

研究発表要旨
10月27日(金)

4P02~4P45 : ポスター D 会場

核分裂片の原子番号測定のためのグリッド電離箱の開発

(新潟大理¹、新潟大機器分析センター²) ○坂牧雅巳¹、川崎拓馬¹、後藤真一²、工藤久昭¹

【はじめに】

アクチノイドの低エネルギー核分裂において、核分裂片の質量分割が対称になる分裂と非対称になる分裂が確認されているが、分裂の機構に関してはいまだ十分な解明がなされていない。当研究室ではこれまでに、ウランやプルトニウム同位体の陽子誘起核分裂における核分裂片の運動エネルギー分布と質量分布の精密測定を行ない、非対称質量分割には核分裂片の殻効果が影響していることを示唆する結果を得ている。そこで本研究では、非対称分裂における核分裂片の殻効果の影響をより直接的に観測するため、電荷(原子番号)も同時に測定することを考えている。本発表では、核分裂片の運動エネルギー、質量、電荷を高分解能で測定する検出器の開発について報告する。

【実験】

製作した検出器は気体充填型であり、その概略を fig.1 に示す。充填気体をイソブタンとし、グリッド-カソード間距離、グリッド-アノード間距離、印加電圧などを変化させ、検出器を通過する ^{252}Cf の α 粒子の分解能が最良となる条件を探った¹⁾。その条件の下で、アノードを5つに等分割した状態の検出器の動作の確認を行なった。

【結果と考察】

アノード全体と最前部から得られた ^{252}Cf の自発核分裂片のエネルギースペクトルを fig.2 に示す。アノード2~5 から得られたスペクトルは、アノード1に比べてかなり低チャンネル側に観測されたことから、エネルギーの大半を飛程の前方で落としていることがわかった。これは、TRIM²⁾によるシミュレーションの結果と定性的に一致している。発表では、様々なアノード分割の条件での測定結果について述べる。

【文献】

- 1) 坂牧 他, 第49回放射化学討論会
- 2) J.F. Ziegler and J.P. Biersack, TRIM software, SRIM-version 2003.26 (<http://www.srim.org/>)

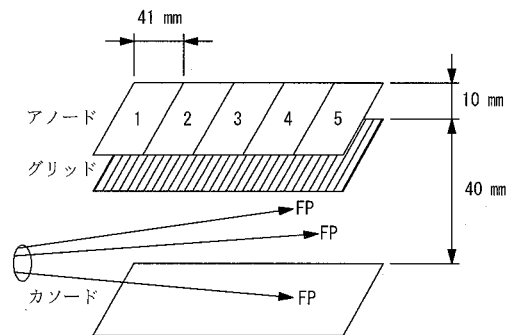
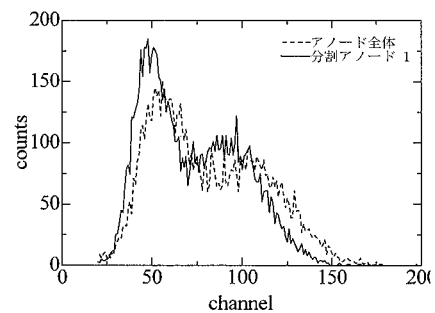


fig.1 検出器の概略図

fig.2 ^{252}Cf の自発核分裂における核分裂片のエネルギースペクトル

Development of gridded ionization chamber for measuring atomic number of fission fragments

SAKAMAKI, M., KAWASAKI, T., GOTO, S., KUDO, H.

Ba+¹⁶O、La+¹⁶O系重イオン核融合反応による重元素合成のための研究
(金沢大院自然¹, 金沢大理², 阪大院理³)

○荒井美和子¹, 木下哲一¹, 南里朋洋², 横山明彦¹, 高橋成人³

【序】重元素合成は、新元素合成や新同位体合成、または核壊変・核構造などの核化学・核物理研究のために重要な研究対象であり、低エネルギーの重イオン核融合反応がよく利用される。二つの原子核が融合するとき、励起状態の高い複合核をつくる。複合核が軽粒子放出でエネルギーを放出すれば、残留核として重元素が合成される。近年注目されている超アクチノイド元素合成においても精密な反応機構の理解が必要となっている。そのためには、核融合反応断面積の基礎的データが重要である。本研究では、アクチノイドと同様に変形核であるランタノイド近傍のBa及びLaをターゲットとして、¹⁶Oとの核融合反応実験を行った。そしてγ線スペクトロメトリー、α線スペクトロメトリーによって求めた反応生成物の放射能から断面積を計算し、理論的な励起関数と比較した。

【実験】大阪大学核物理研究センターにおいて、以下のような照射を行った。天然同位体組成のBaまたはLaをアルミホイルに電着してターゲット (Ba:1.7~2.4 mg/cm²厚、La:0.38~0.96 mg/cm²厚) を調製し、3枚重ね合わせてスタックにした。このスタックに150 MeV、170 MeVの¹⁶O⁵⁺イオンを照射した。照射後、各ターゲットに分けてそれぞれGe検出器を用いてγ線測定を行った。その後、ターゲットを溶かし、溶液の1/10から薄く一樣な水酸化物沈殿の線源を作り、シリコン半導体検出器(SSD)で測定した。溶液の9/10に液体シンチレーターALPHAEX_a 2 mlを加えて振り混ぜ、希土類元素を抽出した溶液試料を作製し、液体シンチレーションカウンターPERALSで測定した。測定した放射能から、反応断面積σを求めた。

【結果と考察】γ線測定及びSSDとPERALSによるα線測定の結果、Baターゲットでは、¹⁴⁶⁻¹⁴⁹Gd、¹⁴⁵⁻¹⁴⁸Euが、Laターゲットでは¹⁴⁹⁻¹⁵²Tb、¹⁴⁷⁻¹⁴⁹Gd、¹⁴⁶Euが検出された。励起関数の実験値を、計算コードALICEによる理論値と比較した。下の図にLaの場合について示した。測定エネルギー領域の比較的低いエネルギーでの上限値や、高い質量数の生成物断面積が大きいことから融合反応のしきい値が理論値より高いことがわかった。

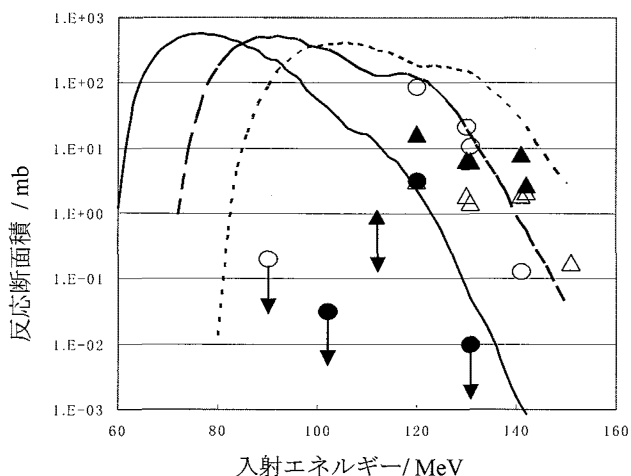


図 La+¹⁶O核融合反応の励起関数から融合反応のしきい値が理論値より高いことがわかった。

Study on the synthesis of heavy elements using the Ba+¹⁶O and La+¹⁶O reaction systems
ARAI, M., KINOSHITA, N., NANRI, T., YOKOYAMA, A., TAKAHASHI, N

$^{229\text{m}}\text{Th}$ の可視・紫外・赤外領域における脱励起光測定

(阪大院理¹、原子力機構先端研²、理研加速器³、京大炉⁴、東北大金研・大洗⁵、金沢大院自然⁶、東北大・核理研⁷)

○中嶋啓二¹、笠松良崇^{1,2}、佐藤渉¹、菊永英寿^{3,6}、高宮幸一⁴、三頭聰明⁵、中西孝⁶、大槻勤⁷、篠原厚¹

$^{229\text{m}}\text{Th}$ には励起エネルギーが約 3.5eVの核異性体、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ が存在する。その励起エネルギーは極端に低いため、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の脱励起過程として内部転換が禁止され、 γ 線遷移が主に起こると予測される。また、通常の核ではほとんど観測例のない電子架橋機構の観測も期待される。電子架橋機構とは原子核の脱励起に軌道殻電子が関与する三次の壊変過程である。特に $^{229\text{m}}\text{Th}$ に関しては最外殻電子がその壊変に関与するため、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ 試料の化学種の違いによって半減期や放出光子のエネルギーが変化することが期待される。

我々のグループではこれまでに 170-650nmの波長領域における高検出効率の光子測定を $^{229\text{m}}\text{Th}$ の塩酸溶液試料、硝酸溶液試料に対して試みてきたが、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ 起源と思われる光子放出は観測されなかった。結果として、放出光子のエネルギーが測定波長の範囲外であるか、測定対象とした化学種での半減期が非常に短い可能性が示された。

今回、さらに異なった化学種に対して光子測定を試みるため、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の水酸化物沈殿試料、フッ化物沈殿試料を作成し、高効率光子測定を行った。測定の結果、水酸化物沈殿、フッ化物沈殿ともに、長期間一定量の光子放出が確認されたが (Fig.1)、他の放射性核種を用いた確認実験の結果、観測された光子放出は試料中の $^{229\text{m}}\text{Th}$ 以外の成分の放射線起源であることが確認された。それらの光子放出成分を除くと、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ に由来する光子放出は観測されなかった。

さらに、従来の測定波長範囲外での発光を見るために、180-900nmに検出感度をもち、かつできる限り効率の高い光電子増倍管 (浜松ホトニクス R943-02) を用いて赤～近赤外まで波長範囲を広げた光測定装置を開発し、妨害光成分の除去など、高効率光測定の環境を整えた。これを用いて $^{229\text{m}}\text{Th}$ 試料に対して光測定を試みたため、その測定結果を合わせて報告する。

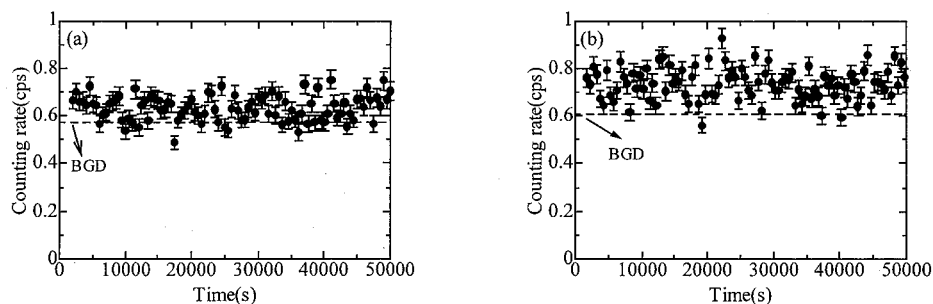


Fig.1 Time variation of the counting rate for photons emitted from $^{229\text{m}}\text{Th}$ samples. (a)The data for $^{229\text{m}}\text{Th}$ hydroxide precipitate sample. (b)The data for $^{229\text{m}}\text{Th}$ fluoride precipitate sample.

Measurement of ultraviolet, visible and infrared light originating from de-excitation of $^{229\text{m}}\text{Th}$

NAKASHIMA, K., KASAMATSU, Y., SATO, W., KIKUNAGA, H., TAKAMIYA, K., MITSUGASHIRA, T., NAKANISHI, T., OHTSUKI, T., SHINOHARA, A.

超重核における自発核分裂の系統的な性質 と原子核の存在限界

(原子力機構) ○小浦寛之、千葉敏

近年成果が著しい超重元素合成実験においてより原子番号の大きい元素が発見されるに伴い、原子核は一体どこまで存在するのであろうかということは極めて自然な問いであろう。軽・中重核では陽子放出限界が原子核の“安定に”存在しうる限界を与えていたが、重・超重核領域においては自発核分裂が存在限界を決定するのに重要な役割を果たしていると考えられる。

本研究では、上記の問題を調べるため、原子核の巨視的・微視的模型の一つである KUY 原子核質量模型 [1] を用いて自発核分裂のポテンシャルエネルギー及び自発核分裂部分半減期を系統的に計算した。この際従来基底状態質量に対して行われた時に比べ、2つの拡張を行った。一つは単一粒子状態の計算に関してであり、配位混合計算に必要な基底数を倍以上増やした。また変形液滴計算部分については、これまでルジャンドル関数展開による多項式で表していたものを数値6重積分の表式に変更した。これにより、基底状態から核分裂に至る広い変形空間での計算が可能となった。超重核領域の核分裂障壁計算の結果を図に示す。

本手法で計算した半減期計算を用いると、1ナノ秒程度以上の半減期を持つ原子核はいわゆる超重核の安定性の島近辺（中性子数 $N=184$ の中性子欠損側付近）では陽子数（原子番号） $Z=130-136$ 程度までであり、また、1秒程度までの核種は大体 $Z=115$ 辺りが上限であろうという結果となった。前者は自発核分裂が主因であり、後者は α 崩壊が主因である。また、核種が存在しうる限界の中性子欠損側は陽子放出可能の限界線ではなく、核分裂の限界線で特徴づけられる。本発表では核分裂が与える原子核の存在領域について議論を行う。

[1] Koura, H. et al., Prog. Theo. Phys. **113**(2005)305.

Systematics properties of spontaneous fission for superheavy nuclei and a limit of existence of nuclei
KOURA, K., CHIBA, S.

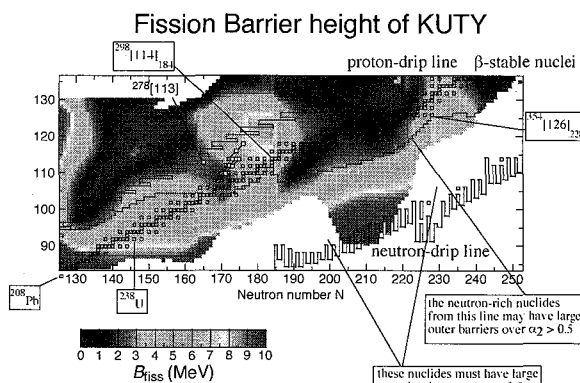


Fig. fission barrier heights for superheavy region

JAEA-ISOL 用イオン源の開発-I

(原子力機構) 長 明彦○、佐藤哲也、市川進一

JAEA-KEK 放射性核種ビーム(RNB)加速計画に基づく、放射性核種ビーム加速実験装置 (TRIAC: Tokai Radioactive Ion Accelerator Complex) での RNB 加速を目的に、原子力機構タンデム加速器に敷設されたオンライン同位体分離器に用いるウラン標的の表面電離型イオン源 (Fig.1) の改良を進めた。Fig.1a)に示すイオン化室では ^{126}In の全分離効率が 0.08%と、重イオン核反应用表面電離イオン源での ^{106}In の全分離効率 0.8%に比べて低かった。イオン化室が厚いことで十分な温度まで上昇させることができないことに起因していると考え、Fig.1 b)に示す薄いイオン化室に変更した。改良したイオン源の性能を確認するため、ウランの陽子誘起核分裂で生成する中性子過剰核のインジウム核種の分離強度と放出時間の測定を行った。

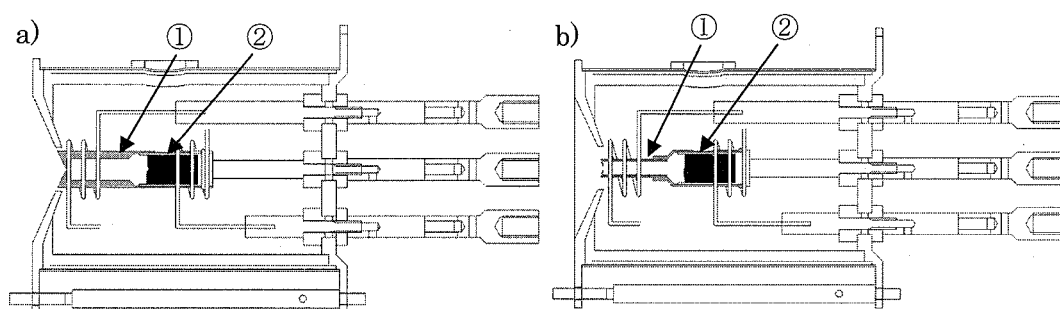


Fig.1. Schematic view of the surface-ionization type ion source;
a) previous version and b) improved version.①:Ionizer, ② UC target.

表面電離型イオン源に装着した炭化ウラン標的($630\text{mg}/\text{cm}^2$)を 33MeV 陽子ビーム(100nA)で照射し、核反応生成物をオンライン同位体分離器で質量分離した。RNB はアルミ蒸着マイラテープに捕集した後、テープ装置で測定位置に移送した。高純度ゲルマニウム検出器により γ 線の測定を行い、分離強度を測定した。

改良型表面電離型イオン源では ^{126}In の全分離効率が約十倍改善された。

Development of Ion source for JAEA-ISOL -I
OSA, A., K.SATO, T., ICHIKAWA, S.

JAEA-ISOL用イオン源の開発-II

(原子力機構) ○佐藤哲也、長 明彦、塚田和明、浅井雅人、市川進一

重イオン核融合反応で生成するアクチノイド核種のオンライン質量分離と崩壊核分光的研究を目的に、我々はJAEA-ISOL(Isotope Separator On-Line)用イオン源の開発を進めている。これまで、アクチノイド核種の質量分離には gas-jet 結合型イオン源が用いられてきた[1]。この場合、様々な標的が使える一方、標的から反跳した生成核をガス気流でイオン源へ導くため、薄い標的しか使うことができない。他方、厚い標的中に生成する全ての核種をイオン源に導くことで、より多くの生成核種を測定に供することが可能になる。本研究では、厚い標的からの Am 核種の拡散・蒸発の振舞いを、表面電離型イオン源を用いて Am 核種をイオン化・分離することで調べた。

イオン源は、投入電力とイオン化室温度の相関が明らかである表面電離型イオン源[2]を用いた。標的には炭素繊維($\phi=100\ \mu\text{m}$, 東海カーボン社製)を母材とした炭化ウラン標的($25\ \text{mg}/\text{cm}^2\ \text{natU}$)を用いた。イオン源に設置した標的に $45\ \text{MeV}\ ^6\text{Li}$ ビーム ($100\ \text{pA}$) を照射して $^{238}\text{U} (^6\text{Li}, 5n)$ 反応で生成する ^{239}Am を ISOL で質量分離し、一定時間アルミ蒸着マイラテープに捕集した後、測定位置に移送して高純度 Ge 検出器により γ 線測定を行って分離強度を求めた。図には、標的中に生成する ^{239}Am を分母とした分離効率のイオン源温度に対する変化を示す。また、Langmuir の式から求めた Am のイオン化効率を点線で示す。2600K で 0.3% の分離効率を、そのときの分離ビーム強度として $1.6 \times 10^3\ \text{atoms}/\text{s}$ を得た。得られた分離効率は gas-jet 結合型イオン源と同等であるが、約 10 倍の有効標的厚みを可能にしたことで、大きな分離ビーム強度を得ることができた。

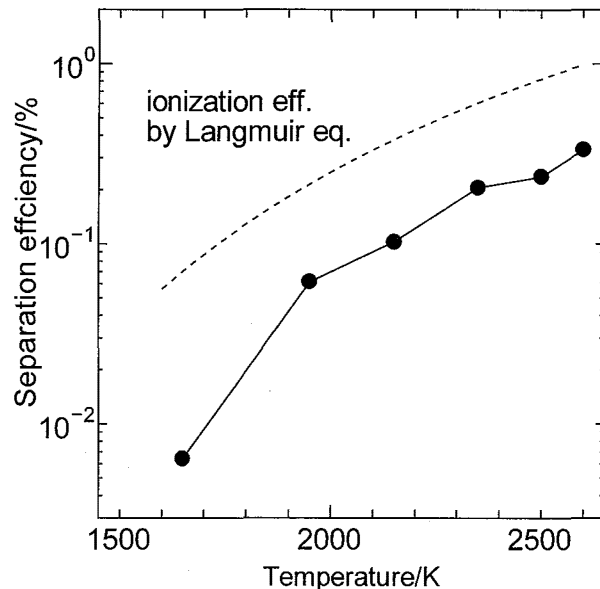


Fig. Separation efficiency for ^{239}Am as a function of ionizer temperature. Dashed line shows a calculation using the Langmuir equation.

[1] S. Ichikawa et al. Nucl. Inst. and Meth. B187 (2002) 548-554.

[2] S. Ichikawa et al. Nucl. Inst. and Meth. A274 (1989) 259-264.

Development for Ion Source of JAEA-ISOL (II)

T. K. SATO, A. OSA, K. TSUKADA, M. ASAI, and S. ICHIKAWA

理研におけるシーボーギウム化学研究に向けた 重元素合成

(阪大院理¹, 原子力機構², 理研仁科センター³, 新潟大理⁴, 東北大金研⁵)
 ○高部智正¹, 雑賀大輔¹, 松尾啓司¹, 田代祐基¹, 大江一弘¹, 栗林隆宏¹,
 吉村崇¹, 豊嶋厚史², 菊永英寿³, 加治大哉³, 羽場宏光³, 工藤久昭⁴,
 三頭聰明⁵, 篠原厚¹

【はじめに】 我々は 106 番元素シーボーギウムの化学研究を行うため、理研AVFサイクロトロンビームラインにガスジェット結合型超重元素合成装置を開発している。今回、 $^{238}\text{U}(^{22}\text{Ne}, 5n)$ ならびに $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)$ 反応によって製造される ^{255}No と ^{261}Rf を用いて本装置の性能試験を行い、これらの反応断面積を測定した。また $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)$ 反応による化学実験対象核種 ^{265}Sg の合成に向けて、大強度 ^{22}Ne ビーム照射試験、および ^{248}Cm 標的照射時の副反応や標的不純物に起因する α 線バックグラウンドの評価を行った。

【実験】 鉛不純物と入射粒子との核子移行反応によって生成する α 測定妨害核種($^{211\text{m}}\text{Po}$ 等)を低減するため、 ^{238}U 、 ^{248}Cm 試料それぞれをイオン交換法で精製した後、 ^{238}U 標的 (0.63 mg/cm^2) および ^{248}Cm 標的 (0.26 mg/cm^2) をBe箔 (2.0 mg/cm^2) 上に電着して作製した。平均 350 pA の $^{22}\text{Ne}^{7+}$ ビーム ($104.9, 106.3, 108.0, 112.5, 115.7, 120.0 \text{ MeV on target}$) と $^{18}\text{O}^{6+}$ ビーム ($94.1 \text{ MeV on target}$) をそれぞれ ^{238}U 、 ^{248}Cm 標的に照射した。反応生成核をHe/KClガスジェット法により照射室から 45 m 離れた回転式連続 α 線測定装置 (RIKEN MANON) に搬送し、 α 線スペクトロメトリーによって ^{255}No 、 ^{261}Rf それぞれの反応断面積を評価した。またガスジェット搬送効率を、 ^{255}No の壊変により生成する ^{255}Fm を用いて次のように決定した。標的に密着させたAl捕集箔 ($10 \mu\text{m}$ 厚、純度 99.999%) に捕集した全ての反跳核と、ガラスフィルター (ADVANTEC GB-100R) 上にガスジェット搬送した反跳核の両方から ^{255}Fm をイオン交換法により分離精製した。そして、それぞれの試料で検出された ^{255}Fm の α 線強度比からガスジェット効率を約 50% と評価した。

【結果】 $104.9\text{--}120.0 \text{ MeV}$ において $^{238}\text{U}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{255}\text{No}$ 反応の励起関数を取得し、 113 MeV 付近において約 90 nb の最大反応断面積を示すことが分かった。また、最大 600 pA の大強度 ^{22}Ne ビームを ^{238}U 標的に照射し、標的の十分な耐久性を確認した。Fig. 1 に $^{248}\text{Cm}+^{18}\text{O}$ 反応系で得られた α 線スペクトルを示す(30s 捕集後 $5\text{s}\text{--}210\text{s}$ 間測定、入射粒子数 1.38×10^{17})。 $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)$ 反応によって生成した ^{261}Rf およびその娘核種 ^{257}No の α 線ピーク ($8.20\text{--}8.40 \text{ MeV}$) をはっきりと確認できた。また鉛不純物と ^{18}O ビームとの核子移行反応によって生成された $^{212\text{m}}\text{Po}$ 、 $^{211\text{m}}\text{Po}$ などの核種も観測された。Fig. 1 に示すように ^{265}Sg の α 線エネルギー領域には $^{211\text{m}}\text{Po}$ などが重なる。そのため、次回予定している $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)$ 反応による ^{265}Sg 合成実験に向けて、更なる標的精製を行いバックグラウンドの低減化を進めていく予定である。

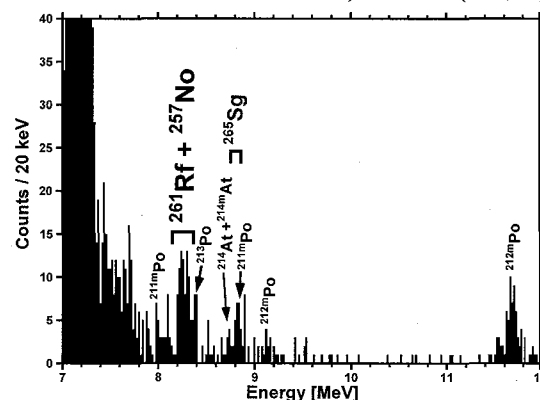


Fig. 1. Alpha spectrum measured in bombardment of the ^{248}Cm target with the ^{18}O ions.

Studies on the heavy element productions at RIKEN for chemical characterization of seaborgium
 TAKABE, T., SAIKA, D., MATSUO, K., TASHIRO, Y., OOE, K., KURIBAYASHI, T., YOSHIMURA, T.,
 TOYOSHIMA, A., KIKUNAGA, H., KAJI, D., HABA, H., KUDO, H., MITSUGASHIRA, T., SHINOHARA, A.

大阪大学核物理研究センターにおけるオンライン化学実験の立ち上げ
 (阪大院理¹, 阪大核物センター²) ○田代祐基¹、雑賀大輔¹、
 北本優介¹、松尾啓司¹、高部智正¹、栗林隆宏¹、大江一弘¹、
 吉村崇¹、佐藤渉¹、高橋成人¹、高久圭二²、篠原厚¹

【はじめに】我々のグループはこれまで重アクチノイド元素を対象にして、溶媒抽出によりその化学的性質を調べることを目的とした研究を行ってきた[1]。加速器によるビーム照射で生成した重い元素の寿命は、数分程度の半減期しかないため、重アクチノイドの研究はターゲットから反跳した生成核を KCl エアロゾルを含む He ガスジェットにより搬送する一連のオンライン化学実験システムが必須である。そこで、大阪大学核物理センターの AVF サイクロトロン、K コースのビームライン整備を行い(Fig.1)、ガスジェット搬送システムおよびマイクロチップ[2]を組み込んだオンライン迅速抽出化学システムを立ちあげた。本研究では、新たに構築されたシステムとその性能試験および、現在取り組んでいるアクチノイド溶媒抽出実験の結果について報告する。

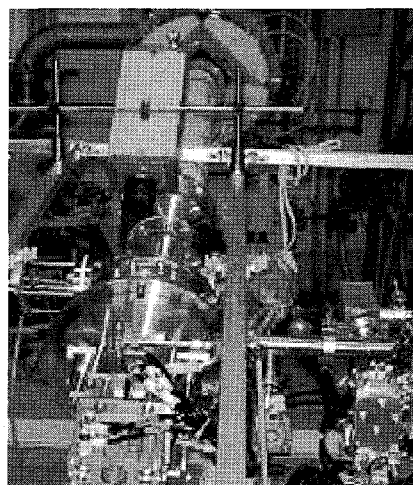


Fig.1. K コース照射装置写真

【実験】今回は、加速器により生成された核をガスジェットで搬送後、捕集ユニット上に集め希塩酸で溶液化、複線式マイクロチップで溶媒抽出を行うオンラインシステムを構築した。マイクロチップ中では別々の入り口から入った水相と有機相が細い溝を隣り合わせに層流となって流れており、本実験系では1秒以内で抽出平衡が達成されることが確認されている。

加速器実験では、はじめに搬送に用いるKClエアロゾルの発生温度、ガスジェットの流量を変え、ガスジェット搬送効率の変化を調べ、それぞれの最適条件を決定した。次に、同条件下で²³⁸U(¹²C,5n)²⁴⁵Cfにより生成したCfの溶媒抽出実験を行った。抽出は水相を希塩酸、有機相にピリジン-TTAベンゼン溶液を用いた。

【結果と考察】搬送効率は KCl エアロゾル発生装置の温度が 640°C、He ガスの流量が 2.5 L/min.の時に最大値をとることが分かった。また、希塩酸で溶液化する際の効率は 60 %ほどであった。複線式マイクロチップを用いた Cf の抽出率は、バッチ実験の結果と一致していた。約 200 秒で溶液化開始からα線スペクト開始までの一連の操作は完結し、迅速なオンライン溶媒抽出を行うことに成功した。今後は Fm、No 等の重アクチノイドについても順次研究を進めていく予定である。

【参考文献】

[1]田代他、第 49 回放射化学討論会 1P11(2005).[2]雑賀他、第 49 回放射化学討論会 1A04(2005).

Startup of on-line chemistry at Research Center for Nuclear Physics, Osaka University

TASHIRO, Y., SAIKA, D., KITAMOTO, Y., MATSUO, K., TAKABE, T., KURIBAYASHI, T.,
 OOE, K., YOSHIMURA, T., SATO, W., TAKAHASHI, N., TAKAHISA, K., and SHINOHARA, A.

複線式マイクロチップを用いたNo²⁺迅速溶媒抽出

(阪大院理¹、原子力機構先端研²、理研³)○田代祐基¹、雑賀大輔¹、
北本優介¹、松尾啓司¹、高部智正¹、栗林隆宏¹、大江一弘¹、
吉村崇¹、佐藤渉¹、高橋成人¹、豊島厚史²、羽場宏光³、篠原厚¹

【はじめに】我々のグループでは重アクチノイド元素の化学的性質を明らかにする事を目的とし、溶媒抽出を用いて研究を行っている。重アクチノイド元素は一般に半減期が短いので迅速に化学操作を行う必要がある。そのため、我々は迅速溶媒抽出操作が可能なマイクロチップに着目した[1]。マイクロチップを用いた抽出では迅速な平衡が達成される一方、我々が取り組んでいる実験系においてマイクロチップ1枚の単位時間当たりの処理能力は20 μl/min.と比較的小さい。本研究では単位時間当たりの処理能力を倍増させるため2枚のマイクロチップを同時に使い、「複線式マイクロチップ」とする事により²⁵⁵Noの迅速溶媒抽出を行ったので報告する。

【実験】抽出剤としてHDEHP(Di(2-ethylhexyl)phosphoric acid)を用い、0.01 M toluene溶液を有機相とした。一方、水相は弱塩基性のアンモニア水を用い、予め有機相と混合してpH 5.9とした溶液を使用した。オンライン実験は理研AVFサイクロトロンC03 コースを用いて行われ、617 μg/cm²の²³⁸Uターゲットに112.4 MeV(on target)の²²Ne⁷⁺ビームを1 runあたり5分間照射した。²³⁸U(²²Ne,5n)²⁵⁵No反応により生成する²⁵⁵Noはガスジェット搬送システムにより実験室に搬送され、上記の水溶液により溶かされた後、複線式マイクロチップへと運ばれ有機相に抽出される。排出された水相・有機相を分取、蒸発乾固した後、α線を測定した。

【結果と考察】一連の操作を34 run繰り返した結果、半減期3.1 min.の²⁵⁵Noが関心領域に40 counts観測された (Fig.1)。分配比は1.8±0.6となり、同族元素の+2価イオンの分配比と比較すると、分配比はCa²⁺>No²⁺>Sr²⁺の順で変化し[2]、イオン半径の大きさCa²⁺<No²⁺<Sr²⁺から予想される結果と一致した。

【参考文献】

- [1]雑賀他、第49回放射化学討論会 1A04(2005).
[2]P.M.Shanbhag,J.inorg.nucl.Chem,Vol.41(1979)1033

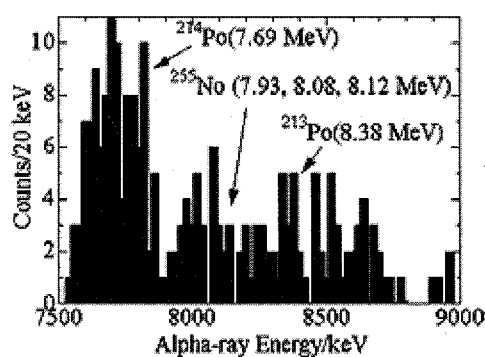


Fig.1.全てのRunについて積算された関心領域付近のα線スペクトル

Rapid solvent extraction experiment of No²⁺ with multi-track microchips

TASHIRO, Y., SAIKA, D., KITAMOTO, Y., MATSUO, K., TAKABE, T., KURIBAYASHI, T.,
OOE, K., YOSHIMURA, T., SATO, W., TAKAHASHI, N., TOYOSHIMA, A., HABA, H.,
and SHINOHARA, A.

カーボンクラスター搬送を用いた気相化学反応の基礎研究
 (新潟大理 1・機器分析セ 2) ○石川 剛 1・後藤 真一 2・工藤 久昭 1

[はじめに]

これまで Rf の化学的性質を調べるため 4 族元素塩化物の気相化学実験に取り組んできた。搬送ガスに He/KCl、反応剤に HCl を使った場合、系内の残留酸素による不揮発性酸化塩化物の生成が問題となっていた。そこで本研究では KCl の代わりに、酸素除去効果の高いカーボンクラスターを用い、気相化学反応による塩素化合物の分離実験への適用について ^{252}Cf からの核分裂生成物を用いて検討した。

[実験]

本実験で用いた装置の概略図を Fig.1 に示した。

核分裂生成物を搬送するためのカーボンクラスターは発生装置内にあるカーボン電極間のグロー放電によって生成される。カーボンクラスターの生成条件（電圧、電流、電極間距離等）および系内圧力、He 流量について

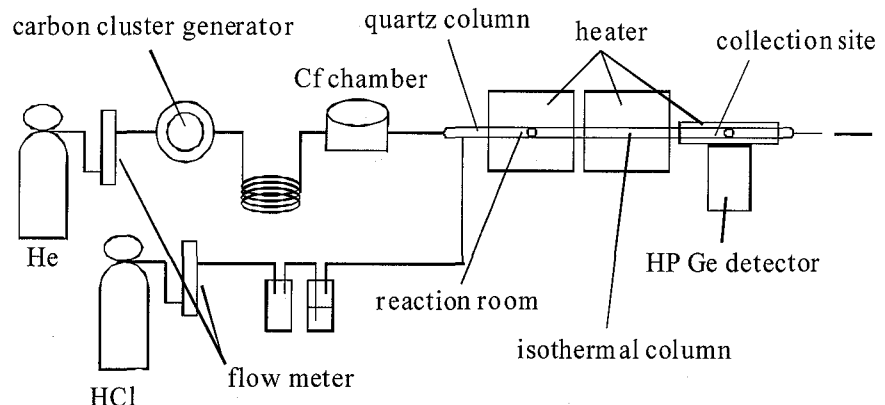


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus

核分裂生成物の最適な搬送条件を調べた。

また、 ^{252}Cf を用いた実験では目的とする Zr 以外にも Mo, Tc, Sb, Te などが観測された。特に ^{97}Zr を観測する場合、 ^{134}Te が γ 線測定妨害となっていた。Te の揮発性は Zr より高いことがわかったので、捕集部にヒーターを巻きつけ、 200°C で加熱することで比較的揮発性の高い Te は捕集せず、Zr のみ捕集するようにした。

[結果と考察]

カーボンクラスターを用いた際の搬送効率を最適な条件下で測定したところ約 50% であった。これは KCl を用いた場合とほぼ同等の結果であり、カーボンクラスターによるガスジェット輸送はオンライン実験に十分適用できることがわかった。

次に、捕集部を加熱した場合、Te のピークが消え ^{97}Zr のピークがはっきりと見え、カーボンクラスター搬送が気相化学実験に適用できることがわかった。また、Te だけでなく、Mo, Tc, Sb のピークも減少し、 γ 線測定の際のバックグラウンドの低減にもつながった。

発表では Zr のクロマトグラフィーについても述べる。

Basic study on gas phase chemistry using carbon cluster transport system

ISHIKAWA, T., GOTO, S., KUDO, H.

単一原子の電気化学的研究に向けた電解セルの開発

(原子力機構先端研¹, 理研加速器², 阪大院理³)○豊嶋厚史¹, 笠松良崇¹, 塚田和明¹, 羽場宏光², 篠原厚³, 永目諭一郎¹

[はじめに] 我々は超アクチノイド元素の酸化還元電位の取得を目指し, 単一原子化学における電気化学分析法の開発を進めている. 酸化還元電位は水溶液中における錯体の酸化還元対のエネルギー差を示し, 特に同じ配位子を持つ同族錯体の酸化還元電位の順序は中心金属のイオン化エネルギーの順序に相当する. 超アクチノイド元素の酸化還元電位を取得する事によって, 価電子のエネルギー準位やそれに及ぼす相対論効果の影響を明らかにできると期待される. 本研究では, ノーベリウム(No)の酸化電位($\text{No}^{2+} \rightarrow \text{No}^{3+} + e^-$)の決定を目的とし, 単一原子化学における電気化学分析法の方法論並びに実験装置の開発を行った. No に酸化電位が近いと予想されるセリウム(Ce)の酸化反応($\text{Ce}^{3+} \rightarrow \text{Ce}^{4+} + e^-$)をトレーサーレベル(原子数 10^{10} 個)で調べ, 実験手法を検討した.

[実験手法・装置] 通常の電気化学法では, 錯体の酸化還元反応に伴う電流測定などによってその電位が決定される. ところが, 超アクチノイド元素では単一原子化学という性格上, 電流の観測は不可能である. そこで, 酸化還元対を化学分離し, それらの比率から電位を決定する手法を考案した. 電解セルのカラム型作用電極を破碎型陽イオン交換体によって化学修飾し, 作用電極上で酸化と同時に陽イオン交換分離を行う装置を開発した.

[トレーサー実験] Ce の挙動が既知である α -ヒドロキシイソ酪酸溶液系において, ^{139}Ce トレーサーのカラム型作用電極からの溶離挙動を $^{85}\text{Sr}^{2+}$, $^{88}\text{Y}^{3+}$ 及び $^{88}\text{Zr}^{4+}$ と共に調べた. 結果の例として印加電圧0.2 V並びに1.0 V (Ag-AgCl 参照電極)での溶離曲線を Fig. 1 に示す. Ce の溶離挙動だけが大きく変化している事がわかる. 0.2 Vと1.0 Vでの溶離挙動は, それぞれ Ce^{3+} と Ce^{4+} のそれに相当し, 約0.75 Vを境として急激に変化する事がわかった. また, この電位は同じ溶液条件において電流測定で求めた0.001 M Ce の酸化電位とほぼ同じであった. よって, トレーサースケールでの Ce の酸化電位測定は成功したと考えられる. 発表では, 最近行った ^{255}No の酸化実験の結果についても報告する.

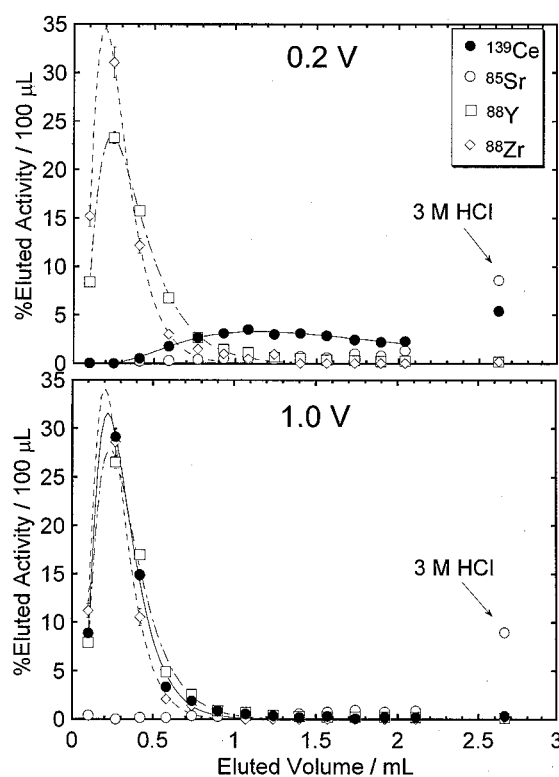


Fig. 1. Elution behavior of ^{139}Ce , ^{85}Sr , ^{88}Y and ^{88}Zr on the chemically-modified electrode in applying potentials of 0.2 V (up) and 1.0 V (bottom).

Development of an electrochemistry apparatus for an atom-at-a-time chemistry

TOYOSHIMA, A., KASAMATSU, Y., TSUKADA, K., HABA, H., SHINOHARA, A., NAGAME, Y.

塩酸溶液系におけるラザホージウムの TOPO 逆相抽出クロマトグラフ挙動

(原子力機構先端研¹, 理研加速器², 新潟大理³, 筑波大院数理物質⁴, 首都大院理工⁵, 阪大院理⁶, 金沢大院自然⁷) ○豊嶋厚史¹, 笠松良崇¹, 塚田和明¹, 羽場宏光², 浅井雅人¹, 石井康雄¹, 當銘勇人¹, 佐藤哲也¹, 西中一朗¹, 永目諭一郎¹, 後藤真一³, 石山剛³, 坂牧雅巳³, 工藤久昭³, 秋山和彦⁴, 大浦泰嗣⁵, 菊永英寿², 大江一弘⁶, 栗林隆宏⁶, 篠原厚⁶, 末木啓介⁴, 横山明彦⁷

[はじめに] 我々はこれまでに塩酸(HCl)系におけるラザホージウム(Rf)の挙動を陰イオン交換法とトリブチルリン酸(TBP)逆相抽出クロマトグラフ法を用いて調べ、六塩化物錯体の形成を示す陰イオン交換樹脂への吸着率の順列が $Rf > Zr > Hf$ となる一方で、TBP への抽出率の順列が $Zr > Hf \approx Rf$ となる事を見出している[1]. Rf の順列のみが異なる事から、Rf 四塩化物錯体への TBP の配位が同族元素 Zr, Hf に比べて弱いと予想される. 本研究では Rf 四塩化物錯体へのリン化合物の配位を系統的に調べるために、トリオクチルホスフィンオキシド(TOPO)を抽出剤として用い、HCl 溶液系における抽出挙動を調べた.

[実験] 原子力機構タンデム加速器施設において、それぞれ $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5n)$ 並びに $\text{Gd}(^{18}\text{O},xn)$ 反応で生成した ^{261}Rf と ^{169}Hf を He/KCl ガスジェット法により α 線測定装置結合型イオン交換分離装置まで搬送した. 捕集した生成物を濃 HCl 溶液に溶解した後、TOPO 逆相抽出カラムに ^{261}Rf 及び ^{169}Hf を吸着させた. その後、2.0, 3.5, 5.0, 7.0 M HCl 溶離液を流し、溶出液をタンタル(Ta)皿に捕集した(Fr.1). さらに、2.0 M HCl 溶離液を流してカラム内に残った ^{261}Rf と ^{169}Hf を溶出させ、溶出液を別の Ta 皿に捕集した(Fr.2). 二つの Ta 皿を赤外ランプと加熱した He ガスにより強熱し、溶出液を蒸発乾固させて α 線測定試料とした. これらの試料の α 線を PIPS 検出器を用いて測定し、 γ 線を Ge 検出器を用いて測定した. また、 $\text{Ge}(^{18}\text{O},xn)$ 並びに $\text{Gd}(^{18}\text{O},xn)$ 反応によりそれぞれ ^{85}Zr 並びに ^{169}Hf を生成し、これらの抽出挙動も Rf と同じ条件で調べた.

[結果と考察] Rf の抽出率は、Zr, Hf の抽出率とほぼ同じように、2.0 - 7.0 M HCl において HCl 濃度の増加と共に増加する事がわかった. この 2.0 - 7.0 M という HCl 濃度は、以前行った TBP 抽出系[1]で抽出率の増加が観測された HCl 濃度(7.0 - 8.0 M)よりも低い. リン化合物が四塩化物錯体に配位しやすいほど、低い HCl 濃度で金属イオンが抽出される. 従って、Rf, Zr, Hf のいずれの四塩化物錯体に対しても、TBP よりも TOPO の方が配位しやすいと考えられる. 詳細は討論会にて報告する.

参考文献 [1]豊嶋ら, 第 49 回放射化学討論会 1A06 (2005).

TOPO reversed-phase extraction behavior of rutherfordium in HCl solutions

TOYOSHIMA, A., KASAMATSU, Y., TSUKADA, K., HABA, H., ASAI, M., ISHII, Y., TOUME, H., SATO, K. T., NISHINAKA, I., NAGAME, Y., GOTO, S., ISHIYAMA, T., SAKAMAKI, T., KUDO, H., AKIYAMA, K., OURA, Y., KIKUNAGA, H., OOE, K., KURIBAYASHI, T., SHINOHARA, A., SUEKI, K., YOKOYAMA, A.

希フッ化水素酸系における Nb, Ta, Pa の陰イオン交換挙動

(原子力機構先端研¹, 理研加速器²) ○笠松良崇¹,
豊嶋厚史¹, 當銘勇人¹, 塚田和明¹, 羽場宏光², 永
目諭一郎¹

これまでの 105 番元素ドブニウム(Db)を対象とした化学実験において、その性質が最近同族元素の Ta と異なり、より軽い同族元素の Nb や、時には擬似同族元素である Pa に似ているといった興味深い結果が得られている。しかし、実験例も少なく、不十分な統計量などの問題もあり、その化学的性質を詳細に議論するには至っていない。我々は、Db のフッ化物錯体に関する研究を計画している。フッ化水素酸はハロゲン化水素酸の中で唯一 5 族元素を容易に溶解する溶液であり、短寿命核種を対象とした迅速化学実験を行うのに適している。本研究では Db とフッ化物イオンとの反応を調べるための実験条件を得るために、その同族元素である Nb、Ta と擬似同族元素である Pa の HF/HNO₃ 混酸中での陰イオン交換挙動を観測した。

実験にはトレーサ量の放射性同位元素 ⁹⁵Nb、¹⁹⁷Ta、²³³Pa を主に利用し、定量は Ge 半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーによって行った。我々は、各元素に対するフッ化物イオンの配位の強さを詳細に調べるため、フッ化物イオン濃度 [F⁻] の非常に薄い領域から幅広い濃度領域 ($1 \times 10^{-6} \text{ M} < [\text{F}^-] < 2 \times 10^{-2} \text{ M}$) において陰イオン交換挙動を観測した。強塩基性陰イオン交換樹脂 MCI GEL CA08Y (三菱化学) を使用し、樹脂への吸着率から K_d 値を算出した。 K_d 値のフッ化物濃度、硝酸濃度依存性の観測から、これら各元素のトレーサ濃度におけるフッ化物イオンとの反応性を調べることができた。また、本実験の条件において、それぞれの元素の挙動が互いに大きく異なることを確認することができた。これらの結果と対象とした化学反応の平衡到達時間の測定結果から、Db の HF/HNO₃ 混酸溶液中での陰イオン交換実験を行うための実験条件を検討する。

Adsorption of Nb, Ta and Pa on anion exchangers in diluted HF media
KASAMATSU, Y., TOYOSHIMA, A., TOUME, H., TSUKADA, K., HABA, H., NAGAME, Y.

EXAFS を用いた Zr、Hf の塩酸系 TBP 抽出における錯体構造に関する研究

(¹筑波大院数理物質、²理研加速器、³原子力機構先端研、⁴原子力機構) ○秋山和彦¹、羽場宏光²、塚田和明³、浅井雅人³、豊嶋厚史³、矢板毅⁴、末木啓介¹、永目諭一郎³

【はじめに】我々は、これまでに新規に開発した逆相抽出クロマトグラフィー用の TBP 樹脂を用いて周期表第 4 族元素 Zr、Hf、Rf の HCl 系における TBP 抽出の強度が $Zr > Hf \approx Rf$ となることを報告した。この抽出挙動の違いを理解するために EXAFS を用いて Zr、Hf の TBP 錯体の構造を調べた。

【実験】測定に用いた試料は Zr、Hf の塩化物をそれぞれ 7 M (Zr のみ)、8 M 及び conc. HCl に溶解し、逆相抽出クロマトグラフィーに用いた TBP 樹脂と共にポリエチレン袋に封入した。この試料を KEK-PF BL27B においてビーム軸に対して 45° に配置し、Zr については K 吸収端、Hf については L_{III} 吸収端の蛍光 EXAFS 測定を行った。入射 X 線の吸収と共に放出される各目的元素からの蛍光 X 線をビーム方向に対して直角に配置された 7 素子 Ge 半導体検出器で検出した。

【結果】TBP 樹脂相へ抽出された Zr、Hf は各 HCl 濃度において、それぞれ非常に類似した動径分布関数 (RDF) を示し (See Figure)、HCl 濃度の変化による錯体構造の変化は確認できなかった。これまでの研究から HCl 濃度 7~8 M、conc. HCl における溶液中の主な Zr、Hf 錯体はそれぞれ $[M(H_2O)_8]^{4+}$ 、 $[MCl_6]^{2-}$ であることが分かっており、TBP 樹脂相への抽出に係わる錯体は HCl 溶液中の存在度としてはそれほど多くない $MCl_4(H_2O)_4$ などの中性錯体と予想され、TBP 抽出強度の順列はこれらから形成された TBP 錯体の安定性と関連しているものと考えられる。発表は HCl 溶液中の錯体構造、陰イオン交換樹脂中における陰イオン錯体構造などから得られた知見と共に周期表第 4 族元素の TBP 抽出挙動に関する議論を行う。

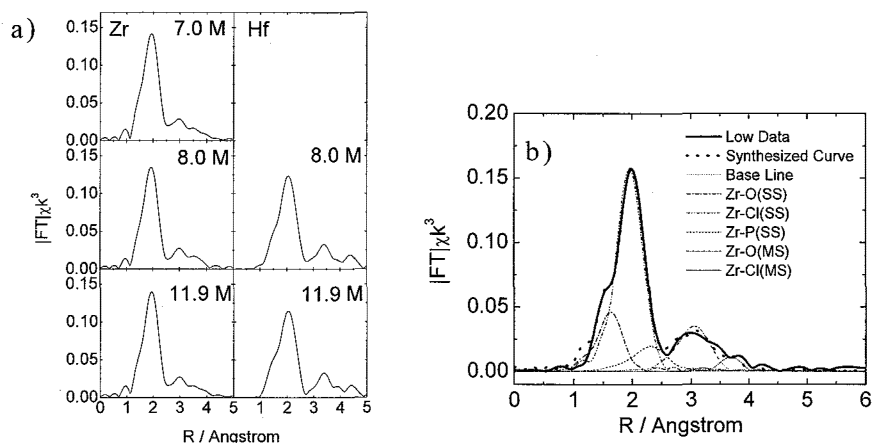


Fig. a): RDF of the TBP complex in each HCl concentration and
b): the result of structural fitting for the Zr-TBP complex.

EXAFS Study for complexation of Zr and Hf with TBP in HCl solution
AKIYAMA, K., HABA, H., TSUKADA, K., ASAI, M., TOYOSHIMA, A.,
YAITA, T., SUEKI, K., NAGAME, Y.,

堆積物を用いた海底への ^{10}Be の蓄積過程の解明
 (日大院総合基礎¹、日大文理²、東大院工学系³)
 ○吉田忠英¹、山形武靖¹、齊藤 敬²、永井尚生²、松崎浩之³

【はじめに】 宇宙線生成核種 ^{10}Be ($T_{1/2} = 1.5 \times 10^6$ y)は、大気上層において宇宙線と酸素、窒素との核反応により生成し、エアロゾルによって大気から地表・海面へと輸送され、最終的に土壌・堆積物中に取り込まれる。従って、 ^{10}Be はグローバルな物質循環のトレーサーとして利用可能であると考えられる。しかし ^{10}Be が海水から海底堆積物へと蓄積する過程に関する情報は少ない。そこで本研究では、海底堆積物中の ^{10}Be 濃度を測定し、堆積物の組成や物性と比較し、海底堆積物への ^{10}Be の蓄積過程について検討した。

【実験】 東京大学海洋研究所白鳳丸KH00-3航海 (BO:2000.6~7)、KH04-5航海(SX:2004.11~2005.03)において、西部北太平洋から東部太平洋、南太平洋にかけて、堆積物表層をマルチプルコアラーにより採取し、1 cm 間隔に切り分けたものを試料とした。乾燥・粉碎した試料0.1gを分取し、濃硝酸・フッ化水素酸を加え加圧酸分解した後、ベリリウム担体1 mg 加えた。アセチルアセトンによる溶媒抽出・陽イオン交換によりBeを単離し、東京大学MALTにて ^{10}Be のAMS測定を行った。主成分元素分析に関しては、試料と無水ホウ酸リチウムを1:10(0.4g:4.0g)で混合させ白金るつぼに移し、ビードサンプラーでガラスビードを作製し、明治大学および高知大学にてXRF測定を行った。

【結果】 赤粘土、石灰質およびケイ質堆積物中の ^{10}Be 濃度は、それぞれ $3.4 - 6.1 \times 10^9$ atoms/g、 $0.9 - 6.5 \times 10^9$ atoms/g、 $2.3 - 4.3 \times 10^9$ atoms/gとなった。赤粘土堆積物中の ^{10}Be 濃度と ^9Be 濃度との関係をFig.1に示す。1ヶ所(BO-4)を除き ^{10}Be 、 ^9Be 濃度は各コア内でほぼ一定であった。BO-4は ^{10}Be 、 ^9Be 濃度の急激な変動が見られたが、これは組成分析結果から火山性の堆積物の混入によるものと推定された。またBO-2, 4を除く5ヶ所のステーションの ^9Be 濃度は2.3-2.6 ppmと狭い範囲内で、中国土壌の平均値2.0 ppmと近い値を示したことから西部北太平洋の堆積物は中国大陸の土壌を供給源としていると考えられるが、BO-2は ^{10}Be および ^9Be 濃度が他と比べて高い値を示した。いずれにしろ中国土壌中の ^{10}Be 濃度の実測値 0.2×10^9 atoms/gよりも海底堆積物の方が約20倍も高いことから、堆積物中の ^{10}Be は、海水から降下した成分が大部分であると考えられる。次に石灰質堆積物(SX-9, 10, 16)の主成分元素(Si, Ca)と ^{10}Be 濃度の関係をFig.2に示す。 ^{10}Be 濃度は、Siに正の相関、Caで逆相関を示すことがわかった。これはCaが堆積物中の ^{10}Be を希釈させるまたは吸着しない可能性を示唆している。

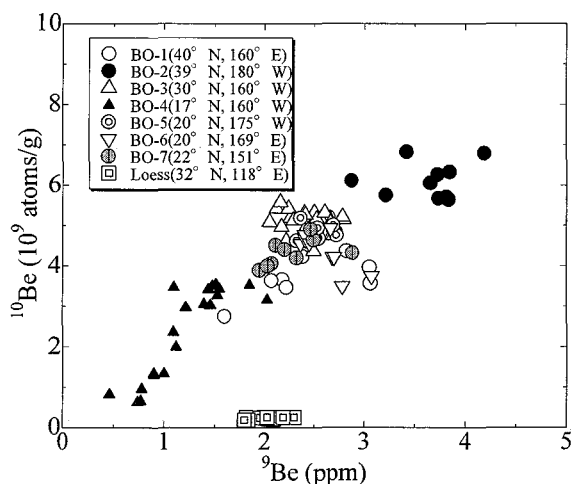


Fig.1 Correlation between ^{10}Be and ^9Be concentration.

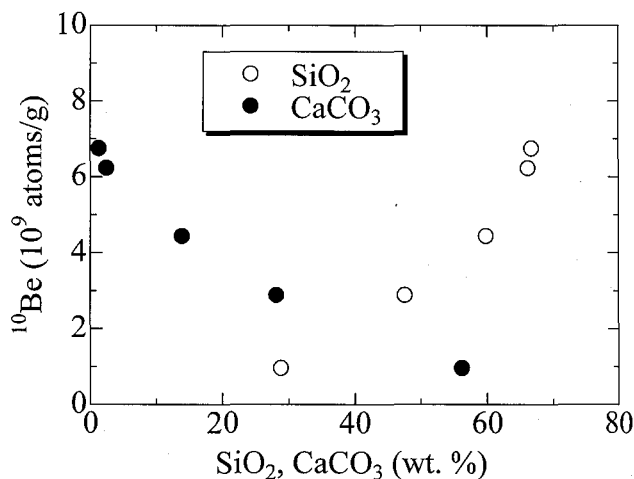


Fig.2 Correlation between ^{10}Be and major elements concentration in the calcareous sediment..

Elucidation of ^{10}Be accumulation mechanism to sea floor with the marine sediment.
 YOSHIDA, T., YAMAGATA, T., SAITO, T., NAGAI, H., MATSUZAKI, H

湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体変動

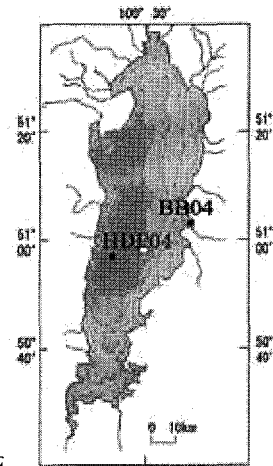
-モンゴル・フスグル湖-

(金沢大・自然計測応用研セ¹, 金沢大院自然²)○山本政儀¹, 坂口 綾², 富田純平², 柏谷健二¹

[はじめに] ユーラシア大陸北東部に位置するロシア・バイカル湖やモンゴル・フスグル湖の堆積物コアから読み取れる種々の指標は、過去から現在に至る大陸内部での環境変動理解の重要な情報を提供する。我々は、これまでバイカル湖の堆積物コア中に存在するウラン(U)・トリウム(Th)同位体の変動を指標に、これら元素の沈積・堆積挙動および気候環境変動との応答を検討してきた。フスグル湖は、大きな流入河川はなく、バイカル湖と比べて標高(1645m)は 1,000m 以上高い所に位置し、容積(383km³)は 1/60 である。このような地理的条件が、日射量変動や湖水面変動などこの地域の環境変動に対する鋭い応答を期待させる。本研究は、この湖から採取した 2 本の堆積物コアについて U/Th 同位体濃度およびそれらの放射能比の深度分布を測定し、フスグル湖での両元素の堆積挙動および気候環境変動との関連を検討した。

[実験] フスグル湖の最深部付近で掘削した 81m(HDP-04, 2004 年 1-3 月採取, 水深約 250m, 3cm 毎に切断) および湖岸の Bortsog Bay から採取した 7.2m(BB-04, 2004 年 8 月採取, 水深 9m, 2cm 毎に切断)の堆積物コアを用いた (Fig. 1)。有機物, 炭酸塩, Biogenic silica (Bio-SiO₂) および鉍物含有量, さらに中央粒径(全岩, 鉍物)の詳細な測定を行なった。U/Th 同位体および化学的情報を得るために, 全分解, 逐次抽出(炭酸塩, Fe-Mn 酸化物, 有機物, Bio-SiO₂ および残渣フラクション)試料について, U/Th の化学分離・ α 線測定(²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th), ICP-AES による安定元素の測定を行った。堆積物の堆積年代は, ¹⁴C 法, ²³⁴U-²³⁸U 法, ²³⁰Th-²³⁸U(²³⁴U)法, Orbital-tuning 法を併用して推定を試みた。

[結果・考察] 堆積年代が 2 万年程度をカバーするコアの環境変動解析から, フスグル湖は最終氷期までは水深が現在よりも 100m 程度低く, 高塩分(硫酸イオンの濃縮)の湖で, その後は降水流入による塩分躍層, 深層の無酸素化が生じたことなどが示唆されている。Bortsog Bay からの 7.2m コア(最深層:¹⁴C年代, 5-6kyrBP)は Holocene 中期以降の環境変動を反映しており, 有機含量が 10-30%と高く, ²³⁸U 濃度は 20-100mBq/g, ²³²Th 濃度は 20-50mBq/g (大部分 40mBq/g 程度)であった。²³⁴U/²³⁸U 放射能比は, 1.51-1.99 の範囲で変動した。現在の湖水の ²³⁸U 濃度は約 7-8 mBq/L で ²³⁴U/²³⁸U 放射能比は約 2 の非平衡状態にありバイカル湖とほぼ同じ状況である。湖最深部からの HDP-04 コアについては気候変動(MIS)に対応するような ²³⁸U 濃度の深度分布(Fig.2)を得ており, 堆積物組成, 環境変動情報等を考慮して, これらの濃度変動さらに ²³⁴U/²³⁸U 比および ²³⁰Th/²³⁸U 比の変動を解析中である。



F sediment cores in Lake Hovsgol, Mongolia

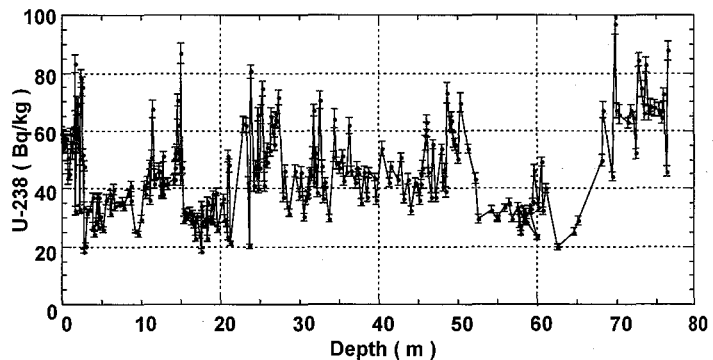


Fig. 2 Vertical distribution of U-238 contents in sediment core (HDP-04) from Lake Hovsgol, Mongolia.

Distribution of Uranium and Thorium Isotopes in Lake Sediment Core - Lake Hovsgol, Mongolia

Yamamoto, M.,¹ Sakaguchi, A.,² Tomita, J.,² Kashiwaya, K.¹ (^{1,2}K-INET, Kanazawa Univ.)

相模湾およびその周辺の表層海水中の ^{228}Ra と ^{226}Ra の定量

(京大炉¹, 敷島製パン², 明治大理工³)
○¹中野 (太田) 朋子、¹窪田卓見、²吉川 真、
³佐藤 純、¹馬原保典

1. はじめに

海洋に流出された重金属の広がりを見積もるためには、海水の動きを把握する必要がある。表層海水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は、 ^{228}Ra の半減期が5.8年と短いため、滞留時間が長くなると小さくなる。このため海水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は水の動きを把握するよいトレーサーになると考えられる。しかし近年、表層海水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は、季節変動が見られることがわかってきた。海洋の重金属の汚染を把握するためには、海水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の季節変動パターンとその要因を明らかにすることが重要になると考えられる。

本研究では、相模湾と東京湾の表層海水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動パターンを次の3地点で観測を行ったので報告する。

- (1) 日本列島からやや離れた、外海に位置する伊豆大島の港湾内
- (2) 外海に面する熱海の漁港内
- (3) 外海からやや閉ざされた東京湾内

2. 結果と考察

秋季に観測された $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は春季に観測されたものより高い値を示し、伊豆大島周辺および熱海では春期に低く、秋期に高い変動パターンを示したが、東京湾では大きな変動はみられず、その変動幅は相模湾に比べて小さかった。陸地に囲まれ、湾口が狭い東京湾の海水は相模湾や伊豆大島周辺の海水より外海の海水が入りにくいため、東京湾の表層海水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は相模湾や伊豆大島周辺のものより変動幅が小さくなったと考えられる。観測した3地点の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動の違いは、 ^{228}Ra 濃度の低い外海の海水の入りやすさが反映された可能性がある。そこで、外海に面する相模湾およびその周辺で表層海水中の ^{226}Ra と ^{228}Ra の定量を行った。日本列島からやや沖に離れた伊豆大島の表層海水中の ^{228}Ra 濃度は、熱海のものと同じ濃度レベルであった。これは、外海に面する熱海の漁港の海水に外海から寄与された海水が多かったため、沿岸であるにもかかわらず ^{228}Ra 濃度の低い外海水によって、薄められた可能性が考えられる。外海に面する状況が異なる3地点((1)-(3))の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動幅の違いは、 ^{228}Ra 濃度の低い外海からの寄与の量の違いに反映されたものと考えられる。

Determination of ^{226}Ra and ^{228}Ra in surface seawater around Sagami Bay and its vicinity

NAKANO-OHTA, T., KUBOTA, T., YOSHIKAWA, M., SATO, J., MAHARA, Y.

現場型超大容量海水濾過装置を用いた北部太平洋 表層における Th 同位体の濃度分布について

(放医研) ○青野 辰雄、中西 貴宏、山田 正俊、日下部 正志

1. はじめに

海水中の Th 同位体は、難溶性であり、粒子に対して高い吸着性を持つことから、炭素エクспортフラックスの推定、粒子輸送や堆積速度等の地球化学的な研究に幅広く用いられている。海水中の Th の存在状態は、大別すると溶存態と粒子態になる。海水中の Th 同位体は低濃度のために、存在状態別に試料を定量するには、大容量の海水試料が必要となる。そこで北部北太平洋表層における粒子の挙動を解明することを目的に、開発した外部電力供給型の現場型超大容量海水濾過・濃縮装置（以下、濾過装置）を用いて、存在状態別の Th 同位体の分析を行った。

2. 方法

JAMSTEC の地球海洋研究船「みらい」の MR04-07 次研究航海や学術研究船白鳳丸の KH05-2 次研究航海において、濾過装置を用いて水深 200 m 以浅の試料の採取を行った。粒子態試料は、大粒子（粒径 70 μm 以上の粒子）と小粒子（粒径 1-70 μm の粒子）の 2 画分に分別した。また Th 測定用の海水試料は、カートリッジフィルター（平均孔径 1 μm ）でろ過を行った海水を二酸化マンガン付着カートリッジフィルター（直列 2 本）に通過させ、溶存態 Th と Ra の吸着濃縮を行った。装置に取付けた積算流量計により、システム毎の積算流量を計測した。採取した粒子試料は、冷凍保存し、研究室へ持帰り、乾重量の測定を行い、酸を用いた湿式分解法により溶液試料とした。この試料を溶媒抽出法やカラム法を用いて、P、Be、Th と Ra を分離、精製した後に、測定用試料とした。一方、二酸化マンガン付着カートリッジフィルターは、灰化した後に溶液試料とし、精製を行い、測定用試料とした。なお、粒状試料の一部については POC（粒子状有機態炭素）の測定を行った。

3. 結果及び考察

西部北太平洋では小粒子態 ^{234}Th 濃度は水深 10m 付近で 0.01-0.02 dpm/L であった。一方、大粒子態 ^{234}Th の濃度は、水深 30m 以浅では検出下限以下であったが、水深 50m 以深で 0.03 から 0.20 dpm/L と増加した。大粒子中の POC 濃度が高い水深では大粒子態 ^{234}Th の濃度も高くなる傾向にあった。POC/ ^{234}Th ($\mu\text{mol}/\text{dpm}$) 比は、大粒子の場合には水深 50m 以浅では 1-1.8、水深 100m 以深では 1 以下に対して、小粒子では 6-70 であった。これは粒子の組成比やプランクトン群集の組成比による結果と考えられる。また水深 100m 以浅では、小粒子態 ^{230}Th が検出された。大粒子態 ^{230}Th は検出下限以下であったが、水深 150m 以深では 0.01-0.03 dpm/ m^3 の濃度範囲であった。この海域は西太平洋暖水塊に位置しており、表層から水深 50m 付近では海水温が高く、海水の密度が小さいために貧栄養状態で、表層よりも温度躍層での生物生産量が高い。大粒子態 Th 同位体の濃度分布はこれらによる影響を受けたものと考えられる。

Vertical Profiles of Thorium Isotopes with the Multiple-unit Large-Volume *in situ* Filtration System in the North Pacific

AONO T., NAKANISHI T., YAMADA M., KUSAKABE M.

マンガンクラストに含まれる微量 Pu 同位体の

高収率分離に関する検討

(金沢大院自然) ○佐藤 優子, 木下 哲一, 横山 明彦, 中西 孝

【はじめに】

先カンブリア代に固化したカリフォルニア産バストネサイト(Ce, La)(CO₃)F, 85 kg から 2.0×10^7 原子の ²⁴⁴Pu が検出されたとの報告があった (D.C. Hoffman *et al.*, 1971)。この ²⁴⁴Pu の起源として, 銀河系で起こっている超新星爆発に伴って合成された ²⁴⁴Pu が定常的に地球に流入している可能性が考えられた (K. Sakamoto, 1974)。この可能性を検証するために我々は深海堆積物や深海底産マンガンクラストに ²⁴⁴Pu を探索する研究を開始した。このような研究においては kg 量の海底堆積物やマンガンクラストから極微量の Pu 同位体を高収率で分離する必要があるが, 従来の環境プルトニウム分析法ではマンガンクラストからコンスタントに高収率でプルトニウムを分離することが難しいことが分かり, マンガンクラスト専用の分析法の検討を行った。

【実験】

ウエーク島～ジョンストン島間の海山上 (水深 1551 m) で 1994 年に採取されたマンガンクラストの表面から 0.5 cm までの核実験起源のフォールアウトで汚染されている層を試料として用いた。マンガンクラスト約 10 g (恒量) を塩酸に溶解した後, 収率トレーサー ²⁴²Pu を既知量添加し, 強塩基性溶液での水酸化物沈殿 (Mn, Ca, Al 等除去), 溶媒抽出 (Fe 除去), フッ化物共沈法でアクチノイドをランタノイドと共に回収し, 亜硝酸ナトリウムによる Pu の還元, 陰イオン交換樹脂カラム法による Pu の分離・精製, 水酸化サマリウム法での線源調製, シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーを行った。このような Pu の回収率向上を目指した化学分離による収率と従来法による収率を比較した。

【結果】

従来の Pu 分析法では 9 回の操作の平均収率が 33.2 % であったのに対し, 今回の方法では 98.8 % 以上の収率が得られた (Table 1)。従来法のどの段階で Pu のロスが大きいのかを丁寧に検討しなければならないが, 高い再現性で高収率が得られるマンガンクラスト専用の Pu 分析法の目途は得られつつあると考えられる。

Table 1 Chemical yield of plutonium separation from manganese crust

Method	Chemical yield / %
Conventional method	33 ± 2
Present method	104 ± 6

High yield separation of trace plutonium from manganese crust

SATO, Y., KINOSHITA, N., YOKOYAMA, A., NAKANISHI, T.

SF-ICP-MS による沈降粒子中の極微量 Pu 同位体の定量

(放医研) ○ 鄭 建、 山田 正俊

We report an analytical method for the determination of plutonium concentration and its isotope ratio ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$) for settling particle samples by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). Due to the small size of settling particle samples available for the analysis for Pu isotopes the generally used approach for Pu preconcentration by increasing the amount of samples is not applicable. Efforts were made to improve the sensitivity of a sector-field ICP-MS (SF-ICP-MS) and reduce the $^{238}\text{UH}^+$ interference for Pu analysis by combining a high-efficiency sample introduction system (APEX-Q). An extremely low detection limit of 0.07 fg Pu was achieved [1], which allowed the determination of Pu isotope ratio at femtogram levels. The precision and accuracy of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratio analysis were carefully examined with a certified Pu isotope standard (NBS-947) and an ocean sediment reference material (IAEA-368). Simple anion-exchange chromatography for the separation and purification of Pu was combined with the APEX-Q/SF-ICP-MS system (Fig. 1) to determine Pu isotopes in settling particles collected in the East China Sea continental margin and in the Okinawa Trough. The obtained results supported a previous observation on the lateral transport of Pu containing particles in this continental margin [2], and suggested that advective lateral transport of dissolved Pu from the open ocean to the ocean margin and removal of Pu into the margin sediments by particle scavenging is a common phenomenon in the Pacific Ocean [3].

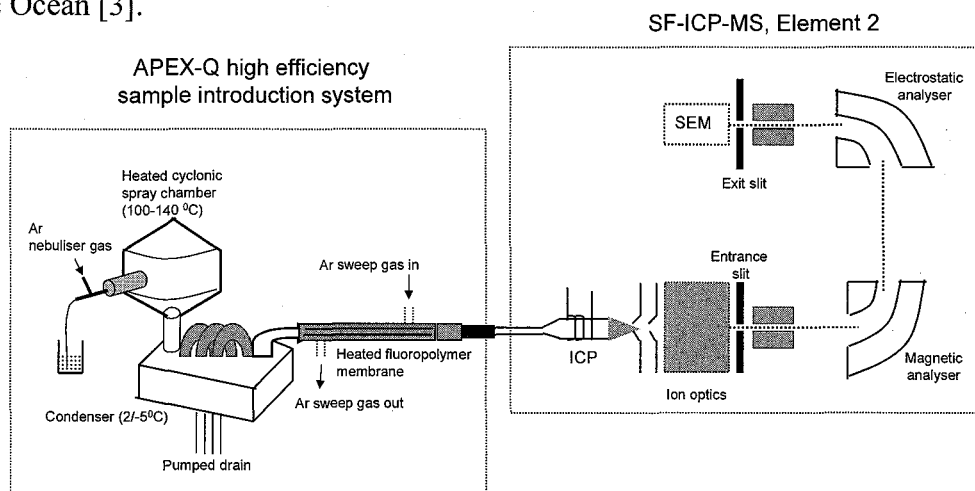


Fig.1 Schematic diagram of APEX-Q/SF-ICP-MS analytical system.

References

- [1] J. Zheng, M. Yamada, *Talanta*, 2006, 69, 1246-1253.
- [2] M. Yamada, T. Aono, *Sci. Total. Environ.* 2002, 287, 97-105.
- [3] J. Zheng, M. Yamada, *Environ. Sci. Technol.* 2006, 40, 4103-4108.

日本近海における海底堆積物中の^{239,240}Pu蓄積量

(金沢大院自然) ○木原 忍, 西澤明子, 長南洋平, 中西 孝

<はじめに> 現在の環境中に存在する人工放射性核種^{239,240}Pu ($T_{1/2}=2.41 \times 10^4$ y, 6.56×10^3 y) のほとんどは 1945 年から 1980 年にかけて行われた大気圏内核実験によって放出されたもので、地球表面積の約 70% を占める海洋はその最大の受容圏となった。海面に降下した Pu の海水中から海底堆積物への移行過程 (Pu を担っている沈降粒子の化学組成や沈降速度) については未だ十分な知見が得られていないので、我々は海水中での Pu の沈降挙動に関係している諸要因を明らかにするために種々の海域において海水と海底堆積物を採取して^{239,240}Pu 濃度の深度分布及び蓄積量の測定を行っている。本研究では、海水中 Pu 濃度の深度分布が測定されている日本海溝と伊豆・小笠原海溝の近傍海域で採取された海底堆積物について、Pu 濃度の深度分布を測定し海水柱中と堆積物柱中で Pu 蓄積量の比較を試みた。

<実験> 東大海洋研・白鳳丸の KH-94-3 次研究航海において日本海溝と伊豆・小笠原海溝の近傍で採取された海底堆積物 (断面積 44.18 cm^2 , 1~5 cm 間隔に切断) を試料とした。風乾堆積物試料を減圧乾燥して秤量し、収率トレーサー²⁴²Pu を既知量添加後、アルカリ溶解を行い、強塩基性溶液での水酸化物沈殿 (Al, Na 等除去), 濃塩酸からの Si 析出・除去, 溶媒抽出 (Fe 除去) の後、陰イオン交換樹脂カラム法により Pu を分離・精製した。精製された Pu をステンレス板上に電着し、Si 半導体検出器を用いて α 線スペクトロメトリーを行った。

<結果と考察> 堆積物柱中と海水柱中の^{239,240}Pu 蓄積量を海域別に Fig. 1 に示す。日本海溝と伊豆・小笠原海溝で海水柱+堆積物柱中の^{239,240}Pu 総量を比較すると、伊豆・小笠原海溝の方がやや多いという程度の違いであるが、堆積物中に移行した^{239,240}Pu の割合は日本海溝の方が高い。日本海溝の方が Pu の沈降が速やかであることを示しており、親潮と黒潮が共存するために生物活動が活発で生物起源の沈降粒子が豊富に存在するためと考えられる。今後、公表されているセディメントトラップのデータ等と比較して考察を進める予定である。

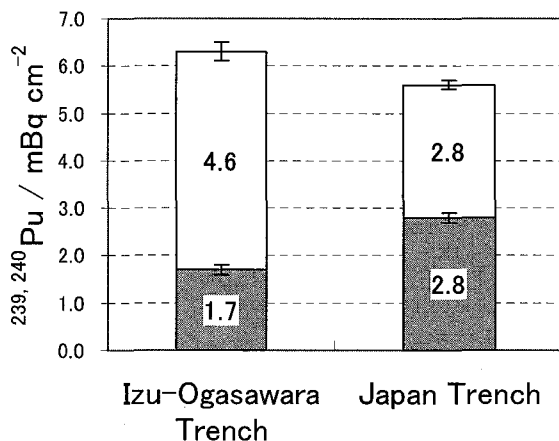


Fig. 1 Pu inventories in seawater and sediment columns in Izu-Ogasawara Trench and Japan Trench.

□ : Pu inventory in seawater column
 ■ : Pu inventory in sediment column

^{239,240}Pu inventories in marine sediments in the Pacific near Japan
 KIHARA, S., NISHIZAWA, A., CHONAN, Y., NAKANISHI, T.

東部インド洋及びその周辺海域における ^{241}Am の深度分布

(金沢大院自然) ○和泉 拓朗, 中西 孝

【はじめに】大気圏内核実験に伴って放出された人工放射性核種が海水中から海底堆積物へと除去される過程の地球化学的メカニズムと時間スケールに関する研究が多数行われてきているが、95番元素アメリシウム(Am)については、海水中濃度が低いために研究が十分に進んでいない。核実験に由来する環境 Am の同位体は ^{241}Am (半減期 432.2 年, α 放射体) であり、 ^{241}Pu (半減期 14.35 年) の β 壊変によって生成する。本研究において 1996~1997 年に東部インド洋及びその周辺海域で深度別に採取された海水について ^{241}Am の定量を行ったので、その結果を報告する。

【実験】東大海洋研 白鳳丸の KH-96-5 次研究航海において深度別の大量採水 (1 試料 約 250 L) が行われ、船上で ^{242}Pu , ^{243}Am などの既知量をトレーサーとして添加後、鉄共沈が行われた。その水酸化物沈殿からまず Pu が分離され (放医研)、次いで Am フラクションを陰イオン交換樹脂カラム法によって精製し、 ^{209}Po の既知量を添加してから銀板法で Po を除去した後 Am の電着を行った。精製 Am の電着線源と Po を析出させた銀板について、シリコン半導体検出器を用いる α 線スペクトロメトリーを行った。

本研究の Am 分析においてとくに留意したことは、Am を精製しても Po を完全に除去できない場合が多く、 ^{210}Po の α 線ピークが ^{243}Am のそれと重なって ^{243}Am の計数値を不正確にするので、Po 析出銀板で求めた $^{210}\text{Po}/^{209}\text{Po}$ 放射能比と Am 電着板の ^{209}Po 計数値を用いて Am 電着板の ($^{243}\text{Am} + ^{210}\text{Po}$) ピーク計数値から ^{210}Po の寄与を差し引いたことである。

【結果と考察】本研究によって得られたフィリピンのスルー海における海水中 ^{241}Am 濃度の深度分布の結果を Fig. 1 に示す。 ^{241}Am 濃度は、表層の低濃度から深度 1000 m 付近まで増加し、中層~底層ではほぼ一定になっていることが分かった。このような ^{241}Am 濃度の深度分布パターンは、表層から深度 1000 m 付近までの間で溶存 ^{241}Pu から生成した ^{241}Am が沈降粒子 (元素組成未解明) に吸着し、沈降粒子は Am を溶出させることなく、また余り離合集散することなくほぼ一定速度で海底方向に海底近傍まで沈降しているというモデルによって説明できる。海底近傍では、Am を吸着した沈降粒子が直ぐに海底堆積物表面に沈積・固定されないで漂っているらしいことも推測できる。

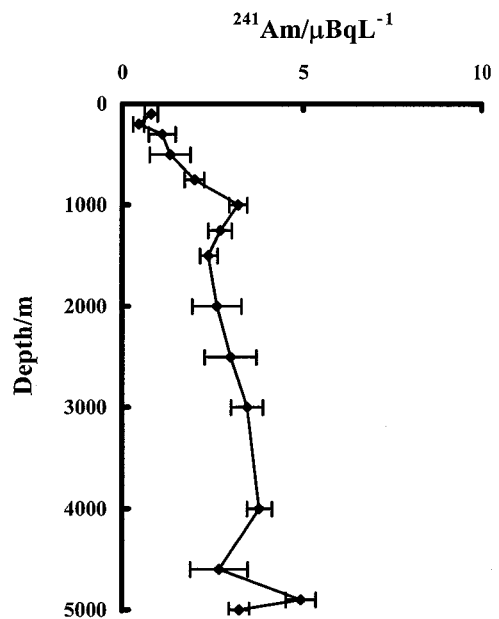


Fig. 1 Depth distribution of ^{241}Am in a water column at 8°N , 121°E (Sulu Sea, water depth 4988 m).

Depth distribution of ^{241}Am in water columns of the Eastern Indian Ocean and its adjacent seas
IZUMI, T., NAKANISHI, T.

秋田県玉川温泉水中のウラン系列核種とトリウム系列核種の放射能
(日大文理¹, 日大院総基²)

○齊藤 敬¹, 山形武靖², 吉田忠英², 塚原博司², 永井尚生¹

【はじめに】

温泉水中のラジウム同位体の放射能の研究は古くから研究されてきている。しかし、ラジウムの親核種であるウラン(^{238}U , ^{234}U)やトリウム(^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th)の濃度を知らずには、温泉水中のラジウムの起源を知る上で非常に重要であるにもかかわらず、あまり研究が進んでいない。

そこで、本研究では以前から研究を続けている、秋田県玉川温泉のウラン、トリウムおよびラジウムの同位体の放射能を測定し、その変動の有無を調べた。

【試料・実験操作】

試料 : 玉川温泉温泉水(大噴から約400m 地点から採水) 2003年7月から2005年6月までの2年間、月に一度購入したもの。

実験操作 : 温泉水中のウラン、トリウムは試料水から、陰イオン樹脂とUTEVA・Spec.を用いて単離し、アルファ線スペクトロメトリにより ^{238}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th および ^{228}Th のアルファ線を測定し濃度を算出した。ラジウムの濃度は、SAITOら¹⁾の測定法を参考に、ガンマ線スペクトロメトリによりラジウムの娘核種から放出される ^{214}Pb (351keV), ^{228}Ac (911keV)および ^{212}Pb (239KeV)のガンマ線から、 ^{226}Ra , ^{228}Ra および ^{228}Th の濃度を算出した

【結果と考察】

U-238とその娘核種の放射能をFig. 1, Th-232とその娘核種の放射能をFig. 2に示す。Figures 1, 2よりウラン系列では ^{230}Th , ^{226}Ra , トリウム系列では ^{232}Th , ^{228}Ra の放射能が冬季に減少する傾向がみられた。これより、玉川温泉の源となる水系は2カ所以上存在し、その混合割合が季節によって変化している可能性が示唆された。

また、今回の測定核種で唯一ラジウムの娘核種として存在する ^{228}Th は、ほぼ一定の濃度を示した。これは、源泉の噴出口の奥底にある北投石($\text{Ba}(\text{Pb})\text{SO}_4$)のような温泉沈殿物中のラジウム(^{228}Ra)から定常的に ^{228}Th が温泉水中に供給されているものと考えられる。

1) SAITO, T. et. al., *J. Balneol. Soc. Jpn.*, **52**, 3-11 (2002).

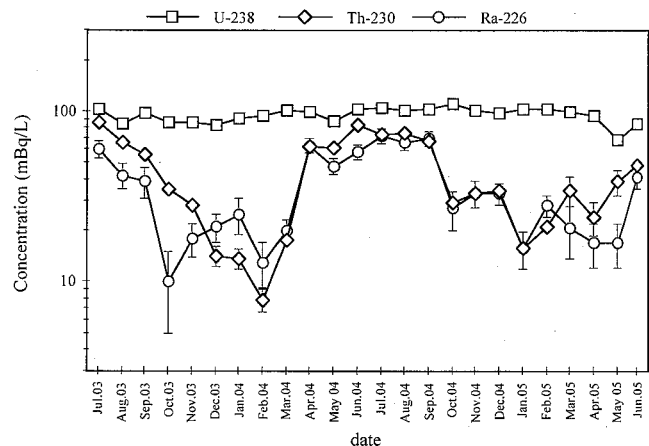


Fig.1 Concentration of uranium and the progenies in Tamagawa hot-spring water.

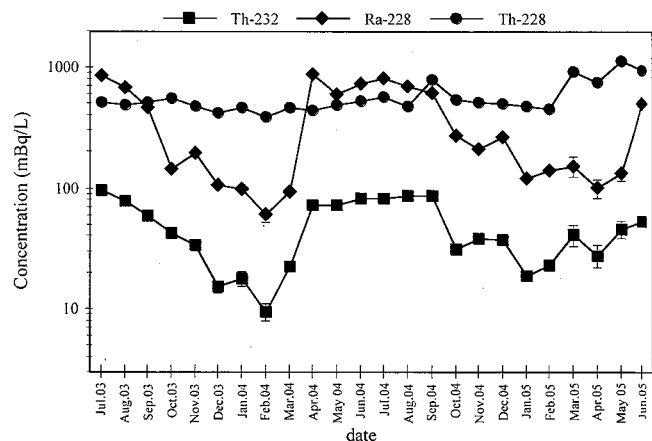


Fig.2 Concentration of thorium and the progenies in Tamagawa hot-spring water.

Radioactivity of uranium-series and thorium-series nuclides in Tamagawa hot-spring water, Akita Prefecture.
SAITO, T., YAMAGATA, T., YOSHIDA, T., TSUKAHARA, H., NAGAI, H.

山形県金丸地区のボーリング地層水中の ウラン系列核種の経年変化

(¹産総研 地質調査総合センター)

○ 金井 豊¹・関 陽児¹・奥澤康一¹・上岡 晃¹

【はじめに】

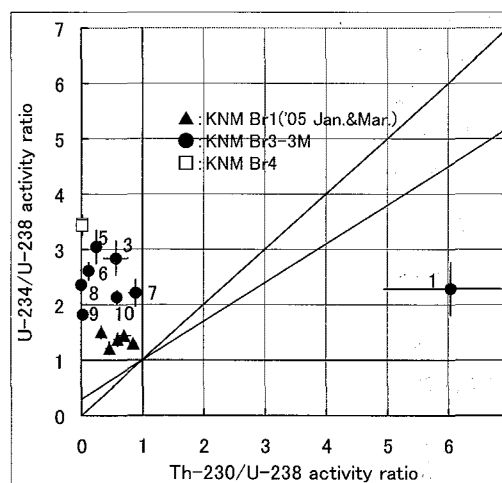
山形県と新潟県の県境付近に位置する金丸地区は、ウラン鉱探査地域として昭和30年代から調査されてきたが、環境中でのウランの動態解明を目的の一つとして、2001年から再調査を行ってきている。ウラン鉱露頭は“H露頭”と呼ばれているが、2002年にその北東の山腹にて37.5m(Br1)、30.0m(Br2)の深度までのボーリング掘削が行われた。その後、数本のボーリング掘削が追加され(Br3, Br4等)、ボーリング井戸で地層水などの調査等が行われてきている。本研究では、そこでのウランとウラン系列核種の挙動を検討したので、その結果について報告する。

【試料採取法と分析方法】

金丸地区周辺は、白亜紀の岩船花崗岩類の上に、新第三紀の釜杭層（主としてアルコーズ質砂岩・礫岩）と上位の下関層（泥岩・ベントナイト層）などが堆積している。孔底深度約30mのストレーナー仕上げ孔井（地下水位は地表から約5m）のBr1, Br2の他にマルチパッカー仕上げのBr3-3（孔底深度約45m）、さらに山頂付近のBr4（孔底深度約55m）等の井戸から定期的に地層水を採取した。その一部について数回にわたり水質やウラン系列核種を検討した。現場では硫化水素固定のため、炭酸ナトリウム-硫酸亜鉛溶液を添加して実験室に持ち帰り、溶存ウランの分析は実験室で行った。試料水中の全ウラン（未ろ過）の分析は、U-232・Th-229スパイクを添加して水酸化物共沈分離後、Eichrom社製TEVAおよびUTEVA陰イオン交換カラムを使用してウランの分離精製を行った。ステンレス板に電着して線源を作成し、アルファスペクトロメトリーでU-238-U-234-Th-230放射能を測定した。

【結果と考察】

Br1およびBr2で採取した2002年の地層水のウラン系列核種を分析したところ、上位地層水で低ウラン、下位地層水で高ウランという結果、および $U-234/U-238 > 1$ であり、上位地層水で $Th-230/U-234 > 1$ 、下位地層水で $Th-230/U-234 < 1$ という結果が得られた。2005年1月、5月も継続して調査したところ、 $Th-230/U-234 < 1$ という結果であり、 $Th-230$ の過剰は認められなかった。これらは大気開放系のボーリングで上下の坑内水の移動や混合の可能性があるため、マルチパッカーシステムを有するBr3-3における地層水の調査も行った。その結果、最上部の地層水で $Th-230/U-234 > 1$ となり、コロイドや懸濁物の可能性が示唆された。また、基底部分でウラン濃度の高いBr4の坑内水も分析して、比較検討を行った。さらに金丸鉱山廃水中のウランや流路にある苔に濃集したウランについても検討を加えた。



Uranium series nuclides in borehole groundwaters at Kanamaru (Br1, 3-3, 4)
金丸地区におけるボーリング地層水中のウラン系列核種

Behaviors of uranium series nuclides in borehole groundwaters at Kanamaru, Yamagata Prefecture.

KANAI, Y., SEKI, Y., OKUZAWA, K. and KAMIOKA, H. (AIST, Geological Survey of Japan)

河川流域におけるトリチウム濃度を用いた環境動態モデル

(九大院理¹, 九大RIセンター², 富山大理³)○広瀬篤志¹, 杉原真司¹, 百島則幸², 前田米蔵¹, 佐竹洋³

1. はじめに

宇宙線や原子力発電所等により大気中に放出されたトリチウム(³H)が拡散移行するとき、大気中に放出されたトリチウムは酸化されて水となり、雨水として地表へと落下した後にさらに地下水、河川水などを経て海中にいたる。このように雨水、河川水などの環境水はそれぞれが密接に関わりを持っている。この循環過程において河川、湖沼水は人類の生活とのかかわりが非常に深く被曝評価の観点から現在のバックグラウンド値を測定することは重要である。そこで日本各地の環境水中のトリチウム濃度を測定し、過去の蓄積データとともに報告する。

また、トリチウムを含む水は化学的にも一般的な水とほとんど変わらないために水の移動を追跡する理想的なトレーサとなりうる。このことからトリチウムをトレーサとして用いることによって環境水の循環過程を明らかにしていく流出解析が過去に行われてきている。本研究では降水、河川、及び地下水中トリチウムをトレーサとして用いて、福岡県に位置する宇美川上流における水収支を明らかにすることを目的とし、コンパートメントモデルにより地下水の滞留時間を見積もった。また、近年の福岡県の降水トリチウム濃度についても報告する。

2. 実験

降水試料は九州大学 RI センターの屋上に採水容器を設置して、2005/5~2005/11、2006/4~2006/8 にかけて降水ごとに採取した。又、河川水試料は宇美川上流にて8箇所サンプリングを行った。試料水は2回蒸留を行った。蒸留後、1.0Lを電解濃縮装置で約7.7倍に濃縮し、そのうち50mlを測定用試料とし、50mlのシンチレータとともに100mlテフロンバイアル内で混合後、液体シン

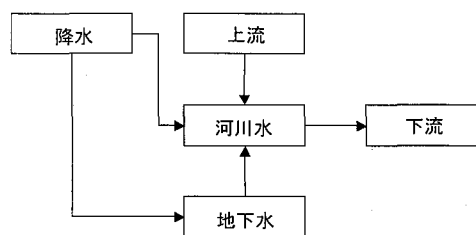


図 河川の流出モデル

チレーションカウンターで20分の測定を50回行った。解析には環境負荷物質移行予測コードMOGRA(Migration Of Ground Additions)により河川の流出モデルをコンパートメントモデルによって構築することを試みた。図にモデルの模式図を示す。

3. 結果

測定した全国の河川・湖沼水の中で北海道の布部川が 2.66 ± 0.041 Bq/Lでもっともトリチウム濃度が高く、高知県の宍道湖が 0.42 ± 0.027 Bq/Lで最低濃度であり、平均トリチウム濃度は 1.16 ± 0.040 Bq/Lであった。以前から報告されているように、トリチウム濃度は高緯度に行くほど高く、低緯度になるほど低くなる傾向が見られた。

Environmental tritium dynamics model in a small drainage basin

Hirose, A., Sugihara, S., Momoshima, N., Maeda, Y., Satake, H.,

伊豆島弧における流紋岩の $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 放射能強度比

(明治大理工) ○高橋 賢臣、栗原 雄一、佐藤 純

1. 緒言

マントル上部で発生したマグマが地表に噴出するまでの過程において、平衡が乱れる可能性がある。これまでの結果¹⁾によると、伊豆-マリアナ弧の火山岩（浅間・富士・伊豆大島・三宅島・神津島・新島）については ^{238}U - ^{234}U 間では放射平衡になっていることが示されている。そこで、結晶分化の最終段階の流紋岩質に着目し ^{234}U - ^{230}Th 間の放射平衡・非平衡関係を観察した。

2. 試料

神津島産火山岩：838年の噴火による流紋岩質噴出物 (Tj₁-Tj₄)

新島産火山岩：886年の噴火による流紋岩質噴出物 (My₁-My₃)

3. 実験操作

1) 化学分離操作

岩石試料を精粉碎した後、HF-HClO₄-HNO₃の混酸で酸分解を行った。分解後の試料を7M硝酸で溶解させ、UTEVA・Specを用いてウランとトリウムをそれぞれ単離した。

2) TTAを用いたウラン・トリウムの精製および線源作成

単離したウランとトリウムの溶液をそれぞれpH2-pH1.5に調整した後、TTA-ベンゼン溶液を用いて溶媒抽出を行い、それぞれを精製した。ウランとトリウムは有機相にあるので、有機相をステンレス製の皿に滴下して高温で皿に焼付け、α線スペクトロメリー用の線源とした。

4. 結果

測定結果をTable 1に示す。神津島・新島の両火山からの噴出物の $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 放射能強度比は1.00で、伊豆-マリアナ島弧の流紋岩質溶岩では、 $^{234}\text{U} = ^{230}\text{Th}$ の放射平衡になっていると考えられる。

Table 1 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ activity ratio in the volcanic products from Kozu-shima and Niijima

Sample	Rock type	Concentration (mBq/g, av.)		Activity ratio (av.) $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$
		^{234}U	^{230}Th	
Kozu-shima (Tj ₁ -Tj ₄)	rhyolite	20.46±0.92	20.35±1.73	1.00±0.10
Niijima (My ₁ -My ₃)	rhyolite	15.92±1.03	15.93±1.13	1.00±0.09

参考文献

1) J.Sato and M.Endo, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **2**, N1 (2001)

$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ activity ratio in volcanic products from Kozu-shima and Niijima

TAKAHASHI M., KURIBARA Y., SATO J.

マイナスイオン効果を謳った壁紙から放出される
ラドンの線量評価

(慈恵医大) ○吉沢 幸夫、箕輪 はるか
(共立薬大) 森田 裕子
(お茶女大) 古田 悦子

「マイナスイオン」という言葉は、人々の健康志向が強まる中、1999年頃からマスコミに登場し始めた。「マイナスイオン」は陰イオン(anion)を指すものではなく、その実体に関して科学的な説明はなされていない。市販の製品には、「マイナスイオン」の発生源として機器、天然鉱石、そして植物加工品を用いるものの3種類がある。これらの多くは、その原理から言って、有益な効果もない代わりに特に有害なこともないと推測される。ところが、広告あるいは説明書に、「マイナスイオン」を発生させるために使用している天然鉱石からの年間被ばく線量に関して書かれている製品がある。広告等の記述が正しいとすると、これらは放射性コンシューマプロダクト(RCP)である。

RCPであるならば、外部被ばくのみならず、室内ラドンによる内部被ばくを増大させる要因となる可能性がある。本研究では、「マイナスイオン」効果を謳った壁紙に含まれる放射能を調べ、被ばく線量を推定し、健康への影響を評価した。

壁紙4種類に含有される放射性核種の同定は、Ge半導体検出器(GC3518、CANBERRA社)および解析ソフト(Genie-2000、CANBERRA社)を用いて行った。その結果、Th系列の ^{208}Tl 、 ^{212}Pb 、 ^{212}Bi 、 ^{228}Ac とU系列の ^{214}Pb が $0.03\sim 0.35\text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ 程度含まれており、モナザイト等のTh鉱石を原材料としたRCPであると考えられた。

試料内の放射性核種の分布状態をFLA-2000とBAS-MS(富士写真フイルム)を用いて調べたところ、いずれの壁紙も表面と裏面で放射線量が違い、表面の放射線量は裏面の5~15倍以上の値を示した。このことから、4種とも壁紙表面に鉱石粉末を塗布してあると考えられた。

壁紙から発生するラドン濃度は、活性炭検出器(PICO-RAD、ACCUSTAR LABS社)を用いて測定した。試料を内容積50Lの密封容器の内部に貼り付け、10日間密封後、発生したラドンをPICO-RADに48時間吸着させた。同時に吸着中の温度および湿度を記録した。その後、液体シンチレータ(Insta-fluor、PerkinElmer社)を10ml加え、液体シンチレーションカウンター(Tri-Carb 3170TR/SL、PerkinElmer社)で測定した。BGを測定するために、密封容器のみで同様の実験を行った。その結果、壁紙の1種はBGの2~5倍のRn濃度を、残りの3種の混合試料はBGの1~1.5倍のRn濃度を示した。

Estimation of effective dose from Rn emanating from the "minus ion" effect wallpaper.

YOSHIZAWA, Y., MINOWA, H., MORITA-MURASE, Y., FURUTA, E.

大気中放射性核種の高解像度同時観測 (金沢大・LLRL) ○阿部 琢也、山口 芳香、田中 究、 小村 和久

はじめに

大気中に存在する放射性核種は、発生源及び供給量がよく把握され、そのほとんどが大気浮遊塵と挙動を共にするので固有の物理的半減期を利用することによって、大気及び大気中汚染物質の移行やその滞留時間を知るトレーサーとして非常に有用である。これまでグローバルスケールの現象の解明を目的として、比較的長寿命核種について、数日～1ヶ月といったサンプリング間隔での観測が数多くなされてきた。一方、アジア大陸から日本海域への人為・自然起源物質の輸送過程といった地域的な情報を得るには、より短時間間隔での観測が必要と考えられていたが、測定上の困難さからほとんど行なわれていなかった。

本研究では、尾小屋地下測定室(OUL)の利用により、従来よりも高い時間解像度(数時間)で複数の地点において同時に、大気中放射性核種 ^{210}Pb 、 ^7Be 及び短寿命の ^{212}Pb の観測を行ない、準地域的な大気の移動を論じることを目的とした。

実験

観測拠点は、1)金沢大学低レベル放射能実験施設(LLRL)、2)高度分布の観測地点として獅子吼高原(標高640 m、石川県白山市)、大陸及び3)本土からの影響評価のため能登半島輪島沖50 km北方に位置する舳倉島(石川県輪島市)の地理的環境を異にする三地点を選んだ。

大気浮遊塵は、ハイボリュームエアサンプラー(SIBATA HV-1000F)を用いて900 L/minの流速において2-3時間間隔で石英ろ紙上に採集した。採集後のろ紙は、その一部を油圧式プレス機を用いて直径35 mm・厚さ3 mmのディスク状に形成し、 γ 線測定試料とした。 ^{212}Pb の測定は、予想される放射能レベルに応じて、LLRLまたはOULにおいて数時間から半日間行なった。 ^{212}Pb の測定後、その壊変を待ってから、全ての試料について再度OULにおいて ^{210}Pb 及び ^7Be の測定を2-3日間行なった。

結果

2005年8月18日から21日に行なったLLRL-獅子吼高原同時観測における ^{212}Pb の濃度変動をFig.1に示す。この変動には二地点間での顕著な位相差が見られた。この結果は、ラドンに見られるように、大気境界層の高さの変化に相関した大気の垂直方向の移動によるものと考えられる。その他、舳倉島における長寿命の ^{210}Pb 、 ^7Be の濃度変動について併せて報告する。

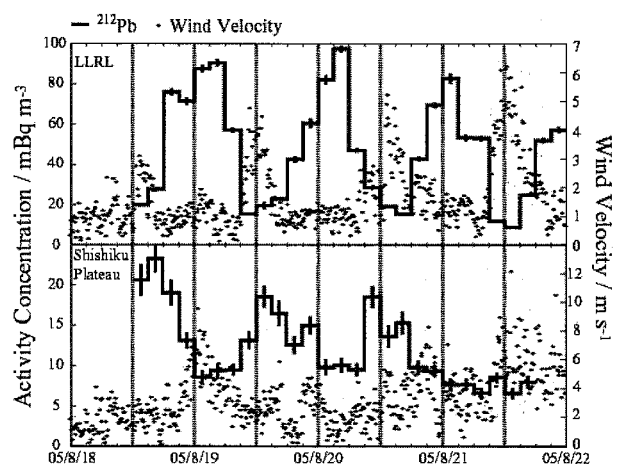


Fig. 1. Atmospheric concentration of ^{212}Pb at LLRL and Shishiku Plateau.

High resolution simultaneous measurements of airborne radionuclides
ABE, T., YAMAGUCHI, Y., TANAKA, K., KOMURA, K.

環日本海域における大気中放射性核種変動の高解像度同時観測

(金沢大LLRL¹, 大阪市大RI²) ○山口 芳香^{1,2}, 阿部 琢也¹,
村田 祥全¹, M.Manikandan N¹, 田中 究¹, 小村 和久¹

1. はじめに

豊富な自然資源に恵まれ、地震や火山活動が盛んであるとともに、気象学的にも極めて特徴的な様相を示すことで知られる一方、人為的原因による化学物質や放射能汚染には弱く、自然及び人為的要因により環境が急激に変化しつつある環日本海域を研究の場として、大気中微量元素の長期的、短期的変動を予測し、それに基づく環境保全・災害防止対策を構築することは、極めて重要な課題と考えられる。

大気中に存在する放射性核種は、大気及び大気中汚染物質の移行やその滞留時間を知る、非常に有用なトレーサーである。空間的に距離をおいた地理的条件の異なる複数地点で、これらの濃度変化を気象変動の時間スケールに応じた短い間隔で、同時に試料を採取して測定するには、超高感度検出器の使用が不可欠である。水深換算 270m の尾小屋地下測定施設 (OUL) に設置した 11 台の極低バックグラウンドγ線検出器を用いることにより、環日本海域における気象変動や自然災害に伴う大気中放射性核種の濃度変動について、従来よりも一桁高い時間解像度で議論することが可能になった。今回は、²¹⁰Pb, ⁷Be および ²¹⁰Po の測定結果について発表する。

2. 実験方法

モニタリング地点として、1) 定常観測拠点には石川県能美市 (旧辰口町) にある当実験施設 (LLRL, 海拔40m), 2) 鉛直分布の観測に適した獅子吼高原 (石川県白山市, 海拔 640m), 3) 大陸からの影響評価の拠点として舩倉島 (能登半島沖50km) を選び、HVエアサンプラーにより 700-900 L/minの流速で、大気浮遊塵を石英繊維濾紙上に採集した。定常観測では LLRLと獅子吼高原は原則 1日間隔、舩倉島は1週間間隔で、気象条件の変動が見込まれる際や自然災害発生時には 1-3 時間間隔でサンプリングを行った。²¹⁰Pb 及び ⁷Beは OUL内設置の極低バックグラウンド Ge 検出器によるγ線測定を行い、²¹⁰Po は ²⁰⁹Poを収率トレーサーに加えて水酸化鉄で共沈捕集し、銀小片上に電着したものを、LLRL内設置の Si 検出器で2~6日間、α線計測により定量した。

3. 結果および考察

短時間間隔の複数地点における同時観測の結果、これまで降雨時前後を除き、大きな変動はないと考えられていた大気中 ²¹⁰Pb及び ⁷Be濃度が急激に変動を示すことや、台風通過時には、宇宙線由来の ⁷Beの濃度が一時的に²¹⁰Pbよりも大きな減少を示すこと、降雪時には、²¹⁰Po / ²¹⁰Pb が極めて低くなること等が明らかになった。現在、春先の黄砂の到来に伴うそれらの濃度変動について解析中である。また、1日間隔の長期的な定常観測で得られた大気中 ²¹⁰Pb, ⁷Beおよび ²¹⁰Poの濃度比較と、季節変化に伴う濃度変動等についても発表する。

尚、濾紙のブランクと鉛からの成長補正量が相対的に大きいため、²¹⁰Poの定量においては、サンプリングから化学分離開始までの時間を短くすることにより、その間に親核種 ²¹⁰Pbから成長する ²¹⁰Poの補正を可能な限り小さくする必要があるが、サンプリング終了から数日以内に化学分離を開始しなければ、期待する精度を得るのは難しいことがわかった。

High resolution Simultaneous Measurements of Airborne Radionuclides in the Pan - Japan sea area
YAMAGUCHI, Y., ABE, T., MURATA, Y., M.MANIKANDAN N., TANAKA, K., KOMURA, K.

1993-2005 年に東海村で採取した大気降下物に関する放射化学的特性研究

(北大院環境科学¹、北大院地球環境²、原子力研究開発機構³、
国立環境研⁴) ○波岡久恵¹、長尾誠也²、入野智久²、上野隆³、荒巻能史⁴、
柴田康行⁴

【はじめに】 大気-陸域間の物質移行では、有機炭素が粒子成分の数~数 10%占めており、その移行状態の全体像を把握する事は、炭素循環システムを解明していく上で重要である。現在までに、大気環境中の有機炭素の特性研究は様々なツールを用いて行なわれているが、分離・測定が難しい化学成分も多く、全ての有機物の起源や特性の特定には至っていない。そこで、本研究では、有機炭素の特性検討を、¹⁴C 測定や放射性トレーサー等を用いた放射化学的な側面から試みた。特に、大気から陸域へのフラックスが著しく増加する黄砂時期に注目し、1993~2005 年間の大気降下物の特性を考察した。

【試料と実験】 試料は、茨城県東海村 JAEA 内建物屋上に設置した水盤 (0.5m²) で採取した。1993 年 9 月~2005 年 3 月の間、各々1 ヶ月間連続して大気降下物を捕集した。捕集後の試料は、蒸発濃縮させ粉末状とした。これらの試料は、well 型 Ge 半導体検出器を用いてγ線測定を行なうと共に、元素分析にエネルギー分散型蛍光 X 線分析計、鉱物同定に X 線回折を用いて測定した。有機物の δ¹³C、Δ¹⁴C の測定は、1N 塩酸で炭酸塩を除去した試料を燃焼させ、真空ラインにより二酸化炭素ガスを分離精製した。その後、鉄を触媒とし水素でグラファイトに還元した。作成したグラファイト試料は加速器質量分析計で測定した。

【結果】 観測期間の全有機炭素 (TOC) フラックスは各年毎に異なり、その変動幅は、0.11 ~2.25g/m² (平均値 0.50g/m²) であった。そして、年間の TOC フラックスのピークは春と秋に現れた。特に春は、ユーラシア大陸から偏西風によって運ばれてくるダストの影響を強く受け、ほぼ毎年、TOC フラックスは年間最大値を示していた。1996, 1998, 2000, 2002, 2004 年 3 月の Δ¹⁴C の値は、-80.2~-5.5‰ 間で変動した。Δ¹⁴C と TOC フラックスの相関図は、右図に示した。TOC フラックスが増えるにつれ Δ¹⁴C の値が減少する傾向が認められた。これは、フラックスの増加に伴い、降下物中の有機炭素の起源が古い物質へとシフトしていく事を示している。本発表では、元素分析やγ線測定等の結果を考慮し、有機炭素の特性やその起源について議論する。

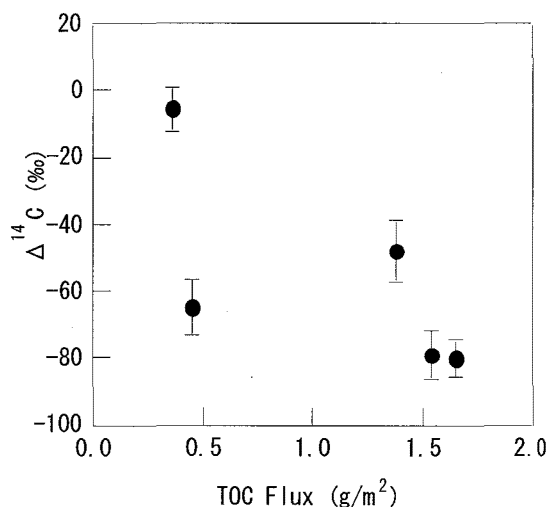


Fig. Correlation between Δ¹⁴C and TOC flux

Characterization of fallout deposition materials during 1993-2005 at Tokai-mura by radioanalytical methods

NAMIOKA, H., NAGAO, S., IRINO, T., UENO, T., ARAMAKI, T., SHIBATA, Y.

主成分分析とトラジェクトリ解析による エアロゾル粒子発生源の季節変動

九大院理 ○森長一朗 杉原真司 前田米藏

大気中にはさまざまな化学成分と大きさを持つ微粒子が存在している。これらの微粒子を総称して大気エアロゾルと呼んでいる。この大気エアロゾルは地球の気候への影響や大気中における反応過程を考える上で非常に重要な大気成分である。そのためこれらの大気中での挙動には大きな関心もたれている。

大気エアロゾルによる影響を考える場合には、各成分の環境中での挙動について調べなければならない。そこで本研究では、採取した大気降下物中の金属元素の分布を調べ、これらの金属元素と天然放射性核種の分布パターンの変化から、主要な成分の起源について推定し、それらの成分の季節変化について考察することを目的としている。今回その起源を推定するために、主成分分析とトラジェクトリ解析を行った。ここで主成分分析とは解析しようとしている多次元のデータを、そこに含まれる情報の損失をできるだけ少なくしていくつかの次元のデータに縮約する手法である。またトラジェクトリ解析とは、ある時間に、ある地点に到達する気塊の流跡線を調べる方法であり、その流跡線を見ることにより到達した気塊の発生源を推定することができる。

サンプルとして用いた大気降下物試料は1ヶ月ごとに採取しており、福岡市（九州大学RIセンター屋上；33.62°N, 130.43°E）において、水盤法（採取面積約0.5 m²）により採取した。採取期間は1995年1月から2006年6月までである。濃縮乾固した試料を、Ge半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによって⁷Be、²¹⁰Pbを測定し、その後金属元素を中性子放射化分析によって定量した。

γ線スペクトロメトリーと中性子放射化分析によって検出された元素について、それらの濃度変化から主成分分析を行ったところ、いくつかの成分が大気降下物試料中の元素濃度に影響を与えていることが分かった。またトラジェクトリ解析は地図作成ソフトのGMTと気象データ解析システムであるMETEXを用いて行い1995/01/01～2006/06/30までの期間の午前9時に採取地点に到達した気塊のトラジェクトリを7日間さかのぼって1日おきに調べた。得られたトラジェクトリをFig.に例示したように大きく3つの方角に分類した。これらの分析結果から、福岡市に影響を与えている成分を推定することができた。

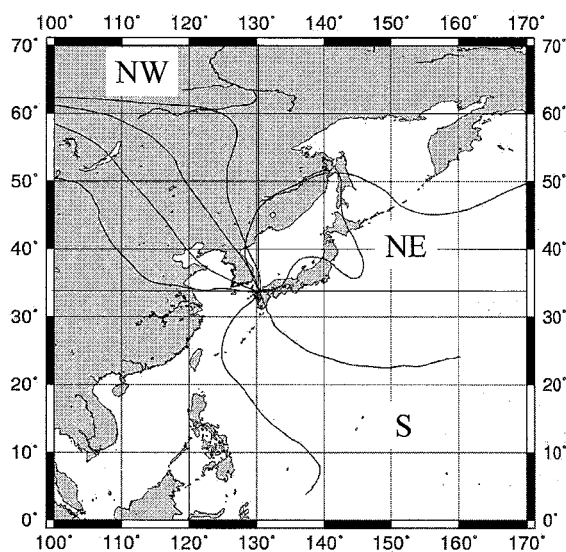


Fig. Example of classified direction.

Seasonal variations of the source of aerosol particles by using backtrajectories and principal component analysis

Morinaga, I., Sugihara, S., Maeda, Y., (Kyushu Univ.)

環境中の α 線放出核種含有粒子検出法の開発

(原子力機構) 江坂木の実、安田健一郎、江坂文孝、
間柄正明、桜井 聡、臼田重和、中山真一

1. はじめに

過去数十年間にわたり、核実験、原子力施設の事故、衛星搭載アイソトープ電池の破壊などにより人工放射性核種が大気環境中に放出されてきた。それらの多くはやがて地表に降下する。これらの粒子の特性（化学組成・同位体組成、物理的形状など）および分布を調査することは、その起源や環境中における挙動を把握する上で重要である。しかしながら、それらは微粒子の形態で存在することが多く、降下物を含む土壌等に通常用いられるバルク分析（平均的な特性分析）は容易であるが、個々の粒子についての特性分析は極めて難しい。この研究は、土壌や堆積物中、および建築物や植物上への降下物中の α 線放出核種含有粒子を固体飛跡検出器を用いて見つけ出し、個々の粒子についての詳細な特性分析を可能にするための検出法の開発である。

2. 実験

土壌模擬試料として、標準土壌（SRM2710）に粒子状の微量の標準ウラン（CRM U350, U_3O_8 , ^{235}U 濃縮度 35%）を加えたものを用いた。この模擬試料をポリカーボネート溶解液と混合し、ガラス板上に均一に伸ばして乾燥させ、フィルムを作成した（図1）。この操作により対象ウラン粒子を含む模擬試料をフィルム中に閉じ込めることが可能となる。このフィルムを α トラック検出器であるバリオトラックで両面から挟みこみ、2週間程度暴露した。フィルムからバリオトラックを外し、7M水酸化ナトリウム水溶液中でエッチングを行った（70°C, 2 h）。エッチング処理したバリオトラックとフィルムを再び重ね合わせ、顕微鏡下でバリオトラック面を観察することにより、ウラン含有粒子を見つけた。個々の粒子を分析するために、窒素レーザーにより対象粒子を含むフィルムを切り落とした。

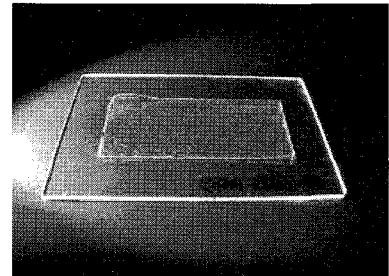


図1 粒子を含むフィルム

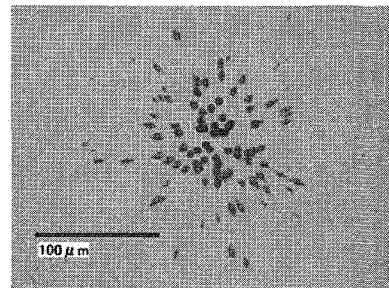


図2 ウラン粒子による α トラック

3. 結果・考察

バリオトラック上に図2のような放射状に広がる α トラックが観察され、フィルム上の対応する位置に α 線放出核種含有粒子の存在を確認した。ウラン粒子含有土壌模擬試料を薄いフィルムに閉じ込め、バリオトラックで挟むことにより、粒子から放出されるほぼ 4π の α トラックを捉えることができる。この高効率性のため、崩壊数の少ない核種の検出にも有効な方法である。発表では、実試料の調整法や個々の粒子の分析例（SEM-EDXによる形態観察および化学組成分析、SIMSによる同位体分析）についても紹介する。

Development of detection method for individual environmental particles containing alpha radioactive nuclides

ESAKA, K.T., YASUDA, K., ESAKA, F., MAGARA, M., SAKURAI, S., USUDA, S., NAKAYAMA, S.

(金沢大 LLRL) ○井上睦夫・小村和久

海水や陸水試料では天然放射性核種 (^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{234}Th など) に加え, 人工放射性核種 ^{137}Cs や宇宙線生成核種 ^7Be といった微弱核種が, 地球化学的トレーサとして利用されてきた。また ^{60}Co , ^{137}Cs などは, 原子力発電所事故や海洋への放射性廃棄物の不法投棄に対する汚染モニタリングに有効である。一方で, これら核種の化学分離過程, 特に微弱核種の測定や試薬/試料比が大きい場合 (低バックグラウンド γ 線測定法を適用する際に多くみられる), 化学試薬由来の汚染が心配される。本研究では, 共沈法に使用される化学試薬を中心に, 放射性核種の汚染を, 実測値から評価する。試薬中の放射性核種は, 通常の化学的分析法では検出困難である。全試薬においては, 尾小屋地下測定室を利用した極低バックグラウンド γ 線測定を適用した。

海水試料からの Ra の分離には, 主に Ba (Pb) キャリアを用いた BaSO_4 (PbSO_4) 共沈法が利用される。本研究では, 多種の Ba, Pb 化学試薬の他, X線造影剤やその原料の重晶石 (BaSO_4), さらには旧金沢城内の鉛などを測定した。Ba 試薬は, その化学的純度に関わらず, 大きな Ra 汚染 (^{226}Ra , 6-90 mBq/g-Ba) を示し, ^{226}Ra の多い試薬では, ^{210}Pb も検出された。一方, 造影剤および重晶石における Ra 汚染は, ^{226}Ra で 0.7-17 mBq/g-Ba と小さかった。また, Pb 試薬に共通して, ^{210}Pb が顕著に検出されたが, 旧金沢城の Pb ではバックグラウンドレベルであった。

海水からの U, Th および Be の分離には, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法が, Cs には AMP (または AMP/Cs compound) による沈殿濃集法が利用されてきた。本研究では, Fe 試薬, AMP および CsCl 試薬についても測定した。これらの結果についても報告する。

沿岸海水試料 (~20 L) に, 目的核種の汚染の少ない Ba キャリア 480 mg, Fe キャリア 800 mg および AMP 4 g (CsCl, 260 mg) を添加, 回収された沈殿混合物 ($\text{BaSO}_4 + \text{Fe}(\text{OH})_3 + \text{AMP/Cs compound}$) に極低バックグラウンド γ 線測定法を適用した。簡便な共沈法の組み合わせにより, 海水試料における ^7Be , ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{228}Ra および ^{234}Th の同時測定を試みる場合の, メリット, デメリットを議論する。

Determination of radionuclides contaminated in chemical reagents

INOUE, M., KOMURA, K.

多チャンネル入力による高速パルス間隔解析を用いた
 空气中ダスト連続モニタリング

(新潟県放射線監視セ¹、(株)ゼットコスモス²、新潟大理³)

○坂上央存¹、藤巻広司¹、加藤健二¹、伊藤成樹²、橋本哲夫³

1.はじめに

新潟県では、東京電力(株)柏崎刈羽原子力発電所(1985年営業運転開始)周辺の環境放射線監視調査の一環として、空气中浮遊じん中の全β放射能連続測定を行っている。原子力発電所からは、主にβ放射体が放出される可能性があり、自然放射能(²²²Rn, ²²⁰Rnの子孫核種等)の変動の下で、人工放射能を迅速に検出・定量する手法の開発に取り組んでいる。

この目的のため、放射線パルスの入射時間の解析により、放射能の定量を可能とする時間間隔解析(TIA)法の導入を試みた。浮遊じん中放射能の主要因子である²²²Rn子孫核種の濃度を、²¹⁴Bi(β)→²¹⁴Po(α)の相関事象に着目してTIA法により評価し、全β放射能との比をとることにより、人工放射能の監視指標とすることが目標である。

2.実験方法

²¹⁴Bi(β)→²¹⁴Po(α)(半減期:164μ秒)の相関事象をモニターするために、測定システムには①μ秒レベルでの②異種パルス間の時間間隔解析能力が必須であり、かつ③解析結果のリアルタイム表示が可能であることが要請された。このために、カスタムの高速時間計測ボードを搭載した測定PC及びソフトウェアを製作した。

浮遊じんの採取は、6時間の自動間欠集塵・測定方式により行ない、検出器はZnS(Ag)薄膜とプラスチックシンチレータを組み合わせたα/β同時検出器を用いた。α線とβ線の信号はそれぞれ矩形パルスに変換されてテレメータ回線により基地局へと伝送されたが、この手前でパルスを分取し、時間間隔測定・解析システムへと導入した。

3.結果・考察

Fig. 1に6時間集塵後の測定結果を示す。本装置は²¹⁴Bi→²¹⁴Poの相関事象を捕える十分な性能があることが示された。また、10分集塵・測定モードや、捕集しながらの同時測定モードへの応用例、及び人工放射能の検出限界についての考察結果を報告する。

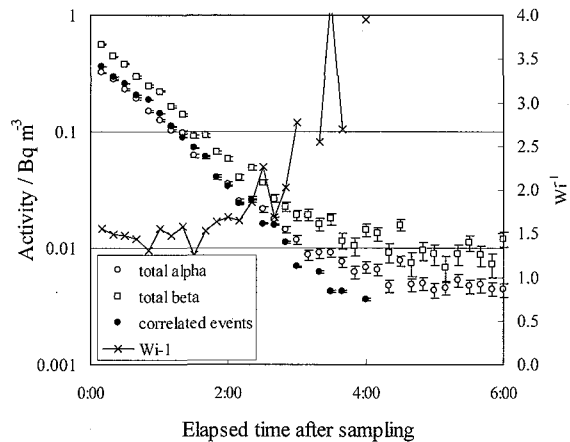


Fig. 1 Results of continuous measurements of α ray, β ray and TIA from airborne dust.

On-line monitoring of radioactive airborne dust using high-speed pulse interval analysis with multi-input channels

SAKAUE, H.,¹ FUJIMAKI, H.,¹ KATOU, K.,¹ ITOU, S.² and HASHIMOTO, T.³

¹Niigata Prefectural Institute of Environmental Radiation Monitoring, ²ZCOSMOS Co., Ltd.,

³Faculty of Science, Niigata Univ.

拭取り試料表面上の元素分布測定装置の開発
(原子力機構) 安田健一郎、間柄正明、桜井 聡、臼田重和、
篠原伸夫

1. はじめに

保障措置環境試料分析では、未申告の原子力活動の検知を目的に、原子力施設で採取された試料中に存在する核物質の同位体比を測定している。分析対象は、主に綿布(TexWipe®304, 10 × 10 cm)による拭取り試料であり、表面に付着した粒子を回収し、個々の粒子について核物質を質量分析するパーティクル分析と、試料全体を灰化・溶解後イオン交換法によって分離・精製し核物質を質量分析するバルク分析を行っている。質量分析を行う場合、共存する不純物に起因する分子イオンが妨害となる¹⁾。このため、妨害となる元素の試料上の分布やその含有量は、パーティクル分析における粒子回収の位置選定やバルク分析における化学処理に有用な情報である。

本研究では、拭取り試料表面の元素分布を測定するための蛍光 X 線測定装置を開発し、その性能を評価したので報告する。開発にあたり、目的元素は妨害となる元素に限らず、原子番号 20 番(Ca)以上の元素を対象とした。

2. 装置の製作

拭取り試料は、IAEAよりビニールバッグ(Ziploc)に封入された状態で送付される。試料の相互汚染等を防ぐため、バッグを開封せずに蛍光X線を測定できるシステムとした。試料は、可能な限り平面を保持するためアクリル製試料ホルダーで固定した後、試料台に乗せ横 5 mm 縦 7 mm ごとにステッピングモーターで走査できるようにした。蛍光X線検出部には電子冷却式 Si 検出器(有効面積: 50 mm², エネルギー分解能@Mn K_α: 160 eV)を採用した。出力 50 W の空冷式 X 線管(Pd ターゲット)は、チラーを要しないため、装置全体で 90 × 75 cm 内に設置できるほどの小型化に成功した。

3. 実験

性能評価にあたり、鉛について実験を行った。TexWipe®304 に鉛の原子吸光標準溶液を滴下しビニールバッグに封入したものを試料とし、5 × 7 mm を 1 pixel として走査し 1 枚当たり 280 点の蛍光 X 線スペクトルを測定、試料全体の元素分布を解析した。各 pixel の測定条件は、Live time: 60 s、管電圧及び管電流: 50 kV, 1 mA とした。

4. 結果と考察

Dead time は約 30% であり、1 枚あたりの測定時間は 6 時間程度となった。図に、拭取り試料上に展開された鉛の測定例を示す。鉛の L_αX 線で評価したところ、30 ~ 1000 ng/pixel において直線性のある相関が得られた。バルク分析の際に、ICP-MS の検出下限である fg オーダーでの分析に影響が現れるのは、試料あたり 10 μg 以上の鉛が含まれる場合であるので、十分な感度を有している。今後、他の妨害元素についても検討する予定である。

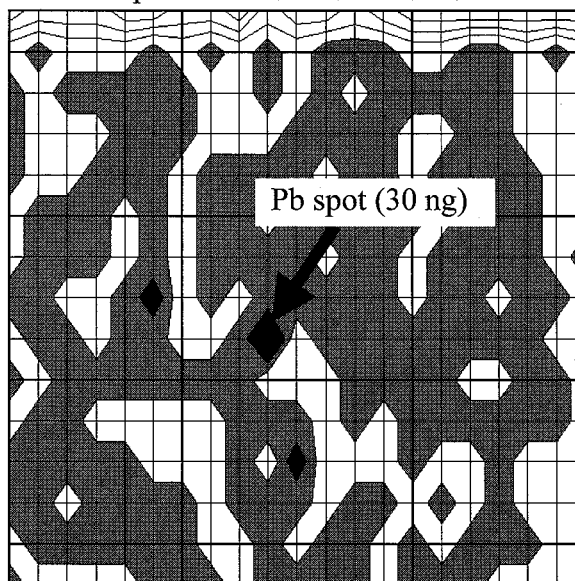


Fig.: Lead distribution image on a cotton smear sample.

¹⁾ 間柄他, J. Nucl. Radiochem. Sci. supplement, 5, p.27 (2004)

Instrumental development for measurement of elements distribution on the surface of smear samples
YASUDA, K., MAGARA, M., SAKURAI, S., USUDA, S., SHINOHARA, N.

*本件には文部科学省からの委託で実施している「保障措置環境分析開発調査」の成果の一部が含まれる。

長崎市西山地区のプルトニウム

(原子力機構¹, 大阪市立大², 近畿大³, 長崎大⁴)○國分(齋藤)陽子¹, 安田健一郎¹, 間柄正明¹, 宮本ユタカ¹, 桜井聡¹, 臼田重和¹, 吉川周作², 山崎秀夫³, 長岡信治⁴

【はじめに】

長崎市上空で原爆が爆発した数十分後、爆心地から約 3 km 東の西山地区に黒い雨とともにプルトニウム(Pu)が降ったと言われている。西山地区の中心部にある西山貯水池は、その周辺に蓄積した物質の最終的な貯蔵槽となる。これまで我々は、被曝後約 60 年経った現在でも西山地区周辺に長崎原爆由来プルトニウムが蓄積し、それが貯水池に供給されていることを明らかにした^{1,2}。今回は、西山貯水池に蓄積した過去 60 年間のプルトニウムの起源の変遷及びその堆積過程等の考察について報告する。

【実験】

2006 年 10 月貯水池ダム堤体中央から北東約 80 m の地点から固定ピストン式シンワールサンプラーを用いて約 620 cm のコアを採取した。岩相を観察した後、深さ方向に 2 cm ごとに分割・乾燥して分析試料とし、Pu 分析には各分析試料の約 1.5 g を、¹³⁷Cs 測定には約 7~40 g を用いた。Pu 分析では、8M 硝酸を加える等の前処理をした後、陰イオン交換法により Pu を分離した。その後、ICP-MS を用いて ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比を求めるとともに、同位体希釈法により Pu を定量した。また、¹³⁷Cs 測定は Ge 半導体検出器で行った。

【結果と考察】

深度約 450 cm 以深では ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 及び ¹³⁷Cs とも、ほとんど検出されなかったが(Fig.1)、深度 440 cm 付近に ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 及び ¹³⁷Cs 濃度のピークが見られ、また ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比はコア中最も低い値(0.028)が検出された。深度 370 cm 付近では ¹³⁷Cs 濃度のみピークを示し、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比の上昇が見られた。それ以浅では、²³⁹⁺²⁴⁰Pu、¹³⁷Cs 濃度及び ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比もほぼ一定の値であった。また、この層の ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 比は、周辺土壌の値と一致した。これらのことから、貯水池に 1945 年黒い雨によって貯水池及びその周辺にもたらされた原爆由来の Pu 及び ¹³⁷Cs が供給された後、その後に行われた核実験由来の Pu 及び ¹³⁷Cs の混入があったことを示す。またそれ以降は、原爆由来の Pu と核実験由来の Pu を一定の割合で含む周辺土壌が浸食され、貯水池に定常的に流れ込んでいることを示している。発表では、堆積物の堆積速度や Pu の堆積量についても報告し、貯水池の物質堆積過程についても考察する。

1. 齋藤ら、J.Nucl.Radiochem.Sci.Suppl., 4, 133 (2003).
2. 國分ら、J.Nucl.Radiochem.Sci.Suppl., 5, 128 (2004).

Plutonium in the Nishiyama area of Nagasaki city
Saito-Kokubu, Y., Yasuda, K., Magara, M.,
Miyamoto, Y., Sakurai, S., Usuda, S., Yamazaki, H.,
Yoshikawa, S., Nagaoka, S.

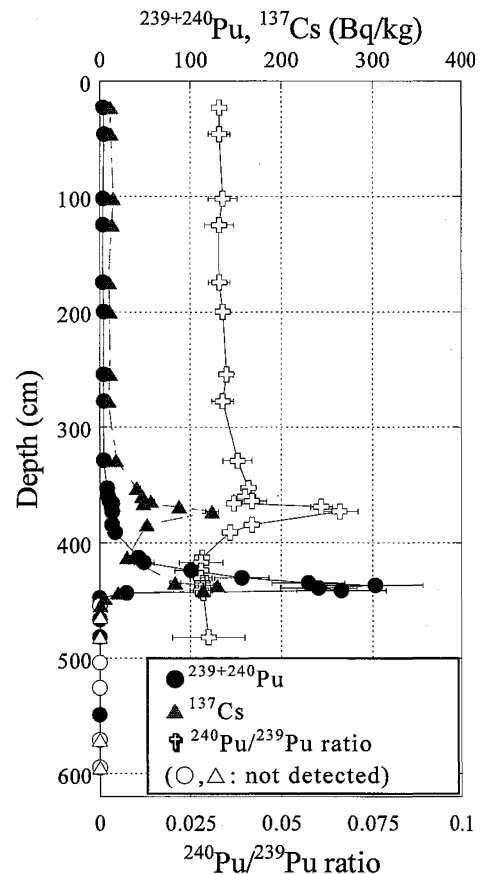


Fig.1 Concentrations of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ¹³⁷Cs, and ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu ratios in sediments.

原爆被ばく試料中の極微弱 Eu-152 定量における Sm の妨害

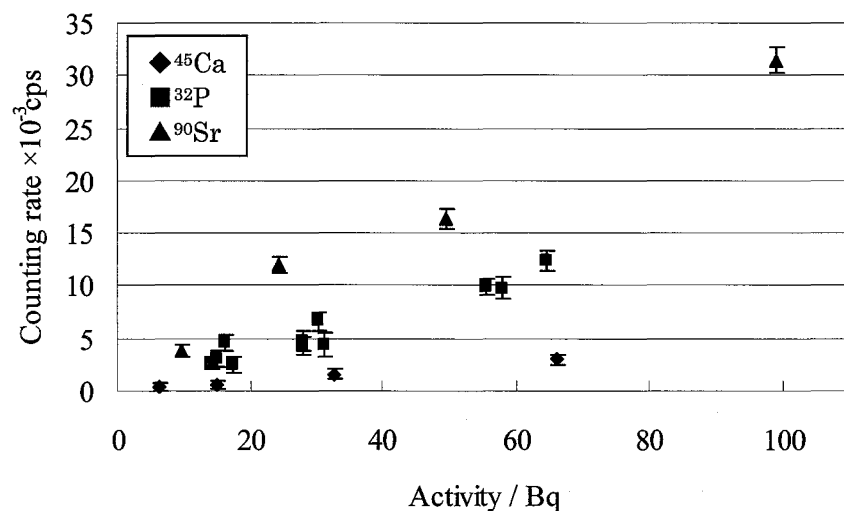
(金沢大院自然) ○井上 裕, 能村哲平, 和泉宏謙, 細谷梨沙,
横山明彦, 中西 孝

【はじめに】 現行の放射線防護基準の主要部は、広島・長崎における被ばく者の推定被ばく線量と障害発生率等の関係を根拠としており、被ばく線量の推定は、現在、2002年線量評価体系(DS02)によって行われている。中性子線量に関するDS02計算方式の妥当性を検証するために様々な被ばく地点における中性子誘導放射性核種の比放射能の実測が行われてきた。

我々は、長崎において実測値が得られていない1200 m以遠の ^{152}Eu (半減期13.542年)の比放射能を実測により求めるために爆裂点から1595 mの地点で発見されたコンクリート試料を入手し、ランタノイドの群分離と精製を行い、 ^{152}Eu の比放射能測定を続けてきた。我々の ^{152}Eu 定量法では ^{152}Eu の電子捕獲($^{152}\text{Eu} \rightarrow ^{152}\text{Sm}$)に伴って放出されるX線の測定を行っているが、このX線はSmのKX線であり、測定試料中に含まれるSmの蛍光X線と区別できない。そのため、 ^{152}Eu 測定試料にSmが含まれると ^{152}Eu の放射能を過大評価する可能性があり、昨年 α 放射体 ^{210}Po を用いて α 放射能と蛍光X線強度の関係に関する実験を行った。今回、 β 線によるSm蛍光X線の強度について実験を行ったので報告する。

【実験】 ポリエチレン容器(内径30 mm, 肉厚2 mm)の底面に一定量のSm溶液と β 放射体を混合して蒸発乾固した。 β 放射体として ^{32}P ($E_{\beta\text{-max}}$ 1.71 MeV), ^{45}Ca ($E_{\beta\text{-max}}$ 0.257 MeV), ^{90}Sr - ^{90}Y ($E_{\beta\text{-max}}$ 2.281 MeV)の標準溶液を用いた。Smの蛍光X線の測定には低エネルギー光子検出器を使用し、39–40 keVのX線を測定した。

【結果と考察】 5 mgのSmを用いて測定した β 放射能とSm-KX線計数率との関係をFig. 1に示す。 ^{32}P , ^{45}Ca , ^{90}Sr - ^{90}Y の全てで β 放射能の増加とともにSm-KX線の計数率が増加した。また β 線エネルギーの増加とともにSm-KX線の計数率が増加した。昨年及び今回の実験結果と原爆被ばく試料から分離・調製した ^{152}Eu 測定試料中の α / β 放射能を考慮して精製Euフラクションの ^{152}Eu 比放射能を補正すると 5.5×10^{-2} Bq/mg から 4.3×10^{-2} Bq/mg へと減少したが依然として計算値よりも高い値である。

Fig. 1 39–40 keV X-rays from 'Sm(5 mg) + β -activity'

Interference due to Sm-X-rays to the determination of ultra-low-level ^{152}Eu separated from a sample exposed to Nagasaki atomic-bomb

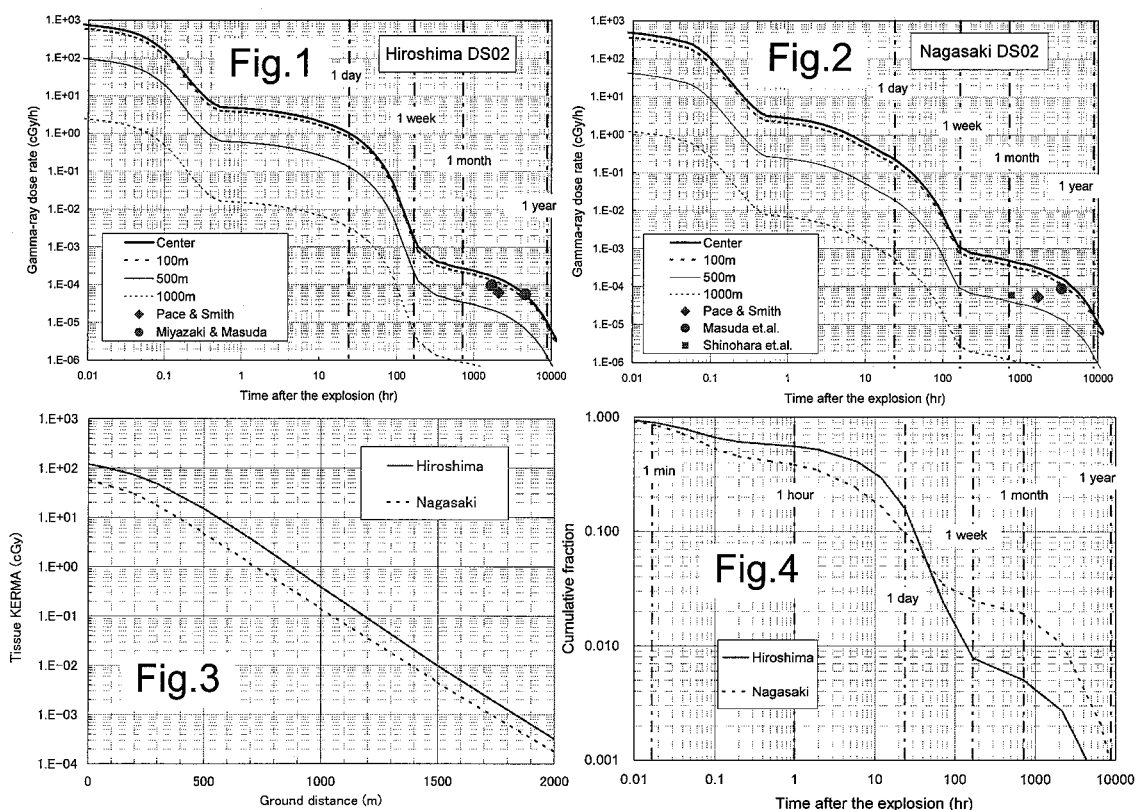
INOUE, Y., NOMURA, T., IZUMI, H., HOSOTANI, R., YOKOYAMA, A., NAKANISHI, T.

広島・長崎原爆の中性子誘導残留放射能による被曝線量の評価

(京大原子炉¹、広島大原医研²)○今中哲二¹、遠藤暁²

【目的】広島・長崎原爆放射線量の新評価システム DS02 が扱っているのは、爆発時の初期放射線による被曝のみであり、誘導放射能や“黒い雨”といった残留放射能は考慮されていない。DS02 で残留放射能が考慮されていない理由は、その被曝量が初期放射線に比べてかなり小さいと考えられてきたからである。一方、原爆症認定訴訟の判決では、残留放射能による被曝影響が指摘されており、残留放射能の評価が改めて必要とされている。ここでは誘導放射能による地上 1 m での γ 線外部被曝を DS02 方式に基づいて求めた結果を紹介する。

【方法・結果】DS86 報告書では Gritzner らが土壌中の 16 元素を対象にして地上 1 m での誘導放射線量を計算している。DS02 と DS86 での ^{60}Co 生成比を、Gritzner らの計算結果に適用して DS02 に基づく空間線量とした。Fig.1 と Fig.2 に、原爆直後から 1 年後までの空間線量率（空气中組織カーマ）変化を示す。線量率に支配的な放射能は、 ^{28}Al (2.24min)、 ^{56}Mn (2.58h)、 ^{24}Na (15.0h)、 ^{46}Sc (83.3d) の順である。Fig.3 は、無限時間までの積算空間線量で、爆心で広島 120cGy、長崎 57cGy であるが、距離とともに急速に減少する。Fig.4 は、「その時刻以降の積算線量」の「時刻ゼロからの積算線量」に対する比である。たとえば、Fig.4 の 1 day 値は広島 0.16、長崎 0.097 であるから、1 日後に爆心に入ってずっと滞在した場合、広島 19cGy、長崎 5.5cGy となる。こうした検討から、誘導放射能によって 1 cGy 以上の外部被曝が考えられる入市者は、爆心 1km 以内に 1 週間以内に入った人々と言えよう。



Radiation dose due to neutron-induced residual radioactivities by the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki
MANAKA T., ENDO S.

北日本産食用コンブ及びウニ卵巣中 ^{99}Tc 及び ^{137}Cs 濃度

(^a環境研、^b東北大) ○大塚良仁^a、五代儀貴^a、
高久雄一^a、関根勉^b、久松俊一^a

再処理施設稼働前の食用海藻中 ^{99}Tc 濃度を把握するために、平成 17 年に採藻された青森県産 (1 種類、7 地点)、北海道産 (5 種類、5 地点)、岩手県産 (1 種類、1 地点) の市販のコンブに含まれる ^{99}Tc と ^{137}Cs を分析した。合わせて、海藻類を主食とするウニ (青森県産) の卵巣についても分析した。青森県沿岸、北海道及び岩手で採取したマコンブ中 ^{99}Tc の濃度範囲は 6.3-26 mBq kg⁻¹-乾であり、平均は 15±6 mBq kg⁻¹-乾であった。マコンブ中 ^{99}Tc 濃度は、青森県沿岸のウミトラノオ中 ^{99}Tc 濃度分布で報告されているような顕著な地域差は見られなかった。北海道産のリシリコンブ、ミツイシコンブ (流通名: 日高コンブ)、及びオニコンブ (流通名: 羅臼コンブ) の ^{99}Tc 濃度は 6.5~26 mBq kg⁻¹-乾であり、マコンブ中の濃度範囲と同じであった。これらの測定値は、青森県及び北海道沿岸のウミトラノオ (ヒバマタ目: 非食用) の濃度範囲 (5.2-30.7 mBq kg⁻¹-生、含水率 80%と仮定すると 25-150 mBq kg⁻¹-乾) より小さく、九州産ヒジキの ^{99}Tc 濃度とほぼ同じ濃度レベルであった。

^{137}Cs 濃度は、過去に行われた食品中放射性核種濃度調査 (日本分析センター等) の値と大きく異なっていない。 $^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は、0.03-0.12 であったが、この値は ^{235}U や ^{239}Pu の核分裂収率から考えられるフォールアウト中 $^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 (0.00027) や海水中の放射能比 (0.0003) と比較して大きく、コンブ類が ^{137}Cs に比べ ^{99}Tc を選択的に濃縮していることを示唆している。

ウニ卵巣中の ^{99}Tc 濃度は、いずれの試料も検出下限以下であり、海藻類と比較しても ^{99}Tc 濃度が非常に低いことが明らかとなった。 ^{137}Cs 濃度は平均 0.6±0.3 mBq kg⁻¹-乾であり、海藻類の濃度とほぼ同じレベルであることが分かった。ウニ類はこれらの海藻を主食として摂取しているが、可食部には ^{99}Tc の選択濃縮が起こっていないことを示唆している。

本研究は、青森県委託調査事業「放射性物質等分布調査」で実施した成果の一部である。

Concentrations of ^{99}Tc and ^{137}Cs in edible kelps and sea urchin ovaries from the northern part of Japan

OHTSUKA, Y., IYOGI, T., TAKAKU, Y., SEKINE, T., HISAMATSU, S.

AMS による植物試料中 ^{129}I 測定のための ターゲット調製法の検討

((財)九環協) ○川村秀久, 天日美薫

^{129}I は半減期 1570 万年の β -線放出核種である。 ^{129}I は Xe と宇宙線との反応や U の自発核分裂などにより天然で生成されている一方, 人工的にも生成され環境中へ放出されている。原子力の平和利用に伴って環境中へ放出される ^{129}I は, モニタリングが必要な長半減期核種の一つとされている。本研究では, AMS による植物試料中 ^{129}I 測定のための測定試料 (AgI ターゲット) 調製法を確立することを目的として, 植物試料中ヨウ素を定量的に回収できる方法について検討した。検討した手法は, 下記の 3 種類である。

(1) 石英管燃焼法: 石英管 (内径 22mm, 長さ 600mm) 中の試料約 10g を, 2 箇所から供給できる酸素気流中で, プンゼンバーナーと 1100°C 管状炉とで燃焼させた (図 1A)。燃焼生成したヨウ素をアルカリ溶液 (TMAH と Na_2SO_3 混合溶液) 中に吸収させ回収した。

(2) Bomb 燃焼法: Large Volume Parr Oxygen Bomb (No. 1121) を用い, 試料約 10g を酸素加圧下 (21 気圧) で電氣的に着火することにより, 瞬時に燃焼させた (図 1B)。燃焼生成したヨウ素を, 予め添加していたアルカリ溶液中に吸収させ回収した。

(3) アルカリ溶出法: 試料約 10g をアルカリ溶液中で 6 時間攪拌させた後, 溶出するヨウ素を回収した。

それぞれの手法について, バックグラウンド評価と回収率評価を行った。バックグラウンドは, 植物試料を加えずに燃焼もしくは溶出試験を行い, 回収されたアルカリ溶液中のヨウ素濃度より評価した。一方, 回収率は, 環境標準試料 (RM8418) の燃焼もしくは溶出試験を行い, 同様な方法で評価した。なお, ヨウ素測定には, ICP-MS (HP4500, 横河アナリティカルシステムズ) を用い, 内部標準添加法によりヨウ素濃度を算出した。本発表では, それらの結果を比較し考察するとともに, 最適な分析手法を選定する。

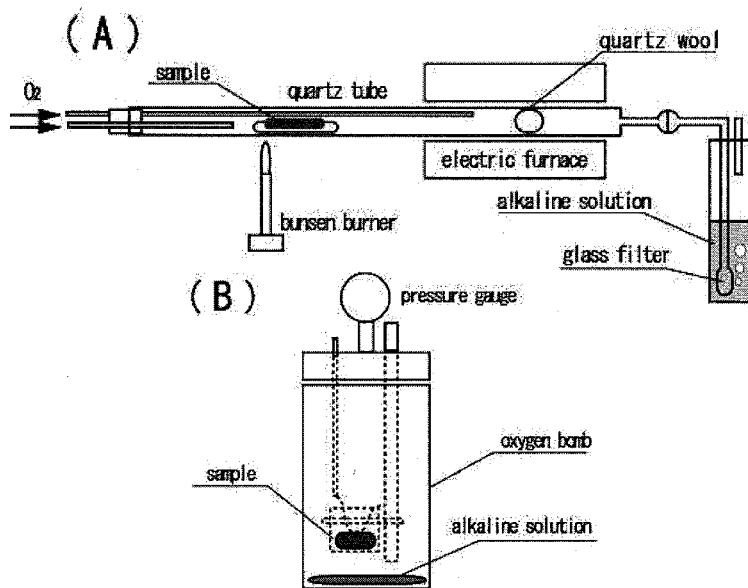


Fig.1 Scheme of the separation of iodine from vegetation samples for analysis of ^{129}I by AMS.

Method for measurement of ^{129}I in vegetation samples by using AMS

-Target preparation-

○KAWAMURA, H., TENNICH, Y.

AMS を用いた土壤中 ^{129}I 濃度の深度分布に関する研究(学習院大学¹, 東京大学², 農環研³, 元農環研⁴)○高田 ゆかり¹, 村松 康行¹, 松崎 浩之², 加藤 和浩²,
木方 展治³, 結田 康一⁴

^{129}I (半減期 1570 万年)は、自然界では大気中の Xe と宇宙線との反応や地殻中 U の自発核分裂により生成されている。一方、人工的には核実験や核燃料再処理施設の稼働に伴い環境中に放出されている。 ^{129}I は半減期が長いことから、環境中では安定ヨウ素(^{127}I)と同様な挙動をとると考えられている。そこで環境中における ^{129}I の分布を調べることはヨウ素の地球化学的挙動を把握する上でも興味深い。

環境試料中に含まれる ^{129}I の分析法としては放射化分析(NAA: Neutron Activation Analysis)が通常用いられており、原子力施設(再処理施設)周辺のモニタリングはこの方法で分析が行われている。しかし、検出感度は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比として 1×10^{-9} 程度であり、バックグラウンドレベルの測定には問題がある。そこで、検出感度の優れた加速器質量分析(AMS: Accelerator Mass Spectrometry)を用いることで土壤試料中の ^{129}I の微量分析が可能と考えた。しかし、AMS で分析するためには土壤からヨウ素を分離する必要がある。そこで本研究では、土壤試料からのヨウ素の分離法の検討を行った。また、得られた分析法を用い、日本各地で採取した土壤中の ^{129}I 濃度と幾つかの地点での深度分布を AMS 法により測定した。また、安定ヨウ素濃度は ICP-MS 法により測定した。

その結果、AMS を用いることによって NAA では難しかったバックグラウンド地域における土壤中の ^{129}I も定量できるようになった。実際の土壤中の検出下限値は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比として 2×10^{-11} 程度であった。分析結果の 1 例としてつくば市の畑地において採取した土壤中の安定ヨウ素と ^{129}I 濃度の深度分布を Fig.1 に示す。グラフから分かるように、安定ヨウ素については 30ppm 前後で深度による変化はあまり見られなかった。一方、 ^{129}I 濃度は、表層では $1.7 \times 10^{-3} \text{Bq/Kg}$ であったが、深度が深くなると $8.1 \times 10^{-6} \text{Bq/Kg}$ (236cm の深さ)と非常に低く、大気中に放出された ^{129}I は土壤表面に吸着されて動きにくいと考えられる。

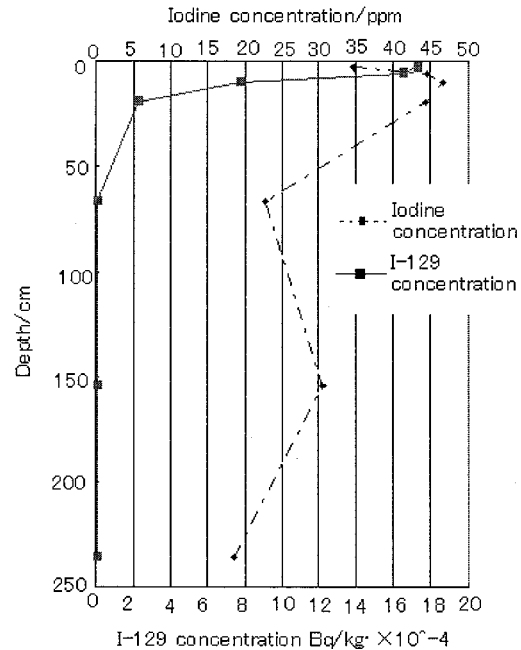


Fig1 Depth profiles of iodine

Depth profile of I-129 concentrations in soil determined by AMS

TAKADA, Y., MURAMATSU, Y., MATSUZAKI, H., KATO, K., KIHOU, N., YUITA, K.

畑作土中 Sr-90 の長期減少傾向と土壤理化学性の関係

(農環研) 山口紀子, (東大) 関勝寿, (元農環研) 駒村美佐子,
(WDB) 栗島克明

農業環境技術研究所では、1959年より全国に設置した放射能基準ほ場より米、麦とその栽培土壌を毎年採取し、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr のモニタリング調査を続けている。最後の大気圏内核実験がおこなわれた1980年から25年以上が経過した現在においても、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr をはじめとする長寿命人工放射性核種は土壌に残留しており、微量ではあるが米、麦からも検出されている。本研究では、我々が45年にわたり収集したモニタリングデータのうち、畑土壌中の交換態 ^{90}Sr に着目した。畑作土中の交換態 ^{90}Sr 濃度は、経時的に減少する傾向にあるが、その長期的な減少傾向は、モニタリング地点によりさまざまである。そこで、畑作土からの交換態 ^{90}Sr の減少傾向と土壌の理化学性の関係を明らかにすることを目的とし、長期モニタリングデータの解析をおこなった。

土壌中の ^{90}Sr 濃度と比較し、フォールアウトの寄与が無視できるようになった1980年を基準年($t=0$)と定めると、畑作土中の交換態 ^{90}Sr 濃度($C_s(t)$)は、次式(1)によりあらわすことができる。

$$C_s(t) = C_0 \exp(-\lambda_a t) \quad (1)$$

λ_a は見かけの減衰定数であり、 ^{90}Sr の物理崩壊定数 λ_p と環境要因による減衰定数 λ_e の和である¹⁾。式(1)により λ_a を求め、 λ_a から λ_p を差し引くことにより、 λ_e を算出した。また、次式(2)により環境半減期を算出した。

$$RHT_e = \frac{\ln 2}{\lambda_e} \quad (2)$$

各観測地点における λ_e および環境半減期(RHTe)を表1に示す。

Table 1 Decrease factor (λ_e) and residence half-time (RHTe)

	λ_e (y^{-1})	RHTe (y)
Sapporo	0.02258	30.7
Nagaoka	0.03138	22.1
Morioka	0.02722	25.5
Iwanuma	0.03350	20.7
Mito	0.02159	32.1
Kumagaya	0.06198	11.2
Futaba	0.06171	11.2
San-yo-chc	0.06979	9.9

λ_e は、土壌の陽イオン交換容量と高い負の相関 ($R = -0.921$) があつた。作土の陽イオン交換能の高い土壌ほど、Sr-90 が土壌の陽イオン交換サイトに保持され、土壌下層に移行しにくいいため、作土から Sr-90 が失われにくいことが明らかとなつた。

参考文献：1) 高橋ら 保健物理 2000; 35: p.359-364

*本研究は、文部科学省 環境放射能調査研究費により実施した。

Relationships between the long-term mobility of Sr-90 in ploughed soil of upland field and soil properties.

YAMAGUCHI, N., SEKI K., KOMAMURA, M., KURISHIMA, K.

環境試料の極微量ウラン、トリウム、鉛
およびランタノイドの分析
—陰イオン交換法を用いた分離条件の検討(2)—

(原子力機構)○宮本ユタカ、國分(齋藤)陽子、桜井 聡、臼田重和

【はじめに】環境試料の極微量U, Th, Pbおよびランタノイドを正確に定量および同位体比分析するためには、試料の分解・化学分離の際にこれらの元素が外界から混入するのを最小限に抑えることが重要である。前報¹⁾では、①原子力機構・高度環境分析研究棟(CLEAR)のクリーンルーム内で、②1本の陰イオン交換樹脂カラムを使って、③塩酸+メタノール混合溶媒を用いることによって、50 ngのU, ThおよびPbの相互分離ができたことを報告した。ランタノイドは地球化学的な考察をする際に重要な役割を果たすので、これらの元素と同様に分離・分析することが重要であるが、この分離法ではThと同じ溶離分面に溶出してランタノイドとThの相互分離ができなかった。本研究ではU, Th, Pbおよびランタノイドの相互分離を行うための条件を検討した。

【実験方法】陰イオン交換樹脂を詰めたポリエチレン製カラム(内径 5.5 mm×高さ 42 mm: カラム容積 1 ml)に、ICP-MS 標準溶液から調製した U, Th, Pb, ランタノイドなどの元素を各 50 ng 含む試料溶液を樹脂に吸着させた後、溶離液を流して目的元素を分離した。溶離曲線を作成するため、溶出液を 5 ml 毎にテフロンビンで集めて蒸発乾固を行った後、2%硝酸溶液 2 ml に調製して ICP-MS で定量した。

【結果と考察】Thはシュウ酸と錯体を作り陰イオン交換で分離できる²⁾ので、90%メタノール、塩酸に 0.001Mシュウ酸を加えた混合溶媒で分離を試みた。塩酸濃度を 0.001M, 0.01M, 0.1Mの3種類に変えた組成の溶媒で分離した溶離曲線を Fig.1 に示す。図には示していないがU, Pbは共にとどの塩酸濃度でも溶出しなかった。Thは 0.1M塩酸では溶出量 25 mlにピークを持つ形で76%が溶出したが、塩酸濃度が 0.01Mと 0.001Mでは溶出しなかった。LaおよびLuはどの塩酸濃度でも溶出した。したがってランタノイドとThを相互分離するには塩酸濃度を 0.01M以下にしなければならないことが分かった。LaとLuの回収率は塩酸濃度が薄くなるに従って100%から30~40%へと低下した。そして吸着したLaとLuは 0.1M塩酸で溶離すると全て回収することができた。この回収率の低下は、カラム内で生成したシュウ酸ランタノイドの沈殿が原因で起こったものと思われる。シュウ酸ランタノイドの水に対する溶解度は約 0.5 μg/mlであり、実験に用いた試料濃度よりも濃いので水溶液ならば沈殿は生成しない。しかし、溶離液は90%メタノール溶液であるため塩析効果が起こり、溶解度の低下によって沈殿が生成したと考えられる。メタノール濃度を薄くすることによって沈殿の生成が抑えられるのであれば、ランタノイドとThを相互分離することができる。今後、更に詳細な分離条件を検討する予定である。

参考文献: 1) 宮本 他, J.Nucl.Radiochem.Sci.Suppl., 6, 100 (2005).

2) 小村、阪上、分析化学、16, 114-118 (1967).

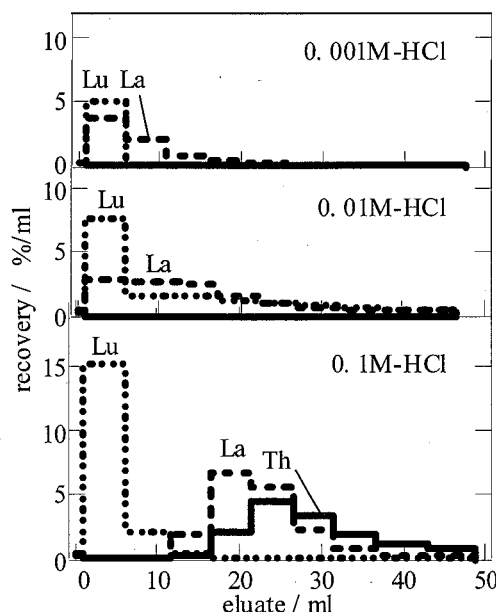


Fig.1 Chromatogram of La, Lu and Th eluted with 90%-CH₃OH + 0.001M-H₂C₂O₄ + 0.001M, 0.01M and 0.1M-HCl.

**Trace analysis of uranium, thorium, lead and lanthanoids in environmental samples
- examination of condition of anion-exchange separation (II) -
MIYAMOTO, Y., SAITO-KOKUBU, Y., SAKURAI, S., USUDA, S.**

電子ライナック照射室内における放射性エアロゾルの生成

(京大院工¹ 京大原子炉² 原子力機構³) ○長田直之¹、沖雄一²、
山崎敬三²、横山須美³

<はじめに> 運転中の加速器から放出される放射線により加速器室中には高濃度に放射性エアロゾルや放射性ガスが生成されることがある。放射性エアロゾルは一般に放射性核種を含まない非放射性エアロゾルに空気中に浮遊する放射性核種が付着することで生成すると考えられている。非放射性エアロゾルも放射線により誘起される反応により生成されると考えられているが、その組成や生成機構などの詳細はなお不明な点が多い。本研究では電子線型加速器から放出される放射線により生成される非放射性エアロゾルと放射性エアロゾルの粒径と濃度を測定した。

<実験> 照射実験は京都大学原子炉実験所の電子線型加速器で行った。実験時のビーム条件はエネルギー30MeV、平均電流 30~90 μ A であった。ターゲットはタンタルで行った。試料空気は電子線とその制動放射線により照射される。実験は、直接照射室内の空気採取するか、照射チェンバーを用いて行った。チェンバー実験では、ターゲットから約 1m 離れた所に照射チェンバー(50L または 1.5L)を設置、照射室外からエアロゾルを含まない空気をチェンバー内へ導入し照射した。照射後の空気はフレキシブルチューブで測定室へ導いた。チェンバー照射後から測定系までの到達時間は 20 秒~5 分である。

エアロゾルの粒径測定は拡散バッテリー、低圧インパクターと SMPS(scanning mobility particle sizer)を用いた。放射性エアロゾルは主に拡散バッテリーを使いフィルターなどにエアロゾルを捕集し、同時計数型 BGO 検出器と Ge 半導体検出器による測定を行った。

<結果と考察> 以下に照射室内空気を直接サンプリングした場合の拡散バッテリーによる解析結果を示す。エアロゾルの粒径分布を対数正規分布と仮定し、拡散バッテリーのエアロゾル透過率から中央径を求めた。照射時間が長いとより高濃度のエアロゾルが生成され粒径も大きくなっていることがわかった。

生成された放射性核種からは Ge 半導体検出器により 511keV と ³⁹Cl の光電ピークが検出された。511keV のピークは β^+ 壊変核種による消滅放射線であり、BGO 検出器での減衰過程の測定より半減期から、ほとんどが ¹³N であることがわかった。今回の条件では照射室内の非放射性のエアロゾルは粒径(幾何中央径)114nm、 σ_g (幾何標準偏差)1.2、放射性エアロゾルでは ¹³N の場合、粒径 184nm、 σ_g 1.6 となった。³⁹Cl エアロゾルの場合も同様に非放射性エアロゾルに対して大きい粒径となる傾向が認められた。この傾向は他の加速器施設と同様に、生成された放射性核種がエアロゾルに付着して放射性エアロゾルを生成していることを示唆している。

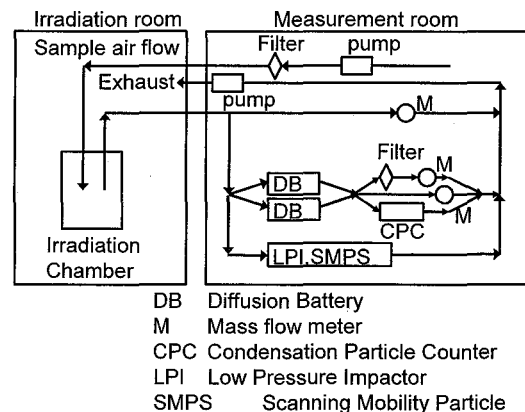


Fig. 1 Irradiation and measurement system

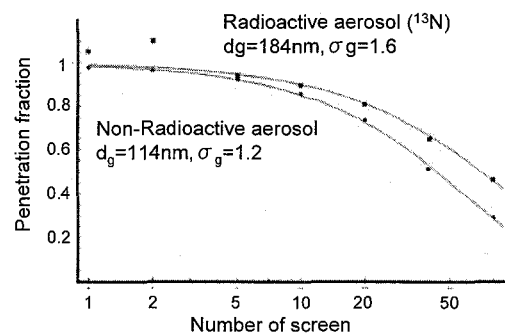


Fig. 2 Aerosol penetration fraction in the diffusion battery measurement

Formation of radioactive aerosol in electron linear accelerator irradiation room
OSADA, N., OKI, Y., YAMASAKI, K., YOKOYAMA, S.