

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 18 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540301

研究課題名(和文)二重ベータ崩壊研究のための、レーザーによるCaの同位体分離

研究課題名(英文)Laser Isotope Separation of Ca for Double Beta Decay Research

研究代表者

仁木 秀明(Niki, Hideaki)

福井大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00135758

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：宇宙生成の謎の一端を解明するかもしれないと期待されている、二重ベータ崩壊実験をなるべく小型の装置で精度よく短時間で行えるようにするために、実験で使用されるCa-48同位体をレーザーにより高純度化(同位体分離)する手法について研究を行った。真空容器内で発生させたCa原子蒸気に青色(波長423nm)のレーザー光を照射してCa-48のみを回収する方法であり、シミュレーションと実験により、分離性能の評価法の開発が行われた。

研究成果の概要(英文)：Double-beta-decay experiments are being performed world-widely, which may reveal some picture of the genesis of this universe. Ca-48 is one of the elements used in these experiments, and the development of purification (separation) technique of this isotope is awaited. A laser method, in which Ca-48 is selectively deflected and enriched using a blue laser ($\lambda=423\text{nm}$), has been proposed. Measurement techniques to evaluate the performance of this method have been developed experimentally with the aid of computational calculation.

研究分野：量子エレクトロニクス、レーザー分光

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

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。

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いく。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。

Ca原子は、図1-1のように、波長423nmの光に対して極めて強い吸収特性があり、共鳴光を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。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、申請者はこれをCaの同位体分離に応用することを考えた。

すなわち、図1-2のように、真空容器中でCa

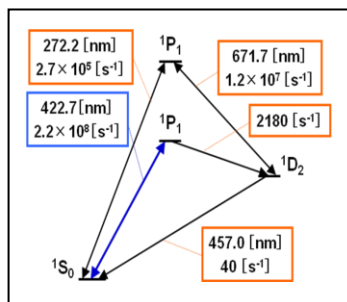


図 1-1 Ca 原子のエネルギー模式図

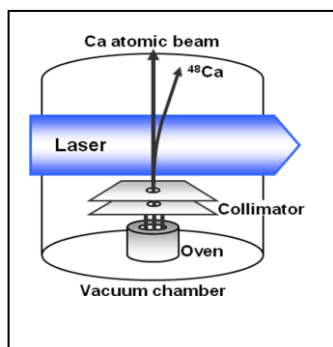


図 1-2 Ca のレーザー同位体分離の概念図

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。

2. 研究の目的

以下のことを目的とした。

(1) レーザー照射による Ca 原子の偏向実験 (同位体分離実験)

特定同位体の原子ビームからの偏向の大きさを明らかにし、計算モデルの妥当性を評価する。

(2) Ca 原子蒸気ビームの特性評価

Ca 原子蒸気ビームの濃さとビーム広がりとの関係を明らかにする。

(3) 分離装置の概念設計

3. 研究の方法

実験的方法として、当初以下のような方法を考えていた。

(1) レーザー照射による Ca 原子の偏向実験

実験装置の整備

図 3-1 のように原子蒸気発生用ヒータ加熱のオープン、イオン引き出し電極、高感度高速イオン検出器(MCP)を備えた装置を準備する。

① Ca 原子の偏向実験

現有する、半導体レーザーを用いて、まず、天然存在比の最も大きいCa-40にレーザー波長を同調し、原子偏向の観測

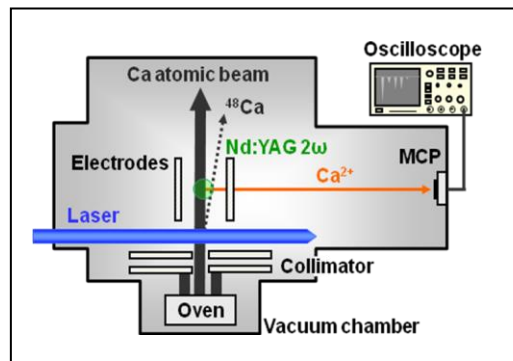


図 3-1 分離実験用真空チャンバー

を行う。

② 同位体分離実験

半導体レーザーを用いて、Ca-48 同位体分離実験を試みる。

④高原子密度での同位体分離実験

高い原子密度(数密度)での同位体分離実験を試みる。

(2) Ca 原子蒸気ビームの特性評価

①原子蒸気ビーム広がり測定

低密度において十分にコリメートされた原子蒸気について、オープンの温度

を変化させたときの原子蒸気ビーム広がりを調べる。発生蒸気量は、原子ビーム上方に膜圧計を設置してモニタする。蒸気ビームの広がり、半導体レーザー照射により原子蒸気が発光する（レーザー誘起蛍光）領域の長さを画像測定することにより評価する。

②原子蒸気中の凝縮成分の測定

①と同様にして、オーブンの温度を変化させたときの単原子成分および凝縮成分（2原子分子、3原子分子等々）を測定する。これは、それぞれの成分は、レーザーイオン化測定において、飛行時間の違いにより簡単に区別できる。これより、それぞれの成分の存在比、特に単原子として存在しているCa原子蒸気の割合を明らかにする。

(3) 分離装置の概念設計

4. 研究成果

(1) 実験装置の整備と準備

①Ca原子蒸気発生装置

本研究の手法では真空容器内においてコリメートしたCa原子ビームを発生させ、直角方向から、特定の同位体の共鳴ラインに同調した半導体レーザーを照射することにより、この同位体のみを選択的に偏向し、回収する。実験を効率的、多角的に進めるために、2つの真空容器を準備した。大チャンバーは直径～1mの円筒形で、電子ビーム加熱装置が備わっており、2000℃程度以上の加熱が可能である。小チャンバーは直径30cm程度の円筒形で、ヒーター加熱式のろつぼが設置されており、Caの融点（839℃）程度の加熱が可能である。真空排気系は両者ともロータリーポンプが備わっており、 10^{-6} Torr以下程度の真空度が得られる。その他、両者にはレーザー光導入用窓、レーザー誘起蛍光観測用窓、イオン計測用マルチチャンネルプレート(MCP)が準備されている。

②半導体レーザー

本研究で使用するレーザー波長は、図4-1のCaのエネルギー準位図にも示されているように422.7nm（青色）である。また、特定の同位体を選択的にレーザー光を吸収させるため、スペクトル幅が十分小さいことが要求される。これらの条件を満たすレーザーはいくつか考えられるが、本研究ではパワーをそれほど大きくないが、この波長領域で波長が可変で、スペクトル純度の高い半導体レーザー（Toptica社製）を2式準備した。1台はCa原子偏向用光源として用い、もう1台はレーザー誘起蛍光法（Laser-induced Fluorescence; LIF）による吸収スペクトル測定に用いる。

半導体レーザーは外部共振器を備えており、半導体素子の両側に設置された反射ミラーと回折格子で外部共振器が組み立てられ、これによって、発振波長が微細に制御される。回折格子の設置角度並びに外部共振器長を同時に制御することにより、発振器からスペクトル純度の高い単一縦モード発振光が出力できる。回折格子を精密に駆動するためにピエゾ素子が採用されている。半導体レーザーのコントローラーにより半導体素子に流す電流並びにピエゾ素子に印加する電圧を制御できる。

Ca原子偏向用光源として用いる半導体レーザーは、特定の同位体（Ca-48等）の吸収線に固定される必要がある。そのためにフィードバック方式による波長安定化が可能な形になっている。

(2) 原子ビーム偏向の測定法の開発

報告者がこれまで進めてきたレーザー同位体分離の研究は、ほとんどの場合、レーザーを用いて特定の同位体を選択的にイオン化する手法であったので、同位体選択性の評価は生成したイオンの質量分析を行うことでなされてきた。本研究では、Ca原子のエネルギー構造の特殊性を利用して、特定の同位体を選択的に原子ビームから偏向させる手法であり、分離過程にはイオン化を含まない。したがって、分離性能の評価には工夫が必要である。本研究では原子ビームからの偏向の様子を観測するために2つの方法を考えた。1つはここに述べる吸収スペクトルを測定する手法であり、もう1つは別に準備する高強度パルスYAGレーザー光等を原子ビームの特定の場所に照射して原子をイオン化して質量分析を行う方法である。

①吸収スペクトルのドップラーシフトによる偏向の評価

偏向用レーザー光が照射された場合、このレーザー光に共鳴する同位体は、光の吸収・放出を繰り返すことにより、平均的にレーザー光の進行方向の速度成分が与えられる。したがって、この光と同方向に入射する別のレーザーにより吸収スペクトルを観測した場合、ドップラー効果により吸収のピーク波長がシフトすることが予想される。

図4-1には原子ビームに対するレーザー光の照射配位および開発したモンテカルロシミュレーションによる吸収スペクトルの計算例を示す。偏向用レーザーは、原子ビームがレーザー光ビームを横切る時間(transit time)をある程度稼ぐため、少し広げて照射する。吸収スペクトル観測用レーザーはこれと平行に照射する。また、偏向用レーザー照射時と非照射時の吸収スペクトルの例をそれぞれ青色、赤色で示してある。計算の条件は、偏向用レーザー

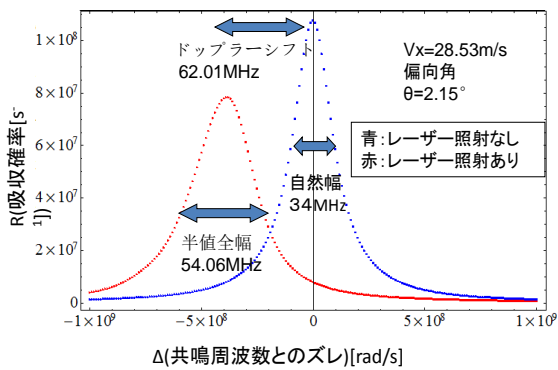
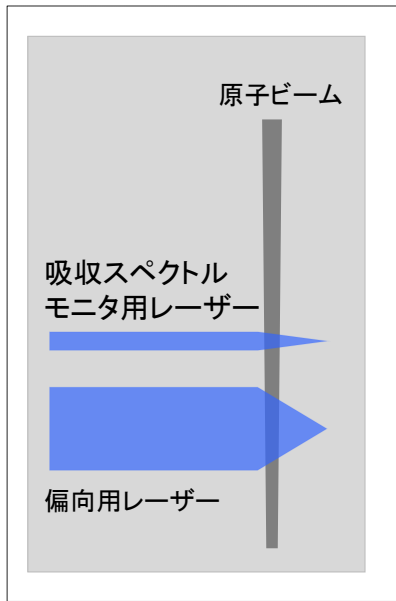


図 4-1 偏向原子のドップラーシフト²

ビームの幅 5cm、レーザー強度 $60\text{mW}/\text{cm}^2$ でこれは飽和パワー密度である。Ca 原子のこの吸収線の自然幅は 34MHz である。原子ビームの広がりによるドップラー幅をある程度抑えれば、原子偏向による吸収スペクトルの違い（シフト量）は十分に観測できると予想された。

これを実験的に確認するために、レーザー誘起蛍光測定を実施した。まずは吸収スペクトルを観測するために、2 台の半導体レーザーのうちの 1 つを用い、大チャンバーに導いた。光路の途中には干渉計、分光器を設けている。干渉計（スペクトラムアナライザー）はフィネス 200、自由スペクトル間隔 1GHz で、レーザー波長掃引時の波長の変化をモニターする。実際には周波数間隔 1GHz ごとにピーク出力を発生する。分光器は半導体レーザーの波長を大まかに Ca 原子の吸収線に同調するために用いられる。真空チャンバー内に導入された半導体レーザー光は、原子ビームと直角に交差させ、レーザー照射により誘起された Ca 原子からの蛍光は光電子増倍管 (PMT) で観測される。

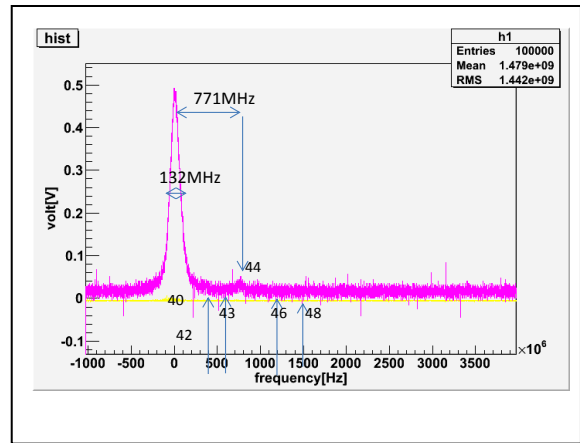


図 4-2 Ca の吸収スペクトル（予備的実験）⁹

図 4-2 は、レーザー誘起蛍光法を用いて測定された吸収スペクトルの予備的な結果である。横軸の周波数は Ca-40 のピーク位置を 0 としたときの相対的なレーザー周波数のずれである。縦軸は光電子増倍管の出力である。

観測結果から Ca-40 のスペクトル幅は 130MHz と算出されるが、これを予想されるドップラーシフトより小さくすることは難しくなく、原子偏向時のドップラーシフト観測は行えるものと予想される。

② レーザーイオン化質量分析による偏向および濃縮比の評価

質量分析による方法はより直接的な方法を提供する。

図 4-3 は Nd:YAG レーザー等の高強度パルスレーザーを用いて Ca 原子を光イオン化し、電界で垂直方向に引き出し、マイクロチャンネルプレート (MCP) でイオンを検出することにより質量分析を行う方法を模式的に示したものである。電界で引き出されたイオンは電界のない領域を一定距離飛行した後 MCP で測定されるが、この際、同位体の質量の違いによって MCP への到達

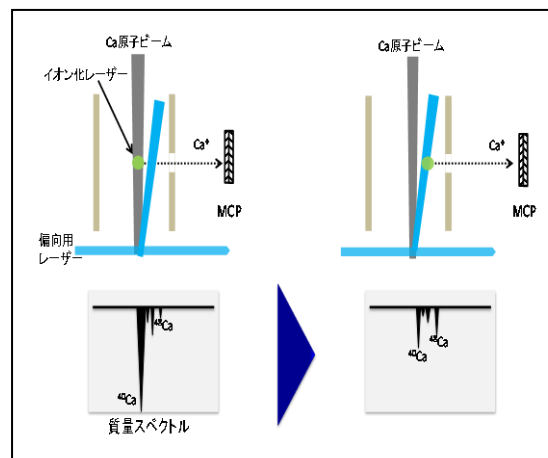


図 4-3 飛行時間型質量分析法による濃縮性能の評価

時間がずれるため、イオン信号の時間変化がそのまま質量スペクトルを与えることになる。特定の同位体が選択的に偏向された場合、Nd:YAG レーザーの照射領域、すなわちイオン化領域を変えることにより、図のように質量スペクトルに形状が変化することが予想される。

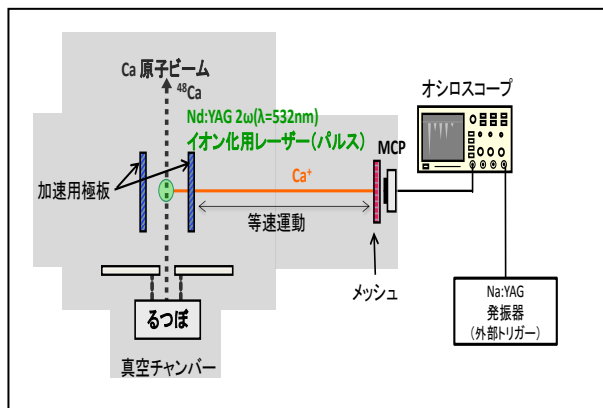


図 4-4 飛行時間法による質量分析概念図

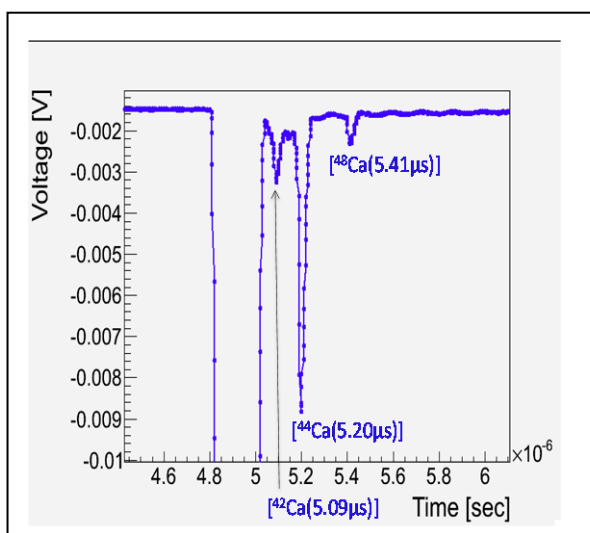


図 4-5 Ca 質量スペクトルの測定例

偏向用レーザーによる各同位体の偏向の角度分布、並びに、各場所における濃縮度が直接的に観測可能となる。実験的な評価をするために、図 4-4 のように真空チャンパー内を整備し、質量分析のテストを実施した。図 4-5 に観測例を示す。Ca-40 が存在比の大半を占めており、これ以外の同位体を観測するため、蒸気量を増やし測定した結果である。Ca-42、Ca-44、および Ca-48 のピークが観測されており、おおよそ天然存在比になっている。

以上得られた成果をまとめると、

- (1) レーザー偏向法による Ca の同位体分離実験を行うために、原子蒸気発

生、分離実験用の真空容器を 2 式準備し、それぞれにおいて、蒸気発生、吸収スペクトル測定、質量分析（同位体分析）をできる形を整えた。

- (2) Ca 同位体偏向用および吸収スペクトル測定用光源として、Ca の吸収線（波長 422.7nm）の近傍で同調可能な、波長可変半導体レーザー 2 式を準備した。
- (3) レーザー偏向の程度を測定するために、2 つの手法を開発した。1 つは、YAG レーザーによる光イオン化と質量分析により、原子ビームの水平方向の各同位体の密度分布を測定する方法である。もう一つは原子偏向による原子の水平方向速度成分の変化を利用した、吸収スペクトル観測によるドップラーシフトの測定と計算シミュレーションを組み合わせた、偏向の程度の評価方法である。
- (4) レーザー偏向の程度を測定するために、2 つの手法を開発した。1 つは、YAG レーザーによる光イオン化と質量分析により、原子ビームの水平方向の各同位体の密度分布を測定する方法である。もう一つは原子偏向による原子の水平方向速度成分の変化を利用した、吸収スペクトル観測によるドップラーシフトの測定と計算シミュレーションを組み合わせた、偏向程度の評価方法である。
- (5) Ca 同位体の質量分析については本実験装置において、十分な質量分解能と感度が得られ、天然存在比が 0.2% と小さい Ca-48 標的の同位体も良好に観測されている。
- (6) ドップラーシフト測定による偏向程度の評価も方法も有望であることが確認された。

残念ながら、期限内に有効な分離データを取得するまでには至らなかったが、現在も本研究は続行中で、二重ベータ崩壊研究の関係者からは早期の実現性評価が期待されている。

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 1 件）

- ① H. Niki, " Laser Isotope Separation for Nuclear Engineering and Neutrino Physics", Proc. 12th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases, Paris, June 2012.

〔学会発表〕（計 7 件）

- ① 坂本、加藤、遅、森下、三橋、平田、方、小川、玉川、仁木、“二重 β 崩壊実験のためのCaのレーザー同位体分離実験”レーザー学会学術講演会第35回年次大会、北九州、2015年1月。
- ② 坂本、遅、森下、寺西、Irrasyardilla Binti Baihaki、Gabriella Ank Magin、小川、玉川、仁木、“二重 β 崩壊実験に用いる ^{48}Ca のレーザー同位体濃縮”、2014年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会、福井、2014年12月。
- ③ 坂本、加藤、遅、森下、三橋、平田、方、小川、玉川、仁木、“二重 β 崩壊実験のためのCaのレーザー同位体分離実験”レーザー学会学術講演会第34回年次大会、北九州、2014年1月。
- ④ 坂本、加藤、遅、森下、三橋、平田、方、小川、玉川、仁木、“二重 β 崩壊観測実験のためのCaのレーザー同位体分離に関する研究”、2013年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会、富山、2013年11月。
- ⑤ H.Niki,” Laser Isotope Separation for Nuclear Engineering and Neutrino Physics”, International Conference on Laser Application in Nuclear Engineering (LANE' 13) (Invited), Yokohama, April 2013.
- ⑥ 神谷、島崎、加藤、遅、仁木：“輻射圧によるカルシウムのレーザー同位体分離”、レーザー学会学術講演会第33回年次大会、姫路、2013年1月。
- ⑦ H.Niki,” Laser Isotope Separation for Nuclear Engineering and Neutrino Physics”, 12th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases (SPLG2012), Paris, June 2012.

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

- 出願状況（計 0 件）
- 取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

仁木 秀明 (Niki, Hideaki)
福井大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：00135758