

平成 21 年 5 月 21 日現在

研究種目：基盤研究 (B)
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18360043
 研究課題名 (和文) 極微量放射性核種シリコン 32 の加速器質量分析による超高感度検出法の開発
 研究課題名 (英文) Development of a high-sensitivity detection method for trace radionuclide silicon 32 by an accelerator mass spectrometry
 研究代表者
 笹 公和 (SASA KIMIKAZU)
 筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師
 研究者番号：20312796

研究成果の概要： 極微量放射性核種シリコン 32 を高感度で検出できる、大型タンデム加速器を用いた加速器質量分析法 (AMS) を開発した。シリコン 32 の同重体である $^{16}\text{O}_2$ 分子を用いたパイロット分子ビーム法により、大型タンデム加速器の電圧安定制御を実施した。測定試料は SiO_2 として、 ^{28}Si では 430 nA のビーム電流値を得た。測定対象核種の $^{32}\text{Si}^{8+}$ について加速電圧 9 MV で、加速エネルギー 81 MeV により AMS 測定を実施した。新たに開発したガス ΔE -半導体検出器を用いて、シリコン 32 と妨害となる硫黄 32 の分離識別を実施し、シリコン 32 の AMS を用いた高感度検出に成功した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	6,900,000	2,070,000	8,970,000
2007年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
2008年度	2,100,000	630,000	2,730,000
総計	12,800,000	3,840,000	16,640,000

研究分野：加速器科学、加速器質量分析法

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：加速器質量分析法、年代測定、放射性核種、シリコン 32、タンデム加速器

1. 研究開始当初の背景

(1) 加速器質量分析法 (AMS) を用いた計測は、炭素 14 [^{14}C (半減期 5730 年)] を中心にベリリウム 10 [^{10}Be (半減期 151 万年)]、アルミニウム 26 [^{26}Al (半減期 71.6 万年)]、塩素 36 [^{36}Cl (半減期 30.1 万年)]、ヨウ素 129 [^{129}I (半減期 1570 万年)] などの開発が進み、既に実用段階に入っている。加速器質量分析法に用いられる加速器はタンデム静電加速器であり、負イオンを生成して加速する。タンデム静電加速器では、荷電変換材を通過させて負イオンを正イオンに変換し、2 段加速

をおこなう。通常の質量分析法で問題となる測定対象核種の妨害同重体分子等は、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分離識別され、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。つまり重い放射性核種

の識別には、高い加速エネルギーが必要である。また、加速エネルギーが高ければ、エネルギー損失差が大きくなり、それだけ妨害イオンとの識別も容易となる。

(2) シリコン ^{32}Si は、主に 2 次宇宙線と大気中の Ar の核破碎反応により生成される誘導放射性核種である。しかしながら、天然に存在する ^{32}Si は 0.1ppt 以下と極微量であるため、放射能測定等の通常の検出器による方法では、その検出は不可能である。また、加速器質量分析法でも、 ^{32}Si の場合は ^{32}S が同重体の妨害核種となる。 ^{32}S は硫黄の安定同位体中で、最も多い核種(存在度 95.02%)である。硫黄はあらゆる環境中に入り込む性質があり、加速器質量分析法による超高感度分析では容易に測定結果に紛れ込み影響を与える。そのため、 ^{32}S の影響を試料調整及び質量分析系でいかに排除するかが、本研究での重要な課題となる。 ^{32}Si の加速器質量分析は、以上の理由から最も難しい測定対象核種となっている

2. 研究の目的

加速器質量分析法は長寿命放射性核種を超高感度に検出できる手法であり、より重い放射性核種の検出には、より高い加速エネルギーが必要となる。特に ^{32}Si の検出は、妨害核種 ^{32}S の影響が大きい為、その測定は難しい。しかしながら、研究代表者等が開発した国内最大の加速器質量分析装置により、80 MeV 程度まで ^{32}Si を加速すれば、試料調整による硫黄除去と新粒子識別装置の開発及びガス充填型粒子検出器の開発に拠って、 ^{32}Si の加速器質量分析による超高感度測定が可能となる。また大型タンデム加速器の加速電圧を安定に制御する為、 ^{32}Si の同重分子となる $^{16}\text{O}_2$ を利用する独自のパイロット分子ビーム法を提案する。このパイロット分子ビーム法による大型タンデム加速器を用いた加速器質量分析を開発することが、本研究の目的である。

加速器質量分析法では、数十年から数百年範囲の年代を測定できる対象核種が無く、 ^{32}Si の加速器質量分析法の開発に成功すれば、比較的近年の年代測定における新たな測定手段となり、その効果は大きい。Si が含まれる試料の環境動態調査、年代測定が可能となり、加速器質量分析法の応用研究のさらなる進展が期待できる。

3. 研究の方法

(1) 加速器質量分析法の開発

本研究では、筑波大学の 12UD ペレトロンタンデム静電加速器を利用した。加速電圧制御とその光学要素設定に ^{32}Si の同重体 $^{16}\text{O}_2$ を

パイロット分子ビームとして利用する手法を開発した。AMS 測定では、 SiO_2 試料から $^{16}\text{O}_2^-$ 分子を引き出し、加速電圧の安定制御を試みた。粒子識別系として、第 2 荷電変換膜(炭素薄膜 $11 \mu\text{g}/\text{cm}^2$)、 8° 静電偏向器(曲率半径 1000 mm, $E/q = 10 \text{ MeV}$)、 45° 分析電磁石を開発した。また、加速器パラメータは、 $^{28}\text{Si}^{8+}$ に対して加速電圧 10.29 MV として、加速エネルギー 92.6 MeV で光学要素パラメータを決定した。 $^{28}\text{Si}^-$ の低エネルギー側でのビーム電流値は、最大で 430 nA であった。また、AMS システム全体の Si ビームの透過率は、約 5% であった。図 1 に ^{32}Si の AMS 測定の加速器設定の概略図を示す。

$^{32}\text{Si}^{8+}$ については加速電圧 9 MV として、加速器パラメータ設定に利用した $^{28}\text{Si}^{8+}$ に対して Me/q^2 を揃えて加速エネルギーを 81.0 MeV とした。なおパイロットに利用した $^{16}\text{O}^{4+}$ は 40.5 MeV となる。 $^{32}\text{Si}^{8+}$ は、第 2 荷電変換膜により $^{32}\text{Si}^{11+}$ に荷電変換される。粒子識別系の静電、磁場分析器等の最適値を設定し、ガス ΔE -半導体検出器により ^{32}Si と ^{32}S の粒子識別を試み、AMS 測定性能を確認した。

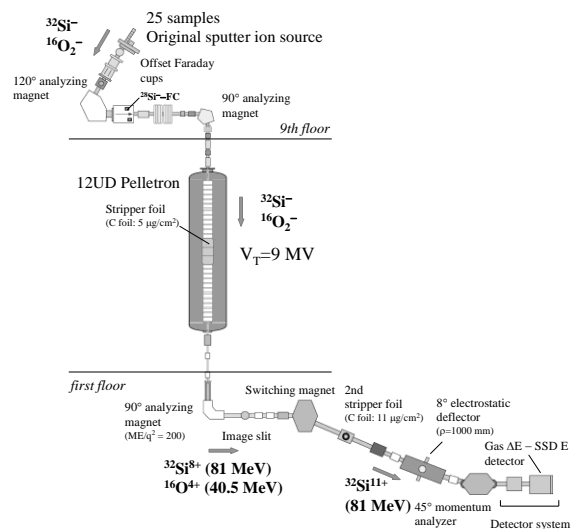


図 1 12UD ペレトロンタンデム加速器を用いた ^{32}Si の AMS 測定設定

(2) Si 試料調整法の検討

妨害となる硫黄 ^{32}S の除去を目的として、 BaSO_4 沈殿による硫黄除去方法の検討をおこなった。帯電防止用添加物として SiO_2 試料に Nb を添加する手法を考案し、硫黄除去効果を検討した。また ^{36}Cl の AMS 測定でも、同様に硫黄 36 が妨害となる為、 ^{32}Si と ^{36}Cl の双方について、硫黄除去方法の検討を進めた。

^{32}Si 検定試料については、 NH_4Cl に中性子を照射して作成し、試料処理により SiO_2 の化学形とした。検定試料の同位体比は、放射能測

定により、 $^{32}\text{Si}/^{\text{nat}}\text{Si}$ で 2.3×10^{-11} と見積もられた。 SiO_2 のバックグラウンド測定用試料としては、 SiO_2 試薬 (99.999%, 株式会社ニラコ) の粉末を使用した。

(3) ガス ΔE -半導体 E 検出器の開発

^{32}Si の AMS 測定用に 2 連電極型のガス ΔE -半導体 E 検出器を開発した。ビーム入射窓にアラミド膜 (4 μm) を使用している。粒子検出用電離ガスは、高純度イソブタンガス (使用標準ガス圧力 670 Pa) を使用する。半導体検出器は、45 mm \times 45 mm の大面積 PIN シリコンフォトダイオード (S4276-02 浜松ホトニクス株式会社製) を使用した。イソブタンガス中での粒子の損失エネルギーと半導体検出器へ到達した全粒子エネルギーに関して同時計数法を用いて検出する。図 2 に本研究課題で開発を行ったガス ΔE -半導体 E 検出器の概略図を示す。

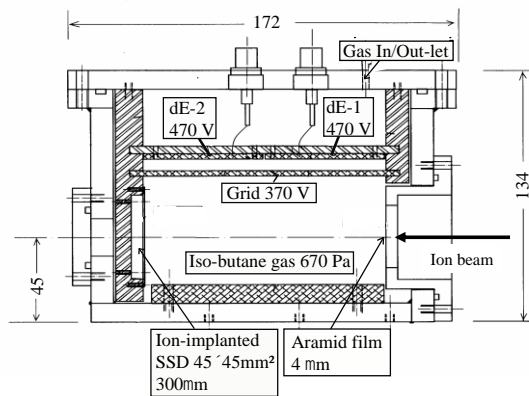


図 2 ガス ΔE -半導体 E 検出器の概略図

4. 研究成果

(1) SiO_2 試料からの負イオンビーム

加速器質量分析用の負イオン源に SiO_2 試料を装填し、引き出された負イオンの質量分析をおこなった。試料は SiO_2 試薬に Ag と Nb を添加した試料を用いた。図 3 にイオン源からの負イオンビームの質量分析結果を示す。安定同位体イオンの $^{28}\text{Si}^-$ と加速器制御に必要な $^{16}\text{O}_2^-$ を引き出すことが重要となる。帯電防止用添加物としては、試験測定の結果、Ag よりも Nb の方が硫黄の影響が少ないことが判明した。最終的に $\text{SiO}_2 : \text{Nb} = 1:1$ の割合で混入させた試料を AMS 測定に利用した。 $^{28}\text{Si}^-$ ビームは 250~430 nA 程度となった。また ^{32}Si と同体重体の $^{16}\text{O}_2^-$ は、加速器電圧の安定制御に必要な nA 以上の出力を得られた。表 1 に標準的な SiO_2 試料からの負イオン引き出し結果を示す。また図 3 に SiO_2 試料からの負イオン質量分析スペクトルを示す。

表 1 SiO_2 試料からの負イオンビームの引き出し結果

Ion	B [mT]	Current [nA]
$^{16}\text{O}^-$	420.01	4400
$^{28}\text{Si}^-$	555.84	277
$^{29}\text{Si}^-$	565.68	14.4
$^{30}\text{Si}^-$	575.44	8.2
$^{16}\text{O}_2^-$	594.4	27
$^{35}\text{Cl}^-$	621.49	75
$^{37}\text{Cl}^-$	638.83	21
$^{28}\text{SiO}^-$	696.95	2.1
$^{29}\text{SiO}^-$	704.95	0.8
$^{30}\text{SiO}^-$	712.59	0.12
$^{28}\text{Si}_2^-$	786.23	5.8
$^{28}\text{SiO}_2^-$	813.89	122
$^{29}\text{SiO}_2^-$	820.71	8
$^{30}\text{SiO}_2^-$	827.54	4.5

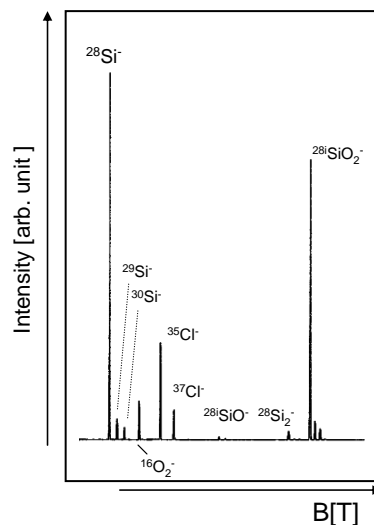


図 3 SiO_2 試料からの負イオン質量分析スペクトル

(2) AMS による ^{32}Si の測定結果

加速電圧 9 MV として、 $^{32}\text{Si}^{8+}$ を 81.0 MeV で加速して、加速器質量分析測定をおこなった。第 2 荷電変換膜によって、 $^{32}\text{Si}^{8+}$ は $^{32}\text{Si}^{11+}$ に変換される。この時の $^{28}\text{Si}^-$ のビーム電流値は 430 nA であった。 $^{28}\text{Si}^-$ のビーム透過率は、加速器に対して 19.5%、質量分析ビームラインに対して 24.6% であった。AMS システム全体

のビーム透過率は4.8%となった。

^{32}Si 検定試料 ($^{32}\text{Si}/^{\text{nat}}\text{Si} = 2.3 \times 10^{-11}$) の加速器質量分析法による粒子識別2次元スペクトルを図4に示す。 $^{32}\text{Si}^{11+}$ (81.0 MeV) に関して、妨害となる $^{32}\text{Si}^{11+}$ の散乱粒子との分離識別に成功した。5分間測定で、 $^{32}\text{Si}^{11+}$ の粒子検出数は356 countsであった。

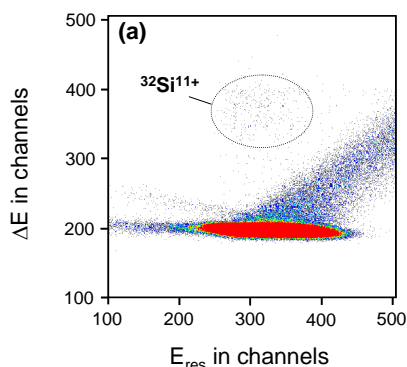


図4 ^{32}Si 検定試料の粒子識別2次元スペクトル

また検出限界測定のための SiO_2 試薬を用いた空白試料の測定結果を図5に示す。5分間測定で、検出粒子数は3 countsであった。

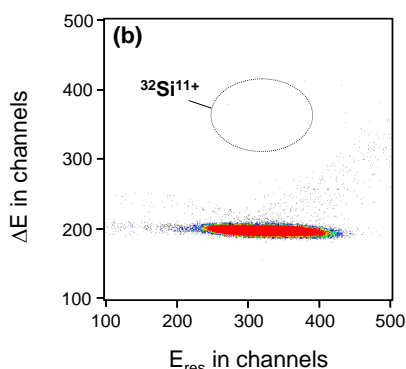


図5 SiO_2 空白試料の粒子識別2次元スペクトル

^{32}Si の高感度検出のための加速器質量分析装置の開発を行った。特に本研究課題において、加速器質量分析のための粒子識別系とガス ΔE -半導体 E 検出器を新たに開発した。 ^{32}Si 検定試料を用いて、 ^{32}Si の粒子識別測定に成功した。妨害となる ^{32}Si の散乱粒子スペクトルが未だ強く残留しているが、 ^{32}Si の明確な分離識別が可能となった。本研究課題での加速器質量分析装置の検出限界としては、空白試料の測定結果から $^{32}\text{Si}/^{\text{nat}}\text{Si} \sim 5 \times 10^{-13}$ となった。

(3) 今後の展開について

^{32}Si の加速器質量分析法による高感度検出に成功した。今後は、加速器質量分析法による ^{32}Si の測定精度向上を図り、繰り返し測定精度として $\pm 10\%$ 以内を目標とする。また、妨害となる硫黄の影響がまだ強く残っており、試料処理方法の開発も今後の継続検討課題である。本研究課題での加速器質量分析装置を用いて、 $^{32}\text{Si}/^{\text{nat}}\text{Si}$ 同位体比で 10^{-12} レベルの測定が可能となった。今後は、自然環境レベルの 10^{-13} レベルの同位体比測定を目指す。現在、環境試料からの SiO_2 試料の作成方法を開発中である。半減期140年程度の ^{32}Si の利用は、比較的近年の年代測定にその応用が期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7件)

- ① Kimikazu Sasa, Tsutomu Takahashi, Yuki Tosaki, Yuki Matsushi, Keisuke Sueki, Michiko Tamari, Takahiro Amano, Toshiyuki Oki, Shozo Mihara, Yoshihiro Yamato, Yasuo Nagashima, 他3名, Status and research programs of the multinuclide accelerator mass spectrometry system at the University of Tsukuba, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B, 2009, in press. 査読有
- ② Yuki Tosaki, Norio Tase, Masaya Yasuhara, Yasuo Nagashima, Kimikazu Sasa and Tsutomu Takahashi, An Estimate of Local Bomb-produced ^{36}Cl Fallout Using the Depth Profile of Groundwater in the Tsukuba Upland, Central Japan. Hydrological Research Letters, Vol. 2, 9-13, 2008. 査読有
- ③ K. Sasa, Y. Nagashima, T. Takahashi, K. Sueki, Y. Tosaki, M. Tamari, 他10名, Status of the Tsukuba AMS system, UTTAC ANNUAL REPORT 2007, 4-5, 2008. 査読無
- ④ 長島 泰夫, 関 李紀, 笹 公和, 高橋 努, 大型タンデム静電加速器による加速器質量分析, 真空, 50, 475-479, 2007. 査読有
- ⑤ Yuki Tosaki, Norio Tase, Gudrun Massmann, Yasuo Nagashima, Riki Seki, Tsutomu Takahashi, Kimikazu Sasa, Keisuke Sueki, 他5名, Application of ^{36}Cl as a dating tool for modern groundwater, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B, 259, 479-485,

2007. 査読有

- ⑥ Kimikazu Sasa, Yasuo Nagashima, Tsutomu Takahashi, Riki Seki, Yuki Tosaki, Keisuke Sueki, 他 4 名, ^{26}Al and ^{36}Cl AMS system at the University of Tsukuba: A progress report, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B, 259 41-46, 2007. 査読有
- ⑦ Kimikazu Sasa, Yasuo Nagashima, Tsutomu Takahashi, Riki Seki, Yuki Tosaki, Keisuke Sueki, 他 5 名, Status and future plans of the Tsukuba AMS system, Proceedings of the First East Asian Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, UTTAC-74, 63-71, 2006. 査読無

[学会発表] (計 12 件)

- ① 笹 公和, AMS の南極氷床コア研究及び地球環境科学分野への応用, UTTAC 研究発表会「イオンビーム科学が拓く学際研究」, 2009 年 3 月 16 日, 筑波大学総合研究 B 棟講義室 0110.
- ② 長島泰夫, 筑波大学における AMS 研究の歴史, 第 11 回 AMS シンポジウム, 2009 年 1 月 14 日-15 日, 名古屋大学野依記念学術交流館.
- ③ 笹 公和、高橋 努、戸崎裕貴、末木啓介、玉理美智子、天野孝洋、大木俊征、大和良広、長島泰夫、他 4 名. 筑波大学 AMS システムの現状 (2008 年度), 第 11 回 AMS シンポジウム, 2009 年 1 月 14 日-15 日, 名古屋大学野依記念学術交流館.
- ④ Tosaki, Y., Tase, N., Sasa, K., Takahashi, T., Nagashima, Y., Estimation of groundwater residence time using bomb-produced ^{36}Cl : a case study on spring waters from Mt. Fuji, Japan. The XXXVI IAH Congress, Toyama International Conference Center, Japan, 26 October - 1 November, 2008.
- ⑤ Michiko Tamari, Keisuke Sueki, Yuki Tosaki, Yuki Matsushi, Toshiyuki Oki, Shozo Mihara, Norikazu Kinoshita, Hiroshi Matsumura, Kotaro Bessho, Tsutomu Takahashi, Kimikazu Sasa, Yasuo Nagashima, Chemical procedure of sulfur reduction for ^{36}Cl -AMS: A case of soil samples, The 11th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry (AMS11), Rome, Italy, 14th to 19th September, 2008.
- ⑥ Kimikazu Sasa, Tsutomu Takahashi, Yuki Tosaki, Michiko Tamari, Keisuke Sueki, Toshiyuki Oki, Shozo Mihara, Yoshihiro Yamato, Yasuo Nagashima, 他 4 名, Status and research programs of the

multi-nuclide AMS system at the University of Tsukuba, The 11th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry (AMS11), Rome, Italy, 14th to 19th September, 2008.

- ⑦ 笹 公和、長島泰夫、高橋 努、末木啓介、戸崎裕貴、玉理美智子、他 8 名, 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, 第 5 回日本加速器学会年会・第 33 回リニアック技術研究会, 2008 年 8 月 6-8 日, 広島大学 (東広島市中央公民館).
- ⑧ 笹 公和、高橋 努、戸崎裕貴、玉理美智子、末木啓介、大木俊征、三原正三、長島泰夫、他 4 名, 大型タンデム加速器を用いた加速器質量分析法 (AMS) による地球環境科学研究, 第 10 回応用加速器・関連技術研究シンポジウム (ARTA2008), 東京工業大学百年記念館 フェライト会議室, 2008 年 6 月 12-13 日.
- ⑨ 笹 公和、高橋 努、戸崎裕貴、玉理美智子、末木啓介、大木俊征、三原正三、Y. Guan、松村万寿美、長島泰夫、他 3 名, 筑波大学 AMS システムの現状と利用研究 (2007 年度), 第 10 回 AMS シンポジウム—AMS 次の 10 年—, 2008 年 3 月 7 日-3 月 8 日, 東京大学.
- ⑩ 笹 公和、石井 聡、大島 弘行、木村 博美、高橋 努、田島 義一、大和 良広、小松原 哲郎、工藤 博、長島 泰夫、筑波大学タンデム加速器の現状, 第 20 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会, 日本原子力研究開発機構 東海研究所, 2007 年 7 月 12 日-13 日.
- ⑪ 笹 公和、石井 聡、大島 弘行、木村 博美、高橋 努、田島 義一、大和 良広、小松原 哲郎、長島 泰夫. 筑波大学タンデム加速器の現状, 第 19 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会. 2006. 7. 1-2, パレオラボ.
- ⑫ 笹 公和、長島泰夫、関 李紀、高橋 努、戸崎裕貴、末木啓介、他 3 名, 加速器質量分析法 (AMS) による近年から過去数十万年オーダーの年代測定, 第 8 回応用加速器・関連技術研究シンポジウム (ARTA2006), 2006. 6. 8-9, 東京工業大学.

[その他]

ホームページ

<http://www.tac.tsukuba.ac.jp/~ams/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

笹 公和 (SASA KIMIKAZU)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師
研究者番号：20312796

(2)研究分担者

長島 泰夫 (NAGASHIMA YASUO)
筑波大学・名誉教授
研究者番号：60091914
末木 啓介 (SUEKI KEISUKE)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・准教授
研究者番号：90187609
田瀬 則雄 (TASE NORIO)
筑波大学・大学院生命環境科学研究科・教授
研究者番号：40133011

(3)研究協力者

高橋 努 (TAKAHASHI TSUTOMU)
筑波大学・研究基盤総合センター・技術専門職員
何 民 (HE MING)
中国原子能科学研究院核物理研究所・教授