

# 一放射化学者から見た加速器質量分析

大学院理学研究科

古川 路明

「放射能測定」が放射化学者の生き方であるが、(1)式からも明らかなように、長寿命核種に対する放射能測定の適用が質量分析に比べて不利であることは常に意識していた。

$$D = \ln 2 / T = 0.693 / T \quad (1)$$

ここでDは壊変率、Tは半減期を表す。半減期が1万年を超えれば、放射能測定は不利である。

ここでは、この3月で停年を迎える者として、加速器質量分析に関する二三の感想を述べてみたい。(この技術が「復活」した頃の思い出については「加速器質量分析との浅くて長いつき合い」<sup>1)</sup>と題して書いたもので、省略した。)

## 1. 新たな時代に際しての放射化学者による感想

新しい装置が導入され、多くの試料が測定できることは結構である。しかし、加速器に測定用ターゲットを装着する前に、試料処理があることは忘れてはならない。慎重で、試料に愛着をもつ人が操作にあたらなければ正確な測定結果は得られないと思う。

立派な研究成果の陰に、地道な活動を続ける「縁の下の力持ち」がいることは、私が何度も見聞きしてきたところである。

## 2. いくつかの長寿命放射性核種について

(1)  $^3\text{He}$ と $^3\text{H}$ (12.23年)の関係 — 1939年のAlvarezとCornogによる安定な $^3\text{He}$ の確認<sup>2)</sup>は、加速器を質量分析計のように用いて達成された。この頃の懸案を一挙に解決した重要な業績である。当時の常識であった $^3\text{He}$ が放射性、 $^3\text{H}$ が安定であるとの予測に反する貴重な発見であった。(興味のある方はAlvarez自身の思い出話<sup>3)</sup>を読んでいただきたい。)

(2)  $^{14}\text{C}$ (5730年) — 1977年秋に東京大学原子核研究所で催された小研究会で木越邦彦教授によって加速器質量分析の復活が紹介された際の参加者の反応は、 $^{14}\text{C}$ への適用についてはやや否定的な雰囲気が強かったようにみえた。その後の発展が予想を超えて著しく、現在の隆盛を迎えていることは今さらいうまでもないが、 $^{14}\text{C}$ の放射能測定が洗練された技術をもつ専門家によって高い正確さでおこなわれていたことを忘れてはならない。現在でも正確さについては、なお放射能測定に軍配が上がると思う。

$^{14}\text{C}$ について触れておきたいのは、核兵器実験による大気中炭素の比放射能の増加である。1960年代前半にアメリカと旧ソ連による大気圏内核実験のためにその値は2倍にまで達した。この事実は、木曾ヒノキの年輪についての名古屋大学における測定でも確認されている。

(3)  $^{10}\text{Be}$ ( $1.57 \times 10^6$ 年) — 長寿命であるために、加速器質量分析の有効性は否定しようがない。微弱放射能測定の限界に挑んでいた田中重男氏ら<sup>4)</sup>は衝撃を受けた。 $^{10}\text{Be}$ の放射能測定が危機にさらされることは目に見えていた。本田雅健・田中重男・今村峯雄の諸氏を中心に、東京大学原子力総合センターのタンデムバンデグラフを利用した $^{10}\text{Be}$ の加速器質量分析が企画され、軌道に乗ったことは画期的な出来事であった。 $^{10}\text{Be}$ については多くが語られているので、これ以上触れないことにする。

(4)  $^{26}\text{Al}$ ( $7.1 \times 10^5$ 年) — 隕石・月面岩石などの中に含まれる宇宙線生成核種で、ガンマ線を放出するために非破壊測定が可能であり、多くの隕石について測定された。私が

名古屋大学に赴任して間もなく始めた研究はこの核種に関係していた。「マグネシウム・アルミニウム・珪素の陽子照射による $^{26}\text{Al}$ と $^{22}\text{Na}$ の生成」と題する論文<sup>5)</sup>は、私が関わった論文としては引用件数が多く、加速器質量分析による測定値<sup>6)</sup>ともほぼ一致していた (Fig. 1)。しかし、放射能測定では、加速器質量分析の場合の1万倍におよぶ原子数の $^{26}\text{Al}$ を必要とし、後からみて無駄をしたような感じをもつのは正直なところである。

(5)  $^{36}\text{Cl}$  ( $3.0 \times 10^5$ 年) — 隕石などの中に含まれる宇宙線生成核種として有名であるが、最近は水理学との関係でも注目されている。加速器質量分析によって初めて正確な分析値が得られた核種である。1950年代後半には、大気中濃度が高く、放射能測定によって雨中の濃度が測定されていた<sup>7)</sup>。これが核兵器実験に由来することは、グリーンランドの氷コアを用いた加速器質量分析による測定<sup>8)</sup>で明らかとなった。この経年変化 (Fig. 2) をみると、論文中にははっきりと書かれてはいないが、1952年11月1日にアメリカによっておこなわれた最初の熱核兵器実験 (Mikeと呼ばれる) によって多量の $^{36}\text{Cl}$ が大気圏内に放出されたことはほぼ確実である。核兵器実験の際の環境中への放射能放出としては、天然における生成量に比べて、もっとも変化が大きかった例であろう。

(6)  $^{129}\text{I}$  ( $1.57 \times 10^7$ 年) — 宇宙線生成核種として知られ、「消滅放射性核種」の有力候補として注目を浴びていた。国内では、加速器質量分析による測定はおこなわれていないが、放射化分析による測定例<sup>9)</sup>は知られている。この研究は環境放射能に関係し、東海村にある動燃 (動力炉核燃料開発事業団) の燃料再処理工場からの $^{129}\text{I}$ の放出について追求したものである。その結果 (Table 1) によると再処理工場から $^{129}\text{I}$ が放出された時期があったことは明白である。ヨーロッパにおいても、加速器質量分析によって再処理工場からの放出を海藻と海水の分析によって綿密に調査した例<sup>10)</sup>があり、この場合も工場からの放出がはっきりと認められる。(関心をもつ人の一読をお勧めしたい。)

今後の名古屋大学における加速器質量分析に関係する研究の一層の発展を願うものであるが、そのためには人的資源の確保がもっとも重要であることをつけ加えておきたい。

#### 文献

1. 古川路明, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書(VI) p. 232(1995).
2. L. W. Alvarez and R. Cornog, Phys. Rev. 56, 379(1939), *ibid.*, 56, 613(1939).
3. L. W. Alvarez, "The Early Days of Accelerator Mass Spectrometry", "Symp. on Accelerator Mass Spectrometry" (W. Kutschera et al. eds.) p. 1, ANL/PHYS-81-1(1981).
4. Y. Fujita, Y. Taguchi, M. Imamura, T. Inoue and S. Tanaka, Nucl. Instrum. Methods 128, 523(1975).
5. M. Furukawa, K. Shizuri, K. Komura, K. Sakamoto and S. Tanaka, Nucl. Phys. A174, 539(1971).
6. R. J. Schneider, J. M. Sisterson, A. M. Koehler, J. Klein and R. Middleton, Nucl. Instr. Methods Phys. Res. B29, 271(1987).
7. O. A. Schaeffer, S. O. Thompson and N. L. Lark, J., Geophys. Res., 65, 4013 (1960).

8. L. E. Elmore, Tubbs, D. Newman, X. Z. Ma, F. Finkel, K. Nishiizumi, J. Beer, H. Oeschger and M. Andree, *Nature* **300**, 735(1982).
9. Y. Muramatu and Y. Ohmomo, *Sci. Total Environment*, **48**, 33(1986).
10. F. Yiou, G. M. Raisbeck, Z. O. Ziou and L. R. Klius, *Nucl. Instr. Methods Phys. Res.* **B92**, 436(1994).

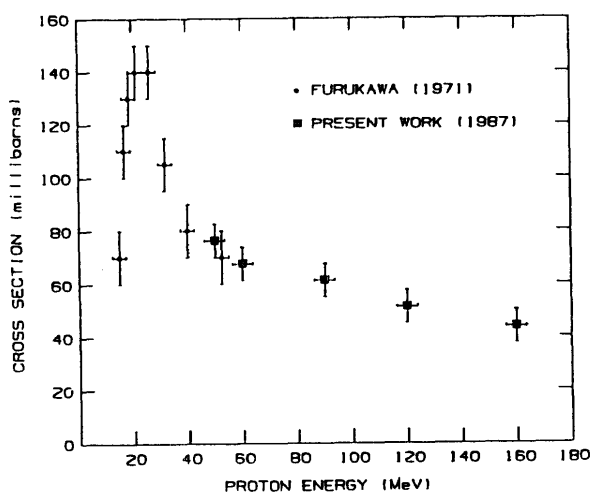


Fig. 1 Formation Cross Sections for  $^{26}\text{Al}$  from Al. Points are from Furukawa et al.

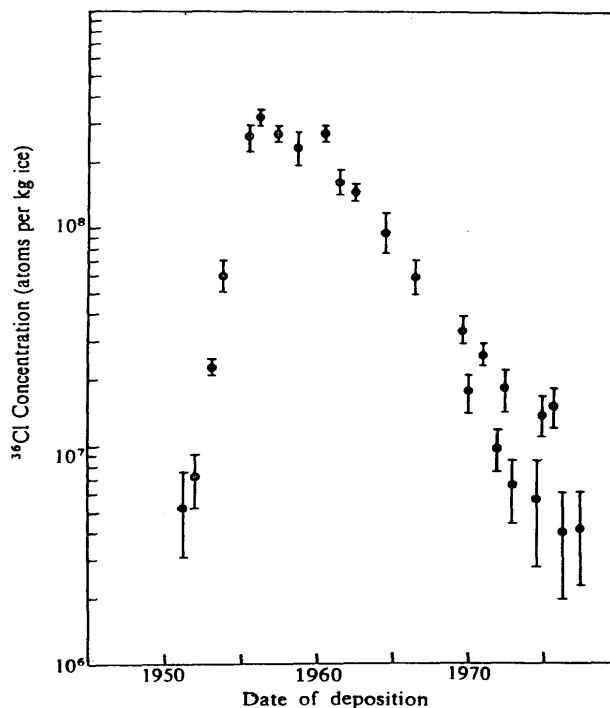


Fig. 2 The  $^{36}\text{Cl}$  Profile in an ice core drilled at Dye 3, Greenland.

Table 1  $^{129}\text{I}$  in water samples.

No.	Sampling location	Sampling date	km <sup>a</sup>	$^{129}\text{I}$ ( $\mu\text{Bq l}^{-1}$ )	$^{127}\text{I}$ ( $\mu\text{g l}^{-1}$ )	Atom ratio $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
<b>Precipitation</b>						
W-1 <sup>b</sup>	Tokaimura/ Ibaraki	September 1979 to March 1981	2.5	$110 \pm 4^c$	$3.4 \pm 0.1$	$5.0 \times 10^{-6}$
W-2	Tokaimura/ Ibaraki	August— November 1982	2.5	$5.2 \pm 0.4$	$3.2 \pm 0.1$	$2.6 \times 10^{-7}$
W-3	Nakaminato/ Ibaraki	August— November 1982	8.0	$2.5 \pm 0.2$	$3.3 \pm 0.1$	$1.2 \times 10^{-7}$
W-4	Tokaimura/ Ibaraki	July— September 1983	2.5	$2.1 \pm 0.3$	$2.5 \pm 0.1$	$1.3 \times 10^{-7}$
W-5	Chibashi/ Chiba	June— September 1983	98	$0.48 \pm 0.07$	$6.6 \pm 0.1$	$1.1 \times 10^{-8}$
<b>Swamp water</b>						
W-6 <sup>b</sup>	Tokaimura/ Ibaraki	July 1981	2.5	$3.1 \pm 0.2$	$3.1 \pm 0.1$	$1.6 \times 10^{-7}$

<sup>a</sup> km = Distance from the reprocessing plant (PNC).

<sup>b</sup> Samples W-1 and W-6 were partly reported in a previous paper [9].

<sup>c</sup> Standard deviations were calculated from counting statistics ( $1\sigma$ ).

AMS viewed by an old-fashioned  
radiochemist

Graduate school of Science

Michiaki Furukawa

As a radiochemist, I have measured radiations emitted from radionuclides by various counting techniques: They are very useful to identify and determine most radionuclides. The techniques are, however, not useful to apply to long-lived nuclides, because decay rates decrease with the increase of half-life.

In 1939, Alvarez and Cornog identified stable  $^3\text{He}$  by using a cyclotron as a kind of mass spectrometer. This is an important contribution in the field of light nuclei studies. In the last 1970's, the AMS technique was revisited, and has widely been applied to various fields like physics, chemistry, geology, archeology, geography, etc.

I gave brief comments on some long-lived nuclides which I am interested. They include  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  and  $^{129}\text{I}$ . The last three nuclides have close connection to environmental issues such as production by nuclear weapons tests, emission from reprocessing plants, storage of nuclear waste, etc.

I sincerely welcome the introduction of a new superb machine. But, we must not forget the importance of sample preparation. Accurate results cannot be obtained without careful handling of invaluable samples.