2024年秋の大会

放射線工学部会セッション

レーザーを活用した分析計測・制御システムの研究と原子力工学への展開
Researches on analysis and control systems using lasers
and their applications to nuclear engineering

レーザー共鳴イオン化質量顕微鏡の開発

Development of a Laser Resonance Ionization Micro-Imaging Apparatus

*坂本　哲夫 [1]
[1] 工学院大学

福島第一原発の廃炉において、建屋内のダストや燃料デブリの性状把握は喫緊の課題である。元素や同位体の分析には ICP-MS などのバルク分析が用いられることが多いが、マイクロメートルレベルの微小粒子や微小部位には適用できない。我々は PM2.5 を１粒子ずつ分析できる高い面分解能の飛行時間型二次イオン質量分析(TOF-SIMS)装置を開発した[1]。面分解能 40 nm は TOF-SIMS として世界記録であり、また、狙った粒子を断面加工し、内部分析もできることが特長である。

一方、廃炉工程に関連するダスト・デブリの分析は簡単ではない。一つの大きな問題は質量ピークが重なり、識別ができなくなる「同重体干渉」である。とくにダストやデブリは放射性同位元素や核分裂生成物が多種混在しており、同重体干渉の問題は避けては通れない。

そこで、我々は、TOF-SIMS 分析においてイオンビーム照射した際に同時に表面から放出されるスパッタ中性原子に着目し、特定の元素に固有の励起エネルギーに相当するレーザー光を照射し、イオン化させるレーザー共鳴イオン化法を TOF-SIMS 装置に組み込んだ。これをレーザー共鳴イオン化質量顕微鏡と呼んでいる。同重体干渉の例として、^{137}Cs と ^{137}Ba があり、それぞれ、質量は 136.9070895、136.9058274 であり、高い質量分解能の質量分析計を用いても分離が難しい。しかしながら、Cs と Ba はそれぞれ固有の内部励起準位を持っているため、Cs の励起準位に正確に波長を合わせたレーザーにより共鳴イオン化させれば Cs のみが検出されるため、同重体干渉が回避できる。実際に、原発敷地外で採取した放射性 Cs を含有する微粒子において、^{133}Cs, ^{134}Cs, ^{135}Cs, ^{137}Cs それぞれを検出・イメージングすることに成功した[2]。同重体干渉がないため、それぞれの質量ピーク強度が同位体比を表しており、同位体比パターンはシミュレーション結果と一致した。

本手法には波長可変のレーザーが必要であるが、従来であれば色素レーザーが用いられるが、繰り返し率が低く、イメージング分析のためには 10 kHz が必要であり、また、劣化のない全固体レーザーが望ましい。そこで、名古屋大学と共同で波長可変 Ti:Sapphire レーザーを 2 台備えた共鳴イオン化イメージング用レーザーシステムを開発した。その技術があればこそ、前述の Cs イメージングができたと言える。

本装置は現在、建屋内ダストの元素・同位体イメージングに活用されているが、分析のスループット向上のためには、レーザーシステムの遠隔操作、自動調整機構が必要である。また、元素ごとに最適なイオン化スキーム（基底状態からイオン化に至るまで、2 台のレーザーの波長をどのように選定するのか）をデータベース化する必要もあり、現在もその開発を進めている。これらの詳細について当日報告する。

参考文献

[1] T. Sakamoto et al., Appl. Surf. Sci., 255(4), 1617-1620, (2008).
[2] T. Sakamoto et al., Anal. Sci., 34(11), 1265-1270, (2018).

謝辞 本研究は、JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 JPJA21P21465814 の助成を受けたものです。

*Tetsuo Sakamoto[1]
[1]Kogakuin Univ.