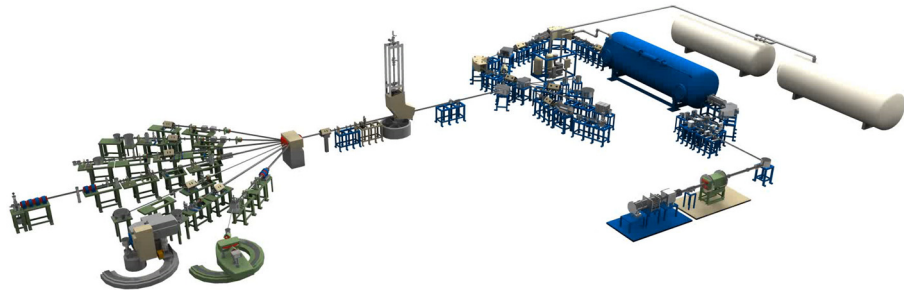


極微量放射性核種を超高感度で検出可能な 6 MVタンデム加速器質量分析装置の開発

Development of the 6 MV Tandem Accelerator Mass Spectrometry System for Ultrasensitive Detection of Trace Radionuclides

笹 公和, 高橋 努, 細谷 青児, 高野 健太, 落合 悠太, 末木 啓介(筑波大学)
松中 哲也(金沢大学)

Kimikazu Sasa, Tsutomu Takahashi, Seiji Hosoya, Kenta Takano, Yuuta Ochiai,
Keisuke Sueki (Univ. of Tsukuba), Tetsuya Matsunaka (Kanazawa Univ.)



Outline

1. Introduction

- 加速器質量分析法(AMS)とは
- 本研究の目的

2. 6MVタンデム加速器質量分析装置の設計と開発

- 6 MVタンデム加速器質量分析装置の設計
- Csスパッタ負イオン源: CO₂ガス/固体ハイブリット型イオン源
- 極微量核種検出ライン

3. 極微量放射性核種のAMSによる検出

- 核種検出手法の開発
- C-14 測定: CO₂ガスイオン源を用いたC-14直接測定
- B-10 を例として

4. Summary



加速器質量分析法(AMS)とは



AMS: Accelerator Mass Spectrometry

通常の質量分析

ICP-MSでの同位体比: $\sim 10^{-9}$



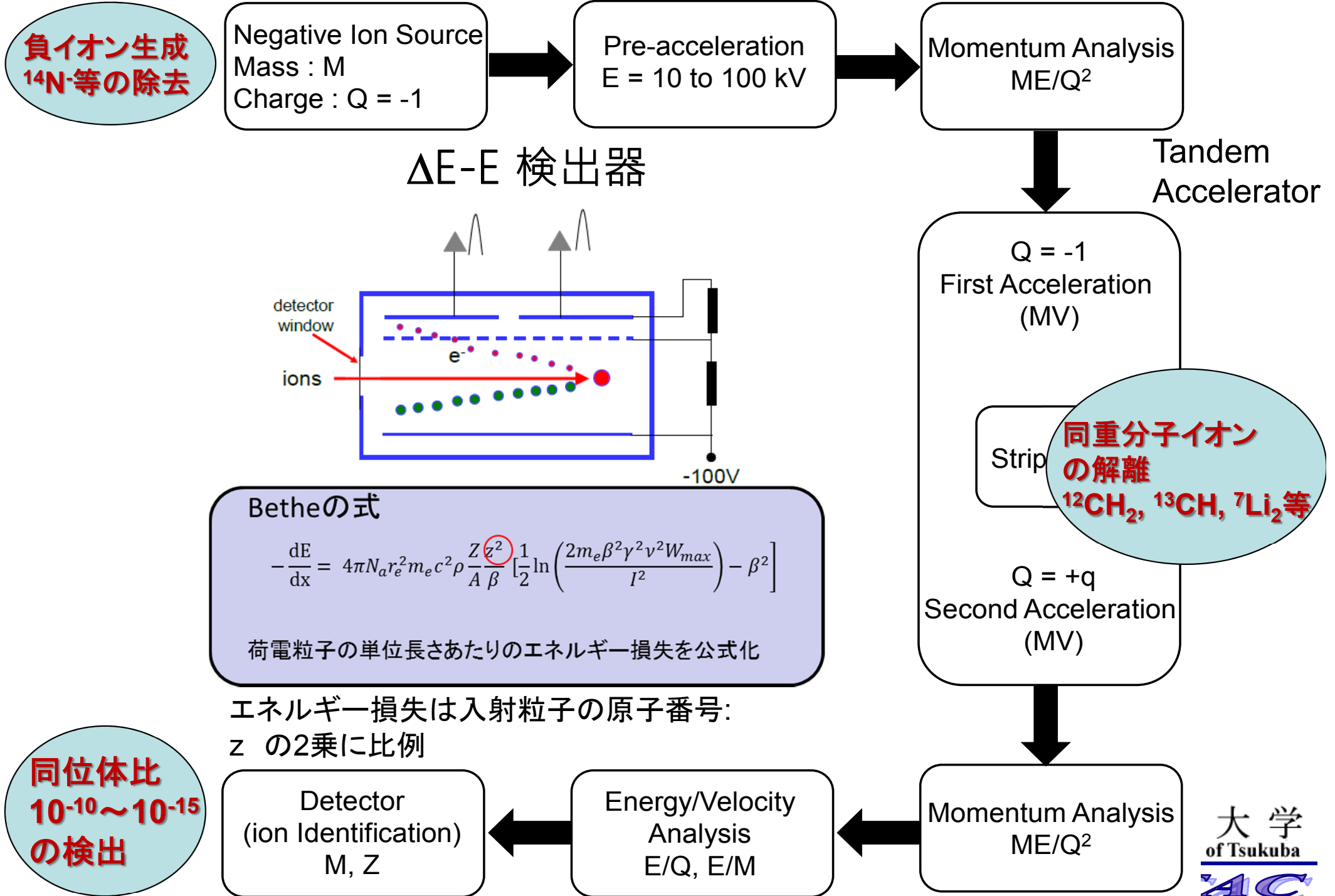
加速器質量分析

加速器による同重体分離



同位体比: $10^{-10} \sim 10^{-15}$ (ppt レベル)の検出手法

加速器質量分析(AMS)の構成



本研究の目的

6MV(600万ボルト)加速器質量分析装置の開発

- 高エネルギー ^{14}C ビーム(25 MeV)による ^{14}C 高感度測定の実現
→古い年代測定研究への適用
- 多核種AMS測定の開発
 - ^{14}C ($T_{1/2} = 5,730 \text{ yr}$), ^{10}Be ($1.36 \times 10^6 \text{ yr}$), ^{26}Al ($7.17 \times 10^5 \text{ yr}$), ^{36}Cl ($3.01 \times 10^5 \text{ yr}$), ^{41}Ca ($1.03 \times 10^5 \text{ yr}$), ^{129}I ($1.57 \times 10^7 \text{ yr}$), ^{90}Sr 等
- 新たな分析手法: CO_2 ガスからの ^{14}C 加速器質量年代測定法の開発



大気元素(N, O, Ar)との相互作用



宇宙線生成
核種

$$^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim 1.2 \times 10^{-12}$$



筑波大学
University of Tsukuba

UTTAC

2. 6MVタンデム加速器質量分析装置の設計と開発

- 6MVタンデム加速器質量分析装置の設計
- Csスパッタ負イオン源: CO₂ガス/固体ハイブリット型イオン源
- 極微量核種検出ライン



筑波大学
University of Tsukuba

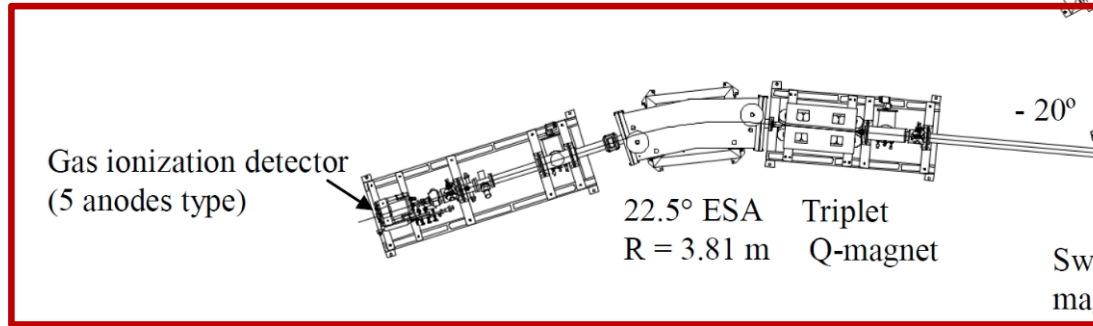
UTTAC

6 MV 加速器質量分析(AMS) システム

国内最大の質量分析専用装置

微量核種検出

Cビーム輸送効率~100%

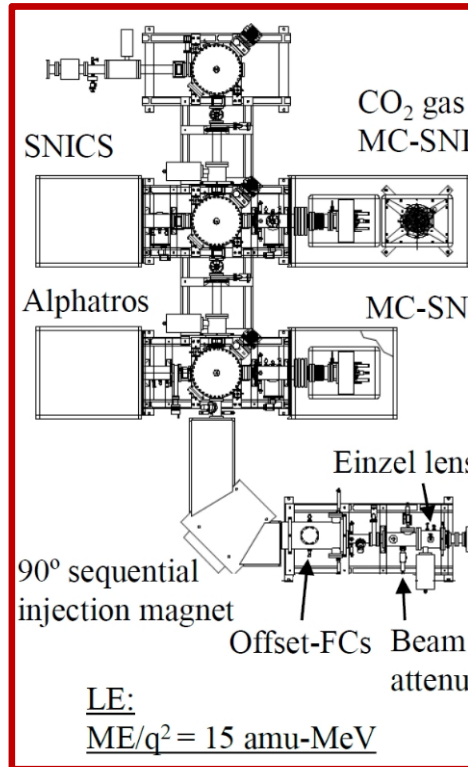


$$\frac{LE}{ME/q^2} = 176 \text{ amu-MeV}$$

90° analyzer magnet R = 1.27 m

Three 90° rotational Electrostatics Spherical Analyzers (ESAs)

Rare particle detection line



負イオン生成

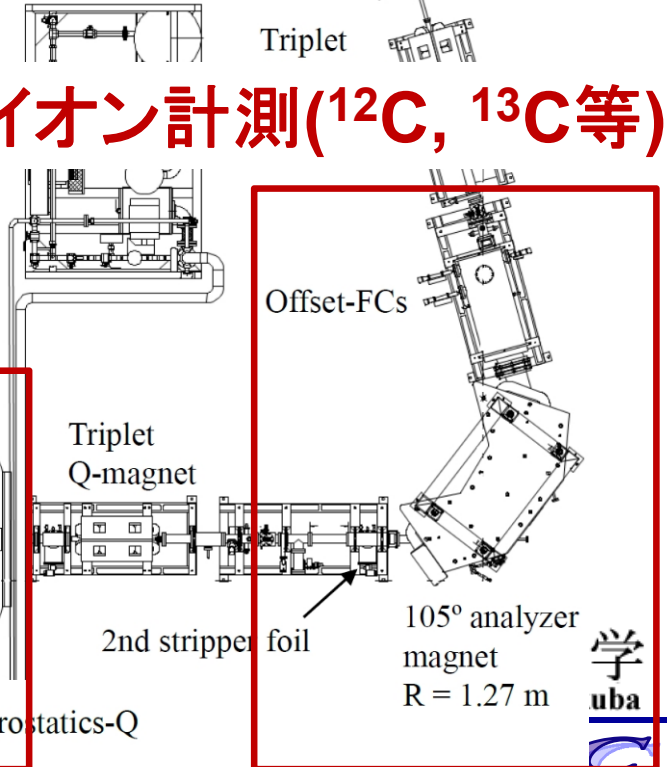
AMS injection

40 samples sputter ion sources

安定同位体イオン計測(¹²C, ¹³C等)

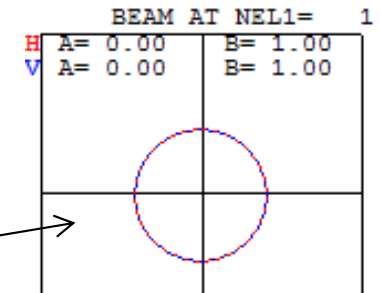


加速及び同重体分離

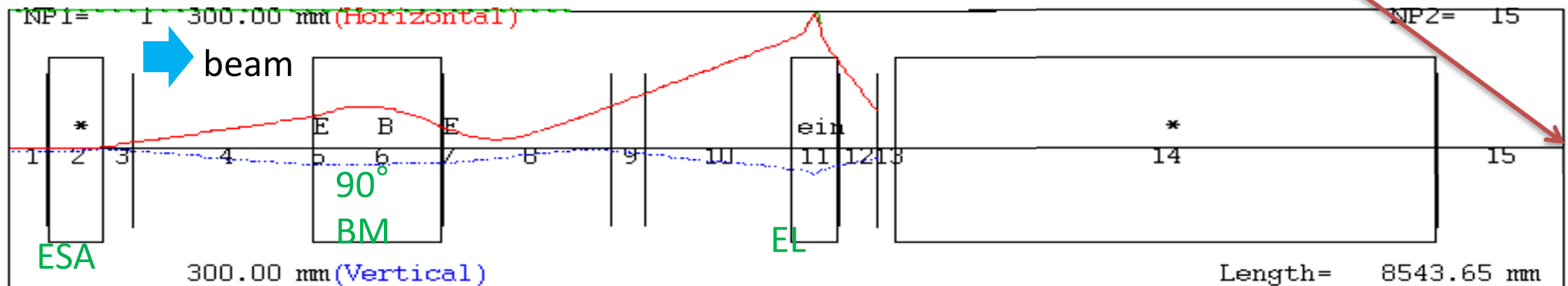
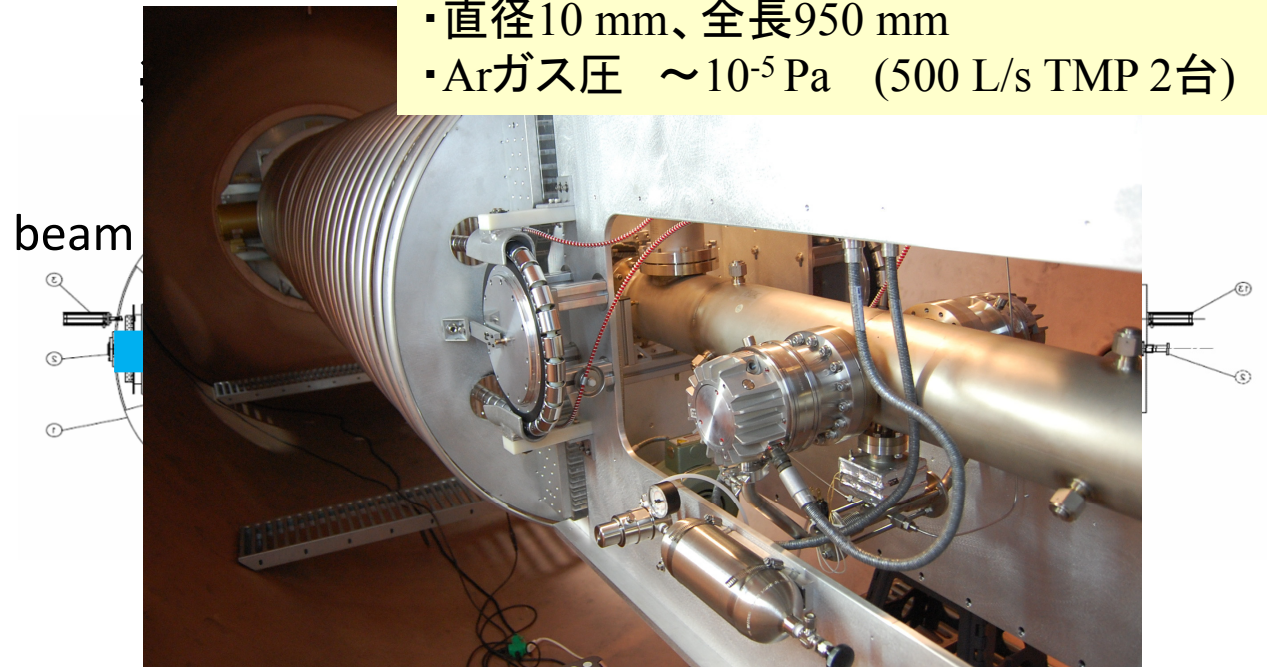
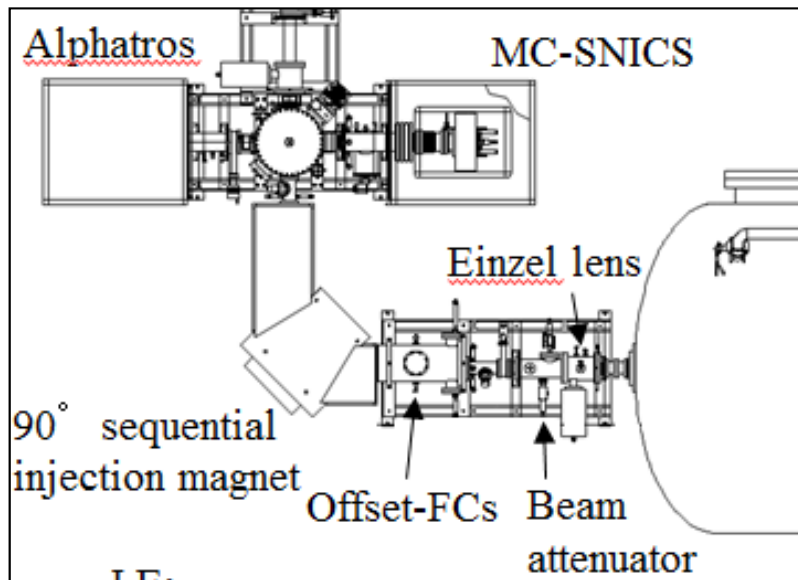


入射器側のビームライン軌道

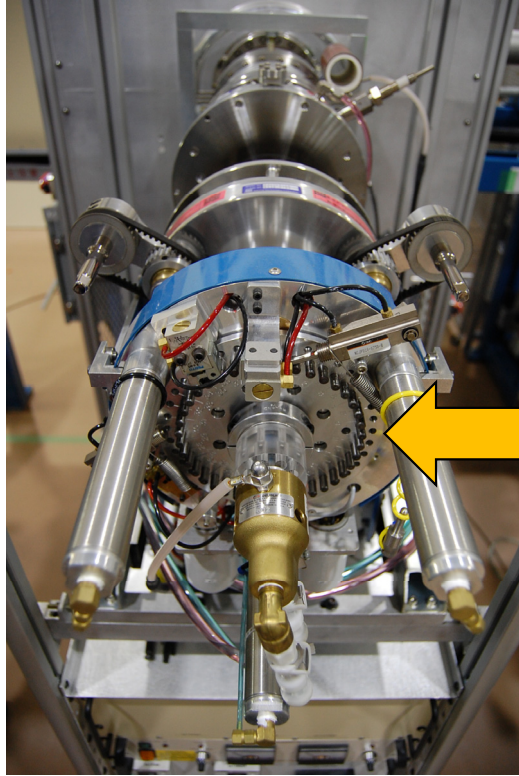
入射器側ビームライン初期条件	
Energy	78 keV
Emittance	35 π mm mrad
Charge	-1



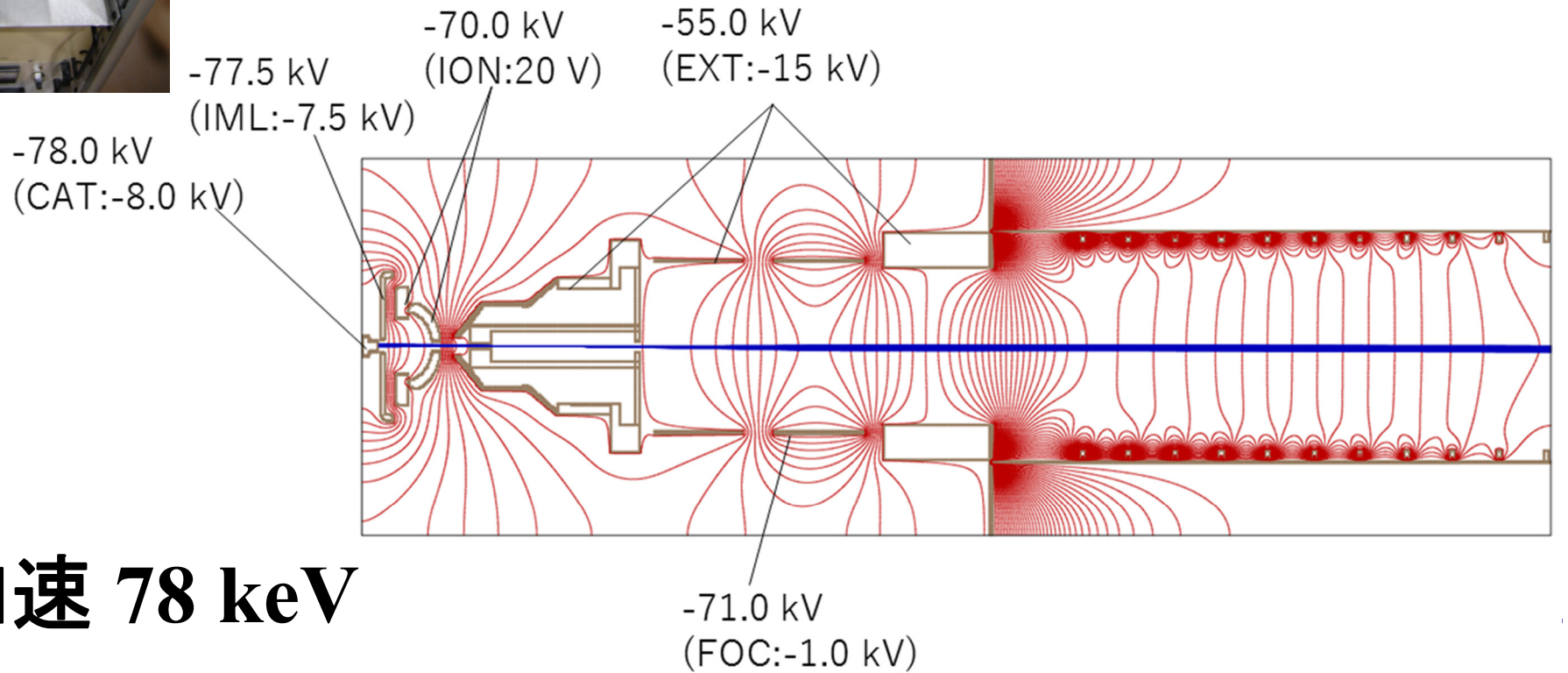
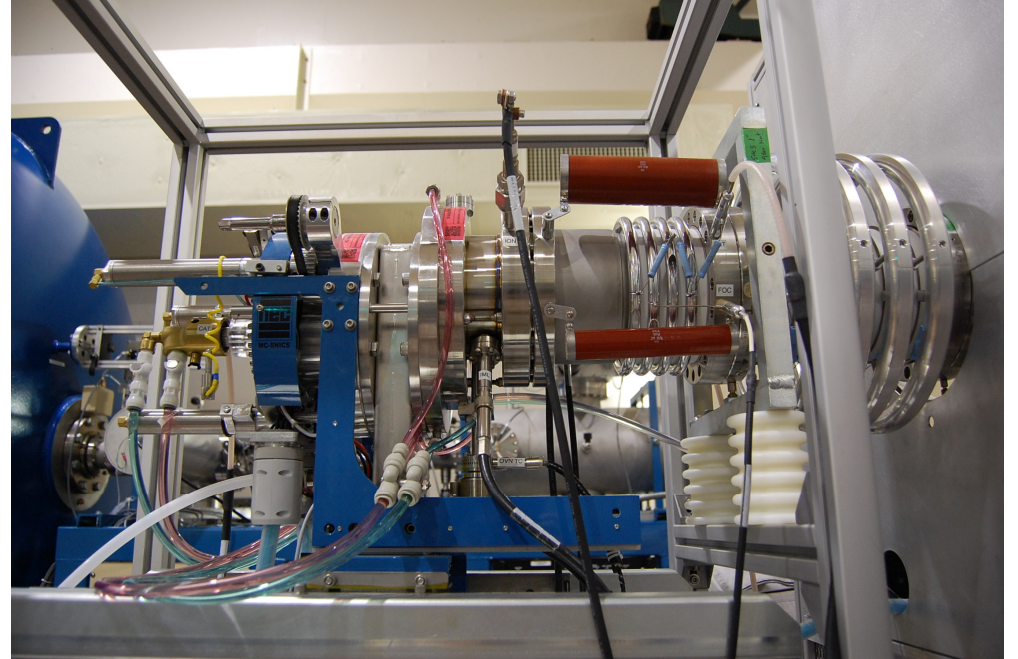
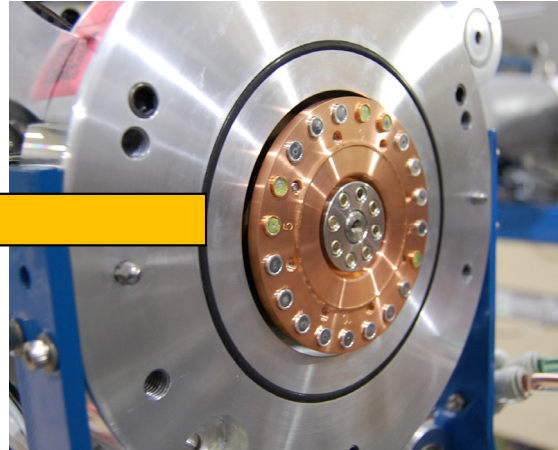
循環型Arストリッパチャンネル:
 ・直径10 mm、全長950 mm
 ・Arガス圧 $\sim 10^{-5}$ Pa (500 L/s TMP 2台)



Csスパッタ負イオン源

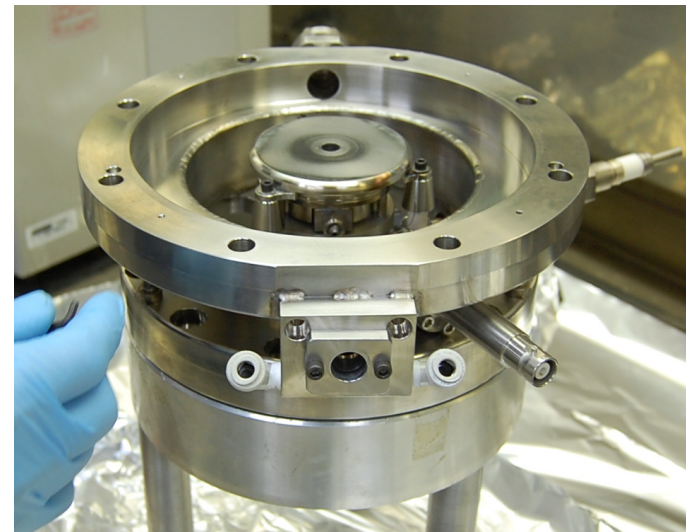
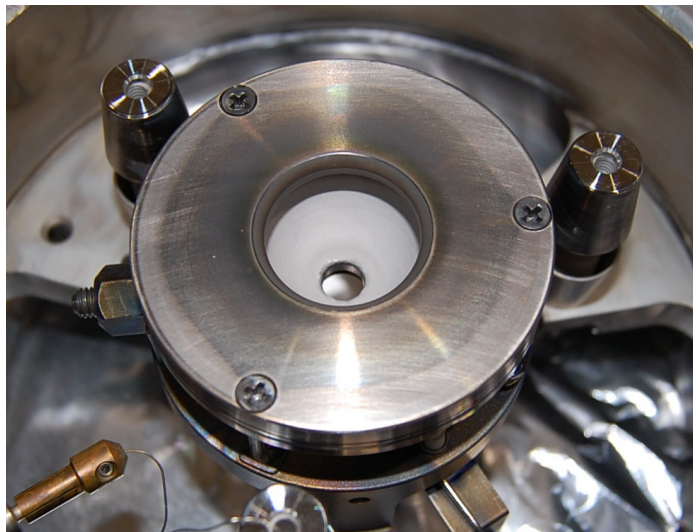
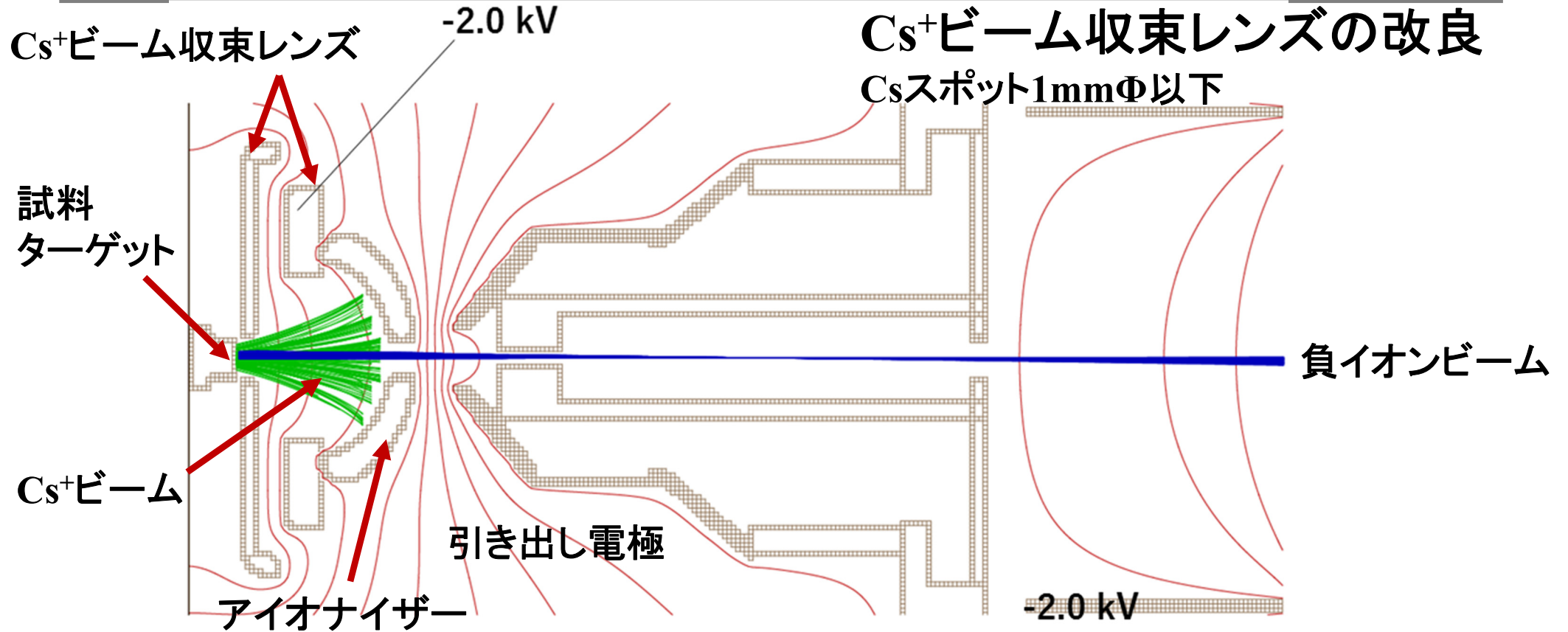


20-40 試料

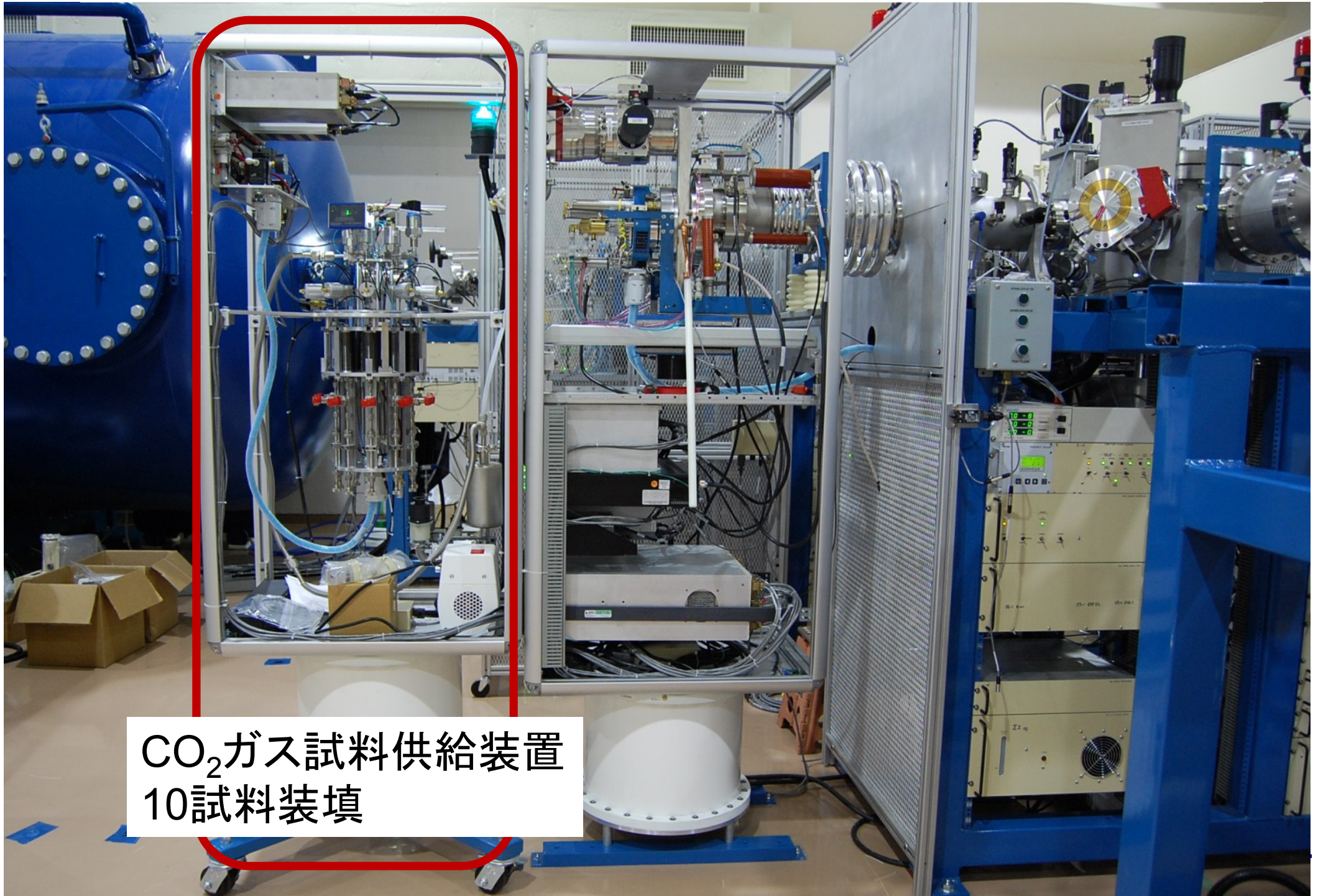


前段加速 78 keV

Csスパッタ負イオン源

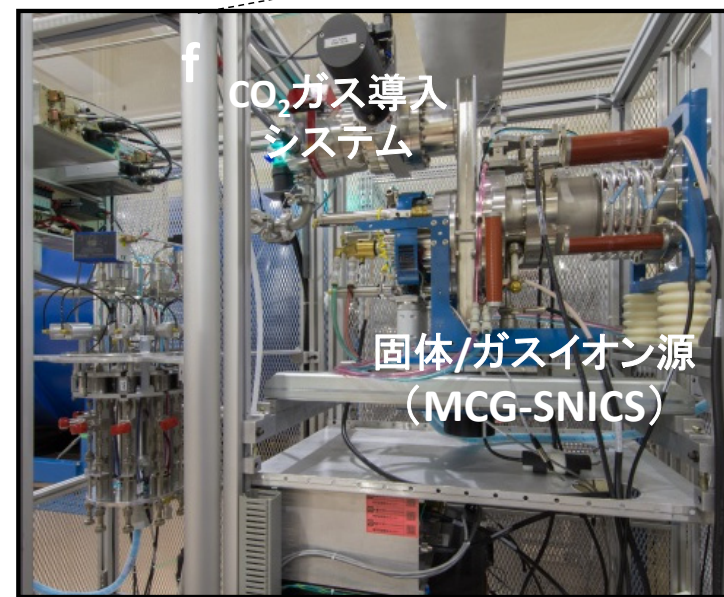


CO₂ ガス/固体Csスパッタ負イオン源 for ¹⁴C AMS



CO₂ガス試料供給装置
10試料装填

^{14}C -AMS グラファイト作製前処理システム

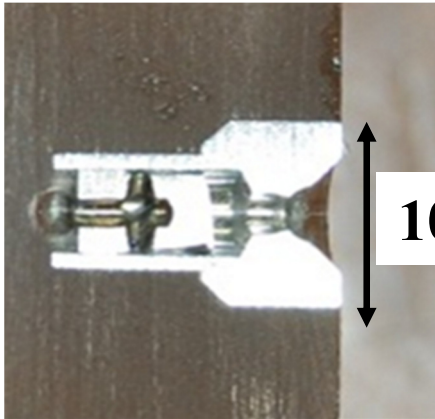


CO₂ ガス/固体Csスパッタ負イオン源 for ¹⁴C AMS

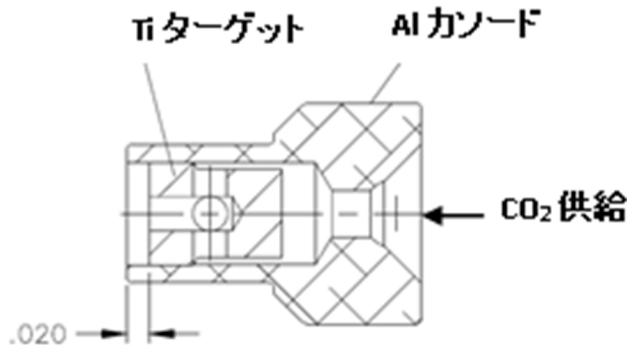


CO₂ gas handling system

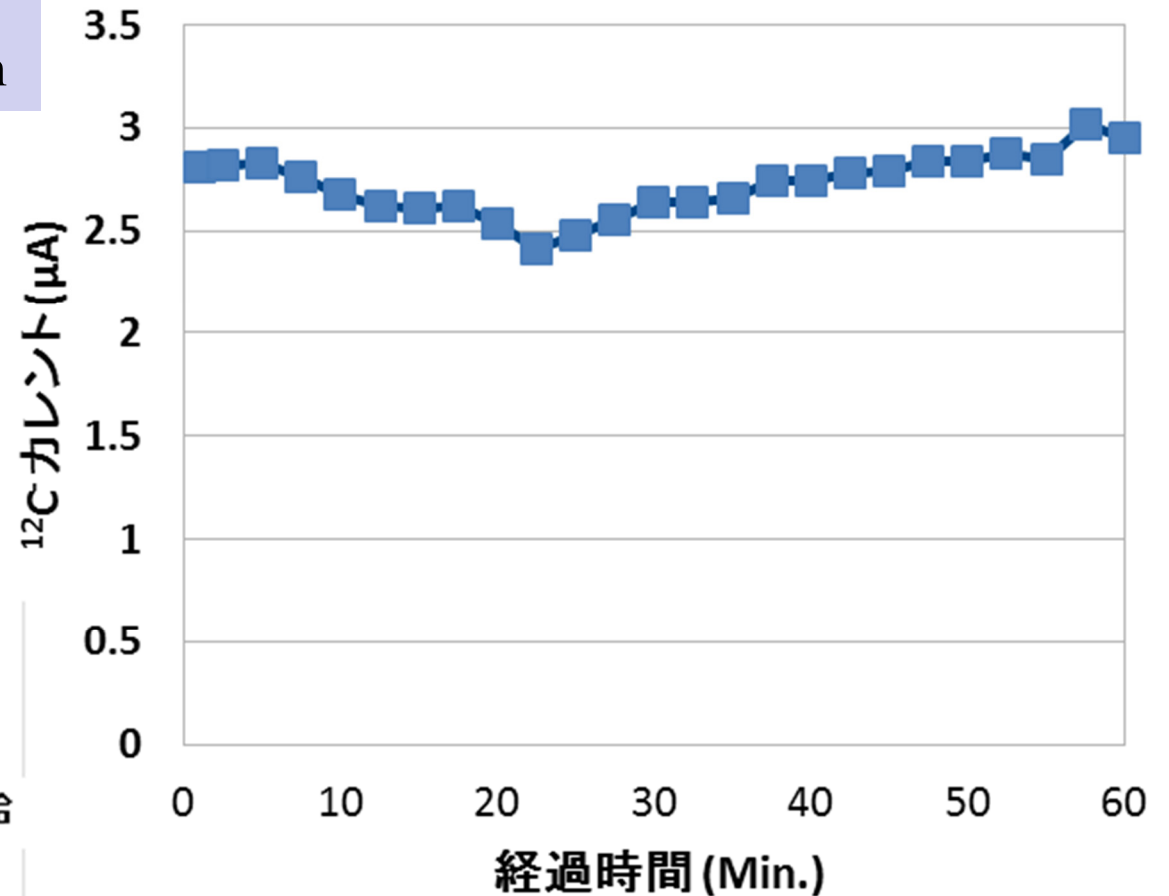
- CO₂ gas lines : 10
- CO₂ gas flux : 1-2 μl/min
- He gas flux : < 130 μl/min



10 mm



CO₂からの¹²C-ビーム生成

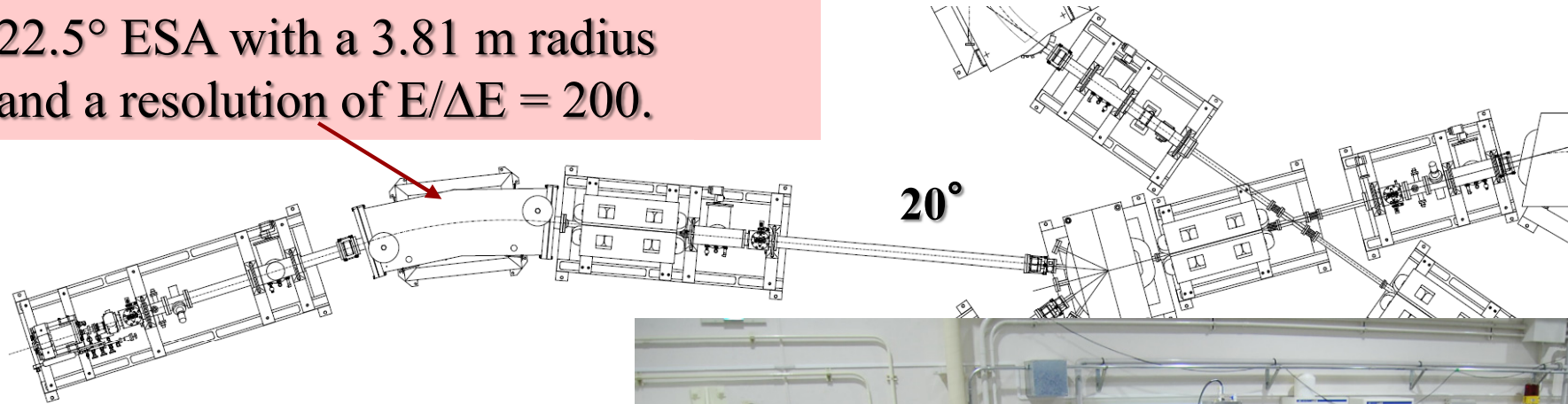


0.5% for samples >200 μg
1% for samples 10-200 μg

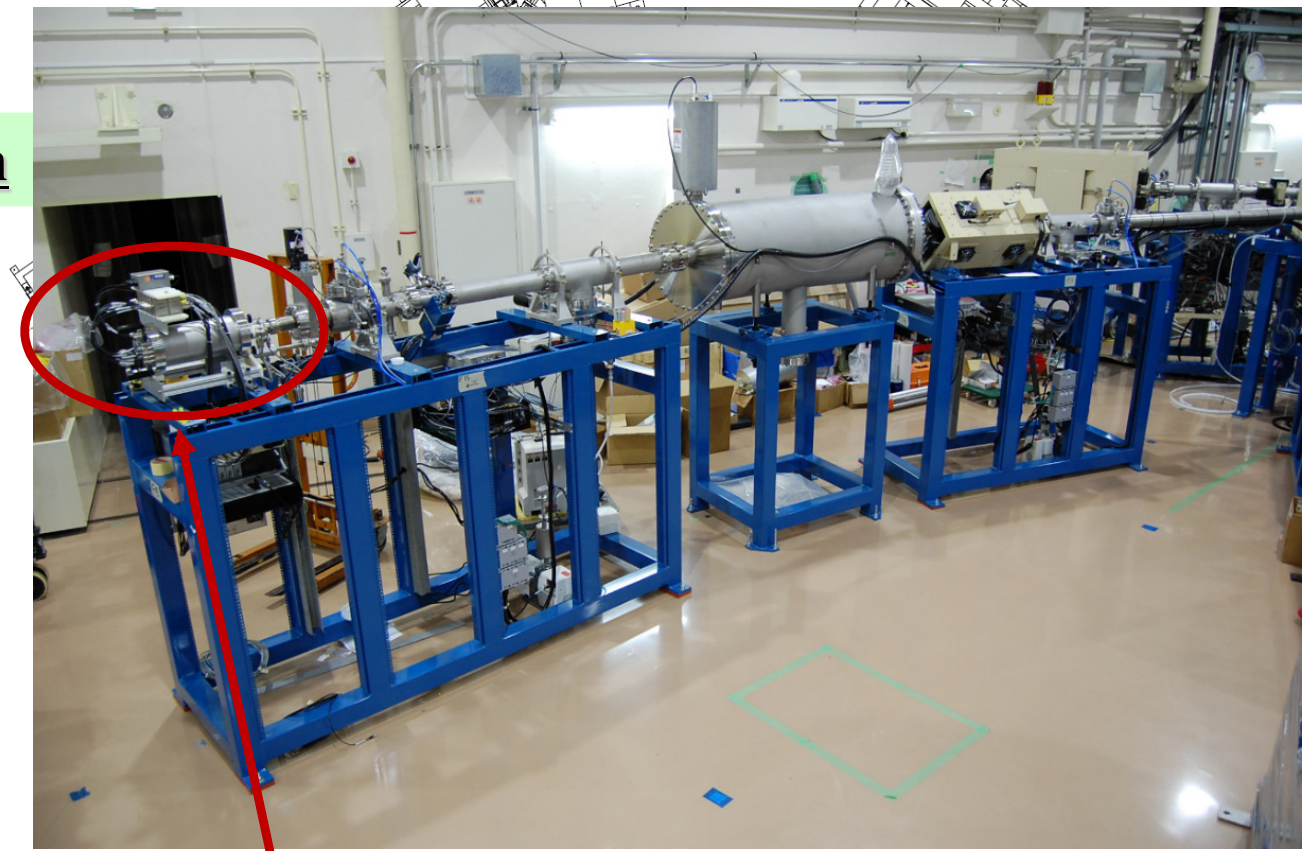
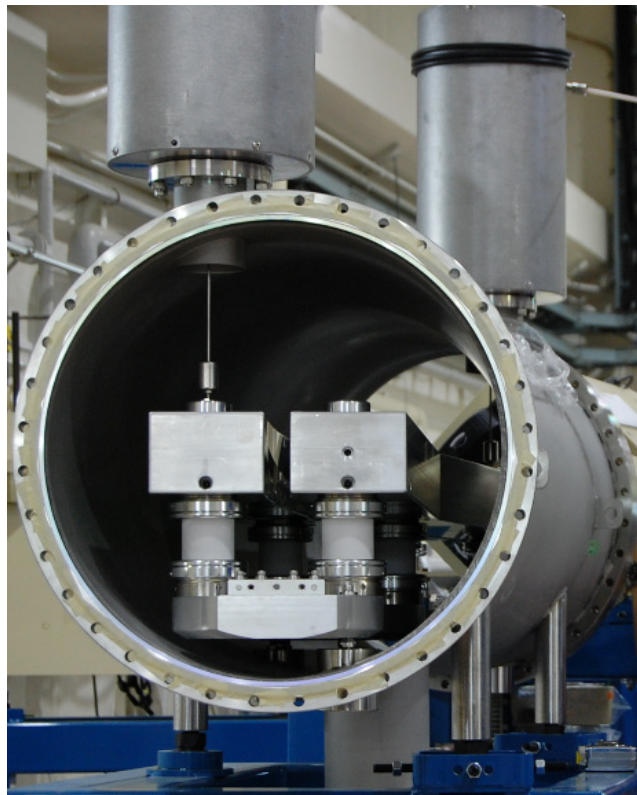
CO₂試料(1 mgC)
¹²C-カレント: 最大~12 μA
2.5-3.0 μA程度 (持続時間60 min.)

極微量核種検出ライン

22.5° ESA with a 3.81 m radius
and a resolution of $E/\Delta E = 200$.



Rare particle detection system



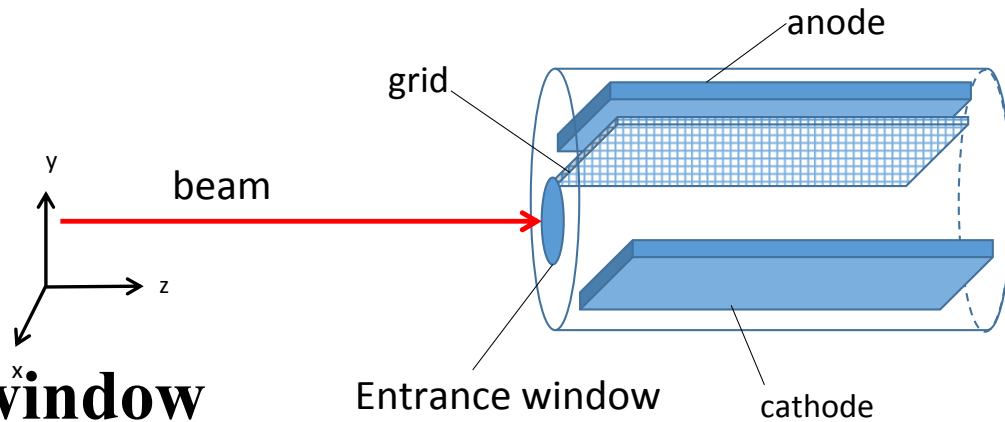
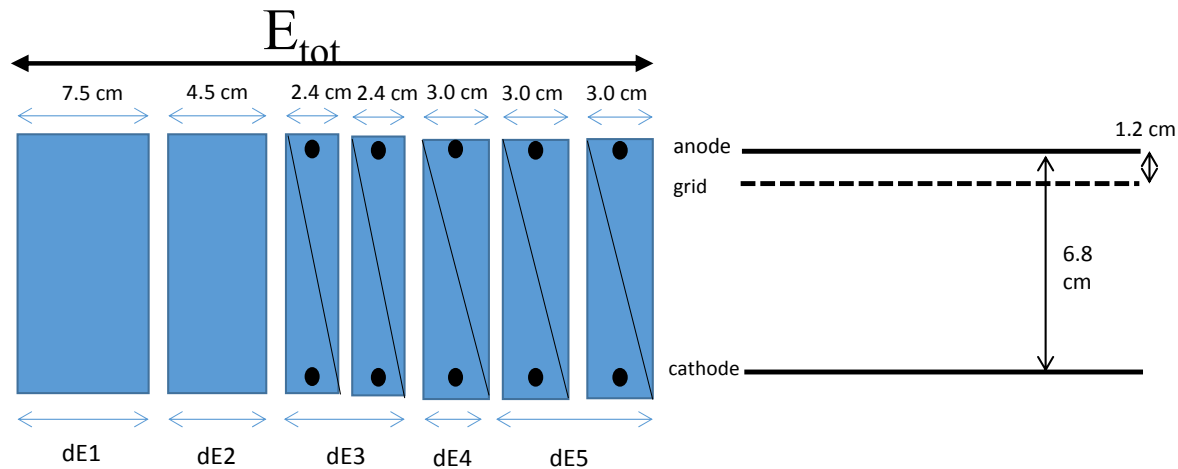
ΔE-E検出器



筑波大学
University of Tsukuba

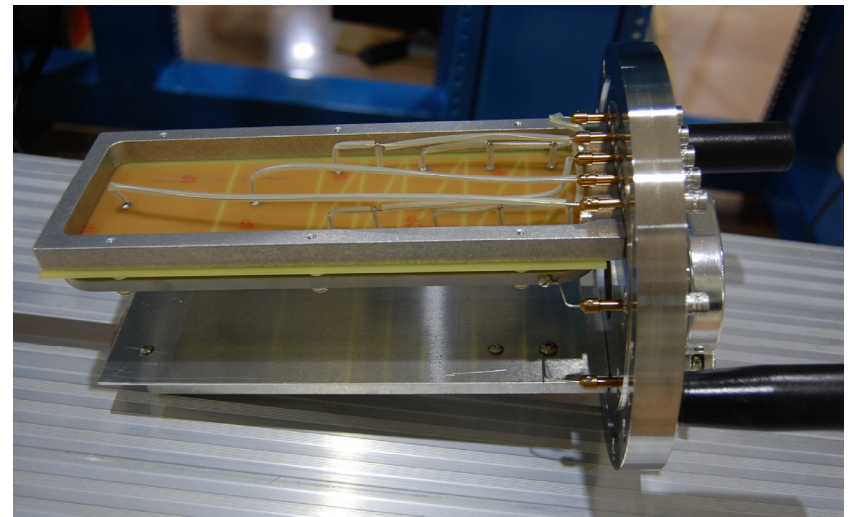
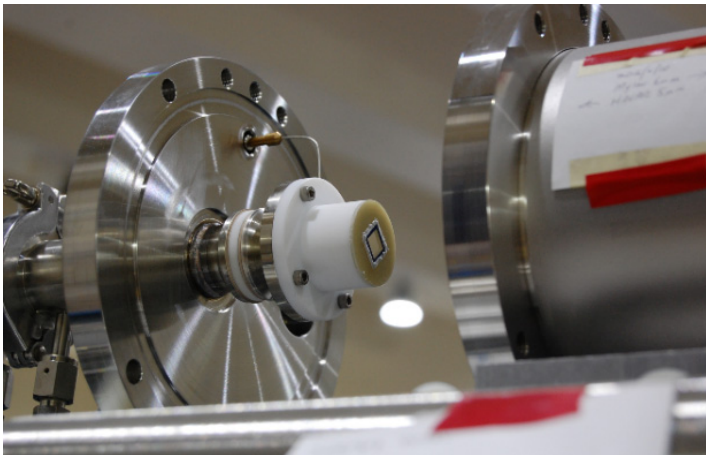
UTTAC

5枚電極型 ΔE -Eガス検出器



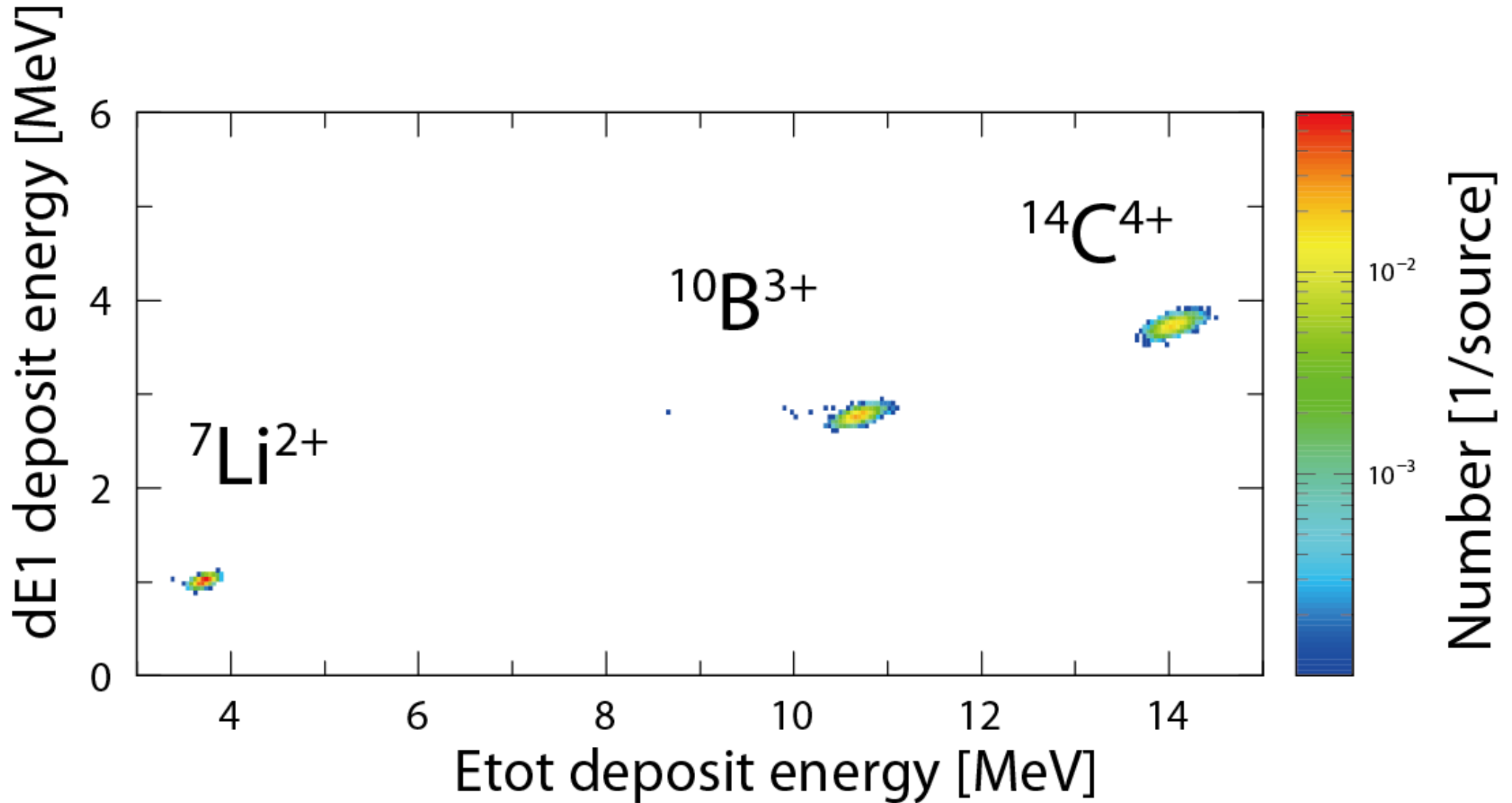
**75 nm Si_3N_4 window
for ^{36}Cl & ^{41}Ca -AMS**

電極構造



$^{14}\text{C}^{4+}$, $E=25\text{ MeV}$ (加速電圧 5 MV)の計算結果

PHITSコード



シミュレーション結果

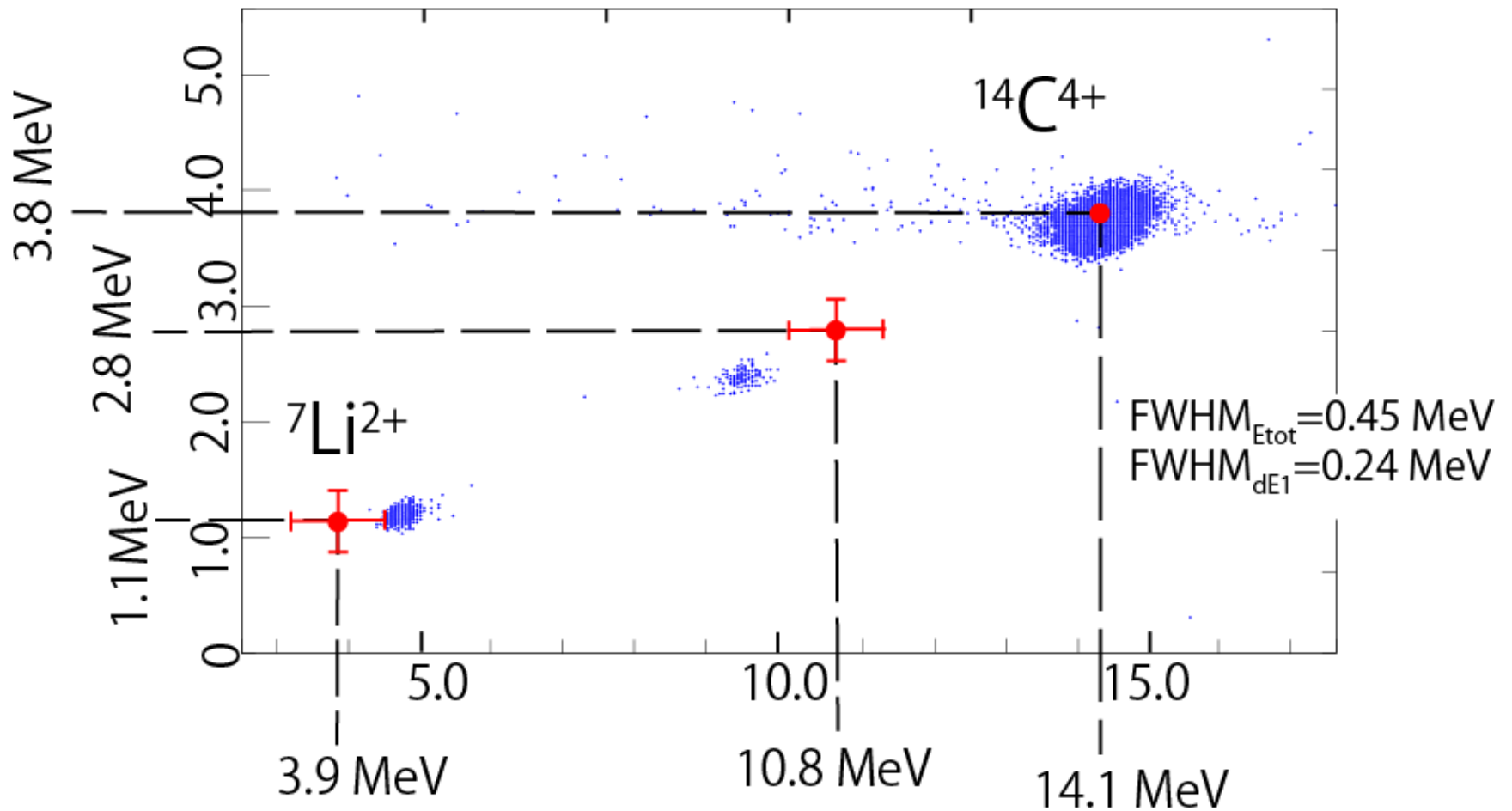


^{14}C -AMS試験測定結果

$^{14}\text{C}^{4+}$, $E=25\text{ MeV}$ (加速電圧5 MV)

ビーム輸送効率: 90%

dE_1 deposit energy [MeV]

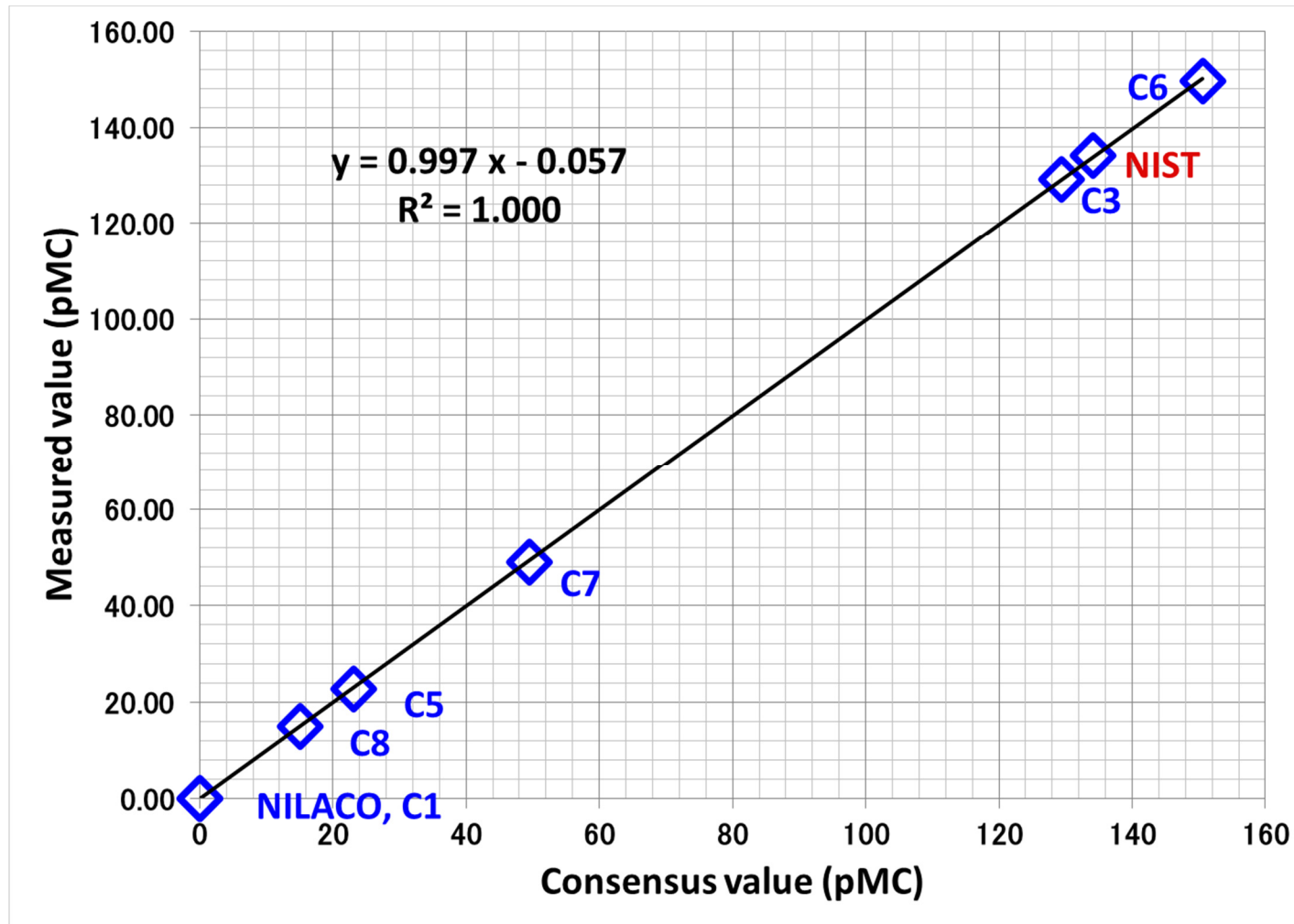


E_{tot} deposit energy [MeV]

^{14}C -AMS測定結果

C-14 AMS (IAEA標準 C1-C6)

$V = 5.0 \text{ MV}$, $q = 4+$, $E = 25.0 \text{ MeV}$, 1800 cycle (3min), 1~2 times



Precision: $< 0.2\%$

Chemical BG (IAEA-C1) : 0.04~0.06 pMC

($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$: $4.0\sim 6.2 \times 10^{-16}$, Age: 59,140~63,320 yr)

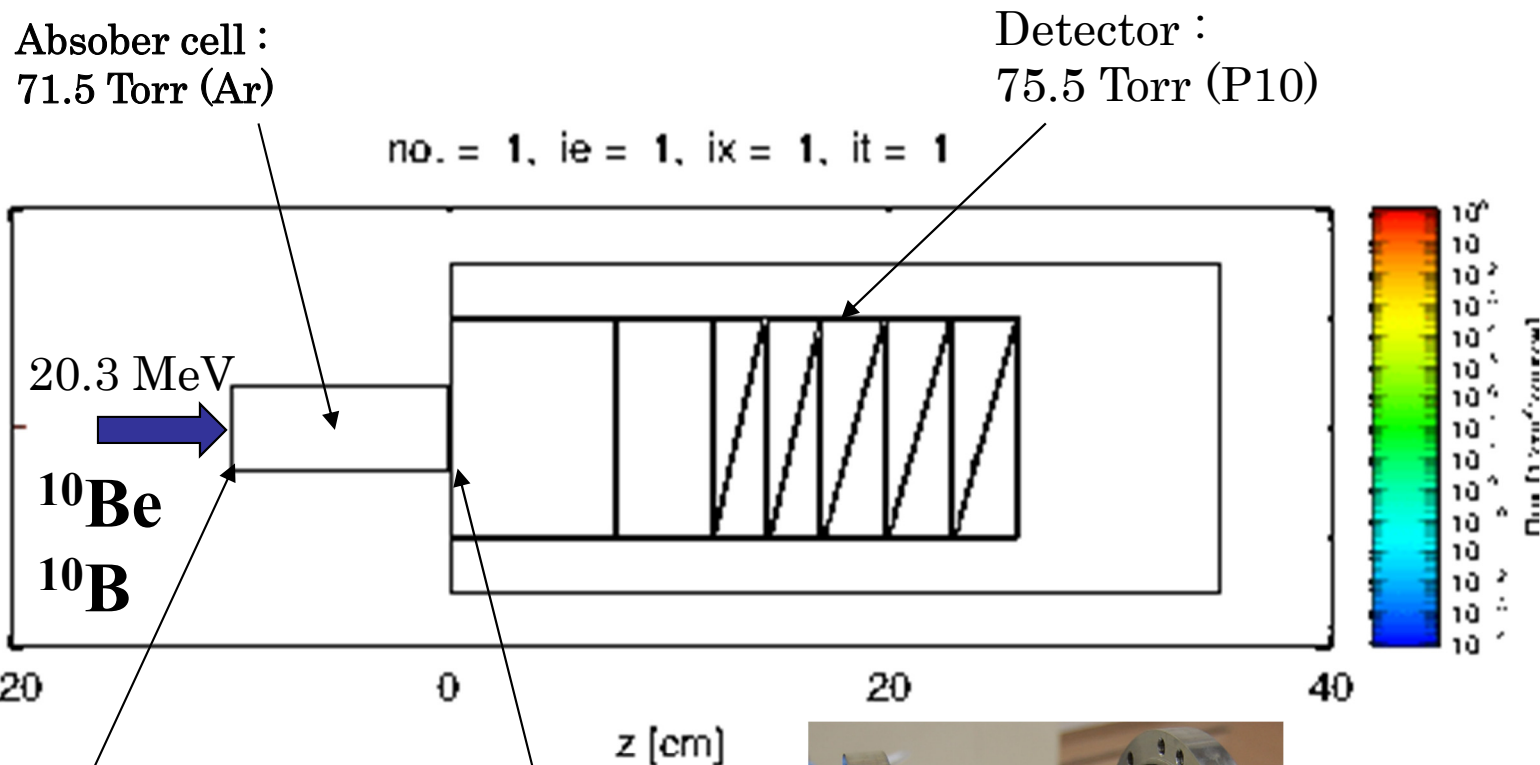


Be-10 AMS PHITSシミュレーション

加速イオン： $^{10}\text{BeO}^- \rightarrow \text{Be}^{3+}$

加速電圧：6 MV

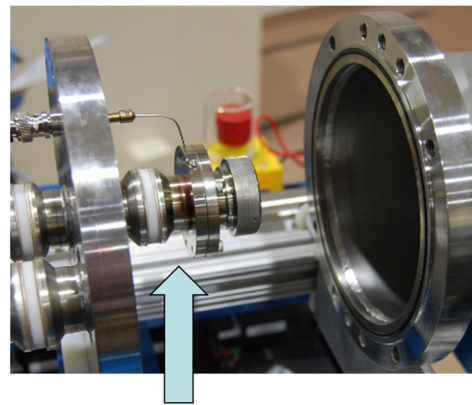
加速エネルギー：20.3 MeV



Harvar foil (5ミクロン)

Mylar foil (6ミクロン)

妨害元素 ^{10}B の除去



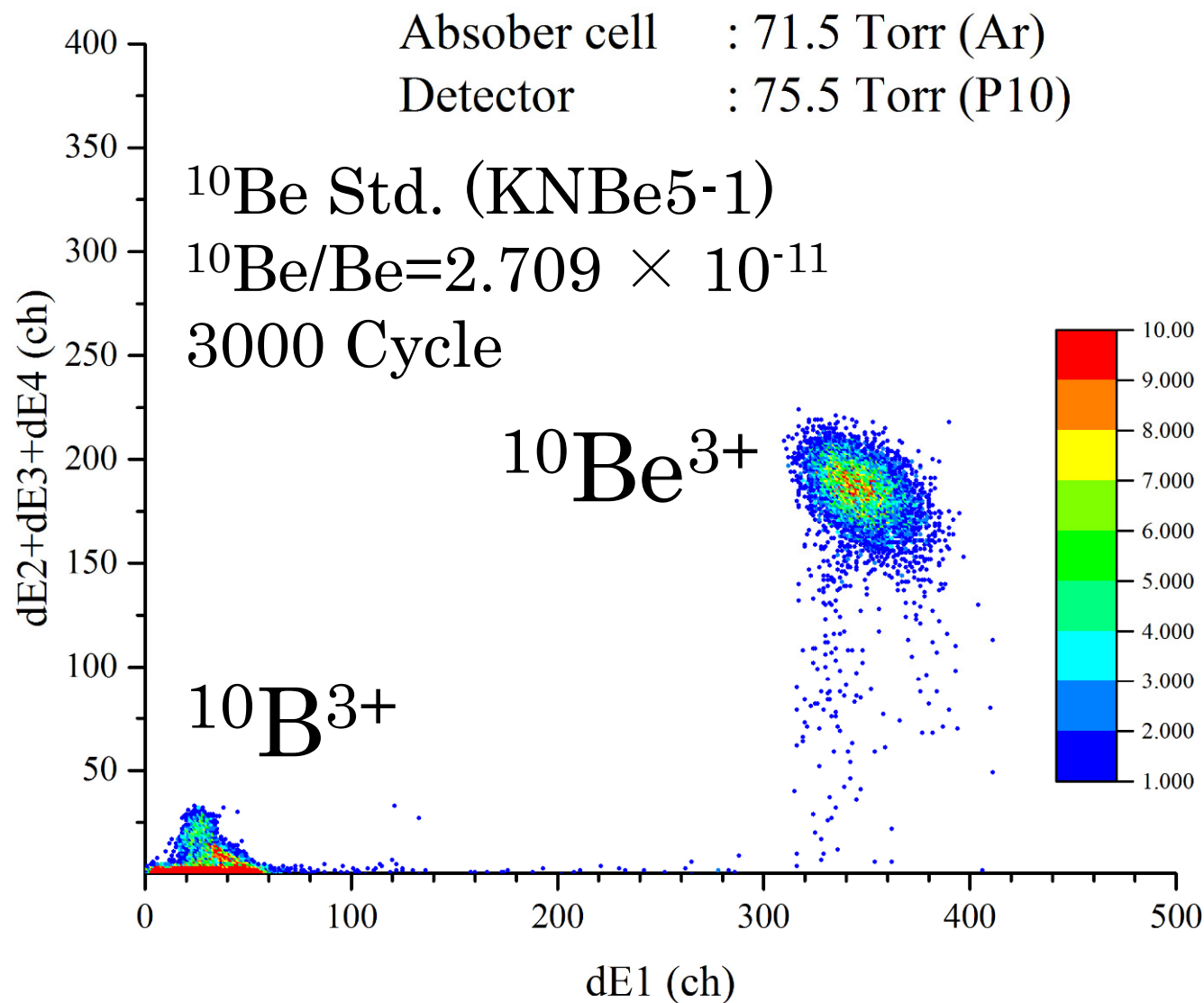
Absorber cell

Be-10 AMS試験測定結果

加速イオン： $^{10}\text{BeO}^- \rightarrow \text{Be}^{3+}$

加速電圧：6 MV

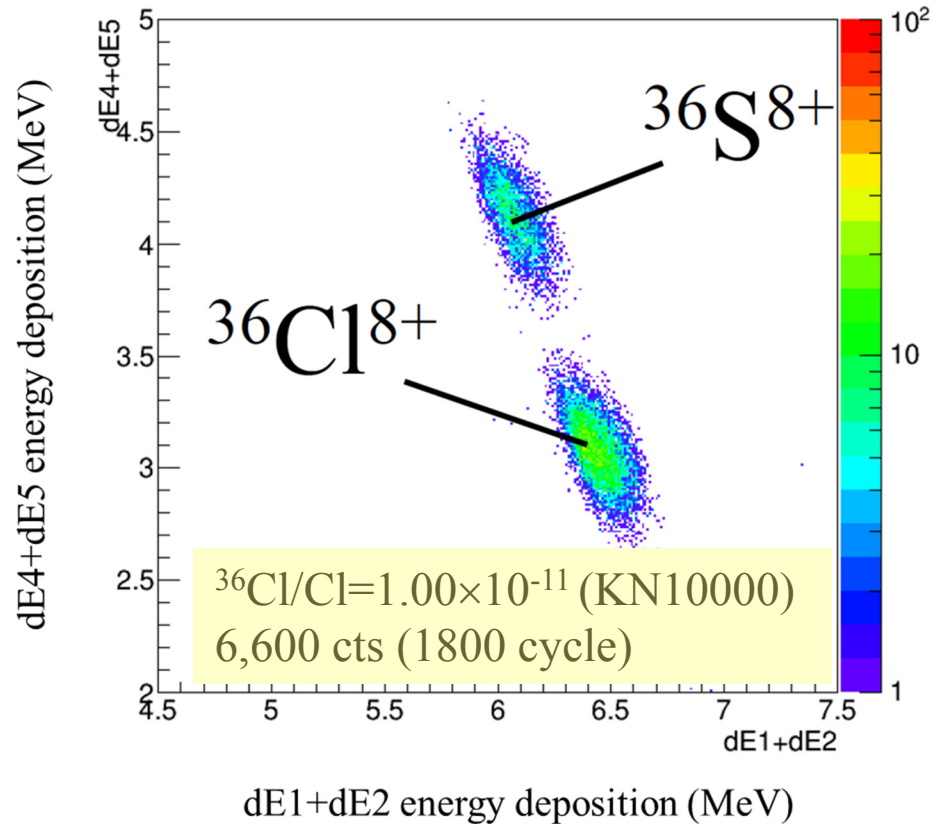
加速エネルギー：20.3 MeV



多核種AMS測定の実現

Cl-36 AMS

$V = 6.0 \text{ MV}$, $q = 8+$, $E = 54 \text{ MeV}$



LE $^{35}\text{Cl}^-$: 10–15 μA

Transmission : 10%

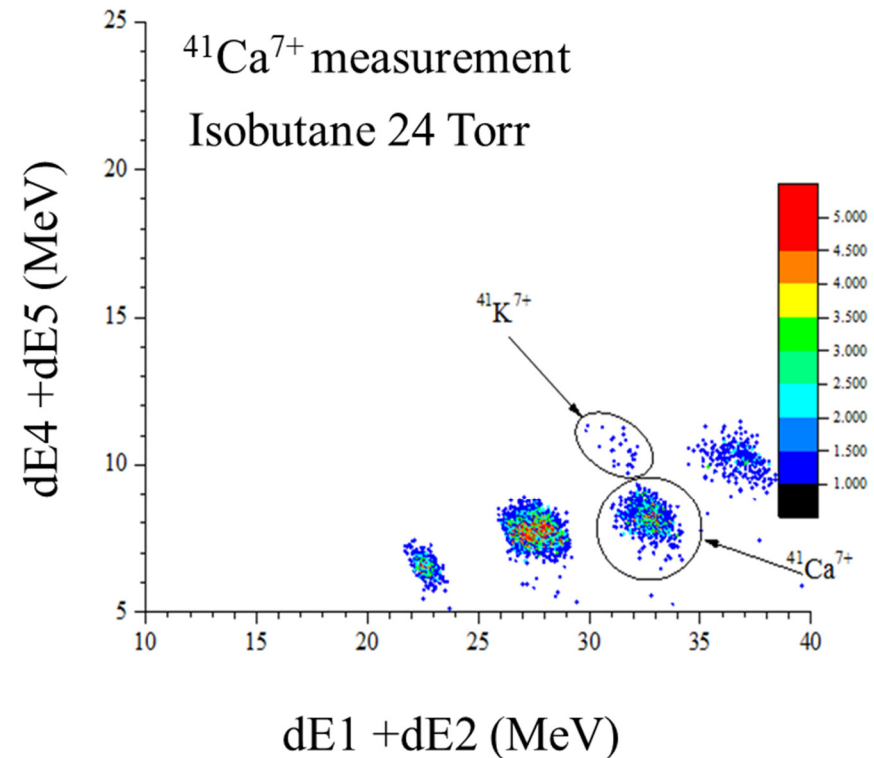
Measurement error: 2%

Background: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \sim 3 \times 10^{-15}$

Ca-41 AMS

$^{41}\text{CaF}_3^- \rightarrow \text{Ca}^{7+}$

$V = 6.0 \text{ MV}$, $q = 7+$, $E = 32.5 \text{ MeV}$



LE $^{40}\text{CaF}_3^-$: 500 nA

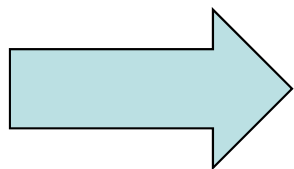
Transmission : 5 %

Measurement error: 2%

Background: $^{41}\text{Ca}/\text{Ca} \sim 3 \times 10^{-15}$

筑波大学6 MV AMS 設定条件

Isotopes	¹⁰ Be	¹⁴ C	²⁶ Al	³⁶ Cl	⁴¹ Ca	¹²⁹ I
Half-life (yr)	1.36×10 ⁶	5,730	7.17×10 ⁵	3.01×10 ⁵	1.03×10 ⁵	1.57×10 ⁷
Stable isotopes	⁹ Be	¹² C, ¹³ C	²⁷ Al	³⁵ Cl, ³⁷ Cl	⁴⁰ Ca, ⁴² Ca, ⁴³ Ca, ⁴⁴ Ca	¹²⁷ I
Isobars	¹⁰ B	⁷ Li, ¹² CH ₂ , ¹³ CH, ¹⁴ N	²⁶ Mg	³⁶ Ar, ³⁶ S	⁴¹ K	¹²⁹ Xe
Chemical form	BeO	Graphite, CO ₂	Al ₂ O ₃	AgCl	CaF ₂	AgI
Sample size (mg)	0.5	0.1 - 1	2	1	10	2
Injected ion	BeO ⁻	C ⁻	Al ⁻	Cl ⁻	CaF ₃ ⁻	I ⁻
Typical ion current (μA)	5 (⁹ BeO ⁻)	10 - 50 (¹² C ⁻)	0.2 (²⁷ Al ⁻)	10 (³⁵ Cl ⁻)	0.5 (⁴⁰ CaF ₃ ⁻)	5 (¹²⁷ I ⁻)
Terminal Voltage (MV)	6.0	5.0	6.0	6.0	6.0	5.0
Detected ion (Stripper)	¹⁰ Be ³⁺ (gas)	¹⁴ C ⁴⁺ (gas)	²⁶ Al ⁵⁺ (gas)	³⁶ Cl ⁸⁺ (foil)	⁴¹ Ca ⁵⁺ (foil)	¹²⁹ I ⁵⁺ (gas)
Beam Energy (MeV)	20.3	25.0	36.0	54.0	32.5	30.0
Transmission (%)	15	40	25	10	8	10
Measure/Known (%)	80	-	75	70	50	90
Precision (%)	2	0.2 (Graphite) 0.4 (CO ₂)	2	2	3	1
Background (atom ratio)	< 2 × 10 ⁻¹⁵	< 2 × 10 ⁻¹⁶ (Graphite) < 5 × 10 ⁻¹⁵ (CO ₂)	< 1 × 10 ⁻¹⁶	< 3 × 10 ⁻¹⁵	< 3 × 10 ⁻¹⁵	< 2 × 10 ⁻¹⁴



全核種対応型AMS装置の完成



Summary

1. C-14以外にも多くの宇宙線生成核種について、筑波大学6MV加速器質量分析装置の高エネルギーAMSにより測定が実施可能となった。
2. 筑波大学6MV加速器質量分析装置では、 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I について、同位体比 $10^{-14} \sim 10^{-16}$ レベルのバックグラウンドを有するAMSが実施できる。多核種AMSによる高精度年代測定研究への新たな展開が期待できる。
3. 筑波大学6 MV加速器質量分析装置での ^{14}C -AMSバックグラウンドは、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 2.4 \times 10^{-16}$ (0.04 ± 0.01 pMC)であり、測定精度0.2%を達成した。
4. CO_2 ガスからの ^{14}C 直接試験測定に成功した、年輪試料への迅速AMS測定に適用可能である。

