

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25707020

研究課題名(和文) 極微量ラドンの選択的な除去を目的とした狭線幅ナノ秒パルス真空紫外レーザーの開発

研究課題名(英文) Development of a narrow linewidth ns-pulsed vacuum ultraviolet laser for the selective removal of ultratrace radon

研究代表者

岩田 圭弘 (IWATA, Yoshihiro)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：20568191

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,500,000円

研究成果の概要(和文)：キセノンを用いた暗黒物質探索実験において、ラドンは主なバックグラウンド源の一つである。本研究では、キセノン中に含まれるラドンを選択的に共鳴イオン化して除去することを目指し、共鳴四波混合を用いて高出力・狭線幅・波長安定性に優れたナノ秒パルス真空紫外レーザーを開発した。また、共鳴イオン化技術を不純物クリプトン分析に適用し、XMASS検出器のキセノンガスに含まれるクリプトン濃度は測定誤差7%で約100 pptと得られた。

研究成果の概要(英文)：Radon is one of the major background sources for dark matter search using xenon. To selectively remove radon atoms by resonance ionization, a ns-pulsed vacuum ultraviolet laser with high-power, narrow linewidth and high wavelength stability was developed using the four-wave mixing technique. Besides, the resonance ionization technique was applied to the analysis of krypton impurity. Krypton concentration in the xenon gas sample taken from the XMASS detector was obtained to be about 100 ppt with a measurement error of 7%.

研究分野：数物系科学

キーワード：ラドン 共鳴イオン化 真空紫外レーザー 光パラメトリック発生 暗黒物質 宇宙物理

1. 研究開始当初の背景

これまでの天体観測等の結果から暗黒物質の存在はほぼ明らかとなっており、暗黒物質の直接探索に向けた観測が世界各地の地下実験室で活発に進められている。神岡宇宙素粒子研究施設で行われている XMASS 実験では液体キセノン (Xe) シンチレーション光を利用しており、Xe の持つ外来線に対する自己遮蔽能力を活かした極低バックグラウンド (BG) 環境が構築されている。

XMASS 検出器の主な内部バックグラウンド源であるラドン (^{222}Rn) はウラン系列の放射性不純物であることから、バックグラウンドの低減には Xe ガスを循環させて極微量含まれる Rn を連続的に除去する技術が必要不可欠である。活性炭を用いた物理吸着では Rn とともに主成分 Xe が大量に吸着され、連続的な Rn 除去が困難であることが判明しており、Rn を選択的に除去する手法の開発が待たれている。

2. 研究の目的

本研究では、図 1 のとおり Xe ガス循環ラインに狭線幅のレーザーを照射し、不純物 Rn のみ選択的に共鳴イオン化して電場ドリフトにより除去することを考える。

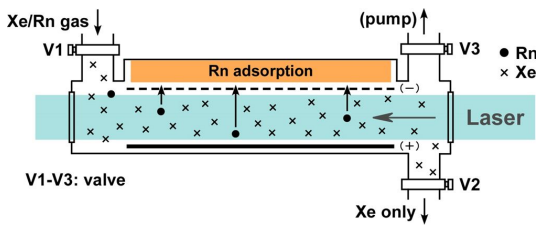


図 1 狭線幅レーザーを用いた Rn 選択的除去の概念図

レーザー照射領域を稼ぐため、Rn 原子の共鳴イオン化には図 2 の 1 光子で共鳴励起させるスキームを用いる必要がある。波長 145.2 nm は真空紫外 (VUV) 領域となり、Rn を効率良く 1 光子励起させるため高出力・狭線幅・波長安定性に優れたナノ秒パルス VUV レーザーを開発することが本研究の主な目的である。

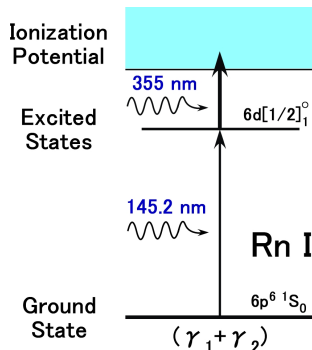


図 2 1 光子励起による Rn 原子の共鳴イオン化スキーム

3. 研究の方法

レーザー光の波長変換には BB0 等の非線形光学結晶が使用されることが多いが、波長 145.2 nm の VUV 光を生成することはできない。本研究では、図 3 の共鳴四波混合を利用した。図 4 に VUV 光生成のセットアップを示す。

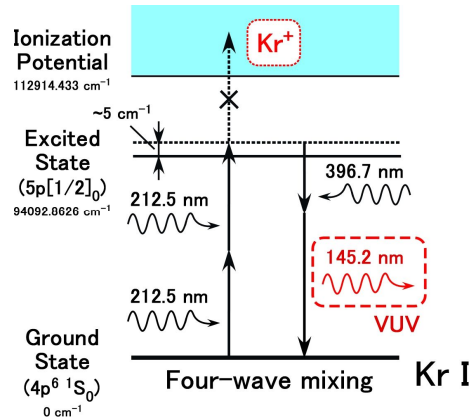


図 3 共鳴四波混合による VUV 光生成

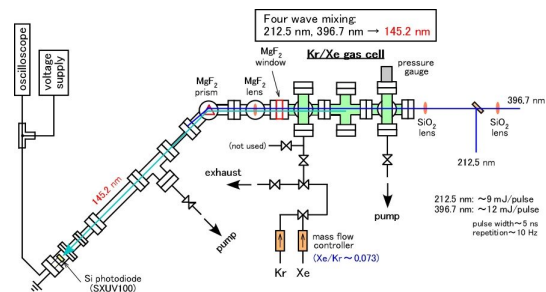


図 4 VUV 光生成のセットアップ

波長 212.5 nm 及び 396.7 nm のナノ秒パルスレーザー (ともにパルス幅 5 ns, 繰り返し 10 Hz) をオーバーラップさせて Kr/Xe 混合ガスセルに集光照射すると、図 3 の過程によりガスセル内のクリプトン (Kr) 励起原子から Rn の 1 光子励起波長 145.2 nm の VUV 光が放出される。ガスセルに Xe ガスを入れて混合比 Xe/Kr を約 0.073 に調整することで、共鳴四波混合 : 212.5 nm, 396.7 nm 145.2 nm の位相整合がとれて VUV 光出力が増加する。

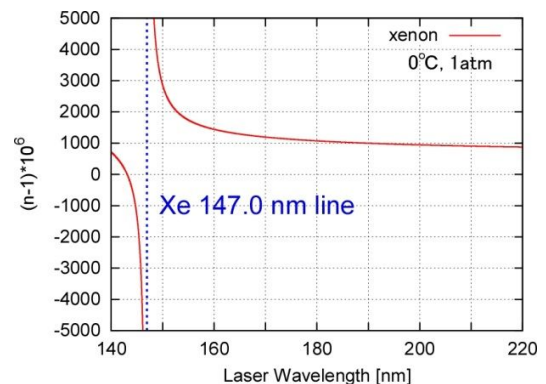


図 5 Xe 屈折率の波長依存性

これは、生成される VUV 光の波長が Xe 原子の吸収線（波長 147.0 nm）より若干短いことから、VUV 光の波長 145.2 nm における Xe 屈折率が小さくなるためである（図 5）。さらに、波長 212.5 nm を Kr 原子の 2 光子励起波長より若干短波長に（2 光子のエネルギーで 5 cm^{-1} 程度大きく）調整することで、Kr 原子の共鳴イオン化に起因する局所的な位相ずれを抑制し VUV 出力の低下を抑制できる。入射パルスレーザー 2 本のうち波長 396.7 nm については Nd:YAG 第 3 高調波（波長 354.8 nm）を励起光とする光パラメトリック共振器で波長 632.4 nm のパルスレーザーを生成し、Nd:YAG 基本波（波長 1064.4 nm）との和周波発生により生成した。一方で、波長 212.5 nm については波長安定性を得るため、図 6 に示す共振器を組まない光パラメトリック発生（OPG）光学系により波長 530.1 nm のパルスレーザーを生成し、Nd:YAG 第 3 高調波との和周波発生により生成することとした。

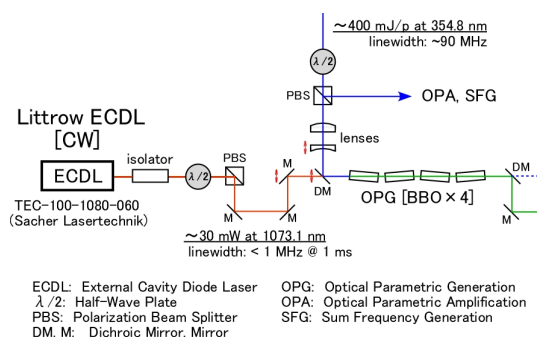


図 6 OPG 光学系のセットアップ

Kr/Xe 混合ガスセル内で生成した VUV 光をフッ化マグネシウム (MgF_2) レンズで平行光にして、 MgF_2 正三角形プリズムで入射光から分離し、シリコン (Si) フォトダイオードで検出した。

4. 研究成果

波長 212.5 nm のパルスレーザー生成に図 6 の共振器を組まない OPG 光学系を用いたことで、フーリエ限界(パルス幅 5 ns で約 90 MHz)レベルの狭線幅が得られ波長安定性が改善したとともに、出力についても短時間の変動が減少し安定性が向上した。

出力約 9 mJ/pulse の波長 212.5 nm 及び出力約 12 mJ/pulse の波長 396.7 nm パルスレーザーを Kr/Xe 混合ガスセルに入射したときに得られた Si フォトダイオード出力のオシロスコープ波形を図 7 に示す。赤線が入射レーザー 2 本で VUV 光を生成した場合で、緑及び青線は入射レーザーのいずれか 1 本を入射した場合のバックグラウンドを表す。赤線から緑及び青線を差し引いた成分が波長 145.2 nm の VUV 光に相当する。Si フォトダイオードのキャリブレーション結果と比較して VUV 出力は約 $20 \mu\text{J/pulse}$ と得られ、Rn 原子の 1 光子励起に十分な出力であると考えられる。

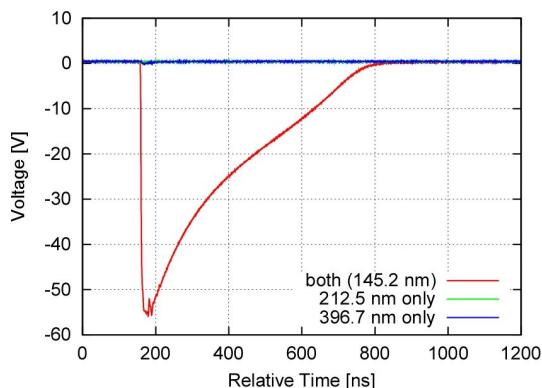


図 7 Si フォトダイオード出力のオシロスコープ波形

次に、VUV 出力の損失を抑えるため MgF_2 正三角形プリズムを外して VUV レーザーを飛行時間型質量分析計 (TOF-MS) に導入し、反対側からイオン化用の Nd:YAG 第 3 高調波を導入して空気中の Rn 共鳴イオン化測定を試みたところ、Kr/Xe 混合ガスセルを透過した波長 212.5 nm 入射光の散乱に起因するバックグラウンドが大きく、Rn 共鳴イオン化の有意な信号は観測されなかった。一方で、 MgF_2 正三角形プリズムにより VUV 光を分離した状態で TOF-MS に導入した場合は、波長 145.2 nm の VUV レーザーと波長 354.8 nm のイオン化用レーザーの光軸調整に精度が要求されるものの S/N 比が大きく向上するため Rn 共鳴イオン化信号の観測が期待される。

本研究で開発した波長 145.2 nm の VUV レーザーは Rn 原子の 1 光子励起用であるが、共鳴四波混合による VUV 光生成（図 3）の入射光である波長 212.5 nm のパルスレーザーは波長を Kr 原子の 2 光子励起波長に（光子エネルギーを 2.5 cm^{-1} 小さく）微調整することで、試料ガス中の Kr 濃度分析に適用することが可能である。XMASS 実験において、 ^{85}Kr は ^{222}Rn とともに主な内部バックグラウンド源であることから、Xe ガス中に ppt レベル含まれる不純物 Kr の濃度分析に対するニーズが高い。そこで、2010 年 12 月 9 日に XMASS 検出器の気相から採取された Xe ガス試料に対して、図 8 のセットアップにより不純物 Kr

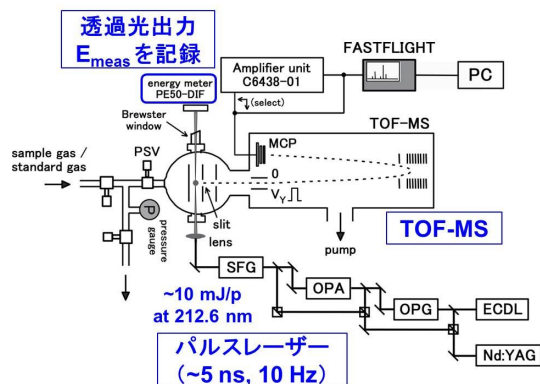


図 8 Kr 濃度分析のセットアップ

の濃度測定を行った。試料ガス圧を3-4気圧に調整しマスフローコントローラにより流量を制御した状態で、試料ガスの一部を超音速分子線バルブ(PSV)からTOF-MSに導入した。Kr原子の共鳴イオン化に用いる波長212.6nmのパルスレーザー生成には図6のOPG光学系を利用した。

得られた質量スペクトルを図9に示す。赤線がレーザー波長をKr原子の2光子励起波長に合わせた時のデータで、青線で示した非共鳴波長時のデータとの差分がKr共鳴イオン化信号である。

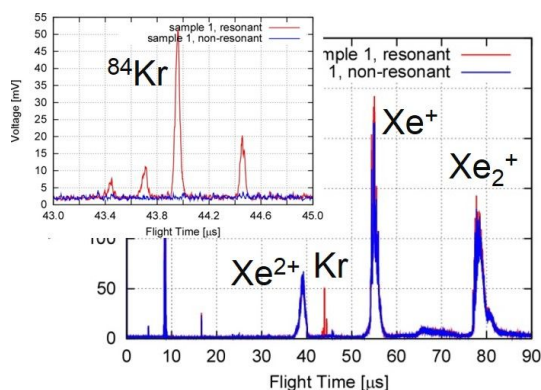


図9 Xeガス試料に対する測定結果

主成分Xe由来のイオン信号と干渉することなく、Kr共鳴イオン化の質量スペクトルが観測された。図10に濃度0-50pptのKrを含むアルゴン(Ar)ガスを用いたキャリブレーション結果を示す。本研究で使用したTOF-MSの特性として主成分がXeの場合はArと比較してKr検出感度が約1/2に低下することを考慮し、Xeガス試料中のKr濃度は約100ppt(測定誤差約7%)と得られた。

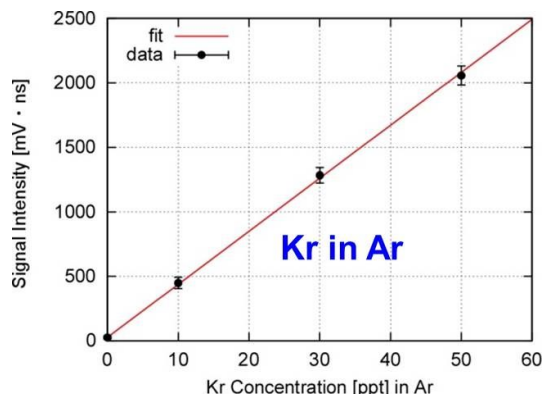


図10 濃度0-50pptのKrを含むArガスを用いたキャリブレーション結果

以上から、本研究でRn原子の1光子励起に必要な波長145.2nmのVUVレーザーを開発し、さらに共鳴イオン化技術をKr濃度分析に適用してXMASS検出器の気相から採取されたXeガス試料中のKr濃度測定を行った。

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1件)

Y. Iwata, H. Sekiya, C. Ito, “Ultrasensitive resonance ionization mass spectrometer for evaluating krypton contamination in xenon dark matter detectors”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 797 (2015) 64-69 (査読あり).
doi:10.1016/j.nima.2015.06.037

[学会発表](計9件)

岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用いた希ガス不純物評価に関する研究”, 平成27年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会, 2015年12月19日, 東京大学(千葉県柏市)

岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用いた希ガス不純物測定(2)”, 日本物理学会2015年秋季大会, 2015年9月27日, 大阪市立大学(大阪府大阪市)

Yoshihiro Iwata, “Measurement of noble gas impurities in xenon dark matter detectors using resonance ionization mass spectrometry”, 7th international conference on Laser Probing (LAP2015), June 10, 2015, East Lansing (USA)

岩田圭弘, “Measurement of krypton contamination in xenon dark matter detectors”, 「極低放射能技術」研究会, 2015年3月10日, 淡路夢舞台国際会議場(兵庫県淡路市)

岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用いた希ガス不純物の安定的な除去に関する研究”, 平成26年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会, 2014年12月12日, 東京大学(千葉県柏市)

岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用いた希ガス不純物測定”, 日本物理学会2014年秋季大会, 2014年9月18日, 佐賀大学(佐賀県佐賀市)

Hiroyuki Sekiya, “Development of a Rn removal system for future Xe-based neutrino detectors using resonant ionization”, XXVI International Conference on Neutrino Physics and Astrophysics (Neutrino2014), June 6, 2014, Boston (USA)

岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用いたラドン除去手法の開発状況”, 日本物理

学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 30 日, 東
海大学 (神奈川県平塚市)

岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用
いた希ガス不純物の安定的な除去に関する
研究”, 平成 25 年度東京大学宇宙線研究所
共同利用研究成果発表会, 2013 年 12 月 20 日,
東京大学 (千葉県柏市)

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

岩田 圭弘 (IWATA, Yoshihiro)

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号 : 2 0 5 6 8 1 9 1