

NEW AMS USING LINEAR ACCELERATOR

Toshiyuki Hattori*, Shintaro Ueda, Noriyosu Hayashizaki, Taku Ito, Takuya Ishibashi,
Lu Liang, Rui Kobori and Jun Tamura
Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology
2-12-1 Ookayama, Meguro-ku, Tokyo, 152-8550, Japan

Abstract

As a new technique we focus attention on Accelerator Mass Spectrometry (AMS) which is known for ^{14}C dating and the dating is performed by the abundance of 1 to 10^{-15} . The basic AMS technique is based on counting technique to detect a particle with detectable energy which is provided by acceleration with an accelerator. The technique is able to apply to trace element analysis like a radio isotope analysis, but there is some problem. The setting and analyzing method, treatment of result of analysis are complicated comparison with radio isotope analysis, therefore we made known the setting by assembling AMS. As a character we build Radio Linear Accelerator (Linac) onto AMS. This gives energy analysis for trace element analysis because Linac accelerates particles, which has equivalent ratio of mass over charge, with same velocity and so constant acceleration energy leads proportional relation for energy and mass. More specifically mass is identified by energy. In this paper we also clear up analytical skill and established two quantitative methods. The one method is absolute analysis with a distribution chart, and the other is relative analysis that uses nondestructive pre-analysis, which is Particle Induced X-ray Emission analysis, together.

線形加速器を用いた新型質量分析

1. はじめに

加速器質量分析 (AMS) は、加速器によって検出可能なエネルギーを与えた粒子を、個々にカウントすることによって分析をおこなう技術である。これは主に放射性同位体分析において、なかでも ^{14}C を用いた年代測定方法は多くの分野で利用されており、同位対比で $1:10^{-15}$ まで測定可能である^[1]。

このようにAMSは高い分析能力を持つため、微量元素分析への適用が検討されているが、未知試料を測定する場合は、イオン化効率の把握が困難であるため、定量分析は確立されていない。また、AMSはタンデム型加速器を用いたタイプが普及しているが、近年では永久磁石型電子サイクロトロン共鳴イオン源 (PM-ECRイオン源) が開発されたこともあり、線形加速器を用いたAMS (L-AMS) も容易に構築できるようになり、エネルギー分析が可能になった。そこで実際にL-AMSを構築し、これを微量元素分析に適用する方法を研究した。

2. L-AMSの構成

L-AMSの装置レイアウトを図1に示す。L-AMSはPM-ECRイオン源、分析マグネット、高周波四重極型線形加速器 (RFQ型線形加速器)、アインツェルレンズ (EL)、ファラデーカップ (FC)、半導体検出器 (SSD) から構成される。

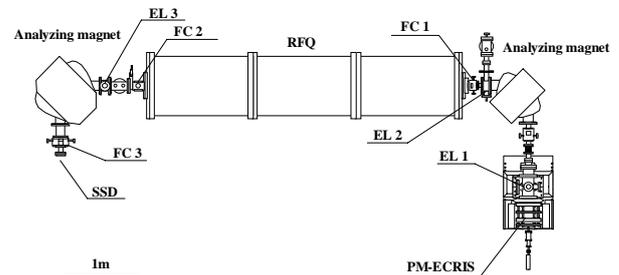


図1: L-AMS の構成図

PM-ECRイオン源

PM-ECRイオン源はミラー磁場および閉じこめ磁場の発生に電源を必要としないため、絶縁架台上への設置が容易である。また、イオン源内で高温プラズマと電子サイクロトロン共鳴により、全元素から多価イオンを生成が可能である^[2]。

測定試料のイオン化は、固体試料をイオン源上流部から導入し、直接プラズマに接触させることでおこなった。もしくは、Taで作成したオープンに試料となる粉末を詰め、プラズマから少し離れた場所で試料をガス化させておこなった。なお、イオン源は運転周波数14.8 GHzで連続運転をおこなった。

RFQ型線形加速器

RFQは対電荷質量比 (q/A) の等しい粒子を核子あたりのエネルギーで加速することができる。L-AMSに組み込まれたRFQは $q/A=1/16$ までの粒子を4.9 keV/amuから214 keV/amuまで加速することができる^[3]。もしも質量数が1だけ異なったなら、出射

粒子のエネルギーは214 keV異なり、エネルギーの測定値から粒子の質量数を求めることが可能になる。

分析マグネット

分析マグネットは、 q/A の等しい粒子を選択するフィルターとして、RFQ入射前と出射後に配置した。入射前のマグネット（第1マグネット）の半径は28 cmで、約6 kGの磁場を発生することができる。これに対して出射側のマグネット（第2マグネット）の半径は35 cmで、約14 kGの磁場を発生できる。

SSD

粒子の検出にはORTECのSurface Barrier Detectorを用いた。シリコンは300 Kで用いた場合、3.62 eV毎に電子正孔対を生成する。そのためエネルギースペクトルの測定は、マルチチャンネルアナライザーとA/Dを組み合わせたシステムによりおこなった。

3. 測定方法

L-AMSではデータ校正に事前分析の結果が必要とされ、非破壊分析が可能な荷電粒子蛍光X線（PIXE）分析により、試料中に含まれる元素の相対比および濃度（ppm-ppb）の測定を事前におこなう。今回のPIXE分析は、バンデグラフ型静電加速器から出射された約2 MeVのプロトンを試料に照射し、そこから発生した特性X線を検出することでおこなった。

固体もしくは粉末でイオン源に導入された試料は、プラズマによって多価イオンとなり、イオン源から10 kVの電位差で引き出される。このなかから $q/A=1/4$ の粒子（ $^{12}\text{C}^{3+}$ 、 $^{16}\text{O}^{4+}$ ）を測定する場合、 $q/A=1/4$ の粒子は19.6 kVまで前段加速された後に第1マグネットにてフィルターされ、RFQに入射される。

粒子の測定は、第2マグネットにて粒子を再びフィルターした後にSSDでおこなった。加速された粒子は214 keV/amuのエネルギーを持つため、 ^{12}C および ^{16}O のエネルギーは各々約2.6 MeVと3.4 MeVになり、エネルギースペクトルの測定では、2つのピークとして検出される。なお、 q/A の異なるエネルギースペクトルの測定は、RFQ入射前の設定の変更、もしくは第2マグネットにて磁場を変化させておこなった。

4. 分析結果の処理方法

本節では、エネルギースペクトルから定量分析をおこなうまでの処理方法を示す。イオン源からは表1に示した粒子が引き出されるものと仮定する。RFQによって加速された粒子は質量ごとに異なるエネルギーを持つため、 q/A を変えて測定したエネルギースペクトルはエネルギー毎にまとめることができる（図2）。ここでは便宜上、 q/A の分母はラウンドした^[4]。

表1：イオン源から引き出された粒子

| Element | Charge state | | | | | | | | |
|------------------|--------------|----|----|----|----|---|---|---|--|
| | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | |
| ^{12}C | 19 | | 8 | 1 | | | | | |
| ^{14}N | 59 | 35 | 28 | 19 | 3 | | | | |
| ^{16}O | 72 | 51 | | 19 | 14 | 2 | | | |
| ^{19}F | 22 | 18 | 13 | 7 | 3 | 2 | | | |
| ^{20}Ne | 26 | 21 | 20 | 12 | 8 | 3 | 1 | | |
| ^{28}Si | 10 | 11 | 17 | 14 | 8 | 4 | 2 | 1 | |

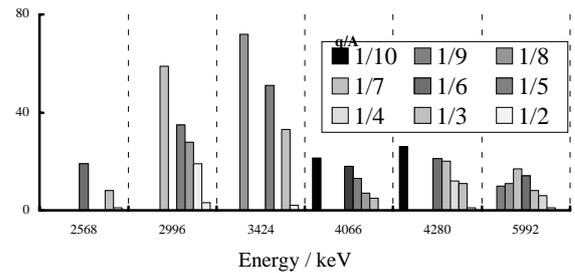


図2：検出エネルギーと q/A の関係

次に検出エネルギーからは質量数、 q/A からは価数が導かれるため、価数分布図が作成できる（図3）。また、 q/A を横軸にとり、元素ごとに価数分布を作成した後、異なる元素どうしの同じ価数を結ぶことで、粒子分布図も作成できる（図4）。イオン化効率の校正と定量分析は、図3~4にPIXE分析の結果を反映することによっておこなう^[5]。そのためL-AMSではppb以下の定量分析が可能になる。

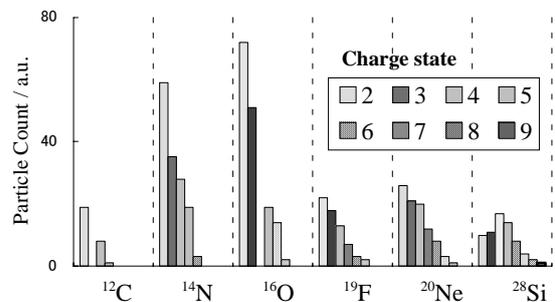


図3：価数分布図

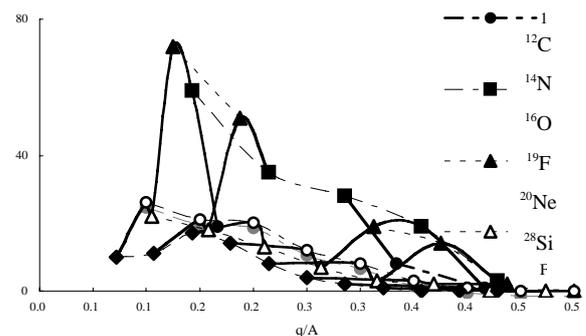


図4：粒子分布図

5. 原理実証実験

5.1 検量線の作成

検量線の作成には大気および希ガス (Ne, Ar, Kr) を試料として用いた。その検量線を図5に示す。劣化前のSSDは、質量数12~40までチャンネル数との間に線形性をもつが、 ^{84}Kr はSSDのエネルギー欠損によって、直線から大きく外れたチャンネルで検出された。SSDの劣化に伴うチャンネル数の変化が大きいと、試料の測定と同時に検量線を作成する必要がある。

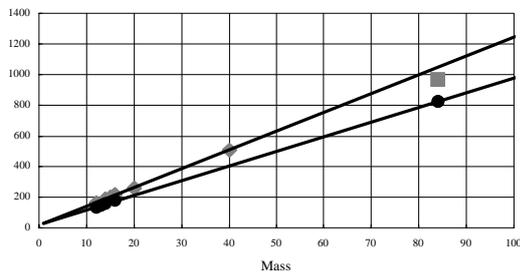


図5：検量線

検量線の作成は同じSSDを用いておこなった。■：劣化前 (Krの測定結果を除外し、最小二乗法を用いて検量線をひいた)，●：劣化後 (Krの測定結果も含め、最小二乗法を用いて検量線をひいた)

5.2 試料の測定

試料にはあらかじめPIXE分析を行った古代エジプトのファイアンスを用い、イオン化はTaオープンにておこなった。エネルギースペクトルの測定は、RFQへの入射粒子を $q/A=1/5.6$ に固定後、第2マグネットの磁場を変化させておこなった。図6~7に q/A の変化に伴うエネルギースペクトルの測定結果を示す。図7において $^{56}\text{Fe}^{10+}$ ($q/A=1/5.6$)の現れる500チャンネル付近に着目すると、 $q/A=1/0.1$ の変化があったとき、ピークの状態が大きく変動している。また質量数40 (Ar, K, Ca)を持つ粒子の7価 ($q/A=5.71$)が現れる400チャンネル付近に着目すると、 q/A が1/5.71のときに最もはっきりとしたピークが生じている。

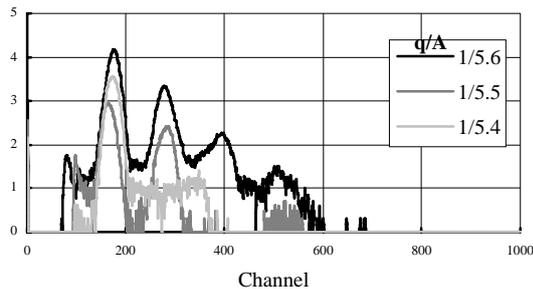


図6：エネルギースペクトル ($A/q=5.6, 5.5, 5.4$)

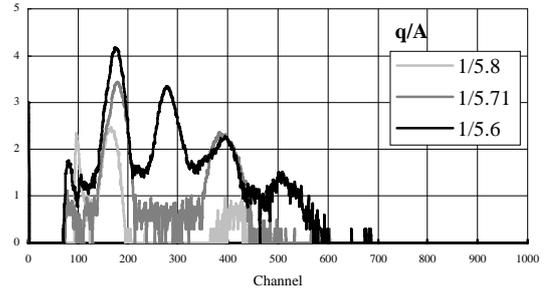


図7：エネルギースペクトル ($A/q=5.6, 5.71, 5.8$)

6. まとめ

線形加速器を用いた、新しい微量元素分析方法を考案した。また、これを証明するためにL-AMSを構築し、試料の測定をおこなった。現在は価数分布図および粒子分布図を作成するために、エネルギースペクトルの統一方法と測定方法の検討を進めている。

参考文献

- [1] C. Tuniz, J. R. Bird, D. Fink and G. F. Herzog, "Accelerator mass spectrometry", CsRC Press, Boca Raton (1998).
- [2] R. Geller, "Electron Cyclotron Resonance", IOP Publishing, Bristol (1996).
- [3] M. Okamura, Y. Oguri, K. Sasa, T. Ito, M. Okada, T. Hattori, O. Takeda, K. Satoh, T. Miura, Y. Tanabe and N. Tokuda, "Design and construction of heavy ion RFQ linac with effective Acceleration structure", Nucl. Instr. and Meth., B89, (1994)38.
- [4] C. M. Lyneis, "Operating experience with the LBL ECR source", International conference on ECR ion sources and their application, NSCL REPORT #MSUCP-47, Michigan, 42-56 (1987).
- [5] S. Ueda, T. Hattori, N. Hayashizaki, T. Hata, K. Kawasaki, D. Nagae, International Journal of PIXE 16 (2005)11.