

審査の結果の要旨

氏名 北岡 雅則

本論文は、線形イオントラップに捕獲された原子イオンに対して、同位体選択的にレーザー冷却を行うことで高効率な蛍光分光を可能とし、これを誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）と組み合わせることで、微量同位体分析へ適用するための研究を行っており6章より構成されている。

第1章は序論として本研究の背景とその目的について述べている。まず研究の背景として、極微量同位体の存在とその分析意義について概観している。その既存測定手法の特徴を列挙している。次に、本研究で用いているイオントラップ・レーザー冷却法についても触れている。その後、本研究で対象としているCa同位体、特に、極微量同位体であるCa-41について、その利用分野を紹介するとともに、分析対象として既存分析法の効率を評価している。そのあと、本研究で開発を進めている誘導結合プラズマ質量分析（ICPMS）-イオントラップ（IT）-レーザー冷却分光法（LCS）について概要を紹介している。最後に、ICPMS-IT-LCSを同位体分析へ適用することを本研究の目的として掲げている。

第2章では、本研究で用いた理論を紹介している。まず、2準位系における光と物質の相互作用について記述している。さらに、同位体選択の上で重要な原子準位における同位体シフトやCa-41で重要となる核スピンによる超微細構造について詳述している。これらを元にして、イオンの磁気サブレベルまで考慮した準位密度を古典的なレート方程式により記述している。次に、イオントラップ・レーザー冷却法について説明している。具体的には、捕獲された荷電粒子の運動方程式からMathieu方程式を導出し、イオンの微小運動（マイクロモーション）、永年運動および非線形共鳴を説明している。次に、レーザーによる冷却・加熱の概念、原子・分子との衝突による加熱・冷却、イオンどうしの協同加熱・冷却、rf加熱について説明している。さらに冷却された結果、イオンが結晶化されるが、その性質について述べている。その後、ICPMSの紹介を行っている。

第3章では、レーザーによる同位体制御について実験結果を記述している。まず、実験装置の説明をした後に、実験プロセスを述べている。具体的には、レーザーアブレーションにより生成したCaイオンをrf線形イオントラップにより捕獲した後で、866nmのリポンプレーザーを2台準備し、それらの波長をCa-40およびCa-44の遷移に共鳴させ、397nmの励起光の波長を各同位体の共鳴波長の間を設定する。これにより、天然同位体比97%をしめる支配的なCa-40がトラップから排出され、Ca-44だけをトラップに残すことに成功している。直接冷却・協同冷却ではCa-44を十分冷却することはできず、本手法の選択的加熱冷却法が有効であることを実験により示している。また、さまざまな実験パラメータの依存性についても調べている。さらにCa-42, 4

3, 48に対しても選択的加熱冷却を行い、それぞれの同位体のスペクトル観測に成功している。また、分子動力学によるシミュレーションと比較することで本手法が効率的な手法であることを示している。

第4章では、ICPMS-IT-LCSによる同位体分析可能性について検討している。まず、ICPMS-IT装置の紹介を行っている。次に、ICPMSからイオントラップまでのイオンの輸送効率について、評価している。実際のイオンとしては天然存在比が最も小さいCa-46および奇数同位体であるCa-43を取り上げ、スペクトル観測を行っている。ICPMSからイオントラップへのイオンの捕獲挙動について、レート方程式を仮定して解析を行い、実験結果との比較から妥当な結果を得ている。このレート方程式に基づいて、液体試料濃度について検量線を作成している。さらに連立のレート方程式により直接観測ができない同重体の挙動についても、定量的な評価の可能性を示している。また、同位体比についても検量線を作成することで同位体比の測定が可能であることを示している。

第5章では、高感度化・高精度化に向けて、LIFのイメージングの実験的検討を行っている。まずイメージングシステムの概要を紹介している。長時間観測可能にするためのレーザー波長安定化および高真空化について述べている。イオン結晶化に必要となるイオン運動の解析を行うとともに、その実験観測を実現している。これらを踏まえて、捕獲イオンの画像取得に成功している。さらに、その結晶化により、個別イオンの観測およびその構造について検討を行っている。この結果から、同位体分析で重要となる捕獲イオンの個数評価法について考察している。

第6章は、結論および今後の展望であり、本研究のまとめを述べている。

以上を要するに、本論文はイオントラップ・レーザー冷却を利用して、ICPMSと組み合わせることで同位体分析への適用可能性を明らかにしている。よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。