

DEVELOPMENT OF AN ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY SYSTEM USING THE LARGE TANDEM ACCELERATOR AT THE UNIVERSITY OF TSUKUBA

Kimikazu Sasa^{1,A)}, Yasuo Nagashima^{A)}, Tsutomu Takahashi^{A)}, Keisuke Sueki^{A)}, Yuki Tosaki^{A)}, Michiko Tamari^{A)},
Takahiro Amano^{A)}, Toshiyuki Oki^{A)}, Shouzou Mihara^{A)},
Hiroshi Matsumura^{B)}, Norikazu Kinoshita^{B)}, Kotaro Bessho^{B)}, Yuki Matsushi^{C)}

^{A)} AMS Research Group, Tandem Accelerator Complex, University of Tsukuba

1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8577, Japan

^{B)} Radiation Science Center, KEK

1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

^{C)} MALT, Department of Nuclear Engineering and Management, The University of Tokyo

2-11-16 Yayoi, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

Abstract

A multi-nuclide AMS system on the 12UD Pelletron tandem accelerator at the University of Tsukuba (Tsukuba AMS system) has been able to measure environmental levels of long lived radioisotopes of ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl and ^{129}I by employing a molecular pilot beam method that stabilize the terminal voltage with 0.1% accuracy. In addition, we have been developing ^{32}Si and ^{41}Ca AMS systems for future research programs. Several major improvements have been made to increase the sensitivity of the ^{36}Cl AMS system. The standard deviation of the fluctuation for the $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ratio is $\pm 3\%$, and the effective detection limit is better than 5×10^{-15} . We have measured more than 500 samples in year including earth and environmental sciences with the Tsukuba AMS system. A detailed description of the Tsukuba AMS system is given and earth and environmental applications are also described briefly.

筑波大学大型タンデム加速器を用いた加速器質量分析(AMS)装置の開発

1. はじめに

筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門は、12UDペレトロンタンデム加速器(ターミナル電圧12 MV)と1 MVタンデム加速器を有する国内有数の複合タンデム加速器施設である。12UDペレトロンタンデム加速器は、国内2位の加速電圧性能を誇る大型汎用タンデム加速器であり、建設当初は原子核実験が利用研究の中心であったが、近年は加速器質量分析法(Accelerator Mass Spectrometry: AMS)の利用割合が約40%と最も多くなっている。AMS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で測定可能な手法であり、近年では年代測定研究の他、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。本報告では、筑波大学の大型汎用タンデム加速器を用いたAMS開発研究について紹介する。

2. 加速器質量分析法(AMS)

加速器質量分析法(AMS)^[1]は、1970年代後半より開発が始まり、1980年代には実用化された。極微量

放射性核種のうち放射性炭素 ^{14}C ($T_{1/2}=5,730$ yr)が年代測定に最も多く使用されているが、 ^{14}C 測定では5万年程度が古い試料としての限界であり、最近はもっと長半減期で環境トレーサーとして有望な ^{10}Be ($T_{1/2}=1.51 \times 10^6$ yr), ^{26}Al (7.16×10^5 yr), ^{36}Cl (3.01×10^5 yr), ^{41}Ca (1.03×10^5 yr), ^{129}I (1.57×10^7 yr)等の宇宙線起源による放射性核種のAMS開発が盛んにおこなわれている。

AMSに用いられるタンデム静電加速器は負イオンを加速する。負イオンは荷電変換材(ガスや薄膜など)を通過後に正イオンに変換され、2段加速がおこなわれる。通常の質量分析法で問題となる測定対象核種の妨害イオン(同重体分子等)は、荷電変換材を通過する際に分解遊離される。高エネルギーに加速された測定対象核種のイオンは、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。最終的には粒子検出器で、物質中のエネルギー損失 ΔE の差を利用して、同重体イオンや散乱イオンと識別され、測定対象核種が1個単位で計測される。エネルギー損失を利用するには最低、核子当たり0.5 MeV以上の加速エネルギーが必要となる。

¹ E-mail: ksasa@tac.tsukuba.ac.jp

つまり重い放射性核種の識別には、それだけ高い加速エネルギーが必要となる。日本では、AMS専用加速器以外も含めると10機関で計12台のAMS装置が稼動している。このうち、 ^{14}C 以外の放射性核種AMS測定を定常的に実施しているのは、東京大(^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{129}I)、筑波大(^{26}Al , ^{36}Cl , ^{129}I)、日本原子力研究開発機構青森研究開発センター(^{14}C , ^{129}I)である。

3. 筑波大学AMSシステム

筑波大学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。ターミナル電圧は、2 - 12 MVの範囲において10 kV単位で加速電圧可変であり、高度に制御されたイオンビームが提供可能である。9階に3台のイオン源装置が設置されており、加速イオンは1階の分析電磁石(ME/q²=200 MeV amu)により、2つの測定室に導かれる。図1に筑波大学12UDペレトロンタンデム加速器の断面図を示す。

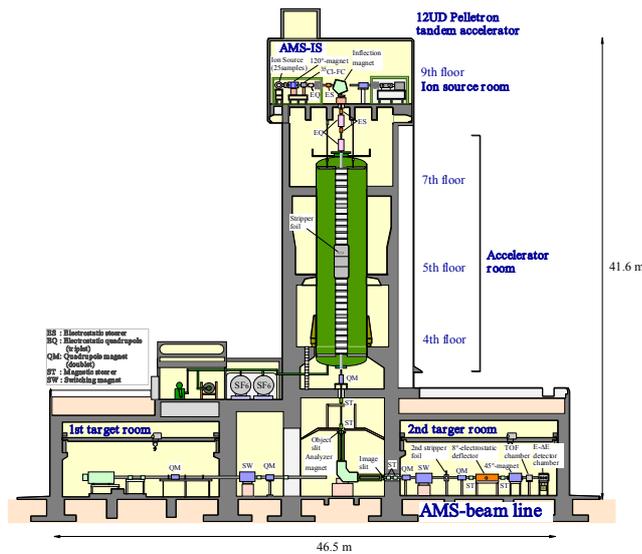


図1：筑波大学12UDペレトロンタンデム加速器

筑波大学AMSシステムでは、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 及び ^{129}I のAMS測定を行っている^{[2], [3]}。大型タンデム加速器の特徴を活かして、主に妨害元素との分離が難しい重い極微量放射性核種の測定に的を絞っている。図2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試料自動交換が可能である。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 $\Delta E-E$ 検出器から成り立つ。図3に筑波大学AMSシステムの粒子識別用ビームラインの写真を示す。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。12UDペレトロンタンデム加速器では、加速器下流の分析電磁石物点に設置したスリットで得られるビーム電流値をフィードバックして、ターミナル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。このパイロットビーム法により大型タンデム加速器の電圧制御をおこない、これまでに ^{14}C 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I のAMS測定以外に ^{32}Si 、 ^{41}Ca のAMS試験開発等も実施している^[4]。表1に現在、主に測定がおこなわれている ^{26}Al 及び ^{36}Cl のAMSシステム現況を示す^[5]。

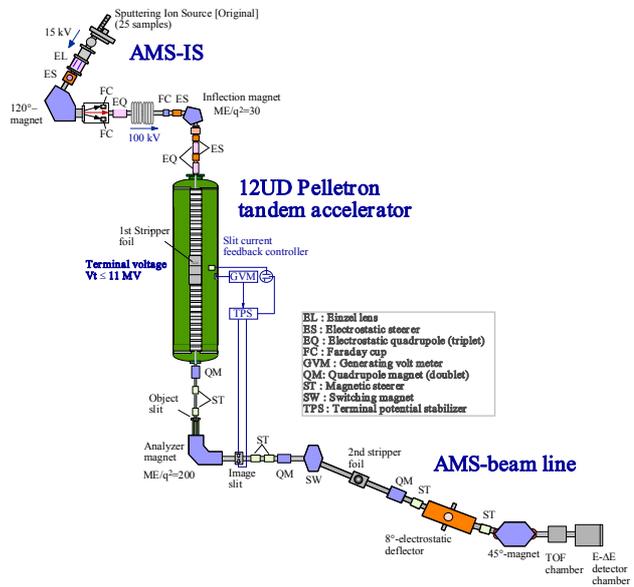


図2：筑波大学AMSシステム概略図

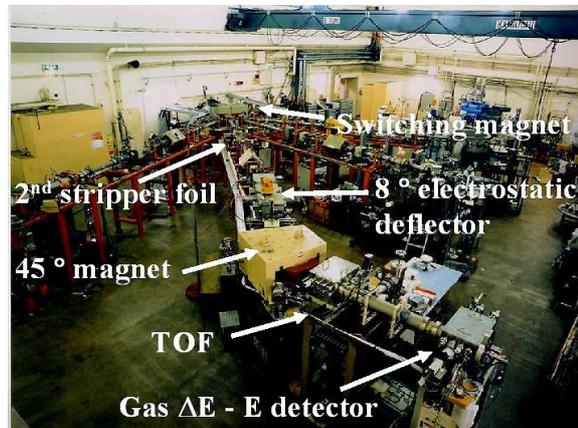


図3：粒子識別ビームライン

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

表1: ^{26}Al 及び ^{36}Cl -AMSの概略

Trace isotope	^{26}Al ($T_{1/2}=7.1\times 10^5$ yr)	^{36}Cl ($T_{1/2}=3.0\times 10^5$ yr)
Target material	$\text{Al}_2\text{O}_3 + ^{26}\text{MgO}_2 + \text{Ag}$	$\text{AgCl} + \text{C}_{60}$
Injection ion	$^{26}\text{AlO}^-$	$^{36}\text{Cl}^-$
Pilot beam	$^{26}\text{MgO}^-$	$^{12}\text{C}_3^-$
Reference ion	$^{27}\text{AlO}^-$	$^{35}\text{Cl}^-$ & $^{37}\text{Cl}^-$
Typical current of reference ion	1.5 μA	10 μA & 2.5 μA
Injection energy	115 keV	103 keV
Terminal voltage	10.2 MV	10 MV
Particle energy	78 MeV ($^{26}\text{Al}^{7+}$)	100 MeV ($^{36}\text{Cl}^{9+}$)
Detected ion	$^{26}\text{Al}^{13+}$	$^{36}\text{Cl}^{14+}$
Background	$^{26}\text{Al}^{27}\text{Al} < 5 \times 10^{-15}$	$^{36}\text{Cl}^{35}\text{Cl} < 5 \times 10^{-15}$
Typical precision	5 - 10 %	≤ 5 %
Number of targets	40 samples/year	400 samples/year

3. ^{36}Cl -AMSシステム

^{36}Cl -AMSでは、 $^{36}\text{Cl}^-$ とともに $^{12}\text{C}_3^-$ を加速して加速電圧のスリット制御に使用している。ターミナルの荷電変換炭素薄膜を通過後、 $\text{ME}/q^2 = 44.4$ (MeV amu)となる $^{36}\text{Cl}^{9+}$ (100 MeV)、 $^{12}\text{C}^{3+}$ (33.3 MeV)を分析電磁石で選択している。振分電磁石後のビームコースでは、第2荷電変換炭素薄膜により $^{36}\text{Cl}^{9+}$ は $^{36}\text{Cl}^{14+}$ に変換される。質量分析ラインの粒子識別系で $^{36}\text{Cl}^{14+}$ を選択して、ガス検出器と半導体検出器からなる ΔE -E検出器によりその個数が計測される。 ^{35}Cl と ^{37}Cl については、イオン源下流の 120° 電磁石で分析後、加速器に入射する前にマルチファラデーカップで電流値を計測している。試料の $^{36}\text{Cl}^{14+}/^{35}\text{Cl}^-$ (counts/ μC) 相対値と既知標準体の $^{36}\text{Cl}^{14+}/^{35}\text{Cl}^-$ 相対値から試料の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を求めて、未知試料中の ^{36}Cl 濃度を計測する。これまでに新規計測制御システムの開発などにより、測定効率の向上が図られ、1ヶ月に1週間程度のマシンタイムにより、年間約500試料のAMSが実施できるようになっている。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 同位体比で 10^{-10} から 10^{-14} の範囲で測定可能であり、検出限界は 5×10^{-15} 以下である。繰り返し測定精度は ± 3 %程度となっている。図4に ^{36}Cl -AMSの標準試料($^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}=5.90\times 10^{-11}$)と検出限界を確認する為のブランク試料の2次元測定スペクトル結果を示す。

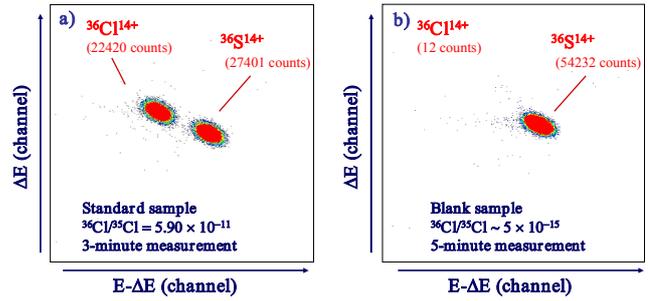


図4: ^{36}Cl -AMSの測定スペクトル。ガス ΔE -E検出器で測定された $^{36}\text{Cl}^{14+}$ (100MeV)の2次元測定スペクトル。a) 標準試料 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}=5.90\times 10^{-11}$ とb)ブランク試料の測定結果。

4. まとめ

大型タンデム加速器を用いた加速器質量分析法(AMS)の開発について紹介をおこなった。筑波大学AMSシステムは加速器質量分析装置として国内最大の規模を誇っており、重い放射性核種分析に有利である。特に ^{36}Cl -AMSは妨害となる ^{36}S との分離が難しく、高いターミナル電圧を有する筑波大学AMSシステムの特徴を活かす研究が進展している。これまでに広島・長崎原爆被ばく線量評価システムDS-02の検証やJCO臨界事故調査などの原子力関連研究や環境試料中の放射性核種分析研究などを実施している。また現在、南極ドームふじの氷床コア^[6]に含まれる極微量の宇宙線生成核種 ^{36}Cl の分析研究が進展している。72万年といわれる氷床コア年代に関して、新たなデータを提供できると期待されている。

Acknowledgements

本研究は、科学研究費補助金 基盤研究(A) (課題番号19201003)、基盤研究(B) (課題番号18360043)、基盤研究(B) (課題番号19300304)及びKEK加速器科学総合支援事業(大学等連携支援事業)の支援により実施している。

参考文献

- [1] 小林紘一, 加速器質量分析法, 日本物理学会誌Vol.53, No.12 (1998) 903.
- [2] K. Sasa et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B259 (2007) 41-46.
- [3] Y. Nagashima et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B259 (2007) 241-245.
- [4] T. Baba et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B123 (1997) 183-185.
- [5] K. Sasa et al., Proceedings of the First East Asian Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, UTTAC-74 (2006) 63.
- [6] H. Motoyama, Scientific Drilling 5, (2007) 41-43.