DOI:10.11484/jaea-review-2019-027

# レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低い ストロンチウム 90 の迅速分析技術開発 (委託研究)

-平成30年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

Development of Technology for Rapid Analysis of Strontium-90 with Low Isotopic Abundance using Laser Resonance Ionization (Contract Research)

-FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development-

廃炉国際共同研究センター 東京大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science The University of Tokyo

福島研究開発部門福島研究開発拠点

Fukushima Research Institute Sector of Fukushima Research and Development

January 2020

**Japan Atomic Energy Agency** 

日本原子力研究開発機構



本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ(<a href="https://www.jaea.go.jp">https://www.jaea.go.jp</a>) より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課  $\overline{\phantom{a}}$   $\overline{\phantom{a$ 

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to Institutional Repository Section,

Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2019

レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低い ストロンチウム 90 の迅速分析技術開発(委託研究) - 平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 -

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点

廃炉国際共同研究センター

東京大学

(2019年11月13日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA)廃炉国際共同研究センター(CLADS)では、平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業(以下、「本事業」という)を実施している。本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所(1F)の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、平成30年度「レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム90の迅速分析技術開発」について取りまとめたものである。

本研究は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の事故で環境中に放出された主要な難測定核種の一つであるストロンチウム 90 を、半導体レーザーを用いた共鳴イオン化により元素かつ同位体選択的にイオン化する手法に着目し、特に海洋試料等のストロンチウム安定同位体濃度が高い実試料を対象としたストロンチウム 90 の迅速分析技術を開発する。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、東京大学が実施した成果に関するものである。

廃炉国際共同研究センター:〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Development of Technology for Rapid Analysis of Strontium-90 with Low Isotopic Abundance using Laser Resonance Ionization (Contract Research)

- FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource
 Development –

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

The University of Tokyo

Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development

Japan Atomic Energy Agency

Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

(Received November 13, 2019)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development (hereafter referred to "the Project") in FY2018. The Project aims to contribute to solving problems in nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields. The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2018, this report summarizes the research results of the "Development of Technology for Rapid Analysis of Strontium-90 with Low Isotopic Abundance using Laser Resonance Ionization".

In this study, we will develop a rapid analysis technique for strontium-90 using diode laser-based resonance ionization with elemental and isotopic selectivity. Strontium-90 is one of the major difficult-to-measure nuclides released into the environment due to the accident at TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. Our method is particularly intended for real samples which contain high concentrations of strontium stable isotopes such as marine samples.

Keywords: Strontium-90, Laser Resonance Ionization, Elemental Selectivity, Isotopic Selectivity, Isotope Shift, External Cavity Diode Laser, Linewidth, Diffraction Grating, Interference Filter, Real Samples

This work was performed by The University of Tokyo under contract with Japan Atomic Energy Agency.

# 目次

1	英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要1
2	平成 30 年度採択課題
付	録 成果報告書5
	Contents
1.	Outline of Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource
	Development 1
2.	Accepted Proposal in FY2018
Ap	ppendix Result Report5

This is a blank page.

#### 1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成 26 年 6 月文部科学省)」等を踏まえ、平成 27 年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、 機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課 題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(平成 31 年度より新設)に再編した。

#### 2. 平成30年度採択課題

平成30年度は「共通基盤型原子力研究プログラム」、「課題解決型廃炉研究プログラム」、「国際協力型廃炉研究プログラム」において、研究課題の採択を決定した。公募の概要は以下のとおりである。

- 公募期間: 平成30年5月22日(火)~6月22日(金)平成30年5月22日(火)~7月12日(木)※日英共同研究のみ

共通基盤型原子力研究プログラム 49 課題 (若手研究 14 課題、一般研究 35 課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 28 課題

国際協力型廃炉研究プログラム 5課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定し、その後、PD(プログラムディレクター)・PO(プログラムオフィサー)会議での審議を経て、表 2-1 に掲げる 19 の採択課題を決定した。

#### 表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (1/3)

#### 共通基盤型原子力研究プログラム

#### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための 半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマ ップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性 微粒子回収法の高度化	山﨑 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部 被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変 異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (2/3)

課題名	研究代表者	所属機関
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低い ストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

# 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオラ イト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開 発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本保	木更津工業高等 専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同 定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

# 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤 研究	桐島陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環 境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技 術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イ メージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (3/3)

課題名	研究代表者	所属機関
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブ リセンサーの研究開発	萩原 雅之	大学共同利用機 関法人高エネル ギー加速器研究 機構

### 国際協力型廃炉研究プログラム (日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク 低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

# 国際協力型廃炉研究プログラム(日仏共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
採択なし	_	_

本報告書は上記のうち、共通基盤型原子力研究プログラム【若手研究】「レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発」について記したものである。 研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

# 付録

# 成果報告書

This is a blank page.

# 平成30年度

# 日本原子力研究開発機構 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度 の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発 (契約番号 30I106)

# 成果報告書

平成 31 年 3 月 国立大学法人 東京大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人東京大学が実施した平成30年度「レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム90の迅速分析技術開発」の成果を取りまとめたものです。

# 目次

概略	V
1. はじめに	. 1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	. 5
2.2 平成30年度の成果の目標及び業務の実施方法	. 7
3. 平成30年度の実施内容及び成果	
3.1 レーザー共鳴イオン化セットアップの構築	
3.1.1 標準試料の準備	. 8
3.1.2 光学系の開発	11
3.2 化学処理法の確立 (連携先:日本原子力研究開発機構)	43
3.2.1 共存元素の影響評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	43
3.2.2 実試料に適した化学分離手法の検討	43
3.3 研究推進	52
4. 結言 ······	53

# 表一覧

表 2.1 本研	开究の年度別全体計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
表 3. 2. 1 フ	ストロンチウム化合物に用いる試薬 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	45
表 3. 2. 2 淮	毎水又は実試料で想定される共存元素として用いる試薬	45
表 3. 2. 3 多	<b>ミ海水試料の測定に用いた検量線及び内標準試料</b>	45
表 3. 2. 4 写	€海水試料中の元素濃度結果と文献値との比較 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	46
	作製した安定同位体試料 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	46
図一覧		
図1.1 ウラ	ラン・プルトニウム核分裂収率 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3
図 1.2 <sup>90</sup> Sr	原子のレーザー共鳴イオン化例 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3
図 1.3 文献	ぱで報告されている <sup>90</sup> Sr 原子の共鳴イオン化質量分析[5]: (a)測定セットアップ	°.
(b)	質量数 m/z = 90 領域に観測された <sup>90</sup> Sr <sup>+</sup> イオン信号量の時間変化 ·········	4
図 3.1.1 L	レーザー共鳴イオン化質量分析装置の概念図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
	Fタンフォイル(左)と炭素るつぼ(右): <sup>90</sup> Sr 試料を塗布したチタンフォイル	
j	炭素るつぼ内に挿入する ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
	$\exists$ 本アイソトープ協会の $^{90}$ Sr 放射能標準溶液 $SR005$ (左)と溶液全量の保管に使	
j	用した二重容器(右)	20
図 3.1.4 <sup>90</sup>	Sr 標準試料の準備に用いるチタンフォイルの寸法(単位 mm) ·········	20
図 3.1.5 化	作製した 6 枚のチタンフォイル(手前は炭素るつぼ) ・・・・・・・・・・・・・・・・	21
図 3.1.6 方	トットプレート上に耐熱アルミテープで固定された3枚のチタンフォイル …	21
図 3.1.7	フード内作業用に準備した工具等一覧(二重容器及びチャック付ポリ袋は除く)	
		22
図 3.1.8	フード手前側に準備した物品等一覧 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	22
図 3.1.9 オ	トット作業時の服装 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23
図 3.1.10	フード内で <sup>90</sup> Sr 放射能標準溶液が入った二重容器の 250 ml 広口瓶を開封 ···	23
図 3.1.11	マイクロピペットに専用チップを装着 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	24
図 3.1.12	<sup>90</sup> Sr 放射能標準溶液を塗布している時の様子 ······	24
図 3.1.13	チタンフォイル"U"字箇所の折り曲げ ·····	25
図 3.1.14	耐熱アルミテープをはがして、チタンフォイル両端を切断	25
図 3.1.15	チタンフォイル2枚を炭素るつぼ内に挿入	26
図 3.1.16	炭素るつぼを入れた二重容器 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	26
図 3.1.17	Sr 原子のレーザー共鳴イオン化スキームの候補 ······	27
図3118	回折格子型 (Littrow 型) FCDL の構造 ······	27

ii - 10 -

図 3.1.19	単一の周波数モード発振[8]	28
図 3.1.20	回折格子型(Littrow型)ECDLの製作例 ······	28
図 3.1.21	干渉フィルター型 ECDL の構造	29
図 3.1.22	干渉フィルター型 ECDL の製作例 ······	29
図 3.1.23	回折格子(上)及び部分反射ミラー(下)における角度ずれ $lpha$ と並進ずれ $\delta$ の影	3
	響	30
図 3.1.24	オプトクエスト社製干渉フィルターECDL のレーザーヘッドイメージ図 ·····	31
図 3.1.25	配線を完了した波長 689.4 nm 干渉フィルターECDL ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	32
図 3.1.26	サーミスタの仕様・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	32
図 3.1.27	製作した波長 393.8 nm 回折格子型 ECDL の写真 ······	33
図 3.1.28	回折格子を設置する燐青銅板の寸法・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	33
図 3.1.29	LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング	ブ
	調整を行った外部共振器ありの状態である (波長 393.8 nm 用 ECDL、回折効率約	]
	50%)	34
図 3.1.30	図 3.1.29 の横軸 25-35 mA を拡大したもの ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	34
図 3.1.31	フラッシングされていない状態における回折格子の 0 次反射光 (I = 28.5 mA)	
		35
図 3.1.32	フラッシング時における回折格子の 0 次反射光 (I = 28.5 mA) ·······	35
図 3.1.33	波長 393.8 nm 用 ECDL に使用した回折格子 GH13-36U の仕様[10] ········	36
図 3.1.34	共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率約 50%) ・・・・・・	36
図 3.1.35	LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング	ブ
	調整を行った外部共振器ありの状態である (波長 393.8 nm 用 ECDL、回折効率約	]
	10%)	37
図 3.1.36	図 3.1.35 の横軸 25-35 mA を拡大したもの ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	37
図 3.1.37	共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率約 10%) ・・・・・・	38
図 3.1.38	製作した波長 426.3 nm 回折格子型 ECDL の写真 ······	38
図 3.1.39	LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング	ブ
	調整を行った外部共振器ありの状態である (波長 426.3 nm 用 ECDL、回折効率	
	<10%)	39
図 3.1.40	LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング	ブ
	調整を行った外部共振器ありの状態である (波長 426.3 nm 用 ECDL、回折効率	
	>50%)	39
図 3.1.41	共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率>50%)	40
図 3.1.42	製作した波長 487.4 nm 回折格子型 ECDL の写真 ······	40
図 3.1.43	LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング	ブ
	調整を行った外部共振器ありの状態である (波長 487.4 nm 用 ECDL、回折効率	
	最小)	41

- 11 - iii

図 3.1.44	LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシン会	グ
	調整を行った外部共振器ありの状態である (波長 487.4 nm 用 ECDL、回折効率	
	最大)	41
図 3.1.45	共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率最大) ・・・・・・・・	42
図 3.2.1	海水試料の測定に用いた ICP-AES (Optima8300) ·····	47
図 3.2.2	採取され、搬入された直後の海藻(アラメ)試料	47
図 3.2.3	採取され、搬入された直後の魚(ヒラメ)試料	48
図 3.2.4	採取され、搬入された直後の魚(シラス)試料	48
図 3.2.5	魚(シラス)の乾燥試料 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	49
図 3.2.6	魚(シラス)の灰試料 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	49
図 3.2.7	大型乾燥器 ·····	50
図 3.2.8	大型電気炉 ·····	50
図 3.2.9	魚介類の灰化処理温度	51

### 略語一覧

AMS : Accelerator Mass Spectrometry (加速器質量分析)

ECDL : External Cavity Diode Laser (外部共振器半導体レーザー)

ICP-MS : Inductively Coupled Plasma - Mass Spectrometry

(誘導結合プラズマ質量分析)

LD : Laser Diode (レーザーダイオード)

MCP : MicroChannel Plate (マイクロチャネルプレート)

PM : Partially reflective Mirror (部分反射ミラー)
QMS : Quadrupole Mass Spectrometer (四重極質量分析計)
RIS : Resonance Ionization Spectroscopy (共鳴イオン化分光)

iv - 12 -

#### 概略

ストロンチウム 90( $^{90}$ Sr,半減期 28.8年)は、東京電力福島第一原子力発電所の事故で環境中に放出された主要な難測定核種の一つである。一般的な放射線計測法では、娘核種のイットリウム 90( $^{90}$ Y,半減期 64.1 時間)からの  $\beta$  線を測定するが、放射平衡に数週間程度要するため迅速分析は困難である。誘導結合プラズマ質量分析法等の一般的な質量分析法では、分析対象のイオン化が同位体選択的でないため、特に海洋試料等の Sr 安定同位体濃度が高い試料については安定同位体由来のスペクトル干渉が問題となる。Sr 安定同位体濃度として海水中の濃度約 8 ppm を仮定すると、厚生労働省で定められている一般食品の基準値 100 Bq/kg に相当する  $^{90}$ Sr の同位体存在度は  $2\times10^{-9}$  程度となり、同位体存在度の低い  $^{90}$ Sr の迅速かつ高感度な分析技術開発が必要不可欠である。

本研究では、半導体レーザー3 本を用いたレーザー共鳴イオン化により元素かつ同位体選択的に  $^{90}$ Sr をイオン化する手法に着目し、質量分離フィルターを組み合わせることで一般食品の基準値  $^{100}$  Bq/kg 以下の濃度をターゲットとする  $^{90}$ Sr の迅速分析技術を開発することを目的とする。 具体的には、 $^{2018}$ 年度(平成  $^{30}$ 年度)  $^{2020}$ 年度の  $^{3}$ 年間で下記(1)-(4)の  $^{4}$ 項目を実施する。

- (1) レーザー共鳴イオン化セットアップの構築
  - ①標準試料の準備 (2018 年度)
  - ②光学系の開発(2018年度~2019年度)
  - ③同位体選択性の評価 (2019 年度~2020 年度)
- (2) 化学処理法の確立(連携先:日本原子力研究開発機構)
  - ①共存元素の影響評価 (2018 年度~2019 年度)
  - ②実試料に適した化学分離手法の検討(2018年度~2019年度)
  - ③最適な化学処理方法の確立(2020年度)
- (3) 実試料中のストロンチウム 90 分析
  - ①ストロンチウム原子化の効率評価(2019年度)
  - ②ストロンチウム 90 分析 (2020 年度)
  - ③検出限界濃度の評価(2020年度)
- (4) 研究推進(2018年度~2020年度)

3 カ年計画の1年目である2018年度(平成30年度)は、上記(1)①,②、(2)①,②及び(4)を実施した。主な研究成果は、下記のとおりである。

- (1) レーザー共鳴イオン化セットアップの構築
  - ①標準試料の準備

東京大学東海キャンパスの管理区域内化学実験室に設置されているフード内で、日本アイソトープ協会の  $^{90}$ Sr 放射能標準溶液 SR005(作業日時点で、容量 2.5 ml 及び数量 286.5 kBq)をチタンフォイル 2 枚に各 0.2 ml 分取・塗布してホットプレート上で乾燥させた(塗布量は計 45.8 kBq)。乾燥後にチタンフォイル 2 枚を折り畳んで炭素るつぼ内に挿入し、 $^{90}$ Sr のレーザー共鳴イオン化実験を行うまで RI 貯蔵庫のロッカーに保管した。

#### ②光学系の開発

Sr 原子の共鳴イオン化スキームとして、460.9 nm-655.2 nm-426.3 nm 及び 689.4 nm -487.4 nm-393.8 nm の 2 通りに着目した。必要なレーザーの中で、波長 460.9 nm 及び 655.2 nm については既に製作されている回折格子型の外部共振器半導体レーザー (ECDL: External Cavity Diode Laser) を使用することとした。本研究では、波長 426.3 nm, 689.4 nm, 487.4 nm, 393.8 nm の 4 本のレーザーについて、波長 689.4 nm は自然幅の狭い遷移であるため安定性の高い干渉フィルター型の ECDL を製作し、他の 3 本は回折格子型の ECDL を製作した。各々の ECDL に取り付けられているピエゾ素子の印加電圧により、各 ECDL の波長を Sr 原子の共鳴励起波長付近となるよう微調整した。

#### (2) 化学処理法の確立(連携先:日本原子力研究開発機構)

#### ①共存元素の影響評価

2018年度は主なストロンチウム化合物及び海水又は実試料で想定される共存元素の試薬を準備した。また実海水中の主要元素について濃度を測定し、想定される共存元素の情報を得た。

#### ②実試料に適した化学分離手法の検討

2018年度は、未処理の試料(生試料)及び前処理済み試料(乾燥試料又は灰試料)の試料を準備した。

#### (4) 研究推進

2019 年 1 月 10 日 (木) に進捗状況及び研究計画に関する打合せを東京大学東海キャンパスにて実施し、研究代表者・分担者の 3 名で活発な議論を行った。また、2019 年 1 月 31 日 (木) に中間フォローとして PO 及び原子力安全研究協会の担当者に対する進捗状況の説明を研究代表者が新橋にて行った。本研究の成果発表として、第 17 回同位体科学研究会にて研究代表者がポスター発表を行った。

次年度(2019年度)は、上記(1)②,③、(2)①,②、(3)①及び(4)を実施する予定である。具体的な内容は、下記のとおりである。

#### (1) レーザー共鳴イオン化セットアップの構築

#### ②光学系の開発

反射率 90%以上の凹面ミラー2 枚を対向させた共焦点型エタロンを製作し、2018 年度に製作した外部共振器半導体レーザー3 台の波長制御系を構築する。さらに、黒鉛炉の加熱により生成したストロンチウム原子蒸気にレーザー3 本を照射し、各レーザーの波長スキャンにより 90Sr 及び安定同位体のレーザー共鳴イオン化スペクトルを測定する。

#### ③同位体選択性の評価

vi

前項で得られたスペクトルを用いて、各共鳴遷移におけるストロンチウム原子の同位体シフトを測定し、レーザー共鳴イオン化による光学的同位体選択性を評価する。

#### (2) 化学処理法の確立(連携先:日本原子力研究開発機構)

#### ①共存元素の影響評価

2018年度に作製したストロンチウム化合物及び想定される共存元素を添加した各試料における、レーザー共鳴イオン化測定結果(測定は東京大学が実施)をもとに、ストロンチウム原子蒸気の生成における各成分の影響を評価し、最適なストロンチウム化学形及びストロンチウム原子化に影響を与える共存元素を同定する。

#### ②実試料に適した化学分離手法の検討

前項で得られた他元素の影響を考慮し、未処理の試料(生試料)及び前処理済み試料(乾燥試料又は灰試料)に対して有機物分解、沈殿による濃縮分離、及びストロンチウム樹脂を用いた手法を検討し、ストロンチウム原子化に支障が無く迅速性に優れた化学分離手法を決定する。

#### (3) 実試料中のストロンチウム 90 分析

#### ①ストロンチウム原子化の効率評価

連携先から提供された、化学形及び共存元素の条件が異なるストロンチウム安定同位体 試料を用いてレーザー共鳴イオン化スペクトルを測定し、相対的なストロンチウム原子化 の効率を評価する。測定データ及び原子化効率の評価結果を日本原子力研究開発機構にフィードバックする。

## (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉国際共同研究センター (CLADS) 等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

- 15 - vii

#### 1. はじめに

2011年に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故では、大気中に大量の放射性物質が放出された。図 1.1 はウラン・プルトニウムの核分裂収率を質量数の関数として示したものであり [1]、質量数 90-100 及び 130-140 付近にピークを持つ形状となる。ストロンチウム 90 ( $^{90}$ Sr, 半減期 28.8年) は質量数 90 であり、主要な核分裂生成物として知られる。カルシウムと同族のアルカリ土類金属元素であることから、体内に摂取された際に骨への沈着に伴う内部被ばくの問題が指摘されている。

厚生労働省では、食品中の放射性物質に対する新たな基準値を設定し[2]、平成 24 年 4 月 1 日から施行されている。一般食品については基準値 100 Bq/kg となっているが、これは半減期 1 年以上の核種である放射性セシウム( $^{134,137}$ Cs)、ストロンチウム( $^{90}$ Sr)、プルトニウム( $^{238-241}$ Pu)、ルテニウム( $^{106}$ Ru)からの被ばく線量が合計で年間 1 mSv となるように分析が容易な放射性セシウムで規制された値である。食品中の $^{90}$ Sr/ $^{137}$ Cs 比は種類により異なるものの、半減期がともに約 30 年であることから、ここでは基準値レベルの $^{90}$ Sr 濃度を放射性セシウムと同じ 100 Bq/kg と仮定し、Sr 安定同位体濃度の高い海洋試料の Sr 濃度を海水と同じ約 8 ppm と仮定する。このとき、海洋試料中の $^{90}$ Sr 同位体存在度は  $2\times10^{-9}$  程度の計算になり、 $^{90}$ Sr の測定には同位体選択的な $^{90}$ Sr の分析手法が必要不可欠となる。 $^{90}$ Sr の分析手法は、大きく放射線計測手法と質量分析手法に分けられる。

一般的な放射線計測手法では、 $^{90}$ Sr の娘核種イットリウム 90( $^{90}$ Y, 半減期 64.1 時間で安定同位体のジルコニウム 90( $^{90}$ Zr)に崩壊)からの最大 2.28 MeV の  $\beta$  線を低バックグラウンド  $2\pi$  ガスフロー検出器又は液体シンチレーションカウンタ等で計測する。しかし、 $^{90}$ Sr  $-^{90}$ Y の放射平衡に数週間程度の時間を要するため迅速分析には適していない。最近では、直接  $^{90}$ Sr からの  $\beta$  線を計測する試みもされているが、  $\beta$  線エネルギーは連続スペクトルであるため、時間とともに成長する  $^{90}$ Y からの  $\beta$  線による影響を考慮する必要がある。

一方で、質量分析手法は  $^{90}$ Sr をイオン化して検出するものであり、代表的な手法として誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)及び加速器質量分析(AMS)が挙げられる。これらの分析手法ではイオン化過程で元素選択が行われていないため、 $^{90}$ Sr $^+$ イオンを検出する際に同じ質量数の  $^{90}$ Yf 及び  $^{90}$ Zr $^+$ イオンを分離する必要がある。ICP-MS では酸素ガスを用いたリアクションセルにより  $^{90}$ Y,  $^{90}$ Zr を酸化して質量数をずらすことにより同重体干渉を抑制し、土壌 6 g に対する検出限界として 3.9 Bq/kg が報告されている[3]。一方で、Sr 安定同位体( $^{nat}$ Sr) 濃度の高い海洋試料では得られる質量スペクトルにおいて主要な安定同位体  $^{88}$ Sr のテールによる影響が指摘されている。AMS では物質中でのエネルギー損失の違いを利用して同重体を分離し、 $^{90}$ Sr $^{nat}$ Sr 同位体比の検出限界 5.98× $^{10}$ 13 及び  $^{90}$ Sr 個数の検出限界 4× $^{10}$ 6 個が報告されている[4]。但し、ICP-MS 及び AMS ともに同重体干渉等を抑制するため実試料から化学的前処理により Sr を分離する過程が必要であるほか、AMS は大型の設備であり可搬性・柔軟性の点で難がある。

それに対して、 $^{90}$ Sr 原子を線幅(周波数幅)の狭い連続波の半導体レーザーによりイオン化するレーザー共鳴イオン化(RIS: Resonance ionization spectroscopy)手法が提案された。図 1.2 は、3 本の半導体レーザーを用いて  $^{90}$ Sr 原子をイオン化する場合の一例である。原子の電子状態のエネルギー準位は元素によって大きく異なるほか、Sr 同位体間においても僅かに異なっており「同位体シフト」と呼ばれる。従って、「同位体シフト」に対して十分に線幅の狭い半導体

レーザーを用いて  $^{90}$ Sr 原子の共鳴遷移波長に微調整することで、 $^{90}$ Sr 原子のみがレーザー光を吸収して励起準位に遷移するようにすることが可能となる。例えば、図 1.2 に示した波長 689.4 nm 遷移は  $^{90}$ Sr に対する  $^{88}$ Sr の同位体シフトが 187.4 MHz (波長単位で約  $3\times10^{-4}$  nm) であり [5]、 1 MHz (波長単位で約  $2\times10^{-6}$  nm) 程度の線幅を持つ半導体レーザーを用いることで十分な選択性をもって  $^{90}$ Sr 原子が  $^{88}$ Sr から分離・共鳴励起される。複数の半導体レーザーを同じ場所に照射し、この過程を繰り返して Sr 原子をイオン化エネルギー以上に励起させることで、極めて高い選択性をもって  $^{90}$ Sr 原子のみを元素かつ同位体選択的に共鳴イオン化することができる。 文献 [5]では、図 1.2 と異なる 689.4 nm -688.0 nm -488 nm の遷移(3 段目は  $Ar^+$ イオンレーザー)で図 1.3 のとおり  $^{90}$ Sr 原子を共鳴イオン化し四重極質量分析計(QMS)を用いて測定することで、  $^{88}$ Sr に対する  $^{90}$ Sr の光学的同位体選択性(レーザー3 本で得られる同位体選択性)  $2.4\times10^4$  及び QMS の質量分解能を考慮した同位体選択性  $1.4\times10^{10}$  が報告されている。

本研究では、海洋試料中に一般食品の基準値 100 Bq/kg 含まれる  $^{90}$ Sr の同位体存在度が  $10^{-9}$  レベルであることを念頭に置き、レーザー共鳴イオン化を用いて基準値レベル以下の  $^{90}$ Sr 濃度をターゲットとした  $^{90}$ Sr 迅速分析技術を開発する。具体的には、文献[5]より高い同位体選択性を持つ  $^{90}$ Sr 原子の共鳴イオン化スキームを開発するとともに、「元素・同位体選択的」イオン化を活かして ICP-MS 等の既存の質量分析手法と比較した、実試料からの前処理過程の簡略化に取り組む。

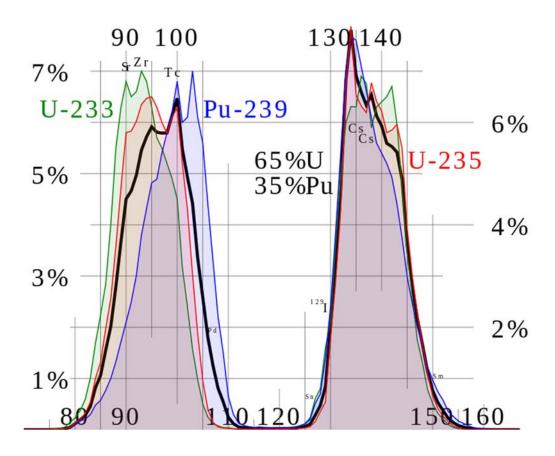


図1.1 ウラン・プルトニウム核分裂収率

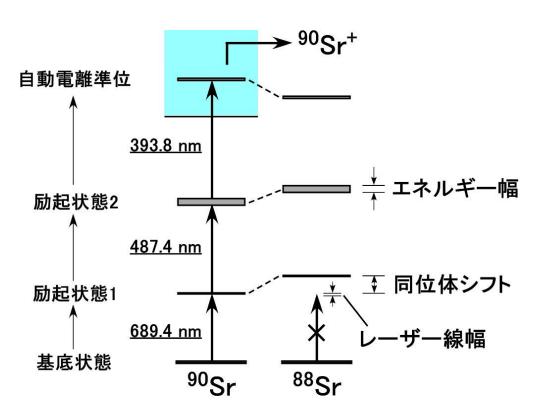
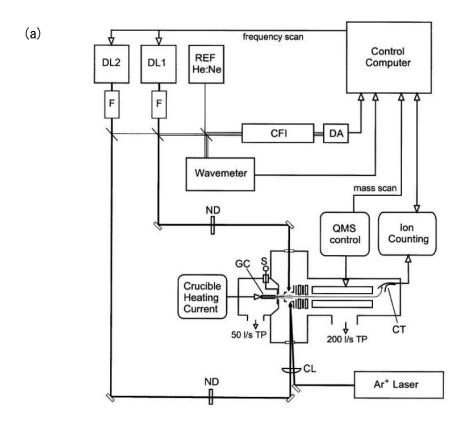


図 1.2 % 原子のレーザー共鳴イオン化例

3



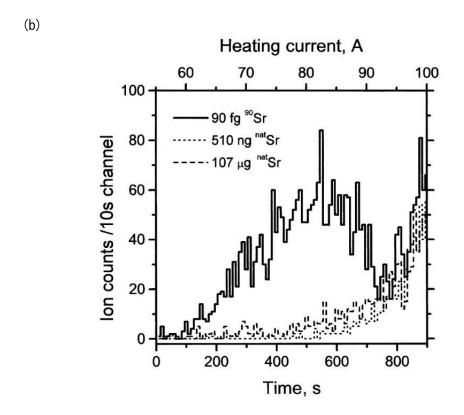


図 1.3 文献で報告されている  ${}^{90}$ Sr 原子の共鳴イオン化質量分析[5]: (a) 測定セットアップ、 (b) 質量数 m/z=90 領域に観測された  ${}^{90}$ Sr $^+$ イオン信号量の時間変化

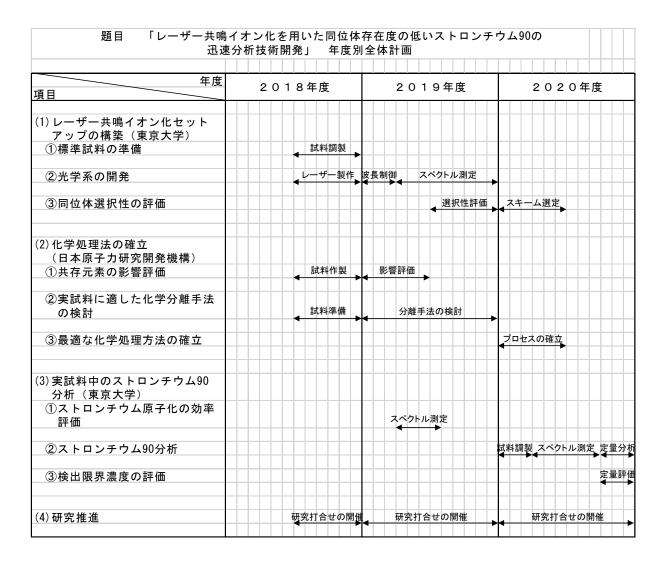
#### 2. 業務計画

#### 2.1 全体計画

本研究では、半導体レーザー3本を用いたレーザー共鳴イオン化により元素かつ同位体選択的に $^{90}$ Srをイオン化する手法に着目し、一般食品の基準値 $^{100}$ Bq/kg以下の濃度をターゲットとする $^{90}$ Srの迅速分析技術を開発する。具体的には、 $^{2018}$ 年度 $^{2020}$ 年度の $^{3}$ 年間で下記(1)-(4)の $^{4}$ 項目を実施する。また、表 $^{2.1}$ に本研究の年度別全体計画を示す。

- (1) レーザー共鳴イオン化セットアップの構築
  - ①標準試料の準備 (2018年度)
  - ②光学系の開発 (2018年度~2019年度)
  - ③同位体選択性の評価 (2019年度~2020年度)
- (2) 化学処理法の確立(連携先:日本原子力研究開発機構)
  - ①共存元素の影響評価 (2018 年度~2019 年度)
  - ②実試料に適した化学分離手法の検討(2018年度~2019年度)
  - ③最適な化学処理方法の確立(2020年度)
- (3) 実試料中のストロンチウム 90 分析
  - ①ストロンチウム原子化の効率評価(2019年度)
  - ②ストロンチウム 90 分析 (2020 年度)
  - ③検出限界濃度の評価(2020年度)
- (4) 研究推進(2018年度~2020年度)

表 2.1 本研究の年度別全体計画



#### 2.2 平成30年度の成果の目標及び業務の実施方法

前節で述べた本研究の全体計画に基づき、平成30年度(2018年度)における成果の目標及び業務の実施方法を以下に示す。

#### (1) レーザー共鳴イオン化セットアップの構築

#### ①標準試料の準備

管理区域の化学実験室フード内で、日本アイソトープ協会の <sup>90</sup>Sr 放射能標準溶液をチタンフォイルに 0.1-0.5ml 程度塗布する。乾燥後にチタンフォイルを折り畳んで炭素るつぼ内に挿入することで、レーザー共鳴イオン化実験用の標準試料を準備する。

#### ②光学系の開発

ストロンチウム原子の共鳴イオン化に使用する外部共振器半導体レーザーとして、回折格子及び干渉フィルター型の2種類を検討し、必要な波長のレーザーを製作する。波長計を用いて、製作したレーザーの波長をストロンチウム原子の共鳴励起波長となるよう微調整する。

#### (2) 化学処理法の確立 (連携先:日本原子力研究開発機構)

#### ①共存元素の影響評価

主なストロンチウム化合物(炭酸ストロンチウム、塩化ストロンチウム、硝酸ストロンチウム等)に海水又は実試料で想定される共存元素(ナトリウム、マグネシウム、カルシウム、カリウム、バリウム、鉄、塩素、ジルコニウム等)を一定濃度添加した安定同位体試料を作製する。各試料を用いたレーザー共鳴イオン化測定を東京大学に依頼する。

#### ②実試料に適した化学分離手法の検討

未処理の試料(生試料)及び前処理済み試料(乾燥試料又は灰試料)を準備する。

#### (3) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉国際共同研究センター (CLADS) 等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

#### 3. 平成30年度の実施内容及び成果

#### 3.1 レーザー共鳴イオン化セットアップの構築

本研究では、半導体レーザー3 本を用いて試料中の  $^{90}$ Sr 原子を共鳴イオン化し、質量分離フィルターを用いて質量分離後に  $^{90}$ Sr<sup>+</sup>イオンをマイクロチャネルプレート (MCP) で検出する。図 3.1.1 にレーザー共鳴イオン化質量分析装置の概念図を示す。まず、チタンフォイル(図 3.1.2 の左)の中心(縦 2 mm×横 12 mm)に試料溶液を塗布し、乾燥後にチタンフォイルを折り畳んで炭素るつぼ(図 3.1.2 の右)内に挿入する。炭素るつぼは長さ 50 mm であり、中心を境にして左右ともに深さ 10 mm まで M3 タップ穴加工されており黒鉛炉にネジ固定できるようになっている。また、左右ともに深さ 10-24 mm まで  $\phi$  2.4 mm 穴があけられており、そこにチタンフォイルを配置する。分析の際は、真空中で黒鉛炉により炭素るつぼを加熱して酸化還元反応により  $^{90}$ Sr 原子蒸気を発生させ、3 本の半導体レーザー(図 3.1.1 の ECDL①-③)により $^{90}$ Sr 原子を共鳴イオン化する。 $^{90}$ Sr<sup>+</sup>イオンを電場で図中右方向に引き出し、質量分離フィルターによる質量分離後に MCP で検出する。 $^{90}$ Sr<sup>+</sup>イオンのカウントレートをフォトンカウンタで計測し、専用の PC に結果を出力する構成となっている。

#### 3.1.1 標準試料の準備

平成 30 年度は、まず  $^{90}$ Sr 標準試料の準備を行った。本研究の実施前に日本アイソトープ協会の  $^{90}$ Sr 放射能標準溶液 SR005[6](図 3.1.3 の左)を用意しており、仕様は下記のとおりである。

放射能:370 kBq

容積:3 ml

化学形: SrCl<sub>2</sub> (0.1N-HCl aq.)

担体: SrCl<sub>2</sub> 0.05 mg/g, YCl<sub>3</sub> 0.05 mg/g

<sup>90</sup>Sr 放射能標準溶液に含まれる <sup>90</sup>Sr の同位体存在度は、納品時点で <sup>90</sup>Sr/<sup>nat</sup>Sr: ~8.5×10<sup>-4</sup> 程度である。この溶液を事前に図 3.1.3 の右に示す二重容器 (10 ml バイアル瓶を 250 ml 広口瓶で覆い、バイアル瓶底面を広口瓶の蓋に両面テープで固定したもの) に全量移し替えた。一部を他の用途に使用したため、本研究の開始時点での <sup>90</sup>Sr 放射能標準溶液の残量は 2.5 ml (後述のホット作業日時点で 286.5 kBq) である。

今回は、残量 2.5 ml のうち 0.4 ml を使用し、各 0.2 ml をチタンフォイル 2 枚に塗布した後、この 2 枚のチタンフォイルを炭素るつぼ内に挿入するホット作業を実施した。以下に作業手順の詳細を述べる。

#### (1) チタンフォイルの作製

ニラコ社製の厚さ 0.02 mm チタンフォイルを使用し、はさみで切断して図 3.1.4 の寸法 (単位 mm) のものを計 6 枚作製した。6 枚のチタンフォイル各々について、先折れピンセットを用いて図 3.1.5 のとおり斜線箇所の上下を "U" の字に折り曲げた。図 3.1.5 の手前に見えているものが炭素るつぼである。作製した 6 枚の中から 3 枚を選び、アルミフォ

イルを敷いたホットプレート (エルエムエス社製 HPS-2000) 上に配置して図 3.1.4 斜線箇 所の左右を耐熱アルミテープで固定した (図 3.1.6)。3 枚のうち手前側2 枚がホット作業用のものであり、奥の1 枚は溶液塗布のテスト用である。

#### (2) 溶液塗布のテスト

コールドランの一環として、図 3.1.6 の奥にあるチタンフォイルを用いて溶液塗布のテストを行った。ホット作業を模擬するため、管理区域内化学実験室に設置されているフード内でホットプレートを加熱した状態で、 $0.5-10~\mu 1$  用マイクロピペット(ニチリョー社製 00-NLE-10)を用いて純水  $10~\mu 1$  を "U"の字に折り曲げたチタンフォイルの中心(図 3.1.4 斜線箇所)に塗布し乾燥させた。乾燥に要する時間及び高温に加熱しすぎない点を考慮し、ホットプレートの目盛 2-3 あたりに相当する温度で加熱することとした。実際のホット作業では  ${}^{90}$ Sr 放射能標準溶液を 2 枚のチタンフォイルに各 0.2~m 1 塗布することになるので、2 枚各々に「 $10~\mu 1$  塗布・乾燥」を 20 回繰り返すことになる。ここでは、純水を  $10~\mu 1$  塗布・乾燥後に、塗布した箇所(図 3.1.4 斜線箇所)が隠れるようにチタンフォイルの "U"の字側面を折り畳んだ。ここで、チタンフォイル内に隙間があると以下に示す酸化還元反応、すなわち  ${}^{90}$ Sr 原子蒸気生成の効率が低下するため、チタンフォイル同士が密着するように折り畳むことがポイントである。

酸化還元反応(SrCl₂の場合): 2SrCl₂ + Ti → 2Sr + TiCl₄

チタンフォイルを折り畳んだ後、耐熱アルミテープをはがしてチタンフォイルの両脇 (図 3.1.4 斜線箇所の左右)をはさみで切り離した。実際のホット作業では、このチタン フォイルを炭素るつぼ内に挿入する。

#### (3) 90Sr 標準試料の準備:ホット作業

前項(2)のテストをふまえて、 $^{90}$ Sr 放射能標準溶液をチタンフォイル 2 枚に各 0.2 ml 塗 布し、乾燥後に 2 枚を折り畳んで炭素るつぼ内に挿入するホット作業を実施した。フード内で使用した工具等の一覧は下記のとおりで、写真を図 3.1.7 に示す。なお、写真左側の炭素るつぼ保管用二重容器及びチャック付ポリ袋は、ホット作業時に  $^{90}$ Sr が付着する可能性があるため、作業前にフード外に移動した。

- \*ホットプレート 1 台 (アルミフォイルで覆った上に、"U"の字に折り曲げたチタンフォイル 2 枚の両端を耐熱アルミテープで固定したもの)
- \*マイクロピペット1本(0.5-10 μ1用)
- \* 浅型バット (タオルペーパーを1枚敷いたもの)
- \*マイクロピペット用チップ5本(実際に使用するものは1本で、残り4本は予備)
- \*先折れピンセット3本(実際に使用するものは2本で、残り1本は予備)
- \*はさみ2本(実際に使用するものは1本で、残り1本は予備)
- \*炭素るつぼ1本

\*ポリエチレン袋3枚(RI 可燃ゴミ、RI 不燃ゴミ、RI 金属ゴミ用)

フード手前側に準備した物品等の一覧は下記のとおりで、写真を図 3.1.8 に示す。作業時に着用するもの以外は、予備として用意したものである。フード内及び手前側の床には、事前に養生用のポリエチレンろ紙を敷いた。作業用の丸椅子は 2 個(1 個は予備)用意し、ポリ袋でカバーを行った。

- \*SMS 保護服3着(実際に使用するものは1着で、残り2着は予備)
- \*腕カバー多数
- \*靴カバー多数
- \*綿手袋2袋
- \*PROTEX 手袋1箱
- \*キムワイプ2箱
- \*タオルペーパー1袋
- \*ベンコット2袋
- \*クアラテック手袋1箱
- \*炭素るつぼ1本
- \*アルミフォイル1巻
- \*テープ類

まず、図 3.1.9 のように SMS 保護服を着用し、綿手袋・PROTEX 手袋(二重)・腕カバー・靴カバーを着用した。PROTEX 手袋は二重とし、着用のたびテープで固定した。次に、RI 貯蔵庫で保管されていた  $^{90}$ Sr 放射能標準溶液(残量 2.5 ml, 286.5 kBq)の入った二重容器を取り出し、フード内で外側の 250 ml 広口瓶を開封した(図 3.1.10)。マイクロピペットに専用チップを装着し(図 3.1.11)、チタンフォイル 2 枚に  $^{90}$ Sr 放射能標準溶液を各10  $\mu$ 1 塗布して乾燥させた(図 3.1.12)。この操作を 20 回繰り返すことで、2 枚のチタンフォイルに各 0.2 ml(計 0.4 ml, 45.8 kBq)塗布した。 $^{90}$ Sr 放射能標準溶液の塗布・乾燥後、2 枚のチタンフォイルの "U" の字箇所を先折れピンセット 2 本で隙間が生じないよう折り曲げた(図 3.1.13)。その後、耐熱アルミテープをはがしてチタンフォイルの両端をはさみで切り離し(図 3.1.14)、チタンフォイル 2 枚を炭素るつぼ内に挿入した(図 3.1.15)。チタンフォイル 2 枚を挿入した炭素るつぼをチャック付ポリ袋に入れた後、汚染の拡大防止という観点から、フード外で  $^{90}$ Sr 放射能標準溶液用に使用しているものと同様な二重容器(図 3.1.16)に入れた。

作業終了後、マイクロピペット用チップを RI 不燃ゴミとして処理し、ホットプレートを覆っていたアルミフォイルは RI 金属ゴミとして処理した。フード内で使用した工具等については全てエタノールを染み込ませたウエットティッシュで 1-2 回程度ふき取った後、汚染が無いことを確認してフード外に移動した。ふき取りに使用したウエットティッシュは RI 可燃ゴミとして処理した。フード内に準備し使用しなかった工具等は、ウエットティッシュによるふき取り作業を省略し、汚染が無いことを確認してフード外に移動した。フ

ード内及びフード手前側の床の複数箇所においてスミア測定を行い、念のためフード内で 養生用に使用していたポリエチレンろ紙は、RI 可燃ゴミとして処理した。最後に、身体汚 染検査を行って問題が無いことを確認し、ホット作業の全工程を終了した。

上述の二重容器を RI 貯蔵庫に運搬して専用のロッカーに保管した。今回のホット作業では、<sup>90</sup>Sr 放射能標準溶液 2.5 ml (286.5 kBq) のうち 0.4 ml (45.8 kBq) を使用し、残量 2.1 ml (240.6 kBq) は引き続き <sup>90</sup>Sr 放射能標準溶液用の二重容器に入れて、炭素るつぼと同様に RI 貯蔵庫に運搬し専用のロッカーに保管した。

#### 3.1.2 光学系の開発

 $^{90}$ Sr 標準試料の準備と並行して、Sr 原子のレーザー共鳴イオン化に使用する半導体レーザーを準備した。図 3.1.17 に NIST のデータベース[7]を利用して選定したレーザー共鳴イオン化スキームの候補を示す。縦軸は Sr 原子のエネルギー準位であり、励起されてイオン化ポテンシャル(45932.2036 cm $^{-1}$ )を超えるとイオン化される。スキーム①及び②は、1段目に波長 460.9 nm の遷移を用いたものであり、当該遷移の励起準位の自然幅  $\Gamma$ :  $\sim$ 32 MHz と大きいために高い遷移効率が期待される。一方で、スキーム③及び④は 1 段目が波長 689.4 nm の遷移であり、自然幅  $\Gamma$ :  $\sim$ 7.5 kHz と小さく高い同位体選択性が期待される。遷移効率と同位体選択性はトレードオフの関係にあるため、両者の兼ね合いから適切なレーザー共鳴イオン化スキームを構築することが重要である。なお、スキーム④は 2 頁で述べた文献[5]で使用されているスキームである。

本研究では、図 3.1.17 の中でスキーム②及び③に着目し、必要なレーザー6 本を準備した。同位体選択的なレーザー共鳴イオン化を行うため、レーザーの種類として線幅(周波数幅)が狭い・波長可変幅が広い点を考慮して、連続波の外部共振器半導体レーザー(ECDL: External Cavity Diode Laser)を利用することとした。6 本のレーザーの中で、スキーム②に使用する波長 460.9 nm(1 段目)及び 655.2 nm(2 段目)のレーザーについては、別用途で既に製作されている回折格子型の ECDL を使用し、本研究では波長 426.3 nm(スキーム②の 3 段目),689.4 nm,487.4 nm,393.8 nm(各々スキーム③の 1,2,3 段目)の 4 本について新たに準備した。以下では、まず ECDL の構造として回折格子型と干渉フィルター型の 2 種類について説明した後、各レーザーの製作状況を述べる。

#### (1)回折格子型と干渉フィルター型 ECDL の比較

ECDLではレーザーダイオード (LD) からの光をレンズで平行光にし、特定の光学素子を用いて一部の光を LD にフィードバックすることで、単一の周波数モードでレーザー発振を行う。それにより、線幅の狭いレーザー光が得られる。ここでは、光学素子として広く使用されている回折格子と、ここ近年高い安定性が得られるとして注目されている干渉フィルターの 2 種類について検討する。

回折格子を用いたもので特に構造が最もシンプルな Littrow 型 ECDL の構造を図 3.1.18 に示す。LD からの光をレンズで平行光にした後、ピエゾ素子が取り付けられた回折格子に 角度  $\theta$  で入射させる。回折格子の格子間隔を d とすると、1 次回折光が LD にフィードバックするための波長  $\lambda$  と d の関係は式(3.1.1)のとおりである。

11 - 26 -

$$λ = 2d \cdot \sin \theta$$
 $\vec{x}(3.1.1)$ 

図3.1.19に単一の周波数モードでレーザー発振が行われる概念図を示す[8]。LDからの光は幅広い周波数分布を持っているが、その中でLDと出射窓で形成される内部共振器(Internal cavity)モード、回折格子の1次回折光がLDにフィードバックされるための周波数分布(Grating)、及び図3.1.18に示したLDと回折格子で形成される外部共振器(External cavity)モード全てを満足する周波数成分のみがレーザー発振される(Lasing frequency)。図3.1.18で、ピエゾ素子は印加電圧により伸縮する性質を持つ。印加電圧を大きくしてピエゾ素子を伸ばすことで、発振するレーザー周波数を高い(波長を短い)側に微調整することが可能となる。図3.1.20に回折格子型(Littrow型)ECDLの製作例を示す。

干渉フィルター型 ECDL の構造を図 3.1.21 に示す。LD からの光をレンズで平行光にして、バンド幅の狭い(透過するレーザー周波数幅の狭い)干渉フィルターを入射角 $\theta$ で透過させて、リング型のピエゾ素子が取り付けられた部分反射ミラー(PM: Partially reflective Mirror)の表面に集光させる。干渉フィルターは入射角 $\theta=0^\circ$  の垂直入射で透過波長が最も長くなる。このときの波長を $\lambda_{\max}$ とすると、入射角 $\theta$ のときの透過波長 $\lambda$ は式(3.1.2)で表される。ここで、n は干渉フィルターの屈折率である。

干渉フィルターの入射角  $\theta$  を変えることで透過波長を粗調整し、さらに部分反射ミラーに取り付けられたリング型ピエゾ素子の印加電圧により発振するレーザー周波数を微調整することが可能である。図 3.1.19 に示した回折格子型 ECDL における単一モード発振について、干渉フィルター型 ECDL では Grating の代わりに干渉フィルターの透過光が対応し、外部共振器は LD と PM 表面で形成される。図 3.1.22 に干渉フィルター型 ECDL の製作例を示す。

上記 2 種類の ECDL を比較すると、回折格子型(Littrow 型)ECDL は構造がシンプルで製作が容易である一方で、干渉フィルター型 ECDL は角度ずれに強く安定性が高い特徴を持つ。ここで、角度ずれによる影響を 2 種類の ECDL で比較する。レーザーの出力波長を689.4 nm(図 3.1.17 のスキーム③1 段目)とし、回折格子は格子間隔 d=1/1800 mm のものを使用し、干渉フィルターは屈折率 n=2 及び入射角  $\theta=6$ ° で透過波長が 689.4 nm のものを使用することとする。まず、回折格子及び干渉フィルターについて角度ずれに伴う波長の変動を計算する。回折格子では、

$$\frac{\partial \lambda}{\partial \theta}$$
 = 2d · cos  $\theta$  ~0.871 nm/mrad (~550 GHz/mrad) 式(3.1.4)

と得られ、干渉フィルターでは

$$\lambda = \lambda_{\max} \cdot \sqrt{1 - \sin^2 \theta / n^2} \quad (\lambda = 689.4 \text{ nm at } \theta = 6^{\circ} \text{ and } n = 2)$$
  $\stackrel{\rat}{\precsim} (3.1.5)$ 

$$\frac{\partial \lambda}{\partial \theta} = -\frac{\lambda_{\text{max}}}{n^2} \cdot \sin \theta \cos \theta \cdot \left(1 - \frac{\sin^2 \theta}{n^2}\right)^{-\frac{1}{2}} \sim 18 \text{ pm/mrad} \quad (\sim 11.3 \text{ GHz/mrad})$$

$$\vec{\Xi}(3. 1. 6)$$

と計算される。従って、 $\partial \lambda/\partial \theta$  の値が小さい干渉フィルター型 ECDL の方が角度ずれに伴う波長の変動は小さく安定性が高いと言える。次に、回折格子及び部分反射ミラー (PM) による LD へのフィードバック効率を比較する。これら光学素子による反射率を R とすると、規格化されたフィードバック F は式(3.1.7)で表される[9]。

$$F = \frac{1}{R} \cdot \left| \iint E_{do}^* E_{dr} \, dx dy \right|^2 \qquad \qquad \vec{x} (3.1.7)$$

ここで、 $E_{do}^*$ 及び $E_{dr}$ は各々LD 出射面における LD からの光及び光学素子による反射光による電場である。回折格子及び PM について、図 3.1.23 のとおり角度方向のずれ  $\alpha$  及び並進方向のずれ  $\delta$  を定義し、これらがフィードバック効率に与える影響を調べる。角度ずれ  $\alpha$  については、

$$F = \exp\left[-\left(\frac{\alpha\pi w_0}{\lambda}\right)^2\right] \Rightarrow \left.\frac{\partial^2 F}{\partial \alpha^2}\right|_{\alpha \to 0} = -\frac{2\pi^2 w_0^2}{\lambda^2} \propto w_0^2 \qquad \qquad \vec{x}(3.1.8)$$

並進ずれδについては、

$$F = \left(1 + \frac{\delta^2 \lambda^2}{\pi^2 w_0^4}\right)^{-1} \implies \frac{\partial^2 F}{\partial \alpha^2}\Big|_{\alpha \to 0} = -\frac{2\lambda^2}{\pi^2 w_0^4} \propto 1/w_0^4 \qquad \qquad \vec{\mathbb{K}}(3.1.9)$$

で表され、いずれも光学素子(すなわち外部共振器の出射面)におけるレーザー光のビーム径 $w_0$ にのみ依存する[9]。回折格子型 ECDL では平行光のため  $w_0$ : ~1 mm を仮定し、干渉フィルター型 ECDL では PM 表面に集光させるため  $w_0$ : ~10  $\mu$ m を仮定すると、フィードバック F が 10%低下するときの角度ずれ  $\alpha$  及び並進ずれ  $\delta$  は、

F = 0.9 at α: ~0.07 mrad or δ: ~1.5 m (
$$w_0$$
: ~1 mm) 式(3.1.10)

F = 0.9 at α: ~7 mrad or δ: ~0.15 mm (
$$w_0$$
: ~10 μm) 式(3. 1. 11)

と計算される。すなわち、角度方向のずれによる影響は回折格子型 ECDL の方が大きく、逆に並進方向のずれによる影響は干渉フィルター型 ECDL の方が大きいことになる。前者の  $\alpha$ : ~0.07 mrad と後者の  $\delta$ : ~0.15 mm を比較すると、ECDL を製作する上では前者の方が厳しい条件となることから、一般的に回折格子型 ECDL と比較して干渉フィルター型 ECDL の方が高い安定性が得られると言える。本研究では、自然幅の狭い波長 689.4 nm の遷移には干渉フィルター型 ECDL を使用し、波長 426.3 nm, 487.4 nm, 393.8 nm の遷移には製作が容易な回折格子型 ECDL を使用することとした。

13

#### (2) 波長 689.4 nm 干渉フィルター型 ECDL の準備

波長 689.4 nm の遷移(図 3.1.17 のスキーム③1 段目)に使用する干渉フィルター型 ECDL については、別用途でオプトクエスト社に製作依頼した ECDL のレーザーヘッドに対して LD に流す電流(以下では、LD 電流と記載)・ECDL の温度・ピエゾ素子の印加電圧(以下では、ピエゾ電圧と記載)を各種コントローラから制御するための配線を行った。図 3.1.24 がレーザーヘッドのイメージ図であり、配線を完了した干渉フィルターECDL の写真を図 3.1.25 に示す。ECDL 製作用として、業者に提供した部品は下記のとおりである。

\*LD: Eagleyard Photonics 社製 EYP-RWE-0690-00703-1000-S0T02-0000 1個

\*レンズ:ソーラボ社製355390-B 1個

\*干渉フィルター: オプトクエスト社製、半値幅 0.3 nm、5×5×1t 1 個

\*レンズ: ソーラボ社製 354350-B 2 個

\*PM: シグマ光機社製、反射率 20%、 φ10 mm×t3 mm 1個

\*ピエゾ素子: キーストンインターナショナル社製 NAC2123-A01 1個

ECDL の温度制御には図 3.1.26 の仕様であるサーミスタが使用されている。波長 689.4 nm 遷移の共鳴波長は 689.4491 nm  $(14504.334\ cm^{-1})$  の計算であり、干渉フィルターの角度を粗調整した後、LD 電流  $I \cdot ECDL$  温度  $T \cdot L^{2}$  工 が電圧 V のパラメータを微調整することで、 $I = 136.41\ mA$ ,  $T : \sim 23^{\circ}$ C(サーミスタ抵抗  $10.780\ k\Omega$ ), $V = 54.1\ V$  で波長計表示値 689.448362 nm を得た。レーザー出力は約  $11\ mW$  であった。  $L^{2}$  工 が電圧を調整し、共鳴波長をカバーする波長 689.447-689.452 nm の範囲(スキャン幅約  $3\ GHz$ )で ECDL がモードホップせず単ーモード発振することを確認した。なお、ECDL の出力波長は温度に敏感であるほか  $L^{2}$  工 が表子にヒステリシスがあるため、使用の際には毎回  $L^{2}$  工 で  $L^{2}$  工 で  $L^{2}$  で  $L^{2}$  の出力波長が大きく変化することはない。

#### (3) 波長 393.8 nm 回折格子型 ECDL の準備

波長 426.3 nm, 487.4 nm, 393.8 nm の遷移に使用する回折格子型 ECDL を製作した。ここでは、まず波長 393.8 nm (図 3.1.17 のスキーム③3 段目) の ECDL 製作状況について説明する。ECDL の製作に使用された部品は下記のとおりである。

\*LD: 日亜化学社製 NDU4316(中心波長 393.5-394.0 nm を選別) 1個

\*レンズチューブ: ソーラボ社製 LT230P-B で非球面レンズ A230TM-B を A230TM-A に 交換、上記 LD をセットして使用する 1 個

\*回折格子: ソーラボ社製 GH13-36U(格子間隔 d=1/3600 mm, 入射角  $\theta=45.1^{\circ}$ ) 1個

\*出力用ミラー: ソーラボ社製 BB05-E02 1個

\*ピエゾ素子: ソーラボ社製 AE0203D08F 1個

\*温度トランスデューサ:ソーラボ社製 AD590 1個

\*ペルチェ素子: TEC1-12708 1個

- 29 <del>-</del>

製作した ECDL の写真を図 3.1.27 に示す。図 3.1.20 に示した製作例とは左右が逆転している。回折格子型 ECDL の製作で重要な点は、回折格子からの 1 次回折光を精度良く LD にフィードバックさせるところである。そのため、図 3.1.27 では回折格子を"コ"の字の形をした燐青銅板(図 3.1.28)の上に設置し、2 種類のネジを用いて"コ"の字のあおり方向を微調整できる構造となっている。黒色の M3 ネジ 2 個が"コ"の字の上板を下側に押し、中央の  $M3 \times 0.25$  超精密ネジ(ソーラボ社製 MAS15)が"コ"の字の上板を上側に引っ張る役割を果たしている。

回折格子を設置する前に、LD からの光をレンズで平行光にした状態で LD 電流とレーザ 一出力の関係を測定した。結果を図 3.1.29 の赤で示す。図 3.1.30 は、図 3.1.29 の横軸 25-35 mA の範囲を拡大したものである。LD 電流 I = 29.5 mA 付近に閾値があり、閾値以 上の LD 電流では直線的な関係にある。外部共振器を構成する際は、回折格子からの 1 次 回折光を精度良く LD にフィードバックさせるため、閾値の LD 電流付近でレーザー出力の 増加が観測される。これをフラッシングと呼ぶ。図 3.1.31 及び図 3.1.32 は、フラッシン グ前後の様子を示した写真である。1 次回折光の割合(回折効率)は、回折格子の線の方 向とLDからの光の偏光方向の関係に依存する。回折格子GH13-36Uの仕様(図3.1.33)を もとに、ここではまず回折効率が約 50%と高くなるように LD からの直線偏光の光につい て偏光方向を回折格子の線の方向と垂直になるよう調整した。外部共振器が無い状態にお ける LD 電流の閾値 29.5 mA より若干低い I = 28.5 mA 付近に LD 電流を調整した状態で、 回折格子の 0 次反射光を見ながら "コ"の字のあおり方向を 2 種類のネジで微調整した。 回折格子からの 1 次回折光が LD にフィードバックされると、図 3.1.32 のように 0 次反射 光が明るくなる。この状態で出力用ミラーを取り付けて、LD電流とレーザー出力の関係を 測定した結果が図 3.1.29 及び図 3.1.30 の青である。外部共振器を構成することで LD 電 流の閾値が I = 27.0 mA 付近に低下した。一方で、十分大きい LD 電流では回折格子の 1 次 回折光による損失のためレーザー出力は低下する。ここではフィードバックを優先して回 折効率を約 50%としたため、大きい LD 電流では複数の周波数モードが成長するマルチモ ードになりやすい傾向にある。また、図 3.1.30 において赤で示したデータと比較すると、 青で示した外部共振器ありのデータは閾値電流以上の点が直線に対して若干ガタガタして いる。これは、単一モード発振されていた状態でモードホップする又は LD 電流によって は単一モード発振されないことでレーザー出力が局所的に変化することが原因である。

波長 393.8 nm 遷移の共鳴波長は 393.7719 nm (25395.411 cm $^{-1}$ ) の計算である。回折格子の角度を超精密ネジで粗調整した後、LD 電流  $I \cdot ECDL$  温度  $T \cdot \ell' L'$ 工ゾ電圧 V のパラメータを微調整し、I = 37.73 mA,T = 22.97°C,V = 24.64 V で波長計(HighFinesse 社製WS-7)表示値 393.77190 nm (761.33533 THz)を得た(図 3.1.34)。レーザー出力はアイソレータ(反射光が ECDL に戻るのを防止する光学素子)透過後で約 1.5 mW であった。LD 電流及び温度を変えずにピエゾ電圧 V を変化させたところ、761.33420-761.33580 THz の約 1.6 GHz の範囲で ECDL がモードホップせず単一モード発振することを確認した。

次に、レーザー出力を大きくするため LD からの光の偏光方向を回折格子の線の方向と 平行になるよう調整した。回折効率は約 10%に低下するため、LD 電流を I = 30.2 mA 程度に上げて上述と同様にフラッシングの微調整を行った。図 3.1.35 及び図 3.1.36 にLD 電

流とレーザー出力の関係を測定した結果を青で示す。赤は図 3.1.29 及び図 3.1.30 に示したデータと同じであり、図 3.1.36 は図 3.1.35 の横軸 25-35 mA の範囲を拡大したものである。回折効率が約 10%と低いため、図 3.1.36 を図 3.1.30 と比較すると LD 電流の閾値で大きな低下は観測されなかった。一方で、十分大きい LD 電流では 1 次回折光による損失が抑えられているため、レーザー出力は外部共振器なしの場合の 80%程度に増加した。

回折格子の角度を超精密ネジで粗調整した後、LD 電流  $I \cdot ECDL$  温度  $T \cdot L$  で出ているのパラメータを微調整し、L = 63.95 mA, L = 22.97L, L = 23.85 L で波長計表示値 393.77190 nm (761.33533 THz) を得た(図 3.1.37)。波長計に表示されるモードを比較すると、回折効率が約 50%と約 10%の場合で大きな違いはなく、両者ともに共鳴波長付近において単一モード発振が確認された。レーザー出力はアイソレータ透過後で約 21 mWであった。LD 電流及び温度を変えずにピエゾ電圧 L を変化させたところ、761.33520-761.33580 THz の約 0.6 GHz の範囲で ECDL がモードホップせず単一モード発振することを確認した。上述の回折効率約 50%の場合と比較すると、より大きい L D 電流で単一モード発振されたことで、共鳴波長付近においてレーザー出力が約 L 倍と大きく増加した。しかし、回折効率が低いために特に大きい L D 電流において単一モード発振の安定性が低下し、周波数の可変幅は半分以下に狭くなった。一般的に、回折効率が高い・低い場合における ECDL の特徴をまとめると、下記のとおりとなる。

# 【回折効率が高い場合】

- \*LD 電流の閾値が大きく低下し、フラッシング調整が容易
- \*単一モード発振の安定性が良好で、周波数の可変幅が広い
- \*1次回折光による損失が大きく、レーザー出力は低下する
- \*大きいLD電流では、複数の周波数モードが成長するため単一モード発振が難しい

# 【回折効率が低い場合】

- \*LD 電流の閾値低下は僅かであり、フラッシング調整がやや困難
- \*単一モード発振の安定性が十分でないことがあり、周波数の可変幅が狭い
- \*1次回折光による損失が小さいため、大きいレーザー出力が得られる
- \*大きいLD電流では、発振の安定性が十分でないため単一モード発振が難しい

回折効率が高い場合は周波数の可変幅が広く、回折効率が低い場合は大きいレーザー出力が得られる点が各々の長所となる。本研究では製作した ECDL を Sr 原子の波長 393.8 nm 遷移に使用するが、自動電離準位への遷移であるため、遷移断面積が小さく大きいレーザー出力が要求される。また、共鳴波長を探索する際は周波数の可変幅が広い点も重要である。 ECDL 周波数の可変幅及びレーザー出力はトレードオフの関係にあることが多く、Sr 原子のレーザー共鳴イオン化に使用する際は、両者を考慮して回折効率を調整する(すなわちレンズチューブを回転させて、直線偏光である LD からの光の偏光方向を調整する)ことがポイントとなる。

# (4) 波長 426.3 nm 回折格子型 ECDL の準備

次に、波長 426.3 nm (図 3.1.17 のスキーム②3 段目) の ECDL 製作状況について説明する。製作及び波長調整の流れは、前項(3)の波長 393.8 nm 回折格子型 ECDL と同様である。 ECDL の製作に使用された部品は下記のとおりである。LD は、中心波長が共鳴波長に近いものを業者が選別し、それを使用した。

\*LD: 日亜化学社製 NDV4A16 (中心波長 424.5-425.0 nm を選別) 1 個

\*レンズチューブ: ソーラボ社製 LT230P-B で非球面レンズ A230TM-B を A230TM-A に 交換、上記 LD をセットして使用する 1 個

\*回折格子: ソーラボ社製 GH13-36U(格子間隔 d=1/3600 mm, 入射角  $\theta$  =50.1°) 1 個

\*出力用ミラー: ソーラボ社製 BB05-E02 1個

\*ピエゾ素子: ソーラボ社製 AE0203D08F 1個

\*温度トランスデューサ:ソーラボ社製 AD590 1個

\*ペルチェ素子: TEC1-12708 1個

製作した ECDL の写真を図 3.1.38 に示す。まず、LD からの直線偏光の光について偏光方 向を回折格子の線の方向と平行(回折効率<10%)になるよう調整し、LD電流 I = 26.34 mAの状態でフラッシングの微調整を行った。図3.1.39にLD電流とレーザー出力の関係を 測定した結果を示す。前項(3)と同様に、赤が外部共振器なしの状態で青がフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である。この偏光条件では、LD電流が大きくなるにつ れて単一モード発振が観測されなくなったため、LDからの光の偏光方向を回折格子の線の 方向と垂直(回折効率>50%)になるように変更し、LD電流 I = 26.25 mA の状態でフラッ シングの微調整を行った。図 3.1.40 に変更後の偏光条件で LD 電流とレーザー出力の関係 を測定した結果を示す。波長 426.3 nm 遷移の共鳴波長は 426.3200 nm (23456.558 cm<sup>-1</sup>) の計算である。回折格子の角度を超精密ネジで粗調整した後、LD 電流 I・ECDL 温度 T・ピ エゾ電圧 V のパラメータを微調整し、I = 138.94 mA, T = 23.12℃, V = 26.58 V で波長 計表示値 426.32000 nm(703.20993 THz)を得た(図 3.1.41)。波長計に表示されるモー ドに若干の連続成分が観測されているが、これは使用した LD の中心波長が共鳴波長 426.3 nm から 1 nm 程度離れており、異なる波長成分が若干含まれていたためと考えられる。レ ーザー出力はアイソレータ透過後で約 14 mW であり、LD 電流及び温度を変えずにピエゾ電 圧 V を変化させたときの周波数可変幅は約1 GHz であった。

# (5) 波長 487.4 nm 回折格子型 ECDL の準備

最後に、波長 487.4 nm (図 3.1.17 のスキーム③2 段目) の ECDL 製作状況について説明する。製作及び波長調整の流れは、前項(3)の波長 393.8 nm 回折格子型 ECDL と同様である。ECDL の製作に使用された部品は下記のとおりである。

\*LD: 日亜化学社製 NDS4216 1個

\*レンズチューブ: ソーラボ社製 LT230P-B で非球面レンズ A230TM-B を A230TM-A に

#### JAEA-Review 2019-027

# 交換、上記 LD をセットして使用する 1個

\*回折格子: Spectrogon 社製(格子間隔 d=1/3000 mm, 入射角  $\theta$  =47.0°) 1個

\*出力用ミラー: ソーラボ社製 BB05-E02 1個

\*ピエゾ素子: ソーラボ社製 AE0203D08F 1個

\*温度トランスデューサ: ソーラボ社製 AD590 1個

\*ペルチェ素子: TEC1-12708 1個

製作した ECDL の写真を図 3.1.42 に示す。まず、LD からの直線偏光の光について偏光方 向を回折格子の線の方向と平行(回折効率最小)になるよう調整し、LD電流 I = 34 mA 付 近の状態でフラッシングの微調整を行った。図 3.1.43 に LD 電流とレーザー出力の関係を 測定した結果を示す。赤が外部共振器なしの状態で青がフラッシング調整を行った外部共 振器ありの状態である。項目(4)と同様に、この偏光条件では LD 電流が大きくなるにつれ て単一モード発振が観測されなくなったため、LDからの光の偏光方向を回折格子の線の方 向と垂直(回折効率最大)になるように変更し、LD電流 I = 32 mA 付近の状態でフラッシ ングの微調整を行った。図 3.1.44 に変更後の偏光条件で LD 電流とレーザー出力の関係を 測定した結果を示す。波長 487.4 nm 遷移の共鳴波長は 487.3851 nm (20517.655 cm<sup>-1</sup>) の 計算である。回折格子の角度を超精密ネジで粗調整した後、LD 電流 I・ECDL 温度 T・ピエ ゾ電圧 V のパラメータを微調整し、I = 57.06 mA, T = 23.04℃, V = 26.40 V で波長計表 示値 487.38488 nm (615.10414 THz) を得た(図3.1.45)。本項目ではアイソレータを使 用せず、レーザー出力は約3.3 mWであり、LD電流及び温度を変えずにピエゾ電圧Vを変 化させたときの周波数可変幅は約0.8 GHz であった。波長393.8 nm 及び426.3 nm の ECDL と比較するとレーザー出力は小さいが、波長 487.4 nm の遷移断面積が大きいため 1 mW 程 度の出力があれば十分である。

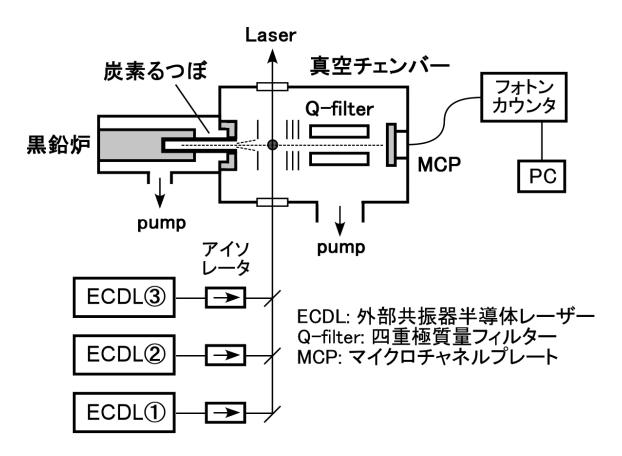


図 3.1.1 レーザー共鳴イオン化質量分析装置の概念図

# 

図 3.1.2 チタンフォイル(左)と炭素るつぼ(右):  $^{90}$ Sr 試料を塗布したチタンフォイルを 炭素るつぼ内に挿入する

19 - 34 -





図 3.1.3 日本アイソトープ協会の <sup>90</sup>Sr 放射能標準溶液 SR005 (左) と溶液全量の保管に 使用した二重容器 (右)

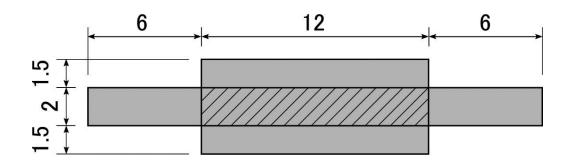


図 3.1.4 <sup>90</sup>Sr 標準試料の準備に用いるチタンフォイルの寸法 (単位 mm)



図3.1.5 作製した6枚のチタンフォイル (手前は炭素るつぼ)



図3.1.6 ホットプレート上に耐熱アルミテープで固定された3枚のチタンフォイル



図3.1.7 フード内作業用に準備した工具等一覧(二重容器及びチャック付ポリ袋は除く)



図 3.1.8 フード手前側に準備した物品等一覧



図 3.1.9 ホット作業時の服装



図 3.1.10 フード内で 90Sr 放射能標準溶液が入った二重容器の 250 ml 広口瓶を開封



図 3.1.11 マイクロピペットに専用チップを装着



図 3.1.12 90Sr 放射能標準溶液を塗布している時の様子



図 3.1.13 チタンフォイル "U" 字箇所の折り曲げ

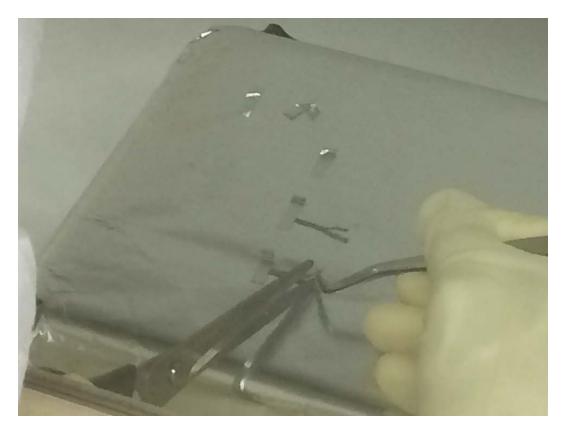


図 3.1.14 耐熱アルミテープをはがして、チタンフォイル両端を切断

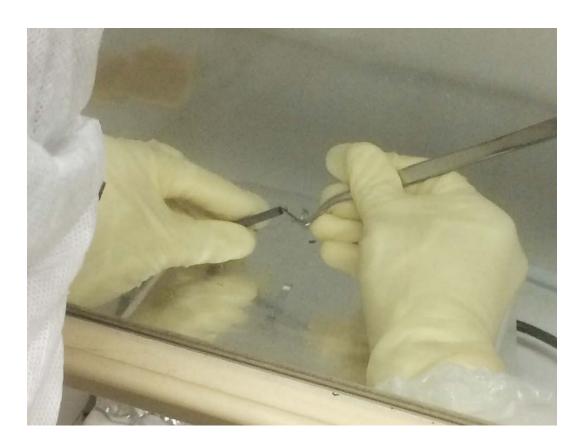


図 3.1.15 チタンフォイル 2 枚を炭素るつぼ内に挿入



図 3.1.16 炭素るつぼを入れた二重容器

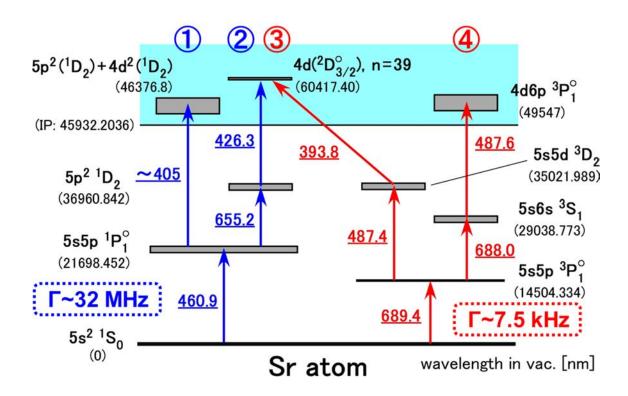


図 3.1.17 Sr 原子のレーザー共鳴イオン化スキームの候補

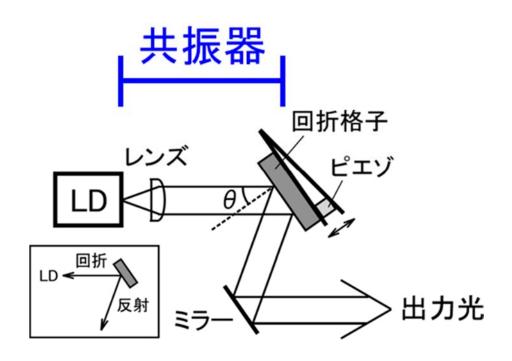


図 3.1.18 回折格子型 (Littrow型) ECDL の構造

27 - 42 -

# Lasing frequency Medium gain Internal cavity Grating External cavity Frequency

図 3.1.19 単一の周波数モード発振[8]

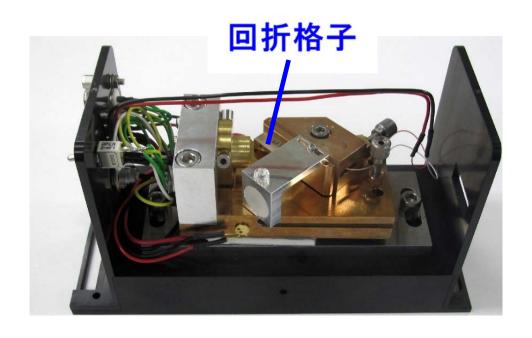


図 3.1.20 回折格子型 (Littrow型) ECDL の製作例

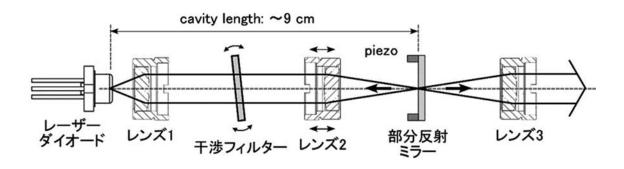


図 3.1.21 干渉フィルター型 ECDL の構造

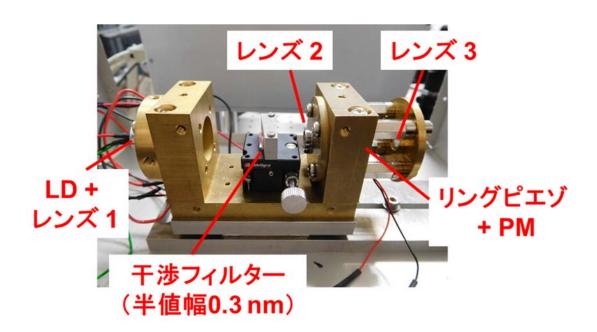


図 3.1.22 干渉フィルター型 ECDL の製作例

29 - 44 -

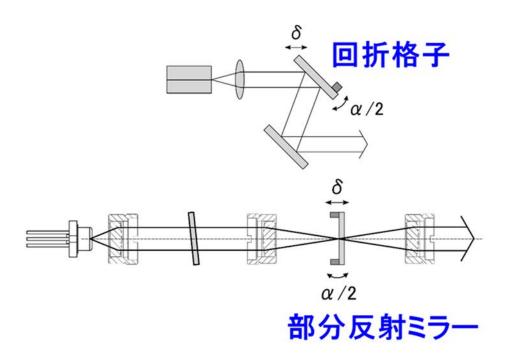


図 3.1.23 回折格子(上)及び部分反射ミラー(下)における角度ずれ  $\alpha$ と並進ずれ  $\delta$  の影響

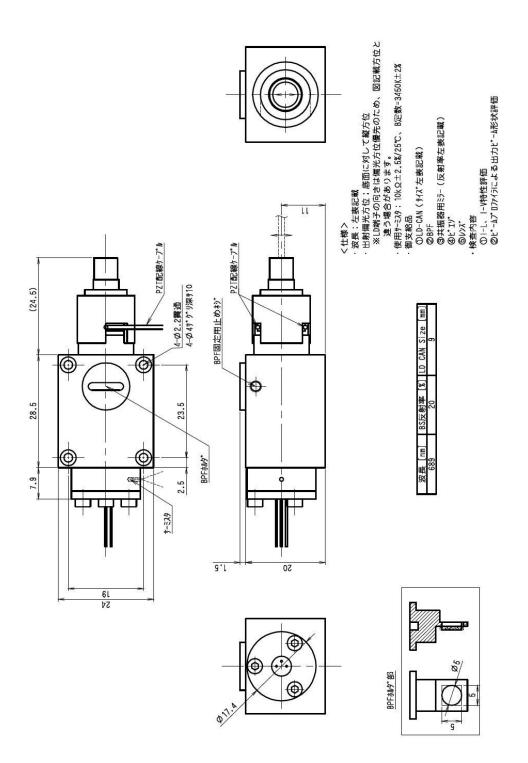


図3.1.24 オプトクエスト社製干渉フィルターECDLのレーザーヘッドイメージ図

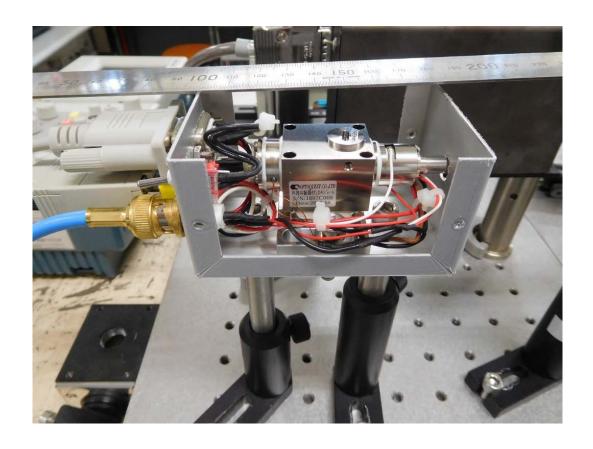


図 3.1.25 配線を完了した波長 689.4 nm 干渉フィルターECDL

R	T(°C	2)	1
(kΩ)	B1	B2	
(K SZ)	3381	3319	平均
30	-1.33	-1.78	-1.56
29	-0.59	-1.03	-0.81
28	0.18	-0.24	-0.03
27	0.99	0.58	0.78
26	1.83	1.43	1.63
25	2.71	2.33	2.52
24	3.63	3.26	3.45
23	4.60	4.24	4.42
22	5.62	5.28	5.45
21	6.69	6.37	6.53
20	7.83	7.52	7.63
19	9.03	8.75	8.89
18	10.31	10.05	10.18
17	11.67	11.43	11.55
16	13.13	12.92	13.03
15	14.71	14.52	14.6
14	16.41	16.25	16.33
13	18.26	18.13	18.20
12	20.28	20.20	20.24
11	22.51	22.47	22.49
10	25.00	25.00	25.00
9	27.80	27.85	27.82
8	30.98	31.10	31.04
7	34.68	34.87	34.78
6	39.06	39.34	39.20
5	44.41	44.80	44.60
4	51.21	51.74	51.48
3	60.41	61.16	60.79
2	74.31	75.39	74.85
1	100.96	102.75	101.86

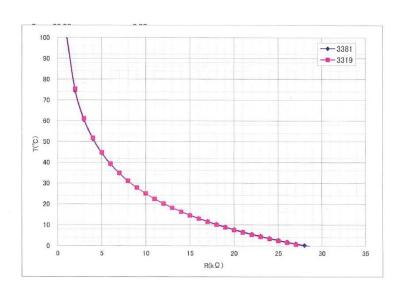


図 3.1.26 サーミスタの仕様

- 47 - 32

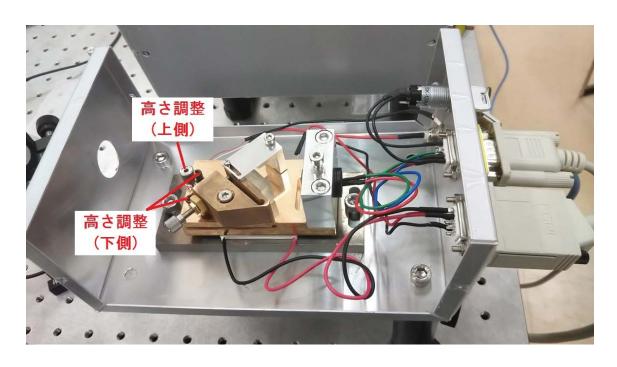


図 3.1.27 製作した波長 393.8 nm 回折格子型 ECDL の写真

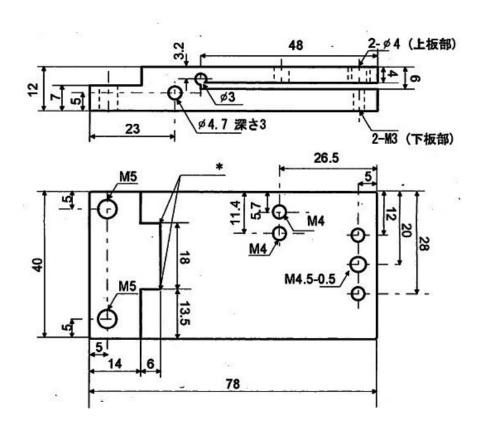


図 3.1.28 回折格子を設置する燐青銅板の寸法

33 - 48 -

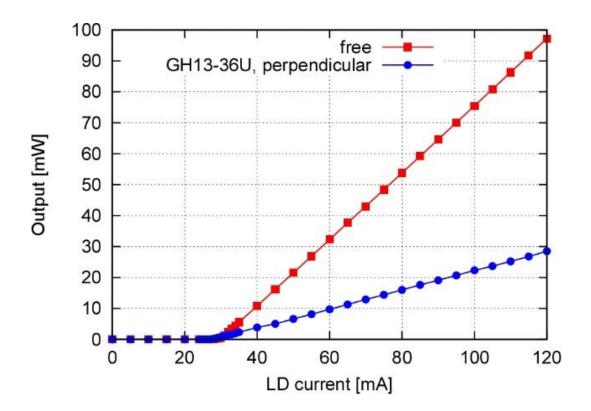


図 3.1.29 LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である(波長 393.8 nm 用 ECDL、回折効率約 50%)

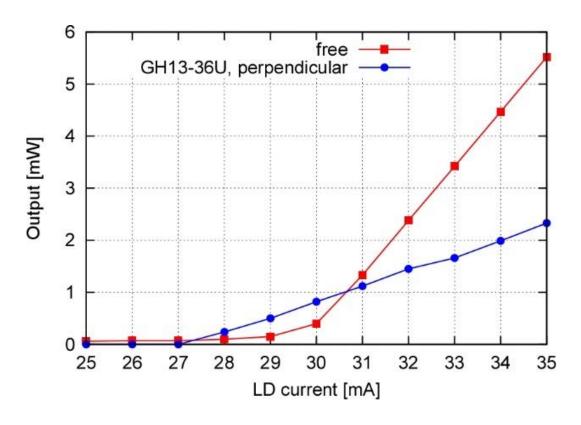


図3.1.30 図3.1.29の横軸25-35 mAを拡大したもの

- 49 - 34

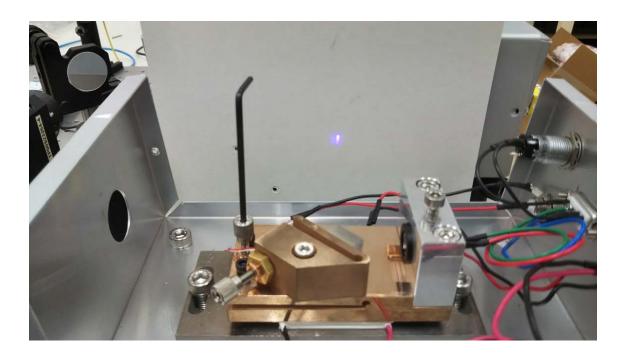


図 3.1.31 フラッシングされていない状態における回折格子の 0 次反射光 (I = 28.5 mA)

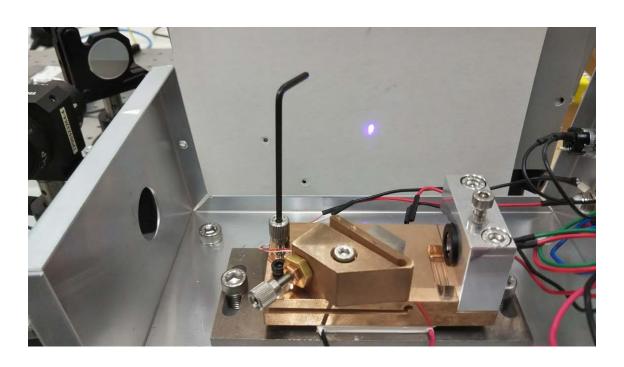


図 3.1.32 フラッシング時における回折格子の 0 次反射光 (I = 28.5 mA)

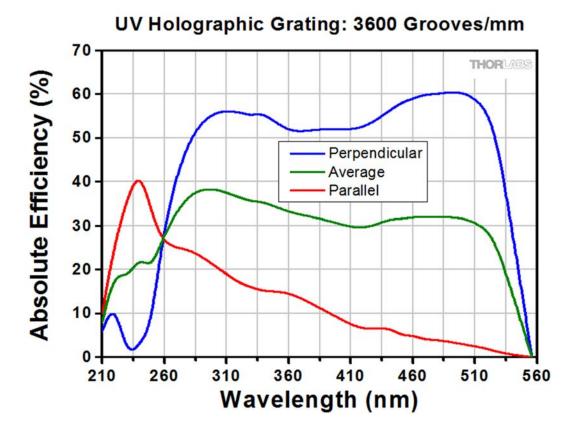


図 3.1.33 波長 393.8 nm 用 ECDL に使用した回折格子 GH13-36U の仕様[10]

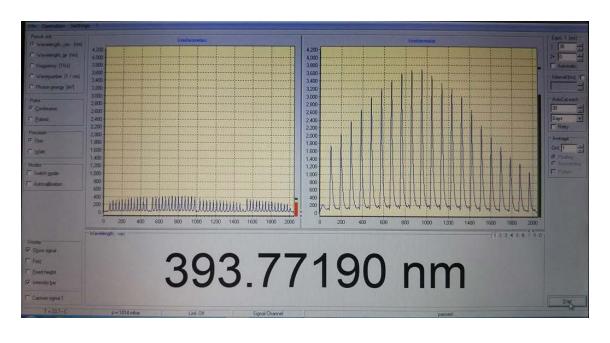


図 3.1.34 共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率約50%)

- 51 - 36

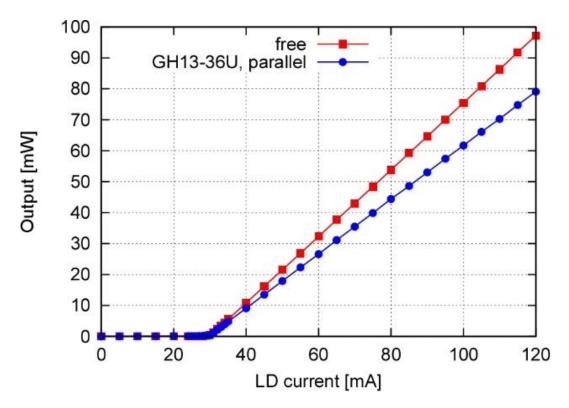


図 3.1.35 LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である(波長 393.8 nm 用 ECDL、回折効率約 10%)

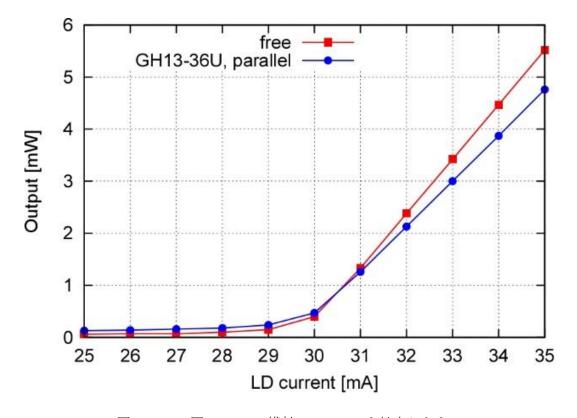


図3.1.36 図3.1.35の横軸25-35 mAを拡大したもの

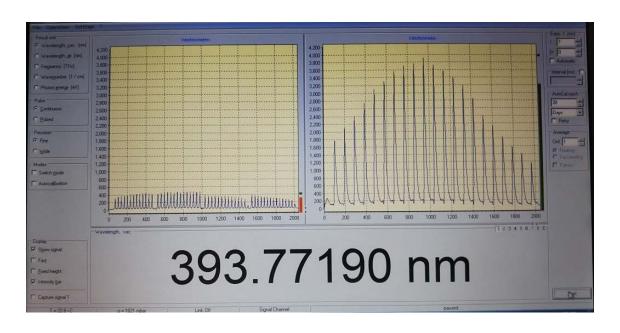


図3.1.37 共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率約10%)



図 3.1.38 製作した波長 426.3 nm 回折格子型 ECDL の写真

- 53 - 38

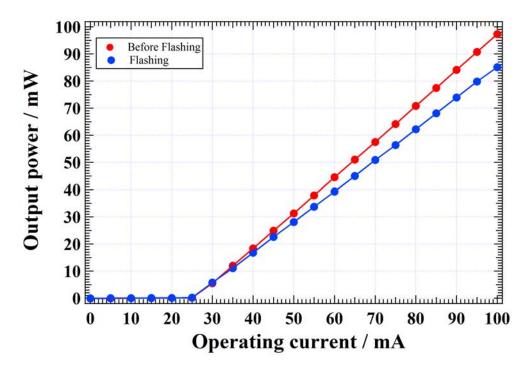


図 3.1.39 LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である(波長 426.3 nm 用 ECDL、回折効率 <10%)

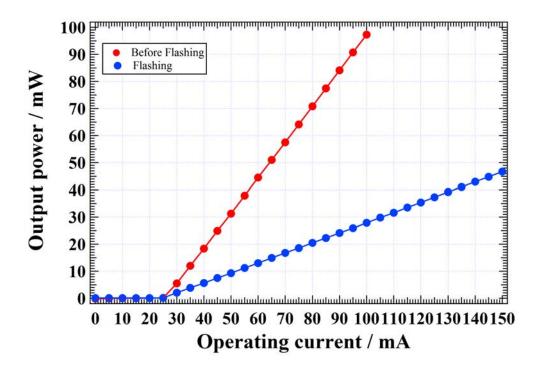


図 3.1.40 LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である(波長 426.3 nm 用 ECDL、回折効率 >50%)

39 - 54 -

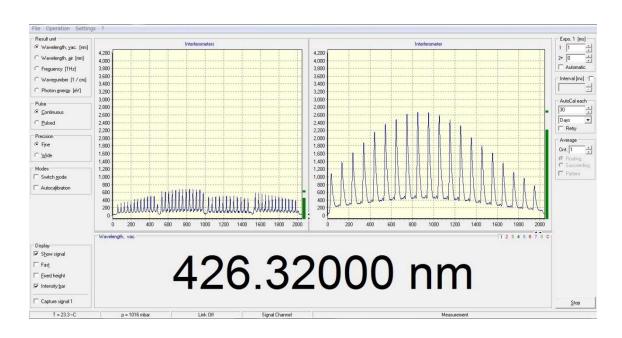


図 3.1.41 共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率>50%)

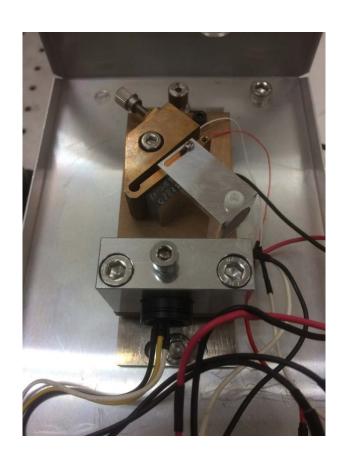


図 3.1.42 製作した波長 487.4 nm 回折格子型 ECDL の写真

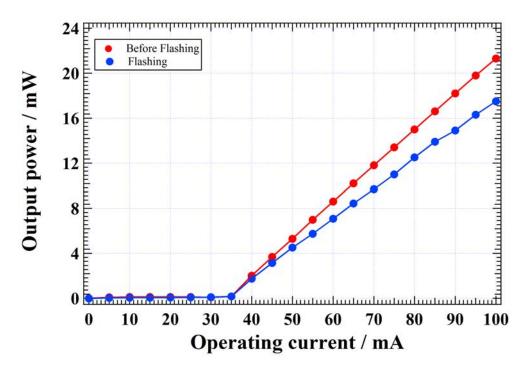


図 3.1.43 LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である(波長 487.4 nm 用 ECDL、回折効率 最小)

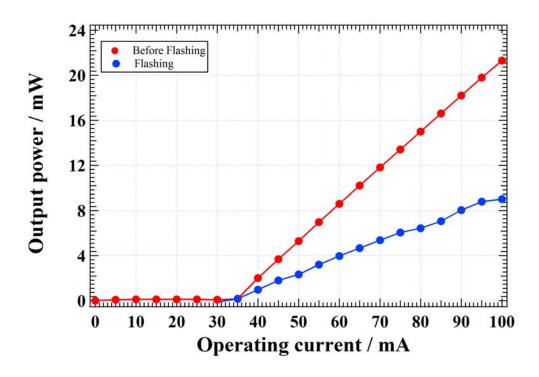


図 3.1.44 LD 電流とレーザー出力の関係:赤は外部共振器なしの状態で、青はフラッシング 調整を行った外部共振器ありの状態である(波長 487.4 nm 用 ECDL、回折効率 最大)

41 - 56 -

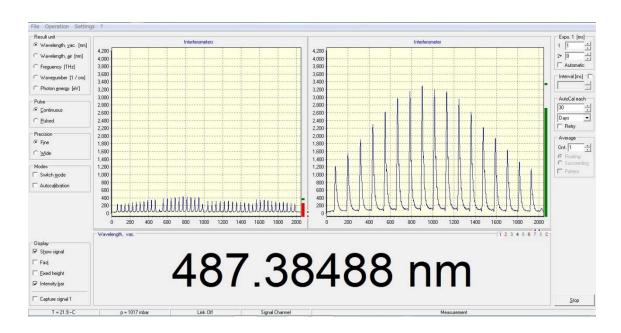


図3.1.45 共鳴波長付近に微調整したときの波長計表示値(回折効率最大)

- 57 - 42

# 3.2 化学処理法の確立 (連携先:日本原子力研究開発機構)

# 3.2.1 共存元素の影響評価

# (1) 試薬の準備

2018年度では、まず主なストロンチウム化合物(炭酸ストロンチウム、塩化ストロンチウム、硝酸ストロンチウム)として用いる試薬(表 3.2.1)を準備した。次に、海水又は実試料で想定される共存元素(ナトリウム、マグネシウム、カルシウム、カリウム、バリウム、鉄、塩素、ジルコニウム)として用いる試薬を準備した(表 3.2.2)。なお、塩素については、塩酸(TAMAPURE-AA-100、多摩化学工業株式会社、7647-01-0)を準備した。

# (2) 実海水試料を用いた共存元素の確認測定

東京大学から提供された海水試料を用いて、海水中に含まれる共存元素及び濃度について誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES、PerkinElmer 社製 Optima8300、図3.2.1)を用いて確認測定を実施した。なお、測定元素は ICP-AES の検出下限値を考慮し、測定可能と考えられるナトリウム、マグネシウム、カルシウム、カリウム、ストロンチウム、バリウムを対象とした。海水試料は1 mlを分取してメスフラスコを用いて 0.5 M 硝酸で 100 ml として、100 分の 1 に希釈した。また、検量線はナトリウム標準液(1000 ppm、和光純薬株式会社、199-10831)、カリウム標準液(1000 ppm、和光純薬株式会社、165-17471)及びその他は表 3.2.2 の試薬を用いて表 3.2.3 のように作製し、内標準としてイットリウム(イットリウム標準液(1000 ppm、和光純薬株式会社、250-00121))をそれぞれ 0.5 ppm となるように添加した。

測定の結果、バリウムにおいては、強度が小さく検出することができなかったが、その他の元素は、ナトリウムが 11289.2~ppm、マグネシウムが 1340.6~ppm、カルシウムが 413.7~ppm、カリウムが 399.5~ppm、ストロンチウムが 7.8~ppm となり、試料中濃度を算出して文献値[11]と比較した結果、ほぼ同程度であった(表 3.2.4)。

#### (3) 試料の測定依頼

(1) で準備したストロンチウム試薬及び共存元素試薬を表 3.2.5 のとおり混合することで、ストロンチウム化合物に共存元素を添加した安定同位体試料①-8を作製し、東京大学に各試料のレーザー共鳴イオン化測定を依頼した。試薬を混合する上で、ナトリウム及びカルシウムについては海水  $20~\mu$ 1 と含有量が等しくなる各標準液の容量が約  $200~\mu$ 1 及び約  $8~\mu$ 1 となる点を考慮した。

# 3.2.2 実試料に適した化学分離手法の検討

2018 年度~2019 年度に実施する 3.2.1 において、ストロンチウム原子化に影響を与える 共存元素を同定した後に、分離手法の検討に用いる海洋試料等の実試料について、未処理の 試料(生試料)及び前処理済み試料(乾燥試料又は灰試料)を準備した。2018年度において は、生試料及び灰試料として、海藻のアラメ、魚のヒラメ及びシラスを準備するとともに、 乾燥試料としては、魚のシラスを準備した。図 3.2.2~図 3.2.4 に採取され、搬入された直 後のアラメ、ヒラメ及びシラス、図 3.2.5 に乾燥試料のシラス、図 3.2.6 に灰試料のシラス を示す。

各試料は茨城県近海にて採取され、採取後の試料はそれぞれの試料に応じた洗浄及び部分け作業を行った。アラメは、まず砂等が、なくなるまでよく水で洗浄し、くきの部分を包丁で取り除いた後、脱水機にかけ水気を切り、フードカッターで裁断した。ヒラメは、表面を水道水でよく洗浄した後、5枚におろして、可食部(肉)、骨、内臓に分けた。そのうち本研究においては可食部のみを用いた。シラスは、洗浄及び部分けは行わず、全量をそのまま生試料とした。

上記のそれぞれの生試料は、次に磁性皿に入れて大型乾燥器(図 3.2.7)で 105℃で約 5 日間乾燥させ、乾燥試料とした。その後、大型電気炉(図 3.2.8)に入れて、約 3 日かけて温度を 450℃まで上げた後、約 2 日間おいて灰試料とした(図 3.2.9)。ヒラメ等の魚試料の場合、乾燥することで、生試料の約  $20\sim25$ %の重量となる。また、灰化することで、生試料の約 1.5%の重量となり、少量の灰で多量の生試料の分析が可能となるとともに、保存も可能となる。得られた灰試料は、それぞれミキサーで粉砕混合して均一化した後、試料とした。

表 3.2.1 ストロンチウム化合物に用いる試薬

<b>武薬</b>	メーカー	製品コード
炭酸ストロンチウム	富士フイルム和光純薬株式会社	190-04175
塩化ストロンチウム	富士フイルム和光純薬株式会社	197-04205
硝酸ストロンチウム	富士フイルム和光純薬株式会社	198-04235
ストロンチウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	199-13871
ストロンチウム標準液(1000 ppm)	林純薬工業株式会社	I2-13

表 3.2.2 海水又は実試料で想定される共存元素として用いる試薬

業	メーカー	製品コード
ナトリウムイオン標準液 (1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	193-09621
ナトリウム標準液 (1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	199-10831
マグネシウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	136-12121
カルシウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	039-16161
カリウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	162-28351
バリウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	027-15321
鉄標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	094-03841
ジルコニウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	263-00891
ジルコニウム標準液(1000 ppm)	富士フイルム和光純薬株式会社	264-02261

表 3.2.3 実海水試料の測定に用いた検量線及び内標準試料

検量線 (ppm)	ブランク	1	2	3	
ナトリウム	0	50	100	200	
マグネシウム	0	10	20	30	
カルシウム	0	1	5	10	
カリウム	0	1	5	10	
ストロンチウム	0	0.01	0.05	0.1	
バリウム	0	0.0001	0.0005	0.001	
内標準 (ppm)					
イットリウム	0. 5	0. 5	0.5	0.5	

# JAEA-Review 2019-027

表 3.2.4 実海水試料中の元素濃度結果と文献値との比較

元素	設定波長	試料中濃度	試料中濃度	文献 [11] の	文献 [11]
九条	nm	ppm	%	質量%	との比
ナトリウム	588. 995	11289. 2	1. 1289	1.0556	1. 07
マグネシウム	279. 077	1340.6	0. 1341	0. 1272	1. 05
カルシウム	317. 933	413. 7	0.0414	0.04	1.04
カリウム	766. 490	399. 5	0. 0399	0.038	1. 05
ストロンチウム	407. 771	7.8	0.0008	0.0008	1.00
バリウム	455. 403				

表 3.2.5 作製した安定同位体試料

試料の名称	ストロンチウム試薬、容量	共存元素試薬(共存元素),容量
試料①	199-13871, 100 μ1	なし
試料②	12-13, 100 μ1	なし
試料③	199–13871, 100 $\mu$ 1	199-10831 (Na), 200 μ1
試料④	199-13871, 100 μ1	136-12121 (Mg), 200 μ1
試料⑤	199–13871, 100 $\mu$ 1	039-16161(Ca), 200 μ1
試料⑥	199-13871, 100 μ1	039-16161(Ca), 8 μ1
試料⑦	199-13871, 100 μ1	162-28351 (K), 200 μ1
試料⑧	199-13871, 100 μ1	264-02261 (Zr), 200 μ1

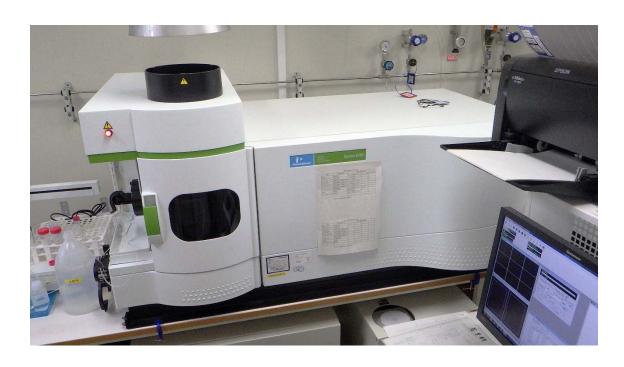


図 3.2.1 海水試料の測定に用いた ICP-AES (Optima8300)



図3.2.2 採取され、搬入された直後の海藻(アラメ)試料



図3.2.3 採取され、搬入された直後の魚(ヒラメ)試料



図3.2.4 採取され、搬入された直後の魚(シラス)試料



図 3.2.5 魚 (シラス) の乾燥試料



図 3.2.6 魚 (シラス) の灰試料



図 3.2.7 大型乾燥器



図 3.2.8 大型電気炉

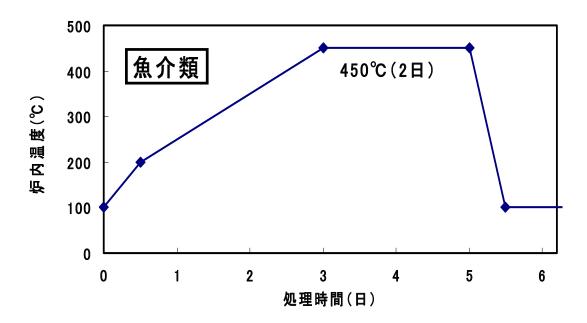


図 3.2.9 魚介類の灰化処理温度

51 - 66 -

# 3.3 研究推進

本研究を推進するにあたり、研究代表者・分担者間で連携を密にして、研究を着実に進めた。 2018 年度については、2019 年 1 月 10 日(木)に進捗状況及び研究計画に関する打合せを東京大学東海キャンパスにて実施し、研究代表者・分担者の 3 名で活発な議論を行った。また、 2019 年 1 月 31 日(木)に中間フォローとして P0 及び事業事務局の担当者に対する進捗状況の 説明を研究代表者が原子力安全研究協会(新橋)にて行った。

本研究の成果発表として、研究代表者が 2019 年 3 月 8 日 (金) に第 17 回同位体科学研究会 (首都大学東京・国際交流会館) に参加し、「レーザー共鳴イオン化を用いた実試料中 <sup>90</sup>Sr 分析の検討」のタイトルでポスター発表を行った。

# 4. 結言

本研究では、半導体レーザー3本を用いたレーザー共鳴イオン化により元素かつ同位体選択的に  $^{90}$ Sr をイオン化する手法に着目し、一般食品の基準値  $^{100}$  Bq/kg 以下の濃度をターゲットとした  $^{90}$ Sr の迅速分析技術を開発する。 $^{3}$  カ年計画の  $^{1}$  年目である  $^{2018}$  年度の成果は下記のとおりである。

# (1) レーザー共鳴イオン化セットアップの構築

#### ①標準試料の準備

東京大学東海キャンパスの管理区域内化学実験室に設置されているフード内で、日本アイソトープ協会の  $^{90}$ Sr 放射能標準溶液 SR005(作業日時点で、容量  $2.5\,\mathrm{ml}$  及び数量  $286.5\,\mathrm{kBq}$ )をチタンフォイル  $2\,\mathrm{th}$  枚に各  $0.2\,\mathrm{ml}$  分取・塗布してホットプレート上で乾燥させた(塗布量は計  $45.8\,\mathrm{kBq}$ )。乾燥後にチタンフォイル  $2\,\mathrm{th}$  を折り畳んで炭素るつぼ内に挿入し、 $^{90}$ Sr のレーザー共鳴イオン化実験を行うまで RI 貯蔵庫のロッカーに保管した。

# ②光学系の開発

Sr 原子の共鳴イオン化スキームとして、460.9 nm-655.2 nm-426.3 nm 及び 689.4 nm -487.4 nm-393.8 nm の 2 通りに着目した。必要なレーザーの中で、波長 460.9 nm 及び 655.2 nm については既に製作されている回折格子型の外部共振器半導体レーザー (ECDL: External Cavity Diode Laser) を使用することとした。本研究では、波長 426.3 nm, 689.4 nm, 487.4 nm, 393.8 nm の 4 本のレーザーについて、波長 689.4 nm は自然幅の狭い遷移であるため安定性の高い干渉フィルター型の ECDL を製作し、他の 3 本は回折格子型の ECDL を製作した。各々の ECDL に取り付けられているピエゾ素子の印加電圧により、各 ECDL の波長を Sr 原子の共鳴励起波長付近となるよう微調整した。

#### (2) 化学処理法の確立(連携先:日本原子力研究開発機構)

# ①共存元素の影響評価

2018年度は主なストロンチウム化合物及び海水又は実試料で想定される共存元素の試薬を準備した。また実海水中の主要元素について濃度を測定し、想定される共存元素の情報を得た。2019年度は、2018年度に作製したストロンチウム化合物及び想定される共存元素を添加した各試料における、レーザー共鳴イオン化測定結果(測定は東京大学が実施)をもとに、ストロンチウム原子蒸気の生成における各成分の影響を評価し、最適なストロンチウム化学形及びストロンチウム原子化に影響を与える共存元素を同定する。

# ②実試料に適した化学分離手法の検討

2018年度は、未処理の試料(生試料)及び前処理済み試料(乾燥試料又は灰試料)の試料を準備した。2019年度は①の影響評価の結果を受けて、それぞれに対して有機物分解、沈殿による濃縮分離、及びストロンチウム樹脂を用いた手法を検討し、ストロンチウム原子化に支障が無く迅速性に優れた化学分離手法を決定する。

# (3) 研究推進

2019年1月10日(木)に進捗状況及び研究計画に関する打合せを東京大学東海キャンパスにて実施し、研究代表者・分担者の3名で活発な議論を行った。また、2019年1月31日(木)に中間フォローとして PO 及び事業事務局の担当者に対する進捗状況の説明を研究代表者が原子力安全研究協会(新橋)にて行った。本研究の成果発表として、第17回同位体科学研究会にて研究代表者がポスター発表を行った。

以上、3 カ年計画の1年目である2018年度(平成30年度)の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

# 参考文献

- [1] https://commons.wikimedia.org/wiki/File:ThermalFissionYield.svg.
- [2] https://www.mhlw.go.jp/shinsai\_jouhou/dl/leaflet\_120329.pdf.
- [3] 古川真, 高貝慶隆, RADIOISOTOPES, **67** (2018) 17-30.
- [4] S. J. Tumey et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 282 (2009) 821-824.
- [5] B. A. Bushaw, B. D. Cannon, Spectrochim. Acta B, **52** (1997) 1839-1854.
- [6] https://www.jrias.or.jp/products/cat3/catalog01.html.
- [7] NIST Atomic Spectra Database: https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database.
- [8] 長谷川秀一, レーザー研究, 41, no.11 (2013) 936-941.
- [9] X. Baillard et al., Opt. Commun. 266 (2006) 609-613.
- [10] https://www.thorlabs.co.jp/newgrouppage9.cfm?objectgroup\_id=25.
- [11] ブライアン・メイスン、松井義人、一国雅巳 訳、一般地球化学、岩波書店 (1970).

55 - 70 -

# 国際単位系(SI)

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本i	単位
巫平里	名称	記号
長 さ	メートル	m
質 量	キログラム	kg
時 間	秒	s
電 流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光 度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
和工里	名称	記号
面	責 平方メートル	m <sup>2</sup>
体		$m^3$
速 さ , 速 月	まメートル毎秒	m/s
加 速 月		$m/s^2$
波	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度,質量密度	ま キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	ま キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比 体 和	責 立方メートル毎キログラム	m³/kg
電流密度	まアンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強き	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> ,濃厚	ま モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質 量 濃 月	ま キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝		cd/m <sup>2</sup>
出 切 半	b) (数字の) 1	1
比透磁率(	<sup>b)</sup> (数字の) 1	1

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

	衣3. 固有の有称と記りて衣されるの間型工事位				
			SI 組立単位		
組立量	名称	記号	他のSI単位による	SI基本単位による	
	10 M	記り	表し方	表し方	
平 面 角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 (p)	m/m	
立 体 角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 (b)	$m^2/m^2$	
周 波 数	(d)	Hz		$s^{-1}$	
力	ニュートン	N		m kg s <sup>-2</sup>	
圧力,応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>	
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>	
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>	
電荷,電気量	クーロン	С		s A	
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>	
静 電 容 量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$	
	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>	
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2$	
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>	
磁 束 密 度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>	
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>	
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	$^{\circ}\!\mathbb{C}$		K	
光	ルーメン	lm	cd sr <sup>(c)</sup>	cd	
	ルクス	lx	$lm/m^2$	m <sup>-2</sup> cd	
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup> ベクレル <sup>(</sup>		Bq		$s^{-1}$	
吸収線量, 比エネルギー分与,	グレイ	G	T/l	$m^2 s^{-2}$	
カーマ	2 24	Gy	J/kg	m s	
線量当量,周辺線量当量,	. (-)	_	7.0	9 -9	
方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>	
	カタール	kat		s <sup>-1</sup> mol	
Charlest Contract and Contract			to the second second second	mm > f t = > >>f f t = >	

- 酸素活性|カタール kat simple

  (a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
  (b)ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、患についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
  (c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。(d)へルソは周朝現象についてのみ、ペクレルは放射性接種の統計的過程についてのみ使用される。(d)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度開局を表す数値はどもらの単位で表しても同じである。(f)放射性核種の放射能(activity referred to a radionuclide)は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。(g)単位シーベルト(PV,2002,70,205)についてはCIPM動告2(CI-2002)を参照。

表 4 単位の中に因有の名称と記号を含むSI組立単位の例

表 4. 単位 0.	)中に固有の名称と記号を含		立の例
	S.	I 組立単位	
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
表 面 張 力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
	ラジアン毎秒	rad/s	m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
角 加 速 度	ラジアン毎秒毎秒	$rad/s^2$	m m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
熱容量,エントロピー		J/K	$m^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2 s^{-2} K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
熱 伝 導 率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s A
	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> s A
電 束 密 度 , 電 気 変 位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> s A
誘 電 率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>-1</sup>
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg⁻¹ s A
吸 収 線 量 率	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> s <sup>-3</sup>
放射 強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m4 m-2 kg s-3=m2 kg s-3
放 射 輝 度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 sr)$	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m³	m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表 5. SI 接頭語						
乗数	名称	記号	乗数	名称	記号	
$10^{24}$	ヨ タ	Y	10 <sup>-1</sup>	デ シ	d	
$10^{21}$	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c	
$10^{18}$	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	₹ <i>リ</i>	m	
$10^{15}$	ペタ	Р	10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ	
$10^{12}$	テラ	Т	10 <sup>-9</sup>	ナーノ	n	
$10^{9}$	ギガ	G	$10^{-12}$	ピコ	p	
$10^{6}$	メガ	M	$10^{-15}$	フェムト	f	
$10^{3}$	丰 口	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a	
0			-01	18		

10-24 ヨクト

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位					
名称	記号	SI 単位による値			
分	min	1 min=60 s			
時	h	1 h =60 min=3600 s			
目	d	1 d=24 h=86 400 s			
度	0	1°=(π/180) rad			
分	,	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad			
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad			
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>			
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>			
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> kg			

da

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で 表される数値が実験的に得られるもの

衣される数胆が夫厥的に待られるもの					
名称	記号	SI 単位で表される数値			
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J			
ダ ル ト ン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg			
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da			
天 文 単 位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m			

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値		
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa		
		1 mmHg≈133.322Pa		
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m		
海里	M	1 M=1852m		
バーン	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>		
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s		
ネ ー パ	Np ¬	CI単位しの粉は的な関係は		
ベル	В	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。		
デシベル	dB ~	, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,		

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダ イ ン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St =1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フ ォ ト	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウエル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$
ガ ウ ス	G	1 G =1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド <sup>(a)</sup>	Oe	1 Oe ≙ (10 <sup>3</sup> /4 π)A m <sup>-1</sup>

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 △ 」 は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称				記号	SI 単位で表される数値			
+	ユ		リ	ſ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq		
$\nu$	ン	卜	ゲ	ン	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$		
ラ				K	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy		
$\nu$				ム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv		
ガ		ン		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$		
フ	æ.		ル	131		1フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m		
メートル系カラット			ット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10 <sup>-4</sup> kg			
卜				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa		
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa		
力	П		IJ	ſ	cal	1 cal=4.1858J(「15℃」カロリー),4.1868J (「IT」カロリー),4.184J(「熱化学」カロリー)		
3	ク		口	ン	μ	1 μ =1μm=10 <sup>-6</sup> m		