

JAERI-Tech
2004-010



JP0450282



共鳴レーザーアブレーションを用いた
超高感度中性子ドシメトリー手法に関する基礎研究
(原子力基礎研究 H12-035)
(委託研究)

2004年3月

井口 哲夫*・渡辺 賢一*・河原林 順*
瓜谷 章*・榎田 洋一*・渡部 和男

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2004

編集兼発行 日本原子力研究所

共鳴レーザーアブレーションを用いた超高感度中性子ドシメトリー手法に関する基礎研究
(原子力基礎研究 H12-035)
(委託研究)

日本原子力研究所東海研究所環境科学部
井口 哲夫*・渡辺 賢一*・河原林 順*・瓜谷 章*・榎田 洋一*・渡部 和男

(2004年1月9日受理)

本研究は、原理的に高感度かつ高選択性を持つレーザー共鳴イオン化分光法（Resonance Ionization Spectroscopy : RIS）のうち、1波長のレーザーで試料元素のアブレーションと共にイオン化を同時に行う「共鳴レーザーアブレーション（Resonant Laser Ablation : RLA）」現象と短パルス多光子イオン化現象を活用することにより、従来の低バックグラウンド放射能測定と同程度のコンパクトな装置規模で、これまで検出が困難であった安定同位体や長半減期核種の測定をベースとする新しい中性子ドシメトリー技術の開発を目的としている。

最新のレーザー技術である短パルス・高繰り返し率で適切な出力強度の得られる波長可変レーザーを用いて、中性子ドシメトリー（極微量核変換生成物の検出・定量）へ RLA 現象を効果的に活用するため、本研究で確立した理論モデルにより最適条件、即ち、高感度性（パルス当たりのレーザー出力×繰り返し率）と元素選択性（レーザー線幅）の両立を図ることのできる条件を探査した。その結果、従来の低繰り返し率レーザーシステムと比べ、約 100 倍検出感度を改善できることを実証した。さらに改良型 RLA-MS システムにより、14 MeV DT 中性子照射を行った高純度 Al 試料中に生成された極微量長半減期核種 ^{26}Al を明瞭に検出することに成功し、本分析手法に基づく中性子ドシメトリー手法の実現可能性を示すことができた。

本研究は、日本原子力研究所の平成 12-14 年度「原子力基礎研究推進制度」の支援により実施した研究成果である。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

* 名古屋大学

Basic Study on Ultra High Sensitive Neutron Dosimetry Technique Based on Resonant Laser Ablation
(JAERI's Nuclear Research Promotion Program, H12-035)
(Contract Research)

Tetsuo IGUCHI*, Kenichi WATANABE*, Jun KAWARABAYASHI*, Akira URITANI*,
Youichi ENOKIDA* and Kazuo WATANABE

Department of Environmental Sciences
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 9, 2004)

A basic study has been made to develop a new neutron dosimetry technique based on direct detection of trace isotopes produced from nuclear reactions with resonant laser ablation (RLA) technique, which combines laser ablation and resonance ionization spectroscopy simultaneously with a single laser.

A theoretical model for RLA has been developed to predict an optimal measurement condition in which both high detection sensitivity and high elemental selectivity can be achieved by making good use of a short-pulse and high-repetition-rate tunable laser. To verify the basic performance under the optimal condition, a compact RLA system comparable to conventional equipments for low background radioactivity measurement has been constructed, including some improvements of a time-of-flight mass spectrometer to enhance the signal-to-noise ratio on isotopic selectivity.

The experiments on detection of a sub-ppb level of long-lived radionuclides ^{26}Al , which were produced by heavy irradiation of 14 MeV neutrons to high-purity Al samples, have demonstrated that the detection sensitivity of the new system can be improved up to 100 times as much as that of the conventional low-repetition-rate laser system and the theoretical model we developed would be sufficiently applicable for practical use of RLA to neutron dosimetry.

Keywords: Neutron Dosimetry, Resonance Ionization Spectroscopy, Laser Ablation, Resonant Laser Ablation, Short-pulse and High-repetition-rate Tunable Laser, Multi-photon Ionization, Long-lived Radionuclide, ^{26}Al , 14MeV Neutrons

This research was supported by the JAERI's Nuclear Research Promotion Program(JANP) in 2000, 2001 and 2002.

* Nagoya University

目 次

1. 緒言	-----	1
2. 共鳴レーザーアブレーションの理論モデル	-----	1
2. 1 レーザーアブレーションによる固体の蒸気化	-----	1
2. 1. 1 $f_{nei}(T_s, N_v)$, $f_{out}(T_s)$, $f_{in}(T_s, N_v)$	-----	2
2. 1. 2 固体表面温度 T_s	-----	3
2. 1. 3 固体表面付近蒸気粒子密度 N_v	-----	3
2. 2 イオン化	-----	4
2. 2. 1 共鳴イオン化	-----	4
2. 2. 2 非共鳴イオン化（熱的イオン化）	-----	4
2. 3 理論モデル計算の妥当性確認実験	-----	5
2. 3. 1 実験体系	-----	5
2. 3. 2 理論モデル計算との比較	-----	5
3. 短パルス・高繰り返し率レーザーシステムの利用	-----	6
3. 1 短パルス・高繰り返し率化による影響	-----	7
3. 1. 1 共鳴イオン化率	-----	7
3. 1. 2 試料表面温度及び試料蒸気の拡散	-----	8
3. 2 短パルス・高繰り返し率レーザーを用いた RLA 質量分析システム	-----	9
3. 2. 1 既存色素レーザーシステム	-----	9
3. 2. 2 新規導入短パルス・高繰り返し率レーザーシステム	-----	10
3. 2. 3 質量分析器	-----	11
3. 2. 4 その他の実験体系	-----	12
4. 共鳴レーザーアブレーションの基礎実験	-----	13
4. 1 共鳴レーザーアブレーション質量分析法による固体分析	-----	13
4. 2 単一ビーム RLA 基礎実験	-----	14
4. 2. 1 質量スペクトル	-----	15
4. 2. 2 出力-波長依存性	-----	15
4. 3 ビーム分割型 RLA による性能改善	-----	15
4. 3. 1 元素選択性	-----	16
4. 3. 2 検出限界濃度	-----	16
4. 4 最適分析条件の検討	-----	17

5. 極微量核変換生成核種検出の実証実験 -----	18
5. 1 高純度 Al 試料に対する 14 MeV 中性子照射 $\sim^{26}\text{Al}$ の生成 -----	18
5. 2 従来型色素レーザー系 RLA-MS システムによる実証実験 -----	18
5. 3 種々の干渉効果とその抑制方法の検討 -----	19
5. 3. 1 非共鳴イオン化成分 -----	19
5. 3. 2 二次イオン成分 -----	20
5. 3. 3 クラスターイオン成分 -----	20
5. 4 新規導入 Ti:S レーザー系 RLA-MS システムによる実証実験 -----	22
6. 結言 -----	23
参考文献 -----	25

Contents

1.	Introduction -----	1
2.	Theoretical Model of Resonant Laser Ablation -----	1
2.1	Vaporization Process by Laser Ablation -----	1
2.1.1	$f_{net}(T_s, N_v)$, $f_{out}(T_s)$, $f_{in}(T_s, N_v)$ -----	2
2.1.2	Solid Surface Temperature: T_s -----	3
2.1.3	Vapor Particle Density near Solid Surface: N_v -----	3
2.2	Ionization Process -----	4
2.2.1	Resonance Ionization Process -----	4
2.2.2	Non-resonance (Thermal) Ionization Process -----	4
2.3	Basic Experiment for Verification of Theoretical Model -----	5
2.3.1	Experimental Setup -----	5
2.3.2	Comparison between Theoretical Calculations and Basic Experiments -----	5
3.	Utilization of Short Pulsed and High-repetition-rate Laser System -----	6
3.1	Influence on Short Pulsed and High-repetition-rate RLA -----	7
3.1.1	Resonance Ionization Efficiency -----	7
3.1.2	Sample Surface Temperature and Vapor Diffusion -----	8
3.2	RLA Mass Spectrometry System Using Short Pulsed and High-repetition-rate Laser -----	9
3.2.1	Conventional Dye Laser System -----	9
3.2.2	New Short-pulsed and High-repetition-rate Laser System -----	10
3.2.3	Mass Spectrometer -----	11
3.2.4	Other Experimental Setup -----	12
4.	Basic Experiment of Resonant Laser Ablation -----	13
4.1	Solid Sample Analysis by Resonant Laser Ablation Mass Spectrometry -----	13
4.2	Basic Experiment of Single Beam RLA -----	14
4.2.1	Mass Spectrum -----	15
4.2.2	Laser Power and Wavelength Dependence -----	15
4.3	Improvement on Performance Using Beam Split RLA -----	15
4.3.1	Elemental Selectivity -----	16
4.3.2	Detection Limit Concentration -----	16
4.4	Discussion on Optimal Condition for Measurement -----	17

5.	Demonstration for Detection of Trace Nuclides Produced by Nuclear Reactions -----	18
5.1	Irradiation of 14 MeV Neutrons to High-purity Al : Production of ^{26}Al -----	18
5.2	Demonstration Using Conventional Dye Laser RLA-MS System -----	18
5.3	Discussion on Various Interference Effects and Its Suppression Procedure -----	19
5.3.1	Non-Resonance Ionization in LA -----	19
5.3.2	Secondary Ionization on Reflector Electrode -----	20
5.3.3	Cluster Ions -----	20
5.4	Demonstration Using New Ti: Sapphire Laser RLA-MS System -----	22
6.	Conclusions -----	23
	References -----	25

1. 緒 言

本研究は、原理的に高感度かつ高選択性を持つレーザー共鳴イオン化分光法（Resonance Ionization Spectroscopy : RIS）^{1),2)}のうち、1波長のレーザーで試料元素のアブレーションと共にイオン化を同時に行う「共鳴レーザーアブレーション（Resonant Laser Ablation : RLA）」現象³⁾⁻⁵⁾と短パルス多光子イオン化現象を活用することにより、従来の低バックグラウンド放射能測定と同程度のコンパクトな装置規模で、これまで検出が困難であった安定同位体や長半減期核種の測定をベースとする新しい中性子ドシメトリー技術の開発を目的としている。

本研究では、主として、最新のレーザー技術である短パルス・高繰り返し率で適切な出力強度の得られる波長可変レーザーを用いて、中性子ドシメトリー（極微量核変換生成物の検出・定量）へ RLA 現象を効果的に活用するための最適条件の探索、即ち、高感度性（パルス当たりのレーザー出力×繰り返し率）と元素（および同位体）選択性（レーザー線幅等）の両立実証と、その最適条件を予測できる理論モデルを確立することを目指した。

具体的には、まず、サブナノ秒(100 ps)パルス幅・1kHz 繰り返し率の可視域波長可変チタンサファイアレーザーシステムを既設 RIS システムへ組み込み、実験・理論の両面から、SUS ターゲット中の Cu 検出を対象とした最適分析条件（高い検出感度と元素選択性の両立条件）の探索と検出限界の評価を行った。これらの結果をもとに、実験システムの改良を行い、他の元素や同位体測定（本研究では、低放射化材である Al を選定）への適用を念頭に置いた基礎実験データの充実および理論モデルの改善・高度化を図った。最終的には、14MeV 中性子の重照射により高純度 Al 試料中に実際に生成された超長半減期放射性核種 ²⁶Al（半減期：7.2×10⁵ 年）の検出実証を試み、本 RLA 手法の中性子ドシメトリー技術への適用性を評価した。

なお、本研究の意義は、中性子ドシメトリーにおける技術革新の1つを担うとともに、従来法（放射化箔、熱蛍光線量計、固体飛跡検出器など）と組み合わせることで、広範かつ多様な中性子場へ適切に対応できる中性子ドシメトリー技術体系の拡張・再構築が見込まれることにある。

2. 共鳴レーザーアブレーションの理論モデル

共鳴レーザーアブレーション(RLA)は、レーザーアブレーションと共にイオン化法とを組み合せた手法である。本モデルでは、共鳴レーザーアブレーション現象の素過程として、レーザーアブレーションによる固体の蒸気化過程とイオン化過程を別々に考える。イオン化過程については、さらに細かく、共鳴イオン化過程、非共鳴イオン化（熱的イオン化）過程に分けて考える。そこで本章では、それぞれの素過程について詳しく述べる。

2. 1 レーザーアブレーションによる固体の蒸気化

Q スイッチレーザーなど高 Flux レーザーによるレーザーアブレーションの過程を考えるとき、recoil pressure（レーザーパルスの初期に生成された蒸気による試料表面側への圧力）の効果を考慮に入れる必要がある⁶⁾。この効果を考慮するために、固相と気相の界面での粒子の流れのバラ

ンスを考える必要がある。蒸発により固体表面から放出される正味の粒子数は次のように定義される。(Fig. 1)

$$f_{net}(T_s, N_v) = f_{out}(T_s) - f_{in}(T_s, N_v) \quad (1)$$

ここで、 $f_{net}(T_s, N_v)$ は蒸発により固体表面から放出される正味の粒子数、 $f_{out}(T_s)$ は固体表面から放出される粒子数、 $f_{in}(T_s, N_v)$ は固体表面付近から固体中に流れ込む蒸気の粒子数であり T_s は固体表面温度、 N_v は固体表面付近蒸気粒子数密度である。

従って、 $f_{net}(T_s, N_v)$ は固体表面温度と固体表面付近蒸気粒子数密度により決まる。2. 1. 1 で f_{net} 、 f_{out} 、 f_{in} について、2. 1. 2 で固体表面温度 T について、2. 1. 3 で固体表面付近蒸気粒子密度 N_v について述べる。

2. 1. 1 $f_{net}(T_s, N_v)$ 、 $f_{out}(T_s)$ 、 $f_{in}(T_s, N_v)$

$f_{out}(T_s)$ 、 $f_{in}(T_s, N_v)$ を考えるためにあたって、温度 T 、個数密度 N の蒸気がある面の単位面積内を単位時間当たりに通過する個数 $f(T, N)$ について考える必要がある。速度 $v_x \sim v_x + dv_x$ 、 $v_y \sim v_y + dv_y$ 、 $v_z \sim v_z + dv_z$ を持つ単位体積当たりの粒子数（分子数）は Maxwell-Boltzmann の速度分布則より次のように表される⁷⁾。

$$n(\mathbf{v}) dv_x dv_y dv_z = N \left(\frac{m}{2\pi kT} \right)^{\frac{3}{2}} \exp \left[-\frac{m}{2kT} (v_x^2 + v_y^2 + v_z^2) \right] dv_x dv_y dv_z \quad (2)$$

ここで、 N 、 m 、 k 、 T はそれぞれ粒子数密度、粒子の質量、ボルツマン定数、温度である。そして、温度 T 、個数密度 N の蒸気がある面の単位面積内を単位時間内に z 軸正方向に通過する粒子数 $f(T, N)$ は次のようにになる。(Fig. 2)

$$f(T, N) = \int_{-\infty}^{\infty} dv_x \int_{-\infty}^{\infty} dv_y \int_0^{\infty} dv_z n(\mathbf{v}) v_z = N \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \quad (3)$$

温度 T_s の固体表面から放出される粒子数を計算する。蒸発により固体表面から放出される粒子数を計算するためには、固体表面と飽和蒸気との平衡状態を考える必要がある。気相と液相・固相とが平衡状態にあるとき、固体表面から放出される粒子数と固体表面付近から固体中に流れ込む蒸気の粒子数は等しい。従って、温度 T_s の固体表面から放出される粒子数を計算することと、温度 T_s の飽和蒸気の粒子が固体中に流れ込む数を計算することは等価であるといえる。つまり、温度 T_s の固体表面を温度 T_s の飽和蒸気と置き換えることができるということである。

温度 T_s の固体表面から放出される粒子数 $f_{out}(T_s)$ は、温度 T_s の飽和蒸気の粒子が固体中に流れ込む数に等しいので、次のようになる。

$$f_{out}(T_s) = N_s(T_s) \sqrt{\frac{kT_s}{2\pi m}} \quad (4)$$

ここで、 $N_s(T)$ は温度 T の飽和蒸気圧密度であり、

$$N_s(T_s) = \frac{p_s(T_s)}{kT_s} \quad (5)$$

$$p_s(T_s) = A_0 \exp\left(-\frac{L}{RT_s}\right) \quad (6)$$

ここで、 $p_s(T_s)$ は温度 T_s の飽和蒸気圧、 L 、 R は1モル当たりの気化熱、気体定数である。

固体表面付近での蒸気密度が N_v （気体運動論により固体表面付近の蒸気の動きを考えることにより求まる）の時、固体表面付近から固体中に流れ込む蒸気の粒子数 $f_{in}(T)$ は次のようになる。

$$f_{in}(T_s, N_v) = N_v \sqrt{\frac{kT_s}{2\pi m}} \quad (7)$$

当然温度 T_s は固体表面温度と等しい。

式(1)、(4)、(7)より、蒸発により固体表面から放出される正味の粒子数 $f_{net}(T_s)$ は固体表面温度 T_s と固体表面付近蒸気粒子密度 N_v より求めることができる。

2. 1. 2 固体表面温度 T_s

固体表面付近の温度は次に示す熱伝導方程式を用いて計算できる⁸⁾。

$$c\rho \frac{\partial T(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \kappa \nabla^2 T(\mathbf{r},t) + q_{in}(\mathbf{r},t) \quad (8)$$

ここで、 c 、 ρ 、 κ 、 T はそれぞれ比熱、密度、熱伝導率、温度である。 $q_{in}(\mathbf{r},t)$ は固体中でレーザーエネルギーが吸収されて位置 \mathbf{r} で発生するエネルギーである。

$$q_{in}(\mathbf{r},t) = (1 - R) I_0(t) \alpha \exp(-\alpha x) \quad (9)$$

ここで、 R 、 $I_0(t)$ 、 α 、 x はそれぞれレーザー光の固体表面での反射率、レーザーのエネルギーFlux、レーザー光の固体表面での吸収定数、位置 \mathbf{r} の表面からの距離である。

2. 1. 3 固体表面付近蒸気粒子密度 N_v

次に、 N_v を計算するため固体表面付近の蒸気の動きを考える。気体運動論によると気体の運動は次の方程式で記述できる⁹⁾。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \rho \mathbf{v} = 0 \quad (10)$$

$$\frac{\partial(\rho \mathbf{v})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) \mathbf{v} = -\nabla p \quad (11)$$

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \nabla \cdot E \mathbf{v} = -\nabla \cdot p \mathbf{v} \quad (12)$$

ここで、 ρ 、 \mathbf{v} 、 E 、 p は気体の密度、速度ベクトル、単位体積当たりの全エネルギー、気体の圧力である。 E と p には次のような関係がある。

$$\begin{aligned} E &= \frac{1}{2} \rho \mathbf{v}^2 + e \\ p &= (\gamma - 1)e \end{aligned} \quad (13)$$

ここで、 e 、 γ は単位体積当たりの内部エネルギー、比熱比 (C_p/C_v) である。式(10)、(11)、(12)はそれぞれ連続の式、運動量保存の式、エネルギー保存の式である。これらの式を解くことにより各点での ρ 、 \mathbf{v} 、 e が得られる。固体表面付近の蒸気密度 N_v は ρ より求められる。

2. 2 イオン化

RLA の素過程のうち、もう一つの重要な過程として、イオン化過程がある。イオン化過程は共鳴イオン化過程と非共鳴イオン化過程の 2 つに分けられる。

2. 2. 1 共鳴イオン化

本システムで行える共鳴イオン化スキームとして、2 光子共鳴吸収により励起、他のもう一つの光子吸収によりイオン化されるという (2+1) 光子共鳴イオン化スキームが挙げられる。このようなイオン化スキームの場合、共鳴イオン化のイオン化率は次に示すような 2 準位系に対するレート方程式を解くことにより求めることができる。(Fig. 3)

$$\frac{d\rho_g}{dt} = -\sigma_{2a} N^2 \rho_g + \sigma_{2a} N^2 \rho_e + \Gamma \rho_e \quad (14)$$

$$\frac{d\rho_e}{dt} = \sigma_{2a} N^2 \rho_g - \sigma_{2a} N^2 \rho_e - \Gamma \rho_e - \sigma_i N \rho_e \quad (15)$$

$$\frac{d\rho_i}{dt} = \sigma_i N \rho_e \quad (16)$$

ここで、 ρ_g 、 ρ_e 、 ρ_i はそれぞれ、注目元素が基底準位、励起準位、イオン化準位にある確率である。また σ_{2a} 、 σ_i 、 Γ 、 N は 2 光子吸収断面積、励起準位からのイオン化断面積、誘導放出率 (励起準位の寿命の逆数)、光子 Flux である。ただし、このような遷移の速さは、レーザーの周波数程度であり、 10^{-15} sec 程度と考えられるので、これより十分長い時間スケールの時のみ、このレート方程式が適用できる。

また σ_{2a} の入射レーザーの周波数に対する依存性は、共鳴周波数 ν_0 を中心とし半値幅 Γ (励起準位の寿命の逆数) を持つローレンツ分布で記述でき、次式のようになる。

$$L(\nu) d\nu = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma/2}{(\nu - \nu_0)^2 + \Gamma^2/4} d\nu \quad (17)$$

2. 2. 2 非共鳴イオン化 (熱的イオン化)

一方、このモデルの中では非共鳴イオン化過程を熱的イオン化過程としている。熱的イオン化は Saha-Langmuir の式で表され、蒸気として放出される粒子中のイオンと中性原子の比は次のように表される。(Fig. 4)¹⁰⁾

$$\frac{n_i}{n_a} = \frac{\omega_i}{\omega_a} \exp\left[-\frac{(I - \phi)e}{kT}\right] \quad (18)$$

ここで、 n_i 、 n_a は放出イオン数、中性原子数であり、 ω_i 、 ω_a はイオン、中性原子の統計的重率である。また I 、 ϕ 、 k 、 T はイオン化ポテンシャル、仕事関数、ボルツマン定数、温度である。

2. 3 理論モデル計算の妥当性確認実験

前節までに述べた共鳴レーザープレーションの理論モデルの妥当性を確認するための基礎実験を行った。

2. 3. 1 実験体系

RLA-MS による基礎実験の実験体系を Fig. 5 に示す。本実験システムの基本構成は、レーザープレーション (LA) 及び共鳴イオン化 (RIS) 用レーザーシステム、質量分析器、計測系から成る。なお、本章の実験では、名古屋大学に設置された RLA-MS システムを用いている。

RIS 用波長可変レーザーとして、Nd:YAG レーザー励起色素レーザーを用いている。色素レーザーには LAMBDA PHISIK 社の SCAN MATE を用いている。励起用の Nd:YAG レーザーには、色素レーザー内に設置できる小型の LAMBDA PHISIK 社の LPY150 を用いている。線幅は 4.2 GHz (0.14 cm⁻¹)、出力は数 mJ 程度である。LA 用レーザーとしては色素レーザー励起用 Nd:YAG レーザーの第 2 高調波 (532 nm) を用いている。また RIS 及び LA 用レーザーの出力は各々可変アッテネータにより調節することができる。

質量分析器には J. M. Jordan 社製の TOF-MS を用いている。試料は Fig. 6 のように TOF-MS のイオン引き抜き領域に支持台によって設置した。

共鳴イオン化スキームとしては、単色のレーザーで実行可能な (2+1) 光子イオン化スキームを用いた。種々の元素に対するイオン化スキームの例を Table 1^{11),12)} に示す。

2. 3. 2 理論モデル計算との比較

RLA-MS において、元素選択性を低下させる主な要因は、アプレーション時に熱的にイオン化される非共鳴イオン化過程である。注目元素は中性原子としてアプレーションされ、その後共鳴イオン化過程によりイオン化されるが、この非共鳴イオン化過程では、注目元素以外の元素もイオン化されてしまう。このため、非共鳴イオン化過程は元素選択性を低下させる要因となる。以上のことより、アプレーション時に生成される中性原子収量とイオン収量は、元素選択性を決める上で非常に重要なものとなる。そこで、特にアプレーションのしきいエネルギー (レーザーパワー) 付近での中性原子収量及びイオン収量のレーザーパワー依存性を実験的に調べ、モデル計算との比較を行った。

モデル計算との比較を行う前に、RLA-MS の基礎特性を調べるために、試料に Kovar 合金 (Ni: 29 %, Co: 17 %, Mg: < 0.1 %, Al: < 0.1 %, Fe: Balance) を用い、その主要構成元素である、Fe、Ni、Co

のイオン収量の共鳴イオン化用レーザー波長依存性を調べ、その結果を Fig. 7～Fig. 9 に示す。続いてモデル計算との比較として、主要構成元素である、Fe、Ni、Co の中性原子・イオン収量のアブレーションレーザーパワー依存性を調べ、その結果を Fig. 10～Fig. 12 に結果を示す。丸 (○)・四角 (□) はイオン・中性原子収量の実験結果、破線・実線はイオン・中性原子収量のモデル計算結果を示す。アブレーションの条件を一定にするため、アブレーション用レーザーには波長固定の Nd:YAG レーザーの第 2 次高調波を用い、ここで生成された中性原子を共鳴イオン化することにより中性原子収量を求めた。ここで、各元素に対して Table 1 に示した共鳴イオン化スキームを用いた。Fe のイオン収量を除けば、実験結果とモデル計算結果とが良い一致を示していることから、少なくともアブレーションのしきいエネルギー付近では、本計算モデルは妥当であることが示せた。Fe のイオン収量について、一致しない理由としては、アブレーションに用いている Nd:YAG レーザーの第 2 次高調波の 532.1 nm という波長が、Fe の $3d^7(^4F)4s\ a^5F_3$ から $3d^6(^5D)4s(^6D)5s\ e^5D_2$ への 2 光子共鳴励起の 531.833 nm に近いため、アブレーションレーザーにより共鳴イオン化過程が起こっていることが考えられる。この過程は、モデル計算では考慮されておらず、そのため実験値がモデル計算値よりも大きくなっていると考えられる。

このアブレーションにより中性原子が放出されるしきいエネルギーは、固体試料の沸点、蒸発熱、熱伝導率、比熱等の熱的性質に依存するため、同じ固体試料からの中性原子放出しきいエネルギーはすべての元素に対して等しい。一方、イオン放出のしきいエネルギーは、上記熱的性質に加え各元素のイオン化エネルギーに依存するため、そのしきいエネルギーは中性原子よりも高く、かつ元素によって異なる。ここで、最適なアブレーションレーザーエネルギーについて考えると、当然、中性原子放出しきいエネルギーより高いことが必要であり、かつ、上述したように、アブレーション時の非共鳴イオン化過程は望まれない非注目元素をもイオン化してしまうため、イオン放出しきいエネルギーより低いことが必要となる。以上のことより、本モデル計算によりアブレーションの最適レーザーエネルギーを見積もることができると見える。

3. 短パルス・高繰り返し率レーザーシステムの利用

本研究では、原理的に高感度かつ高選択性を持つレーザー共鳴イオン化分光法 (Resonance Ionization Spectroscopy : RIS) と試料元素のレーザーアブレーションを 1 波長のレーザーで同時に用いる共鳴レーザーアブレーション (Resonant Laser Ablation : RLA) に、最新の短パルス・高繰り返し率レーザーシステムを組み合わせることで、従来の低バックグラウンド放射能測定と同程度のコンパクトな装置規模で、これまで検出が困難であった安定同位体や長半減期核種の測定をベースとする新しい中性子ドシメトリー技術の開発を目的としている。

本章では、まず、3. 1 で高繰り返し率化に伴う影響について議論し、3. 2 では高繰り返し率レーザーを用いた共鳴レーザーアブレーション質量分析システムについて概論する。

3. 1 短パルス・高繰り返し率化による影響

3. 1. 1 共鳴イオン化率

一般に、レーザーを高繰り返し率化することで 1 パルス当たりのレーザー出力が下がる。RLA-MS では、レーザー出力が下がるとアブレーションが行えなくなるため、パルス幅を短くし出力密度を高くする必要がある。この短パルス化により、一般にレーザー線幅は広くなる傾向があり（不確定性理論により、時間幅を狭くすると、エネルギーの不確定性、すなわちレーザー線幅が大きくなる）、これは共鳴イオン化過程において、イオン化効率を下げる可能性がある。

そこで、短パルス化及び線幅の広帯域化が共鳴イオン化率に与える影響についての検討を行う。共鳴イオン化率は第 2 章でも述べたように、次のようなレート方程式を解くことにより求めることができる。

$$\frac{d\rho_g}{dt} = -\sigma_{2a} N^2 \rho_g + \sigma_{2a} N^2 \rho_e + \Gamma \rho_e \quad (19)$$

$$\frac{d\rho_e}{dt} = \sigma_{2a} N^2 \rho_g - \sigma_{2a} N^2 \rho_e - \Gamma \rho_e - \sigma_i N \rho_e \quad (20)$$

$$\frac{d\rho_i}{dt} = \sigma_i N \rho_e \quad (21)$$

ここで、

σ_{2a} : 2 光子遷移断面積

σ_i : イオン化断面積

Γ : 自然放出の割合(励起準位 e の寿命の逆数)

ρ : 各準位の存在確率 (g : 基底準位、 e : 励起準位、 i : イオン)

N : 光子数密度

である。ただし、このような遷移の速さは、レーザーの周波数程度であり、 10^{-15} sec 程度と考えられるので、これより十分長い時間スケールの時のみ、このレート方程式が適用できる。また σ_{2a} の入射レーザーの周波数に対する依存性は、共鳴周波数 ν_0 を中心とし半値幅 Γ (励起準位の寿命の逆数) を持つローレンツ分布で記述できる。

従来用いていた色素レーザーシステムは、パルス幅 : 10 ns、レーザー線幅 : 4.5 GHz (0.15 cm^{-1}) であり、本章で用いる高繰り返し率 Ti: Sapphire レーザーシステムは、パルス幅 : 100 ps、レーザー線幅 : 10.4 GHz (0.35 cm^{-1}) である。

ここで、共鳴イオン化の各パラメータが整備されている Cu を例にとってイオン化率について検討を行う。Cu の共鳴イオン化の各パラメータは、 $\sigma_{2a} : 5.0 \times 10^{-42} \text{ cm}^4 \text{s}$ 、 $\sigma_i : 1.8 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 、励起準位の寿命 22 nsec である。共鳴吸収周波数(波長)の自然幅は励起準位の寿命の逆数であり、45 MHz となり、レーザー線幅と比べると非常に小さい。 σ_{2a} はレーザーの周波数に依存するので、これをレーザー周波数で畳み込み積分することにより実効的な σ_{2a} を求めることができる。実効的な σ_{2a} を、従来の色素レーザーシステムと高繰り返し率 Ti: Sapphire レーザーシステムについて求めると、それぞれ、 $5.19 \times 10^{-44} \text{ cm}^4 \text{s}$ 、 $2.28 \times 10^{-44} \text{ cm}^4 \text{s}$ となる。

次に、話を簡単にするため、レート方程式を単純化する。自然放出は励起準位の寿命が 22 nsec であり、パルス幅が 10 nsec 以下であることを考え、自然放出は起こらないとする。そしてまず、

基底準位と励起準位が平衡に達するまでの時間について考える。

$$\frac{d\rho_g}{dt} = -\sigma_{2a} N^2 \rho_g + \sigma_{2a} N^2 \rho_e \quad (22)$$

$$\frac{d\rho_e}{dt} = \sigma_{2a} N^2 \rho_g - \sigma_{2a} N^2 \rho_e \quad (23)$$

上式のように基底・励起準位のみの遷移を考える。これを $\rho_g(0)=1$ 、 $\rho_e(0)=0$ で解くと、

$$\rho_g = \frac{1}{2} \left(1 + \exp[-2\sigma_{2a} N^2 t] \right) \quad (24)$$

$$\rho_e = \frac{1}{2} \left(1 - \exp[-2\sigma_{2a} N^2 t] \right) \quad (25)$$

となる。これより、基底・励起準位が平衡に達するまでの時定数は $1/2\sigma_{2a}N^2$ となる。これを、現在使用している代表的なレーザー出力 : 100 μJ、スポット径 : 50 μm で計算すると、パルス幅 : 10 ns (10^{-8} sec)、 σ_{2a} : 5.19×10^{-44} cm⁴s の色素レーザーシステムでは 1.1×10^{-10} sec で、パルス幅 : 100 ps (10^{-10} sec)、 σ_{2a} : 2.28×10^{-44} cm⁴s の高繰り返し率 Ti: Sapphire レーザーシステムでは 2.5×10^{-14} sec となり、両者ともパルス幅に比べて十分小さく、ほぼ瞬間に平衡に達すると考えられる。

次に基底・励起準位が瞬間に平衡に達すると仮定すると、 ρ_g 、 ρ_e は次のようにおける。

$$\rho_g = \rho_e = \frac{1 - \rho_i}{2} \quad (26)$$

これを(3-3)式に代入して解くと、

$$\rho_i = 1 - \exp\left[-\frac{\sigma_i N}{2} t\right] \quad (27)$$

となる。これより、イオン化率はパルス幅によらず、光子フルエンス Nt によって決定することが分かる。共鳴イオン化率はスポット径 : 50 μm で計算すると、レーザー出力 : 10 μJ で 0.23、50 μJ で 0.73、100 μJ で 0.93 となり 100 μJ でほぼイオン化は飽和することがわかる。

以上のことより、従来の色素レーザーシステムと、高繰り返し率 Ti: Sapphire レーザーシステムの両者においては、レーザー線幅、パルス幅には依らず、むしろ光子フルエンス、つまり 1 パルス当たりのレーザー出力に依存することが分かり、スポット径 : 50 μm、レーザー出力 : 100 μJ では、共鳴イオン化率がほぼ飽和することが分かった。

3. 1. 2 試料表面温度及び試料蒸気の拡散

高繰り返し率化により、パルス間隔が狭まるため、各々のレーザーパルスを独立と考えて良いかといった問題も生じてくる。特に、アブレーションによって加熱された試料表面が、次のパルスまでに十分冷却されない、或いは、アブレーションで生じた試料蒸気が、次のパルスまでに十分拡散しない、と言った状況である場合、各々のレーザーパルスを独立と考えることはできないため、この点について検討を行う。

まず、理論モデル計算により求めた試料表面温度の時間変化を Fig. 13 に示す。計算時間の都合

上 10^7 sec までしか計算していないが、この結果を外挿することにより、高繰り返し率 Ti: Sapphire レーザーシステムのパルス間隔である 10^3 sec では、室温である 300K まで冷却されると予想される。

次に、同じく理論モデル計算により求めた、試料表面近傍圧力の時間変化を Fig. 14 に示す。こちらも 10^7 sec までしか計算していないが、 10^3 sec まで外挿すると、試料表面近傍圧力が 10^{-6} Torr まで下がることが予想され、試料蒸気は十分に拡散すると予想される。

以上の理論モデル計算の結果から、アブレーションによって加熱された試料表面は、次のパルスまでには十分冷却され、また、アブレーションで生じた試料蒸気は、次のパルスまでには十分拡散すると予想されたため、各々のレーザーパルスを独立と扱っても問題ないと予想される。

以上の検討結果をまとめると、レーザーを高繰り返し率化することにより生じると予想される弊害は、あまり問題にはならず、各々のレーザーパルスを独立に考えても良いため、高繰り返し率化することで、単純に単位時間当たりの検出限界濃度が向上できると期待される。

3. 2 短パルス・高繰り返し率レーザーを用いた RLA 質量分析システム

共鳴レーザーアブレーション質量分析システムは、主として、共鳴イオン化およびアブレーション用のレーザーシステムと質量分析器で構成される。本研究では、特に、レーザーシステムに関して、既設の比較的繰り返し率の低い波長可変色素レーザーシステムに替えて、短パルス・高繰り返し率レーザーシステムを新規導入し、本手法のさらなる高感度化を図る。また、高繰り返し率化に伴い、飛行時間型質量分析器では分析が困難となることも予想されるため、高繰り返し率に於いても適用可能な四重極質量分析器の本システムへの適用性評価も行う。本システムの全体図を Fig. 15 に示す。

本章では、まずレーザーシステムとして、比較のため 3. 2. 1において、既設の色素レーザーシステムについて、さらに 3. 2. 2 で新規導入短パルス・高繰り返し率レーザーシステムについて述べ、3. 2. 3 で質量分析器について、反射型飛行時間型質量分析器と四重極質量分析器について述べる。また、3. 2. 4 ではその他の実験体系について述べる。

3. 2. 1 既存色素レーザーシステム

本システムは、励起用レーザーに繰り返し率 10 Hz の Nd: YAG レーザーを用いた波長可変色素レーザーシステムである。

① Nd: YAG レーザー

Nd: YAG レーザーとは、YAG (yttrium alminum garnet: $Y_3Al_5O_{12}$) 結晶に、活性イオンとして Nd^{3+} をドープした固体レーザーで、 Nd^{3+} イオンのエネルギー準位を利用してレーザー動作する。また、その基本波の発振波長は 1064nm である。

本システムでは LAMBDA PHYSIK 社製の LPY 150 を用いている。Q スイッチパルス発振で使

用し、そのパルス幅は 10 nsec、発振周波数は 10 Hz である。色素レーザー励起用には、主に波長 355 nm の第 3 高調波を用い、その出力はおよそ 50 mJ/pulse である。レーザーのビーム径は約 10 mm、線幅は 0.1 cm⁻¹ 以下である。また、波長 532 nm の第 2 高調波をレーザープレーション用に用いることができる。

② 色素レーザー

色素レーザーは代表的な波長可変レーザーの一つであり、レーザー媒質である色素を変えることによって、発振可能な波長領域も変わる。また、色素を励起するときの準位は発振線の上準位より高くする必要があるため、励起レーザーの波長より長波長の光しか発振させることができない。また、多重干渉を利用した光学素子であるエタロンを用いることで、レーザー線幅の狭帯化が可能である。狭帯化と出力効率は反比例の関係にあり、エタロンの分解能を上げて線幅を狭くすればするほど出力効率は低下する。

本システムでは、LAMBDA PHISIK 社 SCAN MATE を用いており、上述の YAG レーザーにより励起され発振する。色素を変えることにより波長 400~800 nm で発振可能である。レーザー線幅は 463 nm に於いて、通常 4.6 GHz (0.16 cm⁻¹)、線幅の狭帯化を行うエタロン使用時で 0.98 GHz (0.033 cm⁻¹) である。レーザーのビーム径は約 2 mm である。また、出力効率は、460 nm に於いてエタロン未使用時で励起レーザーの約 10 % であるので、レーザー出力は約 5 mJ/pulse である。

3. 2. 2 新規導入短パルス・高繰り返し率レーザーシステム

本研究において導入した短パルス (100 ps)・高繰り返し率 (1 kHz) Ti: sapphire レーザーシステムを Fig. 16 に示す。本システムは、LD 励起 CW グリーン固体レーザーによって励起された 100 ps モードロック Ti:サファイアレーザーの出力を、Nd: YLF レーザーによって励起される kHz Ti:サファイア再生増幅器で再生増幅し、これを SHG 結晶に入射し 2 次高調波を発生させ、パルス幅 : 100 ps、繰り返し率 : 10 Hz、出力 : ~数 10 μJ/pulse、波長 : ~460 nm のレーザー光を得るものである。各レーザー装置の仕様を以下に述べる。

LD 励起 CW グリーン固体レーザー

(Spectra-Physics 製 Millennia Vs)

連続発振

波長 : 532 nm (Nd: YVO₄ の基本波 1064 nm を LBO 結晶により 2 次高調波発生)

出力 : 5 W

100 ps モードロック Ti:サファイアレーザー

(Spectra-Physics 製 Tsunami)

パルス幅 : 100 ps

繰り返し率 : 82 MHz

波長 : 920~940 nm (複屈折フィルターにより波長制御)

出力 : 660 mW (=8.05 nJ/pulse) at 915 nm

Nd: YLF レーザー

(Spectra-Physics 製 Evolution)

パルス幅 : 50 ns

繰り返し率 : 1 kHz

波長 : 527 nm (Nd: YLF の基本波 1053 nm を LBO 結晶により 2 次高調波発生)

出力 : 6 W (=6 mJ/pulse)

kHz Ti: サファイア再生増幅器

(Spectra-Physics 製 spitfire)

パルス幅 : 100 ps

繰り返し率 : 82 MHz

出力 : 660 mW (=8.05 nJ/pulse) at 915 nm

を入力時

出力 : 400 mW (=400 μJ/pulse) at 915 nm

SHG 結晶

KDP 結晶

変換効率 : 25 % at 915 nm

出力 : 400 mW (=400 μJ/pulse) at 915 nm を入力時

出力 : 100 mW (=100 μJ/pulse) at 457.5 nm

平成 12 年度に、短パルスチタンサファイアレーザーを、平成 13 年度に、高繰り返し率チタンサファイア再生増幅器を導入した。

3. 2. 3 質量分析器

本システムの質量分析部である反射型飛行時間型質量分析器について述べる。

反射型飛行時間型質量分析器

飛行時間型 (TOF) 質量分析器は、他の電場、磁場を用いた偏向型質量分析器に比べ、個々の質量数に対するイオン信号効率は小さい。しかし、偏向型質量分析器では質量スペクトルを得るために磁場や電場をスキャンする必要があるのに対し、TOF の場合は一度にすべてのスペクトルを得ることができる。つまり、多質量同時計測可能な方式である。また、作業が電場調節のみで簡便であること、その精度が装置の機械的な精度より、信号処理系の精度によるところが大きく、改善が容易であることなどの利点が挙げられる。

TOF 質量分析器は、イオン引き抜き領域、イオンに運動エネルギーを与える加速領域、質量により同位体を分離するための無電場の自由飛行領域、イオン検出器で構成される。また、イオン

反射鏡（リフレクター）付きの、長い自由飛行領域を有し、高い質量分解能を持つものを、反射型 TOF 質量分析器という (Fig. 17)。

直線型 TOF 質量分析器では、イオン化位置の空間的な広がりに由来する飛行時間の差を、2段加速により収束させるように電場を調節することができる。これを定性的に説明する。イオン検出器から遠い位置で生成されたイオンは、近い位置で生成されたイオンより引き出し電場及び加速電場領域に長く滞在するので、より大きな速度をもって自由空間へ入射されるため、飛行距離の差が打ち消されることになる。電場をうまく調節することにより、イオンの検出器に到着する時間差を収束させることができる。

反射型 TOF 質量分析器では、さらにイオンの初期エネルギー分布に由来する飛行時間差をイオン反射鏡中の減速領域と反射領域で補正することができ、分解能がさらに向上する。これを定性的に説明する。大きな運動エネルギーを持つイオンはより長時間イオン反射鏡中に滞在し、小さな運動エネルギーのイオンは短時間で反射されるため、運動エネルギーの差が打ち消され、検出器位置に到着する時間差を収束させることができる。イオン反射鏡の形状は、通常円形状にくり貫かれた数～数十枚の電極板を等間隔に重ね合わせ、抵抗分割したものが用いられる。

本システムでは R. M. Jordan 社製の反射型質量分析器を用いている。それぞれの電極の印可電圧は、Fig. 17 に示す通りである。イオン検出器には、応答速度の速いマイクロチャンネルプレート (R. M. Jordan 社製：以下 MCP) を用いている。この MCP は有感部径 40 mm であり、3 枚の MCP を重ね合わせた Z-GAP 型と呼ばれるもので、 2.5×10^8 (-2800 V 印可時) という高い利得を持ち、非常に良い検出感度を持つ。また、真空排気系として、イオン化チャンバー部に 520 l/s、TOF 部に 210 l/s の排気速度を持つターボポンプを持ち、チャンバー内を 10^{-7} Torr 以下の高真空に保つことができる。

信号処理系は、MCP で得られる電気信号をデジタルオシロスコープで取得し、GPIB インターフェースにより PC にデータ転送し、PC により解析を行う。レーザーを高繰り返し率化する場合、このデータ転送速度が間に合わなくなるため、現状では、TOF 型では質量分析が困難になることが予想される。

3. 2. 4 その他の実験体系

その他の実験体系として、光学系及び試料について述べる。

信号処理系

高繰り返し率レーザーシステムへ変更したことに伴い、信号処理系として従来用いていたデジタルオシロスコープ (Sony Tektronics 社製、TDS-420A) では TOF 質量スペクトル波形を 1 kHz で取り込むことができないため、取り込み速度の速い横河電機製の PC ベース計測システム WE7000 に波形測定 (オシロスコープ/ディジタイザ) モジュール WE7311 (1 Gs/s, 400 MHz, 8 bit) を組み込んだものを使用した。これにより、Record Length: 1000 points で従来～5 波形/s であった取り込み速度が～100 波形/s と約 20 向上した。しかしながら、従来型に比べノイズを多く拾うという欠点がある。ノイズ抑制のために、データ取得後にオフラインでパルス計測をすることとした。オ

フラインでのパルス計測法は以下の通りである。

オフラインパルス計測法

- ① ある点において、前後各 3 点のデータと比較し、そこが最大値であれば、この点をピーク値と判断。
- ② その点のピーク値が、ベースラインの揺らぎの標準偏差の 10 倍を超えたとき、その時間にイオンを検出したとし、その時間チャンネルに 1 カウント加算。
- ③ これを全時間チャンネルで行い、全波形分積算する。

この、オフラインパルス計測はで定量性を保ちつつ測定が可能なのは、イオンが検出される頻度が非常に少ない場合のみであるが、極微量核変換生成物は検出される確率が非常に低いのでオフラインパルス計測法を適用できる。

光学系

各レーザーシステムより出力されるレーザービームは、アブレーション用及び共鳴イオン化用の 2 本に分けられており、アブレーションによって蒸気化する中性原子を効率的に共鳴イオン化できるよう、共鳴イオン化用レーザーは Fig. 15 に示すように光学 Delay により、アブレーション用レーザーから遅らせている。また、アブレーションと共にイオン化を別々に制御できるように、各々のレーザーに可変アッテネータを持つ。

試料

Fig. 18 に示すように、アブレーション用レーザーは試料面に対し垂直に照射され、試料表面の極近傍を共鳴イオン化用レーザーが通過している。

また、試料を電気的に浮かせておくと、試料表面で高密度にイオン化が行われるため、試料中に電荷蓄積が起こり、試料付近の電場が歪むために、得られる信号が不安定になる。これを解消するため、試料自体にも電圧を印可できるようになっている。

4. 共鳴レーザーアブレーションの基礎実験

本章では、まず 4. 1 で共鳴レーザーアブレーション質量分析法について簡単に述べ、それから共鳴レーザーアブレーション (RLA) の基礎実験について述べる。新規導入した短パルス (100 ps)・高繰り返し率 (1 kHz) Ti:サファイアレーザーシステムを用いた RLA 基礎実験として、4. 2 で単一ビーム RLA による実験を、4. 3 ではビーム分割型 RLA による性能改善の検討を行い、4. 4 では最適分析条件の検討を行う。

4. 1 共鳴レーザーアブレーション質量分析法による固体分析

レーザー共鳴イオン化分光法 (Resonance Ionization Spectroscopy: RIS) は、基本的には気体試料に対する分析手法であり、固体試料分析へ適用するためには試料の蒸気化過程が必要不可欠である。この蒸気化としては、一般的には、オープンによる蒸気化法が用いられている。また、共鳴

イオン化と同様にレーザーを用いるというレーザーアブレーション法 (Laser Ablation: LA) を採用する手法もあるが、この両者とも、一般的には蒸気化位置と共にイオン化レーザースポットの距離が長く、蒸気化した試料原子がレーザービーム中に入り共鳴イオン化される割合はおよそ距離の二乗に反比例して減少するため、蒸気化した試料原子のほとんどを無駄にすることとなり非常に効率が悪く、共鳴イオン化分光の高感度という特徴を活かしきれていない。

本研究では、レーザーアブレーション法を共鳴イオン化法の蒸気化法として用いるものなかで、特に、この両者を同一のレーザーでほぼ同時に行う手法を共鳴レーザーアブレーション (Resonant Laser Ablation: RLA)³⁾⁻⁵⁾ という手法に着目し、これをイオン源として用いる質量分析法である共鳴レーザーアブレーション質量分析法 (Resonant Laser Ablation Mass Spectrometry: RLA-MS) に基づく固体分析手法の開発を行った。この手法の特徴としては、アブレーションと共鳴イオン化で同一のレーザーを使うため、複数基レーザーを用意する必要が無く 1 基のレーザーシステムのみで行え、システムの簡素化を図ることができること、共鳴波長のレーザーでアブレーションを行うため、1 フレーザーパルスの中でアブレーションして蒸気化してきた試料をすぐさま共鳴イオン化でき、非常に効率が良いということが挙げられる。また、システムの簡素化という観点から、共鳴イオン化スキームには単色のものが用いられ、なかでも可視光でほとんど全ての元素に対して実行可能な(2+1)光子イオン化スキーム (2 光子共鳴吸収により励起し、さらにもう 1 つの光子でイオン化を行う) が良く用いられる。

RLA には、一本のレーザービームをそのまま固体表面に照射する单一ビーム型 RLA と、レーザービームをアブレーション用、共鳴イオン化用の二本に分けるビーム分割型 RLA というものがある。单一ビーム型 RLA は簡便であるが、アブレーション時に生成される非共鳴（熱的）イオン化の影響が大きい。一方、分割型 RLA は、二本のレーザービームの位置あわせが必要であるが、アブレーション用、共鳴イオン化用のレーザー出力を独立に制御できるため、アブレーションによる熱的イオン化の影響を抑えることができる。本論文では主にこの分割型 RLA を用いる。

RLA-MS の特徴をまとめると次のようになる。

- ・ LA と RIS に同一のレーザーを用いるため比較的シンプルな測定システムを構築できる。
- ・ RIS の元素選択性により、同重体干渉を受けない。
- ・ LA のレーザー出力・スポット径を調節し、かつ、RIS レーザーを LA スポットの極近傍に通過させることで、試料蒸気を効率的にイオン化できるため、分析に必要な試料は極微量で高感度な測定ができる。

RLA-MS はまだ開発段階であり、具体的な適用例はほとんど無く、具体的な適用例の提案及びその適用性評価を行うことが望まれている。

4. 2 単一ビーム RLA 基礎実験

本節では、新規導入した短パルス・高繰り返し率 Ti:サファイアレーザーを用いた場合の RLA の諸特性（波長依存、出力依存性）を調べ、单一ビーム RLA による従来型色素レーザー系との性能比較を行う。

また、本節では RLA の特性を調べるため、RIS の諸特性（イオン化スキーム、共鳴吸収断面積、

イオン化断面積等) がわかっている Cu を検出対象とし、試料としては Cu を不純物として 2.7 % 含んでいるステンレス鋼 (SUS-303A、Mn : 2.1%、Cr : 19.2%、Ni : 8.0%、Cu : 2.7%、Fe : Balance) を用いた。

また、共鳴イオン化スキームとして、従来型色素レーザーによって確認されている Fig. 19 のような (2+1) 光子イオン化スキームを用いた。

4. 2. 1 質量スペクトル

新規導入した短パルス・高繰り返し率 Ti:サファイアレーザーを用いた時の典型的な質量スペクトルを Fig. 20 に示す。単一ビーム RLA であり、波長も共鳴波長では無いので、信号のほとんどがアブレーション時に非共鳴的(熱的)に生成されたイオンによるものである。非共鳴的には不純物の Cu はほとんど検出されていないことがわかる。

4. 2. 2 出力-波長依存性

新規導入レーザーシステムで共鳴イオン化現象を確認するためには、イオン収量の波長依存性を調べればよい。しかし、新規導入レーザーシステムでは、出力を一定に保ちつつ波長を変化させることは非常に困難である。そのため、Cu の共鳴波長及び非共鳴波長における、イオン収量のレーザー出力依存性を調べ、その結果を Fig. 21 の a), b) に示す。ここで、試料表面でのレーザースポット径はレンズにより $48.7 \mu\text{m}$ に絞られている。また、Fig. 22 の a), b) において Fe, Cu イオン収量の出力依存性をいくつかの波長に対して示す。Cu の共鳴遷移波長 ($3d^{10}4s^2 S_{1/2} \rightarrow 3d^{10}5s^2 S_{1/2}$) 463.636 nm において Cu イオン収量のみが増加していることがわかる。これを分かり易くするために、Fig. 22 の出力依存の結果を適切な近似関数(今回は三次関数)によりそれぞれ近似し、ある出力でのイオン収量の波長依存性を求めたものを Fig. 23 の a), b) に示す。これより、Cu の共鳴波長で Cu のイオン収量が顕著に増加していることがわかる。ここで、非共鳴成分である Cr, Fe のイオン収量を見てみると波長によるばらつきが大きい。これは、本レーザーシステムでは波長によりレーザーのパルス幅を一定に保つことが困難で、同じパルスエネルギー [J/cm^2] でも出力密度 [W/cm^2] が異なることが原因である。これを、補正する意味で Fig. 24 に Cr イオンに対する Cu イオンの比の波長依存性を示す。これを見ても、共鳴波長において Cu のイオン収量が増加していることは明らかである。ここで、Cu の共鳴波長における質量スペクトルを Fig. 25 に示すが、この図からも共鳴波長において Cu のみイオン収量が顕著に増加していることがわかる。これにより、新規導入短パルス・高繰り返し率 Ti:サファイアレーザーシステムにおいて、RLA 現象が確認できたといえる。

4. 3 ビーム分割型 RLA による性能改善

前節において、単一ビーム RLA 方式で、RLA 現象の確認に成功した。しかし、4.1 節で述べたようにビーム分割型 RLA 方式を用いれば、検出限界濃度及び元素選択性が改善されると予想できる。本節では、新規導入 Ti:S レーザー系によるビーム分割型 RLA 方式を試み、基本性能である元素選択性及び検出限界濃度の評価を行い、従来型の色素レーザー系 RLA-MS システムとの性能比

較を行う。

4. 3. 1 元素選択性

性能評価実験のための試料として kovar 合金 (Ni: 29 %、Co: 17 %、Mg: < 0.1 %、Al: < 0.1%、Fe: Balance) を用いた。これは、核融合炉及び加速器の構造材の低放射化材料として期待されている Al に D-T 14 MeV 中性子を照射することによって生成される長半減期核種 ^{26}Al の検出を想定したものであり、この中に不純物として含まれる Al を検出対象とし、同じく不純物として含まれる Mg を妨害元素とし、元素選択性を妨害成分である Mg をどれだけ抑えられるかという指標として扱うために次のように定義した。ここで用いた共鳴イオン化スキームは、Al の $3s^2(1S)3p$ $^2\text{P}^o_{3/2} \rightarrow 3s^2(1S)5f$ $^2\text{F}^o_{5/2,7/2}$ の 2 光子共鳴遷移 (457.467 nm) を用いた(2+1)光子イオン化スキームである。

$$\text{元素選択性} = \frac{\text{Mgイオン収量}}{\text{Alイオン収量}} \quad (28)$$

元素選択性を評価するため、共鳴イオン化用レーザー出力を一定にし、元素選択性を決める要因がアブレーション時に生成される非共鳴イオン化成分であるので、Al 及び Mg イオン収量のアブレーションレーザー出力依存性を調べ、その結果を Fig. 26 に示す。また、元素選択性 (Mg/Al) のアブレーションレーザー出力依存性を Fig. 27 に示す。このときの RIS レーザー出力は $5.7 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ である。アブレーションレーザー出力を上げるために、非共鳴イオン化成分が多くなるために元素選択性が悪くなっていくことがわかる。また、 $2.1 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 以下のパワーでは 10^{-3} 以下の元素選択性 (Mg/Al) が得られることがわかる。

4. 3. 2 検出限界濃度

もう一つの重要な基本性能である検出限界濃度について評価する。検出限界濃度とは、注目している元素の検出可能な最低濃度であり、次のように定義される。

$$\text{検出限界濃度} = \frac{C_{\text{int}}}{N_{\text{detect}}} \quad (29)$$

ここで、 C_{int} は測定試料中の注目元素の濃度、 N_{detect} はその測定条件での検出される注目元素イオン数である。この定義に基づき Fig. 26 より求めたレーザー 1 パルス当たりの Al に対する検出限界濃度のアブレーションレーザーパワー依存性を Fig. 28 に示す。この出力範囲においてレーザー 1 パルス当たり 1 ppm 程度の検出限界濃度が得られている。

また、これはレーザー 1 パルス当たりの検出限界濃度であり、多数のレーザーパルス分のデータを蓄積することで、式(29)からもわかるように N_{detect} が増えるため、検出限界濃度を向上することができる。そこで、検出限界濃度を単位時間当たりに書き換え、元素選択性を併せたもの Fig. 29 に示す。比較のために、従来型（色素レーザー系）RLA-MS による結果を Fig. 30 に示す。従来型 RLA-MS との比較には、元素選択性が等しくなる条件での検出限界濃度を用いた。ここでは、 ^{26}Al 検出に必要な元素選択性 (Mg/Al) が 10^{-3} での比較を行う。新規導入 Ti:S レーザー系 RLA-MS では元素選択性 10^{-3} を得られる LA レーザー出力範囲内 ($2.1 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 以下) での単位時間当たりの検出限界濃度は 3 ppb/s である。従来型では、元素選択性が 10^{-3} となる LA レーザー出力範

りの検出限界濃度は 3 ppb/s である。従来型では、元素選択性が 10^3 以下となる LA レーザー出力範囲 ($5.3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 以下) での単位時間当たりの検出限界濃度は 300 ppb/s である。新規導入 Ti:S レーザー系 (パルス幅 : 100 ps、繰り返し率 : 1 kHz) システムは、従来型色素レーザー系 (パルス幅 : 10 ns、繰り返し率 : 10 Hz) システムと比べ単位時間当たりの検出限界濃度が 100 倍向上していることが分かる。これは、従来の色素レーザーシステムを高繰り返し率 Ti: Sapphire レーザーシステムに置き換える (パルス幅 : 10 ns → 100 ps、繰り返し率 : 10 Hz → 1 kHz)、アブレーション及び共鳴イオン化の特性はそれほど変わらず、各々パルスで独立であると考えても良いことを意味し、繰り返し率を上げれば上げるほど単位時間当たりの検出限界濃度を向上できるということが確認された。

4. 4 最適分析条件の検討

ビーム分割型 RLA 方式では、アブレーションされた試料蒸気が拡散する時間分 RIS 用レーザーを LA 用に対して時間的に遅らせる必要がある。本節では、特にビーム分割型 RLA 方式での、最適な RIS レーザー遅延時間と検出限界濃度の更なる向上についての検討を行う。

RIS レーザー遅延時間の検討

1 基のレーザー装置で行うビーム分割型 RLA 方式の場合、ビーム分割後の RIS レーザーの光路長を LA 用より長く取ることで、その時間遅れを作り出す。試料表面とビームの中心間の距離は、RIS レーザーが試料に当たらないようするためにビーム径 (50 μm) 程度は離す必要がある。この程度試料蒸気が拡散するのに要する時間は数 10~100 nsec であり、これだけの時間遅れを作るのに必要な光路長は 20~30 m である。レーザービームのパス (経路) の安定性等を考慮に入れると、この光路長を短くすることが望まれる。そこで、RLA モデル計算コードにより、試料表面より 50 μm の地点へ試料蒸気が到達する時間のレーザー出力依存性を計算した結果を、色素レーザー系については Fig. 31、新規導入レーザー系については Fig. 32 に示す。レーザー出力を上げることで、蒸気温度つまりは蒸気速度が上がるため蒸気到達時間が短くなっている、ある程度で飽和傾向を示すが、新規導入レーザー系の方が、色素レーザー系に比べ蒸気到達時間が短いことが分かる。これは、短時間に蒸発が起こるので、試料表面付近の蒸気密度つまり圧力が非常に高くなり蒸発が抑制され、それによりレーザーエネルギーが蒸発で逃げることなく吸収され、表面温度つまりは蒸気温度が高くなるため、蒸気到達時間が短くなっていると考えられる。また、短時間に蒸気が放出されるために、蒸気濃度勾配がきつく拡散速度が速いために、蒸気到達時間が短くなると考えられる。以上のことより、新規導入 Ti: サファイアレーザー系は、ビーム分割型 RLA 方式において、RIS レーザーの光路長を短くできるという点で有利であるといえる。また、Fig. 31、Fig. 32 より最適な RIS レーザー遅延時間は色素レーザー系では約 40 nsec、Ti: サファイアレーザー系では約 10 nsec であり、これは光路長にしてそれぞれ 12 m、3 m である。つまり、パルス幅を 10 nsec から 100 psec に短パルス化することによって光路長を約 1/4 にすることができるといえる。

5. 極微量核変換生成核種検出の実証実験

本章では、共鳴レーザーアブレーション質量分析法（RLA-MS）に基づく中性子ドシメトリー手法の確立への第一歩として、核変換によって生成される微量長半減期核種を RLA-MS により検出することを目的とする。例として、核融合炉及び加速器の構造材の低放射化材料として期待されている Al に D-T 14 MeV 中性子を照射することによって生成される長半減期核種 ^{26}Al 検出を取りあげる。

5. 1 高純度 Al 試料に対する 14 MeV 中性子照射 $\sim^{26}\text{Al}$ の生成～

日本原子力研究所の核融合中性子源施設（FNS）の第 2 ターゲット室内にて高純度 Al 試料（99.999 %）に対し、14 MeV D-T 中性子ビームの重照射を行った。高純度 Al 試料（ $\phi 1 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 、9.2 mg）に照射された中性子フルエンスは $1.0 \times 10^{18} / \text{cm}^2$ 程度であり、14 MeV 中性子に対する $^{27}\text{Al}(n,2n)$ 反応の断面積が $6.0 \times 10^{-3} \text{ barn}$ であるので（Fig. 33）、生成された ^{26}Al の濃度は 6 ppb であると予想される。色素レーザー系での Al に対する検出限界濃度は 1 ppm/shot であるため、1000 shots (1.7 min) 程度で検出可能と推測される。中性子照射した Al 試料を照射終了後十分（2 年程度）冷却し、HPGe 検出器により 84 時間測定した結果を Fig. 34 に示す。不純物の放射化により生成した ^{57}Co ($T_{1/2}: 271 \text{ d}, 122 \text{ keV}, 136 \text{ keV}$)、 ^{58}Co ($T_{1/2}: 70.8 \text{ d}, 811 \text{ keV}$)、 ^{54}Mn ($T_{1/2}: 312.5 \text{ d}, 835 \text{ keV}$) からの γ 線とともに ^{26}Al からの 1809 keV の γ 線が検出されている。この HP-Ge 検出器による γ 線分析により見積もられた ^{26}Al の放射能は $4.6 \times 10^{-2} \text{ Bq}$ ($^{26}\text{Al}: 1.5 \times 10^{12} \text{ 個}$) であり、 ^{26}Al 濃度は $7.4 \pm 0.7 \text{ ppb}$ であった。予想された生成 ^{26}Al 濃度は 6 ppb であったが、断面積及びフルエンスの不確定性を考慮に入れれば妥当な所であるといえる。この試料には、不純物として 2 ppm の Mg が含まれており、この安定同位体である ^{26}Mg (同位体存在比 11.01%) が ^{26}Al 検出を行う場合には同重体干渉を引き起こす。この試料に含まれる $^{26}\text{Mg}/^{26}\text{Al}$ は 30 程度であり、 ^{26}Al の信号が ^{26}Mg と比べ十分大きく（数 10 倍）なるようにするために、RLA-MS に要求される元素選択性 (Mg/Al) は余裕をみて 10^3 以下といえる。

従来の放射能測定法では ^{26}Al の検出に要した測定時間は 84 時間 (3×10^5 秒) 程度であり、検出はできるもののかなりの時間がかかるといえる。

5. 2 従来型色素レーザー系 RLA-MS システムによる実証実験

14 MeV DT 中性子照射を行った高純度 Al 試料中に生成された極微量長半減期核種 ^{26}Al の検出を色素レーザーシステムによる RLA-MS で試みた。共鳴イオン化スキームとして (2+1) 光子イオン化スキーム (Al の $3s^2(1S)3p\ ^2P_{1/2} \rightarrow 3s^2(1S)3p\ ^2P_{1/2}$ 遷移) を用いた。得られた質量スペクトルを Fig. 35 に示す。これは 4×10^4 波形分積算したデータであり、RIS レーザー出力は $1.1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ である。ここで、用いた反射型 TOF 質量分析器の電極構造を Fig. 36 に示す。この時の TOF 質量分析器の各電極への印加電圧を Table 2 に示す。

この結果より、Al の共鳴波長の場合のみ、m/z=19.2、20.6 等にピーク (m/z=19.2、20.6 をそれ

ぞれピーク A、B とする) が現れている。また、 ^{27}Al のピークの低 m/z 側にテールを引いており、 ^{26}Al を確認することが出来なかった。極微量元素分析を行う場合には、これらの干渉効果に埋もれてしまうために対象核種の検出が困難となることがわかった。

5. 3 種々の干渉効果とその抑制方法の検討

ここでは、種々の干渉効果についての考察とその抑制方法について検討を行う。

5. 3. 1 非共鳴イオン化成分

RLA-MS における干渉効果のうち最も主要なものとして挙げられるのが、アブレーション時に熱的にイオン化される非共鳴イオン化成分である。これらは、共鳴イオン化過程を経ないでイオン化するため、注目元素以外もイオン化してしまい、RLA の特徴の一つである元素選択性を損なう原因となる。

この非共鳴イオン化成分を抑制する方法として、我々は次の方法に着目した。RLA-MS ではアブレーション (Laser Ablation: LA) 用レーザーと共鳴イオン化 (Resonance Ionization Spectroscopy: RIS) 用レーザーのスポット位置がわずかに異なるため、これと試料付近の電位分布を利用し、共鳴イオン化成分と非共鳴イオン化成分 (LA 時に生成) を弁別できる可能性がある。

試料近傍の電位分布の一例を Fig. 37 に示すが、LA と RIS 用レーザーのスポット位置がわずかに異なるため、それにより生成されたイオンは各々違うイオン軌道をとることがわかる。この軌道の違いを利用して、Fig. 36 の偏向電極印加電圧 VXY を調整することで、RIS 用レーザーで生成されたもののみイオン検出器である MCP で検出されるように調整することができる。ここでは、以上の方法で LA 時に生成される非共鳴イオン化成分の抑制を行う際の最適な条件に関して、基礎実験及びモンテカルロ法によるシミュレーション計算を通して検討を行う。

まずレーザースポット位置による影響を調べる。非共鳴イオン化成分抑制効果を評価するため、ここでは試料として kovar 合金 (Ni: 29 %、Co: 17 %、Mg: < 0.1 %、Al: < 0.1%、Fe: Balance) を用い、この中の Co を注目元素として基礎実験を行った。試料の中心部及び端付近 (試料中心から 0.74 mm、Fig. 38 参照) にレーザーを照射した場合の RIS 及び LA レーザーによるイオン収量 (それぞれ Signal 及び Noise 成分) の偏向電極印加電圧 VXY に対する依存性を Fig. 39、Fig. 40 に示す。この時の TOF 質量分析器の各電極への印加電圧を Table 3 に示す。

ここで a)、b) はそれぞれモンテカルロシミュレーション計算及び基礎実験の結果である。シミュレーション計算、基礎実験の結果はともに、試料の端付近のほうが LA・RIS 成分を良く弁別できていることが分かる。これは、試料中心より端付近のほうが LA・RIS レーザースポットにおける電場ベクトルの差が大きいことを示している。

次に、TOF 質量分析器の加速電極印加電圧 VA1 を 3950 V、4000 V、4050 V と変化させたときの RIS 及び LA レーザーによるイオン収量 (それぞれ Signal 及び Noise 成分) の偏向電極印加電圧 VXY に対する依存性を Fig. 41、Fig. 42、Fig. 43 に示す。ここでも a)、b) はそれぞれモンテカルロシミュレーション計算及び基礎実験の結果である。また、このときレーザー照射位置は試料中心から 0.87 mm である。VA1 が 3950 V のときに LA・RIS 成分を良く弁別できていることが分

かる。これは、VA1 印加電圧を変えることにより電場が歪み、LA・RIS レーザースポットにおける電場ベクトルの差が大きくなつたということを示している。

以上のことより、試料の端付近にレーザーを照射し、付近の電場をうまく歪ませることで LA・RIS 成分を良く弁別できることが分かった。結果の一例として、試料端付近に照射し、VA1 印加電圧 3950 V、VXY 印加電圧 V 及び VA1 印加電圧 4050 V、VXY 印加電圧 V の時の質量スペクトルを Fig. 44 に示す。VXY が V の時には LA 成分を良く抑制できており、RIS 成分のみ検出できていることが分かる。

5. 3. 2 二次イオン成分

Fig. 35において観測された種々の干渉効果の原因を解明ために、ピーク A、B のイオン収量の波長依存性を調べた結果を Fig. 45 に示す。ピーク A、B も Al の共鳴波長 496.623 nm 付近でイオン収量が顕著に増加している。このことより、ピーク A、B は ^{27}Al 同様共鳴イオン化過程により生成されるものか、或いは ^{27}Al によって引き起こされる何らかの過程を経て生成されるものと考えられる。我々は、これらのピークを、 ^{27}Al が反射電極 VR1 に衝突する際にスパッタされた 2 次イオン (^{27}Al , ^{23}Na 等) が VR1 により加速され、検出されたものと仮定した。このような 2 次イオンの予測される飛行時間とピーク A、B の飛行時間の VR1 印加電圧依存性を比較したものを Fig. 46 に示す。Fig. 46 の結果より、ピーク A、B はそれぞれ ^{27}Al が VR1 電極に衝突した際にスパッタされた ^{23}Na , ^{27}Al イオンによるものと結論づけられる。

ここで、VR1 でスパッタされる 2 次イオン成分を抑制するため、TOF 電極の印加電圧を Table 4 のように設定した。

このときの質量スペクトルを Fig. 47 に示す。これは 3×10^4 波形分積算したデータであり、LA レーザー出力 : $8.3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ 、RIS レーザー出力 : $8.7 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ である。Fig. 47 では 2 次イオンの成分は消え、 ^{26}Al ピークが確認された。しかし、テール部分は依然として残っており、 ^{26}Al のピークを確認しづらくしている。

また、各電極の印加電圧を調整することで質量分解能が劣化することが考えられるが、質量スペクトルを見る限り、その劣化の度合いは問題にならない程度であることがわかる。

以上により、テールを引く成分が残っているものの、RLA-MS により ^{26}Al の検出に成功したと言える。

5. 3. 3 クラスターイオン成分

クラスターイオンによる干渉

次に、Fig. 47 でテールを引く成分についての検討を行うが、これらの成分は TOF の加速領域において中途半端な運動エネルギーを得たものと考えられる。そこで、我々はこれをクラスターイオンによるものと仮定した。クラスターとは¹³⁾、原子・分子が分子間力により引きつけられてつくられた集団であり、このクラスターのイオンが TOF の加速領域で解離し、加速途中で m/z が変化するため中途半端な飛行時間で検出されると考えられる。このような過程を考慮に入れモンテ

カルロ計算を行い、質量スペクトルを求めるとき Fig. 48 のようになる。ここでクラスターイオンの寿命を $1 \mu\text{s}$ と仮定した（クラスターの寿命については Au、Ag、Ta に対し $10 \text{ ns} \sim \mu\text{s}$ オーダーという報告がある）。 $^{27}\text{Al}_2^{3+}$ が加速領域で解離したものは低 m/z 側にテールを引く傾向が見られた。この $^{27}\text{Al}_2^{3+}$ は $^{27}\text{Al}_m^{n+}$ ($m < n$) のものの代表的なものであり、 $^{27}\text{Al}_m^{n+}$ ($m < n$) は解離前には m/z が 27 より大きく $^{27}\text{Al}^+$ より大きな加速度を受けるので、これらはすべて低 m/z 側にテールを引くことになる。以上のことより、低 m/z 側にテールを引いている成分はクラスターイオンによるものと考えられる。

クラスターイオンの生成過程としては、上述した 2 次イオンと同様、そのイオン収量が RIS レーザー波長に依存することから、アブレーションにより直接生成されるわけではなく、アブレーションにより中性クラスター（価数の低いクラスターイオン）として放出され、その後共鳴イオン化によって大量に生成された $^{27}\text{Al}^+$ イオンとの衝突等により、（価数の高いものに）イオン化されるという過程が考えられる。

高繰り返し率レーザーシステムを用いた RLA-MSにおいてには、クラスターイオンによる干渉といった発生頻度の小さい現象が顕著に現れるため、クラスターイオンによる干渉効果についてより詳しい検討を行うことができる。高繰り返し率レーザーシステムを用いた RLA-MSにおいて Al 試料を測定して得られた質量スペクトルを Fig. 49 に示す。これは 10^6 波形分積算したデータであり、LA レーザー出力 : $2.7 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 、RIS レーザー出力 : $5.8 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ である。不純物である ^{23}Na に加え、クラスターと思われるテールを引く成分が確認された。ここで、注目すべきは飛行時間が約 $17 \mu\text{s}$ より前ではテール部が突然消失し肩ができるということである。この肩ができる理由を考察するため、もう一度、上で行ったクラスターイオンのモンテカルロ計算を行った。時間軸の短い方へテールを引く成分を考えればよいので、生成されるクラスターイオンとしては、代表的なものとして、 Al_2^{3+} 、 Al_2^{10+} について計算を行い、その結果を Fig. 50 に示す。ここで、クラスターイオンの寿命を $0.1 \mu\text{s}$ とした。モンテカルロ計算結果からも飛行時間およそ $17 \mu\text{s}$ で肩ができることがわかる。この肩ができる時間は、多価のクラスターイオン (Al_m^{n+} , $m < n$) が現在の電極構造で飛行するときの最短の時間である。このことについてもう少し詳しく説明する。多価のクラスターイオンは、電荷が多いほど、また、加速領域で解離せずに大きな q/m (電荷質量比) で加速される時間が長いほど、大きなエネルギー、つまり大きな速度を加速領域で得るので飛行時間は短くなる。しかし、反射型 TOF-MS の場合、あまり大きな速度 (エネルギー) を得てしまうと、その後クラスターが解離し小さな q/m 値となって反射領域へ進入した場合、反射領域で反射できずそのまま抜けていってしまい、イオンは検出されない。この反射領域で反射可能な限界の速度に加速されるようなクラスターイオンが最も速くやってくるものであり、これ以上速くやってくるものはいない。現在の体系 (Fig. 36、電極印加電圧は Table 5 参照) で、もっとも速く検出されると予想されるイオンは、加速領域で反射可能な限界である 3960 eV のエネルギー (VR1 の印可電圧に相当、VR1 を越えた領域は電場が弱く反射できたとしても時間がかかり、結局飛行時間が長くなってしまう) を得たものであり、これを模擬したものの飛行時間を計算したもの (加速領域での飛行時間は非常に短く無視できるため、VA1 電極位置よりスタート) を Fig. 50 に併せて示すが、これは $16.8 \mu\text{s}$ の飛行時間を持つ。以上のことから、Fig. 49 のようにテール部に肩を持つようなスペクトルを示すのは、テール部がクラスターイオン

の影響であることの証拠の一つといえる。

クラスターイオン干渉効果の抑制に関する検討

妨害成分となるクラスターイオンは、加速領域において途中で解離し q/m 値が変化するため、通常通り加速されるイオンとは異なるエネルギーを得る。このため、偏向電極による曲がり方が異なり、通常のイオンとは異なる軌道を描く。つまり、MCP の検出面の異なる位置で検出されていることとなる。このように偏向電極により、エネルギー弁別を行うことで、クラスターイオン成分を抑制することが可能となる。

そこで、高繰り返し率レーザーシステムを用いた RLA-MS のイオン検出器前面に幅 (10mm) のスリットが設置し、偏向電極電圧 VXY を調節することによりクラスターイオン成分の抑制を試みた。具体的には、基礎実験とモンテカルロシミュレーション計算によりクラスターイオン効果の抑制について検討した。実験では、スリット設置後のシグナル (質量数 27 での ^{27}Al イオン信号) とノイズ (質量数 26 でのクラスターイオン信号) のイオン収量の偏向電極印加電圧 VXY に対する依存性を測定し、計算結果と比較した。結果を Fig. 51、a)、b) に、また (シグナル) / (ノイズ) の VXY 依存性を Fig. 52、a)、b) に示すが、その傾向はほぼ一致しており本モデル計算の妥当性が確認された。これらの結果より、イオン検出器前面に適切な幅のスリットを設置し、偏向電極電圧を調節することでクラスターイオンの干渉効果をほぼ抑制することができ、S/N 比を向上させることができることが分かった。

5. 4 新規導入 Ti:S レーザー系 RLA-MS システムによる実証実験

高繰り返し率レーザーシステムへ変更したことに伴い、信号処理系として従来用いていたデジタルオシロスコープ (Sony Tektronics 社製、TDS-420A) では TOF 質量スペクトル波形を 1 kHz で取り込むことができないため、取り込み速度の速い横河電機製の PC ベース計測システム WE7000 に波形測定 (オシロスコープ/ディジタイザ) モジュール WE7311 (1 GS/s, 400 MHz, 8 bit) を組み込んだものを使用した。これにより、Record Length: 1000 points で従来～5 波形/s であった取り込み速度が～100 波形/s と約 20 向上した。しかしながら、従来型に比べノイズを多く拾うという欠点がある。ノイズ抑制のために、データ取得後にオフラインでパルス計測をすることとした。オフラインでのパルス計測法は以下の通りである。

オフラインパルス計測法

- ① ある点において、前後各 3 点のデータと比較し、そこが最大値であれば、この点をピーク値と判断。
- ② その点のピーク値が、ベースラインの揺らぎの標準偏差の 10 倍を超えたとき、その時間にイオンを検出したとし、その時間チャンネルに 1 カウント加算。
- ③ これを全時間チャンネルで行い、全波形分積算する。

この、オフラインパルス計測はで定量性を保ちつつ測定が可能なのは、イオンが検出される頻度が非常に少ない場合のみであるが、 ^{26}Al は検出される確率が非常に低いのでオフライン

パルス計測法を適用できる。

以上のように、新規導入高繰り返し率 Ti:S レーザーシステムを組み込み、信号処理系の改良と種々の干渉効果の抑制策を施した改良型 RLA-MS システムにより、5.2 で述べた 14 MeV DT 中性子照射を行った高純度 Al 試料中に生成された極微量長半減期核種 ^{26}Al の検出を試みた。共鳴イオン化スキームとして (2+1)光子イオン化スキーム (Al の $3s^2(1S)3p\ ^2P_{3/2} \rightarrow 3s^2(1S)5f\ ^2F_{5/2,7/2}$ 遷移) を用いた。得られた質量スペクトルを Fig. 53 に示す。ここで積算波形数 : 1×10^5 、LA レーザー出力 : $2.3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 、RIS レーザー出力 : $5.1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ である。スリットを設けることで、クラスターの干渉効果がほぼ抑制され、極微量核変換生成核種である ^{26}Al のピークが明瞭に検出されていることが分かる。

ここで、Fig. 53 で確認された ^{26}Al ピークが、 γ 線分析により検出された ^{26}Al ($7.4 \pm 0.7 \text{ ppb}$) と比べ量的に妥当かどうかを検討する。検討するにあたり、Fig. 53 で検出されている ^{24}Mg に着目し、この ^{24}Mg と ^{26}Al の比より ^{26}Al の定量を行う。改良型 RLA-MS システムで得られる Mg と Al のイオン収量比 (元素選択性、Mg/Al) については 4. 3. 1 で調べており、RIS レーザー出力が $5.7 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ において Fig. 27 のようになる。今回の RIS レーザー出力が Fig. 27 の時とほとんど変わらないため、これをそのまま読みとることとする。今回の LA レーザー出力 $2.3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ における Mg/Al 比を読みとると 1.6×10^{-3} が得られる。Fig. 53 において検出された質量数 26 と 24 のピーク比は、(質量数 26 ピーク) / (質量数 24 ピーク) = $11.47 / 8.9 = 1.3$ であった。質量数 26 には同重体として ^{26}Mg が存在するが、天然存在比で $^{26}\text{Mg} / ^{24}\text{Mg} = 11.01\% / 78.99\% = 0.14$ であるため、明らかに ^{26}Mg のみに帰因するピークでは無いことがわかる。 ^{26}Mg の分を差し引いて $^{26}\text{Al} / ^{24}\text{Mg}$ を求めると $^{26}\text{Al} / ^{24}\text{Mg} = 10.5 / 8.9 = 1.2$ となる。しかし、Mg は Al に対して感度が 1.6×10^{-3} 倍であるため、実際の存在量は $^{26}\text{Al} / ^{24}\text{Mg} = 10.5 / (8.9 \div 1.6 \times 10^{-3}) = 1.9 \times 10^{-3}$ となる。高純度 Al 試料中に存在する不純物 Mg の濃度は、試料の購入元によると 2 ppm であり、 ^{24}Mg の濃度は $2 \text{ ppm} \times 78.99\% = 1.6 \text{ ppm}$ である。したがって、今回の測定で得られた ^{26}Al の濃度は $1.6 \text{ ppm} \times (1.9 \times 10^{-3}) = 3.04 \text{ ppb}$ と見積もることができる。 γ 線分析で得られた $7.4 \pm 0.7 \text{ ppb}$ と比べて、不純物 Mg 濃度の精度等を考慮に入れれば妥当な値であるといえ、確かに ^{26}Al が検出されていると結論できる。以上ことより、改良型 RLA-MS を用いることにより極微量核変換長半減期核種 ^{26}Al の検出を実証することができたと結論できる。

6. 結 言

本研究における主な成果は、以下のようにまとめられる。

1. 短パルス(100 ps)・高繰り返し率(1 kHz)Ti:S レーザーをベースとした新しい RLA-MS システムを整備した。
2. RLA 現象の実験結果を汎用的に説明でき、システムの最適分析条件の探索・予測に利用可能

な RLA 理論モデルを構築した。

3. 短パルス・高繰り返し率レーザー誘起の RLA 現象の基礎特性を明らかにし、既存の低繰り返し率色素レーザー (10 Hz) RLA-MS システムと比べ、理論モデルの予測通り、単位時間当たりの検出限界濃度を 100 倍改善できることを実証した。
4. RLA-MS による極微量核変換生成物検出において、熱的イオン化成分、電極からの二次イオン、クラスターイオンといった種々の干渉・妨害 (S/N 比の劣化) 要因を明らかにし、これらの干渉・妨害効果の抑制策を新規に考案し、実験的に有効性を実証した。
5. 上記の知見と対策を盛り込んだ改良型 RLA-MS システムにより、14 MeV DT 中性子照射を行った高純度 Al 試料中に生成された極微量長半減期核種 ^{26}Al を明瞭に検出することに成功した。

以上、本研究を総括すると、短パルス・高繰り返し率の波長可変レーザーを用い、中性子ドシメトリー(極微量核変換生成物の検出・定量から照射試料の中性子フルエンス・エネルギー・線量評価)へ RLA 現象を効果的に活用するための最適条件の探索と、その予測理論モデルの確立という主要目標は達成でき、本研究提案（方法論）の正当性を示すことができたと言える。

RLA 質量分析法に基づく新しい中性子ドシメトリー技術体系の構築という観点からは、実証例が十分ではなく、今後、Cu や Al 以外への適用拡張（例えば、低放射化材料 SiC 中の Mg、Mo 合金中の Tc、V 合金中の Ag 等）を図りながら、データベースの充実(共鳴波長、最適レーザー出力、検出感度、S/N 比など)が必要であろう。また、実用化に向けた課題として、短パルス・高繰り返し率波長可変レーザーの安定性や波長スキャンの操作性の改善が必要であり、現時点のレーザー技術で、本手法の実用化を図るならば、分析対象を特化し、アブレーションを小型の YAG レーザーで、共鳴イオン化を狭帯域半導体レーザーで行う方式が有望と思われる。

参考文献

- 1) C. H. Chen, M. G. Marvin, G. S. Hurst, S. D. Kramer, S. L. Allman and R. C. Phillips : "Isotopically Selective Counting of Atoms and Molecules Using Resonance Ionization Spectroscopy", Oxford University Press, 3 (1990).
- 2) M. G. Payne, C. H. Chen, G. S. Hurst and G. W. Foltz : Adv. At. Mol. Phys., 17, 229 (1981).
- 3) T. M. Allen, P. B. Kelly, J. E. Anderson, T. N. Taylor and N. S. Nogar : Appl. Phys., A 61, 221 (1995).
- 4) G. C. Eiden, J. E. Anderson and N. S. Nogar : Microchem. J., 50, 289 (1994).
- 5) C. G. Gill, A. W. Garrett, P. H. Hemberger and N. S. Nogar : Spectrochimi Acta, B 51, 851 (1996).
- 6) J. F. Ready : "Effects of High-Power Laser Radiation", Academic Press, New York, 95 (1971).
- 7) 小出昭一郎 : 熱学, 東京大学出版会, 95-99, 126-130 (1980).
- 8) J. F. Ready : J. Appl. Phys., 36, 462 (1965).
- 9) A. Nishiguchi and T. Yabe : J. Comp. Phys., 52, 390 (1983).
- 10) T. Suzuki, H. Iwabuchi, K. Takahashi, M. Nomura, M. Okamoto and Y. Fujii : Int. J. Mass Spectrom. Ion Process, 145, 131 (1995).
- 11) C. E. Moore : U.S. Goverment Printing Office, 1 (1949)
- 12) C. E. Moore : U.S. Goverment Printing Office, 2 (1952)
- 13) 大塚齊之助, 山崎博史 編 : "金属クラスターの化学", 学会出版センター, 1 (1986).

Table 1 (2+1) photon ionization schemes^{11),12)}

Element	Wavelength [nm]	Lower Level	Energy [cm ⁻¹]	Excited Level	Energy [cm ⁻¹]
Fe	499.036	3d ⁷ (⁴ F)4s a ⁵ F ₅	6928.266	3d ⁷ (⁴ F)5s e ⁵ F ₅	47005.508
	531.833	3d ⁷ (⁴ F)4s a ⁵ F ₃	7728.056	3d ⁶ (⁵ D)4s(⁶ D)5s e ⁵ D ₂	45333.874
Ni	489.564	3d ⁹ (² D)4s ¹ D ₂	3409.937	3d ⁹ (² D _{3/2})5s ² [3/2]	44262.599
Co	484.270	3d ⁸ (³ F)4s b ⁴ F _{9/2}	3482.82	3d ⁸ (³ F)5s e ⁴ F _{9/2}	44782.13

Table 2 Applied Voltages for TOF electrodes.

Electrode	VA1	Vs	VA2	VR1	VR2
Voltage [V]	4000	3500	3000	3000	4000

Table 3 Applied Voltages for TOF electrodes when the dependence of LA and RIS ion yield on the deflector voltage Vxy is measured.

Electrode	VA1	Vs	VA2	VR1	VR2
Voltage [V]	4000	3500	3000	3000	3750

Table 4 Applied Voltages for TOF electrodes when these voltages are tuned to suppress the effect of secondary ions produced on the reflector electrode.

Electrode	VA1	Vs	VA2	VR1	VR2
Voltage [V]	3130	2500	2000	3300	3400

Table 5 Applied Voltages for TOF electrodes when these voltages are optimized to suppress various interference effects.

Electrode	VA1	Vs	VA2	VR1	VR2
Voltage [V]	3600	3000	2500	3960	4080

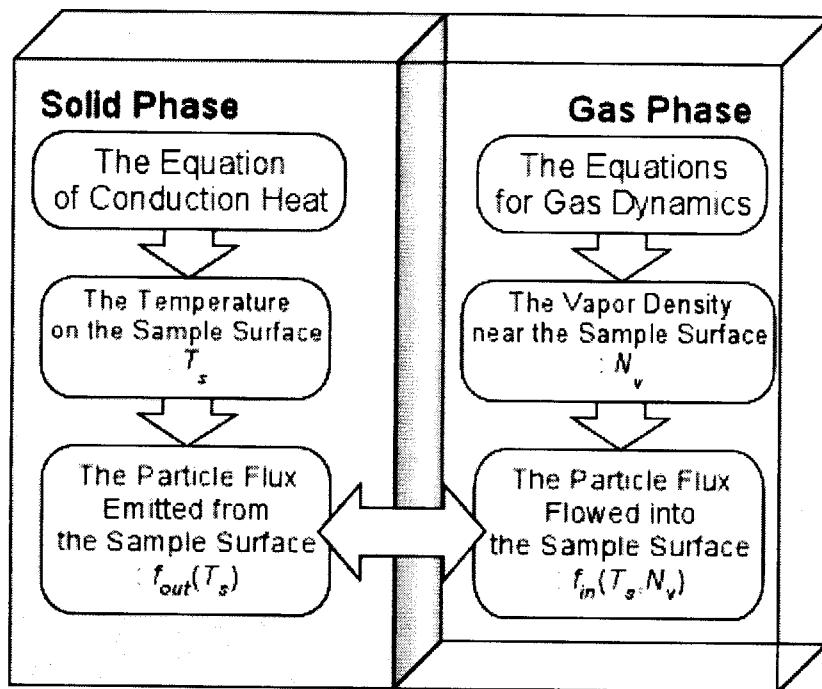
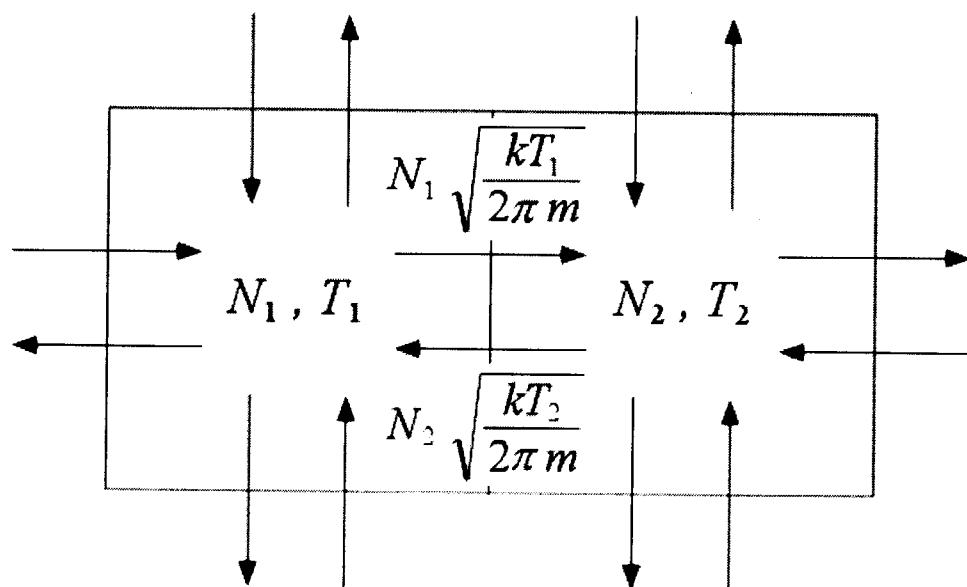


Fig. 1 Conceptual drawing of vaporization process

Fig. 2 Particle flux of vapor in the direction of z axis

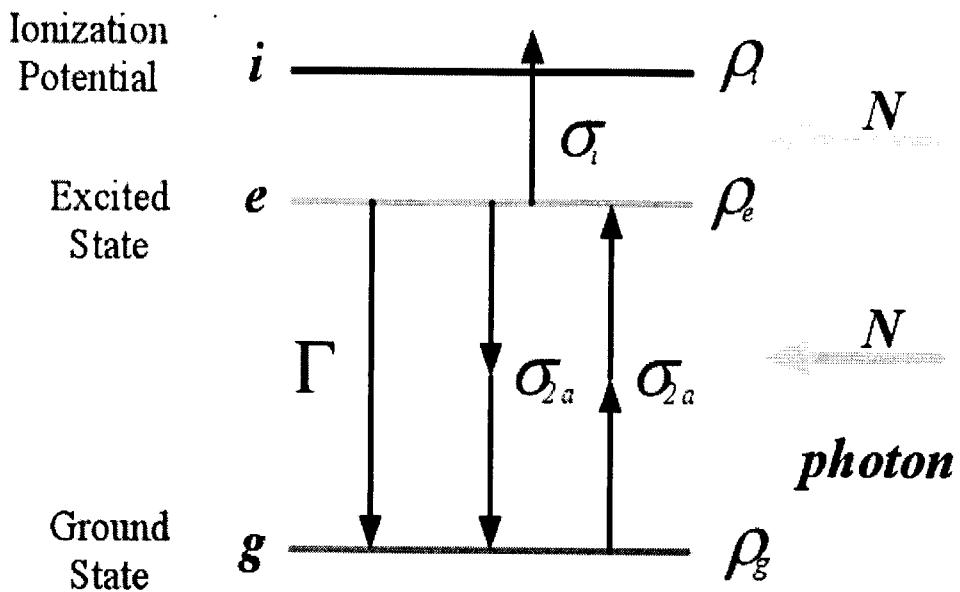


Fig. 3 Resonance ionization scheme for two-levels system

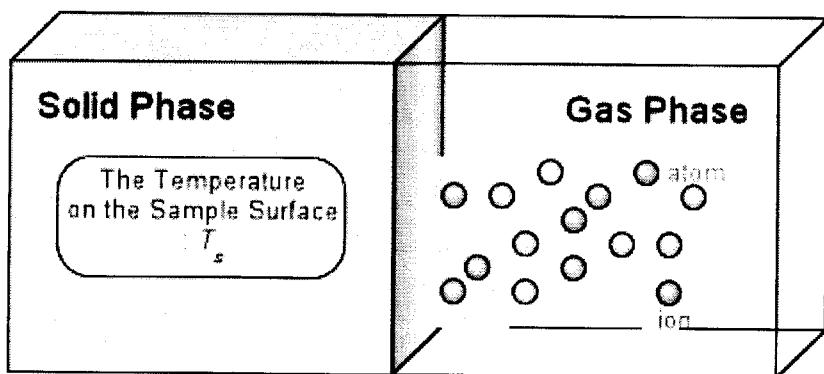


Fig. 4 Thermal ionization process

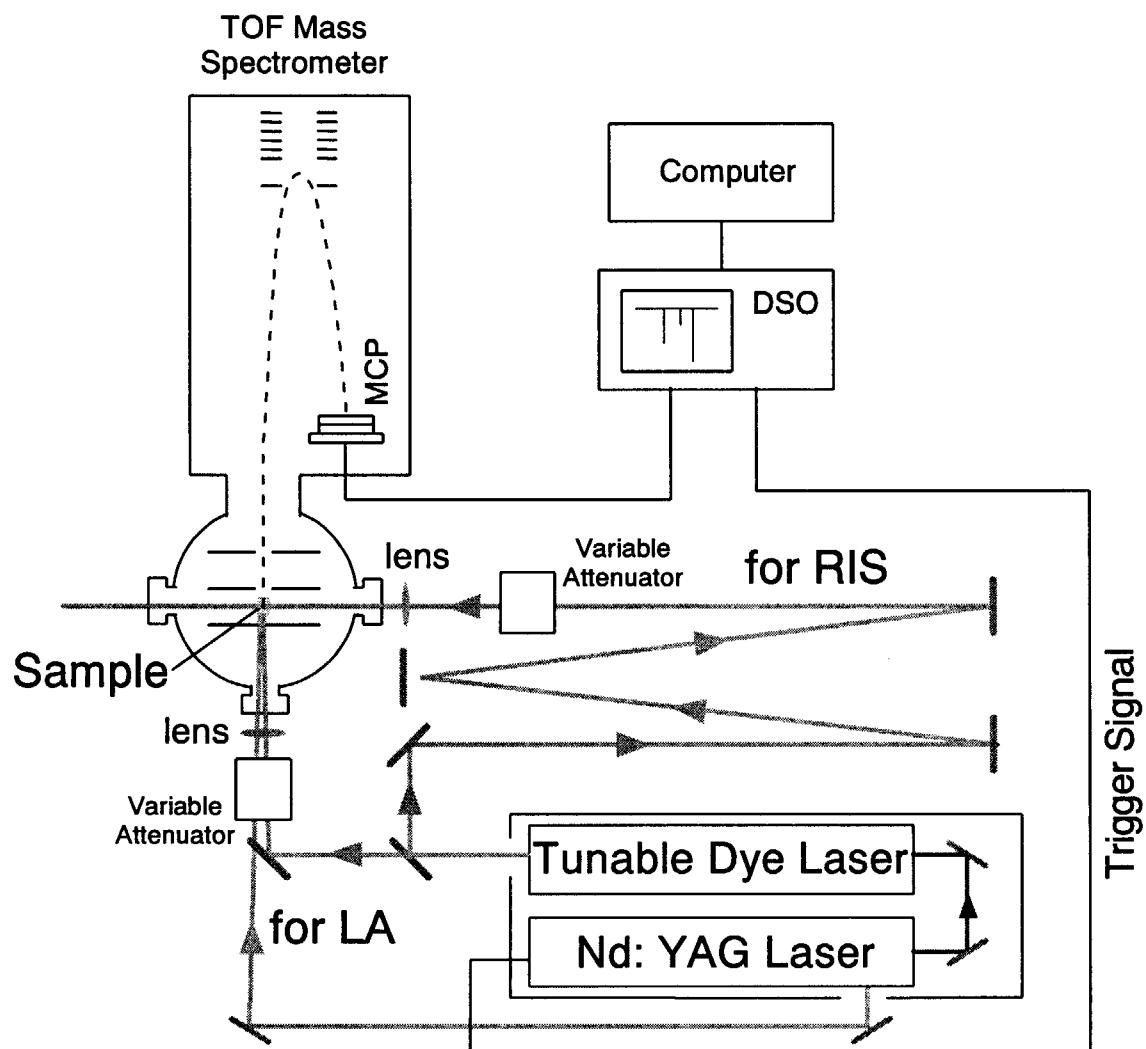


Fig. 5 Experimental setup for RLA-MS

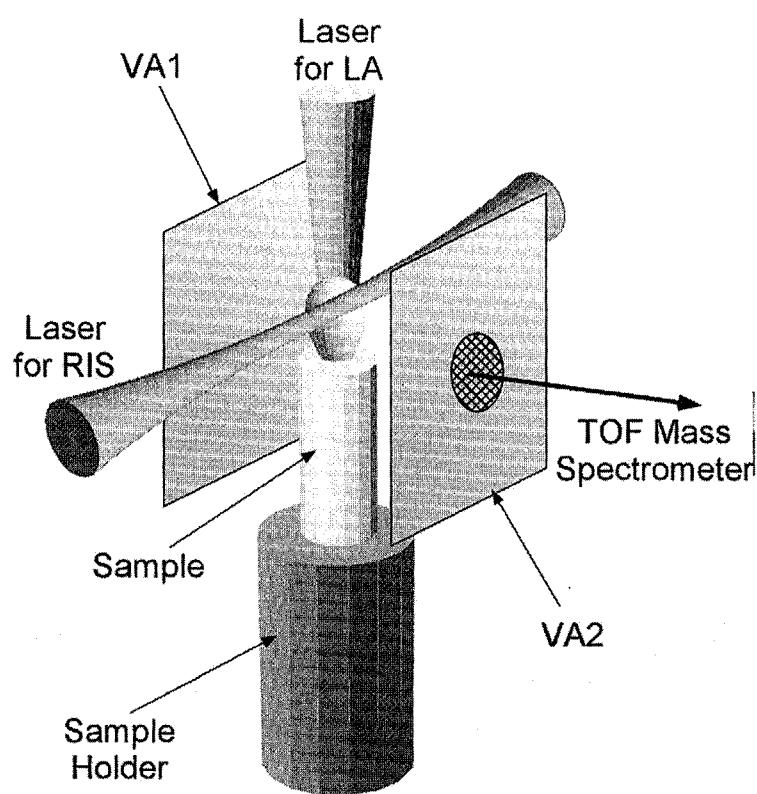


Fig. 6 Illustration of sample support

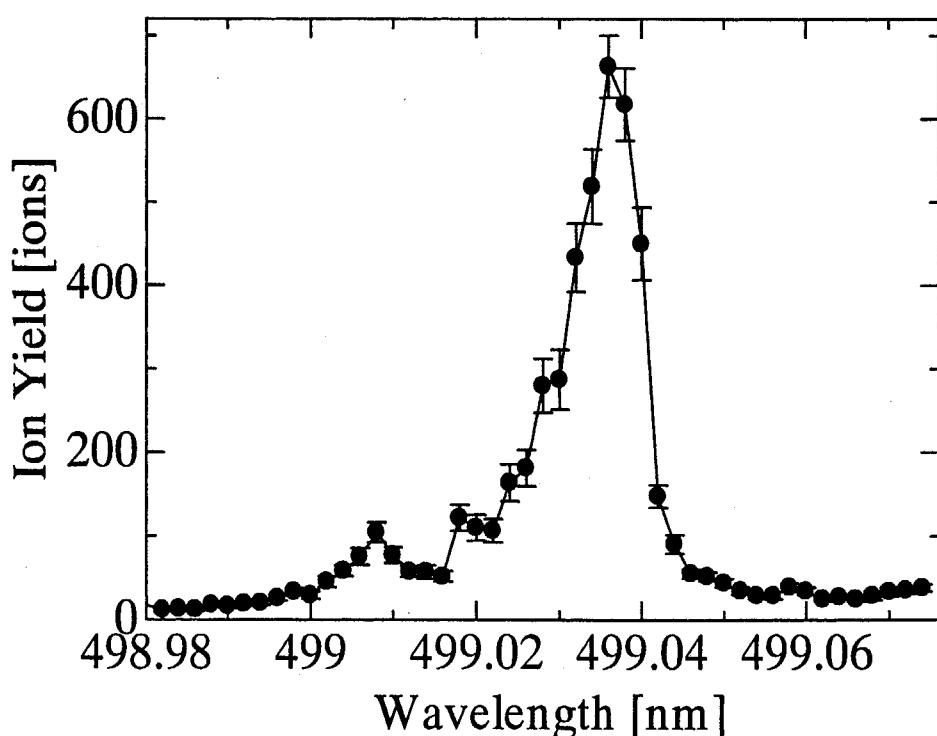


Fig. 7 Dependence of Fe ion yield on RIS laser wavelength

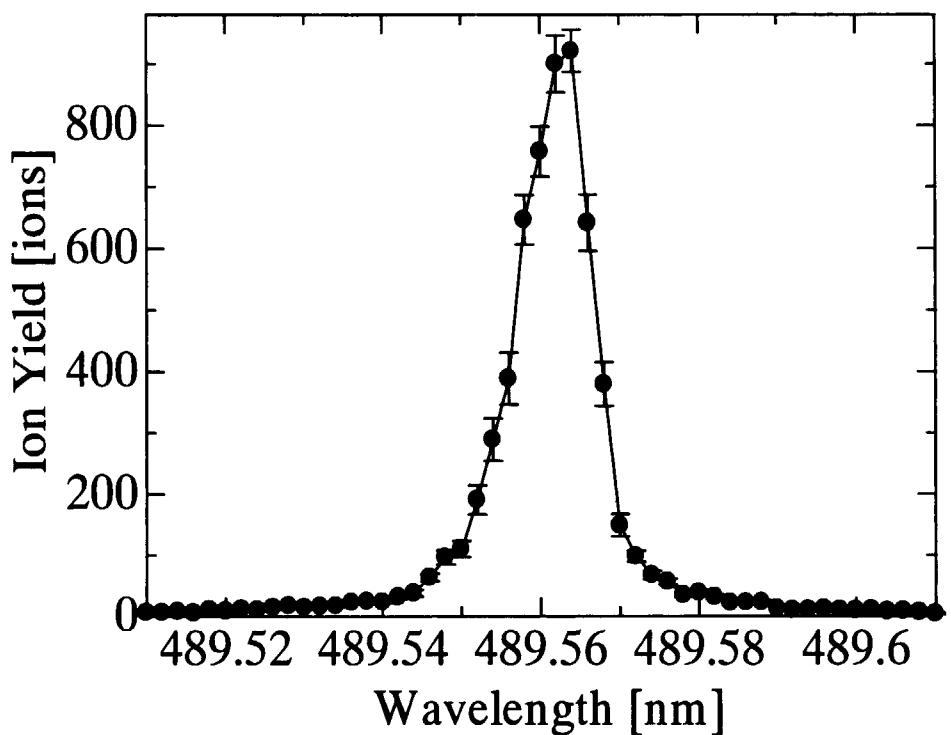


Fig. 8 Dependence of Ni ion yield on RIS laser wavelength

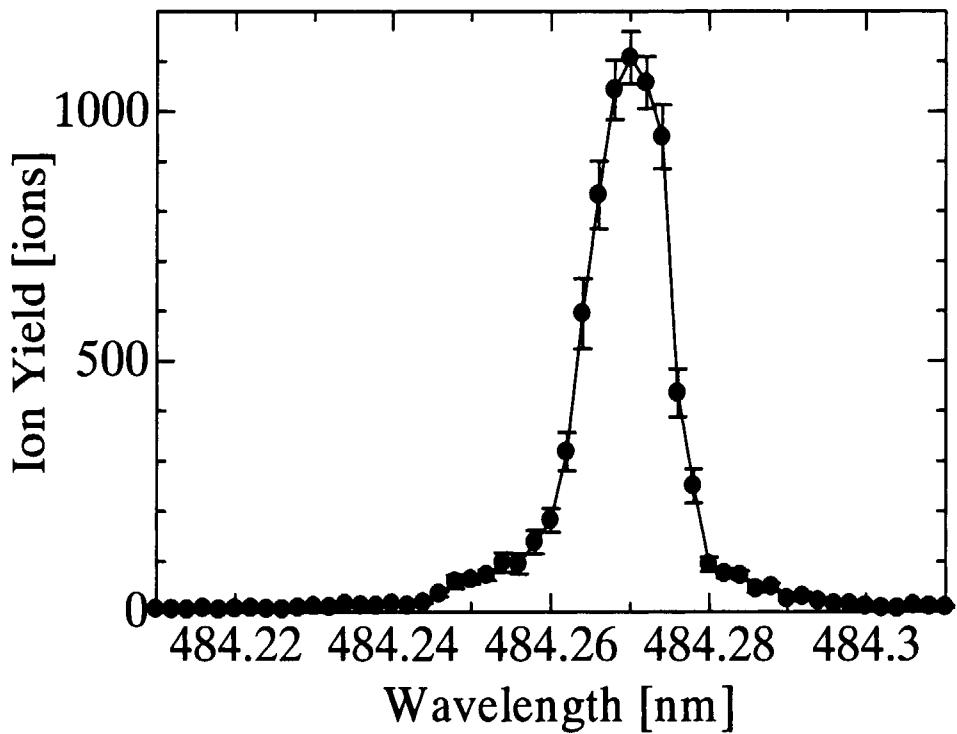


Fig. 9 Dependence of Co ion yield on RIS laser wavelength

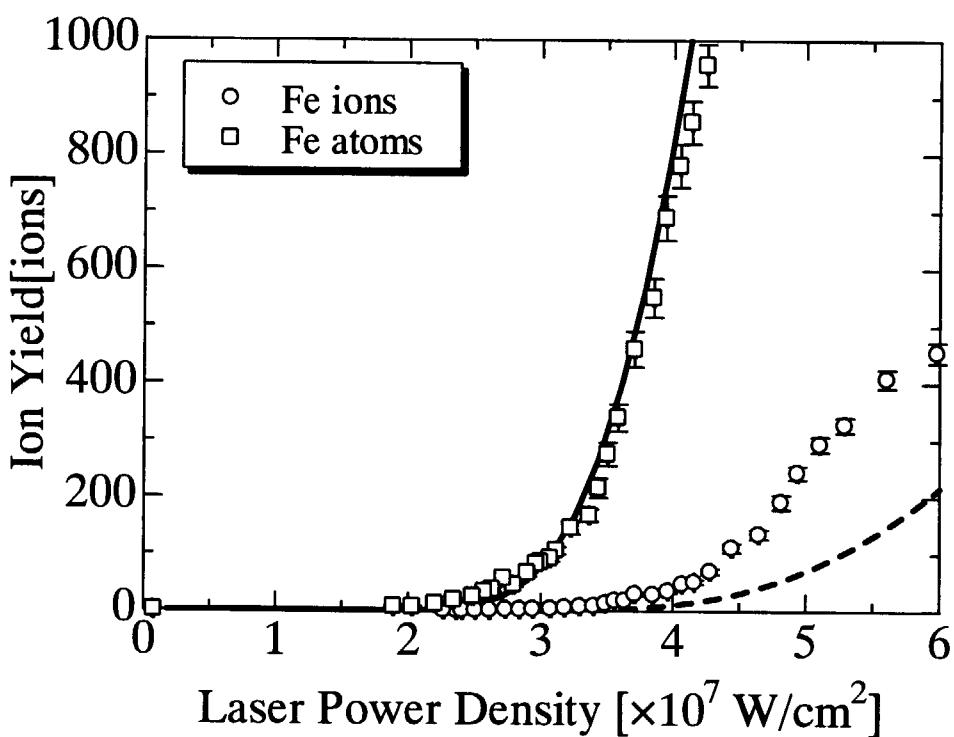


Fig. 10 LA laser power dependence of Fe ion yield

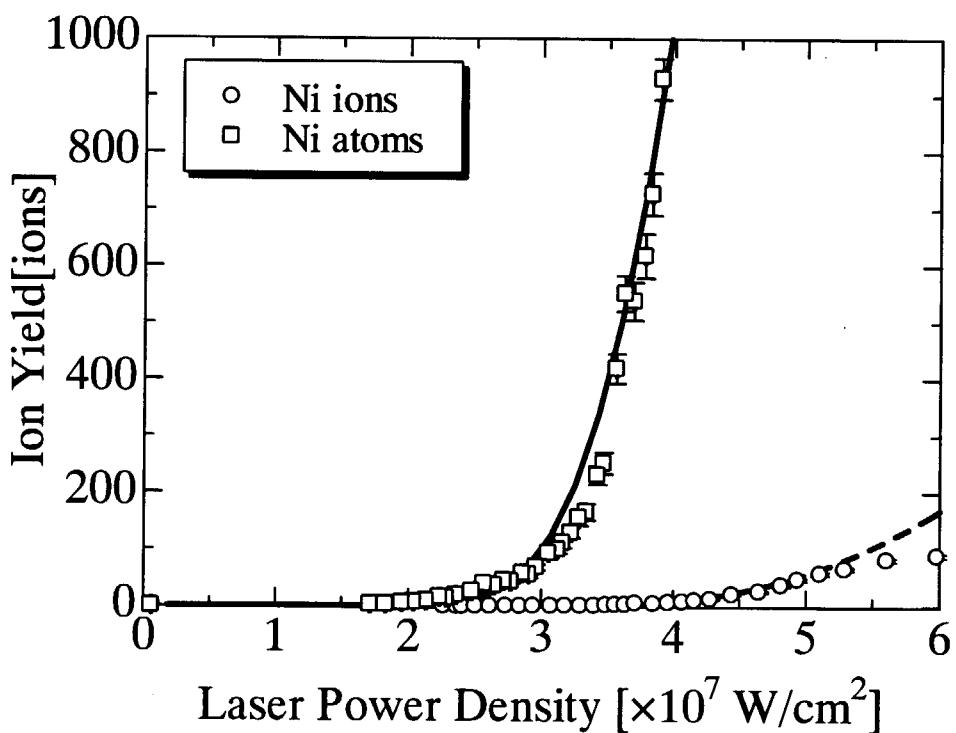


Fig. 11 LA laser power dependence of Ni ion yield

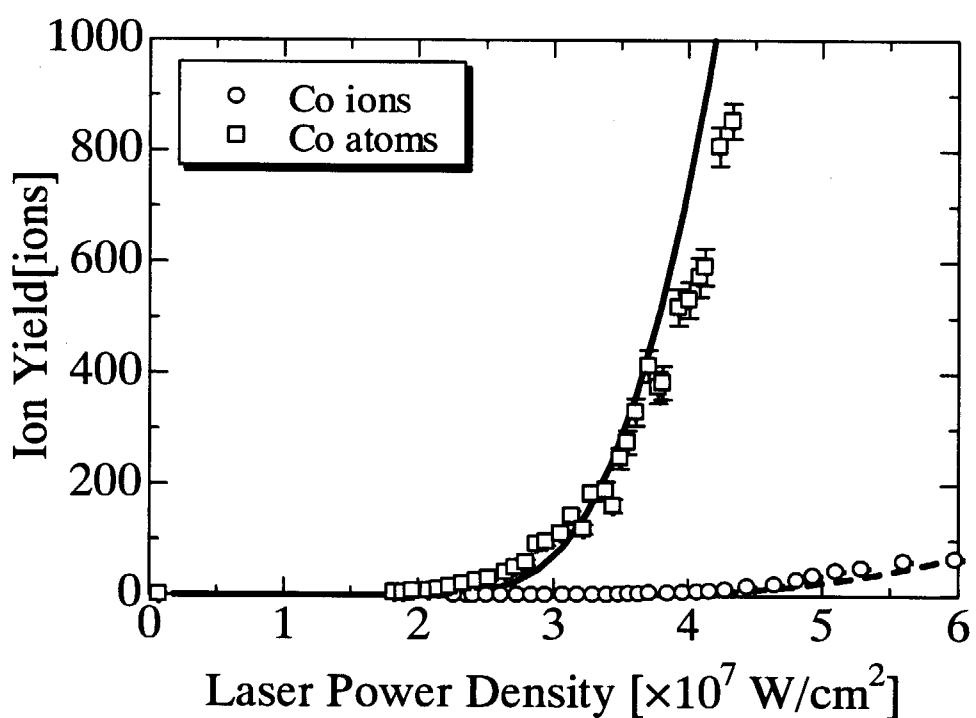


Fig. 12 LA laser power dependence of Co ion yield

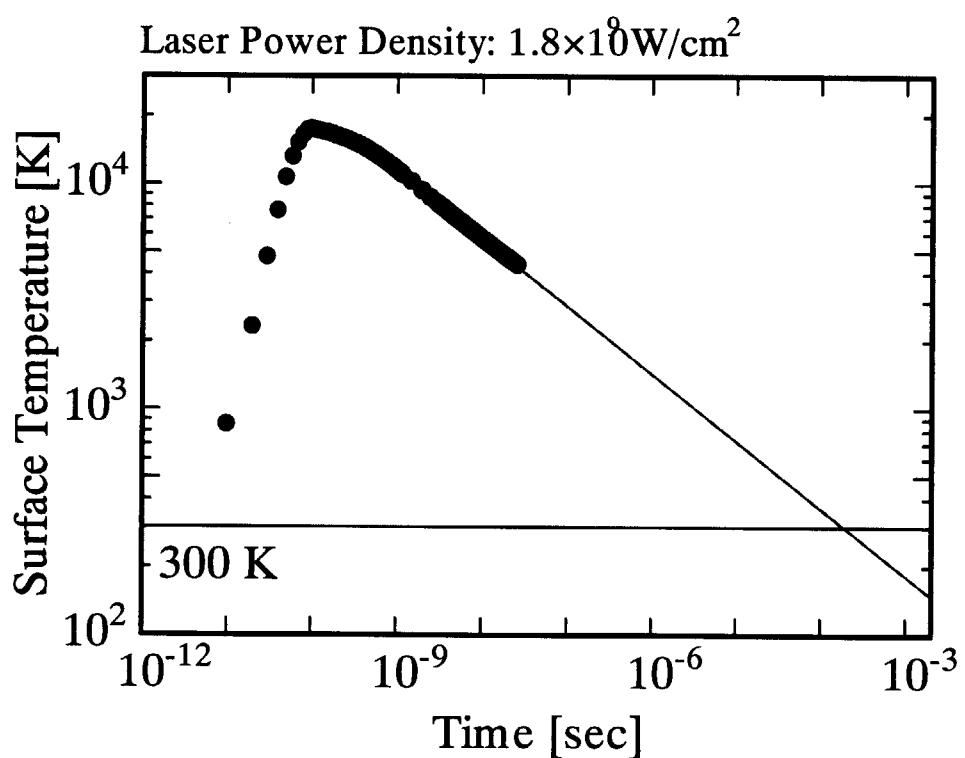


Fig. 13 Temporal variation of sample surface temperature

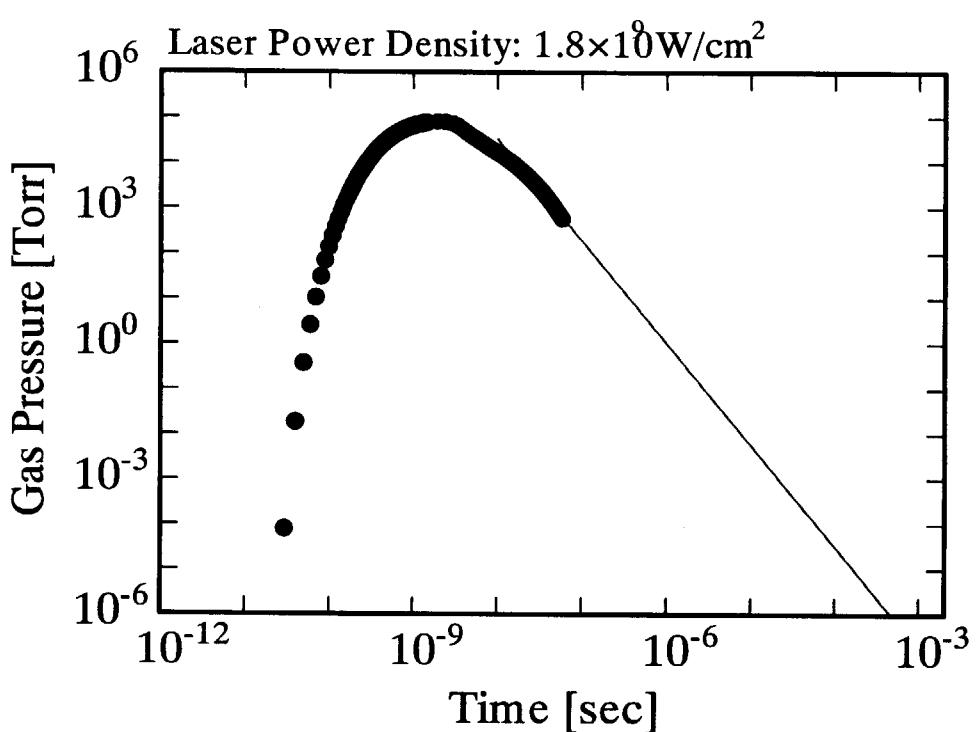


Fig. 14 Temporal variation of gas pressure near sample surface.

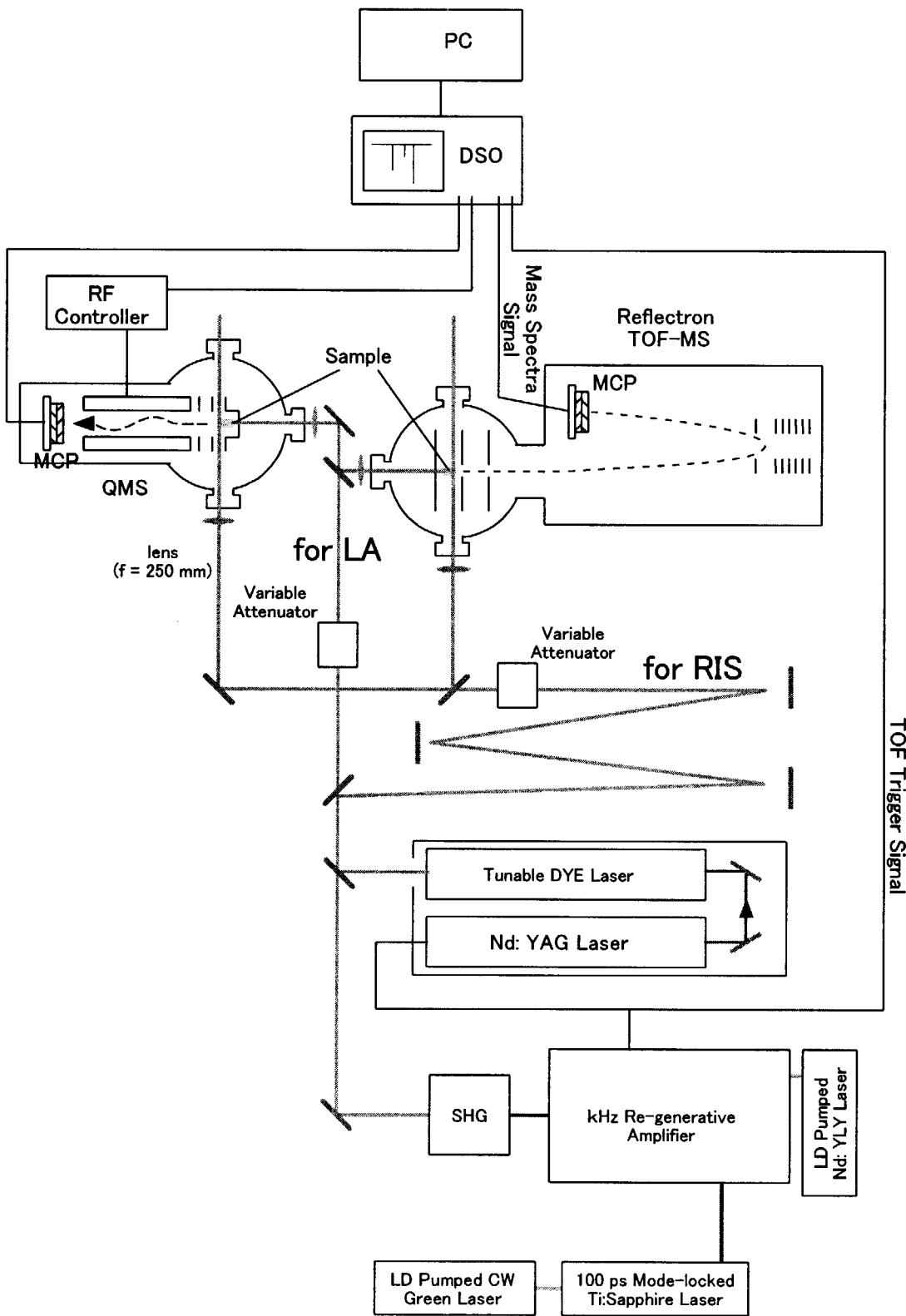


Fig. 15 Diagram of RLA system using conventional dye laser and present short-pulse high-repetition-rate Ti:Sapphire laser system

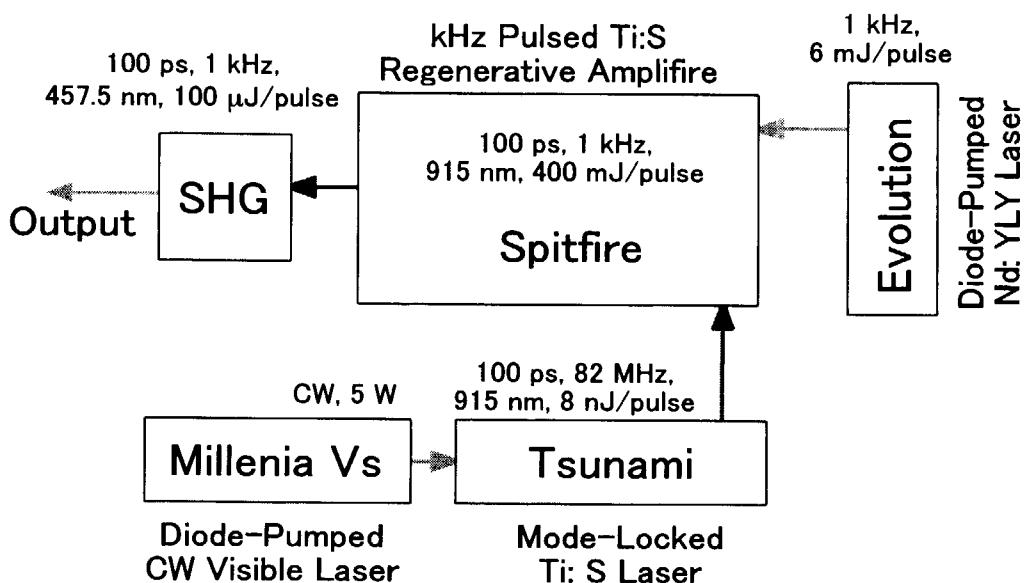


Fig. 16 High-Repetition-Rate Ti:Sapphire laser system

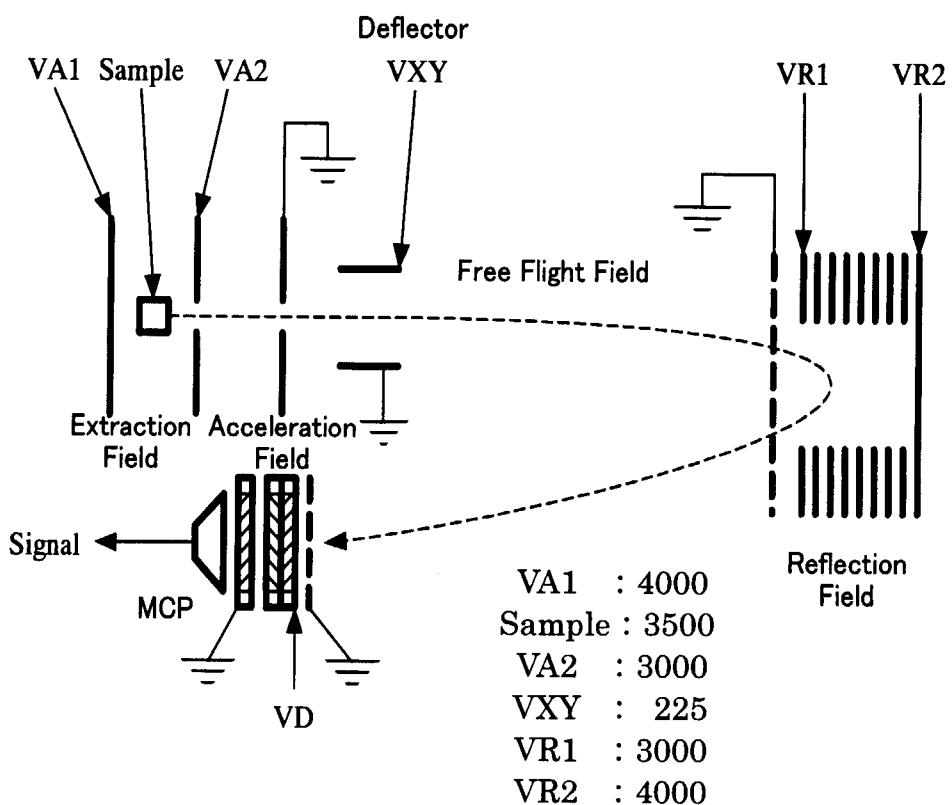


Fig. 17 Reflectron time-of-flight mass

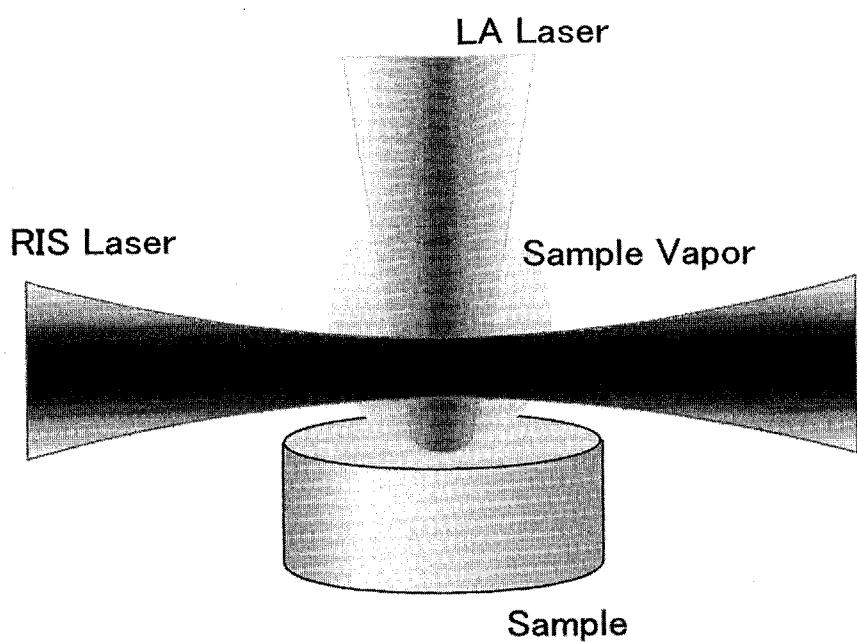


Fig. 18 Illustration of sample irradiated

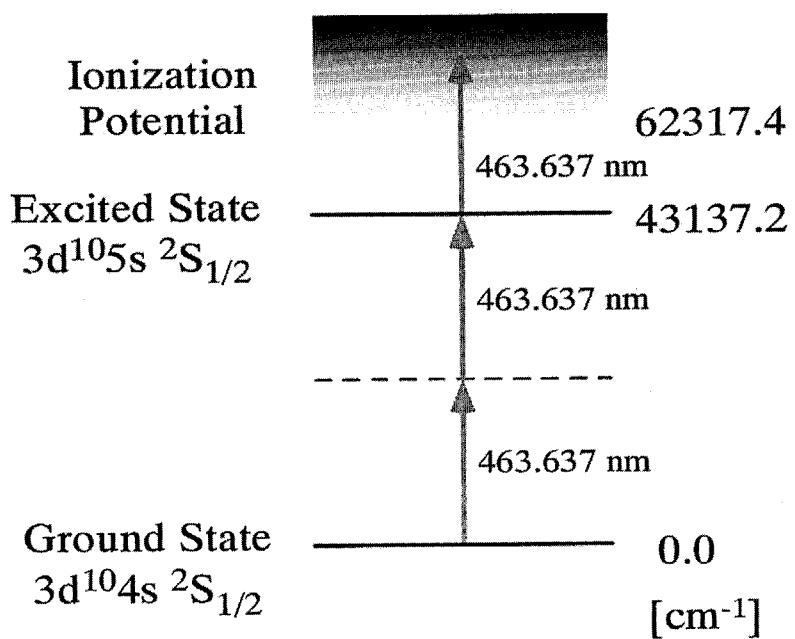


Fig. 19 (2+1) photon resonance ionization scheme for copper

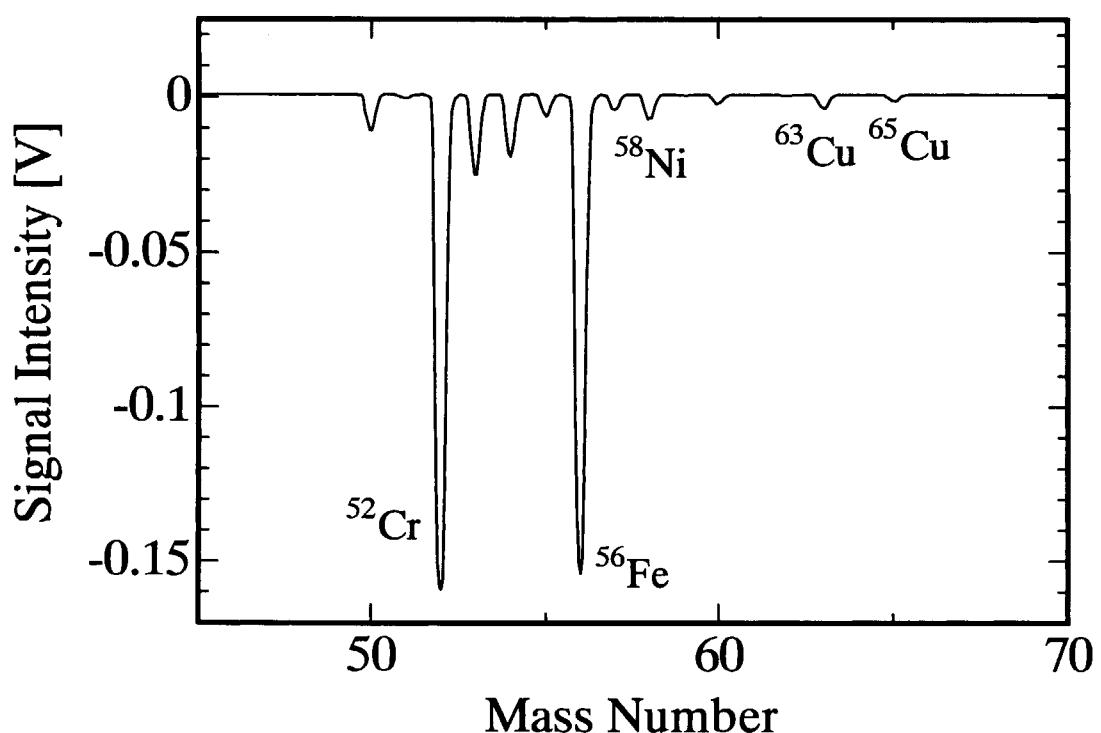


Fig. 20 Mass spectrum under the single-beam-RLS using the present high-repetition-rate laser system at the wavelength of 463.655 nm. A sample is stainless steel (SUS-303A).

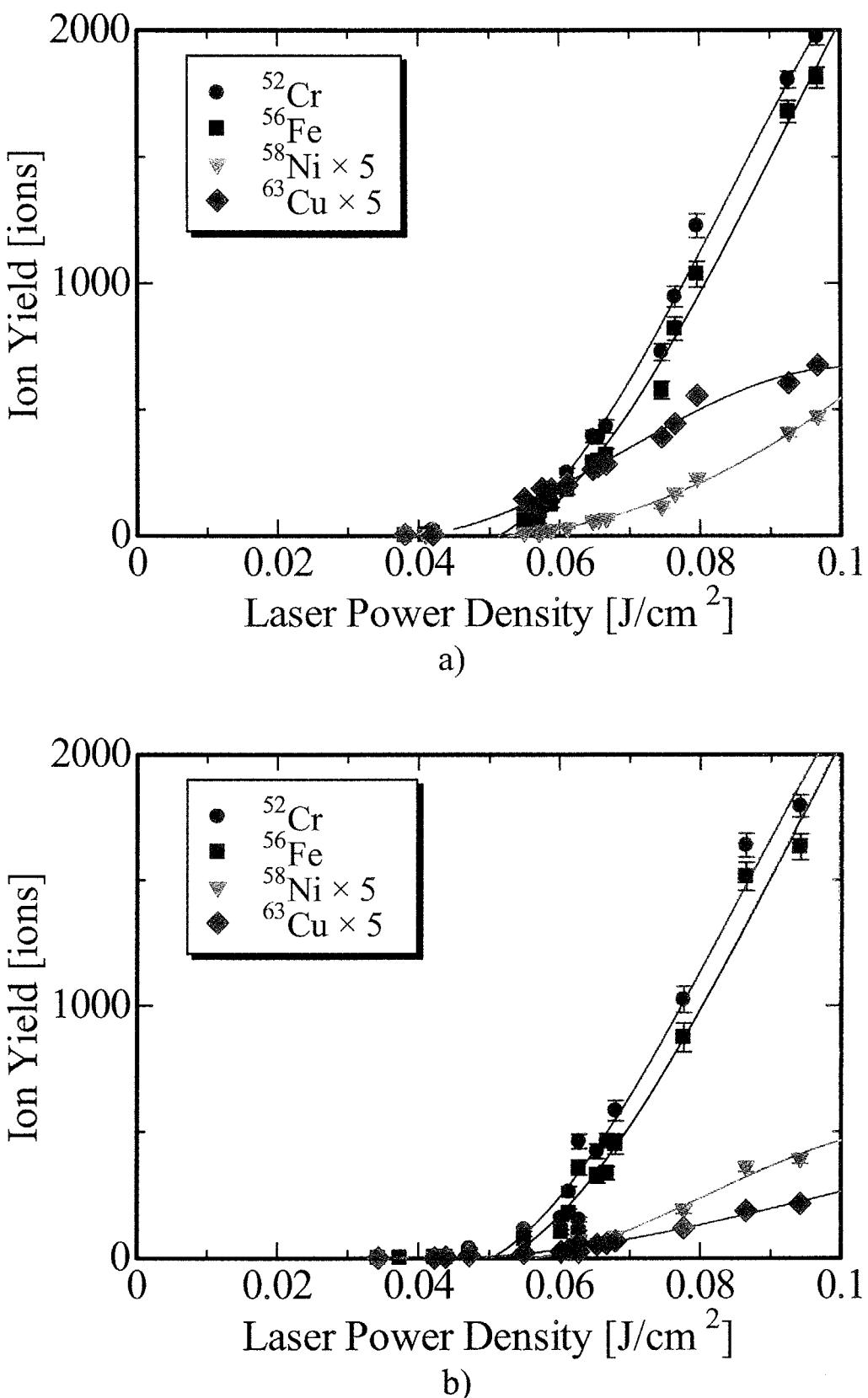


Fig. 21 Laser power dependence of ion yield at the wavelength of a) 463.640 nm and b) 463.622 nm

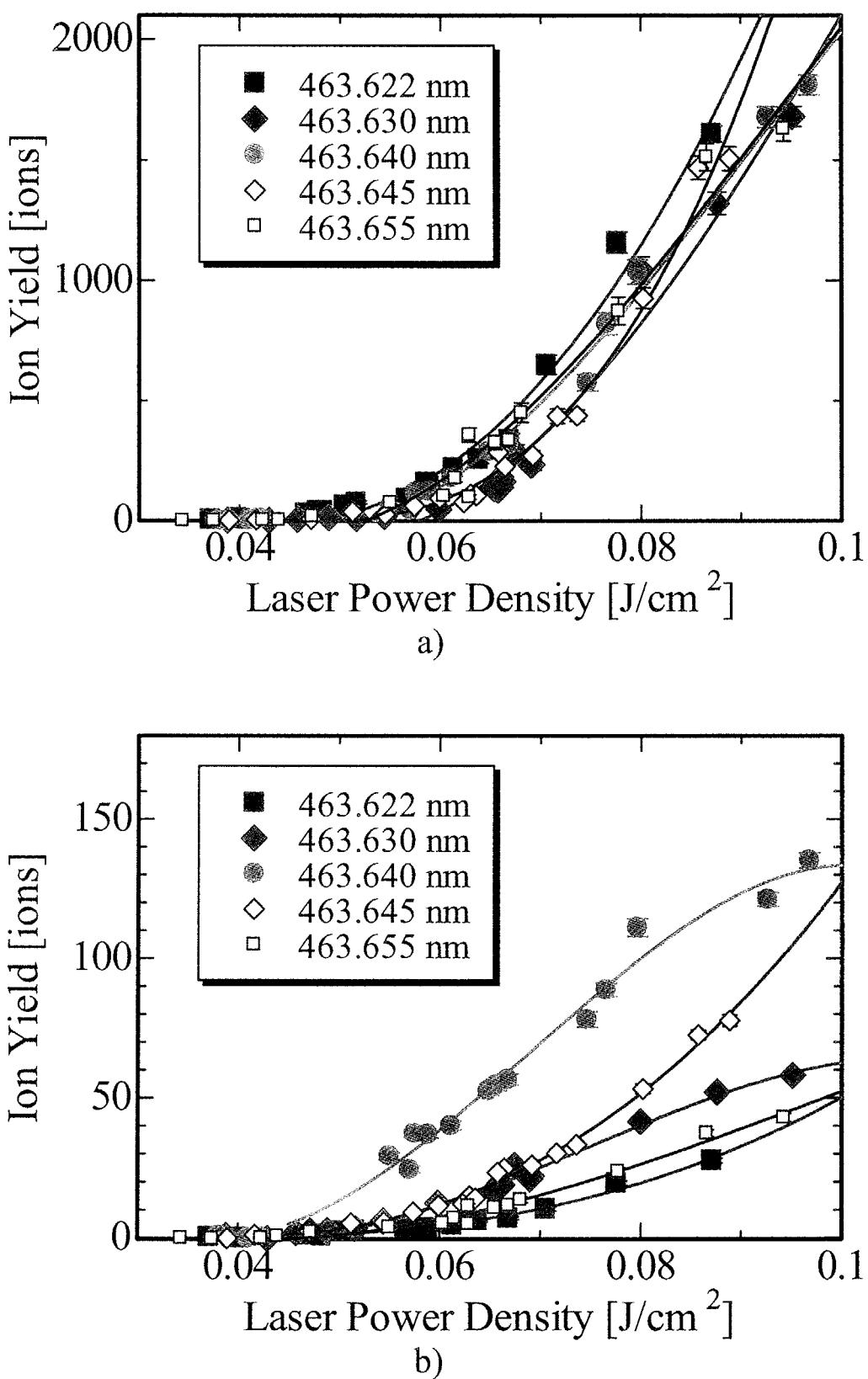


Fig. 22 Laser power dependence of a)Fe and b)Cu ion yield.

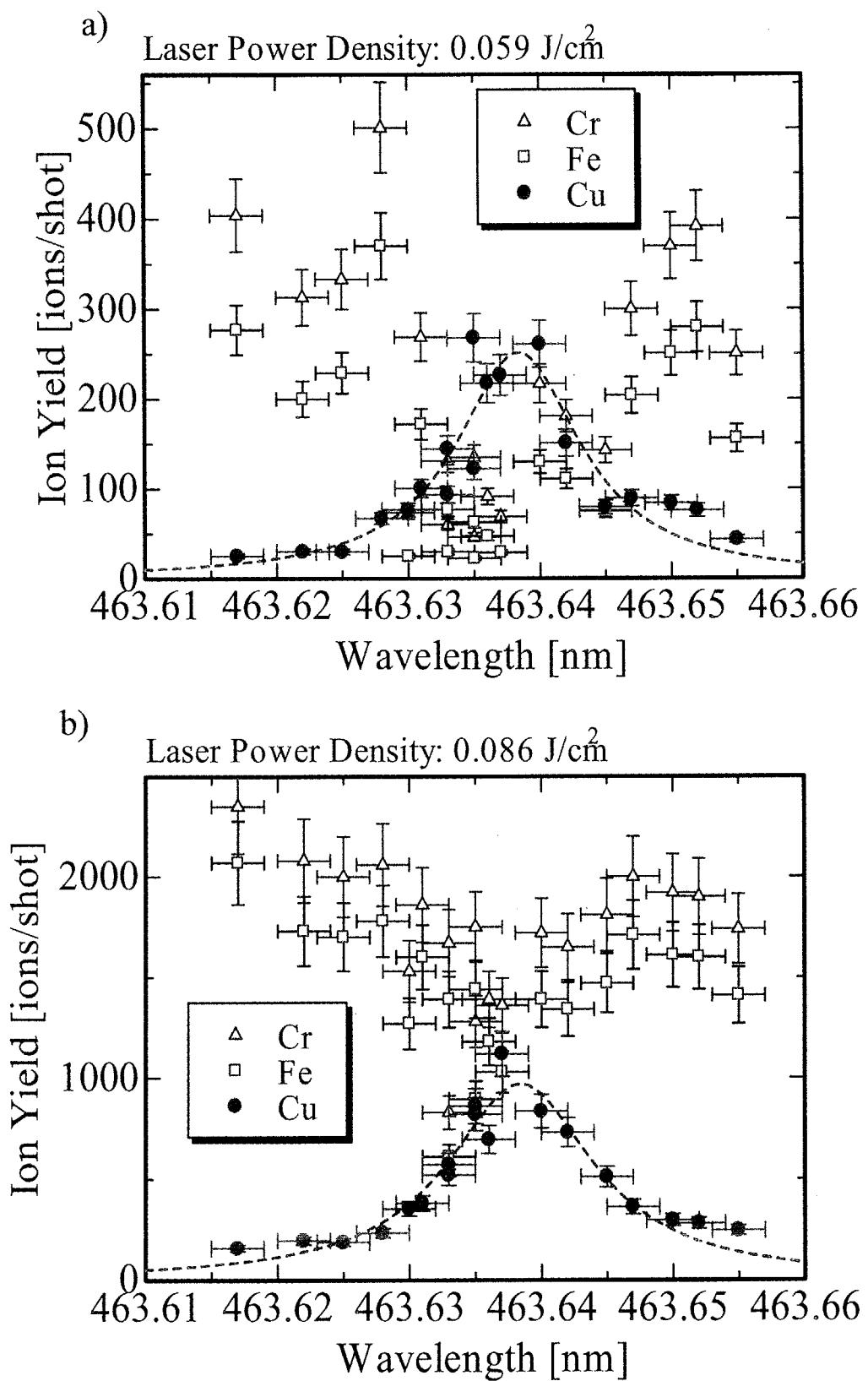


Fig. 23 Laser wavelength dependence of ion yield at the laser power of a) 0.059 J/cm^2 and b) 0.086 J/cm^2

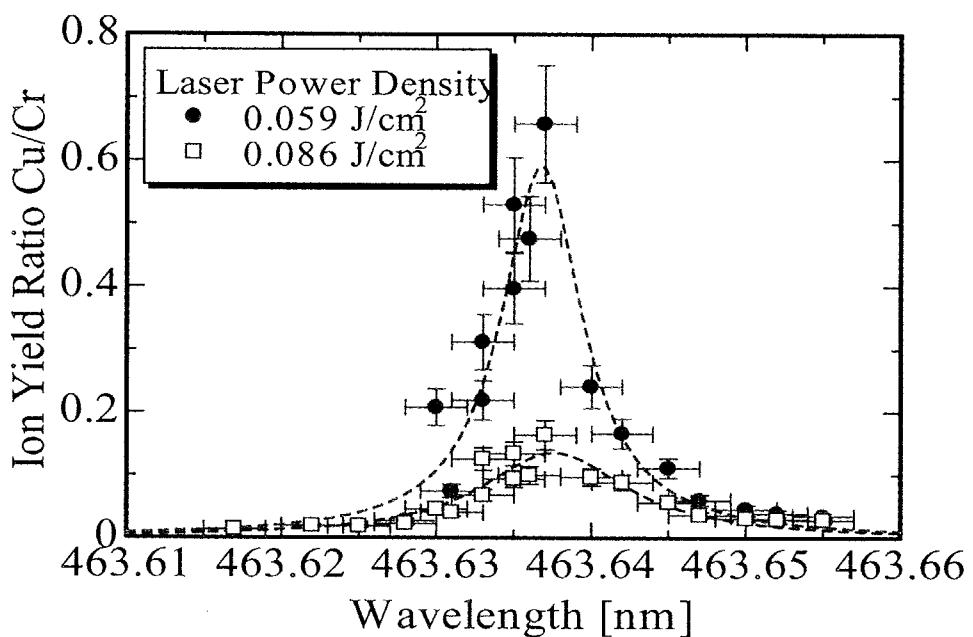


Fig. 24 Laser wavelength dependence of the ion yield ratio of Cu to Cr.

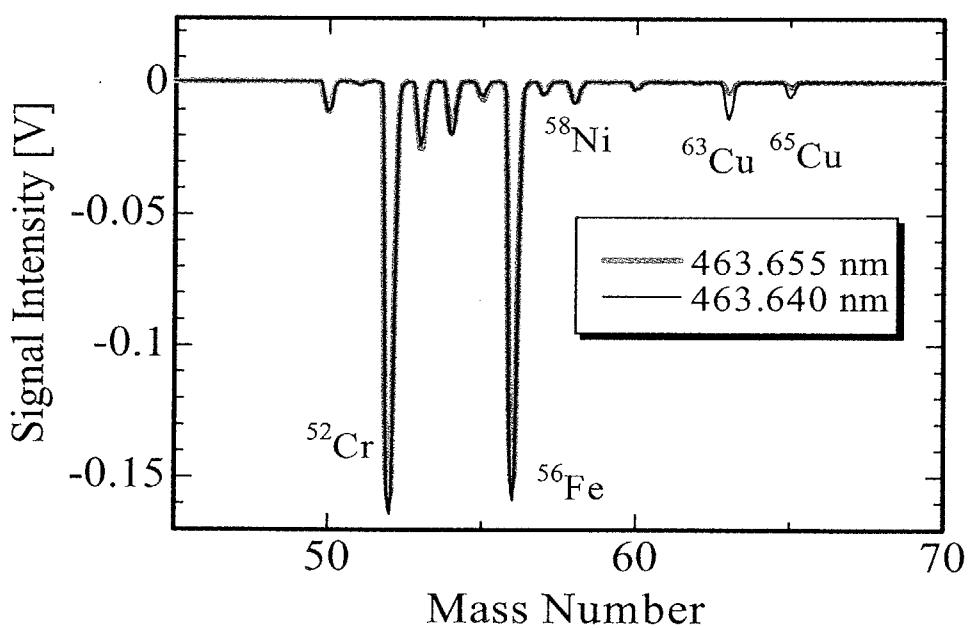


Fig. 25 Mass spectra under the laser beam split RLA on and off resonance for copper.

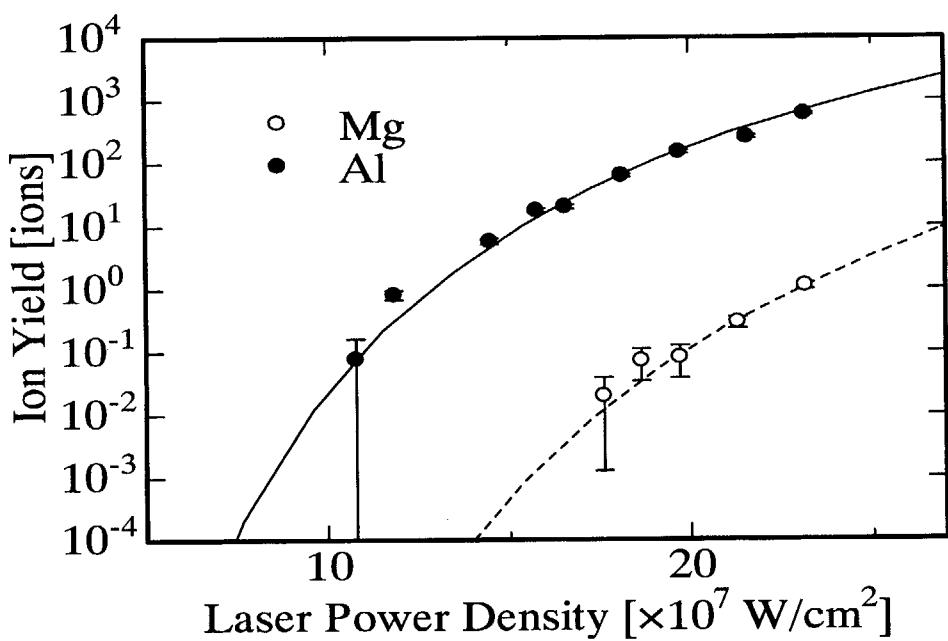


Fig. 26 LA laser power dependence of Al and Mg ion yield.

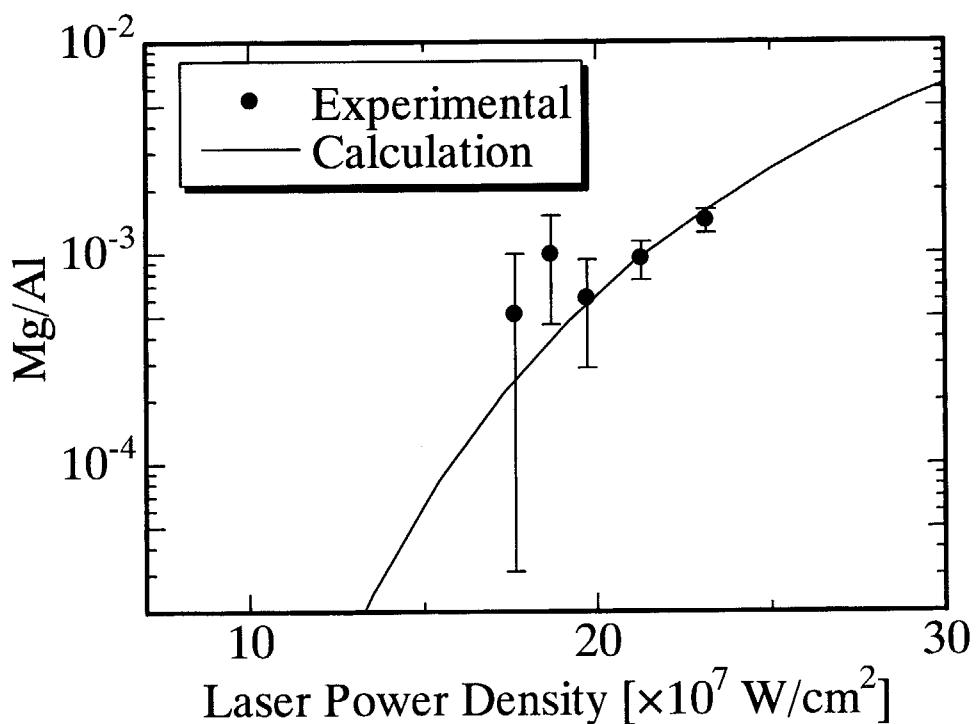


Fig. 27 LA laser power dependence of the elemental selectivity, which is the ratio of Mg to Al ion yield.

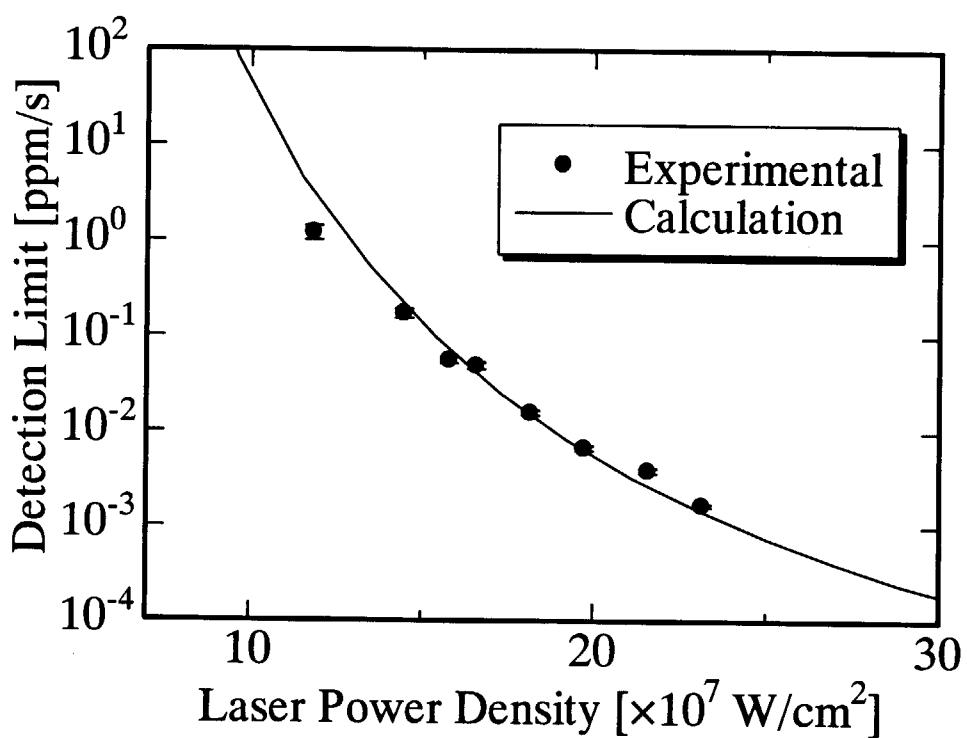


Fig. 28 LA laser power dependence of the detection limit concentration for Al.

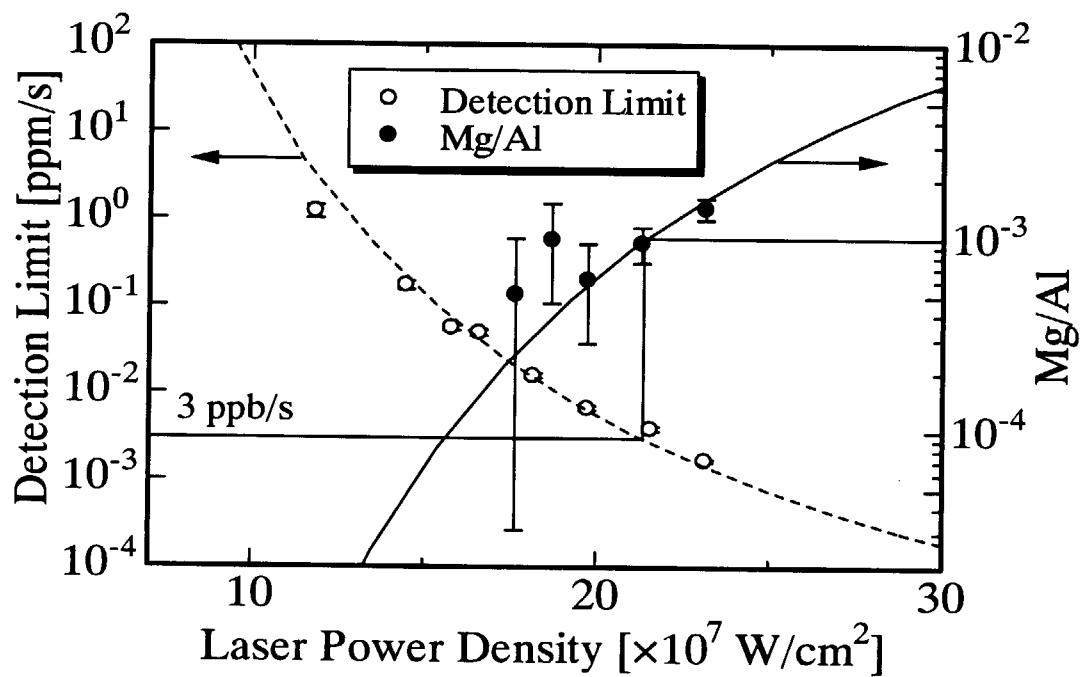


Fig. 29 LA laser power dependence of the elemental selectivity and detection limit concentration for present RLA-MS system.

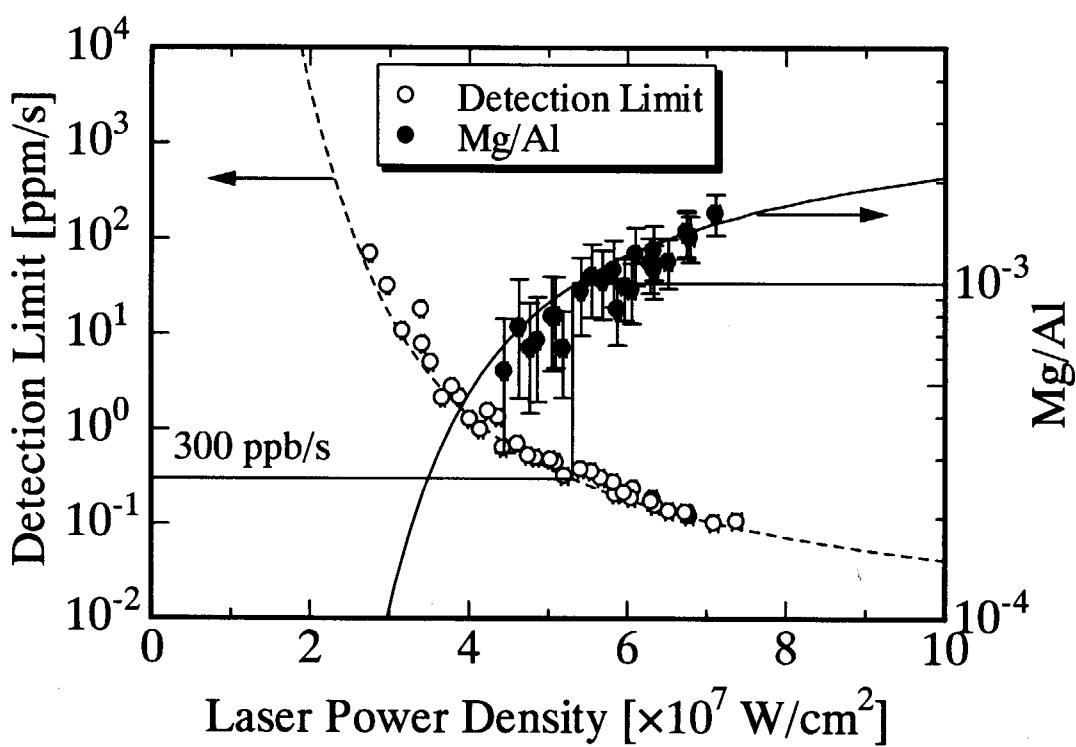


Fig. 30 LA laser power dependence of the elemental selectivity and detection limit concentration for present RLA-MS system.

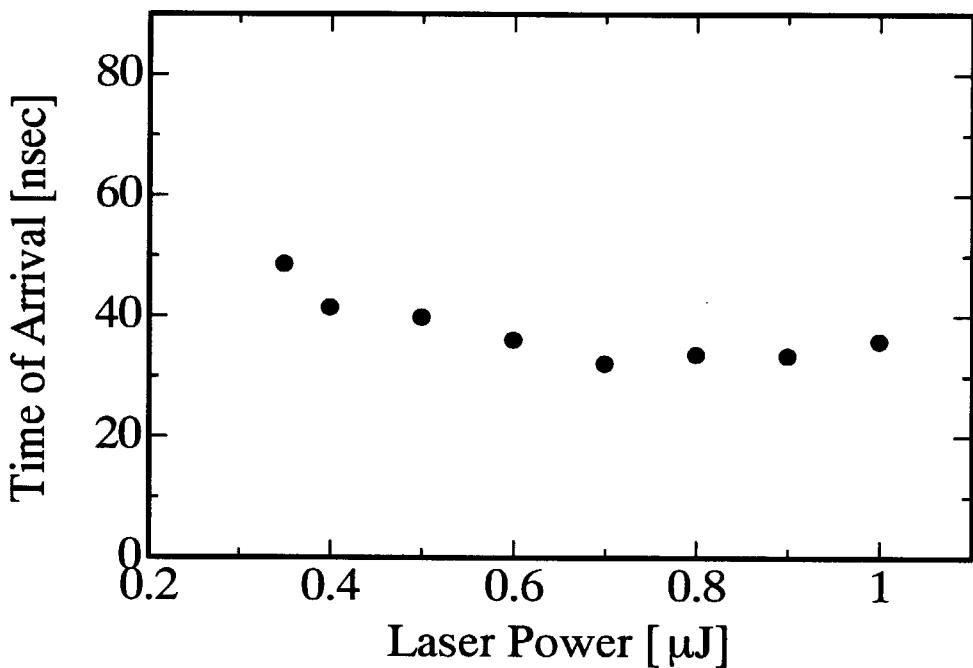


Fig. 31 LA laser power dependence of the vapor arrival time, which take for vapor to arrive from sample surface to RIS laser spot where is at 50μm distance from sample surface, when the conventional long-pulse (10 ns) dye laser system is used.

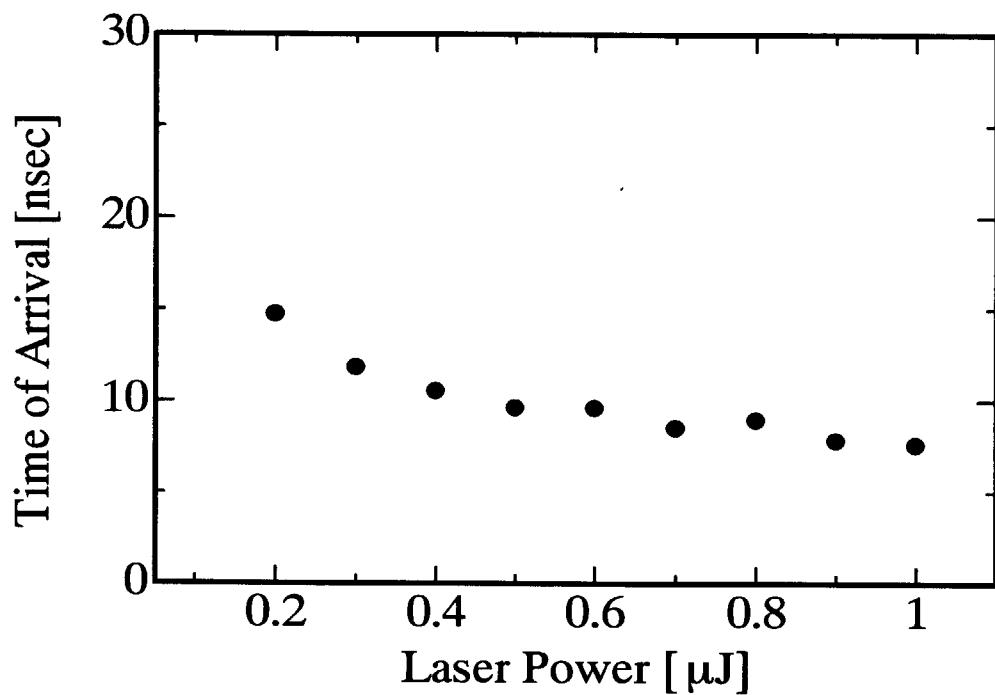


Fig. 32 LA laser power dependence of the vapor arrival time, which take for vapor to arrive from sample surface to RIS laser spot where is at 50 μ m distance from sample surface, when the present short-pulse (100 ps) Ti:Sapphire laser system is used.

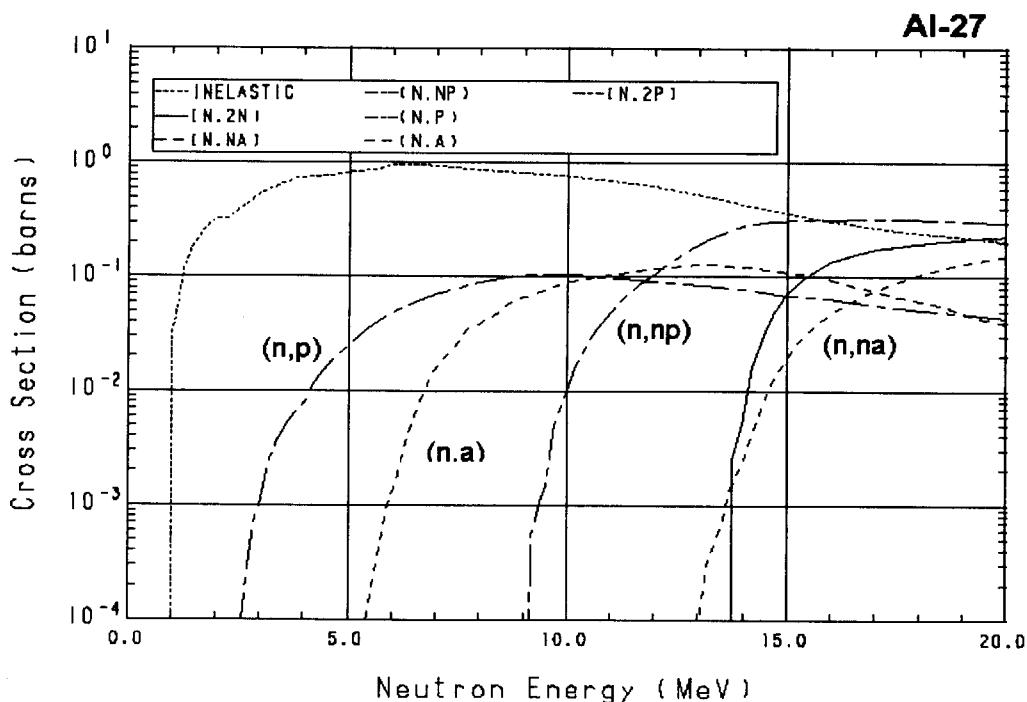


Fig. 33 Neutron cross section for Al

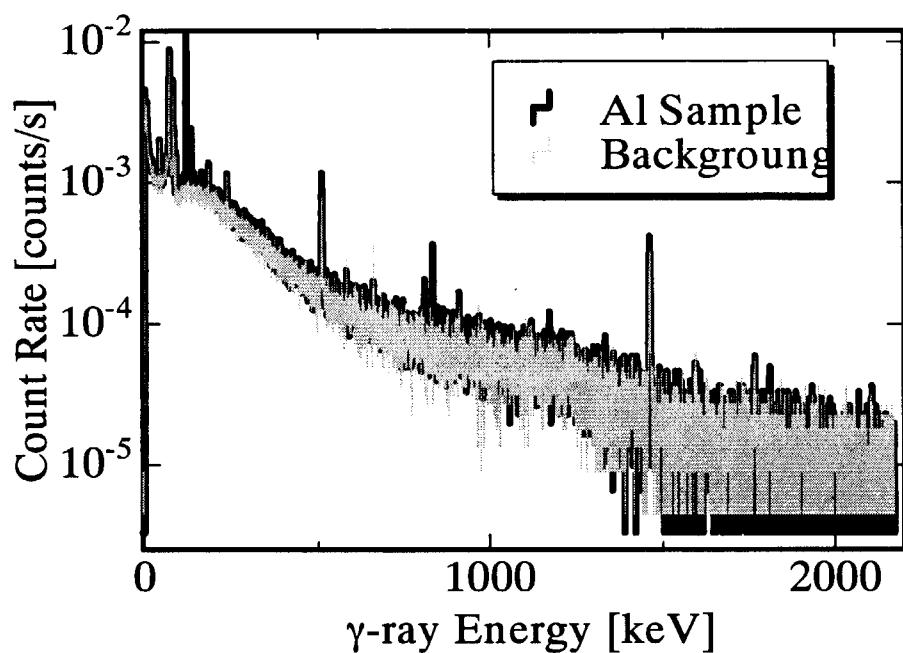


Fig. 34 Gamma-ray energy spectra obtained from Al irradiated
by 14 MeV neutrons

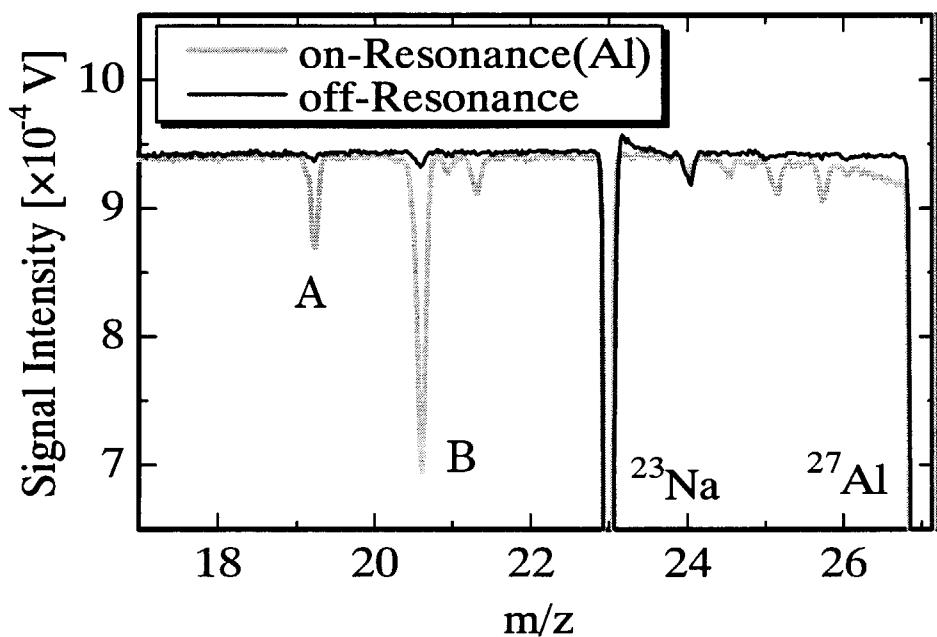


Fig. 35 RLA mass spectra obtained from Al irradiated by 14 MeV
neutrons.

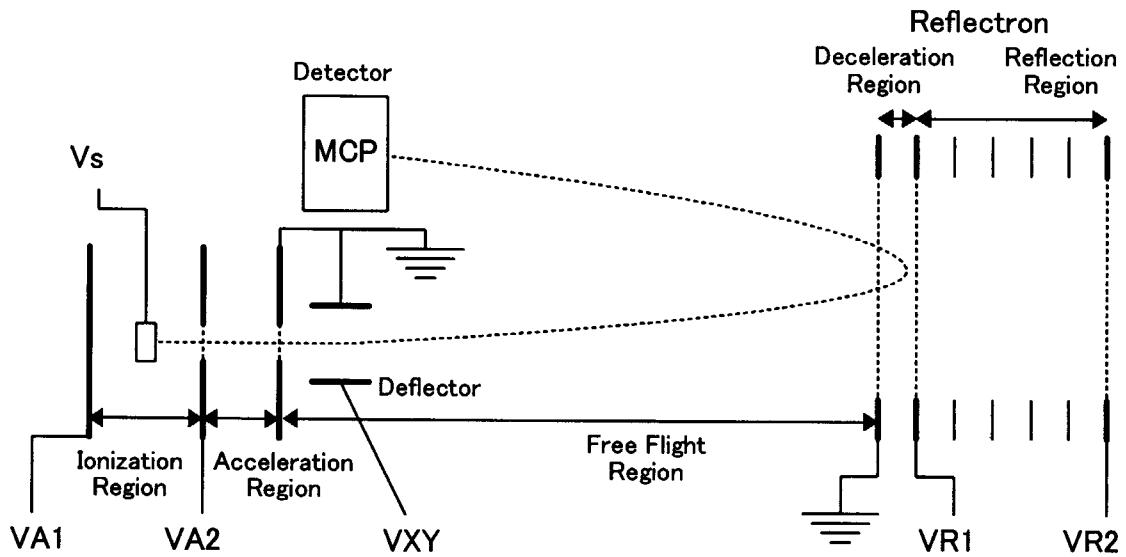


Fig. 36 Diagram of TOF-MS electrodes.

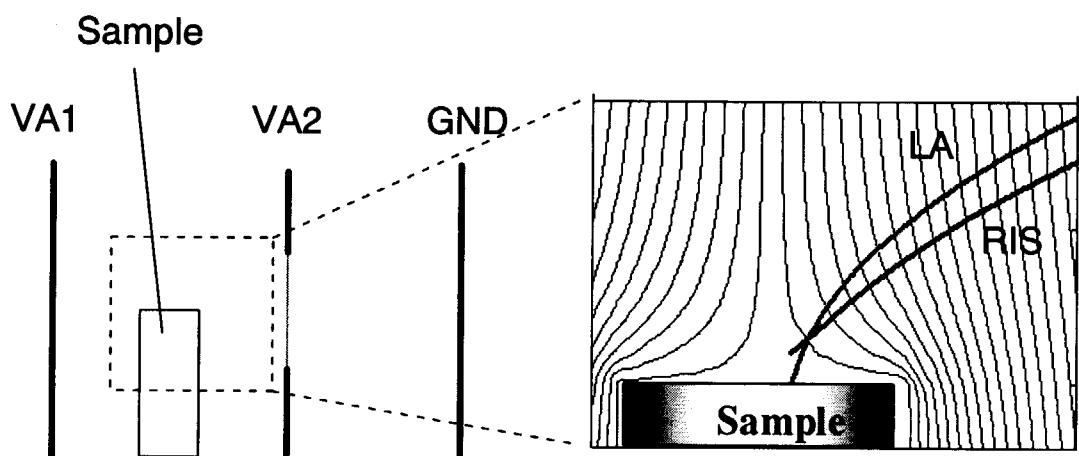


Fig. 37 Isopotential map near a sample.

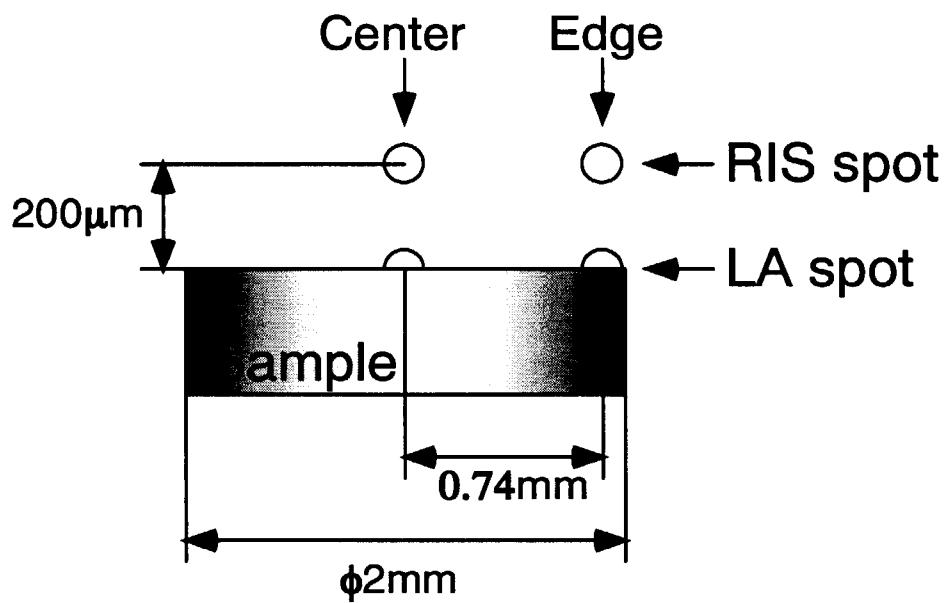
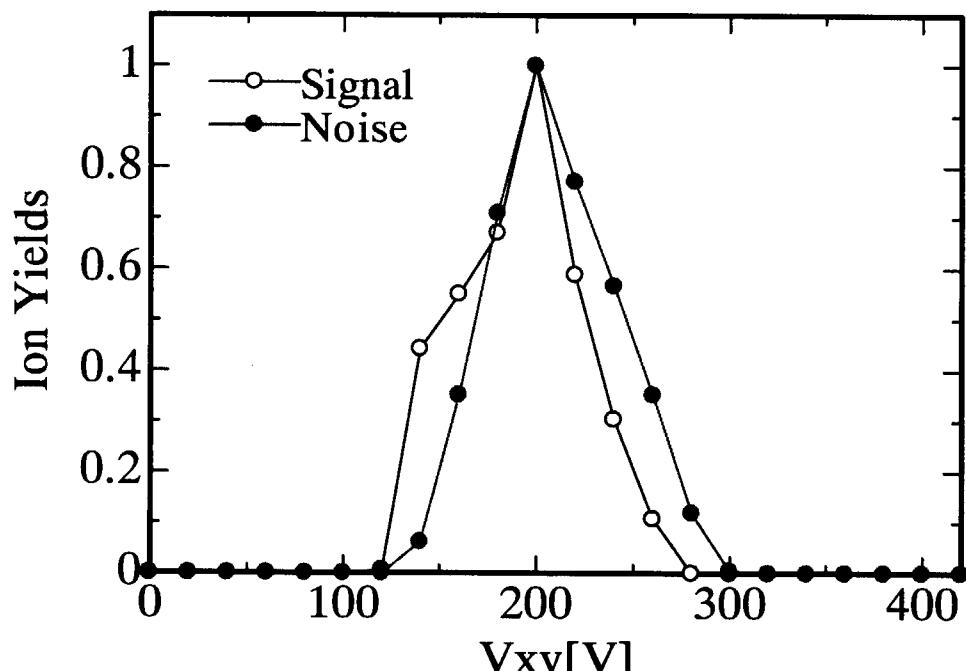
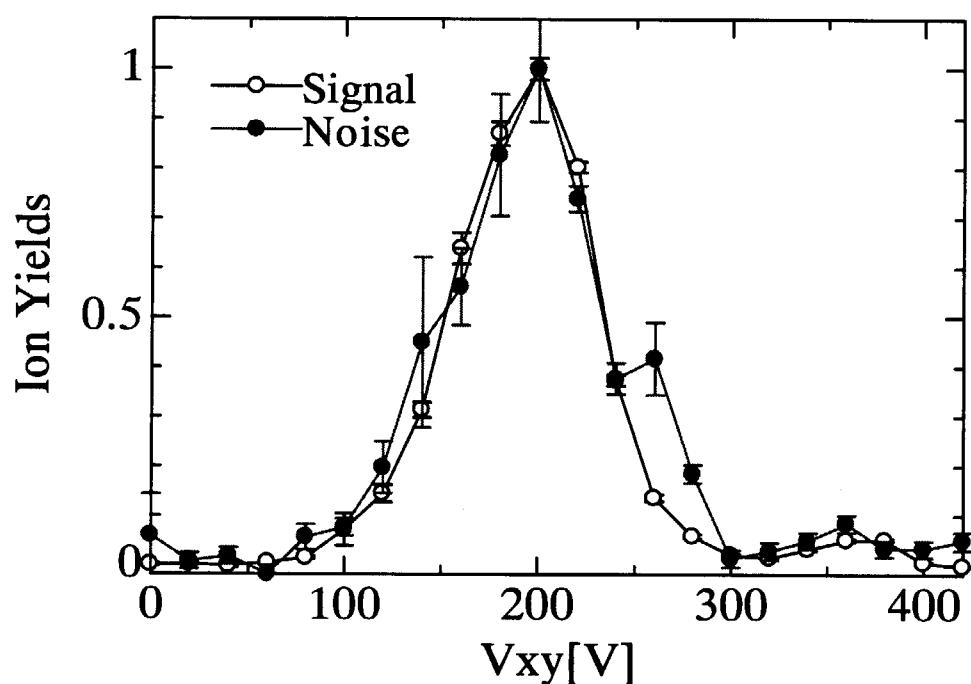


Fig. 38 Diagram of laser irradiation spot to a sample.

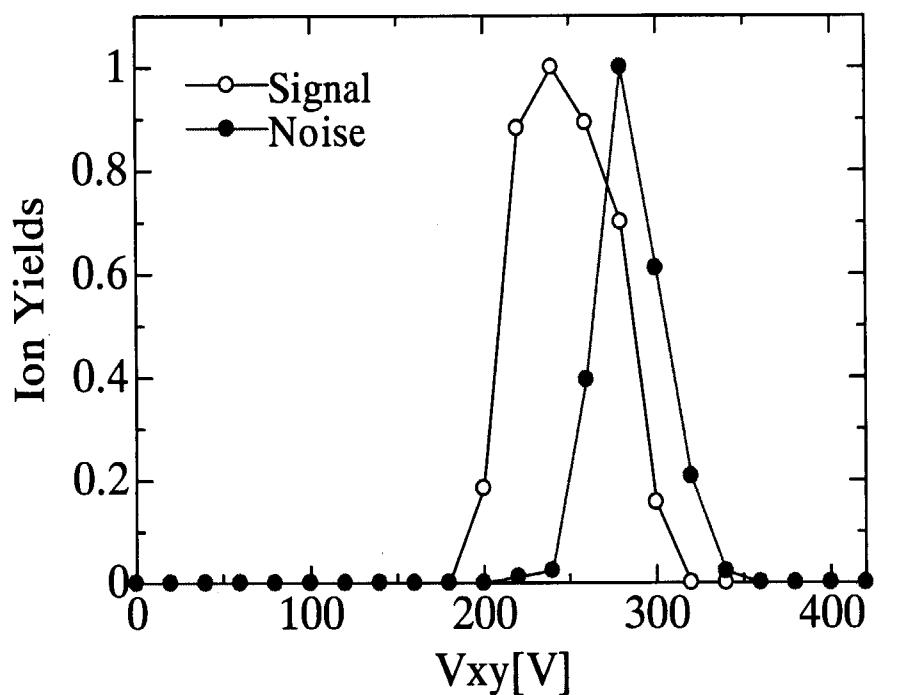


a)

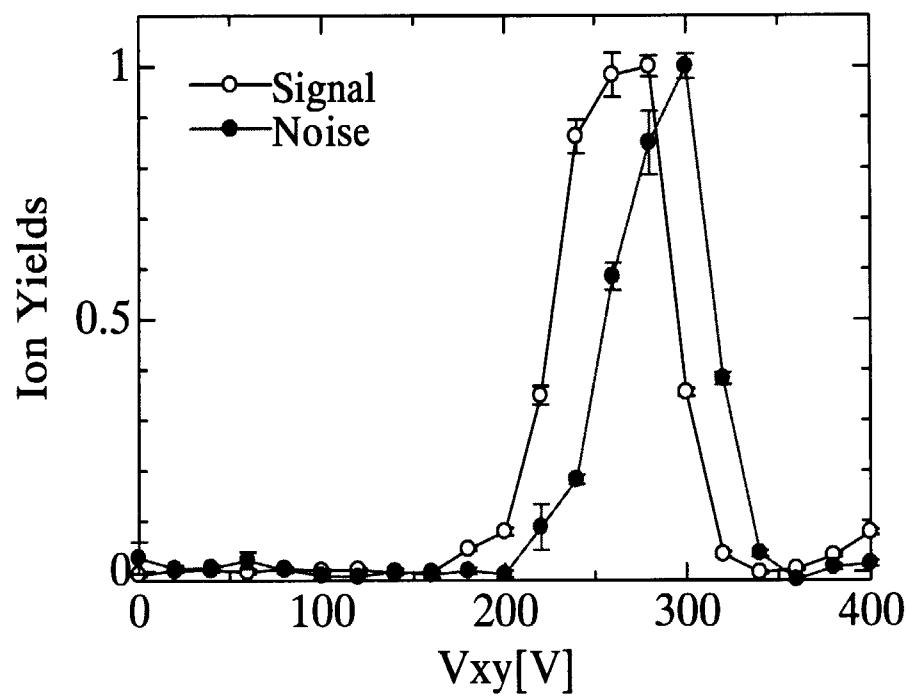


b)

Fig.39 Dependence of LA and RIS ion yield on the applied voltage to the deflection electrode V_{xy} , when LA laser irradiates on sample center and applied voltage to the extraction electrode VA1 is 4000 V. a) and b) are simulation and experimental results, respectively.



a)



b)

Fig.40 Dependence of LA and RIS ion yield on the applied voltage to the deflection electrode V_{xy} , when LA laser irradiates on 0.74 mm distance from sample center and applied voltage to the extraction electrode V_{A1} is 4000 V. a) and b) are simulation and experimental results, respectively.

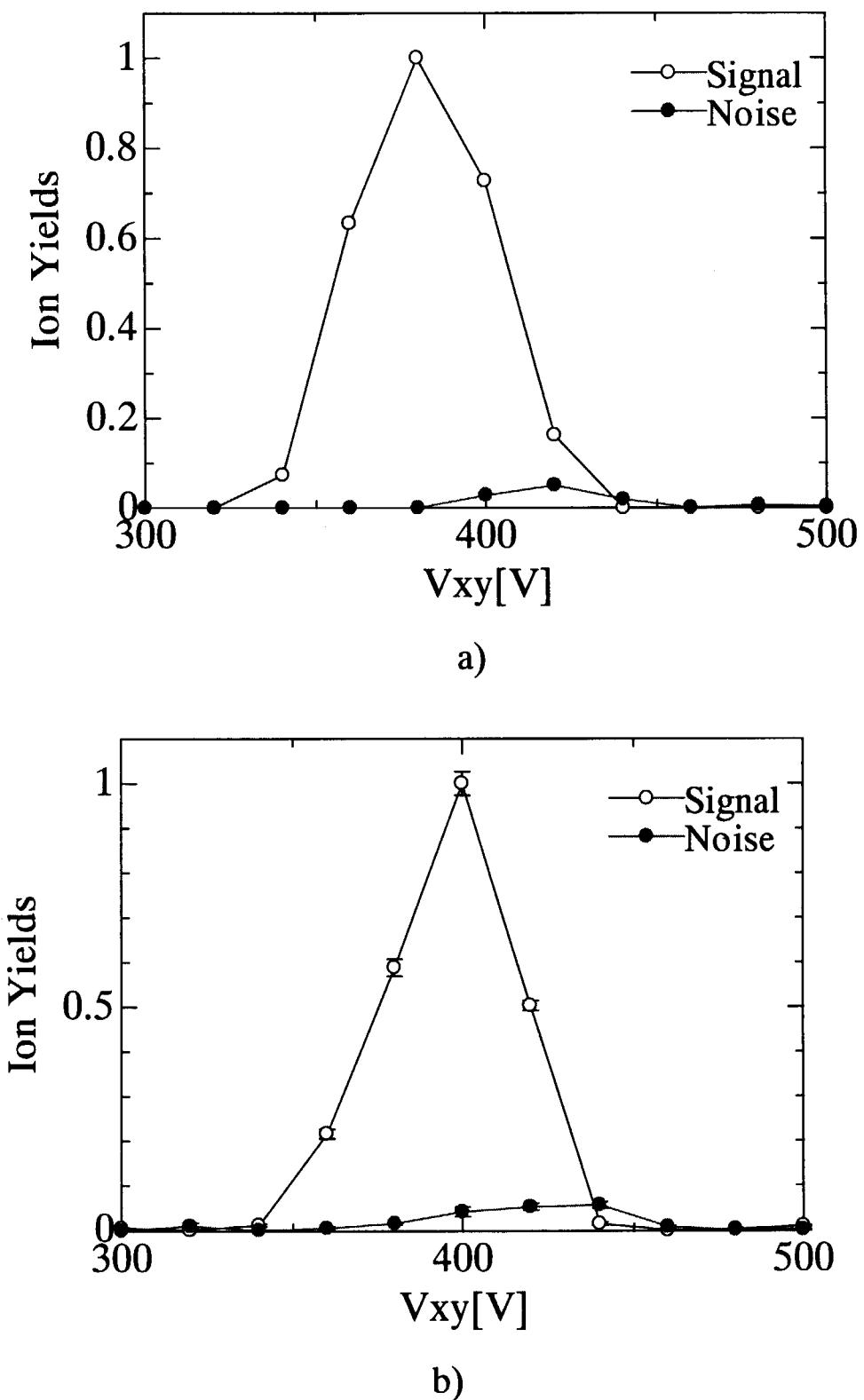
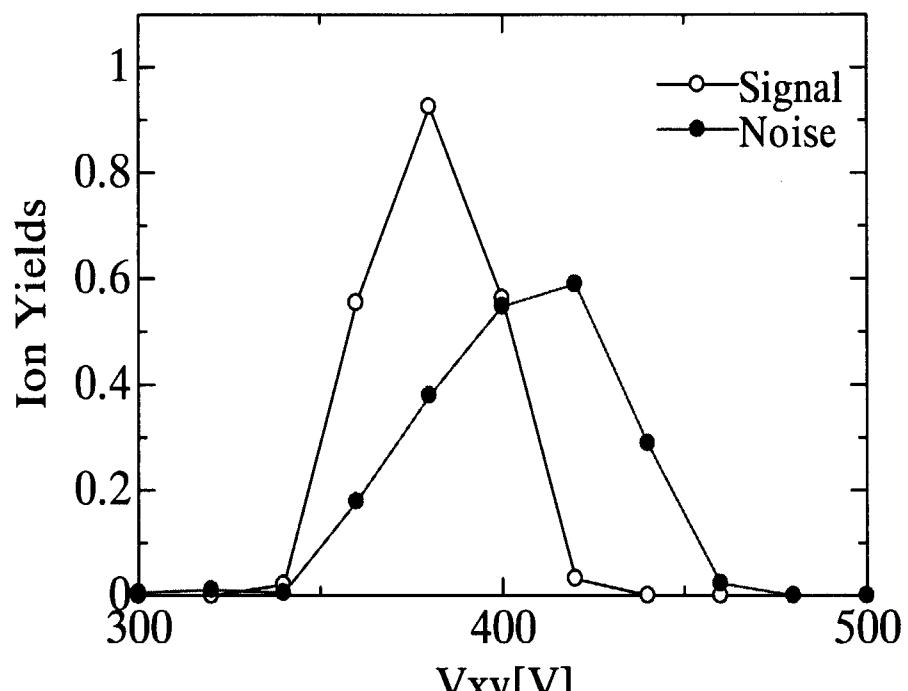
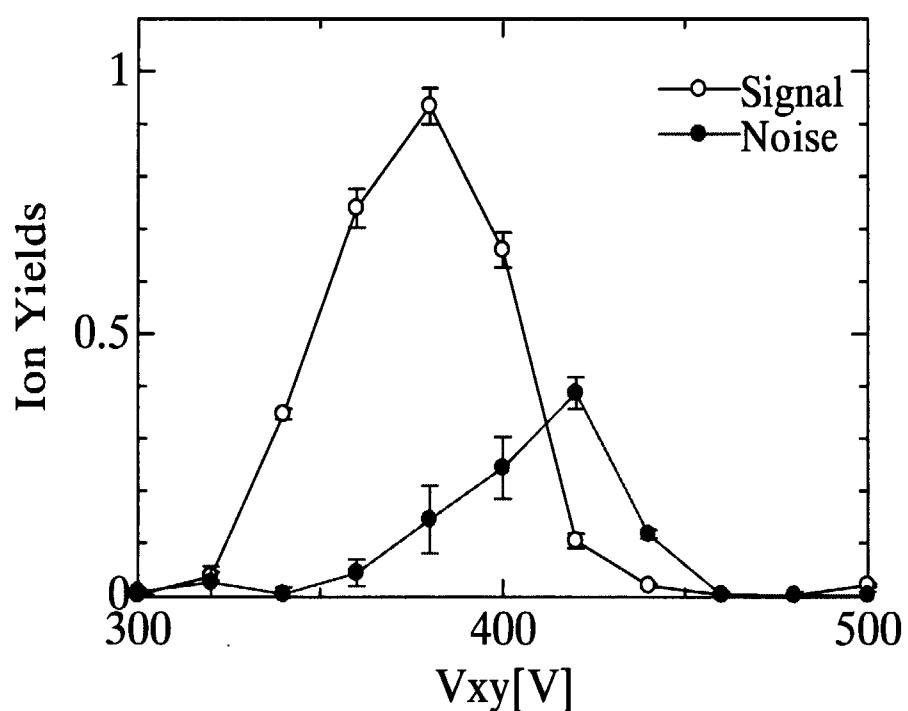


Fig.41 Dependence of LA and RIS ion yield on the applied voltage to the deflection electrode V_{xy} , when LA laser irradiates on 0.87 mm distance from sample center and applied voltage to the extraction electrode VA1 is 3950 V. a) and b) are simulation and experimental results, respectively.

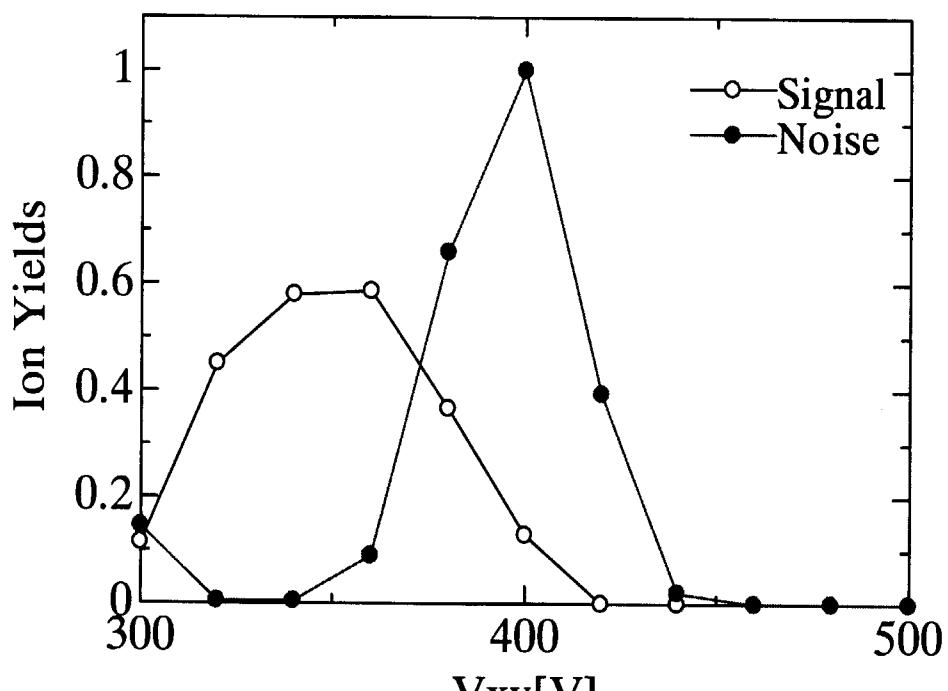


a)

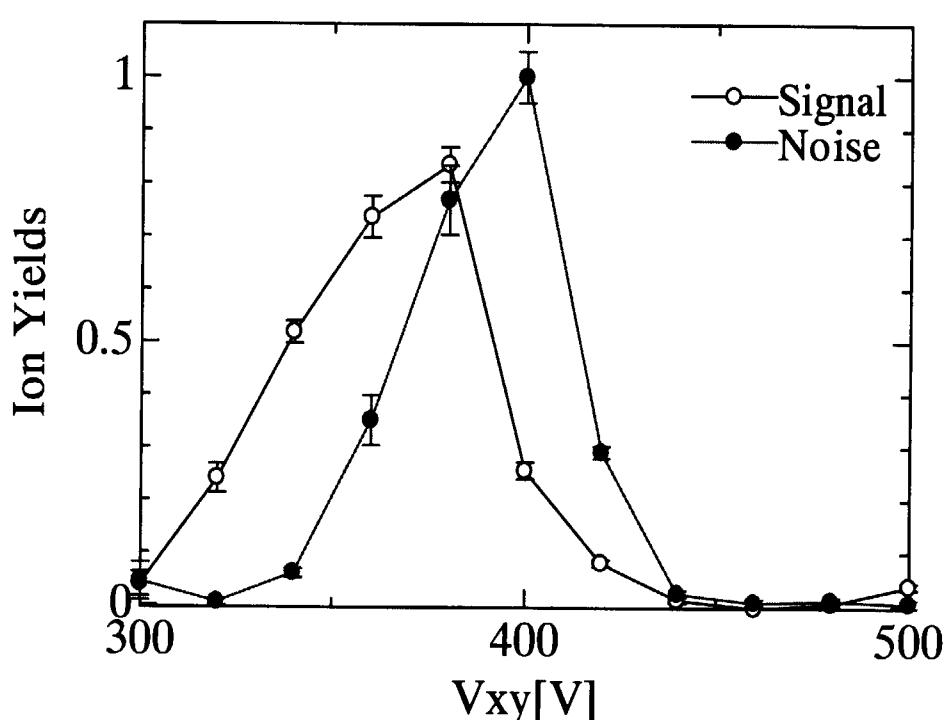


b)

Fig.42 Dependence of LA and RIS ion yield on the applied voltage to the deflection electrode V_{xy} , when LA laser irradiates on 0.87 mm distance from sample center and applied voltage to the extraction electrode V_{A1} is 4000 V. a) and b) are simulation and experimental results, respectively.



a)



b)

Fig.43 Dependence of LA and RIS ion yield on the applied voltage to the deflection electrode V_{xy} , when LA laser irradiates on 0.87 mm distance from sample center and applied voltage to the extraction electrode V_{A1} is 4050 V. a) and b) are simulation and experimental results, respectively.

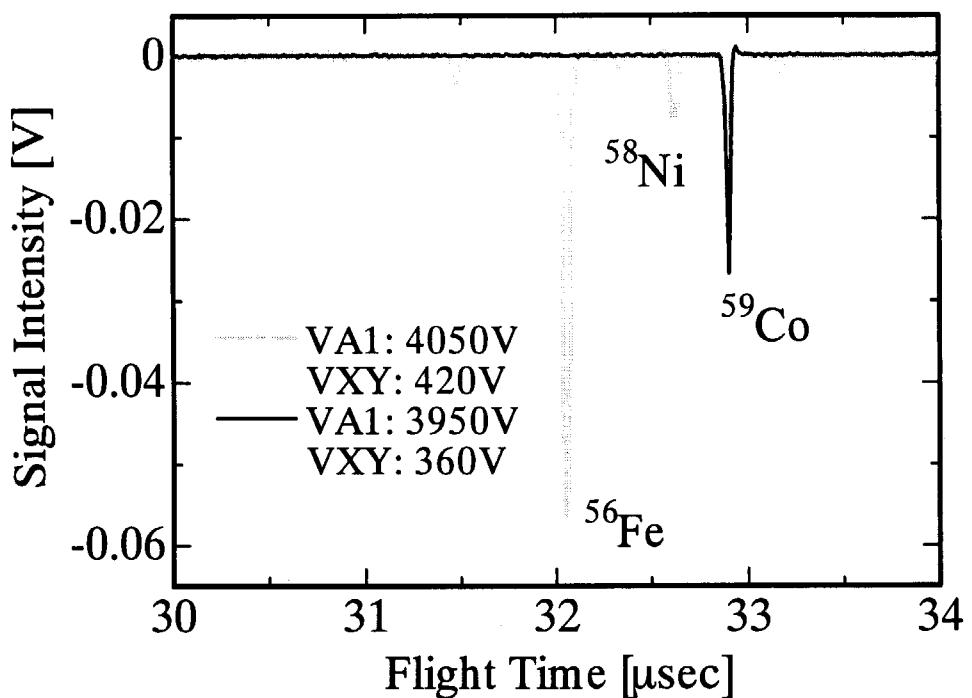


Fig.44 Mass spectra suppressing the non-resonance ionization component, which is caused by ions produced on laser ablation.

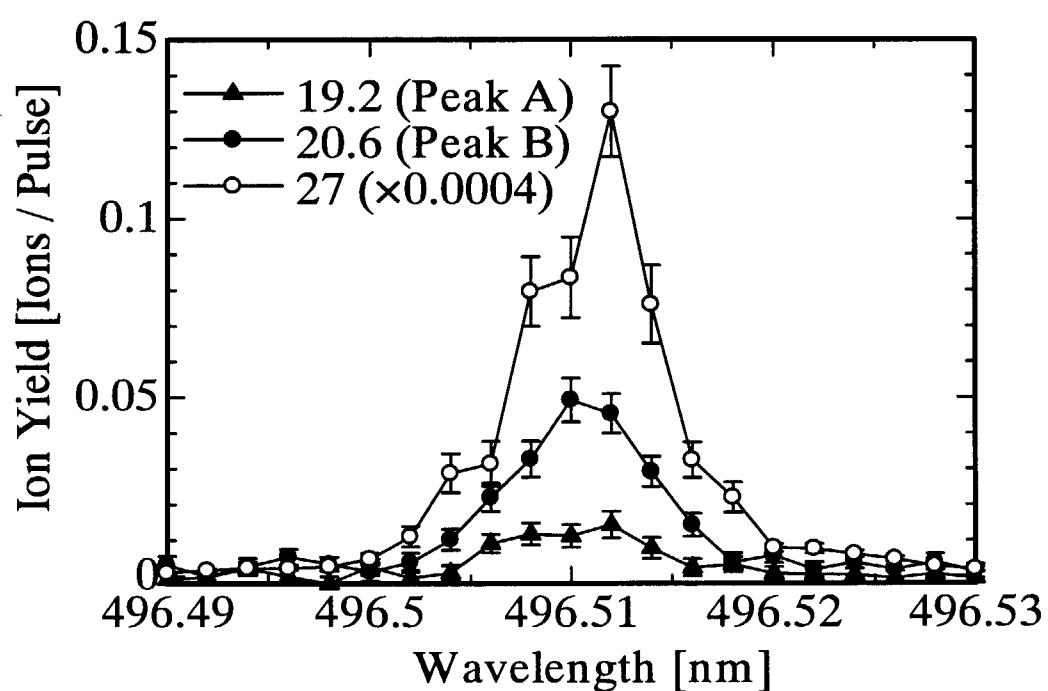


Fig.45 RIS laser wavelength dependence of ion yield corresponding to peak A and B, which locate at $m/z = 19.2$ and 20.6 , respectively, in Fig. 35.

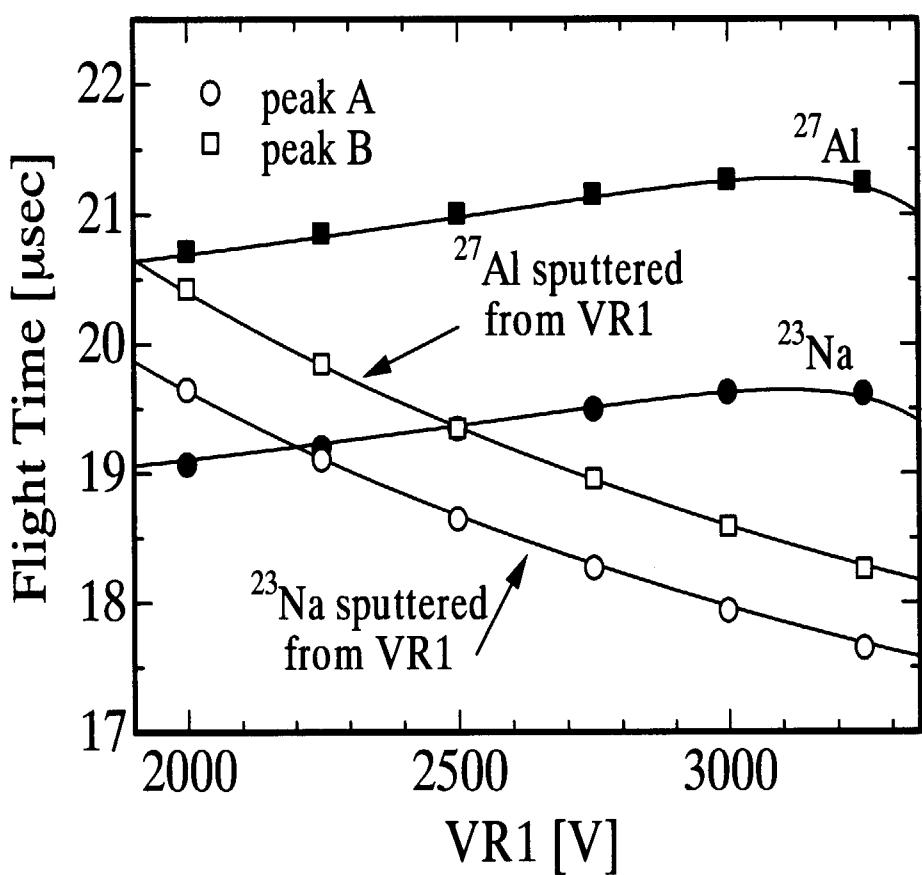


Fig. 46 Flight time dependence of the component corresponding to peak A and B on the applied voltage of reflectron electrode VR1, where dots and lines show experimental and simulated results.

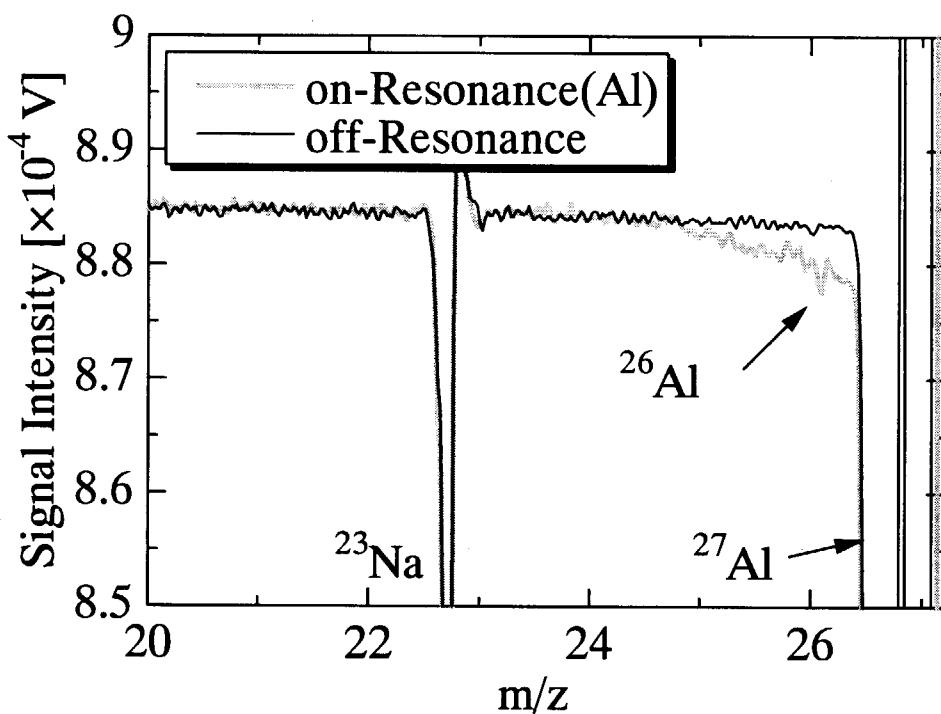


Fig. 47 Mass spectra obtained from Al irradiated by 14 MeV neutrons after the applied voltages of TOS electrodes are modified.

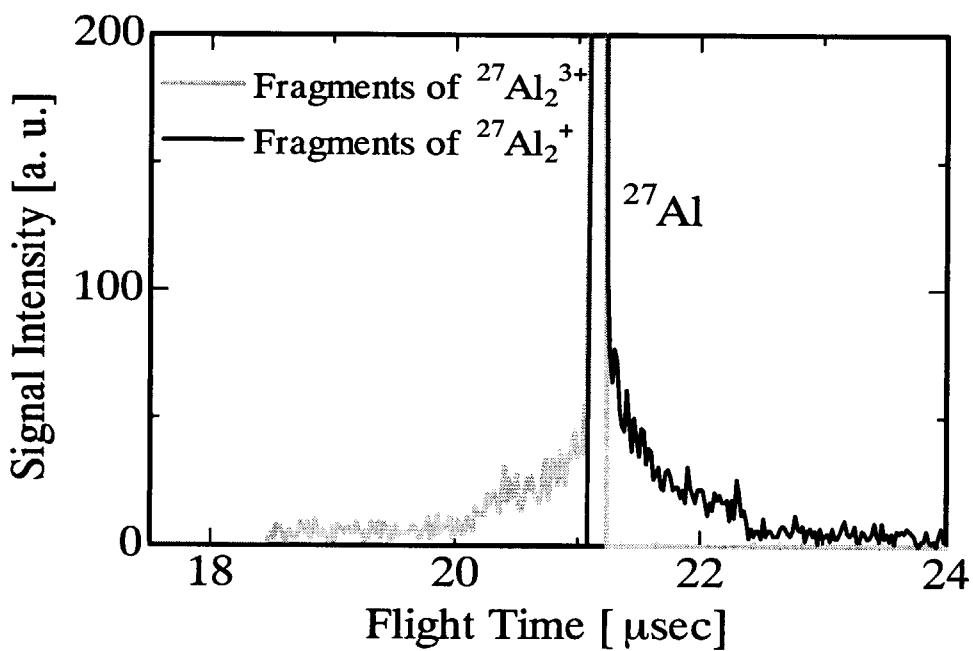


Fig. 48 Mass spectra simulated by Monte Carlo method considering the cluster ion effect.

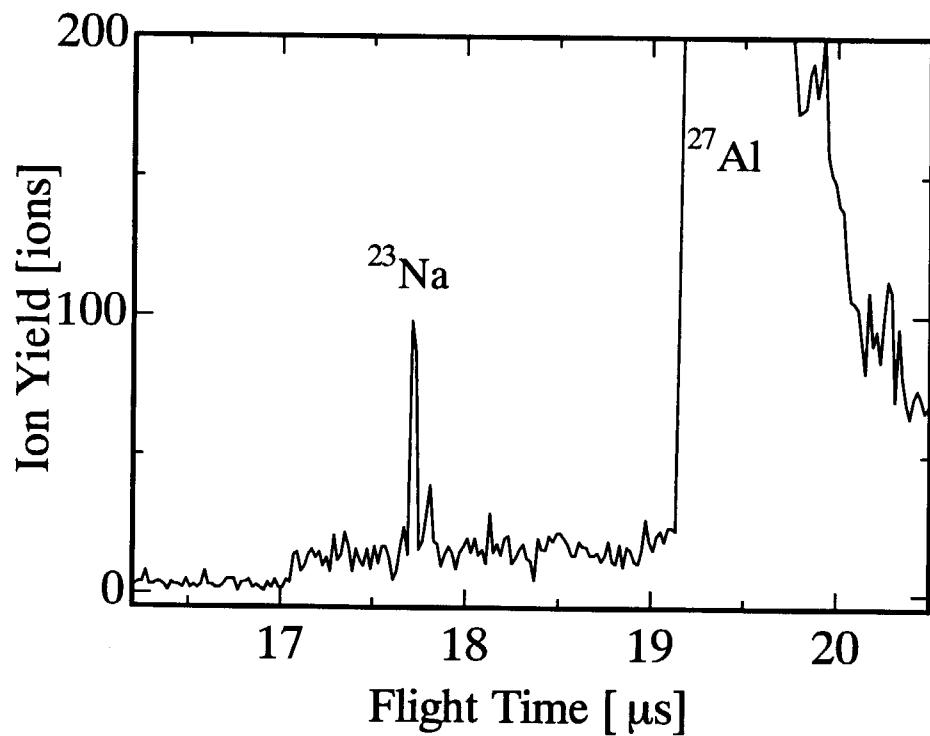


Fig.49 Mass spectrum obtained from Al irradiated by 14 MeV neutrons using the improved RLA-MS system.

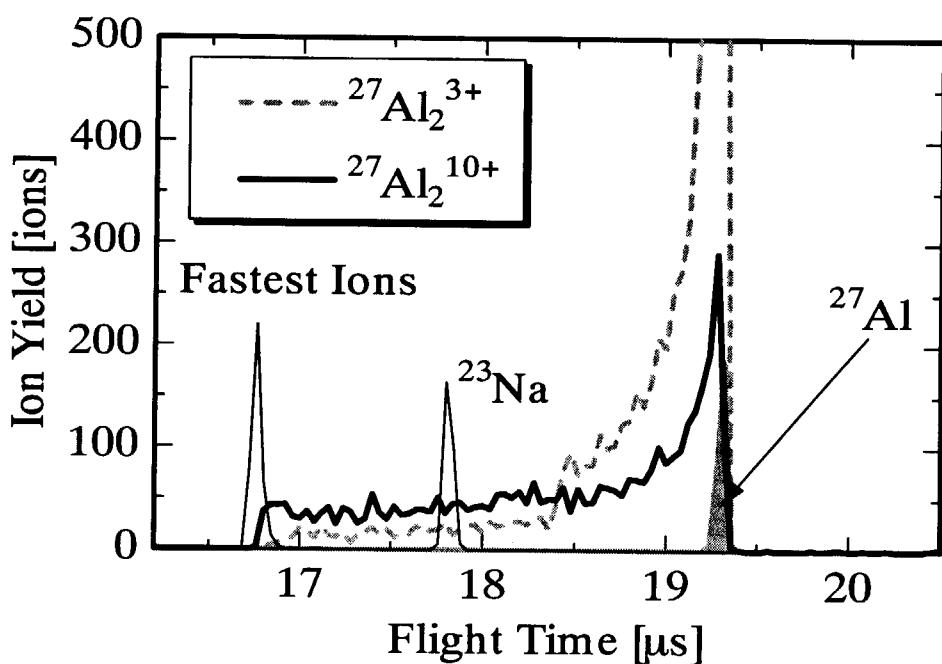


Fig. 50 Mass spectra of highly charged ions simulated by Monte Carlo method

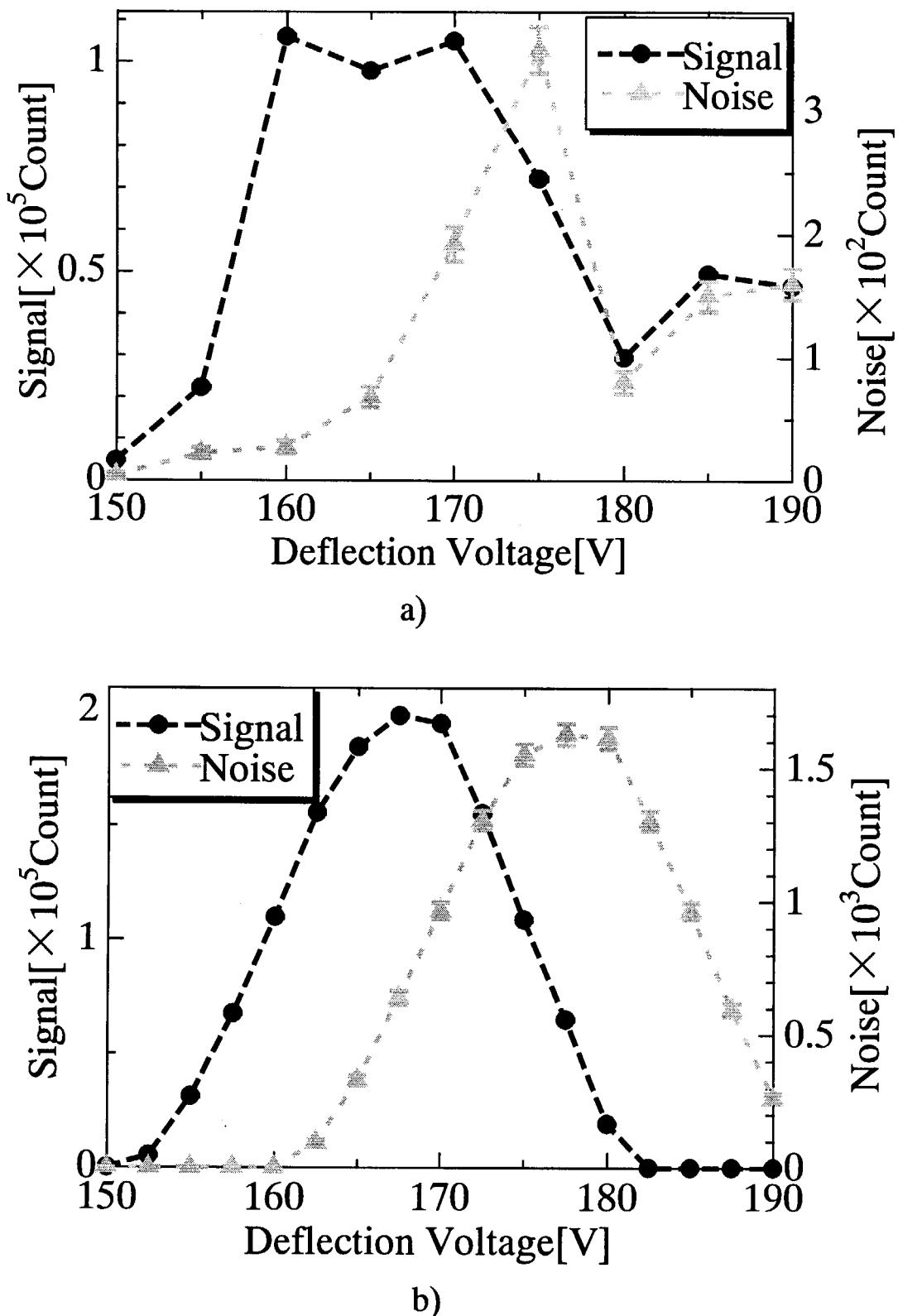


Fig.51 Dependence of ion yield for signal (non-cluster) and noise (cluster) component on the deflector electrode voltage when slit is set in front of MCP, where a) and b) show experimental and simulated results, respectively.

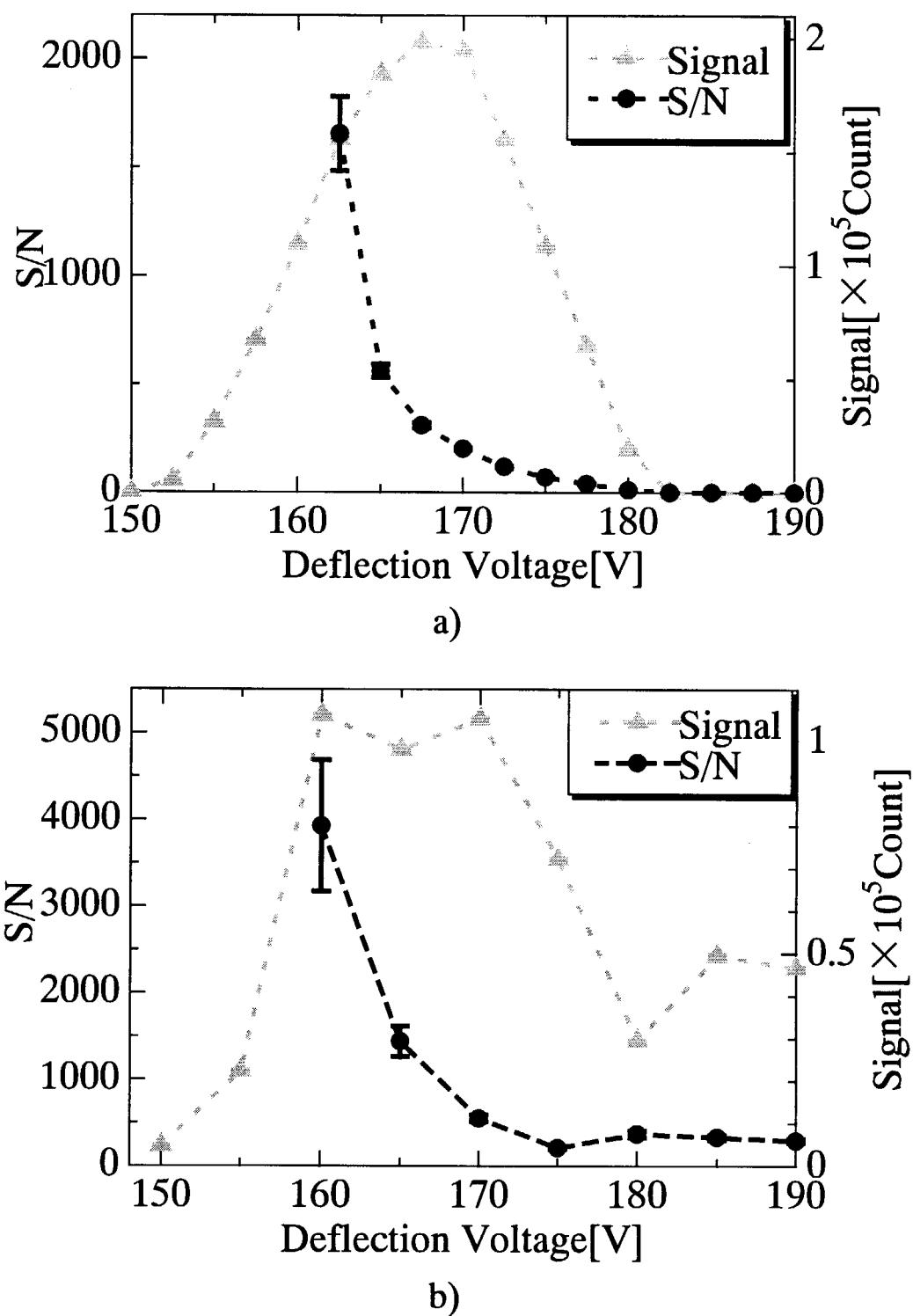


Fig. 52 Dependence of the ratio of signal (non-cluster) to noise (cluster) component on the deflector electrode voltage when slit is set in front of MCP, where a) and b) show experimental and simulated results, respectively.

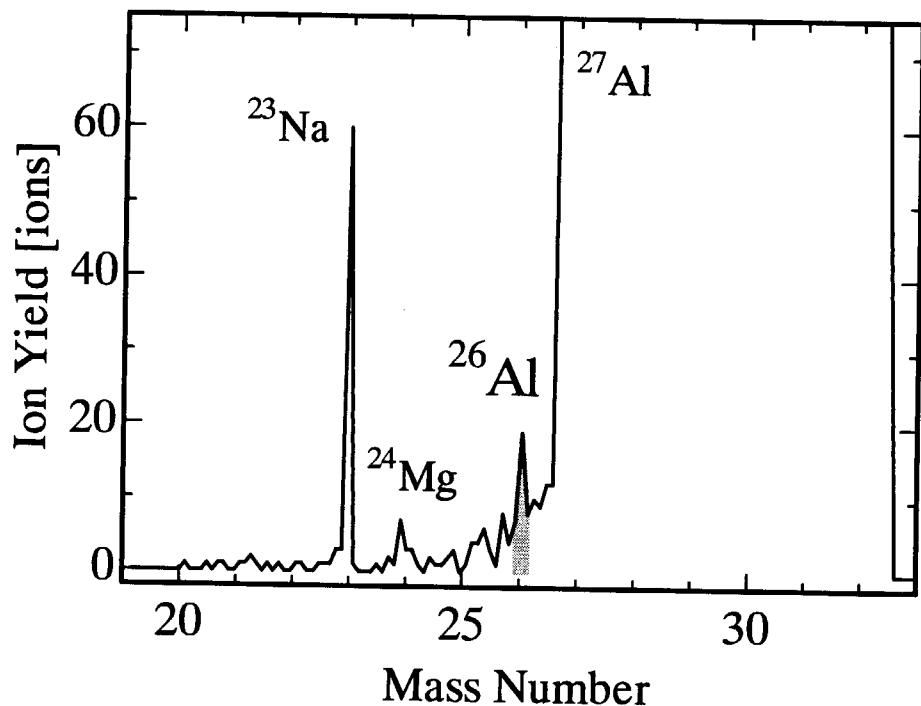


Fig.53 Mass spectrum obtained from Al irradiated by 14 MeV neutrons when slit is set in front of MCP and deflector voltage is tuned to optimal voltage.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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
光强度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジユール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L, l
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC開催理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(N\cdot\text{s}/\text{m}^2)=10 \text{ P(ボアズ)}(\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s}=10^4 \text{ St(ストークス)}(\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻³
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605J (計量法)	
								= 4.184J (熱化学)	= 4.1855J (15°C)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸		
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹		
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ³	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵		
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹		
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹		
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸		
	1.60218 × 10 ¹⁹	1.63377 × 10 ²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

共鳴レーザー干涉計を用いた超高感度中性子ドップラー手法に関する基礎研究

(原子力基礎研究 H-2-O35) (委託研究)

