

研究発表要旨

ポスター発表

P01-P64 ポスター会場

P01

Development of correction methods for time-of-flight prompt gamma-ray analysis at ANNRI

(JAEA¹, 首都大学東京²)○黄 明輝¹、藤 暢輔¹、海老原充²、木村敦¹、中村詔司¹

【Introduction】 In J-PARC, the Accurate Neutron-Nucleus Reaction measurement Instrument has been available for time-of-flight (TOF) prompt gamma-ray analysis (PGA) by using a pulsed neutron beam. Prompt gamma-ray, neutron TOF and the TOF-PGA spectra can be obtained simultaneously for multi-element determination. However, the number of events given by data acquisition system is generally not proportional to the sample weight due to many factors, such as the data acquisition efficiency, neutron attenuation and gamma-ray attenuation. In this study, the effects of these factors on Fe and Ag samples were examined. Calibration method and simulation model have been developed to evaluate the correction factors.

【Experiment and determination of correction factors】 A set of 10×10 mm² iron plates and 5×5 mm² silver plates were irradiated by the 25-Hz pulsed neutron beam which was generated by 400-kW proton beam in J-PARC. The thicknesses of iron and silver plates were 0.1-6.0 mm and 0.01-1 mm, respectively. Each sample was wrapped in a 25- μ m thick FEP (fluorinated ethylene propylene) bag and measured for 1-4 h in vacuum condition at ambient temperature. Prompt gamma-rays were detected by two Ge cluster detectors. A 5.3-kHz random pulse generator was used to determine the live time of data acquisition (τ). The data acquisition efficiency in live time (δ) was calibrated with the data obtained by 6-mm thick iron sample. Neutron attenuation (NA) and gamma-ray attenuation (GA) in each sample were simulated by the PHITS code.

【Results】 An example of the corrections for gamma-ray counts is illustrated in Figure 1. The original data points (black solid points) distribute on a deformed curve. By the corrections of τ , δ , NA and GA, the data points shown by red square circles lie on a straight line which passes through the zero point. The maximum deviation of the data points from the linear fitting is less than 5%. Therefore, a good linear relation between the corrected data and sample weights is found. The accuracy of the corrected data is sufficient for quantitative analysis.

This work was supported in part by Grants-in-Aid for Scientific Research (25246038).

Development of correction methods for time-of-flight prompt gamma-ray analysis at ANNRI
HUANG M., TOH Y., EBHARA M., KIMURA A., NAKAMURA S.

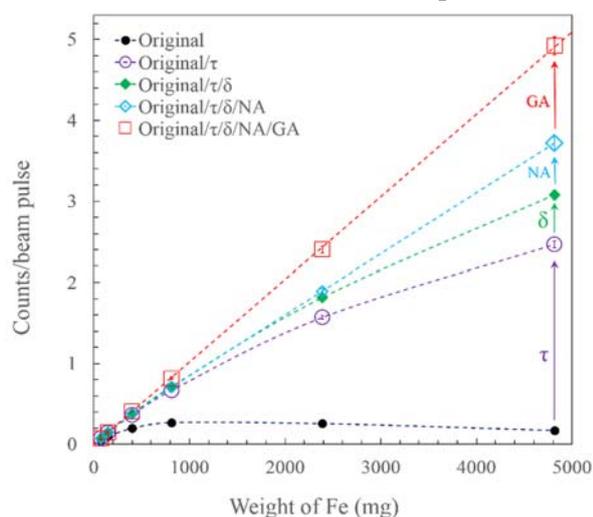


Figure 1. Corrections for the counts of 352-keV γ -rays of Fe. The original experimental data are shown by black solid points. The neutron energy range is 3.55-3.80 meV.

【緒言】酢酸-酢酸アンモニウム緩衝液(pH=4.7)によって消費される交換性陽イオン(Ca, Mg, Na, K)は土壌の酸中和能(Acid Neutralization Capacity, ANCc)に関与し、酸性雨に対する土壌の耐性を示す指標の一つとなる。山林地域など自然環境における土壌の酸中和能に関する研究は多くあるが、各国の都市域間の酸中和能を比較した研究は少ない。本研究では中国(北京、上海)と日本の都市域(東京)における各土壌の ANCc に基づいて、地域因子及び有機物含有量との関連性を解明することを目的にした。土壌中の交換性陽イオンの元素量を測定し、酸中和能として効いている元素量の割合及び溶出順について検討を行い、各都市間の違いを明らかにした。

【実験】東京、上海と北京の都心部及び郊外の山林地域で試料を採取した。比較対象として自然環境の豊かな屋久島の土壌試料も採取した。採取した試料を 110℃で乾燥して粉碎し、一部を機器中性子放射化分析(INAA)及び酸分解により全元素量を測定した。もう一部を酢酸-酢酸アンモニウム緩衝液で抽出し、ICP-AES で測定して ANCc を算出した。

【結果と考察】

4 種類の交換性陽イオンのうち、Ca と Mg の寄与がいずれの地域においても ANCc の 90%以上を占めていた。地域別に見ると、北京の ANCc は一番高い(Fig.1)。北京には黄砂由来の炭酸カルシウムの量が多いため、表層の交換性 Ca が消費されても深層には十分な CaCO₃ が残っているため、ANCc が高くなっていると推定された。一方、屋久島は花崗岩によって形成されており、また降水量が多いため、土壌中の交換性陽イオンが非常に少なく、低い ANCc を得たと考えられる。

土壌中交換性陽イオンの元素総量を Fig.2 に示す。ANCc として溶出してくる元素量の割合を Fig.3 に示す。溶出率は、Na と K は 1%程度しかないのに対し、Ca と Mg は大きく、そのため ANCc への寄与が大きくなったと推定された。また、酸中和能の回復メカニズムを解明するために有機物含有量を調べた。山林地域の高尾山と小昆山では落葉樹の葉を通して土壌の ANCc が補充されることが分かったが、都心部では有機物含有量と ANCc の相関が見えなかった。特に北京では黄砂が運ばれ続け、植物ではなく炭酸塩で ANCc を維持するメカニズムが示唆された。

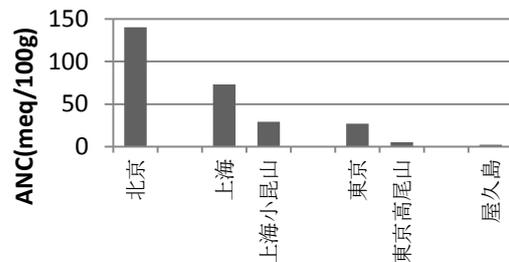


Fig.1 地域別土壌の ANCc

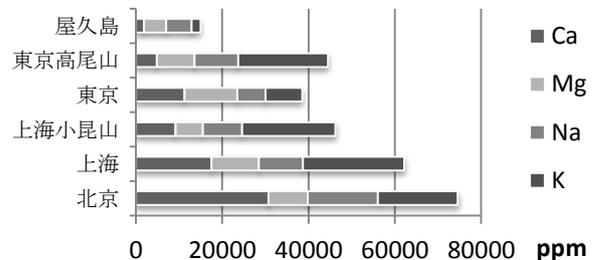


Fig.2 土壌中交換性陽イオンの元素総量

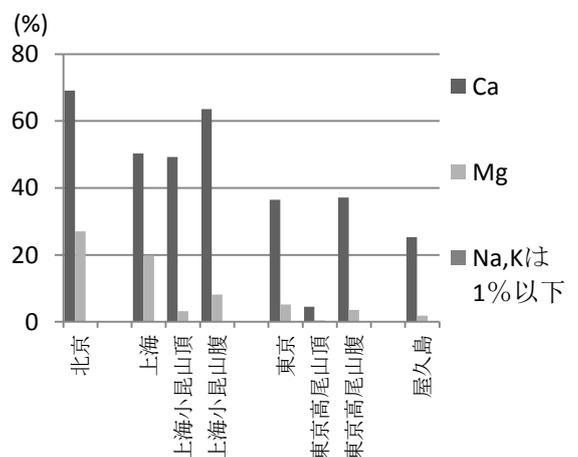


Fig.3 地域別土壌の ANCc/元素量

A study on element concentration and acid neutralization capacity of soil at urban areas
XU, F., SHOZUGAWA, K., MATSUO, M.

P03

核合成に関わる $^{142}\text{Nd}(p, \gamma)^{143}\text{Pm}$ 反応と $^{143}\text{Nd}(p, n)^{143}\text{Pm}$ 反応の断面積測定 —p 核 ^{144}Sm の同位体組成解明を目指して—

(金沢大院自然¹、清水建設²、阪大院理³、金沢大理工⁴) ○林 和憲¹、
上野慎吾¹、木下哲一²、高橋成人³、横山明彦⁴

【緒言】 現在太陽系に存在する元素の内、鉄より重い元素の大半は遅い中性子捕獲反応や速い中性子捕獲反応によって元素合成される。しかし一部には中性子捕獲プロセスでは生成されない中性子欠乏核(p 核)が存在する。我々のグループではプロトン捕獲を主体とする経路に着目し、質量数 130-150 の同位体組成の解明に向けた研究を行ってきた。本研究ではプロトン捕獲による ^{144}Sm の元素合成経路である $^{142}\text{Nd}(p, \gamma)$ および $^{143}\text{Nd}(p, n)$ 反応についての核反応断面積測定を行い、理論計算の精度の検証を行った。また、理論計算による核反応断面積データを実験値に合うように補正し、 10^9K のオーダーにおけるプロトン捕獲による ^{144}Sm 生成に関するネットワーク計算を行った。本発表では $^{142}\text{Nd}(p, \gamma)$ および $^{143}\text{Nd}(p, n)$ 反応断面積の実験データ、および核反応断面積の理論計算と実験値の差が及ぼす ^{144}Sm 存在量への影響について報告する。

【核反応断面積測定】 大阪大学核物理研究センターにて、スタック法によるビーム照射実験を行った。酸化ネオジウム濃縮同位体（濃縮度 ^{142}Nd : 99.99 % , ^{143}Nd : 83.50 %）をそれぞれ高純度アルミニウム箔に電着することで調製された電着ターゲット（厚さ $0.21\text{--}0.26\text{ mg/cm}^2$ ）に、14 MeV のプロトンビームを照射し、4.1-7.6 MeV における $^{142}\text{Nd}(p, \gamma)$ および $^{143}\text{Nd}(p, n)$ 反応断面積を得た。測定値と TALYS コードを用いた計算値との比較を図 1 に示す。 $^{143}\text{Nd}(p, n)$ 反応は理論計算と良く一致したが、 $^{142}\text{Nd}(p, \gamma)$ 反応は低エネルギー側で理論計算よりも約 3 倍大きな値となった。

【元素合成環境における ^{144}Sm 存在量のネットワーク計算】 s プロセスで生成する Nd 同位体への (p, γ) 反応と (p, n) 反応および熱分解による (γ , n) 反応を考慮し、 ^{144}Sm 同位体組成の時間変化のネットワーク計算を行った。このネットワーク計算に用いた核反応断面積は実験値に合うように、(p, γ) 反応には TALYS により得られた断面積を 3 倍した用い、(p, n) 反応および (γ , n) 反応には TALYS による断面積をそのまま用いた。プロトンが 1000 g/cm^3 の密度で存在する $1.5 \times 10^9\text{ K}$ の環境を仮定すると、約 3 秒間元素合成時間が持続すれば現在の天然の同位体組成を再現できた(図 2)。

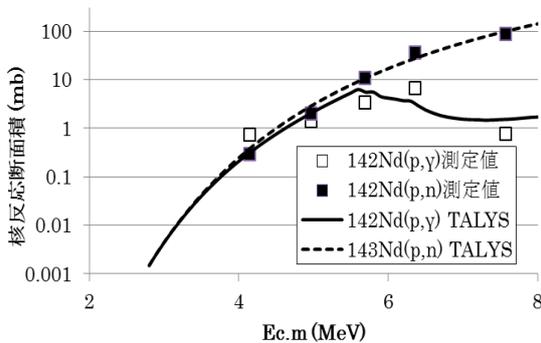


図 1 核反応断面積

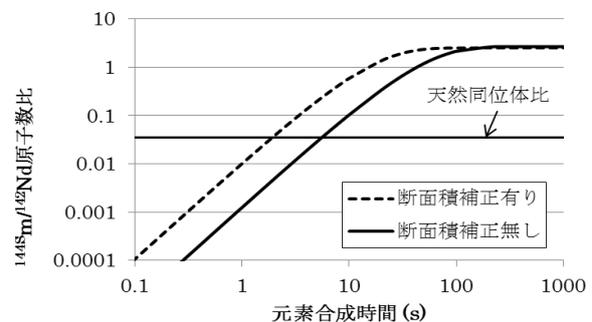


図 2 元素合成温度 $1.5 \times 10^9\text{ K}$ における $^{144}\text{Sm}/^{142}\text{Nd}$ 同位体比の時間変化

Cross section measurement of $^{142}\text{Nd}(p, \gamma)^{143}\text{Pm}$ and $^{143}\text{Nd}(p, n)^{143}\text{Pm}$ reactions at astrophysically relevant energies: Study for understanding isotopic abundance of p-nuclei ^{144}Sm
HAYASHI, K., UENO, S., KINOSHITA, N., TAKAHASHI, N., YOKOYAMA, A.

P04 超重元素の気相化学実験における標準としての BiCl_3 の利用

(新潟大院自然¹、新潟大理²)○白井香里¹、浅井貴裕¹、南波佑¹、
青野竜士¹、後藤真一¹、大江一弘¹、工藤久昭²

【緒言】 超重元素の化学研究手法の一つであるガスクロマトグラフ法における揮発性化合物の吸着エンタルピー ΔH_a は多くの場合、実験データを再現するようなカラム通過挙動をシミュレーションすることにより決定されている。しかし、実験条件や装置定数を正確に見積もることは困難であるため、得られた吸着エンタルピーの正確度を検証する必要がある。そこで当研究室では、比較的揮発性の高い塩化ビスマス (BiCl_3) を用いて実験装置の較正を行うことを検討してきた。ビスマストレーサーとして、Th 系列から ^{212}Bi ($t_{1/2} = 60.56 \text{ min}$) を容易に得ることができるという利点もある。本研究では、 ^{212}Bi を用いた BiCl_3 の等温ガスクロマトグラフ挙動を詳細に測定した。

【実験】 BiCl_3 が等温ガスクロマトグラフィに適した化合物なのかを確かめるために、マクロおよびトレーサースケールで実験を行った。実験装置は約 50 cm の石英管を 2 台の電气管状炉で加熱出来るようにしたもので、 BiCl_3 を揮発させる部分と等温カラム (長さ 30 cm、内径 4 mm) からなる。 BiCl_3 を 2M 塩酸溶液に溶解し ^{212}Bi トレーサーを加えた溶液 (トレーサースケール実験ではトレーサーのみ) をカーボンフィルターに浸透させ、揮発部に試料を導入し、100 °C に加熱して一定時間乾燥させた後、500 °C まで昇温することで BiCl_3 を揮発させた。He 気流によって運ばれた BiCl_3 は 100–130 °C に設定された等温カラムをとおり水冷却捕集部にて一定時間捕集した。 ^{212}Bi からの γ 線を Ge 半導体検出器で一定時間ごとに測定し累積収率を得た。

【結果】 導入した試料のうち揮発性化合物として捕集できた割合は、マクロスケールで 80–90 %、トレーサースケールで約 50 % であった。結果の一例としてトレーサースケールにおける累積収率の時間変化を図 1 に示す。図中の実線は従来のモンテカルロシミュレーションによる解析結果で、得られた吸着エンタルピー ΔH_a は約 -76.2 kJ/mol であった。この結果より BiCl_3 をガスクロマトグラフィ実験装置の較正に使用できることが分かった。発表ではマクロスケールとトレーサースケールの結果の比較、およびさらに詳細なクロマトグラフィ挙動の解析結果を報告する。

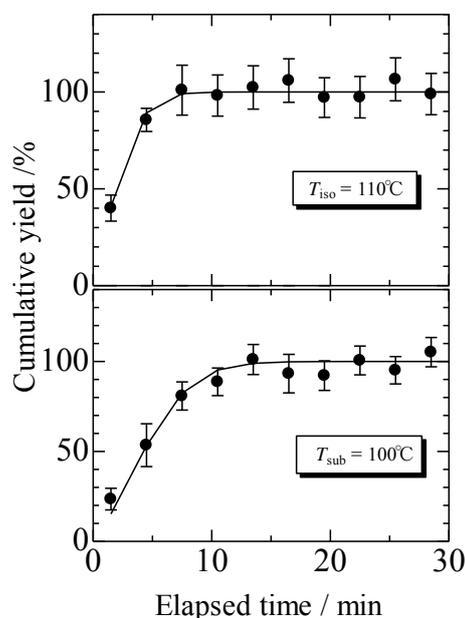


図 1. トレーサースケールでの BiCl_3 の等温クロマトグラフィ挙動

Utilization of BiCl_3 as standard for gas phase chemistry of superheavy elements
SHIRAI, K., ASAI, T., NAMBA, Y., AONO, R., GOTO, S., OOE, K., KUDO, H.

P05

Rfの溶液化学実験に向けた同族元素 Zr, HfのHDEHPによる溶媒抽出挙動

(新潟大院自然¹、理研仁科セ²、東北大電子光セ³、新潟大理⁴) ○山田亮平¹、大江一弘¹、村上昌史¹、羽場宏光²、小森有希子²、菊永英寿³、後藤真一¹、工藤久昭⁴

【緒言】 これまでのラザホージウム (Rf) の溶液化学実験においては、フッ化物イオンや塩化物イオンなどの無機配位子との錯形成について、同族元素であるジルコニウム (Zr) とハフニウム (Hf) との比較を基に研究されてきている[1]。これに対し、有機配位子を用いた Rf の溶液化学実験の報告例は非常に少なく、Rf の有機配位子との錯形成の調査は非常に興味深い。当研究室では Rf の溶液化学実験に向け、無担体 Zr, Hf トレーサーを用いたテノイルトリフルオロアセトン (TTA) による溶媒抽出挙動を調査してきた[2]。本研究ではウランや希土類元素の溶媒抽出によく用いられる抽出剤であるジ-2-エチルヘキシルリン酸 (HDEHP) による溶媒抽出実験を行ったので報告する。

【実験】 東北大学及び理化学研究所の AVF サイクロトロンを用い、⁸⁹Y 標的と ^{nat}Lu 標的に 16 MeV の陽子または 24 MeV の重陽子ビームを照射し、⁸⁸Zr ($T_{1/2} = 83.4$ d) 及び ¹⁷⁵Hf ($T_{1/2} = 70$ d) を製造した。製造したトレーサーは陰イオン交換分離法を用いて標的から分離、精製し、1 M 過塩素酸溶液中に保存した。トレーサー溶液 1 μ L を含む過塩素酸溶液 600 μ L と HDEHP/トルエン溶液 600 μ L を 1.5 mL テフロンサンプルチューブに入れ、25 $^{\circ}$ Cにおいて振盪を行った。遠心分離後各相 420 μ L を分取し、 γ 線スペクトロメトリーを行った。

【結果と考察】 分配比 D の振盪時間依存性を調べたところ、1 M 過塩素酸- 1.75×10^{-3} M HDEHP/トルエン系において、⁸⁸Zr では 10 分、¹⁷⁵Hf では 30 分で分配比が一定となった。また、⁸⁸Zr、¹⁷⁵Hf の 1 M 過塩素酸からの分配比の HDEHP 濃度依存性を図 1 に示す。TTA を用いた溶媒抽出では、Zr の分配比が Hf の分配比よりも高いという結果が出ているが[2]、HDEHP-過塩素酸系では Hf の分配比が Zr よりも高いという興味深い結果となり、水相を硫酸にした際にも同様の結果が報告されている[3]。また、図 1 より $\log D$ vs. $\log [(HDEHP)_2]$ プロットの傾きが 3 となった。一般に過塩素酸イオンの配位は無視できることから、1 M 程度の酸濃度では Zr^{4+} 、 Hf^{4+} の加水分解種に HDEHP が配位して抽出されているのではと考えられる。発表では水相に硝酸を用いた際の結果と水相の酸濃度を変化させた際の結果についても報告する。

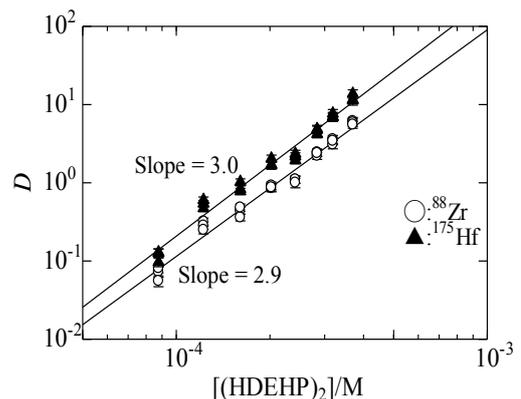


図 1. 1 M 過塩素酸における ⁸⁸Zr、¹⁷⁵Hf の分配比の HDEHP 濃度依存性。

[1] A. Türlér and V. Pershina., *Chem. Rev.* **113** (2013) 1237.

[2] A. Tanaka, Master's thesis, Niigata Univ., (2015).

[3] M. S. Lee et al., *J. Chem. Technol. Biotechnol.* **89** (2014) 1712

Solvent extraction behavior of Zr and Hf with HDEHP for aqueous chemistry of Rf
YAMADA, R., OOE, K., MURAKAMI, M., HABA, H., KOMORI, Y., KIKUNAGA, H., GOTO, S., KUDO, H.

ドブニウム (Db) の化学実験に向けた 5 族元素 Nb, Ta の塩化物錯体のトリイソオクチルアミンによる抽出挙動

(新潟大院自然¹、理研仁科セ²、新潟大理³) ○ 本山李沙¹、大江一弘¹、村上昌史¹、羽場宏光²、後藤真一¹、工藤久昭³

【緒言】 当研究室では 105 番元素ドブニウム (Db) の化学的性質の解明を目指し、同族元素 Nb, Ta のフッ化物錯体の TBP および Aliquat 336 による溶媒抽出実験を行ってきた[1,2]。これらの抽出系は Ta よりも Nb の抽出率が非常に低いが、Db の挙動は Nb に類似していると示唆されている[3]ため、Nb の抽出率が高い系において Db の挙動を調査することは、Db の錯形成について議論する上で興味深い。そこで本研究では、マクロ量での実験において Ta よりも Nb の抽出率が高いと報告されている塩化物錯体のトリイソオクチルアミン (TiOA)[4] による溶媒抽出挙動について調査した。この抽出系では、トレーサー溶液の調製方法が重要であることが明らかになってきており、調製法が溶媒抽出の結果に与える影響についても報告する。

【実験】 理研 AVF サイクロトロンにて $^{nat}\text{Zr}(d,xn)$, $^{nat}\text{Hf}(d,xn)$ 反応によって ^{95}Nb ($T_{1/2} = 34.991$ d), ^{179}Ta ($T_{1/2} = 1.82$ y) トレーサーを製造し、陰イオン交換分離により精製した。精製したトレーサーを 1 M フッ化水素酸溶液に溶解し、適量を蒸発乾固させて濃塩酸中に保存した (ストックソリューション)。実験に用いる際は、一旦蒸発乾固させて目的濃度の塩酸溶液に溶解させて使用した。トレーサーを含む塩酸溶液と、TiOA/キシレン溶液の等量をポリプロピレン試験管内で混合し、25 °C に設定した恒温槽中で一定時間振盪した。遠心分離後、各相を一定量分取し、Ge 半導体検出器で X 線および γ 線の測定を行い、水相と有機相の放射能比より分配比 D を算出した。

【結果と考察】 水相に 8, 9, 10 M HCl、有機相に 0.12 M TiOA を用いて抽出を行ったところ図 1 のような結果が得られ、Nb の方が Ta より高い抽出率を示すことがわかった。しかし、トレーサーを濃塩酸中に保存後、時間経過とともに Ta の分配比が低下していくことがわかった (図 2)。原因調査のため様々な方法でトレーサーを調製したところ、調製法によって分配比および回収率に違いが見られた。原因としては、ストックソリューション中での加水分解や、わずかに残るフッ化物イオンの影響などが考えられ、さらに詳細な調査を進めているところである。

[1] S. Tsuto *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. **47**, 270 (2014).

[2] D. Sato *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. **47**, 271 (2014).

[3] Y. Kasamatsu *et al.*, Chem. Lett. **38**, 1084 (2009).

[4] T. Ishimori *et al.*, 日本原子力学会誌 **3**, 698 (1961).

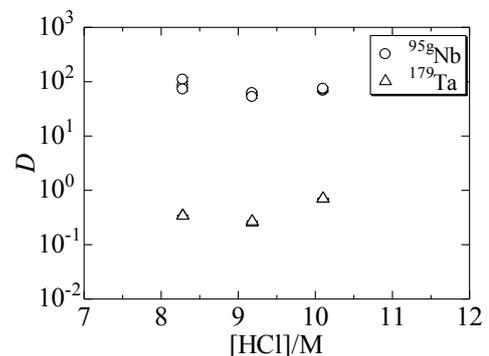


図 1. Nb と Ta の分配比の塩酸濃度依存性。

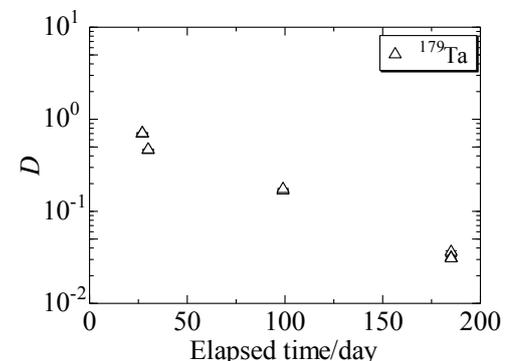


図 2. ストックソリューション調製からの経過日数と分配比の関係。

Extraction behaviors of chloride complexes of Nb and Ta with triisooctyl amine for chemical experiment of dubnium (Db)

MOTOYAMA, R., OOE, K., MURAKAMI, M., HABA, H., GOTO, S., KUDO, H.

P07

105番元素 Db の化学実験のための Aliquat 336 樹脂を用いた Nb, Ta のフッ化水素酸中からの固液抽出

(¹新潟大院自然、²理研仁科セ、³原子力機構、⁴東北大電子光セ、⁵新潟大理) ○佐藤大輔¹、村上昌史¹、大江一弘¹、本山李沙¹、羽場宏光²、小森有希子²、豊嶋厚史³、水飼秋菜³、菊永英寿⁴、後藤真一¹、工藤久昭⁵

【緒言】 本研究では Db のフッ化物錯形成を検討するため、これまでに Db のより軽い同族元素である ^{95g}Nb, ¹⁷⁹Ta トレーサーを用いてフッ化水素酸溶液からのイオン対抽出剤 Aliquat 336 による溶媒抽出実験を行ってきた[1]。Db の化学実験では自動迅速化学装置 ARCA を用いた逆相クロマトグラフィー実験を行う予定であり、Aliquat 336 を担持した樹脂を調製し、バッチ法によるフッ化水素酸溶液からの Nb, Ta の固液抽出実験を行ったので報告する。

【実験】 実験に用いた ^{95g}Nb($T_{1/2}=35$ d)と ¹⁷⁹Ta($T_{1/2}=665$ d)は理研と東北大の AVF サイクロトロンを用いて Zr, Hf の金属箔標的に陽子または重陽子を照射して製造した。目的核種は陰イオン交換法により標的から分離し、1 M フッ化水素酸中に保存し使用した。Aliquat 336 樹脂は、Aliquat 336 と充填剤 CHP20/P30 をメタノール中で混合・攪拌し、その後オーブンで乾燥させて調製した。種々の濃度のフッ化水素酸 400 μ L と Aliquat 336 樹脂 10-15 mg を容器内に入れ、一定時間振盪したのち相分離を行った。このとき、Aliquat 336 樹脂を入れずに対照操作を行ったサンプルを用意し初期放射能とした。相分離後の各サンプルから水相をそれぞれ 250 μ L ずつ分取し、Ge 半導体検出器で放射能を測定し、分配係数 K_d を算出した。この際、樹脂の放射能は初期放射能から樹脂の入ったサンプルの水相の放射能を差し引くことで求めた。

【結果と考察】 結果の一例として、図 1 に 1-27 M フッ化水素酸と 32 wt% Aliquat 336 樹脂を用いた抽出の結果を示す。図 1 より、Ta はフッ化水素酸濃度が大きくなるにつれ K_d 値が徐々に減少する傾向が見られた。一方で、Nb は 10 M までは K_d 値が減少し、それ以上の濃度が高い領域では K_d 値が増加していくという傾向が見られた。図 1 でどのような化学種が Aliquat 336 により抽出されているかを推定するために、Slope-Analysis を行った。発表では、振盪時間に対する Nb, Ta の K_d 値の依存性や図 1 で抽出されている化学種および液液抽出と固液抽出との比較についても考察を行う。

[1] 佐藤ほか, 第 58 回放射化学討論会 1A10 (2014)

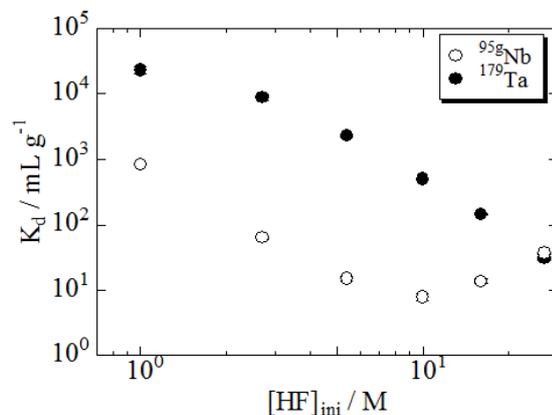


図 1: 32 wt% Aliquat 336 樹脂を用いた ^{95g}Nb, ¹⁷⁹Ta の分配係数 K_d のフッ化水素酸濃度依存性

Solid-liquid extraction of Nb, Ta with Aliquat 336 resin from hydrofluoric acid solution for chemical experiment of element 105, Db
 SATO, D., MURAKAMI, M., OOE, K., MOTOYAMA, R., HABA, H., KOMORI, Y., TOYOSHIMA, A., MITSUKAI, A., KIKUNAGA, H., GOTO, S., KUDO, H.

P08

プルトニウム粒子を対象とした α 線測定による粒子中アメリシウムの定量法検討

(原子力機構)○安田健一郎、鈴木大輔、金澤和仁、宮本ユタカ、江坂文孝、間柄正明

【はじめに】 原子力機構では、原子力施設等における未申告活動を検知する手段の一つとして、保障措置環境試料分析手法の開発を実施している。その一環として、施設等からの拭き取り試料(スワイプ)に付着した核物質を含む粒子を SEM-EDX により検出し、TIMS により同位体組成を分析する手法を確立した¹⁾。回収した粒子中のプルトニウムの有無を事前に確認するため、 α 線測定の適用性を検討している。これまでに、TIMS フィラメント上にピックアップしたプルトニウム粒子を溶解し、 α 線測定によって $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{239+240}\text{Pu})$ 放射能比を得たうえで、続く TIMS 測定により、プルトニウム同位体比測定を試みた。フィラメント上で溶解した粒子を TIMS/連続昇温法で測定した場合、フィラメント加熱電流を利用したアメリシウム・プルトニウムの明確な分離が困難であった。本発表では、 ^{241}Am の定量を目的として、プルトニウム標準試料由来の粒子を α 線測定し、プルトニウム同位体組成の認証値と $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{239+240}\text{Pu})$ 放射能比を比較し、定量性を検討したので報告する。

【実験】 プルトニウム粒子は、精製時期の異なる同位体標準物質(SRM947)溶液を蒸発乾固後、削り取って作製した。SEMにより粒径を測定した上で、粒子をピックアップし、TIMS用Reフィラメント上に乗せた。このフィラメントを α 線測定装置(ORTEC製OCTETE-Plus, BU-024-600-AS, 有効面積: 600 mm²)で測定した。なお、試料-検出器間距離は、5 mm、測定時間は、100 万秒以上である。

【結果と考察】 粒子径は、0.5~3.8 μm であった。 α 線測定した際の $(^{239+240}\text{Pu})$ ピークの半値幅を図1に示す。3 μm 以下であれば、半値幅は170 keV未満であり、 $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$ ピークとの重なりは、10%未満、測定誤差(1 σ)は、5%程度であった。図2に、精製時期に対する各試料の放射能比を示す。使用したSRM947の精製後の経過時間は、3.9年から6.7年であることから、認証値に基づく $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{239+240}\text{Pu})$ 放射能比は、0.425から0.490へ推移する。粒径が1 μm 以上の場合、概ね誤差の範囲内で認証値と一致しており、本法が ^{241}Am を含む試料に対し、適用可能であると考えられる。

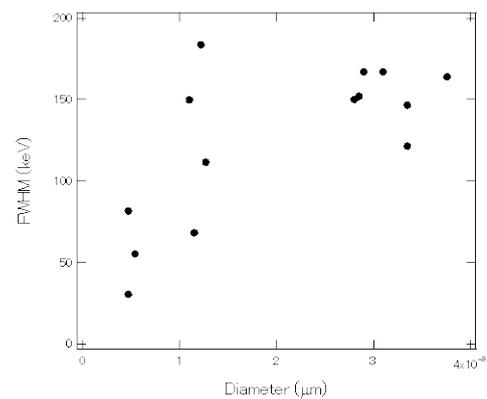


図1: 粒子径に対する $(^{239+240}\text{Pu})$ ピークの半値幅

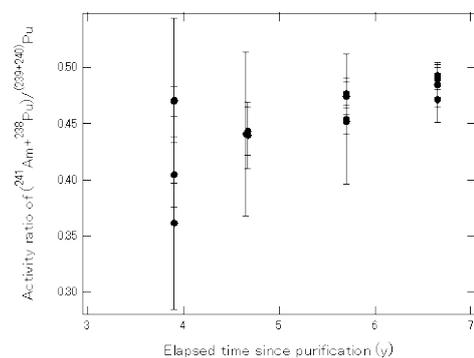


図2: $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{239+240}\text{Pu})$ 放射能比

本発表は、電源開発特別会計予算による原子力規制庁委託研究「保障措置環境分析開発調査」の成果の一部が含まれる。

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

Feasibility study of americium determination method in plutonium particles using alpha spectrometry. YASUDA, K., SUZUKI, D., KANAZAWA, K., MIYAMOTO, Y., ESAKA, F., MAGARA, M.

P09

簡便な ^{40}K 浸出除去法を利用した海産物試料の低レベル ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度の測定

(金沢大¹、中央水研²) ○山下詩央里¹、井上睦夫¹、藤本賢²、長尾誠也¹、小藤久毅¹、浜島靖典¹、山本政儀¹

^{137}Cs 、 $^{108\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{54}Mn および ^{60}Co といった微弱人工放射性核種は、大気圏内核実験、原発事故や原子力施設からの漏洩の指標として、海産物を中心に、多くの報告がなされてきた。通常の γ 線測定では、 ^{40}K がもたらすコンプトン効果の寄与が、これら微弱核種の測定を妨げる大きな要因となる。我々の先行研究では、海藻試料に簡単な ^{40}K 浸出除去法を適用することにより、コンプトン効果の低減が得られた (Inoue et al., 2003)。

2011 年の福島第一原発事故によって大量の放射性セシウムが海洋環境中へも放出されたことから、海産物のモニタリング調査がこれまでにない頻度で行われている。しかし事故後 4 年以上が経過した現在では、その放射能濃度も減少している。本研究において、 ^{40}K 浸出除去法を魚介類の微弱 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度測定用に改良し、低バックグラウンド γ 線測定を組み合わせさせた結果、海産物試料の γ 線ベースライン (610-650keV) が処理前のおよそ 3/100 に低減、検出限界が 1/5 程度に改善された (Fig.1)。さらには、福島原発以降に日本列島付近で採取された魚介類試料に本手法を適用し、微弱 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs のモニタリングを行った。本年会では、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度測定用に改良した ^{40}K 浸出除去法、および様々な海域の実試料への適用結果を報告する。

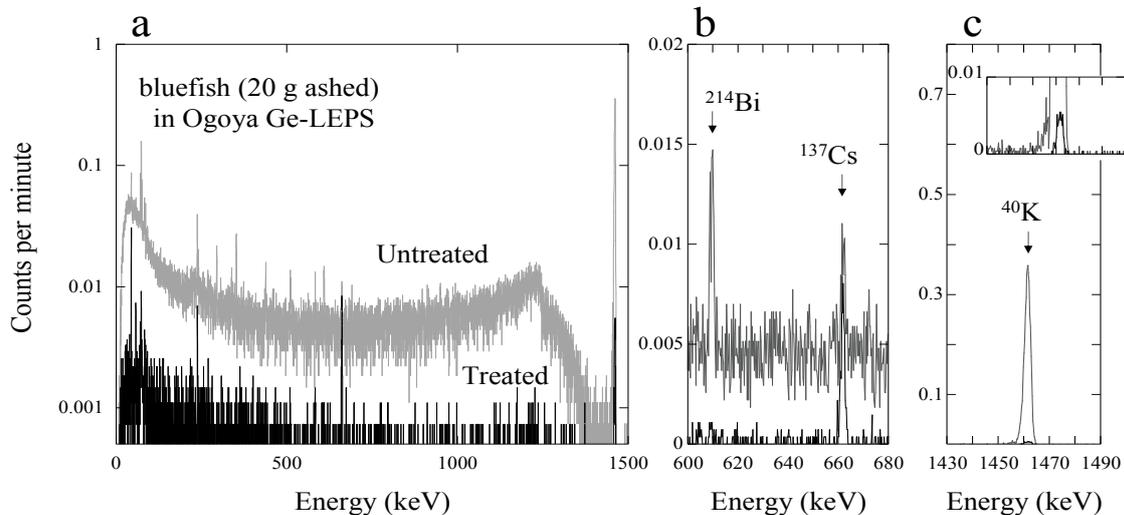


Fig. 1: Gamma-spectra (0.25 keV/ch) of a bluefish sample conducted by ^{40}K -removal water leaching treatment obtained in the Ogoya Underground Laboratory of Kanazawa University; a) 0-1500 keV, b) 600-680 keV, and c) 1430-1490 keV.

謝辞：中央水産研究所、福井県原子力環境監視センターには、海産物試料をご提供いただきました。ここに感謝いたします。

文献：M. Inoue et al. (2003) *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **255**, 211-215.

A simple ^{40}K -removal water leaching combined with AMP method for detection of low-levels of radiocesium in marine products

YAMASHITA, S., INOUE, M., FUJIMOTO, K., NAGAO, S., KOFUJI, H., HAMAJIMA, Y., YAMAMOTO, M.

P10

大気中 ⁸⁵Kr 濃度の全国調査

(日本分析センター)○松原秀行、新田済、磯貝啓介

【はじめに】 六ヶ所村再処理工場の稼働に伴って大気中に放出される人工放射性核種のうち、β線（γ線）放出核種である ⁸⁵Kr（半減期：10.76年）の放出量（Bq）が最大であるため、稼働前の2006年から大気中 ⁸⁵Kr 濃度水準の把握を目的とした全国調査を実施している。調査地域は緯度別に選定した5地域（北海道、秋田県、千葉県、福岡県、沖縄県）である。

【調査方法】 大気を流量1L/分で1週間連続捕集し、⁸⁵Krを含む希ガスを液体窒素温度に冷却した活性炭に吸着捕集した。次いで、活性炭を加熱（305℃）し、希ガスを脱離・回収した。ガスクロマトグラフ（GC）を用いてKrを分離・精製した後、GMカウンターを用いて、⁸⁵Krのβ線を測定するとともに、定量用GCにより安定Kr量（mL）を定量した。得られた⁸⁵Kr比放射能（Bq/mL）を大気中の安定Kr存在比（1.14mL/m³）を用いて大気中⁸⁵Kr濃度（Bq/m³）に換算した。

【結果及び考察】 日本の大気中 ⁸⁵Kr 濃度（2006年～2014年）は、国内の再処理工場の運転や福島第一原子力発電所事故に伴う一時的な上昇を除くと、1.31～1.60Bq/m³の範囲内（平均1.45±0.054(1σ) Bq/m³）であった。東海村再処理工場の影響例として、2006年10月末から11月上旬に千葉県（千葉市）において2.97Bq/m³、六ヶ所村再処理工場の影響例として、2006年10月中旬から下旬に北海道（札幌市）にて3.95Bq/m³を観測した。また、福島第一原子力発電所事故直後（2011年3月14日～3月22日）に、事故前の濃度水準の10倍以上高い17.7Bq/m³を千葉市において観測し、元の水準に戻るまで3週間を要した。

日本の大気中 ⁸⁵Kr 濃度は季節変動（夏季低く、冬季高い）を示しながら、0.03Bq/m³/年の割合で増加していると報告（Igarashi et al. 2000; Hirota et al. 2004）されている。本調査においては、2007年を最大として、2012年まで横ばいもしくは減少傾向を示した。主な放出源である欧州の大型再処理施設（La Hague 及び Sellafield）からの⁸⁵Kr年間放出量（2006～2012）は180～280PBqであり、2006年以前の330～420PBq（1995～2005）に比べ減少しており、年間放出量との相関を確認できた。2013年の年間放出量は340PBqと増加しており、翌年の2014年の濃度範囲（1.37～1.60Bq/m³）に反映したものと考えられる。また、調査結果の妥当性を確認するため、千葉市で採取した全試料について、ドイツ BfS（Bundesamt für Strahlenschutz）と相互比較分析を実施した。両機関の結果（JCAC/BfS）は良く一致（平均=1.00, 変動係数=2.5%, 試料数=406）した。

なお、本調査結果は、原子力規制庁の委託事業「環境放射能水準調査（平成18年度～平成26年度）」の成果の一部である。

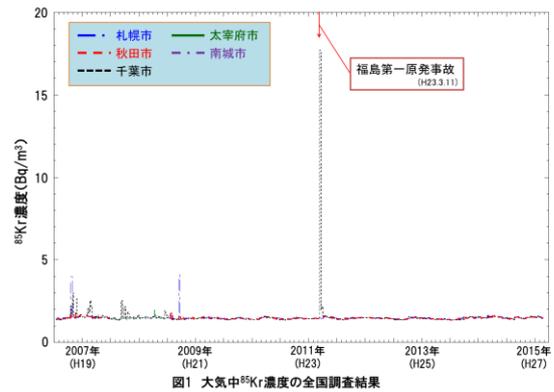


図1 大気中⁸⁵Kr濃度の全国調査結果

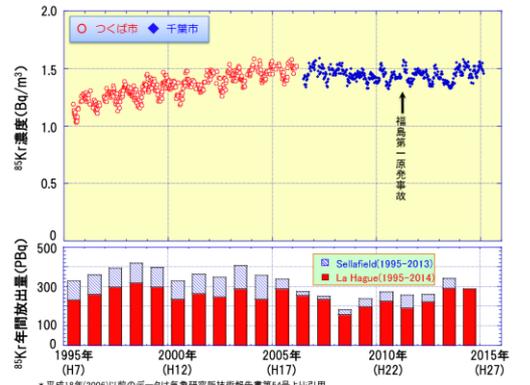


図2 大気中⁸⁵Kr濃度水準(つくば市と千葉市)の長期トレンドと欧州再処理施設の⁸⁵Kr年間放出量

P11

川崎市における大気中放射性核種の継続的な観測

(明大院理工¹、明大研究・知財戦略機構²)

○塩原良建¹、鈴木亮一郎¹、栗原雄一²、中村利廣¹、小池裕也¹

【緒言】地球環境の大気動態トレーサーとして、天然に存在する放射性鉛同位体である²¹⁰Pb、²¹²Pb 及び ²¹⁴Pb が利用されており、比較的半減期が長い ²¹⁰Pb (半減期: 22.3 年) は遠方から動態情報を、一方で短寿命の鉛同位体である ²¹²Pb (半減期: 10.6 時間) 及び ²¹⁴Pb (半減期: 27 分) は、短時間の情報を得ることができる。その他に大気中には地表表面から空気中に散逸した天然放射性核種のラドンが壊変することにより生成した、Rn, Bi, Po の放射性核種が存在する。本研究では、明治大学生田キャンパスにおいて大気浮遊粉塵中の放射性核種を定期的に観測し、放射能濃度の季節変動や大気中の挙動を考察することが目的である。また、 γ 線スペクトロメトリーによる測定とあわせて観測日ごとの大気粉塵を捕集したフィルターの放射能分布の評価も試みた。

【実験】大気浮遊粉塵は、神奈川県川崎市の明治大学生田校舎第 2 校舎 D 館 (35°36'N, 139°33'E) の 6 階北側テラスで、ADVANTEC GB-100R ガラス繊維フィルター (110mm ϕ) を装着した SIBATA HV-500R ハイボリュームエアサンプラーで捕集した。空気吸引速度は 2013 年 3 月以前が 600 dm³min⁻¹、2013 年 4 月以降が 500 dm³min⁻¹、捕集時間は 24 時間である。大気浮遊粉塵を捕集したガラス繊維フィルターをベルトポンチで切り抜き、コンテナに捕集面を下にして重ね入れ測定試料とした。試料中の放射性核種の定量は、 γ 線を PGT 社製 LEPS を用いた非破壊 γ 線スペクトロメトリーによった。

【結果】過去の川崎市での大気観測の結果より、天然放射性核種として ⁷Be, ²⁰⁸Tl, ²¹⁰Pb, ²¹²Bi, ²¹²Pb, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb 及び ²²⁶Ra が検出されている。また、2011 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故由来と考えられる ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs も大気浮遊粉塵中では 2011 年 4 月から 9 月までの期間で観測されている。2014 年 4 月から 2015 年 1 月までに観測された ⁷Be と ²¹⁰Pb の濃度変動を Fig. 1 に示す。

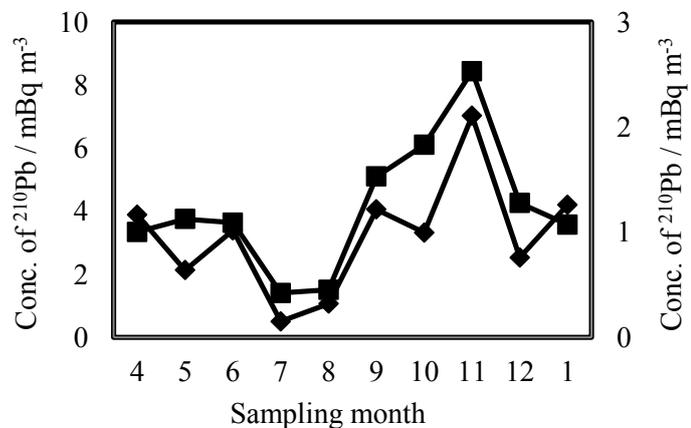


Fig. 1 Atmospheric concentrations of ⁷Be (■) and ²¹⁰Pb (◆) at Kawasaki from April 2014 to January 2015.

⁷Be 及び ²¹⁰Pb は春季と秋季に濃度が高く、夏季に低くなる傾向が見られた。2014 年に川崎市で観測された大気中の ⁷Be と ²¹⁰Pb の濃度変動も、過去の観測と同様に太平洋側の観測地で見られる一般的な変動を示した。大気浮遊粉塵を捕集したフィルターのイメージングプレートによる二次元画像について比較及び評価した。大気浮遊粉塵中の放射性核種を観測し、大気の挙動や季節変動について考察を継続的に行うことで、火山活動等の環境の変化による一時的な天然放射性核種濃度の増加も確認されている。継続的なモニタリングは重要であると考え、今後も観測を続けていく予定である。

Continuous observation of atmospheric radionuclides at Kawasaki, Japan
SHIOBARA, R., SUZUKI, R., KURIHARA, Y., NAKAMURA, T., KOIKE, Y.

P12

環境試料中ストロンチウム-90 分析用自動化システムの開発

(原子力機構¹、関東技研²) 野島健大¹、○藤田博喜¹、永岡美佳¹、大澤崇人¹、横山裕也¹、小野洋伸²

【緒言】東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性物質のうち、放射性セシウムは多くの機関で測定され、その結果が報告されているが、放射性ストロンチウム (⁹⁰Sr) については、化学分離操作が必要であり、その分析時間もかかるため、分析結果は放射性セシウムと比較すると少ない。また、簡略化した分析法で環境試料中 ⁹⁰Sr 濃度を測定するための研究は行われているが、環境レベルの測定は困難である。

そこで、環境レベルの ⁹⁰Sr 濃度を測定することを目的に、放射性ストロンチウム分析法 (文部科学省、放射能測定法シリーズ 2) に従った供試量及び分析法で、自動分析するシステムを開発したので、報告する。なお、今回の自動化の対象は、ストロンチウムを単離するまでの分析操作である。

【システム概要】まず、環境試料を自動で湿式分解するために、単軸ロボットと定量送液ポンプ、ホットプレート等によるシステムを組み上げた。ビーカに入れた灰化試料 (葉菜、牛乳、精米、海藻、貝、魚類) をホットプレート上に置き、試薬の添加やホットプレートの加熱を自動で行った。試料が完全に分解されて白くなるまで、画像認識システムで監視しながら自動で試薬の添加を繰り返すようにした。

次に、湿式分解後の試料からストロンチウムを単離するために、産業用ロボット、器具供給システム等を組み合わせて、1) pH 調整、2) 沈殿生成、3) 沈殿熟成、4) ろ過、5) 試薬 (固体、液体) の投入までの一連の化学分析を自動で行えるようにした。ただし、遠心分離、沈殿物の灰化处理は、本装置では実施できないため、作業者が分析することにした。

最後に、イオン交換カラムと送液ポンプ等を組み合わせて、試料をイオン交換カラムに作業者が投入した後、洗浄液、溶離液を自動で液量の制御をしながら投入できるようにした。

なお、これらのシステムを制御するために、LabVIEW を開発環境として制御プログラムを独自に開発した。

【結果】450°C で灰化した環境試料を 20 g 分取し、本システムにより湿式分解した。最大で 6 件までの試料を本システムで処理できた。

次に、湿式分解した試料を自動化学分離システムにより、化学分析した。その結果、一部の作業は作業者が実施する必要のあるものの、一連の化学分析を自動で行えるシステムを開発することができた。

最後に、化学分析した試料をイオン交換カラム上の分液ロートに作業者が投入し、自動で洗浄液、溶離液を通液し、ストロンチウムを回収した。その結果、魚類 (シラス) の回収率は 40~70% であった。

本開発は、「復興促進プログラム (マッチング促進) (JST 復興促進センター)」で実施したものである。

Development of automatic analysis system of Strontium-90 in environmental sample
NOJIMA, T., FUJITA, H., NAGAOKA, M., OSAWA, T., YOKOYAMA, H., ONO, H.

P13

大容量淡水試料中のラジウム同位体分析法の検討

(原子力機構) ○富田純平

【緒言】 一般的に、地下水中のラジウム (Ra) 濃度には塩分依存性があり、低塩分では低く、高塩分になるほど高くなる傾向がある。しかし、近年、WHO の定める最大汚染レベル (1 Bq L^{-1}) を超える ^{226}Ra を含む地下水が諸外国で見出されるなど、低塩分 (淡水) 領域における地下水中の Ra 挙動は非常に複雑である。低塩分領域における Ra の挙動解明は、地球化学のみならず放射線防護の観点からも重要な課題であるが、大部分の低塩分地下水中の Ra 濃度は非常に低濃度であるため、一般的な実験・測定環境ではその測定が困難であり、測定データが少なく、未だ不明な点が多い。本研究では、低塩分地下水中の低濃度 Ra 同位体 (^{226}Ra 及び ^{228}Ra) 測定データを取得することを目的に、バッチ法による大容量水試料からの Ra 同位体の現地回収及びその後の単純な共沈法を組み合わせた γ 線スペクトロメトリーによる低濃度 Ra 同位体分析法について検討した。

【実験方法】 (1)Powdex 樹脂への Ra 吸着特性：水試料中の Ra の現地回収には、Powdex 樹脂 (陽イオン交換樹脂：PCH、陰イオン交換樹脂：PAO) を用いた。樹脂への Ra 吸着特性を確認するために、電気伝導度 (EC) を測定済みの既知量の ^{228}Ra を含む中性溶液 ($1.5\sim 2 \text{ L}$) に異なる量の樹脂を加え、1 時間攪拌後、静置した。上澄み液の EC 測定後、上澄み液中の ^{228}Ra 及び他のアルカリ土類元素 (Ca、Sr、Ba) 濃度を測定した。

(2) Ra 同位体分析法：大容量水試料 (170 L) から Ra を吸着した Powdex 樹脂を回収後、灰化した。その後、 HNO_3 及び H_2O_2 を加えて加熱・分解し、 ^{40}K を除くために、 Ra 同位体を BaSO_4 共沈により回収した。得られた沈殿 (BaSO_4 及び HNO_3 分解時の残渣) を回収し、強熱後、 Rn の散逸が無視できるフイルムに封入し、3 週間以上放置後、γ 線スペクトロメトリーにより ^{226}Ra 及び ^{228}Ra を定量した (下図)。

【結果と考察】 上澄み液の EC は、Tomita et al. (2015) と同様に、樹脂を加えていない溶液の EC を切片として、PCH 量/水量の増加に伴って一定の傾きで減少した。この関係を用いて、Tomita et al. (2015) は、試料中の Sr を回収するために必要な PCH 量を以下の式で推定出来ることを示した。

$$[\text{PCH}(\text{g})] = [\text{EC}_{\text{試料}}] \times [\text{水}(\text{L})] / [\text{傾き}]$$

樹脂への吸着割合が $Ra > Sr$ であったことから、 Ra を全て回収するために必要な樹脂量の見積りに上式が適用できることがわかった。また、既知量の ^{226}Ra 及び ^{228}Ra を添加した淡水試料 (170 L) を本手法により分析した結果、得られた分析値が、添加量と計数誤差 (1σ) 内で一致し、本手法の妥当性が確認された。なお、本研究は、JSPS 科研費 (26740021) の助成を受けたものである。

参考文献： Tomita et al. (2015), J. Environ. Radioact., 146, 88-93.

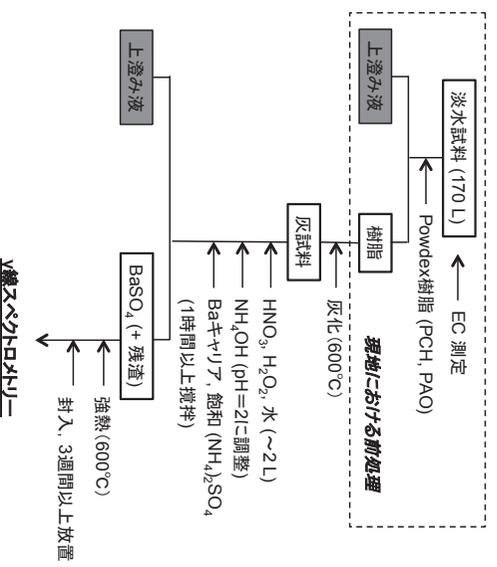


図 Ra分析法の実験スキーム

An examination of radium isotope analysis from large volume of freshwater samples
TOMITA, J.

P14

Be-7 放射性エアロゾルの粒径と化学形の検討

(信州大・院教育¹、信州大・教育²)○樋渡瑞幹¹、村松久和²、近藤茜²

【緒言】 2011年3月11日の東日本大地震および津波の発生によって、東京電力福島第一原子力発電所の事故が起こった。事故直後から多くの研究機関等で放射性物質の輸送・拡散・分布に関する研究がされてきたが、現在では、福島原発事故による放射性物質の拡散過程を解明するうえで、その「運び手」となる大気中のエアロゾル粒子の実態（粒径、化学形）に関心が集まっている。

本研究では、大気中のエアロゾル粒子を粒径別に捕集できる装置を用いて、⁷Beの付着したエアロゾル粒子の粒径分布の測定と高性能液体クロマトグラフィ（HPLC）を用いて、⁷Beの運び手となっている大気エアロゾル粒子の化学形の推定を試みた。

【実験】 アンダーセン型ロープレッシャーインパクト（LP-20、東京ダイレック）を大学キャンパス（36°39'N, 138°12'E）内の建物の屋上（地上約20m）に設置し、大気エアロゾル粒子の捕集を行った。2014年から2015年にかけて、約2-3週間の捕集時間とした。LP-20は、吸引流量を20 L/minとすると、大気エアロゾルを12段階（13 μm～0.06 μm）に分級することができ、エアロゾルはガラスプレート（80 mmφ）上に捕集される。純水中でガラスプレートを超音波洗浄して得られた試料22 mlに1.1 mol/L 硫酸ベリリウム0.5 mlを添加した後、アンモニア水を加えて⁷Beを水酸化ベリリウムとして共沈させた。沈殿試料は高純度 Ge 半導体検出器にて478 keVのγ線を測定し、⁷Beの定量を行った。液体試料の一部（3 ml）を用いて、高性能液体クロマトグラフィ（HPLC）により粒径ごとの陰イオンの分布を調べた。

【結果および考察】 ⁷Beの放射能はプレート No.8 および9に多く付着しており、⁷Be 放射性エアロゾル粒子の平均粒径は0.55～0.83 μmであると推測される。一方、高性能液体クロマトグラフィによる大気エアロゾル粒子に含まれる陰イオンの分析から、陰イオンに限れば、フッ化物イオン、塩化物イオン、硝酸イオンおよび硫酸イオンが多く存在していた。各陰イオンの粒径分布を⁷Be 放射性エアロゾルの粒径分布と比較したところ、最も高濃度で存在する硫酸イオンを含む大気エアロゾルの粒径分布は0.55～0.83 μmに集中し、他の陰イオンとは際だって⁷Be 放射性エアロゾル粒子の粒径分布と類似していた。単分散、対数正規分布をしていると仮定して見積もった平均粒径は、⁷Be 放射性エアロゾルおよび硫酸イオンを含むエアロゾル粒子でほぼ一致し、硫酸エアロゾルが⁷Beの輸送を担っている可能性が高い。

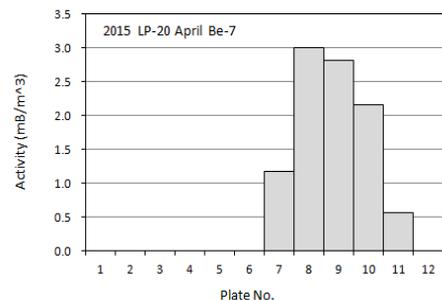


図1. ⁷Be 放射性エアロゾルの粒径分布

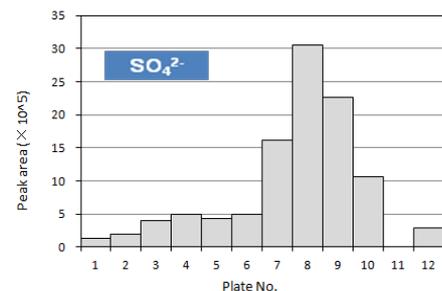


図2. 硫酸イオンを含むエアロゾル粒子の粒径分布

Particle size and chemical form of radioactive aerosols of ⁷Be
Hiwatashi, M., Muramatsu, H., Kondo, A.

P15

超臨界流体抽出法を用いた前処理法の高度化

(原子力機構)○永岡美佳、藤田博喜

【緒言】

原子力施設周辺の放射能調査では、事故の有無に関わらず、継続的に環境試料を採取して化学分析等を行い、試料中に含まれる放射能濃度を監視している。通常、環境試料中に含まれる α 線及び β 線放出核種の放射化学分析では、前処理として試料中に混在する有機物を大量の酸溶液（硝酸及びフッ化水素酸）で加熱しながら分解し、目的核種を浸出する。しかし、この有機物分解時における酸溶液の使用により、酸廃液及びガスの発生、分析設備の腐食、分析作業への負荷等の問題がある。そこで、大量の酸溶液を用いる前処理法に代わり、環境に優しく、温度・圧力を制御することで有機物の分解及び種々の物質の溶解が可能である「超臨界流体」を用いた新たな前処理法を検討した。まず、基礎実験として、土壌と超臨界水（亜臨界水）との反応時間及び温度・圧力等を変化させ、ストロンチウム（Sr）、ウラン（ ^{238}U ）等の目的元素に対する最適抽出条件の検討を行った。

【実験】

2013年に東海村で採取した土壌を、 105°C で乾燥後、安定 Sr 溶液を添加して 550°C で 4 時間加熱し、本検討用の試料とした。試料 0.3g を回分式反応器（SUS316 製管 + Swagelok プラグ、内容積 6 cm^3 ）に分取し、溶媒として超純水（及び 3%過酸化水素水）を加えて、サンドバス又は管状型電気炉で、反応温度（ 250°C （約 4 MPa）～ 400°C （約 37 MPa））、反応時間（30 分～90 分）等を変化させた。反応後、ガラス繊維ろ紙でろ過し、ろ液を測定試料とした。残渣の洗浄には、超純水又は 0.5M 硝酸溶液を用いた。安定 Sr の濃度測定には ICP-AES、 ^{238}U 濃度測定には ICP-MS を使用した。

【結果及び考察】

安定 Sr 土壌試料中の正味の安定 Sr 濃度は、38 ppm であり、添加分を合わせると約 490 ppm であった。温度・圧力及び時間等の反応条件を変化させ、ろ過後、残渣を水で洗浄した場合には、土壌中安定 Sr 量（添加分を含む）の 10%～30%が超純水中に抽出されていた。一方で、ろ過後、残渣を 0.5M 硝酸溶液で洗浄した場合には、約 60%の抽出が確認できた。このことから、希硝酸での洗浄は必要なものの、超臨界水との反応により安定 Sr は抽出されることが分かった。

^{238}U 土壌試料中の ^{238}U 濃度は 1 ppm であり、本検討実験における抽出率はいずれの条件においても 1%未満と低く、超臨界水のみでの反応では抽出されないことが分かった。

今後は、溶媒に希硝酸を用いることや触媒を添加することで、抽出率の向上を目指すとともに、超臨界水と土壌との反応メカニズムについても調査していく。

なお、本研究は JSPS 科研費 15636784 の助成を受けて得られた成果の一部が含まれる。また、本実験において東北大学スミス教授、同研究室の皆様にご協力いただき、御礼申し上げます。

Advance of pretreatment method using supercritical fluid extraction
NAGAOKA, M., FUJITA, H.

P16

低レベル放射能測定に影響する実験室環境ラドンによるBGについて

(九環協¹) ○川崎伸夫¹、山中潤二¹、玉利俊哉¹

【緒言】 環境放射能の測定では、バックグラウンド計数率が低く、かつ安定していることが必要である。建築資材として石膏ボードやコンクリート等が広く用いられているが、これらの資材には天然に存在するラジウムが含まれていることが多く、これから生ずるラドン・トロン、及びその娘核種が環境レベル放射線計測の妨害になることが指摘されている。今回、実験室毎のラドン・トロン雰囲気の特徴を把握し、過去から実施している対策の効果について実際にデータを取ったものを取り纏めて紹介する。

【実験】 実験室毎（実験室A～D）のラドン・トロン雰囲気の違いを把握するために、ハイボリュームエアサンプラーにガラス繊維ろ紙（Advantec GB-100R）を装着して実験室の空気を吸引し、低バックグラウンドガスフローカウンター（日立アロカメディカル LBC-4301）で娘核種のβ線を計数した。採取条件は部屋の中心床から高さ1m、流速500L/min、吸引時間1時間とした。また、測定機への窒素ガス導入による対策効果を確認するために、液体シンチレーションカウンタ（日立アロカメディカル, LSC-LB7）及びGe半導体検出器（Canberra GX40-ULB）を用いて、窒素ガス導入の無い状態でBG測定を開始し、測定途中から窒素ガスを導入した。窒素ガスは液シンでは窒素ボンベから、Geでは液体窒素の気化ガスを導入した。

【結果と考察】 図1は実験室A～Dのラドン・トロン雰囲気の違いを示している。全βの正味計数率は測定開始から300分頃まで急激に減衰し、それ以降は緩やかに減衰した。それらのみかけの半減期はそれぞれ約30分、約10.5時間であり、ラドン・トロンそれぞれの娘核種による寄与を反映したものであった。ラドン・トロン濃度が高い実験室において、吸引ろ過等による測定試料の調製を行うと影響を受ける可能性があることが示唆された。特にトロン濃度が高い場合、その娘核種Pb-212（半減期10.64h）による影響は長時間に及ぶ。図2は、液シンとGeの窒素ガス導入効果を示している。液シンのBG（H-3領域）計数率は窒素ガス導入から徐々に低下し、導入開始後10時間で、常時窒素ガスを導入し続けた場合のBG計数率（安定BG、約2.3cpm）と同等まで低下した。GeのBG計数率は、窒素ガス導入から約5時間で安定BG（約0.005cps、609keV Bi-214領域）と同等まで低下した。安定した測定を行うためには、窒素ガスを導入して十分にBG計数率が低下するのを待って測定を開始することが望ましい。

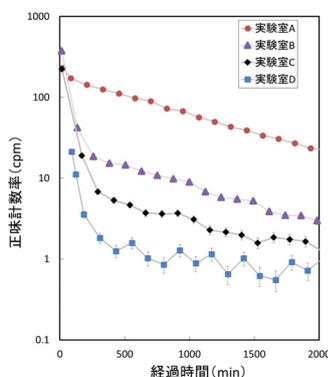


図1 実験室雰囲気測定(全β)

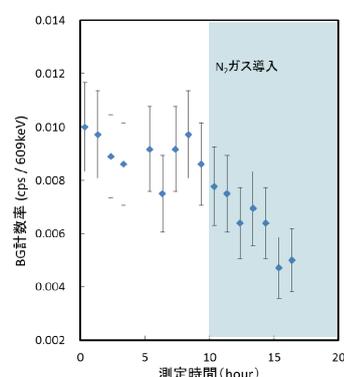
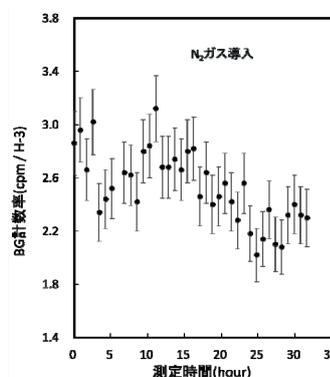


図2 窒素ガス導入効果（左：液シン、右：Ge）

Influence of the radon for environmental radioisotopes measurement

KAWASAKI, N., JUNICHI, Y., TAMARI, T.

P17

金属塩の加熱により発生したエアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動

(京大院工¹、京大炉²)○新田真之介¹、田中徹¹、関本俊²、高宮幸一²、
沖雄一²、大槻勤²

【緒言】 福島第一原子力発電所事故によって放出された核分裂生成物(FP)を含む放射性物質は主にエアロゾルとして大気中を輸送された。また、放射性セシウムは硫酸塩エアロゾルを担体として輸送されたという報告があり[1-2]、これは放射性セシウムが硫酸塩エアロゾルに対して選択的に付着するような機構の存在を示唆するものと考えられるが、そのような機構は明確になっていない。一方、事故当時の原子炉内に存在したと考えられる 1000°C を超える高温環境下では、炉内の物質が揮発し、大気中で冷却され凝固することで、固体エアロゾルが生成することが推測される。本研究では、高温環境下での放射性エアロゾルの生成機構の解明を目的として、様々な化学形・粒径分布を有する固体エアロゾルに対する FP の付着挙動を調査した。

【実験】 電気炉で NaCl, CsCl 粉末を異なる温度で加熱し、粒径分布の異なる固体エアロゾルを発生させ、SMPS を用いて粒径分布を測定した。このエアロゾルを、自発核分裂核種である ²⁴⁸Cm 線源(40 kBq)を設置したチェンバーに導入し、FP を付着させた後、ポリカーボネート製のフィルターで捕集した。一方で、²⁴⁸Cm 線源を覆うようにセルローズ濾紙を設置し、チェンバー内に放出される FP を直接捕集した。これらのフィルターおよび濾紙について、γ線スペクトロメトリーを行い、チェンバー内に放出された FP の内、エアロゾルに付着した割合を「付着率」として算出した。エアロゾルの粒径分布から算出した全表面積と ¹⁰⁴Tc, ¹³¹Te, ¹³⁴I, ¹⁴⁶Ce の付着率の相関を Fig.1 に示す。今回の実験条件においては、エアロゾルの全表面積と付着率の間には明確な相関は見られなかった。付着率がエアロゾル粒子と FP の衝突頻度に比例するのであれば、付着率はエアロゾルの全表面積に比例すると考えられるので、今回の実験条件では、付着率が飽和しているか、あるいは衝突頻度と付着率が比例しないことが考えられる。しかし、用いたエアロゾルの化学形によって付着率に差異が存在するため、化学的な相互作用が付着率に影響している可能性が示唆された。

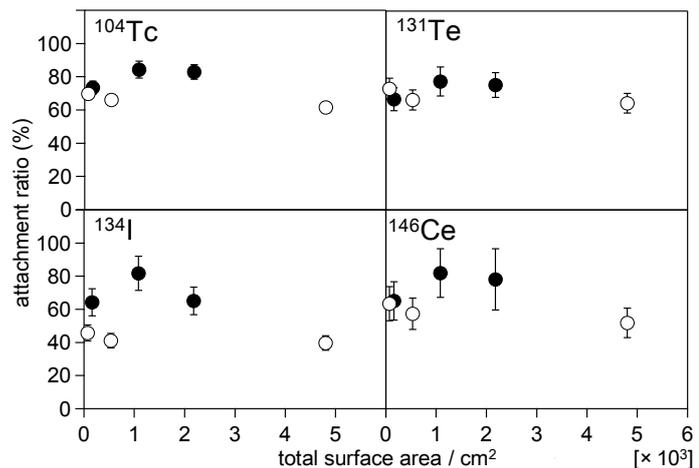


Fig. 1. Variation of the attachment ratio of each fission product for the total surface area of the primary solid aerosol particles (● : sodium chloride, ○ : caesium)

[1] N. Kaneyasu, H. Ohash, F. Suzuki, T. Okuda, F. Ikemori, Environ. Sci. Technol. **46**, 5720-5726 (2012).

[2] Y. Miyamoto, K. Yasuda, M. Magara, J. Environ. Radioact. **132**, 1-7 (2014).

P18

難測定核種である塩素 36、ヨウ素 129、テクネチウム 99 の 土壌からの抽出方法の検討

(筑波大院数理¹、筑波大数理²、東大 MALT³)○本多真紀¹、末木啓介²、
坂口 綾²、笹 公和²、松崎浩之³

【緒言】

塩素 36(³⁶Cl: 半減期 30.1 万年)、ヨウ素 129(¹²⁹I: 半減期 1570 万年)、テクネチウム 99(⁹⁹Tc: 半減期 21.1 万年)は土壌中では易動性の陰イオンとして存在することから低レベル放射性廃棄物の廃棄後の管理において重要な核種である。従来の土壌試料の前処理方法は、1000℃で土壌を加熱しアルカリ溶液に捕集する熱加水分解法か、酸またはアルカリ溶液による分解・抽出方法がある。熟練を要する熱加水分解法では、人為的な操作ミスによりガスが漏れ実験環境を汚染する恐れがある上、分析値がばらつきやすい。本研究では、土壌に水またはアルカリ溶液等の抽出溶液を加え、耐圧密閉容器内でマイクロ波分解する抽出法を試みる。土壌の分解から各元素の抽出までの実験操作を簡易にして閉鎖環境内で行うことにより、開放系で行う熱加水分解と比べて実験環境を汚染するリスクが軽減され、より高い収率で安定した分析値が得られることが期待される。

【実験】

耐圧密閉容器内に茨城県の森林で採取した土壌 25 g に 5 通りの抽出溶液:①純水(亜臨界水)、②5% TMAH、③5% TMAH、H₂O₂、Triton X-100[1])をそれぞれ加え全量を 75mL としマイクロ波を照射して加熱分解後、未分解の有機物および鉍物分離のため 24 時間室温で静的透析(MWCO:500-1000D)または 0.45μm のメンブランフィルターでろ過した。⁹⁹Tc 定量のためにろ液を分取後、TEVA カラム(Eichrom)による化学分離で ⁹⁹Tc を精製し、トリプル四重極型高周波誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS/MS、Agilent 8800)により定量した。³⁶Cl、Cl を分析するため、透過液を分取、濃縮し Togo et al. (2014)[2]に従い加速器質量分析(AMS)用の AgCl ターゲットを作成した。³⁶Cl/Cl は AMS により、Cl 濃度は ICP-MS/MS により定量した。残りの透過液は ¹²⁷I、¹²⁹I 分析用とし、Muramatsu et al. (2008)[3]に従い AMS 用の AgI ターゲットを作成した。¹²⁹I/¹²⁷I は AMS により、¹²⁷I 濃度は ICP-MS/MS により定量した。また ³⁶Cl、¹²⁹I、⁹⁹Tc の定量値に関して従来法である熱加水分解法と比較した。

【¹²⁷I、¹²⁹I についての結果・考察】

熱加水分解による収率を 100%とすると、亜臨界水では ¹²⁷I の収率が 31%、¹²⁹I では 60%であったのに対して、5%TMAH 溶液では 81%、132%であった。亜臨界水による収率は低かったものの、強アルカリ溶液である TMAH による分解では、熱加水分解法と比較してより多くの ¹²⁹I が捕集できた。しかし、亜臨界水または TMAH いずれの場合でも耐圧密閉容器による分解・抽出方法では、熱加水分解法と比べて ¹²⁷I の収率は低かった。これは土壌の分解が完全でないことや、ICP-MA/MS でのマトリックスの影響による ¹²⁷I の減感が原因であると考えられる。今後は、土壌の分解条件と高マトリックス下での ICP-MS/MS 分析方法について検討する。

【参考文献】

- [1] Y.-K. Hsieh et al., *Radiochim. Acta.* 102 (2014) 1137-1142
- [2] Y. S. Togo et al., *Earth, Planets and Space* 66 (2014) 1-12
- [3] Y. Muramatsu et al., *Quat Geochronol.* 3 (2008) 291-297

Development of degradation method for analysis of chlorine-36, iodine-129 and technetium-99 in soil samples
HONDA, M., SUEKI, K., SAKAGUCHI, A., SASA, K., MATSUZAKI, H.

P19

Ra-226 を Ge 半導体検出機で測定する際に用いる測定容器の検討

(一般財団法人 九州環境管理協会¹⁾ ○山中潤二¹、川崎伸夫¹、
玉利俊哉¹

【緒言】 Ge 半導体検出機による土壌試料中 Ra-226 の測定は、試料を容器に密封し 3 週間以上経過した後に測定を行い、放射平衡に達した娘核種である Pb-214 または Bi-214 の濃度で代用する方法を採る¹⁾。これら娘核種は、Ra-226 崩壊後に希ガスである Rn-222 を経て生長するため、Rn 漏出が無い容器を使用する必要がある。今回は数種の材質の容器を用いて土壌試料を密封した場合の、Rn 漏出による Ra-226 濃度評価に対する影響の程度を把握するために行った試験結果を紹介する。

【実験】 試験に使用した測定容器及び密封条件は表 1 に示すとおりである。測定は極低バックグラウンド Ge 半導体検出機 (Canberra GX40-ULB) と極低バックグラウンド遮蔽体 (Canberra 777B) の組み合わせで行った。試験試料は、Ra-226 を多く含む IAEA-434 (Phosphogypsum) と岩石標準試料 JG-2 とした。試料を容器に密封し、3 週間以上経過した後、Pb-214 濃度を測定した。また、容器の材質 (PP、PS、スチール) 自身による Rn 漏出の違いを比較するため、Rn 温泉水を測定容器に分取、密栓し、Ge 半導体検出器により Pb-214 濃度の経時変化を観察した。

【結果】 Rn 娘核種の生長過程の一例を図 1 に示す。蓋を開放した条件以外は理論通りに生長していることを確認した。放射平衡到達後における各条件の測定結果を表 2 に示す。試料を圧密充填、内蓋接着した条件では、Rn 漏出は判別し難い程度であった。一方、内蓋無しの条件では、蓋を開放した条件と同一の結果となり、Rn が著しく漏出していることが確認された。また、Rn 温泉水を用いた試験結果を図 2 に示す。満水とし、蓋を接着剤で固定したものでは、PP、PS、スチール製容器共に減衰の程度は Rn の半減期とほぼ同等であり、Rn 漏出の材質による違いは判別し難かった。スチール製容器に満水とせず蓋をテープで固定したものは減衰が著しく、このことから本試験に使用した容器材質においては、Rn は容器材質自身からの漏出よりも、蓋部からの漏出が主たるものであることが分かった。

表 1 測定容器及び密封条件

No	条件名	測定容器
1	PS-open	PS製U-9容器、内蓋なし、蓋開放
2	PS	PS製U-9容器、圧密充填、内蓋接着
3	PP	PP製U-9容器、圧密充填、内蓋接着
4	PP-CAN	3を容器のままステンレス製容器内に密封
5	PP-AC	PP製U-9容器、圧密充填、活性炭混合、内蓋接着
6	PP-CAN-AC	5を容器のままステンレス製容器内に密封
7	PP-ALZIP	3をアルミ製袋に密封
8	PP-without inner plate	PP製U-9容器、圧密充填、内蓋なし

表 2 放射平衡到達後の測定結果

IAEA-434	条件名	Pb-214濃度(Bq/kg)	Ra-226推奨値
	PS-open	687 ±14	
	PS	774 ±13	
	PP	777 ±11	
	PP-CAN	780 ±11	780 ±62
	PP-AC	777 ±14	
	PP-CAN-AC	779 ±15	
	PP-ALZIP	778 ±11	
	PP-without inner plate	666 ±10	
JG-2	PP	137 ±2	
	PP-CAN	137 ±2	

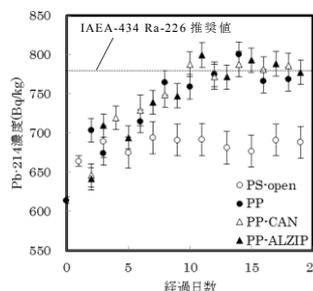


図 1 Pb-214 の生長過程

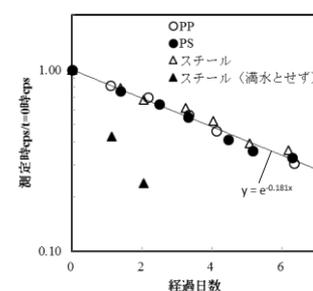


図 2 測定容器による Rn 減衰の違い

1) 文部科学省放射能測定法シリーズ「ラジウム分析法」(平成 2 年)

The study for measurement of Ra-226 through radon progenies by Ge detector
○Junji Yamanaka, Nobuo Kawasaki, Toshiya Tamari

P20

固相抽出法による環境試料中のウラン及びトリウム系列核種の分離・定量の検討

(明大研究・知財戦略機構¹、明大理工²、明大院理工³)

○栗原雄一¹、吉武愛加²、福田大輔²、藤井健悟²、中村利廣³、小池裕也³

【緒言】

天然の放射性壊変系列であるウラン、トリウム及びアクチニウム系列は、環境試料中に普遍的に存在する。これらの系列内には様々な放射性核種が含まれており、系列内の放射平衡・非平衡を利用して、環境中で起こる様々なイベントの時間スケールや環境試料中の核種の物理的及び化学的存在状態の推定が行われている。ウラン、トリウム及びアクチニウム系列の核種の測定を正確に行うために、各核種を分離してから測定することが求められる場合があるが、その分離から測定に至るまでは多大な労力と時間を要することが多い。そこで、本研究では様々な固相抽出剤を組み合わせることで、天然放射性核種を迅速に分離し定量する方法の確立を目的としている。放射能が既知の U 及び Th 溶液を試料とし、選択的に目的元素を抽出することができる抽出クロマトグラフィーレジ¹⁾を用いて U, Th, Ra, Ac 及び Pb の同位体の分離・定量を行った。

【実験】

放射能既知の U 溶液及び系列内が放射平衡に達している Th 溶液 (8 M 硝酸系) を試料溶液として用いた。放射性核種の分離には eichrom 社製の抽出クロマトグラフィーレジ[®]である UTEVA resin[®]、Sr resin[®] 及び DGA resin[®] を連結させたカラムを用いた。このカラムに試料溶液を通液することで、U 及び Th の同位体を UTEVA resin[®] に、Pb の同位体を Sr resin[®] に、Ac の同位体を DGA resin[®] にそれぞれ抽出した。続いて、8 M 硝酸で連結したカラムを洗浄することで Ra の同位体を回収した後、各レジ[®]を分離した。UTEVA resin[®] からは 5 M 塩酸で Th の同位体を溶離し、続いて 0.05 M 硝酸で U の同位体を溶離した。Sr resin[®] からは 0.05 M クエン酸アンモニウムで Pb の同位体を溶離し、DGA resin[®] からは 2 M 塩酸で Ac の同位体を溶離した。U 及び Th の同位体は α 線スペクトロメトリにより定量した。一方、Ra, Pb 及び Ac の同位体は γ 線スペクトロメトリにより定量した。

【結果及び考察】

UTEVA resin[®] からの溶離液中の U 及び Th の同位体の回収率はどちらも 95% 以上であった。また、得られた α 線スペクトルより、U 及び Th の同位体の混入はそれぞれ見られなかった。一方、連結カラム及び Sr resin[®]、DGA resin[®] からそれぞれ溶離した Ra, Pb, Ac の同位体の回収率はどれもほぼ 100% であった。また、複数回の測定により ²²⁴Ra ($T_{1/2} = 3.66$ d) および ²¹²Pb ($T_{1/2} = 10.64$ h)、²²⁸Ac ($T_{1/2} = 6.15$ h) の半減期を求めたところ、各核種の半減期とほぼ一致した。これらの結果より、この分離法は試料溶液中の U, Th, Ac, Ra 及び Pb の同位体を定量的に迅速に分離できる方法だと考えられる。講演では、この方法を環境試料に適用した結果についても発表する。

【参考文献】

1) E. P. Horwttz, R. Chiarizia, M. L. Dietz, H. Diamond,; *Anal. Chim. Acta* **281**, 361 (1993)

Separation and determination of uranium and thorium series nuclides in environmental samples by solid phase extraction method
KURIHARA, Y., YOSHITAKE, A., FUKUDA, D., FUJII, K., NAKAMURA, T., KOIKE, Y..

P21

サンゴ中のウラン同位体組成および蛍光分光 XAFS 法を用いた化学形態分析

(筑波大数理¹、広島大理²、金沢学院大美術³、関西学院大理工⁴、JASRI⁵、東大院理⁶) ○坂口綾¹、森千晴²、佐々木圭一³、谷水雅治⁴、宇留賀朋哉⁵、高橋嘉夫⁶

【はじめに】浅海に生息するサンゴは、炭酸カルシウム(CaCO_3)のaragonite 結晶形の骨格を形成しながら成長している。海洋の歴史をその骨格にとどめるサンゴの年代測定には ^{238}U 、 ^{234}U および娘核種である ^{230}Th の同位体比 ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$) が用いられている。年代の妥当性は、海水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が過去一定の値を持っていたことを前提に、復元されたサンゴに取り込まれた当時のU同位体比(初生 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比)と、現在の海水 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比 (1.144 ± 0.002)との一致により確認されている。しかし、復元された初生 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は現在の海水中のそれと一致しない例が多く報告されており、オープンクエスションとして注目されている。本研究では、異なる結晶形、年代および生物種の天然サンゴ試料を用いて、サンゴ中のUの存在状態を同位体比とともに系統的に理解することで、初生 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比変動問題の解決の一助とすることを目的とする。

【実験】サンゴ試料は、aragonite と続成作用を受けたcalcite 結晶形との比較、現世と化石年代による比較、および生物種での比較が可能な7試料を用いた (KSD-1: *Porites*, Age ~0.01ky, aragonite; KK-27: *Porites*, Age 131ky, aragonite; M-2: *Porites*, Age ~100ky, aragonite; M-4: *Plesiastrea*, Age ~100ky, aragonite; M-5: *Plesiastrea*, Age ~100ky, calcite; KSM-02: *Goniastrea*, Age 8.8ky, calcite; F-1: *Flabellum*, Age~80ky, aragonite.)。まず、粉末X線回折による鉱物組成の同定・定量、電子顕微鏡での骨格微細構造の変質状態観察を行った。それぞれの分析目的に応じた前処理後、ICP-MS, EPMA によるUおよび主要元素の濃度分析、マルチプルコレクター型ICP-MSによるU同位体組成分析、さらに、妨害となるSrの $\text{K}\alpha$ 線を除去するために蛍光分光を組み合わせたX線吸収微細構造分析を行うことで、サンゴ中Uの価数を求めた。

【結果と考察】サンゴ中のU濃度は海水と比較すると数百から千倍以上濃縮しており (0.60 - 4.11 ppm)、種や年代などにより異なる値を示した。続成作用を受けcalcite化したサンゴ中のU濃度は、Sr濃度と同様に続成作用の程度に応じて減少しており、元素濃度マッピングからもその存在分布が偏っていることが明らかになった。またこれら試料のXANES 分析から、結晶構造、年代および生物種に関わらずUは+6 価で存在していることが分かった。同位体分析値を年代補正して求めた初生 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は、どの試料においても同位体異常は認められず、誤差範囲内で 1.144 ± 0.002 と一致した。このように、サンゴの種や年代による同位体比異常やUの価数の顕著な差は見られず、さらには続成作用での鉱物結晶変化によるU溶脱時も同位体フラクショネーションを起こしていないということが明らかになった。本研究により、U 同位体変動はサンゴによるフラクショネーションの結果ではないと示唆される。

Study on uranium in coral skeleton - Isotopic composition and speciation by wavelength dispersive XAFS analyses-
SAKAGUCHI, A., MORI, C., SASAKI, K., TANIMIZU, M., URUGA, T., TAKAHASHI, Y.

ガンマ線スペクトロメトリのためのゲル化剤を用いた 市販試薬標準線源の作製

(明大院理工¹、明大研究・知財戦略機構²、尚絅学院大環境構想³)

○鈴木亮一郎¹、栗原雄一²、塩原良建¹、齊藤敬³、中村利廣¹、
小池裕也¹

【緒言】ガンマ線スペクトロメトリを用いて放射能を定量する場合、試料と標準線源のジオメトリを一致させて測定する。一般的に、環境試料測定のための試料容器には、U8 型容器が用いられるため、U8 型容器に充填された標準線源により定量を行う。しかし、環境試料には、フィルター上に捕集した試料や固相抽出ディスクに放射性核種を保持させた試料¹⁾のように膜状のものがあり、ジオメトリに対応したディスク型の線源も必要となる。放射線管理区域のない施設では、試料とジオメトリが一致した線源の作製および放射能の定量は難しいため、天然放射性核種を利用したディスク型標準線源の作製を試みた。

【実験】試薬には塩化カリウム(和光純薬)および酸化ルテチウム(和光純薬)を用いた。塩化カリウムは純水を用いて溶液化し、酸化ルテチウムは濃硝酸を用いて加熱溶解したものを乾固し純水を加えることで溶液化した。この溶液をそれぞれバイアル瓶に取り分け、溶液の質量に対して 10% のゼラチンと少量の食紅を加えた後、50°C で湯煎にかけゼラチンを溶解させた。マイラー膜に張り付けた ADVANTEC 社製のろ紙(No.2, 55 mm 径)に溶液を滴下し、溶液の滴下量から放射能を決定した。ろ紙は低温でゆっくりと乾燥させ、乾燥後ラミネートフィルムでコーティングし、これを線源とした。作製した線源はイメージングプレート(IP)に 1 週間露光した後に読み取り、線源中の放射性核種の分布を二次元画像化して露光した部分の PSL 値からろ紙上での均質性を評価した。

【結果】線源作製は、ゲル化剤を用いた線源作製法²⁾を応用した。作製した線源を IP に露光することで得られた放射能分布の二次元画像を Fig. 1 に示す。⁴⁰K および ¹⁷⁶Lu を含む試薬から作製した線源は、共にディスク形状に均一に固定化できたと考えている。用いた試薬は放射線管理区域を持たない施設でも入手ができ、多くの場所でガンマ線スペクトロメトリに利用できる。また、試薬を溶液化した後にゲル化剤を加えることで固定化できるため、環境試料に適用できる様々な形状の線源を作製できることも利点である。

【参考文献】1) 小池裕也, 炭山裕彰, 小田切裕輔, 乾哲朗, 岩鼻雄基, 栗原雄一, 中村利廣: 分析化学, **62**, 507 (2013).

2) 野口正安, 小峰隆志, 上沖寛, 松本幹雄: *Radioisotopes*, **50**, 301 (2001).

Preparation of natural radionuclides source using gelatinizer for gamma-ray spectrometry
SUZUKI, R. KURIHARA, Y. SHIOBARA, R. SAITO, T. NAKAMURA, T. KOIKE, Y.

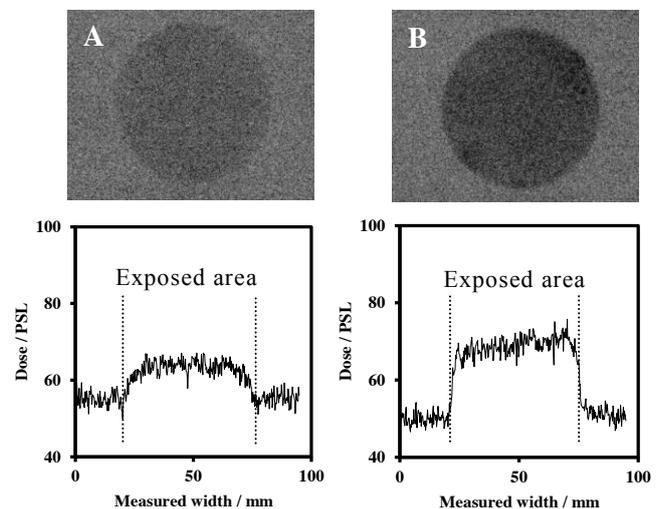


Fig. 1 Photo-stimulated luminescence images of disk-shaped sources using chemical reagent including ¹⁷⁶Lu (A) and ⁴⁰K (B).

P23

食用きのこ類の放射性セシウム測定と子実体への移行低減

○村野井友*, 入澤歩*, 木野康志*, 板橋康弘, 中島丈博, 郡山慎一, 木村栄一, 嶋原隆
(株式会社キノックス, *東北大理)

【緒言】 ナメコ栽培において、培地添加剤としてゼオライトとカリウム化合物を併用することにより、ゼオライト単体使用に比べ、栽培培地から子実体へ移行する放射性セシウムの量を更に低減でき、また増収効果も期待できることを見出した。そこで、他の食用きのこ類においても同様の効果が期待できるか検討した。

【実験】 供試菌株として、アラゲキクラゲ (KX-AK080 号、KX-AK081 号)、エノキタケ (千曲 T-011、QS)、エリンギ (KX-EG070 号、KX-EG1001 号)、シイタケ (森 XR-1、No. 300)、ハタケシメジ (KX-HA091 号、KX-HA092 号)、ヒラタケ (東北-H64 号、東北-H67 号)、ブナシメジ (KX-BS023 号、KX-BS025 号)、マイタケ (東北-MA52 号、東北-MA59 号) を使用した。栽培培地は、各きのこのキノックス基本培地とし、これにゼオライト単体、ゼオライト-硫酸カリウム混合物をそれぞれ添加した。オガコは放射性核種に汚染された広葉樹を使用して放射性セシウム濃度が 50Bq 前後になるように調製を行った。栽培培地並びに発生子実体に含まれる放射性セシウムを測定して移行係数を求めた。移行係数は、子実体中のセシウム濃度 (Bq / Kg 生重) / 菌床中のセシウム濃度 (Bq / Kg 乾重) とし、乾燥時の菌床含水率は 12%とした。放射能濃度は、Ge 半導体検出器を用いて測定した。

【結果】 ナメコと同様に、エノキタケ、ハタケシメジ、ヒラタケにおいてはゼオライトと硫酸カリウムを併用することにより、ゼオライト単体使用に比べ、子実体へ移行する放射性セシウムの量を更に低減できることが分かった。しかし、アラゲキクラゲ、エリンギ、シイタケ、ブナシメジ、マイタケでは、硫酸カリウムとの併用効果は確認できず、逆に移行係数がやや高くなる傾向が認められた。また、増収効果については品種間で差があるものの、EG1001 号、HA091 号、HA092 号、AK081 号、H64 号、H67 号で確認できた。これまでに得られたきのこ別の移行係数は、なめこ (0.64~1.00) が最も高く、はたけしめじ (0.53~0.54)、しいたけ (0.33~0.56)、まいたけ (0.32~0.33)、エリンギ (0.15~0.22)、ぶなしめじ (0.09~0.12)、ひらたけ (0.12~0.14)、えのきたけ (0.12~0.13)、あらげきくらげ (0.09~0.12) であった。

The radiocesium measurement of edible mushrooms and transfer reduction to a fruit body
Tomo MURANOI*, Ayumi IRISAWA*, Yasushi KINO* Yasuhiro ITABASHI, Takefumi NAKAJIM
A, Shinichi KORIYAMA, Eiichi KIMURA, Takashi SHIGIHARA

【緒言】

福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性セシウムによる食品の汚染が、福島県を始め東日本の多くの県で報告された。キノコは放射性セシウムを蓄積する能力が高く、現在でも自生キノコの出荷制限が福島や宮城県などで続いている。東北地方は自生キノコの愛好家が多く、自生キノコの汚染の詳細についての関心が高い。そこで、仙台キノコ同好会は東北大学理学研究科放射化学研究室と共同で、自生キノコの放射能汚染調査を行い、その結果を公表してきた[1]。公表された値は、採取し表面を洗浄した生の自生キノコの値であり、本研究では、実際に人の口に入る段階で、どれくらいの値になるか、また汚染がどれくらい除去されるかを調査した。

【実験】

同一の菌床から比較的多くの検体が採取でき、放射能濃度の高いキノコに対して、処理方法の違いによる放射性セシウムの除染効果について検討した。今回は、ハナイグチ、タマゴタケ、アミタケについて実験を行った。処理方法は、試料を水洗いして表面の土やゴミ等を除去したのち、

1. コントロール（原形）
2. お湯2ℓで煮こぼす（原形）
3. お湯2ℓで煮こぼす（2～4に分割）
4. 塩を入れたお湯2ℓで煮こぼす（2～4に分割）
5. 水と酢を合わせたもの（水1ℓ+酢1ℓ）で煮こぼす（2～4に分割）
6. お湯2ℓで煮こぼし、塩蔵する（2～4に分割）

放射能濃度は、高純度 Ge 検出器を用い、Cs-134、Cs-137、K-40 を定量した。

【結果】

2013年仙台市泉ガ岳で採取されたハナイグチの除染効果を下記の表に示す。茹でると3分の1に減少したが、その際の添加物（塩、酢）の効果はなかった。また、キノコの切断面からの流出よりもキノコ全体からの流出量が多かった。塩蔵すると100%近く除染する事ができたことから、ナトリウムとの交換によりキノコから塩へセシウムが移動した。同時に測定したカリウムもほぼ同様な振る舞いをした。

表：ハナイグチの放射性セシウムの除染

処理	Cs-134 (Bq/kg)		Cs-137 (Bq/kg)		Cs-合計 (Bq/kg)		K-40 (Bq/kg)	
未処理	302.3	(100.0%)	727.9	(100.0%)	1028.0	(100.0%)	53	(100.0%)
水茹元	107.2	(35.4%)	248.8	(34.2%)	356.0	(34.6%)	21	(39.3%)
水茹	107.0	(35.4%)	249.8	(34.3%)	356.8	(34.7%)	19	(35.6%)
水酢茹	111.4	(36.9%)	250.5	(34.4%)	362.0	(35.2%)	20	(37.4%)
塩茹	111.4	(36.9%)	257.4	(35.4%)	368.8	(35.9%)	22	(41.2%)
塩蔵3ヶ月	0.7	(0.2%)	1.6	(0.2%)	2.3	(0.2%)	0	(0.0%)

[1] 船内キノコ同好会会誌 第36号(2012)、第37号(2013)、第38号(2014)、第39号(2015).

Radioactive cesium decontamination of wild mushrooms
YABU, U., KINO, Y.

短寿命プローブ核 $^{19}\text{F}(\leftarrow^{19}\text{O})$ の電気四重極モーメント測定に向けたオンライン γ 線摂動角相関測定システムの改良

(金沢大院自然¹、金沢大理工²、阪大院理³) ○藤澤照功¹、島田昌英¹、竹中聡汰²、三原基嗣³、佐藤渉^{1,2}

【緒言】 フッ素(F)の物性研究を行う上で、F原子周辺の局所構造に関する情報は必要不可欠である。このF原子核位置での局所構造を調べる方法の一つにF核位置での電場勾配を測定する摂動角相関法(PAC)がある。PACではプローブ核を試料に導入する必要があるが、Fの場合唯一の安定同位体の ^{19}F が最も有力な候補となるが、この核の基底状態は電場勾配の導出に必要な電気四重極モーメントを持たない。そこで本研究では半減期が26.9sの ^{19}O からの β 壊変によって生じる ^{19}F の第二励起準位($I=5/2$)の当該モーメントに着目した。しかし親核の ^{19}O の半減期は26.9sと短く、通常の化学操作での試料への導入が困難である。従って本研究では加速器を用いてプローブ核を直接試料に導入するオンライン摂動角相関法を開発し、当該励起準位の電気四重極モーメントを決定することを目指している。

【実験】 実験は大阪大学のヴァンデグラフ加速器施設にて Ta^{18}O_2 ターゲットに重陽子を照射して、 $^{18}\text{O}(d, p)^{19}\text{O}$ の核反応により ^{19}O を生成し、反跳した ^{19}O をそのまま試料のフッ化マグネシウム(MgF_2)に導入する手法を採用した。オンラインPAC法ではオフラインの時と異なり、ビーム由来のバックグラウンドが非常に高いので、回路調整によってバックグラウンドの抑制を試みた。構築した回路をFig.1に示す。ビーム照射時に ^{133}Ba 標準線源の測定を行うことで、この回路がオンライン法に適用可能かどうか検証を行った。検出器には時間分解能に優れる BaF_2 シンチレーターを採用し、データをリスト形式で保存可能なVME規格のデータ収集システムを使用した。

【結果】 Fig.2に実験により得られた時間スペクトルを示す。ビーム未照射時と比較してバックグラウンドは増加したが、中間準位の半減期(6.27 ns)を観測することができた。使用した ^{133}Ba 標準線源は ^{19}O の生成量と同等の放射能を持つ為、構築した回路は $^{19}\text{F}(\leftarrow^{19}\text{O})$ プローブの実験に適用可能であると考えられる。しかし $^{19}\text{F}(\leftarrow^{19}\text{O})$ の時間スペクトルの測定を行った際には第二励起準位の半減期(89.3 ns)を観測することはできなかった。このことから反跳した ^{19}O がストッパー位置まで届いていないことが考えられる。現在、バックグラウンドの更なる抑制と統計精度の向上を目指して測定系の改良を行っている。

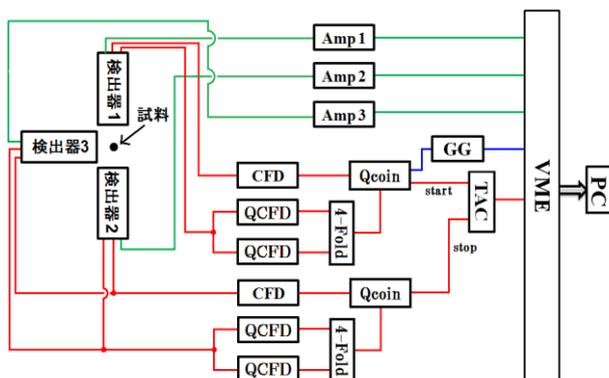


Fig.1 オンライン PAC 測定の回路図

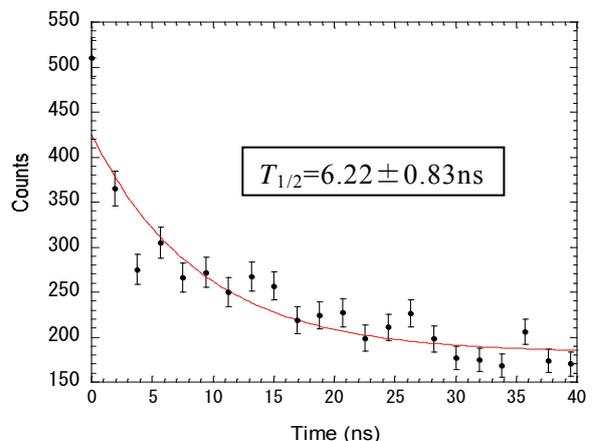


Fig.2 ^{133}Ba 標準線源の時間スペクトル

Improvement of an Online Perturbed Angular Correlation Measurement System for the Determination of an Electric Quadrupole Moment of the Short-Lived $^{19}\text{F}(\leftarrow^{19}\text{O})$ Probe
FUJISAWA, T., SHIMADA, M., TAKENAKA, S., MIHARA, M., SATO, W.

○鈴木茂世, 小池裕也, 野村貴美 (明大理工),
小林康浩 (京大原子炉), 李 洪玲 (東大工)

【緒言】 スピントロニクス分野において常温で強磁性と半導体の特性を生かした新規の材料の開発を進めている。本研究では、室温で強磁性を示す新しい材料開発を目指し、Fe をドーピングしたペロブスカイト化合物 (SrSn_{1-x}Fe_xO_{3-δ}) を作製した。その化合物に特異な磁気特性が出現することが分かった。磁気特性の起源を解明するために、SrSn_{1-x}Fe_xO_{3-δ} の ⁵⁷Fe Mössbauer スペクトル (MS) の測定を行った。その結果を報告する。

【実験】 0.1M の Sr 及び Sn の溶液、0.01 M の Fe 及び ⁵⁷Fe の各溶液と、クエン酸とエチレングリールを混合して、所定割合の溶液を調整した。溶液濃縮と有機物分解の後、400 °C で 2 時間 (h) 焼成した。最終的に 850 °C (2 h)、1000 °C (4 h) または 1000 °C (2 h) で焼成して 1% ⁵⁷Fe を含む粉末試料 (Fe 濃度が 0.5 – 15%) を得た。X 線回折 (XRD)、試料振動型磁力計 (VSM) の測定、⁵⁷Fe の MS の測定を行った。

【結果及び考察】 XRD により、直径約 30 – 50 nm の SrSnO₃ の結晶が生成していることを確認した。その格子定数は Fe の濃度とともに減少する傾向を示した。Fe が 2% 以上を含むと強磁性を示し、それとともに飽和磁化が大きくなる。

Fig. 1 に室温 VSM 磁化曲線を示したように、焼成時間により飽和磁化が大きくなる事が分かる。

Fig. 2 に 8% Fe の 4h 焼成試料の室温及び 77K の MS を示す。なお、2h 焼成の MS は、4h の MS とほぼ同じである。室温では、2 種類の常磁性 Fe (III) のピークが認められ、低温では磁気分裂がはっきり認められた。SrSnO₃ の Sn⁴⁺ に置換された Fe は 3 価であり、電荷中性の条件から酸素欠陥が生じる。8% Fe 以下では、XRD に不純物が認められず、MS は常磁性ピークのみを示すが、強磁性の振る舞いを示すものがあり、低い濃度では、欠陥誘起の希薄磁性が現われていると考えられる。なお、10% 以上の Fe ドーピングでは、室温 MS で 4 種の磁気分裂ピークが認められている。

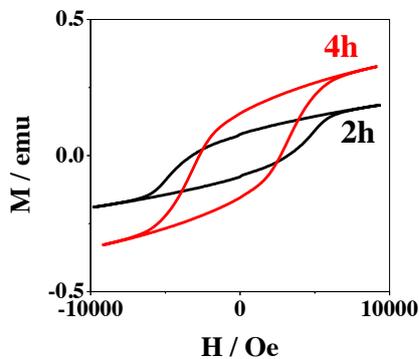


Fig. 1 VSM curves of 8% Fe doped SrSnO₃ annealed at 1000 °C for 2h & 4h

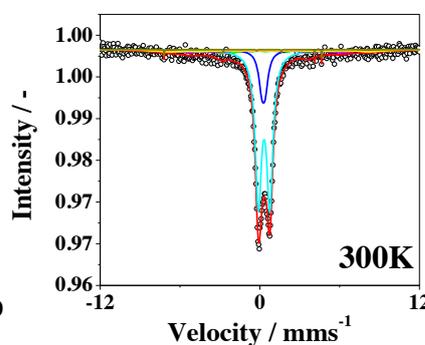


Fig. 2 ⁵⁷Fe Mössbauer spectra of 8% Fe doped SrSnO₃ annealed for 2h.

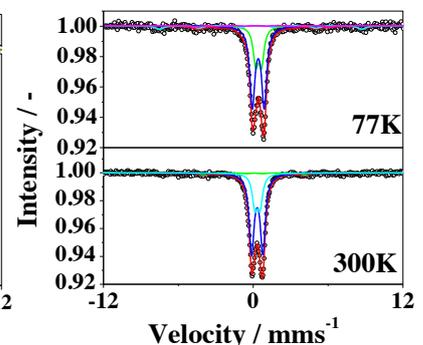


Fig. 3 ⁵⁷Fe Mössbauer spectra of 8% Fe doped SrSnO₃ annealed for 4h.

Mossbauer spectra and magnetic property of diluted Fe doped Perovskite, SrSn_{1-x}Fe_xO_{3-δ}
SHIGEYO SUZUKI, YUYA KOIKE, KIYOSHI NOMURA, YASUHIRO KOBAYASHI, KOREI LI

P27

RCNP-MuSIC ミュオン源を用いたミュオン特性 X 線測定

(阪大院理¹、阪大 RCNP²、KEK³、原子力機構⁴)○稲垣誠¹、二宮和彦¹、吉田剛¹、佐藤朗¹、川島祥孝²、松本侑樹¹、河野靖典¹、中沢遊¹、高久圭二²、下村浩一郎³、髭本亘⁴、篠原厚¹

【緒言】 ミュオンは電子と同じレプトンに属する素粒子である。負の電荷を持つミュオンの振る舞いは重い電子として、正の電荷を持つミュオンの振る舞いは軽い陽子として扱うことができる。このような性質を用いて、ミュオンは物理化学や材料科学で有用なツールとして利用されているものの、ミュオンビームが利用できる加速器施設はごく限られているのが現状である。現在、大阪大学核物理研究センター（RCNP）において大強度 DC ミュオンビーム施設 MuSIC が建設されており、ファーストビームの取り出しに成功し共同利用の開始に向けてビーム調整が進められている。今回、MuSIC において負ミュオンビームの利用を開始するにあたり、ミュオン特性 X 線測定の実験を行ったので結果を報告する。

【実験】 実験は、RCNP MuSIC-M1 ビームラインにおいて、陽子ビーム強度 20 nA、ミュオン運動量 60 MeV/c の条件で行った。負ミュオンビームをアルミニウム板で減速して銅板に照射し、ミュオン原子形成に伴って放出されるミュオン特性 X 線を高純度 Ge 半導体検出器を用いて測定した。銅板の前後にはプラスチックシンチレーターを設置し、ミュオンの銅板中への停止に同期した信号のみを取り出すことによりバックグラウンドノイズを低減した。

【結果・考察】 得られた X 線スペクトルを図 1 に示す。ターゲット由来の銅のミュオン特性 X 線（バルマー系列・パッシェン系列）および、プラスチックシンチレーター由来と考えられる炭素のミュオン特性 X 線（ライマン系列）の測定に成功した。84 分間の測定で、 μCu (4-3)は相対誤差 7%のカウントが得られた。現状の陽子ビーム強度 20 nA の条件においても、24 時間の計測を行うことで相対誤差 2%程度のカウントが得られる計算となる。また、 μCu (4-3)の S/N は 5 程度であり、良い S/N でミュオン特性 X 線を観測できることが分かった。現在、より大強度の陽子ビームを出すことができるようビームラインの遮蔽強化を行っており、大強度の負ミュオンを用いた X 線測定による様々な応用研究が可能となりつつある。

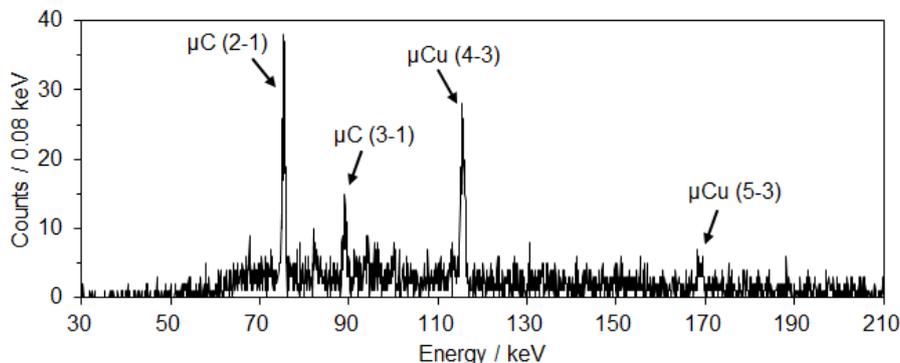


図 1. 測定されたミュオン特性 X 線のスペクトル。 $\mu\text{Z}(n-n')$ は Z 原子においてミュオンが主量子数 n から n'に遷移する際に放出される X 線を示す

Measurements of characteristic muonic X-rays using RCNP-MuSIC muon source
INAGAKI, M., NINOMIYA, K., YOSHIDA, G., SATO, A., KAWASHIMA, Y., MATSUMOTO, Y., KOHNO, Y., NAKAZAWA, Y., TAKAHISA, K., SHIMOMURA, K., HIGEMOTO, W., SHINOHARA, A.

P28

メスバウアー分光法による普通コンドライト隕石 Saratov に含まれる Fe 含有鉱物組成の研究

(金沢大院自然¹、金沢大理工²、首都大院理工³)

○中川真結¹、加納康大¹、海老原充³、佐藤渉^{1,2}

【緒言】

コンドライト隕石は太陽系生成時の母天体の状態を保存しているため、隕石中の元素組成や同位体組成に関する情報は母天体形成時の環境を知る手がかりとなる。従って鉄を含む鉱物を同定・定量することは小惑星の生成過程を知るうえで大変重要である。本研究では、普通コンドライト L4 隕石に分類される Saratov を ⁵⁷Fe メスバウアー分光法で調べ、鉱物組成を調べた。⁵⁷Fe メスバウアー分光法は、固体試料中の鉄の物理的・化学的状态に関する情報を与えるため、隕石中の鉱物組成を調べる上で最も適した手法のうちの 1 つである。これまで Saratov に関するメスバウアー分光研究では室温における測定結果が報告されているが、磁性に関するより明確な情報を得るには、スピンの配向する低温での測定が不可欠である。従って本研究では低温測定により、既報[1]で指摘されている超常磁性成分の有無を調べた。

【実験】

Saratov 隕石を粉末状にした試料（全岩成分）と、そのうちの磁石に付着しない成分（非磁性成分）をそれぞれ透過型 ⁵⁷Fe メスバウアー分光法により、室温と 10K で測定した。得られたスペクトルは α Fe の室温スペクトルにより較正を行った。

【結果と考察】

10K における Saratov 全岩成分のメスバウアースペクトルを Fig.5 に示す。得られたスペクトルから普通コンドライトの主成分として知られるカンラン石、輝石、FeS (Troilite または Pyrrhotite)、Fe-Ni (Kamacite または Taenite) の存在が確認された。低温測定で得られたスペクトルは室温のものと比較すると、磁気分裂を示す sextet の成分比がスピンの配向により増加した。Oshtrakh ら [1] は室温測定により、超常磁性 doublet を示す Fe³⁺ が 6.6 % 存在していると報告しており、これは低温測定を行うことで磁気分裂を示し、鉱物の帰属が可能になると主張している。しかし本研究では室温スペクトルにおいてこの成分は見られず、超常磁性から強磁性に転移すると考えられる 10K においてもコンドライトの酸化鉱物として知られる Akaganeite や Geothite に帰属される sextet は見られなかった。よって既報の Fe³⁺ は落下場所や保存状態に依存する地上で酸化された鉱物であることが示唆された。

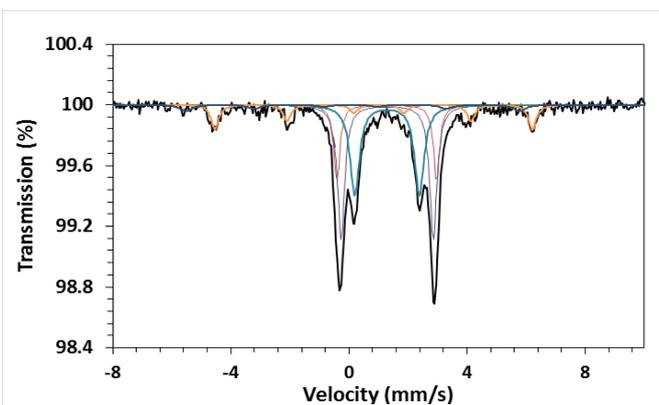


Fig.1 10K における Saratov の ⁵⁷Fe メスバウアースペクトル

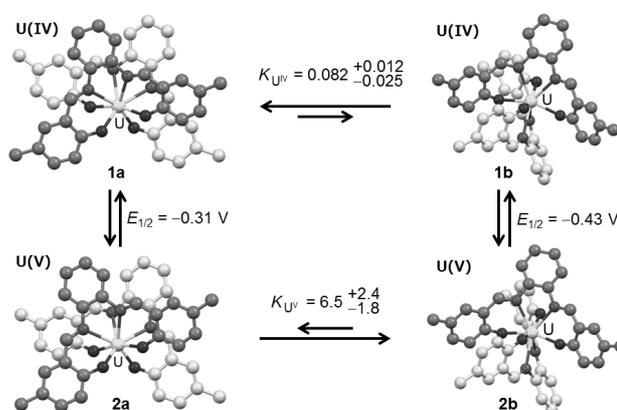
[1] M. I. Oshtrakh *et al.* *Meteoritics & Planetary Science* **43**, 941-958(2008).

Compositional Study of Iron-Containing Mineral in an Ordinary Chondrite Saratov by Mössbauer Spectroscopy
NAKAGAWA, M., KANO, Y., EBIHARA, M., SATO, W.

【緒言】我々は、 Schiff塩基である *N,N'*-Bis(2-hydroxy-5-methylbenzylidene)-1,2-phenylenediamine が U(IV) および U(V) に二つ結合した錯体において、ウラン中心が八配位四方逆プリズム構造および八配位十二面体構造の2種類の異性体が存在することを見出した。また、U(IV)では四方逆プリズム構造、U(V)では十二面体構造がより安定なことを報告した(スキーム1)。今回は、これらの化合物の安定性に関してさらに情報を得るために、U(IV)およびU(V)の両異性体の DFT 計算を行った。

【実験】U(IV)およびU(V)の四方逆プリズム構造の錯体 (**1a** および **2a**)、U(IV)およびU(V)の十二面体構造の錯体 (**1b** および **2b**)の構造最適化計算およびシングルポイントエネルギー計算は、Amsterdam Density Functional package を用いた。構造最適化計算は、GGA:BP/DZ で行った。構造最適化計算における初期構造は、X線結晶構造解析で得られたデータを用いた。全ての錯体について、配位子のメチル基をプロトンに置き換えて計算を行った。シングルポイントエネルギー計算は、最適化された構造を用いて GGA:PBE/TZP で行った。また、この計算は CH₂Cl₂、CH₃CN、THF 中の条件で行った。

【結果と考察】構造最適化計算による各錯体の U-O および U-N 平均結合距離を X線結晶構造解析で得られたデータとともに表1に示す。全ての錯体について、U-O および U-N 結合距離は X線構造の値とよく一致した。シングルポイントエネルギー計算による各溶液中での全結合エネルギーから、U(IV)では **1a** のほうが **1b** よりも 7~8 kJ/mol 安定なことが分かった。U(V)については、**2b** のほうが **2a** よりも 14~17 kJ/mol 安定であった。このことより、DFT 計算でも U(IV)は四方逆プリズム構造が安定、U(V)では十二面体構造が安定であることを示し、実験による結果と一致した。CH₂Cl₂ 中の **1a**, **1b** における SOMO および **2a**, **2b** の LUMO は計算の結果、**1a** は **1b** に比べて SOMO のエネルギーが 20 kJ/mol 低く、**2a** は **2b** に比べて LUMO のエネルギーが 10 kJ/mol 低かった。これらの値の平均値は、**2a/1a** および **2b/1b** における U(V/IV)酸化還元電位の差から算出した自由エネルギー差 12 kJ/mol と近い値を示し、今回の DFT 計算の結果は、実験で得られた結果を支持していることが分かった。



スキーム 1.

表1. U-O および U-N 平均結合距離(Å)

	1a	1b	2a	2b
U-O (DFT)	2.20	2.21	2.14	2.15
U-O (X線)	2.23	2.23	2.13	2.12
U-N (DFT)	2.58	2.56	2.60	2.57
U-N (X線)	2.60	2.59	2.56	2.56

【緒言】 高レベル放射性廃棄物の地層処分や福島第一原子力発電所事故により自然環境中に放出されたアクチノイドの挙動を解明・把握することは安全評価を行う上で極めて重要である。しかし、アクチノイドのうちウラン (U)、ネプツニウム、プルトニウムは溶液中で3価～6価の原子価を比較的安定にとり、各々の原子価によって化学的性質や溶液内挙動が大きく異なることから、いまだ正確な解明には至っていない。先行研究では、U (V) から U (IV) の還元反応において、U (IV) の酸化物凝集体の形成に伴い U (V) の電極還元速度および U (V) の不均化反応速度が増加する自己触媒作用を示すことを見出した。そこで本研究では、U の原子価変化と凝集体形成の相関およびその形成過程を調査した。

【実験】 ウラニルイオン (UO_2^{2+}) 溶液 (最終濃度 1 mM) に過塩素酸ナトリウム (最終濃度 1 M) を添加し、NaOH で pH を調整し、電解セルを用いて電気化学水晶振動マイクロバランス (EQCM) の測定 (ビー・エー・エス製 ALS420C) を行った。

【結果と考察】 U (V) から U (IV) へ還元される -0.35 V (対銀/塩化銀参照電極) を印加して EQCM 測定を行ったところ、周波数が負に変化したことから電極上でのウラン凝集体の形成を確認することができた。この凝集体の形成過程は、形成速度から、①凝集開始までの誘導過程、②凝集開始～析出量 $\sim 4 \times 10^{-9}$ mol の初期凝集過程、③成長速度が一定となる二次凝集過程 (析出量 $> 4 \times 10^{-9}$ mol) の3段階で進行していると考えられる (図1)。まず、凝集体形成過程の pH 依存性 (pH 2~4) を調査した。pH 3.1 以上で凝集体が形成し、pH が高くなるとともに誘導時間が短くなり、

初期および二次凝集体の形成速度が大きくなった。これは、凝集体形成反応への水酸化物の関与を示している。次に、U 濃度依存性 (0~2 mM, pH 3.4) を調査した。U 濃度増大とともに初期および二次凝集体の形成過程での還元速度は増大し、U 濃度に対し直線関係を示した。凝集体は U 濃度 0.21 mM 以上で形成し、U 濃度増大とともに誘導時間が短くなり、初期および二次凝集体の形成速度は U 濃度と直線関係を示した。以上より、還元反応および凝集体形成反応が一次反応であることが分かった。さらに、凝集体形成の温度依存性 (13~33°C) を調査した。温度上昇とともに誘導時間が短くなり、初期および二次凝集体の形成速度が大きくなった。

今後、初期凝集体と二次凝集体の化学種および粒径等を測定することにより形成過程について調査する予定である。

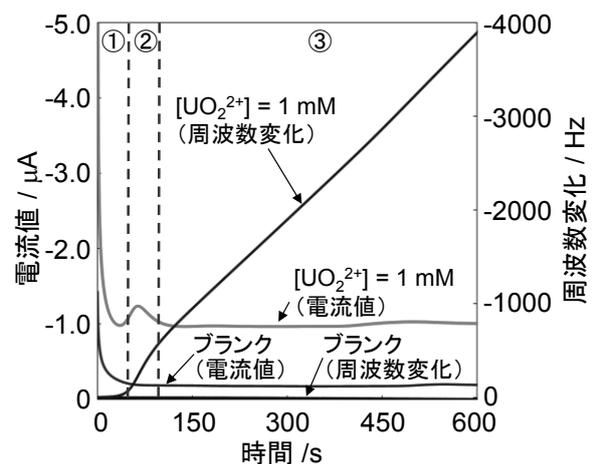


図1 UO_2^{2+} 還元反応のEQCM. $[\text{UO}_2^{2+}] = 1$ mM, $[\text{NaClO}_4] = 1$ M, pH 3.42. ①誘導過程, ②初期凝集過程, ③二次凝集過程.

P31

セシウム、ストロンチウムの選択的抽出 ～リスクフリー溶媒による溶媒抽出化学 III～

(東北大金研)○永井満家、白崎謙次、坂本清志、山村朝雄

【緒言】

高レベル放射性廃棄物から ^{137}Cs 、 ^{90}Sr を除去する方法として、溶媒抽出法が試みられている。抽出剤としてクラウンエーテルを利用することで、酸性溶液から Cs、Sr を選択的に抽出できることが報告されているが^{1) 2)}、使用する希釈剤は 1,2-ジクロロエタンなどの可燃性溶媒であり、リスクが大きい。我々のグループでは不燃性などの特徴を有するリスクフリー溶媒であるハイドロフルオロカーボン (Vertrel XF:HFC-43-10mee、図 1) を希釈剤、CMPO を抽出剤とする溶媒抽出によるウランの分離を報告している³⁾。また 1,2-ジクロロエチレンと Vertrel XF の共沸混合物

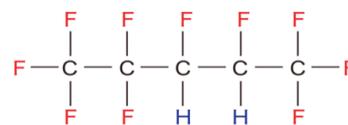


図 1 HFC-43-10mee の構造式

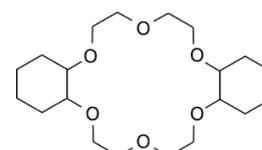


図 2 DCH18C6 の構造式

(Vertrel MCA) を希釈剤、*cis*-ジシクロヘキサノ-18-クラウン-6 エーテル (DCH18C6、図 2) を抽出剤として Sr が抽出されることを報告したが、1,2-ジクロロエチレンは PRTR 法において第 1 種指定化学物質として指定されているため毒性が無視できず、また K が同程度抽出されるため K をマスクするなどの対策が必要である⁴⁾。

本研究では Vertrel MCA より低毒性である *n*-ヘプタンと HFC-43-10mee の共沸混合物 (Vertrel XH) を希釈剤として利用することを検討している。抽出速度論や分配比の酸濃度依存性、温度依存性の検討を行った。

【実験】

水相は金属元素を含む 1~6M 硝酸溶液とし、有機相は DCH18C6 を溶解した Vertrel XH とした。等量の水相と有機相を混合し、5~30°C、30~480 分で振とうした。水相の金属元素濃度を ICP-AES または原子吸光装置で測定し、分配比を決定した。

【結果と考察】

時間を長くすると Sr の分配比は大きくなり、240 分において硝酸濃度 2M で 2.54 を示し (図 3)、Vertrel MCA を使用した結果とほぼ同じ値となった。また Vertrel MCA を使用した結果では温度が低くなるにつれて分配比が上昇しており、本研究においても同様の傾向が予想される。

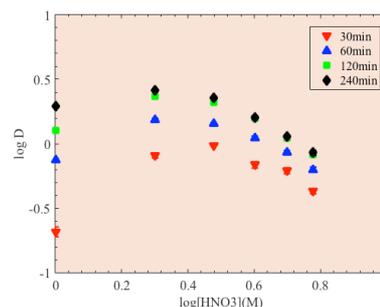


図 3 25°Cにおける硝酸濃度と分配比の関係

【謝辞】

本研究において、Vertrel XH を試供して下さった三井・デュポンフロロケミカル株式会社に厚く感謝申し上げます。

【参考文献】

- 1) R. A. Sachleben, et al., Sep. Sci. Technol., 32(1997)275.
- 2) K. K. Gupta, et al., Sol. Extr. Ion Exch., 21(2003)53.
- 3) T. YAMAMURA, et al., Journal of Nucl Sci and Tech, 47(2010)515.
- 4) 永井ら, 日本原子力学会 2015 春の年会 (茨城大学), D30, 2015 年 3 月 21 日.

Selective extraction of cesium and strontium ~solvent extraction III by risk-free solvent~
NAGAI, M., SHIRASAKI, K., SAKAMOTO, K., YAMAMURA, T.

P32

MA/Ln 分離における mono-triazinyl-phenanthroline 系抽出剤の合成とその Ln 元素に対する性能評価

(筑波大院数理¹、原子力機構²) ○ 亀澤 明憲¹、鈴木 伸一²、小林 徹²、坂口 綾¹、末木 啓介²

【緒言】 MA(マイナーアクチノイド)と Ln(ランタノイド)に対する液-液抽出による分離技術開発は高レベル放射性廃棄物の減容化や、核変換プロセス開発において重要である。しかし実プロセスに耐えうる抽出剤は殆ど報告されていない。本研究では異なる置換基を持つトリアジル基を有する 1,10-フェナントロリン系抽出剤(t-Phen)を数種類合成し、Ln 元素に対して液-液抽出、紫外可視分光滴定を行い、抽出性能を比較した(Fig.1)。

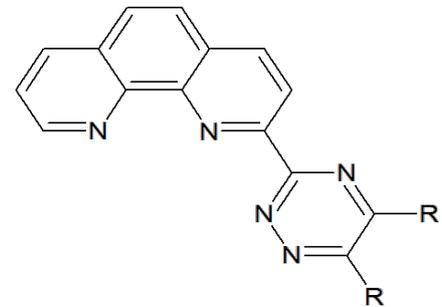


Fig.1 t-Phen (R = Me, Et, Ph)

【実験と結果】 抽出剤はBhattacharyyaらの報告に倣い合成した[1]。トリアジン環形成の反応段階において、種々の α -ジケトンを用いて各抽出剤を合成した。抽出剤の純度確認には¹HNMR、¹³CNMR、TG/DTA、ESI-MS、有機元素分析等を用いた。TG/DTA測定では、いずれの抽出剤にも吸湿性が若干ある事と水和水が1分子含まれている事が示唆された。抽出剤の性能を評価するためにLn類に対する液-液抽出実験、紫外可視分光滴定等を行った。液-液抽出実験では分配比の硝酸濃度依存性、抽出剤濃度依存性を確認した。測定にはAgilent 7700x ICP-MSを用いて水相中における希土類濃度を定量し、分配比を算出した。合成した抽出剤はCHCl₃、EtOH、Tolueneには易溶だったが、n-Octanol、dodecaneの様な長鎖飽和炭化水素系溶媒には溶解度が悪く、実プロセス適用への課題の一つとなった。紫外可視分光分析において、CH₃CNを溶媒とし、HCl溶液及びEu(NO₃)₃溶液を滴定してその波形変化(Fig.2)を観測した。得られたスペクトルからHyperquad2013 (©2013 Protonic Software)を用いて各配位子のpKaや錯安定度定数を求めた。また安定性評価に関して、ESI-MS、¹HNMRよりR = Et基である抽出剤が酸化されやすく、抽出剤中のベンジル位が酸化している事が示唆された。当日は置換基による抽出剤の各種性能への影響について報告する。

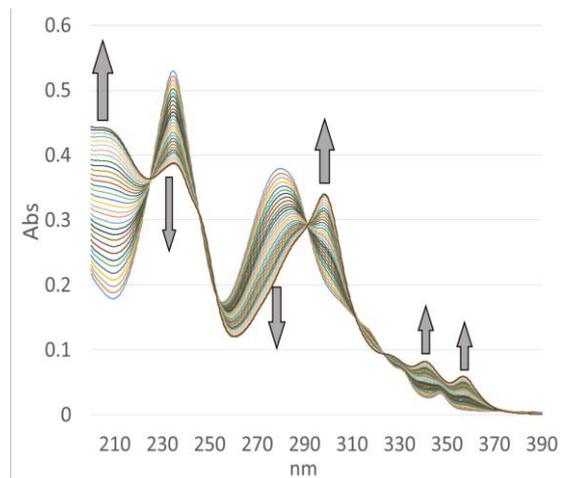


Fig.2 Titration profile of 75 mM Eu(NO₃)₃ with a 12.5 μM solution of t-Phen(R = Me) in acetonitrile.

【参考文献】

[1] Bhattacharyya, A., et al. *RSC Adv.* **2**, 7066-7073 (2012).

The synthesis the mono-triazinyl-phenanthroline derivatives for Am/Ln partitioning and the performance evaluation in lanthanide series elements.

Akinori Kamezawa, Shinichi Suzuki, Tohru Kobayashi, Aya Sakaguchi, Keisuke Sueki.

P33

核医学利用のための EDTMP および DOTMP の Th(IV) 錯体の構造と安定性

○山村朝雄、白崎謙次、古谷 昌、北林和真(東北大金研)、鷲山幸信、天野良平(金沢大)、大槻 勤(京大炉)

【緒言】

我々のグループでは、Th-227 標識した EDTMP のマウスへの投与実験を行い、骨への選択的集積、非標的組織からの迅速なクリアランス、娘核種 Ra-223 および Rb-221 が高い割合で骨内に保持されることを見出した。Th-EDTMP が骨に高い割合で保持されていることから、EDTMP や DOTMP との錯体で優れた核医学治療の創成が期待されることから研究を進めている。

本研究では、EDTMP および DOTMP の Th(IV)錯体の結晶構造と安定性定数について検討結果を報告する。

【実験】

電位差滴定法では、滴定液として 0.1 M NaOH 水溶液を用い、被滴定液は 0.005 M H ClO₄、イオン強度が 50 mM NaClO₄ の溶液中で配位子濃度は、5 m mol dm⁻³とした。また、金属イオンの濃度は、配位子と等モルの温度は 5 m mol dm⁻³とした。温度は、25.0 ± 0.1°Cとした。

【結果と考察】

滴定曲線の解析を Hyperquad2008 で行い、安定度定数を決定した。logK_{ML} において、d 遷移金属では、EDTMP より DOTMP で大きいのは、配位へ影響を及ぼしている窒素原子の数が 2 つ DOTMP で多いからである。一方、アルカリ土類金属では、窒素原子の配位への関与は小さく、EDTMP と DOTMP でほぼ同じ値が得られている。Th の場合は、logK_{ML} および logK_{MHL} において、d 遷移金属よりアルカリ土類金属元素である Ca に近い挙動を示している。よって、Th では、窒素原子の関与は小さいと推察できる。

また、EDTMP と DOTMP の Th (IV) 錯体の錯形成定数は、アルカリ土類金属の Ca (II) 錯体に近い値となり配位結合において窒素原子の関与が小さいことを示唆する。また、Th (IV) 錯体の結晶構造解析を行い、DOTMP 錯体において、窒素原子との錯形成を含む、EDTMP 錯体より強い配位結合があることが判明した。しかし、Th 窒素結合は、従来知られている結合の中でも最も弱く長い配位であった。

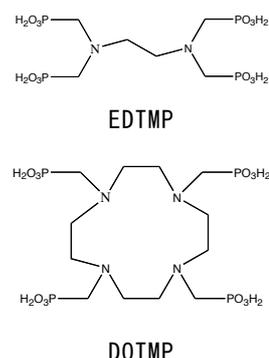


Fig. 1 EDTMP と DOTMP の構造

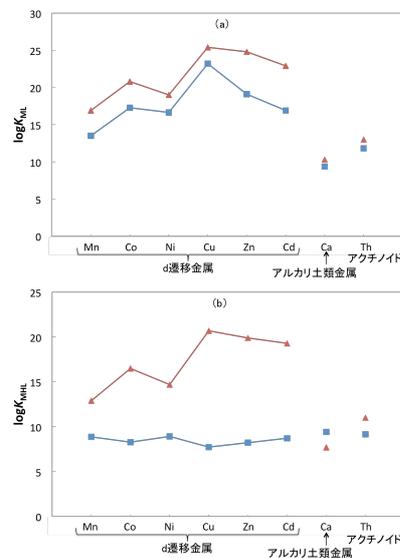


Fig. 2 EDTMP 錯体 (■) と DOTMP 錯体 (▲) の元素ごとの安定度定数 : (a) logK_{ML}; (b) logK_{MHL}

Structure and stability of EDTMP and DOTMP complex with Th(IV) for nuclear medicine.
YAMAMURA, T., SHIRASAKI, K., FURUYA, M., KITABAYASHI, K., WASHIYAMA, K., AMANO, R., OHTSUKI, T.

P34

重陽子照射で発生する加速器中性子によるがん治療用 ^{67}Cu の大量製造に関する検討

(原子力機構¹、千代田テクノ²)○橋本和幸¹、川端方子²、佐伯秀也²、佐藤俊一²、塚田和明¹、初川雄一¹、永井泰樹¹、渡辺智¹、石岡典子¹

【緒言】 ^{67}Cu (半減期 62 時間) は、がん治療に適したベータ線 (平均エネルギー 141 keV) と画像化に適したガンマ線 (185 keV) を同時に放出するため、がん治療用核種として有望視されている。しかし、大量に高品質の ^{67}Cu を製造する方法が限られているため、研究開発が限定的である。そこで我々は、AVF サイクロトロンにて重陽子ビームを炭素あるいはベリリウム標的に照射する事で発生する高速中性子を ^{68}ZnO に照射することにより ^{67}Cu を製造する手法の開発を行っている。本研究では、実用化を目指す次のステップとして、動物実験が可能な放射エネルギーの ^{67}Cu を製造するために、ターゲット物質である ZnO 増量 (5 g→33 g) に対応する分離手法、濃縮 ^{68}ZnO ターゲットの精製・回収等について検討した結果を報告する。

【実験】 加速器中性子として、東海 核融合中性子源施設 FNS で、 $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$ 反応で得られる高速中性子及び高崎研サイクロトロンの中陽子ビーム (40-50 MeV) を炭素 (またはベリリウム) 標的に照射して得られる高速中性子を用いた。天然 ZnO (FNS 照射) または、 ^{68}ZnO 濃縮ターゲット (濃縮度 99.291%) を 5-6 時間中性子照射して $^{64,67}\text{Cu}$ を生成した。照射済みターゲットを濃塩酸に溶解し、10 M NaOH で pH を 3.5-4 に調整した後、キレート樹脂 (Chelex-100) 及び陰イオン交換樹脂 (AG1-X8) カラムを用いて、Zn-Cu の分離を行った。さらに、得られた $^{64,67}\text{Cu}$ 溶液を用いて、抗体標識に有用なモデル配位子である DOTA, TETA への標識を実施した。また、濃縮 ^{68}ZnO ターゲットの模擬回収 (精製) 実験として、キレート樹脂カラムから 0.001 M HCl で溶出される濃縮 ^{68}Zn 溶液に高純度 NaOH 溶液を加えて、水酸化物として沈殿・分離し、電気炉中 130°C → 400°C で加熱して、 ^{68}ZnO 模擬回収試料とした。

【結果・考察】 キレート樹脂カラムによる Cu-Zn の分離挙動を詳細に調べた結果、既報の基本分離法¹⁾ で用いた同じカラムサイズ (1.1 cm ϕ × 12 cm) で、従来の 6 倍量以上の 33 g ZnO 試料を用いた場合でも $^{64,67}\text{Cu}$ の強い吸着と Zn の非吸着が観察され、99.3% 以上の Zn を分離除去できることが確認できた。さらに、次ステップの陰イオン交換樹脂カラムによる分離・精製により、わずかに残った Zn の分離も良好であり、Cu 最終溶液中に、 $^{65,69\text{m}}\text{Zn}$ は検出されなかった。また標識実験においても、DOTA, TETA 共に従来の 5 g ZnO 分離 $^{64,67}\text{Cu}$ を用いた場合と同じ配位子濃度で高い標識率を得ることができ、標識を阻害する新たな不純物の混入も認められなかった。また、模擬回収した ^{68}ZnO を照射済み ^{68}ZnO に添加して、分離・標識実験を行い、比較検討した結果、模擬回収 (精製済み) ^{68}ZnO を添加した場合は、未精製 ^{68}ZnO のみの場合よりも、低い配位子濃度で高い標識率が得られた。本結果は、 ^{68}ZnO 回収操作により、標識を阻害する不純物が新たに混入することがないことに加え、 ^{68}Zn 濃縮ターゲット中に ppm オーダー含まれるコールド Cu を分離・精製できていることを示唆している。

(参考文献) 1) M. Kawabata *et al.*, J Radioanal Nucl Chem. 303, 1205 (2015).

Production of ^{67}Cu for cancer therapy with accelerator neutrons by deuterons
HASHIMOTO, K., KAWABATA, M., SAEKI, H., SATO, S., TSUKADA, K., HATSUKAWA, Y., NAGAI, Y., WATANABE, S., ISHIOKA, N. S.

【緒言】 ^{99}Mo を親核とする $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は 70-90 万件/年の核医学診断で用いられているが、近年、海外からの輸入危機を経て、将来における国内安定供給への対策が議論されてきた。加速器中性子を利用した ^{99}Mo 製造と $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 熱分離は、連続高効率分離が可能であり、我々は、国産化が可能な新製造法として研究を進めてきた。分離後の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は、装置内石英管に凝縮しており、これを洗浄及び濃縮して少量の生理食塩水に溶解した化学形(TcO_4^-)にすることが必要である。これまでは濃縮に用いるアルミナへの $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 吸着を要する為、低濃度(0.1 mM)の NaOH 水溶液で洗浄を行ってきたが、洗浄効率が不安定で収率に影響していた。そこで、0.1 M NaOH 水溶液で $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の洗浄を行い、陽イオン交換カラムで NaOH の中和を、アルミナカラムで $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の濃縮を試みた。本発表では、この改善の効果と、熱分離効率と合わせた総収率についての検討結果を報告する。

【実験】 $^{100}\text{MoO}_3$ 25g 試料をペレット化し、日本原子力研究開発機構 核融合中性子源施設 (FNS)にて中性子照射を行った。照射済試料は白金製のつぼ(50 φ × 20 mm)に入れ、熱分離装置内に設置し、酸素及び水蒸気を流した環境中 830°C以上で一定時間加熱することで、試料中から $^{99\text{m}}\text{Tc}$ のみを熱分離した。分離された $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は装置内の低温領域にある石英管及び石英管内金線に凝縮している。これを取り外し、0.1 M 又は 0.05 M NaOH 水溶液 20 mL で洗浄し、その溶液を陽イオン交換樹脂カラム(Dionex OnGuard II-H, Thermo Fisher Scientific, Inc.)及びアルミナカラム(SepPak Alumina N Plus Light, Waters)に通液した。続いて超純水 20 mL で両カラムを洗浄後、陽イオン交換樹脂カラムのみを取り外し、アルミナカラムに生理食塩水 3 mL を通液し $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を溶出した。NaOH 溶解液及び生理食塩水溶出液中、及び残留 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ について放射能測定を行い、収率を算出した。

【結果】 NaOH 濃度を 500~1000 倍にしたことで、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の洗浄効率が従来(50-90%)から向上し、安定的に 95%以上を達成、アルミナカラムにおける濃縮回収と合わせて 90%を得た。熱分離効率 > 90%と合わせて、本熱分離システムでの $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 分離収率は 80%を超えることが明らかになり、熱分離システムとしての有効性が示された。

【謝辞】本研究は、国立研究開発法人日本医療研究開発機構(AMED)の研究成果最適展開支援プログラム シーズ育成タイプ 平成 25 年度採択課題 「加速器中性子利用 $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ 国産化に向けた開発研究」の支援によって行われた。

Recovery and purification of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ isolated from $^{99}\text{MoO}_3$ using a thermal separation technique
KAWABATA, M., HASHIMOTO, K., MOTOISHI, S., SAEKI, H., SHIINA, T., OHTA, A., TAKEUCHI, N. and NAGAI, Y.

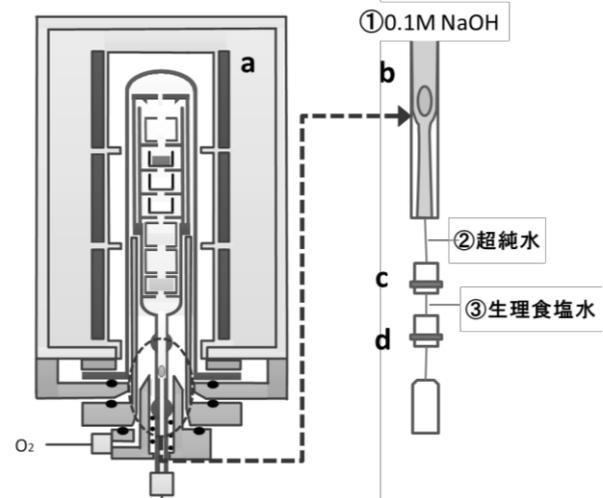


図 1. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 熱分離装置概要。a: 加熱分離装置、b: $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 回収石英管、c: 陽イオン交換カラム、d: アルミナカラム

P36

$^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ ジェネレータの原型としてのシリンジ密封抽出系の構築

(金沢大理工¹、金沢大院自然²、原子力機構³、金沢大医薬保健⁴)

村上拳冬¹、○大江崇太¹、谷口拓海²、橋本和幸³、牧井宏之³、

西中一朗³、鷺山幸信⁴、横山明彦¹

【緒言】アイソトープ治療に用いる α 線放出核種として ^{211}At が注目されている。 α 線は線エネルギー付与が高いため、同一線量の β 線より高い治療効果が期待できる。また飛行が短いため腫瘍周辺の正常細胞を傷つけずに治療を行うことができる特徴がある。しかし ^{211}At の半減期は 7.2h と短いため、核種製造施設から遠い場所での利用が困難である。そこで我々は、その親核種である半減期 14.6h の ^{211}Rn を製造し、娘核種の ^{211}At をミルキングすることで遠隔地利用を可能とするジェネレータ技術の確立を最終目標とした研究を行ってきた。これまで、様々な手法を検討してきたが、溶媒中から ^{211}Rn が空気中へ放出することや ^{211}At が予想に反して抽出されないことなどの問題があった。本研究では、これらの問題点を改善することを目的とした密閉系のジェネレータとして、シリンジを用いたプロトタイプを作製し、溶媒抽出による ^{211}Rn から ^{211}At のミルキングを試みた。

【実験】Bi を蒸着させた Al 箔に、日本原子力研究開発機構タンデム加速器の 7Li ビームを照射し、 $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5n)^{211}\text{Rn}$ 反応によって ^{211}Rn を製造した。ターゲットから湿式分離法によって ^{211}Rn を抽出した後、アルカン溶液を予め空気を抜いたシリンジに入れ、一定時間放置して ^{211}Rn の壊変で生成する ^{211}At の成長を待った。その後、抽出を行うためにメタノールが入ったシリンジを連結して、二本のシリンジのピストンを交互に動かすことで2つの溶媒をよく混合した。混合後の各相を各々のシリンジに再度分離して、測定試料とした。各シリンジは Ge 半導体検出器で γ 線測定を行い、2相間の ^{211}Rn の量を定量することで、分配比およびアルカン相からの損失量を求めた。一方、 ^{211}At の分配比については液体シンチレーションカウンター(Photon Electron Rejecting Alpha Liquid Scintillation, PERALS)により測定し ^{211}At の抽出率を求めた。非極性溶媒としてデカン、ドデカン、テトラデカンおよびヘキサデカン、極性溶媒としてメタノール、NaCl を飽和させたメタノール、N-ブロモスクシンイミド(NBS)添加メタノールを選択し、アルコール相に対するアルカン相中の ^{211}Rn 分配比の検討を行った。 ^{211}At の抽出はドデカンに対するメタノールおよび NBS 添加メタノールの条件で検討を行った。

【結果】 ^{211}Rn 分配比を確認した結果、図1のようになった。この図より炭素数の少ないアルカンのほうが ^{211}Rn の保持に優れ、ミルキングに好ましいことがわかった。しかし、NaCl を加えた効果は分配比向上の上で、わずかであった。また、 ^{211}Rn をドデカンに捕集し、メタノール、NBS 添加メタノールにて抽出を行った時の At 分配比を確認した結果、表1のようになった。以上の結果から、NBS 添加メタノールによる At 抽出は非常に優れていることが分かった。今後は、メタノールの ^{211}Rn 分配をできるだけ減らし、アルカンに ^{211}Rn を残留させるような溶媒や系の検討が必要である。

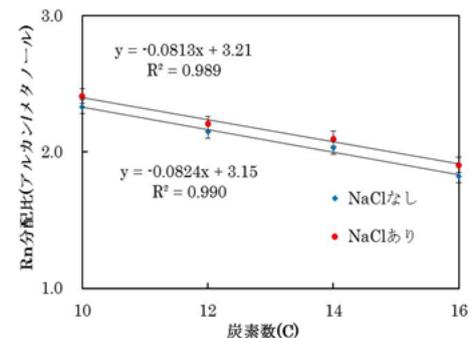


図1 アルカンに対する Rn 分配比

表1 ^{211}At の分配比

系	分配比
MeOH	0.64(1)
MeOH + NBS	37(1)

Extraction experiment in a closed system using syringes for a simulation of $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ generator
MURAKAMI, K., OOE, S., TANIGUCHI, T., HASHIMOTO, K., MAKII, H., NISHINAKA, I.,
WASHIYAMA, K., YOKOYAMA, A.

P37

阪大 RCNP における核医学診断、治療用 RI の製造

(阪大院理¹、阪大 RCNP²、阪大院医)○高橋成人¹、林 良彦²
神田晃充¹、中井浩二¹、篠原 厚¹、福田光宏²、畑中吉治²、
池田隼人³、畑澤 順³

【緒言】今日、核医学診断、治療の多様化に伴い様々な RI の利用が行われてきている。SPECT で利用されている ^{99m}Tc のほぼ全量は輸入に頼っているが、国内の加速器を用いた製造もかなり検討されている。また PET 診断では ¹⁸F が国内外で数多くの施設において使用されているが、半減期の長い β⁺放出核種の利用が求められている。さらには α 線を用いた内用療法も検討されており、²¹¹At がその有望な核種として取り上げられている。

我々は、このような核医学利用核種の製造を大阪大学核物理研究センター (RCNP) で行って来た。その製造装置の特徴及び分離精製法について発表する。

【実験】我々は RCNP の AVF サイクロトロンおよびリングサイクロトロンを使用してこれまでに次のような核医学用の RI を製造した。⁵²Fe(T_{1/2} = 8.28 h)、⁶²Zn(T_{1/2} = 9.26 h)、⁶⁵Zn(T_{1/2} = 244.1 d)、⁹⁹Mo(T_{1/2} = 65.94 h)、^{99m}Tc(T_{1/2} = 6.01 h)、¹²⁴I(T_{1/2} = 4.18 d)、¹⁹¹Pt(T_{1/2} = 2.91 d)、²¹⁰At(T_{1/2} = 8.14 h)、²¹¹At(T_{1/2} = 7.21 h)を製造した。これらの RI はターゲットから化学分離法により分離精製した。さらにはこれらの RI を用い標識化合物を合成した後、マウスに投与しがん組織への集積度を調べた。図 1 に RI の製造・薬剤調整の手順を示す。

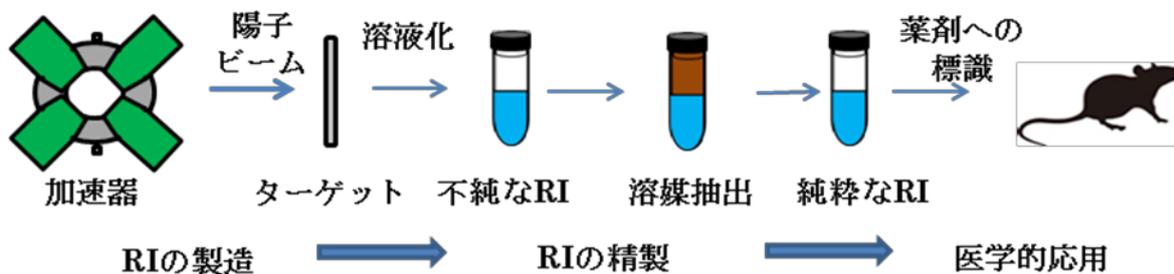


図 1 核医学用 RI の製造、分離・精製及び標識

さらに、これらの RI を人に投与するための多量の RI の製造方法についても検討を行った。

特に低融点のターゲットを使用する場合、照射中の冷却が必要となる。冷却 He によるターゲット冷却システムを開発した。さらには RI の分離過程での被ばくを低減するための自動分離装置の開発も行った。

【結果・考察】これまでは p や α 粒子を用いた核反応によって RI を製造した。ターゲットの前面及び背面からの冷却により低融点のヨウ素やアスタチンの製造において目的 RI の損失は見られなかった。また分離方法では主に溶媒抽出法を使用し、高純度の目的 RI が得られた。さらには自動分離装置の開発により、多量の RI の分離・精製が可能なことを検証した。

Production of Radioisotopes for Nuclear Medicine Diagnosis and Therapy at RCNP Osaka University
TAKAHASHI, N., HAYASHI, Y., KANDA, H., NAKAI, K., SHINOHARA, A., FUKUDA, M.,
HATANAKA, K., IKEDA, H., HATAZAWA, J.

【緒言】 核医学用放射性同位体(RI)は、高感度の診断(癌、脳神経疾患、心疾患等)及び治療(主に癌)のために世界中で重用されている。本研究では、治療用 RI として最近利用されてきた⁹⁰Yを、安定稼働に定評がある加速器で得られる高速中性子(数 MeV 以上)を用いて効果的に合成する事を試みる。15~30 MeV の陽子ビームをより多くの中性子が発生すると期待されるベリリウム標的に照射し、実際に発生する高速中性子で生成する⁹⁰Yの合成試験を行うと共に、同時に生成する副生成物の影響について評価する。また、粒子・放射線輸送モンテカルロ・シミュレーション計算コード PHITS コードを用いて、今回の照射実験系を模擬し、実測値との比較検討を行った。

【実験】 実験は原子力機構タンデム加速器において行った。目的核種である⁹⁰Yを合成するため、陽子ビームをBe金属標的に約300 nAのビーム量で照射し、Be(p,n)反応によって高速中性子を発生させ、直径10 mm、重さ0.3 gのZrO₂ペレット(98.80%濃縮⁹⁰Zr)をビーム前方の大気中に設置し約5時間中性子照射を行った。照射したZrは冷却後取り外し、Ge半導体検出器によってγ線測定を繰り返し行い、その結果、⁹⁰Yと同時に生成する^{90m}Y(T_{1/2}=3.19 h)の励起関数測定と^{90m}Yおよび副生成物を定量した。さらに同様の実験体系をPHITS version 2.77 によって模擬し、データの取得を行った。

【結果と考察】

γ線スペクトロメトリーより、それぞれの照射エネルギーにおいて生成された核種およびその生成量を得た。Fig.1に30 MeV陽子照射における試料のγ線スペクトルを示す(照射終了後1時間)。スペクトルから、目的核種である^{90m}Yの合成を確認できた。その他検出された副生成物は、⁸⁹Zr(T_{1/2}=78.4 h)、^{87m}Sr(T_{1/2}=2.81 h)であり、⁹⁰Zr(n,2n)⁸⁹Zr、⁹⁰Zr(n,α)^{87m}Srなどの反応で生成されたと考えられる。PHITSによる計算結果と比較すると、実測値の方がより大きな放射エネルギーを示した。また、入射陽子エネルギーに対する主な副生成物の生成量については、実測値およびPHITSによる計算結果との比較から、ほぼ同様な傾向を示していることが確認できた。Zrターゲットの厚さを1.2 cmまで設定し重さを増やした結果、ターゲット厚を増やすほど生成量が増加することが推測された。

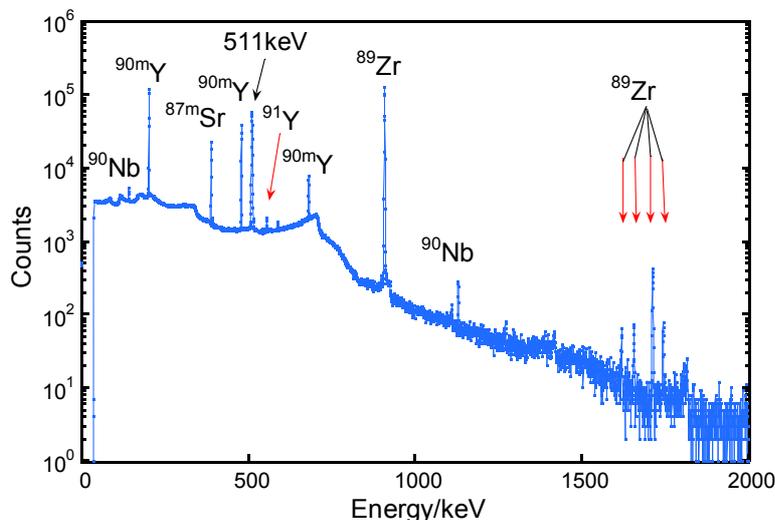


Fig.1 Beに30MeV陽子を照射することで発生する高速中性子を照射したZr試料のγスペクトル(照射終了後1時間)

Production of medical radioisotope ⁹⁰Y at a zirconium target irradiated by fast neutrons in the ⁹Be(p,n) reaction

TAKEDA, S., TSUKADA, K., SATO, T.K., ASAI, M., NAGAI, Y., SAKAMA, M., ERIKA, M.

P39

東シナ海から日本海表層における $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の水平分布および季節変動

(金沢大¹、日水研²、愛媛大³、水大校⁴、中央水研⁵)○城谷勇陸¹、井上睦夫¹、長尾誠也¹、山本政儀¹、浜島靖典¹、古澤佑一¹、小藤久毅¹、本多直人²、森本明彦³、滝川哲太郎⁴、藤本賢⁵、早川和一¹

[序論]

海洋環境において粒子吸着性である ^{228}Th ($t_{1/2} = 1.91$ y) は、親核種の溶存態 ^{228}Ra ($t_{1/2} = 5.75$ y) に比べ優先的に海水表層より除去される。それゆえ、 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 放射能比は粒子吸着性元素とともに粒子の挙動を探る指標となる。東シナ海表層での先行研究では、黒潮海水に対して大陸棚浅層海水の寄与が大きくなる場合に $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比が低くなる水平分布および季節変動が認められた (Inoue *et al.*, 2012)。本研究では日本海表層の $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の水平分布および季節変動を基に、日本海表層における粒子吸着性核種の挙動を議論する。

[試料・実験]

2008-2014 年に東シナ海から日本海で表層海水 ~20 L を採取した。BaSO₄ および Fe(OH)₃ 共沈法を適用し、海水より ^{228}Ra 、 ^{228}Th を分離精製し、金沢大学尾小屋地下測定室に設置したゲルマニウム検出器を利用した低バックグラウンドガンマ線測定法により ^{228}Ra 、 ^{228}Th 放射能濃度を計測した。

[結果・考察]

6-7 月において、東シナ海表層では、主に黒潮海水と大陸棚浅層海水の混合比を反映した $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の変動 (0.01-0.41) が認められた (Fig. 1)。一方、日本海に入ってから $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の変動幅が小さく (0.01-0.25)、日本海表層における顕著な粒子除去の寄与はみられないが、より詳細な議論が必要である。大陸棚浅層海水の混合比の季節変動が大きく (Inoue *et al.*, 2012)、流速が速く滞留時間の短い (3 か月程度) 日本海表層 (対馬暖流) 海水における粒子除去の議論には、 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の季節変動、および半減期の短い ^{234}Th 放射能濃度 ($t_{1/2} = 24$ d) ($^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比) の適用が有効である (^{234}Th 濃度は、2015 年 7 月の日本海調査航海で採取した海水で測定中)。本年会では、これら測定結果を加えることにより、日本海表層における粒子除去の寄与を評価する。

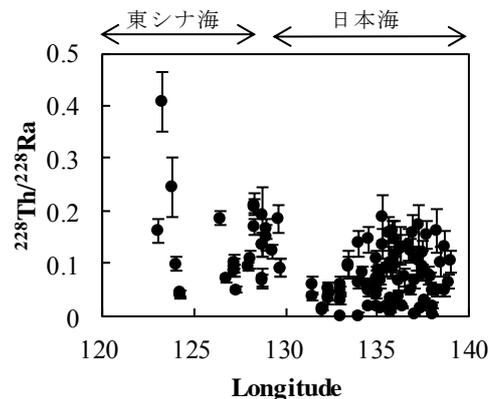


Fig. 1: Lateral distribution of $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ activity ratio

謝辞：海水採取にご協力いただいた、蒼鷹丸、照洋丸、天鷹丸、淡青丸の同乗研究者、船長および乗組員の皆様に感謝いたします。

文献：M. Inoue *et al.* (2012) *Geochem. J.* **46**, 429-441.

Lateral distribution and seasonal variation of $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ ratio in surface seawaters of the East China Sea and the Sea of Japan

SHIROTANI, Y., INOUE, M., NAGAO, S., YAMAMOTO, M., HAMAJIMA, Y., FURUSAWA, Y., KOFUJI, H., HONDA, N., MORIMOTO, A., TAKIKAWA, T., FUJIMOTO, K., HAYAKAWA, K.

P40

ピッチブレンド中のウラン及びトリウム系列核種の溶出

(明大院理工¹、明大研究・知財戦略機構²)

○小松原健太¹、栗原雄一²、塩原良建¹、中村利廣¹、小池裕也¹

【緒言】

これまでに、放射性鉱物のモナズ石¹⁾ (Ce, La, Nd, Th) PO₄、ユークセン石²⁾ (Y, Ca, Ce, U, Th) (Nb, Ta, Ti)₂O₆ 及び石川石 (Y, Fe, U, Ca)(Nb, Ta)O₄ と様々な pH の酸溶液とを接触させた溶出実験において、酸溶液の pH の変化に伴い Th 及び Ra 同位体間 (²²⁸Th, ²³⁰Th, ²³²Th 及び ²²⁴Ra, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra) で溶出挙動が異なることが報告されている。また、これらの同位体間での溶出の差異はトリウム鉱物とウラン鉱物とで異なる傾向を示している。ウラン鉱物における系列内核種の溶出挙動を調べるために、本研究ではユークセン石などと同じウラン鉱物であるピッチブレンドを用いて同様の溶出実験を行い、溶出液中の Th 及び Ra の同位体の放射能比を観測した。

【実験】

試料にはピッチブレンドを含んだ岩塊を粉砕し、重液分離により精製したものを使用した。溶出実験は、pH を 0, 1, 2 に調整した塩酸溶液と精製した試料とを 25°C で 15 日間接触させて行った。各溶出液中の Ra の同位体の放射能比は γ 線スペクトロメトリにより測定した。

【結果及び考察】

各溶出液の pH に対する ²²³Ra/²²⁶Ra の放射能比を Fig. 1 に示す。Figure 1 より、溶出液中の ²²³Ra/²²⁶Ra の放射能比は、鉱物中の値 (0.0437) より高い値を示し、溶出液の pH の値が高くなるにつれて大きくなる傾向が見られた。これは、これらの核種が生成されるまでに起こる α 壊変のエネルギーの差異に起因しているのではないかと考察した。Uranium-238 から 3 回の α 壊変を経て生成される ²²⁶Ra 及び ²³⁵U から同じく 3 回の α 壊変を経て生成される ²²³Ra について、核種が生成され

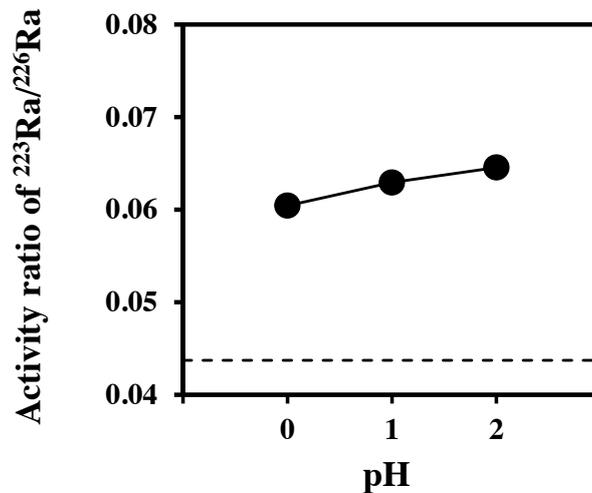


Fig. 1 ²²³Ra/²²⁶Ra activity ratio in leachate from pitchblende sample in HCl aqueous solution.

--- : ²²³Ra/²²⁶Ra activity ratio in the sample (0.0437).

るまでに起こる α 壊変のエネルギーの総和を算出すると、それぞれ 13.6 MeV 及び 15.1 MeV となり、²²³Ra の方が ²²⁶Ra よりも大きいエネルギーを受けていることになる。このことから、²²³Ra 周辺の結晶格子の方が α 線による損傷の影響が大きいため、²²³Ra が ²²⁶Ra よりも溶出しやすい傾向を示したのではないかと考えられる。

【参考文献】

- 1) K. Nagai, E. Hashimoto and J. Sato: *Radioisotopes*, **55**, 567 (2006)
- 2) K. Nagai, Y. Kurihara and J. Sato: *Radioisotopes*, **56**, 719 (2007)

Leaching of uranium and thorium series nuclides from pitchblende
KOMATSUBARA, K., KURIHARA, Y., SHIOBARA, R., NAKAMURA, T., KOIKE, Y.

P41

隕石構成元素に対する 80 MeV 単色中性子による核反応生成物の測定

(阪大院理¹、阪大理²、京大炉³、阪大 RCNP⁴、KEK⁵、JAEA⁶、理研⁷、パデュー大⁸、カリフォルニア大⁹)○二宮和彦¹、南部明弘²、重河優大¹、高橋成人¹、篠原厚¹、関本俊³、八島浩³、嶋達志⁴、萩原雅之⁵、岩元洋介⁶、柴田誠一⁷、Marc. W. Caffee⁸、西泉邦彦⁹

【緒言】 宇宙空間における高エネルギー宇宙線が、隕石や小惑星に入射すると大量の中性子を二次的に生成する。これら中性子による核反応は、安定同位体の比率の変化や放射性核種の生成を起こす。中性子による核反応は、十数 MeV 以下の領域では多くの研究がされているが、より高エネルギーの領域ではほとんど研究例がない。本研究グループは、中性子のエネルギースペクトルが、中性子を発生させる一次ビームである陽子の入射方向に対して大きく変化することを利用して、擬似的に単色の中性子成分を取り出す方法により[1]、高エネルギー中性子による核反応断面積の測定を行ってきた[2-4]。本発表では、隕石構成元素を中心に、80 MeV 中性子を照射し核反応断面積の測定を行ったので報告する。

【実験】 中性子照射実験は、大阪大学核物理研究センターN0 ビームラインにおいて行った。80 MeV の陽子を Li ターゲットへと照射し、陽子の入射方向に対して 0°と 25°に、C, Al, Mg, Si, SiO₂, Si₃N₄, KNO₃, CaCO₃, Fe, Ni, Cu, Nb を設置した。これらの試料に生成した短寿命の放射性核種をゲルマニウム半導体検出器で定量し、二つの試料間での生成量を減算することによって、中心エネルギー 80 MeV の中性子による核反応断面積を決定した。

【結果】 図 1 に一例として、Mg ターゲットのガンマ線測定結果を示す。0°および 25°の 2 回の照射実験それぞれにおいて、²²Na, ²⁴Na の生成が確認された。これらの生成率を減算することにより、Mg(n, x)²²Na, ²⁴Na 反応の核反応断面積を決定した。

本発表では、ガンマ線測定により生成が確認された核種の断面積について、過去の実験結果と合わせた入射エネルギー依存を議論する。

[1] J. M. Sisterson et al., NIM B240 (2005) 617

[2] K. Ninomiya et. al., Proc. Radiochim. Acta., 1 (2011) 123

[3] K. Ninomiya et. al., APSORC-13(2013), 25-NCP-04,

[4] 二宮和彦他、第 58 回放射化学討論会(2014), 1A01

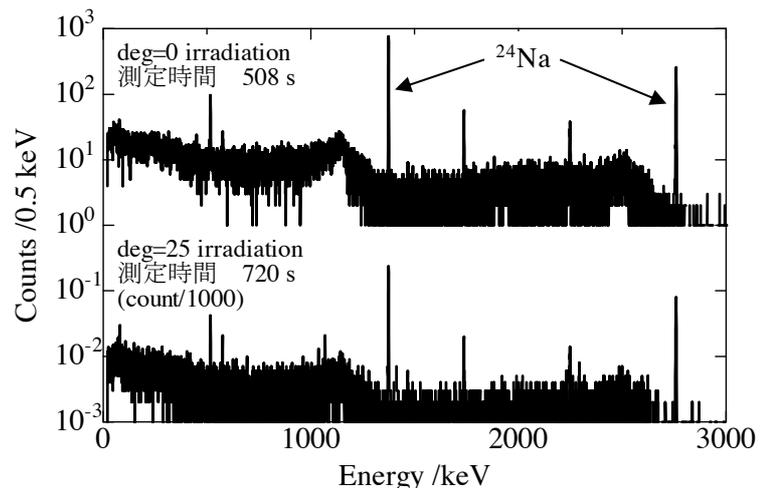


図 1 . Mg ターゲットでのガンマ線測定結果

Cross section measurement of 80 MeV neutron induced reaction for meteorite constituent elements
NINOMIYA, K., NANBU, A., SHIGEKAWA, Y., TAKAHASHI, N., SHINOHARA, A., SEKIMOTO, S., YASHIMA, H., SHIMA, T., HAGIWARA, M., IWAMOTO, Y., SHIBATA, S., CAFFEE, M. W., NISHIIZUMI, K.

P42

福島第一原子力発電所事故に由来した大気中放射性セシウム濃度の季節変動

(阪大院理¹、阪大理²、阪大 RI セ³、福島大⁴、東大大気海洋研⁵、茨城大理⁶)○二宮和彦¹、張子見¹、松永静¹、鈴木杏菜¹、藤田将史²、山口喜朗³、渡邊明⁴、鶴田治雄⁵、北和之⁶、篠原厚¹

【緒言】 2011年3月に起きた、東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が大気中に放出された。その中でも放射性セシウム(¹³⁴Cs,¹³⁷Cs)は、今なお環境中に多くが沈着したままであり、大気からも微量であるが検出され続けている。我々は、2011年より福島県福島市、茨城県日立市、宮城県丸森町において継続して大気試料の採取と放射能定量を行っている。4年を越える継続した測定により、大気放射能濃度の長期の季節変動について議論することが可能となっており、最新の結果について報告する。

【実験】 ハイボリュームエアサンプラーを用いて、福島県福島市、茨城県日立市、宮城県丸森町で大気試料を石英線維ろ紙上に捕集した。採取場所はすべて建物の屋上である。2011年は一日単位での捕集を行っていたが、2014年以降は3-7日連続して捕集を行っている。ろ紙を大阪大学 RI センターにて定型にし、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いてガンマ線スペクトロメトリーにより放射性セシウムを定量した。使用の検出器や大気捕集量により多少は変化するが、検出限界はおよそ $1 \times 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$ である。

【結果と考察】 図1に福島市における大気放射能濃度の変動を示す。2011年10月以降は、大気放射能濃度は低いレベルとなっており、緩やかな濃度減少が続いていることがわかった。減少傾向の中でも季節的な変動が見られ、冬の間は放射能濃度が上昇する傾向にあることがわかった。このような濃度上昇は、日立市や丸森町では見られない現象である。また2013年の夏ごろには、突発的に高いレベルの放射能が検出されているイベントがあることがわかった。時間分解能は悪いが、カスケードインパクターを用いて同じ地点で採取している粒径別のエアロゾル試料の分析結果から、冬季の濃度上昇は粒径が $0.39 \mu\text{m}$ 以下の非常に小さなものもたらしており、夏の濃度上昇は粒径が数 μm の比較的大きなエアロゾルがもたらしていることがわかった。発表ではこれら濃度変動の原因について、最新のデータを交えて議論する。

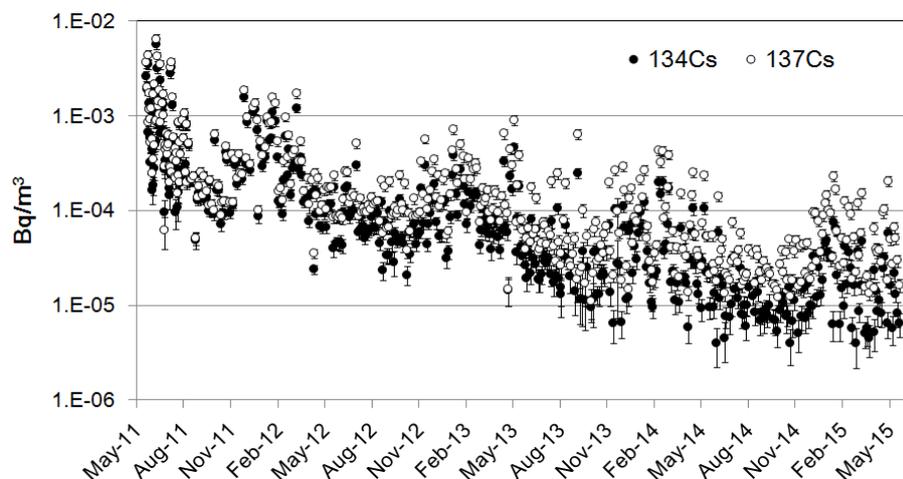


図1.福島市における ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs の大気中放射能濃度変化

Seasonal variation of radioactive cesium concentration in Fukushima City

NINOMIYA, K., ZHANG, Z., MATSUNAGA, S., SUZUKI, A., FUJITA, M., YAMAGUCHI, Y., WATANABE, A., TSURUTA, H., KITA, K., SHINOHARA, A.

P43

南相馬市で採取されたサル軟骨に含まれる放射性 Cs の測定

(東北大理¹、東北大院理²、東北大院歯³、東北大災害研⁴、東北大院農⁵、東北大高教機構⁶、東北大加齢研⁷)

○西山純平¹、小荒井一真²、木野康志²、清水良央³、高橋温³、鈴木敏彦^{3,4}、千葉美麗³、小坂健^{3,4}、佐々木啓一³、福田智一⁵、磯貝恵美子⁵、岡壽崇^{2,6}、関根勉^{2,6}、福本学⁷、篠田壽³

【緒言】我々は、福島第一原発事故後、動物への低線量被ばく影響を明らかにするために、動物体内への放射性物質の蓄積状況を調査している。オートラジオグラフィによるイメージングプレート (IP) 画像にて、警戒区域内に生息していた被災動物の骨および軟骨中の放射性物質の分布を観察すると、骨中よりも軟骨中に多くの放射性物質が蓄積していることが判明した。骨の主成分は Ca であり、主に Sr-90 が沈着することが知られている[1]。今回の事故でも骨や歯などの硬組織から Sr-90 が検出されている[2]。一方、軟骨中に放射性物質が沈着することは、過去にほとんど報告されていない。軟骨組織は、骨と比べ Ca が少ないため、Sr-90 が骨よりも多く沈着しているとは考えづらい。また、軟骨中は骨中と比べアルカリ金属が多い[3]。そこで本研究では、IP 画像の黒化度の違いを説明するため、軟骨に含まれる放射性 Cs 濃度を測定し、また骨と軟骨における放射性 Cs の取り込みを検討するため安定 Cs 濃度を測定した。

【実験】分析試料として福島県南相馬市で採取された年齢の異なる 2 匹のサル (幼サル、若サル) の骨を用いた。上腕骨、大腿骨、腰椎から骨部分と軟骨部分を別々に採取したものを測定した。試料を粉碎、乾燥し、均一化したものを Ge 半導体検出器により Cs-134 と Cs-137 を定量した。一方、安定 K、Rb、Cs は ICP-MS により測定した。

【結果】乾燥重量あたりの Cs-137 の濃度は若サルの軟骨中 4410 ± 308 Bq/kg、骨中 1315 ± 145 Bq/kg であった。値と誤差は部位による平均値と標準偏差を示す。一方、幼サルは軟骨中 421 ± 31 Bq/kg、骨中 178 ± 47 Bq/kg と軟骨中の方が骨中と比べて放射性 Cs 濃度がはるかに高かった。軟骨に比べ骨の方が密度は高いが、このことを考慮しても、オートラジオグラフィによる IP 画像において見出された放射性物質は、軟骨中の放射性 Cs であると言える。安定 Cs の濃度は、若サルの軟骨中 426 ± 9 ppb、骨中 177 ± 8 ppb、幼サルの軟骨中 56.6 ± 2.0 ppb、骨中 29.8 ± 1.4 ppb となり、安定 Cs あたりの比放射能では、若サルの軟骨中 10.3 ± 0.8 Bq/ μ g Cs、骨中 7.40 ± 0.88 Bq/ μ g Cs、幼サルの軟骨中 7.45 ± 0.60 Bq/ μ g Cs、骨中 5.80 ± 1.61 Bq/ μ g Cs となった。今回は 2 個体についてはあるが、代謝の速い軟骨中の比放射能の方が骨中より高い結果を得た。比放射能は、捕獲されたサルの生育環境中での放射性物質の動態や放射性物質の取り込みについて多くの情報を含んでいる。今後、検体数を増やしこれらの問題を明らかにする。

[1] K.C. Stamoulis et al., *Sci. Total Environ.*, **229**, 165–182 (1999).

[2] 小荒井一真 et al., *Proceedings of the 15th Workshop on Environmental Radioactivity.*, 15,268-275(2014)

[3] 高田晃平ほか、*整形外科と災害外科*、23、44-47 (1974).

Measurement of radioactive Cs in monkey cartilage collected in Minamisoma city
NISHIYAMA,J.,KOARAI,K.,KINO,Y.,SHIMIZU,Y.,TAKAHASHI,A.,SUZUKI,T.,CHIBA,M.,OSAKA,K.,SASAKI,K.,FUKUDA,T.,ISOGAI,E.,OKA,T.,SEKINE,T.,FUKUMOTO,M.,SHINODA,H.

P44

宮城県の空間γ線線量率における福島第一原子力発電所事故影響の評価

(宮環放セ¹、宮城県原対課²、放地研³) ○石川陽一¹、新井康史²、木村昭裕¹、佐藤健一¹、榎野光永¹、湊進³

【緒言】宮城県は2011年3月の東京電力福島第一原発事故起因の放射性物質によって県全域が汚染を受け、放射性セシウム(Cs-134,137)による放射能・放射線影響は現在でも各所で認められている。より正確な影響評価のためには、事故前または自然起因バックグラウンド(BG)との弁別が必要である。吉田ら¹⁾は宮城県南部におけるNaI(Tl)検出器のγ線スペクトル解析により、自然起因と事故起因の線量率の弁別評価を行なった。本研究では、より発展したスペクトル解析法及び事故前BG値の差し引き法によって、空間γ線線量率における放射性セシウム寄与の弁別評価を行なった。

【方法】環境の異なる様々な地点で、3”φ×3”NaI(Tl)検出器を用いて空間γ線スペクトルを測定し、セシウム寄与評価用に開発した49×49行のレスポンスマトリクス(RM)²⁾及びG(E)関数法で解析し、線量率を求めた。

【結果及び考察】表1に結果を示すが、上4行はモニタリングカーによる事故前からの定点測定データである。G(E)関数法では事故前のBG値が既知の場合にのみ、差し引き法によって事故後のセシウム寄与が算出できた。一方、RMスペクトル解析法ではBG値が不明でも1回の測定データから自然核種と放射性セシウムからの寄与を弁別評価できた。両方法の結果を比較したところ全線量率及びセシウム寄与線量率は各々5%以内及び15%以内で一致した。

表1 宮城県内の地点における解析法別γ線線量率の比較 (nGy/h)

測定場所	測定年月日	RMスペクトル解析法 *1			G(E)関数法		
		全線量率	自然核種 起因線量率	Cs-134+137 寄与線量率	全線量率	福島第一事故前 BG線量率	Cs-134+137 寄与線量率
女川町pt.1	'12.6.4	90	46	44	87	48	39
女川町pt.1	'14.12.9	66	47	19	68	48	20
石巻市pt.1	'12.6.4	139	42	97	133	45	88
石巻市pt.1	'14.12.9	88	40	48	93	45	48
女川町pt.2	'15.7.28	49	29	20	49	—*2	—
東松島市	'15.8.11	44	36	8	46	—	—
仙台市	'15.8.12	43	33	10	44	—	—
丸森町	'15.8.17	137	41	96	141	—	—

*1 RM: Response Matrix (49×49行列), *2 —:データなし

参考文献

- 1) 吉田浩子ほか、Radioisotopes、62、203-210 (2013)
- 2) 湊進、環境γ線解析用49×49応答行列の紹介 (2015)、放地研ホームページ
<http://www1.s3.starcatt.ne.jp/reslnote/>

Evaluation of Influence of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident on Environmental γ-ray Dose Rate in Miyagi Prefecture

Yoichi Ishikawa, Yasufumi Arai, Akihiro Kimura, Ken-ichi Sato, Mitsunaga Kayano, Susumu Minato

P45

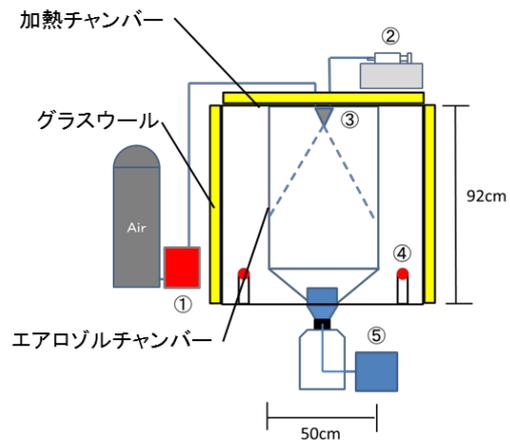
植生への放射性エアロゾル沈着挙動解明のためのエアロゾル発生システムの開発

(阪大院理) ○張 子見, 二宮和彦, 篠原 厚

【緒言】 福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された大量の放射性物質は、主にエアロゾルの形態で大気中を輸送され環境中に沈着した。特に放射能濃度が高い原発近辺の森においては、エアロゾルが直接植生に衝突して沈着する乾性沈着プロセスがメインであると考えられ、その後、放射性元素は葉面吸収によって植物体内へ取り込まれた可能性がある。葉面吸収プロセスは一般的によく調べられている経根吸収よりも、吸収速度が速いと言われており、事故初期の放射性物質の植生への沈着量を評価するには大きな影響を及ぼす。このような葉面吸収プロセスは、放射性物質の農作物への初期沈着量の見積もりや内部被曝を評価するうえで、または長期間にわたる森林内での放射性物質の循環をモデリングするうえで重要である。

本研究は、福島第一原子力発電所の事故により放出され、エアロゾルとして大気中を輸送された放射性Csの、植生への乾性吸着挙動および吸収挙動を再現することを目的としている。そのためには、放射性Csを含んだ硫酸エアロゾルを人工的に発生させ、コントロールされた環境下で植物の葉面に直接沈着させる実験系の構築が必要となる。放射性Csを用いることで、植物体に取り込まれてからも非破壊で定量することができ、植物体中へのCsの移行を巨視的に観測できる。本発表では放射性Csエアロゾルの発生システムの開発の現状について報告する。

【実験】 放射性エアロゾルの発生方法は噴霧乾燥法と呼ばれる方法をとった。この方法では、目的とするエアロゾル成分を添加した水溶液を、高速で流れる乾燥空気に乗せてノズルを通すことで微細な霧として放出する。高温環境中に噴霧することで、噴霧発生後すぐに水分が蒸発し、溶液内の塩成分の化学組成をとる微小固体塩エアロゾルが得られる。発生装置の概要図を図1に示す。チャンバーはアルミアングルによって組み立てられ、ポリエステルシートを壁材として用いた。発生装置はおもに、噴霧を直接注入する鉛筆型のアエロゾルチャンバーと、一辺が90cm³の立方体である、装置中を高温に保つための加熱チャンバーで構成されている。加熱チャンバーとエアロゾルチャンバーの間にヒーターが設置され、エアロゾルチャンバー中の空気を外から加熱している。加熱チャンバーの外側を断熱材であるグラスウールで囲んだ。発表では、作成したチャンバーの温度条件、生成される噴霧の形状、得られるエアロゾルの回収率や粒径について報告し議論する。



- ① S48-32/HMTseries マスフローコントローラー
- ② YSP-201 シリンジポンプ
- ③ ノズル: 内部混合・空気消費量効率化タイプ
- ④ ストレートフィンヒーター
- ⑤ 吸引ポンプ SIP-32L

図1 エアロゾル発生装置の概略図

Development of the aerosol generation system for simulating the dry deposition behavior of radioaerosol emitted by the accident of FDNPP
ZHANG,Z, NINOMIYA,K, SHINOHARA.A

東京湾と千葉県都市河川の底質における
福島第一原発事故由来の放射性セシウムの鉛直分布

(東大院総合)○添盛晃久、小豆川勝見、松尾基之

【緒言】2011年福島第一原発事故で拡散された放射性セシウムのうち、陸上土壌などに沈着したものは、9割以上が表層5cmにとどまり下層にはほとんど沈降しないことが、事故後の複数の研究により認められている。他方、海域や河川域などの物質の振る舞いについては、陸上に比べると知見の蓄積が少ないが、都市域においては、事故後一旦地上に沈着した放射性セシウムが雨水によって再び移動し河川を通じて沿岸域で沈降するという二次拡散の影響が懸念されている。本研究では、東京湾幕張沖で採取した底質試料に対し、放射性セシウムの鉛直分布を分析し、さらにこの地点に最も近い河口を持つ千葉県の花見川・新川についても同様の分析を施したので報告する。

【実験】東京湾幕張沖でのサンプリングは、深堀（自然海底を掘削した窪地）および平場（自然海底）で採取地点を定め、コアサンプリングを行った。今回は2013年2月、8月採取分の分析結果を示す。一方、千葉県の花見川・新川については、2015年6月に河口から4kmおきに採取点を定めてコアサンプリングを実施した。これらの試料は形を崩さないように切断し加熱乾燥・破砕した後、Ge半導体検出器で測定を行った。得られたデータに対し、含水率を加味し乾燥前の数値を出し、半減期補正を2011年3月21日に合わせることで、放射性セシウムの真の移動を議論できるように工夫した。

【結果と考察】Fig.1に、本研究で分析した各地点の放射性セシウム（¹³⁴Cs+¹³⁷Cs）濃度の鉛直分布を示す。測定した全試料について、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比がほぼ1であったため、いずれも事故由来の放射性セシウムであると考えた。まず東京湾幕張沖については、表層5cmまでの濃度の変動は顕著でないが、鉛直分布をみるとその地点に降下した放射性セシウムの大部分は5cmまでの層にとどまらず下層へ沈降していることが明らかになった（東京湾の平均堆積速度は1.2cm/yという先行研究がある）。さらに沈降現象は平場より深堀で顕著で、沈着量も深堀のほうが多く、深堀に放射性セシウムの集積機能があるといえる。他方、河川域でも、30cmほど深層で放射性セシウムが検出されたうえ、各層の濃度が東京湾の採取点より1桁も高い。つまり河川を通じて海に流入する機能の一方で、河川域内での停滞・底質内沈降も盛んであるといえる。さらにこの現象は、淀みのような地形や、生活圏からの雨水・下水が流入しないし合流する地形に特に顕著であった。河川では、海の特徴と陸域の特徴を併せた集積が生じていると推察される。

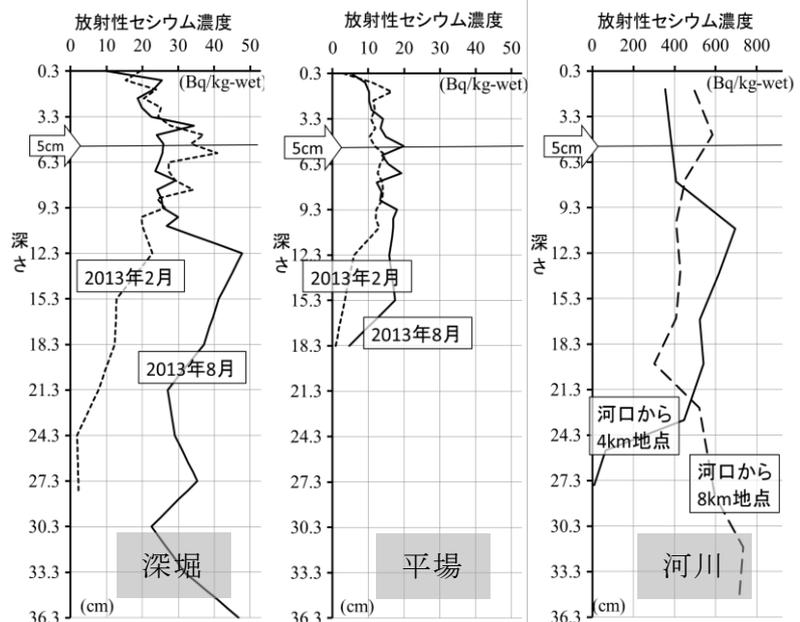


Fig.1 放射性セシウム濃度の鉛直分布

(左：東京湾深堀、中：東京湾平場、右：河川域)

Vertical distribution of radioactive cesium in the sediments of Tokyo-bay and Chiba's urban river released by the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident
SOEMORI, A., SHOZUGAWA, K., MATSUO, M.

P47

リン酸塩共沈前濃縮と DGA レジン化学分離を用いた ^{90}Sr の定量による海水中 ^{90}Sr の迅速定量法

(金沢大院自然¹、金沢大学際セ²、金沢大理工³)

○酒井浩章¹、上杉正樹²、横山明彦³

【はじめに】 福島第一原子力発電所事故において、ストロンチウム ^{90}Sr は、陸域への影響は少なかったが、冷却水に溶解したものが汚染水となり、地下への漏えいと海洋への放出が続いている。現在、海水中の ^{90}Sr の分析には文部科学省の放射能測定法が用いられているが、緊急時に対応できる迅速分離法という点においては改善が必要である。放射性ストロンチウムの迅速定量には、 ^{90}Sr を精製分離して ^{90}Sr の β 線を測定して直接的に定量する方法と ^{90}Sr の子孫核種 ^{90}Y の β 線を測定し、間接的に ^{90}Sr を定量する方法がある。本研究では、試料から Y を分離し直接 ^{90}Y を測定するために、リン酸マグネシウムに共沈した ^{90}Y を DGA レジン、及び DDTC を用いて精製することを試みた。また、Sr Rad Disk を用いた Sr の濃縮法による放射性 Sr の定量値 ($^{89}\text{Sr} + ^{90}\text{Sr}$) から、Y 濃縮法による ^{90}Sr の定量値を引くことにより、 ^{89}Sr が存在する場合の定量法についても検討を行った。

【実験】 ① ^{90}Y の分離・精製： ^{90}Y の海水中の濃度は低く、その水酸化物やリン酸塩は水に不溶である。これをもとに図 1 の分離スキームを作製した。リン酸マグネシウムに放射性 Y を共沈濃縮させ、海水中の共存イオンと分離した。Y の精製には、DGA レジン、及び DDTC 溶媒抽出を行い、Y の測定を妨害する天然放射性核種(U, Th, Po, Pb)の除去を行った。Y の挙動は ^{88}Y トレーサー(γ 線 1836keV)を用いて確認した。
② $^{89}\text{Sr} + ^{90}\text{Sr}$ 及び ^{90}Y の測定：液体シンチレーションカウンターを用いて、トルエンシンチに HDEHP を添加した抽出シンチレータによる測定を検討した。

【結果と考察】 ① ^{90}Y の分離・精製：図 1 の分離スキームによる ^{88}Y の回収率は、91%が得られ、分離時間は約 4.5 時間であった。DGA レジン、及び DDTC 溶媒抽出により、天然の放射性核種を除去することで迅速化を図ることが可能となった。

② ^{89}Sr と ^{90}Sr の定量： ^{90}Y により ^{90}Sr を定量した結果と Sr Rad Disk を用いた ^{90}Sr の直接測定による結果は良く一致した。また、 $^{89}\text{Sr} + ^{90}\text{Sr}$ を測定し、 ^{90}Sr の寄与を差し引くことで ^{89}Sr を定量できる。その手法が可能であることは、 ^{89}Sr を添加して確認している。

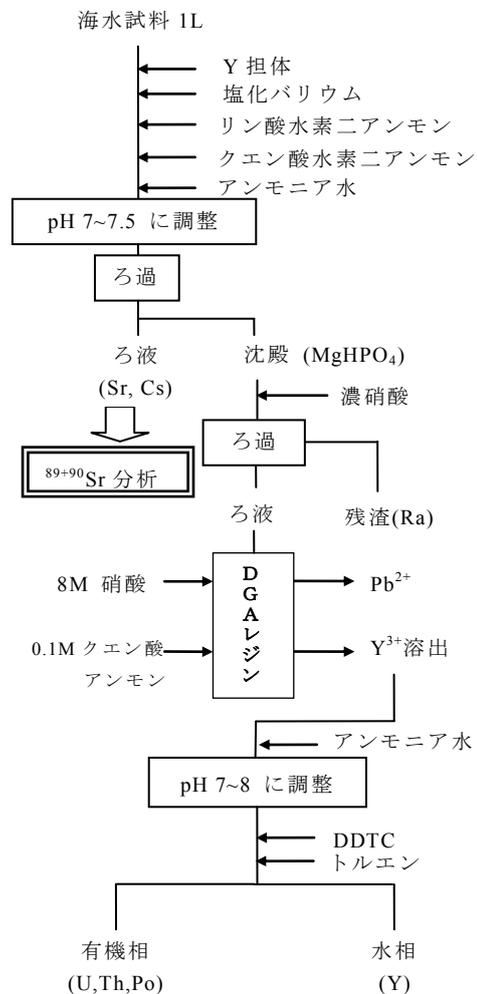


図 1 分離スキーム

Rapid Determination Method for ^{90}Sr in Seawater from ^{90}Y Measurement Through Yttrium Phosphate Coprecipitation and Purification with DGA Resin
SAKAI, H., UESUGI, M., YOKOYAMA, A.

福島第一原発事故由来放射性セシウムの福島沿岸海域での拡散挙動

(金大院自然¹、金大環日セ²、ふくしま海洋科学館³、東大大気海洋研⁴、原子力機構⁵)○馬場北透¹、長尾誠也²、宮田佳樹²、井上睦夫²、富原聖一³、田中潔⁴、乙坂重嘉⁵

【序論】

福島第一原子力発電所事故により、放射性セシウムが環境中へ放出された。今後の海洋への影響を評価するために、海洋へ付加された放射性セシウムの拡散状況を把握することが必要不可欠である。本研究では、2012年8月および2013年1月の淡青丸調査航海、および、ふくしま海洋科学館沿岸で定期的に採取された海水試料の放射性セシウム濃度を測定し、その経時変動を調べることで福島沿岸域での海洋環境における放射性セシウムの拡散挙動を検討した。

【試料・実験】

2012年8月(KT-12-22)、および2013年1月の淡青丸調査航海(KT-13-01)で表層海水約20Lをそれぞれ24試料と8試料採取した。ふくしま海洋科学館沿岸では2011年9月から1か月間隔で沿岸海水約20Lを採取した。海水試料は濃硝酸でpH1とした後、0.26gの塩化セシウムと4.0gのAMPを加えて放射性セシウムを回収し、Ge半導体検出器を使用して放射性セシウム濃度を測定した。

【結果・考察】

KT-12-22、KT-13-01試料の¹³⁴Cs濃度を図1に示す。KT-12-22表層海水の¹³⁴Cs濃度は、各測線で沿岸から沖合に向かって減少し、最大で約10倍の放射能濃度の違いが認められた。一方、KT-13-01試料の¹³⁴Cs放射能濃度はKT-12-22に比べ、最大で約200倍高い値を示していた(C03とJ10を比較した場合)。本発表では、ふくしま海洋科学館沿岸海水の¹³⁴Cs放射能濃度の時系列変動測定結果も加味して拡散挙動の状況を議論する予定である。

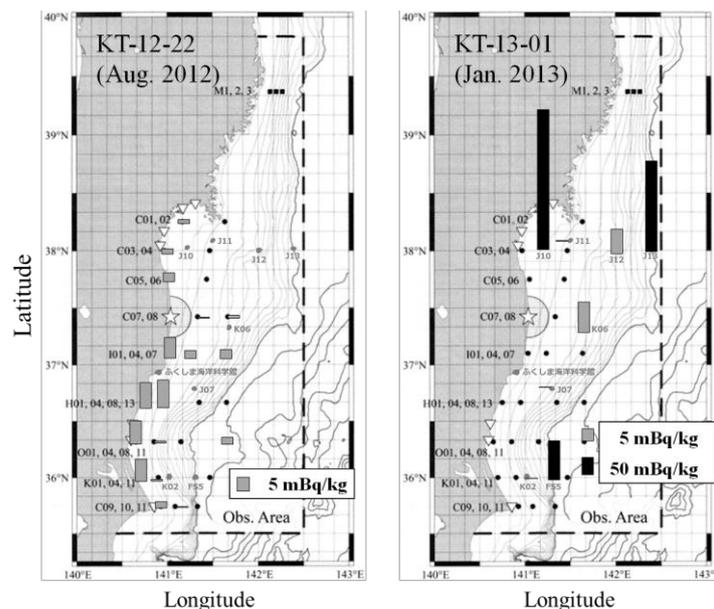


図1 福島沖の表層海水の¹³⁴Cs濃度分布(棒グラフの無い所は検出限界以下(0.3 mBq/kg)である)。Dispersion of radioactive cesium released from the Fukushima Dai-ichi NPP in coastal area off Fukushima Prefecture
BABA, H., NAGAO, S., MIYATA, Y., INOUE, M., TOMIHARA, S., TANAKA, K., OTOSAKA, S.

P49

原発事故以降の都市部河川における放射性核種と溶存イオンの挙動

(筑波大院数理¹、筑波大応用加速器²、筑波大数理物系³、東京大 MALT⁴)

○富田涼平¹、松中哲也²、本多真紀¹、佐藤志彦¹、松村万寿美²

高橋努²、坂口綾³、松崎浩之⁴、笹公和^{2,3}、末木啓介³

【緒言】

福島第一原子力発電所の事故により、広範囲に渡って放射性 Cs や I などの核分裂生成物が環境中に拡散した。これら放射性核種は、福島第一原発から南に 200 km 離れた千葉県東葛地域の河川底質土からも検出された。福島における高濃度の放射性核種沈着は森林や田畑を中心に起こっているが、千葉県東葛地域は人口密集地であり福島とは異なった土地利用状況にある。本研究では、人口密集地の河川における放射性核種の挙動や濃度等の経年変化を明らかにすることを目的とした。

【試料採取・実験】

事故 1 年後の 2012 年から 2015 年にかけて、千葉県東葛地域の手賀沼に流入する大堀川の上流から下流(約 8 km)の全 6 地点で河川水の採取を行った。また、大堀川への注水(利根川)および合流河川である地金堀でも上記の試料採取時に併せて採水した。試料は採取後直ちに 0.2 μm のメンブレンフィルターを用いてろ過し、溶存態と懸濁態に分けた。得たる過水(溶存態)中の主要イオン、安定 ¹³³Cs、¹²⁷I 濃度、放射性 ¹³⁷Cs、¹²⁹I をそれぞれ誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)、加速器質量分析装置(AMS)、γ線スペクトロメトリーにより分析した。

【結果・考察】

2012-2015 年にかけての ¹³⁷Cs 放射能濃度変化を図 1 に示す。2012 年にはグローバルフォールアウトレベルよりも 5 桁高かった放射能は、2015 年の時点で初期濃度から 77%減少して数十 mBq dm⁻³となっている。上流から下流にかけての濃度変化では、上流から 2 km 付近で放射能濃度の大きな減少が見られる。これは、大堀川本流と比較して低い ¹³⁷Cs 濃度の注水が影響していると考えられる。注水後には ¹³⁷Cs/¹³³Cs 比の変化も観測されているが、この比は下流では徐々に注水以前の値に近づいていく傾向が見られた。また、¹²⁹I 濃度は ¹³⁷Cs とよい相関を示し、溶存態としては同様の挙動をしていることが示唆された。放射能濃度が安定した 2014 年では ¹²⁷I、Mg、Ca も同様に ¹³⁷Cs と相関を示した。

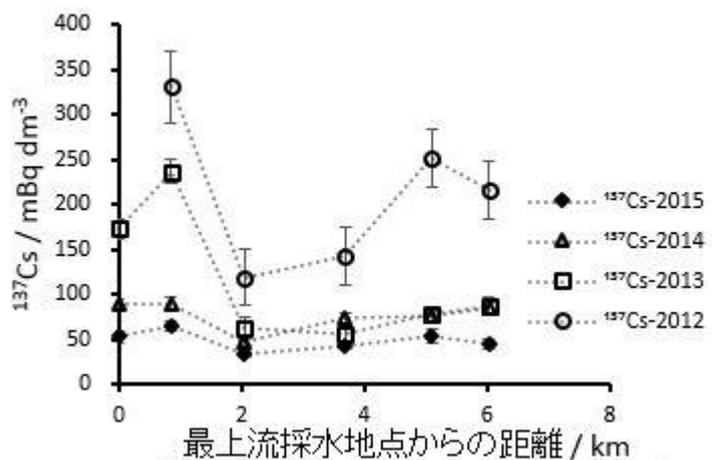


図 1:大堀川上流から下流における放射能濃度変化と経年変化

Environmental dynamics of dissolved radionuclides and ions in riverine water flowing urban area after the FDNPP accident

Tomita Ryohei

P50

砂試料中放射性セシウムイメージングプレートによる 簡易キャラクタリゼーション

(明大院理工¹、明治研究知財²、阪大安全衛生管理部³、明大理工⁴)

○越智康太郎¹、栗原雄一²、高橋賢臣³、中村利廣⁴、小池裕也⁴

【緒言】

2011年3月11日に東京電力福島第一原子力発電所(FDNPP)事故が発生し、環境中に多くの放射性セシウムが放出された。本研究では、環境試料の中でも人々の生活圏内に存在し身近な公園の砂場に注目した。砂試料中の放射性セシウムの挙動を予想し適切な対策をとるためには、放射性セシウムの砂試料からの溶出と吸着に関する情報が必要となる。そこで、逐次抽出法とイメージングプレート(IP)による二次元画像解析を組み合わせ、2011年に福島県東部で採取した砂試料中の放射性セシウムについて、簡易な化学形態分析を試みた。

【実験】

試料は2011年11月3日に福島県福島市松川の公園砂場で、砂土を深さ5cmまで採取した。砂試料を乾燥機で110°C、24時間乾燥した後に、目開き2mmのふるいに通した。目を通過した試料を円錐四分し約3.0gを量り取った。次に、Tessierら¹⁾の条件を参考に、砂試料中の放射性セシウムの化学形態をイオン交換態、炭酸塩態、Fe-Mn酸化物態、有機物態、残留物態の5つに分画した。抽出前の砂試料及び抽出残渣はそれぞれブリキ製コンテナ(内径:38mmφ、高さ:11mmH)に入れ、高純度ゲルマニウム半導体検出器(PGT、INC.)でガンマ線測定した。その後、IP(BAS-III(20cm×25.2cm、FUJIFILM)とバイオイメージングアナライザー(BAS-1800、FUJIFILM)上に砂試料を設置し、1日間の露光により放射能分布を調べた。

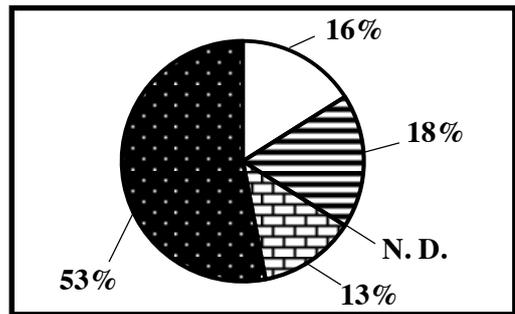


Fig. 1 Distribution of ¹³⁷Cs in sand sample collected at Fukushima.
□ : IE, ▨ : CB, ▩ : OX, ▧ : OB, ■ : Res, N. d: Not detected

【結果】

砂試料中の¹³⁷Csを逐次抽出によって分画した化学形態別の放射能分布をFig. 1に示す。砂試料に含まれる放射性セシウムの内、OX、OB、Resの割合は全体の約66%であった。よって、砂試料中の放射性セシウムの大部分は溶出せずに、砂試料に局所的に吸着したままであると考えられる。抽出前の砂試料をイメージングプレートにより測定した二次元画像をFig. 2に示す。二次元画像より、放射性セシウムが砂試料中に局所的に集積して存在していることが分かった。そこで、化学形態別に逐次抽出を進め、二次元画像を取得しながら、簡易な化学形態分析を行った。その結果、放射性セシウムの集積部の化学形態を得た。

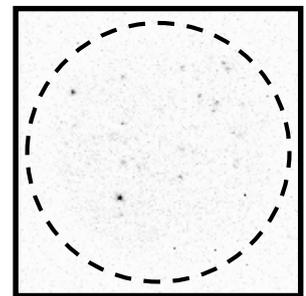


Fig. 2 Photo-stimulated luminescence image of sand sample.

【参考文献】 1) A. Tessier, P. G. C. Campbell and M. Bisson: *Anal. Chem.*, **51**, 844(1979).

Simple characterization of radiocesium in sand sample combined with the imaging plate
Kotaro Ochi, Yuichi Kurihara, Masaomi Takahashi, Toshihiro Nakamura, Yuya Koike

P51

福島県浪江町における大気中 ^{137}Cs 濃度の経時変化

(環境科学技術研究所¹、核融合科学研究所²、弘前大学³) ○落合伸也¹、長谷川英尚¹、柿内秀樹¹、赤田尚史²、植田真司¹、床次眞司³、久松俊一¹

【はじめに】 土壌等の表面に沈着した放射性 Cs は、様々な要因により再浮遊し、大気中に移行することが知られている。福島第一原発事故による ^{137}Cs 沈着密度が比較的高い地域における大気中 ^{137}Cs 濃度の濃度変動と、その変動要因を明らかにするため、福島県浪江町において大気中浮遊粒子状物質の観測を行った。

【手法】 福島第一原発から北西へ約 30 km に位置する浪江町南津島地区において、2012 年 10 月から大気中浮遊粒子の観測を行った。浮遊粒子試料はインパクターを取り付けたハイボリュームエアサンプラーを用いて 1.1 μm 以上、及びそれ未満に分級して毎月 1 ヶ月間捕集した。石英繊維フィルター上に捕集された浮遊粒子試料は、金型に詰めてディスク状に成形し、Ge 半導体検出器によって ^{137}Cs 濃度を測定した。また、大気中浮遊粒子の観測地点において、風向・風速を 10 分間隔で観測した。

【結果と考察】 大気中全 ^{137}Cs 濃度は 2012 年 10 月から 2014 年 12 月にかけて 0.042-1.1 mBq m^{-3} の範囲であり、夏季から秋季にかけて高くなり、冬季から春季にかけて低くなる明瞭な季節変動を示した (Fig. 1)。2014 年の濃度は 2013 年の同時期に比べて低くなり、時間の経過に伴って減少する傾向が認められた。また、粒径別の ^{137}Cs 濃度の観測結果から、夏季から秋季にかけての大気中の ^{137}Cs は大部分が 1.1 μm 以上の粒子として存在していた。

浪江町の観測地点においては、夏季から秋季にかけて東よりの風が卓越しており、その時期に大気中全 ^{137}Cs 濃度及び 1.1 μm 以上の粒子の寄与が高くなる傾向が見られた (Fig. 1)。地表の ^{137}Cs 沈着密度は観測地点の東側で高く、西側で低いことが明らかとなっており、夏季から秋季に粒径 1.1 μm 以上の粒子が東側から供給されて、大気中 ^{137}Cs 濃度が高くなると考えられる。この結果は、観測地点から見た方角別の ^{137}Cs 沈着密度に差があることにより、大気中 ^{137}Cs 濃度が風向によって影響を受けることを示している。本記載事項は、青森県からの受託事業により得られた成果の一部である。

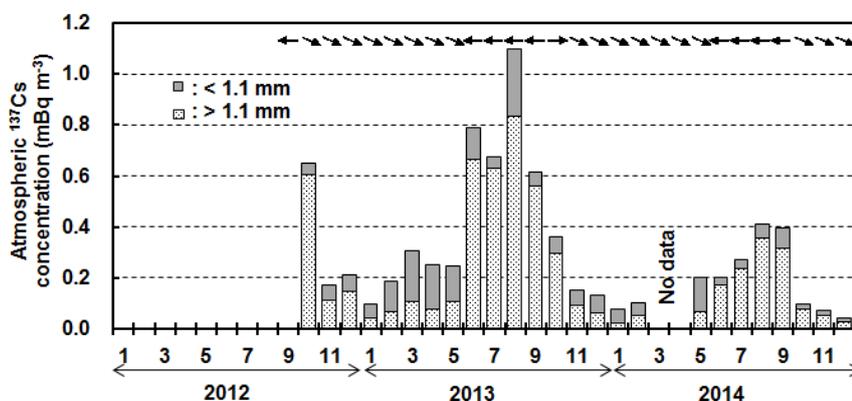


Fig. 1 Temporal changes in atmospheric ^{137}Cs concentrations in Namie Town. Arrow indicates the most frequent wind direction for a month at the observation site.

Temporal changes in atmospheric ^{137}Cs concentrations in Namie Town, Fukushima
 OCHIAI, S., HASEGAWA, H., KAKIUCHI, H., AKATA, N., UEDA, S., TOKONAMI, S., HISAMATSU, S.

P52

ヒト乳歯の CO₂ ラジカル測定による被ばく量推定

(東北大高教機構¹、東北大院歯²、東北大院理³、東北大理⁴)

○岡 壽崇^{1,3}、高橋 温²、小荒井一真³、木野康志⁴、関根 勉¹、清水良央²、千葉美麗²、鈴木敏彦²、小坂 健²、佐々木啓一²、篠田 壽²

【緒言】 原発事故や大気圏内核実験などにより大気中に放出された放射性物質は、動物やヒトの放射線被ばくを引き起こすため、放射線防護や安全の観点から、精確な被ばく量の見積もりが必要である。電子スピン共鳴 (ESR) 法は、放射線によって動物やヒトの歯中に生じた炭酸ラジカルを測定することで、個体の被ばく線量を評価可能な手法である。現在、我々は本手法を用いて、ヒト乳歯の被ばく量推定のための検量線作製と、それを利用した被ばく量推定を行っている。

【実験】 収集した乳歯は、歯を下部の歯根部を切断し、上部の歯を裏側 (象牙質側) から象牙質を技工用ハンドピースで削ることでエナメル質のみの部分を取り出した。その後、ニッパーで 2 mm 以下の粒径に揃え、実験に適切な粒径 (0.425 mm-1.4 mm) になるようにふるいにかけてさらに粒径を揃えた。検量線作製のためのガンマ線照射は、エナメル試料を約 150 mg 入れた石英管試料を 7 本ずつ用意し、原子力機構・高崎研で約 25 mGy 照射し、ESR 測定後に再度 25 mGy 照射するという積算照射法で 200 mGy まで、さらに 300 mGy 積算して 500 mGy、500 mGy 積算して合計 1000 mGy まで照射を行った。各照射後に、ESR 装置で測定し、炭酸ラジカルと有機ラジカルのスペクトルから、スペクトル分離プログラムを利用して炭酸ラジカルのみ強度を抽出した。

【結果と考察】 エナメル質中の炭酸ラジカル量は線量に対して非常により応答を示したが、比較のために丸ごとの歯 (エナメル質と象牙質が混在) では、応答はするものの、ESR スペクトルのバックグラウンドが大きく傾き、スペクトルの分離が困難であった。これは、象牙質に多く含まれている有機質の影響が大きいからと考えられる。1 Gy までの積算照射により作製した検量線は未照射 (0 mGy) まで直線性があった。ウイリアムスの多重比較検定を行ったところ、0 mGy に対して 50 mGy 以上で 5 %有意とわかった。また、全吸収線量の範囲で重回帰分析を行うと未照射試料の 95 %上限値は 33.97 mGy であり、回帰線の 95 %上限と下限を考慮すると最低でも 18.38 mGy、最高でも 50.90 mGy 照射されていると見積もられ、本システムの検出限界は 34 mGy (±16 mGy 程度) と推定された。この検量線を用いて、福島県および福島県以外の地域から収集した乳歯の被ばく量を見積もった結果を報告する。

【謝辞】 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「ヒト乳歯を用いた個体の被ばく量推定方法の確立」の成果である。

Dosimetry using milk teeth of Japanese children by measuring CO₂ radical
OKA, T., TAKAHASHI, A., KOARAI, K., KINO, Y., SEKINE, T., SHIMIZU, Y., CHIBA, M., SUZUKI, T., OSAKA, K., SASAKI, K., SHINODA, H.

P53

福島県内野生ニホンザルにおける福島第一原子力発電所事故由来放射性セシウムの体内分布

(放医研¹、東北大加齢研²、東北大院歯³、新潟大自⁴、帯広畜産大原虫病セ⁵、東北大院理⁶、東北大高教機⁷)○漆原佑介^{1,2}、鈴木敏彦³、清水良央³、藤田詩織³、桑原義和²、鈴木正敏²、福本基²、林剛平²、安彦亮²、鷺尾亮太²、山城秀昭⁴、阿部靖之⁵、木野康志⁶、関根勉⁷、篠田壽³、福本学²

【緒言】 東京電力福島第一原子力発電所事故により福島県を中心とした周辺地域が放射性物質で汚染された。我々は2013年以降、福島県内で捕獲された野生ニホンザルから臓器、血液のサンプリングを行い、2015年8月末日現在において約220頭から試料を収集している。ニホンザルは福島県で被災した野生動物の中でヒトに最も近い生物種であることから、ニホンザルを用いた解析は未だに多くのことが明らかとなっていない微量慢性被ばくによるヒトへの健康影響解明への重要な基礎的データとなることが期待される。

本研究では、ニホンザルより採取した各臓器・筋肉の放射性セシウム濃度の測定を行い、体内の放射性セシウム濃度分布を調べた。また、捕獲場所と体内放射性セシウム濃度との関係、時間経過による体内放射性セシウム濃度変化についても解析を行った。

【方法】 体内の放射性セシウム濃度を解析するために、捕獲された野生ニホンザルより18の筋肉及び臓器（大腿筋、最長筋、咬筋、横隔膜、心臓、肺、肝臓、腎臓、脾臓、膵臓、膀胱、副腎、脳、甲状腺、顎下腺、胸腺）と血液、尿、胆汁をサンプリングし、Ge半導体検出器を用いてスペクトル分析を行うことでCs¹³⁷、Cs¹³⁴濃度の算出を行った。

【結果・考察】 捕獲したサル体内各臓器における放射性セシウム濃度を測定した結果、骨格筋の放射性セシウム濃度が他の臓器に比べて高く、次いで顎下腺、舌、腎臓の順で高かった。最も放射性セシウム濃度の低かった部位は甲状腺であり、骨格筋に対して約1/5の濃度であった。捕獲地域により放射性セシウム濃度は大きく異なり、最も放射性セシウム濃度の高い個体は、骨格筋中の放射性セシウム濃度（¹³⁷Cs + ¹³⁴Cs）が捕獲日に換算した値で80,000Bq/kg（2013年10月28日捕獲個体）を超えた。一方で異なる時期に同じ場所で捕獲された個体では同程度の骨格筋中放射性セシウム濃度を示したが、これはニホンザルが群れをつくり特定の行動範囲の中で生息することから、同様の食性を示す同群れ個体であったためと考えられる。

Distribution of radiocaesium in the wild Japanese monkey (*Macaca fuscata*) after the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant.

Urushihara, Y., Suzuki, T., Shimizu, Y., Fujita, S., Kuwahara, Y., Suzuki, M., Fukumoto, M., Hayashi, G., Abiko, R., Washio, R., Yamashiro, H., Abe, Y., Kino, Y., Sekine, T., Shinoda, H. and Fukumoto, M.

2013-2014 年の福島沖海水中の ^{137}Cs , ^{129}I 濃度

P54

○吉田伊吹（日大院総合基）、森本真由子（日大院総合基）、辻田一樹（日大院総合基）、山形武靖（日大文理）、永井尚生（日大文理）、田副博文（弘前大被ばく医）、松崎浩之（東大博物館）

【緒言】 2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震によって、東京電力福島第一原子力発電所の事故が発生し環境中に多量の ^{134}Cs (半減期 2.062年), ^{137}Cs (半減期 30.07年), ^{129}I (半減期 1.57×10^7 年), ^{131}I (半減期 8.01日)等の人工放射性核種が放出された。この事故によって圧力容器内の圧力を下げるためのベントや、水素爆発による原子炉建屋の損傷で大気中に ^{134}Cs :10PBq, ^{137}Cs :10PBq, ^{131}I :500PBq が放出され一部が海水表層に降下した。また、低、高濃度汚染水により ^{134}Cs :3.5PBq, ^{137}Cs :3.6PBq, ^{131}I :11PBq が直接海水中に流出した。本研究では、2013年5月、2014年5月における福島近海の海水中の ^{137}Cs , ^{129}I 濃度を測定し、事故後の福島県沖における拡散状況を調べ、汚染水の漏洩について検討した。また、太平洋ではデータの少ない ^{129}I については今後のヨーロッパの再処理工場の影響あるいは日本の再処理工場稼動前の状況の把握を試みる。

【実験操作】 海水試料は東京海洋大学海鷹丸の UM-13-05 航海(2013年5月15日~5月21日)、海洋研究開発機構の研究船新青丸の KS-14-6 航海(2014年4月30日~5月9日)において福島県沖の太平洋で採取した。 ^{134}Cs , ^{137}Cs については、海水試料 20L からリンモリブデン酸アンモニウムによりセシウムを吸着捕集し、重量測定後、Well型 Ge 半導体検出器を用い ^{134}Cs ($E_\gamma=604\text{ keV}$), ^{137}Cs ($E_\gamma=662\text{ keV}$) の γ 線測定を行った。 ^{129}I については、海水試料 1L を溶媒抽出法により精製し、溶液に 1M AgNO_3 を添加し硝酸銀沈殿を生成し、100°C で 12時間乾燥させた後そこへ Nb 粉末を混合させ東京大学 MALT において ^{129}I の AMS 測定を行った。

【結果・考察】 2013年と2014年で福島第一原子力発電所から約 5km における表層の ^{137}Cs は 36.8 mBq/kg から 12.5 mBq/kg、 ^{129}I は 1124nBq/kg から 307nBq/kg と、それぞれ約 1/3 程度に減少していたが、福島第一原子力発電所事故前濃度(^{137}Cs :1.5mBq/kg, ^{129}I :45nBq/kg) より高く汚染水の流出は続いている可能性が示唆された。また、2013年2014年ともに陸から東方 30km 沖合では事故前の濃度レベルになっていた。

$^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ は 2013年5月(UM-13-05 航海)では 21、2014年5月(KS-14-6 航海)では 11 であった。また、原子炉内の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ は 0.29 と推定されており^[1]、福島土壌中は 0.11-0.66^[2]、事故直後 2011年(KOK 航海)の福島県沖海水中では 0.22 である^[3]。事故直後と比べると 2013-2014年は海水中の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ は高いので、 ^{137}Cs が除去された汚染水が流出していると考えられる。また、2012-2014年の間では $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ にあまり変化は見られなかった。

【参考文献】

- [1]西原健司他, JAEA-Data/Code 2012-018, 1-190 (2012)
- [2]本多真紀, 修士論文, 日本大学大学院総合基礎科学研究科 (2014)
- [3]長谷川憲他, Proceedings of the 15th Workshop on Environmental Radioactivity, 215-219 (2014)

^{137}Cs and ^{129}I concentrations in seawater off Fukushima Prefecture in 2013-2014
Yoshida, I., Morimoto, M., Tsujita, K., Yamagata, T., Nagai, H., Tazoe, H., Matsuzaki, H.

【緒言】 2011年3月の震災による東電原子力発電所の事故によって環境中に多くの放射性物質が放出された。特に、I-131は特定臓器への集積性、Cs-137, Sr-90は元素の性質とその半減期の長さから人体への影響が大きいとされている。生体内に放射性セシウム (Cs-137, Cs-134) が経口摂取されると、カリウムと似た挙動により全身にほぼ均一に分布する。医療対応が必要な場合の治療法例としては、放射性セシウムが腸管内に排出された際に補足して、排泄することで胃腸管からの吸収を低減しようとする除去剤プルシアンブルー (PB, フェロシアン化第二鉄) の使用のみであり、さらに適切な除去剤が望まれていた。当研究室では、イオン交換樹脂製剤が除去剤として利用できる可能性があることを報告している^[1]。この他にも事故による主たる核種に対し、微生物や緑藻類を用いる除去法についての報告もなされているが、今回、乳酸菌等製剤に注目し、Cs-137吸着能について検討し評価を行った。

【実験】 緩衝液 (pH6.8, pH1.2) と Cs-137 溶液を混合後、この溶液の放射能を測定し、Cs-137 濃度 (C_0) を算出した。ポリプロピレン製チューブにこの溶液 (Cs-137 含有量: 約 1 kBq) と乳酸菌等製剤を加え、1-6 時間振盪させた後、遠心分離し、上清の放射能を測定して吸着後の Cs-137 濃度 (C) を算出した。下記の算出式により求めた吸着率を比較に用いた。計数率の測定には AUTO WELL GAMMA SYSTEM (ALOKA 社, ARC-380CL) を使用した。Cs-137 吸着へのカリウムイオンの影響を検討するために、KCl を添加した溶液 (最終カリウム濃度 5-100 mmol L⁻¹) を用いて Cs-137 吸着実験を行った。また、pH1.2 曝露による吸着率への影響を検討するために、乳酸菌等製剤を pH1.2 に 3 時間曝露し、溶液を取り除いた後 pH6.8 における Cs-137 吸着実験を行った。

$$\text{吸着率(\%)} = (C_0 - C) / C_0 \times 100$$

【結果と考察】 数種類の乳酸菌製剤で検討したところ、Cs-137 の吸着は 1-3 時間で起こり、24 時間後まで吸着率の大きな変化は見られなかった。また、いずれも吸着率は水中で高く (15-46%)、次いで pH6.8 (12-21%)、pH1.2 (4-17%) であった。カリウムイオンの影響について検討したところ、カリウム濃度が 20 mmol L⁻¹ までは吸着率の大きな低下が見られた。また、胃通過後の吸着能を検討するため、あらかじめ pH 1.2 に曝露させた乳酸菌等製剤を用い pH 6.8 における吸着率を求め、未処置乳酸菌等製剤の吸着率と比較した結果、有意な上昇が認められた。乳酸菌等は胃液に曝露されると死滅する割合が非常に高いことが知られているが、胃通過後も Cs-137 吸着能が維持され、さらに死菌体での吸着能が高いことが推察された。さらなる検討が必要であるが、以上のことから、乳酸菌等製剤は、体内の放射性セシウムの除去目的に利用できる可能性は十分にあると考えられる。副作用が少なく PB の鉄に対し過敏な患者に使用可能など、緊急時における治療の選択肢を増加することが期待できる。

[1] 森田他、分析化学 62(6), 541-545(2013).

P56

多種多様な金属化学種の一括分離を目指した新しい有機複合吸着剤の開発

(長岡技科大¹、Zhejiang University²)○立花優¹、鈴木達也¹、Mohammad Chand Ali²

【緒言】我々は福島第一原子力発電所の過酷事故から発生した汚染水に含まれる多種多様な放射性核種を一括分離できる新しい有機複合吸着剤を探索してきた。その候補となる吸着剤の一つとして、多孔質シリカ担持ベンゾイミダゾール型陰イオン交換樹脂にタンニン酸(TA)を化学修飾した改良型タンニン酸樹脂(ITA-01 樹脂)を合成し、その吸着特性を報告してきた。¹⁾ ITA-01 樹脂は海水溶媒系にも拘らず、Ln や Ac に対して分配係数が 1000 以上、また、I(I と IO₃)に対しても 500 以上の値を持つことが分かった。¹⁾ しかしながら、Cs や Sr に対しては僅かな吸着現象しか確認できなかった。そこで、本研究では、これらの元素に対しても高い吸着特性が期待できるスチレン系塩基性陰イオン交換樹脂(QA 樹脂)に TA を化学修飾した新しい有機複合吸着剤(ITA-02 樹脂)を合成し、海水に溶存させた複数の模擬放射性核種に対する吸着特性評価を実施した。

【実験】Cs, Sr, Ln(Pm を除く), Ac(U のみ), 及び I(I と IO₃)と新潟県柏崎市付近で採水した海水を含む水溶液 500 mL をポリプロピレン製容器(PP 容器)に準備した。その後、その模擬汚染海水 20 mL が入った PP 容器に 0.25 g の ITA-02 樹脂を添加し、バッチ試験を行った。ITA-02 樹脂を含む模擬汚染海水の振とう時間は 24 時間以上とした。吸着平衡後、0.45 μm の細孔径を持つ再生セルロース系フィルターを用いて ITA-02 樹脂を取り除き、ろ液を回収した。回収したろ液に含まれる各元素の定量分析は ICP-MS(Agilent 社製 7700x 型)分析法により行った。各元素の分配係数(K_d)は参考文献(1)と同様の計算式を用いて算出した。ITA-02 樹脂の構造解析は FT-IR(IRAffinity-1S, Shimadzu)により行った。

【結果・考察】室温条件下、ITA-02 樹脂を用いて海水に溶存した Cs, Sr, Ln, Ac, 及び I(I と IO₃)の吸着試験を行った結果、ITA-02 樹脂は検討した全ての元素に対して高い吸着能を持つことが分かった。得られた K_d 値はそれぞれ $(9.4 \pm 1.2) \times 10$ (Cs), $(6.4 \pm 0.6) \times 10^2$ (Sr), $(1.60 \pm 0.04) \times 10^6$ (ex. La), $(7.3 \pm 3.9) \times 10^3$ (U), $(5.6 \pm 0.9) \times 10^2$ (I), 及び $(7.8 \pm 0.6) \times 10^2$ (IO₃)であった。Cs と Sr の K_d 値の差は価数の違いによるものである。また、Ln と U は海水中では、主に LnCO₃⁺と(UO₂)₁₁(CO₃)₆(OH)₁₂²⁺としてそれぞれ存在し、これらの化学種が TA 樹脂と強く吸着することが明らかとなっている。さらに、QA 樹脂と TA 樹脂のみでは IO₃ に対して吸着能を全く示さなかったが、驚いたことに、ITA-02 樹脂は I と IO₃ に対して高い吸着能を持つことが分かった。これは、この樹脂にタンニン酸が化学修飾されたことによる陰イオン交換体の電子密度の低下が要因と考えられる。

【参考文献】(1) Tachibana, Y. et al., “Simultaneous removal of various iodine species in aqueous solutions of high salt concentrations using novel functional adsorbents”, Submitted to Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry

Syntheses of Novel Organic Composite Adsorbents and Its Application for Simultaneous Separation of Various Types of Radioactive Nuclides in Seawater
TACHIBANA, Y., SUZUKI, T., Mohammad, C. A.

【緒言】 原子力施設の事故や核爆弾などによって環境中に放出された放射性核種を含む環境物質が長期的にどのように変動していくのかを予測する上で、Pu の量や同位体比($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ など)などのように、これまでの変動履歴の測定結果が非常に役立つ。植物に含まれる Pu 濃度は最大で数 $10\text{ pg}(10^{-11}\text{ g})/\text{kg}$ 程度と極微量であること、分析に供することができる試料量に制限があることから、pg 以下の極微量元素を分析するための化学分離技術が必要である。発表者らは、これまでに一本の陰イオン交換カラムで $\text{ng}(10^{-9}\text{ g})$ 以下の U, Th, Pb 希土類元素を逐次的に自動で分離する技術を開発してきた(1)。さらに Pu が Th とともに溶離してしまう混合溶媒組成を最適化することによって、両元素の逐次分離が可能であることを溶離実験により確認した。スパイクを用いた実験で Pu を含む極微量多元素の逐次分離が可能であることを確認するとともに、この分離法を応用して環境試料として松の年輪の元素分析を試みた。

【実験】 化学分離に用いた自作の自動多元素逐次分離システム(CASSUAL)は、陰イオン交換樹脂 (MCI-GEL CA08S, 粒径 $11\pm 2\ \mu\text{m}$, Cl^- 形)をテフロンチューブに詰めたカラム(内径 2 mm , 長さ 50 mm , カラム容量 0.16 mL)に溶離液を圧縮アルゴンガス (0.45MPa)で押し流して全自動で分離を行う。分析に用いた松の年輪試料は、1999年に原子力機構・原子力科学研究所内で伐採された樹齢推定 88 年(1911 年~1999 年)の黒松である。表面の汚れを取り除き、5~10 年分の年輪 5 試料($0.5\text{g}\sim 3\text{g}$)を採取した。採取した年輪試料を灰化および酸分解して分離試料とした。溶離分画は蒸発乾固させた後、2% HNO_3 測定溶液に調製した。四重極 ICP-MS (Agilent 7500a)を用いて ICP-MS 校正溶液による検量線法で元素定量した。また、U や Pu の同位体比分析は表面電離質量分析法(TIMS)や加速器質量分析法(AMS)で行った。

【結果】 この逐次分離システムでは分離終了までの所要時間は約 6 時間半であった。ICP-MS 校正溶液(各元素量 50 ng)および ^{242}Pu スパイク(12 pg)を分離した場合(Fig.1)、U と Pu の回収率はそれぞれ 100%と 93%であった。また他の元素についても回収率は 95%以上であった。年輪試料への応用では、酸分解処理後に無色の溶解残渣が生じた。蛍光 X 線元素分析の結果、Si と Ca を主成分とするものであった。可溶解成分を分離して得られた分画の元素濃度を分析した結果、U は 0.1 ng/g (乾燥重量)、Pu は 1 fg/g 以下であった。

本発表には科研費基盤研究(C)(25340078)からの助成を受けて得られた成果の一部が含まれる。

参考文献 : (1) Y. Miyamoto *et al.*, *Analyst*, **140**, 4311 (2015), [correction **140**, 4720 (2015)].

Development and Application of sequential separation technique for ultra-trace multi-elements including Pu
MIYAMOTO, Y., YASUDA, K., MAGARA, M.

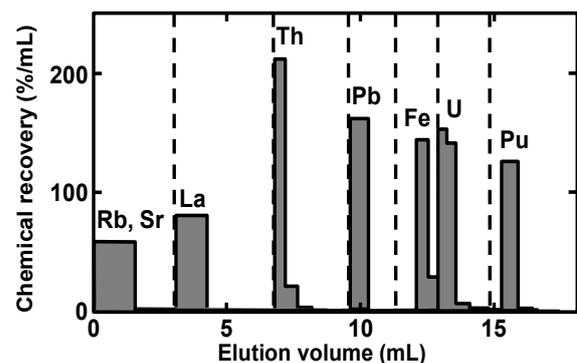


Fig.1 Elution profiles of the elements in a reference sample

【緒言】

放射能をガンマ線スペクトロメトリー等で定量する場合、測定する試料の幾何学的な条件が非常に重要となる。そのため、温泉沈殿物等の鉱物の放射能を測定する場合、しばしば試料を破壊して幾何学的条件を合わせた上で測定していた。しかし、北投石などの鉱物は非常に貴重であるため、できれば試料を破壊せずに放射能を定量できることが望ましい。

そこで、昨年より 3D プリンタを利用し、放射性鉱物である北投石の模擬試料を作成し、ガンマ線スペクトロメトリーにて放射能を定量する方法を研究している。本報では、さらに 3D スキャナと光造形方式(Stereolithography Apparatus: SLA)の 3D プリンタを導入しより迅速かつ高精度な測定方法の開発を目指した。

【実験操作】

はじめに北投石の形と大きさ 3D スキャナ(Matter & From)を用いてスキャンし、試料の 3D 形状のデータを得た。さらにデータ化した北投石モデルを、3DCG ソフトウェア(Shade 3D)を用い、ブール演算処理で北投石の形状を差し引いた凹みのある円柱図形を作成し、線源容器とした。

モデリングした線源容器は、3D プリンタ(Novel 1.0)とで複数プリントアウトし、一つは北投石の位置を合わせるジグとして用い、もう一つには分割して北投石の形に合わせて作られた空間に ^{226}Ra 濃度が既知のモナズ石を充填し、模擬線源とした。試料および模擬線源を高純度ゲルマニウム半導体検出器によって測定し、 ^{226}Ra と永続平衡にある ^{214}Bi の 609 keV のガンマ線を測定し、模擬線源の放射能から検出効率を算出した後、実試料の放射能濃度を求めた。

【結果と考察】

本実験方法で求められた北投石の濃度と、従来の熱溶解積層式(Fused Deposition Modeling : FDM) 3D プリンタで求められた北投石の濃度を Table 1 に掲げる。玉川温泉産の北投石の ^{226}Ra 放射能濃度は、40 ~ 80 Bq/g と報告されており、本方法での測定値とほぼ一致した。さらに、両印刷方式とも得られた濃度は誤差に範囲で一致していた。これより、北投石の形状にあった検出効率を得られたため 3D プリンタを利用し任意の形状の試料の放射能濃度を迅速に非破壊で定量する方法がある程度確立できた。しかし、北投石の試料は鉱物中で放射能が層状に分布しており均一ではないため、まだ正確な検出効率を得られていない可能性がある。最終的には北投石試料を破壊したうえで再測定を行い、本測定が本当に正しいかの確認を行う予定である。

Table 1 Concentration of ^{226}Ra in hokutolite corrected by 3D printer standard

3D printer Type	Sample Weight (g)	Activity of ^{226}Ra (Bq)	Concentration of ^{226}Ra (Bq/g)
SLA	6.56	397 ± 16	60.5 ± 3.5
FDM		370 ± 11	56.4 ± 1.7

Trial production for gamma-ray emitting source applied by SLA 3D printer
SAITO, T., KOIKE, Y., SUZUKI, R., TAKAHASHI, M.

【緒言】原子力発電所や加速器施設などの放射線環境下で利用されるケーブル被覆材には、ポリエチレンなどの高分子材料が用いられている。高分子材料は放射線の影響を受けて劣化するため、施設の安全性を維持するためにはその劣化評価を行わなければならない。高分子中には自由体積と呼ばれるサブナノメートルサイズの空隙が存在し、材料のマクロな物性と密接に関係していることが知られている。放射線劣化のさらなる理解のためにも、放射線照射がこうしたミクロな構造変化に与える影響を調べる必要がある。陽電子消滅寿命測定法 (PALS) は、高分子材料中に入射された陽電子が材料の空孔で消滅する性質を利用して、ナノ空孔の測定を行うことが可能である。本研究では PALS を利用して、放射線劣化による自由体積への影響を調べた。

【実験】測定試料には高密度ポリエチレン (HDPE)、低密度ポリエチレン (LDPE) の 2 種類を用いた。日本原子力研究開発機構・高崎量子応用研究所で脱気中・室温で電子線を照射 (10、100、500、1000 kGy) した試料を作製した。照射後、試料は大気中で保管した。電子線照射直後と照射後数ヶ月保管した後に PALS と赤外分光測定を行った。

【結果と考察】赤外吸収スペクトル測定により、HDPE、LDPE 共にカルボニル基の生成量は吸収線量と共に増加し、さらに照射後の保管中に酸化が進行することがわかった。カルボニル基の増加は特に HDPE で顕著であった。また、PALS の結果から、PE 中にサイズの異なる 2 種類の自由体積空孔 (結晶-非晶質界面、非晶質領域) が存在すると推察できる。試料の自由体積サイズは長期保存後もほとんど変化しないが、陽電子の自由体積中での消滅割合は長期保存後に変化することがわかった。HDPE では長期保存後に結晶-非晶質界面で消滅したと考えられる陽電子の割合が減少した (Fig. 1、Fig. 2)。陽電子の消滅割合は材料中のカルボニル基に影響を受けることが知られており、結晶-非晶質界面と非晶質領域でこのような違いが見られたのは、カルボニル基が形成した分子鎖の運動性の違いによるためと考えられる。

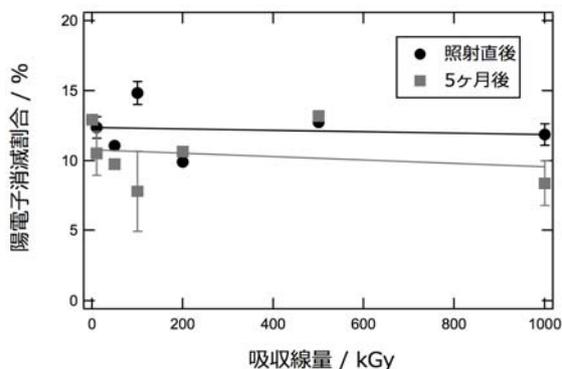


Fig.1 結晶-非晶質界面由来の空孔の陽電子消滅割合

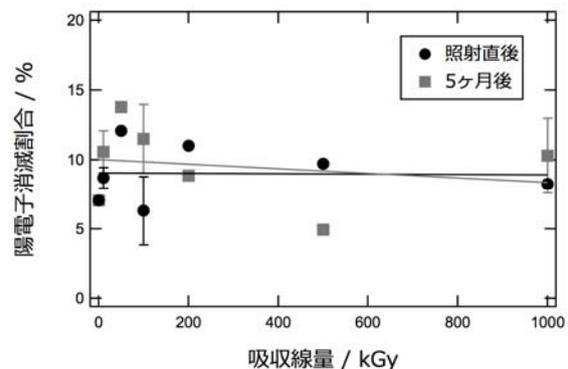


Fig.2 非晶質領域由来の空孔の陽電子消滅割合

Radiation degradation of cable coatings examined by positron annihilation lifetime spectroscopy
ONODERA, K., OKA, T., KINO, Y., SEKINE, T.

P60

電場存在下での陽電子寿命測定のための陽電子線源の開発

(東北大院理¹、東北大高教機構²)○道股知也¹、佐野陽祐¹、岡 壽崇^{2,1}、
木野康志¹、関根 勉²

陽電子は電子の反粒子であり、電子と対消滅することで2本あるいは3本の γ 線を放出する。また、電子と束縛することでポジトロニウム (Ps) を生成する。Ps は換算質量が水素原子の半分の最も軽い原子であり、水素原子に比べ2倍のボーア半径と、半分の束縛エネルギーをもつ。近年では、低速 Ps は反陽子との電荷交換による反水素原子生成や QED のテストへの応用が期待されている。ガス中では、生成直前の陽電子の運動エネルギーに依存して、およそ数 eV の初期運動エネルギーを持った Ps が生成する。我々は、高圧ガス中に電場を印加し、陽電子のエネルギーをコントロールすることで、低速 Ps 源の開発を目的としている。

我々は、図1の金属ロッド (SUS316; 直径3 mm, 長さ17 cm) に²²NaCl 溶液を滴下することで陽電子線源を作成し、この金属ロッドが中心になるように円筒電極を配置した。中心の電場を高くし、放射状に電場を印加することで陽電子を効率よく加速できる。ガス中で、Ps 生成しきい値以上のエネルギーで陽電子をドリフト運動させることにより Ps の生成量も増加する。ガス中での Ps の生成量および運動エネルギーを見積もるには、Ps の消滅 γ 線のドップラー広がり測定が必要がある。その際に、金属ロッドで消滅する陽電子由来の γ 線がバックグラウンドとして問題である。

今回我々は、金属ロッド中での陽電子消滅割合を陽電子寿命測定法で見積もり、消滅 γ 線のドップラー広がりを Ge 半導体検出器を用いて見積もった。陽電子寿命測定法とは、陽電子が入射した時刻 (START) と、電子と対消滅した時刻 (STOP) の時間差を測定することで陽電子の寿命を知る方法である。将来的には、START シグナルを検出する光電子増倍管 (PMT) の数を増やすことで検出効率を向上させることを目指しているが、時間分解能の低下が懸念される。そこで、本実験では START シグナルを検出する PMT の数を2つにして実験を行い、時間分解能の変化も調べた。詳細な結果については当日報告する。



図1 陽電子線源となる金属ロッド

Positron source for a positron annihilation lifetime measurement cell under an electric field
MICHIMATA, T., SANO, Y., OKA, T., KINO, Y., SEKINE, T.

P61

陽電子やミュオンを含むアルカリ原子の構造

(東北大院理)○山下琢磨、木野康志

電子の反粒子である陽電子や、その約207倍の質量を持つ正ミュオンは、有力なトレーサーとして材料科学や物質の電子状態の基礎研究に利用されてきた。これらの粒子は正の電荷を持つ点で原子核の軽い同位体とみなせるが、物質中での挙動はその質量に応じて大きく異なる。

陽電子は電子と質量が同じため、量子効果が大きく、原子の外側に非局在化する。電子と対消滅する際に放出するガンマ線は物質を容易に透過し、消滅相手の電子の運動量を反映するため、物質内部の電子状態を非破壊に検出するプローブとなる。また、原子の価電子を陽電子が引き抜いて形成するポジトロニウム (Ps) は、伴った電子の交換反発により低電子密度領域に鋭敏なプローブとなる。

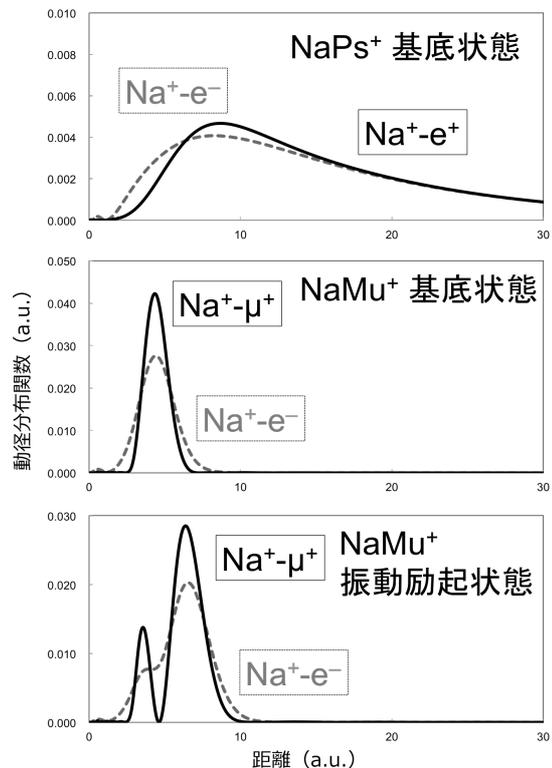
正ミュオンは水素原子核に近い振る舞いを示すが、原子核に比べ大きな磁気モーメントを持つため、物質内部の局所的な磁場を敏感である。短時間で崩壊し、陽電子を放出するため検出も容易で、 μ SR法として、超伝導体や磁性体の研究に盛んに利用されている。また、正ミュオンが電子を伴ったミュオニウム (Mu) は検出しやすい水素の同位体として、水素吸着材料の研究に近年でも利用されている [1]。一方で、正ミュオンは陽子の質量の約9分の1程度で、その量子的な広がりや分解能に大きく影響する。

本研究では、アルカリ原子 (A) と陽電子 (e^+)・正ミュオン (μ^+) が形成する束縛・共鳴状態における波動関数構造・広がりやを明らかにした。アルカリ原子は価電子 (e^-) と閉殻イオン (A^+) に大別され、 e^+/μ^+ と A^+ との相互作用を有効ポテンシャルを用いて近似することで、精密な三体計算が可能である。今回、 e^+/μ^+ と A^+ の分極による引力効果を、 A^+ と e^- の励起状態を再現するポテンシャルから決定し [2]、 A^+ 、 e^- 、 e^+/μ^+ の非断熱三体計算を行った。陽電子や正ミュオンへの価電子の移動や、アルカリ原子中での陽電子・正ミュオンの量子状態・振動状態を、波動関数形状の考察から明らかにした。上図に陽電子ナトリウム (NaPs^+)・ミュオンナトリウム (NaMu^+) の基底状態、振動励起状態の電子および陽電子・正ミュオンの動径分布関数を示す。 NaPs^+ では束縛状態は一つだけであるが、 NaMu^+ では正ミュオンの振動励起状態が発現し、正ミュオンの電子を伴った遠方への広がりも明らかになった。

[1] M. Aramini *et al.*, *CARBON* **67**, 92 (2014).

[2] T. Yamashita and Y. Kino, *J. Phys. Conf. Ser.* **618**, 012009 (2015).

Structures of positronic and muonic alkali atoms
YAMASHITA, T. and KINO, Y.



P62

陽電子消滅時刻運動量同時測定法による Ar ガス中での Ps 熱化過程

(東北大院理¹、東北大高教機構²)○佐野陽祐¹、木野康志²、岡 壽崇^{2,1}、関根 勉²

【緒言】 ポジトロニウム (Ps) とは、電子と電子の反粒子である陽電子が束縛した最も軽い粒子である。1951年に発見されてから、物質中における Ps の消滅速度やドップラー広がりの変化を使った物性測定ツールとして利用されてきたが、近年では、Ps と反陽子の陽電子交換による反水素原子の生成や Ps によるボースアインシュタイン凝縮の達成、量子電磁気学のテストへの応用などが計画されており、室温以下(0.039 meV)のエネルギーの低速 Ps を得ることが求められている。我々は、希ガス中で低速 Ps を得ることを目標とし、研究を進めている。希ガス中での Ps の生成メカニズムは、陽電子-希ガス衝突による電子引き抜き反応で生じる。この際生成した Ps は数 eV 程度の運動エネルギーを持つ。生成後の Ps は、希ガスと散乱することでエネルギーを失う。今回は、Ar ガス中で生成した Ps の熱化過程について発表する。

【実験】 Ps の熱化過程は、陽電子消滅時刻運動量同時測定法で観測する。この手法は、陽電子線源である ²²Na が β^+ 壊変する際に放出する γ 線と Ps が自己消滅する際に放出する 2本の対消滅 γ 線の 3光子を同時測定する必要がある。 β^+ 崩壊時に放出される γ 線と対消滅 γ 線の 1つをそれぞれ BaF₂ シンチレータで検出することで Ps の消滅時刻をもとめる。それと同時に、もう一方の対消滅 γ 線を Ge 半導体検出器で検出することで、Ps の運動エネルギーをもとめる。このように、計 3本の γ 線を同時計測することにより、Ps のエネルギーの時間変化を観測した。

【結果と考察】 Ar ガス中で Ps は 3.7 eV の運動エネルギーを持って生成し、その後 0.8 ns で 0.6 eV まで減速することがわかった。実験により得られた Ps の運動エネルギー変化に対して、Ps の減速モデルをたてることにより、3.7 eV-0.6 eV による運動量移行断面積 (σ_m) を求めた (図 1)。Ps のエネルギーが大きくなるにつれ、 σ_m は小さな値となった。これは、理論の結果や低エネルギー領域での先行研究の結果と一致した。さらに、0.6 eV 以下のエネルギー領域において、先行研究の σ_m の値を使い Ps の熱化時間を求めた。Ar ガス 7.5 MPa においては、Ps は 3.7 eV の運動エネルギーをもち生成し、3 ns で熱化することがわかった。

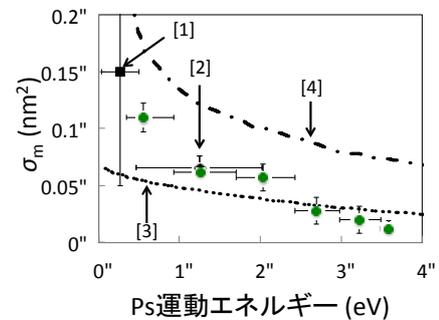


図 1 Ps-Ar 運動量移行断面積

[1] Y. Nagashima, F. Saito, N. Shinohara, and T. Hyodo, *New Directions in Antimatter Chemistry and Physics* (Kluwer, Dordrecht, 2001), p. 291 [2] M. Skalsey, J. J. Engbrecht, C. M. Nakamura, R. S. Vallery and D. W. Gidley, *Phys. Rev. A*, **67** (2003)022504 [3] P.K. Biswas and S.K. Adhikari, *Chem. Phys. Lett.* 317, (2000)129 [4] J. E. Blackwood, M. T. McAlinden, and H. R. J. Walters, *J. Phys. B*, **35** (2002)2661

Age-momentum correlation measurement of Ps thermalization process in Argon gas
SANO, Y., KINO, Y., OKA, T., SEKINE, T.

P63

東北大学電子光理学研究センターにおける光核反応を利用した RI 製造のための制動放射 γ 線プロファイル計測

(東北大)○高橋健、菊永英寿、塚田暁、武藤俊哉、柏木茂、東谷千比呂、南部健一、長澤育郎、日出富士雄、小林恵理子、濱広幸

【はじめに】東北大学電子光理学研究センターでは大強度電子加速器のビームを白金やタングステンなどのコンバータに入射することで制動放射線を生成し、試料との光核反応を利用して放射性同位体(RI)製造を行っている。試料とコンバータの距離の最適化や様々な試料のサイズに対応していくため、現在の RI 製造の照射条件を模擬したセットアップでの制動放射線のプロファイル計測を行った。本測定ではニッケル箔を放射化させ、その生成量やプロファイルを放射能強度分布測定から求めた。

【実験】RI 製造に利用される電子ビームのエネルギーは 30~50 MeV であり、測定には 10~35 MeV の γ 線に反応断面積を持つニッケルを用いた。実験のセットアップを Fig.1 に示す。電子ビームを厚み 50 μm チタン箔から大気に取り出し、照射前にコンバータの位置に設置したベリリウム板を用いて入射する電子ビームのプロファイルを調整した。プロファイルの測定には厚み 10 μm のニッケル箔をコンバータ上流、3 cm 下流、6 cm 下流に設置し、ビーム強度 40 μA で 15 分間照射した。 $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ で生成した ^{57}Ni の放射能強度分布を Ge 半導体検出器とイメージングプレートを用いて計測した。

【結果と考察】 ^{57}Ni の生成量はコンバータ上流のニッケルで約 20kBq となり、GEANT4 と (γ, n) 反応断面積を用いたシミュレーションの結果と良く一致した。シミュレーションからコンバータの下流では約 1MBq の生成量が得られた。

RI 製造時に試料を設置するコンバータ 3 cm 下流で得られた ^{57}Ni の放射能強度分布とピークで切り出したそのプロファイルを Fig.2 に示す。計測した制動放射線の半値幅はおよそ 12 mm、縦横比で $\pm 5\%$ となり、ほぼ想定通りのプロファイルとなっていることが明らかになった。制動放射線の照射効率はおおよそ 7% である。

本測定を行い制動放射線のプロファイルを確認することで、コンバータに入射する電子ビームのプロファイルを制御することによって制動放射線のプロファイルをある程度制御できることや、制動放射線の発散角が多重散乱に依存し一定の広がり角を持つことを実験的に把握することができた。今後、精確な照射効率を求めるために、コンバータ直後に設置したニッケル箔の放射能強度分布測定から、生成した 100% の制動放射線で得られる強度の測定などを行う予定である。

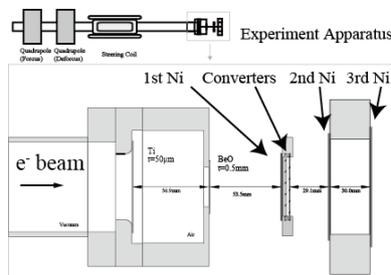


Fig.1 実験のセットアップ

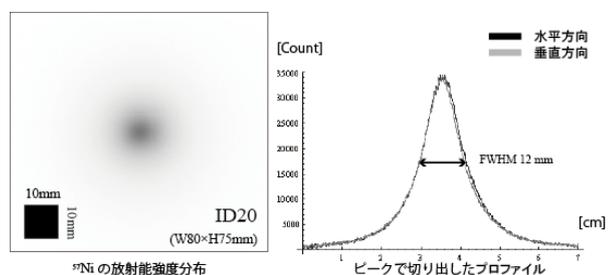


Fig.2 ^{57}Ni の放射能強度分布(左)とプロファイル(右)

Profile measurements of bremsstrahlung γ -ray for radioactive isotope production via photonuclear reaction at Research Center for Electron Photon Science, Tohoku University
TAKAHASHI, K., KIKUNAGA, H., TUKADA, K., MUTO, T., KASHIWAGI, S., TOKOKU, C., NANBU, K., NAGASAWA, I., HINODE, F., KOBAYASHI, E., HAMA, H.

P64

高温水および超臨界水の放射線分解反応初期過程

(阪大産研¹、RI協会²、東大院工³)○室屋裕佐¹、吉田哲郎¹、金森航¹、
勝村庸介²、山下真一³、古澤孝弘¹

【緒言】 原子炉の冷却材である水の化学環境把握と制御は、プラントの長期健全性確保に不可欠である。放射線環境下における水の改質（放射線分解）が炉内構造材料の応力腐食割れや放射能移行に直結するため、支配因子とされる分解生成物（ H_2O_2 、 O_2 ）やその前駆体（水和電子 e^-_{aq} 、 OH 、 H 等）を含めた基礎過程の解明が重要である。高温下の放射線分解反応は極めて迅速なため高時間分解能で追跡する必要があるが、従来開発されたナノ秒分解能では不十分であった。そこでピコ秒分解能を持つ放射線誘起反応測定装置（ピコ秒パルスラジオリシス装置）を開発し、高温・超臨界水に誘起される放射線分解反応の直接追跡に適用すると共に、その素過程の検討を行った。

【ピコ秒パルスラジオリシス装置開発】 ピコ秒分解能を達成するため、ピコ秒電子ライナック（照射ビーム源）およびフェムト秒レーザー（分析光源）を組み合わせたパルスラジオリシス装置を構築した。初期型は S/N 比やデータ取得効率など不十分であったため大幅な改善を図り、加速器・レーザー同期安定性や分光測定系等の改良を行った結果、40 ps 分解能を達成すると共に実用性の高いピコ秒分解能測定が可能となった。

【実験結果と考察】 室温～超臨界状態（臨界点：374 °C、22.1 MPa）における水（Ar 脱気、pH 中性）のピコ秒パルスラジオリシスを行った。主な水分解生成物の一つである e^-_{aq} のピコ秒～ナノ秒領域の時間減衰挙動を、各温度で比較した結果を図 1 に示す。室温下の減衰は緩やかであるが、高温ほどピコ秒領域に速い減衰が現れ、超臨界状態においては照射後 500 ps 以内に 30 %程度が消滅する。スパー反応過程の高速化、特に H_3O^+ との反応による H 生成 ($e^-_{\text{aq}} + \text{H}_3\text{O}^+ \rightarrow \text{H} + \text{H}_2\text{O}$) が促進されていると考えられる。次に、強アルカリ条件下（pH = 11.4）における e^-_{aq} の時間挙動を測定した。室温下ではほとんど pH 依存性は見られなかったが、300 °C（亜臨界状態）においては顕著な差が見られた。結果を図 2 に示す。300 °C、pH = 11.4 の条件下においては、 H_3O^+ は迅速に OH^- に捕捉されて水分子を再生する ($\text{H}_3\text{O}^+ + \text{OH}^- \rightarrow 2\text{H}_2\text{O}$ 、反応時間は約 400 ps)。そのため、これらの減衰の差異は $e^-_{\text{aq}} - \text{H}_3\text{O}^+$ 反応の寄与に対応すると考えられる。一方、アルカリ下においても減衰は見られるが、これは存在濃度が pH に依存せず且つ収量の大きい OH ラジカルとの反応 ($e^-_{\text{aq}} + \text{OH} \rightarrow \text{OH}^-$) が主に寄与していると考えられる。各反応の寄与の割合は同程度であり、近年行われた数値計算（モンテカルロ計算）による予測を、実験的に初めて裏付けるものである。

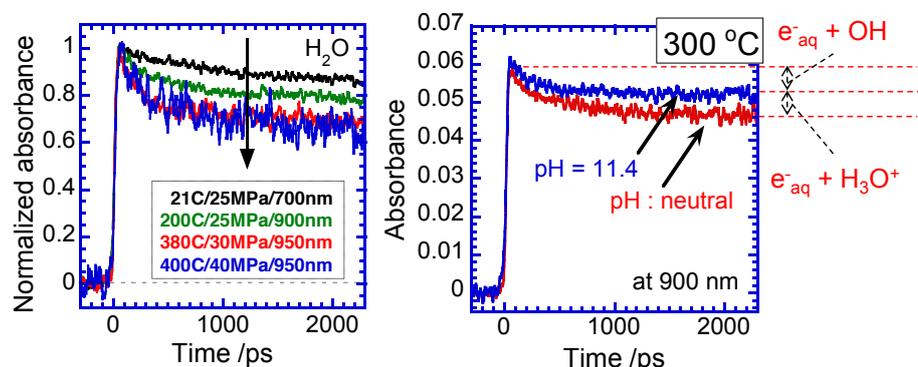


Fig. 1 (left): Fast decay kinetics of e^-_{aq} in neutral water from 21 °C (room temperature) to 400 °C (super-critical state).

Fig. 2 (right): Fast decay kinetics of e^-_{aq} in neutral and strong basic conditions at 300 °C (sub-critical state).

Primary processes of radiolysis of sub- and super-critical water

MUROYA Y., YOSHIDA, T., KANAMORI, W., KATSUMURA, Y., YAMASHITA, S., KOZAWA, T.