

論文の内容の要旨

論文題目 加速器質量分析における新しい同重体分離技術に関する研究

氏名 三宅 泰斗

加速器質量分析(AMS, Accelerator Mass Spectrometry)は質量分析装置とタンデム加速器を組み合わせた分析手法である。AMS は環境中での存在度が非常に低い ^{14}C 、 ^{10}Be 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I などの長半減期放射性核種の測定が可能であり、原子力分野だけでなく、考古学、地球化学等様々な分野で広く利用されている。

福島第一原子力発電所事故では、 ^{131}I の同位体である ^{129}I は、環境中の挙動が ^{131}I と同じであることから、事故当時の ^{131}I の分布の再構築のために積極的に測定が行われてきた。一方で、 ^{36}Cl や ^{236}U などは ^{129}I と同様に事故により環境中に漏洩したと予測されるが、測定の困難さからこれまでほとんど報告がされていない。しかしながら、事故事象の解明や事故の環境への影響評価において重要な核種であると考えられ、AMS による測定が必要である。

事故の影響評価だけでなく、福島第一原子力発電所の廃止措置の際にもこれらの長半減期核種の分析は重要な意味を持つ。廃棄物の適切な処分には核種分析による性状把握が必須であるが、特に β 線を放出する長半減期核種は測定に長時間必要であるか、測定施設の問題やまだ測定法が確立されていないものも含まれるため、測定が困難である。これらの中でも ^{59}Ni や ^{135}Cs などは AMS で測定可能とされている核種であり、測定が可能になれば放射性廃棄物の処分に大きく貢献できるものと考えられる。また、いずれも長半減期核種であるため、地球化学におけ

るトレーサー利用等にも活用可能であると考えられる。

これらの核種を高感度で測定するために、AMS では試料の化学処理、負イオン源利用による同重体の選択的イオン化や加速器のターミナルでの同重分子イオンの分解等が積極的に利用されている。しかし、質量電荷比が同じイオンについては電磁石や静電偏向器により分離することができない。そのため、AMS ではタンデム加速器によりイオンビームを数十 MeV まで加速することにより、目的の核種と同重体核種での、イオンのエネルギー損失や平衡電荷分布のような物質との相互作用の違いを利用して同重体の分離が行われる。これらはイオンの原子核中の陽子数の違いに起因し、質量数の大きい核種になるほど、測定対象核種と同重体核種の相互作用の違いが相対的に小さくなり分離が困難になる。

近年、陽子数の違いだけでなく、目的核種と同重体核種の電子親和力(EA; Electron affinity)の違いを利用した同重体の分離の研究が進められており、その一つの技術にレーザー光脱離法(LPD, Laser photo-detachment)がある。LPD では、レーザーにより負イオンに原子の EA 以上のエネルギーを与えることによって、光脱離反応を起こし負イオンを中性化する。目的核種の EA の方が同重体核種の EA より大きい場合、その間のエネルギーのレーザーとイオンビームを反応させることで、同重体核種のみを選択的に中性化し分離できる。LPD では陽子数の違いではなく EA の違いによって同重体の抑制が行われるため、これまで測定できなかった ^{135}Cs や ^{182}Hf などの質量数の大きい核種の測定が可能になり AMS の応用範囲をさらに広げることができると考えられる。既に測定可能な核種についても、LPD と他の分離手法を組み合わせることで検出感度の向上が期待される。

以上から、本研究では福島第一原子力事故の事象解明や環境影響評価に向けた ^{36}Cl をはじめとする難測定核種の測定と、AMS における新しい同重体分離手法である LPD の開発による AMS の応用領域の拡張を目的とした。研究は従来法による実サンプルの測定と、新しい手法のための装置の設計・製作及び装置の性能評価のためのテストベンチビームラインの構築に分けて実施した。実サンプルの測定では難測定核種として ^{36}Cl を選択し、従来法であるガス充填型電磁石とガスカウンターを組み合わせ、福島第一原子力発電所周囲で採取された土壌中の ^{36}Cl の測定を試みた。

LPD における同重体抑制効果を高めるためには、負イオンを減速しレーザーとの相互作用時間を増加させることが重要である。装置の製作では、そのための負イオン減速チャンバーを設計・製作し、構築したテストベンチビームラインに実装した。装置におけるイオンビームの透過効率を評価し、シミュレーションによる計算と比較することにより、設計の妥当性を確かめた。

本研究は 6 章から構成される。

第 1 章では研究の背景として、AMS の技術的概要、福島第一原子力発電所事故への応用研究、

AMS における同重体分離について述べた上で、本研究の目的と構成を述べる。

第 2 章では、原発周囲で採取された土壌中の ^{36}Cl の測定を試みた。試料は 2011 年 4 月 20 日に発電所の周囲 60 km から採取されたもので、 ^{129}I が AMS により既に測定済みのものを用いた。原発から北西方向を中心に 16 点を選択し、AMS 測定のための前処理を行った。 ^{36}Cl -AMS の測定には東京大学総合研究博物館タンデム加速器分析室(MALT)の AMS システムを利用した。測定の結果、16 試料のうち 10 試料から有意な ^{36}Cl の値が得られ、塩素同位体比($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比)は $(1.05 \pm 0.60) \times 10^{-12}$ から $(2.63 \pm 0.54) \times 10^{-11}$ となった。事故前の福島第一原子力発電所周囲の土壌中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比は 4.6×10^{-13} であり、事故前よりも高い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が観測された。原子力発電所からの距離と得られた $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を比較すると、原発から 20 km 付近の 1 点を除き、距離に従って $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が減少することが確認された。同一土壌中の ^{36}Cl と ^{129}I は正の相関を示し、 ^{36}Cl の沈着量が高かった地点では ^{129}I の沈着量も同様に高かった。今回観測された ^{36}Cl から、事故により炉内の ^{36}Cl が環境中に漏洩したことが示唆された。しかしながら、処理可能な土壌試料量が限られていたことやガス充填型電磁石を使用したことによる測定効率の低下の影響により、得られた結果には 20 % ~ 60 % の比較的大きな誤差が見られた。 ^{36}S の干渉が大きく測定できなかった試料もあり、少ない試料量で測定効率を低下させず ^{36}Cl の測定を行うために、新たな同重体抑制技術を導入した測定システムの構築が必要であることの端的な例として示された。

第 3 章ではレーザー光脱離法の中心部となる、負イオン減速チャンバーの設計・製作について説明する。負イオン減速チャンバーは主に減速部、高周波四重極部、加速部から構成される。減速部ではイオン源から引き出されたイオンビームを電場により減速する。その際に拡がろうとするビーム束をトラップするために、減速部の後には高周波四重極が設置される。さらに、四重極内に He ガスを導入することでイオンをさらに減速し、内部での滞留時間を増加させ、レーザーとの相互作用時間を伸ばす。導入した He ガスが外部に漏洩しないよう、四重極の入口と出口にアパーチャーを設置し、アパーチャーでビームを損失させないために、減速部・加速部の間にはイオンの集束を調整するためにガイド電極を設置した。十分に減速されたイオンは、四重極内に設置された DC 電極が作る進行方向の電場により引き出され、加速部で元のエネルギーまで再加速される。設計にはイオン光学系設計ソフト SIMION8.1 を使用し、製作したチャンバー内のイオンの挙動を計算し、ガス圧を変化させた時のイオンの滞留時間と透過効率の変化を評価した。入射イオンは ^{36}Cl 及び ^{36}S を想定した。計算の結果、イオンビームの透過効率として 90 % 程度を実現できると予想された。 ^{36}S についてはレーザーにより 1/200 程度まで抑制されることが計算され、この設計に基づき、実際に負イオン減速チャンバーを製作した。

第 4 章では製作した負イオン減速チャンバーの性能を調べるため、テストベンチビームラインを構築した。テストベンチは負イオン源、電磁石、減速チャンバー、そしてスリットやフレアレーダーカップなどからなる。減速チャンバーの電位構成については、イオンビームの減速の精

密な制御ができるよう設計・構築した。

第5章では、テストベンチビームラインで³⁵Clの負イオンビームを用いて透過効率を評価し、第3章における設計の妥当性を検証した。まずはHeガス導入のための差動排気系について、設計通りの真空度の差が実現されていることを確認した。次に、減速チャンバー内の高周波四重極内に導入するイオンビームを減速していくと、透過率は次第に落ちていくものの、単調ではなく複数のピークが観測された。この現象は、減速に伴いビームの節の位置が変化することにより、電極構造の影響で生じることをSIMIONによるシミュレーションにより明らかにした。さらに、イオンビームを減速した状態でも、新たに導入したガイド電極によりレンズ構造を構成することにより、ビームの透過率が改善することを実験的にも証明した。以上により、負イオン減速チャンバーの設計の妥当性を実証した。

第6章は結論である。

以上をまとめると、本研究ではレーザー光脱離法の実装を目標として負イオン減速チャンバーを設計・製作し、構築したテストベンチビームラインにより設計の妥当性を確かめた。既存の施設による測定では、福島第一原子力発電所周辺で採取された表層土壌から事故により漏洩したと考えられる³⁶Clを検出した。同時に、試料量が限られた場合や同重体の妨害が大きい場合にはLPDにより測定効率を稼ぎつつ検出限界を下げることの必要性が示された。

福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された難測定核種は、本研究を含めて、これまで¹²⁹Iや³⁶Clについての報告が行われてきた。しかしながら、放出された核種には、既存の測定手法では測定が困難であるか、測定手法が確立していないものも多数存在し、事故事象の解明や環境への影響評価のために今後も継続した調査と測定手法の検討が必要である。これらの知見は福島第一原子力発電所の廃炉作業においても非常に重要になると考えられる他、長半減期核種である性質を利用したトレーサー研究などを通して、地球化学や環境化学の領域において研究を大きく進める可能性がある。本研究で得られた知見が加速器質量分析の応用範囲を拡大し、加速器質量分析が福島第一原子力発電所事故の収束を含む様々な学問領域の進展の一助になることが期待される。