

# 静電加速器により高感度に微量環境 ヨウ素 129 を測定する方法の研究

(課題番号 10555019)

平成 10 年度～平成 12 年度 科学研究費補助金  
(基盤研究 (B) (2))

## 研究成果報告書

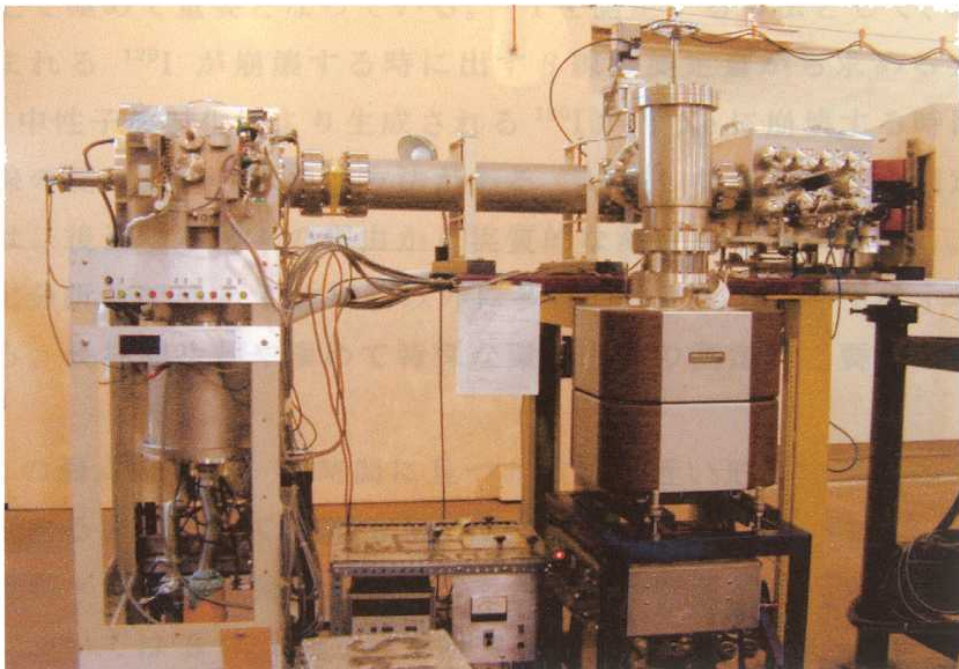
平成 13 年 3 月

研究代表者 長島 泰夫

(筑波大学医療技術短期大学部)



ヨウ素試料抽出・精製 装置



実時間粒子飛行時間測定装置 (TOF)

## はしがき

55年前に広島・長崎に原爆が落とされてから現在まで、ビキニ環礁での大規模な大気圏原水爆実験やチェルノブイリ原子力発電所の爆発事故など、制御不能原子核分裂反応に伴う悲劇的な事件により、多大な人的被害に加え、多量な原子核分裂生成物の大気中への放出による地球環境への悪影響がもたらされた。特に  $^{129}\text{I}$  は原子核分裂で多量に生成され、大気循環に乗って全地球規模に拡散するのみならず、その長い半減期（1570万年）の為に減衰することなく、いつまでも地球環境に存在する事となる。又、 $^{129}\text{I}$  は、原子力発電の使用済み燃料中に多量に生成されており、その再処理中の事故等により環境に微量なりとも放出される恐れがあり、この事も、環境悪化を引き起こすものとして懸念されている。

従って、 $^{129}\text{I}$  の量そのものやその変化を知る事は、広島・長崎原爆から今日までの核実験や事故の環境悪化のみならず、核燃料再処理作業による環境への影響を数量的に調査し、その対策を立案施行する上で極めて重要となっている。 $^{129}\text{I}$  を測定する方法として、試料に含まれる  $^{129}\text{I}$  が崩壊する時に出す  $\beta$  線の測定量から求める方法や  $^{129}\text{I}$  中性子放射化により生成される  $^{130}\text{I}$  が  $^{130}\text{Xe}$  に崩壊する時に出す  $\gamma$  線の測定量から求める方法がある。しかしながら、 $\beta$  線測定方法では、後述する種々の理由から実質的な測定が不可能である。又放射化分析法では  $^{129}\text{I}$  放射物以外に多量の放射化物をも生成することから、長期間冷却や極めて特殊な環境下での測定が必要となっている。

この弱点を補い、短時間に且つ非破壊に近い形態で同様の測定を実現する方法として、Rich Muller<sup>1)</sup> により提唱され（1977年）、其の後種々の研究開発が進められてきた加速器質量分析法がある。本学においては3年計画の科学研究補助金の補助を受け、本学加速器センターに設置されている12UDペレトロン加速器を用いた加速器質量分析法の研究開発が1992年より開始され、現在  $^{14}\text{C}$  測定はもと

より、 $^{26}\text{Al}$  と  $^{36}\text{Cl}$  の中重粒子の超高感度 AMS が実現されている。<sup>2-3)</sup>

以上の背景の下、本研究では本学加速器センターに設置されている 12UD タンデム加速器に、今までの中重粒子 AMS の経験を十分に生かし、かつ本研究の独創的方法である“分子パイロットビーム法”を用いて、重粒子弁別に必須である実時間重粒子飛行時間測定系の研究開発を行ない、従来困難であった重粒子  $^{129}\text{I}$  の加速器質量分析システムの開発を行なった。

本報告書では、“分子パイロットビーム法”による  $^{129}\text{I}$  超高感度質量分析システムの開発研究と得られた結果（性能）を  $^{129}\text{I}$  試料抽出作製システムと実時間重粒子飛行時間測定系の開発結果と合わせて報告する。なお、この研究によって  $^{129}\text{I}$  の高感度、且つ正確な測定が、初めて可能となり、環境研究等の分野に新たな研究手段を提供できるようになった事に及しておく。

# 静電加速器により高感度に 微量環境ヨウ素 $^{129}\text{I}$ を測定する方法の研究

## 概要

本研究報告では、筑波大学加速器センターに設置された加速電圧 12MV の大型タンデム静電加速器を利用し、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-9}$  から  $10^{-14}$  程度のごく微量に含まれる  $^{129}\text{I}$  の超高感度定量分析が可能になった事を述べる。

又、ヨウ素  $^{129}$  測定に必須である、測定サンプルからヨウ素を取り出し、AMS 測定用試料とするヨウ素試料抽出製作システムと実時間重粒子飛行時間測定システムに関しての研究開発結果をも報告する。

## 研究組織

研究代表者 : 長島 泰夫 (筑波大学医療技術短期大学部・教授)  
研究分担者 : 関 李紀 (筑波大学化学系・助教授)  
" : 青木 孝義 (筑波大学物理学系・助教授)  
研究協力者 : 高橋 努 (筑波大学加速器センター・技術専門職員)  
" : 皆倉 輝志 (元 筑波大学加速器センター・技官)  
(現 鹿児島大学大学院情報処理課)

## 研究経費

平成 10 年度	6,600 千円
平成 11 年度	1,900 千円
平成 12 年度	1,300 千円
計	10,500 千円

## 研究発表

### 1] 学術論文等

- 1) Y.Nagashima, R.Seki, T.Takahashi, and D.Arai,  
Current status of  $^{36}\text{Cl}$  AMS program at the university of Tsukuba,  
Proceedings of the International Workshop on Frontiers in  
Accelerator Mass Spectrometry, Tsukuba, Japan, (1999) 123-128.
  
- 2) K.Komura, M.Yamamoto, R.Seki, T.Muroyama et al.,  
The JCO criticality accident at Tokai-mura, Japan: an overview of  
the sampling campaign and preliminary results,  
JOURNAL OF ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY, Vol.50,  
(2000) 3-14.
  
- 3) D.Arai, R.Seki, Y.Nagashima, T.Takahashi, H.Kume, and  
R.Mawatari,  
 $^{36}\text{Cl}$  AMS measurement of JCO samples,  
Proceedings of the First Workshop on Environmental  
Radioactivity, Tsukuba, Japan (2000) 161-164.
  
- 4) Y.Nagashima, R.Seki, T.Takahashi, and D.Arai,  
Status of the  $^{36}\text{Cl}$  AMS system at the university of Tsukuba,  
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B172  
(2000) 129-133.

## 2] 口頭発表

### 1) Y.Nagashima,

The program of  $^{129}\text{I}$  AMS at the university of Tsukuba  
Seminar at Beijin Low Energy Atomic Institute, Beijin, China,  
(1998), (Invited Talk)

### 2) Y.Nagashima, R.Seki, T.Takahashi, and D.Arai,

Current status of  $^{36}\text{Cl}$  AMS program at the university of Tsukuba,  
The International Workshop on Frontiers in Accelerator Mass  
Spectrometry, Tsukuba, Japan, (1999) (Invited Talk)

### 3) Y.Nagashima,

$^{129}\text{I}$  AMS program and  $^{36}\text{Cl}$  AMS,  
Seminar at VERA Laboratory, University of Vienna, Vienna, Austria,  
(1999) (Invited Talk)

### 4) Y.Nagashima,

A molecular pilot beam method in  $^{129}\text{I}$  AMS,  
Seminar at Munchen Technical University, Garhing, Germany, (1999).

### 5) 長島泰夫、関李紀、高橋努、新井大輔

筑波大 AMS の現状、  
筑波大学加速器センター 25 周年記念講演会、筑波、(2000) (招待講演)

### 6) 長島泰夫、関李紀、高橋努、新井大輔

筑波大 AMS の現状と  $^{129}\text{I}$  測定  
加速器質量分析シンポジウム「我が国の AMS 施設の現状と将来」、  
東京、(2001) (招待講演)

# 目次

はしがき	i
概要	iii
<b>1 序論</b>	<b>1</b>
1-1 ヨウ素 129 元素	1
1-2 研究の目的と方法	2
1-3 研究の特色	4
1-4 タンDEM 静電加速器質量分析法の概略	6
1-4-1 絶対測定法	6
1-4-2 相対測定法	7
<b>2 ヨウ素 129 静電加速器質量分析システムの開発</b>	<b>9</b>
2-1 構成	9
2-2 方式	11
2-2-1 加速電圧安定化の方法	11
2-2-2 $^{97}\text{MoO}_2$ 分子パイロットビーム法	13
2-3 ヨウ素試料抽出作成装置の開発	19
2-3-1 ヨウ素試料抽出作成装置	21
2-3-2 土壌試料からのヨウ素取り出し	21
2-3-3 水試料からのヨウ素取り出し	22
2-4 負イオン源システムの開発・改良	24
2-4-1 $^{129}\text{I}$ -AMS 用イオン源の構成	24
2-4-2 スパッタリングイオン源	26
2-5 $^{129}\text{I}$ 静電加速器の改良	35
2-5-1 $^{129}\text{I}$ -AMS 用スリットコントロール	35



2-6	$^{129}\text{I}$ 分析測定系の建設	37
2-6-1	構成	37
2-6-2	実時間粒子飛行時間測定装置の開発	40
2-6-3	配置と光学系	43
3	性能確認実験	47
3-1	$^{36}\text{Cl}$ による基本性能の確認	47
4	ヨウ素 129 測定実験	51
4-1	$^{97}\text{MoO}_2$ パイロットビーム	51
4-2	標準ヨウ素試料の測定	53
4-3	バックグラウンド	56
4-4	ヨウ素 129 測定の性能	58
5	まとめ	59
6	今後について	61
7	発表論文	63
	謝辞	91
	参考文献	93

# 1 序論

$^{129}\text{I}$  の自然界での存在量は  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で見ても大きくても  $10^{-9}$  程度であり、一般的には  $10^{-11}$  程度がその存在量である。このように多くても 0.001ppm の極微量しか存在しない  $^{129}\text{I}$  を従来よりある高感度分析法で定量することは不可能である。高感度分析法の代表的なものとしての“SIMS”を持ってしても、同重分子イオンの妨害や同重体 ( $^{129}\text{Xe}$ ) の粒子識別が困難なことから、その検出感度は  $\sim 10^{-9}$  程度であり、 $^{129}\text{I}$  の高精度な定量測定は困難である。

そこで、 $^{129}\text{I}$  中性子放射化により生成される  $^{130}\text{I}$  が  $^{130}\text{Xe}$  に崩壊する時に出す  $\gamma$  線の測定量から、元の  $^{129}\text{I}$  量を算出する、いわゆる中性子放射化分析法により  $^{129}\text{I}$  の定量が広く為されている。しかし、 $^{130}\text{I}$  以外の放射化物も多量に生成する事から、被爆防止を目的とした長期間の冷却や厳格に管理された特殊な環境下での測定が必要となっている。又、その検出感度は  $10^{-10}$  程であり、より安全で高精度高感度の新たな  $^{129}\text{I}$  定量方法が待ち望まれていた。

ここでは、このような背景のもとで、本科学研究費補助金により遂行された研究の目的と其の方法の概要に触れ、従来の方法に比べ  $^{129}\text{I}$  静電加速器質量分析法がどのような特色を持つ方式であるかについて説明する。

## 1-1 ヨウ素 129 元素

生体はその進化の過程において多種の元素を取り込み、その生命活動維持の為に有効に利用している。ヨウ素元素も生体維持に利用されている元素の一つである。主に海草類から摂取し、甲状腺に多量に蓄積しており、甲状腺ホルモンの生成に欠くべからざるものとなっている。

現在、自然界にはヨウ素同位体は安定同位体の  $^{127}\text{I}$  と大部分が人工的に生成された長半減期 (1570 万年) を持つ放射性同位体の  $^{129}\text{I}$  の 2 種類のヨウ素元素が存在している。 $^{129}\text{I}$  は自然核分裂などから僅かに

自然界で生成されるが、その大部分は原爆や原子力発電などにおけるウラン核分裂の核分裂片として生成される。この生成された  $^{129}\text{I}$  の一部分はは大気圏原爆実験やチェルノブイリ事故の様な原子力施設事故により大気中に放出され、長半減期であることから地球環境にほぼ永久に留まっている。

したがって、環境試料に含まれる  $^{129}\text{I}$  量の分析は、原爆や原子力施設事故などが地球環境にどの程度の汚染を引き起こし、人間生活にどのような影響を及ぼすかを調査研究する極めて重要且つ効果的な手段となっている。原爆などで人工的に  $^{129}\text{I}$  が生成されるまでは、環境中の  $^{129}\text{I}$  量は極めて少なく、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-14}$  程度であった。しかしながら、その後の事故等による  $^{129}\text{I}$  放出により、その影響を受けた地域等での  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は  $10^{-9}$  程になっているものと思われる。

## 1-2 研究の目的と方法

主に、大気圏原水爆実験や原子力施設の事故等により環境中に放出された  $^{129}\text{I}$  の分析を、筑波大学加速器センターに設置されている大型タンデム静電加速器システムにその特徴を生かした独創的なアイデア（分子パイロットビーム法）により実現し、従来困難であった  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-14}$  程度までの超高感度で且つ高精度な分析を可能とする事がこの研究の目的である。

この超高感度  $^{129}\text{I}$  分析システムは、本研究により必要な改良を加えた大型タンデム静電加速器システムと AMS 用自動連続試料交換機構付きスパッタリング負イオン源、及び今回新たに開発された AMS 用粒子飛行実時間測定装置 (TOF) とヨウ素抽出試料作製システムより構成されている。

試料に含まれている極微量な  $^{129}\text{I}$  の個数を直接計数する本方式は、PIXE 法等加速器を利用した高感度分析法に比べ、僅かなヨウ素試料 (~10mg) を用い、より超高感度な分析ができる特徴を有している。

極めて少量のヨウ素試料から、その中にごく少量含まれる  $^{129}\text{I}$  を高感度に測定出来る事から、次のような意義があるといえる。

1. 放射線の性質を用いる放射化分析や PIXE 分析等に比べ、感度、精度において格段の優位性を持つ測定方式であるので、従来測定不可能であった極微量  $^{129}\text{I}$  の定量が可能となり、環境科学をはじめ宇宙物理等に新たな研究手段を提供することとなり、その発展に大きく寄与出来るものと期待される。
2. 半減期が 1570 万年と極めて長い  $^{129}\text{I}$  元素の検出が可能となる事より、 $^{129}\text{I}$  を用いた年代同定の道が開かれ、 $^{14}\text{C}$  年代同定で選られる最も古い年代（約 6 万年）よりはるかに古い年代（数百万年から数億年）の同定が可能となる。
3. 超高感度である事から、 $^{129}\text{I}$  をトレーサとした生体の新陳代謝、臓器部位への選択的集積を調べる新たな医学、生物学分野での研究遂行が可能となる。

このよな意義と目的を持った本研究を 3 年計画で遂行した。

研究初年度の平成 10 年度には、本研究の遂行に必要な装置類の開発改良に邁進し、ヨウ素抽出試料作成装置及び実時間粒子飛行時間測定システムの開発、そして AMS イオン源部と 12UD 静電加速器部の改良を分担して遂行した。

平成 11 年度には、前年度に開発した装置を加速器センターの試料準備室と第 2 測定室に配置且つ既設の静電加速器に結合し、ヨウ素  $^{129}\text{I}$  超高感度加速器質量分析システムを作り上げた。又、AMS イオン源部と 12UD 静電加速器部に施した改良の効果を調べるとともに、“分子パイロット法”による  $^{129}\text{I}$  の測定法の開発を鋭意進め、検出感度と効率に関する性能の確認を行った。

平成 12 年度には、標準となるべき  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比の異なる 3 種類のヨウ素試料を作成し、それを用いて  $^{129}\text{I}$  超高感度加速器質量分析システム度しての総合的性能の確認を行うとともに、必要な改良を施し、システムの完成を計り、初期の目的を達成することに成功した。

### 1-3 研究の特色

環境に微量存在する  $^{129}\text{I}$  を測定する方法として、 $^{129}\text{I}$  中性子放射化により生成される  $^{130}\text{I}$  が  $^{130}\text{Xe}$  に崩壊する時に出す  $\gamma$  線の測定量から、元の  $^{129}\text{I}$  量を算出する方法、いわゆる中性子放射化分析法により  $^{129}\text{I}$  の定量を行う事が広く為されている。しかし、 $^{130}\text{I}$  以外の放射化物も多量に生成する事から、被爆防止を目的とした長期間の冷却や厳格に管理された特殊な環境下での測定が必要となっている。又、その検出感度は  $10^{-10}$  程度それほど高くなく、更に測定精度が数 10% 程度と低いことが、この方法の弱点となっていた。

他方、放射化分析法等の方法では測定が困難な  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-13}$  程度と  $^{129}\text{I}$  を極微量しか含まないヨウ素試料であっても、その 1g に含まれている  $^{129}\text{I}$  元素数は数億個という多数となっている。この事実はヨウ素試料中に含まれる  $^{129}\text{I}$  の個数を直接数え上げる方法により、ヨウ素試料から従来では測定困難であった極微小量の  $^{129}\text{I}$  測定を十分な感度と精度で行える可能性を示している。そこで、反跳型重イオン源、タンデム静電加速器、そして粒子弁別型測定装置とで構成され、目的粒子を個数として直接計数する加速器質量分析法 (AMS) では、数 mg の微小試料で、数%精度の測定を短時間にできる可能性があり、世界的に研究がなされている。この内、1~2 MV の小型タンデムを用いた  $^{14}\text{C}$  元素の分析を行う AMS 装置は精力的に開発が進められ、<sup>4,6)</sup> 現在精度、感度、効率ともに満足できる領域に到達し、年代同定に幅広く応用されている。

しかしながら、 $^{14}\text{C}$  より 9 倍近く質量の大きな  $^{129}\text{I}$  測定は  $^{14}\text{C}$  測定と同様な方法では実現できず、静電加速器のより精密な制御、ビーム転送効率の向上、ヨウ素負イオンの安定な生成方法の開発や  $^{127}\text{I}$  妨害粒子弁別装置の開発など解決しなければならない技術的問題がある。世界的に見て幾つかの機関で  $^{129}\text{I}$ -AMS の試みが成されているが、加速器電圧の精密な制御と  $^{127}\text{I}$  粒子の妨害除去の問題を十分に克服出来ていないのが現状で、精度と再現性において不十分な測定しか成されていない。又、国内においてはわれわれの今回の研究以外全く成されて

いない状態である。

これらの問題点を独創的なアイデアにより解決し、 $^{129}\text{I}$  粒子を 1 個 1 個直接計数する究極の方法で超高感度な  $^{129}\text{I}$  測定を可能とした本研究の特徴を列挙しておく。

特長 1 :

大型タンデム加速器の加速電圧を正確に制御し、 $^{129}\text{I}$  を安定に加速する為の新しい方式（分子パイロットビーム法）を考案、その実証試験を実施した結果、電圧変動を極めて小さく抑えられ、且つノイズの少ない優れた方法であり、 $^{129}\text{I}$  程度の重粒子をも安定に加速出来ることが確認された独創的な方式を用いている。

特長 2 :

$^{127}\text{I}$  妨害粒子をほぼ完璧に静電加速器に入射しないように設計された 2 連偏向電磁石によるビーム入射系により、従来不可能であった  $^{127}\text{I}$  の測定系での妨害が除去されている。

特長 3 :

$^{129}\text{I}$  と同質量原子 ( $^{129}\text{Xe}$ ) 及び分子 ( $^{97}\text{MoO}_2$  等) を荷電変換膜のを通過させることで完全に除去でき、かつ磁気および静電粒子弁別装置と実時間粒子飛行時間測定装置により極めて低いバックグラウンドでの測定が可能となった。

特長 4 :

$\beta$  線計測法ではほぼ不可能であった  $^{129}\text{I}$  測定が可能となった。又、中性子放射化分析法に比べても、測定試料を放射化することなく、大凡 1 万倍の感度で且つより少ない誤差（精度）で測定を出来る。

特長 5 :

極微量の  $^{129}\text{I}$  をトレーサとしてのトレーサ実験が可能となり、医学や生物の分野に新しい研究の手段を提供することが可能となった。

## 1-4 タンデム静電加速器質量分析法 (AMS) の概略

タンデム静電加速器質量分析法は、試料に含まれている極微量の元素の存在比、例えばヨウ素試料中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比をタンデム静電加速器の特長を生かし、かつ原子核実験の分野で開発され培われてきた高度な粒子検出技術を駆使して、目的元素を1個1個加増上げる方式で測定する方式で、絶対測定と相対測定の2通りの測定法がある。

ここでは、最初に開発が行なわれ、完成の領域に到達している  $^{14}\text{C}$ -AMS において測定した  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比を用いて試料の年代同定を行なう方法を例に取り、2通りの測定法の説明をしておく。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比を求める  $^{129}\text{I}$ -AMS においても同様である。

### 1-4-1 絶対測定

絶対測定は、トレーサ事件などにおいてトレーサ元素の量を直接測定する方法である。正確な測定量を求める為には、イオン源での試料元素のイオン化効率、加速器系でのビーム転送効率、荷電変換膜での荷電分布等を正確に見積もる事が必須であるが、かなりの困難があり絶対量を正確に求める事は難しい。試料間の差異等を調べる目的の時に用いられている。

$^{14}\text{C}$  測定を例にとって、絶対測定における年代同定を説明する。測定は、試料炭素に含まれる  $^{14}\text{C}$  と安定同位体の  $^{12}\text{C}$  (及び  $^{13}\text{C}$ ) の量を求める。 $^{14}\text{C}$  は AMS システムを用い粒子検出器でその個数を、 $^{12}\text{C}$  ( $^{13}\text{C}$ ) は AMS システムの適当な所で電流値として計測する。加速器系での転送効率の違い等から生じる  $^{14}\text{C}$ ,  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$  の検出効率の差を補正する事で  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比が求まる。試料の年代  $t$  は、現代標準試料 ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比  $= 1.96 \times 10^{-12}$ ) の値を用いて、

$$t = (T_{1/2} / 0.693) \log_e (1.96 \times 10^{-12} / (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{試料}})$$

で求まる。ここで  $T_{1/2}$  は  $^{14}\text{C}$  の半減期 (5730 年) を使用する。 $^{129}\text{I}$  の場合は、 $(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{試料}}$  を  $(^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{試料}}$  とし、 $T_{1/2}$  として  $^{129}\text{I}$  の半

減期 1750 万年を用いる。このように、絶対測定は手軽に測定出来る反面、前述したように検出効率の正確な見積もりが難しく、精度において次の相対測定より劣るのみならず、測定の再現性も不十分である。

## 1-4-2 相対測定

絶対測定と対比して説明する為に、同様に  $^{14}\text{C}$  年代同定を例として相対測定法の原理を述べる。AMS においてはこの相対測定法で比を求めるのが一般的である。まず、試料炭素に含まれる  $^{14}\text{C}$  と其の安定同位体  $^{12}\text{C}$  (及び  $^{13}\text{C}$ ) の存在比を測定する。 $^{14}\text{C}$  は静電加速器質量分析システムの粒子検出器で計数值として、 $^{12}\text{C}$  ( $^{13}\text{C}$ ) は分析システムの適当な所 (通常は加速器の後段に設置されている運動量分析磁石出射面の焦点) において電流値として計測する。次に、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比が既知である標準試料より作成した炭素試料が含む  $^{14}\text{C}$  と  $^{12}\text{C}$  (及び  $^{13}\text{C}$ ) の存在比を同様の方法で測定する。標準試料は NIST-RM4990C 蓚酸を用いるのが一般的である。

ここで、試料と標準の 2 つの  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比から、試料の経過年代  $t$  は、

$$\delta^{14}\text{C} (^{12}\text{C}) (\%) = (R - 1) \times 1000$$

$$R = (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{試料}} / (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{標準}}$$

となり

$$t = (T_{1/2}/0.693) \log_e (1 + \delta^{14}\text{C} (^{12}\text{C}) / 1000)^{-1}$$

で求まる。 $^{129}\text{I}$  測定では、 $R = (^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{試料}} / (^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{標準}}$  として  $\delta^{129}\text{I} (^{127}\text{I}) (\%)$  より同様に求まる。加速器系での転送効率の違いなどから派生する  $^{14}\text{C}$  と  $^{12}\text{C}$  の検出効率の違いや、測定系全般での時間的変動が、交互測定で選られる試料と標準の比を用いる事から自動的に打ち消され、絶対測定の欠点を取り除かれる。静電加速器の加速電圧が安定している限りでは、信頼性に富む高精度の測定が可能となる。



## 2 ヨウ素 129 静電加速器質量分析システムの開発

本研究では、筑波大学加速器センターに設置されている 12UD タンデム静電加速器を中心に、 $^{129}\text{I}$  静電加速器質量分析装置を試料作成から粒子検出までの総合システムとして捉え、その研究開発を遂行した。

本試験研究の独創的アイデアである“分子パイロットビーム法”を実現すべく研究開発した静電加速器質量分析システムの全体構成を延べ、続いて  $^{129}\text{I}$  試料抽出作製、重イオン源とタンデム加速器、そして粒子識別系の各部分について個別に報告を行なう。なお、計測したデータを収集・解析する装置としては、加速器センターで開発され、実験に供されている多次元多重データ収集解析システム<sup>7)</sup> (SHINE) が十分な性能を有している事からそのまま使用した。

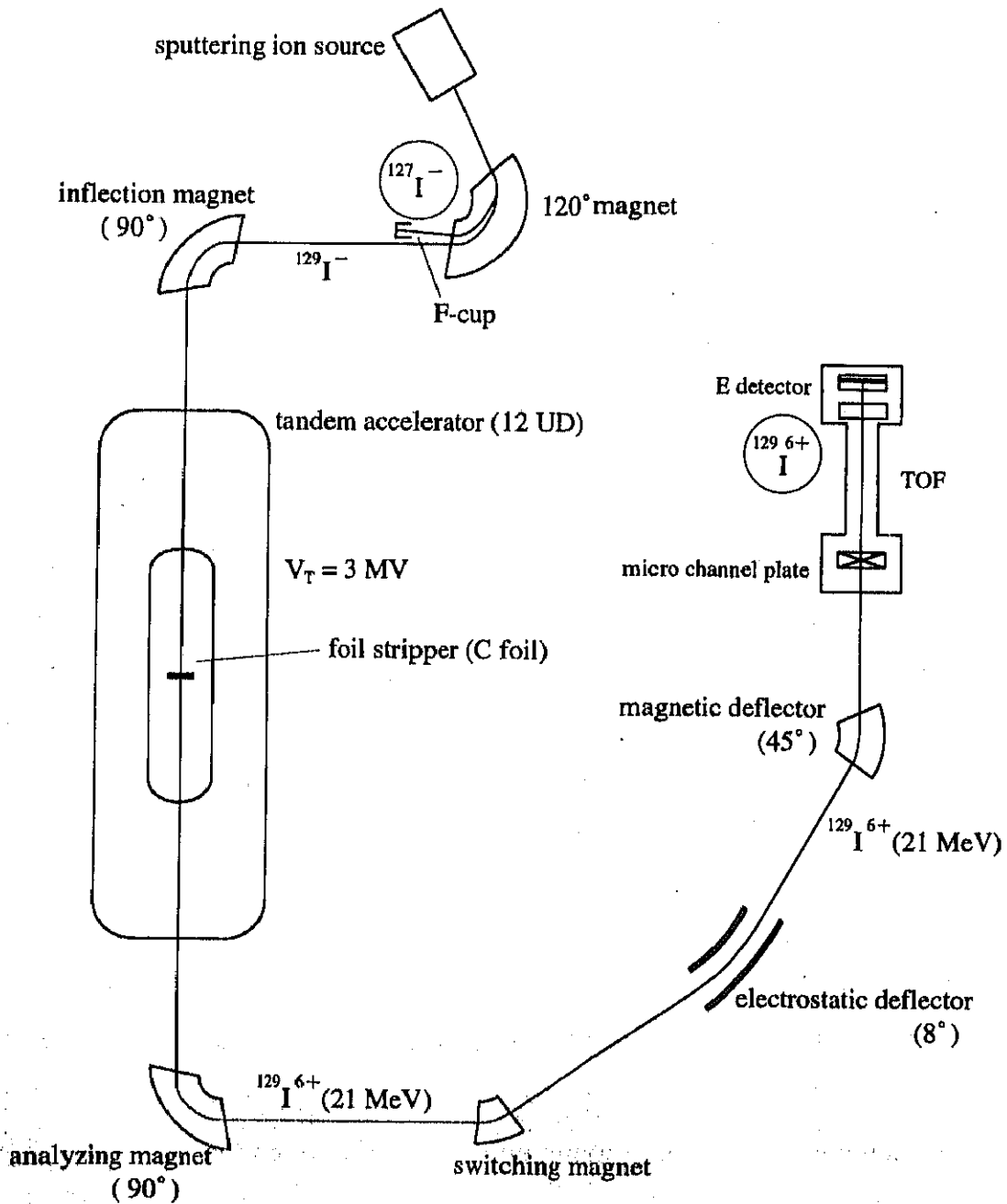
### 2-1 構成

開発した  $^{129}\text{I}$  静電加速器質量分析システムの全体構成を図 2-1 に示した。加速器センター 9 階に建設された反跳型 AMS 用負イオン源と  $^{127}\text{I}$  と  $^{129}\text{I}$  の高速静電型走査機構を持った偏向角 120 度の同位体弁別用 2 極電磁石、1 階から 7 階まで縦置き型で設置されている 12UD タンデム静電加速器系、1 階の測定室に建設した第 2 荷電変換機構、エネルギー弁別器、運動量弁別器、及び  $^{129}\text{I}$  識別用実時間粒子飛行時間測定装置の構成となっている。

静電加速器質量分析法では、測定精度と安定性を確保する為に測定中におけるビーム転送率の変化を極力少なくする必要がある。その為に最も重要な要素は加速器の加速電圧を精密に制御し、ビーム変動を無視できるほどに小さくする事であり、それを実現する事が必須となっている。 $^{14}\text{C}$  測定など小型のタンデムでは、加速電圧を静電型誘導起電計 (GVM) で読み取り、帰還形コロナトライオード電圧制御装置を用いて加速電圧が一定電圧となるように制御している。しかし、本学の静電加速器のように大型の加速器になると GVM 読み取りだけ

図 2-1  $^{129}\text{I}$ -AMS システム構成図

Fig. 11 Configuration for  $^{129}\text{I}$  Measurements



での加速器電圧の精密な安定化には限度がある。そこで、大型静電加速器質量分析法では、分析電磁石真空箱の出射面を扇型に改造し目的

粒子と少々異なる運動量のパイロットビームを用いて、その変化をスリット電流の変化として読み取り、帰還形コロナトライオード電圧制御装置を用いて加速電圧が一定電圧となるように制御する方法が有力な方法として研究されている。

分析電磁石真空箱の改造にはその周辺装置の改良も加味すると半年から1年程の期間を必要とし、その間加速器全体を停止する必要がある。しかしながら、共同利用施設としての加速器センターでは、多数の利用者が加速器を用いた実験的研究を計画されたスケジュールに則って連続して実施している。その為に、本研究でも使用する入射電磁石から分析電磁石までの12UD静電加速器システムは昼夜の別なく運転されており、長期間加速器の停止を必要とする改造作業は困難な状況である。そこで、後で述べる本研究の独創的な方式を考案し、既存の加速器設備にはなんらの改造や変更を加える事無くそのまま使用する事で、 $^{129}\text{I}$ -AMSを実現させた。

## 2-2 方式

図 2-1 に示す全体構成図を用いて、 $^{129}\text{I}$ -AMS 測定において本研究で考案研究した方式、加速器電圧の安定化の方法と分子パイロットビーム法について述べる。

### 2-2-1 加速電圧安定化の方法

前述したごとく、静電加速器質量分析法では、粒子を加速する電圧の安定度が測定の精度と信頼度を確保する上で極めて重要である。静電加速器の電圧安定化は、加速器高圧部から高電圧三極真空管のプレートに流れるコロナ電流の量を調整する帰還形コロナトライオード電圧制御装置を用いて行われている。この時の調整量は、分析電磁石の出射側焦点面に設置された2分割構造のスリットに当たる加速粒子の電流差を用いて行われ、この差が最小となるように加速器電圧を制御する高電圧三極真空管のグリッド電圧を帰還制御する事で行なっている。加速器センターの静電加速器は縦置き型で粒子は垂直方向に加速

され、加速された粒子は分析電磁石により垂直方向から水平方向の90度曲げられ、出射側焦点面において焦点を結ぶようになっている。そこで、出射側焦点面に設置される2分割スリットは、水平面に対して上下に配置されており、2分割スリットで読み取る電流値の変動は、加速された粒子の運動量の変動に対応している。

静電加速器を用いた原子核実験など従来の研究では、加速粒子の粒子数が十分に多く電流値で数百ナノアンペアはある。従って2分割スリットでも電流値として十分に読み出す事が出来、この電流値を用いて帰還形コロナトライオード電圧制御装置で加速器電圧を精度よく安定化する事が出来た。

一方、静電加速器質量分析法では加速器で加速される粒子数は多くても1秒あたり数十個と極めて少なく、これを電流値として読み取る事は全く不可能である。その為に、従来の2分割スリットのままでは加速電圧安定化を得る事は困難となり、AMS実現の為に既存の静電加速器系に大きな改造を行なう必要があった。この事が、ルーチンとして運転されている大型静電加速器を用いてAMSを実現する上での障害となっていた。

“分子パイロットビーム法”は、静電加速器システムに何らの改造を加える事無く、前述した困難を取り除き、本学加速器センターにおいて $^{129}\text{I}$ 静電加速器質量分析システム( $^{129}\text{I}$ -AMS)を実現する為に考案された独創的アイデアである。“分子パイロットビーム法”とは、被測定粒子の整数分の1(例えば2分の1や3分の1等)の質量の粒子が複数個集まった分子でかつ質量が $^{129}\text{I}$ とほぼ同じとなる分子をイオン源で被測定粒子と同時に生成する。この分子ビームをパイロットビームとして被測定粒子と同時に加速器に導き、分子ビームで加速器電圧を精度よく制御しつつ、電磁気学的条件を巧みに設定して、最終的には被測定粒子のみを高感度に測定する方法である。この方法により、既に $^{36}\text{Cl}$ 等比較的軽い粒子の測定は本学加速器センターで実現されているが、 $^{129}\text{I}$ のような重い粒子の測定に“分子パイロットビーム法”が適応でき、十分な性能を発揮するには、“分子パイロットビーム法”

を更に発展させる必要があった。

そこで、本研究では“分子パイロットビーム法”の詳細な見直しを発展的に行い、新たなる“分子パイロットビーム法”を考案し、 $^{129}\text{I}$ 測定の実現を計った。新たなる“分子パイロットビーム法”とは、粒子が分析電磁石を通過する時の磁気リジディティと $^{129}\text{I}$ が同じ分析電磁石を曲がる時の磁気リジディティとがほぼ等しいそのような粒子を含む分子のうち、分子質量が $^{129}\text{I}$ とほぼ同じとなる分子をイオン源で被測定粒子と同時に生成する。この分子ビームをパイロットビームとして被測定粒子と同時に加速器に導き、分子が壊れて単独となった $^{129}\text{I}$ と磁気リジディティがほぼ同じ粒子で加速器電圧を精度よく制御しつつ、電磁気学的条件を巧みに設定して、最終的には被測定粒子のみを高感度に測定する方法である。次の節で、新たなる“分子パイロットビーム法”について詳細に述べる。

## 2-2-2 $^{97}\text{MoO}_2$ 分子パイロットビーム法

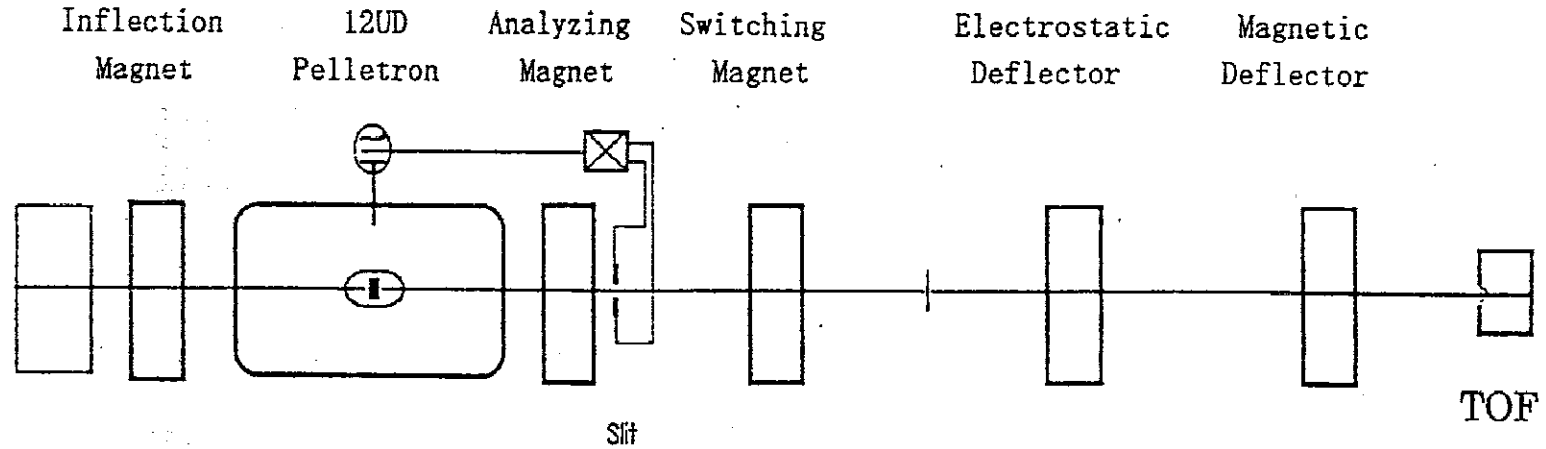
図 2-2-1 は“分子パイロットビーム法”による $^{129}\text{I}$ 測定方法を述べたものである。図 2-2-1 を用いて“分子パイロットビーム法”について説明する。

スパッタリングイオン源では、単原子負イオンはもとより分子負イオンをも生成する事が出来る。そこで、 $^{129}\text{I}$ 測定試料中に $^{129}\text{I}$ とほぼ同質量の $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_3$ を適当量加えると、 $^{129}\text{I}^{-1}$ イオンと共に $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^{-1}$ イオンも同時に生成され、同一のエネルギーを与えられてイオン源を出射される。

ここで、運動量  $P$  [Ns]、電荷数  $Q$  の荷電粒子が、磁束密度  $B$  [N/Am] の磁場中を運動する時の曲率半径  $\rho_B$  [m]は

$$\rho_B = P / (B \cdot Q) \quad (1)$$

又、エネルギー  $E$  [J]、電荷数  $Q$  の荷電粒子が電界  $V$  [V/m] の電界中を運動する時の曲率半径  $\rho_V$  [m]は



Ion Source	Terminal Stripper Foil	Slit	Second Stripper Foil	Electrostatic Deflector	Magnetic Deflector	TOF
$^{129}\text{I}^-$ Interested	$^{129}\text{I}^{++}$	$^{129}\text{I}^{12+}$ E	$^{129}\text{I}^{++}$ E	$^{129}\text{I}^{26+}$ E		$^{129}\text{I}^{26+}$
$^{97}\text{MoO}_2^-$ Pilot	$^{97}\text{Mo}^{++}$	$^{97}\text{Mo}^{9+}$ 0.75E	$^{97}\text{Mo}^{++}$ 0.75E	$^{97}\text{Mo}^{18+}$ E'		
				$^{97}\text{Mo}^{13+}$ E''		

図2-2-1 分子パイロットビーム法による $^{129}\text{I}$ 測定の方法

$$\rho_v = E / (V \cdot Q) \quad (2)$$

と表される。そこで、ほぼ同質量 (128.905amu と 128.896amu)、同電荷量 (-1)、同エネルギーの  $^{129}\text{I}^{-1}$  と  $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^{-1}$  は磁場中、電場中で同一の動きをする事から、図 2-1 で示すイオン源から静電加速器中央部の加速高圧部分荷電変換膜までほとんど同じ道筋を通り加速される。

ここで、イオン源での加速電圧を  $T_p$  [MV]、静電加速器の加速電圧を  $T_T$  [MV] とすると、 $^{129}\text{I}^{-1}$  と  $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^{-1}$  は同じ運動エネルギー  $E_1$  [MeV]

$$E_1 = (T_p + T_T) \quad [\text{MeV}] \quad (3)$$

を与えられ、炭素薄膜 ( $\sim 5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) の荷電変換膜を通過する。

荷電変換膜を通過する  $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^{-1}$  分子は、荷電変換膜を構成する炭素原子との電磁相互作用により軌道電子が剥ぎ取られ負イオンより正イオンに変換させられるとともに、分子結合が切れ、 $^{97}\text{Mo}^{k+}$  ( $k = 1 \sim 42$ ) と  $^{16}\text{O}^{1+}$  ( $l = 1 \sim 8$ ) の原子となり、荷電変換膜を出射する。又、運動エネルギーは質量比に対応して減少し、荷電変換膜を出射する時の  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  と  $^{16}\text{O}^{1+}$  の運動エネルギーはそれぞれ

$$E_1 (^{97}\text{Mo}^{k+}) = E_1 \cdot (97/129) \quad [\text{MeV}]$$

$$E_1 (^{16}\text{O}^{1+}) = E_1 \cdot (16/129) \quad [\text{MeV}]$$

となる。

一方、 $^{129}\text{I}^{-1}$  イオンは荷電変換膜を通過する時には、単に負イオンから正イオン  $^{129}\text{I}^{m+}$  ( $m = 1 \sim 53$ ) に変換され、運動エネルギーも質量が変化しない事から  $E_1$  を保持したまま出射する。

$$E_1 (^{129}\text{I}^{m+}) = E_1 \quad [\text{MeV}]$$

荷電変換膜出射後の  $^{129}\text{I}^{m+}$  や  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  の荷電数 ( $n$  や  $m$ ) 毎の存在割合は、粒子エネルギーと原子価数等で決まり、例えば、 $^{129}\text{I}^{12+}$  イオンエネルギーが  $10\text{MeV}$  ( $T_P + T_T = 10\text{MV}$  の相当) の時は、 $m = 12$  の  $^{129}\text{I}^{12+}$  が約 17% 程度と最も多く、その周りに分布している。

荷電変換膜通過後  $^{129}\text{I}^{m+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  と  $^{16}\text{O}^{1+}$  の各正イオンは再び加速器で加速され、加速器中央の高電圧部から加速器を出射する間に得る運動エネルギー  $E_2$  [MeV] はそれぞれ

$$E_2 (^{129}\text{I}^{m+}) = m \times T_T \quad (4)$$

$$E_2 (^{97}\text{Mo}^{k+}) = k \times T_T \quad (5)$$

$$E_2 (^{16}\text{O}^{1+}) = 1 \times T_T$$

となる。

そこで、 $^{129}\text{I}^{m+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  粒子が最終的に得る運動エネルギーを  $E_3$  [MeV] とすると  $E_3 = E_1 + E_2$  である事から、

$$\begin{aligned} E_3 (^{129}\text{I}^{m+}) &= E_1 (^{129}\text{I}^{m+}) + E_2 (^{129}\text{I}^{m+}) \\ &= T_P + (m+1) \times T_T \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} E_3 (^{97}\text{Mo}^{k+}) &= E_1 (^{97}\text{Mo}^{k+}) + E_2 (^{97}\text{Mo}^{k+}) \\ &= (T_P + T_T) \cdot (97/129) + k \times T_T \\ &= [T_P + (k \cdot (129/97) + 1) T_T] \cdot (97/129) \end{aligned} \quad (7)$$

となり、 $^{129}\text{I}^{m+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  正イオンはともにその荷電数に応じて得たエネルギーでもって 90 度分析電磁石に入射される。

分析電磁石に入射された  $^{129}\text{I}^{m+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  正イオンはそれぞれ (1) 式で決まる曲率半径の円弧を描いて、その進行方向を偏向される。適当な荷電数と運動量を持つ粒子のみが 90 度の偏向を受け、後段の AMS 測定系へ導かれ、その他の 90 度偏向条件に合わない大部分の  $^{129}\text{I}^{m+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{k+}$  正イオンはビーム中心軸から逸脱し、最終的には消滅する。



ここで、 $m = 12$ 、 $k = 9$ を選択した時の $^{129}\text{I}^{m+}$ と $^{97}\text{Mo}^{k+}$ イオンの同じ磁場強度における90度分析電磁石での曲率半径を求めると、

$$\begin{aligned}\rho_B (^{129}\text{I}^{12+}) &\propto [129 \times (T_P + 13 \times T_T)]^{0.5} / 12 \\ &= (T_P + 13 \times T_T)^{0.5} \times [129^{0.5} / 12] \\ &\doteq 0.947 \times (T_P + 13 \times T_T)^{0.5}\end{aligned}\quad (8)$$

$$\begin{aligned}\rho_B (^{97}\text{Mo}^{9+}) &\propto [97 \cdot [T_P + (9 \times (129/97) + 1) T_T] \times (97/129)]^{0.5} / 9 \\ &= (T_P + (9 \times (129/97) + 1) T_T)^{0.5} \times [(9409/129)^{0.5} / 9] \\ &\doteq 0.949 \times (T_P + 12.97 \times T_T)^{0.5}\end{aligned}\quad (9)$$

となり、 $\rho_B (^{129}\text{I}^{12+})$ と $\rho_B (^{97}\text{Mo}^{9+})$ がほぼ同じである。

この事は、分析電磁石の磁場強度を2分割スリットで電流値として読み取る事の出来る $^{97}\text{Mo}^{9+}$ イオンに設定し、前述のスリット電流制御法で静電加速器の加速電圧を制御し、かつ同時に目的粒子の $^{129}\text{I}^{12+}$ を後段の測定系へ安定に転送する事が可能である事を示している。これが、本研究における“分子パオロットビーム法”での独創的着眼点である。

ここで、2分割スリットに当たり電流を発生させる $^{97}\text{Mo}^{9+}$ イオンはその周辺部分のみで、大部分の $^{97}\text{Mo}^{9+}$ イオンは2分割スリットの中心部を通り抜け、 $^{129}\text{I}^{12+}$ とともに測定系に入り込んでいく。 $^{129}\text{I}^{12+}$ イオンと電磁気光学的に全く同じ運動をする $^{97}\text{Mo}^{9+}$ イオンビームは電流として読み取れる量である事から極めて強く、 $^{129}\text{I}^{12+}$ イオン検出器を一瞬にして破壊してしまうほどの量である。

そこで、次の段階として図2-1に示す第2荷電変換膜( $\sim 10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 炭素薄膜)、エネルギー弁別器、運動量弁別器、そして実時間粒子飛行時間測定装置(TOF)よりなる粒子検出系を開発し、 $^{129}\text{I}^{12+}$ と $^{97}\text{Mo}^{9+}$ を次に述べる方法で分離することとした。

分析電磁石で分析され、第2荷電変換膜に入射した $^{129}\text{I}^{12+}$ と $^{97}\text{Mo}^{9+}$

イオンは再び荷電変換を起こし、多数の荷電状態に分布して出射してくる。そこで、出射  $^{129}\text{I}$  イオンの内から 26 価の  $^{129}\text{I}^{26+}$  を弁別するように、その後のエネルギー弁別器と運動量弁別器を調整し、TOF 装置により質量弁別を行ないながら  $^{129}\text{I}^{26+}$  を検出計数するようにする。この時、 $^{97}\text{Mo}^{9+}$  イオンも同様に多数の荷電状態に分布しているが、 $^{129}\text{I}^{26+}$  と同じ電磁氣的運動が可能なイオンは原理的に存在しなくなり、エネルギー弁別器と運動量弁別器を通り抜けられなくなる。結果として、TOF 装置には目的とする  $^{129}\text{I}^{26+}$  粒子のみが入射し、測定される事になる。この事が、“分子パイロットビーム法” のもう一つの独創的着眼点で、妨害粒子がほとんど無いきれいな高精度の測定が可能であることが本研究によって示された。

“分子パイロットビーム法” では、本研究における  $^{129}\text{I}$  測定のみならず、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{26}\text{Al}$ 、 $^{82}\text{Si}$ 、そして  $^{36}\text{Cl}$  の超高感度測定にも適用する事が可能である。

以上述べた“分子パイロットビーム法” は全く新しい AMS 法で、既存の静電気加速器システムに何らの改造を加える事無く、極めてノイズの少ない AMS 計測を可能とした本研究の独創的な方式である。

表 2-1 に“分子パイロットビーム法” により測定可能な粒子の一覧を示した。パイロットビームとして使用できる分子は、分子を構成する粒子が分析電磁石を通過する時の磁気リジディティと  $^{129}\text{I}$  が同じ分析電磁石を曲がる時の磁気リジディティとがほぼ等しいそのような粒子を含む分子のうち、分子質量が被測定粒子の質量とほぼ同じとなる分子である。測定する元素の質量の整数分の 1 の質量を持つ粒子が幾つか集まって測定する元素と同じ質量となる 2 分子や 3 分子などの分子は本法に用いる事が出来る。又、アルミニウムのように測定粒子単体では負イオンとなる事が困難で酸化物の形でイオン源で発生させなければならない時は、そのパイロットビームも同じ形の酸化物として生成することで対応する事が出来る。

測定元素	生成 負イオン	生成 分子イオン	加速電圧制 御用イオン	検出粒子
$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}^-$	$^{97}\text{MoO}_2^-$	$^{97}\text{Mo}^{9+}$	$^{129}\text{I}^{26+}$
$^{36}\text{Cl}$	$^{36}\text{Cl}^-$	$^{12}\text{C}_3^-$	$^{12}\text{C}^{3+}$	$^{36}\text{Cl}^{13+}$
$^{32}\text{Si}$	$^{32}\text{Si}^-$	$^{16}\text{O}_2^-$	$^{16}\text{O}^{5+}$	$^{32}\text{Si}^{13+}$
$^{26}\text{Al}$	$^{26}\text{AlO}^-$	$^{13}\text{C}_2\text{O}^-$	$^{13}\text{C}^{4+}$	$^{26}\text{Al}^{19+}$
$^{14}\text{C}$	$^{24}\text{C}^-$	$^7\text{Li}_2^-$	$^7\text{Li}^{2+}$	$^{14}\text{C}^{5+}$

表 2-1 分子パイロットビームと測定元素との組み合わせ

### 2-3 ヨウ素試料抽出作成装置の開発

質量分析において、試料の良し悪しはその測定結果の良し悪しに大きく影響する。加速器質量分析法においても同様で、特に測定精度に影響を及ぼす。そこで、本試験研究では測定結果に信頼性を与え、且つ精度を保持することを目的として、 $^{129}\text{I}$  測定の為のヨウ素試料抽出作成装置の開発を行い、その作成手順の確立を行った。土壌及び海底堆積物よりヨウ素を分離・精製する手順、及び雨水や海水より同じくヨウ素を分離・精製する手順の確立を実施した。なお、海草や甲状腺などの生体試料からのヨウ素抽出技術もこれからの課題として開発していく予定であるが、ここでは、開発した装置とそれを用いたヨウ素抽出手順について述べる。

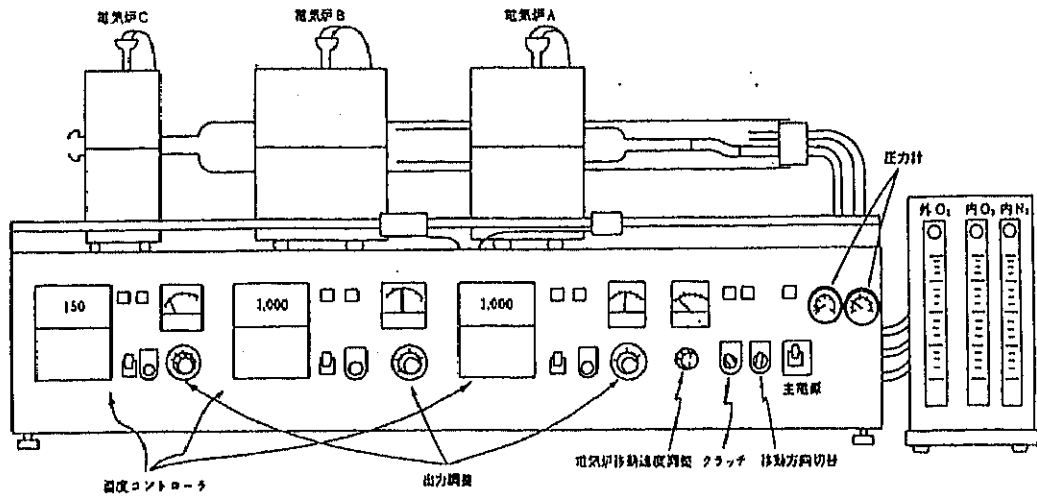


図 2-3-1 3連電気炉 (ヨウ素試料抽出・精製装置)

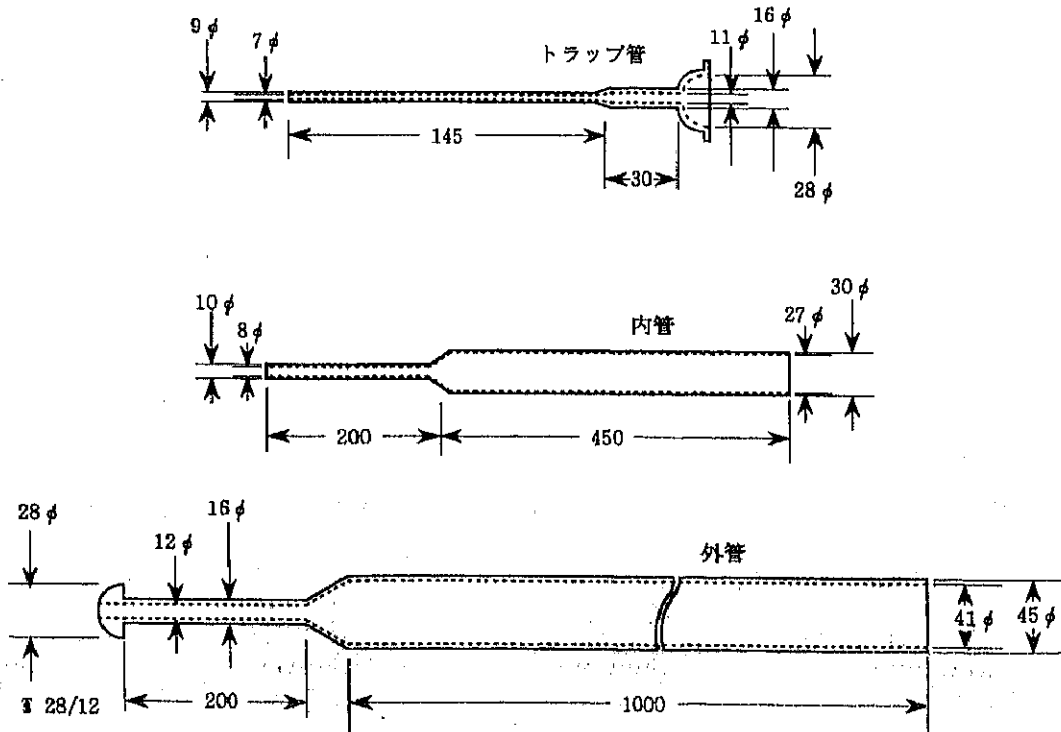


図 2-3-2 トラップ管、内石英管、外石英管

### 2-3-1 ヨウ素試料抽出作成装置

図 2-3-1 に開発したヨウ素試料抽出作成装置の全体を示してある。試料を燃焼しヨウ素の含まれている燃焼ガスを活性炭に吸着させて試料中よりヨウ素を分離させる装置である。3連式の管状型電気炉から成り立っており、電気炉 A と B は最大 1600℃、電気炉 C は最大 1000℃まで、±2 度の精度で自動温度制御されるようになっている。電気炉には図 2-3-2 に示す試料燃焼用の 2 本の石英管が設置されている。外管と内管の同心構造となっており、試料を内管に詰め燃焼させる構造となっている。外管、内管それぞれに試料燃焼に必要な酸素と窒素のガスを導入できる構造となっている。3 本のガス流量計により外管には酸素ガス、内管には酸素ガスと窒素ガスを設定量流せるようになっている。

### 2-3-2 土壌試料からのヨウ素取り出し

本研究で開発した 3 連の管状型電気炉より成るヨウ素試料抽出作成装置を用いて、土壌や海底堆積物に含まれているヨウ素を取り出す手順を開発した。AMS 測定に必要な試料の量はヨウ化銀 (AgI) で大凡 10mg 程度である。ここで、土壌試料には 100 g (乾燥質量) あたり 0.1mg から数 mg のヨウ素が含まれていることから、数 100 g の土壌試料が必要となる。土壌試料を石英管中で燃焼、ガスとして抽出されたヨウ素を活性炭に吸着させる。このヨウ素が吸着した活性炭を燃焼し、トラップ管内の微量 (0.5 g) の活性炭に吸着させなおす。この微量活性炭より化学的処理によりヨウ化銀としてヨウ素を精製・取り出す。以下にその方法を図 2-3-1 を用いて箇条的に述べる。

1. 十分に乾燥させた土壌 200 g を細かく粉砕し、図に示すように内側石英管に入れ、両端を石英ウールで止める。
2. 外側石英管の細くなっている部分に活性炭 6 g を入れ、同じく両端に石英ウールを入れ、止める。
3. 外側石英管の電気炉 B の部分に相当する所に図のように石英ウールを詰める。
4. 内側、外側石英管を図に示す様に 3 連電気炉にセットする。

5. 電気炉 B を 1000℃、電気炉 C を 150℃にする。
6. 外管に酸素ガス (200ml/分) を、内管に酸素ガスと窒素ガス (各 50ml/分) をそれぞれ流す。
7. 電気炉 A を 250℃とし、試料中の水分を追い出す。
8. 電気炉 A の温度を 700℃に上げ、数分間保ち、試料の燃焼を始める。
9. 電気炉 A を 1000℃に設定し、2 時間ほど燃焼を進める。
10. 2 時間後、電気炉 A を止め、電気炉 B を 500℃に下げる。
11. トラップ管に 0.6g の活性炭を入れ、両端を石英ウールで封じ、トラップ管を外側石英管の左端結合部に取り付ける。
12. トラップ管が電気炉 C に、外側石英管の活性炭部分が電気炉 B の中に来るように、電気炉の位置を調整しなおし、外側、内側石英管内に酸素ガス (50ml/分) を流す。
13. 内側の石英管を流す酸素ガス量を調整しながら活性炭の燃焼状態をすすめ、活性炭を完全に燃焼させる。
14. ヨウ素を吸着させたトラップ管内の活性炭を空気冷却器付き三角フラスコに移し、水酸化ナトリウム溶液 20ml (24w/V%) を加える。ホットプレートの載せ、1 時間程度ゆっくり加熱して、ヨウ素を浸出させる。
15.  $\text{AgNO}_3$  を加え、遠沈をかけヨウ素を  $\text{AgI}$  沈殿物として取り出す。

以上が、土壌や海底堆積物試料からヨウ素を取り出し、AMS 測定に適したヨウ化銀 ( $\text{AgI}$ ) の形にヨウ素試料を精製する手順である。1 回の操作で得られる  $\text{AgI}$  量は、大凡 10mg 程度である。試料によっては含有ヨウ素が少なく、操作を複数回繰り返して必要ヨウ素収量を確保しなければならないときもある。

### 2-3-3 水試料からのヨウ素取り出し

本研究で開発した 3 連の管状型電気炉より成るヨウ素試料抽出作成装置を用いて、雨水や海水に含まれているヨウ素を取り出す手順を開発した。土壌の処理では土壌を燃焼しヨウ素ガスを活性炭に吸着させたが、水試料では試料中のヨウ素を陰イオン交換樹脂に吸着させるよう

にした。土壌と異なって、含有ヨウ素量は少なく 5 ㇿの海水で 0.3mg、陸水で 0.05mg と極めて少ない。そこで、抽出したヨウ素をヨウ化銀に変換する段階で、塩素イオンを 10mg 程度溶液中に添加し、AgCl で析出量を増やし、AgI と AgCl の混合物試料として用意することにした。以下に水中のヨウ素を陰イオン交換樹脂へ吸着する方法を述べる。

1. 試料水 5 ㇿを 5 ㇿビーカーに採り、亜硫酸ナトリウム溶液(10w/v%) 0.5ml と陰イオン交換樹脂 50ml を加え、30 分間攪拌し、1 時間程度静置する。
2. デカンテーションにより新しい 5 ㇿビーカーに試料水のみを移し、陰イオン交換樹脂は新たな 500ml ビーカーに移す。
3. 5 ㇿビーカーに再度陰イオン交換樹脂 50ml を加え、30 分間攪拌し、1 時間程度静置する。
4. 再度デカンテーションにより陰イオン交換樹脂を失わないように注意しつつ、試料水を捨て、陰イオン交換樹脂を先ほどの 500ml ビーカーに追加する。
5. 陰イオン交換樹脂を集めた 500ml ビーカーに温水(60℃程度) 300ml を加え、攪拌し、樹脂が沈殿するのを待つ。
6. デカンテーションにより上澄み液を捨てる。温水が透明になるまでこの操作を繰り返す。
7. イオン交換樹脂を 70℃程度の温度で少し湿り気のある状態にまで乾燥させる。
8. 土壌の処理とほぼ同じ手順を用いて、AgI 試料を抽出・精製する。

ヨウ素を吸着した陰イオン交換樹脂から AgI ヨウ素試料を取り出す手順は土壌から AgI を得る手順とほとんど同じである。

## 2-4 負イオン源システムの開発・改良

$^{129}\text{I}$  静電加速器質量分析は、まずその初段において  $^{129}\text{I}$  の負イオンを生成することから始まる。 $^{129}\text{I}$  静電加速器質量分析用イオン源として要求される性能を列挙する。

1.  $^{129}\text{I}$  の負イオン生成量が多いこと。 $^{129}\text{I}$  の存在量が極めて小さく  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-10}$  から  $10^{-13}$  程度である。従って効率良く短時間で測定を行えるためには、 $^{129}\text{I}$  の生成量が多い事が必要と成る。
2. ヨウ素含有量が少ない試料が多く、例えば水試料では  $0.05\text{mg}/5\%$  程度と極めて少ない。そこで、少量の試料でも測定可能とするために、 $^{129}\text{I}$  から  $^{129}\text{I}$  を生成する負イオン化効率が高いこと。
3. 試料と標準との交互測定が精度良く行えること。この為には、マルチカソード型の自動試料交換機能が付随していることが必須である。
4. 妨害粒子と成る  $^{127}\text{I}$  を完全に除外し、静電加速器に入射されないようになっていること。この為には  $^{129}\text{I}$  と  $^{127}\text{I}$  とを高分解能に分離出来る様にする必要がある。

このような要求を満たし、静電加速器質量分析に適したスパッタリング負イオン源を開発した。また、 $^{129}\text{I}$  と  $^{127}\text{I}$  を明確に分離し、 $^{127}\text{I}$  をビーム光学の中心軸からはずすための、 $^{129}\text{I}^- \cdot ^{127}\text{I}^-$  逐次ビーム走査機構を開発した。

### 2-4-1 $^{129}\text{I}$ - AMS 用イオン源の構成

今回開発した  $^{129}\text{I}$  AMS 用イオン源システムの構成を図 2-4-1 に示した。自動試料交換機構付きマルチカソードスパッタリング負イオン源、ビーム収束用アインツェルレンズ、ビーム進行方向修正用静電ステアラー、 $^{129}\text{I}^- / ^{127}\text{I}^-$  分析用  $120$  度偏向電磁石、 $^{129}\text{I}^- \cdot ^{127}\text{I}^-$  逐次ビーム走査機構、 $^{127}\text{I}^-$  電流読み取り用ファラデーカップ、ビーム収束用 3 連 4 重極レンズ、そして前段加速用  $100\text{KV}$  加速管より構成されている。



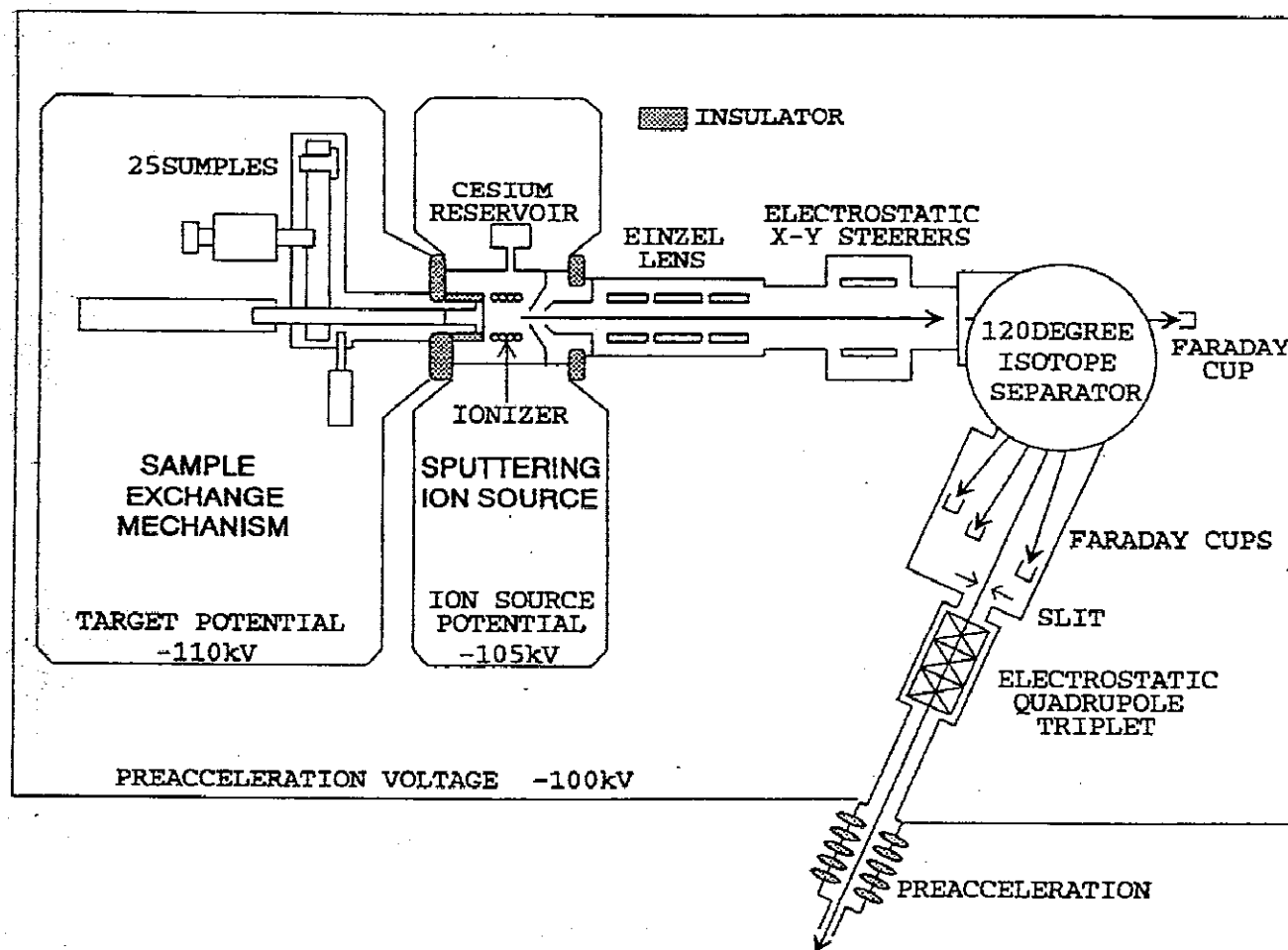


図2-4-1 AMS専用イオン源コース構成図

以下の制約条件の下で、 $^{129}\text{I}$  ビームの転送が最大と成るようにビーム光学の計算機によるシュミレーションを繰り返し、イオン源部分の配置を決定した。

1. イオン源の円錐型引き出し電極に  $^{129}\text{I}$  ビームの最初のスポットがあるとする。つまり、その点を最初の焦点として、イオン源で生成された  $^{129}\text{I}$  ビームが出射してくるとする。
2. アインツェルレンズをイオン源直下に配置し、120 度電磁石の入射面の物点に  $^{129}\text{I}$  の第 2 焦点を持つてくる
3.  $^{127}\text{I}$  計測用ファラデーカップを 120 度電磁石出射面の焦点に設置する。
4. 第 1 焦点面から入射電磁石までのビーム転送効率を 100%にする。
5. 加速器センター 9 階イオン源室建設用スペースに収納できること。

以上の条件を加味したビーム光学のシュミレーション計算の結果を参考に、図 2-4-1 に示す最適であると考え配置で建設を行った。この設計のポイントを列挙しておく。

1. 入射電磁石焦点面を縦フォーカス、横フォーカスの 2 重焦点面とするために、3 連 4 重極レンズを設計製作して使用した。
2.  $^{127}\text{I}$  測定用ファラデーカップより入射電磁石焦点面までの光学的倍率を 2 倍以下となるようにするために、3 連 4 重極レンズを極力上流側に配置した。
3. アインツェルレンズでビームを 120 度電磁石の入射焦点面に形成するようにしたことから、第 3 焦点が 120 度電磁石出射焦点面にビームサイズを保持したまま自動的に形成することが出来た。

## 2-4-2 スパックリングイオン源

イオン源はミドルトンにより開発された高強度イオン電流 Cs スパッタリング型負イオン源を参考にして、新たに設計開発を行った。負イオン生成部での円筒対杯な電場形状が損われないとの条件の下、自動試料交換機構の方式検討をした。最終的には現在手動で行っている方式をそのまま自動化するのが望ましいとの結論を得た。図 2-4-2 に

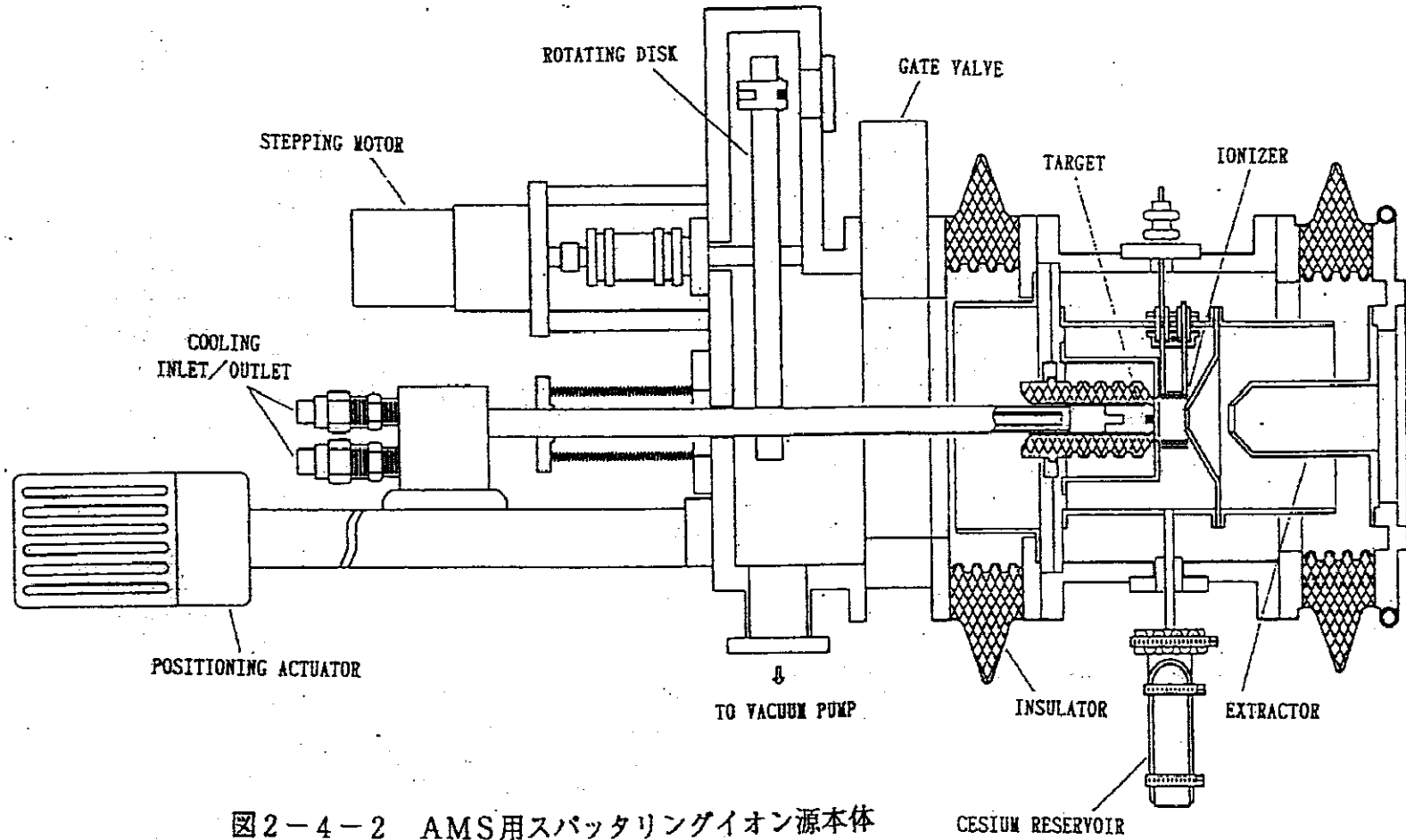


図2-4-2 AMS用スパッタリングイオン源本体

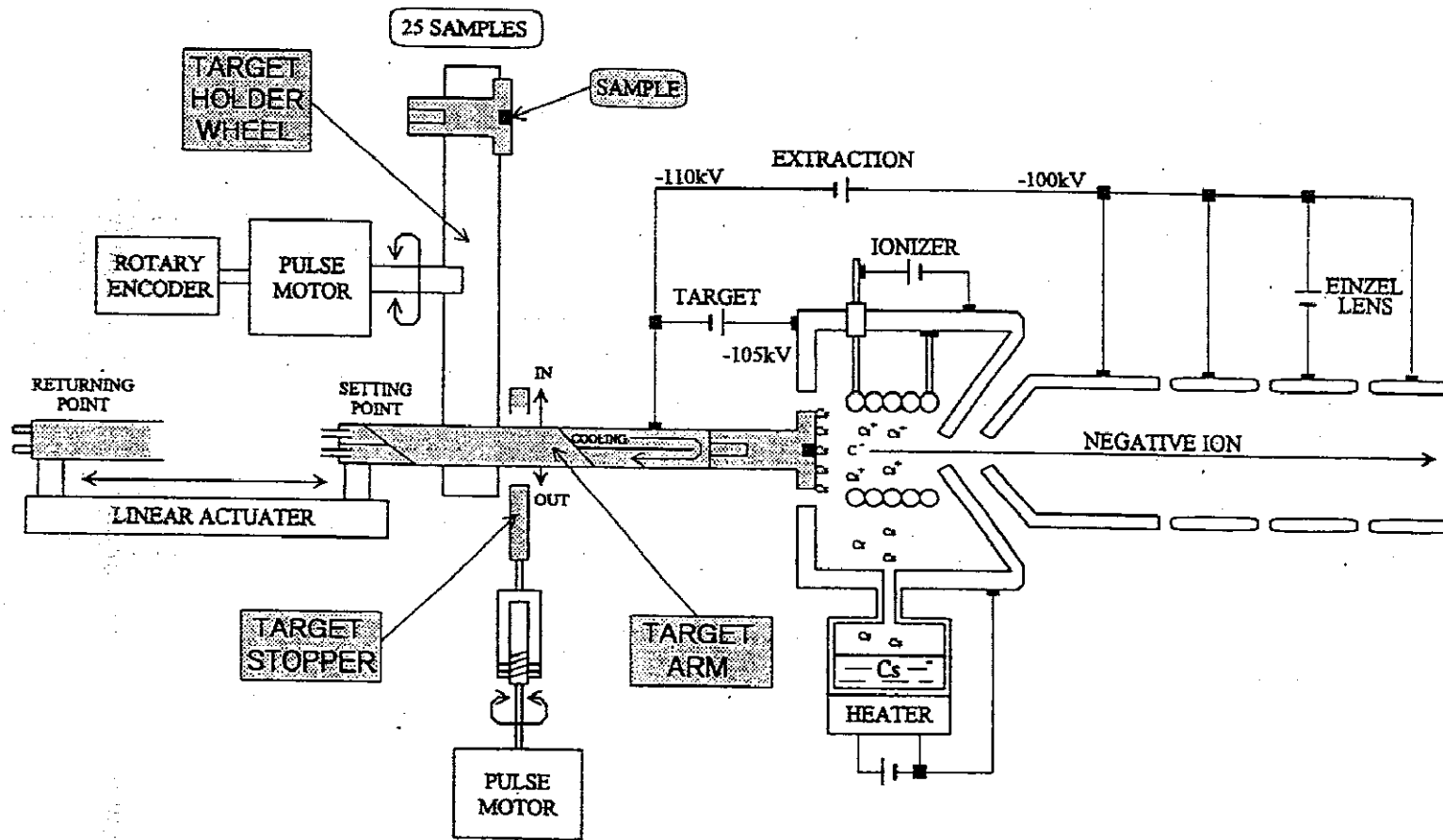


図2-4-3 イオン源動作概念図

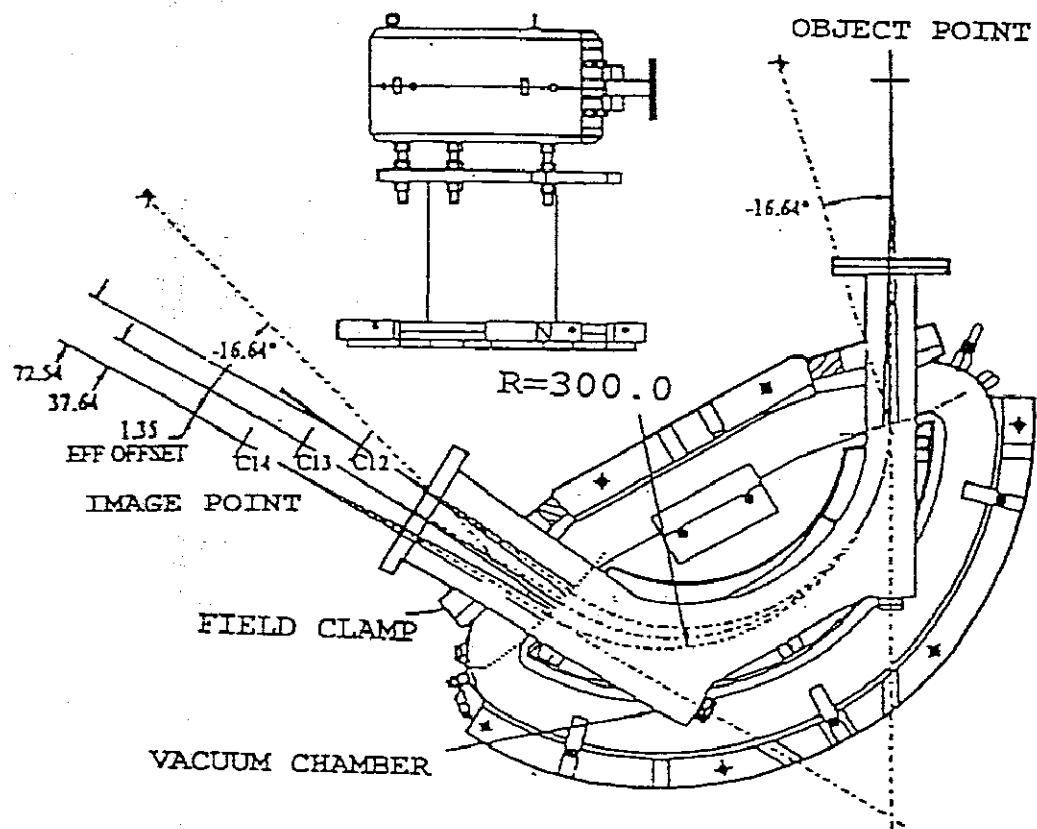
イオン源本体部と自動試料交換機構の断面を、又図 2-4-3 に動作概念図をアインツェルレンズとともに示した。アイオナイザーは円筒コイル型を用いた。半球型の形状の方が Cs のイオン化効率とターゲットへの Cs イオンの収束性が優れている事が知られているが、本研究ではイオン源を安定に作動させることが必須の条件であるので、今までに安定に稼働した実績があり且つ十分な負イオンを発生出来る事がわかっている円筒コイル型を用いた。

試料は銅製ターゲットホルダーの中心部にある直径 2mm の小穴に圧力をかけて充填され、直径 240mm のターゲットホルダー保持円盤にセットされるようになっている。円盤には 25 個のターゲットホルダーを取り付ける事が可能である。既定の位置に回転してきたターゲットホルダーはターゲットアームによって押し出され、イオン源本体部の所定の位置にセットされる様になっている。測定後はターゲットアームによって再び円盤の位置に戻され、円盤が 1 ターゲットホルダー分回転し、次の測定試料が用意されるようになっている。この操作はパーソナルコンピュータにより自動的に行えるようになっている。

図 2-4-4 に同位元素分離用として開発した 120 度 2 極電磁石の外形図を示した。2 次の項までの軌道計算を行い、出射側焦点面で主軌道 ( $\rho = 300\text{mm}$ ) の 2 重収束のみならず同位体の軌道においても 2 重収束が得られる様にした。又、その為に弱収束性を磁場に持たせる必要があり、フィールド指標  $n$  が 1.3 の斜磁場分布とした。

イオン源の性能試験をした結果を図 2-4-5 から図 2-4-7 にまとめた。試料として炭素の結晶であるグラファイトを用い、全負イオンの生成効率を引き出し電圧、ターゲット電圧を変数として調べた。負イオン電流値は 120 度電磁石入射口の 180 度反対側に取り付けたファラデーカップで測定した。

図 2-4-5 はターゲット電圧を変数、引き出し電圧をパラメータとした生成イオン電流の変化を調べた結果をグラフ化したものである。これにより、引き出し電圧が高いほど生成電流が多いことが示されているが、16kV から 18kV の間で大きく増加し、20kV では 18kV とそ



$$\phi = 120^\circ$$

$$\rho = 300 \text{ [cm]}$$

$$M \times E = 1.5 \text{ [amu} \cdot \text{MeV]}$$

$$B = 0.59 \text{ [T] (Max)}$$

$$E = 20 \text{ [keV] (Max)}$$

$$\text{Pole Gap} = 35 \text{ [cm]}$$

Pole Profile :

Semi-Rogowsky

图 2-4-4 同位元素分离用 120 度电磁石 (断面图)

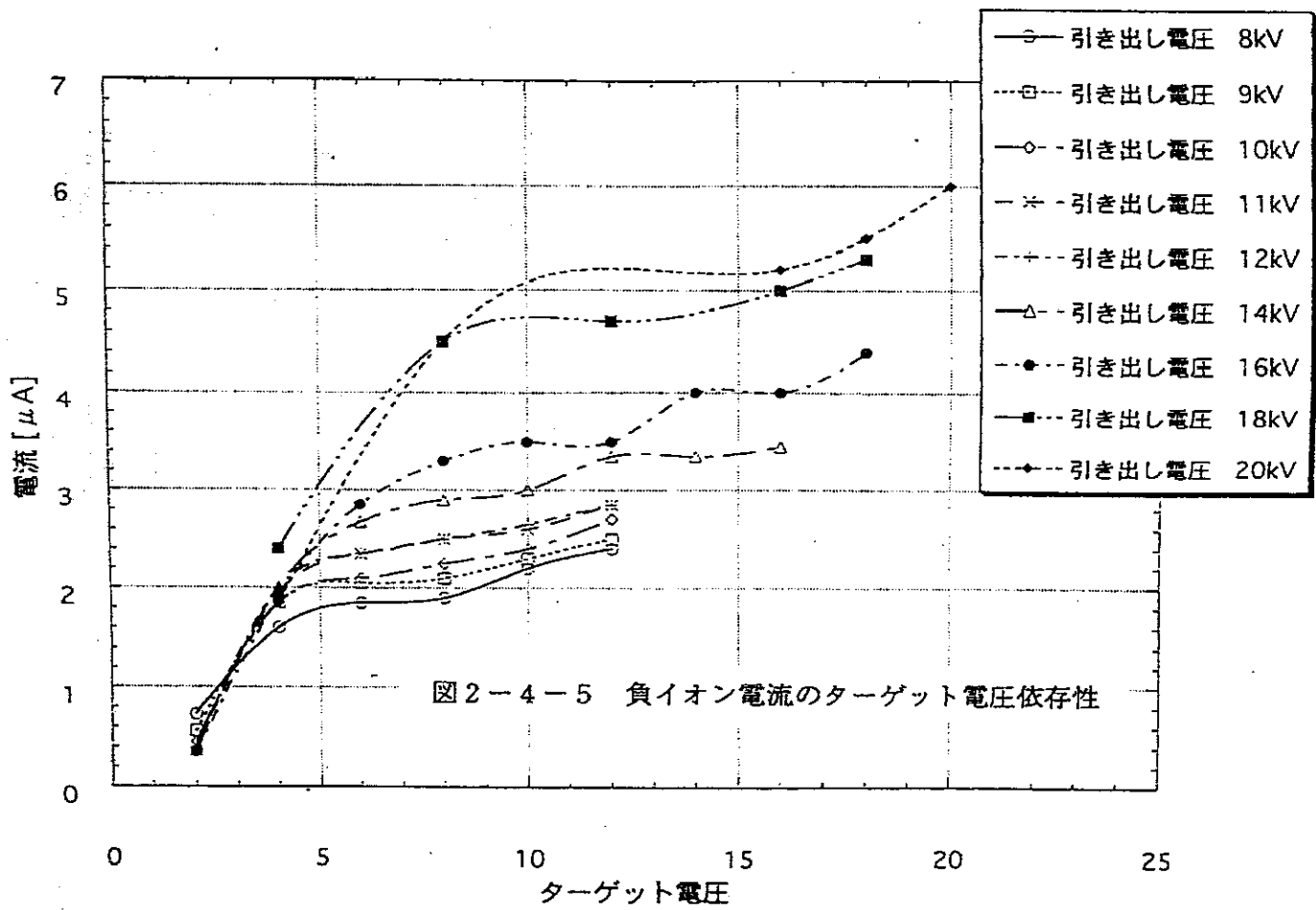


図 2-4-5 負イオン電流のターゲット電圧依存性

図 2-4-5

う変わらない事が分かる。高電圧になるほど放電の危険が増し、装置の安定性が低下する。したがって、引き出し電圧は 18kV が最適であるとの結果を得た。引き出し電圧を変数、ターゲット電圧をパラメータとしたときの生成イオン電流の変化を示したグラフが図 2-4-6 である。ターゲット電圧も高いほど生成電流量も多いことが示されているが、その増加率は 2kV から 6kV の間で大きく 8kV 以上ではそれほどでもない事がグラフよりわかる。ターゲット電圧が高いほど試料のスバッタリング率が高くなり、試料の消費が早まることになり、闇雲にターゲット電圧を上げることは全体的にみて得策でない。又、図 2-4-5 よりターゲット電圧が 10kV から 15kV の間で生成電流量がほぼ一定となっていることも考えると、最適ターゲット電圧は 2kV 近辺であるとの結論になった。イオン源冷却用冷却水温度によるイオン電流の変化を示したグラフが図 2-4-7 である。明かにイオン源温度は高いほうが生成電流量が急激に増えている。ターゲット表面に出来る中性セシウム層が最適と言われている 1.5 層程度になるには、18~20 度程度のターゲット表面温度が良いはずである。今回の様に 26 度に冷却水温度を上げててもまだ電流量が増加する原因は不明である。考えられる事として、セシウム炉からアイオナイザーにセシウム蒸気を導く細管の熱絶縁が悪い事が挙げられ、その結果細管の温度が低すぎ十分な量のセシウム蒸気をアイオナイザーに送り込めていない可能性がある。ともかく、今後解決しなければいけない問題である。

120 度電磁石で負イオンを分析し、 $^{127}\text{I}$  を電磁石出口側焦点に設置したフラデーカップで測定した。セシウム炉温度 120 度、アイオナイザー電流 19A、ターゲット電圧 2 kV、引き出し電圧 15kV の条件のとき  $9\mu\text{A}$  の  $^{127}\text{I}^-$  が得られた。AMS 用イオン源の出力電流としては数  $10\mu\text{A}$  程度は少なくとも必要であり、今後改善すべき点である。セシウム炉温度分布の一様性、ターゲット温度の最適化、イオン源本体部冷却方法の改善などまだまだやるべき事柄が残っており、徐々に改良されて行くものと確信している。



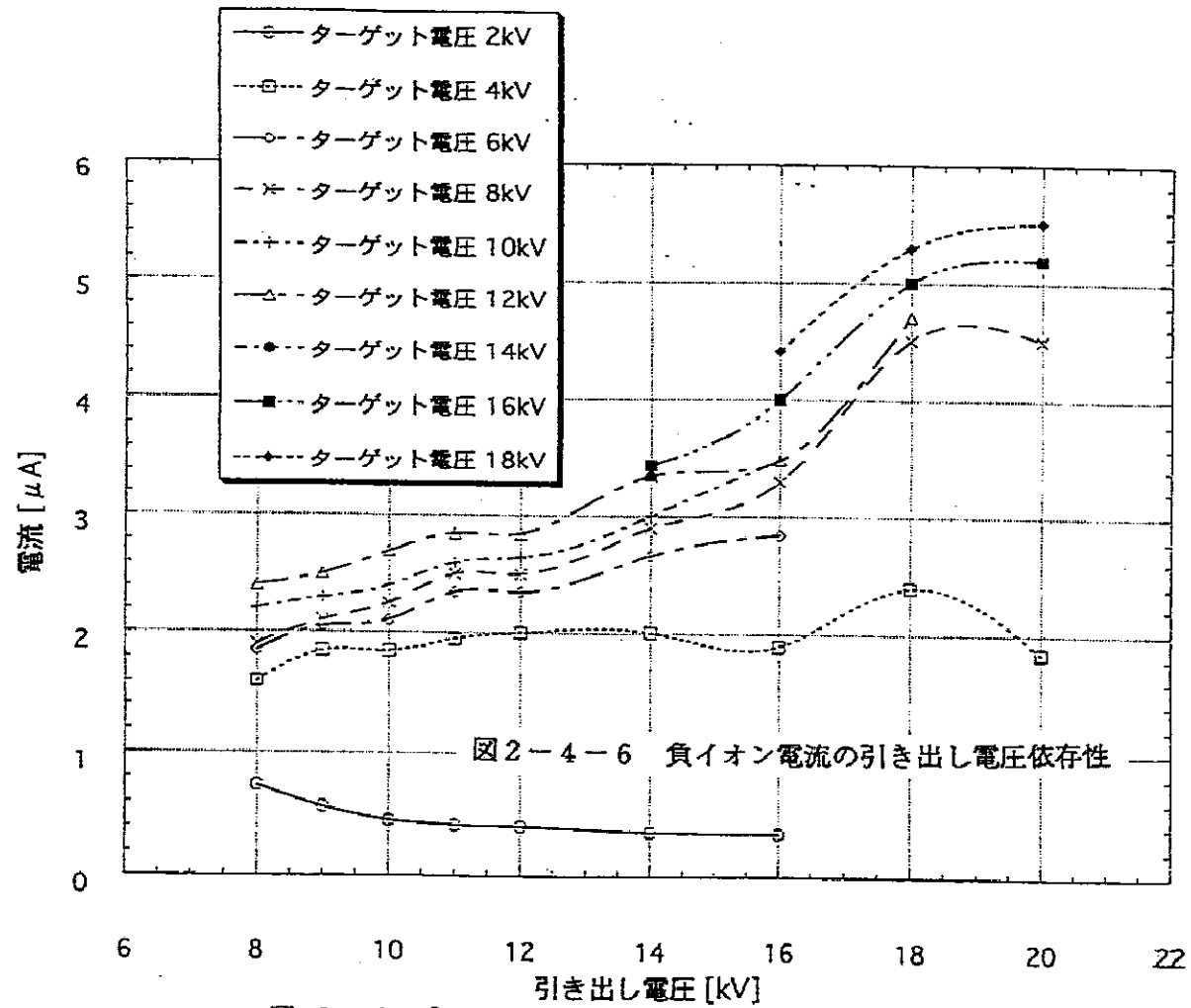


図 2-4-6

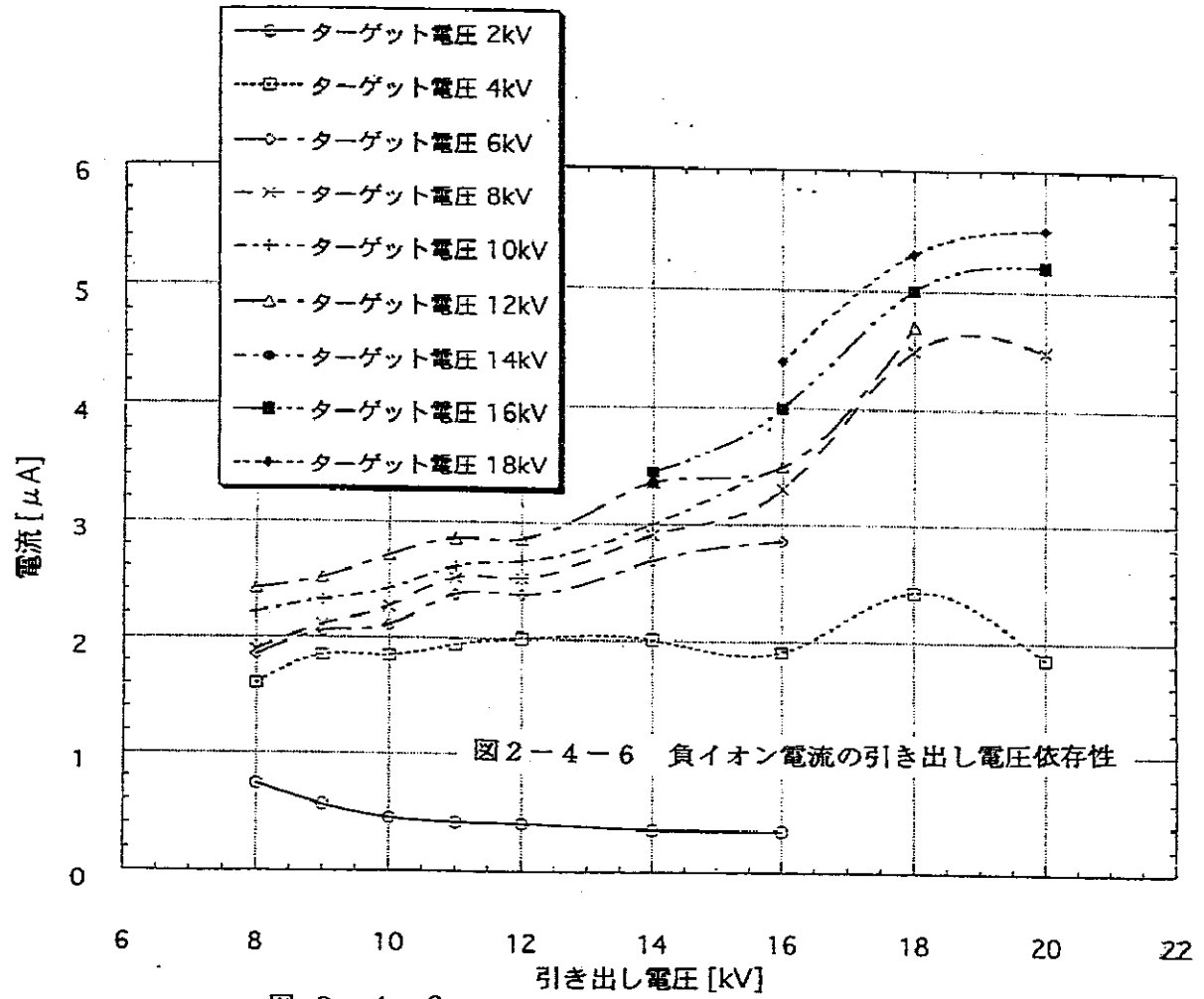


図 2-4-6

## 2-5 12UD 静電加速器の改良

“分子パイロットビーム法”の導入により、既設の12UD静電加速器システム（入射電磁石から分析電磁石間での間）には何らの変更なり改良成りを加えることなく、 $^{129}\text{I}$ -AMSを実現することが出来た。ここで、“分子パイロットビーム法”によるAMSが成立するためには、イオン源において  $^{129}\text{I}^-$  と同時に同じ質量の分子パイロットビームを生成出来、且つ分析電磁石においてパイロット粒子の中に測定粒子と同じ極率半径を持つ粒子が存在していることが必須の条件である。

$^{129}\text{I}$ -AMSでは  $^{97}\text{MoO}_2$  分子をイオン源で生成しパイロットビームとしているが、 $^{129}\text{I}$  と  $^{97}\text{MoO}_2$  とでは構成元素の違いから、僅かながらではあるが質量に差異がある。この差異は、やはり僅かではあるが電磁石での偏向軌道の差、つまり極率半径の差と成って現れる。特に、入射電磁石と分析電磁石においてこの差が現れる。中でも分析電磁石（極率半径=128cm）で生じる極率半径の差異は無視できないほど大きな物と成る。試算の結果では、 $^{129}\text{I}^{12+}$  が分析電磁石の設計半径である128cmの極率半径で偏向したとき、パイロット粒子の  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の回転半径は僅かに大きく、分析電磁石の焦点面において  $^{129}\text{I}^{12+}$  の軌道の5mm下側に  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の軌道が来ることが見積もられた。この違いは極めて大きく、 $^{97}\text{Mo}^{9+}$  で加速器を制御しつつ、 $^{129}\text{I}^{12+}$  を検出器に導くために、次に述べる特殊なAMS専用のスリット機構を開発し、この差異を吸収し、“分子パイロットビーム法”での安定なAMS測定を実現した。

### 2-5-1 $^{129}\text{I}$ -AMS用スリットコントロール

$^{129}\text{I}^{12+}$  が分析電磁石の設計半径である128cmの極率半径で曲げられたとき、パイロット粒子の  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の回転半径は僅かに大きく、分析電磁石の焦点面において  $^{129}\text{I}^{12+}$  の軌道の5mm下側に  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の軌道が来ることが見積もられた。この違いは大きく、例えば、 $^{97}\text{Mo}^{9+}$  を分析電磁石の半径128cmで曲げ、加速器電圧を一定になるように制御を行なうと、 $^{129}\text{I}^{12+}$  はビーム中心より5mm近くも離れた点を通過する事となり、その後のAMS分析系をほとんど通過する事が出来なくなる。そ

ここで、図 2-5 に示す AMS 専用の加速器制御用 2 分割スリットを新たに開発し、より安定な  $^{129}\text{I}$ -AMS を可能とした。

$^{129}\text{I}^{12+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の分析電磁石での回転半径  $\rho_B$  ( $^{129}\text{I}^{12+}$ ) と  $\rho_B$  ( $^{97}\text{Mo}^{9+}$ ) は、前段加速電圧を  $T_P$ 、加速器加速電圧を  $T_T$  として、

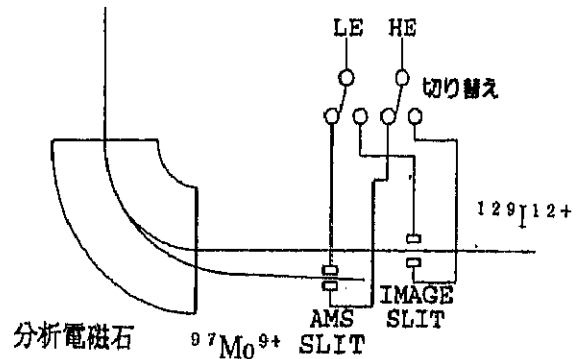


図 2-5 AMSスリットによる加速器制御用スリット電流の読み取り

$$\begin{aligned} \rho_B (^{129}\text{I}^{12+}) &\propto [129 \times (T_P + 13 \times T_T)]^{0.5} / 12 \\ &= (T_P + 13 \times T_T)^{0.5} \times [129^{0.5} / 12] \\ &\approx 0.947 \times (T_P + 13 \times T_T)^{0.5} \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \rho_B (^{97}\text{Mo}^{9+}) &\propto [97 \cdot [T_P + (9 \times (129/97) + 1) T_T] \times (97/129)]^{0.5} / 9 \\ &= (T_P + (9 \times (129/97) + 1) T_T)^{0.5} \times [(9409/129)^{0.5} / 9] \\ &\approx 0.949 \times (T_P + 12.97 \times T_T)^{0.5} \end{aligned} \quad (9)$$

となり、 $T_P=100\text{KV}$ 、 $T_T=9\text{MV}$ として、 $\rho_B (^{129}\text{I}^{12+})$  を分析電磁石の曲率半径である  $128.00\text{cm}$  となるように磁場強度を調整すると、 $\rho_B (^{97}\text{Mo}^{9+})$  は  $128.15\text{cm}$  となり、わずかに大きくなる。その結果分析電磁石の出射側焦点面において、 $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の軌道は図 2-5 に示すように  $^{129}\text{I}^{12+}$  軌道の約  $5\text{mm}$  下側となる。

そこで、 $^{97}\text{Mo}^{9+}$  軌道の約  $5\text{mm}$  下側に、 $^{129}\text{I}$ -AMS 専用の 2 分割スリット (図 2-5) を設置し、このスリットでもって  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  が生成する電流を読み取り、加速器制御のためのフィードバック量として使用する

る事にした。

この措置により、 $^{97}\text{Mo}^{9+}$ をパイロットビームとして $^{97}\text{Mo}^{9+}$ をAMS分析系で分析計数することで、安定に且つバックグラウンドの少ない高精度の $^{129}\text{I}$ 測定を実現できた。AMSスリットを通り抜けた $^{97}\text{Mo}^{9+}$ は、すぐ後方にある通常のイメージスリットの電極にその大部分が当たり、AMS分析系に入り込み偶然のチャンスで検出器に入ってしまう $^{97}\text{Mo}$ の数が極端に押さえられている。この事がパイロットビーム起源によるバックグラウンドがほとんど無い要因の一つとして考えられる。

## 2-6 $^{129}\text{I}$ 分析測定系の建設

加速された $^{129}\text{I}$ と分子パイロットビーム $^{97}\text{MoO}_2$ から生成された $^{97}\text{Mo}$ パイロットや $^{127}\text{I}$ 等のバックグラウンド粒子を識別し、極力目的粒子の $^{129}\text{I}$ のみを測定する為の測定システムで、本試験研究によって新たに開発され加速器センター第2測定室に建設された。

### 2-6-1 構成

図2-1で第2測定室の太線で示した部分が本研究で建設した分析測定系である。第2荷電変換機構、静電偏向器、2極電磁石、実時間粒子飛行時間測定装置(TOF)そして半導体エネルギー検出器より構成され、計算機でビーム光学シミュレーションを繰り返し行い最適解に近い方法で組み合わせ、配置を決めた。

第2荷電変換機構は $^{97}\text{Mo}$ パイロットビームを静電偏向器で分離するために、目的元素の $^{129}\text{I}$ と $^{97}\text{Mo}$ の荷電状態を変えるための装置で、その原理の詳細は2-2-2項で述べてある。荷電状態を変えるための炭素薄膜は、必要に応じてビーム中心に出し入れ出来る機構になっており、粒子を弁別するための静電偏向器や2極電磁石のパラメータ調整の便宜が計られている。静電偏向器は式(2)よりエネルギーを荷電数で除した1荷電当たりのエネルギー( $E/q$ )をパラメーターとし、それを満たす元素のみが中心軌道を通り、選択される。従って静電偏向器だ

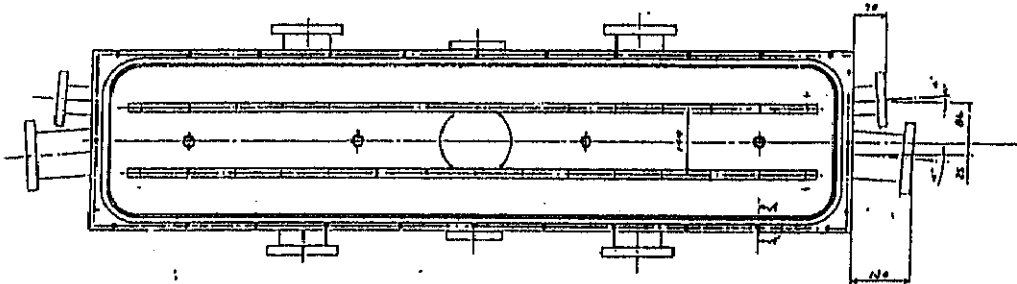
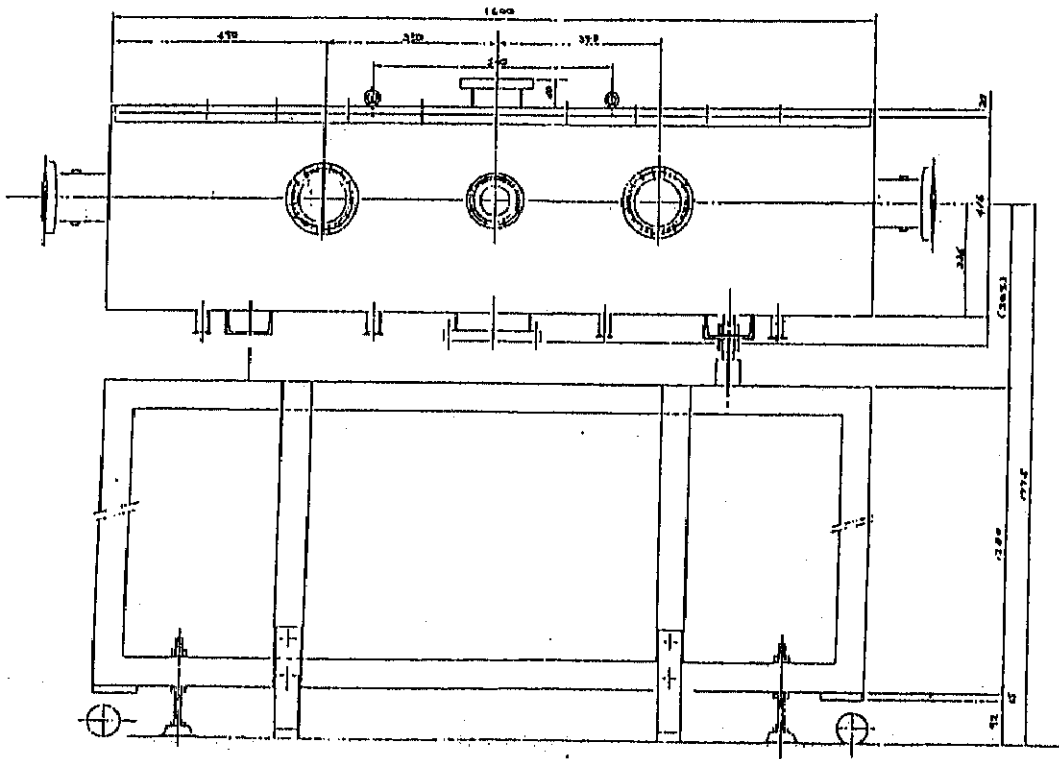


図 2 - 6 - 1 静電偏向器 外觀図



けでは目的元素だけを弁別することは原理上不可能であり、エネルギー、荷電数ともに異なるが、 $E/q$ は同じとなる元素も検出系に入り込んでくる。図 2-6-1 に静電偏向器の外形図を示した。8度の小さな偏向角度でも十分な弁別能を得るように、大きな曲率半径（10m）と長い電極長（140cm）に設計した。又、偏向電圧は最大 100kV で抑えることが出来、コンディショニングなしに、最大電圧を付加できる利便性が得られた。表 2-6-1 に仕様の一覧を示した。

2極電磁石は静電偏向器で選別出来なかったバックグラウンド元素を選別する働きをする。式（1）によって運動量を荷電数で除した 1 荷電当たりの運動量（ $P/q$ ）をパラメーターとし、それを満たす元素のみが中心軌道を通り、選択される。したがって、静電偏向器の条件をすり抜けてきたバックグラウンド元素の大部分が 2 極電磁石によって弁別され、検出器には入らなくなり、静電偏向器との組み合わせで極めてバックグラウンド粒子の少ない測定が可能となった。表 2-6-2 に仕様の一覧を示した。

偏向角	8 度（入射 -4 度、出射 4 度）
曲率半径	10m
偏向電圧	最大 ±50 k V
電極長	140cm
電極幅	150mm
電極間隔	50mm
電極材質	SUS304
真空漏れ量	$1 \times 10^{-9}$ Torr l/秒 以下

表 2-6-1 静電偏向器（エネルギー弁別器）仕様

偏向角	45 度
曲率半径	100 cm
磁極間隔	32 mm
最大磁束密度	1.2 T
収束	2 重収束 (2 D)
入射、出射角度	11.7 度
コイル	200A、0.23 Ω
真空漏れ量	$1 \times 10^{-9}$ Torr l/秒 以下

表 2-6-2 45 度電磁石 (運動量弁別器) 仕様

## 2-6-2 実時間粒子飛行時間測定装置の開発

$^{129}\text{I}$  の存在量が比較的多く  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-12}$  程度より大きい試料の測定は、極力  $^{127}\text{I}$  を静電加速器に入射しないように設計した本システムで実現可能である。しかしながら  $^{129}\text{I}$  が極端に少なく  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-13}$  以下となる試料の測定では、検出器に偶然に近い条件の下で入射してくる  $^{127}\text{I}$  のバックグラウンドが無視できなくなり、時として  $^{129}\text{I}$  がバックグラウンドに埋もれてしまい、測定不能となってしまう。そこで、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-13}$  以下の極微量な  $^{129}\text{I}$  測定をも可能とする為に、実時間粒子飛行時間測定装置を開発した。

$^{127}\text{I}$  が検出器に入り込み  $^{129}\text{I}$  検出の妨害となる原因としては、加速管の真空環境での残留ガスによる荷電交換反応やスリットエッジ等による散乱などによる偶然の現象の結果、最終的に検出器に入射してしまう事などが考えられる。その為、 $^{127}\text{I}$  は連続エネルギー分布をしており、エネルギー弁別や運動量弁別では完全に取り除く事が困難である。 $^{127}\text{I}$  と  $^{129}\text{I}$  を完全に弁別し  $^{129}\text{I}$  のみを測定するという見地から見ると、検出器に入射した  $^{127}\text{I}$  と  $^{129}\text{I}$  の違いは、その質量が異なるという事のみである。

ここで、粒子の質量を  $M$ 、粒子の持つエネルギーを  $E$ 、粒子の速度を  $V$  とすると、 $2E = M \times V^2$  の関係から



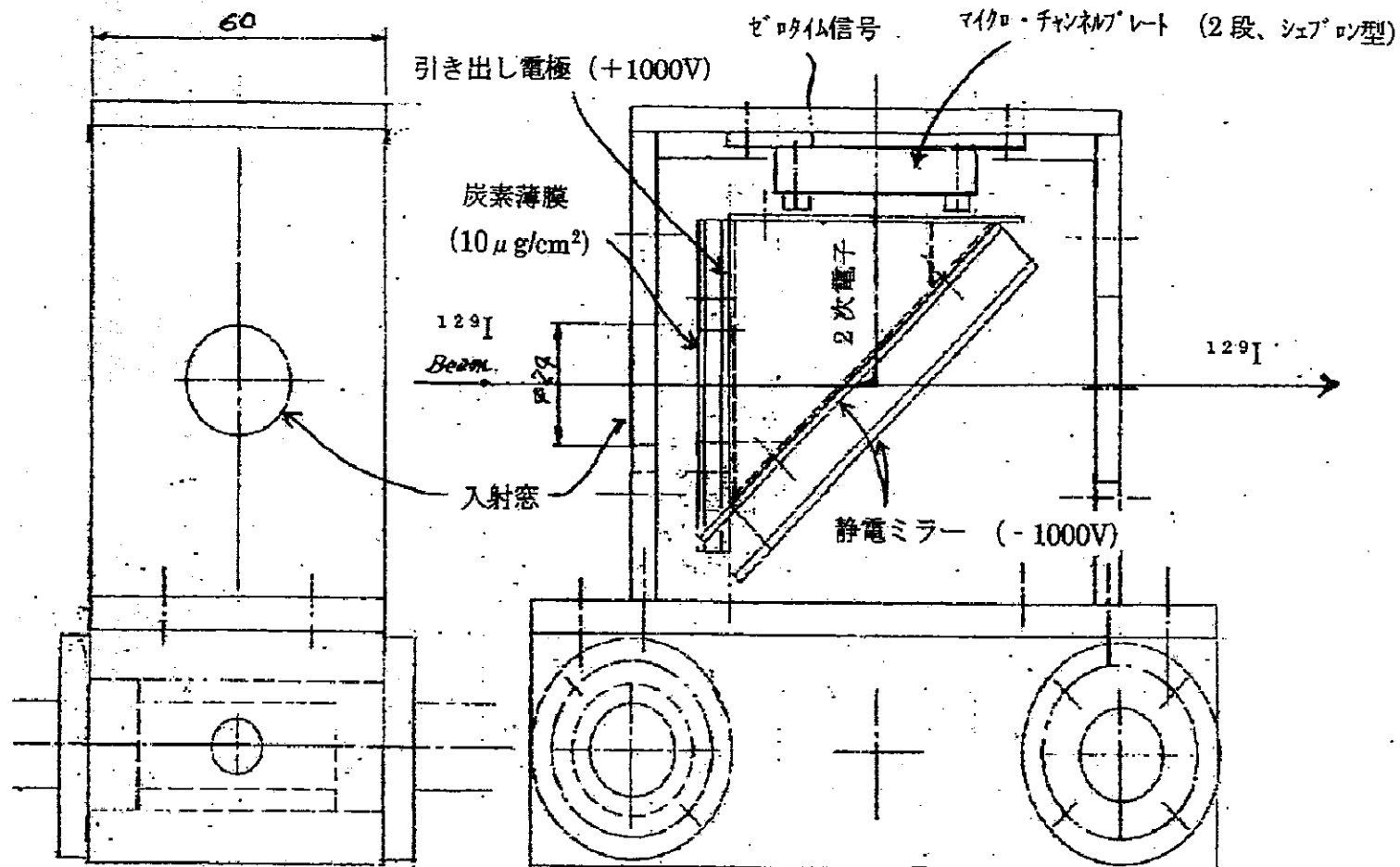


図 2-6-2 粒子通過時間 (ゼロ時間) 検出器

$$M = 2E/V^2 = 2E \times (dL/dt)^{-2}$$

となる。ここで  $dL$  はエネルギー  $E$  の粒子が  $dt$  秒間に進む距離。この式より粒子のエネルギー  $E$  と粒子が一定距離  $L$  ( $dL=L$ ) を進むのに要した時間  $t$  ( $dt=t$ ) を測定する事で、その粒子の質量を知る事が出来る。この原理に基づいて粒子の飛行時間とそのエネルギーを測定し、質量を求める実時間粒子飛行時間測定装置を開発した。

図 2-6-2 に粒子が通過した時のタイミングを正確に信号として発生するゼロ時間信号発生器を示した。 $^{127}\text{I}$  や  $^{129}\text{I}$  の粒子は図で左側から  $24\text{mm}\Phi$  の入り口窓に入射し、そこに貼られた炭素薄膜を通過する。この時入射粒子と炭素原子との電磁相互作用により炭素薄膜から複数個の2次電子が放出される。2次電子は粒子進行方向に掛けられた引き出し電圧 (1000V) により引き出され、粒子と平行に一定速度で進行し、45度に設置された2枚のタングステンに金メッキを施した極細線 ( $d=30\mu\text{m}$ ) のグリッド板で構成されている静電ミラーにより90度曲げられ、シェブロン型のマイクロチャンネル光電子増倍板 (MCP) に導かれる。この時、高エネルギーでかつ質量の重い  $^{127}\text{I}$  や  $^{129}\text{I}$  は静電ミラーに影響される事無く、左側から右側に直進して行く。MCPに入射した電子は、MCPにより $\sim 10^8$ 倍まで電子数を増倍をし、MCPの電子収集電極 (アノード) から、極めて鋭い電気信号として出力される。従って、この電気信号を高速に処理する事で、粒子がこのゼロ時間信号発生器の炭素薄膜を通過した時のタイミングを知る事が出来る。

2台のゼロ時間信号発生器を一定距離離して設置し、粒子がそれぞれを通過する時のタイミング信号の発生する時間差を測定すれば、粒子が一定距離を進むのに要した時間を求める事が出来る。本研究で開発した実時間粒子飛行時間測定装置は、1.5mの間隔に設置した2台のゼロ時間信号発生器とその後方に配置した粒子エネルギー測定用のイオン入射型半導体検出器で構成されている。以下表 2-6-3 に仕様と得られた性能を示す。

入射窓有効径	24 mm
引き出し電圧	1000 V
ミラー電圧	1000 V
ミラーグリッド線	W(Au)線 30 $\mu$ m
2次電子膜	炭素薄膜 (10 $\mu$ g / cm <sup>2</sup> )
MCP	有効径 24.8mm、2枚
MCP 電圧	1000 V $\times$ 2
電子増倍率	10 <sup>8</sup>
運転時真空度	1 $\times$ 10 <sup>-7</sup> Torr 以下
時間分解能	1 ns

表 2-6-3 ゼロ時間信号発生器 仕様

### 2-6-3 配置と光学系

電子計算機によるビーム転送シュミレーションを行い、第2荷電変換機構、静電偏向器、2極電磁石、そして $\Delta E-E$ 検出器の最適な配置を決めた。制約条件は第2測定室に配置し、かつ壁との間に2m以上の空間が確保できることであり、この制約条件の下、ビーム転送効率が100%、検出器上でのビームの直径が $\pm 2$ mm以下となる解をシュミレーションを繰り返して探した。

図 2-6-3 に最終的なビーム転送の光学系計算結果を示す。シュミレーションは分析電磁石の出射側焦点(IM)より検出器まででおこなった。図中点線は焦点IMを大きさ $\pm 2$ mmで光軸に平行に入射したビームの軌跡と焦点IMの光軸上で光軸に射して2mradの角度を持って入射したビームの軌跡の包絡線である。加速器からは2mradより小さい角度で入射してくると加速器機器の配置関係から見積もれる。そこで、この包絡線が測定系のどこの場所でも機器の内径を超えていないので焦点IMより検出器まで計算上は100%のビーム転送が得られている事になる。

電極長が140cmと長い静電偏向器ではビームを平行に転送するのが一番単純で且つビーム転送が容易であるから、焦点IMの次の焦点

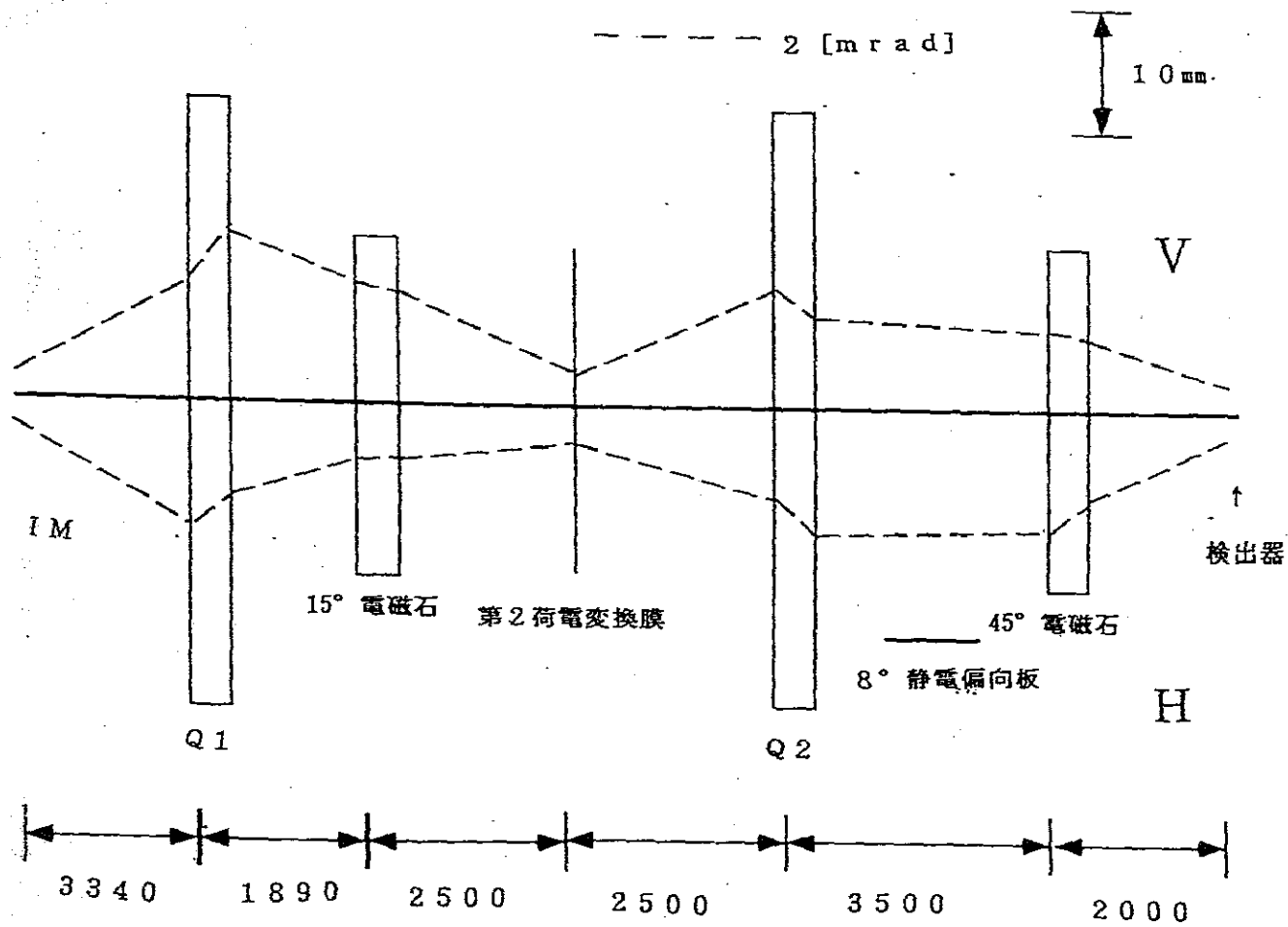


図2-6-3  $^{129}\text{I}$ 測定系のビーム転送計算と光学装置の配置

面である第2荷電変換膜と静電偏向器の間に収束用の2連4重極電磁石を配置し、この4重極電磁石から静電偏向器を通過して45度電磁石までの間を平行ビームで転送するように設計した。

焦点IMと検出器での焦点の倍率は図2-6-4から分かるようにほぼ1で、検出器上で±2mmのサイズにビーム径がなっている。このことはビーム転送実験において確かめられた。検出器上でのビーム形状はやや横長になっていることが観察されているが、静電偏向器にフィールドクランプを取り付ける事で円形のビーム形状にする事が出来た。

### 3 性能確認実験

本試験研究で開発したシステムの総合性能を確認する為の  $^{129}\text{I}$  検出実験を行なった。実験は主に以下の点に主眼をおいて遂行された。

- (1)  $^{97}\text{MoO}_2$  —  $^{97}\text{MoO}^{9+}$  パイロットビームの性能確認
- (2) 試料調整における  $\text{AgI}$  と  $^{97}\text{MoO}_3$  の最適混合比の確認
- (3) 入射電磁石のフラットトップ特性
- (4)  $^{129}\text{I}$ -AMS 用 2 分割スリットの性能確認
- (5) 実時間粒子飛行時間測定装置の性能確認
- (6)  $^{129}\text{I}$  測定の感度、安定性、S/N 比

AMS システムとしての総合性能を調べるのには、安定にイオンが生成出来、且つ濃度が正確に分かっている標準試料が必要である。したがって、ヨウ素試料を用いて装置を組み合わせたハードウェアとしての総合性能を評価するのは適当でなく、常に安定にイオンが生成出来、かつ素性のしっかりしている試料を用いる必要がある。そこで、本研究では、従来より安定に測定が可能となっており、濃度を正確に決める事の出来る塩素 (Cl) 試料を使用して、AMS システムの性能確認を行なった。そこで得た結果にもとづいて、複数の標準ヨウ素試料を用いて、 $^{129}\text{I}$ -AMS システムの性能を確認し、“ $^{97}\text{MoO}_2$  パイロットビーム法” による  $^{129}\text{I}$ -AMS が実現できる事を示した。

#### 3-1 $^{36}\text{Cl}$ による基本性能の確認

主に宇宙線起源で生成される  $^{36}\text{Cl}$  の特長は  $3.0 \times 10^5$  年もの長い半減期を持つ超長寿命放射性同位元素である。又、その存在比は低く ( $< 10^{-15}$ ) 崩壊放射線による測定は困難をきわめており、本研究の静電加速器質量分析法が唯一の方法として期待されている。 $^{14}\text{C}$  では不可能であった 10 万年から 100 万年前の年代同定が  $^{36}\text{Cl}$  の 30 万年という長い半減期を利用することで可能となり、数十万年にもおよぶ地下水の挙動の研究等に応用されるものと考えられる。さらに、 $^{36}\text{Cl}$  は宇宙線

と大気の  $^{40}\text{Ar}$  の核反応から生成される他に、中性子捕獲反応  $^{35}\text{Cl} (n, \gamma) ^{36}\text{Cl}$  や速中性子による  $^{39}\text{K} (n, \alpha) ^{36}\text{Cl}$  反応により地球地殻内でも生成される事から地球物理分野の研究道具となるものと思われる。また、宇宙線による隕石成分の Fe, Co, Ni 等の核破砕反応からも生成され、隕石の年齢、履歴等の研究にも応用されるものと考えている。標準  $^{36}\text{Cl}$  試料を原子力研究所の JRR-3 中性子炉を用いて次の条件で生成した。

照射場所	JRR-3 中性子炉気送管
被照射物	NaCl (40mg)
核反応式	$^{35}\text{Cl} (n, \gamma) ^{36}\text{Cl}$ $\sigma_n = 43.6 \text{ Barn}$
照射時間	20 分間
熱中性子束	$6 \times 10^{13} [\text{cm}^2 \text{ 秒}]^{-1}$
$^{36}\text{Cl}$ 放射能	$1.8 \times 10^9 [\text{Bq}]$
$^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$	$7.9 \times 10^{-5}$

なお、 $^{36}\text{Cl}$  のほかに、 $^{37}\text{Cl} (n, \gamma) ^{38}\text{Cl}$ ,  $^{23}\text{Na} (n, \gamma) ^{24}\text{Na}$  反応による  $^{38}\text{Cl}$ ,  $^{24}\text{Na}$  生成物が同時に出来ており、109 Bq 程度の強い初期放射能があった。しかしながら、これらはそれぞれ 37.2 分と 15 時間の比較的短い半減期で崩壊し元に戻る。そこで、 $^{38}\text{Cl}$ ,  $^{24}\text{Na}$  を十分に減衰させる処置として照射後 50 日間放置し冷却した。その後に試料作りの為の化学分離を行った。

NaCl のままでターゲット試料とすると、NaCl の電気絶縁性が高いため、イオン源内で試料が多量の電荷を帯び放電が発生する。そこで、NaCl に硝酸銀 ( $\text{AgNO}_3$ ) を用いて、NaCl から AgCl に変えた塩化銀の形で用いた。又、この過程で NaCl を多量に加え  $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$  比で  $7.9 \times 10^{-5}$  から  $8 \times 10^{-11}$  に希釈し測定可能な濃度の試料にした。この ~100 万倍に薄める操作を正確に行うことは至難の技であって、極力注意を払って行われたが、 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$  比に比較的大きな誤差があるものと考えている。

ターゲットは試料 (AgCl)、グラファイト、Ag の混合物として用意した。グラファイトは分子パイロットビーム ( $^{12}\text{C}_9^{-1}$ ) 生成の為に入れた。割合は 1000 : 3 : 2000 でグラファイトはほんのわずかであるが十分な量の  $^{12}\text{C}_9^{-1}$  ビームを発生させる事が出来た。

次に  $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$  比で  $8 \times 10^{-11}$  の試料の実験で得た  $^{36}\text{Cl}$  検出設定条件をまとめておく。

$^{35}\text{Cl}$ 生成電流	1.2 $\mu\text{A}$	
$^{12}\text{C}_9$ 生成電流	$\sim 10\text{nA}$	
加速電圧	10MV	
加速器系ビーム転送効率	17% (含む第 1 荷電変換効率)	
検出系ビーム転送効率	32.5% (含む第 2 荷電変換効率)	
$^{36}\text{Cl}$ 計数率	$\sim 320$ カウント/分	
加速粒子の選択		
イオン源	加速ビーム	検出粒子
$^{36}\text{Cl}^{-1}$	$^{36}\text{Cl}^{9+}$ 100MeV	$^{36}\text{Cl}^{14+}$

図 3-3-1 に  $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$  比  $8 \times 10^{-11}$  の試料を測定した結果の 2 次元スキヤッタプロットを示した。データは実時間粒子飛行時間測定装置で計測した。測定時間は 30 分で、横軸がエネルギー、縦軸が質量の違いを表わす飛行時間を表わしている。量としては少ないがパイロットビームの  $^{12}\text{C}$  が検出されている。これは真空中の残留ガスと荷電交換反応をおこし、偶然に 45 度電磁石の偏向条件に合致し、検出器に届いたものである。測定粒子とほぼ同じ質量の安定同重体が存在しない  $^{14}\text{C}$ 、 $^{26}\text{Al}$  測定と異なり、 $^{36}\text{Cl}$  測定では測定に妨害をとなる  $^{36}\text{S}$  元素が安定同重体として存在している。同重体同士を電磁場で完全に弁別することは原理的に不可能である。SIMS 等従来の質量分析法では、同重元素を識別することは不可能でこれらの測定法の限界となっている。加速器質量分析法においても電磁場を用いている事には変わらず、同重元素を識別することは原理的に不可能である。事実、小型の静電加速



器をもちいた加速器質量分析装置では同重元素のない  $^{14}\text{C}$  測定等に限定しているのが現状である。

しかるに、図 3-3-1 から明白なように本方法では、 $^{36}\text{Cl}$  と  $^{36}\text{S}$  とが明瞭に識別されて測定されている。ここに、従来にない本試験研究での大型静電加速器を用いた特長が現われており、同重体をも識別しつつ極微量の元素の測定が可能となった。特長を箇条的にまとめておく。

1. 大型タンデム静電加速器で粒子を加速し、薄膜を通過させることで同重分子を完全に取り除く。
2. 従来より格段の高いエネルギーを粒子に与える事で、原子核研究で開発された粒子識別技術を応用できるようになり、同重体を識別しつつ目的粒子を計測できる。

以上  $^{36}\text{Cl}$  を用いて“分子パイロットビーム法”による AMS システムとしての基本性能を確認する事が出来た。この成果を下に、I-129 AMS システムとしての性能確認実験を遂行した。

## 4 ヨウ素 129 測定実験

ヨウ素 129 測定のために開発した  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ビーム逐次走査装置、加速器電圧制御用 2 分割スリットコントロール装置、及び実時間粒子測定装置の性能  $^{36}\text{Cl}$  ビームを用いて行った。その結果  $^{129}\text{I}$  測定に必要な性能を達成していることを確認する事が出来た。そこで、これらの装置を 12UD 静電加速器システムに結合し、ヨウ素 129 超高感度元素分析システムを構築し、本研究の主目的である  $^{129}\text{I}$  の測定実験を試みた。実験は 3 段階に行った。まず、“ $^{97}\text{MoO}_2$  分子パイロットビーム法”の性能を調べる実験を行い、次に 3 種類の標準ヨウ素試料を用いて  $^{129}\text{I}$  の検出実験を行った。最後に  $^{129}\text{I}$  を含まないヨウ素試料(ブランク試料)の測定実験を行い感度等のチェックを行った。実験は極めて順調に推移し、極微量の環境中に存在する  $^{129}\text{I}$  を超高感度に測定することに成功した。そこで、以下に順を追って測定実験結果を述べる。

### 4-1 $^{97}\text{MoO}_2$ パイロットビーム

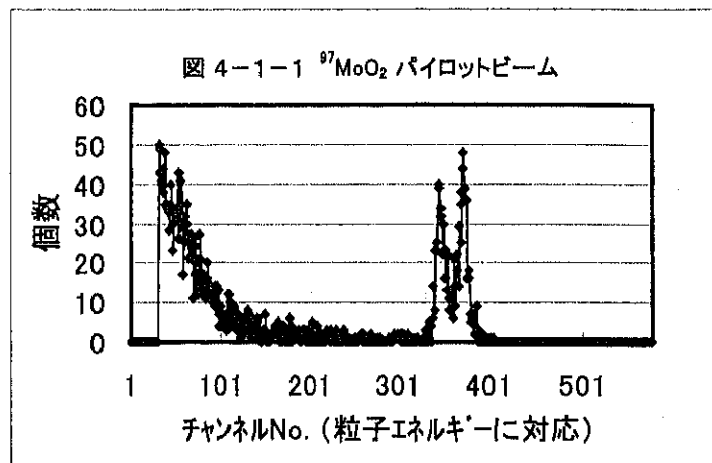
予備実験の  $^{36}\text{Cl}$  測定では  $^{12}\text{C}_3$  の炭素が 3 つ集まった 3 重分子を“分子パイロットビーム”として加速器を制御することに成功し  $^{36}\text{Cl}$  を測定できることが解った。一方、 $^{129}\text{I}$  測定では  $^{97}\text{MoO}_2$  を分子パイロットビームとして加速器を制御する必要がある。 $^{12}\text{C}_3$  分子と違い  $^{97}\text{MoO}_2$  は同一元素が結合した分子ではない為に、分析電磁石を通過する目的元素とパイロット元素の組み合わせが  $^{36}\text{Cl}$  測定より複雑になる。 $^{36}\text{Cl}$  測定ではほとんど磁気リジリティーが同じである  $^{36}\text{Cl}^{9+}$  と  $^{12}\text{C}^{3+}$  の組み合わせで試験を行ったが、 $^{129}\text{I}$  測定では、 $^{129}\text{I}^{12+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の組み合わせで測定を試みる。ここで、 $^{129}\text{I}^{12+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の磁気リジリティーは同じでなく、分析電磁石の出射焦点面では  $^{129}\text{I}^{12+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  の軌道に 5mm ほどの差が生じる。そこで、 $^{129}\text{I}$  測定用に新たに 2 分割スリットを開発し、この差を克服する予定としている (2-2-2 項参照)。

この 2 分割スリットを用い、 $^{97}\text{MoO}_2$  分子ビームがパイロットとして予定通り機能し、加速器の電圧を安定に制御できるかを調べるのがこ

の実験の目的である目的である。

試料としては  $^{97}\text{Mo}$  が約 93% と濃縮された  $^{97}\text{MoO}_3$  を用い、イオン源にセットし、 $^{97}\text{MoO}_2^-$  イオンを生成した。ヨウ素のない  $^{97}\text{MoO}_3$  100% の試料で実験を行った。図 4-1-1 に実験結果のグラフを示す。横軸が  $^{97}\text{Mo}$  のエネルギー、縦軸が計測した  $^{97}\text{Mo}$  の個数である。粒子が走る加速管や真空ダクト内の真空状態が理想的に超高真空で、かつ粒子が

飛行する空間に粒子の飛行を妨げるスリットなどの構造物がないとすれば、“ $^{97}\text{MoO}_2$  分子パイロットビーム法”の原理から、検出器に到達する  $^{97}\text{Mo}$  は皆無かあっても極



めて微量と予測される。しかしながら、加速器の加速管や真空抱くとの真空度はそれほど高くなく  $10^{-6}$  から  $10^{-7}$  Torr 程度である。この為に  $^{97}\text{Mo}$  は飛行中に真空中の残留ガスと荷電交換反応を盛んに起こし、その結果  $^{97}\text{Mo}$  は多数のエネルギー状態を持つようになる。結果として幾つかのエネルギー状態の  $^{97}\text{Mo}$  が検出器に到達し図 4-1-1 のようなエネルギースペクトラムを示す事となる。このデータが取れたということは、 $^{97}\text{MoO}_2$  パイロットビーム法で加速器が安定に制御できたことを示している。

加速器の電圧を  $^{129}\text{I}^{12+}$  の割合が最も多くなると考えられる 9.68MV 一定と成るように  $^{97}\text{MoO}_2$  分子パイロットビーム法で制御した。図 4-1-1 の 2 山は  $^{97}\text{Mo}^{10+}$  と  $^{97}\text{Mo}^{8+}$  で本来は検出に到達し得ないはずのものが、前述の現象で偶然に検出器に入射したものである。又、低エネルギー側の連続エネルギー部分は、 $^{97}\text{Mo}^{8+}$  が電磁石の真空箱やスリット等にぶつかって前方に散乱を受けエネルギーを損失しながら検出器にやはり偶然に捕らえられたものである。

これら  $^{97}\text{Mo}$  の計数率が高いと測定器の不感時間を増加させ、本来の  $^{129}\text{I}$  測定効率を低下させてしまう。そこで、 $^{97}\text{MoO}_2$  パイロットの電流値は加速器の制御

が不安定にならない範囲で極力すくないほうがよい。 $^{97}\text{MoO}_2$  の加速器への入射量を  $0.1\text{ nA}$  から  $5\text{ nA}$  まで変化させ、加速器の安定性を調べた。その結果を図 4-1-2 に示す。 $^{97}\text{Mo}$  が  $1\text{ nA}$  以上では加速器の転送効率に変化は見られなかった。詳細をよく見る為に図には  $0.15\text{ nA}$

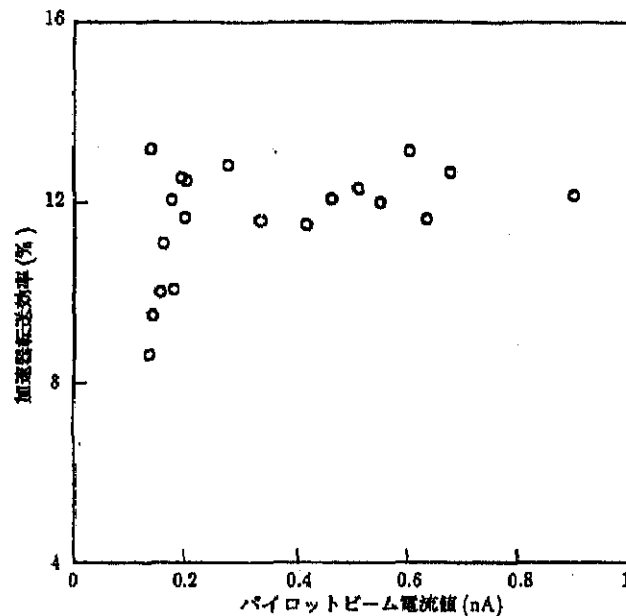


図 4-1-2  $^{97}\text{Mo}$  パイロット対  
加速器電圧安定性

から  $1\text{ nA}$  までを示した。 $^{129}\text{I}$  用 2 分割スリットでの  $^{97}\text{Mo}$  電流値が  $0.3\text{ nA}$  以下になると加速器の電圧安定性が悪くなり、 $0.3\text{ nA}$  以上  $5\text{ nA}$  までは変化なく加速器の電圧は一定に制御できることがわかった。制御安定性とバックグラウンド減少を考慮すると、 $^{92}\text{M}$  パイロットビームの強度は  $1\text{ nA}$  程度が最適であるとの結論を得た。

## 4-2 標準ヨウ素試料の測定

$^{97}\text{MoO}_2$  分子パイロットビームにより、加速器を安定に制御可能である事を確認できた。そこで、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比が既知の 3 種の標準ヨウ素試料を用いて  $^{129}\text{I}$  検出実験を行なった。

ヨウ素試料の化学形はすべて導電性の  $\text{AgI}$  とし、イオン源内で電荷蓄積による放電が起こらないようにした。用意した標準試料の一覧を表 4-2-1 に示した。試料 2 と試料 3 は試料 1 に試薬の  $\text{AgI}$  を加える希釈操作で作成した。この希釈操作での誤差はかなり大きいものと見積

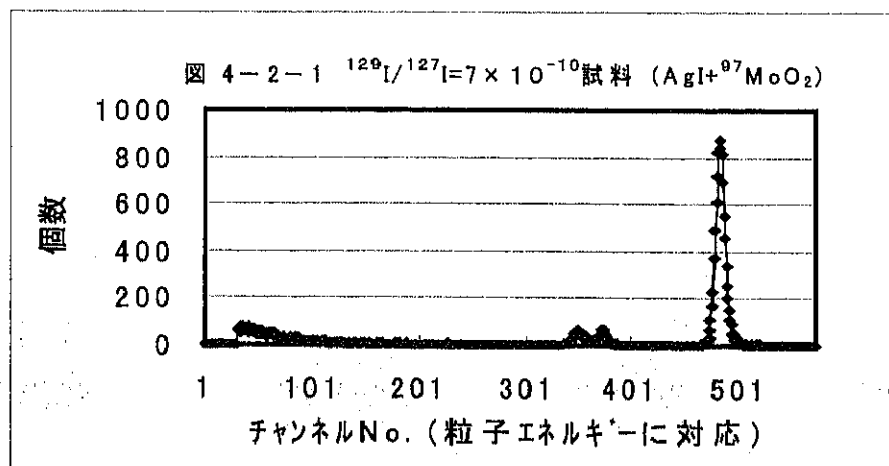
もられ、30%から40%の誤差が生じている。将来、誤差の小さい標準試料を作成する手順を確立する必要がある。

表 4-2-1 標準  $^{129}\text{I}$  試料一覧

標準試料	試料 1	試料 2	試料 3
$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比	$7.0 \times 10^{-10}$	$7 \times 10^{-11}$	$7 \times 10^{-12}$
誤差	10%	30%	40%

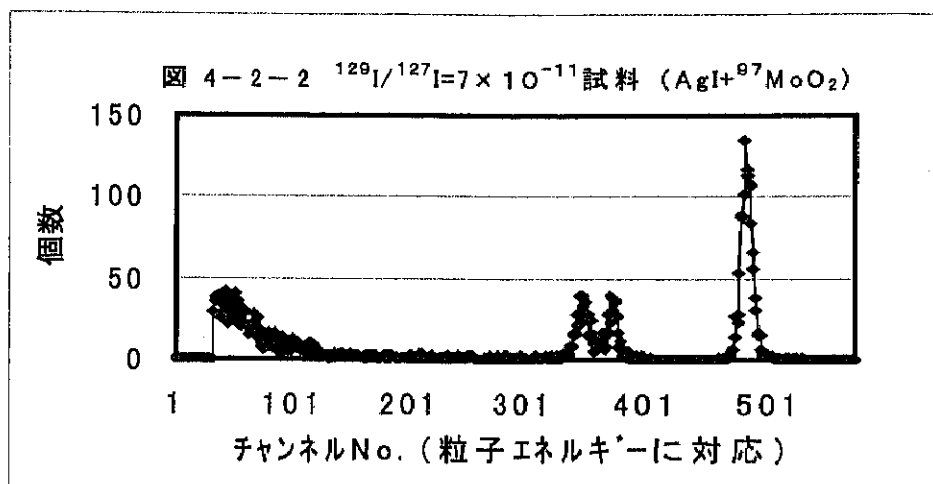
AgI 試料に  $^{97}\text{MoO}_3$  を質量比で 10:1 の割合で混合し、イオン源に挿入する為の試料ホルダーに充填した。試料ホルダーの中心には直径 1.5mm の円形穴が空けられており、この穴に試料を圧力約  $200\text{g重}/\text{cm}^2$  で圧入する事で充填した。イオン源で生成される  $^{97}\text{MoO}_2^-$  イオン量がおおよそ 10 nA 程度となるように混合比 10:1 を決めた。10 nA の  $^{97}\text{MoO}_2^-$  イオンが加速器に入射加速され、2 分割スリットに  $^{97}\text{Mo}^{9+}$  として到達した時の電流量はおおよそ 1 nA と予定する最適値になる。

図 4-2-1 から図 4-2-3 に試料 1 から試料 2 を測定した時のエネルギースペクトラムを示した。測定は  $^{129}\text{I}$  のイオン源での残留効果を最小限に押さえる為に、 $^{129}\text{I}$  含有量の少ない試料 3 から始め、試料 2、試料 1

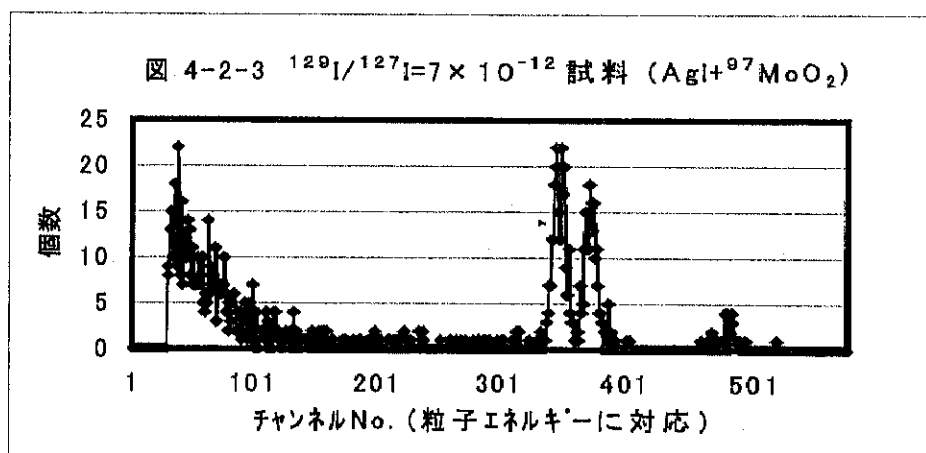


の順に測定をした。各試料とも 3 回測定を繰り返し、その平均値を測定値とした。 $^{97}\text{MoO}_2^-$  のみの時のスペクトラム (図 4-1-1) と比較する

と  $^{97}\text{Mo}$  が作る 2 つのピークより上に、新たに大きなピークが現れている事が分かる。このピークのエネルギーは



おおよそ 126 MeV であり、 $^{129}\text{I}^{12+}$  の持つエネルギー 125.8 MeV にほぼ等しい。又、試料 1、試料 2、試料 3 で、このピークの面積を比べる



とほぼ 100 : 10 : 1 となっている事が分かる。更に、このピークは  $^{127}\text{I}$  が作るバックグラウンドピークでない事が次のプランク測定結果から明白となる。以上の考察から、このピークは  $^{129}\text{I}^{12+}$  であり、目的とする  $^{129}\text{I}$  が検出された事を示している。

イオン源で生成される  $^{127}\text{I}$  イオンは 120 度電磁石の出射側焦点面に新たに設けられた  $^{127}\text{I} \cdot ^{129}\text{I}$  逐次走査型電流検出器で読み取った。 $^{127}\text{I}$  の平均電流値は試料 1、試料 2、試料 3 でそれぞれ  $4 \mu\text{A}$ 、 $3 \mu\text{A}$ 、 $2 \mu\text{A}$  であった。 $^{97}\text{Mo}$  パイロットは試料 1、試料 2、試料 3 でそれぞれ

1 nA、0.5 nA、0.5 nA であり、加速器電圧を高精度に制御できた。又、 $^{129}\text{I}$  ピークに妨害となる粒子の検出は認められず、高精度の測定が為されたものと考えている。

試料 1 の測定結果を  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比の  $7 \times 10^{-10}$  に基準化し、試料 2 及び試料 3 の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比を求め、計算値との比較を表 4-2-2 に示した。なお、測定値の誤差は、統計誤差と 3 回の測定の偏差のみを示し、標準試料の誤差は考慮していない。

表 4-2-2 測定値と計算値の比較

標準試料		試料 1	試料 2	試料 3
計算値	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比	$7.0 \times 10^{-10}$	$7 \times 10^{-11}$	$7 \times 10^{-12}$
	誤差	10%	30%	40%
測定値	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比	$7 \times 10^{-10}$	$6 \times 10^{-11}$	$8 \times 10^{-12}$
	誤差	15%	20%	25%

“ $^{97}\text{MoO}_2$  分子パイロットビーム法”により、 $^{129}\text{I}$  を測定する事に成功した。繰り返し測定の再現性が不十分で、測定毎のばらつきが大きく、それが測定誤差を大きくしている。

### 4-3 バックグラウンド

本研究でのバックグラウンドは目的とする  $^{129}\text{I}$  以外の粒子や事象により発生し、 $^{129}\text{I}$  計数値に紛れ込んでくる事象の総称である。バックグラウンド計数が多いほど  $^{129}\text{I}$  測定値の不確かさが増大し、測定精度の低下を引き起こす。したがって、バックグラウンドを極力少なくする事が高精度測定には必要不可欠である。

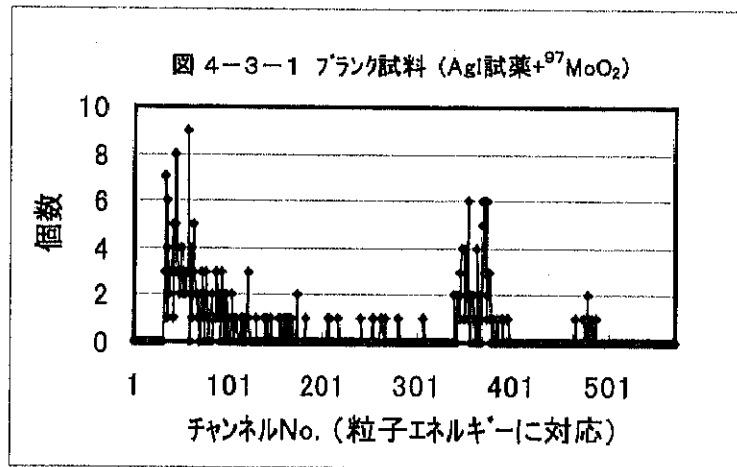
$^{129}\text{I}$  測定でバックグラウンドとなる要因としては、

1.  $^{127}\text{I}$  の検出器への紛れ込み
2.  $^{97}\text{Mo}$  パイロットビームの検出器への紛れ込み

3. イオン源の  $^{129}\text{I}$  メモリー効果（残留効果）による紛れ込みの3要因が考えられる。

“ $^{97}\text{MoO}_2$ 分子パイロットビーム法”による  $^{129}\text{I}$  測定にどの程度のバックグラウンドが発生するか見積もる為に、試薬の  $\text{AgI}$  と  $^{97}\text{MoO}_3$  を 10:1 に混合したブランク試料を用意し、エネルギースペクトラムで  $^{129}\text{I}$  が生じるエネルギー領域に発生する計数値を測定した。ここで、試薬の  $\text{AgI}$  に含まれる  $^{129}\text{I}$  は  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-14}$  以下であると言われている。図 4-3-1 に測定結果を示した。 $^{127}\text{I}$  の平均電流値は  $4.5\mu\text{A}$  であった。 $^{129}\text{I}$  のエネルギー領域に極めて少量であるがデータが存在しており、ごく弱いバックグラウンドがある事が分かった。

本システムの設計段階において、イオン源で多量に発生する  $^{127}\text{I}^-$  イオンを、120 度電磁石の出射側焦点面に新たに  $^{127}\text{I} \cdot ^{129}\text{I}$  逐次走査型電流検出器を設け、ここで大部分の  $^{127}\text{I}$  粒子を止める



ようにした。更に、この障壁をすり抜けてきた  $^{127}\text{I}$  は入射電磁石の高質量分解能を使って  $^{129}\text{I}$  より分離 (7mm の分離) する様にした。この効果により、加速器に入り込む  $^{127}\text{I}^-$  イオンはほぼ皆無とする事が出来ており、 $^{127}\text{I}$  によるバックグラウンドは無視できるものと考えている。従って、この弱いバックグラウンドは、試薬の  $\text{AgI}$  が元々持っている  $^{129}\text{I}$  とイオン源の中に残留ガスとして存在している  $^{129}\text{I}$  から生じたものと考えている。

試料 3 の測定値から得られる  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は  $5 \times 10^{-18}$  となり、この値が現時点における感度である。環境中に存在する  $^{129}\text{I}$  は  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比で  $10^{-9}$  から  $10^{-12}$  程度であると考えられる事から、実際の測定にはこの感度で十分であると思われる。



#### 4-4 ヨウ素129測定の性能

以上、本研究で進めた独創的アイデアに立脚し高感度に静電加速器を用いて測定する方法により環境中のヨウ素129を測定する時の性能を以下に表としてまとめた。

測定原理	静電加速器質量分析法
測定方式	$^{97}\text{MoO}_2$ 分子パイロットビーム法
被測定物質	土壌、海底堆積物、陸水、海水、生物試料等
試料形態	ヨウ化銀 (AgI)
パイロット物質	$^{97}\text{MoO}_3$
試料混合比	AgI : $^{97}\text{MoO}_3$ = 10:1
ヨウ素イオン強度	$\sim 10 \mu\text{A}$
$^{97}\text{MoO}_2$ イオン強度	$\sim 10 \text{nA}$
$^{127}\text{I}^-$ 測定	$^{127}\text{I} \cdot ^{129}\text{I}$ 逐次走査測定
加速電圧	9.7 MV
パイロット粒子	$^{97}\text{Mo}^{9+}$
スリット電流	$\sim 1 \text{nA}$
測定 $^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}^{26+}$ 、126 MeV
分析	エネルギー弁別 (8度静電偏向器) 運動量弁別 (45度電磁石) 質量弁別 (TOF)
感度	$\sim 5 \times 10^{-13}$
精度	$\sim 15\%$ ( $7 \times 10^{-10}$ 標準) $\sim 20\%$ ( $7 \times 10^{-11}$ 標準)
測定時間	$\sim 60$ 分 (標準+試料+標準測定の総計)

## 5 ま と め

平成 10 年度から平成 12 年度までの 3 年計画科学研究費補助金を有効に活用し、且つ筑波大学加速器センターに設置されている 12UD タンデム静電加速器システムの高度利用による環境中のヨウ素 129 の測定を目指した“静電加速器により高感度に微量環境ヨウ素 129 を測定する方法の研究”を本研究の独創的アイデアである  $^{97}\text{MoO}_2$  分子を用いる“分子パイロットビーム法”により成功裡に終了する事が出来た。

研究初年度には研究の全体計画に基づいて研究の遂行に必要な不可欠な装置の開発研究に集中した。研究分担者および協力者の分担協力により開発又は改良した装置を以下に列挙しておく。

- ①ヨウ素自動試料交換機能付高電流型負イオン源
- ②120 度偏向高速  $^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$  走査機構付き分析電磁石
- ③ヨウ素 129 測定用 2 分割スリットコントロール装置
- ④第 2 荷電変換機構
- ⑤3 連電気炉型ヨウ素試料抽出・精製装置
- ⑥超高速ゼロ時間信号発生装置
- ⑦実時間粒子飛行時間測定システム

平成 11 及び 12 年度には開発した装置類を主として、(1) 加速器センター第 2 測定室の AMS 粒子検出系に新たに実時間粒子飛行時間測定システムを主体とするヨウ素 129AMS 測定コースを建設した。(2) 又、9 階イオン源室に設置されているスパッタリング負イオン源コースに高速  $^{127}\text{I}$ ・ $^{129}\text{I}$  走査機構を付加し、 $^{127}\text{I}$  と  $^{129}\text{I}$  の高速逐次測定を実現し、 $^{129}\text{I}$  の高精度測定を可能とした。(3) 更に、これらを既存のタンデム静電加速器と結合し、新たに開発した 2 分割スリットコントロール装置を組み合わせ、日本では初めての大型タンデム静電加速器によるヨウ素 129 質量分析システムを建設した。

試験測定を繰り返し、その性能を確認すると共に実験研究を開始し、研究の新たな手段として広く全学共用に具する準備を始めた。以下に本研究で得られた成果を述べる。

(1)  $^{97}\text{MoO}_2$  分子による“分子パイロットビーム法”により既存の静電加速器システムになんらの変更を加える事なくヨウ素 129 超高感度質量分析つまり  $^{129}\text{I}$ -AMS を実現する事に成功し、以下の仕様を持つ事が確認された。

被測定物質	土壌、海底堆積物、陸水、海水、生物試料等
試料形態	よう化銀 (AgI)
パイロット物質	$^{97}\text{MoO}_3$
試料混合比	$\text{AgI} : ^{97}\text{MoO}_3 = 10 : 1$
イオン強度	$\text{I}^- = \sim 10 \mu\text{A}$ 、 $^{97}\text{MoO}_2^- = \sim 10 \text{nA}$
感度	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比で $\sim 5 \times 10^{-13}$
精度	$\sim 15\%$ ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 7 \times 10^{-10}$ 標準測定)
測定時間	$\sim 60$ 分 (標準+試料+標準測定の総計)

(2) タンデム静電加速器システムに改造を施して加速器質量分析を可能とする事は加速器を AMS 専用と限定する限りそう困難な事ではない。事実、中小型タンデムを AMS 専用と改造している研究所も多々ある。他方、大型のタンデム静電加速器では、原子核実験等従来の目的に大部分の日時使用されているのが現状で、その中から改造に要する時間を見出さなければならない。又、装置の規模が大きい事から改造に要する日数も膨大なものとなる。したがって他の使用者と共存しながら大型のタンデム静電加速器で加速器質量分析を可能とする事は極めて苦しいのが現実であった。しかるに、独創的なアイデアにより実施した本試験研究では、加速器センターの大型タンデム静電加速器システムにはなんらの変更、改造を加えずに、今までは容易には測定出来なかったヨウ素 129 の高感度測定を可能とする事ができた。

## 6 今後について

この報告で述べたように、今回の研究期間で主目的とした大型タンデム静電加速器によるヨウ素 129 超高感度質量分析法を実現させる事が出来た。しかしながら、やっと、動き出したというところが正直なところで、たとえば性能に関して考えて見るに、まだまだ改良の余地があることを実感しているところである。いまやっとヨウ素 129 静電加速器質量分析システムとしてのスタート点に立ったところであり、これからもまだまだ感度、効率、安定性等の性能向上を計る努力をしなければならない。又、さらに重い元素の分析をも可能とすべく努力していくつもりである。

今後の予定を列挙しておく。

- (1) 測定精度の向上 (5%程度)
- (2) 生成負イオン電流の向上 ( $I^-$ ビームで $\sim 30 \mu A$ 程度)
- (3) 加速器電圧安定化用 2 分割スリット電流フィードバック回路の高信頼性化
- (4) ヨウ素試料抽出・精製方法の簡素化
- (5) 実時間粒子飛行時間測定装置の時間分解能の向上 (0.5 n 秒)

以上述べた今後の課題を解決することが、本試験研究で開発し稼働し出したヨウ素 129 大型タンデム静電加速器質量分析システムが本物のシステムとして幅広く受け入れられ、新しい研究法を提供するものとして認められる為に必要な要件であろう。

このような観点に立ち、今後もよりよいシステムとすべく研究をすすめていく所存である。 $^{129}I$  - AMS は世界的にみてもほとんど測定されておらず、1~2 の報告も安定に欠け信頼性に乏しいのが現状である。大型タンデム静電加速器の特長を如何なく発揮できるこの  $^{129}I$  の測定の安定をより高め、かつより高精度に行なえるようにする事が大切である。

## 謝 辞

研究協力者としてイオン源の開発建設に邁進して戴き、又実験に際してはその卓越した腕を遺憾無く發揮して試料の準備をしていただいた高橋努技官、又エレクトロニクスをはじめ計算機制御系の開発に奮闘して戴いた同じく皆倉輝志技官の諸氏に心より感謝いたします。皆様方の協力なくして本システムが日の目を見ることはなかったと思っております。

環境科学研究科の新井大輔君、医療技術短期大学部衛生技術学科 3 年馬渡理奈さん、皆さんどうも有難うございました。それぞれのテーマの所で努力して頂き、それぞれ初期の目的を達する成果を上げる事が出来ました。特に新井さんには試料調整と実験に奮迅の働きをして頂き有り難う御座いました。

最後になりましたが、有意義なご意見を頂きました物理学系原子核実験グループ及び加速器センターの諸先生、及びいろいろと技術的な面で助けて戴いた加速器センターの木村博美、田島義一、石井聡、大和良広の諸技官各氏にお礼を申し上げます。

## 参考文献

- 1) R.A Muller,  
Science 196 (1977) 489.
- 2) Y. Nagashima, H. Shioya, Y. Tajima, T. Takahashi, T. Kaikura, and  
N.Yoshizawa. T.Aokia, and K.Furuno.  
Nuclear Instruments and Methods.B92 (1994) 55.
- 3) Y.Nagashima, S.Nakajima, T.Takahashi, T.Kaikura, Y.Tajima.  
T. Hayakawa, K.Takahashi, J.Mukai, K.Shima, T.Aoki, and  
K.Furuno,  
Nuclear Instruments and Methods.A328 (1993) 338.
- 4) K.F.Vonreden, R.J.Schneider, G.J.Cohen, and A.Jones,  
Nuclear Instruments and Methods, B92 (1994) 7.
- 5) C.Tuniz, D.Fink, M.A.C.Hotchkis, G.E.Jacobsen,  
E.M.Lawson, A.M.Smith, J.R.BirdandJ.W.Boldeman,  
Nuclear Imstruments and Metbods.B92 (1994) 22.
- 6) L.K.Fifield, G.L.Allan, J.O.H. Stone, and T.R.Ophel.  
Nuclear Instruments and Methods, B92 (1994) 85.
- 7) Y.Nagashima, H.Kimura, and K. Kuriyama,  
Nuclear Instruments and Methods, 206 (1983) 147.