

解 説(Ⅱ)

加速器質量分析法

Accelerator Mass Spectrometry: AMS

東京大学原子力研究総合センター

小林 絏一

1. はじめに

近年行われている ^{14}C 年代測定法は、感度が従来の β 線測定法に較べて1,000倍以上も向上し、貴重な考古学試料を実際上ほとんど潰すことなく測定できるようになっている。これは、タンデム型静電加速器（以下タンデム加速器と略する）などの小型重イオン加速器を使った加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry; AMS) という測定技術の応用によるものである。

W.L.Alvarez の弟子 R.A.Muller は、1977年の Science 誌に、 ^{14}C 、 ^{10}Be などの長半減期放射性核種を検出し定量するには、それら放射性核種が崩壊するのを待って β 線や γ 線を測定するよりもむしろ、崩壊する前の核種そのものの数を計数する方が、何桁も感度がよくなるし、それは、加速器を用いてそれらの核種を高エネルギーに加速することにより可能であろうという論文を発表した²⁾。この新しい原理に基づく測定法に対する関心は高く、直ちにタンデム加速器を使って mg 量の炭素試料による年代測定が試みられて成功し³⁾、1978年4月には、早くも第1回加速器質量分析の研究会 (First Conference on Radiocarbon Dating with Accelerators, Univ. Rochester, U.S.A.) が開催されている⁴⁾。初期の AMS 研究はこの研究会の名が示すように、 ^{14}C の測定法およびその応用に関する研究が主であったが、 ^{10}Be 、 ^{36}Cl の測定方法に関する研究も精力的に行われていた。

その後、AMS 国際会議は各国の回り持ちで3年毎に開催されることになり⁵⁻⁸⁾、6回目は1993年9月にオーストラリアのキャンベラおよびシドニーで開催されている⁹⁾。

現在までに、AMS を行うと表明した加速器施設は世界で35箇所以上にのぼり、その大部分はタンデム加速器施設である。また、現在までに実用化あるいはそれに近い状態にまで開発された測定対象核種は、 ^{10}Be (半減期; 1.6×10^6 年)、 ^{14}C (5,730年)、 ^{26}Al (7.2×10^5 年)、 ^{36}Cl (3.1×10^5 年)、 ^{129}I (1.6×10^7 年)であり、更に ^{41}Ca (1.0×10^5 年)、 ^{53}Mn (3.7×10^6 年)、 ^{59}Ni (7.6×10^4 年)、 ^{60}Fe ($\sim 10^5$ 年)など

の測定の実用化にむけての研究が行われている。

AMS による応用研究は非常に広い分野に広がっており、それらの総てをここに紹介することは、紙面の制限もあり不可能であるが、文献 [10,11,12] によくまとめられているので、そちらを参考にされたい。

AMS は、従来の低レベル放射線測定法では全く測定不可能であったような微量の放射性物質を含む試料を取り扱う分野に、急速に浸透し、発展してきた。即ち、試料が極めて貴重である場合や少量の試料しか採取できない場合、あるいは、放射線取り扱いに厳重な注意を必要とするような大量の放射線を扱わなければ測定ができないようなトレーサー実験の場合、などというような研究の大部分が AMS によって可能になっている。それらは、宇宙科学、考古・人類学、地球科学、環境科学、医学・薬学、生物学、素粒子・原子核物理学などの極めて多岐にわたる分野において展開されている。

AMS の応用分野の中で最も重要な分野の一つは、考古・人類学における ^{14}C 年代測定であり、AMS 開発以来の測定件数は早くも 10,000 件を越えて従来の β 線測定法による測定数を凌駕する勢いである¹³⁾。又、 ^{14}C 、 ^{26}Al や ^{41}Ca を標識として用いる医学・薬学、生物学や地球科学におけるトレーサー実験への応用も発展しつつある。更に、重要な応用例としては、原子核基礎データの測定である。例えば、 ^{32}Si 、 ^{41}Ca 、 ^{59}Ni 、 ^{60}Fe などの、半減期が不確実であった放射性核種の半減期測定や、各種核反応の断面積の測定などにも活躍している。

2. AMSの原理

放射性核種は次の簡単な式に従って崩壊する。

$$dN/dt = -\lambda N = -\ln 2 / T_{1/2} \times N$$

即ち、単位時間内に崩壊する放射性核種の数 (dN/dt) は崩壊前の核種の数 (N) に比例し、半減期 ($T_{1/2}$) に反比例する。

例えば、 ^{14}C (β 崩壊; $T_{1/2} = 5,730 \text{ yr}$) の場合、その崩壊定数 $\lambda = 2.3 \times 10^{-10} (\text{min}^{-1})$ であるので、毎分の崩壊数は崩壊前の数の僅かに 2.3×10^{-10} であるに過ぎない。逆に、 4.3×10^9 個の ^{14}C 原子は僅かに 1 dpm しか崩壊しない。

通常、1 dpm の ^{14}C の β 線測定は、バックグラウンドの関係上、測定限界に近いのであるが、10,000 カウント (統計誤差 1%) の計数を得るためには、計数効率 100% としても 10,000 分 (約 1 週間) を要する。これに対して、AMS では崩壊前の ^{14}C の数を直接に測定するのであり、実際にはこの場合には 4.3×10^9 個もの ^{14}C を測定対象とする。仮にその検出効率が約 1% しかないとしても 10^7 以上もの計数が得られることになり、10,000 の計数を得るためには元々の ^{14}C の数は約千分の一でよいことにな

る。しかも、通常の AMS ではこの程度の測定は 1 時間以下で可能である。

AMS が高感度である所以はここにあり、貴重な試料を測定対象とする考古・人類学などの分野において、AMS による ^{14}C 年代測定が β 線測定法にとって代わって瞬くうちに主流になったのは当然といえる。 β 線測定法に較べて、測定に要する試料の量は千分の一以下、測定時間も百分の一以下で済むからである。

^{14}C 年代測定法は AMS の応用の中で最も重要な分野であり、AMS の発展につれて著しく応用研究が進展した。地球上に天然に存在する ^{14}C は、宇宙線と大気との衝突により作られた中性子と大気中の窒素との反応 $^{14}\text{N}(\text{n,p})^{14}\text{C}$ により絶えず作られており、直ちに酸化して炭酸ガスとなって大気中の炭酸ガスと混じりあう。一方、 ^{14}C は 5,730 年の半減期で崩壊するので平衡状態になり、宇宙線の強度が変動しない限り $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ の値は約 1.2×10^{-12} という一定値になる。1 g の現代炭素中には 6×10^{10} 個もの ^{14}C を含んでいるが、わずか 14 dpm の β 崩壊をするのみである。生物が生存中はいつもこの比率の炭素を体に取り込んでいるが、死後は ^{14}C が崩壊するのみであるので、5,730 年経過する毎にこの割合が半減する。それ故、生物遺体を構成する炭素の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ を測定することにより、その死後の経過時間を計算できることになる。例えば 60,000 年後には $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim 10^{-16}$ になる。この炭素 1 g はわずか 10^{-3} dpm の β 線を放出するだけであるので、いかに低バックグラウンドの β 線測定器であっても実際上は測定不可能である。これに対し、AMS 測定法では、通常の半導体による重イオン測定器により ^{14}C はほとんどバックグラウンド無しで測定できるので、1 mg の炭素試料で $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim 10^{-16}$ の測定が可能である。

それにしても、現代炭素の同位体比 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ は約 1.2×10^{-12} であるので、この同位体比の測定は 10^{12} 個の ^{12}C の海の中から 1 個の ^{14}C を探し出すという割合で測定することを意味しており、探し出した ^{14}C が ^{12}C や ^{13}C あるいは ^{14}N ではなく ^{13}CH でもなく、本当に ^{14}C であるということを確認することが必要となる。AMS では、 ^{14}C と思われるイオンを高エネルギーに加速し、物質通過中のエネルギー損失を測定することによりそれを可能としている。

2.1 極微量元素の質量分析測定時の妨害イオン除去

崩壊前の放射性核種の数測定するだけであれば、例えば通常の質量分析計（イオンエネルギー： ~ 10 keV）によっても可能であるはずであるが、実際には以下の理由により放射線測定法に較べて有利になるわけではない。

- ①、検出するべき核種と同じ質量数を持つ分子イオンが妨害し、測定感度を低下させる。
- ②、検出するべき核種と同じ質量を持つ同重体（isobar）イオンが妨害し、測定感度

を低下させる。

- ③、隣接する質量のイオンの持つエネルギーに幅（ふらつき）があるので、電場、磁場の分析場を通り抜け得る隣接同位元素イオンが存在し、妨害する。

この3種の妨害イオンを排除して着目する核種を確実に検出することがAMSの目的である。現在までにAMSによりよく測定されている ^{10}Be 、 ^{14}C 、 ^{26}Al 、 ^{41}Ca 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I について、上記①、②に相当する妨害イオンをまとめると表1になる。

通常の質量分析法は、イオンを10keV程度のエネルギーにして電場、磁場の分析場により質量（同位体比）を分析する方法であり、加速器により～10MeV以上の高エネルギーに加速して分析する加速器質量分析法に対して、ここでは低エネルギー質量分析法と呼ぶ。通常はイオン化の容易さと発生イオン種が単純であるという理由から正イオンを用いるが、低エネルギーであるので、質量分析された後の、同重体イオンおよび分子イオンによる妨害を区別する方法がない。但し、質量分解能が $10^5 \sim 10^6$ 程度以上と高分解能であり且つ高輝度の質量分析計を開発できれば上記①、②の妨害を除去できる可能性もあるが、イオンのエネルギーを測定するなどの方法をとらない限り③による

表1 AMSによりよく測定される長半減期放射性核種と妨害イオン

核種	半減期(年)	同重の正イオン	同重の負イオン
^{10}Be	1.6×10^6	$^{10}\text{B}^+$, $^9\text{BeH}^+$	$^{10}\text{B}^-$ $^9\text{BeOH}^-$ ($^{10}\text{BeO}^-$ 加速の場合)
^{14}C	5,730	$^{14}\text{N}^+$, $^{13}\text{CH}^+$	$^{13}\text{CH}^-$, $^{12}\text{CH}_2^-$, N^- は不安定、作りにくい
^{26}Al	7.2×10^5	$^{26}\text{Mg}^+$	Mg^- は不安定、作られない $^{25}\text{MgH}^-$
^{36}Cl	3.1×10^5	$^{36}\text{Ar}^+$	$^{36}\text{S}^-$
^{41}Ca	1.0×10^5	$^{41}\text{K}^+$, $^{40}\text{CaH}^+$	$^{40}\text{CaH}^-$ K^- は不安定 KH_3^- は不安定 (CaH_3^- 加速の場合)
^{129}I	1.6×10^7	$^{129}\text{Xe}^+$	$^{129}\text{Xe}^-$ は作られない

注) 負の電子親和力を持つ原子や分子は不安定であり、通常、負イオンにならないか或いは負イオンの寿命が非常に短い。

妨害を除去することは不可能である。更に、高分解能の低エネルギー質量分析計に適応できるイオン源から得られるイオン電流は微弱であり、測定時間との兼ね合いから、測定感度は非常に小さい。

これに対して、イオンを 0.5 MeV / 核子程度以上の高エネルギーにすると、薄膜や薄いガス層を通すことが可能となり、そのときに分子イオンを分解することができるので ① による妨害を除くことができる。更に、高エネルギーになるとイオンのエネルギーを測定できるようになり、また、物質通過中のエネルギー損失を利用して、イオンの原子番号 Z を知ることが可能になるので、②、③ による妨害を除去でき、ほとんどバックグラウンドの無い測定が可能になる。

このように、低エネルギーイオンではこれらの妨害イオンによる影響を除くことが困難であるが、高エネルギーにすることにより粒子識別が可能となり、妨害を除去することが可能となるのである。

また幸いなことに、タンデム加速器は負イオンを入射し加速するという特徴を持っており、それが AMS にとって以下のように重要な役割を果たすことになる。即ち、電子親和力が大きい原子、分子は負イオンになりやすく、電子親和力が負の場合にはその原子、分子の負イオンは不安定であり寿命が短い。表1に示すように、都合の良いことに、検出目的の元素の電子親和力が正であって安定であるのに対し、その同重体元素 (isobar) のそれが負であり不安定であるという組み合わせがかなり多いので、② による妨害イオンの除去が容易である場合が多い。

3. 粒子識別

AMS システムを構成する主装置である加速器としては、イオンを 0.5 MeV / 核子程度以上のエネルギーに加速する性能があればよく、サイクロトロンまたはタンデム加速器を使った AMS 測定システムが開発されている。しかしながら、サイクロトロンにより重イオンを加速するときには、通常は試料を多価正イオンにする必要があり、極微小の試料をイオン化する多価イオン源開発の遅れなどの理由により、AMS の世界から退却しつつある。但し、 ^{14}C 専用の AMS 装置として、負イオンを加速する小型サイクロトロンの開発が進んでおり注目されている^{14, 15, 16)}。タンデム加速器は負イオンを入射、加速し、中央の高電圧電極内に配置された電荷変換装置により正の多価イオンに変換して再加速するというような独特な加速を行う。そのため、その過程において分子イオンの大部分を分解することができるので、前述の負イオン生成過程における同重体イオン発生の抑制という有利さに加えて、タンデム加速器は AMS にとっては非常に好都合な加速器であると言える。更に、タンデム加速器の特徴であるイオンエネルギーを高

精度に制御できるという性質も有利であり、通常の AMS 測定はほとんどタンデム加速器により行われている。したがって、ここではタンデム加速器による AMS 測定のみについて述べることにする。

AMS で使われる粒子識別装置については、文献 [17,18] に詳しく議論されている。タンデム加速器による AMS の測定は、試料のイオン化、目的とするイオンの選別、加速、薄膜あるいはガス層の通過による電子剥離（荷電変換）、再加速、イオンの運動量、エネルギー、あるいは速度の選別、物質中でのエネルギー損失 dE/dX およびその後の最終エネルギー E の測定による粒子識別などの順で行われる。

図 1 に、典型的な例として東京大学 5 MV タンデム加速器による AMS システムの概念図¹⁹⁾を示す。

試料より化学的に抽出された元素は、イオン化しやすい化学形に処理され、イオン源に充填される。通常の AMS 用イオン源は、数 10 個の試料（試料量；各 10mg 以下）を同時に充填できるようになっており、効率よく順次イオン化し測定できるように工夫されている。試料よりイオン化された負イオンビームは、アインツェルレンズにより収束

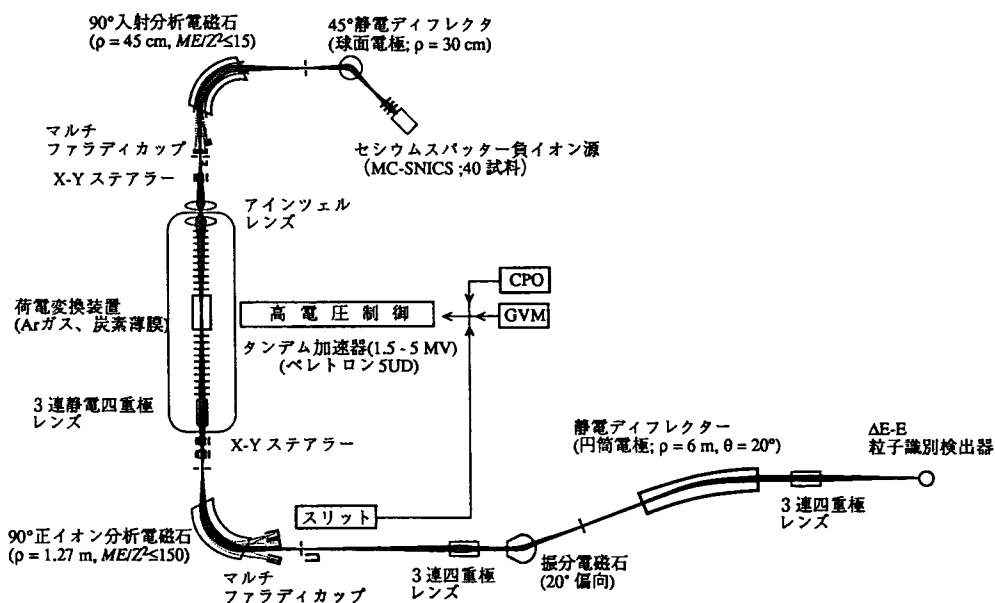


図 1 東京大学 5 MV タンデム加速器による AMS システム¹⁹⁾

交互入射法と内部イオンモニター法の 2 つの方法により測定測定可能。

重イオン測定装置は、 $\Delta E - E$ 測定用気体電離箱またはアブソーバー + SSD が設置される。

され、静電ディフレクターと入射分析電磁石の系により目的の質量を持つイオンが選別される。加速器に入射したイオンは、加速器中央にある荷電変換装置（通常は Ar ガス層）を通るときに電子を剥離され、分子イオンは解離される。多価正イオンに変換されたイオンは更に加速され、目的の高エネルギーイオンになって、加速器より出射する。

この加速イオンの中には、様々な電荷、エネルギー、質量のイオンが混在しているのであるが、まず、90°分析電磁石により、質量 M 、エネルギー E 、電荷 q のイオンが $ME/q^2 = \text{一定}$ の条件により選別される。この選別されたイオンビームの中には、まだ多くの種類の不純物イオンが含まれている。例えば、加速前の入射分析電磁石等のフィルターを通過する不純物イオンは、隣接同位元素イオンの質量差分だけエネルギーの異なるイオンや水素化物などの分子イオンである。後者の量は非常に多いが、荷電変換の過程で分解し、残留ガスとの衝突により相手をイオン化したり電荷を変えたりする。これらのイオンは、荷電変換やイオン化が起こった場所の違いにより異なるエネルギーを持つので、エネルギーは連続スペクトルとなる。これらのイオンのうち、90°分析電磁石を通過するための上述の条件を満足するイオンが不純物イオンとなり、測定バックグラウンドになる。このイオンは通常、目的のイオンに比べて桁違いに多いので、重イオン検出器による粒子識別能力を損なうばかりでなく、時には検出器自身を破壊する。

電磁石により分析されたイオンは、運動量が一定 ($E/q \cdot m/q = \text{const.}$) の粒子であるので、妨害イオンを除くためには、エネルギーフィルターまたは速度フィルターを通すことが有効である。前者のためには、静電ディフレクター、後者のためには、ウィーンフィルター或いは TOF（飛行時間測定；time of flight）測定系が使われる。図の東京大学の例では、最も単純で簡便な方法として静電ディフレクターが使用されている。

次ページの表 2 に、各種のイオンビームフィルターにより規制されるパラメーターおよび粒子識別法により決定されるパラメーターをまとめておく。

これらのフィルターをしぶとく通り抜けるイオンは、分析目的のイオンと同重体イオン及び少量の散乱イオンなどである。これらのイオンの全エネルギー E を測定し、あるいは物質中でのエネルギー損失 ΔE が原子番号 Z の自乗に比例するという性質を利用することにより、核種を弁別することが可能になる。

原子番号 Z 、速度 V （エネルギー E 、質量 M ）の高エネルギーイオンが物質中を通過するときのエネルギー損失は、次の Bethe-Bloch による式で表される。

$$\begin{aligned} -dE/dx &= (aZ^2 c^2 / V^2) \ln[bV^2 / (c^2 - V^2)] \\ &= (aZ^2 M/E) \ln(bE/M) \end{aligned}$$

ここで、 a, b は物質による定数、 c は光速である。

表2. 各種イオンビームフィルターおよび粒子識別法により制限され、決定されるパラメーター。

イオンビームフィルター	パラメーター
磁場(磁気分析器)	$(E/q) \cdot (m/q) = k \cdot (B \cdot \rho)$
電場(静電分析器)	$(E/q) = k \cdot (E \cdot \rho)$
ウィーンフィルター	$(E/q) / (m/q) = k \cdot v^2$
ガス充填電磁石	$(E/z') \cdot (m/z') \sim k(B \cdot \rho')$
イオン検出器	
アブソーバー + E 検出器	E, z
(ΔE -E) 検出器	E, z
TOF + E 検出器	E, m, $(E/z) / (m/z)$
TOF + (ΔE -E) 検出器	E, m, z, $(E/m, z)$

E、m、q、z はそれぞれイオンのエネルギー、質量、電荷、原子番号、z' は物質通過後の平衡電荷である。

$dE/dx = kZ^2/V^2$ であるので、もし粒子の速度 V を規制するフィルター（例えばウィーンフィルターなど）を通過した後であれば、 dE/dx 即ち ΔE を測定するだけで Z をユニークに決定できる。また同様に、 $E \cdot \Delta E = k' dx (MZ^2) \ln(bE/M)$ であるので $\ln(bE/M)$ の項を無視すれば、E と ΔE を測定することにより MZ^2 を決定できる。

最も単純な例は、金属フォイルによるエネルギーアブソーバーと半導体検出器 (SSD) によるエネルギー測定器である。例えば、同重体イオンは目的のイオンとほぼ同じエネルギーを持って検出器部に到達するが、適当な厚さの金属フォイルを通過後のイオンのエネルギーは Z^2 に比例したエネルギーを失うので、残留エネルギーを測定すれば、同重体イオンと区別できる。アブソーバとしては、ガス圧可変のガスアブソーバーが汎用性の高い装置としてよく使われる。このガスアブソーバー内でのエネルギー損失 ΔE を測定し、残留エネルギーと同時に測定を行えば、様々なバックグラウンドイオンからの Z 分離が容易になる場合が多い。この ΔE -E の測定装置は、SSD によるものと、電極分割型の気体電離箱 (gas ionization chamber) によるものなどがあり、これらの組み合わせ等も含めて AMS に適した装置が開発されている²⁰⁾。これらの重イオン検出器は通常の原子核実験などにおいて開発されてきた装置であり、詳細は省略する。分割された電極からの一つの ΔE シグナルと全部の電極からのシグナルを加えた E シグナルを二

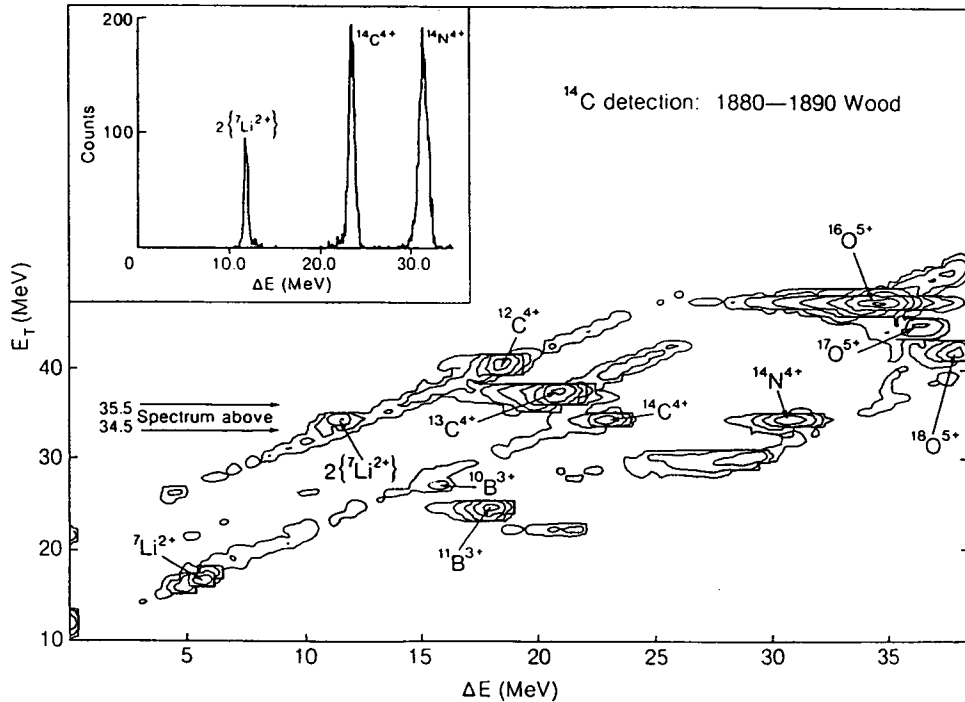


図2 サイモンフレーザーとマクマスター大学で開発された AMS システムにより得られた $\Delta E - E$ スペクトル。AMS 開発の初期の頃のデータであり、多くのバックグラウンドイオンが見られる。100 年ほど前の木の ^{14}C 測定例²¹⁾

次元表示することにより同重体イオンや他の妨害イオンが明確に分離される。典型的な例を図 2 に示す²¹⁾。

その他、次の 2 例はあまり一般的ではないが、 Z を弁別する特殊な方法として紹介しておく。

タンデム加速器の後に小型線形加速器を結合させたり或いは大型線形加速器やサイクロトロン等を使用し、十分に高エネルギー（数 MeV/核子程度以上）に加速すると、ストリッパーを通すことにより、電子を完全にはぎ取った完全電離イオン (fully stripped ion) にすることが可能になる。それ故、測定目的のイオンの核電荷 Z が妨害同重体イオンの核電荷よりも大きいときには、fully stripped ion にし、適当な磁場を通すことにより妨害同重体イオンを完全に弁別することができる。例えば、 ^{26}Al に対する ^{26}Mg 、 ^{41}Ca に対する ^{41}K の弁別などがその例である²²⁾。

適当な厚さの物質層を通った後の高エネルギーイオンの平均荷電状態は Z により異なる、ということを利用すれば、分析場に適当な圧力のガスを充填した電磁石

(gas-filled magnet) は、同重体イオンを空間的に分離する手段となる^{23, 24)}。イオンはガス中を走りながらエネルギーと荷電状態を徐々に変え、平衡電荷状態になったイオンビームはZの違いにより分離した特有の軌跡を描いて収束する。最後にはイオン検出器により残りのエネルギーを測定する必要があるため、イオンが数 10 MeV 程度以上のエネルギーを持つ場合のみ適応できる測定技術ではあるが、AMS において重要な位置を占めつつある。

4. 質量分析

以上のように、各種フィルターを通り、粒子弁別されたイオンは様々な妨害イオンの影響が除かれて計数される。ところが、イオン源におけるイオン化の効率やイオン電流強度および加速器等の透過効率、中央電極内の電荷変換効率などは様々な理由により絶えず変化するものであるため、計数されるイオンの数は試料中の検出目的の同位元素量には必ずしも比例しないし、ましてや試料中の絶対量を測定できるわけでもない。試料中の絶対量を知るためには、通常は、既知量の安定同位元素を試料に混合し、それに対する同位体存在比を測定し算出する。また、例えば、¹⁴C 年代測定の場合には、試料炭素の同位体比 ¹⁴C/¹²C を測定する。このように、AMS は、最終的には、検出目的の核種を含む元素の同位体比を測定する（質量分析する）ことにより、目的核種の定量を行う。

同位体比の測定は、その比が 10 数桁にもなるため、それぞれの同位元素量の測定法は全く異なる。即ち、一方は前述のように粒子識別後のイオン計数により、他方は、イオン電流が多いので、通常は二次電子を抑制されたファラデーカップにより電流として測定される。加速器の透過率の変動による影響は、両者のイオン電流を加速器の通過後に、しかもできる限り同時に測定することにより、小さくできる。

同位体比の測定は、AMS 開発の初期の頃に多くの方法が試みられてきたが、現在までに次の 3 方式、即ち、交互入射法、内部イオンモニター法および同時入射法が精度の高い方法として定着しつつある。どの測定法を採用にしても、最終的には同位体比のよくわかっている試料を標準試料として測定し、試料の測定値と比較することにより、加速器の透過率の変動などをキャンセルする必要がある。通常は、世界の多くの加速器施設により何度も測定されて、同位体比が保証された試料を標準試料として配布し、それと比較するという方法により、間接的に世界共通の測定値として較正する。また、¹⁴C と ¹⁰Be については米国の国立標準技術研究所 (NBS) から標準試料を入手できる。

4.1 交互入射法

測定すべき同位元素イオンを交互に繰り返し加速器に入射し、それぞれのイオン量を加速後に測定する方法である。イオン源出射イオン電流の変動のタイムスケールは1秒程度から数分であるので、繰り返しの速さをその10分の1以下にすることにより、イオン源変動の影響を少なくできる。磁場を高速に切り替えることは渦電流とヒステリシスの問題があり困難であるので、通常は磁場を固定し、入射分析電磁石の中に設置される分析用真空チェンバーを電氣的に浮かせておき、それに印加する電圧を適当に切り替えることにより、入射イオンの質量を高速に切り替える^{25, 26)}。

加速後のイオン電流測定は、図1の例では90°分析電磁石の直後の収束面付近に設置されたファラデーカップにより行われる。例えば、¹⁴C分析用には、質量数12、13、14に対応する電圧をそれぞれ10 μ秒、100 μ秒、100 m秒の間、繰り返し印加して入射し、加速後のそれぞれのイオン電流をそのファラデーカップをつかって蓄積測定することにより、高い精度で¹²C、¹³C、¹⁴Cの同位体比を測定できる。

この方法は、イオン源の変動や加速器の透過率の変動による影響を小さくできるが、高電圧の高速切り替えという動きのある部分が不安定要素となる。

4.2 内部イオンモニター法

安定同位元素イオンに直接または間接的に付随して発生する分子イオンを積極的に利用し、加速器の高電圧安定化を兼ねて、同位体比測定を行う方法が内部イオンモニター法であり、その原理は東京大学のグループにより開発された^{27, 28)}。例えば¹⁰Be測定には、質量数26の¹⁰Be¹⁶O⁻を入射し加速するが、この時同じ質量の⁹Be¹⁷O⁻が同時に入射される。この分子イオンは荷電変換時に解離してそれぞれの原子イオンになるのであるが、⁹Be正イオン電流の蓄積値と¹⁰Be計数値の比から¹⁰Be/⁹Beを算出できることになる（この時、同じ質量の⁹Be¹⁶OH⁻も同時に入射するので、入射前の質量比である $I(26)/I(25) = \{I(^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-) + I(^9\text{Be}^{16}\text{OH}^-)\} / I(^9\text{Be}^{16}\text{O}^-)$ を測定する必要がある）。あるいは、解離されて作られる¹⁷O正イオンの数は⁹Be正イオンの数と同じであるので、¹⁷O正イオン電流の蓄積値と¹⁰Be計数値の比から¹⁰Be/⁹Beを算出することもできる。これらの場合、⁹Beあるいは¹⁷Oの正イオン電流値を測定する時にイオンビーム位置の変動をスリット電流の差として読みとり、加速器の高電圧発生にフィードバックする事により、発生電圧を非常に精度良く安定化できるので、AMS測定の高精度化を容易にしている。この¹⁷Oあるいは⁹Be正イオン電流を内部イオンモニターと呼んでいる。¹⁴C測定の場合は、¹³CH⁻から解離した¹³C正イオン、²⁶Alの場合は、意図的に試料に混合されたBOより得られる¹⁰B¹⁶O⁻から解離した

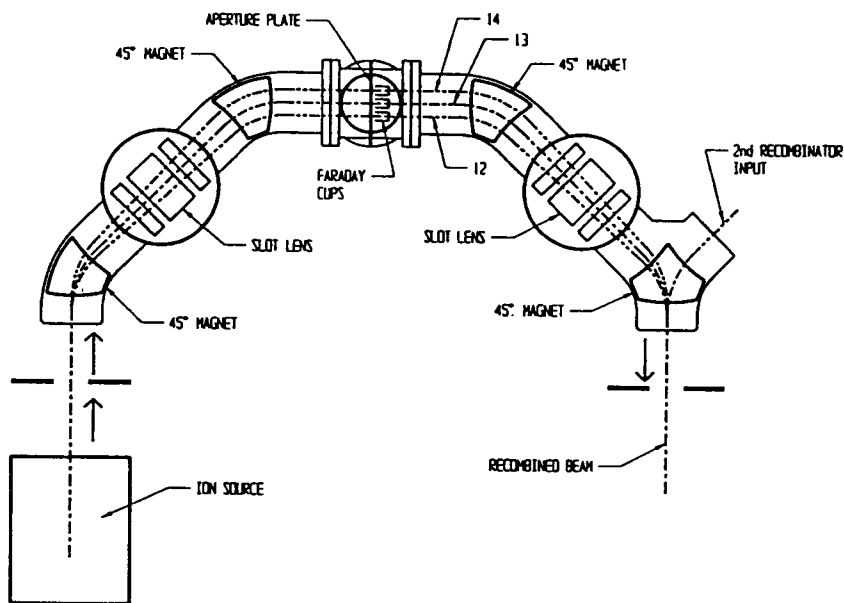


図3 recombimator の一例²⁹⁾

イオン源からのイオンを、1番目の電磁石により質量毎に分散させ、必要なイオンを選び、次の電磁石により再び結合させて、同時に加速器に入射させる。

¹⁶O 正イオンが同様にモニターイオンとして用いられ、加速後の90°分析電磁石の結像曲線位置近傍にセットされたファラデーカップにより電流値が蓄積測定される。

この方法は、測定中に磁場、電場、加速電圧などのイオン光学に関するパラメーターを完全に固定しているため、高精度な測定が可能となっている²⁸⁾。

4.3 同時入射法

負イオン入射系の磁場や電場を工夫することにより、望みの質量のイオンのみを同時に入射することが可能である。図3は recombimator と呼ばれる入射系であり、¹⁴C 測定専用の AMS 装置として市販された小型加速器装置に採用されている。この測定法も、総ての磁場、電場を固定して測定できるので、比較的に精度の高い測定法になっている²⁹⁾。しかしながら、この方法では、大量のイオン電流を加速器に入射することになるので、加速器の負担を減少させる工夫が必要である。例えば、入射イオン電流を加速器の加速能力以下のイオン電流に押さえるためにチョッパーを通す必要があり、その透過率の変動が精度を悪化させる原因になりうる。

5. AMS の性能

AMS の性能の内、検出効率、感度、精度について表3にまとめる。

表3 AMS 測定における典型的なイオン電流量、検出感度、検出効率、測定精度。

核種	化学型	負イオン	イオン電流 μA	検出感度	検出効率	精度 %
^{10}Be	BeO	BeO^-	0.5-20	3×10^{-15}	10^{-4}	2
^{14}C	C	C^-	10-100	3×10^{-16}	10^{-2}	0.5
^{26}Al	Al_2O_3	Al^-	1-5	1×10^{-15}	10^{-4}	2
^{36}Cl	AgCl	Cl^-	10-100	1×10^{-15}	10^{-3}	5
^{41}Ca	CaH_2	CaH_3^-	5-10	1×10^{-15}	10^{-4}	5
^{129}I	AgI	I^-	5-10	10^{-14}	10^{-4}	5

検出効率とは、イオン源で消費した試料の核種量に対して、最終的にイオン検出器で計数されるイオン量の比である。それ故、検出効率は、イオン源における試料のイオン化効率と加速器全系の透過効率（荷電分布効率を含む）および検出器の計数効率の積である。この中で、加速器の透過効率は、電荷状態を選べば通常10%以上にする事が可能である。これに対して、イオン化効率は、試料の化学形、負イオンの電子親和力などにより大きく異なり、その値は $10^{-1} \sim 10^{-5}$ にもなるので、検出効率を向上させるためにはイオン化効率を良くすることが効果的である。

検出感度とは最小検出同位体比であり、バックグラウンドレベルの計数から算出される値である。通常は安定同位体に対する比として表す。バックグラウンドの原因には2種類ある。一つは、測定目的核種以外の、例えば、安定同位元素イオンなどの真空壁等からの散乱イオン、あるいは真空中の残留ガスとの散乱イオン等が原因となる。これは、装置の注意深い設計やイオン検出器のエネルギー分解能の向上によりある程度小さくできる。他の一つは、測定試料の純度に由来するもので、例えば ^{14}C の場合には、測定試料作成過程等に混入する現代炭素の汚染が感度を決定する。

着目核種の測定に必要な試料量は、その半減期とその検出効率に反比例する。 ^{14}C の場合、従来の放射線測定法に比べて約千分の一以下で測定可能であり、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 測定の場合には約一万分の一、 ^{10}Be 、 ^{41}Ca の場合には約千分の一の桁の試料量でよい。

測定精度は、加速器などの装置が安定しているときには、イオン計数の統計精度によ

ってほぼ決まる。同位体比既知の標準試料の測定値との比較により、加速器の透過率の変動、イオン源出力電流の変動などによる影響はある程度除くことができる。その他、系統的誤差としては、イオン化の過程で起こる質量分別効果および機械的部分の透過率に関して質量弁別効果があるが、これも同位体比既知の標準試料の測定値により補正することができる。この表中の測定精度は、現在までに得られた典型的な値を示しているが、 ^{14}C については考古学等からの高精度化の要請も強く、0.3%もの高い精度が報告されることもある。

6. おわりに

AMSは、従来の原子核実験技術などを駆使して発展してきた。この技術が今後も更に発展するための鍵は、核電荷 Z の弁別法の開発とイオン源におけるイオン化効率の向上が握っている。これらは相変わらず加速器による原子核実験や、それに近い分野において発展するものと予想され、この分野の動向から目を離すことが出来ない。また、新しい方向としてはレーザー技術の利用があり、極微量同位元素の検出に新たな技法を提供してくれる可能性があるが、加速器質量分析法からかなり離れることになるので、ここでは触れなかった。

参考文献

- 1) L. Alvarez and R. Cronog, Phys. Rev. 56(1939)379
- 2) R.A. Muller, "Radioisotope Dating with a Cyclotron", Science, 196(1977)489 - 497
- 3) G.L. Bennett, R.P. Beukens, M.R. Clover, D. Elmore, H.E. Gove, L. Kilius, A.E. Litherland, K.H. Purser, "Radiocarbon Dating with Electrostatic Accelerators : Dating of Milligram Samples", Science, 201(1978)345-347
- 4) H.E. Gove, (ed.), Proc. 1st Conf. on Radiocarbon Dating with Accelerators, (Univ. Rochester, U.S.A., 1978)
- 5) W. Kutschera, (ed.), Proc. 2nd Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, (Argonne National Laboratory, U.S.A., 1981)
- 6) W. W. Hoff, H.A. Pollach and H.H. Anderson, (eds.), Proc. 3rd Int. Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, (Zürich, Switzerland) ; Nucl. Instr. and Meth., 233(1984)
- 7) H.E. Gove, A.E. Litherland, D. Elmore, (eds.), Proc. 4th Int. Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, (Niagara-on-the-Lake, Canada); Nucl. Instr. and

- Meth., B29(1987)
- 8) F. Yiou and G.M. Raisbeck,(eds.), Proc. 5th Int. Conf. Accelerator Mas Spectrometry, (Paris, France) ; Nucl. Instr. and Meth., B52(1990)
 - 9) L.K. Fifield, D. Fink, S.H. Sie and C. Tuniz, (eds.), Proc. 6th Int. Conf. Accelerator Mass Spectrometry, (Canberra–Sydney, Australia); Nucl. Instr. and Meth., B92(1994)
 - 10) D. Elmore and F.M. Phillips, "Accelerator Mass Spectrometry for Measurement of Long–Lived Radioisotopes", Science, 236(1987)543–550
 - 11) D. Elmore, "Ultrasensitive Radioisotope, Stableisotope and Trace–element Analysis in the Biological Sciences Using Tandem Accelerator Mass Spectrometry", Biological Trace Element Research, 12(1987)231–245
 - 12) 今村峯雄、永井尚生、小林紘一、「加速器質量分析」、質量分析、39, No.6,(1991) 283–299
 - 13) R.E.M. Hedges, Nucl. Instr. and Meth., B52(1990)428–432
 - 14) K.J. Bertsche, P.G. Friedman, D.E. Morris, R.A. Muller and J.J. Welch, "Status of the Berkeley Small Cyclotron AMS Project", Nucl. Instr. and Meth., B29(1987)105–109
 - 15) K.J. Bertsche, C.A. Karadi, R.A. Muller and G.C. Paulson, Nucl. Instr. and Meth., B52(1990)398–404
 - 16) M.B. Chen, D.M. Li, S.L. Xu, G.S. Chen, L.G. Shen, Y.J. Zhang, X.S. Lu, W.Y. Zhang, Y.X. Zhang and Z.K. Zhong, "The successful SINR mini cyclotron AMS for ¹⁴C dating", Nucl. Instr. and Meth., B92(1994)213–216
 - 17) K.H. Purser, A.E. Litherland and H.E. Gove, "Ultra–Sensitive Particle Identification Systems Based Upon Electrostatic Accelerators", Nucl. Instr. and Meth., 162(1979) 637–656
 - 18) W. W ò lfi, "Advances in Accelerator Mass Spectrometry", Nucl. Instr. and Meth., B29 (1987)1–13
 - 19) K. Kobayashi, S. Hatori and C. Nakano, "AMS system at the University of Tokyo", Nucl. Instr. and Meth., B92(1994)31–34
 - 20) D. Shapira, R.M. Devries, H.W. Fulbright, J. Toke and M.R. Clover, "The Rochester heavy ion detector", Nucl. Instr. and Meth., 129(1975)123–130
 - 21) D.E. Nelson, R.G. Korteling, D.G. Burke, J.W. Mckay and W.R.Stott, "Results from Simon Fraser – McMaster Universities Carbon Dating Project", Proc. 1st Conf. on Radiocarbon Dating with Accelerators, H.E. Gove(ed.), (Univ. Rochester, U.S.A., 1978) 47–69
 - 22) G.M. Raisbeck and F. Yiou, "Accelerator Mass Spectrometry with the Grenoble and

- Orsay Cyclotrons", Proc. 2nd Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, W.Kutschera(ed.), (Argonne National Laboratory, U.S.A., 1981)23–33
- 23) W. Henning, B. Glagola, J.G. Keller, W. Kutschera, Z. Liu, M. Paul, K.E. Rehm and R.H. Siemssen, Proc. Workshop on Techniques in Accelerator Mass Spectrometry, (Oxford, UK, 1986)196
- 24) M. Paul, "Separation of isobars with a gas-filled magnet", Nucl. Instr. and Meth., B52 (1990) 315–321
- 25) M. Suter, R. Balzer, G. Bonani, Ch. Stoller, W. Wölfl, J. Beer, H. Oeschger and B. Stauffer, "Improvements in the Application of a Tandem Van-de-Graaf Accelerator for Ultra-Sensitive Mass Spectrometry", Proc. 2nd Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, W. Kutschera(ed.), (Argonne National Laboratory, U.S.A., 1981)
- 26) M. Suter, R. Balzer, G. Bonani, W. Wölfl, J. Beer, H. Oeschger and B. Stauffer, "Radioisotope Dating Using an EN-Tandem Accelerator", IEEE Transactions on Nuclear Science, NS–28, No.2(1981)1475–1477
- 27) M. Imamura, Y. Hashimoto, K. Yoshida, I. Yamane, H. Yamashita, T. Inoue, S. Tanaka, H. Nagai, M. Honda, K. Kobayashi, M. Takaoka and Y. Ohba, "Tandem Accelerator Mass Spectrometry of $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ with Internal Beam Monitor Method", Nucl. Instr. and Meth., B5(1984)211–216
- 28) K. Kobayashi, M. Imamura, H. Nagai, K. Yoshida, H. Ohashi, H. Yoshikawa and H. Yamashita, "Static operation of an AMS system using the beam monitor method", Nucl. Instr. and Meth., B52(1990)254–258
- 29) K. H.Purser, T.H. Smick and R.K. Purser, "A precision ^{14}C accelerator mass spectrometry", Nucl. Instr. and Meth., B52(1990)263–268