

塩素36—AMSシステムの改良

“硫黄36妨害粒子の除去について”

筑波大学加速器センター 高橋 努

1. はじめに

AMSとは、加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry) の略で、加速器を用いた質量分析の一つの方法であります。私たちの住む地球上では、宇宙線の作用で、また、原子爆弾、原子炉施設の事故、加速器の運転等で、中性子の影響が様々な放射性同位体を生成されます。放射性同位体というと、一般に有害な放射線を放出するというイメージが強く嫌われ者的存在ですが、自然科学の分野では様々な研究に役立てられています。物質中に極わずかに存在する超寿命の放射性同位体は、放射性崩壊を起こして時間の経過と共に一定の割合で減少すること (半減期) を時計として利用することによりAMSの測定を行っています。

AMSで利用されている放射性同位体と半減期は、 ^{10}Be (1.5×10^6 年)、 ^{14}C (5730 年)、 ^{26}Al (7.2×10^5 年)、 ^{36}Cl (3.0×10^5 年)、 ^{41}Ca (1.0×10^5 年)、 ^{129}I (1.6×10^7 年) などがある。われわれは半減期約30万年の塩素36を用いて1999年9月30日に東海村のJCO施設で発生した臨界事故、また、1945年に広島に投下された原子爆弾の中性子の影響について測定した。

2. 筑波大学AMSシステム

図-1に筑波大学加速器センターAMSシステムの概略図を示す。イオン源、加速器、測定系がAMSの中心となる装置である。イオン源は、我々がAMS専用イオン源を設計、製作した。加速器は、NEC社製12UDタンデム型静電加速器を使用する。測定系は、気体検出器と半導体検出器を組み合わせて、気体中のエネルギー損失とエネルギー情報から核種とエネルギーを同定した。

AMSの測定方法は、イオン源に測定試料を入れてイオン化させ、 120° 電磁石で目的のイオンビームを設定して 90° 入射電磁石を通して加速器に入射される。加速器に入射された負イオンビームは、加速されて加速器中心部の高圧ターミナルに設置されている荷電変換膜を通過するとき電子が剥ぎ取られ正の電荷をもった陽イオンビームに変換される。陽イオンビームはさらに加速され 90° 分析電磁石により分類され振り分け電磁石によって測定コースに、さらに第2荷電変換膜を通過して静電偏向器、 45° 電磁石等により検出器まで導かれる。検出器に入射された ^{36}Cl は個数を数えて測定する。

AMSの測定では、非常に微量の目的イオンを加速し分離しなければならないので加速器を安定に働かすためにパイロットビーム法という筑波大学加速器センター独自の方法を採用した。この方法で ^{36}Cl の測定をするときは、イオン源の試料の中に炭素 (グラファイト) の粉末を混ぜ質量が同じ36となる $^{12}\text{C}_3$ という分子イオンを加速する。この $^{12}\text{C}_3$ を使用して加速器の電圧コントロールを行う方法をパイロットビーム法と言う。

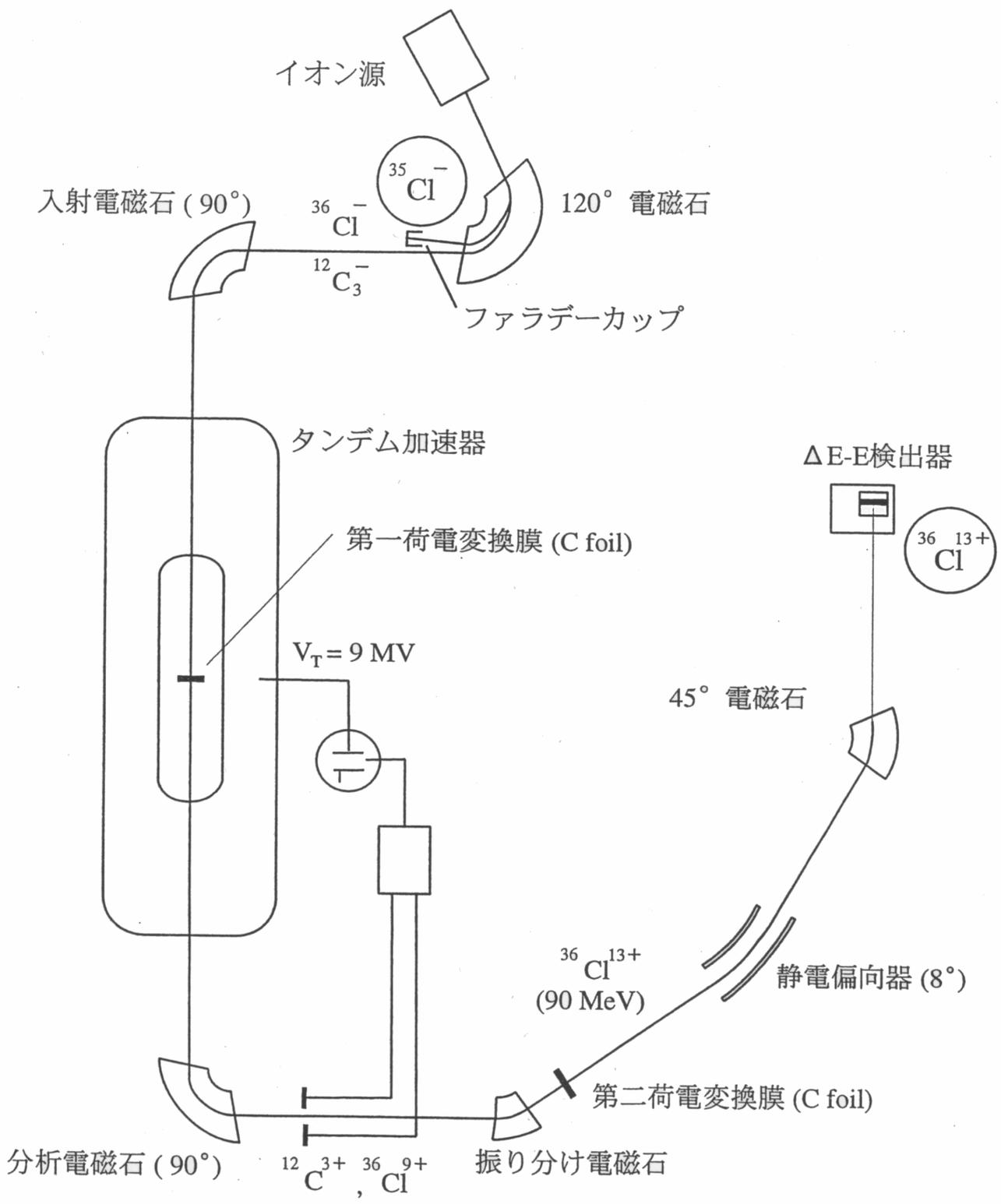


図-1 筑波大学加速器センターAMSシステムの概略図

3. AMS専用イオン源

AMSの測定に用いるイオン源は、極微量の放射性核種と安定同位体の比を求めるため他の物質に汚染されない専用のイオン源を用いなければならない。そこで我々は、AMS専用イオン源の開発をした。測定試料（ターゲットコーン）を25個セットして、パソコンを使用した自動交換機構でイオン源内の真空を破ることなく測定試料を交換することができるイオン源の開発に成功した。AMS専用イオン源を図-2に示す。

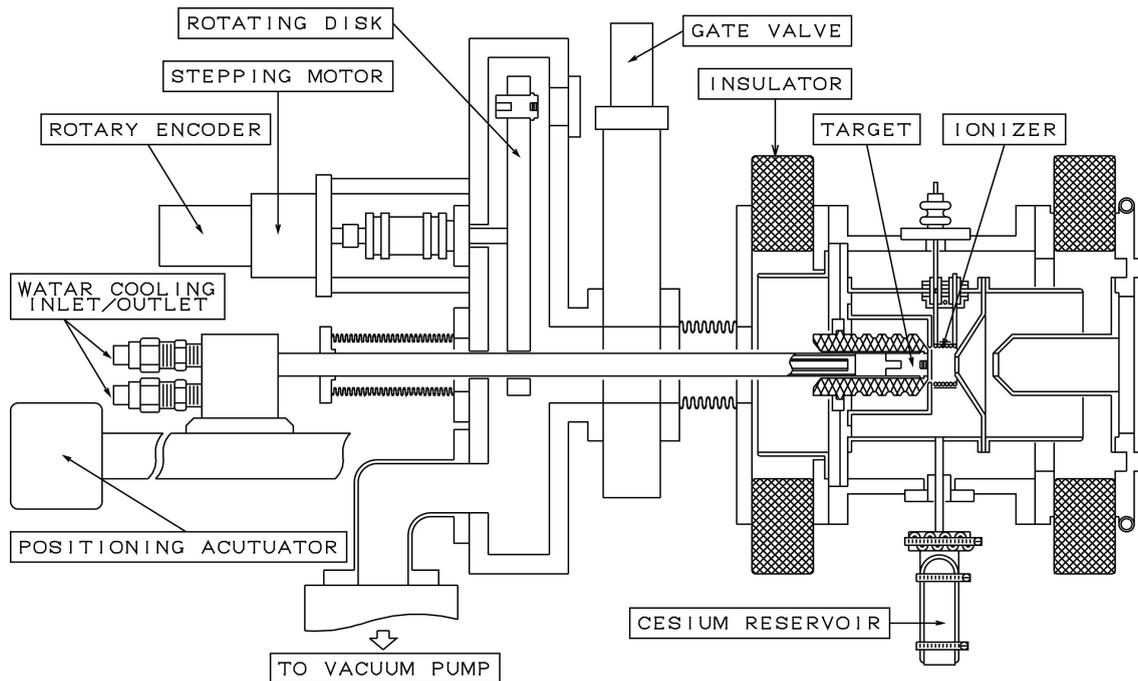


図-2 AMS専用イオン源

4. 硫黄³⁶妨害粒子の除去

³⁶Clの測定では³⁶Sの妨害があり除去する方法としては、イオン源のターゲットや試料から取り除くこと、加速器で取り除くこと、測定系で分離除去する方法がある。ここでは試料とターゲットコーンの作成法について述べる。

- 1) 塩素³⁶試料の測定に用いた試料は塩化銀 (AgCl) として調整した。塩化銀は、比較的精純な物質を精製することができ、導電性で引き出し効率にも優れている。調整法の手順を図-3に示す。試料に含まれている塩素を溶液に抽出し、硝酸銀を加えて塩化銀の沈殿を得る方法を採用した。さらに硫黄を除去するために硝酸バリウム溶液を加えて、硫酸バリウムの形で硫黄を除去した。また、器具の洗浄、遠心分離を行い硫黄をほぼ除去することに成功した。

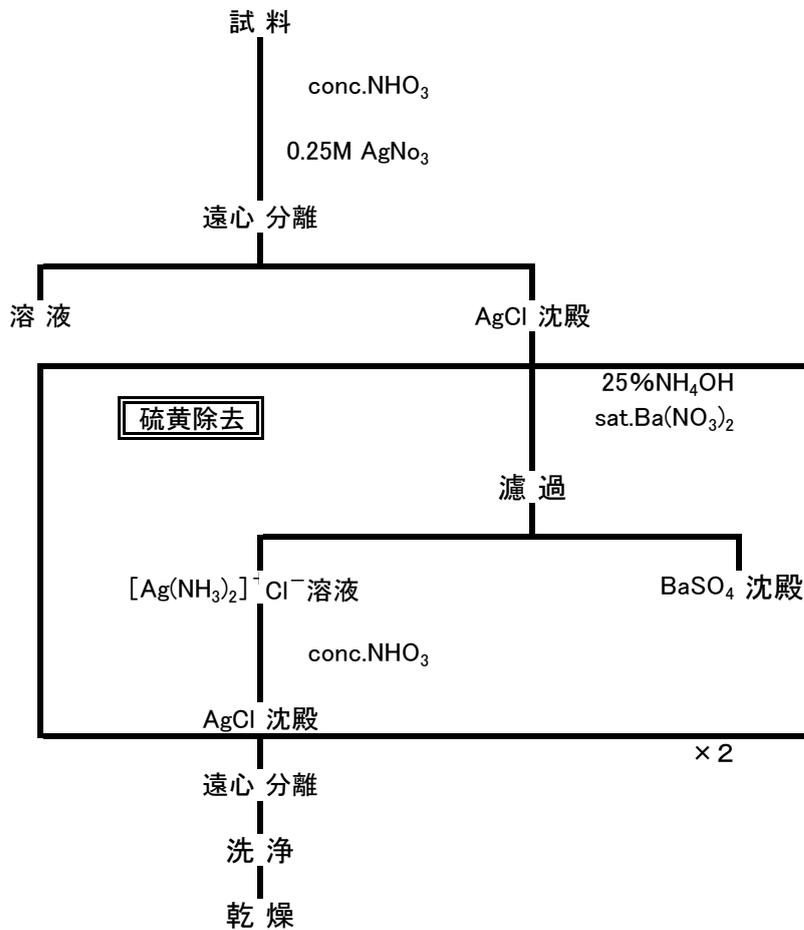


図-3 試料調整法

2) ターゲットホルダーの作成

調整した測定試料を詰めるターゲットホルダーの材質は熱伝導性を考慮して銅を用いた。しかしこのままホルダーとして用いると妨害粒子の硫黄³⁶Sが多量にイオンビームとして加速されてしまうので、銅よりも硫黄の混入ない物質、タンタルを表面にプレスで付けることにした。薄いタンタルシートだけですとすぐに穴が開いてしまうので1 mm厚のタンタルと0.5 mm厚のタンタルを2枚ターゲットホルダーにプレスで付けた。タンタルを付けたターゲットホルダーの中心に1 φの穴をあけて、測定試料を専用のプレス機を用いて1 φの穴に詰めターゲットコーンとした。

5. 測定結果

1) JCO地内および周辺試料の塩素³⁶Clの測定

1999年9月30日に東海村のJCO施設内で発生した臨界事故で通常的环境中ではみられない量の中性子が放出された。JCOの事故では早い段階で事故調査が行われたので、半減期の短い放射性核種の測定により中性子の見積りが行われた。我々は³⁶Clという長半減期核種で検証することにした。

測定に用いた試料は、事故が発生した転換試験棟から80m離れた湿式実験棟の試薬、第三ウラン実験棟の試薬、事務室にあった食塩と近くの民家にあった食塩、及び敷地内の土壌の採取場所と測定結果を下図に示す。

試料名	距離(m)	$(^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl})$ 測定値
Soil A	2.5	$(1.52 \pm 0.9) \times 10^{-11}$
Soil I	2.5	$(3.68 \pm 0.6) \times 10^{-11}$
Soil B	10	$(1.10 \pm 0.2) \times 10^{-11}$
Soil F	10	$(1.01 \pm 0.2) \times 10^{-11}$
Soil G	15	$(6.80 \pm 0.1) \times 10^{-12}$
Soil H	17	$(3.76 \pm 0.6) \times 10^{-12}$
KCl	56	$(5.6 \pm 0.5) \times 10^{-14}$
KCl	56	$(5.7 \pm 0.4) \times 10^{-14}$
CsCl	58	$(1.0 \pm 0.2) \times 10^{-14}$
BaCl ₂	58	$(1.6 \pm 0.4) \times 10^{-14}$
NiCl ₂	58	$(1.0 \pm 0.2) \times 10^{-14}$
Slt-H2	126	$(1.6 \pm 0.3) \times 10^{-14}$
Slt-H5	126	$(1.0 \pm 0.3) \times 10^{-14}$
民家の食塩	80	$(1.6 \pm 0.3) \times 10^{-14}$
blank		$(1.5 \pm 0.3) \times 10^{-14}$
花畑公園		$(6.9 \pm 0.4) \times 10^{-13}$
大学内(陸域環境センター)		$(3.2 \pm 0.3) \times 10^{-13}$
大学内(虹の広場)		$(5.5 \pm 0.5) \times 10^{-13}$
市販の食塩		$(1.0 \pm 0.2) \times 10^{-14}$

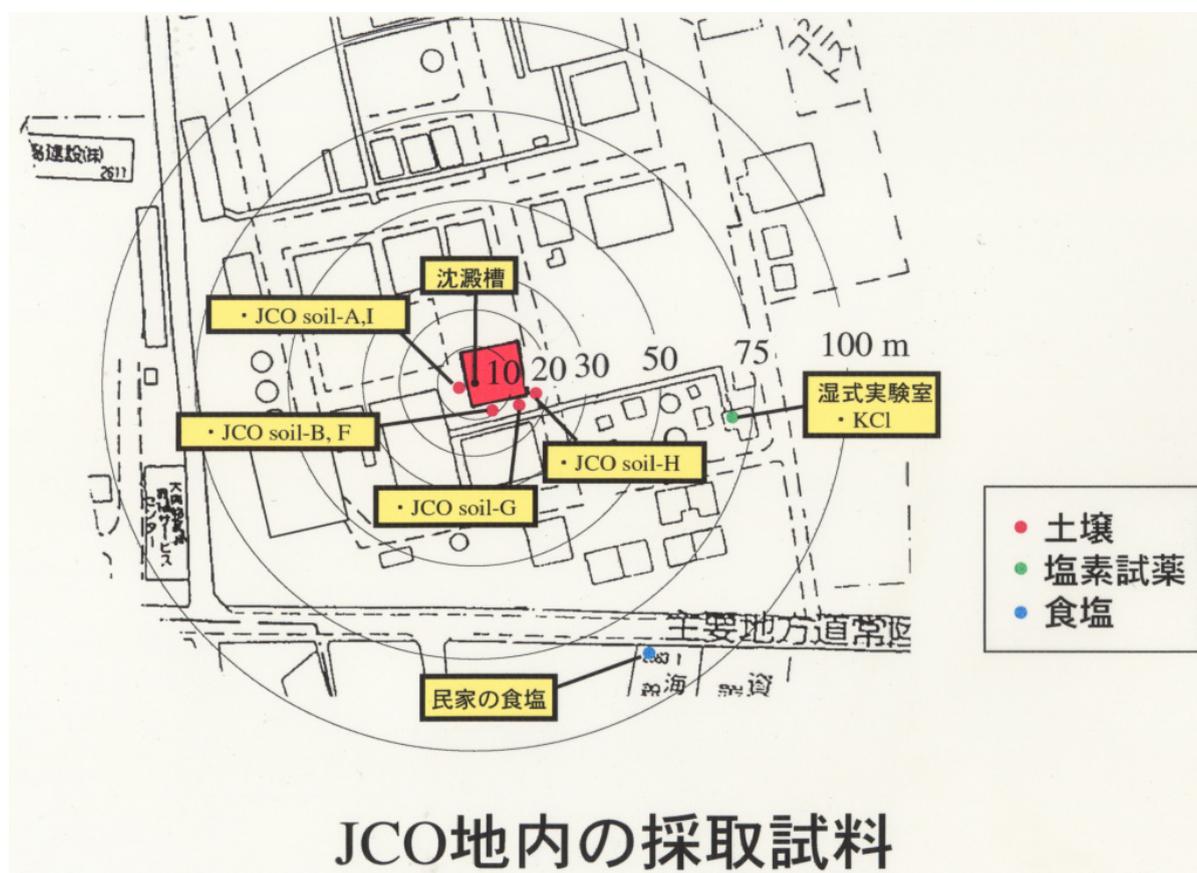


図-4 JCO試料測定結果

2) 広島試料の測定

1945年に世界ではじめて原子爆弾が広島、長崎に投下された。投下後、複数のグループで線量評価が行われた。1986年には日米合同上級委員会において新たな線量評価システムが承認されDS86 (Dosimetry System1986) と命名された。DS86は最良の計算方法であり高い信頼性のシステムとされ用いられてきた。しかし広島大学のグループ等により被爆花崗岩で ^{152}Eu を測定値した値が10倍以上も高い値を示した。そこで原因を突き止めるため筑波大学に ^{36}Cl の測定依頼が広島大学からあり、測定を行った。測定結果を下図に示す。みどりの測定点がDS86のラインとほぼ同じ結果が見られた。

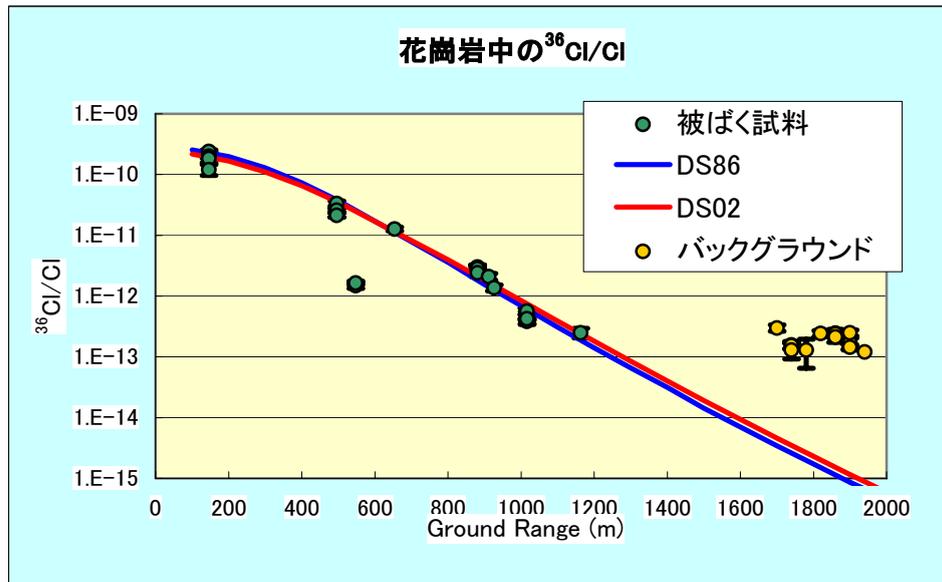


図-5 広島試料の測定結果

7. まとめ

- 1) 塩素36の妨害粒子となる硫黄36を効率よく除去する試料調整法やターゲットコーンの作成法が確立して高感度の測定が出来るようになった。しかし、硫黄の除去にはまだばらつきがあるので今後の課題となる。
- 2) 今後は、塩素36だけではなく他の同位体についても測定が出来るようにする。