

ULTRA-TRACE ANALYSIS OF RADIO-NUCLIDES BY AN ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY SYSTEM USING THE 12UD TANDEM ACCELERATOR AT THE UNIVERSITY OF TSUKUBA

Kimikazu Sasa^{1,A, B)}, Tsutomu Takahashi^{A)}, Yuki Tosaki^{A, C)}, Yasuhiko Takaya^{A, B)} and Keisuke Sueki^{A, B)}

^{A)} AMS Research Group, Tandem Accelerator Complex, University of Tsukuba
1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8577, Japan

^{B)} Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba
1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8571, Japan

^{C)} Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba
1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8572, Japan

Abstract

An Accelerator Mass Spectrometry (AMS) system using the 12UD Pelletron tandem accelerator at the University of Tsukuba has been developed to measure environmental levels of long lived radioisotopes of ²⁶Al, ³²Si, ³⁶Cl, ⁴¹Ca and ¹²⁹I. AMS is an ultra-sensitive technique for the study of long-lived radioisotopes, and stable isotopes at very low abundances. The high terminal voltage has an advantage in the detection of heavy radioisotopes. It is important for sensitive measurements of heavy radioisotopes that background interference of their stable isobars are suppressed by AMS measurements. We have been attempting to apply AMS techniques to environmental monitoring for nuclear facilities. Much progress has been made in the development of new AMS techniques for environmental monitoring. The standard deviation of the fluctuation for the ³⁶Cl/Cl ratio is $\pm 3\%$, and the effective detection limit is better than 1×10^{-15} . A detailed description of the Tsukuba AMS system is given, and study on environmental monitoring is also described briefly. A part of this study is the result of "Study of the environmental monitoring for nuclear facilities by ultra-trace AMS analysis of radio-nuclides" carried out under the Strategic Promotion Program for Basic Nuclear Research by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan.

筑波大学12UDタンデム加速器を用いた加速器質量分析装置による 極微量放射性核種の検出

1. はじめに

加速器質量分析法(Accelerator Mass Spectrometry: AMS)^[1]は、環境試料中の極微量放射性核種を高い検出感度と確度及び精度で測定可能な手法であり、近年では年代測定研究の他に、文化財、地球、環境、海洋科学などの分野で広範囲な利用が始まっている。極微量放射性核種のうち放射性炭素¹⁴C ($T_{1/2}=5,730$ yr)が年代測定研究等に最も多く利用されているが、原子力研究分野や地球環境科学等への新たな適用を図る為に、長半減期で環境トレーサーとして有望な¹⁰Be ($T_{1/2}=1.36 \times 10^6$ yr), ²⁶Al (7.16×10^5 yr), ³²Si (140 yr), ³⁶Cl (3.01×10^5 yr), ⁴¹Ca (1.03×10^5 yr), ¹²⁹I (1.57×10^7 yr)等の重い極微量放射性核種のAMS測定技術開発が進められている。AMSには通常はタンデム静電加速器が用いられる。タンデム静電加速器では、負イオンを加速する。加速電圧を発生するターミナル部で荷電変換材(ガスや薄膜など)を通過後に正イオンに変

換されて、2段加速がおこなわれる。妨害となる同重分子等は、荷電変換材を通過する際に分解される。高エネルギーに加速された測定対象核種は、静電及び磁場分析器により、エネルギー及び運動量の選別がおこなわれる。最終的に粒子検出器等において、物質中のエネルギー損失 ΔE の差を利用して、妨害となる同重体や散乱イオンと分離識別されて測定対象核種が1個単位で計測される。エネルギー損失差を利用するには、核子当たり0.5~1 MeV程度の加速エネルギーが必要となる。その為、重い極微量放射性核種のAMS測定には、高い加速電圧を有する大型のタンデム静電加速器が必要となる。本報告では、筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門の12UDペレトロンタンデム加速器(ターミナル電圧12 MV)を用いた加速器質量分析装置の開発と原子力研究分野への適用について紹介する。

¹ E-mail: ksasa@tac.tsukuba.ac.jp

2. 筑波大学AMSシステムの開発状況

筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門²の12UDペレトロンタンデム加速器は、1975年にNational Electrostatics Corp. (USA)から導入された縦型の大型汎用タンデム加速器である^[2]。国内2位の加速電圧性能(12 MV)を誇り、建設当初は原子核物理実験が利用研究の中心であった。1990年には、コンプレスト型加速管を導入して、最高発生電圧12.78 MVを記録している^[3]。また、2009年に電圧分割方式として、これまでのコロナ針から分割抵抗システムに更新を行っている。この更新によりターミナル電圧は1 - 12 MVの範囲で可変となり、高度に制御されたイオンビームが提供可能となっている。

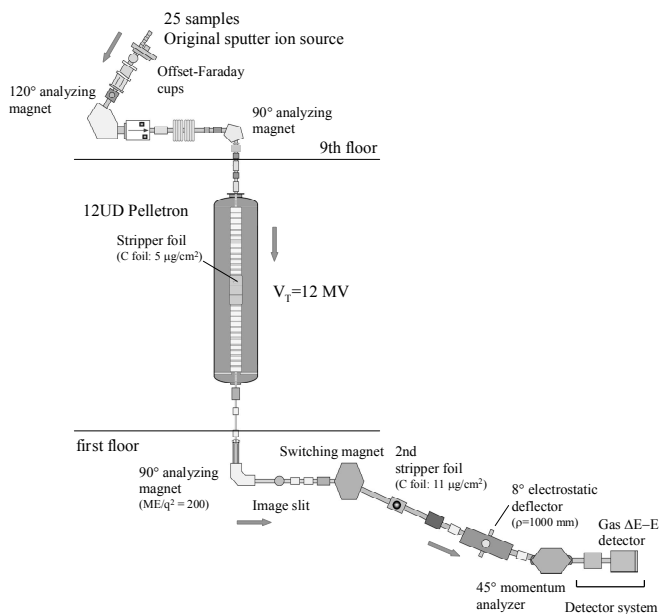


図1：筑波大学AMSシステム概略図

図1に筑波大学AMSシステムの概略図を示す。Csスパッタ型負イオン源は、25試料の自動交換が可能である。安定同位体負イオンは、イオン源下流の120°電磁石で分析され、加速器入射前にマルチファラデーカップにより電流値(μC)が計測される。加速電圧を発生するターミナル部には、 $5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の荷電変換用の炭素薄膜($\phi 16 \text{ mm}$)が設置されている。妨害となる同重分子は炭素薄膜による荷電変換により分解遊離される。加速イオンは1階の90°分析電磁石($\text{ME}/q^2 = 200 \text{ MeV amu}$)により、測定室に導かれる。12UDペレトロンタンデム加速器では、加速器下流の90°分析電磁石物点に設置したスリットでビーム電流値を計測し、ターミナルのコロナ探針による電荷量調整機構に帰還して加速電圧を制御している。その為、筑波大学AMSシステムでは、独自に開発した同重分子パイロットビーム法を用いている。これ

は、測定対象の極微量放射性核種をビーム電流として計測出来ないため、同重分子イオンを測定対象核種と電荷対質量比を揃えて加速して、加速電圧の安定性を保つものである。同重分子パイロット分子ビーム法により、加速電圧は0.02%の安定性を得ている。質量分析系は、第2荷電変換膜、8°静電偏向器($\rho = 10 \text{ m}$, $E/q = 10 \text{ MeV}/q$)、45°分析電磁石、TOF検出器、ガス ΔE -E検出器から成り立つ。第2荷電変換膜は $11 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜($\phi 20 \text{ mm}$)を用いており、パイロットに用いた同重分子の質量分析系への入射を除去している。

3. AMSシステムの改良

AMS測定では、精密なビーム調整と加速器制御、及び電源・電磁石などのシステムを構成する各機器の高い安定性が求められる。筑波大学AMSグループは文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブに採択され、AMS測定の高精度化に取り組んでいる。AMS装置の改良では、主にイオン源Csフォーカス電極の改造によるビーム電流値の増加と遠隔操作系の更新及び自動計測システムの構築を実施している。また2009年度は、ガス検出器のガス圧力調整システムの高安定化に取り組んでいる。

図2にAMS用Csスパッタ負イオン源の写真を示す。25試料を遠隔操作により自動操作可能なシステムとした。イオン源からのイオンビーム出力を安定的に増強させる為、2008年度にCsイオン化用アイオナイザーを円錐形状に改良した。また標的試料装填コン前にCsビームのフォーカス電極を新たに取り付けた。イオン源の改良と共に、ビーム電流値増強と重い核種分析に対応した高圧電源を新たに導入した。イオン源装置改良により、 ^{35}Cl ビームの電流値は、最大 $10 \mu\text{A}$ までに増加した。

図3に新たに開発した ^{35}Cl 電流値の計測モニターを示す。イオンビーム電流値の増強により、測定対象核種の検出個数が増加し、AMS測定に関する統計精度が向上した。本改良により、 ^{36}Cl 測定では $\pm 3\%$ の測定精度を達成している。

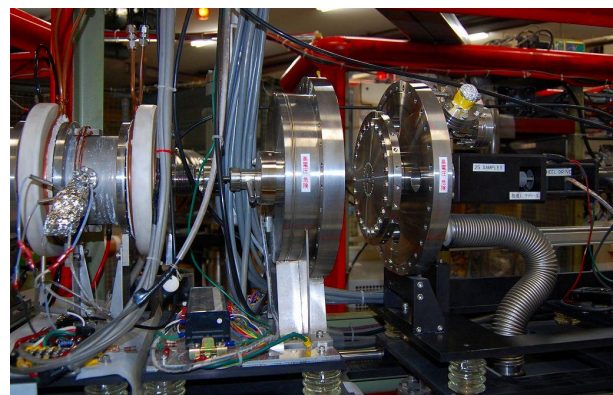


図2：25試料装填型AMS用Csスパッタ負イオン源

² <http://web2.tac.tsukuba.ac.jp/uttac/>

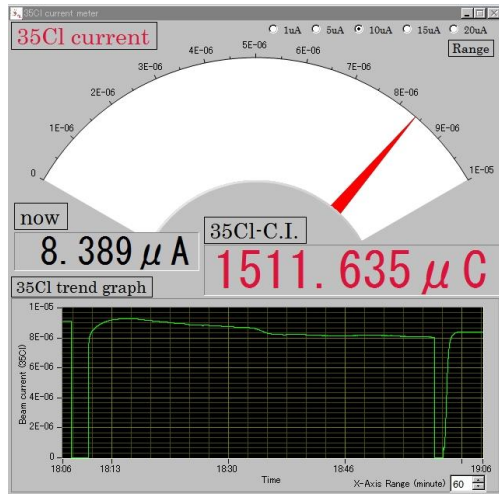


図3：イオン源からのビーム電流計測モニター

4. 極微量放射性核種AMSの原子力研究分野への適用

筑波大学AMSシステムでは、大型タンデム加速器の特長を活かして、主に妨害元素との分離が難しい重い極微量放射性核種を測定対象としている。これまでに、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 及び ^{129}I のAMS測定が可能となっている^{[4], [5]}。極微量放射性核種AMSの原子力研究分野への適用では、 ^{36}Cl 及び ^{129}I のAMS測定を中心に実施している。また、現在は ^{32}Si 及び ^{41}Ca -AMS測定法の開発を進めている。これまでにAMSイオン源装置の高度化を図り、AMS測定の精度向上と効率化を図られている。 ^{36}Cl -AMS測定では、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 同位体比で 10^{-10} から 10^{-14} の範囲で測定可能となっている。また、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の検出限界は 1×10^{-15} を達成した。新たに開発した ^{129}I -AMSでは、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ の検出限界として 1×10^{-13} を達成した。測定精度は8%となっている。図4に ^{129}I -AMSの標準試料の測定スペクトル結果を示す。表1には、 ^{36}Cl 及び ^{129}I のAMSシステム現況を示す。

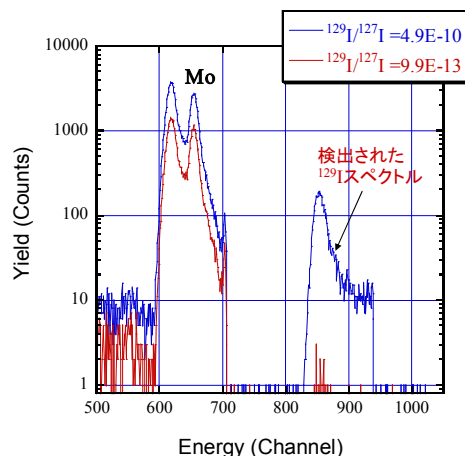


図4： ^{129}I -AMS測定による検出感度測定結果。 ^{129}I の標準試料($^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 4.9 \times 10^{-10}$ と 9.9×10^{-13})を用いて測定を実施した。

表1： ^{36}Cl 及び ^{129}I のAMS測定の概要

Trace isotope	^{36}Cl ($T_{1/2} = 3.01 \times 10^5$ yr)	^{129}I ($T_{1/2} = 1.57 \times 10^7$ yr)
Target material	AgCl + C ₆₀	AgI + MoO ₂ + Nb
Injection ion	$^{36}\text{Cl}^-$	$^{129}\text{I}^-$
Pilot beam	$^{12}\text{C}_3^-$	$^{97}\text{MoO}_2^-$
Reference ion	$^{35}\text{Cl}^-$ & $^{37}\text{Cl}^-$	$^{127}\text{I}^-$
Typical current of reference ion	~20 μA & 5 μA	10 μA
Injection energy	103 keV	103 keV
Terminal voltage	10 MV	9.68 MV
Particle energy	100 MeV ($^{36}\text{Cl}^{9+}$)	125.8 MeV ($^{129}\text{I}^{12+}$)
Detected ion	$^{36}\text{Cl}^{14+}$	$^{129}\text{I}^{26+}$
Background	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl} < 1 \times 10^{-15}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 1 \times 10^{-13}$
Typical precision	≤ 3 %	≤ 8 %

大型タンデム加速器を用いた加速器質量分析法(AMS)による重い極微量放射性核種の超高感度分析法について、原子力環境モニタリング研究分野への適用を図る為以下の研究項目を実施している。

- (1) 原子力施設環境モニタリング
- (2) 原子力施設クリアランスレベルに関する塩素36測定
- (3) 原子力施設周辺の発生熱中性子積算線量推測法の開発
- (4) 新規の極微量放射性核種AMS分析手法の開発
 - ① AMS装置の改良
 - ② 新核種の分析手法の検討
- (5) 核不拡散条約(NPT)の検証手法の検討

これまでに原子力施設周辺の土壌・地下水等の環境中に存在する極微量放射性核種を分析する環境モニタリング手法を開発した。また、放射線発生施設の遮蔽壁等に生成された塩素36のAMS分析により、クリアランスレベルと熱中性子積算線量を推測する方法の開発に成功している。

5. まとめ

大型タンデム加速器を用いたAMSについて、 ^{36}Cl 及び ^{129}I の測定精度向上を図った。今後、新たな放射性核種AMSの開発とAMSの原子力施設環境モニタリング研究への適用を図っていく予定である。

Acknowledgements

本研究の一部は、文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにより実施された「極微量放射性核種AMSによる原子力施設環境モニタリング研究」の成果である。

参考文献

- [1] 小林紘一, 日本物理学会誌Vol.53, No.12 (1998) 903.
- [2] S. Seki et al., Nucl. Instr. and Meth. 184 (1981) 113.
- [3] M. Yamanouchi et al., UTTAC-58 (1991) 1.
- [4] K. Sasa et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B259 (2007) 41-46.
- [5] Y. Nagashima et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B259 (2007) 241-245.