1A01 U+p 及び Th+Li 反応による Np 同位体励起関数の作成

(金沢大院自然[1], 筑波大数理[2], 金沢大理工[3], 筑波大理工[4], 阪大院理[5], 理研仁科セ[6]) ○早川優太[1], 坂口綾[2], 村田真優[3], 松村夏紀[3], 藤沼修平[2], 中島朗久[4], 笠松良崇[5], 篠原厚[5], 小森有希子[6], 横北卓也[6], 森大輝[6] 矢納慎也[6], 羽場宏光[6], 横山明彦[3]

【緒言】原子力関連施設で生成し天然中に微量に存在する Np-237 ($t_{1/2}$ = 2.1×10^6 y)は極微量分析が可能な加速器質量分析(AMS) によって定量される。AMS で Np-237 を測定する際のトレーサーとして Np-236g ($t_{1/2}$ = 1.5×10^5 y)の利用が期待されており、Np-236g の利用によって現在使用されているトレーサーの半減期や挙動の違いといった問題点を解決することができる一方で、Np-236g は天然中に存在しないため核反応により製造する必要があり、核反応に関するデータはほとんど得られていない。本研究では Np-236g 製造を目的とし U+p 及び Th+Li の核反応を行い、Np 同位体の励起関数を作成することで Np-236g 生成最適条件について検討する。

【実験】照射ターゲットとして Al 箔に電着した $UO_2(NO_3)_2$ 又は Th 金属箔のスタックターゲットを用いて、**^{238}U(p, 3n)^{236}Np** の反応を大阪大学核物理研究センターAVF サイクロトロンで 40 MeV 陽子照射で、**^{232}Th(^{7}Li, 3n)^{236}Np** の反応を理化学研究所 AVF サイクロトロンにて 42 MeV ^{7}Li 照射で実施した。照射後のスタックターゲットを酸溶解し、TEVA レジンを用いてターゲットから Np の化学分離を行い、Ge 半導体検出器を用いたγ線分光法により Np 同位体の定量を行った。化学分離した試料を十分冷却した後、AMS 測定によりγ線定量できない Np-236g, Np-237 の定量を試みた。得られた定量値から Np 同位体の核反応断面積を算出し、励起関数を作成した。

【結果】今回の実験から Np-234, 236, 237, 238 同位体の反応断面積を得た。結果の一部として、U+p 及び Th+Li 反応の Np-236m, Np-236g の励起関数を下に示す。

準安定状態の Np-236m ($t_{1/2}$ = 22.5h)は Np-236g と競合して生成し、AMS の妨害となる ^{236}U や ^{236}Pu に壊変するため、核反応断面積だけでなく Np-236g と Np-236m の生成比が重要となる。Np-236m の断面積は U+p 反応が Th+Li 反応よりも 1 桁以上大きいが、Th+Li 反応では Np-236g の断面積が Np-236m よりも大きくなり、Np-236g/236m 比が 1 以下[1]である U+p 反応よりも Np-236g の生成において有利である。本発表では AMS で Np-237 の下限値に影響する Np-237/236g 生成比や、実際のトレーサー適用に向けた課題についても議論する。

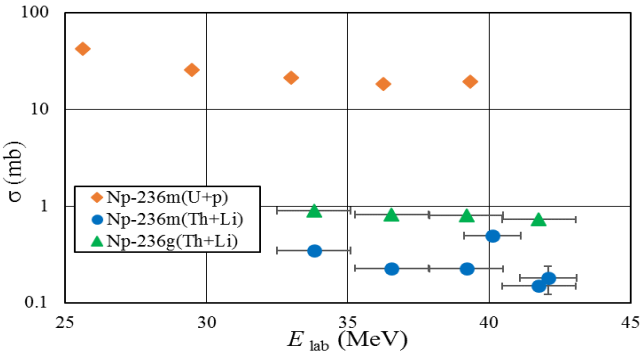

図 Np-236m, Np-236g の励起関数

【参考文献】[1] J. Aaltonen *et al*, Phys. Rev. **C 41**, 513-516 (1990).

Measurement of the excitation functions of Np isotopes in U+p and Th+Li reactions.
HAYAKAWA, Y., SAKAGUCHI, A., MURATA, M., MATSUMURA, N., FUJINUMA, S., NAKAJIMA, A., KASAMATSU, Y., SHINOHARA, A., KOMORI, Y., YOKOKITA, T., MORI, D. YANOU, S., HABA, H., YOKOYAMA, A.

1A02 ^{nat}W(d,x)反応による Re 同位体の励起関数と半減期の測定

(理研仁科セ[1]、新潟大院自然[2]、原子力機構[3])○小森有希子[1]、村上昌史[1,2,3]、羽場宏光[1]

【緒言】我々のグループでは，Re の担体無添加 RI トレーサーを製造し，107 番元素ボーリウム(Bh)の溶液化学研究に向けた基礎実験を進めている．本研究では，Re の RI トレーサー，特に半減期が長くトレーサー実験に利用しやすい ^{183}Re ($T_{1/2}$ = 70 d [1])と ^{184m}Re ($T_{1/2}$ = 169 d [1])を定量的に製造するため，^{nat}W(d,x)反応により生成する Re 同位体の反応断面積をスタックフォイル法により測定した．得られた励起関数を，先行研究や TENDL-2017 データライブラリ[2]と比較した．照射後の ^{nat}W 箔を繰り返し測定したところ, ^{181,183}Re の半減期が最新の核データベース[1]に掲載されている半減期より短いことが示唆された．そこで本研究では，^{181,182a,182b,183,184m}Re と ^{187}W について半減期の精密測定実験も行った．

【実験】実験は理研 AVF サイクロトロンを用いて行った．天然同位体組成の W 箔（純度 99.95%，厚さ 40.7 mg/cm^2）18 枚と Ti 箔（≥ 99.6%，4.7 mg/cm^2）18 枚から成るターゲットスタックに 24 MeV の重陽子ビームを 1 時間照射した．Ti 箔は，^{nat}Ti(d,x)^{48}V 反応により重陽子のビーム強度と入射エネルギーを校正するために用いた．平均のビーム電流は 0.18 μA であった．照射後，各ターゲット箔について Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーを行い，^{nat}W(d,x)反応で生成した Re, W 及び Ta 同位体の生成断面積を求めた．さらに，^{181,182a,182b}Re 及び ^{187}W の半減期を参照線源法[3]により求めた．^{nat}W 箔（純度 99.95%，厚さ 40.7 mg/cm^2）4 枚に 425 nA の重陽子ビームを 5 分間照射し, 照射後の ^{nat}W 箔を ^{88}Y ($T_{1/2}$ = 106.626 ± 0.021 d [1])参照線源とともに Ge 半導体検出器で測定した．長寿命の ^{183,184m}Re については，^{nat}W 箔（純度 99.95%，厚さ 197 mg/cm^2）1 枚を 5 μA で 125 分間照射し，474 日の冷却時間の後，Ge 半導体検出器で測定を行った．^{183}Re については 493 日，^{184m}Re については 713 日間の減衰曲線から，それぞれの半減期を求めた．

【結果と考察】^{nat}W(d,x)反応で生成する ^{181,182a,182b,183,184m,184g,186g}Re, ^{187}W, ^{182g,184}Ta の励起関数を取得できた．得られた励起関数から 24.7 MeV での ^{183}Re 及び ^{184m}Re の収率を見積ったところ，それぞれ 1.7 及び 0.052 MBq/μA·h であった．また，本研究で求めた ^{181,183}Re の半減期はそれぞれ 18.95 ± 0.05 h と 66.5 ± 0.1 d であり，現在の核データベースの値と比較して約 5%短いことが分かった．^{184m}Re の半減期は 178.5 ± 0.2 d であり，これは現在の核データベースの値より 5.6%長い．

[1] Nudat 2.7, Nat. Nucl. Data Center, Brookhaven National Laboratory. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>

[2] TENDL-2017: TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library, 2017. <https://tendl.web.psi.ch/tendl_2017/tendl2017.html>

[3] M.A.L. da Silva et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. **264**, 571 (2005).

Measurement of Excitation Functions for the ^{nat}W(d,x) Reactions and Half-lives of Rhenium Isotopes

KOMORI, Y., MURAKAMI, M., HABA, H.

1A03 Ia 型超新星爆発の中での p 核生成量

（清水建設）○木下哲一

超新星爆発の際の超高温・超高密度環境下におけるα、プロトン、中性子、光子との核反応と放射壊変により、無数の原子核が作られる。我々の研究グループでは、不安定核に着目し、p 核の ^{146}Sm の原始太陽系における存在量の推定[1)]や r 核の ^{60}Fe や ^{244}Pu を用いた太陽系近傍での元素合成活動の研究[2, 3)]を行ってきた。超新星爆発の中での元素合成シミュレーションでは、Reaclib や Bruslib として知られる Hauser-Feshbach 計算による核反応率のデータベースが利用されている。その一方で、超新星爆発の中の無数な核反応の一部の核反応において、実験値を最もよく再現する適切な準位密度や光学モデルの検討が行われている[4)]。本研究では多くの p 核を元素合成する Ia 型超新星爆発に着目し、準位密度と光学モデルの違いによる p 核の生成量への影響を計算するとともに、太陽系内の p 核の存在量の解明を目指した。

Hauser-Feshbach コード Talys1.6 において様々な核反応断面積実験値を最もよく再現するパラメータ（モデル 1）、Talys1.6 の標準パラメータ（モデル 2）、Talys1.9 の標準パラメータ（モデル 3）を用いて、光子、中性子、プロトン、αの 4 粒子と Li から Cm までの約 3100 核種との 1.0–3.6 GK の温度下の核反応率を得た。1.4 $M_\odot$（$M_\odot$：太陽質量）を下回る白色矮星へ近傍の天体の外層が流入し、炭素・酸素の核融合反応をきっかけに Ia 型超新星爆発が起こる。この爆発モデル（W7 モデル[5)]）より得られる温度変化と密度変化の中での約 3100 核種について、3 種類の原子核モデルによる核反応率を用いて存在量の変化をネットワーク計算した。初期の同位体組成として、原子番号の C から Fe までは太陽系内組成、Co から Po までは ^{58}Fe を出発物質に 1×10^{8} n/cm^3 の中性子密度下で s 過程が進み Pb/Fe 比が太陽系内組成となる s 過程の理論値を用いた。超新星爆発による高温環境下におけるプランクの黒体放射由来の光核反応、光核反応により生成した中性子、プロトン、α粒子との融合反応と放射壊変を考慮し、核図表上での核種存在量の経時変化を見ると共に、超新星爆発から 4×10^{7} 秒後までの p 核生成量を計算した。

3 種類の原子核モデル（上記モデル 1–3）を用いて計算された Ia 型超新星爆発の中での p 核の生成量を図 1 に示した。また図 1 には ^{74}Se≡1.7×10^{-8} $M_\odot$としたときの太陽系内存在量の相対値[6)]も示した。今回用いた 3 種類の原子核モデルにおいて、α放出反応の反応率は光学モデルにより 1–5 桁の差があるが、他の核反応反応率の原子核モデルによる差はおよそ 2 倍以内であった。図 1 に示すように、原子核モデルの違いによる超新星爆発の中での生成量への影響は核種により差はあるが、同様な生成量のパターンが得られた。太陽系内の p 核存在量を説明するためには、様々な Pb/Fe 比を持つ天体の超新星爆発を考慮しなければならない。一方、不安定核に着目すると、原始太陽系の ^{146}Sm/^{144}Sm 比は 0.0094 であるのに対し、Ia 型超新星爆発で生成した ^{146}Sm/^{144}Sm 比は 0.23 と計算され、原始太陽系の比とは 24 倍の差があった。また、Ia 型超新星爆発での ^{98}Tc/^{96}Ru 比は 0.0043 であるが、原始太陽系では $<2\times10^{-5}$ の上限値しか得られていない状況である[7)]。原始太陽系における ^{98}Tc/^{96}Ru 比と ^{146}Sm/^{144}Sm 比を説明するためには、宇宙が誕生してから太陽系が誕生するまでの間の安定核の増加を考慮しなければならない。

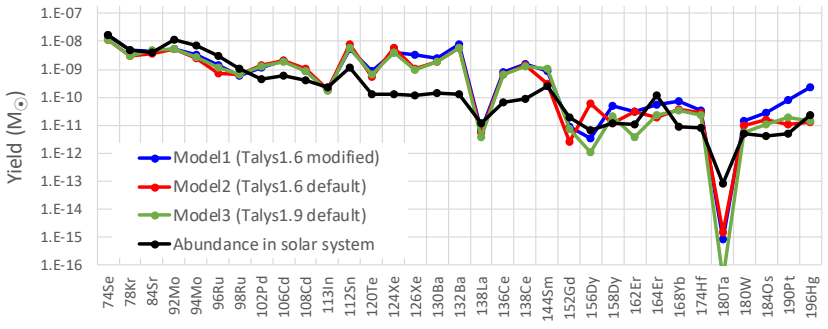

図 1　モデルの違いによる p 核生成量と太陽系内存在量との比較

参考文献 [1)]Kinoshita et al., Science 2012. [2)]Wallner, Kinoshita et al., Nature 2016. [3)]Wallner, Kinoshita et al. submitted. [4)]Kinoshita et al., Phys. Rev. C 2016. [5)]Nomoto et al., Astrophys. J. 1984. [6)]Anders, Ebihara, Geochim Cosmochim Acta 1982. [7)]Becker, walker, Chem. Geol. 2003.

Production of p-nuclei in the Ia supernova

KINOSHITA, N.

1A04 光核反応を用いたキャリアフリーアルカリ金属トレーサーの同時製造・分離法の検討

([1]東北大サイクロ,[2]東北大電子光セ)○池田隼人[1,2],菊永英寿[2],渡部浩司[1]

【緒言】植物研究の分野においてアルカリ金属の挙動に興味が持たれており，その RI トレーサーが植物内の元素の動きを知るための有効なツールとして需要が高まっている。日本国内においてルビジウム(Rb)やセシウム(Cs)の RI トレーサーは購入することが可能だが，植物にとって最も重要な元素であるカリウム(K)の RI トレーサーは K-40 を除けば半減期が 24 時間以内の短寿命核種しか存在しないので購入ができない。そのため，K トレーサーを利用した実験を行う場合は，その都度加速器を用いて製造する必要がある。K トレーサー製造の際に他のアルカリ金属トレーサーも同時に製造・化学分離できれば，時間的・経済的に効率の良い実験が可能となる。我々はこれまでに K，Rb，Cs のアルカリ金属について制動放射線による製造・化学分離の検討を行い，キャリアフリーRI トレーサーの製造量の見積もりおよびその分離手法を確立した。本発表では，K，Rb，Cs の 3 元素混合キャリアフリーRI トレーサーの同時製造および同時分離の条件を決定し，実証を行ったので報告する。

【実験】RI 製造は東北大学電子光理学研究センターの電子ライナックを用いて行った。50 MeV の電子ビームを 1 mm のタンタル板 3 枚に照射して発生する制動放射線を核反応に用いた。石英管内に CaO，SrO および BaO のペレットを一緒に入れ，同時に制動放射線照射を行った。照射後のターゲットを石英管より取り出して水を加えて懸濁液とした。さらに，シュウ酸を加えて加熱しながらシュウ酸塩沈殿を生成した。冷却した後に上澄みを分取し，陽イオン交換カラム(2 mL)へチャージした。陽イオン交換カラムを 20 mL の 0.01 M HCl で洗浄した後に 0.5 mL ずつ濃塩酸(11.5 M)を流して，溶離曲線を作成した。

【結果】シュウ酸による沈殿法では，12%程度の K-43，15%程度の Rb-86，9%程度の Cs-136 がシュウ酸塩とともに共沈した。遠心分離後の上澄み液の陽イオン交換カラムへのチャージおよび 0.01 M HCl でのカラム洗浄においては，アルカリ金属トレーサーの溶出は認められなかった。陽イオン交換カラムにチャージされた K，Rb，Cs に対する溶離曲線を図 1 に示した。4.0 mL 程度まででアルカリ金属トレーサーのほとんどが溶出されることがわかった。また，4.5-5.0 mL 程度からはターゲット元素の RI が観測されたとともに，蒸発乾固すると白色の残渣が発生した。このことから，ターゲット元素が徐々に溶出していることがわかった。本研究の結果から，K，Rb，Cs の 3 元素混合キャリアフリーRI トレーサーは，各元素の RI トレーサーを別個に製造・化学分離することなく，同時に製造・分離して得られることが実証された。

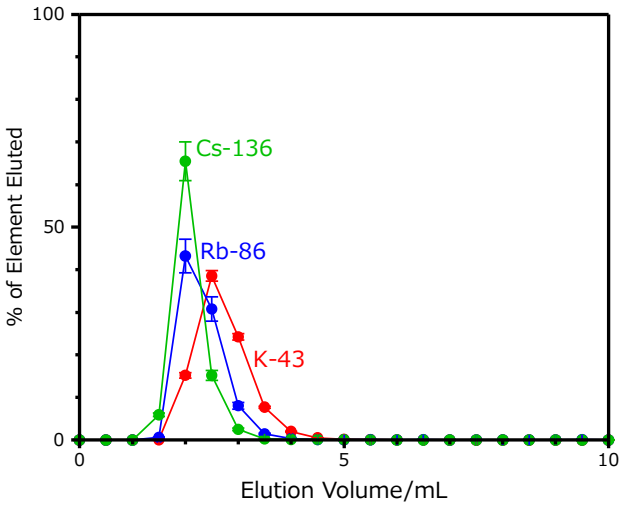

図 1 濃塩酸(11.5 M)によるアルカリ金属の溶離曲線

Simultaneous Production and Separation of Carrier-free Alkali Metal Tracer Using Photonuclear Reaction

IKEDA, H., KIKUNAGA, H., WATABE, H.

1A05

Production of At-211 at RIKEN

(Nishina Center for Accelerator-Based Science, RIKEN)○Yang Wang, Nozomi Sato, Yukiko Komori, Takuya Yokokita, Daiki Mori, Sachiko Usuda, Hiromitsu Haba

【Introduction】 ^{211}At is considered as one of the most promising radionuclides for targeted alpha radiotherapy, due to its suitable half-life of $T_{1/2}$ = 7.214 h and high α-particle emission probability of 100% [1]. This short-lived nuclide can be produced from natural bismuth targets via the ^{209}Bi(α,2n)^{211}At reaction, and only a few cyclotrons in Japan have the beam characteristics required for the ^{211}At production. We report here our latest production technology of dry ^{211}At products for distributing them to researchers in Japan.

【Experiment】 The alpha beam with a typical energy of 29 MeV was extracted from the RIKEN AVF cyclotron. After The passing through a Be window (18.08 μm) and He cooling gas (65 mm, 1.06 bar), the beam energy on the target was about 28 MeV. The metallic Bi target (20 mg/cm^2) was irradiated by the beam at an angle of 15 degrees [2]. The beam intensity (2-16 pμA) and the irradiation times (2 to 8 hours) varied to meet the users' requirements. After the irradiation, ^{211}At was separated from the Bi target by a dry distillation technique [1]. The irradiated Bi target was placed on a copper tray in a quartz tube, and heated up to 850 ℃ in 10 min, and then kept for another 15 min, and finally cooled down naturally. ^{211}At sublimated from the target was transported from the quartz tube through a quartz capillary (i.d.= 2 mm, length = 13 cm) to a PFA cold trap (i.d.= 1 mm, length = 100 cm) by oxygen gas (10 mL/min). The PFA cold trap was cooled to -96 ℃ to collect the gaseous ^{211}At. After the distillation, the capillary and the PFA trap tube were washed with chloroform (300-400 μL). The samples collected in V-shaped glass vials were then dried up by N_2 gas (100 mL/min) at a room temperature.

【Result and discussion】 Produced ^{211}At were measured using Ge detectors, and the thick target yield agreed well with the literature data [3]. Under our current experimental condition, 1 GBq of ^{211}At can be produced in 1.5-h irradiation by a 27.8 MeV alpha beam (on target) with the 16-pμA intensity. The typical chemical yield was about 80%. We are distributing ^{211}At to more than 10 research groups in Japan. More details about the radioactive purity measured by gamma-ray and alpha-ray detectors, and the chemical purity measured by ICP-MS, will be presented in the conference.

【References】

[1] S. Yano et al., *RIKEN Accel. Prog. Rep.* **50**, 263 (2017).

[2] N. Sato et al., *RIKEN Accel. Prog. Rep.* **50**, 262 (2017).

[3] A. Hermanne et al., *Applied Radiation and Isotopes* **63**, 1 (2005).

Production of At-211 at RIKEN
WANG, Y., SATO, N,. KOMORI, Y.,YOKOKITA, T., MORI, D., Usuda, S., Y. HABA, H.

1A06 気相 At 化合物の吸着温度の精確測定に向けた熱クロマトグラフ法の開発

（阪大院理[1]、阪大理[2]、阪大放射線機構[3]、阪大院医[4]、阪大放射線機構 RI セ[5]）○市村聡一朗[1]、尾幡穂乃香[1]、中川創太[2]、寺本高啓[3]、大江一弘[4]、永田光知郎[5]、豊嶋厚史[1,3]、吉村崇[5]、篠原厚[1,3]

【緒言】近年、α線放出核種である ^{211}At を用いた核医学治療開発が注目されている。その一方、At の化学的性質には不明な点が多く、その基礎科学的研究の重要性は増している。我々は将来的に気相 At 化合物を分光学的に同定する事を計画しており、本研究では、その前段階として気相 At 化合物の生成、分離条件を決定し、さらにそれらを推定するため、熱クロマトグラフ装置開発やそれを用いた分析を進めている。これまで開発を進めた装置[1]では、熱クロマトグラフカラムの温度安定性や At の放射線測定の再現性に不確実な点があった。そこで本研究においてはそれらの問題点を改善するために、熱クロマトグラフ装置の自動化等の開発を行ったので報告する。

【装置開発】開発した熱クロマトグラフ装置の概略図を Fig.1 に示す。この装置では、まず管状炉で Bi 標的を熱して At 化合物を揮発させ、高温から低温へと温度勾配を持つ石英製の熱クロマトグラフカラムに搬送ガスにより導入する。At 化合物はカラム壁面に吸脱着しながら低温側に移動し、ある温度で移動しなくなる。それぞれの At 化合物が持つ吸着エンタルピーにより、この吸着（移動停止）温度は異なるため、At を化合物ごとに分離できる。本開発装置では、温度の安定性を上げるため、カラムに沿って設置した 10 個のヒーターを独立に制御する構造とした。また、At の吸着位置を精度よく決定できるよう、幅 2 ㎜のコリメーターを装着した CdZnTe 検出器をカラムに沿って自動制御により移動させ、2 ㎜おきにγ線測定を行えるようにした。

【実験】^{209}Bi(α,2n)^{211}At 反応により ^{211}At を生成した。照射した Bi 標的を装置内にセットし、温度勾配が安定した後、酸素とヘリウムの混合ガス(1:3)を流速 20 mL/min で流しながら標的を 850℃まで加熱した。その後、管状炉の温度を 850℃に保ちながら 30 分間ガスを流した。石英カラムの温度勾配は 100℃から-80℃とした。温度勾配を維持したままガスを止め、CdZnTe 検出器を用いてγ線測定を行った。検出した ^{211}At 由来の X 線と温度勾配の比較から、At 化合物の吸着温度を決定した。

【結果と考察】実験の結果、100℃から-80℃に渡って、吸着温度が異なる 3 つのピークが観測された。これまでの実験[1]においても同様に 3 つのピークが観測されており、本研究でも再現した。しかし、吸着温度は、温度の測定誤差を超えて大きく異なっていた。その理由として、使用する石英カラムの表面状態を実験ごとに再現できていない、異なる化学形のアスタチンが実験ごとに生成されている、などが考えられる。今後、その原因についてさらに実験的に検討する。

【参考文献】[1] 市村ら、第 62 回放射化学会 P10 (2018).

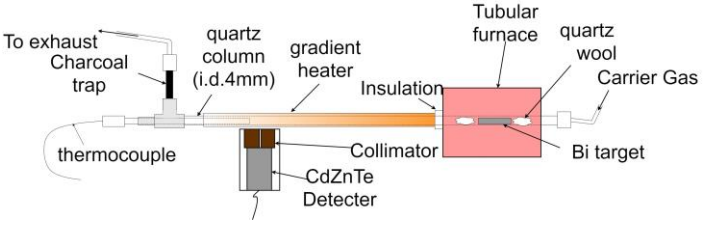

Fig.1. Schematic of developed apparatus.

Development of thermochromatography apparatus for accurate measurement of adsorption temperature of At compound in gas phase

ICHIMURA, S., OBATA, H., NAKAGAWA, S., TERAMOTO, T., OOE, K., NAGATA, K., TOYOSHIMA, A., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A.

1A07 Zr，Hf，Th の硝酸錯体形成に関する実験および理論研究 ～Rf の化学に向けて～

（[1]阪大院理，[2]阪大院基礎工，[3]理研仁科セ，[4]分子研）
○渡邉瑛介[1]，速水翔[1]，東内克馬[1]，二宮秀美[1]，笠松良崇[1]，
北河康隆[2]，重河優大[3]，横北卓也[3]，中野雅由[2,4]，篠原厚[1]

【緒言】104 番元素ラザホージウム(Rf)は寿命が比較的長く、溶液化学研究が可能な超重元素のひとつである。我々は、硝酸溶液中における Rf と硝酸イオンとの逐次錯形成反応に興味をもっている。それは、Rf と同族の Zr や Hf は硝酸溶液中でカチオン錯体や中性錯体しか形成しないが、擬同族元素である Th は配位数が 12 の$[Th(NO_3)_6]^{2-}$を形成すると考えられており[1]、これらの中間のイオン半径をもつ Rf の硝酸イオンとの錯形成挙動を調べることで、Rf の最大配位数に関する知見が得られると考えているからである。そこで、本研究グループが過去に開発し、Rf の塩化物錯体研究への適用[2]が成功している自動バッチ型固液抽出装置(AMBER)を用いて、イオン交換平衡下における Rf の硝酸系陰イオン交換の分配係数を取得したいと考えている。我々はこれまでに、四級アルキルアンモニウム塩の Adogen 464 を樹脂に担持させたもの陰イオン交換樹脂として用いた際に、迅速にイオン交換平衡へ到達することをバッチ法により見出している。本研究では、Adogen 464 樹脂を用いて、AMBER による装置実験（オフライン実験）を行った。また、硝酸溶液中に存在する Zr や Th の化学種を推定し電子状態の視点から理解するために、密度汎関数法(DFT)に基づく量子化学計算を行った。

【量子化学計算】Zr^{4+}と Th^{4+}に水分子や硝酸イオンが数個配位した種々の錯体を計算対象とした。汎関数に CAM-B3LYP、基底関数として金属イオンに Stuttgart-RSC(ECP)、配位子に 6-31G*を用いて、Gaussian09 により構造最適化計算を行った。

【実験】AMBER の装置実験には ^{88}Zr, ^{175}Hf, ^{234}Th の硝酸溶液と Adogen 464 樹脂を用いた。樹脂に吸着した金属元素を溶離させる逆抽出に用いる溶液には塩酸等を使用し、最も効率よく溶離できるよう最適化した。その他、連続実験により樹脂の使いまわし回数等を調べた。

【結果と考察】図 1 に示す$[Th(NO_3)_6]^{2-}$の HOMO には、Th の 5f 軌道の寄与がわずかに存在した。このような Th の 5f 軌道と配位子との相互作用は、f 軌道が結合に関与するアクチノイド性を示唆しているものと考えられる。また Zr や Th の硝酸−水和−錯体のギブズエネルギー変化をカチオン・中性錯体の範囲で調べたところ、Zr は硝酸イオンが二つ配位した状態が安定であることが示唆された。AMBER を用いたオフライン実験の結果から決定した Rf の加速器オンライン実験条件については、当日の発表にて報告する。

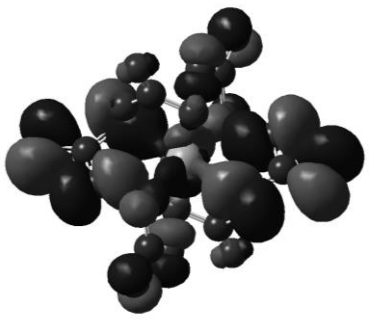

図 1. $[Th(NO_3)_6]^{2-}$の HOMO

【参考文献】[1] M. Johansson et al, *Radiochim. Acta*, **91**, 351-355 (2003)
[2]T. Yokokita et al., *Dalton. Trans*. **45**, 18827–18831 (2016).

Experimental and computational study of nitrato complex of Zr, Hf, and Th - toward the chemical study on Rf
WATANABE, E., HAYAMI, S., TONAI, K., NINOMIYA, H., KASAMATSU, Y., KITAGAWA, Y,, SHIGEKAWA, Y., YOKOKITA, T., NAKANO, M., SHINOHARA, A.

1A08 硫酸系における Rf の陰イオン交換

(理研仁科セ[1]、阪大院理[2])○横北卓也[1]、笠松良崇[2]、渡邉瑛介[2]、小森有希子[1]、二宮秀美[2]、王洋[1]、森大輝[1]、ゴーシュコースタブ[1]、篠原厚[2]、羽場宏光[1]

【緒言】 超重元素の錯形成定数や化学種の議論を行うためには、化学平衡到達下の超重元素の実験データが必要である。これを達成するために、分配反応の時間依存性を調べ、超重元素に対して化学平衡到達を観測することが可能なバッチ型固液抽出装置 (AMBER) が開発された[1]。我々の研究グループでは、Rf の硫酸錯体の研究を進めるため、同族元素の Zr と Hf、擬似同族元素の Th を用いた基礎研究を進め、Rf の実験条件の選定及び比較データを取得してきた[2,3]。今回、理化学研究所 AVF サイクロトロンを用いて ^{261}Rf を製造し、硫酸系における Rf の陰イオン交換を行った。

【実験】 ^{261}Rf 及び ^{169}Hf は理化学研究所 AVF サイクロトロンを利用し、^{248}Cm(^{18}O,5*n*)^{261}Rf 及び ^{nat}Gd(^{18}O,*xn*)^{169}Hf 反応にて製造した。これらの核反応生成物は、He/KCl ガスジェット搬送システムにて化学実験室に迅速に搬送し、AMBER の溶液化部に捕集した。捕集した核反応生成物は 0.11 M H_2SO_4 に溶解し、陰イオン交換樹脂を含む化学反応容器に送液した。10、30、または 90 秒間振とうした後、空圧により化学反応容器から溶液のみを溶出させ、その溶液を Ta 皿に捕集した。その後、自動 α 線計測装置を用いて、α 線測定試料を作製し、α 線測定を行った。測定後の試料は Ge 検出器を用いて、γ 線測定を行った。樹脂に残った核反応生成物は 1.1 M H_2SO_4 にて 5 回洗浄することで除去した。また、溶液の標準放射能を調べるため、樹脂を使用せずに同様の操作を行う比較実験も行った。

【結果・考察】 今回、上記の実験を 462 回行い、^{261}Rf 及び ^{257}No の α イベントを 96 カウント観測した。Rf の K_d 値の振とう時間依存性を調べたところ、K_d 値は振とう時間によらず、低い値で一定となった。また、その K_d 値は同族元素の Zr と Hf の K_d 値よりも明らかに低く、擬似同族元素 Th の K_d 値と同程度の値であった。このことから、Rf は、0.1 M H_2SO_4 では、陰イオン錯体を形成しない、または、陰イオン錯体を形成しているけれども、カウンターイオンの HSO_4^- が樹脂の吸着サイトに優先的に吸着していることが考えられる。今後、HSO_4^- の影響の小さい条件で、Rf の K_d 値を取得することにより、Rf が今回の条件 ($[SO_4^{2-}] \approx 0.01$ M) で、陰イオン錯体を形成するか否かを調べる予定である。

【参考文献】 (1) Y. Kasamatsu, J. Nucl. Radiochem. Sci. **18**, 24 (2018).
(2) 横北卓也 他, 日本化学会 第 99 春季年会, 2D4-45 (2019).
(3) 横北卓也 他, 2017 日本放射化学年会・第 61 回放射化学討論会, P44 (2017).
(4) H. Haba et al., RIKEN Accel. Prog. Rep. **45**, 204, (2012).

Anion exchange of Rf in H_2SO_4

YOKOKITA, T., KASAMATSU, Y., WATANABE, E., KOMORI, Y., NINOMIYA, H., WANG, Y., MORI, D., GHOSH, K., SHINOHARA, A., HABA, H.

1A09 水酸化サマリウム共沈法を用いた102番元素ノーベリウムの沈殿実験

(阪大院理[1]、理研仁科セ[2])○速水 翔[1]、二宮秀美[1]、渡邉瑛介[1]、重河優大[2]、永瀬将浩[1]、笠松良崇[1]、近藤成美[1]、羽場宏光[2]、横北卓也[2]、小森有希子[2]、森大輝[2]、王 洋[2]、ゴーシュ コースタブ[2]、佐藤 望[2]、篠原 厚[1]

【緒言】原子番号の大きな重元素は、相対論効果の影響による電子軌道の収縮、拡大が起こることによって、同族元素とは異なる性質を持つ可能性が示唆されており、非常に興味深い。しかし、特に原子番号101番以降の重元素は短半減期かつ低生成率であるため、化学実験を行うのが困難であり、詳細な化学的性質はいまだ不明の部分が多い。ノーベリウム(No)は原子番号102番のアクチノイド元素である。ランタノイドやアメリシウム(Am)以降の重アクチノイドは水溶液中での安定価数がすべて+3価であるのに対し、Noのみが+2価であり、2族元素に類似しているという性質が報告されている。しかし、これまでは塩化物イオンとNoの反応しか調べられておらず、その化学的性質を知るためには他の系での実験が必要である。そこで、本研究グループで確立し、過去にラザホージウム(Rf)への適用例もある水酸化サマリウム共沈法をNoに適用してNoの共沈挙動を調べ、2族元素の水酸化物沈殿の共沈挙動と比較を行った。

【実験】理化学研究所のAVFサイクロトロンを用いて、^{248}Cm(^{12}C, 5n) ^{255}No反応により、Noを合成した。合成した^{255}Noをガスジェット気流によって化学実験室に運び、ナフロンシート上に捕集した。捕集した^{255}Noを0.01 M塩酸溶液とサマリウムを含む硝酸溶液で溶かしたのち、塩基性溶液(希アンモニア水、濃アンモニア水、0.1 M水酸化ナトリウム、1.0 M水酸化ナトリウム)を加えて5分間攪拌した。本研究グループで開発した半自動吸引ろ過装置を用いて溶液から沈殿を捕集した。得られた試料を理化学研究所の自動連続α線測定装置を用いてα線測定を行い(図1)、沈殿収率を求めた。

【結果・考察】2族元素と今回得られたNoの共沈収率の比較を行った。希アンモニア水ではNoの収率が約100%であった。一方、2族元素では20~50%程度であり、Noのみ高い共沈収率を示すことが分かった。この結果については、重元素では外殻軌道の広がりによって共有結合性が増加すると予測されており、その影響が表れたと考えられる。0.1 M、1.0 Mにおいては、おおむねCaに近い沈殿挙動をとることが分かった。イオン半径の予測では、Noは2族元素中でCaに近い値をとることから、水酸化物イオン濃度が高い条件では、塩化物イオンで行われた先行研究と同様にCaと似た挙動を示すということが分かった。

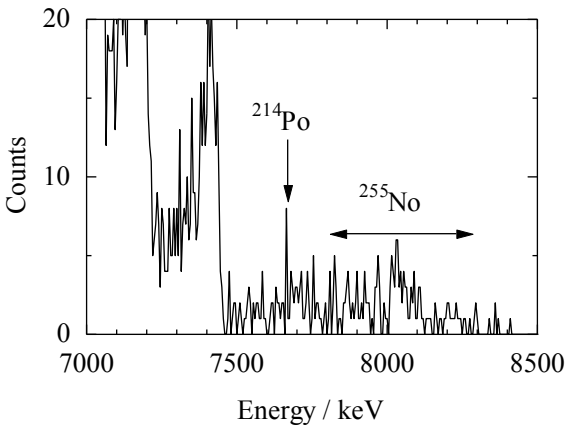

図1：Noのエネルギー領域のα線スペクトル

[1] R. J. Silva, et al, J. Inorg. Chem. 13, 9, 2233-2237 (1974).

Coprecipitation experiments of element 102, No, with Sm hydroxide with NH_3 and NaOH aqueous solutions.

HAYAMI, S., NINOMIYA, H., WATANABE, E., SHIGEKAWA, Y., NAGASE, M., KASAMATSU Y., KONDO, N., HABA, H., YOKOKITA, T., KOMORI, Y., MORI, D., WANG, Y., GHOSH, K., SATO, N., SHINOHARA, A.

1A10 酸化物・フッ化物・塩化物系における U-235m の半減期および内部転換電子エネルギースペクトルの測定

(理研仁科セ[1]、阪大院理[2]、電通大院情報理工[3]、JAEA[4])
○重河優大[1]、笠松良崇[2]、山北佳宏[3]、金子政志[4]、渡邉雅之[4]、渡邉瑛介[2]、安田勇輝[2]、近藤成美[2]、篠原厚[2]

【緒言】 ^{235m}U は原子核の励起エネルギーが 76.7 eV と極端に低いため，内部転換によって基底状態に脱励起する際に，原子核が外殻の軌道殻電子のみと相互作用する。従って，外殻電子の状態（化学状態）に応じて，内部転換確率（壊変定数）がわずかに変化する。実際に最大 11%の半減期変化が測定されたが[1]，変化の原因についての理解は進んでいなかった。我々は，半減期に加えて内部転換電子のエネルギースペクトルを測定し，それを複数の化学状態について比較することで，半減期変化の原因の解明を目指してきた．これまで酸化物系・フッ化物系の ^{235m}U について半減期とスペクトルの測定に成功したが[3]，その他の化学状態については電子計数率の低下が大きく，精度の良い測定が困難であった．そこで我々は，高い S/N を実現する阻止電場—磁気ボトル型電子分光装置を新たに開発した．今回，この装置を用いることで，塩化物系の ^{235m}U について半減期とスペクトルを精度よく取得し，さらに，酸化物系・フッ化物系の ^{235m}U について以前よりも高い S/N とエネルギー分解能で測定できたので報告する．

【実験】 今回，3 種類の化学状態の ^{235m}U 試料（酸化物・フッ化物・塩化物）について，それぞれ複数回ずつ半減期とエネルギースペクトルを測定した．酸化物試料は，反跳核捕集装置を用いて ^{239}Pu 線源から放出される ^{235m}U を銅箔の表面に捕集することにより作製した．フッ化物および塩化物試料は，銅箔表面に捕集された ^{235m}U に HF ガスおよび HCl ガスを 5 分間反応させることにより作製した．作製された ^{235m}U 試料を磁気ボトル型電子分光装置に導入し，強磁場を 80 mT 程度，弱磁場を 1.16 mT，捕集電圧を 500 V に設定して，半減期とスペクトルを測定した．

【結果】 酸化物・フッ化物・塩化物試料の半減期は，それぞれ，25.83 ± 0.04 min ，25.25 ± 0.05 min ，26.23 ± 0.07 min と測定され，塩化物試料の半減期を初めて取得し半減期変化を観測することに成功した．一方，図 1 に示すように，塩化物試料のエネルギースペクトルを精度よく測定することに初めて成功した．それぞれの試料のスペクトルを X 線光電子分光スペクトルや理論計算と比較することで，それぞれの試料の分子軌道図を推定した．半減期と分子軌道図の比較により，^{235m}U の半減期変化の主要な起源が 6p 電子の変化であることを明らかにできた．

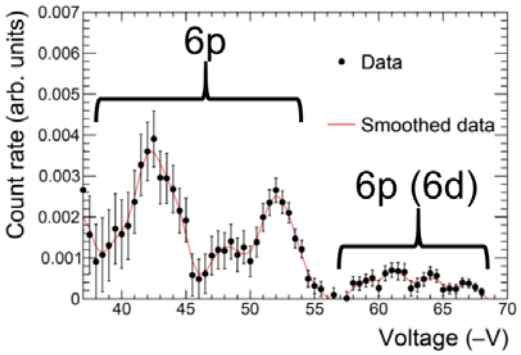

図 1. HCl ガスと反応した ^{235m}U の内部転換電子エネルギースペクトル

[1] M. N. Mevergnies and P. D. Marmol, Phys. Lett. **49B**, 428 (1974). [2] Y. Shigekawa *et al*, Phys. Rev. C. **2018**, *98*, 014306.

Measurement of half-lives and internal-conversion electron energy spectra for U-235m oxide, fluoride, and chloride

SHIGEKAWA, Y., KASAMATSU, Y., YAMAKITA, Y., KANEKO, Y., WATANABE, M., WATANABE, E., YASUDA, Y., KONDO, N., SHINOHARA, A.

1A11 Ac-229 のβ線—電子同時計数測定による Th-229m の内部転換電子の観測

(理研仁科セ[1]、阪大院理[2])
○重河優大[1]、笠松良崇[2]、渡邉瑛介[2]、安田勇輝[2]、近藤成美[2]、二宮秀美[2]、速水翔[2]、羽場宏光[1]、篠原厚[2]

【緒言】^{229m}Th は価電子の結合エネルギー程度の励起エネルギー(~8 eV)を持つため，化学状態に応じた核壊変過程（内部転換，γ線放出，電子架橋）の変化や半減期の劇的な変化が観測されると期待されている．最近，^{229m}Th 由来の内部転換電子が初めて観測され[1], Ni 合金表面における半減期が 7 μs 程度であることが分かった[2]．しかし，その他の化学状態における半減期は報告されていない．我々は，将来的に様々な化学状態の ^{229m}Th について半減期を測定するために，^{229}Ac から ^{229m}Th に壊変する際に放出される β^-線をトリガーとして，7 μs 程度遅れて発生する ^{229m}Th の内部転換電子の観測を試みた．β^-壊変の際に ^{229m}Th が持ち出す反跳エネルギーは 2.8 eV 以下と小さいため，壊変後の ^{229m}Th は ^{229}Ac と同じ化学的環境に留まる．つまり，^{229}Ac の化学状態を制御することで寿命の短い ^{229m}Th の化学状態を制御できる．^{229}Ac は加速器か原子炉でしか製造できず，半減期が 62.7 分と短いが，今回，加速器により製造された ^{229}Ac を短時間で高い純度で分離し，^{229m}Th の内部転換電子を観測することに成功した．

【実験】 大阪大学核物理研究センターにおいて ^{232}Th (6.5 mg/cm^2)に 20 MeV のプロトンを 2 時間照射し，^{232}Th(p, α)^{229}Ac 反応によって ^{229}Ac を製造した．照射後の試料を 1% クエン酸（pH 2）に溶かして Muromac® 50WX8 に着点し，樹脂を洗い，6 M HNO_3 で Ac, La, Sr 等を溶離させた．溶液を乾固し，0.05 M HCl に溶かして Eichrom® Ln resin に着点し，樹脂を洗い，0.1 M HCl を 0.5 mL ずつ流した．8–10 番目のフラクションを用いて，電着法によって ^{229}Ac 線源を作製した．測定は図 1 のスキームで行った．β^-線と電子の検出時間情報を測定し，β^-線検出時を 0 s とした電子の時間スペクトルを得た．

【結果】^{229}Ac 線源のγ線スペクトルと β^-線の減衰曲線によると，^{229}Ac 線源には ^{229}Ac, ^{228}Ac, ^{226}Ac のみが含まれており，^{142}La 等の不純物を十分に分離できたことが分かった．同時計数測定開始から 300–800 分（^{229}Ac はほぼ減衰，^{228}Ac が主要に存在）の時間スペクトルに着目すると，寿命の長い電子成分は観測されなかった．一方，0–120 分（^{229}Ac と ^{228}Ac が主要に存在）の時間スペクトルでは，半減期 10.2 ± 7.8 μs の減衰成分が観測された．従って，この減衰成分は ^{229}Ac の壊変由来，すなわち ^{229m}Th の内部転換電子に対応しているということが分かった．今後は，測定の S/N を高めた上で，複数の化学状態について測定することで，^{229m}Th の劇的な半減期変化が観測されると期待される．

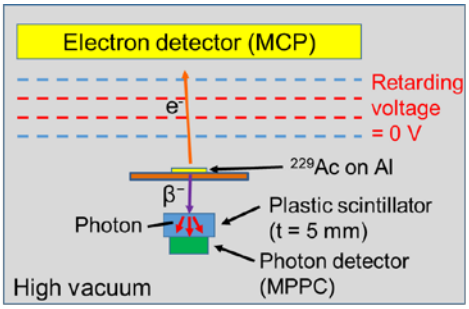

図 1. Ac-229 の β^-線—電子同時計数の測定スキーム

[1] L. v. d. Wense *et al.*, Nature **533**, 47 (2016). [2] B. Seiferle *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 042501 (2017).

Observation of the internal conversion electrons emitted from Th-229m through coincidence measurement between beta particles and electrons from Ac-229
SHIGEKAWA, Y., KASAMATSU, Y., WATANABE, E., YASUDA, Y., KONDO, N., HAYAMI, S., NINOMIYA, H., HABA, H., SHINOHARA, A..

1A12 LET の異なる放射線によるゲノムサイズ DNA 二重鎖切断の定量的評価

(静大院総合科学技術[1]、静大理[2]、富山大水素研[3]、同志社大生命医[4])
○和田 拓郎[1]、仲田 萌子[1]、小池 彩華[1]、山﨑 翔太[1]、趙 明忠[1]、
孫 飛[2]、下谷内 宏統[3]、波多野 雄治[3]、剣持 貴弘[4]、大矢 恭久[1]

【緒言】

福島第一原子力発電所事故以来、放射性汚染水による生体への放射線影響が問題視されており、とりわけ汚染水に多く含まれるトリチウムの内部被ばくによる DNA 損傷が注目されている。また放射線による DNA 二重鎖切断(DSB)の程度は、LET の違いによって異なることが想定されるため、本研究ではゲノムサイズの長鎖 DNA を用いて様々な LET を持つ放射線を照射した後、蛍光顕微鏡による DNA 一分子観察法によって画像解析することで、DNA 二重鎖切断効率を定量的に評価した。

【実験】

T4 バクテリオファージ DNA(T4 GT7: 166 kbp)を各放射性物質(^{3}H-β 線, ^{45}Ca-β 線)と混合、あるいは各放射線(^{60}Co-γ 線, ^{241}Am-α 線)に曝した状態で、低温環境下で数日間放置した。その後トリス塩酸緩衝液, 3-メルカプト-1,2-プロパンジオール, YOYO-1 を DNA 溶液と混合し、ポリ-L-リシン溶液で成膜したガラス皿表面に DNA を貼り付けた。その後、蛍光顕微鏡を用いて DNA の長さを測定することで、各試料における DNA 二重鎖切断回数を定量的に評価した。

【結果】

下図は、各試料において測定した DNA の長さを元に DNA 二重鎖切断回数を計算し、比較したグラフである。グラフの横軸は、滅菌水及び $^{45}CaCl_2$ 水溶液と混ぜた試料については下軸、^{60}Co (γ 線)に曝した試料については上軸に対応しており、それぞれ同じ吸収線量を表している。結果から、^{60}Co (γ 線)より高 LET の ^{45}Ca (β 線)の方が DNA 二重鎖切断速度が大きいことがわかった。これらの放射線による影響では、ラジカル発生による間接効果が主であることが考えられる。^{45}Ca の二重鎖切断回数が多くなった原因として、高 LET β 線により発生した高密度ラジカルによる DNA 切断が挙げられる。また ^{60}Co の切断回数が少なくなった原因は、低 LET 以外に高吸収線量率によるラジカルの再結合によるものであることが考えられる。通常、ラジカルが高密度に発生する方が効率的に DSB が発生することが考えられるが、今回の場合 ^{45}Ca の吸収線量率(2.1×10^{-2} Gy/h)より ^{60}Co(50 Gy/h)の方が遥かに大きく、ラジカル再結合の寄与が大きくなったことが考えられる。今後の展望として、その他の核種(^{3}H-β 線, ^{241}Am-α 線)についても実験を進める。

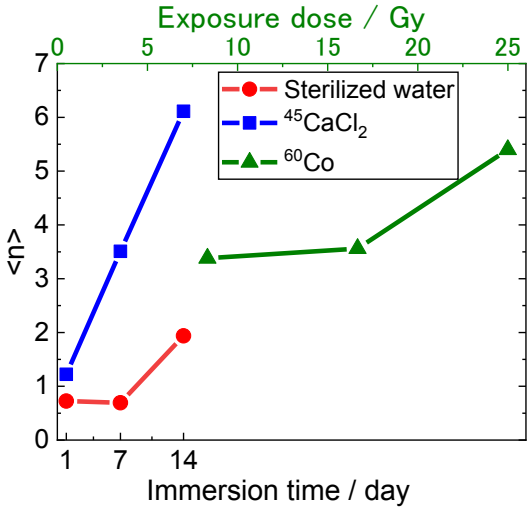

図 各試料における DNA 切断回数

Quantitative evaluation of DNA double strand break caused by radiations with different LET
WADA, T., NAKATA, M., KOIKE, A., YAMAZAKI, S., ZHAO, M., SUN, F., SHIMOYACHI, H., HATANO, Y., KENMOTSU, T., OYA, Y.

1A13 MRTOF+α-TOF を用いた ^{207}Ra の質量-崩壊特性測定

(九大理[1]、理研仁科セ[2]、高エ研[3]、原子力機構[4]、山形大[5]、NMSU[6]、IBS[7]、ANU[8])○庭瀬暁隆[123]、和田道治[3]、P. Schury[3]、伊藤由太[4]、木村創大[2]、加治大哉[2]、M. Rosenbusch[2]、渡辺裕[3]、平山賀一[3]、宮武宇也[3]、J. Y. MOON[7]、石山博恒[2]、森本幸司[2]、羽場宏光[2]、田中泰貴[8]、石澤倫[523]、高峰愛子[2]、森田浩介[12]、H. Wollnik[6]

【緒言】

原子核は中性子や陽子といった核子の集合体が、結合エネルギー分だけ軽くなった状態で安定した系と考えることができる。結合エネルギーは核の存在や安定性を決定する指標となり、核子間相互作用を議論するための最も基本的かつ重要な物理量である。

我々は超重核の精密質量測定へ向け、重核の飛行時間とそれに相関したα崩壊を取得することができる革新的な検出器α-TOF[1]の開発およびオフラインでの性能評価試験を行い、これまでの放射化学討論会において報告を行ってきた[2]。

【実験】

実験は理化学研究所の線形加速器RILAC-IIおよびリングサイクロトロン(RRC)を用いて行った。実験概念図を図1に示す。^{159}Tb(^{51}V,3n)反応によって合成された短寿命核種^{207}Raを気体充填型反跳分離装置GARIS-II [3]によって一次ビームから分離、焦点面への輸送を行い、ガスセル直前に設置したマイラー膜によってイオンの減速をし、ガスセルと多段トラップからなるシステムによってイオンの熱化および MRTOF への輸送を行った。MRTOF にはイオン検出器としてα-TOF が組み込んであり、^{207}Ra の質量とα崩壊特性の相関測定を行った。

【結果】

MRTOF+α-TOF を組み合わせた実験系を用いて、初の原子核質量-崩壊特性の相関測定に成功した。また、崩壊事象との相関を取ることによって、高バックグラウンド環境の中でも真のイベントだけを弁別した状態で、飛行時間と崩壊特性(崩壊エネルギー/半減期)を取得できることを実験的に確認した。本講演では、オンライン実験および結果の詳細について報告を行う。

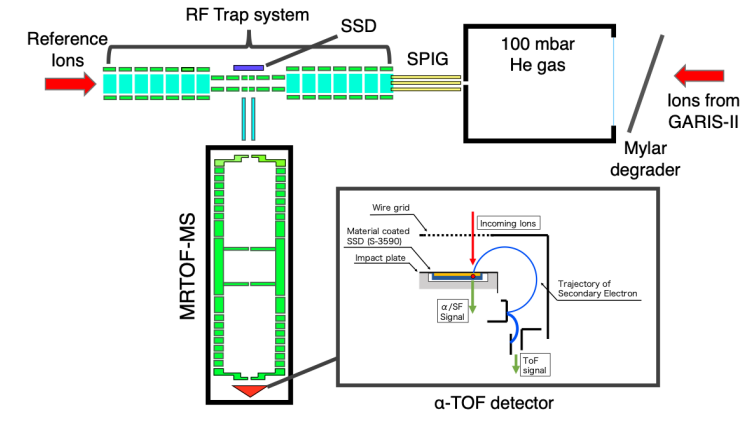

図 1. MRTOF-MS+α-TOF の実験概念図

【参考文献】

[1]T. Niwase et al., arXiv:1904.11589, submitted to Nucl. Instrum. Methods., Phys., A
[2]庭瀬暁隆 ほか,「MRTOF-MS 用のα-ToF 検出器の性能評価」第 62 回放射化学討論会
[3]D. Kaji et al., Nucl. Instrum. Methods Phys., B 317, 311(2013)

Correlation measurement of precision mass and decay properties of ^{207}Ra with MRTOF+α-TOF.

NIWASE, T., WADA, M., SCHURY, P., ITO, Y., KIMURA, S., KAJI, D., ROSENBUSCH, M., WATANABE, Y, X., HIRAYAMA, Y., MIYATAKE, H., MOON, J, Y., ISHIYAMA, H., MORIMOTO, K., HABA, H., TANAKA, T., SHIZAWA, S., TAKAMINE, A., MORITA, K., WOLLNIK, H.

1A14 ブラッグカーブ測定による重元素の原子番号同定

(九大理[1]、理研仁科セ[2])○藤田訓裕[1,2]、庭瀬暁隆[1,2]、末川慶英[1,2]、白坂和也[1,2]、森田浩介[1,2]

加速器を用いた核融合反応実験においては低エネルギー重イオンの原子番号を直接測定する手法の確立が求められている。特に、近年の新元素探索のような極小断面積、1ms 以下の短寿命かつ自発核分裂をする同位体には、従来用いられてきた X 線測定や精密質量測定を用いることは出来ない。そこで、本研究ではイオンが媒質中で作るブラッグカーブの測定による原子番号同定を目指している。ブラッグピークの高さはイオンの原子番号に特有の依存性を示すが、核子当りのエネルギーが 1.5MeV 以下のイオンではピークはエネルギー依存性をもつことが問題となっている。そこで、ピークだけでなくブラッグカーブ全体の測定をすることで、原子番号の識別を可能とする。

制作した検出器の性能評価実験を九州大学の加速器・ビーム応用科学センターにおいて行った。タンデム加速器からの炭素、酸素そしてヨウ素ビームを用いて、重元素標的による散乱粒子のブラッグカーブを測定した。得られた波形はシミュレーションコード Garfield++の計算結果と比較され、原子番号依存性が良く再現されていることが確かめられた。

Identification of Atomic Number for Heavy Elements by Bragg Curve Measurement
FUJITA, K., NIWASE, T., SUEKAWA, Y., SHIRASAKA, K., MORITA, K.

1A15 超重元素原子ビーム生成に向けた高温ノズル型低速原子ビーム源の開発

（原子力機構先端研[1]、新潟大院自然[2]、茨城大院理工[3]）○富塚知博[1,2]、佐藤哲也[1,3]、伊藤由太[1]、床井健運[1,3]、鈴木颯人[1,3]、浅井雅人[1]、塚田和明[1]、後藤真一[2]、永目諭一郎[1]

我々の研究グループでは、超重元素の原子科学研究への応用を目指し、単一原子レベルに適用可能な原子ビーム源(ABS, Atomic Beam Source)の開発を進めてきた(図1)。これまでにタンタル製ノズルを備えた高温ノズル型ABSを採用し、モンテカルロシミュレーションによるノズル形状の検討や安定同位体を用いた原子ビームの取り出しを行ってきた。[1]

想定する超重元素実験では、核反応で合成した核反応生成物をHe/CdI_2ガスジェット法を用いてABSへ連続的に搬送する。CdI_2エアロゾル粒子に付着した核反応生成物は、高温ノズル内でエアロゾル粒子から分離され、ノズルから原子ビームとして射出される。ノズル出入口は常に解放された状態となっており、特にノズル入口からの核反応生成物の損失が懸案となっていた。

ノズル入口からの損失を低減する目的で入口径の最小化を行うため、エアロダイナミックレンズ(AL)を新たに採用した。ALの概略図を図2に示す。本ALはHe流量が1.0 L/minで最適に動作するように設計され、多段階のレンズオリフィスとスペーサーから構成されている。ALに導入されたエアロゾル粒子流が、オリフィスを通過するごとにレンズ軸方向へ収束され、AL出口では小径のエアロゾル粒子流として取り出される。

実験では、^{252}Cf核分裂生成物や核反応で合成した短寿命核種を用い、エアロゾル粒子収束のパラメータとなるHe流量を0.6 L/minから1.4 L/minまで変化させてノズルへの導入効率を測定した。その結果、He流量が1.0 L/minまではエアロゾル粒子流径が1 mm φ以下に保たれ、十分に収束されていることが確認できた。また、ALを用いた際の原子ビーム取り出しも試みた。

発表では、実験の詳細及びAL-ノズル間距離やノズル温度などの各種パラメータを変化させたときの原子ビーム発生の様子について報告する。

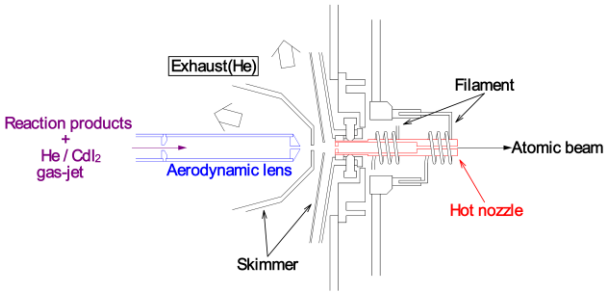

図 1. ガスジェット結合型原子ビーム源

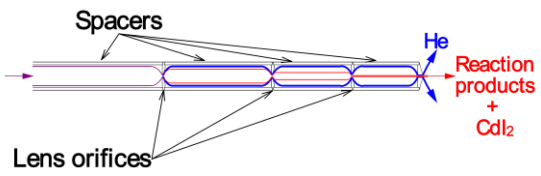

図 2. エアロダイナミックレンズ概要図

[1] 富塚 他、2018年放射化学討論会 1A03

Development of an atomic beam source using a high-temperature nozzle type cavity for atomic beam generation of superheavy elements

TOMITSUKA T., SATO, T. K., ITO, Y., TOKOI, K., SUZUKI, H., ASAI, M., TSUKADA, K., GOTO, S., NAGAME, Y.

1A16 超重元素原子線分光法に向けた電子再結合型原子ビーム源の開発

(茨城大院理工[1]、原子力機構先端研[2]、新潟大院自然[3])
○鈴木颯人[1,2]、伊藤由太[2]、佐藤哲也[1,2]、富塚知博[2,3]、床井健運[1,2]、
塚田和明[2]、浅井雅人[2]、永目諭一郎[2]

重元素領域では、相対論効果の影響により電子構造が周期律から逸脱する場合があることが理論的に予測されており、その効果の強さが原子番号の二乗に比例する。特に、103 番元素ローレンシウム(Lr)の基底状態の電子配置に着目すると、価電子は周期律から想定される $6d_{3/2}$ 軌道とは異なる $7p_{1/2}$ 軌道を取り、周期表で初めて相対論効果によって電子構造に周期律異常が出現すると予測されている。我々の研究グループでは、近年 Lr の第一イオン化エネルギーの測定に成功し、$7p_{1/2}$ 軌道を強く支持する結果を得た[1]。これを受けて現在、価電子軌道の直接決定を行うための原子線分光に向けた低速原子ビーム生成法の開発を行っている。

本研究では、低速原子ビーム源として、イオンと電子の再結合を用いた電子再結合型原子ビーム源の装置開発を行った。電子再結合型では、原子の化学的性質に依存しないことに加え、低エネルギーで原子ビームを生成出来るという利点がある。一方で、再結合断面積が 10^{-19} cm^2 程度と小さいという問題がある。本装置では、まずイオン源で生成されたイオンビームを、アインツェルレンズとステアラーで収束・位置調整する。その後、イオンビームを小さい断面積を補うための電子集束機構によって発生させた高密度電子雲に入射し、電子と再結合させることによって原子ビームを生成する。高密度電子雲は、中性化器 e-Neutra に組み込まれた円形フィラメントとそれを取り囲む電子収束電極によって実現される。電子収束電場によってイオンビーム軸状に電子を収束させることで、高密度電子雲による効率的な中性化を可能とする(図 1)。

実験では、50 eV の Rb^+ビームを用いて、電子雲通過後のイオンビーム電流の減衰を測定することで間接的に中性化を評価した。結果、電子雲中心を通過したイオンビームに対して 100%近い減衰を観測することに成功した。その後、より系統的なデータを得るために、電子雲に対してどの位置でも同条件で入射できるよう収束・移動が可能なイオンビーム光学系の改良を進めている。講演では、これまでの測定結果と改良イオンビーム光学系の詳細、および今後の展望について報告する。

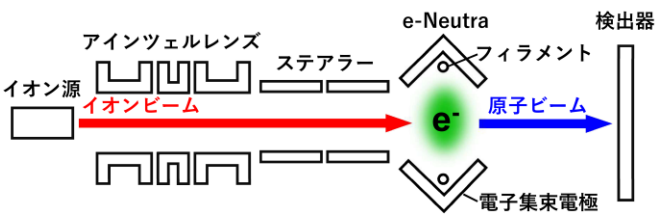

図 1: 電子再結合型原子ビーム源の概要図

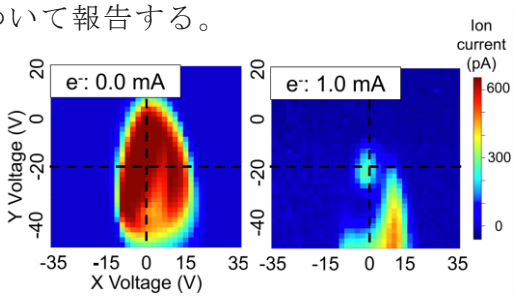

図 2: イオンビーム電流値の二次元スキャン
電子電流を上げるとイオンビーム電流値が減少した

[1] T.K. Sato, et al., *Nature* **520** 209(2015)

Development of an ion-electron recombination atomic beam source for atomic beam spectroscopy of superheavy elements
SUZUKI, H., ITO, Y., SATO, T.,TOMITSUKA, T., TOKOI, K., TSUKADA, K., ASAI, M., NAGAME, Y.

1B01 川崎市における土壌深度別放射性セシウム濃度と土壌性状の関係

(明治大院理工 [1]、明治大理工 [2])○高橋朋基 [1]、市橋洵 [1]、坂野花歩 [2]、小池裕也 [2]

【緒言】 福島第一原子力発電所（FDNPP）の事故により、環境中に放出された放射性セシウム（^{134}Cs 及び ^{137}Cs）が放出された。FDNPP から南西に約 250 km 離れている都市圏でも、不溶性の ^{137}Cs が表層土壌中で観測されている [1]。この調査では表層 5 cm の土壌のみを分析しており、深層土壌に関しては議論されていない。本研究では、川崎市の明治大学生田キャンパスで、表層土壌中の放射性セシウム濃度を考慮し、表層から深さ 30 cm までの深度別分析用土壌を採取した。試料は水分量や有機物量、粒度分布、結晶相、存在形態などを多角的に分析し、土壌深度別放射性セシウム濃度と土壌性状の関係を調査した。

【実験】 土壌試料は、明治大学生田キャンパスで植生を考慮し、ライナー採土器（大起理化工業,DIK-110C）を用いて、深度別分析用の深さ 30 cm 分の土壌を採取した。採取した土壌は、5 cm ごとに分割し、ガンマ線測定した。放射能分析した土壌試料は、粒径 2 mm 以下にふるい分けした後、水分量と有機物量の測定、粒度分布測定、結晶相分析、逐次抽出試験 [1]に供した。

【結果と考察】 表層から深さ 30 cm までの深度別 ^{137}Cs の放射能濃度と土壌中の水分量、有機物量を Fig. 1 に示す。^{137}Cs 濃度は、深さ 5～10 cm の深さで一番高い値を示した。一方、水分量と有機物量は、^{137}Cs 濃度が減少した深さ 10 cm 以深で上昇した。粒度分布と結晶相分析の結果から、粘土鉱物等の寄与を検討したが、^{137}Cs 濃度との相関は確認できなかった。存在形態を調査すると、深さ 0～10 cm は約 8 割が難溶性、深さ 10 cm 以深では多くが水溶性であった。深さ 10 cm 以深では、水溶性の ^{137}Cs は有機物に吸着し [2]、深さ方向に浸透している可能性があると考えられる。

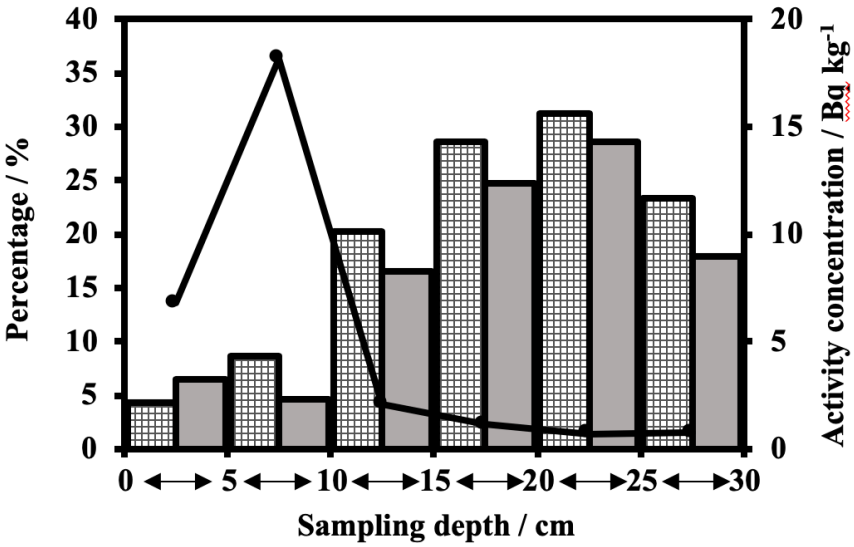

Fig. 1 Variations in activity concentration, water content, and ignition loss in soil sampled at Ikuta campus, Meiji University with sampling depth.
●: ^{137}Cs; ▦: Water content; ▭: Ignition loss.

【結言】 土壌深度別放射性セシウム濃度と土壌性状分析との関係を把握すれば、土壌中での時間経過による放射性セシウムの二次的移行を議論できると考えている。

【参考文献】

1) 越智康太郎ら, 分析化学, **66** (3), 175-180 (2017).
2) Rigol *et al.*, *J. Environ. Radioact.*, **58,** 191-216 (2002).

Relationship between radioactive cesium concentration and soil properties in depth-sorted soil collected in Kawasaki, Japan

TAKAHASHI, T., ICHIHASHI, M., SAKANO, K., KOIKE, Y.

1B02 固相抽出法を用いた福島原発周辺土壌のストロンチウム-90 分布測定

(阪大院理[1]、阪大放射線機構[2])○梶原知啓[1]、二宮和彦[1]、篠原厚[1]、山口喜朗[2]

【序論】2011 年 3 月に発生した福島原発事故によって、大量の放射性核種が環境中へと放出された。中でも ^{137}Cs の放出量は多く、半減期も 30 年と長いこと、非破壊でγ線を測定により定量できることから多くの研究がされている。化学的性質の違いから、^{137}Cs とほかの放射性核種では原子炉からの放出タイミングが異なり、放出時の風向きや天候の違いによって沈着場所に偏りが出ることが知られている。このため、^{137}Cs 以外の核種を測定し、^{137}Cs との分布の比較を行うことで事故時の原子炉内状況の解明ができると期待される。^{90}Sr は 30 年の半減期を持ち、原子炉事故の際には注目される放射性核種のひとつである。しかし ^{90}Sr は純ベータ線放出核であることから、定量を行うには化学分離が必要であり、^{90}Sr についての研究は現時点でもかなり少ない。本研究では固相抽出法による簡便な ^{90}Sr 分離法を採用することにより、分析時間を短縮し、原発周辺土壌からの ^{90}Sr 分析を系統的に行った。そして各地点の ^{90}Sr 分布状況を調査し、場所による ^{90}Sr/^{137}Cs の値の比較を行った。

【実験】土壌分析実験を行うに先立って、本研究で採用した Sr レジン（Eichrom Technologies）を用いた固相抽出法の分離条件の最適化を行った。その後、土壌分離実験のために、福島原発周辺の 15 か所で採取された土壌を選定した。まず Ge 検出器で土壌のγ線測定を行い、^{137}Cs 濃度を定量した。その後乾燥、有機物分解を行った後、濃硝酸で土壌成分の抽出を行った。この抽出液を Sr レジンに通し、^{90}Sr の単離を行った。溶出液は液体シンチレーションカウンターによるチェレンコフ光測定を 2 週間連続して測定を行い、^{90}Y の成長から ^{90}Sr の定量を行った。収率はキャリアーとして加えた ^{nat}Sr を ICP-MS で定量することで決定した。

【結果・考察】本分析で ^{137}Cs インベントリは 570~26400 kBq/m^2、^{90}Sr インベントリは 21~1340 Bq/m^2 が得られた。Fig. 1 では本研究で得られた ^{90}Sr/^{137}Cs の値を地図上にプロットした。^{90}Sr/^{137}Cs の値は 10^{-5} から 10^{-4} のオーダーであり、明確な方向依存性が見られた。北西方向では 10^{-4} と比較的高い比率が得られ、そこから反時計回りで値が下がり、西方向では最小の 10^{-5} となった。さらに南方向では再び比が上昇し 10^{-4} オーダーとなった。これらの比の違いは汚染プルームの違いを表していると考えられ、^{90}Sr/^{137}Cs の方角依存性は先行研究の値とも一致した。各地点の詳しい分析値については発表にて述べる。

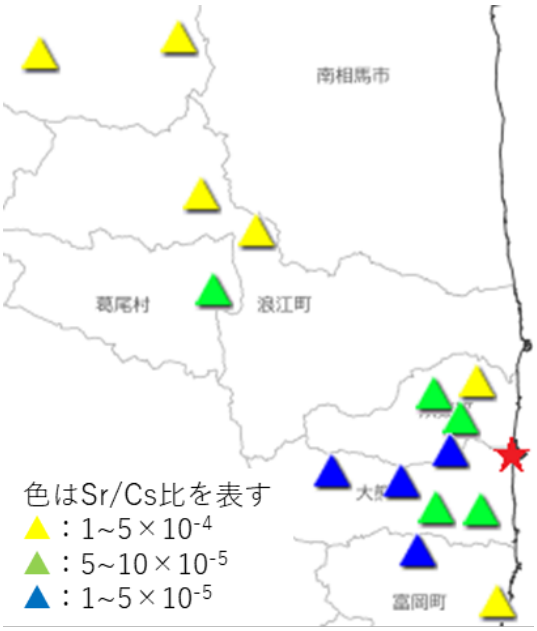

Fig. 1 各地点での ^{90}Sr/^{137}Cs の値

Distribution of ^{90}Sr concentration in soil samples around the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant determined by solid phase extraction method

KAJIWARA, T., NINOMIYA, K., SHINOHARA, A., YAMAGUCHI, Y.

1B03 山岳湖沼の赤城小沼における放射性セシウムの堆積解

(金大環日セ[1]、金大院自然[2]、群馬水試[3])○長尾誠也[1]、宮坂將平[2]、渡辺峻[3]、鈴木究真[3]、落合伸也[1]

【緒言】2011 年 3 月 11 日に発生した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セシウムが環境中に放出された。放出された放射性セシウムの一部は、群馬県・栃木県の山岳地域に移動し、大気からのフォールアウトにより湖沼の堆積物に沈着した。本研究では、群馬県の標高 1470 m に位置する山岳湖沼、赤城小沼の堆積物を分析し、福島原発事故由来の放射性セシウムの堆積状況について検討した。

【実験】赤城小沼は赤城大沼の南南東約 1.5 km に位置し、流入河川がなく人為的活動が少ないといった赤城大沼とは異なる周辺環境をもつカルデラ湖である。赤城小沼における堆積物の採取は 2018 年 5 月 31 日に行われ、湖心部で佐竹式コアサンプラーにより採取した。得られた堆積物は、15 cm までは 1 cm 間隔、15 cm 以深は 2 cm 間隔でカッティングを実施した。堆積物試料は真空凍結乾燥を行い、2 mm メッシュのふるいに通して不純物を除去し、メノウ乳鉢と乳棒を用いて均一化を行った。ガンマ線測定には金沢大学低レベル放射能実験施設の EG&G ORTEC 製ゲルマニウム半導体検出器、もしくは CANBERRA 製井戸型ゲルマニウム半導体検出器（Model No. EGPC250-P21）を用いた。試料の測定時間は 1〜4 日であり、放射能濃度は試料採取日に壊変補正を行った値を用いた。

【結果と議論】 赤城小沼湖心部にて採泥された堆積物の放射性セシウム濃度の鉛直分布は、^{137}Cs 濃度は上層部で高くなっており表層では 1780 Bq/kg であった。また、原発事故由来である ^{134}Cs は深さ 11 cm まで検出された。

excess^{210}Pb 濃度の鉛直分布では、深度 5 cm 付近までほぼ一定の値（約 500 Bq/kg）をとっていることから鉛直混合の存在が確認された。鉛直混合がおこっていると考えられる上層のプロットは除外して赤城小沼湖心部の堆積速度を算出したところ 0.086 g/cm^2/y となり、赤城大沼の流出部（0.091 g/cm^2/y）・流入部（0.092 g/cm^2/y）に近く、赤城大沼湖心部（0.060 g/cm^2/y）より大きな値となった。

赤城小沼湖心部の excess^{210}Pb インベントリー（1.59×10^4 Bq/m^2）は赤城大沼湖心部（1.28×10^4 Bq/m^2）より大きくなり、大気からの excess^{210}Pb の沈着量が同じ程度と仮定すると、流域からの大気由来物質の流入量は赤城小沼の方が多いと考えられる。このことは、赤城小沼湖心部における堆積速度が赤城大沼湖心部より大きくなった結果と矛盾しない。一方、福島原発事故日に壊変補正を行った ^{137}Cs インベントリーは 1.76×10^4 Bq/m^2 あり、赤城大沼湖心部（1.48×10^4 Bq/m^2）に比べて高かった。また、赤城大沼湖心部堆積物では、^{137}Cs 放射能濃度の最大値が 2011 年 12 月では表層の 0-2 cm ではあるが、2017 年 8 月に採取した堆積物では深さ 5-6 cm に ^{137}Cs 放射能濃度のピークが検出された。これらのことは、赤城大沼では ^{137}Cs 放射能濃度の低い粒子が堆積しているが、赤城小沼では湖底堆積物を採取した 2018 年 5 月時点でも湖沼流域の急斜面から寄与する放射性セシウムが存在することを示唆している。

Study on sedimentation of radiocesium in mountain lake, Lake Akagi-Konuma, in Gunma Prefecture, Japan
NAGAO, S., MIYASAKA, S., WATANABE, S., SUZUKI, K., OCHIAI, S.

1B04

^{210}Pb を用いた厚岸湾における堆積場と粒子動態の解析

（金沢大院自然[1]、金沢大環日セ[2]、北大北方セ[3]、北大院地球環境[4]）
○佐々木一樹[1]、長尾誠也[2]、落合伸也[2]、伊佐田智規[3]、入野智久[4]

【緒言】 陸起源懸濁粒子の海洋への流入は海洋生態系へ影響を及ぼす可能性が指摘されている。しかし、河川・汽水湖・沿岸域という連続した環境場で陸起源懸濁粒子の海洋への移行挙動に関する報告は少ない。本研究では、北海道東部の厚岸町に位置し、別寒辺牛川・厚岸湖と接する厚岸湾において、過去の陸起源粒子の沈着状況を記録している堆積物に着目し調査を行った。現状では、厚岸湖及び厚岸湖の流入河川である別寒辺牛川由来の懸濁粒子が寄与するが、どの地点においてそれらの懸濁粒子の寄与が大きいか明らかになっていない。そのため、厚岸湾の湾内及び湾外に測線を設定し海底堆積物を採取し、^{210}Pb を用いて堆積環境を検討した。

【実験】 2014 年 9 月、2017 年 10 月に北海道東部の厚岸町に位置する厚岸湖において 2 測点、隣接する厚岸湾の湾内において 4 測点、厚岸湾の湾外において 2 測点の計 8 測点で重力式コアサンプラーを用いて柱状堆積物を採取した。懸濁粒子は別寒辺牛川、厚岸湖、厚岸湾でそれぞれ採取した。堆積物、土壌及び懸濁粒子は乾燥・均一化した後、容器に封入し放射平衡に達した後に堆積物に含まれる ^{210}Pb を Ge 半導体検出器で測定した。堆積物に含まれる ^{226}Ra から生成される ^{214}Pb(295keV, 352keV) を supported^{210}Pb として、^{210}Pb(46.5keV)値から差し引き、大気由来の excess^{210}Pb(^{210}Pb$_{ex}$)濃度として用い、堆積速度を求めた。

【結果】 厚岸湖の 2 測点における ^{210}Pb$_{ex}$ インベントリーはどちらも 0.58 Bq/cm であった。厚岸湾における ^{210}Pb$_{ex}$ インベントリーは湾内の 3 測点において 0.57 Bq/cm , 0.20 Bq/cm , 0.26 Bq/cm 、湾外の 1 地点において 0.35 Bq/cm であり、厚岸湖に最も近い測点において最も高い値を示した。これらの値は森林土壌の ^{210}Pb$_{ex}$ インベントリー(0.74 Bq/cm)よりも低い値であった。厚岸湾では ^{210}Pb$_{ex}$ インベントリーと同様に、厚岸湖に最も近い測点において堆積速度が最大(0.37 g/cm^2/y)となり、湾と外洋の境界の測点にいて最小値(0.05 g/cm^2/y)を示した。本発表では海水中の懸濁粒子濃度と ^{210}Pb$_{ex}$ も考慮して陸起源粒子の移行挙動を評価する。

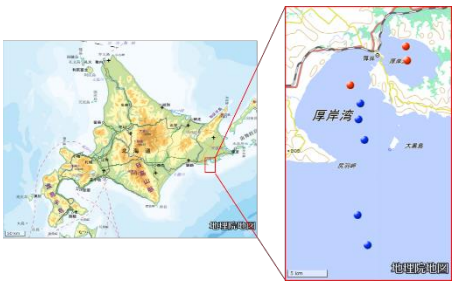

図 1. 採取地点（地理院地図より引用・加筆）

地点名		堆積速度 (g/cm²/y)	^{210}Pb$_{ex}$インベントリー (Bq/cm²)
厚岸湖	AK-14-05	0.41	0.58
	AK-14-03	0.23	0.58
		0.46	
厚岸湾湾内	AK-14-11	0.37	0.57
	AB8-1a	N.D.	0.20
	AB12-1a	N.M.	N.M.
	AB16-2a	0.05	0.26
厚岸湾湾外	A0-1a	0.20	0.35
	A1'-2a	N.M.	N.M.

図 2. 堆積速度及び ^{210}Pb$_{ex}$ インベントリー

Study of sedimentary environment by ^{210}Pb at Akkeshi Bay in eastern Hokkaido, Japan
SASAKI, K., NAGAO, S., OCHIAI, S., ISADA, T., IRINO, T.

1B05 海洋放射能モニタリングにおける指標海産物としての褐藻に関する研究

(宮城県環境放射線監視センター[1]、宮城県原子力安全対策課 [2]、東北緑化環境保全株式会社 [3])○小笠原一孝 [1]、小野原清志 [1]、高群富貴 [2]、石川陽一 [1]、髙橋正人 [1]、安藤孝志 [1]、澤田晃宏 [3]

【緒言】宮城県と東北電力(株)では，女川原子力発電所環境放射能及び温排水測定基本計画等に基づき，従来から年に 4 回，海藻（褐藻の一種）のアラメを採取し，放射能濃度を測定している[1]。東日本大震災後，牡鹿半島において磯焼けが進行したため，アラメは以前ほど生息しておらず，近い将来採取が困難となることが懸念された。そこで，宮城県と東北電力(株)では，アラメの代替試料を探すこととし，牡鹿半島周辺で広く生息しているホンダワラ属のうち，同定が容易なエゾノネジモクを採取して放射能及び安定元素濃度を測定し，適性を調べた。

【採取と実験】従来のアラメ採取地点での採取を優先し，生育が認められない場合は他地点で代替することとした。調査の結果，牡鹿半島西側の地点 c では生育が確認できず，地点 d を代替地点とした。同様に牡鹿半島南側の地点 g でも生育がみられず，地点 h を代替地点とした。他の 4 地点では採取が可能であった（Fig.1）。また，採取は生育調査を含めて 2017 年 7 月から四半期毎に実施した。放射能濃度は Ge 半導体検出器により，安定元素濃度は ICP-OES または ICP-MS により定量した。

【結果と考察】2017 年 7 月～2019 年 5 月の間に行った 6 地点の測定の結果，^{131}I は全ての試料において検出されなかったが， 2 試料（2018 年 2 月の地点 a, 2018 年 12 月の地点 d）に僅かなピーク（以下，LTD）が見られた。また，^{137}Cs は不検出（以下，ND）～0.56 Bq/kg 生の範囲，^{134}Cs は ND～0.081Bq/kg 生の範囲にあり，アラメの測定値範囲と同程度であった。その他のモニタリング対象放射性核種（^{54}Mn，^{58}Co，^{59}Fe，^{60}Co）は全ての試料において検出されなかった（Table 1）。

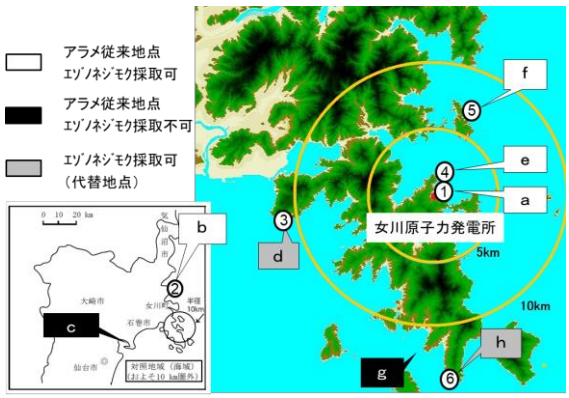

Fig. 1　採取地点図

Table 1　放射能濃度測定結果の比較

	エゾノネジモク	アラメ	単位
試料数 *n*	33	18	
^{131}I	ND～LTD	ND～0.23	Bq/kg 生
^{137}Cs	ND～0.56	ND～0.17	
^{134}Cs	ND～0.081	ND	

Table 2　濃縮係数の比較

	エゾノネジモク	アラメ	単位
^{137}Cs	47	30	L/kg 生
^{40}K	24	30	
I（安定）	1400～3600	6200～8300	
Co(安定)	2200～20000	1300～6700	
Mn(安定)	1400～20000	1100～1700	

　また，濃縮係数（=海藻の含有濃度/海水の含有濃度）を比較したところ（Table 2），放射性核種（^{137}Cs，^{40}K）の濃縮係数は同程度であった。安定元素（I，Co，Mn）の濃縮係数は，I については，アラメの方が大きいものの，Co と Mn については，エゾノネジモクの方が高い濃縮能力を持つことが示唆された。

【参考文献】[1]宮城県，女川原子力発電所環境放射能調査結果.
http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/kankyo-onhaisui.html

A study on brown algae as an indicator organism in marine radioactivity monitoring
OGASAWARA, K., ONOHARA, K., TAKAMURE, T., ISHIKAWA, Y., TAKAHASHI, M., ANDO, T., SAWADA, A.

1B06 福島原発事故により放出された不溶性粒子に含まれるプルトニウムの定量

（阪大院理[1]、量研[2]、原子力機構[3]、北京大物理[4]）○五十嵐淳哉[1]、鄭建[2]、張子見[1]、二宮和彦[1]、佐藤志彦[3]、福田美保[2]、倪 有意[2,4]、青野辰雄[2]、篠原厚[1]

【緒言】Pu は原子力災害において最も注目される放射性核種の一つであり、2011 年に起こった福島原発事故後にも Pu の調査が行われている。環境中には本事故前からグローバルフォールアウト（GF）由来の Pu が存在している。本事故での Pu の放出量は極めて少ないために[1]、GF 由来の Pu の影響が大きく、本事故による汚染の正確な評価は困難である。本事故のみの寄与を明らかにするために、これまで核実験や原発事故ごとに異なる同位体比を示す Pu に注目した分析が行われてきたが、実際にその多くは同位体比がばらつき、GF による影響が大きいことが報告されている[1]。
本事故では、SiO_2 の母材に放射性 Cs が濃集した水に不溶な粒子（不溶性粒子）が放出されたことが知られている[2]。不溶性粒子は放出時の状態を保持しており、環境からの汚染を受けていないと考えられる。したがって不溶性粒子の Pu を分析することにより、GF の影響を受けていない本事故由来の Pu 同位体比を得ることが期待される。また粒子内の Pu 量は、粒子生成時における炉内環境の解明に繋がると期待される。
【実験】本研究では、放射化学的手法と ICP-MS 質量分析により、不溶性粒子からの Pu の定量を行った。具体的には、福島県双葉町と大熊町で採取した不溶性粒子をアルカリ溶融により溶液化し[3]、TEVA,UTEVA,DGA レジンを用いたカラム分離を行い、Pu の分離を行った[4]。分離溶液について、SF-ICP-MS により質量数が 239,240,241 の領域を測定することにより、Pu 同位体（^{239}Pu,^{240}Pu,^{241}Pu）を定量した[5]。
【結果と考察】4 個の不溶性粒子の分析を行った結果、3 つの粒子で Pu が検出され、同位体比は、$^{240}Pu/^{239}Pu$ で 0.330~0.415、$^{241}Pu/^{239}Pu$ で 0.161~0.178 が得られた。これは GF 由来の値よりも大きく、福島原発の炉内インベントリーの計算値[6]やこれまで報告されている福島原発付近で採取された、落ち葉などの一部の環境試料の値[1]と良い一致を示していることがわかった。不溶性粒子に含まれる Pu の量は、$^{239+240}Pu/^{137}Cs$ で 10^{-8} のオーダーであったが、由来とする原子炉が異なる粒子同士で差があることが分かった[7]。講演では分析した粒子ごとの Pu 同位体比の詳細や、不溶性粒子に含まれる Pu の量から予想される粒子生成過程について議論する。
【参考文献[1] J. Zheng et al, Sci. Rep. (2012) 2, 0304. [2] K. Adachi et al., Sci. Rep. (2013) 3, 2554. [3] Z. Zhang et al., Environ. Sci. Technol. (2019) 53, 10, 5868-5876. [4] Z. Wang et al., Anal. Chem. (2017) 89, 2221-2226 [5] J. Zheng et al, J. Nucl. Radiochem. Sci. (2015) 1, 7-13. [6] K. Nishihara et al., JAEA-Data/code. (2012) 2012-018, 65-117. [7] J. Igarashi et al., Sci. Rep. in press

Identification of Plutonium isotopes in insoluble particles released by the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant.
IGARASHI, J., ZHENG, J., ZHANG, Z., NINOMIYA, K., SATOU, Y., FUKUDA, M., NI, Y., AONO, T., SHINOHARA, A.

1B07

Internal structure and composition of Unit 1 particulate revealed through combined synchrotron and mass-spectrometry techniques.

(Univ. of Bristol[1], JAEA[2]) ○ Peter Martin[1], Tom Scott[1], Yukihiko Satou[2]

In contrast to the extensively studied micron-scale "Cs-ball" material that has been isolated from numerous localities, some at considerable distances from the crippled reactor site, this work has focused on the larger material isolated from sediments obtained less than 2 km from the plant boundary. Whereas the spherical particulate material is attributed to reactor Unit 2, this larger material is conversely the result of the reactor Unit 1 hydrogen building explosion.

Through the application of both laboratory and synchrotron radiation (SR) x-ray tomography (XRT), the internal structure of a representative 450 µm × 280 µm × 250 µm particle was shown to be highly-porous – with 24% of the internal volume constituted by void space, exhibiting limited interconnectivity between these bi-modal sized pores – shown in Figure 1.

Compositional (elemental) analysis of the particulate material through SR x-ray fluorescence (XRF) detailed the peripheral enrichment of several elements (including Sr, Pb and Zr) – with the existence of Cs associated near-exclusively with the location of several highly-angular Fe-based fragments, extruding from the materials surface. Many larger fragments of cement composition were additionally observed embedded into the particles surface. The component of fissionogenic Cs ($^{134+135+137}$Cs) was determined to account for most of the elemental abundance within the particle with limited contribution from natural ^{133}Cs.

SR x-ray absorption near edge structure (XANES) analysis on several high atomic density particles located within the bulk particle confirmed them to be U in composition, existing in the U(IV) oxidation state, as UO_2. The isotopic analysis of this micron-scale U material enclosed just below the surface of the particle was subsequently determined using secondary ion mass spectrometry (SIMS), having spatially referenced their co-ordinate positions between the different techniques. SIMS mapping revealed the U-rich particle to be ~1 µm in maximum dimension, consisting of enriched U with 3.54 wt% ^{235}U – used in reactor Unit 1.

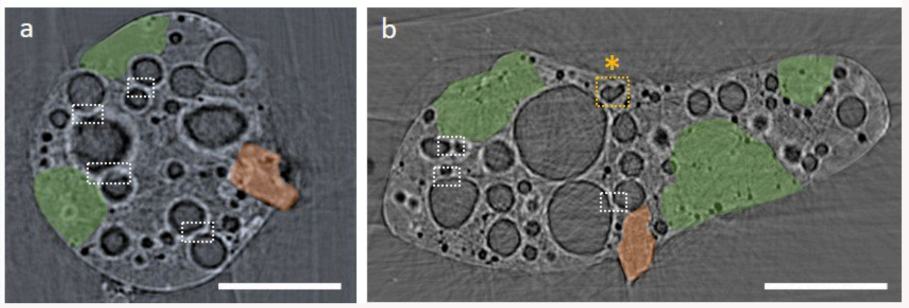

Figure 1: SR-XRT reconstruction of the representative particle showing the 24% void volume. Regions of both stainless-steel (orange) and cement (green) composition are shown (as identified through SR-XRF), as are locations where voids are observed to interact. Scale bar = 100 µm.

1B08 福島第一原子力発電所近郊の室内ダスト試料の $^{134}Cs/^{137}Cs$ 比による放射性物質の拡散分布

（東京慈恵会医科大学 [1]、JAEA[2]、筑波大学 [3]） ○箕輪はるか [1]、吉川英樹 [1,2]、中間茂雄 [2]、佐藤志彦 [2]、末木啓介 [3]

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所（福島第一原発）の事故では、3 基の原子炉から環境中に放射性物質が放出された。地表にはこれら 3 基の原子炉を放出源とする放射性物質が混合して沈着しており、その混合比は各原子炉からの放出量とタイミングおよびその際の風向きや地形などに依存する。我々は環境試料の測定データから各原子炉由来物質の拡散分布を推定することを目的としている。

各原子炉内の事故時の放射性セシウム同位体比 $^{134}Cs/^{137}Cs$ は、1 号炉 0.94、 2 号炉 1.08、3 号炉 1.04、と算出されており、環境試料の $^{134}Cs/^{137}Cs$ 比を精度よく求めれば放出源の原子炉が推定できる可能性がある。放射性セシウムの測定には Ge 半導体検出器が使われるが、$^{134}Cs/^{137}Cs$ 比を精度良く求めるためには試料と測定器の相対位置の厳密性が特に求められる。^{134}Cs は主なものだけで 11 本のγ線を放出し一部はカスケード壊変をする。そのため試料を測定器に近接させて測定した場合にサムピーク効果の影響を受ける。一方 ^{137}Cs は 662 keV のγ線 1 本のみ放出するためサムピーク効果の影響は受けない。したがって、^{134}Cs と ^{137}Cs とでは測定器と試料の距離による計数効率の変動の度合いが異なる。本研究ではまず Ge 半導体検出器における ^{134}Cs の計数効率に与えるサムピーク効果の影響を調べ、得られた計数効率を実試料に適用した。

【方法】円盤状線源（25mmφ濾紙, ^{137}Cs: 190 Bq, ^{134}Cs: 17 Bq 測定時）、粒子状線源（長辺 200μm, ^{137}Cs: 170 Bq, ^{134}Cs: 20 Bq 測定時）を用いて、Ge 半導体検出器と試料との距離による計数効率の変動を測定した。

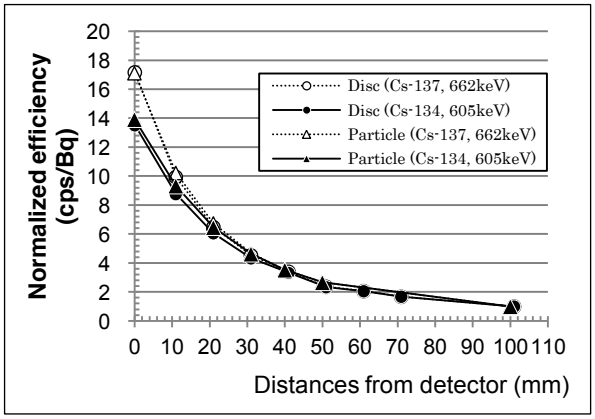

Fig.1 計数効率の距離依存性

【結果および考察】Fig. 1 に、測定器からの距離 100 mm の値で規格化した計数効率[cps/Bq]の値を示した。円盤状・粒子状線源ともに、試料を測定器に近接させた場合（距離 0.1 mm）、^{134}Cs の値は ^{137}Cs に比べて約 20%低くなり、サムピーク効果の影響がみられた。したがって、測定器に近接して測定した場合、土壌試料など厚さ・高さの大きい試料では $^{134}Cs/^{137}Cs$ 比を厳密に求めることは難しいと考えられる。

2014-2019 年に福島第一原発から 10 km 圏内約 40 地点から採取した室内ダスト試料のスミア試料を測定し、円盤状線源による計数効率を用いて ^{134}Cs、^{137}Cs を定量した。スミア試料は平板状であり測定器からの距離を一定にできるため精度の良い測定が可能である。事故時の $^{134}Cs/^{137}Cs$ 比から 1 号炉および 2, 3 号炉由来物質の混合比を求め、原子炉別に放射性物質の空間拡散分布を推定した。結果については発表時に報告する。

Research for the spatial diffusion of radionuclide from $^{134}Cs/^{137}Cs$ ratio in indoor dust from near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

MINOWA, H., YOSHIKAWA, H., NAKAMA, S., SATOU, Y., SUEKI, K.

1B09 フキ地上部から地下茎経由による新組織への放射性セシウムの転流について

（量研機構）○田上恵子、内田滋夫

【緒言】福島第一原子力発電所事故が発生した 2011 年 3 月に地上部が汚染した樹木では、新芽中の放射性 Cs 濃度が高かったことから、樹木の葉や枝等の旧組織から新組織への放射性 Cs の転流が主であったことが定性的に示されている。一方、フキ（*Petasites japonicus*）のように、地下茎を介する場合、新芽へは、転流による汚染経路と根からの吸収による汚染経路があり、どちらが優先的または同等の寄与があったのかについては明確になっていない。そこで 2011 年に採取したデータを用いて再検討を試みた。

【材料及び方法】2011 年 3 月 28 日から 5 月 3 日に千葉県千葉市の放医研敷地内においてフキの地上部として展開葉を 6 回、新芽（4 月 13 日から採取を開始）を 5 回採取した。それぞれ試料を半分は洗浄、半分は未洗浄に分割し、さらに展開葉は葉身と葉柄に切り分けた。これらの試料中の放射性 Cs 濃度を Ge 半導体検出装置で測定した。また、比較のために 4 月下旬から急激に成長するヤブガラシ、イタドリ、ヒマワリ（経根吸収が主）を同敷地内から 6 月 18 日に採取して測定した。土壌は同年 5 月 5 日に採取・風乾し、孔径 2mm の篩を通したのちに放射能濃度を測定した。

フキの成長速度については、2019 年 4 月から 5 月に調査を行なった。測定する新芽を 12 本選択した後、5 本については付近の展開葉を除去し、残りは展開葉が近傍にある自然の状態で成長を測定した。

【結果及び考察】フキの新芽中の ^{137}Cs 濃度を直接汚染のない草本植物と比較したところ（図 1）、採取時期が 1 ヶ月半違うが、明らかにフキの新芽中の ^{137}Cs 濃度が高く、経根吸収だけではなく展開葉から吸収された放射性 Cs が、フキの新芽に転流したことが示唆された。

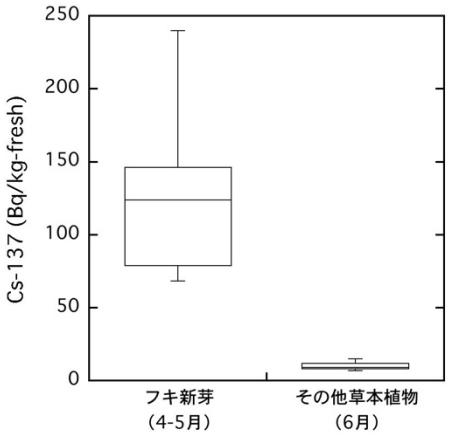

図 1　フキ新芽と他の草本植物中（直接汚染なし）の ^{137}Cs 濃度の比較

次に、フキの新芽の近傍に展開葉がある／なしで新芽の成長速度が影響されるか調査したところ、最初の 2 日間は差が見られなかったが、3 日目からは展開葉が近傍にない新芽では成長が遅くなることがわかった。展開葉からの光合成産物が地下茎を介して近傍の新芽に供給されていることが要因と考えられる。2011 年当時も同様に、光合成産物が展開葉から新芽に移動しており、併せて新芽の生長のために盛んにカリウムも転流し、それに伴って葉面吸収された放射性 Cs も新芽に転流したと考えられた。

なお、追加的に当該土壌の放射性セシウム収着能についても ^{137}Cs を用いたトレーサー実験により検討を行なった。その結果、この土壌が速やかに放射性セシウム捕捉して脱離しにくいことから、植物には吸収されにくいと考えられた。

本研究の一部は JSPS 科研費（JP18H04141）の助成を受けた。

Translocation of Radiocaesium from Aboveground Leaves to New Shoots of Japanese Butterbur through Underground Stems
TAGAMI, K., UCHIDA, S.

1B10 山林の汚染状況調査のための福島県飯舘村産コナラ中の放射性セシウムの分析

(東北大院・理[1]、東北大高教機構[2])
○田巻廣明[1]、木野康志[1]、奥津賢一[1]、関根勉[1,2]

【緒言】福島県ではキノコ栽培の原木や菌床となる落葉広葉樹の植林が行われてきたが、福島第一原発事故による放射性 Cs により、地域差はあるが汚染された。福島県内の林業の再生のためにも、汚染木の利用の可能性や汚染状況の年次変化を見極める必要がある。チェルノブイリ原発事故以降の森林内における放射性 Cs の移動や形態について研究が報告されているが[1]、沈着の形態、土壌、植生、事故時の季節など福島事故と異なる要因もあり、福島県の落葉広葉樹の汚染の実態を知る必要がある。本研究では、キノコ栽培でよく使われるコナラの汚染の状態について調査した。コナラは東アジアに植生の分布をもち、チェルノブイリ原発事故に関連した報告はない。なお、今回採取した丸太から菌床を作成し、キノコ栽培を今後行う予定である。

【実験】 2019 年 4 月 6 日に福島県飯舘村の林(原発から北西に約 40 km、地上 1 m の空間線量率 1.68±0.05 μSv/h)の中でコナラ 1 本を伐採し、1 m 長の丸太 13 本を得た。伐採時には新芽はまだなく、一年枝が伸びた状態にあった。A) 各丸太の樹皮表面の放射能分布を、サーベイメーターを用いて調べた。B) 高圧洗浄機を用いて丸太の樹皮を洗浄し、洗浄液と洗浄によって剥がれた樹皮のかけらを回収した。C) 洗浄液とかけらは乾燥後に高純度 Ge 検出器を用いて ^{137}Cs を定量した。D) 枝（一年枝・多年枝)、落葉についても同様に ^{137}Cs を定量した。E) 丸太断面における放射性核種の分布を、イメージングプレート(IP)を用いて調査した。

【結果】A) 樹皮の中で、半径 1~2 cm 程度の大きさの、周辺と比べて明らかに放射性 Cs が集中している点が見られた。点の数は南側が若干多かった。B) 樹皮の洗浄によりこれらの点の放射性 Cs は明確に減少した。C) 洗浄液から ^{137}Cs はほとんど検出されず、樹皮のかけらに ^{137}Cs が含まれていた。D) 枝や葉の ^{137}Cs 濃度と比べてかけらの値は高かった。以上から樹皮の放射性 Cs は、枝や葉に含まれる経根吸収や転流された放射性 Cs ではなく、事故直後に付着した非水溶性の放射性 Cs であると考えられる。E) 丸太断面の IP 像を図 1 に示す。放射性 Cs は樹皮に多く、幹内部では心材より辺材に多く含まれていた。

図 1 丸太断面の IP 像

【謝辞】認定 NPO 法人ふくしま再生の会の皆様に試料の提供や貴重な助言をいただきました。ここに深く感謝いたします。

[1] IAEA, Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience, 2006

Analysis of radiocesium in Konara tree in Iitate, Fukushima, for contamination investigation of forest
TAMAKI, H., KINO, Y., OKUTSU, K., SEKINE, T.

1B11 歯や耳石に記録された放射性核種の取り込み履歴

([1] 日本原子力研究開発機構、[2] 東北大、[3] 国立環境研究所、[4] 東京医大)
○小荒井一真[1]、松枝誠[1]、藤原健壮[1]、小野拓実[2]、木野康志[2]、岡壽崇[1]、奥津賢一[2]、高橋温[2]、鈴木敏彦[2]、清水良央[2]、千葉美麗[2]、小坂健[2]、佐々木啓一[2]、石井弓美子[3]、林誠二[3]、関根勉[2]、福本学[2,4]、篠田壽[2]、北村哲浩[1]

【緒言】生体内の放射能分布調査において、硬組織は測定対象の 1 つとされてきた。福島第一原発事故後においても、硬組織はウシ生息環境中の ^{90}Sr [1] と ^{137}Cs [2]の分布の指標となった。

硬組織の中でも、歯は特殊な形成・代謝メカニズムをもつ。歯の構成成分は形成時期に基質に沈着し、形成が終了すると歯の組織はほぼ入れ替わらない。そのため、歯は形成時期における生体の ^{90}Sr の取り込みを記録する [3]。さらに、歯の組織であるエナメル質と象牙質では組織液との接触表面積が異なる。そのため、ある 1 本の歯の内部でも ^{90}Sr と ^{137}Cs の分布が異なる可能性がある。

また、魚類の耳石は層状に組織が蓄積する。耳石の蓄積性は魚の年齢推定や微量元素取り込みの変化による生息環境の追跡に利用されている [4]。耳石の蓄積性に注目することで、^{90}Sr と ^{137}Cs の魚類の生息環境での分布を過去に遡って解明することが期待される。本研究では、硬組織の性質・特徴を利用し、1 検体の歯や耳石から動物生息環境中における ^{90}Sr と ^{137}Cs の分布の時間変化の推定を目指す。

【測定試料と実験方法】2012 年に大熊町において採取されたウシから、事故時点で形成途中であった歯を採取した。魚類の耳石は、2017 年に福島県飯舘村および猪苗代町において採取したウグイより摘出した。それぞれの歯、耳石は採取後に洗浄、乾燥した。歯は、粉砕した後、エナメル質と象牙質に分離した。^{90}Sr 測定のために、歯試料を 8 M 硝酸に溶解後、Sr resin による化学分離を行った。分離後の溶液から炭酸塩沈殿を作製し、2π ガスフロー検出器による β 線測定に使用した。歯、耳石中の安定 Sr および安定 Cs は、試料をマイクロウェーブ分解によって溶液化し、ICP-MS によって定量した。また、耳石はエポキシ樹脂によって包埋後、鏡面加工し EPMA による元素マッピングを行った。

【結果と考察】事故時点で形成中の歯において、エナメル質の ^{90}Sr 比放射能（105 ± 6 Bq g^{-1} Sr）は象牙質の比放射能よりも低い値（140 ± 7 Bq g^{-1} Sr）であった。このように歯の形成時期が事故をまたいだ場合、歯の組織内で ^{90}Sr の分布に差があることが示された。この ^{90}Sr 比放射能の変化は、事故前後のウシ生息環境中での ^{90}Sr の分布の変化を表していると考えられる。

同一個体内のウグイ骨と耳石において、安定 Sr は骨が耳石よりも高濃度であった（骨 : 226 mg/kg、耳石 : 94 mg/kg）が、安定 Cs は骨が耳石より低濃度であった（骨 : 61 μg/kg、耳石 3 μg /kg）。また、耳石中での安定 Sr、安定 Cs の分布は一様であった。したがって、耳石内で安定 Sr や Cs に対する ^{90}Sr と ^{137}Cs の分布に変化があれば、河川や海洋での分布の変化を示唆すると考えられる。今後、ウシや魚類生息環境中での ^{90}Sr や ^{137}Cs の移行状況と照らし合わせることで、歯や耳石から環境中の ^{90}Sr や ^{137}Cs 分布についての時間変化が推定可能であることが示された。

[1] K. Koarai *et al.*, *Sci. Rep.*, **6**, 24077, (2016). [2] K. Koarai *et al.*, *KEK Proc.*, **6**, 202, (2017). [3] K. Koarai *et al.*, *J. Environ. Radioact.*, **183**, 1, (2018). [4] Y. Sano *et al.*, *Appl. Geochemistry*, **23**, 2406, (2008).

Incorporation record of radionuclides in teeth and otoliths.

KOARAI, K., MATSUEDA, M., FUJIWARA, K., ONO, T., KINO, Y., OKA, T., OKUTSU, K., TAKAHASHI, A., SUZUKI., T., SHIMIZU, Y., CHIBA, M., OSAKA, K., SASAKI, K., ISHII, Y., HAYASHI., S., SHINODA, H., KITAMURA, A.

1B12 歯を用いた内部被ばく状況の把握

(東北大歯[1]、東北大理[2]、JAEA[3]、新潟大農[4]、北海道科学大薬[5]、弘前大保健[6]、東北大高教機構[7])○篠田壽[1]、高橋温[1]、清水良央[1]、千葉美麗[1]、鈴木敏彦[1]、木野康志[2]、小野拓実[2]、小荒井一真[3]、岡壽崇[3]、山城英昭[4]、中田章史[5]、葛西宏介[6]、有吉健太郎[6]、関根勉[7]、佐々木啓一[1]、三浦富智[6]

福島第一原発事故により、多量の放射性物質が環境中に放出された。それら放射性物質が、ヒトや動物にどのような影響を及ぼすかについて明らかにすることは重要な課題である。この課題を解決するためには、対象となるヒトや動物の内部被ばく量や外部被ばく量を個体レベルで明らかにし、それら被ばく線量との関係において、放射線の生物への影響を議論することが重要となる。しかし、過去にまで遡って個体の被ばく線量を明らかにする手段は限られている。一方、骨や歯といった硬組織中には、トリウムやウラン壊変系列を構成する各種放射性核種や ^{40}K といった自然放射性核種が例外なく含まれており、さらに、原発事故や過去の核実験等に由来する ^{90}Sr 等も含まれる。硬組織、特に歯は、その形成期に歯質中に環境から放射性物質を取り込み、それらは代謝されることなく蓄積性に歯の中に保持されることが知られている。その量は、歯が形成される時期に体内に取り込まれた放射性物質の量に比例すると考えられので、それらの歯質中濃度は、環境中から体内に取り込まれた量(内部被ばく量)を反映していると考えることができる。本研究においては、福島県浪江町において捕獲した野生アカネズミと野生アライグマの硬組織中の放射線レベル(QL値／Quantum Level)をイメージングプレート(IP) により測定した。すべてのIP上にはKCLで作成した基準尺(^{40}K *vs* QL値)を置き、IP間の感度の違いを補正した。その結果、次のような所見を得た。

(1)アカネズミの歯のQL値は、捕獲地の空間線量率に依存した緩やかな相関を示した。しかし、同じ空間線量率を示す地域においても、個体間の差は大きく、そのバラツキが、個体間で5倍以上に達する地域もみられた。

(2)アカネズミ切歯のQL値は切歯中の ^{137}Cs や ^{134}Cs の値と高い相関を示した。

(3)アライグマの歯と骨のQL値には高い相関がみられた。また、両者とも、アカネズミ同様、捕獲地の空間線量率と緩やかな相関を示した。しかし、同じ空間線量率を示す地域で捕獲された個体であっても、個体間のバラツキは6倍以上に達する例がみられた。

(4)アライグマの歯や骨のQL値は、同一個体内の大腿筋や肝臓中の ^{137}Cs、^{134}Cs の値と高い相関を示した。

以上、アカネズミやアライグマの歯の放射線量(QL値)は組織中の ^{137}Cs や ^{134}Cs 濃度と高い相関が見られることからも、個体の内部被ばく状況を反映する指標になり得ると考えられる。また、同じ地域に棲息する個体であっても、内部被ばく量には個体間で大きなバラツキがあることが示唆された。アカネズミやアライグマの歯に限らず、ヒトも含め、動物の歯の放射線量を測定することにより、個体の内部被ばく状況を簡便にスクリーニングできる可能性があると考えられる。

Radioactivity in teeth as an index of internal exposure to radiation

SHINODA,H., TAKAHASHI,A., SHIMIZU,Y., CHIBA,M., SUZUKI,T., KINO,Y., ONO,T., KOARAI, K., OKA,T., YAMASHIRO,H., NAKATA,A., KASAI,K., ARIYOSHI.,K., SEKINE,T., SASAKI,K., MIURA,T.

1B13 放射性物質汚染域に棲息するアライグマの硬組織および軟骨組織への放射性物質の取り込み

（東北大 院歯[1]、東北大 院理[2]、東北大 高教機構[3]、原子力機構[4]、弘前大 院保健[5]、弘前大 被ばく研[6]）○清水良央[1]、高橋 温[1]、千葉美麗[1]、鈴木敏彦[1]、木野康志[2]、岡 壽嵩[2,3,4]、小荒井一真[4]、小野拓実[2]、関根 勉[3]、ゴーバレリ[5]、葛西宏介[5]、有吉健太郎[6]、三浦富智[5]、篠田 壽[2]

【緒言】これまで福島第一原発事故により拡散した放射性物質の汚染域に棲息する様々な動物における歯、骨への影響について検討してきた。歯や骨などの硬組織は他の軟組織からなる臓器と異なり、組織の代謝が非常に遅いか代謝がないため、被ばく歴の検討が可能であることを明らかにしてきた。今回、放射性物質汚染域で捕獲された野生アライグマを用いて、硬組織である歯、骨および骨化する軟骨組織の放射性物質の取り込み量について検討を行った。

【実験】害獣として汚染域で駆除された野生アライグマの主要臓器（肝、大腿筋）および頭蓋骨、体幹骨、体肢骨を採取した。イメージングプレートおよびゲルマニウム半導体検出器を用いて、取り込まれた放射性物質を計測し比較を行った。対照として青森および北海道のアライグマを用いた。１．全身骨イメージングプレートによる検討：低線量、高線量地域で捕獲されたアライグマの歯、胸骨、腰椎、尾椎、脛骨、大腿骨（軟骨含む）について黒化度を確認した。２．切歯および脛骨による個体間での違いによる検討：捕獲された全個体でのアライグマの脛骨の水平断面でのイメージングプレートでの検討を行い､各サンプルのQL値を算出し個体間での違いについて比較した。３．肝および大腿筋のセシウム濃度計測：ゲルマニウム半導体を用いてセシウム濃度を計測し比較した。

【結果および考察】１．全身骨イメージングプレートによる検討：イメージングプレートの黒化度は、骨による明らかな違いはみられなかった。大腿骨、脛骨では骨幹部に比べ、骨端部の骨髄腔領域は黒化度が高かった。成長軟骨、椎間円板などの軟骨は骨よりも黒化度が高かった。２．歯と脛骨のQL値は､正の相関を示した。しかし捕獲域の空間線量は歯、骨のQL値といずれも正の相関を示さなかった（図１）。３．大腿筋と肝のセシウム濃度は、環境線量と相関を示さなかった（図１）。肝、筋と歯、脛骨のQL値は正の相関を示した。以上のことから、歯、骨、軟骨は放射性物質が取り込まれ、他の臓器と一定の相関を示すが、捕獲場所の環境線量と明らかな相関はみられず、活動範囲の推定が必要であると思われた。

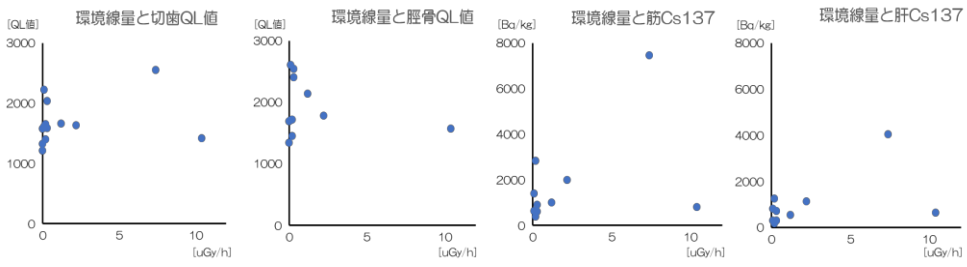

図１．環境線量と切歯、脛骨のQL値、大腿筋および肝のセシウム137との関係値

Radionuclides accumulation in hard and chondroid tissue of racoon affected by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. SHIMIZU, Y., TAKAHASHI, A., CHIBA, M., SUZUKI, T., KINO, Y., OKA, T., KOARAI, K., ONO, T., SEKINE, T., GHO, V., KASAI, K., ARIYOSHI, K., MIURA, T., SHINODA, H.

1B14 PHITS を用いた野生動物の被ばく線量評価のための動物ファントムの検討

(東北大院・理[1]、JAEA[2]、東北大・高教機構[3])
○小野拓実[1]、木野康志[1]、奥津賢一[1]、岡壽崇[2,1,3]、関根勉[1,3]

【緒言】我々は福島第一原発周辺に生息するアライグマやアカネズミなどの動物の放射線による生物影響を調査している。採取した試料の遺伝子や細胞の変異等を調査しているが、放射線影響を評価するためには、個々の臓器について正確な被ばく線量の推定が必要となる。ヒトや一部の動物種では体型に合わせた精密なファントムを用いて線量評価がされているが、多くの動物は回転楕円体や円柱のような形状で表現することで線量評価が行われている。アライグマの精密なファントムを入手することは現実的でないため、本研究ではこれに代わるファントムを制作するための数値実験を行った。よく使われる最も単純な模型では、全身が骨格筋で構成される回転楕円体として計算する。しかし、実際の動物は骨格筋の放射性 Cs 濃度が高く、他の臓器とは放射性 Cs 濃度が異なる。そこで、我々は動物や臓器の形状を回転楕円体や球の組み合わせで表現したファントムを作製し、放射線輸送コード「PHITS」を用いて、全身および臓器の被ばく線量率が骨格筋と臓器の濃度差や臓器の位置によって被ばく線量の推定値がどの程度変動するかを調べ、精密な動物ファントムの制作のための検討を行った。

【数値実験】アライグマを密度 1.0 g/cm^3 の回転楕円体（平均的な大きさから長径 55 cm、短径 13 cm、質量 4.77 kg とした）と近似した。動物は体の中心付近に内臓があり、その周りを骨格筋が囲んでいるため、Figure 1 のような骨格筋と内臓部分の 2 層からなる回転楕円体の組み合わせで表現した。直径 2 cm の球形の臓器が内臓部分の(i)中心および(ii)外縁（骨格筋に接する位置）にある場合について計算を行った。内臓部分の質量は、骨格筋質量の推定値[1]と体重の差として内臓部分の大きさ（長径 46 cm、短径 11 cm、質量 2.75 kg）を定めた。動物体内の放射性 Cs 濃度は骨格筋が高く、各臓器の濃度はその半分程度であるという報告が多いため、アライグマを表す回転楕円体の骨格筋中 ^{137}Cs 濃度は 1000 Bq/kg とし、臓器はその半分の濃度であるとした。骨格筋と内臓の ^{137}Cs 濃度の加重平均から、均質な回転楕円体中の ^{137}Cs 濃度は 710 Bq/kg であるとした。

【結果・考察】Table 1 に 2 層回転楕円体と従来の回転楕円体の 2 つの模型による被ばく線量率の計算結果を示す。全身の被ばく線量率はそれぞれ 3.46 μGy/d および 3.52 μGy/d となり、2 層にすることによる変化は 1.7 %程度で測定精度を考えるとこれ以上の改良は必要ない。一方、臓器については 2 層にすることにより (i) 中心で 24 %、(ii) 外縁で 26 %低くなり、モデルの改良による変化があった。そのため、精度の高い線量評価を行うには解剖学的な臓器の位置を考慮することと、さらなるモデルの改善の必要がある。今後は脂肪や骨格による遮蔽も考慮したさらに精密なモデルを作製する。

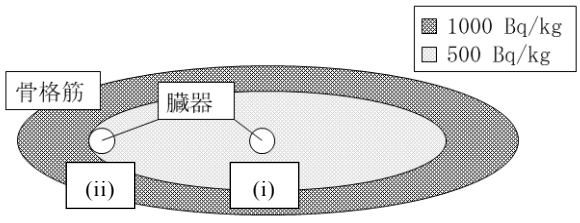

Figure 1. 2 層回転楕円体模型

Table 1. 被ばく線量率の計算結果

	全身の被ばく線量率	臓器と全身の被ばく線量率の比	
	(μGy/d)	(i) 中心	(ii) 外縁
2 層回転楕円体	3.46	1.20	0.522
均質回転楕円体	3.52	1.59	0.706

[参考] [1] H. Hoppeler *et al.*, *J. Exp. Biol.*, **205**, 2143-2152 (2009).

Study of animal phantom for wildlife dosimetry by using PHITS.
ONO, T., KINO, Y., OKUTSU, K., OKA, T., SEKINE, T.

1B15 乳歯に含まれる放射性物質のスクリーニング -イメージングプレートを用いた検討-

（東北大病院[1]、東北大院歯[2]、東北大院理[3]、JAEA[4]、福島県歯科医師会[5]、奥羽大歯[6]、琉球大理[7]、東北大高教機構[8]）○高橋　温[1]、千葉美麗[2]、相田　潤[2]、清水良央[2]、鈴木敏彦[2]、木野康志[3]、岡　壽崇[4]、小荒井一真[4]、池山丈二[5]、海野　仁[5]、廣瀬公治[6]、大野　敬[6]、小坂　健[2]、棚原　朗[7]、関根　勉[8]、佐々木啓一[2]、篠田　壽[2]

【緒言】 福島第一原発事故により乳歯中の放射性物質に増加が認められるかどうかを明らかにすることは内部被ばく状況を把握する上で重要である。そのための基礎として、本研究では、事故以前に形成されたコントロール乳歯について、その中に含まれる放射線量を、イメージングプレート（IP）によりスクリーニングした。

【対象と方法】 福島第一原発事故前に形成された乳歯 4,957 本を用いた。乳歯は福島県内から 4,130 本、福島県外から 827 本収集した。それらの歯を水洗し、唇側面（頬側面）を IP に向けて置き、周囲をシリコン印象剤により埋めた。それらの試料を鉛ブロックによる遮蔽空間で 4 週間露光し、得られた IP 画像の解析から、各歯の放射線の強度を QL 値として求めた。また、IP 間における感度の違いを補正するために、それぞれの IP に既知濃度の塩化カリウムで作成した基準尺を置き、IP 間での感度の違いを補正した。QL 値に与える要因をマルチレベル多変量解析により検討した。

【結果と考察】 福島県から収集された歯の QL 値の平均は 108.4±72.2、福島県外からのものは 113.5±68.8 で福島県の歯は他県に比較して若干低い値を示した。歯の QL 値は収集地に関わらずバックグラウンドより 100 程度高い値を示した。測定に際し、歯科用充填剤そのものに高い QL 値を示す例があったため充填処理が施された歯はすべて測定対象から除外した。また、福島県地方別にみると、地方間で QL 値に有意な違いを認められた。収集地を問わずバックグラウンドより高い QL 値を示すことや地方による違いがあることは、もともと歯には環境から取り込まれた自然放射能が存在し、それらの濃度は地域によって異なることが示唆された。歯種別では、収集地に関わらず上顎前歯部がほかの部位に比較して最も QL 値が高かった。その理由として上顎前歯は環境中の放射性物質を取り込みやすい性質があるためと考えられた。性別、年齢、空間線量率、事故後の口腔内存在期間は QL 値に有意な影響を与える因子ではなかったが、福島県収集歯においては、事故後の口腔存在期間が長くなるほど、高めの QL 値を示す歯が散見されるようになった。これらのデータは今後多く収集されるであろう福島第一原発事故後に形成された歯をスクリーニングするにあたり比較対象として極めて重要な情報を提供するものである。

Screening of radioactivity in the human deciduous teeth using imaging plate
Takahashi, A., Chiba, M., Aida, J., Shimizu, Y., Suzuki, T., Kino, Y., Oka, T., Koarai, K., Ikeyama, J., Unno, M., Hirose, K., Ohno, T., Osaka, K., Tanahara, A., Sekine, T., Sasaki, K., Shinoda, H.

1B16 電子スピン共鳴法による野生動物の外部被ばく線量推定法の検討

(原子力機構[1]，東北大高教機構[2]，東北大院理[3]，東北大病院[4]，東北大院歯[5]，東北大院医[6]，弘前大保健[7]，弘前大被ばく研[8]，北海道科学大薬[9]，東北大災害研[10]，新潟大農[11]，東京医大[12])

○岡　壽崇[1,2,3]，高橋　温[4]，小荒井一真[1]，光安優典[3]，小野拓実[3]，田巻廣明[3]，木野康志[3]，関根　勉[2,3]，清水良央[5]，千葉美麗[5]，鈴木敏彦[5]，小坂　健[5]，佐々木啓一[5]，藤嶋洋平[6]，漆原佑介[6]，Valerie See Ting Goh[7]，有吉健太郎[8]，中田章史[9]，鈴木正敏[10]，山城秀昭[11]，福本　学[12]，篠田　壽[5]，三浦富智[7]

【緒言】 福島原発事故によって放出された放射性物質によって野生動物は長期的な低線量率被ばくを受ける。通常は捕獲地点の空間線量率を元に外部被ばく線量を推定するが，動物は生息域が広いために見積もった外部被ばく線量には不確定要素が大きく，生物影響と明確な相関が得られないことが多い。そこで，電子スピン共鳴（ESR）線量評価法を利用し，歯から外部被ばく線量を直接推定することにした。しかし，動物の歯にはESR測定を阻害する金属成分が含まれていることがあり，ほとんどの場合，綺麗なESRスペクトルが得られない。本研究では動物歯から阻害物質除去する方法を検討し，高汚染地域で捕獲された個体の外部被ばく線量を推定した。

【実験】 コントロール地域で捕獲した野生のニホンザル歯からエナメル質を抽出してESR用試料とした。まず，ESR測定の掃引を0-800 mTの範囲で行い，金属由来のブロードなピークの有無を確認した。ほぼ全ての歯にブロードなピークが観測されたので，金属成分を除去するためにTitriplex III水溶液に浸漬，一部残留している象牙質をNaOH水溶液で溶解した。その後，中心磁場337 mT付近に現れる炭酸ラジカルと有機ラジカルのスペクトルをEPR Dosimetryプログラム [1] でデコンボリューションして炭酸ラジカル強度を求めた。

【結果･考察】 ニホンザルの歯には金属由来のブロードなピークが存在していたが，化学処理を行うとブロードなピークが除去できることがわかった。しかし，大気中で試料を保管していると，3本に分裂する別のラジカルが重なってくることが新たにわかった。これは，化学処理後に試料表面に活性種が残っており，それが保管中に新たなラジカルを生成しているのが原因であると考えた。そこでNaOH処理ののちに試料を酢酸に5分程度浸漬して表面をエッチングしたところ，3本線ラジカルを除去することができ，炭酸ラジカル強度をきちんと求めることが可能になった。本プロトコルを利用して歯の処理を行い，福島県の高汚染地域で捕獲した野生ニホンザルの外部被ばく線量の推定を行った。発表では，アライグマなどの他の野生動物の歯を用いた外部被ばく線量推定についても報告する。

[1] Koshta et al., Appl. Radiat. Isot. 52, 1287-1290 (2000).

Sample preparation procedure for the estimation of external exposure dose of wild animals using electron spin resonance spectroscopy

OKA, T., TAKAHASHI, A., KOARAI, K., MITSUYASU, Y., ONO, T., TAMAKI, H., KINO, Y., SEKINE, T., SHIMIZU, Y., CHIBA, M., SUZUKI, T., OSAKA, K., SASAKI, K., FUJISHIMA, Y., URUSHIHARA, Y., GOH, V., ARIYOSHI, K., NAKATA, A., SUZUKI, M., YAMASHIRO, H., FUKUMOTO, M., SHINODA, H., MIURA, T.