

---

## 高励起リドベルグ状態を用いた同位体分離の研究

Isotope separation through highly excited Rydberg states

- 代表研究者 電気通信大学新形レーザー研究センター教授 宅間 宏  
Prof., Inst. for Laser Sci., Univ. of Electro-Communications  
Hiroshi TAKUMA
- 協同研究者 電気通信大学新形レーザー研究センター助教授 狩野 覚  
Assoc. Prof., Inst. for Laser Sci., Univ. of Electro-Communications  
Satoru S. KANO
- 電気通信大学新形レーザー研究センター助教授 平 洋一  
Assoc. Prof., Inst. for Laser Sci., Univ. of Electro-Communications  
Yoichi TAIRA
- 電気通信大学電気通信学部教授 松沢道生  
Prof., Faculty of Electro-Communications, Univ. of Electro-Communications  
Michio MATSUZAWA
- 電気通信大学電気通信学部助教授 伊東敏雄  
Assoc. Prof., Faculty of Electro-Communications, Univ. of Electro-Communications  
Toshio IRO
- 電気通信大学電気通信学部助手 清水和子  
Res. Assoc., Faculty of Electro-Communications, Univ. of Electro-Communications  
Kazuko SHIMIZU
- 東京大学教養学部助教授 桜井捷海  
Assoc., Prof., College of General Education, Univ. of Tokyo  
Katsumi SAKURAI

Collisional energy transfer between Rubidium atoms in the highly excited Rydberg state and those in the ground state is observed. The measured cross section is  $250 \text{ \AA}^2$ . The mechanism of the relevant collision is concluded to be that of the charge transfer between the ground state atom and the core ion of the Rydberg state atom. The rate of collisional mixing of the excited isopic species before the field ionization can be estimated from the present experiment to give a design criteria of the laser isotope separation through the Rydberg states.

### 研究目的

レーザーによるウランの同位体分離は、原子核燃料の経済的な濃縮法として真剣に考慮されている。本研究の目的は、レーザーによるウラン原子の特定の同位体を高励起リドベルグ状態へ遷移させ、これを外部電界によりイオン化して同位体分離する方法について、その実用的可能性を検討することにある。直接イオン化する場合に比

べ、リドベルグ状態を経由させた場合のほうが遷移確率が大きくなるので、それだけ小さい出力のレーザーを用いることができ、魅力的である。また、リドベルグ状態の原子は、放射寿命も長く、さらに外部の電界により容易にイオン化され、選択的に励起した同位体原子を効率良く集めるのに有利である。このような方法の有効性を検討するためには、リドベルグ状態にある特定の同位体原

子が、基底状態にある他の同位体の原子と衝突したときに、その内部エネルギーを交換する過程、すなわち最終的にリドベルグ状態の原子の中にレーザーで励起した同位体でないものが混入する確率がどの程度あるかについて、知る必要がある。言葉を変えていうならば、衝突によるエネルギー移乗によって容易に他種の同位体の励起状態がつくられてしまったのでは、高い分離効率が得られないかもしれないからである。

実験では、ルビジウム (Rb) 原子を用いてリドベルグ状態の関与する衝突現象の本質を解明したが、高励起リドベルグ原子のエネルギー移乗に関する性質がイオン・コアの性質に大きく依存しないことから、ここで得られた結論をウラン原子にそのまま適用することは本質的には問題がないと考えられ、本研究の成果は同位体分離の効率を論ずる上で重要な指針を与えることが期待される。

また、ここで得られるデータは実用上重要であるだけでなく、リドベルグ原子の衝突過程の物理に対し、既に知られているものとは異なる視点からの知識を提供するものであり、純粋科学の立場からも興味深い。すなわち、リドベルグ原子の衝突についての議論は、理論・実験ともにほとんどすべての場合、励起状態の電子と衝突相手との相互作用に注目しているが、この研究で対象としている衝突はむしろイオン・コアと衝突相手との関係が重要となり、高励起リドベルグ原子の衝突現象を、極めて低い束縛エネルギーを持つ電子からの寄与とイオン・コアからの寄与とに分ける近似 (E. Fermi による) の正しさを直接に検証することになるからである。

### 研究経過および成果

実験の対象として Rb 原子を選んだ理由は、(1) イオン化ポテンシャルが約 4 eV であり、2 光子過程を用いる場合でも、第二高調波発生による紫外光を用いる場合でも、基本波として可視レーザーを利用できるし、(2) 天然の同位体存在比が、質量数 85 のものが約 72%、87 のものが約 28% であり、同位体間の衝突による相互作用を見るのに経済的な元素であり、(3) 比較的低い温

度で十分な蒸気圧を持つので、衝突数を制御しやすいなどである。しかし、最も重要なことは、リドベルグ原子の衝突に関する松沢らの理論によれば、イオン・コアと高励起状態の電子の持つ影響

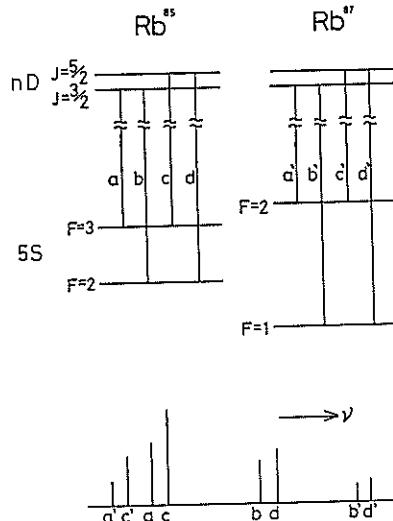


図 1. Rb の 2 光子吸収過程, 5S-nD 遷移。各 n (主量子数) について、質量数 85 の Rb と 87 の Rb のそれぞれに 4 本ずつの遷移があり、約 8 GHz の範囲に合計 8 本の遷移が現れる。レーザー分光の手法により、これらの遷移の中から、特定の同位体のものだけを選択的に励起する。

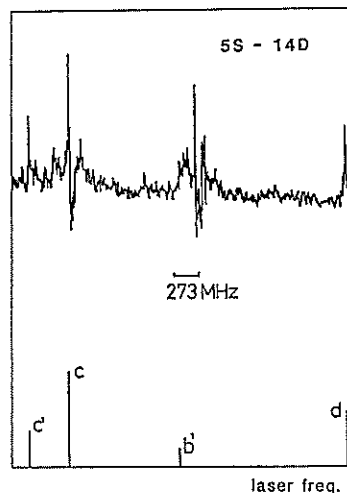


図 2. 連続発振色素レーザー (CR-599) を用いた Rb の原子ビームによる超高分解能分光スペクトル。遷移は、5S-14D の 2 光子吸収の一部。横軸はレーザー (可視光) の周波数。

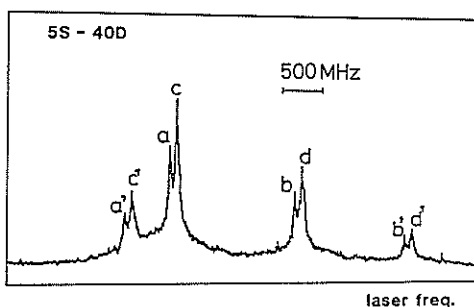


図 3. サーマイオニック検出器を用いた、連続発振色素レーザーによる 2 光子吸収スペクトル。遷移は 5S-40D である。図 2 の場合に比べると、セル中に封入された Rb 原子の気体を資料としているために、衝突によるスペクトルの広がりが顕著である。

を分離して考えることができるために、衝突現象そのものが比較的容易にスケールリング則に乗りやすく、Rb で得た結論を他の原子へ適用することに大きな問題はないと考えられたからである。

実験は、高励起状態の生成のために最適な方法の検討および衝突で起こる励起エネルギーの移乗の結果を検出する最も有利な方法の開発を準備段階とし、次に、問題となる過程の断面積の絶対測定を行なった。

### 1. 高励起リドベルグ原子の生成と検出

レーザー励起によって高励起リドベルグ状態を作る場合、取りうる方法が幾つかあるが、この実験では、(1) 2 光子過程を利用するものと、(2) 紫外光を発生して 1 光子過程を用いるものを実際に行なって比較し、最終的には (2) が衝突実験のために適切であると判断した。Rb の基底電子状態は 5S であるから、2 光子過程を用いると、レーザーによって作られる状態は  $nS$  か  $nD$  であり、1 光子吸収の場合  $nP$  である ( $n$  は主量子数)。図 1 に示したものは、5S- $nD$  遷移のダイアグラムで、二つの同位体が混在する場合、合計 8 本の遷移が基底状態の超微細構造の分裂 (約 8 GHz) の中に密集している。5S- $nP$  もこれと同様であり、5S- $nS$  は選択則から 8 本ではなく 4 本の遷移があるところだけ異なる。このような密集したスペクトルの中から、一方の同位体によるものだけを厳密に選択する場合、ドップラー効果によるスペクトルの広がりを打ち消すことのでき

る、2 光子吸収法が有利になる。

まず、真空中を一方方向に走る Rb 原子のビームと、連続発振の色素レーザー (CR-599) により高分解能 2 光子吸収のスペクトルを測定し、図 2 に示すような信号を得た。また、図 3 は、封じきりの Rb セル (サーミオニック検出器) を用いて測定した、衝突による広がりを持つ 2 光子吸収信号の例である。これからもわかるように、2 光子吸収によれば、二つの異なる同位体の一方だけを選択的に励起することができる。また、これらの実験から、2 光子過程で遷移の起きる確率を測定することができ、たとえば質量数 85 の Rb の 5S-30D 遷移について、 $2.5 \times 10^{-4} \text{ sec}^{-1} (\text{W/cm}^2)^{-2}$  という値が得られた。この値をもとに、2 光子過程を用いて、励起を行なうことが適当であるかどうかについての検討を行ない、原子ビームをもちいた衝突実験も必ずしも不可能ではないとの結論に達した。

一方、1 光子過程で励起を行なうことについても同時に検討をすすめた。実験は、YAG レーザー (MY-35) 励起のパルス発振色素レーザー (DL-18) の出力を非線型光学結晶により周波数逡倍して紫外光をつくり、これを励起源として行なった。この場合、パルス発振色素レーザーのスペクトル幅は、 $0.03 \text{ cm}^{-1}$  (1 GHz) で、フーリエリミットに近いものであるが、1 光子吸収であるため、原子の遷移のドップラー広がりによって異なる同位体の遷移が辛うじて識別出来る程度ではあった。しかし、なによりも十分な量のリドベルグ状態の原子を供給できることに大きな魅力があった。

次に、衝突による励起エネルギーの移乗が起きる確率の絶対値を求めるための方法についての検討を行い、結論として、圧力を制御することが、単位時間内に起こる衝突頻度を正確に求め得る点で、衝突断面積の測定としては最も定量性に富むと判断し、次節に述べる実験法を選択した。

### 2. 衝突によるエネルギー移乗の確率の測定

実験装置の概略を図 4 に示す。真空タンクの中に Rb のオープンがあり、この中で光励起、衝突を起こさせる。光励起には主としてパルス発振色

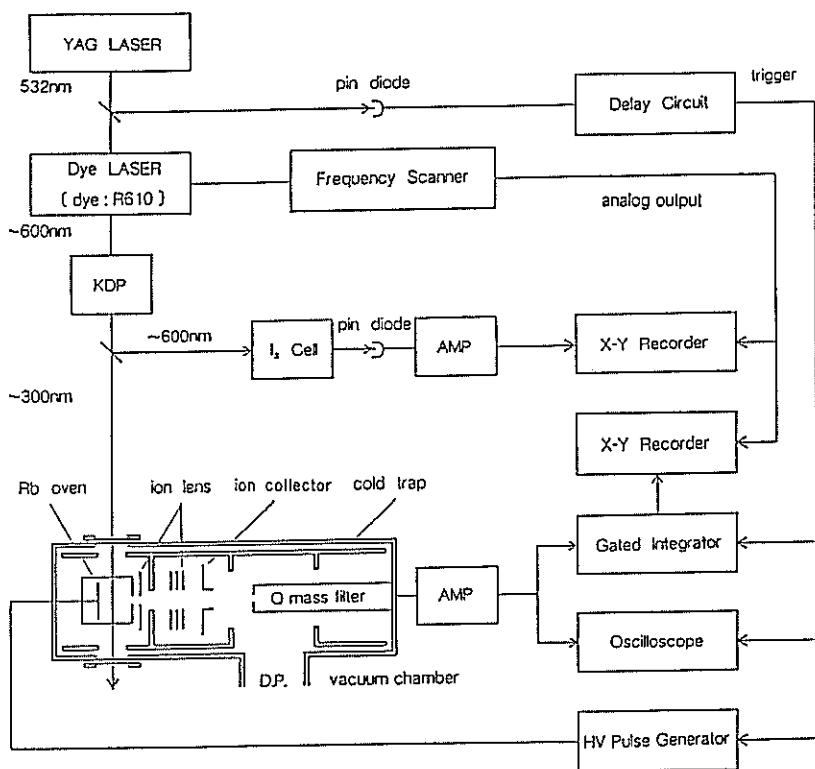


図 4. 衝突による同位体間のエネルギー移乗の確率を測定するための実験装置の概略。YAG レーザー励起の色素レーザー (パルス) の出力を非線型結晶を用いて、その周波数を2倍にし、真空タンク中の Rb オープン内に導く。オープン内では、リドベルグ状態の原子がレーザーにより生成された後、衝突により直接光励起されなかった同位体のリドベルグ状態もつくられる。光励起後、適当な時刻にこれらのリドベルグ原子をすべて電場をかけてイオン化し、オープンから引き出して質量分析を行う。

素レーザーの第二高調波の紫外光を用い、 $np$  状態のリドベルグ原子を作り出した。オープン内で高励起リドベルグ原子と基底状態の原子が衝突して、内部エネルギーを交換すると、レーザーで励起しなかった同位体も高励起状態になる。レーザーパルス入射後、適当な時間衝突を起こさせてから、オープン内の電極に短パルスの高電圧を与えて電場イオン化をおこなうと、この時励起状態にあった原子が総てイオンとなる。レーザーで直接励起した同位体のイオンの量と、他の同位体のイオンの量を、レーザー入射からイオン化までの時間の関数としてモニターすれば、問題となっている過程の起こる確率を知ることができる。電場イオン化によって生じたオープン内のイオンは、真空タンク中に引き出して質量数 85 のイオンと 87

のイオンとに分離した上でその量をモニターする。この目的のために四重極質量分析器を用いた。

イオン信号は、パルス紫外光の入射に同期してパルスの出てくるので、信号の S/N 比を改善するためにゲート付き積分器を用いた。

図 5 にこの実験で得られる典型的な信号を示した。ドップラー幅のために、8 本の遷移の分離は必ずしも良くないが、2 光子過程によるよりも良い S/N の信号が得られ、同位体を分離・検出するには十分である。なお、中央に質量数 85 の同位体による 4 本の遷移があり、87 の同位体による遷移が両側に 2 本ずつある。励起光の周波数を 87 の遷移に共鳴させ、87 のイオンの量を観測すると、衝突回数 (すなわち time delay) が増す

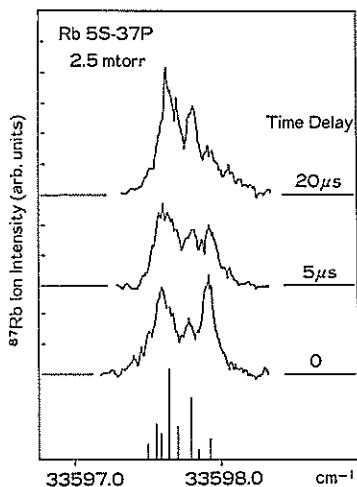


図 5. 5S-37P 1 光子吸収の場合の典型的スペクトル。質量数 85 の同位体をレーザー励起しても、87 の同位体の励起状態が現れ、同位体間でエネルギー移乗が起こっていることが証明される。また、光励起から電場イオン化までの時間 (Time Delay) によって、励起状態の同位体存在比が変化して行くのがわかる。十分時間がたつと、励起状態の同位体存在比は基底状態の存在比 (棒線) と一致する。なお、Time Delay の原点は、レーザーパルス入射から少し遅れたところに設定されている。

にしたがって減少する。一方、85 の励起状態をレーザー励起で作って、87 のイオンの量を観測すると、逆に増加する。十分時間がたつと、スペクトルはちょうど自然の同位体存在比から予想される様相を示す。これらの経緯を考えあわせると、同位体間でエネルギーの交換が行なわれていることは明らかである。なお、図は、5S-37P の遷移に対するものであり、オープンの温度測定からその圧力は 2.5 mtorr (誤差は 20% 以内) と決定された。

このようにして得られたデータの解析には、簡単なレート方程式を用いる。例えば、 $N$  を 35 の数密度、 $n$  を 82 の数密度とし、添字 0 を基底状態、1 を励起状態のものとして、

$$dn_1/dt = -kN_0n_1 + k'N_1n_0$$

にしたがって検出される 87 のイオンの量が変化すると考えて、 $k$  を求める。実際、 $n_1$  の時間変化の部分のみを取り出して、log プロットすると、

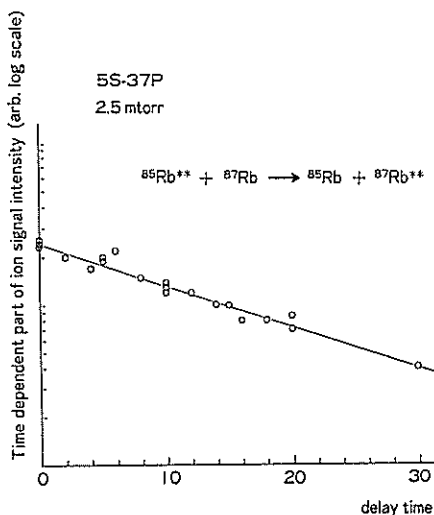


図 6. 図 5 で得られたデータから、励起状態の原子数の時間変化のみを取り出して見ると、指数関数的に変化していることがわかる。オープン内の蒸気圧を温度測定から求め、簡単なレント方程式に従ってこれを解析すると、エネルギー移乗の過程の断面積が求まる。

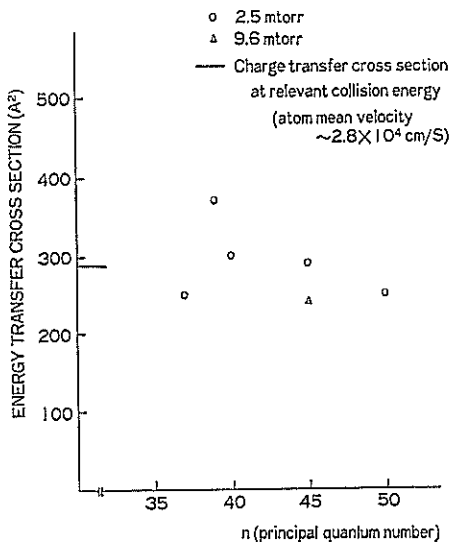


図 7. 主量子数  $n=50$  までのリドベルグ状態について、エネルギー移乗の断面積を測定した結果、リドベルグ原子のイオン・コアとの電荷交換反応から予測される値 (矢印) と非常に良く一致するものとなった。

図 6 のようになる。これから  $k$  が求まる。さらに  $k = \sigma \langle v \rangle$  から衝突の際に問題となる反応の起こる断面積 (確率に比例)  $\sigma$  を得る。ただし、 $\langle v \rangle$  は

衝突の相対速度の平均値であり、この実験の場合  $2.8 \times 10^4$  cm/s である。図 7 は、以上のような手続を踏んで得られた、 $n$  が 25 から 50 までの P 状態のリドベルグ原子について、これが基底状態の原子との衝突によってエネルギー交換を起こす断面積を示したものである。実験誤差の範囲で主量子数に対する依存性は認められなかった。さらに、断面積の測定値、 $250 \text{ \AA}^2$  は、Rb のイオンと基底状態原子との間の電荷交換反応の断面積と良い一致を示す。実際、Rapp らの共鳴的電荷交換の理論によって計算すると、上記の衝突速度の場合、断面積として  $290 \text{ \AA}^2$  が予測される。

高励起リドベルグ原子の関与する衝突は、フェルミによる圧力シフトについての研究以来、多くの研究者の興味を集めてきた。その理由は、リドベルグ電子の軌道がイオン・コアから非常に離れており ( $n=30$  程度で軌道の直径は  $10^{-5}$  cm にもなる)、またその束縛エネルギーは、非常に小さく (同様に、室温の熱エネルギー以下) 準「自由電子」として振る舞うので、低エネルギー衝突の非常に敏感な検出器となりうるからである。理論的には、このような衝突現象は、(1) 「自由電子」と標的、(2) イオン・コアと標的の衝突という二つの過程が独立にあるものと考えられる。これまでのほとんどすべての研究は、理論・実験を問わず (1) に注目したものであったが、我々の研究は (2) に焦点をあて、この理論的モデルが成立していることを定量的に確かめたものである。

同位体間のエネルギー移乗の実験的研究は、我々の知る限りでは、 $^4\text{He}$  の同位体を用いたものが一つ見受けられるだけである。結論としては今回の結果と同様のものが導かれており、先駆的な研究であるが、励起に放電のアフター・グローを使うなど、実験の条件としては必ずしも単純なものではなく、したがって結果の解釈はいくつかの仮定に基づくものであり、また測定したリドベルグ状態も  $n=9$  のみであった。今回の実験では、より直接的な方法を考案することにより、実験の解釈に不明瞭な点を残すことなく、多くの始状態について、徹底的な測定を行なうことができた。さらに、He の同位体に比べると、Rb の同位体のエ

ネルギー単位の構造は互によく似ており、共鳴的エネルギー交換の非常に良い例となっている。Rb を用いたことにより、他の元素の場合にも拡張しうる一般的な結論が得られたことは、大きな意義があると考えられる。

### 3. 結 論

この実験から、高励起リドベルグ原子と、同種の基底状態の原子の間の内部エネルギーの交換が、イオンと中性原子の間の電荷交換と本質的に同一のものであると結論されたことは重要である。リドベルグ状態の電子はイオン・コアから遠く離れた軌道にあり、ほとんど自由電子ともいうことのできる程度の束縛エネルギーしか持っていない。したがって、他の中性粒子との衝突が起きるときは、確率的に、準自由電子との衝突とイオン・コアとの衝突とが独立に起きていると考えてよい。電荷交換反応に注目した場合、電子は傍観者 (スペクテーター) として振る舞う。これを系統的にまた直接的に実験で確かめたのは、これが最初である。

Rb 原子で得た結論を他の原子に拡張してあてはめる場合のスケール則は、共鳴的電荷交換について、

$$\sqrt{\sigma} = -A \cdot \ln(v) + B$$

と書けることが知られている。ただし、 $I$  をその原子のイオン化ポテンシャルとして、 $A$  は  $\sqrt{I}$  に比例し、 $B$  もほぼ  $\sqrt{I}$  に比例する。Rb 原子のイオン化ポテンシャルは、 $4.2 \text{ eV}$ 、U 原子は  $6.1 \text{ eV}$  であるから、数値的にも両者は大差がない。したがって、ウランについても、リドベルグ状態を経由して同位体分離を行なうときは、衝突の相対速度が  $10^5 \text{ cm/s}$  程度のとき、数  $100 \text{ \AA}^2$  程度の断面積で同位体間のエネルギー移乗が起こると予想される。また、もし適当な方法で、衝突速度を増加すれば、その  $\log$  の 2 乗で断面積が小さくなることも予想される。これらをもとにして、効率的な同位体分離の方法の検討を行なうことが可能となろう。

## 謝 辞

本研究は、世界的にも初めての試みとして、数々の実験的困難に打ち勝って完成することができたもので、比較的長い期間を必要とした。このような興味深い研究に着手することを可能にし、今日まで辛抱強くお待ちいただいた、日産科学振興財団の各位に、研究者一同、心からの感謝を捧げるものである。また、大学院学生として実験に携わった、河村信一郎、西沢克志、他の各氏の協力に負う所が少なくなかったことも付け加えておかなければならない。

## 研究発表

1. The 9th International Conference on Atomic Physics, Seattle, 1984.
2. S. S. Kano, Y. Taira, H. Takuma, K. Nishizawa and K. Sakurai, to be published in Phys. Rev. A.