

第一原理計算による THz パラメトリック増幅用 BBO 結晶のフォノン解析

研究代表者名

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・猿倉 信彦

研究分担者名

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・清水 俊彦

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・斉藤 繁喜

1. はじめに

テラヘルツ波は医療、指紋分析、環境、半導体など様々な産業分野への応用から理学まで幅広い分野から注目されているが、高強度のテラヘルツ源がないことが利用進展の妨げになっている。そこで、本研究では、増幅器や発振機もふくむ光学的パラメトリックデバイスの実現を目指し、 β -BBO のテラヘルツ領域における光学特性について調べた。

2. 研究経過

THz 領域における β -BBO 結晶の透過スペクトルを様々な方位角について測定した。その結果、方位角 40 度から 60 度において 0.65 THz 付近で強い吸収が観測された。これは低振動数のフォノンによるものと考えられる。これを証明するために、第一原理計算に基づく β -BBO 結晶の振動モードの計算を行った。

3. 研究成果

計算の結果、26.97、26.98 cm^{-1} 付近で双極子モーメントが c 軸に対してそれぞれ 46.1、61.9 度であることがわかった。これは、これらの角度において、0.65 THz 付近で強い吸収が見られることを示しており、実験で見られた吸収が低振動数のフォノンによることが確かめられた。

4. まとめ

β -BBO 結晶は透過率の方位角依存性からテラヘルツ領域において $\Delta n/n=0.12\pm 0.02$ という高い複屈折性を持つことを明らかにした。そしてこの透過率の方位角依存性は、透過スペクトルの方位角依存性および第一原理計算に基づくフォノン解析の結果から、フォノンの振動によるものであることを明らかにした。このことは、BBO 結晶がパラメトリックデバイスになりうることを示す、大変興味深い結果が得られた。

熱水環境模擬条件下での固-液反応における同位体効果に関する研究

研究代表者名

京都大学・原子炉実験所・藤井俊行

研究分担者名

京都大学・原子炉実験所・山名 元、
京都大学・原子炉実験所・上原章寛、
東北大学・金属材料研究所・山村朝雄

1. はじめに

原子力学分野において、化学交換反応にもとづく同位体分離法は、非常に安価な統計的同位体分離法として広く知られた方法である。化学交換法の同位体分離係数は、理論上、相対的な同位体質量の差に律されている。しかしながら重元素の同位体効果には従来の質量に依存する同位体効果以外にも、質量に依存しない同位体効果が存在することが明らかになってきた。すなわち、原子核の大きさや形、核スピンなどの情報が伝搬して同位体効果を引き起こすというものである。現在、原子力学だけではなく、環境学や地球・宇宙科学の分野でも、化学が引き起こす異常同位体効果が注目されている。

このことを受け、申請者は環境を模擬するような実験条件下で同位体効果は起こるか、またその同位体効果に異常同位体効果が見られるかという発想に至った。本研究は、水環境下での化学平衡反応における同位体効果を研究するものである。

2. 研究経過

SrCO_3 – Na_2CO_3 系、および $\text{Sr}(\text{OH})_2$ – NaOH 系について、298K の温度条件下にて不飽和実験を行い、固液平衡に到達した両相のストロンチウムの同位体比変動を評価した。同位体分析はマルチコレクター表面電離型質量分析計 (Finnigan, MAT262) を用いて行った。Sr 錯体の構造最適化とその分子振動エネルギーの計算は、Gaussian03 プログラム中にある、従来の Hartree-Fock 近似、もしくは密度汎関数理論を用いて行った。

3. 研究成果

同位体濃縮係数 $\alpha_{86,m}$ を式 1 にて定義する。

$$\alpha_{86,m} = \frac{([\text{mSr}]/[{}^{86}\text{Sr}])_{\text{液相}}}{([\text{mSr}]/[{}^{86}\text{Sr}])_{\text{固相}}} \quad (1)$$

本試験では、Sr のほぼ全量が固相を占めるため、固相の Sr 同位体比は、開始物質の同位体比に等しい。濃縮係数 $\varepsilon_{86,m}$ を式 2 にて定義する。

$$\varepsilon_{86,m} = \alpha_{86,m} - 1 \quad (2)$$

水酸化物系では 1% を超える同位体分別は見つからず、測定誤差を考慮するとその分別効果について言及することは難しい結果となった。炭酸系では 1% を超える同位体分別がみられ、液相に重い同位体が濃縮することが分かった。量子化学計算により Sr 錯体の分子振動解析を行い同位体濃縮係数を評価したところ、多段の同位体分別が起こっている可能性が示唆された。

4. まとめ

自然界での炭酸塩環境下 (海洋試料) における同位体比の変動が近年調査されており、 $\varepsilon_{86,m}$ に関して 0.4% 程度の同位体分別が確認されている。本試験結果は、同位体分別の大きさが自然界にて観測されるものより数倍から 10 倍程度大きい、濃縮方向は報告結果と同じであることが分かった。

光ガルバノ分光法による鉄鋼中の窒素、酸素分析

研究代表者名

名古屋大学・エコトピア科学研究所・北川 邦行

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・松田 秀幸

1. はじめに

酸素、窒素などの鋼中ガス成分を発光分光法で分析しようとする場合、その分析に用いられる発光線の波長は、酸素が 130.2 nm、窒素が 149.4 nm と真空紫外領域にある。真空紫外光は大気中の酸素により大きな吸収を受けるため、分析のための光路は排気もしくは窒素やアルゴンなど不活性ガスで置換する必要があり、分光には大型の真空分光器が必要となるため鉄鋼製造現場での酸素、窒素のオンサイト発光分析は困難な状況にあった。ここで可視から近赤外域のレーザー光を使用する光ガルバノ分光法は、簡単な装置で高感度検出が可能であるため、酸素や窒素であっても大気中で高感度分析が行える可能性がある。そこで本研究では、光ガルバノ分光法による鉄鋼中の窒素、酸素分析に関して研究を行った。

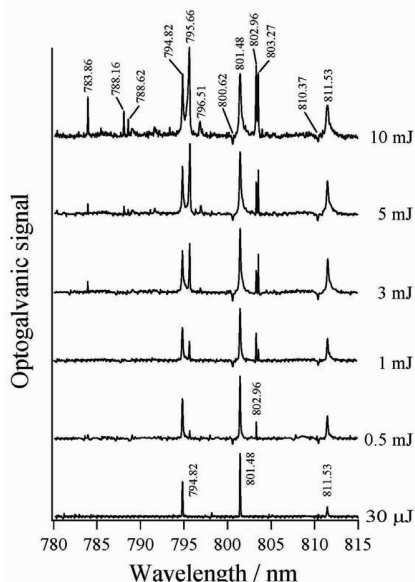


図 測定したアルゴンの光ガルバノスペクトルの一例。励起用パルスレーザー1発あたりのエネルギーを $30 \mu\text{J}$ から 10mJ まで変化させて測定した。

2. 研究経過

グリム型グロー放電管を用いて光ガルバノ分光法により鉄鋼中の窒素、酸素の固体直接分析を行うために、はじめにこのグロー放電管のプラズマガスであるアルゴンについて、励起用パルスレーザーの波長を 735 から 850 nm の範囲で変化させた場合について、どの波長でアルゴン原子の光ガルバノ信号が観測できるか、またレーザーの出力を変化させた場合観測される光ガルバノスペクトルがどのように変化するかを調べた。

3. 研究成果

観測された光ガルバノスペクトルの一例を図に示す。光ガルバノスペクトルには上向きと下向きのピークが認められ、レーザーのパルスエネルギーが増加するに従い新しいピークが多数出現し、その強度が増大した。これらのピークを帰属したところ、パルス 1 発あたりのエネルギーが $30 \mu\text{J}$ の時は、下準位が準安定状態のアルゴンの発光スペクトルのところに上向きのピークが観測され、レーザーのエネルギーが増加すると、励起レーザー光の 2 光子吸収による光ガルバノスペクトルが多数観測された。またアルゴンの発光スペクトルのうち下準位がアルゴンの基底状態に対して光学許容であるもののいくつかの波長では下向きの光ガルバノピークとなることもわかった。アルゴングロープラズマはレーザー光をレンズで集光しなくとも励起レーザーのパルスエネルギーを少々上げることにより多数の 2 光子励起光ガルバノピークを観測することが出来るため（詳しい解析の結果、アルゴンで

は共鳴 2 光子吸収による光ガルバノ効果が起こっていることが判明）、これらのアルゴンの光ガルバノピークは可変波長レーザーの波長を確認するための波長マーカーとして利用可能である。

4. まとめ

今後の予定としては、このアルゴンの場合と同様の手順で純鉄や導電性のマグネタイト、窒化鉄などの光ガルバノスペクトルを測定し、鉄および酸素、窒素原子の光ガルバノスペクトルの特性を調べ、それぞれの元素の分析に最適な光ガルバノピークの波長や励起レーザーのエネルギーなどを決定し、研究テーマである光ガルバノ分光法による鉄鋼中の窒素、酸素分析の研究へと発展させる予定である。