

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K14748

研究課題名（和文）レーザー分光による超変形原子核検証のためのイオン源開発

研究課題名（英文）Development of ion source for laser spectroscopy of unstable nuclei

研究代表者

田島 美典 (Tajima, Minori)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器科学研究センター・特別研究員

研究者番号：20821838

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：加速器を用いなければ生成できない不安定な原子核では、原子核の構造を顕著に反映した現象が見られる。特に、不安定原子核と電子からなる原子をレーザーで精密に調べることで、不定性を抑えて原子核構造を研究することが可能である。今までこの手法の適用が困難だったために未測定のコル種に対し、理研RIBFで開発が進むSLOWRI施設ではアクセスが可能になる。本研究は、ここでの不安定核に対するレーザー分光を通じた原子核構造研究を大きな目標として、高精度測定の実現に必要な加速器を用いずに得られる安定な原子核のイオンを供給するイオン源の開発と、レーザー分光装置および手法の開発を進めるものである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本開発研究は、天然に存在しない不安定な原子核（RI）を対象とした新たなレーザー分光の技術開発に関するもので、長寿命・短寿命両方のRIに適用可能な新たな元素分析技術に繋がる。学術面では二ホニウムに代表される超重元素の性質解明、原子核工学の面では長寿命核分裂生成物の寿命測定などへの発展が期待される。当該研究はただちに実社会へ成果が還元されるものではないが、人類共有の知的財産として蓄積され、人類の文化的な生活を発展させる基盤となる。

研究成果の概要（英文）：Unstable nuclei, which cannot be generated without using accelerators, show phenomena that remarkably reflect nuclear structures. In particular, it is possible to study the nuclear structures using a laser by precisely examining atoms and ions consisting of unstable nuclei and electrons, while suppressing ambiguities from theoretical models of nuclear energy levels. The SLOWRI facility, which is being developed at RIKEN RIBF, will be able to access nuclides that have not been measured due to difficulties in applying this method. While aiming to study the nuclear structures through laser spectroscopy of unstable nuclei, this research focuses on the development of an ion source of stable nuclei without using accelerators which is necessary for achieving high-precision measurements, and the development of laser spectroscopy setup improving detection efficiency.

研究分野：エキゾチック原子

キーワード：コリニアレーザー分光 同位体シフト 超微細構造 不安定原子核 レーザーアブレーション 高周波 イオンガイド ジルコニウム

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。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 原子準位間の精密レーザー分光によって原子核構造を調べると、原子核としては単一の状態のみから情報が得られ、原子核の理論モデルから予測したエネルギー準位構造に依存しない、不定性を抑えた測定が可能になる。これは、原子核物理で広く行われている、励起状態にある原子核からの遷移で放出されるガンマ線の測定と相補的で、核構造の理解に重要な役割を果たす。

(2) 核構造研究では、加速器で生成されて特徴が顕著に表れる不安定原子核を調べる必要がある。理研 RIBF では不安定核を生成後、BigRIPS 施設での核種による分離と SLOWRI 施設での冷却を経て、低エミッタンスのイオンとして引出すことができ、レーザー分光に最適である。特に、特異的な核構造の結果として基底状態で原子核が大きく変形するなど、興味深い理論予測の多い中重核領域において、難揮発性元素の未測定核種にアクセスが可能となる。この領域でレーザー分光実験のデータを蓄積し、理論モデルとの比較と改良を通じて、さらなる研究の進展が期待されている。

(3) レーザー分光によって原子核の変形度を得るためには、原子の超微細構造、あるいは同位体に依る遷移周波数のずれ(同位体シフト)を測定する。特に、同位体シフトは核スピンによらない手法で、加速器を用いずに行われる安定同位体の遷移周波数を高精度で決めて、周波数シフトの基準として参照することが重要である。また、収量が限られる不安定原子核に対し、高精度測定を可能にする工夫が必要である。

### 2. 研究の目的

不安定原子核のレーザー分光の手法による核構造研究を最終的な目標に据えつつ、

(1) 同位体シフトの参照周波数決定に必要な安定同位体のイオン源として、難揮発性元素を含めた固体ターゲットに適用可能な、汎用性の高い装置を開発する。

(2) 安定同位体のイオンを加速してレーザーを同軸上に照射し、分光スペクトルのドップラー広がりを抑制した手法(コリニアレーザー分光)によって、同位体シフトと超微細構造の測定を行うことで、不安定核測定の実現に向けた開発を進める。

### 3. 研究の方法

(1) ヘリウムガス中で固体ターゲットのレーザーアブレーションによりイオンを生成し、高周波イオンガイド法でイオンを停止、下流に輸送して引き出すイオン源を構築する。引き出したイオンはマススペクトルを取得して確認する。

(2) バリウムの安定同位体イオンを用いてコリニアレーザー分光装置と手法の最適化を行い、さらに、不安定原子核の測定が期待されるジルコニウムの安定同位体のイオンを用いて検出効率の向上を図る。

### 4. 研究成果

(1) イオン源を構築し、マススペクトルの取得に成功

図1aは製作したイオン源の模式図である。ヘリウムガス中の円筒電極内に、アブレーションの固体ターゲットを設置し、光学窓を通して532 nmのパルスレーザーを照射してイオンを生成した。ヘリウムはイオン化ポテンシャルが高いので、生成したイオンはガス中で冷却され、そのままDC電場で下流側へ輸送される。このとき、レーザーの照射位置をランダムに変化させることで収量の安定化を図った。下流側の同心円状電極(RFCP)には、高周波電場を印加してイオンが電極に衝突するのを防ぎながら、中央の出口に向かうDC電場を重畳することでイオンを引き出し、直下にも四重極型のRFとDC電場を用いたイオンガイドを配置して(QPIG, RFQ)、下流へ輸送した。RFを印可しない場合に同心円状電極で回収される電荷量に対し、RFの印可に

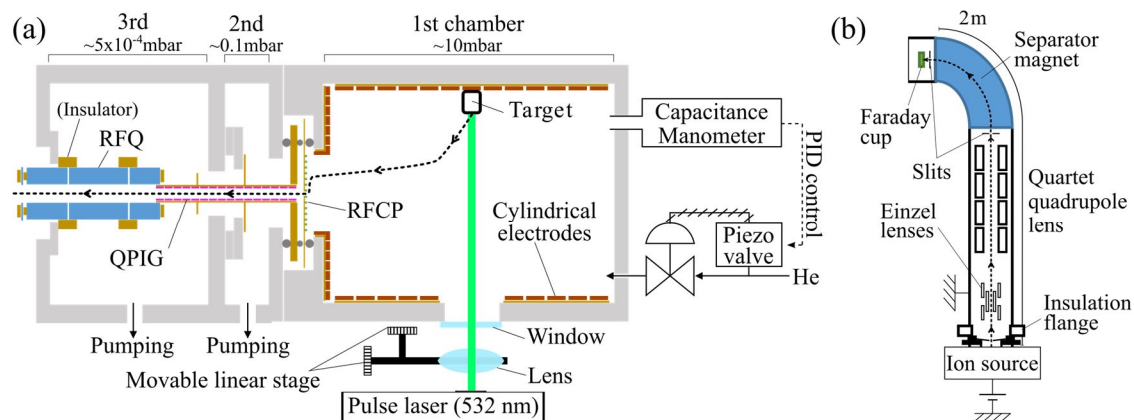


図1 イオン源(a)とマススペクトル測定装置(b)の模式図 ([1]より改変)

よって 60~80% を下流へ引き出すことができた。また、レーザー分光スペクトルの拡がりを抑えるため、真空度は最初のアブレーションターゲットを設置したチャンバの 10 mbar 程度から、最下流では  $5 \times 10^{-4}$  mbar 程度に落とした (図 1 a)。

次に、イオンを同定するため、質量分離用ダイポール磁石を備えたビームラインにイオン源を接続した (図 1 b)。イオン源のチャンバ全体を電氣的に絶縁して 10 kV を印可し、一価イオンを 10 keV のビームとして下流へ引き出して、ファラデーカップで電荷量を測定した。図 2 はニッケル、銀、難揮発性元素であるジルコニウム、タンタル、タングステン、化合物であるフッ化バリウムを固体ターゲットとした場合に得られたマススペクトルで、それぞれの天然同位体比に応じて一価イオンのピークが確認できた。強度としてはパルスレーザーを一回照射することに  $10^5$  から  $10^7$  個程度で、安定性に改善の余地はあるものの、コリニアレーザー分光の参照測定に使用可能である。結果を査読付き論文として報告した [1]。

## (2) 安定同位体のコリニアレーザー分光測定

コリニアレーザー分光の手法としての最適化にあたって、まずはバリウム安定同位体のイオンの分光スペクトルを測定した。これは、バリウムの分光学的性質が既知であり、イオンの生成と光源の準備が比較的容易なためである。図 3 a は測定装置の模式図である。イオンは、酸化バリウムの粉末を熱することで生成し、10 kV で加速して連続的なビームとして引き出した。加速電圧は、高電圧用の精密抵抗分割器で常時測定して電源にフィードバックをかけ、電圧を安定化した。光源としては、外部キャビティを製作し、市販のレーザーダイオード (455 nm) と回折格子を用いたリトロ型を採用した。波長は常時モニターし、回折格子にとりつけたピエゾ素子にフィードバックをかけることで安定化した。波長のドリフトを抑制するため、アルミ製の筐体を二重にして、それぞれの温度を安定化した。下流側にはビーム軸上に穴の開いた抵抗分割電極が設置されており、そこで共鳴したイオンからの発光を光電子増倍管 (PMT) で測定した。電極の PMT 側の面と反対の側面は金属メッシュが貼られていて、ビームラインの反対側には球面ミラーが設置されており、PMT 側に出た光と反対側に出てミラーで反射された光が PMT で観測される。イオンビームとレーザーはダイポール磁石の下流で常同軸上にあるが、電極への印可電圧によってイオンの速度を調整し、PMT の観測領域で局所的に共鳴が起こるようにした。印可電圧をスキャンし、それをレーザー波長に換算することで、波長

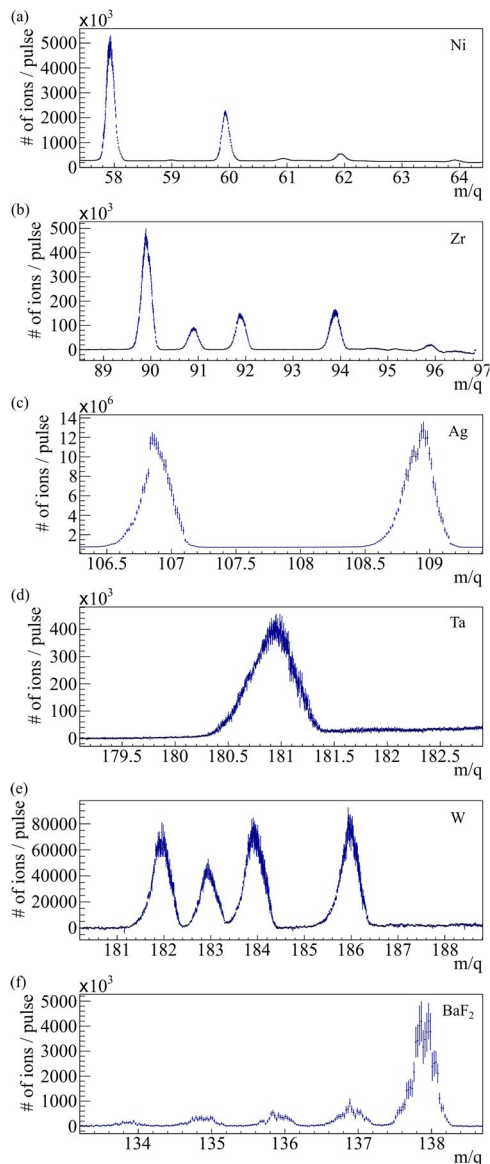


図 2 マススペクトル ([1]より改変)

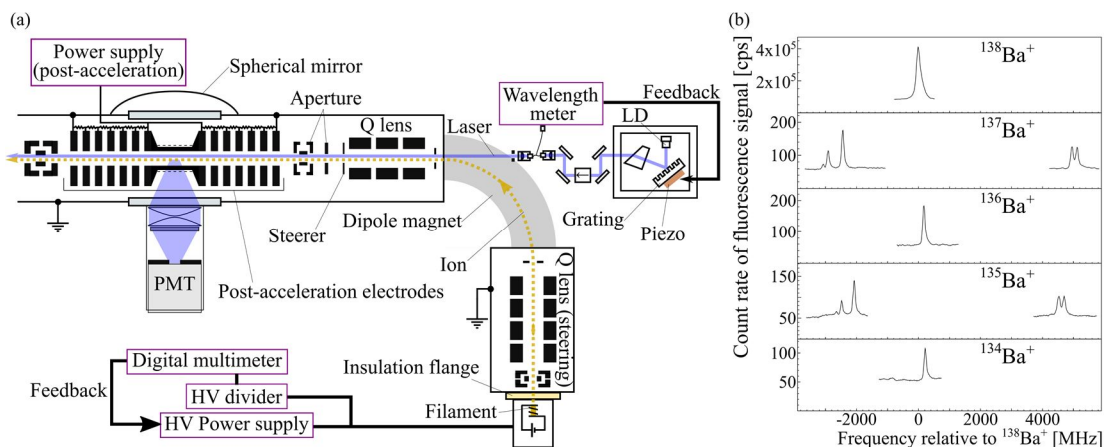


図 3 バリウム安定同位体イオンのコリニアレーザー分光装置(a)と分光スペクトル(b) ([2]より改変)

に対する分光スペクトルが得られた(図3b)。換算には加速電圧の値が必要で、電圧の安定化は不確かさの低減に寄与する。結果として、質量数が134から138までのバリウム安定同位体の一価イオンに対し、遷移周波数のシフトと超微細構造を観測することができた。先行実験の値と矛盾しない結果が得られており、測定手法の妥当性が確認できた。

次に、不安定同位体の測定対象として期待されている元素の一つであるジルコニウムの、安定同位体イオンの分光スペクトルを測定した。イオンは、ディスク状のジルコニウムにパルスレーザーを照射してレーザーアブレーションのみでパルスの生成した。光源としては、市販のTi:Saレーザーと第二次高調波発生器を使用し、波長は常時モニターして安定化した(357 nm)。抵抗分割電極の部分は、PMT正面の電極の内側を回転楕円体面ミラーと球面ミラーを向かい合わせた構造(コンボミラー)に削って研磨したものに入れ替えて全方向の光を集光し、検出効率の改善を図った(図4)。このミラーの組み合わせは分子分光の実験で用いられていたデザインを参照したもので、中央に位置する点光源に対しては集光効率が一桁改善する。コリニアレーザー分光では光源に幅があるうえ、表面の反射率には改善の余地があるものの、集光効率は2倍程度に改善したと見積もられた。さらに、アブレーションレーザーのパルスと同期した50マイクロ秒間のみPMTでの発光を観測することで、レーザーの迷光による分光スペクトルのバックグラウンドを抑制した。結果として、質量数が90-92, 94, 96のジルコニウムの一価イオンの分光スペクトルの観測に成功した(図5)。質量数91のイオンでは、分離できた超微細構造のピークから超微細構造定数の導出が可能である。測定誤差は改善の余地があるが、同位体シフトの値を先行研究の測定値に対してプロットすることで、測定の妥当性を確認できた[2]。一方で、パルスの引き出したジルコニウムイオンの速度分布が複数のピークを持つ場合があり、理由が特定できていない。アブレーションによる複雑なプロセスに起因する可能性があり、(1)で構築したイオン源を用いることでヘリウムガス冷却によってエネルギーの揃ったイオンビームを引き出して、より信頼度の高い測定を行える可能性がある。ただし、この場合は冷却によって時間的なパンチ幅が長くなるため、イオン源の下流側でパンチを短くする装置を製作してバックグラウンドを低減する必要があり、今後の課題である。

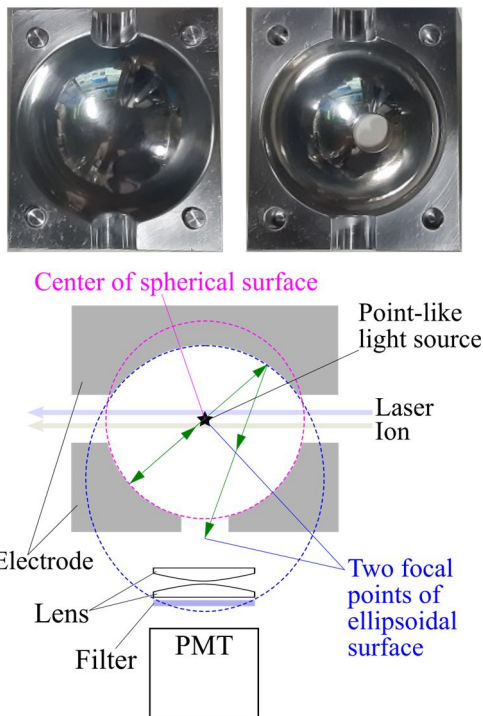


図4 コンボミラー型電極の写真と集光の模式図( [2]より改変 )

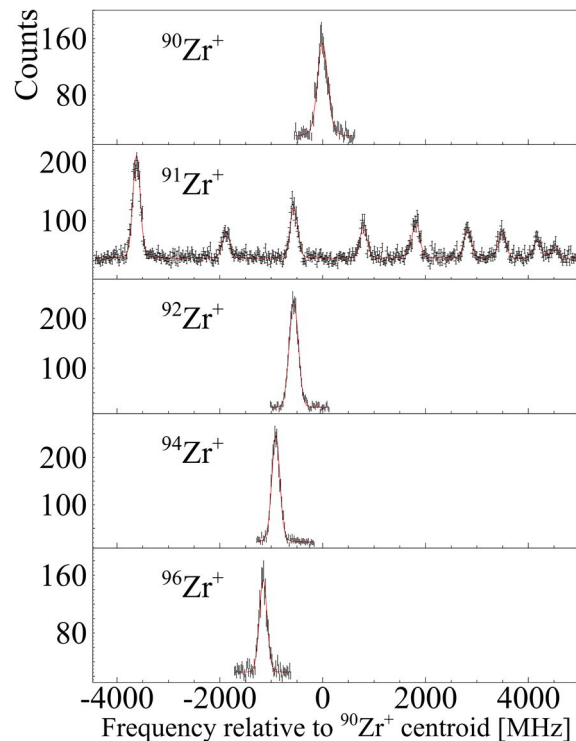


図5 ジルコニウム安定同位体イオンの分光スペクトル( [2]より改変 )

#### 参考文献

- [1] "Offline ion source for laser spectroscopy of RI at the SLOWRI," M. Tajima et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 486, 48-54 (2021).  
 [2] "Offline development for collinear laser spectroscopy at the SLOWRI facility M. Tajima et al, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 541, 272-274 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tajima M., Takamine A., Wada M., Ueno H.	4. 巻 486
2. 論文標題 Offline ion source for laser spectroscopy of RI at the SLOWRI	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 48 ~ 54
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2020.10.013	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 -

1. 著者名 Tajima M., Takamine A., Iimura H., Wada M., Kimura S., Niwase T., Schury P., Schuessler H.A., Lassen J., Ueno H.	4. 巻 541
2. 論文標題 Offline development for collinear laser spectroscopy at the SLOWRI facility	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 272 ~ 274
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2023.05.031	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 該当する

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Minori Tajima, Aiko Takamine, Hideki Iimura, Michiharu Wada, Sota Kimura, Toshitaka Niwase, Peter Schury, Hans A Schuessler, Jens Lassen, Hideki Ueno
2. 発表標題 Offline development for collinear laser spectroscopy at the SLOWRI facility
3. 学会等名 The 19th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Related Topics (EMIS) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田島美典、高峰愛子、飯村秀紀
2. 発表標題 不安定原子核の同位体シフト測定に向けた開発
3. 学会等名 第17回AMO討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田島美典、高峰愛子、飯村秀紀、和田道治、H.A. Schuessler、上野秀樹
2. 発表標題 コリニアレーザー分光による四重極変形度測定を通じた原子核構造研究にむけた開発II
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Tajima, A. Takamine, T. Asakawa, M. Wada, Y. Sasaki, Y. Nakamura, H. Imura, K. Okada, T. Sonoda, H. A. Schuessler, H. Odashima, Y. Matsuo, H. Ueno
2. 発表標題 Development of offline ion source for collinear laser spectroscopy at the SLOWRI facility in RIKEN
3. 学会等名 The 13th International Conference on Stopping and Manipulation of Ions and related topics (国際学会)
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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------