

令和 5 年 6 月 11 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K20606

研究課題名（和文）加速器質量分析による超重元素測定に向けた負イオン源の研究開発

研究課題名（英文）Study on negative ion source for super heavy elements measurement by accelerator mass spectrometry

研究代表者

三宅 泰斗 (Yasuto, Miyake)

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器科学研究センター・技師

研究者番号：30804695

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではセシウムスパッター型負イオン源における負イオンの生成について調査するために、PbF₂を混合した試料から生成される分子負イオンビームの分析を行った。同族イオンに関して、生成のされ方に同様の傾向が見られ、元素の種類や電子親和力の影響が考えられる。また、レーザー光脱離法による電子親和力の推定も試み、電子親和力が大きいほど、負イオンの抑制率が大きくなることが観測された。これらのような基礎データは、特に加速器質量分析とレーザー光脱離法を組み合わせた手法を様々な核種へ適用させる上で重要であり、さらなる研究やデータの蓄積が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

加速器質量分析は加速器と質量分析を組み合わせた分析手法であり、極めて高い検出感度の測定が可能である。そのため、環境中の存在度が低い核種の測定に使用され、考古学、環境科学、原子力工学など様々な分野で活用されている。近年では負イオン源の研究開発やレーザー光脱離法の適用などにより、さらなる応用分野の拡大が検討されており、本研究で得られた成果はその基礎的なデータとなるものである。

研究成果の概要（英文）：In this study, to investigate the production of negative ions in a cesium sputter-type negative ion source, we analyzed molecular negative ion beams produced from a sample mixed with PbF₂. A similar trend was observed in the way of production concerning homologous ions, suggesting the influence of elemental type and electron affinity. We also attempted to estimate the electron affinity by laser photodetachment and observed that the larger the electron affinity, the larger the negative ion suppression rate. These primary data are important for applying the combined method of accelerator mass spectrometry and laser photodetachment to various nuclides, and further studies and accumulation of data are expected.

研究分野：加速器質量分析

キーワード：加速器質量分析 負イオン セシウムスパッター型負イオン源

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

長半減期の超重元素が分布すると理論的に予測される「安定の島」の元素の探索は、原子モデルの理解や超重元素合成の謎を解く手掛かりとして、原子核物理学や宇宙物理学において重要なテーマとされる。長半減期の超重元素は自然界に未だ崩壊せずに存在するか、加速器により合成できたとしても、その存在度は極めて低く、検出には高感度の分析手法が必要である〔①〕。超高感度の分析手法である加速器質量分析法ではイオン源としてセシウムスパッター型負イオン源が使用される。環境中に存在し得る極めて存在度が低い元素の検出に向けて、セシウムスパッター型負イオン源における負イオンの生成について研究を行うことが重要である。

2. 研究の目的

研究では、化学的な性質が近いと考えられる同族の元素を利用して、負イオンを効率良く生成するための条件を調べることを目的とした。本研究では特に、 PbF_2 を混ぜた場合に生成される分子負イオンを質量分析し、元素ごとの生成のされ方を調査した。

また、分子負イオンについて、レーザー光脱離法による電子親和力の推定も検討した。

3. 研究の方法

(1) 負イオンの生成

① ビームラインの整備

研究では、まず実験で使用するイオン源とビームラインを接続する真空容器の製作に取り組んだ。使用するイオン源は米国 NEC 社の MCSNICS (Multi Cathode Source for Negative Ion by Cs Sputtering) というセシウムスパッター型負イオン源である〔②〕。マルチカソード型で、一度に 40 個の試料を装填し、真空中で試料の交換が可能である。真空容器は真空容器、絶縁体、ビームの引き出し電極、アインツェルレンズから構成される(図 1)。製作の際、ビーム引き出しの光学系を計算し、真空容器の全長やアインツェルレンズの配置等を設計した。

ビームラインは理化学研究所 RI ビームファクトリーに設置されたもので、前述の負イオン源、分析電磁石(Bending magnet)、標的チェンバー、四重極電磁石(Q0, Q1, Q2)、ステアラー(St1, St2)等で構成される(図 1)〔③〕。分析電磁石は曲率半径が 80 cm と大きく、高い質量分解能を実現することが可能である。標的チェンバーにはスリットとファラデーカップ(FC2)が設置される。研究期間ではビームラインのターボ分子ポンプや、冷却水系の整備なども実施した。

② 試料ディスクの作成・分析

試料は第 7 周期目の元素の一部を対象として、その元素単体試料(A)、 PbF_2 を等量から 2 倍量混ぜた試料(B)、4 倍量混ぜた試料(C)を用意した。試料はアルミニウム製のカソードに詰められ、カソード径は $\phi 1$ mm である。試料量は各 10 mg 程度とした。

試料は Nb, Ta, Cu, Ag, Au, W, Pt であり、各元素について A, B, C の 3 種類から生成された負イオンビームを質量分析し、標的チェンバーに設置されたファラデーカップで電流値を検出した。ファラデーカップの前には $\phi 3$ mm の開口部を持つスリットが設置され、質量分解能を向上させた。ビームの加速電圧は 20 kV で、引き出し電圧は 14 kV、カソード電圧は 6 kV とした。

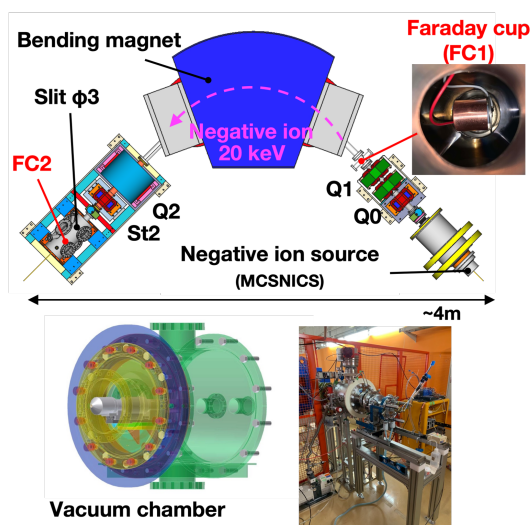


図 1 ビームラインと真空容器〔③〕

(2) レーザー光脱離法

レーザー光脱離法(Laser photo detachment, LPD)は負イオンとレーザーを相互作用させ、レーザーの光子のエネルギーが原子の電子親和力(Electron Affinity, EA)よりも大きい場合、その原子の負イオンから電子が脱離し、中性化される現象である。したがって、ある分子負イオンビームとレーザーを相互作用させ、その強度が減少すれば、その分子負イオンの EA はそのレーザーの光子のエネルギーよりも小さいことが予想される。

実験装置は、東京大学総合研究博物館タンデム加速器施設(Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator, MALT)のレーザー光脱離法用テストベンチビームラインを使用した〔④〕。本ビームラインは負イオン源、分析電磁石、減速チャンバー、静電偏向器及びレーザー系から構成される。減速チャンバーは減速管、加速管、四重極電磁石(Radio Frequency Quadrupole, RFQ)

で構成され、入射した負イオンを減速管で減速し、RFQでビームの発散を抑え、加速管でもとのエネルギーまで再加速する。LPDは負イオンとレーザーの相互作用時間を増加させることが効果的であり、そのために使用される装置である。ビームラインは既に構築されており、実験のため、レーザーの光学系を整備した。レーザーは波長が532 nm ($h\nu = 2.33$ eV)のCWレーザーである。ビームラインをレーザーが通過できるように、ミラーの角度の調整や、レーザーモニターを設置した他、レーザー設備周囲の囲いの作製など、環境整備を行った。

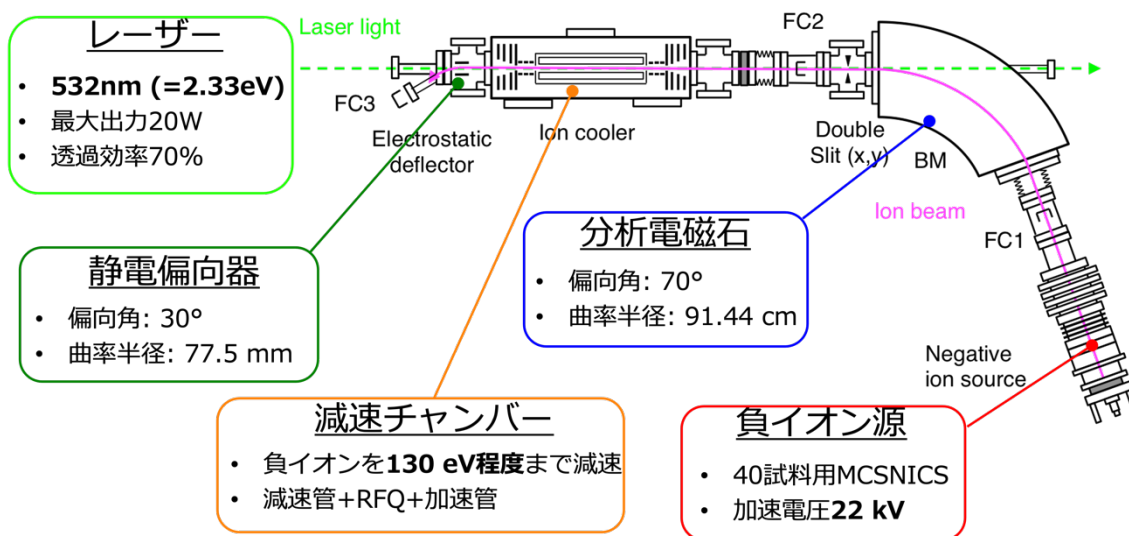


図2 東大 MALT レーザー光脱離法用テストベンチビームライン [4]

4. 研究成果

(1) 負イオンの生成

作成した試料の PbF_2 の混合割合を表1に示す。セシウムスパッター型負イオン源では、内部でまずセシウムが加熱され蒸気化する。蒸気化したセシウムはアイオナイザーによって熱イオン化し、カソードに向かって加速される。したがって、カソードに流れる電流はセシウムイオン、生成されるビーム、及びスパッターの際に生じる二次電子の合計となる。試料による強度のばらつきを抑えるため、ファラデーカップの電流をカソード電流で割ることで試料ごとの生成強度を規格化した。

得られた結果を図3に示す。分析の対象とした同位体は ^{93}Nb (天然存在比 100%)、 ^{181}Ta (99.9%)、 ^{63}Cu (69.15%)、 ^{107}Ag (51.84%)、 ^{197}Au (100%)、 ^{184}W (30.64%)、 ^{195}Pt (33.78%)である[5]。Nb、Taの

5族の元素については、ともに4, 5, 6フッ化物の負イオンから強い強度が得られた。中でも6フッ化物から最も高い強度が得られた。また、混合した PbF_2 の量が多い方が高い強度が得られる傾向が観測された。11族のCu, Ag, Auについては、1, 2フッ化物イオンの生成が見られたが、いずれも単体の負イオンが最も強度が高かった。混合したカソードよりも、単体のカソードから最も強い強度が得られた。試料の混ざり具合が影響している可能性がある。Wのカソードからは複数のフッ化物イオンが生成され、5, 6フッ化物からの強度が大きかった。Ptについても複数のフッ化物イオンが生成されたものの、11族の元素と同様に、単体から得られたビーム強度が最も大きかった。

興味深いこととして、7族と11族において、それぞれ同じ族の元素でフッ化物イオンの生成のされ方に同様の傾向が見られた。また、一般的に電子親和力(EA)が大きいほど負イオンが形成されやすいが、EAの比較的小さいNb(EA = 0.893 eV)やTa(EA = 0.322), W(EA = 0.815 eV)ではフッ化物イオンが形成されやすく、EAの大きいCu(EA = 1.228 eV), Ag(EA = 1.302 eV), Au(EA = 2.309 eV), Pt(EA = 2.128 eV)では単体の試料から最も高い強度の電流値が得られた。近年の研究で、セシウムスパッター型負イオン源のカソード内では、試料のEAとCsの励起状態の準位に近い場合に電子の移動が起こり負イオンが生成されるという報告もあり[7]、元素や分子のEAが負イオンの生成に影響することが示唆される。

表1 試料量と電子親和力
電子親和力は[6]より引用した。

X	X/PbF ₂ [weight %]		Electron Affinity eV
	B	C	
Nb	1.99	4.19	0.893
Ta	0.92	4.14	0.322
Cu	1.15	4.54	1.228
Ag	0.83	3.64	1.302
Au	1.77	3.45	2.309
W	0.98	4.47	0.815
Pt	1.00	3.45	2.128

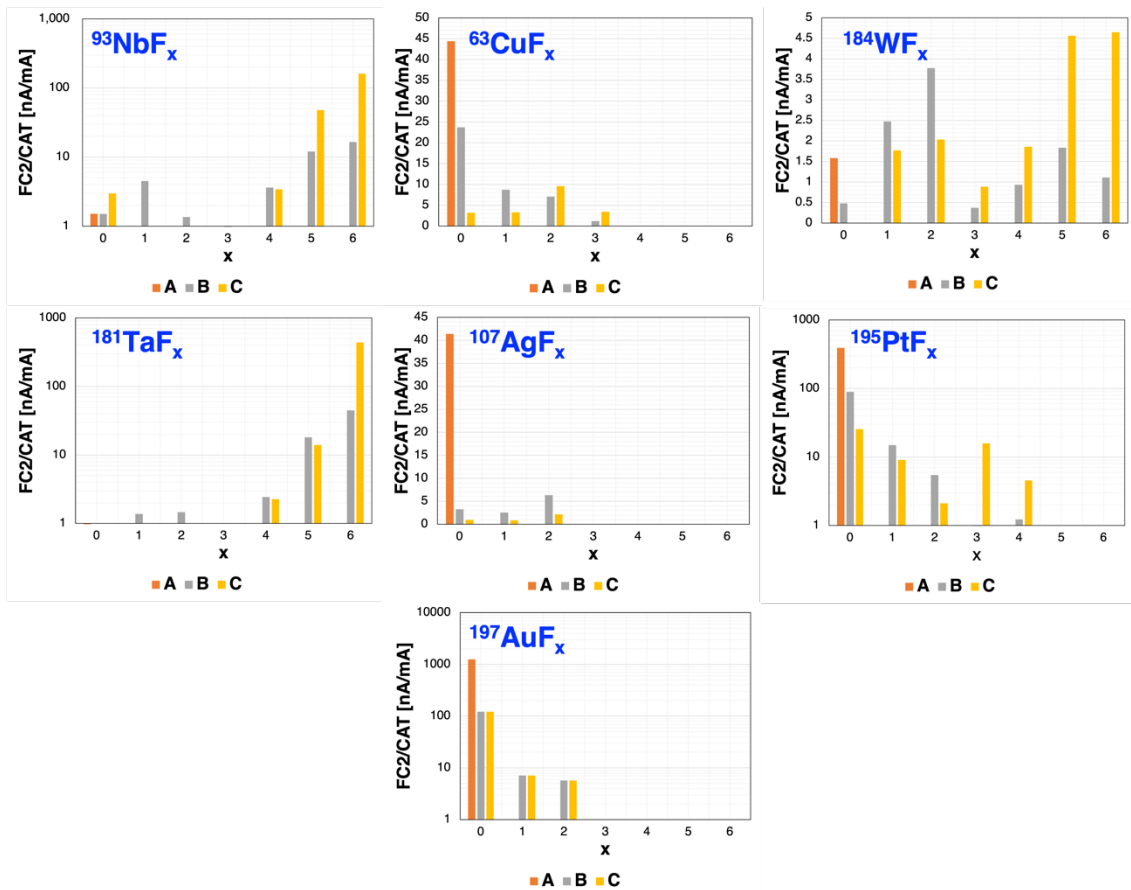


図3 生成されたビーム強度

(2) レーザー光脱離法

(1)で生成した負イオンについて、レーザーとの相互作用を検討したが、実験装置のレーザー系のトラブル等により実施できなかった。ここでは、予備実験として負イオン及び分子負イオンとレーザーを相互作用させた際に得られた結果について述べる。

実験では、負イオン、分子負イオンと波長 532 nm のレーザーを相互作用させ、電流値の変化を FC3 で測定した(図 2)。電子が脱離し中性化された場合、FC3 で検出される電流量が減少する。光脱離による電流量の減少は、ビームとレーザーとの相互作用時間が長いほど大きくなると考えられ、テストベンチビームラインに設置された減速チャンバーによりエネルギーを 130 eV 程度まで減速させた。

図 4 は各原子及び分子について、電子親和力と電流量の減少量を示した図である。縦軸はレーザー照射/未照射時の FC3 で検出された電流値の比であり、負イオンが中性化されると値が小さくなる。横軸は使用したレーザーの光子のエネルギーである 2.33 eV から、原子・分子の電子親和力の値を引いた値となる。原子及び分子の電子親和力は[⑧]より引用した。E - EA の値が正の場合、レーザー光子のエネルギーの方が EA よりも大きく、光脱離反応が生じると考えられる

負イオンとレーザーの相互作用の式は $n/n_0 = \exp(-\sigma \phi t)$ で表される。ここで、 n は光脱離反応後のイオンの数、 n_0 は光脱離反応前のイオンの数、 σ は光脱離反応の断面積、 ϕ はレーザーのフラックス、 t はレーザーとイオンの相互作用時間となる。Wigner のしきい則により、断面積は $\sigma \sim (E-EA)^{(1/2)+1}$ と表されることから、これを代入して、右の式が得られる[⑨]。ここで、 E は光子のエネルギー、 EA は電子親和力、 l は脱離する電子の角運動量、 k は定数である。

$$n/n_0 = \begin{cases} \exp(-k(E-EA)^{\frac{1}{2}+l} \phi t) & (E \geq EA) \\ 1 & (E < EA) \end{cases}$$

この式から、E-EA の値が大きいくほど n/n_0 の値が小さくなることが予想され、実験では実際にそのような傾向が観測された。一方で、E-EA が負の領域において、AlO(EA = 2.60 eV) や AlO₂(EA = 4.23 eV) などの分子負イオンの強度の減少が見られた。これらの EA は 2.33 eV よりも大きいが電流値が減少しており、光分解 (photodissociation) が生じている可能性がある[⑩]。

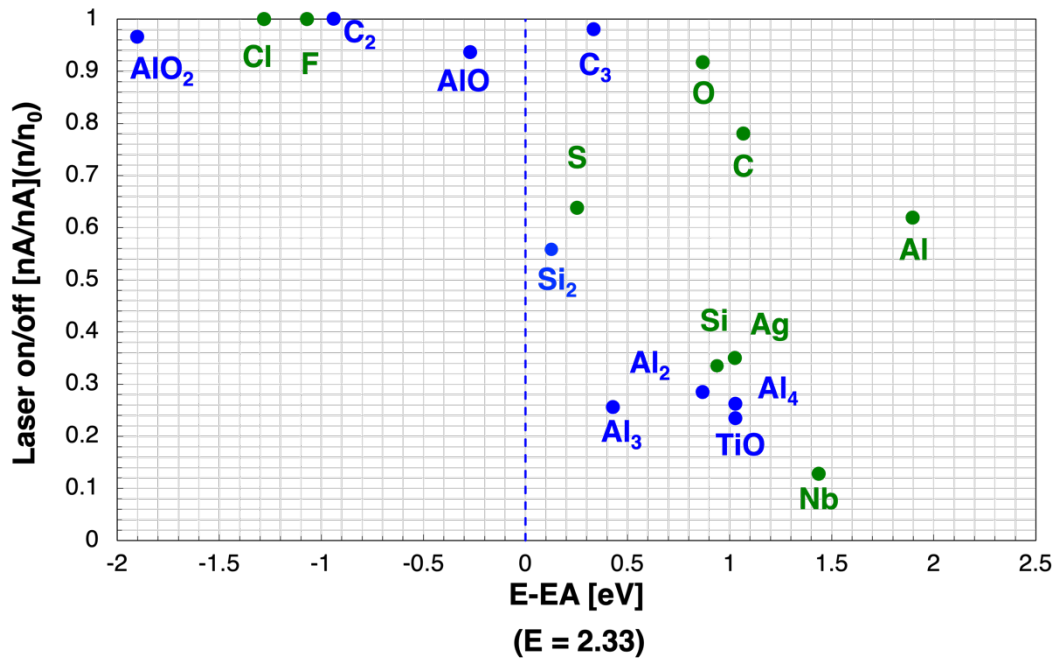


図4 電子親和力とレーザー照射/未照射時の電流値の変化

以上から、本研究ではセシウムスパッター型負イオン源における負イオンの生成について調査するために、PbF₂を混合した試料から生成される分子負イオンビームの分析を行った。同族イオンに関して、生成のされ方に同様の傾向が見られ、元素の種類や電子親和力の影響が考えられる。また、レーザー光脱離法による電子親和力の推定も試み、電子親和力が大きいほど、負イオンの抑制率が大きくなることが観測された。これらのような基礎データは、特に加速器質量分析とレーザー光脱離法を組み合わせた手法を様々な核種へ適用させる上で重要であり、さらなる研究やデータの蓄積が期待される。

<引用文献>

- ① G. Korshinek and W. Kutschera, *Nuclear Physics* A944 (2015) 190-203.
- ② National Electrostatics Corp. [Internet] <https://www.pelletron.com>
- ③ Y. Miyake *et al.*, *Journal of Nuclear science and technology*, Vol. 59, No. 12 (2022) 1536-1545.
- ④ H. Matsuzaki *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* B463 (2020) 55-63.
- ⑤ Table of Nuclear Data, Nuclear Data Center, Japan Atomic Energy Agency [Internet] <https://wwwndc.jaea.go.jp/NuC/index.html>
- ⑥ R. Middleton, "A Negative-Ion Cookbook", University of Pennsylvania (1989)
- ⑦ J. S. Vogel, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* B361 (2015) 156-162.
- ⑧ J. C. Rienstra-Kiracofe *et al.*, *Chem. Rev.* 102 (2002) 231-282.
- ⑨ E. P. Wigner, *Phys. Rev.* 73 (1948) 1002.
- ⑩ L. C. Lee and G. P. Smith, *J. Chem. Phys.* 70 (1979) 1727-1735.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Yasuto Miyake, Takeyasu Yamagata, and Hiroyuki Matsuzaki
2. 発表標題 Progress of laser photo detachment experiment at MALT
3. 学会等名 The 15th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry (AMS-15) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三宅泰斗、山形武靖、谷井智樹、松崎浩之
2. 発表標題 加速器質量分析におけるレーザー光脱離法の分子負イオンへの適用の検討
3. 学会等名 2020年第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 三宅泰斗、山形武靖、谷井智樹、松崎浩之
2. 発表標題 負イオン減速チャンバーにおける光学系の最適化
3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三宅泰斗、山形武靖、谷井智樹、松崎裕之
2. 発表標題 MALTにおける加速器質量分析のためのレーザー光脱離システムの開発
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三宅泰斗、山形武靖、松崎浩之
2. 発表標題 加速器質量分析における新しい同重体分離手法の研究開発
3. 学会等名 2023年第70回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関