特集：定量分析・同位体分析のためのイオン検出器

COMMENTARY

AMSの計測システムの概略

Introduction of Measurement System for AMS

洪 完*

Wan HONG

韓国地質資源研究院 (KIGAM) 地質資源分析センター Geochemical Analysis Center

(Received July 29, 2021; Accepted August 10, 2021)

1. 緒 言

加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) は、数百 kV から数十 MV までの電圧を利用して目的イオンを数百 keV から数十 MeV のエネルギーに加速し、質量分析を行う分析法である。これまで主に超微量同位体分析に広く活用されてきた。AMS の代表的な応用分野の一つである放射性炭素 (^{14}C) 年代測定では、超微量の ^{14}C を測定する。現代炭素中の ^{14}C の存在比は $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 1 \times 10^{-12}$ であり、一方で AMS の ^{14}C の検出下限は $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 1 \times 10^{-15}$ 程度であり、十分に低いブランク値を有する。しかし、このブランク値は AMS 分析で避けられない試料の化学前処理や還元処理過程での現代炭素の汚染を含めた値であり、最新の AMS 装置自体のブランク値は $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 3 \times 10^{-16}$ にまで向上している。また AMS ^{14}C 測定では通常 1 mg の炭素量を使用するが、最近では深海底堆積物中の有孔虫やアイスコアの中の二酸化炭素のように試料の量が限られている場合には数 μg の炭素量で測定を行うことも稀ではない^{1)~5)}。この場合、絶対量で 10^{-20} g 以下の ^{14}C を測ることになり、そのために検出系には極めて高い感度が要求される。

AMS ではイオンが高い運動エネルギーを持つため普通の低エネルギー範囲では適用が不可能な E×B フィルター^{6),7)}や ESA フィルター⁸⁾ (Electric Spherical Analyzer) などを利用して、スペクトル干渉を起こす同重体、多価イオン、多原子イオンを効率よく取り除くことによって超微量同位体の同位体比の精密測定を実現する。炭素のほかにも ^{10}Be , ^{26}Al , ^{126}I などのようにいわゆる宇宙線生成同位体が AMS の測定対象となるようになった⁹⁾。その理由はこれらの同位体が ^{14}C 同様に低い自然界存在比を持つ放射

性超微量同位体であるためである。

質量が異なる上に含有量が極端に離れている同位体の比を少量の試料で測定するためにはそれらを同時に測定する必要がある。AMS はそのための装置を備えている。その代表的な装置としてバウンシングシステム (Bouncing System) とリコンビネーター (Recombinator) がある¹⁰⁾。後者は 4 組の 45°セクターマグネットで構成された装置で、同時にイオン源から出てきた ^{12}C , ^{13}C , ^{14}C の 3 つの炭素同位体を磁場によっていったん質量分離した後、いくつかの磁場の組み合わせによりもう一度同じ位置に集結させるように設計されている ^{14}C 測定用装置である。これにより質量の異なる 3 つの同位体が混在するビームを同時に曲げることができる。リコンビネーターを使えば 3 つの同位体が加速器や電磁石などのコンディショニングの時間的揺れを同様に受けるので同位体比がそれらの条件変化に影響されない利点があるが、一方で広い設置空間が必要であるだけでなく、測定対象イオンごとにリコンビネーターのセッティングが固定されるため、測定対象イオンを自由に変えることができない欠点もある。この十数年間加速器の安定性が向上するにつれリコンビネーターは高い導入費用に比べ得られる利点が少なくなり、一時期、特定モデルの炭素専用の AMS に適用されたものの、その後は使われなくなった。今はより簡単な構造を持つバウンシングシステムが主に使われている。バウンシングシステムは入射電磁石に設置され、質量の異なる同位体イオンを順次に加速器に送り込む役割を果たす装置である。電磁石に設置するので余分の設置空間がほとんど不要で導入費用も格段に安い上に、高い周波数で運転すれば同時測定にほぼ近い結果を得ることができる。

イオンの計測装置としては、存在比が大きい安定同位体の検出にはファラデーカップが利用され、ファラデーカップの検出下限より低い存在比を持つ超微量同位体の検出に

* 連絡先: whong@kigam.re.kr

韓国地質資源研究院 (KIGAM) 地質資源分析センター: 124 Gwahang-ro, Yuseong-gu, Daejeon, 34132, South Korea

は、より感度の高いイオンチャンバーや半導体検出器が使用される。ターミナル電圧500 kV以下の小型加速器で構成されたAMSには半導体検出器が主に使われるが、1 MV以上のAMSでは、質量分解能が高いガスイオンチャンバーを使う場合が多い。ファラデーカップに関しては別の特集で詳しく取り扱われているのでこの稿では要点だけの説明に限定し、バウンシングシステムとイオンチャンバーを中心に詳説する。

2. バウンシングシステム

バウンシングシステムは、イオン源と加速器の間に位置する入射電磁石に設置される装置で、電場を高速走査することで入射電磁石に入射されるイオンのエネルギーを変化させ、質量の異なる同位体イオンを順次に加速器に送り込む役割を果たす。電磁石に流す電流で磁場強度を変化させる場合、magnetic hysteresisの影響で磁場変化速度に制約を受けるが、バウンシング技術を用いることで、スイッチング速度を飛躍的に高めることが可能となる。

Fig. 1にバウンシングシステムに印加される交流電圧の例を示した。この電圧は電磁石の中を通るビーム経路を成す金属の磁石チャンバーを他のビームラインや磁石コアなどすべてのパートとの間に絶縁材を用いて電気絶縁させた上でそのチャンバーに印加する。この例では ^{13}C を基準同位体として入射電磁石の磁場を ^{13}C に合わせてセットしているため、印加電圧なし($V=0$)では ^{13}C が入射されることになる。AMSでは陰イオン源を採用しているためプラス電圧では陰イオンが磁石に入る前に陽電圧によって加速されもともとより大きいエネルギーを持つようになり、 ^{13}C より軽い ^{12}C が磁石を通り加速器に入射される。反対にマイナス電圧では減速されるため、 ^{13}C より重い ^{14}C が入射される。磁石を出るときそれぞれ違ったエネルギーを持っている同位体イオンは磁石を離れてからは後ろから引っ張られたり、押されたりする電圧による力が働き、加速されたも

のは減速され、減速されたものは加速され、結局は元のエネルギーに揃うことになる。このようにバウンシング電圧を変えることにより三つの同位体を迅速にスイッチングできる。しかも、同位体の信号強度（相対存在度）を考慮して入射時間（＝計測時間）を任意に変えることができる。この例では ^{12}C と ^{13}C の入射時間をそれぞれ0.1 msにして、 ^{14}C の入射時間を9.75 msにすることによって、 ^{14}C の測定時間を他の同位体に比べて約100倍長く設定してある。これは存在比の違いが大きい同位体比の測定をする際に有用であり、極微量の同位体の積分時間を長くすることで統計誤差の影響を低減することが可能である。この一連の動作を速い速度で繰り返すことによって加速器や高電圧電源、電磁石の揺れの測定値への影響を小さくすることができる。この例では100 Hzで動作するようにセットしているが、50 Hzになっているケースも多い。その場合は入射時間の配分も変わることになる。 ^{12}C と ^{14}C の入射のために必要な電圧は次の式のようにイオンのエネルギーと基準となる同位体との質量比によって決まる。

$$V = \frac{\delta E}{e} = \frac{E_1 - E_0}{e} = \left(\frac{m_0}{m_1} - 1 \right) \frac{E_0}{e} \quad (1)$$

ここで m_0 と m_1 はそれぞれ基準イオンと入射同位体イオンの質量、 E_0 はイオンのエネルギー、 e はユニットチャージである。重イオンでは同位体の質量数が近いと質量比が1に近い値になるのでこの電圧の大きさはイオンのエネルギーが数十keVの場合、おおむね数百Vから数kV範囲である。バウンシングパルスはまずFunction generatorで電圧の比率や時間の配分などに合わせたパルスの形を作った後、これをロックインアンプで必要な電圧まで増幅させる。ロックインアンプは出力を出す際、出力と同じ模様のモニター信号パルスを同じタイミングで別のアウトプットから出すが、このモニター信号はこの後のイオンの計測の際にゲート信号としても用いられる。これに関しては測定回路のところで後述する。

3. ファラデーカップによる安定同位体の測定

AMSにおいては、存在比が大きい安定同位体の測定はファラデーカップを利用して電荷量として測定するのが一般的である。バウンシングによって加速器に導入され加速された同位体イオンは分析電磁石によって質量分離され、それぞれの質量によって違う軌道をたどることになる。同じエネルギーを持つ同位体は同じ磁場の中で質量が軽いほど大きく影響され大きく曲がる。炭素のように三つの同位体を持つ元素を例にすると、安定同位体である ^{12}C が回転軌道の一番内側で ^{13}C は ^{12}C よりは外側に位置する。したがって、それぞれの同位体が来るところに複数のファラデーカップを設置してイオン電流を測定する。

Fig. 2にファラデーカップの設置例を示した。炭素を測定する場合は2つのファラデーカップを使うが、BeやAlのように2つの同位体比を測定するときは可動式ファラデーカップだけを使って質量に合う位置に移動させて測定

Fig. 1. 炭素同位体比測定のためのバウンシングパルスの例。この例では入射電磁石の磁場は ^{13}C に合わせてある。例えば ^{12}C と ^{13}C の入射時間をそれぞれ0.1 msにして、 ^{14}C を9.75 msにするとこのシステムは約100 Hzで動作することになる。

Fig. 2. 炭素安定同位体測定用の off-axis ファラデーカップ。測定元素が変わるとイオンの相対位置関係も変わるので一つのファラデーカップは移動式で真空を破らずに位置を変えることができるようになっている。

する。測定はファラデーカップに入ってきた電荷がファラデーカップからグラウンドにつながっている電線を通して流れる際、途中に設置されている電流集積回路によって行われる。電流集積回路はあらかじめ設定されている単位電荷量が集まるごとにパルスを出力するようになっている。このパルスをカウンターで数えることによってファラデーカップに入ってきた総電荷量を計測する。またこのカウンターは、バウンシングシステムで作られたモニター信号をゲート信号として利用し、決められた同位体が入射されたときのみカウントを行う。これによりノイズの影響を低減できる。パルスを発生させる単位電荷量は計測が要求する精密度を考慮して決める。 ^{14}C 年代測定の場合、存在比 0.989 の ^{12}C の測定では 10 pC ごとにパルスを発生させ、存在比 0.011 である ^{13}C の測定では 0.1 pC ごとにパルスを発生させる。仮に $20\ \mu\text{A}$ の ^{12}C ビームが入ってくるとしたら、5 分間の測定で 6 億個のパルスをカウントすることになる。バウンシングシステムのところで説明したように実際には全体測定時間の 1/100 だけが ^{12}C 測定に使われているので 6 百万個を測定することになる。この場合統計的標準偏差は 0.04% であり、AMS ^{14}C 年代測定で求められる分析精度 (0.1%) より優れている。

4. ガスイオンチャンバー

4.1 ガスイオン検出器の種類

運動エネルギーを持つ荷電粒子を検出する方法は液体シンチレーションカウンタ (Liquid Scintillation Counter) などのような液体を用いるものや、プラスチックシンチレーターや半導体検出器のように固体を利用するものなどさまざまであるが、その中でもガスイオン検出器は、原理の解りやすさ、製作や使用の簡単さから放射線検出器開発初期から広く利用されてきた。ガスイオン検出器は、比例計数管 (proportional counter) とイオンチャンバー (ionization chamber)、それから GM カウンタ (Geiger-Muller counter) に大別できる。これらの検出器の違いは構造的

Fig. 3. 印加電圧と計測された電荷の相関関係。I: recombination region, II: ionization region, III: proportional region, IV: GM region.¹¹⁾

な違いよりは印加するバイアス電圧とガスの内圧の違いといえる。測定粒子がこれらの条件のもとでガスの中で運動する際に発生させた 1 次電荷がさらに 2 次電荷を作るか否か、また作るなら 2 次電荷発生量が印加電圧に比例するか否かの違いである。こういった性質は検出器の使用目的によって長所にも短所にもなるため、実験目的に応じて選択しなければならない。

Fig. 3 に印加電圧と発生電荷の関係を示す¹¹⁾。Fig. 3 の領域 II は入射イオンの内部ガス分子電離作用によってできた 1 次電荷が電極に集まる過程で 2 次電荷が発生されない領域で、印加電圧の変化による計測される電荷量の変化は小さい。この領域では検出されたイオンの運動エネルギーのみに比例した電荷量が計測されるので、この領域を利用する検出器であるイオンチャンバーは比較的優れたエネルギー分解能を示す。領域 III は入射イオンによって生成された 1 次電荷の印加電圧による運動エネルギーが電極まで移動中に 2 次電荷を生成できるほどに大きい領域である。この領域では発生する総電荷量は印加電圧に比例して増幅されるため、比例領域と呼ばれる。この領域を利用する検出器が比例計数管であり、イオンチャンバーより強い信号が得られるので目的イオンが作る電荷量が小さいときに有利である。領域 IV ではさらに高い印加電圧により 2 次電荷や 3 次電荷などが雪崩式に増えることによって、入射イオンの運動エネルギーの大きさに関係なく強い信号が得られる。この領域を利用するのが GM カウンターであり、エネルギー分光が必要でなく、高い感度でイオンの量だけを測りたい時に有利である。

AMS では、微少量を精密に測定するため使われる検出器には高い感度と安定性、そして優れた質量分解能が要求される。その反面、検出対象となる重イオンのエネルギーは高いので一個一個のイオンの作り出す電荷量が十分に大きく、信号を増幅する必要はさほど大きくない。したがって、使用する印加電圧の範囲が比較的低くて使いやすく、何より印加電圧の揺れが多少あっても発生電荷量が安定しているので高いエネルギー分解能を持つイオンチャンバーを主に用いる。

4.2 ガスイオンチャンバーの測定原理と特性

ガスイオンチャンバーは加速器で加速されたイオンの高いエネルギーを利用してシングルイオン計測を行う検出器であり、バウシングシステム、エネルギーフィルター(ESA)と共にAMSのもっている高い分析感度を最大限に引き出す重要な要素といえる。Fig. 4aにイオンチャンバーの電子回路を示した¹¹⁾。イオンチャンバーの中の電場 E は印加された電圧 V_0 と電極間距離 d で次のように表すことができる。

$$E = \frac{V_0}{d} \quad (2)$$

この電場の中で入射イオンが運動すると周りのガス分子を電離してイオン対が作られ電場によってそれぞれ反対方向に向かって加速される。4.1節で説明したようにイオンチャンバーでは二次電荷が生成されることはない。電子とイオンが電極に向かって距離 dx を移動したとき電場がした仕事はエネルギー保存によってキャパシタのなかの電荷の変化と等しい。すなわち、

$$eE(dx^+ - dx^-) = d\left(\frac{Q^2}{2C}\right) = \frac{Q}{C}dQ \equiv V_0(dQ^- + dQ^+) \quad (3)$$

となる。したがって任意の時間 t に検出器の出力電圧 $V(t)$ は

$$V(t) = \frac{1}{C} \int_0^t [dQ^+ + dQ^-] = -\frac{e}{Cd} \int_0^t [dx^+(t) - dx^-(t)] \quad (4)$$

と表せる。

一般的にイオンチャンバーで使われる印加電圧は数百Vであり、この場合電子が検出器の陽極に到達するまでの時間は数 μs で、一方でイオンが陰極に到達するまでの時間は約千倍長い数msである。信号パルスはイオンが電極に到達した時最大値になるのでパルスの時間幅は数msに及ぶことになる。AMSで広く使われているセシウムスパッタタイプ陰イオン源の中には100 μA のイオンビームを生産できるものも多い。例として通常の50 μA の炭素ビームを想定すると、現代炭素の中の ^{14}C の存在比はおおよそ $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 10^{-12}$ であるから1秒当たり約300個の ^{14}C を測ることになる。これは一個の炭素信号を処理するのにかかる時間は平均して3 ms以下であることを示す。したがって、幅数msの信号パルスは長すぎ、このままでは検出器としては使えない。この問題を解決するために実際には入射イオンによって作られたイオン対のうち移動時間が短い電子の作る信号だけを使う。電子による信号だけを計測する回路の一例をFig. 4bに示した。

多くの場合はさらに速い信号が必要なのでCR微分回路¹¹⁾を利用してパルスの持続時間を短縮する。実際に高速プリアンプを用いたときのプリアンプの出力パルスのrising timeはFig. 5に表したように十分に短い数 μs である。極端な例でイオン源に特別な工夫を施して200 μA の炭素ビームを用いて測定するAMS装置も存在しており¹²⁾、この場合では1秒間に1200個以上の ^{14}C を測ることになるがこの場合でもガスイオンチャンバーの信号は十分に速い。

Fig. 4. イオンチャンバーの電子回路. (a) 原理図¹¹⁾ (b) 信号のrising timeを短縮するために電子—イオン対のうち電子からのパルスだけを計測信号とする回路の例。

Fig. 5. イオンチャンバーのPreAmp信号の特性の例。Anode Bias: 300 V, Cathode Bias: -200 V, Rising Time: 6 μs , Falling Time: 400 μs 。

ただしここまで計数率が上がるとAD変換時間が問題となるため不感時間の補正が重要になる。不感時間の補正は後述の計測回路のところで触れることにする。

ガスイオンチャンバーの中で高エネルギーイオンによって励起され、イオン対を作るのは検出器の中に入れられた

Table 1. ガスの 20°C, 760 Torr での物理特性¹³⁾

Gas	Z	A	ρ (g/cm ³)	E_x (eV)	E_i (eV)	w_i (eV)	dE/dx (keV/cm)	n_p (cm ⁻¹)	n_t (cm ⁻¹)	L (m)
He	2	2	0.178	19.8	24.5	41	0.32	4.2	8	745
Ar	18	39.9	1.782	11.6	15.7	26	2.44	23	94	110
Ne	10	20.2	0.90	16.67	21.56	36.3	1.56	12	43	345
Xe	54	131.3	5.86	8.4	12.1	22	6.76	44	307	15
CF ₄	42	88	3.93	12.5	15.9	54	7	51	100	92.4
DME	26	46	2.2	6.4	10.0	23.9	3.9	55	160	222
CO ₂	22	44	1.98	5.2	13.7	33	3.01	35.5	91	183
CH ₄	10	16	0.71	9.8	15.2	28	1.48	25	53	646
C ₂ H ₆	18	30	1.34	8.7	11.7	27	1.15	41	111	340
i-C ₄ H ₁₀	34	58	2.59	6.5	10.6	23	5.93	84	195	169

ρ : density, E_x : exciting energy, E_i : ionization energy, w_i : average energy required to produce one electron-ion pair, dE/dx : minimum energy loss, n_p : average number of primary charge pair, n_t : average number of total charge pair, L: radiation length, DME: dimethyl ether.

ガス分子であるので、ガスの種類や圧力も検出器の特性を決定するうえで重要になる。イオンチャンバーを含むガスイオン検出器でよく使われるガスにはP-10 (PR) ガス (90%Ar+10%CH₄) やブタン、イソブタンなどがある。これらのガスはイオン対生成エネルギーや電子のドリフト特性、それからクエンチング効果などを考慮して選ぶ。

検出器信号の強度に影響するイオン対生成エネルギー w はガスの固有特性であるが、小さいほど信号強度は大きくなる。Table 1 にガス検出器に使われるガスの特性をまとめた¹³⁾。これらのガスはAMS装置の加速器の加速電圧、測定イオンの原子番号などによって選択する。一方、検出器信号の時間特性に影響する電子のドリフト速度 v は、次の式で表すようにガスの固有特性である電子モビリティ μ や電場 $\bar{E}$ 、ガス圧 p によって決まる¹⁴⁾。

$$v = \frac{\mu \bar{E}}{p} \quad (5)$$

Fig. 6¹⁴⁾ にドリフト速度と電場：ガス圧比の関係を示した。Fig. 6 でわかるようにモビリティが定数に近い比例領域が存在するので、実際では主にこの領域を利用することになる。ガス圧は大体検出器の測定イオン進行方向の内部長さ l とイオン質量、それから入射エネルギーを考慮して決めるため、ドリフト速度は印加電圧を調整して決めることになる。ガス圧は入射される測定イオンが検出器の中のガスに自分の持っているすべての運動エネルギーを与えて止まるように決定する。つまり、イオンの制動距離 (Range) が検出器の内部になるようにする。

イオンがガスの中を運動する時のエネルギー損失の大部分を占める、ガス原子の持っている電子との相互作用による阻止能 dE/dx は次のような式で表すことができる¹⁵⁾。

$$(dE/dx)_e = NZ_1[(4\pi(Z_1e^2)^2/m_e v_1^2) \ln(b_{max}/b_{min})] \quad (6)$$

ここで N はターゲット原子核の数、 Z_1 と Z_2 はそれぞれ入射イオンとターゲット原子の原子番号、 m_e は電子質量、 v_1 は入射イオンの速度、 b はインパクトパラメータである。この式の右辺最後にある対数項を量子力学的に計算された平均励起ポテンシャルに変えたのが Bethe-Bloch の式であ

Fig. 6. 電子のドリフト速度と電場：ガス圧比の相関曲線。電場：ガス圧比の増加につれ速度も大きくなるが最大値を過ぎれば低下する¹⁴⁾。

Fig. 7. 代表的なイオンの阻止能曲線。阻止能が最大値となるエネルギーを超えた領域で理論式とよく一致する¹⁵⁾。

る。Bethe-Bloch の式は高エネルギー領域で有用な式であるが³⁾、Fig. 7¹⁵⁾ に示したように阻止能の最大値を見せるエネルギーより低いエネルギー範囲では実験結果と一致しない。したがって、この範囲では実験的に得られたデータを併用して計算するのが一般的である。

イオンチャンバーの条件を決めたり、設計するといった実務で阻止能やイオンの制動距離を計算する上で広く使われるコードの中に SRIM¹⁶⁾ がある。SRIM は理論的フォーマーと実験データを併用して計算を行う模写コードである。Fig. 8 に 10 mbar のイソブタンを入れたイオンチャンバーで 2.88 MeV の ¹⁴C を測定する時の SRIM シミュレー

Fig. 8. SRIMを利用したシミュレーション結果. 入射イオンは2.88 MeVの ^{14}C でイソプタンを10 mbar入れた長さ40 cmのイオンチャンバーを想定している. エントランスウィンドウは厚さ75 nmの窒化シリコンに設定してある. この場合イオンのレンジは327 mmと計算された. なお, ビームが広がるのはstraggling効果¹⁷⁾のためである.

シミュレーション例を示す. この条件で入射イオンは検出器の壁に当たる前にエネルギーをガスに全部伝達して止まることがわかる. イオンエネルギーが全部ガスに伝達されないとイオンが持っていたエネルギーの一部が信号電荷を生成するのに使われなくなり pulse defect というエネルギー損失が起こる. こうなるとパルスの高さどイオンエネルギーの比例関係が悪くなり, 検出器のエネルギー分解能が低下するので避けるべきである.

以上, ガスの種類, ガス圧, 印加電圧, イオンチャンバーのサイズなどの諸要因と検出器性能との関係について説明した. しかし, イオンチャンバーを使用する, あるいは製作する上で考えなくてはならない事項がもう一つだけあり, それは検出器の入射窓である. 入射窓は測定対象になるイオンが検出器の中に入る入口である.

AMSでは検出器の窓が真空中にあり, 入射イオンのエネルギーも大きいので, これから述べる入射窓の特性の影響は比較的小さい. しかし, 検出対象のエネルギーが数keV以下の低エネルギーの場合は阻止能との関係から構成原子の原子番号が重要になり, 窓の厚さも十分に薄い必要がある. また窓が大気中に露出されている場合は機械的強度や化学的安定性も重要になってくる. 窓の膜厚の均一性が低いと通過した後のイオンのエネルギーが空間的に広がり検出器のエネルギー分解能が低下する. 窓の材質としてマイラーフィルム, キャプトンフィルム, ベリリウム膜, 炭素膜, 窒化シリコン (Si_3N_4) 膜などが使われている. 窓の電気伝導度が要求される実験では炭素膜が優れているが, 大気中での使用は機械的強度の問題があって難しい. ベリリウム膜も炭素膜に比べれば強度があるが, 大気中で使うには細心の注意が必要である. しかもベリリウムは毒

性物質なのでさらに取り扱いには注意を要する. マイラーフィルムやキャプトンフィルムのような有機膜は強度が優れているが, その一方で炭素測定には使えないという欠点がある. 窒化シリコンは機械的強度が優れていて, 良質の膜の厚さを自由に変えながら製作できるので便利である.

窒化シリコン膜はシリコンウェーハの上に必要な厚さの窒化膜を作った後に, ウェーハの背面に必要な大きさの穴の開いたマスクを当ててからエッチングして行き, シリコンの部分を取り除き, 窒化膜だけを残す方法で製作できる. これは半導体回路製作に利用されるエッチストップという技術で非常に洗練された形で確立されている方法なので, 膜厚や物理的特性の均一性が優れていてとても良質の窒化シリコン膜を簡単に得ることができる. しかも, 膜の縁がある程度の強度を持つシリコンウェーハになっているので扱いやすく, イオンチャンバーへ装着も容易である. それ故に最近のAMSで使われるイオンチャンバーのほとんどが窒化シリコン膜を窓として採択している. 膜厚の調整が容易なので検出器の窓だけでなく加速器のエネルギー減衰材としても広く使われるようになった.

4.3 dE-E telescope

AMSでは炭素測定の場合Li分子の分析妨害が起こることがある. $^7\text{Li}_2$ 分子は質量が14なので ^{14}C に対して質量スペクトル干渉を生じる. さらに同じく質量が14である ^{13}CH 分子や $^{12}\text{CH}_2$ 分子による分析妨害もある. また, ^{10}Be の測定においては同重体である ^{10}B の巨大なピークとのピーク分離はとても重要になる. さらに, ^{36}Cl の測定で ^{36}S 同重体の分析妨害はとても深刻でこの場合は検出器の分解能だけでは解決できず, 大型加速器を利用した高エネルギーイオンビームOpticsに頼っていることはよく知られている.

AMSではイオンチャンバーの質量分解能を向上させるため, 陽極を2個以上に増やし複数の信号を取り出せる構造を持つイオンチャンバーを使うようになった. 複数の陽極がある場合, イオン進行方向の一番奥の陽極を除いた残りの陽極はすべてイオンがガスの中を運動する途中に発生する電荷を集めることになる. これら電極に集まる電荷量は阻止能によってイオンが失うエネルギー損失に比例するので, これを測定することはイオンが途中で失ったエネルギーの大きさ (dE) を測定することになる. その反面最後に位置する電極は停止されたイオンの持っていた残りのエネルギー (E_{res}) を測定するのに使われる. このような構造を持つ検出器をdE-E telescopeという. dE-E telescopeでは陽極の数と同数の信号が得られる. Fig. 9にdE-E telescopeを示した. この例では陽極が2つになっているが, 大型加速器を使うAMSでは4つや6つになっている場合が多い.

dE-E telescopeのdE信号は阻止能による信号であり, 阻止能は式(6)からわかるように入射イオンの原子番号の2乗に比例するから他の条件が一緒であるならdE信号はイオンの種類によって違った値を見せる. したがってこの信号は元素分析に有効である. 2つの信号を利用してFig.

Fig. 9. dE-E telescopeの構造。陽極が2個あるのが特徴で、それぞれの陽極から2種類の信号を得ることができる。

Fig. 10. dE-E telescopeで得られたスペクトル。(a) 1次元の炭素スペクトルでは2つのピークしか見えない。(b) 2次元スペクトルでは3つのピークが確認できる。(c) ベリリウム測定では ^{10}B の分析妨害が深刻なため、dE-E telescopeが必ず必要になる。

10bのように2次元のスペクトルを作れば Fig. 10aのように1次元のスペクトルで分離できなかったピークの分離ができるようになる。Fig. 10の例では見えないが、装置や条件によっては炭素ピークの右下の近いところにもう一つピークが現れる場合もあるがそれは $^{12}\text{CH}_2$ 分子によるピークである。その場合もdE-E telescopeで取り除くことがで

きる。炭素のリチウムによる分析妨害は2価や4価イオンのように偶数のイオン価を持つイオンを測定する場合だけ起こるが、 ^{10}Be 測定において ^{10}B の分析妨害や ^{36}Cl 測定の際の ^{36}S のように避けられない場合もある。 ^{10}B は自然界の存在比が20%であるから、1 ppbが混ざってきても ^{10}Be より数百倍大きなピークを形成する。こういった問題を解決するために Fig. 10cで示したようにdE-E telescopeの利用は必須である。

dE-E telescopeと同じように優れた質量分解能を持つ2次元検出器としてTOF (Time of Flight) - E検出器がある。これは速い信号を持つ二つの時間検出器(数nsから数百ps範囲)と半導体検出器やイオンチャンバーのようにエネルギー測定用の検出器を合わせて利用し、イオンの速度とエネルギーを同時測定することによって質量を決める検出システムである。dE-E telescopeに比べて時間信号を処理するためのTAC (Time to Amplitude Convertor) やCFD (Constant Fraction Discriminator) の使用など計測回路の構成が複雑であり調整も難しいのでAMSではまだ使われる例が少ないため、本稿では原理の紹介にとどめる。

4.4 計測回路の構成

イオンチャンバーは入射イオンによって生成された電子を信号にするから電子を集めるための陽電圧印加用のDC電源が必要である。1 kV 100 μA 程度の容量を持つ電源の使用が望ましい。通常、陰電圧は必要でないが、検出器の窓が陽極と陰極の中央に位置しておらず一方に偏っている場合などは陰電圧も必要になる。検出器の2つの出力からの信号は2台の高速プリアンプを利用してそれぞれ増幅してからアンプに送るが、この際プリアンプはできるだけ検出器近くに設置してプリアンプの前で信号にノイズが混ざるのを最小限に抑える必要がある。なお試行錯誤が必要であるが信号アースを最適化して検出器にイオンが入射されないときのプリアンプホワイトノイズレベルを10~20 mV以内に維持すると綺麗なスペクトルを得ることができる。アンプのshaping timeはプリアンプ信号の時間特性にもよるが5~10 μs が目安になる。

AD変換は信号処理過程の中で一番時間がかかる部分なので、AD変換回路に余計な信号が入るのを積極的に抑える必要がある。そのためにAMSではファラデーカップの場合と同様にバウンサーで作られたモニター信号をAD変換器のゲート信号として活用することによって目的同位体が入射されるときだけAD変換を行う。なおほとんどのAD変換回路は入力threshold電圧を設定できるのでノイズを最小限に抑えるように精密にセットする。それでも信号が多過ぎで変換できない信号が増えてくると不感時間補正が必要になる。AD変換回路は一つのパルスのAD変換を行う途中には他の入力信号を受け付けないので、その間が不感時間になる。不感時間が長くなると数え損ねるカウントが増えるので、この不感時間の総計の全体測定時間に対する比をもって測定値を補正する。 ^{14}C 年代測定では不感時間比が1%を超えると影響が見え始めるのでそれ以下に保つのが望ましいが、やむを得ない場合は補正を行う。さ

らに5%を超えると補正しても誤差が大きくなるので5%を超えないように注意する必要がある。AD変換された信号はmultiparameter MCA (Multichannel Analyzer) を利用して2次元のスペクトルと複数の1次元スペクトルとして保存する。Multiparameter MCAは実験室で製作¹⁸⁾もできるが、FAST ComTecなどのメーカーから完成度の高い製品が市販されている。

5. ま と め

AMSで使われる検出器と信号処理回路を紹介した。放射線発生装置であるというAMSの特性上、検出器と計測回路やデータ集積装置の間の物理的距離が遠いために計測信号処理においてタイミングの歪み、ノイズの混入、信号電圧減衰などの問題が起こりやすいので、検出器だけに留まらず、信号処理回路に対しても説明した。

これからのAMSの発展は測定精密度の向上、バックグラウンドの低下、それから測定対象同位体の開拓にかかっていると言える。AMSの最も代表的な応用分野である¹⁴C年代測定で要求される年代精密度は1%以下なので測定値の精密度はそれ以下でなくてはならない。もちろんAMSの測定精密度は検出器だけではなく加速器の性能やビーム光学に依存する部分も大きいですが、新たな検出技術の開発や改良研究へのニーズはますます増えていくと考えられる。そういった研究を始めるに先立って理解度を高めるのに本稿が役立てたら幸いである。

文 献

- 1) M. Fedi, S. Barone, F. Barile, L. Liccioli, M. Manetti, and L.

- Schiavulli, *Nucl. Instr. Meth. B*, **465**, 19 (2020).
- 2) H. Hoffmann, S. Preunkert, M. Legrand, D. Leinfelder, P. Bohleber, R. Friedrich, and D. Wagenbach, *Radiocarbon*, **60**, 517 (2018).
- 3) G. M. Santos, J. R. Southon, S. Griffin, S. R. Beaupre, and E. R. M. Druffel, *Nucl. Instr. Meth. B*, **259**, 293 (2007).
- 4) Y. Yokoyama, M. Koizumi, H. Matsuzaki, Y. Miyairi, and N. Ohkouchi, *Radiocarbon*, **52**, 310 (2010).
- 5) R. Drosch, W. Kuschera, K. Scholz, P. Steier, D. Wagenbach, and E. M. Wild, *Nucl. Instr. Meth. B*, **259**, 340 (2007).
- 6) C. Tuniz, R. K. Moniot, W. Savin, S. Vajda, T. H. Kruse, D. K. Pal, G. F. Herzog, and M. J. Carr, *Nucl. Instr. Meth. B*, **5**, 321 (1984).
- 7) M. I. Yavor, *Nucl. Instr. Meth. B*, **126**, 266 (1997).
- 8) F. Paszti, Y. K. Park, and M. Takai, *Nucl. Instr. Meth. B*, **130**, 247 (1997).
- 9) M. Klein, D. Mous, Q. Liu, X.-L. Zhao, and W. Zhou, *Instr. Meth. B*, **439**, 100 (2019).
- 10) A. E. Litherland and L. R. Kilus, *Nucl. Instr. Meth. B*, **52**, 375 (1990).
- 11) N. Tsoulfanidis, "Measurement and Detection of Radiation," Hemisphere Publishing Corporation (1983), p. 167.
- 12) M. Klein, A. Gottang, and D. J. W. Mous, *Radiocarbon*, **55**, 224 (2013).
- 13) A. Sharma, "Properties of some gas mixtures used in tracking detectors," <http://www.slac.stanford.edu/pubs/icfa/summer98/paper3/paper3.pdf>, (1998), p. 3.
- 14) G. Knoll, "Radiation Detection and Measurement," John Wiley & Sons (2010), p. 135.
- 15) W.-K. Chu, J. W. Mayer, and M.-A. Nicolet, "Backscattering Spectrometry," Academic Press (1978), pp. 39–40.
- 16) J. Ziegler, <http://www.srim.org/>.
- 17) W.-K. Chu, J. W. Mayer, and M.-A. Nicolet, "Backscattering Spectrometry," Academic Press (1978), p. 45.
- 18) J. Bajema, K. Ashktorab, F. D. Becchetti, D. Hotz, and M. Shapiro, *Comp. in Phys.*, **8**, 608 (1994).