1T01 福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種（２）

（愛知医大・医[1]，原子力資料情報室[2]）○ 小島　貞男[1]，有信　哲哉[1]，小須田　誓[1]，加藤　元久[1]，古川　路明[2]

【はじめに】筆者らは昨年度の本会で，2011 年 5 月 19 日に福島第一原発より北北西約 8 km の浪江町で採取された土壌から，放射化学分離により核分裂生成物では ^{125}Sb，^{127m}Te，^{141}Ce，^{144}Ce の 4 核種を，中性子放射化生成物では ^{54}Mn，^{58}Co，^{60}Co，^{114m}In の 4 核種を検出し，定量した結果を報告した。[1] 非破壊γ線スペクトロメトリで検出し, 定量した ^{110m}Ag, ^{129m}Te, ^{134}Cs, ^{136}Cs，^{137}Cs，^{140}Ba-^{140}La と合わせ，全部で 14 種類の核種を分析した。^{54}Mn，^{58}Co，^{60}Co の主な生成核反応はそれぞれ ^{54}Fe(n, p)^{54}Mn，^{58}Ni(n, p)^{58}Co，^{59}Co(n, γ)^{60}Co であり，同時に ^{54}Fe(n, γ)^{55}Fe，^{58}Ni(n, γ)^{59}Ni，^{62}Ni(n, γ)^{63}Ni という核反応により，^{55}Fe（半減期：2.6 年，EC 壊変），^{59}Ni（半減期：75000 年，EC 壊変），^{63}Ni（半減期：100 年，β壊変）が生成されていると考えられる。これらの 3 核種はいずれもγ線を放出せず，^{55}Fe と ^{59}Ni は低エネルギーの X 線とオージェ電子を放出するだけであり，^{63}Ni はβ線を放出するだけである。従って，これらの核種の分析には放射化学分離を伴った液体シンチレーション(以下，液シン)計測法[2), 3)] が適している。また，^{114m}In，^{110m}Ag が検出されていることから，^{109}Cd（半減期：463 日，EC 壊変）から放出されるγ線（88keV，分岐比 3.6%）の検出を試みることで制御棒に Ag-In-Cd 合金が使用されていた可能性の検証を行うことができる。得られる結果は，原子炉内で生成されていた放射性核種の生成量の推定や，生成された放射性核種が大気中に放出され，飛散し，土壌に沈着した過程などに関する新たな知見を提供することが期待される。

【実験と結果】前述した土壌 14.51g を秤量し，各々10mg の Ni，Cd，Sr のキャリアを加え，濃 HNO_3 と濃 HCl の混酸による酸分解法で分析する核種を溶出した。水酸化ナトリウム水溶液による水酸化物沈殿法により，Fe，Ni，Cd を分離した。水酸化物沈殿を 6MHCl に溶解し，土壌から溶出された Fe の定量を行うために溶液の一部を分取した。残りの溶液を放射線測定用試料とし, 以下のような①～⑥の放射化学分離操作を行った。① 6MHCl 溶液に 4-メチル-2-ペンタノン(MIBK）を加え溶媒抽出し，有機層と水層に分け，有機層に水を加え，Fe を逆抽出した。② Fe を除いた水層の HCl 濃度を 0.1M に，NaCl 濃度を 10％に調整し，溶液を陰イオン交換樹脂カラムに通した。Ni は溶出し，Cd は陰イオン交換樹脂に吸着した。③ 陰イオン交換樹脂に 1MHNO_3 を通し，Cd を溶離した。①～③の化学操作で単離した Fe，Ni，Cd の各々の画分のうち，Fe と Ni の画分は液シン計測を行うために更に精製を行った。④ ①で Fe を逆抽出した水溶液を 0.1MHCl に調整し，溶液中の Fe を陽イオン交換樹脂に一旦吸着させた後，3MHCl で Fe を溶離した。HCl を揮散させた溶液を液シンバイアルに集め，リン酸を加え，Fe を無色のホスファト錯体とし，液シン測定試料とした。[2)] ⑤ ②で分離した Ni を，ジメチルグリオキシム沈殿法で精製した後，Fe と同じように陽イオン交換法で Ni をさらに精製した後，アンモニア水を加え Ni を青紫色のアンミン錯体とし，液シン測定試料とした。[3)] ⑥ ③で分離した Cd の溶液は蒸発濃縮し，井戸型 Ge 半導体検出器を用いたγ線測定試料とした。④～⑥で調製した測定試料の放射線計測は現在継続中である。^{55}Fe，^{59}Ni，^{63}Ni の計数効率の評価法および化学収率を含めた測定結果を発表当日に報告する予定である。

【参考文献】１）第 56 回放射化学討論会講演予稿集，1T06 (2011)，２）Radioisotopes, **34**, 72-77 (1985)，３）J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, **95**, 323-330 (1985)

Radiochemical Analysis of Fission and Neutron Activation Products released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident (2)

KOJIMA, S., ARINOBU, T., KOTSUDA, C., KATO, M., FURUKAWA, M.

1T02 福島第一原発事故由来 Cs-137 の環境中における挙動

（広大院理[1]，広大サステナセンター[2]）○値賀晴香[1]，坂口綾[1]，岩谷北斗[1]，田中万也[2]，高橋嘉夫[1]

【緒言】東日本大震災により，福島第一原子力発電所から多量の放射性核種が環境中に放出した．中でも比較的長半減期の ^{137}Cs ($T_{1/2}$ = 30.17 y)は核分裂収率が大きく，沸点が低いため，大気経由で広範囲にわたり拡散し深刻な汚染をもたらしている．この核種は，表層環境では粘土に強く吸着するため，汚染除去や将来的な移行挙動に関しては“粘土鉱物との相互作用”がキーポイントとなり，数多くの研究が盛んに行われているが，実際の現場観測と現地試料による室内実験を併せた研究はかなり限られている．今後 ^{137}Cs の汚染拡大･蓄積再分配や動植物への取り込みも含めての移行挙動を予測するには，長期的な現場観測や室内実験によるミクロスケールからの元素挙動を明らかにすることが必要である．今回はその基礎研究として，(i) 土壌や河川系などの天然環境における ^{137}Cs の移行･分布状況の観測，(ii) 天然環境を模擬した室内実験の結果について報告する．

【方法】＜現地調査＞土壌試料として，計画的避難区域内である福島県伊達郡川俣町山木屋地区のタバコ畑および牧場の表層土壌(0 - 5 cm)，河川試料として，平成 23 年 6 - 8 月, 11 - 12 月（平常時），平成 24 年 5 月（イベント時：豪雨）の計 3 回にわたり，山木屋地区を上流域とする口太川（上流，下流）とその下流の阿武隈川本川の河川水および浮遊懸濁物質，を採取した．土壌試料および浮遊懸濁物質は粒径分画したもの，河川水はリンモリブデン酸アンモニウムにより Cs を濃縮処理したものを，Ge 半導体検出器を用いて ^{137}Cs 放射能濃度を測定した．　**＜抽出実験＞**汚染土壌が河川（淡水）→汽水域→海（海水）へと移行する過程を模擬した際の固相-液相間における Cs 同位体(^{133}Cs, ^{137}Cs)の分配挙動を明らかにするため，海水 : 純水比の異なる 3 種類の溶媒に福島土壌を添加し，振とう・抽出実験を長期的に行った．一定期間の間隔を置いて抽出溶液を交換し，溶液の一部を分取後 ICP-MS を用いて ^{133}Cs を，残りの溶媒で ^{137}Cs を測定した．75 日間で 7 回にわたり抽出溶液を交換し，Cs 同位体測定を行った（現在継続中）．

【結果・考察】土壌試料は，環境中で移行しやすい粒径の小さな粒子ほど ^{137}Cs 濃度が高いという粒径依存性が見られた．河川懸濁粒子にもその傾向は見られたが，土壌にみられる粒径-濃度分布が異なり、再分布の際に重要なパラメータとなることが示唆された. 河川試料では，平常時に観測された各粒径ごとの単位重量当たり ^{137}Cs 濃度(Bq/g)が，6 - 8 月と 11 - 12 月でほとんど変化がないにも関わらず，河川水単位体積当たりの粒子中 ^{137}Cs 濃度(Bq/L)に大きな差があることや，イベント時に流れる粒子中 ^{137}Cs 濃度(Bq/g)が低いにも関わらず体積当たりの濃度が上昇するという結果から，河川水中 ^{137}Cs 濃度は降雨量や河川の流量が大きく寄与していることが示唆された．抽出実験では，淡水→海水溶媒になるほど ^{137}Cs は多く，長期的に抽出され続けることが分かった. これまでは数時間のみの抽出や人工的な溶媒による抽出で“Cs は抽出されにくい”などの報告がされてきた．しかし，本研究における現在までの結果より海水中に高濃度で含まれる Na^+などの陽イオン交換により長期的に抽出され，試算すると最終的には吸着した約半分の ^{137}Cs が海洋で溶け出す可能性が示唆された. さらに, ^{137}Cs は ^{133}Cs より選択的に抽出されており，新たに降下した ^{137}Cs は土壌中に元々存在していた Cs とは挙動が異なることが明らかになった.

Environmental behavior of Cs-137 from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident
CHIGA, H., SAKAGUCHI, A., IWATANANI, H., TANAKA, K.,TAKAHASHI, Y..

1T03 福島事故由来エアロゾル態放射性核種の輸送担体の変化

（産総研[1]、東京海洋大[2]、慶応大[3]、名古屋市環境科学調査センター[4]）
○兼保直樹[1]、大橋英雄[1]、鈴木芙美恵[2]、奥田知明[3]、池盛文数[4]

【緒言】福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質の地表面や呼吸器内の各部位への沈着を考える際に重要な情報と考えられる、大気エアロゾル中の放射性核種の粒径分布についてはその測定例は少ない。本報では、事故後 40 日以上が経過した時点で茨城県つくばにおいて粒径別捕集した大気エアロゾル中の放射性核種の測定結果、化学組成の測定結果などから放射性核種の大気中の輸送担体についての解析を示す。

【実験】つくば市の産業技術総合研究所の 4 階バルコニーにおいて、2011 年 4 月 28 日より低圧型カスケードインパクター（Tokyo Dylec LP-20）を用いて大気エアロゾルを 13 段に分級捕集した。放射能測定を含む詳細は Kaneyasu et al.(2012)を参照のこと。

【結果および考察】 Fig.1 に 2011/4/28～5/12 に捕集された大気エアロゾル(LPI-AIST-1 サンプル)中の ^{137}Cs および ^{134}Cs 放射能粒径分布を示す。これより、4 月下旬～5 月中の放射性セシウムは、微小粒子領域に大部分が存在しており、土壌粒子収着-再飛散による粗大域のものは少ないことがわかる。同時に測定したエアロゾル主要成分より、これら放射性セシウムの大気中での輸送担体は硫酸塩エアロゾルであることが示唆された(Kaneyasu et al., 2012)。ただし、他の期間には土壌粒子収着-再飛散が大規模に生じていたイベントも存在したことがいくつかの報告から推測される。また、本測定が事故後にかなりの期間が経過してから開始されたものであり、事故後の早い時期には比較的粗大な粒子が放射能を帯びていたことを示唆する報告もある。そこで、一般に公開されているデータから、事故後の比較的初期の放射性核種の大気中濃度と地表面降下量が同時に得られる地点を探し、乾性沈着速度 V_d (cm s^{-1})を求めた。

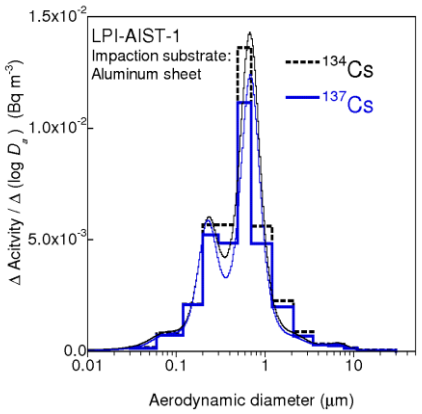


Fig.1　4 月 28～5 月 12 日につくばで捕集された大気エアロゾル中の ^{134}Cs および ^{137}Cs の放射能粒径分布。Adapted with permission from Kaneyasu, N.; Ohashi, H.; Suzuki, F.; Okuda, T.; Ikemori, F. Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident, Environmental Science and Technology, **2012**, http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/es204667h. Copyright 2012 American Chemical Society.

両項目のデータが報告されているのは千葉市の日本環境分析センター(3/14～)と福島市の方木田・杉妻町(3/27～)である。降水が記録された日のデータを除いた各核種の V_d を 2011/5/3 まで計算した結果、福島市では硫酸塩エアロゾルなどに対して報告される小さな値(V_d < 0.4 cm s^{-1})であるが、千葉市稲毛では、V_d < 0.4 cm s^{-1} の値(大部分)の他に、ときおり V_d ＞ 数 cm s^{-1} の大きな値がみられる。7 cm s^{-1} 以上の極端に大きい値は、この終端沈降速度を与える空気力学径が 50 μm以上となることから明らかに土壌粒子収着-再飛散である(4/8 など)。ただし、V_d = 2～4 cm s^{-1} を示すデータが 3/24 などでみられており、これが何らかの意味を持つのかどうかが問題である。この点に関する検討結果は発表時に示す。

Kaneyasu et al., *Environ. Sci. Tech.* **46**, 5720-5726 (2012).

Change in the transport media of radionuclide in aerosol phase derived from the Fukushima accident
KANEYASU, N., OHASHI, H., SUZUKI, F., OKUDA. T., IKEMORI, F.

1T04

液体シンチレーションカウンターによる福島第一原子力発電所事故由来の放射性ストロンチウムの定量

（阪大院理[1]、阪大ＲＩセンター[2]、尚絅学院大[3]、愛知医大[4]、気象研究所[5]）
○張子見[1]、柿谷俊輔[1]、二宮和彦[1]、高橋成人[1]、山口喜朗[2]、吉村崇[2]、齊藤敬[3]、小島貞男[4]、五十嵐康人[5]、篠原厚[1]

【はじめに】東京電力福島第一原子力発電所の事故によって、大量の放射性核種が環境中に拡散した。ヨウ素やセシウムなどの核種は事故直後から数多くの測定が行われ、結果が報告されてきた。一方でこれらの核種と同様に原子炉内で生成されている放射性ストロンチウムに関する報告は限られている。放射性ストロンチウムは Sr-89 と Sr-90 であり、環境試料中における両核種の存在比は当初の事故状況の解明の重要な手掛かりとなる。

Sr-89, Sr-90 はγ線を放出しないβ線放出核種であるため、測定のためには環境サンプルから化学分離によってストロンチウムを単離する必要がある。今回、我々は液体シンチレーションカウンターを用いて測定を行った。Sr-89 および Sr-90 の娘核種である Y-90 はともに最大エネルギーが 1000 keV 以上の高エネルギーのβ線を放出するために、液体のなかではチェレンコフ光を出すことが知られている。そこで本研究では、チェレンコフ光測定とシンチレーション光測定を組み合わせることによって、Sr-89 と Sr-90 の両核種を個別に定量することを試みた。

【実験と結果】環境サンプルに Sr キャリアーを加え、測定の妨害となる Cs-137, -134, Ag-110m などを放射化学分離操作で除き、単離した Sr は炭酸塩とした回収した。$SrCO_3$ を酸で溶解した溶液をイオン交換樹脂カラムに通し、Sr と Y を分離した。イオン交換樹脂に Y が吸着し、ろ液として Sr のみを含む測定サンプルが得られた。その後、樹脂から Y-90 を溶出した。低バックグラウンドの液体シンチレーションカウンター（LSC）を用いてそれぞれの試料をチェレンコフ光測定することで Sr-89 および Y-90 の放射能の値が得られた。最後に Sr-89 の測定サンプルにシンチレータを加えて、Sr-89, Sr-90 および Y-90 の定量を行い、それぞれの放射能を再度定量した。

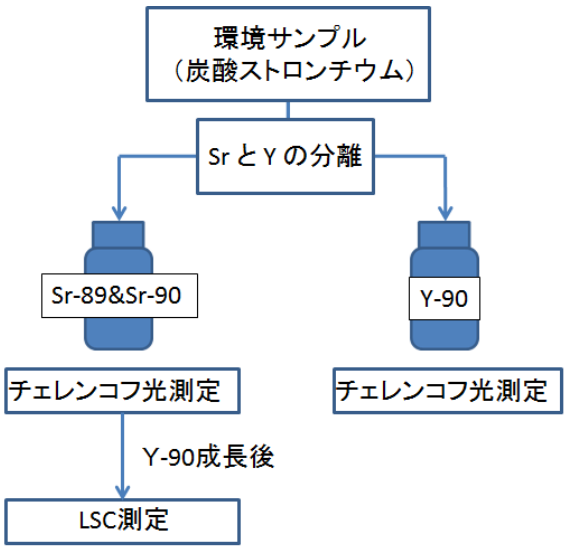


図 1、分離測定の概念図

検出限界について計算により、チェレンコフ測定を用いた場合、Sr-89 は 10 時間測定では±3σでは 0.09 Bq、Y-90 ならび Sr-90 は 0.06 Bq となった。本研究では降下物や土壌などの環境サンプルを用いて測定を行ったので、講演ではこれらの環境試料での Sr-89, Sr-90 の放射能について議論する。

Measurement of radioactive strontium in environmental samples from Fukushima nuclear power plant accident using liquid scintillation counter

ZHANG,Z., KAKITANI, S., NINOMIYA, K., TAKAHASHI, N., YAMAGUCHI, Y., YOSHIMURA, A., SAITO, T., KOJIMA, S., YGARASHI, Y., SHINOHARA, A.

1T05 東電福島第一原発事故後の東海再処理施設周辺における降下じん中放射性物質濃度

（原子力機構サイクル研）○永岡美佳、藤田博喜、中野政尚、渡辺均、住谷秀一

【はじめに】　核燃料サイクル工学研究所では、以前より再処理施設周辺の環境モニタリングの一環として、研究所内で定期的に降下じん（降水及び自然に地表に降下するじん埃）を採取し、放射性核種の分析・測定を実施している。平成23年3月11日の東電福島第一原発事故後も継続して採取しており、平成24年6月現在では、γ線放出核種測定から検出されるのは、^{134}Cs及び^{137}Csのみであるが、原発事故後には^{131}I、^{129}Te、^{129m}Te、^{132}Te等の様々な短半減期の放射性核種が検出された。本報告では、事故後約1年間の降下じん中放射性物質濃度についてγ線放出核種を中心に、また一部試料については^{90}Sr及びPu（^{239,240}Pu及び^{238}Pu）分析を実施し、東電福島第一原発事故影響の調査結果を述べる。

【試料と分析方法】　研究所内（福島第一原発から南約 115 km、地上約 9 m）に設置してある、受水面積 0.5 m^2 の大型水盤に 1 ヶ月間の降下じんを採取し、試料とした。本報告では平成 23 年 3 月～平成 24 年 6 月までの期間を対象とした。試料の採取及び分析・測定方法は、文部科学省放射能測定シリーズに準拠して実施した。試料は全量を 2 インチの試料皿上に蒸発乾固し、全 β 放射能測定、ゲルマニウム（Ge）半導体検出器を用いたγ線放出核種分析を実施した。また一部試料（平成23年 3 月～6 月分）については ^{90}Sr 及び Pu（^{239,240}Pu 及び ^{238}Pu）の系統分析を実施した。

【結果】　事故当時から約1年間（平成23年3月～平成24年2月）の放射性Csの年間降下量を算出すると、^{134}Cs:19,000 Bq/m^2、^{137}Cs:17,000 Bq/m^{2}であった。^{137}Cs濃度の高い試料からは^{90}Srが検出された。平成23年3月の^{90}Sr降下量は5.1 Bq/m^{2}であり、その後濃度は減少していった。平成23年3月～6月における^{90}Sr/^{137}Cs放射能比は1/2700～1/330と広範囲におよんでおり、また、周辺土壌からの再浮遊の影響もみられた。一方、Puにおいては、^{239,240}Puが検出されたが、^{238}Puは検出されなかったため、過去のフォールアウトの影響によるとみられる。

今回の東電福島第一原発事故により検出された ^{137}Cs、^{90}Sr 及び ^{239,240}Pu 濃度を事故以前に茨城県及び全国で検出された濃度と比較すると、^{137}Cs 濃度は核実験で検出された濃度の 90 倍、チェルノブイリ事故の 110 倍であるのに対し、^{90}Sr 濃度はそれぞれ 0.040 倍、2.8 倍であった。今回の事故により観測された降下じん中放射性物質が Cs にかなり偏ったものであったことがわかる。^{90}Sr 濃度については、事故による影響よりも過去の核実験による影響が大きかった。また、^{239,240}Pu 濃度は、今回の事故による濃度の増加等はみられず、過去の降下量の範囲内であった。

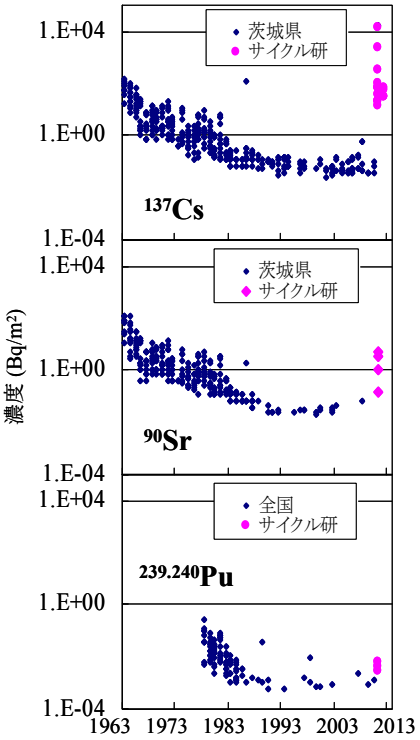


図 1　月間降下じんの経時変化（サイクル研で震災後観測されたデータを含む）

Radionuclide concentrations in fallout around Tokai Reprocessing plant after Fukushima Nuclear Power Plant incident

NAGAOKA, M., FUJITA, H., NAKANO, M., WATANABE, H., SUMIYA, S.

1T06

福島第一原子力発電所事故起源 ^{129}I の分布と移動

（日大院[1]、東大 MALT[2]、日大文理[3]、京大防災研究所[4]、農環研[5]）○本多真紀[1]、松崎浩之[2]、山形武靖[3]、土屋陽子[2]、中野忠一郎[2]、松四雄騎[4]、前島勇治[5]、永井尚生[3]

【緒言】2011 年 3 月 11 日に起きた福島第一原子力発電所（F1NPP）の事故により ^{129}I（$T_{1/2}$ = 1.57 ×10^7 年）、^{131}I （$T_{1/2}$ = 8.01 日）などの放射性核種が環境中に放出された。原子力安全委員会の発表によると 3 月 11 日から 4 月 5 日までの ^{131}I の総放出量は、150PBq であったと推定された。この事故起源 ^{129}I は福島県全域に短時間で降下したので、これを用いて土壌中 ^{129}I の分布と移動を推定した。大気中に放出された ^{129}I は I^-、IO_3^- となって雨水中に溶け、海洋や土壌表面に降下し、雨水の浸潤によって土壌中へ移動する。土壌中ヨウ素は一般的に土壌成分と結合し、長期間土壌表層に存在するといわれている。T. Straume et al. （1996）の研究結果から、ベラルーシの土壌において、1986 年 4 月 26 日に起きたチェルノブイリ事故から 10 年経過してもまだ土壌表層（約 20cm）に 85%以上の ^{129}I が存在し、土壌中 ^{129}I はほぼ動かないことが示された。環境中のヨウ素サイクルにおいて土壌中ヨウ素は滞留時間が長いため土壌は重要なリザーバーであるが、現在まで土壌中ヨウ素の移動を明確に説明できていない。本研究目的は、F1NPP 事故前の土壌中の比放射能の推定、土壌中 ^{129}I の深度分布が時間経過と共に変化するのかを検証すること、そして土壌中 ^{129}I の挙動のモデル化である。そこで F1NPP から南西方向に 20km 離れた川内村において事故直前まで耕されて均一になっていた畑土から採取した土壌コアの深度分布の時間変化を調べた。【実験】土壌試料は、川内村の畑土で事故後 2011.4.29 ～2012.3.16 で約 3 ヶ月ごとに採取した深さ 36cm ～ 39cm の土壌コア 4 本（ABK12A1、B1、C1、D2）を用いた。これらの土壌コアを乾燥させて約 0.5g 分取し環状炉で焼成して I_2 ガスとし、アルカリトラップ溶液中に捕集した。このトラップ溶液に ^{127}I キャリヤを 2mg 加え、溶媒抽出を行いヨウ素を精製した。I^- として回収した試料に $AgNO_3$ 溶液を加えて AgI 沈殿を生成して、東京大学 MALT において ^{129}I-AMS を行い、土壌中 ^{129}I の定量を行った。土壌中 ^{127}I 量は、トラップ溶液を分取し ICP-MS を用いて定量を行った。【結果】事故前の ^{129}I 比放射能は 43μBq kg^{-1} で、表層約 10cm までの事故起源 ^{129}I のインベントリは 39.0mBq m^{-2} となった。また、F1NPP 事故から約 1 年経過しても、土壌中 ^{129}I はほぼ動かないことがわかった。さらに土壌中 ^{129}I 深度分布は指数関数で近似できるので、土壌中 ^{129}I の移動は、土壌成分と ^{129}I 間でのイオン交換であると推察した。

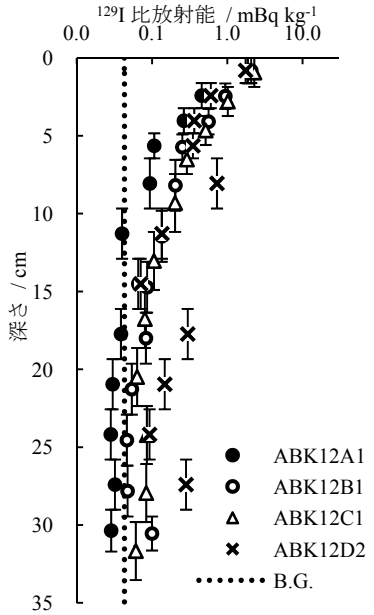


図 1 畑土の ^{129}I 比放射能深度分布

Depth profile and migration of 129I in soil in Abukuma, Fukushima

HONDA, M., MATSUZAKI, H., YAMAGATA, T., TSUCHIYA, Y., NAKANO, C., MATSUSHI, Y., MAEJIMA, Y., NAGAI, H

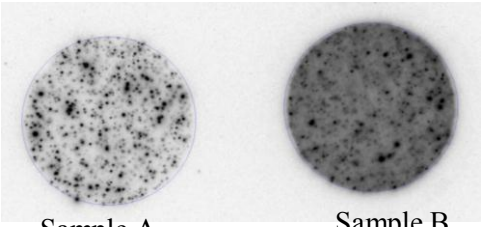
1T07 福島第１原発事故によって輸送された放射性物質の化学状態に関する研究

（筑波大学数理物質）○末木啓介，半田晃士

【緒言】東日本大震災にともなう東電福島第１原発事故により生じた放射性物質の拡散は筑波大学においても観測された。アイソトープ総合センターでは 2011 年 3 月 15 日から 5 月中旬までローボリュームエアサンプラーで HE-40T フィルターと CP-20 チャコールフィルターに捕集し、2 種類のフィルターを重ねてガンマ線測定して、得られた放射性核種の空気中濃度の経次変化については既に報告した [1)]。この HE-40T フィルターを採取時から 10 月以上経ってからイメージングプレートを用いて放射性物質の分布と化学処理によるリーチングによる溶解率および残留物の画像から化学状態に関して検討したことを報告する。

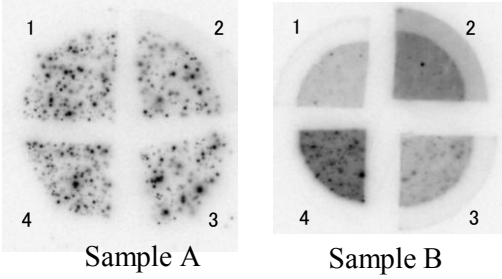
【実験】2011 年 3 月 15 日から 5 月中旬まで状況に合わせてローボリュームエアサンプラーを用いてフィルターHE-40T で捕集した試料についてイメージングプレートで 1〜2 日曝露照射したのち BAS1800II によって読み出して画像を得た。いくつかの放射能量が高い試料についてフィルターを分割して様々な溶液で 10 分間超音波を照射したのち 24 時間放置してリーチングを行った。その溶液を 0.22 μm のフィルターでろ過してガンマ線測定により溶解率を求めた。リーチングしたフィルターおよびリーチングの際に用いた 0.22 μm フィルターも併せてイメージングプレートで暴露して画像を得た。

【結果と考察】図１はガンマ線測定から ^{137}Cs と ^{134}Cs の２核種しか観測されていない 3/15 10:30-16:30 (Sample A)と 3/20 15:00-3/22 10:40 (Sample B)の２つの試料のイメージングプレートによる画像である。試料 A では放射性物質はフィルター上に粒子状の点の分布として観測される。これに対して試料 B は粒子状の点も観測されるがフィルター全体一様に放射性物質が存在している。この違いは当時の天候等から乾性沈着と湿性沈着の違いである可能性が示唆される。図２は試料を 1: 0.5 M HCl 溶液、2: 純水、3: 1%シュウ酸ナトリウム水溶液でリーチングした結果を示す。試料 B は希塩酸、シュウ酸ナトリウム水溶液に易溶であったが純水には 10%程度しか溶けなかった。純水においてはフィルターから剥ぎ取られた微小の粒子がそのままろ過したフィルター上に残っており、純水に対しては容易に溶けるような物質ではないことが明らかである。試料 A は希塩酸でも 20%程度しか溶けず、放射能の分布イメージも粒子状がそのままの形で観測された。このことから乾性沈着で運ばれた放射性物質は塩酸などに容易に溶解しないことが明らかになった。他の溶液への溶解性なども調べて報告する。



Sample A　Sample B

Figure 1. IP image of air filters



Sample A　Sample B

1: 0.1 M HCl, 2: dis. Water 3: 1 % $Na_2C_2O_4$

Figure 2. IP image of leached filters.

1) 末木ら、1T03、第 55 回放射化学討論会、長野、2011 年 9 月

Study on chemical condition of transported radioactive materials from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident.

SUEKI, K., HANDA, K.

1T08 福島原発事故により放出された放射性核種の環境中での挙動解明と今後の課題

（学習院大・理）○村松康行、大野剛、織田和優、稲川直也、（福島県・農業総合センター）佐藤守、佐藤睦人、小林智之、（東大・TANDEM）松崎浩之

福島第１原子力発電所の事故から約 1 年半が経過し、行政機関におけるモニタリング調査や大学や研究機関における様々な研究が行われてきた。例えば、文部科学省は、航空機や自動車を用いた空間線量マップ（μSv/h）や表層土壌（0-5cm）の分析から求めた放射性セシウムの沈着量マップ（Bq/m^2）を作成している。農水省関連では、農地の作土層（0-15cm）における放射性セシウム濃度（Bq/kg）の測定や農水産物のモニタリングが行われている。環境省では、公共用水域における水質・底質等のモニタリング、除染対象地域における空間線量の詳細調査等が実施されている。また、福島県をはじめ各県では食品のモニタリング等を行っている。このように、汚染状況を知る上では多くのデータが集まりつつあると言えよう。

しかし、放射性物質の環境中での動き、農地や生態系における挙動などについてはまだ充分な知見が得られていない。例えば、汚染した土壌から放射性物質の植物への移行は、土壌や植物の種類、生育環境などによって異なる。昨年秋に玄米中に 500Bq/kg を超える値が検出されたが、近隣の水田では検出限界以下というところもあった。どのようなメカニズムで米の放射性セシウムの値が高くなったかについては詳しく分かっていない。また、果樹では野菜や米と異なり、経根吸収以外の経路も重要となる。森林ではリター層に多くの放射性セシウムが溜まっているが、それらの化学形態や森林生態系での挙動については不明な点が多い。

放射性ヨウ素に関しては、I-131 が大量に放出され、甲状腺に被曝をもたらした可能性があるため、初期被曝の評価を行うことが重要である。しかし、半減期が 8 日と短いため、数ヶ月で検出限界以下になった。その為、放射性セシウムなどに比べ測定データが少ない。一方、I-131 と同時に放出された I-129 は放出量こそ少ないが、半減期が 1570 万年と長いため、現在も検出できる。そこで、I-129 を測定することで事故当時の I-131 の環境中でのレベルを推定できる可能性がある。

我々は、放射性核種の環境挙動の解明を目差し、事故直後から土壌や様々な植物試料中の放射性セシウムおよび放射性ヨウ素の分析を行っている。主なものを以下に示す。

・放射性核種の深度分布（未耕地土壌、耕作による深度分布の変化）
・農作物への移行に及ぼす土壌の種類および植物の種類による影響
・果実への移行における樹皮や葉からの転流
・山菜やタケノコへの濃縮
・森林生態系における分布と移行
・一部の地域の水稲に高い値が出た原因の解明
・I-129 の分析による I-131 の再構築

これらの研究はまだ継続中であり、学会の時点で得られた成果をまとめて報告する予定である。また、今後の課題についても言及する。

Assessment on the behavior of radionuclides released from the Fukushima nuclear accident in the environment. MURAMATSU, Y., OHNO, T., ODA, K., INAGAWA, N., SATO, M., SATOU, M., KOBAYASHI, T. and MATSUZAKI, H.

1A01 保障措置環境試料中の極微量 Am-Pu 分離と Pu 精製時期決定

（原子力機構）○宮本ユタカ、鈴木大輔、間柄正明、江坂文孝，木村貴海

【はじめに】秘密裡に行われる核開発など未申告原子力活動の痕跡を探知するための技術手法として、IAEA は原子力施設などで採取した粉塵などの環境試料に含まれる極微量核物質の定量および同位体比分析を導入している。Pu の同位体組成から核開発や原子力発電など原子力活動を探知するには、極微量 Pu の正確な同位体分析が重要である。我々は IAEA 環境試料ネットワーク分析所の一員として試料の分析とともに極微量分析法の開発を行っている。Pu 同位体の 1 つである ^{241}Pu は β^-壊変(半減期 14.35 年)によって ^{241}Am を生成する。これら核種の原子個数比を測定すると、放射年代法の原理に基づき Pu 精製活動からの経過年数を知ることができる。そこで、Am と Pu の陰イオン交換分離と ICP-MS による原子個数比の測定から Pu 精製時期を測定することを試みた。Pu 精製からの経過年数が既知の Pu 酸化物粒子を模擬試料とし、決定した時期が妥当であるかを評価した。

【実験方法】Pu 酸化物粒子はイオン交換分離法で Am を除去・精製した Pu 標準硝酸溶液(NBL CRM-947)を加熱して酸化物とした後、n-デカノールに懸濁させて粉砕して得た。走査型電子顕微鏡下で拾い出した数 pg 量の Pu 酸化物粒子(直径 0.5～2 μm)8 個を個別に溶かし、8M 硝酸溶液に調製した。Pu と Am の分離は陰イオン交換カラム(樹脂：三菱化成製 CA08P、Cl 形、粒径 75－150 μm、カラムサイズ：3.6 mm ϕ×25 mm, カラム容量: 0.25 mL)を用いた。8M 硝酸で Am を溶出させた後、0.5M 塩酸と 0.01M フッ化水素酸の混酸で Pu を溶出させた。分離試料は蒸発乾固させた後、5%硝酸の ICP-MS 測定溶液に調製した。測定は高分解能 ICP-MS(サーモフィッシャー製 ELEMENT)を用い、脱溶媒導入装置(ESI 製 APEX-Q)を取り付けて高感度化を図った。

【結果と考察】^{241}Am/^{241}Pu 原子個数比の測定は、①^{243}Am スパイクを試料に添加し、化学分離前の ^{243}Am / ^{239}Pu 比、分離後の ^{241}Am / ^{243}Am 比および ^{239}Pu / ^{241}Pu 比の積から求める方法と、②化学分離前の(^{241}Am+^{241}Pu) / ^{239}Pu 比と分離後の ^{241}Pu / ^{239}Pu 比の差から求める方法で行った。これらの方法で測定した結果を図 1 に示す。分析に用いた Pu 酸化物粒子の精製時期(3.9151 年前)に対して決定した時期は両方法ともに不確かさ(k=1)の範囲内で一致し、Pu 精製時期決定法として有効であることが分かった。^{243}Am スパイクを添加する方法は、Pu 精製から数年しか経っていない(^{241}Am/^{241}Pu 比が小さい)試料でも年代幅 0.3 年の精度で正確に時期を決定できる優れた方法であることがこの実験から実証できた。

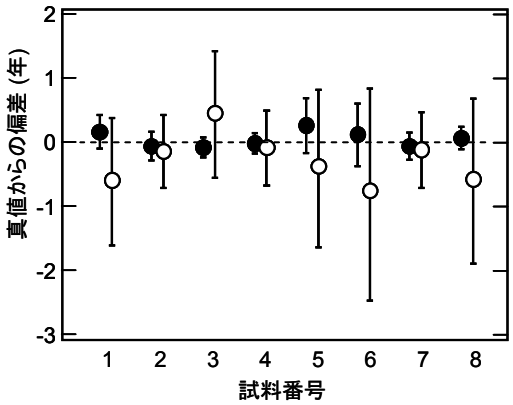


図 1：Pu 精製時期の測定値と真値の一致性

●：①^{243}Am スパイク添加法，　○：②差し引き法

本発表には文部科学省から委託を受けて実施した「保障措置環境試料分析開発調査」の成果の一部が含まれる。

Chemical separation and age determination of trace Am-Pu mixture in the safeguards environmental samples

MIYAMOTO, Y., SUZUKI, D., MAGARA, M., ESAKA, F., KIMURA T.

1A02

秋田・東京・筑波・石垣における大気降下物中 $^{129}I/^{127}I$ 比と ^{129}I 降下量の経年変化

(学習院大[1]、気象研究所[2]、東京大学[3])○遠山知亜紀[1]、内田悠香[1]、村松康行[1]、五十嵐康人[2]、青山道夫[2]、松崎浩之[3]

【序論】放射性ヨウ素は核実験や原子力事故、再処理施設の稼働により環境中に放出されている。そのうち、^{129}I は半減期(1570 万年)が極めて長いため、環境中における濃度や挙動を調べる必要がある。大気圏内核実験において放出された ^{129}I は直接環境中に移行する。原子力発電所の場合は事故が起こらない限り ^{129}I の環境への放出は殆どない。しかし、再処理施設の場合は使用済核燃料を再処理する過程で大気中に一部が放出されており、それは雨などと共に地表に降り注ぐと考えられる。そこで、本研究は AMS(加速器質量分析法)を用いて、1963～2005 年までに秋田、東京、筑波、石垣で採取された大気降下物中の $^{129}I/^{127}I$ 比を測定し、そこから ^{129}I の降下量を算出した。そして、核実験が盛んな頃から現在までの ^{129}I の経年変化とその起源の推定を行った。さらに、2011 年に筑波で採取された雨水についても分析を行い、福島第一原発事故の影響についても調べた。

【試料及び実験方法】大気降下物試料は気象研究所が秋田、東京、筑波、石垣で採取したもので、それぞれひと月分の降水と降下塵を含む。試料は毎月採取されているが、今回は 5, 9 月の試料を選び分析した。但し、石垣については 5 月の採取のみとした。雨水は 2011 年の 2, 3, 4, 5, 9, 10, 11, 12 月、そして、3 月 14～16 日の間に筑波で降った 9 試料を用いた。

降下物試料からヨウ素を分離する方法は加熱分離法、ヨウ素の精製は溶媒抽出・逆抽出法、^{127}I 濃度の測定には ICP-MS、$^{129}I/^{127}I$ 比の測定には東京大学の AMS を用いた。雨水中のヨウ素は溶媒抽出・逆抽出法を用いて抽出・精製後、降下物試料と同様の操作で分析を行った。

【結果及び考察】測定の結果、1980 年以前の大気降下物中の $^{129}I/^{127}I$ 比は $1\text{-}2\times10^{-8}$ で、核実験が行われる前の環境中の $^{129}I/^{127}I$ 比より 4 桁高くなっていることが分かった。また、測定した $^{129}I/^{127}I$ 比と ^{127}I 濃度から ^{129}I 降下量を算出した結果、^{129}I の降下量は 1970 年後半から上昇し、1980 年代に降下量が多かったことが分かった。そして、これは ^{137}Cs や ^{90}Sr とは異なるパターンを示し、また、チェルノブイリ原発事故が起こった 1986 年においても ^{129}I 降下量の大きな上昇は見られなかった。このことから、^{129}I 降下量の変動は核実験や原発事故以外の放出源からの影響が主であると考える。さらに、地域ごとに比較すると、東京と秋田は異なる変動パターンを示し、これらは異なる起源からの影響を受けている可能性が示唆された。また、石垣の ^{129}I 降下量は他の地域に比べ一桁低かった。一方、筑波の ^{129}I 降下量は、東京とよく似たパターンを示し、筑波は東京と同じ起源からの影響を受けていると考えられる。^{129}I 降下量と再処理施設からの放出量の比較を行ったところ、東京と筑波の ^{129}I 降下量の経年変化は、東海再処理施設からの ^{129}I 放出量のパターンと似ていることが分かった。このことから、東京、筑波における ^{129}I 降下量の変動は、東海再処理施設からの影響が主であると推定される。一方、秋田は、ヨーロッパの再処理施設からの ^{129}I 放出量と似ていることから、ヨーロッパの再処理施設や近隣諸国（中国やロシアなど）の再処理施設からの影響を受けていると考える。また、雨水試料については現在測定中である。

Variations of $^{129}I/^{127}I$ ratio in the atmospheric fallout and ^{129}I deposition of Akita, Tokyo, Tsukuba and Ishigaki in Japan.

TOYAMA, C., UCHIDA, Y., MURAMATSU, Y., IGARASHI, Y., AOYAMA, M., MATSUZAKI, H.

1A03

福島県東部地域における福島第一原発事故由来のヨウ素 129 の表層土壌分布

(筑波大 AMS[1]、清水建設[2]、KEK 放射線[3]、日大文理[4]、東大 MALT[5])
○ 笹公和[1]、末木啓介[1]、高橋努[1]、松村万寿美[1]、佐藤志彦[1]、安倍聡美[1]、木下哲一[2]、北川潤一[3]、山形武靖[4]、松崎浩之[5]

【緒言】福島第一原発事故により、環境中に揮発性の高いセシウムやヨウ素などの核分裂生成の放射性核種が大量に放出された。しかし、^{131}I の半減期が約 8 日と短い為に、被ばく線量評価を実施する為の詳細なデータの入手が既に困難となっている。そこで、半減期約 1570 万年の ^{129}I を ^{131}I の降下量推定に利用することが考えられる。本研究では、福島県東部地域の表層土壌中の ^{129}I を加速器質量分析法で測定し、その分布状況を調査した。また、^{129}I バックグラウンド値となる、福島第一原発事故前の ^{129}I 表層土壌分布の測定結果についても報告する。

【実験】2011 年 3 月下旬から 5 月上旬にかけて、環境中に放出された放射性核種の分布調査を実施した。福島及び関東周辺の表層土壌について 108 か所で、^{129m}Te, ^{131}I, ^{134}Cs, ^{136}Cs, ^{137}Cs の地表への降下・沈着量を明らかにした(Kinoshita et al., 2011)。本研究では、^{131}I を測定した福島県東部地域の表層土壌(表面から深さ 5 cm まで)を用いて、^{129}I 測定を実施した。^{129}I 測定では、土壌を約 0.5 g 分取して、土壌と同質量の V_2O_5 とともに酸素気流中において約 1000 ℃で燃焼させた。トラップしたヨウ素を最終的に AgI として沈殿させ、Nb と混ぜた後にプレスを行った。^{129}I 測定には、東京大学 MALT の AMS システムを用いた(Matsuzaki et al., 2007)。また、ICP-MS により安定ヨウ素(^{127}I)の測定を行い、^{129}I 濃度を算出した。

【結果・考察】福島県東部地域における福島第一原発事故前の表層土壌中の ^{129}I 平均濃度は、$(2.7 \pm 1.4) \times 10^8$ atoms/g であった。^{129}I 表面密度では約 1.1×10^{-2} Bq/m^2 となり、これが福島第一原発周辺の ^{129}I バックグラウンド値と推定される。図 1 に福島第一原発事故後における、^{129}I と ^{131}I の表層土壌の単位重量当たりの原子数についての測定結果を示す。本測定結果から ^{129}I/^{131}I 比は、約 18 という値を得た。

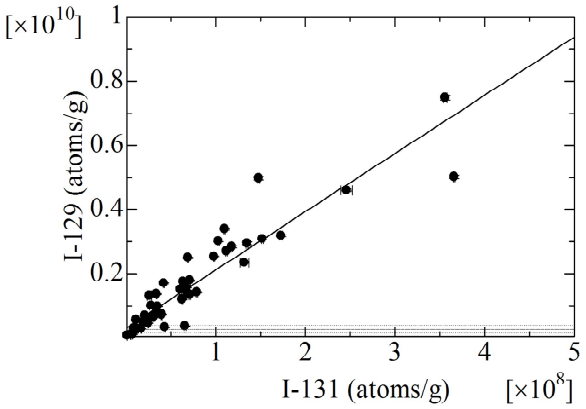


図 1　福島県東部地域の表層土壌中の ^{129}I と ^{131}I (2011 年 3 月 11 日時点)の関係
(点線の範囲は、^{129}I バックグラウンド推定値).

Norikazu Kinoshita, Keisuke Sueki, Kimikazu Sasa et al., *PNAS*, 108, 19526-19529 (2011).
Hiroyuki Matsuzaki et al., *Nucl. Instr. and Meth. B*, 259, 721-726 (2007).

Distribution of iodine 129 in the surface soil from the Fukushima No. 1 nuclear power plant accident in the eastern area of Fukushima Prefecture

SASA, K., SUEKI, K., TAKAHASHI, T., MATSUMURA, M., SATOU, Y., ABE, S., KINOSHITA, N., KITAGAWA, J., YAMAGATA, T., MATSUZAKI, H.

1A04

環境水試料柱におけるラドン深度分布の時間変化に関する研究（II）

（金沢大院自然 [1]，金沢大理工 [2]，金沢大学際セ [3]）○山田記大 [1]，前田英太 [1]，上杉正樹 [1]，佐藤　渉 [2]，横山明彦 [2]，中西　孝 [3]

【はじめに】　大気中や水中のラドン濃度の測定にはラドンモニター（電離箱による測定）やトラック法，液体シンチレーションによる測定等様々な方法が用いられているが，いずれの方法においても試料水を採取する際のラドン損失を抑制することが課題である。しかしラドン損失に環境中のどのようなパラメーターがどれだけ影響しているかは不明な部分が多い。本研究では環境条件（圧力，温度，対流等）がラドンの挙動に与える影響を評価することを目的としており，特に水中からのラドン放出挙動の解明を目指している。前回の報告では，以前より行っていたラドン水深分布実験における再現性の悪さを改善するための実験系（試料の大容量化，高濃度化，測定の時間スケール拡大）の改良および，より再現性の高いデータの取得について報告した。今回，改良後の実験系における温度毎の深度分布データをボックスモデルで解析した結果，新たな知見が得られたので報告する。

【実　験】改良した実験系にて水温・気温一定の下で静置状態での各水深のラドン残留率の時間変化を調査した。約 15 Bq/L の ^{222}Rn を含む地下水を円柱形の容器に移動し，各水深から連日試料を採取し，ラドン濃度･残留率の時間変化を測定した。試料中の Rn 測定については，試料水 50 mL を採取し，液体シンチレーションカウンターを用いて直接試料をバイアルに封入する方法で ^{222} Rn およびその子孫核種を測定した。得られたデータは本実験系のために構築したボックスモデルで解析を行い，各温度における水相－空気相間ラドン移動係数 a (s^{-1})，水相内ラドン移動係数 b（s^{-1}）を求めた。この a，b はラドン移動のしやすさの指標である。

【結果と考察】　図 1 は温度の逆数に対する a，b の変化を示したものである。グラフ内の実線と破線はそれぞれ a および b の変化を指数関数で近似した曲線であり，アレーニウスの式より直線の傾きは活性化エネルギー（ラドンが相移動するのに必要なエネルギー）を示す。293 K での誤差が大きいが，概ね温度が低くなるにつれ両方の係数値は減少している。これは温度の低下によりラドンの移動が抑制されていることを示す。また a，b より得られた活性化エネルギーはそれぞれ 64 kJ/mol，108 kJ/mol であり，特に水相－空気相間ラドン移動に要するエネルギーは水の蒸発エンタルピー（約 40 kJ/mol, 373 K）と近い値を示していることから，ラドンが水の蒸発とともに大気中に放出されている可能性も考えられる。

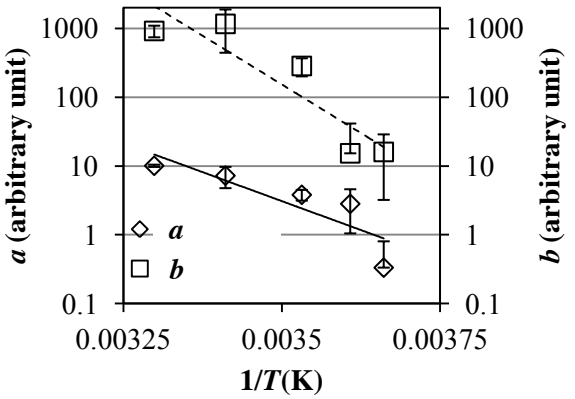


図 1　温度に対する水相－空気相間ラドン移動係数 a および水相内ラドン移動係数 b の変化

Studies on temporal change in depth profiles of the Rn concentrations in natural water columns (II)
YAMADA, N., MAEDA, E., UESUGI, M., SATO, W., YOKOYAMA, A., NAKANISHI,T.

1A05

シロサンゴの骨軸肥大成長速度の推定

（弘前大被ばく研[1]、立正大地球環境[2]、産総研地質情報[3]）
○山田正俊[1]、岩崎望[2]、鈴木淳[3]

【緒言】

宝石サンゴは、名前が同じ「サンゴ」なので造礁サンゴとよく混同されるが、分類学上刺胞動物門花虫綱八放サンゴ亜綱ヤギ目サンゴ科に属し、熱帯・亜熱帯の浅海域でサンゴ礁を形成する造礁サンゴとは亜綱のレベルで異なっている動物である。さらに、造礁サンゴとは骨格を形成する炭酸カルシウムの結晶形が異なり、高マグネシウム方解石の骨格を持つ。その生息水深は幅広く、例えば日本産アカサンゴは 100mから 300m、ミッドウェー産深海サンゴは 1000mから 1500mである。宝石サンゴは、古くから数珠やお守りなどの宗教的用途や装飾品として利用されてきた。地中海では古代から採取が行われており、2 万 5 千年前のドイツの遺跡の出土品等に残っている。地中海産と思われるサンゴが、シルクロードを通り、中国を経由して、正倉院に収められている。日本は地中海と並ぶ主要な漁獲海域であり、世界各地に日本産宝石サンゴが輸出されている。乱獲による資源の枯渇が懸念され、ワシントン条約締約国会議では、国際取引を規制する提案が行われた。提案は否決されたものの、規制を求める世論は根強い。科学的な根拠に基づく議論を行うことが重要であるが、宝石サンゴを対象とした研究はほとんど行われていない。そこで本研究では、資源管理等で重要であると考えられる成長速度に着目し、日本近海産のシロサンゴについて、骨軸肥大成長速度を求めた。

【実験】

シロサンゴ（試料名 : DPC-16, DPC-17）は、鹿児島県三島村近海の水深 100-150mにおいて、シロサンゴ（試料名：DPC-01）は、高知県室戸沖の水深 100m において採取された。また比較のために用いたアカサンゴ（試料名：DPC-18）は、奄美大島沖の水深 207mにおいて、モモイロサンゴ（試料名：DPC-10）は、沖縄本島から石垣島にかけての海域の水深 200-300mにおいて採取されたものである。化学的収率モニターとして ^{209}Po を加え、切削試料を硝酸で溶解後、銀板上に電着し、PIPS 検出器付 α 線スペクトロメータを用いて ^{210}Po を測定した。なお、^{210}Pb 濃度は試料採取日に減衰補正した。

【結果と考察】

結果の一例として、シロサンゴ（DPC-16）の ^{210}Pb 濃度の鉛直分布（半径）を図 1 に示す。^{210}Pb 濃度は、骨軸表面から中心に向かって指数関数的に減少するという分布を示した。この傾きから骨軸の肥大成長速度は、0.21 mm/yr と見積もられた。この速度は、奄美大島沖の水深 207mにおいて採取されたアカサンゴ（試料名：DPC-18）よりやや速い速度であった。

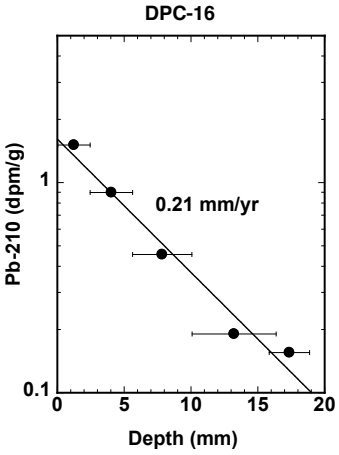


図 1　シロサンゴの骨軸肥大成長速度

Determination of the radial growth rate of white coral (*Corallium konojoi*)
YAMADA, M., IWASAKI, N., SUZUKI, A..

1A06　尾小屋地下実験施設の井戸型 Ge 検出器による隕石中の宇宙線生成核種の測定

（金沢大学・LLRL）○浜島靖典

【緒言】隕石中の宇宙線生成核種の測定は，これまで通常，数十 g の試料を用いて，同軸型 Ge 検出器を用いて行われてきた。今回，本年 4 月 22 日にカリフォルニアに落下した炭素質隕石の中から，3~5g 程度の試料 2 個を尾小屋地下実験施設の井戸型 Ge 検出器で測定した。井戸型 Ge 検出器の利点は, 試料の高さが 40mm 程度までなら計数効率が試料の形状にあまり依存せず，カスケードガンマ線を放出しない核種は，高計数効率で測定できるため宇宙線生成核種の定量が容易な事である。一方，Na22，Al26，Co60 等はサムコインシデンス効果が顕著に表れ補正が必要となる。本研究では測定出来た核種を紹介すると共に，全ての Ge 検出器で必要となるサムコインシデンス効果の補正方法についても検討する。

【測定】3.1g，5.06g の炭素質隕石をそれぞれ 5/21 から約 30 日，6/21 から約 28 日井戸型 Ge 検出器(井戸の直径 21mm，深さ 68mm，有効体積 311cm^3)で測定した。計数効率は，日本アイソトープ協会製の密封放射能標準ガンマ体積線源（Cd109, Co57, Ce139, Cr51, Sr85, Cs137, Mn54, Y88, Co60）の 9 核種混合線源）及び Na22 線源を用いて求めた。

【宇宙線生成核種】両者ともに Co57, Cr51, Be7, Co58, Mn54, Co60, Na22, K40, Al26 を誤差ほぼ 20%以下(Al26 は約 33%)で検出した(図 1)。Co57, Cr51, Be7, Co58, Mn54, K40 はシングルもしくはシングルガンマ線放出とみなされる。Na22 と Al26 は消滅ガンマ線と，Co60, Co56 はカスケード放出の他方のガンマ線とサム効果が認められる。Na22 と Co60 は標準線源とのピーク面積比較ができる。Al26 は，511keV の全効率を Na22 のから求め 1809keV の計数効率を推定した。Co56 も検出したが壊変様式が複雑なため検討中である。

【計数効率】シングルもしくはシングルガンマ線放出とみなされる核種の計数効率は，9 核種混合線源から求めたが，Ce139, Y88, Co60 及び Na22 はサム効果があり, 井戸型 Ge では各ピーク面積が 40 - 60%も減少し，効率曲線作成に使用できなかった。(これら 4 核種は, 平板型, 同軸型 Ge でも 10-20%程度は減少し, 同様に効率曲線作成に使用できない)。

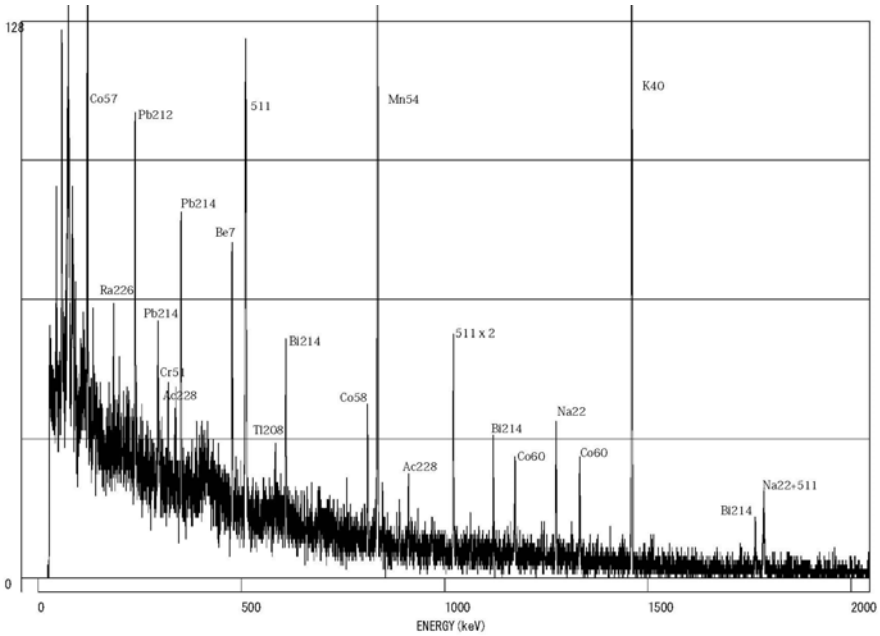


図 1　3g の炭素質隕石のスペクトル(2012/4/22 落下, 5/21 から 30 日測定)

Measurement of cosmogenic nuclides in small meteorites by well-type Ge detector in Ogoya Underground Laboratory

HAMAJIMA, Y..

1B01 ^{7}Li+^{nat}Pb 反応での放射性 At 同位体の製造と利用に関する核・放射化学的研究 ―α放射性同位体による新しいがん治療を目指して―

（原子力機構先端基礎セ[1]、金沢大理工[2]、金沢大医薬保健[3]、金沢大院自然[4]、原子力機構量子ビーム応用[5]）　○ 西中一朗[1]、横山明彦[2]、鷲山幸信[3]、天野良平[3]、前田英太[4]、山田記大[4]、谷口拓海[2]、渡邉茂樹[5]、石岡典子[5]、橋本和幸[5]、牧井宏之[1]、豊嶋厚史[1]

核医学利用の観点からα放射性核種は「癌の全身性、転移性治療」に有用であると期待されている。なかでも加速器で合成する半減期 7.2 時間の ^{211}At は、ハロゲン元素であることから医薬品合成のための化学特性の面から注目されている。^{211}At は約 30 MeV の He イオンビームを用いた ^{209}Bi(α,2n)^{211}At 反応で製造されているが、我々は Li イオンビームを用いた新しい製造方法を開発するため、原子力機構タンデム加速器施設において Li ビームを用いた核反応での放射性 At 同位体の核・放射化学的研究を開始した[1]。本講演では核反応 ^{7}Li + ^{nat}Pb で生成する At 同位体の励起関数測定、乾式化学分離での無担体 At の化学挙動について得られた研究成果を報告する。

原子力機構タンデム加速器から供給される 50, 60 MeV の ^{7}Li^{3+}ビームを 90-250 nA の強度でアルミ箔で覆った ^{nat}Pb 金属薄膜標的（0.8-1.5 mg/cm^{2}）に照射して At 同位体を製造した。励起関数を求めるため、3-5 組の照射試料を重ねて照射した。それぞれの照射試料中に生成した $^{208-210}$At の放射能をγ線スペクトロメトリーで求めた。その後、照射試料を試験管に入れ電気炉で 650℃に加熱し、無担体 At を ^{nat}Pb 金属薄膜から蒸留して乾式化学分離した。分離した無担体 At からエタノール、水、イソプロピルエーテル溶液を作り、溶液の一部を銀板上に滴下、乾固して測定試料を作製した。^{211}At の放射能をγ線、α線スペクトロメトリーで求めた。

At 同位体の放射能、ターゲット厚、ビーム量から反応断面積を求めた（図）。先行研究[1,2]より高いエネルギー領域（> 50 MeV）の測定データを新たに得た。さらにγ線スペクトロメトリーだけでは求められなかった ^{211}At の反応断面積を初めて決定した。曲線で示した統計模型計算は、実験値をほぼ再現している。高いエネルギー領域での実験値と計算値の不一致は、Li 原子核に特徴的な分解融合過程[3]に起因していると推察する。45 MeV より低いエネルギーでは、α線放出同位体 ^{211}At の反応断面積が、γ線放出同位体 $^{208-210}$At に比べて大きい。入射エネルギーを制御することで、α線とγ線を放出する無担体 At 同位体を異なる存在比で製造できる。この反応で製造した無担体 At は ^{211}At 標識アミノ酸誘導体の合成に使用された[4]。乾式化学分離、化学挙動についての詳細は、講演で報告する。

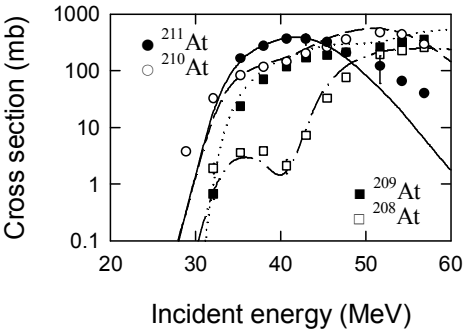


図 ^{7}Li+^{nat}Pb 反応での At の励起関数

参考文献： [1]西中ら、第 55 回放射化学討論会 3B07 (2011).　[2]K. Roy, S. Lahiri, Appl. Radiat. and Isotopes 66 (2008) 571.　[3]M. Dasgupta *et al.*, Phys. Rev. C 70 (2004) 024606.　[4]渡邉ら、第 56 回放射化学討論会 1B04 (2012).

Nuclear and radiochemical study of production and utilization of radioactive astatine isotopes in the ^{7}Li+^{nat}Pb reaction –Aim at the new cancer medical treatment by α-emitting radioisotopes-

NISHINAKA, I.,YOKOYAMA, A., WASHIYAMA, K., AMANO, R., MAEDA, E., YAMADA, N., TANIGUCHI, T., WATANABE, S., ISHIOKA, N., HASHIMOTO, K., MAKII, H., TOYOSHIMA, A.

1B02 核医学利用に向けた At 同位体の湿式分離と溶媒抽出

（金沢大院自然 [1]，金沢大理工 [2]，金沢大医薬保健 [3]，原子力機構先端基礎セ [4]，阪大院理 [5]） ○前田英太 [1]，横山明彦 [2]，山田記大 [1]，谷口拓海 [2]，鷲山幸信 [3]，天野良平 [3]，西中一朗 [4]，高橋成人 [5]，笠松良崇 [5]

【はじめに】

アイソトープ治療に用いるα線放出核種として ^{211}At が注目されている。α線は線エネルギー付与が高いため、同一線量のβ線より高い治療効果が期待できる。また飛程が短いため腫瘍周辺の正常細胞を傷つけずに治療を行うことができる特徴がある。治療薬製造に適した At 溶液を得るための湿式分離に関しては DIPE[1]と MIBK[2]などへの抽出が報告されているが、その化学的挙動はいまだ不明な点が多い。そこで本研究では、大阪大学核物理研究センターにおいてαビームを用いた ^{209}Bi(α, 3n)^{210}At 反応、日本原子力研究開発機構のタンデム加速器においてLiビームを用いた ^{nat}Pb(^{7}Li, xn)^{210}At 反応によりγ線放出核種である ^{210}At(半減期 8.1h)を製造し、ターゲットからの At の湿式分離と溶媒抽出の検討を行った。

【実験】

^{209}Bi(α, 3n)^{210}At 反応では Al 箔(厚さ 2.69 mg/cm^2)に 0.86－0.98 mg/cm^2 の厚さで真空蒸着した Bi 標的を用い、大阪大学核物理研究センターにて 40MeV のαビームを 1.2－1.4μA の強度で照射して ^{210}At を製造した。^{nat}Pb(^{7}Li, xn)^{210}At 反応では Al 箔(厚さ 2.69 mg/cm^2)に 0.62－0.72 mg/cm^2 の厚さで真空蒸着した Pb 標的を用い、日本原子力研究開発機構のタンデム加速器にて 50MeV の ^{7}Li ビームを 130－150nA の強度で照射して ^{210}At を製造した。

照射後のターゲットを 4mL の 6M HNO_3 に溶解して 18mL の 1M または 8M HCl を加えた後、80mL の抽出剤(DIPE, MIBK, トルエン)を加えて 5 分間振とうして At の溶媒抽出を行った。両相を分離してγ線測定を行い ^{210}At の分配比(*D*)を求めた。抽出後の有機相を 10mL ずつ分取し、同体積の 0.25－8.0M NaOH を加え、5 分間振とうして水相への逆抽出を行った。同じく両相を分離してγ線測定により逆抽出率を求めた。

【結果】

^{210}At の分配比について Table 1 に示す。DIPE, MIBK に対して ^{210}At はよく抽出されたものの、トルエンに対しては抽出されなかった(MIBK > DIPE >トルエン)。また HCl 濃度の違いにより At の分配比にも違いが見られた。有機相からの逆抽出に関しては Fig. 1 に示した。ここで DIPE と MIBK で異なる抽出挙動が見られ、DIPE では 75%以上の逆抽出率が得られたが、一方 MIBK では NaOH の濃度に比例して逆抽出率が高くなる傾向が見られた。

Table 1. Distribution ratio of ^{210}At

DIPE (1MHCl)	0.6
DIPE (8MHCl)	40
MIBK	$>1.7\times10^{2}$
toluene	4.9×10^{-4}

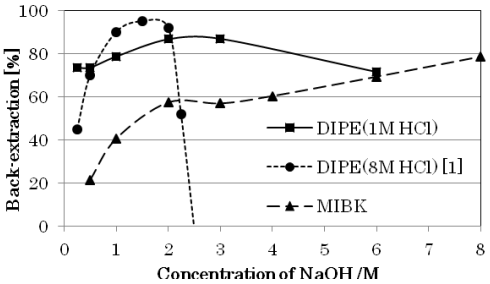


Fig. 1. Back-extraction with NaOH

【参考文献】

[1] C.Zona et.al., *J.Radioanal. Nucl. Chem.*, **276** (2008) 819.

[2] D.Nayak et.al., *Radiochim. Acta,* **91** (2003) 159.

Wet separation with solvent extraction of astatine isotopes in the synthesis process for nuclear medicine.

MAEDA, E., YAMADA, N., YOKOYAMA, A., TANIGUCHI, T., WASHIYAMA, K., AMANO, R., NISHINAKA, I., TAKAHASHI, N., KASAMATSU, Y.

1B03 放射性 At のマウス体内分布

（金沢大医薬保健[1]、金沢大理工[2]、大阪大院理[3]、原子力構先端基礎セ[4]、原子力構量子ビーム応用[5]）○鷲山幸信[1]、李恵子[1]、天野良平[1]、横山明彦[2]、高橋成人[3]、中井浩二[3]、笠松良崇[3]、篠原厚[3]、西中一朗[4]、牧井宏之[4]、橋本和幸[5]

【緒言】α放射体のひとつである ^{211}At（アスタチン-211, 半減期 7.2h）は 6.79 MeV のα線を放出する。放出されたα線の組織内飛程は 55-70 μm と短く平均 LET は 97 keV/μm であるため、核医学の領域に於いて局所的な治療や播種性のがん治療への適応が期待されている。さらにこの核種は加速器を利用して製造できる核種であり、国内での製造および利用が最も有望視されている。At はハロゲンに属しながらも金属的な性質も有している。そのため核医学で利用されている同族の放射性ヨウ素と同じ標識法を At 標識に応用しても、標識化合物はヨウ素標識体と較べて体内で分解され易く安定性が低い。したがって At を用いて最適ながん治療を行うためには At を安定に標識する技術が不可欠である。一方、体内で結合からはずれた At はがん組織とは異なる正常組織に分布するため、その影響を評価することも重要である。そこで本研究では体内で標識化合物から遊離した At がどのように分布するのかを評価するために、標識化合物の分解物と同等と考えられる At 単体のトレーサー溶液をマウスに投与し、マウス体内での At の薬物動態を検証した。

【実験】大阪大学核物理研究センター K-70 AVFサイクロトロンから供給される40MeVのαビームをBi金属板に照射し、^{209}Bi(α, 2n)^{211}At, ^{209}Bi(α, 3n) ^{210}At反応により^{211}At, ^{210}Atを製造した。また日本原子力研究開発機構タンデム加速器から供給される^{7}Liビームを Pb金属板に照射し、^{nat}Pb(^{7}Li, xn)$^{211, 210}$At反応により^{211}At, ^{210}Atを製造した。照射後の各標的を金沢大学アイソトープ総合研究施設に持ち帰り、その後乾式分離法にて^{211}At, ^{210}Atを分離し、生理食塩水に溶解して試料溶液とした。この^{211}At, ^{210}Atトレーサー溶液をBalb/c系雄性マウスに投与し、1, 3, 6, 12, 24時間後に解剖し、血液, 肝臓, 腎臓, 胃等13組織を摘出した。摘出試料は秤量後NaI(Tl)シンチレーションカウンターで^{211}AtのX線ならびに^{210}Atのγ線を測定し、各組織中のAtの重量集積率(%ID/g)を求めた。

【結果と考察】 ^{209}Bi(α,2n)^{211}At, ^{209}Bi(α,3n)^{210}At ならびに ^{nat}Pb(^{7}Li, xn)$^{211, 210}$At 反応で製造した ^{211}At, ^{210}At は共に同様の体内分布を示した。

血中に投与された At は投与 1 時間で摘出した全ての臓器で検出され、特に肺、脾臓、胃、甲状腺への集積が高く、その他の組織は 10%ID/g 以下の取込率を示した。実験期間に亘って甲状腺への集積が最も高く、投与後 12 時間では約 120%ID/g の取込率を示した。よって At が標識化合物から遊離した場合は、甲状腺への集積を制御することが重要であると考えられる。

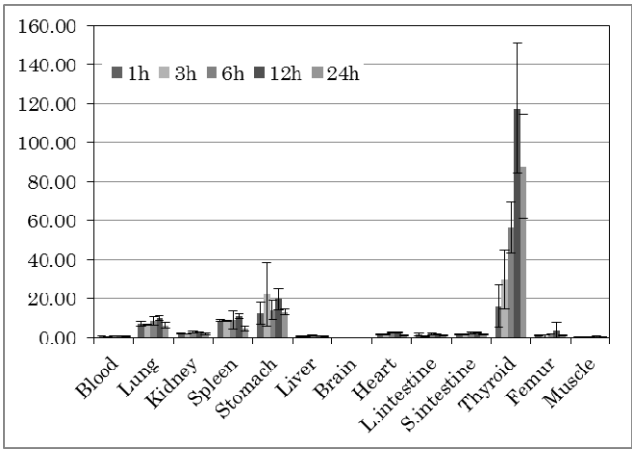


Fig. Biodistribution of [^{211}At] astatide in mice.

Biodistribution of ^{211}At astatide in mice

WASHIYAMA, K., LI, K., AMANO, R., YOKOYAMA, A., TAKAHASHI, N., NAKAI, K., KASAMATSU, Y., SHINOHARA, A., NISHINAKA, I., MAKII, H., HASHIMOTO, K..

1B04 内用放射線治療に向けたAt-211標識アミノ酸誘導体の合成

(原子力機構量子ビーム[1]、原子力機構先端基礎[2]、群馬大工[3]、千葉大薬[4])
○渡辺茂樹[1]、西中一朗[2]、山田圭一[3]、橋本和幸[1]、牧井宏之[2]、花岡宏史[4]、石岡典子[1]

【緒言】α線放出核種は高い細胞殺傷能力を持つことから、放射性核種を体内へと投与して特定の疾患を治療する内用放射線治療への利用が期待されている。その中でもAt-211は、半減期(7.2 h)が治療に適している他、高い反応性を持つこと、放射性ヨウ素と類似の分子設計が可能であることなどの特徴から、内用放射線治療への利用が期待されているα線放出核種である。生理活性ペプチドには、がん細胞特異的に発現する受容体に対して高い親和性を持つものがあり、このようなペプチドにAt-211を標識することができれば、がんを対象とした内用放射線治療に利用することができる。そこで、本発表では、At-211 標識生理活性ペプチドの開発を目的として、その基礎検討としてペプチドの構成分子であるAt標識アミノ酸誘導体の合成について検討した。

【実験】At は原子力機構タンデム加速器施設において製造した。^{nat}Pb 薄膜ターゲットに 45 MeV の $^{7}Li^{3+}$ビームを照射することでAtを生成させた。その後、650 ºC で加熱することでエタノール 1 mL 中に回収した[1]。スズ化フェニルアラニン誘導体は、フェニルアラニンを出発原料として2段階の保護反応を行った後、Pd触媒存在下ビストリブチルスズと反応させることで合成した[2](図)。At標識反応は1%酢酸含有エタノール溶液中、酸化剤存在下、室温で15分間反応させた。反応溶液の一部を分取し、ジクロロメタン：メタノール＝20：1の展開溶媒を用いて薄層クロマトグラフィー(TLC)上で展開した。TLCを4日間イメージングプレートにより露光した後、バイオイメージングアナライザー(BAS)を用いて画像化した。得られた画像から標識率を算出した。

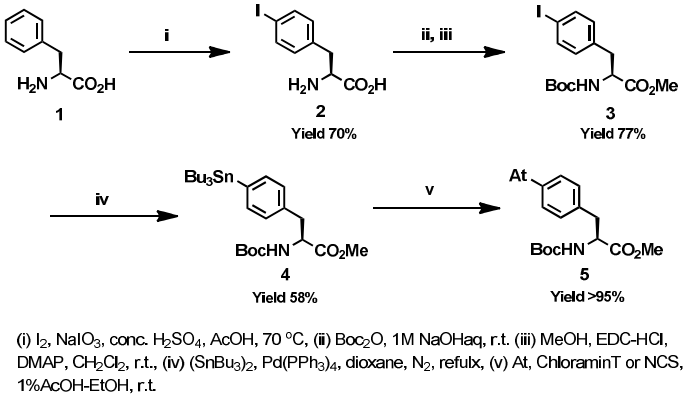


図　At標識アミノ酸誘導体の合成経路

【結果】スズ化フェニルアラニン誘導体は、出発原料から収率31%(4ステップ)で合成した。化合物は^{1}H NMRおよびESI-MSにより同定した。酸化剤存在下で標識反応を行い、反応溶液についてTLC分析を行った結果、Rf = 0および0.72付近にAtのスポットを確認した。Atと類似の化学的性質を示すI-131(半減期 8.0日)を用いて同条件で標識反応を行った結果、Rf = 0.72付近にI-131のスポットが得られ、コールド体でもRf = 0.72付近にスポットが見られたことから、Rf = 0.72付近のAtスポットはAt標識アミノ酸誘導体であることを確認した。BASを用いた解析から、標識率は95%であった。以上の結果から、スズ―アスタチン交換反応によりAt標識アミノ酸を高い標識率で合成できることが明らかとなった。

【参考文献】

[1] 西中ら、第56回放射化学討論会 1B01, 2012. [2] D. S. Wilbur et al., *Bioconjugate Chem.*, **1993**, *4*, 574-580.

Synthesis of At-211 labeled amino acid derivative for radionuclide therapy

WATANABE, S., NISHINAKA, I., HASHIMOTO, K., YAMADA K., MAKII, H., HANAOKA, H., ISHIOKA N. S..

1B05

核医学的手法を用いた放射性ヨウ素のラット体内動態の検討

(阪大院・医) ○金井泰和、渡部直史、(阪大院・理) 高橋成人、(阪大院・医) 加藤弘樹、礒橋佳也子、仲定宏、渡部浩司、下瀬川恵久 (阪大院・理) 篠原厚、(阪大院・医) 畑澤順

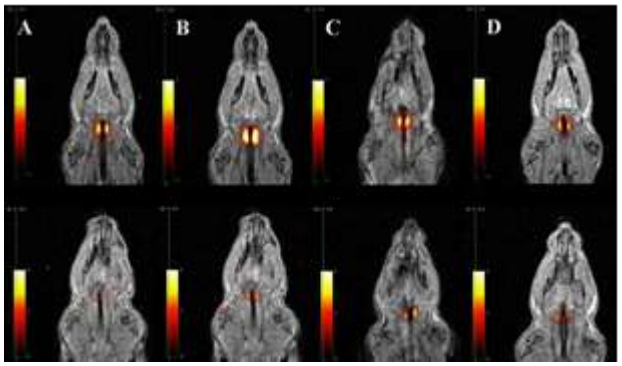
【目的】2011 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災とそれに続く大津波により福島第一原子力発電所の原子炉が重大な損傷を受けた。この事故より、大量の放射性物質が大気中に放出された。放出された放射性物質の中でもヨウ素 131 に代表される放射性ヨウ素は揮発性が高いため、広範囲に拡散し、また、生体内に取り込まれると甲状腺に特異的に取り込まれ、体外へ排泄されにくい。このようなことから核分裂生成物の中でも生体にとって最も有害な核種の一つであると考えられている。

放射性ヨウ素の生体内での甲状腺への取り込みは、非放射性ヨウ素の摂取によりブロックすることが出来る。しかし、生体内での放射性ヨウ素の動態や甲状腺ブロックについて、どのタイミングで、どの程度の量を投与することで、最も効果的であるかなどの詳細な検討についての報告はほとんどなされていない。そこで今回、我々は核医学的な手法を用いることにより放射性ヨウ素が生体内に取り込まれた時の詳細な体内動態や甲状腺ブロックの効果などを検討することを計画した。

【方法】放射性ヨウ素としては、ヨウ素の放射性同位元素の一つで陽電子放出核種であり、半減期が 4.18 日と比較的長い ^{124}I を用いた。^{124}I は ^{124}I-NaI として用い、ラット甲状腺のイメージングを行った。^{124}I-NaI 2~3 MBq をラットに投与した。また、甲状腺ブロックとして非放射性 NaI を投与したラットの甲状腺イメージングも行った。

^{124}I-NaI 投与後、1、7、24 および 48 時間で PET 撮像および MRI 撮像を行った。PET 装置および PET-MRI 装置は超高分解能半導体 PET カメラ(MIP-100, 住友重機社製)および iPET-MR 装置を用いた。

【結果】ラットの甲状腺の良好な画像を得ることができ、Standard Uptake Value (SUV)は投与 24 時間後に最大になることを確認した。甲状腺ブロックを行ったラットでは ^{124}I-NaI の取り込みは甲状腺ブロックを行っていない群と比較して取り込みが低下している画像が得られた。



【考察】本研究から ^{124}I-NaI を用いることにより PET による放射性ヨウ素の生体内での動態および甲状腺ブロックの効果の評価が可能であることが示唆された。

Investigation of radioactive iodine kinetics in rat with nuclear medicine methods

YASUKAZU KANAI, TADASHI WATABE, NARUTO TAKAHASHI, HIROAKI KATO, KAYAKO ISOHASHI, SADAHIRO NAKA, HIROSHI WATABE, EKU SHIMOSEGAWA, ATSUSHI SHINOHARA, JUN HATAZAWA.

1B06

核破砕中性子を用いた ^{99}Mo の製造とラットの骨シンチグラム撮像

（阪大院理 [1]、阪大院医 [2]、阪大核物センター[3]、富士 RI ファーマ [4]）○髙橋成人 [1]、中井浩二 [1]、林良彦 [1]、篠原厚 [1]、畑澤順 [2]、金井泰和 [2]、池田隼人 [2]、渡部浩司 [2]、堀次元気 [2]、中村正信 [3]、福田光宏 [3]、畑中吉治 [3]、森川康昌 [4]、小林正明 [4]、山本朝樹 [4]

【緒言】今日の進んだ医療の現場ではイメージング技術が進歩し、医療診断に不可欠な方法になっている。MRI や PET 等の先端技術を駆使した技術が日常的に使われて威力を発揮している。その中で古くから用いられてきた SPECT 法による Tc-99m シンチグラフィーの方法は最も広く普及してイメージング診断の 80%以上を占め、国内では 1500 を越える医療機関で脳・心肺などの血流検査、癌の骨転移検査等に用いられている。

その Tc-99m は半減期が短く 6 時間で、親核の Mo-99 のβ崩壊によって造られるが、Mo-99 は核分裂生成物から分離したものを海外から輸入している。この海外に依存した体制は、海外の原子炉の運転状況に左右され供給に大きな不安が生じている。

海外依存の体制から脱却するために国内で製造することが必要である。我々は大阪大学核物理研究センターで高エネルギー陽子の原子核反応による核破砕中性子を用い ^{100}Mo(n,2n)^{99}Mo 反応を利用する方法の開発に成功し、^{99}Mo-^{99m}Tc を製造した。

【実験】Mo-99 は大阪大学核物理研究センターのリングサイクロトロンからの 400MeV の陽子による核破砕中性子を用いて ^{100}Mo(n,2n)^{99}Mo 反応により製造した。

図 1 に ^{99}Mo-^{99m}Tc の製造スキームを示す。リングサイクロトロンからの陽子ビームを直径 18mm のタンタル金属棒に当て核破砕中性子を発生させる。この周りに天然組成の酸化モリブデンを配置し、中性子照射を行った。照射は p（400MeV）1μA、8 時間行った。照射終了後ターゲットを 4 mol/L の NaOH に溶解、生成したテクネチウムをメチルエチルケトン（MEK）に抽出した。その後アルカリ溶液を 1 日放置し、再び生成した ^{99m}Tc を MEK 中へ抽出した。MEK を減圧化で蒸発させた後、少量の生理食塩水に ^{99m}Tc を溶かした。この溶液を市販の骨シンチグラフィー用のメチレンジホスホン酸(MDP)キットに加え、^{99m}Tc-MDP 薬剤を調製した。さらに阪大医学系放射性同位元素等使用施設にてラットを用い骨シンチグラムを撮影した。

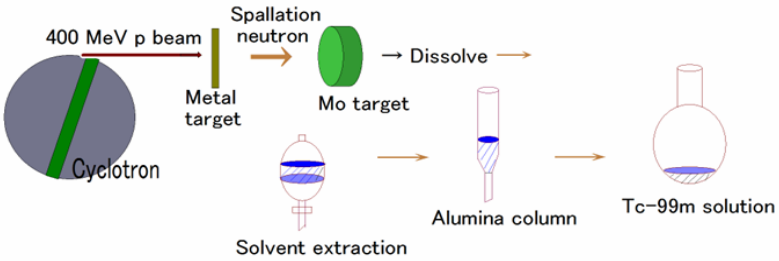


図 1． ^{99m}Tc の製造スキーム

【結果】本研究で p (400MeV)、Ta ターゲットを使用した核破砕中性子により、^{nat}Mo のターゲット 1g あたり 3MBq/μA・h の ^{99}Mo が得られた。また図 2．に示すような骨シンチグラムが得られた。

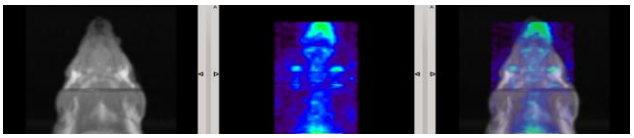


図 2．ラットの骨シンチグラム

Production of ^{99}Mo with spallation neutron and bone scintigraphy of rat

TAKAHASHI, N. , NAKAI, K. , HAYASHI, Y. ,SHINOHARA, A. , HATAZAWA, J. , KANAI, Y. , IKEDA, H. , WATABE, K., HORITSUGU, G., NAKAMURA, M., FUKUDA, M., HATANAKA, K., MORIKAWA, Y., KOBAYASHI, M., YAMAMOTO, A.

1B07 DFT 計算による 1,2-ビス(4-ピリジル)エタンで架橋した集積型鉄(II) 錯体の電子状態

(広島大院理 [1]、広島大 N-BARD [2]) ○金子政志 [1]、中島　覚 [2]

【諸言】価電子に 6 つの 3d 電子を持つ Fe(II)錯体は singlet (LS)⇔quintet (HS) のスピンクロスオーバー(SCO)を示す可能性があり、熱や光などがトリガーとなって起こる。またスピン転移は分子同士の協同効果によって起き、主に鉄周りの構造の歪みを伴う。我々はビピリジン型架橋配位子を用いた自己集積型錯体における研究により集積構造やスピン状態の制御を行ってきた。架橋配位子に 1,2-ビス(4-ピリジル)エタン(bpa)、アニオン配位子に NCX^- (X = S, Se, BH_3)を用いた集積型錯体$[Fe(bpa)_2(NCX)_2]_n$は空孔へのゲストの包接の有無により熱 SCO 現象が制御される [1](Fig. 1)。今回はこの系における熱的スピン転移メカニズムを DFT の手法を用いて検討した。

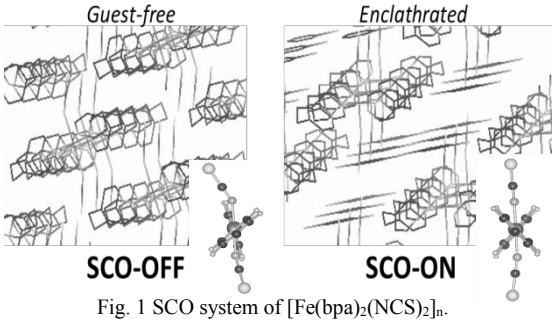


Fig. 1 SCO system of $[Fe(bpa)_2(NCS)_2]_n$.

【計算】全ての計算においてプログラム“ORCA 2.8 [2] ”を用いた。クラスターモデルは集積構造のうち単核錯体$[Fe(bpa)_4(NCX)_2]$を対象とした。構造最適化計算は meta-GGA 汎関数である TPSS を用い、準 Newton 法により X-ray 構造を始点として勾配計算を行った。また X-ray 構造を有効に反映するために、Fe に配位している NCX の配位角や Fe を通して向かい合うピリジンの二面角に束縛条件を施した。single point 計算には Reiher らによる SCO 錯体の計算に適した密度汎関数 B3LYP*を用いた [3] 。基底関数は Fe に CP(PPP)、S, N に TZVP、C, H に SV(P)を用い、resolution of the identity (RI) 近似による SCF 計算を行った。

【結果と考察】まず SCO を起こさない系(Guest-free)と起こす系(Enclathrated)の X-ray[HS]及び HS, LS 平衡構造における Fe-Ligand の平均結合距離を Table 1 に示した。Guest-free と Enclathrated を比較した結果、quintet に比べ singlet は Guest-free の方が大きい値を得た。これは Fig. 1 に示したように Guest-free は非対称的な Fe 配位環境を持ち、結晶中での束縛による影響を示唆している。また Table 2 に HS と LS のポテンシャルエネルギー差($\Delta E_{tot}^{HS/LS} = E_{tot}^{HS} - E_{tot}^{LS}$)と MO 密度解析による配位子場分裂の値を示したが、SCO を起こす系は起こさない系に比べポテンシャルエネルギー差が小さく、SCO を起こす系がより大きな Δ_o を与えた。この結果は SCO が発現しうる傾向と一致しており、isolated 単核モデルの DFT 計算の適用可能性を示唆するものである。発表においては構造最適化ステップを利用したポテンシャルエネルギー曲面を考慮した計算結果や、minimum energy crossing point を直接的に計算する非断熱的アプローチも合わせて報告する。

Table 1 $r(Fe\text{-}N)_{ave}$ of $[Fe(bpa)_4(NCS)_2]$.

	X-ray/Å	singlet/Å	quintet/Å
Guest-free	**2.192**	**1.993**	**2.188**
Enclathrated	**2.188**	**1.969**	**2.176**

Table 2 $\Delta E_{tot}^{HS/LS}$ and Δ_o of $[Fe(bpa)_4(NCS)_2]$ by B3LYP*/CP(PPP).

	$\Delta E_{tot}^{HS/LS}$/kcal mol^{-1}	Δ_o^{LS}/eV	Δ_o^{HS}(up/down)/eV
Guest-free	**-7.35**	**4.92**	**2.17 / 2.54**
Enclathrated	**-2.29**	**5.17**	**2.24 / 2.65**

Ref. 1) T. Morita, S. Nakashima, *et al*. *Chem*. *Lett*. **2006**, ***35***, 1042. 2) F. Neese, University of Bonn: Bonn, Germany, **2008**. 3) M. Reiher, *Inorg*. *Chem* .**2002**, *41*, 6928.

The electronic states of assembled iron complexes bridged with 1,2-bis(4-pyridyl)ethane studied by DFT

KANEKO, M., NAKASHIMA, S.

1B08 β線と遅延γ線同時計測による時間分解 ^{57}Mn/^{57}Feインビームメスバウア分光法の開発

（高エネ研[1]，理研[2]，ICU[3]，東京理大[4]，阪大院[5]，金沢大[6]，日大生産工[7]，放医研[8]）○長友傑[1]，小林義男[2]， 前和也[3]，山田康洋[4]，
三原基嗣[5]，佐藤渉[6]，宮崎淳[7]，久保謙哉[2]，佐藤眞二[8]，北川敦志[8]

【はじめに】高エネルギー^{57}Mn ビームを用いたインビームメスバウア分光は、あらゆるサンプルに対して応用可能で、打ち込まれたイオンの近傍の電子状態を高感度で観測可能である。また、^{57}Mn は 75%の分岐比で 14.4 keV の励起準位へβ崩壊($T_{1/2}$ = 87.2 s)するため、β線の観測時刻を $t = 0$ とする ^{57}Fe のメスバウアースペクトルの時間変化を容易に観測する事が可能であり、化学結合の時間的な変化の様子を *in situ* で観測できると期待される。本研究では、酸化マグネシウムのような結晶構造が単純な岩塩型結晶に ^{57}Mn をインプラントし、β線とβ壊変後に放射される 14.4 keV γ線（τ=98.1ns）の遅延時間を測定すると同時に、そのγ線に対してメスバウアー分光測定を行い、時間分解メスバウアースペクトル法の原理実証実験を行った。

【実験】放射線医学総合研究所の重イオン加速器施設 HIMAC を用いて、核子あたり 500MeV に加速された ^{58}Fe 一次ビームを 27mm 厚のベリリウム標的に照射し、入射核破砕過程によって不安定核 ^{57}Mn ビームを生成した。二次ビームライン SB2 によって他の核破砕片から分離された ^{57}Mn ビームは、エネルギー減衰板によって、酸化マグネシウム試料にインプラントされた。プラスチック検出器により、^{57}Mn から放射されるβ線を測定すると同時に、アンチコインシデンス法[1]によって ^{57}Fe から放射される 14 keV γ線に対してメスバウアー分光を行った。

【結果】得られた酸化マグネシウム中の ^{57}Fe 時間分解メスバウアースペクトルを Fig.1 に示す。先行研究から[2]、得られたスペクトルは、Mg 置換位置の 1 つのシングレットと格子欠陥を伴う複数のダブレットからなると理解される。時間経過に伴い、線幅が狭くなっていく様子が観測された。また、面積強度の変化も議論する。

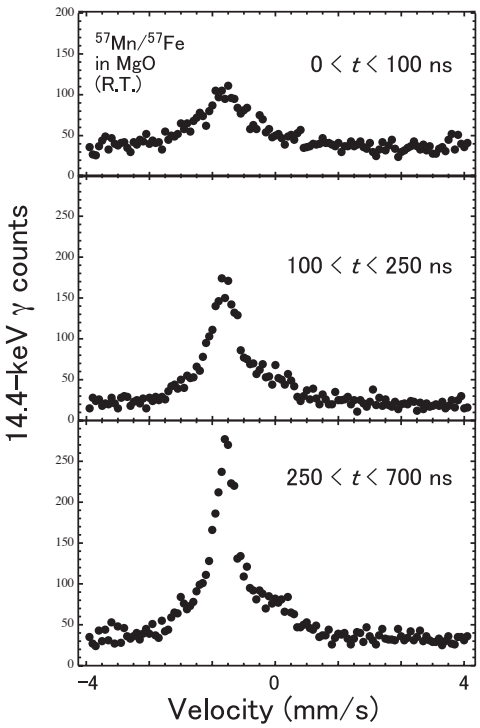


Fig.1. Time dependence of Mössbauer spectra of ^{57}Mn/^{57}Fe in MgO.

【参考文献】 [1] T. Nagatomo et al. Nucl. Instr. Meth. B 269 (2011) 455.
[2] 長友傑等、1A12, 2010 日本放射化学会年会・第 54 回放射化学討論会.

Development of time-resolved ^{57}Mn/^{57}Fe in-beam Mössbauer spectroscopy with the coincidence measurement of β and delayed γ rays

NAGATOMO, T., KOBAYASHI, Y., MAE, K., YAMADA, Y., MIHARA, M., SATO, W., MIYAZAKI, J., KUBO, M.K., SATO, S., KITAGAWA, A.

1B09

ZnO 中にドープされた不純物 Al と In の会合とその安定性

（金大院自然[1]，京大原子炉[2]，金大理工[3]）
○小松田沙也加[1]，大久保嘉高[2]，佐藤　渉[3]

【はじめに】

酸化亜鉛(ZnO)は，近年半導体としての利用が注目されている。半導体物性は希薄不純物の濃度や導入法によって変化するため，これを制御するには電気伝導度等のバルクの情報に加え，不純物の占有サイトや熱への安定性といった局所的情報を得る必要がある。そこで我々は ^{111}In(→^{111}Cd)をプローブとするγ線摂動角相関(PAC)法により，ZnO の局在量子構造を調べることを目的として実験を行っている。我々はこれまでの研究において，不純物 Al をドープした ZnO(Al-doped ZnO)において，Al が ZnO 中で凝集相を形成し ^{111}In(→^{111}Cd)プローブがこの凝集相と選択的に会合する現象を観測した[1,2]。この選択的会合は，Al と In がそれぞれ ppm，ppt レベルといった非常に希薄な状態でも観測され，ZnO 中で In と Al は強い親和力で結合していることが見出された[2]。しかし，ppm レベルの Al 濃度条件で作成した Al-doped ZnO において，真空中での熱処理により，強く会合している Al とプローブの ^{111}In(→^{111}Cd)が解離することを示唆する結果が得られた。そこで本研究では Al-doped ZnO について，様々な測定温度や雰囲気条件下で PAC 測定を行い，ZnO 中の Al と In の会合の安定性について調べた。以下に，結果の一部である 500 ppm Al-doped ZnO の試料について記す。

【実験】

Al の濃度が Zn に対し 500 ppm となるように，$Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ を溶解したエタノール溶液と ZnO 粉末を混合し，エタノールが完全に蒸発するまで加熱・撹拌して粉末試料を得た。これらの粉末試料を錠剤成形し，^{111}In 塩酸溶液を滴下して，空気中 973 K で 2 時間焼成した。得られた試料を粉砕し，石英管に真空封入し，298～1000 K で PAC 測定を行った。

【結果と考察】

Fig.1 は真空中で，室温および 1000 K で測定した 500 ppm Al-doped ZnO の PAC スペクトルである。室温のスペクトルは先行研究で得られた Al-doped ZnO のスペクトル[1]を再現しているが，1000 K においては，上記の成分に加え不純物を何も加えていない ZnO に見られる周波数成分(t = 200 ns 周辺の小さなピーク)が観測された。これはプローブと Al の強い会合が，真空中，1000 K の条件において解離し始めていることを示唆する結果である。本発表ではさらに異なる雰囲気や温度における PAC 測定結果を示し，ZnO 中の不純物 Al と ^{111}In(→^{111}Cd)の安定性を議論する。

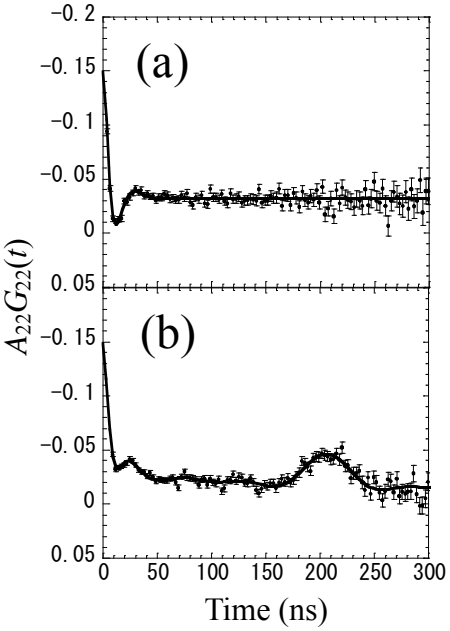


Fig.1 TDPAC spectra of ^{111}In(→^{111}Cd) in 500 ppm Al-doped ZnO in vacuum measured at (a) room temperarture and (b) 1000 K.

[1] W. Sato, Y. Komeno, M. Tanigaki, A. Taniguchi, S. Kawata, and Y. Okubo: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77** (2008) 105001.
[2] S. Komatsuda, W. Sato, S. Kawata, and Y. Okubo: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **80** (2011) 095001.

Stability of locally-associated Al and In impurities doped in ZnO
KOMATSUDA, S., OHKUBO, Y., SATO, W.

1B10 酸化亜鉛中に合成された新規化合物

（金大理工[1]、金大院自然[2]、京大原子炉[3]）
○佐藤　渉[1]、小松田沙也加[2]、大久保嘉高[3]

【はじめに】内因性の *n* 型半導体としての性質をもつ酸化亜鉛（ZnO）は、その地殻埋蔵量を反映して機能性材料への応用において大いに注目されている物質である。物質固有の性質に加えて、ZnO は不純物の添加によって光学特性や電気伝導性が大きく変化するため、不純物の存在状態を把握することは、半導体物性を制御するうえで大変重要である。本研究では、ZnO 中でドナーとしての機能を果たすことが期待されているインジウム（In）を不純物として添加し（In-doped ZnO）、^{111}Cd（←^{111}In）をプローブとするγ線摂動角相関法で ZnO 中の不純物 In の局所環境を調べることを目的としている[1]。今回はより詳細に局所場を理解するため、新たに ^{111}Cd（←^{111m}Cd）をプローブとして In-doped ZnO に導入して摂動角相関測定を行なった。これらの測定結果を種々のスピネルの酸化物中に ^{111}Cd（←^{111}In）プローブを導入して得た結果と比較することにより、In の存在状態について新たな知見を得ることに成功した。

【実験】$In(NO_3)_3 \cdot 3H_2O$ のエタノール溶液に ZnO 粉末を加え，エタノールが完全に蒸発するまで加熱撹拌して粉末試料を得た。In 濃度は Zn に対して様々な原子数比（0.5%～10%）で調製した。この粉末試料を錠剤成形して、1273 K で 3 時間焼成した。焼成した試料のうち、In 濃度 0.5 % の試料（0.5 at.% In-doped ZnO）に放射性 ^{111}In の塩酸溶液を滴下し、1373 K で 2 時間焼成して摂動角相関測定を行なった。また、上記の 0.5 at.% In-doped ZnO に ^{111}Cd（←^{111m}Cd）プローブを以下の方法で生成して導入した。^{110}Cd を濃縮した酸化カドミウム（CdO）約 3 mg を京大原子炉の圧気輸送管で 60 分間中性子照射し、放射性 ^{111m}Cd を生成した。これを各濃度の In-doped ZnO とめのう乳鉢中でそれぞれ混合した後、錠剤成型して空気中 1373 K で 45 分間焼結し、摂動角相関測定を行なった。さらに、スピネルの構造をもつインジウム酸カドミウムの粉末に ^{111}Cd (←^{111}In) プローブを導入して、同様に摂動角相関測定を行なった。

【結果】 Fig. 1 に 0.5 at.% および 2 at.% In-doped ZnO 中に導入した ^{111}Cd (←^{111m}Cd) プローブの摂動角相関スペクトルをそれぞれ示す。不純物として導入されている In の濃度が増す程、スペクトルの振幅が減少する様子が観測されており、ZnO 中に原子レベルで分散している ^{111}Cd（←^{111m}Cd）プローブ近傍における In 原子の存在確率の増加を示唆する結果である。即ち、この結果は、固有の構造を形成している不純物 In[1]が ZnO 中で大きな凝集相を形成することなく、微視的な単位で ZnO 中に点在していることを示している。本発表では、スピネル化合物で得られたスペクトルを傍証として示し、これまで理論計算でのみ存在が予測されていた新規化合物の ZnO 中における実験的合成について報告する。

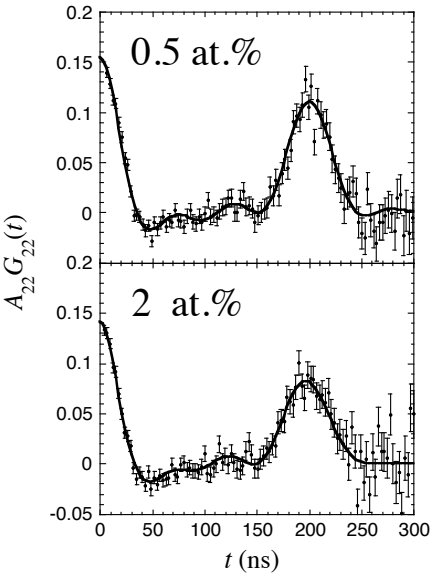


Fig. 1. TDPAC spectra of ^{111}Cd(←^{111m}Cd) in 0.5 and 2 at.% In-doped ZnO measured at room temperature.

【参考文献】

[1] W. Sato *et al.*, Phys. Rev. B. **78**, 045319 (2008).

Novel compound synthesized in ZnO
SATO, W., KOMATSUDA, S., OHKUBO, Y.

1B11 負ミュオンを用いた三次元非破壊多元素同時元素分析

(阪大院理[1]、高エネ研[2]、理研[3]、芝浦工大[4]、原子力機構[5]、国際基督教大[6]、歴博[7])○二宮和彦[1]、長友傑[2]、小林義男[3]、鈴木栄男[4]、河村成肇[2]、ストラッサー・パトリック[2]、下村浩一郎[2]、三宅康博[2]、髭本亘[5]、坂元眞一[5]、篠原厚[1]、久保謙哉[6]、齋藤努[7]

【緒言】

負ミュオンが物質中で停止すると、負ミュオンが電子に置き換わった系であるミュオン原子を形成する。ミュオン原子からは元素に固有のエネルギーを持った、ミュオン特性エックス線が放出される。負ミュオンは電子の約 200 倍の質量をもつので、エックス線のエネルギーは電子由来のものの 200 倍であり、物質の内部から放出されたエックス線も吸収されることなく観測することができる。これに加えてミュオンは電荷をもった粒子であり、必要な輸送系を構築することによって、加速器で生成したミュオンの運動量を選択する、つまりミュオン入射後の停止深さの制御を行うことが可能である。我々はミュオン特性エックス線測定による、新しい三次元非破壊多元素同時分析の手法の開発を行っている[1]。本発表ではミュオン入射運動量を変化させることにより、本分析手法に深さ方向の位置分解能がどの程度あるかについて調べたので結果を報告する。

【実験と結果】

我々の研究グループは最近、茨城県東海村 J-PARC ミュオン施設（MUSE）において、10 MeV/c 以下の低運動量の負ミュオンの取り出しに成功した。これは物質中で数マイクロメートルの飛程に対応する。本研究では天保小判（日本、19 世紀）に 6.4, 7.5, 8.0, 10.2, 15.2 MeV/c の低運動量の負ミュオンの照射を行い、放出されるミュオン特性エックス線を半導体検出器で測定した（図 1）。これらの運動量の負ミュオンの金での飛程は 2 ~ 20 マイクロメートルに相当する。スペクトルの解析を行ったところ、金および銀由来のミュオン特性エックス線の強度は入射運動量により変化し、運動量が低い条件では金のエックス線の収量が増加する、つまりは小判表面付近では金の含有量が多いということがわかった。天保小判をはじめとする江戸期の小判は金と銀の合金であるが、「色揚げ」と呼ばれる技術により表面数マイクロメートルでは特に金の含有量が多いことが知られており、この結果は過去の破壊分析によるものと一致した。

本研究ではミュオン特性エックス線の測定に加えて、ミュオンが原子核に吸収され核反応を起こした後に即発的に放出されるガンマ線についても測定を行った。金および銀原子核に負ミュオンが捕獲されて放出されたガンマ線強度を定量し、ガンマ線からもエックス線測定と同じ分析結果が得られることを明らかにした。

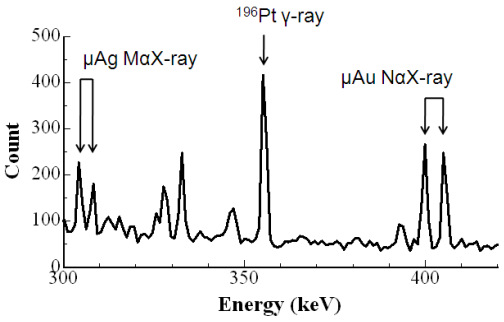


図 1：入射運動量 6.4 MeV/c 条件で得られたスペクトル

【参考文献】

[1] 久保 他、第 55 回放射化学会討論会 3B06

Non-destructive, three-dimensional and multi-elemental analysis using negative muon beam

NINOMIYA, K., NAGATOMO, T., KOBAYASHI, Y., SUZUKI, T., KAWAMURA, N., STRASSER, P., SHIMOMURA, K., MIYAKE, Y., HIGEMOTO, W., SAKAMOTO, S., SHINOHARA, A., KUBO, M. K., SAITO, T..

1B12 低圧の CO,CO_2,COS を試料に用いたミュオン原子形成過程の研究

（阪大院理[1]、原子力機構[2]、高エネ研[3]、国際基督教大[4]）　○吉田剛[1]、二宮和彦[1]、伊藤孝[2]、髭本亘[2]、長友傑[3]、ストラッサー・パトリック[3]、河村成肇[3]、下村浩一郎[3]、三宅康博[3]、三浦太一[3]、久保謙哉[4]、篠原厚[1]

【はじめに】 負ミュオンは電子と同じレプトンに属する素粒子で、電子の約 200 倍の質量があり、電子と同じ負の電荷を持つ。負ミュオンは原子に捕獲されると、電子のようにミュオン原子軌道を周回し、ミュオン原子を形成する。分子にミュオンが捕獲される場合、同じ原子にミュオンが捕獲されたとしても、その化学的状態によって捕獲過程が大きく変化することが知られている（分子効果）。具体的には分子を構成している各原子のミュオン捕獲率や、捕獲初期状態におけるその原子に捕獲されたミュオンの軌道角運動量は分子によって大きく異なる。しかしながら、これら分子効果の詳細については未だ理解されていない。本研究グループでは分子効果を解明するために低圧の気体を試料に用いて、低運動量のミュオンビームを照射し、ミュオン原子形成後に放出されるミュオン特性 X 線の測定を行ってきた。本発表では、CO, CO_2, COS の各サンプルにおけるミュオン捕獲過程の観察を行ったのでその結果について報告する。

【実験】本実験は J-PARC 物質生命科学実験施設ミュオン実験施設(MUSE) D1 ビームラインで行った。低圧の CO(0.4 atm), CO_2(0.2 atm), COS(0.2 atm)を、ガスチェンバー(容積 3.8 L)に封入後、ミュオンを照射した。ミュオン特性 X 線はゲルマニウム半導体検出器を用いて測定し、それぞれのサンプルにつき 6～27 時間測定を行った。

【結果と考察】 今回の実験で得られたミュオン特性X線スペクトルの例を図.1に示す。ライマン系列のミュオン X 線全強度より C と O 原子のミュオン捕獲率を求めたところ、CO_2, COS ともにC原子よりもO原子へのミュオン捕獲が優勢であることがわかった。COS においては興味深いことに、S の O に対するミュオン捕獲比が、A(S/O)～1 となり、S と O でミュオン捕獲率に差が無いことが示された。S は O に比べ原子半径や核電荷が大きく、経験的にミュオン捕獲率も O より大きいと予想されたが、実験結果はそれと異なっていた。講演ではこれに加え、CO と CO_2 での C と O の原子の捕獲率の比較や、それぞれの原子に捕獲されたミュオンの初期角運動量分布を求めるためにミュオン X 線の構造(K α /K β 比など)について考察を行ったので、その詳細を報告する。

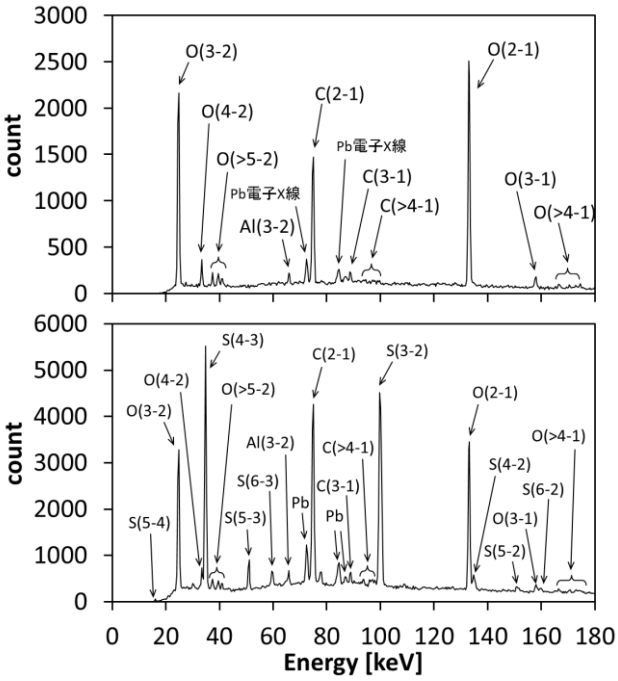


図.1 ミュオン特性 X 線スペクトル 上段:CO_2 サンプル
下段:COS サンプル

Muonic atom formation processes for low pressure gases ; CO, CO_2 and COS samples

YOSHIDA, G., NINOMIYA, K., ITO, T.U., HIGEMOTO, W., NAGATOMO, T., STRASSER, P., KAWAMURA, N., SHIMOMURA, K., MIYAKE, Y., MIURA, T., KUBO, M.K., SHINOHARA, A.

1B13 固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究(XXX)～タングステン中の重水素滞留に及ぼす高エネルギー炭素照射効果

(静岡大・理・放射研[1]、核科研[2]、九大応力研[3]、富山大水素研[4])○佐藤美咲[1]、川崎淨貴[1]、藤島徹生[1]、田口僚久[1]、三浦遼[1]、芦川直子[2]、相良明男[2]、吉田直亮[3]、波多野雄治[4]、大矢恭久[1]、奥野健二[1]

【緒言】D-T 核融合炉のプラズマ対向壁にはタングステン(W)の使用が計画されている。炉運転時には高エネルギーの炭素・水素同位体イオンが W に照射され、水素同位体の捕捉サイトとなりうる W-C 混合層や照射欠陥が形成される。核融合炉内燃料制御の観点から、プラズマ対向材料中での、水素同位体滞留量に影響すると考えられる高エネルギー粒子照射効果に関して明らかにすることは重要である。本研究では、事前に炭素を照射（炭素前照射）した W に重水素をフルエンスを変化させて照射することで重水素滞留挙動変化を観察し、重水素単独照射時の結果と比較検討することにより、高エネルギー炭素照射が重水素滞留プロセスに及ぼす効果を明らかにした。

【実験】試料としてアライドマテリアル社製の多結晶 W (10 mm$^{\varphi}$×0.5 mm^{t}) を用いた。イオンエネルギー10 keV C^+、フラックス 1.0×10^{17} C^+ m^{-2} s^{-1}、フルエンス 1.0×10^{21} C^+ m^{-2} の炭素照射を行った後、イオンエネルギー3.0 keV D_2^+、フラックス 1.0×10^{18} D^+ m^{-2} s^{-1} で、フルエンスを $(0.03\text{-}1.8)\times10^{22}$ D^+ m^{-2} で変化させて重水素照射を行った。また、同条件で重水素単独照射を行った。各試料での重水素滞留挙動を明らかにするため、昇温脱離 (TDS) 法を用い、昇温領域を室温から 1173 K、昇温速度を 0.5 K s^{-1} として行った。また、光電子分光(XPS)法によりイオン照射した試料の表面化学状態の分析を、重水素の深さ分布をグロー放電発光分析(GD-OES)法を用いて評価した。

【結果・考察】図に、炭素前照射した W に重水素照射した試料および重水素単独照射試料における D_2 TDS スペクトルの重水素イオンフルエンス依存性を示す。３つの重水素放出ピークが観測でき、過去の研究から、400 K 付近のピーク 1 は表面吸着及び転位ループ、500 K 付近のピーク 2 は原子空孔による重水素捕捉と考えた。重水素照射のフルエンス増加によるピーク 3 での重水素放出量の増加は重水素単独照射において顕著に見られた。GD-OES の結果から、重水素単独試料において、重水素照射領域の重水素濃度の上昇と、ピーク 3 の増加に相関がみられた。過去の研究から、ピーク 3 は重水素濃度の増加により重水素バブルが形成し重水素が滞留したことが示唆された[1]。一方、XPS の結果から、炭素照射試料表面に W-C 混合層が形成されていたことから、高エネルギー炭素照射により形成された表面 W-C 混合層がバブルの形成を抑制するため重水素滞留挙動が減少すると考えた。

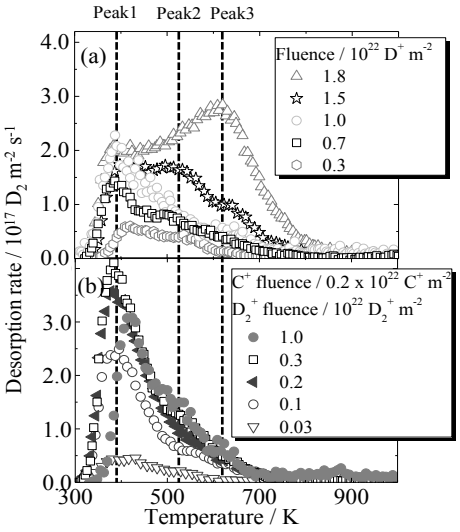


図 炭素照射後に重水素照射した W と重水素単独照射を行った W における D_2TDS スペクトル

[1] V. Kh. Alimov et al., *J. Nucl. Mater,* 290 (2001) 389.

Studies on hot atom chemical behavior of energetic ions in solids(XXX)～Effect of energetic carbon implantation on deuterium retention in tungsten

SATO, M., KAWASAKI, K., HUJISHIMA, T., TAGUCHI, T., MIURA, R., ASHIKAWA, N., SAGARA, A., YOSHIDA, N., HATANO, Y., OYA, Y., OKUNO, K..

1B14

固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究(XXXI)～$Li_{2+x}TiO_3$からのトリチウム放出に及ぼすリチウム濃度依存性～

（静岡大理放射研[1]、京大炉[2]）○佐野 枝里子[1]、小林 真[1]、宮原祐人[1]、内村 大道[1]、戸田 健介[1]、藤井 俊之[2]、山名 元[2]、大矢 恭久[1]、奥野 健二[1]

【緒言】D-T 核融合炉において燃料となるトリチウムは、^{6}Li(n, α)T 及び ^{7}Li(n, n'α)T の核反応により生成する。そのためトリチウム増殖材としてリチウムセラミックスの導入が検討されており、化学的に安定でトリチウム回収効率の良いチタン酸リチウム(Li_2TiO_3)や、さらに効率的なトリチウム生成のためリチウム濃度を増加させた $Li_{2+x}TiO_3$ の使用が検討されている。核融合炉では増殖材からのトリチウム放出挙動を理解することが重要となるが、リチウム濃度を増加させることで $Li_{2+x}TiO_3$ の結晶構造が変化し、トリチウム放出挙動に影響を及ぼすと考えられる。そこで本研究では、熱中性子照射した様々なリチウム濃度の $Li_{2+x}TiO_3$ を用い、等速昇温脱離(TDS)法や等温加熱法によりトリチウム放出挙動をそれぞれ比較することで、試料中のリチウム濃度変化がトリチウム放出挙動へおよぼす影響を明らかにした。

【実験】試料として $Li_{2.0}TiO_3$, $Li_{2.2}TiO_3$, 及び $Li_{2.4}TiO_3$ 粉末を用い、He 減圧下にて加熱処理を行った。京都大学原子炉実験所にてフルエンス 3.3×10^{15} cm^{-2} にて熱中性子照射を行った後、TDS 測定を行った。TDS 測定は、He ガスパージ下で昇温速度 0.5 K min^{-1} で等速昇温により、300-1173 K の昇温領域で行った。トリチウムの放出スペクトルは比例計数管にて測定を行った。また 500-620 K にて等温加熱実験を行った。

【結果・考察】図に各試料に対するトリチウム TDS スペクトルを示す。TDS スペクトルをガウシアン分布関数にてピーク分離すると 2 つのピークで構成されており、450 K 付近のピークをピーク 1、600 K 付近のピークをピーク 2 とした。各 $Li_{2+x}TiO_3$ での放出挙動を比較すると、全ての試料におけるピーク 2 での放出量の変化は見られなかった。各試料に対する等温加熱実験の結果からピーク 2 でのトリチウム放出は拡散律速であり、各試料における活性化エネルギーには大きな差が見られなかった事から、このピークは Li_2TiO_3 構造中でのトリチウムの拡散律速による放出であると考えた。一方、ピーク 1 に関しては、リチウム濃度の増加に伴い放出量が増加した。リチウム濃度の増加に伴い Li_4TiO_4 構造が形成することが報告されていることから、Li_4TiO_4 の構造に起因するピークであると考えた[2]。トリチウムの拡散速度は材料内部におけるリチウムの拡散速度と相関関係にあると考えられ[3]、今回使用した $Li_{2+x}TiO_3$ においてはリチウム濃度の高いオルソ構造ではリチウムの拡散がメタ構造と比較して速いため、450 K 付近にトリチウム放出が見られたと考察した。

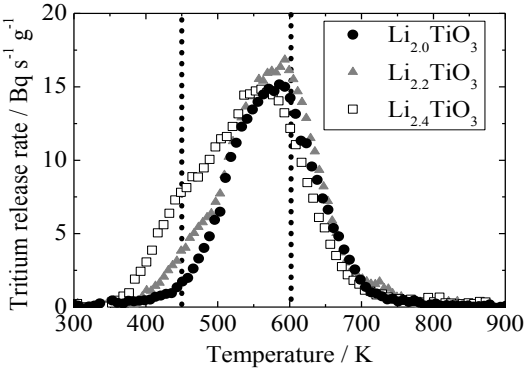


図　熱中性子照射した各リチウム濃度の $Li_{2+x}TiO_3$ の TDS スペクトル

[1]S. Suzuki et al., *Fusion Eng. Des.*, 85, 2331 (2010)..

[2] M. Hara et al., *J. Nucl. Mater.* , 217 (2010).

[3] T.Hayashi et al., *J. Nucl. Mater.*, 170, 60 (1990)

Studies on hot atom chemical behavior of energetic ions in solids(XXXI）～Dependence of lithium concentration on tritium release for $Li_{2+x}TiO_3$～

SANO,E., KOBAYASHI,M., MIYAHARA,Y., UCHIMURA,H., TODA,K., HUJII,T.,YAMANA,H., OYA,Y., OKUNO,K.

1P01 土壌の酸中和能に対する緯度、標高と植生の影響

（東大院総合）○陳品彧、小豆川勝見、松尾基之

【緒言】日本の森林では、針葉樹林の土壌より広葉落葉樹林の土壌の酸中和能（ANC：Acid Neutralization Capacity）が上回っている。これは、広葉樹林の土壌中には落葉の腐植により生じる有機酸が混在し、それが酸中和に影響しているためと考えることができる。東アジアの落葉樹林は、大陸の北東地帯に限られ、日本海と東シナ海の沿岸に面している。それに対して、常緑広葉樹林は亜熱帯地域に存在するため、緯度による土壌の酸中和能の違いにも着目したい。本研究では、各地土壌試料に対して元素の分布と化学状態を解明し、地域的な因子との関連性を調査した。

【実験】本研究では、①酸性降下物の有無、②山地の緯度や標高、③土壌種類の三つの因子から、土壌の酸中和能に対する影響の評価を行う。①酸性降下物の有無については、酸性雨によって被害を受けている金精峠の汚染側（栃木県）と非汚染側（群馬県）の土壌試料を採取した。②山地の緯度や標高については、高野山（和歌山県、異なる標高の 2 地点）、犬山（愛知県）、拉拉山（台湾）から土壌試料を採取した。これらの試料について、主として交換性陽イオン元素の分布と化学状態を解析した。手法としては、機器中性子放射化分析法(INAA)で元素分布を測定し、X 線吸収微細構造(XAFS)法で化学状態の測定を行った。

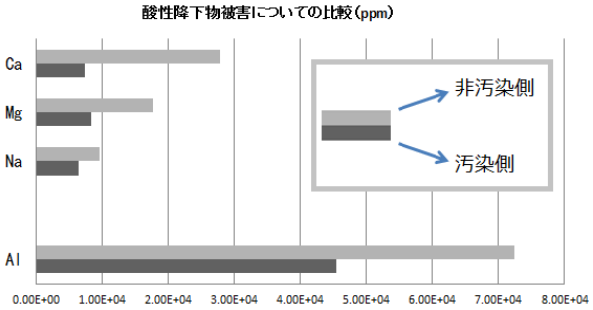


Fig.1 Elements in the soil determined by INAA

【結果と考察】酸性雨被害が見られる金精峠の土壌の機器中性子放射化分析の結果を Fig.1 に示す。酸性雨被害を受けていない非汚染側の土壌に比べ、被害を受けた汚染側の Ca, Na, Mg 等の交換性陽イオンの濃度は比較的に低い値が観測された。これは酸性雨からの水素イオンが土壌に吸着されやすいため、Ca, Na, Mg 等の陽イオンが水素イオンに交換され、土壌中で濃度が減少するためと考えられる。しかしながら、その他にも酸性雨被害を受けた土壌では Al イオンの含量も減少していることが分かった。これは土壌構造中に存在している Al イオンが、酸性環境下で可溶態になり、土壌から溶け出したためと考えられる。

また、山地の緯度が異なる各地の土壌試料の Ca 化合物の XAFS スペクトルを Fig.2 に示す。標準試料に比べ、4040 eV と 4055 eV 付近の特徴的な構造から判別した結果、愛知県以北の森林土壌の Ca 化合物が $CaSO_4$ として存在する傾向があることが分かった。緯度によって Ca の存在形態が変化していることから、土壌の酸中和能にも大きな影響を与えることが予想される。

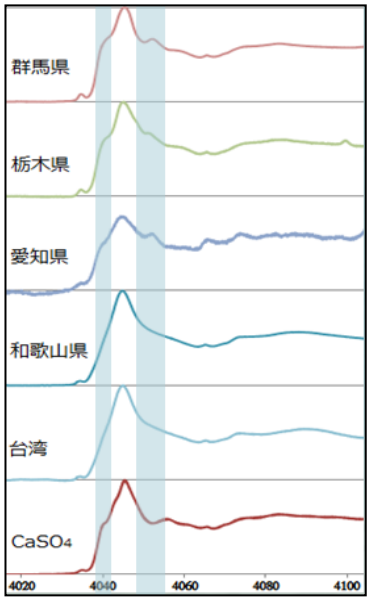


Fig.2 Ca K-edge XANES spectra of surface soils for various latitude regions

Effects of Latitude, Height and Vegetation on Acid-Neutralization Capacity in Mountainous Region
CHEN, P., SHOZUGAWA, K., MATSUO, M.

1P02 Gd 造影剤投与マウス体内の Gd および微量元素定量に関する基礎的検討 －アクチバブルトレーサー法の生命科学への応用－

（金沢大医薬保健[1]、京大原子炉[2]）○鷲山幸信[1]、辻井陽香[1]、松本高史[1]、奥村良[2]、高宮幸一[2]、天野良平[1]

重篤な腎機能障害をもつ患者への MRI 用 Gd 造影剤の投与は、腎性全身性線維症（NSF：Nephrogenic Systemic Fibrosis）を引き起こすことがあり、その発症機序は未だ明らかとなっていない。通常 Gd 造影剤は体内に投与後 24 時間までに 98%が尿中に排泄されるが、腎機能障害を持つ患者へ投与した場合、造影剤が体内に長時間残留し、Gd がキレートから遊離して骨などに沈着し、一定の過程を経て皮膚の繊維化が起こるとされている。Gd がキレートから遊離する過程において体内微量元素との相互作用が議論されており、微量元素の一つである Zn は NSF との関連性が指摘されている。本研究では、腎機能低下が体内微量元素の分布に影響するのか、Gd の体内貯留がどう影響するかを調べ、NSF 発症メカニズムの解明を Gd と体内微量元素の相互作用の観点から捉えることを検討した。

実験では腎不全モデルマウスと健常マウスに、Gd 造影剤オムニスキャン®（ガドジアミド水和物）を投与し、48 時間後に解剖し組織を摘出して試料を作成した。また Gd 造影剤を投与していない腎不全モデルマウスと健常マウスについても同様に解剖し試料を作成した。摘出した試料は凍結乾燥後、京都大学原子炉実験所に移送した。その後、中性子放射化分析アクチバブルトレーサー法を用いて試料中の Gd 及び体内微量元素の定量を行った。

腎不全モデルでは組織内にガドリニウムの残留が確認された。体内のマグネシウム濃度は腎機能の状態に依存せず変動は見られなかったが、一方で造影剤投与により骨組織中での濃度が増えた。マンガン濃度に着目すると、腎機能の低下によって Gd 造影剤の影響も増強される傾向が確認できた。一方、亜鉛濃度はどのグループ群においても変化は見られず、恒常性が高いことがわかった。微量元素の濃度変動には腎機能低下と造影剤投与のいずれも関与する場合があり、元素ごとに差異がある。本検討は、ある一定期間の腎機能低下を反映したモデルで、且つ Gd の投与後一定期間の体内複数元素の基礎的検討である。NSF 発症およびその対策を知るためには、相互の詳細な検討が必要である。

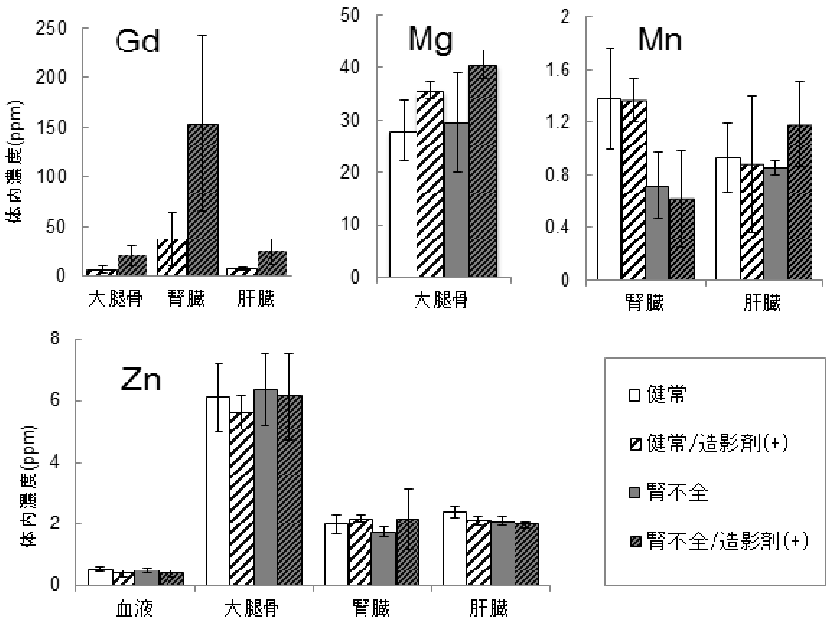


図　Gd 投与 2 日後の体内残留 Gd 濃度および体内微量元素濃度[ppm]

Biodistribution of gadolinium-based contrast agent, and concentration of trace elements in mice
WASHIYAMA, K., TSUJII, H., MATSUMOTO, T., OKUMURA, R., TAKAMIYA, K., AMANO, R..

1P03

^{nat}Zr + p, ^{nat}Hf + p 反応の励起関数測定

（新潟大院自然[1]、理研仁科セ[2]、新潟大理[3]）○村上昌史[1]、後藤真一[1]、羽場宏光[2]、金谷淳平[2]、工藤久昭[3]

【緒言】 超重元素の化学研究では、その軽い同族元素の放射性トレーサーを用いたオフライン実験を行い、超重元素の化学実験に適した条件をあらかじめ調査する。105 番元素であるドブニウム(Db)の化学研究には、同族元素である Nb, Ta 同位体の中でも半減期が比較的長い ^{95g}Nb ($T_{1/2}$ = 35 d)と ^{179}Ta ($T_{1/2}$ = 1.82 y)がオフライン実験に適している。我々のグループでは、今後 AVF サイクロトロンを用いてこれらの同位体を製造し、Db の溶液化学研究に利用する予定である。この目的のため、本研究ではまず ^{nat}Zr + p, ^{nat}Hf + p 反応の励起関数を測定したので報告する。

【実験】励起関数の測定にはスタックホイル法を用いた。^{nat}Zr 箔(純度 99.8+%, 厚さ 20 μm)と ^{nat}Cu 箔(99.99+%, 25 μm)および ^{nat}Hf 箔(99.9%, 25 μm)と ^{nat}Cu 箔(99.9%, 10 μm)のスタックに、理研 AVF サイクロトロンから得られる 14 MeV のプロトンビームを 30 分間照射した。^{nat}Cu 標的は、励起関数が良く知られた ^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn 反応を利用してビーム強度とエネルギーを求める目的で用いた。平均ビーム電流は Zr/Cu スタックについて 0.53 μA、Hf/Cu スタックについて 0.80 μA であった。各標的箔におけるビームエネルギーは、OSCAR コードを用いて計算した。照射後、各標的箔について、Ge 検出器を用いたγ線スペクトロメトリーを行った。

【結果と考察】 本研究で求めた ^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn 反応の励起関数は Zr/Cu スタックと Hf/Cu スタックにおいて互いに一致したが、ビームエネルギーが IAEA の推奨値[1]と比較してわずかに異なっていたので、ビームエネルギーを+0.3 MeV シフトすることにより IAEA の推奨値に合わせた。結果として得られた励起関数は IAEA の曲線をよく再現した(図 1)。全ての測定結果について、同様な系統誤差の補正を行った。Zr 標的を測定した結果、広いビームエネルギーの範囲の標的で目的核種である ^{95g}Nb が観測されたが、同時に ^{95g}Nb の核異性体である ^{95m}Nb ($T_{1/2}$ = 3.61 d)も観測された。さらに、それらの親核種である ^{95}Zr ($T_{1/2}$ = 64 d)が、9.5 MeV 以上のビームエネルギーの標的において確認でき、実験に用いたビームエネルギーの範囲では、その生成量はエネルギーが高くなるほど大きくなることがわかった(図 2)。発表ではそれぞれの核種の励起関数に加え、Hf 標的を測定した結果についても報告する。

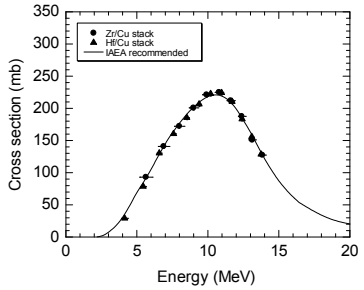


図 1. ^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn 反応の励起関数

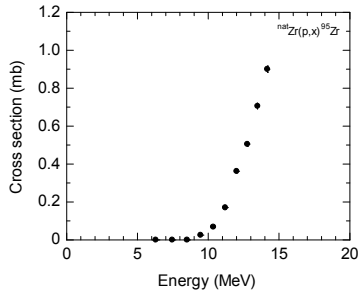


図 2. ^{nat}Zr(p,x)^{95}Zr 反応の励起関数

【参考文献】

[1] International Atomic Energy Agency (IAEA), Charged-particle cross section database for medical radioisotope production. (http://www-nds.iaea.org/medical/)

Measurement of excitation functions of ^{nat}Zr + p and ^{nat}Hf + p reaction
MURAKAMI, M., GOTO, S., HABA, H., KANAYA, J., KUDO, H.

1P04 Rfの化学種解明に向けた逆相クロマトグラフ用樹脂調製法の再検討 II

（金沢大院自然[1]、金沢大理工[2]）○重吉祐生[1]、北山雄太[2]、横山明彦[2]

【はじめに】

本研究では、超重元素 Rf の溶液中化学種の解明を目的として、キレート抽出剤 TTA を保持した固定相による逆相クロマトグラフィーを行い、Rf の抽出データの取得を目指している。これまでに、イオン交換樹脂などを用いた Rf 実験が行われたが、吸着している化学種は特定できていない。4 価の金属イオンを選択的に抽出可能な TTA を用いることで、イオン交換樹脂などでは得られない化学種を特定した、4 族元素 Zr、Hf と比較した Rf の錯形成定数の決定が期待される。本研究グループではこれまでに様々な樹脂調製法を試み、Rf のカラムクロマトグラフ実験も行ったが、その抽出挙動は得られていない[1]。その原因として、迅速な分離に対応する樹脂の調製ができていないことが挙げられる。Rf 実験で使用した樹脂は TTA の希釈剤としてドデカン（水溶解度 0.0037 mg/L, 25℃）を用いたが、バッチ法では平衡に達するまでに約 20 分も要していた。そのため、今回は平衡到達にかかる時間を短縮するため、溶解度の高いオクタノール（540 mg/L, 25℃）を希釈剤に用いて樹脂を調製し、その検証を行った。

【実験】

① 樹脂調製法：抽出剤を保持する CHP20Y(スチレンジビニルベンゼン共重合体, 粒径 30 μm)をメタノール、アセトンで 3 回ずつ洗浄し、60 ℃で乾燥した。乾燥後、20 % TTA-オクタノール溶液を滴下し、スパーテルで 10 分間撹拌し、TTA 樹脂とした。

② バッチ実験：調製した樹脂を容量 5 mL の蓋付き試験管に 50 mg 量り取った。1.0×10^{-4}M フッ酸/0.1M 硝酸の混酸溶液を 2.95 mL、Zr、Hf トレーサー溶液(約 2 kBq/mL)を 50 μL 加え、時間を変えて撹拌した。その後、溶液をろ過し、ろ液の放射能を測定することで分配比を決定した。

【結果】

図 1 にバッチ実験による分配比の撹拌時間依存性の結果を示した。10 % TTA-ドデカン溶液を用いた樹脂では、平衡に達するのに 20 分程度の時間を要したが、今回のオクタノールを用いた樹脂では 2 分までに平衡に達し、平衡到達時間が大幅に改善された。今回の実験で、樹脂をカラム実験に適用し、溶離曲線を取得できる可能性が示されたので、さらに平衡について詳しく調べ、Rf 実験に適用する方向で検討を進める。

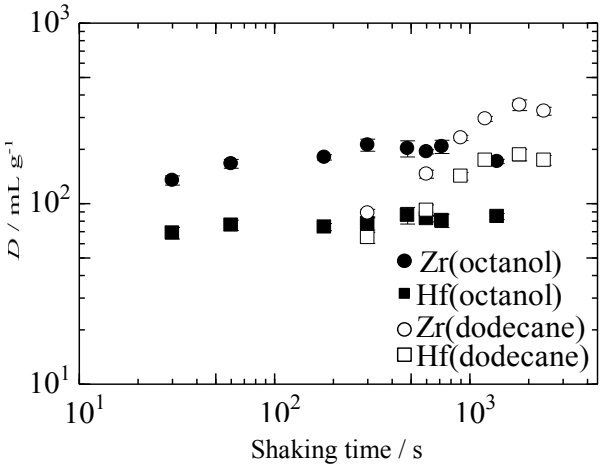


図 1. 分配比 D の撹拌時間依存性

参考文献 [1]武田勇樹, 金沢大学自然科学研究科 修士論文 (2012)

Reexamination of the procedure preparing for reversed-phase chromatography resin for speciation of rutherfordium II

Shigeyoshi, Y., Kitayama, Y., Yokoyama, A.

1P05

超重元素の短寿命自発核分裂特性測定のための装置開発

(新潟大院自然[1]、新潟大理[2]、理研仁科セ[3])○刈屋佳樹[1]、後藤真一[1]、田村信行[2]、森本幸司[3]、加治大哉[3]、工藤久昭[2]

自発核分裂(SF)は超重元素の主要な崩壊様式の一つであり、核分裂片の質量数ごとの収率(質量分布)は分裂核によって極めて特徴がある。100 番元素フェルミウム(Fm)より軽い元素の自発核分裂では、質量分布が 2 山となる非対称核分裂を起こすが、Fm 以降の重い元素(特に Fm, Md, No)では分裂核の質量数が 1 異なるだけで、質量分布が突如として鋭い 1 山となる対称分裂に変化する場合があることが知られている。質量分布が鋭い 1 山となる理由として、核分裂片が二重魔法数をもつ ^{132}Sn (Z = 50, N = 82)となることによる安定性の影響と定性的に言われているが、必ずしも ^{132}Sn が 2 つ出来るわけではなく、詳しいことは明らかになっていない。本研究では、アクチノイド以降の超重元素においてもこのような現象が現れるかを調査することを目的として、短寿命自発核分裂に対して核分裂片の質量分布と全運動エネルギー分布を高精度で測定するための装置の開発を行うことにした。

自発核分裂では分裂核を同定できないため、副生成物の自発核分裂によるバックグラウンドを極力排除する必要がある。そのため、理化学研究所の気体充填型反跳分離装置(GARIS)を利用することにした。GARIS によりビームや副反応生成物から目的核を効率よく分離した上で、さらに低バックグラウンドで目的核種の自発核分裂事象を測定するために回転円盤型検出システムの開発を検討した(Fig.1)。この検出システムでは、GARIS の焦点面に配置した薄膜を張った円盤に目的核種を捕集し、一定速度で回転させながら、数か所で膜の両側に放出される核分裂片の運動エネルギーを測定する。二つの核分裂片の運動エネルギーにより、それぞれの質量数を求めることができる。質量分解能はエネルギー分解能に依存するため、捕集膜と検出器の距離をある程度離して分解能を向上させることとした。このようなエネルギー分解能と検出効率についての捕集膜と検出器の距離に対する依存性を、^{212}Bi および ^{212}Po の α 線を測定することにより調査した。その結果、検出効率と分解能の兼ね合いから 10 mm の距離が最適であることがわかった。発表では、装置の基本設計について様々に検討した結果について報告する。

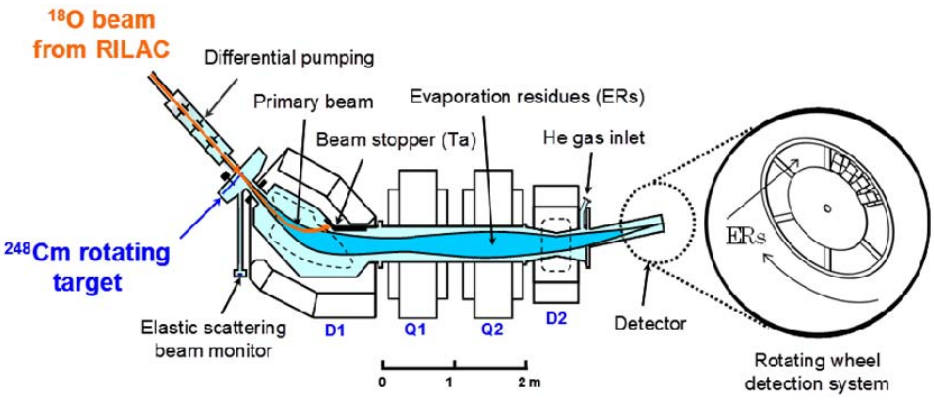


Fig.1 GARIS および測定装置の概念図

Device development for measurement of spontaneous fission of superheavy elements
KARIYA, Y., GOTO, S., TAMURA, N., MORIMOTO, K., KAJI, D., KUDO, H.

1P06 半減期の異なる Hf 同位体を用いた等温ガスクロマトグラフ挙動の研究

(新潟大院自然[1]、原子力機構先端基礎[2]、茨城大院理工[3]、新潟大理[4])○富塚知博[1]、小嶋貴幸[1]、村上昌史[1]、後藤真一[1]、佐藤哲也[2]、塚田和明[2]、浅井雅人[2]、豊嶋厚史[2]、佐藤望[2]、大江一弘[2]、永目諭一郎[2]、金谷佑亮[3]、工藤久昭[4]

【緒言】当研究室では、104 番元素ラザホージウム(Rf)の化学的性質を研究するため、同族元素であるジルコニウム(Zr)およびハフニウム(Hf)を用いた等温ガスクロマトグラフ法による気相化学的研究を行っている。等温クロマトグラフ挙動が、従来考えられてきた揮発性化合物分子の単純吸脱着モデルに従うとすれば、半減期が異なる同位体の等温クロマトグラムを同時に取得することで、実験パラメータに依存せず吸着エンタルピーを求められる可能性がある。そこで本研究では、半減期の異なる Hf 同位体を用いて等温クロマトグラフ実験を行い、得られたクロマトグラフ挙動を比較することで、従来のモデルが適用可能であるか検討を行った。

【実験】 実験は原子力機構タンデム加速器にて行った。対象核種として ^{nat}Eu(^{19}F,xn)反応で合成した ^{165}Hf ($T_{1/2}$ = 78 s) , ^{166}Hf ($T_{1/2}$ = 406 s) および ^{167}Hf ($T_{1/2}$ = 123 s)を用いた。核反応生成物を He/C ガスジェット搬送法により化学実験室に設置した等温ガスクロマトグラフ装置まで搬送した。搬送した核反応生成物を 1000 ℃に加熱した等温ガスクロマトグラフ装置反応部の石英ウール上に捕集し、反応部に 200 mL min^{-1} で導入した HCl と反応させて揮発性化合物を生成した。生成した揮発性化合物はキャリアガスにより、等温に保たれた石英カラム内を通過させた後、N_2/KCl ガスジェット搬送法によって捕集部まで再搬送してγ線を測定し定量する。測定では等温部の温度を 260 ℃から 450 ℃の範囲で変化させ、450 ℃の収量を 100%としたときの各温度での収量を相対収率として等温クロマトグラムを取得した。

【結果と考察】 $^{165–167}$Hf について 10 ℃ごとの詳細なクロマトグラムを得ることができた。Fig. 1 に ^{165}Hf および ^{166}Hf の等温クロマトグラムを示す。同元素では石英カラムにおける保持時間がほぼ等しいとみなせるため、揮発性化合物のカラム中の輸送に関する従来のモデルから考えれば、短寿命核種でのカラムの通過効率は半減期に依存する。例えば、^{165}Hf の収率が 50%となる温度では、^{166}Hf は約 90%の収率になると予測される。しかし、実際に ^{166}Hf の収率は約 65%にとどまった。この結果は、今回観測されたクロマトグラム挙動が、従来のモデル以外の異なる過程による挙動を示した可能性を示唆する。

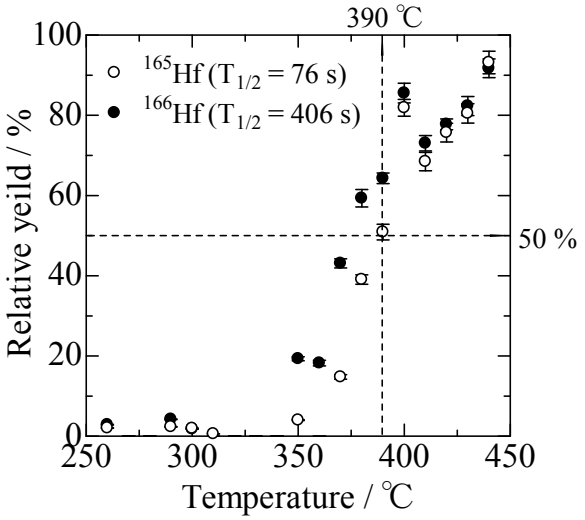


Fig.1 ^{165}Hf ($T_{1/2}$ = 78 s)および ^{166}Hf ($T_{1/2}$ = 406 s)の等温クロマトグラム

Isothermal gas chromatographic behavior of hafnium isotopes

TOMITSUKA, T., KOJIMA, T., MURAKAMI, M., GOTO, S., SATO, T. K., TSUKADA, K., ASAI, M., TOYOSHIMA, A., SATO, N., OOE, K., NAGAME, Y., KANEYA, Y., KUDO, H.

1P07 Lr の第一イオン化電位測定を目的としたガスジェット結合型表面電離イオン源の開発（Ⅱ）

(茨城大院[1]、原子力機構[2]、理研[3]、CERN[4]、マインツ大[5])○金谷佑亮[1,2]、佐藤哲也[2]、佐藤望[2]、浅井雅人[2]、塚田和明[2]、豊嶋厚史[2]、大江一弘[2]、宮下直[2]、永目諭一郎[2]、Matthias Schädel[2]、長明彦[2]、市川進一[2,3]、Thierry Stora[4]、Jens Volker Kratz[5]

第一イオン化電位は、対象原子の価電子のエネルギー状態を直接反映する物理量である。そのため、超重元素領域の第一イオン化電位を実験的に決めることは、相対論効果の影響を解明する大きな手掛かりとなる。しかし、超重元素は人工的に合成することでしか得られず半減期も短いため、一度に一個の原子しか扱うことができず、従来法による測定は非常に困難である。我々のグループでは、103 番元素ローレンシウム（Lr）の第一イオン化電位を測定するため、表面電離法によるイオン化電位測定法の確立を目指している。これまで、原子力機構タンデム加速器施設に設置したオンライン同位体分離装置（ISOL）においてガスジェット結合型表面電離イオン源を構築し、装置の性能試験と改良を進めてきた。本装置では、核反応で合成した生成物をガスジェット搬送法でイオン源へと搬送し、イオン化する。その後イオン化された生成物を ISOL で質量分離し、捕集後、放射線測定により同定・定量することで、イオン化効率を求める（図１）。

これまでに、核反応で合成した短寿命希土類核種を用いて実験を行ってきた。イオン源温度と得られたイオン化効率の関係からそれぞれの元素のイオン化電位を求めたところ、対象元素の沸点が高いほど文献値に対する差が大きくなるという結果が得られた。この沸点依存性は、イオン源壁面への対象元素の吸着の度合いに起因すると考えられる。そこで、イオン源内のヒートシールドの増設やフィラメントの追加など、イオン源温度をより高温・均一化できるよう改良を加えたところ、これを低減することができた。この結果を受けて、^{249,250,251}Cf + ^{11}B 反応で合成した ^{256}Lr についてイオン化実験を行ったところ、^{256}Lr のイオン化・分離に成功した [1]。

現在は、わずかに残っている沸点依存性をさらに除去するため、ヒートシールドのより一層の増設やイオン源内部の構造改良等によるイオン源温度のさらなる高温・均一化を目指している。討論会では、前回の改良とその実験結果、それを受けての現在の改良について報告する。

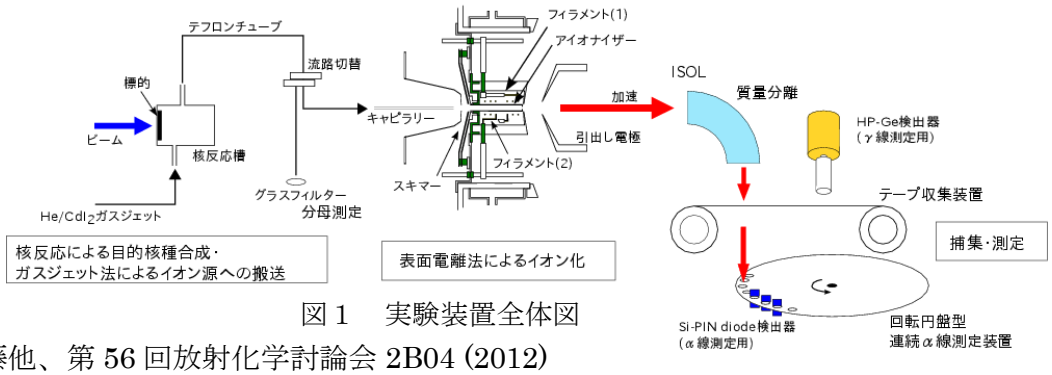


図１　実験装置全体図

[1]佐藤他、第 56 回放射化学討論会 2B04 (2012)

Development of a Gas-jet coupled Surface Ion Source of ISOL for Measurement of the First Ionization Potential of Lr (Ⅱ)

KANEYA, Y., SATO, T. K., SATO, N., ASAI, M., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., OOE, K., MIYASHITA, S., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M., OSA, A., ICHIKAWA, S., STORA, T., KRATZ, J. V.

1P08 Rf の同族元素 Zr による迅速溶媒抽出法の検討

（新潟大院自然[1]、原子力機構[2]、新潟大理[3]）○笠原翔悟[1]、村上昌史[1]、佐藤大輔[1]、後藤真一[1]、塚田和明[2]，浅井雅人[2]，佐藤哲也[2]、豊嶋厚史[2]、工藤久昭[3]

【緒言】超重元素の化学研究の一環として、これまで 104 番元素ラザホージウム (Rf)を対象とした多くの溶液化学実験が行われてきた。これまで主にフッ化物イオン、塩化物イオン、硫酸イオンによる陰イオン錯体について研究がなされてきたが、塩化物錯体については陰イオン交換法での反応速度が遅く、定量的な Rf の分配係数の取得には至っていない。塩化物イオンと Rf との錯形成反応の反応速度が遅いかどうかは未だ不明であり、他の分配法では定量的な化学量を得られる可能性がある。そこで Rf の同族元素ジルコニウム (Zr)の放射性同位体である ^{88}Zr を用い、溶媒抽出法により塩化物イオンとの錯形成反応における速度の調査を行った。バッチ法による溶媒抽出法での種々の酸を用いた錯形成速度の比較や、Flow Injection Analysis (FIA)を用いた迅速な溶媒抽出法により検討した。

【実験】日本原子力研究開発機構のタンデム加速器を利用して ^{89}Y(p, 2n)反応で製造した ^{88}Zr を陰イオン交換法によって ^{nat}Y ターゲットから分離し、無担体トレーサーとして調製した。トレーサーを Zr と錯形成しにくい硝酸や希塩酸に溶解させ、その後錯形成剤となる 10 M HCl と混合し、一定の反応時間後に四級アンモニウム塩である Aliquat 336 により抽出を行った。トレーサーと錯形成剤を混合してから抽出までの時間と分配比の変化を調べることで反応時間を調べた。しかし溶媒抽出法を用いる場合、錯形成反応の時間の他に抽出平衡に達するまでに時間を要するため、十分に錯形成反応をさせた ^{88}Zr を用いて抽出を行い、平衡到達時間の決定も行った。

【結果】錯形成剤とトレーサーを混合してから抽出を行うまでの時間と分配比の関係を Fig.1 に示す。いずれの系でも反応時間 30 分以降は時間による分配比の変化が見られなかったがトレーサーと錯形成剤を混合してすぐ抽出を行ったものは大きく異なる分配比が得られたものがあったため、より短い反応時間での調査をする必要がある。また実験ごとに分配比が異なっており今後さらに検討が必要である。また討論会ではフッ化水素酸を用いた場合との比較の他、溶媒抽出装置としての FIA を用いた装置について検討を行った結果も併せて報告する。

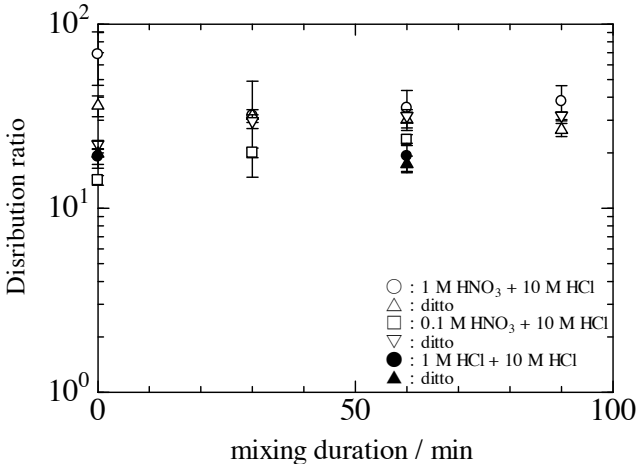


Fig.1 錯形成時間による分配比の変化

Examination of rapid extraction method for Rf using homologue Zr

KASAHARA, S., MURAKAMI, M., SATO, D., GOTO, S., TSUKADA, K., ASAI, M., SATO, T. K., TOYOSHIMA, A.,KUDO,H.

1P09

Rf 実験に向けた迅速な抽出系の探索
− 様々なアミン系抽出剤と HCl 系における Zr と Hf の抽出挙動 −

(阪大院理 [1]、阪大 RI セ [2]) ○横北卓也 [1]、中村宏平 [1]、木野愛子 [1]、小森有希子 [1]、笠松良崇 [1]、高橋成人 [1]、吉村崇 [2]、篠原厚 [1]

【緒言】 104 番元素ラザホージウム (Rf) は超重元素の中では研究例が多い。しかし、文献によって異なる結果が報告されており信頼性の高い研究はフッ化物錯体に関する研究のみである。本研究グループではマイクロ化学チップとバッチ型迅速固液抽出装置を用いて HCl 系での Rf の平衡到達した抽出挙動を調べることを目指して研究を行っている。^{261}Rf の半減期が 78 s であるため、平衡到達した結果を得るためには平衡到達の速い系で実験を行う必要があり、本研究では抽出速度が速いと言われているイオン対抽出に注目した。今回は研究例が多いアミン系の試薬に注目し、第 1 級アミンであるデシルアミン、第 3 級アミンであるトリ-n-オクチルアミンとトリイソオクチルアミン (TIOA)、第 4 級アンモニウム塩であるメチルトリ-n-オクチルアンモニウムクロリド (Aliquat 336) とベンジルトリブチルアンモニウムクロリドを用いて HCl 系でのジルコニウム (Zr) とハフニウム (Hf) の抽出をバッチ法により行った。また、アミン系試薬を溶解させる希釈剤についても様々なものを用いて実験を行った。

【実験】 実験に用いた ^{88}Zr と ^{175}Hf は大阪大学核物理研究センターにてそれぞれ、^{nat}Y(p, xn)^{88}Zr と ^{nat}Lu(p,xn)^{175}Hf 反応により製造し、陰イオン交換カラムクロマトグラフィーにより精製した。溶媒抽出は ^{88}Zr と ^{175}Hf を含んだ 8 – 11 M HCl 1 ml と同体積の様々な濃度のアミン系試薬を含む溶液を加えて、25 °C の恒温槽中で 10 s – 120 min 振とうした後に、遠心分離をし、各相を分取した。水相と有機相の ^{88}Zr と ^{175}Hf のγ線をゲルマニウム半導体検出器で測定し、分配比を求めた。

【結果・考察】Aliquat 336、TOA、TIOA のベンゼン溶液による 10 M HCl から Zr と Hf の溶媒抽出を行ったときの分配比と振とう時間との関係を Fig. 1 に示す。Aliquat 336 は振とう時間 10 s ですでに平衡到達しているが、TOA と TIOA では平衡到達に 10 min 程度の振とう時間が必要である。このため、第 4 級アンモニウム塩と第 3 級アミンでは構造の違いによる抽出速度への影響があるということが考えられる。発表では希釈剤の影響や他の抽出剤を用いた結果も含めて考察を行う。

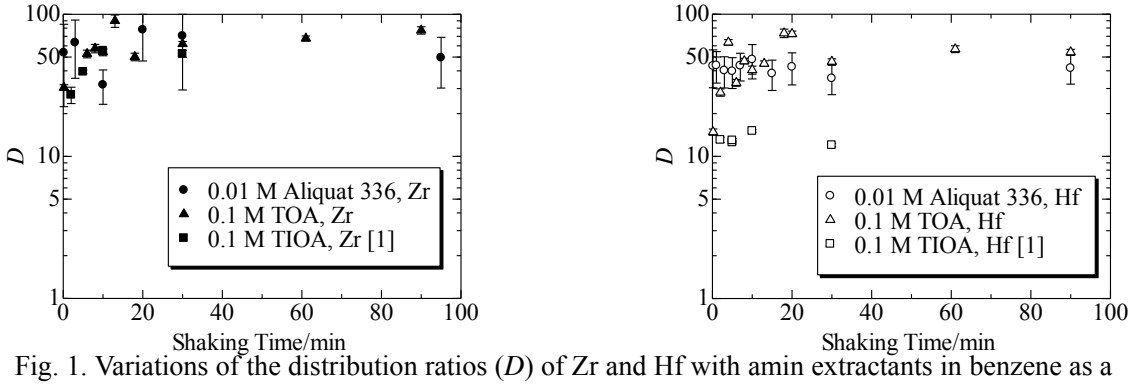


Fig. 1. Variations of the distribution ratios (D) of Zr and Hf with amin extractants in benzene as a function of the shaking time in 10 M HCl solutions.

[1] 木野愛子, 他, 第 55 回放射化学討論会, 1P22 (2011).

Search for the rapid extraction systems for Rf
− Extraction behavior of Zr and Hf from HCl solutions using amine extractants −
YOKOKITA, T., NAKAMURA, K., KINO, A., KOMORI, Y., KASAMATSU, Y., TAKAHASHI, N., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A..

1P10 超重元素の溶液化学研究のための自動迅速放射線計測装置の開発

（理研仁科セ [1]，阪大院理 [2]，東北大・電子光セ [3]）○羽場宏光 [1]，笠松良崇 [2]，菊永英寿 [3]，金谷淳平 [1]，米田晃 [1]，森田浩介 [1]

【はじめに】我々の研究グループでは，理研 AVF サイクロトロンを用いて，^{261}Rf^{a}，^{262}Db や ^{265}Sg^{b} などを対象とした超重元素の溶液化学研究を計画している．今回，自動迅速イオン交換装置[1]，フロー電解カラム[2]，マイクロ化学チップ[3]など，超重元素の溶液化学装置に接続できる自動迅速放射線計測装置を開発したので報告する．

【装置仕様】本装置の上面図と写真をそれぞれ Fig. 1 と Fig. 2 に示す．本装置は，溶液試料捕集用の Ta 皿を収納するためのカラム，最大 16 枚の Ta 皿を配置できる回転テーブル，そしてα粒子や核分裂片を測定するための 16 台の検出器チャンバーによって構成される．まず，スカラロボット（ヤマハ発動機，YK500XG）は，Ta 試料皿を収納カラムから取り上げ，回転テーブル上に配置する．回転テーブルは，直径 107 mm の円周上にある任意の 16 位置に Ta 皿を移動させることができる．化学分離後の試料溶液は，Ta 皿上に捕集され（1 枚当たり約 200 μL），高温ヘリウムガスとハロゲンランプによって迅速に蒸発乾固される．乾固後，Ta 皿は，スカラロボットによって Si PIN フォトダイオード検出器（浜松ホトニクス，S3204-09）と前置増幅器（浜松ホトニクス，H4083）が内蔵された真空チャンバー内に搬送される．前置増幅器電源ならびに検出器への印加電圧（–50 V）は，電源とゲート信号発生器の複合モジュール（バキュームプロダクツ，GG-10001）から供給される．装置全体は，プログラマブルロジックコントローラ（キーエンス，KV-3000）によって制御される．また，上述の各動作は，溶液化学装置からのリレー接点信号によっても始動させることができる．前置増幅器からの出力信号は，主増幅器（クリアパルス，4066）で増幅され，リストモード計測システム（仁木工芸，A3100）を用いて，時間情報とともに記録される．蒸発乾固から計測開始までの所要時間は，約 5 s である．^{241}Am 線源を用いて評価した検出器の計数効率とエネルギー分解能（半値幅）は，それぞれ 36%，50 keV である．

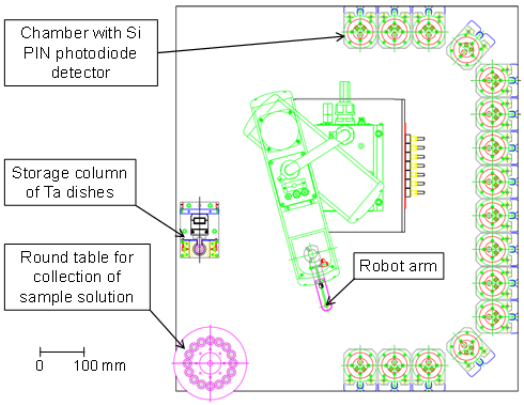


Fig. 1. Top view of the automated rapid α/SF detection system for studying aqueous chemistry of superheavy elements.

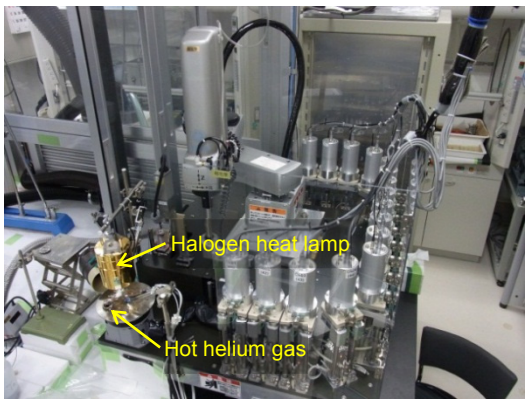


Fig. 2. Bird's-eye view of the automated rapid α/SF detection system.

【参考文献】

[1] Y. Nagame *et al.*, Radiochim. Acta **93**, 519 (2005).
[2] A. Toyoshima *et al.*, Radiochim. Acta **96**, 323 (2008).
[3] K. Ooe *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. **8**, 59 (2004).

Development of the automated rapid α/SF detection system for studying aqueous chemistry of superheavy elements

HABA, H., KASAMATSU, Y., KIKUNAGA, H., KANAYA, J., YONEDA, A., MORITA, K.

1P11 シーボーギウムの化学実験に向けたタングステンの抽出と液体シンチレーション測定におけるクエンチングの評価

（阪大院理[1]、阪大 RI セ[2]）○小森有希子[1]、横北卓也[1]、木野愛子[1]、中村宏平[1]、豊村恵悟[1]、笠松良崇[1]、高橋成人[1]、吉村崇[2]、篠原厚[1]

【緒言】我々は 106 番元素シーボーギウム(^{265}Sg^{a,b}, $T_{1/2}$ = 9 s, 16 s)を対象として抽出実験を行い、Sg とフッ化物イオン、塩化物イオンなどの配位子との錯形成反応について調べることを目指している。本研究ではこれまでに、溶液試料に含まれる Sg を迅速に検出するための液体シンチレーション検出システムの開発を行ってきた[1]。液体シンチレーション測定では、水や酸、抽出剤などによるクエンチングのために測定できる溶液試料は化学的に制限され、それによって Sg の実験に適用できる抽出系も限られる。さらに、Sg は短寿命であるため、抽出実験を行う系は短時間で平衡状態に到達するものが望ましい。今回、W を用いて塩酸溶液からの液液、固液抽出を行い、分配比または分配係数の酸濃度依存性や振盪時間依存性を調べた。抽出剤は Aliquat 336 を用いた。また、^{226}Ra を用いて液体シンチレーション測定を行い、塩酸、硝酸、フッ酸、硫酸によるクエンチングの影響を調べた。これらの結果から、Sg の実験に適用できる可能性のある溶液条件を議論する。

【実験】^{181}W ($T_{1/2}$ = 121.2 d)は大阪大学核物理研究センターの AVF サイクロトロンにて ^{181}Ta(p,n)^{181}W 反応により製造した。液液抽出実験では、有機相として Aliquat 336 のトルエン溶液、水相として ^{181}W トレーサーを含む塩酸溶液を用いた。有機相と水相を振盪した後、遠心分離により各相を分離した。ゲルマニウム半導体検出器を用い、X 線を測定して各相の ^{181}W を定量して分配比を求めた。固液抽出実験では、充填剤 MCI GEL CHP20Y（粒径 30 μm）に Aliquat 336 を保持させたもの(Aliquat 336 resin)を用いた。Aliquat 336 resin と ^{181}W トレーサーを含む塩酸溶液を振盪した後、フィルター付遠心管を用いた遠心分離により溶液のみを分取し、ゲルマニウム半導体検出器で ^{181}W を定量した。Aliquat 336 resin を含まない状態で同様の操作を行い、分配係数を求めた。次に、液体シンチレーション測定におけるクエンチングの影響を調べた。^{226}Ra を 0.1 から 10 M までの塩酸、硝酸、硫酸および 0.1 から 26 M までのフッ酸溶液 50 μL に溶かし、φ10 mm × 75 mm の試験管の中で Ultima Gold AB® 1 mL と混合した。これを液体シンチレーション検出器で測定し、イベントごとのエネルギー情報と α/β 粒子弁別のための蛍光寿命情報をそれぞれ記録した。

【結果】^{181}W の分配比の振盪時間依存性を調べたところ、4 M 塩酸溶液からの 0.2 M Aliquat 336－トルエン溶液への抽出では平衡状態になるまでに約 20 分を要するのに対し、10 M 塩酸溶液からの抽出では 10 秒程度の振盪で平衡状態に達していることがわかった。

液体シンチレーション測定の結果、塩酸、硝酸、フッ酸、硫酸は 0.1 M であれば十分に α/β 粒子弁別できたが、酸濃度が高くなるにつれ α イベントと β イベントとの蛍光寿命差は小さくなり両者の弁別は困難になった。水酸化ナトリウム溶液による中和で α/β 粒子弁別における蛍光寿命差を拡げることができ、これは特に塩酸やフッ酸に対して有効であった。発表では塩酸系の他にフッ酸系からの ^{181}W の抽出についても報告する。

[1] 小森有希子他、第 55 回放射化学討論会 1A03 (2011)

Extraction of tungsten and investigation of quenching in liquid scintillation counting for chemistry of seaborgium

KOMORI, Y., YOKOKITA, T., KINO, A., NAKAMURA, K., TOYOMURA, K., KASAMATSU, Y., TAKAHASHI, N., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A.

1P12 超重元素生成のための新しい標的システム

(理研仁科セ[1], 新潟大院自[2], 山形大院理工[2],埼玉大理[3])○加治大哉[1], 住田貴之[1], 長谷部裕雄[1], 田中謙伍[1], 羽場宏光[1], 森田浩介[1], 森本幸司[1], 若林泰生[1], 村上昌史[2], 武山美麗[3], 山木さやか[4]

はじめに

超重元素合成実験において，大強度重イオンビーム照射に耐えうる標的の開発は重要課題である。特に，低融点金属である Tl, Pb, Bi などの標的物質を用いる場合は，標的溶融といった深刻な問題が生じる可能性がある。最近，この問題を解決する新しい標的システム(double target)を開発した。**図 1** にその概念図を示す。従来型の single target を 2 分割することで、標的中でのエネルギー損失が半分となり温度上昇を半減することができる。2 分割した標的間に隙間を設けることで、気体充填型反跳分離装置(GARIS)の充填ガスによる冷却効果も期待できる。本標的システムの原理実証を行うために、^{48}Ca ビーム照射試験を行った。

実験

実験は，理研重イオン線形加速器施設で行った。主要な実験条件を以下に示す。

Exp. date: 5th-Jun-2012 ~ 7th-Jun-2012
Target composition: C/^{208}Pb
Thickness: 260~1200 μg/cm^2
Energy degrader: 30 μg/cm^2 C & 0.8 μm Al
Projectile: ^{48}Ca,
Energy: E_{in} = 220, 223 MeV in front of target

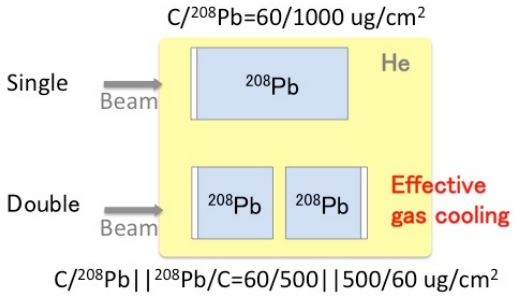


図 1. double target system の概念図(標的厚 =1000 μg/cm^2 の場合)。

結果と考察

^{254}No の合成条件を把握するために、^{208}Pb(^{48}Ca, 2n)^{254}No 反応における励起関数を測定した。続いて、超重元素合成における最適な標的厚を調べるために、様々な厚さの標的を用いて GARIS 焦点面における ^{254}No の収率を測定した。また、double target を用いた同様の実験も行った。その際、標的中心での入射エネルギーが、励起関数のピーク位置となるよう調整した。測定結果を**図 2** に示す。標的厚の増加とともに収率が増加していくが、標的厚が 500 μg/cm^2 あたりを過ぎると飽和がみられた。これは、cold fusion 特有の狭い励起関数の幅と標的中における蒸発残留核の多重散乱による影響が考えられる。

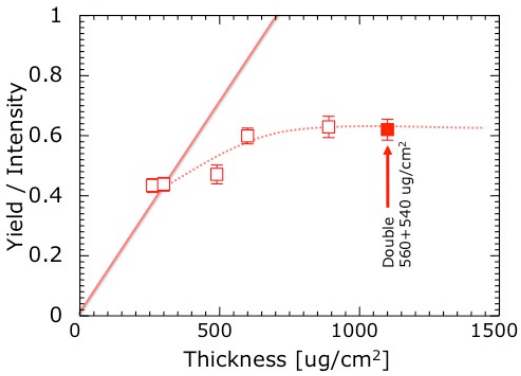


図 2. 標的厚を変化させながら測定した ^{254}No の収率。□: single target, ■: double target。

New target system for the SHE production
KAJI, D., SUMITA, HASEBE, H., TANAKA, K., HABA, H., MORITA, K., MORIMOTO, K., WAKABAYASHI, Y., MURAKAMI, M., TAKEYAMA, M., YAMAKI, S.

1P13 大気浮遊塵の放射能濃度と粒径分布

(原子力機構)○宮本ユタカ、安田健一郎、間柄正明、木村貴海

【はじめに】東日本大震災が引き金となって起こった福島原発事故では、人体への影響が懸念されるほど多量の放射性物質が環境中に放出され、気体あるいはエアロゾル状となって広範囲に拡散した。現在も被曝量評価や環境動態調査などを目的とした大気浮遊塵や土壌などの放射能濃度の計測が続いている。事故現場から環境への放射性物質の主たる放出は、震災から1～2週間の間に起こっている。したがって、この時期に大気降下物の放射能濃度を測定することは放射性物質の移流を調べる上でも重要である。放出源である福島第一原子力発電所から114km離れた原子力科学研究所敷地内(CLEAR棟南側)で地震発生から10日以内に大気浮遊塵を粒度分画に分けて捕集し、ガンマ線スペクトロメトリーによる放射性核種の同定・定量を行った。また、全反射蛍光X線分析による元素組成測定や走査型電子顕微鏡による形状観察も行い、粒径による放射能濃度や元素組成の違いなどについて考察した。

【試料捕集】捕集は2011年3月17日17:28～4月1日10:13(15日間)と5/9 15:10～5/13 9:47(4日間)の2回行った。捕集を開始する直前の3月15日～16日と、3月21日～22日にかけて茨城県北部の空間線量率が急上昇していた。捕集は8段アンダーセンサンプラー(東京ダイレック製 AN-200)を用いた。震災後で設置できる場所が限られていたため、プレハブ倉庫内に装置を設置した。サンプラーの吸気口に塩化ビニール管(内径25 mmφ、長さ108 cm)の一端を接続し、もう一端を屋外(地上2.3 m)に出して大気を捕集した。

【測定】捕集終了から約3週間後に高純度Ge半導体検出器(ORTEC製検出効率80%)で放射能を測定した。γ線スペクトル解析は金沢大学・浜島氏が作成したソフトウェアpkviewを用いた。得られた放射能は捕集終了時に壊変補正した。測定室のバックグラウンド放射能は日々変化したので、試料とバックグラウンド測定を交互に行って補正した。

【結果と考察】3月に捕集した大気浮遊塵からは^{129m}Te, ^{131}I, ^{134}Cs, ^{136}Cs, ^{137}Cs が検出された。図1に^{137}Csについて、粒径に対する対数正規確率分布図を示す。この図から求められる^{137}Csの空気動力学的放射能径(AMAD)は1.5 μmであった。^{129m}Te, ^{134}Cs, ^{136}Cs についても同様の粒径であった。同程度の粒径分画にはAlやSiを多く含む粘土鉱物と思われる不定形の粒子やKClやNaClなどの立方体の海塩粒子が多く含まれていることが電子顕微鏡観察から確認できた。^{131}IのAMADは^{137}Csとは異なり0.58 μmであった。その粒径の分画には炭素と硫黄を多く含む微細粒子で占められていた。5月に捕集した試料では3月のものと粒径分布は異なり、^{137}Cs を含む粒子はAMADが1.0 μm以下と10 μm以上の粒度が異なる2成分から成っていた。3月は捕集場所が太平洋に近いことからこの捕集場所では海塩などの粒子によって^{137}Csが移流し、5月は土壌の再浮遊などが関係しているものと思われる。

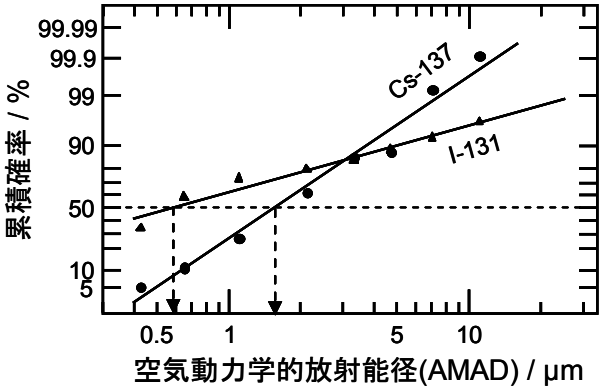


図１：3 月に捕集した大気浮遊塵の粒径に対する ^{137}Cs および ^{131}I 放射能の対数正規確率分布

Radioactivity and size distribution of the airborne particles
MIYAMOTO, Y., YASUDA, K., MAGARA, M., KIMURA, T.

1P14

Pu 含有単一粒子のα線測定技術の開発

（原子力機構）○安田健一郎、鈴木大輔、江坂文孝、間柄正明、木村貴海

【はじめに】JAEA では、原子力施設等における未申告活動を検知する手段の 1 つとして保障措置環境試料分析手法の開発を実施している。その一環として、既に、施設等からの拭き取り試料(スワイプ)に付着したミクロンオーダーの個々の核物質粒子を走査型電子顕微鏡(SEM）のエネルギー分散型 X 線分析法（EDX）により検出し、表面電離質量分析法（TIMS）によりその同位体組成を精密に分析する一連の手法を確立した [1)]。TIMS では、核物質の同位体比測定はできるが、その定量は困難である。そこで、TIMS による同位体比分析に先立ち、α線測定法を適用し、フィラメント上の Pu 粒子の定量について検討したので報告する。

【実験】プルトニウム粒子試料：Pu 同位体標準物質(NBS SRM947)から作製した。SEM-EDX により粒径等を計測するとともに、TIMS 用の Re フィラメント上に粒子を乗せた。粒子の平均直径は、およそ 0.6, 0.9, 1.9 μm であった。図 1 に、0.6 μm の粒子像を示す。また、α線の検出効率校正のため、Pu 標準物質溶液を Pu が 1 pg となるように Re フィラメント上に滴下し、蒸発乾固した。α線測定装置：ORTEC 社製 OCTETE-PLUS を、検出器は有感面積: 600 mm^2 の BU-024-600-AS を使用した。測定：試料-検出器間距離は 5 mm、10 万秒以上測定し、α線スペクトルを得た。

【結果と考察】各 Pu 粒子をα線測定した結果を図 2 に示す。平均直径が 1.9 μm の粒子を測定した場合、粒子中におけるα線の自己吸収により、$^{239+240}$Pu と ^{238}Pu(+^{241}Am)のピークが分離できなかったが、本法により、電着等の操作を用いることなく単一粒子から放出されるα線を測定することが可能となった。SEM や TIMS では、試料粒子を構成する Pu の原子個数を評価することができないが、α 線を測定することにより、放射能から原子個数を推定することが可能である。今後、α線測定した Pu 粒子試料を TIMS で測定し、粒子状 Pu のイオン化効率等の評価について検討する予定である。また、粒子の測定数を増やし、SEM で測定された平均直径に対する放射能の相関性や粒子中におけるα線の自己吸収によるエネルギー分解能の相関性についても検討する。

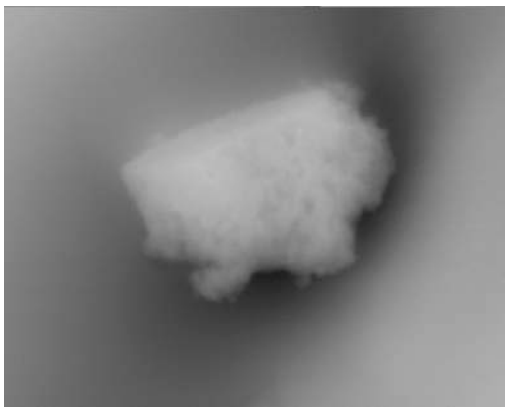


図 1: SRM947 から作成した Pu 粒子
(平均直径:0.6 μm)

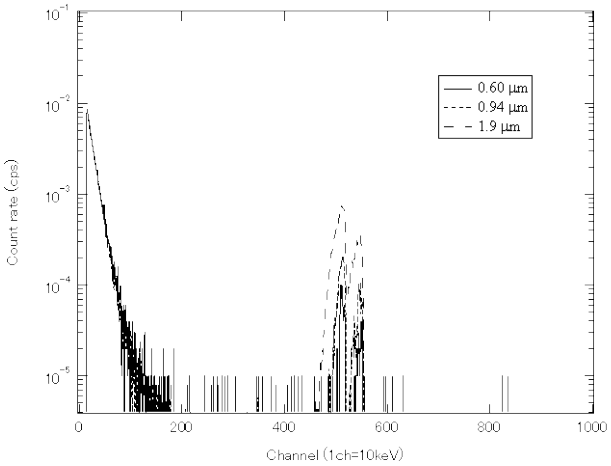


図 2: Pu 粒子のα線スペクトル

[1)] D.Suzuki et al., Chem. Lett., 41, pp.90-91 (2012)

Development of alpha-ray measurement technique for single plutonium particles
YASUDA, K., SUZUKI, D., ESAKA, F., MAGARA, M., KIMURA, T.

1P15 広島大学東広島キャンパスの環境放射能と化学的環境の関係

（広島大院理[1]、広島大 N-BARD[2]）○古賀和樹[1]、木原翔也[1]、難波孝志[1]、松嶋亮人[2]、稲田晋宣[2]、中島　覚[2]

【緒言】 我々は広島大学東広島キャンパス付近における水中の環境放射能について調査を行ってきた。これまでの研究によって微生物の活動が環境放射能に対して何らかの関与をしている可能性が示唆された。そこで、広島大学東広島キャンパス水系に存在するバイオマットについて調査し、微生物の活動が環境放射能に対してどのような影響を与えるのかを調べている。今回、水中の全β放射能濃度、金属濃度、COD などへの微生物の関与を評価した。

【実験】 角脇川に存在するバイオマットを河川水が通過する前後(Fig.1 の A 点、B 点)、対照地点として山中谷川(Fig.1 の C 点)をサンプリングポイントとした。サンプリングは、A,B,C の 3 点において 2011 年 5 月から 2012 年 6 月の間に行った。それぞれ 2 L の水を採水し、1 L をI沈着のために非放射性の NaI と CsCl 溶液を加えたのちに蒸発乾固させて同軸型 Ge 半導体検出器を用いて核種別γ線分析を行った。また、500mL の水を蒸発し、赤外線ランプで乾固させ、残渣重量測定後、全β放射能を測定した。残りの水試料で、COD_{Mn} 測定および ICP 発光分析によって元素分析を行った。なお、ICP 発光分析は検量線をそれぞれの元素に関して作成し、直線の範囲内になるように適宜希釈をして、測定を行った。

Fig.1 広島大学東広島キャンパス

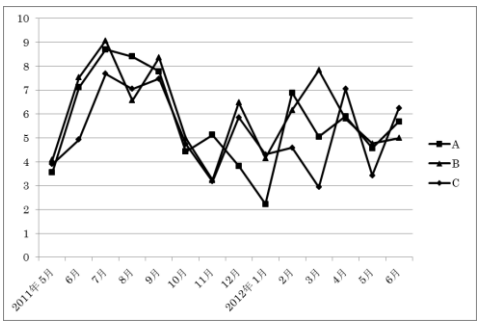


Fig.2 全β放射能濃度の経月変化
■:A 点、▲:B 点、◆:C 点

【結果と考察】 Fig.2、3 にそれぞれ全β放射能濃度および COD の経月変化を示す。全β放射能濃度は、バイオマットを通過することにより顕著な違いは見られない。一方、多くの月においてバイオマットを通過することにより COD が減少していることが分かる。そして、季節変化は見てとれない。また、Fe と Mn の濃度は、水温が高い時は、水中の存在度が減少する傾向があることを確認している。これらを総合して考えると、バイオマットが微生物から作られる鉄を含む鉱物であることから、微生物活動により環境水に含まれる Fe と Mn、あるいは有機物などが取り除かれると推測される。この変化と全β放射能濃度との関係は継続して検討する必要がある。

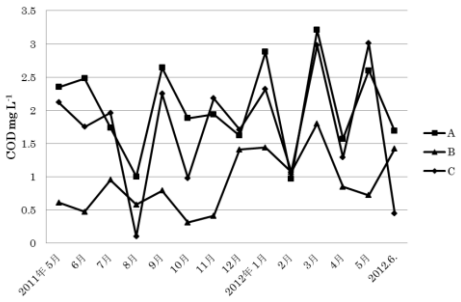


Fig.3 COD の経月変化
■:A 点、▲:B 点、◆:C 点

Relation between Environmental Radioactivity and Chemical Circumstances in Higashi-Hiroshima Campus, Hiroshima University

KOGA, K., KIHARA, S., NANBA, T., MATSUSHIMA, A., INADA, K., NAKASHIMA, S.

1P16

浴水中のトリウム系列核種の解析

（東京慈恵会医科大学　アイソトープ実験研究施設）○堀内公子、箕輪はるか、吉沢幸夫

浴剤利用は温泉に準ずるものとして普及してきた。自宅で手軽に温泉を楽しむことができ、また、製品によっては一定の薬効があることが消費者に認知されている。『放射能泉』の場合は放射性鉱物等が利用されている。本研究では玉川温泉の湯の華を含む浴剤（湯の華）および『放射能泉』利用されているアマン精鉱（Th1.4%含有）を用いて、溶出してくる放射性核種を解析、定量することを目的とした。

試料から放出されるγ線を NaI（Tl）放射線測定装置（Auto Well Gamma System ARC-380CL, アロカ）を用いて測定し、図 1、2 にγ線スペクトルを示した。湯の華およびアマン精鉱はともに ^{212}Pb (239keV)および ^{228}Ac (338keV)の存在が確認された。この結果は、それぞれの親核種である ^{224}Ra および ^{228}Ra が含まれていることを示唆している。

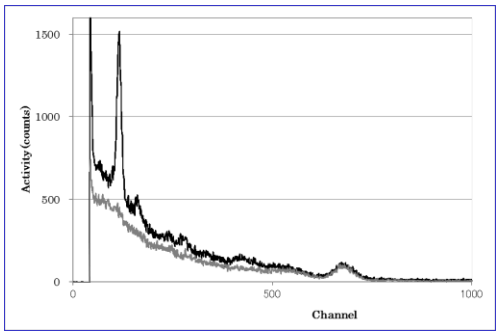


図 1　湯の華

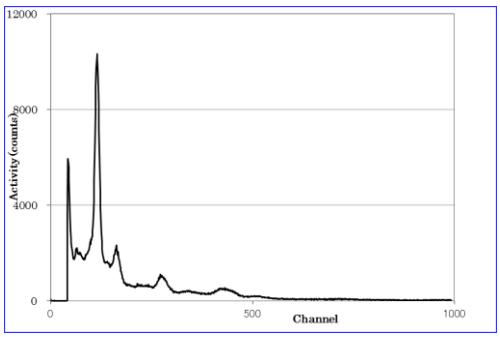


図 2　アマン精鉱

α 線は液体シンチレーションカウンタ（LSC-6100, アロカ）で測定した。通常湯の華と呼ばれる温泉堆積物の主成分は硫黄であるが、今回用いた浴剤には 50%のカオリンが混ぜられている。α 線測定試料は、硫黄分を坩堝で燃焼させた後、40℃の 0.1M EDTA を 300rpm で撹拌しながら作用させ、濾過して調製した。図 3 にそのスペクトルを示した。アマン精鉱は 40℃の 0.1%クエン酸溶液で作用させた浸出液を同様に測定した（図 4）。両者共に ^{224}Ra のピークが顕著にみられた。

今後は、他の核種の同定および定量を行う予定である。

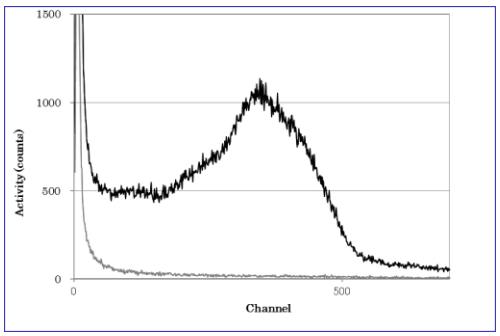


図 3　湯の華

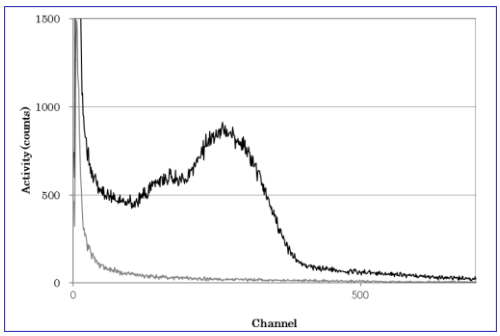


図 4　アマン精鉱

Analysis of Th-series nuclides in a bath water
HORIUCHI, K., MINOWA, H., YOSHIZAWA, Y.

1P17 土壌中放射性ストロンチウムの迅速分離法の改良

(筑波大院生命[1]、筑波大院数理[2])
○佐藤志彦[1]、末木啓介[1,2]、笹公和[2]

【緒言】　原子力災害により大地に沈着した放射性核種量を速やかに定量することは、事故の実態解明、ならびに人命保護の観点から極めて重要である。しかしストロンチウムの放射性同位体である ^{89}Sr と ^{90}Sr は共に純 β 放出核種のため、測定には複雑な化学操作を行わなければならず、特に土壌を対象とした場合、迅速定量は困難を極める。このような問題を解決するため Sr を選択的に分離する樹脂が開発され、環境試料への適用事例が複数報告されている。しかし試料処理は性能低下を引き起こす妨害元素の存在により、取扱を慎重に期す必要があり、特に土壌を対象とした場合、安定同位体である鉄の存在が試料処理を困難にしている。そこで本研究では Sr(R) resin (Eichrom, USA)を用いた Sr 分離法で、予め効果的な鉄の除去を行うことで、土壌試料に適用をさせるための手法を検討した。

【実験】　本研究における実験スキームを図 1 に示した。また Sr の挙動を確認するためトレーサーに ^{85}Sr(EC $t_{2/1}$ = 64.84 d)を加えた。Eichrom 社の指定する手法に対し、土壌抽出に濃塩酸を用いた。次に分離濃縮した溶液を 10 M(HCl)程度に調整し、陰イオン交換樹脂(10 mg DOWEX 1X8 100-200 mesh)を通過させ、鉄をクロロ錯イオンとして吸着させることで除去を行った。その後、陽イオン交換樹脂を既定の条件で通過させるため硝酸置換を行った。

【結果】　陰イオン交換後、溶液の濃縮を行った際、硝酸に不溶な沈殿が析出した。しかしこの沈殿に ^{85}Sr は 1%程度しか含まれておらず、95%以上の ^{85}Sr が溶液中に存在しており、沈殿生成が分離操作の障害とならないことを確認した。また鉄の分離効果は視覚的に確かめることが可能なため、操作の完了を容易に把握できた。今後は土壌ごとの適用限界、および試料量の上限の検証を行い、分離操作の一部に組み込むための準備を行う予定である。なおこの他にジイソプロピルエーテルを用いた溶媒抽出法による鉄除去の検討も行った。これらの結果等についても詳細を報告する。

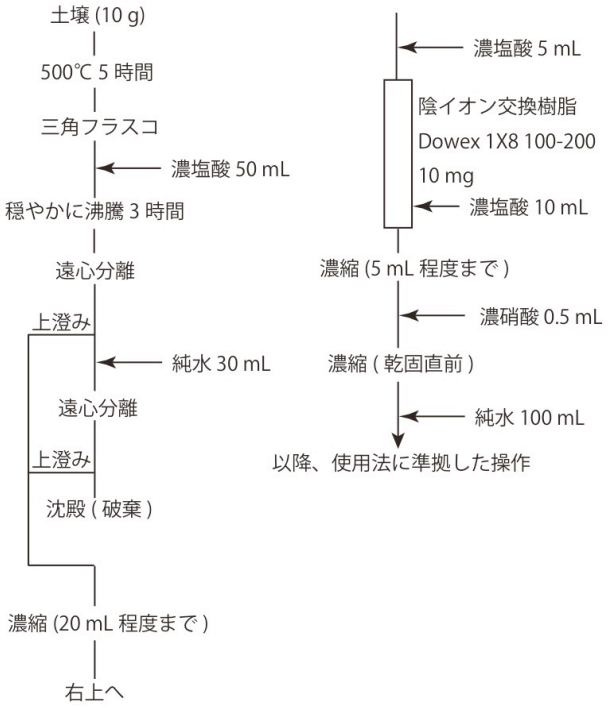


図 1　化学操作手順

Improvement in rapid separation of strontium radionuclide in soil samples
SATOU, Y., SUEKI, K., SASA, K.

1P18 陽電子消滅寿命分光法による鉄基合金中の放射線照射誘導欠陥の観察

（金沢大院自然[1]、大阪大院理[2]、京大原子炉[3]、金沢大理工[4]）○硎光貴[1]、小野遼平[1]、三原基嗣[2]、松多健策[2]、福田光順[2]、大久保嘉高[3]、佐藤渉[4]

【緒言】

原子炉材料は、原子炉運転中の放射線損傷により、その物理的機械的性質が変化しうることが知られている。そのため、材料内に生成される放射線照射誘導欠陥に関する情報を得ることは炉材の耐久性を評価する上で重要である。中性子照射下においては、材料を構成する原子が中性子と核反応を起こし、He や H といったガス原子が生成されることがある。He は固体への溶解度が低いため、特に高温においては、バブルを形成しやすく、材料に脆化をもたらす。この He バブルについては、Fe-9Cr%鋼において、Cr がバブルの運動を遅くすることが実験的に示されている[1]。また、第一原理計算により Au や Ce などの溶質元素が bcc Fe 内のバブル成長を妨げることが示唆されている[2,3]。

本研究では、Fe をベースとした合金試料へ He を照射し、試料内での He バブルの成長を含む照射誘導欠陥の挙動に与える、溶質元素などの影響を実験的に調べることを目的とする。そのための測定手法として、陽電子消滅寿命分光法（PALS）を用いる。PALS では試料中の欠陥の種類、サイズおよび濃度についての情報を高感度に得ることができる。従って、PALS は材料内の欠陥評価に有効な非破壊的測定手法である。

本研究室における PALS 測定の立ち上げに際し、He 照射実験の前に、γ 線照射した純 Fe 試料を測定し、その測定系の評価並びに γ 線照射の影響の調査を行った。

【実験】

純 Fe 試料としては市販の板状試料を用いた。試料への γ 線照射は京都大学原子炉実験所において ^{60}Co 線源 (2.8 kGy/h) を用いて 48 時間行った。未照射および照射後の試料を、^{22}Na 線源を用いた標準的な PALS の装置構成により測定した。

【結果と考察】

測定により得られた陽電子寿命は両方の試料とも純 Fe 試料の文献値 (約 100 ps) と一致しており、γ 線については照射の影響が見られなかった。なお、当研究室において同じ測定系を用いて行った、Si 試料に対する中性子照射実験では照射の影響が見られた。従って、この結果は ^{60}Co 程度の γ 線では Fe 内に顕著な欠陥が出来なかったためであると考えられる。

He 照射については、市販の純 Fe や、Cr などを含む Fe 基合金の板状試料に対し、大阪大学のバンデグラフ加速器において行う予定である。

【参考文献】

[1] K. Ono *et al*.: *Journal of Nuclear Materials*, **307-311**, 1507 (2002).

[2] W. Hao *et al*.: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **269**, 1428 (2012).

[3] W. Hao *et al*.: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **280**, 22 (2012).

Observation of Irradiation-induced Defects in Fe-based Alloy by Positron Annihilation Lifetime Spectrometry

TOGIMITSU, T., ONO, R., MIHARA, M., MATSUTA, K., FUKUDA, M., OHKUBO Y., SATO, W.

1P19

^{19}F 励起状態の電気四重極モーメント測定に向けたオンライン摂動角相関測定システムの構築

（金沢大自然[1]、阪大院理[2]、金沢大理工[3]）○島田昌英[1]、三原基嗣[2]、佐藤渉[3]

【序論】

フッ素(F)を構成元素とする物質の局所的な情報を得る場合、F 原子核位置での電場勾配は F 周辺の電荷分布や構造を知る上で有力な指標となる。電場勾配を決定するには F 原子核の電気四重極モーメントが必要になるが、F の同位体の中で唯一の安定核種である ^{19}F の基底状態は、電気四重極モーメントをもたないため不安定核を利用する必要がある。現在、^{19}F 核の第二励起状態の電気四重極モーメントは 2 つの値が提示されており[1, 2]、真の値が確定していない。そこで本研究では ^{19}F(←^{19}O)の摂動角相関(PAC)法によって、^{19}F の第二励起状態の電気四重極モーメントを決定することを目的としている。^{19}O の半減期は 26.9 秒と非常に短いため、加速器からのビームを利用するオンライン法を採用する。まず手始めに VME(Versa Module Eurocard)規格のモジュールを使用して、イベント毎のエネルギーや時間情報をリスト形式で取得する、オンライン法に有効なシステムを構築し、その動作確認を行った。現在、オンライン PAC 法で必要になる照射チェンバーの構築に取り組んでいる。

【測定系の動作試験】

新たな測定系が機能していることは、NIM 規格モジュールを使用している従来の測定系で得られたデータと比較することによって調べた。Fig. 1 は 10% In-doped ZnO に ^{111}In をドープし、VME 測定系で測定して得られたスペクトルである。これは NIM 規格で得られるスペクトルをよく再現しているため、オンライン PAC 法に適用できることが確認できた。

【照射チェンバーの設計】

本研究のオンライン PAC 法では、$Ti^{18}O_2$ 箔に 3.5MeV の重陽子ビームを照射し、^{18}O(d, p)^{19}O 反応で生成する ^{19}O を試料に反跳注入し、β⁻壊変後の ^{19}F 励起状態から連続的に放出される 2 本の γ 線を測定する。Fig.2 にオンライン PAC 法で用いる照射チェンバーの上面図を示した。

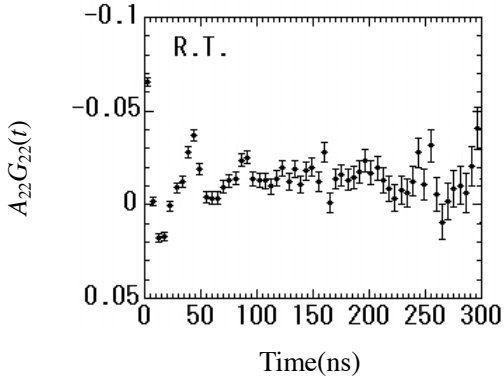


Fig. 1. PAC spectrum of ^{111}Cd(← ^{111}In) embedded in 10 at. % In-doped ZnO measured at room temperature.

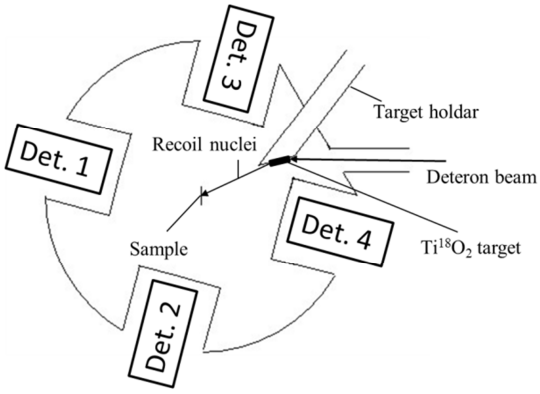


Fig. 2. Schematic drawing of the irradiation chamber (Top view).

【参考文献】

[1]K. Sugimoto, A. Mizobuchi, K. Nakai: *Phys. Rev*, **134**, B539(1964).

[2]K. C. Mishra, K. J. Duff, T. P. Das: *Phys. Rev. B*, **25**, 3389(1982)

Development of an Online Perturbed Angular Correlation Measurement System for the Determination of the Quadrupole Moment of ^{19}F on the 197-keV Excited State

SHIMADA, M., MIHARA, M., SATO, W..

1P20

陽電子寿命法を利用した半導体材料中の空孔型欠陥挙動の研究

（金沢大院自然[1]、京大原子炉[2]、金沢大理工[3]）
○小野遼平[1]、硎光　貴[1]、大久保嘉高[2]、佐藤　渉[3]

【はじめに】

半導体材料中に存在する空孔型欠陥は半導体の性質に影響を与える。そのために半導体材料中の空孔型欠陥の生成、回復、凝集、拡散といった空孔の挙動についての情報を得ることは物性を制御する上で重要である。また多結晶中においては粒子の境界面に存在する結晶粒界の物性への影響が考えられるため、結晶粒界に関する知見を得ることも不可欠である。従来、物質中の空孔型欠陥の検出法として陽電子寿命法（PALS）が重要な役割を担っている。陽電子の寿命が陽電子占有サイトの電子密度に依存するため、本法では空孔型欠陥を特異的に検出することができる。我々は陽電子寿命法を用いて異なる状況下における半導体材料の物性評価を目的として研究を進めている。その手始めとして本研究では、現在広く利用されているシリコン（Si）と近い将来半導体としての利用が期待されている酸化亜鉛（ZnO）のふたつの半導体材料を研究対象として、試料の合成法や放射線耐性の観点から空孔型欠陥の存在状態や挙動を調べている。

【実験】

京都大学原子炉実験所の ^{60}Co γ線照射装置を用いて Si(5N)に対してそれぞれ線量率 2.76, 0.582, 0.179 kGy/h で 48 時間γ線照射を行った。また同施設の研究用原子炉圧気輸送管にて Si に対して熱中性子束 2.75×10^{13} cm^{-2}s^{-1} で 1 時間中性子照射を行った。

ZnO 粉末約 0.5g を 75MPa で圧縮し粉末成形を行い、空気中 800, 900, 1000, 1100℃で 2 時間焼結を行った。その後ゆっくりと室温まで徐冷した。

これらの試料を陽電子寿命測定器にて全カウント数で 10^6 以上になるように測定を行った。

【結果】

陽電子寿命測定の結果からγ線照射前後の Si 試料で寿命に大きな変化が見られなかった。Fig.1 に熱中性子照射前後の Si 試料の陽電子寿命スペクトルを示す。熱中性子を照射した Si の試料においては、照射前の試料と比較し陽電子寿命が長くなるという変化が見られた。ZnO の試料に関しては陽電子寿命に焼結温度依存性があることが分かった。陽電子寿命の変化から各試料中における空孔型欠陥のサイズ、密度が変化したと考えられる。現在欠陥と照射条件、焼結温度の違いによる半導体材料中の空孔型欠陥の挙動ついて考察中である。

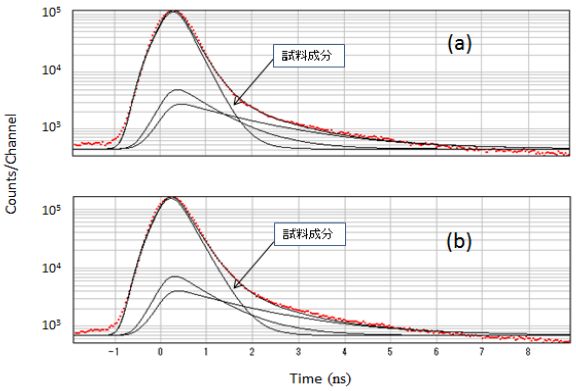


Fig.1 PALS spectra for Si samples (a) before and (b) after neutron irradiation.

Behavior of Vacancy-Type Defects in Semiconductor Materials Studied by Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy
ONO, R., TOGIMITSU, T., OHKUBO, Y., SATO, W.

1P21 ミュオンエックス線測定による青銅鏡の元素成分比の定量

(阪大院理[1]、理研[2]、高エネ研[3]、国際基督教大[4]、歴博[5])○二宮和彦[1]、小林義男[2]、ストラッサー・パトリック[3]、石田勝彦[2]、松崎禎市郎[2]、久保謙哉[4]、齋藤努[5]

【緒言】

負電荷をもったミュオンを物質中に入射するとミュオンは物質内で減速され、物質中の原子核のクーロン場に捕獲されて、原子内の電子が一つ負の電荷のミュオンに置き換わった系であるミュオン原子を形成する。ミュオン原子からは負ミュオンの脱励起に伴い、ミュオン特性エックス線が放出される。我々の研究グループでは、ミュオン特性エックス線測定による元素分析手法の開発を目指し、これまで研究を行ってきた[1]。

ミュオン特性エックス線測定による元素分析の特徴は、通常の蛍光エックス線分析よりもはるかに高いエネルギーのエックス線を対象としていることである。ミュオン特性エックス線のエネルギーは、ミュオンと電子の質量の関係から、電子由来の特性エックス線のおよそ 200 倍であり、バルクな物質内部の軽元素からのエックス線の定量も可能である。このほかの特徴として、各原子へのミュオンの捕獲確率が元素によらずほぼ一定であることが挙げられる。これはミュオンを物質中に打ち込むだけで、物質中に含まれている水素を除くあらゆる元素を、同じ感度でエックス線測定により定量することができることを意味している。またミュオンは荷電粒子なので、適当な輸送系を構築することで運動量の選別することができ、ミュオンの物質中での入射深さを制御する、つまり非破壊で三次元的な分析ができる[2]。これらの特性を生かして、我々はこの分析手法の考古学資料への応用を目指している。

【実験と結果】

本実験は英国ラザフォードアップルトン研究所、理研 RAL ミュオン施設においてミュオン照射実験を行った。星雲鏡（中国前漢時代）にミュオンを照射し、放出されたミュオン特性エックス線をゲルマニウム半導体検出器で測定した。図 1 に得られたスペクトルを示す。標準試料として Cu, Sn, Pb の純金属に対してもミュオン照射実験を行い、星雲鏡試料から得たスペクトルと比較したところ、図 1 で得られたピークはすべて Cu, Sn, Pb 原子由来であると帰属できた。つまり星雲鏡は Cu, Sn, Pb からなる青銅合金であることがわかった。

本研究では純金属試料とは別に、成分既知の青銅についてもミュオン照射を行い、ミュオン特性エックス線の測定を行った。Cu, Sn, Pb の原子由来の各ミュオン特性エックス線強度と元素成分比の関係を調べ、星雲鏡試サンプルで得られたエックス線強度から、星雲鏡の成分が Cu: 73 %, Sn: 22 %, Pb: 5 %であると試料を破壊することなく決定した。

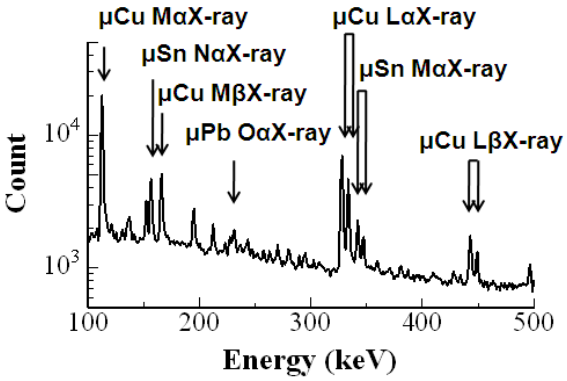


図 1：星雲鏡にミュオンを照射したときに得られたスペクトルと主なピークの同定（照射時間：15 時間）

【参考文献】

[1] 久保 他、第 55 回放射化学会討論会 3B06
[2] 二宮 他、第 56 回放射化学会討論会 1B11

Determination of elemental composition of an ancient Chinese mirror by measuring muonic X-rays
NINOMIYA, K., KOBAYASHI, Y., STRASSER, P., ISHIDA, K., MATSUZAKI, T., KUBO, M. K., SAITO, T..

1P22 鉄を添加した酸化亜鉛の放射線照射効果のメスバウアー分光研究

（金沢大院自然[1]、阪大院理[2]、京大原子炉[3]、金沢大理工[4]）○鈴木卓也[1]、笠松良崇[2]、高橋成人[2]、大久保嘉高[3]、佐藤渉[4]

【緒言】室温強磁性半導体は電子の電荷とスピンの両方を利用した高機能素子を作り出すための素材としてスピントロニクスの分野で注目されている。半導体である酸化亜鉛(ZnO)においても微量の磁性金属を添加した場合、室温強磁性半導体になる可能性があるとの報告がなされているが、室温強磁性が発現する条件や起源は明確には分かっていない。本研究では、半導体である酸化亜鉛に磁性金属である鉄を二通りの合成法で添加して固溶条件の探索を行い、磁性の発現を目指している。また、酸化亜鉛の室温強磁性に関し放射線照射による格子欠陥を磁性の起源として挙げている報告[1]があるが、その真偽について見解は一致していないことから、酸化亜鉛試料に放射線を照射して格子欠陥の導入を行い磁性発現の有無を調べることを目的とする。

【実験】鉄を添加した酸化亜鉛を以下の二通りの方法で合成した。

①$Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ を溶かしたエタノールに ZnO 粉末を Zn:Fe 原子数比が 90:10 となるように加え、60℃程度に加熱・攪拌してエタノールを除き、これを 1000℃で焼成した。

②KOH のメタノール溶液に Zn:Fe 原子数比が 92:8 の $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ と $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ の混合メタノール溶液を加えて沈殿を生成し、これを洗浄後 50℃で乾燥させた[2]。

格子欠陥を生成させるための放射線照射として、大阪大学核物理研究センターにて陽子(8 MeV, 7×10^{12} /s, 2h)を、京都大学原子炉実験所にて ^{60}Co のγ線(2.7 kGy/h, 2d）を照射した。

各試料の放射線照射前後についてメスバウアー分光測定を室温で ^{57}Co 線源を用いて行った。

【結果】①の合成法と②の合成法による鉄を添加した酸化亜鉛はいずれも室温で強磁性を示さなかった。粉末X線回折測定を行ったところ、①は酸化亜鉛と亜鉛フェライト、②は酸化亜鉛の結晶構造のみが読み取れた。^{60}Co のγ線を照射した①と②の鉄を添加した酸化亜鉛のメスバウアースペクトルからは照射前後の有意の変化は読み取れなかった（図 1)。

本発表では放射線照射による格子欠陥と室温強磁性の関係を探る観点から、鉄を加えた酸化亜鉛以外の放射線照射前後のメスバウアー分光測定も行ったので、それについても報告する。

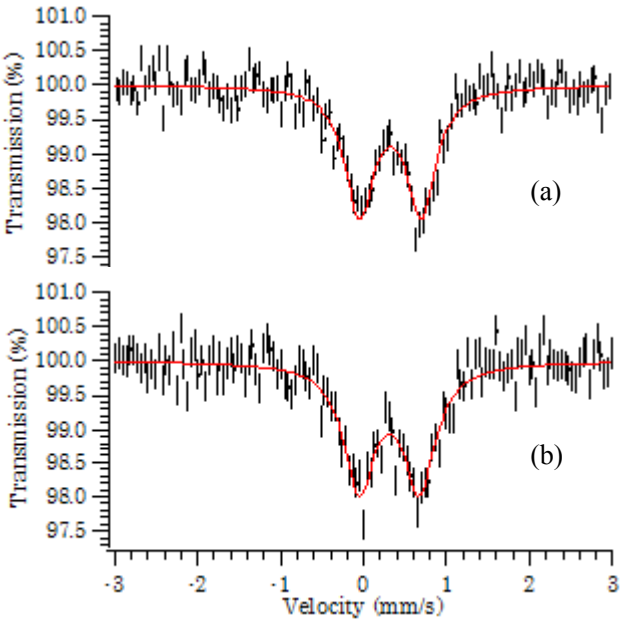


図 1 合成法②で合成した、鉄を添加した酸化亜鉛の放射線照射前(a)と、^{60}Co のγ線照射後(b)のメスバウアースペクトル

[1] G. Weyer et al., J. Appl. Phys. **102**, 113915 (2007).

[2]P. K. Sharma et al., J. Mag. Mag. Mat. **321**, 2587 (2009)

Mössbauer spectroscopic study of irradiation effects on Fe-doped ZnO

SUZUKI, T., KASAMATSU, Y., TAKAHASHI, N., OHKUBO, Y., SATO, W..

1P23

^{228}Ra/^{226}Ra 比からみた日本海表層の水塊流動の検討

（金沢大 LLRL[1]、中央水産研究所[2]、北海道大水産[3]）
○古澤佑一[1]、井上睦夫[1]、長尾誠也[1]、山本政儀[1]、浜島靖典[1]、
藤本賢[2]、磯田豊[3]

[はじめに]

日本海はユーラシア大陸と日本列島に囲まれた縁辺海であり、水深が 150m以下の海峡により外海とつながっている。対馬暖流は東シナ海を起源とし表層水のみが対馬海峡により日本海に流入、津軽海峡、宗谷海峡から流出する。対馬暖流は 3 分枝に分かれて日本海を北上するとされるが、その流動パターンは複雑なために明らかにはなっていない。大陸側浅層海水の ^{228}Ra/^{226}Ra 比は 3.0～4.0 と高い一方、黒潮の ^{228}Ra/^{226}Ra 比は 0.2～1.0 と低い。日本海表層海水の ^{228}Ra/^{226}Ra 比は、この大陸側浅層海水と黒潮の混合比の変化を反映する。よって本研究では、^{228}Ra/^{226}Ra 比を第一分枝と第二分枝の水塊流動のトレーサーとして利用し、その水塊流動を検討した。

[試料と実験]

2011 年 6 月北海道大学おしょろ丸調査航海、2011 年 10 月中央水産研究所のみずほ丸調査航海において採取した表層海水試料 (~20 L) 計 65 試料を用いた (図. 1)。$BaSO_4$、$Fe(OH)_3$ 共沈により Ra 同位体を回収、低バックグラウンドγ線測定により、^{228}Ra、^{226}Ra 濃度を求めた。

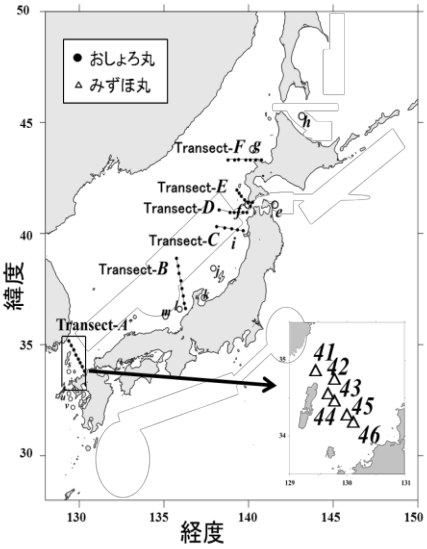


図１：表層海水採取地点

[結果と考察]

対馬海峡の Transect-A において韓国側への漸近に伴い ^{228}Ra/^{226}Ra 比が上昇し (0.8-2.5)、対馬海峡西水道では東シナ海大陸側浅層海水の寄与が大きいことを示唆した。Transect-B において沖合では ^{228}Ra/^{226}Ra 比が高く (1.5)、沿岸側では ^{228}Ra/^{226}Ra 比が低い (0.8) のは、沖合側では第二分枝の寄与が大きく、沿岸では第一分枝の寄与が大きいことを示唆する。Transect-C～-F においては ^{228}Ra/^{226}Ra 比が一定 (～1) である。これは第一分枝と第二分枝の混合を示唆している。一方、対馬周辺の Transect-A (6 月) と MZ41-46 (10 月) においては ^{228}Ra/^{226}Ra 比の変動幅などにちがいがみられた。日本海表層海水の流入口である対馬沿岸および本州沿岸でも ^{228}Ra/^{226}Ra 比の季節変動が確認されている。今後、異なる季節の ^{228}Ra/^{226}Ra 比を調べてより詳細な議論をおこなう。

Water circulation patterns on surface of the Japan Sea from Ra-228/Ra-226 ratio

FURUSAWA, Y., INOUE, M., NAGAO, S., YAMAMOTO, M., HAMAJIMA, Y., FUJIMOTO, K., ISODA, Y.

1P24

福島原発由来の放射性セシウム同位体が示すメコンデルタの堆積環境

（産総研地質調査総合センター[1]、ベトナム科学院 [2]、東大院 [3]）○金井　豊 [1]、齋藤文紀 [1]、田村　亨 [1]、Van Lap Nguyen[2]、Thi Kim Oanh Ta[2]、佐藤明夫 [3]

【はじめに】2011 年 3 月 11 日に発生した宮城県沖を震源とする M9.0 の大地震とそれに続く大津波によって起きた東京電力(株)福島第一原発事故により、大気中に大量の放射性核種が放出され、福島県を中心に広い範囲が汚染された。これらの放射性物質は日本国内ばかりでなく、世界各国の観測地点で検出され報告されてきている。著者らは、環境への影響評価と住民の安全確保の観点から、3 月末から研究所において大気中のエアロゾルのサンプリングを開始し、エアロゾル中の放射性核種を調査し報告した。

一方で、メコンデルタにおける環境保全のための観測診断技術と管理手法の開発をするために堆積環境の研究も進めている。こうした中で、現地のデルタ堆積物中に福島原発事故由来の放射性セシウム同位体を見いだした。更に 3 ヶ月後に同一地点で採取した試料から、ここでの環境変化を示唆する結果が得られたので、その詳細について報告する。

【試料と測定装置】試料はベトナムのメコン川デルタ域の 2 地点で採取した。2011 年 10 月に、A195 地点(海岸線から沖に向かって 195 m のポイント)において 66 cm のコア試料を、B415 地点において 45 cm のコア試料を、手で塩ビ管を押し込んで採取した。同様に、堆積環境の変化をみるため、2012 年 2 月にも同じ位置で堆積物を採取した。コアは 3-6 cm の厚さに分割し、密封して研究室に持ち帰り、実験室において乾燥後微粉砕して、ナルゲン製遠沈管に約 6 g を封入し、放射線測定に供した。放射線測定装置には，井戸型 Ge 半導体検出器を備えた MCA7600 システムを使用した。核種の定量には、それぞれ 605 keV(^{134}Cs)，662 keV(^{137}Cs)のガンマ線ピークを用いた。^{134}Cs はカスケード壊変に伴うサム効果の影響が顕著に表れるため、^{134}Cs/^{137}Cs 比が既知のサブスタンダードを利用して定量した。核種濃度は全てサンプリング日における濃度に崩壊補正した。

【結果と考察】A195 コアでは、上位 5-15 cm の試料においてのみ高濃度の ^{137}Cs、および ^{134}Cs が検出された。その他の試料ではいずれも低濃度であった。^{134}Cs に関しても、上位 5-15 cm の試料において高濃度で検出されたものの、他試料ではほとんどが検出限界以下となった。このことから、^{134}Cs と ^{137}C s が高濃度で検出された 5-15 cm の試料は、2011 年 3 月 11 日以降に堆積した堆積物がその後デルタの堆積場に運搬され堆積したものと考えることができる。ベトナムの大気観測ステーションでは、2011 年 4 月 10 日をピークに 3 月末から 4 月 23 日にかけて福島第一原発事故の影響が観測されており、それ以降は検出限界以下だったとしている。このように、メコン川流域においても 4 月あたりに福島第一原発事故によって放出されたセシウム同位体が降下して堆積し、雨季の洪水等で河口域に運搬され、それらが A195 コアのあるデルタ域に堆積したと考えられる。2012 年の乾季に採取した A195(2012)コアでは、^{137}Cs は検出限界ぎりぎりで ^{134}Cs は検出限界以下であった。2011 年の 10 月に高濃度で検出された ^{137}Cs および ^{134}Cs は、減衰ではそれほど低下しないため、このように低濃度で検出されたことは、当時の堆積物が 3 ヶ月後の乾季の間に浸食・除去されていたことを示唆している。

Elucidation of sedimentary environment in the Mekong Delta by radioactive Cs isotopes from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

KANAI, Y.[1], SAITO, Y.[1], TAMURA, T.[1], NGUYEN, V.L.[2], TA, T.K.O.[2] and SATO, A.[3] ([1]Geol. Surv. Japan, AIST, [2]Vietnam Acad. Sci. Tech., [3]Uni. Tokyo)

1P25 鉛-210 法による陸奥湾の堆積速度と堆積環境の解析

（金沢大学 LLRL[1]、金沢大院地球環[2]、北海道大院水産[3]）○浜高一仁[1]、長尾誠也[1]、加藤道夫[2]、工藤　勲[3]、山本政儀[1]

【はじめに】

半閉鎖系の内湾は、流域の人間活動や自然環境の変化に敏感であり、湾内のみならず河川を通じて流入する汚染物質や懸濁物質などを堆積しやすい場である。青森県陸奥湾は、1970 年代から増養殖産業(特にホタテ)が盛んに行われており、過密養殖によるホタテの大量斃死、水質悪化による赤潮の害が発生しており、ヘドロの増加も懸念されている。堆積環境の変遷の全体像を把握するためには、まず研究対象とする堆積物の堆積年代を定量化することが重要である。そこで ^{210}Pb (半減期 22.3 年) および ^{137}Cs (30.17 年)の年代測定法を利用し、堆積環境の解析を試みた。

【試料採取と実験】

海底堆積物コア試料(直径3.5 cm、深さ10～30 cm)は図1に示す東湾4点(2011年5月：St. 8, 11, 12, 21)、西湾3点(2011年8月：St.1,3 , 5)、西湾から東湾にかけて4点(2012年6月：St.16, 20, 31, 43)で採取した。現地で1 cm毎に切断、凍結乾燥後、目視で大きな貝殻、礫を除去し、3 g 程度をプラスチック容器に封入して、井戸型Ge半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリーにより ^{210}Pb、^{137}Cs、^{214}Pb、^{228}Ac、^{40}Kを定量した。

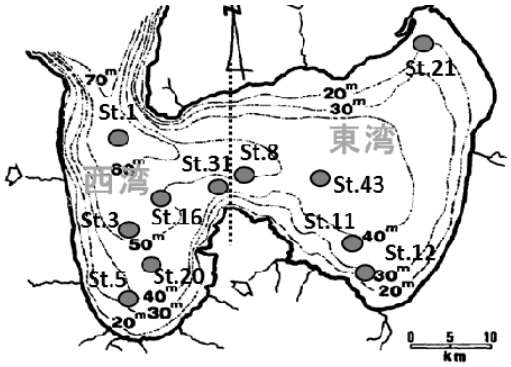


図1 試料採取地点

【結果と考察】

表 1 に各採取地点の平均堆積速度と ^{137}Cs および ^{210}Pb$_{ex}$ 蓄積量を示す。陸奥湾の東側に位置する六ヶ所村で測定 (Ohtsuka et al., 2004)された陸域土壌中での ^{210}Pb$_{ex}$ 蓄積量（15 kBq/m^2）および ^{137}Cs 蓄積量（3.4 kBq/m^2）と比較すると、今回の測定地点の ^{210}Pb$_{ex}$ 蓄積量は 50-60% 程度、^{137}Cs 蓄積量は明らかに低い（降下量の 2.4～4.1%）。堆積速度に関しては、西湾の海峡入口の St.1 表層（39 mg/cm^2/y）および東湾の St.21, St.11 表層(47-55 mg/cm^2/y)で低く、St.8 と St.12 の表層(190-200 mg/cm^2/y)で高い。ホタテ養殖（沿岸から 1～3km）が盛んな St.12 においては、1983 年頃から堆積速度が増加する傾向が認められ、ホタテの養殖技術の導入（1978 年）に伴う生産量向上と調和的である。他の地点については、現在測定中であり，内湾全域の堆積環境の解析を進めている。

表1 ^{210}Pb$_{ex}$法から見積もった堆積速度と^{210}Pb$_{ex}$、^{137}Csの蓄積量

試料採取地	深さ (cm)	深さ (g/cm^2)	平均堆積速度 (mg/cm^2/y)	蓄積量(kBq/m^2) ^{210}Pb$_{ex}$	蓄積量(kBq/m^2) ^{137}Cs
St.1	0～4	0.73～3.2	39 ± 2.5		
St.8	0～4	0.41～1.72	190 ± 37		
	4～14	1.72～7.1	52 ± 6		
St.21	2～11	1.5～7.1	47 ± 5	7.8	0.14
	15～18	10.9～12.8	76 ± 50		
St.11	2～7	1.7～4.3	55 ± 13	9.4	0.093
	9～16	6.2～10.5	56 ± 5		
St.12	0～6	0.87～6.6	200 ± 50	8.9	0.083
	6～9	6.6～10.3	61 ± 1		
	9～16	10.3～19.3	170 ± 17		

Investigation of sedimentation rate and sedimentary environment in Mutsu bay, Japan by lead-210 dating

K. Hamataka, S. Nagao, M. Kato, I. Kudo, M. Yamamoto

1P26 AgI 中の Ag の挙動解明に向けた ^{111}Cd（←^{111}Ag）プローブの抽出

（金沢大院自然[1]、京都大原子炉[2]、金沢大理工[3]）
○水内理映子[1]、大久保嘉高[2]、佐藤渉[3]

【はじめに】

α—ヨウ化銀（α-AgI）は、I^-格子間を Ag^+が高速移動する現象により高いイオン伝導性を示す超イオン伝導体である。AgI 結晶において、α 相は 146 ℃から融点の 552 ℃までの温度範囲で存在する。我々は、AgI 中の Ag サイトに放射性 ^{111}Ag 原子核を導入し、時間微分型 γ 線摂動角相関法（TDPAC 法）を用いて、Ag^+の格子間移動によるプローブ核周辺の電場勾配の変化やその時間スケールを観測し、Ag の動的挙動を調べることを目的としている。

本研究では、金属 Pd 粉末に中性子を照射し ^{110}Pd(n,γ)^{111}Pd 反応によって生成する 111Pd から成長する ^{111}Ag の最適な抽出条件を見出すこと、また、抽出した無担体の ^{111}Cd(←^{111}Ag)プローブを AgI の Ag サイトに導入することを目的として実験を行った。

【実験】

金属 Pd 粉末を京都大学原子炉実験所にて中性子照射し ^{110}Pd から ^{111}Pd を生成し、5 日間静置して ^{111}Pd の β^-壊変により ^{111}Ag を成長させた。その後、この Pd 粉末と、陰イオン交換後に Pd と Ag の分離を γ 線測定で確認するため直前に中性子照射した少量の Pd 粉末を合わせて三角フラスコに入れた。濃硝酸を加えホットプレートで約 200 ℃まで加熱しながら完全に溶解させた。この溶液を 1 mol/L の硝酸溶液に調製し、陰イオン交換樹脂（DOWEX 1×8　100~200 mesh, Cl 型）を充填したカラムに通し Pd を除去し、両イオンの分離の最適条件を見出した。Pd と Ag の分離の確認は Ge 半導体検出器での測定により行った。得られた ^{111}Ag の硝酸溶液に硝酸銀水溶液とヨウ化ナトリウム水溶液を暗室で遮光して加え、^{111}Cd(←^{111}Ag)プローブを導入した AgI を生成した。得られた AgI について室温で PAC 測定を行った。

【結果】

^{111}Cd(←^{111}Ag)プローブの抽出条件の最適化の検討から以下のような結論が得られた。陰イオン交換では硝酸溶液中で錯イオン形成している Pd を樹脂に吸着させ、Ag は樹脂を通過させることで 2 つのイオンの分離を試みたが、Pd の樹脂への吸着が完全ではなく、徐々に流出する現象が確認された。そのため、カラム通過後の分画フラクションを取り分離の確認を行い Pd と Ag が完全に分離できる最適条件を決定した。

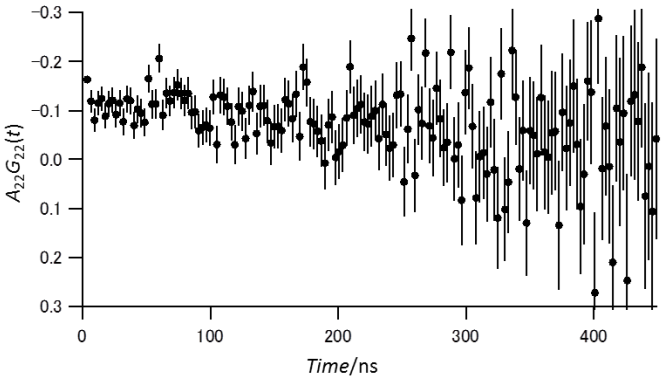


図 1　AgI の PAC スペクトル（室温）

図 1 に AgI の室温での PAC 測定結果を示す。AgI は室温では立方晶系閃亜鉛鉱型構造の γ 相であり、結晶構造が対称である。そのため電荷の偏りがなく Ag サイトに入ったプローブ核は摂動を受けずスペクトルは図 1 のように平坦な形になる。よって ^{111}Cd(←^{111}Ag)プローブを AgI の Ag サイトへの導入ができたと考えられる。今後 α 相中の ^{111}Ag の挙動を PAC 測定によって観察する予定である。

Extraction of the ^{111}Cd(←^{111}Ag) probe for a study on the behavior of Ag in AgI
MIZUUCHI, R. ,　OHKUBO, Y. ,　SATO, W.