

研究発表要旨

9月22日(木)

3A01～3A10：A会場(特別会議室B)
3B01～3B10：B会場(会議室2,3)

【はじめに】

平成 23 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（福島県大熊町、双葉町）が被災し、水素爆発やベントに伴い多量の放射性物質が放出された。放出された核種と量を推定するため、原発より約 100 km 南に所在する日本原子力研究開発機構・原子力科学研究所（茨城県東海村）において、事故以降の雨水を採取し、γ線測定を行った。

【実験】

事故後に東海村で降雨が観測されたのは、3/16, 21-23, 30-31, 4/9, 11, 19 であった。このうち、3/23, 3/31, 4/11, 4/19 の雨水を採取した。採取は、所内建築物の北側風除室屋根（トタン製 1 m x 2 m）に繋がる雨どいに 5 L 容器を設置し取水する方法を採った。採取した雨水 100 mL に 20%アンモニア水を 100 μL 加えたのち、25 mL ポリバイアルに入れ、Eurisys mesures 製 n 型 80%HPGe の EGNC80-230-R で測定した。

震災後、実験室出入りに起因するバックグラウンド(BG)の上昇・変動が確認されたため、測定の前後に BG 測定を行い、その平均値を測定中の BG とした。

【結果と考察】

採取直後の測定で検出された核種は、 ^{129m}Te (半減期:33.6d), ^{132}Te (3.2d), ^{131}I (8.02d), ^{132}I (2.3h), ^{133}I (20.8h), ^{133}Xe (5.25d), ^{134}Cs (2.06y), ^{136}Cs (13.16d), ^{137}Cs (30.17y), ^{140}Ba (12.75d), ^{140}La (1.68d)であった。また、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は、全ての雨試料の平均値を計算したところ 1.0 ± 0.1 であった。

代表的な核種である ^{137}Cs の変動を Fig. 1 に示す。雨水の測定からは、少なくとも 4/11 以降、大気中への大規模な放出はないと考えられる。今後、採取した雨水を再測定し、 ^{131}I 等の妨害で検出できなかった長寿命核種を対象とした分析を行う予定である。

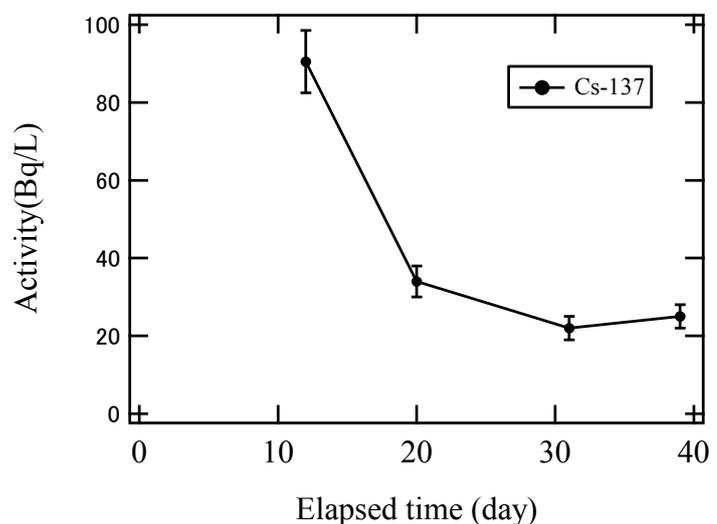


Fig.1: 3/11 からの雨水中 ^{137}Cs の濃度変化

Observed radioactive materials in rain water after accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

YASUDA, K., MIYAMOTO, Y., MAGARA M., KIMURA, T.

序論

福島第一原子力発電所での事故に伴い、大量の放射性物質が環境中に放出された。植物が汚染された結果として、我々が口にする茶葉が放射性セシウムによって汚染されたことが問題となっている。本研究では、今回の事故によって汚染された茶葉からお茶を浸出する際の放射性セシウムの抽出率について検討した。

実験方法

実験には、同じ地方において今年春に収穫された製品茶葉二種類を用いた。同じ茶葉で1、3、5、7、10分の浸出時間でそれぞれ2回お茶を浸出し、一番煎じと二番煎じの抽出率を調べた。また、茶葉から浸出するお茶を1分間隔で分取し、抽出される放射性セシウムの経時変化を調べた。お茶の測定・定量には、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた。また、吸光度測定を併せて行い、お茶に含まれるカフェインを測定した。

結果と考察

一番煎じと二番煎じでは、カフェインの抽出に茶葉の種類による差があったが、セシウムの抽出率はいずれも二番煎じの方が高くなった。一番煎じでは40%程度、二番煎じでは最大で80%程度のセシウムが抽出された。

また、放射性セシウムの抽出率は、浸出時間が長くなるに従い増加し、10分間で約80%になった。茶葉に残るセシウムとお茶に抽出されるセシウムの濃度比（分配係数）は、5分まではほぼ一定であったが、6分以降急激に増加することが明らかになった（図1）。セシウムの放射能とカフェインの吸光度の比をとると、浸出時間が長くなるに従い直線的に減少した（図2）。

以上から、一番煎じのお茶で浸出時間を5分以内にすると、茶葉からの放射性セシウムの抽出を低く押さえられることが示唆された。

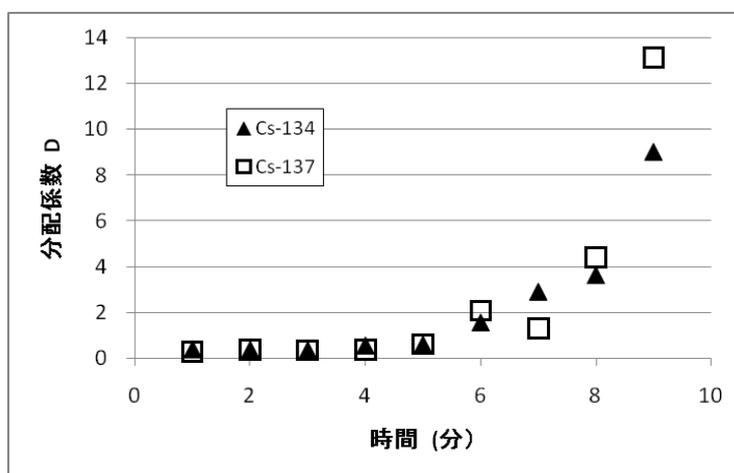


図1 茶葉とお茶の濃度比（分配係数）

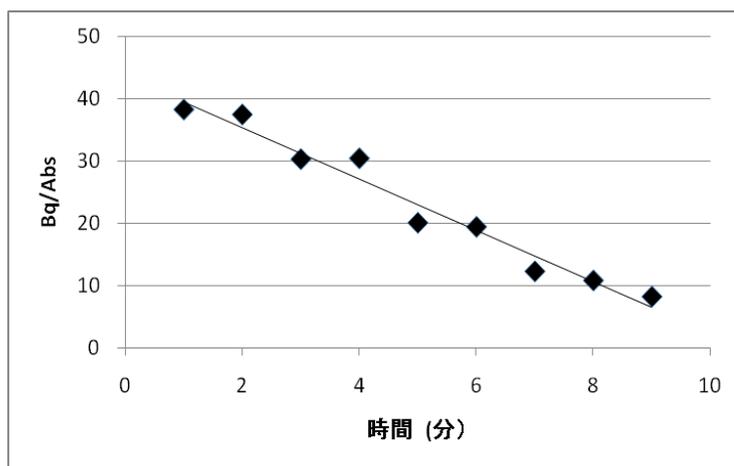


図2 放射能と吸光度の比の経時変化

Extraction of Radioactive Cesium from Tea Leaves

YANO, Y., HIGAKI, S., HIROTA, M., NOMURA, K., KUBO, M. K.

【緒言】

2011年3月に福島第一原子力発電所で発生した事故によって、さまざまな放射性核種が大気中に放出され、広範囲にわたって降下した。地表に直接降下した放射性核種は地中へ浸透していくことが過去の研究で報告されている。数年単位以上の半減期を有する放射性核種の深度分布は、過去に行われた大規模な大気圏内核実験や、チェルノブイリ原子力発電所事故(1986)で放出された放射性核種によって、経年変化の調査や、プロファイリングが行われてきた。しかし、半減期が1ヶ月以内のような短半減期の放射性核種については降下した時期の正確な把握の難しさや、半減期そのものが短いことなどから十分な知見が得られていなかった。そこで本研究では地表に降下してから2ヶ月ほど経過した土壌で、短半減期核種である ^{131}I ($t_{1/2}=8.021\text{d}$)および $^{129\text{m}}\text{Te}$ ($t_{1/2}=33.6\text{d}$)の濃度についてその深度分布を測定して、浸潤の特徴を調査した。

【実験】

福島県内において土質が異なる4地点を選定し、放射性核種の大気放出からおよそ2ヶ月余が経過した5月14日と6月1日に、土壌の深度試料を採取した。土壌試料の採取は地表から30cmの深さまで、円筒状の採土器を用いておこなった。この土壌試料を凍結後、深さ方向に1cm単位で裁断し、HP-Ge半導体検出器でγ線スペクトル測定を行い、核種量を算出した。

【結果と考察】

FIG. 1 にいわき市の海岸における試料の結果を示した ^{131}I は表層から4cmの位置で検出され、5cmの位置でピークを観測でき、 ^{137}Cs と ^{134}Cs は3-6cmの間に2カ所のピークを観測した。一方、FIG. 2 に示した山中で採取した試料では、表面から指数的に核種量は減少している。この深度分布の違いは土壌の粒度が違うことに起因していると考えられる。粒度測定を行った結果、平均粒子径が小さいほど、浸潤が抑制されやすいことを確認した。加えて土壌試料のpH、含有水分量、および有機物含有量の面からも検証を行った。当日は、上記2試料に加え、さらに土質の異なる土壌試料の結果、また $^{129\text{m}}\text{Te}$ の挙動も報告する。

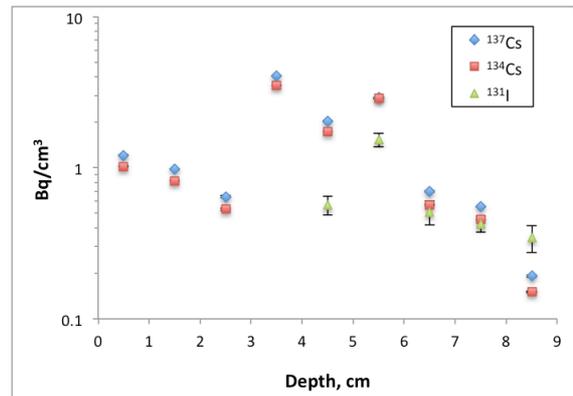


FIG. 1 海岸の砂（いわき市）における深度分布測定結果

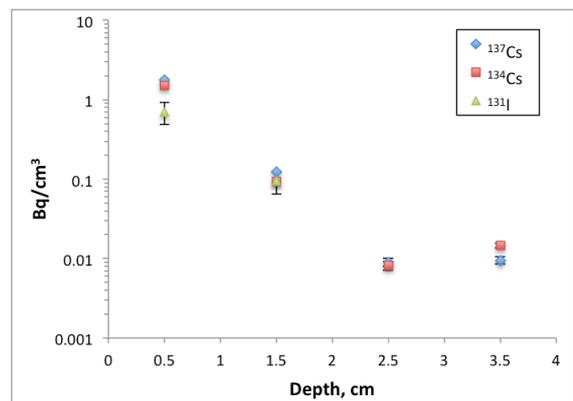


FIG. 2 山中（いわき市）で採取した土壌試料の深度分布測定結果

Depth distributions of radionuclides in soils from the Fukushima nuclear accident.

SATOU, Y., SUEKI, K., KITAGAWA, J., IKARASHI, S., SASA, K.

福島県内の河川水中放射性セシウムの濃度変動

(金沢大 LLRL¹, 金沢大院自然科学²) ○長尾誠也¹, 金森正樹², 落合伸也¹, 井上睦夫¹, 濱島靖典¹, 山本政儀¹

はじめに

東北大震災の影響により福島第一原子力発電所の事故が発生し、原子力安全委員会と保安院の見積もりによると、370～630 PBq の放射性核種が環境中に放出された。緊急時のモニタリング調査の結果、土壌への沈着状況が把握され、放射線防護の対策が進められている。しかし、中長期の影響評価を考えた場合、沈着した土壌から河川を経由した放射性核種の移行を評価する必要がある。そのため、金沢大学では中長期の影響評価で重要な ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs に着目し、福島県内の 5 河川を対象に河川調査を 2011 年 5 月から開始した。

試料と方法

福島県内の河川は、空間線量のデータを基にして阿武隈川上流（白河市）、下流（伊達市）、宇多川、新田川を調査対象として選定した。観測では、河川流心の表層水を 2011 年 5 月 20 日に採取し、河川水の水質を多項目水質計により測定した。2011 年 7 月 12 日には、福島県いわき市の夏井川と鮫川でも河川水を採取し、7 月 13 日は上記の 4 測点で同様の調査を行った。

河川水中の放射性セシウムは、リンモリブデン酸アンモニウム沈殿法により分離し、金沢大学低レベル放射能実験施設、あるいは尾小屋地下実験施設の Ge 検出器で測定した。なお、¹³⁴Cs に関してはサム効果の補正を行った。溶存態と粒子態の放射性セシウムの分画には、カートリッジフィルターを使用し、ろ液の放射性セシウムの放射能濃度を測定した。

結果と議論

2011 年 5 月 20 日に採取した河川水の測定結果は下の表に示した。バルク分析の結果、河川水中の ¹³⁷Cs の放射能濃度は 0.23～4.17 Bq/L の範囲を示し、福島原発事故以前の久慈川と利根川の河川水の報告値に比べて、3 桁程度高い値であった。また、上流の流域に飯舘村が存在する新田川で、他の観測点に比べて 1 桁高い放射能濃度であった。これらの結果は、河川流域の ¹³⁷Cs の沈着状況と一致する傾向にある。また、阿武隈川上流で採取した河川水で行ったカートリッジフィルターによるろ過試料の分析結果より、86%が粒子態で存在し移行していることが明らかとなった。

表 福島河川水の水質と ¹³⁷Cs の放射能濃度

河川	pH	電気伝導度 (mS/m)	濁度 (NTU)	Cs-137 (Bq/L)	Cs-134/Cs-137
阿武隈川(白河)	8.38	8.9	5.1	0.23	0.91
阿武隈川(伊達)	7.36	15.6	15.6	0.66	0.91
宇多川	8.76	7.9	14.6	0.53	0.91
新田川	8.01	5.4	14	4.17	0.9

Variations in radioactivity of radiocesium in river waters from Fukushima Prefecture

NAGAO, S., KANAMORI, M., OCHIAI, S., INOUE, M., HAMASHIMA, Y., YAMAMOTO, M.

【はじめに】東京電力福島第一原子力発電所の事故により、関東地方では主に 2011 年 3 月 21 日から 22 日にかけての降雨の間、I-131 (半減期 8.02d)、Cs-134 (半減期 2.065y) および Cs-137 (半減期 30.04y) が地表面に降下した。3 月 22 日には浄水場処理水中の I-131 濃度が乳幼児の摂取規制値である 100 Bq/L を超える値が報告されたが、放射性セシウム (Cs-134+Cs-137) は超えなかった。セシウムは土壌等に収着されやすいため、浄水処理場における通常の処理によりほぼ除去されたようだが、I-131 はその後も上水中に含まれ続け、関東地方で 1Bq/L を下回ったのは 4 月 23 日以降であった。このようにヨウ素は水道水に残り易いことから、実際に I-131 が含まれる水道水を用いて、いくつかの除去方法を検討した。

【材料および方法】試料は千葉県内において採取された水道水である。I-131 濃度は最大約 50Bq/L であった。試験は①煮沸、②木炭や竹炭等の投入、③活性炭の利用、④家庭用浄水カートリッジ通過、⑤RO 膜処理の 5 つの方法である。①については、ビーカーに水道水を入れて煮沸を 0-30 分程度行い、溶液を最大 1/3 にまで濃縮した場合の濃度変化を求めた。②では、木炭約 10g に対し水を 200g、竹炭 6g に対し 240g 入れ、30 分おきに攪拌しながら 2、4、8 時間後に試料水の測定を行い経時変化を求めた。③では約 3g の活性炭をカラムに詰めて 200mL の水道水を通水し、通水前後での変化を調べた。④では処理量と I-131 の濃度の関係を、⑤では実験室用の RO 膜 (Millipore, Elix 5) の除去能を調べた。測定は全て Ge 半導体検出器で行った。試料水の処理前後でのカウント比を求めており、濃度は求めている

【結果および考察】水道水は浄水場において塩素処理されるため、化学形は IO_3^- になっていると推測される。処理①では、水の蒸発・濃縮に伴って I-131 濃度も高まり、損失は認められなかった。従って、煮沸ではヨウ素を除去することができず、逆に濃度が高まる¹⁾。また、一般家庭で行われるように鍋を用いた実験でも同様の結果であった。②では、時間が経過しても濃度は減少しなかったことから、炭による除去はできなかった。③でも、濃度変化がほとんど見られず、最大でも 10% 程度の除去しか確認されなかったため、効果的な除去はできなかったといえる。④では蛇口取り付け型 (耐用 900L、粒状活性炭+イオン交換体+中空糸膜フィルター) とポット型 (耐用 200L、活性炭+セラミック+中空糸膜フィルター) を用いた。蛇口取り付け型では 100L までは 20% 除去できたが、400L を超えると除去できなかった。ポット型浄水器では、2L までであれば 50% 除去できたが、10L を超えると除去できなくなった。特に活性炭の部分でトラップされていたが、その効果は限定的であった。⑤では、95% 以上除去可能であった。

【参考文献】 1) K. Tagami and S. Uchida, Chemosphere 84, 1282-1284 (2011).

表 1 水道水中ヨウ素除去効果試験の結果

処理方法	効果
煮沸	×
木炭・竹炭	×
活性炭	<10%
浄水器	0-50%
RO 膜	>95%

Tests of some methods to remove I-131 from contaminated tap water.

TAGAMI, K. UCHIDA, S.

(九大院理¹, 九大RI²) ○市川竜平¹, 百島則幸², 杉原真司²,

【序論】

水素の放射性同位体であるトリチウムは、環境中には天然起源の他、原子力発電所等から放出される人工起源が存在している。トリチウムは人体へ移行し長期の被曝をもたらすことから、環境へ放出されたトリチウムの挙動を明らかにし、その影響を正しく評価することは重要である。本研究は、植物の光合成で固定されるトリチウムの挙動を明らかにすることを目的としている。光合成では、大気水蒸気経由の水と土壌水経由の水からなる含有水が利用される。トリチウムを大気放出している原子力施設周辺の植物のモニタリングでは、取り込まれたトリチウムの利用に、経路による偏りがある可能性を示唆する結果が見られる。従来、光合成では取り込み経路による固定に違いはないとされてきたことから、経路による利用に偏りがあるならば、環境トリチウムの被曝線量評価に直接関わってくる極めて重要な問題である。光合成による水素固定に経路による取り込みに差があるのか、重水を用いて検証するための実験系の構築と実験方法について検討を行った。

【実験】

植物は水耕栽培する。空気中水蒸気から重水を取り込ませた場合と、培養液から重水を取り込ませた場合について実験する。光合成における水利用の偏りは、植物及び取り込ませた水の重水素/水素 (D/H) 比を比べ評価する。重水を取り込ませる期間については短期と長期の栽培を実施する。

[短期取り込み] 日中に作られる光合成産物を回収して分析する。そのため、まず暗所で葉に蓄積されているデンプン等を消費させた後、光を照射し光合成を行わせる。葉の含有水は加熱して回収する。光合成産物の抽出は葉を液体窒素で粉碎し、80%エタノール中で加熱後、抽出物を活性炭で脱色し、濃縮乾固する。燃焼装置で燃焼してスクロース、グルコース、その他の糖類の水素を水としてコールドトラップに回収する。

[長期取り込み] 根と茎葉の間に仕切りのある栽培用チャンバーを使用し、苗から植物を生育させる。チャンバーの仕切りにより、重水は植物に大気と培養液経由を区別して取り込ませることができる。成長した葉から燃焼水を回収し、D/H 比を求めて利用の偏りを評価する。

重水素濃度はガスクロマトグラフを用いて求める。検量線と検量限界を検討し、植物に与える水の重水素濃度を決定した。また全ての実験において条件を可能な限り揃えるため、一定の温度、照度に制御された環境調節実験室で取り込みを行う。

Research on hydrogen availability of soil water and atmospheric water during photosynthesis by plants

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

【はじめに】日本海は大陸と 4 つの浅い海峡に囲まれた閉鎖系の強い太平洋の代表的な縁辺海である。この海域は環境変動に敏感であり外洋でみられる様々な地球規模での海洋現象が存在していることから、海洋研究に適した実験場となっている。また日本と密接に関係している日本海の物質循環に関する情報は、汚染物質が流入した際に対策を講じるためにも重要である。しかし、試料採取の困難さや循環の複雑さなどから日本海における詳細な表層・底層水の循環・形成機構は未だ不明な点が多い。本研究では近年の測定技術の進歩により新たに注目されている、グローバル・フォールアウト放射性核種 ^{236}U に着目した。最終的には ^{236}U を新たな海洋トレーサーとして位置づけ、日本海物質循環解明の一助とすることを目的として研究を行う。過去に海水中の ^{236}U を測定した事例は皆無であるため、ここではまず海水・浮遊懸濁物及び海底堆積物中の ^{236}U 濃度をそれぞれ測定し、 ^{236}U の海水中での分布・存在状態を把握する。また ^{236}U と同じくグローバルフォールアウト由来の人工放射性核種である ^{137}Cs と比較・検討を行い、 ^{236}U の海洋トレーサーとしての利用可能性を議論する。

【方法】海洋試料及び土壌試料採取地点を Fig. 1 に示す。海水・堆積物試料は 2010 年夏季に実施された白鳳丸研究航海(KH-10-2)において、土壌試料は 2009 年に国内の未攪乱地から採取した。各地点の数深度から採取した海水試料(各 20 L)は、それぞれ前処理を行った後、 ^{236}U は鉄共沈及び陰イオン交換樹脂を用いて化学分離・精製を行い、加速器質量分析計にて測定を行った。 ^{137}Cs はリンモリブデン酸アンモニウムを用いて化学分離・精製を行い、Ge 半導体検出器にて測定を行った。

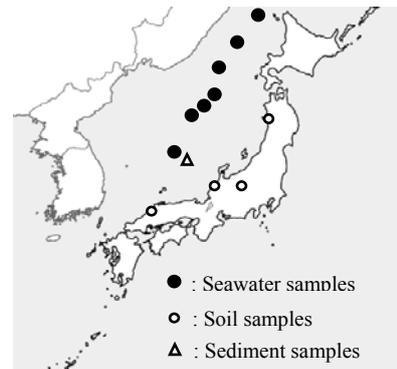


Fig. 1 : Location of sampling sites

【結果・考察】海水 ^{236}U 濃度は 20 L の海水から非常に精度よく測定することができた。また海水中、懸濁粒子中の ^{236}U も併せて比較した結果、 ^{236}U は溶存態として水相に存在しているという結果が得られた。また堆積物中では表層から 2 cm までの間に微量の ^{236}U が検出されたが水柱の値と比べて 1/1000 程度であった。これらの結果から大部分の ^{236}U が日本海において溶存態として海水中に存在しており、 ^{236}U の水塊トレーサーへの利用可能性が示唆された。また得られた海水中の ^{236}U 、 ^{137}Cs インベントリーをそれぞれ土壌中の値と比較したところ、共にほぼ等しい値であることがわかった。よって日本海における ^{236}U はグローバル・フォールアウトによってのみ供給されたものであるということが推測される。

海水中 ^{236}U 濃度の鉛直分布は、表層付近で濃度が最大となり、深度と共に減少していく傾向がみられた。この ^{236}U 鉛直濃度分布を ^{236}U と同じく溶存性の人工放射性核種である ^{137}Cs の鉛直濃度分布と比較したところ、両者は全体として同様な傾向を示したが、細部では深度によって異なる増減がみられた。これら起源を同じくする溶存放射性核種 ^{236}U と ^{137}Cs 鉛直濃度分布のわずかな差異などについては、現在考察中である。

Distribution of U-236 in the Japan Sea

SAKAGUCHI, A., KADOKURA, A., STEIER, P., SHIZUMA, K., TAKAHASHI, Y., YAMAMOTO, M.

南極氷床コア中の ^{36}Cl 測定による 11 ka 付近の宇宙線強度変動の研究(筑波大¹, 京都大², 産総研³, 弘前大⁴, 東京大⁵, 国立極地研⁶)○黒住和奈¹, 笹公和¹, 末木啓介¹, 高橋努¹, 松四雄騎², 木下哲一¹,
戸崎裕貴³, 堀内一穂⁴, 松崎浩之⁵, 本山秀明⁶

宇宙線が大気中を通過するとき、大気中に存在する N、O、Ar などの種々の原子と核反応することによって、 ^{14}C や ^{10}Be 、 ^{36}Cl などの宇宙線生成核種が生じる。 ^{36}Cl (半減期: 30.1 万年、主な生成過程: $^{40}\text{Ar}(p, n\alpha)^{36}\text{Cl}$) は大気上層で生成され、2 年程度で地表に降下する。宇宙線生成核種の生成率は宇宙線強度に依存しているため、過去の宇宙線生成核種の降下量を決定することで、宇宙線強度変動を復元することができる。

これまで、弘前大学のグループによる研究で、南極ドームふじ基地 (39°42'12" E, 77°19'01" S, 標高 3810 m) で掘削された氷床コア中の ^{10}Be の測定結果から 11 ka 付近において降下量の増大が確認された。本研究では、弘前大学のグループが ^{10}Be 測定をした氷床コアの切削片試料を用い、11 ka 付近の宇宙線生成核種 ^{36}Cl の測定を加速器質量分析 (AMS) により行った。この ^{36}Cl 測定は、筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門の 12UD Pelletron タンデム加速器に付設されている AMS システムを利用した。150 g 前後のサンプルには、各サンプルに応じた Cl キャリアを添加している。サンプルに硝酸銀を加えることにより、塩化銀 (AgCl) が約 2 mg 生成され、それを 120°C で乾燥させ、タンデム加速器に装填し測定する。

本実験により、11.21-11.37 ka の期間に、 ^{36}Cl の降下量(最大降下量: $3.0 \times 10^4 \text{ atoms cm}^{-2} \text{ yr}^{-1}$)の増大が確認された。 ^{36}Cl と同じ宇宙線生成核種である ^{10}Be や ^{14}C と比較することにより、11.21-11.37 ka 間の降下量の増大部分が一致することが確認できた。また、 $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ 比の平均が 10.2 であり、降下量の増大部分である 11.21-11.37 ka の間でも $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ 比が一定となっていることから、 ^{10}Be と ^{36}Cl は同じ変動をしていることがわかる。 ^{36}Cl の降下量の変動が ^{10}Be や ^{14}C の降下量の変動と一致したこと、 $^{10}\text{Be}/^{36}\text{Cl}$ 比が一定であることから、11.21-11.37 ka の期間の降下量の増大は宇宙線強度の変動が原因であると考えられる。

Study of cosmic-ray intensity fluctuations around 11 ka by ^{36}Cl measurements in the Antarctic ice core

KUROSUMI, K., SASA, K., SUEKI, K., TAKAHASHI, T., MATSUSHI, Y., KINOSHITA, N., TOSAKI, Y., HORIUCHI, K., MATSUZAKI, H., MOTOYAMA, H.

太平洋赤道域の海水柱中におけるプルトニウム同位体の時系列変化

(弘前大被ばく研¹, 放医研防護セ²) ○山田 正俊¹, 鄭 建²

【はじめに】

プルトニウム同位体は、主に大気圏核実験によるグローバルフォールアウトやビキニ水爆実験によるローカルフォールアウトにより、海洋にもたらされた。その後、数十年が経過しているが、未だ定常状態にはなく、海水中での鉛直分布やインベントリは時間とともに変化している。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、原子炉や核兵器のタイプ、核燃料の種類や燃焼時間などによって異なることが知られており、環境試料中の同位体比の測定から、その起源や輸送過程を推定するのに有効である。しかし、環境試料の分析は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度のみで、測定の困難さから海水の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の定量はほとんど行われていない。そこで、起源を推定するために、太平洋赤道域から採取した海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の鉛直分布を測定した。また、水深 1000m 以浅について、地球化学的大洋縦断研究計画 (GEOSECS) の際に得られた結果と比較を行い、インベントリの時系列変化量を求めた。さらに、日本海での時系列変化量と比較し、海洋における挙動を考察した。

【実験】

海水試料は、西部太平洋赤道域において、1 試料につき約 250 L を採取した。試料採取地点を図 1 に示す。プルトニウムは水酸化鉄で共沈後、陰イオン交換法等により分離・精製した。ステンレス板に電着し、アルファ線スペクトロメトリにより $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度を測定した。アルファ線測定後、ステンレス板から溶解し、分離・精製を行い、同位体希釈高分解能誘導結合プラズマ質量分析法 (ID-SF-ICP-MS; ELEMENT 2, Thermo Fisher Scientific) を用いて、 ^{239}Pu と ^{240}Pu を定量した^[1]。

【結果と考察】

太平洋赤道上 (AQ-7) における $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、表層で低く (1.8 mBq/m^3)、水深 600 m で極大となり (14.4 mBq/m^3)、その後ゆるやかに減少し、海底直上 (水深 5421 m) で 2.7 mBq/m^3 であった。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の鉛直分布から求めたビキニ水爆実験起源のプルトニウムの割合は、表層で 25% であり、深さとともに増加し、水深 3000 m では 55% となった。

水深 1000 m 以浅における $^{239+240}\text{Pu}$ のインベントリは、 $9.6 \pm 0.4 \text{ Bq/m}^2$ であり、GEOSECS (GX-246) との比較により、みかけの減少速度は $0.89 \pm 0.07 \text{ Bq/m}^2/\text{yr}$ となった。

【参考文献】

[1] M.Yamada and J. Zheng, *Sci. Total Environ.*, 408, 5951-5957 (2010)

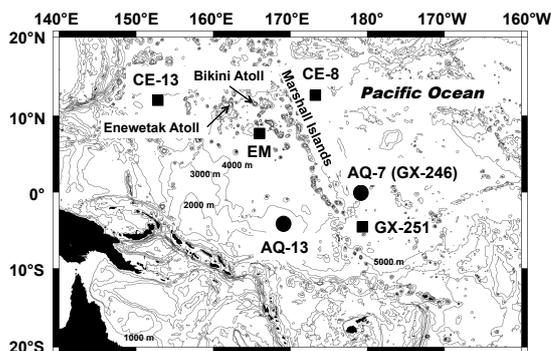


図 1. 西部太平洋赤道域における試料採取地点 (AQ-7, AQ-13)

【はじめに】

東京湾では夏季を中心に貧酸素水塊が発生し、湾全域で還元的な環境となっている。貧酸素水塊を発達させる要因として、海底から土砂を採取したことによって形成された浚渫窪地の存在が挙げられる。現在、窪地の埋め戻し工事が行われているが、窪地の貧酸素水塊への寄与度など明らかになっていないことが多い。その解明には浚渫工事前後の貧酸素水塊の様子を知ることが必要であると考えられる。底質中の Fe、Mn、S といった元素は海水の酸化還元電位に応じて化学状態が変化することから、酸化還元環境を評価する指標とされている。そこで、堆積物中の元素の化学状態から酸化還元環境を推定し、過去の貧酸素水塊について評価することを試みた。

【試料採取と分析方法】

サンプリングは 2009 年 9 月、2010 年 7 月、2011 年 2 月に東京湾奥部にある幕張沖浚渫窪地と窪地周辺の自然海底で行った。各地点で採取した底質コアを 3 cm ごとに分取し、放射化分析や X 線吸収微細構造(XAFS)法を用い、元素濃度や化学状態の分析を行った。

【結果と考察】

定量分析および X 線吸収端近傍構造(XANES)スペクトルから、堆積物中の S について 09 年と 10 年で比較を行ったところ、09 年は 10 年に比べほぼ全層で S^{2-} が卓越しており、還元的であった。このことは貧酸素状態の底層水がコアの下層まで浸透していることを示唆している。しかし、Fe、Mn の化学状態を XANES で比較すると全層を通じてスペクトルの形状に大きな差異がみられず、S とは水質に対して異なった挙動をとることが示された。また、堆積後の環境変化による Fe と Mn の化学種の変化をみるために底質試

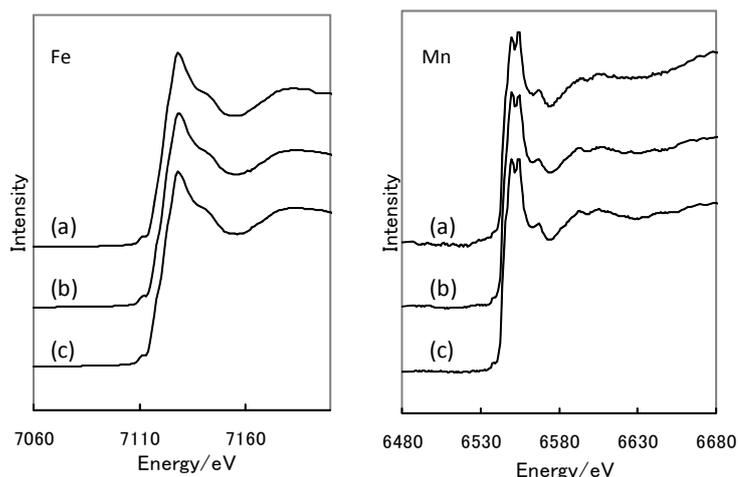


図 1. 酸化還元電位変化時の Mn、Fe の XANES スペクトル

(a) 10 年採取浚渫窪地の底質試料(深さ 15 cm、未処理)

(b) 酸化剤添加試料 (c) 還元剤添加試料

料に酸化剤(H_2O_2)と還元剤(Na_2S)を添加して酸化還元電位を変化させた試料についても測定を行った。酸化、還元した試料は処理を施していない試料とエッジの出現するエネルギーに差がなく、価数の変化がないことが示唆された(図 1)。我々は酸化還元電位を変化させることで Fe や Mn の化学状態が変化すると考え、実験を行った。しかし、結果から堆積後に酸化還元環境が変化しても化学状態が変化することはなく、Fe、Mn は沈降時の化学状態を保持していることが示された。口演では ^{57}Fe メスbauer 一分光法を用いてさらに詳細な化学種の分類を行い、その結果についても報告する。

Evaluation of hypoxia in Tokyo bay by chemical states of elements in the sediments

OKOSHI, T., SHOZUGAWA, K., MATSUO, M.

$^{248}\text{Cm} + ^{18}\text{O}$ 反応による Rf 同位体の励起関数の測定

(新潟大院自然¹, 新潟大機器分析セ², 理研仁科セ³, 東理大院理工⁴, 埼玉大院理工⁵, 東北大電子光セ⁶, 大阪大院理⁷, 原子力機構先端基礎研⁸, 新潟大理⁹) ○村上昌史¹, 後藤真一², 村山裕史¹, 小嶋貴幸¹, 加治大哉³, 森本幸司³, 羽場宏光³, 住田貴之^{3,4}, 酒井隆太郎^{3,5}, 工藤祐生³, 米田晃³, 森田浩介³, 菊永英寿⁶, 笠松良崇⁷, 佐藤哲也⁸, 工藤久昭⁹

【はじめに】104番元素 Rf の化学実験では比較的長寿命かつ α 放射体である ^{261}Rf ($T_{1/2} = 68$ s, $E_{\alpha} = 8.28$ MeV; ^{261a}Rf とする) が用いられる。 ^{261a}Rf が観測される核反応において、半減期が数秒の自発核分裂性核種も観測され、 ^{262}Rf ($T_{1/2} = 47$ ms) の核異性体と帰属されてきた[1]。一方で、より原子番号が大きい ^{277}Cn や ^{269}Hs の壊変鎖を観測した結果、壊変鎖中の ^{261}Rf が半減期数秒で自発核分裂した[2,3]ことから、直接合成により ^{261a}Rf とともに観測されるこの自発核分裂性核種は最近では ^{261a}Rf の核異性体 ^{261b}Rf であるとされてきている[4,5]。しかし、この帰属は未知核種であった ^{277}Cn の壊変鎖中の核種ということからなされており、 ^{261b}Rf が ^{262}Rf の核異性体ではなくその質量数が 261 であるということは現在までに確かめられているわけではない。本研究ではこの点について明らかにすることを目的として、 $^{248}\text{Cm} + ^{18}\text{O}$ 反応で観測される Rf 同位体の励起関数を測定した。

【実験】実験は理化学研究所の重イオン線形加速器(RILAC)と気体充填型反跳分離装置(GARIS)を用いて行った。RILAC から供給される平均強度 $6.1 \mu\text{A}$ の ^{18}O ビームを $230 \mu\text{g cm}^{-1}$ の $^{248}\text{Cm}_2\text{O}_3$ 回転式標的に照射した。ビームエネルギーは標的厚中点において 88.2, 90.2, 94.8, 101.3 MeV とした。生成核を GARIS(He 圧力 33 Pa, 磁気剛性 1.73 T m)によってビームや副生成物から分離し、GARIS 焦点面に設置した位置感応型検出器(PSD)および側面検出器(SSD)によりその壊変を観測した。周期的にビーム ON とビーム OFF を切り替え、ビーム ON 期間中に成長した放射能の減衰をビーム OFF 期間中に測定した。半減期数秒の自発核分裂と ^{262}Rf を区別する目的で、ビーム ON/OFF の間隔は 6 s/6 s および 0.1 s/0.1 s とした。

【結果】生成核の壊変に伴って放出される α 線を測定した結果、バックグラウンドが低い状態で ^{261a}Rf とその娘核である ^{257}No ($T_{1/2} = 25$ s, $E_{\alpha} = 8.22, 8.32$ MeV)や、 ^{261b}Rf の 8.51 MeV の α 壊変事象が観測できた。得られた $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)^{261a}\text{Rf}$ 反応の励起関数はこれまでに報告されている実験値と一致した。ビームエネルギー 94.8 MeV、ビーム ON/OFF が 6 s/6 s の測定において、 ^{261b}Rf の減衰が観測され、ビームエネルギー 88.2 MeV、ビーム ON/OFF が 0.1 s/0.1 s の測定において ^{262}Rf の減衰が観測された。詳細は発表にて述べるが、これらの核種の励起関数は互いに異なっており、 ^{261b}Rf の励起関数は ^{261a}Rf によく一致することが分かった。これらの結果から、 ^{261b}Rf は ^{262}Rf ではなく ^{261a}Rf の核異性体であることが推定できた。

【参考文献】

[1] M. R. Lane *et al.*, Phys. Rev. C **53**, 2893 (1996). [2] S. Hofmann *et al.*, Eur. Phys. J. A **14**, 147 (2002). [3] J. Dvorak *et al.*, Phys. Rev. Lett. **100**, 132503 (2008). [4] A. Gorshkov *et al.*, GSI Sci. Rep. 2008, p. 140. [5] H. Haba *et al.*, Phys. Rev. C **83**, 034602 (2011).

Measurement of excitation functions of rutherfordium isotopes in $^{248}\text{Cm} + ^{18}\text{O}$ reaction

MURAKAMI, M., GOTO, S., MURAYAMA, H., KOJIMA, T., KAJI, D., MORIMOTO, K., HABA, H., SUMITA, T., SAKAI, R., KUDOU, Y., YONEDA, A., MORITA, K., KIKUNAGA, H., KASAMATSU, Y., SATO, T. K., KUDO, H.

アクチノイドターゲット重イオン融合核分裂における 核分裂片角度異方性 II

(原子力機構先端基礎セ¹, 東大理², 金沢大理工³) ○西中一朗¹, 西尾勝久¹, 谷川勝至², 牧井宏之¹, 若林泰生¹, 光岡真一¹, 横山明彦³

重い原子核のポテンシャルエネルギーは、質量非対称性への変形に対して大きく変化する。そのためアクチノイドターゲット重イオン核融合核分裂において、標的核 A_t と入射核 A_p の質量非対称性 $\alpha=(A_t-A_p)/(A_t+A_p)$ は反応機構の重要な因子であると考えられている。そこで本研究では、同じ複合核 ^{254}Fm を生成する 3 つの反応系 $^{12}\text{C}+^{242}\text{Pu}$ ($\alpha=0.906$), $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ ($\alpha=0.874$), $^{22}\text{Ne}+^{232}\text{Th}$ ($\alpha=0.827$) において同じ励起エネルギーでの核分裂片角度分布を測定し、核分裂片角度異方性に対する質量非対称性の効果について調べた。昨年、報告した $^{12}\text{C}+^{242}\text{Pu}$, $^{22}\text{Ne}+^{232}\text{Th}$ 反応[1]に加えて、あらたに $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ 反応での核分裂片角度分布を測定した。

原子力機構タンデム加速器施設 R2 コースに設置した真空散乱槽を用いて 85.0-110.8 MeV ^{16}O ビームを厚さ $174\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の ^{238}U 標的に照射し、生成する核分裂片を実験室系 $25^\circ - 67^\circ$, $73^\circ - 105^\circ$, $205^\circ - 247^\circ$ に配置した $20 \times 8\text{cm}^2$ の有感面積をもつ 3 台の位置検知型ガス検出器と 176° に設置した Si 半導体検出で測定した。

核分裂片の微分断面積は、重心系角度 $\theta = 90^\circ$ に極小値をもつ角度分布 (図 1) であり、それぞれのエネルギーについて、 $\theta = 180^\circ$ と 90° の微分断面積の比として定義される角度異方性 $A = W(180^\circ) / W(90^\circ)$ を求めた。 $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ 反応 (●) での角度異方性の励起エネルギー変化を、昨年報告した $^{12}\text{C}+^{242}\text{Pu}$ (□), $^{22}\text{Ne}+^{232}\text{Th}$ (○) とともに図 2 に示した。 $^{22}\text{Ne}+^{232}\text{Th}$ ($\alpha=0.827$) の角度異方性が他の反応系に比べて大きく異なる。このことから質量非対称性 $\alpha=0.827$ 近傍が臨界領域であることが示唆される。液滴模型計算から予測される質量非対称性臨界点 α_{BG} は、核分裂障壁のポテンシャルエネルギーでは $\alpha_{\text{BG}}=0.903$ 、一方、2 つの原子核が接した形状のポテンシャルエネルギーでは、 $\alpha_{\text{BG}}=0.813$ である。後者が実験に近い値であり、質量非対称性臨界点の観点から、2 つの原子核が接した形状のポテンシャルエネルギーが $^{22}\text{Ne}+^{232}\text{Th}$ ($\alpha=0.827$) の大きな角度異方性の反応機構に強く関与していると考えられる。

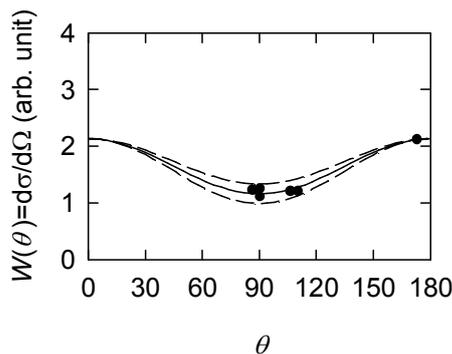


図 1 100.8 MeV $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$ 反応の核分裂片角度分布 $W(\theta)$

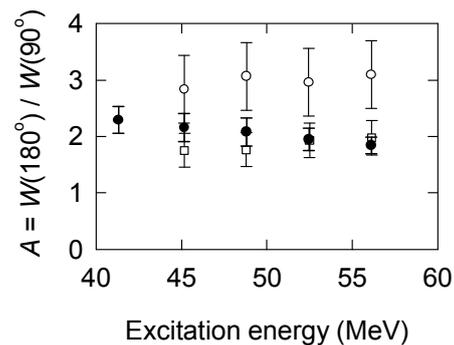


図 2 角度異方性の励起エネルギー変化 : ●, $^{16}\text{O}+^{238}\text{U}$, □, $^{12}\text{C}+^{242}\text{Pu}$, ○, $^{22}\text{Ne}+^{232}\text{Th}$

参考文献

[1] 西中一朗 他, 第 54 回放射化学討論会 研究発表要旨集 1A02 (2010).

Fission fragment anisotropy in heavy-ion-induced fission of actinides II

NISHINAKA, I., NISHIO, K., TANIKAWA, M., MAKII, H., WAKABAYASHI, Y., MITSUOKA, S., YOKOYAMA, A

【はじめに】 金属内包フラーレン(EMF)は、トルエンなどの有機溶媒に可溶であるが、一般的には水に対して不溶性である。しかしながら、炭素ケージ表面に化学修飾を施すことでEMFを水溶性にすることができ、水溶性EMFはドラッグデリバリーとしての応用が可能である。実際、 $Gd_3N@C_{80}[DiPEG5000(OH)_x]^{1)}$ は、内包された Gd_3N クラスターの性質を利用して高感度なMRI造影剤としての応用が期待されている。水溶性EMFの中でも、カルボキシEMF²⁾は、罹患部に特有のタンパク質と共役するペプチドを結合させることで、生体内の目的部位へ特異的に集積させることが可能であると考えられる。²⁵Acは、線エネルギー付与が高い α 線を放出する壊変系列を作り、その娘核種の半減期を短いことからEMFの核医学応用において有用な核種の一つである。我々は、この²⁵Acを内包したEMFの幾つかの性質を報告してきた³⁾。しかし、AcEMFは生成量が極微量なため、化合物の反応性などを分光学的手段により明らかにすることは不可能である。そこで、本研究では、²⁵Acを内包したカルボキシEMFの核医学応用を目指し、AcEMFと化学的性質が似ているLaを内包したLaEMFを用いて、極微量でも高感度で検出することが可能である放射性トレーサー法(¹⁴⁰La)により化学収量や溶離挙動の観察をおこなった。また、他の分光学的手段により生成したカルボキシEMFの性質を調べた。

【実験】 アーク放電法により生成したLa@C₈₂を含むフラーレン粗抽出物を日本原子力研究開発機構 JRR-4にて熱中性子照射をおこなった。照射した試料からAlCl₃を用いてEMF成分を分離し⁴⁾、*o*-ジクロロベンゼンに溶解した。この溶液にコハク酸ペルオキシド(SAP)を加え、Arガスフロー中で48時間加熱攪拌し、エチレンカルボキシル基の付加をおこなった。このカルボキシ付加体を0.2 M NaOH水溶液を用いて有機相から抽出し、Sephadex G-25サイズ排除ゲル濾過クロマトグラフィーによって溶出成分を2分毎に分画し、30分以降はまとめて分取した。抽出前後の溶液及び分画した各溶出成分から放出された γ 線をGe半導体検出器によって測定した。また、各分画についてはそれぞれpHの確認とUV/vis吸収スペクトルの測定をおこなった。

【結果及び考察】 抽出前後の放射能比から、水相中におけるEMF誘導体の収率は6割程度であることがわかった。図1は γ 線測定から得られたSephadexカラムにおけるLaカルボキシEMFの溶離曲線及び各分画のpHを示している。¹⁴⁰La由来の放射能は12~18分に大部分が計測され、溶出成分は淡黄褐色であったことからEMFの存在を示唆している。また、30分以降の溶出成分中にも若干の放射能が確認された。この溶出成分はpHの急激な上昇からNa⁺やOH⁻等のイオンを含むと考えられ、ここで確認された放射能は、反応によって炭素ケージから放出されたLa³⁺イオンに由来すると考えられる。

1) P. Fatouros et al., *Radiology*, **240**, 756-764 (2006).

2) M. D. Shultz et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **132**, 4980-4981 (2010).

3) K. Akiyama et al., *Chem. Lett.*, **38**, 978-979 (2009).

4) 濱野達行, 他, 第54回放射化学討論会 研究発表要旨集 1P16 (2010)

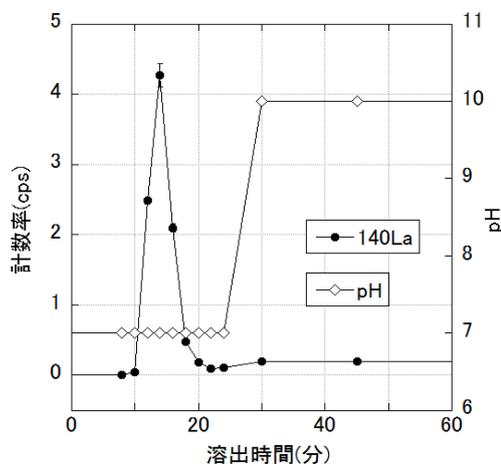


図1. 水相の溶離曲線とpH変化

Radiochemical Approach for Synthesis of Carboxy Metallofullerenes

TAKEUCHI, E., HAMANO, T., AKIYAMA, K., KUBUKI, S.

【研究背景】

金属フラーレンの抽出方法として、これまでに酸化還元反応を利用した様々な方法が提案されてきた。Stevenson らは、金属窒化物内包フラーレンや金属酸化物内包フラーレンに AlCl_3 などのルイス酸を加えることでこれらの金属フラーレンを容易に分離できると報告をしている¹⁾。我々は前回の討論会において、 AlCl_3 を用いた金属フラーレンの分離手段が La@C_{82} 等の金属フラーレンにも適用可能である事を示した。しかし、本手法による分離は La@C_{82} の収率が最大 50 %程度であり、残りは有機溶媒に不溶性成分となってしまう問題点があった。本研究ではこの問題を克服し、さらに効率の良いルイス酸と反応溶液の組み合わせを探索し、ルイス酸による金属フラーレン分離の効率化を目指した。

【実験操作】

アーク放電法によって合成した金属フラーレン抽出物を日本原子力研究開発機構 JRR-4 において熱中性子照射により放射化を行った。放射化した La@C_{82} を含むフラーレンを有機溶媒に溶解し、粗フラーレン抽出物にトレーサーとして加えた。この溶液にルイス酸を加え攪拌し、 La@C_{82} を含む残渣を得た。これをメンブレンフィルターを用いてろ過し、残渣とろ液(溶液 U)とに分離した。残渣に含まれているルイス酸を取り除くためフィルターを蒸留水及びアセトンで洗浄し、フィルター上に残った残渣を CS_2 に再溶解(溶液 R)した。このルイス酸と有機溶媒の組み合わせ、用いたルイス酸の量・反応時間を Fig.1 に示した。それぞれのバッチにおける La@C_{82} の収率は、反応前の La@C_{82} 量と、反応後の各溶液及び残渣における ^{140}La の放射エネルギーまたは高速液体クロマトグラフィー(HPLC)の溶出ピーク強度から算出した La@C_{82} 量を比較することにより決定した。

【結果・考察】

Fig.1 はルイス酸、有機溶媒、反応時間の組み合わせを変化させた、それぞれの実験条件における La@C_{82} の収率を示したものである。図中、溶液 R (recovered)、溶液 U (unreacted)、および不溶性成分(insoluble)の La@C_{82} 収量をそれぞれ黒色、灰色、白色と色分けした。この結果から今回行った実験条件では、ルイス酸として TiCl_4 、溶媒に CS_2 を用いた系で、 La@C_{82} がほぼ 100%の収率で得られており、短時間かつ定量的に La@C_{82} の回収できる事が分かった。

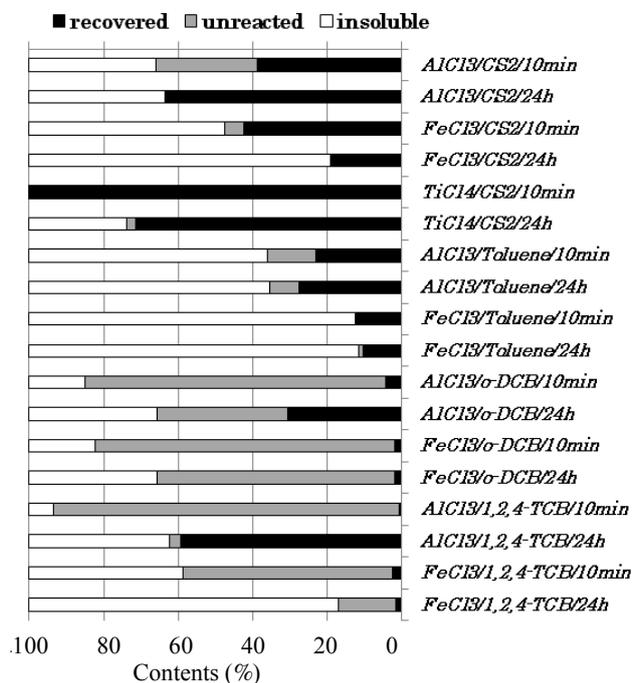


Fig.1 Contents% of La observed in each treated step of EMFs separation: labels on the ordinate axis indicate Lewis acid/solvent/ reaction time.

1)S. Stevenson, M. A. Mackey et al., Inorg. Chem., 48, 11685 (2009)

多重即発ガンマ線分析法による NMIJ CRM 8133a (PP 樹脂) 中 Cd, Hg の定量性能の評価

(産総研計測標準¹, 原子力機構²) ○三浦勉¹, 藤暢輔², 古高和禎², 木村敦², 小泉光生², 大島真澄², 原かおる², 金政浩², 中村詔司², 原田秀郎²

【はじめに】日本原子力研究開発機構 JRR-3 冷中性子ビームラインに設置された多重即発ガンマ線分析 (MPGA; Multiple Prompt Gamma Ray Analysis) 装置を用いて産業技術総合研究所重金属分析用ポリプロピレン樹脂ペレット (Cd, Cr, Hg, Pb; 高濃度) 認証標準物質 NMIJ CRM 8133a 中の Cd (94.26 mg/kg \pm 1.39 mg/kg)、Hg (941.5 mg/kg \pm 19.6 mg/kg) と欧州 IRMM BCR681 ポリエチレン樹脂認証標準物質 (Cd; 21.7 mg/kg \pm 0.7 mg/kg, Hg; 4.50 mg/kg \pm 0.15 mg/kg) を測定した。得られた結果から MPGA 測定の繰返し性と Cd、Hg 量と信号強度 (計数率) 間の直線性を検証した。本発表では MPGA によるプラスチック中の Cd、Hg 測定の再現性、定量性の評価について報告する。

【実験】NMIJ CRM 8133a (50-100 mg; 5 bottle \times 2=10 試料)及び BCR 681 (50-100 mg; 3 試料)を FEP 試料袋に入れ、PTFE 製試料枠で固定、自動試料交換装置にセットした。空气中窒素から生成する即発ガンマ線のバックグラウンドを低減させるため、CO₂を毎分 3.5 L 流しながら、冷中性子ビームを 4000 秒間照射した。試料から放出される即発ガンマ線を γ - γ 同時測定モードで MPGA 装置により複数回自動測定した。得られた多重ガンマ線測定データを Sort MPGA を用いてソーティングし二次元マトリックスを得た。得られたデータは主に二次元マトリックスを用いて評価した。MPGA 装置を構成する Ge 半導体検出器の不感時間は MPGA 装置内に設置した ¹³¹Ba 校正線源を用いて補正した。

【結果と考察】

- (1) 多重即発ガンマ線データのソーティングに用いた Sort MPGA では Anti-coincidence モードと Addback モードがあるが、2 法で得られたデータを比較した結果、Anti-coincidence モードのほうが、より少ない計数誤差が得られたので Anti-coincidence モードで全てのデータをソーティングした。
- (2) 今回行った 4000 秒測定では Cd の ¹¹³Cd(558.4 keV-651.26keV)ピークは NMIJ CRM 8133a (Cd: 5-10 μ g)、BCR 681(Cd: 約 2 μ g)の双方で確認できた。しかし Hg は最も高感度な ¹⁹⁹Hg(368.0 keV-1693.3 keV)においても BCR 681 ではピークが確認できなかった。4000 秒程度の MPGA 測定では約 0.5 μ g の微量の Hg 検出が困難であることがわかった。
- (3) NMIJ CRM 8133a (n=10) のデータを用いて Cd、Hg 量と信号強度 (計数率) 間の直線性を検証した。計数率は ¹³¹Ba 計数率で基準化した。その結果、Cd; 0-10 μ g と ¹¹³Cd(558.4 keV-651.26keV)ピーク強度の関係は Cd 量が高くなるに従い、傾きが減少する傾向が見られ、一次式より二次式のほうが最小二乗法によるあてはめが良好であった。この傾向は実際の定量では定量範囲に近い狭い範囲で検量線を作成したほうが望ましいことを意味する。この結果を踏まえ、NMIJ CRM 8133a で検量線を作成して、BCR 681 中の Cd を定量した。定量値は Cd; 21.0 mg/kg \pm 1.2 mg/kg (RSD: 5.7 %) であり、認証値 (21.7 mg/kg \pm 0.7 mg/kg) と一致した値が得られた。

The evaluation of Analytical Capability of Cd and Hg in NMIJ CRM 8133a by Multiple Prompt Gamma Ray Analysis

Miura Tsutomu, Toh Yosuke, Furutaka Kazuyoshi, Kimura Atsushi, Koizumi Mitsuo, Oshima Masumi, Hara Kaoru, Kin Tadahiro, Nakamura Shoji, Harada Hideo

(ICU¹, JAEA², 高エ研³, 歴博⁴) ○久保 謙哉¹, 長友 傑¹, 鈴木 栄男¹,
二宮 和彦², 髭本 亘², 坂元 眞一², 河村 成肇³,
ストラッサー パトリック³, 下村 浩一郎³, 三宅 康博³, 齋藤 努⁴

はじめに 電子の約 200 倍の質量を持つ負ミュオンは、原子に捕獲されるとミュオン原子を形成する。ミュオン原子中で負ミュオンが捕獲初期の高励起状態から基底状態へ遷移するのに伴って負ミュオン X 線が放出される。負ミュオン X 線のエネルギーは、電子 X 線と同様に捕獲した原子と遷移に特有である。また対応する電子 X 線のエネルギーの約 200 倍であり物質による減衰はそれに応じて小さい。物体中に負ミュオンを停止させ、物体外部から負ミュオン X 線を測定する事が可能であり、物体内部に存在する元素を非破壊的に同時に分析することができる。負ミュオン特性 X 線測定による分析は、大型物体や貴重資料の非破壊元素分析への応用が期待されるが、これまでは、おそらく実用的な強度の負ミュオンビームが得られなかったために、適用例は非常に少ない。

2009 年から供用を開始した J-PARC ミュオン施設では、3 GeV というこれまでのミュオン施設に比して高エネルギーの陽子を一次ビームとして用いるため、負ミュオンの強度が高い。我々は負ミュオン X 線元素分析法開発の手始めとして、J-PARC ミュオン実験施設で江戸末期天保小判の非破壊元素分析を行なった。江戸時代の小判は、金と銀の合金でできているが、「色あげ」と呼ばれる化学的手法によって表面の銀が選択的に取り除かれており、表面の金の濃度は内部より高いことがすでに知られている。

実験 J-PARC ミュオン実験施設 D2 ポートに Ge 半導体検出器を設置し、運動量 15 MeV/c の負ミュオンを小判の表面から深さ約 20 μm 付近に停止させて、負ミュオン X 線を測定した。データはミュオンビームパルスと同期させて収集し、バックグラウンドの低減を図った。また負ミュオンの運動量を 6.4 MeV/c と低くし、負ミュオンを小判の表面から 1.5 μm の深さに停止させて分析を行った。低エネルギーの負ミュオンを試料に有効に照射するために、試料は真空容器の中に保持した。

結果と考察 図に深さ約 20 μm の位置にミュオンを停止させたときのミュオン X 線スペクトルを示す。金と銀の負ミュオン X 線ピークが観測されており、小判の主成分が金と銀であることがわかる。スペクトルの解析により、この部分での金の含有量は 54%であったが、表面 1.5 μm では 72%であり、深さ方向に金の含有量が異なることを非破壊分析で明らかにすることができた。

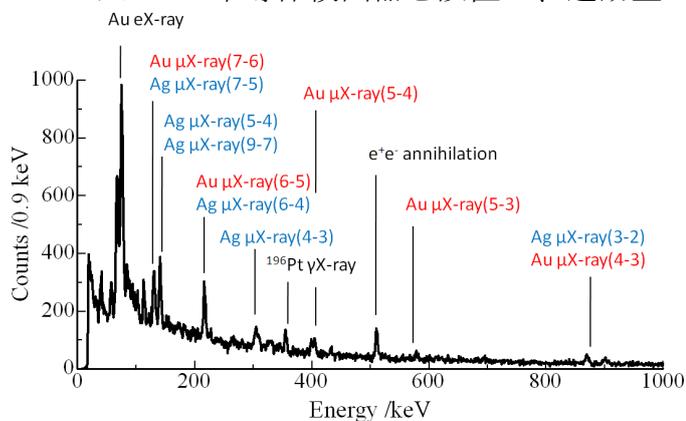


Fig. Muonic X-ray spectrum of a Japanese gold coin at 20 μm depth.

Non-destructive and Multi-elemental Analysis of Bulk Materials by Muonic X-ray

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

原子力機構タンデム加速器施設での Li イオンビームを用いた 有用放射性同位元素 At の製造、利用に関する核・放射化学研究

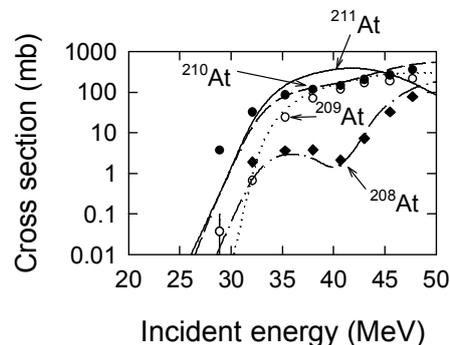
(原子力機構先端研究セ¹, 金沢大理工², 金沢大医薬保健³, 金沢大院自然⁴, 金沢大理⁵, 原子力機構量子ビーム応用⁶) ○西中一朝¹, 横山明彦², 鷺山幸信³, 天野良平³, 山田記大⁴, 石黒梨花⁵, 牧井宏之¹, 橋本和幸⁶

核医学利用の観点から α 放射性同位体 ^{211}At の有用性が期待されている。加速器で合成される ^{211}At は、通常、約 30 MeV の He イオンビームを用いた $^{209}\text{Bi}(^4\text{He}, 2n)^{211}\text{At}$ 反応で製造されているが、 $^6, ^7\text{Li} + \text{Pb, Bi}$ 反応など、Li イオンビームを用いた反応も新しい製造手段として期待される。そこで本研究グループでは、原研タンデム加速器施設において Li ビームを用いた ^{211}At の製造、利用に関する核・放射化学研究を開始した。本講演では、加速器実験で行った研究、「 $^7\text{Li} + ^{\text{nat}}\text{Pb}$ 反応で生成する At 同位体の励起関数測定」と「乾式化学分離での無担体アスタチンの化学挙動」について報告する。

$^{\text{nat}}\text{Pb}$ 標的 (厚さ 0.78-0.97 mg/cm^2) は、5.4 mg/cm^2 厚のアルミ箔上に真空蒸着法で作製した。 $^{\text{nat}}\text{Pb}$ 薄膜面をもう一枚のアルミ箔 (5.4 mg/cm^2 厚) で覆い、照射試料とした。原子力機構タンデム加速器施設において 50 MeV の $^7\text{Li}^{3+}$ ビームを 120-150 nA の強度で約 2 時間、5~6 組重ねた照射試料に照射した。2 回の照射で、それぞれのターゲット位置での入射エネルギーが 17-48 MeV の範囲で異なる値なるように調整し、11 個の測定試料を作製した。照射終了後、試料中に生成した放射性物質の放射能を Ge 半導体検出器で測定した。 γ 線光電ピークのエネルギー、時間変化から核種同定を行い、その強度から反応断面積を求めた。

$^7\text{Li} + ^{\text{nat}}\text{Pb}$ (^{204}Pb 1.4%, ^{206}Pb 24.1%, ^{207}Pb 22.1%, ^{208}Pb 52.4%) 反応で生成した At 同位体の反応断面積 (● ^{210}At , ○ ^{209}At , ◆ ^{208}At) を図に示した。曲線は統計模型計算コード HIVAP[1]による計算値である。統計模型計算では、類似した様々な重イオン融合反応における蒸発残留核の反応断面積を系統的に再現するように決めた計算パラメータを用いた。実験データに合わせるために計算パラメータを微調整することなく、独立に計算した値が、実験値をよく再現した。 ^{208}At の励起関数にある 35 MeV 近傍の凸構造は、 $^{204}\text{Pb}(^7\text{Li}, 3n)^{208}\text{At}$ 反応に由来する。統計模型計算の予測では、 ^{211}At の断面積が 45 MeV 以下のエネルギー領域で他の同位体の断面積より大きい。しかし短半減期の同位体 (^{210}At 8.1 h, ^{209}At 5.4 h, ^{208}At 1.6 h) から放出される大きい放出確率 I_γ の γ 線が数多く観測されたため、 ^{211}At の 687 keV ($I_\gamma = 0.26\%$) 光電ピークは観測できず、 γ 線スペクトロメトリーでは実験データを得ることができなかった。

無担体アスタチンの化学挙動を調べるため、励起関数測定で使用した試料を用いて乾式化学分離実験を行った。詳細は講演で報告する。



参考文献

[1] W. Reisdorf and M. Schadel, Z. Phys. A 343 (1992) 47. 図 $^7\text{Li} + ^{\text{nat}}\text{Pb}$ 反応における At の励起関数

Nuclear and radiochemical study of production and utilization of radioactive astatine isotopes using lithium ion beams at the tandem accelerator of JAEA-Tokai
NISHINAKA, I., YOKOYAMA, A., WASHIYAMA, K., AMANO, R., YAMADA, N., ISHIGURO, R., MAKII, H., HASHIMOTO, K.

新規 R-BTP 吸着剤を用いた簡素化 MA 分離プロセス確立への挑戦-2

(東北大 CYRIC¹, 産総研東北セ²) ○臼田 重和¹, 倉岡 悦周¹, 李 崢¹,
徐 源来¹, 劉 瑞芹¹, 金 聖潤¹, 和久井 喜人², 林 拓道², 山崎 浩道¹

【はじめに】高レベル放射性廃液(HLLW)中の希土類(RE)を含む核分裂生成物(FP)から三価マイナーアクチノイド(MA(III): 主に Am, Cm)のみを直接回収する目的で、単一カラムの抽出クロマトグラフィによる簡素化 MA 分離プロセス(Fig.1 参照)の構築に挑戦している¹⁾。抽出剤として、MA に対し高い選択性を有する R-BTP (2,6-bis(5,6-dialkyl-1,2,4-triazin-3-yl)pyridine, R: アルキル基)を中心とする含窒素芳香族化合物に注目した。これは R の構造により、吸着性と安定性が変化するので、分子設計上適当と思われる R-BTP 抽出剤を合成し、これを多孔性シリカ/ポリマー複合単体(SiO₂-P)に含浸担持させて新規吸着剤を調製した。本発表では合成した吸着剤の吸着及び脱着性能、並びに耐硝酸性、耐放射線性などの安定性を比較するとともに、模擬 HLLW からの Am の分離性能を評価した。

【実験】抽出剤として、*isohexyl*-BTP, *isoheptyl*-BTP, *Cyheptyl*-BTP 及び *Tolyl*-BTP を調製し、これを粒径約 60 μm の SiO₂-P に担持させて吸着剤を合成した。バッチ法により、硝酸溶液における Am 及び主な FP の吸着性能及び純水による脱着性能を調べた。吸着剤の安定性は、全有機炭素分析により吸着剤からの抽出剤の分解溶出量で評価した。さらに、硝酸溶液(0.01-3 M)と一定期間(1-4 ヶ月)接触させた状態で、低い線量率(約 40 Gy/h)で γ 線を照射し、吸着性能の変化などを調べた。Am の分離性能は、約 4-5 g の吸着剤を充填した φ10 mm×h120 mm のカラムを用いて評価した。

【結果と考察】バッチ試験では、Amは*Tolyl*-BTPを除く吸着剤に対し2-3 M硝酸で高い吸着性を示し、REとの分離係数は100程度以上であった。しかし、いずれも吸着/脱着速度が遅いこと、また酸濃度/温度上昇やγ線照射に伴う吸着剤の劣化が観察されたことが課題である。最も優れた性能を示した*isohexyl*-BTP吸着剤を用いて、25 及び50 °Cにおけるカラム試験を実施したところ、簡素化MA分離プロセスは、試料供給及びFP洗浄部分を25 °Cに、MA溶離部分を50 °Cに温度を制御すれば成立すると評価した。その結果をFig.2に示す。AmはCs、Sr、軽REなどから分離・回収できる。中重REとの分離は、洗浄液を十分流すことにより可能になる。高放射線の主要因となる¹³⁷Csや⁹⁰Srが25 °Cにおける3 M 硝酸で洗浄・除去できるため、吸着剤劣化の緩和が期待される。抽出剤の溶出は、全量を積算しても0.05 %程度以下であった。

本研究の一部は、文部科学省原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブにより実施された「新規 R-BTP 吸着剤による簡素化 MA 分離プロセスの開発」の成果である。

1) 臼田他, 第 54 回放射化学討論会(平成 22 年 9 月 27-29 日, 阪大) 研究発表要旨集, p.128.

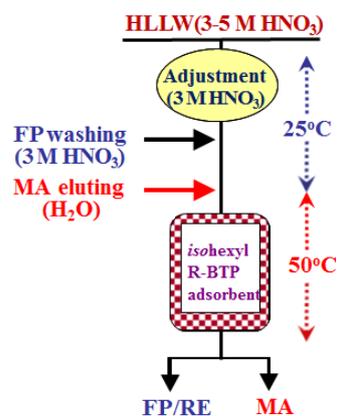


Fig.1 Simplified separation process of MA(III) by temperature control (FP: Cs, Sr, RE, Zr, Mo, etc., RE: Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu etc., MA: Am, Cm)

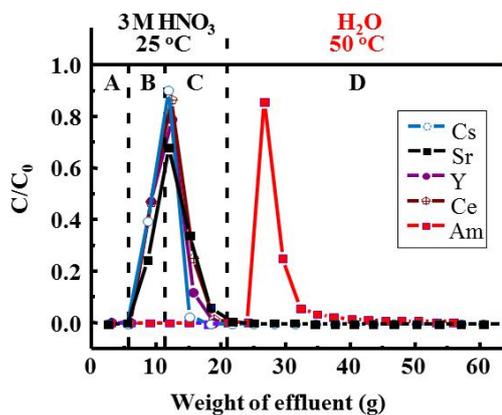


Fig.2 Estimated elution curves of Am and some FP (C_0 : initial concentration, C : concentration in effluent, A: dead volume, B: feed soln., C: washing soln., D: eluting soln., flow rate: 0.25[A-C] and 0.5 mL/min[D])

【緒言】 化学的挙動の類似した 3 価のアクチノイド(Am, Cm など)とランタノイドイオンの分離に対し、軟らかい元素である窒素や硫黄が配位する抽出剤(ソフトドナー)を用いた溶媒抽出が有効であることが示されてきた。また硫黄が配位するジチオリン酸やジチオカーバメイトなどを用いた溶媒抽出において、Am と Cm の分離係数($SF = D_{Am}/D_{Cm}$)がジチオリン酸を用いた場合は 30、ジチオカーバメイトでは 5 とソフトドナーを用いることで 3 価のアクチノイド間の相互分離が可能であることが示されてきた。そこでこれまで報告例の少ない軟らかい元素であるリンにより配位する抽出剤を用いることで 3 価ランタノイドとアクチノイドの分離および 3 価アクチノイド間の相互分離が可能であると考え、リンにより配位すると考えられるリン系抽出剤を用いた 3 価ランタノイドとアクチノイドイオンの溶媒抽出を行い、その抽出能と分離能を調べた。

【実験】 リン系抽出剤として単座の配位子として Triphenylphosphine (TPP)を、2 座のキレート配位子として Bis(diphenylphosphino)methane (DPPM)、Bis(diphenylphosphino)ethane(DPPE)、Bis(diphenylphosphino)propane(DPPP)を用いた。(図 1) それぞれの抽出剤をさまざまな濃度で 1,2-ジクロロエタンに溶解した溶液を有機相とし、水相として 0.1 mol dm^{-3} の NaClO_4 水溶液に 0.01 mol dm^{-3} の酢酸緩衝溶液を加え pH を調整したものをを用いた。アクチノイドとして ^{241}Am 、 ^{244}Cm を、ランタノイドとして Eu を用い、297 K にて溶媒抽出を行い分配比(D)と分離係数(SF)を調べた。

【結果】 図 2 に各抽出濃度に対し pH=4 における分配比をプロットした結果を示す。同一条件で比較した場合、分配比は $\text{DPPM} > \text{DPPE} > \text{TPP}$ の順に高くなり、キレート配位子の方がより安定な錯体を形成し、4 員環キレートが最も安定であることが分かった。また Am と Eu の分離係数(D_{Am}/D_{Eu})は DPPM で 80、DPPE で 40、TPP で 7 となりキレート配位子においてアクチノイドとランタノイドの分離が可能であることが示された。また用いた全ての抽出剤において Am と Cm の分離係数は 1~2 程度でありアクチノイドの相互分離には適していないことが分かった。

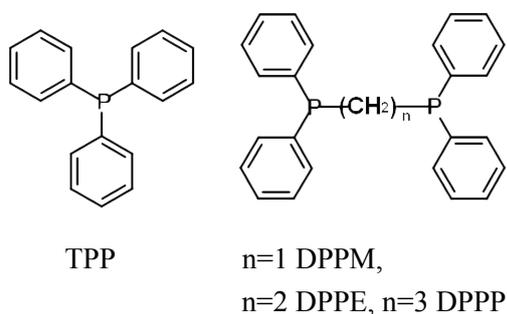


図 1 リン系抽出剤の構造

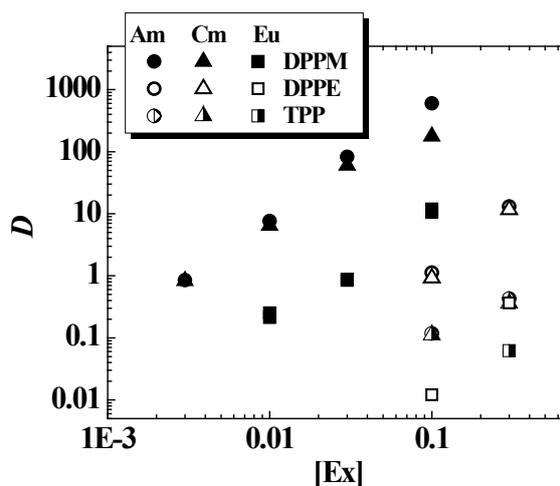


図 2 抽出剤濃度([Ex])に対する分配比

【はじめに】我々は以前、様々な置換基をもつ salophen 型配位子 2つがウラン(IV)をサンドイッチした構造をもつ錯体を合成した。さらに、それらの錯体のサイクリックボルタンメトリーでは、ウラン(V/IV)酸化還元電位が、 $-0.4 - 0 \text{ V vs. Fc}^+/\text{Fc}$ に可逆な波として観測され、置換基の種類によって系統的に変化することを明らかにした。この結果から、salophen がサンドイッチしたウラン錯体は酸化還元に対して安定性が高く、安定なウラン(V)錯体が得られると期待される。今回、置換基として phenylene 環に 2つのメチル基をもつ salomphen (N,N'-4,5-dimethyl-1,2-phenylenebis(2-hydroxybenzylidenimine)) が配位したウラン(IV)錯体、 $[\text{U}(\text{salomphen})_2]$ を 1 電子酸化したウラン(V)錯体、 $[\text{U}(\text{salomphen})_2]^+$ を合成した。

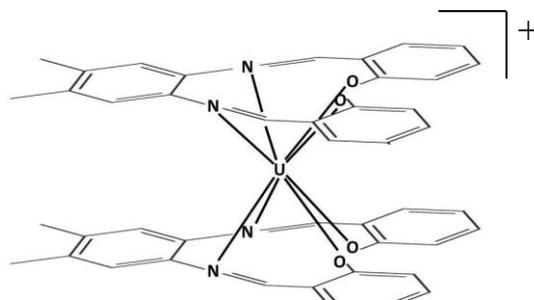


図 1. $[\text{U}(\text{salomphen})_2]^+$ の構造

【実験】合成実験はアルゴン気流下で行った。 $[\text{U}(\text{salomphen})_2]$ のジクロロメタン溶液に、1 当量のヘキサフルオロリン酸フェロセニウム(FcPF_6) のジクロロメタン溶液を加え、攪拌した。この溶液にジクロロメタンの 4 倍量のヘキサンを加えて放置することによって、黒色の結晶を 64% の収率で得た。

【結果と考察】得られた黒色の結晶のジクロロメタン溶液の吸収スペクトルは、500 nm 以下の領域で極めて大きなモル吸光係数を示し、salomphen の存在を示唆した。また、スペクトルはウラン(IV)の錯体とは異なる形状を示した。IR スペクトルでは、salomphen に由来する吸収帯とともに、 PF_6^- に由来する吸収帯も観測された。このことは、錯体の電荷がプラスになっていることを示唆している。さらに ^1H NMR スペクトルでは、salomphen に由来する 7 種類のシグナルが 2.5 ~ 16 ppm の領域に観測された。このことは、錯体が C_2 よりも高い対称性を持つことを示している。さらにシグナルが検出された領域は、反磁性の錯体で一般的に観測される領域よりも広範囲に広がっていること、シグナルの位置が温度に大きく依存して変化することから、錯体は常磁性であることが分かった。これらのシグナルの位置およびその温度依存性は、 $[\text{U}(\text{salomphen})_2]$ とは大きく異なっていた。これらの結果から、 $[\text{U}(\text{salomphen})_2]^+\text{PF}_6^-$ が得られたと判断した。

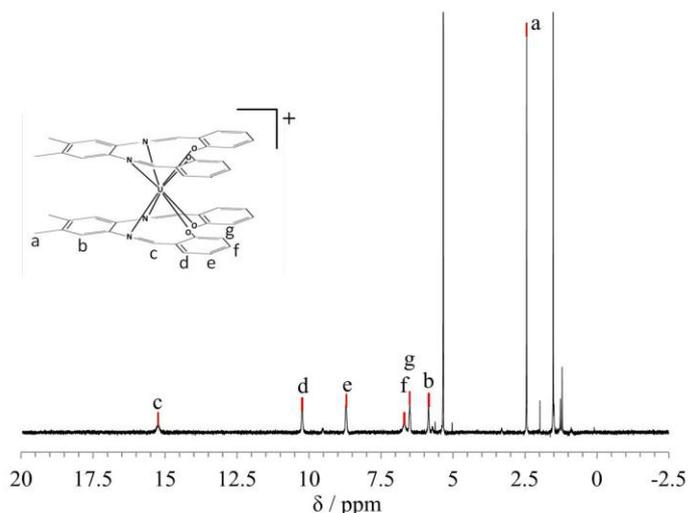


図 2. 30 °C、ジクロロメタン- d_2 中における黒色結晶の ^1H NMR スペクトル

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

【はじめに】

日本原子力研究開発機構 東濃地科学センターでは、高レベル放射性廃棄物の地層処分における地質環境の長期安定性に関する研究の一環として地層の隆起・侵食速度の評価に関わる岩石の露出年代の推定などに向けタンデム型加速器質量分析装置 (JAEA-AMS-TONO) による ^{10}Be 測定技術の整備を進めている。本発表では、 ^{10}Be 測定のための装置設定の状況や性能確認のために行った標準試料や実試料を用いた試験測定の結果を報告する。

【 ^{10}Be 測定のための装置設定】

重イオン検出器で ^{10}Be を測定する場合、同重体である ^{10}B が妨害となる。その影響を取り除くために、ガスセル付きの重イオン検出器を設置した。重イオン検出器入射口をハーバーホイルで仕切り、窒素ガスを封入してガスセルとした。また、重イオン検出器に充填する 90%Ar-10%CH₃ ガスの圧力も ^{10}Be が効率的に検出できるように調整した。最適化を行った結果、それぞれ 38 Torr 及び 70 Torr とした。また、現在ルーチン測定を行っている ^{14}C 測定では、 ^{12}C 、 ^{13}C 、 ^{14}C の逐次入射で加速電圧 4.5 MV で運転しているが、 ^{10}Be の測定に向け、逐次入射システムは、 $^9\text{Be}^{17}\text{O}$ 及び $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}$ の同時入射とし、加速電圧は 4.8 MV に設定した。

【標準試料や実試料を用いた試験測定】

装置の測定条件の最適化が終了した後、性能を確認するため、標準試料による試験測定を行った。標準試料は ICN 標準溶液をカルフォルニア大学で希釈した 01-5-1 ($^{10}\text{Be}/\text{Be} = 2.709 \times 10^{-11}$) 及び 01-5-2 ($^{10}\text{Be}/\text{Be} = 8.558 \times 10^{-12}$) ¹⁾を用いた。01-5-1 試料 10 個を数ヶ月間の期間をあけて 2 回測定 (11 月及び 3 月) したところ、各結果はほぼ保証値と一致し、相対標準偏差 (1σ) は 1 回目で 2%以下、2 回目で 0.8%以下であった。2 回目の測定では、重イオン検出器の窓サイズを大きくしたことにより ^{10}Be の計数率が増加したため、精度の向上が見られたと思われる。また、1 回目及び 2 回目の 10 個の平均値は、測定時期の違いによる差は見られなかった。また、01-5-2 の結果は、どの結果も保証値と一致した。つづいて、実試料測定の予備試験として、既に定常的に ^{10}Be 測定を行っている東京大学 MALT で測定済の南極ドームふじから採取されたアイスコア試料について測定を行った。MALT での測定値より JAEA-AMS-TONO の結果は平均 5% 高めの結果となった。標準試料に比べ実試料中には ^{10}B が多く含まれると考えられ、 ^{10}B 除去に対するガスセル中の窒素ガスの調整が不十分であった可能性がある。今後さらに最適化を行う予定である。

1)Nishiizumi et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 258, 403 (2007).

Measurement of ^{10}Be with JAEA-AMS-TONO

Saito-Kokubu, Y., Matsubara, A., Nishizawa, A., Ohwaki, Y., Nishio, T., Ishimaru, T., Matsuzaki, H.

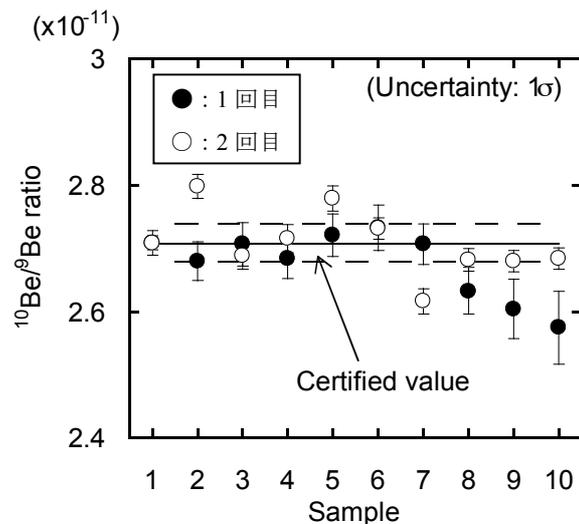


図 標準試料 01-5-1 の測定結果

*直線は保証値、破線は 1.1%(1σ)不確かさを示す。

原子力機構・研究用原子炉 JRR-3M のビームホールに設置されている即発ガンマ線放射化分析 (PGA) 装置に産業用多関節ロボットを利用した自動試料交換装置を設置したので報告する。

原子力機構の PGA 装置はその優れた性能が世界的に知られており、現在機構内研究のみならず、産業界への利用を促進するトライアルユースプログラムや大学開放研を通して 10 の大学研究グループが共同利用研究を行なっている。この PGA 装置に自動試料交換装置を導入するならば、より多くの試料測定を容易に行うことが可能になり良質な測定データを得ることが期待できる。20 個の試料保持台を予めセットできるように設計しており、20 試料を一回の設定で測定することができる。(図 - 1 参照)

今回の設置では多関節アームロボット制御、測定チャンバー上部扉開閉作業、中性子ビーム遮蔽シャッター開閉操作、及びガンマ線測定用 MCA プログラム操作を National Instruments 社製制御用プログラム LabVIEW を用いて行なった。今後さらに測定チャンバー内のヘリウムガス流量の制御も行う計画である。

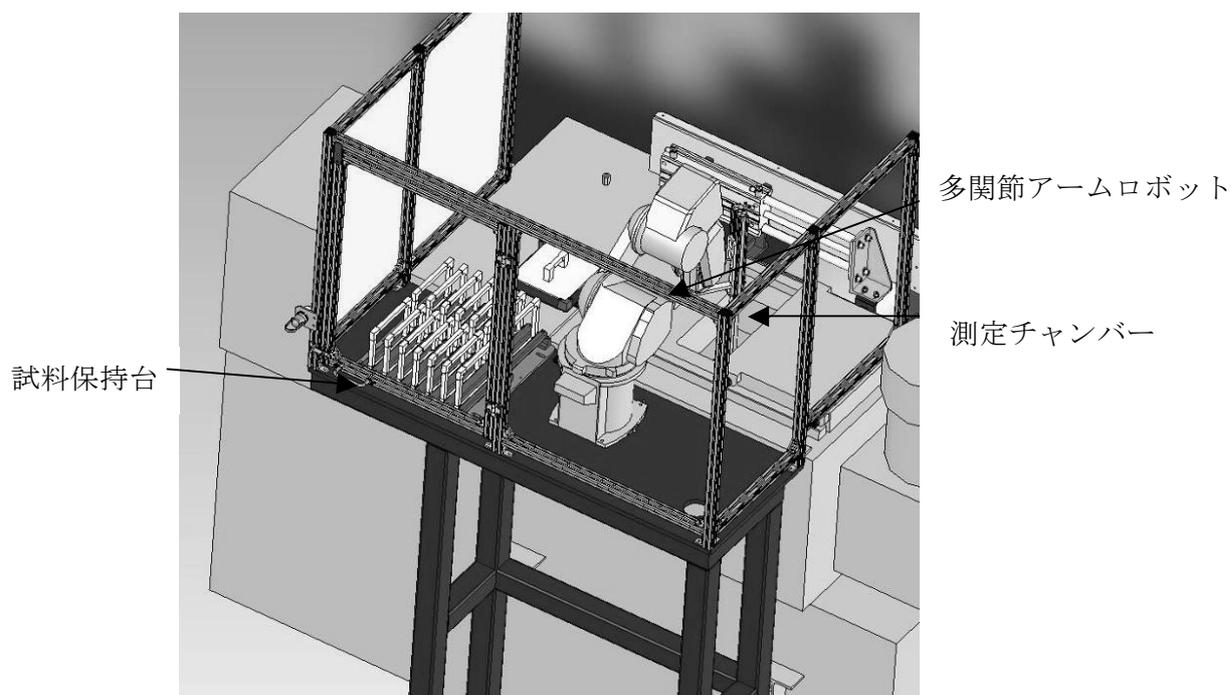


図 - 1 PGA 自動試料交換装置

多関節アームロボットによる PGA 装置の自動試料交換装置。20 個の試料保持台が設置出来る様になっている。

Installation of Auto sample changer for the Prompt Gamma-ray Activation Analysis equipment at JAEA

. HATSUKAWA, Y., OSAWA, T.,

Gd 造影剤投与ラット体内の Gd および微量元素定量に関する基礎的検討 —アクチバブルトレーサー法の生命科学への応用—

(金沢大医¹、金沢大院医²、京大原子炉³) ○鷲山幸信¹、服部知里¹、長岡三樹矢²、高宮幸一³、天野良平¹

重篤な腎機能障害をもつ患者への MRI 用 Gd 造影剤の投与は、腎性全身性線維症(NSF : Nephrogenic Systemic Fibrosis)を引き起こすとされている。NSF は主に四肢に局限し、皮膚の硬化や関節拘縮を訴える全身疾患である。通常 Gd 造影剤は体内に投与後 24 時間までに 98% が尿中に排泄されるが、腎機能障害を持つ患者へ投与した場合、造影剤が体内に長時間残留し、Gd がキレートから遊離して骨などに沈着し、その結果一定の過程を経て皮膚の繊維化が起こるとされている。

一般的に体内 Gd の定量には ICP-MS 法が用いられる。一方 Gd は中性子放射化断面積が高いため、アクチバブルトレーサー法を適応できる可能性を持つ。また中性子放射化分析法では多元素同時分析が可能であることから、NSF 発症メカニズムの解明を Gd と体内微量元素の相互作用の観点から捉えることも可能である。

そこで本研究では、腎機能低下が造影剤投与後の Gd 残留や体内微量元素の分布に与える影響を調べるために、腎不全モデルおよび通常のラットに Gd 造影剤を投与し、中性子放射化アクチバブルトレーサー法を用いてラット体内の主要組織内の Gd と微量元素を定量した。

本検討では、ラットに投与した Gd 造影剤由来の ¹⁵³Gd, ¹⁵⁹Gd, ¹⁶¹Gd を検出した。図 1 に ¹⁵³Gd の γ 線を使用して定量した各組織内の Gd 濃度を示す。腎不全ラットでは正常ラットに比して、いずれの組織でも Gd が多く残留していた。特に 9 組織の中では特に骨における集積の増加が特徴的であることが分った。一方、体内微量元素のうち Zn 濃度の定量結果を図 2 に示す。腎不全ラットは正常ラットに対し、骨での Zn 量の増加が見られた。その他の元素に着目すると、同じく骨中の Ca 量の増加および血液・脾臓中での Fe 量の減少が認められた。

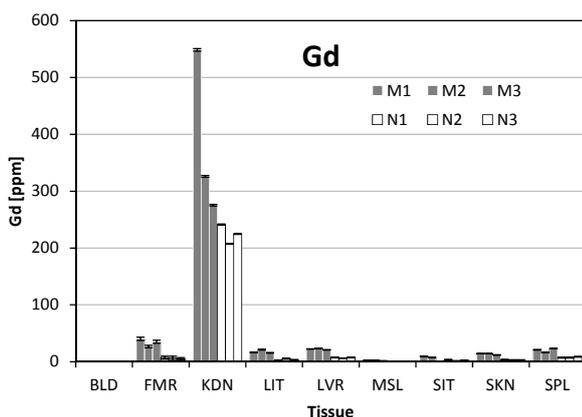


Fig. 1: Biodistribution of gadolinium in the blood, femur, kidney, large intestine, liver, muscle, small intestine, skin, and spleen of three nephrectomized and three normal rats 2 d after agent administration.

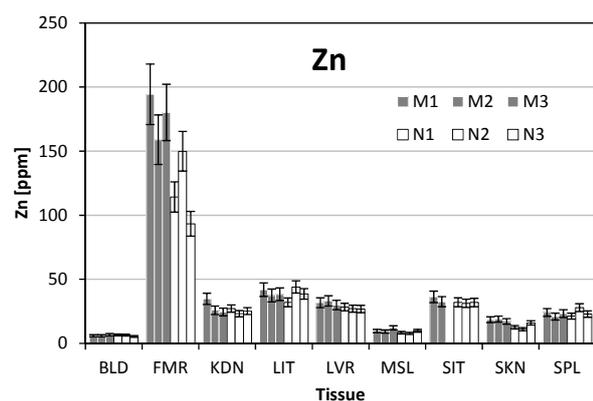


Fig. 2: Concentration of zinc in the blood, femur, kidney, large intestine, liver, muscle, small intestine, skin, and spleen of three nephrectomized and three normal rats 2 d after agent administration.

Biodistribution of Gadolinium-Based Contrast Agent, and Concentration of Trace Elements in Rats

WASHIYAMA, K., HATTORI, C., NAGAOKA, M., TAKAMIYA, K., AMANO, R.

パレオ・ラボ Compact-AMS による高精度炭素 14 測定

((株)パレオ・ラボ)○尾崎 大真、伊藤 茂、丹生 越子、廣田 正史、
LOMTATIDZE Zaur, JORJOLIANI Ineza、山形 秀樹、小林 紘一、藤根 久

加速器質量分析計(AMS)は ^7Be 、 ^{14}C 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl 、 ^{41}Ca 、 ^{129}I などの長半減期核種の分析に用いられており、これらの核種を利用したさまざまな分野で広く利用されている。中でも ^{14}C の利用は比較的多く、特に近年の日本では考古学において、遺跡発掘試料などの年代測定法としての利用が増してきている。これには従来の方法に比べ、AMS法では微量でも分析が可能であるということに加えて、一定の初生値を仮定して得られるモデル年代である「炭素 14 年代」を実際の暦年代に較正する暦年較正曲線が実用可能なレベルにまで構築されてきたことが主な要因となっている。

近年、AMSの ^{14}C 測定精度は大きく向上してきており、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 同位体比にして±数%程度にまで及んでいる。この測定精度向上によって ^{14}C 利用研究の幅を大きく広がっていくことが期待される。

2004年にパレオ・ラボで導入した米国NEC社製 Compact-AMS では一度に40個の試料を測定することができる。このうち通常10個ほどはブランクや評価用を含む標準試料を入れている。現在、 ^{14}C の標準試料としてはNIST SRM 4990cが広く用いられており、パレオ・ラボでもこれを使用している。そして、測定試料作成から測定にいたるまでの一連の操作ブランクを評価するためにIAEAから販売され、 ^{14}C 濃度が0とされるC1を用いている。さらに、これらの標準試料を用いた定量操作により得られる結果の正当性を評価するために、やはりIAEAから販売されているC5とC6も同時に測定している。図1に最近1年間のC1、C5、C6の測定値をpMC(1950年当時の大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度を1としたときの百分率)で示し、その平均と標準偏差を推奨値などとともに記した。ブランクであるC1の値は見ても十分に低く、安定している。C6については推奨値と比較してわずかに低くなっているが、推奨値が少し高いのではないかという議論もあり、Xu et al. (2010)は300回ほどの分析の結果、推奨値より少し低い $150.16 \pm 0.02\text{pMC}$ という値を報告している。パレオ・ラボの測定結果は Xu et al. (2010)の値とよく一致しており、C5の測定結果が推奨値と非常によく一致していることと合わせて、分析の確度が十分に高いことが分かる。

発表では、このパレオ・ラボにおける高精度 ^{14}C 測定を利用したいくつかの成果例を取り上げる。

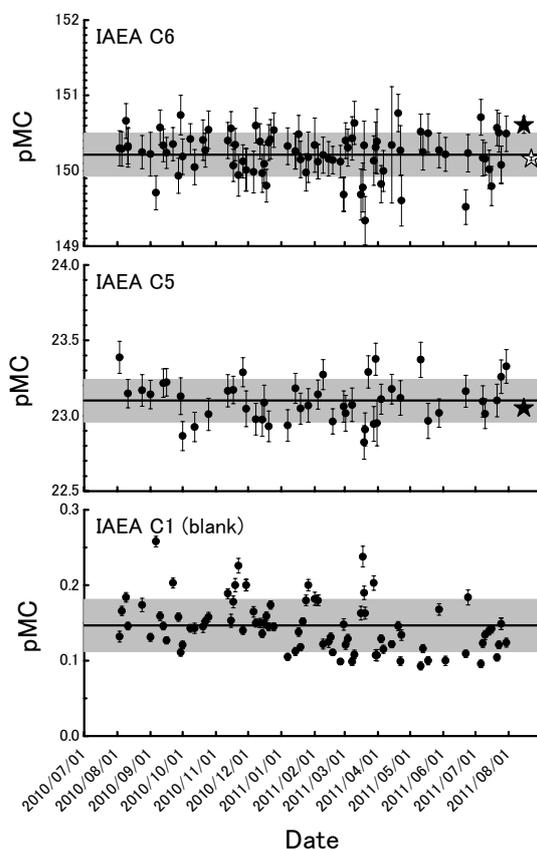


図1 IAEA標準試料の測定結果
黒線は平均値、グレーは標準偏差(1σ)の範囲
黒の星印はIAEAによる推奨値
C6の白抜き星印は Xu et al. (2010)による値

Highly-precise radiocarbon measurements using the Compact-AMS system at Paleo Labo Co., Ltd.
OZAKI, H., ITOH, S., NIU, E., HIROTA, M., LOMTATIDZE, Z., JORJOLIANI, I., YAMAGATA, H.,
KOBAYASHI, K., Fujine, H.

(北大・工学研究院・環境循環システム¹, 京大・炉², 住鉱資源開発³) ○太田朋子^{1,2}, 馬原保典², 藤原慶子², 福谷 哲² 窪田卓見², 水落幸広², 吉永尚生², 高宮幸一²,

福島第一原発由来の放射性核種の放出に伴い、東北・関東地方の水道水から基準値を超える¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Csが検出された。国内で入手が容易な資源(砂、土壌、活性炭)等を活用し、水中の¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Csを除去する手法の検討を行った。

1. 身近な資源を活用した雨水中の放射性核種の捕捉

雨水中(2011.3.30に茨城県で採取)の放射性核種を次の捕集材で構成されるカラムを用いて回収を行った。カラムは高さが約5cmのものを用いた。

- 1) Column-A: (上部より)砂層、ピートモス層、砂層、ヤシガラ活性炭層、砂層
- 2) Column-B: (上部より)土層、砂層、竹炭層、砂層

Column-A, Column-Bに、50 mlの雨水試料を流速1 ml/minで通水させた。各捕集材およびカラムを通過後のドレイン水中の放射性核種の放射能強度を、 γ -ray spectrometryにて定量を行った。雨水中の¹³⁷Csはほとんどが砂層に捕捉された(捕捉率は93±6%)。¹³¹Iの捕捉率は、ピートモスで3.7±1.3%、ヤシガラ活性炭で39±3%であった。土壌中に捕捉された¹³¹Iは31±3%で、¹³⁷Csは81±5%であった。ドレイン水中には¹³¹Iが6-7割は残存していた。

2. 陰イオン交換樹脂を用いた雨水およびドレイン水中の放射性核種の捕捉

20 mlの雨水およびColumn-A,Bのドレイン水に約2 mlの陰イオン交換樹脂を加え、バッチ法にて攪拌を行った。雨水とColumn-Aのドレイン水中の¹³¹Iは、陰イオン交換樹脂にそれぞれ100±10%および94±14%捕捉され、水中のほとんどの¹³¹Iが陰イオン交換樹脂で除去可能であった。雨水中の¹³¹Iの化学形態は陰イオン交換体であると考えられる。

一方、土壌を通過したColumn-Bのドレイン水では、¹³¹Iの70±10%が陰イオン交換樹脂に捕捉され、30%は捕捉されなかった。(発表当日は、家庭用浄水器(水道直結型、ポット型)による放射性核種の除去率の発表も行う。)

3. 表層土壌中の¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Csの水中への移行実験

関東の表層土壌と純水を容器に密封し、30分間の振とうを行い、水に移行した¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Csの放射能強度を測定したところ、検出限界以下であり、一度土壌に捕捉された¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Csは、水への移行はないことが示唆された。

結論

雨水中の¹³⁴Cs, ¹³⁷Csは表層土壌層でほぼ100%捕捉される。¹³¹Iも同様に大部分が土壌に捕捉されるが、一部の¹³¹Iは土壌中の有機物と結合し、地下へと浸透する。しかし、土中水の地下進行速度は極めて遅く、¹³¹Iの半減期は8日と短いため、地下水系への¹³¹Iの汚染源にはならないと考えられる。また、一度土壌に捕捉された¹³¹I, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Csは、水へ移行はないものと考えられる。

Elimination of ¹³¹I and ¹³⁷Cs in rainwater from Fukushima Daiichi Accident...

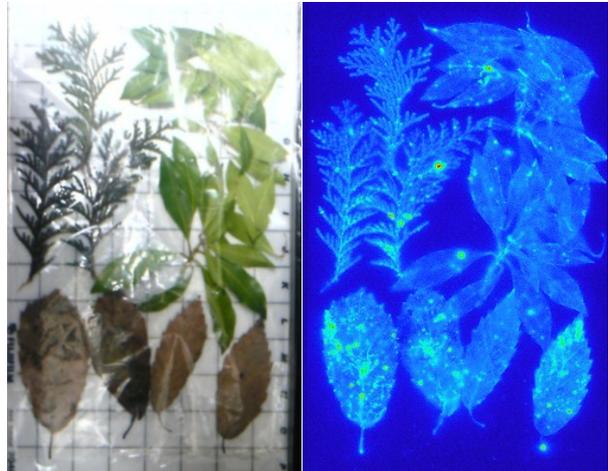
Ohta, T., Mahara, Y., Fujiwara, K., Fukutani, S., Kubota, T., Mizuochi, Y., Yoshinaga, H., Takamiya, K. (Hokkaido Univ., KUR, Sumiko Resources Exploration and Development Co. Ltd.)

1.はじめに 福島第一原子力発電所事故により、核分裂生成物が空気中に放出され、広範囲に飛散した。原子力関連事故では、住民の避難などを考えた場合、早期の汚染状態の把握が重要であり、今回も避難区域が同心円状に暫定的に決定された。しかし、この決定で十分か否かを判断するためには、その後早期に詳しい汚染地域の調査が必要となる。γ線スペクトロメトリーによる核種の定性定量は重要ではあるものの、β線のみ放出核種の存在も想定される中では十分とは言い難い。これに対し、β-γ同時測定が可能なイメージングプレート(IP)を用いた画像処理法が有効と考えられる。3-4月を中心に集めた「葉」の画像処理結果を示し、有効性と問題点を明らかにし今後に資することを目的とする。

2.方法 東京と福島周辺間でのサンプリングは、葉が7、草が2、枯葉が7箇所である。多くのサンプリング箇所及び高速道路の休息所では、空間線量等を放射線サーベイメータ(TCS-171, TGS-133: Hitachi-ALOKA)を用いて測定した。試料はサンプリング直後にジッパー付きの袋に入れ持ち帰った。IPはBAS-MS(20×40 cm: Fuji Film)を用い、室内に置いたカセット内で24時間露光し、露光終了後3分で読み取った。葉の雨による洗浄効果を見る目的で、一部試料は流水下で洗浄し、再度同IPを用い画像を取得した。全試料は、U8容器に移し、もしくは袋のまま、HPGe(CANBERRA)でのγ線測定により放射能濃度を求めた。

3.結果および考察 全ての試料から鮮明な画像が得られた。下図は岩城において採取

(2011.3.29)した葉、枯葉の写真と画像を示す。検出された核種は、 ^{129m}Te , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs であった。いずれの採取場所においても、放射能濃度は枯葉が高かった。また、6月採取の新芽では画像が得られないものもあった。通常の葉では、主に ^{40}K による画像が遮蔽容器内での1週間から1月の露光により得られる。試料は24時間よりさらに短時間の露光でも画像が得られ、汚染の強さが伺える。IPから得られるPSL値(輝尽光発光量)は2次元的な放射能分布に比例するが、各地での葉の



合計PSL値と放射能濃度にも相関がみられた。流水による洗浄効果は、50%近いものもあれば、30%未満の場合もあった。汚染核種と葉の表面状態により変化するものと考えられた。画像法による正確な定量のための標準試料の作成は難しいが、緊急時にβ-γ放出核種の場所ごとの比較値を短時間で求めるには、有効な方法であると考えられる。

4.まとめ 葉表面の鮮明な汚染画像が24時間で得られた。定量は困難を伴うが、緊急時のβ-γ放出核分裂生成物の飛来範囲や高濃度地区の決定、および降雨効果の判断には、画像法が簡便かつ有効である。

1. はじめに

大気中の放射性同位体には、天然起源のものと人工起源のものがある¹⁾。天然起源の放射性同位体には、地表面から空気中に散逸したものと、成層圏で酸素や窒素と宇宙線との核破砕反応によって生成した⁷Be などがある。他方、人工起源の放射性同位体は、大気圏内の核爆発実験で生成した核種のほかに、原子力施設から放出された核種、および事故等によって放出された核種である。これらの核種は、対流圏と成層圏のいずれか、あるいは両方に存在しているが、それらの間に粒径や化学形の違い等により、その挙動は著しく異なっている。

本研究では、主に放射性鉛同位体を中心としてこれらの核種について、2011年4月より川崎市で大気の捕集及び測定を再開し、これまでに川崎市で観測した大気中の放射性鉛同位体(²¹⁰Pb, ²¹²Pb, ²¹⁴Pb)の濃度データ²⁾との比較を行った。また、東日本大震災に伴う福島第一原発の一連の事故由来と考えられる放射線核種の測定結果もあわせて報告する。

2. 実験方法

エアロゾルの捕集には ADVANTEC GB100R ガラス繊維フィルターを装着した SIBATA HVC-500 ハイボリュームエアサンプラーを使用した。空気吸引速度は 600 dm³min⁻¹、捕集時間は 24 時間である。試料中の放射性核種の定量は、LEPS を用いた非破壊 γ 線スペクトロメトリーによった。

3. 結果と考察

2011年4月からの測定結果の一つとして、4月21~22日に捕集したエアロゾルの γ 線スペクトルを Fig. 1 に示す。 γ 線スペクトル上に、²¹⁰Pb, ²¹²Pb, ²¹⁴Pb, ²⁰⁸Tl, ⁷Be, ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs が同定された。川崎市で観測された大気中の²¹⁰Pb 及び ²¹²Pb の月平均濃度は、それぞれ 0.30~0.65 mBq/m³、0.9~3.1 mBq/m³ で過去に観測された濃度レベル²⁾の範囲内であった。¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs の3核種は他の観測地点でも報告されており³⁾、川崎市でも観測されたと考えられる。

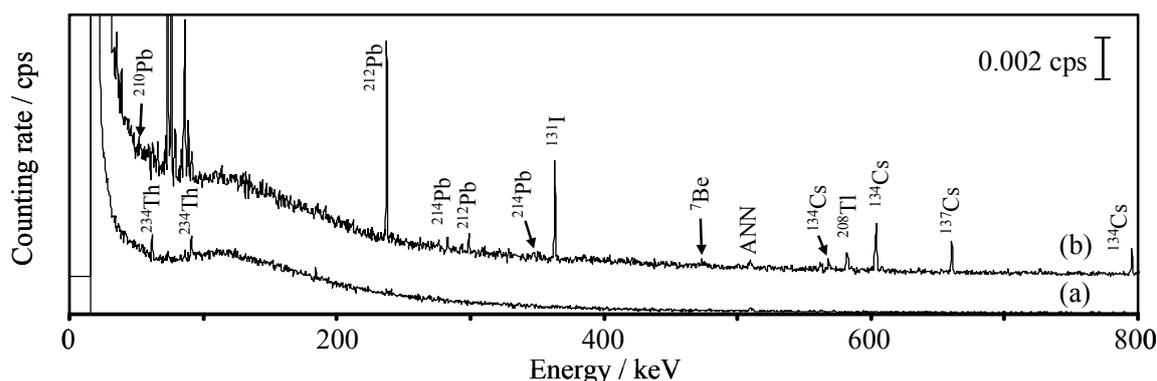


Fig. 1 Gamma-ray spectra of blank (a) and aerosol sample (b) collected on April 21, 2011 at Kawasaki.

参考文献

- 1) 下 道國, エアロゾル研究, **10**, 264 (1995).
- 2) KOIKE, Y., KUKITA, K., NAKAMURA, T. and SATO, J., *RADIOISOTOPES*, **54**, 87-94 (2005).
- 3) 五十棲泰人, 宮武秀男, 戸崎充男, *ぶんせき*, **7**, 387-392 (2011).

環境水試料柱におけるラドン深度分布の時間変化に関する研究

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

【はじめに】 大気中や水中のラドン濃度の測定にはラドンモニター（電離箱による測定）やトラック法、液体シンチレーションによる測定等様々な方法が用いられている。特に試料水を採取する際、ラドン損失の抑制が課題となる。しかし、試料採取時のラドン損失に関して、どのような環境中のパラメーターがどれだけ影響しているかは不明な部分が多く、測定したラドン濃度が、自分が欲しい時点の濃度を示しているのか疑問が残る。本研究では環境条件がラドンの挙動にどのように影響を与えているかに興味を持ち、特に水中のラドン放出挙動の解明を目指している。これまで水試料からのラドン散逸・ラドン損失に関係すると考えられる種々のパラメーターのうち、攪拌時間・速度、水温、水深分布について実験を行い、昨年度の討論会にて発表した。しかし、水深分布のデータはばらつきが大きかった。これは使用している実験試料が低濃度かつ実験スケールが小さかったことが原因ではないかと考え、本報告では特に水深分布について試料の高濃度化と実験試料量の大容量化を施した数日スケールの実験系の構築を行い、その結果を得たので報告する。

【実験】 実験はこれまでと同様ある水温・気温のもとで静置状態での各水深のラドン残留率の時間変化を調査した。ただし今回の試料については、これまでより高濃度のラドンを含む石川県金沢市笠舞の湧水地の地下水（約 15 Bq/L）を使用し、実験室に運んで温度調整し実験試料とした。また試料は直径 20 cm の円筒容器に深さ 1 m まで水（約 30 L）を入れた。水試料中の Rn 測定については前回と同様試料水 50 mL を採取し、液体シンチレーションカウンターを用いて直接法にて ²²²Rn およびその子孫核種を測定した。

【結果と考察】 図 1 は減衰補正後の各温度におけるラドン総残留率の経時変化をボックスモデルの計算結果とともに示したものである。図よりいずれの温度においてもモデル計算との良い一致を見せており、指数関数的に減少するとともに温度によりその減少率が大きくなっていることが分かる。これは Rn の水に対する溶解度の温度依存性と一致する。また同じ実験の水深分布の傾向についてもボックスモデルによってある程度再現できた。

ばらつきが少なくなり実験スケール拡大によるデータの改善は見られたもののボックスモデルでは解析できないばらつきが存在した。その原因として試料採取時の振動が避けられず、また空気相に流れが生じている可能性があり、この影響があることが考えられた。現在その影響の大きさについて検討し、実験装置の改善を目指している。

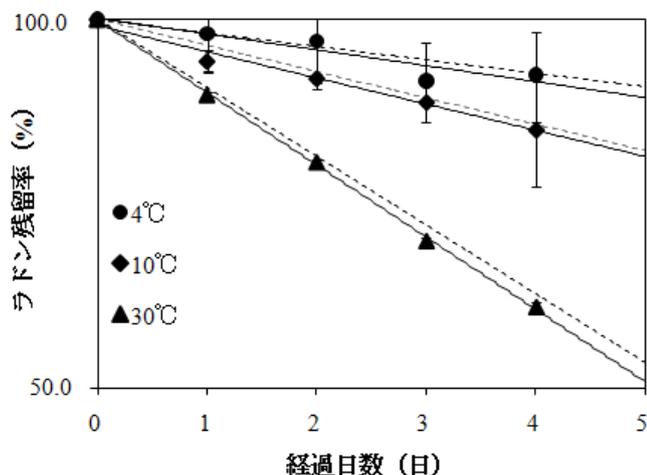


図 1 ラドン総残留率の経時変化。実線は指数関数近似曲線、破線はボックスモデルの計算結果。

はじめに 自然界における放射性核種の多くは地殻構成物質から周辺の状況による化学反応により溶出して来る。その状況を正確に把握する事が出来れば各種の応用へと利用範囲を広げることが出来る。本実験では有機酸を用いて、モナザイトから浸出して来る放射性核種を確認した。

実験 マレーシア産モナザイトを 100 メッシュにして溶出試料とした。このモナザイト 5 g に 0.1% のクエン酸 20ml を 40℃ で作用させ、放射性成分を溶出した。溶出条件を最適化するために条件を変え 10 分から 12 日まで溶出した：①恒温槽内で振盪する、②恒温槽内で作用容器を円回転する、③恒温槽内で作用容器を水平回転する、④超音波処理する。作用容器は蓋のついた密閉容器を使い、溶出液を 1 分間遠心分離した上清を放射能測定用の試料とした。

放射能測定には液体シンチレーションカウンター (LSC-6100, Aloka) を用いた。分離した試料は分離後の放射能の変化を見るために 1 分間測定を繰り返し 20 回行い、その後は数時間おきに 20 分または 60 分の計測を繰り返した。放射線のスペクトル解析は、1000 分間測定したデータにより行った。

結果と考察 試料中の放射能は必ずしも作用時間に比例しなかったが、作用時間が長くなるに従って増加する傾向が見られた。核種として ^{232}Th 、 ^{224}Ra を確認できたが、その他の核種は明確には確認出来なかった。本実験と同じモナザイトを用いて 9 時間溶出させた人工放射能泉の γ 線スペクトロメトリーでは、トロン崩壊生成物である ^{212}Pb と ^{212}Bi が検出されているため、本実験条件でもこれらの核種が存在すると推定される。

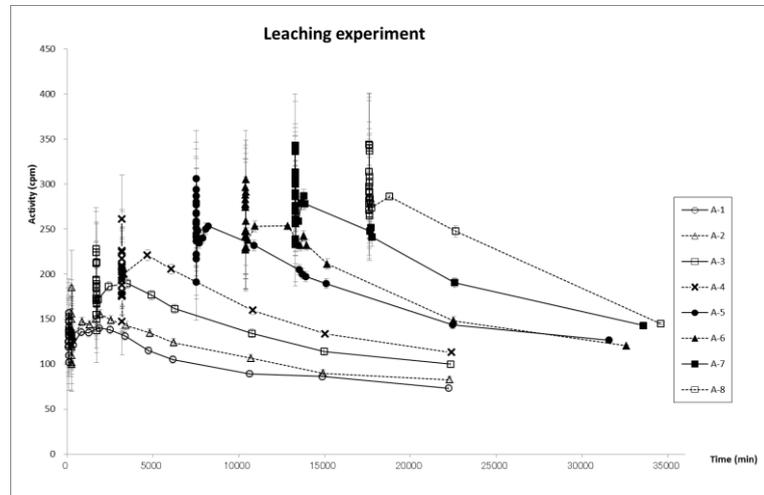


図 1 浸出液中全放射能の時間変化

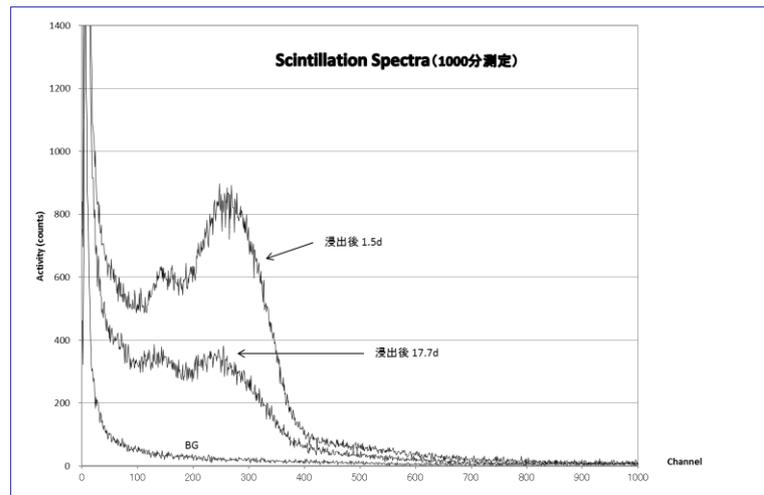


図 2 浸出液のシンチレーションスペクトル

Leaching experiments of radionuclides from monazite

HORIUCHI, K., MINOWA, H., YOSHIKAWA, Y. (Jikei Univ.)

町田市および周辺地域における放射性核種の分析

(昭和薬大¹、明治大農²) ○遠藤和豊¹、中村昂介¹、土田高久¹、
松岡圭介¹、本田智香子¹、塚田正道²

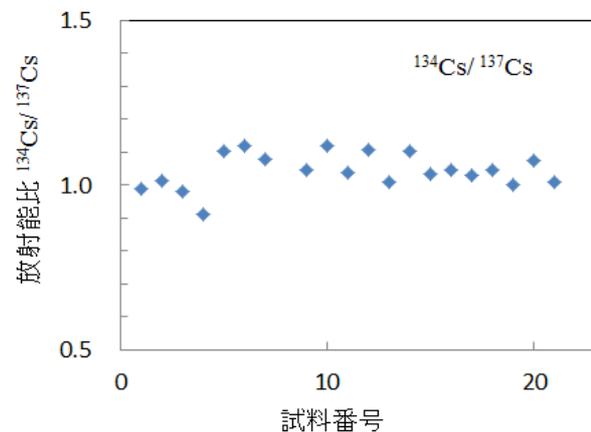
【はじめに】東日本大震災による東京電力福島第一原子力発電所の事故に伴う放射性核種の飛散は日本各地に広がり、放射能の環境汚染を引き起こしている。また、健康への影響も危惧され、汚染物質の処分法やさまざまな除去、浄化対策が行われている。当研究グループは、3月20日過ぎから東京都内、神奈川県川崎市、あるいはその近隣の地域、および長野県、千葉県、茨城県、福島県などの表層土を中心にγ線スペクトロメトリーにより放射性核種の分析をした。また、雨水中の放射性核種、およびイメージングプレートによる植物の葉に付着している放射性核種の分布等を測定してきた。本研究ではおもに東京都、神奈川県、千葉県各地の表層土のγ線スペクトル測定の結果を報告する。

【試料の採取と測定】試料は、表層土（50cm×50cm×深さ約3cm）をできるだけ均一にして、その一部（約150～200g）を採取し、ポリエチレン容器に移しオープンにより97℃で約20～24時間、加熱乾燥した。乾燥後、試料正味の重量を量った。γ線スペクトルは、高純度Ge半導体検出器（ORTEC社製）と多重波高分析器7600（SEIKO EG&G社製）により1～3日間測定した。測定器のエネルギーおよび検出効率の決定には、円盤状標準密封線源（日本アイソトープ協会製¹⁵²Eu（1kBq））を用いた。ピーク判定の基準はスペクトルベースライン計数値の3σ以上とした。¹³⁷Csの分析には662keVを用いたが、複数のγ線が放出される¹³⁴Cs、¹³¹Iについては2本の光電ピークから算出した平均値、又は一方を参考値として放射能強度を求めた。

【結果と考察】採取した試料のうち21個の表層土試料の¹³⁷Csの放射能は4月1日を基準にして2.4～112Bq/kgの範囲（平均値；43 Bq/kg）、¹³⁴Csは0.5～142Bq/kgの範囲（平均値；49 Bq/kg）であった。セシウム同位体の放射能比¹³⁴Cs/¹³⁷Csは同日基準で0.9～1.2の範囲であった。また、大学キャンパスのグラウンドの表層土で¹³⁷Csは検出されたが、深さ5cm～10cmの試料ではBGレベルを上回る量は検出されなかった。

¹³¹I放射能レベルは、4月1日基準で場所により異なり表層土試料では数Bq/kg～数100Bq/kgと範囲であった。また、本学グラウンドの5-10cm深さでは、数Bq/kgであった。

¹³¹Iの分析には368.38keVとともに284、636.97keVが利用できる。γ線放出確率とγ線エネルギーより368.38keVが分析感度において有利である。3月20日以降、東京町田、神奈川、千葉、長野の土壌表層土試料中の¹³¹Iの放射能レベルの評価には、測定が5月中旬までは2本のγ線、中旬以降はおもに364.48keVを用いた。各試料の放射能比¹³¹I/¹³⁷Csは地域ごとに異なる値を示す傾向が見られている。これまでに測定した他地域の測定値と比較して発表する。



原発事故以前の土壌中の放射性核種 ^{129}I と ^{137}Cs の分布

(筑波大院数理物質科学¹、筑波大 AMS²、清水建設技術研究所³、京大防災研⁴、東大工⁵) ○北川潤一^{1,2}、末木啓介^{1,2}、笹 公和^{1,2}、高橋 努²、木下哲一³、松四雄騎⁴、松崎浩之⁵

【緒言】ヨウ素及びセシウムの放射性同位体 ^{129}I (半減期約 1570 万年)、 ^{137}Cs (半減期約 30 年) は、宇宙放射線由来の天然核種及び核実験や原子力施設事故などによる人為的な核種として存在する。大気に放出された ^{129}I 、 ^{137}Cs の大半は地表面や海水面に降下したと考えられる。これらの核種は原発事故による被害を推定するのに重要な核種であり、3 月 11 日に起こった東日本大震災による福島第一原子力発電所の炉心溶融事故による影響を調査するため、震災以前と以後におけるこれら放射性核種濃度の変化を比較する必要がある。また、事故によって放出された ^{131}I は半減期約 8 日と短く、核種放出後時間が経つとその測定が困難となる。しかし、 ^{131}I は甲状腺癌の原因となりその降下量を正確に求める必要があり、 ^{129}I が ^{131}I の降下量の推定に利用される[1]。本発表では、炉心溶融事故以前に採取した福島県周辺における土壌中の ^{129}I 、 ^{137}Cs の濃度分布を報告する。

【実験】 ^{137}Cs は 110°C 乾燥させた土壌を Ge 半導体検出器を用いて γ 線測定することによって、放射能濃度を求めた。 ^{129}I の測定には、高感度で $^{129}\text{I}/\text{I}$ 同位体比測定が可能な東京大学 MALT の AMS システムを利用した。土壌と同質量の V_2O_5 を添加して酸素気流中約 1000 °C で燃焼させ、水酸化テトラメチルアンモニウムでアルカリ溶液にトラップした。溶液にキャリアーとしてヨウ素を加え、溶媒抽出・逆抽出を通して最終的にヨウ化銀として沈殿させた。沈殿を乾燥させた後、試料を カソード にプレスして AMS 測定を行った。また、ICP-MS により安定ヨウ素(^{127}I)の測定を行い、 ^{129}I (mBq/kg) を算出した。

【結果・考察】18 地点で土壌の採取を行い、そのうち 4 地点においては約 1 m までの深さまで測定し、深度により濃度がどのように変化するかを検討した。表層 10 cm までの深さの土壌について、 ^{129}I 及び ^{137}Cs の放射能濃度は、それぞれ 0.16 ~ 0.65 (mBq/kg)、12.60 ~ 44.40 (Bq/kg) 程度であり、これは過去における日本の測定例と比較して標準的な値である [2]。今後の課題として、震災以後に採取した土壌中放射性核種の濃度も測定し、検討する必要がある。

[1]V. Mironov et al., Journal of Environmental Radioactivity **59** (2002) 293–307

[2]Y. Muramatsu et al., Quaternary Geochronology, **3** (2008) 291–297

Distribution of radionuclides ^{129}I and ^{36}Cl in soils before nuclear accident

KITAGAWA, J., SUEKI, K., SASA, K., TAKAHASHI, T., KINOSHITA, N., MATSUSHI, Y., MATSUZAKI, H

地表面下における石灰岩中の宇宙線生成核種 ^{36}Cl の深度プロファイル：
侵食速度の復元にむけて

(筑波大院生命環境¹, 京大防災研², 筑波大院数理物質³, 筑波大 AMS⁴)

○西村 朋紘¹, 松四 雄騎², 末木 啓介³, 笹 公和⁴, 高橋 努⁴,
木下 哲一⁴, 天野 孝洋³, 北川 潤一³, 黒住 和奈¹

カルサイト中に多く含まれるカルシウムは、宇宙線生成核種 ^{36}Cl (半減期:30.1 万年) を生成する主要な元素である。地表面のカルサイト中に生成する ^{36}Cl の殆どはカルシウム同位体の破砕によるものである。しかし深度数メートル下では、 ^{36}Cl の生成は殆ど宇宙線ミューオンによって始められる。主な反応は $^{40}\text{Ca}(\mu^-, \alpha)^{36}\text{Cl}$ による直接の負電荷ミューオン捕獲、ミューオン捕獲や光分解反応で誘起されたミューオンで生成する二次中性子の ^{35}Cl の捕獲である。カルシウムを多く含有する石灰岩は、カルサイト中の宇宙線生成 ^{36}Cl の測定は露出年代の測定やカルスト地形の発展の研究のように幅広く応用されることが期待される。

山口県美祢市に存在する秋吉台のカルスト台地において、表面下の深度 0~3m から石灰岩を採取した。宇宙線生成核種 ^{36}Cl 濃度は筑波大学の AMS(Accelerator Mass Spectrometry, 加速器質量分析)によって求めた。また、日本原子力研究開発機構の即発 γ 線分析(PGA)によって試料の Ca 含有量などの元素成分を調べ、その結果から ^{35}Cl の中性子捕獲率を計算によって求めた。

測定結果から図 1 に示すような濃度プロファイルを作成し、深度方向に宇宙線が減衰するに従って ^{36}Cl が減少することを確認できた。また、侵食速度を ^{36}Cl 生成率の逆解析によって求めた結果、約 1 万年前に侵食速度が 20mm/kyr から 50mm/kyr へ増加したと仮定した場合にモデルカーブがプロットと最も良い一致を示した。このことから侵食は約 1 万年前の最終氷期である完新世気候の変遷を境に増加したと考えられる。

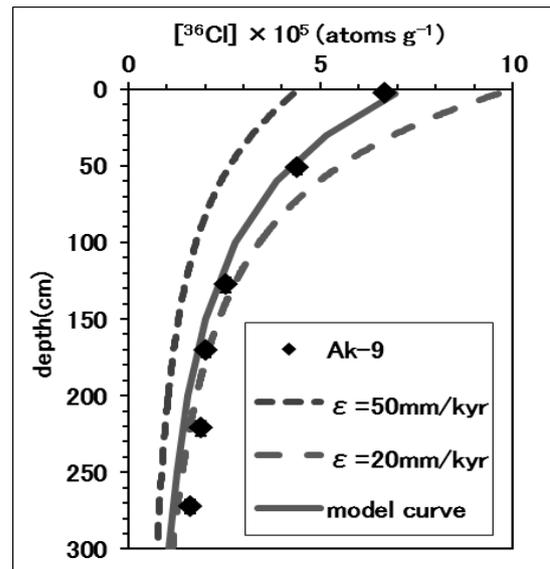


図 1. ^{36}Cl と侵食速度のモデルカーブ

参考文献

- 1) J.O.H.Stone et al., Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 62, No. 3, pp. 433-454, 1998

Depth profile of *in situ* cosmogenic ^{36}Cl in limestone under ground level:

for the reconstruction of denudation rates

Nishimura, T., Matsushi, Y., Sueki, K., Sasa, K., Takahashi, T., Kinoshita, N., Amano, T., Kitagawa, J., Kurosumi, K.

茨城県北部土壤中の福島原発由来放射性核種

(茨城大院理工¹, 原子力機構², 高エネ研³) ○金谷佑亮^{1,2}, 佐藤哲也², 浅井雅人², 塚田和明², 豊嶋厚史², 佐藤望², 大江一弘², 宮本ユタカ², 安田健一郎², 二宮和彦², 松田誠², 光岡真一², 石山博恒³, 永目諭一郎²,

【はじめに】2011年3月11日に発生した東日本大震災における福島第一原子力発電所の事故によって原子炉由来の放射性核種が環境中に拡散した。原子炉から放出された放射性核種は事故当時の風向きや降雨などの気象条件及び海や山などの地形によってその拡散状況に地域間で差が生じることが予想されるが、現実にはどのように分布しているかは実際に調査する必要がある。そこで我々は各地域での汚染状況を確認して除染計画などに役立てるために、茨城県北部と東部、栃木県東部及び福島県と千葉県の一部について土壌サンプルを採取し測定を行ったのでその結果を報告する。

【実験】2011年5月20, 21日と6月22日の二回に分けて全83地点で土壌サンプルを採取した。まず福島第一原子力発電所の位置を基準に10 km×10 kmのメッシュを引いて座標を設定し、採取地点を決定した。採取場所は頭上に障害物がなく雨水の流れ込みなどの影響を受けない露出した土表面を選択した。採取は逆さにしたプラスチック製U8容器(内径48 mm, 深さ60 mmの円柱形)を土壌に垂直に差し込みこぼさないように取り出した後、採取した土を一度ビニール袋に入れて十分に攪拌し、再びU8容器に戻すという方法で1座標につき3サンプルずつ行った。採取作業と並行してNaIサーベイメーターなどで地上1 m地点の空間線量を測定した。採取した土壌サンプルはゲルマニウム半導体検出器でγ線を測定し内部に含まれる放射性核種の同定と定量を行った。

【結果と考察】全土壌試料から¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Csを検出した。これまでに得られた¹³⁷Csの分布をFig. 1に示す。Fig. 1で示されているように¹³⁷Csの分布は均等ではなく地域ごとに差が生じている。福島-栃木県境付近において比較的大きな値が測定され、そこから南に進むにつれて値は下がっていくが、茨城県霞ヶ浦近辺で数値はわずかながら再び上昇するという分布が得られた。測定した範囲内での最大値は福島県境の約130 kBq/m²であり、茨城県中央部では約3 kBq/m²であった。ポスター発表では他に¹³⁷Csと同様に地域による違いが見られる¹³¹I, ¹³⁴Csの分布についても報告する。

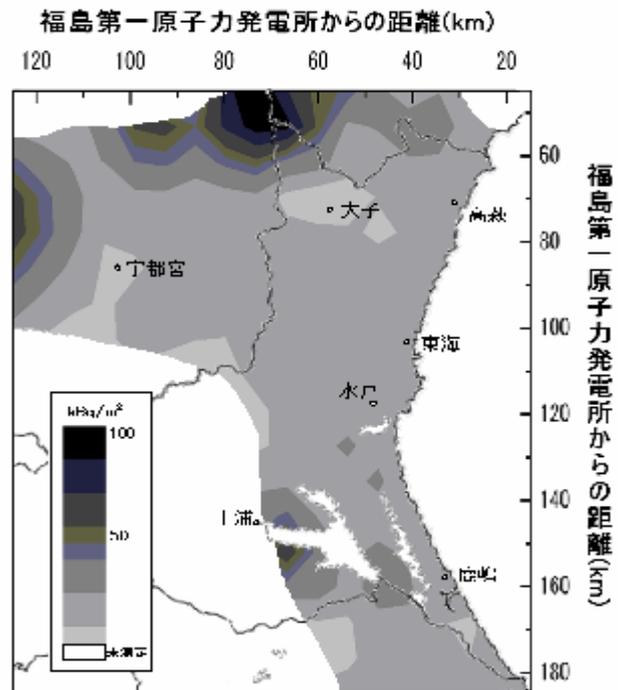


Fig.1 茨城県周辺の¹³⁷Csの分布状況
(白色は未測定)

Radioactive nuclides in soil at northern Ibaraki prefecture from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant.

KANEYA, Y., SATO, T.K., ASAI, M., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., SATO, N., OOE, K., MIYAMOTO, Y., YASUDA, K., NINOMIYA, K., MATSUDA, M., MITSUOKA, S., ISHIYAMA, H., NAGAME, Y.

(金沢大学 LLRL) ○浜島靖典

はじめに

Ge 検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリーでは、カスケードガンマ線放出核種は、低い計数率においても常にサム・コインシデンスの補正が必要となる。このサム効果の補正は、検出効率と核種の壊変関式に依存する。さらに、散乱線等の影響も受けるため Ge 検出器自身、遮蔽体、測定試料等にも依存し、その都度求めなければならない。これまでに多くの補正方法が報告されている。通常、ピーク計数効率は既知であるから、全計数効率が求められれば放射能 (Bq) が求められる。しかし全計数効率を求めることは極めて困難である。一般的には、全計数効率は、ピーク・トータル比 (P/T 比) を用いて代用する。当施設のように管理区域を持たない施設では、P/T 比を求める都合の良い単色ガンマ線源が無く、利用できる線源は市販の密封放射能標準ガンマ体積線源のため、報告されている補正方法が使用できない場合がある。今回、この市販の密封標準体積線源を用いてサム・コインシデンスの補正ができないか検討した。特にサム効果の影響の大きい井戸型 Ge 検出器を用い、その効果と補正方法を検討した。同軸型、平板型 Ge 検出器についても報告する。

方法

線源は日本アイソトープ協会製の密封放射能標準ガンマ体積線源及び面線源 (いずれも Cd109, Co57, Ce139, Cr51, Sr85, Cs137, Mn54, Y88, Co60 の 9 核種混合線源) を用いた。また Cs134, Cs137 混合乾燥土壌も用いた。Ge 検出器は、有効体積約 300cm² の井戸型、約 380cm² の同軸型、面積 2800-3800mm² 厚さ 20-30mm の平板型を用いた。

結果

9 核種混合線源の内、Ce139, Y88, Co60 はサム効果があり、井戸型 Ge では各ピーク面積が 40-60% も減少していた。これら 3 核種は、それぞれの見かけのピーク計数効率から、放出ガンマ線エネルギーの全計数効率の推定に利用できる。低エネルギーを検出できる Ge の場合は、X 線とのサム効果を考慮する必要がある場合もある。Cs134 はどの放出ガンマ線もサム効果が見られる。604keV では、井戸型 Ge では同程度の減少が見られる。同軸型検出器表面密着測定でも 20-30% 程度の減少が見られる。

まとめ

井戸型検出器ではサム効果によるピーク面積の減少は特に大きく表れる。程度の差はあるが、同軸型、平板型 Ge 検出器についても同様の減少はあるので、これらの核種を測定する場合は考慮が必要である。ある程度のエネルギー範囲で全計数効率が推定できる場合は、見かけの効率の補正を算出することが可能である。

Correction of sum-coincidence on Ge detectors using nuclide mixed activity standard volume source

HAMAJIMA, Y.

HDEHP/HNO₃系における Bk と Md の溶媒抽出挙動

(阪大院理¹、東北大・電子光セ²、原子力機構先端基礎セ³) 鈿優香¹、
 ○笠松良崇¹、高山玲央奈¹、菊永英寿²、豊嶋厚史³、塚田和明³、浅
 井雅人³、佐藤哲也³、李子杰³、佐藤望³、菊池貴宏³、金谷佑亮³、永
 目諭一郎³、大江一弘³、小森有希子¹、吉村崇¹、高橋成人¹、篠原厚¹

【はじめに】 ランタノイド元素と Am 以降の No を除く重アクチノイド元素は全ての元素で化学的性質が似ており、相互分離も困難である。ただし、原子番号が 95 を超える重アクチノイド元素は、核電荷が大きく相対論的効果が強くなり、価電子にもその影響を及ぼすと考えられている。それゆえ、ランタノイドと重アクチノイドの化学的性質を詳細に、系統的に調べることは非常に興味深い。しかし、重アクチノイド元素は全て人工元素であり、半減期も原子番号の増加と共に短くなっていくため、化学実験が非常に難しく、実験データもほとんど得られていない。

本研究では、これまでに HDEHP を用いた溶媒抽出挙動を全ランタノイド元素と ⁹⁵Am, ⁹⁶Cm, ⁹⁸Cf, ⁹⁹Es, ¹⁰⁰Fm に至るまで系統的に調べてきた。今回、これまで製造が困難であった ⁹⁷Bk と ¹⁰¹Md を大強度の加速器を用いることで製造し、その溶媒抽出挙動を調べることができた。

【実験】 日本原子力研究開発機構のタンデム加速器を用いて ²⁴⁸Cm(¹¹B,4n)²⁵⁵Md 反応により ²⁵⁵Md を製造した。また、その副反応生成物として同時に ²⁵⁰Bk を製造した。生成物は照射中、連続して He/KCl ガスジェットシステムにより化学室まで迅速搬送され、実験に用いられた。一定時間生成物を捕集し、HDEHP 樹脂を用いたカラム分離により、まずは精製を行った。その後、200 μL の 0.1 M HNO₃ に溶解し、同体積の HDEHP ベンゼン溶液と混ぜ、10 分間振とうして溶媒抽出を行った。遠心分離により両相を分離し、蒸発乾固した後、Bk については γ 線測定、Md については α 線測定を行い、分配比 (D) を算出した。

【結果】 Bk と Md の分配比の抽出剤濃度依存性を同じ実験方法で得た他の重アクチノイドの結果と共に Fig. 1 に示す。同じ抽出剤濃度条件下では、Bk と Md の分配比の大きさは原子番号の順、つまりイオン半径の順番通りであった。また、他の元素と同様に log[(HDEHP)₂] に対する logD の変化は、傾きが +3 の良い直線性を示し、Bk と Md も脱プロトン化した HDEHP の 2 量体が 3 つ配位した錯体が有機相に抽出されていることが分かった。また、直線フィッティングから抽出定数を算出し、これまでのデータと合わせると、ランタノイドと同様にアクチノイドに対しても観測されていたテトラド効果がより明確になった。

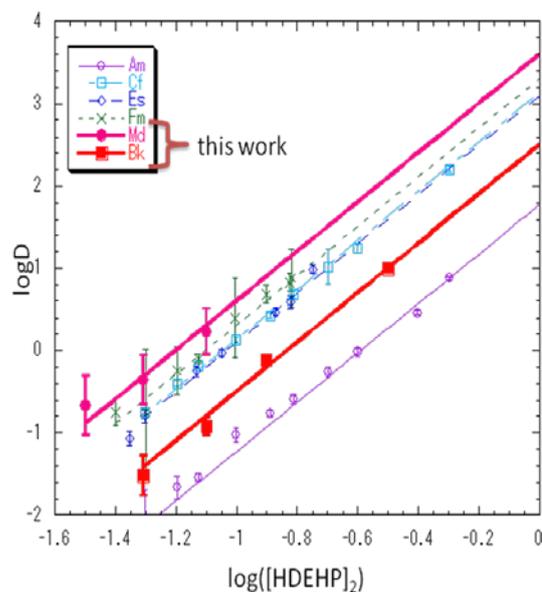


Fig. 1. Variation of log D of heavy actinide elements as a function of log [(HDEHP)₂].

Solvent extraction of Bk and Md into HDEHP from HNO₃ solution

KOGAMA, Y., KASAMATSU, Y., TAKAYAMA, R., KIKUNAGA, H., TOYOSHIMA, A., TSUKADA, K., ASAI, M., SATO, T. K., LI, Z., SATO, N., KIKUCHI, T., KANEYA, Y., NAGAME, Y., OOE, K., KOMORI, Y., YOSHIMURA, T., TAKAHASHI, N., SHINOHARA, A.

【緒言】亜鉛は生体必須微量元素の一つであり、体内では鉄について多く存在し、様々な酵素反応に関与する。我々は、実験動物としてマウスを用い、亜鉛欠乏時における微量元素とタンパク質の変化について研究を行ってきた。亜鉛欠乏症としては、味覚障害、嗅覚障害、皮膚炎、脱毛、成長障害等の症状がある。性腺機能障害もその一つであり、精子形成の減少や、睾丸の萎縮などが知られており、一般に長期の亜鉛欠乏状態に陥ると精子が形成されなくなることが知られている。本研究では、亜鉛欠乏群、対照群および欠乏状態に陥らせた後に亜鉛を投与した切り替え群、の飼育条件の異なるマウスを用意し、亜鉛欠乏における金属元素濃度と精巣中でのタンパク質の変化を、3群間で比較することにより調べることにした。

【実験】ICR系マウス（オス、8週齢）を、亜鉛欠乏餌を与える亜鉛欠乏群、対照餌を与える対照群、最初の1週間は亜鉛欠乏餌を与え次の1週間は対照餌を与える切り替え群の3群に分け、それぞれ2週間飼育した。飼育期間中、水および餌は自由に摂取できる状態にした。2週間の飼育後、精巣を摘出し、4頭分の精巣を一試料としてホモジナイズ（細胞破碎、均一化）を行った。その後、遠心分離による細胞分画を行い、サイトゾル画分を分離した。得られたサイトゾル画分をSDS-PAGEおよび二次元電気泳動法を用いて、タンパク質の分離、検出を行った。また、二次元電気泳動法後、3群間で差異がみられたスポットについてその部分のゲルを切りだし、PIXE分析を行った。

【結果・考察】SDS-PAGEの泳動パターンではタンパク質のバンドに明確な違いは認められなかったが、二次元電気泳動後の泳動パターンにおいては3群間で違いが確認できた(Fig.1)。対照群についての泳動後のゲルと、欠乏群でのそれとを比較すると、欠乏群ではスポットが見られなくなっている箇所がいくつか認められた。これは、亜鉛が欠乏したことにより、亜鉛が関わっている酵素が働けなくなり、それに伴ってタンパク質が生成されなかったか、構造が維持できなくなり分解されたのではないかと考えている。また、対照群に認められたスポットの中には、欠乏群では認められないが切り替え群では認められるもの、切り替え群と欠乏群の両方で認められないものがあった。このことは、欠乏からの回復時での、亜鉛が関わる酵素やタンパク質の合成に関する優先順位を示しているのではないかと考えている。

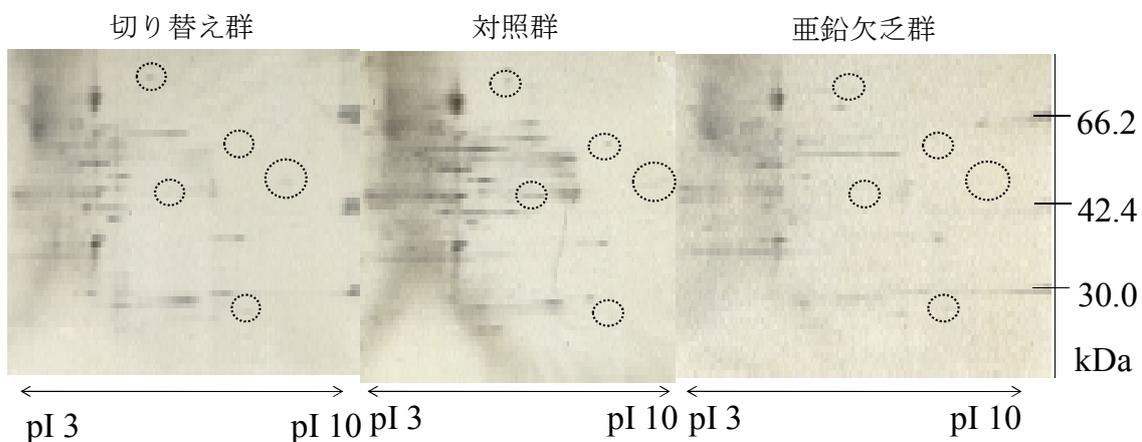


Fig.1 精巣の可溶性画分を二次元電気泳動後に銀染色したもの

Determination of trace elements and change of proteins in testes of zinc deficient mice

Tanaka, H., Shimoyama, H., Akiba, S., Ikeda, Y., Yanaga, M.

鳥取県東伯郡湯梨浜町方面東郷鉱山で産出した放射性鉱物の分析

(長浜バイオ大¹, 岡山大院自然², 阪大 RIC³) ○川瀬雅也¹, 山川純次²,
藤原裕子¹, 溝淵由紀¹, 斎藤 直³

【はじめに】

放射性物質を含む鉱物については、その生成過程や結晶構造に興味を持たれているが、試料を得ることが難しいため、これまであまり研究が進んでこなかった。今回、鳥取県東伯郡湯梨浜町方面(かたも)に存在した東郷鉱山方面坑道(1966年閉鎖)の内壁から1961年(昭和36年)4月に採集されていた試料よりγ線が放出されており、放射性鉱物であることが分かった。本試料は記載の特長によりβ-ウラノフェンを含むことが推定されたため、鉱物の同定と、それに含まれる放射性核種の分析を行ったので報告する。

【実験法】

β-ウラノフェンと考えられる鉱物を含む試料は堆積型ウラン鉱床に特徴的な複数の鉱物の集合体であったので、黒色の粒状鉱物が含まれていないバームクーヘン状の部分からβ-ウラノフェンと考えられる部分のみの測定試料を作成した。

鉱物の同定は岡山大学に設置の粉末X線回折(XRD)装置 (Rigaku Rad-C) にてXRDパターンを測定し、Rietveld解析により行った。

γ線スペクトルの測定は、約100 mg の試料をプラスチックチューブに入れ大阪大学ラジオアイソトープ総合センター豊中分館に設置されているγ線スペクトル測定装置(Ge 半導体検出器)を使用した。

【結果と考察】

β-ウラノフェン, $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{SiO}_3\text{OH}_2) \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ は産出が稀な含水カルシウムウラン珪酸塩鉱物で、ウランに富む鉱物の酸化により生成すると考えられている。ネソ珪酸塩の基本構造で単斜晶系に属する結晶構造を持っている。測定されたXRDパターンより放射能を持つ鉱物はβ-ウラノフェンである可能性が高いと考えられた。しかし、試料にはβ-ウラノフェン以外の鉱物も不純物として含まれており、現在、詳細なRietveld解析を行っている。またγ線エネルギー測定(図1)および、図1には示されていないが、1001keVの $^{234\text{m}}\text{Pa}$ からのγ線も弱いながら観測されたので、 ^{238}U 系列の核種が含まれていることが分かった。この結果より、試料がβ-ウラノフェンを含むことが強く示唆された。

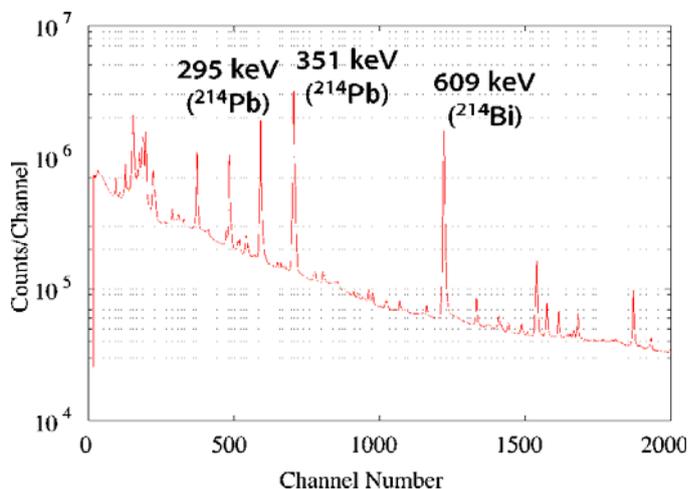


図1. β-ウラノフェンのγ線スペクトル

今後は、詳細な結晶構造解析を行うと共に鉱物の生成に関わる地球科学的な検討も進めていく予定である。

東シナ海表層海水の ^{226}Ra , ^{228}Ra および ^{228}Th 濃度の季節変動
 (金沢大 LLRL¹、中央水産研究所²、西海区水産研究所³、日本海洋科学振興財団⁴) ○井上睦夫¹、吉田圭佑¹、皆川昌幸²、清本容子³、小藤久毅⁴、長尾誠也¹、浜島靖典¹、山本政儀¹

[はじめに]

東シナ海表層では黒潮海水、大陸側表層海水さらには長江河川水が季節ごとおよび海域ごとに大きく異なった割合で混合した後、対馬海流として日本海へ流入、さらには津軽海峡、宗谷海峡を経て北太平洋、オホーツク海にもたらされる。本海域では季節的に表層海水循環が大きく異なるため、物質循環の解明には海流の季節変動を知ることが不可欠である。本研究では、東シナ海表層海水の ^{226}Ra , ^{228}Ra および ^{228}Th 濃度の季節変動および水平分布を調べ、東シナ海表層における海水および粒子循環を議論する。

[試料と実験]

Fig. 1 に示した 8 地点 (YKA-C, YKI-5) において 2008 年 2 月より 2010 年 7 月にわたり表層海水試料 (20 L) を 1-3 ヶ月に 1 回採取した。BaSO₄、Fe(OH)₃ 共沈により Ra、Th 同位体を回収、低バックグラウンド γ 線測定により、 ^{228}Ra 、 ^{226}Ra および ^{228}Th 濃度を求めた。

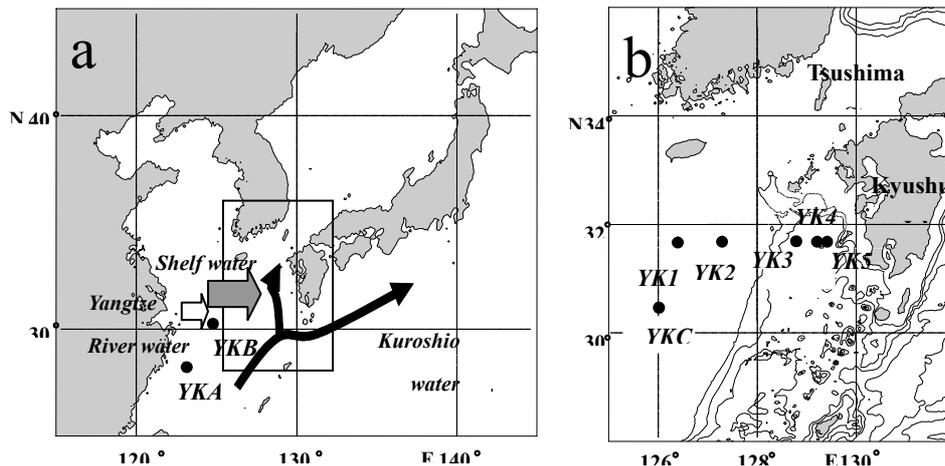


Fig.1 Locations of sampling sites for seawater samples

[結果と考察]

黒潮海水、大陸側表層海水、および長江河川水のエンドメンバーの核種 (特に濃度変動が大きく溶存性の ^{228}Ra) 濃度および塩分の設定により、東シナ海表層における 3 成分の混合比の見積もりが可能となる。本研究では、各採取地点における季節ごとの混合比を算出、その結果より、東シナ海表層の海水循環を議論する。一方、Th 同位体はスキャベンジングにより海水中より除去されるため、 $^{228}\text{Ra}/^{228}\text{Th}$ 比は粒子の挙動を探る指標となる。この $^{228}\text{Ra}/^{228}\text{Th}$ 比においても、東シナ海表層での季節変動および海域差が確認された。東シナ海東部表層における ^{228}Th のスキャベンジングメカニズム、さらには粒子の循環についても議論する。

Seasonal variations of ^{226}Ra , ^{228}Ra , and ^{228}Th activities in surface water from the East China Sea

INOUE, M., YOSHIDA, K., MINAGAWA, M., KIYOMOTO, Y., KOFUJI, K., NAGAO, S., HAMAJIMA, Y., YAMAMOTO, M.

$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^{137}Cs , 及び ^7Be を用いた九頭竜川における
河川懸濁粒子の流出挙動の推定

(金沢大学 LLRL¹) ○金森正樹¹, 長尾誠也¹, 落合伸也¹,
山本政儀¹

はじめに

陸域から沿岸海洋への物質動態においては、そのほとんどが河川を通して運搬が行われる。懸濁粒子の河川水中における濃度自体は非常に低いにもかかわらず粒子態で運搬される物質の割合は非常に高い。そのため、河川懸濁粒子の定性的な分析を行うことにより、陸域－沿岸海洋における物質動態の把握をすることが可能である。しかし、粒子態として運搬される物質が高いにもかかわらず懸濁粒子の絶対量の少なさから日本における研究例は少なく、流域スケールでの定性的な研究はほとんど行われていない。本研究では、福井県に位置する九頭竜川流域における物質動態を評価するために放射性核種である ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^{137}Cs をトレーサーとして検討することを試みた。

試料と方法

九頭竜川本流とその支流である日野川の各一地点において河川水約 120L を採取し、連続遠心法により懸濁粒子のみを回収した。その後、凍結乾燥、均質化を行なった試料についてゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーにより、 ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, 及び ^{137}Cs の定量を行なった。

結果と議論

流量と懸濁粒子濃度の相関性は、九頭竜川本流と支流の日野川において大きく異なり、九頭竜川と日野川でも懸濁粒子の流量に対する応答性は河川特性により違いが生じることが観察された。九頭竜川、日野川共に $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ の濃度は、懸濁粒子濃度の増加と共に増加傾向を示したのに比べ (図 1 a)、 ^{137}Cs の濃度は懸濁粒子濃度に関係なく一定値となった (図 1 b)。また ^7Be の濃度は九頭竜川と日野川において大きな違いが見られ、九頭竜川では懸濁粒子濃度の増加と共に増加したが、日野川では懸濁粒子濃度の増加とは逆に減少していった (図 1 c)。これらのことから河川に負荷される懸濁粒子、またそれに起因する三核種の放射能濃度は河川流域環境や水の供給経路、その流出プロセス等の特徴に関連して変動することが明らかになった。

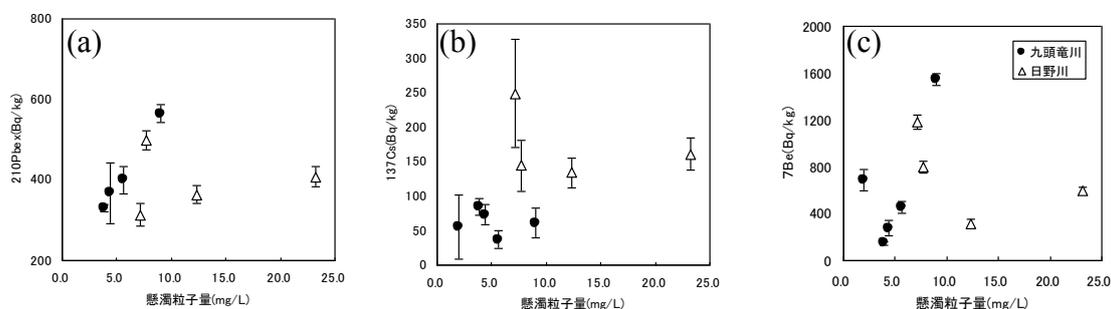


図 1 懸濁粒子量と放射能濃度の関係 (a) $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (b) ^{137}Cs (c) ^7Be

Investigation on Transport Behavior of River Suspended Solids in Kuzuryu River Basin using $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^{137}Cs , ^7Be as tracers: Kanamori, M., Nagao, S., Ochiai, S., Yamamoto, M.

高塩分温鉱泉のラジウム同位体

(金沢大学 LLRL¹, 幌延地圏環境研究所², 富山大理³, 北海道立総合研究所⁴)
 ○高田貴裕¹, 山本政儀¹, 長尾誠也¹, 玉村修司², 富田純平¹, 張 勁³, 秋田藤夫⁴

はじめに

温鉱泉水中の Ra 同位体の研究はこれまで多数行われてきた。日本国内では花崗岩地帯に胚胎する有馬温泉(6.2Bq/kg)や増富温泉(1.4Bq/kg)、ウラン鉱床付近に胚胎する三朝温泉(0.55Bq/kg)などで高濃度の ²²⁶Ra が見出されている。一方、海外においては高塩分地下水から 100Bq/kg を超える高濃度 ²²⁶Ra が見出されている。近年、日本国内において大深度の掘削が可能となったことで、沿岸域において高塩分の熱水が得られるようになり、温泉として利用されている。我々は先行研究で石川・富山・新潟の沿岸域から得られる高塩分の地下水において ²²⁶Ra が比較的高濃度に含まれることを見出し、その成因について議論を行ってきた。しかし、高塩分地下水における高濃度 Ra の成因については不明な点が多く、さらに検討する必要がある。そこで本研究は、高塩分の温鉱泉が多数点在する北海道西部を対象とし、塩分と ²²⁶Ra 濃度との関係をさらに検討するとともに、フィールドでの塩分と ²²⁶Ra 濃度との関係を明らかにするために、種々の塩分下での Ra の鉱物への吸着トレーサー実験を行った。

実験方法

温泉水試料は源泉に近いところから 20L 採水し、U,Ra 同位体を Fe,Ba 共沈にて分離・精製し、 α 線および γ 線測定を行った。また温泉水を別途 100mL 採水したものをイオンクロマトグラフと質量分析計(富山大)にて主要溶存イオンと水素・酸素安定同位体比の測定、0.1M 硫酸を用いて pH4 アルカリ度の測定も行った。先行研究で Ra 同位体濃度の高かった神恵内温泉については掘削コアサンプル(地下 1100m地点)の

U,Ra 同位体の測定も行った。

鉱物への Ra の吸着実験は 50mL 遠沈管によるバッチ式とした。鉱物試料を 0.01g、0.1g および 1g(ゲータイトは 0.5g)を 0.001M、0.01M、0.1M、0.5M、1M の NaCl 溶液 30mL に加え、pH を 5.0 ~ 5.5 に塩酸で調整し、²²⁶Ra を添加して 2 日間攪拌させた。攪拌後、遠心分離とろ過を行って γ 線測定を行った。

結果と考察

測定した温泉水の主要溶存イオンおよび水素・酸素安定同位体比の検討から今回得られた温鉱泉水は天水と化石海水または海水の混合に由来すると推測された。²²⁶Ra および ²²⁸Ra 濃度はそれぞれ、10~5097mBq/kg、15~7700mBq/kg であり、神恵内温泉において、これまでの研究を含めた中で最高の 5097mBq/kg の値を得た。この温泉の ²²⁸Ra/²²⁶Ra 放射能比は 1.46 で、掘削コアの ²²⁸Ra/²²⁶Ra 放射能比は 1.32 であった。塩分濃度と ²²⁶Ra は概ね正の相関が認められた。Ra と鉱物を用いた吸着実験により、用いた鉱物の種類によらず、塩分濃度が低いと分配係数が大きくなり、逆に塩分濃度が高くなると分配係数が小さくなることが明らかとなり、フィールドでの結果とも矛盾しない結果を得た。



Radium isotopes in high saline groundwater

T.Takada,M.Yamamoto,S.Nagao,S.Tamamura,J.Tomita,J.Zhang ,F.Akita

【背景と目的】

近年、流域保全の観点から流域スケールでの粒子輸送動態把握の重要性が高まっており、そのトレーサーとして放射性核種を利用した研究例が報告されている。また、現在、全国的に労働者不足による里山の荒廃が進んでおり、管理放棄された森林(放棄林)や水田(放棄田)が増加している。放棄林では日照量不足で地表が裸地化するために雨滴衝撃による表土削剥を受けやすくなり、降雨時の土壌流出が増大する可能性が指摘されている。そこで本研究では里山の荒廃が進行中である石川県七尾市熊木川流域において、 ^{137}Cs 及び $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ をトレーサーとして用いて粒子動態の現状を評価することを試みた。

【試料採取と実験】

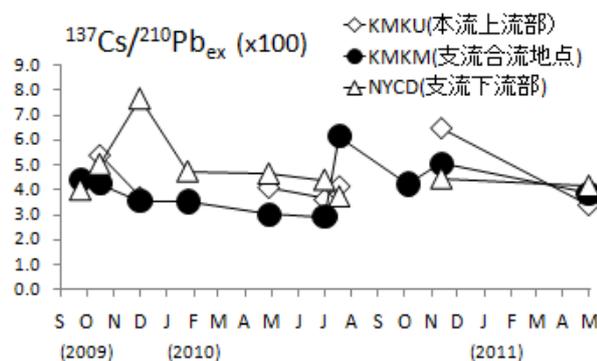
熊木川流域は、里山放棄が進んでいる熊木川本流と、比較的管理林や水田の多い支流の西谷内川から構成されている。月に一回程の頻度で、各々の源流部から合流後までの数地点で河床堆積物を採取した。また主な粒子供給源と考えられる森林、水田、放棄田、放棄林で表層から深さ 20~25cm 程度まで土壌試料を採取した。更に、河川懸濁粒子を採取するために河川水の大量採水を行い、連続遠心分離により試料を得た。これらは凍結乾燥後、土壌は 2mm、河床堆積物は 63 μm の篩にかけたものを均質化し測定試料とした。試料は当研究室の Ge 半導体検出器で γ 線スペクトルを測定し、 ^{137}Cs 及び $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ を定量した。

【結果と考察】

土壌表層 0-5cm の各測定値を Table.1 に示す。森林土壌において、根が露出するほどの侵食が起きていた放棄林では ^{137}Cs 濃度及び $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ の減少が見られた。水田土壌では土壌攪乱により ^{137}Cs 及び $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 濃度の減少と鉛直方向の均質化が顕著に見られた。表層 5cm の $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ は管理林より低く、特に放棄田表層 0-5cm では極めて低い値を示した。河床堆積物の測定結果を Fig.1 に示す。合流地点である KMKM、及び支流の NYCD では水田が卓越しており、年間を通してその寄与が多いために低い $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ が得られたと考えられる。本年度では、河川懸濁粒子の結果と合わせ、季節や降雨ごとの $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ の経時変化及び空間変化をより総合的に議論する予定である。

Table.1 Results of ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ from surface soils.

土地利用形態	$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$	^{137}Cs	$^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$
(表層0-5cmの値)	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[100x]
放棄林・管理林	490~777	51~75	9.5+0.5~13.5+0.4
放棄林 (程度大)	327~557	22~24	4.0+0.2~7.5+0.5
水田	159~167	7.5~11	4.8+0.5~6.8+0.5
放棄田	207~221	5.0~7.9	2.4+0.2~3.5+0.3

Fig.1 $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ activity ratio ($\times 10^2$) of bed sediments.

【緒言】 核融合炉ではトリチウム製造の材料としてリチウム化合物が使用される。特に、リチウムタイタネート(Li₂TiO₃)はこのトリチウム増殖材として期待されている物質の1つである。核融合炉ではトリチウム増殖材を高温かつ乾燥状態で使用する。一方、リチウム化合物は雰囲気中の水や二酸化炭素と容易に反応するという性質が知られている。よって、湿潤空気下で保存されたLi₂TiO₃を、核融合炉で使用するときと同様に加熱した際の変化を知ることが重要である。このため、本実験では湿潤空気下で保存し水を吸収したLi₂TiO₃の熱重量測定(TG測定)を行った。そして、加熱に伴う重量変化を固体の反応モデルを用いて検討することを目的とした。

【実験】 Li_{2.0}TiO₃、Li_{2.2}TiO₃、Li_{2.4}TiO₃の3種類のリチウムタイタネートそれぞれの乾燥試料と湿潤空気下で保存した試料についてTG測定を行った。また、Li_{2.4}TiO₃についてはTG-GC-MS測定も行った。これらの測定は100 cm³/minのヘリウム流通下で、室温から800 °Cの温度範囲で行なった。また、昇温速度はTG測定では5 °C/min、10 °C/min、20 °C/minとし、TG-GC-MS測定では10 °C/minとした。

【結果と考察】 測定により得られたリチウムタイタネートのTG曲線を図1に示す。乾燥試料及びLi_{2.0}TiO₃湿潤試料では重量変化はほとんど見られなかった。一方、Li_{2.2}TiO₃、Li_{2.4}TiO₃湿潤試料は3段階での重量減少が観測された。これは、加熱開始から約15分(170 °C)までの減少(step1)と、それに引き続く約22分(245 °C)までの減少(step2)、最後に加熱から約60分(600 °C)から始まる減少(step3)である。TG-GC-MS測定より、これらの重量減少を引き起こす放出ガスは、step1及びstep2ではH₂Oであり、step3ではCO₂であると同定された。これらのガス放出がどのような機構で起こったか解明するために、Coats-Redfern法とOzawa法を用いて速度論的解析を行った。その結果、step1では球体の試料表面から内部へ拡散過程を律速としてH₂Oが放出され、step2では一次の脱水反応を律速としてH₂Oの放出が進んだことが示唆された。即ち、step1では吸着水あるいは結晶水が脱離し、step2では化学吸着種のOHあるいはOH基を含む化合物の分解が起こったと考えられる。また、step3でのCO₂の放出は、Li₂CO₃の融点が618 °CであることからLi₂CO₃の融解と分解によるものであると説明できる。なお、得られた活性化エネルギーはstep1で約70 kJ/mol、step2で約100 kJ/molであった。

この研究は科研費20246131の助成のもと行われた。

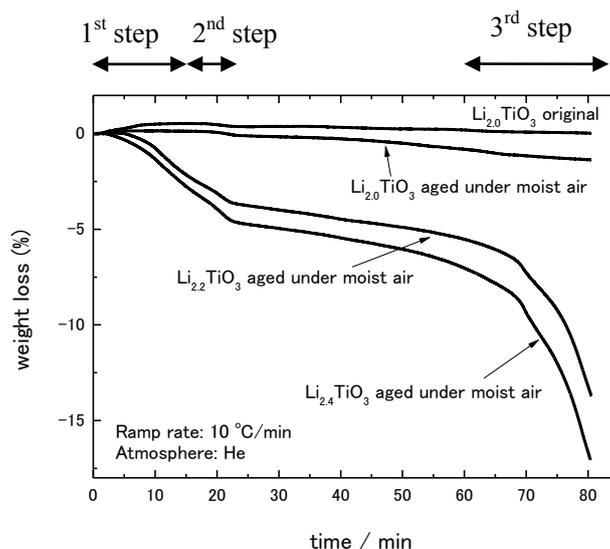


図1 リチウムタイタネート(乾燥・湿潤試料)の昇温速度10 °C/minでのTG曲線