

資料

ライフサイエンスのためのアイソトープ測定機器(第四シリーズ)

# V. 環境放射能研究における 加速器質量分析(AMS)の利用

関 李紀

Reprinted from  
RADIOISOTOPES, Vol.53, No.3  
March 2004



Japan Radioisotope Association

<http://www.jrias.or.jp/>

## 資 料



## ライフサイエンスのためのアイソトープ測定機器 (第四シリーズ)

V. 環境放射能研究における加速器質量分析 (AMS) の利用<sup>†</sup>

関 李紀

筑波大学化学系

305-8571 茨城県つくば市天王台 1-1-1

Key Words : accelerator mass spectrometry, environmental radioactivity,  
chlorine-36, long-lived radionuclide

## 1. はじめに

環境放射能の研究方法は広島原爆の被災、ビキニ事件、チェルノブイリ原発の事故、JCOにおける臨界事故などの経験を経るにつれて、変化してきた。環境放射能の測定初期においてはローリツェン検電計を使うなど放射線を直接測定したもので、大気圏内核実験が盛んに行われていた時代には放射能レベルは現在と比べて格段に高かったことから、技術的には発展段階であったにもかかわらず、かなり正確な結果が得られた。その後、環境中の放射能は大気圏内の核爆発実験が中止されるとともに、直接測定するのが困難な程度に低下した。そのため、大量の試料を化学処理し、長時間の測定を行わなくてはならなくなった。環境放射能を測定することは、1試料に1週間以上の日数をかけて測定することを意味した。それが、加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry, AMS) などの新たな測定法の開発によってわずか数分の測定時間で高精度の結果が得られるようにな

り飛躍的な発展を遂げた。

現在、環境レベルの試料の低バックグラウンドの測定法として主に関心を持たれているのは地下の低レベル放射能測定室と質量分析である。質量分析にはAMSの他にICP-MSがある。後者はかなり実用化されているが、世界的に見るとAMSも環境放射能の研究分野ではかなり普及してきている。

環境放射能研究のための測定機器の開発について述べることは、本欄の目的であるライフサイエンスへの応用としてはやや的是ずれかもしれない。しかし、放射能が人に与える影響の出発点は環境放射能であろうと思われるので、ここでは、AMSを用いた環境放射能研究の最近の動向についてまとめる。

## 2. AMSを用いて測定される核種の例

第9回加速器質量分析国際会議 (AMS-9) と第6回放射化学の方法と応用国際会議 (MARC VI) の要旨集から環境放射能を測定した例を取り上げてみると、 $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Pu}$  と、環境放射能研究で関心がもたれている長半減期核種のほとんどが測定の対象となっている。

グリーンランドの氷床コア中の $^{36}\text{Cl}$ を測定して核実験のパルスを検出した Synal らの研究

<sup>†</sup> Instruments for Radiation Measurement in Life Sciences(4). V. Application of Accelerator Mass Spectrometry to Environmental Radioactivity Measurements. Riki SEKI: Department of Chemistry, University of Tsukuba, 1-1-1, Tenoudai, Tsukubashi, Ibaraki Pref. 305-8571, Japan.

成果<sup>1)</sup>や地下水中の<sup>36</sup>Cl測定によるオーストラリアの地下水の循環の研究成果<sup>2)</sup>は有名である。また最近では、AMSを用いた世界各地の降水中の<sup>36</sup>Clの測定から、核実験起源の<sup>36</sup>Clが地表と対流圏間で再循環しているという結果が導かれた<sup>3)</sup>。この研究は今後世界的な物質循環の解明ばかりでなく、地球温暖化の研究にも寄与することになるであろう。

環境放射能の分野で多くの研究者が取り組んでいた大気や降水中の<sup>7</sup>BeもAMSで測定されるようになった<sup>4),5)</sup>。<sup>7</sup>Beは半減期が53日であるから、質量分析は長半減期核種の測定にのみ適用されるという常識が覆されたといえよう。また、AMSは非常に感度がよいので、わずか250 mLの海水試料を用いて<sup>129</sup>Iを測定すると、ヨーロッパの海水の循環を解析することができる<sup>6)</sup>ことが確かめられ、研究の効率が向上した。放射化分析を用いた測定と比較すると<sup>129</sup>Iの検出限界が3桁以上低くなり、研究の幅が広がると期待される。

環境中のプルトニウムの起源を特定するために同位体比を測定する研究も、AMSを用いれば、非常に簡単に行われる<sup>7)</sup>ようになった。核拡散に関する保障措置に関連して<sup>236</sup>Uを測定することが計画されており、超ウラン元素の測定には威力を発揮することが予想される。プルトニウム用のAMS装置の小型化も計画されているので、近い将来にはモニタリングもAMSで行われる時代が来るかもしれない。

### 3. 広島原爆の線量再評価

日本における環境放射能研究の原点は原子爆弾の被災にある。広島、長崎の被爆は人々の記憶の中からかなり薄れてきたが、原爆被爆者の被ばく線量推定のための線量評価システムはT65Dが改訂されてDS86<sup>8)</sup>として、放射線業務従事者の作業規範である放射線障害防止法の基になっている。しかし、現行の線量評価システムも計算結果と測定結果の不一致が問題視されていて、引き続き研究が行われていた。広島に

原爆が投下されてから約60年になり、当初の放射能はほとんど減衰しているが、測定技術の進歩によって、残存する微量放射能を測定することができるようになったので、再測定と再計算が行われている。ここで注目されたのは、<sup>152</sup>Eu(半減期13.5年)、<sup>63</sup>Ni(100年)、<sup>36</sup>Cl(3.01×10<sup>5</sup>年)、<sup>41</sup>Ca(1.03×10<sup>5</sup>年)である。

<sup>152</sup>Euは金沢大学の低レベル放射能実験施設で測定され、<sup>36</sup>Clはアメリカのグループとドイツのミュンヘン工科大学のAMSで測定されていた<sup>9)</sup>が、最近になって、筑波大学でも<sup>36</sup>Clが測定できるようになった<sup>10)</sup>。その結果、広島の花崗岩試料中の<sup>36</sup>Clは計算結果と比較的によく一致した。<sup>36</sup>Clや<sup>152</sup>Euの測定結果はそれらの再計算の結果とあわせてDS02としてまとめられる見通しである。

<sup>63</sup>Niは高エネルギー加速器研究機構でβ線を検出する方法で測定される<sup>11)</sup>とともに、ミュンヘンのAMSでも測定されている<sup>12)</sup>。<sup>41</sup>Caについては被爆者の歯を測定する計画が進んでいるが、そうなれば直接被ばく線量を測定するものとして注目される場所である<sup>13)</sup>。

### 4. JCO 臨界事故

1999年9月に茨城県の東海村で発生した臨界事故において、中性子が一般環境に放出されたことは記憶に新しい。このとき、国内の環境放射能研究者は協力してこの事態の解明に向かった<sup>14)</sup>。それぞれが得手とするさまざまな研究方法を用いて研究を行い、その結果の一部はJournal of Radioactivityの特集号Vol. 50, No. 1-2(2000)として報告され、また金沢大学の小村和久教授を班長とする科学研究費補助金による研究「臨界事故の環境影響に関する学術調査研究」の報告書としてまとめられた。筑波大学では<sup>36</sup>Clがようやく測定できるようになっていたので、JCO敷地内の土壌や実験室内にあった薬品を分析し、熱中性子で放射化された<sup>36</sup>Clを測定した<sup>14)</sup>。この結果は図1に示したように、<sup>36</sup>Clの測定でも他の核種と同じように、

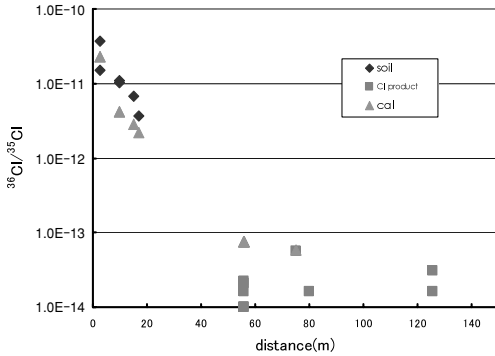


図1 JCO敷地から採取した土壌及び塩素を含む試料、食塩中の<sup>36</sup>Cl/<sup>35</sup>Cl  
横軸は臨界事故の起きた沈殿槽からの距離、  
▲印は漏洩中性子輸送計算に基づく推定値

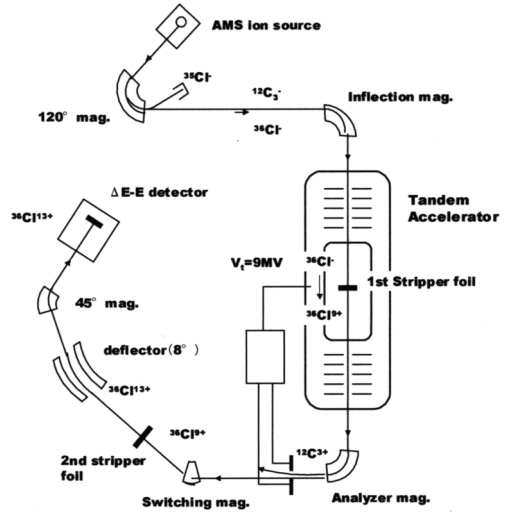


図3 筑波大学加速器質量分析システム概念図  
(<sup>36</sup>Cl用)

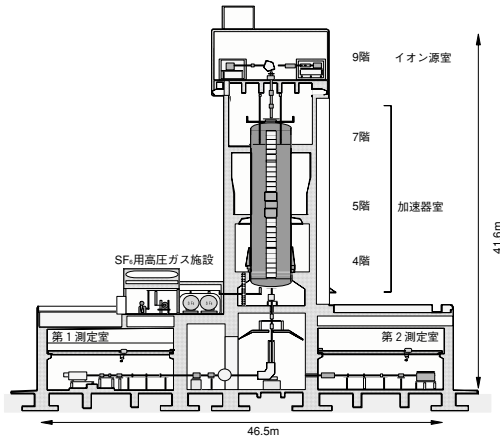


図2 筑波大学加速器センター概念図  
AMSの測定は第2測定室で行われる

臨界事故のあった位置から離れるにしたがって減少した。この結果を京都大学原子炉実験所の今中氏による計算結果と比較すると比較的よい一致を示した<sup>15)</sup>。放出された熱中性子束は臨界事故が起こった建物のすぐ外では $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ であったことがわかった。この結果は他の短半減期核種の測定結果ともよく一致した。AMSでは直接<sup>35</sup>Clとの比で結果が得られるため理論計算と比較しやすいという利点がある。

### 5. 筑波大学のAMS装置

これまで本シリーズで種々のAMS装置の紹介があったが、筑波大学のAMS装置は核物理、核物性研究用に導入された12UDペレトロンを基にし、AMS専用のイオン源と測定系を増設して、開発されたものである。AMS専用の加速器でないために種々の問題点があるが、10MVの水準を保っているので、国内のほかの施設にない利点もある<sup>16)</sup>。

図2、3に示したように高さ41mの塔の上部にイオン源室があり、3種類のイオン源が設置されている。その一つがAMS専用イオン源であり、25個の試料を一度に装着できるようになっている。イオン源はセシウムのスパッタタイプで、ここで陰イオンを生成する。<sup>36</sup>Clの場合、試料から調製したAgClに少量の炭素を加えてホルダーにつめる。問題点の一つは、AMSによる測定を目的とする微量ビームでは加速電圧の制御ができないことで、分子パイロットビーム法によって加速電圧を安定化している。<sup>36</sup>Clの場合、<sup>12</sup>C<sub>3</sub><sup>-</sup>という3個の炭素が結合した分子イオンをパイロットとして用いる。

この方法によって、 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ の比でおよそ $10^{-14}$ から $10^{-11}$ の範囲の測定をすることができ。これまでに、JCO敷地内で採取した試料や、広島原爆の再評価試料の測定、加速器の遮蔽用のコンクリート測定によるクリヤランスレベルの評価などの研究を行ってきた。今後も加速器の安定化をすすめて、 $^{36}\text{Cl}$ 以外の核種の測定を行う計画である。

## 6. おわりに

AMSはすでに考古学の分野ではなくてはならない方法となっているが、ここに述べたように環境放射能の分野でも、強力な道具となりつつある。AMSは長半減期核種で $\gamma$ 線を放出しない核種はもとより、放射能測定が困難な核種の検出には非常に優れている。もちろん大量に同重体のイオンが存在するような場合にはこれを除去しなければならないことなど固有の問題点もあるが、それは克服可能である。

まだ測定を試みられていない核種が多数あり、測定対象も増加していく傾向が見られる。ここには示さなかったが、放射線医学総合研究所の村松氏の $^{129}\text{I}$ の研究<sup>17)</sup>などは、微量元素の全地球的な循環について、モデルに基づく計算でなく実際に測定することが可能となる時がすぐ近くに来ていることを思わせる。このように環境放射能研究だけでなく、多くの分野に連携する研究にAMSが寄与することであろう。

## 文 献

- 1) Synal, H. A., Beer, J., Bonai, G., Suter, M. and Wolfli, W., Atmospheric transport of bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$ , *Nucl. Instr. Meth.*, **B52**, 483-488 (1990)
- 2) Torgersen, T., Habermehl, M. A., Phillips, F. M., Elmore, D., Kubik, P., Jones, B. G., Hemmick, Y. and Gove, H. E., Chlorine 36 dating of very old groundwater. 3. Farther studies in the Great Artesian Basin, Australia, *Water Resources Res.*, **27**, 3201-3213 (1991)
- 3) Blinov, A., Massonet, S., Sachsenhauser, H., Synal, H.-A. and Nolte, E., An excess of  $^{36}\text{Cl}$  in modern atmospheric precipitation, *Nucl. Instr. Meth.*, **B172**, 537-544 (2000)
- 4) Smith, A. M., Curran, M., McMorrow, A., Smith, B. T., Morgan, V. I. and Pedro, J. B., High resolution study of the deposition of cosmogenic  $^{10}\text{Be}$  and  $^7\text{Be}$  in Antarctic snow, AMS-9 要旨集, p.33 (2002)
- 5) Nagai, H., Distribution and transport of  $^7\text{Be}$  and  $^{10}\text{Be}$  in the atmosphere, AMS-9 要旨集, p.38 (2002)
- 6) Kieser, W. E., Zhao, X. L., Soto, C. Y., Tracy, B. and Smith, J. N., Accelerator mass spectrometry of iodine-129: technique and applications, MARC IV 要旨集, p.121 (2003)
- 7) Hamilton, T., Brown, T., Marchetti, A. A., Martinelli, R., Kehl, S. and Brunk, J., Low-level detection of plutonium isotopic signatures in aged fallout from the marshall islands using accelerator mass spectrometry, MARC IV 要旨集, p.454 (2003)
- 8) Radiation Effects Research Foundation, US-Japan joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, final report, Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Vols.1 and 2, ed. by Roesch, W. C. (1987)
- 9) Huber, T., Ruehm, W., Kato, K., Kubo, F., Lazarev, V. and Nolte, E.,  $^{36}\text{Cl}$  measurements in Hiroshima: bomb induced and in-situ production, AMS-9 要旨集, p.122 (2002)
- 10) Nagashima, Y., Seki, R., Matsuhira, T., Takahashi, T. and Sasa, K., Chlorine-36 in granite samples from Hiroshima A-bomb site., AMS-9 要旨集, p.124 (2002)
- 11) Ito, Y., Shibata, T., Imamura, M., Shibata, S., Nogawa, N., Uwamino, Y. and Shizuma, K., A method to detect low-level  $^{63}\text{Ni}$  activity for estimating fast neutron fluence from the Hiroshima atomic bomb, *Health Phys.*, **76**, 635-638 (1999)
- 12) Ruhm, K., Rugel, G., Marchetti, A. A., Faestermann, T., Wallner, C., McAninch, J. E., Straume, T. and Korschinek, G., Accelerator mass spectrometry of  $^{63}\text{Ni}$  at the Munich tandem laboratory for estimating fast neutron fluences from the Hiroshima atomic bomb, *Health Phys.*, **79**, 358-364 (2000)

- 13) Wallner, A., Arazi, A., Faestermann, T., Kellerer, A. M., Knie, K., Korschinek, G., Maier, H. J., Nakamura, N., Ruhm, W. and Rugel, G., <sup>41</sup>Ca-an *-in-vivo* dosimeter for thermal neutrons., AMS-9 要旨集, p.125 (2002)
  - 14) Komura, K., Yamamoto, M., Murata, Y., Nakaniishi, T., Hoshi, M., Takada, J., Ishikawa, S., Takeoka, S., Kitagawa, K., Suga, S., Endo, S., Tosaki, N., Mitsugashira, T., Hara, M., Hashimoto, T., Takano, M., Yanagawa, Y., Tsuboi, T., Ichimasa, M., Ichimasa, Y., Imura, H., Sasajima, E., Seki, R., Saito, Y., Kondo, M., Kojima, S., Muramatsu, Y., Yoshida, S., Shibata, S., Yonehara, H., Watanabe, Y., Kimura, S., Shiraishi, K., Ban-nai, T., Sahoo, S. K., Igarashi, Y., Aoyama, M., Hirose, K., Uehiro, T., Doi, T., Tanaka, A. and Matsuzawa, T., The JCO criticality accident at Tokai-mura, Japan : an overview of the sampling campaign and preliminary results, *J. Environ. Radioact.*, **50**, 3-14 (2000)
  - 15) Seki, R., Arai, D., Nagashima, Y., Imanaka, T., Takahashi, T. and Matsuhira, T., Determination of <sup>36</sup>Cl in environmental samples collected in the JCO by AMS, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **255**, 245-247 (2003)
  - 16) Nagashima, Y., Seki, R., Takahashi, T. and Arai, D., Status of the <sup>36</sup>Cl AMS system at the University of Tsukuba, *Nucl. Instr. Meth.*, **B172**, 129-133 (2000)
  - 17) Muramatsu, Y., Fehn, U. and Yoshida, S., Recycling of iodine in fore-arc areas, evidence from the iodine brines in Chiba, Japan, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **192**, 583-593 (2001)
-