

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02646

研究課題名(和文)原子のリュードベリ準位を用いた同位体分離による極微量放射性カルシウム分析法の開発

研究課題名(英文) Development of trace radioactive calcium analysis method by isotope separation using atomic Rydberg levels

研究代表者

岩田 圭弘 (IWATA, Yoshihiro)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター・研究職

研究者番号：20568191

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：原子力発電所の解体時に発生するコンクリート廃棄物を処理する上で、カルシウム41(41Ca)の高感度かつ簡便な分析が必要不可欠である。本研究では、2本の直線偏光レーザーを用いてCa原子をnsリュードベリ準位に共鳴励起・イオン化する光学系を開発した。安定同位体40Ca及び43Caの信号比較から偏光制御による奇数同位体の分離を実証し、50sリュードベリ準位で40Caに対する41Caの光学的同位体選択性を10の5乗程度と評価した。電場起因の非共鳴イオン化を低減することで、クリアランスレベルの41Caを含むコンクリート廃棄物分析への適用が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カルシウム41は従来の放射線計測及び質量分析が難しい長寿命放射性核種であり、本手法が実用化されることで、原子力発電所の解体時に大量に発生するコンクリート廃棄物の迅速な処理への貢献が期待される。また、本研究の成果はリュードベリ準位の同位体シフトといったカルシウム原子の分光データの拡充につながるものであり、原子力工学分野及び原子物理分野の両面で意義は高いと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Highly sensitive analysis of calcium 41 (41Ca) is indispensable for the disposal of concrete waste generated during the dismantling of nuclear power plants. In this study, we have developed an optical system using two linearly polarized lasers to resonantly excite Ca atoms to the ns Rydberg states. Even-odd isotope separation by laser polarization control was demonstrated from the comparison of measured 40Ca+ and 43Ca+ ion count rates, and the optical isotopic selectivity of 41Ca with respect to 40Ca using the 50s Rydberg state was evaluated to be 10 to the power of 5. By reducing non-resonant ionization caused by the electric field, it is expected that our method will be applied to the analysis of 41Ca at the clearance level contained in concrete waste.

研究分野：レーザー分光

キーワード：放射性カルシウム リュードベリ準位 レーザー共鳴イオン化 同位体分離 偏光制御 同位体選択性  
クリアランスレベル 原子・分子物理

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

原子力発電所の解体作業において、放射性廃棄物の適切な処理は重要な課題の一つである。コンクリート廃棄物では、主成分であるカルシウム 40 ( $^{40}\text{Ca}$ ) の中性子放射化により生成した長寿命の放射性カルシウム 41 ( $^{41}\text{Ca}$ , 半減期  $1.0 \times 10^5$  年) が問題となる。他の廃棄物と比べて放射能は低いが発生するため、廃棄の基準となるクリアランスレベルの  $^{41}\text{Ca}$  (100 Bq/g, 同位体存在度  $10^{-7}$  程度) を高感度かつ簡便に分析する技術開発が求められている。

$^{41}\text{Ca}$  の分析手法として、従来の放射線計測では電子捕獲に伴うエネルギー 3.3 keV の X 線を測定するが、半減期が長く低エネルギーの X 線であるため測定が困難である。質量分析ではカリウム 41 ( $^{41}\text{K}$ ) 及び  $^{40}\text{CaH}$  等による同重体干渉の問題が指摘されている。従って、コンクリート廃棄物に含まれる  $^{41}\text{Ca}$  を他元素の干渉を受けず主要な安定同位体  $^{40}\text{Ca}$  から分離して高感度に計測する手法の開発が必要不可欠である。

2. 研究の目的

本研究では、元素・同位体選択性を持つレーザー共鳴イオン化に着目する。コンクリート廃棄物に含まれるクリアランスレベルの  $^{41}\text{Ca}$  をターゲットとして、①レーザー偏光制御による奇数同位体の分離及び②奇数同位体リユードベリ準位のエネルギーシフトを利用した同位体選択性向上の 2 点を組み合わせた Ca 原子のレーザー共鳴イオン化による  $^{41}\text{Ca}$  分析手法の開発が主な目的である。

3. 研究の方法

(1) レーザー偏光制御による奇数同位体の分離

Ca 原子の電子状態のエネルギーレベルは元素固有であるが、同位体間でも僅かなずれ (同位体シフト) が生じている。そのため、図 1 のとおり線幅の狭い半導体レーザーを用いて特定の Ca 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である。ここで、図 2 のとおり 2 本の半導体レーザーを用いて電子の全角運動量  $J: 0 \rightarrow 1 \rightarrow 0$  の 2 段励起により  $ns \ ^1S_0$  リユードベリ準位に遷移させることを考える。レーザー 2 本の偏光を互いに直交する直線偏光とした場合、核スピンを持たない  $^{40}\text{Ca}$  等の偶数同位体は 2 段目の遷移が禁止される。一方で、 $^{41}\text{Ca}$  及び安定同位体  $^{43}\text{Ca}$  の奇数同位体は核スピン  $I = 7/2$  を持つため、電子の全角運動量  $J$  との結合で生じる超微細構造により 2 段目の遷移が許容される。これにより、 $^{40}\text{Ca}$  等の偶数同位体から  $^{41}\text{Ca}$  (及び安定同位体  $^{43}\text{Ca}$ ) を分離することが可能となる。なお、 $^{43}\text{Ca}$  は天然存在度が 0.1% 程度と低く  $^{41}\text{Ca}$  に対する同位体シフトが大きいため、 $^{41}\text{Ca}$  の分析への影響は無視できる。

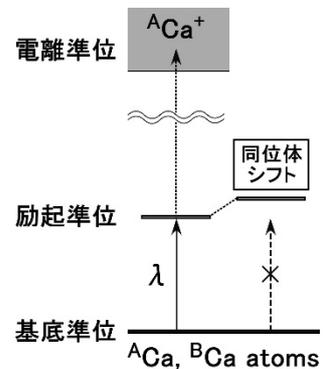


図 1 Ca 原子のレーザー共鳴イオン化

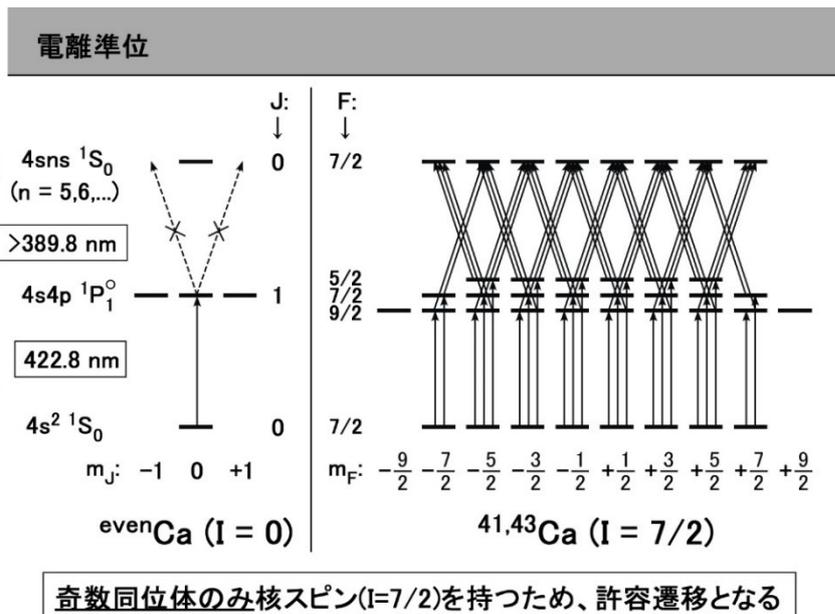


図 2 レーザー偏光制御による奇数同位体の分離スキーム

(2) 奇数同位体リユードベリ準位のエネルギーシフトを利用した同位体選択性向上

図2のスキームで、 $ns\ ^1S_0$ リユードベリ準位は主量子数  $n$  とともに  $Ca^+$ イオン基底準位に収束する。奇数同位体 ( $^{41}Ca$ ,  $^{43}Ca$ ) については、図3のとおりイオン基底準位が超微細構造を持ちエネルギーの高い  $F = 3$  準位に収束することが知られている。従って、 $n > 30$  の大きい主量子数では  $^{40}Ca$  に対して  $^{41}Ca$  のリユードベリ準位のエネルギーレベルが高い側に離れていくため、同位体シフトが大きくなり  $^{40}Ca$  に対する  $^{41}Ca$  の同位体選択性向上が期待される。

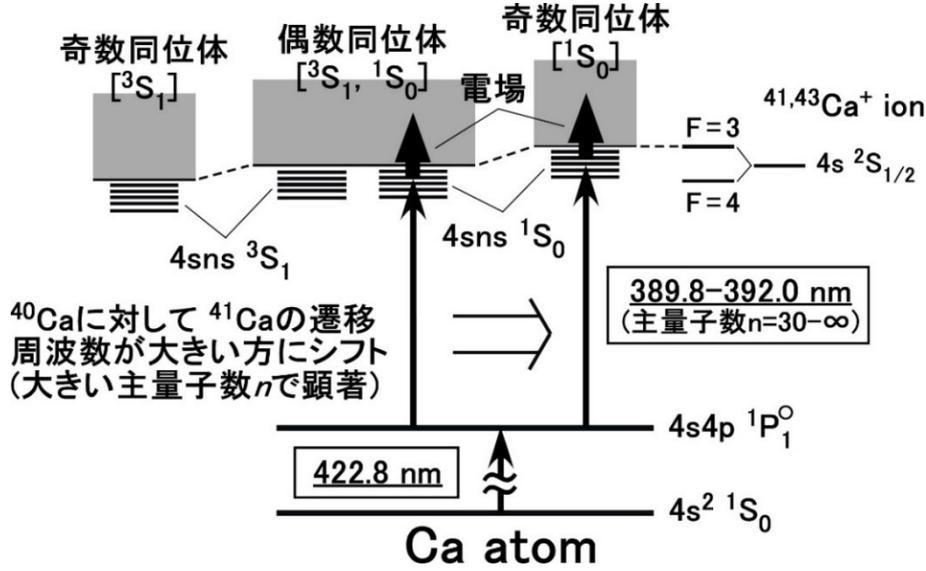


図3 Ca 奇数同位体における  $ns\ ^1S_0$  リユードベリ準位のエネルギーシフト

(3)  $^{41}Ca$  光学的同位体選択性の評価

四重極質量分析計を用いて  $^{40}Ca$  と  $^{43}Ca$  のイオン信号量を比較することで、(1)及び(2)の原理実証を行う。2段励起における1段目(波長422.8 nm)のレーザー周波数を  $^{41}Ca$  の共鳴周波数に制御した状態で2段目(波長390 nm程度)のレーザー周波数をスキャンして  $^{40}Ca^+$ イオン信号量を測定し、スペクトル形状から  $^{40}Ca$  に対する  $^{41}Ca$  の光学的同位体選択性を評価する。

4. 研究成果

(1)  $50s\ ^1S_0$  リユードベリ準位におけるレーザー偏光条件と  $^{40,43}Ca^+$ イオン信号量の関係

図2のスキームで2段目を波長390.5 nmに微調整し、 $50s\ ^1S_0$  リユードベリ準位の信号を観測した。1段目のレーザー周波数を  $^{40}Ca$  又は  $^{43}Ca$  の共鳴周波数 ( $^{43}Ca$  は  $J = 1$  励起準位が超微細構造を持つため、量子数  $F = 9/2, 7/2, 5/2$  の3通り) に制御した状態で2段目のレーザー周波数をスキャンし、 $^{40}Ca^+$ 又は  $^{43}Ca^+$ イオン信号量を測定した。図4は、レーザー2本の直線偏光が互いに平行及び直交の2通りで測定した  $^{40}Ca$  の周波数スペクトルであり、直交条件では  $^{40}Ca^+$ イオ

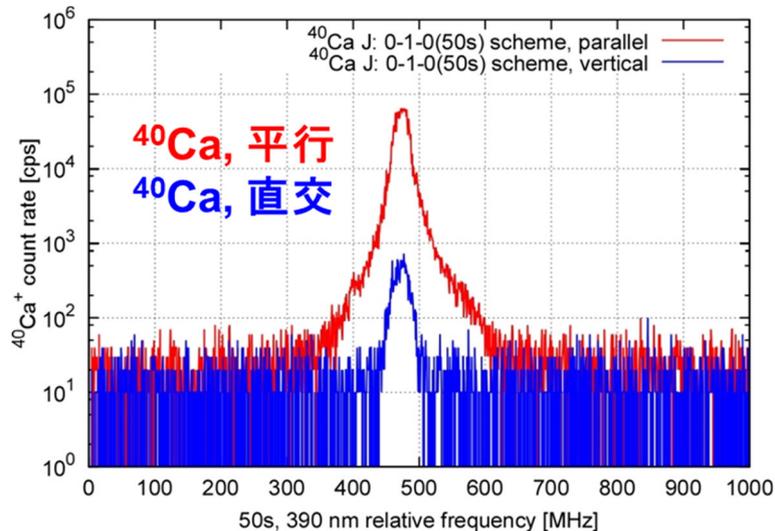


図4 レーザー偏光条件と  $^{40}Ca^+$ イオン信号量の関係 (リユードベリ準位:  $50s\ ^1S_0$ )

ン信号量が2桁程度低下した。 $^{43}\text{Ca}$  の場合は1/3程度で低下度合いが小さかったことから、レーザー偏光制御による奇数同位体の分離を実証し、偶奇選択性を $10^1$ – $10^2$ 程度と評価した。

(2)  $50\text{s } ^1\text{S}_0$  リュードベリ準位における  $^{43}\text{Ca}$  のエネルギーシフト

次に、 $50\text{s } ^1\text{S}_0$  リュードベリ準位について2段目の遷移におけるCa安定同位体の周波数スペクトルを測定した(図5)。1段目のレーザー周波数は、各同位体の共鳴周波数( $^{43}\text{Ca}$ の励起準位は $F = 9/2$ )に制御した。2段目の共鳴周波数の測定値を用いて、King plotによる解析から図3に示した超微細構造起因の $^{43}\text{Ca}$ のエネルギーシフトを390 MHz程度と評価した。この値は計算による予測と矛盾の無い結果であり、 $^{41}\text{Ca}$ のエネルギーシフトは580 MHz程度と見込まれる。

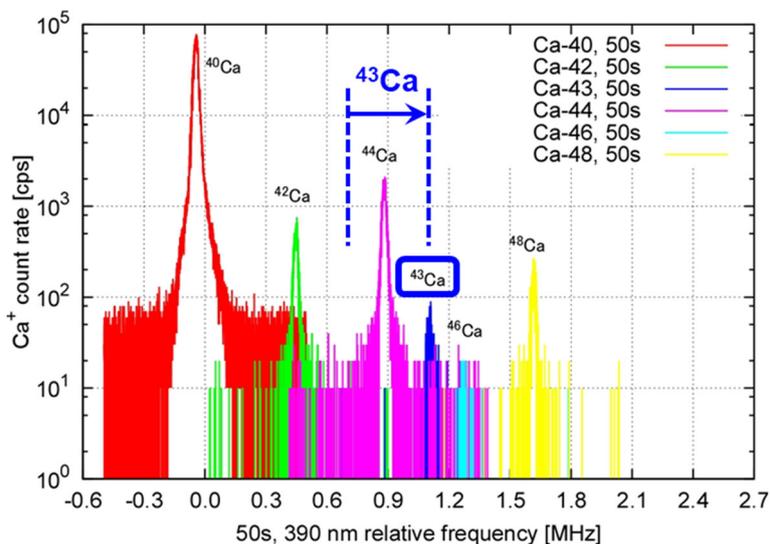


図5 2段目の遷移におけるCa安定同位体の周波数スペクトル(リュードベリ準位： $50\text{s } ^1\text{S}_0$ )

(3)  $^{41}\text{Ca}$  光学的同位体選択性の評価

(1)及び(2)の測定・評価結果をもとに、 $50\text{s } ^1\text{S}_0$  リュードベリ準位を用いた場合の $^{40}\text{Ca}$ に対する $^{41}\text{Ca}$ の光学的同位体選択性を評価した。1段目のレーザー周波数を $^{41}\text{Ca}$ の共鳴周波数(励起準位 $F = 9/2$ 及び $5/2$ の2通り)に制御した状態で、2段目のレーザー周波数をスキャンして $^{40}\text{Ca}^+$ イオン信号量を測定した(図6の緑及び青)。1,2段目ともに $^{41}\text{Ca}$ の共鳴周波数に制御した場合の $^{40}\text{Ca}^+$ イオン信号量をもとに、 $^{40}\text{Ca}$ に対する $^{41}\text{Ca}$ の光学的同位体選択性を $10^5$ 程度と評価した。現状は、電場に起因する $^{40}\text{Ca}$ の非共鳴イオン化成分が選択性に制限を与えているが、 $^{40}\text{Ca}$ の周波数スペクトル形状(図6の赤)から原理的に $10^7$ を超える高い光学的同位体選択性が見込まれる。従って、今後イオン化領域の電場及び主量子数 $n$ を最適化し電場起因の非共鳴イオン化バックグラウンドを低減することで、クリアランスレベルの $^{41}\text{Ca}$ を含むコンクリート廃棄物分析への適用が期待される。

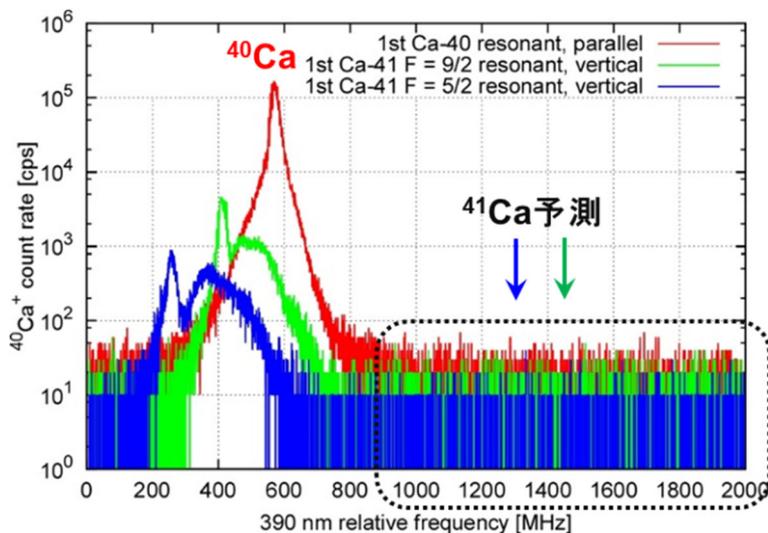


図6  $^{41}\text{Ca}$ の共鳴周波数に制御した場合の $^{40}\text{Ca}^+$ イオン信号量(リュードベリ準位： $50\text{s } ^1\text{S}_0$ )

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Wells Stephen R、Miyabe Masabumi、Iwata Yoshihiro、Hasegawa Shuichi	4. 巻 54
2. 論文標題 Resonance ionisation spectrometry measurement of atomic calcium Rydberg isotope shifts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 045002 ~ 045002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6455/abe0a4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 岩田圭弘、宮部昌文、赤岡克昭、若井田育夫
2. 発表標題 レーザーの偏光制御及びリユードベリ原子を用いたCa同位体分析
3. 学会等名 第19回同位体科学研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩田圭弘、Stephen Wells、宮部昌文、長谷川秀一
2. 発表標題 直線偏光レーザーを用いた放射性カルシウム分析法の開発
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	宮部 昌文  (MIYABE Masabumi)  (20354863)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター・研究主幹    (82110)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	長谷川 秀一  (HASEGAWA Shuichi)  (90262047)	東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授    (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関