

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05101

研究課題名(和文) レーザーによるCa-48の高濃縮技術の研究

研究課題名(英文) Laser isotope separation of Ca

研究代表者

仁木 秀明 (Niki, Hideaki)

福井大学・学術研究院工学系部門・教授

研究者番号：00135758

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：ニュートリノ物理学の分野で行われている、二重ベータ崩壊実験研究のために純度の高いCa-48同位体が必要である。しかしCa-48の天然存在比が0.187%と小さいため、本研究ではレーザーによるCaの同位体濃縮技術の開発を行った。真空中でCaの原子ビームを発生させ、側面から半導体レーザーを照射することにより、特定の同位体の進行方向を変えることで、原子ビームから取り出す方法についてその実現性を調べた。その結果、原子ビームから高濃度(10%以上)のCa-48が高い回収効率(20%以上)で取り出せることが分かった。

研究成果の概要(英文)：Highly concentrated Ca-48 is required for double beta decay experiments in neutrino physics. The natural abundance of Ca-48, however, is as small as 0.187%. Therefore technical development of isotope enrichment of Ca is awaited. In this study a method of laser isotope separation has been investigated. In the experiment Ca atomic beam generated in a vacuum chamber was irradiated with a diode laser light, the wavelength of which was tuned to the resonance frequency of the target isotope and this isotope was selectively deflected from the original atomic beam. It was found that highly concentrated Ca-48(>10%) could be extracted and collected with high collection efficiency(>20%).

研究分野：レーザー分光、量子エレクトロニクス

キーワード：レーザー同位体分離 カルシウム 二重ベータ崩壊 輻射圧

1. 研究開始当初の背景

ニュートリノのマヨラナ粒子性を検証することは、この宇宙では反物質ではなく物質の存在が支配的であることの説明に直接つながる証拠を与えられている。この検証は現在のところ、二重ベータ崩壊の研究のみによって可能であると考えられている。このために二重ベータ崩壊の研究は近年その重要性の認識が高まり、世界中で研究が進められている。具体的には、Ca-48、Ge-76、Mo-100、Cd-116、Te-130、Xe-136、Nd-150などの同位体を利用した実験が世界各国で進行中あるいは計画中である。

二重ベータ崩壊のうちでニュートリノを放出しない崩壊がニュートリノのマヨラナ粒子性の検証に重要であるが、その崩壊率は極めて小さいため、観測時にはバックグラウンドノイズが問題となる。わが国においては大阪大学のグループ(岸本他)がフッ化カルシウムの結晶を検出器としてその中に含まれるCa-48におけるニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊の観測実験を計画している。Ca-48におけるこの二重ベータ崩壊のQ値は4.28MeVと、他の原子核に比べて突出して大きく、自然放射性的ガンマ線やベータ線などのバックグラウンドノイズから極めて良好に分離して検出されることが期待できる。

しかしながら、Ca-48 同位体の天然存在比は0.187%と小さく、天然存在比のままカルシウムのフッ化物結晶を用いた実験装置は、結晶の総量ならびに検出器の数量ともに大きなものにならざるを得ない。またその分、バックグラウンドノイズも大きくなってくる。したがって、Ca-48 の同位体濃縮技術の開発は、このような基礎研究において切望される技術である。

2. 研究の目的

カルシウム化合物には常温でガス状態のものがないため、現在ウラン濃縮に用いられているガス遠心分離法やガス拡散法は適用できない。報告者はこれまでレーザーによる同位体分離の研究に従事し、ウラン、ガドリニウム、ジルコニウム、珪素、ホウ素等について、実験的分離に成功している。これらはいずれも、高強度のパルスレーザーを試料の原子ビームあるいはガスに照射することにより、特定の同位体を選択的に電離あるいは解離することにより分離する手法であった。

Ca 原子は、波長 423nm の光に対して極めて強い吸収特性があり、比較的弱い強度の光であっても、連続的に照射し続けることにより、Ca 原子は基底準位 (1S_0) と励起準位 (1P_1) の間を往復しつつ極めて多数回、光子の吸収、放出を繰り返すことができる(図1)。この際、Ca 原子から放出される光子の方向はランダムなので、Ca 原子は平均的に光の照射方向に運動量を得る。このことは、原子のレーザー冷却に応用されているが、報告者はこれをCa の同位体分離に応用することを考えた。すな

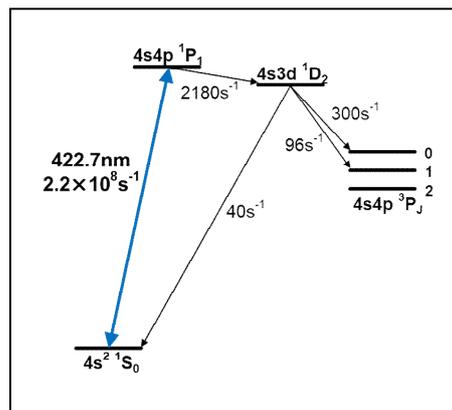


図1 Ca のエネルギー準位図(一部)

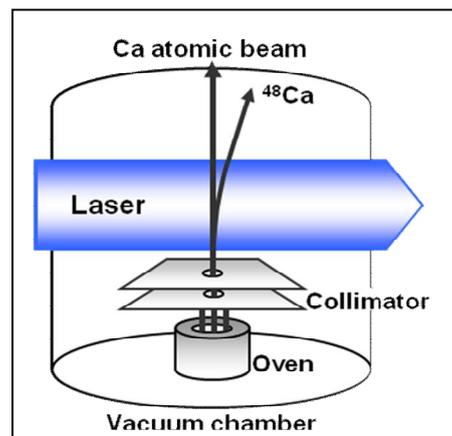


図2 Ca のレーザー同位体分離の概念図

わち、図2のように、真空容器中で Ca の原子ビームを発生させ、Ca-48 同位体に同調したレーザー光を直角方向から連続的に照射することにより、Ca-48 を原子ビームから偏向して回収しようというものである。これにより、発生した Ca 原子蒸気中の Ca-48 同位体の大部分を高い濃度で回収できることが期待される。本研究では、この方法での Ca 同位体分離の可能性の実証と分離特性を明らかにすることを目的として実験的研究を進めた。

3. 研究の方法

Ca 原子ビームから特定の同位体をレーザー照射により偏向し回収する方法の性能評価をするために、レーザーによる原子ビームの偏向特性を以下の方法で調べた。

真空容器内 ($\sim 10^{-6}$ Torr) に、図3に示すような装置配置し、実験を行った。真空容器下部に設置したオープン内で、Ca をタングステンヒータにより $550^\circ C$ に加熱し、Ca 原子蒸気を発生させた。オープン上方に設置した2枚のアーチャーにより原子蒸気をコリメートし、原子ビーム(広がり角 $\theta_0 = 15 \text{mrad}$) を形成した。原子ビームに直角に交差する方向から、偏向用レーザーを照射した。このレーザー照射領域からさらに約 33cm 上方では、

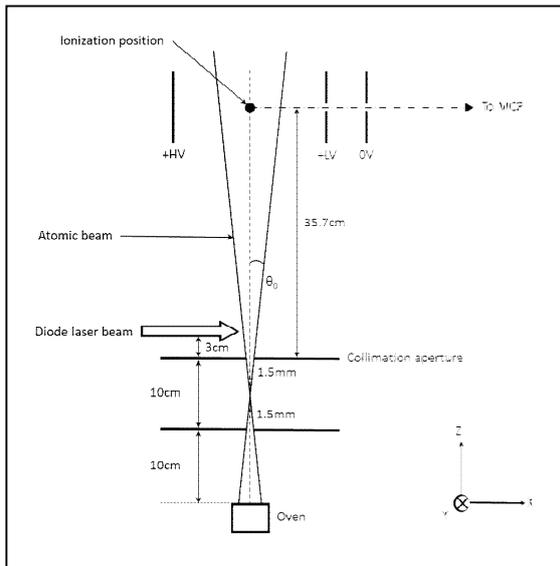


図3 真空容器内の実験配置図

YAG レーザー照射による原子ビームのプロファイル（原子蒸気密度分布）測定を行った。偏向用レーザーは、422.7nm 近傍で波長可変で、連続発振半導体レーザーで、図1に示した遷移において、任意の Ca の吸収線に同調可能である。

原子ビームのプロファイル測定には、Q スイッチ YAG レーザーの第二高調波をレンズで集光し、原子ビームと偏向用レーザーの両者に直角となる方向から照射した。レーザー照射により生成された Ca イオンは電界により右方向へ偏向、加速され、電界のない 30cm の空間を飛行した後マルチチャンネルプレート (MCP) により検出された。イオン信号はオシロスコープにより時間分解測定され、これにより、レーザー照射領域の Ca 同位体の質量スペクトルが得られた。YAG レーザーの照射位置を図3の x 方向に変化させてこの測定を行うことにより、原子ビーム中の各同位体の密度プロファイルが得られることになる。これらの測定結果を、偏向用レーザー照射時、非照射時と比較することにより、偏向角の大きさや同位体選択性が評価できることになる。

4. 研究成果

偏向用レーザー照射の有無しでの質量スペクトルの測定例を図4に示す。A は、図3において YAG レーザーの照射位置（イオン化位置）を原子ビームの中心から左側（x の負の方向）にしたときの結果で、B は右側にした時の結果である。赤色は偏向用レーザー照射時、青色は非照射時である。偏向用レーザーの波長は ^{40}Ca の吸収線に同調されている。図から、偏向用レーザー照射時に、原子ビームの左側で ^{40}Ca の信号が減少し、右側で増加している様子がよくわかる。これにより、偏向用レーザー照射時に ^{40}Ca が右側に偏向されたものと推測される。

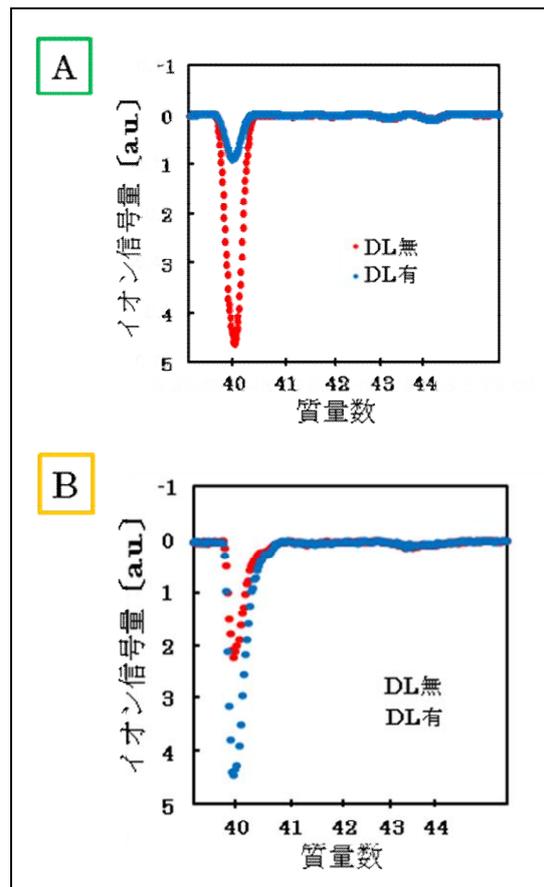


図4 偏向用レーザー照射による ^{40}Ca 信号の変化

以上の測定をイオン化位置を変えて行った、原子ビームのプロファイル測定例を図5に示す。図では ^{40}Ca 信号強度を位置 x ($x=0$ は原子ビームの中心) の関数として表しており、偏向用レーザー照射時が赤色、非照射時が青色で示している。この実験におけるレーザー照射条件等 (条件①) は次の通りである。

【条件①：原子ビームの広がり角 $\theta_0=15\text{mrad}$ 、レーザー光の照射幅 3.8mm、レーザー照射強度 $390\text{mW}/\text{cm}^2$ 】。

図5から、偏向用レーザー照射により、レーザービームの伝搬方向に原子ビームがシフト

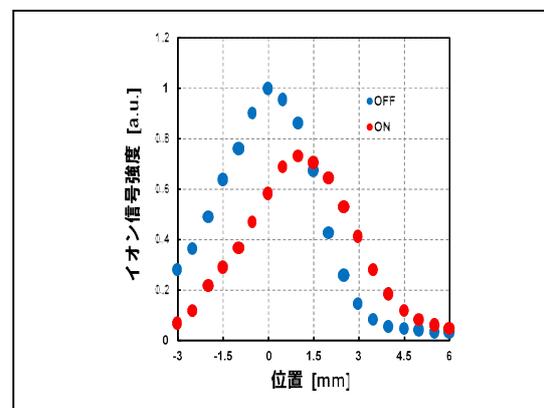


図5 偏向用レーザー照射による ^{40}Ca 密度プロファイルの変化①

トしている様子がよくわかる。原子ビームプロファイルの**重心の移動距離**を求めると**1.9mm**であり、これは、偏向用レーザー照射位置とイオン化位置の高さの差および原子ビームの速度を考えると**偏向角 6mrad**に相当する。また、光子1個の吸収により Ca 原子の横方向の速度変化は約 2cm/s であることを考えると、平均として1個の Ca 原子が **230個**の光子を吸収したことになる。

偏向角が大きくなり、元の原子ビームの広がり角以上になれば高い濃縮比での同位体分離が可能となる。偏向角は吸収する光子の数（言い方を変えれば光の吸収-放出のサイクル数）による。サイクル数を増加させるためには(1)レーザー強度（パワー密度（単位面積当たりのパワー））を大きくし単位時間当たりの吸収光子数を増加させるか、(2)原子の照射領域での滞在時間を長くする、すなわち、レーザーの照射面積を広げればよい。ただし、(1)についてはレーザー強度が飽和パワー程度以上に大きくしてもサイクル数は吸収の飽和によりほとんどそれ以上に増加しない。

実験で使用した Ca の遷移の飽和強度は $59.9\text{mW}/\text{cm}^2$ で、**条件①**のレーザー照射強度は大きくこれを上回っているため、偏向用レーザーの出力が一定であっても、照射面積（実際には照射の高さ）を増加させることで偏向角の増大が期待できる。図6は以下の条件（条件②）で行った実験結果である。

[条件①：原子ビームの広がり角 $\theta_0=8.8\text{mrad}$ 、レーザー光の照射幅 15.2mm、レーザー照射強度 $107\text{mW}/\text{cm}^2$]

図5と同様、偏向用レーザー照射時が赤色、非照射時が青色で示している。図5と同様の

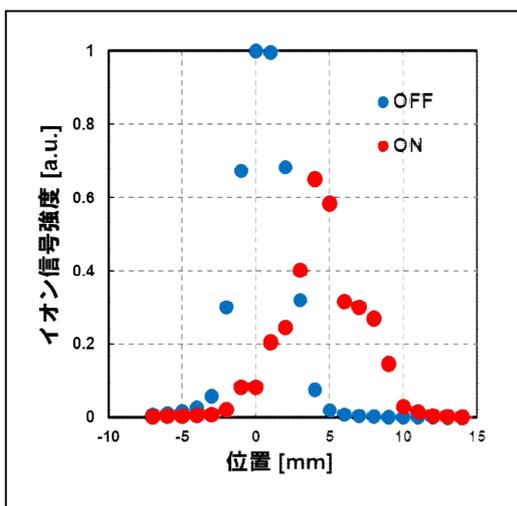


図6 偏向用レーザー照射による ^{40}Ca 密度プロファイルの変化②

整理をすると、**重心の移動距離は 4.0mm、偏向角 12mrad**、吸収光子数は **490個**という結果が得られた。単純な計算からは条件①に対して3倍程度の偏向角が推測されたが実際は2倍程度にとどまっている。

本手法を利用した同位体分離装置において、濃縮同位体を回収する方法としては、原子ビームの上方で、ある角度以上の偏向角で飛来してくる原子ビームを、回収板に付着させて回収する方法である。ここでは一例として、実験で用いた偏向用レーザーの波長を ^{48}Ca の吸収線に同調し、**条件②**の照射条件で、イオン化位置の高さに回収板を設置した場合、どの程度の分離性能が得られるかを見積もった。ここで分離性能とは(1)回収物中の標的同位体濃度、および(2)回収率（原子ビーム中の標的同位体のうち回収板に回収される割合）である。図7に、回収板の位置 x （ x より右に飛来した原子ビームをすべて回収板で回収）に対する ^{48}Ca の回収率および濃度を示す。 x の小さい領域では回収板で

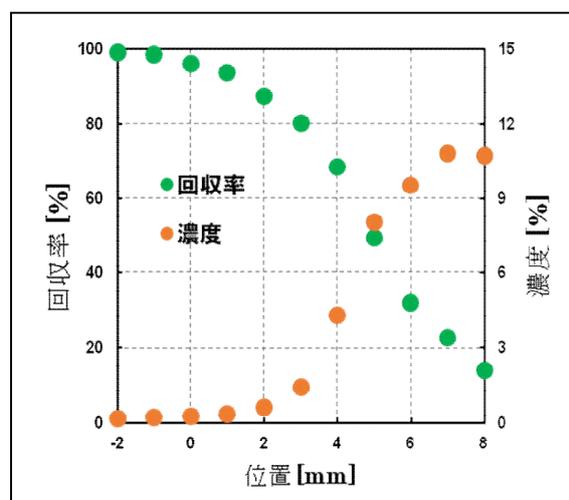


図6 回収板の位置に対する ^{48}Ca の回収率および濃度の回収率および濃度

元の原子ビームの大部分を回収することになり、回収率は高いが同位体選択性は得られない。回収板の位置を右に移動していくと回収率は低くなるが、選択的に偏向した原子ビームを選択的に回収することになるため標的同位体 ^{48}Ca の濃度は高くなる。濃度が最大となる点は $x=7\text{mm}$ の位置で、濃度 11%、回収率 23%である。 ^{48}Ca の天然存在比 0.187% を考えると、濃縮比にして 58 倍である。

濃縮比を制限する要因は主として元の原子ビームの広がり角であり、これを小さくすることで同位体選択性は向上する。偏向用レーザー光の非標的同位体による吸収により選択性が低下することも考えられるが、原子ビームのドップラー幅、吸収スペクトルの飽和広がり（パワー広がり）を考えてもほとんど影響しない。実際、図4に示した質量スペクトル測定において、偏向用レーザー照射の有無による信号強度変化は、波長を共鳴波長に同調した同位体に限られることを確認している。

レーザー照射による Ca 原子ビームの偏向特性については、以上述べた原子ビームのプロファイルを測定する方法以外に、数値計算

シミュレーションによる方法および偏向原子ビームのドップラーシフトを測定する方法を用いて並行して調査した。偏向角測定においてはこれらの間に数倍の違いがあり、本手法が最も小さい結果となっている。この違いについては引き続き検討していく。

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)

[学会発表等] (計 16 件)

① H.Niki, " Laser isotope separation for nuclear engineering and neutrino physics", General Lecture at Diponegoro University (Indonesia) (招待講演)、Semarang、Indonesia、2018年3月。

② 伊代田 智洋, 山下 隼弥, 藤田 拓馬, 江崎 雄太, Muhamad Rahmat, 佐藤 紘祥, 小川 泉, 仁木 秀明, " レーザー偏向法を用いた Ca の同位体分離", レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会、京都、2018年1月。

③ 山下 隼弥, 伊代田 智洋, 橋詰 和昭, 小川 泉, 仁木 秀明, " レーザーイオン化法を用いた Ca の同位体分離", レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会、京都、2018年1月。

④ H.Niki, K.Teranishi, T.Fujita, K.Hashizume, Y.Ezaki, " Laser Isotope Separation of Calcium", SPLG2017(Workshop on Separation Phenomena of Liquids and Gases 2017)、Stresa, Italy、2017年6月。

⑤ 仁木 秀明, " 二重ベータ崩壊実験用 Ca 同位体のレーザー濃縮", 新学術領域「宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究」領域研究会、岡山、2017年5月。

⑥ 仁木 秀明, 江崎 雄太, 橋詰 和昭, 藤田 拓馬, " レーザー同位体分離の研究", 光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2017、大阪、2017年5月。

⑦ 仁木秀明, " 二重ベータ崩壊実験用 Ca 同位体のレーザー濃縮", 「極低放射能技術」研究会 (新学術領域「宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究」 計画研究 D01 「低放射能技術による宇宙素粒子研究の高感度化」主催)、飛騨、2017年2月。

⑧ 藤田拓馬, 寺西叶, 江崎雄太, 佐藤紘祥, 橋詰和昭, 小川泉, 玉川洋一, 仁木秀明, " 二重ベータ崩壊観測実験のための 48Ca のレーザー同位体分離Ⅲ", レーザー学会学術講演会第 37 回年次大会、徳島、2017年1月。

⑨ 江崎雄太, 寺西叶, 藤田拓馬, 橋詰和昭, 玉川洋一, 小川泉, 仁木秀明, " レーザーによる Ca の同位体分離に関する研究", 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、新潟、2016年9月。

⑩ 藤田拓馬, 寺西叶, 江崎雄太, 橋詰和昭, 玉川洋一, 小川泉, 仁木秀明, " レーザー同

位体分離の研究", レーザー研シンポジウム 2016、大阪、2016年4月。

⑪ 仁木秀明, 寺西叶, 江崎雄太, 藤田拓馬, 橋詰和昭, 玉川洋一, 小川泉, " 二重ベータ崩壊実験用 Ca 同位体のレーザー濃縮", 第 2 回「極低放射能技術」研究会 (LBGT2016)、徳島、2016年3月。

⑫ 寺西叶, 森下剣, 中島恭平, 小川泉, 玉川洋一, 仁木秀明, " レーザーの輻射圧による Ca の同位体分離に関する研究", 日本物理学会第 71 回年次大会、仙台、2016年3月。

⑬ 森下剣, 寺西叶, 江崎雄太, 橋詰和昭, 藤田拓馬, 松浦由馬, 小川泉, 玉川洋一, 仁木秀明, " 二重β崩壊観測実験のための 48Ca のレーザー同位体濃縮Ⅱ", レーザー学会年次大会、名古屋、2016年1月。

⑭ 森下剣, 寺西叶, 小川泉, 玉川洋一, 仁木秀明, " レーザーの輻射圧を用いた 48Ca の濃縮に関する研究Ⅱ", 日本物理学会 2015 年秋季大会、大阪、2015年9月。

⑮ 仁木秀明, 寺西叶, 森下剣, 玉川洋一, 小川泉, " 二重ベータ崩壊実験用 Ca 同位体のレーザー濃縮", 地下素核研究領域研究会、神戸、2015年5月。

⑯ 仁木秀明: " レーザー同位体分離の研究—Ca-48 の濃縮を目指して—", レーザー研シンポジウム (大阪大学レーザーエネルギー学研究センター)、大阪、2015年4月。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

仁木 秀明 (Niki Hideaki)

福井大学・学術研究院工学系部門・教授

研究者番号: 00135758