

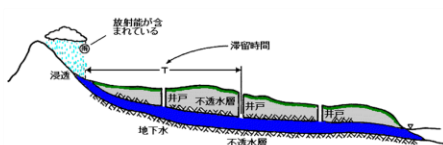
塩素年代測定における妨害原子のイオン分子反応による抑制

日本原子力研究開発機構 核燃料・バックエンド研究開発部門 東濃地科学センター 地層科学研究部 年代測定技術開発グループ

神野 智史・藤田 奈津子

はじめに

背景
地層処分事業において、地下水流動の特性の把握が重要な評価項目の一つであり、地下水の年代を推定する手法として、地下水に含まれる塩素（塩素-36 (^{36}Cl)）を対象とした年代測定技術を開発している。 ^{36}Cl を目的核種とした場合は、**硫黄-36 (^{36}S)**がAMS測定における**同重体干渉**による妨害核種となる。



【出典】 馬原 保典: Radioisotopes, 日本アイソトープ協会, Vol. 45, p.437(1996)

^{36}Cl は、大気層での宇宙線により ^{40}Ar や ^{38}Ar から（宇宙線核破砕により）生成し降水

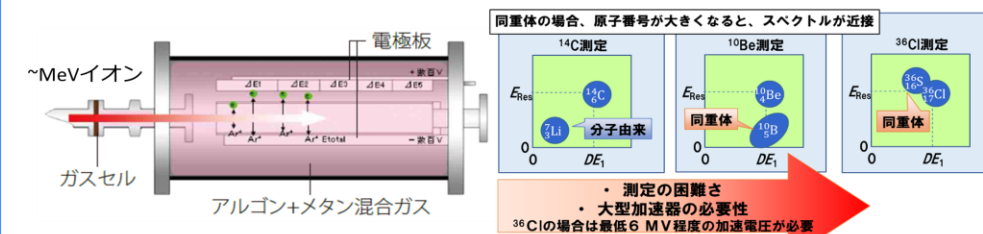
課題
 ^{36}Cl と ^{36}S を分離するには、一般に**6 MV以上の加速電圧**が必要

目的
目的核種の ^{36}Cl の妨害核種となる ^{36}S を**選択的に抑制する装置の開発**

展望
JAEA-AMS-TONO-5MVへの実装



電離箱を用いた同重体分離

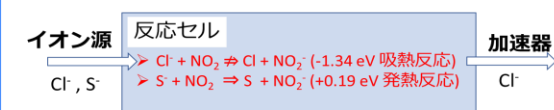


ΔE 電離箱における模式的な ΔE_1-E_{Res} エネルギースペクトル（目的核種の原子番号zが大きくなるほど同重体のピークと重なり分別が難しくなる）

核種	質量	半減期	天然存在比
イオン源ターゲット ^{36}Cl (原子番号17) AgCl	35.96830369(8)	3.01×10^5 y	7×10^{-13}
^{36}S (原子番号16)	35.96708076(20)	安定	0.0002(1)

試料由来、試料ホルダー、空気中からの混入で ^{36}S を完全に排除することは困難

反応セルによるsの抑制



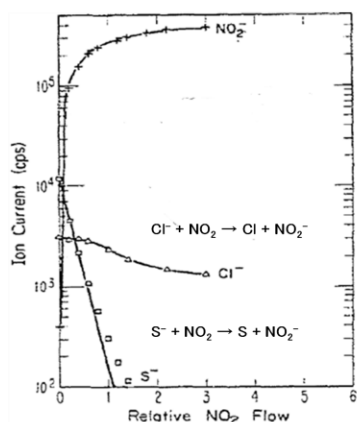
● $\text{S}^- + \text{NO}_2 \rightarrow \text{S} + \text{NO}_2^-$
反応速度定数 (Molecule $^{-1}$ cm 3 s $^{-1}$)
 1.3×10^{-9} [1], 8.2×10^{-10} [2]

● セル内でのドリフト時間
約30 μs (25 Pa ヘリウムガス中)

● 1/e になる NO_2 の分圧は0.17 Pa
→ **1.2 Pa で1/1000以下**
→ **1.6 Pa で1/10000以下に抑制**

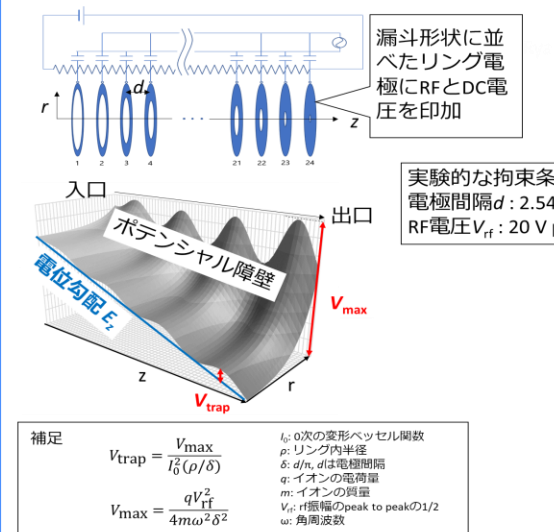
● 2000年ごろから物理化学分野にて利用が広がっている**イオンファネル**を採用

Flowing Afterglow法での280 Kにおける Cl^-/NO_2 , S^-/NO_2 の反応データ [1]。

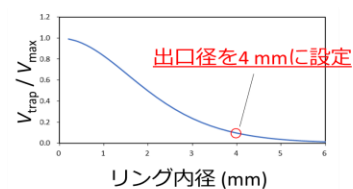


[1] D. B. Dunkin, et al., Chem. Phys. Lett. 15, 257 (1972).
[2] B. M. Hughes, et al., J. Chem. Phys. 59 3162 (1973).

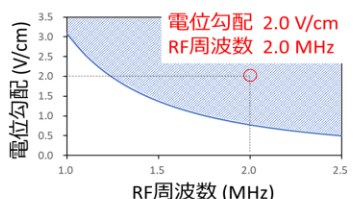
イオンファネルの理論的背景



イオンファネル出口を通過するためには、 V_{trap}/V_{max} は十分小さくなければならない



必要な電位勾配 E_z は $E_z > \frac{V_{trap}}{d/\pi}$



イオン透過率のシミュレーション

● 楕円レンズ^[1]により衝突誘起電子脱離の閾エネルギー^[2,3]まで減速

$\text{Cl}^- + \text{He}$ 衝突では70 eV以下まで減速

[1] A. Kellerbauer, Production of a cooled ion beam by manipulation of 60-keV ions into a radio-frequency quadrupole ion guide, M.Sc. Thesis, McGill University, January 1999.

[2] R. L. Champion and L. D. Doverspike, Phys. Rev. A 13, 609-616 (1976).

[3] B. T. Smith., Phys. Rev. A 18, 945-954 (1978).

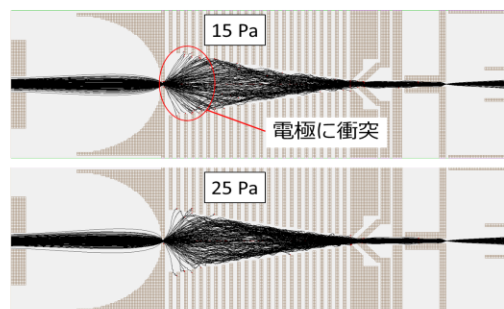
● ヘリウムガスとの衝突により直ちに熱化（衝突過程は剛体球モデル）

● RF電圧で閉じ込め

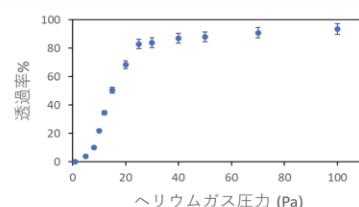
● 電位勾配で下流へ輸送

● 混合した NO_2 (数Pa)により妨害核種である ^{36}S を抑制

● 電極間隔を狭くするほど、原理的に出口径を小さくできるため、差動排気有利



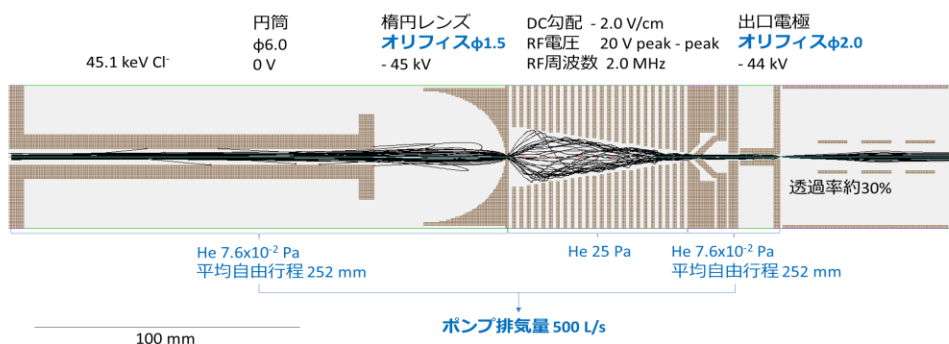
イオンファネル単体での透過率



● 圧力が低く衝突頻度が低いと、熱化が不十分

● 25 Pa以上でイオンファネル単体の透過率は80%を超える

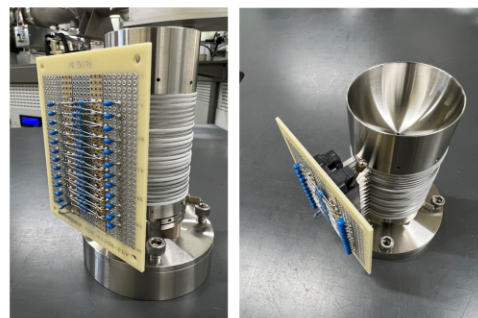
セル外に漏れるガスによる散乱



● オリフィス径を大きくすることによる透過率の上昇と真空度はトレードオフ

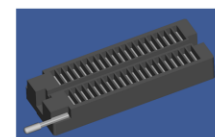
● 上記のオリフィス径とポンプ排気量における最終的な透過率は約30%

イオンファネル型反応セルの組立



● シミュレーションに基づいて設計製作を行った

● 電極の接続には48pin ZIFソケットを採用
→ 電極間隔は2.54 mm



● 電極間はテフロンでシール
→ ガスをリング電極の内側だけに導入

まとめ

■ 塩素36の同重体である硫黄36を抑制するためにイオンファネル型反応セルの開発に向けたシミュレーションを行った

● 減速部に楕円レンズを採用

● イオンファネルのパラメータを決定

➢ イオンファネル単体での透過率80%（ヘリウムガス25 Pa以上にて）

➢ 差動排気領域を含めると透過率30%

● 反応ガスとして NO_2 を混合

→ Ex. 分圧1.2 Paで1/1000以下
分圧1.6 Paで1/10000以下に抑制

■ イオンファネルの製作が完了

謝辞

日本原子力研究開発機構理事長ファンド「萌芽研究開発制度」（2022年度～2023年度）により行われた。