

資料番号:9-10

# レーザ共鳴イオン化質量分析法を 用いた高速炉の燃料破損検出法に

开口	哲天	渡辺	賢─	狄田	利辛
野瀬	正一	原野	英樹	伊藤	和寛
`客員研究	記員(名古属	【大学) <sup>,</sup>	<sup>*1</sup> 名古屋大	学	実験炉部
大洗丁≦	ジャンター	昭射施設	演転管理1	ァンター	

Basic Study on Fast Reactor Failed Fuel Detection and Location Method with Resonance Ionization Mass Spectrometry

Tetsuo IGUCHI<sup>\*</sup> Ken-ichi WATANABE<sup>\*1</sup> Toshiyuki OGITA<sup>\*1</sup> Shoichi NOSE Hideki HARANO Kazuhiro ITO

\*Guest Researcher, Nagoya University \*1Nagoya University Reactor Division, Irradiation Center, Oarai Engineering Center

レーザ共鳴イオン化質量分析法(RIMS)を活用し、従来のXe, KrなどのFPガスモニタリングによる 破損燃料検出及び位置決め法(FFDL)との組合せによる高度化とともに,技術革新の可能性を検討 した。東京大学工学系研究科原子力工学研究施設に設置された高速中性子科学研究設備(共同利 用設備)のRIMSを用い、Xe,Krの検出限界などの基本性能を明らかにする基礎実験と理論的評価と ともに、「常陽」のカバーガス分析を対象とする実証試験を行った。その結果、本研究で提案する RIMS-FFDL法は、感度、S/N比、迅速検出性の基本的な要求性能を同時に満たすことができ、さら に、オンラインで簡便にタグガスの同位体比分析が行える画期的なシステムの構築が可能との結 論が得られた。

The present study is aiming to develop a new and advanced Failed Fuel Detection and Location (FFDL) technique based on fission product gas monitoring with Resonance Ionization Mass Spectrometry (RIMS). A feasibility study on the RIMS-FFDL was carried out through basic experiments to detect Xe/Kr by using a RIMS system for common utilization installed at the Nuclear Engineering Research Laboratory of the University of Tokyo. This report describes the basic performance necessary for the design of RIMS-FFDL, such as the detection limit, the elemental selectivity, etc, obtained from experiments and their theoretical analyses. The report also describes the successful results on the detection and isotopic ratio analysis of ppb level Xe/Kr in the cover gas sampled from the 'JOYO', which would lead to the conclusion that the RIMS-FFDL is able to satisfy all the requirements for conventional FFDL methods in addition to a novel function of on-line isotopic ratio analysis useful for the tag gas method.

## キーワード

高速炉、破損燃料検出と位置決め、波長可変レーザ、共鳴イオン化、飛行分析、核分裂生成物、タグ ガス、クリプトン、キセノン

Fast Reactor, Failed Fuel Detection and Location, Tunable Laser, Resonant Ionization, Time-of-flight Mass Spectrometer, Fission Product, Tag Gas, Krypton, Xenon



井口 哲夫



渡辺 賢



利幸 荻田



原野 英椿



伊藤 和窅

79

## 1. はじめに

レーザをプローブとする分光分析法は、近年の 光技術の進展に伴って、検出感度、スペクトル分 解能とも飛躍的に向上し、原子・分子検出の最も 有力な手段の一つとなっている。特に、波長可変 レーザを駆使した共鳴励起によるイオン化分光法 (Resonance Ionization Spectroscopy: RIS)は、検 出感度と元素選択性において、光検出器の雑音限 界や単一原子検出などの極限レベルに達しつつあ り、他の元素分析法に比べても、迅速性、汎用性、 遠隔操作性等の観点から、放射性同位元素分析に 対して、多くの有利かつ魅力的な点を持っている<sup>1)</sup>。 一方, これまでの核分裂生成(FP) ガス等のモニタ リングによる破損燃料検出及び位置決め法 (Failed Fuel Detection and Location : FFDL)では, 放射性核種の分析に対しては優れた検出感度を有 していたが、安定核種を含めた同位体分析では、 十分な検出感度がないため、大掛かりな設備を伴 った濃縮操作等が必要であった。本研究は、極低 レベル核変換物質を直接高感度 / 高選択的に検出 することを可能とするRISと質量分析計から成る レーザ共鳴イオン化質量分析法(Resonance Ionization Mass Spectrometry: RIMS)の特長を活 かし、FFDL法の技術革新(RIMS-FFDL法)を目指 すものである。Xe, Krなどの希ガス試料の分析は、 RIMSの得意とするところであり、これまでにも 環境ドシメトリーや年代測定等への適用例が報告 されてきた<sup>2),3)</sup>が、必ずしもFFDLのような工学的 な計測システムの成立性まで言及されていない。

そこで、本研究では、東京大学大学院工学系研 究科附属原子力工学研究施設に設置された高速中 性子科学研究設備(共同利用設備)のRIMSシス テムを用い、Xe及びKrの検出限界やS/N比などの 基本性能を明らかにする基礎実験と理論的評価と ともに、高速実験炉「常陽」のカバーガス分析を 対象とする実証試験を行った。本稿では、RIMS-FFDL法の基本概念と実用化に向けたシステム設 計に有用な一連の研究成果を報告する。

#### 2. **測定原理**

## 2.1 測定原理と特長

RISの原理は、単一又は複数の波長可変レーザ を用いて、対象の原子・分子を、それらのエネル ギー準位に相当する波長の光子ビームを生成・照 射して共鳴的に選択励起することから始まる。こ れら励起準位の原子・分子は、緩和過程によって 基底準位に遷移するが、このとき放出される蛍光 強度を測定するのが蛍光分光法であるのに対し、 RISでは、さらにレーザビーム又はパルス電場を 印加して電離させ、発生した電子又はイオンを検 出・定量するものである。このように、対象原 子・分子の固有のエネルギー準位に応じて、段階 的に励起・イオン化することにより、本質的に高 感度・高選択(又は、高S/N比)性が生まれ、原子 蒸気化できる任意の物質に適用可という汎用性、 レーザパルス幅で決まる高速分析性のほか、質量 分析器と組み合わせること(RIMS)で、従来の熱イ オン化質量分析で問題となる同重体の干渉を回避 した同位体分析が行えるなどの特長を有している <sup>4).5)</sup>。以上の測定原理と特長から、RIMSは、カバ ーガス中に混入したKrやXeの微量FPガス検出及 び質量分析に向いていることが分かる。

高速実験炉「常陽」や原型炉「もんじゅ」で は、遅発中性子法、プレシピテータ法などのFP放 射能測定に基づく破損燃料検出システムやFFDL が完備されている<sup>6)</sup>が、RIMS-FFDL法は測定原理 が全く異なることと、既存のFFDLの各方式にお いて一長一短のある検出感度、S/N比、時間応答 性を兼ね備えている点で、FFDLシステム全体の 高度化につながる。特に、「もんじゅ」で採用さ れているFFDL用のタギング法<sup>1</sup>と位置決めの観 点から組み合わせると、極めて迅速にその場FPガ ス質量分析を可能とする画期的なFFDLシステム の構築が期待できる。識別ガスは燃焼に伴い生成 したFPガス(Xe,Kr)で希釈され、更にアルゴンカ バーガスで薄まることから、ppbオーダ以下の同 位体比の分析が必要となる。

## 2.2 基礎理論の概要

RISの基礎理論式は、原子が光子を吸収・誘導 放出するという現象について、単独の原子が振動 する電磁場中に置かれた場合を量子力学的に扱う ことで、近似的に導かれる<sup>7)</sup>。ここでは、本研究で 用いている2光子共鳴遷移かつ2準位イオン化ス キームについて、図1にモデル図を、以下に、イオ ン化率に関する生成と消滅のバランス式を示す。

$$d\rho_g / dt = -\sigma_{2a} N^2 \rho_g + \sigma_{2a} N^2 \rho_e + T \rho_e \dots (1)$$
  
$$d\rho_e / dt = \sigma_{2a} N^2 \rho_g - \sigma_{2a} N^2 \rho_e$$

$$-T\rho_e - \sigma_i N\rho_e \qquad \dots \dots (2)$$

$$d\rho_i/dt = \sigma_i N \rho_e$$
 .....(3)

<sup>1</sup> タンギング法:燃料集合体ごとに組成比の異なるKr,Xe安定同位体の識別(タグ)ガスを燃料ピン中にあらかじめ封入しておき, 燃料破損時にカパーガス中に移行した識別ガスを濃縮後,質量分析することにより,破損燃料の位置同定を行う方法。



図1 2光子共鳴吸収励起+光子イオン化スキームのモデル

- ここで、2:2光子遷移断面積
  - ::イオン化断面積
  - : 自然放出の割合
    - (**励起準位**eの寿命の逆数)
  - <sub>g</sub>, 。:基底準位及び励起準位にある原子の 存在確率
    - N : 光子数密度

である。2光子遷移断面積 2aは入射光子の周波数に依存し、この周波数依存を表すため、共鳴波長に相当する周波数を中心としたローレンツ分布が用いられ、主要な元素についてデータベース化されている<sup>8)~11</sup>。

式(1),(2),(3)を,t=0で,g=1,g=1; という初期条件,つまりレーザ照射前はすべて基 底準位にあるという仮定をして,t=(:レ ーザのパルス幅)のときの。を求めることで、レ ーザパルス照射後のイオン化率を求めることがで きる。

3. 基礎実験と解析<sup>12)</sup>

3.1 実験システム

本研究では、東京大学工学系研究科附属原子力 工学研究施設に併設された高速中性子科学研究設 備の中のRIMSシステムを用いて実験系を構成し た。この実験系は、図2に示されるように、波長 可変レーザ、飛行時間型(TOF)質量分析器、計 測系、気体試料導入系に大きく分けられる。

波長可変レーザは、励起用のNd:YAGレーザ と波長可変の色素レーザから成り、パルス幅10 ns,繰返し周波数10Hzで、所望の発振波長領域の レーザ光を選択できる。ただし、本研究では、非 線形光学結晶を用いて第2高調波を発生させる必



図2 RIMS実験システム(東京大学大学院工学系研究科 附属原子力工学研究施設高速中性科学研究設備)

要があるため、レーザ出力は、1パルス当たり、 数mJが限界となっている。また、本実験時の発振 波長領域におけるレーザ線幅は、~0.1 cm<sup>-1</sup>オーダ ーであり、KrやXeのエネルギー準位の同位体シフ ト効果に比べて十分広い。

TOF質量分析器は、共鳴イオン化で生じたイオ ンの引抜き電極部、イオンに運動エネルギーを与 える加速電極部、無電場のイオンの自由飛行空間 部、及びイオン検出器(MCP)から成る。本実験 システムでは、反射型TOF質量分析器が使われて おり、イオン化領域の空間的拡がりやイオンの初 期エネルギー分布に起因する飛行時間収差を補正 することにより、質量分解能<sup>2</sup>~1,500程度が得ら れる。また、実験時にイオン化チェンバー内は、 最大10<sup>5</sup> torr (10<sup>3</sup>Pa)程度の真空度となるのに対 し、飛行管内は、差動排気により、10<sup>7</sup> torr(10<sup>5</sup>Pa) 以下の真空度に保たれる。

質量スペクトルは、DSO(Digital Signal Oscilloscope)を用いて、YAGレーザのQスイッチ 信号をスタート信号とし、高速イオン検出器であ るMCPの信号をストップ信号とするイオンの到 達時間分布を適宜重量していくことで得られる。 また、レーザ出力は、パワーメータを用いて、実 験中に適時モニタされる。

気体試料導入系は、図3に示されるように、微 量流量調整パルプ、ストップパルプ、フロー用ス トップパルプから成り、「常陽」のカパーガスサ

<sup>2</sup> 質量分解能:異なる質量/電荷比(m/z値)のイオンピークを分 離する装置の性能をマススペクトロメトリーにおける質量分解 能という。具体的には、1 価イオンのピークの半値幅を質量数で 割った値などで定義される。

ンプリング容器を直接装着することができる。ま た,微量流量調整バルブを用いることで,気体試 料導入時にイオン化チェンバー内の圧力を一定値 [10<sup>6</sup>~10<sup>5</sup> torr(10<sup>4</sup>~10<sup>3</sup>Pa)]に保つことができ る。このほか,気体試料交換時には,フロー用ス トップバルブを用いることにより残留気体を最小 限にし,Arガスによる洗浄フローが効率的にでき るように工夫されている。

## 3.2 実験概要

基礎実験に用いた分析試料は、天然組成100%の 高純度Xe及びKrガスと、それらをArで希釈した 混合ガス(高速炉のカバーガスを模擬)である。 これらの気体試料について、入射レーザ波長、入 射レーザ出力、イオン化チェンバー内の圧力(気 体の濃度)を変化させた時のイオン収率を測定し た。

ここで、Xe及びKr原子の基底準位から中間準位 へのエネルギー差は、波長換算で近紫外域であ る。よって、測定の簡便性を図るため、共鳴イオ ン化スキームは、共鳴エネルギーの1/2に相当す る可視域の1波長光子による2光子共鳴吸収と1 光子イオン化を採用した。Xeの場合、基底準位か ら中間準位5p<sup>5</sup>6p[5/2]<sup>2</sup>へのエネルギー差が128.01 nm の波長に相当するため、レーザ波長を256.02 nm にチューニングした。本実験システムのレー ザでは、この波長域の出力として、1パルス当た リ~0.75 mJが限界であった。ただし、レーザ光 は、集光レンズを用いて、真空チェンバー内のイ オン化領域で、直径~2.7µmまで絞られる。一 方、Krに対しては、基底準位からのエネルギー差 108.30 nmの中間準位5p[5/2]<sup>2</sup>を経る必要がある ため、波長216.60nmのレーザ光を用いたが、本実 験システムのレーザでは発振効率が更に低く、最 大レーザ出力はXeの場合の1/10程度となる。

したがって、本実験では、現在のところ、主としてXe検出を対象に、RIMS-FFDLの基本性能評価を行い、Krについては測定原理実証と予備的な検出能評価実験に留めた。

## 3.3 結果と考察

まず、典型的な測定結果の一例として、図4に、 3 種類のXe濃度混合ガスの飛行時間質量スペクト ルを示すが、天然同位体存在比0.096%の<sup>124</sup>Xe及び 0.09%の<sup>126</sup>Xeを含むXe同位体比が、濃度に比例し て明確に分析できていることが分かる。図5に入 射レーザ波長に対するピーク面積を示す。レーザ 波長255.94 nmの時に共鳴(選択)的検出(ピー



ク半値幅~0.008 nm)が起こることが確認された。 また、Xe同位体組成比が実験誤差の範囲内で文献 値と一致することも確認された。

次に、図6(a)にXe検出感度(イオン収量)の レーザ出力依存性を示すが、2.2節で示した2光子 共鳴励起・イオン化の理論モデルに基づくレート 方程式の解析解にフィッティングしたところ、実 験結果をよく再現できた。その結果を外挿[図6 (b)]すると、レーザ出力密度が2.0×10<sup>12</sup>W/cm<sup>2</sup> (~5mJ/パルス相当)付近でイオン化がほぼ飽 和することが予想される。すなわち、現在の共鳴 イオン化率が~60%程度と推定されるので、現シ ステムのレーザ出力の増強により、約1.7倍まで感



図4 Xe濃度の異なるAr-Xe混合ガスの飛行時間質量 スペクトル



図5 入射レーザ波長に対するピーク面積



図 6 Xe共鳴イオン化率のレーザ出力依存性の理論 モデルフィッティング

度の向上が期待できる。

一方,本実験システムにおける検出限界を実験 的に評価するため、より広範囲でXe同位体の濃度 割合(ppm)と1レーザパルス当たりにMCPで 検出された推定イオン個数を対数プロットした結



図7 Xe同位体濃度とイオン収量の関係

果を図7に示す。両者の間には良好な直線性が見 られるため、最小二乗法で直線フィッティングす ると、その関係式は、log(Y)=(0.964±0.010) log(X)+(0.731±0.016)となった(X:Xe原子数 濃度、Y:MCPで検出されたイオン個数)。イオ ン検出数とXe原子数濃度は、傾きほぼ1の比例関 係にあるといえる。そこで、検出限界をMCPにイ オンが1個検出された時と仮定し、この直線を外 挿、かつ検出限界を安全側に、つまり検出限界が 大きくなるように評価した結果、1レーザパルス 当たり~0.18 ppmとなった。

Krについても、ほぼ同様の手順により基礎実験 を行った結果、イオン収量の入射レーザ波長依存 性、すなわち216.60 nmの時の共鳴的検出(ピー ク半値幅~0.002 nm)、観測されたKr同位体組成 比の文献値との一致(同位体シフト効果は無視 可)、Krイオン検出数と原子数密度との比例性な どが確認された。

イオン収量のレーザ出力依存性は、Xe実験に比 べて測定範囲は狭いながら、同様の理論モデル計 算でよくフィッティングでき、その結果を外挿す ると、レーザ出力密度が~3.0×10<sup>11</sup>W/cm<sup>2</sup>(~2 mJ/パルス相当)付近でイオン化が飽和すると推 定された。したがって、現在の共鳴イオン化率が ~1%程度であるので、レーザ出力の増強により、 理論的には約100倍までの著しい感度向上が見込 まれる。

また、本実験システムのKrに対する検出限界は、 Xeの場合と同様に、イオン検出数と原子数濃度を 直線フィッティングし、その直線を外挿して、MCP にイオンが1個検出された時の濃度を求めると、1 レーザパルス当たり~6.66 ppmと見積もられた。

#### 4.1 実験概要

84

RIMS-FFDLのための実証実験として、高速実験 炉「常陽」から実際に採取されたカバーガス中に 含まれる微量Xe/Krガスの分析を試みた。今回の 分析試料は、温度制御型材料照射装置を用いた内 **圧クリープ破断強度試験において<sup>13)</sup> 照射試料の** クリープ破断時にあらかじめ封入した識別ガスが 照射量0.77~3.3×10<sup>21</sup>n/cm<sup>2</sup>で炉容器カバーガス 中に放出されたもので、照射材料のクリープ破断 検出時に合わせて、カバーガスのサンプリングが **なされた。識別ガスは**、0.77NccのXeと3.1Nccの Krで、その同位体比が微妙に調整されている。採 取されたカバーガスは、所定のボンベに大気圧で 封入され、上記基礎実験システムに直結後、微量 流量調整バルブを用いて、約3.0×10<sup>5</sup>torr (4.0× 10<sup>3</sup>Pa)の真空度を保ちながら、分析用チェンバ ー内に導入された。波長可変レーザは、Xe及びKr の共鳴波長にそれぞれ同調され、本実験システム で可能な最大出力のレーザが打ち込まれた。カバ ーガス中のXe/Kr濃度は~10<sup>2</sup>ppmと見積もられ るので、本実験システムでは、基礎実験による検 出限界評価結果から、1個のXeイオン検出に対 し、約20レーザパルス(パルス繰返し率が10Hzに より約2秒)で、また1個のKrイオン検出に対し ては、約700レーザパルス(約70秒)で可能と予 想された。

## 4.2 結果と考察

典型的な実験結果の一例として、図8に、参照 用の天然組成Xeと今回「常陽」で採取されたカ バーガス中のXeの質量スペクトルを重ねて示す。 スペクトルパターンの比較から分かるように、天 然組成Xeでは、<sup>128</sup>Xe(1.9%)より<sup>130</sup>Xe(4.1%)の 方の同位体比が大きいが、「常陽」採取Xeでは、 両者の関係が逆転している。これは、事前に提供 されたXe識別ガスの同位体比分析結果の傾向と 一致しており、本実験システムによって、実際の カバーガス中のXe検出に成功したことを示して いる。また、これらの測定結果は、10,000レーザ パルス(1,000秒)分の平均値であり、「常陽」採 取Xeに対しても十分な計数統計精度で質量スペ クトルが得られていることから、基礎実験で評価 された検出限界の妥当性も確認できたと考えられ る。なお、「常陽」採取Xeの<sup>124</sup>Xe, <sup>126</sup>Xeは、天然 組成Xeのそれより大きなピークが確認できる。こ れは、Xe識別ガスの両核種の同位体存在比が天然 組成よりも濃縮されていることと一致している。





図 8 天然組成Xeと「常陽」カバーガス採取Xeの質 量スペクトルの比較

図9には、天然組成Krと「常陽」採取Krに対し て測定された質量スペクトルの比較を示すが、Xe の場合と同様に、<sup>82</sup>Krと<sup>83</sup>Krの同位体比に事前に 予想された違いが見られ、実機カバーガス中のKr 検出を実証できたといえる。ただし、本実験シス テムでは、Kr検出において、レーザ出力が不足し ているため、10,000レーザパルスの積算では、 <sup>78</sup>Kr(0.354 %)や<sup>80</sup>Kr(2.27 %)の少数同位体について 十分な計数統計の得られていないことが分かる。

次に、「常陽」採取Xeについて、測定された質 量スペクトルから、各同位体に対応するピーク面 積を求め、ピーク面積はMCPに入射したイオン個 数に比例するので、このピーク面積比をもって、 同位体比を算出した。具体例として、2種類の試 料ガス(試料 No.5とNo.7)の分析結果を、事前 に予想した同位体組成比(識別ガス調整時の分析 値)と併せて表1に示す。また、図10(a)、(b)に、



図9 天然組成Krと「常陽」カバーガス採取Krの質 量スペクトルの比較

研究報告

これらの同位体比の分析結果の整合性を明示する ため、予測値との比を同位体ごとにプロットし た。分析結果は、実験誤差の範囲内で、予想同位 体組成比とよい一致を示しており、実機カバーガ ス中の微量FPガス分析においても、本RIMSの適

# 5. 実験システムの改良

用可能性が実証された。

# 5.1 検出限界向上の方策

RIMSは、レーザ照射域に対象とする原子が1 個でも存在すれば、原理的に検出可能である。実際、本実験システムにおける有感体積として、共 鳴イオン化により質量分析器ヘイオン引抜きが可 能な領域と考えると、レーザビーム径とイオンの 引出し孔に囲まれる空間の体積から、~1.3×10<sup>5</sup> cm<sup>3</sup>と見積もられる。したがって、分析チェンバ ー内の圧力が、本実験時のように~10<sup>5</sup>tori(10<sup>3</sup>Pa) オーダーの場合、Xeの検出限界0.18 ppmというの は、ほぼ~1個/有感体積に相当するので、理論的 な限界に近いことが分かる。

そこで、RIMS FFDLにおいて、カバーガス中の微量Xe/Kr原子のオンライン同位体比分析を実用的に、すなわち、より短時間で高精度に行うためには、検出限界濃度の更なる向上が望まれる。このためには、レーザ性能の向上(レーザ出力、

表1「常陽カバーガス採取Xeの同位体比分析結果 (試料No.5とNo.7)」

		C.0M			
同位体	予想組成比	組成比	相談誤差[%]		
124	0.968	0.919	18. 15		
126	0.969	0.954	20.14		
128	4. 188	3. 993	8.05		
129	28.454	27.802	2.95		
130	3.853	3.807	7. 86		
131	19.525	19. 736	3. 43		
132	24. 576	25. 323	3. 09		
134	9. 501	9. 390	4. 80		
136	7.964	8.076	5. 20		
	No. 7				
		No. 7			
同位体	予想組成比	No.7 組成比	相談誤差[%]		
同位体	予想組成比 1.036	No.7 組成比 1.113	相談誤差[%] 9.97		
同位体 124 126	予想組成比 1.036 1.435	No.7 組成比 1.113 1.385	相談誤差[%] 9. 97 9. 09		
同位体 124 126 128	予想組成比 1.036 1.435 4.960	No.7 組成比 1.113 1.385 4.941	相談誤差[%] 9.97 9.09 4.54		
同位体 124 126 128 129	予想組成比 1.036 1.435 4.960 27.046	No.7 組成比 1.113 1.385 4.941 26.690	相談誤差[%] 9.97 9.09 4.54 2.09		
同位体 124 126 128 129 130	予想組成比 1.036 1.435 4.960 27.046 3.762	No.7 組成比 1.113 1.385 4.941 26.690 3.919	相談誤差[%] 9.97 9.09 4.54 2.09 5.22		
同位体 124 126 128 129 130 131	予想組成比 1.036 1.435 4.960 27.046 3.762 19.484	No. 7 組成比 1.113 1.385 4.941 26.690 3.919 19.748	相談誤差[%] 9.97 9.09 4.54 2.09 5.22 2.36		
同位体 124 126 128 129 130 131 132	予想組成比 1.036 1.435 4.960 27.046 3.762 19.484 24.639	No. 7 組成比 1.113 1.385 4.941 26.690 3.919 19.748 24.376	相談誤差[%] 9.97 9.09 4.54 2.09 5.22 2.36 2.18		
同位体 124 126 128 129 130 131 132 134	予想組成比   1.036   1.435   4.960   27.046   3.762   19.484   24.639   9.558	No. 7 組成比 1.113 1.385 4.941 26.690 3.919 19.748 24.376 9.599	相談誤差[%] 9.97 9.09 4.54 2.09 5.22 2.36 2.18 3.20		



図10 同位体比分析結果とその予想値の比

レーザパルスの繰返し率,出力安定性等の改善) とともに,真空度を保ったまま,共鳴イオン化の 微小な有感領域内にXe/Kr原子を濃縮する工夫が 必要となる。具体的には,希ガスコールドトラッ プターゲットによる吸着とレーザアブレーション の併用方式,及びパルス超音速分子線パルプ <sup>2),14),15)</sup>を用いた局所的高圧ガス注入方式が考えら れる。本研究では,前者の方式が,現在の実験シ ステムにおいて,イオン引抜き電極部へのコール ドトラップターゲット導入という大幅な改造を必 要とするため,実験システムの変更が少なく,よ り実現の容易な後者の方式の適用性を実験的に検 討した。

# 5.2 パルス超音速分子線パルプの適用性評価 実験

パルス超音速分子線パルブ(PSV)は、定常的 に気体試料をパルプ本体内に流しながら、トリガ により電磁パルプをパルス作動させ、超音速分子 線パルスを発生させる構造になっている。図11 に、本バルブの概観写真と動作原理の模式図を示 す。断面が「コ」の字状の金属板の一方の面にノ ズルが設けられ、金属板の間にOリングを挟むこ とで、通常は、ノズルと開放端から供給される気 体を遮断する。この金属板にパルス電流(~ 5,000A, 20 µ s) を流すと、電磁気的な反発力がパ ルス的に誘起され、金属板が変形して、Oリング との隙間を通った気体がノズルから超音速自由噴 流として噴出される。パルス幅は、~60 µ sec程 度で、ノズルの前方に逆ホーン型のスキマーを設 置することで、超音速自由噴流のうち、ノズルか らまっすぐに出てきた気体成分のみを取り出し て、分子線パルスの形で共鳴イオン化領域へ導く ことができる。ただし、本実験では、共鳴イオン 化領域(イオン引抜き電極部)近傍の試料気体濃 度を局所的に高めることが主目的であるので、ス







図11 パルス超音速分子線バルブの概観写真と動作原理

キマーは設置しなかった。

図12のような構成に変更された実験システム において、3種類のXe混合比(1.0%, 0.1%, 0.01%) のAr/Xe混合ガスを大気圧でPSVに供給し、レー ザ光と同期をとって、分析チェンバー内へパルス 的に打ち込んだ。PSV使用時のXeイオン収量に ついて、まず、レーザ同期における遅延時間の影 響を調べ、適切な遅延時間を設定した後、レーザ 波長や出力の依存性、また、Xe濃度との相関性を 実験的に評価した。

# 5.3 結果と考察

まず、図13に、本実験で得られたPSV開放トリ ガとレーザパルス同期の遅延時間に対するXeイ オン収量の典型的な依存性を示す。図には、予備 的ながら、流体力学に基づく数値計算により、分 析チェンバー内にPSVで導入された気体の挙動、 すなわち、レーザ照射域における気体密度の時間 変化のシミュレーション結果も併せて示してあ る。イオン収量の実験結果は、遅延時間~200 µs でパルス的に立ち上がり、その後ダブルピークを 形成しているが、気体密度のシミュレーション結 果も、この傾向を比較的良く再現している。本来、 気体密度の時間変化は、矩形パルス状になること が望ましいが、本実験システムでは、気体の進行 方向を揃えるスキマーを使用していない上、PSV ノズルとレーザ照射域の距離が離れている(約10



# 図12 パルス超音速分子線バルブを用いた気体試料 導入実験システム

87

cmの距離)ため、分析チェンバーに放出された 超音速自由噴流内で、気体原子間の速度の差が顕 著に現れるようである。実際、流体力学に基づく 気体挙動の数値シミュレーションにおいて、PSV ノズルとレーザ照射域が~1 cm程度の距離であ ると矩形パルス形状が保たれ、両者の距離が離れ るにつれ、ダブルピークの形成とともに、後方の ピーク幅が広がっていく傾向が得られた。また、 図13の実験結果は、ダブルピーク後方に緩やかに 尾を引いているが、真空排気系の能力が十分でな いこととPSVノズルが瞬時に閉まっていない可能 性が考えられる。

次に、試料気体中のXe同位体濃度と検出された イオン収量の相関関係について、PSVの使用 / 不 使用の場合を比較した結果を図14に示す。ここ で、PSVのレーザ同期遅延時間は、Xeイオン収量 が最大となる~400 µ sに設定している。PSVを使 用した場合も、Xe同位体濃度とイオン収量の間に は、ほぼ傾き~1の良好な比例関係があり、PSV を使用しない場合に比べて、検出効率(又は、検 出限界濃度)が~6倍ほど向上していることが分 かる。また、流体力学に基づく気体挙動の数値シ ミュレーションから、パルスピーク時の気体密度 が、PSVノズルとレーザ照射域の距離に対し、ほ ぼ逆二乗則に従うことが示されているので、両者 をできるだけ近づけた配置で、分析チェンバーの 設計改良を行うことにより、更なる検出限界の向 上が期待できる。

このほか、PSVの効用として、レーザ波長依存 性における共鳴ビークの先鋭化や質量スペクトル の分解能の向上も観測された。これらは、PSVを 用いることで、試料気体原子の速度分布の分散が 通常よりも抑制され、共鳴波長におけるドップラ ー拡がりの効果や共鳴イオンの初期エネルギー分



図13 パルス超音速分子線バルブのレーザ同期遅延 時間に対するXeイオン収量の依存性(レーザ 照射域における試料気体密度の時間変化)





図14 PSV使用 / 未使用時におけるXe同位体濃度とイ オン収量の関係

布に起因する飛行時間差変動が緩和されたためと 思われる。

# 6. おわりに

本研究では、微量元素(及び同位体)分析にお いて、超高感度性とともに、高選択性、迅速性、同 重体干渉回避等の特長を有するRIMS技術をベース に、従来のXe、KrなどのFPガスモニタリングによ るFFDL法との組合せによる高度化とともに、技術 革新の可能性を検討するための基礎研究を行った。

本研究で得られた主な成果は、次の3点である。 FPガスであるXe及びKr検出に関して、レー ザ波長・出力依存性や検出限界などのRIMS-FFDL法の設計に必要な基本性能を、実験と 理論の両面から明らかにした。

高速実験炉「常陽」のカバーガス中に人工的 に放出された微量Xe/Kr識別ガスの直接検出 と同位体比分析に成功し、RIMS-FFDL法の実 機への適用可能性を実証した。

RIMS-FFDL法の検出限界向上策として、パル ス超音速分子線バルプを用いた局所的高圧ガ ス注入法の有効性を実証し、更なる高性能化 を図るための設計指針を与えた。

以上の成果を総括して、本研究で提案する RIMS-FFDL法は、感度、S/N比、迅速検出性の基 本的な要求性能を同時に満たし、タギング法と組 み合わせると、オンラインで簡便にFPガス同位体 比分析が行える画期的なFFDLシステムの構築が 可能と結論できる。

現在, RIMS-FFDL法の実用化を目指して, レー ザ強度の増強や超音速分子線バルブの導入を図っ た高速炉用FFDLシステムを設計しており,「常陽」 でシステムの構築及び性能の実証を進めている。

#### 参考文献

- )井口哲夫: "「放射線センシングの発展と将来展望」V.放射線センシングと先端技術の融合,3.レーザによる放射能検出",原子力誌,Vol.38,No.9,P.727~729(1996).
- 2 ) C. H. Chen, M. G. Marvin, et al. : "Isotopically Selective Counting of Atoms and Molecules Using Resonance Ionization Spectroscopy", Oxford University Press (1990).
- 3 ) G. S. Hurst, M. G. Payne, et al.: "Method for Counting Noble Gas Atoms with Isotopic Selectivity", Rep. Prog. Phys., 48, p.1333 ~ 1370 (1985).
- 4 ) G.S.Hurst, M.G.Payne : "Principles and Applications of Resonance Ionization Spectroscopy ", Adam Hilger (1988).
- 5 ) Chen, C.H., et al. : "Lasers and Mass Spectrometry", Lumban, D.M. ed., Oxford Univ. Press, 3 (1990).
- 6)青山卓史: "原子炉施設の放射線計測-高速実験炉での応用-" ,放射線、Vol.23, No.3, p.17~41 (1997).
- 7 ) M. G. Payne, C. H. Chen, et al. : " Applications of Resonance Ionization Spectroscopy in Atomic and Molecular Physics ", Adv.At. Mol. Phys., 17, P.229 ~ 274 (1981).
- 8 ) E. B. Saloman : " A Resonance Ionization Spectroscopy/Resonance Ionization Mass Spectroscopy Data Service. I-Data sheets for As, B, Cd, C, Ge, Au, Fe, Pb, Si and Zn ", Spectrochim. Acta B, 45, P.37 ~ 83 (1990).

- 9 ) E. B. Saloman : " A Resonance Ionization Spectroscopy/Resonance Ionization Mass Spectroscopy Data Service. II-Data sheets for Al, Ca, Cs, Cr, Co, Cu, Kr, Mg, Hg and Ni ", Spectrochim. Acta B, 46, P.319 ~ 378 (1991).
- 10) E. B. Saloman : " A Resonance Ionization Spectroscopy/Resonance Ionization Mass Spectroscopy Data Service. III-Data sheets for Sb, Bi, P, Na and Sn ", Spectrochim. Acta B, 47, P.517 ~ 543 (1992).
- 11) E. B. Saloman : " A Resonance Ionization Spectroscopy/Resonance Ionization Mass Spectroscopy Data Service. IV-Data sheets for Be, In, Li, K, Rb, Ag, Ti and V and an update of the data sheet for Ni ", Spectrochim. Acta B, 48, p.1139 ~ 1203 (1993).
- 12) 荻田利幸, 渡辺賢一 他 : " 共鳴イオン化質量分析法を用いた破 損燃料検出システムの開発",放射線、 Vol.25, No.2, P.89~93 (1999).
- 13) 揃 政敏, 片岡 一 他 : "高速実験炉「常陽」におけるオンライン計装照射技術",原子力誌, Vol.40 No.2, p.124~134 (1998).
- 14) R. E. Smalley, B. L. Ramakrishna, et al. : "Laser Spectroscopy of Supersonic Molecular Beams: Application to the NO2 Spectrum", J. Chem. Phys., 61, p.4363 ~ 4364 (1974).
- 15) W. R. Gentry, C. F. Giese : "Ten-Microsecond Pulsed Molecular Beam Source and A Fast Ionization Detector", Rev. Sci. Instrum., 49, p.595 ~ 600 (1978).