

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 29 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24310078

研究課題名(和文)イオンサイクロトロン共鳴法による安定同位体分離の研究

研究課題名(英文)Study of the Ion Cyclotron Resonance Method for Stable Isotope Separation

研究代表者

稲垣 隆雄 (INAGAKI, Takao)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・その他部局等・名誉教授

研究者番号：60044757

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：均一磁場中を運動するイオンのサイクロトロン運動の周回周波数が、イオンのエネルギーに依らず、質量に逆比例するという関係を利用して、外部高周波によって、特定質量のイオンのサイクロトロン運動を選択的に励起し、特定の安定同位体を分離・濃縮する方法(ICR法)を実験的に研究する。ICR法は、原理的にはあらゆる核種に適応できる。

本研究期間中に、高エネルギー加速器研究機構の低温工学センターにある超伝導ソレノイド磁石を使って、1-2か月の実験を4度行い、亜鉛(Zn)の同位体 ^{68}Zn に対して、濃縮率2%、収量1mg/hourという有意な結果を得ることが出来た。更に、改良に為の今後の指針も得られた。

研究成果の概要(英文)：We have studied the ion cyclotron resonance method for a separation (enrichment) of stable isotope. The method is based on the relation that the frequency of cyclotron motion in a uniform magnetic field depends only on the mass of particle, and that the cyclotron motion of a specific isotope can be selectively excited by an outside radio-frequency field which resonates with the cyclotron motion. The ICR method is a very unique method, because it can be used for isotope separation of all atoms.

We tried experiments four times using the superconducting solenoid magnet in the Cryogenics Science Center of KEK. We observed a substantial effect for enrichment and yield, 2% and 1 mg/hour, respectively.

研究分野：素粒子実験

キーワード：安定同位体の分離 プラズマのICR加熱

1. 研究開始当初の背景

(1) 安定同位体は一種の天然資源である。原子核は約 100 種あるが、安定同位体の総数は 250 以上あるので、個々の安定同位体を分離することが出来れば、多様で広大な利用分野が広がる。例えば、生物分野だけを見ても、

(a) 開放系でも使える安全なトレーサーという直接利用

(b) 放射線性同位元素 (RI) 生成の材料という間接利用

が考えられる。前者には、戦後我国の農業の近代化に大きな寄与をした理研の重窒素 (^{15}N) 計画という例があり、後者には、PET 用の放射線同位体 ^{18}F を、近傍の安定同位体 ^{18}O から、小型加速器を使ってピュアーで効率よく作るという利用例がある。

(2) 安定同位体の利用が限られてきたのは分離が難しいためである。安定同位体の分離法には、大別して、化学分離法や遠心分離法などの統計的分離法と、個別的分離法がある。個別分離法は基本的には核種を選ばないが、現存する個別分離法は、電磁分離法 (質量分析法) のみである。電磁分離法では、収量は小さく、第二次世界大戦中に作られた超大型装置も老朽化してきており、限界が見えている。新規の個別的分離法として 1980 年代に華々しく登場したのがレーザー法であるが、それが消えた今、新規の個別分離法の候補として考えられているのは、イオンサイクロトロン共振 (ICR) 法だけである。

ICR 法による安定同位体分離装置は、米国のセラジェニックスという民間企業に唯一現存しているが、10 年前にパラジウム同位体分離に使われたという情報以上の報告はない。ロシアのクルチャトフ研究所には、建設計画がある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ICR 法による安定同位体分離を実証することである。当初、対象核種としてモリブデン (Mo) を計画したが、実際は、調達できた ICR 励起用の高周波電源の帯域制限によって、亜鉛 (Zn) をとりあげた。Mo 及び Zn には、多くの安定同位体が存在し、個別分離法の特徴を実証するに適した、質量数が端ではない同位体が存在する。

3. 研究の方法

(1) ICR 法では、荷電粒子が磁場中を周回運動 (サイクロトロン共振) する振動数が、粒子のエネルギーに依存せず、磁場に比例し、粒子の質量に逆比例することを利用する。均一磁場では、特定の安定同位体イオンの振動数に等しい外部高周波によって、その振動が積みあがっていく。即ち選択的な ICR 加熱が起こる。

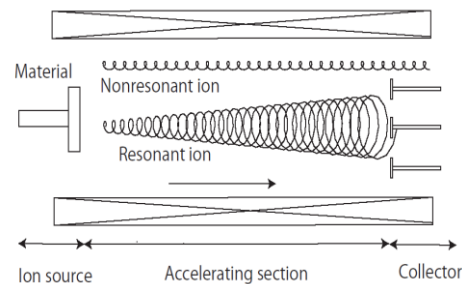


図 1 ICR 同位体分離装置の概念図

その際、電子と同位体イオンの振動数には 3~6 桁という大きな差があるので、電子とイオンが共存するプラズマ状態で、ICR 加熱が可能である。

ICR 装置は、図 1 のようにソレノイド磁場中の真空容器の内に、Ion Source 部、Accelerating 部、Collector 部を設置したものである。Source 部では、スパッタリング等によって同位体原子が Material plate から放出され、マイクロ波により電離されてプラズマ状態となる。電離された電子およびイオンは磁力線に巻きついて閉じ込められる。ただ磁力線方向の運動は拘束を受けない。Accelerating 部では、ヘリカル形状のアンテナ

ナで発生する高周波によって、特定同位体イオンのサイクロトロン運動を励起する。Collector 部ではすだれ型の電極によって、励起されて振幅が大きくなったイオンを収集する。

一価のイオンのサイクロトロン周波数 (f) は、 $f = 2.2 \times 10^5 \cdot (B/1.5T) \cdot (A/100)^{-1}$ である。 B (磁場) = 1.5 T, A (原子量) = 100、 $f = 2.2 \times 10^5$ Hz である。一方、サイクロトロン振動の振幅 (ラーマー半径、 r) は、横方向エネルギーの平方根に比例しそれが 10 eV の $A=100$ のイオンではラーマー半径は 3 mm、同じエネルギー電子では 7 μ m である。

ICR 加熱高周波によって、特定イオンのラーマー半径だけを選択的に励起し、すだれ状収集板で、特定同位体の濃縮が出来る。

(2) ICR 法には、均一で強い磁場を発生する大型超伝導磁石や、プラズマ生成と ICR 加熱の為の複数帯域の高周波などの技術が必要である。これが、ICR 法を技術的に難しくし、開発を妨げてきた。しかし、それらの技術の多くは加速器科学で培われ、磨かれてきたものであり、装置やインフラの転用、再利用もできる。私達にはそれらが利用できるという利点がある。

4. 研究成果

(1) 研究の経過

① 2012 年度は、実証実験のデザインを行った。特に、アンテナコイルから発生する高周波パワーが、イオンの横方向エネルギー励起へと伝搬するという、いわゆる ICR 加熱、を調べた。

② 2013 年度は、デザインレポートを論文化し、実験の準備・物作りを行った。2014 年 1-2 月の第 1 回実験では、装置主要部の稼働を確認し、プラズマ発生を観測した。しかし、プラズマ発生はまだ不安定であった。調達できた ICR 加熱用高周波アンプの定格

帯域が 0.3-30 MHz だったので、対象標的を、共鳴周波数が 0.25 MHz 付近にあるモリブデン (Mo) から 0.35 MHz 付近の亜鉛 (Zn) へと変更した。

③ 2014 年 6-7 月の実験では、ICR 加熱用の高周波アンプを、所定の 1/4 という電流値であったが、はじめて働かせた。 ^{68}Zn が約 2% の濃縮されているのが観測できた。9 月の物理学会で、その成果を報告した。10-11 月の第 3 回実験は、磁場設定が誤った為に、分離の試験とはならなかった。一方で、プラズマ発生については、前進があった。スパッター電極表面の亜鉛以外の部分を石英ガラスで包みこむことによって、マイクロ波入力窓付近の金属ガス濃度を下げ、マイクロ波の注入を容易にし、イグニッションとなるアルゴンプラズマを増加させ、スパッター頻度を上げ、Zn ガス量を飛躍的に増した。

この 2014 年 10-11 月の実験が、磁場設定を誤って、同位体分離に至らなかったため、申請時に 3 年だった本基盤研究 B の研究期間を 1 年延長し、期間 4 年と変更した。

④ 2015 年度は、第 4 回実験を 2015 年 9-10 月に行った。スパッター電極の形状変更や、マイクロ波導波管のサーキュレーターとダミーロード部の空冷を強化などによって、マイクロ波流入及びプラズマ発生を更に安定化した。ICR 加熱用アンプ 2 台の並列運転を行い、ICR 加熱電流を 1/3-1/2 へと増やした。しかし、実験終了間際に、スパッター電極のバイアス電源の発火事故があり、時間がとられ、解析が遅れたために、収集系から試料が剥がれ落ちてしまった。結果は 2016 年 3 月の物理学会で報告された。

(2) 成果のまとめ

① 第 3 回実験と第 4 回実験でトラブルがあった為に、同位体分離の到達点として示し得るのは、第 2 回実験で得られたものである。次頁の図 2 の様に、亜鉛同位体 ^{67}Zn 、 ^{68}Zn の有意な分離 (濃縮) が観測されている。

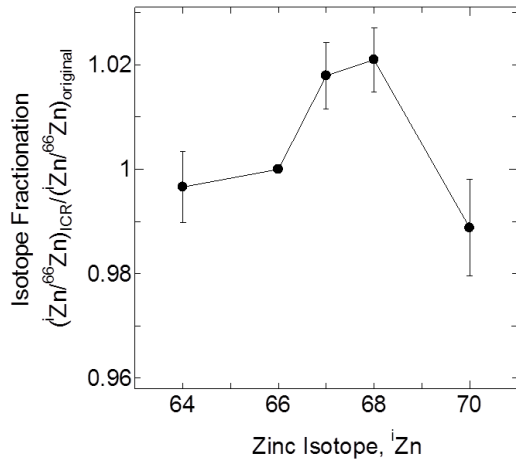


図2 ^{67}Zn 、 ^{68}Zn の有意な分離 (濃縮)

分離能の更なる向上は、ICR加熱用の高周波アンプを強化することで得られることは、デザイン時の軌道計算結果から分かっている。その為に、2台直列の現行システムを安定化させる一方で、新たな資金を得てより強力なアンプを製作したいと考えている。

② 一方、収量にかかわる、アルゴンプラズマ生成、スパッタリングなどは、漸次向上してきた。この向上は、装置の理解を深め、マイクロ波導入部などを不断の改良することで得られたものである。いふなれば、本研究で得られた最大の成果は、この理解の深化であるといえる。以下に、その一例を述べる。

本実験での亜鉛イオンビームの生成は、以下のような過程で起こる。まず、プラズマ室内にアルゴンガスを注入し、マグネトロン・マイクロ波 (2.45 GHz) で、アルゴンプラズマを生成する。次に、スパッタリング (叩き出し) 電極に負の高圧電位をかけて、アルゴンイオンを亜鉛電極に衝突させ、亜鉛元素を叩き出す。そして、その亜鉛元素を電子によって電離する。プラズマ構成物の一方をなす電子は、マイクロ波によって揺すられ、激しく動いている。電離後の亜鉛イオンは、亜鉛元素として叩き出された反跳を保持して、下流方向へと突き進む。その際、横方向の運動は、1.5 テスラという強い磁場のサイクロ

トロン振動に転化して、閉じ込められる。実験では、プラズマ生成を強い磁場内で行っているため、イオン化されさえすれば亜鉛は、効率よく下流部の ICR 加熱部へと流れていく。ところで、研究経過でも述べた数々の改良を経て、スパッタリングされた亜鉛元素の量は、250mA (亜鉛原子量では、500mg/h) 程度を達成している。この値はターゲットの質量欠損でも裏付けられている。一方で、下流側に流れてくる亜鉛イオンの量は、その3ケタ以上少ない。これは、電離で役割を果たす電子密度が上がっていないことによると考えられる。

横方向には閉じ込められている電子を縦方向にも流れ出しにくくし、電子密度の向上を図る必要がある。電極を-1 kV に帯電しているため、電子は、基本的には、下流部に押し出されている。上流側にソレノイド磁場変化が最大となる位置を置けるよう真空容器全体を設置し、変化最大点で起こるピンチ効果を利用して、電子の下流への流出を防ぐという策が考えられる。もう一つの策は、プラズマ室を更に磁石の外へ出して、2.45 GHz で ECR (電子サイクロトロン共鳴) が起こる 875 Gauss の面をプラズマ室内に取り込み、ECR 電離を利用する方法である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① K. Ohmi, T. Inagaki, H. Kichimi, A. Takagi, K. Tanaka, T. Suzuki, T. Shibata and Y. Fujii, Design of KEK Test Machine for Mo Isotope Separation Based on Ion Cyclotron Resonance Plasma Separation, Japanese Journal of Applied Physics (JJAP), Vol.52, 2013, pp. 126401-1 - 126401-6.
<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.52.126401>

[学会発表] (計 2 件)

日本アイソトープセンター・研究員
研究者番号： 80028224

① 稲垣隆雄、平成 26 年度日本物理学会秋季大会、2014 年 9 月 18 日、佐賀大学(佐賀県・佐賀市)。

② 稲垣隆雄、平成 28 年度日本物理学会年次大会、2016 年 3 月 20 日 東北学院大学(宮城県・仙台市)。

[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]

該当なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

稲垣 隆雄 (INAGAKI, Takao)
高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・名誉教授
研究者番号：60044757

(2) 研究分担者

大見 和史 (OHMI, Kazuhito)
高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・教授
研究者番号：10194292

高木 昭 (TAKAGI, Akira)
高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・講師
研究者番号：10100819

鈴木 達也 (SUZUKI, Tatsuya)
長岡技術科学大学・工学研究科・教授
研究者番号：70323839

(3) 連携研究者

吉見 弘道 (KICHIMI, Hiromichi)
高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・共同研究員
研究者番号：90044784

松本 修二 (MATSUMOTO, Shuuji)
高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設・准教授
研究者番号：70249902

田中 賢一 (TANAKA, Kenichi)
高エネルギー加速器研究機構・超伝導低温工学センター・技師
研究者番号：50391793

柴田 徳思 (SHIBATA, Tokushi)