

平成 22 年 5 月 1 日現在

研究種目： 若手研究(B)  
 研究期間： 2008 ~ 2009  
 課題番号： 20760592  
 研究課題名 (和文) 同位体選択的レーザー共鳴イオン化イオン源の開発  
 研究課題名 (英文) Development of isotope-selective laser ion source based on resonant ionization

## 研究代表者

富田 英生 (TOMITA Hideki)  
 名古屋大学・大学院工学研究科・助教  
 研究者番号：20432239

## 研究成果の概要 (和文)：

発振線幅を狭帯域化した高繰り返し率チタンサファイアレーザーを用いた 2 光子吸収共鳴イオン化に基づく同位体選択的イオン源の開発を行った。Si 安定同位体のドップラーフリー高分解分光実験により、同位体選択的イオン化を実証した。本手法は高純度同位体イオン源として、短半減期核種のみならず長半減期核種に対しても適用可能と期待される。

## 研究成果の概要 (英文)：

Resonant ionization via two-photon excitation by high-repetition rate, narrow band-width Ti:Sapphire laser was developed for the isotope-selective laser ion source. The feasibility of a Doppler free two-photon spectroscopy inside a hot cavity was demonstrated. The isotope shift and hyperfine structure of the transition from  $3s^2 3p^2 \ ^3P$  ( $J=0, 1, 2$ ) to  $3s^2 3p4p \ ^3P$  ( $J=0, 1, 2$ ) in silicon could be resolved using a seeded Ti:sapphire laser operating at a repetition rate of 7 kHz. This new method will allow highly pure ion source of not only ultra short lived radio isotopes, but also long-lived radio isotopes.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,900,000	870,000	3,770,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学 ・ 原子力学

キーワード：レーザー分光、同位体、イオン源

## 1. 研究開始当初の背景

元素特有のエネルギー準位に対応した波長を持つレーザーによるレーザー共鳴イオン化は、核破砕反応により生成される短寿命放射性核種の核分光や、長半減期放射性核種の

極微量分析のためのイオン源として利用されている。このようなレーザー共鳴イオン化イオン源 (Resonant Ionization Laser Ion Source : RILIS) には波長可変レーザーが必須であるため、従来は色素レーザーが用いられ

てきたが、長時間の安定動作には色素の劣化を防ぐ為のメンテナンスが不可欠であった。一方、広範囲で波長可変であり、かつ固体利得媒質による高い安定性を兼ね備えている高繰り返し率チタンサファイアレーザーを用いた RILIS 開発が近年盛んに行われており、長時間安定動作が可能になってきた。しかし、これらで用いられてきた波長可変レーザーでは、発振スペクトル線幅が同位体ごとに異なるエネルギー準位の差（同位体シフト）と比較して広帯域であったため、元素選択的なイオン源であった。

## 2. 研究の目的

本研究では、高繰り返し率チタンサファイアレーザーの発振線幅を注入同期法により狭帯域化し、それを用いた同位体選択的レーザー共鳴イオン化イオン源を開発することを目的とした。ここで、同位体シフトを利用して同位体選択的なイオン化を行うには、試料原子の速度に起因するドップラー拡がりの効果を同位体シフト以下に抑制する必要がある。そこで、ドップラーフリーの2光子吸収励起・イオン化を採用し、本手法に適したスキームの実現性を評価する。以上により、高い純度で着目同位体のみを選択的得られる同位体源が実現できる。

## 3. 研究の方法

(1) 図1に高繰り返し率・注入同期チタンサファイアレーザーの体系図を示す。注入同期は、強度は小さいが発振線幅の狭いレーザー（マスターレーザー）を狭帯域化させるレーザー（スレーブレーザー）に注入すると、マスターレーザーの発振と一致する縦モードが、スレーブレーザーにおいて優先的に発振する。これにより狭帯域でかつ高強度のレーザーを得ることが可能となる。本研究では、マスターレーザーとして外部共振器型半導体レーザーを用いた。これをチタンサファイアレーザーによる損傷を防ぐために光学アイソレーターを通過させた後、アウトプットカップラーM1よりリング型共振器に入射した。連続発振である半導体レーザー光を共振器に蓄積するために、共振器ミラーM4に取り付けられたピエゾ素子により、共振器長を制御し、共振器の安定化を行った。このようにして狭帯域化された高繰り返し率・チタンサファイアレーザーについて、同位体選択的レーザー共鳴イオン化用のレーザー光源としての特性を評価した。

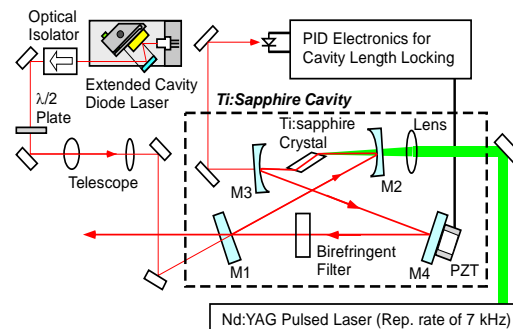


図1 高繰り返し率・注入同期チタンサファイアレーザーの体系図

(2) 次に、Si安定同位体を一例として、注入同期チタンサファイアレーザーを用いたドップラーフリー2光子吸収共鳴イオン化分光に基づく同位体選択的レーザー共鳴イオン化の実験的検証を行った。図2に実験で用いたSiの2光子吸収イオン化スキームを示す。円筒状グラファイトを用いたオーム加熱原子源にてSi試料の原子化を行い、繰り返し率7kHzの注入同期チタンサファイアレーザーの2倍波（波長408nm、出力60mW、発振線幅40MHz）を入射した。2光子吸収により共鳴励起・イオン化したSiイオンは、イオン光学系により四重極質量分析計へ輸送され、チャンネルロンにより計数された。

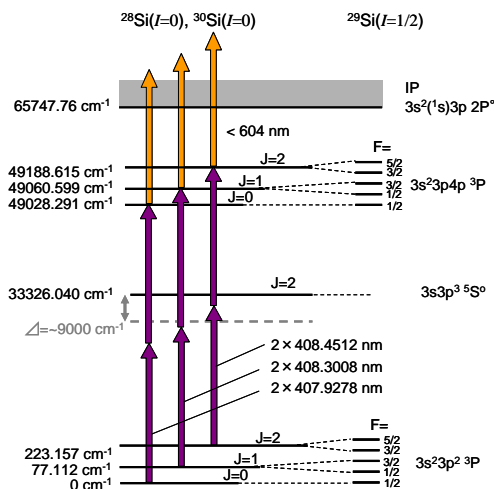


図2 Siの2光子吸収励起・イオン化スキーム

## 4. 研究成果

(1) 注入同期チタンサファイアレーザーの発振特性は、繰り返し率約7kHzで出力約2W・発振線幅約20MHzであり、共鳴イオン化に対し十分な強度であることがわかった。また、複屈折フィルターを用いることで、より広い範囲で高い注入同期効率を確保できることがわかった（図3参照）。

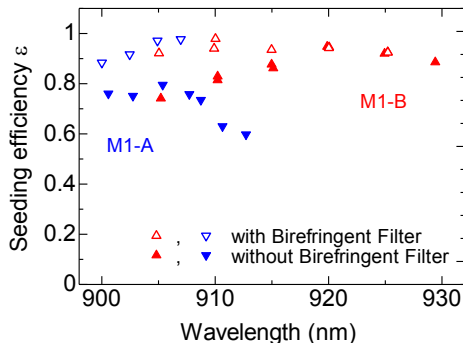


図3 注入同期効率の波長依存性

(2) Si 安定同位体のドップラーフリー高分解分光により得られたスペクトルを図4に示す。原子源中で熱運動する Si 原子のうち、レーザー方向に速度成分を持たないもののみが、イオン化するため、ドップラーフリー高分解分光が可能となる。レーザー波長を挿引すると、 $^{28}\text{Si}$ ,  $^{29}\text{Si}$ ,  $^{30}\text{Si}$  (天然存在比 92%, 4.7%, 3.1%) それぞれの共鳴波長において同位体選択的なイオン化が行われることを確認された。ここで、各ピーク強度は  $^{28}\text{Si} : ^{29}\text{Si} : ^{30}\text{Si} = 92\% : 4.5\% : 3.5\%$  であり、天然同位体比と一致した。さらに、 $3s^2 3p^2 \ ^3P (J=0, 1, 2) \rightarrow 3s^2 3p4p \ ^3P (J=0, 1, 2)$  遷移における同位体シフトはおよそ 150 MHz、スペクトル線幅は 80 MHz であることが明らかとなった。ここで、光学的同位体選択性  $S_{\text{opt}}$  は、以下の式で定義され、

$$S_{\text{opt}} \equiv (\Delta\Gamma / \Delta\nu)^2$$

$\Delta\nu$  はスペクトルの線幅、 $\Delta\Gamma$  は同位体シフト幅である。図4では、 $\Delta\Gamma = 150\text{MHz}$ ,  $\Delta\nu = 80\text{MHz}$  であるから、 $S_{\text{opt}} = 3.5$  であった。数 GHz 程度の同位体シフトを持つ元素に対して、または同位体選択的多段励起・イオン化を行うことで、共鳴イオン化における同位体選択性として  $10^3$  が実現できる可能性が示された。

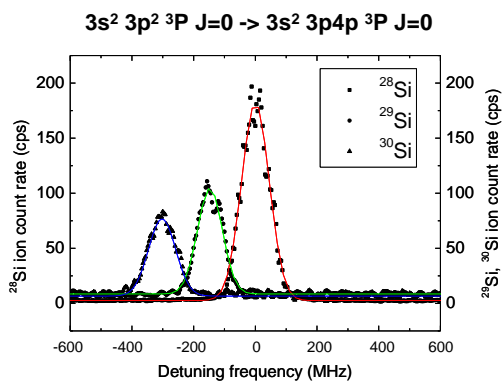


図4 Si の2光子吸収スペクトル

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

① Hideki Tomita, Christoph Mattolat, Sebastian Raeder, Seiji Sasada, Yuki Higuchi, Kunisuke Takezawa, Takayoshi Muramatsu, Tetsuo Iguchi and Klaus Wendt, “Development of laser ablation assisted resonant ionization mass spectrometry for isotope analysis”, *Hyperfine Interactions*, 査読有, 196, (2010), 169-176.

② H. Tomita, Ch. Mattolat, Th. Kessler, T. Muramatsu, K. Wendt, K. Watanabe, and T. Iguchi, “Tunability of Injection Seeded High-Repetition Rate Ti:Sapphire Laser Far Off the Gain Peak”, *AIP Conference Proceedings*, 査読有, 1104, (2009), 195-199.

③ T. Kessler, H. Tomita, C. Mattolat, S. Raeder, and K. Wendt, “An Injection-Seeded High-Repetition Rate Ti:Sapphire Laser for High-Resolution Spectroscopy and Trace Analysis of Rare Isotopes”, *Laser Physics*, 査読有, 18, (2008), 842-849.

[学会発表] (計7件)

① 富田英生, Christoph Mattolat, Sebastian Raeder, Tina Gottwald, Sebastian Rothe, Klaus Wendt, 井口哲夫, “高繰り返し率・狭帯域チタンサファイアレーザーを用いた Si 安定同位体の選択的イオン化”, 日本原子力学会 2010 年春の年会, 2010 年 3 月 26 日, 茨城大学水戸キャンパス

② 竹澤邦将, 富田英生, Christoph Mattolat, Sebastian Raeder, Klaus Wendt, 河原林順, 井口哲夫, “レーザーアブレーション共鳴イオン化質量分析への高繰り返し率チタンサファイアレーザーの適用”, 第8回同位体科学研究会, 2010 年 3 月 5 日, 産業総合技術研究所 臨界副都心センター

③ 富田英生, “Si 安定同位体インソース共鳴イオン化分光”, 6th International Workshop on “Physics with Stopped and Slow Radioisotope Beams” (第6回 停止・低速不安定核ビームを用いた核分光研究会), 2010 年 3 月 2 日, 東京工業大学蔵前会館ロイヤルブルーホール

④ Hideki Tomita, Christoph Mattolat, Thomas Kessler, Sebastian Raeder, Seiji Sasada, Klaus Wendt, Yuki Higuchi, Takayoshi Muramatsu and Tetsuo Iguchi, “Resonant Ionization Spectroscopy for Trace Isotope Analysis”, VIII International Workshop APPLICATION OF

LASERS AND STORAGE DEVICES IN ATOMIC NUCLEI RESEARCH -Recent Achievements and Future Prospects-, 2009年6月24日, Adam Mickiewicz University, Poznan, Poland

⑤ 村松圭芳、富田英生、河原林順、井口哲夫, “共鳴イオン化のための注入同期チタンサファイアレーザーの発信特性”, 日本原子力学会中部支部第40回研究発表会, 2008年12月9日, 名古屋大学

⑥ H. Tomita, Ch. Mattolat, Th. Kessler, T. Muramatsu, K. Wendt, K. Watanabe and T. Iguchi, “Tunability of Injection Seeded High-Repetition Rate Ti:Sapphire Laser Far Off the Gain Peak”, The 4th International Conference on Laser Probing, 2008年10月9日, Nagoya University

⑦ 富田英生、村松圭芳、クリストフ マトラット、トーマス ケスラー、クラウド ベント、渡辺賢一、井口哲夫, “高繰り返し率狭帯域チタンサファイアレーザーの短寿命核ビーム源への応用”, 2008年秋季 第69回応用物理学学会学術講演会, 2008年9月2日, 中部大学

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

富田 英生 (TOMITA Hideki )  
名古屋大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号: 20432239