講 演 発 表

第１日　９月１６日（水）
１０：００～１７：４５

Ａ会場　1A01～1A20

Ｂ会場　1B01～1B20

Ｃ会場　1C01～1C20

1A01 軽核生成光核反応の放射化学的研究

(金沢大院, 金沢大・理[1], 原研[2], 都立大・理[3], 京大原子炉[4],
四日市大・環境情報[5], 追手門学院大・経済[6], 日大・文理[7], 東大原セ[8])
○ 鷲山幸信, 松村 宏, 羽場宏光, 坂本 浩[1], 宮本ユタカ[2], 大浦泰嗣[3],
柴田誠一[4], 古川路明[5], 藤原一郎[6], 永井尚生[7], 小林貴之[7], 小林紘一[8]

【はじめに】

光子と原子核との初期相互作用はハドロン誘起反応と異なり, その違いが終状態(残留核生成)にどのように反映されるかは非常に興味深い。核反応で質量数が 30 くらいまでのクラスターの生成については, これらが励起核からの放出(フラグメンテーション)なのか核破砕残留核なのかの区別, さらに前者ならどういうプロセスなのかが先ず問題である。そこで我々は陽子誘起反応で比較的データの多い ^{7}Be, (^{10}Be), (^{22}Na), ^{24}Na に着目し, ^{10}B–^{197}Au を標的核とした光核反応での軽核の生成収率を測定し, そのエネルギー依存性, 標的核質量依存性, さらに^{7}Beと^{10}Beに関しては生成収率比(^{10}Be/^{7}Be)と標的核の陽子対中性子数比$(N/Z)_t$との関係を調べてきた[1-3]。 今回, Be, Na 同位体に加えて新たに ^{28}Mg 等の生成収率を測定し, 標的核の変化に対して生成核の特性を反映した結果が得られはじめたので報告する。

【実験】

照射は高エネルギー加速器研究機構田無分室 1.3GeV 電子シンクロトロンと東北大学原子核理学研究施設 300MeV 電子 LINAC から得られる制動放射線(最大エネルギーE_0=50-1200MeV)を用いた。ビーム強度はAlまたはAuのモニター反応から求めた。標的は, 高純度のB, C, H_2O, Al, Si, SiO_2, $CuCl_2$, $SrCl_2$, K_2CO_3, $CaCO_3$, V_2O_5, MnO, Fe, Co, Ni, Cu, Y, Y_2O_3, Ag, In, Pr, Tb_4O_7, Ho, Ho_2O_3, Au を用い, 照射後必要に応じて化学分離を行った。^{7}Be, ^{22,24}Na, ^{28}Mg はγ線スペクトロメトリー, ^{10}Be は加速器質量分析により生成収率を求めた。

【結果と考察】

図1に ^{7}Be, ^{10}Be, ^{22}Na, ^{24}Na 並びに^{28}Mg の E_0=1000MeV における生成収率の標的核質量(A_t)依存性を示す。^{7}Be, ^{10}Be に関して A_t<50 の領域では標的核が大きくなるにつれて生成収率は指数関数的に減少するが A_t>50 ではそれぞれ減少が緩やかになるか増加する。^{24}Na, ^{28}Mg に関しては A_t<80の領域ではともに指数関数的に減少するが, A_t>80では増加する。ここで生成収率の指数関数的減少の部分は核破砕による寄与が高く, その領域より大きい標的からはフラグメンテーションによる寄与が高いと考えられる。この傾向は我々のグループで得られた核破砕反応の収率測定値を Rudstam の経験式に適応させた結果と一致する[4]。また生成収率比(^{10}Be/^{7}Be), (^{24}Na/^{22}Na) 並びに (^{28}Mg/^{24}Na) は標的核の $(N/Z)_t$とともに増加するが, これは核内でのクラスター生成機構に関する重要な手掛りである。

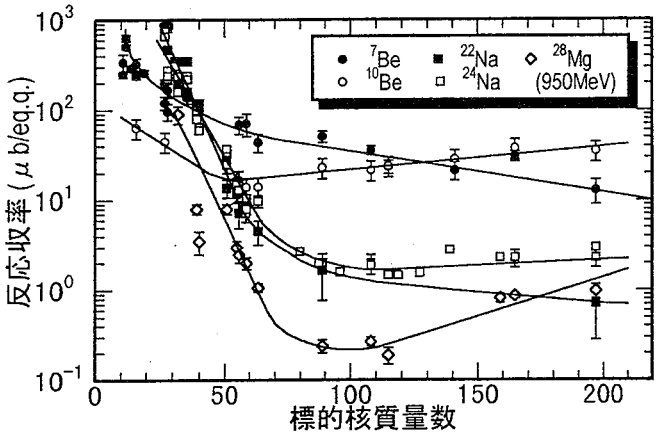


図1. E_0=1000MeVの制動放射線を用いて得られた ^{7}Be, ^{10}Be, ^{22}Na, ^{24}Na, ^{28}Mgの標的核依存性

討論会ではCl, Sc等の生成収率の結果も加え, 陽子誘起反応の結果と比較しながら議論する。

【参考文献】

1) 柴田ほか, 第 31, 33, 38 回放射化学討論会
2) 松村ほか, 第 40 回放射化学討論会, 国際放射化学シンポジウム APSORC'97
3) Shibata et al., Radiochim. Acta **80**, 181 (1998)
4) Sarkar et al., Radiochim. Acta **55**, 113, 139 (1991)

WASHIYAMA, K., MATSUMURA, H., HABA, H., SAKAMOTO, K., MIYAMOTO, Y., OURA, Y., SHIBATA, S., FURUKAWA, M., FUJIWARA, I., NAGAI, H., KOBAYASHI, T., KOBAYASHI, K.

1A02 核反跳法による ^{197}Au 中高エネルギー光核反応の動力学的研究

(金沢大理, 都立大理[1], 京大原子炉[2], 四日市大環境情報[3], 追手門学院大経[4])
○羽場宏光, 松村 宏, 鷲山幸信, 五十嵐学, 坂本 浩, 大浦泰嗣[1], 柴田誠一[2], 古川路明[3], 藤原一郎[4]

[序] 最近, 我々の研究グループでは, 核反跳法を利用した中高エネルギー光核反応への動力学的アプローチを進めている. 前回は, 光核破砕反応に重点を置き, ^{27}Al, ^{nat}Cu, ^{nat}Ag, ^{nat}Ta, 並びに ^{197}Au 標的核における光核破砕生成核の反跳特性の系統化を報告した[1]. 今回, これを^{197}Au 標的核における核分裂反応に適用した結果, 核分裂片の反跳特性さらに質量収率分布を得ることができ, 既報の核破砕並びに軽核放出反応との反応機構の違いが明確になってきたので報告する.

[実験] thick-target thick-catcher foil 法に基づき, 前後をマイラー箔(7.0mg/cm^2, 2.5x2.5cm)で挟んだ Au 標的箔(84mg/cm^2, 2.5x2.5cm)のセットを40～50 組重ね, ビームモニターの Al 板(200mg/cm^2, 2.5x2.5cm)と共に光子照射を行った. 光子源には高エネルギー加速器研究機構田無分室の 1.3GeV 電子シンクロトロンから得られる最大エネルギーE_0=300～1100MeV の制動放射線を用いた. 照射後, 標的箔の前後別に集めたマイラー箔, 標的箔, さらに標的の一部から化学分離されたK, Fe, Ni, Zn, As, Ga, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Ag, Ba, 並びに希土類元素の各試料についてGe検出器によるγ線スペクトロメトリーを行った. 実験データの動力学的解析(生成核の前方(F)対後方(B)捕獲比 F/B, F, B方向の平均飛程 FW, BW, 生成核運動エネルギー T, 放出粒子の平均運動エネルギーε_s等)の詳細は既報の通りである[1, 2].

[結果と考察] 今回得られた反跳特性は, 何れの生成核においても, E_0=600-1100MeV の範囲で一定値を示した. このうち, T を標的核質量数(197)と生成核質量数(A_p)の差(ΔA=197-A_p)の関数として Fig.1に白丸で示す. 標的に近いΔA<50の測定値は核破砕生成核で, Tは ΔAとともにスムーズに増加する. この増加は主として巨大共鳴, 準重陽子共鳴で(γ, xn)(x≧0)反応によって生成する ^{196,194,192}Au と, 主として (3, 3)共鳴の(γ, xnyp)(x≧0, y≧1)反応による生成核の 2 成分に分解できた. 加えて PICA コード[3]による E_0=400MeV での T を黒丸で示した. PICA コードは, 巨大共鳴による光吸収が組み込まれていないため低エネルギー光子によって生成する ^{196,194,192}Au の Tを過大評価する. 一方, (γ, xnyp)(x≧0, y≧1)反応生成核の Tをやや過小評価するが, ΔAとともに増加していく核破砕の傾向は良く再現している. また, F/Bは, ΔAに依存せず一定でその平均値は F/B=2.7±0.1 であった. ところで, ΔA>50 の生成核の TはΔA<50 の核破砕反応の T比べて1桁以上大きく, これは核分裂反応で解放されるエネルギーに相当する. また, F/Bは, 核破砕反応生成核のそれに比べて小さく F/B=1.1±0.1 で等方的角度分布を示し, 核分裂反応による生成を支持している. 討論会では, 今回初めて得られた ^{197}Au 光核分裂の質量収率曲線も参照しながら, 競合する核破砕並びに軽核放出反応の既存の結果も踏まえ ^{197}Au の中高エネルギー光核反応の現時点での全体像を議論する.

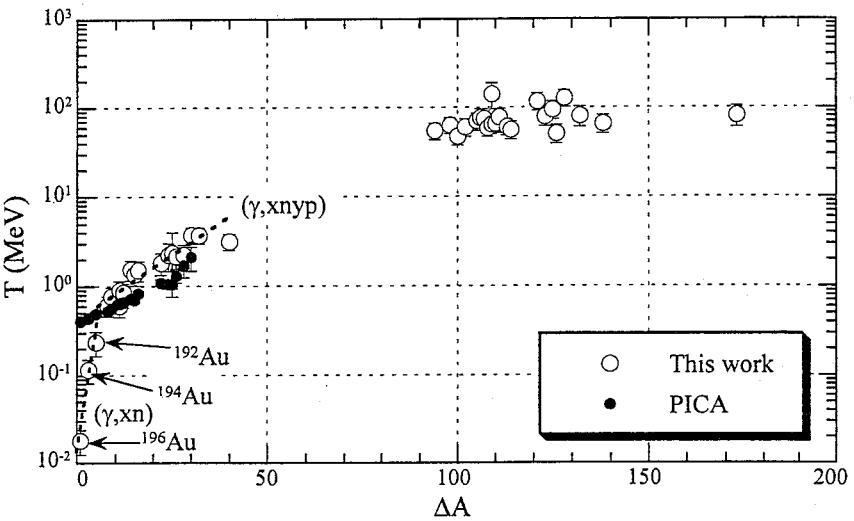


Fig.1 Kinetic energy, T, as a function of mass difference, ΔA.

[参考文献] [1] 羽場ほか, 国際放射化学シンポジウムAPSORC'97, [2] 羽場ほか, 第40回放射化学討論会, [3] T. A. Gabriel and R. G. Alsmiller, Jr., Phys. Rev. 182, 1035 (1969).

Haba, H., Matsumura, H., Washiyama, K., Igarashi, M., Sakamoto, K., Oura, Y., Shibata, S., Furukawa, M., Fujiwara, I.

1A03 高エネルギー陽子、重陽子、ヘリウム入射による軽核種の生成断面積

（高エネ研）○沼尻正晴、鈴木健訓、近藤健次郎

【はじめに】 現在、高エネ研では大強度加速器が計画されており、加速器ビームライントンネル周辺の遮蔽体中に生成する放射能の検討を行う必要がある。たとえば、H-3、Be-7、Na-22などの核種は、半減期・生成量・地下水への移行のし易さから、周辺環境への影響等放射線管理上重要な核種である。これらの核種は、高エネルギー核子と遮蔽体中のNa,Mg,Al,Si,Fe等との核反応によって生成する。

高エネルギーのハドロンと比較的重い原子核との反応では、BeからNaなどの軽い核種の生成が顕著となる。この反応はフラグメンテーション反応として近年、核反応機構の興味から研究されている。しかしながら、中重核のAg 等の標的核を除けば、生成断面積としての絶対値のデータが少なく、半経験式等を用いて生成量を予想する必要がある。今回、加速器構造体周辺で生じる放射能量を見積もるために、高エネ研で4から12GeVの陽子を様々な標的核に照射し、主にBe-7, Na-22,Na-24などの軽核の生成断面積を求めた。さらに 重陽子、ヘリウムイオンについても陽子に比べ放射化断面積としての測定データは少ないことと陽子入射との比較のため測定を行った。

【測定方法】 高エネルギー加速器研究機構の陽子加速器施設を用い、陽子(3-12GeV), 重陽子(2-6GeV/A), ヘリウム(2-12GeV/A)の入射粒子をMgからSnまでの核種の金属箔（３枚一組）にし5～20分照射した。照射後、中央の箔をGe検出器で放出γ線を測定し、生成断面積を求めた。入射粒子数は、電離箱、SEC(二次粒子放出検出器）及びモニター反応としてのAl中のNa-24生成量から求めた。

【結果と考察】 照射直後30分から経過時間を変えてγ線スペクトルを取得し、γ線エネルギー及び半減期から核種同定を行った。様々な核種が同時に得られるが、生成核種の質量数（Ａ）によって励起関数が異なる。標的核種の質量数に近い生成核($A_t/3 < A < A_t$、ターゲット核の質量数:A_t)の励起関数は、数百MeVから急激に増加し数GeV付近から変化が少なくなる。一方、Be-7,Na-24など軽い生成核種($A < A_t/3$)は入射エネルギーが１GeVを超えると顕著となる。一例として比較的広範囲のエネルギー(３～800GeV)で測定されているAg標的核について、図１に示す。

本講演では、これまでの実験結果から生成断面積の入射エネルギー依存性（図１）、標的核依存性（図２）を示し、Silberberg-Tsaoの式などの半経験値と比較検討を行う。

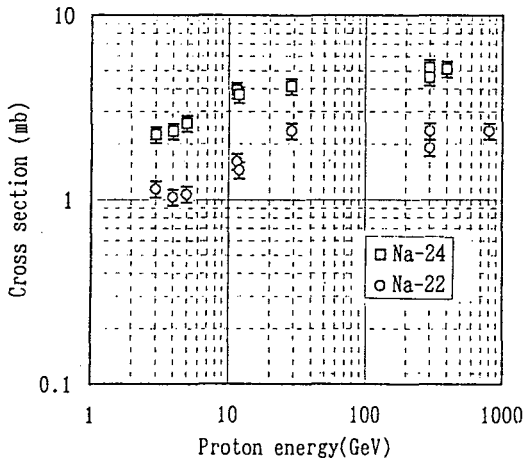


図１ 銀標的でのNa-22, Na-24の励起関数。4,5,12GeVの値は、KEKで測定された。

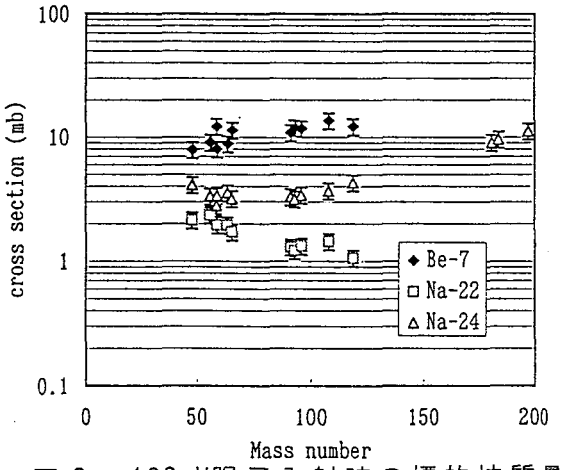


図２ 12GeV陽子入射時の標的核質量数依存性(KEKで測定）。

NUMAJIRI,M.,SUZUKI,T.,KONDO,K.

1A04 高エネルギー重イオンによる金ターゲットの核破砕反応機構

(阪大院理、阪大RIセ[1]、京大炉[2]、放医研[3]) ○横山明彦・森本真哉・荒木宏一・真田　潤・斎藤　直[1]・馬場　宏・大久保嘉高[2]・篠原　厚[2]・柴田貞夫[3]

[初めに]　著者らは、これまで金をターゲットとしたtarget fragmentation の反応機構を研究する目的で入射粒子の種類やエネルギーを変えた一連の実験を行ってきた。今回の発表では、実験結果に基づき、fragmentationの反応過程の初期に生成し、その機構に重要な役割を担うと考えられてきた中間状態（prefragment）を推定する試みを行ったので、それについて報告する。

[実験]　一連の実験で、特に重残留核の生成断面積や線形運動量移行量についてthick-target-thick-catcher法による測定を行ってきたが、実験の詳細は以前の討論会 [1] で発表したので、以下に簡単に記す。放射線医学総合研究所のHIMAC照射設備を用いて、高エネルギーの重イオン照射（C-12、Ar-40等）を金ターゲットに対して行った。その反応生成物をGe検出器を用いたγ線スペクトロメトリによってオフラインで測定した。

[結果と考察]　prefragmentの質量と励起エネルギーを推定するために、次のような仮定をした。まず、第一段階で衝突する原子核中の核子のやりとりでprefragmentが生成し、第二段階でそのprefragmentが熱平衡に達して比較的ゆっくりと脱励起していくというtwo-step processを考える。初期過程に関しては不完全融合反応のモデル[2]を用い、脱励起に関してはfragmentationの系統性から求められた、線形運動量移行と脱励起過程の放出粒子数との経験式[3]を利用して、逐次代入法によって解をもとめた。

得られたprefragmentの質量と励起エネルギーはそれぞれ図１、図２に示した。図１から、prefragmentの質量は入射粒子の大きさに依らず、入射エネルギーの増加に対して単調に減少する様子が見える。一方励起エネルギーについては図２に示したが、そのような依存性を示すような傾向が認められなかった。前者の傾向は入射エネルギーの増加に対してその透過性が増すことによると理解できる。

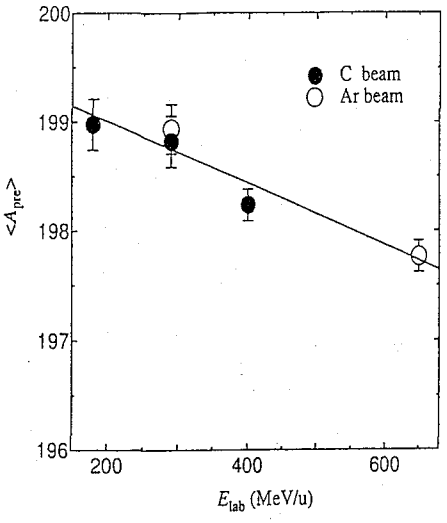


図１．　金のtarget fragmentationにおけるprefragment平均質量の入射粒子依存性.

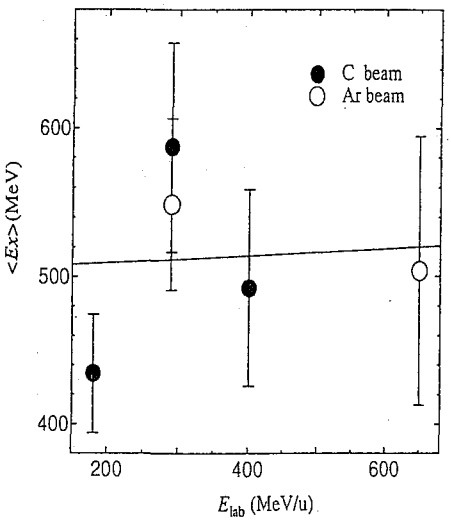


図２．　金のtarget fragmentationにおけるprefragment平均励起エネルギーの入射粒子依存性.

[参考文献]

[1] 森本ら、第41回放射化学討論会、熊本、JB02 (1997).
[2] R. J. Charity *et al.*, Nucl. Phys., **A457**, 441 (1986).
[3] D. J. Morrissey *et al.*, Phys. Rev., **C39**, 460 (1989).

YOKOYAMA, A., MORIMOTO, S., ARAKI, H., SANADA, J., SAITO, T., BABA, H., OHKUBO, Y., SHINOHARA, A., SHIBATA, S

1A05 陽子誘起核分裂における核分裂生成物の角運動量

(新潟大理・東北大サイクロ[1])
○後藤真一・加治大哉・工藤久昭・藤田正広[1]・篠塚 勉[1]・藤岡 学[1]

【はじめに】

原子核分裂において，核分裂片の持つ角運動量は核分裂機構の解明に有用な量である．我々はこれまでに，^{232}Th + p の系における核分裂生成物の核異性体生成比より核分裂片の角運動量を見積もってきた．

今回は，^{232}Th + p の系における核分裂片の角運動量の陽子エネルギー依存性について考察し，また，以前に測定された ^{238}U + p (24 MeV) の系との比較・検討をおこなったので報告する．

【実験】

実験は，東北大学サイクロトロン RI センターの IGISOL (イオンガイド型同位体分離装置) を用い，HPGe による γ 線測定によって核種の同定・定量をおこなった．反応系は ^{232}Th + p で，入射陽子エネルギーを 13–26 MeV とした．

【結果と考察】

核分裂片の角運動量は，分裂直後の核のスピン分布が統計分布

$$P(J) = P_0\,(2J+1)\exp\left\{-J(J+1)/\langle J^2\rangle\right\} \qquad J_{\rm rms} = \langle J^2\rangle^{1/2}$$

に従うものとし，脱励起によるこの分布の再分配を GROGI-2 計算コードにより計算した．実験より得られた核異性体生成比を再現するように一次分裂片の角運動量分布を見積もった．ここで，角運動量の大きさの指標として分布の幅 $J_{\rm rms}$ を用いた．

陽子エネルギー 24 MeV の ^{232}Th および ^{238}U の系について，核分裂片の角運動量を比較したのが Fig. 1 である．ほとんどの核種で，分裂核の違いにもかかわらずほとんど同じ角運動量を持っていることがわかる．一部の核種（白丸）ではこの傾向から外れているが，これらは核異性体生成比で比較した場合も同様な傾向を示し，その原因について現在検討中である．

また，^{232}Th の系での陽子入射エネルギー依存性については，エネルギーの増加とともに角運動量も増加する傾向にある．講演では核分裂片の励起エネルギーも考慮に入れてその関連性について発表する予定である．

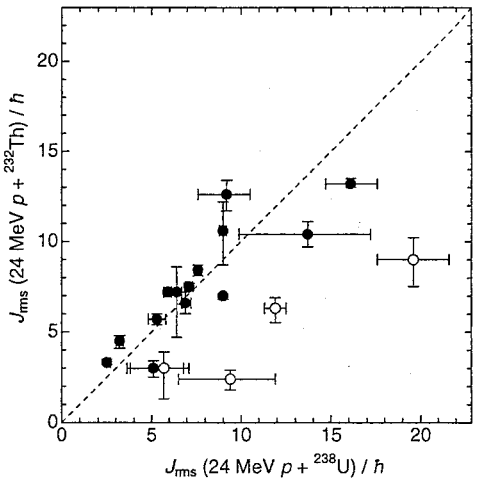


Fig. 1. Correlation of $J_{\rm rms}$ between the systems of 24 MeV proton-induced fission of ^{232}Th and ^{238}U.

GOTO, S., KAJI, D., KUDO, H., FUJITA, M., SHINOZUKA, T., FUJIOKA, M.

1A06

$^{239}Pu(n_{th},f)$における即発中性子と核分裂片の測定

(阪大院理・阪大RIセ[1]・原研[2]・京大炉[3]) ○高宮幸一 ・ 中西 潔 ・ 横山明彦・高橋成人 ・ 斎藤 直[1]・ 馬場 宏 ・ 西尾勝久[2]・ 中込良廣[3]

[序] ^{239}Pu の熱中性子誘起核分裂反応の機構をより詳細に調べるため、これまで行ってきた二重速度二重エネルギー測定に加え、即発中性子の運動エネルギーの直接測定を行った。本発表では二つの実験で得られた結果を用いて、分裂片の運動エネルギーと励起エネルギーに着目することにより、切断時の分裂核の様相についての考察を行う。

[実験] 実験は京都大学原子炉実験所スーパーミラー中性子導管設備を用いて行った。ターゲットにはNi 箔上に電着された約 20 μ g/cm^2 の Pu を用いた。プラスチック薄膜シンチレーターとSSBD を用いた核分裂片の二重速度二重エネルギー測定(2v2E)実験に加え、液体シンチレーターによる即発中性子の運動エネルギーの直接測定と、SSBD を用いた二重エネルギー測定を組み合わせた実験を行った。前者の実験では約 8 X10^4 の核分裂片対について測定を行い、これまで通り核分裂片の質量・運動エネルギー、及び即発中性子多重度についての情報が得られた。後者の実験では約 6 X10^4 の核分裂片対についての測定を行い、核分裂片質量及び運動エネルギーと即発中性子の運動エネルギーの相関が得られた。

[結果と考察] 切断後の核分裂片のもつ励起エネルギーは即発中性子と即発 γ 線の放出によって脱励起されるとし、核分裂片の励起エネルギーを核分裂イベント毎に計算した。即発中性子の運動エネルギーには、直接測定によって得られたデータを用いた。また核分裂片の形状を回転楕円体で近似し、切断時において励起エネルギーは全て変形エネルギーとして用いられるとして、核分裂片の長軸半径 a_i を求めた。一方、核分裂片対の全運動エネルギーから、切断時の核分裂片中心間距離 D_{eff} を求めた。ここで D_{eff} と両核分裂片の a_i の和との差、つまり $D_{eff} - (a_1 + a_2)$ を見積もることにより切断時における核分裂片間の距離(neck の長さ)を求めることができる。図1に核分裂片質量と neck の長さの平均値 D_{neck}^{1st} との相関を示した。質量分割が 132/108 付近で neck の長さが最短になっており、対称領域に近づくにつれ急激に長くなり、また非対称性が増すにつれて徐々に長くなっていくことがわかった。また同様の解析をこれまでに測定された $^{233,235}U(n_{th},f)$及び $^{252}Cf(sf)$についても行った結果、同様の傾向を示すことがわかった。

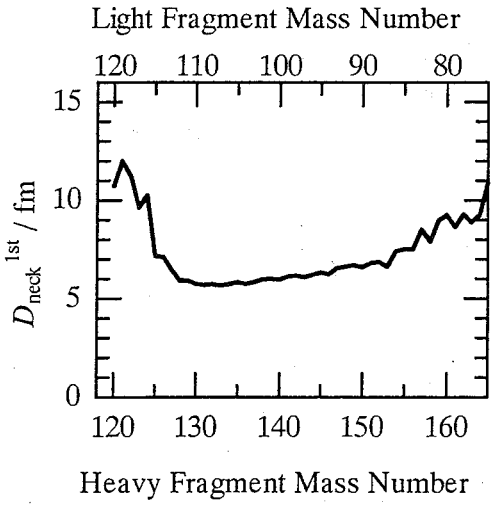


図 1 . 核分裂片質量とneckの長さの相関

TAKAMIYA, K., NAKANISHI, K., YOKOYAMA, A., TAKAHASHI, N., SAITO, T., BABA, H., NISHIO, K., NAKAGOME, Y.

1A07

核分裂現象の系統的考察

(都立大・理[1]、原研[2]、東大・理[3]、東北大・核研理[4]、新潟大・理[5])
○趙 宇亮[1]、西中一朗[2]、永目諭一郎[2]、谷川勝至[3]、末木啓介[1]、大浦泰嗣[1]、
中原弘道[1]、塚田和明[2]、市川進一[2]、光岡真一[2]、池添 博[2]、大槻 勤[4]、
後藤真一[5]、工藤久昭[5]

【はじめに】

これまでに、ウランなどの低エネルギー誘起核分裂では対称質量分割生成物と非対称質量分割生成物の生成断面積が異なる励起関数を示すことが指摘されており[1]、二種類の核分裂障壁の存在が示唆されている。また、近年我々の研究室の実験などから、核分裂生成物がもつ運動エネルギー分布には二種類の分布が存在することが指摘されている。この実験結果は、二つの原子核にちぎれる際に、変形の度合いの全く異なった二種類のちぎれ方が存在することを示唆している。本研究では、これら二つの核分裂変形経路が分裂核の陽子・中性子数によってどのような影響を受けるかを系統的に調べることを目的とした。

【実験】

実験は日本原子力研究所東海研究所のタンデム加速器にて行った。15.0MeVの陽子を用いて^{232}Th、^{238}U、^{244}Pu、^{248}Cmの核分裂を誘起し、それらの生成物の速度は二重飛行時間法により精密に同時測定した。測定系は四つの重粒子検出器で構成され、三個の新しく作られたMicrochannelPlate (MCP) と一個のParalell Plate Avalanche Counter(PPAC) である。また、^{127}Iビームと^{nat}Ag, ^{nat}In, ^{209}Biターゲットとの核反応の生成物を利用して飛行時間系の較正を行った。測定系の質量分解能は約2%で、運動エネルギー分解 能は約1.5%であった。

【結果と考察】

図１に各反応系の核分裂について測定した核分裂片の全運動エネルギー(TKE)を核分裂片質量数の関数として（黒丸印はp+^{232}Th、白三角印はp+^{238}U、 黒方形印はp+^{244}Pu、白方形印はp+^{248}Cm）示した。分裂核の質量数を増加するとともに、核分裂の際に放出された核分裂片のTKE分布は平行的に増加する傾向を示した。各質量の核分裂片のTKE分布の中では微細構造が存在するのが観測され、同じ質量分割に対する二種類の運動エネルギーの存在を確認してから、この微細構造を二つのガウス関数で解析し、高い運動エネルギー成分と低い運動エネルギー成分の分布とそれらの強度比を得た。更にこの二成分の強度比を使って核分裂片の質量収率分布を解析し、各TKEに対応している質量収率を求めた。図２には15MeVでの四つの反応系の重い方の分裂片の非対称質量収率曲線（高い運動エネルギー成分に対応する）を分裂片の質量数の関数としてプロットした。分裂核の陽子・中性子数の増加とともに、重い質量側の領域で質量収率が増加する現象を示した。それに対して逆に、全ての反応系に於て非対称質量収率曲線の左側はA=130付近で同じように急激に減少することが分かった。この現象はA=130近傍の分裂片の閉殻構造が最終的な質量分割の収率分布に大きな影響を与えていることを示唆している。発表では、四つの反応系における様々な物理量を精密に測定した結果を比較しながら、それらの系統性を考察する。

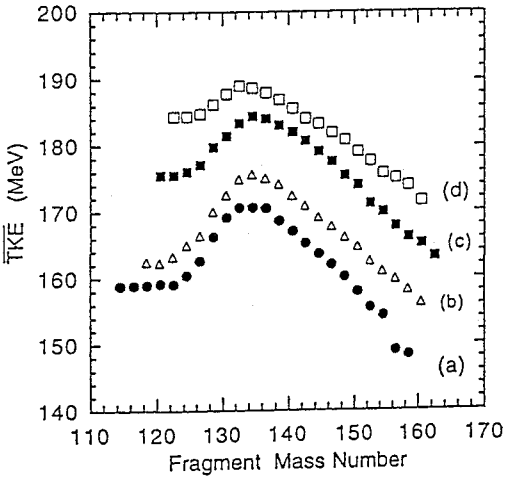


図1. 四つ反応系のTKE分布.

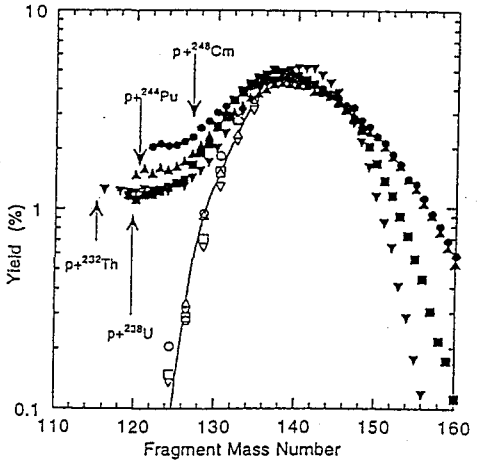


図2. 四つ反応系の重い側の非対称質量収率分布.

【References】

1. D. C. Hoffmann, et al, Radiochim. Acta, 70/71,135 (1995); H. Kudo, et al, Phys. Rev. C 25, 909 (1982); D. C. Hoffmann, et al, Nucl. Phys., A502, 21c (1989).

Y.L.ZHAO, I.NISHINAKA, Y.NAGAME, M.TANIKAWA, K.SUEKI, Y.OURA, H.NAKAHARA, K.TSUKADA, S.ICHIKAWA, S.MITSUOKA, H.IKEZOE, T.OHTSUKI, S.GOTO, H. KUDO.

1A08

^{232}Thの陽子誘起核分裂における二重モードと分裂片殻効果の関連

(原研[1]・都立大院理[2]・東大理[3]) ○西中一朗[1]・趙宇亮[2]・永目諭一郎[1]・塚田和明[1]・市川進一[1]・池添博[1]・大浦泰嗣[2]・末木啓介[2]・中原弘道[2]・谷川勝至[3]

Correlation between Two Mass Division Modes and Fragment Shell Effects in Proton-Induced Fission of ^{232}Th

Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute[1], *Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University*[2], *Department of Chemistry, School of Science, The University of Tokyo*[3]
Ichiro NISHINAKA[1], Yuliang ZHAO[2], Yuichiro NAGAME[1], Kazuaki TSUKADA[1], Shin-ichi ICHIKAWA[1], Hiroshi IKEZOE[1], Yasuji OURA[2], Keisuke SUEKI[2], Hiromichi NAKAHARA[2], Masashi TANIKAWA[3]

本研究グループでは，アクチノイドの陽子誘起核分裂過程に二つの分裂モード（対称・非対称質量分割）が存在することを実証した[1]．また，切断時における分裂片の変形エネルギーは，主に即発中性子νにより放出されので即発中性子数$\overline{\nu}$から，分裂片変形度についても検討してきた[2]．今回，^{232}Th の12 MeV陽子誘起核分裂について，分裂片の質量数毎に$\overline{\nu}$の全運動エネルギーE_k変化を詳細に調べ，分裂モードと分裂片殻効果の相関について検討したので報告する．

図１に二つのモードが混在する質量領域（A=98–107, 126–135, 図２参照）から対をなす分裂片 A=102–103, 130–131 のE_k分布（細線）と$\overline{\nu}$（黒丸）のE_k変化を示した．点線と破線は、非対称・対称質量分割モードに対応する．$\overline{\nu}$は，非対称質量分割モード（太点線）と対称質量分割モード（太破線）間では，明らかに異なる．

図２に質量分布（細線）とそれに相当する$\overline{\nu}$（太線）を示した．対称質量分割モードでは，$\overline{\nu}$（白丸）は質量とともに単調に増加し，また、質量分布（破線）が幅の広いガウス分布であることから，液滴的な性質を強く反映していると考えられる．一方，非対称質量分割モードでは，$\overline{\nu}$（黒丸）は，分裂片が球形の殻構造をもつと考えられる質量数78～80（陽子数28，中性子数50）近傍と128～130（陽子数50，中性子数82）近傍で小さい値を示し，アクチノイドの低エネルギー核分裂に見られるような" saw-tooth" 構造を示す．また，質量分布（点線）も幅が狭く，殻効果が強く影響していると考えられる．

講演では，分裂モードと殻効果の相関について^{226}Raの陽子誘起核分裂やアクチノイドの低励起核分裂と比較検討する．

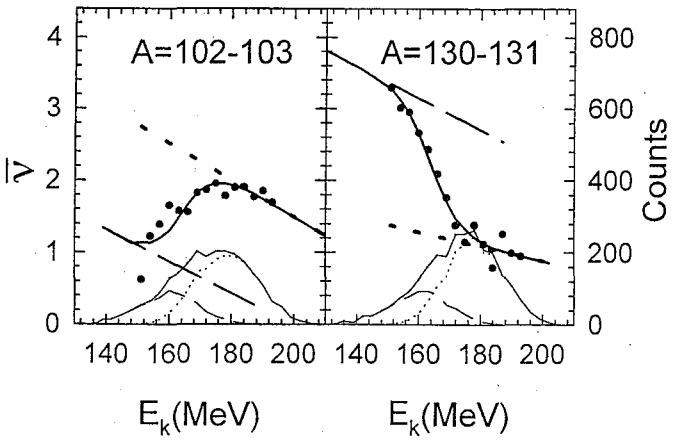


図１　$\overline{\nu}$のE_k変化とE_k分布

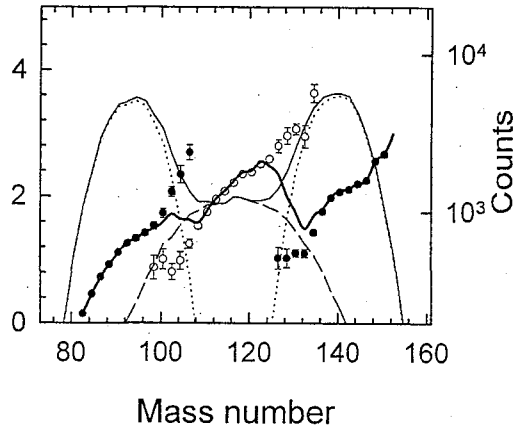


図２　$\overline{\nu}$の分裂片質量数変化と質量分布

参考文献

[1]Y. Nagame *et al.*, Phys. Lett. B387, 26 (1996).

[2]西中 他，第40回放射化学討論会1P01.

NISHINAKA, I., ZHAO, Y., L., NAGAME, Y., TSUKADA, K., ICHIKAWA, S., IKEZOE, H., OURA, Y., SUEKI, K., NAKAHARA, H., TANIKAWA, M.

1A10 原研ガスジェット-ISOL 装置の搬送・分離性能の改良と新アメリシウム同位体の探索

（都立大院理・原研[1]・名大工[2]）○阪間　稔・塚田和明[1]・浅井雅人[1]・市川進一[1]・大浦泰嗣・永目諭一郎[1]・西中一朗[1]・末木啓介・中原弘道・小島康明[2]・柴田理尋[2]・長　明彦[1]・河出　清[2]

【はじめに】これまで、中性子欠損未知アメリシウム同位体の探索並びにその壊変特性を調べるため、ガスジェット-ISOL 装置を開発し、新核種 ^{236}Am の確認と半減期 4.4±0.8 min [1]を決定した。この装置は、核反応生成物をエアロゾルクラスター（NaCl, KCl, etc）に捕捉して、He ガス気流により搬送するガスジェット搬送装置とオンライン同位体分離器（ISOL）を結合させたシステムである。エアロゾルクラスターに KCl を使用した場合、^{235}U(^{6}Li,4n)反応で生成する ^{237}Am の全効率は、0.03%であった。より生成断面積の小さい未知核種を探索するには、全効率の向上が必要である。そこで、エアロゾルクラスターに新しく $PbCl_2$ 及び PbI_2 を使用し、効率向上の検証並びに KCl を用いた場合との比較を行った。また、得られた最適条件下で新核種 ^{235}Am の探索と壊変特性を調べた。

【実験】PbI_2 及び $PbCl_2$ を用い、^{141}Pr(^{6}Li,4n)反応で生成する ^{143m}Sm の搬送効率及び全効率を調べた。効率 100%は、Al キャッチャーフォイル法によって求めた。核反応で生成した ^{143m}Sm が、ガスジェット装置で搬送されてくる割合を搬送効率、ガスジェット装置で搬送され、その後 ISOL でイオン化・質量分離されてくる割合を全効率として定義した。重イオン核融合反応による生成核の搬送及び全効率は、エアロゾルの量と He キャリヤーガス流量に大きく依存するので、He ガス流量（0.7～1.5 L/min）とエアロゾル発生温度《370～430℃（PbI_2）、660～820℃（KCl）》を変化させて最適条件を求めた。オンライン実験は、原研タンデム加速器照射コースに設置した蒸発残留核用マルチターゲットチェンバー内に ^{141}Pr ターゲットを 1 枚（0.280 mg/cm^2）配置し、46.7MeV の ^{6}Li ビームを平均電流 40 pnA の強度で照射した。

^{235}U（^{6}Li,4n）反応を用いた ^{237}Am の全効率を求める実験では、100 μg/cm^2 厚の ^{235}U ターゲット 21 枚（計 2.1mg/cm^2）を用い、46.7MeV、平均電流 40 pnA の ^{6}Li ビームで照射した。

以上の性能実験後、$PbCl_2$ を用いた最適条件下(Table 1.)で ^{235}Am の探索実験を行った。その時の ^{6}Li ビームエネルギーは、59.5 MeV で平均電流は 255 pnA であった。測定は、一定時間生成核を捕集後テープを測定位置に移動し、Si 表面障壁型半導体検出器と Ge 半導体検出器を用いてα、X/γ線シングルス測定及びα-γ、γ-γ同時計数測定に時間情報を加えて行った。

【結果】PbI_2 を用いた時の ^{143m}Sm の搬送及び全効率実験では、KCl を用いた場合と比較して、搬送効率は約 1.5 倍、全効率は約 30 倍の向上を確認した。また、^{237}Am の全効率は、Table 1.から KCl の場合と比較して約 7～8 倍の高効率化に成功した。^{235}Am の探索実験では、質量数 235 で分離・収集したフラクションに ^{235}Am の EC 壊変にともなう Pu K-x 線を確認し、予備的値として 7.2±2.6 min (Fig. 1.)の半減期を得た。

Table 1. Overall efficiency for the separation of ^{237}Am.

Aerosol cluster	Overall efficiency (%)	Temperature (℃)	He gas (L/min)
PbI_2	0.26±0.04	390	1.0
$PbCl_2$	0.21±0.03	470	0.9
KCl	0.03	650	0.8

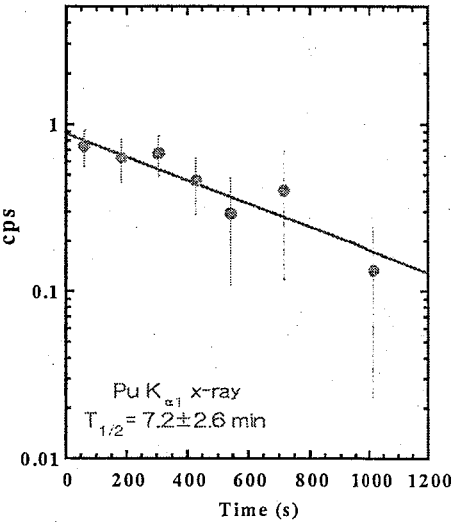


Fig. 1. Decay curve for Pu $K_{\alpha1}$ x-ray

References

[1] K. Tsukada *et al.*, Phys. Rev. C57, 2057 (1998).

SAKAMA, M., TSUKADA, K., ASAI, M., ICHIKAWA, S., OURA, Y., NAGAME, Y., NISHINAKA, I., SUEKI, K., NAKAHARA, H., KOJIMA, Y., SHIBATA, M., OSA, A., KAWADE, K.

1A11 オンライン同位体分離による中性子過剰未知希土類核の探索

(原研[1]、 名古屋大学[2]、東京都立大学[3])
○市川 進一[1]・浅井 雅人[1]・塚田 和明[1]・長　明彦[1]・西中一朗[1]
永目 諭一郎[1]・小島 康明[2]・柴田 理尋[2]・大浦 泰嗣[3]・阪間 稔[3]
河出 清[2]

新核種の発見とその核的性質を明らかにする研究は、核種の存在限界を予測する理論や恒星中における元素合成過程の理解に有用な核データを与える。これら研究が対象とする領域は、近年、様々な実験装置と合成に用いる核反応の開拓により、ますます安定領域から遠く離れた核種にまで広がっている。ここで、中性子過剰核領域に着目すると、質量数が１３０近傍までの核種は、ほぼ中性子ドリップラインまで実験的にその存在が確認されている[1]。また、質量数１５０近傍でも、多くの核種の発見が報告されている [2]。

質量数１６０近傍の中性子過剰核領域では、合成に用いる核反応や実験装置の制約などにより、ここ１０年間、新核種の発見とその崩壊半減期の決定に関する報告はない。我々は、アクチノイドの荷電粒子誘起核分裂を合成反応に利用するとその質量分布の特徴から、質量数１６０近傍では、^{252}Cfの自発核分裂や^{235}Uの熱中性子核分裂に比べ、より多くの生成量が期待できることに着目した。そこで、中性子過剰未知希土類核種の探索とその核的性質を明らかにする目的で、核分裂生成物を迅速かつ効率よく捕集・搬送可能なガスジェット搬送法と結合したオンライン同位体分離(ISOL)システムの開発を行ってきた。このシステムは、^{238}Uの陽子誘起核分裂で生成する希土類核種を１ ～ ２%の効率で、分離・収集できる性能を有している [3]。

本システムによる未知核種の同位体分離は、妨害核種の混入を少なくし引き続く放射線測定の検出感度を高めるため、着目した核種を酸化物イオンで引き出し質量分離することで行った。核種の同定は崩壊に伴い放出されるβ線と同時計測された特性x線の観測から、崩壊半減期は同時計測されたx/γ線強度の時間変化を追跡することで求めた。その結果、これまで報告した核種[4,5]を含め、６つの新核種、^{159}Pm, ^{161}Sm, ^{165}Gd, ^{166}Tb, ^{167}Tb, ^{168}Tb、を発見するとともに、崩壊半減期を決定した。

本講演では、ガスジェット結合型オンライン同位体分離システムとβ/γ核分光学的手法による未知核種の探索結果について報告する。実験で決定した新核種の崩壊半減期は、大局的理論 [6] 並びに微視的理論 [7] で予測された半減期と比較して議論する。また、システムの高効率化と、さらなる未知核種の探索並びに原子核の質量測定など今後の予定を述べる。

References
[1] F. Ameil *et al.*, Eur. Phys. J. A1. 275 (1998). [2] S. Czajkowski *et al.*, in Proceedings of ENAM95, p. 553. [3] S. Ichikawa *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **374**, 330 (1996). [4] M. Asai *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1135 (1996). [5] S. Ichikawa *et al.*, Phys. Rev. C in press. [6] T. Tachibana and M. Yamada, in Proceedings of ENAM95, p. 763. [7] A. Staudt *et al.*, At. Data Nucl. Data Tables **44**, 79 (1990).

ICHIKAWA, S., ASAI, M., TSUKADA, K., OSA, A., NISHINAKA, I., NAGAME, Y., KOJIMA, Y., SHIBATA, M., OURA, Y., SAKAMA, M., KAWADE, K.

1A12

琵琶湖におけるウランの循環過程

○小藤久毅、山本政儀、*横田喜一郎、大塚良仁、小村和久
（金沢大LLRL、*琵琶湖研）

湖沼におけるUの循環過程を明らかにすることは、環境中におけるアクチノイドの挙動を理解するためのアナログ研究としてだけでなく、U系列核種を湖沼系のトレーサとして用いるための基礎としても重要である。演者らは琵琶湖水中においてU濃度の鉛直分布が季節的に変化することを報告してきた。琵琶湖北湖では、湖水が成層する春から夏にかけて表層の^{238}U濃度が約2倍に増加している一方、下層では約30%濃度が減少している。このような季節変化のメカニズムを明らかにするため、これまで行ってきた湖水中のU濃度の測定に加えて、琵琶湖沿岸の地下水のU分析及び底泥からのUの溶出実験により、琵琶湖へのU供給経路と水中での循環過程について検討した。

【研究方法】

湖底への漏出地下水は、1997年6月、8月、10月及び1998年3月に湖沿岸6ケ所（Fig. 1）でピエゾメーターを用い湖底面下50cmから採取した。（奈良教育大 谷口博士より譲受）また、1998年4月25日に琵琶湖北湖及び南湖からそれぞれ湖水及び表層堆積物を採取した。これらを混合し、成層期の上下層を模して温度を30℃及び7℃に保ち、10日間にわたり水中のU濃度変化を追跡した。地下水及び溶出実験の試料は全て0.45 μ m孔径フィルターでろ過した。1N HNO_3溶液に調製し、内部標準として^{209}Biを添加した後ICP-MSにより^{238}U濃度を測定した。

【結果と考察】

湖水中の^{238}U濃度が0.1～0.3mBq/lの範囲であるのに対し、地下水は0.03～25mBq/lと大きく変動し、特に6月及び8月に高濃度を示した。谷口(1995)によれば4～8月は地下水漏水量が他の期間の数分の一に減少してはいるが、U濃度は湖水の最大100倍にまで上昇しているため、地下水が成層期表層のU濃度上昇に大きく寄与していると考えられる。一方、溶出実験では溶液中のU濃度は時間と供に減少した。この減少速度は30℃の方が大きいことから、春から夏にかけての水温上昇による底泥からのU溶出の影響は表層のU濃度上昇に対し無視できると考えられる。琵琶湖への流水量及び溶出・沈着によるUの移行量を併せて考慮し、湖全体でのU収支について議論する。

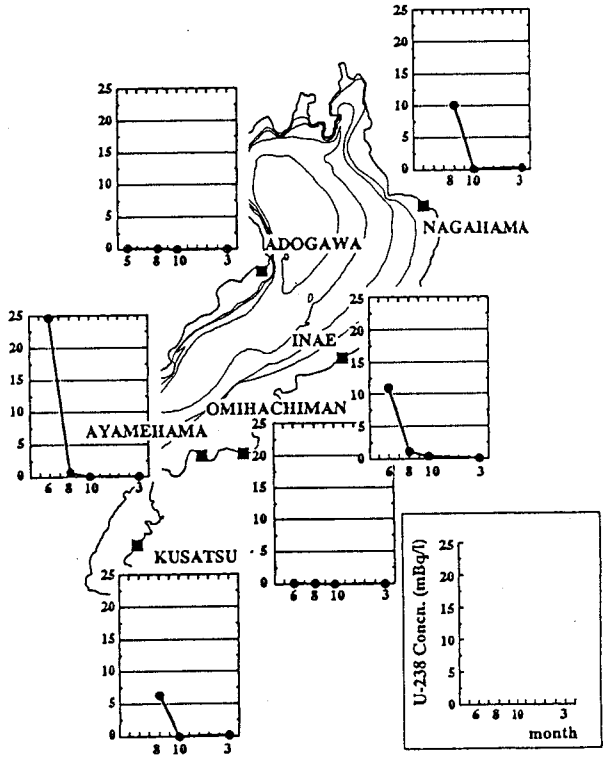


Fig. 1 Uranium concentration in seepage groundwater inshore of Lake BIWA.

References
M. Taniguchi , Jpn. J. Limnol., 56, 4 (1995)

KOFUJI, H., YAMAMOTO, M., YOKOTA, K., OHTSUKA, Y., KOMURA, K.

1A13 琵琶湖水中の天然放射性核種 ^{210}Pb 及び ^{210}Po

(金沢大 LLRL、琵琶湖研*)
○大塚良仁・山本政儀・横田喜一郎*・小藤久毅・小村和久

【緒言】

U系列に属する ^{210}Pb($t_{1/2}$=22.3 y)、^{210}Po($t_{1/2}$=138.38 d)は、水中で固相を形成しやすく、粒子との反応性が高いことから、海洋における物質の輸送・除去過程研究のトレーサーとして有用視され、多くの研究が行われてきた。しかしながら湖沼では、湖盆形成、周辺地系、集水域などの性状が様々であり、系が小さいために湖内での諸過程(沈降、堆積など)が外的影響を受けやすいなど、解析が困難なために海洋と比べてその研究は格段に少ない。本研究では湖沼への ^{210}Pb、^{210}Po トレーサー法の適応として、中栄養湖の琵琶湖において、これら核種濃度の深度分布と大気及び河川からの供給量を測定し、年間を通じての湖内でのこれら核種の循環及び湖底への除去過程を研究した。

【実験】

試料の採水は滋賀県琵琶湖研究所の‘はっけん号’に乗船し、北湖南部(水深 55m)において 97 年 2 月～98 年 3 月まで約 1 ヶ月間隔で行った。ロゼット型採水器を用いて深度別に 4～6 層採水(20 ℓ)し、直ちに船上で 0.45 μm 孔フィルターを用いて、加圧濾過した。河川水については主な 15 河川で採水し、湖水と同様に処理した。^{210}Po は化学分離・α線スペクトロメトリーにより定量した。^{210}Pb は ^{210}Po 成長法により間接的に定量した。大気からの湖面への ^{210}Pb 供給量を評価するために、大津、彦根の 2 地点で湖水採取と同間隔で降下物を採取し、γ線スペクトロメトリーにより ^{210}Pb を定量した。

【結果と考察】

琵琶湖湖水中の ^{210}Pb、^{210}Po の溶存態の平均濃度(水柱全体)は、深度及び季節に依らずほぼ一定で、それぞれ約 0.25mBq/ ℓ (0.13～0.46mBq/ ℓ)、0.08mBq/ ℓ (0.04～0.13mBq/ ℓ)であった。一方、懸濁態 ^{210}Pb の濃度は年間を通じて温度躍層上層(0～20m)で高く、顕著な季節変動を示した。(成層が出来上がる 5 月下旬から 6 月初旬に最大(約 1.3mBq/ ℓ)、8 月に最低(約 0.3 mBq/ ℓ))。懸濁態 ^{210}Po は ^{210}Pb と比べて顕著な変動は示さず水柱全体の平均濃度は 0.18～0.39mBq/ ℓ の範囲であった。降下量から見積もった湖面への ^{210}Pb 供給量は 260～290Bq/m^2/y(1.6～1.8dpm/cm^2/y)、河川からの ^{210}Pb、^{210}Po 供給量はそれぞれ約 7.0Bq/m^2/y、約 5.5Bq/m^2/y であった。2-Box モデルを用いてこれら核種の収支を計算した結果、^{210}Pb は Plankton Bloom 期にあたる 6～7 月に最も多く湖底へ除去され、一方 ^{210}Po 除去は ^{210}Pb に比べ小さく、顕著な季節変動を示さないことが明らかになった。

Ohtsuka, Y., Yamamoto, M., Yokota, K., Kofuji, H., Komura, K.,

1A14 東アジアの大気中の ^{210}Pb と ^{7}Be の濃度

（明治大理工・国立環境研[1]）○佐藤　深・小玉　圭・土井妙子[1]・佐藤　純

【はじめに】

大気中の ^{210}Pb は、地殻中の ^{222}Rn の一部が大気中に逃逸して生成し、エアロゾルに付着して存在している。^{7}Be は、主として成層圏での宇宙線と O_2 や N_2 との核破砕反応によって生成し、大気中では ^{210}Pb と同様にエアロゾルに付着して存在している。つくば市の大気中の ^{210}Pb と ^{7}Be の月平均濃度は、それぞれ、0.2-0.8 mBq/m^3、1-6 mBq/m^3 であり、両核種とも春季と秋季に濃度が増大する二山型の季節変動が観測された[1]。中国大陸内陸部の 3 都市での観測では、^{210}Pb の月平均濃度は 0.3-4.6 mBq/m^3 で、夏季の濃度はつくば市と同程度であるが、冬季には約 10 倍となり、冬季に高濃度で夏季に低濃度となる一山型の季節変動であった[2]。西太平洋上をオーストラリアから神戸に向かって 1993 年と 1994 年の同時期に 2 回航海した船上で採取された試料では、航路に沿っての ^{210}Pb の濃度変動パターンは類似していて、^{7}Be の濃度もこれと共通の変動を示した。しかし、中国大陸に近い航路上の方が濃度が高く、高濃度の大陸性気団が及んでいることが示唆された[3]。

本報では、中国大陸内陸部と本邦との間に位置するソウル（Seoul）および北京（Beijing）での ^{210}Pbの濃度レベルと濃度変動パターンを観測し、すでに得られている観測結果と比較する。

【実験】

エアロゾル試料は、毎週 1 日ずつ、ハイボリウムエアサンプラーを用いて捕集し、^{210}Pb の定量は 46.5 keV のγ線を LEPS で測定する非破壊γ線スペクトロメトリーによった。試料の採取期間は、ソウルが 1989. 4～1990. 3 および 1991. 5～12、北京が 1989. 4～1991. 4 である。

【結果と考察】

観測された濃度の季節変動を Fig. 1 に示す。各都市の濃度範囲は、ソウルが 0.4-3.7 mBq/m^3、北京では 0.7-3.7 mBq/m^3 で、夏季に低く冬季に高い一山型の季節変動を示した。ソウル、北京ともに、濃度レベルはつくば市よりも高く、大陸内陸部のレベルに近いため、内陸部の気団が及んでいると考えられる。つくば市で観測された春季と秋季の濃度増大は 0.2 mBq/m^3 程度で、大気上層部を経由する ^{210}Pb の存在による影響が示唆された[1]。中国大陸内陸部でこの影響が観測されないのは、大気中の濃度が著しく高いためと考えられた[2]。ソウルと北京の季節変動を見ると、全体としては大陸内陸部のパターンと類似しているが、春季と秋季の濃度増大も観測された。しかし、濃度の増大する時期と、そのレベルは、つくば市と比べてばらつきが大きい。この原因として、両都市における濃度が中国大陸内陸部と同様に高いことや、モンスーンなどの気象現象の影響をより大きく受けていることなどが考えられる。

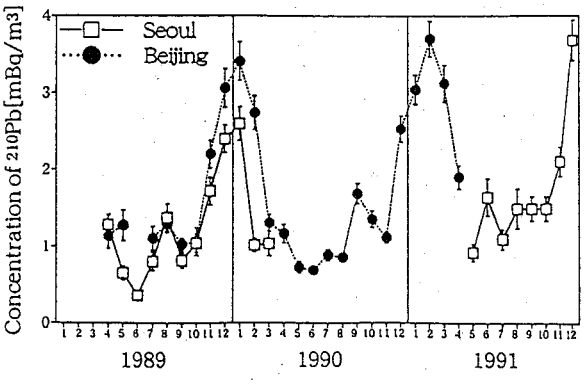


Fig. 1 Seasonal variation of atmospheric ^{210}Pb concentration at Seoul and at Beijing.

【References】

1) J. Sato *et al.*, *Geochem. J.*, **28**, 123 (1994)

2) T. Doi *et al.*, *Radioisotopes*, **44**, 701 (1995)

3) S. Sato *et al.*, *Ibid.*, **47**, 546 (1998)

SATO, S., KODAMA, K., DOI, T., SATO, J.

1A15 環境中の^{7}Be,^{10}Beとその循環に関する研究

(京大炉[1]・日大文理[2]・東大原セ[3]) ○紀野智裕[1]・服部学[1]・篠原厚[1]・
柴田誠一[1]・小林貴之[2]・永井尚生[2]・小林紘一[3]

【はじめに】

地球上には絶えず宇宙線が降り注いでおり、その宇宙線は地球大気と核反応を起こして様々な放射性同位体を生成している。生成した同位体はその化学的性質に従い、異なる経路で地表へと降下する。このうち、^{7}Beと^{10}Beは半減期がそれぞれ53日、160万年と長く、また大気中のエアロゾルに付着して降下するため、地表での^{7}Be/^{10}Be同位体比の測定から、大気中での濃度、地表への降下速度、さらには生成時の分布の情報が得られる可能性がある。

そこで、本研究ではAir Samplerを用いて空気中のエアロゾルを採取し、そこに含まれる^{7}Beのガンマ線をゲルマニウム半導体検出器で測定し、また^{10}Beを加速器質量分析法で測定することにより、^{7}Be、^{10}Beの生成してからの環境中での挙動を観察することを試みた。また、加速器質量分析用の試料調製のための化学分離法を確立した。

【実験】

1. サンプルの採取

HIGH VOLUME AIR SAMPLER(500l/min)を用いて2日-3日間フィルター(TOYO ROSHI ADVANTEC GB100R GLASSFIBER製 SIZE110mm 保留粒子径0.6μm)を通して吸引することにより大気中のエアロゾルを採取した。

2. ^{7}Beの測定

ゲルマニウム半導体検出器を用い、サンプル中の^{7}Beのγ線を測定し、原子数を求めた。

3. ^{10}Beの測定

加速器質量分析器(AMS)を用いて^{10}Beを測定するため、フィルターを溶解した後、陰イオン交換、溶媒抽出、陽イオン交換、遠心分離などの化学操作を行い加速器質量分析用の試料を調製した。

【結果と考察】

現在までにサンプルの採取を行った試料のうち、'96/10/14-12/6の試料についての^{7}Beの測定結果を図1に示した。サンプル採取期間が2-3日と一定ではないのでそれらを統一するため、すべてのデータを2日間に規格化し、この値を図1にプロットした。また、^{7}Beの測定を行った後のフィルターに化学操作を行い、加速器質量分析法により^{10}Beの原子数を求めた。この値も同様に図1にプロットした。

図1よりBeの原子数は一定値を示すのではなく常に増減していることがわかる。この原因は大気の状態変化にあると考えられる。一般に晴れの日は採取されるBeの原子数は多く、雨の日は少なくなる。このことは、Beは大気中ではエアロゾルに付着して存在しており、雨の日はこのエアロゾルが雨と共に降下する為であると考えられる。また、図1より^{7}Be、^{10}Beについて同様の増減パターンが示されているが、^{10}Beは常に^{7}Beより多いことが分かる(約1.5倍から2.0倍)。^{10}Beと^{7}Beはほぼ同じ割合で生成すると考えられるので、^{10}Beの半減期が160万年、^{7}Beの半減期が53日ということから、Beが付着したエアロゾルは上空で少し滞留した後地上に落ちてくるものと考えられる。

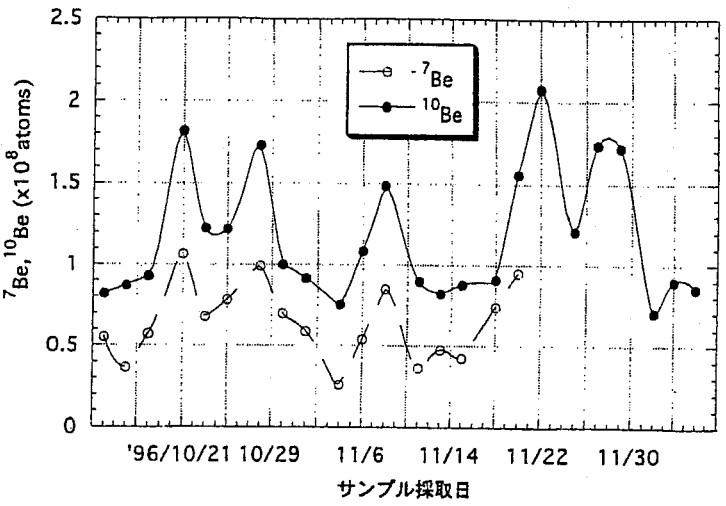


図1 ^{7}Be,^{10}Beの日変動

KINO,T.,HATTORI,M.,SHINOHARA,A.,SHIBATA,S.,KOBAYASHI,T.,NAGAI,H.,KOBAYASHI,K.

1A16 保障措置環境試料中の極微量核物質分析技術開発計画とその意義*

(原研) ○臼田重和、間柄正明、半澤有希子、江坂文孝、渡部和男、高橋司、
安達武雄、西村秀夫、安田健一郎、成瀬日出夫、高野清之丞

【はじめに】 IAEAは、新保障措置制度(93+2計画)における重要施策の一つとして、環境試料分析法の導入を決定した。これは、原子力関連施設の内部及び周辺の環境試料を採取し、その中に含まれる極微量(10^{-15}g/試料レベル目標)のウランやプルトニウムの同位体組成を求めることにより、未申告原子力活動を検知しようという新たな保障措置手法である。原研では、これに対応できるクリーン化学分析所及び分析装置を整備し、極微量分析技術を開発する計画を進めている。発表では、計画の概要とその意義を述べるとともに、他分野への利用の可能性についても言及する。

【クリーン化学分析所及び分析手段の整備】 極微量分析を可能にするには、自然界からの汚染をできるだけ防止する作業環境であるクリーンルームと高感度分析装置等の手段が必要である。原研東海研究所に分析棟(うちクリーンエリアは約 700 m^2)と管理棟から構成されるクリーン化学分析所を建設し、試料の前処理、分離・精製を行う化学処理エリア(クラス 100 個/ft^3)と TIMS(表面電離型質量分析装置)、ICP-MS, SIMS(二次イオン質量分析装置)、放射線計測器などを設置する機器分析・測定エリア(クラス 1,000)などを設ける。クリーンルームには、クリーンフード及びベンチ(クラス 10～100)を設置し、化学処理、測定試料調製などの作業を行う。大量の酸を使用するので、構造材の選定には特に注意する必要がある。また、信頼性のある分析を行うために、装置の校正とスパイク用として微量な $^{233,235,238}U$ 及び $^{238,239,242}Pu$ などの核燃料物質を使用する。

【開発課題】 **Fig.1** にクリーン化学分析所における環境試料分析のための流れ図を示す。受け入れた試料は、クリーンルームでの分析が適当な量であるか、スクリーニング(仕分け)する。バルク分析では、前処理した後、目的元素を分離・精製して、同位体組成を決定する技術を開発する。試料の種類に適した合理的な化学処理技術の開発が当面の課題となる。また、放射能測定による核種分析を併用して、$^{232,236}U$ や $^{236,238}Pu$ など比較的短寿命の核種の分析データも、前歴を推定する上で有効な情報となる。パーティクル分析は、粒子一個一個に含まれる核物質の同位体組成を求めるもので、ウラン濃縮や燃料加工工場からのスワイプ(拭き取り)試料等に有効である。

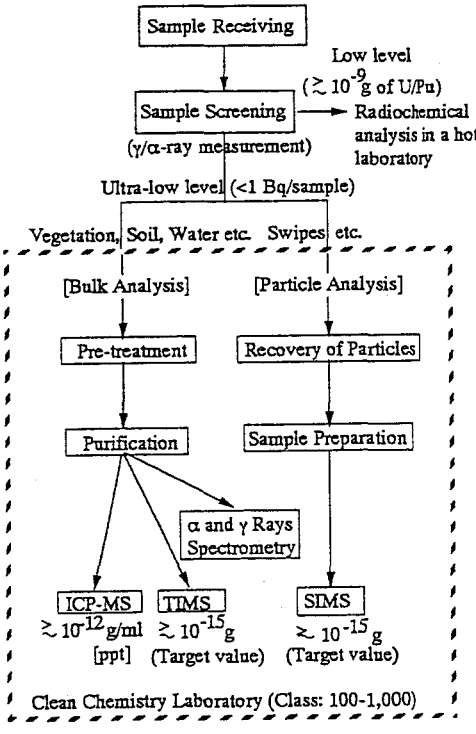


Fig. 1 Flow diagram for environmental sample analysis in the clean chemistry laboratory.

【開発の進め方と利用方法】 極微量分析では、分析システムの品質管理が重要である。分析値の質、特に信頼性が問題となる。最適の標準試料を用いて、精度よりまず確度の高い技術開発を目標とする。また、IAEAネットワークラボとして国際的にも貢献するため、IAEA、米国 DOE や EURATOM との協力関係を強化しつつ、高度な技術を構築する。施設や開発される技術は、CTBT遵守検証のための実験施設としても活用するが、極微量同位体分析技術を駆使する先進的な環境科学研究への応用に期待する。

*本報告は、電源開発特別会計による科学技術庁委託研究「保障措置環境分析開発調査」の成果の一部である。

Usuda,S., Magara,M., Hanzawa,Y., Esaka,F., Watanabe,K., Takahashi,T., Adachi,T., Nishimura,H., Yasuda,K., Naruse,H., Takano,S.

1A17 環境試料中の^{99}Tc定量分析のための標準物質について

（放医研第４研究グループ）○田上恵子・内田滋夫

【はじめに】環境試料中の低レベル^{99}Tc分析の際、定量値が妥当であるかどうか比較するための^{99}Tc値付けがされた標準物質は今のところない。しかしながら、今後は原子力関連施設から^{99}Tcが環境中に放出される可能性があることから、環境モニタリング等を行う上で、その必要性はますます高まると考えられる。そこで筆者らは、チェルノブイリ周辺で採取された牧草及び土壌を用いて作成された標準物質IAEA-373及びIAEA-375に着目し、これらに含まれる^{99}Tcの定量分析を行い、これらが環境試料中の^{99}Tcの標準物質として利用可能かどうか検討した。

【実験方法】IAEAから提供されている２つの標準物質、IAEA-373（牧草、チェルノブイリの西約50km）及びIAEA-375（表層土壌、チェルノブイリの北東約180km）を用いた。トレーサーには^{95m}Tcを使用した。試料は450℃で８時間灰化後、燃焼装置によりTcを揮散・捕集し、硝酸（多摩化学、AA-100）を加えて約0.1NHNO$_3$に調整した。この溶液中のTcをTEVAレジン（EIChroM Ind. Inc.）により分離・濃縮した。得られた溶液中のTc回収率をNaIウェル型シンチレーションカウンター（アロカ、ARC-380）により求め、^{99}Tc測定はICP-MS（横河アナリティカルシステムズ、PMS-2000）を用いた。ICP-MSの検出下限値は0.03 mBq/mLであった。

【結果と考察】チェルノブイリ原発事故で放出された^{99}Tcが周辺に沈着していれば、供したIAEA-373及び375では、グローバルフォールアウトレベルよりも^{99}Tc濃度が高いと考えられる。また環境試料であるので、環境中^{99}Tcの定量分析のための標準物質としての利用が期待できる。表１にTc分析を行ったを結果を示す。それぞれ、IAEA-373で0.86Bq/kg、IAEA-375で0.25Bq/kgであった。これらの濃度は種々の分析法による検出下限値よりも十分高く、環境試料中の^{99}Tcの標準物質として利用可能といえる。チェルノブイリ原発事故で放出された^{99}Tcの環境レベルはほとんど明らかになっていないが、本研究の結果、チェルノブイリ原発近傍では、グローバルフォールアウトレベルよりも十分濃度が高いことが明らかとなった。土壌試料に関しては、筆者らがこれまでに測定してきた日本の水田土壌中の^{99}Tc濃度レベル、6 - 110 mBq/kg程度と比較すると、IAEA-375中^{99}Tc濃度は2 - 40倍である。

牧草中の^{99}Tc濃度の方が土壌よりも約３倍高いという結果が得られた。採取地点が異なるので、厳密な比較は出来ないが、土壌中のTcが牧草に経根吸収されやすいことを示唆するものと思われる。Tcは、土壌から植物へ移行しやすい元素であると言われているが、フィールドにおけるデータはほとんど無い。チェルノブイリ原発事故で放出された^{99}Tc量を推定するとともに、チェルノブイリ原発周辺における^{99}Tcの土壌－植物移行に関する研究を進める必要があろう。

表１　1990年にチェルノブイリ周辺で採取されたIAEA-373（牧草）及びIAEA-375（土壌）中の^{99}Tcの濃度

	試料重（g）		回収率（^{95m}Tc）	^{99}Tc濃度
	灰化前	灰化後	(%)*1	(Bq/kg dry) *2
IAEA-373	50.0	3.4	65.2 +/- 0.2	0.86 +/- 0.07
IAEA-375	85.9	75.0	52.9 +/- 0.2	0.25 +/- 0.02

注）*1 計測誤差（１σ）、*2 統計誤差（１σ）

TAGAMI, K., UCHIDA, S.

1A18　低レベル環境放射能測定用のGe検出器の導入

(宮城県原子力セ)　○石川陽一、庄司克巳、大庭和彦、渡辺丈夫

【はじめに】　最近は環境中の^{137}Cs等のフォールアウト起源核種の濃度が減少したために、これらをγ線スペクトロメトリーによって直接測定することは困難になってきている。そのためこれらの核種の環境中の分布・挙動を調べるには高感度測定が必要である。一方、環境中のトレーサーとして有用な^{210}Pbまたは^{234}Thなどの天然放射性核種は低エネルギーγ線放出核種であるため、測定にはLEPS等の検出器を用いる必要がある。本研究では、大容量Ge検出器による^{137}Cs、及びGe-LEPS等による^{210}Pbと^{234}Thの高感度測定について報告する。

【方　法】　^{137}Cs等の高感度測定を行うために、大容量の高純度Ge検出器（相対効率115%、ORTEC製GEM-110型）と10"φ×12"の井戸型NaI(Tl)検出器を組み合わせたアンチコンプトン・システムを導入した。検出器周囲は15 cm厚鉛等で遮蔽した。低エネルギーγ線放出核種を測定するために、Ge-LEPS（有効サイズ52φ×20mm、LOAX型）とγ(x)型Ge検出器（相対効率50%、GMX-45型）を導入した。検出器はできるだけ低BG(バックグラウンド)仕様のものを選んだ。LEPSとγ(x)型については、外部しゃへい材等からのγ線BGを減らすために、更に検出器を低BG鉛または無酸素銅製内部遮蔽材で囲った[1)]。

【結果と考察】表1に、50万秒測定した場合の^{210}Pb、^{234}Th及び^{137}Csの検出下限値を示す。^{137}Csの検出下限値は、115%のGe検出器が最もが低く、かつノーマル・スペクトルよりはアンチコンプトン・スペクトルの方が低かった。実際の試料では、約3万m^{3}の大気中の浮遊塵を50万秒測定することにより約0.2 μBq/m^{3}程度のBGレベル^{137}Csを検出できた（恐らく地表からの再浮遊起因のもの）。^{210}Pb (46.5 keV) と ^{234}Th (63 keV)の検出下限値については、LEPSが最も低かった。これらの検出器を用いた種々の環境試料中の^{210}Pb等の測定結果についても発表する予定である。

表1 Ge検出器の検出下限値 (60mmφ×2mm厚フィルター状試料)

検出器	測定条件	試料当り検出下限値(Bq)		
		Pb-210	Th-234 (63 keV)	Cs-137
115%Ge	ノーマル・スペクトル	2.0	0.67	0.0062
	アンチコンプトン・スペクトル	2.4	0.54	0.0052
50%Ge	2cm厚無酸素銅製 内部遮蔽体使用	0.064	0.093	0.0068
LEPS	2cm厚低BG-鉛製内部遮蔽体使用	0.047	0.047	0.013

1) 金沢大学低レベル放射能実験施設年次報告、LLRL-AR-17、p.4-5 (1993).

ISHIKAWA, Y., SYOJI, K., OHBA, K., WATANABE, T.

1A19 微生物を用いるトリチウムガス回収法の開発

(九大理、九大RI*) ○柿内秀樹、日高智美、脇山康子、百島則幸、前田米藏、杉原慎司*、大崎進*

【序論】核融合炉施設ではトリチウムの環境安全対策のためトリチウム除去システムが必要とされる。本研究は水素ガス酸化能力を有する土壌微生物を利用して、全く新しいトリチウムガス除去システムを作ることを目的としている。

【実験】九州大学構内松林から表層土壌を採取し、その土壌を生理食塩水 (0.85%)に懸濁させ、その上澄みから水素酸化能力を有する微生物の集積培養を以下の条件で行った。上澄みを無機培地(Table 1)に加え、H_2 : O_2 : CO_2 = 7 : 2 : 1の気相雰囲気下、30℃で振とう培養した。次に各種多孔質担体(Table 2)への、微生物の固定化を検討するため、以下の操作を行った。まず無機培地に担体を加えオートクレーブ滅菌を行った。この担体を取り出して別の無機培地に移し、集積培養により得られた菌体を添加し、上述の集積培養と同じ条件で培養を行った。水素酸化能を有する細菌の増殖は、気相水素濃度をTCD付ガスクロマトグラフで測定することで評価した。多孔質担体への菌の吸着は、菌を含む培地に担体を加えたときに吸着によって生じる培地の吸光度変化から調べた。

【結果と考察】2-3日の集積培養で培地が薄く乳黄色に濁り、1週間程度の培養により乳黄色の菌の凝集物が確認された。水素消費速度は、担体を加えて培養したときの方が無担体と比べて大きくなった。担体は表面積が大きいほど、また、表面に正の電荷を持つ担体ほど水素の消費速度の増加が大きくなることが確認された。無機培地のpHは、培養が進むにつれて酸性側に傾いて行ったが、培地中に担体が存在すると、無担体の場合と比べるとそのpH変化は小さかった。このことから、担体は菌が生産している酸性物質に対して、緩衝剤として働いていることを示している。菌が懸濁している無機培地に担体を加えると、菌は速やかに担体に吸着された。陰イオン交換樹脂やセルロース製マイクロキャリア担体は、アルミナセラミック担体と比較すると高い菌の吸着性を示した。しかし、水素消費速度は、吸着性の低かったアルミナセラミック担体の方が、陰イオン交換樹脂より速かった。このことから、増殖は初めに吸着した菌量よりも、その後の菌の生育環境に依存すると考えられる。

Table 1 Inorganic medium Composition

	(g/l)
$(NH_4)_2SO_4$	3
KH_2PO_4	1
$Na_2HPO_4 \cdot 12H_2O$	3
$MgSO_4 \cdot 7H_2O$	0.3
$FeSO_4 \cdot 7H_2O$	0.01
$CaCl_2$	0.01

Table 2 Cultivating carriers

	pore size (μm)	ion exchange capacity (meq/g-dry)
Ceramics (Totsu; alumina)	3	-
DOWEX 1-X8 (DVB)	-	3
Microcarrier (Asahi chemical; cellulose)	30	1
Microcarrier (Asahi chemical; cellulose)	30	1.8

KAKIUCHI, H., HIDAKA, T., WAKIYAMA, Y., MOMOSHIMA, N., MAEDA, Y., SUGIHARA, S., OSAKI, S.

1A09 中性子及び加速器利用の先端化学

(原研) 永目諭一郎

1. はじめに

中性子ならびに加速器から得られる荷電粒子やX線などの放射線は，ラジオアイソトープ利用と相俟って核科学，物質科学，生命科学，環境科学などの広い分野で大きな役割を果たしている．分析法を含めた様々な分野での応用例は，他の文献を参照していただき，ここでは核・放射化学分野に関係するような最近のトピックスを個人的な関心をもとに紹介する．

2. 中性子利用

中性子はラジオアイソトープ線源や加速器によっても得られるが，原子炉は強力な中性子源である．中性子回折や中性子ラジオグラフィーによる物性や材料研究ならびにラジオアイソトープの製造などが行われている．最近原研グループは高感度の中性子イメージングプレートを開発し，中性子回折と組み合わせて，タンパク質のリゾチームの水和構造決定に成功した [1]．これは，中性子がX線にくらべて，水素原子や水分子との散乱に特徴をもつことを利用したもので，タンパク質をとりまく水の生理機能への役割の解明に道を拓くものとして注目されている．

3. 加速器利用

加速器もいろいろな分野で利用され，最近では医療用にも重イオンビームが使用されている．ここでは，超重元素ならびに新しいアイソトープ合成に関する最新の成果を中心に紹介する．安定領域から遠く離れた未知アイソトープの発見とその性質に関する研究は，原子核の存在限界を明らかにするとともに，極限領域下での原子核の性質・構造に関する新しい情報が得られる．また，恒星内での原子核反応に基づく元素合成過程との関わりからも大きな関心が持たれている．

原研タンデム加速器施設においても，ガスジェット結合型オンライン同位体分離装置ならびに反跳型質量分離装置が開発され，これまでに10個の新しいアイソトープが合成されている．

元素合成は化学の分野でも，最も関心ある話題の一つである．重い極限は現在ドイツ重イオン研究所 (GSI) で，^{208}Pb ターゲットに^{70}Zn を照射して 112 番元素が合成されている [2]．周期表がどこまで続くのか興味ある課題である．また超重元素はどのような化学的性質を示すのか，あるいは周期表のどの位置に収まるのか．シングルアトムレベルでの化学挙動がこれまで 106 番元素 Sg まで調べられている [3]．

4. 今後の展開

原子炉中性子に代わる大強度中性子源の開発が進められている．例えば，1 GeV の高エネルギー陽子で鉛などの重いターゲットを照射すると，核破砕反応により多量の中性子が発生する．これを効率よく取り出せば大強度の中性子源として利用することができる．新しい物質科学の展開や生命科学への有力な手段として，また放射性廃棄物の消滅処理技術への応用としても有望視されている．加速器利用に関しては，核反応で生成した生成物を再度加速して入射ビームとして利用するRI(Radioactive Ion) ビームの開発が進められている．既存の安定核ビームでは到達できない領域での新しい原子核の情報や，RI インプランテーションによる物性，化学，生物研究の進展が期待されている．

References

[1] N. Niimura *et al.*, Nature Structural Biology **4**, 909 (1997). [2] S. Hofmann *et al.*, Z. Phys. A **358**, 377 (1997). [3] M. Schädel *et al.*, Nature **388**, 55 (1997), 本討論会特別講演 S2.

NAGAME, Y.

1A20 教科書にみる放射線・原子力教育の問題点

（放射線教育フォーラム） ○松浦辰男・飯利雄一

１．はじめに

「理科離れ」という言葉があるように，また授業時間の減少でわか国の学校教育（小・中・高校の教育）での理科教育が危機的状況にある。その中でも放射線教育は，学校でまともに教えることがどちらかというと避けられ，疎かにされてきた。わが国の生徒の原子力関係の知識の習得度が欧米に比べて劣るという結果は，明らかにわが国のこの分野の教育が外国に比べて不充分であるためである。放射線・原子力に関する教育は，将来の人材養成と，国民の合理的な判断力養成のための基本的科学的知識習得という二つの面から，もっと重要視すべきである。

わが国の学校教育は文部省の制定した「学習指導要領」により強く規制されている。現行の高校の学習指導要領で，理科で放射線・放射能および原子力について教えるように指示しているのは「総合理科」と「物理ＩＡ」などの各科目のみであって，化学や生物などではほとんど扱わなくてもよいことになっている。

筆者は高校のあらゆる科目（理科のほか政治・経済，一般社会，地理，世界史，保健体育）の教科書合計276 冊において放射線や原子力に関する記述について調査した。その結果，理科でも放射線と放射能の用語の混同とか「放射線は少量でも人体に極めて危険である」とか，科学的に不正確・価値観的に不適切な記述が多いことがわかった（松浦・飯利，「放射線・原子力教育と教科書」，研成社，1998年２月）。本講演ではこのような実態を含めて，学校での放射線・原子力教育の現状を紹介するとともに，どのようにして改善すべきかを提言する。

２．現状改善のために取るべき方策

①われわれ放射線・原子力に携わっている研究者がもっと学校教育の現状に関心を持ち，学習指導要領で放射線教育に高い位置づけを与えるように改訂すべく文部省に働きかける必要がある。高校では物理の科目だけでなく，化学・生物・地学にも放射線関係の事柄をできるだけ含ませる。また理科に必修科目が設けてこの中に放射線・放射能を扱っていただく。

②天然に自然放射線・放射能が存在することを，学校教育の早い時期（小・中学）に「体験学習」を通じて理解させていただく。このため小・中学の学習指導要領の改正も要望したい。

③一般に従来の放射線教育は，放射線の有用性よりも「放射線は少量でも人体に有害である」ということを専門家が先頭に立って一般に普及してきた傾向があった。これからは，放射線の人体影響について最近の学問的事実に基づいてこのようなことを改善する必要がある。すなわち，高い線量・線量率における放射線の有害性のみを強調するのでなく，自然放射線・放射能の程度の低線量・低線量率においては何らの悪影響がないことを教えねばならない。

④さらに，一般的にすべての近代技術にはその便益とともにリスクが伴うことを理科以外の科目においてできるだけ定量的に教えることが望ましい。

⑤われわれ研究者が学校教員（理科その他）と連絡を取り，教員の資質向上に協力する，など。

MATSUURA, T., IIRI, Y.

1B01 混合溶媒中での高エネルギー^{7*}Liの減速過程

（大同工大・東大理[1]・原研東海[2]）
○酒井陽一・久保謙哉[1]・米沢仲四郎[2]・松江秀明[2]

【はじめに】 $^{10}B(n,\alpha)^{7*}Li$反応から生成する寿命7.5×10^{-14}sの^{7*}Liは478keVのγ線を放出し^{7}Liに壊変する。この即発γ線は通常のγ線と著しく異なった線形と広がった線幅を示す。これは(n,α)反跳を受けた^{7*}Li（初速度；4.8×10^{8}cm.s^{-1}=v_0）が運動しながらγ線を放出することによるドップラー広がり効果に起因する。478keV即発γ線線形は物質中での^{7*}Liの減速過程を反映する。LSS理論あるいはこれまでの実験により、^{7*}Liの減速に対しては電子的阻止能が重要であり、減速関数は次の式で表されることが示されている。$v(t)=v_0\exp(-Dt)$、ここで$v(t)$は時間tの^{7*}Liの速度である。Dは減速定数と呼ばれ、^{7*}Liを減速させる物質の能力の指標であり、物質の物理的化学的状態に依存する値である。最近われわれはドップラー広がりをもつγ線線形の新たなる解析法を開発した[1]。解析法の見直し・改良により減速定数を、これまでより精度良く、かつ少ない計算量で算出できるようになった。本研究ではホウ素化合物の溶液中での減速定数を求めた。また混合溶媒中での減速定数を測定することにより、分子間の化学的相互作用が減速過程に対する影響について検討した。

【方法】 日本原子力研究所JRR-3Mの中性子ガイドビームラインに設置された即発γ線分析装置を用い即発γ線を測定した。溶質として、いくつかのホウ素化合物が試されたが、水、有機溶媒に可溶なボランジメチルアミン錯体($BH_3NH(CH_3)_2$; BDA)が最も適していた。調製した溶液約0.5 mlをポリエチレンチューブに溶封し照射試料とした。

【結果と考察】 典型的な例として、BDAのベンゼン溶液に対して測定された478keV即発γ線線形を図１に示した。求められたD値は$(1.085\pm0.010)\times10^{12}$s^{-1}であった。図２にいろいろな混合比をもつメチルアルコール／ベンゼン混合溶媒中にBDAを溶解した溶液のD値とベンゼンの体積分率fの関係を示した。メチルアルコールとベンゼンの混合がD値に対して特別な効果を与えないならば、すなわち単純に混合分子比と混合における密度変化だけを考慮した場合、図２の相関はf=0とf=1を結ぶ直線にとなることが予測される。得られた結果は直線より低いD値を示していて、何らかのメチルアルコールとベンゼン分子間の相互作用がD値（^{7*}Liの減速過程）に影響を与えていることが示唆される。

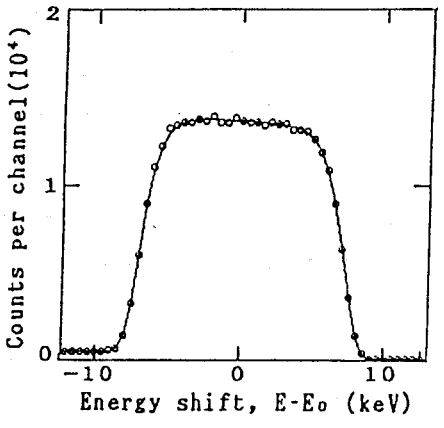


図１．BDAベンゼン溶液の478keV即発γ線線形．横軸はE_0(=478keV)からのエネルギーシフト(E-E_0)

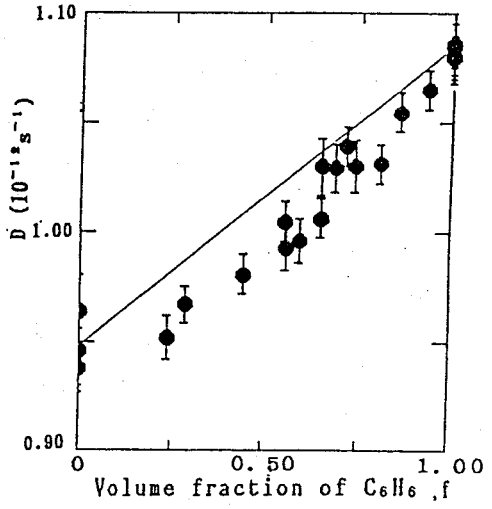


図２．BDAメチルアルコール／ベンゼン溶液の減速定数Dとベンゼンの体積分率fの関係

1) 久保、酒井、米沢、松江；第35回理工学における同位元素研究発表会(7.1998,東京)

SAKAI, Y., KUBO, M. K., YONEZAWA, C., MATSUE, H.

1B02 ホウ素薄膜を用いた粘性液体中での高エネルギー ^{7*}Li の減速定数の測定

(東大理・大同工大[1]・原研東海[2])
久保謙哉・○酒井陽一[1]・神保睦子[1]・米沢仲四郎[2]・松江秀明[2]

【序】 われわれは既に ^{10}B(n,α)^{7*}Li を利用して様々な物質中での ^{7*}Li の減速定数を測定してきた。これまでの測定では、対象物質中のホウ素を ^{7*}Li の供給源とするため、試料自体がある程度のホウ素を含んでいる必要があった。前講演 (1B01) のように有機液体については、ボラン-ジメチルアミン錯体を用いて十分な量のホウ素を均一に試料中に導入することができた。しかし、粘性の大きな液体やゾルなどでは、ホウ素化合物を添加して均一分散させることは難しい。またホウ素の溶解度が小さな固体に対しては、イオン打ち込みによるホウ素の導入が考えられるが、定量分析とは異なりスペクトルの形状が問題になる減速定数の測定に十分な量のホウ素を打ち込むのは困難である。そこでわれわれは、シリコン表面に蒸着したホウ素薄膜を ^{7*}Li 源とし、この薄膜に試料を接触させることによりホウ素薄膜から試料に飛び込む ^{7*}Li の減速定数を測定する手法を考案し、予備的な結果を得たので報告する。

【実験】 鏡面研磨したシリコン表面にイオンスパッタ法により 50nm 厚のホウ素を蒸着した。この面にエチレングリコールなどの粘稠な液体を接触させ、ポリ袋またはポリエチレンチューブに封入し、日本原子力研究所 JRR-3M の中性子ガイドビームラインに設置された即発γ線分析装置を用い ^{7*}Li の 478keV γ線の測定を行った。

【結果と考察】 図 1 にエチレングリコールでのスペクトルを示す。シリコン表面は検出器に正対しており、試料のエチレングリコールはホウ素面より検出器側にある。したがって試料に入射した ^{7*}Li は検出器方向の速度成分を持ち、そこから放出される 478keV γ線は正にドップラーシフトして観測される。逆にシリコン基板側に走る ^{7*}Li からのγ線は、ドップラーシフトが負側のスペクトルを与える。このスペクトルの解析から得られたエチレングリコール中での減速定数は 1.28±0.02 ps^{-1} で、前講演の方法によって得られた 1.24±0.05 ps^{-1} とほぼ一致し、この方法の有効性を示している。一方 LSS 理論からの計算値は 1.46 ps^{-1} で実験値とは隔りが大きい。LSS 理論は自由原子の電子数から阻止能を見積もっており、化学効果を考慮していない。したがって水素のように化学効果が大きく現れると考えられる低原子番号の原子を多く含む物質に対しては、阻止能が正しく見積もられていないものと推測される[1)]。

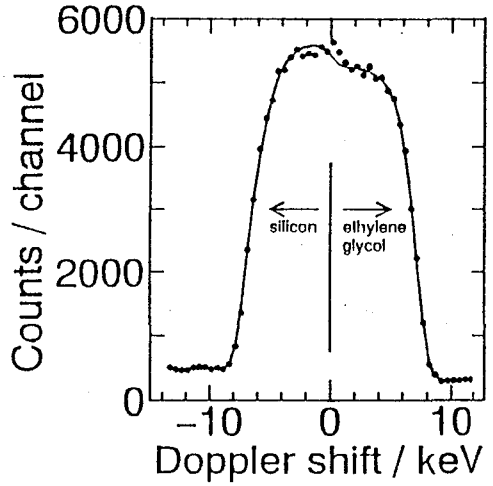


図 1. エチレングリコール中の ホウ素を蒸着したシリコン からの ^{7*}Li の 478keV γ線のドップラー広がりスペクトル

ホウ素面が検出器面と正対する試料配置はスペクトルの解釈は直截的だが、現在の即発γ線分析装置の幾何学的配置では、ホウ素面が中性子ビームと平行となってしまいビームの利用効率が最低になる。そこでホウ素面が中性子ビームと検出器面それぞれと 45 度をなすような幾何学的配置で実験を行い、スペクトル解析によって、特に水素結合を含む粘稠な液体に対して ^{7*}Li の減速定数のデータを集積しつつある。

1) 酒井、米沢、松江、澤幡、伊藤；第 39 回放射化学討論会 (1995 年 10 月、新潟)

KUBO, M. K., SAKAI, Y., JIMBO, M., YONEZAWA, C., MATSUE, H.

1B03 中性子即発γ線分析法における k_0 法の適用

(原研東海) ○松江秀明、米沢仲四郎

【はじめに】 内標準法に基づいた k_0 法は、比較標準試料を使用しないで多元素を簡単に定量できることから、NAA の定量法として注目されている。近年ハンガリー同位体研究所(IKI)及び米国 NIST において中性子即発γ線分析(PGA)へ k_0 法の適用が試みられ、Cl を内標準とする 16 元素の k_0 値が報告された[1]。PGA に k_0 法を適用することで、比較標準試料を使用しないで多元素を正確に定量でき、さらに得られた k_0 値は他の施設と共用できることから、原研においても k_0-PGA 法の適用を試みた。講演では JRR-3M 冷及び熱中性子ビームにおける Cl を内標準とする 23 元素の $k_{0,Cl}$ 値の測定結果と、IKI 及び NIST の報告値との比較を報告する。

k_0-PGA 法においても k_0-NAA 法の定量式を適用できるが, 熱外及び速中性子を含まない純粋な低エネルギー中性子のガイドビームでは, 熱外中性子に関する項は無視できる。分析対象元素(x)について内標準元素(c)とする $k_{0,c}$ 値は次式によって計算される。

$$k_{0,c}(x) = \frac{N_{\gamma,x} / \varepsilon_x}{N_{\gamma,c} / \varepsilon_c} \frac{m_c}{m_x}$$

ここで, N_γ: γ線ピーク計数、ε: 検出効率、m:元素の質量である。本法において k_0 値は内標準元素と分析対象元素の質量比が既知でかつ均一に含まれる試料の測定によって求められる。

【実験】 **元素標準試料の調製と測定**: PGA で分析対象となることの多い 23 元素についてその塩化物をそのままか、あるいは酸化物等と塩化アンモニウムとを混合して標準試料を調製した。これらを JRR-3M の冷及び熱中性子ビームポートに設置した。即発γ線分析装置により測定した。JRR-3M の冷及び熱中性子は曲線ガイド管によって導かれたものであり、中性子エネルギーはそれぞれ、3.0 meV と 15 meV にピークを持って分布している。

検出器の効率曲線の測定: k_0 値の評価を行うため、検出器の検出効率の測定を冷及び熱中性子ビームポート(試料-検出器間距離はそれぞれ; 29.5 cm, 24.5 cm)において行った。Ge 検出器の校正は標準線源と中性子照射を行って作成したγ線源(^{24}Na, ^{46}Sc, ^{56}Mn, ^{75}Se,^{110m}Ag)及び即発γ線測定(C(n,γ), N(n,γ), Cl(n,γ))により得られたγ線(59 ～ 10829 keV)を使用した。

k_0 値の評価: γ線スペクトル解析は SEIKO EG&G 社製 MCA エミュレーションプログラムあるいは、目的とするγ線が多重ピークの場合には IKI が開発したγ線解析プログラム Hypermet-PC Ver. 5.0 を用いた。元素の k_0 値は Cl の 1951 keV を内標準として求めた。Cl では 1951 keV のγ線が単独ピークで最大の計数率を得られるものである。

【結果と考察】 現在までに、冷中性子ビームで 23 元素、熱中性子ビームで 19 元素の $k_{0,Cl}$ 値を 3% 以下の測定誤差で求めることができた。冷と熱中性子ビームにおける $k_{0,Cl}$ 値はほとんどの元素において 3 % 以内で一致した。また、JRR-3M の冷及び熱中性子ビームの $k_{0,Cl}$ 値は同じ熱中性子ガイドビームによる IKI の $k_{0,Cl}$ 値と 15 元素中 9 元素が 3% 以内で一致した。

【参考文献】 1) G. L. Molnár, Zs. Révay, R. L. Paul, R. M. Lindstrom, J. Radioanal. Nucl. Chem., in press

MATSUE,H ., YONEZAWA, C.

1B04 即発ガンマ線分析による火山岩中ホウ素の定量とマグマ生成モデルへの応用

（東北大東北アジア研・立正大地球環境科学[1]・京大理地球熱学研[2]・東大地震研[3]・原研東海[4]）
○長谷中利昭・福岡孝昭[1]・佐野貴司[2]・島岡晶子[3]・米沢仲四郎[4]・松江秀明[4]

【はじめに】ホウ素は，地球上の火山岩では海洋プレートが沈み込んでいる島弧や大陸弧上の火山岩に多く含まれるのに対し，沈み込みが関与していない海洋底玄武岩やプレート内部に噴出した火山岩中には，非常に少ないという特徴がある。ホウ素は地球上の岩石の中では海底堆積物や変質した海洋底玄武岩に高濃度で含まれているので，沈み込み帯マグマの生成にどのような過程が関与しているのかを考察する上で重要な指標となり得る。

島弧や大陸弧のマグマは上部マントルの部分溶融で生成すると考えられるが，上部マントルを代表する岩石のホウ素含有量は非常に少ない（<0.3 ppm）。マグマ生成，地表への上昇，噴出を経てマグマのホウ素含有量が増加する過程としては
（１）沈み込む海洋スラブの脱水分解反応で生じた流体による起源物質への富化
（２）部分溶融による液相へのホウ素の濃集
（３）結晶分化作用による残液へのホウ素の濃集
（４）地殻物質の混染によるマグマ中のホウ素濃度の増加　などが考えられる。
本研究では岩手火山の火山岩を分析して，（１）のプロセスを検討を行った。岩手火山は東北日本弧の火山フロントに位置し，（３）や（４）のプロセスをあまり被っていない玄武岩質マグマを多量に噴出している。岩手火山にはソレアイトとカルクアルカリ系列の2種類の化学組成トレンドをもつマグマが存在するが（e.g. 石川他, 1984），カルクアルカリ系列のマグマは生成した後に地殻の混染の影響等によりホウ素含有量が大きく変化している可能性がある。分析を行った6試料は薬師岳，妙高岳，焼走りのソレアイト質玄武岩質溶岩で，斑晶としてカンラン石と斜長石を含むが，斜方輝石を含む玄武岩もある。焼走り溶岩のみはこれらに加えて単斜輝石をも含む玄武岩質安山岩である。

【実験】それぞれの試料は短時間で高精度（precision）の分析を行うために，粉末700-800mgをプレス錠剤化した。これを日本原子力研究所東海研究所のJRR-3改造炉の熱中性子ガイドビームで5,000-7,200秒間照射し，即発γ線をGe半導体検出器とそれを覆うBGO検出器で検出した（Yonezawa et al, 1993）。照射中の中性子束の時間変動等に起因するホウ素γ線強度の変動はケイ素を用いた内部標準法（佐野他,印刷中；Sano et al., in press）により補正して高確度（accuracy）の分析値を得た。

【結果と考察】分析の結果，6試料のホウ素含有量として7～23 ppmの値を得た。東北日本弧の火山フロントの初生マグマ組成推定値（Tatsumi et al., 1983）と比較すると，分析した玄武岩は初生マグマから約20%の鉱物（カンラン石と単斜輝石）の分別を行った残液と推定される。ホウ素は液相濃集元素であることを考えあわすと，初生マグマには6～20 ppmのホウ素が含まれていると予想できる。この値は通常のマントルの部分溶融生成物と考えられている海洋底玄武岩の値（0.3-0.5 ppm）と比べて一桁以上大きい。この違いは，沈み込むスラブの一部である海底堆積物や変質した海洋底玄武岩の寄与であると考えられる。講演では北緯40° 付近の日本海溝の海底堆積物の分析値も合わせて，沈み込み帯での物質循環モデルの検討も行う。

HASENAKA, T., FUKUOKA, T., SANO, T., SHIMAOKA, A., YONEZAWA, C., MATSUE, H.

1B05 隕石の光量子放射化分析

（都立大院理）○石井　友子・大浦　泰嗣・海老原　充・中原　弘道
（東北大核理研）大槻　勤

中性子放射化分析法（NAA）は隕石の元素分析に重要な役割を果たしてきたが、光量子放射化分析法（PAA）を用いた分析例はほとんど報告されていない。そこで本研究では、PAAを隕石の非破壊分析に応用するための基礎的検討を行った。

＜実験＞

粉末試料約50mgを純度99.5％のアルミ箔で包み、直径10mmのペレットとした。これをフラックス補正用の金箔とともに石英管に封入し、東北大学原子核理学研究施設の電子線形加速器を用いて最大エネルギー30MeVの制動放射線で30分から6時間照射した。30分照射した試料は照射後ただちに、6時間照射した試料は約1日後からγ線スペクトロメトリーを行った。

＜妨害反応＞

Mn、Co、Kを(γ, n)反応により定量する際、それぞれFe、Ni、Caの(γ, pn)反応が妨害となるので、高純度の試薬を同時に照射し、その寄与を調べた。これらの元素では元素濃度比がFe/Mn=1、Ni/Co=3.6、Ca/K=1の時、妨害元素による寄与は1％となることがわかった。NaとMgの定量には、$^{23}Na(\gamma, n)^{22}Na$反応と$^{25}Mg(\gamma, p)^{24}Na$反応を利用するが、これらはそれぞれ$^{24}Mg(\gamma, pn)^{22}Na$反応と$^{23}Na(n, \gamma)^{24}Na$反応に妨害される。二元素が相互に関係しているので、妨害反応の寄与の補正を単純に行うことはできない。そこで、連立方程式をたて、補正を試みたが、うまくいかなかった。^{24}Naが光誘導と二次中性子誘導の両方から生成するために、それぞれのフラックス補正に問題があると考えられる。

＜隕石試料＞

隕石試料は常に十分な量が手に入るとは限らない。そこで60mg、25mg、10mgのJB-1を同時に照射し、比放射能を比較した。60mgと25mgの試料のフラックス補正後の比放射能はほぼ等しかったが、10mgの試料では15％程度大きくなった。ペレット中で不均一に分布するような少量の試料は本法に不適である。

同じ試料を異なる方法で分析できると非常に都合がよい。PAAはNAAと異なる放射性核種を用いて定量するので、NAAで用いた試料の再利用が可能であると考えられる。そこで、半年前に立教炉で6時間中性子照射したAllende隕石をPAAで分析した。この試料には、まだ^{46}Sc、^{51}Cr、^{54}Mn、^{58}Co、^{59}Fe、^{192}Irが残っていた。このうち、^{54}Mnと^{58}CoはMnとCoの定量に利用するため、残留放射能の補正が必要である。6時間の制動放射線照射の際は、約1/4が残留放射能による寄与であった。表1に30分照射によるAllende隕石の定量結果を示す。INAAでは定量の困難なSiを含め、6元素を定量することができた。Kの定量値はCaからの妨害反応による寄与（約45％）を補正した値である。各元素の定量値はどれも文献値と一致している。6時間照射による結果も含めると、約20元素の定量が可能であった。隕石の分類に重要なFe、Ni、Siを定量することができ、PAAは隕石の元素分析にとても有効な方法である。

表1. Allende隕石中の元素濃度

元素	Allende	熱中性子照射したAllende	文献値
Si(%)	16.24±1.35	14.71±0.7	16.02±0.10
Cl (ppm)	369±57	385±53	316 or 265
K(ppm)	<603	315±10	295±8
Ca (%)	1.70±0.15	1.77±0.12	1.84±0.05
Fe (%)	23.5±1.0	23.4±0.8	23.57±0.08
Zn (ppm)	107±34	153±39	110±5

ISHII, T., OURA, Y., EBIHARA, M., NAKAHARA, H., OHTSUKI, T.

1B06 中性子ビーム放射化分析法による須恵器の元素分析

(都立大院理・奈良教大[1]・原研分析セ[2])○大浦泰嗣・齋藤綾子・末木啓介・中原弘道・三辻利一[1]・松江秀明[2]・米澤仲四郎[2]

[はじめに] 我々のグループは，中性子ビームを用いた即発γ線分析法(PGAA)の利点の一つである大型試料の元素組成分析を内標準法を用いて行ってきた．特に，考古遺物を分析対象とし，これまでに，江戸時代の陶器と中国出土銅鏡の分析を行い，PGAAの有効性を示した．中性子ビーム放射化分析法(NBAA)は，PGAAと照射試料のオフラインγ線スペクトロメトリ(便宜上INAAと呼ぶ)を組み合わせたもので，昨年我々が提案し，銅鏡の分析に適用した．INAAによりPGAAでは検出できなかったAs, Au, Sbの定量が可能であった．今回は，須恵器をNBAAに適用した結果を報告する．

[実験方法] 日本国内7ヶ所の窯跡から出土した須恵器79片を分析に供した．須恵器片を粉砕することなくそのままFEPフィルムで包み，原研JRR-3Mに設置されている即発γ線分析装置により熱中性子または冷中性子を1～1.5時間照射し，即発γ線の測定を行った．照射後，ただちに照射試料中の中性子捕獲生成核種の壊変γ線を1～1.5時間測定した．元素組成は内標準法により求めた．

[結果と考察] PGAAにより(Mn)/Si, K/Si, Na/Si, Ti/Si, Fe/Si, Al/Si, (Ca)/Si, Sm/Si, Gd/Si, B/Si比が定量できた．( )内の元素は試料によっては検出できないことあった．また，INAAでは，^{24}Na, ^{28}Al, ^{42}K, ^{52}V,^{56}Mn, ^{152m}Euが検出でき，Eu/NaとMn/Na比を定量した．Na, Al, K, MnはPGAAとINAA両方で検出できたが，MnとNaはそれぞれ約200倍と50倍INAAの方が感度がよく，KとAlはそれぞれ6倍と2倍PGAAの方が感度がよかった．三辻らは6万点以上の須恵器片を粉末試料により蛍光X線分析を行い，Rb, Sr, K, Ca濃度が産地推定の有効な指標であると報告している．本研究で得られたCa/Si-K/Si分布図を図1(a)に示す．分析数は少ないが，窯ごとに異なる分布領域を示しており，K/Si比とCa/Si比も産地推定の指標になり得る可能性がある．RbとSrは検出不可能だったので，代わりとなる指標がないか探した．図1(b)に示したように，Ca/Si-K/Siでは久留美柳谷窯と区別がつきにくかった須江関の入窯，皿山窯，池の奥窯が，B/Si-K/Si分布図では区別できるようになった．これより，B/Siを指標の候補のひとつとして上げることができる．NBAAは須恵器の産地推定にも有効な方法であると言える．

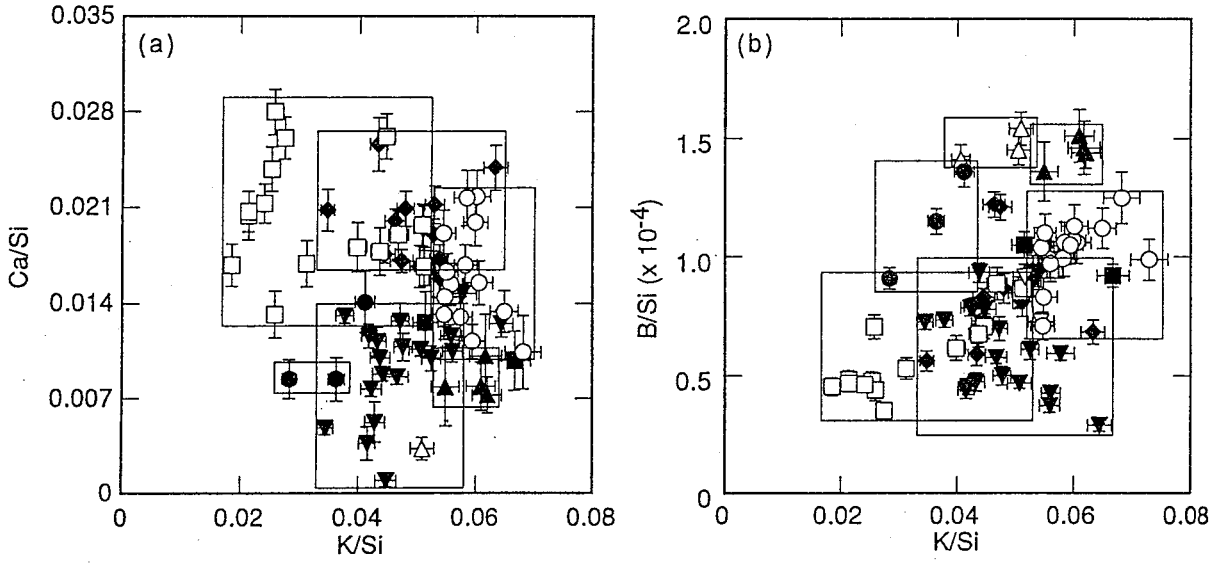


図1 須恵器の元素濃度比分布．(a) Ca/Si - K/Si. (b) B/Si - K/Si.

新潟県日向窯群:○，兵庫県西脇市久留美柳谷窯:▼，宮城県涌谷町六郎館窯:□，宮城県古川市大吉山窯:◆，宮城県阿南町須江関の入窯群:●，静岡県菊川町皿山窯:△，愛知県知多産山茶器:▽，島根県松江市池の奥4号窯:▲，香川県陵南町赤瀬山2号窯:■

OURA, Y., SAITO, A., SUEKI, K., NAKAHARA, MITSUJI, T., H., MATSUE, H., YONEZAWA, C.

1B07　熱中性子柱における熱・速中性子束の位置依存性を利用した純鉄中のマンガンの定量

（立教大原研）　戸村健児・○戸室裕行

〔緒言〕

熱中性子放射化分析でマトリックス元素より１又は２原子番号が小さい不純物元素を定量することは速中性子の妨害核反応のため困難である．速中性子がほとんど存在しない熱中性子柱を利用することによって妨害核反応の影響を少なくすることができるが，高純度材料中の超微量元素の分析は難しい．熱中性子柱では炉心側から外に向かって速中性子束は距離と共に急激に減少するが，熱中性子の減少はやや緩やかである．

本研究では日本鉄鋼協会の高純度鉄１種（ＪＳＳ　００１－４）を立教炉の熱中性子柱で炉心側よりの距離を変えて照射し，熱・速中性子によりＭｎ及びＦｅより生成する^{56}Ｍｎの割合が距離によって変化することを利用して鉄中の微量マンガンを定量した．

〔実験〕

熱中性子柱の中央のグラファイト棒（１０㎝角）中の炉心側から１０，１５，２０，３０，３５，６０，６５，１００，１０５㎝に純鉄と１０００ｐｐｍＭｎ標準溶液２５μｌを濾紙に滴下乾燥した標準とを置き，５又は６時間照射する．Ｇｅ半導体検出器で^{56}Ｍｎの８４６．８ｋｅＶガンマ線を計数した．

〔結果〕

炉心側から最も離れた位置（１０５㎝）で照射した試料と標準から仮のＭｎ濃度を計算する．標準で得られた^{56}Ｍｎ比放射能の距離依存性とこの仮のＭｎ濃度から各位置における鉄試料中のＭｎより熱中性子で生成した^{56}Ｍｎの比放射能を計算し，鉄試料中に観測された全^{56}Ｍｎよりこれを差し引いて速中性子で作られた^{56}Ｍｎの距離依存性を求め，１０５㎝における速中性子の寄与を差し引いて再度Ｍｎ濃度を求める．　以下この操作を繰り返し収斂したところで真の純鉄中のＭｎ濃度を求める．

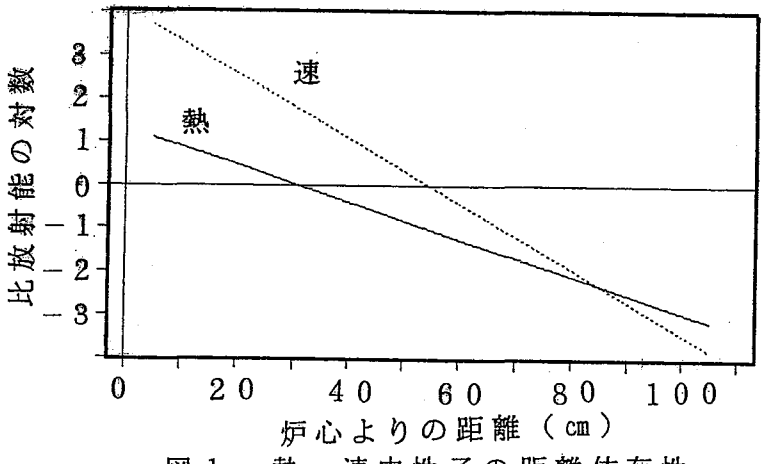


図１　熱・速中性子の距離依存性

図１は収斂したときの熱及び速中性子の距離依存性を示す．グラファイト中における熱及び速中性子の半価層は１６．５と９．０１㎝であった．

純鉄ＪＳＳ　００１－４を１６回繰り返し分析した結果は０．０３０６±０．００５５ｐｐｍＭｎであり，参考値０．０３ｐｐｍＭｎと良く一致した．

TOMURA, K., TOMURO, H.

1B08 荷電粒子放射化分析を用いた環境中の炭素量測定法の開発

（住重試験検査（株）・（株）ピュアレックス[1]）
○八木宏親・片岡昌治・永野　章・野崎　正[1]

【目的】近年、有機物による大気汚染は深刻化し、工業的にも半導体ケイ素表面の炭素汚染が問題化してきた。我々は、放射化分析の高感度，高信頼度を活用し $^{12}C(d,n)^{13}N$ 反応による半導体ケイ素上の炭素の定量法の確立を意図した。

【実験】分析面を内側にし、2枚のケイ素板（2 × 2 cm）を重ねあわせ輸送,照射中の汚染や^{13}Nの飛散を防ぐようにした。入射側のケイ素板（210 ～ 240 μm）の上流側に分析面において反応断面積が最大（2.3 MeV）になるよう厚みを選定したアルミニウム薄を挿入し、小型サイクロトロン（CYPRIS-370V）で重陽子（9.0 MeV）を照射した（1 μA,10 min.）。重ね合わせ面で生じた ^{13}N は、核反跳により全て前方の試料板に押し込まれるので、この板から ^{13}N を分離し消滅放射線を同時計数した。分離には、(1)高周波融解法により生じた ^{13}N を Ti スポンジに吸収、(2)表面部分（2 μm）のみ NaOH 溶解し溶液より $^{13}NH_4BPh_4$ の沈殿、の両方法を用いた。クリーンルーム中で種々の処理（アルカリ洗浄、空気中加熱、オゾン処理等）を施し、その試料を種々の環境に露出し、表面炭素量を測定した。

【結果】1 × 10^{12} (atoms/cm^2) の感度があるが、現実には 3 × 10^{12} (atoms/cm^2) 以上の炭素が常に検出された。最低表面炭素量は、有機物除去フィルターを有するクリーンルーム中において清浄空気中で熱処理（900 ℃, 30 min.）したときに得られた。アルカリ洗浄したケイ素板上は熱処理したものよりも有機汚染が起こりやすく、フッ化水素を含む洗浄液は表面に多量の炭素汚染を起こしやすいことがわかった。また重ね合わせ試料を空気中 500 ℃で熱処理したアルミニウムターゲットフォルダとアルミニウム薄とで封入しておけば、表面炭素量の変化を起こすことなく輸送，保存出来ることがわかった。この方法は、表面炭素総量の高感度測定法として半導体工業ならびに一般環境モニタ用に大変有効と考えられる。

Pretreatment	Atmosphere	Exposure Time	Surface Carbon (atoms/cm^2)
None	Chem.Lab	5 min.	2.3 - 11.3 E14
Acetone Wash	Clean Room	5 min.	2.5 - 4.5 E14
NH_4OH-H_2O_2	Clean Room	5 min.	0.1 - 1.5 E14
Heat Treatment	Good Clean Room	5 min. - 30 min.	0.5 - 1.6 E13
Heat Treatment	Clean Room	5 min. - 1 week	5.0 E12 - 1.5 E15
Heat Treatment	Office	1 hour - 3 days	1.0 E14 - 1.0 E16

表１．ケイ素板の処理法・露出雰囲気と表面炭素量

YAGI.H, KATAOKA.S, NAGANO.A, NOZAKI.T

1B09 干渉PIXEによる生体高分子非破壊構造解析

(日立基礎研, 東北大金研[1]) ○佐々木裕次*, 佐藤伊佐務[1], 高橋三幸[1],
永田晋二[1], 山口貞衛[1]
*10/1より科学技術振興事業団(JST),
高輝度光科学研究センター放射光研究所(Spring-8)

【はじめに】

生体系材料の軽元素を高感度非破壊計測し、構造情報を得る手段の確立を目的に研究を進めている。放射光を用いたX線計測においては、生理活性を保持した状態で分子レベルの位置分解能を持った情報が得られる蛍光X線干渉法の考案、開発に成功し、現在は秒レベルの時分割計測が可能となっている。しかし、上記計測方法の場合、生体高分子の着目部位に重元素を特異的に標識しなければならず、それにより活性が失われる系もある。そこで今回、生体高分子に存在する軽元素に高感度な計測システムで、かつ大気中計測も可能な励起プローブを選択し、その非破壊性をフェリチン抗体分子の単分子層内の硫黄原子から発光する特性X線を用いて検討した。その結果、プロトンを全反射臨界角以下でサンプル基板に入射し、サンプル基板温度をマイナス３０度に保持することで、非破壊的に構造情報が計測可能であることが確認された。これにより、全反射PIXEによる高感度な軽元素検出方法は、生体高分子の構造情報を非破壊的に計測できる方法として再認識されることになる。

【干渉PIXEの原理】

粒子線によって励起された元素から発生する特性X線は、その元素が光学的に平坦な表面上にある場合、２つの光路を通って検出される。１つは、直接光で、もう１つは、基板表面で全反射してくる反射光である。この２つは可干渉であり、励起元素の位置と全反射する表面との距離をdとした場合、$\Delta=2d\sin\theta_t$（θ_tは特性X線の取り出し角）なる位相差Δがつき、上記２つのパスが存在する全反射臨界角以下に明確な干渉縞を計測することができる。この各元素からの干渉縞を計測することにより、その元素の基板表面からの距離dをオングストローム精度で求めることが可能となる。

【実験方法】

加速器は、High Voltage Engineering Europe社製タンデトロン4117型を利用した。プローブは、プロトン（全反射条件でのサンプルビーム電流は5μA/cm^{2}程度である）を用いて、サンプルには、全反射条件（プロトンの入射角は10mrad程度に設定）で入射し（対比実験として直入射条件の実験も行った）それぞれの条件におけるサンプルの破壊特性を計測された干渉縞の変化により確認した。X線検出器にはGe半導体検出器を用いた。サンプルは、クロム蒸着膜上に化学修飾で１層分のフェリチン抗体分子からなる層状構造を持ったサンプルを作製した（因みに、フェリチン分子(m.w.=460KDa)、フェリチン抗体(m.w.=150KDa)）。X線検出器の前方にスリットを置き、それを0.03mmステップで走査しSKαβ線の各取り出し角における強度を計測した。また、サンプル基板の温度をマイナス３０度から室温まで変化させて計測された干渉縞の再現性を確認することで破壊性を検討した。

【結果】

実験の結果、予想された膜構造よりも薄い膜であったため明瞭な干渉縞ではなく、サンプル最表面での屈折効果に由来するピークが確認された。フィッテングの結果、全膜厚9.3nm、硫黄の分布をガウシアン分布と過程した場合のピーク位置（サンプル最表面から）6.6nm、また、その分布幅(2σ)3.9nmが得られた（基板温度マイナス３０度以下に設定）。基板温度がマイナス３０度の場合は、再現性の良いデーターが得られたが、設定温度を１０度にすると、全体的に膜がつぶれるような変化が現れはじめた。

SASAKI, Y.C., SATOH, I., TAKAHASHI, M., NAGATA, S., YAMAGUCHI, S.,

1B10

ICP-MS および INAA による生体試料中の希土類およびその他元素の分析

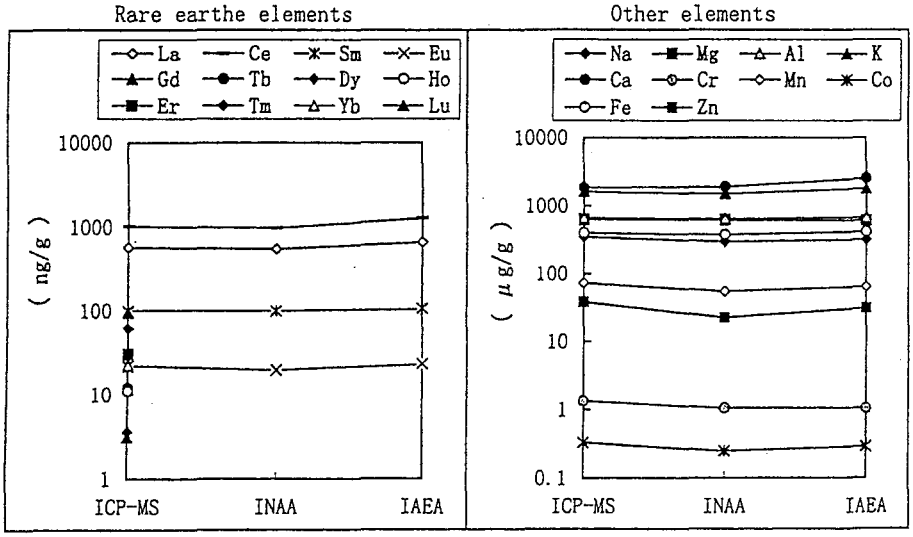
(京大原子炉) O 川本圭造、高田実弥、田中愛子、藤井紀子、赤星光彦

(はじめに) 生体中の微量元素の作用は、環境科学や医学、生物学等の広い分野で注目されている。我々は生体中での希土類元素の役割を明らかにしたいと考え、すでにシダやクロレラを材料として希土類元素の細胞内および体内動態に関する研究に着手している。本報告では IAEA より入手したムラサキイガイおよび地衣類の標準試料を用い、ICP-MS および INAA による希土類元素を主とする分析をおこなった。両手段による分析結果の比較および各種生物種間でのこれら元素含量の違い等に主眼をおいて報告する。

(実験) IAEA から購入したムラサキイガイ(IAEA-142)と地衣類(IAEA-336)の微量元素用標準試料を 70 で 1 日乾燥したものを用いた。ICP-MS の測定には上記試料を 200 mg 秤量し、耐圧テフロン容器に高純度硝酸 4 ml と共に封入し、マイクロウエーブ溶解装置 (CME 製, MDS-200) を用いて溶解した。溶解試料は純水を用いた濃縮-希釈の繰り返しにより精製し、最終的に 2% 硝酸溶液 10 ml に調整し測定に供した。

(結果と討論) REE については ICP-MS では Pm を除く全ての元素が検出されたが INAA では La, Ce, Sm, Eu の 4 種の REE のみが測定可能であった。その原因は INAA では試料に誘導された ^{32}P による妨害にあった。また両手段により得られた測定値を IAEA からの推奨値と比較すると、REE およびその他の多くの元素において、IAEA 値が高く INAA では低く、ICP-MS では中間の値をとる傾向がうかがわれた。ムラサキイガイと地衣類の REE 濃度は両生物の棲息環境における大きな違いにもかかわらず類似していた。しかしながら、その他の元素濃度について見ると両生物の棲息環境を反映した大きな違いが観察された (図)。

Fig. Comparison of the values obtained in the lichen (present work) and those recommended by IAEA.



Kawamoto K., Takada J., Tanaka Y., Fujii N. and Akaboshi M.

1B11

放射化分析法による菌根形成マリーゴールドの金属元素分析

(千葉大RI総セ・東大RI総セ[1]・原研RI[2]・千葉大薬[3])
○鈴木弘行・熊谷　宏・野川憲夫[1]・松岡弘充[2]・大橋國雄[3]

【はじめに】アーバスキュラー菌根菌（AMF）による菌根の形成は植物へのリンの養分吸収を促進する。しかし、その他の元素の吸収についてはほとんど明らかにされていない。本研究ではAMFによって菌根を形成したマリーゴールド（菌根形成区）と非形成のマリーゴールド（対照区）の金属元素を放射化分析によって比較し、菌根形成が金属元素の吸収に及ぼす影響について検討した。

【実験】川砂を400g充填したポットに、マリーゴールドを播種し、AMF（*Glomus etunicatum*）を接種した条件（菌根形成区）と接種していない条件（対照区）で栽培を行った。栽培はバイオトロン（25℃、明期16時間）を用いて行った。植物体の採取は播種後30日および42日に行った。植物体は茎葉部と根部に分け、蒸留水で十分に洗浄後、80℃で48時間乾燥した。乾燥後、根部、茎葉部および川砂をポリエチレン袋に二重に封入したものを照射試料とし、標準試料（NBS:4355）とともに日本原子力研究所東海研究所原子炉（JRR-3M）で2分間熱中性子照射し、1週間後および2週間後にγ線スペクトルをゲルマニウム半導体検出器で測定した。また、栽培に用いた種子と肥料についても同様に分析した。

【結果と考察】川砂から16種類、根部から11種類、茎葉部から5種類の金属元素を検出した。根部と茎葉部の金属元素の種類は菌根形成区と対照区との間で同じであったが、金属元素の含有率は異なっていた。播種後30日の場合、根部では菌根形成区のNa含有率が、茎葉部では菌根形成区のK、Na、Rb含有率が対照区よりも高くなった。播種後42日の場合、根部では菌根形成区のNaの他、Rb、Cs、Th、La、Sm、Ybの含有率も高くなり（図1）、茎葉部では菌根形成区のKとRbの含有率が高くなった（図2）。菌根形成は播種後30日よりも42日で発達していたため、菌根形成はK、Na、Rb、Cs、Th、La、Sm、Ybの含有率を高めると考えられた。一方、菌根形成はFe、Co、Scの含有率に対しては影響を及ぼさないと考えられた。

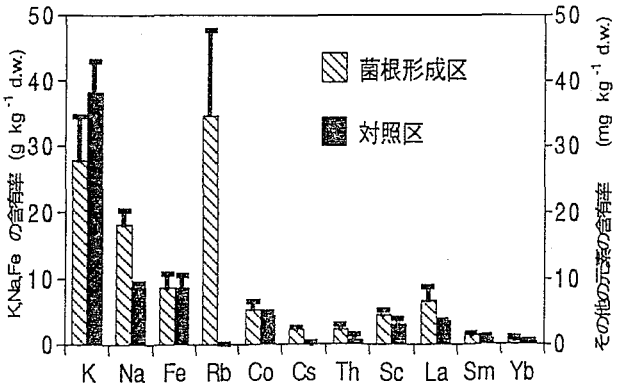


図1　42日間栽培したマリーゴールドの根部中の金属元素

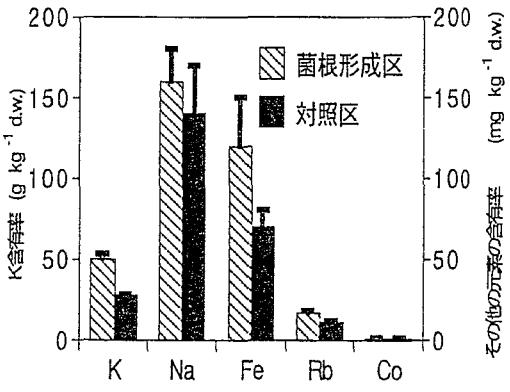


図2　42日間栽培したマリーゴールドの茎葉部中の金属元素

H. Suzuki, H. Kumagai, N. Nogawa, H. Matsuoka, and K. Oohashi

1B12 機器中性子放射化分析法による亜鉛欠乏マウス体内における微量元素の定量

(静岡大理) ○岩間基訓・若狭 仁・大山拓也・吉田 努・
矢永誠人・野口基子・大森 巍

《 緒言 》亜鉛は、生体内における多くの重要な酵素反応に関与しており、最も必須性の高い微量金属であると言われている。この亜鉛の欠乏症として、発育不良、性腺機能低下、味覚(嗅覚)障害等の症状が知られている。本研究では、8 週齢のマウスについて一定期間の亜鉛欠乏実験を行い、その欠乏が他の元素の体内挙動に与える影響を調べるため、マウスの各臓器・組織について、機器中性子放射化分析法により亜鉛および他の微量元素の定量および比較を行った。

《 実験 》ICR 系マウス(オス、8 週令)を 2 群に分け、亜鉛欠乏群として亜鉛欠乏餌およびミリポア水、対照群として対照餌およびミリポア水で、各々 1 週間、3 週間、6 週間、13 週間の飼育を行った。

各マウスより主な臓器・組織を摘出および凍結乾燥し、その乾燥試料 20～150 mg をポリエチレン袋に二重に封入したものを照射用試料とした。標準試料として NIST SRM Bovine Liver および Mg、Ca、Cr、Co の各元素の標準試料を用いた。熱中性子照射は日本原子力研究所東海研究所 JRR-3 において、pn-3 (flux = 1.9×10^{13} $cm^{-2} \cdot s^{-1}$) にて 10 秒あるいは pn-1 (flux = 6.0×10^{13} $cm^{-2} \cdot s^{-1}$) にて 20 分行い、照射後直ちに、あるいは適当な冷却の後、HP Ge 半導体検出器を用いて γ 線測定を行った。

《 結果および考察 》13 週間飼育したマウスの平均体重は、亜鉛欠乏群では 26.2 ± 3.1 g (n = 13)、対照群では 35.4 ± 4.4 (n = 10) であった。各飼育期間におけるマウスの多くの臓器および組織中での Zn 濃度は、亜鉛欠乏群と対照群で、有意な差は認められなかったが、亜鉛欠乏群の骨およびすい臓については明らかな減少が見られた。このことより、亜鉛が生体内で生理的役割をするための不足分は、骨およびすい臓(主に骨)から供給されていると考えられる。Fig. 1 に示したように、亜鉛欠乏群では Co の濃度が高まっていた。この Co の濃度が高まる傾向は他のすべての臓器にも見られた。Fe の濃度は、亜鉛欠乏期間の延長につれて、増加傾向が認められた。また、いずれの群も飼育実験開始前と比較し、Rb の濃度に減少が見られた。この Rb の濃度変化については、飼育実験開始前の餌と亜鉛欠乏餌および対照餌中の Rb 濃度の差が影響したものと考えられる。

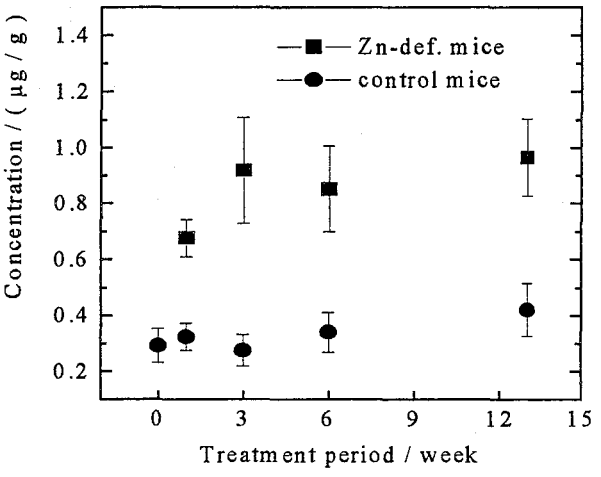


Fig. 1 Concentrations of Co in liver of Zn-def. mice and control mice (dry weight basis).

IWAMA, M., WAKASA, H., OHYAMA, T., YOSHIDA, T.,
YANAGA, M., NOGUCHI, M., OMORI, T.

1B13 成長期における亜鉛の欠乏が他の微量元素の挙動に与える影響

(静岡大理)○吉田　努・若狭　仁・大山拓也・岩間基訓・矢永誠人・
野口基子・大森　巍

[緒言]

亜鉛欠乏症は微量元素欠乏症の中では最も頻度が高く、ヒトにおいて明らかにされたのは1960年代であるが、最近は免疫不全や胎児への影響が注目されている。微量金属としては亜鉛の生体での存在量は比較的多く、その必須性の高さから日々の亜鉛の摂取は不可欠である。成長期においては成人(成獣)とは異なり生体の健康の維持に加えさらなる成長が必要とされる時期であり、従ってこの時期の亜鉛の欠乏は、生体に大きな影響を与える可能性がある。本研究では、授乳の段階から亜鉛を欠乏させたマウスと離乳後から亜鉛を欠乏させたマウスの諸臓器について、機器中性子放射化分析法を用いて微量元素の定量を行うことにより、亜鉛の欠乏が他の元素の体内挙動に与える影響を調べることにした。

[実験]

ICR 系の妊娠マウスを購入し出産させ、生後３日目までは市販飼料(日本クレア、CE-２)で飼育し、３日目に亜鉛欠乏群と対照群の２群に分けて６週間飼育した。亜鉛欠乏群には亜鉛欠乏餌およびミリポア水、対照群には対照餌およびミリポア水を与えたが、生後３週間後に仔マウスを離乳させているため、それまでは亜鉛欠乏餌を摂取した母マウスの母乳によって育ち、その後はマウス自身が亜鉛欠乏餌を摂取して育ったことになる。また別のシリーズでは妊娠マウスから生まれた仔マウスを生後４週間まで市販飼料で飼育し、その後３週間亜鉛欠乏群および対照群に分け同様に飼育をおこなった。目的の飼育期間終了後、それぞれのマウスを解剖して、主な臓器および組織を摘出、凍結乾燥し、照射試料を作成した。熱中性子の照射は立教大学 TRIGA-Ⅱ型原子炉にておこない、HP Ge 半導体検出器等を用いてγ線スペクトロメトリーをおこなった。

[結果および考察]

亜鉛欠乏群では皮膚障害や発育不全などの亜鉛欠乏症状が認められ、授乳期のマウスでは死亡例も見られた。図は生後３日目から６週間、亜鉛欠乏餌または対照餌で飼育したマウス肝臓の中のいくつかの元素濃度を表したものである。亜鉛欠乏群ではコバルト、マンガン、鉄の濃度が上昇していた。コバルトの濃度上昇は他の臓器・組織でも見られた。一方、亜鉛の濃度については有意な差が見られなかったが、亜鉛欠乏群では濃度範囲が広く、またコバルトの濃度との間には正の相関が認められるようであった。他の臓器・組織では亜鉛欠乏群の骨や膵臓において亜鉛の濃度が低下していた。生後４週目から３週間、亜鉛欠乏餌または対照餌で飼育したマウスでは、肝臓中のマンガン、コバルトの濃度の上昇は見られたが、亜鉛濃度との相関は認められなかった。

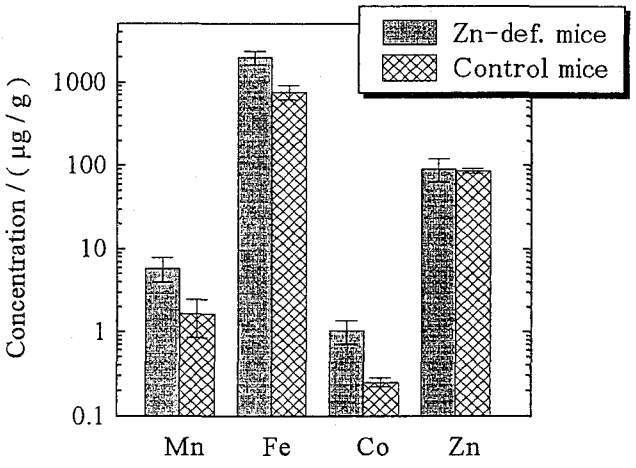


Fig. Concentrations (dry weight basis) of trace elements in liver of mice fed with Zn-def. diet or control diet from 3 days to 6 weeks after their birth.

YOSHIDA,T., WAKASA,H., OHYAMA,T., IWAMA,M., YANAGA,M., NOGUCHI,M., OMORI,T.

1B14 マルチトレーサー法を用いたセレン欠乏ラットに取り込まれる微量元素の分析

（理研、昭薬大*）
○蛭沼利江子、榎本秀一、安部静子、安部文敏、遠藤和豊*

【はじめに】セレン（Se）は、生体内において猛毒であると同時に、過酸化物の還元や甲状腺ホルモンの機能調節などの重要な役割を果たす生体微量元素である。我々は、Se欠乏ラットにおける各種元素の取り込みの経時変化を、マルチトレーサー法を用いて検討した。本報では、誕生前からSe欠乏餌で飼育したSe欠乏ラット(1)、離乳後からSe欠乏餌で飼育したSe欠乏ラット(2)の２種類のSe欠乏ラットを作成し、Se欠乏状態の程度の違いから生じる各種微量元素の取り込みの違いについて議論する。

【実験】理研リングサイクロトロンで製造したマルチトレーサーを、化学分離後、生理食塩水に溶かし、誕生前からSe欠乏餌で飼育したSe欠乏ラット(1)、離乳後から6週間以上Se欠乏餌で飼育したSe欠乏ラット(2)、およびコントロールラットに0.1mlずつ尾静脈内投与した。それらを経時的に解剖し、各ラットの臓器中のγ線を高純度Ge半導体検出器で測定した。

【結果および考察】Seの肝臓への取り込みは、コントロールラットが最も高く、Se欠乏ラット(2)、Se欠乏ラット(1)の順に減少した。これは、肝臓中のSe不足から生じるグルタチオンペルオキシダーゼの低下によるものと考えられる。Seの精巣への取り込みはコントロールラットに比べてSe欠乏ラット(2)で増加しており、Se欠乏ラット(1)ではほぼコントロールラットと一致していた。Seは精子形成に重要な働きをしているために、Se欠乏ラット(2)で取り込みが増加したが、一方、Se欠乏ラット(1)では、二次性徴が遅れているためにSeがSe欠乏ラット(2)ほど必要とされていないということが考えられる。また、Na、Mn、Co、Znの取り込みは、Se欠乏ラット(1)および(2)とコントロールラットで変化が見られなかった。向骨元素であるCa、Sr、Yの骨への取り込みも、Se欠乏ラット(1)および(2)とコントロールラットでほぼ同じであった。しかし、向骨元素の１元素であるZrでは、Se欠乏ラット(1)の骨への取り込みがSe欠乏ラット(2)、コントロールラットに比べて増加した。Se欠乏ラット(1)におけるAsの肝臓、脾臓、脳、骨への取り込みがコントロールラット、Se欠乏ラット(2)に比べて増加した。これらの臓器中での取り込みの増加は、血液中のAsの取り込みが増加したことによる影響を受けていると考えられる。Se欠乏ラット(1)の血液は溶血しやすく、赤血球膜などの膜が壊れやすいために取り込みが増加したと考えられる。また、SeはAsの胆汁排泄を促進することが知られており、Se不足によるAsの胆汁排泄の低下が考えられる。Se欠乏ラット(1)におけるFeの肝臓への取り込みがコントロールラット、Se欠乏ラット(2)に比べて増加していた。これにはカタラーゼなどのFe含有蛋白質が影響していると考えられる。また、Scの肝臓への取り込みの挙動がFeのその挙動に類似していた。FeとScの類似点としては価数とイオン半径が挙げられる。このことがFeとScの類似した挙動に何らかの関係があると考えられる。

HIRUNUMA R., ENOMOTO S., AMBE S., and AMBE F., ENDO K.

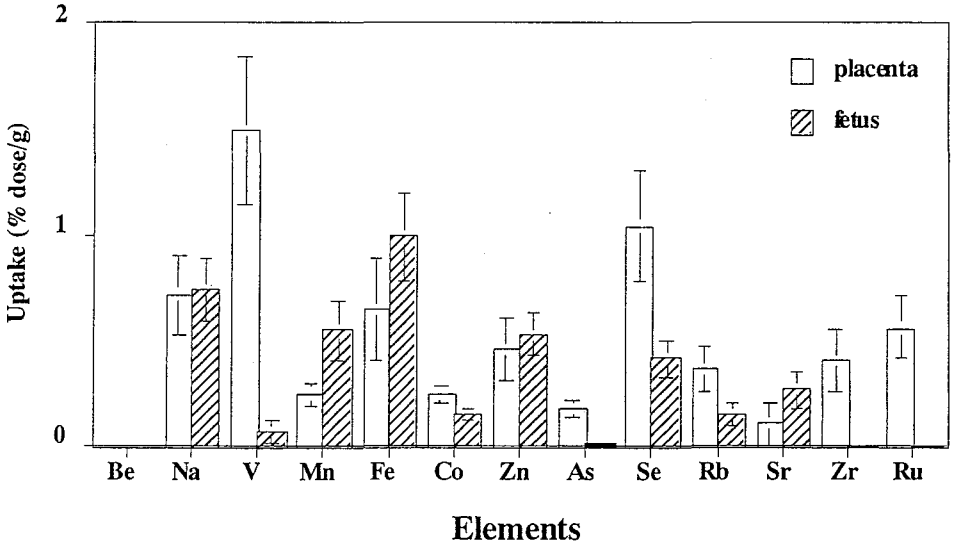
1B15 ラット胎児における各種微量元素の移行と胎盤透過性

（理研）
○榎本秀一、蛭沼利江子、Chou Ju、安部静子、安部文敏

【目的】胎盤は最も元素および物質の選択透過性の高い生体膜の一つである。体内に分布する各種の微量元素の膜透過過程の解明と胎児における微量元素の代謝過程を調べるため、我々はマルチトレーサーを用い、妊娠ウィスターラットの各臓器の有する各種元素の分離能、濃縮および代謝過程を解析し、各種微量元素の取り込みと元素間の相互作用を検討した。

【実験】C-12、N-14またはO-16（135MeV/nucleon）で照射したAgターゲットを化学分離して得たマルチトレーサーを、生理食塩液に溶解して調整した。この調整した溶液を各々の妊娠確定17日のWistarラットに尾静脈注射し、投与24時間後に胎盤と胎児を摘出した。この後、試料のγ線スペクトルをGe半導体検出器で測定した。核種の同定は、エネルギー及び半減期解析により行った。また、胎児のスライス標本を作製し、オートラジオグラフィーにより、放射活性を観察した。

【結果】解析の結果から、Be、Na、V、Mn、Fe、Co、Zn、As、Se、Rb、Sr、Zr、Ruの13元素が同定できた。投与２４時間の結果は、図１に示す。図から明らかなようにVの胎盤蓄積性が顕著であり、胎児への移行は少なかった。また、Zr、Ruの胎盤蓄積は見られたが、胎児への移行は全く見られなかった。生体にとって必須な元素の多くは、胎盤から胎児に容易に移行していた。また、胎児前頭部の脳組織には、Mnの特異的濃縮が見られ、神経系の形成に伴う脳内ネットワークの構築にMnの寄与が示唆された。さらに、胎児の腎ならびに胸腺におけるZn、Fe、Sr、Mnの取り込みの増大が観察された。これは、胎児のメタロチオネインが、胎生16日から18日にかけて生合成がプラトーに達するため、腎のZnの取り込みが増大すると考えられ、さらにトランスフェリンレセプターの発現と免疫系の構築にともない、腎、胸腺のFe、Srの取り込みが増大したと考えられる。本報告では、各種微量元素の胎盤の選択的透過性と胎児への移行について微量元素間の相互作用から議論する。



ENOMOTO S., HIRUNUMA R., CHOU J., AMBE S., and AMBE F.

1B16　植物の微量元素の吸収におよぼす種々の要因

（理研）○安部静子、尾崎卓郎、篠永妙子、王　海芳、榎本秀一

【はじめに】人間の活動に伴い環境中に放出された有害元素および放射性元素の人体への危険性の評価の一環として、植物による微量元素の吸収を長年にわたり研究をしてきた。その一つとして植物による微量元素の吸収モデルのパラメーターである選択吸収係数の研究がある。選択吸収係数は実験によりばらつきが見られ、この原因を明らかにするために、照度や生育段階の選択吸収係数へ及ぼす影響を調べた。また得られた選択吸収係数を基に移行係数を求め、実験で得られた移行係数と比較した。移行係数は土耕でコマツナの成長段階ごとに調べた。また酸性雨と関連して、酸性土壌から微量元素のとりこみをダイズおよびトマトについて調べた。

【実験】土壌および培養液にマルチトレーサーを加えコマツナ、大豆、トマトを栽培し、微量元素の取り込みを、葉、茎、根、子実ごとにガンマ線スペクトルを測定して調べた。

【結果と考察】Be から Re までの多くの元素について選択吸収係数が得られた。一例として Sr の葉と根における選択吸収係数の培養液濃度依存性を log-log プロットしたものを図１に示す。培養液濃度は電気伝導度であらわしている。選択吸収係数は濃度が高くなると減少し、電気伝導度の指数関数として表される。

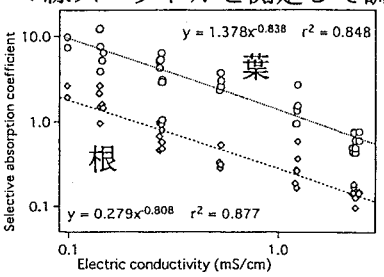


図 1. Sr の選択吸収係数の培養液濃度依存

生育段階別に求めたコマツナにおける Cs, Mn, Zn の移行係数を図２に示す。Cs の葉における移行係数は生育段階が進むにつれて減少した。Mn の移行係数は逆に生育段階とともに増大した。これ以外のおおくの元素の移行係数は生育段階による大きな変化は認められなっかた。つぎに酸性土壌（ｐＨ４）と通常の土壌（ｐＨ６）で栽培したダイズの Sr と Se の濃度の比較を図３に示す。Sr の葉、茎、子実における濃度は酸性土壌からのほうが高かった。Se ではすべての部位において通常土壌のほうが高い濃度をしめした。この結果は、植物の元素の取り込みは元素の土壌への吸着のｐＨ依存性と密接に関連していることを示している。

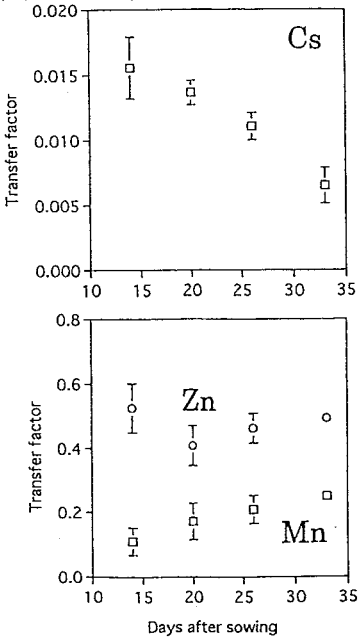


図 2. 生育別の移行係数

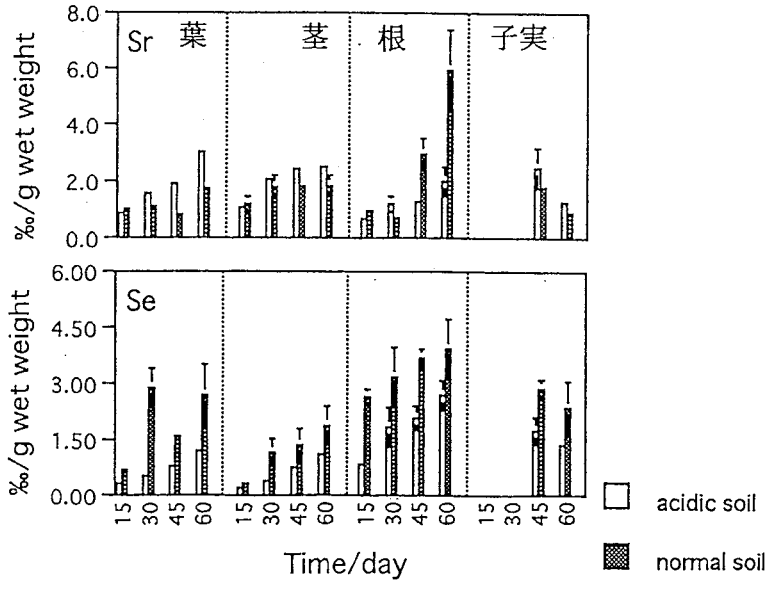


図 3. 通常および酸性土壌から取り込んだ Sr と Se の濃度

AMBE, S., OZAKI, T., SHINONAGA, T., WANG, H. F., ENOMOTO, S.,

1B17　マルチトレーサによる脳局所微量元素に関する検討

（金沢大医・理研*）　○大石茂雄、天野良平、安東　醇、
榎本秀一*、安部文敏*

【はじめに】脳は他の臓器と異なり脳血流関門と呼ばれる特徴ある機能を有している。脳血流関門は脳がその機能を維持するための自己防衛機能とされており、脳にとって不都合な物質の侵入を未然に防いでいる。しかし、実際には我々が「APSORC'97 熊本」において報告したように脳においてもいくつかの微量元素はダイナミックに挙動しており、このメカニズムを明らかにすることは脳科学の一端となるばかりでなく、神経変性疾患や老化などにおける微量元素の働きを明らかにする可能性が高い。我々はこの問題に理化学研究所が開発したマルチトレーサを用いてアプローチしている。今回脳における微量元素の挙動を観測する目的から、摘出した脳をさらに5つの部位に区分することで脳局所における微量元素の動態を検討したので報告する。

【方法】実験には週令の異なる4群（4、8、28、51週令）のC57BL/6N雄マウスを各群5匹用いた。これらのマウスは金沢大学医学部附属動物実験施設に入舎後1～46週間飼育し、左腹腔にマルチトレーサ注射液を投与した。これらのマウスを投与後48時間で解剖し、血液を採取した後に摘出した脳を、線条体、大脳皮質、海馬、小脳、橋・延髄に区分した。試料は秤量の後に凍結乾燥し、測定試料とした。マルチトレーサは、理研リングサイクロトロンで重イオン照射された銀ターゲットから金沢大学アイソトープ総合センターで無担体分離し、生理学的イオン強度の食塩水(pH3)に調製したものを注射液とした。測定試料につきγ線スペクトロメトリーによる核種の同定および放射能の定量を行い、脳各部位における単位重量あたりの注射量に対する取込率（%dose/g of region）を算出し、さらにマウスの体重差を補正する意味から、すべてのマウスを体重25g規格化し評価した。

【結果】観測できた放射性トレーサは、部位によって異なるものの ^{46}Sc, ^{48}V, ^{54}Mn, ^{58}Co, ^{59}Fe, ^{65}Zn, ^{75}Se, ^{83}Rb, ^{88}Zr, ^{88}Y, ^{97}Ru, ^{101m}Rh の12核種であった。このマルチトレーサは、いくつかの必須元素のトレーサを含んでいる。必須元素とそれ以外の元素の挙動を独立に、あるいは相互作用する様子を観測することができるという特徴を利用する。

Fig 1. は週令の異なる4群について5つに区分した脳局所における Se と Zr の取込率を示したものである。必須元素である Se は週令によって、また部位によってそれほど大きな変化を示さないものの、Zr は週令によって大きく変化している。おそらく必須でないと考えられる Zr が加齢とともに脳血流関門を通過しやすくなり、脳内に不均一に多く取り込まれるか、あるいは排出されないで長く留まることが考えられる。このことが脳の老化とどう関係するかは未だ解明できていない。

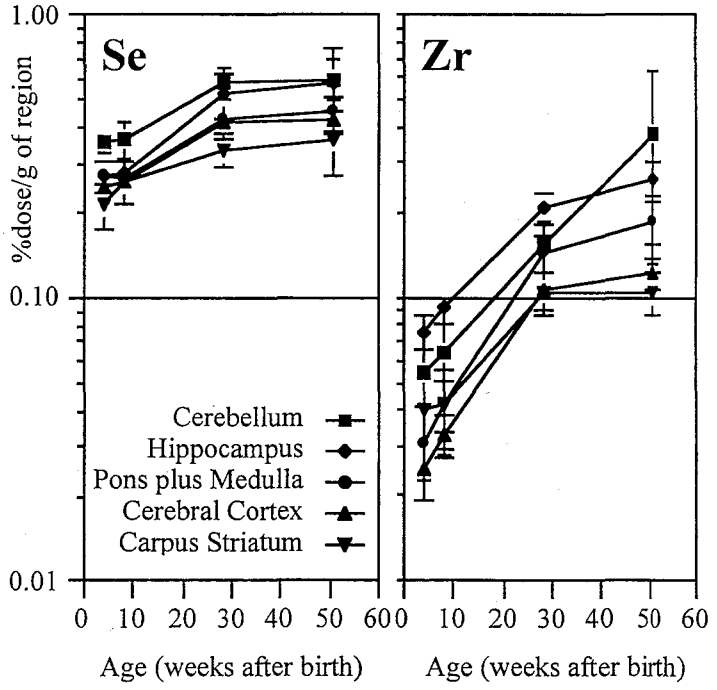


Fig 1. Aging effects of Se and Zr on the regional uptake rate in the brain of normal C57BL/6N mice.

OISHI, S., AMANO, R., ANDO, A., ENOMOTO, S., AMBE, F.

1B18　脳局所微小試料の放射化分析　ー特に脳内 Zn と Mn の分布ー

（金沢大医・理研*）　○大石茂雄、天野良平、安東　醇、榎本秀一*

【はじめに】ミネラル（生体金属元素）のホメオスタシスの研究は、その最適摂取濃度および疾患との関連においても重要な課題である。例えば銅代謝はウィルソン病に、アルミニウムはアルツハイマー症に関係していると言われている。こうした微量元素の定量は、医学・薬学、動物学・獣医学、農学・植物学など多くの領域で必要とされ、それにはICP-MS法が多く利用されている。本報告では、試料を破壊することなく容器の外からでも容易に検出・測定できる利点を有する放射化分析法を適用する。まず京都大学原子炉実験所（以下KUR）を利用し、動物を使った生体微量元素の定量を中性子放射化分析により行うにあたって、照射方法、計測方法、データ処理、計測できる元素について検討した。さらにこの非破壊中性子放射化分析をマウスの脳局所微小試料中の元素の定量に適用した。特にZnとMnの分布について報告する。

【材料および方法】実験に用いたマウスは6週令と38週令の週令の異なる2群のC57BL/6N雄マウス、各10匹であった。これらのマウスは金沢大学医学部附属動物実験施設に入舎後少なくとも1週間飼育後に解剖し、摘出した脳を、線条体、大脳皮質、海馬、中脳、小脳、橋・延髄、嗅球に区分した。試料は秤量の後に凍結乾燥し、放射化分析試料とした。試料はKURの圧気輸送管Pn-3（熱中性子束密度 2.34×10^{13} n cm^{-2} sec^{-1}.）による短時間照射（2分）と長時間照射（40分）を行い、γ線スペクトロメトリーによる生成放射性核種の同定を行った。なお標準試料としてNBS No.1573 Tomato LeavesおよびBowen's Kaleを用いた。

【結　果】今回のような脳局所試料を用いる実験では、採取できる試料は少量で小さい。例えば海馬試料の平均重量は約0.0025gであった。また個体差を避けられない生物試料の実験では統計的誤差を小さくする目的で複数の試料で同じ計測を行う必要があり、今回は短時間照射と長時間照射を合わせて140個の試料を用いた。このように生物試料を対象にする際の特徴は、そのまま中性子放射化分析法の特徴とも対応する。試料の量が限られている問題は、微少の試料を高い感度でそこそこの精度で計測できる放射化分析のメリットによって補われている。一方試料の数が多いという問題は、短時間複数回のγ線測定を要するということより、スループットを低下させることになる。今回我々は、照射方法や計測方法を最適化することで、脳局所におけるNa, Mg, Cl, K, Mn, Zn, Rb, Brの微量元素を定量することができた。

Fig 1. は7つに区分された脳局所におけるZnとMnの分布を週令の異なるマウスについて示したものである。試料が少量であったにもかかわらず定量された値の標準偏差（n=5）は満足できるものであった。週令の異なる2群のマウスにおける比較では、検討した脳局所についてNa, Mg, Cl, K, Rb, Brでは2群に有意な差は認められなかった。しかし、Mnは全ての部位で6週令マウス群が38週令マウス群よりも高い濃度であった。加えて、Znにおいては6週令および38週令群ともに、海馬における濃度が他の部位よりも高く、Znが脳内において不均一分布していることを示している。

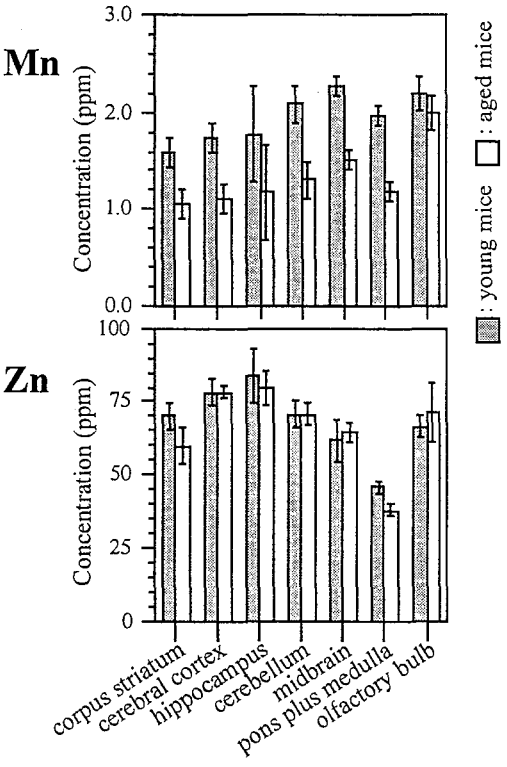


Fig 1. Regional concentrations of the trace elements, Mn and Zn, in the brain of young and aged C57BL/6N mice.

OISHI, S., AMANO, R., ANDO, A., ENOMOTO, S.

1B19

^{195m}Pt 標識白金制癌性化合物(254-S)のトレーサー利用による制癌作用の解析

(京大原子炉) ○赤星光彦、河合健一、田中愛子、高田実弥、川本圭造、藤井紀子

(はじめに) 我々はすでにシスプラチンをはじめとする ^{195m}Pt-標識制癌性白金化合物を合成し、これら化合物の制癌作用を調べるために利用してきた。KUR を用いて合成される ^{195m}Pt の比放射能は 7.4MBq/mg-Pt と高く、平均致死濃度域の低濃度で処理された癌細胞内の DNA と結合した白金原子数を容易に定量できるので、結合白金あたりの致死効率を決定できる。本報告では新規白金制癌剤 254-S を合成し、温熱併用時における制癌剤作用機構を推定する。

(実験) HeLa 細胞を 3.0~75 ug/ml の ^{195m}Pt-254-S で 0, 25, 37, 40, 42, 44 C の各温度条件で 1 時間処理し、コロニーアッセイ法により平均致死濃度 (D_0, $N/N_0=e^{-D/D0}$) を決定した。一方、同じ処理を施した細胞をシュナイダー法により分画し、DNA, RNA, 蛋白質等細胞内重要分子類と結合した白金原指数を放射能より定量した。上記括弧内の式から平均致死濃度において結合した白金原子数の逆数は白金原子あたりの致死効率を表す。そこで、上記温度条件における致死効率を明らかにすることにより、本化学剤-温熱併用による協調作用機構を推測する。

(結果と考察) ^{195m}Pt-254-S を用いて 0, 25, 37, 40, 42, 44C で 1 時間処理された HeLa 細胞の D_0 は 233, 132, 61.1, 42.7, 25.6, 9.9 uM、一方、DNA を標的分子と仮定した際の白金原子あたりの致死効率は 0.612, 1.09, 1.88, 1.90, 2.66, 5.88x10^4 ヌクレオチドと計算された (Fig.)。これより、D_0 を指標として表された温熱-254-S 併用に見られる協調作用は全処理温度を通して、DNA 結合白金数と結合白金あたりの致死効率の増加によって説明されることが解った。

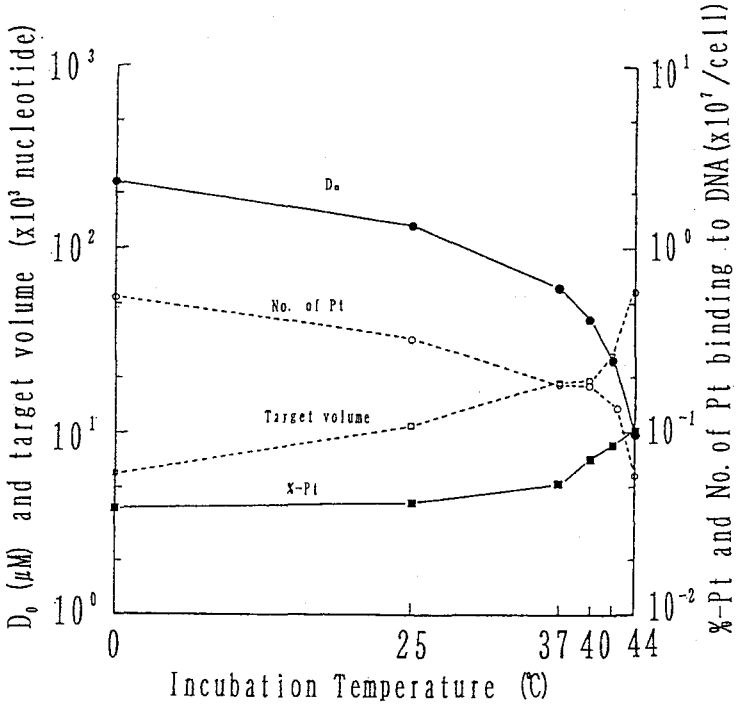


Fig. Variations in D_0, %-Pt, No. of Pt atoms binding to DNA, and cell-killing efficiency of Pt atoms with incubation temperature.

AKABOSHI, M., KAWAI, K., TANAKA, Y., TAKADA, J., KAWAMOTO, K., FUJII, N.

1B20 植物の希土類元素取り込みメカニズムに関する研究

(東大アイソトープ総合センター[1]、理研[2]、武蔵大[3])
○尾崎卓郎[1,2]、榎本秀一[2]、薬袋佳孝[3]、安部静子[2]、安部文敏[2]、巻出義紘[1]

＜はじめに＞

動植物にとって希土類元素は必須ではないとされている。しかし、そのような希土類元素を体内に高濃度に集積する植物種が存在することが報告されている。3価のカチオンとして存在しやすい希土類元素は、土壌中で鉱物やフミン酸などと強く相互作用をし、その結果植物が取り込める形で存在する希土類元素の濃度はきわめて低い。それにも拘わらず、体内に希土類元素を濃縮するためには根になんらかの特殊な機能が備わっているものと推測できる。本研究では、希土類元素集積植物種を含む数種の植物試料を用い、マルチトレーサー法によってその取り込み挙動の比較を行った。

＜実験＞

植物試料としてメロン、へちま、エンドウ、夕顔、バイアム、金魚草、オクラ、うり、芝、ポピーの他、希土類元素集積種であるベニシダ、ヤブソテツを用いた。それぞれ地上部がおよそ7センチになるまで土耕で成育し、さらに5日間超純水中で育てた。その際、超純水は数時間ごとに新しいものと交換した。これらの植物に水耕のまま希土類元素を含むマルチトレーサーのみを与え、2日間取り込みを行わせ、根、葉に分けてガンマ線スペクトルの測定をした。葉は乾燥させた状態で、また、根は0.1Nの塩酸で洗浄してから乾燥し測定試料とした。また、ベニシダのみを用い、様々なキレート剤（NTA、Tris、Succinic Acid、Ascorbic Acid）の共存下、水耕でマルチトレーサーを取り込ませた。マルチトレーサーは理研リングサイクロトロンで加速した窒素ビームを金に照射することによって製造した。

＜結果と考察＞

植物種の違いにより、取り込み様式に関して少なくとも2種類存在することを確認した。すなわち、希土類元素の取り込み量をイオン半径に対してプロットした場合に、イットリウムが他の希土類元素と類似の挙動をとるものとそうでないものに分けることができた。シダ植物以外ではイットリウムの取り込みが他の希土類元素に比べて著しく大きくなったのに対し、シダ植物においてはイットリウムは他の希土類元素と同程度取り込まれた。さらに、前者には希土類元素を集積しないもの、後者にはするものが含まれることがわかった。

また、ベニシダを用い共存キレート剤の希土類元素の取り込みに対する影響を調べた実験では、希土類元素への配位能が弱いキレート剤の存在下では重希土ほど取り込みが大きくなり、強いものの存在下ではその逆となった。

これら2つの実験結果から希土類元素集積植物種であるベニシダは、土壌中の希土類元素を可溶化するために自らの根から何らかの物質を放出してその取り込みに利用しているものと考えられる。イットリウムと他の希土類元素との物理化学的性質がきわめて近いものと考え、イオン半径の違いを無視すると全体として同位体どうしであると見なすことができる。すると、イットリウムの質量は他の希土類元素に比べて約半分程度であるため、同位体効果が現われるもの期待できる。すなわち、本研究の前半で得られた結果は集積種が希土類元素を根から出した物質とともに取り込むことによりイットリウムと他の希土類元素との相対的な重さの比が減少したために、また後半の結果は根から出た物質が水耕溶液中のキレート剤と希土類元素に対し競争反応を行ったために得られたものと解釈できる。

OZAKI, T., ENOMOTO, S., MINAI, Y., AMBE, S., AMBE, F., MAKIDE, Y.

1C01 三座芳香族アミン配位子をもつニトリドテクネチウム錯体の合成と性質

（東北大院理）○今井淳・高山努・関根勉・工藤博司

【序】 2,2′:6′,6″- terpyridine (terpy) や 2,6 - bis(benzimidazol-2-yl) pyridine (bzimpy) などのような三座芳香族アミン配位子を有する遷移金属錯体には、配位座となる窒素の電子供与性の強さや立体的な要因により中心金属に二座または三座配位などの配位形式が異なる構造や立体異性体の存在が考えられる。また、溶液中における異性化など興味深い性質が知られており、配位形式の変化などが注目される。

本研究では、従来知見の乏しい三座芳香族アミン配位子をもつニトリド錯体の性質を明らかにするために、bzimpy を配位子とする錯体を合成し、溶液中における構造およびその構造変化について検討した。

【実験】出発錯体の $[AsPh_4][Tc^{VI}NCl_4]$ と配位子の bzimpy をメタノールを溶媒中、室温で攪拌し緑色の沈殿物 **1** を得た。**1** をジクロロメタンで洗浄後、メタノールに溶かし室温放置すると黄色の溶液に変化した。この溶液にジエチルエーテルを加えて黄色の沈殿物 **2** を得た。

【結果と考察】**1** および **2** の化学種について NMR (DMSO-d_6) 測定を行ったところ、異なる化学シフトをもつシグナルが観察された。**2** について元素分析を行ったところ $[TcNCl_2(bzimpy)]$ の組成をもつ錯体であることがわかった。また NMR の結果を考慮すると **2** については、平面三座配位した構造が推定できる。**1** から **2** への化学種の変化は、メタノール、エタノール、水のような極性溶媒において起こる。また、UV-vis スペクトルにおいて 350 nm 付近に等吸収点をもつ時間変化が観察された。 **1** については、 **2** と比較して中心のピリジン環の 4 位の ^1H NMR シグナルが大きな低磁場シフトを示すことから **2** とは異なる配位サイトをもつと考えられる。

この構造変化については現在検討中である。

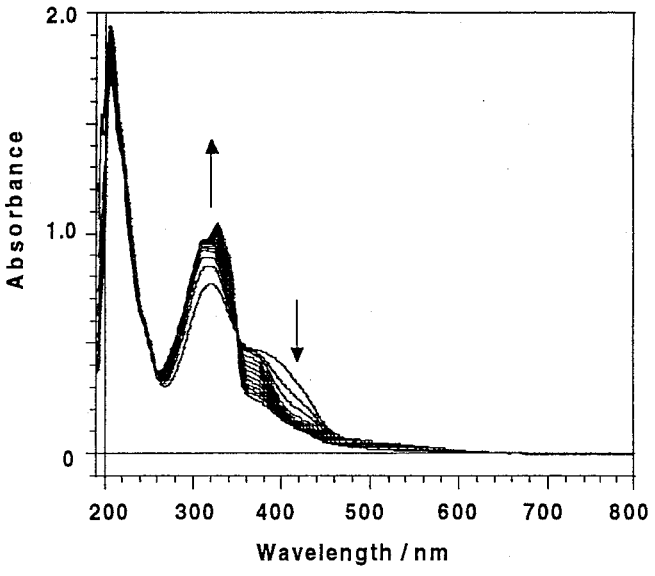


図 1. **1** の UV-vis スペクトルの時間変化
溶媒 ： メタノール
時間間隔 ：5 min
反応温度 ： 室温

IMAI,J., TAKAYAMA,T., SEKINE,T., KUDO,H.

1C02 $N_2N'S$ 型ペプチド配位子をもつテクネチウムおよびレニウム錯体の構造

（東北大院理）○鈴木圭介 ・ 高山努 ・ 関根勉 ・ 工藤博司

【序】ペプチドを配位子とするテクネチウム錯体は、生体組織への高い親和性から、核医学分野における放射性診断薬として期待されており、より効果的な診断薬開発のために、その構造や化学的性質に関する知見が求められている。本研究では、抗ムチン抗体ペプチドを配位子とするテクネチウム錯体を合成し、配位構造を明らかにした。また、レニウム錯体も合成し、それらの性質を比較した。

【実験】配位子となるペプチドには KYCAR (L_1) または KYCAREPPTRTNAYWGQG-NH_2 (L_2) を用いた。テクネチウム錯体は、$[n\text{-}Bu_4N][Tc^{V}OCl_4]$ とペプチドをメタノール中で 2 時間撹拌し合成した。レニウム錯体は $[n\text{-}Bu_4N][Re^{V}OCl_4]$ を用い、同様の方法で合成した。得られた錯体の配位構造を ^1H および ^{13}C NMR により解析した。

【結果および考察】$[n\text{-}Bu_4N][Tc^{V}OCl_4]$ と L_1 の反応では、単一の化学種が生成することを HPLC により確認した。遊離および錯形成した L_1 の NMR スペクトルを比較すると、金属元素に近接した部位のシグナルが低磁場シフトすることから、配位部位が決定できる。^{13}C NMR スペクトルより、Lys のアミノ基と Tyr および Cys のアミド基の窒素原子ならびに Cys 側鎖の硫黄原子がテクネチウムに配位していることがわかった。また、^1H NMR スペクトルより、配位部位のうち Tyr および Cys のアミド基ならびに Cys のメルカプト基が脱プロトン化していること、さらに二つの可能な異性体のうち、*syn* (図)の化学種のみが存在することが判明した。TcO-L_2 および ReO-L_2 錯体の構造は、TcO-L_1 錯体と同様な *syn* の配位構造をとることが明らかになった。

ReO-L_1 錯体の場合、反応開始後 2 時間では *syn* の構造をもつ錯体のみの生成が認められたが、さらに 3 日間室温で撹拌すると、もう一方の化学種が生成した。この化学種のマススペクトルは、最初に生成した *syn* のものとほぼ一致した。この事実は、新たに生じた化学種が、*anti* の異性体であることを示唆する。

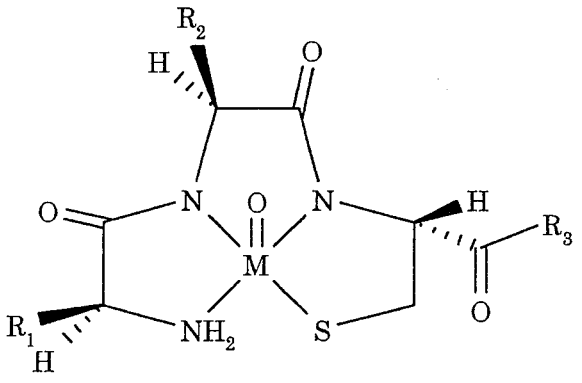


図. MO-L (M=Tc, Re, L=L_1, L_2) *syn* 錯体の配位構造
R_1 = -$(CH_2)_4NH_3^+$, R_2 = -CH_2PhOH,
R_3 = -AR(L_1), -AREPPTRTNAYWGQG-NH_2(L_2)

SUZUKI,K., TAKAYAMA, T., SEKINE, T., KUDO, H.

1C03 ジェネレータ製 ^{188}Re を用いた ^{188}Re-アミノメチレンリン酸誘導体錯体の合成とＨＰＬＣ挙動

（原研ＲＩ）橋本 和幸

【緒言】 転移性骨がんの痛みの緩和用の放射性医薬品として、^{186}Re-HEDP（二リン酸誘導体）及び ^{153}Sm-EDTMP（アミノメチレンリン酸誘導体）が使用されている。そこで本研究では、無担体の ^{188}Re を用いた EDTMP (Ethylenediamine-N,N,N',N'-tetrakis(methylenephosphonic acid))及びその誘導体 EDBMP (Ethylenediamine-N,N'-bis(methylenephosphonic acid)), NTMP（Nitrilotris(methylenephosphonic acid)）の標識について検討した。さらに、得られた ^{188}Re-アミノメチレンリン酸誘導体錯体（以下 ^{188}Re-amp と略す）の溶液内安定性及び HPLC 挙動について、担体の有無など合成条件の違いによる効果について検討した。

【実験】 ^{188}W／^{188}Re ジェネレータは、原研 JMTR 炉にて、26 日間照射した三酸化タングステン $^{186}WO_3$（^{186}W 濃縮度：99.79%）をアルミナカラム（10mm I.D.×60mmL）に吸着させて調製した。^{188}Re の溶出は、生理食塩水により行った。得られた ^{188}Re 溶液（1×10^5～1×10^6 Bq/ml）は、そのまま標識実験に用いた。標識は、バイアル瓶にアミノメチレンリン酸誘導体溶液、pH 調整用溶液（HCl, NaOH）、アスコルビン酸溶液、^{188}Re 溶液及び塩化スズ（Ⅱ）溶液を加えて攪拌後、0.5～6時間室温で（または、沸騰水中 30 分間）静置して行った。^{188}Re-amp, $^{188}ReO_2$ 及び未反応の $^{188}ReO_4^-$ の各割合は、シリカゲル薄層クロマトグラフィー、ペーパークロマトグラフィー及びセルロースアセテート膜電気泳動法による分析から求めた。^{188}Re の放射能分布は、イメージスキャナー（AMBIS-100）により求めた。

【結果と考察】 還元剤である塩化スズ（Ⅱ）の濃度、反応温度、反応時間、アミノメチレンリン酸誘導体の濃度、pH 及び担体の添加などの反応条件を変化させて、^{188}Re-amp の標識率変化を調べた。その一例として、標識率の pH 依存性を図１に示す。このようにして、他の反応条件についても検討した結果、最適条件下では、95%以上の高い標識率が得られた。

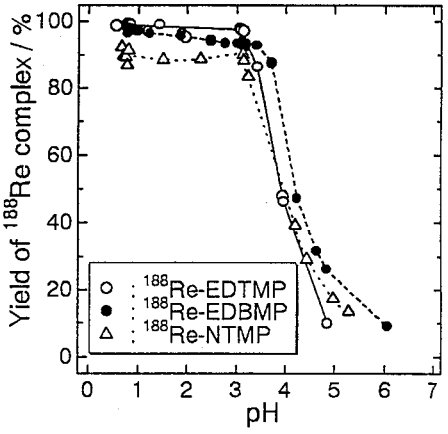


図１．標識率の pH 依存性（無担体）

次に、得られた ^{188}Re-amp の pH 変化及び生理食塩水による希釈に対する安定性について調べた。その結果、まず、担体を含む場合の方が無担体の場合よりも安定性が高いことが認められた。さらに、化合物合成時の反応条件（pH、反応温度及び塩化スズ濃度）によっても、安定性が異なることが認められ、沸騰水中で合成した化合物の方が、室温で合成した化合物よりも安定であった。３種類の ^{188}Re-amp 錯体の安定性を比較すると、^{188}Re-EDTMP 錯体が最も安定であり、続いて ^{188}Re-EDBMP 錯体、^{188}Re-NTMP 錯体の順であった。無担体錯体でもかなり安定であった ^{188}Re-EDTMP 錯体については、ゲルろ過及び陰イオン交換クロマトグラフィーによる分析を行った。その結果、図２に示したように、複数の化学種が認められた。さらに、担体の有無及び $NaBH_4$ を還元剤に用いた場合について、クロマトグラムの比較を行った。

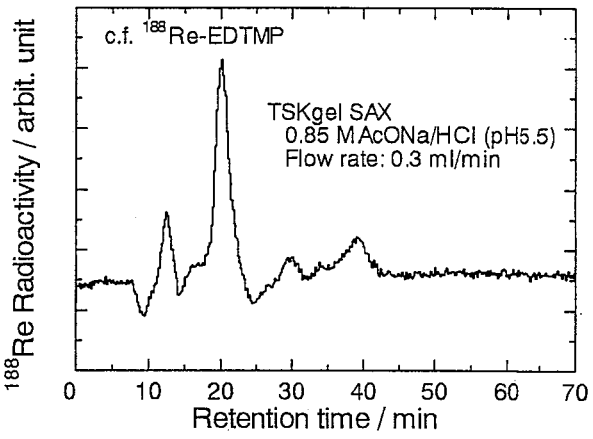


図２．無担体 ^{188}Re-EDTMP 錯体の陰イオン交換クロマトグラム

HASHIMOTO, K.

1C04 ^{186}Re-及び^{188}Re-EDTMPの合成と生体内挙動

(千葉大薬・東大RI総合セ[1]・原研RI[2])
○長谷川秀昭・佐々木庸恵・野川　憲夫[1]・橋本　和幸[2]・大橋　國雄

【はじめに】　^{186}Re及び^{188}Reは、それぞれ最大エネルギーが1.08 MeV、2.12 MeVのβ⁻線を放出することから、治療用核種として注目されている。また、EDTMP(Ethylenediaminetetramethylenephosphonic acid)は高い骨集積性を有するアミノメチレンリン酸の1つであることから、^{186}Re-及び^{188}Re-EDTMPには、ガン性骨疼痛の緩和作用が期待される。今回、^{186}Re-及び^{188}Re-EDTMPの合成及びマウスを用いた生体内挙動について検討したので報告する。

【実験】　EDTMP溶液に$SnCl_2 \cdot 2H_2O$溶液、酸化防止剤（L-アスコルビン酸）溶液、原研製の$H^{186}ReO_4$溶液または$^{188}W/^{188}Re$ジェネレータより得られた$Na^{188}ReO_4$溶液、及びpH調整用溶液を加え、沸騰水浴中で加熱した。^{186}Re-及び^{188}Re-EDTMPの収率（放射化学的収率）は、シリカゲル薄層クロマトグラフィー（アセトン）及びペーパークロマトグラフィー（0.9% NaCl溶液）による分析から求めた。^{186}Re及び^{188}Reの放射能分布は、モレキュラーイメージャー（BIO-RAD,GS-525）により決定した。

生成錯体の安定性（残存率）は、反応液、投与時に用いる酢酸緩衝液（pH=6.2）及び正常マウス血清について調べた。

生体内挙動は、^{186}Re-及び^{188}Re-EDTMPを酢酸緩衝液に10倍希釈したものを5週齢ddY系正常雄性マウスに尾静脈より投与し、一定時間（10分、1、3、6、24時間）後に摘出した各臓器の放射能を測定することによって求めた。

【結果と考察】　収率は、EDTMPの濃度が下がると、またpHが高くなるとそれぞれ低下した。このpH依存性は、Snの還元力が酸性時に大きくなることに起因するものと考えられる。また、^{186}Re-EDTMPの残存率は、酢酸緩衝液中で室温（21℃～22℃）において24時間後に70%であり、酸化防止剤の添加により改善が認められた。また、^{188}Re-EDTMPの残存率は、酢酸緩衝液中で室温（26℃）、24時間後において、酸化防止剤（L-アスコルビン酸）を添加した条件で72%であった。

動物実験の結果、^{186}Re-及び^{188}Re-EDTMPのいずれも高い骨集積性を示した。^{186}Re-EDTMPの生体内挙動をFig. 1に示す。^{188}Re-EDTMPは^{186}Re-EDTMPよりもやや腎臓への集積が目立ったが、24時間後までにほぼ同程度の割合となった。また、代謝ケージを用いて調べた24時間後までの尿中排泄量は、^{186}Re-EDTMPでは55%、^{188}Re-EDTMPでは50%であった。

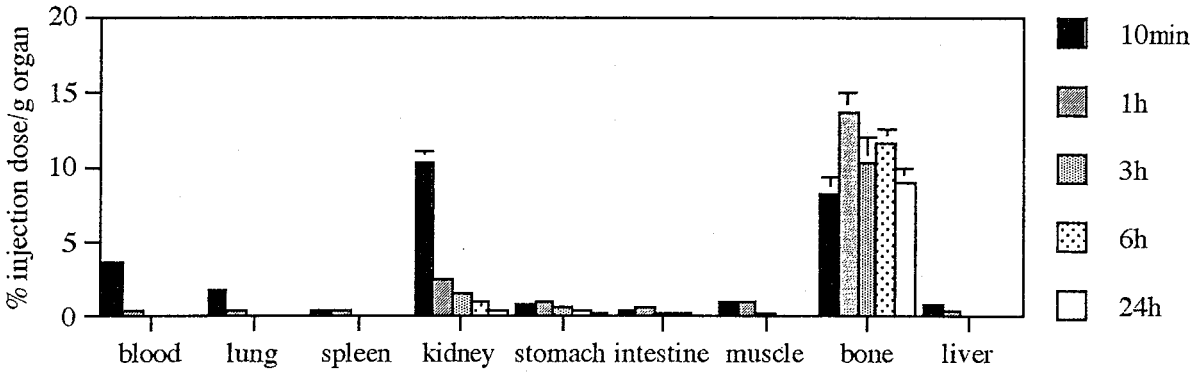


Fig. 1　Biodistribution of radioactivity after intravenous administration of ^{186}Re-EDTMP in normal mice.The values for stomach are exceptionally expressed by "% injection dose/organ", and each column represents the mean+S.E.[n=5].

HASEGAWA, H., SASAKI, N., NOGAWA, N., HASHIMOTO, K., OOHASHI, K.

1C05 薄膜式蒸発器による水蒸発速度および テクネチウムとレニウムの濃縮

（東北大学素材研） ○伊藤 勝雄

【はじめに】テクネチウムは多くの原子価を有し、核燃料サイクルの種々の工程に認められ、またその水溶液からも揮発しやすい放射性物質である。低レベル放射性廃液の濃縮法に薄膜式蒸発器を用いることにより、Tc の揮発性を抑制して廃液を減容することが考えられる。大量の低レベル放射性廃液を減容して保管する為の技術開発が目的である。

【実験】所定時間毎に蒸発液量および濃縮液量を測定して蒸発速度を求め、蒸発器の回転翼速度および加熱温度、溶液の供給速度などが水の蒸発挙動に及ぼす影響を調べた。テクネチウム－９５ｍトレーサ溶液を使用し、供給液および濃縮液から回収率を求めた。また希薄濃度のレニウム水溶液を処理し、蒸留液中の Re 濃度を ICPMASS で分析し、濃縮液中の Re 濃度を ICPMASS で分析して、除染係数及び回収率を求めた。

【結果と考察】１．回転翼速度が 300 rpm 以下では薄膜が生成せず、600 rpm 以上では蒸発速度はほぼ一定値を示した。２．Figure 1 に示すように加熱温度の増加と伴に蒸発速度は増加した。しかし、３４１K 以上では冷却装置内に霧が認められ冷却効率が低かった。３．水供給速度の増加と伴に蒸発速度は増加したが、約 0.23 $cm^3\ sec^{-1}$ 以上では一定の蒸発速度を示した。また、供給速度が大きくなると薄膜層上部に渦巻き流が生成し、そこに泡が発生した。水泡が弾けるとき溶液中物質の飛沫同伴を齎し蒸留液を汚染することが考えられる。４．テクネチウム－95m および Re の回収率はともに 98%であった。レニウム希薄溶液の濃縮処理により約 10^5 の除染係数を得た。５．水調節器にあらかじめ水が在る場合と無い場合について調べた結果によると、蒸発速度に影響は認められなかったが、水がある場合には薄膜の出現が早かった。

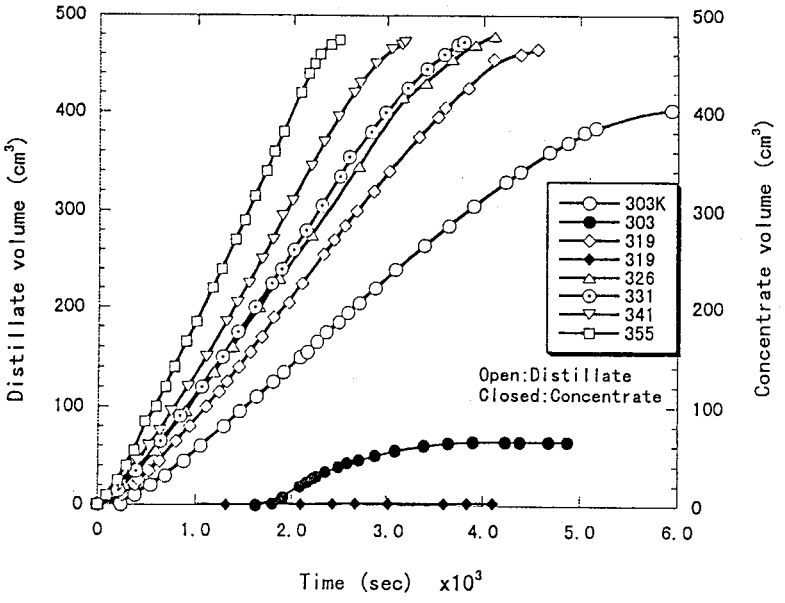


Fig. 1 Temperature dependencies of volumes for distillate and concentrate with time under the conditions of 600 rpm, 2 kPa, and a 0.23 $cm^3\ sec^{-1}$ feed rate.

以上のように、薄膜式蒸発器による Tc と Re の濃縮挙動を明らかにした。

ITO, K.

1C06 レーザー光音響法によるコロイド粒子成長過程のその場観察
—金、銀、テクネチウム（ＩＶ）、ポリスチレン微粒子への適用—

（東北大院理）○関根　勉･木野彩子･木野康志･川島陽子･工藤博司

【はじめに】　レーザー光音響法は光熱変換を原理とした測定法の一つで、分析化学的には、固体、液体、気体など試料形態にかかわらず微量物質の定量に応用されている。しかし、溶液中に存在するコロイド粒子への光音響法の適用例は数少なく、光音響シグナル強度の定量的な理解にはいたっていない。そこで演者らは、コロイド粒子の種類、大きさ、数密度などの基礎的な因子の光音響シグナル強度への依存性を検討した。

【実験】　窒素レーザーと色素レーザーの組み合わせにより得られる 500 nm のパルスレーザー光を石英セル中のコロイド溶液に照射し、発生した光音響シグナルを圧電素子(PZT)で検出した。金コロイド溶液は塩化金酸のクエン酸還元、銀コロイド溶液は硝酸銀水溶液の水素化ホウ素ナトリウム還元により得た。また、Tc(IV)コロイドは、過テクネチウム酸のスズ(II)還元により調製した。調製後の経過時間に対して光音響測定を行うとともに、コロイド粒子の粒径は透過型電子顕微鏡(TEM)により測定した。また、コロイド生成量はトレーサーで標識したコロイド溶液の限外ろ過により求めた。

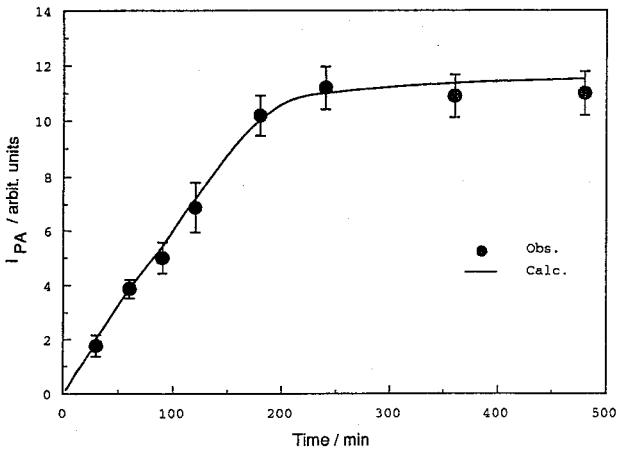


図１.金コロイド溶液調製後の光音響シグナル強度の時間変化.（図中 実線は(1)式による計算値）

【結果と考察】　図１に、金コロイド溶液調製からの経過時間に対する光音響シグナル強度（I_{PA}）の変化を一例として示す。I_{PA}は時間とともに上昇し、４時間程度で一定になる。この間、金コロイドの粒径は3 nmから徐々に増加し、20 nm程度の一定値になる。それと同時に、金コロイドとして溶液中に存在する絶対量も増加することがわかった。すなわち、図１中のI_{PA}の増加は、金コロイド粒子の生成と成長過程を反映している。

金、銀およびポリスチレン微粒子について検討した結果、コロイド粒子からのI_{PA}は、粒径dの粒子の数密度$N(d)/\mathrm{cm}^{-3}$、波長Wの光の吸収断面積（１粒子あたり）$Q_{abs}(W,d)/\mathrm{cm}^2$、用いたセルの光路長$L/\mathrm{cm}$とすると

$$I_{PA}(W,d) = \Gamma \cdot Q_{abs}(W,d) \cdot N(d) \cdot L \qquad (1)$$

のように表されることがわかった（Γは定数）。微粒子の光吸収断面積は、光学定数（複素屈折率）を用いMie散乱理論により計算できる。金コロイド粒子の成長過程に(1)式を適用して得たI_{PA}を図１中の実線で示す。(1)式は実験値をよく再現することがわかる。さらに、銀やポリスチレン微粒子についても同様の関係が得られる。したがって、光音響測定により溶液中に存在するコロイド粒子の成長の様子を、ナノメートルからマイクロメートルの粒径範囲にわたってその場観察することができる。逆に、Tc(IV)コロイドのように光学定数が未知の物質については、(1)式の関係から逆に光学定数を定めることが可能である。

SEKINE, T., KINO, S., KINO, Y., KAWASHIMA, Y., KUDO, H.

1C07 $LiNbO_3$ および $LiTaO_3$ 中の In-117 と Cd-111 の摂動角相関

(京大炉・阪大理[1]・阪大 RI セ[2])○大久保 嘉高・村上 幸弘[1]・斎藤 直[2]・上原 進一・横山 明彦[1]・柴田 誠一・川瀬 洋一

【はじめに】 $LiNbO_3$ および $LiTaO_3$ はそれぞれ T_C=1483 K、938 K の強誘電体で重要な非線形光学材料である。$Li_{0.995}Cd_{0.005}NbO_3$ 多結晶試料中に導入した ^{117}Cd および ^{111m}Cd から生じる ^{117}In および ^{111}Cd に対して 4.2 K で γ–γ 摂動角相関の測定を先に行った。^{117}In に対する電気 4 重極振動数 ω_Q と ^{111}Cd に対する ω_Q との比から In と Cd は純粋なイオン結合性であり、また $^{117}Cd^{2+}$ から $^{117}In^{3+}$ に壊変する際、構造緩和はほとんど起こらないことを結論した[1]。今回、$Li_{0.995}Cd_{0.005}NbO_3$ および $Li_{0.99}Cd_{0.01}TaO_3$ 中の ^{117}In に対する ω_Q の温度変化を測定したので結果を報告する。^{111}Cd に対する ω_Q の温度変化の測定は現在進行中であり、その結果も含めて報告する予定である。

【試料の調製】 京都大学原子炉実験所において、濃縮 ^{116}CdO あるいは ^{110}CdO の中性子照射後、放射性 CdO を Li_2CO_3、Nb_2O_5 (Ta_2O_5) と混合し、空気中 1100℃で焼成して、それぞれ、^{117}Cd あるいは ^{111m}Cd を含む $Li_{0.995}Cd_{0.005}NbO_3$ ($Li_{0.99}Cd_{0.01}TaO_3$) を調製した。

【結果と考察】 図 1 に $Li_{0.995}Cd_{0.005}NbO_3$ 中の ^{117}In の $\omega_Q(T)/\omega_Q(0)$の温度変化を黒丸で、また Hauer らによって測定された単結晶 $LiNbO_3$ 中の ^{111}Cd (←^{111}In)の温度変化[2]を小さな白丸で示す。図 1 には点電荷モデルに基づき格子定数から計算された $LiNbO_3$ 中の Li 位置での $\omega_Q(T)/\omega_Q(0)$の温度変化を破線で示す[2, 3]。計算は ^{117}In の ω_Q の温度変化を低温から室温付近までの範囲で再現するが、^{117}In の ω_Q の値は高温で破線からずれている。図 1 中の実線は $LiNbO_3$ 中の ^{7}Li の ω_Q の温度変化を ^{117}In の $\omega_Q(295)/\omega_Q(0)$の値に一致するようにスケールしたもので[3]、大きな勾配は格子定数の温度変化によって説明されず、Halstead は Li の非対称振動によるものであると解釈した[3]。高温領域での ^{117}In の ω_Q の温度変化も同様に主として In の非対称振動によるものと考えることができる。しかし、^{7}Li と ^{117}In に対する ω_Q の温度変化の割合には大きな差があり、非対称振動の効果は In に対して小さいことを意味する。これは In の質量が Li の質量より大きいことと In^{3+} と O^{2-} 間のイオン結合が Li^+ と O^{2-} のそれより強いことに起因すると考えられる。図 2 に $Li_{0.99}Cd_{0.01}TaO_3$ 中の ^{117}In の $\omega_Q(T)/\omega_Q(0)$の温度変化を示す。$\omega_Q(T)$の値の温度変化は転移点(938 K)付近で変化しており、$LiTaO_3$ の強誘電相転移を反映している。

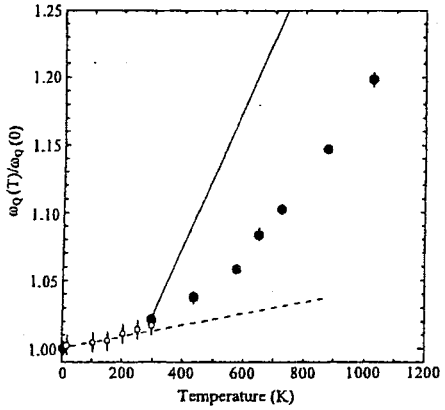


図 1．$Li_{0.995}Cd_{0.005}NbO_3$ 中の ^{117}In の $\omega_Q(T)/\omega_Q(0)$の温度変化．図中の記号の意味については本文を参照せよ．

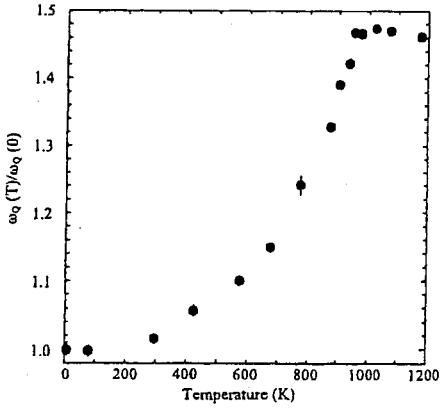


図 2．$Li_{0.99}Cd_{0.01}TaO_3$ 中の ^{117}In の $\omega_Q(T)/\omega_Q(0)$の温度変化．

References
[1] Y. Ohkubo *et al.*, *Phys. Rev. B* 56, 10730 (1997).
[2] B. Hauer *et al.*, *Phys. Rev. B* 51, 6208 (1995).
[3] T. K. Halstead, *J. Chem. Phys.* 53, 3427 (1970).

OHKUBO,Y., MURAKAMI,Y., SAITO,T., UEHARA,S., YOKOYAMA,A., SHIBATA,S., KAWASE,Y.

1C08

放射光励起軟X線発光・吸収分光法を用いた“スーパーダイアモンド“窒化炭素（C_3N_4）結晶薄膜のキャラクタリゼーション

（NTT入シ研[1]，龍谷大[2]，兵工セ[3]，テネシー大[4]，LBNL[5]）
○村松康司[1]，J.J. Delaunay[1]，大山孝[1]林孝好[1]，谷庸治[2]，青井芳史[2]，上條栄治[2]，兼吉高宏[3]，元山宗之[3]，M. M. Grush[4]，R. C. C. Perera[5]

【はじめに】　Cohenら[1]の理論計算により共有結合性窒化炭素，特にβ-窒化炭素（C_3N_4）はダイアモンドに匹敵あるいは凌駕する超硬質材料となりうることが予測された。この理論予測が引き金となり，C_3N_4 結晶の合成とキャラクタリゼーションが注目されている。近年，上條ら[2]は電子サイクロトロン共鳴（ECR）スパッタリング法を用いてβ型が主成分の C_3N_4 微結晶の合成に成功した。この C_3N_4 結晶は新規な材料であるため，その物性，特に電子状態は興味深い。一方，高輝度放射光を用いた高分解能軟X線発光・吸収分光法は軽元素材料の電子状態解析／キャラクタリゼーション手法として有効である[3]。そこで，この ECR-C_3N_4 薄膜のキャラクタリゼーションと電子状態に関する情報を得ることを目的として，高分解能軟X線発光・吸収スペクトルを測定した。本報では ECR-C_3N_4 薄膜の膜質評価も含めて，その電子状態について議論する。

【実験】　測定試料は化学量論組成に近く結晶性の ECR-C_3N_4 薄膜である。分光測定は Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL)の Advanced Light Source (ALS)において行った。*CK* および *NK* 領域の発光・蛍光収率吸収スペクトルはビームライン BL-8.0，全電子収量吸収スペクトルは BL-6.3.2 の分光装置を用いて測定した。

【結果および考察】　ECR-C_3N_4 薄膜と参照試料の *CK* X線発光スペクトルを図1に示す。ECR-C_3N_4 薄膜のスペクトルはシャープな主ピークと低エネルギサテライトからなり，参照試料のスペクトル形状と明らかに異なる。励起エネルギを *CK* 吸収端近傍で変化させて得られた選択励起 *CK* X線発光スペクトルを図2に示す。図1および2から，ECR-C_3N_4 薄膜が（1）アモルファス成分をほとんど含まないこと，（2）C-N結合は分子のような局在化した電子構造をとること，そして（3）C2p 価電子軌道のバンド構造は非分散状態にあることがわかった。さらに，放射光励起軟X線発光・吸収分光法は窒化炭素のキャラクタリゼーションに非常に有効であることを示した。

[1] M. L. Cohen, Phys. Rev. B32, 7988 (1985). [2]谷，青井，上條，1998 年春季応用物理学会学術講演会，28p-ZG-4. [3]村松康司，X線分析の進歩，29，1（1998）.

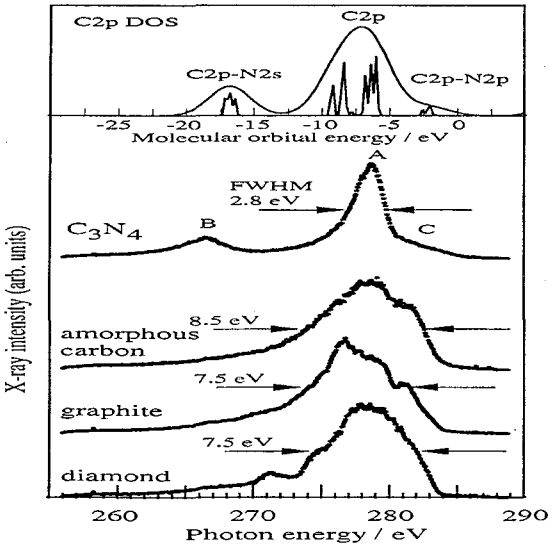


図1．ECR-C_3N_4 薄膜と各種参照試料の *CK* X線発光スペクトル。励起エネルギは 320 eV に固定。DV-X α法による $C(NH_2)_4$ クラスタの C2p-部分電子状態密度を上図に示す。

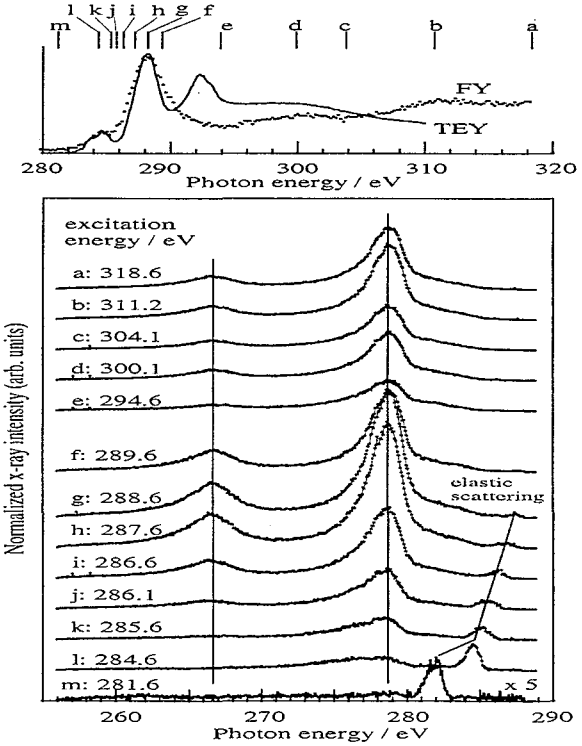


図2．ECR-C_3N_4 薄膜の選択励起 *CK* X線発光スペクトル。*CK* 吸収端のX線吸収スペクトル（上図）に励起エネルギ位置を a~m で示す。

MuramatsuY.*, DelaunayJ. J., OyamaT., HayashiT., Tani Y., Aoi Y., Kamijo E., KaneyoshiT., MotoyamaM., Grush M. M., and PereraR. C. C.,　*e-mail: murama@ilab.ntt.co.jp

1C09 1.3 K液体ヘリウム中におけるトリチウムの水素引抜トンネル反応、$T + H_2(D_2) \rightarrow HT(DT) + H(D)$、及び再結合反応,$T + H(T) \rightarrow HT(T_2)$

(原研基礎セ[1]・名古屋大工[2]) ○荒殿保幸[1]、松本拓郎[2]、高柳敏幸[1]、熊田高之[1]、宮崎哲郎[1、2]

[はじめに] トリチウム (T) の反跳化学反応は、いわゆるホットアトム化学として気相から凝縮相にわたり非常に多くの反応系で実験され、多くの成書もあり、実験され尽くされた感がある。しかしながらその実験温度は液体窒素温度以上であり、それ以下の温度では実験は行われていない。近年、水素同位体の極低温での化学反応が、量子力学的なトンネル効果の観点から注目されるようになってきており、H,D 原子と水素同位体分子 (H_2、D_2、HD) との水素引き抜き反応に関しては、反応のメカニズム等明らかになりつつある。演者等は 1.3K でのTと水素同位体分子との間の引抜反応や $^3He(n,p)T$ で生成する、T と p (H) との再結合反応について、実験・理論の両面から検討したので報告する。

[実験] T の生成には $^3He(n,p)T$ 反応を利用した。^3He-^4He 混合溶液、約 0.1 モルあるいは H_2,D_2 を添加した試料を 1.3±0.1K で約 10-50 時間照射した。照射孔は JRR-2 (現在は廃炉) 及び JRR-3M の中性子散乱実験用であり (熱中性子束 ：約 $10^7/cm^2/sec$) ガンマ線量率は極めて低い。

[結果及び考察]

(1) 水素引抜反応におけるトンネル効果

^3He と ^4He の混合ガスに 1 vol%の H_2, D_2 (H_2/D_2=1/9) を添加して、引抜反応の同位体効果を調べた。結果を Table 1 に示す。これらの値から同位体効果を求めると約 150 となる。本反応系はT に質量の近い ^3He と ^4He の混合溶液を反応媒体としており、191keV の反跳エネルギーを持って生成したT は媒体との衝突により反応までに十分熱化される。その熱化の過程において、励起ヘリウムによる H_2, D_2 の分解から生成するH やD 原子との反応によってもHT,DT は生成すると考えられるがその同位体効果は2 より小さい。従って本実験で得られた大きな同位体効果は、理論計算とも定性的には一致することから熱化Tによるトンネル引抜反応、$T + H_2 \rightarrow HT + H$ 及び $T + D_2 \rightarrow DT + H$、によりもたらされたものである。

Table 1 水素引抜反における生成物分布 (H_2/D_2=1/9、$H_2 + D_2$ = 1 vol%)

反 応 系	HT(%)	DT(%)	備 考
$^3He/^4He$=0.282/0.718	94.6±1.1	5.4±1.1	超流動溶液
$^3He/^4He$=0.670/0.330	94.2±0.8	5.8±0.8	常流動溶液

(2) 再結合反応 ($T + H \rightarrow HT$, $T + T \rightarrow T_2$)

反応生成物HT 及び T_2 のモル分率収率は、HT が 99%、T_2 が約1%であり、HT が選択的に生成される。その理由は検討中であるが、量子媒体としての液体ヘリウムの特性を反映しているのではないかと考えられる。

ARATONO,Y., MATUMOTO,T., TAKAYANAGI,T., KUMADA,T., MIYAZAKI,T.

1C10

^{59}Fe トレーサを用いてのクエン酸緩衝液中における鉄エピガロカテキンガレート錯体沈殿の速度論及び平衡論的検討

(静岡大理 ・ 昭和薬大*・ 静岡県立大**) ○大橋康典 ・ 吉岡濶江 ・ 遠藤和豊*・ 吉岡 寿**

【はじめに】

緑茶の渋み成分である茶カテキン類には、癌予防効果があることが動物実験等で明らかになり近年話題を呼んでいる。茶カテキン類の 60%を占めるエピガロカテキンガレート(EGCg)は、茶カテキン類の中で最も抗酸化能が高く、*in vivo* 及び *in vitro* の両面から研究されてきた。 この実験では、鉄とEGCg の相互作用を調べる目的で、pH 6～7 のクエン酸緩衝液中で生成される Fe-EGCg 錯体沈殿の生成速度を ^{59}Fe トレーサーを用いて測定した。そしてこの鉄錯体の酸化数を ESR、及びメスバウアー測定により調べた。

【実験】

まず、$FeCl_3$ (+$^{59}FeCl_3$)を含む SSC 緩衝溶液([Na_3-citrate] = 0.015 M、[NaCl] = 0.15 M)中に EGCg を添加し、全容量 5 ml の溶液とした。 この溶液を素速く均一混合した後、マイクロチューブ(15本)に 300 μl ずつ分注し、37±0.1℃の恒温槽中で反応させた。一定時間毎にマイクロチューブを取り出し、遠心分離後、上澄み液 50 μl を採取し、その放射能を NaI(Tl)シンチレーション検出器で測定した。スタンダードの放射能と比較することで、生成した紫色の Fe-EGCg 錯体の沈殿量を算出した。 そして、^{59}Fe を添加せずに、同様な実験を行い、その上澄み液中の Fe-EGCg 錯体の吸光度(波長 550 nm 付近)を測定し、^{59}Fe を用いたトレーサー実験との比較検討を行った。また溶液中の鉄の酸化数を調べるために、^{59}Fe の代わりに ^{57}Fe を用いて同様の実験を行い、メスバウアー及び ESR 測定を行った。

【結果と考察】

3.0×10^{-4} M $FeCl_3$ を含む SSC 緩衝液に、種々の濃度の EGCg を添加したときに生成した Fe-EGCg 錯体の沈殿量の経時変化を右の図に示す。ここでは、縦軸は鉄の全量を 1 としたときの沈殿生成量、横軸は試料混合後の反応時間である。図より明らかなように、沈殿の生成速度及び生成量は EGCg 濃度に依存して大きくなった。図中の反応時間 12 h におけるデータを用いて、鉄と EGCg がどの様な比で沈殿しているのかを推察するために、見かけの溶解度積を算出した。ここでは、鉄と EGCg の比を変えてシミュレートした。その結果、EGCg 1に対して鉄が 5～6 結合して沈殿していると考えるのが妥当であった。しかし、この解析はまだ充分でないので、速度論的な方法を用いてさらなる検討を試みている。

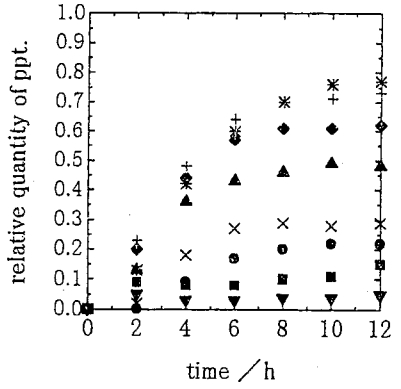


Fig. Relative quantity of precipitation vs. time after EGCg was added in SSC buffer of $FeCl_3$

$[Fe]_{init}$ = 3.0×10^{-4} M
SSC : [NaCl] = 0.15 M
[Na-citrate] = 0.015 M
temp. : 37℃

*	[EGCg] = 1.5×10^{-3} M	pH 6.4
+	[EGCg] = 6.0×10^{-4} M	pH 6.6
◆	[EGCg] = 4.5×10^{-4} M	pH 6.6
▲	[EGCg] = 3.0×10^{-4} M	pH 6.6
×	[EGCg] = 2.0×10^{-4} M	pH 6.8
●	[EGCg] = 1.5×10^{-4} M	pH 6.7
■	[EGCg] = 1.0×10^{-4} M	pH 6.7
▼	[EGCg] = 0.5×10^{-4} M	pH 6.8

OHASHI, Y., YOSHIOKA, H., ENDO, K., YOSHIOKA, H.

1C11 混合溶媒(メタノール/水)中の Sm^{3+} の溶媒和数の変動について

(静岡大理) ○有阪 真、堀 政晴、菅沼英夫

[緒言] 水溶液中で解離したイオンは周りを水分子に取り囲まれて存在している。その具体的構造は、X 線回折法などを用いた構造化学的研究によっている。実際、Spedding 等は水溶液中でのランタノイドイオンの水和数の決定を X 線回折法を用いて行っている。また Kanno らは、水溶液を急冷することでガラス状にし、ラマンスペクトロメトリーを行い水和数を決定している。三価ランタノイドイオンの溶媒和はほとんど静電的なもので支配されているため、その第一溶媒和圏に水よりかさ高い溶媒分子が入り込むと、第一溶媒和圏の溶媒和数は容易に減少することが考えられる。このような溶媒和数の変動は一般に、上述のような手法、および EXAFS を用いて調べられるが、いずれの方法もランタノイドイオン濃度がある程度高い必要がある。そこで、トレーサ濃度でも可能な手法の開発を目的として溶媒抽出法による生成定数を用いる、以下の二つの方法を Eu(Ⅲ)に試みている。(1)接触イオン対を形成するフッ化物イオンとの第一次生成定数($\beta_{1(F)}$)をさまざまなメタノールモル分率(X_s)で求め、F^-の水から混合溶媒への移行ギブズ自由エネルギー($\Delta G_{tr}(F^-)$)を用いて、Eu^{3+}と EuF^{2+}の水溶液、および混合溶媒溶液それぞれの溶媒和エネルギーの差($-\Delta g$)と Eu^{3+}と F^-の間の静電エネルギーの変動(Δg_v)の和の変動の様子から溶媒和数の変動を推定する。(2)溶媒共有型イオン対を形成する塩化物イオンとの第一次生成定数($\beta_{1(Cl)}$)を Born 型の自由エネルギーの式に適用し、Eu^{3+}と Cl^-のイオン間距離(d_{Eu-Cl})を算出し、その距離変動の様子から溶媒和数の変化を推定する。本年度は、(1)と(2)の有効性を確かめるために Sm(Ⅲ)に対して適用を試みることにした。

[実験] Sm(Ⅲ)はトレーサ濃度の ^{153}Sm を用いた。SmF^{2+}生成の $\beta_{1(F)}$はイオン強度 0.10 M の混合溶媒(メタノール/水)中での値、$SmCl^{2+}$生成の $\beta_{1(Cl)}$はイオン強度 1.00 M である混合溶媒(メタノール/水)中での値である。これらの生成定数は、ビス(2−エチルヘキシル)リン酸−トルエン溶液を用いた逆溶媒抽出法により求めた。溶媒抽出における分配比は、水素イオン濃度によって大きく影響されることがわかっている。また、混合溶媒中における水素イオン濃度差は pH メータ値の差として測定できることもわかっているので、β_1 を求める際の補正は pH メータ値の差に基づいて行った。混合溶媒中におけるフッ化物イオン濃度は、イオン選択電極により測定した。塩化物イオン濃度については、完全解離しているとして計算により求めた。今回行った実験条件下では、溶媒抽出時の混合溶媒溶液相からの水、およびメタノールのトルエン相への移動は生成定数を求めるためには無視できるほどのものであった。

[結果と考察] (1)Fig.1 より X_s に対する $(-\Delta g/RT+\Delta g_v/RT)$の変動は、$X_s=0.06$ 付近で変曲点を持つ。この付近で、溶媒和数 8 と 9 の混合状態から 8 になったと考えられる。(2)Fig.2 においても同様の X_s でイオン間距離の変動が見られる。$X_s=0.06$ 付近までの減少は溶媒和数の減少を示し、それ以降の増加は、X_s の増加に従って、水がメタノールに置換されていくためと考えられる。(1)と(2)の変動の様子は溶媒和数変動の様子が一致していることを示している。

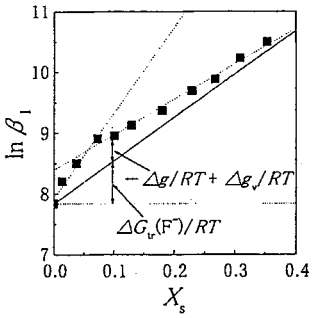


Fig.1 Variation of the value of $\ln \beta_{1(SmF)}$ against the mole fraction of $CH_3OH(X_s)$ in the mixed solvent.

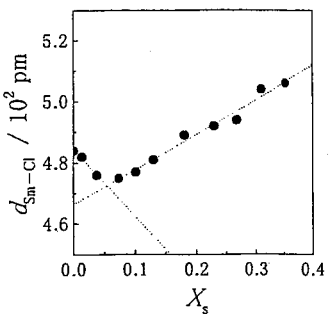


Fig.2 Variation of the estimated distance of $Sm^{3+}-Cl^-$ in CH_3OH/H_2O system of 1.00 M(H,Na)(Cl,ClO_4).

ARISAKA, M., HORI, M., SUGANUMA, H

1C12 Solvent Extraction Behavior of Radioiodine

(Graduate School of Science, Osaka University) ○ Mahfuza sharifa SULTANA, Atsushi TOYOSHIMA, Asae MITO, Naruto TAKAHASHI and Hiroshi BABA.

Introduction

Several authors have reported that an anomalous behavior of radioiodine is observed at low concentration. The first quantitative study of the anomaly was undertaken by assuming formation of a complex radioiodine species, conceivably radiocolloid in the alkaline tracer solution and the reaction mechanism was proposed. In the present study we have investigated the solvent extraction behavior of radioiodine by using radioiodine tracer solutions of various pH in order to gain deeper insight into the anomalous behavior of radioiodine at low concentration by the reaction mechanism.

Experiment

We used radioiodine tracers ^{131}I, ^{130}I and ^{126}I with half lives 8.04d, 12.5hr and 13.1d respectively produced by the nuclear reaction with the AVF cyclotron at the RCNP Osaka University. We also used ^{131}I purchased from the Japan Radioisotope Association. The tracer solutions were initially prepared by dissolving radioiodine tracers in HNO_3 and then converted to alkaline by adding NaOH solution. In the extraction process, radioiodine tracer solution was mixed with various concentrations of carrier iodide solutions and then oxidized by H_2O_2 in presence of HNO_3. The resulting aqueous solution was shaken with CS_2 and after centrifugation the γ-rays of the both phases were measured by the HP Ge detector.

Results and Discussion

We found that the distribution ratio of radioiodine remained constant with oxidation time (0 -300min) at low pH of the initial tracer solution whereas it increased with increasing oxidation time and reached a saturation value at pH > 7 . We also observed that the distribution ratio of radioiodine remained constant with carrier iodide concentration (10^{-11} – 10^{-2}M) when strong acidic initial tracer solution was used whereas it increased with increasing carrier iodide concentration and reached a saturation value when high pH of initial tracer solution was used (Fig.1). We have tried to explain this complex feature by means of the reaction mechanism assuming that HNO_3 oxidized radiocolloid of radioiodine during the preparation of strong acidic tracer solution whereas radiocolloid of radioiodine was oxidized slowly by a mixture of HNO_3 and H_2O_2 at pH > 7 during the extraction process.

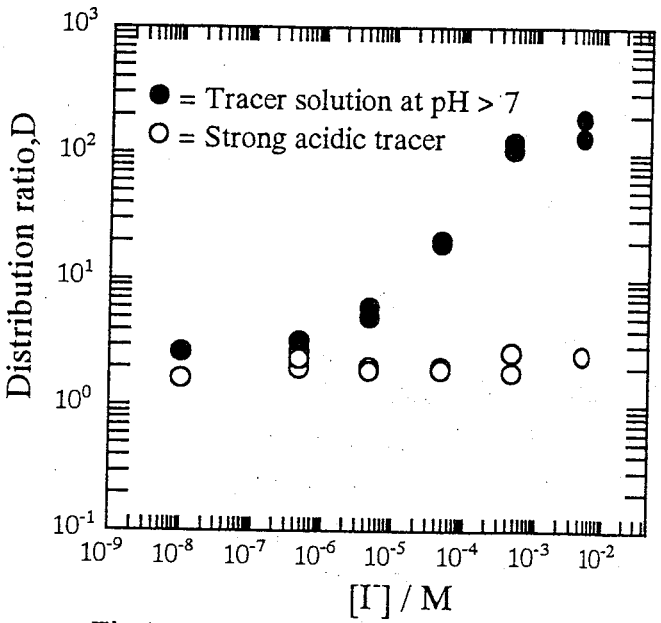


Fig.1 Dependence of the distribution ratio of radioiodine on the initial carrier iodide concentration.

SULTANA, M. S., TOYOSHIMA, A., MITO, A., TAKAHASHI, N. and BABA, H.

1C13 気相における塩化ランタンと dipivaloylmethane の錯形成反応について

(新潟大理) ○金子哲也・木村進一・田村啓子・工藤久昭

【はじめに】本研究は、短寿命超重アクチノイド元素の on-line 化学分離に利用される熱クロマトグラフ法の基礎的研究として行われた。
熱クロマトグラフ法では揮発性錯体の吸着エンタルピーの差異を利用して分離が行われる。そのため気相中での錯形成反応がいかに進行しているかが重要となる。われわれの研究室では錯形成試薬として dipivaloylmethane (dpm)を用い、気相におけるランタニド元素との反応性および、dpm 錯体の形成機構についての検討を行った。

【実験】核反応生成物の gas-jet による輸送を考え、試料には塩化ランタンを用いた。
本実験で用いられた装置を Fig.1 に示す。この装置はガスクロマトグラフ-質量分析器(GC-MS)を基に dpm 蒸気発生部、反応部そして質量分析器で構成されている。

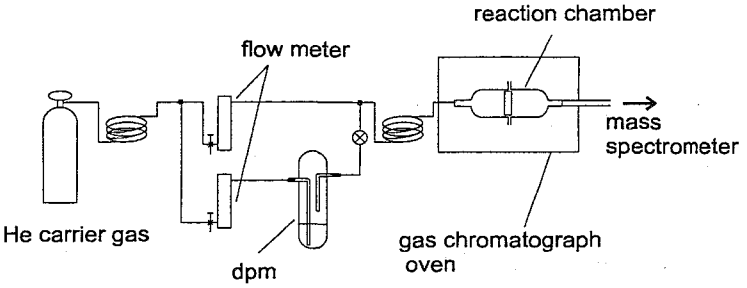


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus for gas phase reaction.

キャリアーガスである He ガスは dpm 蒸気発生部を通り、反応室内に導入される。反応室内には $LaCl_3$ を真空蒸着したガラスフィルターが取り付けられている。ここでの反応生成物はそのまま He ガスによって質量分析器に運ばれ、分子イオンピークの同定が行われる。なお、反応室はガスクロマトグラフオーブン内に設けてあり、温度制御ができるようにした。
反応生成物の同定はフラグメンテーションがもっとも少ない条件下で、質量スペクトルを観測することで行われた。反応に対する系の温度変化の影響を調べるために、いくつかの昇温速度について測定をおこなった。

【結果と考察】これまでの研究で、得られる揮発性 La-dpm 錯体のほとんどが $LaCl_2$(dpm)であることがわかっている。この $LaCl_2$(dpm)について、いくつかの昇温速度でのクロマトグラムを Fig. 2 に示す。これをもとに、発生気体分析の手法を応用して、$LaCl_2$(dpm)が生成される錯形成反応についてその見かけの活性化エネルギーを求めた。求められた活性化エネルギーは非常に小さく、約 13 kJ/mol であった。この値は dpm 分子の運動エネルギーと比較できるほどの大きさである。このことから、塩化ランタンと dpm の気相中における錯形成反応は迅速に進行し、揮発性錯体を形成することが分かった。

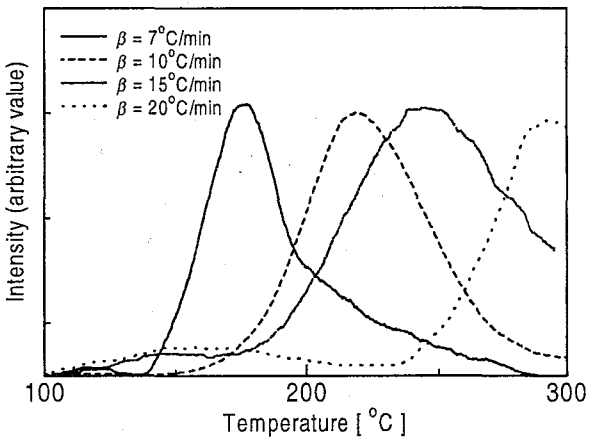


Fig.2 Chromatograms of $LaCl_2$(dpm) obtained in the reaction of $LaCl_3$ under the different heating rate (β).

KANEKO, T., KIMURA, S., TAMURA, K., KUDO, H.

1C14

プール型原子炉の燃料破損監視
－ 気液向流接触カラムによる希ガス壊変生成物の連続抽出 －

(立教大理・立教大原研[1])○山田親義・佐々木研一・林脩平[1]・松浦辰男[1]

【はじめに】 原子炉における燃料破損監視 (Fuel Failure Detection; FFD)は，原子炉安全管理上，重要な測定の一つである．そこで我々は，炉心部で生じ１次冷却水中に漏れ出す核分裂生成物(FP)起源の希ガス^{88,89}Krおよび^{138}Xeを，冷却水中に窒素ガスを吹き込むことにより連続的に捕集し，捕集容器中で壊変させ，それぞれの娘核種である^{88,89}Rbおよび^{138}Csを水に抽出し，放射能を測定し破損監視する方法をいくつか試みてきた．本研究においては，希ガスを含む窒素ガスと，娘核種抽出のための水が向流的に接触する気液向流接触カラムを用いることにより，連続的にサンプリングと娘核種の抽出を行い，原子炉運転中の連続監視を可能とした．

【実験】 今回用いたシステムの概略を Fig. 1に示す．原子炉冷却水プールの中位の深さ(2.4 m)に種々の流速 (0.1～2.0 L/min)で窒素ガスを吹き込み，FP起源の希ガスを気相に抽出し，プール上で捕集した．このガスを気液向流接触カラム(内径100 mm, 長さ2000 mm, 親水性の寒冷紗で全面内張り)の下方から導入し，上方から塩化ルビジウム－塩化セシウム溶液を内壁の寒冷紗に沿って流下させ，両者を向流的に接触させ，生成した^{88,89}Rbおよび^{138}Csを水相に抽出し，Ge検出器に導き連続的にガンマ線スペクトルを測定した．

【結果と考察】 原子炉出力が100 kWに到達後，希ガスの娘核種の計数率は上昇をはじめ，3 時間ほどで飽和に近づく．そこで，3時間から6時間の間の平均計数率を飽和値とみなし，この値と窒素ガス流速との関係をFig. 2に示した．ガス流速の増加と共に計数率は増加し，やがて一定に近づくことがわかる．娘核種の計数率を決める要因としては，①プール内での希ガス捕集効率，②気液向流接触カラムにおける希ガスの滞留時間，③カラム-Ge 検出器間の送液時間などであるが，今回は③を一定とした．従って，ガス流速を増加させた場合，②は小さくなり娘核種を逃すが，その減少を補いなお余るほど①が増加するものと考えられる．

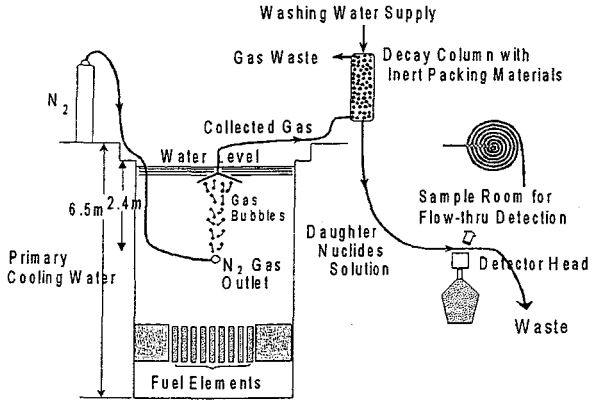


Fig. 1 Layout of Fuel Failure Detection System

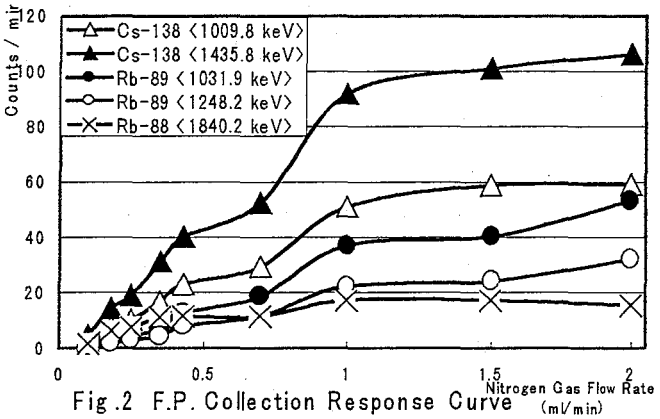


Fig.2 F.P. Collection Response Curve

YAMADA, C., SASAKI, K., HAYASHI, SHU A., MATSUURA, T.

1C15 高エネ研中性子実験施設の減速材用純水循環装置ステンレス配管の腐食とＢｅ－７の付着

（高エネ研）○三浦太一・飯島和彦・別所光太郎・
古坂道弘・伊藤晋一
（ＴＮＳ）　石浜茂夫・国府田保

１　はじめに

諸外国の大強度加速器中性子実験施設では、核破砕反応で生成した高速中性子の減速材として純水を使用しているが、純水減速装置の配管に、純水と高速中性子の核破砕反応で生成する^{7}Ｂｅが付着し、加速器停止時の作業者の被ばくの原因となっている。高エネルギー加速器研究機構の将来計画であるＪＨＦ計画でも大強度中性子実験施設の建設が予定されているため、既設の高エネ研中性子実験施設の減速材用純水循環装置のステンレス配管への^{7}Ｂｅの付着について検討した。本装置は、核破砕反応で生成した高速中性子の減速材として約３０Ｌの純水を、閉鎖系で循環させ、ステンレス配管や純水と中性子の核反応で生成した放射性同位元素は、イオン交換樹脂で除去している。運転開始後約１５年が経過しているが、その間純水の交換はなく、現在の純水のｐＨは、約８．５とややアルカリ性となっている。またイオン交換樹脂には、^{7}Ｂｅ、^{54}Ｍｎ等の放射性同位元素が、吸着されている。

２．実験と結果

^{7}Ｂｅがステンレス配管に付着することを確認するため、イオン交換樹脂をバイパスさせ運転を行った。その結果運転停止後に純水中に検出された放射能は、^{7}Ｂｅと同様に純水と高速中性子の核破砕反応で生成する^{3}Ｈは予想値とほぼ一致したが、^{7}Ｂｅは予想値の１％以下であり、イオン交換樹脂がない場合は、ほぼ１００％の^{7}Ｂｅがステンレス配管に付着することがわかった。次にステンレス配管の一部（約５ｃｍ）を取り外し希硝酸溶液で超音波洗浄したところ、配管から大量の腐食物が剥離し、その化学分析と放射能測定から、腐食物はステンレスの構成元素である鉄、クロム、ニッケルの硫化物であり、それらの腐食物に大部分の^{7}Ｂｅが付着していることがわかった。さらに減速材である純水をイオンクロマトで分析した結果、運転前には存在しなかったSO_4^{2-}が運転後には、約５ｐｐｍ含まれていた。

３．考察

実験結果から、放射線損傷によりイオン交換樹脂から硫酸イオンが遊離し、この硫酸イオンがさらに放射線分解により硫黄イオンとなりステンレス配管を腐食し、そこに^{7}Ｂｅが付着するのではないかと考え、現在イオン交換樹脂と硫酸イオンの放射線分解について実験中であり、上記の結果と合わせて討論会で報告する。

MIURA,T., IIJIMA,K., BESSHO,K., FURUSAKA,M., ITOH,S., ISHIHAMA,S., KUNIFUDA,T.

1C16 高エネルギー陽子加速器のトンネル内で生成する放射性エアロゾル(チェンバー実験における結果)

(高エネ研・原研[1]) ○沖 雄一、神田征夫、近藤健次郎、遠藤 章[1]、大石哲也[1]

[はじめに] 運転中の高エネルギー陽子加速器のトンネル内には、主に核破砕反応により空気等から生成する種々の放射性核種が、エアロゾルやガスとして存在している。これらの生成量、割合ならびに生成機構に関する知見は、物理・化学的な興味のみならず、保健物理の観点からも非常に重要なものとなる。演者らのグループでは以前、運転中の加速器トンネル内の空気をそのままサンプリングし、生成した放射性エアロゾルの粒径分布などについて報告した。[1)] 今回、生成機構等に関するさらに基礎的な知見を得るために、加速器内に設置したAlのチェンバーに、条件を制御した空気をトンネルの外から導入し、放射化して戻る空気に対して各種の分析を行った。本発表では、得られた結果の内、生成する放射性エアロゾルの核種の種類と一部の核種についてはその粒径分布の特徴について述べる。

[実験] 高エネ研の12GeV陽子シンクロトロンのEP2ビームライン内に図1に示すような配管系を設置し、Ptターゲット直後にAl製のチェンバーを設置した。配管系にエアロゾルを除去した空気を導入し、チェンバーから戻る空気に含まれるエアロゾルをミリポアフィルター(孔径0.45μm)により捕集した。捕集時の陽子束は、0.3〜0.6×10^{12} protons/s (Ptターゲット直前)であった。このフィルターをGe半導体検出器により測定し、核種分析を行った。またエアロゾルの粒径分布はスクリーンタイプの拡散バッテリーを用いて測定し、非放射性エアロゾルと放射性エアロゾルの双方の粒径分布を求めた。非放射性エアロゾルの測定では、エアロゾル濃度の測定にCondensation nucleus counter (CNC)を用いた。

[結果および考察] 図2にフィルターに捕集されたエアロゾルのγ線スペクトルの例を示す。^{7}Be (半減期 53.3 d)、^{24}Na (15 h)、^{28}Al (2.24 m)、^{27}Mg (9.46 m)、^{38}S (170 m)、^{38}Cl (37.2 m)、^{39}Cl (56.2 m)などの放射性核種に加えて、強い消滅γ線のピークが認められた。これらの放射性核種は空気中のArなどから核破砕反応により生成するものと、Alのチェンバーからの反跳を起源とするものとに分けられる。消滅γ線のピークは、^{11}C (半減期 20.39 min)、^{13}N (9.965 min)、^{15}O (2.037 min)などからなり、減衰曲線の解析により、主要成分に分離することができた。拡散バッテリーによる実験とこの減衰曲線の解析を組み合わせることにより、^{11}Cと^{13}Nのエアロゾルの粒径分布をはじめて測定することができ、中央径(半径)として^{11}C: 0.03μmと^{13}N: 0.07μmの値を得た(空気を〜60 m^3/hの流速でチェンバーに導入した場合)。講演では、チェンバーに導入する空気の流速や純度を変化させた場合の影響なども述べる。

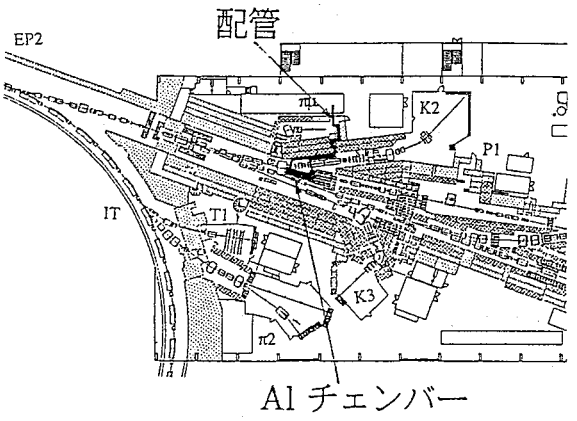


図1 EP2に設置したAlチェンバーと配管系

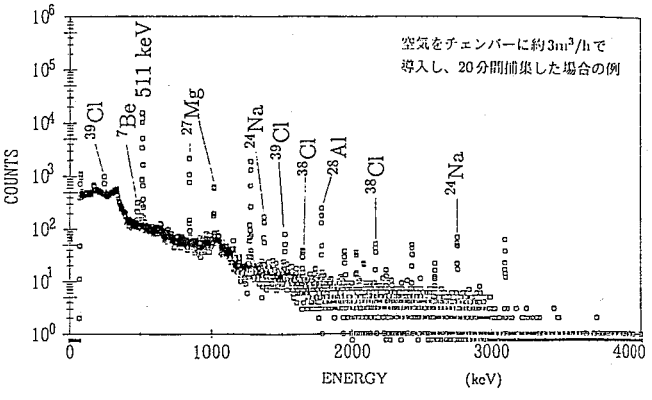


図2 エアロゾルを捕集したフィルターのγスペクトル

文献1) H. Muramatsu *et al., Appl. Radiat. Isot.*, **39**, 413–419 (1988)

OKI, Y., KANDA, Y., KONDO, K., ENDO, A., OISHI, T.

1C17 高エネルギー陽子加速器のトンネル内で生成する^{11}Cガスの化学形

(高エネ研・原研[1]) ○沖 雄一・遠藤 章[1]・神田 征夫・
大石 哲也[1]・近藤 健次郎

【はじめに】 高エネルギー陽子加速器トンネル内の空気中には，核破砕反応により様々な放射性核種が生成される。これらの核種の吸入摂取に対する被ばく評価においては，核種の粒子径，化学形等が重要なパラメータとなる。そこで前発表[1]に続き，本発表では，高エネルギー陽子加速器トンネル内において生成量が大きい^{11}Cについて，その化学形を調査した結果について報告する。

【実験】 実験は，高エネ研12 GeV陽子シンクロトロンEP2ビームラインにおいて行った。前発表[1]と同様の条件で空気の照射を行い，生成された^{11}Cの濃度及び化学形を以下の方法を用いて測定した。1) ミリポアフィルター(孔径 0.45 μm)を用いたエアロゾル成分の濃度測定，2) 1.5 ℓ通気型電離箱を用いたガス状成分の濃度測定，3) KOH溶液トラップ及びホプカライト酸化触媒カラムを用いた化学形ごとの濃度測定，4) モレキュラシーブカラム及び活性炭カラムを用いたラジオガスクロによる化学形分析。

【結果と考察】 図1に，電離箱に捕集したガス状核種による電離電流の経時変化を示す。この曲線を，^{15}O，^{13}N，^{11}C及び^{41}Arの半減期を定数とした4つの指数関数によりフィッティングし，捕集時(経過時間 = 0 min)における電離電流を求め，核種ごとの濃度を決定した。得られたガス状成分の濃度を，フィルタを用いて測定したエアロゾル成分濃度と比較した結果を図2に示す。^{11}Cは98 %以上がガス状で，その割合は空気の流量率に依存しない。KOH溶液トラップを用いた測定の結果，ガス状の^{11}Cのうち，80 %が^{11}CO，その他の成分が20 %であることが分かった。また，ラジオガスクロによる分析では，^{11}CO，$^{11}CO_2$が検出され，その組成は，それぞれ84 %，16 %であった。KOH溶液トラップ及びラジオガスクロで得られた^{11}CO及び$^{11}CO_2$の濃度の合計値は，電離箱による^{11}C濃度と，ほぼ一致することから，その他の化学形の^{11}Cの割合は極めて少ないと考えられる。^{11}Cについては，CO，CO_2及び有機化合物蒸気の化学形に対して，吸入摂取時の線量係数が与えられている。本実験の結果，高エネルギー陽子加速器トンネル内で生成される^{11}Cは大部分がガス状であり，線量係数が最も小さい^{11}COが主成分であることが明かとなった。

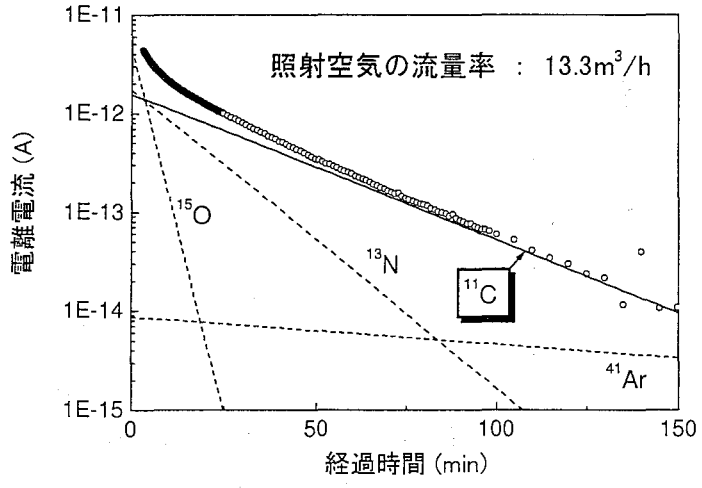


図 1 ガス状核種による電離電流の経時変化

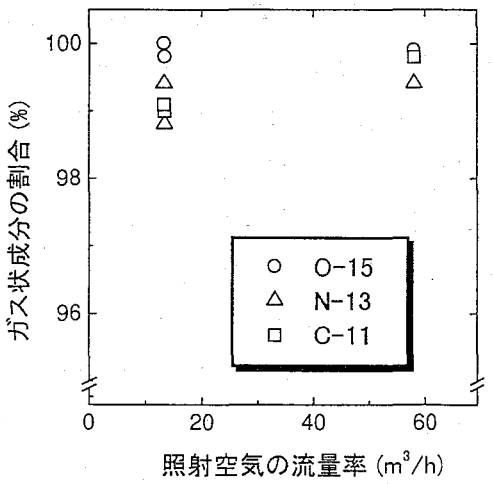


図 2 空気流量率に対するガス状成分の割合

【文献】 1) 沖 雄一，他：第42回放射化学討論会予稿集 1C16 (1998).

OKI, Y., ENDO, A., KANDA, Y., OISHI, T., KONDO, K.

1C18 ポリビニルアルコール(PVA)フィルム中でのポジトロニウムの寿命

(信州大教育)○村松久和・松本訓幸・峯川幸子・八木由紀子・笹井茂則

【はじめに】

ポジトロニウムの寿命が、物質の性質のひとつである自由体積に依存しているという多くの報告があり、定性的によく成り立つことから、絶縁体中の分子サイズの空孔の優れたプローブであり得る。しかし一方で、それが元来存在している空孔を正しく反映しているのかという疑問もある。ポジトロニウムの寿命を決定する要因は様々で複雑であると思われ、そのために実験者によって異なった結果が与えられることが多々あり、対象となる物質の性質を精確に規定することが重要である。本報告では、ポリビニルアルコール(PVA)フィルム内に生成したオルソーポジトロニウム(o-Ps)の寿命を、ＰＶＡの重合度、結晶化度、ケン化度を指標にしながら調べた。

【実　験】

試料として用いたＰＶＡは大きく二つに分けられ、一方は、市販品および信越化学(株)から提供されたもの、他方は市販のポリビニル酢酸(以下、ＰＶＡｃ)から誘導されたものである。ケン化度の異なるＰＶＡ(特に 60%以下の)は、ＰＶＡｃからの部分ケン化によって調製した。寿命スペクトルは、ポジトロン線源として～20 μ Ci の^{22}Ｎａを用い、プラスティックシンチレータ(NE-102)を検出器とした遅延同時計数回路を使って測定した。スペクトル解析には「POSITRONFIT」コードを用い、３成分解析から寿命τ及び強度Ｉを求めた。

【結果および考察】

重合度が 190, 240, 360, 500,1500 ,2000 の市販品、提供品を測定試料とした重合度、結晶化度、ケン化度に対する o-Ps の寿命(τ_3)の変化の測定から、完全ケン化ＰＶＡでは重合度および結晶化度にτ_3が依存しないと結論された。図１の範囲において、o-Ps の寿命はケン化度にほぼ比例して短くなることが示された。ここまでは、氏平らによって報告されていることによく一致した[1]。部分ケン化によって調製したより低いケン化度をもつ試料での測定からは、ケン化が進むにつれて o-Ps の寿命が短くなって行くが、その変化は直線的ではないことが明らかになった。この依存性はポリマー鎖の中での水素結合の形成による自由体積の変化と関連すると推測された。

【文　献】[1]Y.Suda, A.Uedono and Y.Ujihira, *Materials Science Forum*, **105**, 1721(1992)

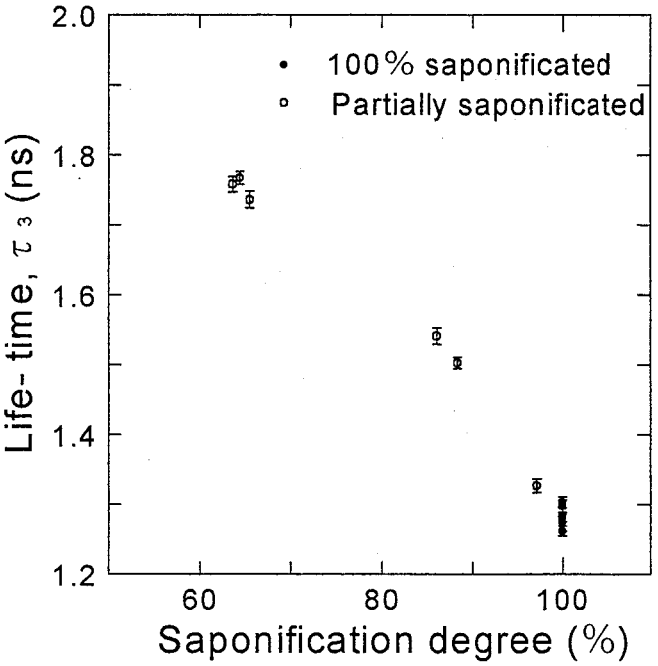


図１　ケン化度による o-Ps の寿命の変化

MURAMATSU, H., MATSUMOTO, K., MINEKAWA, S., YAGI, Y., SASAI, S.

1C19　水素含有気体系における負パイ中間子転移過程の圧力依存性

(京大原子炉・KEK放射線[1]・阪大院理[2]・新潟大理[3]・阪大RIセ[4]・金沢大LLRL[5]・金沢大理[6]・信州大教[7])○篠原　厚・三浦太一[1]・横山明彦[2]・高宮幸一[2]・真田　潤[2]・荒木宏一[2]・金子哲也[3]・斎藤　直[4]・高橋　琢[4]・村上幸弘[4]・室山俊治[5]・浜島靖典[6]・村松久和[7]

【はじめに】　負の粒子(π^-, μ^-, ...)が物質中で静止すると，その原子・分子に捕獲されていわゆる中間子原子が生成する。中でも水素に捕獲されて生成する中間子水素原子は，擬中性子として物質中を動き，より重い原子にその粒子(π^-, μ^-)を転移させる(転移過程)興味深い挙動をする。一般に，寿命の長いミュオン水素原子では物質の状態の違いや圧力による転移率の変化はないとされており，パイ中間子水素原子(π^-p)でもこれまで観測されていない。しかし，π^-pの場合，その寿命内に移動できる距離が短いため，パイ転移過程が圧力(原子間距離)により影響される可能性がある。このような圧力依存性が観測されれば，π^-pの動的挙動の解明に非常に有用な情報となる。そこで、本研究では気相系におけるパイ転移率(Λ)の圧力変化の観測を試みた。

【実験】　実験は高エネルギー加速器研究機構の12GeV陽子シンクロトロン・$\pi\mu$チャネルで行った。ガス試料はベリリウム製のカウンター内蔵高圧ガスチェンバーに詰めて，パイオニックX線とπ^0($\rightarrow 2\gamma$)を同時測定した。測定方法はこれまでのπAX実験[参考:PRA, 53,130('96)]と同様である。測定試料は，H_2+Ar(10,20,40,60%)およびCH_4+Ar(10,20,40,60%)の2成分混合気体系で，50.0, 13.5, 6.0kgf/cm^{2}の各圧力で測定した。

【結果と考察】　最終的な水素への捕獲率W_H，つまり生成されて転移過程を経なかったπ^-pの生成率はπ^-pの崩壊率を示すπ^0数から，他の原子(CもしくはAr)への捕獲率W_ZはそれぞれのパイオニックX線強度から求められる。図1に得られた結果の一例として，H_2+Ar系のH_2濃度に対するW_H(100% H_2に対する相対値)の変化を示した。50.0 kgf/cm^{2}と13.5kgf/cm^{2}でかすかに圧力による変化が観測されていることが分かる。詳細な解析には，パイオニックエックス線によるAr側の捕獲率の変化や各成分への捕獲比等の解析がさらに必要であるが，予備的解析の範囲では，CH_4系でさらに大きな依存性が示唆されている。これはH_2起源のπ^-pとCH_4起源のそれとの状態(寿命)の違いと関係し，まさに動的挙動の情報が含まれていると考えられる。講演では液体系と比較も含め，H_2系とCH_4系の比較と得られたΛの圧力依存性から，動的挙動を含む転移現象の機構を考察する。

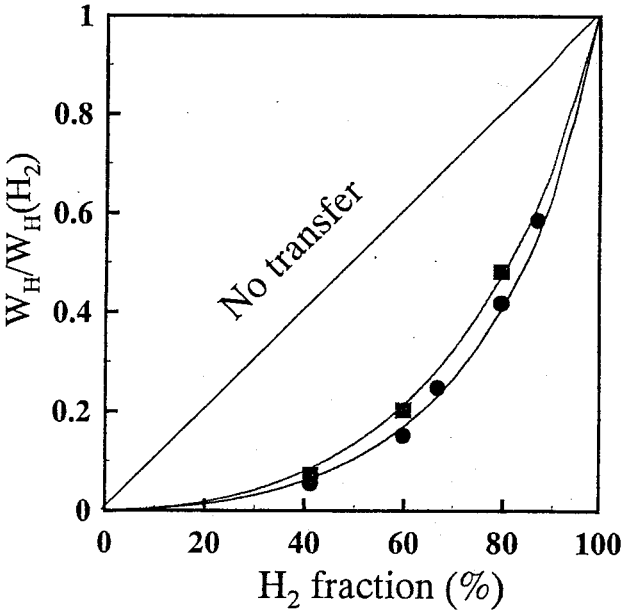


図1．H_2+Ar系のW_Hの濃度変化。
●：50.0kgf/cm^2, ■：13.5kgf/cm^2 。

SHINOHARA,A., MIURA,T., YOKOYAMA,A., TAKAMIYA,K., SANADA,J., ARAKI,H., KANEKO, T., SAITO,T., TAKAHASHI,T., MURAKAMI,Y., MUROYAMA,T., HAMAJIMA,Y., MURAMATSU,H.

1C20 エキゾチック分子 $H_2\mu^+$ の構造及びミュオンスピン緩和率の精密計算

（東北大院理・原研[1]） ○戸谷由起雄・木野康志・工藤博司・横山啓一[1]

【序】 固体水素は最も単純な分子性結晶であるが、オルト水素（陽子スピン平行）とパラ水素（陽子スピン反平行）の存在比による結晶構造の変化や、固体水素中に導入した水素原子の振る舞いなど不明の点が多い。μ^+SR 法はこれらの研究に適しており、照射した μ^+ のスピン緩和により、固体水素中の μ^+ の拡散や内部磁場などについて知ることができる。固体水素中で μ^+ の一部は H_3^+ 分子に似た $H_2\mu^+$ 分子を形成するがその反応過程は詳しくは理解されていない。これまでの $H_2\mu^+$ のスピン緩和率の計算では $H_2\mu^+$ 分子を H_3^+ 分子と同じ正三角形と仮定しているため、理論値は μ^+SR 法の実験値を上回っている。スピン緩和率は、p - μ^+ 間距離の 3 乗に反比例するため、本研究では $H_2\mu^+$ の正確な構造を求め、より精密なスピン緩和率を計算した。

【計算方法】 $H_2\mu^+$ は、p^+ 2 個、μ^+ 1 個、および e^- 2 個から成る 5 体系（図 1）である。電子の質量は p^+ や μ^+ に比べて小さいため断熱近似を用いて電子の運動を分離し、この 5 体系を電子のつくる断熱ポテンシャル上の 3 体問題として計算した。量子力学的 3 体系を精密に計算できる「組替え座標結合変分法」を用いて計算を行い、$H_2\mu^+$ の束縛エネルギーと粒子間距離（表 1）を計算した。

【結果】 μ^+ の質量は p に比べて小さいため $H_2\mu^+$ の p - μ^+ 間は H_3^+ の p - p 間よりも長く、$H_2\mu^+$ は二等辺三角形の形をしていることを明らかにした。また、p, d, t の質量の違いによる束縛エネルギーや構造の違いについても明らかにした。得られた $H_2\mu^+$ の構造を用いてスピン緩和率を計算すると、$H_2\mu^+$ を正三角形と仮定した場合と比べてスピン緩和率は約 20%減少し、実験値に近づくことがわかった。

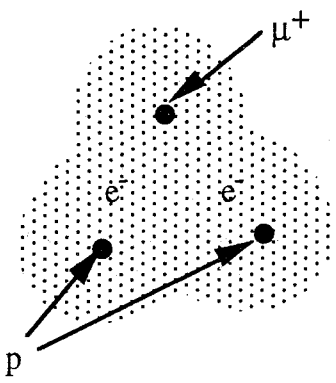


図 1 $H_2\mu^+$

$^{2s+1}J_v^{\pm}$	E/a.u.	r_{pp}/a.u.	$r_{p\mu}$/a.u.
$^1 0_0^+$	-1.3087	1.81	1.72
$^1 0_1^+$	-1.2960	1.82	1.85
$^1 0_2^+$	-1.2839	1.85	2.01
$^3 0_0^+$	-1.2899	1.95	1.76
$^3 0_1^+$	-1.2766	1.97	1.75
$^3 0_2^+$	-1.2665	2.19	2.02
$^3 1_0^-$	-1.3084	1.81	1.72
$^1 2_0^-$	-1.3066	1.82	1.72

表 1 $H_2\mu^+$ の各準位のエネルギーと構造

$^{2s+1}J_v^{\pm}$: 各準位 E:束縛エネルギー

r_{pp}: p-p 間距離 $r_{p\mu}$:p-μ^+ 間距離

TOYA, Y., KINO, Y., KUDO, H., YOKOYAMA. K.