

レーザーを用いた海産物中⁹⁰Srの迅速分析法技術開発

受託者 国立大学法人東京大学
研究代表者 長谷川 秀一 大学院工学研究科
再委託先 独立行政法人日本原子力研究開発機構
研究開発期間 平成25年度～27年度

1. 研究開発の背景とねらい

福島第1原子力発電所事故における放射能計測では、短期的にはCsによる外部、内部被ばくの評価が最大の関心であるが、モニタリングがなされている限り、その影響は評価可能な状況にある。一方、⁹⁰Srについては、Caと同属元素であり、骨組織への結合により容易に体外へ排出されないことから生物半減期も長く、摂取に伴う長期内部被ばくが問題となりうる。しかし、β崩壊核種であることからその計測が著しく困難であるため、事故による放出に対して、その計測が十分なされているとは言い難いのが現状である。

内部被ばくの主たる要因は食物摂取によるものであるが、陸上の家畜については環境除染や植物における核種移動挙動の解明の進展及び管理された飼料による飼育により、その摂取は制限されるものと考えられる。これに対して、水産資源（海産物等）については淡水・海洋環境の除染や管理された環境での育成が困難であること、一定地域に留まらず広範囲なものであることに加え、食物連鎖などに伴う生物濃縮効果を考慮しなければならない。しかしながら、個々の水産物についての調査は、その計測の困難さから十分なされているとは言えない。

分析技術に着目すると、放射化学的手法については、放射線計測で直接その濃度を簡便に評価することは困難である。特に⁹⁰Srについては、β崩壊後の⁹⁰Yから放出される短寿命の高エネルギーβ線が計測対象となるため、半減期を考慮して⁹⁰Y量を評価したうえで⁹⁰Sr量に換算しなければならない。このため長時間を要するとともに高度で緻密な化学分離操作が必要であることから、多くの試料を流通過程で即時的に分析することは困難である。質量分析的手法による分析では、近年ICP-質量分析器による高感度分析が実現しており、迅速分析への適用についても期待されている。しかし、主要同位体の⁸⁸Srの影響除去や、分析で同重体干渉する⁹⁰Zrの高度な除去が要求される。このため、高感度・高分解能な大型質量分析装置と試料の高度な化学分離操作及び分離性能の厳密な評価が要求され、迅速分析への適用には更なる技術革新が求められている。このような現状から、新しい技術の開発が必要とされている。

以上のような現状から、高度な化学分離操作を要しない第3の手法として、近年進展の著しいレーザー技術を利用した、元素および同位体の原子構造の違いに起因した同位体選択的な分析手法である多段階レーザー共鳴イオン化法に着目した。さらに、同位体選択性および検出感度の向上を図るため、生成イオンを電磁場により捕獲し、レーザー冷却による光学的検出を検討する。これらの技術を利用した分析装置の開発を目指す。

2. 研究開発成果

(1) Srイオンレーザー冷却およびレーザーイオントラップ技術の開発

レーザー共鳴イオン化した同位体イオンの同位体成分を評価すると同時に同位体純度を向上さ

せるために、四重極質量選別器を導入する。そのための予備実験に必要な試料蒸発系、イオン導入系、四重極質量選別系、イオン検出系の設計を進めている。

試料蒸発系は、試料を装填したカーボンファーネスチューブに電流を流し、抵抗加熱により試料を真空容器中で気化させることで原子化する。このように発生させた原子蒸気をピンホールで原子ビームとした上で、イオン導入系へと導きレーザー光によりイオン化する。生成されたイオンは前後にある2枚の平行平板電極によって四重極質量選別器のある方向へ導かれる。その後、上下に設けた偏向電極により上下方向の運動成分を調整する。さらに、イオンレンズにより収束させ、四重極質量選別器へ入射させる。これらのイオンを質量選別した後、イオン検出器により検出する。

以上を製作する上で、特に重要となるイオン導入系、質量選別系の設計シミュレーションを SIMION により行った。シミュレーションの概要を図 1.1 に示す。電極は薄茶色、イオン軌道は青色、等電位線が赤色で示されている。

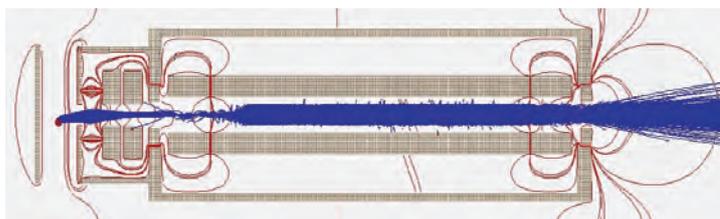


図 1.1 イオン導入系・質量選別系の概要図

下方より導入される原子ビームを、平行平板電極間でレーザー光によりイオン化する。原子は蒸気源の温度に応じた Maxwell-Boltzmann 速度分布を持つ。光イオン化されることで、電極間の電場に応じてイオンのみが右側に引き出される。原子ビーム時の上方向初期速度に応じて、イオン軌道は幅を持つことになる。また、レーザー光に大きさがあり、さらに強度分布があることから、生成イオン数は空間に対しても分布を持つことになる。これらに対して効率的なイオン導入系電極設定を検討する必要がある。必要となる電極として、初期速度方向を補正するための偏向電極、イオンビームを四重極質量選別器導入時に収束させるためのイオンレンズなどが考えられる。

原子は上方向に速度を持つことから四重極質量選別器の軸に対応するようにイオン化位置の検討を行った。原子蒸気温度に応じて数 mm 程度下方へずらし、上下の偏向電極によって調整することで、速度分布に対して最大イオン数をもつイオンに対して、その出口位置で四重極質量選別器軸中心に対して速度成分が平行となるようにした。次に、四重極質量選別器にイオンを入射させる際に、四重極軸中心付近に収束・平行化させる必要がある。これを実現するため、偏向電極とその前後のレンズ計3つでアインツェルレンズ（凸レンズ）を形成し、イオンビームの半径を絞る複合レンズとした。また、それだけでは再度ビームは平行とはならないため、後のレンズ、その次のレンズ、四重極入口レンズの3枚のリング電極でビームエキスパンダー（凹レンズ）を形成し、イオンビームを平行に戻している。四重極質量選別器は入口、出口にレンズ電極を有し、

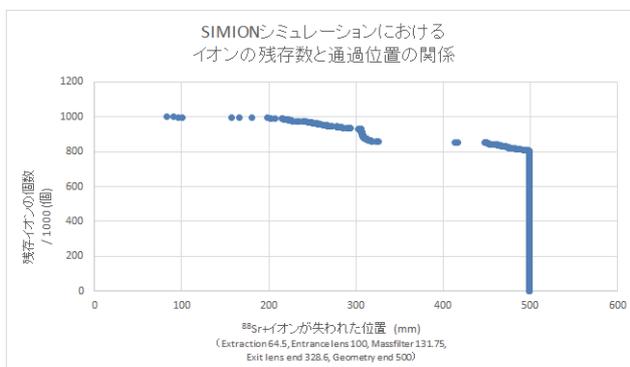


図 1.2 イオン透過効率シミュレーション例

質量選別電極の前後に透過効率を向上させるための四重極電極を有している。これらを考慮して設計したものが図 1.1 である。電極などの配置を検討した結果、イオン導入系では、ビーム軸方向との平行度が透過効率を左右するが、軸方向の前後位置については 1 V 刻みの電圧で調整可能であった。またイオン導入系のビーム軸から 1 mm 程度のずれが透過効率を 1 割程度減ずることがわかった。電圧調整により 855 個/1000 個イオンが透過するときの特性の例を示す (図 2)。以上により、四重極質量選別器を利用する上で必要となる数値シミュレーション評価に対する知見を得た。

(2) Sr 中性原子電離スキームおよび分析性能評価

今年度は、これまでに整備した 3 段階レーザー共鳴電離システムを用いて、Sr 原子の共鳴電離特性を取得することを目的として、分光実験を実施している。

図 2.1 に使用した実験装置の模式図を示す。圧力 1×10^{-7} torr の真空容器中で、金属ストロンチウム試料を装荷したグラファイトファーネスチューブに約 3V、20A の電流を流して数 100°C に加熱し、ストロンチウムの原子ビームを発生させた。発生した Sr の基底状態原子に、周波数安定化 HeNe レーザーとフリンジオフセットロック制御機構で発振周波数を制御した 3 台の外部共振器半導体レーザー光を照射して、 $5p^2$ (1D_2) を経由した励起スキームで光イオン化し、その生成量をイオン検出器で測定した。

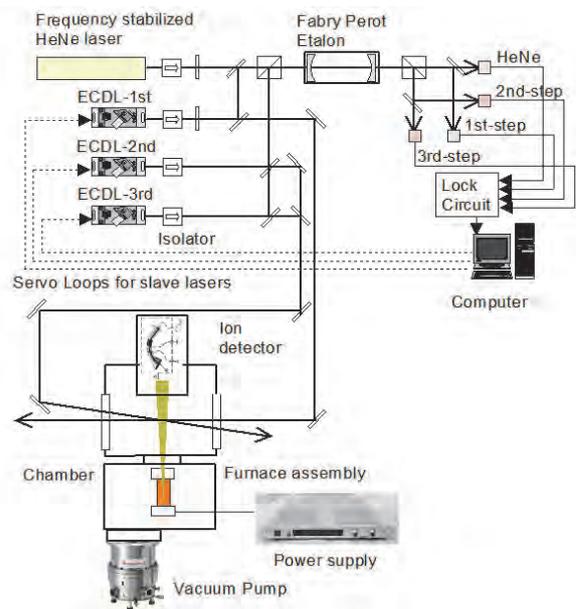


図 2.1 多段階共鳴イオン化分光装置

図 2.2 に測定したスペクトルの一例を示す。この 3 つのスペクトルは、3 段階のレーザーを ^{88}Sr の共鳴周波数に固定し、1 段階目のレーザー光周波数を ^{88}Sr (青), ^{86}Sr (ピンク), ^{84}Sr (緑) の共鳴周波数に切り替えて、2 段階目のレーザー光周波数を連続掃引することで測定した第 2 励起遷移のスペクトルである。3 つのスペクトルともそれぞれ 3 本のピークが現れているが、このうち 1 本が幅の広い着目同位体による共鳴励起ピーク、その他の幅の狭い 2 本が別の同位体による近共鳴励起のピークである。この図の共鳴励起ピーク間隔から、第 2 励起遷移(真空波長: 655.2050 nm) の同位体シフトを求めると

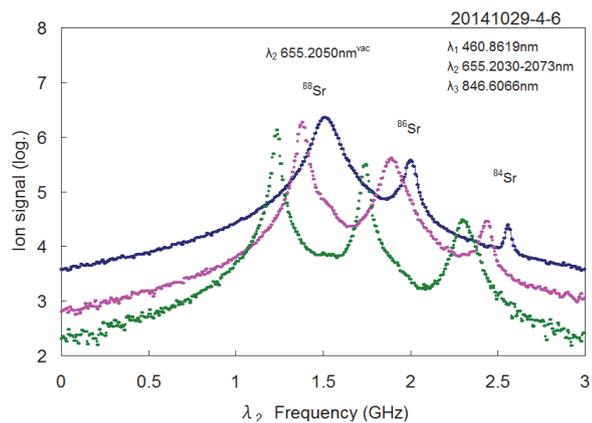


図 2.2 2 段階目のレーザー光周波数を掃引したイオン化スペクトル

$^{88-86}\Delta = 388(25)$ MHz, $^{88-84}\Delta = 797(25)$ MHz と評価された。これは文献値 $^{88-86}\Delta = 404(10)$ ⁽¹⁾ と比較的良く一致している。誤差はピークの残留ドップラー幅によるもので、今後、実験配置などの工夫に

より、さらに精度の高い同位体シフトの決定を目指す予定である。一方、図 2.3 には電離スペクトルの一例を示す。この3つのスペクトルは1段目と2段目の波長を ^{88}Sr (青), ^{86}Sr (ピンク), ^{84}Sr (緑)の共鳴波長に切り替え、3段目のレーザー光周波数を連続掃引することで測定した電離遷移のスペクトルである。図 2.2 のスペクトルとは異なり、ほぼ中央の 846.6066 nm 付近にある強いピークの周りに、別の同位体によるピークは現れておらず、1, 2 段目の周波数を ^{86}Sr や ^{84}Sr に共鳴させても、そのスペクトル形状に大きな変化はなかった。このことは、この 846.6066 nm の遷移の同位体シフトが非常に小さく、ピークの線幅 (50MHz) 以内であることを意味している。即ち、この電離準位の同位体シフトは 36960cm^{-1} 準位の同位体シフト ($^{88-86}\text{LIS} = +529 \text{ MHz}$) とほぼ等しいと考えられる。

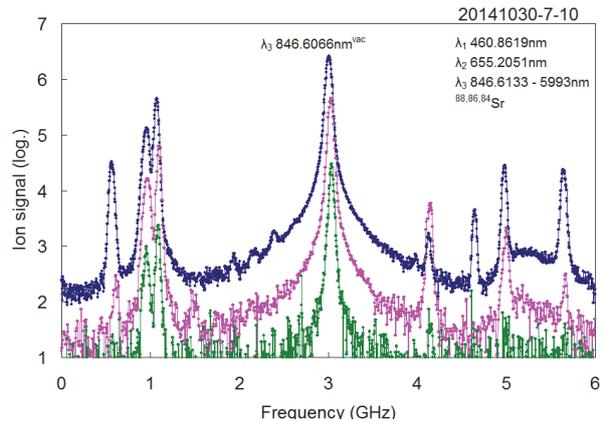


図 2.3 3段目レーザー光周波数を掃引したイオン化スペクトル

次に、電離効率の目安を得るため、レーザーの光出力を変化させて、遷移の飽和を観測する実験を行った。図 2.4 に第 1 励起段のレーザーの光出力を変化させて、イオン生成量の飽和を観測した結果を示す。この測定では、強度を変化させるレーザー以外のレーザーは、これらの図の最大出力を照射している。図から、第 1 段遷移は 2mW 程度の光出力で飽和信号強度の約 80% のイオン信号に達している。一方、第 3 段遷移を飽和させるためには 100mW 以上のパワーが必要であることが分かった。

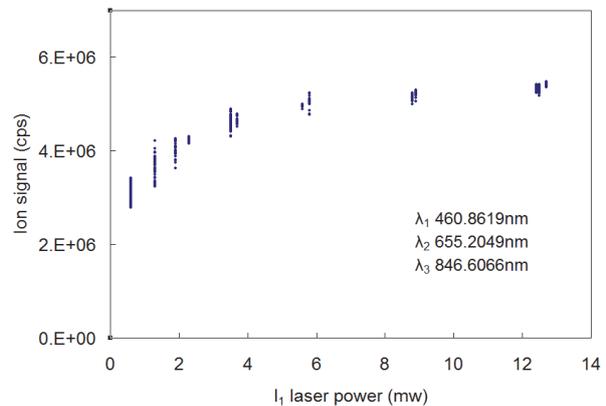


図 2.4 $5p^2 ({}^1D_2)$ 励起レーザー光出力とイオン信号

3. 今後の展望

図 1.1 の電極配置を基本にしたイオン質量分離システムの整備を行うとともに、既存のイオントラップ装置を用いた Sr イオンの捕獲及びレーザー冷却による可視化を行う予定である。また、分光実験においては、既に文献等で電離準位が報告されているエネルギー領域を中心に、現有の半導体レーザーで発振可能な範囲で、電離断面積や同位体シフトが大きく、分析に適したスキームの探査を進め、Sr の共鳴電離特性を明らかにする予定である。

4. 参考文献

(1) Barsanti, M., et al., "Isotope shifts and hyperfine structures investigation of doubly excited levels in Sr I" Z. Phys. D **23**, 145 (1992).