

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009 ～ 2012

課題番号：21246144

研究課題名（和文）

同位体選択的レーザー光脱離を用いたコンパクト化汎用加速器質量分析法の開発

研究課題名（英文）

Development of accelerator mass spectrometry using isotope-selective laser photodetachment

研究代表者

井口 哲夫 (IGUCHI TETSUO)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：60134483

研究成果の概要（和文）：

高アバンダンス感度を維持しながら低加速・小型な AMS を実現する方法として、加速器入射前の試料負イオンにレーザーを照射し、目的のイオン以外を中性化する同位体選択的レーザー光脱離(Isotope-Selective Laser Photodetachment: ISLP)を利用した AMS を提案した。核分裂生成物の1つである長半減期放射性核種 ^{129}I の分析を念頭に、光脱離用レーザー光源として高繰り返し率・注入同期チタンサファイアレーザー、また負イオン源として、レーザーアブレーションを用いたヨウ素パルス負イオン源を開発し、光脱離実証実験をもとに本手法に基づく低エネルギーAMSの技術的成立性を示した。

研究成果の概要（英文）：

Compact accelerator mass spectrometry assisted by isotope-selective laser photodetachment (ISLP-AMS) was proposed, including development of a high performance pulsed injection-locked Ti:Sapphire laser and a pulsed negative ion source using laser ablation. Through a prototype experimental device, photodetachment of pulsed negative iodine ion was demonstrated and the basic performance was made clear. These results have shown that the negative iodine ion source and the injection-locked Ti:Sapphire laser are well-suited to trace analysis of ^{129}I by ISLP-AMS.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|------------|------------|------------|
| 2009年度 | 18,400,000 | 5,520,000 | 23,920,000 |
| 2010年度 | 8,800,000 | 2,640,000 | 11,440,000 |
| 2011年度 | 6,700,000 | 2,010,000 | 8,710,000 |
| 2012年度 | 1,900,000 | 570,000 | 2,470,000 |
| 総計 | 35,800,000 | 10,740,000 | 46,540,000 |

研究分野：総合工学

科研費の分科・細目：原子力学・放射線工学

キーワード：同位体分析、レーザー、加速器質量分析、光脱離、負イオン

1. 本研究の背景と経緯

原子力学の中の一つの大きな学術分野である同位体理工学において、質量分析技術は基礎研究から応用展開にわたる最も重要な要素技術である。

中でも加速器質量分析法(Accelerator Mass Spectrometry: AMS)は、高エネルギーの加速により、質量分析における同重体干渉を抑制し高アバンダンス感度の分析を可能としている。 ^{14}C 年代測定法における分析等に利用

されているが、高い印加電圧を得るのに大型加速器を必要とするため、他の極微量核種分析への幅広い応用や、多くの試料を同時に迅速に分析するための小型装置の実現が困難であった。このため、研究開始当初は、多くの核種に対し適用可能な小型・汎用加速器質量分析法の開発を目指したが、本研究課題の研究期間の2011年3月に発生した東日本大震災と、それによる福島第1原子力発電所での事故により、環境中に放射性核種が放出され、広範囲の周辺住民や現場作業員に対する放射線被曝が発生したため、以下に示すように長半減期放射性ヨウ素同位体を対象核種として研究を行った。

福島第1原子力発電所(1F)の事故のような過酷事故時には、多くの核分裂生成核種が環境中に放出される可能せがあるが、特に ^{131}I は、人体に取り込まれた場合、甲状腺での内部被曝に寄与するため、 ^{131}I の飛散濃度分布を迅速かつ広範囲に取得することが望まれる。1F事故での経験から、原子力施設の過酷事故時における内部被曝量を評価するため、 ^{131}I の飛散濃度分布測定技術の開発が強く求められている。しかしながら、 ^{131}I は短半減期核種(半減期:8日)であるために、事故直後に広範囲に亘る測定が行われなければ、数ヶ月でバックグラウンドレベルとなり、精度の高い濃度分布の実測評価が困難となる。このような状況であっても、濃度分布の精度を向上させる方法として、同時に飛散した核分裂生成物の内、半減期の長いものの濃度分布を精確に測定し、 ^{131}I との存在比から ^{131}I の量を推定することが考案されており、環境中で同様の挙動をとると考えられる ^{129}I が測定対象として挙げられる。 ^{129}I は、天然同位体比が $\sim 10^{-12}$ と極めて少なく、長半減期(半減期: 1.57×10^7 年)であることから、その分析方法が限られており、AMSが従来用いられてきた。しかしながら、前述のように通常のAMS分析では大型加速器が必要であり、 ^{129}I 分析のための小型AMSの開発が求められている。

2. 研究の目的

そこで、本研究では、以下に示す同位体選択的レーザー光脱離(Isotope selective laser photodetachment: ISLP)を用いた ^{129}I 分析用加速器質量分析法を提案し、その開発を目的とした。ここで、ISLPは、加速器入射以前の負イオンビームにレーザーを照射し、目的の同位体以外を中性化し除去する手法であり、これを導入することで、加速器に印加する電圧を低減させ、AMSの小型化を実現できる可能性がある。コンパクトながら汎用性の高い低エネルギーAMSの技術的成立性を検証することを目的として、本研究を行った。

3. 研究の方法

まず、(1)同位体選択的なレーザー光脱離を用いたAMSの概念提案を行った。また、ISLP-AMSを実現するには、前置加速で負イオンを加速した場合、同位体間の質量差によって生じるドップラーシフトを利用する必要がある。このため、ヨウ素負イオンを前置加速した時の光脱離による選択性(中性化確率比) $^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$ の線幅依存性を計算モデルにより求め、レーザーに要求される線幅を見積もった。次に、高い選択性と十分な効率の光脱離を行うために、(2)線幅の狭い高繰り返し率高出力のレーザーと(3)ヨウ素パルス負イオン源の開発を行った。これらを開発した後、(4)2つの基本構成要素を組み合わせたヨウ素光脱離基礎実験装置を設計・試作し、レーザー光脱離による中性化の実証実験を行って、本研究課題で開発されたイオン源、レーザー光源のISLP-AMSへの適用性を評価した。

4. 研究成果

4.1 ISLP-AMSの概念提案と要求性能

図1にISLP-AMSの概念図を示す。試料よりヨウ素負イオンを生成し、予備加速($\sim -50\text{kV}$)することで負イオンビームとなる。加速器入射前の負イオンビームに波長可変パルスレーザーを照射すると、レーザー光のエネルギー以下の光脱離閾値(電子親和力)を有する妨害負イオンを中性化し取り除くことができる。さらに、エネルギーが揃った負イオンビーム中では光脱離閾値はドップラーシフトを受けるが、質量によってヨウ素負イオンの飛行速度が異なるため、発振線幅の狭いパルスレーザーを用いることで妨害となる ^{129}I の負イオンのみを選択的に中性化することができる。

予備加速電圧 -50kV で加速を受けた場合の ^{129}I 、 ^{127}I の光脱離断面積のドップラーシフトと、各線幅におけるレーザーのスペクトルを用いて、光脱離確率の線幅依存性および、パワー依存性を計算した(図2)。光脱離による選択性10を得るためには、線幅 100MHz 以下、光子密度 $6.5 \times 10^{18}\text{photons/cm}^2$ が必要と見積もられた。

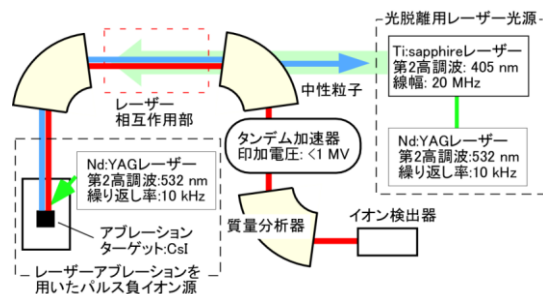


図1 ISLP-AMSの概念図

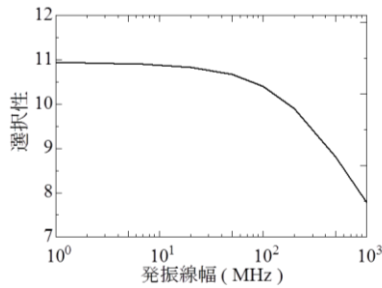


図2 同位体選択性の線幅依存性

4.2 高繰り返し率・注入同期チタンサファイアレーザーの開発

^{129}I を測定対象とした ISLP-AMS に用いるレーザーとして、注入同期 Ti:Sa レーザーを選定し、その設計・試作を行った。はじめに、注入同期用のマスターレーザーとなる ECDL を試作、発振特性を評価した。次に、スレーブレーザーとなる Bow-Tie 型共振器の Ti:Sa レーザーを試作、発振特性を評価したうえで、両者を組み合わせ、注入同期発振を行った。その結果、中心波長 $\lambda=813$ nm、出力は最大 130 mW 程度、発振線幅 ~ 20 MHz を達成した。さらに、イントラキャビティ SHG 法による第二高調波発生をし、図3に示すように光脱離に必要な波長で、世界トップレベルの最大出力約 14 mW を達成した。この結果から、アウトプットカプラーの ISHG 光に対する透過率を 90%にすることで、要求性能である 6.5×10^{18} photon/cm 2 を満たす見込みが得られた。

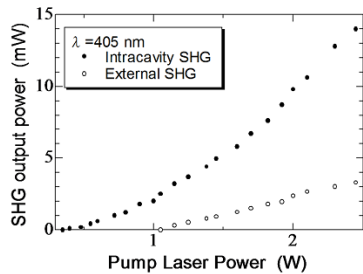


図3 注入同期 Ti:Sa レーザーの出力

4.3 ヨウ素パルス負イオン源の開発

十分な光脱離効率を得るためには、パルスレーザーを用いることが必須であると見積もられたため、レーザーと時間的なプロファイルが一致するヨウ素負イオン源が必要となる。そこで、ヨウ素が含まれる試料にパルスレーザーを照射し、レーザーアブレーションにより負イオン化することで、パルスのヨウ素負イオンを生成する負イオン源の開発を行った。 NH_4I 、 CsI 、 AgI の3種類のヨウ素化合物をターゲットとし、レーザーアブレーションによるヨウ素負イオンパルスの取得を試みた。3種類の試料について、アブレーション閾値、イオン収量、時間的な安定性といった特性を比較し、最も優れた試料とし

て CsI を選定した (図4)。負イオンパルスのパルス幅は 200 ns 程度であり、光脱離用レーザーと同様の時間プロファイルを持つことが確認された。また、この時の最大イオン収量は 6.0×10^4 ions/pulse であった (図5)。

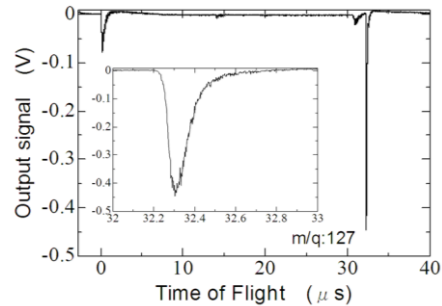


図4 ヨウ素負イオン飛行時間スペクトル

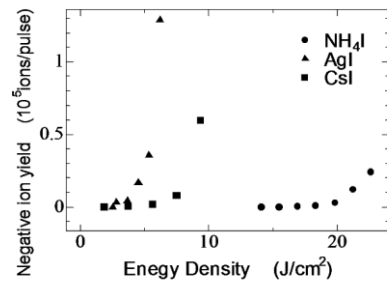


図5 ヨウ素負イオン収量

4.4 ヨウ素光脱離基礎実験と適用性検討

ISLPを行うためには、パルス負イオンに対してパルスレーザーを照射し、相互作用させる必要がある。そこで、飛行時間型質量分析 (TOF-MS) 装置をベースとした光脱離基礎実験装置を構築した (図6参照)。図7は光脱離レーザーの照射タイミングをおよそ 10 s 毎に 10 ns 変化させ、その未照射/照射時での信号比を取ったものである。光脱離用レーザーを照射の範囲 (照射タイミング間隔にして 30 ns) 間で負イオン信号の減少、つま

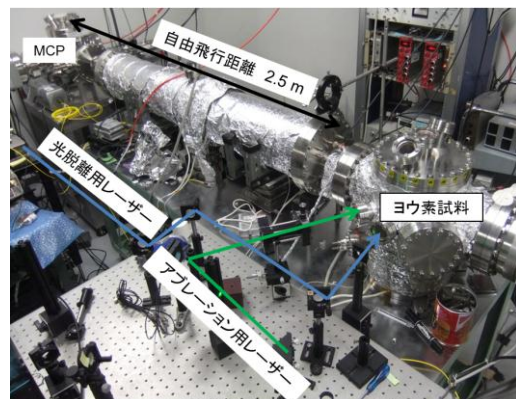


図6 ヨウ素の光脱離原理実証実験装置

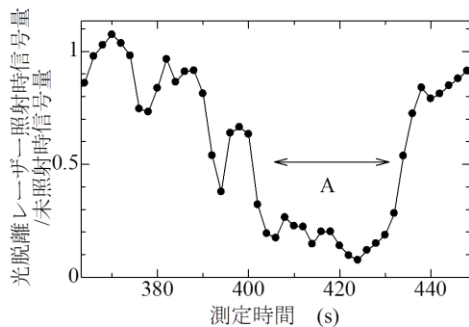


図7 ヨウ素パルス負イオン信号の時間変化

りパルスレーザーによる光脱離が実証された。また、ヨウ素負イオンの光脱離断面積の系統的な測定には、高繰り返し率で発振パルスジッター少ないパルスレーザーを用いる必要があることも明らかとなった。

これらの結果と基本構成要素の性能評価実験データをもとに最適分析条件を選定し、既設 AMS への搭載することを念頭に置いた設計指針と基本性能の評価を行った。レーザーアブレーションを用いて生成されたヨウ素パルス負イオンを予備加速にて 50keV ビームにし、注入同期チタンサファイアレーザーの第二高調波によって光脱離を行うことで、電荷剥ぎ取り前後のヨウ素イオンの価数として -1 価から +3 価を用いた場合でも妨害イオンの影響を低減でき、事故後の土壤中ヨウ素同位体存在比である $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=10^{-9}\sim 10^{-6}$ を見込んだ場合、本システムで用いるレーザーの繰り返し率が 10 kHz であれば、測定時間 $10^2\sim 10^5$ s で、光脱離により同位体選択性を 1 桁向上できると見積もられた。したがって、AMS で用いるタンデム加速器に印加する電圧を約 1 MV 以下に抑えることができ、本低エネルギー AMS の技術的成立性が確認された。

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 2 件)

1. Tone Takahashi, Hideki Tomita, Motoi Nakayama, Yoshitaka Adachi, Volker Sonnenschein, Tetsuo Iguchi, Klaus Wendt “Isotope-selective laser photodetachment for ^{129}I accelerator mass spectrometry”, *Hyperfine Interactions*, **216**, 133-138, 2013,(査読有)

2. Tone Takahashi, Motoi Nakayama, Hideki Tomita, Jun Kawarabayashi, Tetsuo Iguchi, Klaus Wendt, Kenichi Watanabe “Development of accelerator mass spectrometry assisted by isotope-selective laser photodetachment for monitoring ^{129}I ”, *Radiation Measurements*, (査読

有、採録決定済 電子版発行済)

[学会発表] (計 2 1 件)

1. H. Tomita, M. Nakayama, T. Takahashi, T. Iguchi, and K. Wendt, Negative Iodine Ion Source by Laser Ablation for ^{129}I Accelerator Mass Spectrometry, International Conference on Laser Applications in Nuclear Engineering (LANE'13) LANE7-3, Pacifico Yokohama Yokohama, Japan, April 23 - April 25, 2013

2. 高橋時音, 中山元, 富田英生, 河原林順, 井口哲夫, クラウス ベント、同位体選択的光脱離を用いた ^{129}I -加速器質量分析の高度化、29a-PA1-21, 第60回応用物理学会春季学術講演会 (神奈川工科大学、2013年3月27日～30日)

3. 高橋時音, 中山元, 富田英生, 河原林順, 能任 琢真、高塚卓旦、井口哲夫, クラウス ベント、「 ^{129}I -加速器質量分析のための同位体選択的光脱離の適用性評価」、P11、第11回同位体科学研究会 (産業技術総合研究所 臨海副都心センター 別館11階 第一会議室、平成25年3月14日)

4. Tone TAKAHASHI, Hideki TOMITA, Motoi NAKAYAMA, Jun KAWARABAYASHI, Testuo IGUCHI, Klaus Wendt, Isotope-Selective Laser Photodetachment for compact ^{129}I -AMS, 6th International Conference on Laser Probing 2012 (LAP2012), P8, The Institut Henri Poincaré, Paris 5ème, France, June 4-8, 2012

5. 中山元, 高橋時音, 富田英生, 河原林順, 井口哲夫 ^{129}I -AMS 分析に向けた同位体選択的光脱離実証実験装置の開発、第59回応用物理学関係連合講演会 2012/3/16 早稲田大学 (東京都)

6. 中山元, 高橋時音, 富田英生, 河原林順, 井口哲夫 極微量 ^{129}I 加速器質量分析のための同位体選択的光脱離の基礎研究、第10回同位体科学会 2012/3/8 産業総合技術研究所 臨海副都心センター (東京都)

7. 中山元、高橋時音、富田英生、河原林順、井口哲夫 同位体選択的光脱離を用いた小型加速器質量分析法のためのレーザーアブレーションパルス負イオンの特性評価、研究会「放射線検出器とその応用」(第26回) 2012/1/24 高エネルギー研究機構 (茨城県)

8. 高橋時音, 中山元, 富田英生, 河原林順, 井口哲夫 長半減期 ^{129}I 微量分析に向けた同位体選択的光脱離基礎実験装置の設計検

討、日本原子力学会中部支部第 43 回研究発表会 2011/12/6 名古屋大学 (愛知県)

9. Tone TAKAHASHI, Motoi NAKAYAMA, Hideki TOMITA, Jun KAWARABAYASHI, Tetsuo IGUCHI, Klaus WENDT and Kenichi WATANABE. Development of Accelerator Mass Spectrometry Assisted by Isotope Selective Laser Photo-detachment for ^{129}I Monitoring, 7th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring 2011/12/3 大洗パークホテル (茨城県)

10. 中山 元, 村松圭芳, 富田英生, 河原林順, 井口哲夫 同位体選択的光脱離を用いた小型化加速器質量分析のためのレーザーアブレーションによるパルス負イオン源の適用性検討、第72回応用物理学学会学術講演会 2011/9/1 山形大学 (山形県)

11. M. Nakayama, H. Tomita, T. Muramatsu, J. Kawarabayashi, T. Iguchi, K. Wendt, and K. Watanabe. Accelerator Mass Spectrometry for ^{129}I with Isotope-Selective Laser Photo-detachment, Sixth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology (ISORD-6), 2011/7/12 Langkawi (Malaysia)

12. 中山元, 村松圭芳, 富田英生, 竹澤邦将, 河原林順, 井口哲夫 同位体選択的光脱離を用いた加速器質量分析のためのレーザーアブレーションパルス負イオン源の開発、第48回アイソトープ・放射線研究発表会、2011/7/6、日本科学未来館 (東京都)

13. 村松圭芳, 富田英生, 渡辺賢一, 河原林順, 井口哲夫, Klaus Wendt, 同位体選択的光脱離を用いた加速器質量分析のための高繰り返し率注入同期チタンサファイアレーザーの開発、2011年春季第58回応用物理学関係連合講演会、2011年3月9日、要旨集

14. 中山 元, 村松 圭芳, 富田 英生, 竹澤 邦将, 河原林 順, 井口 哲夫, 同位体選択的レーザー光脱離を用いた加速器質量分析法のためのパルス負イオン源の開発、日本原子力学会中部支部第42回研究発表会 2010年12月15日、名古屋大学ベンチャービジネスラボラトリベンチャーホール

15. T. Muramatsu, H. Tomita, M. Nakayama, J. Kawarabayashi, T. Iguchi, K. Wendt, and K. Watanabe. Proposal of Accelerator Mass Spectrometry for ^{129}I at Low Energies by Isotope Selective Photodetachment with Injection Seeded

Ti:sapphire Laser, 5th International Conference on Laser Probing 2010 (LAP2010)、2010年9月30日、TRIUMF, British Columbia, Vancouver Canada

16. 村松 圭芳, 富田 英生, 渡辺 賢一, 河原林 順, 井口 哲夫, クラウド ベント 同位体選択的光脱離を用いた加速器質量分析の高度化に関する検討、2010年春季第57回応用物理学関係連合講演会、2010年3月17日、東海大学湘南キャンパス

17. 村松 圭芳, 富田 英生, 渡辺 賢一, 河原林 順, 井口 哲夫, クラウド ベント 負イオンの同位体選択的光脱離のレーザー光源に関する検討、第8回同位体科学研究会、2010年3月5日 産業総合技術研究所 臨界副都心センター

〔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〕

特になし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

井口哲夫 (IGUCHI TETSUO)

名古屋大学大学院工学研究科・教授

研究者番号：60134483

(2) 研究分担者

河原林順 (KAWARABAYASHI JUN)

名古屋大学大学院工学研究科・准教授

研究者番号：80283414

渡辺賢一 (WATANABE KENICHI)

名古屋大学大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30324461

(平成21~23年度)

富田英生 (TOMITA HIDEKI)

名古屋大学核燃料管理施設・准教授

研究者番号：20432239

(3) 連携研究者

渡辺賢一 (WATANABE KENICHI)

名古屋大学大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30324461

(平成24年度)