

広島原爆被爆花崗岩の ^{36}Cl -AMS 測定

長島泰夫*、関李紀、松広岳司、高橋勉、笹公和、末木啓介

(筑波大学 AMS グループ)

星正治、藤田正一郎、静間清、葉佐井博巳

(広島原爆線量研究会)

1. はじめに

DS86原爆線量評価システムによる中性子線量見積もりと ^{152}Eu - 測定による中性子線量見積もりの不一致が指摘され、その原因の追究がなされてきた。評価システムの改善が必要視されていたが、そのためにも、更なる実測データの積み上げが必要であった。その一環として、われわれは、原爆熱中性子により花崗岩中に僅かに生成された ^{36}Cl を筑波大学 ^{36}Cl 加速器質量分析 (AMS) 装置で測定し、中性子線量の見積もりを行った。

原爆投下後 50 数年経過した現在、半減期が ~13 年の ^{152}Eu - 測定は難しさを増してきている。一方、 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 熱中性子吸収反応によって生成される ^{36}Cl は、~30 万年のきわめて長い半減期であることから、生成された ^{36}Cl がほぼそのまま保存されており、 ^{36}Cl 測定は今の時点での広島原爆線量評価にかなり有効な結果を与えると期待できる。しかしながら、長半減期である事と、 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 反応の断面積が 44barn と小さくなく、 ^{36}Cl 生成量が少ない事から、 ^{152}Eu と同様の放射線測定は実質的に不可能であり、AMS 測定が唯一 ^{36}Cl 測定を可能とする方法である。

^{36}Cl -AMS 測定は、世界各所で開発が進められているが、実用化された施設は世界で 7 施設程度であり、日本では筑波大のみである。AMS 技術はここ 10 年で急速に発展し、現在も開発研究が進められている新しい測定技術であり、研究所間で測定結果に差異が生じることがある。

そこで、今回の試料測定では、測定結果の精度を確保することを考え、3 箇所の ^{36}Cl -AMS 施設で同一試料を測定し、その結果を相互比較検討して、原爆中性子線量の見積もりを求めることにした。

2. 加速器質量分析法 (AMS)

質量分析法の一種であり、タンデム静電加速器で測定粒子を加速することにより、従来の質量分析法 (SIMS 等) に比べ、格段の高感度を得ている。SIMS では、測定粒子をイオン化し、それを 2 極又は 4 極電磁石で運動量分析し、設定した運動量を持つ目的とする粒子を選択的に計数する方式である。AMS も原理的には同じであるが、イオン化した粒子や分子に高いエネルギーを与える事と、タンデム静電加速器の加速過程において、粒子や分子を薄膜に通過させる事に特徴がある。

ある程度加速された分子が薄膜を通過するすると、100%の確率で分子結合が切れ、単粒子になる。したがって、SIMS などでは測定の妨害となる同重分子の存在が AMS では完全になくなる。又、測定粒子が高エネルギーであることから、原子核実験で培われた粒子識別技術が応用でき、やはり SIMS などでは測定の妨害となる同重体を AMS ではほぼ完璧に分離される。これらの特徴により、AMS は SIMS 等 に比べ格段の高感度測定が実現されている。ちなみに筑波大 ^{36}Cl AMS 測定では、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比で 10^{-14} の超高感度が得られている。

放射性同位元素の計測には放射計数法が有効である。放射計数法と AMS 法を ^{36}Cl 測定を例にとっ

* NAGASHIMA Yasuo, University of Tsukuba; nagashima@tac.tsukuba.ac.jp

て比較してみる。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が 10^{-11} の試料の ^{36}Cl を 30 分間で 10000 カウント (1%統計) 計測するのに必要な試料量を比較してみる。AMS システムでの ^{36}Cl イオン転送効率は加速器で 10%、測定系では 30% であり、又イオン源での ^{36}Cl -イオン生成効率はおよそ 3% である。これを考慮すると、AMS 測定の必要な塩素試料量は $\sim 0.3\text{mg}$ (AgCl) である。一方、放射計数法では計数効率を 100% としても、半減期が ~ 30 万年であることから、 $\sim 1.8\text{kg}$ もの AgCl が必要になる。 1.8kg もの AgCl を得るためには、その何千倍もの量の試料が必要となり、 ^{36}Cl 測定を放射計数法で行うことは不可能である。

3 . ^{36}Cl -AMS システムの比較

表に、今回の相互比較測定を行った AMS 機関の ^{36}Cl -AMS 方式を示した。それぞれ特徴のある独自の方式を採用しており、方式の違いの測定結果への影響を確認する上からも、この 3 機関で相互比較測定を行ったことは適切であった。ミュンヘン工科大は、タンデム静電加速器で加速した後に更に線形加速器でより高いエネルギーに粒子を加速し、薄膜通過後、2 極電磁石で完全に軌道電子が剥ぎ取られた $^{36}\text{Cl}^{17+}$ を選別し、妨害となる ^{36}S 同重体は $^{36}\text{S}^{16+}$ が最大で $^{36}\text{S}^{17+}$ が存在しないことを利用して除去し、 ^{36}Cl のみを検出器で計数する方式を用いている。E-E 検出器を用いて ^{36}Cl - ^{36}S 識別検出を行う方法より、 ^{36}S の妨害が少ない優れた方法である。筑波大は、3 分子パイロットビーム ($^{12}\text{C}^{3-}$ $^{12}\text{C}^{3+}$) を用いて、加速電圧の制御を行っている。GVM を用いる方法より長時間安定性に優れた方式である。LLNL の方式は多くの AMS 施設で採用されている一般的な方法であり、高効率に多数の試料を連続測定する事が可能となっている。

	ミュンヘン工科大	LLNL	筑波大
イオン源	単式カソード ロッド式	複式カソード ディスク式	複式カソード ロッド式
加速電圧制御	GVM - コロナ	GVM - コロナ	スリット - コロナ ($^{12}\text{C}^{3+}$)
^{36}Cl - ^{35}Cl 測定	順次測定	順次測定	同時測定
^{36}Cl 検出 ^{36}S 除去	SSD 検出器 ($^{36}\text{Cl}^{17+}$ 検出)	E-E 検出器 (^{36}Cl - ^{36}S 識別検出)	E-E 検出器 (^{36}Cl - ^{36}S 識別検出)

表 1 相互比較測定をした機関の ^{36}Cl -AMS システムの方式比較

4 . 広島原爆被爆試料の ^{36}Cl 測定

元安橋欄干や寺院の墓石等 11 種類の原爆被爆花崗岩と遠距離コントロール試料として採取された原爆に被爆していない花崗岩 5 種の計 16 種の花崗岩の ^{36}Cl を測定した。爆心地からの距離は 146m (元安橋) から 1424m (吉川旅館) で、採取地点を右図に示した。石切り場の花崗岩は ^{36}Cl の自然存在量 (バックグラウンド) を見積もるために測定された。

花崗岩試料は図 2 に示すごとく、表面から $\sim 10\text{mm}$ 厚にスライスし表面から 2 又は 3 層目を測定

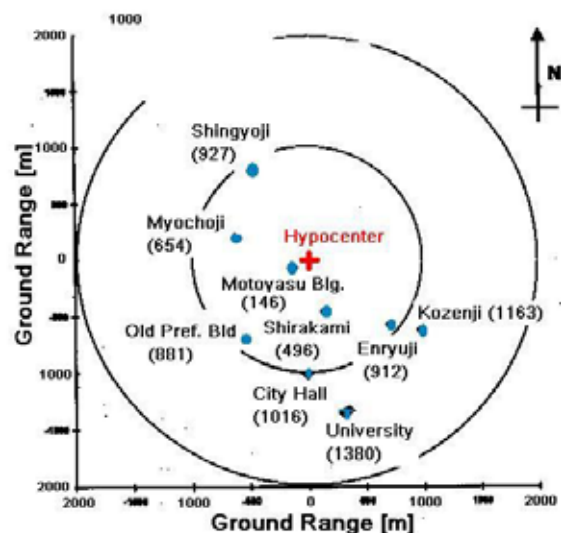


図 1 花崗岩採取地点

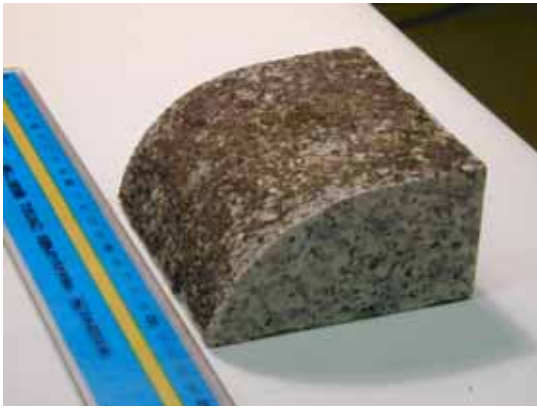


図2 花崗岩試料の前処理

した。 ^{36}Cl 測定はAgClで数mgあれば十分であり、そのためには50g程度の花崗岩試料があればよく、大きな試料では各スライスを更に2分割し、その分割片をスタンプミルを用いて粉末化した(図2の2)。

粉末化した花崗岩より図3に示す化学処理の手順により含有されている塩素をAgClの化学形で取り出した。超純水10mlに混ぜた試料粉末を1mlの濃硝酸で酸性にした後、0.25Mの硝酸銀溶液10mlを加えて、粉末中の塩素を遠心分離を通して塩化銀として取り出した。この塩化銀は、かなりの硫黄を含んでいるので、アンモニアで塩化銀を溶液にした後、硝酸バリウムを加え硝酸バリウムとして硫黄成分を取り除く操作を行った。この硫黄除去操作は必要に応じて複数回行った。硫黄除去操作は重要で、AgClの試料に1ppmの硫黄が残っていると、E-E検出器に入る妨害粒子の ^{36}S の量が多くなり、10ppmあると ^{36}Cl の測定が困難となってしまう。図4に硫黄除去操作をした場合としない場合での、E-E検出器出の測定

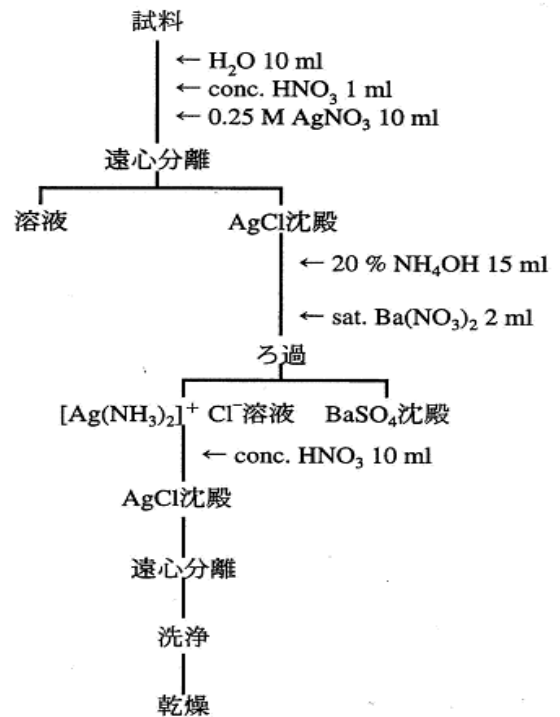


図3 試料の化学処理手順

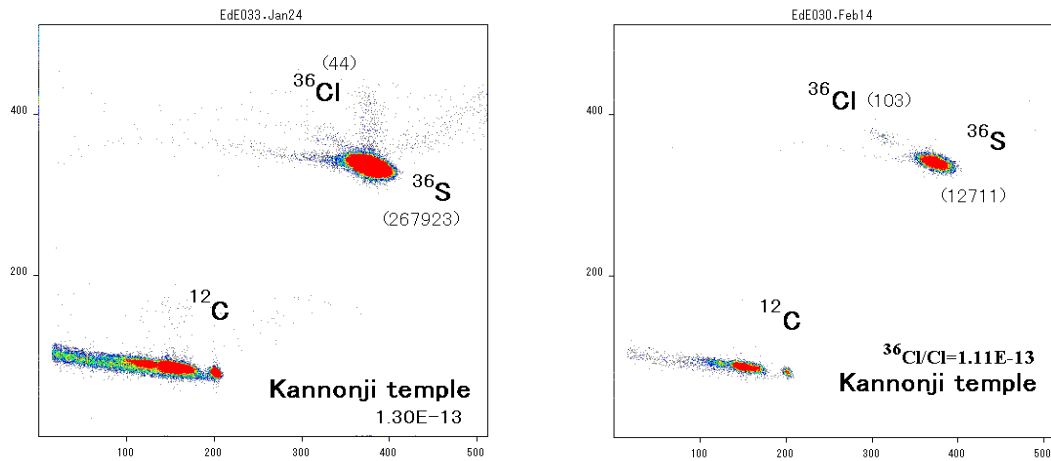


図4 硫黄除去操作有無の比較。左図は無し、右図は有り

状態を示した。同一試料（バックグラウンド試料、観音寺）の測定であるが、硫黄除去無しでは ^{36}S の妨害が ^{36}Cl に入り込み、 $\sim 20\%$ 程度、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が大きく出ている。

測定では AMS 測定で ^{36}Cl を個数として計るとともに、F-Cup で ^{35}Cl を電流値として同時に測定し、 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ の相対比を求めた。 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ 絶対比を得るために、試料と標準試料との交互測定を行った。

5. 結果

被爆花崗岩の ^{36}Cl を E-E 検出器で測定した例を図5に示す。縦軸は粒子が電離ガス(アイソプタン)を通過中に失ったエネルギー、横軸は半導体検出器で測定した残留エネルギーである。 ^{36}Cl に加え、試料にわずかに ($\sim 1\text{ppm}$) 含まれている ^{36}S とパイロットビームの ^{12}C が同時に測定されている。 ^{36}Cl は ^{36}S から明確に分離識別して測定された。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が $\sim 10^{-14}$ 程度と小さくなり、かつ ^{36}S の含有が大きくなると、 ^{36}S の裾野が ^{36}Cl の領域に重なってきて妨害が無視できなくなってくる。したがって、試料調整段階での硫黄除去操作が、測定精度確保の上からも重要な操作となっている。現在、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = \sim 4 \times 10^{-14}$ が実用上の最高感度となっており、もっぱら硫黄の妨害によって決められ

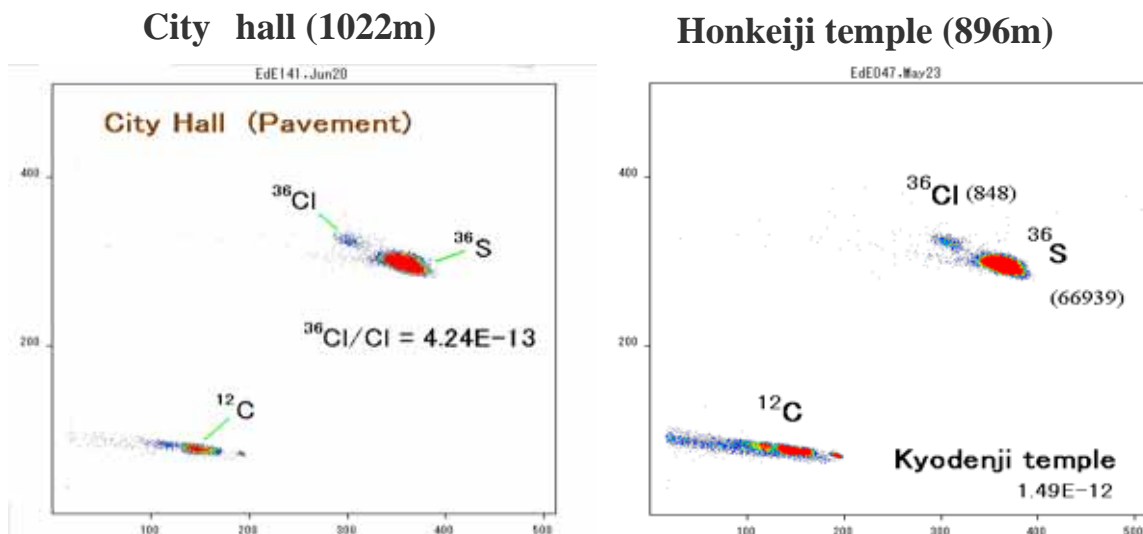


図5 原爆被爆花崗岩 ^{36}Cl 測定 2次元 Map、縦軸： E、横軸：残留 E

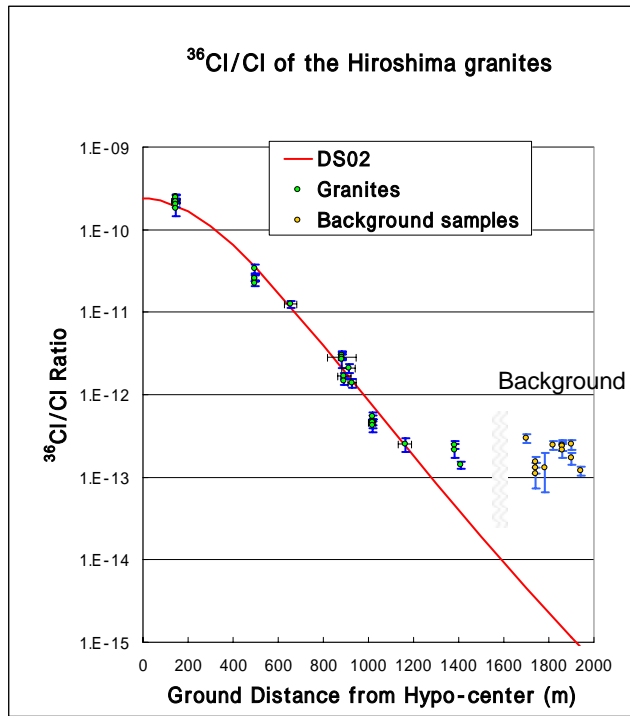


図6 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比。横軸は爆心地からの地上距離

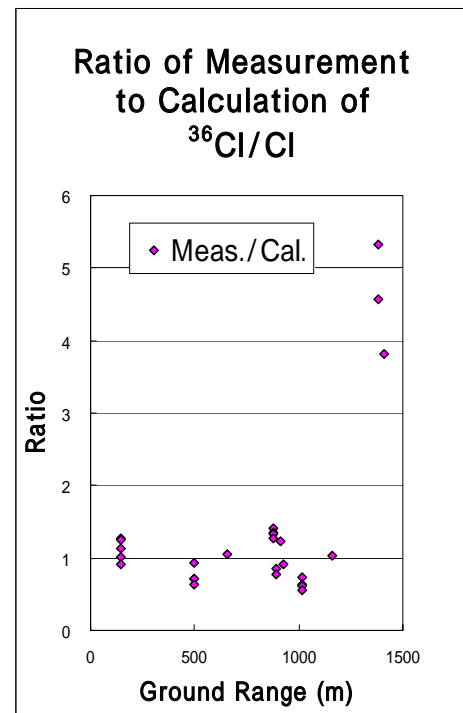


図7 測定と DS02 計算との比

ている。

図6に爆心地からの地上距離を横軸にとって、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の測定結果を示した。実線は新しい線量評価システム DS02 の見積もりである。爆心地から～1200mまでは、測定は DS02 とかなり良い一致を示した。測定値と DS02 計算値の比を取ったものを、図7に示した。元安橋(134m)から高善寺(1177m)の間では、比はほぼ1の周りに分布しており、測定と DS02 の一致性が認められた。

一方、地上距離が～1200m以遠では、測定値は DS02 計算より大きくなり、距離に依存せずその比は 2×10^{-13} 程度になることがわかった(旧広島大学工学部と吉川旅館)。また、被爆していない花崗岩の測定結果も、採取場所に関係なくおおむね 2×10^{-13} 程度となった。これらのことから、花崗岩には普遍的に $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比で $\sim 2 \times 10^{-13}$ の ^{36}Cl が含まれている(バックグラウンド)ことがわかり、～1200m以遠の被爆花崗岩の ^{36}Cl 測定からは原爆放射線量の見積もりが困難であることが明白となった。詳細な測定結果は広島原爆線量再評価 - DS02 - 報告に記述されているので参照されたい。