

超小型 AMS の実現に向けた結晶表面ストリッパー法の開発



神野 智史
Jinno Satoshi

松原 章浩*
Matsubara Akihiro

藤田奈津子*
Fujita Natsuko

木村 健二*
Kimura Kenji

1 はじめに

人類の歴史や地球環境の変遷を精密に読み解く手段として、加速器質量分析（AMS：Accelerator Mass Spectrometry）は不可欠な技術である。とりわけ放射性炭素（ ^{14}C ）分析の主流となっている高感度測定は AMS によって行われ、考古学・地質学・環境科学等幅広い分野に応用されている。しかし、AMS 装置は一般に大型かつ高価であり、その設置と運用には広いスペースと放射線管理が必要とされてきた。これが、AMS の応用拡大の足かせとなっていたことは否めない。

この課題に対し、筆者らは新たなアプローチにより“超小型 AMS”の実現を目指している。本稿では、従来の常識を覆すユニークな技術とその意義、そして今後の展望について紹介する。

2 加速器質量分析（AMS）の概要

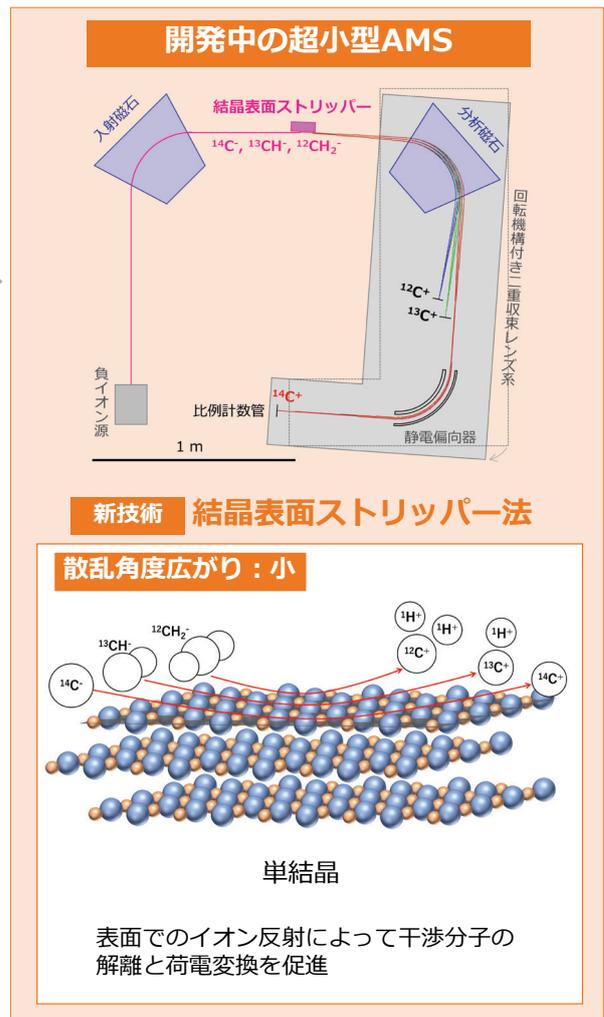
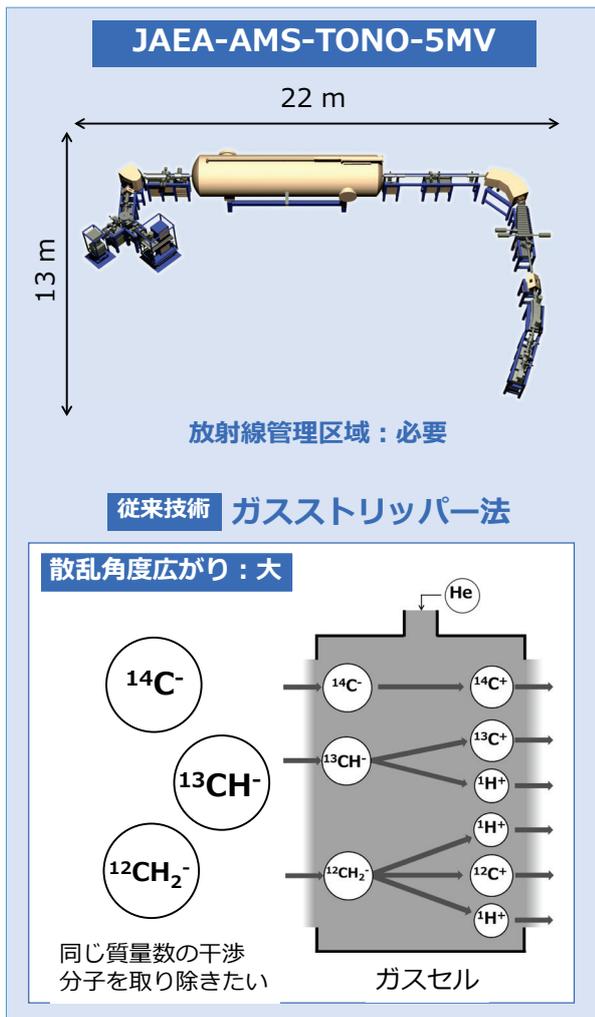
自然界において ^{14}C は宇宙線と窒素原子との反応により供給されており、 ^{12}C 、 ^{13}C 、 ^{14}C の割合が $1 : 10^{-2} : 10^{-12}$ で存在している。しかし、生物に取り込まれ木や骨等に固定化された ^{14}C は半減期 5730 年で減少していく。そのため、この極微量な ^{14}C に対して高感度な測定が必要とされる。質量分析と言えばイオン源で生成したイオンを電磁石を使って質

量電荷比（ m/q ）で分離するものを想像するかもしれないが、 ^{14}C 分析の場合、測定を妨害するイオンとして、 ^{14}N 、 ^{13}CH 、 $^{12}\text{CH}_2$ 、 $^7\text{Li}_2$ があるので、極微量の ^{14}C を測定することは不可能である。そこでタンデム加速器の特性を利用することでこれらの問題をクリアしているのが AMS である。AMS では、試料を負イオン化したのちタンデム加速器により数 MV 規模の高電圧で加速する。この過程で、窒素は負イオンになれないので、この時点で ^{14}N は排除される。タンデム加速器の中央まで加速されたイオンは、ガスストリッパー（一般には希ガスや窒素）を通過することで、負イオンから正イオンへと変換され、タンデム加速器出口に向けてさらに加速される。この際、妨害分子イオンは解離するので排除される。さらに、高エネルギーイオンであることから、原子番号による阻止能の違いを利用して電離箱や Si 半導体検出器による分離検出も行っている。

このようにして、AMS は、微量の放射性同位体を高精度・高感度に測定する手法である。特に ^{14}C の年代測定では、わずか数 mg の試料からでも数万年間までの年代を推定できる点が大きな利点である。

従来の AMS 装置、例えば JAEA-AMS-TONO-5 MV（図 1）のように加速電圧が MV 級の大型装置では全長 10 m を超え、設置には広いスペースと放射線管理区域を必要とし、大学や大型研究機関にしか設置できなかった。しかし、近年の考古資料や環境試料の多様化、さらには災害や環境汚染事故後の迅速な測定ニーズの高まりに伴い、誰もが使える

* 著者写真はご本人の希望によりありません（事務局）



サイズ：1/10
加速電圧：1/100

図1 筆者所属の研究所にある JAEA-AMS-TONO-5MV (左) と今回開発した超小型 AMS (右) の構成比較

AMS への期待が高まっている¹⁾。

また、国際的には CO₂ 排出管理や食品・医薬品の放射性炭素トレーサー利用等、より身近な領域への展開も進んでいる。これらのニーズに応えるには、従来のような大型設備に頼るのではなく、省スペース・低コスト・高機動性を備えた AMS が求められる。近年では AMS 装置メーカーも小型化を進めており、炭素専用機として主流となりつつある 200~500 kV の装置では放射線管理区域が不要で、中には加速電圧が 100 kV で床面積が 2 m×3 m 程度の炭素専用 AMS が市販されている²⁾。

小型化のために各コンポーネントを小さくするには、加速電圧を下げるのが不可欠だが、100 keV 未満ではストリッパーガスとの衝突による散乱角度広がりが増大し、測定精度の劣化を招く。さらに、

ガスの導入には差動排気系が必要となり、装置の小型化を妨げる要因ともなっていた。

3 超小型 AMS の着想と結晶表面ストリッパー法

そこで筆者らは、タンデム加速器を用いず、かつガスストリッパーに依存しない新方式として、「結晶表面ストリッパー法」に着目し、プロトタイプの超小型 AMS を開発中である^{3,4)}。

図1に今回開発した超小型 AMS の概略図を示す。結晶表面ストリッパー法は、従来のガスストリッパーの代わりに、原子レベルで平坦な結晶表面を用いて妨害分子イオンの解離とイオンの荷電状態の変換を行うというものである。具体的には、炭素負イオン (¹⁴C⁻) を加速して結晶表面に斜めに入射させ、

表面近傍の電子との相互作用によって一部のイオンを正電荷 ($^{14}\text{C}^+$) へ変換させる。この電荷移行過程は、イオンと表面の電子準位、フェルミ準位、仕事関数、イオン速度、表面からの距離に依存する。さらに、質量による分離が困難な妨害分子イオン ($^{13}\text{CH}^-$ や $^{12}\text{CH}_2^-$) は、固体表面との衝突により運動エネルギーの一部が内部振動モードに移行し、さらに非断熱的な電子相互作用により反結合性軌道が占有されること等によって、分子結合が不安定化・解離し、AMS の測定対象から除去される。これにより、タンデム加速器やガスストリッパーを使わずに、炭素同位体の高精度分離と測定が可能になる。

また、結晶表面ストリッパー法はガスを使用しないため、差動排気系を必要としないことも大きな利点である。これは、小型化において非常に大きな優位性を持つ。ただし、ストリッパー部を超高真空 (10^{-7}Pa 以下) に維持するため、負イオン源からのガス流入を抑制する差動排気は別途設けている。

4 実験装置

現在、筆者らはプロトタイプの超小型 AMS の性能評価を進めている。本システムは、約 $1.9\text{m} \times 1.9\text{m}$ 程度の省スペースで設置可能な構成となっている。

炭素負イオン ($^{14}\text{C}^-$) ビームはセシウムスパッタイオン源により生成する。イオンビームは $10 \sim 45\text{keV}$ のエネルギーで加速され、結晶表面ストリッパーに斜め入射される。入射角は表面に対して $2 \sim 5$ 度程度の浅い角度であり、鏡面反射するので散乱角度広がり狭く、その後のビーム輸送においてビーム損失が小さい。

ストリッパー表面で散乱・荷電変換されたイオンは、磁場偏向器と静電偏向器で構成された角度広がりエネルギー広がりに対するアクロマティックな二重収束系により質量分離が行われる。これにより、正電荷に変換された $^{14}\text{C}^+$ を高い透過率で選択的に検出できる。

また、結晶は超高真空下 (10^{-7}Pa 以下) でヒーターにより 500K に昇温されており、表面の汚染を防ぎつつ運転している。現在は、複数の結晶表面での測定による検出効率・検出限界の検証が進行中である。

5 結晶材料の選定と表面科学

結晶表面ストリッパー法の実現には、適切な結晶材料の選定が不可欠である。求められる特性として以下の点が挙げられる。(1) 原子レベルで平坦な結晶面が得られること。(2) 仕事関数が高く、電荷移行が効率的に起きること。(3) イオンとの相互作用で分子解離が起こりやすいこと。(4) 表面の清浄性を保ちやすく、真空中でも安定な構造であること。等である。

初期段階では $\text{KCl}(100)$ 結晶を用いた⁵⁾。KCl は劈開により容易に原子レベルで平坦でクリーンな面を形成できるが、分子の解離効率に限界があった。そこで次に着目したのが $\text{SnTe}(100)$ 及び $\text{Au}(111)$ である。

SnTe は狭いバンドギャップ (0.18eV) を持つ半導体であり、高温 (約 500K) 条件で使用されるため、自由電子を持つ金属とみなせる。また、Au は化学的安定性を併せ持ち、表面平坦性もある程度担保できる。これらの材料を用いて実験を重ねた結果、Au では KCl や SnTe に比べて明確な解離と荷電変換の効率向上が観測された。

これらの成果は、表面電子状態の制御が AMS の性能に直結することを示しており、今後の材料選定や表面処理技術の開発に向けた重要な指針となっている。

6 今後の展望と社会的インパクト

現在開発中の超小型 AMS システムは、従来の大型 AMS に匹敵する ^{14}C 測定性能を持ちながら、省スペース・低コスト・非放射線管理区域での運用を実現しようとしている。これは、小規模な研究機関や大学、さらには文化財保存施設や地域博物館等でも ^{14}C 分析を可能にするという点で、社会的な意義は極めて大きい。

今後は、結晶表面での荷電変換・分子解離の一般性や材料依存性の体系的評価が必要である。また、オンサイトでの放射性同位体測定を必要とする場面において、超小型 AMS は従来の大型装置では不可能だったフレキシビリティを提供できる。将来的には、可搬型 AMS の可能性を模索したい。

このように、結晶表面を活用した AMS の小型化

は、単なる装置設計の革新にとどまらず、分析科学の普及に向けた先導的技術と位置づけられる。

7 まとめ

本稿では、結晶表面ストリッパー法を用いた超小型 AMS の研究開発について紹介した。AMS の小型化が抱える課題に対し、原子レベルで平坦な結晶表面を用いた荷電変換・分子解離法は、小型化と高性能化の両立を可能にする画期的なアプローチである。

材料選定、表面制御、真空環境の維持、ビームの安定供給といった複数の技術課題を乗り越えながら、現在構築中のプロトタイプは明確な性能指標を示しつつある。装置の簡素化と省スペース性により、これまで AMS にアクセスできなかった多くの分野や現場への導入が期待される。

今後も、実用化に向けた改良と応用拡大を続け、“誰もが扱える質量分析技術”としての AMS の新たな姿を実現していきたいと考えている。

参考文献

- 1) W. Kutschera, *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **95**, 035006 (2023)
- 2) D. De Maria, *Towards a new horizon for biomedical applications of AMS*, DISS. ETH NO. 27471, ETH Zurich (2021)
- 3) A. Matsubara, *et al.*, *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B* **437**, 81-86 (2018)
- 4) N. Fujita, *et al.*, *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B* **532**, 13-18 (2022)
- 5) S. Jinno, *et al.*, *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B* **557**, 165545 (2024)

(日本原子力研究開発機構)