

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420868

研究課題名(和文) 狭帯域パルスレーザーによる極微量核種高分解能共鳴イオン化分光・分析法の開発

研究課題名(英文) Development of high resolution resonance ionization spectroscopy of short/long-lived radioisotopes using narrow band pulsed Ti:Sapphire laser system and its application to trace analysis

研究代表者

富田 英生 (Tomita, Hideki)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：20432239

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：放射性核種の高分解能レーザー共鳴イオン化分光・分析のために、グレーティング型Ti:Saレーザーを構築し、それを用いたイオン化スキームの探査手法を開発した。また、狭帯域・高繰り返し率注入同期Ti:Saパルスレーザーを用いて、安定核種(Nb、Ti、Zrなど)の高分解能共鳴イオン化分光を行い、基本特性を明らかにした。さらに、理化学研究所PALISやユバスキュラ大学などの加速器実験施設における放射性核種の共鳴イオン化分光への適用性を検討した。

研究成果の概要(英文)：A grating type Ti:Sapphire laser system was developed to investigate highly efficient ionization scheme for high resolution resonance ionization spectroscopy of short/long-lived radioisotopes and its application to trace analysis. Basic performances such as its resolution were evaluated from results in high resolution resonance ionization spectroscopy of stable isotopes such as Nb, Ti and Zr using narrow band pulsed Ti:Sapphire laser system. These Ti:Sapphire laser systems were installed at accelerator research facilities at RIKEN, Japan and the University of Jyväskylä, Finland for future on-line experiments.

研究分野：量子ビーム計測工学

キーワード：共鳴イオン化 レーザー 原子・原子核物理 微量分析 放射性核種 高分解能分光

### 1. 研究開始当初の背景

共鳴イオン化分光法 (Resonance Ionization Spectroscopy: RIS) は、測定対象である元素の2つの電子状態間のエネルギー差に相当する波長を持つ光子をレーザーにより照射することで原子を共鳴励起・イオン化する手法であり、極めて高い元素選択性を有する。RIS と質量分析系と組み合わせることで、測定対象核種の半減期・放出放射線の線種・エネルギーに依存せず、微量分析 (検出限界  $10^6 \sim 7$  atoms) が実現されると期待できる (図1参照)。分析対象の存在比が低い (1%以下) の場合には、核種毎に異なるエネルギー準位における超微細構造を区別するために発振線幅の狭いレーザーを用いた高分解能 RIS が必要となり、 $^{236}\text{U}$ ・ $^{90}\text{Sr}$ ・ $^{41}\text{Ca}$  極微量分析への応用が示されている。一方、高分解能 RIS は、難分析  $\alpha$ ・ $\beta$  崩壊核種の微量分析のみならず、加速器にて高エネルギー安定核ビームにより生成される不安定核種の電磁モーメント精密分光測定への適用に注目が集まっており、各地の研究機関がその開発を競っている。

高分解能 RIS には、従来、狭帯域な連続発振レーザーが用いられてきたが、エネルギー準位が極めて複雑な重元素では、多数の準位を経由した脱励起が起こりえるため、低出力・連続発振レーザーでは同位体選択性とイオン化効率の両立が困難である。さらに、エネルギー密度が低いため限られたイオン化スキーム (イオン化に至るまでに経由する一連の励起準位と準位間の遷移波長) しか利用できず、その適用が限定されてきた。

本研究代表者は、これまでに独国ヨハネス・ゲーテンベルク大 Klaus Wendt 教授 (研究協力者) の研究グループと共同で注入同期波長可変チタンサファイア (Ti:Sa) レーザー光源を開発し、高繰り返し率 (1~10 kHz)、狭帯域 (~20 MHz)、高出力 (~2 W) を実現してきた。高分解能 RIS の理工学応用のため

の基盤技術を確認するには、発振スペクトル線幅が狭帯域なレーザー光源だけでなく、単原子群速度分布の均一化によるドップラー拡がりの抑制 (ガスジェットの利用) や、高分解能 RIS に適したイオン化スキームの開発が必要となる。

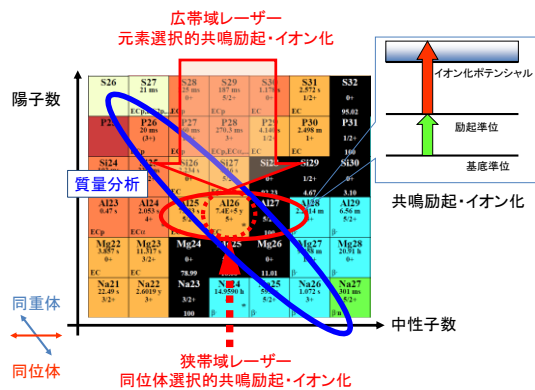


図1 共鳴イオン化質量分析の概念図

### 2. 研究の目的

極微量核種の高分解能共鳴イオン化分光・分析のために、狭帯域・高繰り返し率注入同期 Ti:Sa パルスレーザーを用いた高分解能共鳴イオン化分光法の開発を行った。基本特性を調査することで、測定対象核種に応じた選択指針・適用性を明らかにし、また放射性核種への適用に向けた要素技術開発を行うことで、高分解能 RIS の理工学応用のための基盤技術を確認することを目的とした。

### 3. 研究の方法

狭帯域 Ti:Sa パルスレーザーによる極微量核種高分解能分光・分析法の開発のために、以下を実施した。

まず共通基盤技術として、グレーティング型 Ti:Sa レーザーの構築を行い、それを用いたイオン化スキームの探索手法を開発した。また、注入同期型 Ti:Sa レーザーによる超音速ガスジェットを用いた高分解能 RIS に向けた開発を行った。これらを通じて、高分解能 RIS における対象核種に応じた分光分析法の要素技術を開発した。

#### 4. 研究成果

##### (1) グレーティング型 Ti:Sa レーザーの構築

高分解能分光を実現するためには、イオン化が容易な自動イオン化準位やリユードベリ準位を経由した高効率なイオン化スキームを用いることが望ましい。そこで、これらの準位を探索するために広範な波長スキャンが可能なグレーティング型 Ti:Sa レーザーを開発した(図2参照)。回転ステージ上に配置したグレーティング(回折格子)を回転させることで容易な波長変更が可能なレーザーである。図3に示すような発振特性が得られた。

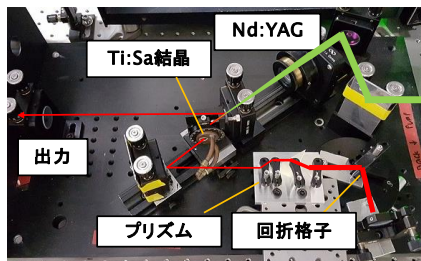


図2 グレーティング型チタンサファイアレーザーの写真と概念図

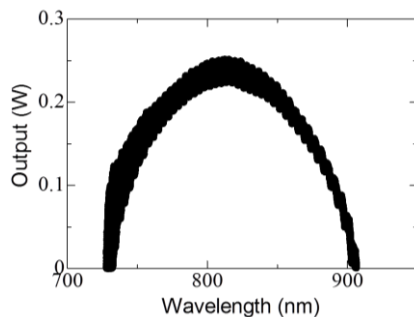


図3 グレーティング型 Ti:Sa レーザーの発振特性(繰り返し率 1 kHz)

##### (2) グレーティング型 Ti:Sa レーザーを用いたイオン化スキームの探索手法の開発

グレーティング型 Ti:Sa レーザーを用いたイオン化スキームの探索手法を開発した。一例として、Zr に対するイオン化スキームを行った。グレーティング型 Ti:Sa レーザーと励起用の標準型 Ti:Sa レーザーを組み合わせて使用した。抵抗加熱により単原子化された Zr 原子に対し、空間的・時間的に同期させてレーザーを照射し、Zr イオンを生成した。

図4にエネルギー準位の探索結果を示す。横軸は励起準位とグレーティング型 Ti:Sa レーザーの光子エネルギー和とした。自動イオン化準位を経由したイオン信号が多々確認され、超微細分裂の数や幅の大きな遷移を経由するスキームの中で、高い強度を示したものを選定することで、高効率なイオン化スキームを探索できる手法を開発できた。この他、Th、Ti などのスキーム開発に応用した。

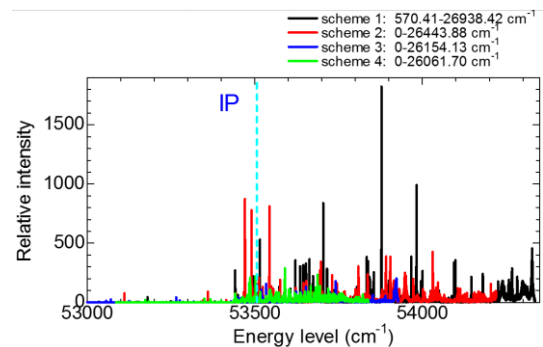


図4 Zr エネルギー準位の探索結果

##### (3) 注入同期型 Ti:Sa レーザーによる高分解能 RIS の開発

注入同期型 Ti:Sa レーザーを用いて、以下に示す3つの元素の高分解能 RIS を行った。

###### ① 高分解能 Nb 共鳴イオン化実験

真空中  $^{93}\text{Nb}$  高分解能共鳴イオン化実験を行った。Nb 原子に対し、共鳴励起のための注入同期 Ti:Sa レーザー(374.3nm、狭帯域)と非共鳴イオン化のための標準型 Ti:Sa レーザー(357.6nm、広帯域)を対抗するよう照射し共鳴イオン化を行った。図5に得られた  $^{93}\text{Nb}$  高分解能共鳴イオン化分光スペクトルを示す。超微細分裂に起因する6つの共鳴ピークを確認し、各ピークの周波数(位置)と強度が文献値とよく一致していることが示された。また、各共鳴ピーク線幅は約  $2 \times 10^2$  MHz と見積もられた。

###### ② 高分解能 Ti 共鳴イオン化実験

真空中 Ti 高分解能共鳴イオン化実験を行った。注入同期 Ti:Sa レーザーの第二高調波(SHG)を励起準位への励起(1段目 365.4537 nm)に、標準型 Ti:Sa レーザー(発振線幅 数

GHz) の SHG を自動イオン化準位(A.I.)への共鳴イオン化 (2 段目 361.6634 nm) に用いた。イオンの飛行時間スペクトルにより 5 つの Ti 安定同位体 (46,47,48,49,50Ti) が区別できた。46,47,48,49,50Ti の飛行時間に対応するイオン計数の注入同期 Ti:Sa レーザー (1 段目) の発振周波数に対する依存性を図 6 に示す。スペクトル線幅 約 160 MHz の高分解能共鳴イオン化分光スペクトルが得られ、レーザー波長による同位体選択的共鳴イオン化を実現できた。

### ③高分解能 Zr 共鳴イオン化実験

真空中 Zr 高分解能共鳴イオン化実験を行った。注入同期型 Ti:Sa レーザーの SHG を励起用レーザー (1 段目) に使用し、標準型 Ti:Sa レーザーをイオン化用レーザー (2 段目) とした。図 7 に注入同期型 Ti:Sa レーザーの発振周波数と飛行時間に対する 2 次元ヒストグラムを示す。奇数核である  $^{91}\text{Zr}$  は超微細構造があるためピークが複数に別れ、幅広く分布していることが分かる。スペクトル線幅が約 120 MHz の高分解能な共鳴イオン化分光スペクトルが取得でき、超微細構造定数を高精度で測定可能である見込みが得られた。

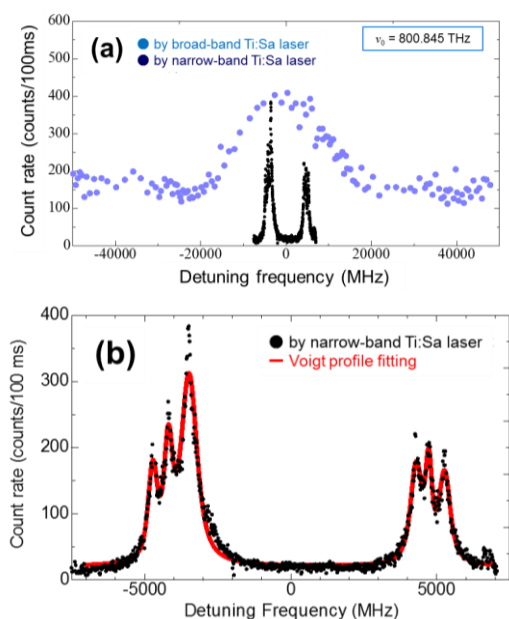


図 5  $^{93}\text{Nb}$  高分解能共鳴イオン化分光スペクトル(a)標準型と注入同期型 Ti:Sa レーザーを用いた場合の比較、(b)  $^{93}\text{Nb}$  の超微細分裂

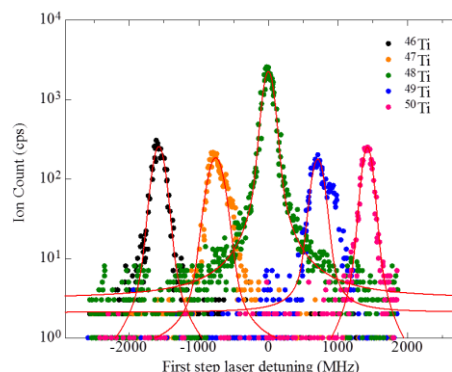


図 6 安定 Ti の高分解能共鳴イオン化分光スペクトル (遷移周波数の同位体シフト)

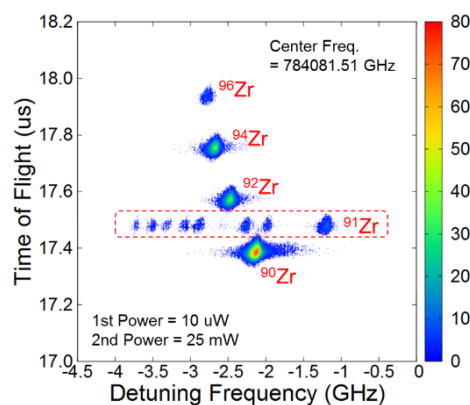


図 7 Zr の共鳴イオン化により検出されたイオン数の 2 次元ヒストグラム

### ④ 注入同期型チタンサファイアレーザーの周波数校正手法を開発

高分解能 RIS のために、注入同期型チタンサファイアレーザーの周波数校正手法を開発した。ファブリペロー干渉計とともに、光周波数コムの利用が有用である見込みを得た。なお、この実験は、名古屋大学西澤典彦教授の協力のもとに行われた。

### (4) 加速器実験施設における放射性核種の共鳴イオン化分光への適用

#### ①理研 PALIS への Ti:Sa レーザーシステムの導入

理化学研究所 RI ビームファクトリーの低速 RI ビーム施設の一部として、共鳴イオン化レーザーイオン源 PARasitic Laser Ion-Source: PALIS の開発が進められている。PALIS における共鳴イオン化用レーザー光源として、高繰り返し率 Ti:Sa レーザーを導入し、オフライン基礎実験を行った。PALIS 用

共鳴イオン化レーザーシステムの概要を図8に示す。高繰り返し率標準型 Ti:Sa レーザーと注入同期型 Ti:Sa レーザーを導入した。これら2台とともに、既設の高繰り返し率色素レーザー（2台）を組み合わせることで、最適なイオン化スキームを選定することが可能となった。これらを用いて、Cu 共鳴イオン化を確認した。また、Cu 共鳴イオン化に用いる2色のレーザービームが約 60 m 遠方の F2 近傍へ伝送できることを実証した。

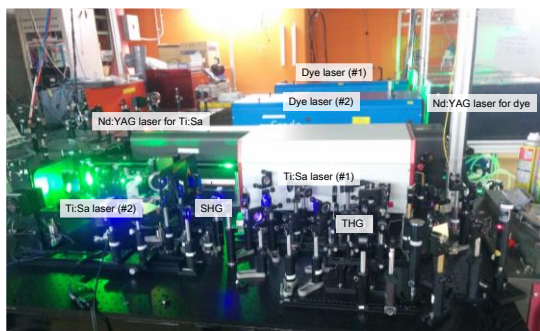


図8 理研PALIS用共鳴イオン化レーザーシステムの概要

## ②ユバスキュラ大におけるガスセル・ジェット分光への応用検討

アクチノイド核種およびプルトニウムなどの高分解能 RIS に向け、フィンランド・ユバスキュラ大学にて、ガスセル中プルトニウム同位体のレーザー共鳴イオン化スキームの開発を平成 27・28 年度に実施した。グレーティング型 Ti:Sa レーザーによる広域波長スキャンの結果、ガスセル内でレーザーにより共鳴励起された原子は、バッファガスとの衝突により脱励起するため、真空中で最適とされている共鳴イオン化スキームは有効でないことが明らかとなった。また、ガスセル内での Pu の高効率なイオン化スキームを見出した。

## 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 10 件)

- ① H. Tomita, T. Takatsuka, T. Takamatsu, Y. Adachi, Y. Furuta, T. Noto, T. Iguchi, V. Sonnenschein, K. Wendt, C. Ito, S. Maeda, “Development of High Resolution

Resonance Ionization Mass Spectrometry for Neutron Dosimetry Technique with  $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$  Reaction”, EPJ Web of Conferences, **106**, 5002 (2016) 査読有.

- ② I. Pohjalainen, I.D. Moore, T. Kron, S. Raeder, V. Sonnenschein, H. Tomita, N. Trautmann, A. Voss, K. Wendt, “In-gas-cell laser ionization studies of plutonium isotopes at IGISOL”, Nucl. Instrum. Meth. B, **376**, 233-239, (2016) 査読有.
- ③ T. Sonoda, M. Wada, M. Reponen, *et al.*, “The first on-line commissioning study on parasitic production of low-energy RI-beam system (PALIS) at BigRIPS”, RIKEN progress report, **49**, 16, (2016) 査読有.
- ④ M. Reponen, T. Sonoda, M. Wada, D. Matsui, V. Sonnenschein, T. Takamatsu, and H. Tomita, “An injection-locked Titanium:Sapphire -laser for high-resolution in-jet resonance ionization spectroscopy at PALIS”, RIKEN progress report, **49**, 190, (2016) 査読有.
- ⑤ T. Takamatsu, H. Tomita, Y. Furuta, T. Takatsuka, Y. Adachi, T. Noto, V. Sonnenschein, T. Kron, K. Wendt, T. Iguchi, T. Sonoda, and M. Wada, Development of High Resolution Resonance Ionization Spectroscopy on Titanium Using Injection-locked Ti:Sapphire Laser System, JPS Conference Proceedings, **6**, 030142, (2015) 査読有.
- ⑥ T. Sonoda, M. Wada, I. Katayama, H. Iimura, M. Reponen, N. Fukuda, N. Inabe, T. Kubo, K. Kusaka, H. Suzuki, H. Takeda, M. Wakasugi, K. Yoshida, T. Takamatsu, H. Tomita, F. Arai, Y. Ito, K. Okada, and P. Schury, “Parasitic Production of Low-Energy RI-Beam at RIKEN BigRIPS”, JPS Conference Proceedings, **6**, 030122, (2015) 査読有.
- ⑦ T. Noto, H. Tomita, Y. Furuta, T. Takahide, J. Kawarabayashi, T. Iguchi, K. Wendt “Development of the Sequential Data Correction Method for Isotopic Ratio Analysis by Resonance Ionization Mass Spectrometry” J. Nucl. Sci. Tech., **53**, 289-294 (2015) 査読有.
- ⑧ T. Takamatsu, H. Tomita, T. Takatsuka, Y. Adachi, Y. Furuta, K. Wendt, V. Sonnenschein, T. Noto, T. Iguchi, T. Sonoda and M. Wada, “Off-line Experiment of High resolution Resonance Ionization Spectroscopy on Titanium using Injection-locked Ti:Sapphire Laser System”, RIKEN Accelerator Progress Report, **47**, 40, (2014) 査読有.
- ⑨ T. Sonoda, H. Iimura, M. Wada, I. Katayama, Y. Adachi, T. Noto, T. Takamatsu, T. Takatsuka, H. Tomita, F. Schneider, K. Wendt, F. Arai, Y. Itou, P. Schury and the

SLOWRI collaboration, "New laser system installation for PALIS", RIKEN Accelerator Progress Report, **47**, 210, (2014) 査読有.

〔学会発表〕(計35件)

- ① 富田英生、レーザー分光を用いた放射性核種分析法の開発、北陸原子力懇談会・日本原子力学会中部支部 エネルギー研修会、2014年11月19日、原子力技術研修センター(石川)(招待講演)
- ② Tetsu Sonoda, Parasitic low-energy RI-beam production using in gas laser ionization and spectroscopy technique at RIKEN/PALIS, The 12th International Conference on Stopping and Manipulation of Ions and related topics, 2016年6月10日, Lanzhou(中国)(招待講演)
- ③ 富田英生, レーザー分光を用いた放射性同位体分析法の開発, 平成28年度電気学会北陸支部 学術講演会, 2016年10月11日、富山高等専門学校(富山)(招待講演)
- ④ Hideki Tomita, Latest developments on the narrow bandwidth laser systems for high resolution resonance ionization spectroscopy, Laser Ion Sources Workshop, 2016年10月24-25日, Paris(フランス)(招待講演)
- ⑤ Hideki Tomita, Development of Ti:Sapphire laser systems for high resolution resonant ionization spectroscopy of radionuclides in gas-jet at PARAsitic Laser Ion-Source (PALIS), RIKEN, GANIL Seminar, 2016年10月27日, Caen(フランス)(招待講演)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

- 出願状況(計0件)
- 取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等 なし

## 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・准教授  
研究者番号: 20432239

### (2) 研究分担者

園田 哲 (SONODA, Tetsu)  
理化学研究所・仁科加速器研究センター・研究員  
研究者番号: 60525583

### (3) 連携研究者

なし

### (4) 研究協力者

クラウス ベント (WENDT, Klaus)  
Johannes Gutenberg-University Mainz, Institute of Physics, Professor

イアン ムーア (MOORE, Iain)

University of Jyväskylä, Department of Physics, Professor

ミカエル ラッポネン (REPONEN, Mikael)

University of Jyväskylä, Department of Physics, Postdoctoral Researcher