

**世界化学年 2011 企画  
特別セッション講演要旨  
9月20日(火)**

1T01～1T12：一般講演 A会場(ホール)

**9月21日(水)**

2T01～2T02：一般講演 S会場(ホール)

## 福島第一原子力発電所事故直後のガンマ線測定によって得られた 福島県とその近隣県における放射性核種の分布の特徴

(高エネ研放射線セ<sup>1</sup>, 理研安全管理部<sup>2</sup>, 理研仁科セ<sup>3</sup>) ○松村 宏<sup>1</sup>,  
齋藤 究<sup>1</sup>, 石岡 純<sup>2</sup>, 上叢 義朋<sup>3</sup>

【はじめに】東日本大震災による福島第一原発事故直後の3月15, 16, 17日と4月8日に、福島県とその近隣県において福島第一原子力発電所からの放射性物質の飛散状況の調査を行った[1]。本調査では線量測定とγ線スペクトルが取得できるLaBr<sub>3</sub>シンチレーションγ線スペクトロメータ(以下LaBr<sub>3</sub>検出器と呼ぶ)を使って、(1)短時間で広範囲を移動でき、(2)場所の特定が容易で、(3)測定環境がほぼ同じにできる、高速道路上を中心に広範囲な線量率の分布と放射性核種の分布を得た。本発表では放射性物質の飛散状況の概要から放射性核種間の相関と分布の特徴までを議論する。

【測定方法】放射線の測定器として1.5インチLaBr<sub>3</sub>検出器(キャンベラ社製, IN1KL-1)を用いた。調査範囲は図1に示した様に、福島第一原子力発電所から30km圏外の福島県とその近隣県の広範囲に及んだ。高速道路上では距離標を目印に基本的に1kmおきの線量率を走行しながら測定した。サービスエリア, パーキングエリア, インターチェンジでは停車し、線量率とγ線スペクトルの測定を行った。

【結果と考察】郡山東インターチェンジで3月15日15時ごろ気体放射性核種<sup>133</sup>Xeを含む放射性プルームを観測した。また、福島県中通りの放射性物質の汚染は3月15日15時ごろから20時半ごろまでに降雨で起こったことがわかった。γ線スペクトルからは放射性核種<sup>132</sup>Te, <sup>132</sup>I, <sup>131</sup>I, <sup>133</sup>Xe, <sup>137</sup>Cs, <sup>136</sup>Cs, <sup>134</sup>Csが検出された。<sup>132</sup>Te, <sup>132</sup>I, <sup>137</sup>Cs, <sup>136</sup>Cs, <sup>134</sup>Csの放射能間には相関関係があり(例として図2)、線量の主原因が事故直後の沈着時には<sup>132</sup>Teと<sup>132</sup>Iだったものが、4月8日には<sup>137</sup>Csと<sup>134</sup>Csに変わったにもかかわらず、線量分布の形は変化していなかった。一方、<sup>131</sup>Iの分布は他の放射性核種と大きく異なることがわかった。福島県中通りでは<sup>131</sup>I沈着率が低い場所が存在すると考えられる。

【参考文献】松村宏, 齋藤究, 石岡純, 上叢義朋, 日本原子力学会和文論文誌, **10**, 152-162 (2011).

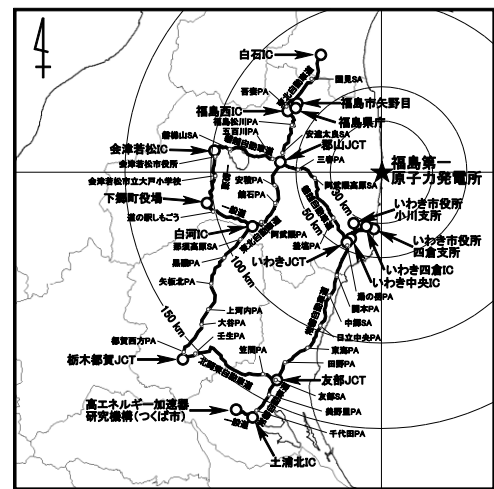


図1 放射線測定した道路地図

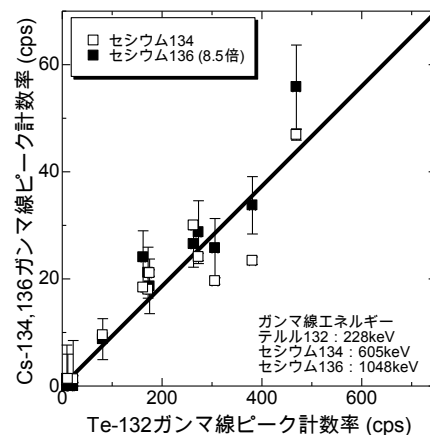


図2 3月17日の東北自動車道の<sup>132</sup>Teと<sup>134</sup>Cs, <sup>136</sup>Csの計数率の相関関係

Characteristics of distribution of radionuclides from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station in Fukushima prefecture and neighbor prefectures obtained by a γ-ray measurement immediately after the accident  
MATSUMURA, H., SAITO, K., ISHIOKA, J., UWAMINO, Y.

福島県走行サーベイと NaI 検出器による  $\gamma$  線スペクトル解析

(九大 RI セ<sup>1</sup>, 九大院理<sup>2</sup>, 九環協<sup>3</sup>) ○杉原真司<sup>1</sup>, 市川竜平<sup>2</sup>,  
前川暁洋<sup>2</sup>, 先崎達也<sup>2</sup>, 川村秀久<sup>3</sup>, 百島則幸<sup>1</sup>

[はじめに] 2011年3月11日に発生した東日本大震災により、東京電力福島第一原子力発電所が電源喪失に陥り、原子炉格納容器からのベントや建屋の水素爆発などの事故が発生し、多量の放射性物質が一般環境に放出された。放射性物質の福島県における分布あるいは世界規模の分布については政府・文部科学省や報道等で現在となつては既知となつてきているが、環境放射線モニタリングの一環として、車載 NaI サーベイメータによる福島県における放射能分布を測定した。数箇所において、NaI 検出器による空間  $\gamma$  線スペクトルを測定した。

[方法] 測定は、2011年4月18日～21日、6月20日～22日に福島県内をほぼ同ルートで実施した。NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ（アロカ社製、TCS-171）を車内に置き、走行中に随時測定値をメモリーに記録した。測定地点は、GPS データから求めた。また、16地点において NaI(Tl)検出器（アロカ社製、ADP-122）とスペクトロスケーラ（同、ASM-303）を用いて、車外の地上 1m の  $\gamma$  線スペクトルを測定した。

[結果] 図1に走行サーベイ（4月測定分）の結果を示す。測定地点に、放射線量を棒グラフで示している。20km 圏内から飯舘村、福島市にかけて線量が高くなっている。県内では、会津地方で、 $0.13 \mu\text{Sv/h}$  と低く、浪江町赤宇木の  $30 \mu\text{Sv/h}$  以上（測定不可）が最大値であった。高線量の地域では、測定値の変動は大きく詳細な濃度分布図を作成するには、道路上だけでなく詳細な調査が必要である。車による遮蔽効果を調べるため、車内と車外 1m、地表面における線量を測定した結果を表1に示す。車外と車内の比は、平均して 1.6 (0.9-2.2) である。 $\gamma$  線スペクトルの測定結果では、主に I-131、Cs-134、Cs-137 のピークが検出された。周辺土壌の測定結果と合わせて、スペクトルの解析結果を報告する。

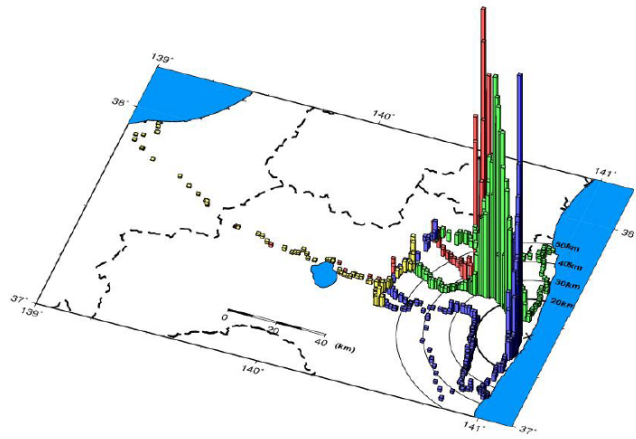


図1 福島県のルートマップと放射線量

表1 サーベイメータの測定結果 ( $\mu\text{Sv/h}$ )

測定場所	車内	車外 1m	土壌表面
双葉郡富岡町下郡山 JAふたば	2.3	5.0	7.3
双葉郡富岡町上郡山	2.2	4.2	5.7
伊達市霊山町石田釜ヶ平	2.2	3.5	4.5
二本松市郭内3丁目	1.4	2.3	2.8
いわき市小川町上小川中戸渡52	0.8	1.5	1.9
田村市常葉町山根三竹平43	0.4	0.7	1.0
いわき市四倉町葉王寺 四倉PA	0.4	0.6	0.9
田村市船引町門沢 阿武隈高原SA	0.2	0.3	0.4
耶麻郡猪苗代町磐里仁蔵51	0.2	0.2	0.3
耶麻郡西会津町野沢 西会津PA	0.1	0.1	0.1
九大構内		0.05	0.05

Survey of the radiation by a car borne survey method and  $\gamma$  ray spectrometry by NaI detector in Fukushima Prefecture

SUGIHARA, S., ICHIKAWA, R., MAEKAWA, A., MATSUZAKI, T., KAWAMURA, H.,  
MOMOSHIMA, N.

福島第1原発事故からの放射性物質—筑波大RICにおける観測  
(筑波大 RIC) ○末木啓介, 鈴木路子, 坂本健一, 伊藤達夫, 古川 純,  
大塩寛紀, 松本 宏

3月11日の東日本大震災による福島第1原発の炉心溶融事故は多量の放射性物質を大気中および海中に放出している。原発から南南西に約170 km 離れている筑波大学にも放射性物質が到達している。筑波大アイソトープ総合センター (RIC) においては、建物の外に管理区域境界に設置されていたエアモニタによる空間線量率測定とローボリュームのエアサンプラーによって大気浮遊粒子を捕集したフィルター、雨水および表層土壌などに含まれる放射性核種の定量を行ったので報告する。

筑波大 RIC は地震直後から電気、水道などが完全に停止していたが、幸い建物、測定装置等には大きな被害はなかった。3月14日の午前中に電気系統の点検を行った後に復電を果たした。その時点では福島第1原発に異常事態が発生しており、放射性物質の放出、拡散が指摘されていたことから早急に建物外にあるエアモニタによる空間線量率の測定を開始した。3月15日早朝にエアモニタに放射線量率の異常な上昇が観測されたので、ローボリュームのエアサンプラーにて HE-40T と CP-20 チャコールフィルターを重ねて空気中の大気浮遊粒子を捕集した。3月15、16両日の昼間は一時間毎にサンプリングして時間変化と継続的な測定を行った。また、3月21日から3月24日にかけての降雨時には雨水を集めた。これらの試料は Ge 検出器によって測定し定量を行った。

筑波大 RIC の3/14-4/1までのエアモニタにより空間線量変化を図1に示す。3月15日未明から3月16日にかけて数度にわたり放射性プルームが到達した考えられるピークが観測されている。また、3月20日昼に再度の到来の後、3月21日から空間線量率が上昇してその後はゆるやかに減少している。エアサンプラーのフィルターを Ge 検出器で測定した結果は $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{Te}(\rightarrow^{132}\text{I})$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ などの放射性核種が確認された。図2に $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ の空气中濃度の2ヶ月間の変化を示す。3月21日からは降雨がありその雨水中にも同様の放射性核種が確認された。筑波大に降下した放射性物質の時間変化などについて考察したので報告する予定である。

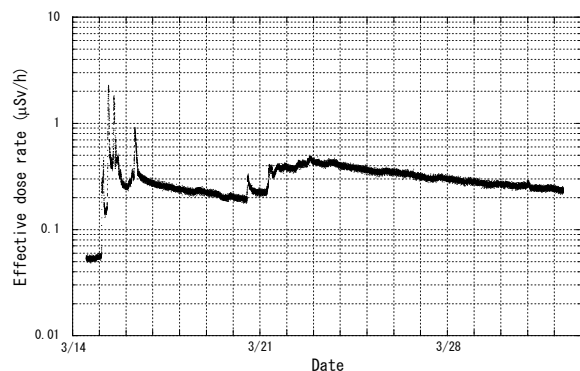


Fig.1 Effective dose rate measured at the monitoring post at RIC, Univ. Tsukuba.

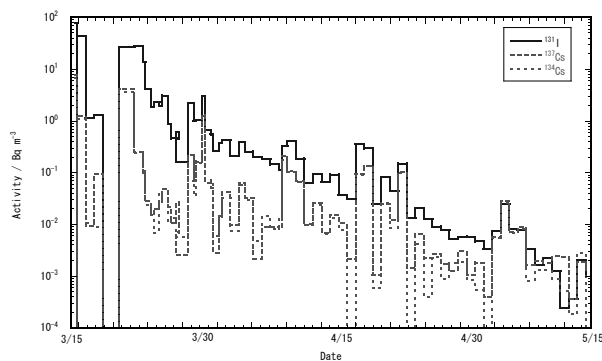


Fig.2 Time variations of the radioactivity concentrations of  $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , and  $^{134}\text{Cs}$ .

Radioactivities from the accident of Fukushima 1 Nuclear Power Plant - Observation at Radioisotope Center, University of Tsukuba.

SUEKI, K., SUZUKI, M., SAKAMOTO, K., ITO, T., FURUKAWA, J., OSHIO, H., MATSUMOTO, H.

八王子, 日野, ならびに加須で採取した大気浮遊粒子中の放射能濃度  
(首都大院理工<sup>1</sup>, 明星大理工<sup>2</sup>, 埼玉県環境科学<sup>3</sup>, 気象研<sup>4</sup>)  
○大浦泰嗣<sup>1</sup>, 松田和秀<sup>2</sup>, 米持真一<sup>3</sup>, 五十嵐康人<sup>4</sup>, 海老原充<sup>1</sup>

[はじめに] 3月11日に起きた東日本大震災により, 東京電力福島第一原子力発電所において原子炉の冷却機能の損失が生じ, 原子炉内の大量の放射性物質が環境中に放出された. これを機に多くの機関で放射性物質のモニタリングが開始されたが, 東京都八王子市の首都大学東京南大沢キャンパスにおいては, 3月22日より大気中の放射能濃度の観測を開始した. 東京都日野市の明星大学ならびに埼玉県加須市の埼玉県環境科学国際センターでは, 平時よりPM<sub>2.5</sub>浮遊粒子(空気力学径2.5μm以下の粒子)の観測を続けており, 後日に震災発生後の試料のガンマ線測定を行った.

[方法] 八王子では, 3月22日より流速33.4 L/minにて大気を吸引し, 石英ろ紙に全浮遊粒子(TSP)を, 石英フィルタをぬけた気体状物質を活性炭繊維ろ紙に24時間から1週間捕集した. また, 同時に, インパクターを用いて, 流速16.7 L/minにてPM<sub>2.5</sub>粒子のみを石英ろ紙上に捕集した. 日野では, インパクターを用いて, PM<sub>2.5</sub>粒子をテフロンコーティングされたガラス繊維フィルタに1週間捕集した. 加須でも, インパクターを用いてPM<sub>2.5</sub>粒子をPTFEフィルタ上に24時間捕集した. 八王子と日野で採取した粒子はフィルタをそのまま, 加須ではフィルタの1/2をガンマ線測定に供した.

[結果] 八王子と加須で観測されたPM<sub>2.5</sub>粒子中の<sup>131</sup>Iと<sup>137</sup>Csの濃度を図に示す. 加須では, 3月15日0時から採取したフィルタで最初に<sup>131</sup>Iが検出され, 3月15日と3月20~21日に濃度のピークが観測された. 日野では, 八王子よりも若干低い濃度が観測された. つくば市, 千葉市, 和光市での観測においても類似した経時変化が報告されており, 放射性物質は塊として一日以内で通り抜けていったことがわかる.

八王子でのPM<sub>2.5</sub>とTSPを比較すると, ほとんどの試料で, PM<sub>2.5</sub>/TSP > 0.5であり, 放射性物質の多くは, 細粒に存在した. しかし, 1を超えることも多く, 検討が必要である. ヨウ素は, 気体状でも存在することが知られている. 活性炭繊維ろ紙(AC)とTSPの石英ろ紙(QZ)で捕集された<sup>131</sup>I量を比較すると, ACの併用を始めた4/23以降でAC/QZ = 2~9であった(ACの<sup>131</sup>I捕集効率を50%とした). <sup>131</sup>Iの多くは気体状化学種として存在していたことがわかった.

PM<sub>2.5</sub>粒子は肺の奥深くまで吸い込まれるといわれているが, 呼吸量を10 L/minとして単純に見積もると, 首都大周辺の住民は, 3月15日から<sup>131</sup>Iを35kBq, <sup>134+137</sup>Csを5.4kBq程度吸い込んでいることになる.

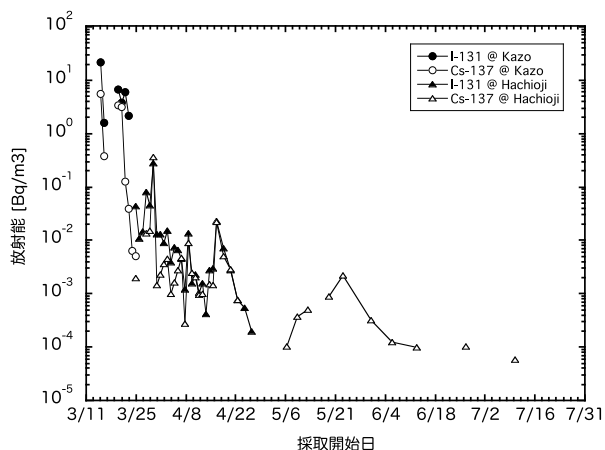


図 八王子と加須で採取したPM<sub>2.5</sub>粒子の放射能濃度

Radioactivity in atmospheric particulates collected at Hachioji, Hino, and Kazo.

OURA, Y., MATSUDA, K., YONEMOCHI, S., IGARASHI, Y., EBIHARA, M.

(九大 RI<sup>1</sup>, 九大院理<sup>2</sup>) ○百島則幸<sup>1</sup>, 杉原真司<sup>1</sup>, 市川竜平<sup>2</sup>, 横山裕也<sup>2</sup>

2011年3月11日の東日本大震災は、福島第一原子力発電所の原子炉冷却機能に被害を与え、燃料体溶融と水素爆発により、放射能を環境へ放出する事態を引き起こした。多量の放射性核種の環境への放出は、空間線量から判断すると3月15日から始まったものと考えられる。福岡市は福島から1000 km以上西に位置し、そして一般的な気団の移動は西から東へ起こることから、事故由来の放射性核種が福岡市ですぐに検出される可能性は低いと考えられた。ところが3月17日に微量の<sup>131</sup>Iが大気中に検出され、その後4月末まで継続して大気中に検出された。

(実験)

3月15日からハイボリュームエアサンプラー(石英繊維ろ紙)で大気中エアロゾルの捕集を始めた。一試料のサンプリングは24時間で捕集大気量は1440m<sup>3</sup>である。フィルターは折りたたんで形状を一定にしてGe半導体検出器で測定した。4月6日からはハイボリュームエアサンプラーのフィルターの後ろに、粒状活性炭(約50g)をセットして、ガス状の核種の捕集を行った。サンプリングは24時間で捕集大気量は936m<sup>3</sup>である。

(結果と考察)

検出された福島原発由来の放射性核種は<sup>131</sup>I、<sup>134</sup>Cs及び<sup>137</sup>Csであった。フィルターに補足された核種の濃度を図に示す。他の放射性核種は検出限界以下であった。4月6日に最も高い濃度を示した後は、それ以前の濃度に再び戻った。ローカルな気象状況を考慮した気象庁のシミュレーションは、福島原発の放射能雲を含む気団が太平洋から北上して4月6日頃に西日本一帯を覆うことを予測していた。4月6日頃の濃度増加は、名古屋、大阪、金沢、徳島でも確認されていることから西日本一帯が放射性核種を多く含む気団に覆われたことがわかる。一方、地球規模の大気循環により移動したと考えられる<sup>131</sup>Iが3月18日にアメリカで、その後ヨーロッパで検出されている。中国政府は福島由来の<sup>131</sup>Iを3月29日に、韓国政府は3月28日に検出したと報告している。地球を一周した放射性核種が福岡に到達したのは3月末以降と思われる。従って、3月17日に福岡市で検出された放射性核種は日本周辺のローカルな気象条件により移流拡散でもたらされたものと考えられる。活性炭に捕集された<sup>131</sup>Iは全体の30-67%であり<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csは活性炭に検出されなかった。

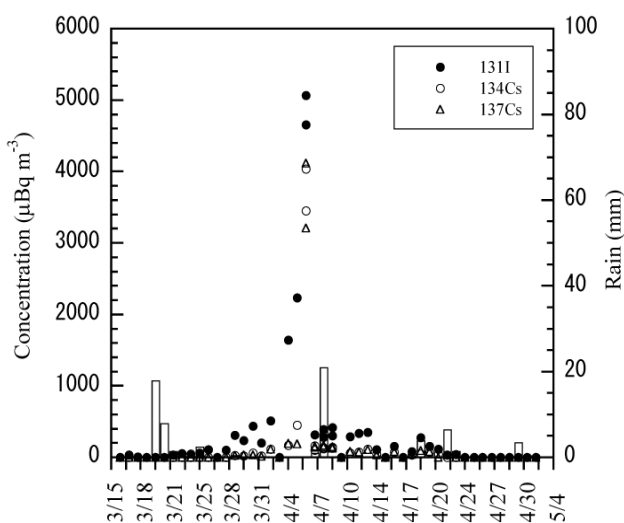


図1 福岡市でフィルターに補足された大気中の放射性核種濃度

Atmospheric radionuclides detected at Fukuoka, Japan released from the Fukushima Daiichi nuclear power complex following the nuclear accident

MOMOSHIMA, N., SUGIHARA, S., ICHIKAWA, R., YOKOYAMA, H.

## 福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種

(愛知医大医<sup>1</sup>, 原子力資料情報室<sup>2</sup>) ○ 小島 貞男<sup>1</sup>, 有信 哲哉<sup>1</sup>,  
小須田 誓<sup>1</sup>, 加藤 元久<sup>1</sup>, 古川 路明<sup>2</sup>

【はじめに】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。どのような放射性核種がどれだけ放出されたかを知ることは、非常に重要な課題であると考えられる。本研究では、多量な<sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Csにより分析が困難となっている放射性核種を、原発周辺で採取された土壌試料から放射化学分離し、測定することを目的とした。

【試料】分析に用いた土壌試料は2011年5月19日に福島第一原発より北北西約8km浪江町酒井曲師前27付近道路わきの雨水溝で採取された。

【実験】土壌試料を30.14g秤量し、Ge半導体検出器で非破壊γ線スペクトロメトリを行った。試料に濃硝酸を加え、加熱し、放冷後ろ過した。不溶残渣への濃硝酸の添加、加熱、ろ過の操作を2度行った。硝酸溶液を加熱濃縮しγ線測定を行った。この試料溶液に10元素(Co, Ag, Zr, Nb, Cs, Sr, Ba, La, Ce, Eu)をキャリアとして添加した。放射化学分離は①NaOH水溶液を加え、水酸化物の沈殿とろ液に分けた。②水酸化物の沈殿を硝酸に溶解後、塩酸を加え、塩化銀の沈殿とろ液に分けた。③ろ液を6MHCl性とし、4-メチル-2-ペンタノン(MIBK)を加え溶媒抽出を行った。④水層にMnとZnのキャリアを添加し、蒸発濃縮し、10MHCl性とし、陰イオン交換樹脂カラムに通した。⑤4MHClを溶離液とし、カラムに通した。⑥0.1MHClを溶離液とし、カラムに通した。①～③のそれぞれの画分について、γ線測定を行った。④～⑥の画分はそれぞれ加熱濃縮し、井戸型Ge半導体検出器の井戸内で測定した。計数効率の測定は数種類の標準溶液を用いた。

【結果】放射化学分離により核分裂生成物では<sup>141</sup>Ce, <sup>144</sup>Ce, <sup>125</sup>Sbの3核種が、中性子放射化生成物として<sup>114m</sup>In, <sup>58</sup>Co, <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mnの4核種が新たに検出された。得られた測定結果を以下の表にまとめた。<sup>114m</sup>Inと<sup>110m</sup>AgはAg-In-Cd合金が使われている制御棒由来と考えられる。

また、<sup>58</sup>Co, <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mnはステンレス製材料由来と考えられる。

【謝辞】分析に用いた土壌試料は井部正之氏、柚原正隆氏、綿井健陽氏より提供を受けた。試料提供者に感謝する。

表 土壌試料(福島第一原発より北北西約8km浪江町酒井曲師前27付近雨水溝)中の放射性核種濃度

核種	半減期	エネルギー/keV	分岐比/%	放射能濃度		定量に用いた試料
				2011年5月19日		
				Bq/g	標準偏差	
<sup>144</sup> Ce	285 d	133.5	11.1%	1.59	0.06	溶媒抽出(MIBK)水層
<sup>141</sup> Ce	32.5 d	145.4	48.2%	0.77	0.05	溶媒抽出(MIBK)水層
<sup>114m</sup> In	49.5 d	190.3	15.6%	2.28	0.16	AgCl沈殿除去ろ液
<sup>125</sup> Sb	2.76 y	427.9	30.0%	1.60	0.07	AgCl沈殿除去ろ液
<sup>134</sup> Cs	2.06 y	604.7	97.6%	1526.2	0.9	土壌(非破壊)
<sup>137</sup> Cs	30.0 y	661.7	85.0%	1850.9	1.0	土壌(非破壊)
<sup>129m</sup> Te	33.6 d	695.9	3.07%	616	11	土壌(非破壊)
<sup>58</sup> Co	272 d	810.8	99.0%	0.053	0.010	AgCl沈殿除去ろ液
<sup>54</sup> Mn	312 d	834.8	100.0%	0.228	0.010	AgCl沈殿除去ろ液
<sup>110m</sup> Ag	250 d	884.7	72.8%	36.5	0.2	土壌(非破壊)
<sup>136</sup> Cs	13.2 d	1048.1	79.7%	10.5	0.6	土壌(非破壊)
<sup>60</sup> Co	5.27 y	1332.5	100.0%	0.161	0.009	AgCl沈殿除去ろ液
<sup>140</sup> Ba- <sup>140</sup> La	12.8 d	1596.5	95.4%	11.3	0.7	土壌(非破壊)

\* <sup>140</sup>Ba-<sup>140</sup>Laの放射能濃度=><sup>140</sup>Laの放射能濃度に0.868(過渡平衡の補正項)を乗した。

Radiochemical Analysis of Fission and Neutron Activation Products released by Fukushima Nuclear Power Plant Accident

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

## 福島第一原発周辺の土壌中のヨウ素 129 の分布 (東大工、東大院工、日大文理)

○三宅、田儀、松崎、藤原、斉藤、山形、本多、土屋、中野

東日本大震災により生じた福島第一原子力発電所の事故で多量の放射性物質が環境中に放出された。その中でも、I-131 (ヨウ素 131) は半減期が 8 日と短く、事故収束後に測定しようとしても検出が難しくなると考えられる。漏出した I-131 がどのように拡散されたかを知ることは、事故時の被ばく量を推定する上で非常に重要である。一方で、同様に原子炉から漏出し、化学的に同一の挙動をすると考えられる I-129 (ヨウ素 129) は半減期が 1570 万年と非常に長く、事故後も変わらず測定することができる。この I-129 の挙動を追うことで、I-131 の分布を推定することが可能と考えられる。そのためには、まず、福島第一原子力発電所近傍の同一試料について、I-131 と I-129 を同時に測定し、その関係性 (原発起源のヨウ素の同位体比 ( $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ ) など) を調べておくことが重要である。

本研究では、東京大学工学系研究科原子力専攻の研究チームが、福島第一原子力発電所から 60km 圏内で採取した表層土壌中の I-129 を測定した。その濃度レンジ、原発からの距離・方位との関係、他の放射性核種の濃度 (Cs-134, Cs-137, I-131) との関係から、原発起源の I-129 について考察する。I-129 は、今回の事故以前にも、ヨーロッパの使用済み核燃料再処理工場から漏出したものが、大気経由で日本にも到達しており、今回の事故固有の I-129 を切り分けるのが重要である。その上で、事故起源の I-129/I-131 比を正確に求め、核燃料燃焼度との関連を考察したい。

実験手法として、土壌からヨウ素を抽出し、東京大学 MALT のタンデム加速器を用いた AMS により土壌中の I-129 の量を測定した。土壌中の I-131 の量は、ゲルマニウム検出器による測定により求めた。また、ICP-MS を用いて土壌中の安定ヨウ素の量も測定した。

測定した結果、土壌中の I-129 と I-131 の量にはある程度の相関関係が見られたものの、同位体比にはバラつきも見られた。本研究では、測定結果のバラつきを生じさせる要因として、測定に用いた土壌試料の均一性、土壌から燃焼法によるヨウ素回収の際の収率、またこれらへの、土壌の種類やヨウ素濃度の与える影響について考察した。分析試料数が現段階では限られており、最終的な結論には至っていないが、いくつかの知見が得られたので報告する。

Title is given here in English 「Spatial distribution of Iodine-129 in surface soil around the Fukushima Daiichi nuclear power plant」

Y. Miyake, K. Tagi (Faculty of Eng., Univ. Tokyo), H. Matsuzaki, T. Fujiwara, T. Saito, T. Yamagata, Y. Tsutiya, C. Nakano (School of Eng., Univ. Tokyo), M. Honda (College of humanity and Sci., Nihon Univ)



# 1T08

## 福島県および関東地方東部における福島原発事故の放射能調査

(清水建設技術研究所<sup>1</sup>、筑波大数理物質<sup>2</sup>、筑波大生命環境<sup>3</sup>、筑波大理工<sup>4</sup>、筑波大研究基盤総合セ<sup>5</sup>、日大文理<sup>6</sup>) ○木下哲一<sup>1</sup>、末木啓介<sup>2</sup>、北川潤一<sup>2</sup>、五十嵐訓<sup>2</sup>、西村朋紘<sup>3</sup>、黄穎斯<sup>3</sup>、佐藤志彦<sup>3</sup>、半田晃士<sup>4</sup>、高橋努<sup>5</sup>、笹公和<sup>5</sup>、佐藤正教<sup>6</sup>、山形武靖<sup>6</sup>

2011年3月11日に起こった東北地方太平洋沖地震による被害により、福島第一原発の原子炉の冷却システムが損なわれた。格納容器内の圧力を下げるため排気が行われ、その結果として、おびただしい量の揮発性の高いセシウムやヨウ素などの核分裂生成物が環境中にばらまかれることになった。それらの生成物は大気の流れによって拡散し、降雨により地表に大量に降下する。我々のグループは広域にわたる分布を明らかにするために、3月下旬から5月上旬にかけて福島県、茨城県、栃木県東部、埼玉県東部、千葉県北部にて表面土壌を採取し、ガンマ線測定により定量可能な核種の分布を明らかにした。

2011年3月29日に放射能を補正した<sup>131</sup>Iと<sup>137</sup>Csの分布を図1に示す。<sup>131</sup>Iと<sup>137</sup>Cs共に福島県飯舘村や浪江町、中通りで降下量が多い。一方、関東地方東部では<sup>131</sup>Iと<sup>137</sup>Csは共に異なる分布が見られ、地形の影響を受けていると考えられる。アメダスによると3月15-16日に福島県で、3月21-24日に茨城県・栃木県・千葉県・埼玉県で降雨があった。気象モデルを用いた空気塊の輸送計算に基づく3月15日には福島第一原発からの空気塊は福島県および関東地方に広く分布し、3月21日は茨城県に分布していた。福島県と関東地方東部への汚染は、まさに空気塊が漂っていたところに降雨があったことにより説明できた。

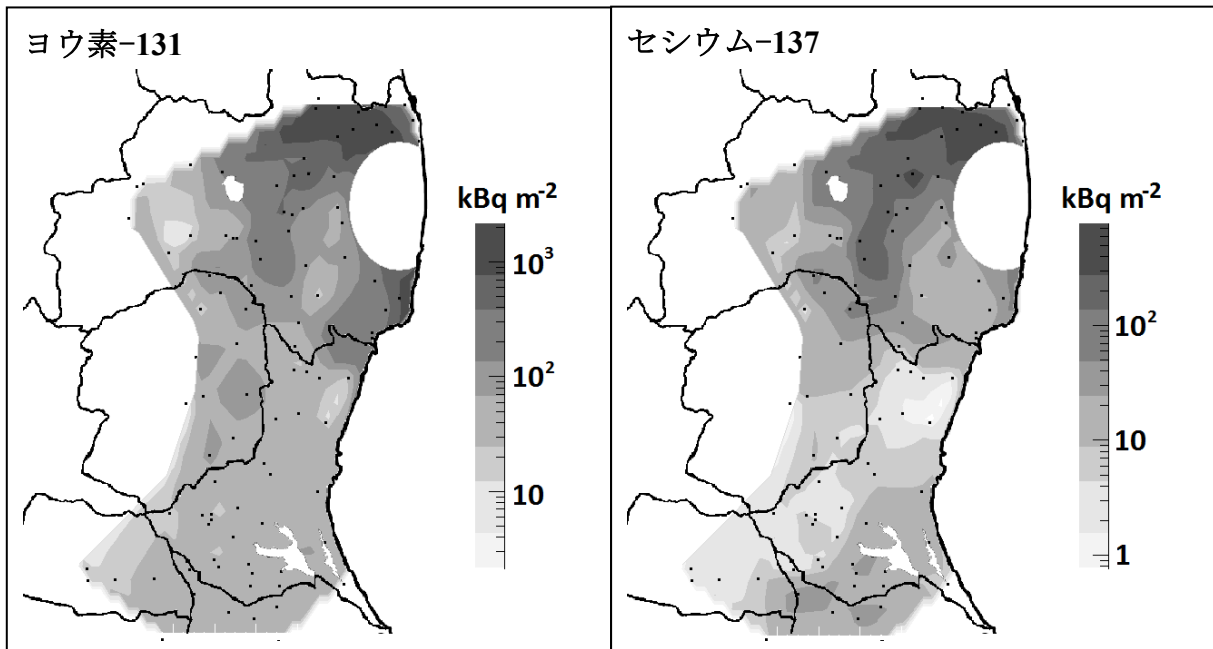


図1 2011年3月29日に壊変補正したヨウ素-131とセシウム-137の降下量の分布。点は土壌試料採取地点を示す。

Radioactivity survey on the Fukushima nuclear accident in Fukushima and Western Kanto

KINOSHITA, N., SUEKI, K., KITAGAWA, J., IKARASHI, S., NISHIMURA, T., WONG, Y.S., SATOU, Y., HANDA, K., TAKAHASHI, T., SASA, K., SATO, M., YAMAGATA, T.

## 放射性セシウムの果実への移行に関する調査・研究： 成長段階における濃度変化

(<sup>1</sup>学習院大、<sup>2</sup>福島県農業総合センター、<sup>3</sup>東北大学)

○村松康行<sup>1</sup>、大野剛<sup>1</sup>、佐藤守<sup>2</sup>、織田和優<sup>1</sup>、安部充<sup>2</sup>、阿部和博<sup>2</sup>、大槻勤<sup>3</sup>

**はじめに：** 福島第1原子力発電所の事故により、環境中に大量の放射性物質が放出され、土壌を始め様々な農作物が汚染された。初期には、放射性ヨウ素の野菜に対する暫定規制値(2000Bq/kg)を大きく超える値がホウレンソウなど葉もの野菜を中心に測定された。しかし、放射性ヨウ素の半減期は短いため時間経過に伴い、濃度は減少した。一方、土壌が放射性セシウム(<sup>137</sup>Cs及び<sup>134</sup>Cs)により汚染されたため、現在は、土壌から農作物への移行が懸念されている。果物に関しては、事故時には実っていなかったため、直接沈着は問題ないと考えられ、当初は土壌からの移行がどのくらいになるか注目した。文献によると土壌から果物への移行係数は0.001程度と低い値である。そして、果樹の根は深いところに張っているため、表層5cm程度が汚染されている現状では果実の放射性セシウム濃度はそれほど高くはならないと考えた。しかし、ウメの実などを測定してみると、予想よりも高い値が得られ、中には放射性セシウムの暫定規制値(500Bq/kg)を超える値が検出された。このことは、移行係数から予測した値では説明できない。

本研究では、果樹への汚染に注目し、生育段階での放射性セシウムの濃度変化、幹や葉に沈着したセシウムの転流等を調べ、果実への移行メカニズムについて考察した。

**サンプル及び分析法：** ウメ、サクランボ、モモ、リンゴ、ブドウ、ビワなどの試料は主として福島県果樹試験所で採取した。また、千葉県などでも採取した。果物ではないが、タケノコや新茶なども採取し、それらにおける転流についても調べた。試料は可食部だけでなく、葉なども分析に供した。測定は、学習院大学のGe半導体検出器で行った。

**結果及び考察：** 果物で放射性セシウムの暫定規制値を超えるかそれに近い値が見られたものは、筆者等が測定した試料では、ウメとビワであった。ウメについては、事故時に葉は出ていなかったものの開花期を迎えており、子房に付着した放射性セシウムがそこに残っていたため高い値が出たと考えられる。特に小梅では高く、規制値を超える値が検出されたものもあった。ビワについては事故時に葉が出ており、そこに付着した放射性セシウムが果実部に転流したと考える。事故時に葉が出ていなかった果実については、樹皮に付着した放射性セシウムが実の部分に転流する経路が考えられる。そこで、成長段階を追って、果実だけでなく葉もサンプリングし、放射性セシウムの濃度を測定した。その結果、モモやリンゴの葉に関しては、初期の段階で、<sup>137</sup>Cs及び<sup>134</sup>Csを合計すると500Bq/kgを超える値が検出された。一方、果実については、葉に比べて低い値であり、規制値を下回っていたものの、十分に検出される量であった。これらは主に、樹皮に沈着した放射性セシウムが、転流して果実に移行したと考える。しかし、果実中の濃度は、時間とともに減少し、実が大きくなることによる希釈効果が認められた。

果実ではないが、新茶やタケノコを調べた結果も、土壌からの経路ではなく、古い葉に着いたものが転流して、新芽やタケノコに移行したと考える。

Studies on the transfer of radiocesium into fruits during their growth

○Y. Muramatsu<sup>1</sup>, T. Ohno<sup>1</sup>, M. Sato<sup>2</sup>, K. Oda<sup>1</sup>, M. Abe<sup>2</sup>, K. Abe<sup>2</sup>, T. Ohtsuki<sup>2</sup> (<sup>1</sup>Gakushuin Univ.,

<sup>2</sup>Fukushima Agri. Tech. Ctr., <sup>3</sup>Tohoku University)

福島第一原子力発電所から放出された放射性セシウム及びヨウ素の土壌中深度分布と農作物への移行 (学習院大<sup>1</sup>, 福島県庁<sup>2</sup>, 福島県農業総合センター<sup>3</sup>) ○大野 剛<sup>1</sup>, 村松康行<sup>1</sup>, 三浦吉則<sup>2</sup>, 織田和優<sup>1</sup>, 稲川直也<sup>1</sup>, 小川 宏<sup>1</sup>, 山崎敦子<sup>1</sup>, 小林智之<sup>3</sup>, 二階堂英行<sup>2</sup>, 佐藤睦人<sup>3</sup>, 加藤義明<sup>3</sup>

【はじめに】福島第一原子力発電所から放出された放射性セシウム及びヨウ素の土壌深部への移行実態を明らかにすることは、放射性物質の農作物への移行を調べる上で重要である。本研究では、土壌特性の違いが放射性核種の深部への移行に与える影響を明らかにするために、水田、畑地、果樹園、森林において放射性セシウム及びヨウ素の深度分布を調べた。さらに福島県内で採取した種類の異なる土壌を用いて、放射性セシウムのキュウリ、トマト、ナス、ピーマンへの移行係数を調べた。

【土壌調査】福島県農業総合センター内の水田、畑、果樹園、森林から直径 5cm のコアサンプラーを用いて深度別 (0-2 cm, 2-4 cm, 4-6 cm, 6-10 cm, 10-15 cm, 15-20 cm, 20-25 cm, 25-30 cm) にそれぞれ 5 試料を採取した。それぞれの試料を十分に混合した後、U-8 容器に入れ、学習院大学のゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能測定をおこなった。

すべての試料において表層から 6cm までに 90%以上の放射性セシウムが存在していることが分かった。畑、果樹園、森林の表層試料 (0-2cm) には試料間に大きなばらつきは見られなかったが、水田試料には 10 倍以上の違いが見られた。また深部への移行は畑試料で大きく、水田試料で小さい傾向が見られた。これは畑土壌に比べ水田土壌の透水性が低いため土壌表面で水平方向の移動が大きくなったことを反映したものと考えられる。畑、果樹園、森林においては試料間のばらつきは小さく、1 試料を採取し代表値として用いても良いと考えられる。一方水田試料については、大きくばらつく可能性があるため 1 試料のみ採取し、それらの値を代表値として用いる場合注意が必要である。

【農作物移行調査】福島県内 3 地点から採取した、灰色低地土、淡色黒ボク土、褐色森林土を用いてキュウリ、トマト、ナス、ピーマンを栽培し、果実、葉、茎への移行係数を調べた。果実、葉、茎は、採取後に水道水で洗浄し、家庭用ミキサーで粉砕し凍結乾燥したものをそれぞれ U8 容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能測定をおこなった。作付け前の土壌の放射性セシウム濃度は、黒ボク土で最も高く、次いで灰色低地土、褐色森林土であった。土壌の放射性セシウム濃度の差は、それぞれの土壌の採取地点によるものである。今回最も高い放射性セシウム濃度を示した黒ボク土 (14200Bq/kg) は稲作に用いる土壌の規制値 (5000Bq/kg) を越えていたが、果実の値は 30Bq/kg 以下と食品の暫定規制値 (500Bq/kg) を大きく下回っていた。また土壌の種類により移行係数が異なることが分かった。灰色低地土のように粘土質の土壌においては、セシウムは土壌に強く吸着され、植物体への移行は少なくなると考えられる。今回、一番高い移行係数を示した褐色森林土でも 0.006 と非常に低い値であり、果実には放射性セシウムは移行しにくいことが分かった。部位別に見た移行係数は、各土壌ともに葉において高く、果実において最も低かった。

Depth profiles of radioactive cesium and iodine released from the Fukushima Daiichi nuclear power plant and their transfer to the agricultural crops

OHNO, T., MURAMATSU, Y., MIURA, Y., ODA, K., INAGAWA, N., OGAWA, H., YAMAZAKI, A., KOBAYASHI, T., NIKAIDO, H., SATO, M., KATO, Y.

## 福島第一原子力発電所の事故起源 $^{129}\text{I}$ をトレーサーとした土壌中のヨウ素の挙動

(日大文理<sup>1</sup>, 東大 MALT<sup>2</sup>, 京大防災研究所<sup>3</sup>) ○本多真紀<sup>1</sup>, 松崎浩之<sup>2</sup>, 山形武靖<sup>1,2</sup>, 土屋陽子<sup>2</sup>, 中野忠一郎<sup>2</sup>, 松四雄騎<sup>3</sup>, 永井尚生<sup>1</sup>

[はじめに]

福島第一原子力発電所の事故により放出された  $^{129}\text{I}$  は、大気中から雨によって降下し土壌に吸着し、上層に蓄積していると考えられ、土壌中のヨウ素の挙動トレーサーとして用いることができる可能性がある。しかし、大気圏内核実験やヨーロッパの再処理工場を起源とする  $^{129}\text{I}$  が既に環境(土壌)中に蓄積しているため、事故起源の  $^{129}\text{I}$  をトレーサーとするためにはこれらの  $^{129}\text{I}$  量を評価する必要がある。そこで本研究では、福島第一原子力発電所の事故により放出されて、土壌に吸着した  $^{129}\text{I}$  を定量することを目的として、阿武隈山地の深さ 30cm の土壌コアを事故後(2011.4.29)に採取し、事故前(2010.7.10)に採取した土壌コアと  $^{129}\text{I}$  濃度の深度分布を比較した。

[実験]

試料は、阿武隈山地で採取した ABK2(採取日 2010.7.10, 森林土壌)、ABK3(採取日 2011.4.29, ABK2 と同じ場所)、ABK12(採取日 2011.4.29, 畑土)を用いた。これらの土壌コアを乾燥させて約 0.5g 分取しチューブ炉で焼成して  $\text{I}_2$  ガスとし、アルカリトラップ溶液中に捕集した。このトラップ溶液に  $^{127}\text{I}$  キャリヤを 2mg 加え、溶媒抽出を行いヨウ素を精製した。I として回収した試料に  $\text{AgNO}_3$  溶液を加えて  $\text{AgI}$  沈殿を生成して、東京大学 MALT において  $^{129}\text{I}$ -AMS を行い、土壌中の  $^{129}\text{I}$  の定量を行った。土壌中の  $^{127}\text{I}$  量は、トラップ溶液を分取し ICP-MS を用いて定量を行った。

[結果]

事故後の森林土壌(ABK3)中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  の深度分布は、1.5cm までは事故前の森林土壌(ABK2)より5倍高い。そのため事故起源の  $^{129}\text{I}$  は森林土壌の1.5cm まで蓄積していることが分かる。また、1.5cm 以深では事故前とよく一致した(Fig. 1)。他の地域の事故前の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  と比較すると、宮城県玉造( $1.8 \times 10^{-9}$ , Y. Muramatsu et al. 2007)の31倍、東海村( $3.0 \times 10^{-7}$ , Y. Muramatsu et al. 1985)の1/5倍であった。ABK12は土壌が攪拌されている畑土であるため、ABK2、3と比べて  $^{127}\text{I}$  濃度が低く、深度分布は一定であった。  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は表層から 9cm まで急激に減少し、9cm 以深は一定となった。このことから9cm までに蓄積した  $^{129}\text{I}$  は事故起源であると考え、事故起源の  $^{129}\text{I}$  沈着量を求めたところ、 $5.68 \times 10^{11}$  atoms  $\text{m}^{-2}$  であった。

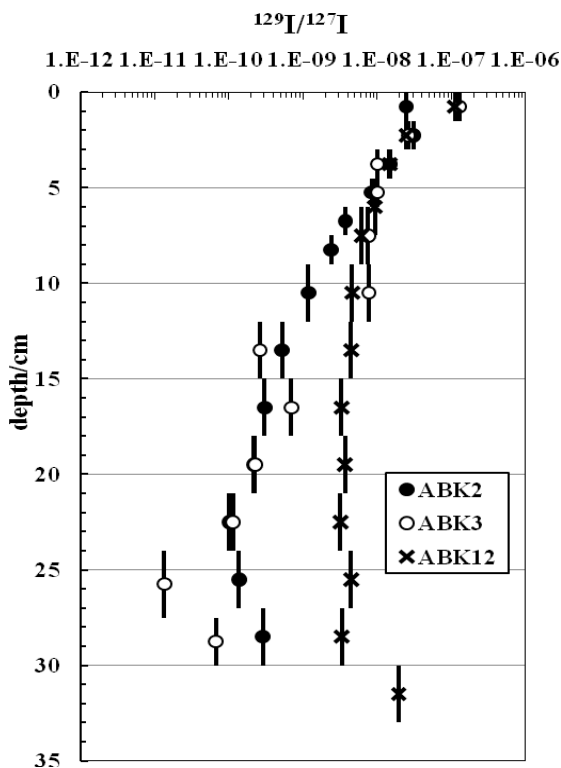


Fig. 1 阿武隈土壌中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  深度分布

Depth profile of  $^{129}\text{I}$  concentration in soil at Abukuma, Fukushima

Honda, M., Matuzaki, H., Yamagata, T., Tuchiya, Y., Nakano, C., Matsushi, Y., Nagai, N.

【はじめに】東日本大震災に伴う福島原子力発電所の事故では、炉心の緊急冷却のために海水が用いられたため、大量の汚染された海水が発生した。この汚染水にはセシウム、ヨウ素、ストロンチウム等が含まれており、ゼオライト等の吸着剤でセシウムを除去した後、逆浸透膜で淡水化して冷却水として再利用している。濃縮された汚染海水は更に蒸発塔で濃縮され、保管廃棄される予定である。本法では汚染水を増やすことなく、循環させて原子炉を冷却させることができる利点があるが、一方、濃縮された汚染海水には、まだ放射性セシウムも残存しており、除去していないストロンチウムも含まれている。これらの放射性物質を含む濃縮海水を安定な状態で保管し続けることは容器の腐食や海水の放射線分解による水素の発生などの問題があり簡単ではない。汚染海水は、放射性物質を十分に除去した後、海に放出することが最も適当であると考えられる。ここでは、セシウムを対象を絞り、研究を行った。

【吸着剤】フェロシアン化物はセシウムを選択的に吸着することがよく知られているが、フェロシアン化物は細かな粉末状で、液中に分散するため、そのままでは使用が難しい。我々は、フェロシアン化物を造粒したもので吸着塔を作り、汚染水を吸着塔を通して除去する方法を提案する。そこで、市販されているピュロライト社の Cs-3500(フェロシアン化ニッケルを樹脂で固定)、(株)日本海水が大日精化工業(株)の紺青(フェロシアン化鉄)を樹脂で固定させたもの(READ Cs(Fe))、我々の研究室で試作したフェロシアン化鉄含有ゼオライトを用いた。フェロシアン化鉄含有ゼオライトはゼオライトにフェロシアン化カリウムを吸着させたあと、塩化第二鉄エタノール溶液を添加することで作成した。

【実験と結果】神奈川県江ノ島沖で採取した海水を 0.45 $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルタで濾過したものに Cs<sup>+</sup> を 10ppm、IO<sub>3</sub><sup>-</sup> もしくは I<sup>-</sup> を 10ppm 加えた 2 種類の試験溶液を準備した。試験溶液 10mL に吸着剤を 0.1mg 入れ、恒温振盪器で温度 25 $^{\circ}\text{C}$ 、160rpm で 24 時間振盪させた。吸着剤の質量は吸引濾過した wet の状態で評価した。振盪後、5 $\mu\text{m}$  のフィルタで濾過し試料とした。ICP-MS で吸着剤を投入する前後の濃度を測定し、吸着性能を除去率(R)と分配係数(Kd)で評価した。Tab.1 にセシウムの吸着特性の結果を示す。加えたヨウ素の化学形態が吸着に影響を及び

Tab.1 Adsorption Property of Cs

	R %	Kd(mL/g)	iodine
Purolite Cs3500	99.93	1.42 $\times 10^5$	IO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
	99.89	9.08 $\times 10^4$	I <sup>-</sup>
READ Cs(Fe)	99.53	2.11 $\times 10^4$	IO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
	58.86	143	I <sup>-</sup>
ZC-ffc	65.38	189	IO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
	79.93	795	I <sup>-</sup>
ZF-ffc	88.92	398	IO <sub>3</sub> <sup>-</sup>
	91.42	1070	I <sup>-</sup>

ZC-ffc: natural clinoptilolite base

ZF-ffc: artificial F9-type zeolite

しているように見えるのが興味深い、基本的にはピュロライトの Cs3500 も日本海水の READ-Cs も極めて高い吸着特性を持っていることがわかる。ゼオライトの中にフェロシアン化鉄を担持させた吸着剤ではまだ前述の吸着材と比べると効率は低く、またゼオライトの種類により差が出ている。まだ、試作段階であるので改良を有するが、フェロシアン化鉄を作成するときにゼオライトの細孔径が小さいと表面に析出したフェロシアン化鉄により、より内部に第二鉄イオンが進行するのを妨げていると考えられる。ゼオライトの違いもその結果であると考えられる。

【謝辞】本試験で、吸着剤を提供していただいたピュロライト・インターナショナル株式会社、吸着剤を作成し提供いただいた株式会社日本海水、紺青を提供していただいた大日精化工業株式会社に深く感謝いたします。本研究は科研費(23360423)の助成を受けたものである。

# 研究発表要旨

## 9月20日(火)

1A01～1A04：口頭発表 A会場(ホール)  
1B01～1B16：口頭発表 B会場(会議室2,3)

## Lr の第一イオン化ポテンシャル測定に向けた、表面電離イオン源によるランタノイドのイオン化

(原子力機構<sup>1</sup>、GSI<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○佐藤望<sup>1</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、塚田和明<sup>1</sup>、佐藤哲也<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1</sup>、李子杰<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、菊池貴宏<sup>1</sup>、金谷佑亮<sup>1</sup>、Matthias Schädel<sup>1,2</sup>、永目諭一郎<sup>1</sup>、市川進一<sup>3</sup>

【はじめに】第一イオン化ポテンシャル(IP)は価電子の束縛エネルギーを反映する物理量であり、その値から電子状態に関する知見を得ることができる。最も重いアクチノイドである 103 番元素ローレンシウム(Lr)の電子配置は、相対論効果による 6d 軌道の不安定化および 7p<sub>1/2</sub> 軌道の安定化によって[Rn]5f<sup>14</sup>7s<sup>2</sup>7p になると考えられている。この配置は 7p 軌道の電子が緩く束縛された状態であるため、Lr は他のアクチノイド元素よりも低い IP を持つと予想されている。また、その値は 7p 軌道に充填された電子が相対論効果の影響をどの程度受けているかという点においても興味深い。

我々は、2 種類の元素のイオン化効率の温度依存性に基づいて IP を導き出すことができる「比較法」を Lr に適用するため、ガスジェット搬送装置に結合した表面電離イオン源の開発を進めている。この手法により、ごく微量かつ短寿命の核種を用いての IP 測定が可能になると考えられる。本講演では、イオン源の性能評価としてランタノイド元素のイオン化効率測定を行ったので報告する。

【実験】日本原子力研究開発機構のタンデム加速器で加速された <sup>11</sup>B 及び <sup>12</sup>C ビームとランタノイド標的との核反応により、ランタノイドの放射性同位体を合成した。核反応生成物を He/CdI<sub>2</sub> ガスジェットシステムによって表面電離イオン源に搬送し、そこから電場で引き出されたイオンをオンライン同位体分離装置で分離し、イオンの収量  $N_{\text{ISOL}}$  を  $\gamma$  線測定によって求めた。この時、ガスジェット搬送物を直接フィルターに捕集し、イオン化効率の分母となる中性原子の収量  $N_{\text{Direct}}$  を評価した。実験ではイオン源の温度を数点で変化させ、各同位体についてイオン化効率  $N_{\text{ISOL}}/N_{\text{Direct}}$  を算出した。

【結果】実験で得られた Eu, Dy 及び Lu のイオン化効率と表面温度の関係を Fig. 1 に示す。最高温度 2300 °C でのイオン化効率はそれぞれ 50%, 15%, 8%であった。また、期待されたようにイオン化効率は温度と共に増加し、同一元素間では同位体の半減期によらず同じ変化を示した。これらの結果から、ランタノイド元素は十分短い時間でイオン化されることが分かった。更に、観測されたイオン化効率は、各元素の IP だけでなく沸点に代表される蒸気圧特性にも依存することが示唆された。そのため、本手法による IP 測定において、各元素の沸点を考慮する必要性が明らかになった。

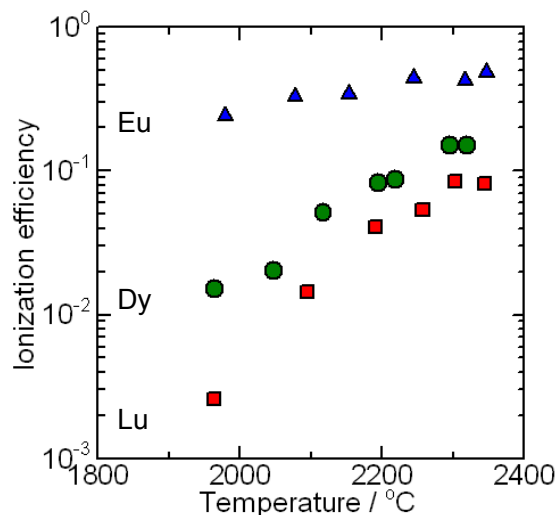


Fig. 1. Ionization efficiency of Eu, Dy, and Lu versus ion-source temperature.

Surface-ionization of lanthanides for the measurement of the first ionization potential of Lr  
 SATO, N., ASAI, M., TSUAKADA, K., SATO, T. K., TOYOSHIMA, A., LI, Z. J., OOE, K., KIKUCHI, T., KANEYA, Y., SCHÄDEL, M., NAGAME, Y., ICHIKAWA, S.

## メンデレビウム(Md)の還元電位測定

(原子力機構<sup>1</sup>、GSI<sup>2</sup>、阪大院理<sup>3</sup>、阪大理<sup>4</sup>、理研仁科セ<sup>5</sup>、マインツ大<sup>6</sup>)○豊嶋厚史<sup>1</sup>、李子杰<sup>1</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、佐藤望<sup>1</sup>、佐藤哲也<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、  
菊池貴宏<sup>1</sup>、金谷佑亮<sup>1</sup>、北辻章浩<sup>1</sup>、塚田和明<sup>1</sup>、永目諭一郎<sup>1</sup>、  
Schädel Matthias<sup>1,2</sup>、笠松良崇<sup>3</sup>、鉦優香<sup>4</sup>、篠原厚<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>5</sup>、  
Julia Even<sup>6</sup>

【はじめに】重アクチノイド元素の2価と3価の酸化還元電位は5f軌道の相対的な安定性を示すため、これを系統的に調べる事は興味深い。しかしながら、原子番号が100を超える元素は単一原子レベルで取り扱う必要があり、電流測定に基づく電気化学法をそのまま適用する事はできない。そこで我々はこれまでに単一原子レベルでの電気化学的手法を開発し[1]、102番元素ノーベリウムを酸化する事に成功した[2]。最近、その手法を用いて101番元素メンデレビウム(Md)の還元実験を行ったが、実験系内に含まれる酸素のためにその電位を定量的に決める事はできなかった[3]。そこで本研究ではその実験手順に改良を加え、Mdの酸化還元電位を決定する事に成功したので報告する。

【実験】原子力機構タンデム加速器において $^{248}\text{Cm}(^{11}\text{B}, 4n)$ 反応によって半減期27分の $^{255}\text{Md}$ を合成した。核反応生成物をHe/KClガスジェットによって化学室に搬送し、迅速化学分離装置に10分間捕集した。 $\alpha$ 線測定の妨害となるKClを除去するために、捕集物を0.10 M HCl水溶液に溶解してHDEHP抽出カラム(1.6 mm  $\phi$   $\times$  30 mm)に導入し、KClを溶出させるとともに $\text{Md}^{3+}$ を吸着させた。この手順を9回繰り返した後、6.0 M HCl水溶液350  $\mu\text{L}$ を用いてMdをカラムから溶出させた。溶出液を試料皿に収集し、Heガスとハロゲンランプを用いて強熱して蒸発乾固した。その後、乾燥試料に0.10 M HCl水溶液20  $\mu\text{L}$ を加えてMdを溶解した。この溶液をフロー電解カラム装置に導入し、0.10 M HCl水溶液1920  $\mu\text{L}$ を用いて溶離展開した。カラム作用電極には $-0.3 \sim -0.6$  Vの電圧(Ag/AgCl参照電極)を印加した。溶出液を240  $\mu\text{L}$ ずつ8つに分取し、試料皿に別々に収集した。その後、3.0 M HCl水溶液をカラム電極に導入し、カラム電極に吸着したイオンを溶出させた。溶出液を300  $\mu\text{L}$ ずつ2つに分取し、別の試料皿に収集した。これらの試料を蒸発乾固した後、PIPS検出器を用いて $\alpha$ 線測定を行った。

【結果と考察】最も高い印加電圧である $-0.3$  Vでは、 $^{255}\text{Md}$ のほとんどが0.10 M HCl水溶液で溶出せず3.0 M HClで溶出した。この挙動は副反応生成物である $^{250}\text{Bk}^{3+}$ や別の実験で調べた $\text{Gd}^{3+}$ や $\text{Yb}^{3+}$ と同じであり、この電位では $\text{Md}^{3+}$ として存在する事がわかった。一方、最も低い $-0.6$  Vでは、 $^{255}\text{Md}$ は0.1 M HCl水溶液で全て溶出した。我々は別の実験において $\text{Sr}^{2+}$ や $\text{Eu}^{2+}$ が0.1 M HCl水溶液で溶出する事を明らかにしており、今回の結果はMdが2価に還元された事を明らかに示している。これらのMdの還元率の変化に基づき、その還元電位を $-0.40 \pm 0.03$  Vと決定した。

## 【参考文献】

- [1] A. Toyoshima *et al.*, *Radiochim. Acta* **96**, 323-326 (2008).  
[2] A. Toyoshima *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **131**, 9180-9181 (2009).  
[3] 豊嶋ら、第53回放射化学討論会、1B08 (2009).

## Determination of redox potential of mendelevium (Md)

TOYOSHIMA, A., LI, Z. J., ASAI, M., SATO, N., SATO, T. K., OOE, K., KIKUCHI, T., KANEYA, Y., KITATSUJI, Y., TSUKADA, K., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M., KASAMATSU, Y., KOGAMA, Y., SHINOHARA, A., HABA, H., EVEN, J.



## 1A03

### シーボーギウムの溶液化学実験に向けた液体シンチレーション検出システムの開発

(阪大院理<sup>1</sup>, 東北大・電子光セ<sup>2</sup>) ○小森有希子<sup>1</sup>, 菊谷有希<sup>1</sup>, 横北卓也<sup>1</sup>, 木野愛子<sup>1</sup>, 菊永英寿<sup>2</sup>, 笠松良崇<sup>1</sup>, 吉村崇<sup>1</sup>, 高橋成人<sup>1</sup>, 篠原厚<sup>1</sup>

【はじめに】本研究の目的は、106番元素シーボーギウム( $^{265}\text{Sg}$ ,  $T_{1/2} = 9 \text{ s}/16 \text{ s}$ )の溶液化学実験に向け、化学分析後の溶液試料を迅速かつ高効率に測定する装置を開発することである。これまでに、我々は $\alpha/\beta$ 弁別能を持つオンライン液体シンチレーション検出システムを開発してきた[1]。本研究ではこれらの装置を改良し、テストとして $^{213}\text{Fr}$  ( $T_{1/2} = 34.6 \text{ s}$ )のオンライン自動連続測定を行ったので報告する。

【実験】これまでに作製した装置[1]では、水溶液試料と乳化シンチレータを合流させてセルに送液しながらセル内で溶液を混合していたが、今回、送液に要する時間を短縮してより迅速に測定を開始するために、セルに予め一定量の乳化シンチレータを入れ、水溶液試料をセルに直接送液しながらセル内で混合出来るようにセルおよびチェンバーを変更した。そのため最初にシステムの性能評価を行った。乳化シンチレータはUltima Gold AB<sup>®</sup> (PerkinElmer, Inc)を用いた。Ultima Gold AB<sup>®</sup>と $^{226}\text{Ra}$ または $^{241}\text{Am}$ を含んだ $0.1 \text{ M HNO}_3/5 \times 10^{-3} \text{ M HF}$ の混合溶液をセルに導入し、測定を行った。 $\alpha/\beta$ 弁別のために各イベントのエネルギー情報と蛍光寿命情報を記録した。得られたスペクトルから $\alpha$ 線測定のエネルギー分解能および検出効率を求めた。 $^{265}\text{Sg}$ の長寿命核異性体は主に $\alpha$ 壊変の後に自発核分裂というパターンで壊変するため、 $^{252}\text{Cf}$ を用いて同様の測定を行い、自発核分裂イベントの観測も試みた。次に、送液停止から何秒後に溶液が均一に混合されているかを調べた。攪拌子の入ったセルに4 mLのUltima Gold AB<sup>®</sup>を導入し、電磁スターラーでセル内の溶液を攪拌しながら $^{224}\text{Ra}$ の $0.1 \text{ M HNO}_3$ 溶液を1 mL/minで12秒間セルに送液した。一定時間攪拌を続けた後に測定を開始し、スペクトルを確認した。

オンライン測定テストとして、 $^{209}\text{Bi}(^{16}\text{O},4n)^{221}\text{Pa}$ 反応で生成した $^{213}\text{Fr}$ のオンライン自動連続測定を行った。 $^{213}\text{Fr}$ は大阪大学核物理研究センターAVFサイクロトロンKコースで製造した。He/KClガスジェットシステムで化学実験室に搬送された核反応生成物を1分間捕集後、 $0.1 \text{ M HNO}_3/5 \times 10^{-3} \text{ M HF}$ 溶液を1 mL/minで12秒間流して溶液化した。これをセル内で4 mLのUltima Gold AB<sup>®</sup>と混合した後、測定を開始した。125秒間測定した後、セル内の溶液を排出した。

【結果】エネルギー分解能は $^{226}\text{Ra}$  ( $E_\alpha = 4784 \text{ keV}$ )でFWHM 300 keV程度、 $^{214}\text{Po}$  ( $E_\alpha = 7687 \text{ keV}$ )でFWHM 500 keV程度であった。 $^{241}\text{Am}$ の検出効率はほぼ100%であった。 $^{252}\text{Cf}$ の自発核分裂イベントは $\alpha$ 線エネルギーで15~28 MeVの範囲に観測された。セル内のUltima Gold AB<sup>®</sup>を攪拌しながら $^{224}\text{Ra}$ の水溶液試料を1 mL/minで12秒間セルに送液したとき、送液停止から約3秒後には溶液は均一に混合され、測定を開始できることが判った。 $^{213}\text{Fr}$ のオンライン測定では、ガスジェット搬送物の捕集終了から約15秒後に測定を開始し、約2時間にわたる連続測定で $^{213}\text{Fr}$ の $\alpha$ イベントを $\beta$ イベントから弁別された状態で安定に測定することができた。

[1] 小森他, 第54回放射化学討論会 1P04 (2010).

Development of a liquid scintillation detection system for aqueous chemistry of seaborgium

KOMORI, Y., KIKUTANI, Y., YOKOKITA, T., KINO, A., KIKUNAGA, H., KASAMATSU, Y., YOSHIMURA, T., TAKAHASHI, N., SHINOHARA, A.

高分解能  $\alpha$  線微細構造測定による重核の核構造研究(原子力機構<sup>1</sup>, 理研仁科セ<sup>2</sup>, 阪大院理<sup>3</sup>, 名大院工<sup>4</sup>, 名大 RI セ<sup>5</sup>)○浅井雅人<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>2</sup>, 佐藤 望<sup>1</sup>, 笠松良崇<sup>3</sup>, 加治大哉<sup>2</sup>, 森本幸司<sup>2</sup>, 森田浩介<sup>2</sup>, 嶋 洋佑<sup>4</sup>, 柴田理尋<sup>5</sup>, 塚田和明<sup>1</sup>, 佐藤哲也<sup>1</sup>, 豊嶋厚史<sup>1</sup>, 石井哲朗<sup>1</sup>, 永目諭一郎<sup>1</sup>

## 【はじめに】

超重核の存在限界や安定性は、陽子や中性子の閉殻の位置や強さなど、原子核の殻構造に大きく依存する。殻構造は一粒子軌道のエネルギー間隔や順序に直接的に現れ、実験的には奇質量数の原子核の基底状態や励起準位のエネルギー、スピン・パリティ、一粒子軌道配位などを明らかにすることで調べることができる。生成量の極めて少ない超重核の場合、 $\alpha$ - $\gamma$  同時計数法が有効であり、これまでに 102~106 番元素の核構造研究が行われてきた。しかし、 $\alpha$  崩壊で放出される  $\gamma$  線は一般的にエネルギーが低く内部転換係数が大きいいため、放出率が極めて小さい。また  $\alpha$  遷移が直接娘核の基底状態や核異性体準位に遷移する場合には  $\gamma$  線を観測できないためこの手法は使えない。本研究では  $\gamma$  線を測定せず  $\alpha$  線測定のみから超重核の準位構造を明らかにすることを目的として、高分解能  $\alpha$  線微細構造測定法を開発し、102, 103 番元素の核構造研究に適用した。

## 【実験及び結果】

高分解能  $\alpha$  線微細構造測定法では、娘核の一準粒子軌道準位とその上の回転励起状態へ遷移する  $\alpha$  線のエネルギーと強度を精密に測定することで、一準粒子軌道準位のスピン・パリティ、軌道配位を決定する。数 10 keV のエネルギー差の  $\alpha$  線を明確に区別して観測するために、半値幅 10 keV 程度の  $\alpha$  線エネルギー分解能が必要である。短寿命核の測定に適用するため線源はガスジェット搬送法で作製するが、線源の厚さが分解能に大きく影響する。そこで、線源作製条件を変えて線源厚さと分解能を測定し、最適条件において厚さ約 60 nm、分解能 11 keV を得た。この条件において原子力機構タンデム加速器で合成した  $^{257}\text{No}$  の  $\alpha$  線微細構造を測定し、回転励起状態へ遷移する合計 6 本の  $\alpha$  線の観測に初めて成功した。また、理研 AVF サイクロトロン及び理研 GARIS を用いてそれぞれ  $^{257, 259}\text{Lr}$  並びに  $^{255g, m}\text{Lr}$  を合成あるいは合成・前段分離し、同様の手法で線源を作製して  $\alpha$  線微細構造を測定した。Lr 同位体の陽子軌道配位を初めて同定することができた (図 1)。

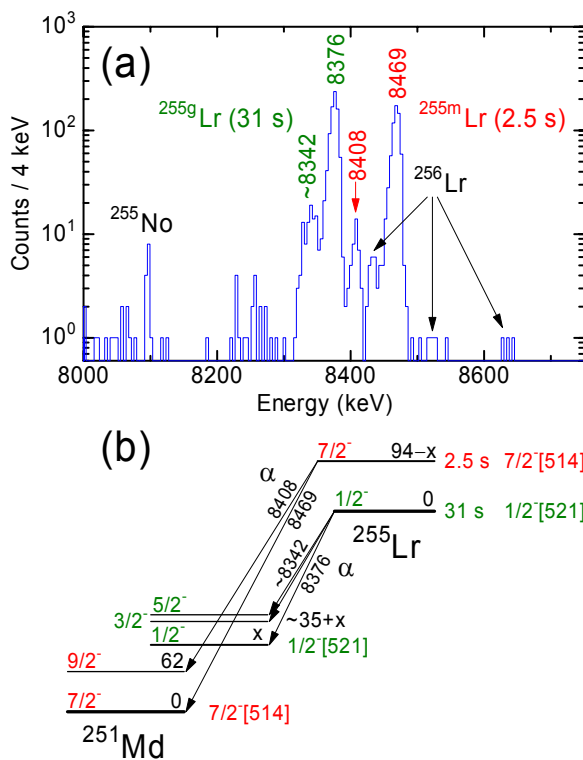


図 1: (a)  $^{255g, m}\text{Lr}$  の  $\alpha$  線スペクトル。(b) 本実験で得られた  $^{255g, m}\text{Lr}$  の  $\alpha$  崩壊図式。

High-resolution alpha fine-structure spectroscopy for studying nuclear structure of heavy nuclei  
 ASAI, M., HABA, H., SATO, N., KASAMATSU, Y., KAJI, D., MORIMOTO, K., MORITA, K., SHIMA, Y., SHIBATA, M., TSUKADA, K., SATO, T.K., TOYOSHIMA, A., ISHII, T., NAGAME, Y.

# 1B01

## 鉄イオンを含むケイ酸塩ガラスの水質浄化作用と構造の相関

(首都大学東京分子物質化学専攻<sup>1</sup>，近畿大学産業理工学部<sup>2</sup>)

○岩沼 準<sup>1</sup>，久富木志郎<sup>1</sup>，秋山和彦<sup>1</sup>，西田哲明<sup>2</sup>

【はじめに】 湖沼などの水の流出入が乏しい閉鎖系水域では、汚濁物質が蓄積しやすく、水質汚濁の指標となる化学的酸素要求量(COD)の達成率が極めて低い現状がある。河川や海域などの開放系水域の生物学的酸素要求量(BOD)達成率は 80%以上であるのに対し、閉鎖系水域の COD 達成率は 50 %程度に留まっている<sup>1)</sup>。既存の水質浄化方法では、薬品による二次汚染などの様々な問題を抱えている。これらの問題を解決する手段の一つとして鉄を利用した水の浄化方法が注目されている。本研究では、鉄イオンを含むソーダライムシリケートガラス(以後 xNCFS と略す。)を用いて水の浄化を行い、浄化作用とガラスの構造の相関について調査した。

【実験方法】 xNCFS は  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を合計 1 g あるいは 2 g バッチになるよう秤量し、めのう乳鉢で混合したものを白金るつぼに入れ電気炉で 1400 °C、1 時間熔融後、急冷し作成した。人工排水はスキムミルク、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{KH}_2\text{PO}_4$ 、 $\text{NaHCO}_3$ 、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  を蒸留水に溶かし、COD の初期値が 250 mg/L になるように調製した。三角フラスコに人工排水 200 mL と xNCFS 0.8 g を加え、1、2、3、4、5、7 日後に COD 測定を行った。COD の値は JIS K 0102 17 にしたがって  $\text{KMnO}_4$  を用いた酸化還元滴定で評価した。浄化試験前後の xNCFS の  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアースペクトルの測定では線源として  $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$  を、基準物質として  $\alpha\text{-Fe}$  を用いた。

【結果と考察】 Fig. 1 に、xNCFS を人工排水に浸漬した時の COD の相対濃度を示す。50NCFS の COD 相対濃度(□)はブランク(●)のものと比べて 2~3 日目にかけて大きく減少していることが分かった。また、10NCFS と 30NCFS の COD 相対濃度についても 5~7 日目に大きく減少することが分かった。Fig. 2 には、50NCFS の浸漬前後のメスバウアースペクトルを示す。浸漬前後で異性体シフトの値は  $0.23 \text{ mm s}^{-1}$  と一定であったことから、50NCFS 中の鉄は四面体型  $\text{Fe}^{3+}$  として存在し、浸漬前後でその化学状態は変化しないことが分かった。

1) 環境省、平成 22 年版 環境・循環型社会・生物多様性白書、p.183(2010)

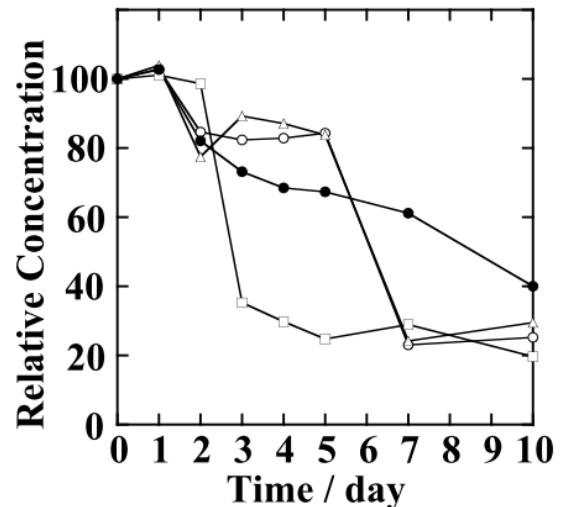


Fig. 1 10NCFS (○)、30NCFS (Δ)、50NCFS (□)、ブランク(●)の COD 相対濃度

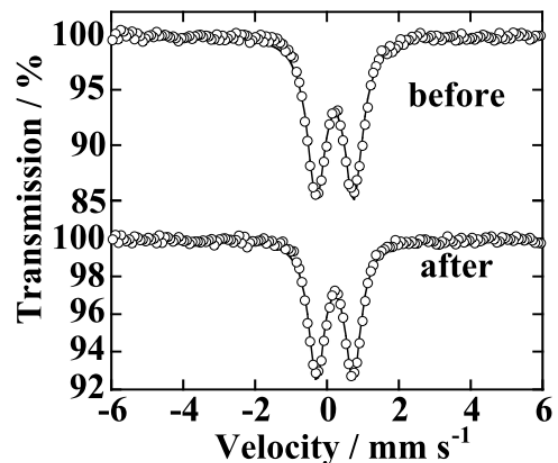


Fig. 2 50NCFS の浸漬前後のメスバウアースペクトル

A Relationship between Water Purifying Effect and Structure of Iron Containing Soda-lime Silicate Glass

IWANUMA, Jun ; KUBUKI, Shiro ; AKIYAMA, Kazuhiko ; NISHIDA, Tetsuaki

## ● 背景

バナジウム酸塩ガラスは  $V_2O_5$  を主成分とした半導体ガラスであり、結晶化ピーク温度以上での熱処理によって導電率が顕著に上昇することが知られている。本研究ではさらなる導電性の向上や物性の変化を目的として、今までで最も高い導電性を持つバナジウム酸バリウム鉄ガラス( $20BaO \cdot 70V_2O_5 \cdot 10Fe_2O_3$ )のバナジウムイオンをリンやマンガンイオンで置換したガラスを作成し、熱処理後の導電率と局所構造の相関を明らかにした。

## ● 実験

$20BaO \cdot 70V_2O_5 \cdot 10Fe_2O_3$  の組成の一部を  $MnO_2$  で置換したガラスを作成した。 $x$  mol%を置換したものを以後  $xMn_{sub}$  と略す。一連の試料は、 $BaCO_3$ 、 $MnO_2$ 、 $V_2O_5$ 、 $Fe_2O_3$  を用いて急冷法によって作成した。ガラスの構造は、メスbauer分光法(FeMS)(線源:  $^{57}Co(Rh)$ 、基準:  $\alpha-Fe$ )、粉末 X 線回折(XRD)(ターゲット:  $Cu-K_{\alpha}$ 、 $2\theta$ :  $10 \sim 80^\circ$ 、電圧:  $50$  kV、電流:  $300$  mA)を用いて調べた。ガラスの導電率( $\sigma$ )は直流四端子法(電流範囲:  $-1 \sim 1$  mA)で測定した。なおこれらの測定は  $500^\circ C$ 、 $1000$  分熱処理をした試料についても行った。これらの実験結果を、以前行ったリンイオンで置換したガラス ( $yP_{sub}$ ) の実験結果と比較した。

## ● 結果

図 1 に熱処理前後の  $10Mn_{sub}$  の FeMS を示す。I.S.の値は  $0.41 \rightarrow 0.38$   $mm\ s^{-1}$  と有意な差は見られず、Q.S.の値は  $0.76 \rightarrow 0.49$   $mm\ s^{-1}$  へと大きく減少した。この Q.S.の減少は  $xMn_{sub}$  と  $yP_{sub}$  のほとんどの組成に見られ、ガラス中の鉄イオン周辺の構造の歪みが減少していることがわかる。XRD によると、熱処理前に見られたハローは熱処理後に消失しており、微細な結晶化がうかがえる。図 2 に  $xMn_{sub}$  の熱処理前後の  $\sigma$  を示す。 $x=15$  までは熱処理によって導電性が上昇している。 $yP_{sub}$  でも同様に  $y=20$  までは導電性が上昇した。また置換量が増えるとどちらも導電率の上昇は抑えられるが、 $xMn_{sub}$  では耐熱性が、 $yP_{sub}$  では耐酸性が上がるのがわかった。これは置換量を変化させることによって導電性の他の特性を持ったガラスを作成できることを示唆している。

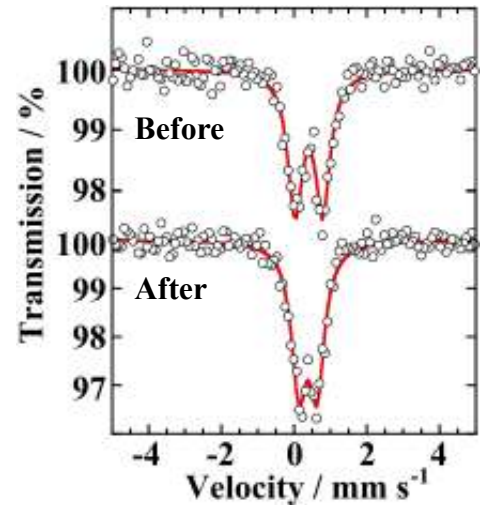


図 1  $10Mn_{sub}$  の熱処理前後の FeMS

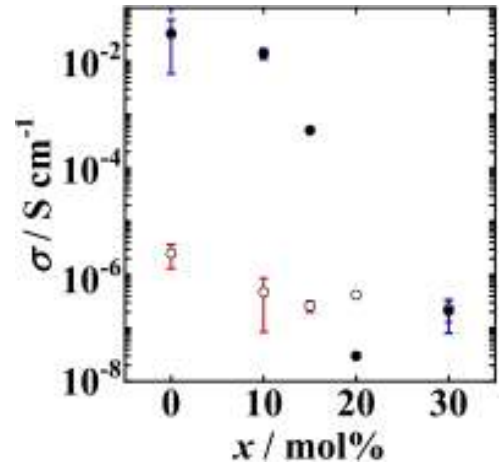


図 2  $xMn_{sub}$  の熱処理前後の  $\sigma$   
○: Before、●: After

混合原子価-3核ペンタフルオロ安息香酸鉄( $\text{Fe}^{3+}, \text{Fe}^{3+}, \text{Fe}^{2+}$ )錯体分子間  
ナノボイドへの有機分子入り込みのメスバウアー分光法による追跡  
(大同大<sup>1</sup>, 東邦大<sup>2</sup>, 東レリサーチセンター<sup>3</sup>)

○酒井陽一<sup>1</sup>, 尾中 証<sup>1</sup>, 高橋 正<sup>2</sup>, 中本忠宏<sup>3</sup>, 小木曾 了<sup>1</sup>, 高山 努<sup>1</sup>,

**はじめに** 結晶中にナノメートルスケールの空間 (ナノボイド) をもつ機能性物質への、分子の取り込み・脱離は最近注目されている現象である。メスバウアー分光法を用いて、ナノボイドへの分子の入り込みについて研究した。演者らが合成した混合原子価-3核ペンタフルオロ安息香酸鉄錯体  $\text{Fe}^{3+}_2\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$  (略称  $F5 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ ) は、減圧下加熱すると、結晶溶媒の  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  がとれた  $\text{Fe}^{3+}_2\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3$  ( $F5$ ) に変化する。室温でのメスバウアースペクトルにおいて、 $F5 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$  では3つの鉄イオンの原子価がデトラッピング (原子価平均化) 状態として観測されるのに対して、 $F5$  では  $\text{Fe}^{3+}$  と  $\text{Fe}^{2+}$  が区別される原子価トラッピング (局在化) 状態となる現象を見出していた (図1のAとB)<sup>1,2)</sup>。今回新たに、 $F5$  を有機溶媒の蒸気にさらすと溶媒分子が  $F5$  のナノボイドに入り込むことを、上のメスバウアースペクトルの変化を指標として追跡したので報告する。

**実験**  $F5 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$  と  $F5$  の合成は既報<sup>1,2)</sup> のとおり行った。 $F5$  を有機化合物の蒸気にさらす実験では、粉末試料を、有機液体を入れて密栓したガラス瓶中に、室温で数時間から数日間放置した。メスバウアー測定は通常の方法であり、ドップラー速度の基準は純鉄である。解析には MossWinn-4.0-Pre を用いた。

**結果と考察**  $F5$  粉末をアセトニトリル  $\text{CH}_3\text{CN}$  の蒸気にさらした試料の室温のメスバウアースペクトルを図1Cに示す。1組のダブルレットからなり、その異性体シフト、四極分裂は図1Aの  $F5 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$  とほぼ一致していて、 $\text{Fe}^{2.7+}$  であることを示唆している。このことは、 $\text{CH}_3\text{CN}$  が  $F5$  の分子間ボイドに入り込み、 $F5 \cdot \text{CH}_3\text{CN}$  となったことを推測させる。 $F5 \cdot \text{CH}_3\text{CN}$  を減圧下 (約 0.1 Torr) 135 °C で加熱した試料のメスバウアースペクトル (図1D) は原子価トラッピング型に戻ることがわかった。 $F5$  粉末を蒸気にさらしたとき、同様のメスバウアースペクトルのデトラッピング型への転換 (B→C) は、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ 、 $\text{CHCl}_3$ 、 $\text{C}_6\text{H}_6$  など多くの有機化合物で観測された。一方、クメン  $\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}(\text{CH}_3)_2$  蒸気は  $F5$  のメスバウアースペクトルを変化させなかった。

1) 酒井ら; 第12回メスバウアー分光研究会シンポジウム、(2011.3、東京)。

2) Y. Sakai et al.; ICAME 2011 (メスバウアー効果応用国際会議 2011) (2011.9, Kobe)。

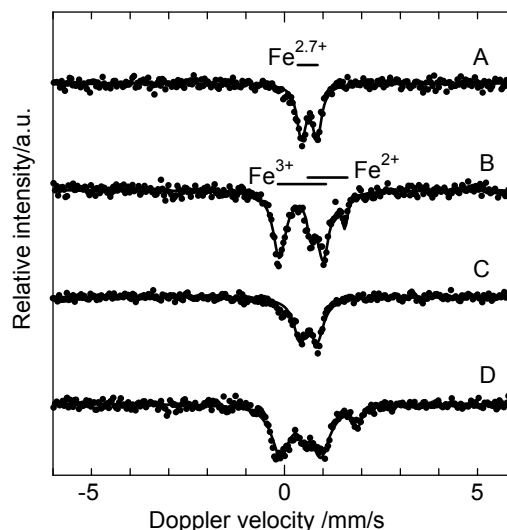


図1、室温のメスバウアースペクトル:

A;  $F5 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ 、 B;  $F5$ 、  
C;  $F5$  を  $\text{CH}_3\text{CN}$  蒸気にさらした試料、  
D; 試料 C を減圧下で加熱した試料。

Mössbauer spectroscopic study of incorporations of organic molecules into intermolecular voids in the mixed-valence trinuclear iron(III, III, II) pentafluorobenzoate complex

SAKAI, Y.<sup>1</sup>, ONAKA, S.<sup>1</sup>, TAKAHASHI, M.<sup>2</sup>, NAKAMOTO, T.<sup>3</sup>, OGISO, R.<sup>1</sup>, TAKAYAMA, T.<sup>1</sup>

1. Daido University, 2. Toho University, 3. Toray Research Center

# ヘテロ金属イオンをもつ混合原子価・3核ペンタフルオロ安息香酸鉄錯体の原子価デトラップ現象のメスバウアー分光法による研究

(大同大<sup>1</sup>、東邦大<sup>2</sup>、東レリサーチセンター<sup>3</sup>)

○小木曾 了<sup>1</sup>、尾中 証<sup>1</sup>、酒井陽一<sup>1</sup>、高山 努<sup>1</sup>、高橋 正<sup>2</sup>、中本忠宏<sup>3</sup>

**はじめに** 混合原子価・3核ペンタフルオロ安息香酸鉄( $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ )錯体における、鉄イオンの原子価のトラップ/デトラップ現象を我々のグループは研究してきた<sup>1)</sup>。本研究では、3つの鉄イオンの1つまたは2つを鉄以外のヘテロ金属イオンに変えて混合原子価錯体を合成し、原子価トラップ/デトラップ現象に与える影響を調べている。今回は、 $\text{Fe}^{3+}$ の1つをクロム(III)イオン  $\text{Cr}^{3+}$ に置き換えた錯体についてメスバウアースペクトル測定し興味深い結果を得たので報告する。

**実験** 硝酸クロム(III)、塩化鉄(II)、ペンタフルオロ安息香酸ナトリウムをエタノールに溶解し、さらにピリジンを加えて数時間攪拌した。生成した黒紫色の固体生成物をろ別し、ジクロロメタンにより抽出し、ジクロロメタン溶液から数週間かけて再結晶した。元素分析、FTIR 分光、熱重量分析、メスバウアー分光などの測定結果から、新規錯体は

$\text{Cr}^{3+}\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$  であると同定した。 $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ は結晶溶媒である。

**結果と考察**  $\text{Cr}^{3+}\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ の78~300 Kの温度範囲での<sup>57</sup>Fe-メスバウアースペクトルを図1に示す。ドップラー速度の基準物質は純鉄である。78 Kのときは $\text{Fe}^{3+}$ と $\text{Fe}^{2+}$ に帰属される2組のダブルットの面積比が約1:1で観測され、原子価トラップ状態であることを示した。温度を上昇させていくと $\text{Fe}^{3+}$ と $\text{Fe}^{2+}$ の2成分が徐々に融合し(平均化し)300 Kでは完全に1組のダブルット(異性体シフト(*IS*); 0.72 mm/s、四極分裂(*QS*); 0.43 mm/s)となり、原子価デトラップ状態になった。我々が既に報告している混合原子価3核錯体 $\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ の室温での*IS*値は0.64 mm/sで、原子価デトラップ状態となった鉄イオンは $\text{Fe}^{2.7+}$ の状態である(2.7は価数+3、+3、+2の平均値)<sup>1)</sup>。今回の $\text{Cr}^{3+}$ を含む混合原子価錯体 $\text{Cr}^{3+}\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ で得られた高めの*IS*値(0.72 mm/s)は、 $\text{Fe}^{2.5+}$ の状態を示唆している。つまり、この混合原子価錯体では $\text{Fe}^{3+}$ と $\text{Fe}^{2+}$ との間で原子価のデトラップがおこり、ヘテロ金属イオンである $\text{Cr}^{3+}$ は関与していないと考えられる。我々のこの観測結果は、ヘテロ金属イオンを含む3核カルボン酸鉄錯体で、2つの鉄イオンの間で原子価デトラップが確認された初めての例である。

1) 酒井ら; 第12回メスバウアー分光研究会シンポジウム、(2011.3、東京)。

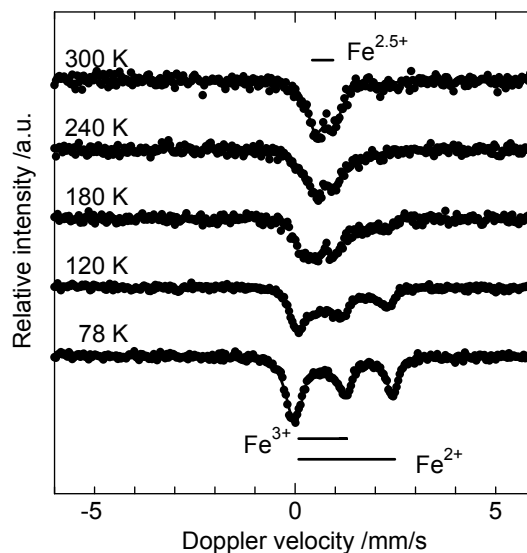


図1.  $\text{Cr}^{3+}\text{Fe}^{3+}\text{Fe}^{2+}\text{O}(\text{C}_6\text{F}_5\text{COO})_6(\text{C}_5\text{H}_5\text{N})_3 \cdot \text{CH}_2\text{Cl}_2$ のメスバウアースペクトルの温度依存性

Syntheses and Mössbauer spectroscopic study of mixed-valence hetero-trimetallic pentafluorobenzoate complexes containing iron ions

OGISO, Ryo<sup>1</sup>, ONAKA, Satoru<sup>1</sup>, SAKAI, Yoichi<sup>1</sup>, TAKAYAMA, Tsutomu<sup>1</sup>, TAKAHASHI, Masashi<sup>2</sup>, NAKAMOTO, Tadahiro<sup>3</sup>

1. Daido University, 2. Toho University, 3. Toray Research Center

## 固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究 (XXVI) ～炭素・酸素含有ボロン膜における水素同位体滞留挙動の不純物濃度依存性～

(静岡大理放射研<sup>1</sup>、核融合研<sup>2</sup>) ○三浦 遼<sup>1</sup>、押尾純也<sup>1</sup>、濱田明公子<sup>1</sup>、川崎浄貴<sup>1</sup>、藤島徹生<sup>1</sup>、芦川直子<sup>2</sup>、相良明男<sup>2</sup>、大矢恭久<sup>1</sup>、奥野健二<sup>1</sup>

【緒言】核融合炉において真空容器内の不純物(炭素や酸素等)の除去およびプラズマへの混入を低減するため、ホウ素(ボロン)を第一壁上に蒸着するボロニゼーションが検討されている。このためボロン膜には炭素や酸素等の不純物が混入することが予測される。このボロン膜にプラズマから漏洩したトリチウムを含む高エネルギー水素同位体が打ち込まれ、ボロンのみならず不純物によっても水素同位体が捕捉されると考えられる。そのため炉内トリチウムインベントリ低減の観点から不純物を含むボロン膜中での水素同位体滞留挙動を明らかにすることが重要である。これまでに炭素単独含有、酸素単独含有ボロン膜における水素同位体滞留について明らかにしたが、実機を想定した場合には炭素と酸素が同時に混入した際の影響について明らかにする必要がある。そこで本研究では種々の不純物濃度のボロン膜を調整し、これらの膜中における重水素滞留挙動について検討した。

【実験】プラズマ化学気相蒸着法を用いて、表に示した元素組成のボロン膜(Samples 1 - 5)をシリコン基板上に成膜した。残留水素除去後に室温にて重水素イオン(D<sub>2</sub><sup>+</sup>)照射を、イオンフルエンスを  $1.0 \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$  で行った。重水素イオン照射前後にて XPS 測定を行うことで各サンプルにおける化学状態を評価した。さらに重水素の滞留挙動を明らかにするために、各サンプルに対し、昇温速度を  $0.5 \text{ K s}^{-1}$ 、昇温領域を室温から  $1173 \text{ K}$  において TDS 測定を行った。

【結果・考察】図に各サンプルの D<sub>2</sub> TDS スペクトルを示す。重水素の脱離は3つのピークから成っており、 $550 \text{ K}$  付近が B-D-B 結合、 $750 \text{ K}$  付近が B-D 結合、 $900 \text{ K}$  付近が B-O-D 結合および B-C-D 結合からの D<sub>2</sub> 脱離であると帰属した<sup>[1][2]</sup>。炭素濃度が増加し酸素濃度が減少するに従い、B-C-D 結合および B-O-D 結合による重水素滞留量が共に増加するとともに、全重水素滞留量も増加した。XPS 測定より、炭素濃度が増加すると C-B 結合が増加するが、酸素濃度が増加しても O-B 結合が増加せずに遊離酸素が増加することが示された。また C-O 結合を形成している割合は少ないことも示された。炭素濃度 20%以下において炭素単独含有ボロン膜では C-B 結合の増加は確認されなかったことから酸素の共存により化学状態が変化したと考えられた。これらのことから、炭素と酸素が共存する場合、炭素 10-20%混入時においても B-C-D 結合が形成され重水素が捕捉されることが示唆された。

[1] S. SUZUKI *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **390**, 200 (2009)

[2] A. YOSHIKAWA *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **367**, 1527 (2007)

表 各サンプルの元素組成比(%)

Sample	B	C	O
1	59.3	2.7	38.6
2	58.1	10.7	28.8
3	54.5	21.2	23.8
4	54.2	31.4	12.7
5	58	40.7	1.2

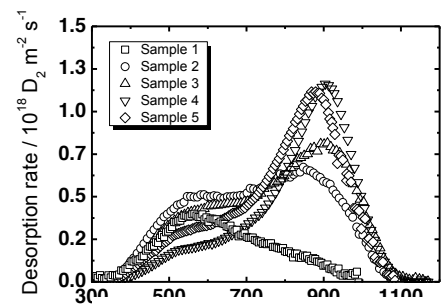


図 各サンプルにおける TDS スペクトル

## 固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究 (XXVII) – 重水素イオンを単独照射したタングステンにおける重水素滞留挙動の解明

(静岡大理放射研<sup>1</sup>、核融合研<sup>2</sup>、九州大応力研<sup>3</sup>) ○内村大道<sup>1</sup>、小林真<sup>1</sup>、鈴木優斗<sup>1</sup>、川崎浄貴<sup>1</sup>、宮原祐人<sup>1</sup>、芦川直子<sup>2</sup>、相良明男<sup>2</sup>、吉田直亮<sup>3</sup>、大矢恭久<sup>1</sup>、奥野健二<sup>1</sup>

**【緒言】**タングステンは、D-T 核融合炉においてプラズマ対向壁への利用が検討されている。タングステンには、プラズマから漏洩した水素同位体、ヘリウム、炭素等の高エネルギーの粒子により欠陥が形成するとともに、水素同位体はタングステン中でホットアトムの挙動を示しながら様々な反応を起こし、エネルギーを失って最終的に欠陥に捕捉され滞留することが考えられる。トリチウムを含む水素同位体の滞留挙動の解明は、核融合炉におけるトリチウムインベントリを評価する上で必要である。本研究では、タングステン中の欠陥形成が重水素の滞留に及ぼす影響を解明するため、 $D_2^+$ の照射フルエンスを変化させて照射し、各フルエンスにおける欠陥形成と重水素滞留の相関を明らかにした。

**【実験】**試料はアライドマテリアル社製の歪取り加工済みタングステン ( $10\text{ mm}^{\phi} \times 0.5\text{ mm}^l$ ) を用いた。不純物除去後に、イオンエネルギーを  $3.0\text{ keV}$ 、フラックスを  $1.0 \times 10^{18}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$  とし、フルエンスを  $(0.3\text{--}1.8) \times 10^{22}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}$  と変化させて  $D_2^+$ 照射を行った。各フルエンスにおける重水素滞留挙動評価のため昇温脱離法(TDS)を、室温から  $1173\text{ K}$  まで昇温速度を  $0.5\text{ K s}^{-1}$  として行った。また、グロー放電発光分光分析(GD-OES)により重水素の深さ方向分布の測定を行うとともに、透過型電子顕微鏡(TEM)観察により重水素照射した試料表面の欠陥状態評価を行った。

**【結果・考察】**図に、種々のフルエンスにおいて  $D_2^+$ 照射したタングステンの  $D_2$  TDS スペクトルを示す。400 K 付近のピーク 1 は表面吸着及び転位ループ、550 K 付近のピーク 2 は原子空孔<sup>[1]</sup>、650 K 付近のピーク 3 はバルクからの重水素脱離であると考えられた。フルエンスに対する各ピークの重水素滞留量変化から、ピーク 1 における捕捉が  $1.0 \times 10^{22}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}$  で飽和し、その後ピーク 3 による捕捉が増加していることがわかった。この結果から、試料表面付近での重水素滞留が飽和した後、重水素がバルクへ拡散し、タングステン中における重水素滞留量が増加することが示唆された。また、 $D_2^+$ 照射したタングステンの TEM 画像からフルエンス増加に伴い転位ループ密度が増加しており、原子空孔の形成が示唆された。さらに GD-OES の結果から、フルエンス増加に伴いバルクにおける重水素滞留量が増加することがわかった。これらのことから、重水素は放出時に原子空孔による捕捉、脱捕捉を繰り返すためにバルクからの放出ピークが高温側にシフトすることが示唆された。そのシフトはフルエンス増加による欠陥量の増加と相関関係にあり、タングステン中における重水素の滞留量もまた、欠陥量の増加と相関があることが明らかとなった。

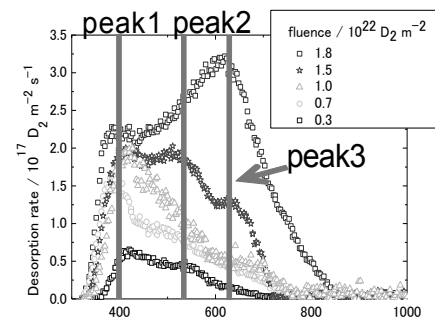


図 各フルエンスで  $D_2^+$ 照射したタングステンの  $D_2$  TDS スペクトル

[1] H. Eleveld et al., *J. Nucl. Mater.*, 191 (1992) 433.

Studies on hot atom chemical behavior of energetic ions in solids(XXVII)-Elucidation of deuterium retention behaviors in only  $D_2^+$  irradiated tungsten.

UCHIMURA,H. ,KOBAYASHI,M. ,SUZUKI,M. ,KAWASAKI,K. ,MIYAHARA,Y. ,ASHIKAWA,N., SAGARA,A. ,YOSHIDA,N. ,OYA,Y. ,OKUNO,K.



固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究  
(XXVIII) – 熱中性子照射したチタン酸リチウムにおけるトリチウムの化学的放出過程の解明 –

(静岡大理放射研<sup>1</sup>, 京大原子炉<sup>2</sup>) ○戸田 健介<sup>1</sup>, 小林 真<sup>1</sup>,  
濱田 明公子<sup>1</sup>, 松岡 和志<sup>1</sup>, 藤島 徹夫<sup>1</sup>, 藤井 俊行<sup>2</sup>, 山名 元<sup>2</sup>,  
大矢 恭久<sup>1</sup>, 奥野 健二<sup>1</sup>

**【諸言】** D-T 核融合において燃料となるトリチウムは  ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$  または  ${}^7\text{Li}(n,n'\alpha)\text{T}$  の核反応により生成する。そのため、固体ブランケットにはリチウムセラミックスの導入が検討されている。その中でも  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  は反応性が低くトリチウム回収効率も良いことから、国際熱核融合実験炉におけるテストブランケットモジュールへの使用が検討されている。実機開発に向けた効率的なトリチウム燃料サイクルを確立するため、トリチウム増殖材からのトリチウム放出挙動を明らかにすることが必要である。本研究では  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  に対して熱中性子照射を行い、生成したトリチウムの放出挙動を速度論的に考察した。

**【実験】** 試料として  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  粉末を用い、京都大学原子炉実験所(KURRI)の研究用実験炉においてフルエンス  $3.3 \times 10^{15} \text{ n cm}^{-2}$  まで熱中性子照射を行い、静岡大学にて TDS 実験により試料からトリチウムを放出させた。He パージガスで回収し、比例計数管にてトリチウム量を測定した。トリチウムの放出化学形及び放出量を計測するために、2つのバブラーを用いて HT と HTO を分離回収した。トリチウム放出過程を速度論的に解明するために、加熱温度を一定とした等温加熱実験と、昇温速度を変化させた昇温速度依存性実験を行った。

**【結果・考察】** 図にフルエンス  $3.3 \times 10^{15} \text{ n cm}^{-2}$  まで熱中性子照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  における各昇温速度についてのトリチウム TDS スペクトルを示す。放出された生成トリチウムの化学形は約 98 %が水形(HTO)であり、他はガス形(HT)であった。昇温速度の増加に伴い、トリチウム放出速度の増加やピーク温度の高温へのシフトが見られたが、全体の放出量はほぼ一定であった。主要な放出ピークの活性化エネルギーは 0.68 eV と算出された。この値は照射欠陥である E'-center と酸素正孔中心の再結合の活性化エネルギー、0.68 eV と一致しており、照射欠陥に捕捉されたトリチウムが消滅過程に伴って放出される過程に由来すると考えられた<sup>[1]</sup>。一方、等温加熱実験では、加熱温度の上昇に伴いトリチウムの放出速度が増加した。このスペクトルは、球体中における拡散方程式でフィットできることから、照射欠陥から脱離したトリチウムの試料内部から表面への拡散が照射欠陥に捕捉されたトリチウムの放出過程の律速段階であることが示唆された。

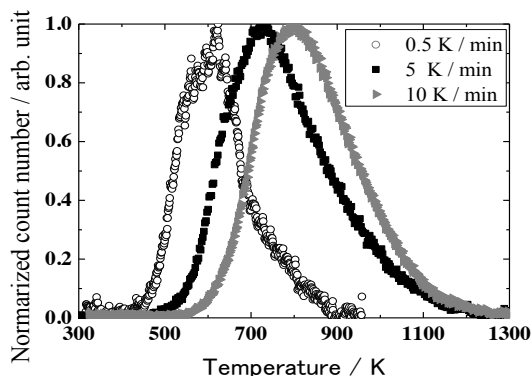


図 熱中性子照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の各昇温速度における TDS スペクトル

[1]Y. Inagaki *et al.*, *Fusion Sci. Technol.*, **56**, 821 (2009).

## 固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究 (XXIX) ～ステンレス酸化膜の化学状態が水素同位体滞留挙動に及ぼす影響の解明～

(静岡大理放射研<sup>1</sup>, 富山大水素セ<sup>2</sup>, 原子力機構<sup>3</sup>, 核融合研<sup>4</sup>)

○田口僚久<sup>1</sup>, 押尾純也<sup>1</sup>, 鈴木優斗<sup>1</sup>, 松岡和志<sup>1</sup>, 宮原祐人<sup>1</sup>,  
松山政夫<sup>2</sup>, 林巧<sup>3</sup>, 山西敏彦<sup>3</sup>, 朝倉大和<sup>4</sup>, 大矢恭久<sup>1</sup>, 奥野健二<sup>1</sup>

【諸言】ステンレス(SS316)は重水素(D)とトリチウム(T)を燃料とする D-T 核融合炉において真空容器や冷却管などへの幅広い利用が検討されている。ステンレス表面には酸化膜が形成し、トリチウムを含む水素同位体の滞留要因となることが知られている。酸化膜の化学状態は形成温度により変化することが分かっており、酸化膜化学状態とトリチウム滞留挙動との相関の解明はトリチウム滞留抑制・制御の観点から重要である。そこで本研究では、酸化膜化学状態が水素同位体滞留挙動に及ぼす影響について検討した。

【実験】試料は SS316 板(10×10 mm<sup>2</sup>, 1.0 mm<sup>t</sup>, ニラコ社製)を用い、表面不純物を除去した後に、酸素分圧 0.2 kPa の Ar/O<sub>2</sub> ガスを用い、室温、473 K、673 K にて酸素曝露を 1 時間行い、酸化膜を形成させた。その後、573 K にて曝露圧力 0.2 MPa で重水素ガスを 1 時間曝露した。酸化膜の化学状態を評価するために、D<sub>2</sub> 曝露前後に X 線光電子分光(XPS)測定を行い、その後、室温から 1173 K まで 100 K ごとに加熱と XPS 測定を繰り返し、各温度での酸化膜の化学状態変化を評価した。また、重水素の放出挙動を解明するため昇温速度を 30 K min<sup>-1</sup> として室温から 1173 K まで昇温脱離(TDS)測定を行った。

【結果・考察】図に室温、473 K、673 K で酸化膜を形成した試料に対する D<sub>2</sub> と D<sub>2</sub>O の TDS スペクトルを示す。D<sub>2</sub> の全放出量は酸化膜形成温度が高くなるにつれ増加したが、D<sub>2</sub>O の全放出量は 473 K で増加した後 673 K で減少することが明らかになった。D<sub>2</sub> と D<sub>2</sub>O の TDS スペクトルは 600 K、700 K、800 K 付近の 3 つの脱離ピークに分離することができ、それぞれ表面吸着<sup>[1]</sup>、酸化膜による捕捉<sup>[2]</sup>、バルク<sup>[3]</sup>での滞留と帰属した。D<sub>2</sub> と D<sub>2</sub>O の TDS スペクトルから各放出量を比較すると、酸化膜からの重水素の放出は主に D<sub>2</sub> であるということが分かった。また、D<sub>2</sub>O TDS スペクトルより、700 K 付近の重水放出は酸化膜形成温度上昇とともに放出量が増加していた。XPS 測定より、酸化膜表面の主な酸化物は鉄の酸化物であり、形成温度上昇とともに Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の割合が増加した。鉄酸化物の分解温度は 700 K 付近で、酸化膜の捕捉による重水素の放出温度領域と一致した。一方、クロム酸化物の分解温度は 900 K 付近であり、重水素滞留挙動はクロム酸化物に関係しておらず、鉄酸化物にのみ影響されることが考えられ、表面での形成温度上昇に伴う Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の割合の増加は、滞留していた重水素を酸化するため D<sub>2</sub>O の放出量を増加させたことと示唆された。

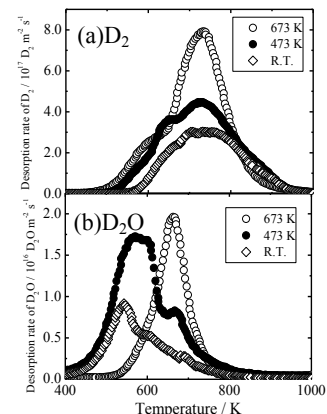


図 各温度で酸化膜を形成した試料における

(a)D<sub>2</sub>,(b)D<sub>2</sub>O TDS スペクトル

[1] T. Hirabayashi *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **126**, (1984) 28-43

[2] K. Okuno *et al.*, *Fusion Sci. Technol.*, **56** (2009) 799 [3] C.R.Cole *et al.*, *Appl. Surf. Sci.*, **253** (2007) 3789

【はじめに】高エネルギー $^{57}\text{Mn}$  ビームを用いたインビームメスバウアー分光は、打ち込まれたイオンの近傍の電子状態を高感度で観測可能である。Fe または Mn 原子と H 原子との二元素化合物は合成されておらず、三元素化合物として  $\text{Mg}_2\text{FeH}_6$  が安定である。我々は、結晶構造が簡素である岩塩型結晶水素化リチウムに注目した。水素化リチウムに  $^{57}\text{Mn}$  をインプラントし、その娘核  $^{57}\text{Fe}$  に対してメスバウアー分光を行うことで、水素に囲まれた  $^{57}\text{Fe}$  の物理化学的な挙動を調べることが本研究の目的である。

【実験】放射線医学総合研究所の重イオン加速器施設 HIMAC を用いて、核子あたり 500MeV に加速された  $^{58}\text{Fe}$  一次ビームを 27mm 厚のベリリウム標的に照射し、入射核破碎過程によって不安定核  $^{57}\text{Mn}$  ビームを生成した。二次ビームライン SB2 によって他の核破砕片から分離された  $^{57}\text{Mn}$  ビームは、エネルギー減衰板によって、水素化リチウム試料の表面近くにインプラントされた。粉末状の水素化リチウム試料(和光純薬工業株式会社より購入)は、Al 箔で包んだ状態(試料の厚さは約 3mm)で BN ヒータ上にマウントされた。試料にインプラントされた  $^{57}\text{Mn}$  の  $\beta$  壊変後 ( $T_{1/2} = 87.2$  s)、平行平板電子なだれ検出器 (PPAC) と  $\beta$  線アンチコインシデンス法[1]により、 $^{57}\text{Fe}$  から放射される 14 keV  $\gamma$  線を選択的に検出し、メスバウアー分光を行った。試料の温度を室温から 823 K まで変化させ、メスバウアースペクトルの温度変化を測定した。

【結果】得られた水素化リチウム中の  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアースペクトルを Fig.1 に示す。ドップラー速度は  $\alpha\text{-Fe}$  で校正した。得られたスペクトルは、1つのシングレットと2つのダブルレットからなる。シングレット成分 ( $\delta = 0.29(3)\text{mm/s}$ ) では、Fe 原子が Li の置換位置を占めており、良い対称性で H 原子に囲まれていると考えられる。Fe と H との電気陰性度の差は小さいので、共有結合性の化学結合となっていると考えられる。密度汎関数計算と比較することで、他の成分の帰属を行う。

【参考文献】 [1] T. Nagatomo et al. Nucl. Instr. Meth. B 269 (2011) 455.

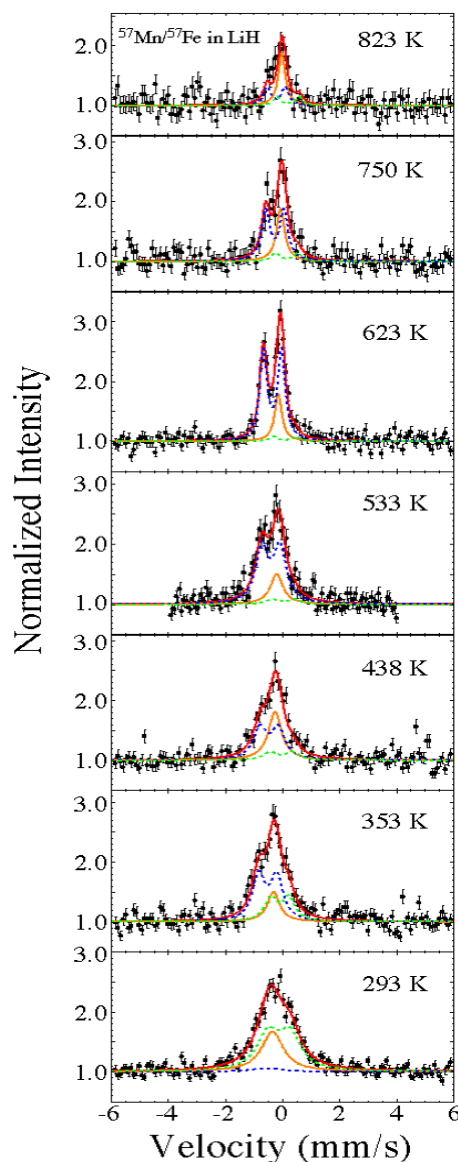


Fig.1. Temperature dependence of Mössbauer spectra of  $^{57}\text{Mn}/^{57}\text{Fe}$  in LiH.

In-beam Mossbauer spectroscopy of  $^{57}\text{Mn}$  implanted into lithium hydride

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

【はじめに】遷移金属を希薄に添加した酸化物絶縁体および半導体は、室温で強磁性を示すことから、機能性セラミックスの作製において重要な材料となる。特に、2種類の遷移金属を共添加した際には、磁化特性を操作でき、その磁気秩序発現の起源の解明と磁性セラミックスとしての応用が期待されている。第一原理計算では、 $ZrO_2$  に遷移金属を添加した際に 500 K 程度の強磁性転移温度をもつことが報告されている[1]。実験的にも、遷移金属を 1 元素添加した研究が行われている[2]。今回、Fe と Co を共添加した  $ZrO_2$  の構造、磁気特性、メスバウアー分光の間の相関について、加熱温度に依存した検討を行う。

【実験方法】試料は、ゾル・ゲル法によって作製した。Zr<sup>4+</sup>、Fe<sup>3+</sup>、Co<sup>2+</sup>の塩化物溶液にクエン酸を加え、Zr<sub>98</sub>Fe<sub>1</sub>Co<sub>1</sub>O<sub>200</sub>の組成となるように混合し、エチレングリコールを加えてゾルとした。その後、80°Cにて濃縮しながらゲル化する。空気中で250°C、2時間仮焼成した後、550°Cで2時間本焼成を行い、酸化物粉末を得た。その後、700, 800, 900, 1000°Cにて1時間加熱して試料を作製した。得られた結晶について、粉末X線回折(XRD)、振動試料型磁力計(VSM)による磁化測定、透過型<sup>57</sup>Feメスバウアー分光の測定を行なった。また、Fe, Coの価数を調べるために、X線吸収分光(XAS)を行った。

【実験結果】 $ZrO_2$  は 800°Cの加熱にて正方晶から単斜晶へ構造相転移を示す[3]。XRD によりこの変化を観測し、Fe, Co を添加しても同様の振る舞いを示した。図に加熱温度に依存した VSM とメスバウアースペクトルを示す。900°C以上の加熱により室温でのヒステリシスを観測した。それに伴い、メスバウアースペクトルにおいて、四極子分裂の他に、900°C以上にて磁気分裂成分が出現していることがわかる。0.3 mm/s 程度のアイソマーシフトから Fe<sup>3+</sup>状態であることがわかった。飽和磁化と磁気分裂成分の強度に相関があり、これは、加熱により Co フェライト微粒子が  $ZrO_2$  粒子表面に析出していることを意味する。しかし、XAS では、Co<sup>2+</sup>、Co<sup>3+</sup>混合原子価であるため、電子顕微鏡での観察と併せると、 $ZrO_2$  との粒界にて原子拡散を起こし、室温での磁気秩序を発現しているものと考えられる。

[1] S. Ostanin et al, Phys. Rev. Lett. **98**, 016101 (2007). [2] A. Pucci et al, J. Phys. Chem. C **113**, 12048 (2009).

[3] C. Lin et al, J. Phys. Chem. C **111**, 3300 (2007).

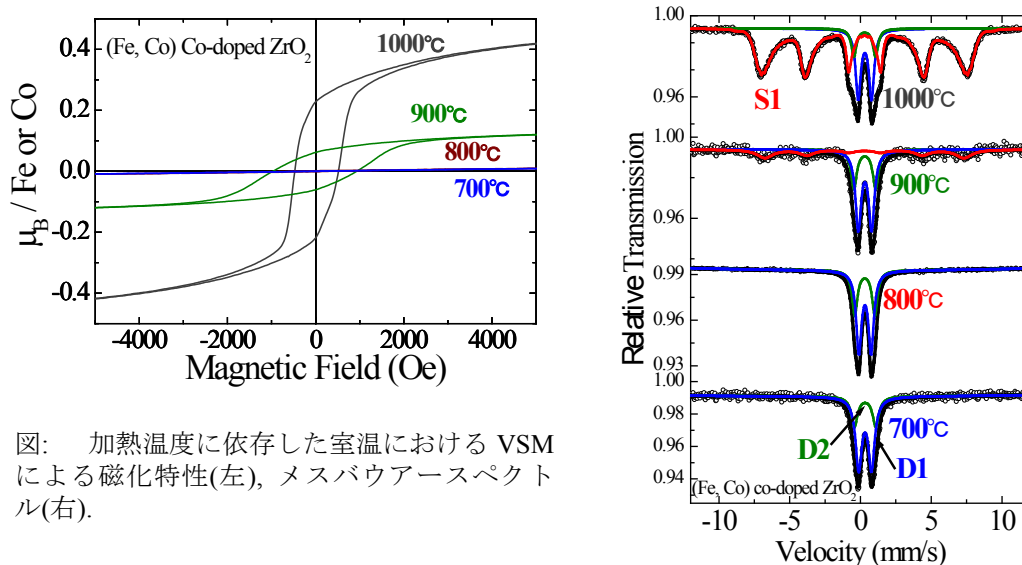


図: 加熱温度に依存した室温における VSM による磁化特性(左), メスバウアースペクトル(右).

Dilute magnetism and Mössbauer spectra in Fe and Co co-doped  $ZrO_2$

OKABAYASHI, J., NOMURA, K., KONO, S., YAMADA, Y.

【諸言】我々は様々なビピリジン型配位子と鉄イオン、そしてアニオンとして NCX (X = S, Se, BH<sub>3</sub>)を用いて自己集積型錯体を合成してきた。その中でも bpp(1,3-bis(4-pyridyl)propane)を用いたものは独特な構造をとるものが多く、溶媒として水-エタノールを用いると二次元相互貫入構造、系中にベンゼンが存在するとベンゼンを包接した一次元鎖状構造が得られる。ベンゼン包接体を室温で放置しておく、加熱をするなどしてベンゼンを飛ばしたものは二次元相互貫入構造に構造変化する。さらに、NCBH<sub>3</sub>錯体の場合、二次元相互貫入構造ではスピントロスオーバー現象(SCO)を発現し、ベンゼン包接錯体では SCO が発現しない。そして、ベンゼンを脱離すると SCO が発現するという現象が見られた。鉄と同じような構造を持つであろう、鉄とはイオン半径の異なる金属 (Zn, Co (Fe<sup>2+</sup>:HS=92pm, LS=75pm; Zn<sup>2+</sup>:86pm; Co<sup>2+</sup>:HS=88.5pm, LS=79pm))を混ぜ、混晶にすることで化学的圧力効果が発生し、鉄のスピン状態が変化することが分かった。また、Zn-Co の NCS 錯体ではこれまでとは色の異なる結晶が得られた。そこでその結晶に鉄原子を入れてやるとどのような変化が現れるのかを調査することにした。また、NCSe,NCBH<sub>3</sub>錯体でも同様の変化が現れるか調査することにした。

【結果と考察】合成はFe, Co, Znが全て等モルとなるように秤量して拡散法で行った。

Fe と Zn, Co の三種類の金属で混晶とした NCS 錯体では、青色と赤色の粒状の結晶が存在した。粉末 X 線回折より、赤色結晶では二次元相互貫入構造であると判断された。一方、青色結晶は亜鉛のみで作成された錯体と同様の粉末 X 線回折パターンを示した。赤色結晶では主成分は Fe(II)高スピン種であったのに対し、青色結晶では Fe(II)高スピン種は観測されず、室温でも、78K でも低スピンとなっていることが分かった。

三金属混晶の NCSe 錯体でも、青色と赤色の粒状結晶が存在した。ただし、量が多くは取れなかったため、現在粉末 X 線回折を行っておらず、メスバウアースペクトル測定に成功していない。現在量産している。この錯体での青色結晶は結晶成長時間を長くすると消失していき、赤色結晶に変化していったように見えた。この変化は NCS 錯体でも見られるが、NCSe 錯体のほうがずっと早く変化が起きている。

三金属混晶の NCBH<sub>3</sub> 錯体では純粋な鉄錯体と同様に黄色の錯体のみ得られた。そのメスバウアースペクトルを図 1 に示す。室温での異性体シフト値は 1.21 mm s<sup>-1</sup> であり Fe(II)高スピン状態であることがわかる。その四極分裂値は 1.68 mm s<sup>-1</sup> で、純粋な鉄錯体に比べて大きい。78K では複雑なスペクトルを与えるが、主成分は Fe(II)高スピン状態である。これは純粋な鉄錯体がスピントロスオーバーを起こし、低スピン状態に変化することと大きく異なる。

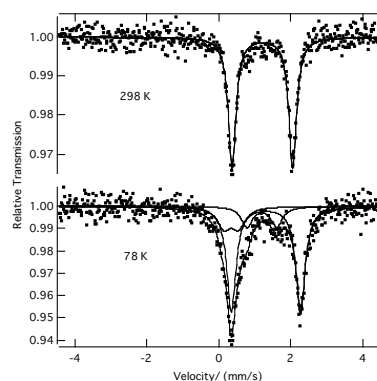


Fig 1. <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectra of Fe<sub>x</sub>Zn<sub>y</sub>Co<sub>(1-x-y)</sub>(NCBH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>bpp<sub>2</sub>.

Syntheses of Mixed Crystals of Assembled Iron Complexes Bridged by 1,3-Bis(4-pyridyl)propane and Their Spin States (III)

DO TE, Haruka<sup>1</sup>, NAKASHIMA, Satoru<sup>2</sup>.

## 【はじめに】

酸化亜鉛(ZnO)は、近年半導体としての利用が注目されている。半導体の電気伝導性は不純物の濃度や導入法によって変化するため、これを制御するにはドーピングされた不純物が占めるサイトや果たす機能を明らかにする必要がある。我々の先行研究において  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  をプローブとする  $\gamma$ 線摂動角相関(PAC)法により、希薄不純物としてプローブのみをドーピングした試料(undoped ZnO)と、プローブに加え非 RI の In, Al をそれぞれ巨視量ドーピングした粉末 ZnO の局所場が観察された<sup>[1,2]</sup>。その結果、不純物を巨視量ドーピングした ZnO については不純物元素とプローブの相互作用による局所構造の変化が観測された。特に Al をドーピングした試料(Al-doped ZnO)の場合、その相互作用は低い Al 濃度 500 ppm においても顕著に観測された<sup>[2]</sup>。そこで本研究では Al と  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  プローブの親和性の高さとその要因について明らかにするため、Al を更に希薄な濃度(0.1, 1, 10 ppm)でそれぞれドーピングした ZnO の PAC 測定を行い、Al とプローブとの相互作用について希薄濃度限界を調べた<sup>[3]</sup>。

## 【実験】

Al の濃度が Zn に対し 0.1, 1, 10 ppm となるように  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  のエタノール溶液に ZnO 粉末を加え、各々調製した。エタノールが完全に蒸発するまで加熱・攪拌して粉末試料を得た。これらの粉末試料を錠剤成形し、空气中 1273 K で 3 時間焼成した。焼成後、 $^{111}\text{In}$  塩酸溶液を滴下し、空气中 1373 K で 2 時間焼成した。得られた試料を粉砕し、石英管に真空封入して室温で PAC 測定を行った。

## 【結果】

Fig.1 は異なる濃度(0.1, 1, 10 ppm)で Al をドーピングした ZnO の室温の PAC スペクトルである。スペクトルは Al の濃度 10 ppm までは先行研究で得られた 500 ppm Al-doped ZnO のスペクトルを再現しているが、1 ppm の濃度を境に undoped ZnO に見られる成分( $t = 200$  ns 周辺の小さなピーク)が増加し始め、0.1 ppm の濃度ではこのピークがより顕著に表れている。これは Al の濃度を 0.1 ppm にまで希薄にすることで、ようやく Al とプローブの相互作用が消失し始めたことを示唆している。これらの結果に加え、本発表では  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111m}\text{Cd})$  プローブを用いて得られた PAC スペクトルなどを示し、 $^{111}\text{In}$  と Al の高い親和性について詳しく議論する。

## 【参考文献】

- [1] W. Sato, Y. Itsuki, S. Morimoto, H. Susuki, S. Nasu, A. Shinohara, and Y. Ohkubo: *Phys. Rev. B*, **78** (2008) 045319  
 [2] W. Sato, Y. Komeno, M. Tanigaki, A. Taniguchi, S. Kawata, and Y. Okubo: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77** (2008) 105001  
 [3] S. Komatsuda, W. Sato, S. Kawata, and Y. Okubo: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **80** (2011) 095001

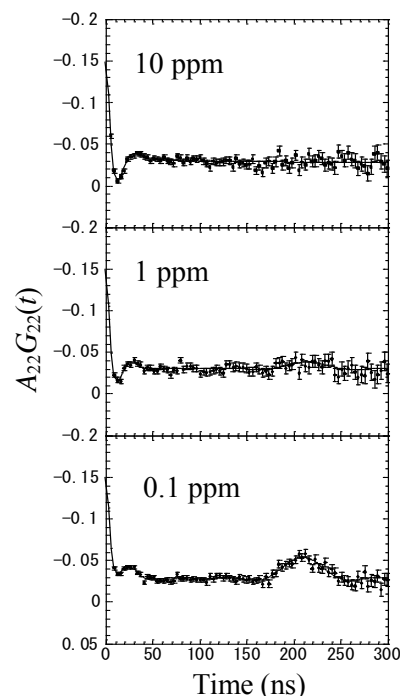


Fig.1 TDPAC spectra of  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  in 0.1, 1, and 10 ppm Al-doped ZnO at room temperature.

Strong affinity between dilute Al and In impurities doped in ZnO  
 KOMATSUDA, S., SATO, W., KAWATA, S., OHKUBO, Y.

## 【はじめに】

酸化亜鉛 (ZnO) は透明伝導性をもつ内因性の  $n$  型半導体である。本来の伝導性に加えて, ZnO は不純物の添加によって電気伝導性が大きく変化するため, 不純物の導入条件や不純物位置での局所情報を把握することは, 半導体物性を制御するうえで大変重要である。我々はこれまでの研究において, 不純物としてインジウム (In) を添加した粉末 ZnO の局所場を,  $^{111}\text{Cd}$  ( $\leftarrow^{111}\text{In}$ ) をプローブとする  $\gamma$ 線摂動角相関法で観察し, In の存在によってプローブ核位置での伝導電子密度が低下する現象を観測している[1]。本来ドナーである In を導入した場合, 伝導電子密度の増加が期待されるが, 摂動角相関測定は逆の結果を与えた。この伝導電子密度の異常は局所構造変化に起因すると考えられるが, 半導体物性を論じるには, この観測結果が局所的なものなのか, 巨視的に現れる現象なのか調べる必要がある。従って本研究では, バルクの情報を得るべく電気抵抗率を測定して, 伝導電子密度に関して摂動角相関測定の結果と比較・対照することを目的として実験を行った。

## 【実験】

$\text{In}(\text{NO}_3)_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  のエタノール溶液に ZnO 粉末を加え, エタノールが完全に蒸発するまで加熱攪拌して粉末試料を得た。In 濃度は Zn に対して原子数比でそれぞれ 0.05% および 0.5% となるように調製した (以下, 試料名をそれぞれ 0.05-IZO および 0.5-IZO とする)。これらの粉末試料と In をドーピングしない ZnO 粉末 (undoped ZnO) を錠剤成形して, 1,273 K で 3 時間焼成し, 測定用試料を得た。それぞれの試料について室温で電気抵抗率を測定した。さらに同様の手法で合成した試料に放射性  $^{111}\text{In}$  の塩酸溶液を滴下し, 1,373 K で 2 時間焼成して摂動角相関測定用の試料とした。測定には従来の 4 検出器法を採用し, 室温から 1000 K の温度範囲において, 摂動角相関スペクトルの温度依存性を調べた。

## 【結果】

Table 1 に電気抵抗率の測定結果を示す。undoped ZnO と比べて 0.05-IZO は電気伝導度が増加傾向を示すのに対して, 0.5-IZO では減少する結果が得られた。0.05-IZO はドナーとしての In の濃度の増加に伴って電気伝導度が増加したという解釈が可能である。一方, 0.5-IZO の結果は前記の解釈は適用できないが, 摂動角相関測定の結果と傾向が一致している。これは, In の導入によって ZnO 結晶中に生じた, 粉末 X 線回折パターンからは判別できない局所的な構造変化に起因すると考えられる。本発表では, 電気伝導度と In 不純物周辺の局所構造との関係について議論する。

Table 1. Room-temperature resistivity of In-doped and undoped ZnO.

	undoped ZnO	0.05 at.% In-doped ZnO	0.5 at.% In-doped ZnO
Resistivity ( $\Omega$ cm)	$5.81 \times 10^3$	$3.60 \times 10^2$	$1.81 \times 10^7$

## 【参考文献】

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

Anomalous electric conductivity observed for In-doped ZnO

SATO, W., KOMATSUDA, S., FURUMOTO, I., NISHIDA, T., OHKUBO, Y.

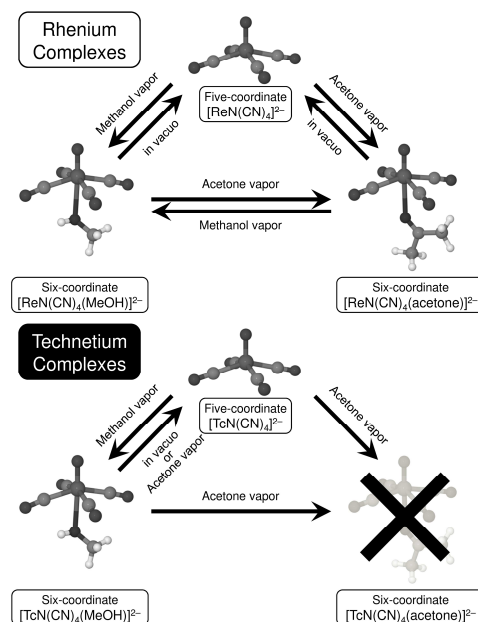
## 五配位および六配位構造が相互変換するニトリドテクネチウム(V)およびレニウム(V)錯体の電子状態と光物性

(阪大院理<sup>1</sup>, 北大院理<sup>2</sup>, 北大院総合化学<sup>3</sup>, 大同大教養<sup>4</sup>, 東北大高教セ<sup>5</sup>)  
 ○池田 隼人<sup>1</sup>, 吉村 崇<sup>1</sup>, 伊藤 亮孝<sup>2</sup>, 作田 絵里<sup>2</sup>, 喜多村 昇<sup>2,3</sup>,  
 高山 努<sup>4</sup>, 関根 勉<sup>5</sup>, 篠原 厚<sup>1</sup>

【緒言】テクネチウム錯体は、放射性画像診断薬としての研究が盛んに行われている。また、発光は生体画像の描写ツールとしてよく用いられており、分子周囲の環境に影響を受けやすいことが知られている。発光を示す放射性薬剤があれば、放射線と発光の両者の特徴を生かした詳細な情報を得ることが期待できる。そこで本研究では、発光するテクネチウム錯体の分子設計の指針を得ることを目的として、五配位および六配位のテクネチウム(V)錯体( $\text{PPh}_4$ )<sub>2</sub>[TcN(CN)<sub>4</sub>] (**1**)および( $\text{PPh}_4$ )<sub>2</sub>[TcN(CN)<sub>4</sub>(MeOH)] (**2**)を新たに合成した。また、同族のレニウムについても同形の五配位錯体( $\text{PPh}_4$ )<sub>2</sub>[ReN(CN)<sub>4</sub>] (**3**)と六配位錯体( $\text{PPh}_4$ )<sub>2</sub>[ReN(CN)<sub>4</sub>(MeOH)] (**4**)を新たに合成した。今回は、テクネチウム、レニウムのそれぞれの錯体について発光挙動と電子状態について研究した。また、五配位—六配位錯体間での可逆的変換反応についても報告する。

【結果と考察】新たに合成した全ての錯体は、室温、固体状態で発光した。**1** および **2** は、発光を示すニトリドテクネチウム(V)錯体の初めての例である。また、**3** および **4** も発光する初めてのテトラシアニトリドレニウム(V)錯体である。五配位錯体の室温、固体状態における発光スペクトルでは、テクネチウム錯体 **1** は 528 nm に極大が観測されたが、対応するレニウム錯体 **3** では、569 nm に極大、720 nm 付近にショルダーを示す発光が観測された。一方、六配位錯体では、テクネチウム錯体 **2** は 559 nm に極大を示した。同形のレニウム錯体 **4** は 528 nm の強い発光を示した。このように発光極大値は、六配位錯体ではレニウム錯体が短波長側に現れるが、五配位錯体ではテクネチウム錯体の方が短波長側に現れることが分かった。

レニウム、テクネチウム錯体ともにメタノールが配位した六配位錯体は、減圧下で五配位錯体に変換された。次に、固体状態の五配位錯体をメタノール蒸気下に放置するとメタノールが配位した六配位錯体が再生することが分かった。また、メタノールまたはアセトンが配位したレニウムの六配位錯体では、それぞれの固体をアセトンまたはメタノール蒸気中に放置すると、固体状態での配位子置換反応が起こることを確認した。一方、同形のテクネチウム錯体では、メタノールは配位する一方、アセトンは配位しないことが分かった。このように中心金属イオンの違いによって、配位子の取り込み能が変わる興味深い現象が観測された(図1)。



(図1) レニウム錯体(上)とテクネチウム錯体(下)の可逆的変換反応

Electronic Structures and Photophysical Properties of Nitridotechnetium(V) and Rhenium(V) Complexes Showing Reversible Interconversions between Five- and Six-coordinate Structures  
 IKEDA, H., YOSHIMURA, T., ITO, A., SAKUDA, E., KITAMURA, N., TAKAYAMA, T., SEKINE, T., SHINOHARA, A.



(KEK) ○別所光太郎, 松村宏, 高橋朝子, 高橋一智, 萩原雅之,  
豊田晃弘, 榎本和義, 文珠四郎秀昭, 大山雄一, 山田善一

【はじめに】 茨城県東海村の J-PARC ニュートリノ実験施設においては、大強度の高エネルギー放射線の影響により、電磁ホーンの冷却水中に高濃度の  $^7\text{Be}$  が生成される。今後計画されているフルパワー運転ではさらに高濃度の  $^7\text{Be}$  が生成されるため、冷却水中の  $^7\text{Be}$  をイオン交換樹脂塔に通水することで高効率に除去することが求められている。本研究では、同冷却水中において  $^7\text{Be}$  の一部がコロイドを生成する特性に注目し、冷却水中におけるコロイド状  $^7\text{Be}$  化学種の生成とイオン交換樹脂への吸着性の関係について検討した。

【実験】 J-PARC ニュートリノ実験施設の電磁ホーン（アルミニウム合金製）用冷却水システムは、総水量 2700 L、総流量 160 L/min の純水循環システムである。ニュートリノ生成運転中は、イオン交換樹脂塔には通水せずに冷却のための水循環のみを行い、ビームを停止した後に、H 型陽イオン交換樹脂 / OH 型陰イオン交換樹脂の混床型イオン交換カートリッジ（75L）に総流量の 1/10（16 L/min）を分岐させて循環運転している。本報告では、Run 36（2010/11/16～12/25, 陽子数  $4.27 \times 10^{19}$  pot）および Run 37（2011/1/16～2/28,  $5.77 \times 10^{19}$  pot）の 2 回のビーム生成運転終了後に、イオン交換樹脂塔へ通水を開始する前の冷却水原水、イオン交換樹脂へ通水中に適切な時間間隔で採取した冷却水試料を採取し、以下の検討を行った。

まず、冷却水を遠心分離型限外ろ過ユニット（分画分子量 10 K, 膜孔径およそ 3 nm 相当）により処理し、コロイド状の成分をフィルター上に捕捉し、溶解性成分から分離した。また、冷却水中の  $^7\text{Be}$  の陽イオン交換樹脂（Dowex 50W-X8, H 型）への吸着性を、カラム法またはバッチ吸着法により調べた。未処理の冷却水試料原水、限外ろ過処理後のろ液と限外ろ過フィルター、イオン交換実験後の水相の各試料について、Ge 半導体検出器によりガンマ線スペクトルを測定し、 $^7\text{Be}$  濃度を求めた。

【結果】 冷却水中の  $^7\text{Be}$  濃度は、Run 36 : (ビーム停止時) 9.8 kBq/ml (69h イオン交換通水後) 28 Bq/ml、Run 37 : (ビーム停止時) 9.1 kBq/ml (28h イオン交換通水後) 89 Bq/ml となり、1～3 日間イオン交換通水することで、ビーム停止時に冷却水中に存在した  $^7\text{Be}$  の 99～99.7% 程度まで除去できるものの、その後はイオン交換通水を継続しても  $^7\text{Be}$  濃度はあまり減少しないことが分かった。この結果は、同冷却水中の  $^7\text{Be}$  には、イオン交換樹脂塔への通水で容易に除去される成分に加えて、除去されにくい成分も含まれることを示している。限外ろ過実験から、イオン交換樹脂塔に 69h (Run 36), 28h (Run 37) 通水した後の冷却水中には、コロイド状態として存在する  $^7\text{Be}$  がそれぞれ 35%, 17% 程度含まれることが示され、イオン交換樹脂に吸着されにくい成分の由来がコロイド状  $^7\text{Be}$  の存在に関連する可能性が考えられる。コロイド状  $^7\text{Be}$  は、水中に硫酸を添加して pH 3 以下にすることで溶解性化学種に解離させられることが分かった。陽イオン交換樹脂への吸着性も、硫酸の添加により顕著に増大した。これらの結果から、イオン交換樹脂への吸着性低下はコロイド状  $^7\text{Be}$  化学種の生成に対応することが示唆される。講演では、 $^7\text{Be}$  を含むコロイド種の化学組成分析についても報告予定である。

Formation of colloidal  $^7\text{Be}$  species in the cooling water for magnetic horns at the J-PARC Neutrino Facility.

BESSHO, K., MATSUMURA, H., TAKAHASHI, A., TAKAHASHI, K., HAGIWARA, M., TOYODA, A., MASUMOTO, K., MONJUSHIRO, H., OYAMA, Y., YAMADA, Y.

**Mineral analysis of some commercially available Japanese tea leaves and tea infusions by neutron-induced prompt and delayed gamma-ray analysis**

(<sup>1</sup>Grad. School of Sci. & Eng., Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>Quantum Beam Sci. Directorate, JAEA) ○Islam, M.A.<sup>1</sup>, Ebihara, M.<sup>1</sup>, Motohashi, J.<sup>2</sup>

Tea is one of the most consumed beverages in the world. In Japan, the consumption of green tea is very high as compared with oolong and red teas. Many studies have concluded that tea has numerous beneficial effects on health, including the prevention of many diseases. However, few studies have determined mineral contents in tea leaves and tea infusion residue, which is very important to elucidate the amounts of the minerals intake during tea consumption. The mineral content present in tea leaves depends on several factors such as geographical area where the plant is cultivated, type of soil, water and fertilizers, industrialization process, and storage conditions. Furthermore, the mineral availability in tea infusion also depends on their solubility as well as on the conditions under which the tea infusion is prepared and drunk. In this study, we aimed to determine mineral contents before and after infusion of some commercially available green teas and to determine percentage released of the elements during infusion with boiling water.

Six brands of commercially available tea packs were purchased from local markets for analysis. These six brands cover the different tea producing regions of Japan. Two sets of samples were prepared—one before infusion and another after infusion. For before-infusion-samples, tea leaves were dried at 50°C for overnight and ground into powder. Powder samples were used for prompt gamma-ray analysis (PGA) and instrumental neutron activation analysis (INAA). For PGA, about 200 mg of each power sample was made into pellet (10 mm  $\Phi$ ) and packed into FEP (fluorinated ethylene propylene) film bag. For INAA, about 50 mg of each sample was packed into polyethylene film bag. For another set of samples, 2 gm of each tea sample was poured into 200 mL of boiling deionized water for 6 minutes. Leached tea samples were separated from hot water, dried in an oven and ground for preparing powder samples for PGA and INAA. PGA and INAA were performed by the use of JRR-3 of JAEA. Elemental contents of K, Ca, Mg, Al, S, Na, Mn, Fe, Zn, Cl, Br, B, La, Sm, Sc and Co were determined in tea leaves before and after infusion. Boron and S were determined by PGA. Among the determined elements the major elements are K, Ca, Mg, Al, S and Mn (concentrations ranged from 2.50 % to 500  $\mu\text{g/g}$ ). The elemental contents vary in tea leaves from region to region where tea is cultivated. The average extraction rates into infusion of some highly soluble elements like Cl, Br, K, Co, Na, S, Zn, B, Mg and Mn are 93, 80, 71, 60, 49, 39, 36, 16, 14 and 5% in 6 minutes extraction, respectively. Among these elements Cl, Br and K are the most soluble elements in the infusion. The high solubility of Cl, Br and K in tea infusion can be explained by the fact that these elements are present in plants in soluble forms<sup>1</sup>. The present study suggests that tea infusion contain a high amount of micronutrients like K, Ca, Na, Mg and Mn which are essential minerals to human health.

1) R. Giulian, C.E.I. Santos, S.M. Shubeita, L.M. Silva, J.F. Dias and M.L. Yonema, *J. Agric. Food Chem.* 55 (2007) 741-746.

Mineral analysis of some commercially available Japanese tea leaves and tea infusions by neutron-induced prompt and delayed gamma-ray analysis, Islam, M.A., Ebihara, M., Motohashi, J.

**世界化学年 2011 企画  
特別セッション講演要旨  
9月20日(火)**

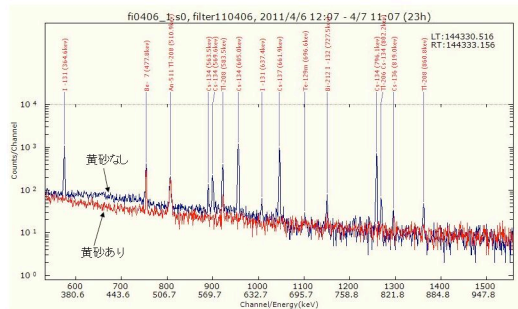
1P01～1P12：ポスター発表 1F ホワイエ

## 四国徳島で観測された福島第一原子力発電所事故由来の大気エアロゾル中に含まれる放射性核種の放射能濃度と黄砂の関係

(徳島大 HBS<sup>1</sup>, 徳島大 RIC<sup>2</sup>, 徳島大総科<sup>3</sup>, 徳島大 SAS<sup>4</sup>) ○阪間稔<sup>1</sup>, 佐瀬卓也<sup>2</sup>, 坂口由貴子<sup>3</sup>, 伏見賢一<sup>4</sup>, 中山信太郎<sup>4</sup>

【緒言】3月11日(金)14時46分、マグニチュード9の巨大地震が東日本を中心として発生し、その直後、東北地方及び茨城県太平洋沿岸に大津波が到達した。この震災は、地震や津波だけでなく、その津波に端を発し東京電力福島第一原子力発電所における事故を引き起こした。この原子力災害は、原子炉建屋の爆発やそれに伴う放射性物質の漏えい、農作物や畜産物、飲料水の放射能汚染、さらには発電所作業員の方の被曝ときわめて大きな社会問題となっており、大地震発生から約5ヶ月経過した今も収束の目処が立っていない深刻な状況となっている。これまで、1986年のチェルノブイリ原子力発電所事故で、環境中に放出された大量の放射性物質の汚染の広がりを経験した事があるが、想定もしてなかった国内での原子力災害にともなう放射性物質の環境中への流出は、環境放射能(線)を専門としている科学者や研究者にとって、特に大気エアロゾルの環境放射能濃度データや関連する情報を正確かつ迅速に社会へ発信していくことが急務となっている。今回、春先の黄砂飛散時期と原子力災害由来の放射性核種の動態と双方を同時に観測できたので、この点について報告を行う。

【測定方法】徳島大学では、二つのキャンパス(蔵本及び常三島キャンパス、ともに徳島市内で両キャンパス間距離は約7km)を有しており、幸いにして、ここ約10年以上前から双方のキャンパスにて大気エアロゾル中の環境放射線による放射能濃度を測定できる環境が整備されている。以前より、常三島キャンパス総合科学部量子科学研究室と蔵本キャンパス先端放射分析化学研究室との間で連携を取り合って、徳島での大気エアロゾルの放射能濃度を観測している。ここで、蔵本キャンパスにおける観測・放射線測定システムについて紹介すると、大気エアロゾルサンプリングとフィルターには、SIBATA社製HV-500FハイボリュームエアサンプラーとADVANTEC社製GB-100Rガラス濾紙フィルターを、ゲルマニウム半導体検出器とガンマ線スペクトル解析には、CANBERRA社製p型同軸GC1018(U字タイプ)と同社製スペクトルエクスペローラver.1.65を使用した。今回の原子力災害における観測では、I-131( $E_{\gamma}=364$  keV)とCs-134(605 keV), Cs-137(661 keV)の核分裂生成物を主な検出目標とし、1試料につきおよそ1日間の大気エアロゾル捕集時間でサンプリングを行い、エアサンプラーの全吸引量と放射線測定の半減期補正から放射能濃度を算出し解析を行った。検出器の検出効率は、Ba-133, Cs-137, Co-60の密封標準線源とI-131の非密封標準容積線源(ガラス濾紙フィルターを畳み込んだの容積線源)で評価した。また、黄砂の飛散状況については、気象庁のデータと*in-situ*での天気観測システム(DAVIS社製VP2)で、風向・風速も含めて観測を行った。【結果】右図は、4月6日(黄砂なし)と5月2日(黄砂あり)の大気エアロゾルのガンマ線スペクトル比較を示している。これより黄砂の飛散時には、I-131及びCs-134, 137の放射能量が顕著に減衰していることを確認した。



Correlation between Asian Dust (yellow dust) and specific radioactivities of fission products including in aerosol in Tokushima, Shikoku Island, due to the Fukushima nuclear accident  
SAKAMA, M., SAZE, T., SAKAGUCHI, Y., FUSHIMI, K., NAKAYAMA, S.

【はじめに】2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う福島第一原発の事故で、破損した原子炉から放射性物質が環境中に放出された。主に放出された放射性物質は、揮発性が高い元素の同位体もしくはその同位体が放射壊変したことによって生じた元素の同位体であると推測される。放出された放射性物質は事故当時の原発周辺の風およびエアロゾルによって福島県内各地および周辺地域へと拡散し、雨水や土壤に混入または堆積したと考えられる。この調査では、原子炉から放出されたセシウム(Cs)の同位体やヨウ素(I)の同位体等の相対放射能を、福島県内および周辺地域で採取された土壤について調べることで、福島第一原発からの距離による核種の分布の変動について検討した。また、周辺地域において測定されたヨウ素の同位体比と原子炉内での生成割合の比較を行うことで、原子炉での核分裂が停止した時間の推定を行った。

【採取・測定】土壤の採取は福島県内および周辺地域の数地点において内径 15 / 7 inch のステンレス管を地面に 5cm 埋め込むことで行い、土壤を混ぜたあとプラスチック容器(7.2cm×7.2cm×4.0cm)に入れて Ge 半導体検出器を用いて放射線の測定を行った。雨水の採取に関しては、新潟大学理学部棟の屋上や周辺に設置したトレー(35×48cm)に採水し、その雨水をプラスチック容器(φ 15.6cm×8.0cm)に移してから Ge 半導体検出器で放射線の測定を行った。東北大学において大気中の放射性物質を Ge 半導体検出器によって測定したデータを用い、原子炉が停止した時間を推定した。

【結果・考察】採取した土壤に含まれていた  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{129\text{m}}\text{Te}$  を用い、 $^{137}\text{Cs}$  を基準とした距離による相対放射線強度を調べた結果、 $^{134}\text{Cs}$  および  $^{136}\text{Cs}$  の同位体間では距離による変化は見られず、各地点での比はおおむね一定となった。しかし、異なる元素では原発からの距離によって相対強度が変化していることがわかり、Te, I, Cs では飛散の仕方が異なると考えられる。そのため原発からの距離に対する相対放射線強度の変化に関して詳しく解析する必要がある。新潟で採取した雨水には  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  が検出され、それらが採取日時の異なるいくつかの雨水サンプルから検出されたことで、一度に全ての放射性核種が飛来したわけではなく、断続的に飛来してきていたものと推測できる。東北大学における放射性物質の測定では  $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  などの放射性核種が検出された。このうち  $^{131}\text{I}$  および  $^{133}\text{I}$  を用いて原子炉稼働時の同位体比と、東北大学において測定されたデータから遡って計算した同位体比を比較することで、原子炉が停止した時間を推定したところ放射線測定時より 118 時間前であると求められた。これは東京電力が発表した地震による原子炉の停止時間(測定時より 120 時間前、地震直後)とほぼ一致している。

## 福島第一原子力発電所事故後の金沢大学角間キャンパスにおける 環境放射能測定について

(金沢大・理工<sup>1</sup>, 金沢大・学際セ<sup>2</sup>, 金沢大・院自然<sup>3</sup>) ○中井 美希<sup>1</sup>,

○木村 元<sup>1</sup>, 長村 雄一郎<sup>2</sup>, 中西 孝<sup>2</sup>, 上杉 正樹<sup>3</sup>, 横山 明彦<sup>1</sup>

**【はじめに】**今年3月に発生した福島第一原子力発電所事故によって、原発近隣地域を中心に全国的な放射能汚染が生じ、地震・津波災害に加えて、社会に大きな影響を与えている。放出放射能の影響は、空間線量の増加、土壌や飲食物の放射能の増加など多岐にわたり、人体影響については外部被ばくから内部被ばくへと関心が移り始め、問題解決までの道のりは険しい。本研究の発表者らが所属する金沢大学では、福島原発からは山岳地帯を介して直線距離で約400km離れた日本海側であるにもかかわらず、留学生の一部が帰国するなどの騒ぎが起こった。このような状況を受けて、放射能・放射線測定の施設・設備がある金沢大角間キャンパスにおいて環境放射能測定を開始した。その結果、放射性核種の増加が微量ながら検出された。得られたデータは地域の安全確認上も大学の放射線取扱施設の安全管理上も重要なものである。また、各地で測定されたデータと比較することで、どのように放射性物質が福島から広がったかも推定することができ、地球環境での物質動態を探る上でも重要な情報となりうる。本発表では角間キャンパスのデータに加えて、他の地域のデータとの比較検討も行って、福島原発から放出された放射性物質の大気中動態等について考察を試みた。

**【試料採取と測定】**大気浮遊塵はハイボリューム・エアサンプラー (SIBATA, HV-1000) で専用ろ紙に捕集後、折り畳んだろ紙をプラスチックケース (TOP, No. 13) に入れ、雨水は屋上でプラスチック容器に受けた後、別のプラスチック容器 (TGK, 丸型サンプル容器浅型 95 - 2) に一定量を移し換え、ともに Ge 半導体検出器により測定した。Eu-152 標準溶液を用いて試料と同形の計数効率測定用線源を調製し、計数率を放射能 (Bq) に換算した。なお、試料採取直後に放射能測定を行い、減衰補正は行っていない。

**【結果と考察】**I-131, Cs-137, Cs-134 の測定結果を図1. に示す。3月15日頃の領域は放射能が大量放出した時期を示し、矢印は福島近辺を通過した空気塊が金沢に到達した時期を示す (地球環境研究センターの METEX プログラムを利用して計算)。放射能値のピークは流跡線解析の結果と良く一致している。この傾向は他の地域の大気浮遊塵データでも確認された。I-131 についてはCs-137, -134 より早く別の経路で到達した成分があった。

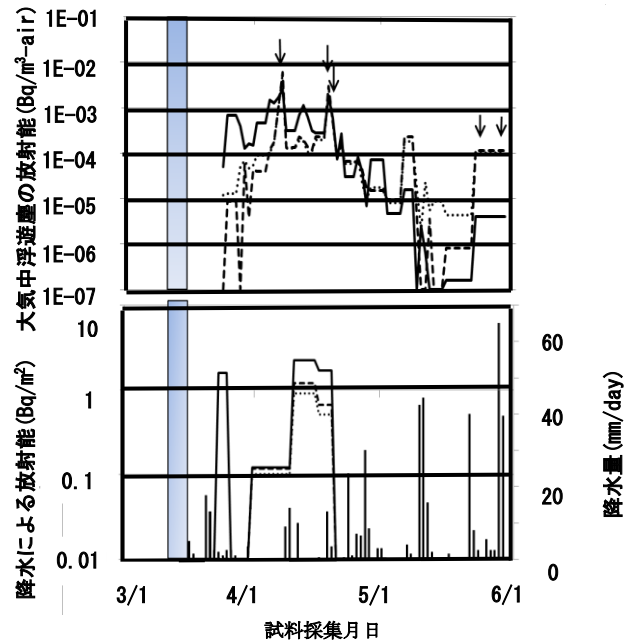


図1. 環境放射能の測定結果 (— : I-131, - - : Cs-137, ..... : Cs-134, 棒グラフは降水量)

Environmental Radioactivity Monitoring at Kakuma Campus of Kanazawa University after the Accident of Fukushima Nuclear Power Plant

NAKAI, M., KIMURA, H., NAGAMURA, Y., NAKANISHI, T., UESUGI, M., YOKOYAMA, A.

植物試料のイメージングプレート画像による  
原子力発電所事故由来の放射性降下物の調査  
(慈恵医大・アイソトープ) ○箕輪はるか

【概要】 2011年5月~8月に福島および首都圏で採取した植物試料のイメージングプレート画像を測定し、福島第一原子力発電所事故由来の放射性降下物の調査を行なった。

【方法】 植物試料をイメージングプレート BASIII 2040 (Fujifilm, Japan) に一晩~1週間曝写し、Typhoon FLA7000 (GE Healthcare Japan, Corp.)を用いて読み取った。

福島県内で2011年6月に採取されたタケノコ(長さ約25cm)を中心に縦に切断し、また横に2cm間隔で切断した後、断面をイメージングプレートに約一週間曝写した。このタケノコ試料を横に約1mm幅に切断し、各断片より Auto Well Gamma System ARC-380CL (ALOKA Co., Ltd., Tokyo, Japan) を用いて放射性核種を同定し、 $^{134}\text{Cs}$ , 795.9keVのピークを用いて定量を行なった。また、福島県内および東京都内などで採取したマツ・カラマツなどの植物試料より、イメージングプレート画像を得た。

【結果および考察】

タケノコ断面のイメージングプレート画像より、放射性物質の分布は一様ではなく、可食部の先端部分および薄皮に濃集していることがわかった。これらの放射性核種は、ガンマ線スペクトル分析により  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  と同定された。このうち  $^{40}\text{K}$  は天然放射性核種であるが、 $^{137}\text{Cs}$  および  $^{134}\text{Cs}$  は福島第一原子力発電所事故由来であろう。

タケノコ試料の横断切片より  $^{134}\text{Cs}$  を定量した結果を Fig. 3 に示す。根元からの距離150mm付近で高い  $^{134}\text{Cs}$  濃度を示した。定量結果はイメージングプレート画像の結果と整合性があった。横断切片の  $^{134}\text{Cs}$  定量値より、このタケノコ1本の可食部約400g(湿潤重量)中には約1kBqの  $^{134}\text{Cs}$  が含まれていたと算出した。

放射性セシウムが生長点に濃集していること、また外側の皮の部分の含有量が内部に比べ相対的に低いことから、この放射性セシウムは外部から付着したものではなく根から吸収されたものであることが示唆される。竹は地下茎を伸ばし広範囲から水分を吸収するため、土壌中の放射性物質濃度が低い場合でも降雨に含まれる放射性物質を吸収しタケノコ内に高濃度に濃集すると考えられる。

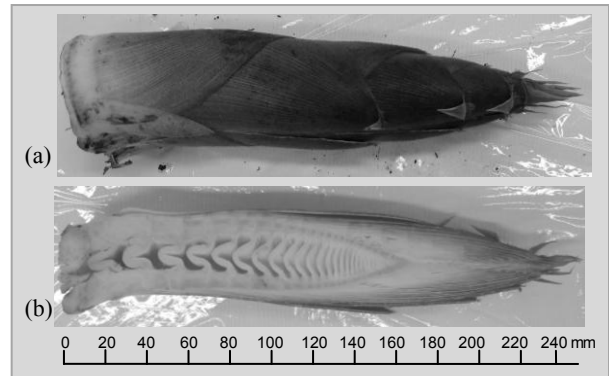


Fig.1. 福島県内で採取されたタケノコの写真  
a. 表面、b. 縦断面

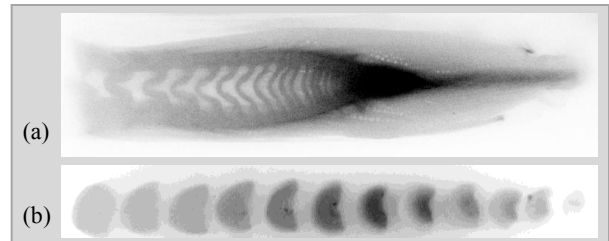


Fig.2. タケノコのイメージングプレート画像  
a. 縦断面、b. 横断面 (2cm 間隔)

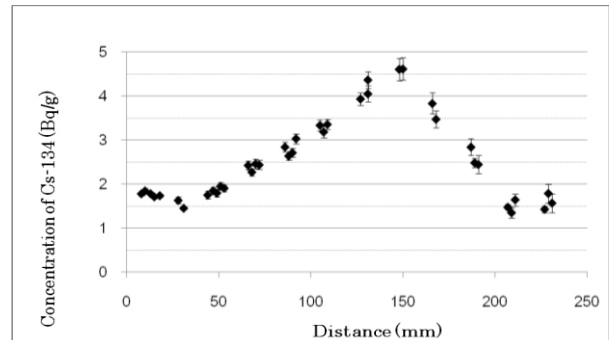


Fig.3. タケノコ中の  $^{134}\text{Cs}$  濃度 (湿潤重量換算)

## 福島第一原発事故起源のヨウ素 129 の水系への影響評価

(東大工<sup>1</sup>, 東大院工<sup>2</sup>, 日大文理<sup>3</sup>) ○徳山裕憲<sup>1</sup>, 松崎浩之<sup>2</sup>, 山形武靖<sup>2</sup>, 本田真紀<sup>3</sup>, 中野忠一郎<sup>2</sup>, 土屋陽子<sup>2</sup>, 伊藤誠二<sup>2</sup>, 森田明<sup>2</sup>

## 【はじめに】

2011年3月11日の東日本大震災によって起こった福島第一原子力発電所の事故の結果、<sup>129</sup>Iを含む多くの放射性核種が環境中に放出された。加速器質量分析による、<sup>129</sup>Iの定量は極めて感度が高いため、例えば、水道水中の<sup>129</sup>Iの濃度を測定すれば福島第一原発事故による影響が明瞭に分かる。本研究では、4月頃の日本各地の水道水、また、東京の水道水については時系列で<sup>129</sup>I濃度を測定し、事故による影響の範囲や、水系の流動による放射性物質の自然な希釈の様子を調べた。

## 【実験】

試料は、4月中に東京、長野、青森、愛媛で採取した水道水と、5月と7月に東京で採取した水道水、そして事故前の2006年に東京で採取した水道水を用いた。これらの試料を溶媒抽出したものに硝酸銀を加えてAgIを生成し、東京大学MALTで加速器質量分析による定量を行った。

## 【結果】

それぞれの水道水試料中の<sup>129</sup>I濃度をFig.1に示す。長野、青森、愛媛で採取した4月の水道水中の<sup>129</sup>I濃度は事故前の東京の $2.69 \times 10^7$ atoms/Lよりも低く、事故による影響は見られなかった。一方、東京の4月の水道水中の<sup>129</sup>I濃度は $1.20 \times 10^8$ atoms/Lと事故以前の4.5倍になっており、これは事故の影響によるものと考えられる。その後、5月には $6.55 \times 10^7$ atoms/L、7月には $5.91 \times 10^7$ atoms/Lと徐々に減少し続けていた。

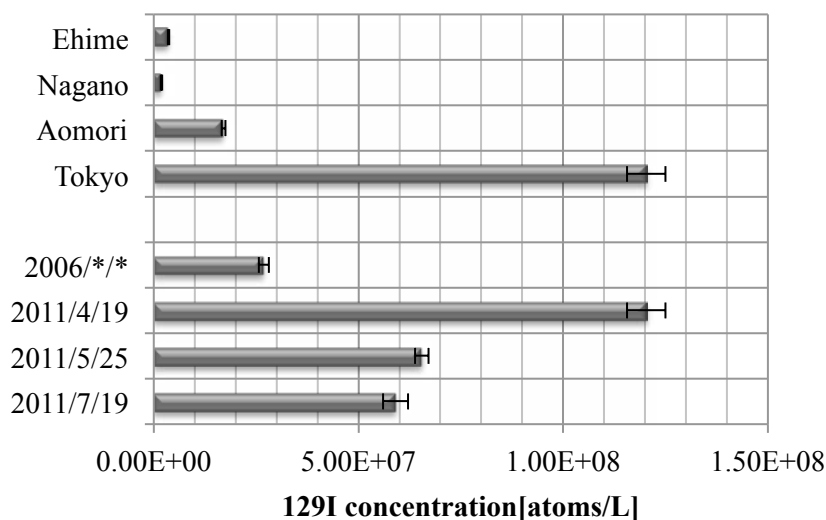


Fig.1 The concentration of <sup>129</sup>I in each water.

Behavior in water system of iodine-129 from Fukushima Daiichi nuclear disaster

TOKUYAMA, H., MATSUZAKI, H., YAMAGATA, T., HONDA, M., NAKANO, C., TSUCHIYA, Y., ITO, S., MORITA, A.



福島第一原子力発電所の事故によって放出された放射性物質は、気象条件により、思いの外遠くまで移動していることが分かっている。事故の環境影響評価を正しく行うためには、遠隔地における事故起源の放射性物質の分布を正確に知る必要がある。土壌は、様々な化学形態の物質を強く吸着する性質があるので、放射性物質の分布評価に適したサンプルである。本研究では、福島から 200km 以上離れた神奈川県で採取した土壌サンプルについて、数ある放射性物質の中でも最も測定が簡便に行える  $^{137}\text{Cs}$  (半減期 30.07 年)と  $^{134}\text{Cs}$  (半減期 2.06 年)をゲルマニウム半導体検出器にて測定した。サンプルは、表層土壌について、直径 5cm、深さ 5cm の部分を採取し、よく攪拌した上で、U-8 容器に入れ、ゲルマニウム半導体で測定した。測定後の試料は乾燥した後、乾燥重量を測定し、今後の  $^{129}\text{I}$ 、 $^{14}\text{C}$  等の測定に供する。

これまで、横浜市鶴見区のいくつかのサイトで測定した結果では、 $^{137}\text{Cs}$  では、 $0.08\text{-}0.8\text{ Bq/cm}^2$ 、 $^{134}\text{Cs}$  では、 $0.06\text{-}0.7\text{ Bq/cm}^2$  に分布した結果が得られている。土壌の形態や、ロケーションによって、ばらつきがあるが、事故前に比べれば有意に高い結果となった。

今後、さらに測定点を増やし、地形との関連を調べる予定である。また、 $^{14}\text{C}$  と  $^{129}\text{I}$  の組み合わせによる、加速器質量分析を利用したさらに高精細な放射性物質の飛散分布の評価の試みを行う。

Measurements of the Fukushima nuclear power plants accident origin  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{134}\text{Cs}$  in soil at remote place.

Hiroyuki MATSUZAKI, Takeyasu YAMAGATA, Maki HONDA, Hironori TOKUYAMA,  
Yasuto MIYAKE, Nariaki SUNADA

東京における雨水中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度と降下量

(日大文理<sup>1</sup>, 東大院工<sup>2</sup>, 日大院総合基<sup>3</sup>) ○山形武靖<sup>1,2</sup>, 辻田一樹<sup>1</sup>,  
平野由佳<sup>1</sup>, 原田直弥<sup>1</sup>, 長谷川憲<sup>1</sup>, 本多真紀<sup>1</sup>, 井上慶祐<sup>3</sup>, 永井尚生<sup>1</sup>

## 【はじめに】

3/11 に起きた東日本大震災を原因とする福島第一原子力発電所の事故によって環境中に非常に大量の放射性核種が放出された。放出された放射性核種は大気中に拡散し、非常に遠方まで運ばれている。これらの量を評価することは地球科学的にも放射線防護の観点からも重要である。そこで本研究では東京において雨水、エアロゾル、水道水を採取し、その中の放射性核種  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30.07\text{y}$ ),  $^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 2.06\text{y}$ ),  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 8.04\text{d}$ ) の観測を行い、環境中の放射性核種が事故後どのように変化しているかを調査した。また  $^{131}\text{I}$  は半減期が短いため消滅し、今後の飛散量の評価が不可能になる。そこで半減期が非常に長い  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1.57 \times 10^7\text{y}$ ) を  $^{131}\text{I}$  のプロキシとして用いることが出来るか、測定を行い、比較を行った。

## 【実験】

試料は東京都世田谷区にある日本大学文理学部 5 号館屋上において 10L バケツにイオン交換水 2L を入れ 1 週間毎に採取した降下物試料、ハイボリュームエアサンプラーを用いて 1 週間毎にろ紙にエアロゾルを回収した大気試料、水道水を毎日採取した水道水試料を用いた。震災の影響で建物内の立ち入りが禁止されたため、福島原発事故の影響評価の試料は 4 月から回収を開始した。その他、連続観測を行っている試料があるため、それらの試料についてもそれぞれの核種分析を行った。 $^{134,137}\text{Cs}$  について雨水試料は陽イオン交換を用いて濃縮を行い、大気試料は非破壊で HPGe 検出器を用いてガンマ線測定を行った。 $^{131}\text{I}$  は雨水・水道水試料 1L を分取し、溶媒抽出を用いて濃縮しガンマ線測定を行った。結果はそれぞれ採取した中間の日時に半減期補正を行った。 $^{129}\text{I}$  は  $^{131}\text{I}$  のガンマ線測定済みの試料に硝酸銀を添加し、AgI 沈殿として東京大学 MALT において加速器質量分析による定量を行った。

## 【結果】

東京における大気中  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  濃度を Fig. 1 に示す。大気中の  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  濃度は事故後、 $500\text{ mBq m}^{-3}$  まで急激に増加した後、指数関数的に減少していることがわかった。環境半減期を求めたところ 9 日であった。大気中の  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$  は 1.2 でほぼ一定であった。 $^{131}\text{I}$  は  $^{134,137}\text{Cs}$  より急激に減少していた。雨水、水道水中の  $^{129}\text{I}$  はそれぞれ  $(43-635) \times 10^7\text{ atoms kg}^{-1}$ ,  $(2.9-76) \times 10^7\text{ atoms kg}^{-1}$  であった。雨水、水道水中の  $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$  は指数関数的に減少し、その半減期はそれぞれ 6.4 日と 7.1 日となった。

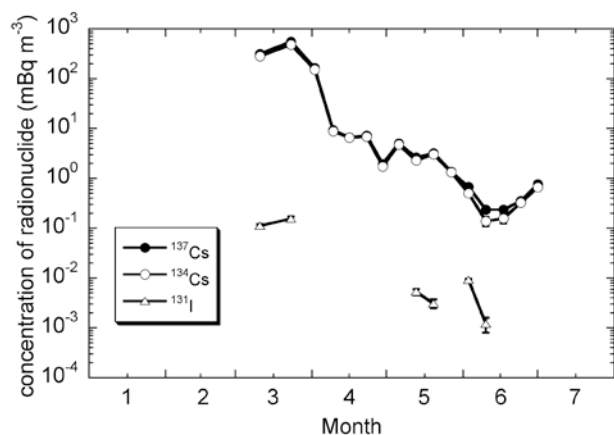


Fig. 1 The atmospheric concentration of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{131}\text{I}$  in the atmosphere.

Deposition flux of  $^{137}\text{Cs}$  at Tokyo

Yamagata, T., Tsujita, K., Hirano, Y., Harada, N., Hasegawa, A., Honda M., Inoue, K., Nagai, H.

## 大阪、名古屋、茨城における福島第一原子力発電所由来の大気中 RI 濃度の経時変化

(阪大院理<sup>1</sup>, 阪大安菅<sup>2</sup> 名大年代測定総合研究セ<sup>3</sup>, 名大全校技術セ<sup>4</sup>, 茨城大<sup>5</sup>) ○張 子見<sup>1</sup>, 中村宏平<sup>1</sup>, 塩原直也<sup>1</sup>, 安田勇輝<sup>1</sup>, 篠原 厚<sup>1</sup>, 高橋 成人<sup>1</sup>, 齊藤 敬<sup>2</sup>, 小田寛貴<sup>3</sup>, 池田晃子<sup>4</sup>, 北和之<sup>5</sup>, 笠原理絵<sup>5</sup>

### 【はじめに】

東日本大震災に伴う、東京電力福島第一原子力発電所の事故によって大気中に放出された放射性核種は、日本各地に広範囲に拡散し現在も影響を及ぼしている。そこで、本研究では原発事故から大気中の放射性核種の濃度を継続的に測定し、放射性物質の拡散状況と経時変化について考察を行った。

### 【測定】

大気試料は、大阪府(豊中市)、愛知県(名古屋市)および茨城県(水戸市、日立市)にてハイボリュームエアサンプラを用いて捕集したものを、ゲルマニウム半導体検出器、<sup>131</sup>I, <sup>134</sup>Cs, <sup>136</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs の 365keV, 605keV, 819keV および 662keV のガンマ線をそれぞれ測定し、大気中の放射性核種の濃度を求めた。また、半減期が短い <sup>131</sup>I と <sup>136</sup>Cs に関しては捕集期間および測定期間における壊変の補正を行い、大気捕集時の濃度とした。

### 【結果と考察】

大阪府と愛知県における大気中の放射性核種の濃度の変動を Fig に示す。

愛知においては3月18日、大阪においては3月23日頃から  $10^{-4}$  Bq/m<sup>3</sup> オーダーの <sup>131</sup>I が観察されはじめ、その10日後ころから <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs が検出されはじめた。また、ヨウ素、セシウムとも4月6日頃と17日頃をピークに濃度の上昇が観察された。この濃度の上昇は、測定期間内に新たに原発から放射性核種が放出されるイベントが無かったならば、放射能濃度の高い気塊が地球を循環しているものが観察された可能性がある。

また、茨城においては測定開始時から、<sup>131</sup>I, <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs が  $10^{-1}$  Bq/m<sup>3</sup> と非常に高い濃度を示しており、5月以降においても  $10^{-2}$  Bq/m<sup>3</sup> オーダーの放射能が検出された。発表ではこれらのデータの測定結果も加え、放射能の変動、拡散について比較議論を行う。

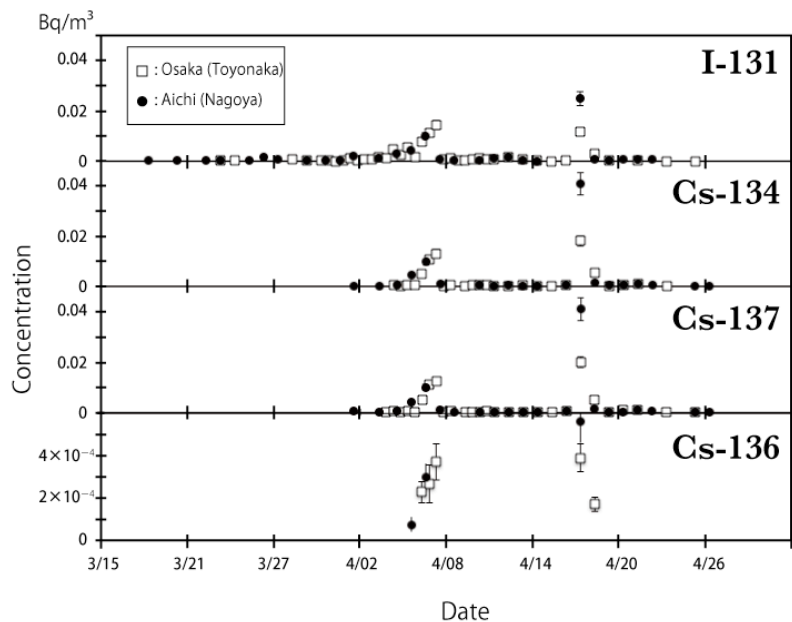


Fig. Concentration of <sup>131</sup>I, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs and <sup>136</sup>Cs in airdust in Osaka and Aichi.

The secular change of radioactivity's concentration in airdust from Fukushima Daiichi Plant at Osaka, Nagoya and Ibaraki.

Cho, S., Nakamura, K., Shiohara, N., Yashuda, Y., Shinohara, A., Takahashi, N., Saito, T., Oda, H., Ikeda, A., Kita, K., Kasahara, R.

【緒言】東日本大震災に伴う福島第一原発の事故は、福島県および周辺県のみならず、全国的、世界的な放射性核種の拡散をもたらした。各地で大気浮遊塵の放射能測定が行われており、関西地区においても非常に低濃度ではあるものの有意な放射能が観測されている。本報では、大阪泉南地方でサンプリングした大気浮遊塵の放射能測定の結果について述べる。

【実験】大気浮遊塵のサンプリングは、大阪府泉南郡熊取町の京都大学原子炉実験所内で3月16日から開始した。サンプリングは、ハイボリウムエアサンプラ(柴田科学、HV-500)を用いて約500 L/minの吸引速度で行った。1回のサンプリング時間は約半日～1日とし、フィルターは空気サンプリング用のガラス繊維ろ紙(東洋濾紙GB-100R 直径110 mm)を用いた。

捕集したろ紙はポリエチレン袋に密封した後、Ge半導体検出器により放射能を測定した。検出効率は、<sup>152</sup>Eu標準溶液を用いて調製した、試料と同形状のろ紙試料などを標準として算出した。また、低圧インパクトを用いて大気浮遊塵の粒径分画を試みたが、放射能濃度が低く、放射性核種の粒径分布を得ることはできなかった。

【結果】 $\gamma$ 線測定の結果、ガラス繊維ろ紙には主な核種として<sup>131</sup>I(半減期8.04 d、解析ピーク364 keV(放出率81%))、<sup>134</sup>Cs(同2.06 y、605 keV(98%))、および<sup>137</sup>Cs(同30 y、662 keV(85.1%))が認められた。3月中にはこの他に、非常に低濃度ではあるが<sup>132</sup>Teなどが検出された日があった。図1に事故発生からの空气中放射能濃度の推移を示す。値は、放射能を総吸引量で除したサンプリング期間の平均濃度である。放射性核種は3月23日にはじめて検出され、4月2～7日および4月18日にピークを示した。<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csはほぼ同様の濃度変化の傾向を示した。<sup>131</sup>Iは、4月27日以降検出されなくなった。また<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Csについても放射能濃度は5月上旬にほぼ検出限界以下となった。

測定された空气中濃度は、3核種の内最も排気中濃度限度が厳しい<sup>131</sup>Iのピークの期間であっても、排気中濃度限度(<sup>131</sup>I:  $5 \times 10^{-6}$  Bq/cm<sup>3</sup>)の $10^{-3}$ 程度であった。

空气中的放射能濃度にピークが認められた期間は、強い南風が吹くなど、気象の状況が異なっている。これらの濃度変化は、福島第一原発からの放射性核種の放出量の変化等を反映したものではなく、海洋上に滞留していた放射性核種が気象条件により移動し、観測されたことなどが考えられる。

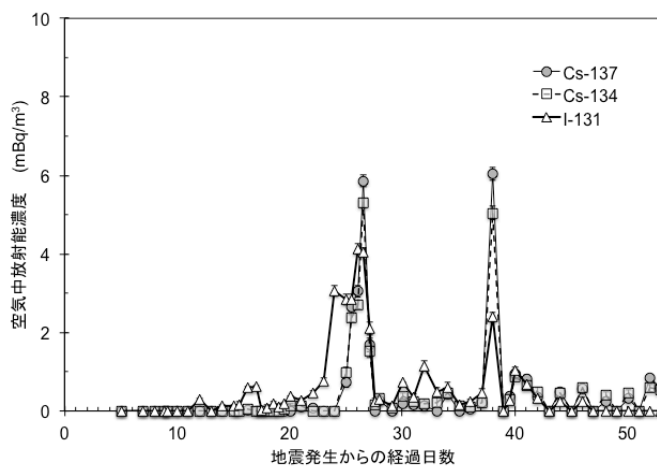


図1 福島第一原発事故以降の空气中放射能濃度の推移

## 仙台（三神峯）における環境放射能測定

（東北大電子光セ）○菊永英寿，大槻勤，石川貴嗣，柏木茂，柴崎義信，鈴木耕拓，菅原由美，高橋健，高橋重伸，長澤育郎，南部健一，平賀正之，藤村寿子，松田一衛，武藤俊哉，宮原房史，宮部学，山崎寛仁

【はじめに】2011/3/11 に発生した東北地方太平洋沖地震とそれに伴う津波の被害により，福島第一原子力発電所から多量の放射性物質が放出された。放射性物質の拡散挙動や汚染状況を調べるために，環境モニタリングの結果を記録することは重要である。電子光理学センターは福島第一原子力発電所のほぼ真北，直線距離で 91 km の地点にあり，3/16 より大気浮遊塵や土壌中に含まれる放射能，空間線量率等を測定してきた。本発表ではこれらの分析結果について報告する。

【実験】大気浮遊じん採取は電子光理学研究センター敷地内でポータブルエアサンプラーSP-30（エム&エフエンタープライズ社製）を用いて流量率 30-40 L/min で捕集した。捕集材はダスト捕集ろ紙 HE-40T（ADVANTEC 社製）と炭素繊維フィルター ATM-48MT（ワカイダエンジニアリング社製）を重ねて使用した。捕集期間は 1-24 時間で，2011/3/15 から 1-3 回/日の頻度でサンプリングした。

土壌採取は当センター敷地内および宮城県内数地点で，円筒状の塩化ビニルまたはアルミニウム製の土壌採取器を用いて行った。これらの放射能分析は高純度 Ge 半導体検出器を用いて行った。空間線量率は当センター敷地内で数カ所（地表 1m，アスファルト表面，土壌表面）をシンチレーションサーベイメーター TCS-172（アロカ社製）を用いてモニタリングした。

【結果】空気中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の測定結果を Fig. 1 に示す。3/21，3/24，4/7，4/15 に今回得られた中では比較的高い値（ $1 \text{ Bq/m}^3$  以上）が観測された。発表では他核種の放射能濃度や土壌に含まれる放射能濃度，シンチレーションサーベイメーターの結果をあわせて報告する。また，震災により被害を受けた当センターの電子ライナックの現状と今後の復旧計画についても報告する予定である。

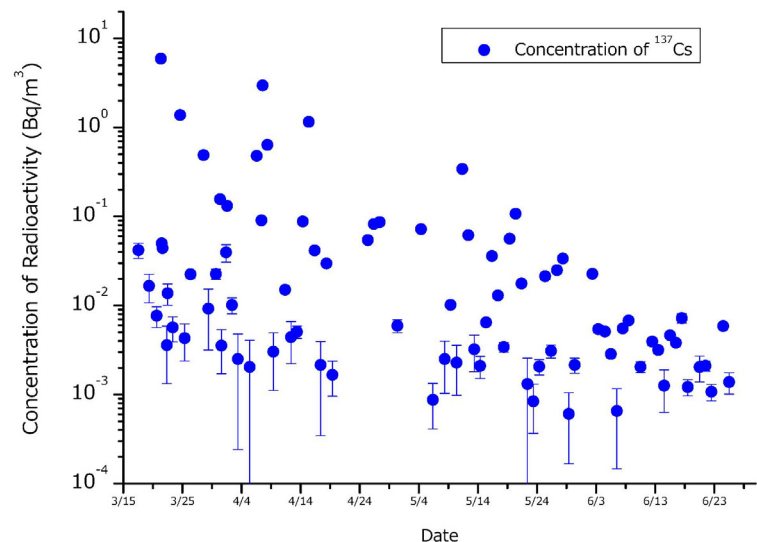


Fig. 1. Radioactivity concentration of  $^{137}\text{Cs}$ .

Environmental radioactivity measurements at Mikamine, Sendai.

KIKUNAGA, H., OHTSUKI, T., ISHIKAWA, T., KASHIWAGI, S., SHIBASAKI, Y., SUZUKI, K., SUGAWARA, Y., TAKAHASHI, K., TAKAHASHI, S., NAGASAWA, I., NANBU, K., HIRAGA, M., FUJIMURA, H., MATSUDA, K., MUTO, T., MIYAHARA, F., MIYABE, M., YAMAZAKI, H.

## 樹園地における放射性ヨウ素および放射性セシウムによる汚染状況

(東北大電子光セ<sup>1</sup>、日環研<sup>2</sup>、東北大多元研<sup>3</sup>、学習院大<sup>4</sup>、  
福島県農業総合セ<sup>5</sup>) ○大槻勤<sup>1</sup>、菊永英寿<sup>1</sup>、泉雄一<sup>2</sup>、桐島陽<sup>3</sup>、  
佐藤修彰<sup>3</sup>、村松康行<sup>4</sup>、大野剛<sup>4</sup>、佐藤守<sup>5</sup>、阿部充<sup>5</sup>、阿部和博<sup>5</sup>

【はじめに】 2011/3/11 に発生した東北地方太平洋沖地震とそれに伴う津波の被害により、福島第一原子力発電所から多量の放射性物質が放出された。当初は短半減期核種の<sup>132m</sup>Teや<sup>131</sup>I、<sup>136</sup>Csなどの降下物が多く確認されたが、現在は比較的長い半減期の<sup>134</sup>Cや<sup>137</sup>Csなどの核種が主なものとなった。この原発事故は各方面において甚大な被害をもたらしたが、これらの核種によるフィールド汚染の影響は特に農業分野で大きく、素早い対応、対策が課題になっている。我々は震災後に福島農業総合センター果樹研究所に協力して、<sup>134</sup>Cや<sup>137</sup>Csの果樹への影響についての調査結果を報告する。

【調査及び結果】 4/15 以来、土壌サンプルや下草などを、また果樹の萌芽期から現在までサンプルボヤモモ、ブドウなどの果実、葉、樹皮などに含まれる放射性セシウム等の分析をおこない、その移行や転流メカニズムとその経時の変化を調べてきた。

当初、根(根群)からの果樹への吸収を心配して土壌0~35cmまでの深度分布を調べたが、根群のある30cm前後にはほとんど放射性セシウムは浸透していないことが分かった。また、樹園地内をGMサーベイメータで放射能強度(計数率)を調べると、地表面では1m範囲内でも2~3倍のばらつきがあり、サンプリングには注意が必要であることも分かった。さらに果樹の主枝表面部位における計数率は、主枝上部(空を向く面)は下部(地を向く面)よりも3倍から10倍も高く、地表面と同レベルの汚染主枝もあることが分かってきた。これらの結果より放射性セシウムが地下の根群から果樹へ移行する確率よりも、樹体に直接降り注いだセシウムの転流を考慮する必要があると考えられる。これまで学習院大学の村松グループ、東京大学の中西グループとともに成長段階での放射性セシウムの転流の可能性を、葉や果実、果梗部等に分けてGe検出器やイオンレンジプレートを用いて調べた。また除染対策の一環として、農業技術情報「放射性物質試験の最新成果情報」を出して粗皮剥ぎの実施を促すプレスリリースがおこなわれた(図1参照)。この粗皮剥ぎの実施は農作業時における被ばく線量の軽減にもつながる。現在、洗浄と粗皮剥ぎを組み合わせた圃場対策を検討中である。発表では、現状と今後の課題を報告する。

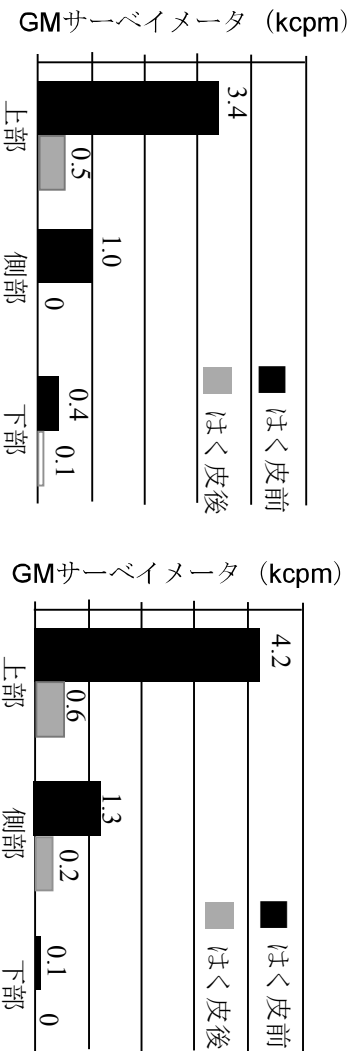


図1 ブドウ「あずましずく」とブドウ「幸水」の剥皮処理

Pollution by radioactive iodine and radioactive cesium in fruit fields

Ohtsuki, T., Kikunaga, K., Izumi, Y., Kirishima, A., Satou, N., Muramatsu, Y., Ohno, T., Sato, M., Abe, M., Abe, K.

【はじめに】 3月11日に起こった大地震による東京電力福島第一原子力発電所炉心溶融事故で、大気中に放出・飛散した核分裂生成物 (FP ;Fission Product)、特にI-131, Te-132, Cs-134, Cs-137 に着目し、これら核種の空気中、降水中、土壌中濃度の経時変化及び地上への降下の動態を調べた。同時に、2007年から取り組んでいる放射性核種の付着したエアロゾル粒子の粒径分布をFPについて調べ、従来から観測してきた<sup>7</sup>Be-エアロゾルのそれと比較した。

【実験】 信州大学教育学部W館屋上 (地上約 20m) にて、ハイボリュームエアサンプラー (HV-1000F型 : SIBATA) およびグラスファイバーフィルタ (203×254mm : GB100R) を用いて、1000 L/minで 8.5 h, およそ 500m<sup>3</sup>を吸引した。吸引後、フィルターを折りたたみ、プラスチックケース (70×45×13mm) に入れて測定試料とした。土壌は、アクリル製の円筒シールケースに詰め、雨水の試料は、原水 1Lをロータリーエヴァポレータで約 80mLに濃縮し、同様な容器に封じ測定試料とした。粒径分布の測定には、多段多孔型インパクト方式によるアンダーセンハイボリュームエアサンプラー (SIBATA)を用い、7.0μm以上, 7.0~3.3μm, 3.3~2.0μm, 2.0~1.1μm, 1.1μm以下の5段階に分級された粒子状物質に含まれる放射能測定から平均粒径を推定した。γ線測定はCANBERRA社製のHP-Ge検出器を用い、検出効率は、試料と同一形状の<sup>152</sup>Euを含む標準線源およびIAEA-444標準物質を詰めた標準体積線源を用いて求めた。

【結果と考察】 空気中のFP濃度は、I-131, Te-132については短半減期の崩壊により、早い段階で検出限界以下になり、Cs-134, Cs-137は、拡散と希釈により急速に低下し、次第に検出が困難なレベルになっている。

原子炉からのFPの放出は、3月15日頃の一過性のもので、その後の放出量は少ないと推測され、遠隔地における濃度の増減は空気塊の移動を反映していると考えられる。図1に示すように、雨水中の濃度は、空気中濃度と同様に变化し、雨によるエアロゾルのwashoutが降雨のたびごとに進行し、FPは次第に土壌に移行している。図2に示すように、対数正規分布を仮定した解析から、FPの付着したエアロゾルの平均粒径は、同時に観測されたBe-7のそれより大きいと推測されるが、詳細については検討中である。

Concentration and size-distribution of airborne radionuclides at Nagano City after the accident at the Fukushima I nuclear power plant

MURAMATSU, H., KAWASUMI, K., KONDO, T.

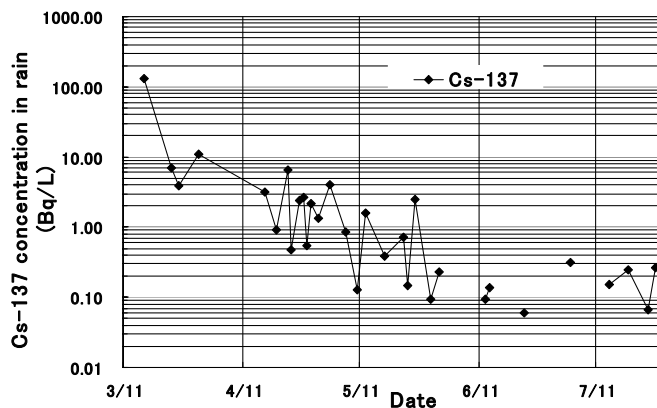


図1 雨水中のCs-137濃度の経時変化

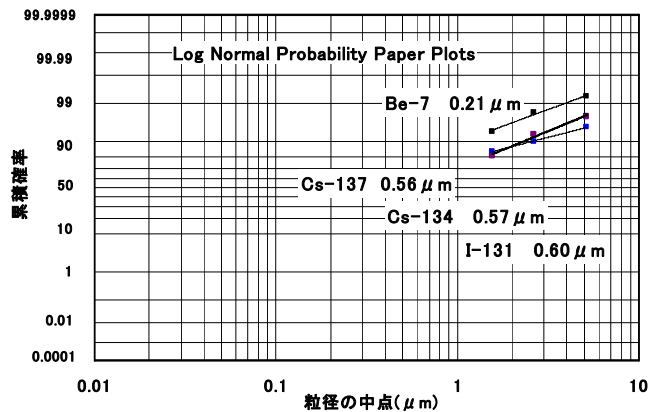


図2 分級された粒子中放射能の対数正規確率プロット

**研究発表要旨**  
**9月20日（火）**

1P13～1P29：ポスター発表 プロムナードギャラリー

**9月22日（木）**

3P01～3P23：ポスター発表 プロムナードギャラリー



## 研究背景

超重核の核物理研究における課題の一つとして、超重核の殻構造解明を目的とした核分光研究がある。我々は、理研 GARIS(あるいは GARIS-II)の焦点面に  $\alpha(e)\text{-}\gamma$  検出器を設置し、核分光研究の立上げを検討している。超重核の Decay spectroscopy における従来実験手法は、Si および Ge 検出器を組合せた Si-Ge 検出器アレイを用いるのが一般的である。しかしながら、理研リニアック棟大照射室内の中性子や  $\gamma(X)$  線に起因する高い放射線バックグラウンド環境を考慮すると、大容量 Ge 検出器の適用には壁がある。そこで、Ge 検出器に代わる  $\gamma(X)$  線検出器として、CdTe 検出器に注目してみた。昨年の討論会において、超重核の核分光研究用としての Si-CdTe 検出器アレイの可能性を調べるため、原理実証用試作機を製作し、その性能評価を行った[1]。本研究では、次段階として CdTe 検出器使用の最適化を目的とした単体性能評価試験ならびに Si-CdTe 検出器アレイの大面积化に取り組んだので、その成果について報告する。

## 実験および結果

本実験で使用した CdTe 検出器は、全てアクロラド製の 10 mm×10 mm×1 mm<sup>3</sup> を使用した。

### [1] CdTe 検出器の冷却効果(単体試験)

CdTe 検出器を冷却(17, 13, 8, 5, 2, -2 °C)し、<sup>241</sup>Am 標準線源を用いてエネルギー分解能ならびに波高安定性を評価した。結果の一例として、17 °C および -2 °C 冷却時における FWHM の時間変化を図 1 に示す。CdTe 検出器特有のポーライゼーション効果により時間経過とともにエネルギー分解能の劣化が進行するが、CdTe 結晶の冷却により劣化の進行を遅らせることが可能になる。

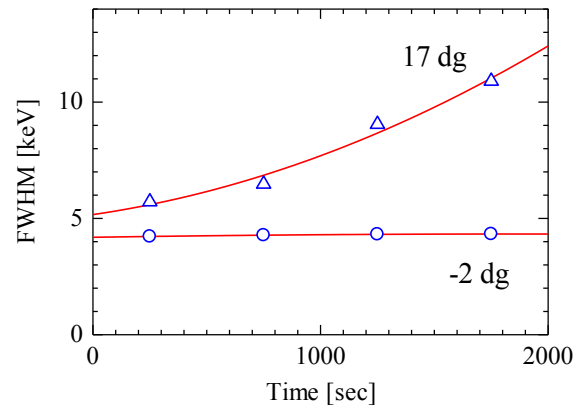


図1 500V印加したときのFWHMの変化

### [2] 理研リニアック大照射室内の放射線バックグラウンド環境測定(単体試験)

CdTe 検出器ならびに将来使用を検討している大容量クローバー型 Ge 検出器(ORTEC, GMX-CLOVER-S, Crystal diameter=53 mm, Crystal length=48 mm, Endcap=1.5 mm<sup>3</sup> Al)を大照射室 GARIS 焦点面近傍に設置し、ビーム照射時における放射線バックグラウンド環境を測定した。高エネルギー  $\gamma$  線に対して感度のある大容量 Ge 検出器は約 8000 cps の高係数率となるのに対し、結晶サイズの小さい CdTe 検出器は約 1 cps と低バックグラウンド環境が実現する事がわかった。この事は、 $\alpha(e)\text{-}\gamma$  同時計測をする際の偶然事象の確率を大幅に軽減できる事を意味する。

### [3] 大面积 Si-CdTe アレイ検出器の製作ならびその性能評価

DSSD(Double Side Silicon Detector, Micron 製 W1-1000, 有効面積 50 mm×50 mm)と 16 台の CdTe 検出器(有効面積=16×10×10 mm<sup>2</sup>)を組み合わせた Si-CdTe 検出器アレイを製作し、<sup>241</sup>Am 線源を用いて  $\alpha(e)\text{-}\gamma$  同時計測を行った。さらに、Si-Ge 検出器アレイも製作し、 $\alpha(e)\text{-}\gamma$  同時計測における S/N の比較を行った。

## 参考文献

[1] 武山, 加治ほか, 第 54 回放射化学討論会 1P09, (2010).

Development of Si-CdTe detector array for Nuclear spectroscopy of superheavy nuclides ②

Takeyama M., Kaji D., Morimoto K., Sumita T., Haba H., Tokanai F.

【はじめに】原子番号 104 以上の超アクチノイド元素 (超重元素) は、大きな原子核電荷が引き起こす強い相対論効果によって周期性から逸脱した化学的性質を示す可能性が指摘されている。しかし、超重元素は非常に短い半減期と極めて低い生成率のため、化学実験が容易ではなく、その性質はほとんど分かっていない。こうした超重元素の化学実験を効率良く行うためには、前もって同族元素の放射性トレーサーを用いた実験を行い、実験条件を決めておくことが重要である。

本研究では、106 番元素 Sg の化学実験を目指し、同族元素 Mo と W のトレーサー実験で使用する <sup>99</sup>Mo ( $T_{1/2}=2.74\text{d}$ ) と <sup>181</sup>W ( $T_{1/2}=121.2\text{d}$ ) トレーサーを調製した。また、<sup>181</sup>W の製造に必要な <sup>181</sup>Ta( $p, n$ )<sup>181</sup>W 反応の励起関数と、調製したトレーサーを利用し Mo と W の陰イオン交換挙動についても調べた。

【実験と結果】<sup>99</sup>Mo は <sup>252</sup>Cf 線源から反跳した自発核分裂生成物を Al 箔に捕獲して製造した。日本原子力研究開発機構 JRR-4 において <sup>98</sup>Mo ( $n, \gamma$ ) 反応によって製造した <sup>99</sup>Mo を用いて、まず Al 箔からの Mo の分離条件を検討した。6M HCl 系で Mo を陰イオン交換樹脂に吸着させ、5M HNO<sub>3</sub> / 1M HF 溶液を用いて溶離することとした。本手法における Mo の化学収率は 93% であった。

<sup>181</sup>W は理研 AVF サイクロトロンによって加速した 14MeV 陽子ビームを用いて <sup>181</sup>Ta ( $p, n$ ) <sup>181</sup>W 反応により製造した。図に本研究で取得した <sup>181</sup>Ta ( $p, n$ ) <sup>181</sup>W 反応の断面積を文献値[1] と TALYS コード[2]による理論計算値と共に示した。約 10MeV で最大の反応断面積が得られ、このピークエネルギーは文献値と良く一致している。本研究で得た断面積は、8MeV 以下では文献値と良い一致を示したが、ピークエネルギー付近で約 30% 低い。また、文献値に見られる、12~13MeV での最小値を示す傾向は観測されなかった。一方、TALYS による理論計算は、9MeV 以上で実験値を過少評価しており、ピークエネルギーも約 1MeV 低い。

Ta 金属標的からの <sup>181</sup>W の分離は、JRR-4 で <sup>181</sup>Ta ( $n, \gamma$ ) <sup>182</sup>Ta 反応により製造した <sup>182</sup>Ta ( $T_{1/2}=114.4\text{d}$ ) を利用し、Liang ら [3] による化学分離法を参考にして行った。W の化学収率は 93.6% であり、<sup>182</sup>Ta の除染係数は 1000 以上であった。

発表では <sup>99</sup>Mo と <sup>181</sup>W トレーサーを用いて行った HCl 系陰イオン交換実験についても報告する。

[1] The Evaluated Nuclear Data File (ENDF) <http://www.nndc.bnl.gov>

[2] A.J. Koning, *et al.*, in Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, (O.Bersillon *et al.*, ed.) EDP Sciences, p. 211 (2008)

[3] X. Liang, *et al.*, 第 54 回放射化学討論会 1P05 (2010)

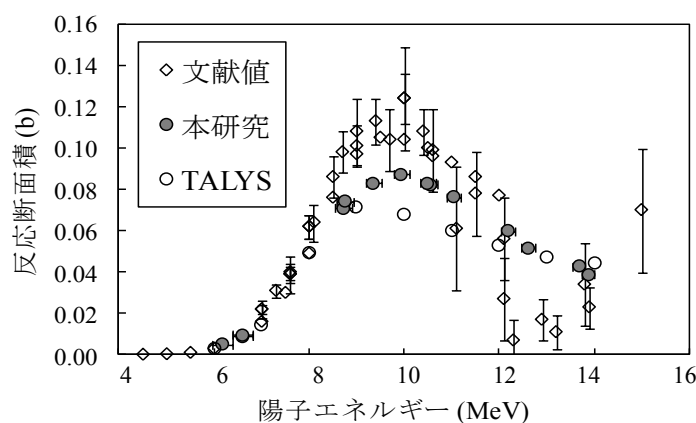


図. <sup>181</sup>Ta ( $p, n$ ) <sup>181</sup>W 反応の励起関数

# 1P15

## H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>水溶液系を用いた<sup>104</sup>Rfの同族元素 Zr、Hf の陽イオン交換の速度論的研究

(筑波大院数理物質科学<sup>1</sup>、原子力機構先端基礎研究セ<sup>2</sup>)

○五十嵐 訓<sup>1</sup>、末木啓介<sup>1</sup>、李 子杰<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>2</sup>

### 【はじめに】

104 番元素 Rf の同族元素 Zr、Hf の H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 水溶液系陽イオン交換樹脂系においてクロマトグラフ分離挙動がバッチ法で得られた分配係数から期待される溶出位置と一致しないことが報告されている。本研究では速度論的立場からクロマトグラフ実験の定量的な議論を進めることを目的に、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 水溶液系での Zr、Hf の陽イオン交換樹脂への拡散過程をバッチ法を用いて明らかにした。

### 【実験】

実験は強陽イオン交換樹脂(MCI GEL CK シリーズ, H<sup>+</sup>型)と<sup>88</sup>Zr、<sup>175</sup>Hf 無担体トレーサー溶液を用いてバッチ法で行った。バイアルとろ紙が一体化したシリンジレスフイルターに陽イオン交換樹脂を 2 mg 入れ、希 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 水溶液 590 μL とトレーサー溶液 10 μL を加え、恒温槽内で 300 秒以内の様々な時間で振とうした。その後ろ過することにより樹脂を溶液から分離し、溶液を分取して、γ線測定することによりイオン交換平衡到達度(U(t))の時間変化を求めた。この方法で U(t) の温度依存性、硫酸濃度依存性、樹脂の粒径依存性について検討した。

### 【結果及び考察】

強陽イオン交換樹脂への 0.10 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 中における<sup>88</sup>Zr と<sup>175</sup>Hf の U(t) は 15–45°C の温度でほとんど変化しなかった。次に、硫酸水溶液、硫酸/硝酸混合水溶液の濃度をそれぞれ [HSO<sub>4</sub>]<sup>-</sup> = 0.10–0.19 M、[HSO<sub>4</sub>]<sup>-</sup> = 0.018–0.10 M ([H<sup>+</sup>]<sub>eq</sub> = 1.0 M) で変化させたところ、濃度が上がるにつれ、吸着速度が遅くなることが分かった。また、樹脂の平均粒径を 11–125 μm で変化させたところ、粒径が大きくなるにつれて吸着速度が遅くなることが分かった。図 1 にイオン交換平衡到達速度の時間変化の例を示す。この結果から、このイオン交換反応は薄膜内拡散が拡散の律速段階であることも分かった。

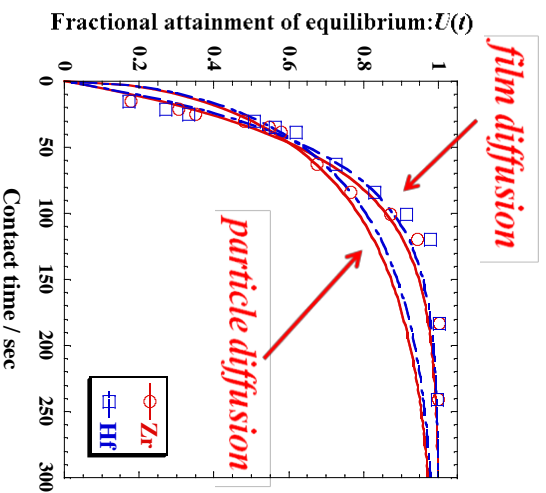
○粒子内拡散 (particle diffusion)

$$U(t) = \frac{A_{resin}(t)}{A_{resin}(\infty)} = \{1 - \exp(-kt)\}^{1/2} \quad (1)$$

$$k = \bar{D}\pi^2 \cdot \frac{1}{r^2}$$

○薄膜内拡散 (film diffusion)

$$U(t) = \frac{A_{resin}(t)}{A_{resin}(\infty)} = 1 - \exp(-kt) \quad (2)$$
$$k = \frac{3DC}{\delta C} \cdot \frac{1}{r}$$



(k : 速度定数, D : 薄膜内拡散の拡散係数,  $\bar{D}$  : 粒子内拡散の拡散係数, C : 溶質の溶液内濃度,  $\bar{C}$  : 図 1. イオン交換平衡到達度(U(t))の時間変化  
溶質の樹脂内濃度, r : 樹脂の粒径,  $\delta$  : 薄膜の厚さ) [HSO<sub>4</sub>]<sup>-</sup> = 0.10M、粒径 105-125μm)

Study on cation-exchange kinetics of Zr and Hf as homologues of <sup>104</sup>Rf with H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> solutions .  
IKARASHI, S., SUEKI, K., LI, Z. J., TSUKADA, K., NAGAME, Y.

## 理研 AVF サイクロトロンを用いた RI 製造と有償頒布

(理研仁科セ<sup>1</sup>, 日本アイソトープ協会<sup>2</sup>) ○金谷淳平<sup>1</sup>, 神原 正<sup>1</sup>,  
羽場宏光<sup>1</sup>, 高橋和也<sup>1</sup>, 山田崇裕<sup>2</sup>, 脇谷雄一郎<sup>2</sup>, 山元真一<sup>2</sup>

【はじめに】 理研仁科センターでは、加速器技術を通じた社会貢献を目的として、2007年10月より、<sup>65</sup>Zn ならびに <sup>109</sup>Cd の精製アイソトープを日本アイソトープ協会の協力を経て有償で頒布している。2011年7月までの頒布実績として、<sup>65</sup>Zn は46件で合計放射能が261.4 MBq, <sup>109</sup>Cd は17件で113 MBq である。また、2009年12月、<sup>88</sup>Y の製造法を確立し、その頒布を開始している。本発表では、これらの RI の製造法、製品の仕様や頒布の現状について報告する。

【理研 AVF サイクロトロンによる RI 製造】 <sup>65</sup>Zn, <sup>109</sup>Cd 及び <sup>88</sup>Y の RI は、理研 AVF サイクロトロンで14MeVに加速された陽子ビーム (~20 μA) を用いて、それぞれ <sup>65</sup>Cu(p,n)<sup>65</sup>Zn, <sup>109</sup>Ag(p,n)<sup>109</sup>Cd, <sup>88</sup>Sr(p,n)<sup>88</sup>Y 反応によって製造されている。RI 製造チャンバーの概念図を Fig. 1 に示す。本装置では、長寿命 RI の製造と同時に、ガスジェット法を用いた短寿命 RI の製造が可能である。ここでは、反跳生成された短寿命 RI はヘリウムガス中に捕獲され、KCl エアロゾルに吸着後、ガスジェットによってそれぞれ 10 m, 45 m 離れた2つのホットラボに搬送される。ガスジェットチャンバーには最大6種類の標的を配置可能で、複数の核種を含んだマルチトレーサーも製造できる。<sup>65</sup>Zn 及び <sup>109</sup>Cd の製造には、それぞれ天然同位体組成の銅板 (純度 99.99%, 厚さ 220 mg cm<sup>-2</sup>) と銀板 (純度 99.99%, 厚さ 260 mg cm<sup>-2</sup>) を用いている。<sup>88</sup>Y 製造用の標的には、炭酸ストロンチウム (純度 99.99%) を 1000°C で酸化ストロンチウムとし、円盤状に加圧成形後 (厚さ 200 mg cm<sup>-2</sup>)、これをアルミニウム箔 (純度 99.999%, 厚さ 10 μm) で包んだものを用いている。標的はタンタル製のビームストッパー上に固定され、循環水と循環ヘリウムガスによって冷却される。照射後、<sup>65</sup>Zn は塩酸系陰イオン交換法 (Dowex 1X8, φ5×50 mm, 100–200 mesh), <sup>109</sup>Cd は塩化銀沈殿法と塩酸系陰イオン交換法 (Dowex 1X8, φ5×50 mm, 100–200 mesh), <sup>88</sup>Y は硝酸系逆相クロマトグラフ法 (Eichrom Ln レジン, φ5×50 mm, 100–150 μm) によって精製される。放射性核種純度は、Ge 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリー、また、化学的純度及び比放射能は、ICP-MS を用いて評価している。<sup>65</sup>Zn と <sup>109</sup>Cd の生成率は、それぞれ 0.24 MBq μA<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>, 0.080 MBq μA<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup>, 比放射能は、≥242.8 MBq μg<sup>-1</sup>, ≥94.3 MBq μg<sup>-1</sup> である。討論会では、最近 <sup>85</sup>Rb(p,n)<sup>85</sup>Sr

反応を用いて製造法を確立した <sup>85</sup>Sr についても報告する。

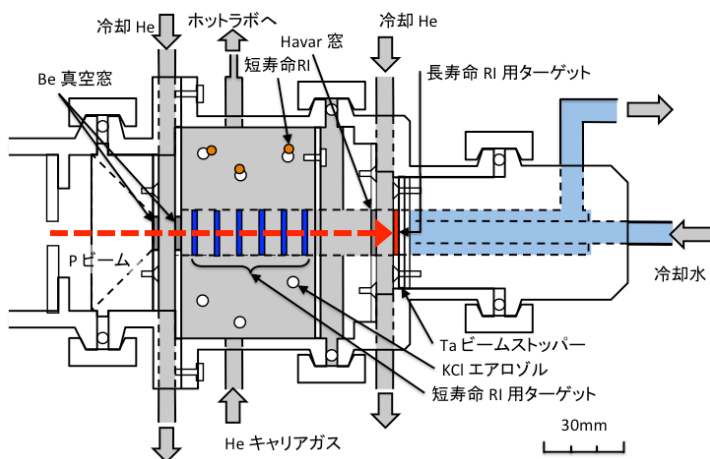


Fig. 1. 理研 RI 製造チャンバーの概念図。

## Production of radioisotopes for commercial distribution

KANAYA, J., KAMBARA, T., HABA, H., TAKAHASHI, K., YAMADA, T., WAKITANI, Y., YAMAMOTO, S.

(大阪大院理<sup>1</sup>、原子力機構先端基礎研<sup>2</sup>) ○横北 卓也<sup>1</sup>、大江 一弘<sup>2</sup>、  
小森 有希子<sup>1</sup>、菊谷 有希<sup>1</sup>、木野 愛子<sup>1</sup>、笠松 良崇<sup>1</sup>、吉村 崇<sup>1</sup>、  
高橋 成人<sup>1</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>

【はじめに】第 6 族元素であるクロム(Cr)、モリブデン(Mo)、タングステン(W)は様々な酸化数をとることが知られている。このため、106 番元素 Sg (シーボーギウム)も多様な酸化数をとると予想されており、第 6 族元素について原子軌道の理論計算も行なわれている[1]。ここでは Sg(VI)は相対論効果により 6d と 7s 軌道のエネルギー準位の逆転が起こるという結果が示されており、Sg(VI)を還元すると 6d 軌道ではなく、7s 軌道に電子が入り同族元素とは異なった挙動を示す可能性がある。本研究では Sg の酸化還元挙動を溶媒抽出挙動の変化から調べることを目標としている。Sg の挙動を調べる前に比較のために同族元素である Mo、W の各種酸化状態の化学挙動を調べる必要がある。そこで、今回は抽出剤に Aliquat 336 を用いて塩酸系での Mo(VI)、Mo(V)、W(VI)の溶媒抽出挙動について調べたので報告する。

【実験】Mo(VI)、Mo(V)溶液として、それぞれ  $\text{Na}_2[\text{MoO}_4] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 $[\text{MoCl}_5]$ を塩酸に溶解させたものを用いた。また、Mo(VI)の溶液を印加電圧 0.1 mV vs. Ag/AgCl で Mo(V)に還元した溶液も用いた。W(VI)の溶液は大阪大学核物理センター(RCNP)の AVF サイクロトロンにおいて  $^{181}\text{Ta}(p, n)$ 反応によって製造した  $^{181}\text{W}$  を Ta から分離して塩酸に溶かした物を用いた。

溶媒抽出実験では上述の各溶液と同体積の有機相(Aliquat 336-クロロホルム)を加えて温度一定で振とうし、遠心分離により 2 相を分離した。Mo(VI)はチオシアネート法[2]により発色させたものを、Mo(V)はそのまま紫外可視分光光度計を用いて定量し、W(VI)はゲルマニウム半導体検出器を用いて定量した。

【結果と考察】Fig. 1 に 0.05 M Aliquat336-クロロホルム溶液による W(VI)の抽出結果を示す。W(VI)の分配比は 9 M 塩酸付近で最大となり、塩酸濃度が薄くなるにつれて抽出量が下がることがわかった。これらの結果から、0.1-4 M で W は中性あるいはカチオン種として存在し、塩酸濃度が高くなるにつれて陰イオン性の塩化物錯イオンが形成されることが示唆された。また、抽出化学種の電荷を調べるために抽出剤の濃度を変化させながら W(VI)を濃塩酸系から抽出したところ、主な抽出化学種の電荷は-1 であることがわかった。発表では Mo(VI)、Mo(V)の溶媒抽出挙動も含めて報告を行う。

[1] V. Pershina, et al., J. Phys. Chem. A, **103**, 8463-8470, (1999).

[2] E. B. Sandell, Colorimetric determination of traces of metals, 3<sup>rd</sup> Ed. Interscience, N.Y., (1959).

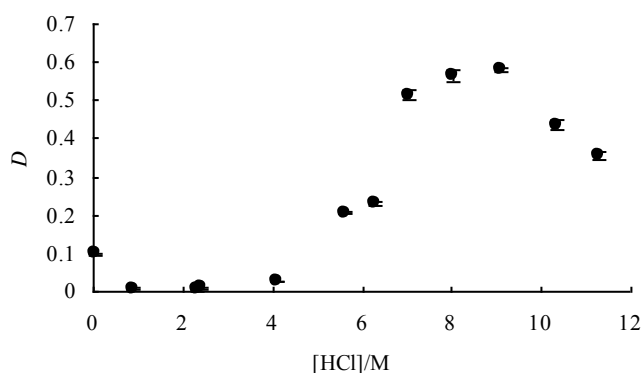


Fig. 1. Distribution ratios ( $D$ ) of  $^{181}\text{W(VI)}$  with 0.05 M Aliquat 336 in chloroform as a function of HCl concentration.

Extraction of Mo and W in oxidation states +5 and +6 with Aliquat 336

YOKOKITA, T., OOE, K., KOMORI, Y., KIKUTANI, Y., KINO A., KASAMATSU, Y., YOSHIMURA, T., TAKAHASHI, N., SHINOHARA, A.

## 変形度の大きい Lu-175 の核融合反応励起関数

(金沢大院自然<sup>1</sup>, 阪大院理<sup>2</sup>, 原子力機構<sup>3</sup>, 金沢大理工<sup>4</sup>)○戸田光祐<sup>1</sup>,  
貝谷英樹<sup>1</sup>, 高橋成人<sup>2</sup>, 笠松良崇<sup>2</sup>, 大江一弘<sup>3</sup>, 横山明彦<sup>4</sup>

【序論】本研究室では、ランタノイド元素をターゲットとして、変形核-球形核系の核融合反応における変形度の影響について研究を行ってきた。この研究の結果、ターゲットに変形核を用いることで、球形核に比べて励起関数がやや低エネルギーから始まることが分かった。これは理論的な計算によって得られた結果とも一致した。しかし、以前までの研究で用いられた変形核は  $^{169}\text{Tm}$ ,  $^{159}\text{Tb}$  であり、これらは比較的変形度が小さく、回転楕円体近似で回転軸方向の長さを  $a$ 、回転軸に垂直方向の長さを  $b$  とすると、 $a/b = 0.96, 1.07$  であり、変形度に関するデータとしては限られた範囲にとどまっている。

そこで本研究では、核融合における変形度の影響が大きいと期待される  $^{175}\text{Lu}$  ( $a/b = 1.14$ ) を含む天然同位体組成 ( $^{175}\text{Lu} : 97.4\%$ ,  $^{176}\text{Lu} : 2.6\%$ ) のルテチウムを用いて、 $^{175}\text{Lu} + ^{16}\text{O}$  系について実験を行った。本研究の結果は、これまでのデータ理論計算値との比較、対照により励起関数を系統的に評価した。また、本実験系で検出された反応生成物について不完全核融合反応の可能性が考えられたので、その影響についても検討した。

【実験】まず、天然同位体組成の Lu 標準溶液を高純度金属箔 (Al または Ti) に電着し、電着ターゲットとした。長寿命反応生成物測定のため、この電着ターゲットを数枚重ねスタックとし、大阪大学核物理研究センターにて  $^{16}\text{O}$  イオンを照射した。照射後、各ターゲットに分けたものをポリエチレンシートに封入し、Ge 半導体検出器を用いて測定した。また、短寿命反応生成物測定にはガスジェット法を用いた。これは反跳で飛び出した反応生成物をガスジェットで実験室まで輸送し、これをフィルターで捕集し、スタック法と同じく Ge 半導体検出器で測定した。両者の測定結果から、反応断面積を求めた。

【結果・考察】測定結果から反応生成物として、ガスジェット法では  $^{186-188}\text{Au}$ ,  $^{186}\text{Pt}$ , スタック法では  $^{186-188}\text{Pt}$ ,  $^{184-187}\text{Ir}$  が検出された。ここで、Pt と Ir の反応生成物は、反応によって直接できる可能性は少ないので、Au 同位体からの壊変による流れ込みであると考えられる。この測定結果と、Au 同位体の理論的な励起関数と、これらの反応生成物の反応断面積について比較・検討した。図 1 にその一例を示した。プロットが実験値、実線、破線はそれぞれ計算コード ALICE, HIVAP を用いた  $^{175}\text{Lu} + ^{16}\text{O}$  系の理論値である。図から、低エネルギー側へ励起関数の広がりが見られるが、これは Lu の天然同位体組成に含まれる Lu-176 の寄与が考えられる。また、励起関数の絶対値の増大については、不完全核融合の寄与が考えられるが、これは主に Ir 生成物に寄与する。図から、Pt と Ir で励起関数の絶対値に大差はないので、この寄与は少ないものと考えられる。今後、この理論値とのズレについて注目してさらに実験を進め、考察を深めていきたい。

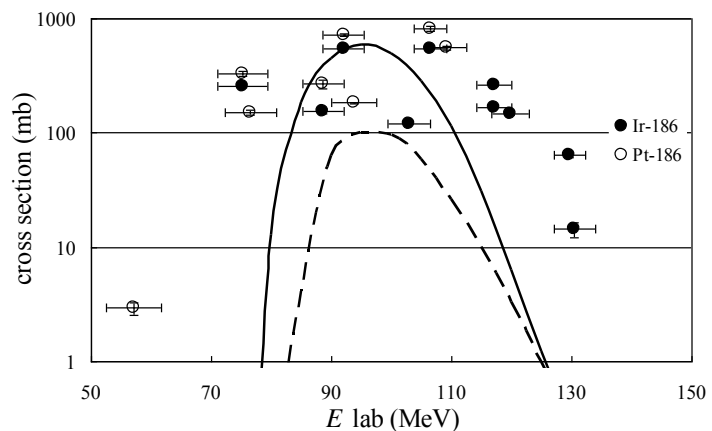


図 1.  $\text{Lu}(^{16}\text{O}, 5n)^{186}\text{Au}$  反応の励起関数

Excitation function for fusion reaction of a very deformed nucleus of lutetium-175

TODA, K. KAIYA, H. TAKAHASHI, N. KASAMATSU, Y. OOE, K. YOKOYAMA, A.

(金沢大院理<sup>1</sup>, 金沢大理工<sup>2</sup>, 原子力機構<sup>3</sup>) ○武田勇樹<sup>1</sup>, 重吉祐生<sup>2</sup>, 横山明彦<sup>2</sup>, 豊嶋厚史<sup>3</sup>

### 【はじめに】

本研究では、キレート抽出剤 TTA を保持した樹脂を用いる逆相クロマトグラフィーを行い、興味がある超重元素 Rf の溶液中の陽イオン化学種を解明することを目的としている[1]。これまでに、陽イオン交換樹脂などを用いた Rf 実験が行われたが、吸着している化学種は特定できていない。4 価の金属イオンを選択的に抽出する TTA を抽出剤として用いることで、化学種を特定した Rf の錯形成定数の決定が期待できる。今までに我々金沢大学を中心としたグループでは、TTA 樹脂の保持担体として kel-F を使いカラム実験を行ってきた。しかし、使用していた kel-F は直径 (0.5 mm 程度) が大きく、マイクロカラム (1.6 mm  $\phi$   $\times$  7 mm) への充填に不向きであった。また、従来の樹脂調整法では、アセトン中で攪拌しながら TTA 溶液を滴下するため、攪拌後に 55  $^{\circ}$ C で 6 時間乾燥しアセトンを蒸発させる必要があった。そのため、TTA が損なわれる可能性があり、再現性の良い樹脂の調製が困難だった。そこで、保持担体として CHP20Y を使い、アセトンを使わない調製方法を再検討した。また、その樹脂の抽出能を確認するためにバッチ実験を行った。

### 【実験】

①樹脂調整法: CHP20Y をメタノール、アセトンで 3 回ずつ洗浄し、120  $^{\circ}$ C で真空乾燥した。乾燥後、10 %の TTA-ドデカン溶液を滴下し、金属スパーテルで 10 分間攪拌した。デシケーター内で一晩静置し、TTA 樹脂とした。

②バッチ実験: 調製した樹脂を容量 5 mL のラウンドチューブに 50 mg 量り取った。フッ酸/硝酸 ( $[F^-]=2.1 \times 10^{-7} \sim 8.5 \times 10^{-6}$  M) の混酸を 2.95 mL、Zr、Hf トレーサー溶液を 50  $\mu$ L 加え、200 rpm で 30 分間攪拌した。その後、溶液をろ過し、ろ液の放射能を測定することで抽出能を調べた。

### 【結果】

図 1 にバッチ実験の結果を示し、液液実験と比較した。フッ化物イオンが増えるにつれて Zr、Hf が錯形成するため、抽出される 4 価の Zr、Hf が減少し分配係数が小さくなっている。また、 $[F^-]=3 \times 10^{-6}$  M 付近で分離能が上昇している。これらは、通常の液液抽出実験と同じ抽出傾向である。今回の調整法で、目的の抽出能を持つ樹脂が調製できることが分かった。

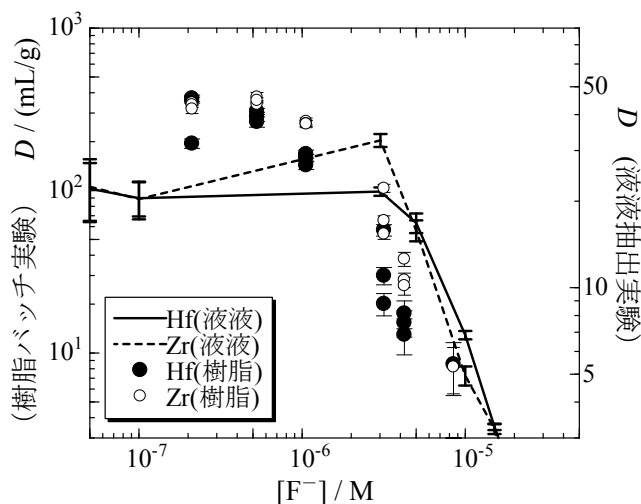


図 1 樹脂バッチ実験と液液抽出実験における Zr、Hf の分配係数のフッ化物イオン濃度依存性

参考文献 [1]武田他, 第 54 回放射化学討論会 1P02 (2010)

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

TAKEDA, Y., SHIGEYOSHI, Y., YOKOYAMA, A., TOYOSHIMA, A.

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

(原子力機構<sup>1</sup>, 茨城大学<sup>2</sup>, 理研<sup>3</sup>) ○佐藤哲也<sup>1</sup>, 佐藤望<sup>1</sup>, 浅井雅人<sup>1</sup>, 塚田和明<sup>1</sup>, 豊嶋厚史<sup>1</sup>, 金谷佑亮<sup>2</sup>, 市川進一<sup>3</sup>, 永目諭一郎<sup>1</sup>, Matthias Schädel<sup>1</sup>

イオン化電位は、対象原子の価電子の束縛エネルギーを直接反映する。そのため、超重元素領域におけるイオン化電位測定には、相対論効果が価電子のエネルギー準位に与える影響を実験的に見積もる意義がある。しかしながら、単一原子レベルでしか得られない原子番号101以上の元素では、従来法による測定が非常に困難なため、実際に測定された例はない。

我々のグループでは、相対論効果が大きく影響すると期待されるローレンシウム(Lr, Z=103)の第一イオン化電位を測定するため、表面電離比較法を用いたイオン化電位測定法の確立を目指している。原子力機構タンデム加速器施設に設置されているオンライン同位体分離装置(ISOL)において、ガスジェット結合型表面電離イオン源を構築し、オフラインおよびオンライン実験を通じて、装置の性能評価と改良ならびに測定法の検証を行ってきた。本装置では、核反応により生成した核反応生成物を、ガスジェット搬送法により速やかに表面電離イオン源へと搬送しイオン化する。対象核種のイオンは ISOL にて質量分離し、 $\alpha$ 線あるいは $\gamma$ 線測定により同定・定量される(図1)。

これまでに、核反応で生成した短寿命希土類元素のイオン化・分離に成功している。しかし、イオン源の昇温が 2300°C 温度で頭打ちになること、アイオナイザーの入り口近傍に低温部がある恐れがあること等の問題があることがわかった。これらの問題を克服し、かつ測定精度を向上するために実験可能な温度領域を広げ、また、長時間の Lr 実験に必要な装置の安定性の向上を目指して、次のような装置改良を進めている。1) フィラメント増設によるイオン源の高温化とアイオナイザー温度の均一性の向上、2) 熱量の損失低減のためのヒートシールドの再配置および 3) イオン源構造の再設計による安定性・メンテナンス性の向上、ならびに 4) 測定効率向上のための回転円盤型  $\alpha$  線測定装置の新設である。討論会では、構築したシステムの現状および上記の改良ならびに今後の予定について報告する。

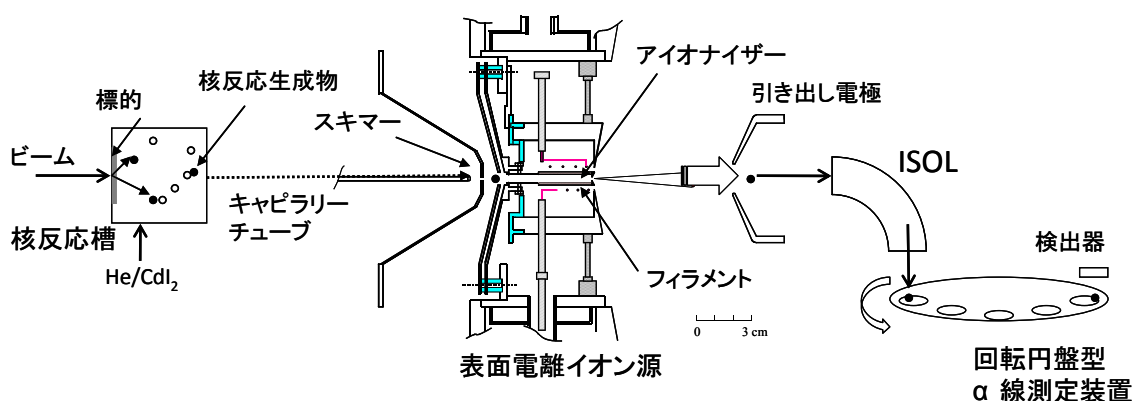


図1. 実験装置概略図

Development of Gas-jet coupled Surface Ion Source of ISOL for Measurement of First Ionization Potential of Lr

SATO, T. K., SATO, N., ASAI, M., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., KANEYA, Y., ICHIKAWA, S., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M.



## 理研 GARIS/gas-jet システムを利用した気相化学の基礎研究

(新潟大院自然<sup>1</sup>、新潟大機器分析セ<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>、東北大電子光セ<sup>4</sup>、原子力機構先端基礎研<sup>5</sup>、新潟大理<sup>6</sup>) ○小嶋貴幸<sup>1</sup>、村山裕史<sup>1</sup>、村上昌史<sup>1</sup>、後藤真一<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、加治大哉<sup>3</sup>、森本幸司<sup>3</sup>、工藤祐生<sup>3</sup>、森田浩介<sup>3</sup>、菊永英寿<sup>4</sup>、佐藤哲也<sup>5</sup>、塚田和明<sup>5</sup>、工藤久昭<sup>6</sup>

【はじめに】 超重元素の化学的性質を調べるための迅速化学分離手法の一つに、気相化学分離法がある。これは加速器を用いて合成した核反応生成物を化学反応により揮発性化合物とし、ガス流に乗せて等温クロマトカラムへと導き、カラム表面との吸脱着挙動を調べる手法である。これまで、超重元素ラザホージウム (Rf) および同族元素であるジルコニウム (Zr)、ハフニウム (Hf) の塩化物を対象とした気相化学実験が行われており[1,2]、吸着エンタルピー ( $\Delta H_a$ ) が求められてきた。 $\Delta H_a$  を求めるためにはモンテカルロシミュレーションが適用されているが、寿命の異なる核異性体を同時に測定することができれば、実験条件など不確実なパラメータに関係なく吸着エンタルピーを求めることができると考えられている。

これまでの Rf の化学実験には比較的長寿命の $\alpha$ 放射体である  $^{261}\text{Rf}$  ( $T_{1/2}=68$  s) が用いられるが、近年半減期 1.9 秒で自発核分裂する核異性体が確認されており[3]、新たな解析手法を適応できる可能性がある。本研究では理化学研究所の気体充填型反跳分離装置 GARIS/gas-jet システムに気相化学実験装置を結合し、寿命の異なる核異性体を低バックグラウンド下で測定することを目的とし、そのテスト実験として、4 族元素 Hf 同位体を対象に塩化物の気相化学実験を行った。

【実験】 理化学研究所の重イオン線形加速器 (RILAC) より供給される  $^{18}\text{O}$  ビームを  $^{nat}\text{Gd}$  ターゲットに照射し、Hf 同位体を合成した。生成核を GARIS (He 圧力 33 kPa, 磁気剛性 1.54 T m) によりビーム粒子や副生成物から分離し gas-jet チェンバーへ導き、He 気流中で直流パルス放電により生成したカーボンクラスタに付着させ気相化学分離装置まで搬送した。反応部において HCl ガスとの反応により生成した揮発性化合物は、KCl エアロゾルに付着され、捕集部のガラスフィルターに捕集した。核種の同定・定量は Ge 半導体検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリにより行った。

【結果と考察】 Gas-jet チェンバーの内圧は、GARIS と間にある薄膜の強度の制約上、60 kPa 以下でなければならない。一方、カーボンクラスタは圧力が 120 kPa 以上でなければ安定した放電が起こらず生成しない。そこで、カーボンクラスタ生成部と gas-jet チェンバーとの間を内径 1.0 mm のテフロンキャピラリで接続し、コンダクタンスを小さくすることで差圧を生み出しこの条件を満たした。キャピラリの長さは 6, 10, 16 m とした。種々のキャピラリの長さ、He 流量に対して核反応生成物の搬送効率を求めた。発表では、化学反応と再搬送を含めた化学分離の効率についても議論する。

## 【参考文献】

- [1] B. Kadkhodayan *et al.*, *Radiochim. Acta.*, **72**, 169 (1996).
- [2] A. Türler. *et al.*, *J. Alloys. Comp.*, **271-273**, 287 (1998).
- [3] H. Haba *et al.*, *Phys. Rev. C* **83**, 034602 (2011).

## Basic study of gas-phase chemistry using RIKEN GARIS/gas-jet system

KOJIMA, T., MURAYAMA, H., MURAKAMI, M., GOTO, S., HABA, H., KAJI, D., MORIMOTO, K., KUDOU, Y., MORITA, K., KIKUNAGA, H., SATO, T. K., TSUKADA, K., KUDO, H.

## Rf のオンライン抽出実験に向けた TIOA/HCl 系での Zr、Hf の樹脂を用いた抽出実験

(阪大院理)○木野愛子, 小森有希子, 菊谷有希, 横北卓也, 笠松良崇,  
高橋成人, 吉村崇, 篠原厚

### 【はじめに】

Rf の錯形成反応については過去にも実験がなされているが、化学平衡について議論されたものはない。そこで我々は、化学平衡の様子を調べ、また Rf の平衡到達後のデータを取得することによって、より信頼性のある結果を得たいと考えている。本研究では、Rf の Cl<sup>-</sup> との錯形成反応を調べることを目的としている。そして、Rf の新たな化学実験として迅速バッチ法で樹脂を用いた化学分離実験を行うために、基礎実験と装置開発を進めている。これまでに Rf の同族元素である Zr、Hf の HCl から TIOA への抽出挙動を液液抽出法及び樹脂を用いた抽出法によって調べた。分配比や分配係数を求め、HCl 濃度依存性、TIOA 濃度依存性と各条件での平衡到達時間を調べた。

### 【実験】

大阪大学核物理研究センターの AVF サイクロトロンにて  $^{89}\text{Y}(p, 2n)^{88}\text{Zr}$ 、 $^{175}\text{Lu}(p, n)^{175}\text{Hf}$  反応でそれぞれ  $^{88}\text{Zr}$  ( $T_{1/2} = 83.4$  d)、 $^{175}\text{Hf}$  (70.0 d) を製造した。溶媒抽出実験では、有機相として 0.1–0.99 M の TIOA/ベンゼン溶液を、水相として  $^{88}\text{Zr}$  と  $^{175}\text{Hf}$  トレーサーを含んだ 5.7–10 M 塩酸を、それぞれ 5 mL ずつ用いた。抽出の後、遠心分離により両相を分離し、各相 4 mL の  $\gamma$  線測定を行って分配比 ( $D$ ) を求めた。樹脂を用いた固液抽出実験では、充填剤 MCI GEL CHP20Y (粒径 30  $\mu\text{m}$ ) にメタノールとの攪拌で TIOA を吸着させたものを使用した。充填剤 10–70 mg とトレーサーを含んだ 5.7–11 M の塩酸 2 mL を振盪させた後、フィルター付き遠心管を用いて遠心分離により塩酸と充填剤の分離をし、 $\gamma$  線測定を行い分配係数 ( $K_d$ ) を求めた。両実験では抽出後の塩酸濃度を 1 M NaOH による中和滴定で決定した。

【結果】溶媒抽出、固液抽出共に平衡到達時間は速く、固液抽出においては 57wt% TIOA の充填剤を用いるとおよそ 2 分以内の振盪で抽出平衡に達していることが分かった。また、TIOA 濃度、塩酸濃度が高くなると、 $D$  値、 $K_d$  値共に増加した。 $K_d$  値の塩酸濃度依存性について調べた結果を Fig. 1 に示す。このグラフより、塩酸濃度が高くなると Zr、Hf の陰イオン塩化物錯体は多く生成すること、またすべての塩酸濃度において Zr の  $K_d$  値は Hf に比べ大きいことから、塩化物錯体は Zr の方が安定であることが分かった。溶媒抽出、固液抽出におけるこれらの結果から、Rf 実験に適した実験条件の検討を行った。

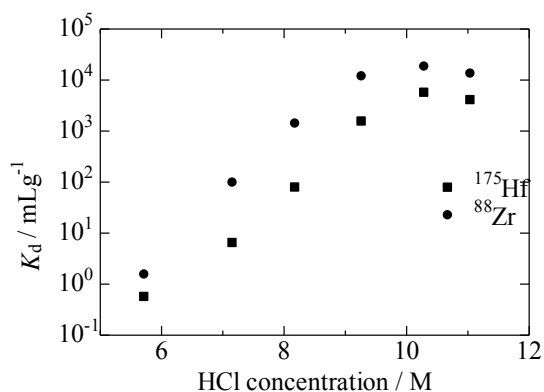


Fig. 1. Variation of the distribution coefficients of  $^{88}\text{Zr}$  and  $^{175}\text{Hf}$  as a function of the HCl concentration at the constant TIOA concentration of 0.10 M.

Extraction of Zr and Hf in TIOA/HCl system for online batch extraction of Rf with the resin  
A. Kino, Y. Komori, Y. Kikutani, T. Yokokita, Y. Kasamatsu, N. Takahashi, T. Yoshimura, and A. Shinohara

## Mössbauer absorption anomaly of gamma radiation via nuclear level anticrossing in FePSe<sub>3</sub> single crystal and powder sample

(<sup>1</sup>Fac. of Edu., Shinshu Univ., <sup>2</sup>Grad. School of Edu., Shinshu Univ.)

○ H.Muramatsu<sup>1</sup>, S.Nakajo<sup>2</sup>, S.Mochizuki<sup>1</sup>, S.Horinouchi<sup>1</sup>, H.Suzuki<sup>1</sup>, K.Nagata<sup>2</sup>, and K.Nakagami<sup>2</sup>

**Introduction** We have already reported the first steps towards a proof-of-principle experiment, demonstrating electromagnetically induced transparency (EIT) with gamma radiation for the Mössbauer effect in the mineral siderite FeCO<sub>3</sub> using the level-crossing technique[1]. We have tried to seek other candidates for absorbers possible to use in the same type of experiment. Recently, we have successfully synthesized small flakes of single crystal of FePSe<sub>3</sub>. In this report, our attention will be focused on the problem whether FePSe<sub>3</sub> can be an appropriate absorber for EIT experiments or not.

**Experimental** FePSe<sub>3</sub> was synthesized by solid phase reaction in the vacuum-shielded tube (Vycor glass tube) including the mixture of stoichiometric amounts of high-purity elements, for 1 month. The single crystal of FePSe<sub>3</sub> was obtained with a dimension of 3mm × 3mm. The experiments were performed by using a conventional Mössbauer setup, including a source of gamma radiation (<sup>57</sup>CoRh), an absorber of FePSe<sub>3</sub>. The absorber FePSe<sub>3</sub> is antiferromagnetic below Néel temperature ( $T_N=123$ K), which means that the hyperfine field can be varied by changing the temperature. The Mössbauer spectra were recorded in the temperature range from 16K to 300K, extensively.

**Results and discussion** A strong temperature-dependent internal magnetic field parallel to the EFG-axis in the single crystal allows for crossings in the nuclear level structure of <sup>57</sup>Fe. Besides the magnetic hyperfine field, the Fe<sup>2+</sup> nucleus in the crystal is subjected to a large axially symmetric EFG, which results in a well-resolved quadrupole

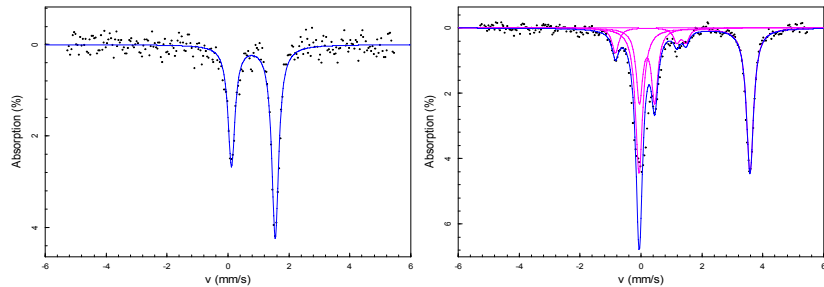


FIG.1. Mössbauer spectra taken with FePSe<sub>3</sub> powder absorber at room temperature (left) and 16.7K (right).

doublet. (See FIG.1, left) At the level-crossing temperature ( $T_{LC}$ ), around 30K in the present case, two states of  $|I=3/2, m=-3/2\rangle$  and  $|I=3/2, m=1/2\rangle$  closely approach each other, and cross and are mixed. Then, two lines, ( $m_g=-1/2 \leftrightarrow m_e=-3/2$ ) and ( $m_g=-1/2 \leftrightarrow m_e=1/2$ ), merge into one single line in the Mössbauer spectrum. A typical spectrum around this level-crossing region is depicted in FIG.1 (right). It should be noted that when the gamma photon is incident along the crystal axis of a single crystal, only four lines among six lines expected from Zeeman interaction could be observed. The obvious deficit in absorption at colliding peaks might be explained as an interference of the two transition amplitudes corresponding to the two lines having the same energy and fulfilling the EIT regime.

For the powder sample of FePSe<sub>3</sub>, the observed spectra below Néel temperature showed a full magnetic hyperfine pattern with 6 absorption lines. Below  $T_{LC}$ , the absorption line that corresponds to  $m_g=1/2 \leftrightarrow m_e=1/2$  transition was observed to be not a singlet but a doublet, though not a doublet at enough higher temperatures than  $T_{LC}$ . So we conclusively considered that when two nuclear levels cross and are mixed, two newly generated eigenstates repelling each other could be observed experimentally under a certain situation.

**Ref.**[1] R. Coussemant, Y. Rostovtsev, J. Odeurs, G. Neyens, H. Muramatsu, S. Gheysen, R. Callens, K. Vyvey, G. Kozyreff, P. Mandel, R. Shakhmuratov, and O. Kocharovskaya, Phys. Rev. Lett. **89**, No.10, 107601-1~4 (2002).

【はじめに】 Kimzeyiteは $\text{Ca}_3(\text{Zr,Ti})_2(\text{Si,Al,Fe}^{\text{III}})_3\text{O}_{12}$ という組成を持つ、garnet類に属するケイ酸塩鉱物である。Garnet類は様々な環境中において、周囲の物質との間でイオン交換反応をほとんど起こさず非常に安定であるため、放射性廃棄物を地中処分する際のイモビライザーとして利用することが検討されている。Kimzeyiteは図1のような構造を持ち、YおよびZサイトに様々な金属が置換できるため、特にイモビライザーとして期待されている。Kimzeyiteの利用のためには、結晶構造の長期安定性機構を明らかにする必要がある。そこで、本研究では、様々な組成のkimzeyiteを水熱合成し、それらの粉末X線回折法(XRD)による結晶構造解析、およびMössbauer効果測定によるFeの状態解析を行ない、長期安定性機構について検討を加えたので報告する。

【実験】 Kimzeyite 試料は  $\text{Fe}/[\text{Fe}+\text{Al}]$  の比を 0% から 100% まで 10% ずつ変化させ、 $600^\circ\text{C}$ 、 $1000\text{atm}$  の条件で水熱合成した。Kimzeyite 中の Fe の状態を知るために Rh をマトリックスとした  $^{57}\text{Co}$  を線源として Mössbauer スペクトルを測定し、得られたデータの解析から、Fe の状態の評価を行なった。試料の構造は XRD により評価した。

【結果と考察】 図 1 に示すように、kimzeyite には金属が占有する 3 種のサイトが存在する。Ca が占有する X サイト、Zr と Ti などが占有する Y サイトと Fe, Si, Al などが占有する Z サイトである。図 2 に  $\text{Fe}/[\text{Fe}+\text{Al}]=50\%$  の kimzeyite のメスバウアースペクトルを示す。解析の結果、Fe は本来の占有サイトである Z サイト (四面体サイト) 以外に、Zr の占有サイトである Y サイト (八面体サイト) にも分配されていることが判明した。Al の割合が高くなるに伴い、Fe は Y サイトに分配される傾向が強くなることも明らかになった。Fe/ $[\text{Fe}+\text{Al}]=100\%$  のときは、Fe は Z サイトのみを占有したが、Fe/ $[\text{Fe}+\text{Al}]=50\%$  のときは、Fe は Z サイトに 77.4%、Y サイトに 22.6% が分配された。XRD より、Fe/ $[\text{Fe}+\text{Al}]$  を変化させても格子定数が変化しておらず、イオン半径が  $\text{Zr}^{4+} > \text{Fe}^{3+} > \text{Al}^{3+}$  であることから、Fe が八面体サイトに移動することで格子の歪みを解消し、構造を安定化させるように分配されていることが示唆された。

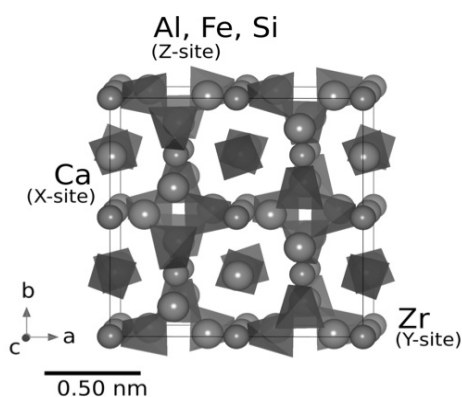


図 1 Kimzeyite の結晶構造

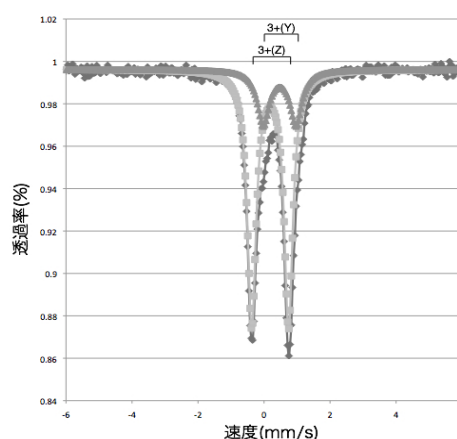


図 2 Kimzeyite のメスバウアースペクトル  
( $\text{Fe}/[\text{Fe}+\text{Al}]=50\%$ )

Analysis of properties of hydrothermal synthesized kimzeyite by Mössbauer spectroscopy.

KAMIJYO, R., SAITO, T., KAWASE, M., YAMAKAWA, J.

溶液中には存在しても固体として単離できない化学種や溶存状態での電子状態や構造の研究のために、凍結溶液のメスバウアー測定が行なわれてきた。最近、低温の有機溶媒中でしか存在できない化学種について凍結溶液のメスバウアー測定を行なったので、新たに作った凍結溶液用のセルの紹介を含めて報告する。

高原子価 Fe のポルフィリン錯体は生物無機化学的にはヘム酵素の反応中間体として興味深い、 $[\text{Fe}^{\text{III}}(\text{TMP})\text{F}_2]$  の 1 電子酸化体  $[\text{Fe}(\text{TMP})\text{F}_2]$  が  $[\text{Fe}^{\text{IV}}(\text{TMP})\text{F}_2]$  と  $[\text{Fe}^{\text{III}}(\text{TMP}\cdot)\text{F}_2]$  のいずれかを明らかにするために実験を行なった。 $[\text{Fe}(\text{TMP}\cdot)(\text{ClO}_4)_2]$  (I) のジクロロメタン (DCM) 溶液に 193 K で  $\text{Bu}_4\text{NF}$  のメタノール溶液を加えてできる化学種を  $^1\text{H}$  NMR と UV-Vis スペクトルから検討したところ、 $[\text{Fe}^{\text{III}}(\text{TMP}\cdot)\text{F}_2]$  が生成すると考えられた。そこで 193 K で調製した反応溶液を凍結させて 77 K で  $^{57}\text{Fe}$  メスバウアースペクトルを測定し、 $[\text{Fe}^{\text{III}}(\text{TMP}\cdot)\text{F}_2]$  が生成することを確認した。<sup>1)</sup>

**【実験】** 今回作製した凍結溶液測定用のセルを Fig. 1 に示す。耐有機溶媒のために、このセルは SUS303 でできている。本体①の中央に  $\phi 11$  mm の穴が空いており、両側から In ワイヤ④をシールとして厚さ 50  $\mu\text{m}$  のアルミ箔⑤を置き蓋②をネジで押さえて容器としている。試料溶液は、右上の⑥からシリンジを用いて入れるようになっており、この穴も In シールでネジを締めて密封するようになっている。測定に際しては、193 K で試料溶液をセルに入れ、液体窒素で凍結させてから、ガスフロー型のクライオスタットに③を用いて装着した。試料部の液相の厚さは 5 mm (950  $\mu\text{L}$ ) である。重原子を含む溶媒は  $\gamma$  線の非共鳴吸収が大きくなるので、例えば DCM 溶液の測定では、厚さ 15 mm のセルにろ紙を 3 枚詰め、試料溶液 200  $\mu\text{L}$  を入れて測定した。いずれも測定では、 $^{57}\text{Fe}$  濃縮 (99%) 鉄を用いた試料を用いた。

**【結果】** I および I に 1 当量と 2 当量の F を 193 K で加えた凍結溶液のスペクトルを Fig. 2 に示す。F を加える前の I には 3 種類の  $\text{Fe}^{\text{III}}$  化学種が存在している (a)。1 当量の F を加えると 2 成分となり、主成分は常磁性緩和を示す  $\text{Fe}^{\text{III}}$  化学種である (b)。2 当量加えると 1 成分だけとなり、この成分も常磁性緩和を示すが、 $\text{Fe}^{\text{III}}$  化学種であることが確認された (c)。従ってメスバウアーからも 1 電子酸化体  $[\text{Fe}(\text{TMP})\text{F}_2]$  はポルフィリンが酸化されてラジカルとなった  $[\text{Fe}^{\text{III}}(\text{TMP}\cdot)\text{F}_2]$  であることがわかった。

1. Ikezaki, A.; Takahashi, M.; Nakamura, M., *Dalton Trans.*, in press (DOI: 10.1039/cldt10561b).

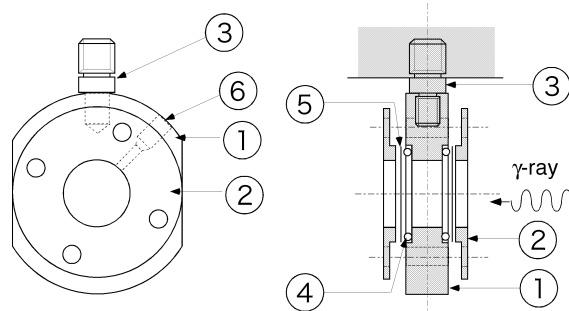


Fig. 1 Drawing of cell for frozen solution

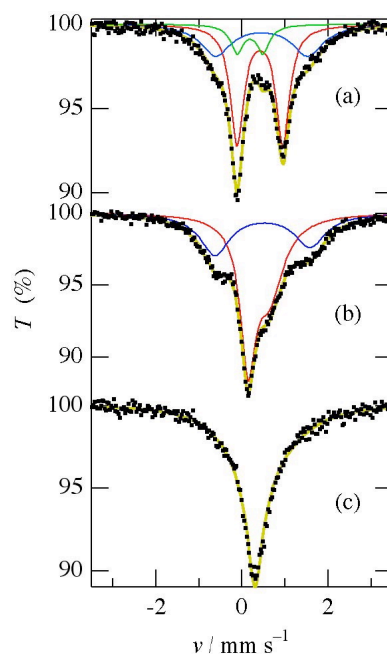


Fig. 2  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectra of frozen solution state.

Iron-57 Mössbauer spectra of iron-porphyrin complexes in frozen solution state.

TAKAHASHI, M.; IKEZAKI, A.; NAKAMURA, M.

## 【はじめに】

ペロブスカイト型マンガン酸化物( $\text{AMnO}_3$ )は超巨大磁気抵抗効果(CMR)を示し、機能性材料としての応用の観点から大いに注目されている物質である。そこで、我々の先行研究では、この酸化物の一つである  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  の各構成原子位置での超微細場の情報を得るために、摂動角相関法を用いて A サイトにおける内部磁場を測定した<sup>[1]</sup>。本研究では、外部磁場を作用させずにこの酸化物本来の Mn サイトにおける情報を得るために、Fe を様々な割合でドーピングした  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$  ( $0.2 \leq x \leq 1$ ) を合成し、メスバウアー分光法を用いて Mn サイトにおける超微細場を測定した。

## 【実験】

試料の  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$  ( $0.2 \leq x \leq 1$ ) は以下の固相反応で合成した。原料の  $\text{La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{MnO}_2$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を当該量秤量して十分に混合し、1273 K で仮焼結した。その後、仮焼結試料を再び混合し、錠剤成型して 1473 K で焼結した。合成した試料は粉末 X 線回折法によって目的の結晶構造になっていることを確認した。メスバウアー分光測定では比例計数管による従来の透過法を採用し、室温でのそれぞれのメスバウアースペクトルにおける Fe の濃度依存性を調べた。

## 【結果】

Fig. 1 に室温における  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$  のメスバウアースペクトルを示す。このスペクトルについては磁気分裂成分を考慮せずに一つのダブルレットを仮定してフィッティングを行った(FWHM=0.387(13) mm/s, IS=0.355(4) mm/s, QS=0.300(8) mm/s)。Fe を 40% ドープした試料についても Fig. 1 とほぼ同様なスペクトルを得たが、Fe を 60%、80%、100% ドープした試料については Fig. 1 と異なり、スペクトルにダブルレットだけではなく磁気分裂成分と思われるピークが見られた。これは試料に対する Fe のドーピング量を変化させたことによって、試料の結晶構造を保ったまま磁性が変化したことを示唆している。ポスター発表では、これらのスペクトルの Fe の濃度依存性について議論する。

## 【参考文献】

[1]W. Sato, N. Ochi, A. Taniguchi, T. Terai, T. Kakeshita, A. Shinohara, and Y. Ohkubo, J. Nucl. Radiochem. Sci. **8**, 89 (2007).

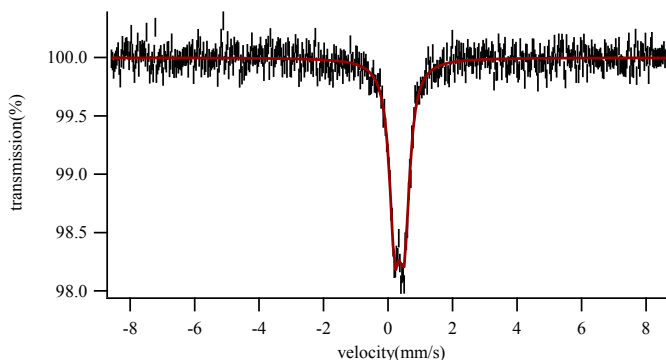


Fig. 1. Mössbauer spectrum of  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$  measured at room temperature.

Hyperfine fields of perovskite manganite  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$  ( $0.2 \leq x \leq 1$ ) measured by Mössbauer spectroscopy

MINAMI, D., SUZUKI, T., KOMATSUDA, S., KUBOTA, T., SATO, W.

【はじめに】酸化亜鉛(ZnO)は、近年半導体としての利用が期待されている物質である。不純物がドーパされた半導体の電気伝導性は、不純物の種類や濃度および導入法によって変化するので、その制御のためには不純物が占めるサイトや果たす役割を明らかにする必要がある。先行研究において  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  をプローブとする  $\gamma$  線摂動角相関(PAC)法により、希薄不純物としてプローブのみをドーパした粉末 ZnO 試料と、プローブに加え更にマクロ量の In(非 RI) をドーパした試料の局所場を観察した<sup>[1]</sup>。ここでは、2 試料間でプローブ核位置における電場勾配の大きさなどに違いが存在した。本研究では、この局所場の変化と不純物ドーパに伴い形成されることが一般的に予想される格子欠陥との関連の有無を調べることを目的とした。そのために、粉末 ZnO 試料に放射線を照射して格子欠陥を意図的に形成させ、その影響を  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  プローブを用いた PAC 測定で調べた。

【実験】 ZnO 粉末(undoped ZnO)および、Zn に対し原子数比 0.5% の In(非 RI) を ZnO 粉末に加えた試料(0.5 at.% In-doped ZnO)をそれぞれ錠剤成型し、1273 K で 3 時間加熱した。それぞれの試料に  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  の塩酸溶液を滴下した後、1373 K で焼鈍しプローブを拡散させた。これらのペレットを粉砕して石英管に真空封入し、東北大学電子光物理学研究センターの線形加速器において電子線と制動放射線を約 8 時間照射した(22 MeV、20 MeV)。これらの試料を 4 検出法により、室温と次いで 1000 K で測定し、その後再び室温に戻して測定した。

【結果】 Fig. 1 に放射線照射前(a)と照射後(b)の undoped ZnO 試料を室温で測定した PAC スペクトルを示す。照射後の試料については、照射前と同様の電気四重極周波数を持つ成分しか見られず、In-doped ZnO に特有の高周波数成分は見られなかった。照射による影響としては強度の減衰が見られた。この減衰は高温測定中に回復したので、周波数の分布の広がりをもたらす結晶構造の乱れとして説明できる。0.5 at.% In-doped ZnO についても同様に、非照射の場合と比べて周波数の変化は見られず、強度の減衰のみが観察された。

以上の結果から、In のドーパによる ZnO の局所場の変化は電子線や制動放射線の照射で生成するような格子欠陥との関連性が小さいことが分かった。

#### 【参考文献】

[1] W. Sato, Y. Itsuki, S. Morimoto, H. Susuki, S. Nasu, A. Shinohara, and Y. Ohkubo: *Phys. Rev. B* **78**, 045319 (2008).

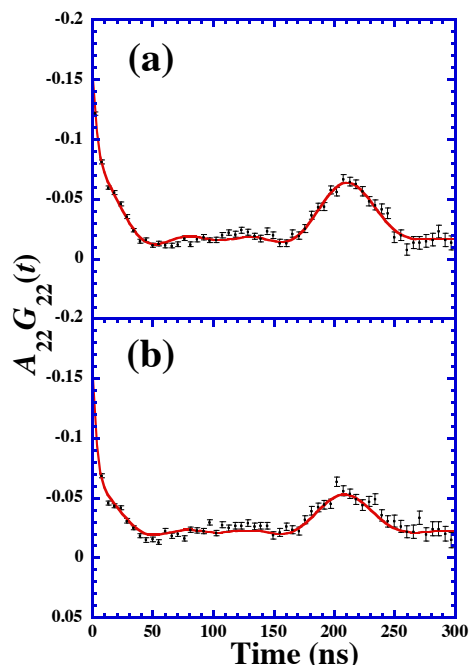


Fig. 1. PAC spectra of  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111}\text{In})$  embedded in undoped ZnO at room temperature. The samples were measured (a) before and (b) after radiation irradiation.

Effect of radiation irradiation on local fields in ZnO

TOGIMITSU, T., KOMATSUDA, S., HIROSE, K., OHTSUKI, T., SATO, W.

## ZnO 中 Fe 不純物位置での超微細場測定

(金大院自然<sup>1</sup>, 東北大電子光セ<sup>2</sup>, 阪大院理<sup>3</sup>, 金大理工<sup>4</sup>)  
 ○鈴木卓也<sup>1</sup>, 大槻勤<sup>2</sup>, 笠松良崇<sup>3</sup>, 高橋成人<sup>3</sup>, 佐藤渉<sup>4</sup>

【はじめに】 室温強磁性半導体は電子の電荷とスピンの両方を利用した高機能材料を作り出すスピントロニクス分野で注目されている。半導体である ZnO においても微量の磁性金属を添加した場合、室温強磁性半導体になる可能性があるとの報告がなされているが、室温強磁性が発現する条件や起源は明確には分かっていない。ZnO の室温強磁性を扱った論文に ZnO に  $^{57}\text{Mn}$  のビームを打ち込み発光メスバウアー分光法で測定した報告がある[1]。そこでは室温強磁性の起源としてビーム照射によって生成する格子欠陥が挙げられているが、その真偽について見解は一致していない。そこで本研究では Fe を添加した ZnO に放射線を照射して意図的に格子欠陥を作り、照射の前後で試料をメスバウアー分光法で測定し、格子欠陥の生成による室温強磁性発現の有無を調べた。

【実験】 エタノール中に ZnO 粉末と  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  を加え攪拌しつつ加熱することで乾固し、錠剤成型の後 1000°C で焼成した。これを粉末にして、 $^{57}\text{Co}$  線源を用いたメスバウアー分光法で測定した。その後、この試料を石英管に真空封入し、東北大学電子光物理学研究センターの線形加速器により 20MeV に加速した電子とそれを白金板に当てて発生させた制動放射線を照射した後、同様にメスバウアー分光測定を行った。

また、上記と同様の方法で合成したペレット状の試料に、大阪大学核物理研究センターにおいて  $^{16}\text{O}$  ビームを照射した後、メスバウアー分光法で測定した。

試料中の Fe の化学系は粉末 X 線回折測定を行うことで確認した。

【結果】 粉末 X 線回折測定の結果から試料中の Fe は  $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$  の構造をとっていることが示唆された。Zn と Fe の原子数比を 98:2 とした試料の制動放射線の照射前後のメスバウアースペクトルを図 1 に示した。制動放射線を照射した後も磁気分裂成分を確認できなかったため、ここではダブレット 1 つだけがあるものとしてフィットした。制動放射線の照射前後を比較すると、Zn と Fe の原子数比を 90:10 とした試料では、制動放射線を照射する前の QS は 0.42(1) mm/s、照射後は 0.40(1) mm/s でありその変化が誤差範囲内だった。これに対して、Zn と Fe の原子数比が 98:2 の試料では、QS が照射前は 0.47(3) mm/s、照射後は 0.37(2) mm/s と照射による変化が見られた。本発表では Fe の含有量と放射線照射の影響について議論する。

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

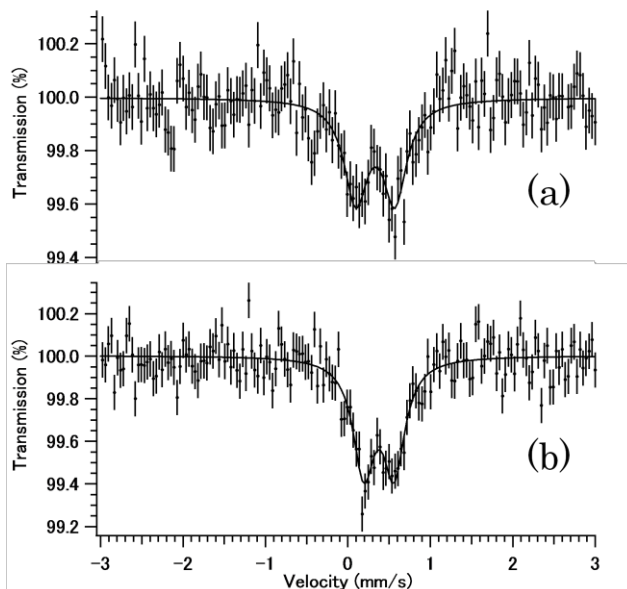


図 1. Fe 添加 ZnO (Zn:Fe=98:2) の制動放射線照射前(a)と照射後(b)のメスバウアースペクトル

Observation of hyperfine fields at impurity Fe sites in ZnO

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



## シクロヘキサンと四塩化炭素の混合溶液系におけるミュオン転移反応の分子効果

(阪大院理<sup>1</sup>、国際基督教大学<sup>2</sup>、原研<sup>3</sup>、高エネ研<sup>4</sup>)○藤原一哉<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>3</sup>、久保謙哉<sup>2</sup>、笠松良崇<sup>1</sup>、河村成肇<sup>4</sup>、長友傑<sup>2</sup>、三宅康博<sup>4</sup>、三浦太一<sup>4</sup>、髭本亘<sup>3</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

【はじめに】 負ミュオンは電子と同様原子軌道をつくりミュオン原子を形成する。負のミュオンが水素を含む分子内の水素原子へと捕獲された時、化学結合が外れ中性子様のミュオン水素原子として分子内を動き回り、時にほかのより重い原子へとミュオンが転移することが知られている(ミュオン転移過程)。本実験では、ミュオンの外部転移の際に分子の構造の違いがどのような影響を受けるかを調べるために、水素を含む分子( $C_6H_6 \cdot C_6H_{12}$ )と含まない分子( $CCl_4$ )の混合比に対する  $\mu$  X 線の強度比を測定した。その結果をカスケード計算によるシミュレーション結果と比較することにより、ミュオンの外部転移の際の分子の構造の違いによる影響を調べた。

【実験】 本実験は J-PARC-MUSE の D2 ビームラインで行った。サンプル溶液はアルミニウムサンプルホルダー( $70 \times 60 \times 2 \text{ mm}^3$ )に充填し、それをヘリウムで満たしたガスチェンバー内に設置し、ミュオン照射を行った。ミュオン照射により放出される X 線を 2 台の Ge 検出器を用いて測定した。測定の際にミュオンの最適運動量の決定を行った。決定した  $34 \text{ MeV}/c$  の運動量を用いて、 $C_6H_6$ 、 $C_6H_{12}$ 、 $CCl_4$ 、また混合溶液として  $C_6H_{12}:CCl_4=2:1$ 、 $C_6H_{12}:CCl_4=97:3$  の混合比のサンプル試料を  $5.0 \times 10^5 \text{ muons/s}$  のミュオン強度で 8 h~12h 測定した。

【結果と考察】 今回の測定で得られたスペクトルの一例を下の Figs.1 に示す。図の C(2-1)等は主量子数 2 から 1 に脱励起した際に炭素から放出される  $\mu$  X 線を示す。C(2-1)、Cl(3-2)を基準として得られたピークのピーク強度比を算出し、試料間の比較を行った。その結果の一例を Fig.2 に示す。 $C_6H_{12}$  のみの時と混合溶液( $C_6H_{12} : CCl_4 = 2 : 1$ )の時 C および Cl のピーク強度比の違いが見られた。実験で得られた X 線強度比をミュオン原子に対するカスケード計算の結果と比較することによって、転移反応による分子効果の影響に関する議論を行った。

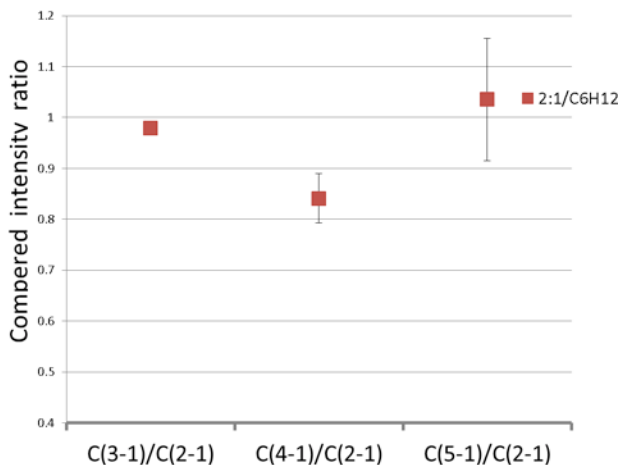
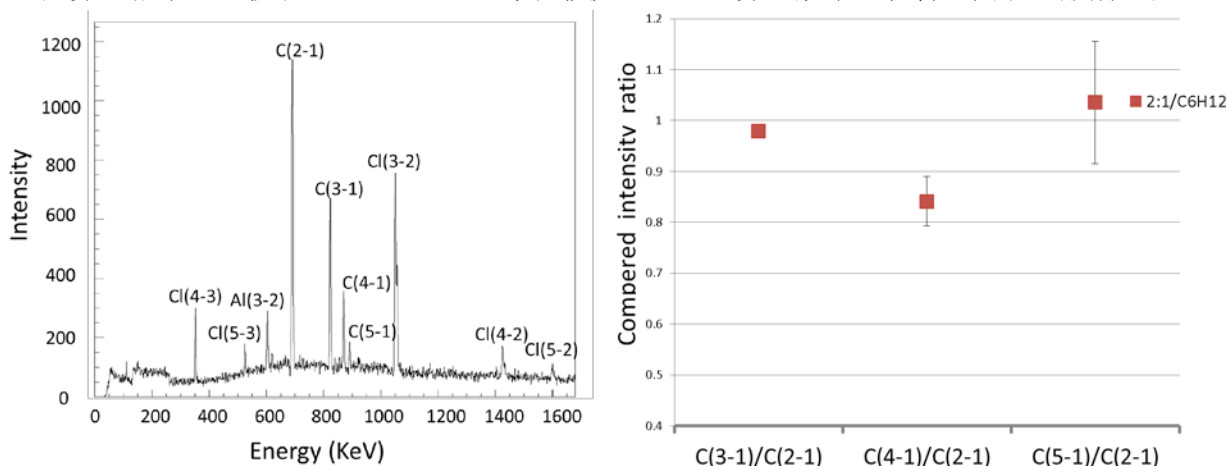


Fig.1  $C_6H_{12} : CCl_4 = 2 : 1$  の  $\mu$  X 線

Fig.2  $\mu$  X 線の強度比の比較( $C_6H_{12}:CCl_4=2:1 / C_6H_{12}$ )

Molecular effects of the muon transfer process in the mixture solution of cyclohexane and carbon tetrachloride.

FUJIHARA, K., NINOMIYA, K., KUBO, K., KASAMATU, Y., KAWAMURA, N., NAGATOMO, T., MIYAKE, Y., MIURA, T., SHINOHARA, A.