

レーザーを用いた海産物中 ^{90}Sr 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 大学院工学系研究科原子力専攻

(再委託先) 独立行政法人原子力機構

(研究期間) 平成25年度～27年度

1. 研究の背景とねらい

福島第一原子力発電所の事故により放出された様々な放射性物質の一つである ^{90}Sr は、 β 崩壊により ^{90}Y から ^{90}Zr に変化する過程で大きな崩壊エネルギーを放つ特性を持つ。また Sr は Ca と同じアルカリ土類金属であり、その化学的性質が類似している。したがって人体に取り込まれると骨に沈着しやすく、その危険性が高い。さらに ^{90}Sr の分析は数週間を要することから、その迅速化が望まれている。そこで本研究では、これまで多くの核種で実績を有するレーザー共鳴イオン化法と、さらにレーザー冷却・イオントラップを加えることで ^{90}Sr に対する迅速測定の可能性を検討する。

平成27年度は、レーザー共鳴イオン化については、選択性の高いスキームの探索とその評価を行っている。レーザー冷却・イオントラップについては、前年度から開発を進めている $^{88}\text{Sr}^+$ イオンの冷却と画像化技術を応用した個別同位体 Sr^+ イオンの冷却と、その評価を行っている。さらに2つの手法を組み合わせた分析手法の検討・評価を目標としている。

2. これまでの研究成果

2.1. Sr^+ イオン同位体シフト

今回 Sr^+ イオンの同位体シフト計測は 422、1092 nm レーザー2台だけで冷却が可能な安定偶数同位体である $^{84}\text{Sr}^+$ 、 $^{86}\text{Sr}^+$ 、 $^{88}\text{Sr}^+$ に限定し、研究室で開発した ICPMS-ILECS 装置にて行った。まず ICPMS で着目同位体イオンを生成し、四重極トラップで捕獲したイオンをストリング状になるまで捕獲イオン数を調整した。その後 5D-5P 遷移のイオン蛍光のスペクトルを得るため 1092 nm レーザーの周波数を共鳴周波数から約 ± 400 MHz 程度の範囲で掃引した。その際 422 nm レーザーの周波数は冷却効率を高くするため共鳴から -20 MHz にした。これを各同位体に対して行い、得られた蛍光信号とレーザー周波数をエタロンの FSR に対して校正した結果を図1の左側に示す。各同位体の蛍光信号をまとめた結果、 $^{88}\text{Sr}^+$ 蛍光信号のピークを 0 MHz とした時に $^{86}\text{Sr}^+$ 、 $^{84}\text{Sr}^+$ の信号は順に右側に発生することが分かる。この際 $^{86}\text{Sr}^+$ のピーク信号が他の同位体蛍光信号より若干高くなっているのはイオンの個数が2個多いためであるが、どちらもストリング状の結晶であることには変わりはない。各同位体の共鳴の左側には 422 nm レーザーによるダークレゾナンスが現れている。この蛍光量の変化を Voigt 関数でフィットし、得られたピーク位置を既往の報告 [1] と比べた結果、我々の実験結果が誤差範囲内で既往の結果と整合性を持つことが確認できた。

5S-5P 遷移の同位体シフト計測は、基本的に 5D-5P 遷移同位体シフト計測の時と同様にストリング状の同位体イオンを準備し、レーザーの周波数を掃引する手順で行われた。異なる点としては、周波数掃引されるレーザー波長が 422 nm であることと、1092 nm レーザーの周波数を共鳴から +30 MHz になるよう設定することでダークレゾナンスを回避したことである。各同位体の冷却スペクトルを取得し、422 nm レーザーの周波数に対して整理した結果を図1の右側に示した。典型的な非対称の冷却イオンスペクトルが同位体に応じて異なる位置で現れている。5S-5P 遷移の

同位体シフトは 5D-5P 遷移とは反対に、 $^{88}\text{Sr}^+$ 蛍光信号のピークを 0 MHz とした時に $^{86}\text{Sr}^+$ 、 $^{84}\text{Sr}^+$ の信号の順に左側に発生することが分かる。蛍光値が最大になる周波数を整理すると、5S-5P 遷移同位体シフトの計測結果は誤差範囲内で既往の文献 [2] と整合性を持つことが確認できた。

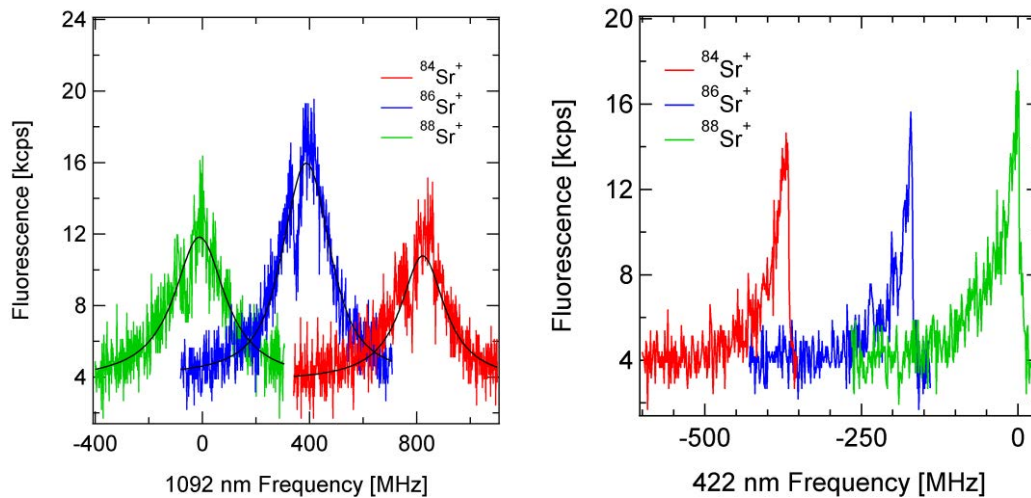


図 1. 偶数安定同位体 Sr^+ イオンの (左) 5D-5P スペクトル. (右) 5S-5P スペクトル.

2.2. $^{90}\text{Sr}^+$ の同位体シフト

本研究で得られた 5D-5P 遷移の $^{86}\text{Sr}^+$ と $^{88}\text{Sr}^+$ 、 $^{84}\text{Sr}^+$ と $^{88}\text{Sr}^+$ の間の同位体シフトの値と、文献 [2] の平均 2 乗電荷半径の差分データを用いて 5D-5P 遷移の同位体シフト定数を計算した。その後、文献 [2] にある $^{90}\text{Sr}^+$ と $^{88}\text{Sr}^+$ の平均 2 乗電荷半径の差分データを代入することで $^{90}\text{Sr}^+$ の 5D-5P シフトの値を 70 ± 21 MHz と求めることができた。ここでの誤差は実験により得られた 5D-5P 同位体シフトの誤差によるものである。さらに、5S-5P 遷移の同位体シフト [2] から変換同位体シフトを計算した。その結果を図 2 に示す King plot により比較した。図 2 から 5S-5P 遷移と 5D-5P 遷移で、 $^{88}\text{Sr}^+$ を基準にして得られた $^{84,86,90}\text{Sr}^+$ の変換同位体シフトの値が線形関係を持っていることから、我々の求めた $^{90}\text{Sr}^+$ の 5D-5P 同位体シフトの計算値が合理的であると言える。

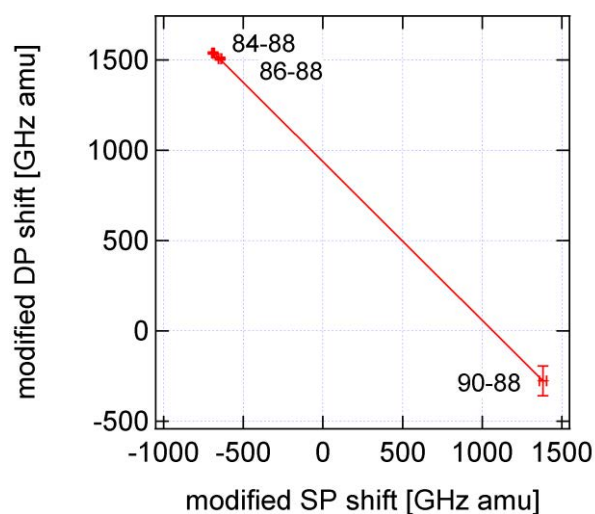


図 2. 5S-5P, 5D-5P に対して計算された Sr^+ 変換同位体シフトの King Plot

以上の結果をまとめると、 $^{90}\text{Sr}^+$ のレーザー冷却に際して、より高い共鳴周波数をもつ $^{84}\text{Sr}^+$ は加熱が起きトラップから脱落させることが可能と考えられる。 $^{86}\text{Sr}^+$ はリポンプが非効率的であり、 $^{88}\text{Sr}^+$ に対してはリポンプは起きるが、冷却遷移が離れていることから、それぞれ冷却効率は低いと考えられる。従って、レーザー冷却が妨害同位体イオンの分別に寄与すると期待される。

2-3. Sr 中性原子電離スキームおよび分析性能評価

3段階共鳴イオン化質量分析装置を用いて、Sr 原子の分光実験を実施し、電離効率や同位体分解能力を評価した。Sr の硝酸溶液を Ti フォイル上で蒸発乾固させた試料をグラファイトチューブに装荷し、圧力 1×10^{-7} torr の真空容器中で、30~50A の電流を流して約 800°C 以上に加熱し、原子ビームを発生させた。Sr の基底状態原子に、周波数安定化した3台の外部共振器半導体レーザー光を照射して、 $5s5p (^1P_1) \rightarrow 5p^2 (^1D_2)$ 準位を介して共鳴イオン化し、イオン生成量を四重極質量分析器で測定した。図3に測定した電離スペクトルの例を示す。縦軸は1秒間当たりのイオンカウント数を対数表示したもので、各ピークの数値は系列準位の主量子数である。Sr イオンの最低励起状態($4d \ ^2D_{3/2}$)に収束する自動電離リドベルグ系列が観測された。

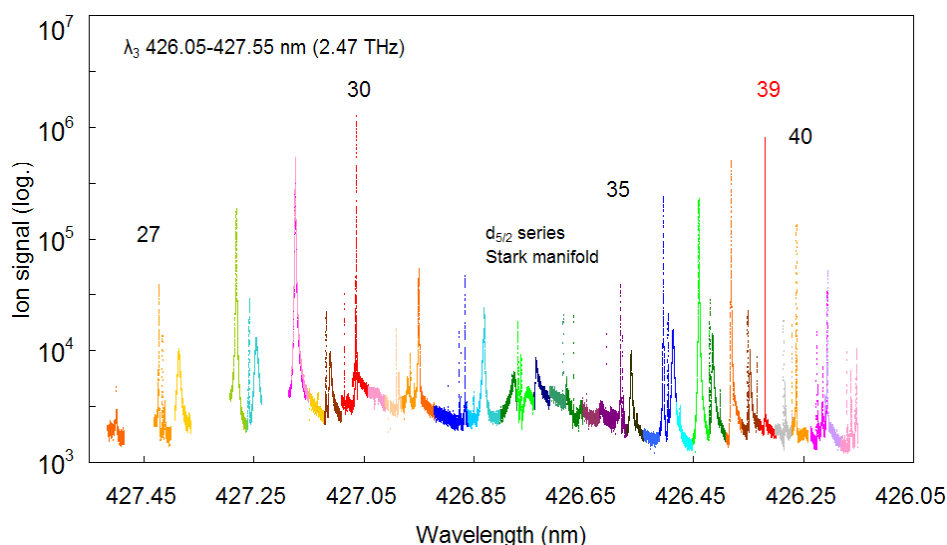


図3 Sr の自動電離スペクトル

そのイオン量やスペクトル線幅は、やや上位にある励起状態($4d \ ^2D_{5/2}$)に収束する系列準位との配置間相互作用による混じり合いのため、波長に対して周期的に変動している。このような摂動により、主量子数 $n=39$ の準位に向かう遷移が最も電離断面積が大きく、線幅も同位体の分解に十分な 100MHz 程度の狭さとなり、分析線として優れていることが分かった。

そこで次に、 $n=39$ の電離遷移を含む3段階共鳴イオン化スキームの3つの遷移について、質量分解スペクトルを測定した。天然存在比の低い同位体信号を増強するため、 ^{84}Sr や ^{87}Sr の濃縮同位体試料を使用した。得られた3つの遷移のうち、3段目のスペクトルを図4に示す。ここで紫色は質量数 84、空色は 86、青色は 87、緑色は 88 のイオン発生量で、これらは質量分析器の透過質量数を高速スイッチングして、1回の波長スキャンで同時に測定した。

Sr では ^{88}Sr が原子核の魔法数に当たり原子核が閉核となるため、質量数 88 から 90 に移る際に

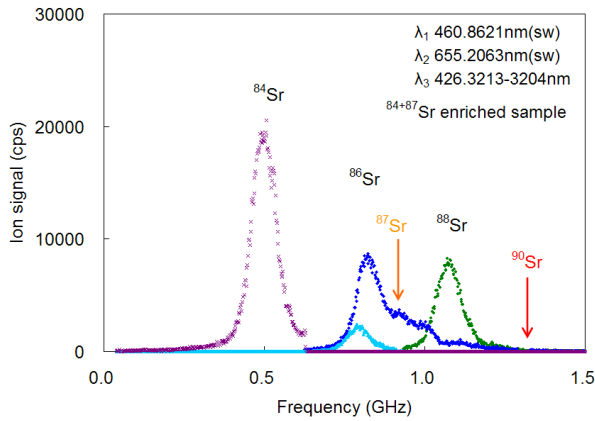


図4 3段階目の遷移の質量分解スペクトル

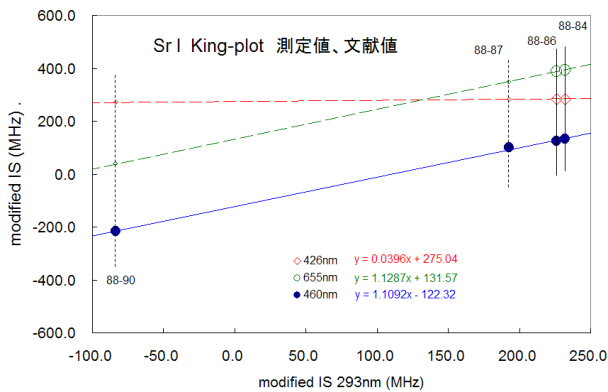


図5 King-plot による ^{90}Sr の同位体シフト評価

示したのが図4の下向き矢印である。得られた結果から、3段階スキームの ^{90}Sr の同位体選択性は約 10^5 で、質量分析器やトラップによる選択性も加えると、 10^{10} 程度が達成可能であることが分かった。

3. 今後の展望

これらの結果を踏まえて、今後は $^{90}\text{Sr}^+$ の観測に向けた研究を進める。具体的には、レーザー共鳴イオン化において、より同位体分解能が高いスキームを検討するとともに、レーザー共鳴イオン化された Sr^+ イオンをイオントラップにより捕獲して、そのレーザー冷却を実現することで本提案システムの性能を検証する。

4. 参考文献

- [1] Dubost B., et al., “Isotope shifts of natural Sr^+ measured by laser fluorescence in a sympathetically cooled Coulomb crystal,” Phys. Rev. A **89**, 032504 (2014).
- [2] Silverans R. E., et al., “Nuclear Charge Radii of $^{78-100}\text{Sr}$ by Nonoptical Detection in Fast-Beam Laser Spectroscopy,” Phys. Rev. Lett. **60**, 2607 (1988).
- [3] Auselment M., et al., “Isotope shifts of a series of Sr isotopes” Z. Phys. D **3**, 421 (1986).

は核の体積が急激に膨張する。同位体シフトの大きさは、同位体ごとの核の質量の違いと体積の違いの2つの効果で決まるため、 ^{90}Sr のピークの位置は $^{84}\text{Sr} \sim ^{88}\text{Sr}$ のピークの規則性から大きく外れ、単純には推定出来ない。そこで、2.2 と同様に既に ^{90}Sr の同位体シフトが分かっている基準遷移（ここでは 293nm 遷移を利用 [3]）を元に、別の遷移の同位体シフトを予測する King-Plot 法を利用した。図5にその結果を示す。変換規則に基づいて変換同位体シフトを求め、基準遷移とその他の遷移の変換同位体シフトを2次元プロットすると、同じ遷移の同位体シフトは1本の直線上に乗る。ここで白抜き記号は図4などの測定した質量分解スペクトルから求めた同位体シフトで、その近似直線の 88-87, 88-90 の位置（縦線）における値から、同位体シフトを求めた。その結果をスペクトル中のピーク位置で