

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H04240

研究課題名(和文) レーザーを駆使した極微量同位体分光分析手法の開発

研究課題名(英文) Development of method for rare isotope spectroscopic analysis using lasers

研究代表者

長谷川 秀一 (Hasegawa, Shuichi)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：90262047

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,180,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、極微量同位体として $^{41}\text{Ca}^+$ を対象とした超微細構造分光を目指し、それに必要となる同位体選別操作技術の確立、およびそれらの技術を基盤として、極微量同位体分析法へと展開させることを目的に研究を行った。 $^{41}\text{Ca}^+$ と同じ核スピンをもつ $^{43}\text{Ca}^+$ を用いて、超微細構造を考慮したレーザー冷却サイクルを確立し、効率的な冷却により $^{43}\text{Ca}^+$ の個別イオンの観測に成功した。さらに、同位体選別操作技術の向上を目指して、中性カルシウム原子の多段共鳴イオン化に必要な新たな光源の開発を行い、3段共鳴励起を実現、同位体シフトを観測した。

研究成果の概要(英文)：This research aims at establishment of isotope selective manipulation technique and spectroscopy of hyperfine structure of $^{41}\text{Ca}^+$ to realize the trace amount isotopic analysis method. Using $^{43}\text{Ca}^+$ isotope with the same nuclear spin as $^{41}\text{Ca}^+$, we established a laser cooling cycle considering hyperfine structure and succeeded in observing $^{43}\text{Ca}^+$ individual ions by efficient laser cooling. Furthermore, with the aim of improving the isotope selective manipulation technique, we developed a new light source necessary for multistep resonance ionization of neutral calcium atoms, and realized three - step resonant photoionization, which resulted in observation of isotope shifts.

研究分野：レーザー分光分析

キーワード：同位体分析 レーザー イオン

1 . 研究開始当初の背景

極微量同位体分析は、原子力をはじめ様々な分野での応用が期待されている。加速器質量分析装置(AMS)を始めとして、誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)など、質量分析装置の進展は著しい。しかしながら、核燃料物質分析などで問題となる同重体(異なる元素で質量数が等しいもの)干渉は原理的に避けることができないため、化学前処理などにより回避しているが、多くの手間がかかるため、その簡素化が望まれている。

一方、レーザー光の利用技術は著しい発展を見せている。特にレーザー冷却の利用は様々な分野へ影響を及ぼしている。基礎分野だけでなく応用面でも中性原子捕獲微量分析法(Atom Trap Trace Analysis: ATTA)の実現により Kr や Ar の希ガス極微量同位体分析が可能となり、多くのブレイクスルーが達成されている。

我々は、より操作性に優れたイオンを対象としてレーザー冷却を用いた同位体微量分析の開発を進めている。これは、原子・分子イオンを対象として交流電場のみで3次元空間的に捕獲するイオントラップ(Paul trap)とレーザー冷却分光を組み合わせたもので、捕獲されたイオンをレーザー冷却することで、隣同士のイオンのクーロンエネルギーより、運動エネルギーが小さくなると、イオン間の相対的な位置が決まることでイオンの結晶化(イオンクーロン結晶)が生じ、イオン位置が固定されることで個別イオンの可視化が可能になる。つまり質量分析では不可避な同重体干渉を回避できるとともにバックグラウンドフリーの計数が実現される。この技術は、短寿命核種の原子核分光、超精密分光など最先端分野で利用されている。さらに2012年のノーベル物理学賞は、イオントラップにより実現される孤立イオン系の量子制御に対して授与されており(D.J. Wineland), 量子コンピュータへの発展が期待されている。これらは、対象とする原子・分子イオンを交流電場によるポテンシャルで空間的に捕獲(運動制御)するだけでなく、レーザー光により選択的に電子遷移を誘起(内部状態制御)する。これにより、トラップで原理的に区別することができない同重体イオンを区別することが可能になる。

我々は、これまでイオントラップ・レーザー冷却を利用した極微量同位体の捕獲・分光分析という観点から、研究に取り組んできており、図1のような誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)をイオン源とする分析装置を開発し、原理実証を行った。具体的にはクリアランスレベルなどで重要な核種である $^{41}\text{Ca}^+$ の分光分析をターゲットに研究を進めている。これに関する分光データはこれまで報告されておらず、理論との対比が望まれている。極微量同位体分光分析においては近隣同位体や同重体が支配的となるため、効率的な捕獲および同位体選別冷却技術の確立が

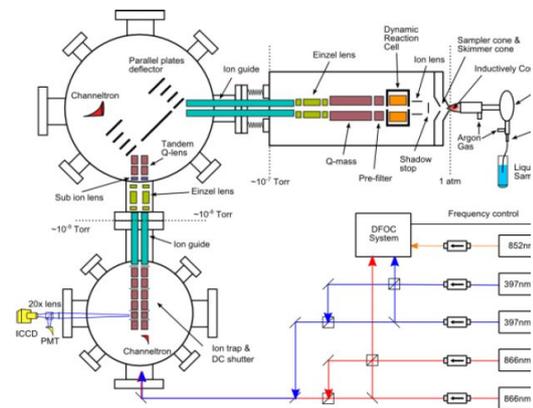


図1: 誘導結合プラズマ質量分析装置(ICPMS)とイオントラップ・レーザー冷却分光(ILECS)を組み合わせた分析装置。

不可欠である。その一つとして、冷却同位体イオンを捕獲しつつ、加熱同位体イオンをトラップから排除することを実現している。これは同位体分離などの実用面だけでなく、捕獲ポテンシャル内に存在するイオン間で個別に運動エネルギーを制御できることを示しており、非平衡統計力学へ発展できる可能性を示している。またイオンクーロン結晶が殻構造とbcc構造が混在している様子などの観測に成功しており、理論との比較が可能となる。

本研究で対象としている捕獲イオンとレーザー制御を利用した系は操作性に優れている上に、運動(外部)状態および内部状態を連携させて操作できる。その結果、単一同位体レベルでのイオンの可視化が可能となり、バックグラウンドフリーのデジタル的な計数を実現できる。レーザー冷却を用いた分析法は中性原子(主に希ガス)を対象とするATTAとして実現しているが、本研究で目指しているイオンを対象とした手法は世界的にも行われていない上に、対象核種を拡張できる点からも意義深い。

2 . 研究の目的

本研究の目的は、極微量同位体として $^{41}\text{Ca}^+$ を対象とした超微細構造分光を目指し、それに必要となる同位体選別操作技術の確立、およびそれらの技術を基盤として、極微量同位体分析法へと展開させることである。また、これまでICP-MS、レーザーイオン化をイオン源として検討しているが、試料利用効率などの面から小型のイオン源が望ましいことから、それについての基礎実験を検討し定量的知見を得ることを目指す。

当面の目標としては $^{41}\text{Ca}^+$ の分光に向けて、同じ核スピンをもつ $^{43}\text{Ca}^+$ を用いて、超微細構造を考慮したレーザー冷却サイクルを確立する。その後、イオントラップを用いた単

ーイオンの観測を行ったうえで、問題となる同重体イオンの影響を評価する。

また、同位体選別操作技術の確立として、中性カルシウム原子の多段共鳴イオン化を検討する。レーザー共鳴イオン化に必要な新たな光源の開発と、その光源を用いた多段共鳴イオン化を実現し、更なる同位体選別技術の向上を目指す。試料の利用効率の向上としては、可搬性を考慮して小型イオン源を製作し、その可能性を検討する。

3. 研究の方法

$^{41}\text{Ca}^+$ の超微細分光に向けて、図1に示すICPMSをイオン源とするICPMS-ILECS装置を用いて実験を行った。この装置は、液体試料を大気圧で導入可能な点が化学分析と相性がよく、通常のICPMSでは測定が困難な極微量同位体や同重体干渉をもつイオンに対して有効である。既にCaを対象にして全安定同位体(40, 42, 43, 44, 46, 48)の検出・分析に成功している。まずは、 $^{43}\text{Ca}^+$ について超微細構造分光を行い、 $^{41}\text{Ca}^+$ に対する知見を得た後に、 $^{48}\text{Ca}^+$ と $^{48}\text{Ti}^+$ を使って同重体干渉の実験を行った。

$^{43}\text{Ca}^+$ は、最終ターゲットとしている $^{41}\text{Ca}^+$ と同じ核スピン $I=7/2$ を有している。その超微細構造はすでに明らかにされている(図2)。このレーザー冷却遷移を閉じるためには、2つの397nm波長と4つの866nm波長が必要である。397nmについては、別途半導体レーザーを利用し、866nmについては、半導体レーザーおよび非線形結晶(音響光学素子、電気光学素子)で対応した。

また、同位体選別の向上を目指して、レーザー共鳴イオン化のための新たな光源を開発し、テーパアンプ半導体を導入することによりこの光源の高出力化を図った。開発した高出力光源を用いて多段共鳴イオン化の実験を行った。

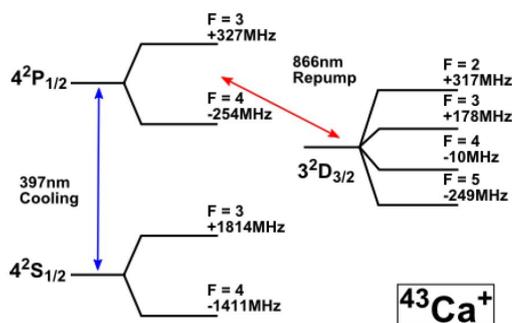


図2. $^{43}\text{Ca}^+$ のレーザー冷却遷移に関する超微細構造。

4. 研究成果

(1) 奇数安定同位体 $^{43}\text{Ca}^+$ を対象としたレーザー冷却遷移波長の確立と効率的冷却

$^{43}\text{Ca}^+$ は、最終ターゲットとしている $^{41}\text{Ca}^+$ と同じ核スピン $I=7/2$ を有している。 $^{43}\text{Ca}^+$ の超微細構造はすでに明らかにされているが、このレーザー冷却遷移を閉じるために必要な光源をAOMによる基本光の変調により実現し、基本光とのビートの測定によりその変調量を評価した。実際に $^{43}\text{Ca}^+$ をイオントラップ中にローディングし、効率的な冷却により個別イオンの観測に成功し、超微細構造の計測を行った。これにより最終ターゲット $^{41}\text{Ca}^+$ の捕獲冷却が十分可能であることが示唆された。

(2) レーザー共鳴イオン化による同位体選別のイオン導入

中性Ca原子の多段階共鳴イオン化スキームはさまざまに存在するが、基底状態の $4s^2\ ^1\text{S}_0$ から $4s4p\ ^1\text{P}_1$ に対応する423 nm、 $4s4p\ ^1\text{P}_1$ から $4s4d\ ^1\text{D}_2$ に対応する732 nmのスキームが半導体レーザーで対応することが可能である。これらを用いて少数同位体の同位体シフトの測定を行い、同位体選択性を実験的に検討した。1段目の423 nmだけでなく、2段目の732 nmの共鳴を利用することで1段の共鳴だけを利用する場合より非常に高い同位体選択性で少数同位体を励起可能であることを示し、微量同位体のイオン化に非常に有用であることを示した。

(3) イオントラップを用いた単一イオンの観測

極微量同位体分光・分析を行うには、その極微量の同位体を高い同位体選択性および効率によりイオン化した後、イオントラップ・レーザー冷却を用いて捕獲イオンを結晶化させ個別イオンとして観測する。そのためには単一レベルでのイオンから発生する蛍光観測が必要である。開発したイオントラップにおいて、波長・光強度を制御したレーザー光により単一原子レベルでのイオン化を行い、イオントラップ中に導入し捕獲した。さらにレーザー光源の周波数安定化や観測系の高感度化などにより、より高い精度で同位体をイオン化するとともに捕獲観測を行った。

(4) レーザー共鳴イオン化に用いる新たな光源の開発

中性Ca原子の多段階共鳴イオン化のためにはさまざまなスキームが存在するが、これまで基底状態の $4s^2\ ^1\text{S}_0$ から $4s4p\ ^1\text{P}_1$ に対応する423 nm、 $4s4p\ ^1\text{P}_1$ から $4s4d\ ^1\text{D}_2$ に対応する732 nmの半導体レーザーの設計・製作を行ってきた。ここから更に $4s4d\ ^1\text{D}_2$ から $4s39f\ ^1\text{F}_3$ に対応する837 nmの半導体レーザーを用いることで、3段階での同位体シフトの利用が可能になることから、中性Ca原子

を更に同位体選択的に励起・イオン化することが可能となる。これには高出力のレーザー光が必要であることから、外部共振器型半導体レーザーシステム (ECDL) に加えて、その光をシード光として増幅するテーパード半導体を導入し、波長制御された高出力のレーザー光を得るシステムの設計・製作を行った。その結果、所望の波長において 1W 以上の高出力を得ることに成功した。

(5) カルシウムの多段共鳴イオン化の実現

これまでの中性カルシウムの共鳴イオン化に用いていた基底状態の $4s^2 \ ^1S_0$ $4s4p \ ^1P_1$ $4s4d \ ^1D_2$ の 2 つの共鳴を用いたイオン化に加えて、 $4s4d \ ^1D_2$ からリユードベリ準位への励起に対応する共鳴を利用することで、中性カルシウム原子の同位体選択的な励起・イオン化の更なる向上が期待される。(4) で開発したテーパード半導体を組み入れた高出力レーザー光源を用いて、中性カルシウム原子の 3 段共鳴励起を実現、同位体シフトを観測した。これにより同位体選択性をさらに向上させることが可能となり、現在この成果を論文にまとめている。

(6) 同重体イオンの影響評価

ICP-MS は質量分析部により、質量分離が可能であるが、原理的には同重体を区別することはできない。開発している装置においては目的同位体と同じ質量を持つ同重体もトラップ部に導入されることになる。そこで、着目同位体の捕獲に同重体が及ぼす影響を観測するため、 ^{48}Ca に対する同重体として ^{48}Ti 元素を採用し、同重体効果を実験的に調査した。試料中の ^{48}Ca 量を一定にした状態で、同重体の ^{48}Ti 量を変化させたいくつかの試料を作成し、それぞれの試料をトラップした時の ^{48}Ca からの蛍光量の変化を系統的に調べた。その結果、これまで使われてきたイオンローディングモデルの見直しが必要であることがわかり、蛍光量に対する熱的な効果を考慮したイオンローディングモデルを新たに考案し、目的同位体の捕獲・冷却のメカニズムを実験的に検討した。これにより、捕獲イオン量やイオンの捕獲後の温度変化などの定量評価に成功した。

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 2 件)

Kyunghun Jung, Yuta Yamamoto, Shuichi Hasegawa, "Development of multiple laser frequency control system for Ca^+ isotope ion cooling", *Hyperfine Interactions* **236**, 2015, 39-51.

DOI: 10.1007/s10751-015-1209-x

Kyunghun Jung, Yuta Yamamoto, Shuichi Hasegawa, "Excess micromotion compensation of trapped ions in a linear Paul trap for trace isotope analysis", *Journal of Nuclear Science and Technology* **54**, 2017, 1261-1266.

DOI: 10.1080/00223131.2017.1359121

〔学会発表〕(計 8 件)

長谷川秀二 "レーザーイオントラップによる同位体の高感度分析技術開発", レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会, 2018 年 1 月, 京都市勧業館みやこめっせ (京都府・京都市)

長谷川秀二, 山本和弘 "レーザー共鳴イオン四重極質量分析トラップ装置の設計検討", 日本質量分析学会 2017 年度同位体比部会, 2017 年 11 月, 熱川ハイツ (静岡県・東伊豆町).

落合皓貴, 山元祐太, 石川大裕, 長谷川秀二 "イオントラップレーザー冷却分析手法の検討に依る検出下限の低減化", 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 2017 年 9 月, 北海道大学札幌キャンパス (北海道・札幌市).

Stephen R Wells, Yuta Yamamoto, Shuichi Hasegawa, "Development of Tapered Amplifier Coupled ECDL System for Resonance Ionisation", 日本原子力学会 2017 年春の年会, 2017 年 03 月 28 日, 東海大学湘南キャンパス (神奈川県・平塚市).

落合皓貴, 山元祐太, 鄭京勲, 石川大裕, 長谷川秀二 "イオントラップ中でのレーザー冷却における同重体干渉の評価", 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 03 月 19 日, 大阪大学豊中キャンパス (大阪府・豊中市).

Stephen R. Wells, 山元祐太, 長谷川秀二, "Diode Laser External Cavity Design for High Power Laser Light Generation for Atomic Spectroscopy Applications", 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 09 月 15 日, 金沢大学角間キャンパス (石川県・金沢市).

Y. Yamamoto, S. Hasegawa, "Observation of cooled Ca ions in RF trap by the axial direction", European Conference on Trapped Ions, 2016/08/29, Arosa, Switzerland.

鄭京勲，山元祐太，長谷川秀一，
“ ICPMS-ILECS でのイオン捕獲時同重
体影響の検討 ”，日本原子力学会北関東支
部若手研究者発表会，2015 年 04 月 17
日，東海会館（茨城県・東海村）。

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

長谷川秀一 (HASEGAWA, Shuichi)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：90262047

(2)研究分担者

宮部昌文 (MIYABE, Masabumi)
日本原子力研究開発機構・廃炉国際共同研
究センター・研究主幹
研究者番号：20354863