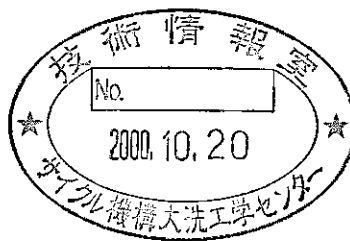


レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) を用いた  
Na冷却型高速炉用破損燃料位置検出システムの開発

－ 「常陽」 RIMSシステムの設計 －

(研究報告書)

2000年7月



核燃料サイクル開発機構  
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4-49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184

Japan

©核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2000

レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) を用いた  
Na 冷却型高速炉用破損燃料位置検出システムの開発  
— 「常陽」 RIMS システムの設計 —  
(研究報告書)

原野英樹\*、野瀬正一\*、伊藤和寛\*

要 旨

燃料破損を迅速に検知し (FFD: Fuel Failure Detection)、破損燃料集合体の正確な同定 (FFDL: Failed Fuel Detection and Location) を行なうことは高速炉プラントの安全性や信頼性、更には稼働率の向上の観点から極めて重要である。この FFDL の高度化の為の方策として、カバーガスに含まれる極微量 Kr、Xe の検出へのレーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS: Resonance Ionization Mass Spectrometry) の適用が提案され、東京大学原子力工学研究施設の RIMS 装置を用いて行なった基礎検討により運転中の実時間モニタリングの可能性をも示唆する数々の優れた特性が報告されている。

そうした状況を受け、現在、本方式をベースとしたレーザ法 FFDL システムを開発し、高速実験炉「常陽」への導入について検討を進めている。「常陽」に本システムを導入することで、安定同位体を含め高感度でカバーガス中の FP ガスやタグガスの同位体分析が可能となり、これにより、例えば、照射試験として実施している被覆管材料の破断試験において、破断試料の特定をオンパワーで可能とでき、或いは、破損燃料集合体の同定において、FP 核種の同位体組成比から破損燃料の燃焼度を推定するなどして事前の絞り込みが可能となるなど、照射技術の高度化や破損燃料同定までの大幅な時間短縮を望める。本報告書では、その出発点となる「常陽」用レーザ法 FFDL システムの基本設計結果について、東京大学原子力工学研究施設の RIMS 装置を用いた基礎的検討結果と合わせて報告する。

---

\*核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター  
照射施設運転管理センター 実験炉部技術課

**Development of the FFDL System using Resonance Ionization  
Mass Spectrometry for Sodium Cooled Fast Reactors  
- System Design for the JOYO -**

Hideki HARANO\*, Shoichi NOSE\*, Kazuhiro ITO\*

**ABSTRACT**

Immediate detection of fuel failure and subsequent precise identification of failed fuel assemblies are extremely important and indispensable for fast reactors from the viewpoint of their safety and reliability as well as the improvement of plant availability. In order to develop the failed fuel detection and location (FFDL) technology, laser resonance ionization spectrometry (RIMS) has been proposed to be applied to the trace analysis of krypton and xenon contained in cover gas. Various promising features have been reported including the results which suggest the feasibility of the method to the on-power real-time monitoring, through the fundamental study using the RIMS device at the nuclear engineering research laboratory (NERL) of the university of Tokyo.

Based on the information obtained above, we are developing a new laser FFDL system using RIMS which is planned to be introduced onto the fast experimental reactor JOYO. By the use of the system at the JOYO, isotope analysis can be performed with high sensitivity for not only radioactive but also stable elements in fission product (FP) and tag gas in the cover gas. This permits the improvement of irradiation technology and the immediate identification of failed fuel assemblies. For instance, it is possible to identify burst samples in the breach test of fuel cladding materials during irradiation. From the isotopic composition of the FP nuclides, the burnup of failed fuel can be estimated which allows the preliminary focusing in the FFDL. In this paper, we review the fundamental study using the RIMS device at NERL and report the basic design of the laser FFDL system for the JOYO.

---

\*Reactor Technology Section, Experimental Reactor Division, Irradiation Center,  
Oarai Engineering Center, JNC

目 次

1 緒言	1
2 レーザ共鳴イオン化質量分析法	5
3 東大弥生 RIMS 装置を用いた検討	9
3.1 システム構成	9
3.2 基礎検討結果	10
4 「常陽」用 RIMS システム	21
5 結言	26
参考文献	27

表リスト

表 1-1	「常陽」の破損燃料検出系	3
表 1-2	破損燃料位置検出系	3
表 3-1	Xe 同位体組成比の組成比の比較	12
表 3-2	Kr 同位体組成比の組成比の比較	12

## 図リスト

図 1-1	タギング法の原理	4
図 2-1	質量分析プロセス	6
図 2-2	レーザー共鳴イオン化法の概念図	7
図 2-3	Kr の同重体干渉の例	8
図 2-4	Xe の同重体干渉の例	8
図 3-1	東大弥生 RIMS 装置	13
図 3-2	Kr 原子のイオン化スキーム	14
図 3-3	Xe 原子のイオン化スキーム	14
図 3-4	直線型 TOF 質量分析器の原理	15
図 3-5	反射型 TOF 質量分析器の原理	15
図 3-6	気体試料導入系の外観	16
図 3-7	Xe の質量スペクトル	17
図 3-8	Kr の質量スペクトル	18
図 3-9	Ar マトリックス中の Xe 濃度に対する検量線	19
図 3-10	Ar マトリックス中の Kr 濃度に対する検量線	20
図 4-1	「常陽」用レーザー法 FFDL システム	23
図 4-2	共鳴イオン化用 OPO レーザ	23
図 4-3	反射型飛行時間型質量分析部	24
図 4-4	大気圧イオン化質量分析法の原理	25

## 1 緒言

燃料破損を迅速に検知し、更に、破損個所の正確な同定を行なうことは高速炉プラントの安全性や信頼性、更には稼働率の向上の観点から極めて重要である。燃料破損の検知 (FFD: Fuel Failure Detection) については、表 1-1 に示した高速実験炉「常陽」の場合のように燃料破損時に放出される核分裂生成物を放射線計測技術を駆使し検出することでオンパワーでリアルタイムにて監視するのが一般的である。一方、破損燃料位置検出 (FFDL: Failed Fuel Detection and Location)、即ち、破損した燃料ピンがどの燃料集合体に属するのかを同定するには、表 1-2 に示した様々なアプローチが存在し、高速増殖炉「もんじゅ」の場合にはタギング法、「常陽」の場合には SHIPPING 法が標準的手法として採用されている。

タギング法とは図 1-1<sup>(1)</sup>に示したように、まず燃料集合体ごとに組成比の異なる Kr、Xe の安定同位体の混合ガス (タグガス) を封入し、燃料破損時、カバーガスに移行した極低濃度 (~100ppt) に希釈されたタグガスを分析することで破損部位の同定を行なう手法である。カバーガスの分析については、「もんじゅ」の場合を例に挙げると、精度よく質量分析を行なう為にまず活性炭深冷吸着法を用いて Kr 及び Xe を 10ppm 程度まで濃縮を行なう。その後、同重体干渉 (2 章参照) を回避するため、カバーガスの主成分である Ar ガスを除去し He ガスに置換 (2% 以下まで) する。これら二段階の比較的大掛かりな前処理を経た後、質量分析法を用いて同位体組成比測定を行なう。「常陽」の場合は、タギング法をタグガス封入タイプの照射試料の破断検出へ適用することで照射技術の向上を目指す検討が為されている。

一方、レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS: Resonance Ionization Mass Spectrometry) という手法を用いてカバーガス中の極微量の Kr、Xe をそうした前処理なしに直接検出する技術の基礎的検討が「常陽」、名古屋大学、東京大学を中心に進められており、数々の優れた特性が報告されている。本技術の適用により、前処理が不要となる分、設備が大幅に軽減される上、オンパワーでの実時間カバーガス分析が期待出来る。このことは高速炉 FFDL 技術の高度化による安全性の向上、並びに高速炉における照射技術の高度化に大きく貢献する。また「常陽」に本システムを導入することで、安定同位体を含め高感度でカバーガス中の F P ガスやタグガスの同位体分析が可能となり、これにより、例えば、照射試験として実施している被覆管材料の破断試験において、破断試料の特定をオンパワーで可能とでき、或いは、破損燃料集合体の同定において、F P 核種の同位体組成比



から破損燃料の燃焼度を推定するなどして事前の絞り込みが可能となるなど、照射技術の高度化や破損燃料同定までの大幅な時間短縮を望める。

そうした状況を受け、現在レーザ共鳴イオン化質量分析法をベースとした「常陽」用レーザ法 FFDL システムの構築を行っており、本手法についてこれまでの原理実証等の基礎研究のフェーズから高速炉 FFDL への実用化のフェーズへの移行を目指している。即ち、レーザ共鳴イオン化質量分析法を基盤技術として確立させ、高速炉実機の計測系としての性能実証を目標とする。本レポートでは、その出発点となる「常陽」用レーザ法 FFDL システムの基本設計結果について、東京大学原子力工学研究施設の RIMS 装置を用いた基礎的検討結果と合わせて報告する。

表 1-1 「常陽」の破損燃料検出系

<b>破損燃料検出系 (FFD : Fuel Failure Detection)</b>	
(燃料破損時に放出される核分裂生成物を検出)	
・ 遅発中性子法	Na冷却材に放出されたF.P. ( <sup>87</sup> Br、 <sup>89</sup> Br、 <sup>137</sup> I)
・ カバーガス法	カバーガスに移行したF.P.
プレシピテータ法	<sup>88</sup> Kr、 <sup>138</sup> Xeの娘核種
γ線スペクトロメトリー	<sup>133</sup> Xe、 <sup>135</sup> Xe、 <sup>138</sup> Xeなど

表 1-2 破損燃料位置検出系

<b>破損燃料位置検出系 (FFDL : Failed Fuel Detection and Location)</b>	
・ セレクターバルブ	
・ タギング法	← 「もんじゅ」にて採用
・ シッピング法	← 「常陽」にて採用
・ 中性子束傾斜法	

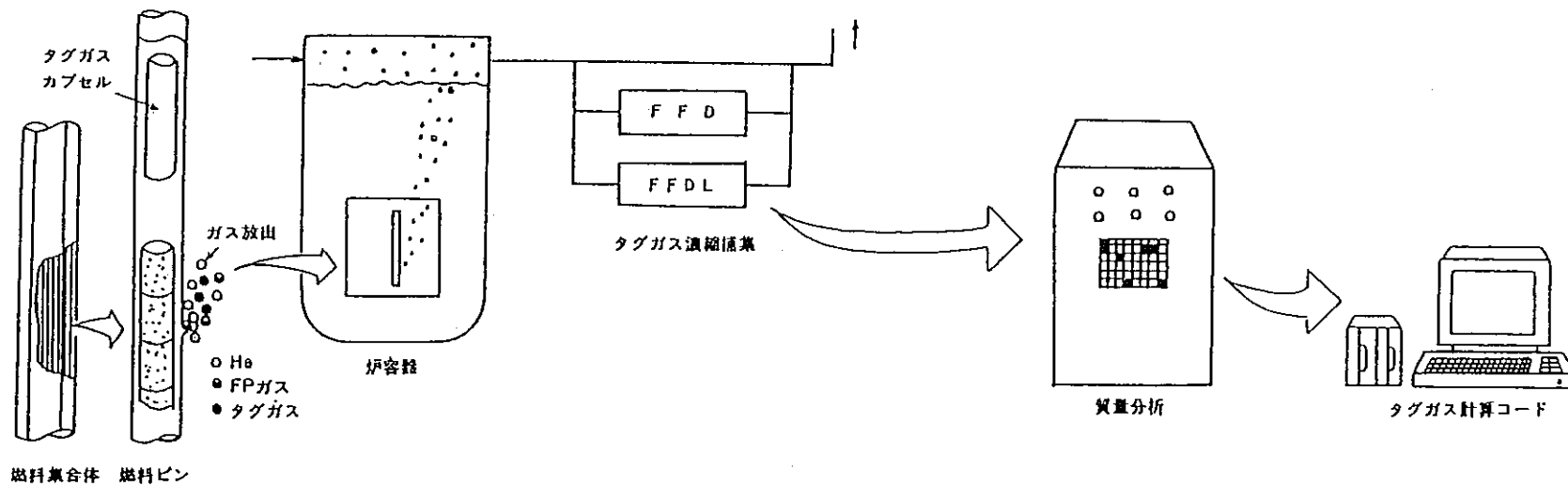


図 1-1 タギング法の原理

## 2 レーザ共鳴イオン化質量分析法

通常質量分析とは図 2-1 に示したように、試料をイオン化する為のイオン源部とそのイオンを質量によって分離する質量分析部により構成される。これらの過程を効率的に行なうために試料によっては何らかの前処理を行なうこともある。1章で紹介したタギング法における通常のカバーガス分析法の濃縮操作と続く Ar 除去、He 置換操作もこうした前処理の一種であると考えられる。

レーザ共鳴イオン化質量分析法とはイオン源にレーザ共鳴イオン化方式を用いる質量分析法のことである。対象とする原子の二つの電子状態のエネルギー差に相当する波長を有する光子を照射し、下準位の原子を選択的に特定の上準位に励起することを共鳴遷移と呼ぶが、レーザ共鳴イオン化とは電子衝突イオン化等に代表される通常のイオン化のように基底状態から一度にイオン化するのではなく、図 2-2 に示したように複数の中間準位をこの共鳴遷移により経由し多段階にて行なう方式のことである。レーザ共鳴イオン化には波長可変レーザが用いられることが多く、近年の超高感度の微量元素分析や効率的な同位体分離などの先端技術として脚光を浴びており、レーザ性能の向上とあいまって更に広範囲な工学応用への展開が見込まれている。

レーザ共鳴イオン化質量分析法とはレーザ共鳴イオン化方式を用いることにより特定の対象のみを選択的にイオン化することが可能であり、同重体干渉が原理的に存在しないので同位体組成比測定に対し非常に信頼性を有するという画期的な特長を持つ。同重体干渉 (Isobaric Interference) とは質量分析において測定対象と同じ質量数を有するクラスターイオン (同重体) が形成される場合、ピークが重なることで質量スペクトルが乱されることである。カバーガス分析の場合、測定対象である Kr、Xe の質量数が主成分である Ar のそれぞれほぼ二倍、三倍であるため、図 2-3、図 2-4 に示したように同重体干渉の影響を強く受ける。従って通常のイオン化の場合 Ar 除去、He 置換操作という比較的大掛かりな前処理を必要とするが、レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いることで前処理が不要となり、設備が大幅に軽減される上、オンパワーでの実時間カバーガス分析が期待出来る。このことは高速炉 FFDL 技術の高度化による安全性の向上、並びに高速炉における照射技術の高度化に大きく貢献する。

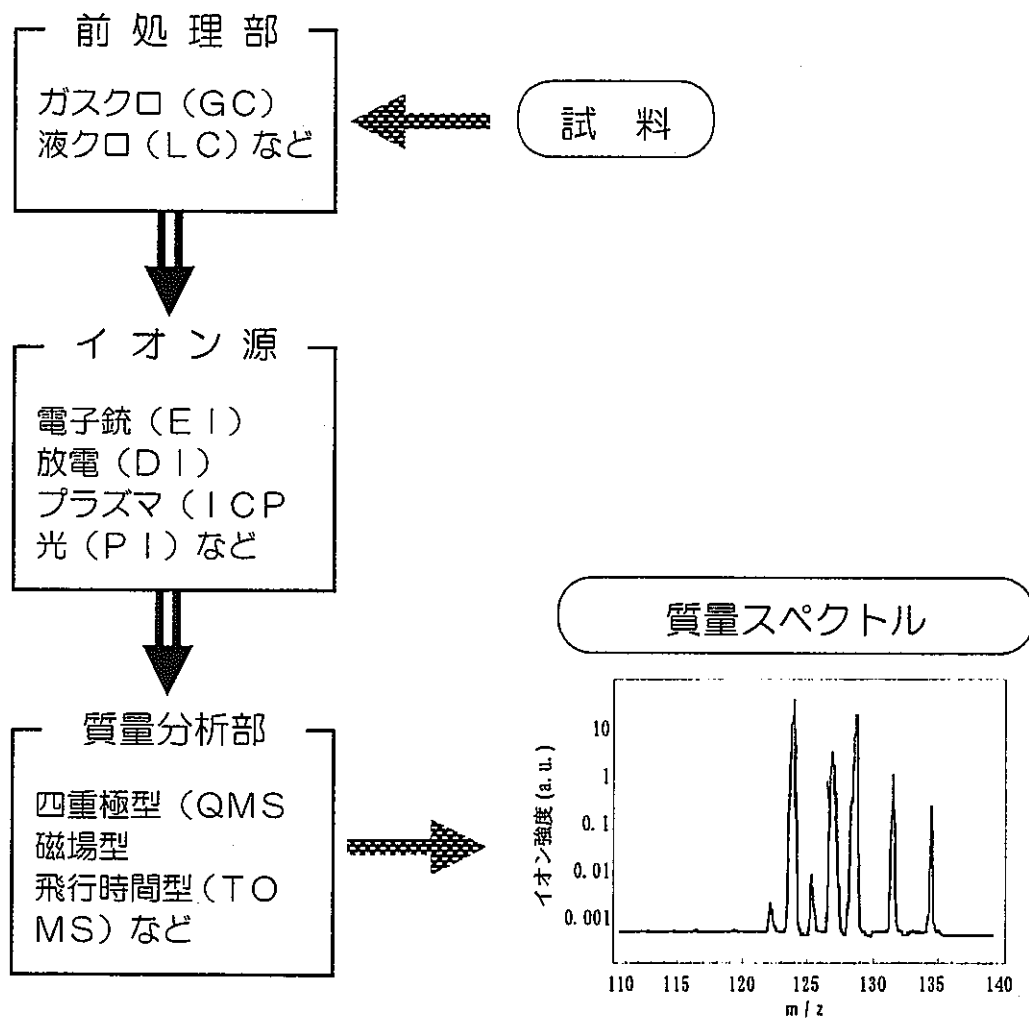


図 2-1 質量分析プロセス

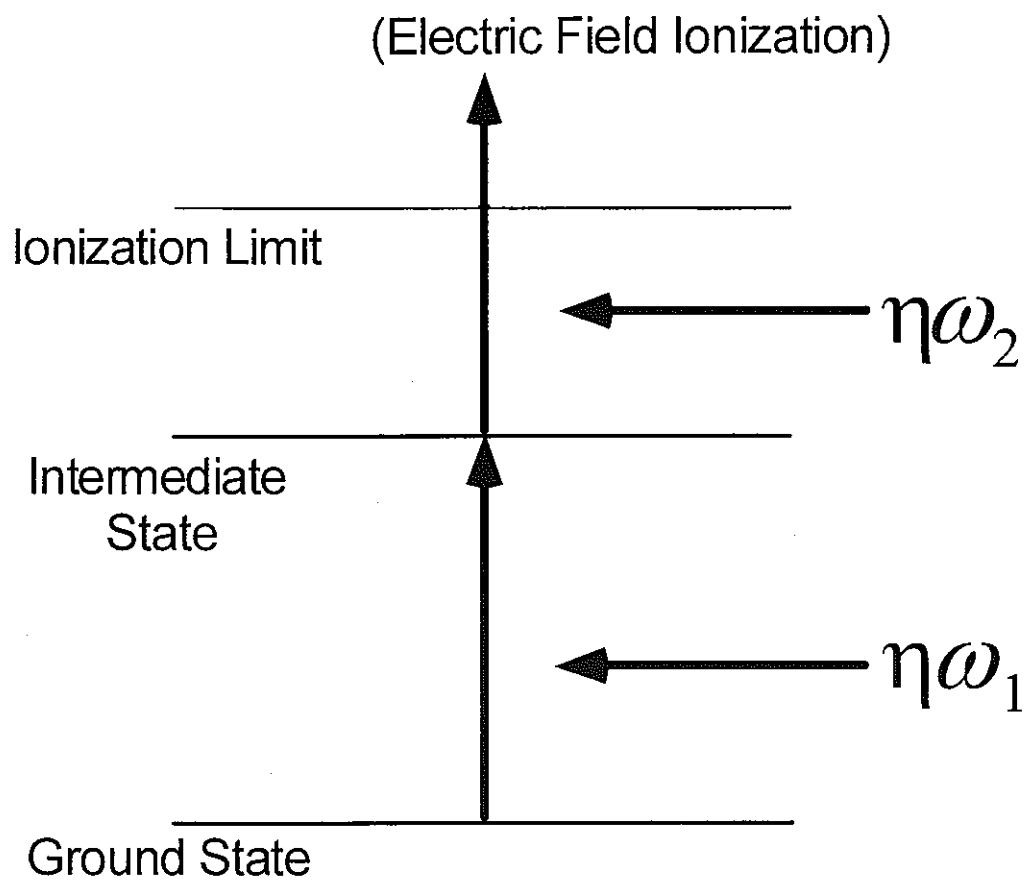


図 2-2 レーザ共鳴イオン化法の概念図

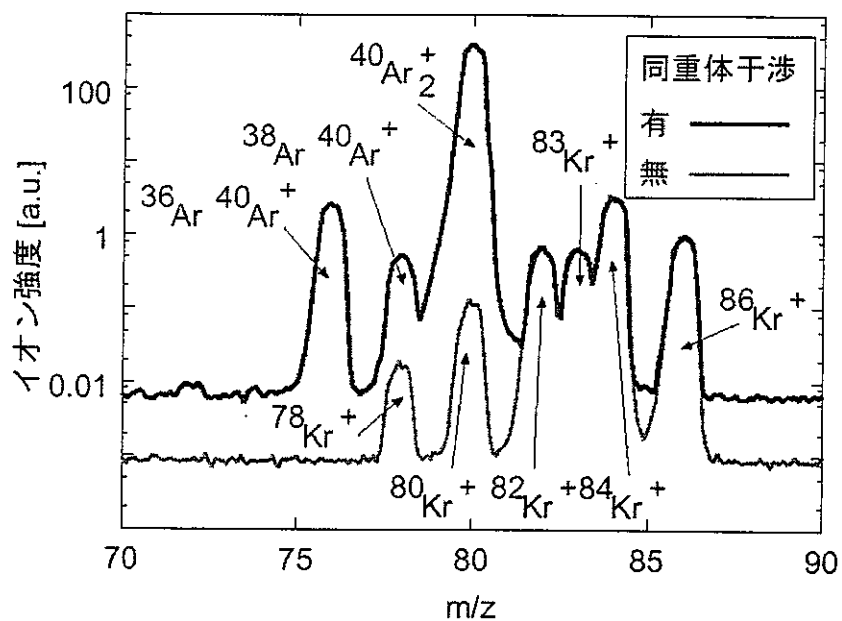


図 2-3 Kr の同重体干渉の例

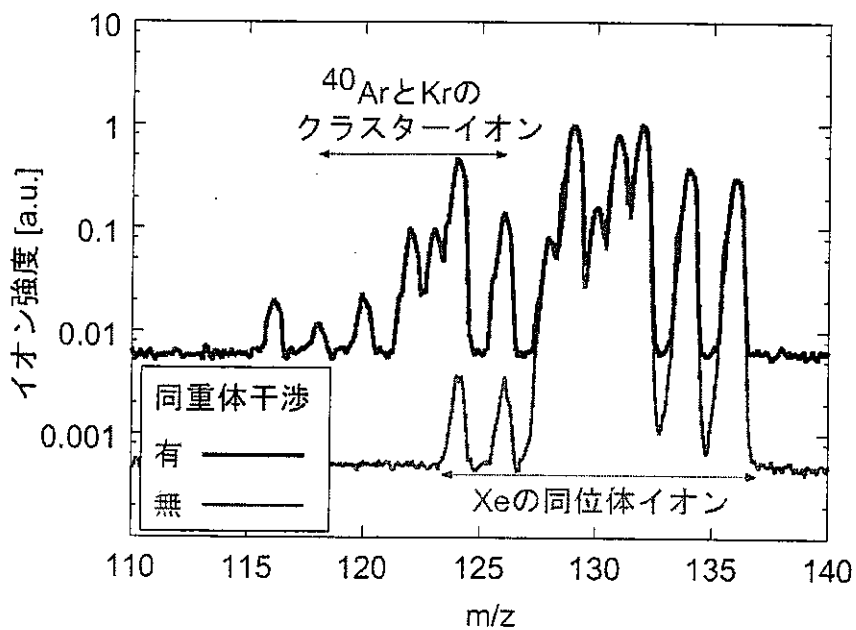


図 2-4 Xe の同重体干渉の例

### 3 東大弥生 RIMS 装置を用いた検討

東京大学大学院工学系研究科附属原子力工学研究施設の高速中性子科学研究設備の RIMS 装置 (以下、東大弥生 RIMS 装置と略す) を Xe、Kr ガス検出用に整備、調整し、レーザ共鳴イオン化質量分析法の高速炉カバーガス分析への適用性評価に関する基礎的検討を「先行基礎工学分野に関する研究協力」にてサイクル機構(「常陽」)と大学(名古屋大学、東京大学)の協力にて実施した。

#### 3.1 システム構成

東大弥生 RIMS 装置は図 3-1 に示すように、共鳴イオン化用の波長可変色素レーザシステム、飛行時間型質量分析システム (TOFMS: Time-of-Flight Mass Spectrometer)、データ処理システム、試料ガス導入系より構成される。

波長可変色素レーザシステムは、前段の Nd:YAG レーザ (Spectra Physics 社の GCR-150) の三倍波出力 (355nm) にて後段の色素レーザ (Lambda Physik 社の Scanmate 1E) を励起する構成となっている。Kr、Xe を共鳴イオン化する方法には幾つかの方法があるが、本検討ではそれぞれ図 3-2、図 3-3 に示したスキームを採用した。同スキームを用いた Kr、Xe の共鳴イオン化は比較的良く行われており<sup>(2)</sup>、共鳴励起、イオン化の両方を同じ波長の光子を兼用して行なうのが特徴である。Kr 共鳴イオン化用の 216.6nm は、色素として Coumarin120 を用い更に非線型光学結晶 BB0-II により第二高調波に変換することで発生させた。また Xe 共鳴イオン化用の 256.0nm は、色素として Coumarin500 を用い更に非線型光学結晶 BB0-I により第二高調波に変換し発生させた。

飛行時間型質量分析システムは R.M.Jordan 社製であり、通常の直線型 (図 3-4) の他、図 3-5 に示す反射型 (Reflectron) としての動作が可能である。直線型に比べ反射型はイオン光学系が複雑であるが、イオンの発生位置等による飛行時間の差を抑制出来ることにより高分解能測定 ( $M/\Delta M \sim 1000$ ) が可能である。同位体組成比測定には質量スペクトルの信頼性が要求されるため、本検討では主に反射型の構成を用いた。イオン検出器には Galileo 社のマイクロチャンネルプレート (MCP: Micro Channel Plate) を用いた。真空排気については、イオン化チェンバー、フライトチューブ各々を一台ずつのターボ分子ポンプとロータリーポンプをタンデムに用いて行い、真空度のモニターは電離真空系にて行なった。

レーザに関する測定器としては、パワーメーター、スペクトルアナライザを用いた。



レーザー出力はパワーメーターを用いて、実験中に適時測定し、レーザーの波長は色素レーザーの動作用コンピューターで制御できるが、スペクトルアナライザで確認を行った。質量スペクトルを得るための計測系は DS0 (Digital Storage Oscilloscope、Tektronics 社製 TDS544A) を用いている。YAG レーザーの Q スイッチ信号をトリガー信号とし、MCP の信号を DS0 に取り込み質量スペクトル計測を行う。測定したデータは解析を行うために、最終的には、コンピューターに送られる。

気体試料導入系の外観図を図 3-6 に示す。気体試料導入系は微量流量調整バルブ 2 個、ストップバルブ 3 個、フロー用ストップバルブ 1 個からなり、微量流量調整バルブを用いることにより、気体試料導入時にイオン化チェンバー内の圧力を一定値に保つことができる。また、気体試料交換時にはフロー用ストップバルブを用いることにより残留気体を最小限にし、空気によるフローが効率的にできるように工夫されている。

### 3.2 基礎検討結果

以下に東大弥生 RIMS 装置を用いて行なったカバーガス分析に関する基礎検討結果を簡単にまとめる<sup>(3)</sup>。

図 3-7 に Ar マトリックスガス中に 0.01%Xe を混入した試料ガスに対する質量スペクトルを示す。質量分解能は 500 以上であり、隣り合うピークが完全に分離されている。このことは各ピークの強度比、即ち同位体組成比を定量的に議論する上で重要である。また図 3-8 に示したようにこのことは Xe の代わりに 1%Kr を用いた試料ガスに対しても確認できる。これらの各ピーク面積から同位体組成比を求め、それを文献値 (天然組成比) と比較した結果を表 3-1、表 3-2 に示す。両者間に測定誤差の範囲内で良好な一致が見られることから、本手法の適用により非常に信頼性の高い同位体組成比測定が可能であることを確認した。

次に Ar マトリックスガス中の Xe 濃度をスキャンすることで作成した検量線を図 3-9 に示す。縦軸はレーザーパルス当たり得られる信号強度 (ピーク面積) を検出イオン数に換算した値である。また同様に Kr の場合に求めたものを図 3-10 に示す。Kr、Xe とともにイオン数と濃度との間に良好な比例関係があることが確認できる。以上より東大弥生 RIMS 装置によって、Xe の場合で  $2 \times 10^4$  ショット、Kr の場合で  $7 \times 10^5$  ショット分のデータの積算により「常陽」のカバーガス内のタグガス濃度<sup>(4)</sup> 10 ppb を検出し同位体組成比を得る (1000 個のイオンを検出) ことが可能と推定される。

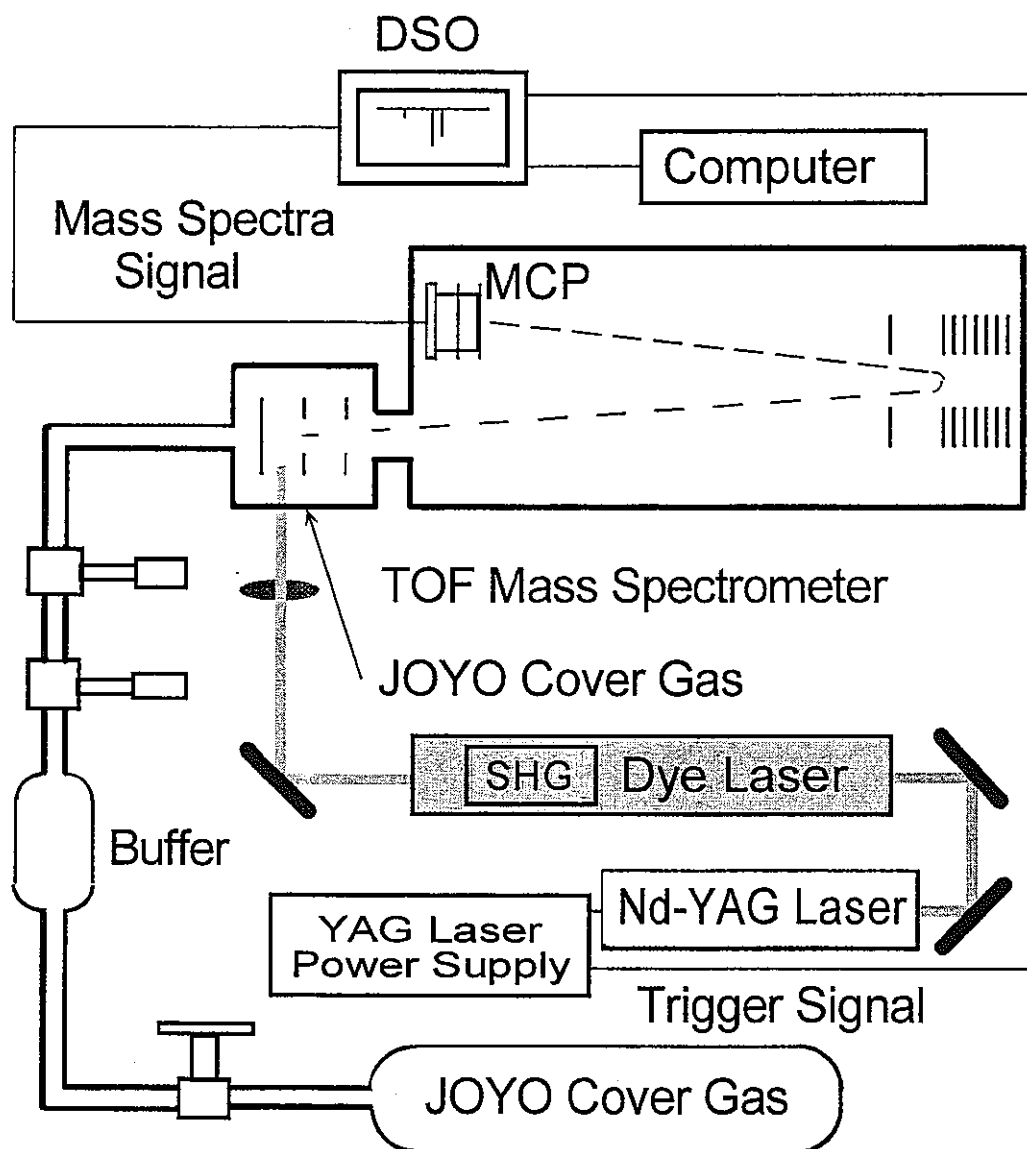
以上、東大弥生 RIMS 装置を用いて行なった基礎検討のうち、同位体組成比、検出感度について簡単にレビューを行なった。以上の結果は本手法が高速炉 FFDL 用微量希ガス検出技術として高いポテンシャルを有していることを示している。なお検出感度については、積算回数が多いほど時間分解能が制限されるだけでなく、同位体比の測定精度に若干悪影響を与える傾向も現れているので、検出感度の向上が望ましく、今後も超音速分子線バルブによる試料導入系の改善や特に技術革新が目覚ましい最新のレーザ技術の適用など、更なる検討を進めていく予定である。

表 3-1 Xe 同位体組成比の測定結果

同位体	文献値 [%]	測定値 [%]	測定値／文献値
124	0.096	1.017±0.762	11
126	0.090	0.819±0.537	9.1
128	1.9	1.84±0.66	0.97
129	26.4	26.86±1.73	1.02
130	4.1	4.05±0.82	0.99
131	21.2	21.28±1.55	1.00
132	26.9	26.83±1.57	0.997
134	10.4	10.40±1.22	1.00
136	8.9	8.75±1.14	0.98

表 3-2 Kr 同位体組成比の測定結果

同位体	文献値 [%]	測定値 [%]	測定値／文献値
78	0.356	0.377±0.145	1.06
80	2.3	2.483±0.339	1.1
82	11.6	12.178±0.921	1.05
83	11.5	11.728±0.859	1.02
84	57.0	56.329±1.772	0.988
86	17.3	16.905±1.094	0.977



DSO: Digital Storage Oscilloscope  
MCP: Micro Channel Plate  
SHG: Second Harmonic Generator

图 3-1 東大弥生 RIMS 装置

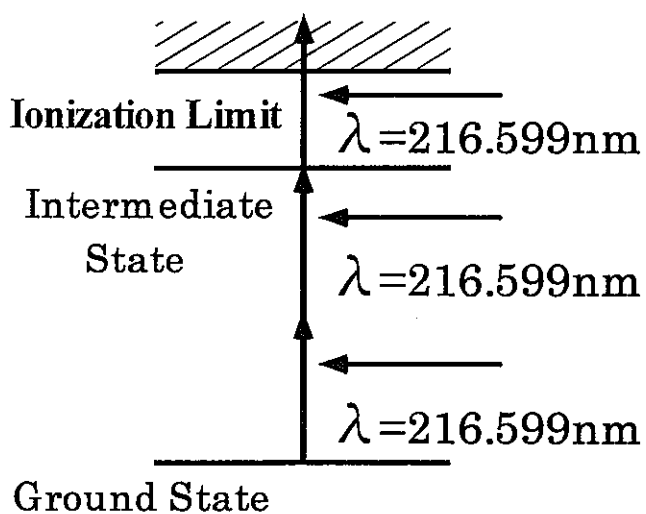


図 3-2 Kr 原子のイオン化スキーム

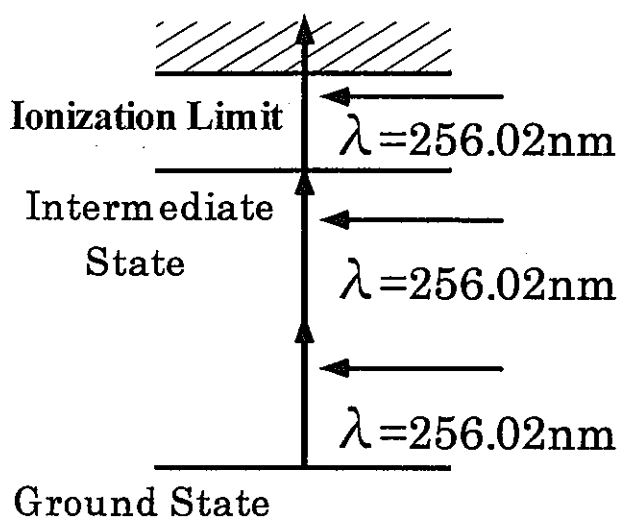


図 3-3 Xe 原子のイオン化スキーム

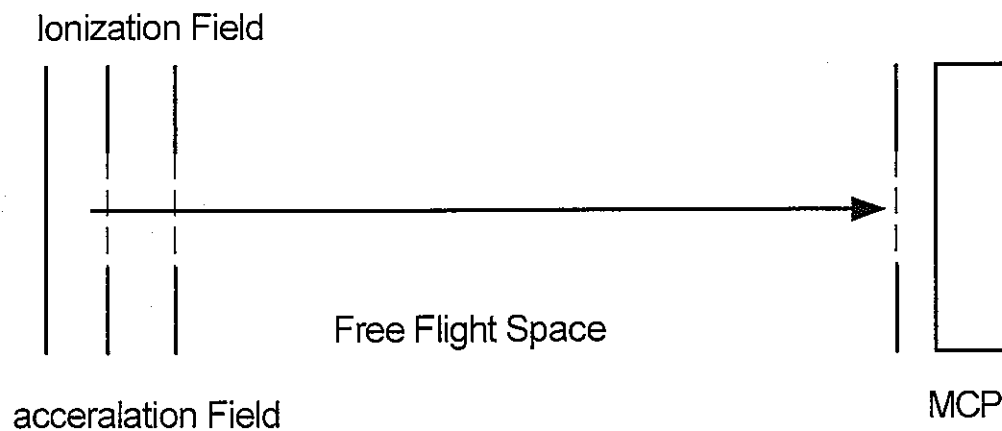


図 3-4 直線型 TOF 質量分析器の原理

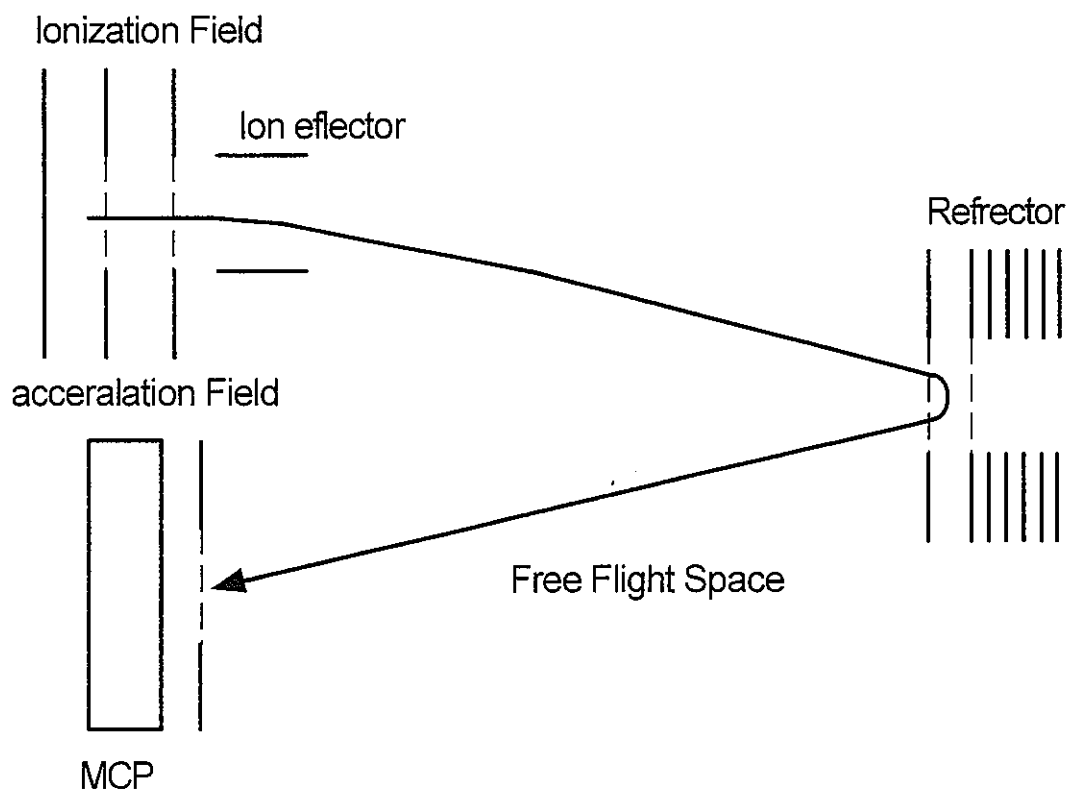


図 3-5 反射型 TOF 質量分析器の原理

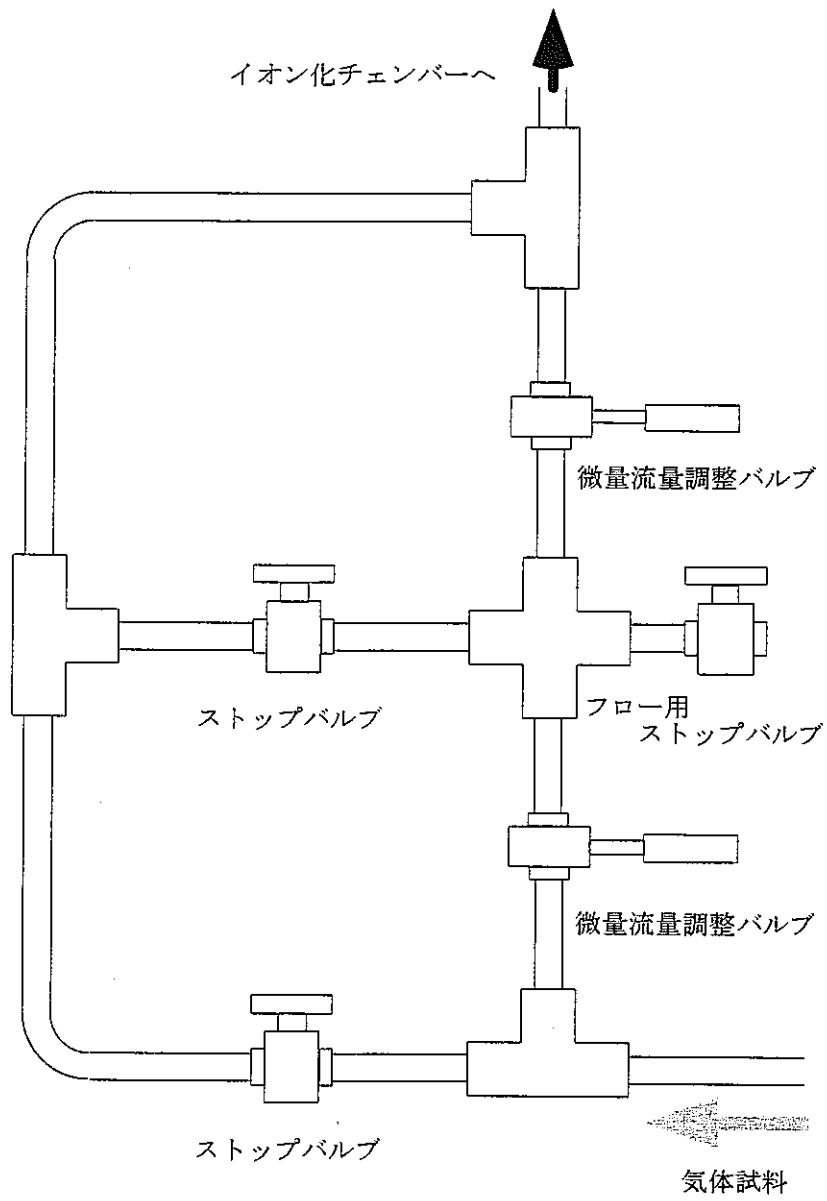


図 3-6 気体試料導入系の外観

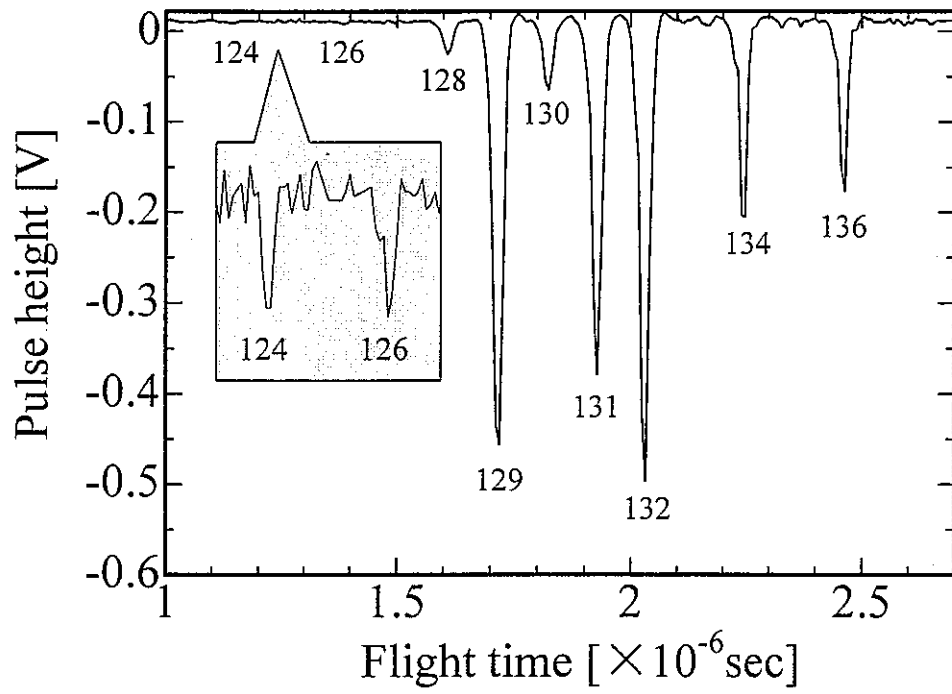


図 3-7 Xe の質量スペクトル



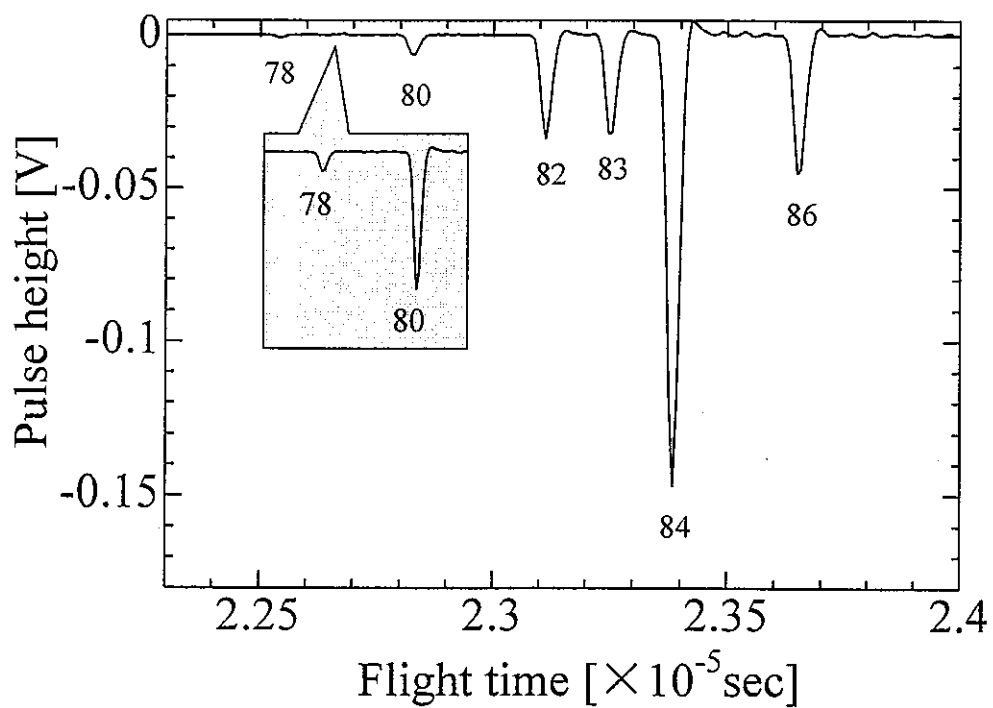


図 3-8 Kr の質量スペクトル

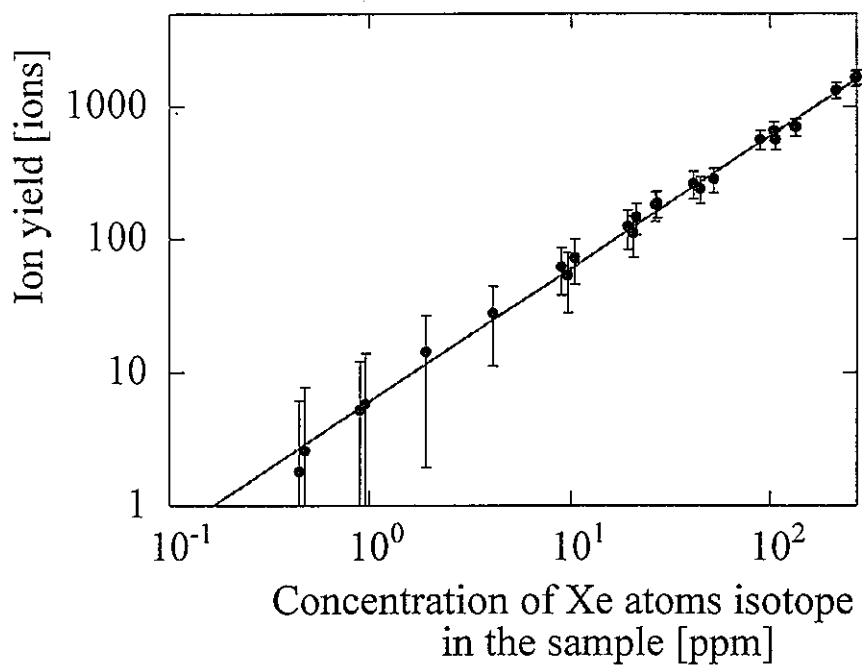


図 3-9 Ar マトリックス中の Xe 濃度に対する検量線

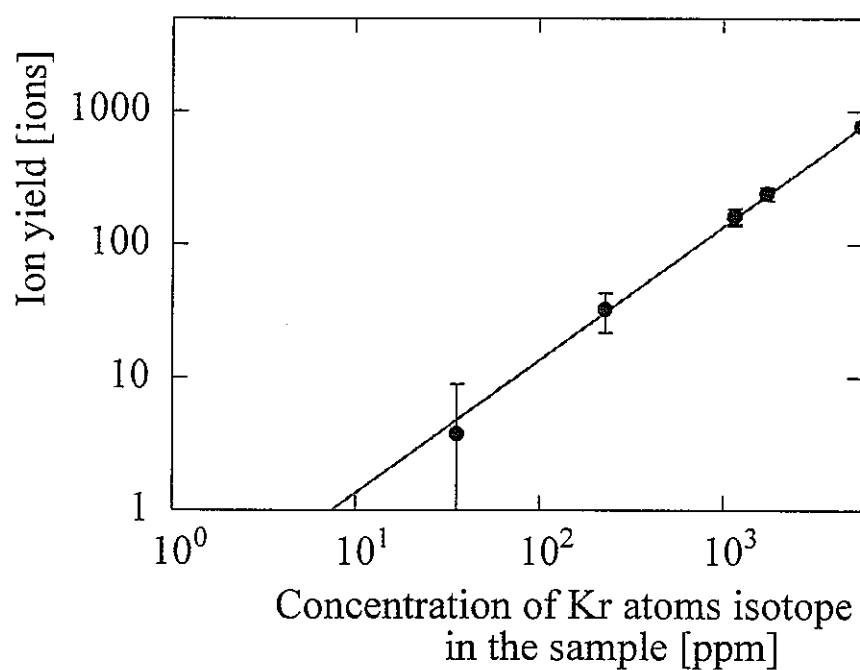


図 3-10 Ar マトリックス中の Kr 濃度に対する検量線

#### 4 「常陽」用 RIMS システム

RIMS 装置は、2章で述べたように共鳴イオン化用レーザ部と質量分析部、並びに両者をつなぐイオン化チェンバーにより構成される。各要素毎にメーカーや専門家等とのディスカッションを通して最新技術動向調査を行ない、レーザ共鳴イオン化質量分析法をベースとした「常陽」用レーザ法 FFDL システムの基本設計を行なった。基本構成を図 4-1 に示し、以下にそれぞれの要素について概要を示す。

東大院工原施の RIMS 装置では Nd:YAG レーザ励起の色素レーザ出力の第二高調波を発生させることで、Xe に対しては 256nm、Kr に対しては 216nm により共鳴イオン化を行なっている。ただレーザ強度が弱く必ずしも効率的な共鳴イオン化が行われているとは言えないのが実状である。レーザの大強度化の為、大型の Nd:YAG レーザ、或いは Nd:YAG レーザの代わりにエキシマレーザを使用した場合、色素の劣化が促進されレーザの出力が不安定となるといった問題がある。ここでは近年進歩の著しい非線型光学素子を用いた光パラメトリック発振器 (OPO) をベースにシステム設計を行なった。図 4-2 に構成図を示す。励起用の Nd:YAG レーザからの第三高調波 (355nm) を OPO に入射することでパラメトリック発振により 445nm~1750nm までを発生する。OPO は全固体レーザシステムであるので出力等の動作特性が長期に渡って非常に安定であるという特長がある。Xe 用の 256nm 発生には OPO 出力 (512nm) の第二高調波発生を用い、Kr 用の 216nm 発生には OPO 出力 (552nm) と Nd:YAG レーザの第三高調波 (355nm) との和周波発生を用いる。それぞれ東大院工原施の RIMS 装置の場合の 20 倍、40 倍程度のレーザ出力の向上が図れるので大幅な検出感度の向上が期待できる。

質量分析部は東大院工原施の場合と同じく反射型飛行時間方式 (TOFMS) を採用した。図 4-3 に構成図を示す。共鳴イオン化用のレーザパルス入射に同期して試料ガス (カバークラス) を超音速分子線バルブ (PSV) によりパルス的に注入し、MCP 出力波形を高速サンプリングすることでイオンの飛行時間を測定し、質量スペクトルを求める。データは専用の DSP により積算、圧縮等の処理をリアルタイムで行ない、コンピュータに転送する。PSV による試料ガス導入に関しては、本年度東大院工原施の RIMS 装置を用いて行なった基礎実験により従来より一桁近く検出感度が向上することを確認した<sup>(4)</sup>。真空排気系については東大院工原施の場合と同じくターボ分子ポンプと粗引系の二段構成により質量分析部、イオン化チェンバーのそれぞれについて差動排気を行ない、更に実機に設置する場合を想定し、排気系をオイルで汚染しない為、粗引系としてはスクロールポンプを採用した。

以上説明した RIMS 装置を Xe、Kr 検出用に計二台(図 4-1 参照)導入する。レーザパワーの増強、PSV の導入等の工夫により、検出限界については、東大院工原施の RIMS 装置に比べ 2～3 桁向上し、数十秒から数十分のオーダーでカバーガス中の Xe/Kr の同位体比測定が可能であると予測される。更に RIMS 法は同重体(クラスター)干渉の影響を原理的に受けないという特長により、得られる同位体比の信頼性は著しく高いことが知られており、このことは東大院工原施において実験的に実証されている。一方レーザの持つ不安定性(エネルギー、位置、各種モードなど)とレーザ共鳴イオン化の効率がエネルギー密度に対し極めて非線型に応答することから、絶対検出感度については装置性能の安定性と信頼性が特に厳しく要求される高速炉の計測系として不十分であり、何らかの補正措置が不可欠である。ここでは図 4-1 中央に示したように大気圧イオン化質量分析法(APIMS)を用いた実時間絶対感度補正を採用した。APIMS とは高感度ガス分析法であり、かつその絶対感度が非常に安定していることで知られている<sup>6)</sup>。APIMS では図 4-4 に示したように二段階のイオン化が行われる。導入された試料ガスはまずコロナ放電によりイオン化される。この一次イオン化により生じた主成分 C のイオンと微量成分 X との電荷交換反応(二次イオン化)が進行する時、微量成分 X は非常に高い効率でイオン化され、高感度を実現することになる。カバーガスの主成分である Ar は微量成分である Kr, Xe よりも大きなイオン化ポテンシャルを有している為、上記の電荷交換反応が進行する。従って APIMS の適用により超高感度検出が期待出来る。カバーガスを模擬した予備実験評価を行ない、100ppt 以下の検出限界を有することを確認した。また半導体プロセスやガスプラント等において豊富な稼働実績を有している。一方、コロナ放電をイオン源に使うため、同重体干渉の影響は不可避であるが、その影響のない同位体のみをモニターすることで RIMS の絶対感度のリアルタイム補正が可能である。今後、各コンポーネント毎に導入、各種調整、試験を実施する。更にそれらを統合し高速実験炉「常陽」用レーザ法 FFDL システムを組み上げ、実機への適用性評価を含む性能実証試験を実施する。

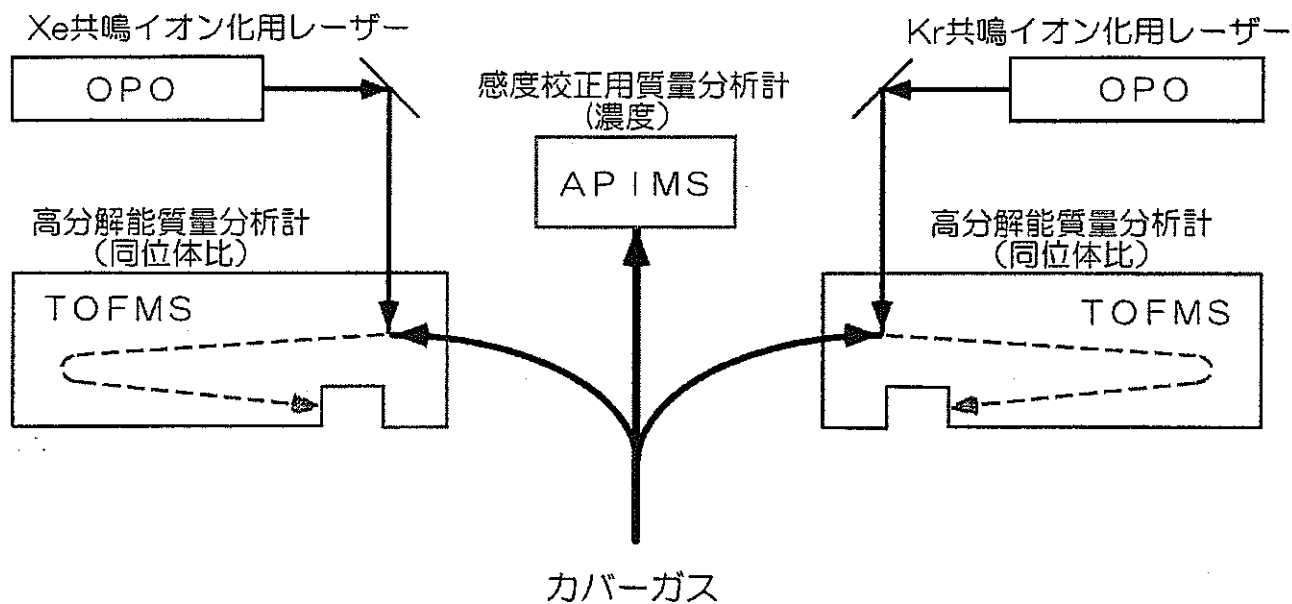


図 4-1 「常陽」用レーザー法 FFDL システム

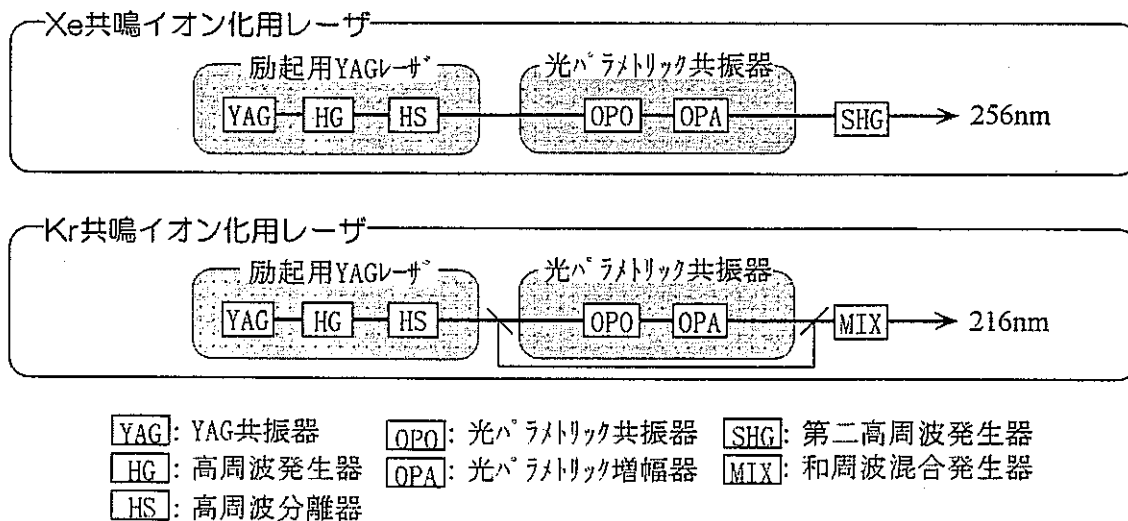


図 4-2 共鳴イオン化用 OPO レーザ

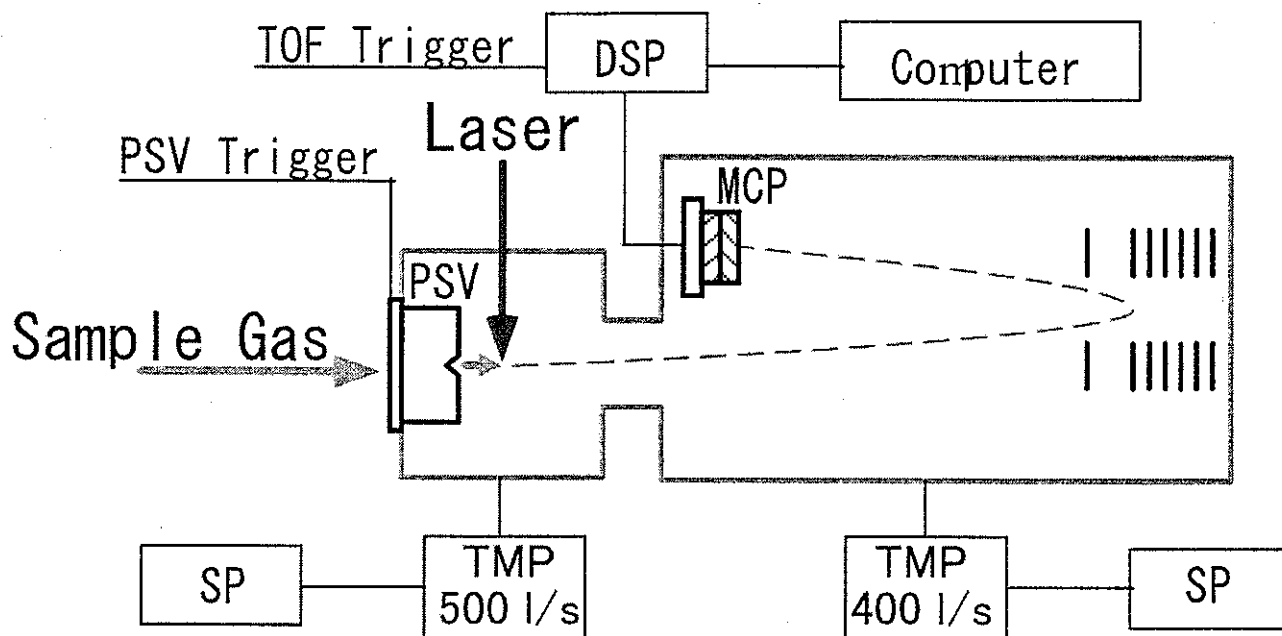


図 4-3 反射型飛行時間型質量分析部

## イオン源内の反応過程

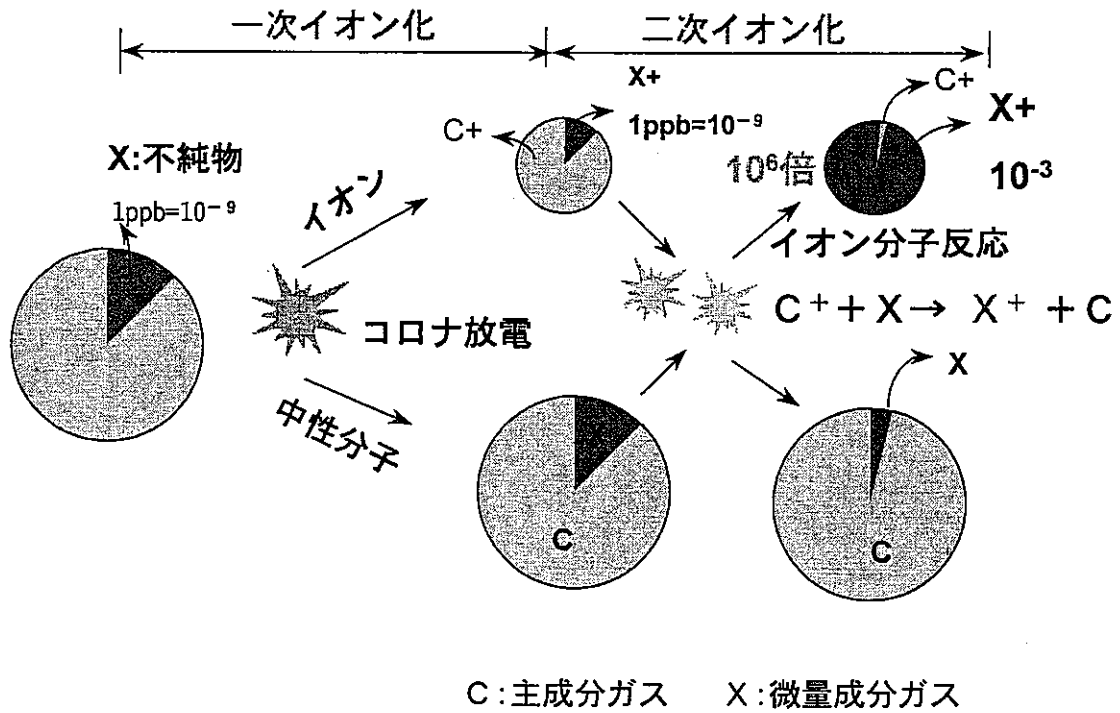


図 4-4 大気圧イオン化質量分析法の原理



## 5 結言

レーザ共鳴イオン化質量分析法の微量希ガス検出への適用に関する原理実証を東大弥生 RIMS 装置を用いて行なった。その結果レーザ出力を増強することで本手法により Kr/Xe の同位体比測定が高精度かつ実時間にて行なえる可能性を示した。更にこれらの検討結果を基に、高速炉「常陽」実機を対象にしたレーザ法 FFDL システムの構築を三年計画で推進中である。その出発点として、レーザ共鳴イオン化質量分析法を構成する各要素技術ごとに最新の技術動向をサーベイし、システムの基本設計を行なった。その際、レーザ共鳴イオン化質量分析法を高速炉 FFDL への適用する上での幾つかの問題点について設計レベルでの解決をはかった他、システム全体の信頼性を高めるため OPO、APIMS 等の新技術を導入した。また検出感度について東大弥生 RIMS 装置に比べ 2~3 桁向上と予想され、「常陽」における実時間分析が期待出来る。今後は各コンポーネント毎に導入を行い、各種調整、試験を実施する。更にそれらを統合し高速実験炉「常陽」用レーザ法 FFDL システムを組み上げ、実機への適用性評価を含む性能実証試験を実施する。

参考文献

- (1) 小林 孝良, 秋山 孝夫, 溝尾 宜辰, 『「もんじゅ」用タグガス濃縮捕集用の開発と「常陽」における実証試験』, 動燃技報 No. 56, p. 78 (1985).
- (2) 宮島 光弘, 『レーザ共鳴イオン化分光法による放射線計測』, 日本原子力学会誌 Vol. 32, p. 234 (1990).
- (3) 荻田利幸, 井口哲夫, 瓜谷章, 河原林順, 渡辺賢一, 青山卓史, 野瀬正一, 『共鳴イオン化質量分析法を用いた破損燃料検出システムの開発(3)』, 日本原子力学会「1999年秋の大会」A54 (1999).
- (4) 渡辺賢一, 荻田利幸, 渡邊武志, 河原林順, 瓜谷章, 井口哲夫, 原野英樹, 野瀬正一, 『共鳴イオン化質量分析法を用いた破損燃料検出システムの開発(4)』, 日本原子力学会「2000年春の年会」L3 (2000).
- (5) 三井泰裕, 『ULSI 用高純度ガス中の超微量不純物分析技術』, 応用物理第 56 巻第 11 号, p. 1466 (1978).