

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K18622

研究課題名(和文)長半減期放射性セシウム135を加速器質量分析法により超高感度で検出する試み

研究課題名(英文)Attempt of ultra-high sensitivity detection for long half-life radioactive cesium-135 by accelerator mass spectrometry

研究代表者

笹 公和(Sasa, Kimikazu)

筑波大学・数理解析系・准教授

研究者番号：20312796

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：近年、核時代の人為起源核種の一つであるセシウム135 (Cs-135:半減期230万年)の高感度検出法の開発が求められている。本研究では、Cs-135同位体比として $10E-10$ 以下の検出を目標として、加速器質量分析を用いたCs-135検出法の開発を進めた。筑波大学6 MVタンデム加速器において、Rbスパッタリングを用いて固体試料Cs₂SO₄ (PbF₂混合)から、¹³³Cs¹⁹F²⁻を最大で0.2 μ A引き出すことに成功した。加速電圧6 MVにより、Cs⁹⁺を58.7 MeVまで加速して、極微量核種検出ラインの5枚電極ガス電離箱において、質量数135の核種由来の粒子スペクトルを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、核時代の人為起源核種の一つとしてセシウム135 (Cs-135:半減期230万年)の高感度測定法の開発が求められている。環境中に拡散された人工放射性核種は、生物・環境影響の観点からそのモニタリングは必須である。セシウム137 (Cs-137:半減期約30年)は核分裂収率も大きく、これまでに多くの研究がおこなわれてきた。しかし、核実験起源のCs-137は、自然環境中では極微量となりつつある。Cs-135は、この代替トレーサーとして機能すると考えられている。本研究でのCs-135の高感度測定法の開発結果は、環境影響評価だけではなく、地球環境問題を扱う上で非常に重要な研究成果になると期待される。

研究成果の概要(英文)：In recent years, development of an ultrasensitive detection method for a long half-life radioactive cesium-135 (Cs-135: half-life: 2.3 million years) is required as one of the anthropogenic nuclides in the nuclear age. However, the Cs sputtering negative ion source limits the analysis of cesium isotopes in AMS techniques with a tandem accelerator. In this study, we have developed the modified sputtering negative ion source using rubidium (Rb), which is the same alkali metal element, instead of Cs for the 6 MV tandem accelerator at the University of Tsukuba. ¹³³Cs¹⁹F²⁻ beam of 0.2 μ A was obtained from the cathode sample of Cs₂SO₄ mixed with PbF₂ sputtered with Rb. CsF²⁻ was accelerated at the terminal voltage of 6 MV, and passed through an Ar gas stripper. Cs⁹⁺ (58.7 MeV) and isobars were analyzed by the rare particle detection line to detect particles with a mass number of 135 in a gas ionization chamber.

研究分野：加速器質量分析

キーワード：セシウム135 加速器質量分析 スパッタ負イオン源 ルビジウム タンデム加速器 微量分析 長半減期放射性核種

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、核時代の人為起源核種の一つとして、長半減期放射性核種であるセシウム 135 (^{135}Cs : 半減期 230 万年)の高感度検出法の開発が求められている。1950-60 年代の核実験、チェルノブイリや福島第一原子力発電所などの事故や、核関連施設の稼働に伴う漏洩の結果として、人工放射性核種が環境中に放出されている。環境中に拡散された人工放射性核種は、生物・環境影響評価の観点からそのモニタリングは必須である。特に、セシウム 137 (^{137}Cs : 半減期 約 30 年)は核分裂収率も大きく、これまでに多くの研究がおこなわれてきた。しかし、核実験起源の ^{137}Cs は、環境に放出されてから既に数半減期が経過しており、自然環境中では極微量となりつつある。 ^{135}Cs は、 ^{137}Cs の代替トレーサーとして機能すると考えられており、核鑑識トレーサーとしても優れている。 ^{135}Cs の高感度かつ高精度の測定は、環境影響評価だけではなく、地球環境問題を扱う上で非常に重要な手掛かりとなる。しかし、 ^{135}Cs は β 線放出の長半減期放射性核種であり、通常の放射線計測による定量と迅速な高感度検出の実施が困難となっている。また、通常の質量分析法では、同重体の ^{135}Ba などが妨害核種となり、検出が難しくなっている。最新の ICP-MS などでは、検出感度として ^{135}Cs 同位体比 ($^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$) で 10^{-9} という報告があり、福島第一原発事故後の土壌や植物の ^{135}Cs 同位体比が測定されている^[1]。

2. 研究の目的

本研究では、 ^{135}Cs 同位体比として 10^{-10} 以下の検出を目標として、加速器質量分析 (AMS: Accelerator Mass Spectrometry)を用いた ^{135}Cs 検出法の開発を進める。タンデム加速器を用いた AMS では、Cs スパッタ負イオン源の使用から、セシウム同位体の分析が制限されることになる。本研究では、筑波大学 6 MV タンデム加速器において、Cs の代わりに同じアルカリ金属元素であるルビジウム (Rb)を使用した Rb スパッタ負イオン源の開発をおこなう。 ^{135}Cs の AMS による高感度検出法を開発して、環境試料中の ^{135}Cs 定量分析の実現を目指す。

3. 研究の方法

(1) 加速器質量分析装置

本研究では、図 1 に示す筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置を用いる^[2]。6 MV タンデム加速器質量分析装置には、2 台の Cs スパッタ負イオン源が備わっており、1 台のイオン源には最大で 40 試料が装填可能となっている。逐次入射法により、加速器へは測定対象核種とその安定同位体の負イオンを交互に入射可能である。加速器に入射した負イオンは、加速器ターミナルに設置された荷電変換機構 (炭素フォイルか Ar ガス) により、正イオンに変換されて 2 段加速がおこなわれる。同重体となる負分子イオンなどは、荷電変換の過程で除去される。高エネルギー輸送側の 105°分析電磁石の下流に 3 台のオフセット・ファラディカップ (FC) が設置されており、安定同位体のイオン電流値を測定する。測定対象核種は、90°分析電磁石の下流の極微量核種検出ラインに導入されて、22.5°球面型静電エネルギー分析器 (ESA) で分析後に 5 枚電極ガス電離箱で検出される。

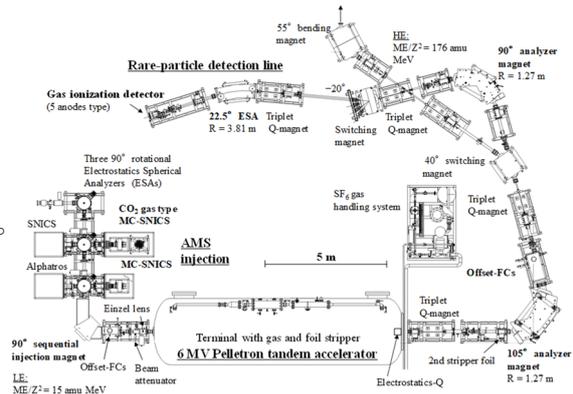


図 1 筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置の概略図

(2) Rb スパッタ負イオン源での負イオン生成

本研究では、 ^{135}Cs の AMS による高感度検出法の開発を進めるために、6 MV タンデム加速器質量分析装置に設置されている米国 National Electrostatics Corp.製の Multi-Cathode Source of Negative Ions by Cesium Sputtering (MC-SNICS)について改良を実施した。固体試料を Cs でスパッタリングする形式の負イオン源であるため、 ^{135}Cs の同位体分析において Cs の混入 (コンタミネーション) が発生する。そのため、MC-SNICS の内部クリーニングを実施した後で、Cs の代わりに同じアルカリ金属元素であるルビジウム (Rb) を新規のオープンに封入して、負イオンビームの生成試験を実施した。Rb スパッタ負イオン源からの負イオン生成試験の結果を表 1 に示す。TiH₂ 試料を用いた負水素イオンの生成では、10 μA 以上の引き出しに成功した。また、一般的な

表 1 Rb スパッタ負イオン源からの負イオンビーム

Negative Ion	Material	Maximum Beam Current (μA)
H ⁻	TiH ₂	~ 10
¹⁸ O ⁻	Al ₂ O ₃ +Ag (¹⁸ O エンリッチ 94%)	~ 1
²⁷ Al ⁻	Al (99.99%)	~ 2
²⁸ Si ⁻	Si (99.999%)+Ag	~ 3
⁵⁶ Fe ⁻	Fe (99.99%)	~ 0.5
⁷⁹ Br ⁻	AgBr	~ 10
¹⁸¹ Ta ⁻	Ta (99.95%)	~ 0.02
¹³³ Cs ¹⁹ F ₂ ⁻	Cs ₂ SO ₄ +PbF ₂	~ 0.2

タンデム加速器で使用するイオン種について、Rb スパッタリングでも供給可能であることを確認した。

アルカリ金属元素である Cs は、電子親和力が低く、単体での負イオンの生成では大電流が得難い^[3]。そのため、カソード試料から高電流の Cs 負イオンビームの引き出しについて検討するために、Cs₂SO₄、CsNO₃、Cs₂CO₃ の試薬を準備し、フッ化物の負分子イオンとして取り出すことを検討した。引き出される負イオンビーム増強のために、添加物として PbF₂ を混合して、Rb でスパッタした Cs の負分子イオンの質量スペクトルを測定した。カソード試料の Rb スパッタリングから得られた負分子イオンでは、PbF₂ を混合した試料において ¹³³Cs³²S⁻、¹³³Cs¹⁶O₂⁻、¹³³Cs¹⁹F₂⁻ と同定されるスペクトルが見られ、¹³³Cs¹⁹F₂⁻ では、最大で 0.2 μA の負分子イオンが安定的に得られた。

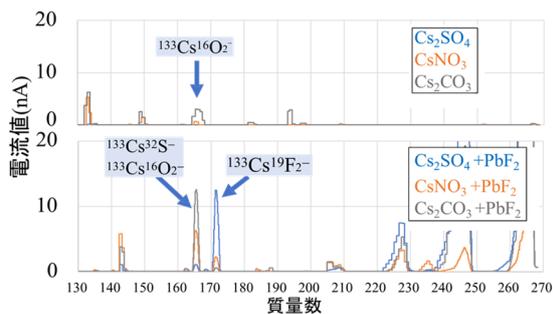


図 2 Rb スパッタ負イオン源からの Cs 負分子イオンの引き出し試験結果

4. 研究成果

(1) 加速電圧 6 MV による CsF₂⁻ の加速試験

Cs₂SO₄ に PbF₂ を混合した試料から、¹³³Cs¹⁹F₂⁻ (110 nA) を引き出して、6 MV タンデム加速器により 6 MV で加速をおこなった。荷電変換は Ar ガスでおこない、図 1 の 105° 分析電磁石下流のオフセット FC により電荷数分布の違いによる電流値を測定した。測定結果を図 3 に示す。図 3 において、電荷数 q = 7+ と q = 14+ は粒子エネルギーと質量電荷比の関係から、フッ素イオンが混入していることが分かっている。本研究では、他の核種との混入が少ない電荷数として、q = 9+ を用いることにした。加速電圧 6 MV で加速された Cs⁹⁺ の粒子エネルギーは、58.7 MeV となる。

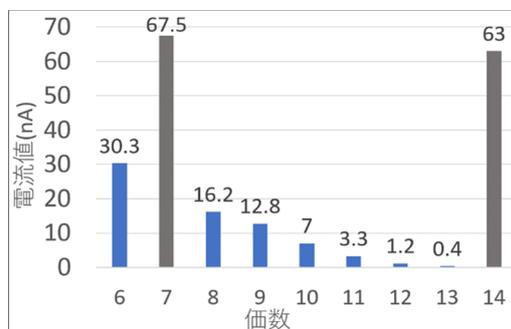


図 3 ターミナル電圧 6 MV で ¹³³Cs¹⁹F₂⁻ (110 nA) を加速した後の ¹³³Cs⁹⁺ 電荷分布 (7+ と 14+ はフッ素イオンが混入)

(2) ガス電離箱による質量数 135 の粒子検出

6 MV で CsF₂⁻ を加速して、Ar ガスにより Cs⁹⁺ (58.7 MeV) に荷電変換した。質量数 135 の粒子について極微量核種検出ラインに導入した上で、ガス電離箱により検出を試みた。シミュレーション結果より、ガス電離箱の入射窓は 75 nm 厚の窒化ケイ素 (Si₃N₄) を用いた。また、検出ガスとして高純度イソブタンを 12 Torr 封入した。ガス電離箱を用いた粒子検出は、³⁶Cl や ⁴¹Ca の AMS 測定^[4,5] と同じ方法である。

¹³⁵Cs/¹³³Cs ~ 10⁻⁸ 程度と推定される Cs₂SO₄ 試料を用いて質量数 135 の粒子検出を試みた結果を図 4 に示す。ガス電離箱のガス中でのエネルギー損失を利用して、第 1, 2 電極と第 4, 5 電極での検出信号より 2 次元スペクトルを作成した。質量数 135 と推定される付近に粒子スペクトルを得たが、今回の測定では ¹³⁵Cs と同重体となる ¹³⁵Ba との分離識別までは確認できなかった。しかし、¹³⁵Cs の加速器質量分析による測定方法について、手順の検討が進展した。

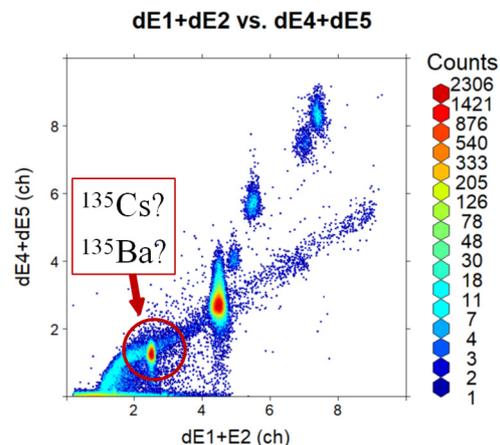


図 4 5 枚電極ガス電離箱で検出を試みた質量数 135 の核種スペクトル

4. まとめと今後の予定

¹³⁵Cs の高感度検出法の実現を目的として、筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置において ¹³⁵Cs-AMS の研究開発をおこなった。Cs の代わりに Rb を用いたスパッタ負イオン源からの負イオンの生成では、固体試料 Cs₂SO₄ (PbF₂ 混合) から、Cs 負分子イオンとして ¹³³Cs¹⁹F₂⁻ を最大で ~0.2 μA 引き出すことに成功した。加速電圧 6 MV により、Cs⁹⁺ を 58.7 MeV まで加速して、極微量核種検出ラインで ¹³⁵Cs の検出を試みた。5 枚電極ガス電離箱において、質量数 135 の核種由来の粒子スペクトルを確認できた。

今後の予定としては、 ^{135}Cs 標準試料 (^{135}Cs 同位体比 $>10^{-8}$) の準備とそれを用いた試験測定を計画している。また、検出器等について ^{135}Cs 検出のための最適な測定条件の探査を引き続きおこなう予定である。

<引用文献>

1. J. Zheng et al., “Determination of ^{135}Cs and $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Atomic Ratio in Environmental Samples by Combining Ammonium Molybdophosphate (AMP)-Selective Cs Adsorption and Ion-Exchange Chromatographic Separation to Triple-Quadrupole Inductively Coupled Plasma–Mass Spectrometry”, *Analytical chemistry*, 86, 2014, pp. 7103–7110.
2. K. Sasa et al., “The 6 MV multi-nuclide AMS system at the University of Tsukuba, Japan: First performance report”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 437, 2018, pp. 98-102.
3. R. Middleton, *A Negative Ion Cookbook*, October 1989, University of Pennsylvania.
4. S. Hosoya et al., “Isobar suppression for ^{36}Cl accelerator mass spectrometry at the University of Tsukuba”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 438, 2019, pp. 131-135.
5. S. Hosoya et al., “Optimization of a ΔE -E detector for ^{41}Ca AMS”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 406, 2017, pp. 268-271.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 笹 公和, 椎根 大輔, 高橋 努, 松村 万寿美, 坂口 綾	4. 巻 PASJ2022
2. 論文標題 6 MV タンデム加速器を用いた長半減期放射性セシウム 135の加速器質量分析法の開発	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of the 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan	6. 最初と最後の頁 356-359
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 3件／うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Kimikazu Sasa, Masumi Matsumura, Tsutomu Takahashi
2. 発表標題 Development of Non-Radiocarbon Accelerator Mass Spectrometry at the University of Tsukuba
3. 学会等名 Technical Meeting on Developments in Non-Radiocarbon Accelerator Mass Spectrometry Techniques and Relevant Applications, International Atomic Energy Agency (IAEA) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 椎根大輔, 坂口綾, 笹公和, 松村万寿美, 高橋努, 末木啓介, 山崎信哉
2. 発表標題 核分裂生成核種 ¹³⁵ Csの測定法確立に向けた取り組みと水圏科学研究への応用
3. 学会等名 2021年度日本地球化学会第68回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 笹 公和
2. 発表標題 加速器質量分析法による宇宙線生成核種の検出と地球化学への応用
3. 学会等名 日本地球化学会 第69回年会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笹 公和
2. 発表標題 加速器質量分析法における環境中の難測定核種の検出技術に関する進展
3. 学会等名 日本放射化学会第66回討論会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笹 公和, 椎根 大輔, 高橋 努, 松村 万寿美, 坂口 綾
2. 発表標題 6MVタンデム加速器を用いた長半減期放射性セシウム135の加速器質量分析法の開発
3. 学会等名 日本加速器学会第19回年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笹 公和, 高橋 努, 松村 万寿美, 松中 哲也, 坂口 綾, 末木 啓介
2. 発表標題 筑波大学6 MVタンデム加速器質量分析装置における多核種AMSと応用研究の現状
3. 学会等名 第23回AMSシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笹 公和, 椎根 大輔, 高橋 努, 松村 万寿美, 坂口 綾
2. 発表標題 加速器質量分析法による長半減期放射性セシウム135の高感度検出試験
3. 学会等名 2023年第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 椎根大輔, 坂口綾, 笹公和, 松村万寿美, 高橋努, 山崎信哉, 末木啓介
2. 発表標題 海水循環レーザー利用に向けた極微量放射性核種 ¹³⁵ Csの測定法確立
3. 学会等名 第23回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 笹公和, 高橋努, 椎根大輔, 松村万寿美, 坂口綾
2. 発表標題 Rbスパッタイオン源からの負イオンビームの生成
3. 学会等名 応用物理学会2022年第69回春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kimikazu Sasa, Tsutomu Takahashi, Masumi Matsumura, Tetsuya Matsunaka, Aya Sakaguchi
2. 発表標題 Accelerator Mass Spectrometry of ³⁶ Cl and ¹²⁹ I at the University of Tsukuba: Analytical Techniques and Applications
3. 学会等名 The 9th East Asia Accelerator Mass Spectrometry Symposia (EA-AMS 9) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 笹公和, 高橋努, 松村万寿美, 吉田哲郎, 椎根大輔, 高橋穂高, 坂口綾
2. 発表標題 6 MVタンデム加速器質量分析装置を用いた難測定核種の検出技術開発の現状
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 松村 万寿美, 高橋 努, 吉田 哲郎, 松中 哲也, 高橋 穂高, 坂口 綾, 笹 公和
2. 発表標題 筑波大学6 MVタンデム加速器質量分析装置における多核種AMSと応用研究の現状(2023年度)
3. 学会等名 第24回AMSシンポジウム
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

筑波大学AMSグループ https://www.tac.tsukuba.ac.jp/~ams/
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	坂口 綾 (Sakaguchi Aya) (00526254)	筑波大学・数理物質系・教授 (12102)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	松村 万寿美 (Matsumura Masumi)	筑波大学・放射線・アイソトープ地球システム研究センター・技術職員 (12102)	
研究協力者	高橋 努 (Takahashi Tsutomu)	筑波大学・放射線・アイソトープ地球システム研究センター・シニアスタッフ (12102)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	椎根 大輔 (Shiine Daisuke)	筑波大学・生命地球科学研究群・大学院修士課程 (12102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関