

## 加速器質量分析法による中性子断面積の測定

(1990年9月3日受理)

(東北大・サイクロ) 中村 尚司

### 1. はじめに

加速器を用いて核種をイオン化して直接測定する加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) は、極微量の長半減期放射性核種に対しては、放射能測定法に比べて桁違いに高い感度がえられる。地球科学や宇宙科学における宇宙線生成核種の研究や考古学における年代測定に、 $^{10}\text{Be}$  ( $1.5 \times 10^6$ 年),  $^{14}\text{C}$  (5740年),  $^{26}\text{Al}$  ( $7.2 \times 10^5$ 年),  $^{32}\text{Si}$  (106年),  $^{35}\text{Cl}$  ( $3.1 \times 10^5$ 年),  $^{129}\text{I}$  ( $1.7 \times 10^7$ 年) などの長半減期核種の加速器質量分析は非常に有用である。

これら長半減期核種の生成は、一方で加速器施設等における残留放射能という観点からも重要であり、著者らのグループは中性子核反応による生成断面積の測定を、加速器質量分析法を用いて行った。測定した核反応としては、 $^{14}\text{N} (n, 2n 3p) ^{10}\text{Be}$ ,  $^{16}\text{O} (n, ^3\text{He}) ^{14}\text{C}$ ,  $^{27}\text{Al} (n, 2n) ^{26}\text{Al}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Si} (n, x) ^{26}\text{Al}$  である。

今、0.001 dpm の  $^{10}\text{Be}$  があったとして、これを仮に50%の検出効率の  $\beta$  線検出器で測定したとしても100個の計数をうるのに約140日かかる。この  $^{10}\text{Be}$  中には  $1.14 \times 10^9$  個の  $^{10}\text{Be}$  が含まれているので、これらの原子をイオン化して、粒子として検出できたとすると、全体の効率を  $10^{-4}$  としても  $10^5$  個の計数をうる。しかし、一般の低エネルギー質量分析法には、ほぼ同じ質量を持つ分子イオンの混在と同重体 ( $^{10}\text{Be}$  に対し  $^{10}\text{B}$ ,  $^{14}\text{C}$  に対し  $^{14}\text{N}$ ,  $^{26}\text{Al}$  に対し  $^{26}\text{Mg}$ ) の存在という困難点がある。加速器質量分析法は、イオンのエネルギーを十分高くすることによって、分子を分解し、イオンの粒子識別を行って、この困難点を取除くものである。

### 2. 測定法

加速器質量分析システムは東京大学原子力研究総合センターのタンデムバンデグラフに設置されている<sup>(1)</sup>。このシステムの概略図を図1に示す。まず測定しようとする試料を負イオン源 (Hiconex 834型) に入れ、図2に示すように  $\text{Cs}^+$  ビームでイオンをスパッタリングして、負イオンを発生させ、引出し電極で加速する。イオン源から発生する様々な負イオンビームのうち目的の質量 ( $M/e$ ) のものだけを、2つの入射系電磁石 ( $30^\circ$ 電磁石及び  $90^\circ$ 電磁石) によって質量分析し、100 kV に加速して加速器本体に入射する。負加速管に送られた負イオンは絶縁ガスタンク中央部の Ar ガスストリッピングカナルで正イオンに荷電変換される。 $+1$ ,  $+2$  の正イオンにはしばしば安定〜準安定な分子イオンが存在することがあるので、 $+3$  以上の荷電イオンを用いる。この正イオンを正加速管でさらに加速し、磁場の強さを目的のイオン種

(エネルギーE, 質量M, 電荷q) だけを通す ( $\text{rigidity} = \sqrt{ME}/qe$ ) 分析電磁石に送る。電磁石を通過したイオンは振分け電磁石 ( $-27^\circ$ ) を経て, さらに目的のE/qを持つイオンだけを通過できるように設定した静電デフレクタを経て重イオン検出器 (窒素ガス吸収体とSSDから成る) で計測される。ガス吸収体はイオンの種類による飛程の違いを利用して, 粒子弁別を行うためのものである。

このシステムでは同時ビームモニター法を用いている<sup>(2)</sup>。これは同位体比 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  の測定を行うのに, 各々の同位体に切替えることなく実行できる方法である。測定対象の放射性同位元素のイオンと同じ原子 (又は分子) 量を持つ負イオンを同時に入射させて加速し, これをモニタービームとしてファラデーカップでその電流を測定する。Beの場合, 試料の化学形はBeOである。発生する $^{10}\text{Be}$ を含む負イオンは $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$  ( $M/e=26$ ) が最も多い。同じ $M/e=26$ を持つ不純物イオンとして,  $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$ ,  $^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-$  が含まれ, これらは $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$ と同時に加速され, 図1のストリッパーで $^9\text{Be}^{3+}$ ,  $^{10}\text{Be}^{3+}$ に荷電変換され, 分析電磁石に達する。ここで $^9\text{Be}^{3+}$ は $^{10}\text{Be}^{3+}$ よりも上方に曲げられ, 正イオンビームモニターで電流を測定する。図3にこの方法の原理図を示す。これより,

$$\begin{aligned} [^9\text{Be}^{3+}]_m &= [^9\text{Be}^{17}\text{O}^- + ^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-]_s \cdot \epsilon \\ [^{10}\text{Be}^{3+}]_d &= [^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-]_s \cdot \epsilon \cdot \epsilon' \\ &= [^{10}\text{Be}/^9\text{Be}]_s \cdot [^9\text{Be}^{16}\text{O}^-]_s \cdot \epsilon \cdot \epsilon' \end{aligned}$$

となる。ここで〔 〕はビーム量を, 添字m, d, s は各々モニター, 検出器, 入射部を示し,  $\epsilon$  は正イオンビームモニターまでのビーム透過率,  $\epsilon'$  はモニター部から検出器までのビーム透過率を示す。従って同位体比は

$$\begin{aligned} [^{10}\text{Be}/^9\text{Be}]_s &= [I_{26}/I_{25}]_s \cdot [^{10}\text{Be}^{3+}]_d / [^9\text{Be}^{3+}]_m \cdot \epsilon' \\ [I_{26}/I_{25}]_s &= [^9\text{Be}^{17}\text{O}^- + ^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-]_s / [^9\text{Be}^{16}\text{O}^-]_s \end{aligned}$$

により与えられ, 検出器における $^{10}\text{Be}^{3+}$ の計数 ( $[^{10}\text{Be}^{3+}]_d$ ) モニターでの $^9\text{Be}^{3+}$ の個数 ( $[^9\text{Be}^{3+}]_m$ ), 入射部の負イオンビーム電流比 ( $[I_{26}/I_{25}]_s$  で, 測定前後に図1に示すようにファラデーカップを動かして測定する) が分れば,  $[^{10}\text{Be}/^9\text{Be}]_s$  が求められる。 $\epsilon'$  は $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 同位体比が既知の標準試料を用いて求めることができる。 $^{14}\text{C}$  に対しても同様の方法が用いられるが,  $^{26}\text{Al}$ に対しては, モニタービームとして $^{10}\text{B}^{16}\text{O}$ を用いる。試料の化学形は $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{B}_2\text{O}_3$  混合体である。図4にこの方法の原理を示すが, これより

$$\begin{aligned} [^{26}\text{Al}^{3+}]_d &= [^{26}\text{Al}^-]_s \cdot \epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \\ [^{16}\text{O}^{2+}]_m &= [^{10}\text{B}^{16}\text{O}^-]_s \cdot \epsilon'_1 \\ [I_{26}/I_{27}]_s &= [^{10}\text{B}^{16}\text{O}^-]_s / [^{27}\text{Al}^-]_s \end{aligned}$$

となり、同位体比は

$$[^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}]_s = [I_{26}/I_{27}]_s \cdot [^{26}\text{Al}^{3+}]_d \cdot \epsilon'_1 / [^{16}\text{O}^{2+}]_m \cdot \epsilon_1 \cdot \epsilon_2$$

により与えられる。この場合  $\epsilon_1$ ,  $\epsilon'_1$  は  $^{26}\text{Al}^{3+}$  と  $^{16}\text{O}^{2+}$  の加速器までのビーム透過率で、 $\epsilon_2$  は分析電磁石から検出器までのビーム透過率である。 $\epsilon_1$ ,  $\epsilon'_1$ ,  $\epsilon_2$  も  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  同位体比が既知の標準試料を用いて求められる。

このシステムの特性を表1にまとめた<sup>(3)</sup>。

### 3. 中性子照射実験と結果

中性子照射実験は、東京大学原子核研究所 S F サイクロトロンから引出した 20–40 MeV の陽子ビームを 1–2 mm 厚のベリリウムターゲットにあてて、Be (p, n) 反応で生成した 15–35 MeV 準単色中性子ビームを用いて行った。図5に20–40 MeV 陽子によりえられた準単色中性子ビームのスペクトルを示す<sup>(4,5)</sup>。照射は数  $\mu$  A の陽子ビーム強度で、ターゲットから 5–10 cm の位置に試料をおいて数–10 数時間行った。シリコンと酸素の試料には石英  $\text{SiO}_2$ 、窒素の試料には窒化バナジウム VN、アルミニウムの試料には金属を用いた。照射終了後、化学処理を行って必要な化学形の AMS 用試料とした。AMS による測定は 1000 秒の測定を 3–5 回くり返して行いその平均を求めた。測定バックグラウンドを知るために、中性子照射を行っていない試料（ブランク試料）に対しても AMS の測定を行った。図6に1例としてアルミニウム試料中の  $^{26}\text{Al}^{3+}$  の重イオン検出器による測定結果を示す。 $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  同位体比が既知の標準試料、32.5 MeV 陽子による p–Be 中性子で照射した試料、ブランク試料に対する測定値を比較しているが、 $^{26}\text{Al}^{3+}$  の他に  $^{16}\text{O}^{2+}$ ,  $^{16}\text{O}^{4+}$  などが同定されている<sup>(5)</sup>。これから得られた  $[^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}]_s$  は  $10^{-12}$  のオーダーであり、バックグラウンドレベルは  $10^{-13}$  以下である。

### 4. 中性子断面積の測定結果

AMS 測定結果からえられた目的核種の生成量  $A_i$  は

$$\begin{aligned} A_i &= N \int_0^{E_i} \sigma(E) \phi_i(E) dE \quad (i = 1, \dots, 9) \\ &= N \sum_k \sigma_k \phi_{ik} \Delta E \end{aligned}$$

と表される。N は試料中のターゲット核種数、 $\sigma$  は核反応断面積、 $E_i$  は入射陽子のエネルギー、 $\phi_i$  は図5に示す中性子束である。この式をアンフォールディングすることによって  $\sigma(E)$  を求めるが、それには(1)平均断面積を求める方法、(2)SAND-IIコード、(3)NEUPACコード、(4)最小二乗フィッティング法の4つの方法が用いられた。(2)–(4)の方法には  $\sigma(E)$  の初期推定値が必要になるが、参考となるデータが全くないので、ALICEコードによる計算値を初期推定値とした。

実験でえられた結果の1例として、 $^{27}\text{Al} (n, 2n) ^{26}\text{Al}$  に対して、SAND-II, NEUPAC 両コードによる解析でえられた断面積の結果を図7に示す<sup>(5, 6)</sup>。結果はIwasakiらによる14MeV近辺のデータ<sup>(7)</sup>との比較及びManiらによる $^{27}\text{Al} (n, 2n) ^{26m}\text{Al}$  (半減期6.3秒)のデータ<sup>(8)</sup>との比較がなされている。我々のデータは15MeV以上で初めて得られた結果である。

以上の結果、加速器質量分析法により長寿命核種を生成する中性子核反応断面積が、高感度で、30%以内の精度 (AMS測定誤差10%, 中性子束測定誤差ピーク部10%, テイル部30-50%を含むアンフォールディング全体の誤差) で求められることが分った。

## 謝 辞

本研究は平成1,2年度文部省科学研究費補助金(一般研究(B))の援助をうけて実施された。

本研究の実施にあたって、東京大学原子核研究所の今村峯雄, 上養義明, 柴田誠一各氏, 日本大学理学部の永井尚生氏, 東京大学原子力研究総合センターの小林紘一氏, 東北大学サイクロトロンRIセンターの杉田裕氏(現在日本総合研究所)の協力をうけた。ここに感謝の意を表したい。

## 参考文献

- (1) 田中重男, 他:「タンデム加速器を用いる高感度質量分析法の研究」文部省科学研究費補助金特定研究報告書
- (2) H. Nagai et al.: Nucl. Instrum. Methods B29, 266 (1987)
- (3) M. Imamura et al.: Proc. 2nd Intern. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research, Jan. 24 - 26 (1990) Mito, pp.602 - 607
- (4) Y. Uwamio et al.: Nucl. Instrum. Methods A 271, 546 (1988)
- (5) 杉田裕:東北大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文(1990)
- (6) T. Nakamura et al.: to be published
- (7) S. Iwasaki, J.R. Dumais and K. Sugiyama: Proc. Intern. Conf. Nucl. Data for Sci. and Technol., Mito, Ed. by Igarasi, 295 (1988)
- (8) G. S. Mani, G. J. McCallum and A. T. G. Ferguson: Nucl. Phys., 19, 535 (1960)

表1 東大原子力研究総合センターの加速器質量分析システムの特性<sup>(3)</sup>

Nuclide	Half-life (yr)	Chemical Form	Negative Ion	Intensity ( $\mu\text{A}$ )	Sensitivity	Precision (%)	Detection Efficiency
$^{10}\text{Be}$	$1.5 \times 10^6$	BeO	$\text{BeO}^-$	0.2-0.4	$3 \times 10^{-14}$	2 2.5	$3 \times 10^{-5}$
$^{14}\text{C}$	$5.7 \times 10^3$	C	$\text{C}^-$	1-4	$3 \times 10^{-16}$	1-2	$10^{-3}$
$^{26}\text{Al}$	$7.2 \times 10^5$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{Al}^-$	0.05	$5 \times 10^{-14}$	2	$10^{-5}$

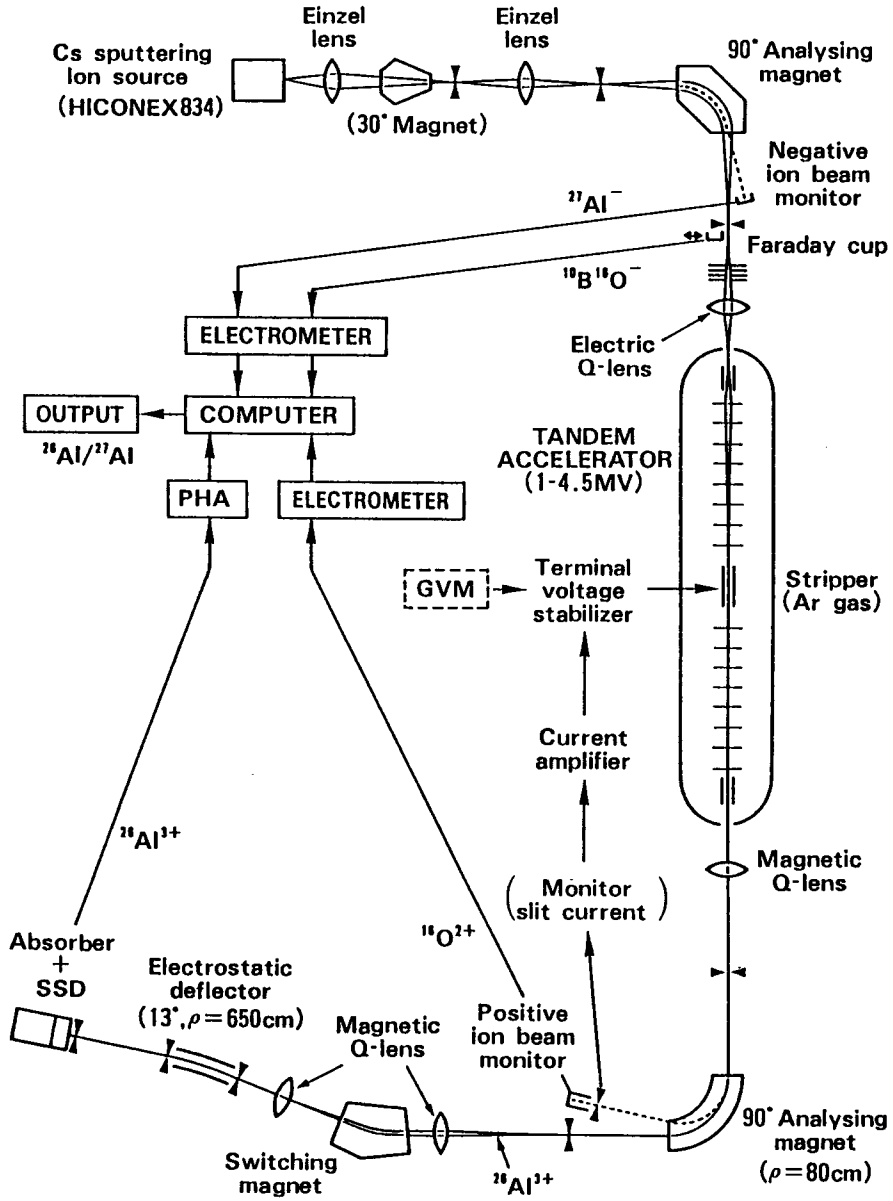


図1 東大原子力研究総合センターの加速器質量分析システム<sup>(1)</sup>

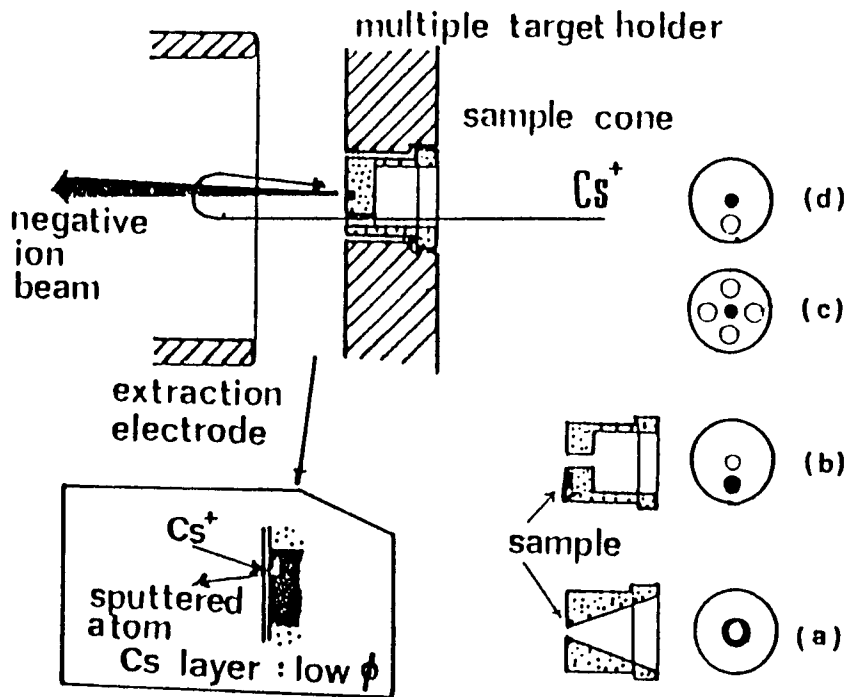


図2 Csスパッター・イオン源からの負イオン生成。試料の型(b), (c), (d)ではバック・フォーカスした $\text{Cs}^+$ ビームで試料を照撃し、負イオン・ビームを発生させる<sup>(1)</sup>。

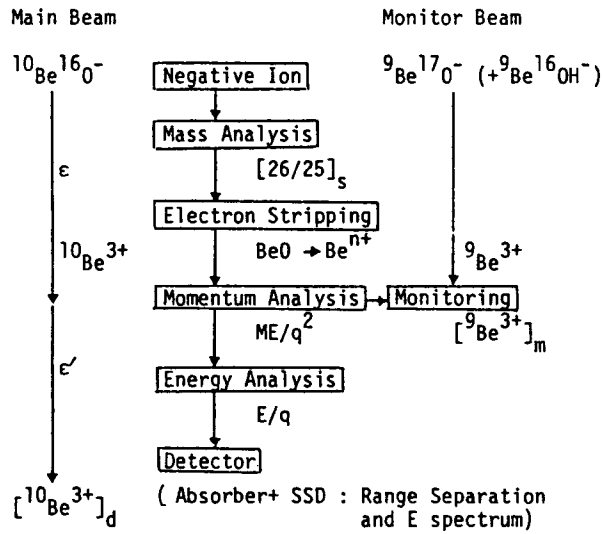


図3 同時ビームモニタ法による $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比の測定原理<sup>(2)</sup>

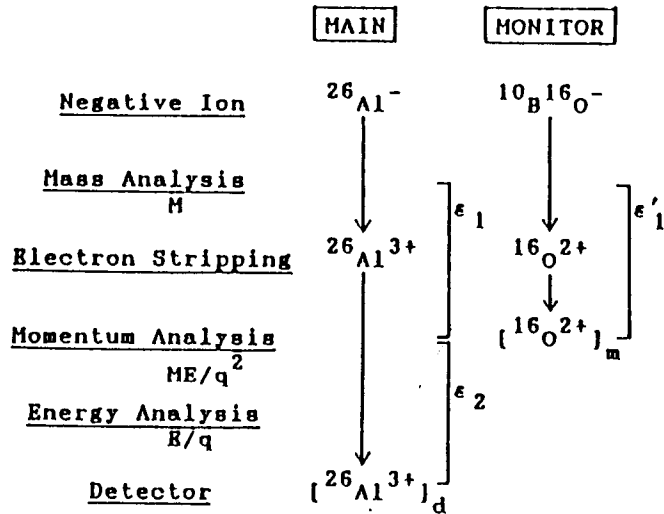


図4 同時ビームモニタ法による $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ 比の測定原理<sup>(2)</sup>

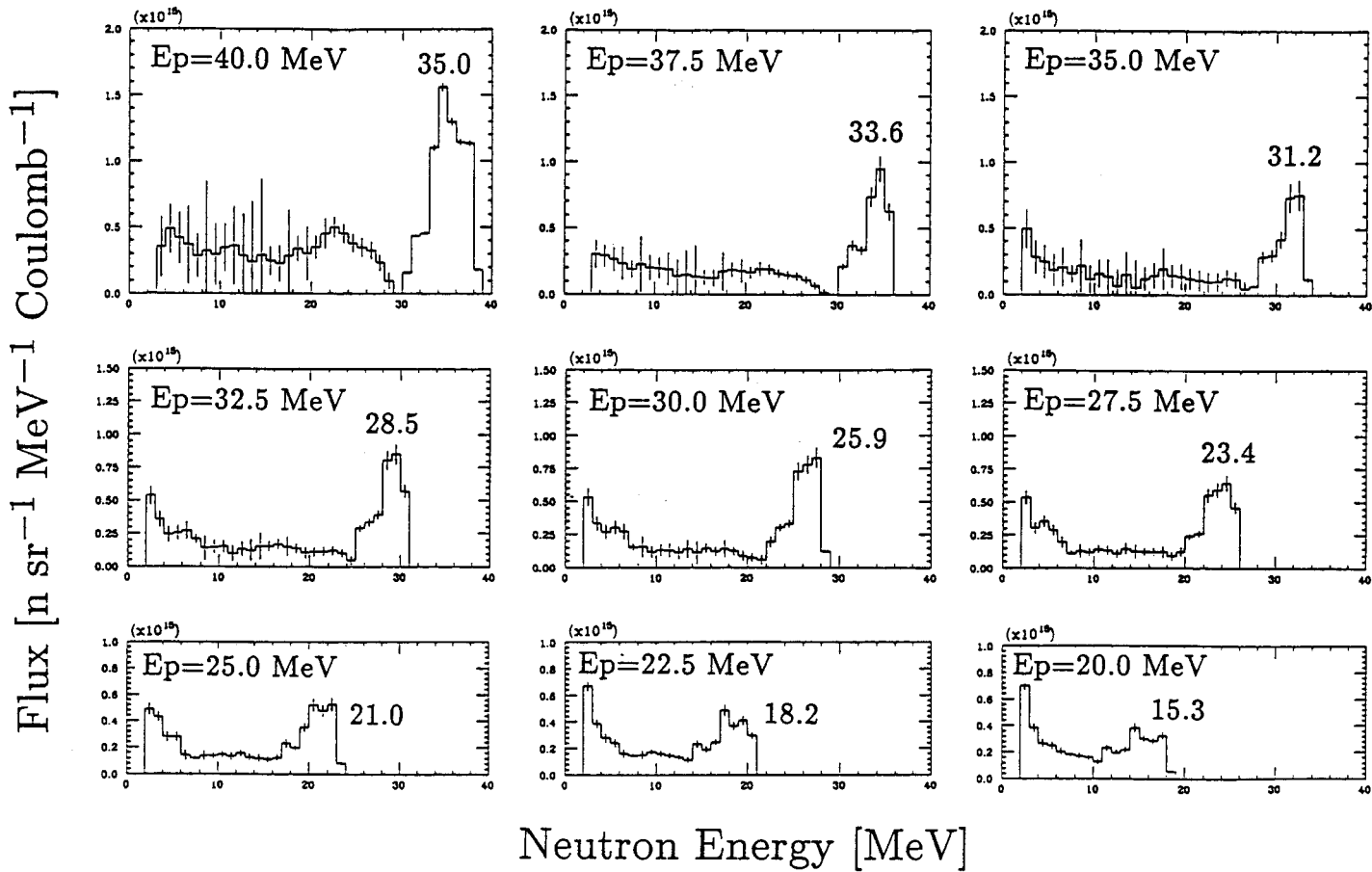


図5 p-Be反応による準単色中性子エネルギースペクトルの測定値<sup>(4, 5)</sup>  
図中に各陽子エネルギーと中性子ピークエネルギーが示されている。



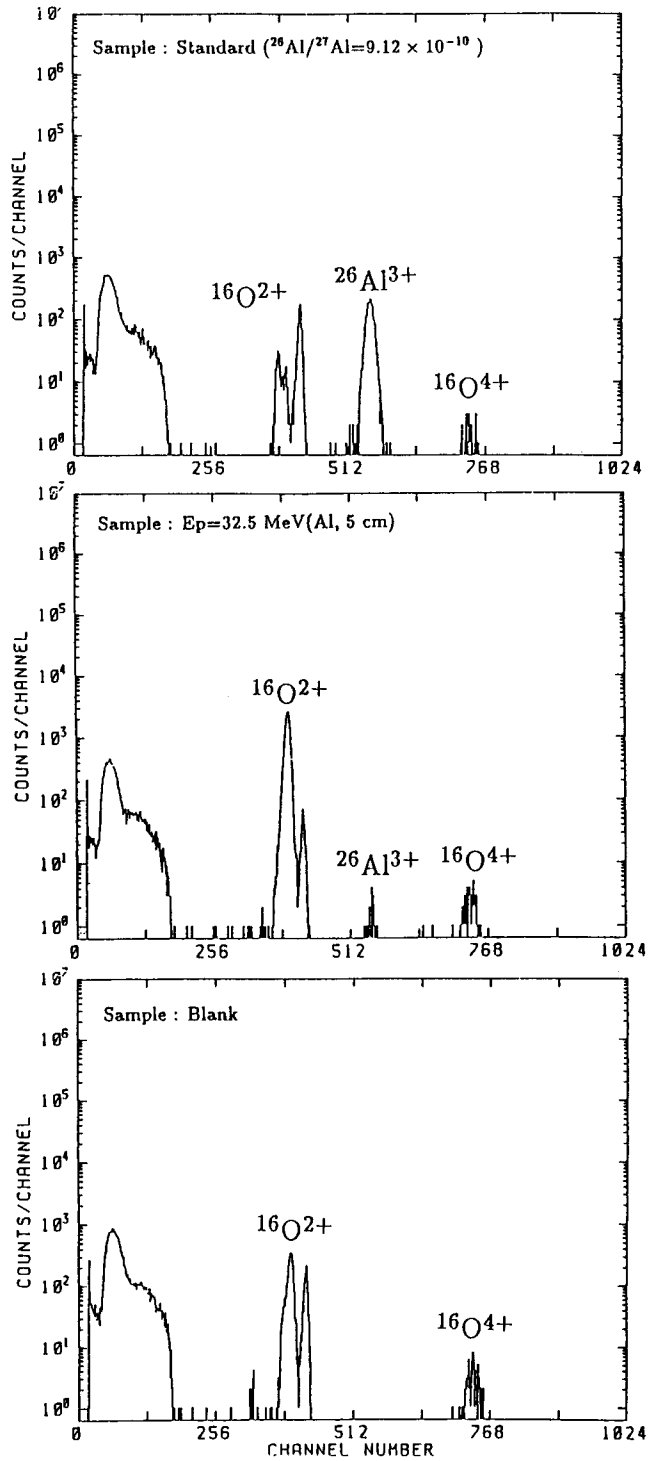


図6 重イオン検出器によるアルミニウム試料（上：標準試料，中：照射試料，下：未照射試料）中の $^{26}\text{Al}^{3+}$ のスペクトル測定値<sup>(5, 6)</sup>

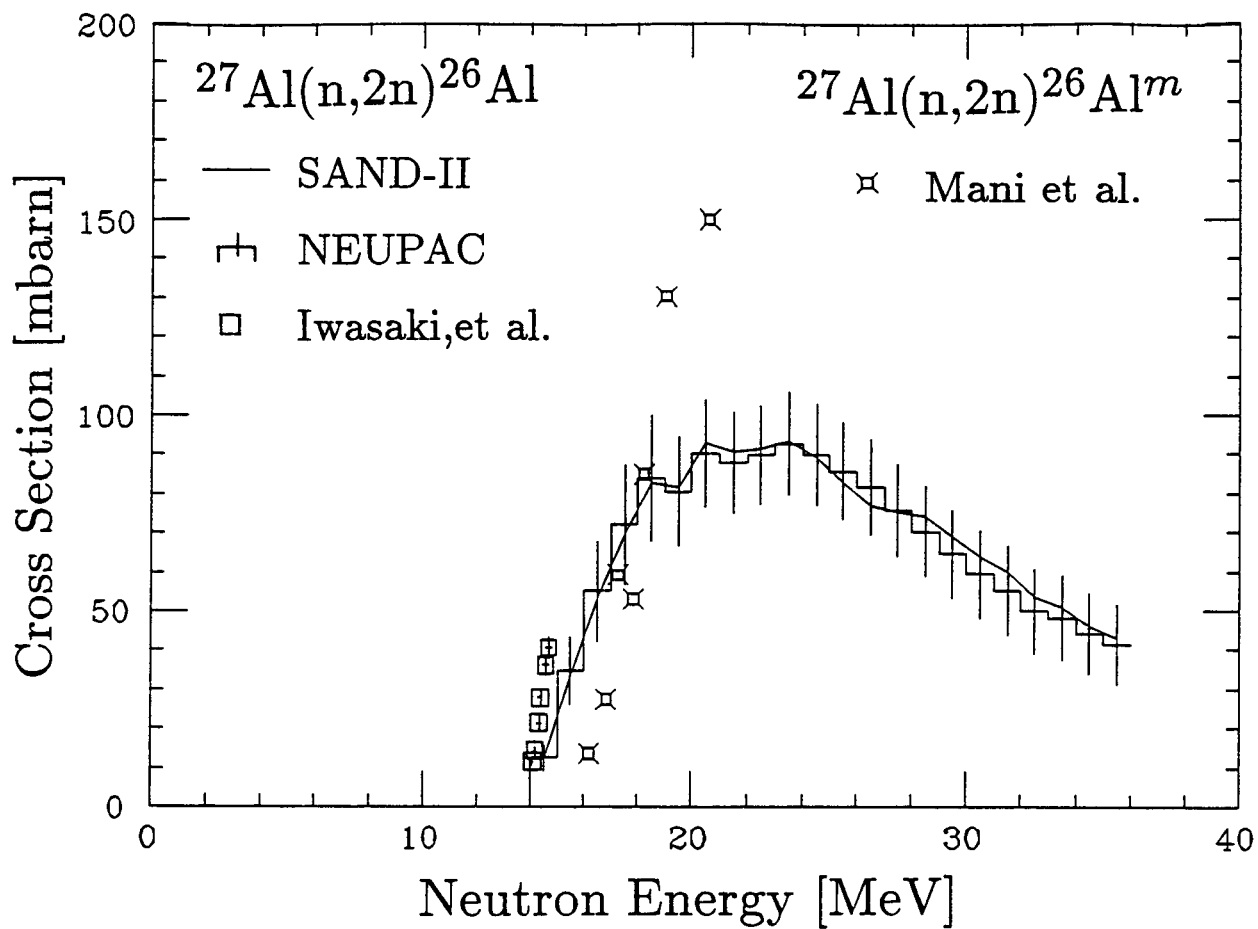


図7  $^{27}\text{Al}(n,2n)^{26}\text{Al}$  反応断面積の測定値<sup>(5,6)</sup>