

令和元年5月9日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04639

研究課題名（和文）放射性ストロンチウムの可視化に向けた同位体選別共鳴イオン化スキームの開発

研究課題名（英文）Development of isotope-selective resonance ionization scheme for visualization of radioactive strontium

研究代表者

岩田 圭弘（IWATA, Yoshihiro）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：20568191

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,000,000円

研究成果の概要（和文）：ストロンチウム90（ ^{90}Sr ）は、環境計測及び原子核データの両面で重要な放射性核種である。本研究では、半導体レーザーを用いた共鳴イオン化及びイオントラップにより ^{90}Sr +単一イオンの蛍光を観測し、 ^{90}Sr 可視化の実証実験を行った。また、同位体選択性の高い ^{90}Sr 原子の共鳴イオン化手法を提案し、干渉フィルター型及び回折格子型の2種類の外部共振器半導体レーザーを使用して同位体選択性を10の6乗 - 10乗程度と評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ストロンチウム90は環境計測及び原子核データの両面で重要な放射性核種であり、特に福島第一原子力発電所事故を受けて体内摂取に伴う内部被ばくの問題から、迅速分析のニーズが高まっている。本研究で開発した共鳴イオン化スキームにより海洋試料等のストロンチウム90同位体存在度が低い試料に対する高感度分析が可能となるほか、本研究の成果は原子核データの拡充につながるものであり、環境計測及び原子核データの両面で意義は高いと考えられる。

研究成果の概要（英文）：Strontium 90 (^{90}Sr) is an important radionuclide in both environmental measurement and nuclear data. In this study, visualization of ^{90}Sr was demonstrated by observing the fluorescence of a single $^{90}\text{Sr}+$ ion using diode laser-based resonance ionization and ion trap. In addition, we proposed a method for resonance ionization of ^{90}Sr atoms with high isotopic selectivity. Two types of external cavity diode lasers were constructed using an interference filter and a diffraction grating. Using these lasers, the isotopic selectivity was evaluated to be 10 to the power of 6 - 10.

研究分野：レーザー分光

キーワード：ストロンチウム 同位体選択性 共鳴イオン化 イオントラップ 半導体レーザー 干渉フィルター 狭線幅 原子・分子物理

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

ウラン・プルトニウムの主要な核分裂生成物であるストロンチウム 90 (^{90}Sr , 半減期 28.8 年) はカルシウムと同族元素であり、骨組織への沈着による内部被ばくの問題が指摘されている。また、安定同位体 ^{88}Sr の中性子数が魔法数 50 にあたることから、同位体シフト等の核データベースを構築する上で重要な核種である。

^{90}Sr の分析手法は、大きく放射線計測及び質量分析に分類される。前者は娘核種イットリウム 90 (^{90}Y , 半減期 64.1 時間) の β 線計測が一般的であるが、 ^{90}Sr 及び ^{90}Y がともに純 β 崩壊核種であり、半減期が長いこと迅速分析は困難である。後者は ^{90}Y 及び安定同位体の孫核種ジルコニウム 90 (^{90}Zr) 等に起因する同重体干渉のほか、海洋起源の試料については Sr 安定同位体濃度が 10 ppm 程度と高く安定同位体 ^{88}Sr によるスペクトル干渉の問題が指摘されている。従って、試料中の極微量 ^{90}Sr を分析する上で他元素の干渉を受けず高い同位体選択性を持つ Sr 計測手法の開発が必要不可欠である。厚生労働省が定めている一般食品の基準値 100 Bq/kg に相当する海洋試料の ^{90}Sr 同位体存在度は 10^{-9} 程度の計算になる。

2. 研究の目的

本研究では、線幅の狭い半導体レーザーを用いて ^{90}Sr 原子を元素かつ同位体選択的に共鳴イオン化し、イオントラップを用いて $^{90}\text{Sr}^+$ イオンを捕獲・結晶化させて単一イオンからの蛍光を観測する超高感度な分析手法に着目する。特に、海洋試料中の ^{90}Sr 分析に十分な同位体選択性を持つ Sr 原子の共鳴イオン化スキームを開発することが主な目的である。

3. 研究の方法

(1) Sr 原子のレーザー共鳴イオン化

原子の電子状態のエネルギーレベルは元素により大きく異なっているが、同位体間でも質量の違い等に起因する僅かなずれが生じる。そこで、特定の Sr 同位体のエネルギー準位差に対応した波長の狭線幅半導体レーザーを用いることで、当該同位体のみを元素かつ同位体選択的にイオン化することが可能となる。半導体レーザーの発振波長域及び励起断面積を考慮して選ばれた Sr 原子の主な共鳴イオン化スキームを図 1 に示す。

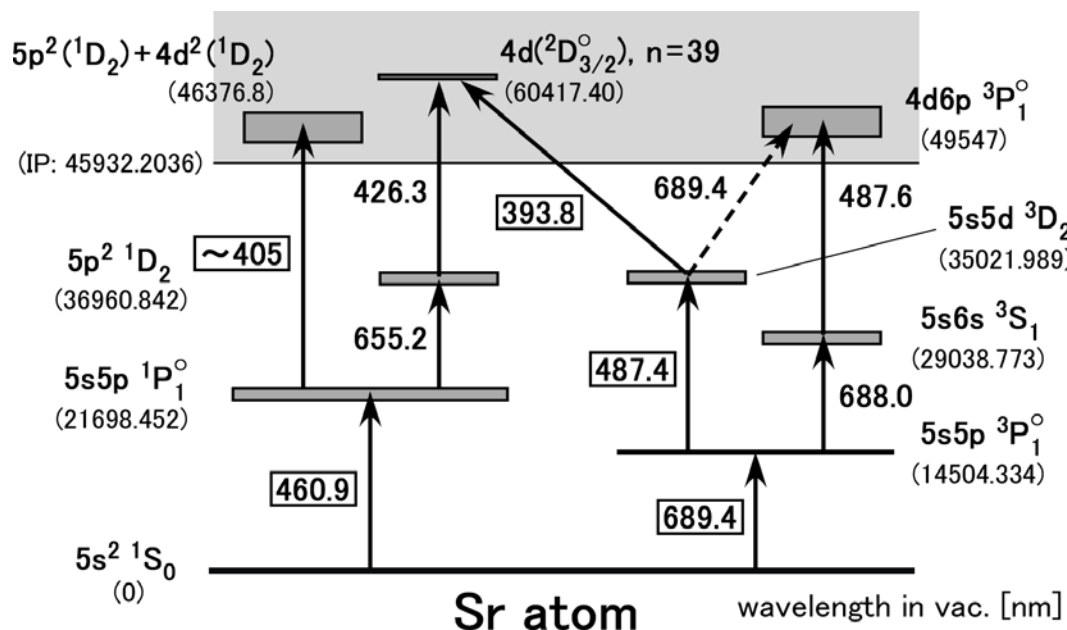


図 1 Sr 原子の主な共鳴イオン化スキーム

各遷移の数字は対応するレーザーの波長（真空中での値）であり、励起準位の電子状態の下にエネルギーレベルを記載した。各準位を表す横棒の厚さは当該準位の不確定性に対応し、一般的に励起準位の不確定性が大きいほど遷移断面積が大きく、不確定性が小さいほど同位体選択性が高くなる傾向にある。従って、イオン化効率及び同位体選択性の兼ね合いを考慮して最適な共鳴イオン化スキームを構築することが重要となる。本研究で使用した 2 週類のスキーム：460.9 nm-405 nm 及び 689.4 nm-487.4 nm-393.8 nm を図 1 に四角で示した。

(2) 共鳴イオン化・イオントラップを用いた $^{90}\text{Sr}^+$ 単一イオン結晶の可視化

同位体選択性の高い共鳴イオン化スキーム開発の前に、まずイオントラップを用いて $^{90}\text{Sr}^+$ 単一イオン結晶の可視化観測を行った。実験セットアップを図 2 に示す。 ^{90}Sr 試料として日本アイソトープ協会の放射能標準溶液を使用し、一定量を塗布したチタンフォイルを炭素ろつぽ内に挿入した。黒鉛炉で試料を加熱することで発生した ^{90}Sr 原子に対し、2 本の半導体レーザー

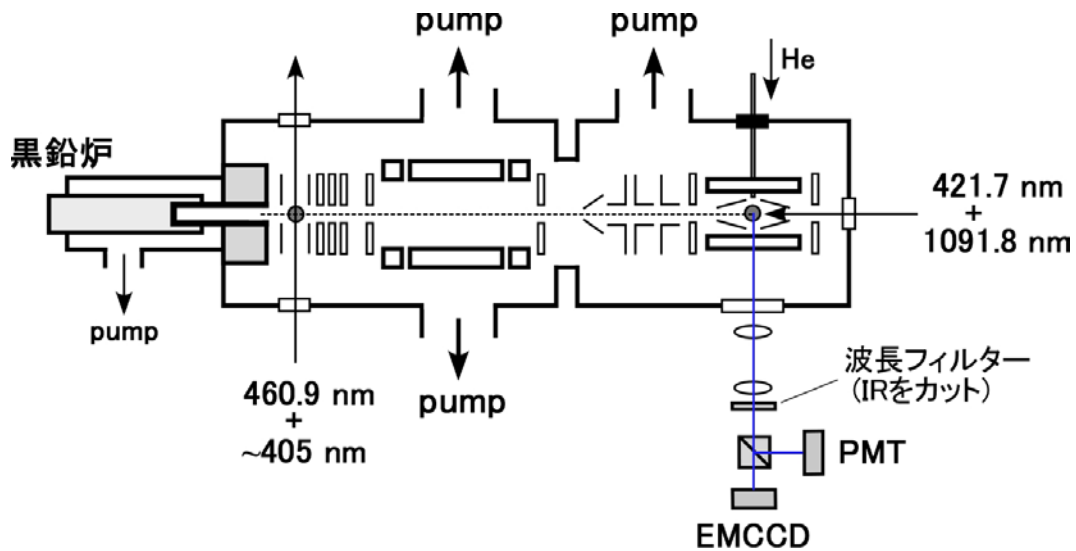


図2 共鳴イオン化・イオントラップを用いた $^{90}\text{Sr}^+$ イオンの可視化セットアップ

を照射して 460.9 nm–405 nm スキームにより共鳴イオン化し、質量分離フィルターを透過後に $^{90}\text{Sr}^+$ イオンを右側のイオントラップに導入した。イオントラップ内で、ヘリウムガスとの衝突により $^{90}\text{Sr}^+$ イオンを常温程度まで減速させ、波長 421.7 nm 及び 1091.8 nm の半導体レーザーを用いたレーザー冷却により $^{90}\text{Sr}^+$ イオンを結晶化させた。波長 421.7 nm レーザーの周波数を微調整し、 $^{90}\text{Sr}^+$ イオン結晶からの波長 421.7 nm の蛍光を EMCCD で観測した。

(3) 同位体選択性の高い Sr 原子の共鳴イオン化スキーム開発

次に、海洋試料中の ^{90}Sr 分析に必要な同位体選択性の高い Sr 原子の共鳴イオン化スキームを開発した。1 段目に自然幅の狭い（すなわち励起準位の不確定性が小さい）689.4 nm 線を利用したスキーム：689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm に着目し、各波長の外部共振器半導体レーザー（ECDL）を製作した。2, 3 段目（487.4 nm, 393.8 nm）は幅広く使用されている図 3(a) の回折格子型 ECDL を使用し、自然幅の狭い 1 段目（689.4 nm）については角度ずれに対して安定性が高い図 3(b) の干渉フィルター型 ECDL を新たに設計・製作した。

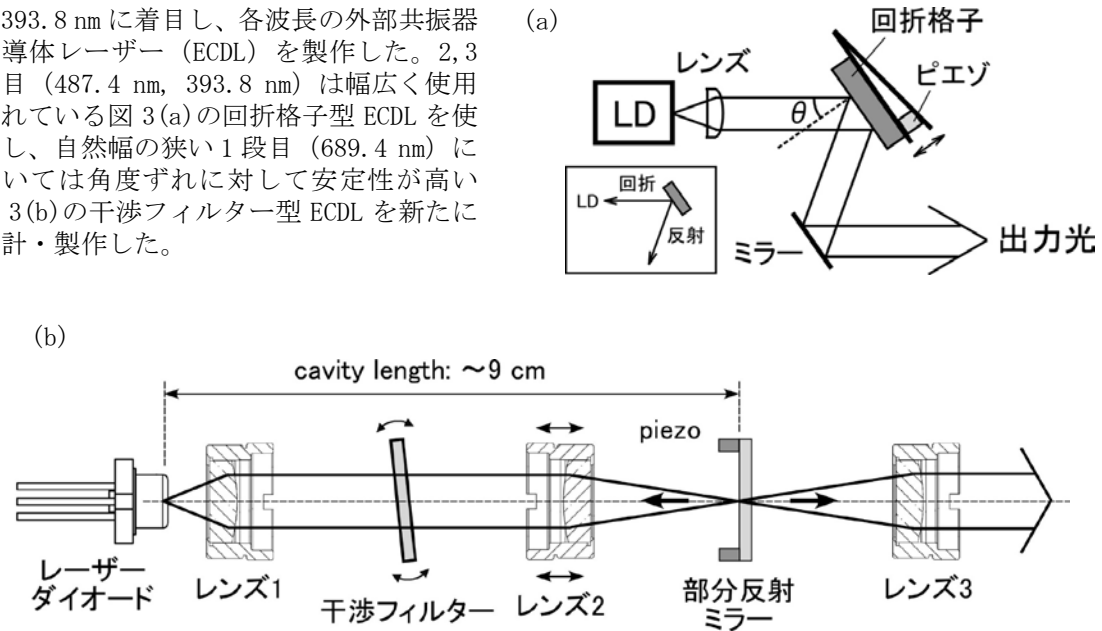


図3 外部共振器半導体レーザー（ECDL）の構造：(a) 回折格子型、(b) 干渉フィルター型

^{84}Sr が濃縮された安定同位体試料を用いて、加熱により発生した Sr 原子蒸気に 3 本の ECDL を照射して Sr 原子を共鳴イオン化し、 Sr^+ イオンを市販の四重極質量分析計で検出した。各 ECDL の周波数をスキャンし、1, 2, 3 段目の遷移における安定同位体 ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr の周波数スペクトルを測定した。得られたスペクトルを Voigt 関数でフィッティングし、各遷移について同位体間における共鳴周波数のずれ（同位体シフト）を評価した。King plot と呼ばれる解析手法により、各遷移について安定同位体の同位体シフト測定値から ^{90}Sr の同位体シフトを評価した。最後に、 ^{90}Sr 同位体シフトの評価値及び周波数スペクトル形状から安定同位体 ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr に対する ^{90}Sr の同位体選択性を評価し、各遷移についてそれらの積をとり本研究で開発したス

キーム：689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm における安定同位体 ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr に対する ^{90}Sr の同位体選択性を評価した。但し、1 段目の ^{90}Sr 同位体シフトについては文献 (B. A. Bushaw, B. D. Cannon, Spectrochim. Acta B **52** (1997) 1839–1854.) の測定値を利用した。

4. 研究成果

(1) $^{90}\text{Sr}^+$ 単一イオンの可視化

3. (2) の共鳴イオン化・イオントラップ手法により観測された $^{90}\text{Sr}^+$ イオン結晶の蛍光画像を図 4 に示す。白い粒が $^{90}\text{Sr}^+$ イオンに相当し、 $^{90}\text{Sr}^+$ 単一イオンの可視化を実証した。トラップ条件に依存するイオン間隔は約 $26 \mu\text{m}$ であった。

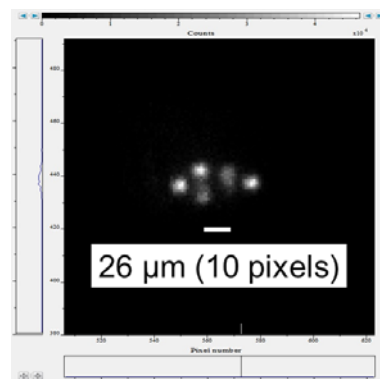


図 4 $^{90}\text{Sr}^+$ イオン結晶の蛍光画像

(2) 周波数スペクトルの測定及び同位体選択性の評価

3. (3) の分析装置を用いて測定された周波数スペクトルの中で、(a) 1 段目の ^{88}Sr 及び (b) 3 段目の ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr のスペクトルを図 5 に示す。1 段目についてはフィッティングした Voigt 関数のローレンツ成分が約 1.3 MHz と小さく、これは自然幅が小さいためレーザー線幅が支配的であり高い同位体選択性が期待できる遷移であることを示している。3 段目のスペクトルでは周波数に依存しない連続成分が観測されたが、これは図 1 の 689.4 nm–487.4 nm–689.4 nm 遷移によるイオン信号と考えられる。

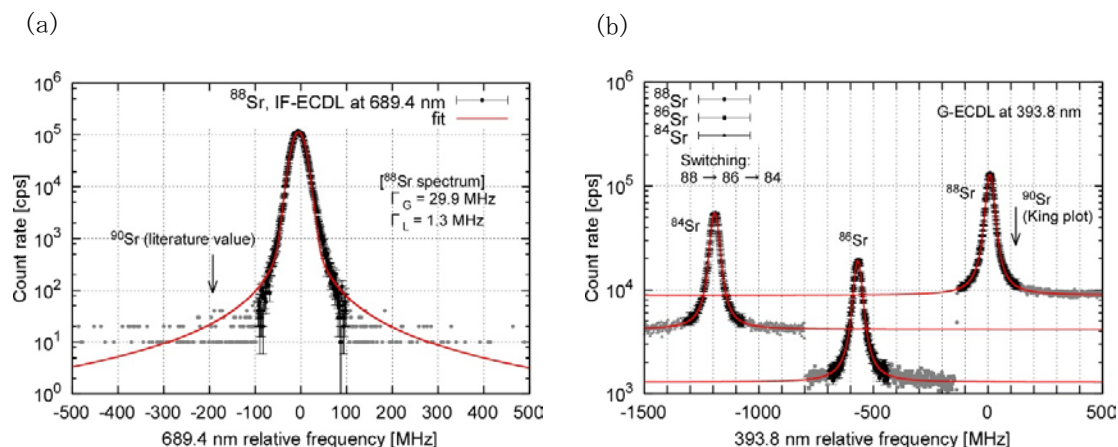


図 5 689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm スキームにおける周波数スペクトルの測定結果：
(a) 1 段目 (689.4 nm) の ^{88}Sr 、(b) 3 段目 (393.8 nm) の ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr

本研究で開発したスキーム：689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm における ^{90}Sr の同位体選択性は、 ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{88}Sr に対して各々 10^{10} , 10^6 , 10^8 と得られた。図 5(b) で観測された連続成分が同位体選択性を制限しているが、これについては 1 段目の励起準位の寿命が約 $21 \mu\text{s}$ と長いため、1 段目の ECDL を 2, 3 段目の ECDL から空間的に 5 mm 程度ずらすことによりイオン信号量は殆ど低下せず連続成分のバックグラウンドを大きく減少させることが可能である。それにより、上記の同位体選択性について 2 桁程度の改善が見込まれる。1. で述べたとおり一般食品の基準値 100 Bq/kg に相当する海洋試料の ^{90}Sr 同位体存在度は 10^{-9} 程度であり、イオントラップにおけるレーザー冷却過程で 10^2 程度の ^{90}Sr 同位体選択性が期待できることから、本研究で開発した Sr 原子の共鳴イオン化スキーム：689.4 nm–487.4 nm–393.8 nm は海洋試料中の ^{90}Sr 分析に十分な同位体選択性を持っていると考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件)

(1) [Yoshihiro Iwata](#), [Kyunghun Jung](#), [Donguk Cheon](#), [Ikuo Wakaida](#), [Masabumi Miyabe](#), [Shuichi Hasegawa](#),

“Laser Cooling and Spectroscopy of Trapped Sr Ions”,
JPS Conference Proceedings **24** (2019) 011039 (6 pages) (査読あり).

DOI: 10.7566/JPSCP.24.011039

(2) [Donguk Cheon](#), [Yoshihiro Iwata](#), [Masabumi Miyabe](#), [Shuichi Hasegawa](#),

“Development of Bandpass Filtered External Cavity Diode Laser System for RIMS of

Radioactive Strontium Isotopes” ,
JPS Conference Proceedings **24** (2019) 011032 (6 pages) (査読あり).
DOI: 10.7566/JPSCP.24.011032

(3) Donguk Cheon, Yoshihiro Iwata, Masabumi Miyabe, Ikuo Wakaida, Shuichi Hasegawa,
“Investigation of optical ionization of strontium via $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s5p \ ^3P_1^o \rightarrow 5s5d \ ^3D_2$
 $\rightarrow 4dnp$ (or $4dnf$, $n=39$) for isotope selectivity enhancement” ,
Journal of Spectroscopy **2018** (2018) 5612360 (6 pages) (査読あり).
DOI: 10.1155/2018/5612360

(4) Kyunghun Jung, Yoshihiro Iwata, Masabumi Miyabe, Kazuhiro Yamamoto, Tomohisa Yonezu,
Ikuo Wakaida, and Shuichi Hasegawa,
“Laser cooling and imaging of individual radioactive $^{90}\text{Sr}^+$ ions” ,
Physical Review A **96** (2017) 043424 (6 pages) (査読あり).
DOI: 10.1103/PhysRevA.96.043424

[学会発表] (計 14 件)

(1) Cheon Donguk, “Study on the novel resonance ionization scheme of strontium for the isotope selectivity enhancement” , 日本原子力学会 2019 年春の年会, 2019 年.

(2) 岩田圭弘, “レーザー共鳴イオン化を用いた実試料中 ^{90}Sr 分析の検討” , 第 17 回同位体科学研究会 (ポスター) , 2019 年.

(3) 岩田圭弘, “共鳴イオン化・イオントラップを用いた ^{90}Sr 分光分析” , 第 21 回 AMS シンポジウム (招待講演) , 2018 年.

(4) Cheon Donguk, “Study on the development of resonance ionization scheme of strontium with high isotope selectivity” , 日本原子力学会 2018 年秋の大会, 2018 年.

(5) Donguk Cheon, “Spectroscopic analysis of radioactive strontium with high isotopic selectivity (2) Multi-step RIS of ^{90}Sr with IF-ECDL and characteristics evaluation” , 日本原子力学会 2018 年春の年会, 2018 年.

(6) 岩田圭弘, “放射性ストロンチウムに対する同位体選択性の高い分光分析法の開発 (1) レーザー開発と共鳴イオン化スキーム” , 日本原子力学会 2018 年春の年会, 2018 年.

(7) Donguk Cheon, “Development of band pass filtered external cavity diode laser system for RIMS of radioactive strontium isotopes” , International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses (ISR2018) (ポスター) , 2018 年.

(8) Yoshihiro Iwata, “Laser cooling and spectroscopy of trapped Sr ions” , International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses (ISR2018), 2018 年.

(9) Donguk Cheon, “Development of interference filtered ECDL system for strontium resonance ionization spectroscopy” , 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 2017 年.

(10) 岩田圭弘, “ストロンチウム同位体イオンのレーザー冷却による分光分析法の開発 (4)” , 日本原子力学会 2017 年春の年会, 2017 年.

(11) 岩田圭弘, “ ^{90}Sr の迅速分析を目的とした共鳴イオン化・イオントラップ分析手法の開発” , 第 15 回同位体科学研究会, 2017 年.

(12) 岩田圭弘, “放射性ストロンチウムの迅速分析に向けた共鳴イオン化・トラップ分析技術の開発 (2) 捕獲イオンの蛍光観測” , 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年.

(13) 山本和弘, “放射性ストロンチウムの迅速分析に向けた共鳴イオン化・トラップ分析技術の開発 (1) 分析装置内イオン軌道シミュレーション” , 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年.

(14) 鄭京勲, “ストロンチウム同位体イオンのレーザー冷却による分光分析法の開発 (3)” , 日本原子力学会 2016 年秋の大会, 2016 年.

〔その他〕

ホームページ : <http://lyman.q.t.u-tokyo.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名 : 宮部 昌文

ローマ字氏名 : Miyabe Masabumi

所属研究機関名 : 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

部局名 : 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター

職名 : 研究主幹

研究者番号 (8桁) : 20354863

(2) 研究分担者

研究分担者氏名 : 伊藤 主税

ローマ字氏名 : Ito Chikara

所属研究機関名 : 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

部局名 : 高速炉研究開発部門 大洗研究開発センター 福島燃料材料試験部

職名 : 課長

研究者番号 (8桁) : 90421768

(3) 研究分担者

研究分担者氏名 : 長谷川 秀一

ローマ字氏名 : Hasegawa Shuichi

所属研究機関名 : 東京大学

部局名 : 大学院工学系研究科 (工学部)

職名 : 教授

研究者番号 (8桁) : 90262047

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。