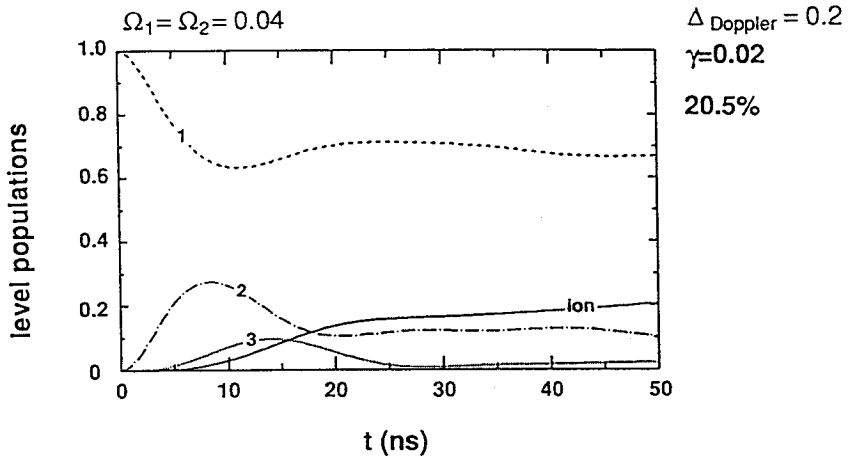


図 2 - 1 8 ドップラー広がりのある場合の各準位密度の時間発展

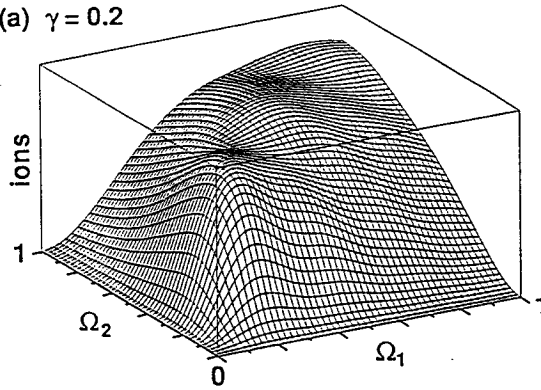
2-6-4 Rabi周波数とイオン化率の最適組合せ

最後に3準位系でのRabi周波数 Ω とイオン化率 γ の最適組合せを示す。ここでは Ω と γ の組合せによる効果がよく分かる様に空間縮退は考えない。

図2-19(a)に γ を0.2 GHzに固定して、 Ω_1 と Ω_2 を変化させた時の生成イオン量を示す。 $\Omega_1 \sim \Omega_2$ となる対角線上でイオンが最も増加していく様子がわかる。時刻 $t = 4 \text{ ns}$ までのイオン量、すなわち決まったパルス幅での生成イオン量であること、 $\Omega \gg$ ドップラー幅となると吸収線全体が共鳴状態となることから、当然大きな Ω でイオン量は増大するが、 $\Omega_1 \sim \Omega_2 \leq \gamma$ となる組合せで、最も効率的な励起が行なわれていることがわかる。図2-19(b), (c)は、それぞれ Ω_1, Ω_2 を0.2 GHzに固定して、 Ω_2, γ および Ω_1, γ を変化させたときのイオン量である。いずれもRabi周波数とイオン化率のバランスを極端にくずすとイオン量は低下し、 $\Omega_1 \sim \Omega_2 \sim \gamma$ で効率的な励起が行なわれていることがわかる。

あるRabi周波数で励起する場合、すべての原子をイオン化するにはパルス幅を十分長くとればよい。また逆にパルス幅が決定されている場合には、すべての原子が励起されイオンとなるRabi周波数まで、 Ω を増加させればよい。これらのことは当然であるが、効率を追求するならば限られたレーザーエネルギー、すなわちフルエンス $I\tau$ (I はレーザー光強度、 τ はパルス幅)でのRabi周波数とパルス幅の最適化を行なうべきである。そこで $\Omega \propto \sqrt{I}$ であるから、 $\Omega^2\tau = 0.5$ 一定として Ω を変えてときの分布数密度を計算し、図2-20に示した。(a)はドップラー広がりがない場合、(b)がドップラー広がりがある場合である。ドップラー広がりがない場合では、Rabi周波数の大きさに関わらず長いパルスの方が有利である。これは励起のダイナミクスが $\Omega\tau$ に比例するからである。しかしドップラー広がりがある場合、必ずしも長いパルスが有利になるとは限らない。 Ω がドップラー幅に対して小さければ、吸収線の一部しか励起できないため、イオン量は低くなる。 Ω が増加するにつれて、吸収線のより広い部分を励起でき、レーザーのバンド幅とドップラー幅が同程度になるときイオン量が最大となる。さらに大きな Ω では吸収線全体を励起できるが、原子がイオン化のある最上準位に到達しイオン化が起こるに十分な時間がないため、イオン量が低下する。さらにこの Ω の領域ではドップラー広がりの有無にイオン量は関係しなくなる。なぜなら飽和広がりのために吸収線全体が共鳴励起されるからである。

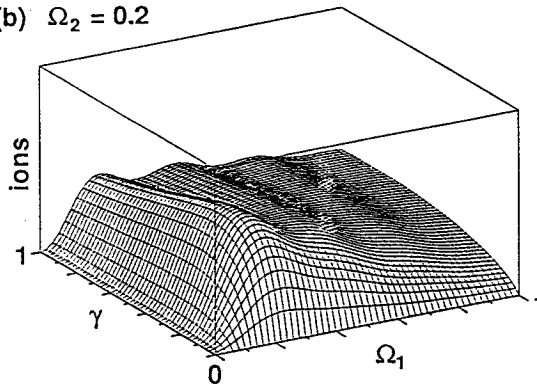
(a) $\gamma = 0.2$



$\Delta_{\text{Doppler}} = 0.2$

$t = 4 \text{ ns}$

(b) $\Omega_2 = 0.2$



(c) $\Omega_1 = 0.2$

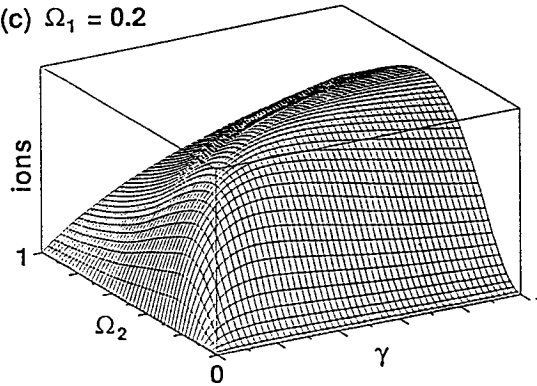


図 2 - 1 9 Rabi周波数とイオン化率の最適組合せ
(a), (b), (c)は各々 γ , Ω_2 , Ω_1 を固定して、他のパラメーターを変化させたときの生成イオン量

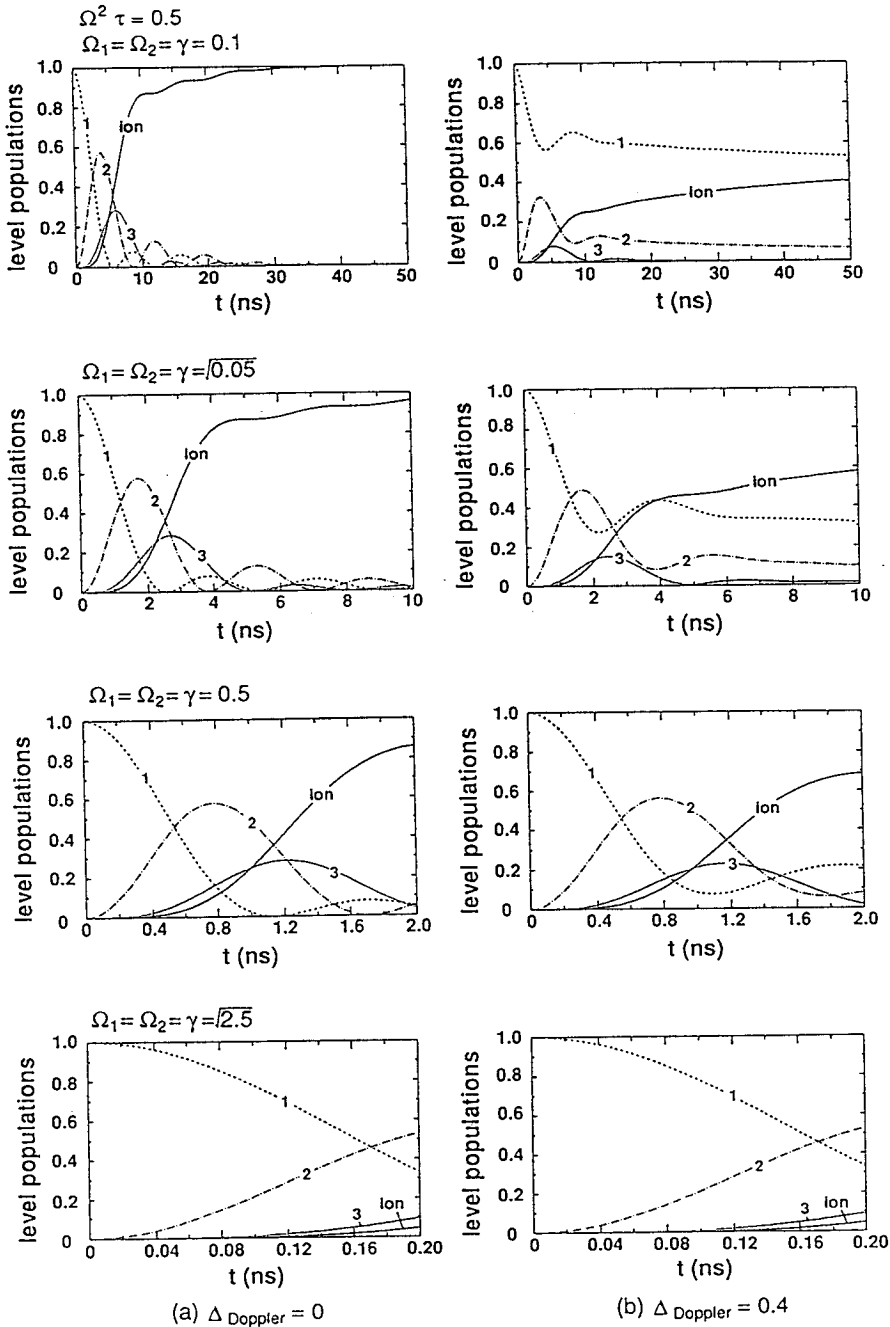


図 2-20 パルスエネルギー一定条件下での各準位密度の時間発展 ($\Omega^2 \tau = 0.5$)
 (a) ドップラー幅 = 0, (b) ドップラー幅 = 0.4 GHz
 ドップラー幅を考慮すると、レーザーのバンド幅 ~ ドップラー幅となるパルス幅でイオン量最大となる。

パルス幅を横軸にとり、イオン量をプロットしたものを図2-21に示す。 $\Omega^2 \tau$ すなわちパルスエネルギーを増加させれば、同じパルス幅でのイオン量が増加するのは当然であるが、決まったパルスエネルギーをもつ場合パルス幅 $\sim 1 / (\text{ドップラー幅} / 2)$ となると、最大のイオン量が得られている。すなわちこれはレーザーのバンド幅とドップラー幅とのマッチングがとれたとき、最大のイオン量が得られることを示している。

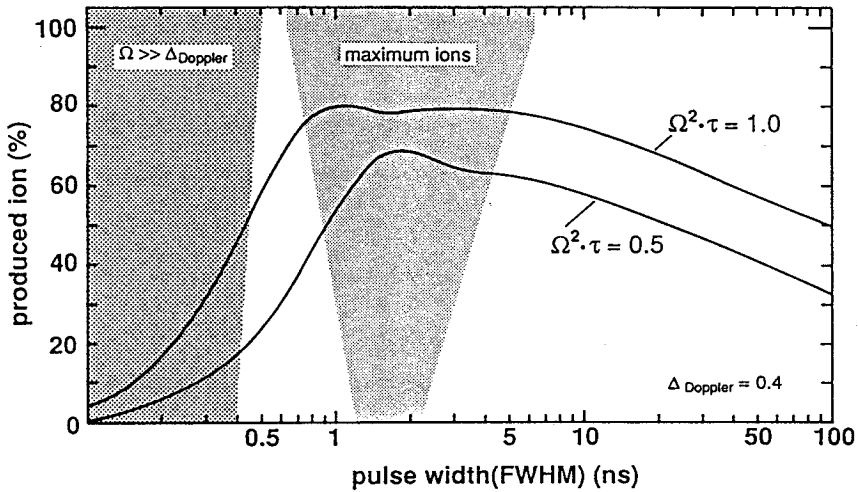


図2-21 パルスエネルギー一定条件下でのイオン量のパルス幅依存性

§ 2-7 むすび

レーザー同位体分離における光反応過程の基本的考察として以下の研究を行なった。

高効率励起を達成するために、光反応過程でのレーザーと原子の相互作用の基本モデルを構築した。さらにエネルギー準位の空間縮退や超微細構造の効果を考察し、これらを取り入れた4波長3段階電離スキームのモデル化を行ない、励起ダイナミクスシミュレーションコードの開発をした。

空間縮退の考察からは、多段階励起においてJ値が減少していくように準位を選

ぶと、イオン化へ至る遷移を起こすことができないサブレベルが増大していくため、 J 値が増えていくように選ぶべきであることがわかった。この結果は励起の詳細に依存せず、選んだ準位の J 値のみで決定されてしまうため、高効率励起を達成するためには必ず考慮する必要がある。また方向量子化により、分布数密度にビートが生じる。

超微細構造についての考察からは、核スピン I と電子の軌道角運動量 J とのカップリングによって選択則が変わり、空間縮退を考えたときには励起できなかったサブレベルの一部が励起できるようになることがわかった。また遷移強度の強い遷移のみを考慮することで、 U や G_d では精度よく超微細構造の励起を計算できる可能性を示した。

ついで開発したシミュレーションコードを用いて、ドップラー広がりの影響について考察をな行なった。その結果ドップラー広がりをもつ吸収線全体を励起するには、Rabi周波数をドップラー幅程度にする必要があり、またパルスのエネルギーを一定とした場合、パルス幅の逆数がドップラー幅程度になるとき、すなわちレーザーのバンド幅とドップラー幅のマッチングがとれたとき最も効率よくイオンが生成されることがわかった。さらに多段階励起では、各段を励起するレーザーのRabi周波数が同程度の大きさと、かつイオン化率と同じ場合が最も効率のよい励起ができることを示した。

第2章の参考文献

- 1) R.C.Stern, B.B.Snavely, Ann. NY Acad. Sci. 267, 71 (1976).
- 2) H.-D.V.Böhm, W.Michaelis and C.Weitkamp, Opt. Commun. 26, 177 (1978).
- 3) G.Hertzberg, Atomic Spectra and Atomic Structure (Dover Publications, New York, 1944).
- 4) V.S.Letokhov, Nonlinear Laser Chemistry (Springer-Verlag, Berlin, 1983).
- 5) A.R.Edmonds, Angular Momentum in Quantum Mechanics (Princeton U.P., Princeton, N.J., 1957); M.Weissbluth, Atoms and Molecules (Academic Press, New York, 1978); I.I.Sobelman, Atomic Spectra and Radiative Transitions (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1979).
- 6) L.R.Wilcox and W.E.Lamb, Jr., Phys. Rev. 119, 1915 (1960); W.E.Lamb, Jr. and T.M.Sanders, Jr., Phys. Rev. 119 1901 (1960).
- 7) 仁木, 井澤, 大谷, 山中, 電気学会論文誌 第102-C巻, 45 (1982).
- 8) B.W.Shore, Phys. Rev. A 17, 1739 (1978).
- 9) B.W.Shore and M.A.Johnson, Phys. Rev. A 23, 1608 (1980).
- 10) P.L.Knight and P.W.Milonni, Phys. Repts. 66, 21 (1980); P.Stehle, Phys. Repts. 156, 67 (1987); M.Sargent III, M.O.Scully and W.E.Lamb, Jr., Laser Physics (Addison-Wesley, Reading, Mass., 1974).
- 11) A.Goldberg and B.W.Shore, Opt. and Quant. Elec. 10, 331 (1978).

第3章 光反応過程の基本的パラメーターの測定

§ 3-1 はじめに

緒論において実用化での問題点の1つに、分光学的データの集積を挙げた。レーザー同位体分離における光反応過程での基本的パラメーターとなるのはこの分光データにほかならない。これら基本的パラメーターとしては、

- (1) 準位のエネルギー値
- (2) 準位のJ値
- (3) 準位の寿命
- (4) 同位体シフト
- (5) 超微細構造定数
- (6) 遷移双極子モーメント ($\propto \sqrt{\text{励起断面積}}$)
- (7) 電離断面積

の7つが考えられる。(1)、(2)についてはU, Gdともにすでに多くの準位について調べられている。しかし(3)~(7)のデータに関する報告は少なく、特にUに関してはほとんどない。この章では次章以下で行なう励起ダイナミクスとパルス伝播効果の研究に際し、スペクトルやRabi周波数などのおおよその大きさを把握するために行なったGd原子の分光データの測定について述べる。

§ 3-1 同位体シフト、超微細構造定数

Gd原子のエネルギー準位に関するデータはW.C.Martinら¹⁾によるものがあるが、レーザー同位体分離で必要となる同位体シフトや超微細構造に関する報告はほとんどない。通常第1段目の励起準位の同位体シフトを利用して選択励起を行なうため、550~650nmの波長領域においてレーザー誘起蛍光法により基底準位とそれに近い3つの準安定準位からの20の遷移について吸収スペクトルを測定し、同位体シフトと超微細構造定数を決定した。

実験装置のブロック図を図3-1に示す。光源には単一モード発振のcwリング

色素レーザー (Coherent CR-699-29) を用い、Gd 金属を電子ビーム加熱して発生する蒸気をコリメートして得られた原子ビームに集光照射した。蛍光は光電子増倍管 (HAMAMATSU R955) で検出し、ロックインアンプを通じて記録計に記録した。照射領域におけるレーザー光の平均パワー密度は吸収の飽和を防ぐため 10 W/cm^2 以下に抑えた。スペクトルの分解能は 35 MHz 程度であった。

測定結果の 1 例を図 3-2²⁾ に示す。Gd 同位体の自然存在比は表 3-1 に示す通りである。7 つの同位体が存在し、そのうち質量数 155、157 の同位体は核スピン $I = 3/2$ をもち他の同位体については $I = 0$ である。超微細構造をもたない偶数質量の同位体については、測定されたスペクトルの吸収ピークの高さと自然存在比を比較することにより同定が容易に行なえる。一方超微細構造をもつ同位体に対して各吸収成分の強度は式 (2-7) で表わすことができる。また超微細構造の各成分のエネルギー準位 $W (J, I, F)$ は式 (2-6) で計算できる。

超微細構造を解析するためには式 (2-7) を用いて各同位体について 6 本以上の吸収ラインを同定し、その周波数間隔より式 (2-6) を用いて超微細構造定数 A, B を決定した。

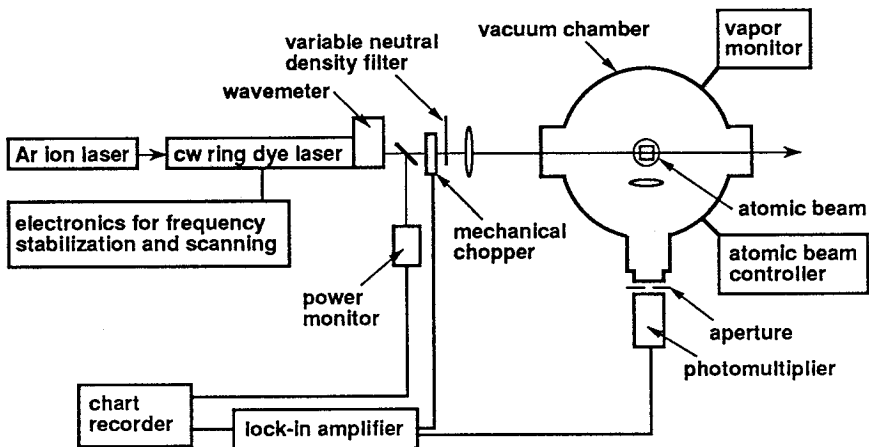


図 3-1 吸収スペクトル測定実験装置

Isotopic Composition	Natural Abundance(%) ³⁾	Nuclear Spin ⁴⁾
¹⁵² Gd	0.2	0
¹⁵⁴ Gd	2.15	0
¹⁵⁵ Gd	14.73	3/2
¹⁵⁶ Gd	20.47	0
¹⁵⁷ Gd	15.68	3/2
¹⁵⁸ Gd	24.87	0
¹⁶⁰ Gd	21.90	0

表 3-1
Gd 同位体の自然存在比と核スピン量子数

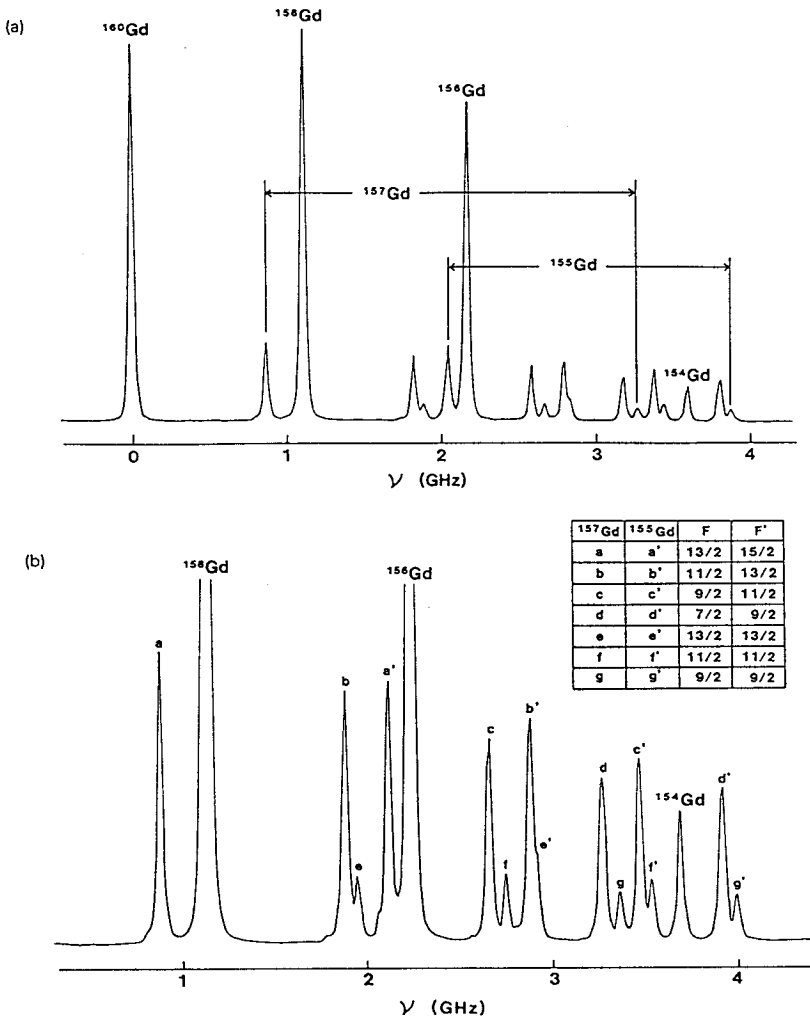


図 3-2 Gd 原子の吸収スペクトル ($999\text{cm}^{-1} - 18070\text{cm}^{-1}$)
 (a) 6つの同位体のスペクトル (¹⁵²Gd はスケール外)
 (b) ¹⁵⁷Gd と ¹⁵⁵Gd の超微細構造
¹⁵⁷Gd, ¹⁵⁵Gd の超微細構造と ¹⁵⁶Gd, ¹⁵⁸Gd の
 スペクトルが重なっている遷移が多い。

表3-2²⁾は ^{160}Gd の吸収ラインの中心から測定した同位体シフトを示している。 ^{155}Gd と ^{157}Gd に対する値は超微細構造吸収スペクトルの重心をとっている。測定精度は色素レーザーの波長掃引の線形性で制限されており、コンフォーカル型スペクトラムアナライザー (Coherent MODEL240, F.S.R=1.5GHz, Finesse=200) を用いて線形性をチェックし2%以下であった。色素レーザーの波長掃引速度は、ロックインアンプやチャートレコーダーの応答時間によって測定されるスペクトルの分解能が低下しないよう十分遅く(10GHz/800ns)した。

^{160}Gd を同位体シフトを計る基点としてとった場合の測定スペクトル中での同位体シフトを図3-3に示す。0.86-1.18GHz (^{158}Gd)、1.53-2.09GHz (^{157}Gd)、1.69-2.30GHz (^{156}Gd)、2.24-3.05GHz (^{155}Gd)、2.79-3.78GHz (^{154}Gd)、5.27-6.98GHz (^{152}Gd)となり単位質量あたりの同位体シフトが0.5GHz程度であることが分かる。

表3-3²⁾に ^{155}Gd と ^{157}Gd の吸収スペクトル解析により得られた超微細構造定数をまとめた。解析により1つのスペクトルデータより遷移の上下準位に対して超微細構造定数が求めることができる。したがって1つの準位が関与する異なる吸収スペクトルデータからその準位に対して独立に超微細構造定数A, Bが得られ、データのクロスチェックを行なえる。表には独立に得られた値の平均値を示し、解析に使用したデータ数および誤差を表示した。一連の測定に対しては超微細構造による吸収スペクトルの広がりと同じ遷移に対しては ^{155}Gd と ^{157}Gd についてほぼ同程度であるが、遷移により0.15-2.4GHzとかなり異なっていることが分かった。またほとんどすべての遷移について、図3-2(a)に示すように ^{156}Gd の吸収ピークが ^{157}Gd の吸収スペクトルの広がりの中に存在し、また ^{155}Gd と ^{157}Gd のスペクトルが重なっている。しかし中には図3-4のように、 ^{155}Gd と ^{157}Gd のスペクトルが完全に分離しているものや、 ^{156}Gd とも完全に分離しているスペクトルも見られ、 ^{157}Gd の高選択励起を達成するには採用する遷移を詳細に検討する必要がある。

ウラン原子の同位体シフトや超微細構造についての報告⁵⁾はほとんどないが、ガドリニウム原子の場合と同様の理由で、高効率励起をおこなうためには採用する遷移を詳細に検討する必要があると思われる。

表 3-2 ^{160}Gd を基点とした同位体シフト

Lower energy level in cm^{-1}	Upper energy level in cm^{-1}	Isotope shifts from ^{160}Gd in GHz					
		^{158}Gd	^{157}Gd	^{156}Gd	^{155}Gd	^{154}Gd	^{152}Gd
(4f ⁷ 5d6s ² ^9D)							
0	17750	0.86	1.53	1.69	2.25	2.79	-
215	17750	0.87	1.54	1.70	2.24	2.80	5.27
	17795	1.10	1.95	2.14	2.86	3.53	6.71
	17931	1.15	2.03	2.24	2.96	3.67	6.91
533	17795	1.11	1.96	2.16	2.89	3.58	6.77
	17931	1.15	2.03	2.24	2.98	3.70	6.98
	18084	1.09	1.91	2.13	2.84	3.51	6.60
999	17931	1.15	2.03	2.24	2.98	3.70	6.98
	18070	1.12	2.01	2.20	2.93	3.63	6.90
	18084	1.08	1.99	2.11	2.81	3.49	6.60
(4f ⁷ 5d6s6p ^9F)							
0	17228	1.18	2.08	2.30	-	-	-
	17381	1.11	1.95	2.19	2.89	3.61	6.91
	17618	1.10	2.00	2.21	2.93	3.62	-
215	17381	1.14	2.00	2.21	2.94	3.66	6.93
	17618	1.10	1.97	2.17	2.89	3.59	6.80
	17974	1.16	2.06	2.27	3.03	3.76	-
532	17618	1.10	2.06	2.27	2.95	3.73	-
	17974	1.16	2.01	2.21	2.97	3.68	-
999	17974	1.17	2.09	2.29	3.05	3.78	-
	18509	1.17	2.07	2.28	3.02	3.75	-

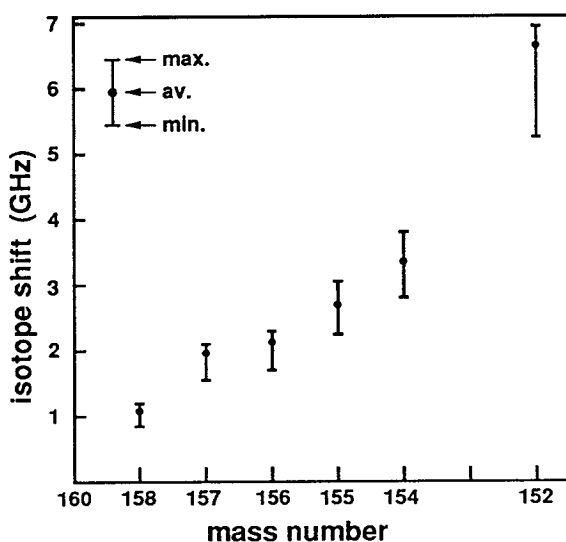


図 3-3 Gd 各同位体の同位体シフト

表 3 - 3 G d の超微細構造定数

Configuration	Energy level in cm^{-1}	Hyperfine coupling constants in MHz				Number of data for the analysis
		^{155}Gd		^{157}Gd		
		A	B	A	B	
$4f^7 5d 6s^2 \ ^9\text{D}$	0	37.6(3)	183(1)	50.0(14)	201(9)	4
	215	4.27(35)	-407(4)	6.08(45)	-442(2)	5
	533	-6.50(9)	-354(1)	-9.38(13)	-376(1)	3
	999	-11.5(17)	40.6(17)	-15.2(8)	45.7(5)	3
$4f^7 5d 6s 6p \ ^9\text{D}$	17750	-88.7(1)	-21.2(11)	-117(3)	-8.96(136)	2
	17795	-94.7(1)	162(1)	-125(1)	162(1)	2
	17931	-72.1(1)	205(3)	-94.8(1)	220(4)	3
	18070	-101	-59.4	-134	-80.2	1
	18084	-97.8(1)	107(2)	-132(2)	96.6(21)	2
$4f^7 5d 6s 6p \ ^9\text{F}$	17228	-	-	352	87.7	1
	17381	73.5(2)	-323(1)	98.0(8)	-349(4)	2
	17618	31.1(4)	-391(2)	41.1(3)	-423(3)	3
	17974	-4.87	-283	-7.68	-303	1
	18509	7.07	-96.4	8.83	-86.2	1

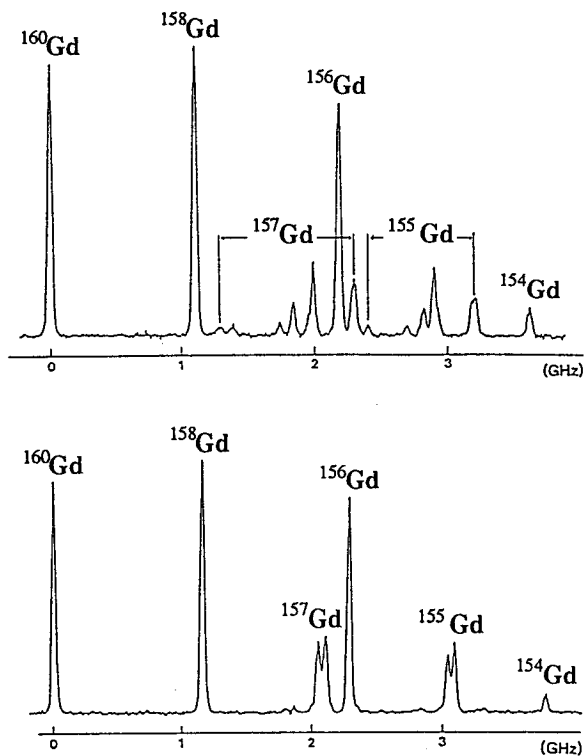


図 3 - 4 G d 原子の吸収スペクトル
 (a) $0\text{cm}^{-1} - 17381\text{cm}^{-1}$, (b) $53\text{cm}^{-1} - 17974\text{cm}^{-1}$
 ^{157}Gd と ^{155}Gd およびその他の同位体のスペクトル
 が分離している遷移も少ないが存在する。

§ 3-3 励起準位の緩和時間

コヒーレント励起の重要性を第2章で述べたが、もしGdやU等の分離対象とする物質の励起準位の緩和時間が非常に短い(数ns)ならば用いるレーザーのパルス幅は数psである必要がある。励起準位の寿命は現有のレーザー装置(パルス幅 ~ 7 ns)でコヒーレント励起が行ない得るかどうかの重要なデータであり、実験により取得しておく必要がある。また寿命がパルス幅に比較して十分長ければ、緩和項を無視することができ励起ダイナミクスを計算する上で簡潔さが増す。以上の理由でレーザー誘起蛍光法によりGdの励起準位の寿命を測定した。

測定装置のブロック図を図3-5に示す。蒸気発生については§3-2の吸収スペクトル測定において使用したものと同一である。励起用レーザーとして、YAGレーザー(Quantel YG661S-30)の2倍高調波を励起光源としたパルス色素レーザー(Lambda Physics FL3002)を用いた。S/Nを上げるため、測定している励起準位からレーザーで励起している遷移とは別の下準位に遷移する蛍光成分を分光器で選択し、電流アンプで信号を増幅しボックスカー積分器を通じて記録計に記録した。

測定結果の1例を図3-6に示す。図3-6は $4f^7 5d 6s 6p \ ^9F_2 (17381 \text{cm}^{-1})$ からの蛍光強度の時間変化であり、横軸は時間、縦軸は蛍光強度の対数値で、直線の傾きを最小2乗法で求め、寿命は $612 \text{ ns} \pm 6 \text{ ns}$ であった。図3-6において、1つの測定点は128パルスでの平均値である。

図3-7に測定を行なった励起準位とその結果得た寿命を示す。 9D 項で表わされ

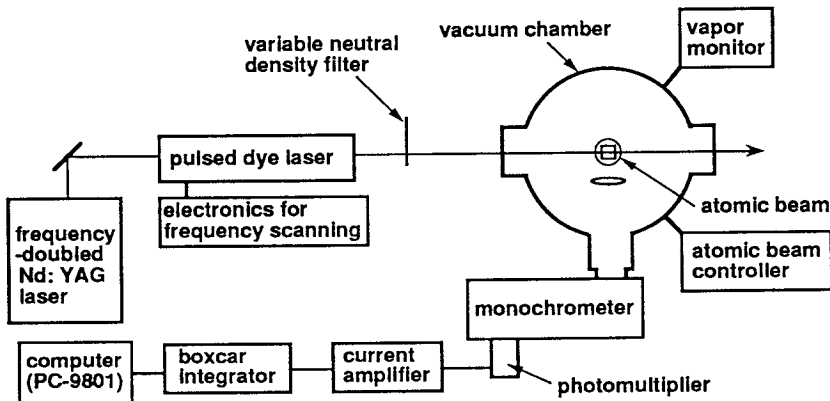


図3-5 励起準位の寿命測定実験装置

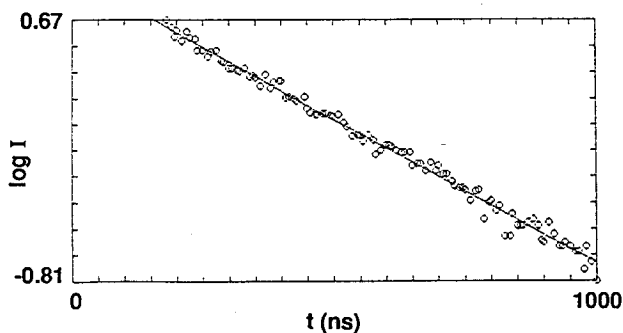


図 3-6
寿命測定の結果の1例
(17381cm^{-1})

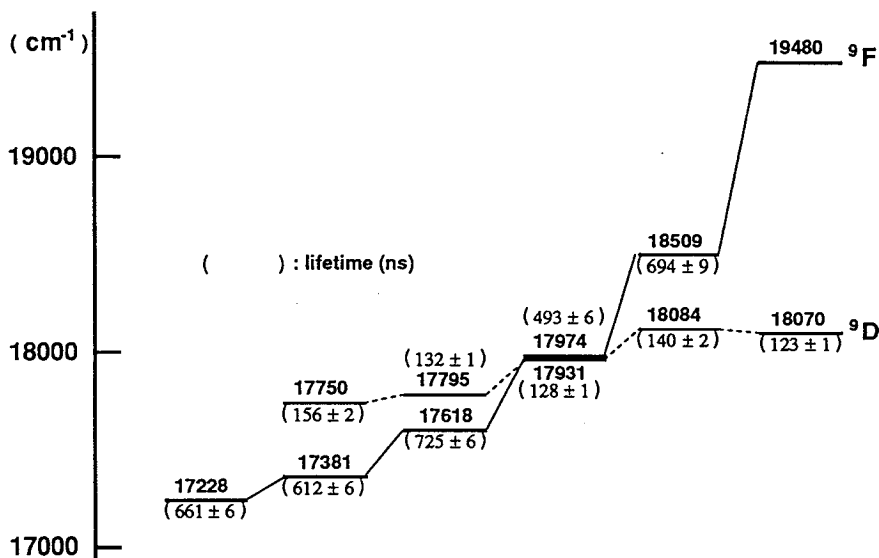


図 3-7 測定した励起準位とその寿命
 ^9F 項の寿命はすべて数100 nsと非常に長い。

る系列は120 ns~150 ns前後の比較的短い寿命をもち、 ^9F 項で表わされる系列は500~700 nsの非常に長い寿命をもつことがわかる。

以上の結果から現有のパルスレーザー（パルス幅~7 ns）であれば ^9D 項、 ^9F 項のどちらを用いてもコヒーレント励起が行なえ、また現在UやGdの同位体分離用レーザーとして最も有望とされている銅蒸気レーザー励起色素レーザー（パルス幅~40 ns）を用いる場合は、 ^9F 項を第一励起準位に採用すれば十分コヒーレント励起が行なえることがわかった。

励起準位の寿命に関するデータはウラン原子に関してもいくつか報告⁶⁾されており、寿命は一般に数100 nsと長いものが多い。

§ 3-4 遷移双極子モーメント

§ 2-5でも述べたように、コヒーレント励起ダイナミクスではEinsteinのA, B係数ではなく、Rabi周波数が最も重要なパラメーターとなる。Rabi周波数を用いたコヒーレント相互作用の計算結果をレーザー光強度に変換するためには、遷移の双極子モーメントを測定する必要がある。測定法としては飽和広がり、ACシュタルク効果による方法等があるが、ここでは最も精度の良いRabi floppingを利用した方法による測定結果について述べる。

Rabi floppingによる測定原理を図3-8に示す。図3-8はレーザー光強度を変化させたときの2準位原子系での上準位密度の時間発展を表わしている。あるレーザー光強度で励起された原子は上下準位を図のように振動 (Rabi flopping) する。準位密度はおよそ励起パルス面積 / 2π 回振動した後、パルスの終了した時点である値 (●で示す) をとる。レーザー光強度を変化させると、振動の回数も変わり、パルス終了時には上準位の分布数密度は、先程とは別の値をとる。したがってレーザー光強度を十分ゆっくり変化させていくと斜線で示した準位密度変化が測定でき、計算との比較により双極子モーメントを決定できる。高精度で測定を行なうには振

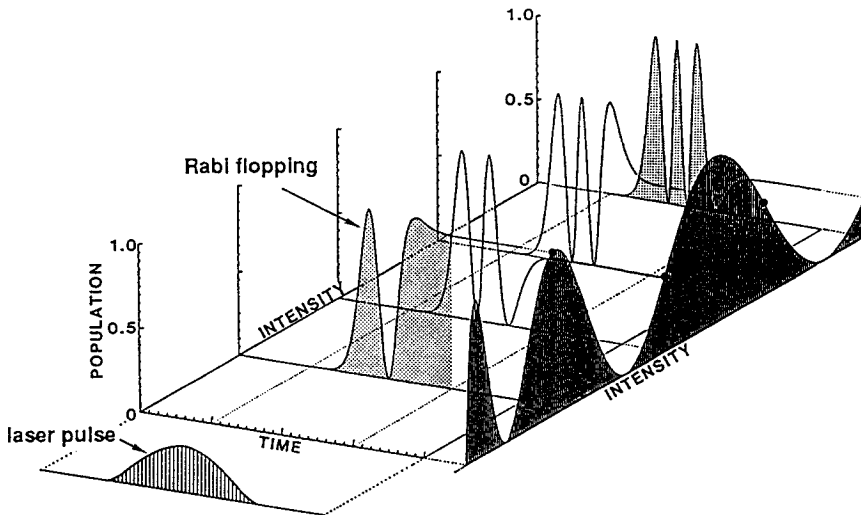


図3-8 Rabi Floppingによる遷移双極子モーメント測定原理

動の山と谷との比を大きくし、大きな振幅で振動が維持されるように工夫する必要がある。そのためにはコヒーレンスを乱す原因を抑制することが重要である。

実験装置のブロック図を図3-9に示す。cw Ar⁺レーザー励起の単一モード発振cwリング色素レーザー光 (Coherent CR-699-29) をYAGレーザー (Spectra-Physics DCR-2(30)) の2倍高調波で3段増幅を行なった。YAGレーザーは繰り返し30Hzで、パルス幅7ns (FWHM) である。レーザー光強度が空間的に一様でない、原子の存在する場所の違いによりRabi floppingの振動周期が異なり、全体としてコヒーレンスの緩和につながる。そのため最終増幅器は一様な空間強度分布を得るため両側励起とした。色素はローダミン6Gを使い濃度0.5mMのエタノール溶液とした。色素レーザー増幅器の前後にはASEを除外するため、0.4mmのピンホールが置いた。増幅された色素レーザー光は、空間フィルター(0.1mmピンホール)で直径15mmに拡大される。空間強度分布はおよそガウス型であり、さらに4mmピンホールで一様な中心部分のみを切り出している。これらの結果、原子と相互作用する色素レーザーはスペクトル幅100MHz、直線偏光(98.5%以上の偏光度)、5.5nsの半値全幅をもつガウス型パルスであり、空間強度分布における非一様性は13%となった。スペクトル幅はF.S.R. = 1.5

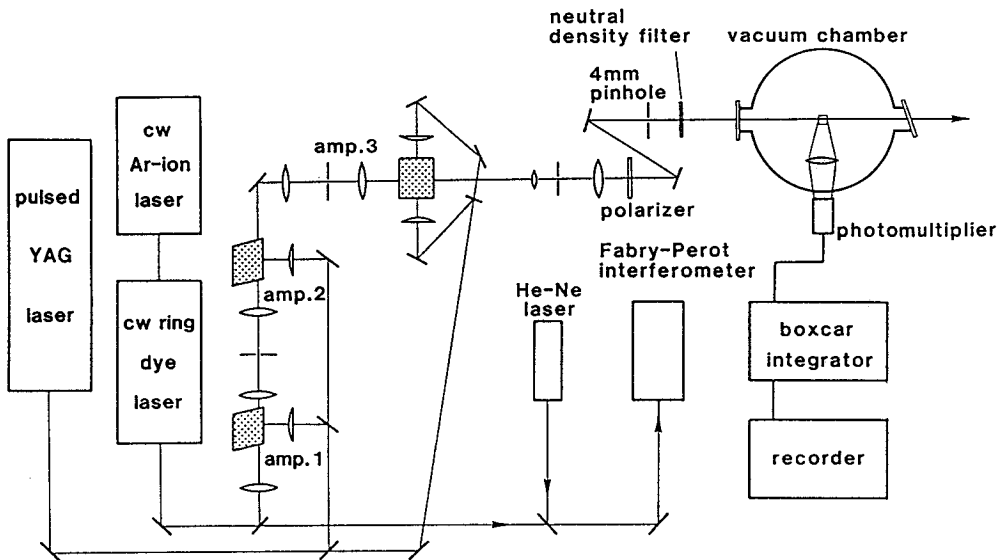


図3-9 遷移双極子モーメント測定実験装置

GHz、フィネス=20のエタロン平行板により、パルス幅はバイブラナー光電管(600ps-risetime)とオシロスコープ(1ns-risetime)により、空間強度分布は相互作用領域に設置したCCDカメラにより測定した。レーザー光強度は可変デンシティーフィルターで調節し、出力はパワーメーターにより絶対較正されたフォトダイオードでモニターした。相互作用領域は4mmφ×15mmである。金属Gdを電子ビーム加熱して発生する蒸気を5mmスリットでコリメートして原子蒸気ビームを得た。相互作用領域での原子密度は 10^9cm^{-3} 程度であり、ドップラー広がり 250MHz であった。相互作用領域からの蛍光は光電子増倍管で検出し、ボックスカー積分器を通して記録計に記録した。

色素レーザーは ^{169}Gd の吸収ラインに、その蛍光信号をモニターしながら同調した。cwリング色素レーザー光の周波数安定性は、共焦点型ファブリペローエタロン(F.S.R.=1.5GHz、フィネス=200)でモニターし、参照光としては周波数安定型He-Neレーザーを用いた。計測時間内の周波数ゆらぎとドリフトは最大15MHzであった。

$4f^75d6s^2\ ^9D_5(999\text{cm}^{-1})$ から $4f^75d6s6p\ ^9D_4(17931\text{cm}^{-1})$ への遷移に対する実験結果を図3-10⁷⁾に示す。●が測定結果であり、実線が2準位系でのプロッホ方程式に以下で述べる準位の縮退、レーザーのshot-to-shotのゆらぎの効果を考慮して得た計算結果である。

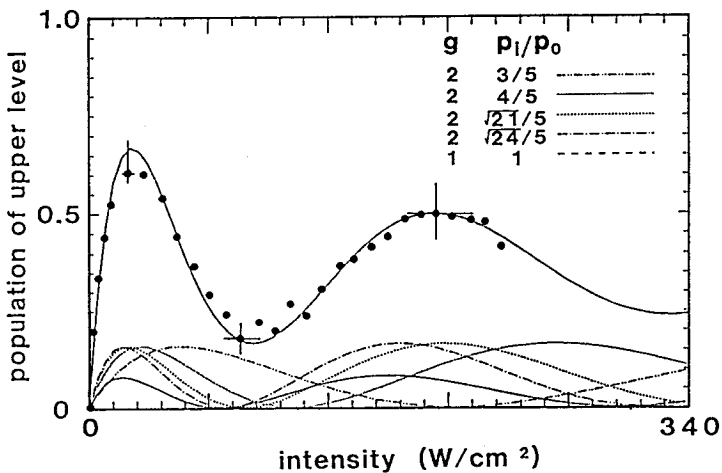


図3-10 測定結果(999-17931 cm^{-1})

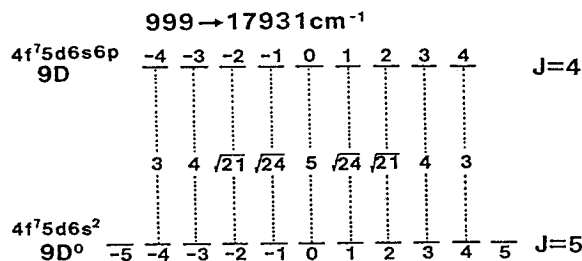


図3-11 遷移 $999 \text{ cm}^{-1} - 179381 \text{ cm}^{-1}$ での双極子行列要素の比

この遷移については下準位に11個、上準位に9個の磁気サブレベルが縮退しており、直線偏光で励起しているため $\Delta m = 0$ の遷移のみが許容される。磁気サブレベル間の遷移は図3-11で与えられるように遷移行列要素の比が異なる。したがって同一のレーザー光に対し、各遷移は異なるRabi周波数で駆動される。 $m = 0$ から $m = 0$ への遷移の行列要素を p_0 としたときの許容される9つの遷移の行列要素 p_i の比 p_0/p_i とその重み g を図3-10右上に示した。図3-10の下部に描かれた点線群は、各々の磁気サブレベルの準位密度のRabi floppingを示している。これらの各floppingカーブの重みを考慮した和が実験値と比較する実線で描かれた曲線である。各サブレベルはエネルギー的には同じであるから、初期には同じ確率で原子が分布していると仮定した。横軸はパルスのピーク光強度であり、計算曲線の山と谷が一致するようにフィッティングした。蛍光強度は 200 W/cm^2 の点での計算値で全体を規格化している。

原子のコヒーレンスは、自然放出や衝突等を通じて失われていく。⁹D₄レベルの寿命は§3-3の実験より 130 ns であり、パルス幅に比べて十分長い。また実験では原子蒸気ビームを使用し、しかも 10^9 cm^{-3} 程度の低密度であるため衝突によるコヒーレンスの擾乱も無視できる。原子コヒーレンスはまたドップラー広がりを通じて失われていくが、この効果はレーザー周波数からのdetuningを変えて原子の応答を計算し、原子の分布関数をかけて平均する方法で計算結果に考慮した。もしドップラー広がりがないとすると図3-10において山と谷の位置が 10 W/cm^2 程度変わる。空間強度の非一様性のコヒーレンスの緩和として作用するが、色素レーザーの最終増幅器を両側励起とし、かつチャンパー手前で 4 mm ピンホールで 15 mm φ のビームから均一部分を切り出し、非一様性を 13% に抑えた。最

も強くコヒーレンスに影響する要素は、レーザー光の強度ゆらぎであり、測定により得た10%の強度ゆらぎをもとに、入射レーザー光のピーク強度の10%の幅をもつガウス型のゆらぎ分布を仮定し計算に取り入れた。強度ゆらぎのあるレーザー光で原子を励起した場合、励起された1個1個の原子のコヒーレンスを乱す要因とはならないが、原子によって振動の位相が異なるため、数ショットの平均として観測する場合には、コヒーレンスを乱す最も大きな要因となっていることが分かった。

最後にCorlissとBozmanにより報告されている gf 値⁸⁾から求めた遷移の双極子モーメントと実験結果との比較を表3-4⁷⁾に示した。彼らが報告している gf 値はアークスペクトルの使って測定しており、その誤差はファクター1.7と非常に大きい。

Rabi flopping自体はよく知られた物理現象であるが、それをGd原子の遷移双極子モーメントの測定に利用したのは初めてであり、極めて高精度で測定を行なったと同時に、コヒーレント励起が行なわれていることを確認した。あわせてコヒーレント励起ダイナミクスコードによる計算との一致よりその信頼性を実証した。

表3-4 gf 値から計算した遷移双極子モーメントと実験結果との比較

transition(cm ⁻¹)	gf	P_{gf} (esu·cm)	P_{exp} (esu·cm)
0 - 17381	0.010	2.9×10^{-19}	$(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-19}$
999 - 17931	0.036	3.7×10^{-19}	$(3.0 \pm 0.2) \times 10^{-19}$

§ 3-5 むすび

本章では次章以下で述べる励起ダイナミクスとパルス伝播効果の研究に際し、原子スペクトルの特徴やRabi周波数のおおよその大きさを把握することを目的として、レーザー同位体分離における光反応過程での基本的パラメーターである同位体シフト、超微細構造定数、励起準位の寿命、遷移双極子モーメントについてGdを用いて測定を行なった。

同位体シフトについてはG dの場合、単位質量あたり0.5 GHzと小さいことがわかった。超微細構造については、標的同位体である ^{157}Gd の超微細構造内に ^{156}Gd のスペクトルが存在したり、 ^{157}Gd と ^{155}Gd の超微細構造が重なっている遷移が多いことがわかった。したがって単色性に優れた強いレーザー光を用いて飽和広がりを利用する励起法では、超微細構造で広がった ^{157}Gd のスペクトル全体を励起できるが、同位体シフトが小さすぎるため選択性の点で問題となり、他の励起法を考える必要がある。そこでG dのように同位体シフトが小さい、あるいは標的同位体のスペクトルが他の同位体のスペクトルと重なっているような場合でさえ有効である励起法について第4章§4-4で考察する。ウラン原子については超微細構造をもつ同位体は ^{235}U のみであり、現在までに明らかになっている超微細構造や同位体シフトの研究報告を見る限りでは、超微細構造の広がりよりも同位体シフト($\geq 5\text{GHz}$)は十分広いと見なされ、現状の飽和広がりを利用する方法を用いることができる。ただし超微細構造によって広がったスペクトルの全幅が3GHz程度とG dと比較して大きいと見なされるため、励起するレーザー光の周波数を超微細構造のどこへ同調するかについて厳密な検討を必要とする。本論文ではその点を考慮して、高速断熱通過を利用した新しい励起法について第4章§4-3で考察している。

励起準位の寿命に関しては、レーザー誘起蛍光法により、510nm~600nmの波長範囲にあるG dの励起準位についてその寿命を測定した。 ^9D 項で表わされる系列は150ns前後の寿命をもち、 ^9F 項で表わされる系列は500~700nsと非常に長い寿命をもつことがわかった。レーザー同位体分離では原子蒸気ビームを用いるため、衝突によるコヒーレンスの緩和が小さいことを考えあわせて、開発された銅蒸気レーザー励起色素レーザー(パルス幅~40ns)を用いて、十分コヒーレントな励起を行なうことができ、高効率励起が期待できる。

遷移の双極子モーメントに関しては、Rabi floppingを利用した新しい方法を開発し、G dの2つの遷移について高精度で測定を行なった。同時にコヒーレント励起が行なわれていることを確認した。また励起ダイナミクスシミュレーションコードによる計算と実験結果との一致よりその信頼性を実証した。

第3章の参考文献

- 1) W.C.Martin, R.Zalbus and L.Hagan, Atomic energy levels, rare earth elements, Natl. Stand. Ref. Data. Ser., NBS Circ. NO.60 (1978).
- 2) H.Niki, T.Miyamoto, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka, Opt.Comm. 70, 16 (1989).
- 3) 日本電球工業, 研究用各種材料カタログ, p20.
- 4) G.Hertzberg, Atomic Spectra and Atomic Structure (Dover Publications, New York, 1944)
- 5) H.-D.V.Böhm, W.Michaelis and C.Weitkamp, Opt. Commun. 26, 177 (1978).
- 6) J.Z.Klosa, Phys. Rev. A 11, 1840 (1975); C.H.Corliss, J. Res. Nat. Bur. Stand. (u.S.), 80A (Phys. and Chem.), NO.1, 1.
- 7) S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka, Jpn. J. Appl. Phys. Lett. 29, 833 (1990).
- 8) C.H.Corliss and W.R.Bozman, Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy elements (National Bureau of Standards, Washington, D.C, 1962).

第4章 多段階電離法における励起効率の向上

§ 4-1 はじめに

第2章において高效率励起条件を示すことを目的として、空間縮退や超微細構造など原子の分光学的特徴を取り入れた光反応過程モデルを構築し、励起ダイナミクスシミュレーションコードを開発した。またその計算コードを用いて、ドップラー広がりの影響やRabi周波数とイオン化率のマッチングなどのシステム設計上の指針となるレーザー光照射条件の目安を幾つか示した。

本章ではさらに励起効率を向上させるために、3種類の異なる励起法について考察する。まず基底準位に存在する原子だけでなく、準安定準位に熱励起されている原子をも同時に励起する方法について問題点を検討する。ついで標的 isotopes が核スピンをもち、広い超微細構造を有し、通常強い単色光による飽和広がりを利用するだけでは、十分なイオン量が期待できない場合に対し、レーザー光周波数をパルス内で掃引する高速断熱通過を利用した励起法について考察する。最後に同位体シフトが非常に小さい場合や標的 isotopes の超微細構造が非標的 isotopes のスペクトルと重なっており、通常飽和広がりを利用した共鳴励起では選択性が低下すると思われる場合に対して、核スピンの有無による選択則の違いを利用した励起法について有効性を考察する。

§ 4-2 準安定準位に熱励起された原子の利用

4-2-1 Population Trapping

レーザー同位体分離においてより多くのイオンを生成するためには、各準位間の遷移を駆動するRabi周波数の最適組合せを用いるとともに、励起できる原子の個数自体を増加させることが重要である。GdやUなどの高融点金属を電子ビーム加熱等により高温に加熱し発生させた原子蒸気ビーム中では、蒸気原子のすべてが基底準位に存在するわけではなく、一部は比較的エネルギーの低い準安定準位に熱励起

されている。例えばウラン原子蒸気では、2500 K程度で基底準位におよそ47%、 620 cm^{-1} の準安定準位に28%の原子が熱励起されている¹⁾。したがって発生させた蒸気を有効に利用するためには、基底準位にある標的 isotopes だけでなく、準安定準位にあるものも同時に励起・電離し分離、回収してやる必要がある。

図4-1に示すように2つの下準位に原子が分布する場合、原子を2つの下準位(1, 2)から2本のレーザー光で照射して、共通のエネルギー準位(3)に励起し、別のレーザー光で電離に導くスキーム(3準位 λ 型)を考える。ここで Δ_1 , Δ_2 はそれぞれのレーザー光周波数と原子の共鳴周波数のずれ(detuning)を表わす。このように2つの独立した下準位が共通の上準位と結合する場合のレーザー光と原子との相互作用に関しては、現在までに数多くの報告²⁾がなされている。図4-1のような励起スキームの場合には1-3間、2-3間の遷移のRabi周波数とdetuningが適当な条件を満足すれば、原子は準位1と2にとトラップされてしまい、有効な電離ができなくなることが予想される。実験的にはGrayらによる報告³⁾がある。彼らはナトリウム原子の $3^2S_{1/2}$ ($F=1$)と $3^2S_{1/2}$ ($F=2$)を下準位に、 $3^2P_{1/2}$ ($F=2$)を上準位に使い、2台の単一モードcw色素レーザーで、2つのS準位から共通のP準位へ励起し、蛍光を測定することでPopulation Trapping⁴⁾を観測している。

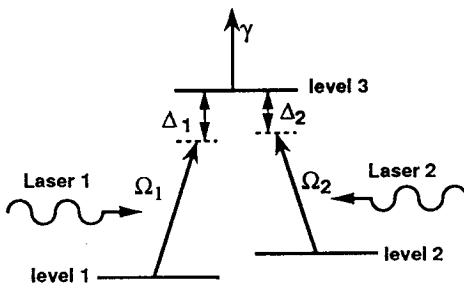


図3-1
基底準位にある原子だけでなく、準安定準位に熱励起されている原子も利用する場合の励起スキーム(3レベル λ 型)

λ 型の原子系に回転波近似(RWA: Rotating-Wave Approximation)⁵⁾を適用すると、この系の励起ダイナミクスを表わすSchrödinger方程式は、

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{pmatrix} = i \begin{pmatrix} \Delta_1 & \frac{1}{2}\Omega_1 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}\Omega_1 & \Delta_2 \\ \Omega_1 & -i\gamma & \Omega_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{pmatrix} \quad (4-1)$$

となる。population trappingを説明するため確率振幅 C_1 , C_2 を別の確率振幅、

$$\begin{aligned} C_+(t) &= [\Omega_1 C_1(t) + \Omega_2 C_2(t)] / \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ C_-(t) &= [\Omega_2 C_1(t) - \Omega_1 C_2(t)] / \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \end{aligned} \quad (4-2)$$

に置き換える。式(4-2)より C_1 , C_2 を C_- , C_+ で表わし、式(4-1)に代入すると、

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C_+(t) &= -i \left[\frac{\Delta_1 \Omega_1^2 + \Delta_2 \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right] C_+(t) - i \frac{1}{2} \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} C_3(t) \\ &\quad - (\Delta_1 - \Delta_2) \left(\frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) C_-(t) \end{aligned} \quad (4-3)$$

$$\frac{d}{dt} C_-(t) = -i \left[\frac{\Delta_1 \Omega_1^2 + \Delta_2 \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right] C_-(t) - (\Delta_1 - \Delta_2) \left(\frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) C_+(t)$$

$$\frac{d}{dt} C_3(t) = -\frac{\gamma}{2} C_3(t) - i \frac{1}{2} \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} C_+(t)$$

が得られる。2光子共鳴状態、すなわち $\Delta_1 = \Delta_2$ のとき、 $\Delta = \Delta_1 = \Delta_2$ とすると

(4-3)式は、

$$\frac{d}{dt}C_+(t) = -i\Delta C_+(t) - i\frac{1}{2}\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} C_3(t)$$

$$\frac{d}{dt}C_3(t) = -\frac{\gamma}{2}C_3(t) - i\frac{1}{2}\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} C_+(t)$$

$$\frac{d}{dt}C_-(t) = -i\Delta C_-(t)$$

となる。したがってイオンとなり得るのは、 C_+ に存在する原子のみとなり、 C_- は上準位と結合できないことがわかる。言い替えれば準位1と2のコヒーレントな重ね合わせ状態の1つ C_- と上準位との遷移行列要素が0であると言える。

EberlyとHioeは、彼らが新しく発見したコヒーレンスベクトル⁵⁾でpopulation trappingが説明できるとしている。

4-2-2 Gd原子を用いたPopulation Trappingの観測

population trappingの理論的研究は比較的古くからなされている³⁾。上準位からのイオン化による緩和がある場合にも、理論的にはpopulation trappingは起こるはずであるが、実験例はまだ報告されていない。そこでイオン化のある場合のpopulation trappingの効果を、Gdを用いて実験的に確かめる。

実験に用いたGdのエネルギー準位を図4-2に示す。2つの下準位として基底準位およびエネルギー 215 cm^{-1} の準安定状態を選んだ。これら2つの下準位から2つのレーザーにより共通の励起準位 17381 cm^{-1} に同時励起する。ここで Ω_1 , Ω_2 は各遷移のRabi周波数であり、 Δ_1 , Δ_2 はdetuningを表わす。励起準位に励起された原子は波長 578 nm のレーザーによる2光子吸収で自動電離準位(51947 cm^{-1})に励起され、電離する。自動電離準位の寿命は非常に短く、ほとんど100%の確率で電離し、 17381 cm^{-1} から 51947 cm^{-1} への遷移は不可逆的である。

実験装置のブロック図を図4-3に示す。レーザー1, 2はcw色素レーザー光をパルス増幅したものをを用いた。cw色素レーザー (Coherent CR-699-29) はAr⁺レーザーをポンプ光源とし、単一モード発振で周波数掃引はコンピューター制御で行なえる。パルス増幅器のポンプ光源としては、QスイッチNd:YAGレーザー

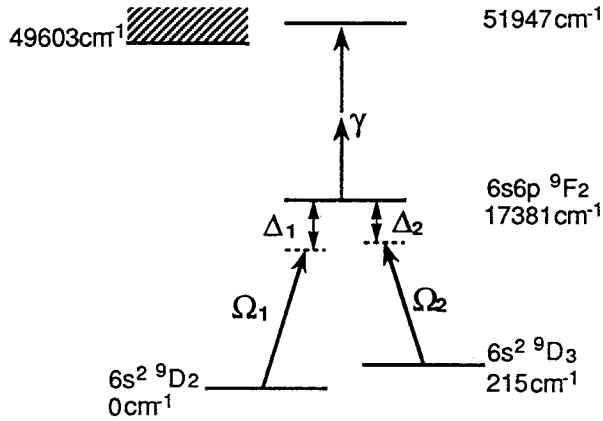


図 4-2 実験で用いた G d のエネルギー準位

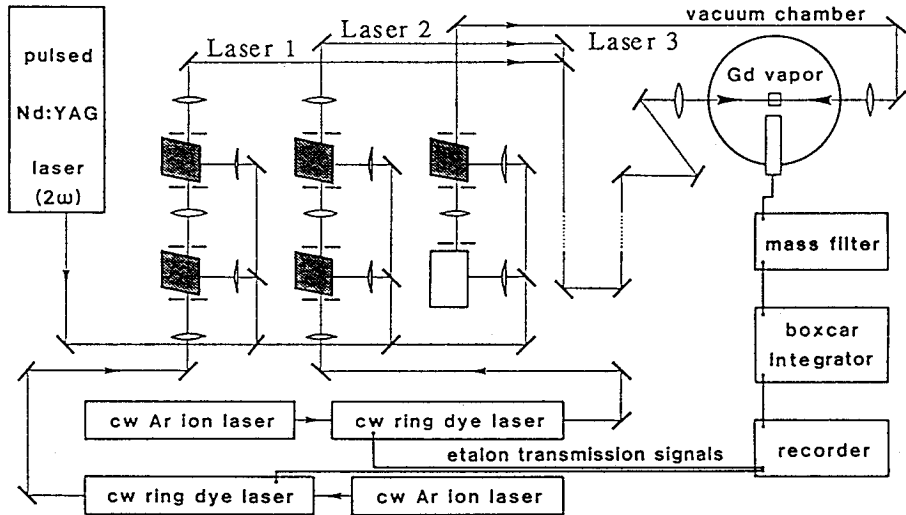


図 4-3 Population Trapping測定実験装置
レーザー 1, 2 は狭帯域 ($\sim 75\text{MHz}$)、レーザー 3 は広帯域 ($\sim 10\text{GHz}$) で、レーザー 1, 2 と対向に入射。

(Quantel YG661S-30) の 2 倍高調波を用いた。色素セルの前後に 0.4mm のピンホールを置くことにより、ASE (Amplified Spontaneous Emission) を抑制した。YAGレーザーの繰り返し周波数は 30Hz で、パルス幅は 7ns (半値全幅) である。パルス増幅した色素レーザーのパルス幅は 6ns で、スペクトル幅はファブリペローエタロンを用いて測定した結果、 75MHz 以下であった。またその色素

レーザーは98.5%以上の偏光度をもつ直線偏光であった。電離用光源としては、同上のポンプ光源を用いたパルス発振色素レーザーを1段増幅して用いた。パルス幅、スペクトル幅はそれぞれ7 ns、10 GHzであった。狭スペクトル色素レーザーの周波数ゆらぎとドリフトは、共焦点型ファブリペローエタロン (F.S.R.=15. GHz, Finesse=200) でモニターした。

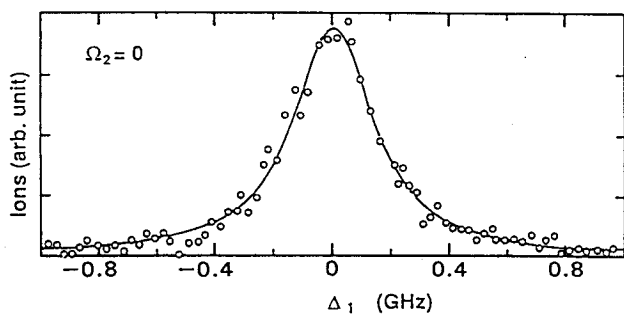
Gd原子蒸気は、金属Gdを真空容器内で電子ビーム加熱することにより発生させ、5 mm×5 mmのスリットを用いて原子蒸気ビームを形成した。レーザー光は原子蒸気ビームと直交する方向から照射した。レーザー光照射領域での原子蒸気密度は膜厚計によりモニターし、 10^9 cm^{-3} 程度であった。原子蒸気ビームのレーザー方向のドップラー幅は100 MHz程度であった。レーザーで生成されたイオンをDC電場により偏向し、質量分析器を通して検知した。信号はボックスカー積分器により積分してレコーダーに記録した。実験はGdの7つの同位体のうち ^{160}Gd に注目して行なった。

実験では図4-2に示した上準位 17381 cm^{-1} への励起を行なう2本のレーザー光のうち、1本のレーザー光(レーザー光2)の周波数を $215 \text{ cm}^{-1} - 17381 \text{ cm}^{-1}$ の遷移の吸収線に固定($\Delta_2=0$)し、他方のレーザー光(レーザー光1)の周波数を変化させて生成されるイオン量を測定した。またレーザー光は同時照射とした。測定に先だって、レーザー光1, 2の光子のみでイオンが生成されないこと、また生成イオン量がレーザー光3のパワーの2乗に比例し、2光子吸収過程でイオンとなっていることを確認した。

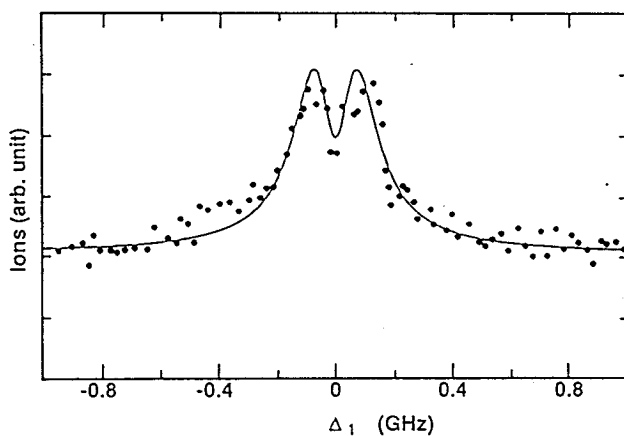
準位1-3間および2-3間の遷移双極子モーメントは、予め飽和広がり測定により求め、それぞれ $2.1 \times 10^{-19} \text{ esu}\cdot\text{cm}$ および $2.5 \times 10^{-19} \text{ esu}\cdot\text{cm}$ であった。

図4-4に実験結果の1例を示す。図4-4(a)は $\Omega_2=0$ 、すなわち準位2からの励起レーザー光(レーザー光2)をカットし、準位1からの励起レーザー光周波数を共鳴周波数付近で掃引したときのイオン信号を示している。ここで $\Omega_1=0.2 \text{ GHz}$ であり、信号は共鳴周波数にピークをもつローレンツ型曲線(実線)によくフィットした。図において1つのデータ点はレーザー光照射回数64回分の平均値である。

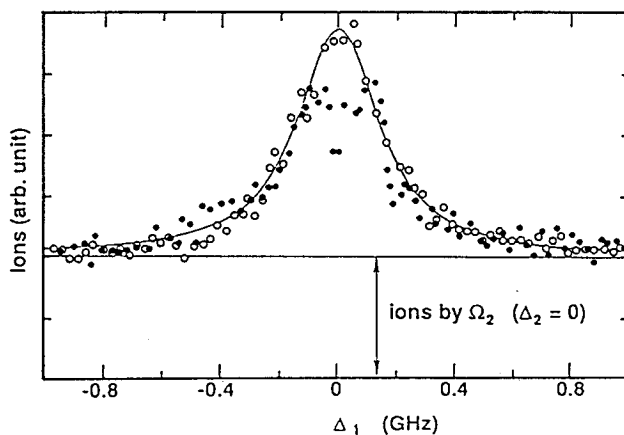
図4-4(b)は2つの下準位から同時励起した場合のイオン信号を示す。ここでレーザー光2の周波数は共鳴周波数に固定($\Delta_2=0 \text{ GHz}$)し、レーザー光1の



(a) 下準位 1 からのイオン信号 (レーザー 2 をカット)



(b) 同時励起によるイオン信号
は測定結果, 実線は計算結果



(c) 非同時, 同時励起時のイオン信号の比較

図 4-4 実験結果 ($\Delta_2 = 0$ の場合)

周波数を掃引した。Rabi周波数は $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2 \text{ GHz}$ とした。図より $\Delta_1 = 0 \text{ GHz}$ 、すなわち2光子共鳴状態となる周波数でイオン信号に谷が観測された。実線は第2章で述べた励起ダイナミクスシミュレーションコードで計算した結果であり、実測値をよく表わしている。ここでのイオン信号の谷がPopulation Trappingの効果である。また、detuningが大きいところでのイオン信号は、初期に準位2にあった原子のイオン化による信号である。

Population Trappingの効果をわかりやすくするために、図4-4(c)に(a)、(b)に示した実験結果を重ねて示す。図ではdetuningの大きいところでのイオン信号を一致させて示している。つまり○のデータ点は、2つの下準位から非同時に励起した場合のイオン信号に相当する。本実験条件では、図からわかるように両方のレーザー光が各遷移と共鳴する条件(2光子共鳴条件)で、同時照射時のイオン信号量は非同時照射時の65%程度となった。また同時照射の場合は、イオン信号はレーザー周波数に少しdetuningをつけたところで最大となっている。

4-2-3 Population Trappingに関する考察

4-2-2で行なった実験により、イオン化のある状態でもpopulation trappingが起こることを確認した。また開発した計算コードと実験結果は良い一致を示した。そこで計算によりpopulation trappingの性質を調べ、その効果によるイオン量の低下を避ける方法について考察する。

図4-5に Ω_1 を変化させた時の生成イオン量を示す。ここで $\Delta_2 = 0 \text{ GHz}$ 、 $\Omega_2 = \gamma = 0.2 \text{ GHz}$ とし Ω_1 を0から2 GHzまで変化させている。実線は $\Delta_1 = \Delta_2 = 0 \text{ GHz}$ (2光子共鳴条件)の場合、すなわちpopulation trappingが起こっている状態での計算結果であり、点線は最大イオン量が得られる Δ_1 に対する生成イオン量である。図からPopulation Trappingの効果は、 $\Omega_1 = 0.2 \text{ GHz}$ 程度で著しく、 Ω_1 の増加に伴いその効果は小さくなっていくことがわかる。また最大イオン量は $\Omega_1 = 0.2 \text{ GHz}$ 付近で最大となる。さらに $\Omega_1 \sim 10 \Omega_2$ でトラップされる谷が消失しており、これは $0 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 17381 \text{ cm}^{-1}$ の遷移が他方に比べ強くなり過ぎ、コヒーレントな重ね合わせ状態がくずれるからだと考えられる。

図4-6は $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2 \text{ GHz}$ 、 $\Delta_2 = 0$ と固定し、 γ を変化させた場合の計算結果である。実線および点線は、それぞれ $\Delta_1 = 0$ (2光子共鳴条件)および最大

イオン量が得られる Δ_1 に対する生成イオン量を示している。図より $\gamma = 0.2 \text{ GHz}$ のとき最大イオン量が最も大きい。図 4-5、図 4-6 より $\Omega_1 = \Omega_2 = \gamma$ の場合に最大イオン量はピーク値となり、同時に Population Trapping によるイオン量の谷の深さも最大となることがわかる。すでに 2-6-4 で示したように、カスケード型の 3 準位系では $\Omega_1 \sim \Omega_2 \sim \gamma$ のとき、最も多くイオンが生成されるが、 λ 型の 3 準位系においても効率的なコヒーレント励起の一般則 $\Omega_1 \sim \Omega_2 \sim \gamma$ が成立することがわかる。

図 4-7 はレーザー光 2 の周波数を $\Delta_2 = 0$ に固定し、 $\Omega_1 = \Omega_2 = \gamma$ としてそれら

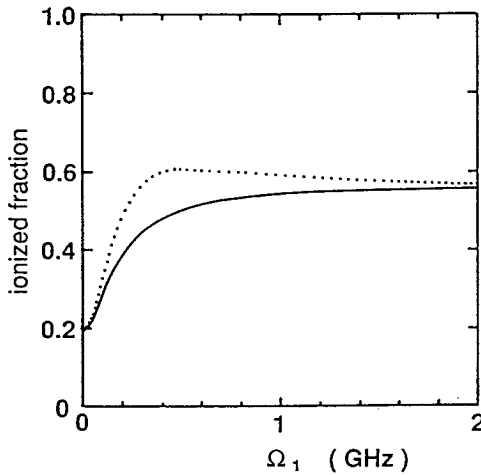


図 4-5
 Ω_1 ($\propto \sqrt{\text{レーザー1の強度}}$) 依存性
 $\Omega_2 = 0.2 \text{ GHz}$, $\Delta_2 = 0 \text{ GHz}$
 実線: $\Delta_1 = 0$ (2光子共鳴条件)
 点線: 最大イオン量

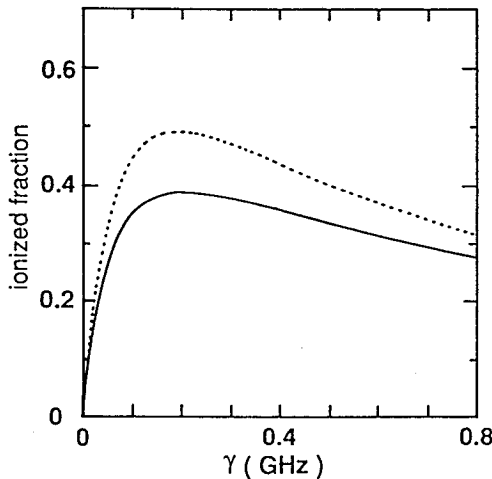


図 4-6
 イオン化率 γ 依存性
 $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2 \text{ GHz}$
 $\Delta_2 = 0 \text{ GHz}$
 実線: $\Delta_1 = 0$ (2光子共鳴条件)
 点線: 最大イオン量

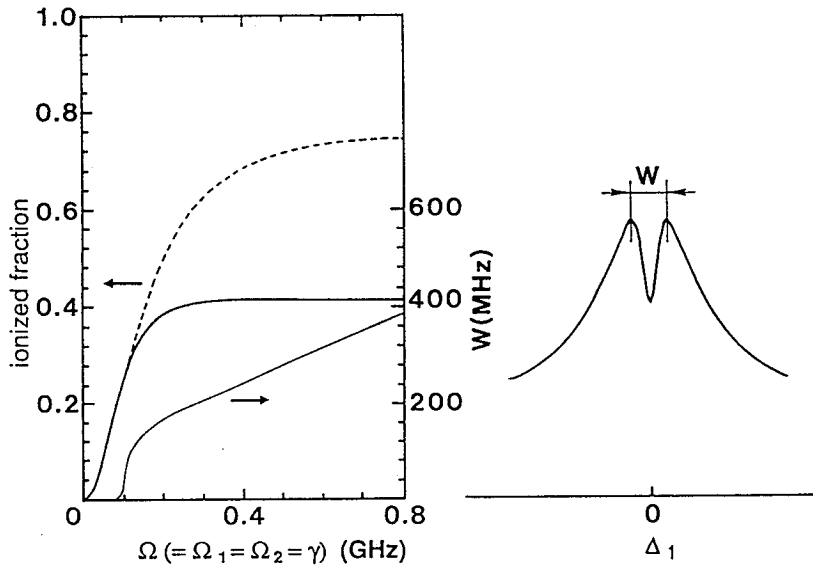


図4-7 最も効率のよい組合せ ($\Omega_1 = \Omega_2 = \gamma$) での
 トラップされる谷の深さと幅 W ($\Delta_2 = 0$ GHz) の
 点線：最大イオン量
 実線： $\Delta_1 = 0$ (2光子共鳴条件) でのイオン量

の値を同時に変化させたときのイオン量を示す。実線および点線は、それぞれ $\Delta_1 = 0$ GHz (2光子共鳴条件) および最大イオン量が得られる Δ_1 に対する生成イオン量を示している。また細い実線は図の右に示したスペクトルを見てわかるように、最大イオン量が得られる2つの Δ_1 の差である。最大イオン量はRabi周波数に伴い増加するが、 $\Delta_1 = 0$ に対するイオン量はRabi周波数0.2 GHz程度で飽和し、レーザー光強度を上げてイオン量は増加しなくなる。したがってRabi周波数の増大に伴いtrappingの谷も深くなる。また最大イオン量が得られるdetuningの大きさ $W/2$ もRabi周波数とともに大きくなる。

以上の考察より population trapping を避ける方法としては、

- (1) 同時励起とせず、時間遅れをつけて励起する。
- (2) $\Omega_1 \sim 1.0 \Omega_2$ 程度Rabi周波数に差をつけて同時励起する。
- (3) 2光子共鳴状態を避け、図4-7に示す $W/2$ のdetuningをつけて同時励起する。

等が考えられる。(1)については、さらに上準位への励起を行なうには幅の長い

パルスを用いる必要があること、(2)については、準安定準位を利用しないスキームとイオン量においてあまり差がないことから、実際的な方法としては(3)が最も効率が良い。(3)の方法によれば、準安定準位に熱励起された原子を利用することができ、イオン量の増加を見込むことができる。もちろんレーザーの偏光と

準位の縮退により、同時励起されないサブレベルがあるため用いる準位により生成イオン量は異なるが、実験で用いた2つの下準位から取り出すことのできるイオンは、population trappingが起こっていると最大41%程度であり、(3)を用いれば最大77%をイオン化できると考えられる。

図4-8(a)は $\Omega_1 = \Omega_2 = \gamma = 0$ 、2GHzの条件で、幅40nsの矩形波レーザーパルスに対してそれぞれの準位の分布数密度の時間発展を計算した結果である。ただし $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ とした。イオン化は時刻6ns程度まで進行するが、それ以後は準位1、2に分布があるにもかかわらず、各準位の分布変動がなくなり、Population Trappingの効果によりイオン化が抑制されている様子が見える。

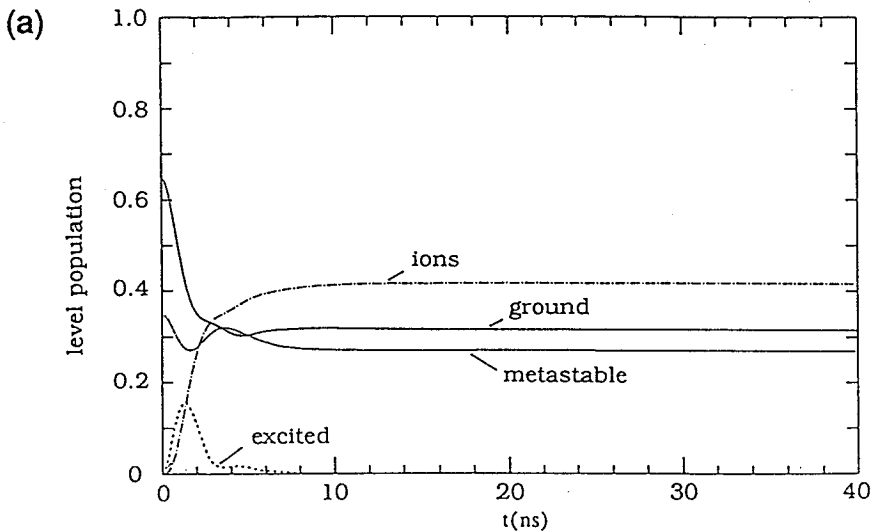
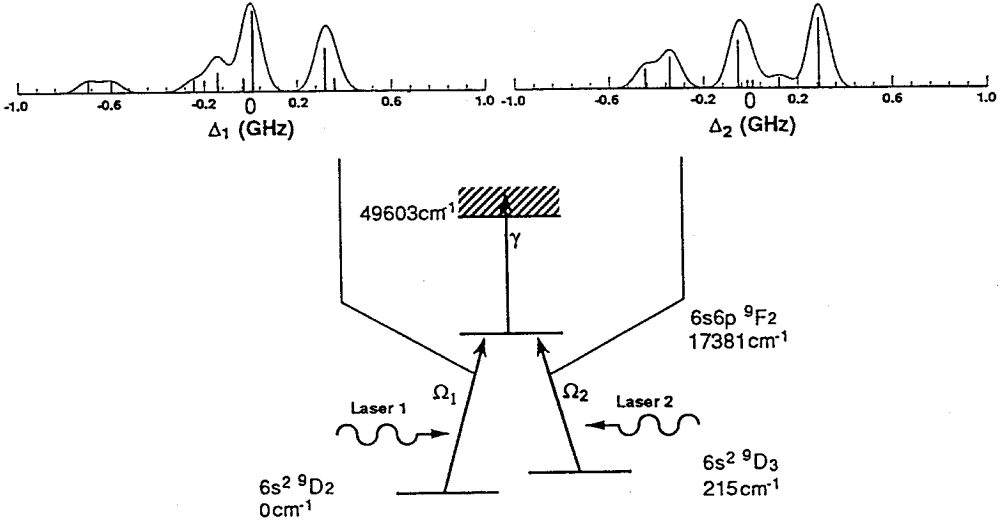


図4-8 超微細構造の有無による各準位密度の時間発展
(a) 超微細構造のない場合(核スピン=0)

UやGdでは濃縮すべき標的 isotopes はそれぞれ ^{235}U 、 ^{157}Gd であり、スペクトルは第2章でも述べたように超微細構造をもち、共鳴周波数が散在している。したがって各共鳴周波数はレーザー周波数に対して適当なdetuningをもつことになり、Population Trappingによる顕著なイオン量の低下は現われないと予想される。図4-8(b)は、実験に用いたGdのエネルギー準位1、2、3について、 ^{157}Gd の超微細構造によるスペクトル分布を示している。このスペクトルにおいて、用いた超微細構造定数A、Bは第3章表3-3中に示した測定値を用いた。また現われる10本の遷移の位置と強度を、図中に実線で示し、各ラインは100MHzのドップラー幅をもつガウス型スペクトルを仮定した。 $\Delta_1=0$ および $\Delta_2=0$ の位置が、各々超微細構造スペクトルの重心である。このスペクトルを考慮し、図4-8(a)と同じ条件で計算した各準位の分布数密度の時間発展が(c)である。ただしレーザー周波数は吸収スペクトルの重心に固定した。(a)と比べると、イオン化は停止することなく進行していく様子がわかる。しかしながら、有限のパルス幅等のレーザーの条件に応じて、生成イオン量を最大にするようなdetuningの最適化がなお必要である。

(b)



(c)

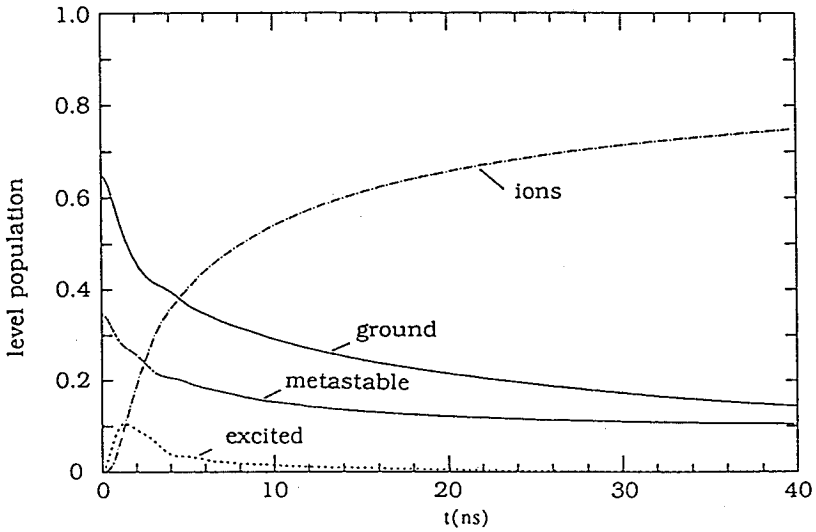


図 4-8 超微細構造の有無による各準位密度の時間発展
(b) 計算に用いた遷移と超微細構造
(c) 超微細構造のある場合 (核スピン = $3/2$)
の各準位密度の変化

§ 4-3 高速断熱通過を利用した高效率励起

4-3-1 高速断熱通過

同位体シフトを利用して選択励起を行なう場合、UやGdのように濃縮すべき標的同位体が超微細構造をもち、広い周波数範囲にその共鳴周波数が分布していると、単一周波数のレーザー光では照射光強度を大きくして遷移の飽和広がりを起こし励起する方法が一般にとられる。その場合前節の終わりでも述べたように、効率よくイオンを生成するには、レーザー光照射強度と超微細構造のどの周波数位置にレーザー光の周波数を同調するかに関して、遷移の1つ1つについて非常に厳密な検討を要する。ここでは基本に立ち戻り、2準位系での励起について考察し、新たな高效率励起法を提案する。

2準位系原子のレーザー光による励起は式(4-5)のよく知られるブロッホ方程式⁷⁾で記述される。

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}u(t) &= -\Delta(t)v(t) \\ \frac{d}{dt}v(t) &= \Delta(t)u(t) + \Omega(t)w(t) \\ \frac{d}{dt}w(t) &= -\Omega(t)v(t)\end{aligned}\tag{4-5}$$

ここで w は反転分布であり、 $w=1$ で原子は上準位に存在し、 $w=-1$ で下準位に存在する。また u 、 v はそれぞれ双極子モーメントの照射レーザー光の電場と同位相成分(分散成分)、および 90° 位相のずれた成分(吸収成分)である。 $\Omega(t)$ はRabi周波数で表わしたパルス波形であり、 $\Delta(t)$ は遷移のBohr周波数とレーザー光周波数の差(detuning)である。

式(4-5)は

$$\begin{aligned}\Omega &= (\Omega(t), 0, \Delta(t)) : \text{トルクベクトル} \\ \rho &= (u(t), v(t), w(t)) : \text{ブロッホベクトル}\end{aligned}\tag{4-6}$$

とベクトル形式に変換するとベクトル歳差運動を表わす式(4-7)となる。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \Omega \times \rho \quad (4-7)$$

式(4-5)で示したブロッホ方程式は、式(4-7)のベクトル歳差運動方程式を用い、ベクトルモデル⁸⁾で考えると直感的に理解できる。

式(4-7)で表わされるブロッホベクトル ρ の挙動を、detuning Δ が $\Delta = 0$ 、 $\Delta \neq 0$ 、 Δ を掃引した3つの場合について図4-9に示した。図4-9でレーザーの電場を $\langle 1 \rangle$ 軸方向に、detuningを $\langle 3 \rangle$ 軸方法にとると、ブロッホベクトルの $\langle 1 \rangle$ 、 $\langle 2 \rangle$ 、 $\langle 3 \rangle$ 軸への射影 u 、 v 、 w は、各々誘起分極の吸収成分、分散成分および反転分布を表わす。 $\Delta = 0$ 、すなわち完全な共鳴状態の場合で、 $\Omega(t)$ を $\langle 1 \rangle$ 軸方向にとると、ブロッホベクトル ρ は原子が下準位にある状態(反転分布 $= -1$)から出発し、 $\langle 2 \rangle - \langle 3 \rangle$ 平面内で大円を描いて回転する。これは原子レーザー場からエネルギーを吸収し、また誘導放出によりエネルギーをレーザー場に戻すというサイクル(Rabi振動)を表わしており、パルスが終わるまで繰り返す。そのため反転分布は -1 と 1 の間を振動する。ちょうどブロッホベクトルを反転分布が -1 から 1 の位置に移動させるパルスは π パルスとして知られている。 $\Delta \neq 0$ の場合はベクトルモデルからわかるように、 Δ の大きさに応じて歳差運動の周波数と半径が異なり、完全な反転分布を起こさない。

式(4-7)はブロッホベクトル ρ がトルクベクトル Ω のまわりを周波数

$$|\Omega| = \sqrt{\Omega(t)^2 + \Delta(t)^2} \quad (4-8)$$

で歳差運動すると解釈することを許す。共鳴からのずれ $|\Delta|$ が十分に大きく、例えば不均一幅 $1/T_2^*$ の数倍もあるときには、 $|\Omega|$ が電場 E の変化率よりずっと大きいと仮定できる。電場 E に対する ρ の応答が可干渉性の歳差であるためには、 E の作用は緩和時間 T_1 (縦緩和時間)と T_2' (純位相緩和時間)に比べて短い必要がある。よってパルス幅 τ_{pulse} と Δ の大きさは、

$$|\Delta(0)|^{-1} < T_2^* < \tau_{\text{pulse}} < T_2', T_1 \quad (4-9)$$

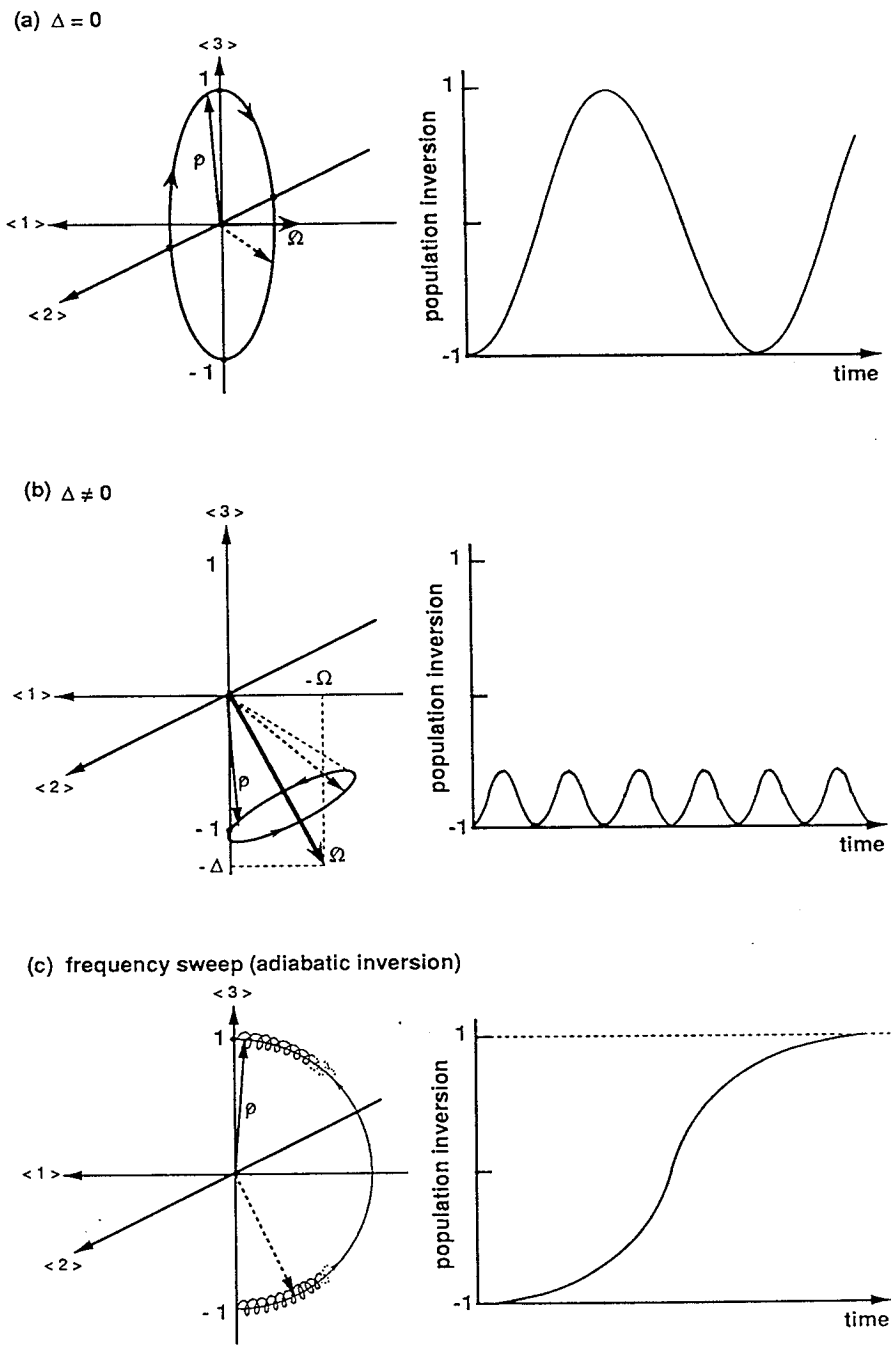


図 4-9 detuningの違いによるブロッホベクトル ρ の挙動
 遷移の共鳴周波数とレーザーの周波数との差 Δ が、(a) $\Delta = 0$ の場合、(b) $\Delta \neq 0$ の場合、(c) $\Delta = 0$ を通るよう
 に周波数を適当な速度で掃引した場合。左側はベクトルモデル、右側は反転分布の時間発展。ベクトルモデルの $\langle 3 \rangle$ 軸
 が反転分布に対応する。

を満たすことができると仮定する。この条件のもとでは、トルクベクトル Ω は、 ρ がそのまわりを歳差運動する周波数 $|\Omega|$ に比べてゆっくり配向する。すなわちブロッホベクトルはトルクベクトルに断熱的に追従する（断熱追従近似⁹⁾）とすることができる。ここで『断熱的』とは、追従する過程で準定常状態が維持されるほど、変化する Ω の成分の変化率が小さいことを意味する。

もしトルクベクトル Ω を、Stark または Zeeman Switching、もしくは電気光学効果やファイバーの自己位相変調効果などを利用した周波数変調または振幅変調により、 -90° から 90° まで断熱的に動かすことができれば、 ρ は Ω に追従し完全な反転分布を得ることができる（断熱反転）と予想される。

簡単のため対称なパルス波形と直線型の周波数掃引を仮定すると、この完全な断熱反転を得ることができる定性的な条件は次の3つとなる。

$$(1) \quad \Delta_s / 2 \gg \Omega \quad (4-10)$$

トルクベクトルがパルスの始まりと終わりで $\langle 3 \rangle$ 軸方向を向いている。

$$(2) \quad \Omega \gg |d\Delta/dt| \quad (4-11)$$

トルクベクトルはブロッホベクトルよりもゆっくり運動する。

$$(3) \quad \tau_{relaxation} \gg (\Omega / \Delta_s) \tau_{pulse} \quad (4-12)$$

緩和時間は反転時間より十分長い。

Gd や U の場合準位の寿命は § 3-3 でも示したように数 100 ns のオーダーであるため条件 3 に関しては採用する準位を適切に選ぶことや、原子蒸気ビームを用い衝突による緩和を抑えることで解決できるため、以下の議論では $\tau_{relaxation}$ による高速性は常に成立すると仮定する。

2 準位原子系では (4-10)、(4-11) の 2 つが断熱反転を達成できる条件として考えられるが、これらは定性的な条件¹⁰⁾ であり、実験に適用するには条件の範囲（即ち不等号の大きさ）を知ることが非常に重要である。

図 4-10 に Rabi 周波数 $\Omega = 0.5 \text{ GHz}$ 、半値全幅 50 ns の矩形パルス内で、

周波数を掃引した場合のプロッホベクトルの軌跡と、上準位の分布数密度の時間発展を示す。ここでは簡単のため、直線型の周波数掃引のみを仮定している。

周波数掃引せずに固定周波数で共鳴励起を行なう場合、図4-9(a)からわかるように、プロッホベクトルは $v-w$ 平面内で動く。一方周波数掃引を行ない、断熱反転を起こす場合には、図4-10(A), (B)の上段に示した軌跡より、プロッホベクトルは基本的には $u-w$ 平面内を運動し、 v 成分は一般に小さいことがわかる。もちろん原子はレーザー光からエネルギーを吸収し、励起されるため v 成分(吸収成分)は0にはならない。(A)は周波数掃引幅 Δ_s が 5 GHz の場合、(B)は Δ_s が 10 GHz の場合である。ここで Δ_s はパルスの半値全幅の時間内で掃引した周波数幅で定義した。(A)では $\Omega^2 / |d\Delta/dt| = 2.5$ 、(B)では $\Omega^2 / |d\Delta/dt| = 1.25$ で、いずれも95%以上の反転分布が起こっており、式(4-11)に示した断熱条件は比較的緩いと推測される。また矩形パルスの場合、条件(4-11)よりも(4-10)の方が強く影響していると考えられる。

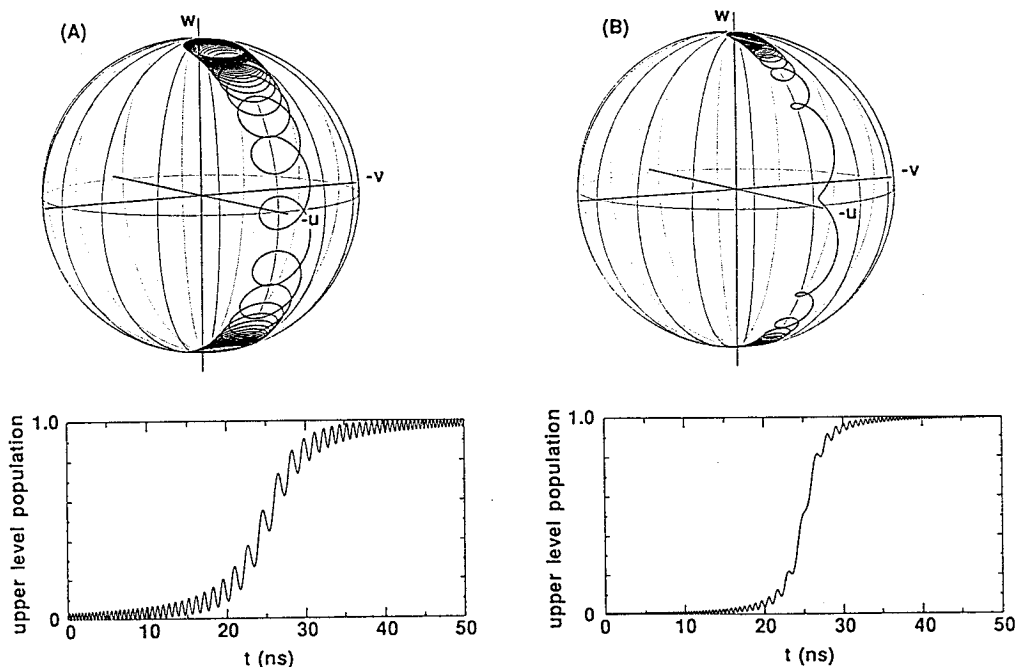


図4-10 周波数掃引した矩形パルスで励起した場合のプロッホベクトルの軌跡と上準位密度の時間発展
 $\Omega = 0.5\text{ GHz}$, $\tau = 50\text{ ns}$
 (A) $\Delta_s = 5\text{ GHz}$, (B) $\Delta_s = 10\text{ GHz}$

そこで式(4-10)と(4-11)から、 Δ_s/Ω と $\Omega^2/|d\Delta/dt|$ をパラメーター(無次元)として選び、安定な断熱反転が得られる範囲を求める。

図4-11にガウス型パルスと矩形パルスでの断熱反転の様子を示す。ガウス型パルスの場合の周波数掃引幅 Δ_s は、図4-12に示すように半値全幅内に掃引する周波数幅で定義している。 $\Omega^2/|d\Delta/dt|=1.0$ では、ガウス型パルスの場合 $\Delta_s/\Omega \sim 1.5$ ですでに完全な断熱反転が起こっているが、矩形パルスでは、大きな Δ_s/Ω までRabi振動の影響が残っている。ガウス型パルスと矩形パルスでは全掃引幅が異なるため直接比較はしにくい、矩形パルスでは $t=0$ で急にレーザー光が印加されるため、 Δ_s の十分大きな場合でない限りプロセスの初期の時点でプロットベクトルが断熱的にトルクベクトルに追従しにくいからだと考えられる。 Δ_s/Ω が小さいところでも完全な反転分布が起こっているが、この状態はRabi振動によるものである。しかしこの状態はレーザーのゆらぎなど少しのパラメーターの変動で簡単に崩れてしまうため、安定な反転分布とは言えない。これらのことから矩形パルスに対しては断熱反転条件として Δ_s/Ω が支配的であり、ガウス型パルスに対しては $\Omega^2/|d\Delta/dt|$ と Δ_s/Ω が独立でないことがわかる。

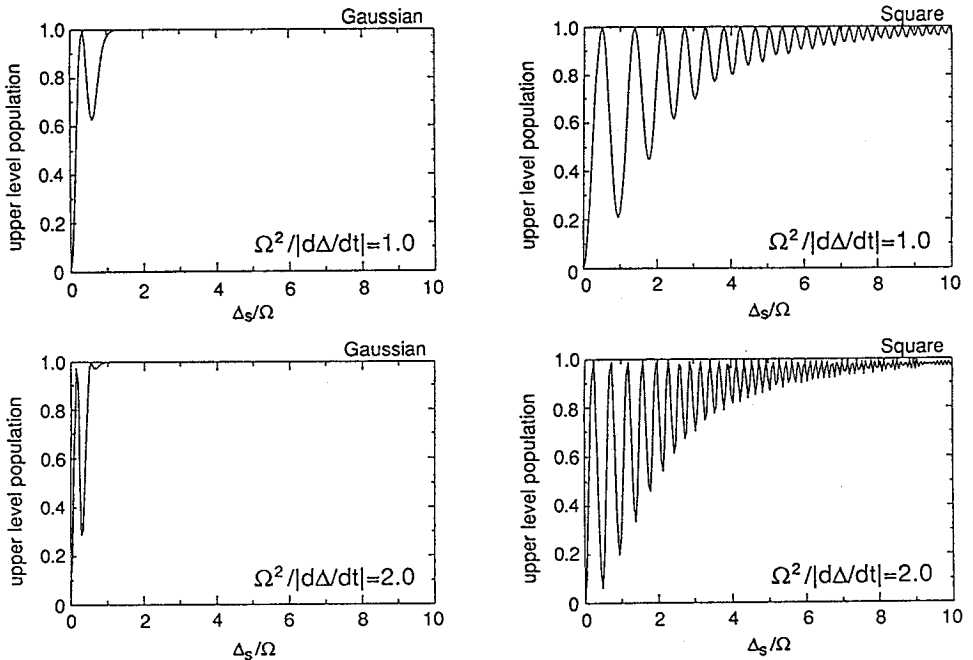
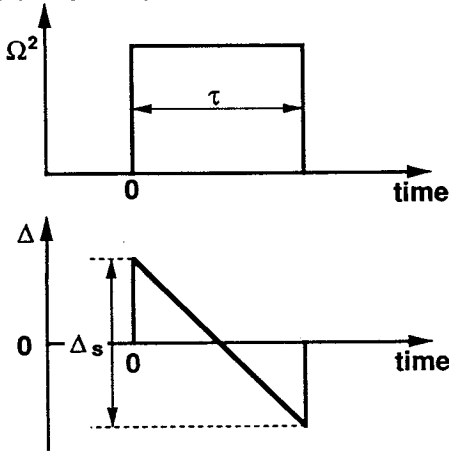


図4-11 ガウス型パルスと矩形パルスによる断熱反転
 ガウス型パルスに対しては $\Omega^2/|d\Delta/dt|$ と Δ_s/Ω が独立でない。矩形パルスに対しては断熱反転条件として Δ_s/Ω が支配的であることがわかる。

(a) square pulse



(b) Gaussian pulse

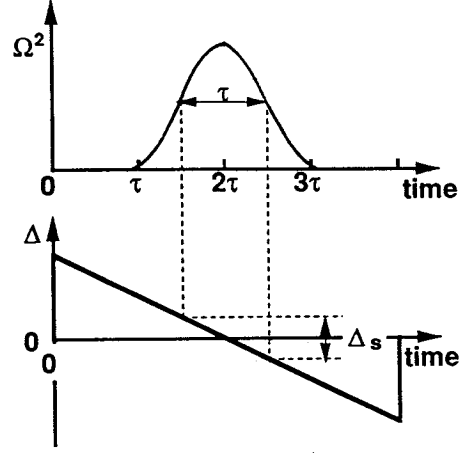


図 4-12 矩形パルスとガウス型パルスでの周波数掃引スキームの定義

このような計算からガウス型パルスと矩形パルスについて安定な断熱反転が得られるパラメーター領域を図 4-13 に示した。図 4-13 において上準位密度が初めて 90%、97% 以上になるパラメーターの組合せを (●, ○)、(■, □) でそれぞれ示してある。97% としたのは 3 段階電離で、 $(97\%)^3 \sim 90\%$ となるためである。図 4-11 からわかるように、 Δ_s / Ω が十分大きくないが、90% または 97% の分布反転が起こる領域では Rabi 振動の影響による細かな振動が残っている。そのため図 4-13 でプロットされた点にばらつきが生じている。これらの考察の結果、斜線をほどこした領域内で安定な断熱反転が得られると結論した。図 4-13 をよりわかり易くするために、Rabi 周波数と周波数掃引幅をパラメーターとして描いた図が図 4-14 である。図 4-14 では矩形パルスとパルス幅 5 ns、50 ns のガウス型パルスについて安定に断熱反転が起こる条件を示した。

実際の遷移ではドップラー広がりや縮退の影響を考える必要がある。ドップラー広がりの影響を図 4-15 に、縮退の影響を図 4-16 に示す。図 4-15 では 50 ns ガウス型パルスに対して、ドップラー幅と周波数掃引幅の関係を示しており、安定な断熱反転が得られる周波数掃引幅の下限がほぼドップラー幅であることがわかる。縮退の効果については第 2 章でも述べた通り、各サブレベル間の遷移の行列要素が異なるために、同一レーザー光に対する Rabi 周波数が違ってくることである。このため図 4-16 に示すように例えば $J = 6 \rightarrow 7$ の縮退度の高い遷移についても、

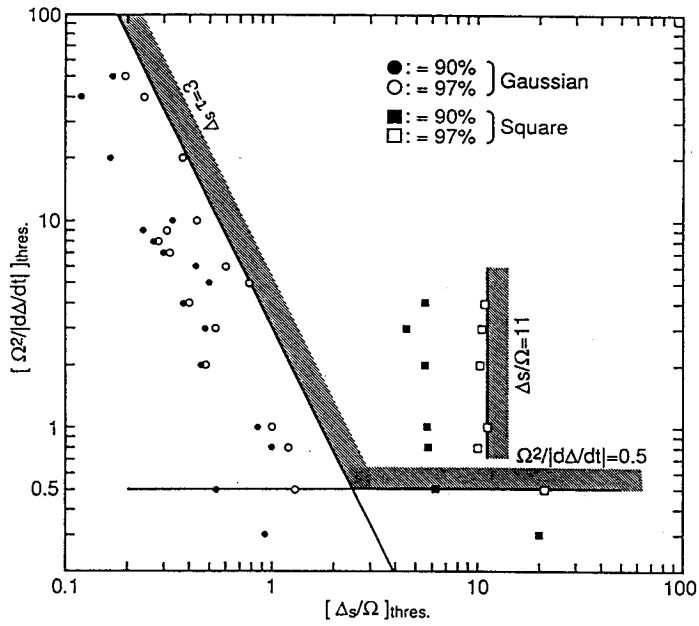


図 4 - 1 3 安定に断熱反転が起こるパラメーター領域

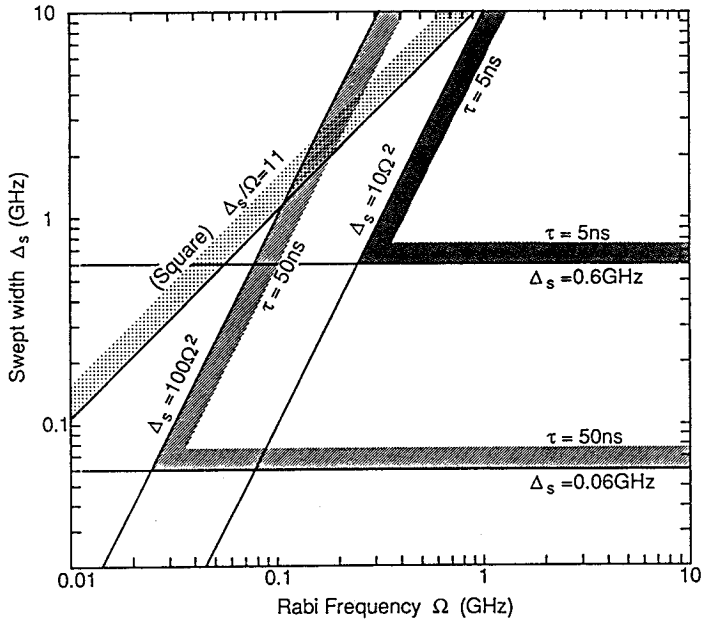


図 4 - 1 4 安定に断熱反転が起こるパラメーター領域
 図 4 - 1 3 を矩形パルスと 5 n s、5 0 n s ガウス型パルスについて Δ_s と Ω で表示。

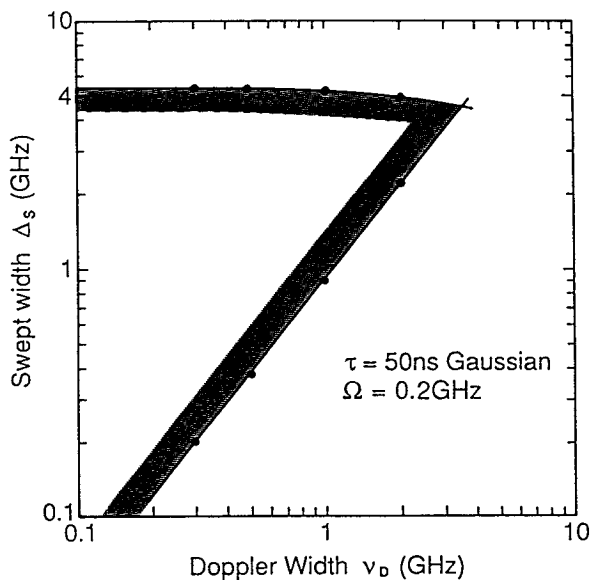


図 4 - 1 5 ドップラー幅と周波数掃引幅の関係
斜線内の領域で安定な断熱反転が得られる。

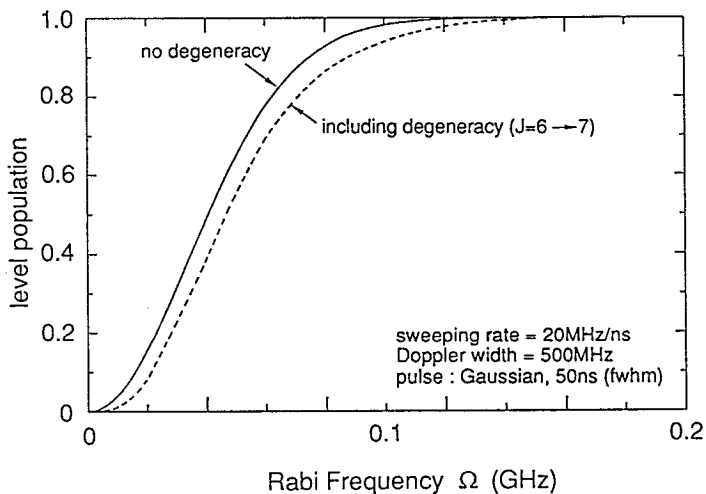


図 4 - 1 6 断熱反転における縮退の影響

縮退がないと仮定した場合のRabi周波数よりも僅かに大きなRabi周波数を用いることで安定な断熱反転が得られる。

以上の研究より、縮退のない2準位原子系を励起する場合、ガウス型パルスに対

しては、

$$\Omega^2 / |d\Delta/dt| \geq 0.5 \quad (4-13)$$

$$\Delta_s \tau \geq 3$$

矩形パルスに対しては、

$$\Delta_s / \Omega \geq 1.1 \quad (4-14)$$

で安定な断熱反転が得られることが明らかになった。さらにドップラー広がりをもつスペクトルをガウス型パルスで励起し、安定な断熱反転を起こすには

$$\Delta_s \geq \Delta_{\text{Doppler}} \quad (4-15)$$

満足すればよく、また空間縮退している準位に対しては

$$\Omega_{\text{degeneracy}} \geq 1.2 \Omega \quad (4-16)$$

とする必要があることがわかった。ここで Δ_{Doppler} はドップラー幅（半値全幅）、 $\Omega_{\text{degeneracy}}$ は空間縮退を考慮したときのRabi周波数である。

4-3-2 高速断熱通過による超微細構造の励起

4-3-1の初めに示した高速断熱通過の原理から、この方法は広い範囲にわたって分布するスペクトルを励起するには有効であることがわかり、超微細構造を有するスペクトルについても応用できる可能性がある。しかし超微細構造は第2章でも述べたように単に共鳴周波数に広がりがあるだけでなく、IとJのカップリングにより選択則が変わることで起こる複雑な励起ダイナミクスも考慮する必要がある。

超微細構造を示す遷移における複雑さは2-2-1でも示した通り、J値、I値や超微細相互作用エネルギーの違いによって共鳴の順序や遷移強度が異なるため遷移を特定しなければ詳しい議論をすることは困難である。しかしここでは一般的な

目安を見いだす目的から簡単なモデルを用いて考察する。

[1] 解析モデル

エネルギー準位として図4-17に示すような上下準位共に2つのレベルからなる超微細構造を考えた。図において分裂した2つの下準位の周波数差 Δ_L を400MHz、2つの上準位の周波数差 Δ_U を200MHzとし、励起パルスは半値全幅50nsのガウス型パルス、周波数掃引は直線型とした場合について励起ダイナミクスを計算し考察を行なった。図4-17において準位1-準位3、準位2-準位3、

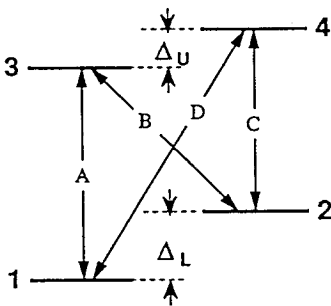


図4-17
解析に用いた超微細構造を示す準位

準位2-準位4、準位1-準位4の4つの遷移があり、それらをA、B、C、Dとした。遷移A、B、C、Dを駆動するパルスのRabi周波数の最大値を各々 Ω_A 、 Ω_B 、 Ω_C 、 Ω_D とした。レーザーの周波数は、共鳴の順序が遷移B、C、A、Dとなるように、遷移の周波数に対し低周波側から直線的に掃引した。シミュレーションモデルの基本式を付録に挙げておく。

[2] 計算結果と考察

図4-18に $\Omega_A = \Omega_C = 0.5 \text{ GHz}$ 、掃引速度 50 MHz/ns ($\Delta_s = 2.5 \text{ GHz}$)とし、 $\Omega = (\Omega_B = \Omega_D)$ を変化させたときの各準位の分布数密度の時間発展を示す。(a)~(d)とも図4-14で示した安定に断熱反転を起こすパラメータ領域に属している。(a)は $\Omega_B = \Omega_D = 0.2 \text{ GHz}$ であり、遷移B、Dに対し遷移A、Cが強く駆動されるため、この4準位系が2準位系(準位1-3、2-4)の集合とみなせる。(d)は逆に、遷移B、Dの方がA、Cよりも強く駆動され準位2-3、1-4の2準位間で各々断熱反転が起こっている。(b)、(c)

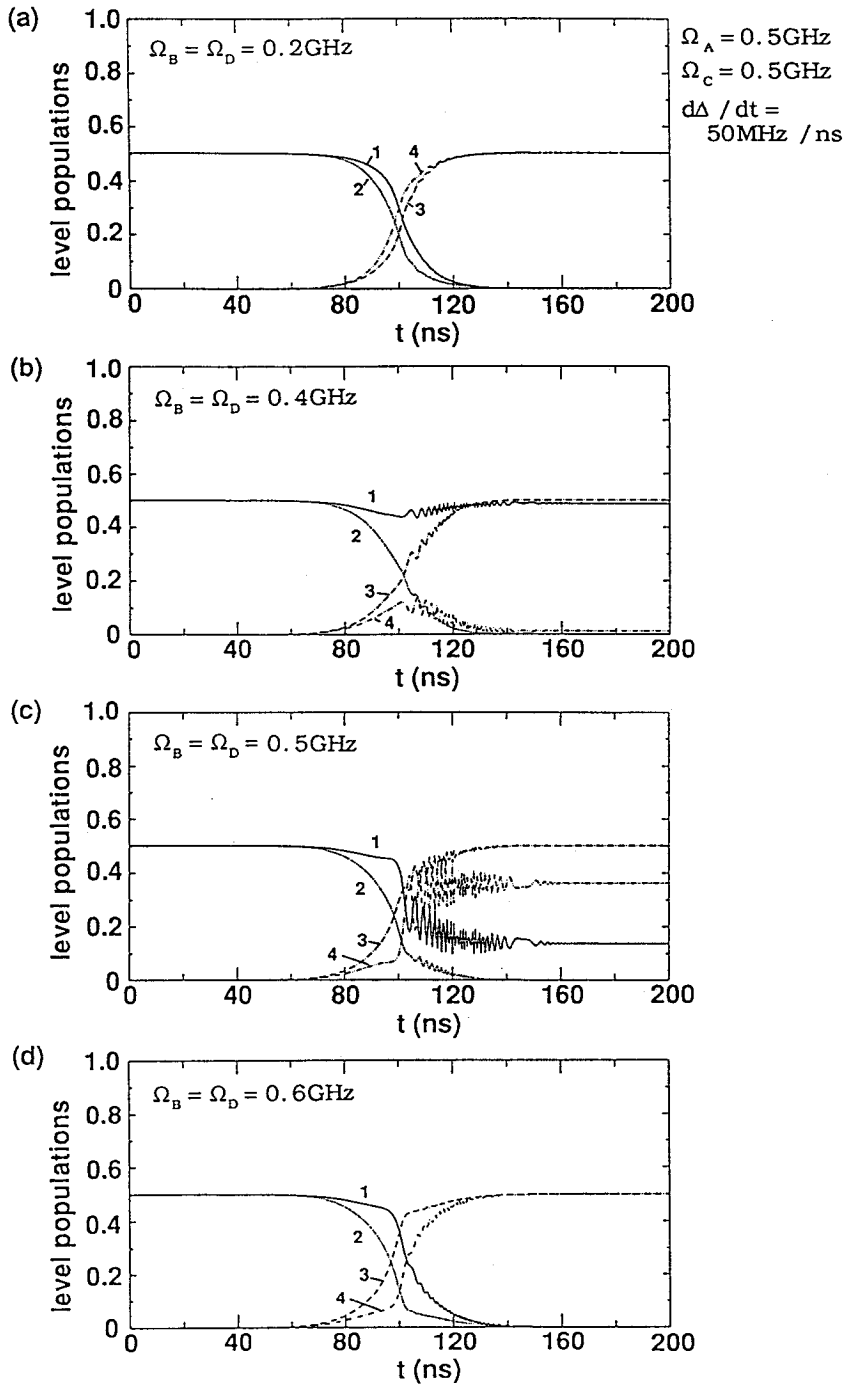


図 4 - 1 8 超微細構造内での各準位密度の時間発展

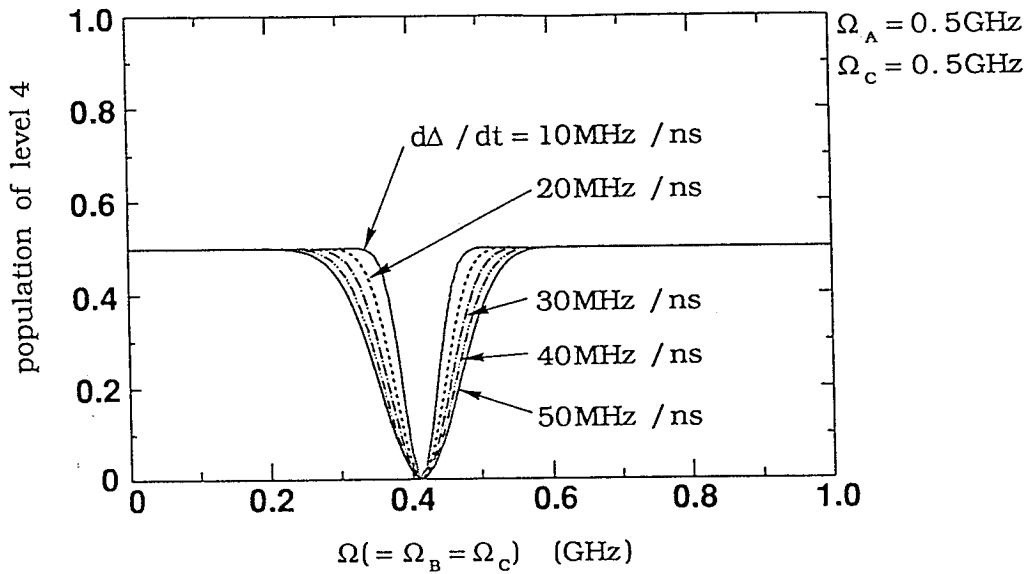


図4-19 準位4の分布数密度のRabi周波数依存性
 $\Omega_A = \Omega_C = 0.5$ GHz

は (a), (d) のように2準位間の集合とはみなせず、閉じた4準位系の励起ダイナミクスが現われており、上準位3と2つの下準位のどちらかとは完全に分布が入れ替わるが、上準位4に0.5まで原子を励起することができない。すなわち2つの下準位から断熱反転によってすべての原子を上準位に励起することは不可能となる。

図4-19には、 $\Omega_A = \Omega_C = 0.5$ GHz とし、 $\Omega_B = \Omega_D$ を横軸にとりパルス終了時の準位4の分布数密度を示した。掃引速度に関係なく $\Omega \sim 0.4$ GHz で準位4の分布数密度は0となる。このとき準位3は断熱反転により0.5の分布数密度となる(図4-18(b))。図4-19より $\Omega_A = \Omega_B = 0.5$ GHz では $\Omega \leq 0.25$ GHz または $\Omega \geq 0.6$ GHz であれば、2準位系の集合と考えることができ、安定に断熱反転を起こすことができる。それ以外の $\Omega \sim 0.4$ GHz 付近では閉じた4準位系の励起ダイナミクスに支配されており、Rabi周波数、周波数掃引速度、共鳴の順序、準位の周波数間隔 (Δ_U, Δ_L) が複雑に関連していると考えられ、励起の位相関係の影響が効いていると思われるが、さらに詳細な研究が必要である。

付録

図4-17に示した超微細分裂した準位間での励起ダイナミクスの計算に用いた数式を以下に記しておく。式中の n , u , v はいままでどおり、それぞれ準位密度、誘起双極子モーメントの電場と同相成分, 90° ずれた成分である。添え字はそれぞれの準位または準位間に関連するものを表わしている。遷移 1-3, 2-3, 2-4, 1-4 を駆動する Rabi 周波数をそれぞれ Ω_a , Ω_b , Ω_c , Ω_d とした。

$$\dot{n}_1 = \frac{1}{2}\Omega_a v_{13} + \frac{1}{2}\Omega_d v_{14} \quad (1)$$

$$\dot{n}_2 = \frac{1}{2}\Omega_b v_{23} + \frac{1}{2}\Omega_c v_{24} \quad (2)$$

$$\dot{n}_3 = -\frac{1}{2}\Omega_a v_{13} - \frac{1}{2}\Omega_b v_{23} \quad (3)$$

$$\dot{n}_4 = -\frac{1}{2}\Omega_d v_{14} - \frac{1}{2}\Omega_c v_{24} \quad (4)$$

$$\dot{u}_{12} = -(\Delta_a - \Delta_b)v_{12} + \frac{1}{2}(\Omega_a v_{23} + \Omega_b v_{13} + \Omega_c v_{14} + \Omega_d v_{24}) \quad (5)$$

$$\dot{v}_{12} = (\Delta_a - \Delta_b)u_{12} + \frac{1}{2}(\Omega_a u_{23} - \Omega_b u_{13} - \Omega_c u_{14} + \Omega_d u_{24}) \quad (6)$$

$$\dot{u}_{34} = -(\Delta_c - \Delta_b)v_{34} - \frac{1}{2}(\Omega_a v_{14} + \Omega_b v_{24} + \Omega_c v_{23} + \Omega_d v_{13}) \quad (7)$$

$$\dot{v}_{34} = (\Delta_c - \Delta_b)u_{34} + \frac{1}{2}(\Omega_a u_{14} + \Omega_b u_{24} - \Omega_c u_{23} - \Omega_d u_{13}) \quad (8)$$

$$\dot{u}_{13} = -\Delta_a v_{13} + \frac{1}{2}(\Omega_b v_{12} + \Omega_d v_{34}) \quad (9)$$

$$\dot{v}_{13} = \Delta_a u_{13} + \Omega_a(n_3 - n_1) + \frac{1}{2}(-\Omega_b u_{12} + \Omega_d u_{34}) \quad (10)$$

$$\dot{u}_{14} = -\Delta_d v_{14} + \frac{1}{2}(-\Omega_a v_{34} + \Omega_c v_{12}) \quad (11)$$

$$\dot{v}_{14} = \Delta_d u_{14} + \Omega_d(n_4 - n_1) + \frac{1}{2}(\Omega_a u_{34} - \Omega_c u_{12}) \quad (12)$$

$$\dot{u}_{23} = -\Delta_b v_{23} + \frac{1}{2}(-\Omega_a v_{12} + \Omega_c v_{34}) \quad (13)$$

$$\dot{v}_{23} = \Delta_b u_{23} + \Omega_b(n_3 - n_2) + \frac{1}{2}(-\Omega_a u_{12} + \Omega_c u_{34}) \quad (14)$$

$$\dot{u}_{24} = -\Delta_c v_{24} - \frac{1}{2}(\Omega_b v_{34} + \Omega_d v_{12}) \quad (15)$$

$$\dot{v}_{24} = \Delta_c u_{24} + \Omega_c(n_4 - n_2) + \frac{1}{2}(\Omega_b u_{34} - \Omega_d u_{12}) \quad (16)$$

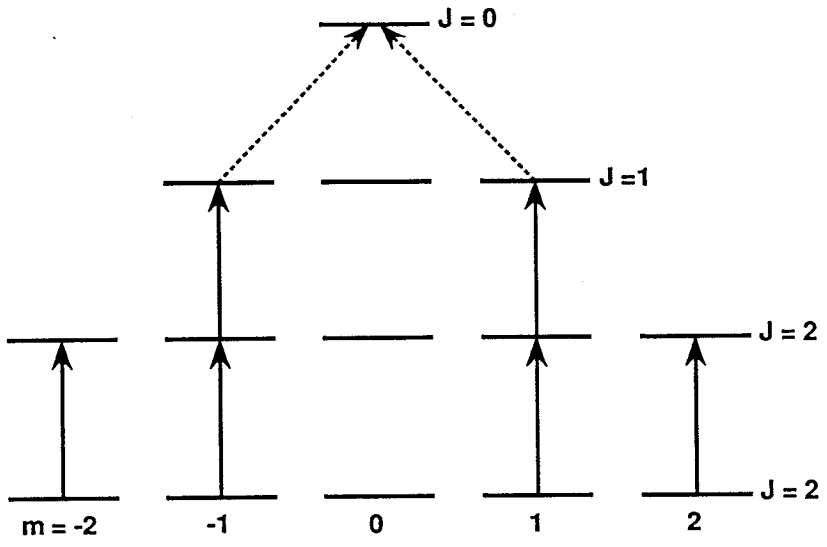
§ 4-4 選択則を利用した高効率励起

前節でも述べた通り、超微細構造によるスペクトルの広がりがある場合、同位体シフトのみを利用して標的同位体を効率よく、高い選択性を保ち分離することは容易でない。特にGd原子では、第3章で示した吸収スペクトル測定からわかるように、 ^{157}Gd の超微細構造中に ^{156}Gd が存在する遷移が多いことや同位体シフトが非常に小さいことから高選択性を得るのは困難である。また周波数掃引パルスを用いた断熱高速通過を利用した励起法も適用できない。そこで1976年にBallingとWrightによって提案された核スピンの有無による角運動量モーメントに対する選択則の違いを利用した励起方法¹¹⁾をGdに応用した。

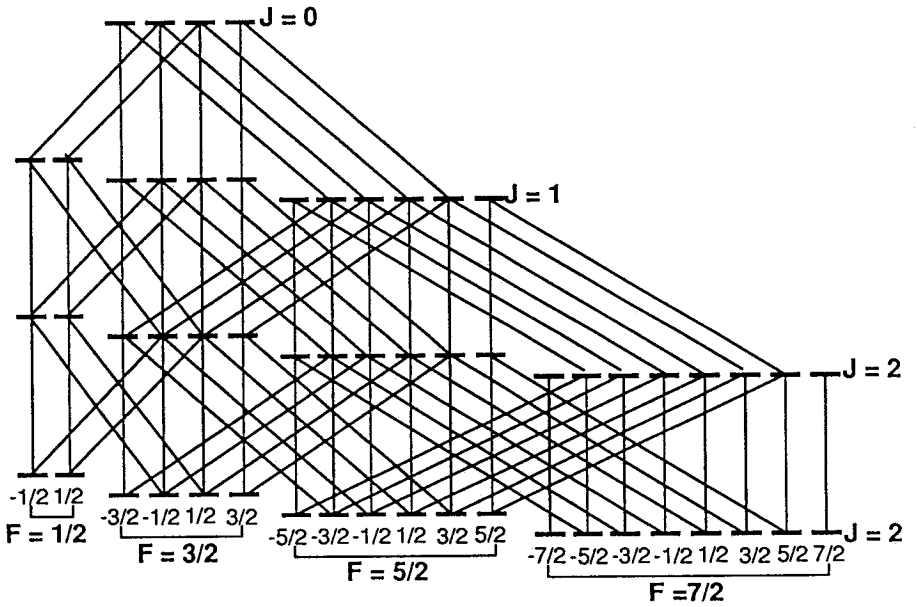
Gdを例にとって原理を説明する。Gdの基底状態の角運動量子数は $J=2$ であり、3段階光電離を考えた場合、レーザー光の偏光特性と励起、電離準位のJ値を適当に選択すれば、 ^{157}Gd および ^{155}Gd だけを選択的に電離することが可能である。例えばエネルギー準位を $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ 、あるいは $J=2 \rightarrow 1 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ と選び、レーザーの偏光をすべて同じ向きの円偏光または直線偏光にすると、図4-20(a)に示すように核スピン $I=0$ である同位体は選択則により電離されない。上下準位のJ値が同じ励起ステップでは、 $m=0 \rightarrow m'=0$ が禁制遷移となるからである。一方 $I \neq 0$ の同位体は、超微細構造分裂を起こしてその選択則が変わるため、図4-20(b)のように電離に至る経路が存在する。この方法によれば同位体シフトが非常に小さい場合、またば標的同位体のスペクトルと非標的同位体のスペクトルが重なっているような場合でも、標的同位体が核スピンをもち非標的同位体が核スピン0であれば、原理的には標的同位体のみを選択的に励起できるはずである。この際レーザー光のスペクトル幅は選択性に依存しないため、超微細構造全体を励起できる程度のブロードバンドとすることができる。ただし偏光度のよいレーザー光を用いることが重要である。

ここではGdに対して原理を実証するため、図4-21に示すエネルギー準位を用い、3台の色素レーザーの直線偏光を利用して同位体分離実験を試みた。

実験装置のブロック図を図4-22(a)に示す。用いた色素レーザーはYAGレーザー(Quantel YG661S-30)の2倍高調波を励起光源としたパルスレーザーであり、繰り返し30Hz、パルス幅7nsである。色素レーザーは研究室で試作したもの¹²⁾であり、図4-22(b)にその構成を示す。レーザー光のスペクトル幅は



(a) $I = 0$



(b) $I = 3/2$

図 4-20 選択則を利用した同位体分離の原理
 (a) 核スピン $I = 0$ の同位体
 (b) 核スピン $I = 3/2$ の同位体

同位体シフトによる選択励起効果を除外し、偏光による選択励起効果のみを観測するためエタロンを挿入せず、10 GHz のブロードバンドとした。レーザーの偏光方向は、 $\lambda/4$ 波長板と偏光子の組合せで任意に制御できるようにした。Gd の原子蒸気ビームは前節までの実験と同じ装置により発生させ、色素レーザー光を $f =$

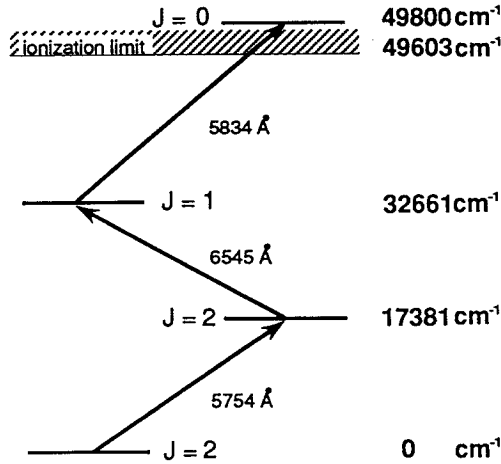


図 4-21 実験に用いた Gd エネルギー準位

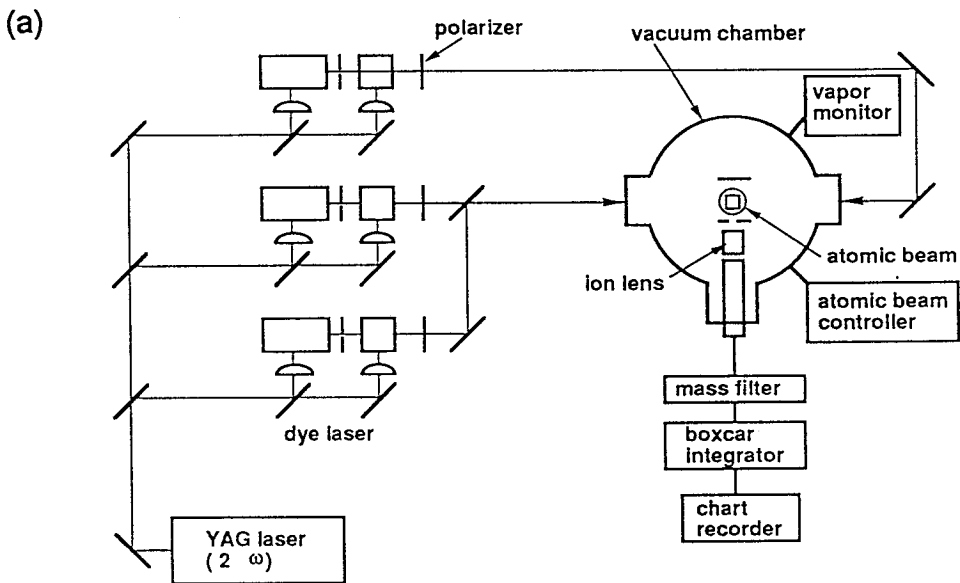


図 4-22 実験装置
(a) 選択則を利用した Gd 同位体分離実験装置配置

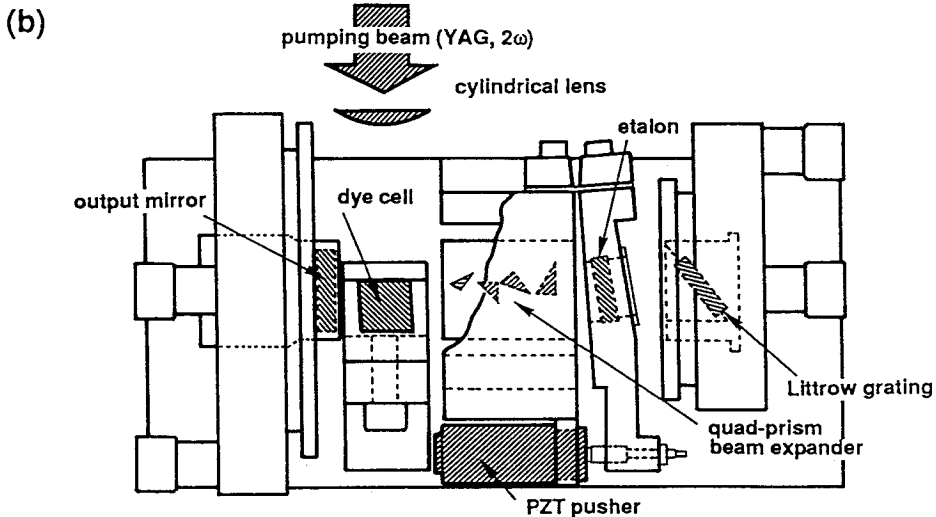


図 4-22 実験装置
(b) 実験に用いたブロードバンド色素レーザーの構成

100 cm のレンズを通して集光照射した。レーザー光照射領域におけるレーザー光のピーク強度密度は数 100 W/cm^2 であった。生成したイオンは電界により偏向し、イオンレンズを通して質量分析器で分析した。

3 段階電離により得られたイオンの質量スペクトルの 1 例を図 4-23 に示す。図 4-23 (a) はすべてのレーザーの偏光を平行にした場合についてのイオンの質量スペクトル、(b) は最終段のレーザーの偏光方向を 90° 回転させた場合 (図 4-20 (a) 中に点線で示す。) の結果である。(a) より明らかに ^{157}Gd と ^{155}Gd が選択的に電離されている様子がわかる。濃縮比は 7~8 倍程度であった。

選択性を制限する理由としては、レーザー光の直線偏光度、各レーザー光の平行度等があるが、これらと原子蒸気発生に用いた電子ビーム発生装置の偏向磁場の影響を考慮し、各レーザー光の平行度と偏光特性を調整すれば、さらに濃縮比は向上するものと考えられる。またレーザー光強度が大きい場合には、多光子吸収による電離にも注意が必要である。図 4-24 (b) に示した質量スペクトルは実験誤差の範囲内で同位体の自然存在比に一致しており、選択性は見られない。これは図 4-20 に示した経路により、偶数質量の同位体も電離されるからである。

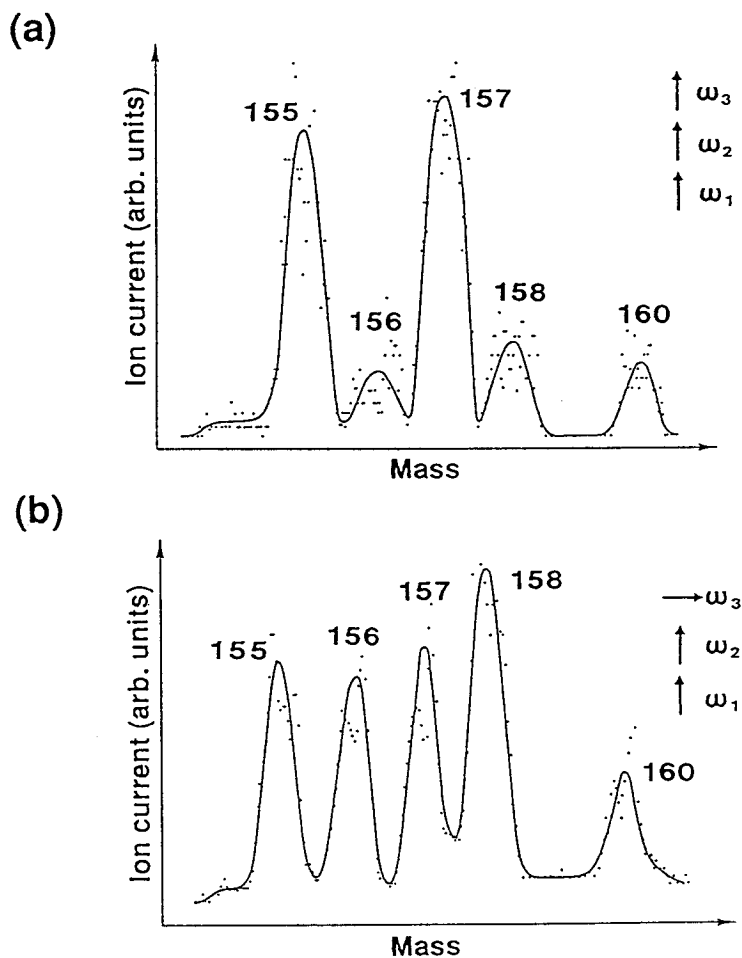


図4-23 測定された質量スペクトル
 (a) すべてのレーザー光の偏光方向が平行
 (b) 最終段のレーザー光の偏光方向が、他に対し垂直(図4-20に点線で示す。)

図4-23によりGd原子において、核スピンの有無による選択則の違いを利用した励起法の原理を実証したが、Gdでは標的同位体である ^{157}Gd の他に、 ^{155}Gd も核スピン $I = 3/2$ をもっており、このままでは両方の同位体が励起されてしまう。 ^{157}Gd だけを選択的に励起するためには、 ^{157}Gd と ^{155}Gd の同位体シフトを同時に利用することが考えられる。

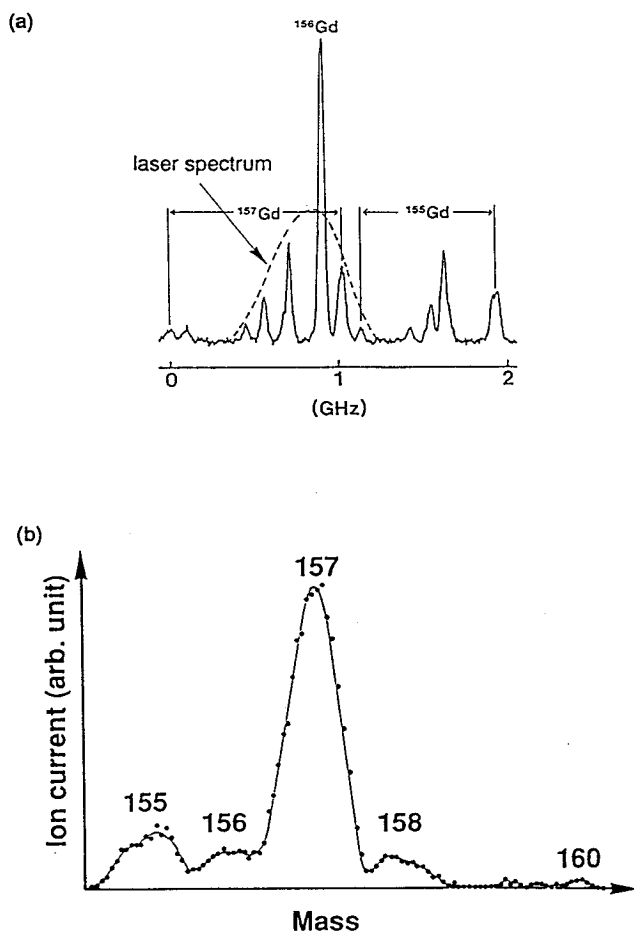


図4-24 選択則と同位体シフトの両方を利用したGd同位体分離実験
 (a) 原子スペクトルとレーザー光のスペクトル
 (b) 測定された質量スペクトル
 図4-23(a)と比較して、 ^{157}Gd のみが分離されていることがわかる。

先の実験で用いた色素レーザーにエタロンを挿入し、モード間隔330MHz、3モード発振を行ない、 ^{157}Gd の超微細構造のみを励起した場合のイオンの質量スペクトルを図4-24に示す。 ^{157}Gd の濃度~70%が得られ、選択則の違いと同位体シフト(^{157}Gd と ^{155}Gd の同位体シフト)の両方を利用する励起方法がGdの超微細構造の励起に対して有効であることが実証された。

§ 4-4 むすび

第4章では高効率励起を目的として3つの励起法について検討し、その問題点を考察した。

準安定準位に熱励起された原子を有効に利用するために、基底準位と準安定準位から共通の上準位に同時励起を行なう際、population trappingが問題となることを指摘し、Gd原子を用いパルス励起およびイオン化による抜き出しがある状況下でも2光子共鳴条件が成り立てばpopulation trappingが起こることを初めて実験的に示した。実験により得たスペクトルは、開発した励起ダイナミクスシミュレーションコードによる計算値とよく一致し、コードの信頼性を実証した。さらにpopulation trappingによるイオン量の低下を避けるためには、2光子共鳴条件からの離調が重要であり、それに必要なdetuning量を計算した。示したdetuning量を用いることで準安定準位に熱励起された原子を利用しない場合に対し、最大1.8倍程度のイオンの増加を見込むことができる。また核スピンの0でない超微細構造をもつ同位体を励起する場合には、超微細構造分裂することによる共鳴周波数のばらつきがpopulation trappingによるイオン量の顕著な低下を抑制することを初めて示した。しかし生成イオン量を最大にするためには、使用する超微細構造それぞれについて個々のdetuningの最適化が必要であると考えられる。

超微細構造は広い周波数範囲に分布するため、単一周波数のレーザー光ではすべての原子を励起しイオンとすることは困難である。そこで照射レーザー光の周波数をパルス内で掃引し、高速断熱通過を利用する励起法を提案し、2準位原子系において安定に断熱反転を起こす条件を定量的に明らかにした。これは現在まで定性的な評価のみであった断熱反転条件に対し、定量的な条件を明確に示しており、実際の応用にとって意義深い。

複雑な超微細構造内の励起ダイナミクスについては、最も強い遷移強度をもつ遷移に対し、0.4倍の遷移強度しかもたない遷移群の影響は無視できることを示した。しかし共鳴の順序、Rabi周波数等多くのパラメーターが関連しており、個々の遷移の位相関係が重要となる閉じた系での励起ダイナミクスについてはさらに詳細な研究が必要である。

この高速断熱通過を利用する方法を多段階電離による同位体分離に応用するには、多段階での励起レーザー光の周波数掃引速度、共鳴させる順序など周波数掃引スキ

ームにおける最適化や準安定準位からの同時励起を考える必要があり、さらに詳細な研究を行なう必要がある。

同位体シフトが非常に小さい場合や、標的同位体の超微細構造が他の同位体のスペクトルと重なっている場合には、飽和広がりを利用した励起法も高速断熱通過を利用した励起法も適用できない。そのような場合に高選択性を得るには、核スピン I と電子の軌道角運動量 J とのカップリングの有無による選択則の違いを利用する方法が有効と考えられる。そこで選択則を利用する励起法について Gd 原子を用いて実験を行ない、原理を実証するとともに、 ^{157}Gd について 70% の濃度を得た。この方法は核スピン量子数と基底準位の J 値より判断して、 $C, Mg, Si, Ca, Zn, Ge, Sr, Pd, Cd, Sn, Ba, Sm, Yb, Hg, Pb, Pu$ に対して有効であり、原子蒸気の温度が高く基底準位よりも準安定準位に多く熱励起されている場合には応用できる元素が増える。さらに実験で示した Gd のように $J=0$ をもつ自動電離準位が利用できる元素にも応用できる。

第4章の参考文献

- 1) L.J.Radziemski, Jr., S.Gerstenkorn and P.Luc, *Opt. Commun.* 15, 273 (1975); H.D.V.Bohm, Dissertation Universitat Hamburg, 1977; Report GKSS 77/E/39 (1977).
- 2) B.W.Shore, *The Theory of Coherent Atomic Excitation* (Wiley, New York, 1990).
- 3) H.R.Gray, R.M.Whitley and C.R.Stroud, Jr., *Opt. Lett.* 3, 218 (1978).
- 4) population trappingとlambda systemに関する理論的研究は比較的古くからなされている。
F.A.M.de Oiveira, B.J.Dalton and P.L.Knight, *JOSA B* 4, 1558 (1987);
G.S.Agarwal and N.Nayak, *J. Phys.* B19, 3375 (1986); W.E.Bell and
A.L.Bloom, *Phys. Rev. Lett.* 6, 623 (1961); P.E.Coleman and P.L.Knight,
Phys. Lett. 81A, 379 (1981); B.Dalton and P.L.Knight, *Opt.Comm.* 42,
411 (1982); P.M.Radmore and P.L.Knight, *J. Phys.* B15, 561 (1982);
P.M.Radmore, *Phys. Rev.* A26, 2252 (1982); J.D.Stettler, C.M.Bowden,
N.M.Witriol and J.H.Eberly, *Phys. Lett.* 73A, 171 (1979); S.Swan,
J. Phys. B15, 561 (1982), *J. Phys.* B15, 3405 (1982); R.M.Whitley and
C.R.Stroud, Jr., *Phys. Rev. A* 14, 1498(1976).
- 5) I.I.Rabi, N.F.Ramsey and J.Schwinger, *Rev. Mod. Phys.* 26, 167 (1954);
G.W.Seris, *Phys. Repts.* 43, 1 (1978).
- 6) F.T.Hioe and J.H.Eberly, *Phys. Rev. Lett.* 47, 838 (1981).
- 7) F.Bloch, *Phys. Rev.* 70, 460 (1946); L.Allen and J.H.Eberly, *Optical Resonance and Two Level Atoms* (Wiley, New York, 1975).
- 8) R.P.Feynman, F.L.Vernon and R.W.Hellwarth, *J.Appl.Phys.* 28, 49 (1957).
- 9) M.D.Crisp, *Phys. Rev. A* 8, 2128 (1973); D.Grischkowsky, *Phys. Rev. Lett.* 24, 866 (1970); D.Grischkowsky and J.A.Armstrong, *Phys. Rev. A* 6, 1566 (1972); D.Grischkowsky, *Phys. Rev. A* 7, 2096 (1973).
- 10) R.L.Shoemaker, in: *Laser and Coherent Spectroscopy*, p304 (Plenum,

New York, 1978)

- 11) L.C.Balling and J.J.Wright, Appl. Phys. Lett. 29, 411 (1976).
- 12) Y.Arai, S.Adachi, T.Takeda, H.Niki, T.Yamanaka and C.Yamanaka, Tech. Rep. Osaka Univ. 36, NO.1860 (1986).

第5章 レーザー同位体分離における レーザーパルス伝播特性

§ 5-1 はじめに

前章までは励起効率向上のために種々の方式についてその励起ダイナミクスを研究し、有効性を検討した。明らかにした励起ダイナミクスは相互作用領域の中のある1点での励起についてであり、実用的なレーザー同位体分離プラントのように長尺原子蒸気ビーム中をレーザー光が伝播しながら原子を励起する状況では、励起ダイナミクスの研究から得られた高効率励起の条件が相互作用領域全体での高効率励起条件と同じになるとは限らない。その理由としては2つのことが挙げられる。1つは共鳴原子による吸収によって、入射パルスの強度やパルス幅が、原子蒸気ビーム中を伝播するにつれて変化していくことである。第2は原子蒸気中を強いレーザー光が伝播するとき、誘起された原子分極によりレーザー光の特性自体が影響を受け、空間的にはレーザー光の自己集束¹⁾や自己発散²⁾が、また時間的にはレーザーパルスの変形³⁾、スペクトルの変調⁴⁾が引き起こされることである。このような非線形効果はレーザー同位体分離の選択性やイオン化効率に大きな影響を与えると考えられる。

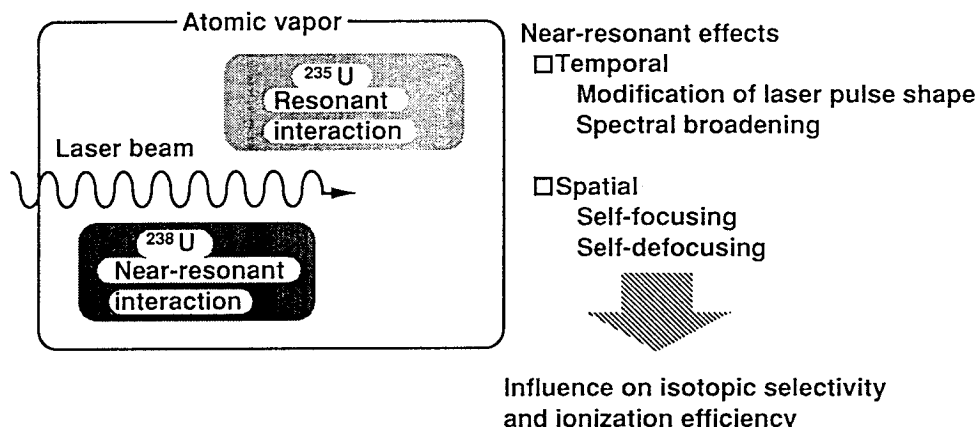


図5-1 レーザー同位体分離におけるレーザーパルス伝播
共鳴・近共鳴状態にある両方の同位体原子からレーザー
パルスは時間的・空間的な変化を受ける。

レーザー同位体分離ではレーザー光の周波数は標的同位体の吸収線に同調され、他の非標的同位体はレーザー周波数より同位体シフトだけ離れた近共鳴状態に置かれる。特にウラン濃縮を考える場合には、標的同位体である ^{235}U は自然存在比0.3%であるのに対し、非標的同位体 ^{238}U は99.7%を占めることからこの近共鳴状態にある非標的同位体との相互作用が伝播効果において支配的になると予想される。

レーザー同位体分離におけるパルス伝播効果についての報告は、著者の知る限りDielsによる1件⁵⁾だけである。彼は2準位系での伝播を扱っており、標的同位体には π パルス、非標的同位体には 2π パルスとなるパルスで励起し、標的同位体のみを電離できている。このコヒーレント相互作用を利用したアイデアは実に優れてはいるが、そのようなパルスを整形するのが困難であり実用的でない。

以上の観点から本章ではナトリウム蒸気を用いて近共鳴相互作用によるパルス伝播効果について実験し、そのパルス変化の物理的メカニズムについて考察する。また共鳴相互作用によるパルス変化についても考察する。さらにパルス伝播効果を考慮してモデルを作成し、レーザー同位体分離における選択性とイオン化効率について検討する。

§ 5-2 近共鳴状態にある同位体による伝播効果

5-2-1 Na 蒸気中でのレーザーパルス伝播実験

近共鳴状態にある同位体が、そこを伝播するレーザーに及ぼす時間的効果を知るために、ナトリウム蒸気を用いて実験を行なった。ナトリウムは質量数23の元素のみで同位体は持たないが、レーザー光を遷移の共鳴周波数から離れたところに同調することにより、ナトリウムを近共鳴状態に置くことができる。ウランを例にとると、 ^{238}U をNaで模擬していることになる。

図5-2に用いたエネルギー準位を示す。Naは核スピン $I = 3/2$ をもっており、そのため用いた準位(D₁線)は上下準位ともに2つの準位に超微細構造分裂している。下準位の $F = 1, 2$ をもつ準位間の周波数間隔は1772MHzと広いが、上準位の $F = 1, 2$ 間は、189MHzと狭く、レーザーのスペクトル幅と同等で

あるため、 $S_{1/2} (F=2) \rightarrow P_{1/2}$ を用い、detuning量 Δ を図に示すように $3p^2P_{1/2}$ からの周波数のずれと定義した。

実験装置のブロック図を図5-3に示す。色素レーザーはNd:YAGレーザーの第2高調波で励起され、単一モード発振する。用いた色素レーザーの構成は第4

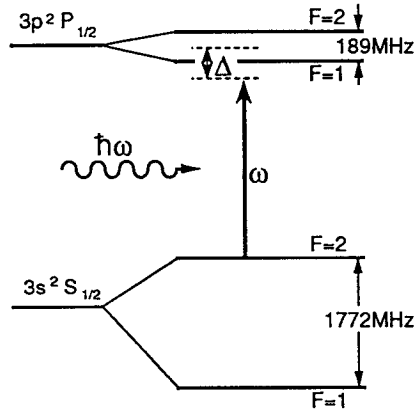


図5-2 実験に用いたNaのエネルギー準位

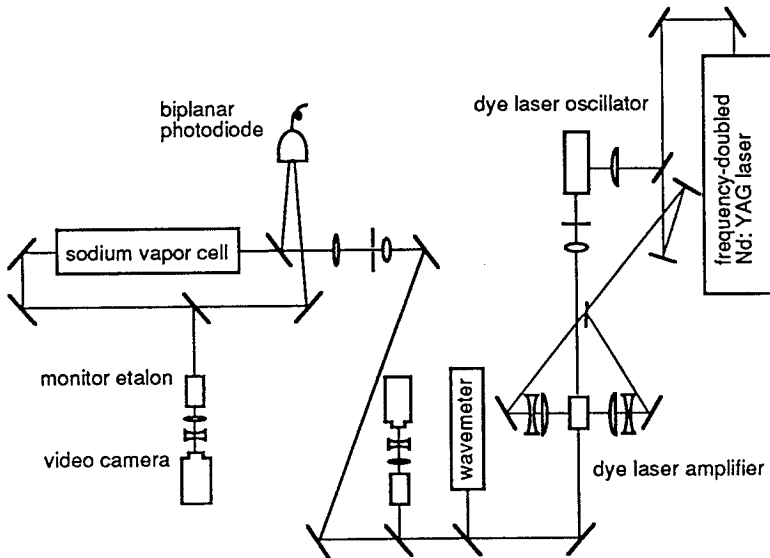


図5-3 レーザーパルス伝播実験装置

章図4-22(b)にすでに示したもので、それにエタロンを挿入し単一モードを得ている。スペクトル幅は150 MHz、パルス幅は8 nsであった。時間的効果を観測する目的から、空間的効果を抑制するためにレーザー光は空間フィルターとアパーチャー(5 mmφ)を通して空間的に均一なビームとし、ナトリウム蒸気セルに入射した。ナトリウム蒸気セルは有効長1 mで、ヒーター加熱で任意にセル壁の温度を調節できる。D₁線に共鳴するレーザー光の周波数を蛍光強度の最大値によって決定した後、共鳴線からのdetuning量Δをファブリペローエタロンを用いてモニターしながら変化させた。レーザー光周波数は、S_{1/2} F=1単位の影響を少なくするため低周波数側に離調した。またNa蒸気セル通過前後での色素レーザーパルス波形をバイプラナー光電管により測定した。

レーザー光強度が30 mW/cm²程度と小さいとき、測定を行なった範囲では蒸気密度、detuning量に依らずレーザーパルス波形や空間分布に変化は見られなかった。しかしこの状態で、detuning量がΔ = -4.4 GHz、蒸気密度10¹⁰ - 10¹² cm⁻³でパルスの伝播速度に遅延が観測された。図5-4(a)はdetuning量Δ = 215 GHzでの入出力パルス波形である。(b)はΔ = 4.4 GHzの場合で、(a)に比べて出力パルスがおよそ5.4 ns遅れている。(c)はNa蒸気セル壁の温度を変えて、Na蒸気密度を10¹⁰ ~ 10¹² atoms/cm³まで変化させたときの入出力パルス波形を観測し、パルス速度/光速を縦軸に分散を横軸にとったものである。実線は群速度の式

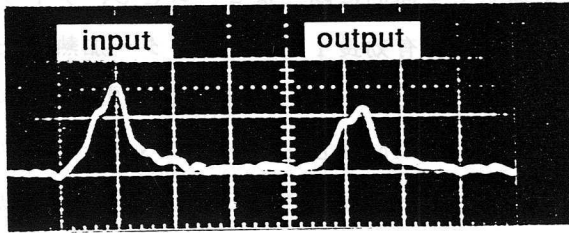
$$V_g = \frac{c}{n + v \frac{dn}{dv}}, \quad \frac{dn}{dv} = \frac{2\pi N p^2}{nh\Delta^2} \quad (5-1)$$

による計算値である。

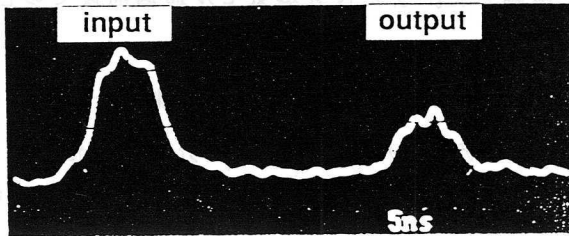
遅延時間の最大値は1 m伝播後7 nsであった。このときNa蒸気中でのレーザー光の伝播速度は真空中での約1/3に相当する。

レーザー光強度が数100 W/cm²を越えるとレーザーパルスの変形が観測された。レーザー光強度500 W/cm²、蒸気密度4 × 10¹² cm⁻³のときのナトリウム蒸気セル通過前後のパルス波形を図5-5に示す。(a)はdetuning量ΔがD₁線の低周波数側に1500 GHzの場合で、完全な非共鳴状態のため波形の変形は見られないが、(b)(c)はdetuning量がそれぞれΔ = 5.5 GHz、4.4 GHz

z の場合で、出力パルスでは入射パルス波形の小さなリップルが強調されていることがわかる。



(a) $\Delta = -215\text{GHz}$
far-off resonance



(b) $\Delta = -4.4\text{GHz}$
near resonance
 $I \sim 30\text{mW/cm}^2$
 $T \sim 220^\circ\text{C}$
(5ns/div)

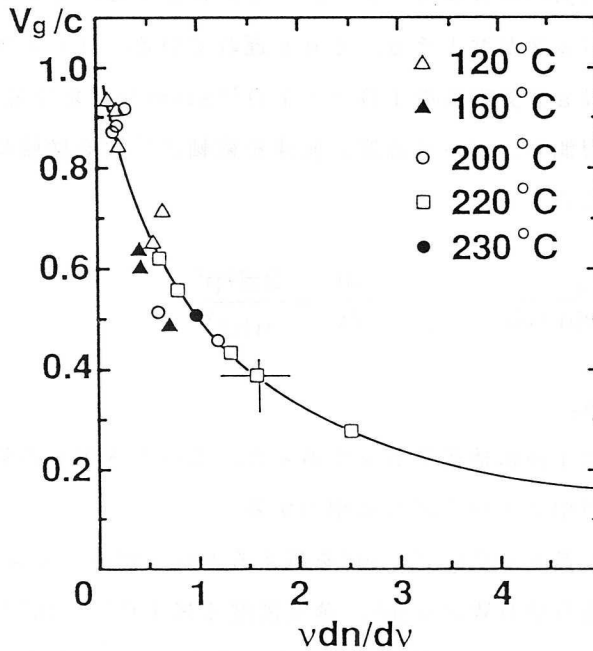
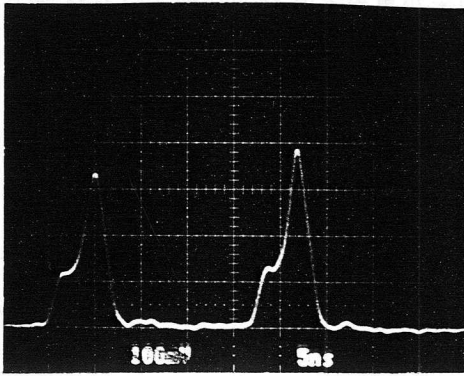


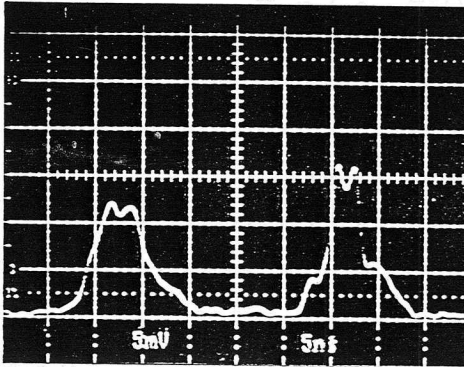
図5-4 低強度での実験結果
波形変化はほとんどないが、著しく遅いパルス速度が観測された。

(a)



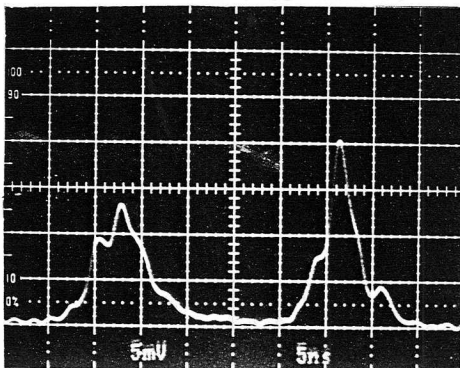
$\Delta = -1500\text{GHz}$
far-off resonance

(b)



$\Delta = -4.4\text{GHz}$

(c)



$\Delta = -5.5\text{GHz}$

図5-5 高強度 ($\sim 500\text{W}/\text{cm}^2$) での実験結果

(伝播距離 1 m, 蒸気密度 $\sim 4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$)

5-2-2 近共鳴効果に関する考察

近共鳴状態では原子によるレーザー光の吸収は小さいので、これによる波形変化は顕著でないので、屈折率の分散効果が重要となる。このような状態では、Grishchowskyの断熱追従近似モデル⁶⁾が適用できるため、これを用いて実験で得たパルス波形変化を考察した。このモデルは2準位系で考える場合、一般的な密度行列方程式で表わされるモデルにおいて分極のレーザー電場と90度位相のずれた成分（吸収成分）を小さいとして無視するが、同位相成分（分散成分）は考慮する場合に相当し、密度行列方程式によるモデル（Heisenberg Atom）とrate方程式によるモデル（Einstein Atom）の中間に位置するモデルと言える。この断熱追従モデルをMaxwell方程式に組み込むと以下の式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Omega}{\partial \xi} &= \sum M_k \frac{\partial \Omega}{\partial \tau} + \sum N_k \Omega \frac{\partial \Delta}{\partial \tau} - c \sum \alpha_k \frac{\Omega}{2} \\ \frac{\partial \Delta}{\partial \xi} &= \sum M_k \frac{\partial \Delta}{\partial \tau} + \sum N_k \Omega \frac{\partial \Omega}{\partial \tau} \\ M_k &= S_k \left\{ 1 - \left(\frac{\Delta_{ik}}{\Delta} \right)^2 \left[1 + \left(\frac{\Omega}{\Delta} \right)^2 \right]^{-3/2} \right\} \\ N_k &= S_k \Delta_{ik}^2 \Delta^{-3} \left[1 + \left(\frac{\Omega}{\Delta} \right)^2 \right] \end{aligned} \tag{5-1}$$

ここで Ω はRabi周波数、 $\xi = z/c$ は真空中の光速で規格化した伝播距離、 Δ は共鳴周波数とレーザー光周波数とのずれ（detuning）、 Δ_i は Δ の初期値（ $t=0$ で $\Delta = \Delta_i$ ）である。結合係数 S 、吸収係数 α は入射レーザー光角周波数 ω 、遷移の双極子モーメント p 、横緩和時間 T_2 、原子蒸気密度 N を用いて、

$$\begin{aligned} S_k &= \frac{2\pi N \omega p_k^2}{\hbar \Delta_{ik}^2} \\ \alpha_k &= 2(cT_2)^{-1} S_k \Delta_{ik}^2 \Delta^{-2} \left[1 + \left(\frac{\Omega}{\Delta} \right)^2 \right]^{-1/2} \end{aligned} \tag{5-2}$$

と表わされる。 M および N はそれぞれレーザー光強度と周波数に依存する伝播速度および非線形分散を与える。

図5-6は図5-5(c)の入射レーザーパルスに対し上の式を用いて計算した

結果である。図5-6 (a) は式(5-1)で振幅のみを考慮し、位相変化を無視した場合の計算結果であり、(b) は振幅、位相の両方を考慮した結果である。(c) は(b)の透過光に対する周波数変調を表わしている。

位相変化を無視した場合、パルス変化のメカニズムはパルス伝播速度が強度に依

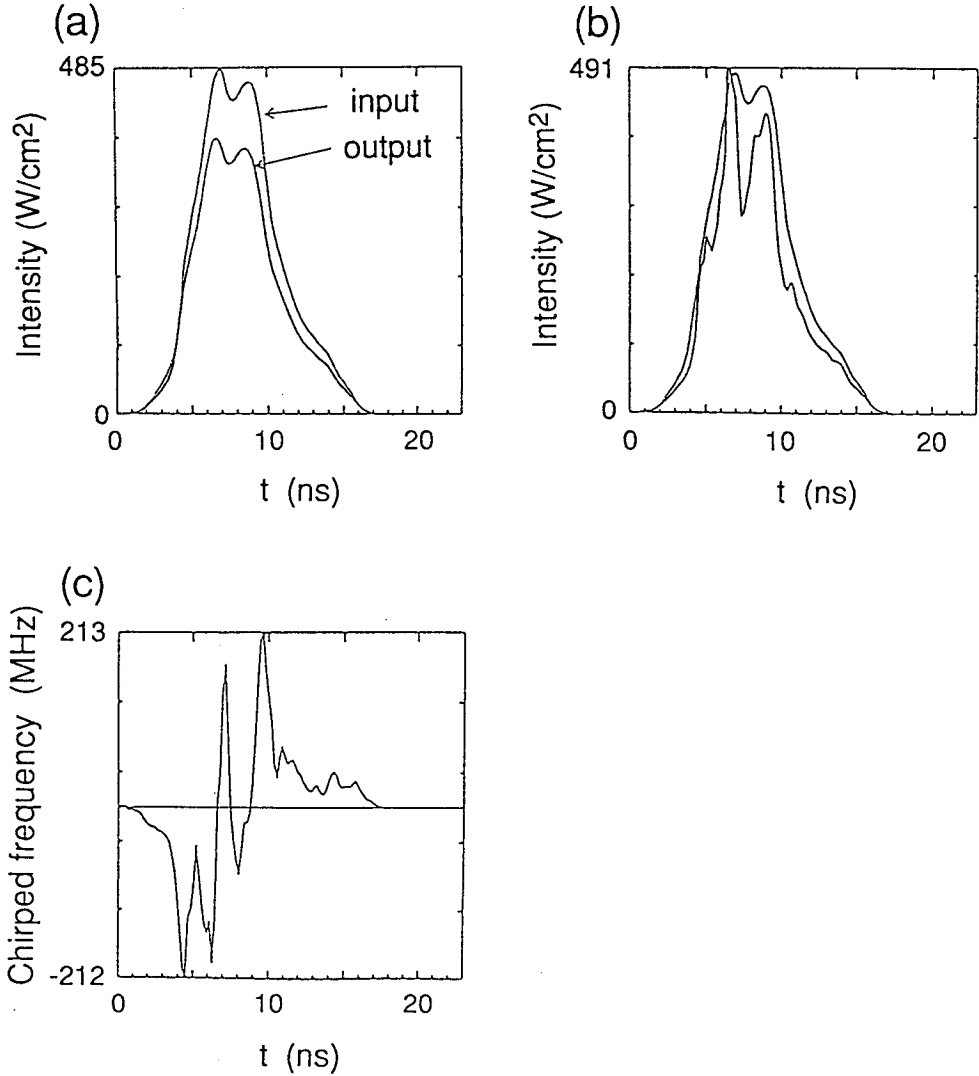


図5-6 図5-4 (b)の実験結果に対する断熱追従モデルによる計算結果
 (a) 強度に依存するパルス伝播速度のみを考慮した場合
 (b) 自己位相変調効果も考慮した場合
 (c) 出射パルス内の周波数変調

存する効果のみとなる。さらに位相を考慮すると自己位相変調効果が付加される。

(a)では吸収による強度の減少とパルスの立ち上がりが急になる変化が見られるだけであるが、(b)では2つのピーク間の谷が深くなり、立ち上がり、立ち下がり部分のリップルが成長するなど、実験的に得られた波形によく似た結果が得られている。このような波形変形に伴い(c)に示したように、パルスの立ち上がり部分では負側に、立ち下がり部分では正側に、それぞれ200MHz程度周波数が変動している。

以上の解析より考慮した2つのパルス波形変形のメカニズムのうち、自己位相変調効果がより強く作用していることが分かった。

ここで屈折率の強度依存性と自己位相変調効果が原因となって起こるパルス波形変化のメカニズムを図5-7にまとめておく。

図5-7(a)は屈折率分散曲線である。周波数軸中央が遷移の共鳴周波数、右側が高周波数とする。Naなどの原子の屈折率の強度依存性は、電場による電子雲の歪、すなわち電子分極が電場の強さに比例して応答できないことの現われである。パルス強度が高くなると屈折率分散曲線は細線で示すように線形屈折率 n_0 (~ 1)に近づいていく。初期にdetuning Δ で入射されたレーザー光に対する屈折率 n は、パルスのピークに近づき強度が増加するに従い、点 a' に移動する。点 a と a' とでは、その傾き $dn/d\nu$ は点 a の方が大きい。群速度は

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{c}{n + \nu \frac{dn}{d\nu}} \quad (5-3)$$

$$n = \sqrt{1 - \frac{4\pi N p^2}{h\Delta \sqrt{1 + (\Omega/\Delta)^2}}}$$

で与えられるため、強度の高いところほど群速度は大きくなる。その結果として図5-7(b)下段に示すようにパルスの立ち上がりが急になっていく。

一方、パルス強度が高くなるにつれて屈折率は線形屈折率に近づいていくから位相速度は大きくなっていく。したがってパルスの立ち上がり部分で周波数が増加し、立ち下がり部分で周波数が減少する。すなわちパルスの立ち上がり部分では波が詰まり、立ち下がり部分では波は伸びることになる。パルス内の各時間部分で周波数が異なるようになるため、屈折率も連続的に変化していく。それに従い群速度が変

化し、立ち上がり部分では遅くなり、立ち下がり部分では速くなり、図5-7(c)に示すようにパルスは圧縮されていく。

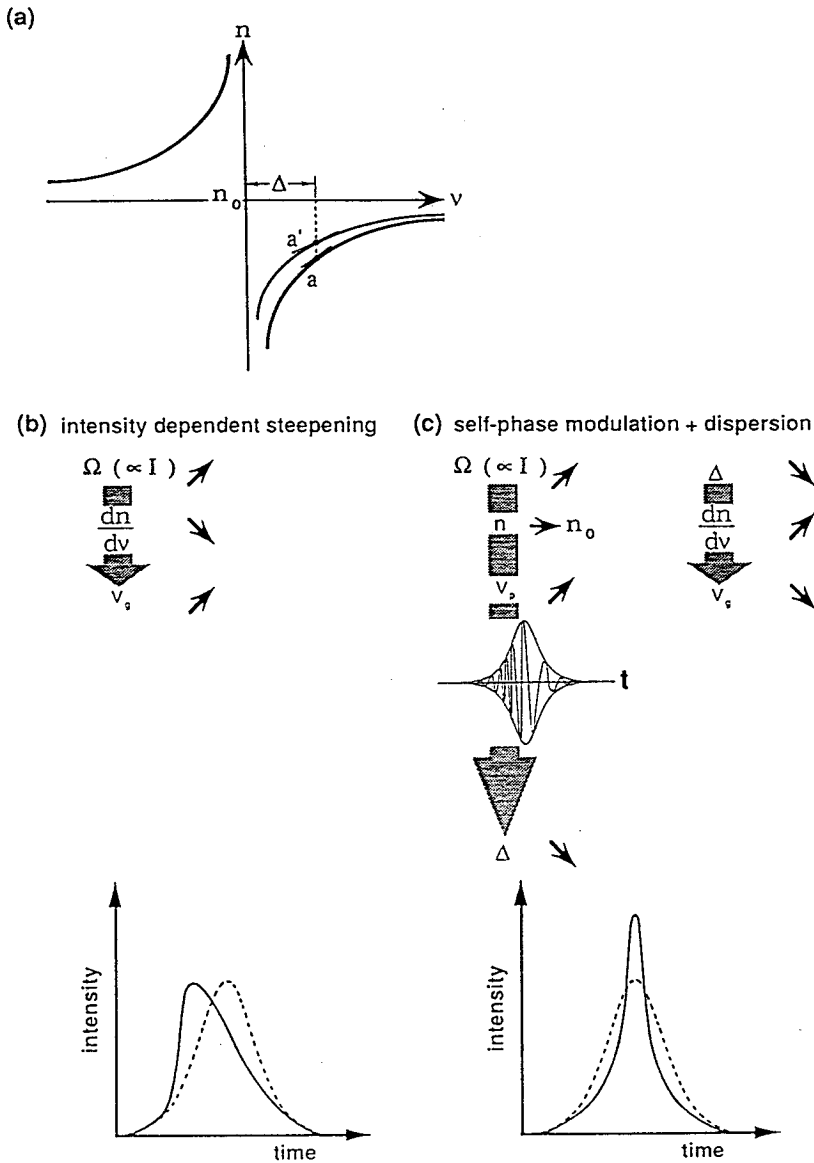


図5-7 近共鳴効果による波形変形のメカニズム
 (a) 屈折率分散曲線
 (b) パルス伝播速度の強度依存性による波形変形
 (c) 自己位相変調+群速度分散による波形変形

§ 5-3 共鳴状態にある同位体による伝播効果

5-3-1 Rabi振動によるパルス波形変化

第2章 § 2-3 で述べたように、コヒーレント励起の1つの特徴は分布数密度が Rabi周波数で時間的に振動することである。共鳴状態にある同位体がレーザーパルスに与える伝播効果には、このRabi振動 (Rabi oscillation, Rabi flopping) によるパルス波形変化とそれが伝播とともに成長した結果として起こるパルスの分裂、ならびに吸収によるエネルギーの減少が考えられる。Rabi振動によるパルス波形変化とパルスの分裂はイオン化が効率よく起こらない状態では、最も顕著な伝播効果になると予想される。共鳴状態にある同位体が対称なスペクトルをもち、レーザー光周波数がその中心に同調された場合、スペクトル全体について平均したマクロな分極の分散成分 (レーザー電場と同位相の成分) は0となるため、周波数変化や分散に関連したパルス波形の変形は小さいと考えられる。

平面波で一様な空間強度分布をもったレーザーパルスが共鳴媒質中を伝播していく際のパルス波形の変化を図5-8により考える。図5-8 (a) に示すように、レーザー光の入射端である媒質の最初の微小体積 dV にある原子が、(b) に示した矩形パルスで励起されると、(c) に示すように分布反転が変化する。(c) で分布反転が -1 はすべての原子が下準位にある状態で、 1 はすべての原子が上準位にある状態を表わす。原子は励起される前の初期状態ではすべて下準位に存在し、分布反転は -1 であるが、レーザー光により励起されると -1 と 1 の間を振動 (Rabi振動) する。この分布反転は (d) に示す分極の振動を伴う。分極の振動とはこの場合、レーザー光の電場と 90° 位相のずれた成分の振動であり、レーザー光からのエネルギー吸収とレーザー光へのエネルギー放出の繰り返しである。したがってこの誘導吸収と誘導放出の変化が直接レーザー光の電場の振幅の変調となって、 dV の領域を通過していくパルス波形 (e) に現われる。次の微小体積 dV 中の原子は、変調されたパルス (e) に励起されることになり、さらに変調の割合が増えていく。このような変調が繰り返しパルスに与えられる結果、もとのパルス (b) は1連のパルス列に分裂 (break-up) する。分裂した1つのパルスは面積 2π をもち、ソリトン⁷⁾ と呼ばれる安定した孤立波として伝播する。

イオン化や励起準位の寿命等による分極の緩和が全く起こらなければ、上記のバ

ルス変化は非常に顕著であり、自己誘導透過現象⁸⁾ (Self-Induced Transparency: SIT) として知られている。しかしながらレーザー同位体分離のように多波長のレーザー光による多段階励起過程で、しかもイオン化による原子系からの損失があるような状況でのレーザーパルス伝播効果は現在まで研究されていない。

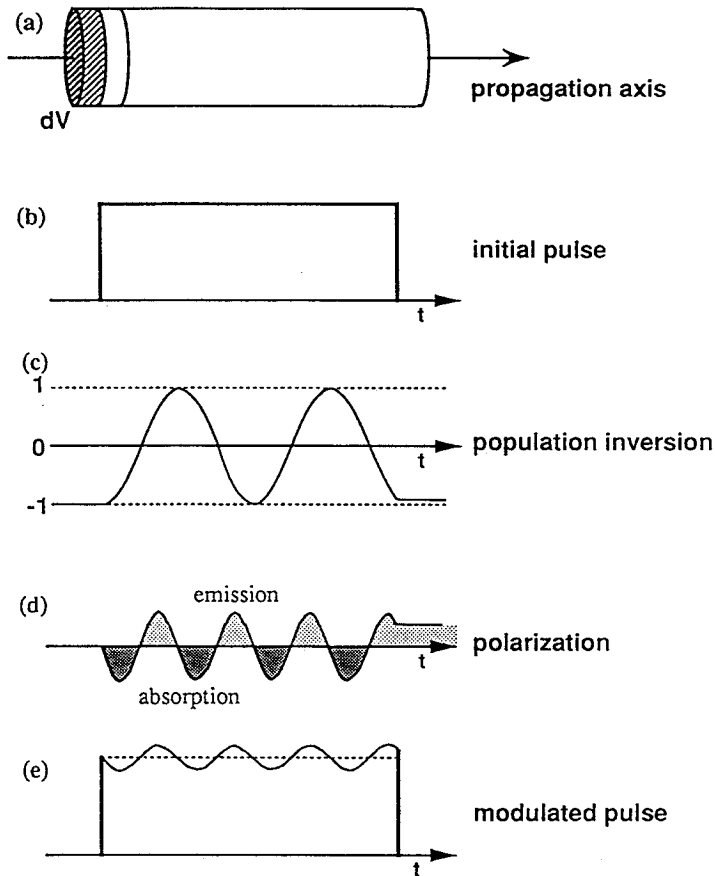


図5-8 共鳴効果によるパルス波形変化のメカニズム
 微小体積 dV にある原子が矩形パルスで励起されると、準位密度と分極の振動が起こる。分極の振動、すなわち誘導吸収と誘導放出の繰り返しは入射パルスを変調する。次の微小体積中の原子は変調されたパルスで励起され、その変調は成長していく。

5-3-2 パルス伝播シミュレーションコード

§5-2では近共鳴状態にある同位体によるパルス伝播効果を実験とGrischkowskyの断熱追従モデルを用いた計算との比較によりそのメカニズムを考察した。しかしこのモデルでは共鳴状態にある同位体の応答を考慮できない。レーザー同位体分離では標的同位体はレーザー光と共鳴し、非標的同位体は同位体シフトだけ離れた近共鳴状態にある。この両者を同時に扱うためには、レーザー光に対する原子系の応答（準位密度や分極の時間変化）をBloch方程式で計算し、誘導された原子分極による入射レーザー光自体の変化をMaxwell方程式で計算する必要がある。そこでこのBloch-Maxwellモデルを用いて伝播シミュレーションコードを開発した。ここでは自己位相変調効果を取り入れるために第2章で扱った基本式のRabi周波数を $\Omega = R + iC$ として複素形式とした。

対象とする原子系は図5-9に示すように最上準位（準位3）からのイオン化および基底準位を除く準位からの緩和を考慮したカスケード3準位系であり、各同位体のスペクトルを任意に設定できるようにした。自動電離準位に励起する場合、その励起は不可逆的でほぼ100%の確率でイオン化するため、準位3から自動電離

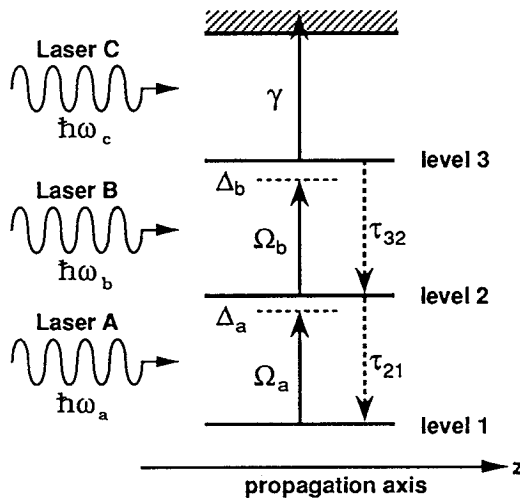


図5-9 3段階電離スキーム

準位に励起するレーザーCによるイオン化率 γ は一定とし、レーザーA, Bのパルス伝播を考える。ただしレーザーは理想的な平面波で、ビーム半径方向の強度分布は一様とし、1次元(z方向)にのみ伝播する。また原子蒸気は均質として扱い、伝播方向の密度分布は一様とした。

シミュレーションコードの信頼性は、2準位系および3準位系でのイオン化のない共鳴励起におけるパルスのソリトン化の研究論文^{8), 9)}と比較することにより確かめた。

以下簡単に計算コードの概略を述べる。

開発したレーザーパルス伝播シミュレーションコードでは、原子系に入射されるレーザー光Aおよびレーザー光Bのパルスの伝播挙動は、レーザー光と原子の相互作用を表わす密度行列要素に関するBloch方程式およびレーザー光の伝播を表わすMaxwell方程式により記述している。

光の振動周期は 10^{-15} 秒程度であるから、ピコ秒程度までのパルスでは、その中に多数の光の振動を含んでいる。そのためゆっくり変化する包絡線をもった急速に振動する進行波として表わすことができる。そこで次式で示すようにレーザーは異なる速度で同じz方向に伝播する2つ準単色平面波の和として取り扱った。

$$\begin{aligned}\vec{E}(z, t) &= \vec{E}_a(z, t) + \vec{E}_b(z, t) \\ \vec{E}_a(z, t) &= \vec{e}_a E_a(z, t) \exp[-i(\omega_a t - \vec{k}_a z)] + c. c \\ \vec{E}_b(z, t) &= \vec{e}_b E_b(z, t) \exp[-i(\omega_b t - \vec{k}_b z)] + c. c\end{aligned}\tag{5-4}$$

ここで \vec{e}_a , \vec{e}_b は偏光ベクトル、 E_a , E_b は複素振幅である。空間および時間の尺度から見て、 E_a , E_b の変化はゆっくりしているから

$$\begin{aligned}\frac{1}{\omega_a} \left| \frac{\partial E_a(z, t)}{\partial t} \right| &\ll |E_a(z, t)|, \quad \frac{1}{\omega_b} \left| \frac{\partial E_b(z, t)}{\partial t} \right| \ll |E_b(z, t)| \\ \frac{1}{k_a} \left| \frac{\partial E_a(z, t)}{\partial z} \right| &\ll |E_a(z, t)|, \quad \frac{1}{k_b} \left| \frac{\partial E_b(z, t)}{\partial z} \right| \ll |E_b(z, t)|\end{aligned}\tag{5-5}$$

が成立する。このためMaxwell方程式

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \vec{E}(z, t) = \frac{4\pi}{c^2} \vec{P}(z, t)\tag{5-6}$$

は、レーザービーム半径方向の変化を無視し、電界をRabi周波数に変換して表わすと

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial(ct)} \right] R_a = \frac{1}{2} S_a V_{12} \quad , \quad \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial(ct)} \right] C_a = -\frac{1}{2} S_a U_{12}$$

(5-7)

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial(ct)} \right] R_b = \frac{1}{2} S_b V_{23} \quad , \quad \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial(ct)} \right] C_b = -\frac{1}{2} S_b U_{23}$$

となる。ここで S_a , S_b は結合係数であり、

$$S_a = \frac{4\pi N p_a^2 \omega_a}{\hbar c}$$

$$S_b = \frac{4\pi N p_b^2 \omega_b}{\hbar c}$$

(5-8)

と表わされる。また R_a , C_a , R_b , C_b はそれぞれ

$$\Omega_a = \frac{1}{\hbar} (\vec{p}_{12} \cdot \vec{E}_a) E_a(z, t) = R_a(z, t) + iC_a(z, t)$$

$$\Omega_b = \frac{1}{\hbar} (\vec{p}_{23} \cdot \vec{E}_b) E_b(z, t) = R_b(z, t) + iC_b(z, t)$$

(5-9)

で表わされるレーザーA、BのRabi周波数の実部と虚部であり、 p_a , p_b は

$$p_a = \vec{E}_a \cdot \vec{p}_{12} \quad , \quad p_b = \vec{E}_b \cdot \vec{p}_{23}$$

(5-10)

である。ここで p_a , p_b は誘起双極子モーメントである。

また分極の実部および虚部の周波数積分値は

$$V_{12}(z, t) = \int v_{12}(z, t, \delta) [g_{\text{target}}(\delta) + g_{\text{others}}(\delta)] d\delta$$

$$U_{12}(z, t) = \int u_{12}(z, t, \delta) [g_{\text{target}}(\delta) + g_{\text{others}}(\delta)] d\delta$$

$$U_{23}(z, t) = \int u_{23}(z, t, \delta) [g_{\text{target}}(\delta) + g_{\text{others}}(\delta)] d\delta$$

$$V_{23}(z, t) = \int v_{23}(z, t, \delta) [g_{\text{target}}(\delta) + g_{\text{others}}(\delta)] d\delta$$

(5-11)

でそれぞれ与えられる。

実際の計算では

$$\xi = z, \tau = t - z/c \quad (5-12)$$

を用いて光速で動く座標系に変換した。

原子系は図5-9に示した3単位原子系であり、量子力学的に取り扱う。原子系のレーザーに対する応答は第2章の励起ダイナミクスシミュレーションコードと同じ形式で求めた。ただし密度行列のままではなく実変数に変換し以下に示すBloch方程式とした。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_{11} &= \frac{1}{2} R_a v_{12} - \frac{1}{2} C_a u_{12} + \frac{1}{\tau_{21}} n_{22} \\ \frac{\partial}{\partial t} n_{22} &= -\frac{1}{2} R_a v_{12} + \frac{1}{2} C_a u_{12} + \frac{1}{2} R_b v_{23} - \frac{1}{2} C_b u_{23} - \frac{1}{\tau_{21}} n_{22} + \frac{1}{\tau_{32}} n_{33} \\ \frac{\partial}{\partial t} n_{33} &= -\frac{1}{2} R_b v_{23} + \frac{1}{2} C_b u_{23} - \left(\gamma + \frac{1}{\tau_{21}} \right) n_{33} \\ \frac{\partial}{\partial t} n_{\text{ion}} &= \gamma n_{33} \end{aligned}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} v_{12} = \Delta_a u_{12} + R_a (n_{22} - n_{11}) - \frac{1}{2} R_b u_{13} - \frac{1}{2} C_b v_{13} - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_{21}} + \frac{1}{\tau_c} \right) v_{12}$$

(5-13)

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} v_{23} &= \Delta_b u_{23} + R_b (n_{33} - n_{22}) + \frac{1}{2} R_a u_{13} \\ &\quad + \frac{1}{2} C_a v_{13} - \frac{1}{2} \left(\gamma + \frac{1}{\tau_{21}} + \frac{1}{\tau_{32}} + \frac{1}{\tau_c} \right) v_{12} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} v_{13} &= (\Delta_a + \Delta_b) u_{13} + \frac{1}{2} R_a u_{23} - \frac{1}{2} R_b u_{12} - \frac{1}{2} C_a v_{23} + \frac{1}{2} C_b v_{12} \\ &\quad - \left(\gamma + \frac{1}{\tau_{32}} + \frac{1}{\tau_c} \right) v_{13} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} u_{12} &= -\Delta_a v_{12} - C_a (n_{22} - n_{11}) + \frac{1}{2} R_b v_{13} - \frac{1}{2} C_b u_{13} \\ &\quad - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_{21}} + \frac{1}{\tau_c} \right) u_{12} \end{aligned}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} u_{23} = -\Delta_b v_{23} - C_b(n_{33} - n_{22}) - \frac{1}{2} R_a v_{13} + \frac{1}{2} C_a u_{13} - \frac{1}{2} \left(\gamma + \frac{1}{\tau_{21}} + \frac{1}{\tau_{32}} + \frac{1}{\tau_c} \right) u_{23}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} u_{13} = -(\Delta_a + \Delta_b) v_{13} - \frac{1}{2} R_a v_{23} + \frac{1}{2} R_b v_{12} - \frac{1}{2} C_a u_{23} + \frac{1}{2} C_b u_{12} - \frac{1}{2} \left(\gamma + \frac{1}{\tau_{32}} + \frac{1}{\tau_c} \right)$$

レーザー光周波数のBohr周波数からのdetuning量 Δ_a , Δ_b はそれぞれ以下の式で与えられる。

$$\Delta_a(z, t, \delta) = \omega_{12} - \left[\omega_a + \frac{\partial \phi_a(z, t)}{\partial t} \right] + \delta = \Delta_{ai} - \frac{\partial \phi_a(z, t)}{\partial t} + \delta$$

$$\Delta_b(z, t, \delta) = \omega_{23} - \left[\omega_b + \frac{\partial \phi_b(z, t)}{\partial t} \right] + \delta = \Delta_{bi} - \frac{\partial \phi_b(z, t)}{\partial t} + \delta \quad (5-14)$$

ここで ϕ_a , ϕ_b は位相の変調成分、 Δ_{ai} , Δ_{bi} は初期detuning量 ($t=0, z=0$)

$$\Delta_{ai} = \omega_{12} - \omega_a, \quad \Delta_{bi} = \omega_{23} - \omega_b \quad (5-15)$$

である。

遷移 $1 \rightarrow 2$ 、 $2 \rightarrow 3$ はそれぞれレーザー光 A、B の光子のみにより駆動され、1つのレーザーの2光子吸収は起こらないとした。また上式においてイオン化がない場合、HioeとEberlyによるコヒーレントベクトル保存則¹⁰⁾

$$u_{12}^2 + v_{12}^2 + u_{23}^2 + v_{23}^2 + u_{13}^2 + v_{13}^2 + 2(n_{11}^2 + n_{22}^2 + n_{33}^2) = C \quad (5-16)$$

が成立することを確認した。式(5-16)でCは初期状態で決定される定数である。

以上の方程式中で用いられた変数は以下の通りである。

- z : 伝播距離
- t : 時間

- δ : 周波数
 γ : 電離速度
 n_{11} : 準位 1 の占有確率
 n_{22} : 準位 2 の占有確率
 n_{33} : 準位 3 の占有確率 $0 \leq n_{kk} \leq 1$ ($k = 1, 2, 3$)
 n_{ion} : イオンとなる確率 $0 \leq n_{ion} \leq 1$
 u_{12}, u_{23}, u_{13} : 誘起双極子モーメントの実部 $-1 \leq u_{mn} \leq 1$
 v_{12}, v_{23}, v_{13} : 誘起双極子モーメントの虚部 $-1 \leq v_{mn} \leq 1$
($m, n = 1, 2, 3; m < n$)

 $1/\tau_{21}$: 準位 2 から 1 への寿命による緩和速度
 $1/\tau_{32}$: 準位 3 から 2 への寿命による緩和速度
 $1/\tau_0$: 弾性衝突による緩和速度
 x_{target} : 標的同位体の自然存在比
 x_{others} : 非標的同位体の自然存在比
 $g(\delta)$: 原子の周波数分布を表わすスペクトル形状関数

$$g(\delta) = g_{target}(\delta) + g_{others}(\delta)$$

$$\int g(\delta) d\delta = \int g_{target}(\delta) d\delta + \int g_{others}(\delta) d\delta$$

$$= x_{target} + x_{others}$$

$$= 1$$

 $g_{target}(\delta)$: 標的同位体のスペクトル形状関数
 $g_{others}(\delta)$: 非標的同位体のスペクトル形状関数

 ω_{12} : 遷移 1 - 2 の共鳴周波数
 ω_{32} : 遷移 2 - 3 の共鳴周波数
 ω_a : レーザー A の $z = 0$ 、 $t = 0$ での周波数
 ω_b : レーザー B の $z = 0$ 、 $t = 0$ での周波数
 p_{12} : 遷移 1 - 2 の双極子行列要素
 p_{23} : 遷移 2 - 3 の双極子行列要素
 N : 原子蒸気密度

 N_{target} : 標的同位体原子蒸気密度 ($= N \times x_{target}$)
 N_{others} : 非標的同位体原子蒸気密度 ($= N \times x_{others}$)

5-3-3 共鳴効果に関する考察

まず上準位からイオン化が起こる2準位原子系を伝播するパルスについて考える。イオン化による緩和により、第2章図2-3に示したように $\gamma \geq \Omega$ ではRabi振動がほとんど生じず、パルス波形変化は分極の完全な減衰が起こる前のパルス前縁部に現われるにすぎない。さらにこの変化も吸収によるパルスエネルギーの減少のためイオン化効率に大きな影響は及ぼさない。

次に図5-9に示した3準位原子系に同時に入射されたレーザー光A, Bのパルスの伝播について考える。1, 2段目の遷移とも遷移双極子モーメントが 5×10^{-19} esu·cmとする。UやGdの同位体分離では、遷移の双極子モーメントとしてはこの程度の数値をもつ準位が用いられる可能性が高い。またUやGdの第1イオン化ポテンシャルは6.2 eV程度で、3段階電離によりイオンを生成するため、1つの遷移の周波数は 5×10^{14} Hz程度になる。そこで遷移の周波数 $\omega_{12} = \omega_{32} = 2\pi \times 5 \times 10^{14}$ rad/sとした。以下で示す計算結果は結合係数と伝播距離の積が等しくなるところで同じになる。すなわち $N p^2 \omega z$ の値が同じであれば、パルス波形変化の様子は等しくなる。原子蒸気密度Nを、Uの同位体分離での原子蒸気密度の上限値 10^{13} cm $^{-3}$ とした場合、標的同位体である ^{235}U の密度は 10^{11} cm $^{-3}$ となる。ここでは共鳴原子による伝播効果を考察するため、 $N = 10^{11}$ cm $^{-3}$ として、伝播距離zに対するパルス波形変化を考える。

まず原子蒸気への入射パルスの条件を決定するために、励起ダイナミクスのみを考慮した場合のイオン化効率とパルスエネルギー密度の関係を図5-10に示す。図5-10は第2章で得た最も効率よく励起できるRabi周波数とイオン化率の組み合わせ $\Omega_a = \Omega_b = \gamma$ を用い、矩形パルスで励起した場合に、Rabi周波数とパルス幅の組合せを変えたときに得られるイオン化効率を示している。図より蒸気の入射端で90%以上のイオン化効率を達成するならば、影をつけた領域にあるRabi周波数とパルス幅の組合せを用いる必要がある。例えば40 nsの矩形パルスで励起する場合、Rabi周波数は0.6 GHz程度でなければ蒸気の入射端で90%のイオン化効率を得られない。また図中には横軸に示したパルス幅と縦軸に示したRabi周波数の組合せをもつパルスの等エネルギー密度の曲線を示した。その等エネルギー密度曲線は図の右に示した蒸気密度 $N \times$ 伝播距離zに存在する原子を100%イオン化できるエネルギー密度を表わしている。蒸気密度を 10^{11} 個/cm 3 としたときの伝

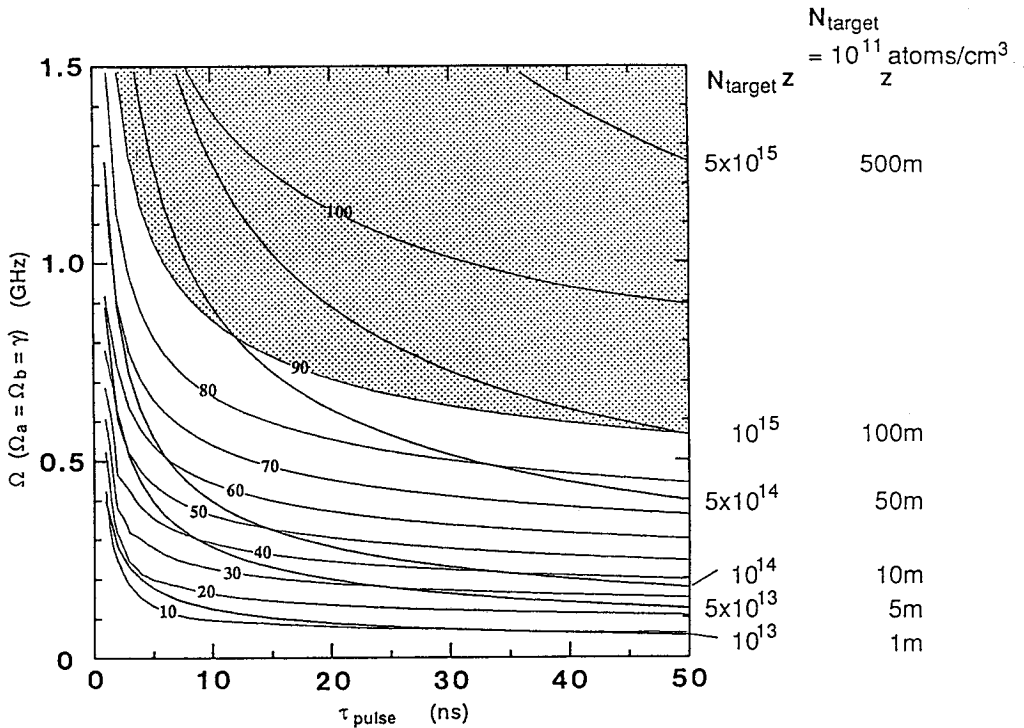


図 5-10 Rabi 周波数とパルス幅の組合せに対する原子蒸気のレーザー入射端でのイオン化効率 (%) と等エネルギー密度曲線
 ($p_{12} = p_{23} = 5 \times 10^{-19} \text{ esu} \cdot \text{cm}$, $\nu_a = \nu_b = 5 \times 10^{14} \text{ Hz}$)

播距離、すなわち次式で $N = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ として計算される伝播距離 z をその右に示した。

$$z = \frac{I \tau_{\text{pulse}}}{Nh\nu} \quad (5-15)$$

したがって幅 40 ns のパルスで 90% のイオン化効率を蒸気の入射端で得る場合、そのパルスには 100 m 程度にわたって原子を励起しながら伝播できるだけエネルギー密度を与えることになる。

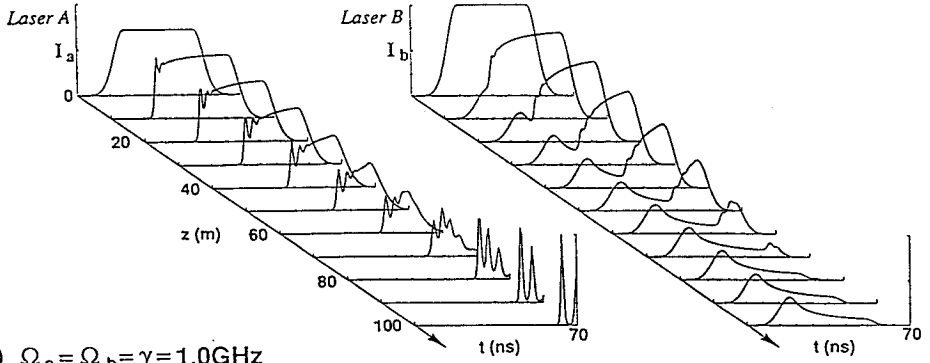
図 5-11 に $\Omega = 0.4, 1.0 \text{ GHz}$ のパルスの伝播中の波形変化の様子を示す。入射パルス波形は、立ち上がり、立ち下がりとも半値半幅 5 ns のガウス型、中心部はフラットで、半値全幅 40 ns のパルスである。これは現在レーザー同位体分離システムにおいて考えられている銅蒸気レーザー励起色素レーザーの波形を模擬している。またレーザー光 A, B のパルスは同時入射である。

準位 1 から準位 2 への遷移を駆動するレーザー A のパルスは、(a)、(b) ともに吸収によって立ち上がりが急峻になり、パルスの前縁部分で微小な変調が起こり、伝播距離とともにその変調が成長し、パルスが分裂している。レーザー B は、レーザー A のパルスで準位 2 に励起された原子をさらに準位 3 に励起する。すなわち準位 1 から準位 2 に原子が励起されるのに要する時間の間は、レーザー B のエネルギーを吸収する原子が準位 2 に十分ない。このためレーザー B のパルスの前縁部分は、大きな伝播距離でも変化せず、少し遅れた時間部分のエネルギーが吸収され、パルスの強度が減少していく。したがって例えば 50 m 伝播した後のレーザー A、B のパルスを比較すると図 5-12 (a) のように、2 つのパルスが重ならないパルス部分、すなわち多段階励起で原子をイオン化できない時間部分や、片方のパルスの強度が他方に比べて高くなる部分が現われてくる。図 5-12 (a) ではレーザー A のパルスの立ち上がり部分ではレーザー B のパルスの強度より高くなるため、準位 1 から準位 2 に励起された原子は、レーザー光 B により準位 3 へ励起されるより、レーザー光 A で準位 1 に誘導放出される原子の方が多くなる。すなわち実質的にこの 3 準位原子系の中で準位 1 と準位 2 の閉じた 2 準位系が構成されてしまったことになる。このような閉じた 2 準位系的ふるまいを示し始めたレーザー光 A のパルス部分は、 2π パルスに分裂し始める。このパルスの分裂は 5-3-1 で述べた原理により起こり、伝播するにつれてやがて完全に分裂するとともに、ハイパボリック 2π パルス ($\text{sech } 2\pi$) となって伝播していく。このようなソリトン化が起こると分裂したパルスは非常に遅い速度で伝播し、およそ

$$\tau_{\text{delay}} = \frac{1}{2} \alpha z \tau_p \quad (5-16)$$

で表わされる時間遅れを示す。ここで τ_p は分裂した 1 つ 1 つのパルスの幅、 α は吸収係数である。やがてレーザー A と B のパルスは図 5-12 (b) に示すように完全にずれてしまい、原子を多段階励起でイオン化することができなくなり、イオン化効率は 0 となる。

(a) $\Omega_a = \Omega_b = \gamma = 0.4\text{GHz}$



(b) $\Omega_a = \Omega_b = \gamma = 1.0\text{GHz}$

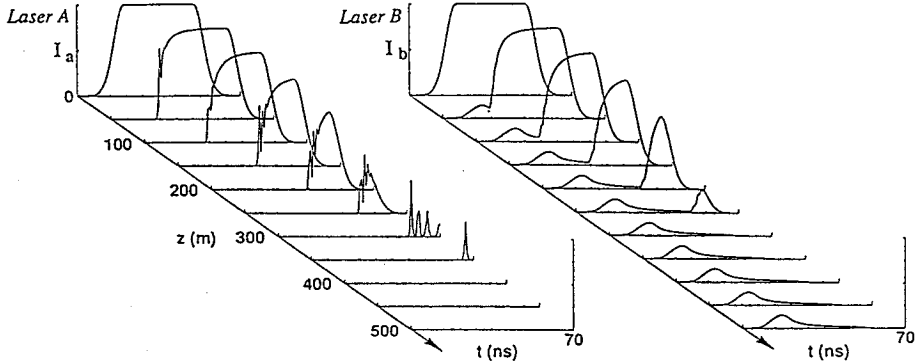
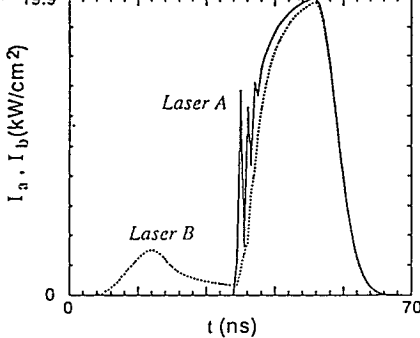


図5-11 共鳴同位体原子のみを考えた場合の伝播パルス波形変化
レーザーA, Bのパルスは計算された全伝播距離での最大強度
の値でそれぞれ規格化している。

$\Omega_a = \Omega_b = \gamma = 1.0\text{GHz}$

(a) $N \times z = 1.5 \times 10^{15} \text{atoms/cm}^2$



(b) $N \times z = 3.0 \times 10^{15} \text{atoms/cm}^2$

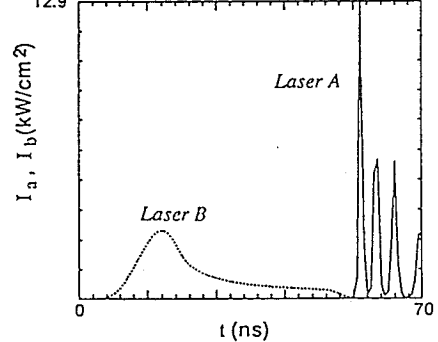


図5-12 イオン化のある3準位原子系における閉じた2準位系的
ふるまいに基づくパルス変形

図5-13に Ω ($\Omega_1 = \Omega_2 = \gamma$) = 0.4, 0.6, 0.8, 1.0 GHzの各場合のイオン化効率と伝播距離の関係を示す。図中の点線は、伝播距離 z にわたり100%のイオン化が起こると仮定し、(5-15)式で与えられるエネルギー収支より求めた伝播長である。Rabi周波数にほとんど関係なく点線で示した伝播長でイオン化効率が50%程度となる。したがって図5-12で示した吸収によるパルスエネルギーの減少とそれに引き続く著しい遅延などの共鳴効果によるパルス波形変化で、イオン化効率が50%程度になる伝播長が式(5-15)で求めたエネルギーで決定される伝播長で評価できることがわかる。

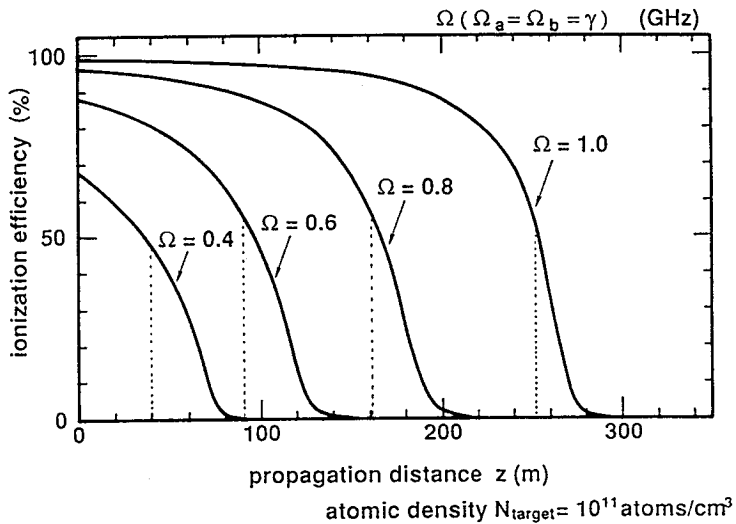


図5-13 イオン化効率と伝播距離の関係
点線は式(5-15)より求めたエネルギー収支から決まる伝播長

§ 5-4 3段階電離法における伝播効果の影響

5-4-1 原子系と入射パルス条件

ここでは5-4-2で行なうパルス伝播効果によるイオン化効率と選択性への影響を考察するための計算条件を述べる。

図5-14に示す3段階電離スキームでイオンを生成する。準位1-2, 2-3間の遷移の双極子モーメント p_{12} , p_{23} は 5×10^{-18} esu·cm で同じとする。第3章で示したようにGdやUの励起準位の寿命は数100 ns と長いものが多く、また 10^{13} cm⁻³ の蒸気密度でかつ原子蒸気ビームを用いるため、寿命や衝突による緩和は励起ダイナミクスに大きな影響を与えないのでここでは無視して考える。

原子系は標的同位体と非標的同位体の準位1-2と2-3間の遷移がそれぞれ5 GHz の同位体シフトをもつ。標的同位体のドップラー幅は、超微細構造によるスペクトルの広がり方を考慮して1 GHz、非標的同位体のドップラー幅は500 MHz とする。また標的同位体と非標的同位体の存在比をそれぞれ1%と99%とした図5-15に示したスペクトルを用いた。レーザー光周波数は、図中に示すように標的同位体のスペクトルの中心に同調する。

図5-16に励起ダイナミクスのみを考慮して得た入射パルス条件、すなわち原子蒸気のレーザー光入射端でのRabi周波数 Ω とパルス幅 τ_{pulse} の組み合わせに対する標的同位体のイオン化効率と生成される濃縮物質中の標的同位体の濃度の関係を示

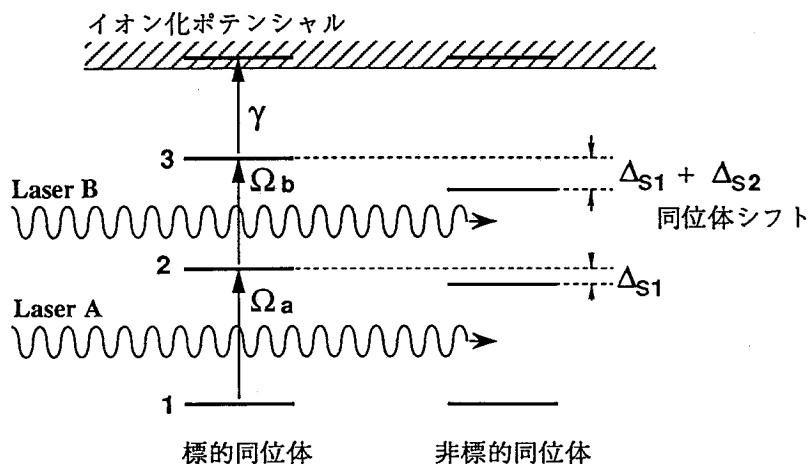


図5-14 3段階電離法によるレーザー同位体分離
 Δ_{s1} , Δ_{s2} は各々準位1-2, 2-3間の同位体シフト量、
 Ω_a , Ω_b は各々レーザー光A, BのRabi周波数、 γ は準位3からのイオン化率

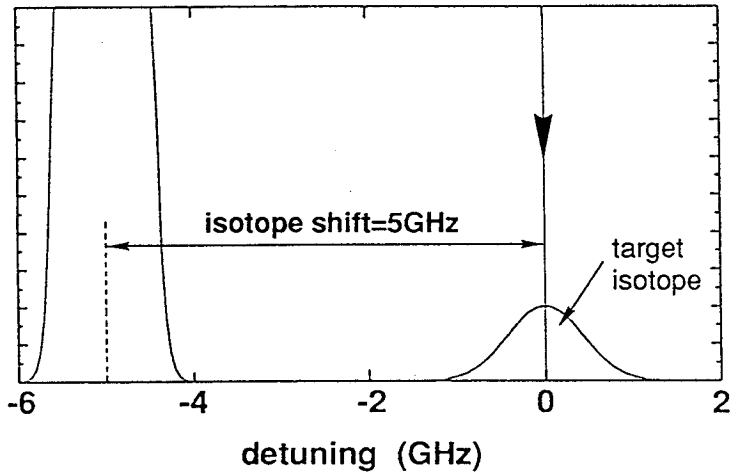


図5-15 計算に用いたスペクトル
 2つの同位体が存在し、それぞれガウス型のスペクトルをもつ。
 レーザー光の周波数は標的同位体のスペクトルの中心に同調する（矢印で示す）。

	ドップラー幅	存在比
標的同位体	: 1 GHz,	1%
非標的同位体	: 0.5 GHz,	99%

す。図5-16は、第2章で行なった励起ダイナミクスの研究結果である最も効率的な励起条件 $\Omega_a = \Omega_b = \gamma$ を用い、図5-15に示したスペクトルをもつ3単位原子系を励起した場合についての結果を示している。簡単のため励起パルスは矩形パルスを用いた。ここで生成される濃縮物質の濃度は

$$C = \frac{N_{\text{target}}^+}{N_{\text{target}}^+ + N_{\text{others}}^+} \quad (5-17)$$

で定義している。式(5-17)で記号+はイオンを表わす。

回収の際起こる電荷移行衝突による選択性の低下を考えると、回収前の段階、すなわち3段階電離された直後の状態で濃縮物質中の標的同位体の濃度がある一定値以上である必要がある。レーザー光との相互作用領域での原子蒸気密度を N 、回収電極の幅を L 、電荷移行衝突断面積を σ とすると、回収電極間で電荷移行衝突を起こした結果、回収されるイオンのうち標的同位体イオンの割合は、回収前の割合の

$\exp(-N\sigma_0L)$ 倍に低下する。 $N = 10^{13} \text{ atoms/cm}^3$ 、 $L = 10 \text{ cm}$ 、 $\sigma_0 = 2 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ と仮定すると約 0.135 倍となり、4% の濃縮物質を得るためには、電離直後（回収前）の段階で30%以上の濃度であることが必要となる。

また蒸気利用率を上げ経済性を発揮するために、原子蒸気中の標的同位体をほぼ100%イオン化しなければならないため、イオン化効率の点からも入射パルス条件に対して制限が付く。したがって入射パルスの条件としてのパルス幅とRabi周波数の組み合わせは、図5-16に示したイオン化効率~100%、濃度 $\geq 30\%$ の曲線に囲まれた範囲の値に限られる。パルス幅を40 ns とすると、およそRabi周波数は0.9 GHz ~ 1.1 GHz となる。ただし選択性は励起パルスの立ち上がりに依存するため、矩形パルスで計算された図5-16での濃度に関する制限は絶対的なものではない。矩形パルスに比べて立ち上がりの緩やかなパルスでは、フーリエ変換されたスペクトル幅が狭いので濃度はもっと高いはずであるが目安としてこの図を用いた。

ここでは同位体分離用のレーザーシステムとして、現在最も有望である銅蒸気レーザー励起色素レーザーを模擬したパルスで励起した場合について考える。そのパルスは、立ち上がり、立ち下がりとも半値半幅5 ns のガウス型、中央部はフラットで、全体では台形波に近い半値全幅40 ns のパルスである。

次に示すパルス波形変化において、伝播コードの基本式中の式(5-8)で与えられる結合係数と伝播距離の積、すなわち $Np^2\omega z$ の値が同じであれば、伝播距離に対するパルス波形変化のふるまいは同じになる。しかしここでは理解しやすいように、蒸気密度 N を U の同位体分離での上限値である 10^{13} cm^{-3} として、伝播距離 z とパルス波形を対応させて示す。なおこの原子蒸気密度 10^{13} cm^{-3} のうち、標的同位体原子の密度 N_{target} は 10^{11} cm^{-3} である。

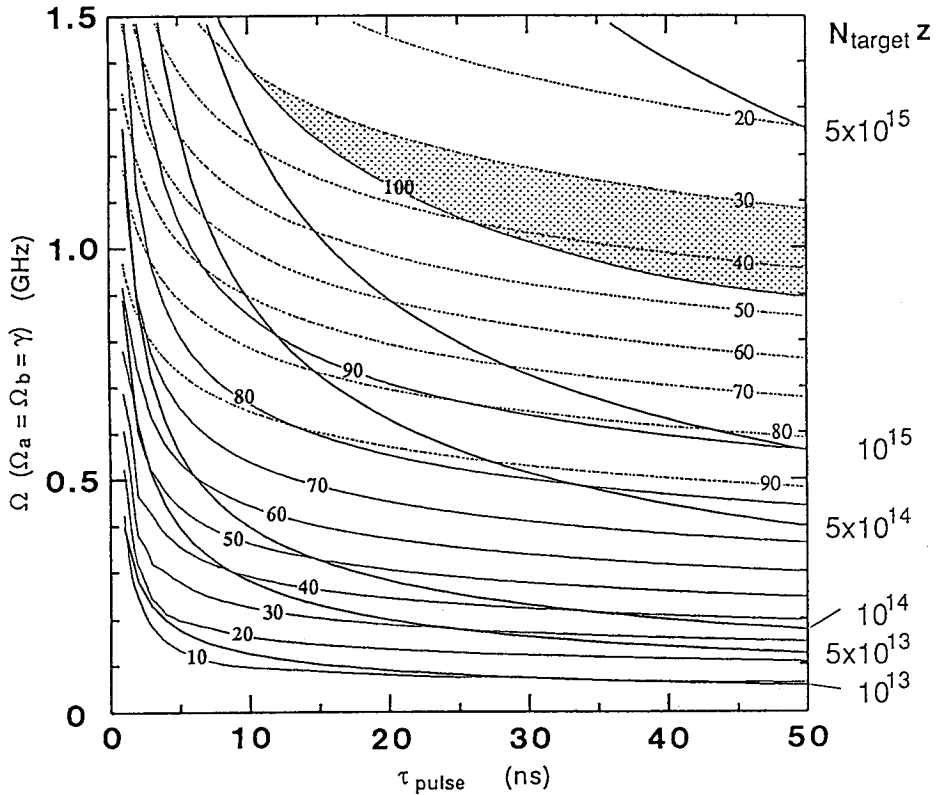


図5-16

励起ダイナミクス、ミクス、のみのみから決定されるRabi周波数とパルス幅の組合せによる、濃縮物質中の原子のイオン化効率(%) (実線で示す)、濃縮物質中の原子のイオン化効率(%) (点線で示す)と入射パルスエネルギー密度 $N_{\text{target}} z$ (atoms/cm³) × 伝播距離 z (cm) の関係を示した。濃縮物質中の原子のイオン化効率(%) (実線で示す)と入射パルスエネルギー密度 $N_{\text{target}} z$ (atoms/cm³) × 伝播距離 z (cm) の関係を示した。濃縮物質中の原子のイオン化効率(%) (点線で示す)と入射パルスエネルギー密度 $N_{\text{target}} z$ (atoms/cm³) × 伝播距離 z (cm) の関係を示した。濃縮物質中の原子のイオン化効率(%) (実線で示す)と入射パルスエネルギー密度 $N_{\text{target}} z$ (atoms/cm³) × 伝播距離 z (cm) の関係を示した。濃縮物質中の原子のイオン化効率(%) (点線で示す)と入射パルスエネルギー密度 $N_{\text{target}} z$ (atoms/cm³) × 伝播距離 z (cm) の関係を示した。

5-4-2 イオン化効率と選択性に及ぼす影響

伝播距離とともにパルスのエネルギーが原子に吸収され減少していくため、イオン化効率は低下していく。逆にパルスエネルギーが減少することで、飽和広がりによる非標的同位体の励起が少なくなるため、濃度は伝播距離にしたがって向上していく。このようにイオン化効率と濃度は伝播距離に対して相反的であることが予想される。したがってパルスのRabi周波数をあまり大きくしても経済性は向上しない。ここでは光子利用率を考慮して、図5-15に示した条件の中から入射パルスのピークRabi周波数 Ω を1GHzとして、原子蒸気中を伝播するパルスの波形変化を計算した。

$\Omega (= \Omega_a = \Omega_b = \gamma) = 1 \text{ GHz}$ のパルス波形で励起した場合の各伝播距離でのパルス波形を図5-17に示す。図5-17では $z = 100 \text{ m}$ までのピーク強度で各々のレーザー光強度を規格化して示しているため、図ではレーザーAとレーザーBの入射ピーク強度は異なるように見えるが、ともに 21 kW/cm^2 と等しい。

レーザーAのパルスは前縁部から吸収されるため、立ち上がりが急峻になっていく。レーザーBのパルスは、レーザーAにより基底準位から励起準位へ励起された原子をさらに上準位へ励起する。そのためレーザーAのパルスが吸収され減少している部分より準位2に十分な原子が励起されてくるまでの時間だけ遅れた部分のエネルギーが原子に吸収されていく。したがってレーザーBのパルスの前縁部分は最後まで形を変えずに残ることになる。また準位2-3間の遷移も同位体シフトが5GHzであり、1段目の同位体シフトと合わせると、2段目では標的同位体と非標的同位体とは10GHzの周波数差があることになる。したがってレーザーBのエネルギーの非標的同位体による吸収はレーザーAより少なく、レーザーBのパルスの波形変形は吸収によるものであって非線形屈折率効果の影響は少ないと考えられる。入射端では標的同位体はほとんど100%イオン化されるのに対し、非標的同位体は99%のうちの0.6%程度しか励起されイオンとならない。すなわち蒸気中の原子のほとんどが準位1に存在する。そのためパルスが受ける伝播効果もレーザーBよりレーザーAのパルスの方がはるかに大きい。

さらに詳しく考察するため、図5-18に(a)標的同位体のみ、(b)非標的同位体のみ、(c)標的同位体と非標的同位体の両方が存在する場合のそれぞれについて、同じ伝播距離($z = 50 \text{ m}$)でのパルス波形を示す。この図より両方の同

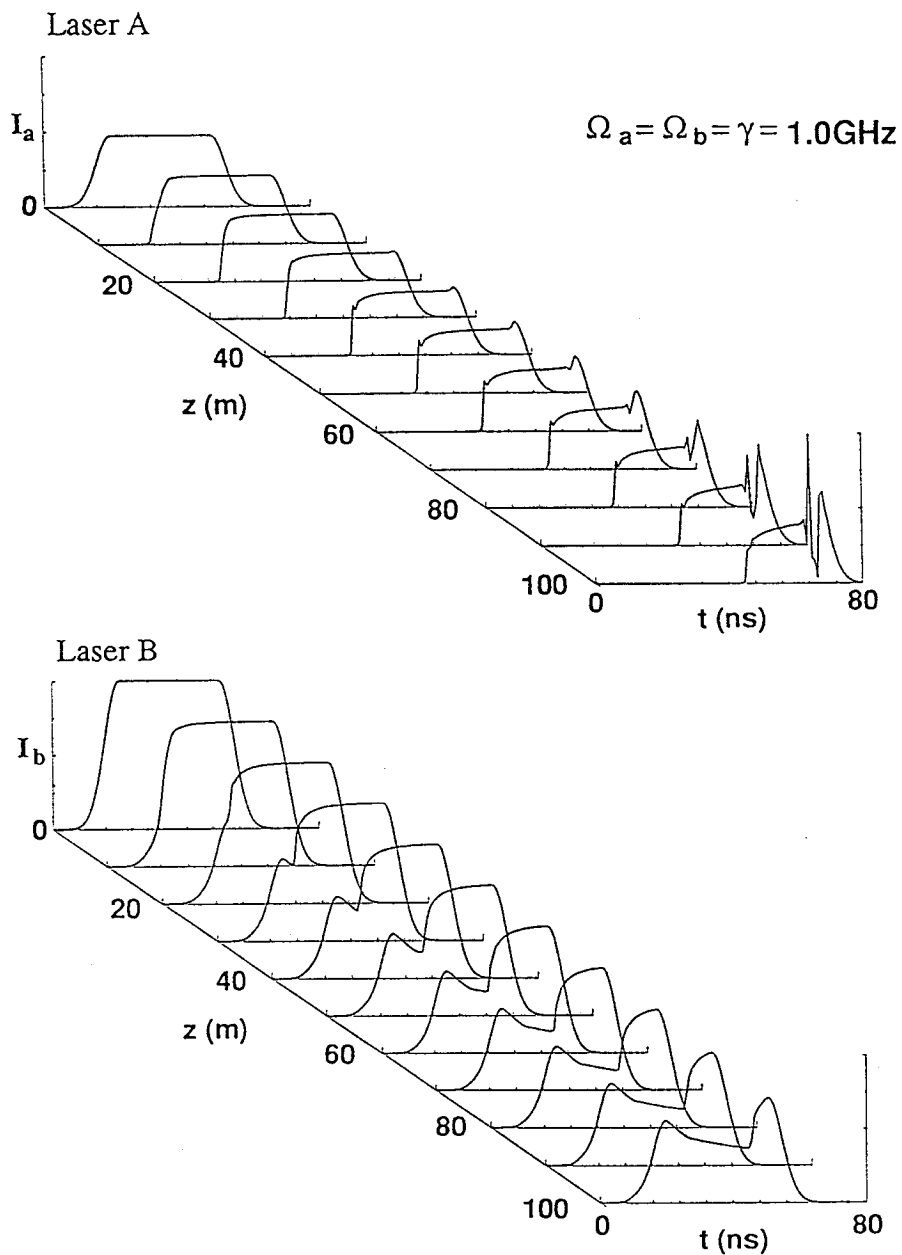
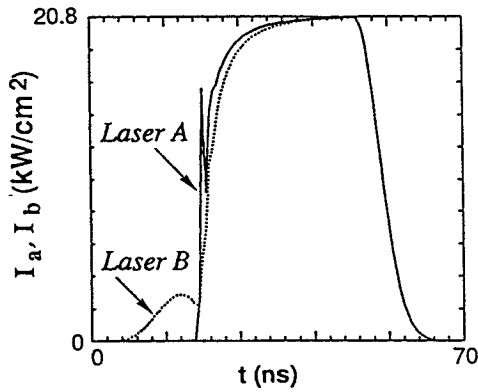
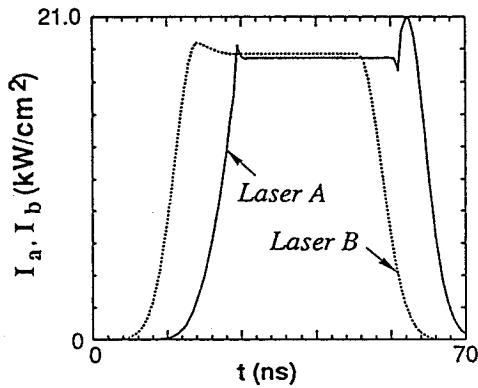


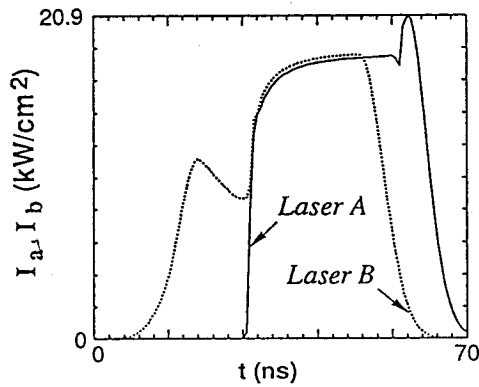
図5-17 伝播していくパルス波形 ($\Omega_a = \Omega_b = \gamma = 1\text{GHz}$) レーザーA, レーザーBのパルスとも各々 $z = 100\text{m}$ までのピーク強度で規格化している。入射パルスはレーザーA, Bとも同強度 ($\sim 21\text{kW/cm}^2$)。



(a) 標的同位体のみの場合



(b) 非標的同位体のみの場合



(c) 標的同位体 + 非標的同位体の場合

図5-18 各同位体の有無によるパルス波形の比較
 $z = 50$ m, $N = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$
 標的同位体 : 非標的同位体 = 1% : 99%

位体がある場合、レーザーAのパルスの前縁は標的同位体による吸収で波形が変形し、標的同位体原子をすべて励起し、準位1には非標的同位体原子しかないパルスの後半部分では、(b)と(c)とが同様の变化を示すことから非標的同位体による非線形屈折率効果によって変形を受けていると思われる。完全にレーザーBのパルスから遅れてしまったレーザーAのパルス部分は、準位1と準位2から成る閉じた2準位系を励起することになり、5-3-3で考察したようにパルスは分裂し始める。分裂して $\text{sech } 2\pi$ パルスに成長しようとする場合、強度が高ければ短いパルス幅で 2π パルスが形成でき、強度が低ければパルスの幅は長くなる必要がある。したがって図5-17の $z = 100\text{ m}$ でのレーザーAのパルスの後半に見られるように、いくつもの 2π パルスが集中するところができ鋭いピークが形成される。

次に各伝播距離でのイオン化効率と濃度を図5-19に示す。標的同位体のイオン化効率が90%以下になる距離をイオン化効率で制限される伝播距離 z_{ion} と定義すると、標的同位体しかない場合は $z_{\text{ion}} \sim 190\text{ m}$ であるが、非標的同位体も含めた場合では $z_{\text{ion}} \sim 90\text{ m}$ となる。これは非標的同位体がパルスのエネルギーを吸収

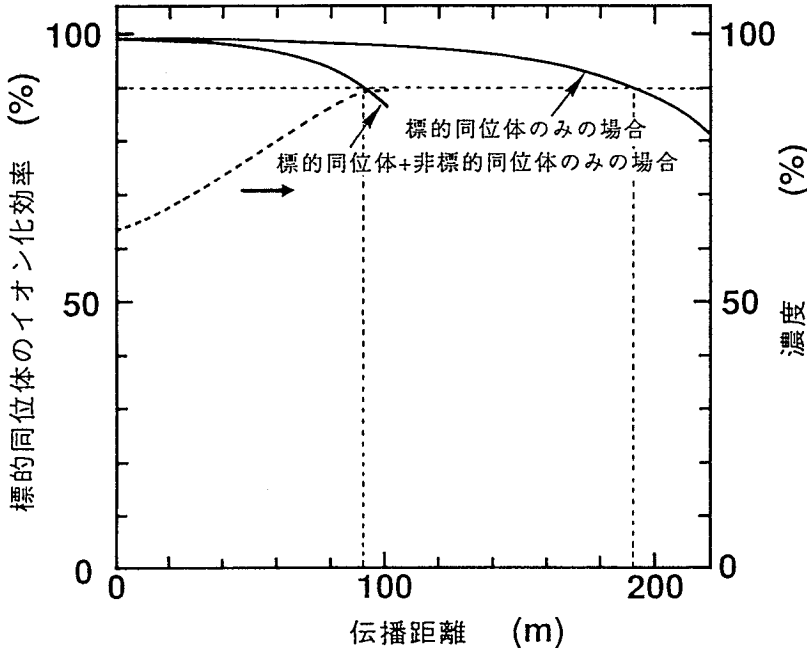


図5-19 標的同位体のイオン化効率と濃度の伝播距離に対する変化
 $(N = 1.0^{13} \text{ cm}^{-3}, \Omega_a = \Omega_b = \gamma = 1 \text{ GHz})$

したことから、上で述べた効果によってレーザーAとBのパルスの1部が同時に原子を励起できなくなったことが原因である。また図5-17より90m以上伝播させると完全にパルスがずれてしまい、イオン化効率は急激に低下すると考えられる。したがってここで計算を行なった条件、すなわち $\Omega_a = \Omega_b = \gamma = 1 \text{ GHz}$ 、 $\tau_{\text{pulse}} = 40 \text{ ns}$ では有効伝播距離は90m程度とするのが妥当である。なお $z = 90 \text{ m}$ までの光子利用率はレーザーA、レーザーB合わせておよそ45%であった。

§5-5 むすび

原子蒸気中を伝播するレーザーパルスが、近共鳴同位体から受ける時間的变化について、Naを用いて実験を行なった。その波形変化のメカニズムとして強度に依存するパルスの伝播速度と自己位相変調と分散の結び付いた効果の2つが考えられ、後者の影響が支配的であることを実験結果と数値計算により示した。

共鳴および近共鳴同位体の両方からの効果を取り扱うことができるパルス伝播シミュレーションコードを開発した。共鳴状態にある同位体がレーザーパルスに与える時間的变化のメカニズムを考え、開発した伝播シミュレーションコードにより、イオン化がある3準位原子系でも、Rabi振動によるパルスの変調が増幅されてパルスの分裂が起こることを初めて示した。また共鳴効果によるパルス分裂が起こる伝播距離を、銅蒸気レーザー励起色素レーザーを模擬したパルスに対して示した。

またパルスがウラン型のスペクトル（標的同位体：非標的同位体=1%：99%、同位体シフト=5GHz）をもつ原子の蒸気中を伝播する際、近共鳴状態にある原子により1段目を励起するパルスに大きな遅延が起こることを示した。この効果によりRabi周波数が1GHzのパルスに対し、イオン化効率が90%以下になる距離が90m程度になることを示し、分離チャンバーの光軸方向の長さの設計指標となる値を提示した。

第5章の参考文献

- 1) D.Grischkowsky, Phys. Rev. Lett. 24, 866 (1970); A.Jaban and P.L.Kelly, IEEE J. Quantum Electron. QE-2, 470 (1966); Ph.Kupeck, M.Comte, J.-P.Marinier, J.-P.Babuel-Peyrissac and C.Bardin, Opt. Commun. 65, 306 (1988).
- 2) D.Grischkowsky and J.A.Armstrong, Phys. Rev. A 6, 1566 (1972).
- 3) D.Grischkowsky, E.Courtens and J.A.Armstrong, Phys. Rev. Lett. 31, 422 (1973); L.Allen and J.H.Eberly, Optical Resonance and Two Level Atoms (Wiley, New York, 1975).
for pulse compression in optical fiber and atomic vapor,
D.Grischkowsky, Appl. Phys. Lett. 25, 566 (1974); H.Nakatsuka,
D.Grischkowsky and A.C.Balant, Phys. Rev. Lett. 47, 910 (1981);
D.Grischkowsky and D.Grischkowsky, Appl. Phys. Lett. 41, 1 (1983).
- 4) R.H.Stolen and C.Lin, Phys. Rev. A 17, 1448 (1977); F.Shimizu, Phys. Rev. Lett. 19, 1097 (1967); J.C.Diels and E.L.Hahn, Phys. Rev. A 8 (1978); M.E.Crenshaw and C.D.Cantrell, Phys. Rev. A 39, (1989),
Opt. Lett. 13, 381 (1988).
- 5) J.C.Diels, Phys. Rev. A 13, 1520 (1976).
- 6) D.Grischkowsky, Phys. Rev. A 7, 2096 (1973); M.D.Crisp, Phys. Rev. A 8, 2128 (1973).
- 7) J.D.Gibbon and J.C.Eilbeck, J. Phys. A 5, L122 (1972); D.J.Kaup, Phys. Rev. A 16, 704 (1977); S.L.McCall and E.L.Hahn, Phys. Rev. Lett. 18, 908 (1967).
- 8) L.Davidovich and J.H.Eberly, Opt. Commun. 3, 32 (1971); H.M.Gibbs, S.L.McCall and G.J.Salamo, Phys. Rev. A 12, 1032 (1975); R.E.Slischer and H.M.Gibbs, Phys. Rev. A 5, 1634 (1972).
- 9) F.T.Hioe and J.H.Eberly, Phys. Rev. Lett. 21, 838 (1981).

第6章 結 論

レーザー同位体分離において高効率、高選択励起を達成できるレーザー光照射条件を明らかにすることを目的として、光反応過程における励起ダイナミクスとレーザーパルス伝播効果について研究を行なった。

レーザー同位体分離システム的设计に必要な同位体シフトや遷移双極子モーメント等の分光学的データを把握するとともに、超微細構造や空間縮退などの原子の分光学的特徴を取り入れた4波長3段階電離での光反応過程をモデル化をし、このモデルに基づいて励起ダイナミクスシミュレーションコードを開発して、高効率励起が期待できるレーザー光照射条件の目安を得た。さらにモデル計算と実験的手法を用いて、3種類の異なる高励起法についてその問題点と有効性を検討した。パルス伝播効果に関しては、共鳴および近共鳴の両方の状態で伝播するレーザーパルスの波形変化を計算しうるシミュレーションコードを開発し、両状態にある原子によるパルス波形の変形メカニズムを考察した。またレーザー同位体分離におけるイオン化効率、選択性に及ぼす伝播効果の影響を考察し、システム設計の指標となる有効伝播長を提示した。

本研究により得られた成果を総括すると以下の様になる。

第2章

- (1) 高効率励起を達成するために、光反応過程でのレーザーと原子の相互作用の基本モデルを構築した。さらにエネルギー準位の空間縮退や超微細構造の効果を考察し、これらを取り入れた4波長3段階電離スキームのモデル化を行ない、励起ダイナミクスシミュレーションコードを開発した。
- (2) 空間縮退の考察からは、多段階励起においてJ値が減少していくように準位を選ぶと、イオン化へ至る遷移を起こすことができないサブレベルが増大していくため、J値が増えていくように選ぶべきであることがわかった。この結果は励起の詳細に依存せず、選んだ準位のJ値のみで決定されてしまうため、高効率励起を達成するためには必ず考慮する必要がある。
- (3) 超微細構造についての考察からは、核スピンIと電子の軌道角運動量Jとのカップリングによって選択則が変わり、空間縮退を考えたときには励起でき

なかったサブレベルの1部が励起できるようになることがわかった。また遷移強度の強い遷移のみを考慮することで、UやG dでは精度よく超微細構造の励起を計算できる可能性を示した。

- (4) 開発したシミュレーションコードを用いて、ドップラー広がりの影響について考察を行なった。その結果ドップラー広がりをもつ吸収線全体を励起するには、ラビ周波数をドップラー幅程度にする必要があり、またパルスのエネルギーを一定とした場合、レーザーのバンド幅とドップラー幅のマッチングがとれたとき最も効率よくイオンが生成されることがわかった。さらに多段階励起では、各段を励起するレーザーのラビ周波数が同程度の大きさで、かつイオン化率と同じ場合が最も効率のよい励起ができることを示した。

第3章

第3章では励起ダイナミクスとパルス伝播効果の研究に際し、原子スペクトルの特徴やRabi周波数のおおよその大きさを把握することを目的として、レーザー同位体分離における光反応過程での基本的パラメーターである同位体シフト、超微細構造定数、励起準位の寿命、遷移双極子モーメントについてG dを用いて測定を行なった。

- (1) 同位体シフトについてはG dの場合、単位質量あたり0.5 GHzと小さいことがわかった。超微細構造については標的同位体である ^{157}Gd の超微細構造スペクトル内に ^{156}Gd のスペクトルが存在したり、 ^{157}Gd と ^{156}Gd の超微細構造スペクトルが重なっている遷移が多いことがわかった。したがって単色性に優れた強いレーザー光を用いて飽和広がりを利用する励起法は、超微細構造で広がった ^{157}Gd のスペクトル全体を励起できるが、同位体シフトが狭すぎるため選択性の点で問題となり、他の励起法を考える必要がある。そこでG dのように同位体シフトが狭い、あるいは標的同位体のスペクトルが他の同位体のスペクトルと重なっている場合でさえ有効な励起法について第4章で考察した。また飽和広がりを利用する励起法を用いる場合、励起するレーザー光の周波数を超微細構造のどこへ同調するかについて厳密な検討を必要とする。その点を考慮して高速断熱通過を利用した新しい励起法について第4章で考察した。

- (2) 励起準位の寿命に関しては、レーザー誘起蛍光法により510 nm~600 nmの波長範囲にあるGdの励起準位についてその寿命を測定した。⁹D項で表わされる系列は150 ns前後の寿命をもち、⁹F項で表わされる系列は500~700 nsと非常に長い寿命をもつことがわかった。レーザー同位体分離では原子ビームを用いるため衝突によるコヒーレンスの緩和が小さいことを考えあわせて、開発された銅蒸気レーザー励起色素レーザー（パルス幅~40 ns）を用いて、十分コヒーレントな励起を行なうことができ、高効率励起が期待できることがわかった。
- (3) 遷移の双極子モーメントに関しては、Rabi floppingを利用した新しい方法を開発し、Gdの遷移について高い精度で測定を行なった。同時にコヒーレント励起が行なわれていることを確認した。また励起ダイナミクスシミュレーションコードによる計算と実験結果との一致よりその信頼性を実証した。

第4章

第4章では高効率励起を目的として3つの励起法について検討し、その問題点を考察した。

- (1) 基底準位だけでなく、準安定準位に存在する原子をも利用して同時に励起・電離する場合、2光子共鳴状態でpopulation trappingが起こり、イオン化効率が減少することを初めて実験により確認し、イオン化スペクトルが開発した計算コードによる結果とよく一致することを示した。
- (2) population trappingを避けるためには、2光子共鳴条件からの離調が重要であることを指摘し、イオン化効率が最大となる周波数離調量の目安を示すとともに、超微細構造により共鳴周波数が散在することが原因でpopulation trappingによるイオン量の低下が起こりにくくなることを初めて示した。しかし生成イオン量を最大にするためには、使用する超微細構造それぞれについて個々の周波数離調量の最適化が必要である。
- (3) 超微細構造は広い周波数範囲に分布するため、単一周波数のレーザー光ではすべての原子を励起しイオンとすることは困難である。そこでレーザー光の周波数を掃引し、高速断熱通過を利用する励起法を提案し、2準位原子系において安定に断熱反転を起こす周波数掃引速度、掃引幅、ラビ周波数の条件

を定量的に与えた。これは現在まで定性的な評価のみであった断熱反転条件に対し、定量的な条件を明確に示しており、実際の応用にとって意義深い。

- (4) 核スピンの有無により遷移の選択則が異なることを利用して同位体分離が可能であることをGdを用いた実験により示し、 ^{157}Gd について濃縮比70%を得た。

第5章

- (1) 近共鳴同位体との相互作用によるパルス波形変化について、Naを用いたパルス伝播実験と数値計算によって、伝播速度が強度に依存する効果と自己位相変調と分散が結びついた効果による波形変化を比較し、後者がより強く波形変化に効いていることを示した。
- (2) 3段階電離法による同位体分離において、原子蒸気中を共鳴・近共鳴状態で伝播していくレーザーパルスの波形変化を励起のダイナミクスと関連させて計算できるシミュレーションコードを開発した。
- (3) 効率よくイオン化が行なわれている3準位原子系でも、共鳴同位体との相互作用によるラビ振動が原因で、パルス分裂が起こりうることを指摘した。また吸収によるパルスエネルギーの減少と分裂に伴う著しい遅延のために、イオン化効率が50%程度に低下する伝播長が、入射パルスのラビ周波数には殆ど無関係で、エネルギー収支により評価できることを示した。
- (4) 原子蒸気の利用率と電荷移行衝突による選択性の低下から、蒸気の入射端で満たすべき標的同位体のイオン化効率と濃度に制限を設け、それらを満足する入射パルスのラビ周波数が幅40nsのパルス(～銅蒸気レーザー励起色素レーザーのパルス)に対し、0.9GHz～1.1GHz程度であることを示した。またラビ周波数1GHzのパルスでは、有効伝播長がおおよそ90mになることを示した。

以上の励起ダイナミクスとパルス伝播効果に関する研究結果は、レーザー同位体分離の光反応過程において高効率な励起を実現するために大きく貢献するものと考えられる。

謝 辞

本研究の遂行に際し、終始懇篤なる御指導、御教授、御鞭撻を賜りました山中龍彦教授、井澤靖和教授、中井貞雄教授に深厚なる謝意を表わします。

また、本研究に対し一貫して激励を戴きました山中千代衛名誉教授に厚く感謝いたします。

あわせて大学院在学中において、御教授を戴きました、松浦虔士教授、藤井克彦名誉教授、青木亮三教授、白藤純嗣教授、平木昭夫教授、鈴木胖教授、村上吉繁教授、辻毅一郎教授、黒田英三教授、中島尚男教授、加藤義章教授に謝意を表します。

また、終始変わらぬ御指導、討論、激励を戴きました、横山昌弘教授、西原功修教授、三間囀興教授、中島信昭助教授、佐々木孝友助教授、北川米喜助教授、中塚正大助教授、山中正宣助教授、吉田国雄講師、実野孝久講師、田中和夫講師、畦地宏講師、高部英明講師、西村博明講師、乗松孝好講師に謝意を表します。

本研究を通じて直接細やかな討論を戴きました仁木秀明助手、阪部周二助手、藤原関夫助手、山中千博助手（大阪大学理学部）に心からの謝意を表します。

レーザーパルス伝播の研究に関し、物理的見地から多くの助言を戴きました名城大学山ノ井基臣教授に謝意を表します。

さらに熱心な討論、激励を戴きました宮永憲明助手、宮本修治助手、大道博行助手、白神宏之助手、中井光男助手、西口彰夫博士（レーザー技術総合研究所）、車信一郎博士（レーザー技術総合研究所）に厚く感謝いたします。

計算機の利用に関し御協力戴きました計算機室の方々を始め、大阪大学レーザー核融合研究センターのスタッフの方々に深く感謝いたします。

レーザー核融合研究センターにおいて研究生活の苦楽を共にし、熱心な討論、激励を戴いた嶋田哲也君、橋田昌樹君ほか研究室の方々、三浦永祐君、節原裕一君、古河裕之君、仲俊博君、奥村夏彦君ほか同級生諸氏に感謝します。

最後にこの研究生活を援助してくれた母に心から感謝します。

業績目録

1. 主要論文

1. "Laser Pulse Reshaping in Near-Resonant Sodium Vapor",
H.Niki, S.Adachi, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
Proceedings of an International Symposium on Short-Wavelength Lasers
and Their Applications, pp.365-370, 1987 (Springer).

2. "Measurement of Dipole Matrix Element of Atomic Gd Transitions
using Rabi Flopping",
S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
Japanese Journal of Applied Physics, Vol.29, pp.L833-L836 (1990).

3. "Experimental and Numerical Studies on Population Trapping in Gd Vapor",
S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
to be published in Optics Communication.

4. "Numerical Studies on Parameters for Stable Adiabatic Inversion
by Gaussian and Square Pulses",
S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
submitted to Optics Communication.

5. "Propagation Effects of Laser Beams through Three-Level Atomic System",
S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, T.Yamanaka, S.Nakai and C.Yamanaka,
to be submitted to Journal of The Optical Society of America B.

6. "Laser Beam Propagation Effects in Laser Isotope Separation",
H.Niki, S.Adachi, Y.Izawa and C.Yamanaka,
to be published, in the Proceedings of an International Symposium
on Isotope Separation and Chemical Exchange Uranium Enrichment.

2. その他の論文

1. "Laser Beam Propagation Effects in Atomic Laser Isotope Separation System",
Technology Reports of The Osaka University, Vol.40, No.1977, pp.87-94
(1990),
S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka
2. "Development of a Single-Mode Dye Laser Pumped by a Copper Vapor Laser",
Technology Reports of The Osaka University, Vol.36, No.1860, pp.361-367
(1986),
Y.Arai, S.Adachi, T.Takeda, H.Niki, T.Yamanaka and C.Yamanaka

3. 国際会議報告

1. "Laser Pulse Reshaping in Near-Resonant Sodium Vapor",
H.Niki, S.Adachi, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
International Symposium on Short-wavelength Lasers and Their Application,
Osaka, Japan, 11-13 September 1987.
2. "Laser Isotope Separation of Gadolinium",
Y.Izawa, H.Niki, S.Sakabe, N.Nakashima, S.Adachi, T.Yamanaka,
S.Nakai and C.Yamanaka
1988 KIEE Annual Conference, International Sessions
Seoul, Korea, 25-26 November 1988.
3. "Laser Propagation Effects in Atomic Laser Isotope Separation",
H.Niki, S.Adachi, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO'89 (TUJ10),
Baltimore, Maryland, USA, 24-28 April 1989.

4. "Coherent Trapping in Multi-Step Photoionization of Atoms",
S.Adachi, H.Niki, Y.Izawa, S.Nakai and C.Yamanaka,
 Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO'90 (CFJ3),
 Anaheim, California, USA, 21-25 May 1990.

5. "Laser Beam Propagation Effects in Laser Isotope Separation",
 H.Niki, S.Adachi, Y.Izawa and C.Yamanaka,
 International Symposium on Isotope Separation and Chemical
 Exchange Uranium Enrichment, Tokyo, Japan, 29-30 October, 1990.

6. "Studies on Atomic Laser Isotope Separation at ILE, Osaka University
 and ILT",
 Y.Izawa, N.Nakashima, H.Niki, S.Sakabe, E.Fujiwara, S.Adachi,
 T.Yamanaka and C.Yamanaka,
 International Symposium on Isotope Separation and Chemical
 Exchange Uranium Enrichment, Tokyo, Japan, 29-30 October, 1990.

4. 学会発表

1. 「金属蒸気中でのレーザービーム伝播特性」
 応用物理学会 北海道大学 1986/ 9

2. 「近共鳴媒質中でのレーザービーム伝播特性」
 原子力学会 九州大学 1986/10

3. 「近共鳴媒質中でのレーザービーム伝播特性」
 レーザー学会 大阪大学 1987/ 1

4. 「ナトリウム蒸気中でのレーザービーム伝播特性」
 応用物理学会 早稲田大学 1987/ 3

5. 「共鳴媒質中でのレーザービーム伝播特性 II」
 原子力学会 北海道大学 1987/10

6. 「3段階光電離によるレーザー同位体分離の基礎研究 II」
原子力学会 北海道大学 1987/10
7. 「共鳴媒質中でのレーザービーム伝播特性 III」
原子力学会 東京工業大学 1988/ 4
8. 「3段階光電離によるレーザー同位体分離の基礎研究 III」
原子力学会 東京工業大学 1988/ 4
9. 「Rabi Floppingによるガドリニウム原子の双極子モーメントの測定」
原子力学会 神戸商船大学 1988/10
10. 「レーザーによるGdのコヒーレント励起効果」
レーザー学会 大阪国際交流センター 1989/ 1
11. 「レーザー同位体分離におけるコヒーレント励起効果」
応用物理学会 千葉大学 1989/ 4
12. 「偏光を利用したGdのレーザー同位体分離」
原子力学会 大阪大学 1989/ 4
13. 「レーザー同位体分離におけるコヒーレント励起効果 II」
原子力学会 日本原子力研究所 東海研究所 1990/10
14. 「レーザー同位体分離におけるレーザーパルス伝播特性」
レーザー学会 東京国際貿易センター 1990/ 1
15. 「レーザー同位体分離におけるレーザーパルス伝播特性」
原子力学会 東京大学 1990/ 4
16. 「断熱反転を利用した高効率励起」
応用物理学会 岩手大学 1990/ 9