

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 5 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23760832

研究課題名（和文） 原子の準安定状態を用いた時間差イオン化による超低ノイズ希ガス同位体比分析計の開発

研究課題名（英文） Development of an ultralow background mass spectrometer for isotope analysis of noble gas atoms using delayed ionization via the metastable state

研究代表者

岩田 圭弘 (IWATA YOSHIHIRO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・高速実験炉部・研究員

研究者番号：20568191

研究成果の概要（和文）：

本研究では、レーザー共鳴イオン化質量分析法を用いた高速炉の破損燃料位置検出におけるバックグラウンド低減を目的として、クリプトン及びキセノン原子の準安定状態を経由した時間差イオン化手法を開発した。時間差イオン化に長波長レーザーを使用することで、主成分アルゴンの光電子イオン化バックグラウンドの除去を実証し、時間差イオン化効率は従来の短波長レーザーによる共鳴イオン化効率と比較して 10%程度と評価された。

研究成果の概要（英文）：

To reduce background in resonance ionization mass spectrometry applied for the failed fuel detection and location system of fast reactors, we developed a method of delayed ionization of krypton and xenon isotopes via the metastable states. With the use of a long wavelength laser for the delayed ionization, the effect of argon and argon dimer ionization on background generated by photoelectrons could successfully be eliminated, and the ionization efficiency was evaluated to be about 10% compared to that with a conventional technique of using a short-wavelength ultraviolet laser.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力エネルギー、原子・分子物理、計測工学、破損燃料位置検出、レーザー共鳴イオン化、時間差イオン化

1. 研究開始当初の背景

高速炉の安全運転及び稼働率向上には、使用する燃料の破損位置を正確かつ迅速に同定する破損燃料位置検出システムの確立が必要不可欠である。破損燃料位置検出法として、破損した燃料ピンからアルゴンカバーガスに移行したクリプトン及びキセノンの同位体比をレーザー共鳴イオン化質量分析法により測定する手法が提案された。主成分アル

ゴン中に極微量(ppb～ppt)含まれるクリプトン又はキセノン原子のみを波長 200-300 nm の紫外パルスレーザーで共鳴イオン化し、飛行時間型質量分析計により同位体比を計測する。

共鳴イオン化の利点は、目的元素以外をイオン化せず分析計のバックグラウンドを大幅に低減することで、高感度な微量分析が可能となる点にある。しかし、波長 300 nm 以下

の短波長レーザーを照射すると光電子イオン化事象が分析の障害となり、主成分アルゴン及びその二量体の光電子イオン化バックグラウンドを低減・除去することが課題となっている。特に、アルゴン二量体(Ar_2)はクリプトン 80 (^{80}Kr)と質量が等しく同重体干渉を引き起こすため、質量分析で両者を分離することは困難である。また、実機への適用に向けてアルゴンカバーガスに含まれる炭化水素不純物の影響を考慮する必要があり、共鳴イオン化過程において同重体干渉を防止することが望まれる。

2. 研究の目的

本研究では、クリプトン及びキセノン原子の準安定状態を経由した時間差イオン化により、光電子イオン化バックグラウンドを低減・除去した高感度な同位体比分析計の開発を目的とする。

3. 研究の方法

図1にクリプトン原子の時間差イオン化スキームを示す。波長 214.8 nm の紫外パルスレーザーで2光子共鳴励起させた後、寿命の長い準安定状態に遷移したタイミングで波長 557.2 nm の長波長パルスレーザーで共鳴イオン化する。キセノン原子の場合は、共鳴励起及び時間差イオン化用レーザー波長を 252.5 nm 及び 479.4 nm とする。

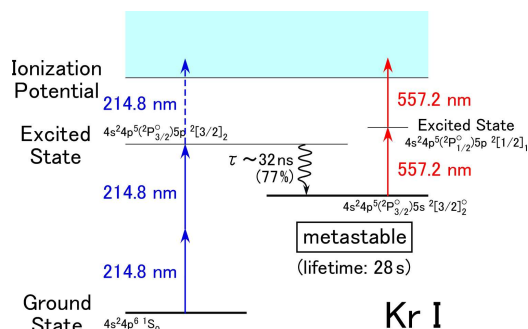


図1 クリプトン原子の時間差イオン化スキーム

図2に時間差イオン化のイメージ図を示す。クリプトン、キセノン原子ともに基底状態からの共鳴励起には短波長の紫外パルスレーザーが必要となるため、レーザー照射による光電子イオン化バックグラウンドが存在する。しかし、時間をかけて長波長レーザーによりイオン化することで、信号成分の質量がバックグラウンドと等しい場合であってもスペクトル上で両者を分離して同重体干渉

を防ぐことができる。時間差イオン化用のレーザーは波長 500 nm 付近の可視光であるため、レーザー照射による光電子イオン化バックグラウンドは存在しない。光電子イオン化事象は共鳴イオン化と異なり、後方に数 μs 程度のテールをひくスペクトル形状をとる。従って、長波長レーザー照射までの時間差を 10 μs までの範囲で可変にして、最適条件を探った。

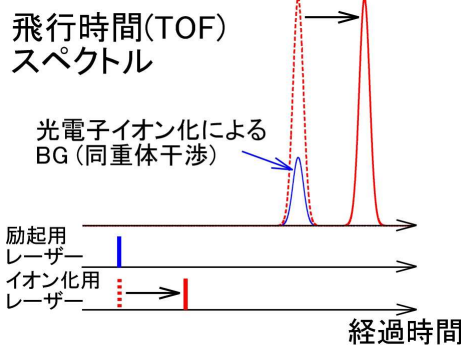


図2 時間差イオン化のイメージ

図3にクリプトン分析における時間差イオン化セットアップを示す。共鳴励起用レーザー(波長 214.8 nm, 出力 10 mJ/pulse, パルス幅 5 ns, 繰り返し 10 Hz)をレンズで直径 0.1 mm 程度に集光して照射し、時間差イオン化用レーザー(波長 557.2 nm, 出力 30 mJ/pulse, パルス幅 5 ns, 繰り返し 10 Hz)を反対側から直径 5 mm の平行光で照射した。一定濃度のクリプトン及びキセノンを含むアルゴン標準ガスを試料として超音速分子線パルス(PSV)から真空中に導入し、時間差イオン化されたクリプトンイオンに対して飛行時間型質量分析計(TOF-MS)により同位体分析を行った。2本のレーザーの照射時間差における試料ガスの移動量を考慮し、レンズ位置を調整して共鳴励起用レーザーの照射位置の最適化を行った。キセノン分析においても、同様なセットアップを構成した。

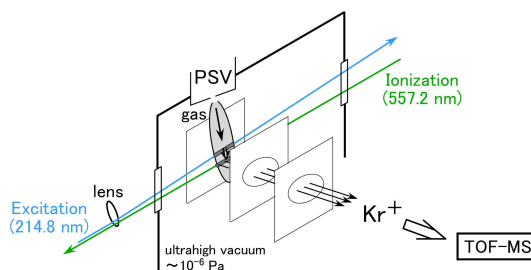


図3 時間差イオン化セットアップ(クリプトン分析の場合)

4. 研究成果

図3のセットアップにおいて、2本のレーザーの照射時間差を200 ns, 5 μ s, 10 μ sと設定して得られた質量スペクトルを図4に示す。横軸の飛行時間は、時間差イオン化用レーザー(波長557.2 nm)の照射タイミングを基準にして表示している。黒破線で示したスペクトルはクリプトン⁸⁴(⁸⁴Kr)の時間差イオン化信号であり、信号量は時間差200 ns及び5 μ sであまり変わらず時間差10 μ sで大きく低下した。時間差を長くすると試料ガスの拡散により信号量が低下する傾向にあるが、時間差5 μ sの範囲では時間差イオン化用レーザーの照射領域(直径5 mm)でカバーされていると考えられる。前項で述べた光電子イオン化のスペクトル形状を考慮し、2本のレーザーの最適な照射時間差を5 μ sと設定した。

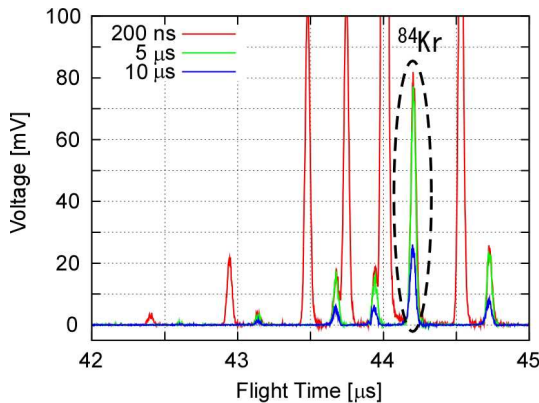


図4 照射時間差200 ns, 5 μ s, 10 μ sにおける時間差イオン化スペクトル(クリプトン分析)

2本のレーザーの照射時間差が5 μ sの場合について、アルゴンの光電子イオン化事象を含めた質量スペクトルを図5に示す。図中の(a)及び(c)は共鳴励起用レーザー(波長214.8 nm)の照射によるイオン信号で、(a)がアルゴンの光電子イオン化、(c)がクリプトンの共鳴イオン化(図1の青実線及び青破線)である。図中の(d)は時間差イオン化用レーザー(波長557.2 nm)の照射によるクリプトンの時間差イオン化である。図中の(b)で示した時間領域は時間差イオン化用レーザーの照射におけるアルゴンの質量数領域、すなわち(a)より5 μ s遅い領域を表しているが、目立ったピークは観測されなかった。これは、時間差イオン化用レーザーの照射による光電子イオン化バックグラウンドが存在せず、クリプトンのみイオン化されたことを意味している。長波長レーザーの照射で光電子の生成が抑えられたことから、アルゴン二量体及び炭化水素不純物による同重体干渉の防止が可能になったと考えられる。(c)及び(d)

のスペクトル強度を比較すると、時間差イオン化効率は共鳴励起用レーザーによるイオン化効率の約20%である。また、時間差イオン化を最適化するように図3のレンズ位置を調整しており、(c)のピーク強度は約1/2に低下した。以上から、時間差イオン化効率は従来の短波長レーザー(共鳴励起用レーザー)による共鳴イオン化効率と比較して10%程度と評価された。キセノン分析(共鳴励起波長252.5 nm, 時間差イオン化波長479.4 nm)についてもほぼ同様な結果を得たが、共鳴励起波長がより短いクリプトン分析において時間差イオン化手法による同重体干渉防止の効果は大きいと考えられる。

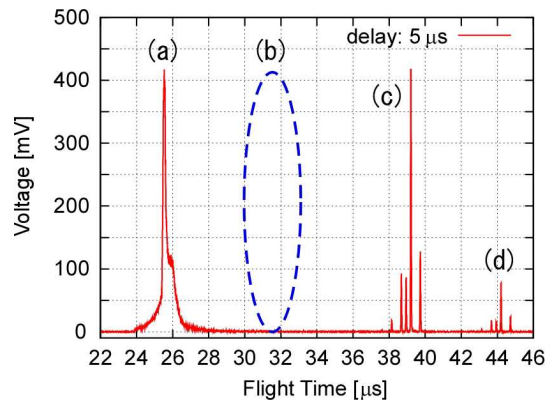


図5 照射時間差5 μ sにおける質量スペクトル(クリプトン分析)
図中の(a)-(d)は本文を参照

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)

[学会発表] (計3件)

① Yoshihiro Iwata, “Studies on accurate and precise identification of the failed fuel assembly using resonance ionization mass spectrometry”, International Conference on Laser Applications in Nuclear Engineering (LANE'13), 2013年4月25日, Pacifico Yokohama

② 岩田圭弘, “希ガス同位体比分析における長波長レーザーを用いた時間差共鳴イオン化手法の開発”, 日本物理学会第67回年次大会, 2012年3月27日, 関西学院大学

③ 岩田圭弘, “準安定状態を用いた時間差イオン化による Kr, Xe 同位体比分析のバックグラウンド除去”, 日本物理学会2011年秋季大会, 2011年9月23日, 富山大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩田 圭弘 (IWATA YOSHIHIRO)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・高
速実験炉部・研究員
研究者番号：20568191

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：