

2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会

# 研究発表要旨集

2016 年 9 月 10 日(土)~12 日(月)

新潟大学 五十嵐キャンパス

(新潟県新潟市西区五十嵐 2 の町 8050)



〈主催〉

日本放射化学会



〈共催〉

日本化学会/日本分析化学会/日本原子力学会/日本薬学会



# 2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会

## ■ 実行委員会

工藤 久昭（新潟大，委員長）

今泉 洋（新潟大）， 大江 一弘（新潟大）， 狩野 直樹（新潟大），  
後藤 真一（新潟大）， 小高 広太郎（新潟大）， 佐藤 峰夫（新潟大），  
鈴木 達也（長岡技科大）， 立花 優（長岡技科大）， 松岡 史郎（新潟大）

## ■ 大会概要

会期：2016 年 9 月 10 日(土)～12 日(月)

会場：新潟大学 五十嵐キャンパス 総合教育研究棟 B 棟

主催：日本放射化学会

共催：日本化学会，日本分析化学会，日本原子力学会，日本薬学会

協賛：サンゴバン(株)

討論主題： 1. 放射化分析                      7. 核エネルギー・バックエンド化学  
2. 核化学                                      8. 医学・薬学・生物学における RI 利用  
3. 環境放射能                                9. 宇宙・地球化学  
4. 同位体化学                                10. 福島事故関連  
5. 原子核プローブ                            11. その他関連分野  
6. アクチノイド

参加登録費：

		事前	当日
放射化学会員 共催団体会員	一般	5,000 円	6,000 円
	学生	3,000 円	4,000 円
その他	一般	7,000 円	8,000 円
	学生	4,000 円	5,000 円

放射化学討論会 60 回記念講演：

9 月 11 日(日) 第一部 13:00～14:00，第二部 14:15～15:25  
一般の方も入場できます。

懇親会：9 月 11 日(日) 18:30～20:30

ANA クラウンプラザホテル新潟

〒950-8531 新潟市中央区万代 5-11-20

一般 6,000 円，学生 3,000 円（当日申込は 1,000 円増）

事務局：新潟大学理学部化学科 核化学研究室内

〒950-2181 新潟市西区五十嵐 2 の町 8050

担当 後藤 真一

# 目 次

交通アクセス .....	2
会場案内図 .....	3
日程表 .....	4
プログラム .....	5
特別講演要旨 .....	15
研究発表要旨	
第1日目：9月10日（土）	
口頭発表 A 会場 .....	27
口頭発表 B 会場 .....	38
第2日目：9月11日（日）	
口頭発表 A 会場 .....	49
口頭発表 B 会場 .....	57
第3日目：9月12日（月）	
口頭発表 A 会場 .....	65
口頭発表 B 会場 .....	72
ポスター発表 .....	81
English Abstracts .....	125
発表者索引 .....	153

## 交通アクセス

新潟大学五十嵐キャンパス 総合教育研究棟  
(〒950-2181 新潟市西区五十嵐 2 の町 8050)

### ■ 新潟交通路線バスを利用する場合

新潟駅万代口バスターミナル 5 番線

W21 西小針線（「新潟大学」，「新大」と書かれた路線）に乗車

新大西門 下車（約 45 分，運賃 470 円）

「Suica」等交通系 IC カードも利用できますが，車内でチャージはできません。  
詳しくは以下をご覧ください。

[http://www.niigata-kotsu.co.jp/ryuto/release/121218\\_ryutosuica.pdf](http://www.niigata-kotsu.co.jp/ryuto/release/121218_ryutosuica.pdf)

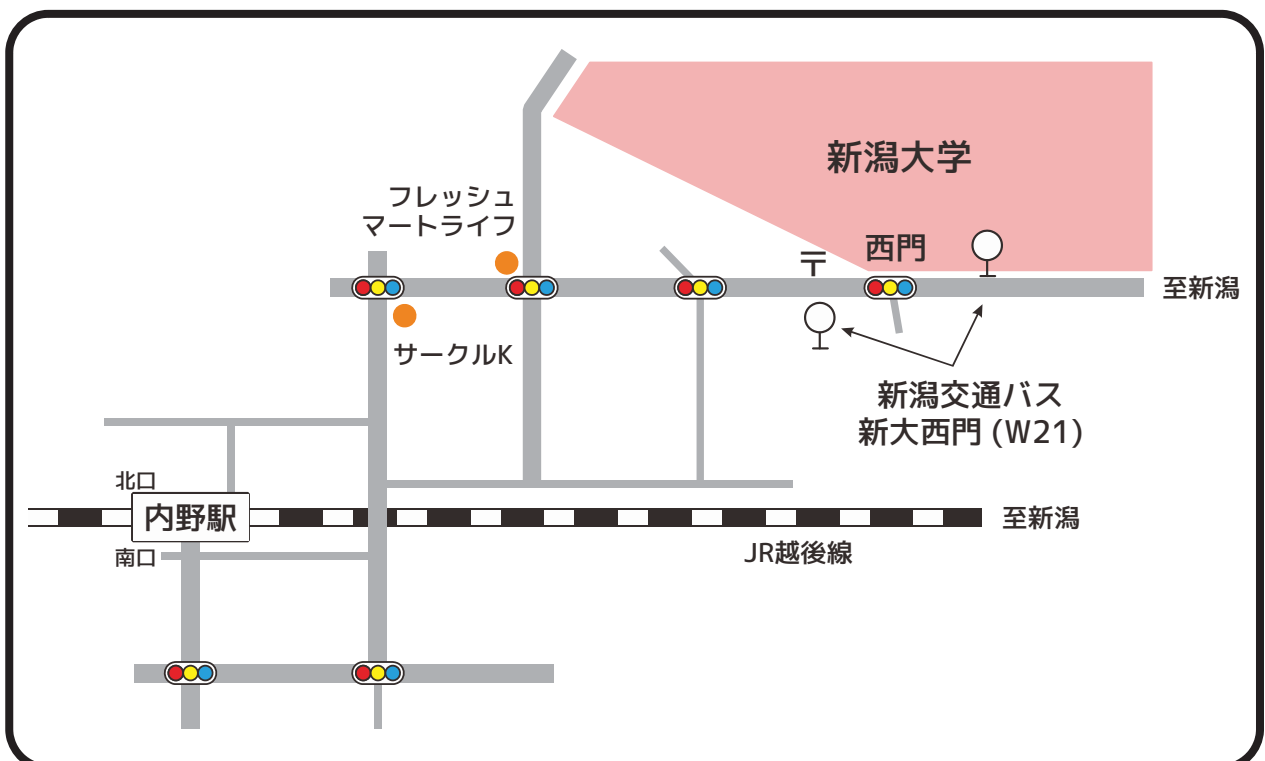
### ■ JR を利用する場合

越後線（内野・吉田方面）

内野駅 下車（約 20 分，運賃 240 円）

徒歩 約 20 分

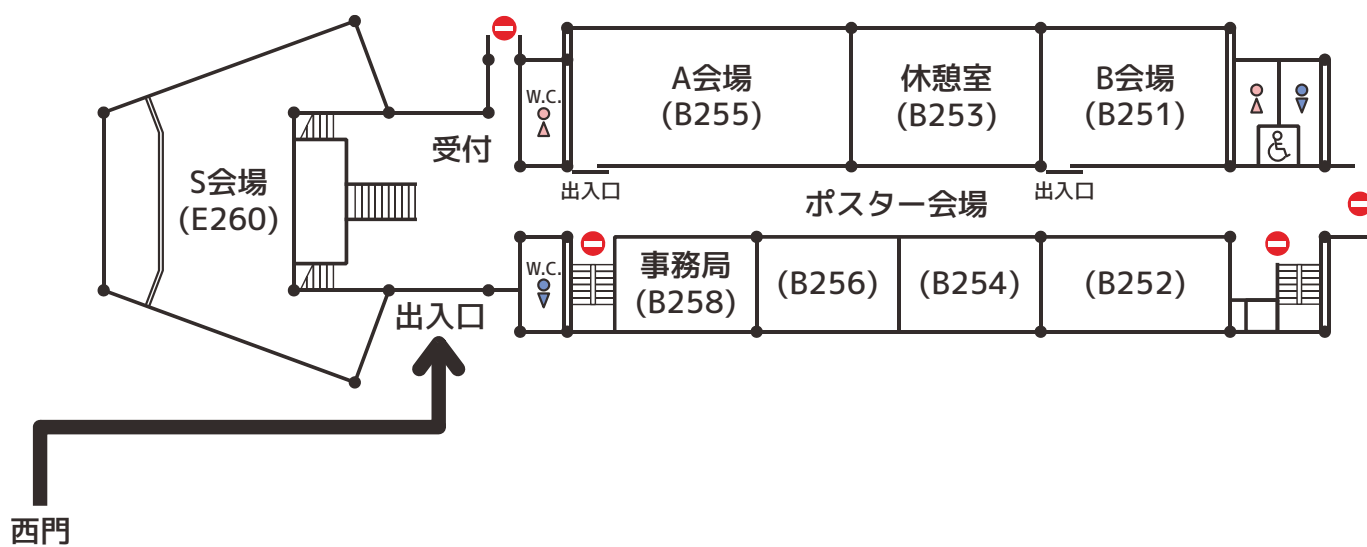
（会場へは「新潟大学前駅」よりも「内野駅」で下車した方が便利です）



# 会場案内図



新潟大学五十嵐キャンパス



総合教育研究棟 B棟 2階

# 日 程 表

9月10日(土)			
S会場	A会場	B会場	
9:00			
受付			
10:00			
	福島事故 関連 1 1A01 } 1A03	核化学 1 1B01 } 1B03	
11:00			
11:10			
	休憩	休憩	
	福島事故 関連 2 1A04 } 1A06	核化学 2 1B04 } 1B06	
12:10			
12:15			
	原子核 プローブ 分科会	核化学 分科会	
13:15			
13:20			
	福島事故 関連 3 1A07 } 1A09	核化学 3 1B07 } 1B09	
14:20			
14:30			
	休憩	休憩	
	福島事故 関連 4 1A10 1A11	核化学 4 1B10 1B11	
15:10			
15:20			
ポスター 発表 ショート プレゼン テーション			
16:20			
ポスターセッション (P会場) 奇数番号			
17:10			
偶数番号			
18:00			
	若手の会	放射化分析 分科会 拡大幹事会	
19:00			

9月11日(日)			
S会場	A会場	B会場	
9:00			
	医学等に おける RI利用 1 2A01 } 2A04	同位体化学 原子核 プローブ 1 2B01 } 2B04	
10:20			
10:30			
	休憩	休憩	
	医学等に おける RI利用 2 その他 2A05 } 2A08	原子核 プローブ 2 2B05 } 2B08	
11:50			
昼食			
13:00			
60回 記念講演 (第一部) 2S01	記念講演には 一般の方も 入場できます		
14:00			
14:15			
	休憩		
	(第二部) 2S02		
14:50			
15:25			
15:35			
	総会		
16:45			
	写真撮影		
17:05			
17:15			
バス移動			
18:30			
懇親会 ANA クラウンホテル新潟			

9月12日(月)			
S会場	A会場	B会場	
9:00			
	環境 放射能 1 3A01 } 3A03	原子核 プローブ 3 3B01 } 3B03	
10:00			
10:10			
	休憩		
	奨励賞 受賞講演 3S01	奨励賞 受賞講演 3S02	
10:40			
	奨励賞 受賞講演 3S03		
11:10			
11:20			
	休憩		
	学会賞 受賞講演 3S04		
12:10			
12:15			
	放射化分析 分科会	α放射体・ 環境放射能 分科会	
13:15			
13:20			
	環境 放射能 2 その他 3A04 } 3A07	アクチノイド その他 3B04 } 3B08	
14:40			
15:00			
	休憩		
	若手表彰式 閉会		
15:30			

# 2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会プログラム

口頭発表 発表時間 15 分以内、討論含め 20 分以内  
ポスター発表 ショートプレゼンテーション 1 分以内  
ポスターサイズ 90 cm (横) × 120 cm (縦) 以内  
会場 新潟大学五十嵐キャンパス 総合教育研究棟  
S会場 大講義室 E260  
A会場 講義室 B255  
B会場 講義室 B251

(\*は若手優秀発表賞対象講演)

## 第 1 日 9 月 10 日 (土)

### A 会場

### B 会場

9:00

受付

10:00

#### 福島事故関連 1

座長: 田上恵子

- 1A01\*** 放射性セシウムの河川から海水への移行に伴う懸濁粒子からの溶脱に関する GAM モデルからの考察  
(東大院理<sup>1</sup>、中国科学院<sup>2</sup>、筑波大<sup>3</sup>、東大 RIC<sup>4</sup>、東京海洋大<sup>5</sup>) ○三浦 輝<sup>1</sup>、Fan Qiaohui<sup>2</sup>、栗原雄一<sup>1</sup>、坂口 綾<sup>3</sup>、松垣 正吾<sup>4</sup>、石丸 隆<sup>5</sup>、神田穰太<sup>5</sup>、高橋嘉夫<sup>1</sup>
- 1A02** セシウムやヨウ素の移行挙動に及ぼす天然有機物の影響  
(東大院理<sup>1</sup>、中国科学院<sup>2</sup>、JAEA<sup>3</sup>) ○高橋嘉夫<sup>1</sup>、三浦 輝<sup>1</sup>、Fan Qiaohui<sup>2</sup>、田中万也<sup>3</sup>
- 1A03** コシアブラの放射性セシウム蓄積経過  
(東大院農<sup>1</sup>、京大院情報<sup>2</sup>、放射線安全フォーラム<sup>3</sup>、伊達市役所<sup>4</sup>) ○二瓶直登<sup>1</sup>、大手信人<sup>2</sup>、多田順一郎<sup>3</sup>、黒沢 崇<sup>4</sup>、根本圭介<sup>1</sup>

#### 核化学 1

座長: 初川雄一

- 1B01** <sup>48</sup>Cr の半減期精密測定  
(東北大電子光セ<sup>1</sup>、京大炉<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○菊永英寿<sup>1</sup>、高宮幸一<sup>2</sup>、大槻 勤<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>
- 1B02\*** 反跳核捕集し、化学調製した <sup>229m</sup>Th 試料の光子測定  
(阪大院理<sup>1</sup>、京大炉<sup>2</sup>、東北大金研・大洗<sup>3</sup>) ○安田勇輝<sup>1</sup>、笠松良崇<sup>1</sup>、重河優大<sup>1</sup>、高宮幸一<sup>2</sup>、大槻 勤<sup>2</sup>、三頭聰明<sup>3</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>
- 1B03\*** 80 MeV 単色中性子による隕石構成元素に対する核反応断面積の測定  
(阪大院理<sup>1</sup>、京大炉<sup>2</sup>、阪大 RCNP<sup>3</sup>、KEK<sup>4</sup>、JAEA<sup>5</sup>、理研<sup>6</sup>、パデュー大<sup>7</sup>、カリフォルニア大<sup>8</sup>) ○南部明弘<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、重河優大<sup>1</sup>、高橋成人<sup>1</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>、関本 俊<sup>2</sup>、八島 浩<sup>2</sup>、嶋 達志<sup>3</sup>、萩原雅之<sup>4</sup>、岩元洋介<sup>5</sup>、柴田誠一<sup>6</sup>、Marc.W.Caffee<sup>7</sup>、西泉邦彦<sup>8</sup>

休憩

11:10

#### 福島事故関連 2

座長: 箕輪はるか

- 1A04\*** シイタケ培地中でのセシウムの存在形態  
(東北大院理<sup>1</sup>、株式会社キノックス<sup>2</sup>) ○村野井 友<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、板橋康弘<sup>2</sup>、中島丈博<sup>2</sup>、郡山慎一<sup>2</sup>、木村栄一<sup>2</sup>、嶋原 隆<sup>2</sup>
- 1A05\*** ウシの歯の放射能測定によるウシ生息域での Sr-90、Cs-137 汚染の推定

#### 核化学 2

座長: 浅井雅人

- 1B04\*** <sup>70</sup>Zn(*d, an*)<sup>67</sup>Cu 反応による頒布用精製 <sup>67</sup>Cu の製造  
(理研仁科セ<sup>1</sup>、RI 協会<sup>2</sup>) ○矢納慎也<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>、柴田誠一<sup>1</sup>、小森有希子<sup>1</sup>、高橋和也<sup>1</sup>、渡邊慶子<sup>1</sup>、脇谷雄一郎<sup>2</sup>、山田崇裕<sup>2</sup>、松本幹雄<sup>2</sup>



(東北大院理<sup>1</sup>、東北大病院<sup>2</sup>、東北大院歯<sup>3</sup>、東北大災害研<sup>4</sup>、岩手大理工<sup>5</sup>、東北大院農<sup>6</sup>、東北大高教機構<sup>7</sup>、東北大加齢研<sup>8</sup>) ○小荒井一真<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、西山純平<sup>1</sup>、高橋 温<sup>2</sup>、鈴木敏彦<sup>3,4</sup>、清水良央<sup>3</sup>、千葉美麗<sup>3</sup>、小坂 健<sup>3,4</sup>、佐々木啓一<sup>3</sup>、福田智一<sup>5</sup>、磯貝恵美子<sup>6</sup>、岡壽崇<sup>1,7</sup>、関根 勉<sup>1,7</sup>、福本 学<sup>8</sup>、篠田 壽<sup>3</sup>

**1A06\*** 福島第一原発事故被災ウシの硬組織中のSr-90濃度の経時変化

(東北大院理<sup>1</sup>、東北大院歯<sup>2</sup>、東北大病院<sup>3</sup>、東北大災害研<sup>4</sup>、岩手大理工<sup>5</sup>、東北大院農<sup>6</sup>、東北大高教機構<sup>7</sup>、東北大加齢研<sup>8</sup>) ○西山純平<sup>1</sup>、小荒井一真<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、清水良央<sup>2</sup>、高橋 温<sup>3</sup>、鈴木敏彦<sup>2,4</sup>、千葉美麗<sup>2</sup>、小坂 健<sup>2,4</sup>、佐々木啓一<sup>2</sup>、福田智一<sup>5</sup>、磯貝恵美子<sup>6</sup>、岡壽崇<sup>1,7</sup>、関根 勉<sup>1,7</sup>、福本 学<sup>8</sup>、篠田 壽<sup>2</sup>

12:15

原子核プローブ  
分科会

核化学  
分科会

13:20

福島事故関連 3

座長: 末木啓介

**1A07\*** 福島県川俣町で採取した土壌のSr-90の深度分布

(阪大院理<sup>1</sup>、阪大RIセ<sup>2</sup>、筑波大<sup>3</sup>) ○鈴木杏菜<sup>1</sup>、張 子見<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、山口喜朗<sup>2</sup>、高橋純子<sup>3</sup>、恩田裕一<sup>3</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>

**1A08** 東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料中の<sup>129</sup>I/<sup>131</sup>I比

(首都大院理工<sup>1</sup>、RESTEC<sup>2</sup>、東大院工<sup>3</sup>、都産技研セ<sup>4</sup>、理研仁科セ<sup>5</sup>、東大MALT<sup>6</sup>、日大文理<sup>7</sup>、京大原子炉<sup>8</sup>) ○海老原 充<sup>1</sup>、大浦泰嗣<sup>1</sup>、白井直樹<sup>1</sup>、鶴田治雄<sup>2</sup>、森口祐一<sup>3</sup>、永川栄泰<sup>4</sup>、櫻井 昇<sup>4</sup>、羽場宏光<sup>5</sup>、松崎浩之<sup>6</sup>、山形武靖<sup>7</sup>、永井尚生<sup>7</sup>、関本 俊<sup>8</sup>

**1A09** 東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料のオートラジオグラフと<sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs比

(首都大院理工<sup>1</sup>、RESTEC<sup>2</sup>、JAXA<sup>3</sup>、東大院工<sup>4</sup>、国環研<sup>5</sup>、都産技研<sup>6</sup>、理研仁科セ<sup>7</sup>、東大博物館<sup>8</sup>) ○大浦泰嗣<sup>1</sup>、海老原 充<sup>1</sup>、白井直樹<sup>1</sup>、鶴田治雄<sup>2</sup>、中島映至<sup>3</sup>、森口祐一<sup>4</sup>、大原利真<sup>5</sup>、永川栄泰<sup>6</sup>、櫻井 昇<sup>6</sup>、羽場宏光<sup>7</sup>、松崎浩之<sup>8</sup>

**1B05** 50MeV重陽子照射で発生する高速中性子による医療用放射性核種の合成研究

(原子力機構<sup>1</sup>、量研機構<sup>2</sup>、千代田テクノル<sup>3</sup>) ○塚田和明<sup>1</sup>、橋本和幸<sup>2</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、川端方子<sup>2,3</sup>、佐伯秀也<sup>2,3</sup>、湊 太志<sup>1</sup>、岩本信之<sup>1</sup>、永井泰樹<sup>2</sup>、須郷由美<sup>2</sup>、渡辺 智<sup>2</sup>、石岡典子<sup>2</sup>

**1B06** GARIS-IIを用いたホットフュージョン反応<sup>48</sup>Ca+<sup>238</sup>U→<sup>286</sup>Cn\*に関する研究

(理研仁科セ<sup>1</sup>、山形大<sup>2</sup>、埼玉大<sup>3</sup>、新潟大院自<sup>4</sup>) ○加治大哉<sup>1</sup>、森本幸司<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>、若林泰生<sup>1</sup>、武山美麗<sup>1,2</sup>、山木さやか<sup>1,3</sup>、小森有希子<sup>1</sup>、矢納慎也<sup>1</sup>、後藤真一<sup>4</sup>

核化学 3

座長: 羽場宏光

**1B07\*** 103番元素ローレンシウム(Lr)のタンタル金属表面における吸着挙動

(茨城大<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、新潟大<sup>3</sup>、広島大<sup>4</sup>、名古屋大<sup>5</sup>、大阪大<sup>6</sup>、徳島大<sup>7</sup>、マインツ大<sup>8</sup>、HIM<sup>9</sup>、GSI<sup>10</sup>、PSI<sup>11</sup>、ベルン大<sup>12</sup>、FLNR<sup>13</sup>) ○金谷佑亮<sup>1,2</sup>、佐藤哲也<sup>2</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、水飼秋菜<sup>1,2</sup>、長 明彦<sup>2</sup>、牧井宏之<sup>2</sup>、西尾勝久<sup>2</sup>、廣瀬健太郎<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>1,2</sup>、冨塚知博<sup>3</sup>、白井香里<sup>3</sup>、佐藤大輔<sup>3</sup>、大江一弘<sup>3</sup>、後藤真一<sup>3</sup>、宮下直<sup>4</sup>、新宮一駿<sup>4</sup>、名桑 良<sup>4</sup>、柴田理尋<sup>5</sup>、鎌田裕生<sup>5</sup>、笠松良崇<sup>6</sup>、重河優大<sup>6</sup>、阪間 稔<sup>7</sup>、Ch. E. Düllmann<sup>8,9,10</sup>、K. Eberhardt<sup>8,9</sup>、J. Grund<sup>8</sup>、J. V. Kratz<sup>8</sup>、J. Runke<sup>8</sup>、P. Thörler-Pospiech<sup>8,9</sup>、N. Trautmann<sup>8</sup>、V. Pershina<sup>10</sup>、M. Schädel<sup>10</sup>、A. Yakushev<sup>9,10</sup>、R. Eichler<sup>11,12</sup>、P. Steinegger<sup>13</sup>

**1B08** 重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギー

(原子力機構<sup>1</sup>、茨城大院<sup>2</sup>、徳島大<sup>3</sup>、新潟大<sup>4</sup>、大阪大<sup>5</sup>、理研<sup>6</sup>、フローニンゲン大<sup>7</sup>、GSI<sup>8</sup>、マインツ大<sup>9</sup>、CERN<sup>10</sup>) ○佐藤哲也<sup>1</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、金谷佑亮<sup>1,2</sup>、塚田和明<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1</sup>、水飼秋菜<sup>1,2</sup>、武田晋作<sup>3</sup>、阪間 稔<sup>3</sup>、佐藤大輔<sup>4</sup>、

大江一弘<sup>4</sup>、重河優大<sup>5</sup>、牧井宏之<sup>1</sup>、長 明彦<sup>1</sup>、市川進一<sup>6</sup>、永目諭一郎<sup>1</sup>、A. Borschevsky<sup>7</sup>、M. Schädel<sup>1,8</sup>、Ch. E. Düllmann<sup>8,9</sup>、J. V. Kratz<sup>9</sup>、T. Stora<sup>10</sup>

**1B09\*** 104 番元素 Rf の同族元素 Zr、Hf の Aliquat 336/HCl 系での溶媒抽出挙動  
(阪大院理<sup>1</sup>、阪大理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○近藤成美<sup>1</sup>、大内昂輝<sup>1</sup>、永瀬将浩<sup>2</sup>、重河優大<sup>1</sup>、安田勇輝<sup>1</sup>、笠松良崇<sup>1</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>、工藤祐生<sup>3</sup>

休 憩

14:30

**福島事故関連 4**

座長: 齊藤 敬

**1A10** 福島第一原発北西部における <sup>110m</sup>Ag/<sup>137</sup>Cs 放射能比と放射性粒子の関係  
(原子力機構<sup>1</sup>、筑波大<sup>2</sup>) ○佐藤志彦<sup>1</sup>、末木啓介<sup>2</sup>、笹 公和<sup>2</sup>

**1A11\*** 原子力事故により放出される放射性物質の森林植生への沈着・溶離挙動の研究  
(阪大理<sup>1</sup>、阪大 RI セ<sup>2</sup>、筑波大生命環境<sup>3</sup>) ○張子見<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、吉村 崇<sup>2</sup>、古川 純<sup>3</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>

**核化学 4**

座長: 塚田和明

**1B10** 107 番元素ボーリウムの溶液化学研究に向けた GARIS ガスジェット装置による Re 同位体の製造とフロー溶媒抽出器を用いた Re のオンライン抽出

(理研仁科セ<sup>1</sup>、新潟大院自然<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>、筑波大数理<sup>4</sup>、東北大電子光セ<sup>5</sup>、阪大院理<sup>6</sup>、オスロ大<sup>7</sup>) ○小森有希子<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>、大江一弘<sup>2</sup>、豊嶋厚史<sup>3</sup>、水飼秋菜<sup>3</sup>、佐藤大輔<sup>2</sup>、本山李沙<sup>2</sup>、矢納慎也<sup>1</sup>、渡邊慶子<sup>1</sup>、佐藤 望<sup>1</sup>、山下さやか<sup>1</sup>、田中泰貴<sup>1</sup>、加治大哉<sup>1</sup>、森本幸司<sup>1</sup>、坂口 綾<sup>4</sup>、稲垣純平<sup>4</sup>、菊永英寿<sup>5</sup>、重河優大<sup>6</sup>、笠松良崇<sup>6</sup>、Jon Petter Omtvedt<sup>7</sup>

**1B11\*** Rf 同族元素 Zr、Hf の塩化物に対する等温ガスクロマトグラフィ  
(新潟大院自然<sup>1</sup>、新潟大理<sup>2</sup>) ○白井香里<sup>1</sup>、押見吉成<sup>1</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>2</sup>

S 会場

15:20

**ポスター発表ショートプレゼンテーション**

(座長: 後藤真一)

16:20

**ポスターセッション**

奇数番号 責任時間 (50 分)

17:10

偶数番号 責任時間 (50 分)

18:00

A 会場  
若手の会

B 会場  
放射化分析拡大幹事会

- P01\*** 谷津干潟底質における福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの動態  
(東大院総合) ○山本 駿、添盛晃久、小豆川勝見、松尾基之
- P02\*** 多摩川における放射性セシウムのキャラクタリゼーション  
(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、明大理工<sup>3</sup>) ○奥村真吾<sup>1</sup>、越智康太郎<sup>1</sup>、萩原健太<sup>2</sup>、中村利廣<sup>3</sup>、小池裕也<sup>3</sup>
- P03** 東京湾における海洋放射能調査—海底土、海水中のセシウム 134、137 濃度の経年変化—  
(日本分析センター) ○豊岡慎介、新田 濟、金子健司、岸本武士、磯貝啓介
- P04** 赤城大沼周辺土壌の放射性セシウム濃度分布  
(東京都市大工<sup>1</sup>、群馬水試<sup>2</sup>、国環研<sup>3</sup>) ○長橋孝将<sup>1</sup>、松浦治明<sup>1</sup>、今川 峻<sup>1</sup>、内山孝文<sup>1</sup>、鈴木究真<sup>2</sup>、湯浅由美<sup>2</sup>、渡辺 峻<sup>2</sup>、新井 肇<sup>2</sup>、野原精一<sup>3</sup>、岡田往子<sup>1</sup>
- P05** 福島原発事故以降の河川における溶存態と底質土におけるセシウム同位体比変化  
(筑波大数理物<sup>1</sup>、筑波大応用加速器<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>、筑波大数理物系<sup>4</sup>、東大 MALT<sup>5</sup>) ○富田涼平<sup>1</sup>、松中哲也<sup>2</sup>、本多真紀<sup>1</sup>、佐藤志彦<sup>3</sup>、松村万寿美<sup>2</sup>、高橋 努<sup>2</sup>、坂口 綾<sup>4</sup>、松崎浩之<sup>5</sup>、笹 公和<sup>2,4</sup>、末木啓介<sup>4</sup>
- P06** イネ中の微量元素及び放射性セシウムの分析  
(静岡大理<sup>1</sup>、徳島大 ARREMC<sup>2</sup>、東京大 RIC<sup>3</sup>、イング<sup>4</sup>、名古屋大名誉教授<sup>5</sup>、RI 協会滝沢研<sup>6</sup>、岩手医大サイクロ<sup>7</sup>) ○矢永誠人<sup>1</sup>、三好弘一<sup>2</sup>、松垣正吾<sup>3</sup>、森 一幸<sup>4</sup>、西澤邦秀<sup>5</sup>、後藤祥子<sup>6</sup>、世良耕一郎<sup>7</sup>
- P07\*** 福島原発事故に由来する放射性セシウムを含む不溶性粒子の生成模擬実験  
(阪大院理<sup>1</sup>、阪大 RI セ<sup>2</sup>) ○藤田将史<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、吉村 崇<sup>2</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>
- P08\*** 都市ごみ焼却飛灰の撥水処理による放射性セシウムの溶出抑制  
(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、明大理工<sup>3</sup>、リガク<sup>4</sup>) ○福田大輔<sup>1</sup>、岩鼻雄基<sup>2</sup>、久米冬馬<sup>3</sup>、藤井健悟<sup>1</sup>、萩原健太<sup>2</sup>、大淵敦司<sup>4</sup>、小池裕也<sup>3</sup>
- P09** 自動分析装置による食品試料中のストロンチウム 90 分析  
(日本分析センター<sup>1</sup>、柴崎製作所<sup>2</sup>) ○伴場 滋<sup>1</sup>、松江登久<sup>2</sup>、藤森 憲<sup>2</sup>、瀬戸博文<sup>2</sup>、児玉理恵<sup>2</sup>、森本隆夫<sup>1</sup>、柴崎昌彦<sup>2</sup>
- P10** イオン交換法を用いた海水中放射性ストロンチウムの化学分離  
(慈恵医大・アイソトープ<sup>1</sup>、(株)日立製作所・ヘルスケア BU<sup>2</sup>、名大・RIC 分館<sup>3</sup>) ○箕輪はるか<sup>1</sup>、加藤結花<sup>2</sup>、緒方良至<sup>3</sup>
- P11\*** 固相抽出ディスクを用いた放射性ストロンチウム分析用線源の迅速作製法  
(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、リガク<sup>3</sup>、明大理工<sup>4</sup>) ○藤井健悟<sup>1</sup>、栗原雄一<sup>2</sup>、大淵敦司<sup>3</sup>、中村利廣<sup>4</sup>、小池裕也<sup>4</sup>
- P12** 淡水系地下水中の Ra 同位体  
(JAEA<sup>1</sup>、金沢大 LLRL<sup>2</sup>、筑波大<sup>3</sup>) ○富田純平<sup>1</sup>、宮田佳樹<sup>2</sup>、濱 克宏<sup>1</sup>、坂口 綾<sup>3</sup>、長尾誠也<sup>2</sup>、山本政儀<sup>2</sup>
- P13\*** ケイ酸塩鉱物中トリウムおよびラジウムの同位体の存在形態  
(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、明大理工<sup>3</sup>) ○塩原良建<sup>1</sup>、栗原雄一<sup>2</sup>、中村利廣<sup>3</sup>、小池裕也<sup>3</sup>
- P14** TEVA レジンディスクを用いた土壌中に含まれるプルトニウム迅速定量法の検討  
(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大学際セ<sup>2</sup>、金沢大理工<sup>3</sup>) ○山守航平<sup>1</sup>、上杉正樹<sup>2</sup>、横山明彦<sup>3</sup>

- P15** 粒子状プルトニウムの精製時期推定のためのアメリカン  $\alpha$  線測定法の検討  
(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
- P16** アクチノイドを含む全自動極微量多元素逐次分離法の開発  
(原子力機構) ○宮本ユタカ、安田健一郎、間柄正明
- P17** 電子スピン共鳴法による小児の外部被ばく線量の推定  
(東北大高教機構<sup>1</sup>、東北大院理<sup>2</sup>、東北大学病院<sup>3</sup>、東北大院歯<sup>4</sup>) ○岡 壽崇<sup>1,2</sup>、高橋 温<sup>3</sup>、小荒井一真<sup>2</sup>、西山純平<sup>2</sup>、木野康志<sup>2</sup>、関根 勉<sup>1,2</sup>、清水良央<sup>4</sup>、千葉美麗<sup>4</sup>、鈴木敏彦<sup>4</sup>、小坂 健<sup>4</sup>、佐々木啓一<sup>4</sup>、篠田 壽<sup>4</sup>
- P18** 福島環境安全センターにおける環境回復への取組み  
(原子力機構福島) ○阿部寛信、吉川英樹、時澤孝之、浅妻新一郎
- P19** 福島山地森林における地表面流出物質と空間線量率の推移  
(原子力機構福島) ○石井康雄、三田地勝昭、阿部寛信、新里忠史
- P20** 放射性物質の大気中での輸送を担うエアロゾル粒子の平均粒径と化学形  
(信州大教育<sup>1</sup>、信州大院教育<sup>2</sup>) ○村松久和<sup>1</sup>、松原梨沙子<sup>1</sup>、樋渡瑞幹<sup>2</sup>、近藤 茜<sup>1</sup>
- P21** 日本国内全域における表層土壌中<sup>129</sup>I 調査 – 福島第一原発事故の影響 –  
(日本分析センター) ○王 暁水、山道美和子、篠原宏文、伴場 滋、太田裕二、磯貝啓介
- P22\*** 北極海-北太平洋における海水中ヨウ素 129 の濃度分布  
(日大院総合基<sup>1</sup>、日大文理<sup>2</sup>、JAMSTEC<sup>3</sup>、東大博物館<sup>4</sup>) ○工藤 輝<sup>1</sup>、山形武靖<sup>2</sup>、永井尚生<sup>2</sup>、熊本雄一郎<sup>3</sup>、西野茂人<sup>3</sup>、松崎浩之<sup>4</sup>
- P23** 新潟県内の環境水中トリチウム濃度レベル  
(新潟県放射線監視センター) ○清野詩子、鴻巣祐也、山崎興樹、丸田文之
- P24\*** 光造形方式 3D プリンタと天然放射性核種を利用した模擬ガンマ線源の開発  
(尚絅学院大生活環境<sup>1</sup>、明治大理工<sup>2</sup>、大阪大安全衛生<sup>3</sup>) ○西間木史織<sup>1</sup>、小池裕也<sup>2</sup>、高橋賢臣<sup>3</sup>、齊藤 敬<sup>1</sup>
- P25** 青銅器の<sup>14</sup>C 年代測定のための試料調製法の開発 – 塩基性炭酸銅・緑青・孔雀石の自己分解温度について –  
(名大 ISEE<sup>1</sup>、元興寺文化財研<sup>2</sup>) ○小田寛貴<sup>1</sup>、山田哲也<sup>2</sup>、塚本敏夫<sup>2</sup>
- P26** CO<sub>2</sub> ガスイオン源を用いた迅速<sup>14</sup>C-AMS の開発  
(筑波大 AMS) ○松中哲也、笹 公和、細谷青児、高橋 努、松村万寿美、末木啓介
- P27\*** フローインジェクション分析法を利用した 4 族元素 Zr、Hf のキレート抽出  
(新潟大院自<sup>1</sup>、新潟大理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○山田亮平<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、小森有希子<sup>3</sup>
- P28** Rf の同族元素 Zr、Hf の 4-イソプロピルトロポロンを用いた溶媒抽出挙動  
(新潟大院自<sup>1</sup>、新潟大理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○大江一弘<sup>1</sup>、山田亮平<sup>1</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、小森有希子<sup>3</sup>
- P29\*** 5 族元素 Nb、Ta のフッ化水素酸からの Aliquat 336 樹脂への抽出：分配係数の抽出剤濃度依存性の検討  
(新潟大院自<sup>1</sup>、理研仁科セ<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>、東北大電子光セ<sup>4</sup>、新潟大理<sup>5</sup>) ○佐藤大輔<sup>1</sup>、村上昌史<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、本山李沙<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>2</sup>、小森有希子<sup>2</sup>、豊嶋厚史<sup>3</sup>、水飼秋菜<sup>3</sup>、菊永英寿<sup>4</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>5</sup>

- P30\*** 5族元素 Nb, Ta の塩酸溶液からのトリイソオクチルアミンによる溶媒抽出—Ta トレーサー調製法の影響—  
(新潟大院自<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>、新潟大理<sup>4</sup>) ○本山李沙<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、村上昌史<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>4</sup>
- P31\*** フロー抽出装置を用いたフッ化水素酸-Aliquat336系におけるタングステンの溶媒抽出  
(茨大院理工<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○水飼秋葉<sup>1,2</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、小森有希子<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、佐藤哲也<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>1,2</sup>
- P32** アスタチンの酸化還元と溶媒抽出挙動  
(原子力機構先端研<sup>1</sup>、阪大院理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>、阪大理<sup>4</sup>、阪大 RI セ<sup>5</sup>) ○豊嶋厚史<sup>1,2,3</sup>、神田晃充<sup>2</sup>、池田卓海<sup>4</sup>、吉村 崇<sup>5</sup>、篠原 厚<sup>2</sup>、矢納慎也<sup>3</sup>、小森有希子<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>
- P33** 重陽子照射で発生する加速器中性子によって製造するがん治療用 <sup>67</sup>Cu の高純度化に関する検討  
(量研機構<sup>1</sup>、千代田テクノル<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>) ○橋本和幸<sup>1</sup>、川端方子<sup>2</sup>、佐伯秀也<sup>2</sup>、佐藤俊一<sup>2</sup>、塚田和明<sup>3</sup>、須郷由美<sup>1</sup>、永井泰樹<sup>1</sup>、初川雄一<sup>1</sup>、渡辺 智<sup>1</sup>、石岡典子<sup>1</sup>
- P34\*** <sup>211</sup>Rn—<sup>211</sup>At ジェネレーター開発を目的としたシリンジ密封抽出系の At/Rn 分離係数の研究  
(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>、量研機構量子ビーム<sup>3</sup>、金沢大医薬保健<sup>4</sup>) ○山田記大<sup>1</sup>、新裕喜<sup>2</sup>、大江崇太<sup>2</sup>、村上拳冬<sup>2</sup>、橋本和幸<sup>3</sup>、西中一朗<sup>3</sup>、鷺山幸信<sup>4</sup>、横山明彦<sup>2</sup>
- P35\*** 樹脂担持有機スズ試薬を用いた <sup>211</sup>At 分離/標識の試み  
(阪大院理<sup>1</sup>、原子力機構先端セ<sup>2</sup>、阪大理<sup>3</sup>、阪大 RI セ<sup>4</sup>) ○神田晃充<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、池田卓海<sup>3</sup>、吉村 崇<sup>4</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>
- P36** リアルタイム RI イメージングシステムを用いた植物体内元素動態の可視化技術の開発  
(東大院農<sup>1</sup>、JST PRESTO<sup>2</sup>) ○杉田亮平<sup>1</sup>、小林奈通子<sup>1</sup>、廣瀬 農<sup>1</sup>、田野井慶太郎<sup>1,2</sup>、中西友子<sup>1</sup>
- P37\*** J-PARC MUSE の大強度ミュオンビームを用いたミュオン原子取り出し実験  
(阪大院理<sup>1</sup>、高エネ研<sup>2</sup>) ○吉田 剛<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、稲垣 誠<sup>1</sup>、豊田岐聡<sup>1</sup>、青木 順<sup>1</sup>、河村成肇<sup>2</sup>、三宅康博<sup>2</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>
- P38\*** メスバウアー分光法によるコンドライト隕石中の鉄含有鉱物組成の研究  
(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>、首都大院理工<sup>3</sup>) ○中川真結<sup>1</sup>、加納康大<sup>1</sup>、佐藤 渉<sup>1,2</sup>、海老原 充<sup>3</sup>
- P39** 鳥海山麓埋木及びその灰に含まれる鉄の化学状態  
(秋県大木研<sup>1</sup>、成蹊大理工<sup>2</sup>、大同大教養<sup>3</sup>) ○山内 繁<sup>1</sup>、栗本康司<sup>1</sup>、山岨崇之<sup>2</sup>、酒井陽一<sup>3</sup>
- P40\*** Sr(Sn<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>)O<sub>3</sub> の磁気特性に及ぼす Ca の置換効果  
(明大院理工<sup>1</sup>、理科大<sup>2</sup>、東大<sup>3</sup>) ○鈴木茂世<sup>1</sup>、水沼丈史<sup>1</sup>、野村貴美<sup>1,2</sup>、岡澤 厚<sup>3</sup>、小池裕也<sup>1</sup>
- P41** 高比放射能プロメチウム内包フラーレン合成に向けた、プロメチウムの分離精製  
(首都大院理工<sup>1</sup>、東北大電子光セ<sup>2</sup>) ○宮内翔哉<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、菊永英寿<sup>2</sup>、久富木志郎<sup>1</sup>
- P42** モリブデンの同位体分離係数に対する価数依存性  
(長岡技科大院工<sup>1</sup>、東工大先端原子炉研<sup>2</sup>、近大理工<sup>3</sup>) ○立花 優<sup>1</sup>、金敷利隆<sup>2</sup>、野上雅伸<sup>3</sup>、鈴木達也<sup>1</sup>、野村雅夫<sup>2</sup>
- P43** 陽電子放出核種による回転体検査法の開発  
(理研仁科セ) ○神原 正、吉田 敦、羽場宏光

**P44 J-PARC ANNRIにおける放射性核種の非破壊分析**

(原子力機構<sup>1</sup>、首都大<sup>2</sup>) ○藤 暢輔<sup>1</sup>、海老原 充<sup>2</sup>、黄明輝<sup>1</sup>、木村 敦<sup>1</sup>、中村詔司<sup>1</sup>、瀬川麻里子<sup>1</sup>

**第2日 9月11日(日)**

**A 会場**

**B 会場**

9:00

**医学等における RI 利用 1**

座長: 菊永英寿

**2A01** 原子力機構タンデム加速器での<sup>7</sup>Li イオンビームを用いたアスタチンとヨウ素放射性同位体の製造と利用

(量研機構量子ビーム<sup>1</sup>、金沢大医薬保健<sup>2</sup>、金沢大(原子力機構)<sup>3</sup>、金沢大理工<sup>4</sup>) ○西中一郎<sup>1</sup>、鷲山幸信<sup>2</sup>、前田英太<sup>3</sup>、谷口拓海<sup>3</sup>、横山明彦<sup>4</sup>、橋本和幸<sup>1</sup>

**2A02** 理研における At-211 製造

(理研仁科セ<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、阪大<sup>3</sup>、RI 協会<sup>4</sup>) ○佐藤 望<sup>1</sup>、矢納慎也<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>、小森有希子<sup>1</sup>、柴田誠一<sup>1</sup>、渡邊慶子<sup>1</sup>、加治大哉<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1,2,3</sup>、高橋和也<sup>1</sup>、松本幹雄<sup>4</sup>

**2A03** コンプトンカメライメージング用 Tc-95m 及び Tc-96 の生成研究

(量研機構<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、京大<sup>3</sup>、東海大<sup>4</sup>、京都薬大<sup>5</sup>) ○初川雄一<sup>1</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、橋本和幸<sup>1</sup>、佐藤哲也<sup>2</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、永井泰樹<sup>1</sup>、谷森 達<sup>3</sup>、園田伸也<sup>3</sup>、株木重人<sup>4</sup>、木村寛之<sup>5</sup>、高田淳史<sup>3</sup>、水本哲也<sup>3</sup>、早川岳人<sup>1</sup>

**2A04** 加速器中性子利用<sup>99</sup>Mo 製造における濃縮<sup>100</sup>MoO<sub>3</sub> 試料の回収と再利用

(千代田テクノル<sup>1</sup>、量研機構<sup>2</sup>) ○川端方子<sup>1</sup>、本石章司<sup>1</sup>、佐伯秀也<sup>1</sup>、竹内宣博<sup>1</sup>、橋本和幸<sup>2</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、永井泰樹<sup>2</sup>

**同位体化学/原子核プローブ 1**

座長: 佐藤 渉

**2B01** 高速中性子照射による核反跳効果を用いた放射性 Sr@C<sub>60</sub> の生成

(首都大院理工<sup>1</sup>、量研機構<sup>2</sup>) ○秋山和彦<sup>1</sup>、宮下由香<sup>1</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、久富木志郎<sup>1</sup>

**2B02** 化学的還元反応を用いた金属内包フラーレン分離の条件検討

(首都大院理工<sup>1</sup>、理研仁科セ<sup>2</sup>) ○田中康介<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>2</sup>

**2B03\*** 酸素、硫黄原子へのミュオン捕獲確率の分子による変化

(阪大院理<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、高エネ研<sup>3</sup>、国際基督教大<sup>4</sup>) ○吉田 剛<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、稲垣誠<sup>1</sup>、伊藤 孝<sup>2</sup>、髭本 亘<sup>2</sup>、ストラッサー・パトリック<sup>3</sup>、河村成肇<sup>3</sup>、下村浩一郎<sup>3</sup>、三宅康博<sup>3</sup>、三浦太一<sup>3</sup>、久保謙哉<sup>4</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>

**2B04** ミュオン原子衝突におけるミュオン触媒核融合反応率の計算

(東北大理) ○木野康志

休 憩

10:30

**医学等における RI 利用 2/その他**

座長: 矢永誠人

**2A05** ガンマカメラによる正常ラットのアスタチン-211 とヨウ素-123 の甲状腺および胃への集積評価

(阪大院医<sup>1</sup>、森ノ宮クリニック<sup>2</sup>、京府医大<sup>3</sup>、阪大院理<sup>4</sup>) ○池田隼人<sup>1</sup>、渡辺晋一郎<sup>2</sup>、高橋

**原子核プローブ 2**

座長: 山田康洋

**2B05\*** 摂動角相関法による不純物をドーピングした四酸化三鉄の局所場観察

(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>) ○竹中聡汰<sup>1</sup>、藤澤照功<sup>1</sup>、佐藤 渉<sup>2</sup>

**2B06** ペロブスカイト型酸化物 La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>

- 成人<sup>3</sup>、篠原 厚<sup>4</sup>、下瀬川恵久<sup>1</sup>、畑澤 順<sup>1</sup>  
**2A06** 広島・長崎原爆被爆者に関わる固形癌の数学モデル  
 (阪大名誉教授<sup>1</sup>、京大炉<sup>2</sup>) ○馬場 宏<sup>1</sup>、高宮 幸一<sup>2</sup>  
**2A07** ベータ線スペクトロメトリー  
 (お茶大理<sup>1</sup>、JRIA<sup>2</sup>、サンゴバン<sup>3</sup>) ○古田悦子<sup>1</sup>、星野萌生<sup>1</sup>、草間経二<sup>2</sup>、渡辺裕夫<sup>3</sup>  
**2A08** 液体ライトガイドを用いる新しい $\gamma$ 線検出器の開発(第一報)  
 (東理大<sup>1</sup>、産総研<sup>2</sup>、U-VIX<sup>3</sup>、東大総<sup>4</sup>) ○野村貴美<sup>1</sup>、柚木 彰<sup>2</sup>、細田和夫<sup>3</sup>、森戸祐幸<sup>3</sup>、寺井隆幸<sup>4</sup>、寺島千晶<sup>1</sup>

- 中の超微細場測定  
 (金沢大理工<sup>1</sup>、一関高専<sup>2</sup>、京大炉<sup>3</sup>) ○佐藤 渉<sup>1</sup>、小松田沙也加<sup>2</sup>、大久保嘉高<sup>3</sup>  
**2B07** ZnO の酸素空孔形成過程における雰囲気依存性  
 (一関高専<sup>1</sup>、金大理工<sup>2</sup>、京大炉<sup>3</sup>) ○小松田沙也加<sup>1</sup>、佐藤 渉<sup>2</sup>、大久保嘉高<sup>3</sup>  
**2B08\*** 酸化亜鉛単結晶中の空孔型欠陥に捕獲された不純物水素の熱的挙動  
 (金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>、阪大院理<sup>3</sup>) ○清水弘通<sup>1</sup>、佐藤 渉<sup>2</sup>、三原基嗣<sup>3</sup>、藤澤照功<sup>1</sup>、福田光順<sup>3</sup>、松多健策<sup>3</sup>

## 昼 食

### S 会場

..... 13:00 .....

#### 放射化学討論会 60 回記念講演

(第一部) 座長: 工藤久昭

- 2S01** GARIS を用いた超重元素研究の最前線  
 —新元素認定までの道のり、周期表の拡張を目指した挑戦—  
 (理研仁科セ<sup>1</sup>、九大理<sup>2</sup>) 森田浩介<sup>1,2</sup>、森本幸司<sup>1</sup>、○加治大哉<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>

..... 14:00 .....

休 憩

..... 14:15 .....

(第二部) 座長: 永目諭一郎

- 2S02** Gas Phase Chemistry of Superheavy Elements  
 (GSI) Alexander Yakushev  
**2S03** 103 番元素でみつけた周期表のほころび ～元素周期表が書き変わる?～  
 (原子力機構) 佐藤哲也

..... 15:35 .....

### A 会場 総会・写真撮影

..... 17:15 .....

バス移動

..... 18:30 .....

### 懇親会

ANA クラウンプラザホテル新潟

第3日 9月12日(月)

A 会場

B 会場

9:00

環境放射能 1

座長: 高宮幸一

**3A01\*** トリチウム回収のための酸化銅の表面積依存性

(静大院総<sup>1</sup>、富山大水素研<sup>2</sup>、静大理学領域<sup>3</sup>)  
○植村有希<sup>1</sup>、桜田翔大<sup>1</sup>、藤田啓恵<sup>1</sup>、東 奎介<sup>1</sup>、原 正憲<sup>2</sup>、波多野雄治<sup>2</sup>、田口 明<sup>2</sup>、近田拓未<sup>3</sup>、大矢恭久<sup>3</sup>

**3A02** 燃焼法による有機結合型トリチウムの分析について

(九環協) ○島 長義、玉利俊哉

**3A03** 新潟県における長半減期放射性核種分布調査

(新潟県放射線監視センター) ○鈴木貴博、大野峻史、山崎興樹

原子核プローブ 3

座長: 酒井陽一

**3B01\*** 低温C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Arマトリックス中の孤立<sup>57</sup>Fe原子の化学状態

(電通大院<sup>1</sup>、理研<sup>2</sup>、東理大理<sup>3</sup>、ICU<sup>4</sup>、阪大理<sup>5</sup>、金沢大理工<sup>6</sup>、北陸大薬<sup>7</sup>、量研機構放医研<sup>8</sup>) ○鈴木聖人<sup>1</sup>、谷川祥太郎<sup>1</sup>、佐藤祐貴子<sup>1</sup>、小林義男<sup>1,2</sup>、山田康洋<sup>3</sup>、久保謙哉<sup>4</sup>、三原基嗣<sup>5</sup>、長友 傑<sup>2</sup>、佐藤 渉<sup>6</sup>、宮崎 淳<sup>7</sup>、佐藤真二<sup>8</sup>、北川敦志<sup>8</sup>

**3B02** 岩塩型窒化鉄のメスバウアースペクトル(東理大理<sup>1</sup>、電通大<sup>2</sup>) ○山田康洋<sup>1</sup>、佐藤美穂<sup>1</sup>、小林義男<sup>2</sup>

**3B03** 強磁性と光触媒の特性を示すスズドープ酸化チタンの<sup>119</sup>Snメスバウアースペクトル(東理大<sup>1</sup>、中科院大連化物研<sup>2</sup>) ○野村貴美<sup>1</sup>、A. S. Ganeshraja<sup>2</sup>、王 軍虎<sup>2</sup>

休憩

S 会場

A 会場

10:10

奨励賞受賞講演

座長: 篠原 厚

**3S01** ラザホージウムの溶液化学研究のための新しい分析法の開発—共沈法と抽出平衡観測法—(阪大院理) 笠松良崇

奨励賞受賞講演

座長: 中島 覚

**3S02** メスバウアー分光パラメータと密度汎関数法を用いたd, fブロック錯体の結合状態研究(日本原子力研究開発機構) 金子政志

奨励賞受賞講演

座長: 久保謙哉

**3S03** 負ミュオンを用いた非破壊三次元元素分析法の開発(阪大院理) 二宮和彦

S 会場

11:20

学会賞受賞講演

座長: 横山明彦

**3S04** 極微量 $\alpha$ 放射性核種の測定法開発および地球化学研究への応用(金沢大学名誉教授) 山本政儀



## A 会場

## B 会場

12:15

放射化分析  
分科会 $\alpha$ 放射体・環境放射能  
分科会

13:20

## 環境放射能 2/その他

座長: 安田健一郎

## アクチノイド/その他

座長: 宮本ユタカ

**3A04** トリウムの土壌-植物間移行係数の問題点:  
分析方法による違い

(量研機構放医研<sup>1</sup>、東京ニュークリア<sup>2</sup>) ○田  
上恵子<sup>1</sup>、内田滋夫<sup>1</sup>、田部井 健<sup>2</sup>

**3A05** ICP-MS/MSによる海水中Np-237測定  
の試み

(筑波大数理<sup>1</sup>、広島大院理<sup>2</sup>、学習院大理<sup>3</sup>、  
Agilent<sup>4</sup>、(財)環境研<sup>5</sup>) ○坂口 綾<sup>1</sup>、Eigl  
Rosmarie<sup>2</sup>、本多真紀<sup>1</sup>、大野 剛<sup>3</sup>、角田紳一  
郎<sup>3</sup>、鹿籠康行<sup>4</sup>、高久雄一<sup>5</sup>、山崎信哉<sup>1</sup>、末  
木啓介<sup>1</sup>

**3A06** ストロンチウム-90分析用自動化システム  
の環境試料分析への適用

(原子力機構<sup>1</sup>、KEK<sup>2</sup>、関東技研<sup>3</sup>) ○藤田博  
喜<sup>1</sup>、野島健大<sup>2</sup>、永岡美佳<sup>1</sup>、大澤崇人<sup>1</sup>、小  
野洋伸<sup>3</sup>

**3A07** 液体シンチレーションカウンタを用いた  
抽出シンチレータによる<sup>89</sup>Srと<sup>90</sup>Srの弁別測  
定法の検討

(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大学際セ<sup>2</sup>、金沢大理工<sup>3</sup>)  
○酒井浩章<sup>1</sup>、上杉正樹<sup>2</sup>、横山明彦<sup>3</sup>

**3B04** f軌道電子の結合特性とマイナーアクチノ  
イド分離挙動の相関

(原子力機構<sup>1</sup>、広島大院理<sup>2</sup>、広島大N-BARD<sup>3</sup>)  
○金子政志<sup>1</sup>、渡邊雅之<sup>1</sup>、宮下 直<sup>2</sup>、中島  
覚<sup>2,3</sup>

**3B05** 中性汚染水からのストロンチウムの選択  
的抽出における抽出構造

(東北大金研) ○山村朝雄、高橋 晃、永井満家、  
白崎謙次

**3B06** 5価ウラン還元における金属コロイドの触  
媒効果

(原子力機構) ○北辻章浩、大内和希、音部治幹

**3B07** Determination of chemical composition  
of nickel-based super alloy by TOF-PGA tech-  
nique

(JAEA<sup>1</sup>、首都大学東京<sup>2</sup>) ○黄 明輝<sup>1</sup>、藤  
暢輔<sup>1</sup>、海老原 充<sup>2</sup>、木村 敦<sup>1</sup>、中村詔司<sup>1</sup>

**3B08** 院政期に書写されたと考えられてきた仮  
名古筆切の<sup>14</sup>C年代測定—伝藤原行成筆未詳散  
らし歌切および伝源俊頼筆民部切を例に—

(名大ISEE<sup>1</sup>、中央大文<sup>2</sup>) ○小田寛貴<sup>1</sup>、池田  
和臣<sup>2</sup>

15:00

## A 会場

若手優秀発表賞表彰式  
閉 会

## 特別講演

### 放射化学討論会 60 回記念講演

9月11日(日)

2S01 – 2S03 : S 会場

### 奨励賞受賞講演

9月12日(月)

3S01, 3S03 : S 会場

3S02 : A 会場

### 学会賞受賞講演

9月12日(月)

3S04 : S 会場

# 2S01

## GARIS を用いた超重元素研究の最前線

### -新元素認定までの道のり、周期表の拡張を目指した挑戦-

(理研仁科セ<sup>1</sup>、九大理<sup>2</sup>) 森田浩介<sup>1,2</sup>、森本幸司<sup>1</sup>、○加治大哉<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>

#### はじめに

元素周期表の第7周期までの全ての元素の認定が、国際純正・応用化学連合(IUPAC)-国際純粋・応用物理学連合(IUPAP)によって組織された合同作業部会(JWP)によってなされた[1]。待望のアジア初・日本発の新元素(113番元素)が、周期表に記載される事になった。現在、元素名に「Nihonium (ニホニウム)」、元素記号として「Nh」を提案し、public review プロセスを経ている。本講演では、①新元素認定までの道のり、②周期表の拡張をめざした核図表末端領域での取り組みについて報告する。

#### ① 新元素認定までの道のり

図1は、2001年から2015年の新元素認定までの道のりを示した年表である。気体充填型反跳イオン分離装置 GARIS は、仁科記念棟地下加速器施設から重イオン線形加速器施設(RILAC)への移設を契機に、<sup>208</sup>Pb や <sup>209</sup>Bi を標的とした重イオン核融合反応(コールドフュージョン)による超重元素探索のための基幹装置として活躍をはじめた。超重核合成実験には大強度重イオンビームが必要不可欠であるが、それらに耐える標的・GARIS の適切なオペレーション・合成した超重核(原子1個)に起因する崩壊連鎖から核種同定できる検出器系も合わせて必要であった。2003年秋からはじめられた113番元素探索の本格始動までに整備された上述の基盤技術は、それ以降に取り組みされている超重元素研究の礎となっている。RILAC から供給される大強度 <sup>70</sup>Zn ビームを <sup>209</sup>Bi 標的に照射して行った新元素探索は、実に10年におよんだ。結果として、正味の照射日数として576日をかけて、3原子の <sup>278</sup>113 に起因する崩壊連鎖を観測することに成功した[2-4]。RIBF 施設が本格始動した2007年を除き、優先的な位置付けで超重元素研究は行われた。2009年に報告された <sup>248</sup>Cm+<sup>23</sup>Na 反応による <sup>266</sup>Bh の観測[5]は、新元素認定基準の一つである親-娘核間の相関関係の確立に加え、さらなる認定基準の一つである交叉反応を成立させる重要なものとなった。加えて、2012年に報告された待望となる3例目の事象では、<sup>262</sup>Db および <sup>258</sup>Lr に起因するα崩壊の観測に成功し、既知核への到達を示す決定的な根拠を得た[4]。原子番号の増加にともない生成断面積が数十fb オーダーまで低下し困難を極めたが、核反応生成物に起因する崩壊連鎖が既知核へ到達するという核種同定の確かさを重視する戦略が功をそうし、2015年12月31日付けで新元素として認定されるに至った[1]。

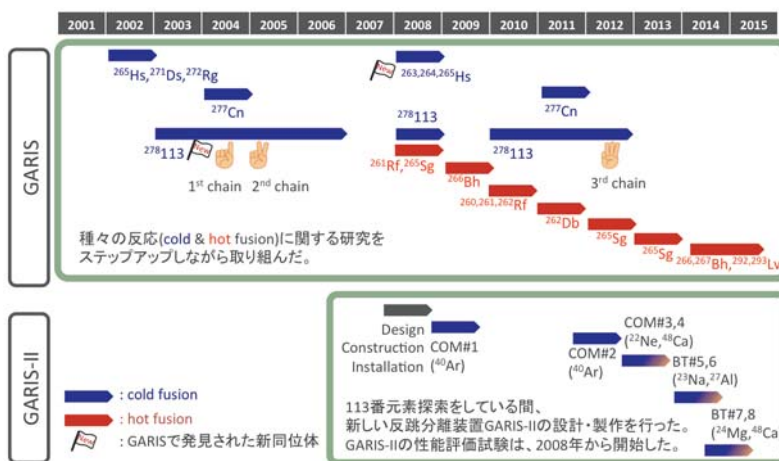


図1. 113番元素認定までの道のり。青矢印:コールドフュージョン、赤矢印:ホットフュージョンによる超重核合成。上段:GARIS を用いた研究、下段:GARIS-II を用いた研究。

Frontline in superheavy element study using a gas-filled recoil ion separator  
MORITA, K., MORIMOTO, K., KAJI, D., HABA, H.

## ② 周期表の拡張をめざした核図表末端領域での取り組み

周期表のさらなる拡張をめざして、2007年を境にホットフュージョン反応による中性子過剰超重核に関する研究ならびに次世代を担う基幹装置 GARIS-II の開発が開始された。

前者は、超重元素の化学研究に向けた秒オーダーの半減期を有する研究対象核種の生成およびガスジェット搬送条件の調査が主である。106番元素までの最適化がなされ、最先端の化学研究が開始され始めている[6]。さらに、核図表末端領域で最も中性子過剰な原子核の合成実験が、 $^{48}\text{Ca} + ^{248}\text{Cm} \rightarrow ^{296}\text{Lv}^*$  反応を用いて行われた。結果として、核図表における中性子数の末端領域に到達し、超重核  $^{293,292}\text{Lv}$  の合成に成功している[7,8]。

後者の GARIS-II は、ホットフュージョン反応に特化した新しい気体充填型反跳イオン分離装置[9]である。1989年の GARIS 誕生以来の一大プロジェクトである。従来使用してきた GARIS と比較して1.5倍大きな立体角を有しながら、全長の短縮、高い磁気剛性を有する反跳イオンへの対応( $B\rho_{\text{max}}=2.43\text{ Tm}$ )、バックグラウンド抑制対策など...を施した分析装置に仕上がった。2009年に RILAC 施設へ設置されて以降、段階的に性能評価試験を行い、2016年1-2月に行われた  $^{48}\text{Ca} + ^{238}\text{U} \rightarrow ^{286}\text{Cn}^*$  反応による112番元素合成実験をもって最終調整が行われ、2016年秋以降の本格始動に向けて準備完了の状況にある。今後、前人未踏の第8周期の新元素合成に挑戦する。GARIS-II は図2に示すように幅広い分野(新しい超重核の探索、超重核を対象とした核分光・化学研究、超重核の精密質量測定)で活躍が期待されている。

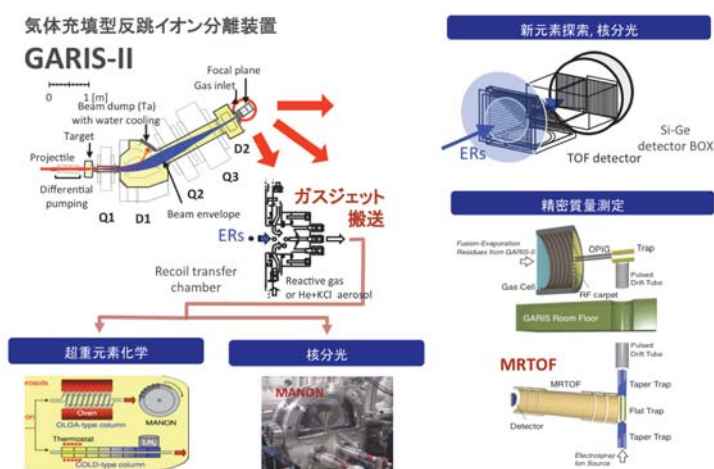


図 2. 新しい気体充填型反跳イオン分離装置 GARIS-II。今後計画している超重元素研究での活用例。

## 謝辞

本研究は、理化学研究所・東京大学・新潟大学・山形大学・埼玉大学・東京理科大学・東北大学・大阪大学・筑波大学・日本原子力研究開発機構・九州大学・中国科学院近代物理研究所・中国科学院高エネルギー研究所の共同研究者や大学院生の協力のもと遂行されました。GARIS-II の開発は文部科学省科学研究費補助金 19002005(特別推進研究)、標的の開発は15K05116(基盤研究C)の助成によって行われました。

## 参考文献

- [1] P. J. Karol et al., Pure. Appl. Chem. **88**, p.155 (2016).
- [2] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji et al., JPSJ **73**, p.2593(2004).
- [3] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji et al., JPSJ **76**, p.045001(2007).
- [4] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji et al., JPSJ **81**, p.103201(2012).
- [5] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji et al., JPSJ **78**, p.064201(2009).
- [6] J. Even et al., Science **345**, p.1491 (2014).
- [7] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji et al., RIKEN Accel. Prog. Rep. **47**, p.xi (2014).
- [8] D. Kaji, K. Morimoto, et al., RIKEN Accel. Prog. Rep. **48**, p.69 (2015).
- [9] D. Kaji, K. Morimoto et al., Nucl. Instr. and Meth. **B317**, p.311 (2013).

Long-lived isotopes of superheavy elements (SHE) with atomic number  $Z \geq 108$  can be produced via fusion reactions between heavy actinide targets and neutron-rich projectiles at a rate of single atoms per day or per week only. Investigating the neutron-rich SHE nuclei using rapid gas-chemical separation and subsequent on-line detection provides an independent chemical characterization and an alternative separation technique to electromagnetic recoil separators. The highly efficient separation of Hs in the form of  $\text{HsO}_4$  is an impressive example for such studies of the nuclear reaction mechanism and nuclear structure [1,2]. Approaching the heaviest elements, the coupling of chemistry setups to a recoil separator promises extremely high sensitivity due to strong suppression of background from unwanted species. The use of combination of two separation techniques, physical pre-separation and gas phase chemistry opens the possibility for investigating new compound classes of superheavy elements [3,4].

Electron shells of SHE are influenced by strong relativistic effects caused by the high value of  $Z$ . The lighter transactinides with  $Z = 104-108$  were experimentally shown to be members of groups 4 through 8 of the Periodic Table of the elements [5]. Early atomic calculations predicted copernicium (Cn, element 112) and flerovium (Fl, element 114) to be noble gas-like due to the strong relativistic stabilization of the closed-shell configuration  $6d^{10}7s^2$  in Cn, and the very large spin-orbit splitting in  $7p$  AOs resulting in the quasi-closed-shell configuration  $7s^27p_{1/2}^2$  in Fl [6]. Recent fully relativistic calculations studying Cn and Fl in different environments suggest those to be less reactive compared to their lighter homologues in the group, but still exhibiting metallic character [7]. Experimental gas-chromatography studies on Cn have, indeed, revealed a weak metal-metal bond formation with gold [8]. In contrast to this, for Fl, the unexpected formation of a physisorption bond upon adsorption on gold was inferred from first experiments performed by the PSI-FLNR collaboration [9].

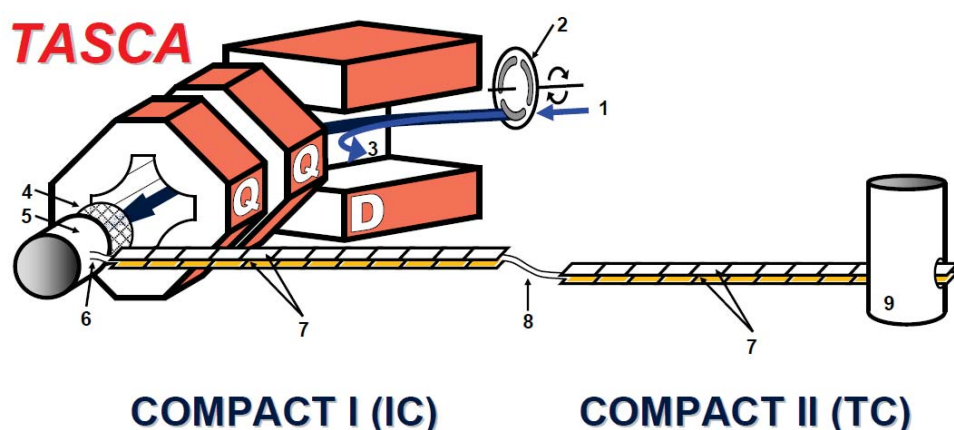


Fig. 1. Schematic drawing of the TASCA-COMPACT<sup>2</sup> set-up used for the gas chromatographic investigation of the volatility of Fl and its reactivity towards Au.

The second successful gas chromatography study on Fl upon the adsorption on gold was performed after the pre-separation with a gas-filled separator TASCA [10]. Two COMPACT detectors were mounted directly to the exit of TASCA (Fig. 1). Two decay chains, one from  $^{288}\text{Fl}$  and one  $^{289}\text{Fl}$  were deposited on gold at room temperature. This result is indicative for the formation of a metal-metal bond between Fl and gold, and thus, demonstrates the metallic character of Fl [11]. Several further studies on Fl chemistry were performed. More Fl atoms were observed in experiments at TASCA. The newest data will be presented.

Element 113, for which the name Nihonium after Japan was proposed this year, is the next very hot topic in the SHE chemistry. First gas-phase studies on nihonium were performed at the FLNR, Dubna and at GSI, Darmstadt. Nihonium has one unpaired  $7p_{3/2}$  electron, and therefore should be much more reactive compared to the neighbors Cn and Fl, which have closed shells. The results of the recent experiment on nihonium chemistry at TASCA will be presented.

The new compound was recently investigated for Sg (element 106),  $\text{Sg}(\text{CO})_6$  – the first organo-metallic compound of superheavy elements. Sg atoms were pre-separated in a gas-filled separator GARIS and stopped in a gas mixture containing CO gas. Volatile carbonyls were formed and transported to COMPACT detector. The adsorption behavior of  $\text{Sg}(\text{CO})_6$  was studied by gas-solid chromatography in comparison with nearest homologs in the group, Mo and W [12,13].

#### References

- [1] J. Dvorak et al., *Phys. Rev. Letters* **97**, 242501 (2006).
- [2] J. Dvorak et al., *Phys. Rev. Letters* **100**, 132503 (2008).
- [3] Ch E. Düllmann et al., *Nucl. Instr. Meth. A* **551**, 528–539 (2005).
- [4] Ch.E. Düllmann et al., *Radiochim. Acta* **97**, 403-418 (2009).
- [5] A. Türler and V. Pershina, *Chem. Rev.* **113**, 1237–1312 (2013).
- [6] K.S. Pitzer, *J. Chem. Phys.* **63**, 1032 (1975).
- [7] V. Pershina et al., *J. Chem. Phys.* **131**, 084713 (2009).
- [8] R. Eichler et al., *Angew. Chem, Int. Ed.* **47**, 3262-3266 (2008).
- [9] R. Eichler et al., *Radiochim. Acta* **98**, 133-139 (2010).
- [10] A. Semchenkov et al., *NIM B* **266**, 4153-4161 (2008).
- [11] A. Yakushev et al., *Inorg.Chem.*, **53**, 1624-1629 (2014).
- [12] J. Even, et al., *Inorg.Chem.* **51**, 6431-6422 (2012).
- [13] J. Even, et al., *Science* **345**, 1491 (2014).

## 2S03

### 103 番元素でみつけた周期表のほころび ～ 元素周期表が書き換わる？ ～

(原子力機構)○佐藤哲也

103 番元素ローレンシウム(Lr)は、1961 年に A. Ghiorso らによって初めて合成された人工元素であり、もちろん自然界には存在しない。元素周期表では、アクチノイド系列の末端に位置する。Lr は加速器を用いた重イオン核融合反応によって合成され、生成量は数秒に 1 個程度と少なく、さらに生成した同位体はすべて短寿命であるため、一度に原子 1 個ないし数個ずつしか実験に供することができない (原子一個の化学)。このような実験の難しさから、Lr の化学的性質はほとんど明らかになっていない。事実、Lr がアクチノイド系列最後の元素として振舞うかどうかすら、実験的に確かめられたことはなかった。

Lr のような原子番号が大きな元素では、原子核近傍に存在確率をもつ  $s$  軌道や  $p_{1/2}$  軌道などにある電子が原子核に強くひきつけられるため、これらの電子の運動は光速に近くなる。これにより電子の質量が増大し、軌道はより収縮する。一方、その外側にある  $d$  軌道や  $f$  軌道では、内側の電子軌道の収縮によって原子核からの静電引力がさらに遮蔽されることになり、軌道が広がる。結果として、 $s$  軌道や  $p_{1/2}$  軌道はより安定化し、 $d$  軌道や  $f$  軌道はより不安定化する。この現象は相対論効果と呼ばれ、すべての元素に内在する。相対論効果は原子番号が大きくなるほど強くなり、特に顕著となる第 7 周期以降の元素では、ときには電子配置まで変化する可能性が指摘されている。

元素周期表があらわしている周期律は、元素を原子番号順に配列すると元素の物理的、化学的性質が一定の周期性で変化することであり、これは似通った価電子軌道が周期的に現れることに起因する。Lr の場合、ランタノイド末端に位置するルテチウム(Lu)の電子配置が  $[\text{Xe}]6s^2 4f^{14} 5d^1$  であることを踏まえると、その電子配置は  $[\text{Rn}]7s^2 5f^{14} 6d^1$  と考えられる。しかしながら、相対論効果を考慮した原子軌道計算の結果、Lr 原子では  $6d$  軌道より  $7p_{1/2}$  軌道がより安定化するため、 $[\text{Rn}]7s^2 5f^{14} 7p_{1/2}^1$  となることが予想された[1]。元素の化学的性質は、最外殻電子軌道(価電子軌道)によって特徴づけられる。すなわち、この価電子軌道の違いは、Lr の化学的性質が周期表からの予想とは異なる可能性があることを意味する。しかし、理論的予測から 40 年以上が経った今日まで、予言された Lr における”周期律のほころび“は、「原子一個の化学」の難しさのために実験的に確かめられないままだった。

我々は、このような Lr の特殊性を明らかにするため、最外殻電子の束縛エネルギーを直接反映する物理量である第一イオン化エネルギー( $\text{IP}_1$ )に着目した。 $\text{IP}_1$  は、原子の性質をあらわす最も基本的な物理量のひとつであり、これを実験的に求めることが出来れば、対象とする原子の電子配置に関する情報を得ることができる。しかしながら、一般に広く利用されている共鳴イオン化法といった手法は、「原子一個の化学」的取扱いが要求される Lr には適用できない。そこで我々は、高温の金属表面で起こるイオン化現象である表面電離過程を応用した新しい  $\text{IP}_1$  決定法を開発した。

表面電離過程は、高温の金属表面に原子を接触させたとき、表面と原子の相互作用によって、原子がイオン化される現象をいう。表面電離過程におけるイオン化効率は、金属表面の温度や仕事関数、そしてイオン化される原子の  $\text{IP}_1$  などに依存することが知られている。我々

Discrepancy in the Periodic Table appears at element 103; the Periodic Table of elements might be restructured  
SATO, T. K.

は、このイオン化効率の  $IP_1$  依存性を応用して、Lr の  $IP_1$  を初めて実験的に決定した[2]。

実験は原子力機構タンデム加速器施設で行った。タンデム加速器からの 63 MeV ホウ素イオンビーム( $^{11}\text{B}^{4+}$ )をカリホルニウム標的( $^{249}\text{Cf}$ )へ照射することで Lr 同位体  $^{256}\text{Lr}$ (半減期 27 秒)を合成した。合成した  $^{256}\text{Lr}$  をタンタルの表面でイオン化し、そのときのイオン化効率を測定することで、Lr の  $IP_1$  を求めた。

得られた Lr の  $IP_1$  は  $4.96^{+0.08}_{-0.07}$  eV だった。アクチノイドの中で最も低い(図1)。ランタノイドでは、テルビウム(Tb)からイッテルビウム(Yb)まで単調に  $IP_1$  が増加し、Lu で急激に小さくなるのが知られている。この単調な増加は、4f 軌道に 9 個の電子をもつ Tb から原子番号が進むにつれ、ひとつずつ 4f 軌道に電子が充填されていき、Yb で準閉殻構造  $[\text{Xe}]6s^2 4f_{14}$  をとることに起因する。Lu はこの準閉殻構造にさらにもうひとつの価電子が追加された電子構造を持つために、低い  $IP_1$  をもつ。よって、Lr が非常に小さい  $IP_1$  をもつことは、Lr 原子が Lu と同様にゆるく束縛された電子をもつと解釈できる。すなわち、本成果において、ランタノイドにおける Lu のように、Lr でアクチノイドが終わることを初めて実験的に示すことができた。

さらに我々は本研究の中で、相対論効果を考慮した原子軌道計算をおこない、Lr の  $IP_1$  の理論値を求めた。電子配置  $[\text{Rn}]7s^2 5f^{14} 7p_{1/2}^1$  に基づいて得られた理論値は  $4.963 \pm 0.015$  eV であり、本研究で得られた実験値と非常によく一致する。このことは、Lr 原子の最外殻電子軌道が  $7p_{1/2}$  であり、Lr が周期表からの予想とは異なる電子配置をもつことを強く示唆する。p 軌道にひとつの価電子をもつ電子配置は、p ブロック元素であるインジウムやタリウムが属する 13 族と類似する。IUPAC によれば、遷移金属は「原子が完全に満たされていない d 軌道を持つ、あるいは d 軌道によって陽イオンとなることができる」と定義されている。この定義に従えば、Lr は遷移金属ではなく、典型元素ということになる。

このように、Lr の周期表の位置に関する議論は、原子番号が 100 を超える超重元素領域において、周期表をどう捉えていくかを考える端緒となる。かねてより Lu と Lr の周期表の位置について、ランタノイドおよびアクチノイドとは区別し、スカンジウム(Sc)およびイットリウム(Y)とともに 3 族元素とすべきという指摘がなされている。本成果がきっかけとなって、IUPAC(国際純正・応用化学連合)は Lu と Lr の周期表上の位置について検討を開始した。すでにタスクグループが立ち上げられており、議論を進めている[3]。

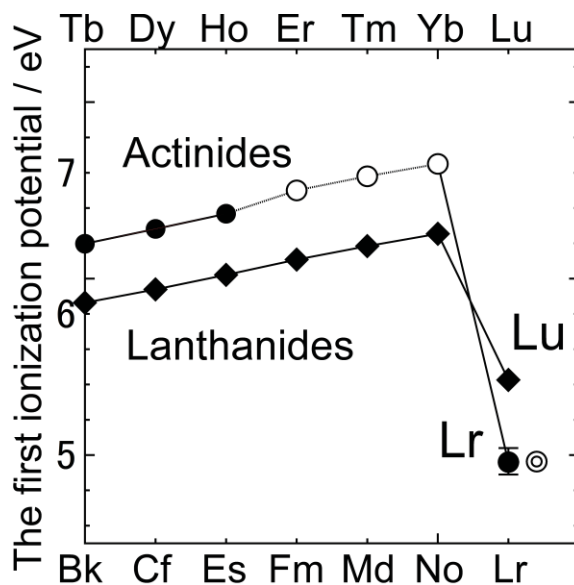


図1. 原子番号に対する  $IP_1$  の変化 (◆, ●: 実験値, ○: 推定値, ◎: 理論計算値)

[1] J. -P. Desclaux & B. Fricke, J. Phys., 41. 943 - 946 (1980).

[2] T. K. Sato et al., Nature, 520, 209-211 (2015).

[3] E. Scherri, Chem. International, March-April 22-23 (2016).



# 3S01

## ラザホージウムの溶液化学研究のための新しい分析法の開発

### —共沈法と抽出平衡観測法—

(阪大院理)○笠松良崇

【はじめに】現在の元素周期表の最下段、第7周期に属する原子番号の非常に大きな元素の中でも、特に原子番号104番以降の超アクチノイド元素（超重元素）の化学的性質には大きな興味を持たれ、研究されている。相対論効果が大きくなる重元素領域において、遷移金属であると考えられる超重元素の化学的性質とその同族元素との類似性を調べることは興味深い。一方で、これら超重元素は、重イオン核融合反応によって低い生成率でしか生成できず、半減期も短いため、単一原子状態での化学実験を実施しなければならず、非常に難しい。さらに、検出法は $\alpha$ 線測定にほぼ限定され、そのための試料調製も短時間で実施する必要がある。また、核反応生成物を常に迅速に化学室に搬送し続ける加速器オンライン搬送装置、これと連結でき、何百回以上も同じ化学操作を行うための化学分析装置、 $\alpha$ 線測定装置が必要である。そのため、超重元素の化学的性質の多くはまだ調べられていない。

本研究では、104番元素 Rf を対象とした新しい化学分析手法として、共沈実験法と抽出平衡到達観測法を開発することができた。

【共沈法】これまでの超重元素の溶液化学としては、主にイオン交換法にて詳細な研究が実施されてきた。本研究では、沈殿挙動に着目し、その性質を調べるための手法、装置開発を実施した。単一原子状態では、共沈挙動を観測するしか方法がなく、沈殿状態での $\alpha$ 線測定の難しさも課題であった。本研究では、高分解能での $\alpha$ 線測定に成功していたサマリウム共沈法の超重元素への適用を試みた。マルチトレーサーを用いて、様々な種類の元素の共沈挙動を調べ、実際の沈殿挙動や錯形成の様子をこの方法で調べることができることを確認し、さらに Rf の同族元素の Zr、Hf、Th の挙動をより詳細に調べて Rf 実験に適切な実験条件を決定した。また、加速器オンライン実験を実施するための溶液化装置、吸引ろ過装置を開発し、加速器オンラインのテスト実験を実施し、Rf の共沈実験手法として確立することができた。

【平衡到達観測法】半減期が約1分やそれ以下となる超重元素の化学実験としては、非常に迅速な化学分離が適用されてきた。しかし、そのため、化学反応が十分に速くない反応系では定量的な議論が難しい面があった。また、超重元素に対してイオン交換や抽出挙動の平衡到達を確認した例もなかった。本研究では、加速器オンラインの状態でバッチ法にて抽出挙動の時間依存性を観測する方法を確立し、定量的な議論のできる分配係数を取得することを目的として、装置開発と基礎実験を行った。溶液化装置の下流に樹脂の入った化学反応容器を設置し、振とう後、空気圧によって容器内から溶液のみを排出し、蒸発乾固後に $\alpha$ 線測定を自動で実施できるように装置を開発した。その装置を実際に加速器オンラインの状態で使用し、Zr と Hf を用いた実験を実施した。結果として、バッチ法で得た分配係数と同様の分配係数を得ることができ、実験手法として確立することができた。また、実際の抽出挙動の時間依存性の観測から、Rf の実験に適用できる十分に速い反応系を探し出すことができた。

【謝辞】本研究は、大阪大学 篠原厚先生、理化学研究所 羽場宏光先生、日本原子力研究開発機構 永目諭一郎先生、九州大学 森田浩介先生をはじめとする諸先生方のご指導、ご鞭撻、並びに木野愛子さん、横北卓也くん、豊村恵悟くんをはじめとする学生の方々の協力の下に実施されたものです。ここに心より感謝申し上げます。

Developments of the chemical experiment methods for rutherfordium: coprecipitation and observation of equilibrium in extraction reactions  
KASAMATSU, Y.

## 【緒言】

メスバウアー分光は、着目する元素の化合物における原子価状態を詳細に記述する。メスバウアー分光パラメータの一つであるメスバウアー異性体シフト( $\delta$ )は、着目する元素の酸化数やスピン状態によって変化する。例えば、 $^{57}\text{Fe}$  の  $\delta$  値を測定することにより、鉄化合物のスピン転移挙動であるスピントスオーバー(SCO)現象を観測することができ、SCO が起こるか否かを判断することができる。さらに、 $\delta$  値は原子核位置での電子密度( $\rho_0$ )に比例するので、原子価軌道が s 電子に与える遮蔽の程度を定量化できる。四価のネプツニウム錯体の  $\delta(^{237}\text{Np})$  値は化合物によって異なり、Np-配位子間の共有結合の大きさを比較することができる。

本研究の目的は、メスバウアー分光パラメータを用いて計算化学的手法である密度汎関数法を最適化し、その計算手法を用いて着目する現象をモデル化することである。本研究は、大きく分けて二つのテーマ (i) 鉄二価集積型錯体の SCO-on/off スwitching 挙動、(ii) ランタノイド・アクチノイド錯体の結合状態研究 からなる。

【鉄二価集積型錯体の SCO-on/off スwitching 挙動<sup>1,2)</sup>】

原子価に  $d^6$  電子を持つ鉄二価イオンは、正八面体場において高スピン(HS)と低スピン(LS)を取りうる。HS( $S = 2$ )-LS( $S = 0$ )間のスピン転移挙動である SCO 現象の発現原因を理解することは、分子スイッチングデバイスのデザインへとつながる。しかしながら、SCO 発現メカニズムに対する理論的研究は多くない。 $[\text{Fe}(\text{NCS})_2(\text{pyridine})_4]$  をユニットとする集積型錯体では、ゲスト吸脱着や集積構造により熱誘起 SCO が起こるか否かが変化する。SCO が起こる場合(SCO-on)、低温において LS、高温において HS となり、SCO が起こらない場合(SCO-off)、温度によらず HS である。したがって、低温においてどのスピン状態が安定かを見積もることで SCO-on/off を予測できる。

鉄二価錯体の幾何学は、既報の単結晶構造を参照し、11 個の SCO-on 錯体、7 個の SCO-off 錯体を対象とした。単核ユニットである  $[\text{Fe}(\text{NCS})_2(\text{pyridine})_4]$  をモデル錯体とし、HS と LS の両条件においてエネルギー計算を行った。用いる計算手法が SCO-on/off 挙動を再現可能か確かめるために、密度汎関数に含まれる Hartree-Fock 交換エネルギーの割合を 0 から 25% まで変化させた。その結果、10% の Hartree-Fock 交換項を含む理論が SCO-on/off 挙動をよく再現した。この理論を用いて、LS と HS のポテンシャル

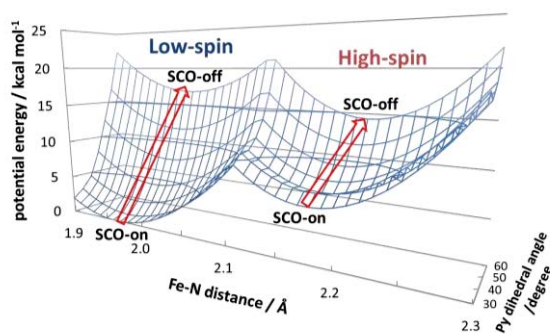


Fig. 1  $[\text{Fe}(\text{NCS})_2(\text{pyridine})_4]$  のポテンシャル曲面

エネルギー曲面を Fe-N 距離と Fe-pyridine の二面角に対して三次元的に描いた(Fig. 1)。その結果、Fe-pyridine 二面角の変化に伴って、SCO-on/off 挙動がスイッチすることを明らかにした。

### 【ランタノイド・アクチノイド錯体の結合状態研究<sup>3-5</sup>】

高レベル放射性廃棄物の分離変換技術の開発において、マイナーアクチノイド(MA)とランタノイド(Ln)の分離メカニズムを明らかにすることは重要な課題である。溶媒抽出による分離実験において、MA/Ln 分離挙動は用いるドナーの性質に依存することが示唆されたため、MA および Ln と結合状態に対する理論的研究が求められてきた。しかしながら、f ブロック化合物の結合性に対する密度汎関数法の妥当性は、十分に議論されていない。そこで、<sup>151</sup>Eu と <sup>237</sup>Np のメスバウアー異性体シフト値を用いて計算手法のベンチマーク研究を行い、MA である Am, Ln である Eu 錯体の結合状態を調べた。

$\delta$  値は  $\rho_0$  値に比例するので、実験値の  $\delta$  値と計算値の  $\rho_0$  をプロットし、一次の線形性を比較することで計算手法の妥当性を評価できる。Eu, Np それぞれ 10 錯体をベンチマークセットとして、様々な Hartree-Fock 交換割合を含む汎関数で比較した。その結果、約 50% の Hartree-Fock 交換項を持つ理論の  $\rho_0$  値が  $\delta(^{151}\text{Eu})$ ,  $\delta(^{237}\text{Np})$  値と良く相関し、すなわち Eu, Np 錯体の結合状態を再現した。この理論を用いて、Eu と Am のジチオホスフィン酸 ( $\text{R}_2\text{PS}_2\text{H}$ ) 錯体の結合状態を調べた。その結果、f 軌道と硫黄の電子的な重なりが Eu と Am で異なり、4f(Eu) と S は重なりを持たないのに対し、5f(Am) と S は結合的な重なりを示した(Fig. 2)。f 軌道電子の結合への寄与の違いが、Am/Eu 分離挙動に起因することを示唆した。

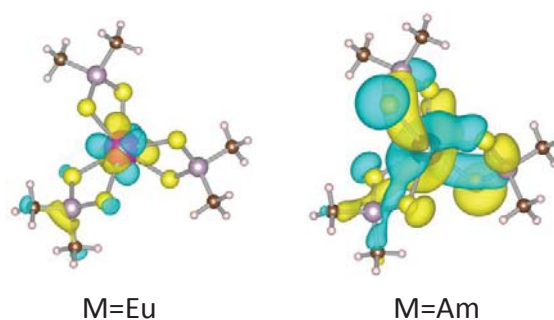


Fig. 2 [M(Me<sub>2</sub>PS<sub>2</sub>)<sub>3</sub>]の f 軌道由来の分子軌道

### 【まとめ】

密度汎関数法を用いた d, f ブロック錯体の結合状態研究について述べた。詳細な計算手法や解析方法は二つのテーマによって異なる。しかしながら、メスバウアー分光パラメータを用いて密度汎関数計算の妥当性を評価することが、それぞれの現象に対するより良い理解に繋がることを示唆した。

### 【参考文献】

- [1] M. Kaneko, S. Tokinobu, S. Nakashima, *Chem. Lett.*, **2013**, 42, 1432-1434.
- [2] M. Kaneko, S. Nakashima, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **2015**, 88, 1164-1170.
- [3] M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, *Dalton Trans.*, **2015**, 44, 8080-8088.
- [4] M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, *Inorg. Chem.*, **2015**, 54, 7103-7109.
- [5] M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, *Croat. Chem. Acta*, **2016**, 88, 347-353.

負ミュオンは電子と同じ電荷を持ち、電子の 200 倍の質量を持つ素粒子である。負ミュオンが物質中で停止すると、ミュオン原子と呼ばれる電子の一つが負ミュオンに置き換わった原子系を形成する。ミュオン原子からは負ミュオンの脱励起に伴い、通常の特性 X 線の 200 倍のエネルギーを持つ、ミュオン特性 X 線が放出される。我々は、このミュオン特性 X 線を利用した新しいタイプの元素分析法の開発にこれまで取り組んできた。

ミュオン特性 X 線は非常に高エネルギーであることから、物質内部を容易に透過し表面に限らない分析が可能である。また負ミュオンの入射エネルギーを選択することにより、物質中での停止位置、すなわちミュオン特性 X 線の発生位置を制御することができる。さらに元素によってミュオン原子の形成確率、すなわち分析における感度はほとんど変化しないことが知られており、多元素同時分析が可能である。このように負ミュオンによる元素分析は、非破壊で、三次元的に、さらに多元素同時の定量分析ができるという、他の手法にはないすぐれた特徴を持っている。負ミュオンによる元素分析の可能性は、40 年以上前に指摘されていたが[1]、これまでは定性的な分析の研究がいくつか知られているのみであった。我々の研究グループは、近年利用可能となった大強度のミュオン源 (J-PARC, RIKEN-RAL, RCNP-MuSIC) を用いて、負ミュオンにより位置選択的な定量分析に初めて成功し、新たな元素分析法として確立した[2-4]。

我々が実際に負ミュオンによる分析を行った結果の一例として、図 1 に江戸期の天保小判の金の含有率の深度分布を示す。江戸期の小判は、その特別な製法から表面近傍で金の含有率が高い層を作っていることが知られている。負ミュオンによる分析でも表面数マイクロメートルの領域に金の含有率が非常に高い層があることを明確に確認できた。またこの分析結果は、破壊分析により知られていた小判の金の含有率の深度分布にも完全に一致していることがわかった[4]。

負ミュオンを用いた分析法は、非破壊でバルクな物質の内部を、位置選択的に定量的に分析することができる唯一の方法である。加速器の利用が必要という制約があるものの、今後貴重試料等への分析に応用されていくことを期待したい。

#### 【参考文献】

- [1] H. Daniel, Nuclear-Medizin 4 (1969) 311
- [2] K. Ninomiya et.al., Bull. Chem. Soc. Jpn., 85 (2012) 228
- [3] K. Ninomiya et.al., JPS Conf. Proc., 8 (2015) 033005
- [4] K. Ninomiya et.al., Anal. Chem., 87 (2015) 4597

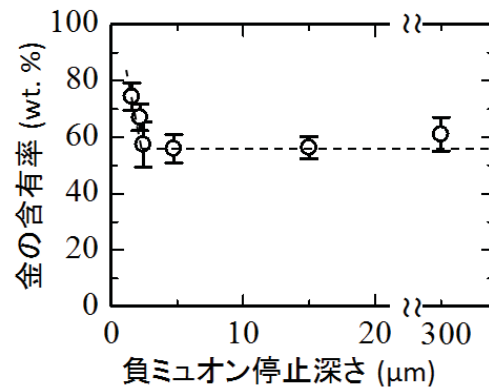


図 1 : ミュオン特性 X 線測定による小判の元素分析結果[4]

# 3S04 極微量 $\alpha$ 放射性核種の測定法開発および地球化学研究への応用 (金沢大学 名誉教授) 山本 政儀

## 1) はじめに

地球表層には、さまざまな天然および人工放射性核種が存在している。特に、中長半減期の $\alpha$ 線放射体は、放射線防護の観点からのみならず、地球・環境化学研究のツールとしても重要視されている。これら核種の特性を熟知し、活用するためには、微量の放射能測定が必須である。正確で精密な測定・定量には、環境試料や生物試料のマトリクス中から極めて微量な目的核種を濃縮・精製する分析技術と、かつ妨害核種の影響を受けない低レベル測定技術が必要となる。筆者は長年、①放射性核種・放射線の精密測定の分析法の開発、②環境放射能・放射線影響研究、③放射性核種をプローブとする地球・環境化学研究に携わってきた。

本講演では、最も力を注いできた極微量 $\alpha$ 放射性核種、特に超ウラン元素諸核種、の分析・測定法の開発、環境放射能研究、地球・環境化学研究への応用研究の主な成果を紹介させていただく。

## 2) 放射性核種、特に $\alpha$ 線放出核種の分析・測定法の開発

筆者は、適切なトレーサの選定、高度な化学分離技術及び $\alpha$ 線スペクトロメトリ（又は ICP-MS）を組み合わせることにより、当時困難であった環境及び生体試料中のごく微量な放射性核種を高い精度で定量することを可能とし、それら核種の濃度分布、挙動解明及び被ばく線量評価研究を広く展開した。分析行程が非常に煩雑であった難溶性 Pu 酸化物については、硫酸水素アンモニウム溶融法を用いることにより迅速分析を可能とした。また、新規な溶媒抽出剤 DBDECMF、DBDECP を用いた強酸性下での Pu、Am 抽出分離を確立した。さらに、当時 TIMS 以外では測定出来なかった  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比を Lx/ $\alpha$ 線測定により可能とした（小村先生と共同）。環境中で極めて低濃度で測定困難であった  $^{237}\text{Np}$  について、 $^{239}\text{Np}$  ( $^{243}\text{Am}$  の子孫核種) (又は  $^{235}\text{Np}$ ) をトレーサとして多量試料（土壌 50-100 g）から Np を放射化学的に分離・精製し、 $\alpha$ 線スペクトロメトリにより高精度で定量する手法の開発に成功した。当時、英国のセラフィールド核燃料再処理施設周辺の汚染地帯を除き、環境における  $^{237}\text{Np}$  データは皆無であったが、いち早く環境中の  $^{237}\text{Np}$  濃度分布や  $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$  放射能比を明らかにすることが出来た。また、放射化学的純度や $\alpha$ 線エネルギーを考慮した上でトレーサを選定し、Np 分析法と Pu 及び Am (Cm) 分析法を組み合わせ、同一試料からの極微量 Np、Pu、Am (Cm) 逐次分析法も確立した。さらに、通常 $\gamma$ 線スペクトロメトリではバックグラウンド (BG) が高く、極低濃度の Ra 同位体測定は困難であったため、 $\alpha$ 線スペクトロメトリにより環境及び生体試料中の極低濃度の Ra 同位体測定法を開発した。この測定法では、回収率モニターとして  $^{225}\text{Ra}$  ( $\beta$ 壊変、 $^{229}\text{Th}$  の子孫核種) を用い、放射化学分離・精製後、白金板に電着した  $^{225}\text{Ra}$  から成長する子孫核種が放出する $\alpha$ 線を用いて回収率を測定することで、極めて低い濃度の Ra 同位体 ( $^{223}\text{Ra}$ 、 $^{224}\text{Ra}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra} \rightarrow ^{228}\text{Th}$ ) を定量するという画期的な測定法を確立することに成功した。この手法は、KAMEOKANDE-II 水槽内の水中 Ra 濃度低減化に係る基礎データの収集に用いられた。また、数グラムの人骨及び歯試料にも適用し、線量評価研究にも貢献した。

## 3) 超ウラン元素諸核種の環境放射能研究

環境における極めて低いレベルの超ウラン元素諸核種に対する逐次定量法の開発により、global fallout の  $^{237}\text{Np}$  をはじめとする超ウラン元素の陸域における核種組成、移行挙動とその経年変動を明らかにすることで、その後同位体指標分析のエンドメンバーとして使用されるに至った超ウラン元素汚染の BG データを世界に示し、世界の汚染地帯に展開した。英国のセラフィールド核燃料再処理工場からの廃液が放出されていたアイリッシュ海の沿岸や河口域において、広域的に堆積物中の Np、Pu、Am、Cm 及び Tc (Cs) 濃度や同位体組成を正確に評価し、工場からの放出量の推定、潮間帯での挙動の差異、核種の易動性 (Tc > Cs > Np > Am  $\approx$  Pu) など、沿岸域での放射性核種の移行挙動を明らかにした。併せて、Am については  $^{242\text{m}}\text{Am}$  の存在も明らかにした。陸水環境においても汽水湖及び淡水湖 (三方湖や琵琶湖) での研究を進め、水質変化と  $^{137}\text{Cs}$  も含めた超ウラン元素の沈降・堆積挙動への影響を評価し、地球化学

研究へ発展させた。さらに、チェルノブイリや福島第一原発事故、広島・長崎原爆（黒い雨も含めて）、JCO 臨界事故、旧ソ連セミパラチンスク核実験場等の世界の核汚染地域での幅広い研究を行い、ウラン・超ウラン核種の同位体指紋分析（Isotopic fingerprint analysis）による汚染源識別法によりその地域の核汚染や被ばく線量評価に貢献した。特に、第五福竜丸に降下した「死の灰」の分析から、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{234,235,238}\text{U}$ 、 $^{238,239,240,241}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Am}$  を少量の試料で正確に定量するとともに、 $^{237}\text{U}$  の子孫核種である  $^{237}\text{Np}$  を初めて正確に定量することに成功した（*Health Physics* 誌に Research topic として掲載）。また、超ウラン元素による汚染や長期被ばく線量評価研究においては、1994～2013 年間毎年カザフスタン共和国のセミパラチンスク核実験場及び周辺集落に出向き、汚染評価及び被ばく線量評価のみならず技術提供も行ってきた。このことが評価され、2003 年にはカザフスタン共和国（公衆衛生・教育・スポーツ省）から「カザフスタン共和国への保健システムへの貢献」として特別賞を受賞した。

#### 4) 放射性同位体を利用した地球・環境化学研究

上記の極微量放射能測定の開発や同位体分布・組成に関する幅広い経験と情報を活かし、地球・環境化学分野への応用研究も行ってきた。大陸からの汚染物質の越境輸送研究では、一ヶ月ごとの降下物（時には大気エアロゾルも含めて）を捕集、それらの  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  分析を2013年まで二十数年にわたり行うことで、物質輸送や除去メカニズム、併せてエルニーニョ現象やラニーニャ現象の長期的なサイクルとも変動が一致していることを取りまとめた。この成果は長期データセットの重要性も兼ね備えた重要な論文として *J. Environ. Radioactivity* の高引用論文としてもマークされた。加えて、U・Th 及びその系列核種を用いた放射年代測定、地下水のUに関わる $\alpha$ 反跳現象に関する研究、 $^{210}\text{Pb}$ - $^{210}\text{Po}$ 並びに $^{22}\text{Na}$ 等の環境に存在する極微量の放射性核種を使用した海水、陸水循環研究や古気候（ロシアのバイカル湖やモンゴルのフブスグル湖の堆積物を対象）に関する研究等を精力的に進めてきた。また、 $^{236}\text{U}$  をAMS（オーストリア・ウィーン大学VERA）で測定し、グローバルフォールアウト降下量（約1000 kg）を始めて評価した後は、広島原爆への応用、さらに当該核種の化学的特性に着目し、海洋深層水の循環トレーサとして利用できる可能性を提唱した。これは、現在利用されている  $^{137}\text{Cs}$  に代る新たな海洋循環トレーサとしてのブレイクスルーとなり、海洋化学分野で重要なトレーサ核種として、現在利用が広がりつつある。温鉱泉水中のRa同位体研究では、大深度（1000 m級）Na-Cl型の高塩分温泉水のRa同位体に着目し、沿岸地域や堆積盆地で高 $^{226}\text{Ra}$ 含有量（ $>1$  Bq/kg）の温泉存在の普遍性を明らかにした。併せて、温泉ボーリングコアのU、Th、Ra同位体も測定し、高Ra含有温泉の成因が、深層の間隙に含まれる化石海水あるいは深部粘土鉱物層間より脱水した流体に由来する高塩分地下水（Raが保存性であることを実験で確認）と主として湧出経路の岩石表層（コーティング相）のトリウム（Th）からの $\alpha$ 反跳に由来する可能性が高いことを示し、強放射能泉成因の一端を明らかにした。

**謝辞：**この度、日本放射化学会の学会賞を戴き、真に望外の榮譽です。この授賞は、亡き恩師である金沢大学名誉教授・阪上正信、小村和久 両先生との幸運な邂逅とご指導、さらに金沢大学・低レベル放射能実験施設（LLRL）関係者の皆様の努力が結集した研究成果の賜物であり、至上の喜びです。今日に至るまで、大変多くの研究者からご支援・ご指導を戴き心より感謝致します。特に、LLRLの上野 馨 教授、金沢大学の放射化学講座の坂本 浩、中西 孝 名誉教授には学生時代から長い期間にわたってご指導、貴重な助言と支援を頂きました。また、この賞は、同時に多くの共同研究を支えて下さった諸先生、研究者の方々、先輩やすばらしい学生のご支援によるものであり、研究のことや人生のことを語り合う時間を共有することができました。これまでの全ての関係者に心から感謝致します。

Development of measurement techniques for low-level alpha-emitting radionuclides and their applications to geochemical sciences  
YAMAMOTO Masayoshi

## 一般講演

9月10日(土)

1A01 - 1A11 : A会場

1B01 - 1B11 : B会場

## 1A01

### 放射性セシウムの河川から海水への移行に伴う 懸濁粒子からの溶脱に関する GAM モデルからの考察

(<sup>1</sup>東大院理、<sup>2</sup>中国科学院、<sup>3</sup>筑波大、<sup>4</sup>東大 RIC、<sup>5</sup>東京海洋大)

○三浦輝<sup>1</sup>、Fan Qiaohui<sup>2</sup>、栗原雄一<sup>1</sup>、坂口綾<sup>3</sup>、桧垣正吾<sup>4</sup>、  
石丸隆<sup>5</sup>、神田穰太<sup>5</sup>、高橋嘉夫<sup>1</sup>

**【はじめに】**セシウム (Cs) は層状ケイ酸塩に対して、異なる吸着力をもつ複数のサイトに吸着すると考えられている。福島第一原発 (FDNPP) 事故で放出された放射性 Cs は、主に懸濁粒子に吸着された状態で河川中に存在するが、河川から海洋へと移行する過程で塩濃度や Cs 濃度の増加に伴い、懸濁粒子から溶脱されると考えられる。本研究では、層状ケイ酸塩への Cs の吸脱着反応に影響を与える因子として塩濃度と天然有機物に注目し、異なる塩濃度と有機物濃度で吸脱着実験を行い、その吸脱着反応への影響を調べた。また、EXAFS 法による構造解析やイオン交換モデル (GAM) によるイオン交換反応のモデル化も行った。最終的には、これらの結果に基づき陸域から持ち込まれた懸濁粒子から海水中へと溶け出す Cs の割合を求めることが目標である。

**【実験】**試料には福島沖で採取した沈降粒子、海洋表層の懸濁粒子、河川の懸濁粒子や浮遊砂を用いた。過酸化水素による有機物除去を行い、除去前後での有機炭素濃度を測定した。有機物除去前後の粒子に対して、河川水や海水の塩濃度条件で <sup>137</sup>Cs トレーサーを添加し固液分配係数  $K_d$  を求めた。これらの粒子中の Cs の L3 吸収端 EXAFS を Photon Factory BL-9A 或いは BL-12C で測定した。粒子に吸着されていた FDNPP 由来の <sup>137</sup>Cs に対しても、有機物の分解前後で河川水・海水による脱着実験を行い、<sup>137</sup>Cs の脱着量を調べた。GAM による計算を行い、異なる塩濃度や有機物濃度での  $K_d$  を求めた。

**【結果と考察】**Cesium-137 トレーサーの添加実験では、有機物の除去後で  $K_d$  は上昇した。これは、有機物によって粒子への Cs の吸着が阻害されていることを示唆している。また、塩濃度の増加により  $K_d$  は低下した。これは、カリウムなどの陽イオンと Cs とのイオン交換により吸着量が減少することを示唆している。EXAFS 測定によって、有機物の除去後では内圏錯体として吸着される Cs の割合が増えることがわかった。これは、Cs の層間への吸着を有機物が阻害しているためと考えられ、添加実験の結果と整合的である。また有機物の除去よりも、河川と海洋での塩濃度の変化のほうが、 $K_d$  に与える影響が大きかった。実際に河川、河口、海洋で観測されている  $K_d$  と GAM により計算された  $K_d$  はほぼ同様の結果を示しており、 $K_d$  の水質への依存性や懸濁粒子の特性を GAM が反映しており、これに基づき海水に溶脱する放射性 Cs の割合を推定できることが示唆された。



# 1A02

## セシウムやヨウ素の移行挙動に及ぼす天然有機物の影響

(東大院理<sup>1</sup>、中国科学院<sup>2</sup>、JAEA<sup>3</sup>)

○高橋嘉夫<sup>1</sup>、三浦輝<sup>1</sup>、Fan Qiaohui<sup>2</sup>、田中万也<sup>3</sup>

**【緒言】** 福島第一原発事故で放出された主要な放射性核種を持つセシウムやヨウ素について、土壌、河川、海洋などにおける環境動態を支配する様々な素過程の研究が精力的に進められている。しかしながら、このうち天然有機物の影響についてはまだ十分な解析がなされておらず、その定量的な解明が必要である。本講演では、天然有機物の大半を占めると考えられる腐植物質が、セシウムやヨウ素の挙動に与える影響について考察した結果を紹介する。

**【セシウム】** セシウムの挙動を支配する要因として、層状ケイ酸塩への吸着が重要であることが分かっている。この吸着反応では、層間に存在する siloxane の 6 員環への構造的な適合性が重要であることが示唆され、このような化学種は広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) の解析では、内圏錯体として検出される。一方、腐植物質が存在し、こうした層状ケイ酸塩と複合体を作った場合、セシウムの層間への吸着反応が阻害され、EXAFS 的には外圏錯体を形成することが分かっている。この時に検出される外圏錯体として、層状ケイ酸塩の表面の planar site が外圏錯体を吸着するサイトに相当すると考えられる。一方で、腐植物質自身も負電荷を帯びており、セシウムを外圏錯体として吸着できる可能性がある。このような腐植物質とセシウムの錯生成について、これまで定量的に考察されたことは殆どない。そこで我々は、<sup>137</sup>Cs トレーサーを用いた限外ろ過法 (分画分子量: 1000 Da) により、腐植物質とセシウムの錯生成定数  $\beta$  の測定を試みた。フミン酸 (HA) の酸解離基の濃度  $[A^-]$  を用いて  $\beta = [CsA]/[Cs^+][A^-]$  と定義した場合、HA の酸解離度が 0.9-1.0 程度の範囲で  $\log \beta = 4$  程度となることが分かった。これは、 $Ca^{2+}$  などの 2 価の陽イオンとの  $\beta$  と比較すると 2 桁程度小さいとみられるものの、溶存有機物濃度が 10 mg/L 以上の天然水では、セシウムの溶存状態として、腐植物質との錯生成は無視できないことを示唆する。またこの  $\beta$  が固体状態でも同様の値を保ったとすると、腐植物質を多量に含む懸濁粒子へセシウムの吸着分配係数 (Kd) は、この  $\beta$  で十分説明可能な値であった。そのため、腐植物質の存在は、層状ケイ酸塩層間へのセシウムの吸着を物理的に阻害するが、外圏型の弱い吸着サイトとしてセシウムを保持している可能性がある。またこれらの研究は、リター層へのセシウムの保持などについても関連する可能性がある。

**【ヨウ素】** ヨウ素の土壌中での鉛直分布は、表層で濃度が高く深部で急激に濃度が減少する傾向をとり、セシウムと類似の挙動を示す場合が多い。しかし、ヨウ素はヨウ化物、ヨウ素酸のいずれの場合も陰イオンを形成するため、その素過程はセシウムとは異なると考えられる。これまでの研究で、ヨウ素は腐植物質中のベンゼン環に求電子置換反応で取り込まれ、有機ヨウ素となるプロセスが重要であることが分かっている。我々は、2011年4月13日に郡山で採取した土壌コア試料について、ヨウ素 (福島第一原発事故由来の <sup>131</sup>I) の溶出実験を行った。その結果、ヨウ素の溶出率はアルカリ性で増加し、その抽出液を酸性にすると腐植物質の一部が沈殿するが、その際、50%程度のヨウ素が沈殿に取り込まれた。これらの挙動は、ヨウ素が腐植物質中に共有結合で取り込まれたことを意味し、事故後 1 ヶ月以内に土壌中のヨウ素が有機化したことを示唆する。一方、これまでの実験で、腐植物質に取り込まれた有機態ヨウ素を還元環境に保つと、ヨウ素が脱離する傾向も見られた。従って、今後ヨウ素の動態を調べる上で、有機態ヨウ素の安定性を調べるということが重要であると考えられる。

# 1A03

## コシアブラの放射性セシウム蓄積経過

(東大院農<sup>1</sup>、京大院情報<sup>2</sup>、放射線安全フォーラム<sup>3</sup>、伊達市役所<sup>4</sup>)○二瓶直登<sup>1</sup>、大手信人<sup>2</sup>、多田順一郎<sup>3</sup>、黒沢崇<sup>4</sup>、根本圭介<sup>1</sup>

### 【緒言】

福島県が実施している農産物のモニタリング検査によると、コシアブラの葉の放射性セシウム濃度は原発事故後から高い値を示すものが散見されるがその要因解明は進んでいない。コシアブラの葉の放射性セシウム蓄積に関する基礎的知見を得るため、福島県の森林に自生するコシアブラ若木を対象に、部位別や経年変化の放射性セシウム濃度の違いを検討した。

### 【実験】

コシアブラ若木内の部位別調査として、頂芽として若木先端に存在する長枝（枝として伸長する部位）に展開する葉（12枚）、側芽として若木中央部に存在する長枝に展開する葉（8枚）、および側芽として若木基部側に存在する短枝（枝として伸長せず葉だけを叢生する部位）に展開する葉（6枚）を2015年度5月2日に採取した。周年経過では、まず同一斜面に沿って自生するコシアブラ（尾根側3本、中央部4本、谷側4本）を対象とし、2015年5月2日、6月29日、9月22日に葉を採取した。さらに春先の放射性セシウム濃度の挙動を詳細に調査するために、2015年とは別の森林に自生するコシアブラ2本を対象に、2016年4月29日、5月5日、5月8日、5月13日、6月4日に葉を採取した。採取した葉はゲルマニウム半導体検出器で放射性セシウムを測定し、サンプルの一部についてはICP-OESにて塩基成分を測定した。

コシアブラ若木の部位による放射性セシウム濃度は、長枝と短枝、あるいは木の先端、中央、基部で展開する葉の間に明確な差は見いだせなかった（図1）。一方、2015年に実施した周年経過についてみると、自生する場所（尾根側、中央、谷側）を問わず5月2日の調査時が最も高く、成熟するにしたがい半以下に低下した（図2）。葉のカリウム濃度も同様の傾向を示し、放射性セシウムは新葉展開時にカリウムと同時に流入していると推察された。春先の濃度変化を詳細に検討した2016年では、5月上旬に放射性セシウム濃度のピークが認められた（図3、コシアブラ①）が、同一森林内の別のコシアブラでは調査期間を通じての濃度変化が僅かであった（図3、コシアブラ②）。春先の放射性セシウム濃度の上昇は山菜として利用する時期と一致しているために注意が必要であるが、調査サイトによっては春先の濃度上昇が僅かである事例もあり、土壌条件など本要因の解明が今後、安心して山菜を利用するための一つのヒントになると考えられた。

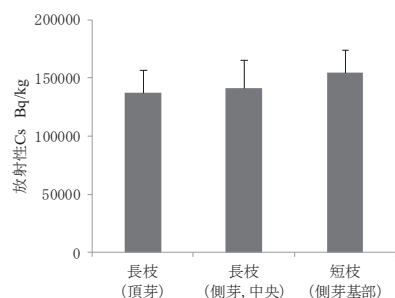


図1 長枝、短枝に展開する葉の放射性Cs濃度(2015年)

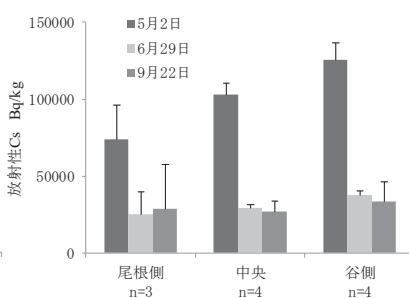


図2 放射性Cs濃度の周年経過(2015年)

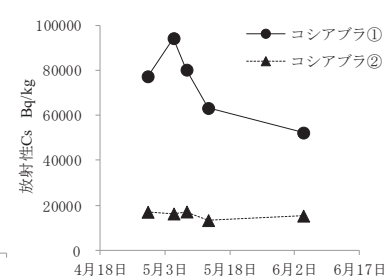


図3 春先の放射性Cs濃度経過(2016年)

Accumulation Process of Radiocesium for Koshiabura(*Acanthopanax sciadophylloides*)  
NIHEI, N., OHTE, N., TADA J., KUROSAWA T., NEMOTO K.

(東北大院理<sup>1</sup>、株式会社キノックス<sup>2</sup>)○村野井友<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、  
板橋康弘<sup>2</sup>、中島丈博<sup>2</sup>、郡山慎一<sup>2</sup>、木村栄一<sup>2</sup>、嶋原隆<sup>2</sup>

### 【緒言】

福島第一原子力発電所事故により多くの放射性セシウムが放出され、福島県を中心に広範囲が汚染された。これを蓄積しやすいことが知られているキノコ<sup>[1]</sup>は特に影響を受けている。我々の研究グループは、キノコ栽培において、培地からキノコへのセシウムの移行の低減化を進めてきた<sup>[2]</sup>。本研究では、キノコに取り込まれたセシウムの培地中での存在形態を分析するため、培地の洗浄試験や逐次抽出試験、栽培キノコの放射性および安定セシウムの測定などから、培地中のセシウムの存在形態や添加物の効果について検討を行った。

### 【実験】

培地は放射性核種に汚染された福島県産広葉樹オガコを使用した。シイタケ 2 品種はキノックス基本栽培法<sup>[3]</sup>により厳密に管理された条件下で栽培された。培地の洗浄実験では、振とう式恒温水槽 BT220 (ヤマト科学) を用い、様々な条件で洗浄を行った。洗浄液は 1mm のふるいで濾過しチップを除去した後、ホットプレート (120°C) で乾固させた。放射能測定は、試料を乾燥後、ミキサーで粉碎・均一化して 100 mL(U8 型)容器に詰め、高純度 Ge 半導体検出器で行った。測定時期による放射能の減衰を考慮するため、放射能の値は原子炉の停止した 2011 年 3 月 11 日時点に壊変補正した。安定セシウムおよび関連するアルカリ金属元素は、誘導結合プラズマ質量分析器で定量した。

### 【結果と考察】

培地中のセシウムの存在形態を水溶態、イオン交換態、有機物結合態と大別して、各抽出液の比放射能を比較すると、値に差が見られた。さらに、栽培シイタケの比放射能は、培地と比べ低い値を示した。これらのことより、培地中での放射性セシウムと安定セシウムの存在形態が異なり、安定セシウムの方がシイタケへ移行しやすいことが分かった。これは、事故後十分に時間が経過していないため、培地中で放射性セシウムが十分に拡散されていないことや、放射性セシウムは木の表面からの吸収と経根吸収、安定セシウムは経根吸収で主に木に取り込まれており、この吸収経路の違いなどが原因であると考えられる。

また、セシウムを吸着するゼオライトを培地に添加した試験においても安定セシウムと放射性セシウムの挙動の違いが見られるか確認するために栽培試験や洗浄試験を行い、セシウムの存在形態と移行低減の機構について検討した。

[1] Martine C. Duff, Mary L. Ramsey, *J. Environ. Radioactiv.* **99**, 912-932 (2008).

[2] 木村栄一、嶋原隆、木野康志、入澤歩, 特許第 5590194 号(P5590194), 平成 26 年

[3] 株式会社キノックス HP 「きのこの栽培法」 <http://www.kinokusu.co.jp/saibai/saibai.html>

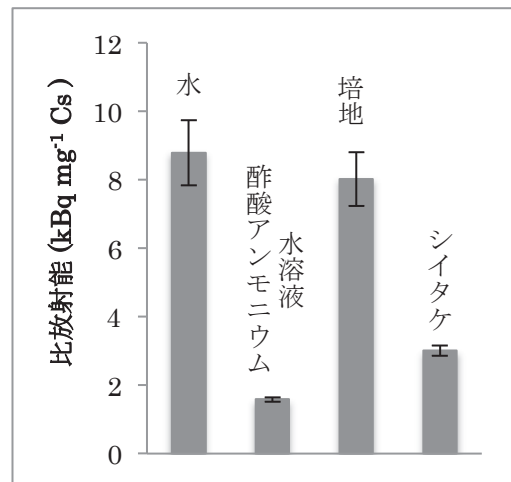


図. 水および 1M 酢酸アンモニウム溶液による洗浄液と培地、栽培シイタケの比放射能(kBq mg<sup>-1</sup> Cs)

A chemical behavior of cesium in substrates for cultivated Shiitake

MURANOI, T., KINO, Y., ITABASHI, Y., NAKAJIMA, T., KORIYAMA, S., KIMURA, E., SHIGIHARA, T.

## 1A05

ウシの歯の放射能測定によるウシ生息域での Sr-90, Cs-137 汚染の推定  
(東北大院理<sup>1</sup>、東北大病院<sup>2</sup>、東北大院歯<sup>3</sup>、東北大災害研<sup>4</sup>、岩手大理工<sup>5</sup>、東北大院農<sup>6</sup>、東北大高教機構<sup>7</sup>、東北大加齢研<sup>8</sup>)

○小荒井一真<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、西山純平<sup>1</sup>、高橋 温<sup>2</sup>、鈴木敏彦<sup>3,4</sup>、清水良央<sup>3</sup>、千葉美麗<sup>3</sup>、小坂健<sup>3,4</sup>、佐々木啓一<sup>3</sup>、福田智一<sup>5</sup>、磯貝恵美子<sup>6</sup>、岡壽崇<sup>1,7</sup>、関根勉<sup>1,7</sup>、福本学<sup>8</sup>、篠田壽<sup>3</sup>

**【緒言】**福島第一原発（FNPP）事故後、東北大学では「被災動物の包括的線量評価事業」を立ち上げた。この事業において、我々はウシの歯や骨といった硬組織中への Sr-90、Cs-137 の取り込みに注目してきた。これらの核種は環境からウシへと移行したものである。しかし、生息域中における核種の分布は一様でない。また、FNPP 事故における放出量の少なさと化学分離の必要性から、今回の事故後の Sr-90 の測定は困難である。そこで、歯中 Sr-90、Cs-137 からウシ生息域中の核種存在量の推定を行うという発想に至った。本発表においては、推定のためにウシ歯中 Sr-90、Cs-137 とウシ生息域中における 2 核種の存在量の比較を行う。

**【実験】**採取地点は、FNPP 事故に伴う旧警戒区域内である、大熊町（FNPP より西に 5 km）、川内村（FNPP より南西に 16 km）の 2 地点であった。試料採取時の空間線量率は、大熊町が  $30 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 、B 地点が  $1 \mu\text{Sv h}^{-1}$  であった。採取地点では、黒毛和種ウシおよびウシの食べ跡のあった植物、周辺の土壌試料を採取した。ウシの歯は歯種ごとに分割した。ウシの歯中の Sr-90 は、発煙硝酸による化学分離後、 $2\pi$  ガスフロー検出器によって測定した。また、それぞれの試料中の Cs-137 は、Ge 半導体検出器による  $\gamma$  線スペクトロメトリーにより測定した。Sr、Ca、Cs、K の測定は、それぞれの試料を溶液化した後に ICP-AES または ICP-MS によって行った。

**【結果と考察】**まず、ウシの歯中 Sr-90 比放射能は、それぞれの歯種ごとに比較した。その結果、歯への Sr-90 の取り込みは歯の形成に従ったものであった。このことから、FNPP 事故後に歯の形成が進んだ歯中の Sr-90 は、事故によってウシ生息域中を汚染した Sr-90 量を反映しているといえる。そのため、環境中で比放射能が一定であると仮定した場合、歯中の Sr-90 比放射能と土壌中の安定 Sr 量から、ウシ生息域の土壌中 Sr-90 濃度を推定することが可能である。この推定によるウシ生息域の土壌 Sr-90 インベントリーは、文科省による値の範囲内にあった。したがって、歯中の Sr-90 から環境中に存在する Sr-90 の推定は可能であると考えられる。

一方で Cs-137 の歯への取り込みは、Sr-90 とは異なり歯の形成とは関係が希薄であった。歯と体内組織の歯の比放射能を比較したところ、組織内の分布は一様であったが、若ウシ（採取時 2 歳以下）の一部の歯はそれよりも高い比放射能であった。この比放射能の高い歯は、過去にウシが高い比放射能の食物を取り込んだことを示唆している可能性がある。今後、ウシの歯への Cs-137 の取り込み機構を明らかにすれば、Sr-90 同様に歯から環境中の Cs-137 存在量の推定が可能になると考えられる。

[1] 文部科学省による、Pu、Sr の核種分析の結果について（平成 23 年 9 月 30 日発表）

Estimation of Sr-90 and Cs-137 contamination in habitat of cattle by measuring of radioactive concentration in teeth.

KOARAI, K., KINO, Y., NISHIYAMA, J., TAKAHASHI, A., SUZUKI, T., SHIMIZU, Y., CHIBA, M., OSAKA, K., SASAKI, K., FUKUDA, T., ISOGAI, E., OKA, T., SEKINE, T., FUKUMOTO, M. and SHINODA, H.

# 1A06

## 福島第一原発事故被災ウシの硬組織中の Sr-90 濃度の経時変化

(東北大院理<sup>1</sup>、東北大院歯<sup>2</sup>、東北大病院<sup>3</sup>、東北大災害研<sup>4</sup>、岩手大理工<sup>5</sup>、東北大院農<sup>6</sup>、東北大高教機構<sup>7</sup>、東北大加齢研<sup>8</sup>)

○西山純平<sup>1</sup>、小荒井一真<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、清水良央<sup>2</sup>、高橋温<sup>3</sup>、鈴木敏彦<sup>2,4</sup>、千葉美麗<sup>2</sup>、小坂 健<sup>2,4</sup>、佐々木啓一<sup>2</sup>、福田智一<sup>5</sup>、磯貝恵美子<sup>6</sup>、岡 壽崇<sup>1,7</sup>、関根 勉<sup>1,7</sup>、福本 学<sup>8</sup>、篠田 壽<sup>2</sup>

**【緒言】**我々の研究グループは、ヒトや動物への低線量被ばく影響を明らかにするため、福島第一原発事故により被災した動物の調査を行っている。この中で、理学研究科では動物体内への放射性物質の蓄積状況を調査している。事故により放出された核種の1つである、Sr-90はCaとともに硬組織に取り込まれやすく、実効半減期が長いため、重大な内部被ばくを引き起こす可能性がある。内部被ばく影響を評価する際、体内の放射性物質の量の時間変化を知る必要があるこれまでの研究にて、事故時の暦齢によって硬組織へのSr-90の取り込み量が異なることがわかった。そこで本研究では、被災期間の異なるウシの硬組織中のSr-90濃度を比較することで硬組織中のSr-90濃度の経時変化を推定する。

**【実験】**サンプルは、福島県大熊町、川内村で採取されたもので、福島第一原発事故後に生まれたウシ8頭の上顎第一大臼歯と、脛骨の皮質骨と海綿骨を用いた。それぞれのサンプルは粉碎、乾燥、灰化し、発煙硝酸法によりSr-90を化学分離した。Sr-90の定量には、低BG2πガスフローGM検出器を用い、約2週間繰り返し測定しY-90の成長を確認した。得られた放射能の値は2011年3月11日に壊変補正した。

**【結果と考察】**場所による餌中のSr-90濃度の違い除くために、各個体について、骨の放射能濃度を、歯の放射能濃度に対して比をとることで規格化した。歯は形成時にSr-90を取り込むと以後殆ど変化しないため[1]、この比の時間変化は、骨中のSr-90濃度の時間変化を見ることになる。本研究では、歯冠の形成が終了(生後約2~3ヶ月[2])して以降の骨へ取り込まれたSr-90の時間変化を評価した。事故時から9ヶ月後に採取されたウシの歯と骨の放射能濃度の比は約0.9であった。しかし、17ヶ月後に採取されたウシの歯と骨の放射能濃度の比は約1.3となった。形成をすでに終えた歯中のSr-90濃度に対して、骨の成長は生後約2年まで続くため[3]、骨の成長に伴いSr-90を取り込み、比が大きくなったと考えられる。このようにして、硬組織中のSr-90の濃度の時間変化が確認された。また、比放射能を用いることで、環境中からウシの体内へ入ってくるSr-90の時間変化も考察した。本研究により、ウシの骨組織内のSr-90量の時間変化を明らかにすることで、骨髄への内部被ばく線量の評価の基礎データとなることが期待される。

[1] Williams, R. A. D. & Elliott, J. C. Basic and applied dental biochemistry 2nd ed. 32-33 (Churchill Livingstone, 1989).

[2] Brown, B *et al.* Postnatal tooth development in cattle. *Am. J. Vet. Res.* **21**, 7-34 (1960).

[3] 入江正和 *et al.* 肉用牛の科学. 肉用牛研究会(2015)

Time course change in Sr-90 concentration in hard tissues of cattle suffered from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

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.

# 1A07 福島県川俣町で採取した土壌の $^{90}\text{Sr}$ の深度分布

(阪大院理<sup>1</sup>、阪大 RI セ<sup>2</sup>、筑波大<sup>3</sup>)○鈴木杏菜<sup>1</sup>、張子見<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、山口 喜朗<sup>2</sup>、高橋 純子<sup>3</sup>、恩田裕一<sup>3</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

**【緒言】**福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性核種が大気中へ放出された。その中でも、放射性セシウム( $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ )や  $^{90}\text{Sr}$  などの長半減期の放射性核種の環境中の分布は、長期的な被ばく影響や環境動態を知るうえで重要である。放射性セシウムは、 $\gamma$  線放出核種であることから、Ge 半導体検出器による定量が可能であるため、分布や時間変化等の様々な研究が行われている。それに対して、純  $\beta$  線放出核種の  $^{90}\text{Sr}$  は、他の妨害核種から分離する必要があるが、分離定量の困難さからほとんど研究が行われていない。しかしながら、土壌に沈着した  $^{90}\text{Sr}$  は放射性セシウムと化学的性質が異なっており、 $^{90}\text{Sr}$  の環境中での移行過程を知ることが重要である。そこで、本研究では土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と放射性セシウムを分析し、深度分布を調べたので報告する。

**【実験】**本研究では、福島県川俣町のスギ若齢林で採取された土壌試料について深度分布を作成した。土壌はスクレーパプレートにより採取し、表層から 5cm までを 0.5cm ずつで分けた 10 試料の分析を行った。土壌には、様々な放射性核種が含まれているが、すでに述べたとおり、 $^{90}\text{Sr}$  は純  $\beta$  線放出核種であることから、化学的に分離する必要がある。そこで、本実験では古典的な沈殿分離法により、土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  の単離を行った。単離された  $^{90}\text{Sr}$  は、最終的に炭酸塩として得られ、(1+3)塩酸溶液として測定試料を作製した。 $^{90}\text{Sr}$  の娘核種である  $^{90}\text{Y}$  の放出する  $\beta$  線が、溶液中で発するチェレンコフ光を液体シンチレーションカウンター(LSC)により測定し、 $^{90}\text{Sr}$  の定量を行った。この測定は親核種である  $^{90}\text{Sr}$  と娘核種である  $^{90}\text{Y}$  が永続平衡に達するまでの約 2 週間行い、そこから得られた  $^{90}\text{Y}$  の放射能濃度から  $^{90}\text{Sr}$  の定量を行った。化学分離における収率は、化学分離初期の溶液と LSC 測定後の溶液に含まれる Sr 担体量を、ICP-MS により測定することによって求めた。

**【結果・考察】**図 1 に 2013 年 7 月に採取された土壌試料の  $^{90}\text{Sr}$  の深度分布を示す。 $^{90}\text{Sr}$  の放射能は採取土壌の深度により減少していくことが分かった。また、 $^{90}\text{Sr}$  と放射性セシウムの放射能比を調べたところ、深度により異なることが分かった。このことは、土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と放射性セシウムの化学的挙動の違いがあることを示している。詳細については講演で議論する。

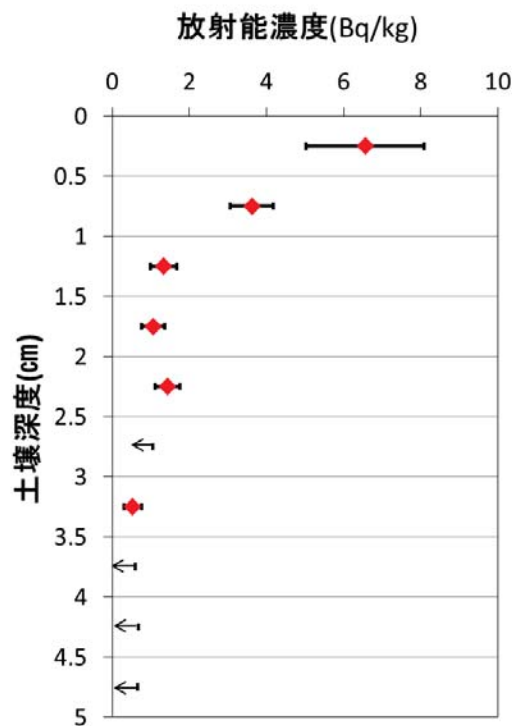


図 1 : 2013 年 7 月に川俣町で採取された土壌の  $^{90}\text{Sr}$  深度分布

Depth-profiling of  $^{90}\text{Sr}$  concentrations in soil at Kawamata Town, Fukushima Prefecture  
SUZUKI, A.,ZHANG, Z.,NINOMIYA, K.,YAMAGUCHI, Y.,TAKAHASHI, J.,ONDA, Y.,SHINOHARA, A.

## 1A08

### 東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比

(首都大院理工<sup>1</sup>、RESTEC<sup>2</sup>、東大院工<sup>3</sup>、都産技研セ<sup>4</sup>、理研仁科セ<sup>5</sup>、東大 MALT<sup>6</sup>、日大文理<sup>7</sup>、京大原子炉<sup>8</sup>)○海老原充<sup>1</sup>、大浦泰嗣<sup>1</sup>、白井直樹<sup>1</sup>、鶴田治雄<sup>2</sup>、森口祐一<sup>3</sup>、永川栄泰<sup>4</sup>、櫻井昇<sup>4</sup>、羽場宏光<sup>5</sup>、松崎浩之<sup>6</sup>、山形武靖<sup>7</sup>、永井尚生<sup>7</sup>、関本俊<sup>8</sup>

**【緒言】**  $^{129}\text{I}$  と  $^{131}\text{I}$  は  $^{235}\text{U}$  の熱中性子誘起核分裂反応によって生成する代表的な放射性ヨウ素核種であるが、その半減期は  $^{131}\text{I}$  が 8 日に対して  $^{129}\text{I}$  が 1500 万年と対照的である。2011 年の東日本大震災によって引き起こされた東京電力福島第一原子力発電所事故によって大量の放射性核種が環境中に放出され、今なおその健康への影響が議論されているが、半減期の短い  $^{131}\text{I}$  の影響に関しては、その重要性にも関わらず、半減期が短いことから、十分解明されないまま現在に至っている。本研究では、長半減期核種  $^{129}\text{I}$  に着目し、その存在量を通して、原発事故由来の  $^{131}\text{I}$  の放出量や環境中での拡散挙動を再現できるかどうか検討した。対象とする物質は事故直後に環境中に浮遊していた大気浮遊粒子で、ろ紙上に捕集された試料を利用した。

**【実験】** 実験に用いた大気浮遊塵試料は事故後に東京都、埼玉県などで採取されたもので、事故当時、試料中に含まれる放射性核種 ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  を含む) の測定が行われものを用いた。大気浮遊塵を捕集したろ紙 (素材: ガラス繊維、フッ素系樹脂繊維) の一部を採取し、 $^{137}\text{Cs}$  放射能を測定した後、 $^{129}\text{I}$  の分離のための化学操作をおこなった。既知量のヨウ素担体を添加し、アルカリ溶解をおこなってヨウ素同位体 ( $^{127}\text{I}$  および  $^{129}\text{I}$ ) 間での同位体平衡を実現した。溶解物を水に溶解し、上澄みを分離し、硝酸銀を添加して AMS 測定用のヨウ化銀の沈殿を生成した。

**【結果と考察】** 固体試料中の微量ヨウ素の定量に関してはこれまで、標準岩石試料や隕石試料中のハロゲン 3 元素 (塩素、臭素、ヨウ素) の定量に繰り返し適用してきた手法 (e.g., Ebihara et al., 1986; Shinonaga et al., 1994; Ozaki and Ebihara, 2007; Sekimoto and Ebihara, 2013) の操作の一部を利用した。大気浮遊塵捕集ろ紙に捕捉された粒子中の  $^{129}\text{I}$  の検出限界を検討するため、ろ紙、試薬、操作に対するブランク値を求めた。その結果、 $10^{-9}\text{Bq}$  レベルの放射能の測定が可能なこと、いずれのブランク値も充分低いこと、 $^{129}\text{I}$  の主要寄与源は担体として加えるヨウ化カリウムであることがわかった。事故直後に捕集された大気浮遊粒子の  $^{131}\text{I}$  放射能濃度 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) と本研究で測定した  $^{129}\text{I}$  濃度の比を求めたところ、福島県で採取された土壌試料が示す  $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$  濃度比とほぼ一致し、また、炉内での核燃料の燃焼度をもとに推定した値とも整合する値が得られた。このことから、大気浮遊粒子として拡散した  $^{131}\text{I}$  の濃度や挙動について、事故後 5 年以上経過した現在でも、粒子状物質中の  $^{129}\text{I}$  濃度を測定することによって議論することが可能であることがわかった。こうした結果を踏まえて、現在、事故直後に回収された大気浮遊塵試料の系統的分析を鋭意進めている。

**【参考文献】** Ebihara et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **108**, 241-255(1986); Shinonaga et al., *Chem. Geol.* **115**, 213-225 (1994); Ozaki and Ebihara, *Anal. Chim. Acta* **583**, 384-391 (2007); Sekimoto and Ebihara, *Anal. Chem.* **85**, 6336-6341 (2013).

$^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$  ratios for airborne particulate matters collected just after the nuclear power accident in Fukushima

EBIHARA, M., OURA, Y., SHIRAI, N., TSURUTA, H., MORIGUCHI, Y., NAGAKAWA, Y., SAKURAI, N., HABA, H., MATSUZAKI, H., YAMAGATA, T., NAGAI, H., SEKIMOTO, S.

# 1A09

## 東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料のオートラジオグラフィと $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比

(首都大院理工<sup>1</sup>、RESTEC<sup>2</sup>、JAXA<sup>3</sup>、東大院工<sup>4</sup>、国環研<sup>5</sup>、都産技研<sup>6</sup>、理研仁科セ<sup>7</sup>、東大博物館<sup>8</sup>)○大浦泰嗣<sup>1</sup>、海老原充<sup>1</sup>、白井直樹<sup>1</sup>、鶴田治雄<sup>2</sup>、中島映至<sup>3</sup>、森口祐一<sup>4</sup>、大原利真<sup>5</sup>、永川栄泰<sup>6</sup>、櫻井昇<sup>6</sup>、羽場宏光<sup>7</sup>、松崎浩之<sup>8</sup>

我々は、多くの自治体の協力を得て、浮遊粒子状物質 (SPM) 自動計測器で 2011 年 3 月の原発事故当時に 1 時間ごとに SPM が捕集されたテープ状ろ紙中の  $^{137}\text{Cs}$  の定量を 2012 年より行っており、これまでに主に福島県から関東地方における  $^{137}\text{Cs}$  の大気中時空間分布を明らかにした。99 地点の測定結果はすでに公表し[1]、現在は、さらに広域な時空間分布と、関東地方での詳細な時空間分布を明らかにすべく新たな地点での  $^{137}\text{Cs}$  定量を続けている。一方、住民の被ばくを評価する上で、重要な  $^{131}\text{I}$  は短半減期のため、その大気中濃度は限られた地点でしか報告されておらず、時空間分布は不明である。そこで、同じ SPM 試料を用いて、長半減期  $^{129}\text{I}$  の定量を行い、原発事故当時の  $^{131}\text{I}$  の時空間分布の再現を試みている[2]。

多くの場合 SPM は直径 1cm の円盤状に捕集されており、その約 1/4 のみを用いて  $^{129}\text{I}$  の定量を行っている。そのため、まず、1/4 片の  $^{137}\text{Cs}$  を定量後、 $^{129}\text{I}$  の定量を行う。そして、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  放射能比と  $^{137}\text{Cs}$  濃度 [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ] から  $^{129}\text{I}$  濃度 [ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ] を算出する。そのため理想的には、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{129}\text{I}$  が SPM 捕集面に均一に分布している必要がある。しかし、試料によっては、放射能強度の強い粒子状物質が点在することをオートラジオグラフィにより確認している。そこで、理化学研究所、東京都産業技術研究センター (TIRI)、首都大学東京で捕集した捕集面の広い大気浮遊粒子試料から直径 10mm の試料を複数に分取し、 $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$  比の均一性を調べた。

例として、図 1 のグラフ内に TIRI で (a) 3 月 15 日と (b) 3 月 21 日に採取された試料のオートラジオグラフィを示す。3/21 は捕集面にほぼ均一な放射能強度が観測されたが、3/15 は放射能の強い点状が多数観測された。3/21 の試料から複数分取した試料 (10mm  $\phi$ ) 間の  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{129}\text{I}$  の放射能はほぼ等しかった (相対標準偏差は 5% と 6%) が、3/15 の試料では、 $^{129}\text{I}$  は相対標準偏差 9 % でのバラつきに対し、 $^{137}\text{Cs}$  は 15 % のバラつきであった。系統的に高放射能粒子が多いほど  $^{137}\text{Cs}$  放射能も大きく、他の試料においても同様の傾向が観測された。また、図 1 に示すように、 $^{137}\text{Cs}$  放射能が大きいほど、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  比は小さく、3/15 の試料では捕集面の  $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  比の分布は一定でないことがわかった。一方、3/21 の試料は放射能比もほぼ一定であった。そのため、 $^{129}\text{I}$  定量に際し、試料を切断する前に、オートラジオグラフィをとり、極端に放射能分布が異なる領域から  $^{129}\text{I}$  定量用試料を分取しないように注意している。

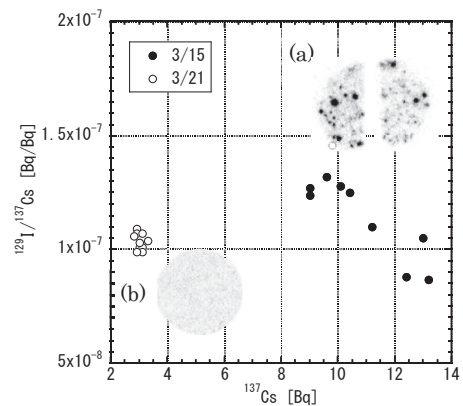


図 1 同一試料内での  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  比の分布。画像 (a) と (b) は 3/15 と 3/21 に採取された浮遊粒子試料 (直径 10mm) のオートラジオグラフィ。

[1] J. Nucl. Radiochem. Sci. 15, 15 (2015). [2] 本討論会 1A08.

Autoradiographs and  $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  ratios for atmospheric particular matters collected just after TEPCO FDNPP accident

OURA Y., EBIHARA M., SHIRAI N., TSURUTA H., NAKAJIMA T., MORIGUCHI Y., OHARA T., NAGAKAWA Y., SAKURAI N., HABA H., MATSUZAKI H.



## 【緒言】

福島第一原発事故ではケイ酸ガラスを主とした通称 Cs ボールと呼ばれる放射性 Cs を高濃度に含む放射性粒子が、福島県内外の広範囲で見ついている。放射性粒子の多くは粒子が生成したときの情報を有したまま環境中に放出するため、粒子がどの地域に存在するか把握することは、住民の帰還準備だけでなく、事故進展解析の上でも大いに有益である。しかしながらこれらの粒子について、放出イベント、および放射性物質の総量に対する粒子の割合は、まだ十分な解明は進んでいない。これまでの先行研究でも帰還困難区域を対象に放射性粒子の探索が展開されてきたが、系統的に放出イベントと粒子の関係性を考察した報告はなかった。そこで本研究では北西地域から分離した放射性粒子について、発見場所と予想される放出源から、地上汚染と放射性粒子の関係性について検討した。

## 【実験データ】

本研究では、2013年6・8月に帰還困難区域で採取した土壌に含まれる<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs、<sup>110m</sup>Agから算出した同位体・放射能比(佐藤ら、2014)と、その土壌にオートラジオグラフィを用いて分離した放射性粒子の観察結果(佐藤ら、2015・2016)を利用した。

## 【検討】

福島第一原発から北西に広がる帰還困難区域は、北から西の順に、1、2、3号機に由来する汚染であることが判明している。このうち明らかに放射性粒子が存在すると認められたのは、1、2号機による汚染エリアである。特に1号機による汚染は水素爆発直後に発生しており、当該地域からは粒径が数百 $\mu\text{m}$ に達する粒子が見ついている。また2号機で汚染した場所からは数 $\mu\text{m}$ 程度の粒子が多数確認された。2号機の放出が発生したのは3月15日朝における格納容器の部分的損傷によるもので、水素爆発のような劇的な放出ではなく、また北西地域にプルームが到達した時は降雨による沈着だったことから、大きい粒子は敷地外まで飛散していないと考えられる。一方、3号機によって汚染を生じた場所からは、オートラジオグラフィによるスクリーニングで、スポット状の汚染は非常に少なく、また分離した粒子のCs同位体比や比放射能は、2号機粒子と同一だった。3号機に由来する粒子はこれまでのところ発見されておらず、現状では2号機に由来する粒子が飛散してきたものと推定される。このように放射性粒子は一律に放出されているのではなく、特定のイベントにおいて放出した可能性が高いと考えられる。本発表では粒子沈着時の考察に加え、<sup>110m</sup>Agの放出率から推定される放出時期についても発表を行う。

# 1A11

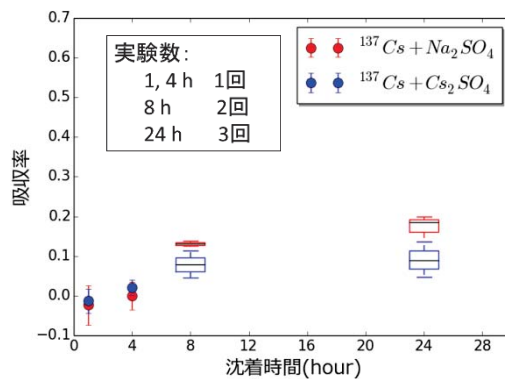
## 原子力事故により放出される放射性物質の森林植生への沈着・溶離挙動の研究

(阪大理<sup>1</sup>、阪大 RI セ<sup>2</sup>、筑波大生命環境<sup>3</sup>)○張 子見<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、吉村 崇<sup>2</sup>、古川 純<sup>3</sup>、篠原 厚<sup>1</sup>

**【緒言】**福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性物質は、主に福島県域の森林を汚染した。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ことが報告されている。そして、事故から1年以上経過したのちでも、放射性物質が植物中でドット状に分布していることが報告されている。放射性物質の森林への初期沈着量の見積もりや、長期間にわたる森林内での放射性物質の循環を考えるうえで、放射性物質が植物にどのように沈着し吸収され、もしくは残留するかを知ることは重要である。しかしながら過去の研究では、農作物への放射性物質の吸収および溶脱について、量もしくは速度に関する議論がほとんどであり、葉面上における放射性物質の分布や化学状態に関する議論はされていない。

本研究の目的は、福島第一原子力発電所の事故において放出された放射性 Cs の、植生への沈着挙動および降雨等による溶離挙動の再現を行うことで、事故後に森林域で見られた放射能汚染状況の原因を探ることである。そこで本研究では、放射性 Cs を含んだ溶液もしくはエアロゾルを植物の葉面に直接沈着させ、一定時間後に水によって溶離し、葉への放射能の残留量および分布を、放射能測定を通して評価した。

**【実験および結果】**葉面沈着実験では、溶液として、過去の研究を参考にして、 $10^{-3}$  M の  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{Cs}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NaCl}$ 、 $\text{CsCl}$  溶液に、トレーサー量の  $^{137}\text{Cs}$  を加えたものを使用した。エアロゾル沈着実験では、天然エアロゾルのメインの組成である  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NaCl}$  と、溶液との比較対象として  $\text{Cs}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{CsCl}$  に、トレーサー量の  $^{137}\text{Cs}$  を加えたものを使用した。植物葉、常緑広葉樹のクスノキの葉を使用した。葉面への添加方法として、溶液については、0.2~0.3 mL の試料溶液を、葉の上に 70~80 滴、均等に添加した。エアロゾルについては、これまでに開発したエアロゾル発生装置[1]により、各無機塩エアロゾルを、葉面上に 2 mg 程度、均等に吹き付けた。沈着後から最大1日まで放置し、水による溶離を行ったのち、葉への残留量をゲルマニウム半導体検出により定量した。 $^{137}\text{Cs}$  の吸収率は、添加した放射線量と、溶出された量を比較して求めた。硫酸塩溶液における沈着実験の結果を図に示す。



図、溶液実験の吸収率の時間依存

$\text{Na}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{Cs}_2\text{SO}_4$  溶液を用いた実験では、沈着後から 1-4 時間では  $^{137}\text{Cs}$  の吸収は認められなかった。8-24 時間では、最大 20% ほどの  $^{137}\text{Cs}$  の残留が確認できた。葉面上の溶液は添加から 2 時間後に蒸発したことから、溶液の組成では  $^{137}\text{Cs}$  は葉内に入らず水により溶出されるが、蒸発して固体になってからは、溶出されない成分があると考えられる。詳細は発表にて報告する。

[1] 第 17 回「環境放射能」研究会、茨城県 高エネルギー加速器研究機構、2016 年 3 月

Study of depositing and eluting behaviors of radioactive materials discharged by severe nuclear accident to forest vegetation  
ZHANG Z., NINOMIYA K., YOSHIMURA T., HURUKAWA J., SHINOHARA A.

# 1B01

## $^{48}\text{Cr}$ の半減期精密測定

(東北大電子光セ<sup>1</sup>、京大炉<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>)○菊永英寿<sup>1</sup>、高宮幸一<sup>2</sup>、  
大槻勤<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>

**【はじめに】** 電子捕獲過程による壊変 (EC 壊変) では軌道電子が原子核に取り込まれるため、化学状態などの外的要因によりその壊変確率 (半減期) は変化する。内殻電子ほど捕獲確率が高くなるため第 2 周期元素の  $^7\text{Be}$  では化学状態の違いにより比較的大きな半減期変化を示し、多くの研究例が報告されてきている[1]。原子番号が大きくなるにつれて内殻電子が化学形の影響を受けにくくなるが、多くの元素で半減期変化が有意に観測できれば化学形トレーサーとしての利用も考えられる。そこで本研究では第 4 周期元素で測定も比較的容易な  $^{48}\text{Cr}$  ( $T_{1/2} : 21.6 \text{ h}$ ) の半減期を精密に測定し、化学形によりどの程度半減期が変わるのか調べたので報告する。

**【実験】** 本研究では Cr(III) の化学形 ( $[\text{CrCl}_3(\text{H}_2\text{O})_3]$ ) と Cr(VI) の化学形 ( $[\text{CrO}_4]^{2-}$ ) で  $^{48}\text{Cr}$  の半減期を測定した。 $^{48}\text{Cr}$  は東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターまたは理化学研究所の AVF サイクロトロンで 50 MeV に加速された  $\alpha$  粒子を約 1.5 puA で 1 時間以上、Ti 金属に照射することで製造した。 $^{nat}\text{Ti}(\alpha, \text{xn})$  反応で製造したクロム同位体は安定同位体を担体として加えて、沈殿分離法またはクペロンを用いた溶媒抽出法によってターゲットのチタンと粗分離した。最終的に陰イオン交換カラム法を用いて精製したクロム同位体は、ほぼ等分にして Cr(III) の濃塩酸溶液および Cr(VI) の水溶液を調整した。

測定は以前  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  の半減期を測定するために制作した高計数率溶液試料測定用の半減期測定装置[2]を用いた。Cr(III) および Cr(VI) の試料溶液約 5 mL をガラスバイアルに封入し、高純度 Ge 半導体検出器で 30 分ごとに交互に位置を変え測定した。測定データは Rb 周波数標準器と同期したフラッシュ ADC ベースの MCA を用いてリストモードで記録した。 $^{48}\text{Cr}$  試料とともに  $^{137}\text{Cs}$  線源を測定し、ピーク強度を比較することによりパイルアップ等の影響を補正した。

**【結果】** 暫定的な結果ではあるが、 $^{48}\text{Cr}$  の 3 価の化学形  $[\text{CrCl}_3(\text{H}_2\text{O})_3]$  と 6 価の化学形  $[\text{CrO}_4]^{2-}$  の半減期測定結果はそれぞれ以下ようになった ( $n = 2$ )。

$[\text{CrCl}_3(\text{H}_2\text{O})_3] : 21.6340 \pm 0.0063 \text{ h}$

$[\text{CrO}_4]^{2-} : 21.6066 \pm 0.0081 \text{ h}$

半減期の違い  $\{T(\text{Cr}^{3+}) - T(\text{Cr}^{6+})\} / T(\text{Cr}^{3+})$  は 0.127(48)% であり、これまで測定されていた 3 価 ( $\text{CrCl}_3$ ) と 6 価 ( $\text{Na}_2\text{CrO}_4$ ) の化学形を持つ  $^{51}\text{Cr}$  の半減期変化量 0.053(21)%[3] と比較して 2 倍程度大きな値となった。今後は  $^{48}\text{Cr}$  の化学分離収率改善や実験再現性の確認などを行うとともに、量子化学計算結果等と比較してどの程度化学形トレーサーとして有用か検討する予定である。

### 【参考文献】

[1] T. Ohtsuki et al., Phys Rev Lett **93**, 112501 (2004).

[2] 菊永他, 2014 日本放射化学学会年会, 1A14.

[3] S. Kakiuchi and T. Mukoyama, Bull Inst Chem Res Kyoto Univ **59**, 27 (1981).

Precise measurement of the half-life of  $^{48}\text{Cr}$   
KIKUNAGA, H., TAKAMIYA, K., OHTSUKI, T., HABA, H.

# 1B02

## 反跳核捕集し、化学調製した $^{229m}\text{Th}$ 試料の光子測定

(阪大院理<sup>1</sup>、京大炉<sup>2</sup>、東北大金研・大洗<sup>3</sup>)○安田勇輝<sup>1</sup>、笠松良崇<sup>1</sup>、重河優大<sup>1</sup>、高宮幸一<sup>2</sup>、大槻勤<sup>2</sup>、三頭聰明<sup>3</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

**【緒言】**  $^{229m}\text{Th}$  という核種には  $7.8 \pm 0.5$  eV という非常に低い励起エネルギーを持つ核異性体  $^{229m}\text{Th}$  が存在し[1]、この値は光では波長 160 nm の真空紫外光に相当する。この核異性体は化学状態によって壊変経路（内部転換もしくは  $\gamma$  線遷移）そのものが変化するという非常に興味深い現象が予測されており、実際に内部転換電子測定による観測が最近報告された[2]。更に光子 ( $\gamma$  線) の観測に成功すれば、化学状態による核壊変の変化をより直接的に証明することができる。これまで光子測定に関しては、 $\text{MgF}_2$  ガラスに  $^{229m}\text{Th}$  を打ち込んだ試料から半減期約 6 h の  $^{229m}\text{Th}$  の光子を観測したという報告があるが[3]、この光子の由来として娘核種の壊変によって発生したチェレンコフ光である可能性も指摘されている。

本研究では光子測定によって  $^{229m}\text{Th}$  の脱励起過程の化学状態依存性を観測し、 $^{229m}\text{Th}$  の壊変過程を解明することを目的としている。今回は、反跳核捕集装置[4]と  $^{233}\text{U}$  の電着試料を作製して  $^{229m}\text{Th}$  を  $\text{MgF}_2$  ガラス皿中や金属表面に捕集した試料を調製し、光子測定を行ったのでその結果について報告する。

**【実験・結果】**  $^{229m}\text{Th}$  は親核種である  $^{233}\text{U}$  の  $\alpha$  壊変時に反跳核として得られ、飛び出した  $^{229m}\text{Th}$  を捕集することで親核種から分離することができる。このために薄い  $^{233}\text{U}$  電着試料 ( $17.8 \pm 0.3$   $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) を調製し、反跳核捕集装置を用いて、真空条件下で  $\text{MgF}_2$  ガラス中に  $^{229m}\text{Th}$  を打ち込み、光電子増倍管を用いて 4-10 eV の範囲で光子測定を行った。この際、捕集時間を変化させて複数の試料を調製した。また、 $^{228}\text{Th}$  沈殿を用いて同様の方法で娘核種 ( $^{224}\text{Ra}$ ) 等を捕集し、 $^{233}\text{U}$  試料に不純物として含まれる  $^{232}\text{U}$  系列核種から発生する光子についても測定を行った。 $\text{MgF}_2$  ガラス皿中に  $^{229m}\text{Th}$  を打ち込んだ試料からは先行研究と同様に光子放出の減衰が観測されたが、これらは複数の半減期成分を含むことが分かった。また、 $^{228}\text{Th}$  沈殿を用いて調製した試料からも減衰する光子放出成分が観測された。これらの結果から、 $\text{MgF}_2$  試料からの光子は娘核種の壊変によって発生したものであると考えられる。また、ガス中で反跳核を捕集することにより、化学反応をさせた  $^{229m}\text{Th}$  試料についても調製し、光子測定を行ったので、発表ではこれらの試料についての結果も合わせて報告する。

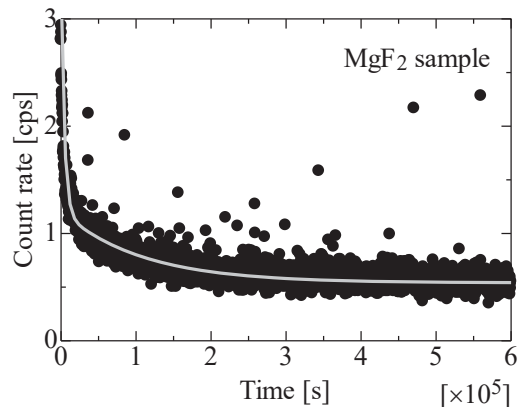


図  $^{229m}\text{Th}$  を捕集した  $\text{MgF}_2$  試料からの光子測定結果

- [1] B. R. Beck *et al.*, LLNL-PROC-415170 (2009).
- [2] L. von der Wense *et al.*, Nature **533**, 47 (2016).
- [3] X. Zhao *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 160801 (2012).
- [4] Y. Shigekawa *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **87**, 053508 (2016).

Search for the photons from the low-lying isomer  $^{229m}\text{Th}$  collected as recoil products.  
 YASUDA, Y., KASAMATSU, Y., SHIGEKAWA, Y., TAKAMIYA, K., OHTSUKI, T., MITSUGASHIRA, T., SHINOHARA, A.

# 1B03

## 80 MeV 単色中性子による隕石構成元素に対する核反応断面積の測定

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

**【序論】** 高エネルギー宇宙線による核反応で生じる、安定核種や長寿命核種の生成は、宇宙化学において重要な知見をもたらす。例えばこれらの生成量から隕石に対する宇宙線照射履歴の推測がなされている。この反応においては、2 次的に発生した高エネルギー中性子が重要な寄与をしており、こうした研究を進める上では核反応断面積の値が必要である。しかし実験的な困難から、50 MeV 以上の高エネルギー中性子による核反応断面積の実験値は不足している。そこで本研究では、中性子を異なる 2 つの方向で利用する手法[1][2]で 80 MeV 単色中性子による核反応断面積を実験的に決定し、またこの値を文献値などと比較することで、80 MeV 中性子による核反応の特徴を明らかにしたので報告する。

**【実験】** 大阪大学核物理研究センター中性子実験室にて 80 MeV 陽子による Li(p,n)反応で生じた中性子のエネルギー分布を TOF 法により測定した。陽子入射方向から 0°と 25°の方向で飛来する中性子のエネルギー分布に違いがあることを利用し、0°のスペクトルから 25°のスペクトルを減算することで 80 MeV 単色の中性子成分のみを擬似的に取り出すことができた。隕石構成元素である 10 種の元素(C, N, O, Mg, Al, Si, K, Ca, Fe, Ni)の単体もしくは化合物に対して中性子を照射した。照射終了後に試料中の核反応生成核を Ge 検出器による  $\gamma$  線測定で同定・定量した。0°照射試料の収量から 25°照射試料の収量を差し引くことで、80 MeV 単色中性子による核反応断面積を 55 の核反応について決定した。

**【結果と考察】** Ni 標的に対する Co 同位体の核反応断面積を図 1 に示す。同エネルギーにおける陽子による核反応[3][4]と比較すると、質量数の大きな核を生じる反応では中性子による核反応断面積の方が大きく、入射粒子によって反応性に違いがあることがわかった。断面積の入射粒子依存は他の核反応においても見られた。核反応に関するこれらの特徴について、発表では本研究グループが実施してきたより高エネルギー領域での実験結果も含めて詳細な議論を行う。

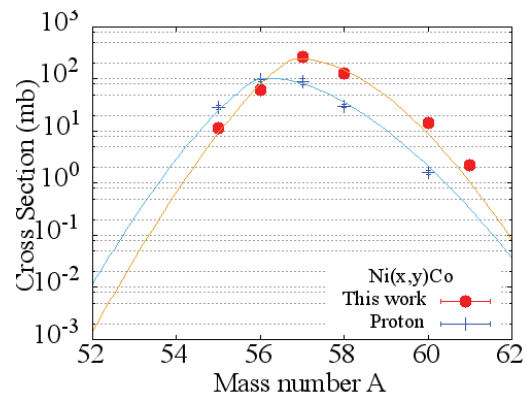


図 1 Ni から生じた Co 同位体の収量分布

### 【参考文献】

- [1]J. M. Sisterson *et al.*, Nucl. Inst. Meth. B, **240** (2005) 617-624
- [2]K. NINOMIYA *et al.*, Proc. Radiochim. Acta, **1** (2011) 123-126
- [3]R. Stueck, INIS, **1** (1983)
- [4]Y. E. Titarenko *et al.*, Phys. At. Nucl., **74** (2011) 573

Cross Sections for Cosmochemically Important Elements bombarded with 80 MeV Monoenergetic Neutrons  
 NANBU, A., NINOMIYA, K., SHIGEKAWA, Y., TAKAHASHI, N., SHINOHARA, A., SEKIMOTO, S., YASHIMA, H., SHIMA, T., HAGIWARA, M., IWAMOTO, Y., SHIBATA, S., M., W., CAFFEE, NISHIIZUMI, K.

## 1B04

 $^{70}\text{Zn}(d,an)^{67}\text{Cu}$  反応による頒布用精製  $^{67}\text{Cu}$  の製造(理研仁科セ<sup>1</sup>, RI 協会<sup>2</sup>) ○矢納慎也<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>1</sup>, 柴田誠一<sup>1</sup>,小森有希子<sup>1</sup>, 高橋和也<sup>1</sup>, 渡邊慶子<sup>1</sup>, 脇谷雄一郎<sup>2</sup>, 山田崇裕<sup>2</sup>, 松本幹雄<sup>2</sup>

【緒言】我々の研究グループでは、将来診断・治療用 RI として期待されている  $^{67}\text{Cu}$  ( $T_{1/2} = 61.83$  h,  $I_{\beta^-} = 100\%$ ) を国内利用者に頒布するため、理研 AVF サイクロトロン (AVF) を用いて、 $^{70}\text{Zn}(d,an)^{67}\text{Cu}$  反応による精製  $^{67}\text{Cu}$  の製造技術開発を進めている[1]。昨年度までに、 $^{nat}\text{Zn}(d,X)$  反応で製造した  $^{61}\text{Cu}$ ,  $^{69\text{m}}\text{Zn}$ ,  $^{66}\text{Ga}$  の放射性トレーサーを用いて、 $^{67}\text{Cu}$  の化学精製スキームを確立し、Cu の化学収率、Zn 標的や副反応生成物である Ga 同位体の除染係数などを評価した[1]。また、高濃縮  $^{70}\text{Zn}$  同位体標的を用いて  $^{67}\text{Cu}$  の試験製造を行い、 $^{67}\text{Cu}$  の製造収率として、 $4.0 \text{ MBq}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$  を決定した[1]。今回、①既報[1]の製造法に基づいて、薬剤標識などの研究に必要とされる  $100 \text{ MBq}$  オーダーの  $^{67}\text{Cu}$  の製造を試み、放射性核種純度、比放射能、不純物化学元素濃度などの品質評価を行った。さらに、②照射後、高価な濃縮  $^{70}\text{Zn}$  標的の回収法を検討した。また、③将来、 $\text{GBq}$  オーダーの製造・頒布を目指し、標的の冷却効率に優れた新しい照射システムを開発し、 $^{nat}\text{Zn}$  金属標的と  $10 \mu\text{A}$  の重陽子ビームを用いて照射試験を行った。

【実験】①  $24 \text{ MeV}$  に加速した重陽子ビーム (ビーム電流:  $4.0 \mu\text{A}$ ) を  $^{70}\text{ZnO}$  ( $^{70}\text{Zn}$  同位体濃縮度:  $96.87\%$ ; 厚さ:  $340 \text{ mg}/\text{cm}^2$ ) に  $10$  時間照射し  $^{67}\text{Cu}$  を製造した。既報[1]の化学分離スキームにより  $^{67}\text{Cu}$  の精製を行い、Ge 検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリーにより精製  $^{67}\text{Cu}$  の放射能と放射性核種純度を評価した。また、ICP-MS による化学元素分析を行い、精製  $^{67}\text{Cu}$  の比放射能、不純物元素濃度を評価した。②さらに、照射済み  $^{70}\text{Zn}$  標的試料を塩酸系陰イオン交換法により精製し、水酸化物として沈殿分離した後、磁性ろつぽ内で強熱し  $^{70}\text{ZnO}$  に転換した。③ He ガスによる標的冷却効率を向上させた照射チャンバーを新規開発し、 $24 \text{ MeV}$ ,  $10 \mu\text{A}$  の重陽子ビームを電着法により作成した熱伝導率が高い金属  $^{nat}\text{Zn}$  標的に  $20$  分間照射した。照射中、標的を He ( $30 \text{ L}/\text{min}$ ) と水 ( $1.5 \text{ L}/\text{min}$ ) によって冷却した。さらに、チャンバー上流に設置したビームウォブラーによりビーム軸を  $120 \text{ rpm}$  で直径約  $3 \text{ mm}$  に回転させ、標的の局所発熱を分散させた。照射後、標的の健全性を目視と重量法により検査した。また、 $^{nat}\text{Zn}(d,X)^{67}\text{Ga}$  反応により生成した  $^{67}\text{Ga}$  の生成放射能を求め、既知の反応断面積[2]より算出した放射能値との比較から、 $10 \mu\text{A}$  のビーム強度による  $^{67}\text{Cu}$  の定量的製造の可能性を検討した。

【結果・考察】①既報[1]の製造法を用いて、 $135 \text{ MBq}$  の精製  $^{67}\text{Cu}$  を製造することができた。放射性核種純度は、 $99.9\%$ 以上 (照射後  $60$  時間で利用するとして評価) であった。製造した  $^{67}\text{Cu}$  は、がんの診断・治療を目指した新規抗体標識薬剤の開発研究に応用した[3]。討論会では、ICP-MS により評価した精製  $^{67}\text{Cu}$  の比放射能や不純物元素濃度などについても報告する予定である。②照射済み濃縮  $^{70}\text{Zn}$  試料の回収率は、 $99\%$ 以上であった。副反応生成物である長寿命  $^{65}\text{Zn}$  ( $T_{1/2} = 244.06 \text{ d}$ ) の生成率は、 $68 \text{ Bq}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$  であり、 $^{70}\text{Zn}$  標的の再利用において  $^{65}\text{Zn}$  の残留放射能は大きな問題にならないことが分かった。③新照射システムの試験においては、照射後に金属  $^{nat}\text{Zn}$  標的の健全性を確認できた。 $^{67}\text{Ga}$  の生成放射能は、照射後、 $47.1 \text{ MBq}$  で、既知の反応断面積[2]より予測される放射能 ( $46.6 \text{ MBq}$ ) に良く一致した。今後  $^{70}\text{Zn}$  金属標的を作成し、 $10 \mu\text{A}$  の重陽子ビームによる  $^{67}\text{Cu}$  の製造を行う予定である。また、将来、 $\text{GBq}$  オーダーの  $^{67}\text{Cu}$  を定期的に頒布していくため、自動化学分離装置の開発も進めている。

[1] 矢納慎也ほか, 2015 日本放射化学会年会・第 59 回放射化学討論会, 1B15, 仙台市, 2015

[2] Tarkanyi *et al.*, Nucl. Instrum. Meth B. **217** (2004) 531-550.

[3] 藤木勝将ほか, 私信.

## 1B05

### 50MeV 重陽子照射で発生する高速中性子による医療用放射性核種の合成研究

(原子力機構<sup>1</sup>、量研機構<sup>2</sup>、千代田テクノル<sup>3</sup>) ○塚田和明<sup>1</sup>、橋本和幸<sup>2</sup>  
初川雄一<sup>2</sup>、川端方子<sup>2,3</sup>、佐伯秀也<sup>2,3</sup>、湊太志<sup>1</sup>、岩本信之<sup>1</sup>、永井泰樹<sup>2</sup>  
須郷由美<sup>2</sup>、渡辺智<sup>2</sup>、石岡典子<sup>2</sup>

【緒言】 核医学用放射性同位体(RI)は、主に癌などに対する高感度の診断及び治療が可能であるため世界中で重用されている。我々は、診断用RIとして<sup>99</sup>Mo(半減期66時間)を、治療用RIとして<sup>90</sup>Y(同64時間)を、そして診断・治療の両方に対応できるRIとしての期待が高い<sup>64</sup>Cu(同12.7時間)及び<sup>67</sup>Cu(同61.8時間)を[1]、安定稼働に定評がある加速器で得られる高速中性子を用いて合成する事を目指して研究を進め、40MeVの重陽子と炭素標的を利用し発生した高速中性子による合成手法が有効であることを実証してきた[2,3]。最近、生成量の更なる増加を目指し、重陽子エネルギーを50MeVに上げると共に、ターゲット物質をBe金属にすることで中性子発生量を増加させるなど更なる改良を行った。本発表では、本手法による対象RI合成の現状と副生成物の影響などについて報告する。

【実験】 量研機構高崎量子応用研究所 AVF サイクロトロンにおいて、加速した 50 MeV 重陽子 (100 nA) を厚さ 9mm の Be 金属ターゲットに 3 時間照射し、Be(d,n)反応で発生した高速中性子を、目的とする RI の合成に利用した。中性子照射量のモニターとして利用する Nb 箔にペレット状の濃縮 <sup>68</sup>Zn 及び <sup>90</sup>Zr 酸化物試料 (10mm φ、約 300 mg) を挟んで、ターゲット前方の空气中に配置し照射を行った。冷却後、照射試料を取り出し、試料の γ 線を測定することによって生成核種を同定・定量した。

【結果と考察】 (n, d)及び(n, pn)反応による <sup>67</sup>Cu、並びに(n, p)反応による <sup>90</sup>Y の合成を確認した。<sup>67</sup>Cu では、40MeV 重陽子と炭素による合成条件[3]と比較して 3.2 倍に増加することがわかった。また、発生する高速中性子は(n, 4n)反応による副生成物までもたすが、<sup>67</sup>Cu の合成においては、副生成物の影響はととも少なく、これまで合成反応として利用されてきた <sup>68</sup>Zn(p, 2p)反応などと比較して、特にターゲットからの分離時に問題となる <sup>64</sup>Cu の生成が少ないなど、重陽子エネルギーを 50MeV にした生成量増加の効果が、副生成物の影響に勝ることが明らかである。ただし、<sup>90</sup>Y の合成では、(n, pn)反応による <sup>88</sup>Y (半減期 106.6 日) の増加が見られるなど、長寿命の副生成物の影響がより顕著に現れることもわかった。<sup>90</sup>Y の合成に関しては、副生成物を考慮した重陽子照射の最適エネルギーに関する検討が更に必要である。

中性子による照射は、100 g を超える大量の試料照射が可能で有り、また試料の冷却も必要ない為どのような化学形での照射も可能である。このことは医療利用に向けた大量合成、そして、その後の分離・精製操作に有利な化合物を直接照射することが可能であるなど、様々な利点が考えられる。<sup>67</sup>Cu の合成においては、本研究に加えて、高速中性子照射の Zn ターゲットを 5 g に、更に重陽子ビームを 3 μ A に増加した実験を進め、マウスを利用する体内分布観測に道を開く、医療利用研究に必要な量の RI 合成に成功している。

- 【参考文献】 1) I. Novak-Hofer and PA. Schubiger: Eur. J. Nucl. Med. 29 (2002) 821.  
2) Y. Nagai et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 064201.  
3) N. Sato et al., J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 073201.

Medical Radioisotope Production with Accelerator Neutrons by 50 MeV Deuterons  
TSUKADA, K., HASHIMOTO, K., HATSUKAWA, Y., KAWABATA, M., SAEKI, H., Minato, F., IWAMOTO, N., NAGAI, Y., SUGO, Y., WATANABE, S. and ISHIOKA, N.

# 1B06

## GARIS-II を用いたホットフュージョン反応 $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}\rightarrow^{286}\text{Cn}^*$ に関する研究

(理研仁科セ<sup>1</sup>、山形大<sup>2</sup>、埼玉大<sup>3</sup>、新潟大院自<sup>4</sup>)○加治大哉<sup>1</sup>、森本幸司<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>、若林泰生<sup>1</sup>、武山美麗<sup>1,2</sup>、山木さやか<sup>1,3</sup>、小森有希子<sup>1</sup>、矢納慎也<sup>1</sup>、後藤真一<sup>4</sup>

### はじめに

新しい気体充填型反跳分離装置 GARIS-II を用いて、ホットフュージョン反応  $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}\rightarrow^{286}\text{Cn}^*$  によって生成する核反応生成物を探索した。この反応系は生成断面積が pb オーダーであり、GARIS-II の最終調整試験となる。

### 実験

実験は、理研重イオン線形加速器 (RILAC) 施設で行った。検出系は、1 台の飛行時間検出器と Si 検出器アレイを用いた。主要な実験条件を以下に示す。

Target:  $312\text{ mg/cm}^2\ ^{238}\text{U}_3\text{O}_8$  on  $3\ \mu\text{m Ti}$

Projectile:  $^{48}\text{Ca}^{11+}$  251.8 MeV (from RILAC)

Intensity:  $5.8\times 10^{12}$  ions/s (0.93 pμA)

Total dose:  $2.2\times 10^{18}$

Magnetic rigidity: 2.23 Tm

Filled gas: pure He at 70 Pa

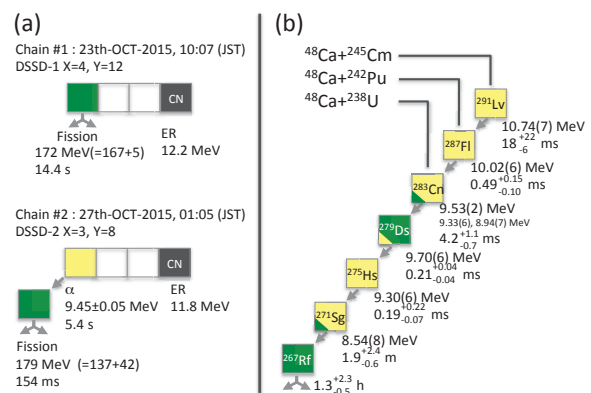


図 1 (a) 得られた二事象の崩壊連鎖。(b) 先行研究の崩壊連鎖[2-4]。DSSD ID 番号、X・Y ピクセル番号、蒸発残留核(ER)の運動エネルギー、および  $\alpha$ /SF の崩壊エネルギーと崩壊時間を与える。

### 結果と考察

正味 4.5 日にわたるビーム照射の結果、二事象の崩壊連鎖を観測した(図 1)。これらは、先行研究 (Dubna-Livermore グループ[1,2]と GSI SHIP グループ[3])で 3n 反応として同定されている崩壊連鎖と同様な特性をもつものであった。GARIS-II の通過効率を 70%と仮定すると、生成断面積は  $s_{3n} = 2.0^{+2.7}_{-1.3}$  pb となる。報告されている生成断面積[1-3]と比較すると、誤差範囲内で一致していることがわかった。今後さらに、最大生成断面積値を与える最適入射エネルギー条件の探索を行い、先行研究の検証を引き続き行う予定である。

本報告では、ホットフュージョン反応に対する GARIS-II の性能(収集効率やバックグラウンド)評価を含め、得られた崩壊特性について議論をする。加えて、新元素研究に向けた装置開発の現状についても報告する。

### 参考文献

[1] Yu. Ts. Oganessian et al., Phys. Rev. C 70, p.064609 (2004).

[2] Yu. Ts. Oganessian, J. Phys. G 34, p. R165 (2007).

[3] S. Hofmann et al., Eur. Phys. J. A32, p.251 (2007).

Study on hot fusion reaction of  $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}\rightarrow^{286}\text{Cn}^*$  using GARIS-II

KAJI, D., MORIMOTO, K., HABA, H., WAKABAYASHI, Y., TAKEYAMA, M., YAMAKI, S., KOMORI, Y., YANO, S., GOTO, S.



1B07

## 103 番元素ローレンシウム(Lr)のタンタル金属表面における吸着挙動

(茨城大<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、新潟大<sup>3</sup>、広島大<sup>4</sup>、名古屋大<sup>5</sup>、大阪大<sup>6</sup>、徳島大<sup>7</sup>、マインツ大<sup>8</sup>、HIM<sup>9</sup>、GSI<sup>10</sup>、PSI<sup>11</sup>、ベルン大<sup>12</sup>、FLNR<sup>13</sup>)

○金谷佑亮<sup>1,2</sup>、佐藤哲也<sup>2</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、水飼秋菜<sup>1,2</sup>、長明彦<sup>2</sup>、牧井宏之<sup>2</sup>、西尾勝久<sup>2</sup>、廣瀬健太郎<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>1,2</sup>、富塚知博<sup>3</sup>、白井香里<sup>3</sup>、佐藤大輔<sup>3</sup>、大江一弘<sup>3</sup>、後藤真一<sup>3</sup>、宮下直<sup>4</sup>、新宮一駿<sup>4</sup>、名桑良<sup>4</sup>、柴田理尋<sup>5</sup>、鎌田裕生<sup>5</sup>、笠松良崇<sup>6</sup>、重河優大<sup>6</sup>、阪間稔<sup>7</sup>、Ch. E. Düllmann<sup>8,9,10</sup>、K. Eberhardt<sup>8,9</sup>、J. Grund<sup>8</sup>、J. V. Kratz<sup>8</sup>、J. Runke<sup>8</sup>、P. Thörler-Pospiech<sup>8,9</sup>、N. Trautmann<sup>8</sup>、V. Pershina<sup>10</sup>、M. Schädel<sup>10</sup>、A. Yakushev<sup>9,10</sup>、R. Eichler<sup>11,12</sup>、P. Steinegger<sup>13</sup>

103 番元素ローレンシウム(Lr)は、強い相対論効果の影響により、その電子配置が周期表から予想される  $[Rn]5f^{14}7s^26d$  ではなく、 $[Rn]5f^{14}7s^27p_{1/2}$  となることが理論的に予想されている。Lr が最外殻電子軌道として  $7p_{1/2}$  を持つ場合、半経験的考察によると、その揮発性は  $d$  軌道に価電子を持つルテチウム(Lu)と比べて高くなる可能性が指摘されている [1]。

Lr は重イオン核融合反応によって合成できる。しかし得られる同位体はすべて短寿命であり、生成量も少ないため、その化学的・物理的性質はほとんど知られていない。我々はこれまでに、表面電離法を応用して Lr の第一イオン化エネルギーを決定し、Lr の最外殻電子軌道が  $7p_{1/2}$  であることを示唆する結果を得た[2]。本研究では、Lr 原子の金属表面への吸着挙動を観測することで、Lr の揮発性について検討した。

実験は原子力機構タンデム加速器施設でおこなった。 $^{249}\text{Cf}(^{11}\text{B}, 4n)$ 反応によって合成した $^{256}\text{Lr}$ (半減期 27 秒)を、He/CdI<sub>2</sub> ガスジェット搬送法によってオンライン同位体分離器(ISOL)に装着した表面電離イオン源へと迅速に搬送し、イオン化した。表面電離に関わるイオン源表面としてはタンタル(Ta)を用いた。イオン化した $^{256}\text{Lr}$ を質量分離後、放射線測定をおこなってイオン化効率( $I_{\text{eff}}^{\text{exp}}$ )を決定した。 $^{79}\text{Rb}$ 、 $^{127}\text{Ba}$ 、 $^{128}\text{Cs}$ 、 $^{143}\text{Sm}$ 、 $^{142\text{m},143}\text{Eu}$ 、 $^{148\text{m},149}\text{Tb}$ 、 $^{153,154\text{m}}\text{Ho}$ 、 $^{157}\text{Er}$ 、 $^{162}\text{Tm}$ 、 $^{165}\text{Yb}$  及び  $^{168}\text{Lu}$  についても同様に $I_{\text{eff}}^{\text{exp}}$ を調べた。得られたイオン化効率と、吸着がないと仮定した場合の推定値( $I_{\text{eff}}^{\text{calc}}$ )との比較のため、両者の比 $r = I_{\text{eff}}^{\text{exp}}/I_{\text{eff}}^{\text{calc}}$ を求めた。イオン源温度範囲 2690~2085 K において、比  $r$  の温度依存性を各同位体について調べた。

その結果、 $^{256}\text{Lr}$  についてイオン源温度の低下に伴って比  $r$  の減少が見られた。Ta 表面に対する吸着エンタルピーが大きい Lu や Tb でも同様の傾向が見られたことから、表面電離の過程で、Lr の一部がイオン源表面への吸着によって失われたと考えられる。このことから、Lr は Ta 表面に対して Lu や Tb と同様な吸着性を示すことが示唆された。

[1] B. Eichler *et al.*, *Inorg. Chim. Acta*, **146**, 261 (1988).

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

## 重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギー

(原子力機構<sup>1</sup>、茨城大院<sup>2</sup>、徳島大<sup>3</sup>、新潟大<sup>4</sup>、大阪大<sup>5</sup>、理研<sup>6</sup>、フローニンゲン大<sup>7</sup>、GSI<sup>8</sup>、マインツ大<sup>9</sup>、CERN<sup>10</sup>)。佐藤哲也<sup>1</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、金谷佑亮<sup>1,2</sup>、塚田和明<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1</sup>、水飼秋菜<sup>1,2</sup>、武田晋作<sup>3</sup>、阪間稔<sup>3</sup>、佐藤大輔<sup>4</sup>、大江一弘<sup>4</sup>、重河優大<sup>5</sup>、牧井宏之<sup>1</sup>、長明彦<sup>1</sup>、市川進一<sup>6</sup>、永目諭一郎<sup>1</sup>、A. Borschevsky<sup>7</sup>、M. Schadel<sup>1,8</sup>、Ch. E. Düllmann<sup>8,9</sup>、J. V. Kratz<sup>9</sup>、T. Stora<sup>10</sup>

原子番号が 100 を超える元素では、加速器を用いた重イオン核反応で合成されるごくわずかな短寿命同位体しか扱うことができないため、その化学的性質はほとんど知られていない。その一方で、このような重い元素の領域では、中心電荷の増大のために相対論効果の影響が顕著となり、最外殻電子軌道まで大きく影響を受ける場合がある。第一イオン化エネルギー(IP<sub>1</sub>)は、最外殻電子軌道にある電子の結合エネルギーを反映するため、実験的に IP<sub>1</sub> を決定することができれば、対象とする原子の電子軌道に関する情報が得られる。

われわれはこれまでに、an atom-at-a-time な取扱いが求められる重元素領域に適用可能な IP<sub>1</sub> 決定法として、表面電離過程を応用した手法を開発し、ローレンシウム(Lr, Z = 103)の IP<sub>1</sub> 測定に成功した[1]。本手法を用いて、フェルミウム(Fm, Z = 100)、メンデレビウム(Md, Z = 101)、そしてノーベリウム(No, Z = 102)の IP<sub>1</sub> を系統的に測定したところ、Fm から No まで、ひとつずつ 5f 軌道に電子が充填していくこと、さらに Lr が No で完成した準閉殻構造に加えて、ゆるく束縛された最外殻電子を持つことを、初めて実験的に示すことができた。

実験は原子力機構タンデム加速器実験施設で行った。本実験系におけるイオン化効率の IP 依存性を調べるため、タンデム加速器からの <sup>11</sup>B ビームによる重イオン核反応で生成した <sup>80</sup>Rb、<sup>157</sup>Er、<sup>162</sup>Tm、<sup>168</sup>Lu、<sup>142,143</sup>Eu、<sup>143m</sup>Sm、<sup>148</sup>Tb、<sup>153,154</sup>Ho、<sup>165</sup>Yb および <sup>49</sup>Cr について、各同位体の表面電離過程におけるイオン化効率を測定した。核反応により生成した核反応生成物は、He/CdI<sub>2</sub> ガスジェット搬送法により、速やかにオンライン同位体分離器(JAEA-ISOL)に装着された表面電離型イオン源へと搬送される。イオン源内で表面電離された核反応生成物は、イオンビームとして引き出され、質量分離される。表面電離にかかわる表面にはタンタルを用いた。質量分離により選別した目的の同位体イオンビームを ISOL 末端で捕集し、放射線測定によりイオン収量を決定する。イオン化効率算出のため、ガスジェット搬送された核反応生成物の直接捕集・測定もあわせて行った。<sup>243</sup>Am(<sup>11</sup>B, 5n)反応で生成する <sup>249</sup>Fm(半減期 2.6 分)ならびに <sup>243</sup>Am(<sup>12</sup>C, 4n)反応による <sup>251</sup>Md(半減期 4.27 分)、<sup>248</sup>Cm(<sup>13</sup>C, 4n)反応により生成する <sup>257</sup>No(半減期 24.5 秒)を用いて、同一イオン化条件下における各同位体のイオン化効率を測定した。

これらの測定の結果得られた約 5.5 ~ 7 eV の範囲で IP<sub>1</sub> 決定に適用可能な IP<sub>1</sub>-イオン化効率相関曲線をもとに、<sup>249</sup>Fm、<sup>251</sup>Md および <sup>257</sup>No のイオン化効率から、Fm、Md および No の IP<sub>1</sub> を求めた。本研究で得られた実験値と、これまでに半経験的および理論計算により得られた推定値とを比較したところ、よく一致し、原子番号が進むにつれ 5f 軌道が充填されていく様子を初めて実験的に明らかにすることができた。

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

The first ionization potentials of heavy actinide elements

SATO, T. K., ASAI, M., KANEYA, Y., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., MITSUKAI, A., TAKEDA, S., SAKAMA, M., SATO, D., OOE, K., SHIGEKAWA, Y., MAKII, H., OSA, A., ICHIKAWA, S., NAGAME, Y., BORSHEVSKY, A., SCHÄDEL, M., DÜLLMANN, Ch. E., KRATZ, J. V., STORA, T.

## 1B09

104 番元素 Rf の同族元素 Zr, Hf の Aliquat 336/HCl 系での  
溶媒抽出挙動

(阪大院理<sup>1</sup>, 阪大理<sup>2</sup>, 理研仁科セ<sup>3</sup>) ○近藤成美<sup>1</sup>, 大内昂輝<sup>1</sup>, 永瀬将浩<sup>2</sup>, 重河優大<sup>1</sup>, 安田勇輝<sup>1</sup>, 笠松良崇<sup>1</sup>, 篠原 厚<sup>1</sup>, 工藤祐生<sup>3</sup>

## 【緒言】

超重元素である 104 番元素ラザホージウム(Rf)は、加速器を用いた重イオン核反応でのみ生成される。その生成率は低く、短寿命であることから、Rf の化学的性質の多くは知られていない。我々は先行研究にて、自動抽出分離装置を用いた Aliquat 336/HCl 系での 104 番元素 Rf の固液抽出挙動の平衡到達を直接観測し、分配係数を取得することに成功した[1]。その結果、Rf は同族元素である Zr や Hf とは異なる分配係数を示した。本実験では、Rf の塩化物錯体をより詳細に調べることを目的とし、その基礎実験として Zr および Hf を用いたバッチ法による溶媒抽出実験を行い、分配比の抽出剤濃度依存性とその希釈剤依存性を調べ、実験条件による塩化物錯体の価数の変化を観測した。また、重元素での溶媒抽出に適したフロー式抽出分離装置(FIA)[2]の開発を進め、大阪大学核物理研究センター(RCNP)の AVF サイクロトロンを用いて Rf での実験を模擬した加速器オンライン実験を行った。

## 【実験と結果】

本実験では、比較的平衡到達の速い陰イオン抽出剤である Aliquat 336 を用いて、水相に 8-11 M 塩酸、有機相には CHCl<sub>3</sub> または CCl<sub>4</sub> を用いて溶媒抽出実験を行った。また、<sup>88</sup>Zr ( $T_{1/2} = 83.4$  d) と <sup>175</sup>Hf ( $T_{1/2} = 70$  d) を RCNP の AVF サイクロトロンにて核反応 <sup>89</sup>Y( $p,2n$ ) <sup>88</sup>Zr と <sup>175</sup>Lu( $p,n$ ) <sup>175</sup>Hf により生成した。バッチ法にてこれらを用いた溶媒抽出実験を行い、Fig.1 のように分配比の抽出剤濃度依存性を得た。CHCl<sub>3</sub> を用いたこの実験ではグラフの傾きが 1.9 となったことから、Zr および Hf の抽出化学種は 2 価の陰イオン錯体であることが示唆された。同様の実験をいくつかの条件で行ったところ、塩酸濃度により抽出剤濃度依存性の傾きに変化が見られた。また、CCl<sub>4</sub> と 11.2 M の塩酸を用いた実験では、傾きは約 1 となったことから、溶媒の違いによる抽出挙動の変化を観測された。

このような塩化物錯形成挙動を Rf に対して調べるために、重元素での溶媒抽出に適したフロー式抽出分離装置(FIA)の開発を進め、FIA を用いた溶媒抽出実験を行った。まず、バッチ法での実験と同様の条件で FIA を用いてオフライン抽出実験を行い、その後 RCNP にて <sup>89m</sup>Zr ( $T_{1/2} = 4.18$  m) および <sup>173</sup>Hf ( $T_{1/2} = 23.4$  h) を合成し Rf 実験を模擬したオンライン実験を行った。オンライン実験では、核反応によって生成した目的核を He/KCl エアロゾルガスジェットで実験室まで運搬した。溶液化装置を用いて水相に溶解させ、有機相と共に FIA に送液することで迅速に抽出分離を行った。Fig.1 に示すように 9-11.2 M HCl を用いた FIA 実験にて得られた分配比はバッチ法を用いた実験で得られた値と近い値であった。このことから、FIA を Rf 実験へ適用できることを確認できた。

[1] 横北卓也 他, 第 59 回放射化学討論会 1B06 (2015).

[2] 中村宏平, 大阪大学理学研究科, 修士論文 (2015).

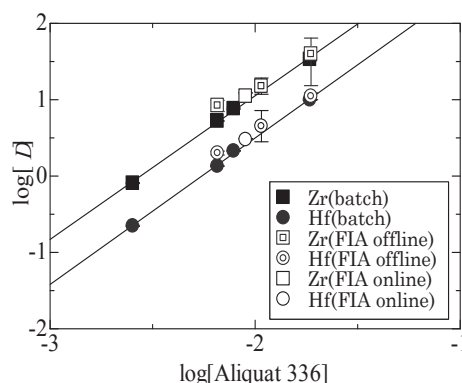


Fig.1 CHCl<sub>3</sub> - 11.2 M HCl 抽出実験結果

Liquid-liquid extraction of Zr and Hf in Aliquat 336/HCl system for the extraction experiment of element 104, Rf

KONDO, N., OUCHI, K., NAGASE, M., SHIGEKAWA, Y., YASUDA, Y., KASAMATSU, Y., SHINOHARA, A., KUDOU, Y.

# 1B10

## 107 番元素bohriumの溶液化学研究に向けた GARIS ガスジェット装置による Re 同位体の製造とフロー溶媒抽出器を用いた Re のオンライン抽出

(理研仁科セ<sup>1</sup>, 新潟大院自然<sup>2</sup>, 原子力機構<sup>3</sup>, 筑波大数理<sup>4</sup>, 東北大電子光セ<sup>5</sup>, 大阪大院理<sup>6</sup>, オスロ大<sup>7</sup>)○小森有希子<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>1</sup>, 大江一弘<sup>2</sup>, 豊嶋厚史<sup>3</sup>, 水飼秋菜<sup>3</sup>, 佐藤大輔<sup>2</sup>, 本山李沙<sup>2</sup>, 矢納慎也<sup>1</sup>, 渡邊慶子<sup>1</sup>, 佐藤望<sup>1</sup>, 山木さやか<sup>1</sup>, 田中泰貴<sup>1</sup>, 加治大哉<sup>1</sup>, 森本幸司<sup>1</sup>, 坂口綾<sup>4</sup>, 稲垣純平<sup>4</sup>, 菊永英寿<sup>5</sup>, 重河優大<sup>6</sup>, 笠松良崇<sup>6</sup>, Jon Petter Omtvedt<sup>7</sup>

**【緒言】**本研究グループでは、106番元素Sgならびに107番元素Bhの溶液化学研究を目指し、理研GARISガスジェット搬送装置に直結した迅速溶媒抽出装置の開発を進めている[1].今回、Bhの同族元素であるReの放射性同位体を用いて本システムの性能試験を行うため、まず ${}^{148}\text{Gd}({}^{23}\text{Na},xn){}^{174}\text{Re}$ 反応により ${}^{174}\text{Re}$  ( $T_{1/2} = 2.4$  min)を製造し、GARISガスジェット搬送装置を用いて効率良く化学実験室に引き出す実験条件を探索した.さらに、GARISガスジェット搬送装置に連続溶液化装置(MDG)およびフロー溶媒抽出器(FSE)を結合し、 $\text{HNO}_3$ -トリオクチルアミン(TOA)/トルエン系における ${}^{174}\text{Re}$ のオンライン溶媒抽出実験を行った.

**【実験】**理研重イオンリニアックで加速した ${}^{23}\text{Na}^{7+}$ イオンを ${}^{148}\text{Gd}_2\text{O}_3$ 標的に照射し、 ${}^{148}\text{Gd}({}^{23}\text{Na},xn)$ 反応により ${}^{174}\text{Re}$ を製造した.標的中心でのビームエネルギーおよび強度はそれぞれ124.3 MeV, 1.6 particle  $\mu\text{A}$ であった. GARISの焦点面にガスジェットチェンバー(直径100 mm×深さ20 mm)を設置し、GARISで分離された ${}^{174}\text{Re}$ をHe中(~80 kPa)でKClエアロゾルに付着させ、He気流(1.5または5 L/min)にのせて化学実験室に搬送した.これをグラスフィルター(ADVANTEC GB100R)に捕集し、Ge検出器を用いて $\gamma$ 線スペクトロメトリーを行い、 ${}^{174}\text{Re}$ の収率が最大となるようGARISの磁場を最適化した.次に、GARISガスジェット搬送装置にMDGを結合し、エアロゾルを0.5 M  $\text{HNO}_3$  (1 mL/min)で連続的に溶解した後、0.005–0.1 M TOA/トルエン (1 mL/min)と混合させ、FSEのテフロンキャピラリー(内径0.50 mm)でフロー溶媒抽出を行った.FSEの分相器で相分離後、両相の放射能比から ${}^{174}\text{Re}$ の分配比を求めた.キャピラリーの長さやTOA濃度を系統的に変化させ、 ${}^{174}\text{Re}$ の分配比を測定した.

**【結果と考察】**化学実験室において、 ${}^{174}\text{Re}$ を60 s間捕集した後の放射能は $13 \pm 1$  kBq/particle  $\mu\text{A}$ であった.0.5 M  $\text{HNO}_3$ –0.01 M TOA/トルエンの抽出系における ${}^{174}\text{Re}$ の分配比は、 $\geq 30$  cmのキャピラリーでバッチ実験から求めた抽出平衡時の分配比に一致した.溶液が30 cmのキャピラリーを通過する時間は約1.8 sと計算され、本手法は半減期10 s程度の ${}^{266}\text{Bh}$  [2]の溶媒抽出実験に適用できると考えられる.しかしながら、TOA濃度が $\geq 0.05$  Mでは、抽出平衡に到達するために、より長いキャピラリーを用いる必要があることがわかった.

[1] 小森有希子他, 2015 日本放射化学会年会・第59回放射化学討論会 1B07, 仙台, 2015年9月.

[2] H. Haba, *Pacificchem* 2015, INOR 1578, Honolulu, Hawaii, U.S.A., Dec. 2015.

# 1B11

Rf 同族元素 Zr, Hf の塩化物に対する等温ガスクロマトグラフィ  
 (新潟大院自然<sup>1</sup>、新潟大理<sup>2</sup>) ○白井香里<sup>1</sup>、押見吉成<sup>1</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、  
 大江一弘<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>2</sup>

【はじめに】これまで Rf の化学的性質を調べるために 4 族元素塩化物の気相化学研究が行われてきたが、得られた吸着エンタルピーは、同族元素の Zr, Hf でもばらつきが大きく、Rf 塩化物の揮発性の議論は困難な状況にある[1]。そこで、当研究室では、Zr および Hf 塩化物について、オフライン実験により詳細な等温ガスクロマトグラフィ挙動の調査を行ってきた[2]。

本研究では、新たな解析手法によりトレーサ量の ZrCl<sub>4</sub> および HfCl<sub>4</sub> の正確な吸着エンタルピーを導出し、石英カラム表面との相互作用についての知見を得るために、様々な条件における等温ガスクロマトグラフィ実験を行った。

【実験】<sup>88</sup>Zr および <sup>175</sup>Hf トレーサを含む塩酸溶液を反応部に設置したカーボンフィルターに付着し、650℃ で空気とともに加熱して酸化物を生成した。つぎに、四塩化炭素を飽和した He ガスを流し 600℃ で四塩化物を生成し、揮発した四塩化物を 75℃ の塩化物捕集部に捕集した。約 90 分後、四塩化炭素の供給を断ち、塩化物捕集部を ZrCl<sub>4</sub> あるいは HfCl<sub>4</sub> の揮発温度以上に加熱した。あらかじめ所定の温度にしておいた長さ 30 cm の等温部を通過した塩化物を水冷捕集部にて捕集し、一定時間ごとに放射能を Ge 半導体検出器で測定して累積収率を得た。

【結果と考察】 Zvára による揮発性化学種のカラム通過モデル[3]では、等温部温度  $T_{iso}$  における平均保持時間( $t_r(T_{iso})$ )は次式で表される。

$$\langle t_r(T_{iso}) \rangle = \frac{LrT_0P}{Q_0P_0} \cdot \sqrt{\frac{2\pi R}{M}} \cdot \tau_0 \cdot \frac{1}{\sqrt{T_{iso}}} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta_{ads}H}{RT_{iso}}\right)$$

$L, r$ : カラム長とカラム半径、 $Q_0$ : 基準状態(温度 $T_0$ , 圧力 $P_0$ )での流量、 $P$ : カラム圧力  
 $M$ : 揮発性化合物の分子量、 $\tau_0$ : 吸着分子の表面での振動周期、 $T_{iso}$ : 等温カラム温度

この式を変形すると  $\ln\{\langle t_r(T_{iso}) \rangle \sqrt{T_{iso}}\}$  が  $1/T_{iso}$  の一次関数となり、傾きから吸着エンタルピーが得られ、装置パラメータ等は切片としてまとめられる。

図 1 にトレーサ量とマクロ量における ZrCl<sub>4</sub> に対する解析結果を示す。当初の予想通りよい直線関係が得られ、その傾きから装置パラメータ等に依存しない吸着エンタルピーとしてトレーサ量では  $-91.9 \pm 1.6$  kJ/mol、マクロ量では  $-81.3 \pm 1.9$  kJ/mol を得た。

講演では、HfCl<sub>4</sub> の結果も加え、この解析手法の妥当性について検討した結果を報告し、さらに、マクロ量とトレーサ量での吸着エンタルピーの違いについて議論する。

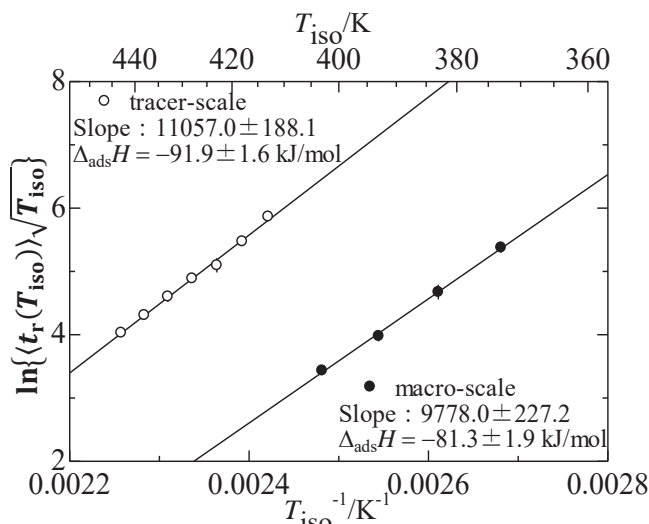


図 1. トレーサ量およびマクロ量における ZrCl<sub>4</sub> の吸着エンタルピーの導出。

## 【参考文献】

- [1] A. Türler *et al.*, *Chem. Rev.* **113**, 1237 (2013).
- [2] 押見吉成 他, 第 58 回放射化学討論会 P08 (2014).
- [3] I. Zvára., *Radiochim. Acta* **38**, 95 (1985).

Isothermal gas-chromatography of chloride of Rf homologues Zr and Hf  
 SHIRAI, K., OSHIMI, Y., GOTO, S., OOE, K., KUDO, H.

# 一般講演

9月11日(日)

2A01 - 2A08 : A会場

2B01 - 2B08 : B会場

## 2A01

### 原子力機構タンデム加速器での ${}^7\text{Li}$ イオンビームを用いたアスタチンとヨウ素放射性同位体の製造と利用

(量研機構量子ビーム<sup>1</sup>、金沢大医薬保健<sup>2</sup>、金沢大(原子力機構)<sup>3</sup>、金沢大理工<sup>4</sup>)

○西中一朗<sup>1</sup>、鷲山幸信<sup>2</sup>、前田英太<sup>3</sup>、谷口拓海<sup>3</sup>、横山明彦<sup>4</sup>、橋本和幸<sup>1</sup>

**【緒言】** がん治療用 RI として注目されている  $\alpha$  放射体  ${}^{211}\text{At}$  (半減期 7.2 h) を  ${}^{211}\text{Rn}/{}^{211}\text{At}$  ジェネレータ( ${}^{211}\text{Rn}$  14.6 h)として供給するための開発プロジェクトを進めている。本プロジェクトでは、ジェネレータを製造するための核反応  ${}^{209}\text{Bi}({}^7\text{Li},5n){}^{211}\text{Rn}$  で使用する  ${}^7\text{Li}$  イオンビームを有効利用し、 ${}^{\text{nat}}\text{Pb}({}^7\text{Li},x){}^{\text{nat}+7-x}\text{At}$ 、 ${}^{\text{nat}}\text{Sn}({}^7\text{Li},xn){}^{\text{nat}+7-x}\text{I}$  で、At、I 放射性同位体を製造、分離して、無担体アスタチンの化学挙動を調べ、ジェネレータ開発に役立てている。本プロジェクトで開発した乾式蒸留に基づく化学分離での無担体 At、I の製造、分離、利用について報告する。

**【実験】** 原子力機構タンデム加速器施設の照射コースに設置した He ガス循環冷却機能を持つ照射装置で、鉛、錫金属の薄膜ターゲットに、60 MeV  ${}^7\text{Li}$  イオンビームを照射し、アスタチン、ヨウ素放射性同位体を合成した。合成した RI は簡易乾式蒸留法によって金属薄膜ターゲットから分離精製した[1]。金属薄膜ターゲットを試験管 (内径 16 mm、長さ 18 cm) に入れ、管内を窒素ガスで置換した後、ポリエチレン系フィルムのデュラシールで二重に密封した。試験管の底から 6 cm の部位を  $650^\circ\text{C}$  に温度設定した電気炉内に挿入して加熱した。その際、試験管内での RI の放射能強度の時間変化を 16 mm 角の窓を持つ厚さ 3cm の鉛遮蔽体内に設置した CdZnTe 半導体検出器で測定した。さらに蒸留後、試験管内壁に付着した RI の放射能分布も測定し、この簡易乾式蒸留法の分離条件を詳細に調べた。

**【結果】** 図 1 に、加熱時の試験管底側 (○) と試験管口側 (●) での At 放射能強度の時間変化を示す。約 10 分間の加熱時間で、融解した鉛から At が蒸留できている。加熱後の試験管内壁に付着した At の放射能分布 (図 2) は、 $650^\circ\text{C}$  に加熱した部位と  $-3^\circ\text{C}$  に冷却した部位の間で極大値を示すことから、試験管口側の冷却により、At を試験管内壁へ効率的に吸着できていることが分かる。講演では、無担体 At、I の塩酸溶液とジイソプロピルエーテル間での分配比[2]など、トレーサーを利用した最新の研究成果についても報告する。

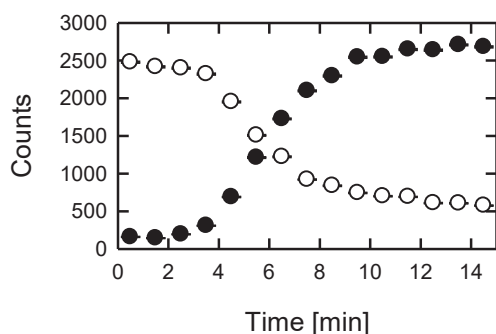


図 1 At 蒸留時の放射能強度時間変化

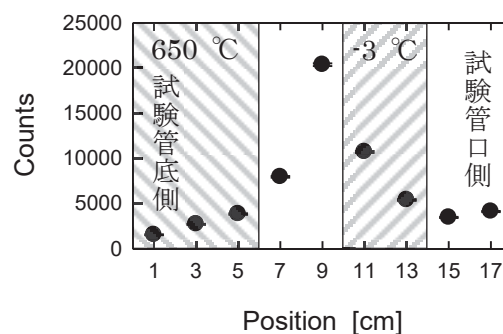


図 2 At 蒸留後の試験管内分布

**【参考文献】** [1] Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 304(2015) 1077-1083.

[2] Maeda et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 303(2015) 1465-1468.

Production and Utilization of Astatine and Iodine Radioisotopes Using  ${}^7\text{Li}$  Ion Beams at the JAEA Tandem Accelerator

NISHINAKA, I., WASHIYAMA, K., MAEDA, E., TANIGUCHI, T., YOKOYAMA, A., HASHIMOTO, K.

## 2A02

### 理研における At-211 製造

(理研仁科セ<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、阪大<sup>3</sup>、RI 協会<sup>4</sup>)○佐藤望<sup>1</sup>、矢納慎也<sup>1</sup>、  
羽場宏光<sup>1</sup>、小森有希子<sup>1</sup>、柴田誠一<sup>1</sup>、渡邊慶子<sup>1</sup>、加治大哉<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1,2,3</sup>、  
高橋和也<sup>1</sup>、松本幹雄<sup>4</sup>

**【緒言】**  $^{211}\text{At}$  は、近年 RI 内用療法での利用が大いに期待されている  $\alpha$  放出核種である[1]。  $^{211}\text{At}$  は短寿命核種 ( $T_{1/2} = 7.214 \text{ h}$ ) であり、また国内に数か所しかない大型の加速器を用いて製造する必要があるため、各加速器施設がネットワークを形成し、利用者に安定に  $^{211}\text{At}$  を供給することが望まれている[2]。我々の研究グループでは、理研 RI ビームファクトリーが将来  $^{211}\text{At}$  の供給拠点の一つとなることを目指し、理研 AVF サイクロトロンを用いて  $^{211}\text{At}$  の製造技術開発を開始した。

**【実験】** AVF で加速した  $\alpha$  ビーム (最大  $12 \mu\text{A}$ ) を  $^{209}\text{Bi}$  金属標的に照射し、 $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$  反応により  $^{211}\text{At}$  を製造した。ビームエネルギーは、静電型ピックアップ[3]を用いて飛行時間測定法により決定した。 $^{209}\text{Bi}$  標的 (厚さ: 約  $20 \text{ mg/cm}^2$ ) は、厚さ  $1 \text{ mm}$  の銅板上に真空蒸着法で作成した。標的をビーム軸方向に対して  $15^\circ$  に傾けて設置し、照射中は、 $^{209}\text{Bi}$  標的側を循環ヘリウム ( $30 \text{ L/min}$ )、銅板側を循環水 ( $1.5 \text{ L/min}$ ) によって冷却した。照射後、既報の気相化学分離法[4]を参考にして、 $^{211}\text{At}$  を  $^{209}\text{Bi}$  標的から化学分離した。まず、 $^{209}\text{Bi}$  標的を銅板ごと石英管 (内径  $34 \text{ mm} \times$  長さ  $20 \text{ cm}$ ) 内に置き、ヘリウムを  $20 \text{ mL/min}$  の流量で流しながら管状電気炉で  $850^\circ\text{C}$  に昇温した。電気炉の温度を  $850^\circ\text{C}$  に  $30$  分間保持し、 $^{209}\text{Bi}$  標的から昇華した  $^{211}\text{At}$  を PFA 管 (内径  $2 \text{ mm} \times$  長さ  $5 \text{ cm}$ ) を通して低温トラップへ搬送した。トラップには、らせん状に結束した長さ  $2 \text{ m}$  の PFA 管 (内径  $2 \text{ mm}$  または  $4 \text{ mm}$ ) または石英管 (内径  $2 \text{ mm}$ ) を液体窒素温度に冷却して用いた。PEEK 管トラップ (内径  $2 \text{ mm}$ ) は、液体窒素とエタノールとの混合溶媒で  $-77^\circ\text{C}$  に冷却した。 $^{211}\text{At}$  の捕集後、トラップを室温に戻し、送液ポンプを用いてトラップ管内を濃塩酸で満たして  $5$  分間放置後、濃塩酸を  $15 \text{ mL}$  送液して (流速  $5 \text{ mL/min}$ )  $^{211}\text{At}$  を回収した。 $^{211}\text{At}$  の生成放射能や化学収率は、Ge 検出器を用いた  $\gamma$  線スペクトロメトリーによって評価した。また、ICP-MS を用いて化学元素分析を行い、標的物質の除染係数、精製  $^{211}\text{At}$  溶液中の不純物元素濃度を評価した。

**【結果と考察】** 標的入射エネルギー  $28.6 \text{ MeV}$  での  $^{211}\text{At}$  の生成収率は  $8.4 \pm 1.3 \text{ GBq/C}$  で、ビーム強度  $0.02 - 10 \mu\text{A}$  の範囲で一定であった。この収率は、IAEA が推奨している  $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$  反応の積算収率[5]から計算した値に良く一致した。内径  $2 \text{ mm}$  のトラップによる  $^{211}\text{At}$  の化学収率は、トラップ管の材質によらず約  $50\%$  であった。 $^{209}\text{Bi}(\alpha, 3n)^{210}\text{At}$  反応によって生成する  $^{210}\text{At}$  は、EC 壊変によって毒性の高い長寿命の  $^{210}\text{Po}$  ( $T_{1/2} = 138 \text{ d}$ ) を生成するため、核医学利用で問題となる。今回の回収溶液中には、 $^{210}\text{At}$  は検出されず、 $^{210}\text{At}/^{211}\text{At}$  原子数比は、 $< 2 \times 10^{-3}\%$  であった。 $^{209}\text{Bi}$  標的の除染係数は、 $> 1.3 \times 10^2$  であった。

[1] F. Guerard *et al.*, *Cancer Biother. Radio.* **28**, 1 (2013).

[2] 羽場宏光, 東北大学電子光理学研究センター研究会「放射性同位元素 (RI) 製造計画と多分野における RI 利用の現状」, 2016 年 2 月 8 日, 仙台市.

[3] 渡邊環ほか, *Proceedings of the 12th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan*, Tsuruga, Japan, 1198 (2015).

[4] K. Nagatsu *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.* **94**, 363 (2014).

[5] S.M. Qaim *et al.* (eds.), *IAEA Technical Report Series No. 473*, IAEA, Vienna, Austria (2011).

Production of At-211 at RIKEN

SATO, N., YANO, S., HABA, H., KOMORI, Y., SHIBATA S., WATANABE, K., KAJI, D., TOYOSHIMA, A., TAKAHASHI, K., MATSUMOTO, M.



## 2A03

### コンプトンカメライメージング用 Tc-95m 及び Tc-96 の生成研究

(量研機構<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、京都大学<sup>3</sup>、東海大学<sup>4</sup>、京都薬大<sup>5</sup>)

○初川雄一<sup>1</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、橋本和幸<sup>1</sup>、佐藤哲也<sup>2</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、豊島厚史<sup>2</sup>、永井泰樹<sup>1</sup>、谷森達<sup>3</sup>、園田信也<sup>3</sup>、株木重人<sup>4</sup>、木村寛之<sup>5</sup>、高田淳史<sup>3</sup>、水本哲也<sup>3</sup>、早川岳人<sup>1</sup>

**【緒言】**テクネチウム - 99m は検出し易い 141 keV のガンマ線と 6 時間の半減期といった優れた核特性ゆえにもっとも広範に核医学診断において用いられており、すでに 30 種類以上の標識化合物が核医学診断薬として開発されている。近年、天体物理学研究用に開発されたコンプトンカメラの核医学診断研究への応用について検討されている。しかしコンプトンカメラの適応には高エネルギーガンマ線放出核種が必要であり、141 keV のガンマ線ではコンプトン散乱の確率がきわめて少なくこの目的には Tc-99m は不適である。Tc-99m の代わりに高エネルギー放出テクネチウム同位体をコンプトンカメラ撮像と組み合わせれば新しい核医学診断法を開発することが可能になる。本研究では 500 から 800 keV の高いエネルギーのガンマ線放出核種である Tc-95m( $T_{1/2}=60$  d)および Tc-96( $T_{1/2}=4$  d)を生成し、これらのコンプトンカメラ撮像実験を行い核医学診断法開発に向けた基礎研究を行った。

**【実験及び結果】**日本原子力機構原子力科学研究所のタンデム加速施設において三酸化モリブデンターゲットへの陽子ビームの照射によって約 20 MBq の Tc-95m を生成した。照射試料は文献 1 に記した分離法により三酸化モリブデンターゲット中に生成した Tc-95m を分離、精製し、分離された Tc-95m 溶液は直径 10 mm のプラスチック容器に封入し撮像実験に供された。コンプトンカメラ撮像は京都大学の電子飛跡検出型コンプトンカメラ (ETCC; Electron Tracking Compton Camera) を用いて行った。ETCC ではコンプトン散乱電子の位置とエネルギー及び散乱ガンマ線の位置とエネルギーが観測され、これらに基づいてイベント毎に解析を行うことにより本来のガンマ線の位置情報を得ることができる。本研究に用いた Tc-95m は 204, 582, 835 keV のガンマ線を放出するが、ETCC によりそれぞれのエネルギーで弁別した撮像した 2 次元スペクトルを図 - 1 に示す。この結果より得られた位置分解能がガンマ線のエネルギーが高くなるほど良い分解能を示していることが分かった。会議では Tc-96 に関する結果も報告する予定である。

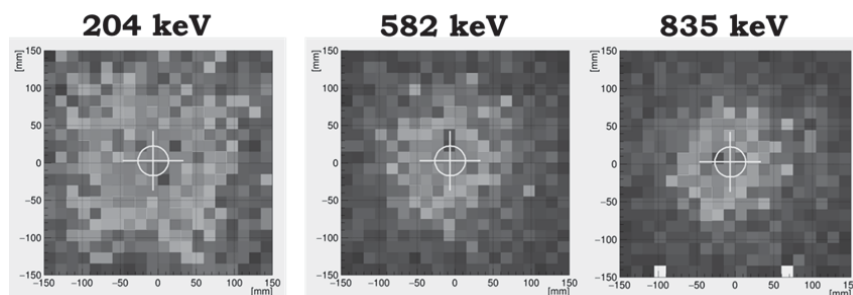


図 - 1 コンプトンカメラ撮像図。  
ETCC により撮像された Tc-95m の画像。中央部白丸は  $\phi$  10 mm の線源の位置及び形状を示している。

文献 1. Y. Hatsukawa, et al., J Radioanal Nucl Chem (2015) 303:1283–1285

## 2A04

加速器中性子利用  $^{99}\text{Mo}$  製造における濃縮  $^{100}\text{MoO}_3$  試料の回収と再利用  
(千代田テクノル<sup>1</sup>、量研機構<sup>2</sup>)○川端方子<sup>1</sup>、本石章司<sup>1</sup>、佐伯秀也<sup>1</sup>、  
竹内 宣博<sup>1</sup>、橋本和幸<sup>2</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、永井泰樹<sup>2</sup>

**【緒言】**我々は、 $^{99}\text{Mo}$  の国内安定供給に向けて加速器中性子を利用して濃縮  $^{100}\text{MoO}_3$  から  $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$  反応で  $^{99}\text{Mo}$  を製造する方法を開発中である。<sup>1)</sup> 本方法で製造される  $^{99}\text{Mo}$  は、高濃縮ウラン(HEU)不使用で放射性廃棄物が少ない反面、HEU の核分裂反応で製造される  $^{99}\text{Mo}$  よりもはるかに比放射能が小さい為、 $^{99}\text{Mo}$  の大量製造のために 100g 以上の  $^{100}\text{MoO}_3$  試料を使用する計画である。具体的には、加速器中性子照射済みの  $^{100}\text{MoO}_3$  を高温で熔融し、 $^{99}\text{Mo}$  から壊変し生成した  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  が昇華、ガス化したものを低温領域で凝縮回収する。その中で  $^{100}\text{MoO}_3$  も一部昇華するが、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  酸化物とは凝固点異なる為、 $^{100}\text{MoO}_3$  のみが針状結晶として析出し単離することが可能である。本製造法においては、 $^{100}\text{MoO}_3$  が高額の為、使用後 ( $^{99}\text{Mo}$  壊変後) の  $^{100}\text{MoO}_3$  試料は高収率で回収し、再利用することが不可欠である。そこで、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  分離後の  $^{100}\text{MoO}_3$  試料を、加熱熔融と水洗浄によって、高い収率で回収する方法を開発した。

**【実験】**加速器中性子照射で生成した  $^{99}\text{Mo}$  が壊変後の  $^{100}\text{MoO}_3$  合計 117g を 3 つの白金るつぼに分割設置し、管状電気炉内において 830℃ で 90 分加熱して、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$  熱分離を模擬的に実施し、 $^{100}\text{MoO}_3$  試料の一部を、るつぼから昇華させ、石英管内の回収部に針状結晶として析出させた。針状結晶は 800℃ 以下の一定の温度領域帯に集中分布して生成されるため、これを取り出し、その石英管を精製水が入ったビーカーに浸して、超音波を用いて回収し、蒸発乾固させた。一方、るつぼに残留した  $^{100}\text{MoO}_3$  は、るつぼごとを上下反転させ 830℃ で 5 分加熱することにより、石英漏斗を通して設置した石英試験管に熔融回収した。この時使用した漏斗を含め、 $^{100}\text{MoO}_3$  が接触する可能性がある他の石英部品も、先に述べた超音波洗浄を実施し、 $^{100}\text{MoO}_3$  を回収した。最後に、 $^{100}\text{MoO}_3$  の混入を防ぐ為に  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  回収部手前に設置した、石英ウールを 830℃ で加熱し、ウールから  $^{100}\text{MoO}_3$  だけを針状結晶として昇華分離させ、洗浄回収した。また、別に少量試料を用いて、1 回で析出した針状結晶を試料上部に設置し、次回の  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  分離時にるつぼ内の  $^{100}\text{MoO}_3$  と共に再熔融させ、複数回の熱分離における  $^{100}\text{MoO}_3$  針状結晶のリサイクルを試みた。

**【結果】**試料として用いた  $^{100}\text{MoO}_3$  117 g の内 94% がるつぼ内に残留、5% が針状結晶として回収部に集中していた。1% 以下  $^{100}\text{MoO}_3$  はウール、あるいは漏斗に付着しており、回収可能であった。試料の回収率は 99% を達成した。また、29 g の試料を用いて、生成した針状結晶を次回加熱分離時に試料上に設置し、試料と共に熔融、再利用することにも成功した (図 1)。 $^{100}\text{MoO}_3$  からの  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  熱分離操作では  $^{100}\text{MoO}_3$  の状態変化のみで化学形が変化しない為、回収が容易である。また、結晶回収にも薬品が不要で、不純物混入の不安が少ないという利点がある。これらの結果から高額な試料  $^{100}\text{MoO}_3$  の再利用は十分可能であり、かつ熱分離毎に結晶を再利用することで、ロスが少ない分離システムをデザインできることが示された。

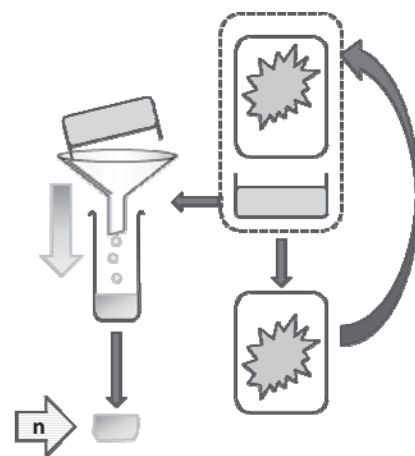


図 1.  $^{100}\text{MoO}_3$  試料と結晶の再利用

1) Y. Nagai et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 064201

Recovery and reuse of enriched  $^{100}\text{MoO}_3$  sample for  $^{99}\text{Mo}$  production by accelerator driven neutrons. KAWABATA, M., MOTOISHI, S., SAEKI, H., TAKEUCHI, N., HASHIMOTO, S., HATSUKAWA, Y. and NAGAI, Y.

## 2A05

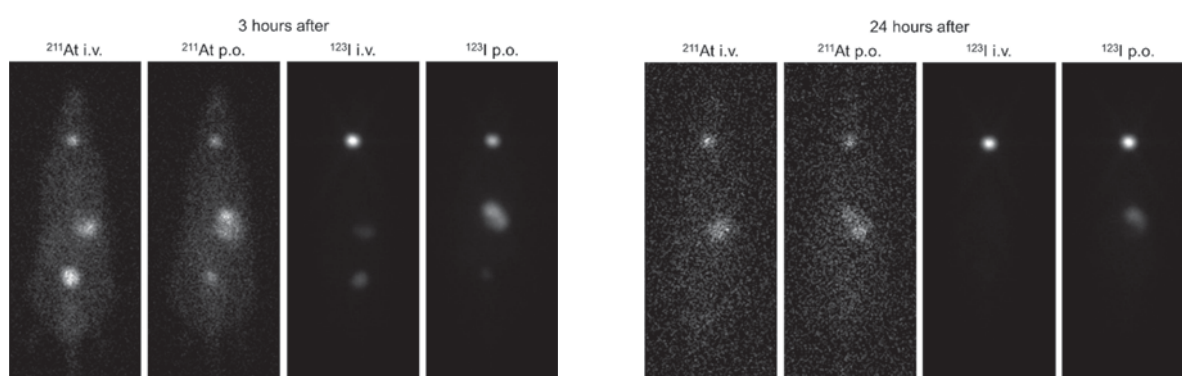
### ガンマカメラによる正常ラットのアスタチン-211 とヨウ素-123 の甲状腺および胃への集積評価

(阪大院医<sup>1</sup>, 森ノ宮クリニック<sup>2</sup>, 京府医大<sup>3</sup>, 阪大院理<sup>4</sup>) ○池田隼人<sup>1</sup>, 渡辺晋一郎<sup>2</sup>, 高橋成人<sup>3</sup>, 篠原厚<sup>4</sup>, 下瀬川恵久<sup>1</sup>, 畑澤順<sup>1</sup>

**【緒言】**ヨウ素-131(<sup>131</sup>I)は古くから内用療法に用いられている核種で、特に甲状腺や胃へ多く集積することが知られている。近年、内用療法に用いる核種としていくつかの $\alpha$ 線放出核種が注目され、日本でも2016年3月に前立腺がんの治療薬として塩化ラジウム-223が $\alpha$ 線放出核種として初めて厚生労働省により承認された。 $\alpha$ 線は $\beta$ 線に比べて飛程が短く線エネルギー付与が大きいことから、内用療法においては治療効果の範囲が限定的であり、周辺正常組織への影響は少ないと期待されている。本研究では $\alpha$ 線内用療法への応用が期待されている核種の一つであるアスタチン-211(<sup>211</sup>At)が、ラットの甲状腺及び胃へどのように集積するのかをガンマカメラを用いて調べた。また体内挙動の比較としてヨウ素を用いたが、本研究ではイメージング核種としてヨウ素-123(<sup>123</sup>I)を用いることとした。

**【実験】**<sup>211</sup>Atは大阪大学核物理研究センターでBi箔に $\alpha$ ビームを照射した後、硝酸溶液より溶媒抽出法により精製したものをを用いた。また<sup>123</sup>Iはヨウ化ナトリウムとして富士フィルムRIファーマより購入したものをを用いた。2週間ヨード制限下で飼育した正常ラット(Wistarラット, ♂, 投与時12週齢)に<sup>211</sup>Atまたは<sup>123</sup>Iを静脈注射および経口により投与した。投与後25分, 3時間, 6時間, 12時間, 18時間で10分間ガンマカメラによる撮像を行った。24時間後と48時間後は20分間の撮像を行った。得られた画像から甲状腺および胃に関心領域を設定し、投与時刻へ補正を行った放射能を投与方法および核種によってその摂取率の比較を行った。

**【結果】**甲状腺への<sup>211</sup>Atおよび<sup>123</sup>Iの摂取率のピークは、静脈注射および経口のいずれも投与後6-12時間であった。<sup>211</sup>Atの摂取率は<sup>123</sup>Iの1割程度であった。胃では投与直後をピークとして摂取率が低下した。



(Figure 1) 3時間後(右), 24時間後(左)のガンマカメラで撮像したラットのプレーナー画像

Evaluation of Astatine-211 and Iodine-123 Uptakes for Thyroid Gland and Stomach of Normal Rats by Gamma Camera  
 IKEDA, H., WATANABE, S., TAKAHASHI, N., SHINOHARA, A., SHIMOSEGAWA, E., HATAZAWA, J.

固形癌の発症メカニズムを、がん細胞に至る前駆細胞の生成過程と、生成した前駆細胞が長い潜伏期間を経てがん細胞へと転移する過程とに分割し、さらに後段の転移過程の期間中には免疫作用が働くというモデルを作り、広島・長崎原爆被爆者に見られる固形がんの罹患率を数学的に取り扱うことを試みた。

数学的モデルの構築に当たっては、固形がんの発症の三つの素過程がいずれも放射能の生成・崩壊現象と数学的に同等の方程式で表されることを導き出して簡単な数式にまとめることができた。得られた数式を広島の放影研のレポート<sup>1)</sup>に記載された33個の罹患率データに適用して、一応満足の行く再現性を得た。

これらのデータは、潜伏期間が6年で比較的緩やかな経年変化を示すグループと、潜伏期間が15～27年と長く急激かつ複雑な経年変化を示すグループの二つに別れ、前者が全体の2/3、後者が1/3の分布になった。ほとんどの固形がんが発症頻度は別にして、男性と女性で全く同じ症状を示すことが見られるが、稀に男女間で全く異なる症状を呈するケースがあることが注目される。

もしこの数学モデルが正しいとすれば、これまで訂正的な概念でしかなかった潜伏期間というものが、固形がん毎に正確に予言できること、がん発症に対する最も有効な予防手段は前駆細胞からがん細胞への転移過程の間に、比較的低線量の継続的な照射によって、免疫抑制分子を破壊し続けることであることを示唆したことが最大の成果と言える。ただし、このがん発症を抑える予防措置は効果があるがんと効かないがんがあることも示している。このモデルは、予防のための放射線治療の効果の程度をがん毎に的確に示すことができる。

今回導出した数式は、前駆細胞数の初期値を0にすれば、原発事故の被災者にそのまま適応可能であり、それによって応用性を広げることができる。もし平常時に於ける固定がんの年齢別罹患率が与えられれば、通常のがんについても同様の議論が展開できて、がんに対する予防策を生み出せる可能性がある。

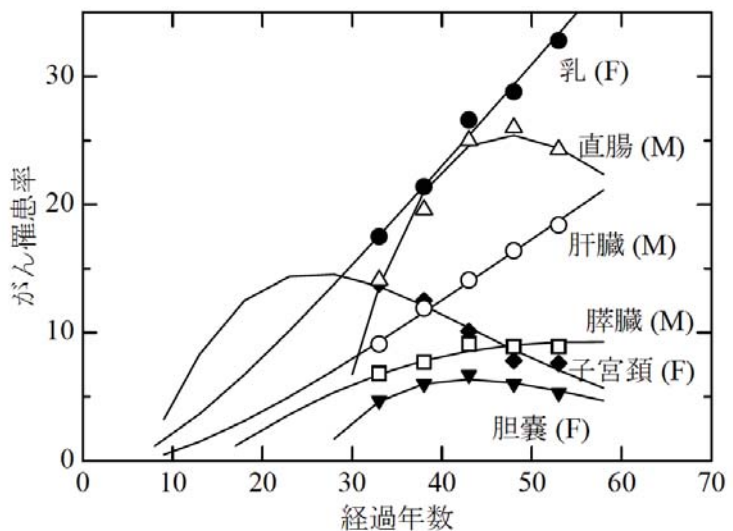


図1. 広島・長崎原爆被爆者のがん罹患率の経年変化

#### 参考文献

- [1] D. L. Preston *et al.*, Radiat. Res. **168**, 1-64 (2007).

# 2A07

## ベータ線スペクトロメトリー

(お茶大理<sup>1</sup>、JRIA<sup>2</sup>、サンゴバン<sup>3</sup>)

○古田悦子<sup>1</sup>、星野萌生<sup>1</sup>、草間経二<sup>2</sup>、渡辺裕夫<sup>3</sup>

【緒言】 ベータ線は、線スペクトルを示すアルファ線・ガンマ線と異なり、連続スペクトルを示す。このため、スペクトロメトリー、すなわちエネルギースペクトルを測定し、放射性核種を同定することは難しいと考えられてきた。一方、従来のベータ線の利用は、生命科学系の非密封放射性同位元素として代謝研究などに限定され、その測定には、もっぱら液体シンチレーションカウンター (LSC) が用いられている。原発事故後は、環境中にも核種不明のベータ核種が存在する。LSC は、一般にスペクトルを示すことができるが、液体シンチレータに放射性物質を溶かし込む 4 $\pi$  測定では、必ずクエンチングが発生し、その最大エネルギーは低エネルギー側にシフトする。液体シンチレータに代えて、有機廃液の発生しないプラスチックシンチレータ (PS) を用いる方法<sup>1)</sup> があり、PS 法では、色クエンチング以外は起こらず<sup>2)</sup>、核種同定が可能である。しかし PS を用いた場合にクエンチングが起こらないとする評価は、電氣的に MCA の 1 チャンネルを 0.5 keV としていることに基づいている。今回、線スペクトルを示す内部転換電子を用い、チャンネルとエネルギーの関係を求め、かつ、PS 以外に分解能が異なると考えられる無機シンチレータを用いた場合について測定した。

【実験】 ホトマルは PMT; H-6231 (浜ホト) に、プラグインタイプの MCA ; Sensor Kit MCA 8 stage +HV, Part Number 600-7889 (サンゴバン) をつないだホトマル 1 本を、遮光ボックスに入れ測定器とした。2 種類のシンチレータ ; PS (サンゴバン) と GSO (オキサイド) を PMT 正面に置き、内部転換標準線源 ; <sup>207</sup>Bi (482, 554, 976, 1048 keV)、ベータ線標準線源 <sup>147</sup>Pm ( $E_{max}$  = 225 keV), <sup>60</sup>Co ( $E_{max}$  = 318 keV), <sup>36</sup>Cl ( $E_{max}$  = 709 keV), <sup>204</sup>Tl ( $E_{max}$  = 764 keV) (以上 Eckert & Ziegler)、および非密封の放射性同位元素 <sup>3</sup>H ( $E_{max}$  = 18.6 keV), <sup>14</sup>C ( $E_{max}$  = 18.6 keV), <sup>35</sup>S ( $E_{max}$  = 167 keV) (以上 Methionne; Moravek Biochemicals) を PS 等に滴下した試料を作成・測定し、エネルギーとチャンネルの関係を求めた。用いたシンチレータの特徴を表に示す。

【結果および考察】 2 種類のシンチレータのいずれを用いた場合でも、エネルギーの近い <sup>207</sup>Bi のピーク 2 本は完全な分離は出来なかった。しかし、その分解能は異なり、スペクトル形状は明らかに異なった。スペクトルのピークトップとなるチャンネルとエネルギーの関係は、いずれの場合も良好な直線関係を示した。同じゲインで 0~1000 keV を超す直線性を得ることは、BG の関係で難しいものの、ゲインを変えることにより、<sup>207</sup>Bi の 2 本の低エネルギーピークトップと非密封のベータ線のスペクトルエンドポイントも、良い直線関係を示した。

今後環境試料の測定を試みる予定である。

表 有機・無機シンチレータの特徴		
	Plastic scintillator	Gadolinium silica oxide
Product	PS : BC-400	GSO
Base compounds	Polyvinyl toluene	Gd <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub>
Density (g cm <sup>-3</sup> )	1.032	6.71
Rise time (ns)	0.9	5~10
Decay time (ns)	2.4	30-60
Wave length (nm)	420 (Max.;423)	430
Refractive index	1.58	1.87

1) FURUTA, E., et al., Radiocarbon, LSC 2008, 19-26 (2009)

2) 加藤結花 他, 日本放射線安全管理学会第 14 回学術大会、平成 27 年 12 月 2-4 日、P10

Beta-ray spectrometry

FURUTA, E., HOSHINO, T., KUSAMA, K., WATANABE, Y

## 2A08

### 液体ライトガイドを用いる新しい $\gamma$ 線検出器の開発(第一報)

(東理大<sup>1</sup>、産総研<sup>2</sup>、U-VIX<sup>3</sup>、東大総<sup>4</sup>)

○野村貴美<sup>1</sup>、柚木彰<sup>2</sup>、細田和夫<sup>3</sup>、森戸祐幸<sup>3</sup>、寺井隆幸<sup>4</sup>、寺島千晶<sup>1</sup>

**【緒言】**液体シンチレータを含むライトガイド(LSLG)に光電子増倍管を連結した新しい $\gamma$ 線検出器を作製した。これは、フレキシブルな検出器なので測定対象物の形状に合わせて、巻き付けることもできる。放射線場の強いところの位置検出器として、たとえば配管内部などの狭い空間の放射線測定ができ、現場の状況に応じて迅速な放射線測定に供することができる。また、廃水槽や貯水槽の水中の放射能の分布測定や石油タンクのレベル計としての応用や土壌中の垂直分布の測定にも利用の可能性がある。ガラスファイバーやプラスチックファイバーの放射線位置検出器などが開発されてきたが、細いファイバー故に複雑な構成になっている。今回開発した LSLG 検出器は、非常に簡単な構造で太さも自由に換えられ、汎用性のある検出器である。まず、第一弾として  $\gamma$  線に対する基本的な応答特性について報告する。

**【実験】**フレキシブルなプラスチックチューブ内を低い屈折率の皮膜でコーティングし、そこに液体シンチレータを注入して石英ガラスの窓を装着した。これをフレキシブルな保護チューブ(アルミニウムとプラスチック)に入れて光電子増倍管を取り付け、LSLG 検出器を作製した。LSLG チューブの太さが異なるものを用意した。LSLG チューブの中心位置から 1.5cm に離して設置した Cs-137 の点線源のパルス波高スペクトルを測定した。

**【結果】** 図 1 は、長さ 1 m、内径 5 mm と 10 mm の LSLG 検出器を用いて光電子増倍管に近い所と遠くの所で測定したパルス波高スペクトルを示す。発光波長は、約 420 nm である。線源を光電子増倍管から遠ざけると光の強度の減衰に伴い、波高値は小さくなる。しかし、カウント数は、線源位置にあまり寄らずほぼ一定の値を示した。この減衰から放射線の位置が検出される。LSLG の内径を 2 倍すると検出効率は、3.2-3.6 倍になった。1m と 2m の LSLG を接続して 3m の LSLG 検出器としても利用できる。LSLG を円形にしてその中心に点線源を置いて測定した結果、一様に減衰したパルス波高スペクトルが得られた。これは LSLG により一様な放射線場の平均線量を測定したことになる。詳しいことは当日発表する。

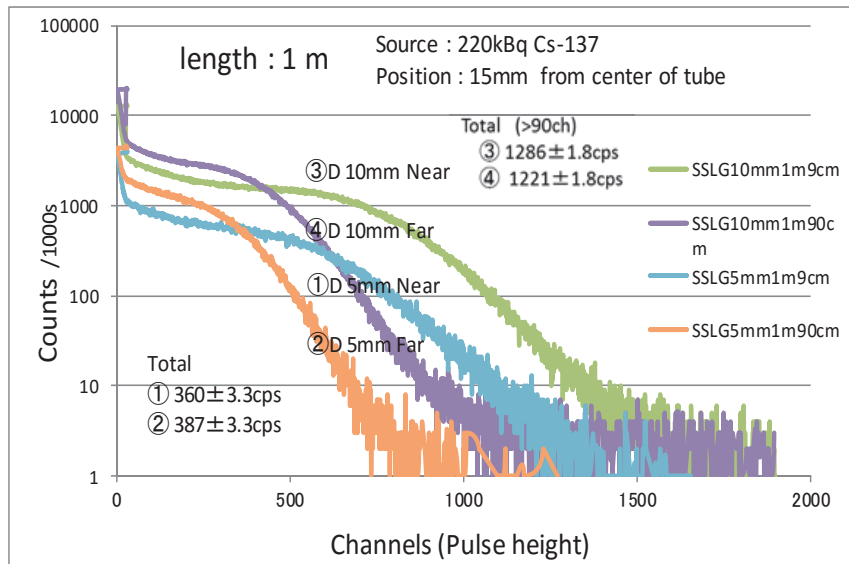


図 1 内径 5mm と 10mm の LSLG 検出器のパルス波高特性

## 2B01

### 高速中性子照射による核反跳効果を用いた放射性 Sr@C<sub>60</sub> の生成

(首都大院理工<sup>1</sup>、量子機構<sup>2</sup>)○秋山和彦<sup>1</sup>、宮下由香<sup>1</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、  
久富木志郎<sup>1</sup>

【はじめに】 籠上分子フラーレン C<sub>60</sub> に金属原子を内包した M@C<sub>60</sub> (M は金属原子を、@ は内包された状態を示す。) はその構造的・電子的興味から金属フラーレン発見当初より非常に関心を持たれてきた。しかしながら、M@C<sub>60</sub> は一般的な金属フラーレンの抽出溶媒には不溶であり、Li@C<sub>60</sub> を除いた M@C<sub>60</sub> については現在まで単離にすら至っていない。

一般的な M@C<sub>60</sub> の合成は他の金属内包フラーレンと同様にアーク放電法で行われることが多いが、副生成物として得られる大量のススからの分離・抽出が非常に困難である。このようなフラーレン類以外の副生成物の発生を抑える M@C<sub>60</sub> の合成法として、近年、プラズマシヤワー法[1]や核反跳現象を利用した放射性金属フラーレン合成法[2-3]などの金属原子を直接 C<sub>60</sub> へ注入する手法が注目されている。

我々は、これまでに DT 反応で生じる 14MeV 高速中性子をフラーレン C<sub>60</sub> とストロンチウム(Sr)塩の混合物に照射することで、(n,2n)反応によって反跳した <sup>85</sup>Sr が C<sub>60</sub> に取り込まれることで放射性 Sr フラーレンが生成することを確認している。本研究ではコールドランにより合成した Sr@C<sub>60</sub> を高速液体クロマトグラフィー (HPLC) 展開し、溶出成分の TOF/MS 測定から、Sr@C<sub>60</sub> 溶出位置を決定し、次いで <sup>85</sup>Sr フラーレン試料を同様の条件で HPLC 展開することで <sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub> の確認を試みた。

【実験】 Sr@C<sub>60</sub> 試料はアーク放電法により合成し、生成したススからアニリンにより抽出した。この試料を用いて HPLC(カラム: Buckyclutcher I、移動相: アニリン)に展開し、溶出成分を 1 分ごとに分画して LD-TOF/MS 測定を行った。また、<sup>85</sup>Sr フラーレンは SrCO<sub>3</sub> と C<sub>60</sub> の混合物に、日本原子力研究開発機構の核融合中性子源(FNS)にて DT 反応で生じる 14 MeV の高速中性子を照射して合成した。この試料をアニリン抽出し、抽出溶液を上記と同様の条件で HPLC 展開し、溶出成分から放出される <sup>85</sup>Sr 由来のγ線を Ge 半導体検出器で測定した。

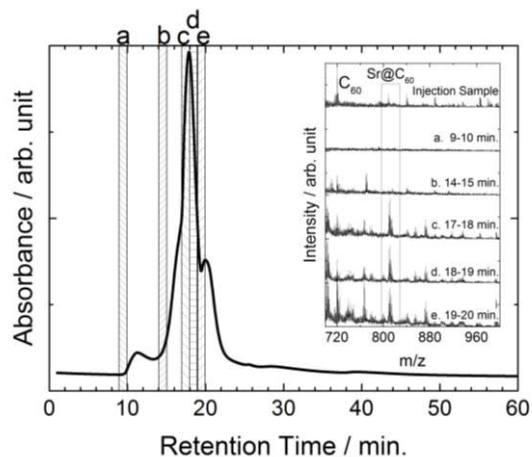


図. Sr@C<sub>60</sub> 試料の HPLC クロマトグラムおよび分画の TOF/MS

【結果】 図は Sr@C<sub>60</sub> 試料の HPLC クロマトグラムおよび溶出成分の TOF/MS である。分画 c, d, e (17-20 min.) の MS (インセット) には m/Z=808.67 に Sr@C<sub>60</sub> 由来のピークが確認できることから、Sr@C<sub>60</sub> は 17-20 分に溶出することが分かった。<sup>85</sup>Sr フラーレン試料を HPLC 展開し、溶出成分のγ線測定を行った結果から、上記 Sr@C<sub>60</sub> の溶出位置に打込み試料の放射能の 0.1% 程度が検出された。これらの結果から <sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub> の収量はおよそ 0.1% であることが確認できた。

【参考文献】 [1] S. Aoyagi *et al.*, *Nature Chem.*, **2**, 678 (2010). [2] T. Ohtsuki *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3522 (1996). [3] M. D. Diener *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **129**, 5131 (2007).

Production of radioactive Sr@C<sub>60</sub> by nuclear recoil phenomenon, AKIYAMA K., MIYASHITA Y., HATSUKAWA Y., KUBUKI S.

【緒言】 金属内包フラーレン (EMF) はフラーレンに金属原子を内包した包接構造を持つ分子であり、放射性医薬品としての応用が期待されている。この様な応用を目指すためには比放射能の高い EMF が必要とされるが、EMF の合成においては副生成物である C<sub>60</sub>, C<sub>70</sub> などの空フラーレンが大量に生成するため、トレーサー量の EMF を高効率で、空フラーレンから分離する方法が求められる。しかし、一般的に分離に用いられている高速液体クロマトグラフィー(HPLC)では多くの時間とコストを必要とするため、より効率的な分離方法が求められる。我々は電子ドナー性物質による EMF の還元し易さと中性フラーレン種の極性溶媒への難溶性を組み合わせた分離を試みてきた<sup>[1]</sup>。本研究では、この分離に用いる極性溶媒ごとの分離効率の差異を、<sup>139</sup>Ce 内包フラーレンを放射性トレーサーとして用い、定量的に比較検討した。

【実験】 <sup>139</sup>Ce を含んだ多孔質炭素棒をアーク放電することにより生成したススを二硫化炭素(CS<sub>2</sub>)で抽出し、<sup>139</sup>Ce 内包フラーレンを含むフラーレン粗抽出物を得た。この CS<sub>2</sub> 溶液にトリエチルアミン(TEA)を約 1 : 20 の割合で混合したアセトニトリル(MeCN/TEA)、メタノール(MeOH/TEA)、エタノール(EtOH/TEA)溶液をそれぞれ加えて攪拌し、EMF の還元を行った。その後、これらの溶液をメンブレンフィルターでろ過して、ろ液成分とフィルター残渣成分に別した。ろ液成分にはジクロロ酢酸(DCA)を加え、生じた EMF アニオンを中性化し、蒸留水によるデカンテーションで残存する DCA を除去した。これらの溶液の放射能を Ge 半導体検出器で測定することで EMF 全体の回収率を決定した。フィルター残渣成分は、CS<sub>2</sub> で回収し同様に放射能を測定した。また、比較対象として La を含む炭素棒をアーク放電することでフラーレンを合成し、同様の手順で分離を行い、ろ液成分をトルエンに置換して HPLC 分析(カラム : Buckyprep、移動相 : トルエン、流速 : 3.2 mL · min<sup>-1</sup>)を行った。得られた HPLC クロマトグラムのピーク面積から La@C<sub>82</sub> の分離効率を比較した。

【結果・考察】 図 1 はそれぞれの極性溶媒で分離したろ液成分と分離前試料の HPLC クロマトグラム及び各成分から検出された放射能の分離前試料に対する割合を示している。HPLC クロマトグラムから MeCN/TEA を用いて分離を行うと La@C<sub>82</sub> については約 80%回収することができ、大量に存在する C<sub>60</sub>, C<sub>70</sub> を 99%以上除去することが出来ることが分かった。さらに、MeCN では EMF 全体の 50%以上をろ液成分として回収することが可能であることも分かった。このことから、MeCN は用いた極性溶媒の中で最も効率的に EMF と空フラーレンの分離が出来ると考えられる。

[1] 千葉和喜, 首都大学東京大学院 修士論文 (2015).

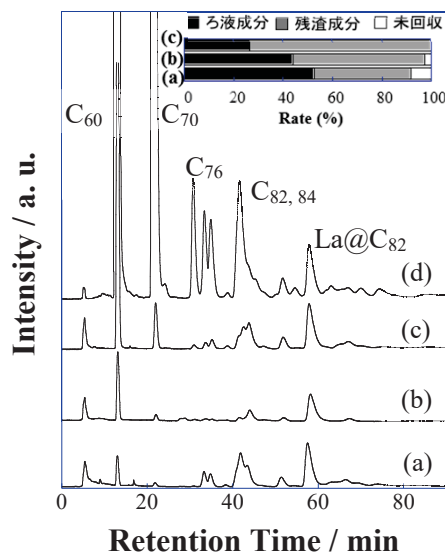


図 1 (a)MeCN/TEA, (b)MeOH/TEA, (c)EtOH/TEA を用いた分離後のろ液成分、(d)分離前のフラーレン粗抽出物の HPLC クロマトグラム及び EMF 全体の各成分の割合



## 2B03

### 酸素、硫黄原子へのミュオン捕獲確率の分子による変化

(阪大院理<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、高エネ研<sup>3</sup>、国際基督教大<sup>4</sup>) ○吉田剛<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、稲垣誠<sup>1</sup>、伊藤孝<sup>2</sup>、髭本亘<sup>2</sup>、ストラッサー・パトリック<sup>3</sup>、河村成肇<sup>3</sup>、下村浩一郎<sup>3</sup>、三宅康博<sup>3</sup>、三浦太一<sup>3</sup>、久保謙哉<sup>4</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

**【緒言】** 電子と同じレプトンに属する素粒子ミュオンは、電子と同じ電荷、電子の200倍の質量を持つ。負の電荷を持つミュオンが原子核の正電荷に捕獲されると、固有の軌道を持つミュオン原子を形成する。ミュオン原子軌道は非常に小さな軌道半径を持つにもかかわらず、原子によるミュオンの捕獲過程は軌道電子の影響を受けることが知られている。実際、我々の過去の研究でもCOとCO<sub>2</sub>で、原子一つ当たりのO原子に対するC原子の相対的な捕獲率が40%も変化することを報告してきた[1]。ミュオン原子形成過程には、もう一つユニークな過程が存在しており、ミュオン転移過程と呼ばれている。これは、一度水素原子に捕獲されたミュオンが移動する反応である。ミュオン転移過程ではミュオン水素の結合エネルギー(2.1 keV)以上のエネルギーを持つ軌道にしかミュオンが捕獲されないため、ミュオンが原子に直接捕獲される時と異なり、転移先原子の電子状態の影響を受けにくいとされている。我々はこれまで、CO、CO<sub>2</sub>を対象とした実験を行ってきたが、今回新たに、COSとCS<sub>2</sub>を対象として、直接捕獲過程および転移過程で捕獲されたミュオンの初期状態を調べたので報告する。

**【実験】** 本実験は茨城県東海村のJ-PARC物質生命科学実験施設ミュオン実験施設(MUSE) D1ビームラインで行った。CS<sub>2</sub>を20 kPaで充填、もしくは、H<sub>2</sub>ガスにCOSおよび、CS<sub>2</sub>を1%の混合比で混ぜたガス(99 kPa)を試料とし、ガスチェンバー(容積7.0 L)に封入後、ミュオンビームを照射した。ミュオン脱励起の際に放出されるミュオン特性X線をゲルマニウム半導体検出器で測定し、それぞれのサンプルにつき9~14時間測定を行った。

**【結果】** 例として、CS<sub>2</sub>のS原子に捕獲されたミュオンが放出するミュオン特性X線(Balmer系列)をK<sub>α</sub>X線で規格化した強度として図1に示す。直接捕獲過程はミュオンが直接CS<sub>2</sub>のS原子に捕獲された時の、転移過程はミュオン水素からS原子への転移により捕獲された時に発するX線である。転移過程ではのL<sub>α</sub>X線強度が直接捕獲の10分の1以下であることが示され、これは、ミュオンが捕獲された初期の量子状態が異なることを表している。講演では、この結果の他にも以前行ったCO<sub>2</sub>の結果と合わせて、C、O、Sから成る直線状3原子分子へのミュオン捕獲について、分子構造の違いによる捕獲過程の変化を議論をする予定である。

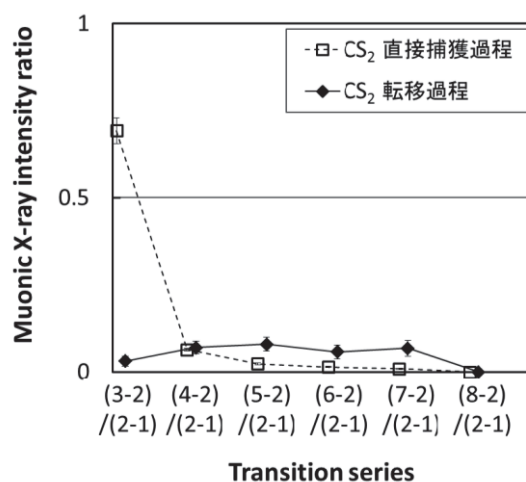


図1 CS<sub>2</sub>のS原子に捕獲されたミュオンが発するミュオン特性X線の放出パターン(Balmer系列)。(2-1)はミュオンが主量子数n=2から1へ遷移する時に発生するX線(K<sub>α</sub>線)を意味する。

#### 参考文献

[1] G. Yoshida *et al.*, J. of Radioanal. and Nucl. Chem. **303** 1277 (2015)

Muon capture probability of oxygen and sulfur atoms and differences attributed to the molecular structure

YOSHIDA, G., NINOMIYA, K., INAGAKI, M., ITO, T.U., HIGEMOTO, W., STRASSER, P., KAWAMURA, N., SHIMOMURA, K., MIYAKE, Y., MIURA, T., KUBO, M.K., SHINOHARA, A.

(東北大理) 木野康志

**【緒言】** 電子の 207 倍の質量をもつミュオンがつくるミュオン分子は、元の原子と比べ束縛エネルギーがほぼ 200 倍、大きさは 200 分の 1 の強く束縛されたコンパクトな系となる。このため核間距離が短くなり、核間の波動関数の一部がクーロン障壁の内側の核力が作用する領域で有意な値をもち、ミュオン分子内で核反応がおこる。ミュオンは、あたかも核反応を触媒しているように見えるため、ミュオン触媒核融合「muon catalyzed fusion:  $\mu\text{CF}$ 」とよばれている[1]。1980 年代末にはエネルギー生産の実現性から大きく注目を集めたこともあったが、ミュオンが核反応で生成したヘリウム原子核と結合し、 $\mu\text{CF}$  のサイクルから外れる「ミュオン付着」とよばれる過程により現在ではエネルギー生産は困難とされている。ミュオンヘリウム原子と水素原子核との高エネルギー衝突によりミュオンがヘリウム原子核の束縛を外れ自由になり、再び  $\mu\text{CF}$  サイクルに戻る「ミュオン再活性化」とよばれる過程がある。一方、重水素・三重水素混合系の  $\mu\text{CF}$  では、 $d+t \rightarrow \alpha+n+17.6 \text{ MeV}$  反応による 14 MeV の単色中性子が一つのミュオンから最大 150 個得られている。この中性子は利用価値が高く、原子炉、核破砕反応に次ぐ第 3 の中性子源として、これまでも原子炉中性子源、核融合炉などの材料研究、長寿命核廃棄物の消滅処理への応用研究が平行して行われてきた。最近、負ミュオンの生成効率が向上し、消滅処理のための中性子源としても  $\mu\text{CF}$  が再び注目をあつめつつある。本研究では、高温非均一プラズマ中で起こるミュオン原子衝突中の核融合反応率の計算を行った。非均一プラズマ中  $\mu\text{CF}$  では、ミュオン付着の確率が減少し、ミュオン再活性化の確率が増加し、高い熱交換効率も期待されている。

**【計算】** ミュオン重水素原子  $(d\mu)_{1s}$  と三重水素原子核  $t$  の弾性衝突  $(d\mu)_{1s}+t \rightarrow (d\mu)_{1s}+t$  と組替え衝突  $(d\mu)_{1s}+t \rightarrow d+(t\mu)_{1s}+48 \text{ eV}$  およびそれらの逆反応の計算を行った。核間相互作用は、 $d+t$  散乱の断面積を再現する光学ポテンシャルを採用した。また、核融合チャネルは、光学ポテンシャルの虚部による吸収で表現した。ミュオンの質量は原子核の質量と比べて無視出来ないため、通常の原子衝突で用いられる断熱近似が適応できない。このため、我々が開発した非断熱組替えチャネルの計算法（ガウス関数展開法[2]）により厳密な量子三体系の計算を行った。また、ミュオン付着の確率を核間距離がゼロになる極限での波動関数とミュオンヘリウム原子軌道との重なりから計算した。

**【結果】** 従来の  $\mu\text{CF}$  の温度条件(10~300 K)とくらべ、高温条件 ( $10^6\sim 10^7 \text{ K}$ ) では、衝突中核融合率は二桁以上増加し、ミュオン付着の確率は一桁減少した。今回得られた計算結果は、今後の実験条件の最適化に利用される。

[1] K. Nagamine, *Introductory Muon Science*, Cambridge University Press, 2007.[2] E. Hiyama, Y. Kino, M. Kamimura, *Prog. Part. Nucl. Phys.* **51**, 223 (2003).

## 【はじめに】

四酸化三鉄 ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、マグネタイト) はキュリー温度 ( $T_C = 858 \text{ K}$ ) 以下でフェリ磁性を示す。工業的応用の可能性から、ドーピングにより磁性や電気特性を制御する試みがさかんに行われている。そのような研究において、不純物元素の宿主物質中での置換位置やその動的挙動に関する情報は大変重要である。我々は先行研究において、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  に不純物として導入したプローブ核  $^{111}\text{In}(\rightarrow^{111}\text{Cd})$  原子が温度に依存してサイト移動するという興味深い現象を観測した。その一方、 $^{111m}\text{Cd}(\rightarrow^{111}\text{Cd})$  プローブは温度に依存せず、一定のサイトに留まっていることを確認した。これらの現象をより深く追及するために、本研究では、非放射性 Cd を不純物としてドーピングした  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  内に  $^{111}\text{In}(\rightarrow^{111}\text{Cd})$  をプローブ核として導入し、摂動角相関(PAC)法を用いて、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  中の  $^{111}\text{Cd}$  位置における局所環境を調べた。

## 【実験】

$\text{Fe}_3\text{O}_4$  粉末と CdO 粉末を原子数比  $\text{Fe} : \text{Cd} = 99.5 : 0.5$  となる分量で混合し、錠剤成形して石英管に真空封入し、1173 K で 45 分間焼成した。石英管を開封してすりつぶしたものを再び錠剤成形し、 $^{111}\text{In}$  塩酸溶液を滴下して、石英管に真空封入後、1173 K で 45 分間焼成した。得られた試料に対して室温から 1173 K の温度範囲で PAC 測定を行った。

## 【結果と考察】

Fig.1 はそれぞれ室温、773 K、873 K で測定した PAC スペクトルである。

$T_C$  以下(Fig.1b,1c)の PAC スペクトルは、周波数分布の異なる 2 つの磁気双極子相互作用を仮定したモデルでフィッティングした。Matos ら[1]が述べるように、周波数分布の大きな成分は  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  粒子表面や粒界領域(“shell”)に存在するプローブ核に、周波数分布が小さな成分は粒子内部の領域(“core”)の陽イオン位置を置換したプローブ核に由来すると考えられる。

$T_C$  以上(Fig.1a)の PAC スペクトルにおいては、熱擾乱により超微細磁場が消失したため磁気双極子相互作用に由来する摂動パターンは見えなくなった。また、新たに動的緩和のパターンを観測した。これは  $T_C$  以下で観測された shell 成分によるものと思われる。発表ではさらに詳細な解析結果を報告する。

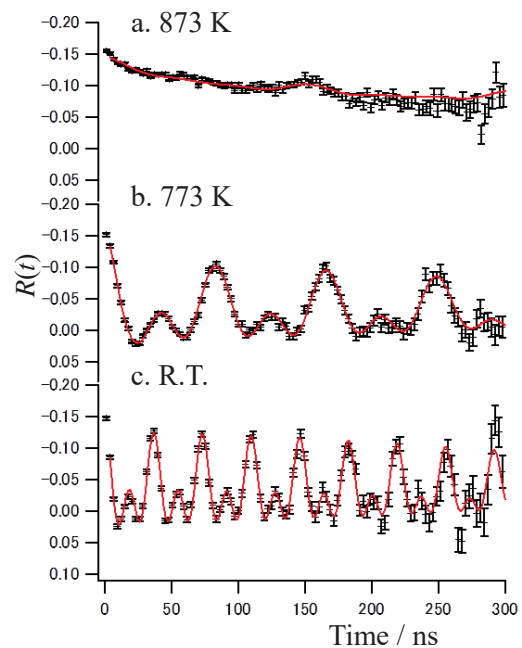


Fig.1 各温度において測定された、0.5 at.% Cd ドープ  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  中  $^{111}\text{In}(\rightarrow^{111}\text{Cd})$  の PAC スペクトル

[1] I. T. Motos *et.al.*, *J.Appl. Phys.*, **117**, 17D511(2015).

Observation of local fields in impurity-doped magnetite by means of perturbed angular correlation spectroscopy  
TAKENAKA, S., FUJISAWA, T., SATO, W.

【はじめに】ペロブスカイト型マンガン酸化物 ( $\text{AMnO}_3$ ) は磁気転移にともなって電気抵抗が桁違いで変化する超巨大磁気抵抗効果 (CMR) を示すことで知られている。マンガン酸化物を機能性材料として応用するためには、バルクの物性情報に加えて磁気特性を微視的に調べることが重要となる。そこで本研究ではマンガン酸化物の中でも顕著な CMR 効果を示す  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  ( $T_C \sim 250 \text{ K}$ ) を研究対象とし、プローブとして極微量の放射性核種を試料に導入して、 $\gamma$ 線摂動角相関法 (PAC) によってプローブ核位置での超微細場を測定した。先行研究において、A サイトに導入した  $^{140}\text{Ce}(\leftarrow^{140}\text{La})$ 核位置における内部磁場を測定することに成功しているが[1]、この比較的大きな磁場の由来は明らかになっていない。そこで本研究では、A サイトを置換することが期待される  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111m}\text{Cd})$ を試料に導入して局所場を測定し、非磁性プローブ核位置での transferred field の有無を調べ、両プローブでの結果を比較することを目的として実験を行った[2]。

【実験】 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  は以下の固相反応で合成した。 $\text{La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MnO}_2$  および  $\text{CaCO}_3$  を当該量秤量して混合し、1273 K での仮焼結後に再び混合・錠剤成型して 1473 K で焼結した。その後、粉末 X 線回折法と磁化測定により目的の試料が合成されていることを確認した。 $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111m}\text{Cd})$ プローブについては、京大炉において  $^{110}\text{Cd}$  で濃縮した  $\text{CdO}$  に中性子を照射することで親核の  $^{111m}\text{Cd}$  を生成した。この放射性の粉末  $\text{Cd}(^{111m}\text{Cd})\text{O}$  を  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  と混合し、空气中で 1373 K で焼結して試料にプローブを導入した。PAC 測定には  $\text{BaF}_2$  シンチレータによる従来の 4 検出器法を採用し、転移点をはさんで室温および 77 K で PAC スペクトルを得た。

【結果】Fig. 1 に 77 K における  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  中  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111m}\text{Cd})$  の PAC スペクトルを示す。転移点以下での測定結果であるため、磁場と電場勾配を仮定した単一成分で解析を行った。その結果、プローブ核位置において内部磁場  $B_{hf} < 0.014 \text{ T}$  が観測されたが、これは  $^{140}\text{Ce}(\leftarrow^{140}\text{La})$ 核位置におけるそれよりも遥かに小さな値である。 $^{111}\text{Cd}-\text{O}-\text{Mn}$  の結合角が  $90^\circ$  に近く、スピン密度の伝播が小さいことを考慮すると、非磁性プローブ位置でのこの小さな内部磁場は尤もらしい値といえる。本講演では、 $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111m}\text{Cd})$ プローブの占有サイトならびに隣接する Mn からの transferred field が  $^{140}\text{Ce}(\leftarrow^{140}\text{La})$ プローブの  $4f$  電子に与える効果について議論する。

#### 【参考文献】

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

[2] W. Sato, S. Komatsuda, A. Osa, T. K. Sato, and Y. Ohkubo, *Hyperfine Interact.* in press.

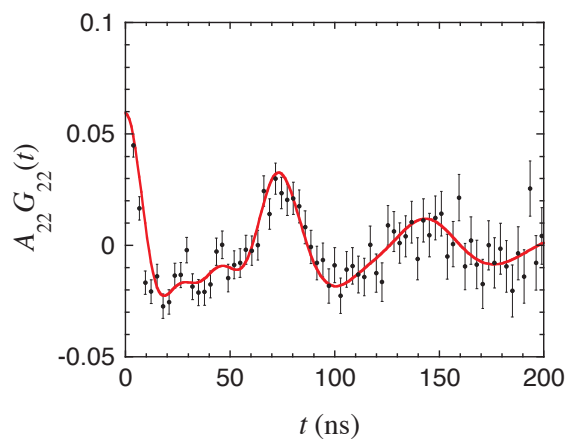


Fig. 1. PAC spectrum of  $^{111}\text{Cd}(\leftarrow^{111m}\text{Cd})$  in  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  obtained at 77 K.

## 2B07 ZnO の酸素空孔形成過程における雰囲気依存性

(一関高専<sup>1</sup>、金大理工<sup>2</sup>、京大炉<sup>3</sup>)○小松田沙也加<sup>1</sup>、佐藤渉<sup>2</sup>、大久保嘉高<sup>3</sup>

【はじめに】酸化亜鉛(ZnO)はドナーとなる 13 族元素(In,Ga,Al)の不純物や試料調製時に形成される酸素空孔といった格子欠陥の存在により半導体物性が向上するといわれているため、ZnO 中の酸素空孔や不純物ドナーが果たす機能、局所構造、その熱的挙動について興味を持たれている。そこで我々は、ZnO に  $^{111}\text{In}$ ( $\rightarrow^{111}\text{Cd}$ )を導入し、これをプローブとして用いた  $\gamma$ 線摂動角相関(TDPAC)法により ZnO の局在量子構造を研究している。先行研究において  $^{111}\text{In}$ ( $\rightarrow^{111}\text{Cd}$ )プローブを用いた TDPAC 測定により、Al と In を不純物として導入した ZnO 中の不純物の局所構造を調べた[1-3]。その結果、空気中での熱処理により ZnO 中に形成された不純物 Al と In の会合が、希薄酸素濃度条件下における熱処理に伴う酸素空孔の形成によって解離する現象を示唆する結果が得られた[2,3]。本研究ではこの解離の機構をより詳細に理解するため、希薄酸素濃度条件下で等温/当時アニリングを施した 100 ppm Al-doped ZnO について TDPAC 測定を行い、解離反応の時間依存性から、反応の速度定数を求めた。さらに速度定数の温度依存性を基に解離の活性化エネルギーを見積もった。

【実験】 ZnO に Al(100 ppm)を空気中における固相反応によって導入した。得られた試料に  $^{111}\text{In}$  塩酸溶液を滴下し、空気中 1373 K で 2 時間焼鈍した。焼鈍した試料のうち数枚をさらに真空中 1123 K で 1~25 時間焼鈍してそれぞれ室温で PAC 測定を行い、解離反応の時間依存性を調べた。得られたスペクトルを解析した結果から、1123 K における解離の速度定数を見積もることに成功した。残りの試料については、真空中 873~1148 K で 24 時間焼鈍したものをそれぞれ室温で PAC 測定を行い、解離反応の温度依存性を調べた。得られたスペクトルの解析結果から、各温度における解離反応の速度定数を見積もった。その後、真空中と同様に希薄酸素濃度条件であるアルゴンガス気流中で同様の実験を行い、解離反応の速度定数について温度依存性を調べた。

【結果と考察】Fig. 1 は解離反応の速度定数を熱処理温度の逆数に対してプロットしたものである。またこのプロットに対し、アレニウスの式を用いてフィッティングを行い、解離反応の活性化エネルギー $E_a$ を真空中においては 0.72(6) eV、アルゴン気流中においては 2.43(10) eV と見積もった。解離反応は ZnO の酸素空孔形成に誘起される現象であることから、この値は ZnO の酸素空孔形成エネルギーに相当する値であると考えられる。理論計算によって得られた真空中における酸素空孔形成エネルギーの値(0.8、1.0 eV)が本実験値に近いことは、解釈の妥当性を示唆している。本発表では酸素空孔形成エネルギー値の違いから、ZnO の酸素空孔形成過程における雰囲気依存性について考察する。

### 【参考文献】

- [1] S. Komatsuda, W. Sato, S. Kawata, and Y. Ohkubo, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 095001 (2011)
- [2] S. Komatsuda, W. Sato, and Y. Ohkubo, J. Appl. Phys. **116**, 183502 (2014)
- [3] S. Komatsuda, W. Sato, and Y. Ohkubo, J. Radioanal. Nucl. Chem. **303**, 1249 (2015)

Atmosphere Dependence of Formation Process of Oxygen Vacancies in Zinc Oxide  
KOMATSUDA, S., SATO, W., OHKUBO, Y.

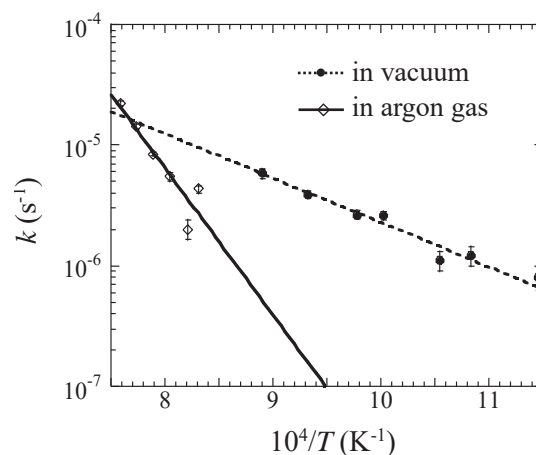


Fig. 1 Temperature dependence of the rate constant,  $k$ . An Arrhenius equation was used for the fit.

【緒言】室温において 3.4 eV の広いバンドギャップを持つ酸化亜鉛(ZnO)は、その性質から発光ダイオードや透明電極などの機能性デバイスへの応用が期待されている半導体物質である。機能性デバイスを製造するにあたり、n 型半導体と p 型半導体が必要となるが、一般に ZnO は n 型半導体の性質を示すため、p 型 ZnO の製造が困難となっている。n 型半導体の性質を示す原因の一つとして不純物水素があり、その濃度は少なくとも 0.3at.%との報告もある[1]。この不純物水素はアクセプターである亜鉛空孔( $V_{Zn}$ )とクーロン相互作用により複合体( $V_{Zn} + nH$ )を形成し、p 型の性質を抑制する。そのため、不純物水素と空孔型欠陥との相互作用を研究することは、p 型 ZnO の開発において重要となる。従って、本研究では陽電子消滅寿命分光法(PALS)を採用し、空孔型欠陥サイトの微視的観察を試みた。これまでに  $V_{Zn} + nH$  の存在は報告されてきたが、形成・解離過程については十分に議論されていない。そこで、 $V_{Zn} + nH$  の形成・解離過程が ZnO の物性に与える影響を理解するため、不純物水素および空孔型欠陥の熱的挙動を調査した。

【実験】ZnO 中の不純物水素の挙動を明確に観測するため、大阪大学の Van de Graaff 加速器を用いて 3.5 MeV の  $^1H^+$  を ZnO 単結晶に照射した(照射量:  $2 \times 10^{17}/cm^2$ )。照射後、約 400 kBq の  $^{22}Na$  を線源として用い、fast-slow 同時計数回路により試料中での陽電子寿命を測定した。得られた陽電子寿命スペクトルを短寿命成分および長寿命成分に分解することにより、各成分の陽電子寿命と成分強度を得た。得られたパラメーターから陽電子の消滅サイトの種類と割合を推定した。また、照射後の試料に 1 時間の等時アニーリングを行い、その後の PALS 測定により不純物水素と空孔型欠陥の熱的挙動を追跡した。

【結果と考察】図 1 に短寿命成分および長寿命成分の陽電子寿命および成分強度のアニーリング温度依存性を示す。照射前の ZnO 単結晶中に、 $V_{Zn}$  のような小さい空孔から 8 個程度の単一空孔で構成される大きな空孔クラスターが存在していることがわかった。 $^1H^+$ 照射後、各成分ともに陽電子寿命が減少したことから、照射された水素が単一空孔や空孔クラスターに捕獲され、複合体が形成されたことが示唆された。その後の等時アニーリングにより、393-573 K における両成分の寿命の増加が観測された。これは、空孔に捕獲された不純物水素の段階的な脱離過程を示唆していると考えられる。また、 $^1H^+$ の脱離により、空孔体積の小さい  $V_{Zn}$  が電荷補償のために陽電子の吸引が増加するため、同温度領域の短寿命成分強度が増加したと考えられる。さらに、773 K までの寿命の顕著な増加は、不純物水素の脱離の促進を示唆している。873 K 以上の温度変化については本発表にて議論する。

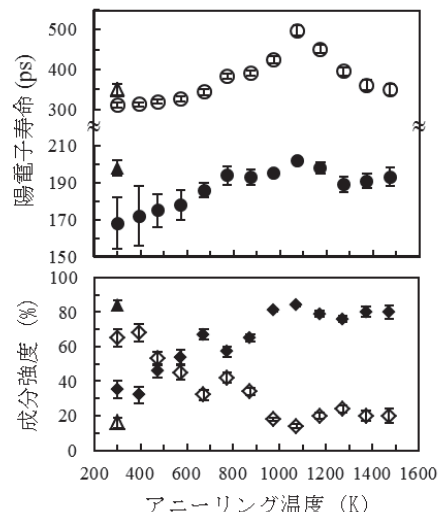


図1 陽電子寿命および成分強度のアニーリング温度依存性。三角のシンボルは照射前に得られたデータであり、塗りつぶしは短寿命成分、白抜きは長寿命成分を示す。

[1] G. Brauer *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 115212 (2009)

Thermal behavior of impurity hydrogen trapped in vacancy-type defects in single crystal ZnO  
SHIMIZU, H., SATO, W., MIHARA, M., FUJISAWA, T., FUKUDA, M., MATSUTA, K.

## 一般講演

9月12日(月)

3A01 - 3A07 : A会場

3B01 - 3B08 : B会場

# 3A01

## トリチウム回収のための酸化銅の表面積依存性

(静大院総<sup>1</sup>、富山大水素研<sup>2</sup>、静大理学領域<sup>3</sup>) ○植村有希<sup>1</sup>、桜田翔大<sup>1</sup>、藤田啓恵<sup>1</sup>、東奎介<sup>1</sup>、原正憲<sup>2</sup>、波多野雄治<sup>2</sup>、田口明<sup>2</sup>、近田拓未<sup>3</sup>、大矢恭久<sup>3</sup>

### 【緒言】

放射線施設では水素同位体のトレーサーとしてトリチウムが用いられるが、元素状（気体）のトリチウムは HEPA フィルター等に捕集されずそのまま環境中に放出される。トリチウム利用の社会的受容性を高めるためには、環境への放出前に簡易かつ効率的な回収が必要である。本研究では、トリチウム実験で用いられ真空容器から排気されたトリチウムガス(HT)をキャリアガスを通じて酸化銅に導入し、トリチウム水とし、水バブラーで回収することとし、その際の効率的回収条件を明らかにすることを目的とした。

### 【実験】

本研究では静岡大学理学部放射科学実験棟に設置されたトリチウムイオン照射装置に排気トリチウムガス回収システムを設置し、実験を行った。本システムでは酸化銅にて HT を酸化したのちに水バブラーを用い、トリチウムを回収する。照射装置から排気された HT は回収ガスとともに一つ目の酸化触媒管（300 – 700 K）を通り、酸化された HT は HTO として一つ目の水バブラーで捕集した。さらに二つ目の酸化触媒管（973 K）にて炭化水素を含むすべてのトリチウムを酸化し、水バブラーにて捕集した。本研究では一つ目と二つ目のバブラー中の水の放射能を液体シンチレーションカウンタにて測定し、得られたトリチウム濃度の比を転換率と定義し、触媒表面積をパラメータとし転換率の酸化触媒温度や回収ガス流速に及ぼす影響を明らかにし、トリチウム回収効率を検討した。

### 【結果・考察】

酸化銅粒径を 0.2 mm および 1.0 mm とした時の転換率の触媒温度依存性を評価したところ、触媒温度の上昇、酸化銅の粒径縮小により転換率が増加することが示された。図に、温度と酸化反応速度のアレニウムプロットを示す。473 K 以上の温度領域では酸化反応の律速段階が一つの反応機構に支配されており、各粒径の酸化銅使用時の酸化反応速度は  $k_1 [s^{-1}] = 5.4 \times 10^5 \exp(-0.65 [eV] / k_B T)$  : 1.0 mm,  $k_2 [s^{-1}] = 1.3 \times 10^6 \exp(-0.64 [eV] / k_B T)$  : 0.2 mm で表された。酸化銅粒径の違いで活性化エネルギーの変化は見られなかったが前指数因子は約 2 倍となった。また回収ガス流速増加とともに反応速度は増加したが、酸化銅粒径 0.2 mm 時の回収ガス流速 50 sccm 以上において酸化反応速度定数はほぼ一定となった。これらのことから解離吸着サイトが酸化銅粒径縮小に伴い増加したことによる影響が示唆された。本発表ではさらに反応管長さ依存性についての検討結果についても議論する。

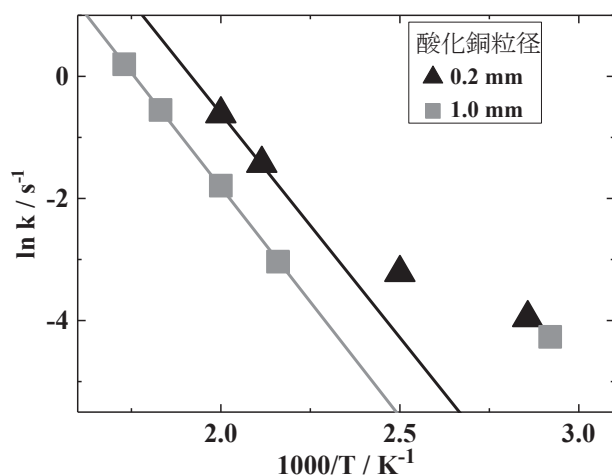


図 各温度における酸化反応速度

CuO surface area dependence for tritium recovery

Y. Uemura, S. Sakurada, H. Fujita, K. Azuma, M. Hara, Y. Hatano, A. Taguchi, T. Chikada, Y. Oya



**【緒言】**

環境中のトリチウムモニタリングでは、陸水、海水、降水などのほか、魚、農産物など生物試料についても調査が行われている。生物試料中トリチウムのうち、組織結合型トリチウム (OBT) の分析では、試料を燃焼させ、発生する燃焼水を液体シンチレーションカウンターで測定を行う手法<sup>1)</sup> が採られることが多い。環境モニタリングを目的とした OBT の前処理は、分析必要量が多く、燃焼装置も大型で操作も煩雑であり分析期間も長期化する。今回はスクリーニングを目的とした OBT 分析の迅速化について検討を行った結果を報告する。

**【実験】**

分析測定 of 迅速化にあたっては目標検出濃度の設定が重要である。これが必要供試量を決定し、処理システムの規模、前処理・測定時間を支配する。本試験では、目標検出濃度を 10 Bq/kg とした。これは Codex に示される OBT の guideline level (for infant food)<sup>2)</sup> の 100 分の 1 であり、スクリーニング目的としては妥当な目標値といえる。

試料の種類は魚類 (可食部) とした。2g の魚乾燥試料を、酸化銅を設置 (800°C に加熱) した石英管中でヒーターにより徐々に昇温し、酸素気流中で燃焼した。燃焼水はコールドトラップ 2 段 (氷水+NaCl 冷却, 及びドライアイス+エタノール冷却) で回収した。回収水を蒸留し精製した後、20mL 低拡散ポリエチレンバイアル中でシンチレータ (Ultima Gold uLLT) と混合し、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター (Hitachi LSC LB7) により 100 分間測定した。また、試料の燃焼水量の理論値を求めるため、元素分析により試料の水素含有率を別途測定した。

**【結果】**

本試験における前処理開始～測定用シンチレーションカクテル作成までの必要時間は 3 時間程度であった。また測定までのカクテル静置時間は、小容量 20mL の測定バイアルを用いるため、5 時間程度と短時間で良いことがわかった (100mL の大容量バイアルの場合は数日静置が必要)。検出下限値は、燃焼水あたりで 40 Bq/L, 魚試料重量あたりで 6 Bq/kg 生であり、スクリーニングとして実用レベルであった。なお、試料の水素含有率から計算される燃焼水量の理論値と実験により得た燃焼水量は良く一致し、燃焼水の回収に問題がないことが確認された。

**【参考文献】**

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 「トリチウム分析法」, (2002)
- 2) CODEX STAN 193-1995

The analysis of organically bound tritium by combustion method  
SHIMA, N., TAMARI, T.

【諸言】2011年3月に発生した東京電力(株)福島第一原子力発電所事故(以下「福島原発事故」という.)影響の把握及び環境試料中のPu濃度レベルの把握, Puと他核種との相関及び起源の推定を目的として, 新潟県内において採取した陸土, 海底土及び海洋指標生物中のPu同位体,  $^{137}\text{Cs}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ を分析した.

【試料】陸土は2011年10月~11月にかけて県内全域で採取した24試料, 海底土は2013年5月に県沿岸で採取した19試料, 海洋指標生物は2013年10月~2014年5月にかけて柏崎刈羽原発沖で採取したホンダワラ12試料を, それぞれ乾燥(ホンダワラは乾燥後灰化)し, 分析に供した.

#### 【分析】

- (1)Pu同位体:放射能測定法シリーズ「プルトニウム分析法」に従い, ステンレス板に電着したPuをSi半導体検出器による $\alpha$ 線スペクトロメトリーを行った. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比及び $\beta$ 線放出核種である $^{241}\text{Pu}$ の分析は, 試料を酸抽出(または電着板のPuをHFを用いて剥離)し, イオン交換によりPuを化学分離後, 四重極型ICP-MSを用いて測定した.
- (2) $^{90}\text{Sr}$ :放射能測定法シリーズ「放射性ストロンチウム分析法」に従い,  $^{90}\text{Sr}$ から生成した $^{90}\text{Y}$ の $\beta$ 線を低バックグラウンド2 $\pi$ ガスフロー計数装置により測定した.
- (3) $^{134}\text{Cs}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ :陸土及び海底土は, 乾燥土約50~100gを, ホンダワラは灰試料約50g(生重量換算で1kg相当)をU-8容器に充填し, 高純度Ge半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトロメトリーを行った. これらの分析は, 放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」に従った.

【結果】測定結果の概要をTable 1に示す.

- (1)新潟県内の陸土, 海底土, ホンダワラ類の $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ の値の範囲は, 福島原発事故前の国内の陸土, 日本海の海底土, ホンダワラから検出された値の範囲内であった.
- (2) $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比,  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比より, 陸土から検出された $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ は過去の核実験に由来するものと考えられた. 海底土とホンダワラは, 過去の太平洋上核実験による海洋汚染の影響を受けていると考えられた.
- (3)土壌及び海底土については,  $^{137}\text{Cs}$ の濃度が福島原発事故前の測定値の範囲を超えた地点があった. また,  $^{134}\text{Cs}$ が検出されていることから, 福島原発事故の影響が考えられた.
- (4) $^{90}\text{Sr}$ は福島原発事故前の値の範囲内で, 福島原発事故の影響はほとんど見られなかった.

Table 1. Analytical result for Pu isotopes,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  concentration and ratio of Pu isotopes in environmental samples

Samples	Concentration units	Pu isotope				$^{90}\text{Sr}$ , $^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$		
		$^{238}\text{Pu}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio	$^{90}\text{Sr}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Soil	Bq/kg-dry	ND ~ 0.098	ND ~ 3.9	0.017 ~ 0.033	0.155 ~ 0.195	ND ~ 3.2	ND ~ 140	ND ~ 230
Sea Sediment	Bq/kg-dry	ND ~ 0.022	0.10 ~ 1.6	0.010 ~ 0.034	0.202 ~ 0.243	ND ~ 0.37	ND ~ 43	ND ~ 93
Sargassum seaweeds	Bq/kg-raw	ND ~ $0.087 \times 10^{-3}$	$2.96 \times 10^{-3}$ ~ $8.85 \times 10^{-3}$	0.011 ~ 0.015	0.199 ~ 0.254	0.031 ~ 0.064	ND	ND

Distribution of long-lived artificial radionuclides in environment of Niigata Prefecture  
Suzuki T., Ono T., Yamazaki K.

**【緒言】** 土壌-植物間移行係数 (TF) について、IAEA は Technical Report Series No.472 において初めて気候別に取りまとめた。Th については、根菜類等の TF は温暖帯の方が高かった一方で、葉菜類を含む葉作物では、熱帯の方が温暖帯よりも 1-2 桁値が高く、気候の影響が考えられた。そこで我々は TRS-472 で採用された以降のデータをさらに収集して報告した (Wang *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. 306, 11-20, 2015)。その中で Th の TF を分析方法によって分類したところ、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる TF 値は明らかに ICP-MS よりも高いという結果を得た。 $\gamma$ 線スペクトロメトリーでは Th そのものではなく子孫核種を測定していることが要因と考えられたが、詳細に検討する必要がある。本研究では、Th の TF が  $\gamma$ 線スペクトロメトリーで正しく計測できるのかどうかについて、検討を行った。

**【材料および方法】** まず最新の文献データを収集・整理し、TF の比較を行った。また、玄米 5 試料とそれらの試料が採取された農耕地土壌試料を用い、ICP-MS と Ge 半導体検出装置による定量を行った。ICP-MS 測定には、粉碎した乾燥試料 (土壌 : 100 mg, 玄米 : 500 mg) に超高純度酸 (HF+HNO<sub>3</sub>) を添加し、マイクロウェーブ分解装置を用いて全分解した。溶液化した試料を蒸発・乾固し、最終的には 2%硝酸溶液に調整した。 $\gamma$ 線スペクトロメトリー用には、風乾土壌および 450 度で灰化した玄米試料を用い、これらを 260mL 容器に 100 mL 分取して密閉し、3ヶ月以上経過してから計測を行った (各 1,000,000 秒)。玄米試料採取から測定までは約 1 年経過していた。

**【結果および考察】** 図 1 に文献調査の結果の一部を示す。文献は J. Radioanal. Nucl. Chem.、Radiat. Prot.、J. Env. Radioactiv.等に 2007-2016 に掲載されたものである。Ge 半導体検出装置の場合、Th-232 から Ra-228 (半減期 : 5.75 y) を経て Ac-228 (半減期 : 6.15 h) になることを利用して、Ac-228 やその子孫核種を用いて Th-232 を定量することが多い。土壌は Th 系列核種がほぼ放射平衡に達しているため、この方法で Th-232 を定量できる。しかし植物試料の場合、Th に比べて Ra が植物に吸収されやすいことに注意しなければ、適切な定量を行うことができない (Uchida and Tagami, J. Nucl. Sci. Technol. 46, 49-54, 2009)。すなわち、Ge 半導体検出装置で得られた Th の TF は、実際には Ra を評価している可能性が高い。

玄米試料を用いて Th の定量を行ったところ、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーで Ac-228 により評価した TF 値は、ICP-MS よりも 1 桁高かった。我々はさらに Th や Ra の植物吸収程度の違いを考慮した濃度の経時変化についてモデル計算を試み、実測値と良い一致が得られた。詳細は講演時に述べる。

本研究の一部は、資源エネルギー庁放射性廃棄物共通技術開発調査等委託費の予算で行われた。

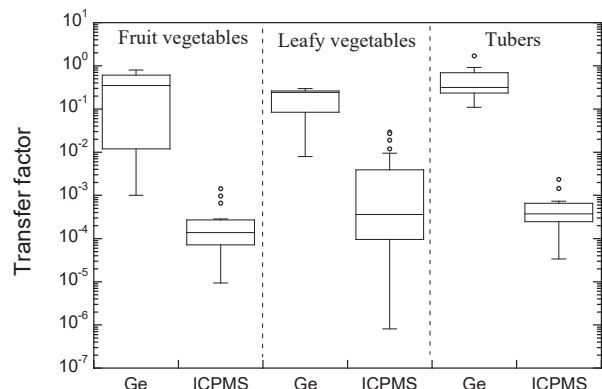


図 1 3 種類の作物への Th の移行係数の分析方法による比較 (文献値)

## 3A05

### ICP-MS/MS による海水中Np-237 測定の試み

(筑波大数理<sup>1</sup>、広島大院理<sup>2</sup>、学習院大理<sup>3</sup>、Agilent<sup>4</sup>、(財)環境研<sup>5</sup>)

○坂口綾<sup>1</sup>、Eigl Rosmarie<sup>2</sup>、本多真紀<sup>1</sup>、大野剛<sup>3</sup>、角田紳一郎<sup>3</sup>、鹿籠康行<sup>4</sup>、高久雄一<sup>5</sup>、山崎信哉<sup>1</sup>、末木啓介<sup>1</sup>

【緒言】 長半減期人工放射性核種  $^{237}\text{Np}$ (半減期  $2.144 \times 10^6$  年)は、海水中に炭酸錯体  $\text{NpO}_2\text{CO}_3^-$ として安定に溶存し、サンゴ等の分析から、表層海水への導入年代および導入量復元が可能であるため、海水循環を追うトレーサーとして利用可能であると予想される。特に近年注目されている海水中の  $^{236}\text{U}$  との比がその発生源により異なるため、これら核種を併せて用いることで水塊起源も特定できる有用なトレーサーとなりうる。しかし、海水中の  $^{237}\text{Np}$  は、1,800 L の試料から煩雑な化学分離法により濃縮・分離生成し、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーで 10 日かけて測定するという方法が 1980 年代に試みられたのみであり、海水循環トレーサーとして用いることは現実的ではなかった。 $^{237}\text{Np}$  を海洋トレーサーとして確立することを最終目的とし、本研究では ICP-MS/MS の感度向上・条件最適化と簡便な化学分離法確立により、数リットルの海水中の  $^{237}\text{Np}$  の測定を試みた。

【実験】 環境試料のような、高マトリクス溶液中に存在する元素の測定に適した ICP-MS/MS の設定では、高質量元素の感度は約 0.1 Gcps/1 ppm であり、予想される  $^{237}\text{Np}$  濃度および使用海水量から計算すると 10 倍以上の感度向上が必要となる。高質量元素の感度を向上させるため、①プラズマへの試料導入効率とプラズマ中でのイオン化率、②分析部へのイオン透過率について検討した。①については、脱溶媒装置(APEX-HF, ESI)により試料溶液を気化させ、ドライエアロゾルとして ICP に導入し、かつ窒素ガスの混合による感度向上を検討した。②についてはインターフェース差動排気部分の真空度、スキマーコーンによるイオンスキミング位置、そしてスキマーコーンの形状およびオリフィス径を変化させて、それぞれのパラメータ変化時のカウント変化から測定条件を最適化した。また、海水中 Np の定量的かつ容易な回収・濃縮操作法を確立するために、水酸化鉄で共沈させた試料を 10 M 塩酸溶液に調整し、ジイソプロピルエーテル抽出で鉄を除去した後に 1-2 ml になるまで加熱濃縮を行った試料中の Np 回収率を試算した。

【結果・考察】 質量数 90 程度の核種について、脱溶媒装置を用いたドライエアロゾル試料の導入により約 10 倍、窒素ガス混合によりさらに約 2 倍の感度向上が見られたが、目的とする質量数 200 以上の核種については、併せて約 7 倍の感度上昇にとどまった。スキマーコーンおよびレンズ形状の変更により質量数 200 以上の核種ではさらに約 5 倍の感度向上が見られた。インターフェース部の圧力を約半分にした場合に質量数 90 程度の核種は 1.3-1.5 倍の感度上昇であった一方、質量数 200 以上の核種で顕著な改善は見られなかった。また、スキマーコーンのスキミング位置を変化させても感度向上は認められなかった。結果として、目的とする質量数 200 以上の核種では、通常的环境試料測定時と比較して約 30-40 倍の感度向上が達成された。

海水試料の化学分離における最終的な Np 回収率は約 50%であった。これは、定量的に Np(V) が共沈していないことが予想され、今後、Np(IV)への還元後に共沈操作を行うことでその回収率を向上させる予定である。

Determination of ultra-low levels of Np-237 in seawater by ICP-MS/MS

SAKAGUCHI, A., EIGL, R., HONDA, M., OHNO, T., KAKUTA, S., SHIKAMORI, Y., TAKAKU, Y., YAMASAKI, S., SUEKI, K.

## 3A06

### ストロンチウム-90 分析用自動化システムの環境試料分析への適用

(原子力機構<sup>1</sup>、KEK<sup>2</sup>、関東技研<sup>3</sup>)○藤田博喜<sup>1</sup>、野島健大<sup>2</sup>、永岡美佳<sup>1</sup>、大澤崇人<sup>1</sup>、小野洋伸<sup>3</sup>

**【緒言】**東電原発事故により環境中に放出された放射性物質のうち、放射性ストロンチウム (<sup>90</sup>Sr) については化学分離操作が必要であり、その分析には長時間を要することから、分析結果は少ない。このため、平成 25 年 1 月から平成 27 年 3 月までの期間において、復興促進プログラム (マッチング促進) として、「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」に取り組み、<sup>90</sup>Sr 分析工程のうち、灰試料 (農畜産物及び海産物) を対象としてストロンチウムを単離するまでの工程を自動化できた。この結果については、前回の放射化学討論会において発表した。

さらに、上記研究期間以降も本システムの高度化を継続しており、いくつかの改良を行い、性能を向上させることができた。現在の自動化システムの概要を報告するとともに、実際の灰試料分析を行い、作業による分析・測定結果との比較結果についても報告する。

**【方法】**<sup>90</sup>Sr 分析工程のうち、湿式灰化工程において、加熱中における突沸を防止するための圧縮空気の吹き付け機能を追加した。また、加熱プログラムについても、一定速度での昇温から 150℃及び 200℃でそれぞれ温度を保持して分解し、最終的に 250℃まで昇温させるように改良した。

次に、化学分離工程において、試薬投入後の試料溶液の攪拌操作を、可搬型垂直多関節ロボットによる攪拌からスターラーによる攪拌に切り替えた。

最後に、イオン交換工程において、イオン交換カラム内の試料溶液量の監視をカメラによる画像認識で行っていたが、レーザー光を利用した監視方法に切り替えた。

上記の改良を行った後、灰化した海藻を試料とし、本システムで分析を行い、試料中 <sup>90</sup>Sr 濃度を求めた。ここで得られた結果と作業による分析結果と比較した。

**【結果】**湿式分解工程において、加熱しながら試料溶液に圧縮空気を吹き付けることで、作業者の攪拌と同様の効果が得られ、突沸を完全に防止することができた。また、これにより、画像解析によるビーカー内の試料溶液の有無の判断が容易となった。

化学分離工程において、スターラーによる攪拌操作を導入することで、試薬投入時の溶解及び pH 調整の時間を短縮できた。

イオン交換工程において、イオン交換カラム内の溶液の有無及び試薬投入時の満水の検知をレーザー光の検知法に切り替えたことで、自動でのイオン交換が確実にできるようになった。

灰化した海藻中 <sup>90</sup>Sr を本システムで分析し、<sup>90</sup>Sr 濃度を測定した結果、計数誤差の 3 倍の範囲内で作業者の分析結果と一致し、本システムで試料中 <sup>90</sup>Sr 分析が可能であることが分かった。

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。

Application of automatic analysis system of Strontium-90 to analysis of environmental sample  
FUJITA, H., NOJIMA, T., NAGAOKA, M., OSAWA, T., H., ONO, H.

# 3A07

## 液体シンチレーションカウンタを用いた抽出シンチレータによる $^{89}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Sr}$ の弁別測定法の検討

(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大学際セ<sup>2</sup>、金沢大理工<sup>3</sup>)

○酒井浩章<sup>1</sup>、上杉正樹<sup>2</sup>、横山明彦<sup>3</sup>

**【緒言】** 放射性ストロンチウムは、人体への影響が強く、重要なモニタリング核種である。2011年3月に発生した福島第一原子力発電所事故では、 $^{90}\text{Sr}$  とともに事故初期には  $^{89}\text{Sr}$ (半減期 50.52 日)も放出されていたが、それらの定量結果は非常に少ない。我々は、事故初期に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{89}\text{Sr}$  の弁別測定を可能にするために、固相抽出ディスクによる精製と抽出シンチレータによる液体シンチレーションカウンタ(LSC)測定を組み合わせた迅速定量法を開発してきた。一般的に  $^{89}\text{Sr}$  の測定にはチェレンコフ光測定や乳化シンチレータを用いることが多いが、本研究においては、チェレンコフ光と抽出シンチレータを用いる方法を比較検討した。

**【方法】** チェレンコフ光による弁別測定では、 $^{89}\text{Sr}$  と  $^{90}\text{Sr}$  混合溶液から  $^{90}\text{Y}$  を除去分離した後、LSC でチェレンコフ光測定すれば、 $^{89}\text{Sr}$  の計数ができる。その後、繰り返し測定を行い、新たに生成した  $^{90}\text{Y}$  の放射能を定量すれば、 $^{90}\text{Sr}$  の放射能が定量される。一方で、抽出シンチレータとして、トルエンシンチレータに HDEHP を 20% 混合したものをを用いれば、Fig. 1 のように、抽出条件 pH 2 では Y のみが抽出され、pH 5 では Sr と Y の両方が抽出されることにより弁別測定ができる。また、抽出シンチレータでは、チェレンコフ光より計数効率が高く、乳化シンチレータよりもクエンチングが小さいため、これら二つの測定法よりも、効率よく放射能を計数することができる。

**【実験】** (a) チェレンコフ光と抽出シンチレータを組み合わせた測定  
 $^{89}\text{Sr}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の混合トレーサー溶液を調製して用い、Sr から Y を分離後、 $^{90}\text{Y}$  の生成率が低いうちにチェレンコフ光を速やかに測定し、 $^{89}\text{Sr}$  の計数を行った。その後、抽出シンチレータを添加し、pH 2 の Y のみが抽出される条件で、繰り返し抽出測定を行った。

(b) 抽出シンチレータによる二層法を用いた測定 (再測定法)  
 $^{89}\text{Sr}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の混合トレーサー溶液から、Sr と Y を分離した後の Sr の溶液を、pH 5 で Sr、Y が抽出される条件で測定し、 $^{90}\text{Sr} + ^{89}\text{Sr}$  の放射能を計数した。その後再測定により、 $^{90}\text{Y}$  の成長を測定し、時間経過と  $^{90}\text{Y}$  成長から  $^{90}\text{Sr}$  の量を計算し、 $^{90}\text{Sr} + ^{89}\text{Sr}$  から  $^{90}\text{Sr}$  分を差し引いて、 $^{89}\text{Sr}$  を求めた。

**【結果】** チェレンコフ光による測定について、 $^{89}\text{Sr}$ 、及び  $^{90}\text{Y}$  の計数効率は、それぞれ 36%、58%であるため、 $^{90}\text{Sr}$  の定量には、 $^{90}\text{Y}$  をある程度成長させるための、1 週間程度の時間を要した。本実験結果から、実験(a)の チェレンコフ光による  $^{89}\text{Sr}$  の定量は、トレーサーの添加量と良い一致を示した。抽出シンチレータによる  $^{90}\text{Y}$  の測定は、計数効率が 90%であり、バックグラウンドもチェレンコフ光測定よりも小さく、2、3 日程度で  $^{90}\text{Sr}$  を定量することができた。実験(b)の  $^{89}\text{Sr} + ^{90}\text{Sr}$  定量について、 $^{90}\text{Y}$  の成長から  $^{90}\text{Sr}$  の放射能を求めたが、 $^{89}\text{Sr}$  の減衰と  $^{90}\text{Y}$  の成長の和となるため、 $^{89}\text{Sr} \gg ^{90}\text{Sr}$  の条件では、 $^{90}\text{Sr}$  の定量精度が低下し、逆に  $^{89}\text{Sr} \ll ^{90}\text{Sr}$  の条件では、 $^{89}\text{Sr}$  の定量精度が低下するが、全体的には安定した測定が得られた。

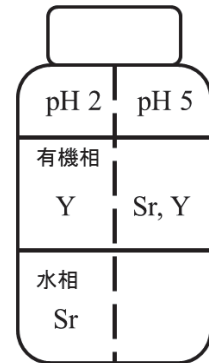


Fig.1 抽出シンチレータ法

Study of Selective Measurement for  $^{89}\text{Sr}$  and  $^{90}\text{Sr}$  by Extractive Scintillator with a Liquid Scintillation Counter  
 SAKAI, H., UESUGI, M., YOKOYAMA, A.

## 3B01

### 低温 C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Ar マトリックス中の孤立 <sup>57</sup>Fe 原子の化学状態

(電通大院<sup>1</sup>、理研<sup>2</sup>、東理大理<sup>3</sup>、ICU<sup>4</sup>、阪大理<sup>5</sup>、金沢大理工<sup>6</sup>、北陸大薬<sup>7</sup>、量研機構放医研<sup>8</sup>) 鈴木聖人<sup>1</sup>、谷川祥太郎<sup>1</sup>、佐藤祐貴子<sup>1</sup>、小林義男<sup>1,2</sup>、山田康洋<sup>3</sup>、久保謙哉<sup>4</sup>、三原基嗣<sup>5</sup>、長友傑<sup>2</sup>、佐藤渉<sup>6</sup>、宮崎淳<sup>7</sup>、佐藤眞二<sup>8</sup>、北川敦志<sup>8</sup>

**【緒言】** 我々は、重イオン加速器を用いて短寿命メスbauer親核 <sup>57</sup>Mn (半減期 1.45 分) を固体試料中に直接イオン注入し、 $\beta$  壊変で生成した励起状態の <sup>57</sup>Fe が放出したメスbauer  $\gamma$  線を測定する「インビーム・メスbauer分光法」を開発した。本手法では、<sup>57</sup>Fe が固溶しない試料でも孤立した Fe 原子の電子状態や配位環境のその場観測が可能である。本研究では、エチレン/アルゴン混合気体を低温で凝縮させたマトリックスを注入試料としたインビーム・メスbauerスペクトルを測定した。得られたメスbauerパラメータと DFT 計算の結果から、マトリックス中で生成した Fe 化学種と Fe 原子の電子状態について報告する。

**【実験】** 実験は放射線医学総合研究所の重イオン加速器 HIMAC で行った。核子あたり 500 MeV に加速した一次ビーム <sup>58</sup>Fe を Be 標的に照射し、入射核破砕反応で生成した <sup>57</sup>Mn を分離、最適化後、低温に保持した C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Ar マトリックス試料に直接注入した。試料はパルスチューブ冷凍機で 17 K に保持した基板上に C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Ar ガス (混合比 C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>:Ar = 3:7) を約 38 時間導入して作製した。メスbauer  $\gamma$  線は、平行平板電子なだれ型カウンター (PPAC) を用いて検出した。

**【結果と考察】** 得られたインビーム・メスbauerスペクトルを Fig. 1 に示す。スペクトルは、1 成分の singlet と 3 成分の doublet で解析した。成分 A と B は、これまでの結果から、それぞれ励起状態の Fe<sup>+</sup>(d<sup>7</sup>) および基底状態の Fe<sup>+</sup>(d<sup>6</sup>s<sup>1</sup>) と帰属した<sup>1)</sup>。残りの成分 C ( $\delta = -0.30(6)$  mm/s,  $\Delta E_Q = 2.05(7)$  mm/s), D ( $\delta = -0.39(5)$  mm/s,  $\Delta E_Q = 4.66(9)$  mm/s) について、Fe の化学種とその電子状態について ORCA を用いて DFT 構造最適化計算を実行した<sup>2)</sup>。その結果、Fe 原子に C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> 分子が 1 または 2 配位した化学種が安定構造となることが示された。成分 C、D について、メスbauerパラメータと DFT 計算結果ならびに Yamada らによるマトリックス単離実験結果<sup>3)</sup>と比較して議論する。

References:

- 1) Tanigawa, S., et al. *Hyp. Int.* **2016**, 237, doi 10.1007/s10751-016-1261-1.
- 2) Neese, F. *Wiley Interdisc. Rev. Comp. Mol. Sci.*, **2012**, 2, 73-78.
- 3) Yamada, Y., et al. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **2003**, 255, 419-423.

Chemical State of Isolated <sup>57</sup>Fe Atoms Decayed from <sup>57</sup>Mn Implanted into a C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Ar matrix  
SUZUKI, M., TANIGAWA, S., SATO, Y., KOBAYASHI, Y., YAMADA, Y., KUBO, K., MIHARA, M., NAGATOMO, T., MIYAZAKI, J., SATO, W., SATO, S., KITAGAWA, A.

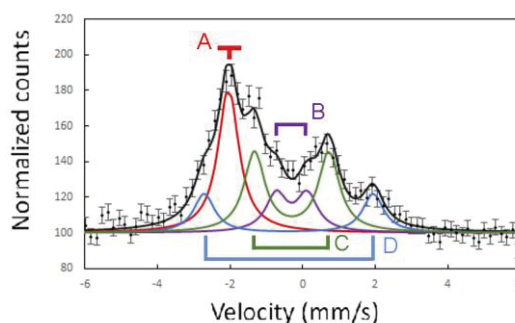


Fig. 1. Mössbauer emission spectra of <sup>57</sup>Fe ( $\leftarrow$  <sup>57</sup>Mn) in a C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> and Ar matrix (C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>:Ar = 3:7) measured at 17K. The isomer shift is given relative to Fe metal at room temperature.

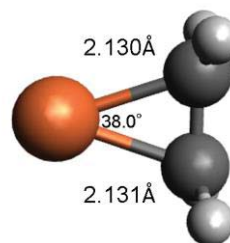


Fig. 2. Optimized structure of (C) Fe(C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>).

【はじめに】 鉄と窒素の組成比が1対1になる窒化鉄 FeN の存在が 1990 年代に予想されて以来、理論計算や合成法の探索が試みられてきたが、未だに単一相の FeN は得られておらず、これまで、閃亜鉛鉱型の  $\gamma''$ -FeN と岩塩型の  $\gamma'''$ -FeN の混合物しか得ることができなかった。われわれは、窒素雰囲気下で鉄をレーザー蒸着することによって窒化鉄を合成することができ、窒素圧力と基板温度を調整することによって、 $\gamma''$ -FeN と  $\gamma'''$ -FeN の組成比を変化させることを示した。ここでは、純度の高い  $\gamma'''$ -FeN を合成し、このメスバウアースペクトルの温度変化からネール点を測定した結果について報告する。

【実験】 YAG レーザー(NewWave, TEMPEST 10)の第二高調波(532 nm)を凸レンズにより集光して金属鉄をレーザー蒸発させた。約 10 万パルスを積算することによってメスバウアー分光測定に十分な量の薄膜試料を得た。 $\alpha$ -Fe に換算した薄膜厚みは 1  $\mu\text{m}$  程度である。レーザー蒸着基板としてアルミニウム基板(厚み 40  $\mu\text{m}$ )を使用した。窒素圧力 70 P で蒸着時の基板温度を 773 K とすると格子欠陥のない純粋な  $\gamma'''$ -FeN 薄膜を生成することができた。メスバウアースペクトルの測定は窒化鉄薄膜をアルミニウム基板上に保持したまま透過法により測定し、試料温度を 6~300 K に変化させた。

【結果と考察】 蒸着時の基板温度を 573 K 以上にして窒化鉄薄膜を生成すると  $\gamma'''$ -FeN の混入がない  $\gamma'''$ -FeN が得られた。 $\gamma'''$ -FeN 反強磁性であり、6 K でメスバウアースペクトルを測定すると 30 T の内部磁場を示すが、この他に格子欠陥によって 50 T の内部磁場を示す不純物が見られた。蒸着時の基板温度をさらに高温の 773 K とすると、大きな内部磁場を示さず格子欠陥のない  $\gamma'''$ -FeN 薄膜が得られた。この試料のメスバウアースペクトルの測定温度による変化を図 1 に示す。 $\gamma'''$ -FeN は室温付近では常磁性を示すが、温度を下げると磁気分裂(30 T)を示す反強磁性となる。得られたスペクトルの半値幅はやや大きな値となることから内部磁場は分布しており、結晶子の大きさが分布していると考えられる。この内部磁場分布の加重平均をとった平均内部磁場の値の温度変化から、ネール点が 230 K に存在することが分かった。

【まとめ】 純度の高い岩塩型  $\gamma'''$ -FeN を合成することに成功した。この試料のメスバウアースペクトルの温度変化を測定し、6 K では 30 T を示し、ネール点は 230 K であることが明らかとなった。

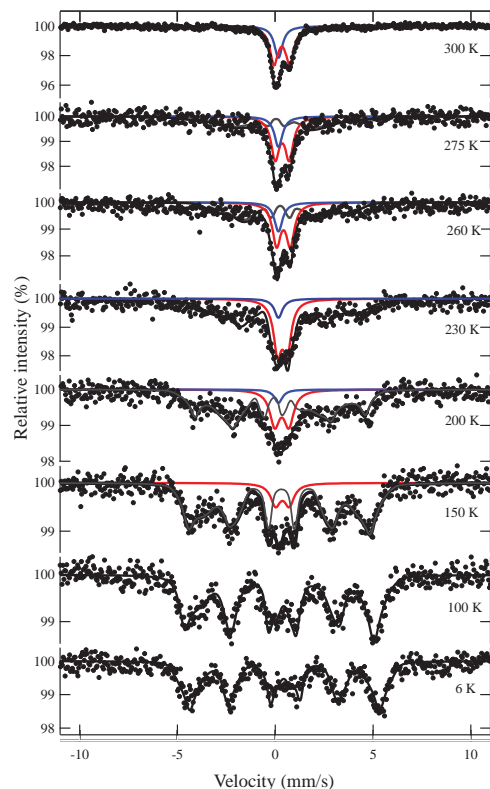


図 1 岩塩型  $\gamma'''$ -FeN 薄膜のメスバウアースペクトル (測定温度 6~300 K)



### 3B03

## 強磁性と光触媒の特性を示すスズドープ酸化チタンの $^{119}\text{Sn}$ メスバウアー ースペクトル

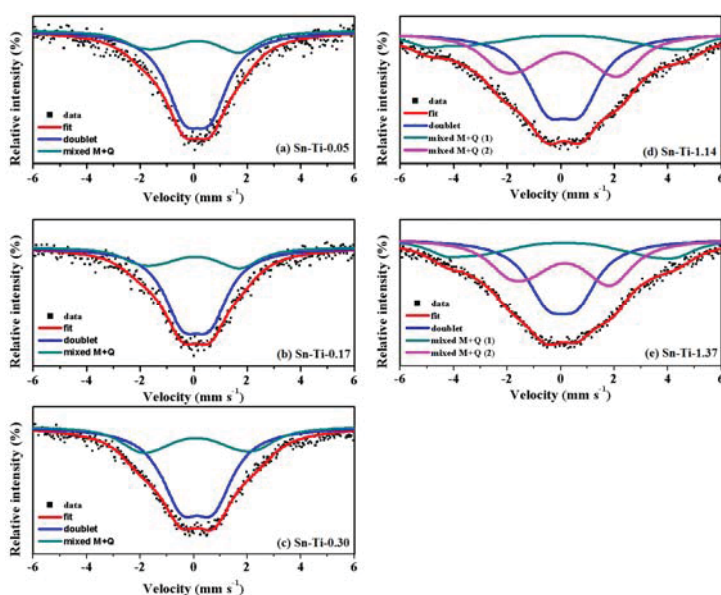
(東理大<sup>1</sup>, 中科院大連化物研<sup>2</sup>)

○野村貴美<sup>1</sup>, A. S. Ganeshraja<sup>2</sup>, 王軍虎<sup>2</sup>

**【緒言】** 酸化チタンの粒子は、光触媒機能を有することが知られている。最近、微量の Sn をドープすることにより  $\text{TiO}_2$  ナノ粒子の光触媒活性が向上することがわかった。また、スズドープ酸化チタンは、非磁性の元素から構成されているにもかかわらず、強磁性を示した。これらの酸化チタン粒子中のスズの状態を明らかにするために  $^{119}\text{Sn}$  メスバウアーースペクトルを測定し、解析をした結果を報告する。

**【実験】** 微量の Sn をドープした  $\text{TiO}_2$  のナノ結晶粒子を水熱合成法により作製した。XRD、光触媒と磁気特性の測定を行った。また、 $^{119m}\text{Sn}$ ( $T_{1/2}=293\text{d}$ ) の  $23.9\text{keV}$  の  $\gamma$  線(185MBq)以下を用いて室温  $^{119}\text{Sn}$  メスバウアーースペクトルを測定した。スペクトルのピークは、それらの半値幅がすべて同じローレンツ関数として解析した。ドップラー速度は  $\alpha\text{-Fe}$  のスペクトルから、また基準物質  $\text{CaSnO}_3$  の異性体シフト(IS)を  $0.0\text{mm/s}$  として速度校正した。

**【結果】** 測定した XRD および透過電子顕微鏡では、Sn/Ti の割合  $x$  (%) = 0.12 まではアナターゼ型  $\text{TiO}_2$  が主成分で、 $x=0.12\text{-}0.30$  ではアナターゼ型とルチル型の混晶  $\text{TiO}_2$  ナノ微粒子、 $x=0.3\text{-}1.37$  ではルチル型  $\text{TiO}_2$  と  $\text{SnO}_2$  の混合物が認められた。光触媒特性では、 $x=0.05\text{-}0.12$  のときに最も大きな活性を示した。 $^{119}\text{Sn}$  メスバウアーースペクトルの解析は、はじめ2つのダブルレット(2D)と3つのダブルレット(3D)としてフィッティングを試みた。しかし、Sn の価数は、すべて  $\text{Sn}^{4+}$  で、強磁性を示すことから磁気分裂成分(S)を含む  $1\text{D}+1\text{S}$  または  $1\text{D}+2\text{S}$  としてメスバウアーースペクトルを解析した。これらのスペクトルを図1に示す。内部磁場の大きさは、 $^{119}\text{Sn}$  は非磁性にもかかわらず、約 3 T を示した。VSM の結果では、Sn/Ti-  $x$ (%) = 0.12 の時に最大の飽和磁化( $M_s=129.6\text{memu/g}$ )および残留磁化( $M_r=6.23\text{memu/g}$ )を示した。それ以上のドープでは磁化率は小さくなった。アナターゼ型  $\text{TiO}_2$  に  $\text{Sn}^{4+}$  が取り込まれ、ナノ粒子結晶のひずみと欠陥構造により内部磁場が生じる。磁気分裂成分は、Sn ドープが多いと酸化スズのナノ粒子が析出し、その界面などに反強磁性的にふるまうことによるか、または、スピンの揺らぎが遅くなることによる常磁性緩和成分と考えられる。



みと欠陥構造により内部磁場が生じる。磁気分裂成分は、Sn ドープが多いと酸化スズのナノ粒子が析出し、その界面などに反強磁性的にふるまうことによるか、または、スピンの揺らぎが遅くなることによる常磁性緩和成分と考えられる。

図1 酸化チタンの  $^{119}\text{Sn}$  のメスバウアーースペクトル

左の上から Sn/T-x=0.05%、0.17%、0.30%、1.14%、1.37%

$^{119}\text{Sn}$  Mossbauer study on Sn-TiO<sub>2</sub> nanocrystals with ferromagnetic and photocatalytic properties: NOMURA Kiyoshi<sup>1</sup>, GANESHRAJA A. Sundaram<sup>2</sup>, WANG Junhu<sup>2</sup>

# 3B04

## f 軌道電子の結合特性とマイナーアクチノイド分離挙動の相関

(原子力機構<sup>1</sup>、広島大院理<sup>2</sup>、広島大 N-BARD<sup>3</sup>)

○金子政志<sup>1</sup>、渡邊雅之<sup>1</sup>、宮下直<sup>2</sup>、中島 覚<sup>2,3</sup>

【緒言】マイナーアクチノイド(MA)の分離・核変換技術開発の一環として、MA とランタノイド(Ln)の分離プロセスの構築は重要な課題である。溶媒抽出による MA/Ln 分離実験により、硫黄や窒素などのソフトドナーが Ln に対して MA を選択的に分離することが明らかとなってきた[1]。これは、ドナーとの結合性が MA と Ln で異なることが原因であることが示唆されているが、詳細は明らかでない。我々は、計算化学的手法である密度汎関数法を用いて、MA/Ln 分離メカニズムを分子レベルで理解することを目指している。本研究では、Am/Eu 分離挙動に着目し、d および f 電子との結合特性と関連付けて議論を行う。

【計算】全ての密度汎関数計算には、プログラム ORCA を用いた[2]。計算には、実験の Am/Eu 分離挙動をよく再現する ZORA-B2PLYP 理論を用いた[3]。モデル錯体は、ジチオホスフィン酸錯体[M(Me<sub>2</sub>PS<sub>2</sub>)<sub>3</sub>]と 9 水和錯体[M(H<sub>2</sub>O)<sub>9</sub>]<sup>3+</sup>とし、単結晶構造を参照して作成した。

【結果と考察】構造最適化計算によって得られた構造は、実験値の幾何学をよく再現した。原子価領域における分子軌道のうち、d, f 軌道由来の代表的な MO を Fig. 1 に図示した。d 軌道電子は、Eu, Am の違いやドナーの違いによらず結合的な重なりを持つ。一方、f 軌道電子は、ドナーの違いにより Eu と Am で結合様式が異なり、特に Am では、硫黄ドナーとは結合的だが、酸素ドナーとは反結合的であった。この結果は、Am/Eu 分離挙動に大きく寄与しているのは、d 軌道でなく f 軌道であることを示唆している。本発表では、酸素ドナーであるホスフィン酸錯体との比較や Mulliken の密度解析法を用いて、何が Am/Eu 選択性を決定しているかについてより詳細に議論を行う。

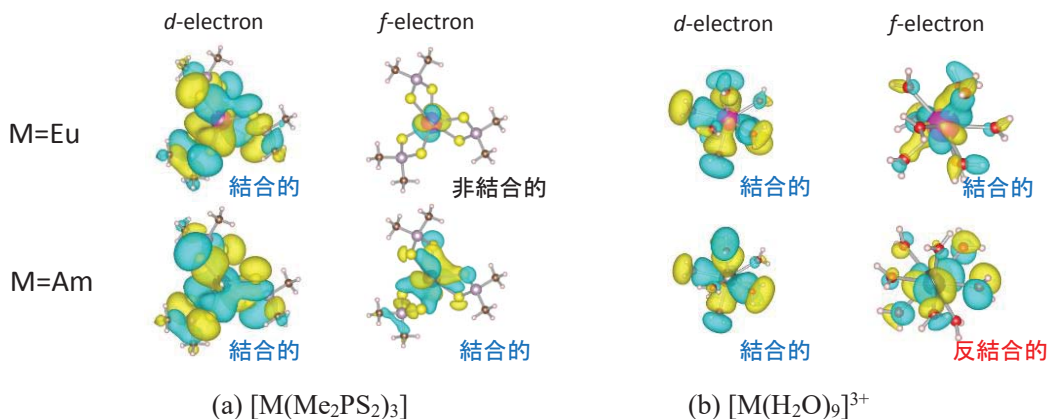


Fig. 1 (a) 硫黄ドナー錯体、(b) 水和錯体の d および f 軌道由来の分子軌道

### 【参考文献】

[1] K. L. Nash, *Solvent Extr. Ion Exch.*, **1993**, 11, 729.

[2] F. Neese, *WIREs Comput. Mol. Sci.*, **2012**, 2, 73.

[3] M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, *Inorg. Chem.*, **2015**, 54, 7103.

Correlation between the bonding property of f-orbital electron and the separation behavior of minor-actinides

KANEKO, M., WATANABE, M., MIYASHITA, S., NAKASHIMA, S.

# 3B05

## 中性汚染水からのストロンチウムの選択的抽出における抽出構造

(東北大金研)○山村朝雄、高橋晃、永井満家、白崎謙次

**【緒言】** 福島第一原子力発電所事故で生じた汚染水中に含まれる<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Srは半減期がともに約30年であるため、環境に与える影響は大きい。溶媒抽出法は金属イオンの有効な分離法の1つであり、抽出剤としてクラウンエーテルを使用し、CsまたはSrの抽出が検討されてきたが<sup>1)</sup>、希釈剤が可燃性で毒性が大きいためリスクが大きい。我々は不燃性、低毒性などの特徴を有するハイドロフルオロカーボン (Vertrel XF、Fig.1) を希釈剤として、溶媒抽出によるウランの分離を報告している<sup>2)</sup>。本研究では共沸混合物を含むHFC (Vertrel MCA、Vertrel XH) を希釈剤、クラウンエーテル (Fig.1) を抽出剤として、中性水溶液からのSrの選択的抽出を検討した。

**【実験】** 水相は Sr を含む中性水溶液とし、有機相は DCH18C6 と共抽出剤 (Fig.1) を HFC に溶解した溶液とした。等量の水相と有機相を混合し、振とうした。水相の Sr 濃度を ICP-AES で測定し、分配比を決定した。また有機相中の共抽出錯体の XAFS 測定と量子化学計算による構造解析を行った。

**【結果と考察】** 分配比は5～10分で平衡に達し、最大で約1000を示した (Fig. 2)。傾き分析による抽出化学種の共抽出剤の配位数は2であった (Fig. 3)。XAFS測定の結果は、Sr-Sr二核錯体の形成を強く示唆しており、Sr-Sr距離は4Å程度と考えられる (Fig. 4)。

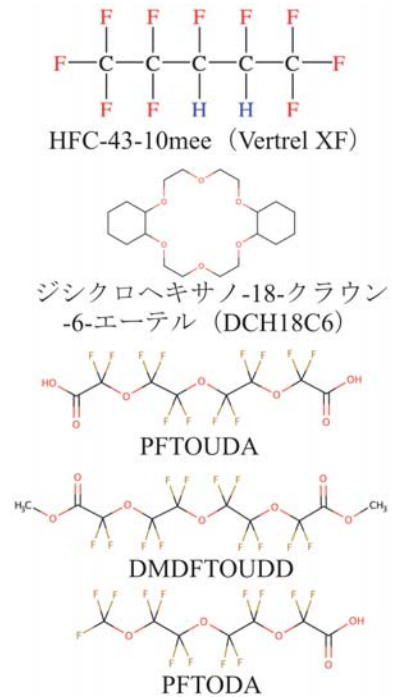


Fig.1 希釈剤、抽出剤、共抽出剤の構造式

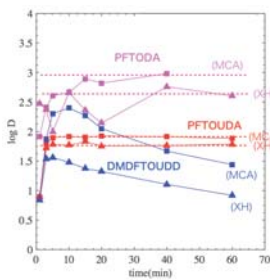


Fig.2 分配比の時間依存性

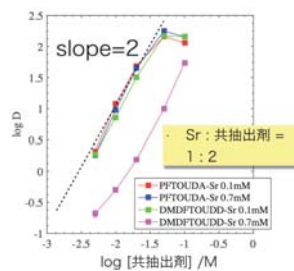


Fig.3 分配比の共抽出剤濃度依存性

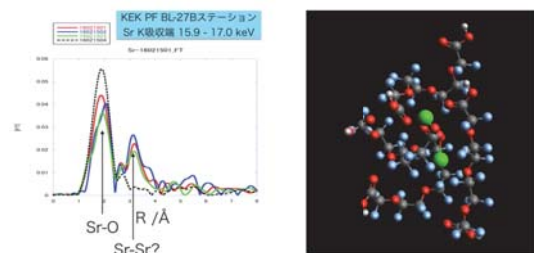


Fig.4 共抽出錯体の構造解析結果

**【謝辞】** 本研究を行うにあたり HFC を提供いただいた Chemours Company、XAFS 測定にご助力いただいた放射光科学研究施設の矢板毅氏、量子化学計算にご助力いただいた東北大学金属材料研究所計算材料学センターのスタッフに厚く感謝申し上げます。

### 【参考文献】

- 1) K. K. Gupta, et al., Sol. Extr. Ion Exch., 21 (2003) 53.
- 2) T. Yamamura, J. Nucl. Sci. Technol., 47 (2010) 515.

Structure determination of extracted strontium complex from neutral contaminated water.  
YAMAMURA, T., TAKAHASHI, A., NAGAI, M., SHIRASAKI, K.

**【緒言】** アクチノイド元素のうち U, Np 及び Pu は 6 価や 4 価といった高原子価状態をとるため、酸性度の低い溶液中では、水酸化物錯体を形成しコロイドや沈殿を生じる。同イオンの環境中での動態予測のため、水酸化物イオン等の配位子との錯生成定数や、イオンの溶解度を求める平衡論的な研究がこれまで行われてきた。一方、演者らの最近の研究ではこれらイオンの原子価変化と凝集粒子生成が互いに作用することが分かった。U(V)の還元は電気化学的な非可逆性が高く電極反応速度が非常に小さいが、U(IV)コロイドの存在下では U(V)の還元速度が増大し、還元生成物である U(IV)のコロイドが成長する。これは、U(V)の還元で生じた U(IV)自身が U(V)の還元反応を触媒するという自触媒反応であると言えるが、詳細なメカニズムは不明である。ここで U 以外の金属の類似化学種が同様な触媒作用を示すか否かを明らかにすることは、U(V)の自触媒還元を理解する上でも興味深い。本発表では、U(IV)の類似化学種として Zr(IV)を共存させた溶液条件での U(V)の還元を調べた結果について報告する。

**【実験】** 60×20 mm の金メッシュ電極を円筒形にした作用極を用いて定電位差電解し、電流の時間変化を調べた。液量 12 ml の電解セルを用い、参照極及び対極にはそれぞれ銀-塩化銀電極 (1M LiCl) 及び白金電極を用いた。支持電解質を含むウラン溶液に過塩素酸ジルコニウムを添加し、15 分間脱気した後、電気化学測定した。U(V)を予め調製し長時間安定に保つことは困難であるため、U(VI)を U(V)に還元する電位 (-0.35V vs SSE) を印加して電解し、電流値の変化及び溶液の状態変化を観察した。電極上への析出反応をストリッピングボルタメトリーにより調べた。

**【結果及び考察】** 右図には共存させる Zr(IV)濃度を変化させた pH 3.0 の水溶液中の 1 mM U(VI)を電解還元した時の電流値を比較した。ここで、溶液の酸性度は、酸溶液を一度中性まで中和した後、pH 3.0 に戻して調整した。曲線 1 は Zr を含まない溶液中でのものであり、電解開始から約 400 s までの電解初期に、U(VI)から U(V)への速い還元による U(VI)濃度の減少に対応した電流の変化が観測される。約 1200 s 以降には U(V)から U(IV)への自触媒反応による特徴的な電流上昇が観測された。溶液中に Zr(IV)を共存させると、電解初期の U(VI)から U(V)への還元電流に、U(V)の還元電流が上乗せされ、電解初期から U(IV)まで還元され触媒作用を示すことが確認できた。このような Zr(IV)による触媒作用の大きさは、Zr(IV)溶液の調製方法に依存すること、ZrO<sub>2</sub> などの酸化物微粒子を共存させた場合には観測されないことなどを明らかにした。

Zr は IV 価の安定性が大きく、本実験条件下では原子価変化がないと考えられる。このため、U(V)の自触媒還元において、U(IV)水酸化物コロイド自身は電子授受に関与せず、反応場として触媒作用を与えられられる。

本研究は JSPS 科研費 JP15H04247 の助成を受けたものです。

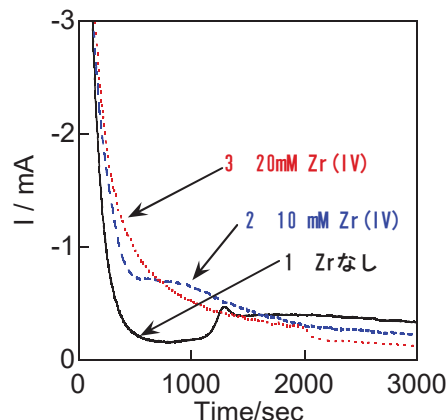


図 Zr(IV)共存下での U(IV)の電解還元の電流変化  
溶液: 1 mM U(VI), pH 3.0  
E: -0.35 V vs SSE.

## 3B07

## Determination of chemical composition of nickel-based super alloy by TOF-PGA technique

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

**【緒言】** Nickel-based super alloys are found in a wide range of applications, such as the manufacture of gas turbine, military aircraft, power generation and marine propulsion. These kinds of alloys generally have complicated chemical compositions. In many studies, their compositions were determined by X-ray fluorescence (XRF) method since the alloys were not destroyed before testing their properties. However, XRF cannot detect the deep layer of alloys (typically under 0.1-mm depth). Therefore, thick alloys are hardly examined directly by XRF. Prompt gamma-ray analysis (PGA) and neutron resonance capture analysis (NCRA) are well-known non-destructive methods which are applicable to thick samples. Unfortunately, PGA is not very sensitive to some elements (e.g. Nb) and NCRA lacks of sensitivity to some light elements. At J-PARC ANNRI, the two methods have been combined as a new analytical method, TOF-PGA, which overcomes the disadvantages of PGA and NCRA. It is feasible to apply the new method to the examinations on materials with complicated chemical compositions. In this study, the compositions of two nickel-based alloys were quantitatively analyzed by TOF-PGA technique.

**【実験】** 5-g metal powder with the nominal content of each element in IN738LC alloy was first mixed by hand. Different amounts of mixed powder were then compressed into discs for measurement. Five TMS238-alloy samples were made in the same way. Metal discs with single element were prepared as reference samples. Each sample was irradiated for 0.5-6 h by the 25-Hz pulsed neutron beam which was generated by 200-kW proton beam in J-PARC. All of them were measured in He gas at ambient temperature. Prompt gamma-rays were detected by two cluster Ge detectors and eight coaxial Ge detectors.

**【結果】** Concentrations of Ni, Cr, Ti, Co, Al, B in the alloy samples were determined by PGA while W, Ta, Mo, Nb, Re, Ru and Hf were quantitatively analyzed by TOF analysis or TOF-PGA. Figure 1 shows the result of TOF analysis for one of the elements, Nb. The contents of Co, W and Ta were first determined by other gamma-ray or neutron resonance peaks. The concentration of Nb was then deduced to be approximately  $0.89 \pm 0.25\%$  (nominal value: 0.90%) from the difference spectrum (see red solid line in Figure 1). The accurate results of present study show that the TOF-PGA technique is a powerful tool for the composition analysis on super alloys.

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

Determination of chemical composition of nickel-based super alloy by TOF-PGA technique  
HUANG M., TOH Y., EBIHARA M., KIMURA A., NAKAMURA S.

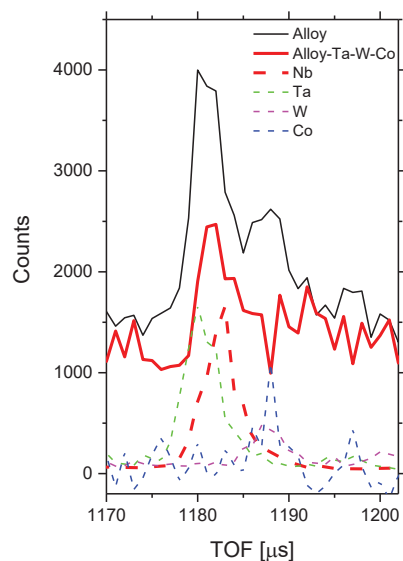


Figure 1. Quantification for Nb in 794.8-mg IN738LC alloy by TOF spectra. Reference samples are denoted by dash lines.

(名大 ISEE<sup>1</sup>、中央大文<sup>2</sup>)○小田寛貴<sup>1</sup>、池田和臣<sup>2</sup>

【緒言】平安時代の古写本は、掛軸の題材等にするため切断され、現存数は極めて少ない。しかし断簡としては、かなりの量が伝世していることになる。これを古筆切という。平安の仮名の名筆といわれる古筆切は、書写年代がはっきりしない場合、1050～1130年、すなわち院政期のものとされることが多い。しかし、その中には、それ以前の稀少な史料も含まれている可能性がある。一方で、後世になって書かれた臨書もあろう。そこで本研究では、院政期書写とされる古筆切について、その書写年代を得るべく、<sup>14</sup>C年代測定を行った。

【試料および実験】測定資料は、伝源俊頼筆民部切および伝藤原行成筆未詳散らし歌切である。古筆切には、元は同じ古写本であった別の頁や部分が存在する。これをツレという。民部切は、胡粉を引いた地に雲母で鳳凰唐草文を刷り出した唐紙という料紙に書かれた古今和歌集の古筆切であり、40数葉(枚)のツレが知られている。未詳散らし歌切には、6葉のツレがあり、その散らし書きの優秀さ、連綿の流麗さなどから、書芸美の高さが評価されている。これらの端から測定試料を裁断し、蒸留水中に浸し、文字の書かれている本紙を裏打紙から剥離させた。その後、超音波洗浄、HCl・NaOHによる処理、グラファイト合成を行い、(株)パレオ・ラボ Compact AMSによって<sup>14</sup>C年代を得た。

【結果】結果を表1に示す。暦年代への換算には、IntCal13 較正曲線を用いた。民部切れについては、2葉のツレ(①、

表1. 「院政期」古筆切の<sup>14</sup>C年代

試料名	<sup>14</sup> C年代 [BP]	較正暦年代 [cal AD]
民部切①-1	251±17	1646(1650)1660
民部切①-2	237±18	1649(1656)1664, 1788()1791
民部切②	220±19	1655(1664)1667, 1782()1796
未詳散らし歌切	1042±19	988(998, 1004, 1012)1019

②とする)について測定を行った。その内、一点①は2カ所から試料を採取し、測定を行った。

【考察】民部切の結果は、いずれも17世紀中期を

示すものであった。民部切には、その唐紙が院政期とするには粗雑すぎている、同筆の民部類切には1205年選定の新古今の歌が書かれているなど、不審な点があり、その書写年代を鎌倉時代をとする説があったが、それにも及ばぬ結果である。さらに不審なのは、民部切にまったく同じ部分を書いた断簡が2葉存在すること、『拾遺和歌集』固有の表記法が用いられていることである。民部切に添えられた鑑定書(極札)で最も古いのは、二代畠山牛庵(1625-1693)、古筆家別家二代了佐(1629-1674)であり、その生存期間と本測定結果は一致している。すなわち、民部切は、極札が書かれたころに作られた「写本」であることになる。

一方の未詳散らし歌切は10世紀末から11世紀初頭の値を示した。仮名は高野切の書かれた11世紀半ば頃に完成されたといわれている。それ以前の仮名遺品は数点しか確認されていない。しかも、個人的な要素が強い、消息・落書・日記・手控えに偏っている。これに対し、本研究によって、未詳散らし切のような高い書芸美をもつ仮名が、高野切よりも早い時期に完成していたことが裏付けられた。またこの年代は源氏物語や枕草子の成立した頃にあたり、この時代の稀少な仮名史料の存在が、事実上、新たに発見されたことになる。

Radiocarbon Dating of kohitsugire calligraphies written by kana where it has been thought that they were copied from the second half in the 11th century to the first half in the 12th century: Dating of Misyo-tirashi-uta-gire attributed to Fujiwara no Yukinari and Minbu-gire attributed to Minamoto no Toshiyori

ODA, H., IKEDA, K.



# ポスター発表

9月10日(土)

P01 - P44

ショートプレゼンテーション：S会場

ポスターセッション：ポスター会場



## 谷津干潟底質における福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの動態

(東大院総合)○山本駿、添盛晃久、小豆川勝見、松尾基之

**【緒言】** 2011年の福島第一原発事故により環境中に拡散された放射性セシウムは、陸上土壌に沈着したものに関しては、表層5 cmに9割以上がとどまり下層へと沈降しないことが報告されている<sup>[1]</sup>。一方、海域および河川域での放射性セシウムの挙動は陸上に比較して未解明な部分があり、雨水の影響で再び移動し河川を通じ沿岸域で沈降する二次拡散や、底質中を30 cmほどの深さへと沈んでゆく現象<sup>[2]</sup>が見られる。本研究では、千葉県習志野市に位置する、流入河川を持たない谷津干潟中の3地点から底質のコアサンプリングを行い、放射性セシウムの鉛直・水平分布を分析した。また、谷津干潟の数キロ南東で東京湾につながる花見川と、花見川沖の東京湾での鉛直分布データが、既に当研究室で調査されており、それとの比較考察を行ったことも報告する。

**【実験】** サンプリングは2015年3月に干潟東部で表層0 cm~5 cmと下層25 cm~30 cmを、2015年11月に干潟東部を含めた3地点を選び、深さ30 cmまで柱状採泥を行った。3月に採取した底質は、熱乾燥させU-8容器に封入し、Ge半導体検出器でγ線スペクトルを測定した。11月に採取した底質は4 cmごとに堆積方向に切断し、水を加えてマリネリ容器に封入し、放射性セシウム濃度を測定した。いずれのサンプルも含水率を考慮した補正をかけ、また採取時点の放射性セシウム濃度へと半減期補正をかけた。

**【結果と考察】** 谷津干潟のいずれの地点でも<sup>134</sup>Csが検出され、干潟東部からは25 cm~30 cmの深さでも検出された。放射性セシウムは<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs比から、ほぼ福島第一原発事故由来のものであり、谷津干潟でも30 cmほど沈降していることが明らかになった。この干潟東部は泥の流出が年々進み、堆積厚が減る地点であるため、その深さから検出されることは、放射性セシウムが底質中を沈降した結果であると解釈できる。また2015年3月と11月のサンプルを比較すると表層で26.8 Bq/kgから9.4 Bq/kgへと減少している(Table)。下層では3月に13.7 Bq/kgを確認したものが、11月には2.0 Bq/kgまで低下しており、またこの深さでは<sup>134</sup>Csは検出されなくなった。これは谷津干潟が東京湾と二つの流路と繋がるのみで、河川のように広い範囲の集水域がないために、付近の雨水や東京湾からの海水に含まれる放射性セシウムを一旦溜め込んでも、すぐに湾へと流出させてしまうためであると考えられる。一方、谷津干潟よりも広い集水域を持つ花見川においては、河口から4 km付近での表層、下層とも200 Bq/kg以上を検出しており、それらは東京湾の河口付近に集積し沈降している。このことから谷津干潟の堆積の仕方は、放射性セシウムの付着した粒子を広範囲から東京湾に運び込む河川系には見られない閉鎖性の地域特有のものであると考えられる。

Table 各地点の2015年における放射性セシウムの合計値 (<sup>134</sup>Cs+<sup>137</sup>Cs)

深さ	地点/採取時期			
	干潟東部 (Bq/kg)		花見川(Bq/kg)	東京湾深掘(Bq/kg)
	3月	11月	6月	8月
表層 0 cm~5 cm	26.8	9.4	243	423
下層 25 cm~30 cm	13.7	2.0	335	1191

[1] 山口紀子 *et al.* 農業環境技術研究所報告第31号(2012)、[2] 添盛晃久 *et al.* 分析化学 Vol.62 (2013)

Dynamics of radioactive cesium in sediments of Yatsu tideland from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident  
YAMAMOTO, S., SOEMORI, A., SHOZUGAWA, K., MATSUO, M.

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所の事故により、環境中に放射性セシウム ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) が放出された。事故より 5 年を経た現在でも陸域に沈降した放射性セシウムは河川を經由し、海洋へと流出していると考えられる<sup>1)</sup>。水環境中の放射性セシウムのモニタリングは引き続き重要であり、各機関で分布の把握と中長期的な変動の調査が行われている。本研究では、環境省のモニタリングが行われておらず、低線量地域を流れる多摩川において河川水と底質を採取し、河川水中の溶存態及び懸濁態の放射性セシウムと底質中放射性セシウムを定量分析することで、その挙動について調査した。

【実験】河川水試料は、粒子保持径  $1\ \mu\text{m}$  の濾紙により吸引濾過し、濾紙上に保持された懸濁物中の放射性セシウムを懸濁態セシウムとした。濾紙を通過した試料は  $12\text{M HCl}$  ( $600\ \text{mL}$ ) を添加し、 $\text{pH}$  を  $1.6$  以下に調整した。その後、 $12$ -モリブドリン酸アンモニウム三水和物 (AMP, 米山薬品) を  $40\ \text{g}$  加え、溶液を  $1$  時間攪拌した。溶液は一昼夜静置し、粒子保持径  $4\ \mu\text{m}$  の濾紙でろ過し、AMP を濾紙上に回収した。回収した AMP に吸着された放射性セシウムを溶存態セシウムとした。底質試料は、 $105^\circ\text{C}$  に設定した乾燥機で十分に  $24$  時間以上、ふるい分けして粒径  $2\ \text{mm}$  以下のものを測定試料とした。それぞれの試料はねじ口 U 式容器 U-8 に充填し、高純度ゲルマニウム半導体検出器で  $\gamma$  線測定した。

【結果及び考察】過去に実施した研究結果とあわせて、 $2016$  年  $3$  月までに  $25$  地点で河川水及び底質を採取し、河川内での存在状態毎に放射性セシウムを継続的に定量してきた。広域サンプリングの結果から、多摩川における放射性セシウムの下流への移行傾向が確認された。また、定点観測の結果から降水時に懸濁態セシウム濃度が高くなった。懸濁態セシウム濃度は降雨時に増大することが報告されている<sup>2)</sup>。河川水中に含まれる懸濁物質量と懸濁態セシウム濃度の関係を Fig. 1 に示す。懸濁物質量と懸濁態セシウム濃度に相関がみられたため、降雨による懸濁態セシウム濃度の上昇は懸濁物質の成分ではなく懸濁物質量に依存すると考えられる。多摩川集水域をターゲットに放射性セシウムを長期的にモニタリングすることで、河川集水域における放射性セシウムの移行や天候による影響を把握できると考えている。

#### 【参考文献】

- 1) 亭島博彦ら: *Adv. Sci. Tech. Soc.*, **19**, 1, (2014).
- 2) Nagano, S., et al.: *Biogeosciences*, **10**, 6215, (2013).

Characterization of radiocesium in Tamagawa river  
OKUMURA, S., OCHI, K., HAGIWARA, K., NAKAMURA, T., KOIKE, Y.

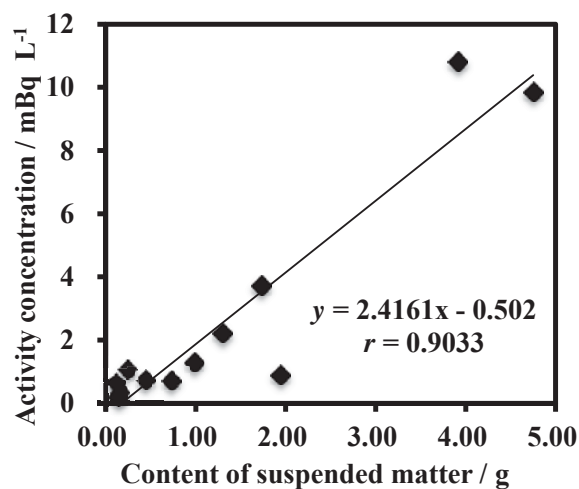


Fig. 1 Relation between activity concentration of suspended radiocesium and suspended matter

# P03

## 東京湾における海洋放射能調査

### — 海底土、海水中のセシウム 134、137 濃度の経年変化 —

(日本分析センター)○豊岡慎介、新田済、金子健司、岸本武士、磯貝啓介

【はじめに】福島第一原子力発電所事故による放射能汚染の実態把握を目的とした、国の総合モニタリング計画の一環として、河川から流入する放射性物質の蓄積が懸念される東京湾内の 23 地点において、平成 24 年から定期的に海底土、海水の放射能調査を実施した。海底土及び海水を採取し、放射性セシウムを定量した。また 4 地点において柱状採泥による深度別分布調査を行った。

【調査方法】海底土は、海底表層から深さ 3cm までを採取した。深度別分布調査では海底表層から 2cm 毎に 20cm までを採取した。十分に混合し吸引ろ過したものを 105℃で約 3 日間乾燥後、2mm 孔径のふるいでふるい分けし、マリネリ容器(容量 700mL)に詰め測定試料とした。海水は、表層から深さ 1m までを採取し、塩酸を添加した。50L を分取してセシウムをリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)により捕集し、測定容器(U-8)に詰め測定試料とした。ゲルマニウム半導体検出器を用いて 70,000 秒以上測定し、放射能濃度を算出した。

【結果及び考察】平成 25～27 年度における各採取地点の海底土の放射性セシウム濃度の年間最高濃度を区分けした結果を図 1 に示す。高い値を示す地点数はこの 3 年間で減少したが、荒川と旧江戸川の沖である K-T1 と木更津港付近の C-P8 が調査開始以来比較的高い値を示していることが判った。

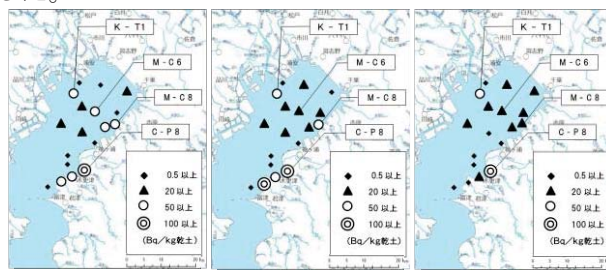


図 1 海底土中 Cs-137 の年間最高濃度値の比較

次に、深度別分布調査を行った 4 地点(K-T1, M-C6, M-C8, C-P8)の海底土の放射性セシウム濃度の経年変化を図 2 に示す。海底表層の放射性セシウム濃度には物理減衰に伴う減少傾向が見られず同程度で推移している。この理由として河川からの供給が続いていることが考えられた。

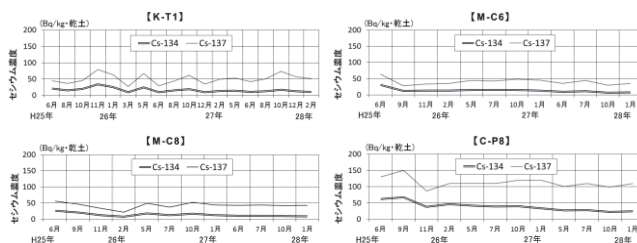


図 2 海底土中放射性セシウム濃度の経年変化

平成 25 及び 26 年度に行った深度別分布調査の結果を図 3 に示す。平成 26 年度は調査深度を 10cm から 20cm に拡大し、より下層の調査を行った。K-T1, M-C6 では深度 7cm 付近を境に放射性セシウム濃度は減少する傾向があり、C-P8 では調査を行った深度範囲において放射性セシウム濃度に大きな変動は見られないが、他の 3 地点に比べ高い値を示した。

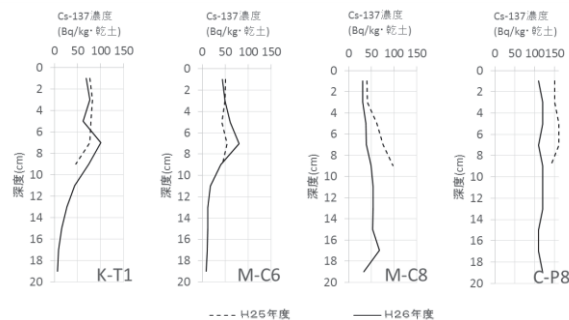


図 3 海底土中 Cs-137 濃度の深度分布

K-T1 における海水の放射性セシウム濃度の経年変化を図 4 に示す。平成 25 年当初の調査結果を最高値とし、その後減少傾向が見られた。

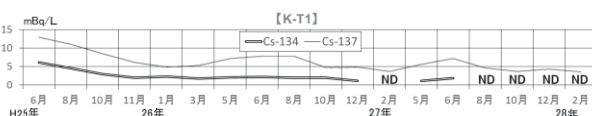


図 4 海水中放射性セシウム濃度の経年変化

なお、検出された放射性セシウムは  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  放射能比から事故由来であることを確認した。本調査結果は原子力規制庁の委託事業「東京湾環境放射能調査(平成 25-27 年度)」の成果の一部である。

Radioactivity monitoring in the Tokyo Bay - temporal variations of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in sea sediment and seawater

TOYOOKA, Shinsuke ; NITTA, Wataru ; KANEKO, Kenji ; KISHIMOTO, Takeshi ; ISOGAI, Keisuke ;

# P04

## 赤城大沼周辺土壤の放射性セシウム濃度分布

(東京都市大工<sup>1</sup>、群馬水試<sup>2</sup>、国環研<sup>3</sup>) ○長橋孝将<sup>1</sup>、松浦治明<sup>1</sup>、今川峻<sup>1</sup>、内山孝文<sup>1</sup>、鈴木究真<sup>2</sup>、湯浅由美<sup>2</sup>、渡辺峻<sup>2</sup>、新井肇<sup>2</sup>、野原精一<sup>3</sup>、岡田往子<sup>1</sup>)

### 【緒言】

2011年3月11日の東日本大震災による福島第一原子力発電所事故に伴い、大量の放射性物質が放出された。閉鎖性の高い湖沼である赤城大沼では、事故後生息するワカサギから基準値を超える<sup>137</sup>Csが検出された。現在は基準値を下回ったが、ワカサギの放射能濃度の減衰が遅いことが問題となっている。そこで赤城大沼がカルデラ湖であることに着目し、赤城大沼森林域周辺の土壤及び湖の底質の放射性セシウムの濃度分布を調査し、今後の放射性セシウム動態解明の一助とすることにした。

### 【実験】

赤城大沼底質土壤については2014年に湖心を試料長さ42cm採取、2015年は湖心・流入・流出地点で30cm以上採取した。森林域の土壤は、2016年5月24日に湖周辺の地蔵岳山麓標高1530mの地点にて手動式採土器で長さ25cmを採取した。その際、リターと土壤は分けて採取した。底質は2cm間隔(2014年は1cm)、土壤は表層から5cmまで1cmごと、それ以降は2cmごとにカットした。それぞれ乾燥させ、U-8容器に入れたものを分析試料とし、相対効率15.4%、半値幅1.68keVである高純度Ge半導体検出器を用いて86400秒測定した。得られたγ線スペクトルからSEIKO EG&G社のガンマスタジオによって解析を行った。

### 【結果・考察】

2014年に採取した赤城大沼湖心と2016年に採取した地蔵岳の土壤の放射能濃度分布をそれぞれ図1、図2に示した。湖心では、<sup>137</sup>Csは表層から10cmまで急激に1/100まで減少している傾向が見られた。また<sup>134</sup>Csは9cmまでしか確認できなかった。図2では、15cmまで図1に似た減少傾向が見られたが、4cmから9cmまでの土壤には放射性セシウムをせき止めている傾向があった。半減期2.1年と短い<sup>134</sup>Csが底質・森林土壤から約10cmまで検出されていることから、これらの放射性セシウムは福島原子力発電所由来のものであると考えられる。地蔵岳の土壤においては、土壤によるせき止める効果ではなく、採取地点が背の低い草や木が生えていた地点だったために、木によって放射性セシウムの浸透を阻害した可能性が考えられる。

### 【参考文献】

・今川峻(2015)「赤城大沼地底質の堆積速度および放射性セシウムに関する研究」

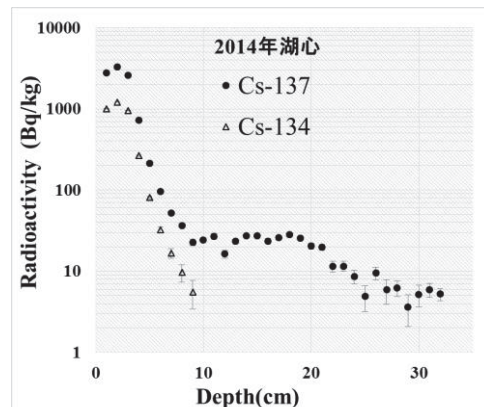


図1 2014年湖心の放射能濃度の深度分布

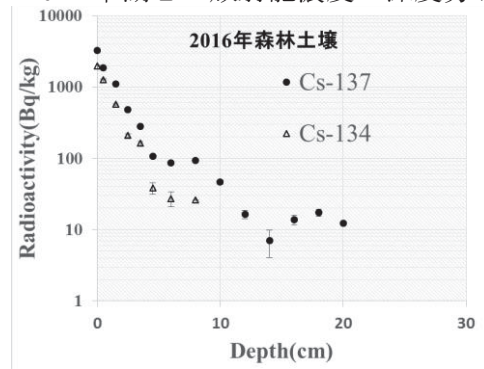


図2 2016年地蔵岳の放射能濃度の深度分布

Distribution of radioactive cesium in the soil around Akagi Onuma region

NAGAHASHI, T., MATSUURA, H., IMAGAWA, S., UCHIYAMA, T., SUZUKI, K., YUASA, Y., WATANABE, S., ARAI, H., NOHARA, S., OKADA, Y.

## P05

福島原発事故以降の河川における溶存態と底質土のセシウム同位体比変化  
(筑波大院数理科<sup>1</sup>、筑波大応用加速器<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>、筑波大数理科系<sup>4</sup>、  
東京大 MALT<sup>5</sup>)

○富田涼平<sup>1</sup>、松中哲也<sup>2</sup>、本多真紀<sup>1</sup>、佐藤志彦<sup>3</sup>、松村万寿美<sup>2</sup>  
高橋努<sup>2</sup>、坂口綾<sup>4</sup>、松崎浩之<sup>5</sup>、笹公和<sup>2,4</sup>、末木啓介<sup>4</sup>

### 【緒言】

福島第一原子力発電所事故により拡散した放射性核種は降雨などの影響を受けて地上に沈着した。原発から 200 km 離れた千葉県東葛地域の河川底質土からも原発由来の放射性核種が検出されており、我々は地点毎に河川水溶存態中放射性セシウム  $^{137}\text{Cs}$  や放射性ヨウ素  $^{129}\text{I}$ 、それらの安定同位体濃度を測定した。特にセシウムに関して特徴的な変化が観測された。本流と比較して低いセシウム同位体比( $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$ )を示す利根川河川水の注水によって本流の溶存態中  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比が一時的に大きく減少していた。一時的に減少した  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比は河口に向けて移動している間に徐々に上昇する変化が観測された。この溶存態中  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比の上昇には底質土が大きく寄与していると考え、底質土から逐次抽出により Cs の抽出を行い、各フラクションの  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{133}\text{Cs}$  を定量し、溶存態との比較を行った。

### 【実験】

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 地点と注水(利根川)および合流河川である地金堀で採水した。底質土は注水以前 1 地点と注水後 3 地点で表層部分を採取した。河川水試料は採取後直ちに 0.2  $\mu\text{m}$  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。底質土は、風乾させた後に逐次抽出を行った。第一フラクションは水溶性セシウムを超純水で抽出し、第二フラクションは 1 M 酢酸アンモニウム(pH=7.0)によるイオン交換性セシウムの抽出を行った。第三フラクションは 0.04 M 塩酸ヒドロキシルアミン (25% v/v 酢酸) (pH=2.0)を用いた還元溶解によって鉄-マンガン酸化物からセシウムを抽出し、最後のフラクションでは 30w/t%  $\text{H}_2\text{O}_2$  (pH=2.0)による有機物からの抽出を行った。溶存態および各フラクションは誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)と $\gamma$ 線スペクトロメトリにより分析した。

### 【結果・検討】

底質土中に残存している水溶性  $^{137}\text{Cs}$  は抽出前の底質土に対して 0.3-0.4%の放射能量であった。また、イオン交換性、鉄 - マンガン酸化物中の  $^{137}\text{Cs}$  はそれぞれ 13-14%、4-6%であった。第二、第三フラクションは上流側からそれぞれ  $1.6-1.8 \times 10^{-4}$ (注水前)、 $2.5-2.8 \times 10^{-4}$ (注水後)、 $3.7-4.8 \times 10^{-4}$ (注水後)と同一地点では近い  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比を示し、河口に近づくにつれて上昇する傾向が見られた。対応する溶存態の  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比では上流側から  $2.5 \times 10^{-7}$ (注水前)、 $1.2 \times 10^{-7}$ (注水後)、 $1.7 \times 10^{-7}$ (注水後)と注水による  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比の減少とその後の増加が見られる。注水以降では(溶存態  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比) / (底質土  $^{137}\text{Cs} / ^{133}\text{Cs}$  比)は  $4.4-5.0 \times 10^{-4}$  とほぼ一定の値を示し、速い速度で底質土と溶存態との平衡に達することが示唆された。底質土中ヨウ素に対する分析を今後行い、核種による差異を検討する予定である。

### Cesium isotopic ratio variation about cesium dissolved in river water and included bottom sediment after the FDNPP accident

Ryohei Tomita, Tetsuya Matsunaka, Maki Honda, Yukihiko Satou,  
Masumi Matsumura, Tsutomu Takahashi, Aya Sakaguchi<sup>4</sup>, Hiroyuki Matsuzaki,  
Kimikazu Sasa, Keisuke Sueki

## P06

### イネ中の微量元素及び放射性セシウムの分析

(静岡大理<sup>1</sup>、徳島大 ARREMC<sup>2</sup>、東京大 RIC<sup>3</sup>、イング<sup>4</sup>、名古屋大名誉教授<sup>5</sup>、RI 協会滝沢研<sup>6</sup>、岩手医大サイクロ<sup>7</sup>) ○矢永誠人<sup>1</sup>、三好弘一<sup>2</sup>、桧垣正吾<sup>3</sup>、森 一幸<sup>4</sup>、西澤邦秀<sup>5</sup>、後藤祥子<sup>6</sup>、世良耕一郎<sup>7</sup>

**【緒言】** 2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故以降、土壌から農作物への放射性セシウムの移行が懸念されている。土壌から作物への放射性物質の吸収されやすさは、土壌の土質、用水及び肥料中に含まれる主要元素及び微量元素の影響を受けることが考えられる。そこで本研究では、福島市内の山間部の水田水及び用水のサンプリングを継続的に行い、含まれる主要元素や微量元素濃度の定量を行うとともに、出穂後の葉に含まれる元素の定量を行った。また、別の地域から採取したゼオライト処理をされていない田の土壌を用いて、いくつかの条件で実験室内でのイネ栽培を行い、比較検討した。

**【実験】 (1) サンプリング** 2014年5月～10月及び2015年5月～8月にかけて、福島市内山間部の田の用水（ため池水及び沢水）並びに田水を採取し、(1:1)硝酸を加えて pH2 程度になるようにし、分析に供するまで保存した。また、8月下旬の出穂後のイネを採取した。

**(2) 実験室内におけるイネ栽培** 2015年5月に福島市内のゼオライト処理をしていない田の土壌を採取し、実験室内においてイネのポット栽培を行った。ポット数は10とし、4ポットは無処理の土壌、3ポットはゼオライトを添加した土壌、残り3ポットは無処理の土壌に苗を植え付けてから4週間後に塩化ルビジウム及び塩化セシウムを、それぞれ  $4.28 \times 10^{-3}$  mol 添加した条件で栽培した。

**(3) PIXE 分析** 水試料は、試料水 1 mL に In 内部標準溶液を加え、プロレン膜上に滴下・乾燥したものを分析に供した。イネについては、乾燥後に数十 mg を精秤し、In 内部標準溶液を加えて硝酸灰化したものをバックリングフィルムに滴下・乾燥し、ターゲットとした。分析は、(公社)日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター(NMCC)において実施した。

**【結果と考察】** 右図は室内栽培を行ったイネのうち、苗植え付け4週間後に Rb 及び Cs を添加したもののうちの同一の茎の葉についての分析結果の一部を示したものである。同モルの Rb 及び Cs を添加したが、葉に吸収された量は mol 比で Rb/Cs=8~9 であり、Rb の方が吸収されやすいか、または Cs が土壌に吸着されることを示していた。一方、各ポットから採取したコメ（粳）についての移行係数を求めると、無処理またはゼオライトを添加した土壌で栽培したものは 0.0008~0.0023 であったのに対し、Cs（及び Rb）を添加した場合には 0.0065~0.014 と大幅な増加が見られた。このことは、添加した Cs の安定同位体は、土壌に吸着する一方で、数年にわたって土壌に吸着していた放射性セシウムを遊離させることを示している。

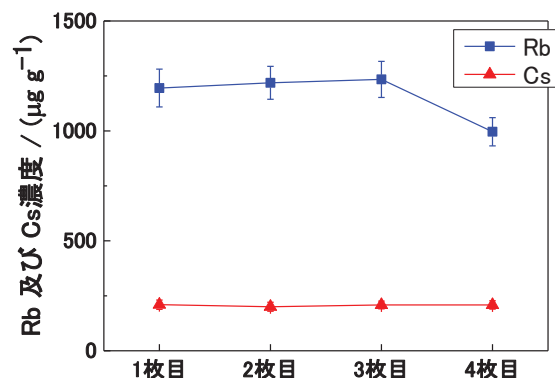


図 Rb 及び Cs を添加して栽培したイネの葉中の Rb 及び Cs 濃度（葉は稲穂からの枚数）

Analysis of Trace Elements and Radioactive Cesium in Rice Plants

YANAGA, M., MIYOSHI, H., HIGAKI, S., MORI, K., NISHIZAWA, K., GOTO, S., SERA, K.

# P07 福島原発事故に由来する放射性セシウムを含む不溶性粒子の生成模擬実験 (阪大院理<sup>1</sup>、阪大 RI セ<sup>2</sup>) ○藤田将史<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、吉村崇<sup>2</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

はじめに：福島原子力発電所の事故により環境中に多くの放射性元素が放出された。これらの中で、水や酸に不溶な放射性セシウムを含む粒子(以下セシウムボール)が見つまっている[1]。セシウムボールは粒径が数  $\mu\text{m}$  の球体で、主成分の  $\text{SiO}_2$  の他に Cs や Zn、Fe といった金属元素を含んでいる[2,3]。また水や酸に対して不溶性であることも報告されているが、このような粒子の生成過程は明らかになっていない。セシウムボールの生成過程を明らかにすることは、事故時の炉内環境を明らかにする上で重要である。本研究では、燃料から揮発した CsOH と断熱材等に含まれる  $\text{SiO}_2$  との反応物が、空气中で急冷され球体となって放出されたという生成過程の仮説を立て、これに基づいて模擬粒子の生成を行った。また、Fe や Zn といった金属を含んだ模擬粒子の生成[4]と、模擬粒子の水や酸への不溶性について調べたので報告する。

実験：ニッケルるつぼに CsOH 0.50 g を入れ、電気炉にて 300~500  $^{\circ}\text{C}$  で加熱することで熔融した。ここにガラスウール 0.05 g を入れ Cs と  $\text{SiO}_2$  の混合物を作成し、この液状の混合物にスポイトで水を滴下することによって突沸を起こし、空气中に飛散させて沈着させた。金属元素を含ませるための実験では、2 mm 四方に切ったトタン板 1.50 g を溶解した CsOH に投入し、同様の実験を行った。沈着物をカーボンテープに貼り付け、テープごと溶液にさらした。テープ上の残留物について SEM および EDX による観察を行った。

結果と考察：水にさらした後のテープ上に存在していた物質の SEM 像と EDX による元素分析スペクトルを図 1 および 2 に示す。図 1 に示すように、粒径が 3  $\mu\text{m}$  程度の球形の模擬粒子を生成することができた。また図 2 に示した元素分析結果から、主成分と考えられる  $\text{SiO}_2$  の他に、Fe と Zn、Cs を含んでおり、実際のセシウムボール同様、生成した模擬粒子が水に対して不溶であることがわかった。また、本研究では  $^{137}\text{Cs}$  を用いて模擬粒子の生成も行い、ろ紙などに沈着させた後、IP 等を用いて観察を行った。詳細は講演で発表する。

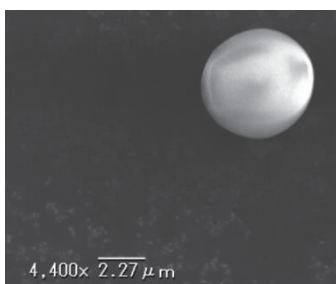


図 1. 水にさらした後の C テープ  
上に見られた模擬粒子

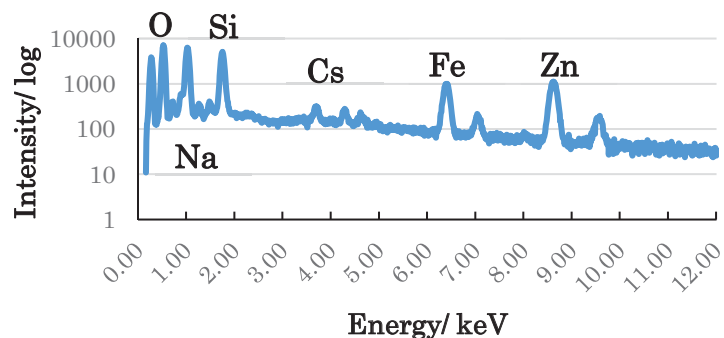


図 2. 図 1 の模擬粒子の元素分析スペクトル

## 参考文献

- [1] K. Adachi *et al.*, Sci. Rep. 2013, 3, 2554
- [2] Y. Abe *et al.*, Anal. Chem. 2014, 86, 8521–8525
- [3] N. Yamaguchi *et al.*, Sci. Rep. 2016, 6, 20548
- [4] T. Yoshimura, Proceedings of the 16th Workshop on Environmental Radioactivity, March9 - 11, 2015

Production experiments of the insoluble Cs-concentrated particles released by the FDNPP accident

FUJITA, N., NINOMIYA, K., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A.

## 都市ごみ焼却飛灰の撥水処理による放射性セシウムの溶出抑制

(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、明大理工<sup>3</sup>、リガク<sup>4</sup>)○福田大輔<sup>1</sup>、岩鼻雄基<sup>2</sup>、久米冬馬<sup>3</sup>、藤井健悟<sup>1</sup>、萩原健太<sup>2</sup>、大淵敦司<sup>4</sup>、  
小池裕也<sup>3</sup>

【緒言】都市ごみ焼却飛灰中の放射性セシウムは、雨水などの環境水との接触により容易に溶出することが報告されており<sup>1-3)</sup>、溶出を抑制することが課題である。セメント固化やジオポリマー固化などの放射性セシウムの溶出抑制処理が検討されているが、固化体処理は固化剤を添加する必要がある、固化後に体積が増大する。そのため、埋立処分場用地の確保が逼迫する可能性がある。体積増加を伴わずに、都市ごみ焼却飛灰からの水溶性放射性セシウムの溶出を簡易的に抑制するために、防水剤噴霧による撥水処理を検討した。焼却飛灰にフッ素樹脂やシリコン樹脂などの防水剤を塗布することで、簡易的な放射性セシウムの溶出抑制が期待される。

【実験】試料には、福島県中部の一般廃棄物焼却場で採取された都市ごみ焼却飛灰を使用した。試料に対して市販の住宅用防水スプレー（透明浸透タイプ）を3回噴霧することで撥水処理を施した。未処理の焼却飛灰もしくは撥水処理を施した焼却飛灰は、それぞれ純水と質量比 1:10 で秤取り、振とう機で6時間水平振とう（振り幅 4-5 cm, 200 回/分）することで溶出試験を行った。溶出試験前後の試料を、ねじ口 U 式容器 U-8 に高さ 5 cm で充填し、高純度 Ge 半導体検出器による  $\gamma$  線測定に供した。

【結果と考察】測定日を基準に減衰補正した都市ごみ焼却飛灰中の  $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、それぞれ 1017 Bq/kg と 4739 Bq/kg であった。図 1 に溶出試験の結果を示す。未処理の焼却飛灰からの放射性セシウムの溶出率は約 60% であった。一方、撥水処理を施した飛灰に対して溶出試験を行ったところ、放射性セシウムの溶出率は約半分の 30% に抑えることができた。撥水処理による溶出抑制効果を評価するために、セメント固化体及びジオポリマー固化体を作製し、同様の溶出試験を試みた。それぞれの溶出率は、セメント固化体で約 40%、アルミノケイ酸塩不使用のジオポリマー固化体で約 80% であり、撥水処理により高い溶出抑制効果が得られた。安定化処理と撥水処理を組み合わせることで更なる溶出抑制が期待される。

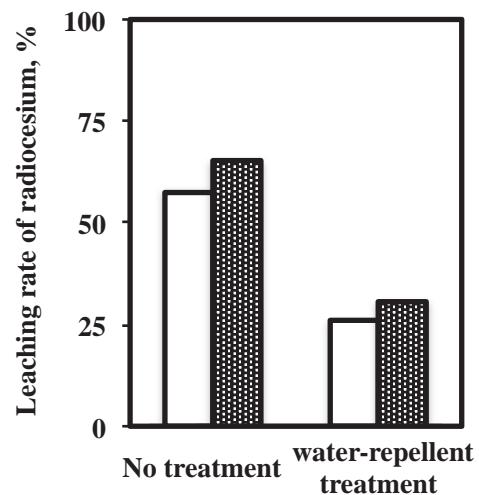


Fig. 1 Results of elution test for municipal waste incinerator fly ash.

□:  $^{137}\text{Cs}$ , ▨:  $^{134}\text{Cs}$ .

## 【参考文献】

- 1) (独)国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター, “放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分” (2014)
- 2) Iwahana, Y. et al., *J. Mater. Cycles Waste Manag.* **2015**, DOI 10.1007/s10163-015-0408-5.
- 3) 大淵敦司ら, X 線分析の進歩, **47**, 225-232 (2016).

Suppression of radiocesium elution by water-repellent treatment of municipal waste incinerator fly ash  
FUKUDA, D., IWAHANA, Y., KUME, T., FUJII, K., HAGIWARA, K., OBUCHI, A., KOIKE, Y.



## P09

### 自動分析装置による食品試料中のストロンチウム 90 分析

(日本分析センター<sup>1</sup>、柴崎製作所<sup>2</sup>) ○伴場 滋<sup>1</sup>、松江登久<sup>2</sup>、藤森 憲<sup>2</sup>、瀬戸博文<sup>2</sup>、児玉理恵<sup>2</sup>、森本隆夫<sup>1</sup>、柴崎昌彦<sup>2</sup>

#### 【はじめに】

東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故以降、食品に含まれるストロンチウム 90 やプルトニウムなどへの関心が高まっている。これらの核種の分析は放射化学分析を伴うため、結果を得るまでに時間を要し、多くの試料を分析することが難しいのが現状である。そこで、(公財)日本分析センターと株式会社柴崎製作所は、科学技術振興機構の研究成果展開事業「先端計測分析技術・機器開発プログラム 重点開発領域」を受け、食品中のアルファ・ベータ線放出核種の分離と放射能測定を自動化し、専用施設を必要とせず、安全・迅速な測定を可能とする自動分析装置を開発した。本研究では、自動分析装置の種々の食品試料への適用性を確認するとともに、その妥当性を確認するための検討を行った。

#### 【実験方法】

検討した自動分析装置(幅 250cm×奥行 85cm×高さ 180cm)の概略を図に示す。同装置は試料分解部、化学分離・精製部、測定のための試料調製部及び測定部から構成され、環境放射線モニタリングで使用されている文部科学省放射能測定法シリーズに準ずる分析法を採用しつつ、24 時間程度でストロンチウムの分離精製が完了するように設計・製作されている。種々の食品試料での検討では分析供試量は原則として生 1kg 相当の灰とし、自動分析装置により分離精製を行い、ストロンチウムの回収率を検討した。



図 自動分析装置の概略

#### 【結果と考察】

50 試料程度の食品試料を自動分析装置により分析したところ、ストロンチウムの回収率は概ね 60%以上、所要時間は概ね 24 時間であり、いずれも良好な結果であった。一部の試料でろ過に時間がかかるなどの不具合が散見されたものの、装置及び制御システムの改良により、それらの不具合点を解消することができた。また、日本分析化学会が頒布している魚類認証標準物質(JSAC0785)を自動分析装置により分析したところ、結果は  $11.8 \pm 1.6\text{Bq/kg}$  灰、 $13.0 \pm 1.6\text{Bq/kg}$  灰であり、認証値( $11.5 \pm 1.2\text{Bq/kg}$  灰)と良く一致しており、開発した自動分析装置は種々の食品試料への適用が可能であることが確認された。

Determination of Strontium-90 in Food Samples Using Automatic Radiochemical Analysis System  
Shigeru Bamba, Takahisa Matsue, Ken Fujimori, Hirofumi Seto, Rie Kodama, Takao Morimoto, Masahiko Shibazaki

# P10

## イオン交換法を用いた海水中放射性ストロンチウムの化学分離

(慈恵医大・アイソトープ<sup>1</sup>、(株)日立製作所・ヘルスケア BU<sup>2</sup>、名大・RIC 分館<sup>3</sup>)

箕輪はるか<sup>1</sup>、加藤結花<sup>2</sup>、緒方良至<sup>3</sup>

**【緒言】** 環境試料中の放射性ストロンチウムの分析はこれまで、イオン交換法・発煙硝酸法・シュウ酸塩法など手順が煩雑で化学分離操作に時間がかかり劇物の使用が必須である方法が用いられていた。福島第一原発事故による汚染水の海洋漏洩を受け、海水中の放射性ストロンチウムを短時間で測定し評価できる方法の確立が求められている。我々は放射性ストロンチウムの安全かつ簡易・迅速な分析法の開発を目的として、陽イオン交換樹脂を用いたカラムによる分離を試みた。

**【実験】** 人工海水（ダイゴ人工海水 SP、日本製薬）に <sup>85</sup>Sr をスパイクした試料を調製して化学分離を行った。Fig.1 に分離操作手順を示す。人工海水試料 200ml を陽イオン交換樹脂（Dowex<sup>TM</sup> 50W-X8）を充填したカラムに通し、陽イオンを吸着させた。カラムを 15.4W/V% 酢酸アンモニウム - メタノール溶液（容量比 1:1）で洗浄し Ca、Mg を溶出させた後、4M-HCl 溶液 60ml で Sr を溶出した。溶出液に NaOH 溶液を加え pH>9 とし、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> を加えて 80°C

で 1 時間加熱した後、一晩静置し、炭酸塩沈殿を生成させた。その後、吸引濾過により沈殿をメンブレンフィルタ（Isopore<sup>TM</sup> 0.45μm, Millipore Corp.）に捕集した。沈殿をフィルタごと乾固封入し、NaI 測定器（応用光研）で測定した。分析途中の各溶液はバイアルに入れ Well 型 NaI ガンマカウンター（ARC-7001, Hitachi, Ltd.）で測定し、Sr の回収率を求めた。

**【結果と考察】** 最適な条件において Sr 回収率は 95%であった。陽イオン交換カラムを酢酸アンモニウム - メタノール溶液により洗浄する際、妨害元素の除去割合と Sr の回収率とを考慮し最も適切な液量にて実施する必要がある。標準的な海水濃度の場合は洗浄液量が

20ml で測定に十分な Sr の分離ができた。この方法により海水試料からの Sr の分離が 2 日間で可能となった。今後、放射性セシウムが共存した場合の手順および収率を確認した後、海水試料からの <sup>90</sup>Sr の定量に適用する予定である。

Research of a rapid analysis for radiostromtium in sea water by ion exchange chromatography  
MINOWA, H., KATO, Y., OGATA, Y.

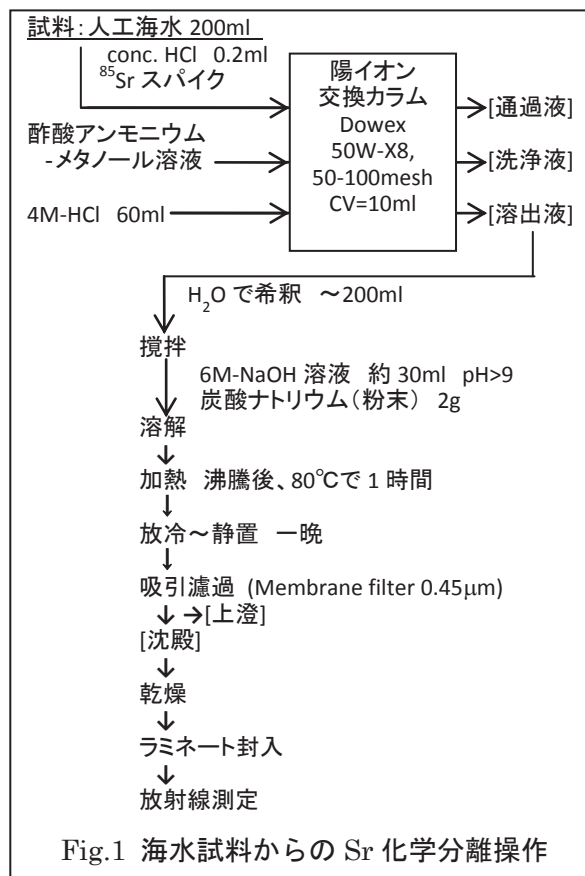


Table 1 化学分離操作における Sr 回収率

試料	Sr 回収率(%)		
	No.1	No.2	No.3
試料溶液通過液	0.73	1.11	0.43
酢酸アンモニウム - メタノール洗浄液	40ml	30ml	20ml
	18.2	12.5	3.8
炭酸塩沈殿上澄	4.5	2.1	1.2
炭酸塩沈殿	72.2	79.1	94.8

# P11

## 固相抽出ディスクを用いた放射性ストロンチウム分析用線源の迅速作製法

(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、リガク<sup>3</sup>、明大理工<sup>4</sup>)  
 ○藤井健悟<sup>1</sup>、栗原雄一<sup>2</sup>、大渕敦司<sup>3</sup>、中村利廣<sup>4</sup>、小池裕也<sup>4</sup>

**【緒言】** 文部科学省が定めている放射性ストロンチウムの分析法<sup>1)</sup>は、イオン交換法や沈殿法によってストロンチウムの分離を行い、沈殿法で線源を作製した後、放射線計測を行う方法であるため、確立された分析方法ではあるが迅速性に欠ける。近年、固相抽出剤による分離と ICP-MS による計測とを組み合わせた迅速分析法が開発されているが、スクリーニング分析としての利用が主な目的である。極微量の放射性ストロンチウムについて正確で信頼性の高いデータを得るためには、放射線計測による分析が望ましい。本研究では、放射性ストロンチウム分析用線源を迅速かつ簡便に作製するために、安定 Sr 及び Y の添加回収実験により固相抽出ディスクを用いた線源作製法の検討を行った。

**【実験】** 土壤認証標準物質(JSO-1)0.1 g に Sr 標準液及び Y 標準液(1000 mg L<sup>-1</sup>)を各 1 mL 加え HF, HClO<sub>4</sub>, HNO<sub>3</sub> の混酸で酸分解した。酸分解後 8 mol L<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub> 20 mL で溶解し試料溶液とした。試料溶液を Eichrom 社製 Sr resin<sup>®</sup> 及び DGA resin<sup>®</sup> カートリッジ(2 mL)を連結させたカラムに 1-2 mL min<sup>-1</sup> で通液することで Sr resin に Sr を、DGA resin に Y をそれぞれ抽出した。続いて 8 mol L<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub> 30 mL で連結したカラムを洗浄した後、Sr resin と DGA resin を分離し、Sr resin から 0.05 mol L<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub> 30 mL で Sr を溶離し、DGA resin から 0.1 mol L<sup>-1</sup> HCl で Y を溶離した。Sr resin 及び DGA resin の溶離液に 0.1 mol L<sup>-1</sup> CH<sub>3</sub>COONH<sub>4</sub> 溶液 500 mL を加えて Sr resin の溶離液を pH 6 に、DGA resin の溶離液を pH 5 に調整した。この試料溶液を、あらかじめコンディショニングした 3M<sup>™</sup> 社製 Empore<sup>™</sup> キレートディスク(47 mm)に 50 mL min<sup>-1</sup> で通液し、Sr 及び Y をそれぞれ濃縮した。通液操作を行ったキレートディスクを 60°C で 40 分間乾燥させた後、マイラー膜(フィルム厚 3.6 µm)を内側に挟んだ状態でラミネートフィルム(フィルム厚 100 µm)によるコーティングを施し、ディスク試料を作製した。ディスク試料は蛍光 X 線分析装置(XRF; リガク製 RIX 3100)で測定を行い、Sr 及び Y の回収率を算出した。管球は Rh を用い、管電圧 50 kV、管電流 80 mA で動作させた。測定径は、30 mmφ を使用した。回収率は予め同様の条件で作成した検量線を用いて算出した。

**【結果及び考察】** キレートディスクへの Sr 及び Y の回収率を Table 1 に示す。Sr 及び Y の回収率はほぼ 100% であり、試料溶液中の Sr 及び Y の全量をキレートディスクへ濃縮することができた。文部科学省が定めている分析法では、試料採取から測定までに約一か月を要する。これに対し、本研究の分析方法では、試料の分解からディスク試料の分析までの工程を約 5 日で行うことができた。発表ではさらに放射線計測による放射性ストロンチウムの定量結果や妨害元素(β 線放出核種)除去の検討結果を示す。

**Table 1 Spike tests for Sr and Y in JSO-1 extracted with inimodiacetate chelating disk**

Element	Content <sup>2)</sup> / mg	Added / mg	Found / mg	Recovery, %
Sr	0.0197	1.003	0.984 (1.1)	96.3 (3.8)
Y	0.0025	1.000	0.976 (4.6)	97.4 (2.4)

( ): Relative standard deviation, % (n = 5)

**【参考文献】** 1) 文部科学省, “放射能測定シリーズ 2 放射性ストロンチウム分析法” (2003)  
 2) S. Terashima *et al.* *Geostandards Newsletter*, **26**, 85 (2001)

Rapid source preparation for radiostrontium analysis using solid-phase extraction disk  
 FUJII, K., KURIHARA, Y., OHBUCHI, A., NAKAMURA, T., KOIKE, Y.

# P12

## 淡水系地下水中の Ra 同位体

(JAEA<sup>1</sup>、金沢大 LLRL<sup>2</sup>、筑波大<sup>3</sup>) ○富田純平<sup>1</sup>、宮田佳樹<sup>2</sup>、濱 克宏<sup>1</sup>、坂口 綾<sup>3</sup>、長尾誠也<sup>2</sup>、山本政儀<sup>2</sup>

【緒言】近年、飲料水に含まれる天然放射性核種の経口摂取による住民の内部被ばくが世界的に注目されている。その中でも、アルカリ土類元素である Ra 同位体は、骨に集積し、線量係数も大きいため、内部被ばく線量評価上重要な元素である。一般的に、地下水中の <sup>226</sup>Ra 濃度には塩分依存性があり、塩分が高くなるに従い <sup>226</sup>Ra 濃度も高くなることが知られている。しかしながら、近年、淡水にも関わらず世界保健機関 (WHO) の定めるガイダンスレベル (<sup>226</sup>Ra: 10<sup>3</sup> mBq L<sup>-1</sup>、<sup>228</sup>Ra: 10<sup>2</sup> mBq L<sup>-1</sup>) を超える Ra 同位体を含む地下水が諸外国で発見されており (右下図)、淡水系地下水 Ra 同位体の濃度把握やその挙動解明が世界的に重要な課題となっている。日本においては、淡水系地下水中の Ra 同位体に関する測定データは少なく、水中 Ra 同位体の濃度範囲やその挙動については不明な点も多い。そこで、本研究では、福島県 (南相馬市)、茨城県、岐阜県 (瑞浪市) で採取した淡水系地下水中の Ra 同位体 (<sup>226</sup>Ra、<sup>228</sup>Ra) 濃度範囲を明らかにするとともに、その濃度を制約する要因について検討を行った。

【試料採取及び実験方法】地下水・湧水の試料採取は、福島県南相馬市 (9 地点)、茨城県 (12 地点) 及び岐阜県瑞浪市の JAEA 瑞浪超深地層研究所の研究坑道内観測孔 (13 試料) において行った。水試料の pH、酸化還元電位、電気伝導度、温度は、現地で直ちに測定した。水試料 (20~40 L) 中の Ra 同位体は、Ra 汚染が殆ど無い Ba キャリアーを用いて BaSO<sub>4</sub> 共沈法により回収し、3 週間以上放置後、γ線スペクトロメトリーにより定量した。Ra が低濃度の試料については、金沢大学低レベル放射能実験施設の尾小屋地下測定室において測定した。水中の陽イオンは、ICP-AES 又は ICP-MS、陰イオンはイオンクロマトグラフ測定装置、アルカリ度は滴定法により測定した。

【結果と考察】福島県と茨城県で採取した水試料の大部分は酸化的な Ca-HCO<sub>3</sub> 型、岐阜県で採取した水試料は、還元的な Na-Cl (・HCO<sub>3</sub>) 型であった。地下水中の <sup>226</sup>Ra と <sup>228</sup>Ra 濃度は、それぞれ 0.07~35、検出限界以下 (0.15) ~76 mBq L<sup>-1</sup> であり、WHO の定めるガイダンスレベルよりも低い値であった。岐阜県で採取した地下水の <sup>226</sup>Ra (8.0~35 mBq L<sup>-1</sup>) は、福島県 (0.15~2.7 mBq L<sup>-1</sup>) や茨城県 (0.07~2.9 mBq L<sup>-1</sup>) の地下水よりも高濃度であった (右図)。福島県や茨城県で採取した地下水は、低塩分で酸化するため、Ra が固相に吸着しやすい環境であると考えられる。一方、岐阜県の地下水は、より塩分が高く、還元性であるため、Ra の固相への吸着が抑制され、Ra 同位体が水相に保存されやすい環境となり、<sup>226</sup>Ra がより高濃度になった可能性が考えられた。

本研究は、JSPS 科研費 (26740021) の助成を受け、実施した。

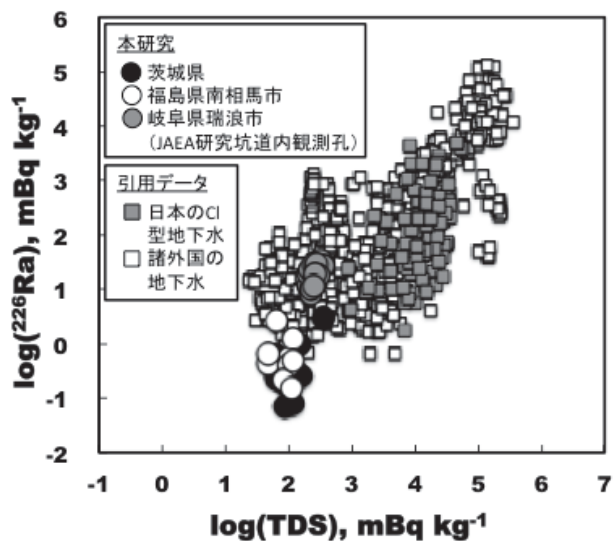


図 水試料中の <sup>226</sup>Ra 濃度と塩分の関係

Ra isotopes in fresh groundwaters

TOMITA, J., MIYATA, Y., HAMA, K., SAKAGUCHI, A., NAGAO, S., YAMAMOTO, M.

# P13

## ケイ酸塩鉱物中トリウムおよびラジウムの同位体の存在形態

(明大院理工<sup>1</sup>、明大研究・知財戦略機構<sup>2</sup>、明大理工<sup>3</sup>)

○塩原良建<sup>1</sup>、栗原雄一<sup>2</sup>、中村利廣<sup>3</sup>、小池裕也<sup>3</sup>

【緒言】 鉱物に対する酸溶液を用いた溶出実験において、溶出液中のトリウムおよびラジウム同位体の放射能比が鉱物中の値と異なることが知られている<sup>1,2)</sup>。この違いは、同位体が生成されるまでの壊変履歴によると考えられているが、この解釈に当てはまらない場合もある。この原因を探るために、ケイ酸塩鉱物であるイットリア石およびトール石に対して土壌などに用いられる逐次抽出を行い、トリウム及びラジウム同位体の形態別分析を行った。

【実験】 試料は、ウランを多く含むイットリア石およびトリウムを多く含むトール石の粉末を用いた。イットリア石は改良 BCR 逐次抽出法<sup>3)</sup>の Step 1~3 を、トール石は Step 1 および Step 2 まで適用した。この逐次抽出により、Step 1 ではイオン交換性陽イオン、Step 2 では酸化物態、Step 3 では硫化物態、残渣はケイ酸塩として鉱物中の元素を回収できる<sup>3)</sup>。各段階の溶液は、エポキシ系樹脂でコーティングしたブリキ製コンテナ (70 mmφ, 16 mmH) に 30 mL 分取し、グルコマンナンと共に純水および 2M NaOH を添加して固化し測定試料とした。各試料は、エポキシ系樹脂で密封した後、<sup>224</sup>Ra-<sup>212</sup>Pb 間が放射平衡に達する 2 日間および <sup>226</sup>Ra-<sup>214</sup>Pb 間が放射平衡に達する 2 週間以上待ち、γ 線スペクトロメトリに供した。トリウム同位体は同位体希釈法 / α 線スペクトロメトリにより定量した。

【結果および考察】 イットリア石およびトール石の形態別分析を行い、鉱物中のトリウムおよびラジウム同位体の存在形態を観測した。Fig. 1 に各段階でのラジウム同位体の抽出率を示す。イットリア石中ではトリウム系列核種の方がウラン系列核種より溶出しやすい形態で存在し、トール石中では逆の傾向を示した。ラジウム同位体は鉱物種によって可溶性形態と難溶性形態の存在割合が異なると考えられる。トリウムおよびラジウム同位体の酸溶液に対する溶出挙動の違いは存在形態の違いに起因していることが示唆された。

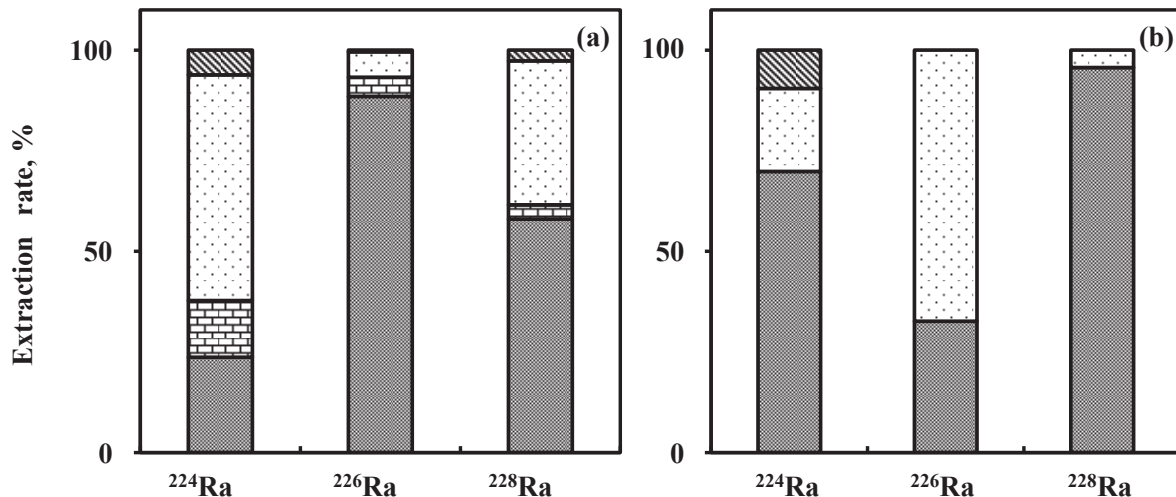


Fig. 1 Extraction rate of radium isotopes from yttrilite (a) and thorite (b).

▨: ion exchanger (Step 1), ▤: oxide (Step 2), ▧: sulfide (Step 3), ■: silicate (Residue).

【参考文献】 1) Nagai, K., et al., *Radioisotopes*, **55**, 567 (2006); 2) Nagai, K., et al., *Radioisotopes*, **56**, 719 (2007); 3) Rauret, G., et al., *J. Environ. Monit.*, **1**, 57 (1999).

Chemical forms of thorium and radium isotopes in silicate minerals  
SHIOBARA, R., KURIHARA, Y., NAKAMURA, T., KOIKE, Y.

# P14

## TEVA レジンディスクを用いた土壤中に含まれるプルトニウム迅速定量法の検討

(金沢大学院自然<sup>1</sup>、金沢大学際セ<sup>2</sup>金沢大理工<sup>3</sup>)

○山守航平<sup>1</sup>、上杉正樹<sup>2</sup>、横山明彦<sup>3</sup>

### 【緒言】

原子力施設の事故が発生した場合、安全確保のために迅速な環境モニタリングが要求される。特に土壤中のプルトニウム定量分析法は結果報告までに時間のかかるものの一つであり、早くとも分析測定に 5 日を要する。本研究グループは分析過程の再検討によって、これまで 2 日間かかるとされていた有機物分解と Pu の酸溶出をアンモニウム塩融解法により 3 時間で完了させる事が出来たが、共存する妨害物質を除去するために行う精製分離操作では、未だ約 12 時間を要し、高濃度の酸廃液が生じてしまう。そこで本研究では、従来の陰イオン交換樹脂の代わりに固相抽出法のひとつである TEVA レジンディスクを適用することで精製分離過程の改善を試みた。さらにプルトニウム(Pu)の価数調整の安定化を図る事により回収率のバラつきを解消することを目指した。

### 【実験】

1. 精製分離実験：土壤からアンモニア塩融解法により Pu を溶出した後、精製分離のために Pu を TEVA レジンディスクに吸着させた。(図 1) 分離の最適条件を検討するため、ディスクに通過させる溶液量、還元剤の有無や酸濃度の変化により Pu の脱離状況を調べた。<sup>242</sup>Pu を収率トレーサーとし、従来法と比較して回収率と所要時間、U, Th 等の洗浄に必要な洗浄液の量、Pu の脱離剤の選択について検討した。
2. 回収率改善実験：Pu の価数調整を完全にするため酸化剤に過マンガン酸カリウムの適用を試み、従来法の酸化剤である亜硝酸ナトリウムを用いた場合と回収率の比較をした。

### 【結果】

1. 従来の方法と比較して、精製分離に要する時間を 12 時間から 0.5 時間に短縮でき、U, Th, Am などの妨害核種の分離も合計 40mL の洗浄液により行うことが可能であった。脱離に要する溶液を蒸発が容易な系で少量の溶液量に抑えることで、次の測定試料調製操作の短縮にも繋がった。
2. 回収率が 10~20%と非常に低かった土壤に適用したところ 50~60%に改善することができた。このことから硫酸水素アンモニウム塩融解法は土壤を焼却して有機物分解を行う必要がなく時間短縮になるが、溶出液に有機物が含まれてしまい Pu の酸化を妨害していた事が分かった。

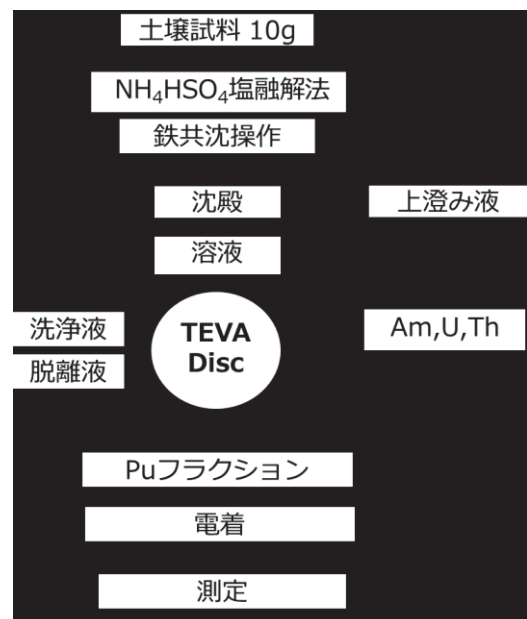


図 1: TEVA レジンディスクによる Pu の分離工程

Improvements of rapidness for the analysis of plutonium in soil using a TEVA resin-Disc

YAMAMORI, K., UESUGI, M., YOKOYAMA, A.

# P15

## 粒子状プルトニウムの精製時期推定のためのアメリカシウム α 線測定法の検討

(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<sup>1)</sup>。この際、回収した粒子中に Pu が含まれていることを事前に確認するため、α 線測定の適用を検討している。さらに、α 線測定によって得られる  $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/^{(239+240)}\text{Pu}$  放射能比と TIMS 測定によって得られる Pu 同位体組成により、次の式から  $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$  同位体比を導出することで、Pu 精製時期の推定が可能となる。

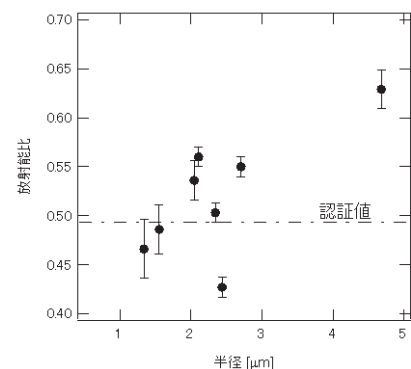
$$\frac{^{241}\text{Am}}{^{241}\text{Pu}} = \frac{R_A \times (\lambda_{\text{Pu-239}} + (^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}) \times \lambda_{\text{Pu-240}}) - (^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}) \times \lambda_{\text{Pu-238}}}{\lambda_{\text{Am-241}}} \bigg/ \frac{^{241}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$$

ここで、 $R_A$  は、 $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/^{(239+240)}\text{Pu}$  放射能比、 $\lambda$  は、各核種の崩壊定数である。

これまでに TIMS フィラメント上にピックアップした Pu 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、Pu 同位体比測定を試みたが、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 Am・Pu の明確な分離が困難であったため、 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  比が得られなかった。そこで、粒子のまま α 線測定することを目指している。前回の発表では、α 線の自己吸収が小さい 1μm 程度の粒子で精製時期を推定した。本発表では、さらに大きな粒子を α 線測定し、Pu 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、定量性を検討したので報告する。

【実験】Pu 粒子は、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 mm<sup>2</sup>) で測定した。なお、試料-検出器間距離は、5 mm、測定時間は、180 万秒である。α 線の自己吸収によるピークの重なりは、WaveMetrics 製 IgorPro の Multi-Peak fitting 機能を利用し、分離・解析した。

【結果と考察】Pu の粒子径は、1.3~4.7μm であった。使用した SRM947 の精製後の経過時間は、7.7 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 0.495 である。粒径が 2μm を超える場合、スペクトル解析によるピークの分離が難しく、認証値から誤差 1σ の範囲を大きくずれた。本法を適用する場合、ピックアップする粒子の大きさを、2μm までとする必要があることが分かった。



図：粒径に対する  $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/^{(239+240)}\text{Pu}$  放射能比

【緒言】 環境変動により濃度や同位体組成が変動しやすい U, Th, Pb などの元素は地球化学や環境化学で研究のプロブとして測定されてきた。さらに、原子力施設の事故や核実験・核爆弾などによって環境中に放出された放射性核種も現状の分布状況の把握や長期的な濃度変動の予測をするために測定されている。特に人工放射性元素である Pu や Am は同位体比や濃度などを測定することで放出起源や経過時間などの履歴が推定できる。分析に供せられる環境試料中に存在するこれらの元素は極微量であることが多く、これらを精確に分析するためには試料の主要構成元素からの分離が必須である。特に Am 分析では化学的に類似している希土類元素(以降、Ln と表記)が多量に含まれている試料を ICP-MS で測定する場合、高濃度の溶液で装置内部を汚してしまわないよう Am に特化した化学分離を行う必要がある。これまで一本の陰イオン交換カラムでナノグラム以下の Pu, U, Th, Pb, Ln を逐次的に自動で分離できる技術を開発してきた。今回、このシステムに Am 分離も組み込んで更なる多元素逐次分離を目指す。その先駆けとして、チオシアン酸アンモニウムを添加したアルコールと塩酸の混合溶媒による古典的で多用されている Am イオン交換分離法の性能を評価した。

【実験】 溶媒として用いるアルコールには有機溶剤作業管理の必要がないエタノールを用いた。 $^{243}\text{Am}$  スパイク(47 pg)と Ln を含む ICP-MS 校正溶液(50 ng)をそれぞれ 90vol%エタノール-1M  $\text{HNO}_3$  3.3 mL に溶かして試料溶液とした。これを 2 本の陰イオン交換カラム(MCI-GEL CA08P, 粒径 75~150  $\mu\text{m}$ ,  $\text{NO}_3^-$ 形, カラム内径 4 mm, 長さ 70 mm, カラム容量 0.84 mL)にそれぞれ流して樹脂上に吸着させた後、80 vol%エタノール-0.1 M  $\text{HCl}$ -0.5 M  $\text{NH}_4\text{SCN}$  を 8 mL 流して Ln を溶離させた。次いで 80 vol%エタノール-0.1M  $\text{HCl}$  を 10 mL 流して Am を溶離させた。得られた Am と Ln 分離分画は ICP-MS で各元素のイオン強度を測定し、分離しない試料とのイオン強度比から回収率を求めた。

【結果】 自然落下のイオン交換では分離終了まで 11 時間以上かかった。Am は Ln よりも SCN 陰イオンと錯形成しやすいため  $\text{NH}_4\text{SCN}$  を含む Ln 溶離液では溶離せず、その後の目的的分画のみに 90%溶出した(Fig. 1)。Ln は軽い La から順番に溶出して 100%回収できたが、Lu などの重 Ln では大半が Am 分画に溶出した。混合溶媒の通液量や濃度、流速、イオン交換樹脂の粒径などを最適化することにより、Am と Ln の分離性能を改善できる可能性はあるが、 $\text{NH}_4\text{SCN}$  が加熱・酸分解されずに多量の塩となって残存するため、Ln を ICP-MS で測定する場合には脱塩処理が必要になる。今後、アルコールの代わりとなる混合溶媒を用いて Ln と Am の相互分離、更には目的元素全ての逐次分離に取り組む。

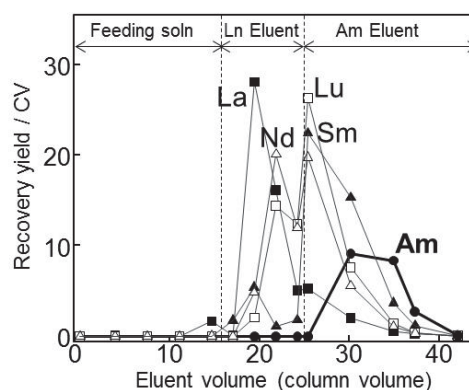


Fig.1 Anion-exchange separation of Am and lanthanides with ethanol-acid media

本発表には科研費基盤研究(C) (25340078, 16K00592)からの助成を受けて得られた成果の一部が含まれる。



## P17

### 電子スピン共鳴法による小児の外部被ばく線量の推定

(東北大高教機構<sup>1</sup>, 東北大院理<sup>2</sup>, 東北大学病院<sup>3</sup>, 東北大院歯<sup>4</sup>)

○岡 壽崇<sup>1,2</sup>, 高橋 温<sup>3</sup>, 小荒井一真<sup>2</sup>, 西山純平<sup>2</sup>, 木野康志<sup>2</sup>, 関根 勉<sup>1,2</sup>,  
清水良央<sup>4</sup>, 千葉美麗<sup>4</sup>, 鈴木敏彦<sup>4</sup>, 小坂 健<sup>4</sup>, 佐々木啓一<sup>4</sup>, 篠田 壽<sup>4</sup>

**【緒言】** 福島原発事故によって環境中に放出された放射性物質は、今後、長期間にわたって生体や環境に影響を与えることが予想され、被ばく線量の推定が行われている。我々は電子スピン共鳴 (ESR) 法によって乳歯の炭酸ラジカルを測定し、福島県在住小児の外部被ばく線量の推定を行っている。ESR 測定においては乳歯からエナメル質のみを抽出する必要があるが、従来の分離方法では抽出に時間がかかる、オペレーターの熟練度によって試料の質が変わる、などの問題があった。また、我々は1本の歯で外部被ばくと内部被ばくを包括的に評価することを目指しているが、従来法では象牙質を失ってしまうことも問題であった。そこで我々は、象牙質を失わず、誰でも簡便に迅速にエナメル質抽出が行える方法を検討した。

**【実験】** ESR 測定においては十分なエナメル質の量が必要となるが、乳歯はサイズが小さいために十分な量が確保できない。そこで、まずは永久歯を用いて比較を行うこととした。歯の下部の歯根部を切断し、歯の上部をさらに2つに切断した。一方はハンドドリルで象牙質を削り、小さく砕いてからさらに粒径を直径 0.100 mm から 0.425 mm に揃えた。もう一方はそのまま小さく砕き粒径を揃えた後、エナメル質と象牙質の密度差を利用した重液分離法で分離した。2つの方法で抽出したエナメル質をよく乾燥させ、石英試料管に充填の後に ESR 測定を行った。得られた ESR スペクトルは EPR Dosimetry [1] プログラムでピーク分離し、外部被ばく線量の推定に利用する炭酸ラジカルの強度を求めた。

**【結果と考察】** 削り出し法および重液分離法で抽出したエナメル質の ESR 強度はほぼ一致したことから、重液分離法でもきちんとしたエナメル質の分離ができることが明らかになった。そこで、福島県在住の同一の被験者から得た2本の歯のうち1本は削り出し法で、もう1本は重液分離法でエナメル質を抽出し、ESR 測定を行った。2本の歯の脱落時期には数ヶ月程度の差があるが、2名の被験者のどちらにおいても、分離方法によらずほぼ同様の ESR スペクトルが得られ、検量線から推定した外部被ばく線量もほぼ同程度であることがわかった。これらのことから、この新規分離法を利用すれば、オペレーターの熟練度によらず簡便・迅速に、かつ、精確にエナメル質を抽出できることが示された。この分離法を利用して福島県の比較的空間線量率の高い地域から収集された歯の炭酸ラジカルを測定し、検量線から外部被ばく線量を推定した現状を報告する。

**【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。

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

Dosimetry study by electron spin resonance spectroscopy using milk teeth of children  
OKA, T., TAKAHASHI, A., KOARAI, K., NISHIYAMA, J., KINO, Y., SEKINE, T., SHIMIZU, Y.,  
CHIBA, M., SUZUKI, T., OSAKA, K., SASAKI, K., SHINODA, H.

## P18

### 福島環境安全センターにおける環境回復への取り組み

(原子力機構福島) ○阿部寛信、吉川英樹、時澤孝之、浅妻新一郎

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（原子力機構）福島環境安全センターは、福島第一原子力発電所の事故発生直後より、原子力災害時の指定公共機関として緊急事態への支援活動（緊急時モニタリング、被ばく測定支援（WBC 車の派遣）、住民の健康相談ホットライン対応、放射線管理・測定に携わる人材を育成する活動等）を実施してきた。また、国からの委託を受けて、放射性物質の分布状況等に関する調査研究（マップ事業）、除染モデル実証事業を実施し、事故後の放射線モニタリング技術の標準化、空間線量率や放射性物質の沈着量のマップの作成、除染効果の評価、施工上の留意点等、一連の方法の整理等の活動を実施した。

現在、原子力機構は、ふくしまの環境回復に資するため、主として①「モニタリングに関する技術開発」、②「放射性物質の環境動態研究」、③「除染・減容に関する技術開発」の三つの課題に対応し、研究開発を実施している。①「モニタリングに関する技術開発」では、無人ヘリや無人飛行機、潜水艇式ロボット（ROV）等を用いた未除染の森林、河川、沿岸海域等の線量評価手法の確立を目指し、放射線測定技術の高度化等を実施している<sup>[1]</sup>。②「放射性物質の環境動態研究」では、河川水系を中心に、未除染の山地森林から水流や風等により移動する放射性セシウムの挙動を長期にわたり観察し、移動挙動を解析・予測するためのモデルを開発するとともに、予測結果に基づき生活圏における被ばく線量の変化を評価し、被ばく線量への寄与が大きい経路の放射性セシウムの移動抑制等の対策を提案することを目的とした福島長期環境動態研究（F-TRACE）プロジェクトを実施している<sup>[1]</sup>。③「除染・減容に関する技術開発」では、除染活動支援システム（RESET）を構築し、除染効果の予測評価技術の提供により自治体の効率的な除染計画策定の支援等を行っている<sup>[1]</sup>。そのほか、住民の被ばく評価の一環として移動式 WBC 車等による内部被ばく測定、「放射線に関するご質問に答える会」等の住民の不安・疑問に対するコミュニケーション活動等の住民への支援活動を実施している。

一方で、復興に対する地元のニーズは、事故発生から5年が経過し、日々変化している。多様なニーズを的確に把握し、それに応える研究開発、支援活動を実施するため、福島県、国立研究開発法人国立環境研究所、原子力機構は、三機関による協力協定を締結し、福島県環境創造センター（福島県三春町、南相馬市）において、三機関の連携の下、各機関の持ち味を活かした環境回復及び復興に向けた研究の推進を進め、ふくしまの復興へ寄与していく。

#### 【参考文献】

[1]原子力機構福島研究開発部門（2015）；東京電力（株）福島第一原子力発電所事故に係る廃止措置及び環境回復への原子力機構の取り組み

## 【緒言】

福島第1原発事故により放出された放射性セシウム (Cs-134, 137; 以下, 放射性Cs) の供給源の一つとして未除染の山地森林域が挙げられる。これらの地域においてリターおよび土壌に付着した放射性Csが地表面を流れる表面流に伴って移動することにより, 隣接する河川やダムを通じて河口域および沿岸域へ流入し, 時間や場所によって空間線量率の変化を引き起こす可能性がある。本研究では, この移動現象の起点となる山地森林の斜面における地表面流出物質の物性等を把握するため, 2013年より観測を続けてきた山地森林域に設置したUSLEプロットおよび大柿ダム上流域にある治山ダムにおける長期モニタリング結果について報告する。

## 【調査・実験】

2013年3月末より, 川俣町山木屋地区に2カ所 (落葉広葉樹林), 川内村荻地区に1カ所 (常緑針葉樹: スギ人工林) にUSLEプロットと観測機器を設置し, 長期モニタリングを開始した。USLEプロットは幅約4.5 - 6m, 長さ約10 - 11mであり, 斜面下部に流出物質を捕らえるための土砂, リター受け用のトラップおよび貯留用タンクを設置し, 斜面からの流出量評価および分析を行った。採取した土砂, リターおよび表面流はGe半導体検出器による放射能分析を行い, 各成分中の放射性Csを定量した。試料採取にあわせて, NaIサーベイメータを用いて1m高さの空間線量率を測定し, 2013年 - 2015年期間の経時変遷を調べた。

浪江町大柿地区の大柿ダム上流域小出谷川沿いにある治山ダムにおいて, 2013年 - 2015年の間に計4回の頻度で試料採取および空間線量率の測定を行った。通常, 治山ダムは堤体上流部が満砂状態となっていることが普通であるが, この治山ダムは完全に土砂で満たされていないため, 流域からの流出土砂が全て堤体上流域で受け止められる。したがって, 堤体内の堆積物量変化を評価することによって, 流域からの流出物を評価することが可能である。流域から治山ダムへ流れ込んだ堆積物計測は3Dレーザースキャナーを用い, 経時的な変化を調べた<sup>1)</sup>。また流出物質の含有放射性Cs量を評価のため, 堤体内の0 - 5cm深度の堆積土壌およびリターを採取し, Ge半導体検出器を用いた放射能分析を行った。空間線量率については観測プロットと同様に, NaIサーベイメータを用いた1m高さの測定し, その変遷を調べた。

## 【結果・考察】

山木屋地区および荻地区に設置した森林観測プロットにおける土壌, リター, 表面流による年間の放射性Cs流出率はおおよそ0.1%と斜面方向へのCs移動量が少ないことがわかった。空間線量率変遷については放射性Csの減衰曲線に従う形で減少していく傾向ではあるが, これには放射性Cs深度方向への移行とリターフォールなどによる樹幹からの移入の影響も考慮する必要があるため, 今後検討が必要である。一方, 治山ダムについては放射性Csの流出率が年間0.5%と森林観測プロットと比べて多いが, その流出量の7割以上が2015年の台風18号に伴う大雨の期間に流出している。発表においては流出物の特性も含めて議論を行う。

【参考文献】 1) 渡辺貴善ら (2016); 3Dレーザースキャナーによる治山ダムの放射性セシウム堆積量の変化の推定, 日本地球惑星科学連合 連合大会 2016年大会

【緒言】 福島原発事故による放射性物質の分布・拡散・輸送に関する研究が多くの研究機関等でされる中、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，放射性物質の拡散・輸送の基礎情報の取得を目的に，エアロゾル粒子の分級捕集装置を用いて， $^7\text{Be}$ 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）を用いた $^7\text{Be}$ の運び手とな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2016年にかけて捕集し，捕集期間は約2-3週間とした。LP-20では，吸引流量を20 L/minとするととき，大気エアロゾルは12段階（13  $\mu\text{m}$ ～0.06  $\mu\text{m}$ ）に分級され，ガラスプレート（80 mm $\phi$ ）上に捕集される。分級捕集したエアロゾルを超純水22 mlに溶解後，硫酸ベリリウムを添加し，水酸化物沈殿として $^7\text{Be}$ を共沈させた。粒径ごとの放射能は高純度Ge半導体検出器にて478 keVの $\gamma$ 線を測定し， $^7\text{Be}$ の定量を行った。超純水に溶解した各液体試料の一部分3 mlを用いて，HPLCにて粒径ごとに陽イオンおよび陰イオンを定量した。

【結果および考察】 大気エアロゾルに含まれるイオン成分のイオンクロマト分析から，陰イオンでは， $\text{Cl}^-$ ， $\text{NO}_3^-$ および $\text{SO}_4^{2-}$ が多く，特に $\text{SO}_4^{2-}$ が際立って多く存在しており。陽イオンでは $\text{NH}_4^+$ が卓越して多く存在していた。各ステージに捕集されたエアロゾル粒子中の $^7\text{Be}$ ，主だった陽イオン，陰イオンの粒径分布をFig.1に示した。 $^7\text{Be}$ 放射性エアロゾルの粒径分布は，他のイオンに比べ， $\text{SO}_4^{2-}$ および $\text{NH}_4^+$ を含むエアロゾル粒子のそれと際だって類似していた。

$^7\text{Be}$ 放射性エアロゾル， $\text{SO}_4^{2-}$ および $\text{NH}_4^+$ を含む大気エアロゾル粒子が単分散，対数正規分布をしていると仮定して，幾何平均粒径を最小二乗法による関数フィッティングより求めた(Fig.2)。この解析から， $^7\text{Be}$ 放射性エアロゾルの幾何平均粒径は0.44～0.55  $\mu\text{m}$ と推定され， $\text{SO}_4^{2-}$ および $\text{NH}_4^+$ を含むエアロゾル粒子の幾何平均粒径はそれぞれ，0.54～0.67  $\mu\text{m}$ ，0.53～0.68  $\mu\text{m}$ と推定された。このことから， $^7\text{Be}$ は $\text{SO}_4^{2-}$ を多く含むエアロゾル粒子および $\text{NH}_4^+$ を多く含むエアロゾル粒子に付着して大気中を浮遊しており，したがって， $\text{SO}_4^{2-}$ および $\text{NH}_4^+$ を含むエアロゾル粒子が $^7\text{Be}$ の輸送を担っていると推測される。

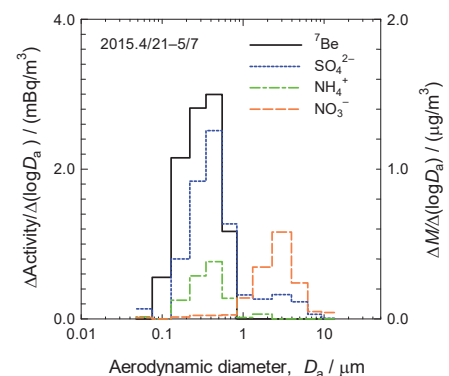


Fig.1 Typical activity and mass size distributions of major aerosols.

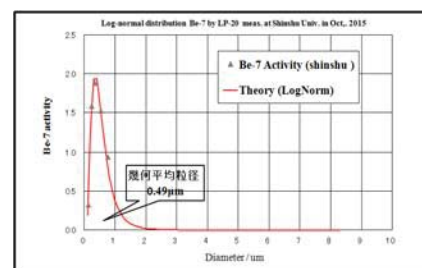


Fig.2 Typical result in the analysis of aerodynamic mean diameter for aerosols including  $^7\text{Be}$ .

# P21

## 日本国内全域における表層土壌中 $^{129}\text{I}$ 調査 -福島第一原発事故の影響-

(日本分析センター)

○王暁水・山道美和子・篠原宏文・伴場滋・太田裕二・磯貝啓介

**【緒言】** 2011年3月の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は、福島県とその周辺地域を始め、日本国内の広域に拡散・沈着した。 $^{129}\text{I}$ は半減期が1,570万年と長く、環境における長期的な動きを把握することは重要な課題である。一方、 $^{129}\text{I}$ 分析技術の進歩に伴い、加速器質量分析法(AMS)は感度的に優れており、既に $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比 $10^{-14}$ オーダーの分析が実用化されている。本研究では、日本国内47都道府県(49地点)で採取された事故前(2010年)及び事故一年後(2012年)の表層土壌(採取深度:0~5cm)中の $^{129}\text{I}$ の沈着・蓄積状況を調査した。また、原発事故由来の影響を確認するため、同一試料のガンマ線スペクトロメトリーによる $^{134}\text{Cs}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の測定結果を用いて、核種間の放射能比について検討した。

**【実験】** 乾燥した土壌中のヨウ素を燃焼法によりTMAH(Tetramethylammonium Hydroxide)溶液に捕集し、溶液から一部を分取して安定ヨウ素定量用試料とし、内標準としてインジウムを用いて誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)で安定ヨウ素( $^{127}\text{I}$ )を定量した。残りの溶液にヨウ素担体を加え、有機溶媒を用いた抽出によりヨウ素を分離・精製した。ヨウ素精製溶液に銀担体を添加し、生成したヨウ化銀沈殿にニオブ粉末を加えて、日本原子力研究開発機構・青森研究開発センター・むつ事務所及び東京大学MALTのAMSによりヨウ素の原子数比( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ )を測定した。得られた結果から $^{129}\text{I}$ 比放射能を算出した。分析工程の妥当性を確認するため、標準試料(NIST-1547)を併せて分析した。また、文部科学省放射能測定シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」に準じて、 $^{134}\text{Cs}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の測定を行い、これらの放射能濃度を算出した。

**【結果と考察】** 福島第一原発発電所との約500km範囲内の採取地点では、青森県(1地点)、岩手県、山形県、宮城県、福島県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、山梨県、長野県、福井県、岐阜県、静岡県、合計16地点で事故後、 $^{129}\text{I}$ 濃度と $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比が同時に上昇したことが観測された。また、日本国内全域での事故前後の表層土壌中 $^{129}\text{I}$ 濃度分布から、西日本に比べ東日本の土壌に事故の影響が顕著に認められた。一方、事故1年後の $^{137}\text{Cs}$ 濃度が事故前に比べ高く推移し、事故前の $^{129}\text{I}$ と $^{137}\text{Cs}$ の相関係数は0.295、事故1年後の相関係数は0.692であり、事故後の結果において強い相関が認められた。事故前、核実験フォールアウト及び再処理施設稼動に伴い環境中に放出された放射性ヨウ素が既に存在したため、事故前の濃度をバックグラウンドとして事故後の分析結果から、差し引いた結果(放射能濃度の増分)を用いて、 $^{134}\text{Cs}$ が観測された合計13地点(岩手県、山形県、宮城県、福島県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、山梨県、長野県、静岡県)で事故一年後に土壌に沈着した $^{129}\text{I}$ と $^{134}\text{Cs}$ の相関は0.808であり、これら地点の事故後表層土壌中の $^{129}\text{I}$ 濃度の上昇は、事故に起因すると考えられた。

Nationwide survey for  $^{129}\text{I}$  activity concentration of surface soil in Japan  
-influence of the Fukushima Dai-ichi nuclear plant accident (FDNPA) -  
Japan Chemical Analysis Center (JCAC)  
WANG, X.S., YAMAMICHI, M., SHINOHARA, H., BAMBA, S., OHTA, Y., ISOGAI, K.

# P22

## 北極海-北太平洋における海水中ヨウ素 129 の濃度分布

(日大院総合基<sup>1</sup>、日大文理<sup>2</sup>、JAMSTEC<sup>3</sup>、東大博物館<sup>4</sup>)○工藤 輝<sup>1</sup>、山形武靖<sup>2</sup>、永井尚生<sup>2</sup>、熊本雄一郎<sup>3</sup>、西野茂人<sup>3</sup>、松崎浩之<sup>4</sup>

【はじめに】表層環境中に存在する  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2}=1.57\times 10^7\text{y}$ ) は、1960年代まで盛んに行われた大気圏核実験や核燃料再処理施設の稼働、1986年に発生した旧ソ連におけるチェルノブイリ発電所事故や2011年の福島第一原子力発電所事故で放出された人為起源の  $^{129}\text{I}$  が支配的である。特にラ・アーク再処理施設(仏)、セラフィールド再処理施設(英)からは2007年までに海洋へ約5400kg、大気へ約440kg放出され、海洋中  $^{129}\text{I}$  インベントリの95%を占める。これらの再処理施設から海洋へ放出された  $^{129}\text{I}$  のほとんどは北大西洋から北極海へ流入し、また大気中へ放出された  $^{129}\text{I}$  は偏西風により輸送され北太平洋などに沈着する。ヨウ素の海水中の平均滞留時間は30,000年と長く、近年放出の始まった  $^{129}\text{I}$  は表層海水の化学トレーサーとして有用である。本研究では  $^{129}\text{I}$  のデータが少ない北極海と北太平洋の2014,2015年の海水中  $^{129}\text{I}$  の分布を調べ、これらの海域における拡散状況や経年変化などに関する知見を得ることを試みた。

【実験】海洋地球研究船『みらい』のMR1404,05次航海(2014/7/14-2014/10/7)、MR1503次航海(2015/8/24-2015/10/22)において採取された海水試料1Lをろ過し、ヨウ素担体を1mg加え、 $\text{CCl}_4$ を用いた溶媒抽出法でヨウ素を濃縮した。その後  $\text{AgNO}_3$ を加え、 $\text{AgI}$ 沈殿を生成し、東京大学MALTにおいて加速器質量分析により測定した。

【結果】MR1404次航海における表面海水中  $^{129}\text{I}$  濃度は北極海(79°N,162°W)で高く、北太平洋、ベーリング海、チャクチ海南部と比べると10倍高い濃度を示した。北太平洋(47°N,160°E-131°W)の鉛直分布は表層で高く、深層にいくにつれ濃度が減少する傾向が見られた。MR1404次航海 St.73(47°N,160°E)とKH-12-4次航海(2012年8月)の同測点BD07の  $^{129}\text{I}$  濃度の鉛直分布<sup>[1]</sup>と比較すると、表層50m付近までは St.073の  $^{129}\text{I}$  濃度が高く、100m以深からは  $^{129}\text{I}$  濃度が減少し、BD07の  $^{129}\text{I}$  濃度の方が高い分布を示し、時間経過による変動が見られた。北極海における  $^{129}\text{I}$  鉛直分布は、表層(0-100m)より深い層の方で  $^{129}\text{I}$  濃度が高い鉛直分布を示した(図1)。これは  $^{129}\text{I}$  濃度の低い太平洋水がベーリング海峡を通り、北極海の観測域まで輸送され、北大西洋から直接輸送された  $^{129}\text{I}$  濃度の高い大西洋水が希釈されたためと考えられる。

またMR1405次航海 St.009(75°N,162°W)と2015年9月の同海域の観測点であるMR1503次航海 St.054-3(72°N,155°W)を比較したところ、2014年は深度300m付近に極大層が存在しているが2015年は深度200m付近に存在していた。2015年の200m付近の海水密度は2014,2015年の300m以深の密度と同程度であり、 $^{129}\text{I}$  濃度が極大層の濃度と同程度であることから、2015年の観測点では  $^{129}\text{I}$  濃度の高い大西洋水が200m以深に存在していたことがわかった。また2013-2015の間で、 $^{129}\text{I}$  インベントリを比較したところ数%ずつ増加していた。北大西洋から北極海の本研究の海域付近への海水の輸送時間は約7-30年とされているため、 $^{129}\text{I}$  の主な放出源である欧州の再処理工場の1990年代の放出量の増加が、観測海域の  $^{129}\text{I}$  濃度の増加を引き起こしたと考えられる。

[1] H.Nagai et al,(2015) Nucl.Instr.And Meth.B,361,p.680-684

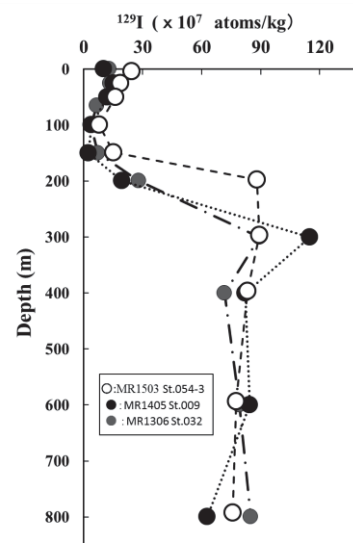


図1 北極海における  $^{129}\text{I}$  の鉛直分布

Distribution of  $^{129}\text{I}$  concentration in the Arctic Ocean and North Pacific

KUDO, A., YAMAGATA, T., NAGAI, H., KUMAMOTO, Y., NISHINO, S., MATSUZAKI, H.

【緒言】新潟県における環境中のトリチウム ( $^3\text{H}$ ) レベルを把握するため、県が柏崎刈羽原子力発電所周辺環境放射線監視調査を実施している柏崎刈羽地域を中心に、電解濃縮法により降水、大気、陸水、海水を測定した。

【試料】2010～2014年度に採取した月間降水 120 試料及び1 か月間連続捕集した大気 120 試料、並びに2012～2014年度に採取した陸水 66 試料及び海水 60 試料を分析した。

【分析】 $^3\text{H}$  分析は放射能測定法シリーズ「トリチウム分析法」に従って行った。監視調査では減圧蒸留後の試料にそのままシンチレータを加えて混合し、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタで測定しているが、現在の環境水中の $^3\text{H}$ 濃度は低レベルであるため特に海水試料において検出下限値(約0.4Bq/L)未満となることが多い。この研究では全ての試料について減圧蒸留後に電解濃縮を加え $^3\text{H}$ 濃度を測定した。電解濃縮は、固体高分子電解質を用いた $^3\text{H}$ 電解濃縮装置で蒸留後の試料水約300～1,000 mLを約50 mLまで濃縮した。軽水素水が優先的に分解するため、試料水約1,000 mLを約50mLまで減容させたときの $^3\text{H}$ の濃縮倍率は約10倍となる。

### 【結果】

- (1) 新潟県内の環境水中の $^3\text{H}$ 濃度は、2010～2014年度の5年間の平均値は、降水中濃度が0.53Bq/L、大気水分中濃度が0.59Bq/L及び大気中濃度が5.6Bq/m<sup>3</sup>であり、2012～2014年度の3年間の平均値では、陸水中濃度は0.37Bq/L、海水中濃度は0.098 Bq/Lであった。
- (2) 降水中濃度には3～5月の春に高く8～10月の夏から秋に低い季節変動が認められた。(Fig.1)
- (3) 大気中濃度は6～7月の夏季に高く、大気水分中濃度は4～5月の春季に高くなる季節変動が認められた。大気中濃度は絶対湿度の影響を大きく受けるため、大気中に含まれる水分量が多くなる夏季に増加する。大気水分中濃度は降水中濃度とよく似た変動パターンであった。
- (4) 電解濃縮を用いることにより、低濃度である海水中濃度も確定することができた。(Fig.2)
- (5) 県内の $^3\text{H}$ による内部被ばく(預託実効線量)は、経口摂取 $6.4\times 10^{-6}$  mSv, 吸入摂取 $1.5\times 10^{-5}$  mSvと見積もられ、年線量限度1 mSvと比べはるかに低い値であった。

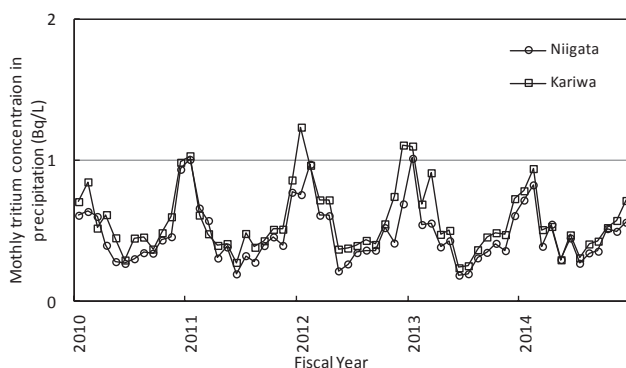


Fig.1 Tritium concentration in precipitation

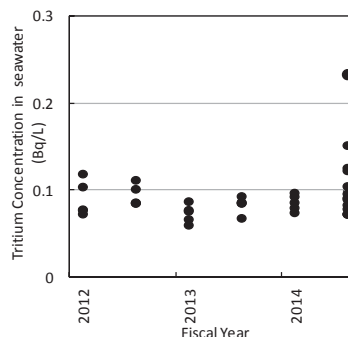


Fig.2 Tritium concentration in seawater

Recent levels of environmental tritium in Niigata prefecture  
SEINO, U., KOHNOSU, Y., YAMAZAKI, K., MARUTA, F.

## 光造形方式3Dプリンタと天然放射性核種を利用した 模擬ガンマ線源の開発

(尚綱学院大生活環境<sup>1</sup>、明治大理工<sup>2</sup>、大阪大安全衛生<sup>3</sup>)

○西間木 史織<sup>1</sup>、小池 裕也<sup>2</sup>、高橋 賢臣<sup>3</sup>、齊藤 敬<sup>1</sup>

### 【緒言】

放射能をガンマ線スペクトロメトリ等で定量する場合、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、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することもある。しかし、貴重な考古学資料などはできれば非破壊で放射能を測定することが望ましい。

そこで、3Dスキャナと光造形方式(SLA)3Dプリンタを利用して、放射能を定量するための模擬線源を作成し、測定する方法を開発した。

### 【実験方法】

試料は含まれている放射性核種(<sup>226</sup>Ra と <sup>226</sup>Ra の娘核種のみ)が明らかである北投石を用いた。

はじめに3Dスキャナ(Matter&Form)を用いて北投石をスキャンし、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(Shade3D)を用い、ブール演算処理をして北投石の形状に合わせた凹みのある円柱図形を作成した。モデリングした円柱は、熱溶解積層式3Dプリンタ(UP!Plus2)でプリントアウトして北投石の位置を合わせるジグとして用いた。

次に、3Dプリンタの光硬化性樹脂に天然放射性物質を含むLu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を混ぜ込み、はじめに得た北投石のデータをSLAプリンタ(Nobel1.0)でプリントアウトし既知の放射能の模擬線源を作成した。北投石と模擬線源はそれぞれジグに乗せてガンマ線スペクトロメトリを行い、得られた放射能から検出効率曲線を平行移動させ実際の試料の検出効率を求め、北投石のラジウム濃度を算出した。

### 【結果と考察】

模擬線源を用いて求めた北投石中のラジウム濃度の結果をTableに掲げる。

Table Concentration of <sup>226</sup>Ra in hokutolite calibrated by mock-up gamma-ray source

Sample	Weight(g)	Activity of <sup>226</sup> Ra(Bq)	Concentration of <sup>226</sup> Ra(Bq/g)
No. 1	1.59	46.4 ± 6.4	29.2 ± 4.0
No. 2	7.15	252 ± 22	35.2 ± 3.1
No. 3	7.23	247 ± 17	34.1 ± 2.3
No. 4	9.99	434 ± 31	43.5 ± 3.1
No. 5	12.24	766 ± 42	62.6 ± 3.4

Table より北投石のラジウム濃度は30~60Bq/gであった。過去に報告されている北投石のラジウム濃度は40~80Bq/gであり、比較的近い値が得られた。これよりSLAプリンタと天然放射性核種を用い、北投石中の放射能濃度の非破壊測定が可能となった。

しかし、光硬化樹脂に含まれるLu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が模擬線源中にどのように分布しているかはまだわかっていない。Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は比重が高いため硬化前の樹脂の下方に沈殿している可能性も考えられる。そこで現在イメージングプレートや安定元素の測定を行い、模擬試料中のLu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の分布状況を確認中である。

Development for mock-up gamma-ray source applied by SLA 3D printer and natural radionuclide

NISHIMAGI, S., KOIKE, Y., TAKAHASHI, M., SAITO, T.



# P25

## 青銅器の<sup>14</sup>C年代測定のための試料調製法の開発 —塩基性炭酸銅・緑青・孔雀石の自己分解温度について—

(名大 ISEE<sup>1</sup>、元興寺文化財研<sup>2</sup>)○小田寛貴<sup>1</sup>、山田哲也<sup>2</sup>、塚本敏夫<sup>2</sup>

【緒言】緑青(塩基性炭酸銅,  $\text{CuCO}_3 \cdot \text{Cu}(\text{OH})_2$ )は, 青銅器に発生するさびである。これは, 青銅器中のCuと大気中の $\text{CO}_2$ から生成されたものである。また, 緑青は一旦形成されるとそれ以上新たな緑青の形成を阻止する性質をもっている。よって, 緑青に含まれる炭素の抽出とその<sup>14</sup>C年代測定が可能となれば, その錆が形成された年代, さらに青銅器が使用された年代を求めることが可能となる。<sup>14</sup>C年代測定を行う際に, 緑青から $\text{CO}_2$ を発生させる条件は, 真空中で緑青を250℃で2時間加熱するというものである。しかし, この条件は, 合成された塩基性炭酸銅の実験結果に基づくものであり, 実際の青銅器表面に発生した緑青に最適な条件であるとは限らない。そこで本研究では, この緑青にとって最適な条件を求めべく,  $\text{CuCO}_3 \cdot \text{Cu}(\text{OH})_2$ という組成をもつ合成塩基性炭酸銅(以下, CUT), 青銅器表面に発生した緑青(以下, DDT), 鉱物である孔雀石(以下, CUD)について, 真空中における分解温度を調査した。

【試料・実験】CUTは以下のようにして調製した。まず, 5.0gの $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ を100mlの蒸留水に溶解させ, 攪拌しつつ2.1gの $\text{Na}_2\text{CO}_3$ を加えた。気体( $\text{CO}_2$ )が発生し, 青白色コロイドの生成が確認された。一晩攪拌を続けることで, 青緑色の沈澱が生成した。これを吸引濾過し, 風乾させて, 2.3gの $\text{CuCO}_3 \cdot \text{Cu}(\text{OH})_2$ を得た。DDTは, 和歌山県道成寺鐘巻銅鐸の表面に発生した緑青である。ただし, 純粋な緑青ではなく, 出土地の土壌が含まれたものである。CUDは, コンゴ民主共和国において採集された鉱物標本を用いた。これらをパイレックス管に封入(CUT, CUDは約50mg, DDTは約200mg)し, 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400℃で2時間加熱し, 生成した $\text{CO}_2$ を定量した。

表1.  $\text{CuCO}_3 \cdot \text{Cu}(\text{OH})_2$ の分解温度と $\text{CO}_2$ 収率

【結果】封入した $\text{CuCO}_3 \cdot \text{Cu}(\text{OH})_2$ に含まれるCに対して, 得られた $\text{CO}_2$ 中のCの収率を表1にまとめた。

温度[℃]	100	150	200	250	300	350	400
CUT[%]	0.8	1.7	18.6	86.0	86.0	—	86.3
DDT[%]	0.0	0.1	1.5	10.1	16.8	15.6	20.7
CUD[%]	0.0	0.5	0.5	4.1	46.3	93.4	94.7

【考察】合成した塩基性炭酸銅CUTは, 200℃では収率18.6%と分解途中であり, 250℃以上では収率86%となり安定している。したがって, 分解に必要な温度は250℃と結論付けることができる。一方, 孔雀石CUDは, 300℃では収率46.3%と分解途中, 350℃以上で収率94%となり安定している。よって, 分解に必要な温度は350℃といえる。これらが一定の収率に漸近する変化を示すのに対し, 緑青DDTでは, 250℃で10.1%, その後, 300℃で16.8%, 350℃で15.6%と同様の収率を示し, 400℃では, 20.7%にまで上昇している。緑青のこのような変化について以下のようなことが考えられる。まず, 収率が, CUT, CUDに比べて著しく低いことについては, 測定に用いた試料中に土壌等の不純物が大量に含まれていたためと思われる。また, 先行研究において, 250℃, 2時間加熱によってDDTより得た $\text{CO}_2$ の<sup>14</sup>C年代は,  $1759 \pm 19$ [BP]と考古学的な年代と一致した結果を得ている。このため, 250℃では分解途中とも考えられるが, 300℃以上では土壌中の不純物の炭素が分解して $\text{CO}_2$ となっている可能性もある。この点を明らかにすべく, 今後これらの<sup>14</sup>C濃度を測定したい。

【謝辞】本研究の趣旨をご理解いただき, 緑青資料を快くご提供いただきました和歌山県日高郡天音山道成寺様のご好意に感謝いたします。

Development of preparation method of radiocarbon dating of bronze implement: On the decomposition temperature of basic copper (II) carbonate, verdigris and malachite  
ODA, H., YAMADA, T., TSUKAMOTO, T.

## 【緒言】

加速器質量分析法 (Accelerator mass spectrometry: AMS) におけるガスイオン源は、数 μgC から数 mgC の CO<sub>2</sub> についてグラファイト処理を必要としない <sup>14</sup>C 測定を可能にするため、前処理迅速化と試料微量化の観点から利点がある。スコットランド大学では、ガスイオン源を用いて 12 μA の <sup>12</sup>C カレントを引き出し、200 μgC – 1 mgC の CO<sub>2</sub> に対して、固体イオン源と同程度の精度 (0.5%) で <sup>14</sup>C 測定を実施している。国内施設においてガスイオン源を用いた <sup>14</sup>C 測定実績は無く、開発が急がれている。筑波大学 6MV タンデム加速器に装備されたガスイオン源、ガスハンドリングシステム、自動前処理装置を用いて迅速 <sup>14</sup>C 測定法の検討を行った。

## 【実験】

ガスハンドリングシステムに装填した高純度 CO<sub>2</sub> をガスイオン源内の Ti ターゲット表面に導入し、<sup>12</sup>C の最大カレントと最適流量を調べた。500 μgC と 1 mgC に調整した <sup>14</sup>C 濃度の異なる標準物質 (IAEA-C1、C7、NIST-HOxII) を対象に、自動前処理装置を用いて CO<sub>2</sub> を精製・封管した。CO<sub>2</sub> を最適流量でガスイオン源に導入し、タンデム加速器で <sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C と <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C を計測した (5分×10回)。ターミナル電圧 3.0 MV の条件で、12 MeV の <sup>14</sup>C<sup>3+</sup> を ΔE-E ガス検出器で計数した。試料の δ<sup>13</sup>C を -25‰ に規格化して同位体分別効果を補正し、下記式により <sup>14</sup>C 濃度 (Percent modern carbon: pMC) を算出した。また固体イオン源の <sup>14</sup>C 測定結果と比較した。

$$^{14}\text{C concentration (pMC)} = 100 \times \left( \frac{^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{sample}} - ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{BKG}}}{(0.7459 \times (^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{HOX-II}} - ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{BKG}}) [1 - 2 \times (25 + \delta^{13}\text{C}_{\text{sample}}) / 1000])} \right)$$

## 【結果と考察】

ガスハンドリングシステムの圧力を 11 – 12 Torr に設定し、CO<sub>2</sub> を 1.6 μl min<sup>-1</sup> 程度でガスイオン源内の Ti ターゲットに導入することによって 44 – 46 μA の最大 <sup>12</sup>C カレントが引き出された (図 1a)。ガスイオン源による CO<sub>2</sub> の <sup>14</sup>C 濃度は、IAEA-C7 で 49.11 ± 0.57 pMC、及び NIST-HOxII で 132.14 ± 1.14 pMC となり、誤差範囲内で推奨値と一致した (図 1b)。また、NIST-HOxII の測定誤差は 0.6% であり、固体イオン源の測定誤差 (0.3%) より高かった。IAEA-C1 (BKG) の <sup>14</sup>C 濃度は、0.48 ± 0.05 pMC (<sup>14</sup>C age: 42,920 年) であり、固体イオン源の BKG (0.09 ± 0.01 pMC) に比べて高かった。ガスイオン源は固体イオン源に比べて測定誤差と BKG 値がやや高いが、少なくとも 1 mgC の CO<sub>2</sub> 試料について <sup>14</sup>C の迅速ルーチン測定を可能にすることが分かった。

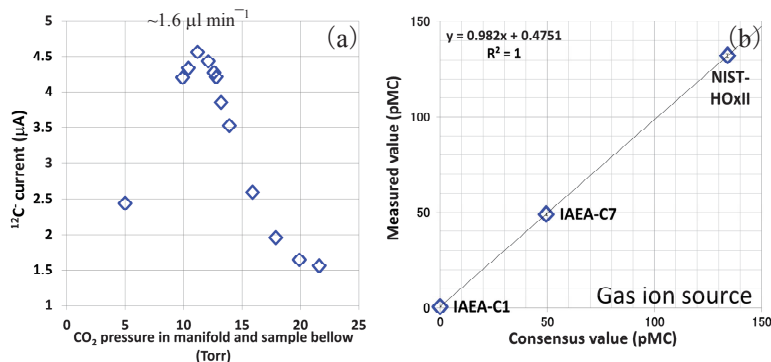


図 1 (a) ガスイオン源に導入する CO<sub>2</sub> 流量 (ハンドリングシステム圧力) と <sup>12</sup>C カレントの関係

(b) ガスイオン源を用いた標準物質の <sup>14</sup>C 測定結果 (炭素量: 1 mgC)

Development of rapid <sup>14</sup>C-AMS using CO<sub>2</sub> gas ion source

MATSUNAKA, T., SASA, K., HOSOYA, S., TAKAHASHI, T., MATSUMURA, M., SUEKI, K.

# P27

## フローインジェクション分析法を利用した4族元素 Zr, Hf のキレート抽出

(新潟大院自<sup>1</sup>、新潟大理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>)○山田亮平<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、小森有希子<sup>3</sup>

**【緒言】**これまで我々は、ラザホージウム (Rf) のキレート錯形成の研究に向け、その同族元素であるジルコニウム (Zr)、ハフニウム (Hf) の溶媒抽出挙動をキレート抽出剤であるテノイルトリフルオロアセトン (TTA) 及びジ-2-エチルヘキシルリン酸 (HDEHP) を用いて調査してきた[1, 2]。しかしながら、抽出平衡に達するまで数十分要しており、短寿命の Rf の実験では、より迅速に抽出を行う必要がある。本研究室では、フローインジェクション分析法 (FIA) を利用した迅速溶媒抽出装置の開発を進めており[3]、今回本装置を TTA 及び HDEHP による4族元素のキレート抽出系に適用し、抽出平衡に要する条件の検討を行ったので報告する。

**【実験】**理化学研究所の AVF サイクロトロンを用い、<sup>89</sup>Y 標的と <sup>148</sup>Lu 標的に重陽子ビームを照射し、<sup>88</sup>Zr ( $T_{1/2} = 83.4$  d) 及び <sup>175</sup>Hf ( $T_{1/2} = 70$  d) を製造した。製造したトレーサーは陰イオン交換法と液液抽出法により標的から分離、精製した。水相には過塩素酸または硝酸溶液を、有機相には TTA または HDEHP をトルエンに溶解したものをを用いた。ダブルプランジャーポンプを2台用いて水相と有機相を流速 0.1 ~ 0.5 mL/min で送液し、サンプルインジェクターを用いてトレーサーを含む水相を導入した。その後、Y 字三方ジョイントで水相と有機相を合流させ、続いて内径 0.17 mm、長さ 0.5 ~ 2.0 m の抽出コイル内において溶媒抽出を行った。抽出コイルからの溶出液を一定時間 1.5 mL マイクロチューブに捕集し、遠心分離後に各相同量分取し、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーから <sup>88</sup>Zr, <sup>175</sup>Hf の分配比を算出した。

**【結果と考察】**FIA 装置を用いた 3 M 過塩素酸- $1.5 \times 10^{-3}$  M HDEHP/トルエンにおける <sup>88</sup>Zr, <sup>175</sup>Hf の分配比  $D$  の二相接触時間依存性を図1に示す。図1より、バッチ実験での平衡時の <sup>88</sup>Zr, <sup>175</sup>Hf の分配比と比べて今回得られた分配比は著しく低いことが分かった。このことから、今回の条件では二相の接触時間が足りない等により、抽出コイル内では抽出平衡に達していないと考えられる。発表では、抽出平衡に達するまでの条件の検討や、3 M 硝酸-TTA/トルエン系における結果についても報告する。

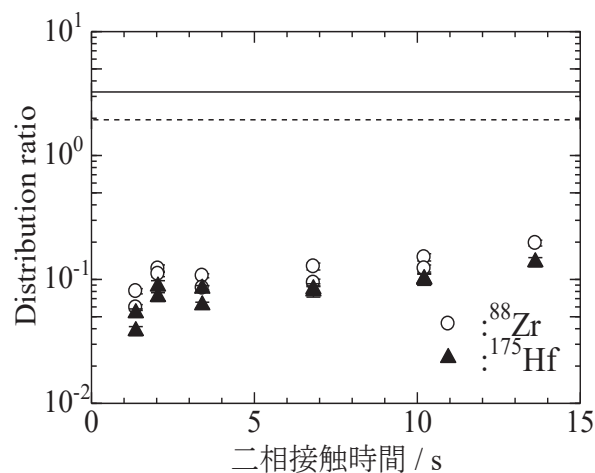


図1. FIA 装置を用いた 3 M 過塩素酸- $1.5 \times 10^{-3}$  M HDEHP/トルエンにおける <sup>88</sup>Zr, <sup>175</sup>Hf の分配比の二相接触時間依存性。

破線は Zr、実線は Hf のバッチ実験での分配比。

- [1] 田中ほか, 第 58 回放射化学討論会, P01, (名古屋, 2014 年 9 月).
- [2] 山田ほか, 第 59 回放射化学討論会, P05, (仙台, 2015 年 9 月).
- [3] 小山ほか, 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry'13 (APSORC 13), 25NCP05, (金沢, 2013 年 9 月).

Chelate extraction of group 4 elements, Zr and Hf, using a flow injection analysis method  
YAMADA, R., OOE, K., GOTO, S., KUDO, H., HABA, H., KOMORI, Y.

# P28

## Rf の同族元素 Zr、Hf の 4-イソプロピルトロポロンを用いた溶媒抽出挙動

(新潟大院自<sup>1</sup>、新潟大理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>) ○大江一弘<sup>1</sup>、山田亮平<sup>1</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、小森有希子<sup>3</sup>

**【緒言】** 本研究では、104 番元素ラザホージウムの溶液化学研究のため、同族元素 Zr および Hf のキレート抽出剤を用いた溶媒抽出実験を進めている[1,2]。これまでに HTTA および HDEHP を使い、Zr、Hf の分配比( $D$ )の抽出剤濃度依存性からその抽出平衡の解析を行ったところ、 $M(TTA)_4$  や  $M[H(DEHP)_2]_4$  ( $M = Zr, Hf$ ) が抽出されていることが示唆された。しかしながら、HTTA や HDEHP では、抽出平衡到達までに数十分程度を要しており、短寿命である Rf の化学研究にはより平衡到達の速い抽出剤の利用が望ましい。これまでに、6 族元素 Mo および W の溶媒抽出実験において、4-イソプロピルトロポロン(IPT)が比較的速い平衡到達を示すことが報告されており[3]、本研究では IPT による Zr、Hf の溶媒抽出における平衡到達時間および抽出平衡について調査した。

**【実験】** 長寿命放射性トレーサー<sup>88</sup>Zr および <sup>175</sup>Hf を、理化学研究所 AVF サイクロトロンを用いて製造し、陰イオン交換分離および溶媒抽出分離によりターゲットから精製して利用した。これらのトレーサーを含む硫酸溶液を、テフロン試験管内において IPT-トルエン溶液と混合し、25 °C において振とうを行った。遠心分離後、二相を別々に分取し、各相の  $\gamma$  線測定から Zr、Hf の分配比の算出を行った。

**【結果と考察】** Fig. 1 に 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> における Zr、Hf の分配比の振とう時間依存性を示す。この結果から、Zr、Hf ともに 45 s 程度で平衡に到達することがわかった。また、0.1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> では平衡到達が 4 min 程度とやや遅くなるものの、これらの結果は TTA や HDEHP と比較して平衡到達時間が大幅に短縮されていることを示しており、本抽出系の Rf 実験への適用が期待される。本抽出系における抽出平衡を解析するため、Zr、Hf の分配比の IPT 濃度依存性を調べた。その結果、0.1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 溶液では Zr、Hf とも  $\log D$  vs.  $\log [IPT]$  プロットの傾きがほぼ 4 となり、金属イオンに IPT が 4 つ配位した錯体が抽出されていることが示唆された。

一方で、3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> では傾きが 3.5 程度と小さくなることがわかった。抽出平衡に硫酸イオンが影響している可能性等が考えられ、今後詳しく調べていく必要がある。

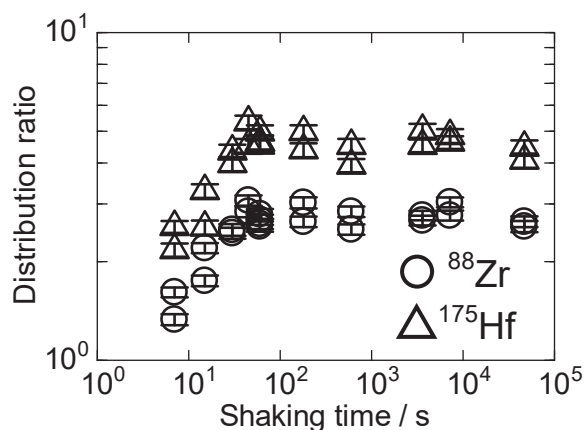


Fig. 1. <sup>88</sup>Zr および <sup>175</sup>Hf の分配比の振とう時間依存性. 水相 : 3 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>; 有機相 : 1.9 × 10<sup>-3</sup> M IPT-トルエン.

[1] 田中彰ら, 第 58 回放射化学討論会, P01, 2014 年 9 月 12 日, 名古屋, (2014).

[2] 山田亮平ら, 第 59 回放射化学討論会, P05, 2015 年 9 月 26 日, 仙台, (2015).

[3] 宮下直ら, 第 56 回放射化学討論会, 2B02, 2012 年 10 月 4 日, 東京, (2012).

Solvent extraction behavior of lighter homologs of rutherfordium, zirconium and hafnium, with 4-isopropyltropolone  
OOE, K., YAMADA, R., GOTO, S., KUDO, H., HABA, H., KOMORI, Y.

# P29

## 5 族元素 Nb, Ta のフッ化水素酸からの Aliquat 336 樹脂への抽出： 分配係数の抽出剤濃度依存性の検討

(<sup>1</sup>新潟大院自然、<sup>2</sup>理研仁科セ、<sup>3</sup>原子力機構、<sup>4</sup>東北大電子光セ、<sup>5</sup>新潟大理)

○佐藤大輔<sup>1</sup>、村上昌史<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、本山李沙<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>2</sup>、小森有希子<sup>2</sup>、

豊嶋厚史<sup>3</sup>、水飼秋菜<sup>3</sup>、菊永英寿<sup>4</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>5</sup>

**【緒言】** 本研究では Db のフッ化物錯形成を明らかにするため、これまでに Db の軽い同族元素である <sup>95g</sup>Nb, <sup>179</sup>Ta 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]。また、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 の固液抽出実験も行った[2]。しかし、溶媒抽出実験におけるフッ化水素酸濃度に対する Nb の抽出挙動が固液抽出実験と異なっていたことから、両者における Nb の抽出錯体が異なっている可能性が示唆された。そこで今回、Nb, Ta の分配係数の樹脂中の Aliquat 336 担持量依存性を調査することで、樹脂に吸着している陰イオン錯体に関する情報を取得できないか検討した。

**【実験】** 実験に用いた <sup>95g</sup>Nb( $T_{1/2}=35$  d)と <sup>179</sup>Ta( $T_{1/2}=665$  d)は理研の AVF サイクロトロンを用いて Zr, Hf の金属箔標的に重陽子を照射して製造し、陰イオン交換法により標的から分離し使用した。各トレーサーを含む種々の濃度のフッ化水素酸 400  $\mu$ 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。相分離後の各サンプルから水相をそれぞれ 250  $\mu$ 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。なお、Aliquat 336 樹脂を入れずに対照操作を行ったサンプルを初期放射能とし、樹脂中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、Nb, Ta の  $K_d$  値の Aliquat 336 担持量依存性を 10 M フッ化水素酸において調べた結果を図 1 に示す。図 1 から、Nb, Ta とともに直線関係がそれぞれ得られた。溶媒抽出実験では Nb, Ta とともに -1 価の陰イオン錯体が抽出されていたが[1]、今回得られた図 1 の結果と比較すると、固液抽出実験では Nb の抽出化学種は -1 価の陰イオン錯体とは異なる可能性が考えられる。固液抽出実験における実際の抽出化学種については、今後、別の方法で実験を行い、より詳細に調査する必要がある。発表では、異なるフッ化水素酸濃度での結果とともに、これまでの溶媒抽出による抽出化学種の議論と併せて、本手法の Db 実験への適用の可能性を検討する。

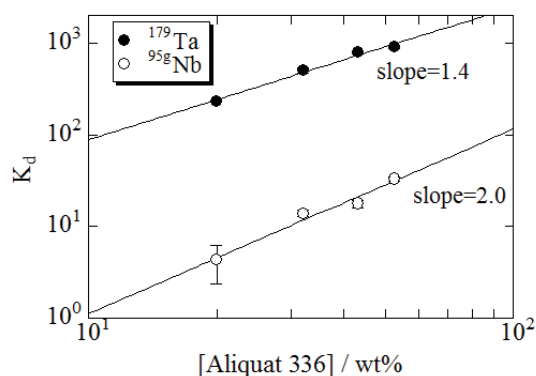


図 1: 10 M HF における <sup>95g</sup>Nb, <sup>179</sup>Ta の分配係数  $K_d$  の Aliquat 336 担持量依存性

[1] 佐藤大輔ほか、第 58 回放射化学討論会 1A10 (名古屋大学, 2014).

[2] 佐藤大輔ほか、第 59 回放射化学討論会 P07 (東北大学, 2015).

Extraction of group-5 elements, Nb and Ta, from HF solutions into Aliquat 336 resin: dependence of the distribution coefficients on the extractant concentration  
SATO, D., MURAKAMI, M., OOE, K., MOTOYAMA, R., HABA, H., KOMORI, Y., TOYOSHIMA, A., MITSUKAI, A., KIKUNAGA, H., GOTO, S., KUDO, H.

# P30

## 5 族元素 Nb, Ta の塩酸溶液からのトリイソオクチルアミンによる溶媒抽出 —Ta トレーサー調製法の影響—

(新潟大院自<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>、新潟大理<sup>4</sup>)○本山李沙<sup>1</sup>、大江一弘<sup>1</sup>、村上昌史<sup>2</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、後藤真一<sup>1</sup>、工藤久昭<sup>4</sup>

**【緒言】**本研究では、105 番元素ドブニウム (Db) の塩化物イオンとの錯形成機構の解明を目指し、同族元素 Nb, Ta の塩酸溶液からのトリイソオクチルアミン (TiOA) による溶媒抽出を行ってきた。これまでに、Ta よりも Nb の抽出率が高くなることがわかったが、Nb がマクロ量での実験において報告されている値[1]とおおよそ一致する一方で、Ta に関しては文献値を上回る分配比が得られた。また、濃塩酸中に保存した Ta トレーサーを用いた溶媒抽出実験において、濃塩酸中への保存期間の経過とともに分配比が低下することがわかった。文献値を上回る Ta の分配比の原因として F<sup>-</sup>イオンの影響が考えられたため、種々の Ta トレーサー調製法による F<sup>-</sup>イオンの除去を試みた。また、マクロ量での報告と比較するため、担体を添加した結果についても報告する。

**【実験】**理研 AVF サイクロトロンにて <sup>nat</sup>Zr(*d,xn*), <sup>nat</sup>Hf(*d,xn*) 反応によって <sup>95g</sup>Nb (*T*<sub>1/2</sub> = 34.991 d), <sup>179</sup>Ta (*T*<sub>1/2</sub> = 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は 1 M HF 溶液中に保存 (ストックソリューション) し、実験に用いる際は一旦蒸発乾固させ、HF および濃塩酸による乾固等を行ってから目的濃度の塩酸溶液に溶解させて使用した。担体添加の際はストックソリューションとともに蒸発乾固させ、金属イオン濃度が 10<sup>-4</sup> M 程度となるように調製した。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。担体のみの Ta の定量には ICP-AES を用いた。

**【結果と考察】**図 1 に、<sup>179</sup>Ta ストックソリューションを蒸発乾固後、そのまま塩酸溶液に溶解させた場合 (1) と、HF 溶液を加えて乾固させ、さらに濃塩酸を加えて乾固させる操作を 2 回行った後、塩酸溶液に溶解させた場合 (2) に得られた分配比を示す。水相には 10 M HCl、有機相には 0.12 M TiOA/キシレン溶液を用いた。HF および濃塩酸による乾固を行うことで分配比は低下したが、依然として文献値を上回る値となった。マクロ量での挙動を確認するため、担体 (TaCl<sub>5</sub> 濃塩酸溶液) を添加し、無担体の場合と同様の調製を行った結果も図 1 (3, 4) に示す。どちらの条件でも担体を添加した場合に分配比が低下することがわかった。また、HF および濃塩酸による乾固を行った場合 (4) には文献値を下回る分配比が得られた。これらのことから、担体を添加した場合と比べて無担体の状態から F<sup>-</sup>イオンの影響を取り除くことは困難であると考えられる。現在、担体とトレーサー間の挙動の違いを確認するため、担体のみの挙動について調査を進めているところであるので、その結果も合わせて発表する。

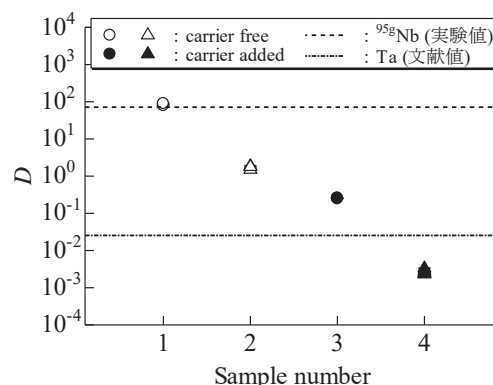


図 1. 担体の有無および調製法の違いによる <sup>179</sup>Ta 分配比の比較。

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

Solvent extraction of Nb and Ta with triisooctyl amine from hydrochloric acid solution—Effect of the preparation method of Ta tracer—  
MOTOYAMA, R., OOE, K., MURAKAMI, M., HABA, H., GOTO, S., KUDO, H.

# P31

## フロー抽出装置を用いたフッ化水素酸-Aliquat336 系におけるタングステンの溶媒抽出

(茨大院理工<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>)○水飼秋菜<sup>1,2</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、小森有希子<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、佐藤哲也<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>1,2</sup>

【緒言】 我々はこれまで106番元素シーボーギウム(Sg)の錯形成反応を調べるため、軽同族元素であるモリブデン(Mo)とタングステン(W)を用いた溶液化学実験を行ってきた。フッ化物錯形成においては中心金属のイオン半径が支配的となるが、MoやWよりイオン半径が大きいと予測されているSgはより錯形成しにくいと考えられる。そのため、Sgの錯形成を実験的に明らかにすることで、そのイオン半径に関する情報が得られると期待できる。しかしながら、 $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{265\text{a,b}}\text{Sg}$ 反応で合成される $^{265}\text{Sg}$ は半減期が約10秒と非常に短く、生成断面積も極めて小さいため、迅速な化学実験装置の開発ならびに早い抽出反応条件の探索が必要である。本研究では、化学分離から $\alpha$ 線測定までを連続的に行う抽出分離装置FSE (Flow Solvent Extractor)開発の一端として、Wのフッ化水素酸/塩酸(HF/HCl)の混酸中からアミン抽出剤であるAliquat336への溶媒抽出挙動を調べた。

【実験】 理研 AVF サイクロトロンにおいて  $^{181}\text{Ta}(d, 2n)^{181}\text{W}$  反応により  $^{181}\text{W}$  ( $T_{1/2} = 121.8$  d) を合成した。原子力機構においてイオン交換法を用いて Ta 標的から  $^{181}\text{W}$  の分離を行った後、 $10^{-4}$  M HF / 1 M HCl 溶液に溶解し、ストック溶液とした。このストック溶液 10  $\mu\text{L}$  を含む  $10^{-4}$  – 1 M HF / 1 M HCl 溶液 700  $\mu\text{L}$  に同体積の 0.2 M Aliquat336-トルエン溶液を加えて 10 分間振とうした。30 秒間の遠心分離後、各相 500  $\mu\text{L}$  ずつを分取し、Ge 検出器で X 線測定を行った。分配比  $D$  は有機相と水相中に含まれる  $^{181}\text{W}$  の濃度比 ( $D = (A_{\text{org}} / V_{\text{org}}) / (A_{\text{aq}} / V_{\text{aq}})$ ,  $A_{\text{org}}$ ,  $A_{\text{aq}}$ : 放射能,  $V_{\text{org}}$ ,  $V_{\text{aq}}$ : 体積)として定義した。

【結果と考察】 まず、振とう時間決定のため、 $10^{-4}$  – 1 M HF / 1 M HCl 溶液において振とう時間を 1 分から 30 分まで変化させた。その結果、それぞれの濃度において 10 分以内で抽出平衡へ到達していることが分かった。次に、抽出される化学種の情報を得るため、 $D$  値の HF 濃度依存性について調べた。その結果を Fig.1 に示す。HF 濃度が  $10^{-2}$  M 以上で  $D$  値が急激に増加していることがわかる。これは HF 濃度が  $10^{-2}$  M 以上で陰イオンフッ化物錯体が形成し、抽出されていることを示唆している。討論会では  $D$  値の抽出剤濃度依存性や迅速溶媒抽出装置を用いたフロー実験の結果についても発表する。

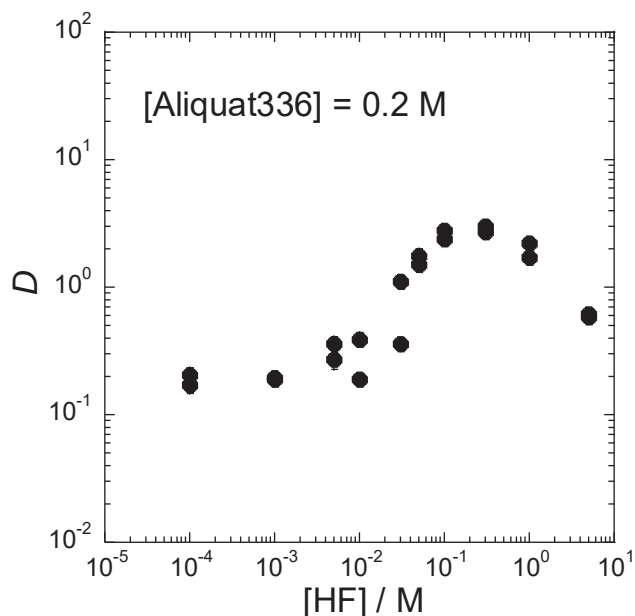


Fig.1. Variation of  $D$  values of W as a function of F<sup>-</sup> concentration ([HF]) at [HCl] = 1 M.

Solvent extraction of W in the HF-Aliquat336 solution systems using a flow solvent extractor  
MITSUKAI, A., TOYOSHIMA, A., KOMORI, Y., HABU, H., ASAI, M., TSUKADA, K., SATO, T.K., NAGAME, Y.

## P32

### アスタチンの酸化還元と溶媒抽出挙動

(原子力機構先端研<sup>1</sup>、阪大院理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>、阪大理<sup>4</sup>、阪大 RI セ<sup>5</sup>)

○豊嶋厚史<sup>1,2,3</sup>、神田晃充<sup>2</sup>、池田卓海<sup>4</sup>、吉村 崇<sup>5</sup>、篠原 厚<sup>2</sup>、矢納慎也<sup>3</sup>、小森有希子<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>

**【緒言】** 第 17 族元素であるアスタチン (At) は、水溶液中で様々な酸化状態をとる事が知られている [1-3]。また、同族であるヨウ素よりも酸化されやすく、水溶液系での電位窓内で行くつかの酸化状態を取ると考えられている [1-3]。最近、Champion らは酸化還元剤を用いて At の抽出挙動ならびにイオン交換挙動の変化を調べ、0.1 M HClO<sub>4</sub> 水溶液中での酸化還元電位を報告した [3]。しかしながら、それぞれの価数や化学種についての実験的情報が得られておらず、その報告には曖昧さが残る。我々はトレーサー濃度での電解酸化還元が可能なフロー電解カラム装置 [4] を有しており、これを用いると酸化状態や化学種をより容易に特定することができる。そこで本研究ではフロー電解カラムを用いて At の電解酸化還元を行い、その電位やそれぞれの酸化状態における溶媒抽出挙動を調べたので報告する。

**【実験】** 実験は大阪大学核物理研究センター/吹田ラジオアイソトープ総合センターならびに理化学研究所 RI ビームファクトリーにおいて行った。両施設において AVF サイクロトロンを用い、蒸着法により調製したビスマス (Bi) 金属標的に 27–28 MeV の  $\alpha$  ビームを照射した。<sup>209</sup>Bi( $\alpha$ , 2n)<sup>211</sup>At 反応によって半減期 7.2 時間の <sup>211</sup>At を合成した。蒸留法によって Bi 標的から At を気相分離した後、蒸留水 1000  $\mu$ L に At を溶解し、これをストック溶液とした。市販のインジェクターを用いて 20  $\mu$ L のストック溶液を 1.0 M HClO<sub>4</sub> に混合し、これをフロー電解カラム装置に 1000  $\mu$ L/min の流速で導入した。溶液展開の間、カラム型のカーボンファイバー電極には -0.2 V から 0.8 V (銀/塩化銀参照電極) 間で一定電圧を印加した。カラム電極からの溶離液を 1500  $\mu$ L 捕集した後、700  $\mu$ L ずつ二試料を別々にチューブに分取した。これらにヘキサンに溶解した 0.1 M リン酸ビス(2-エチルヘキシル) (HDEHP) をそれぞれ 700  $\mu$ L 加えて振とうした。30 秒間遠心分離した後、両相から 500  $\mu$ L ずつ測定容器に分取し、Ge 検出器で X 線を測定した。それぞれ水相と有機相に含まれる At の濃度比として分配比  $D$  を定義し、各条件における  $D$  値を算出した。

**【結果と考察】** 予備的な結果ではあるが、1.0 M HClO<sub>4</sub> 溶液と 0.1 M HDEHP 間の  $D$  値は印加電圧の増加に伴って増加を示す事がわかった。まず、-0.2 V から 0.2 V の電圧範囲では、 $D$  値は徐々に増加を示した。次に 0.2 V から 0.6 V の電圧では、 $D$  値は誤差範囲内で一定の値を示した。さらに 0.8 V では、 $D$  値はより大きな値を示した。電解酸化還元反応によって At の酸化状態が変化したため、印加電圧の増減により抽出率が変化したと考えられる。

#### 【参考文献】

- [1] E. H. Appelman, J. Am. Chem. Soc. **83**, 805-807 (1961).
- [2] A. Cavallero and K. Rössler, Radiochim. Acta **47**, 113-118 (1989).
- [3] J. Champion *et al.*, J. Phys. Chem. A **114**, 576-582 (2010).
- [4] A. Toyoshima *et al.*, Radiochim. Acta **96**, 323-326 (2008).



## P33

### 重陽子照射で発生する加速器中性子によって製造するがん治療用 $^{67}\text{Cu}$ の高純度化に関する検討

(量研機構<sup>1</sup>、千代田テクノ<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>) ○橋本和幸<sup>1</sup>、川端方子<sup>2</sup>、佐伯秀也<sup>2</sup>、佐藤俊一<sup>2</sup>、塚田和明<sup>3</sup>、須郷由美<sup>1</sup>、永井泰樹<sup>1</sup>、初川雄一<sup>1</sup>、渡辺 智<sup>1</sup>、石岡典子<sup>1</sup>

**【緒言】**  $^{67}\text{Cu}$  (半減期 61.9 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、その有効な製造法が模索されている。従来、 $^{67}\text{Cu}$  を製造するには、高エネルギー (50~100 MeV) の陽子を用いた  $^{68}\text{Zn}(p,2p)^{67}\text{Cu}$  が最適であると考えられているが、生成量が限られていることや副生成 RI ( $^{66,67}\text{Ga}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  等) の多さ等の問題点が指摘されている。そこで我々は、従来法に代わる新たな製造法として、重陽子ビームをベリリウム標的に照射する事で発生する高速中性子を  $^{68}\text{ZnO}$  に照射して  $^{67}\text{Cu}$  を製造する手法 [ $^{68}\text{Zn}(n,x)^{67}\text{Cu}$  反応 ( $x=n'p, d$ )]に着目し、Zn-Cu 基本分離法<sup>1)</sup>等を開発してきた。今回は、厚い ZnO ターゲット試料を用いた場合に生成が確認された  $^{67}\text{Ga}$  (半減期 78.3 時間) の分離プロセスを追加するとともに、応用に向けて重要な指標である比放射能の評価を行ったので、その結果を報告する。

**【実験】** 量研機構 高崎研サイクロトロン<sup>1)</sup>の重陽子ビーム (50 MeV, 最大 3  $\mu\text{A}$ ) をベリリウム標的に照射して得られる高速中性子を  $^{68}\text{ZnO}$  濃縮ターゲット (濃縮度 99.291%) に 5-10 時間照射して  $^{67}\text{Cu}$  を生成した。なお、照射中の中性子遮へいは、パラフィンブロックを用いて行った。化学分離は、キレート樹脂 (Chelex-100) 及び陰イオン交換樹脂 (AG1-X8) カラム法を組み合わせた Zn-Cu 基本分離法に、陽イオン交換樹脂 (AG50W) カラムを追加して行い、Ga 除去率を求めた。さらに、 $^{67}\text{Cu}$  の比放射能を評価するために、最終的に得られた  $^{67}\text{Cu}$  溶液を用いて、Cu との反応性に富む DOTA 標識を実施した。また、濃縮  $^{68}\text{ZnO}$  ターゲットに含まれる Cu の事前除去は、キレート樹脂カラム法を用いて行い、0.001 M HCl で溶出される濃縮  $^{68}\text{Zn}$  溶液に高純度 NaOH 溶液を加えて、水酸化物として沈殿・分離・洗浄し、電気炉中 130°C→400°C で加熱して、 $^{68}\text{ZnO}$  精製試料とした。

**【結果・考察】**  $^{67}\text{Ga}$  分離手法の開発では、既報の基本分離法に、陽イオン交換樹脂カラムを追加することにより、 $^{67}\text{Cu}$  の回収率 90%以上を維持したまま、最終  $^{67}\text{Cu}$  溶液中の  $^{67}\text{Ga}$  含量を検出限界以下にすることができた。これまでの結果と併せ、加速器中性子によって製造する  $^{67}\text{Cu}$  をターゲット物質 (Zn) 及び副生成 RI ( $^{65}\text{Ni}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ) から分離する手法を確立した。次に、得られた  $^{67}\text{Cu}$  の比放射能 (GBq/ $\mu\text{g}$  Cu) を評価するために、 $^{67}\text{Cu}$ -DOTA 標識率の DOTA 濃度依存性を調べ、ほぼ 100%標識率が得られる DOTA の最小濃度が、溶液中に存在する Cu (II) の濃度に等しいと考えて、Cu の化学量を算出した。その結果、5 g 精製済み  $^{68}\text{ZnO}$  から製造・分離した  $^{67}\text{Cu}$  溶液中に含まれる Cu 量は、3.7  $\mu\text{g}$  であり、我々が提案している 40 MeV, 2 mA 重陽子加速器 (炭素標的)<sup>2)</sup>で 24 時間照射で製造した場合の  $^{67}\text{Cu}$  の比放射能は、2.1 GBq/ $\mu\text{g}$  Cu と算出される。この値は、現在、ブルックヘブン国立研究所の LINAC で 24 時間陽子照射で製造されている  $^{67}\text{Cu}$  の比放射能 (0.7 GBq/ $\mu\text{g}$  Cu 以下)<sup>3)</sup>の 3 倍である。

(参考文献) [1] M. Kawabata et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 303, 1205 (2015). [2] Y. Nagai et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 064201-1(2013). [3] D. G. Medvedev, et al., Appl. Radiat. Isot. 70, 423(2012).

# P34

## $^{211}\text{Rn}$ - $^{211}\text{At}$ ジェネレーター開発を目的としたシリンジ密封抽出系の At/Rn 分離係数の研究

(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>、量研機構量子ビーム<sup>3</sup>、金沢大医薬保健<sup>4</sup>)

○山田記大<sup>1</sup>、新 裕喜<sup>2</sup>、大江崇太<sup>2</sup>、村上拳冬<sup>2</sup>、橋本和幸<sup>3</sup>、西中一朗<sup>3</sup>、  
鷲山幸信<sup>4</sup>、横山明彦<sup>2</sup>

【序論】  $^{211}\text{At}$  ( $T_{1/2}=7.2$  h) は  $\alpha$  放射性核種であり、放射される  $\alpha$  線は飛程が短く高 LET である。そのため腫瘍周辺への負担を抑え、腫瘍部への効率的なエネルギー付与ができることから、アイソトープ治療に利用できる核種の一つとして注目されている。しかし、半減期が短いことから使用に際して時間的、距離的制限が加えられる。これを解決するために我々は親核種である  $^{211}\text{Rn}$  ( $T_{1/2}=14.6$  h) を作り、そこからのミルキングによって、 $^{211}\text{At}$  を取り出す  $^{211}\text{Rn}$ - $^{211}\text{At}$  ジェネレーターの開発を進めている。これまでドデカンおよび 100%メタノールを用いたシリンジ密封抽出系を開発し、初めて  $^{211}\text{Rn}$  の密封に成功した。しかし、メタノールへの  $^{211}\text{At}$  抽出の際に 30%程度  $^{211}\text{Rn}$  も抽出されてしまうという問題があった。そこで本研究では、より At の核種純度が高い系を見つけるために、NBS (N-ブロモスクシンイミド) を溶解したメタノールまたはエタノール溶液について、アルコール濃度を变化させた At/Rn 分離係数 ( $=\{([^{211}\text{At}]_{\text{アルコール溶液}}/[^{211}\text{At}]_{\text{ドデカン}})/([^{211}\text{Rn}]_{\text{アルコール溶液}}/[^{211}\text{Rn}]_{\text{ドデカン}})\}$ ) を調査した。

【実験】 原子力研究開発機構のタンデム加速器による 60 MeV  $^7\text{Li}$  ビームを、Bi ターゲットに照射し、 $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li}, 5n)^{211}\text{Rn}$  反応で  $^{211}\text{Rn}$  を生成した。 $^{211}\text{Rn}$  をターゲットからドデカンに抽出しシリンジ内に密封した。 $^{211}\text{At}$  成長を待った後、NBS を溶解した濃度の違うメタノールまたはエタノール水溶液が入ったシリンジと接続し、空気相が接触しないように  $^{211}\text{At}$  逆抽出を行った。相分離後  $\gamma$  線スペクトロメトリーおよび PERALS 液体シンチレーションシステムを用いて、各相の  $^{211}\text{Rn}$ 、 $^{211}\text{At}$  放射能濃度を定量し、At の Rn に対する分離係数を得た。

【結果と考察】 各アルコール濃度に対する分離係数を Fig. 1 に示す。メタノールにおいては 90%で急激な上昇を見せており、エタノールにおいては 60%より急激な上昇を見せた。これは水存在下では NBS が失活することが影響している。また 40%以上の濃度域では全体的にエタノールの方が、分離係数が大きいことが分かった。特にエタノール 90%において最大値 ( $=22 \pm 1$ ) を示し  $^{211}\text{Rn}$  と  $^{211}\text{At}$  の分離が良く、At 抽出率も 90%近い値を示していた。しかし、この分離係数では Rn はまだ 20%近く抽出されており、ジェネレーターの抽出液としては十分な結果とはいえない。今後の課題として抽出剤の改良等によるさらなる分離係数の向上を検討する。

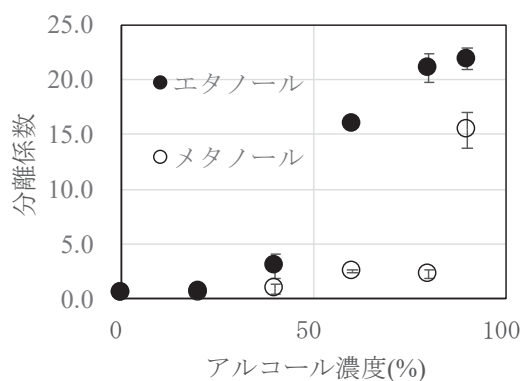


Fig. 1 分離係数のアルコール水溶液濃度依存性

Development of a  $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$  Generator with a Closed Extraction System of Syringes via the Determination of the Relevant At/Rn Separation Factor

YAMADA, N., SHIN, Y., OOE, S., MURAKAMI, K., HASHIMOTO, K., NISHINAKA, I., WASHIYAMA, K., YOKOYAMA, A.

樹脂担持有機スズ試薬を用いた  $^{211}\text{At}$  分離/標識の試み(阪大院理<sup>1</sup>、原子力機構先端セ<sup>2</sup>、阪大理<sup>3</sup>、阪大 RI セ<sup>4</sup>)○神田晃充<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、池田卓海<sup>3</sup>、吉村崇<sup>4</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

【緒言】近年、 $\alpha$ 線放出核種である  $^{211}\text{At}$  の  $\alpha$ 線内用療法に向けた研究が盛んに行われている。一般的に  $^{211}\text{At}$  標識製剤は、 $^{211}\text{At}$  を  $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$  反応で製造し、Bi 標的から  $^{211}\text{At}$  を化学的に分離した後、抗体や化合物に有機化学的に標識することで合成される。本研究ではこの操作の簡便化のため、At と Bi の有機化合物との反応性の違いを利用し、樹脂を用いて At の分離と標識を同時に行う手法の開発を試みた。

【実験】ポリ(co-スチレン-マレイン酸無水物)クメン末端(average Mw = ~1600)をエチレンジアミンで架橋して不溶化したのち、N-ヒドロキシリミド化し、縮合剤存在下で3-トリメチルスタンニル安息香酸を活性エステルとして結合した樹脂(Fig.1)を得た[1, 2]。これは、アスタチンを抗体に標識するために用いられている低分子である 3-トリメチルスタンニル安息香酸-N-スクシンイミジルを樹脂に結合した形のものとなっている。この樹脂を用いて、次の方法で At の分離/標識実験を行った。大阪大学核物理研究センターの AVF サイクロトロンにおいて、29 MeV の  $\alpha$  ビームを Bi 酸化物標的に照射し、 $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$  反応によって  $^{211}\text{At}$  を製造した。照射後の標的を Fig.2 のスキームで溶液調製し、合成した樹脂と反応させた。最終溶液は、HPLC にて UV=254 nm で吸光分析しつつ 30 秒ごとに分液し、ガンマカウンターを用いて  $^{211}\text{At}$  起源の 79 keV X 線を測定した。

【結果】At は今回合成した樹脂を用いて保持されることがわかった。しかしながら、その樹脂上への収率は 15%程度と小さかった。基体となるポリスチレン樹脂を用いた実験との比較から、保持されている At のおよそ 6-8 割は目的とするトリメチルスタンニル基ではなく樹脂中のスチレン残基と反応していることが明らかとなった。また、収率が低いため最終的なブチルアミンと反応したアミドは観測されなかった。そのため、現在ポリスチレンを含まない樹脂の開発ならびに  $^{125}\text{I}$  を用いた実験条件の検討を行っている。

## 【参考文献】

[1] R. Chinchilla *et al.*, Tetrahedron Lett., 2001, 42(27), 4487-4489.[2] H. Shao *et al.*, Tetrahedron Lett., 2000, 41(22), 4257-4260.

An attempt for separation/labeling of  $^{211}\text{At}$  with resin-supported organotin reagents  
KANDA, A., TOYOSHIMA, A., IKEDA, T., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A.

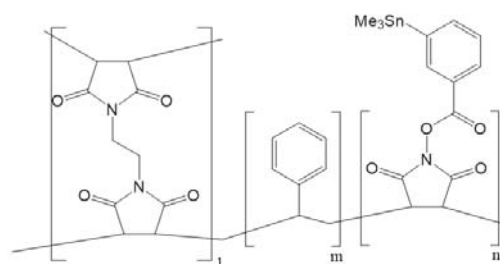


Fig.1. レジンの構造。

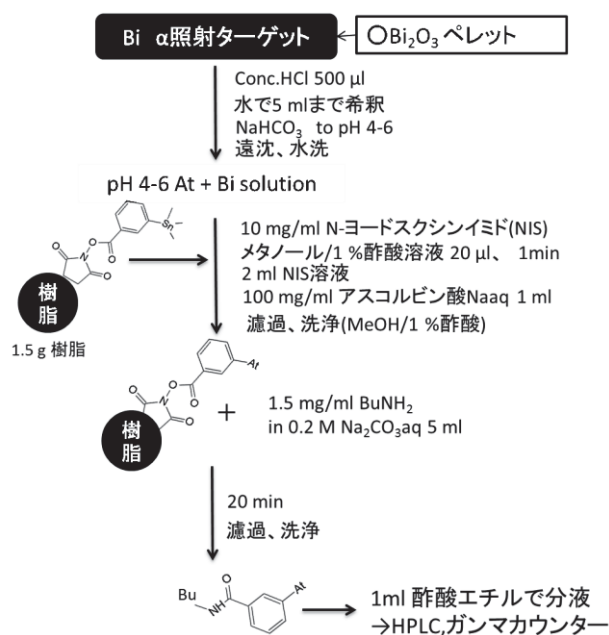


Fig.2. 実験スキーム。

# P36

## リアルタイム RI イメージングシステムを用いた植物体内元素動態の可視化技術の開発

(東大院農<sup>1</sup>、JST PRESTO<sup>2</sup>) ○杉田亮平<sup>1</sup>、小林奈通子<sup>1</sup>、廣瀬農<sup>1</sup>、  
 田野井慶太郎<sup>1, 2</sup>、中西友子<sup>1</sup>

**【緒言】**放射性同位体 (RI) を用い、生きた植物における元素の輸送・分配・蓄積などの動きを可視化し、かつ定量的に解析できることを目指した、リアルタイム RI イメージングシステム (RRIS) を独自に開発してきた。本システムは、植物を広範囲に可視化する macro-RRIS と顕微鏡下で可視化する micro-RRIS の2つの様式から成る。本研究では、植物の必須元素である <sup>14</sup>C、<sup>28</sup>Mg、<sup>32</sup>P、<sup>35</sup>S、<sup>42</sup>K、<sup>45</sup>Ca、<sup>54</sup>Mn、<sup>59</sup>Fe、<sup>65</sup>Zn の他、<sup>22</sup>Na、<sup>109</sup>Cd、<sup>137</sup>Cs など多様な核種を用い、植物地上部および根における各元素の動態を可視化したので報告する。

**【実験】**供試植物はシロイヌナズナ (*A. thaliana*) を、核種は <sup>14</sup>C、<sup>22</sup>Na、<sup>28</sup>Mg、<sup>32</sup>P、<sup>35</sup>S、<sup>42</sup>K、<sup>45</sup>Ca、<sup>54</sup>Mn、<sup>59</sup>Fe、<sup>65</sup>Zn、<sup>109</sup>Cd および <sup>137</sup>Cs を用いた。水耕液で約 40 日間生育させた株を用い、まず、各核種を水耕液に添加し根から地上部への吸収動態の可視化を行った。次に地上部から根への元素動態の可視化には、ゲル培地で7日間生育させた株を用いた。<sup>14</sup>C 標識炭酸ガスは、<sup>14</sup>C-炭酸水素ナトリウムと乳酸を用い生成させ、袋で密閉させた葉にシリンジにより供給し、光合成による取り込みを可視化させた。その他の核種は、葉に塗布して吸収させた。

**【結果】**根への RI 供給では、地上部の元素動態は各元素の移動速度の違いから、(1) 植物全体に均一に分布した <sup>22</sup>Na、<sup>32</sup>P、<sup>35</sup>S と <sup>137</sup>Cs、(2) 葉や茎頂側と比較して花茎の基部側に蓄積した <sup>28</sup>Mg、<sup>45</sup>Ca と <sup>54</sup>Mn、(3) 植物全体に分布しながらも、特に莢などに局所な蓄積がみられた <sup>65</sup>Zn と <sup>109</sup>Cd の3つのグループに分類された (図-1)。

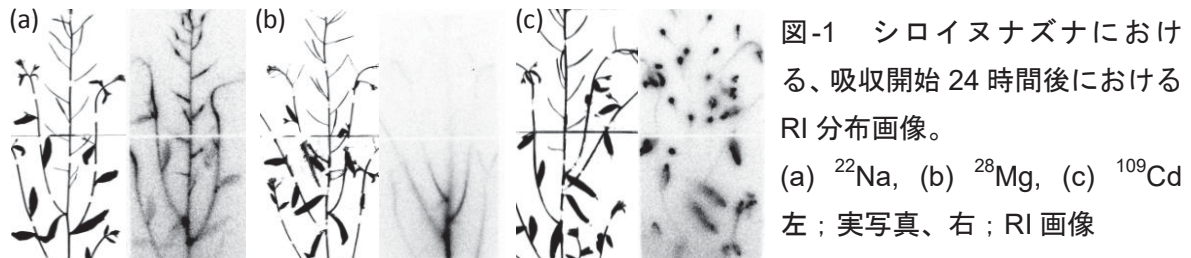


図-1 シロイヌナズナにおける、吸収開始 24 時間後における RI 分布画像。  
 (a) <sup>22</sup>Na, (b) <sup>28</sup>Mg, (c) <sup>109</sup>Cd  
 左：実写真、右：RI 画像

地上部への RI 供給による根への元素動態では、<sup>14</sup>C-光合成産物は主根および側根の根端に多く分布する様子が可視化された (図-2a)。根について micro-RRIS により詳細に調べたところ、根の分裂領域に蓄積していくことが示された (図-2b, 2c)。

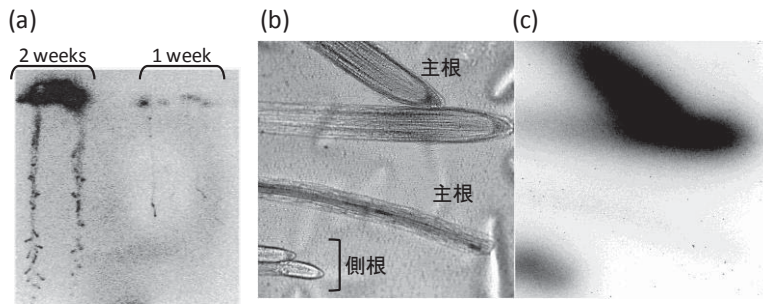


図-2 根における <sup>14</sup>C-光合成産物の輸送動態  
 (a) macro-RRIS 画像。  
 (b) 根の先端における実画像  
 (c) micro-RRIS 画像。

**Development of Real-Time RI Imaging System to Visualize Ion Transport in Plants.**  
 SUGITA R., KOBAYASHI I. N., HIROSE A., TANOI K., NAKANISHI M. T.

# P37

## J-PARC MUSE の大強度ミュオンビームを用いたミュオン原子取り出し実験

(阪大院理<sup>1</sup>、高エネ研<sup>2</sup>) ○吉田剛<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、稲垣誠<sup>1</sup>、豊田岐聡<sup>1</sup>、青木順<sup>1</sup>、河村成肇<sup>2</sup>、三宅康博<sup>2</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

**【緒言】** 原子系に負電荷のミュオンを持つミュオン原子は、ミュオンにより核電荷が強く遮蔽されるために、Z-1 原子に近い性質を持つと考えられている。本研究では、ミュオン原子を化学種として扱い、ミュオン原子の化学反応を観測することを目的に、ミュオン原子の取り出しのための基礎研究を行った。本研究では、実現可能な短期的な目標として、本研究では、ミュオン原子を磁場や電場を用いることにより単離し、ミュオン原子（イオン）ビームを取り出す手法の開発を行った。原子によるミュオン捕獲からミュオン原子が形成されるとき、ミュオンの脱励起に伴うオーグジュ電子放出によりミュオン原子は多価の正イオンとなる。今回、我々は、形成直後のミュオン原子を電場で掃引することにより、孤立系のイオンビームとして取り出すための装置を開発し、茨城県東海村の加速器施設 J-PARC MUSE の大強度ミュオンビームを用いた実験を行ったので報告する。

**【実験】** 装置の概要を図1に示す。原理としては、真空チェンバー内の薄膜ターゲットにミュオンビームを照射し、ミュオンを捕獲後、クーロン相互作用により薄膜より飛び出したミュオン原子イオンを電極により加速、TOF 法を用いてミュオン原子イオンを分離、測定する。ターゲット薄膜として用いた PTFE (テフロン®) は、パルスレーザー等の照射による F 原子イオン取り出しが報告されており、入手、取り扱いが容易であるという利点がある。発生した粒子の検出にはマイクロチャンネルプレート (MCP) を用い、TOF 法によりイオン種の  $m/z$  の同定を行う。本研究では、加速器実験の予備実験として、レーザーによるアブレーションでイオンを発生、加速させる実験を行っており、この結果を用いて装置の最適化を行った。加速器実験は J-PARC の MUSE D2 ポートにて行い、20~40 MeV/c のミュオンビームをターゲットに照射し、発生したイオン種を MCP で観測した。

**【結果】** レーザーを用いた予備実験において、銅板を試料としたときの TOF スペクトルを図2に示す。横軸は  $m/z$  に補正している。スペクトルより  $^{63}\text{Cu}$  と  $^{65}\text{Cu}$  の同位体が区別でき、分解能  $R=300$  を実現できた。講演では、その他、加速電圧の調整によるビームの高収率化など、実験システムの最適化について議論する。また、加速器実験で得られた予備的な結果についても報告する。

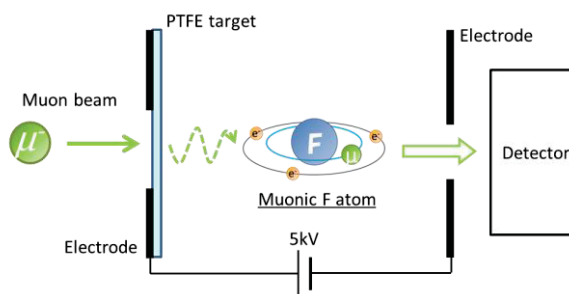


図1 ミュオン原子取り出し装置の概要

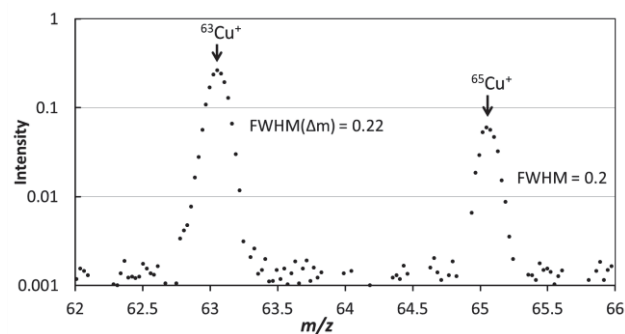


図2 銅板へのレーザー照射によるイオン発生・加速実験の TOF スペクトル

Muonic atom extraction experiment by using intense negative muon beam at J-PARC MUSE  
YOSHIDA, G., NINOMIYA, K., INAGAKI, M., TOYODA, M., AOKI, J., KAWAMURA, N., MIYAKE, Y., SHINOHARA, A.

# P38

## メスバウアー分光法によるコンドライト隕石中の鉄含有鉱物組成の研究

(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>、首都大院理工<sup>3</sup>)

○中川真結<sup>1</sup>、加納康大<sup>1</sup>、佐藤渉<sup>1, 2</sup>、海老原充<sup>3</sup>

### 【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おり、中でも主成分元素のひとつである鉄は、母天体の生成過程に応じて様々な化学形をとる。そのためコンドライト隕石中の鉄含有鉱物の研究は、母天体を取り巻く環境を知る上で大変重要である。本研究では鉱物組成の異なるコンドライト隕石を<sup>57</sup>Feメスバウアー分光法で調べ、鉄の状態解析を行った。また、<sup>57</sup>Feメスバウアー分光測定は、数百mgの試料があればよいことや、非破壊での測定が可能であるため、貴重な試料である隕石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。本研究ではこれらの利点を活かし、メスバウアースペクトルのみで得られる情報から多種多様に存在するコンドライト隕石の化学的分類法の確立を目指した。

### 【実験】

普通コンドライトであるSaratov (L4)と炭素質コンドライトであるAllende (CV3)を、それぞれ透過型<sup>57</sup>Feメスバウアー分光法により、室温で測定した。得られたスペクトルは $\alpha$ Feの室温スペクトルにより較正を行った。

### 【結果と考察】

室温におけるSaratovのメスバウアー分光測定の結果、スペクトルの成分比はコンドライトの主要鉱物として知られるOlivine、Pyroxene、Troilite、Fe-Ni (Kamacite or Taenite)に加えて、鉱物が特定できないFe<sup>3+</sup>のダブルレットが6.7%存在した。地上での酸化鉱物であれば低温で磁気分裂が生じると考え、現在6Kで測定を行っている。Allendeについても同様に測定、解析を行った。本研究の測定結果ならびに、既報の文献に記載されている様々なコンドライト隕石(地上での酸化が少ないもの)のメスバウアーパラメーターに基づいて、横軸に酸化的鉱物(silicate、oxide)中の鉄の原子数比、縦軸に還元的鉱物(Fe-Ni、Troilite)中の鉄の原子数比をプロットしたところ(Fig.1)、化学的分類の可能性を示唆する結果が得られた。Cコンドライトに関しては隕石により大きなばらつきがあり、このプロットだけでは他のコンドライトとの判別が困難であるが、OlivineとPyroxene中の鉄に関して同様の相関を調べることにより、普通コンドライト(H、L、LL)との判別が可能であることが分かった。発表では他の様々な分類法についても提案する。

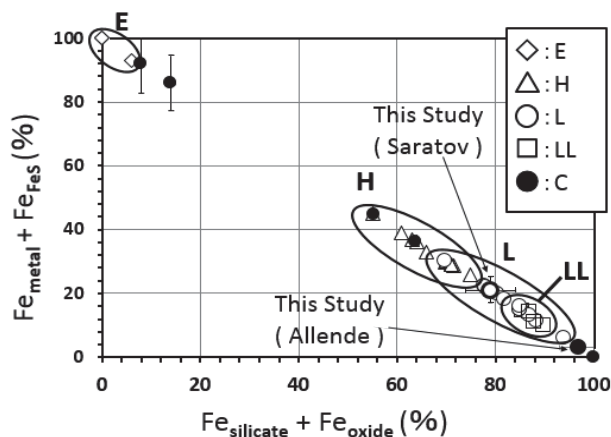


Fig.1 酸化的鉱物と還元的鉱物のFe原子数比の相関

Mössbauer Spectroscopic Study on the Composition of Fe-containing Chondrites  
NAKAGAWA, M., KANO, Y., SATO, W., EBHARA, M.,

【緒言】埋木（うもれぎ）とは、地中に長期間埋もれ変性した樹木である。変性は埋没条件に大きく影響されるが、埋没期間が比較的短い場合は、木材としての物理的性質を保持したまま重厚な色調を呈するため、建材や工芸品の材料として高値で取引される。埋木は生木に比べ、鉄を多量に含有していることが多く、独特の色調は鉄に起因すると推定されているが、その化学状態に関する報告はわれわれの予備的な研究<sup>1)</sup>を除いてほとんどない。また、埋木を焼いた灰は、香炉灰の最高級品として珍重されていたが、物理化学的性質が調べられたことはなかった。本報告では、埋木及び埋木灰中の鉄の化学状態に関し、メスバウアー分光法によって得られた知見を発表する。

【実験】試料は、約2500年前の鳥海山山体崩壊の際に埋没し、2015年に秋田県にかほ市で発掘されたスギ、ケヤキ、ナラ、クリの埋木である。埋木樹幹部をボールミルで粉碎し、18.5 meshのフルイを通して粉体を、105℃で24時間乾燥した後、各測定に供した。また、乾燥後の粉体を電気炉内で、空气中24時間600℃で加熱して灰化した。<sup>57</sup>Feメスバウアースペクトル測定（線源：<sup>57</sup>Co(Rh)、基準： $\alpha$ -Fe）にはTopologic Systems MD-222B Mössbauer spectrometerを用いた。その外、蛍光X線、IR/PAS、ラマン分光、電子顕微鏡観察等の分析を行った。

【結果と考察】図1に各埋木灰の78Kにおけるメスバウアースペクトルを示す。左上に各灰中のFe/Ca比を記した。いずれのスペクトルでも複数の磁気成分が観測され、スギとケヤキの灰ではダブルレットも現れている。ナラ埋木灰では $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に対応する吸収が確認された。スペクトル解析は現在も進行中であるが、ケヤキ灰の磁気成分パラメータはCa<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>5</sub>に近く、また室温のスペクトルとの比較からはナラ、クリの灰にはCaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>が含まれている可能性が示唆された。

一方、埋木自体のメスバウアー測定ではケヤキ、ナラ、クリでは見かけ上、1組のダブルレットが観測され、鉄は3価高スピンド、タンニンと多核錯体を形成していることが推定された。

【謝辞】にかほ市教育委員会から埋木試料の提供を受けた。謹んで謝意を表す。

[1] S. Yamauchi *et al.*, *J. Wood Sci.*, 57(6), 549-552(2011)

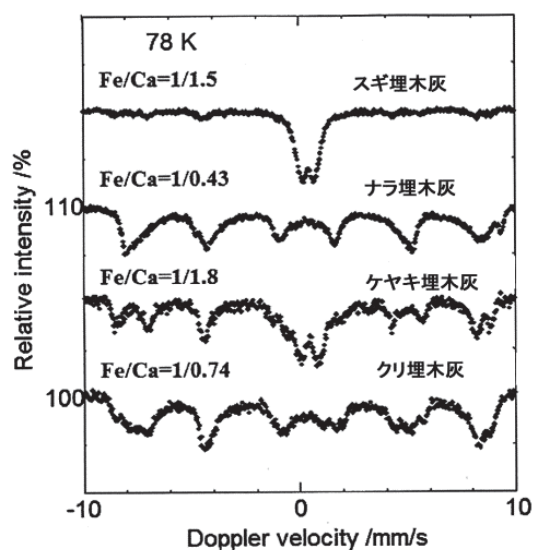


図1 埋木の78Kにおけるメスバウアースペクトル

Chemical states of iron in the ancient woods excavated from the foothills of Mt. Chokai and their ashes

YAMAUCHI, S., KURIMOTO, Y., YAMAGISHI, T., SAKAI, Y.

(明大院理工<sup>1</sup>、理科大<sup>2</sup>、東大<sup>3</sup>)○鈴木茂世<sup>1</sup>、水沼丈史<sup>1</sup>、野村貴美<sup>1,2</sup>、岡澤厚<sup>3</sup>、小池裕也<sup>1</sup>

**【緒言】** これまで SrSnO<sub>3</sub> ペロブスカイト酸化物半導体を用いて Fe を少量置換した希薄磁性半導体の研究、開発を行ってきた。ある一定以上の Fe を置換すると、室温で比較的大きな強磁性を示すことが分かった。Fe は +3 価として Sn<sup>4+</sup> に置換するので、ペロブスカイトに酸素欠陥が生じていると考えられる。今回、A サイトの置換による磁気特性に与える影響を調べることを目的とし、Fe の濃度を 8% に一定添加した SrSnO<sub>3</sub> に対し、Sr サイトに濃度の異なる Ca を置換させたペロブスカイト酸化物を作製した。これらの微細構造解析を行った結果を示す。

**【実験】** 0.1M の Sr 及び Sn の溶液、0.01 M の Ca, Fe 及び <sup>57</sup>Fe の各溶液と、クエン酸とエチレングリールを混合して、所定の割合で溶液を調整した。

ホットプレートを用いて溶液濃縮と有機物の分解を行った後、400 °C で 2 時間、1000 °C

で 2 時間焼成して 1% <sup>57</sup>Fe を含む粉末試料 (Fe 濃度が 8%, Ca 濃度が 0 - 15%) を作製した。X 線回折 (XRD)、試料振動型磁力計 (VSM) および <sup>57</sup>Fe のメスbauer一分光測定を行った。

**【結果及び考察】** XRD により、全ての試料で SrSnO<sub>3</sub> のペロブスカイト酸化物であることを確認し、その結晶子の大きさは、直径約 30 - 40 nm であった。その格子定数は Ca の濃度とともに減少する傾向を示した。これは Sr と Ca のイオン半径の差による。また、Fe が 8% 含まれているため、すべての試料で強磁性を示した。図 1 のように Ca を含まない試料の飽和磁化率は約 0.2 emu/g に対して、Ca 濃度が 2 - 6% 置換した時、平均 0.5 emu/g であり、Ca 濃度が 15% の時 1.0 emu/g となった。飽和磁化率は Ca 濃度により増加した。Ca は Sr サイトに置換することで単位格子が縮小し、磁気特性の向上が向上することが分かった。ただ、8% Fe を含むメスbauerスペクトルの磁気分裂成分の強度は、図の 2 ように Ca を含まない場合より小さくなった。これは単位格子が縮められ、Fe<sup>3+</sup> 原子同士の磁氣的相互作用よりも格子の欠陥などにトラップする電子によって誘起される磁性が大きく寄与していると考えられる。

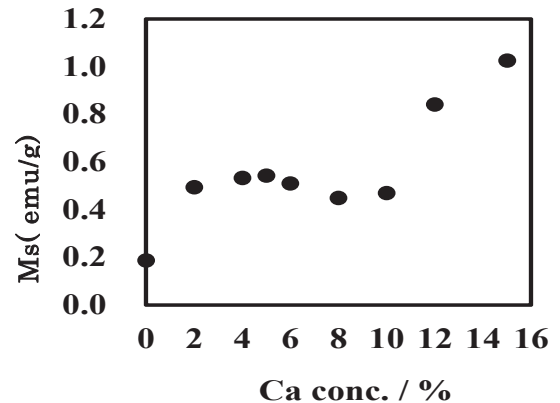


Fig. 1 Saturation magnetization of Sr<sub>(1-x)</sub>Ca<sub>(x)</sub>Sn<sub>0.92</sub>Fe<sub>0.08</sub>O<sub>3-δ</sub>.

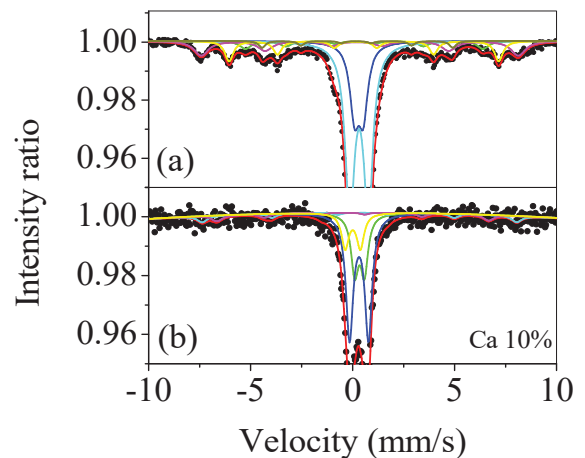


Fig. 2 <sup>57</sup>Fe Mossbauer spectra of Sr<sub>(1-x)</sub>Ca<sub>(x)</sub>Sn<sub>0.9</sub>Fe<sub>0.1</sub>O<sub>3-δ</sub>. (a)x = 0, (b) = 0.1.

Calcium substitution effect on the magnetic properties of Sr(Sn<sub>(1-x)</sub>Fe<sub>x</sub>)O<sub>3-δ</sub>  
SUZUKI. S, MIZUNUMA. T, NOMURA. K, OKAZAWA. A, KOIKE. Y



# P41

## 高比放射能プロメチウム内包フラーレン合成に向けた、プロメチウムの分離精製

(首都大院理工<sup>1</sup>、東北大電子光セ<sup>2</sup>) ○宮内翔哉<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、菊永英寿<sup>2</sup>、久富木志郎<sup>1</sup>

【緒言】金属内包フラーレンは、フラーレン内部にランタノイド元素などの金属元素が包接している化合物である。我々はサマリウム(Sm)を標的とした光核反応で生じたプロメチウム-143(<sup>143</sup>Pm)を用いることで、これまで報告されてこなかったプロメチウム内包フラーレン(Pm@C<sub>2n</sub>)の合成に成功し、PmがC<sub>82</sub>ケージ内で3価であることを明らかにした。しかし、合成した<sup>143</sup>Pm@C<sub>2n</sub>は比放射能が低く、それ以上の詳細を調べることが出来なかった。Pm@C<sub>2n</sub>の詳細な性質を調べるには高い比放射能をもつ<sup>143</sup>Pmを合成に用いる必要があることから、標的としたSmの分離が不可欠である。本研究では十分な比放射能を持つ<sup>143</sup>Pmを得るために陽イオン交換クロマトグラフィーによって<sup>143</sup>Pmの分離精製を行った。

【実験】10 φmmのペレット状にした1 gのSm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を東北大学電子光物理学研究センターにおいて、最大エネルギー50 MeVの制動放射線を6時間照射することで、<sup>143</sup>Pmを製造した。照射した試料のうち0.8 gを8 mLの濃塩酸に溶解し、ここから10 μLを分取して0.1 M塩酸で1000倍に希釈することで分離用の試料とした。この調製した試料のうち1 mLを用いて陽イオン交換クロマトグラフィーを行った。陽イオン交換クロマトグラフィーの分離条件をTable. 1に示した。カラムは強酸性陽イオン交換カラムInertsil CXを用い、アンモニア水でpHを調整した0.2 M α-ヒドロキシイソ酪酸(pH=3.79)を溶離液として用いた。また、ポストカラム試薬として4-(2-ピリジルアゾ)レゾルシノール(PAR)を用いてSmイオンを発色させ、UV/vis 検出器にて530 nmの吸光度をモニターすることでクロマトグラムを得た。保持時間0-40分の溶出成分については2分ごとに分画し、Ge 半導体検出器にてγ線測定を行った。

【結果】Fig. 1に陽イオン交換クロマトグラム及び溶出成分の放射能を測定した結果を示した。クロマトグラムから保持時間が18-22分の間でSmの溶出が確認された。放射能測定した結果から保持時間18-22分の間ではSmのみが、22-30分の間ではPmのみが検出され、分離後の<sup>143</sup>Pmの回収率は94.7%であった。放射能測定の結果をもとにピークフィッティングを行いSmとPmの分離度を求めるとR<sub>s</sub>=1.65となった。<sup>143</sup>Pmを22-30分まで分取した場合、Pm分画に混入するSmは全体のうちの0.06%程度と見積もられ、<sup>143</sup>Pmの比放射能は約1700倍となるため、分離によりPm@C<sub>2n</sub>合成に十分な比放射能を持つ<sup>143</sup>Pmが得られることが分かった。

カラム	Inertsil CX (4.6 φ×250 mm)
溶離液	0.2 M α-ヒドロキシイソ酪酸(pH=3.79)
溶離液流量	0.5 mL/min
反応液	0.2 mM 4-(2-ピリジルアゾ)レゾルシノール 2 M NH <sub>4</sub> OH 1 M CH <sub>3</sub> COONH <sub>4</sub>
反応液流量	0.5 mL/min
恒温槽温度	50 °C
検出器	UV/vis 検出器
検出波長	530 nm
試料注入量	1 mL

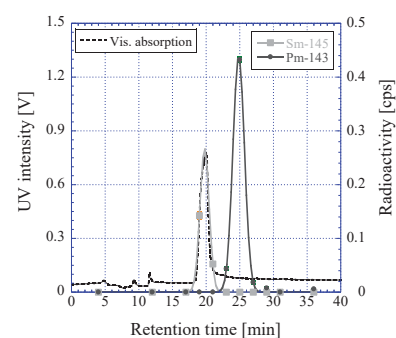


Fig. 1 陽イオン交換クロマトグラム及び分画の放射能

Separation and purification of Pm for Pm@C<sub>2n</sub> synthesis with higher specific radioactivity  
MIYAUCHI, S., AKIYAMA, K., KIKUNAGA, H., KUBUKI, S.

【緒言】現在の核医学検査において Tc-99m は最も多用されている放射性同位元素である。Tc-99m の原材料となる Mo-99 は Mo-98(n,  $\gamma$ )や Mo-100(n, 2n)反応等を経て合成できることから、Mo-99 の国産化を目指した研究開発が活発に行われている。<sup>1-3)</sup> 実用的な濃縮度を持つ同位体を得るための化学的同位体分離技術の一つとして、クロマトグラフィー法が知られているが、その手法では目的の濃縮度を持つ同位体を得るためには莫大な時間がかかる。<sup>2)</sup> 例えば、濃縮度が 24.2 %である Mo-98 から約 4 倍の濃縮度(99.0 %)となる Mo を得るためには 20 年以上の歳月が必要となる。<sup>2)</sup> しかしながら、同位体の濃縮効率の指標となる同位体分離係数が現在の 100 倍となる新規触媒的反応を Mo の同位体交換反応中で発現することができれば、所要時間はたった 110 日に短縮される。我々はクロマトグラフィー法を用いた Mo の触媒的同位体分離法を提案し、複数の樹脂に対する同位体分離挙動を解析してきたが、<sup>2)</sup> 未だ十分な同位体分離係数は得られていない。本研究では、Mo(V)と Mo(VI)との間の酸化還元反応を発現させ、電子交換反応機構を変化させることで Mo の同位体分離係数の向上を試みた。

【実験】1.0 mM ( $M = \text{mol} / \text{L}, L = \text{dm}^3$ ) Mo(VI)を含む HCl 水溶液を準備した。そこに、1.5 mM となるように Sn(II)Cl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O を添加し、Mo(V)を含む HCl 水溶液を得た。さらに、各 10 mL を含むポリプロピレン製容器に陰イオン交換樹脂(合成したベンゾイミダゾール型樹脂と三菱化学社製 WA20 型及び PA316 型樹脂の 3 種類) 0.50 g を添加し、室温条件下でバッチ試験(振とう時間: 24 h)を行った。平衡後、PTFE 製フィルターを用いて陰イオン交換樹脂を取り除き、ろ液を回収した。回収したろ液に含まれる Mo の定量分析は ICP-MS(7700x, Agilent)分析法により行った。Mo の分配係数( $K_d$ )は参考文献(2)と同様の計算式を用いて算出した。吸着実験前後の陰イオン交換樹脂の構造解析は FT-IR(IRAffinity-1S, Shimadzu)により行った。

【結果・考察】室温条件下、0.10 - 11.2 M の HCl 水溶液中で陰イオン交換樹脂を用いて Mo(VI)と Mo(V)の吸着実験を行った結果、 $[\text{HCl}]_T = 0.1 \text{ M}$  のとき、 $K_d$  が最大値を取ることがわかった。この振る舞いは Mo<sub>7</sub>O<sub>21</sub>(OH)<sub>3</sub><sup>3-</sup> が生成したことに起因する。<sup>2)</sup> 一方、 $[\text{HCl}]_T = 1.0 - 2.0 \text{ M}$  では、H<sub>3</sub>MoO<sub>4</sub><sup>+</sup> が生成するため、 $K_d$  が最小値を取ることがわかった。Mo(VI)を V 価に還元すると、0.1 M HCl 水溶液を除く全 HCl 領域で、 $K_d$  値が Mo(VI)と比較して一桁程度減少することが確認できた。Sn(IV)Cl<sub>n</sub><sup>4-n</sup> ( $n \geq 5$ )が陰イオン交換樹脂とより選択的に吸着しやすいことや(Mo(V)OCl<sub>4</sub>)<sub>2</sub>O<sup>4+</sup>と Sn(IV)Cl<sub>n</sub><sup>4-n</sup> ( $n \geq 3$ )が多核錯体を形成したものと推測される。

【参考文献】1) Nagai, Y. et al., *J. Phys. Soc. Jpn.*, **78**, 1-4 (2009), 2) Tachibana, Y. et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **303**, 1429-1434 (2015), 3) Tachibana, Y. et al., “Effect of valence state on chromatographic fractionation of molybdenum isotope in aqueous hydrochloric acid solution”, *Submitted to Prog. Nucl. Energy*

Dependence of valence states of molybdenum for its isotope separation coefficients  
TACHIBANA, Y., KANESHIKI, T., NOGAMI, M., SUZUKI, T., NOMURA, M.

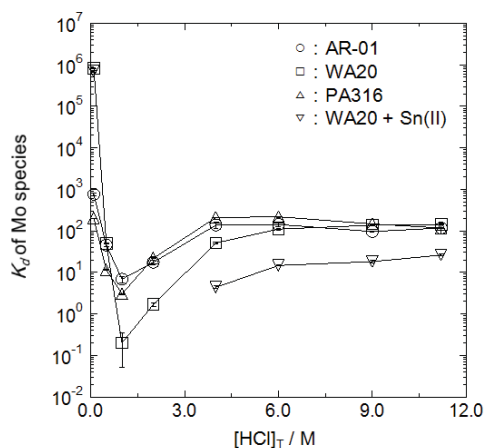


Figure 1. Plots of  $K_d$  values of Mo species vs.  $[\text{HCl}]_T$  at room temperature.  $[\text{Mo}]_T = 1.00 \text{ mM}$ ,  $[\text{Sn}]_T = 1.50 \text{ mM}$ .

**【緒言】** 陽電子断層撮影法(PET)と同じ原理でより簡便な装置を用いて、回転する物体上の陽電子放出線源の2次元分布を非接触で測定する方法を開発している[1]。その原理と試験測定結果を紹介する。

**【原理】** 点線源の場合を例に測定の原理を図1に示す。連続回転する物体上の $(r, \theta)$ の位置に陽電子放出核種の点線源を置き、その両側で2組のガンマ線検出器を往復運動させて検出器を結ぶ線(LOR)で回転体をスキャンする。陽電子消滅 $\gamma$ 線の同時計測率を回転角 $\phi$ とLORの変位の関数として測定すると図1右のようなサイノグラムが得られる。点線源の場合は振幅と位相が線源位置 $(r, \theta)$ に依存する正弦曲線で、2次元分布の線源では強度分布による正弦曲線の重ね合わせになる。このサイノグラムからRIの2次元分布を再構成することができる。

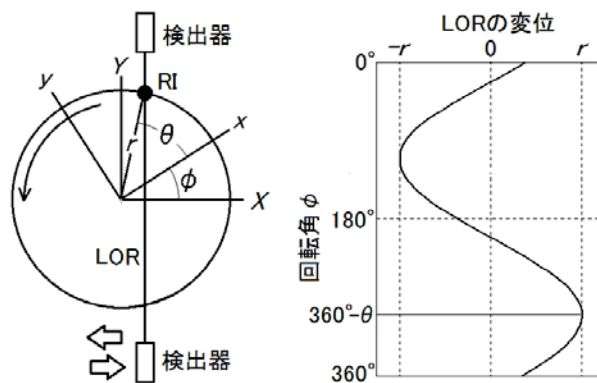


図1：点線源の場合の構成とサイノグラム

**【測定】** 試験測定用に組み立てた装置の概要は以下の通りである。連続回転するターンテーブル(直径140mm)に線源を固定し、その両側に対向して設置された2組のNaI(Tl)検出器を並行往復運動させながら511keVガンマ線を同時計測する。各検出器は厚さ3cmの鉛板による幅4mmの垂直のコリメータでLORの幅を限定する。測定ではターンテーブル上に点状(35kBq)と文字型(975kBq)のNa-22線源を置き150rpmで連続回転させて、検出器は回転中心から±74mmの範囲を2mmステップで平行移動した。片道所要時間は約13分で24時間かけて55往復した。図2(a)に文字型線源のイメージングプレート像を示す。文字サイズは高さ26mmである。

**【結果】** 図2(b)に測定で得られたサイノグラム、(c)に最尤推定-期待値最大化法(ML-EM法)で再構成した線源の2次元分布を示す。

画像は1辺150mmの正方形を一辺2mmのピクセルで分割した。面線源の形状はよく再現している。また点線源に対して半値全幅3mm以下の位置分解能を得た。

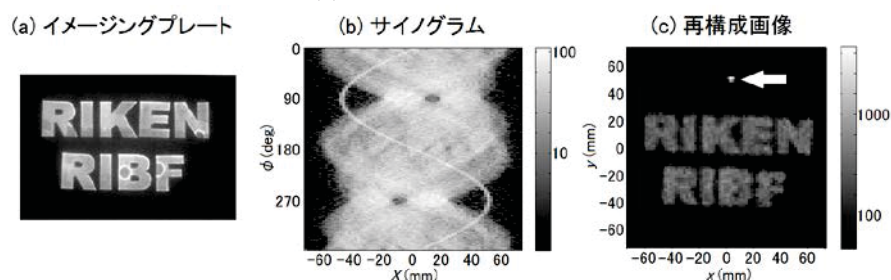


図2：(a)文字線源のイメージングプレート像、(b)サイノグラム、(c)再構成画像、矢印は点線源の像

この方法では遅い過程によるRIの動態を実時間で観察できるので、機械を運転しながら実時間・非接触で行う機械部品の摩耗試験など、工学分野への応用が期待される。なおポスターでは線源としてZn-65(8MBq)の塩酸溶液を用いた測定の結果も合わせて報告する。

**【参考文献】** [1] T. Kambara, A. Yoshida and H. Takeichi, Nucl. Instr. Meth. A 797 (2015) 1.

**【緒言】** 即発ガンマ線分析(PGA)は、中性子捕獲反応によって放出されるガンマ線のエネルギーによって核種弁別する手法であり、中性子共鳴捕獲分析は、原子核の多くが熱外中性子エネルギー領域にもつ固有の共鳴エネルギーによって弁別する手法である。中性子共鳴捕獲分析では、飛行時間法(TOF)によってパルス中性子のエネルギーを測定することによって、共鳴エネルギーを得る。MLF の BL04 に設置されている中性子核反応測定装置 (ANNRI) では、検出限界と峻別性能の向上を目指し、上述の2つの分析法を組み合わせた手法、つまり TOF を PGA に適用した分析法(TOF-PGA)の研究開発を行ってきた[1]。

TOF-PGA 法は分離変換等における放射性核種の非破壊分析としての応用が期待される。分離変換技術とは廃棄物処分的大幅な負担軽減を目指し、高レベル放射性廃棄物をいくつかのグループに分離し、長寿命のものを核変換して短寿命化する技術である。群分離されたグループのうち Tc・白金族元素は、管理すべき Tc-99、Pd-107 の長寿命の放射性核種を含む一方で、有用な金属資源として再利用することも検討されている。再利用のためには白金族の定量だけでなく、これらの放射性核種の定量も重要であるが、Pd-107 は純β核種であり、Tc-99 も殆ど崩壊γ線を放出しないため、破壊法によっても定量することが困難である。

本研究では、群分離後の Tc・白金族元素の非破壊分析を確立する事を目的として、ANNRI において TOF-PGA 法による放射性核種分析実験を行った。

**【実験】** 実験は ANNRI の 21.5m 位置に設置されているクラスターGe 検出器 2 台とコアキシャル Ge 検出器 7 台を用いて実施した。試料は高レベル放射性廃液[2]を模擬するため、それに近い元素比となるように調整した。Tc-99 と Pd-107 は Al キャプセルに密封されたものにパルス中性子ビームを照射した。また、破壊分析において妨害元素となる Ag を加えた試料も作成し、Ag が TOF-PGA 測定に与える影響も調べた。測定時のビーム強度は約 500kW であり、単元素試料については 30 分から 1 時間程度、模擬試料等については 6 時間程度の測定を行った。

**【結果】** 単元素試料の測定では、従来法の PGA でも TOF でも明瞭なピークを確認できた。一方、高レベル放射性廃液を模擬した試料では、試料に含まれる複数の元素(核種)からのガンマ線と共鳴のピークがどちらも重なりあうため、多くの元素は PGA でも TOF でも解析が困難であった。しかし、TOF-PGA では TOF と PGA の相関を用いる事ができるため、模擬試料であっても個々の元素(核種)からのガンマ線 (及び共鳴) だけを得る事ができた。また、デッドタイム等の補正を行うことにより、Tc-99 と Pd-107 を試料の内容物によらず正確に定量する事ができた。本発表では解析の際に用いる放射性核種の核データ整備の必要性についても述べる[3]。

**【謝辞】** 本研究は科研費 JSPS (22750077) の助成を受けた成果を含む。

#### **【参考文献】**

- 1) Y. Toh *et al.*, Anal. Chem. 86, 12030-12036 (2014)
- 2) JAEA Review 2008-037 「再処理プロセス・化学ハンドブック第2版」
- 3) S. Nakamura *et al.*, Nucl. Data Sheets 119,143-146 (2014)

# English Abstracts

### 2S01 Frontline in superheavy element study using a gas-filled recoil separator GARIS

MOIRTA, K.<sup>1,2</sup>, MORIMOTO, K.<sup>1</sup>, KAJI, D.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Nishina Center, RIKEN, <sup>2</sup>Fac. of Sci., Kyusyu Univ.)

The IUPAC/IUPAP Joint Working Party (JWP) on the priority of claims to the discovery of new elements has reviewed the relevant literature for elements 113, 115, 117, and 118 and has determined that the claims for discovery of these elements have been fulfilled, in accordance with the criteria for the discovery of elements of the IUPAP/IUPAC Transfermium Working Group (TWG) 1991 discovery criteria. These elements complete the 7th row of the periodic table of the elements. The IUPAC began a public review of the name and symbol—Nihonium and Nh—that we proposed to IUPAC. In this symposium, I will talk about the way to a new element ( $Z=113$ ) discovery and frontline in superheavy element study using a gas-filled recoil ion separator.

During ten years from 2003 to 2012, we have studied on a production and decay properties of a new superheavy nuclide  $^{278}113$  produced by  $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278}113$  using a gas-filled recoil separator GARIS. Totally 3 decay chains due to the  $^{278}113$  were observed during net irradiation time of 576 days. The 1st and 2nd decay chains consist of four alpha decays from  $^{278}113$  to  $^{266}\text{Bh}$ , and then ended by spontaneous fission of  $^{262}\text{Db}$ . The 3rd chain was consist of 6 alpha decays and connected to  $^{254}\text{Md}$ . Observed decay properties from 3 decay chains were consistent each other. In 2009, we also tried to search for the  $^{266}\text{Bh}$  produced by  $^{248}\text{Cm}(^{23}\text{Na},5n)$  to establish the connection to known nuclides and the cross-reaction. As a result, totally 14 events were assigned to decay chains from  $^{266}\text{Bh}$ . The identification was based on a genetic link to the known daughter nucleus  $^{262}\text{Db}$  by  $\alpha$ -decay. Thus, the decay chains from  $^{266}\text{Bh}$  were well established. Therefore, we concluded the 3 decay chains from  $^{278}113$  are clearly connected to the anchor nuclides and the productions of  $^{278}113$  are clearly confirmed.

New research program toward discovery of new elements with  $Z \geq 119$  via hot fusion reactions has been started. In 2013-2015, production of Lv-isotopes was performed via  $^{48}\text{Ca}+^{248}\text{Cm}$  reaction using GARIS. Although this reaction was already studied by FLNR and GSI, the study was performed on the basis of two motivations. The first is to increase the spectroscopic information or possible to obtain the new information and the second aim is to examine the performance of the GARIS facility relevant to the future plan. These results will be summarized in this talk. Furthermore, in order to study the hot fusion reaction with higher efficiency, a new GAs filled Recoil Ion Separator II (GARIS-II), which has large acceptance and also the equipment such as gas cooled rotating target system and focal plane detection system, were developed. The status of GARIS-II and future plans about new element search at RIKEN will be also presented.

### 2S02 Gas Phase Chemistry of Superheavy Elements

YAKUSHEV, A.<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>GSI Helmholtz Research Center for Heavy Ions, Darmstadt, Germany, <sup>2</sup>Helmholtz Institute Mainz, Mainz, Germany)

Approaching the heaviest elements with  $Z \geq 108$ , gas phase studies are best suited for the chemical investigations. In some cases a clean chemistry allows to reach a very high sensitivity, as in the studies on Hs chemistry. In other cases the coupling of chemistry setups to an electromagnetic separator is advantageous, as it was demonstrated in the first study on the carbonyl complex of Sg. Two successful experiments on Fl gas-phase chemistry are published so far. The results are contradictive: the physisorption of Fl on gold was suggested in the first study and a metallic character of Fl in the second one. Recently several additional Fl atoms were registered in two subsequent experiments. First gas-phase experiments on element 113, nihonium, were performed recently. The experimental details and the results of the gas-phase experiments with superheavy elements Sg, Hs, Cn, Nh (nihonium) and Fl will be presented.

### 2S03 Discrepancy in the Periodic Table appears at element 103; the Periodic Table of elements might be restructured

Sato, T. K.

(Japan Atomic Energy Agency)

The first ionization potential ( $IP_1$ ) of element 103, lawrencium (Lr), has been successfully determined for the first time by using a newly developed method based on a surface ionization process. The measured  $IP_1$  value is  $4.96 \pm 0.08$  eV. This value is the smallest among those of actinide elements and is in excellent agreement with the value of 4.963(15) eV predicted by state-of-the-art relativistic calculations also performed in this work. Our results strongly support that the Lr atom has an electronic configuration of  $[\text{Rn}]7s^25f^{14}7p_{1/2}^1$ , which is influenced by strong relativistic effects. The present work provides a reliable benchmark for theoretical calculations and also opens the way for studies on atomic properties of heavy elements with atomic number  $Z > 100$ . Moreover, the present achievement has triggered a controversy on the position of lutetium (Lu) and Lr in the Periodic Table of Elements.

### 3S01 Developments of the chemical experiment methods for rutherfordium: coprecipitation and observation of equilibrium in extraction reactions

KASAMATSU, Y.

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ.)

The chemical properties of transactinide elements ( $Z \geq 104$ ) are expected to be characteristic due to strong relativistic effects on their electronic shells, and transactinide chemistry is very fascinating. It is, however,

very difficult to perform chemical experiments of these elements because of their short half-lives and low production rates in the nuclear reactions. Chemical experiments on a “one-atom-at-a-time” basis are required to be performed “online” using a transport system of nuclear reaction products.

In this study, the method to investigate the coprecipitation behavior of element 104, Rf, with Sm hydroxide and additionally the method to observe its time-dependent extraction behavior were established. The coprecipitation and extraction behaviors of homologous elements, Zr and Hf, and pseudo homologue, Th, of Rf were investigated. In the coprecipitation experiment, the coprecipitation behaviors of various elements (34 types of elements) with Sm hydroxide were also investigated and the applicability of the method to transactinide elements was found. In addition, apparatuses for rapid and repetitive chemical separation for online experiment were developed. Indeed, online coprecipitation and extraction experiments were performed using the nuclear reaction products  $^{85,89m}\text{Zr}$  and  $^{169,173}\text{Hf}$ , which were transported continuously from the nuclear reaction chamber to the chemistry laboratory with a He/KCl gas-jet system, at RIKEN or RCNP. Consistent coprecipitation and extraction behaviors of the homologues with those obtained in the “offline” experiments were successfully observed in the online experiment. Based on these results, suitable conditions for Rf experiment were determined.

### **3S02 Bonding investigation on d, f-block coordination compounds by combining density functional calculations with Mössbauer spectroscopic parameters**

KANEKO, M.

(Japan Atomic Energy Agency)

This study aims to perform the optimization of density functional methods using experimental data of Mössbauer isomer shifts and apply these methods to d, f-block coordination chemistry. In the d-block complexes, the validity for the spin-crossover (SCO) switching behavior of iron(II) assembled complexes was confirmed. The application of this method indicated that whether SCO occurs or not depends on the dihedral angle between iron atom and pyridine plane. In the f-block complexes, the benchmarking of computational method was performed using  $^{151}\text{Eu}$  and  $^{237}\text{Np}$  Mössbauer isomer shifts. The optimized method reproduced the separation behavior of Am(III) ion from Eu(III) ion and implied that the difference in the bonding contribution between 5f(Am) and 4f(Eu) attributes to the selectivity of Am(III) compared with Eu(III).

### **3S03 Development of nondestructive, position-selective and multi-elemental analysis method with negative muons**

NINOMIYA, K.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ.)

A negative muon is one of the elementally particles that

has the same charge of an electron and 200 times larger mass than that of an electron. The negative muons can produce muonic atoms that have one muon instead of an atomic electron when it stopped in a material, and high-energy characteristic muonic X-rays are emitted after formation of the muonic atom. In this work, we developed a new elemental analysis method using muonic X-rays. Because muonic X-rays are very hard, we can detect such X-rays if the source is deeply inside of a material. Additionally, we can select the depth of muonic X-ray source in a material (muon stopping position) by controlling incident energies of muons. In this way, elemental analysis by muonic X-ray measurement is possible as nondestructive, position-selective and multi-elemental analysis. This method has a possibility to be complementary analysis method for the other analysis methods especially for elemental analysis for valuable samples such as archeological artifacts, extraterrestrial materials, and so on.

### **3S04 Development of measurement techniques for low-level alpha-emitting radionuclides and its application to earth and environmental sciences**

YAMAMOTO, M.

(LLRL, Kanazawa Univ.)

As all of you already well know, various types of radionuclides exist in the environment, and their levels extend over a broad range. For more than 40 years, I have been working in the broad direction of scientific researches related to the development of low-level radioactivity measurement, the environmental contamination and radiation effect to human, and their applications as tracers to earth and environmental sciences, including chronology.

In this presentation, I will discuss about some topics of my works as follows: 1) development of the low-level measurements for alpha-emitting radionuclides which need radiochemical separation and purification, especially environmental transuranic nuclides, 2) studies on the worldwide radioactive contamination fields such as Hiroshima and Nagasaki atomic bombs, Bikini Atoll, Semipalatinsk nuclear test site, Irish Sea involved with the Sellafield nuclear fuel reprocessing plant, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant and so on, and 3) studies on the applications to earth and environmental sciences for better understanding various processes occurring in the environment

This time I feel very honored that I was able to win such a big prize of the Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences. I would like to thank you all members who have supported me.

### **1A01 Evaluation of desorption of radioactive cesium from suspended particles during its transport from river water to seawater by General Adsorption Model (GAM)**

MIURA, H.<sup>1</sup>, FAN Q. H.<sup>2</sup>, KURIHARA, Y.<sup>1</sup>, SAKAGUCHI, A.<sup>3</sup>, HIGAKI, S.<sup>1</sup>, ISHIMARU, T.<sup>4</sup>,

KANDA, J.<sup>4</sup>, TAKAHASHI, Y.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>The Univ. of Tokyo, <sup>2</sup>Chinese Academy of Sciences, <sup>3</sup>Univ. of Tsukuba, <sup>4</sup>Tokyo Univ. Marine Sci. Technol.)

In this study, salinity and natural organic matter were focused as factors that influence adsorption and desorption of cesium (Cs) to phyllosilicates. Sinking particles and suspended particles in coastal ocean and suspended solids in rivers in Fukushima Prefecture were used. In adsorption experiment of added <sup>137</sup>Cs tracer, solid-water distribution coefficient ( $K_d$ ) of Cs on the particles increased after removing organic matter. This result suggested that adsorption of Cs to the particles was blocked by organic matter. After increasing salinity,  $K_d$  was decreased. This result suggested that amount of Cs on particles was decreased by exchange of Cs by cations such as potassium. EXAFS measurement showed that the ratio of Cs as inner-sphere complex was increased after removing organic matter. This meant that organic matter blocked adsorption of Cs to interlayer sites. In addition, it was shown that degree of decrease of  $K_d$  by the difference of salinity between seawater and river water was larger than that caused by organic matter.  $K_d$  calculated from GAM was similar to  $K_d$  measured actually in river, estuary and sea. Therefore, the ratio of radioactive Cs desorbed from the particles in estuary can be estimated by GAM because GAM described dependence of  $K_d$  on salinity and characteristics of particles.

#### 1A02 Effect of natural organic matter on the migration of cesium and iodine in environment

TAKAHASHI, Y.<sup>1</sup>, MIURA, H.<sup>1</sup>, FAN, Q.<sup>2</sup>, TANAKA, K.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>The Univ. of Tokyo, <sup>2</sup>Chinese Academy of Science, <sup>3</sup>JAEA)

Effect of natural organic matter (mainly humic substances) on the chemical processes of cesium and iodine in soil and river water will be discussed. It is well known that humic substances inhibit adsorption of cesium into the interlayer of phyllosilicates. It was also found that humic substances can form complex with cesium ion. For example, a part of cesium ion can form humate complex in natural water with dissolved organic matter above 10 mg/L. As for iodine, it has been indicated that iodine is incorporated into humic substances by the electrophilic substitution to aromatic carbon. We have studied iodine leaching behavior from soil in Koriyama City collected on April 13, 2011. It was found that about 30% of iodine was leached from the soil under alkaline condition. The iodine leached into the solution was subsequently incorporated into the precipitates of humic substances once after acidification of the leached solution to pH 2.

#### 1A03 Accumulation Process of Radiocesium for Koshiabura (*Acanthopanax sciadophylloides*)

NIHEI, N.<sup>1</sup>, OHTE, N.<sup>2</sup>, TADA J.<sup>3</sup>, KUROSAWA T.<sup>4</sup>,

NEMOTO K.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Agri., The Univ. of Tokyo, <sup>2</sup>Grad. Sch. of Info., Kyoto Univ., <sup>3</sup>Radio. Safety Forum, <sup>4</sup>Date City)

Koshiabura (*Acanthopanax sciadophylloides*) is one of the deciduous trees in Araliaceae, and the leaves are eaten in Japan as a wild vegetable. After the Fukushima nuclear accident, radiocesium concentrations of Koshiabura leaves have been passed at a high value, but the elucidated factors don't progressed. It was investigated that accumulation process of radiocesium concentration for Koshiabura which grew naturally in a forest in Fukushima. The difference in the radiocesium concentration of the leaves couldn't be found between at the long shoot and at the short shoot, or at the tip and at the end of the tree. On the other hand, an annual change of the radiocesium concentration in the leaves was showed several times higher in early spring than other season. That is necessary to pay attention because the early spring is the time to eat Koshiabura as a wild vegetable. However there were some cases that the increasing in early spring was slightly. To determine this cause, such as soil conditions, was considered to be one of the tips for the use of Koshiabura in relief.

#### 1A04 A chemical behavior of cesium in substrates for cultivated Shiitake

MURANOI, T.<sup>1</sup>, KINO, Y.<sup>1</sup>, ITABASHI, Y.<sup>2</sup>, NAKAJIMA, T.<sup>2</sup>, KORIYAMA, S.<sup>2</sup>, KIMURA, E.<sup>2</sup>, SHIGIHARA, T.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Dept. of Chem., Tohoku Univ., <sup>2</sup>Kinokkusu Co.)

High ability to accumulate cesium in mushrooms has been widely reported after the Chernobyl accident. In the case of the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident, radioactive cesium contamination of fungi has rather affected cultivated mushroom industries. In order to reveal a chemical behavior of the cesium in substrates for cultivated mushrooms, we analyzed mushrooms and substrates and washed the substrates in a various conditions. We determined concentration of radioactive cesium in extractants with a high purity Ge semiconductor detector. We also determined concentration of stable cesium in those samples by an ICP-MS. We found different behavior between stable and radioactive cesium in the substrates. The results suggested that the chemical form of radioactive cesium in the substrate should be different from that of stable cesium. Since the substrate was cut just after the accident, radioactive cesium from the surface of the wood has not been sufficiently diffused in the substance. And, to investigate the effect of the additive, we carried out cultivation and washing experiment using substrates added with zeolite. From these results, we considered relationship between a chemical behavior of cesium and migration reduction mechanism.

#### 1A05 Estimation of Sr-90 and Cs-137 contamination in habitat of cattle by measurement of radioactive concentration in teeth of cattle.



KOARAI, K.<sup>1</sup>, KINO, Y.<sup>1</sup>, NISHIYAMA, J.<sup>1</sup>, TAKAHASHI, A.<sup>2</sup>, SUZUKI, T.<sup>3,4</sup>, SHIMIZU, Y.<sup>3</sup>, CHIBA, M.<sup>3</sup>, OSAKA, K.<sup>3,4</sup>, SASAKI, K.<sup>3</sup>, FUKUDA, T.<sup>5</sup>, ISOGAI, E.<sup>6</sup>, OKA, T.<sup>1,7</sup>, SEKINE, T.<sup>1,7</sup>, FUKUMOTO, M.<sup>8</sup> and SHINODA, H.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Dept. Chem., Tohoku Univ., Japan. <sup>2</sup>Tohoku Univ. Hospital, Tohoku Univ., Japan. <sup>3</sup>Grad. Sch. of Dent., Tohoku Univ., Japan. <sup>4</sup>IRIDS, Tohoku Univ., Japan. <sup>5</sup>Fac. of Sci. and Eng., Iwate Univ., Japan. <sup>6</sup>Grad. Sch. of Agric. Sci., Tohoku Univ., Japan. <sup>7</sup>IEHE, Tohoku Univ., Japan. <sup>8</sup>IDAC, Tohoku Univ., Japan.)

Sr-90 and Cs-137 are typical fission nuclides. An attention has been paid to the determination of the nuclides in the environment after the Fukushima Nuclear Power Plant (FNPP) accident. We reported an incorporation of the nuclides into the teeth of cattle. The metabolism of the teeth is slower than other organ. Once incorporated, Sr-90 and Cs-137 remains in the teeth until the teeth falls out or is extracted. The nuclides in the teeth would reflect contamination of the environment. An aim of the current study is the estimation of Sr-90 and Cs-137 contamination in habitat of cattle by measurement of radioactive concentration in teeth of cattle. We selected cattle in residing the ex-evacuation zone of the FNPP accident. The plants and soils were collected in the residence. We determined Sr-90, Cs-137, stable Sr and Cs in the samples. Sr-90 in the soil could be estimated from the specific activities of the teeth if the specific activities is constant in the environment. We showed a possible that Cs-137 in the environment could be estimated from Cs-137 in the teeth after finding a detail mechanism of Cs-137 incorporation to the teeth.

#### **1A06 Time course change in Sr-90 concentration in hard tissues of cattle suffered from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident**

NISHIYAMA, J.<sup>1</sup>, KOARAI, K.<sup>1</sup>, KINO, Y.<sup>1</sup>, SHIMIZU, Y.<sup>2</sup>, TAKAHASHI, A.<sup>3</sup>, SUZUKI, T.<sup>2,4</sup>, CHIBA, M.<sup>2</sup>, OSAKA, K.<sup>2,4</sup>, SASAKI, K.<sup>2</sup>, FUKUDA, T.<sup>5</sup>, ISOGAI, E.<sup>6</sup>, OKA, T.<sup>1,7</sup>, SEKINE, T.<sup>1,7</sup>, FUKUMOTO, M.<sup>8</sup>, SHINODA, H.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Dept. Chem., Tohoku Univ., Japan, <sup>2</sup>Grad. Sch. of Dent., Tohoku Univ., Japan, <sup>3</sup>Tohoku Univ. Hospital, Tohoku Univ., Japan, <sup>4</sup>IRIDS, Tohoku Univ., Japan, <sup>5</sup>Fac. of Sci. and Eng., Iwate Univ., Japan, <sup>6</sup>Grad. Sch. of Agric. Sci., Tohoku Univ., Japan, <sup>7</sup>IEHE, Tohoku Univ., Japan, <sup>8</sup>IDAC, Tohoku Univ., Japan.)

In order to evaluate exposed dose in cattle suffered from Fukushima Daiichi nuclear power plant (FNPP) accident, we estimate the time course change of Sr-90 incorporation to the cattle. We determined Sr-90 in the hard tissue of the cattle that was born after FNPP accident. Radioactivity of Sr-90 was measured with low background 2  $\pi$  gas-flow GM counter after chemical separation with nitric fuming acid. To normalize sampling site dependences, the concentration of radioactivity of the bone was divided by that of the tooth that incorporated Sr-90 during formation and retained it. (The formation of the teeth that we used

nearly finished 3 months after the birth.) We found the normalized concentration of radioactivity of the bone was increased.

#### **1A07 Depth-profiling of <sup>90</sup>Sr concentrations in soil at Kawamata Town, Fukushima Prefecture**

SUZUKI, A.<sup>1</sup>, ZHANG, Z.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>1</sup>, YAMAGUCHI, Y.<sup>2</sup>, TAKAHASHI, J.<sup>3</sup>, ONDA, Y.<sup>3</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Univ., <sup>2</sup>RI center, Osaka Univ., <sup>3</sup>Tsukuba Univ.)

Various radionuclides have been released into the atmosphere by the accident of Fukushima daiichi nuclear power plant. Among them, <sup>90</sup>Sr and radioactive cesium (<sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs) are the most significant radionuclides for long-term exposure effect and environmental fate, due to their long-lives. The activities of radioactive cesium can easily be determined from  $\gamma$ -ray spectroscopy by Ge semiconductor detectors. On the other hand, pure  $\beta$ -ray emitting nuclide, <sup>90</sup>Sr should be identified after chemical isolation. It is reason that the studies related to <sup>90</sup>Sr were very limited compare to these of radioactive cesium. In this study, we aim to investigate chemical behaviors of <sup>90</sup>Sr in soil to predict the future of the environment fate. For <sup>90</sup>Sr identification, we adopted a classical precipitation method for <sup>90</sup>Sr separation and used Cherenkov light counting for detection. We determined depth-profiling of <sup>90</sup>Sr in the soil at Kawamata town, Fukushima Prefecture and found difference in activity ratios between <sup>90</sup>Sr and radioactive cesium by the sample depth. That means the chemical properties in the soil are difference by each element. The detail will be discussed in the presentation.

#### **1A08 <sup>129</sup>I/<sup>131</sup>I ratios for airborne particulate matters collected just after the nuclear power accident in Fukushima**

EBIHARA, M.<sup>1</sup>, OURA, Y.<sup>1</sup>, SHIRAI, N.<sup>1</sup>, TSURUTA, H.<sup>2</sup>, MORIGUCHI, Y.<sup>4</sup>, NAGAKAWA, Y.<sup>1</sup>, SAKURAI, N.<sup>6</sup>, HABA, H.<sup>7</sup>, MATSUZAKI, H.<sup>8</sup>, YAMAGATA, T.<sup>1</sup>, NAGAI, H.<sup>1</sup>, SEKIMOTO, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Eng., Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>RESTEC, <sup>3</sup>Grad. Sch. of Eng., Univ. of Tokyo, <sup>4</sup>Tokyo Metropolitan Indust. Tech. Re. Insti., <sup>5</sup>Nishina Cen., RIKEN, <sup>6</sup>MALT, Univ. of Tokyo, <sup>7</sup>Coll. of Humanics and Sci., Nihon Univ., <sup>8</sup>Research Reactor Institute, Kyoto Univ.)

We have determined <sup>129</sup>I/<sup>131</sup>I ratios of the airborne particulate matters (APM) collected just after the nuclear power accident triggered by the big earthquake and tsunami in 2011. <sup>129</sup>I in APM was separated by wet chemical separation and its concentration was determined by AMS. Obtained ratio of <sup>129</sup>I/<sup>131</sup>I is consistent with a value derived from soil samples and further with a calculated values for the nuclear fuel used.

### 1A09 Autoradiographs and $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ ratios for atmospheric particulate matters collected just after TEPCO FDNPP accident

OURA Y.<sup>1</sup>, EBIHARA M.<sup>1</sup>, SHIRAI N.<sup>1</sup>, TSURUTA H.<sup>2</sup>, NAKAJIMA T.<sup>3</sup>, MORIGUCHI Y.<sup>4</sup>, OHARA T.<sup>5</sup>, NAGAKAWA Y.<sup>6</sup>, SAKURAI N.<sup>6</sup>, HABA H.<sup>7</sup>, MATSUZAKI H.<sup>8</sup>

<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Engi., Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>RESTEC, <sup>3</sup>JAXA, <sup>4</sup>Grad. Sch. of Engi., Univ. of Tokyo, <sup>5</sup>NIES, <sup>6</sup>Tokyo Metropolitan Indust. Tech. Re. Insti., <sup>7</sup>Nishina Cen., RIKEN, <sup>8</sup>Univ. Muse., Univ. of Tokyo)

We are trying to estimate atmospheric  $^{131}\text{I}$  concentration just after the TEPCO FDNPP accident by determining  $^{129}\text{I}$  in suspending particulate matters (SPM) collected at that time. Because the SPM samples are valuable, a part of sample is subjected to determination of  $^{129}\text{I}$ . Therefore it is essential that radionuclides are distributed uniformly in a SPM sample. Uniformities of distribution of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{129}\text{I}$  in SPM collected on large filters were examined by analysis of several parts of a sample.  $^{137}\text{Cs}$  was found to be distributed inhomogeneously for SPM samples in which particulates with stronger activity were observed by autoradiography. On the contrary  $^{129}\text{I}$  distributions were generally uniform for all samples. Radioactivity ratio of  $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  was varied within a SPM sample in some samples. Autoradiography is essential before cutting SPM samples not to get a part of sample with concentrated radioactivity.

### 1A10 Relationship of radioactive materials with radioactive particles at the northwest area of the Fukushima Nuclear Plant

SATOU, Y.<sup>1</sup>, SUEKI, K.<sup>2</sup>, SASA, K.<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>JAEA., <sup>2</sup>Univ. Tsukuba.)

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (F1NPP) accident has been discharged radioactive particles to the environment. We analyzed presence of radioactive particles in northwest area from the F1NPP in previous study. However, it was not performed analysis based on emission event of radioactive materials. This study analyzed previous data and categorized origin of radioactive particles. The northwest area of F1NPP was contaminated with radioactive materials by at least three different events. Radioactive particles were discovered from the area contaminated with radionuclides from Unit 1 and Unit 2. The particles from Unit 3 could not be discovered from this zone. Radioactive particles from Unit 1 were released in hydrogen explosion on March 12. Particle diameter is much larger than from Unit 2. On the other hand, the particles from Unit 2 are smaller than 10  $\mu\text{m}$ . Deposition of radionuclides from Unit 2 was a wet process with rainfall. It seems that a large size particle could not be transferred to outside of power plant site.

### 1A11 Study of depositing and eluting behaviors of radioactive materials discharged by severe nuclear accident to forest vegetation

ZHANG, Z.<sup>1</sup>, NINOMIYA K.<sup>1</sup>, YOSHIMURA T.<sup>2</sup>, HURUKAWA J.<sup>3</sup>, SHINOHARA A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>RI center, Osaka Univ., <sup>3</sup>Dep. of Life and Env. Sci., Univ. of Tsukuba)

A large amount of radioactive material was discharged by the accident of FDNPP. A long half-life radionuclide,  $^{137}\text{Cs}$  was transported through the atmosphere mainly as the aerosol form and deposited to the forests in Fukushima prefecture. After the deposition of  $^{137}\text{Cs}$ , the foliar uptake process would occur. For evaluating behaviors of  $^{137}\text{Cs}$  in forest system, fundamental data of dry and wet deposition and uptake process of aerosol was desired. However, the knowledge on dry deposition process with aerosol form was very limited.

We performed simulating experiment for dry deposition process in case of the accident of FDNPP. In this study, we developed aerosol generation system for simulating the dry deposition and the foliar uptake behaviors of aerosol in the different chemical constitutions. Leaves of *Cinnamomum camphora* were used for the experiments. For comparing dry and wet deposition, aerosols and droplet containing  $^{137}\text{Cs}$  were mounted on upper side of leaf, by the aerosol generation system and a syringe. The leaves were washed by purified water, and the amount of absorbed  $^{137}\text{Cs}$  in leaf was measured by germanium detectors. In the presentation, we will discuss about  $^{137}\text{Cs}$  removing rate of time, temperature, humidity dependence and chemical compound dependences

### 1B01 Precise measurement of the half-life of $^{48}\text{Cr}$

KIKUNAGA, H.<sup>1</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>2</sup>, OHTSUKI, T.<sup>2</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Res. Center for Elec. Photon Sci., Tohoku Univ., <sup>2</sup>Res. Reactor Inst., Kyoto Univ., <sup>3</sup>Nishina Center, RIKEN)

The half-life of some nuclides which decay via the electron capture process is changed with changing environmental factors such as its chemical states. A famous example of this type of nuclides is Be-7. Because there is possibility that the variation measurement of the decay constants with radiation detection is able to use a chemical tracer, we have tried to find a new "half-life variation" nuclide. In this study, the half-lives of Cr-48 under different chemical forms were precisely measured to investigate the effects of chemical states on the half-lives of nuclides. Cr isotopes, including Cr-48, were produced in the  $\text{Ti}(\alpha, \text{xn})$  reactions. After chemical purification, Cr isotopes were prepared to two chemical forms,  $[\text{CrCl}_3(\text{H}_2\text{O})_3]$  and  $[\text{CrO}_4]^{2-}$ , and then subjected to  $\gamma$ -spectrometry. As a result, the difference of the half-lives between the two chemical forms is obtained on the order of magnitude of 0.1%.

### 1B02 Search for the photons from the low-lying isomer $^{229\text{m}}\text{Th}$ collected as recoil products

YASUDA, Y.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, SHIGEKAWA, Y.<sup>1</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>2</sup>, OHTSUKI, T.<sup>2</sup>, MITSUGASHIRA, T.<sup>3</sup>

SHINOHARA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>Res. Reactor Inst., Kyoto Univ., <sup>3</sup>The Oarai-branch, Inst. Materials Res., Tohoku Univ.)

Th-229m has the extremely low excitation energy,  $7.8 \pm 0.5$  eV, which corresponds to the vacuum ultraviolet photon. Hence, it is expected that the decay mode of <sup>229m</sup>Th might change depending on the chemical condition: the internal conversion (IC) or gamma-ray transition. Indeed, the change of the number of the IC electrons according to the state of the valence electrons of <sup>229m</sup>Th is reported. The change of the decay mode will be clarified if we could achieve the detection of the photons from <sup>229m</sup>Th. Recently, the photon detection for <sup>229m</sup>Th in the MgF<sub>2</sub> glass was reported. It is, however, indicated that these photons derived from the Cherenkov radiation induced by the daughter nuclides.

In the present study, the <sup>233</sup>U electrodeposited sample and the collecting apparatus for recoil products were prepared. Th-229m nuclides were collected as recoil products in the MgF<sub>2</sub> glass or on the surface of the metal plate, and the 4-10 eV photon detection was performed for these samples. To study the photons derived from <sup>232</sup>U series contained as the impurity of <sup>233</sup>U, the <sup>228</sup>Th precipitated sample was also used. From the results obtained, we found that the decaying photons emitted from the MgF<sub>2</sub> glass samples would originate from the daughter nuclei of <sup>229</sup>Th or <sup>228</sup>Th. In the presentation, the results of the photon detection for other <sup>229m</sup>Th samples will be also reported.

### 1B03 Cross Sections for Cosmochemically Important Elements bombarded with 80 MeV Monoenergetic Neutrons

NANBU, A.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>2</sup>, SHIGEKAWA, Y.<sup>1</sup>, TAKAHASHI, N.<sup>1</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>, SEKIMOTO, S.<sup>1</sup>, YASHIMA, H.<sup>1</sup>, SHIMA, T.<sup>1</sup>, HAGIWARA, M.<sup>1</sup>, IWAMOTO, Y.<sup>1</sup>, SHIBATA, S.<sup>1</sup>, M., W., CAFFEE<sup>1</sup>, NISHIIZUMI, K.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Science, Osaka University, <sup>2</sup>Kyoto University Research Reactor Institute, <sup>3</sup>Research Center for Nuclear Physics, Osaka University, <sup>4</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>5</sup>High Energy Accelerator Research Organization, <sup>6</sup>RIKEN Nishina Center, <sup>7</sup>Department of Physics, Purdue University, <sup>8</sup>Space Sciences Laboratory, University of California)

Isotopic abundance ratios provide us important information in the fields of Earth and planetary sciences. The ratios are slightly changed by the nuclear reactions by high energy cosmic rays, and secondary neutrons provide the most significant contribution. To advance these studies, precise knowledge of the nuclear reactions by high-energy neutrons are needed. However, experimental data for high-energy neutrons above 50 MeV are very limited due to experimental difficulty.

In this study, we performed monoenergetic neutron irradiation experiments for cosmochemically important 12 elements (Al, Mg, Ni, etc.) at the energy of 80 MeV. The

experiment was achieved by two neutron irradiation experiments with different angles to the incident proton direction. We identified gamma-ray activities and determined the nuclear cross sections.

There are some differences in nuclear reactions by neutron and proton. Comparing the nuclear cross sections for Co isotopes from Ni target, it is revealed that production of neutron-rich nuclide (<sup>60</sup>Co) is predominant in neutron irradiation experiment while neutron-deficient nuclide (<sup>55</sup>Co) is superior in proton irradiation experiment. It is also turned out that nuclear cross section will exponentially decrease with the target mass. Details will be discussed in the presentation.

### 1B04 Production of purified <sup>67</sup>Cu for fee-based distribution using the <sup>70</sup>Zn(*d,an*)<sup>67</sup>Cu reaction

YANO, S.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>1</sup>, SHIBATA, S.<sup>1</sup>, KOMORI, Y.<sup>1</sup>, TAKAHASHI, K.<sup>1</sup>, WATANABE, K.<sup>1</sup>, WAKITANI, Y.<sup>2</sup>, YAMADA, T.<sup>2</sup>, MATSUMOTO, M.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>RIKEN Nishina Center, <sup>2</sup>Japan Radioisotope Association)

Copper-67 ( $T_{1/2} = 61.83$  h,  $I_{\beta^-} = 100\%$ ) is one of the promising radioisotopes for radiotherapy and radiodiagnosis. Since 2015, we have been developing a production technology of a purified <sup>67</sup>Cu product for a fee-based distribution to general public in Japan.

Copper-67 was produced in the <sup>70</sup>Zn(*d,an*)<sup>67</sup>Cu reaction by irradiating a <sup>70</sup>ZnO target for 10 h with a 24-MeV and 4.0- $\mu$ A deuteron beam from the RIKEN AVF cyclotron (AVF). After the irradiation, <sup>67</sup>Cu was purified with the reversed-phase extraction chromatography and the anion-exchange chromatography using the Eichrom Cu resin and the Dowex IX8 resin, respectively. We evaluated radioactivity, radionuclidic purity, specific radioactivity, and chemical impurity of the product via  $\gamma$ -ray spectrometry and ICP-MS analysis. We also developed a new target chamber and a beam wobbler to increase a production yield of <sup>67</sup>Cu with a higher-current deuteron beam. With this system, we conducted a test irradiation of a metallic <sup>nat</sup>Zn target with a 10- $\mu$ A deuteron beam.

In this work, 135 MBq of the purified <sup>67</sup>Cu was obtained, and its radionuclidic purity was found to be >99.9% at 60 h after the end of irradiation. In the symposium, the specific radioactivity and the chemical impurity will be also reported. We confirmed that <sup>67</sup>Cu can be produced with the new irradiation system up to 10  $\mu$ A.

### 1B05 Medical Radioisotope Production with Accelerator Neutrons by 50 MeV Deuterons

TSUKADA, K.<sup>1</sup>, HASHIMOTO, K.<sup>2</sup>, HATSUKAWA, Y.<sup>2</sup>, KAWABATA, M.<sup>2,3</sup>, SAEKI, H.<sup>2,3</sup>, Minato, F.<sup>1</sup>, IWAMOTO, N.<sup>1</sup>, NAGAI, Y.<sup>2</sup>, SUGO, Y.<sup>2</sup>, WATANABE, S.<sup>2</sup> and ISHIOKA, N.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>QST, <sup>3</sup>Chiyoda Technol Corporation)

A new system has been proposed for the generation of medical radioisotopes with accelerator neutrons by

deuterons, especially the production of  $^{99}\text{Mo}$  ( $T_{1/2} = 66$  h),  $^{90}\text{Y}$  ( $T_{1/2} = 64$  h),  $^{67}\text{Cu}$  ( $T_{1/2} = 61.8$  h), and  $^{64}\text{Cu}$  ( $T_{1/2} = 12.7$  h). And we had successfully demonstrated the production of the radioisotopes by the fast neutrons by the C(d,n) using 40 MeV deuterons provided from the QST TIARA cyclotron. One of important efforts for our study is to increase the production rate of the radioisotopes for the medical use. Recently we have successfully increased the rate by replacing the reaction system which is Be(d,n) reaction using 50 MeV deuterons. In this result, the production rate of  $^{67}\text{Cu}$  was 3.2 times larger than that of our former result obtained by the C(d,n) using 40 MeV deuterons. Furthermore, yields of impurity radionuclides were much smaller than that of  $^{67}\text{Cu}$  compared with other proposed reaction systems.

#### 1B06 Study on hot fusion reaction of $^{48}\text{Ca}+^{238}\text{U}\rightarrow^{286}\text{Cn}^*$ using GARIS-II

KAJI, D.<sup>1</sup>, MORIMOTO, K.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>1</sup>, WAKABAYASHI, Y.<sup>1</sup>, TAKEYAMA, M.<sup>1,2</sup>, YAMAKI, S.<sup>1,3</sup>, KOMORI, Y.<sup>1</sup>, YANO, S.<sup>1</sup>, GOTO, S.<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Nishina Center, RIKEN, <sup>2</sup>Grad. Sch. of Sci. and Eng., Yamagata Univ., <sup>3</sup>Grad. Sch. of Sci. and Eng., Saitama Univ., <sup>4</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Niigata Univ.)

The production of  $^{283}\text{Cn}$  in the hot fusion reaction of  $^{238}\text{U}(^{48}\text{Ca},3n)$  was confirmed using a new gas-filled recoil ion separator GARIS-II.

At the excitation energies of compound nucleus  $E^*=34.5$  MeV, two decay chains were observed resulting in the cross section of  $\sigma_{3n}=2.0^{+2.7}_{-1.3}$  pb by accumulating the beam dose of  $2.2 \times 10^{18}$  during a net irradiation time of 4.5 days. Decay characteristics of those events well agree with the precedent studies by both Dubna-Livermore collaboration and GSI SHIP collaboration. Therefore, referring to the assignments of the precedent studies, we could state that two of the events are attributed to the decays of  $^{283}\text{Cn}$  (3n evaporation channel). The chains consist of 9.45 MeV  $\alpha$ -decay with a half-life of  $T_{1/2}=6.9^{+12.6}_{-2.7}$  s leading from  $^{283}\text{Cn}$  to  $^{279}\text{Ds}$ , which terminated by spontaneous fission (SF) with  $T_{1/2}=0.11^{+0.53}_{-0.05}$  s.

In this report, we will give these details including performance of background level and transmission of GARIS for hot fusion reaction.

#### 1B07 Adsorption Behavior of Lawrencium (Lr) on a Tantalum Surface

KANEYA, Y.<sup>1,2</sup>, SATO, T. K.<sup>2</sup>, ASAI, M.<sup>2</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>2</sup>, MITSUKAI, A.<sup>1,2</sup>, OSA, A.<sup>2</sup>, MAKII, H.<sup>2</sup>, NISHIO, K.<sup>2</sup>, HIROSE, K.<sup>2</sup>, NAGAME, Y.<sup>1,2</sup>, TOMITSUKA, T.<sup>3</sup>, SHIRAI, K.<sup>3</sup>, SATO, D.<sup>3</sup>, OOE, K.<sup>3</sup>, GOTO, S.<sup>3</sup>, MIYASHITA, S.<sup>4</sup>, SINGU, K.<sup>4</sup>, NAGUWA, R.<sup>4</sup>, SHIBATA, M.<sup>5</sup>, KAMADA, H.<sup>5</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>6</sup>, SIGEKAWA, Y.<sup>6</sup>, SAKAMA, M.<sup>7</sup>, DÜLLMANN, CH. E.<sup>8,9,10</sup>, EBERHARDT, K.<sup>8,9</sup>, GRUND, J.<sup>8</sup>, KRATZ, J. V.<sup>8</sup>, RUNKE, J.<sup>8</sup>, THÖRLER-POSPIECH, P.<sup>8,9</sup>, TRAUTMANN, N.<sup>8</sup>, PERSHINA, V.<sup>10</sup>, SCHÄDEL, M.<sup>10</sup>, YAKUSHEV,

A.<sup>9,10</sup>, EICHLER, R.<sup>11,12</sup>, STEINEGGER, P.<sup>13</sup>.

(<sup>1</sup>Ibaraki Univ., <sup>2</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>3</sup>Niigata Univ., <sup>4</sup>Hiroshima Univ., <sup>5</sup>Nagoya Univ., <sup>6</sup>Osaka Univ., <sup>7</sup>Tokushima Univ., <sup>8</sup>Univ. Mainz, <sup>9</sup>HIM, <sup>10</sup>GSI, <sup>11</sup>PSI, <sup>12</sup>Univ. Bern, <sup>13</sup>FLNR)

The ground state electronic configuration of lawrencium (Lr,  $Z = 103$ ) is predicted to be  $[\text{Rn}]5f^{14}7s^27p_{1/2}$ , which is different from that of the lanthanide homolog Lu  $[\text{Xe}]4f^{14}6s^25d$  due to strong relativistic effects. According to semi-empirical considerations, volatility of Lr is expected to be higher than that of Lu. We have investigated adsorption behavior of  $^{256}\text{Lr}$ , which was produced in the reaction of  $^{249}\text{Cf}(^{11}\text{B}, 4n)$ , on a tantalum (Ta) metal surface using a surface ion-source installed into the isotope separator on-line (ISOL) at the JAEA tandem accelerator facility. The observed adsorption behavior of  $^{256}\text{Lr}$  was similar to those of Tb and Lu which have relatively higher adsorption enthalpy on Ta surface. It implies that Lr would have low volatility like such as Lu and Tb.

#### 1B08 The first ionization potentials of heavy actinide elements

SATO, T. K.<sup>1</sup>, ASAI, M.<sup>1</sup>, KANEYA, Y.<sup>1,2</sup>, TSUKADA, K.<sup>1</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>1</sup>, MITSUKAI, A.<sup>1,2</sup>, TAKEDA, S.<sup>3</sup>, SAKAMA, M.<sup>3</sup>, SATO, D.<sup>4</sup>, OOE, K.<sup>4</sup>, SHIGEKAWA, Y.<sup>5</sup>, MAKII, H.<sup>1</sup>, OSA, A.<sup>1</sup>, ICHIKAWA, S.<sup>6</sup>, NAGAME, Y.<sup>1</sup>, BORSCHEVSKY, A.<sup>7</sup>, SCHÄDEL, M.<sup>1</sup>, DÜLLMANN, CH. E.<sup>8,9</sup>, KRATZ, J. V.<sup>9</sup>, STORA, T.<sup>10</sup>  
(JAEA<sup>1</sup>, Ibaraki Univ.<sup>2</sup>, Tokushima Univ.<sup>3</sup>, Niigata Univ.<sup>4</sup>, Osaka Univ.<sup>5</sup>, RIKEN<sup>6</sup>, Univ. of Groningen<sup>7</sup>, GSI<sup>8</sup>, Univ. Mainz<sup>9</sup>, CERN<sup>10</sup>)

The first ionization potential ( $IP_1$ ) is promising information for a better understanding of relativistic effects in heavy elements with atomic numbers  $Z > 100$ . Their  $IP_1$  values, however, have not been determined due to their short half-lives and their low production rates. In order to determine  $IP_1$  values of the heavy elements experimentally, we have developed a novel measurement method based on a surface ionization technique. In present work, we have successfully determined  $IP_1$  values of Fm ( $Z = 100$ ), Md ( $Z = 101$ ), and No ( $Z = 102$ ) by using the surface ionization method. Short lived  $^{249}\text{Fm}$ ,  $^{251}\text{Md}$ , and  $^{257}\text{No}$ , produced in the  $^{243}\text{Am}(^{11}\text{B}, 5n)$ ,  $^{243}\text{Am}(^{12}\text{C}, 4n)$  and  $^{48}\text{Cm}(^{13}\text{C}, 4n)$  reactions, were used for the experiments, respectively. The measured  $IP_1$  values are in good agreement with those estimated by semi-empirically and theoretically.

#### 1B09 Liquid-liquid extraction of Zr and Hf in Aliquat 336/HCl system for the extraction experiment of element 104, Rf

KONDO, N.<sup>1</sup>, OUCHI, K.<sup>1</sup>, NAGASE, M.<sup>2</sup>, SHIGEKAWA, Y.<sup>1</sup>, YASUDA, Y.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>, KUDOU, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>Fac. of Sci., Osaka Univ., <sup>3</sup>RIKEN Nishina center)

Element 104, Rutherfordium (Rf), is synthesized in heavy-ion-induced nuclear reactions. It is very difficult to investigate the chemical properties of Rf because of the low production rates and short half-lives of the Rf nuclides. In our previous studies, the equilibrium of solid-liquid extraction reactions of Rf in Aliquat 336/HCl system was observed using automated solid-liquid extraction apparatus. The distribution coefficient of Rf was acquired, and the value was different from those of Zr and Hf, homologues of Rf. In this study, liquid-liquid extraction experiments of Zr and Hf in Aliquat 336/HCl system was executed to investigate the chloride complexation of Rf in more detail. The dependence of the distribution ratios of Zr and Hf on the concentration of the n extractant and the variation for different diluent were investigated. Consequently, the change of the net charge of the chloride complexes by experiment condition was observed. In addition, the flow-type liquid-liquid extraction apparatus, Flow Injection Analysis (FIA), suited for the experiments of superheavy elements was developed, and the extraction using the apparatus was performed in online experiment using the accelerator in Research Center for Nuclear Physics, Osaka University (RCNP) for the model experiment of Rf. The distribution ratios acquired in this experiment using FIA in 9-11 M HCl were in good agreement with those acquired by batch method, suggesting applicability of the present experiment to Rf.

#### **1B10 Production of Re isotopes using the GARIS gas-jet system and on-line solvent extraction of Re with a flow solvent extractor –toward the aqueous chemistry of element 107, bohrium–**

KOMORI, Y.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>2</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>3</sup>, MITSUKAI, A.<sup>3</sup>, SATO, D.<sup>2</sup>, MOTOYAMA, R.<sup>2</sup>, YANO, S.<sup>1</sup>, WATANABE, K.<sup>1</sup>, SATO, N.<sup>1</sup>, YAMAKI, S.<sup>1</sup>, TANAKA, T.<sup>1</sup>, KAJI, D.<sup>1</sup>, MORIMOTO, K.<sup>1</sup>, SAKAGUCHI, A.<sup>4</sup>, INAGAKI, J.<sup>4</sup>, KIKUNAGA, H.<sup>5</sup>, SHIGEKAWA, Y.<sup>6</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>6</sup>, OMTVEDT, J. P.<sup>7</sup>

(<sup>1</sup>Nishina Center, RIKEN, <sup>2</sup>Grad. School of Sci. and Technol., Niigata Univ., <sup>3</sup>JAEA, <sup>4</sup>Univ. Tsukuba, <sup>5</sup>ELPH, Tohoku Univ., <sup>6</sup>Grad. School of Sci., Osaka Univ., <sup>7</sup>Univ. Oslo)

Toward the aqueous chemistry of the heaviest superheavy elements such as element 106, Sg and element 107, Bh, we have been developing a rapid solvent extraction apparatus coupled to the RIKEN GARIS gas-jet transport system. In this work, we first investigated production conditions of <sup>174</sup>Re ( $T_{1/2} = 2.4$  min) in the <sup>nat</sup>Gd(<sup>23</sup>Na, $xn$ ) reaction, as a lighter homolog of Bh, by optimizing setting parameters of the GARIS gas-jet system. Then, we performed on-line solvent extraction of <sup>174</sup>Re by coupling a continuous dissolution apparatus (Membrane DeGasser: MDG) and a Flow Solvent Extractor (FSE) to the GARIS gas-jet transport system. Distribution ratios ( $D$ ) of <sup>174</sup>Re in the extraction system of

HNO<sub>3</sub> – tri-n-octylamine (TOA) in toluene were studied as functions of the capillary length of the FSE and TOA concentration, [TOA]. The radioactivity of <sup>174</sup>Re at the chemistry laboratory was optimized to  $13 \pm 1$  kBq/ $\mu$ A ( $\mu$ A = particle  $\mu$ A) after an aerosol collection for 60 s. Extraction equilibrium of <sup>174</sup>Re into 0.01 M TOA in toluene from 0.5 M HNO<sub>3</sub> was attained with the 0.50-mm i.d.  $\times$  30-cm capillary. In the symposium, we will also present the variation of  $D$  as a function of [TOA].

#### **1B11 Isothermal gas-chromatography of chloride of Rf homologues Zr and Hf**

SHIRAI, K.<sup>1</sup>, OSHIMI, Y.<sup>1</sup>, GOTO, S.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>1</sup>, KUDO, H.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Niigata Univ., <sup>2</sup>Fac. of Sci., Niigata Univ.)

To clarify chemical property of Rf, gas chromatographic behavior of chlorides of group-4 elements has been studied. However, observed adsorption enthalpies even for homologues, Zr and Hf, were quite varied. We have studied the gas chromatographic behavior of ZrCl<sub>4</sub> and HfCl<sub>4</sub> at off-line in more detail. In this study, a new technique to determine accurately the adsorption enthalpy of ZrCl<sub>4</sub> and HfCl<sub>4</sub> are developed, and the interaction between the volatile species and the column surface at tracer-scale is considered. Radiotracers of <sup>88</sup>Zr and <sup>175</sup>Hf were reacted with CCl<sub>4</sub> at 600 °C. The formed chloride was collected on carbon filter once, and then was evaporated at 400 °C. The volatile species passed through an isothermal column at various temperatures, and their cumulative yields were obtained with  $\gamma$ -ray measurement. Analyzing of the average retention time for various temperatures, we determine relatively accurate adsorption enthalpy for ZrCl<sub>4</sub> and HfCl<sub>4</sub> at tracer-scale. In the symposium, the difference of adsorption enthalpy between macro- and tracer-scale will be presented in more detail.

#### **2A01 Production and Utilization of Astatine and Iodine Radioisotopes Using <sup>7</sup>Li Ion Beams at the JAEA Tandem Accelerator**

NIISHINAKA, I.<sup>1</sup>, WASHIYAMA, K.<sup>2</sup>, MAEDA, E.<sup>3</sup>, TANIGUCHI, T.<sup>3</sup>, YOKOYAMA, A.<sup>4</sup>, HASHIMOTO, K.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>QuBS, QST, <sup>2</sup>Sch. of Health Sci., College of Med., Pharma. and Health Sci., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Kanazawa Univ. (JAEA), <sup>4</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ.)

In general, the <sup>211</sup>At nuclide, a prospective candidate for utilization in targeted alpha radiotherapy, is produced through the <sup>209</sup>Bi(<sup>4</sup>He,2n)<sup>211</sup>At reaction. In contrast, our project is focusing on the production in the <sup>209</sup>Bi(<sup>7</sup>Li,5n)<sup>211</sup>Rn reaction. This enables us to supply <sup>211</sup>At in a <sup>211</sup>Rn/<sup>211</sup>At generator system. The daughter <sup>211</sup>At of 7.2 h in half-life is extracted from the parent <sup>211</sup>Rn of 14 h, expanding time-frame for transportation and use of <sup>211</sup>At.

In the project, astatine and iodine radioisotopes have been produced in the <sup>nat</sup>Pb(<sup>7</sup>Li, $xn$ )<sup>nat+7-x</sup>At and

$^{nat}\text{Sn}(^7\text{Li}, xn)^{nat+7-x}\text{I}$  reactions, respectively, in order to study chemical behavior of no-carrier-added astatine and iodine. We have developed a chemical procedure based on dry-distillation which easily separates astatine and iodine isotopes from an irradiated lead or tin target with high radionuclidic and chemical purity.

Chemical properties of astatine have been studied by comparing that of iodine to develop the  $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$  generator system.

### 2A02 Production of At-211 at RIKEN

SATO, N.<sup>1</sup>, YANO, S.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>1</sup>, KOMORI, Y.<sup>1</sup>, SHIBATA, S.<sup>1</sup>, WATANABE, K.<sup>1</sup>, KAJI, D.<sup>1</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>1,2,3</sup>, TAKAHASHI, K.<sup>1</sup>, MATSUMOTO, M.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Nishina Center, RIKEN, <sup>2</sup>JAEA, <sup>3</sup>Osaka Univ., <sup>4</sup>Japan Radioisotope Association)

Astatine-211 ( $^{211}\text{At}$ ,  $T_{1/2} = 7.214$  h) is one of the promising radionuclides for  $\alpha$ -particle therapy of cancers. In order to establish an  $^{211}\text{At}$  distribution platform in Japan, we started to develop a production technology of a purified  $^{211}\text{At}$  at RIKEN.

In this study,  $^{211}\text{At}$  was produced via the  $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$  reaction by irradiating a metallic  $^{209}\text{Bi}$  target with a 29-MeV  $\alpha$  beam delivered from the RIKEN AVF cyclotron. After the irradiation,  $^{211}\text{At}$  was purified by a dry distillation method. The activated  $^{209}\text{Bi}$  target was placed in a quartz tube (34 mm i.d.  $\times$  20 cm length) which was heated with an electric furnace for 0.5 h at 850 °C with a He gas flow of 20 mL/min.  $^{211}\text{At}$  sublimated from the target was extracted to the cold trap of a capillary loop (2 mm i.d. or 4 mm i.d.  $\times$  2 m length) which was chilled with liquid nitrogen. Subsequently,  $^{211}\text{At}$  was eluted from the cold trap with conc. HCl at a room temperature.

At the 28.6-MeV beam energy on the target, the integral yield of  $^{211}\text{At}$  was constant,  $8.4 \pm 1.3$  GBq/C, for a beam current up to 10  $\mu\text{A}$ . The chemical yields of  $^{211}\text{At}$  were about 50% with the 2 mm i.d. tube, irrespective of the materials (PFA, PTFE, and PEEK).

### 2A03 Production of $^{95m}\text{Tc}$ and $^{96}\text{Tc}$ for Compton Camera imaging

HATSUKAWA, Y.<sup>1</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, HASHIMOTO, K.<sup>1</sup>, SATO, T.<sup>2</sup>, ASAI, M.<sup>2</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>2</sup>, NAGAI, Y.<sup>1</sup>, TANIMORI, T.<sup>3</sup>, SONODA, S.<sup>3</sup>, KABUKI, S.<sup>4</sup>, KIMURA, H.<sup>5</sup>, TAKADA, A.<sup>3</sup>, MIZUMOTO, T.<sup>3</sup>, HAYAKAWA, T.<sup>1</sup> (<sup>1</sup>QST, <sup>2</sup>JAEA, <sup>3</sup>Kyoto Univ., <sup>4</sup>Tokai Univ., <sup>5</sup>Kyoto Pharm. Univ.)

Technetium-99m is used in radioactive medical diagnostic tests, for example as a radioactive tracer that a nuclear medicine gamma camera can detect in the human body. It is well suited to the role because it emits readily detectable 141 keV gamma-rays, and its half-life is 6.01 h (meaning that about 94 % of it decays to  $^{99}\text{Tc}$  in 24 h).

In recent years, the Compton camera which is originally developed for the astrophysical studies was applied for medical diagnostic usage. For the Compton camera

imaging require technetium isotopes emitting higher energy gamma-rays. Two Tc isotopes,  $^{95m}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 60$  d;  $E_{\gamma} = 204, 582$  and  $835$  keV) and  $^{96}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 4.28$  d,  $E_{\gamma} = 778$  and  $812$  keV) are candidates for Compton camera imaging.

In this study, Technetium-95m was produced by the  $^{nat}\text{Mo}(p, n)^{95m}\text{Tc}$  reaction. Using  $^{95m}\text{Tc}$  obtained in this study, a  $^{95m}\text{Tc}$ -labelled compound was synthesized and quality of the compound was examined by thin layer chromatograph (TLC) autoradiography method. The feasibility study of Compton camera imaging using gamma rays emitted from  $^{95m}\text{Tc}$  was carried out.

### 2A04 Recovery and reuse of enriched $^{100}\text{MoO}_3$ sample for $^{99}\text{Mo}$ production by accelerator driven neutrons.

KAWABATA, M.<sup>1</sup>, MOTOISHI, S.<sup>1</sup>, SAEKI, H.<sup>1</sup>, TAKEUCHI, N.<sup>1</sup>, HASHIMOTO, K.<sup>2</sup>, HATSUKAWA, Y.<sup>2</sup> and NAGAI, Y.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Chiyoda Technol Corporation, <sup>2</sup>QST)

Production of  $^{99}\text{Mo}$  is proposed by the  $^{100}\text{Mo}(n, 2n)^{99}\text{Mo}$  reaction using accelerator driven neutrons provided by the  $^{nat}\text{C}(d, n)$  reaction with 40 MeV deuteron. Generated  $^{99}\text{Mo}$  has a lower specific activity than fission  $^{99}\text{Mo}$ , which is compensated by increasing the mass of  $^{100}\text{MoO}_3$ . Increasing the quantity of an enriched  $^{100}\text{MoO}_3$  inevitably affects the cost of production and so recovery and reuse of the  $\text{MoO}_3$  sample is essential. Recovery of  $^{100}\text{MoO}_3$  has been investigated by  $^{99m}\text{Tc}$  separation using thermo-chromatography. A small amount of  $^{100}\text{MoO}_3$  sublimates when heated above 830 °C, which recrystallizes when the temperature drops below 800 °C. This amount of  $^{100}\text{MoO}_3$  sample loss is not negligible however, and so the crystal was washed from the quartz tube and evaporated to dryness before being used for subsequent irradiation. The  $^{100}\text{MoO}_3$  remaining in the crucibles were re-melted by heating to mold the irradiation sample. Over 99% of  $^{100}\text{MoO}_3$  was successfully recovered and ready for the next irradiation. The sublimated and re-crystallized  $^{100}\text{MoO}_3$  can be placed on top of the sample crucible so that  $^{99m}\text{Tc}$  generated from  $^{99}\text{Mo}$  within the crystal can be released and separated from the bulk sample.

### 2A05 Evaluation of Astatine-211 and Iodine-123 Uptakes for Thyroid Gland and Stomach of Normal Rats by Gamma Camera

IKEDA, H.<sup>1</sup>, WATANABE, S.<sup>2</sup>, TAKAHASHI, N.<sup>3</sup>, SHINOHARA, A.<sup>4</sup>, SHIMOSEGAWA, E.<sup>1</sup>, HATAZAWA, J.<sup>1</sup>

(Graduate School of Medicine, Osaka University<sup>1</sup>, Morinomiya Clinic<sup>2</sup>, Kyoto Prefectural University of Medicine<sup>3</sup>, Graduate School of Science, Osaka University<sup>4</sup>)

[Introduction] Iodine-131 ( $^{131}\text{I}$ ) is one of the nuclides for therapy, the high uptakes to thyroid gland and stomach has been known very well. In recent days, some  $\alpha$ -emitting nuclides are paid attention. The  $\alpha$ -ray has a shorter range

and a higher linear energy transfer than  $\beta$ -ray. Little influence on normal organizations is prospective because the area of curative effect is small. In this work, we researched the uptake of astatine-211 ( $^{211}\text{At}$ ), one of  $\alpha$ -emitter for therapy, in thyroid gland and stomach of rats to use gamma camera. We used  $^{123}\text{I}$  for imaging to compare.

[Experiment] We produced  $^{211}\text{At}$  to irradiate  $\alpha$ -beam to Bi foil. After irradiation, we purified it from nitric acid solution by solvent extraction.  $^{123}\text{I}$  we used was bought from FUJIFILM RI Pharma Co., Ltd.. All the rats (Wistar, male, 12 weeks at injection) were fed low iodine diet for 2 weeks prior to the radionuclide admission. We performed intravenous injections or administrated orally. We scanned planer imaging for 10 minutes at 25 minutes, 3 hours, 6 hours, 12 hours, and 18 hours after injection. In the case of 24 and 48 hours, the scan time was 20 minutes. We compared  $^{211}\text{At}$  and  $^{123}\text{I}$  uptakes in thyroid gland and stomach by scanned data.

[Results] The time of peak of  $^{211}\text{At}$  and  $^{123}\text{I}$  uptakes to thyroid gland was no great difference in intravenous injection and orally administration,  $^{211}\text{At}$  uptake was about 10% of  $^{123}\text{I}$ . In the case of stomach, accumulation decreases from peak at the injection, except for the intravenous injection of  $^{211}\text{At}$ .  $^{211}\text{At}$  uptake was higher and longer time than  $^{123}\text{I}$ .

#### **2A06 Mathematical Model of Solid Cancers related to Hiroshima-Nagasaki A-Bomb Victims**

BABA, H.<sup>1</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Univ. Professor Emeritus, <sup>2</sup>Research Reactor Institute, Kyoto Univ.)

A mathematical model of solid cancers was devised by dividing the whole phenomenon into the formation of prodromal cells and transformation of the prodromal cells to cancers. Epidemiological data of 33 solid cancers observed among Hiroshima-Nagasaki A-bomb victims were analyzed by means of thus derived formula with fairly satisfactory reproduction.

The whole solid cancers were parted into two groups. One is characterized by a common incubation period of 6 years and a relatively mild time dependence, while members of the other group take various incubation periods ranging 15 to 27 years and their time dependence are quite drastic. If the present mathematical model reflects the real condition of solid cancers, we can draw quite valuable knowledge on the accurate incubation period and the means of prevention of solid cancers.

#### **2A07 Beta-ray spectrometry**

FURUTA, E.<sup>1</sup>, HOSHINO, T.<sup>1</sup>, KUSAMA, K.<sup>2</sup>, WATANABE, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Fac. of Sci., Ochanomizu Univ., <sup>2</sup>JRIA, <sup>3</sup>Saint Gobain)

Beta-ray spectrometry is difficult to identify a nuclide compared to those of alpha- and gamma-rays because of its continuous spectrum. Generally, unsealed beta-

emitters are measured with liquid scintillator using a liquid scintillation counter (LSC). Because spectra using a LSC show quenching to low energy region, the end-points of spectra never show their maximum energies. When a plastic scintillator was used for measurement of spectra as an alternative material of liquid scintillators, the spectra showed their maximum energies in case of the 4000 channel was divided into 2000 keV, electrically. However, the horizontal line of spectrum was only estimated, correct evaluation is necessary for qualitative analysis.

For measurement, a PMT; H-6231 and a plug in type MCA were used with plastic scintillator block and sheets or GSO sheets in a light shielded box. Both type of scintillator, which showed different shapes of spectra, showed linearity between the channel and the energy of internal conversion electrons ( $^{207}\text{Bi}$ ) and other beta-rays of standard source ( $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{204}\text{Tl}$ ) (Eckert & Ziegler) and unsealed beta nuclides ( $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{35}\text{S}$ ) (Moravek Biochemicals). The end points of spectra, which were subtracted their background, also showed enough linearity, when the gains were changed depending on their maximum energies. However, the PS and the GSO were showed that the resolution was not so good to divide all internal electron peaks.

#### **2A08 Development of a new detector using a liquid light guide**

NOMURA K.<sup>1</sup>, YUNOKI A.<sup>2</sup>, HOSODA K.<sup>3</sup>, MORITO Y.<sup>3</sup>, TERAJ T.<sup>4</sup>, TERASHIMA T.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>PIRC, Tokyo Univ. Sci., AIST.<sup>2</sup>, U-VIX Co. <sup>3</sup>, Univ. Tokyo<sup>4</sup>)

A new gamma-ray detector was developed using a light guide including liquid scintillator. The detector is so flexible, and can be used as a position sensitive radiation monitor for a narrow space such as drain tubes. A detector using glass fiber or plastic fiber has been developed as a position sensitive radiation monitor, but the structure is complex. The liquid scintillation light guide (LSLG) is simple and enables to make the diameter large easily. In this report, the fluorescent property of LSLG detectors is presented. Using LSLG detectors with 5mm and 10mm in diameter, the pulse height spectra were measured at different positions on the tube, using a point source of Cs-137. The pulse height spectra were shifted to the lower channel when measured far from the photomultiplier, but the total counts were not so changed. It is possible to detect the contaminated area from the spectra shift. When the point source was set at a center of the LSLG circle, the different shape of spectra was obtained. In this case, the uniform radiation level can be easily estimated. The developed LSLG detectors are versatile and applicable to many fields.

#### **2B01 Production of radioactive Sr@C<sub>60</sub> by nuclear recoil phenomenon**

AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, MIYASHITA, Y.<sup>1</sup>, HATSUKAWA Y.<sup>2</sup>, KUBUKI S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Tokyo Metropolitan Univ.,  
<sup>2</sup>Nat. Inst. of Quant. and Radiological Sci.)

M@C<sub>60</sub> has attracted special interest because of their characteristic structure and electronic properties since the discovery of metallofullerenes, but the isolation of M@C<sub>60</sub> has still not yet been achieved due to the difficulties in the separation and purification from soot. Recently, Plasma Shower method and radioactive metallofullerene production method using the nuclear recoil phenomenon have been noted as a production method of M@C<sub>60</sub> suppressing the generation of by-product such as soot. We reported that the radioactive strontium (Sr) metallofullerenes were produced by the implantation of the nuclear recoiled <sup>85</sup>Sr into C<sub>60</sub> induced by (n, 2n) reaction, previously. However, production of Sr@C<sub>60</sub> does not have been confirmed yet. The aim of this work is to prove the production of M@C<sub>60</sub> by the nuclear recoiled radioactive ion implantation method.

Sr@C<sub>60</sub> was produced by conventional arc discharge method and extracted by aniline from generated soot. Aliquot of this Sr@C<sub>60</sub>/aniline solution was injected into a HPLC column of Buckyclutcher I. Eluted solution from a column was collected for every 1 minute. As results of LD-TOF/MS measurement, Sr@C<sub>60</sub> was found in the samples eluted between 17 and 20 minute. The HPLC separation was also performed for the <sup>85</sup>Sr metallofullerenes sample produced by our method and the radioactivity derived from <sup>85</sup>Sr was observed at the same retention time of Sr@C<sub>60</sub>.

## **2B02 Development of metallofullerene separation by chemical reduction**

TANAKA, K.<sup>1</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>2</sup>.

(<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>RIKEN, Nishina center.)

Endohedral metallofullerene (EMF) is expected to be applied for radioactive medicines due to their encapsulation character. For this application, radioactive EMF is necessary to have high specific radioactivity. It is well known that the large amount of empty fullerenes, such as C<sub>60</sub> and C<sub>70</sub>, are produced as a by-product during the EMF production. To obtain the radioactive EMFs with high specific radioactivity, it is required to develop the efficient separation method for trace amount of EMFs from by-products instead of the conventional HPLC separation method. Recently, we developed a new separation method combining the reduction of EMFs using an electron donor and the difference of solubility in a polar solvent between reduced EMFs and empty fullerenes. In this session, we will report the quantitative results of this separation method using radiotracer technique.

Radiotracer of Ce-139 was employed for the EMF production. Produced Ce-139 EMFs were dissolved to CS<sub>2</sub> and then separated using mixed solutions of acetonitrile(MeCN)/trimethylamine(TEA), methanol/TEA, and ethanol/TEA from empty fullerenes. Gamma-ray measurement was performed for each separation step. HPLC analysis of natural La EMFs

proceeded same separation steps was also performed to investigate recovery rate of individual EMFs and empty fullerenes. As results of  $\gamma$ -ray measurement and HPLC analysis, the best recovery rate was found in the case of MeCN/TEA.

## **2B03 Muon capture probability of oxygen and sulfur atoms and differences attributed to the molecular structure**

YOSHIDA, G.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>1</sup>, INAGAKI, M.<sup>1</sup>, ITO, T.U.<sup>2</sup>, HIGEMOTO, W.<sup>2</sup>, STRASSER, P.<sup>3</sup>, KAWAMURA, N.<sup>3</sup>, SHIMOMURA, K.<sup>3</sup>, MIYAKE, Y.<sup>3</sup>, MIURA, T.<sup>3</sup>, KUBO, M.K.<sup>4</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. sch. Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>JAEA, <sup>3</sup>KEK, <sup>4</sup>International Christian Univ.)

A negative muon is one of the elementary particles that has charge and approximately two hundred times heavier mass than an electron. When a muon enters in a substance, coulomb field of nucleus captures a muon and muonic atom is formed. There are two muonic atom formation processes; direct muon capture and muon transfer capture. The muon transfer process occurs only in hydrogen containing system. The muon capture processes by muon transfer process and direct capture process are different each other, however, the difference on initial muon capture levels and muon capture probabilities by these processes still not been well examined. In this study, we performed muon irradiation experiments at J-PARC, Ibaraki, for low pressure CO<sub>2</sub>, COS, CS<sub>2</sub> and mixtures of these and hydrogen gas, and measured muonic X-rays which are emitted after muonic atom formation. From these experiments, we firstly revealed the difference of initial muon capture levels for CO<sub>2</sub>, COS and CS<sub>2</sub> molecules between direct capture and muon transfer.

## **2B04 Calculations of muon catalyzed fusion reaction rate in muon atomic collisions**

KINO, Y

(Dept. Chem., Tohoku Univ.)

A muonic hydrogen molecule is a tight binding and compact system because the mass of muon is 207 times heavier than that of electron. Since the wavefunction of the relative motion of the two nuclei has non-zero value inside the Coulomb barrier where nuclear interaction is dominant, a nuclear reaction can occur in the muonic molecule. This phenomenon is called muon catalyzed fusion ( $\mu$ CF), and had been extensively studied around 1990's not only by nuclear physicists but also by radiochemists. The  $\mu$ CF study nearly achieved the break even where the output energy matched the energy for muon production, but the study declined because of alpha sticking problem which is one of the muon loss process. About 1 percent of muon would be captured by the atomic orbital of an alpha particle after the nuclear reaction, but roughly half of them would return to the  $\mu$ CF cycle due to high energy muon atomic collisions. The  $\mu$ CF has been expected to be the third neutron source. Very recently



production of negative muon has been improved, and  $\mu\text{CF}$  has attracted attention again. In the present study, we calculated nuclear reaction rates during muon atomic collision for hot  $\mu\text{CF}$ . The reaction rates increased with the collision energy.

### 2B05 Observation of local fields in impurity-doped magnetite by means of perturbed angular correlation spectroscopy

TAKENAKA, S.<sup>1</sup>, FUJISAWA, T.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>Grad. School, Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ.)

Magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) is a material that shows ferrimagnetism below Curie temperature ( $T_C = 858$  K) and high electric conductivity leading to a variety of industrial applications, and many experiments have been performed for the purpose of controlling its magnetic and electric properties by impurity doping. In these studies, it is essential to obtain information about residence sites and thermal stability of dopant atoms in the host matter. In our previous work, we observed that  $^{111m}\text{Cd} (\rightarrow ^{111}\text{Cd})$  atoms are resident in the tetrahedral *A* sites independent of measurement temperature, whereas  $^{111}\text{In} (\rightarrow ^{111}\text{Cd})$  atoms partly migrate from the tetrahedral sites to the octahedral *B* sites at high temperature. For further understanding of the phenomenon, in this work, we applied perturbed angular correlation (PAC) spectroscopy with the probe  $^{111}\text{In} (\rightarrow ^{111}\text{Cd})$  to investigate the local fields in 0.5 at. % Cd doped magnetite. As a result, two different components showing magnetic dipolar interactions were observed below  $T_C$ ; one exhibits large distribution in the Larmor frequency attributed to the probe nuclei at the surface and/or boundary of magnetite grains (“shell”), and the other fraction attributed to those substituting for a cation site of inner part of the grains (“core”). Above  $T_C$ , the magnetic hyperfine field vanishes, and we newly observed a pattern that indicates relaxation possibly by dynamic perturbation. In the session, the temperature dependent PAC patterns are discussed in detail.

### 2B06 Local fields at impurity sites in a perovskite $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

SATO, W.<sup>1</sup>, KOMATSUDA, S.<sup>2</sup>, OHKUBO, Y.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Inst. Sci. and Eng., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Nat. Inst. of Tech., Ichinoseki College., <sup>3</sup>Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.)

Perovskite manganese oxides are known to exhibit the effect of colossal magnetoresistance (CMR), a phenomenon that electrical resistivity undergoes a drastic change as large as five to six orders of magnitude by the magnetic transition. In order to realize practical use of these compounds, it is of importance to obtain information on local fields in the material. From this point of view, we have applied the time-differential perturbed angular correlation (PAC) method to a study of a perovskite  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  ( $T_C \sim 250$  K) using the  $^{111}\text{Cd} (\leftarrow ^{111m}\text{Cd})$  probe. Powder  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  was synthesized by a

conventional solid-state reaction in air. The parent nuclides of the  $^{111}\text{Cd} (\leftarrow ^{111m}\text{Cd})$  probe were introduced into the sample by a solid-state reaction with powder  $\text{Cd} (^{111m}\text{Cd})\text{O}$  produced by the neutron irradiation of enriched  $\text{Cd} (^{110}\text{Cd})\text{O}$  in the research reactor of Kyoto University. For the PAC spectrum obtained at 77 K, a small magnetic hyperfine field was barely observed:  $B_{hf} < 0.014$  T. This value is much smaller than that observed at the  $^{140}\text{Ce} (\leftarrow ^{140}\text{La})$  probe in our previous work. In the presentation, the relatively large magnetic field observed at the  $^{140}\text{Ce} (\leftarrow ^{140}\text{La})$  probe is discussed from the view point of the  $4f$  spin orientation.

### 2B07 Atmosphere Dependence of Formation Process of Oxygen Vacancies in Zinc Oxide

KOMATSUDA, S.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>2</sup>, OHKUBO, Y.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Nat. Inst. Tech., Ichinoseki College, <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.)

Thermal behavior of Al and In impurities doped in zinc oxide (ZnO) was investigated by means of the time-differential perturbed angular correlation (TDPAC) method with the  $^{111}\text{In} (\rightarrow ^{111}\text{Cd})$  probe. In one of our previous TDPAC studies, we observed contrasting atmosphere dependence of the stability of aggregations of  $^{111}\text{In}$  and Al impurities doped in 100 ppm Al-doped ZnO: (i) Al and In impurities associate with each other by their thermal diffusion in air, and (ii) the  $^{111}\text{In}$  probe is detrapped from the Al aggregations in high-temperature vacuum, resulting in substitution at defect-free Zn sites. Detailed investigation of the thermal behavior of the impurities has revealed that the dissociation reaction is triggered by the formation of oxygen vacancies. Furthermore, the formation energy of oxygen vacancy was evaluated from the temperature variation of the rate constants, which was estimated from the annealing time dependence of TDPAC spectrum. In the session, based on the further investigation of TDPAC spectra for Al-doped ZnO obtained by isochronal annealings in Ar gas atmosphere, we discuss the atmosphere dependence of the formation process of oxygen vacancy.

### 2B08 Thermal behavior of impurity hydrogen trapped in vacancy-type defects in single crystal ZnO

SHIMIZU, H.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>1,2</sup>, MIHARA, M.<sup>3</sup>, FUJISAWA, T.<sup>1</sup>, FUKUDA, M.<sup>3</sup>, MATSUTA, K.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Grad. Sch. Nat. Sci., Tech. Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Grad. Sch. Sci., Osaka Univ.)

Zinc Oxide (ZnO) is highly expected for applications to functional devices such as light emitting diode and transparent electrodes, having a wide band gap of 3.4 eV at room temperature. In general, ZnO shows n-type semiconductivity. Impurity hydrogen atoms, which are unwantedly involved into the matrix during the crystal growth process, are considered as one of the origin. Furthermore, in the case of the presence of hydrogen atoms in the vicinity of a zinc vacancy, which is regarded as an important acceptor-type native point defect in ZnO,

their complex is likely to be formed by coulombic attraction, causing the inactivation of the p-type semiconductivity. Positron annihilation lifetime spectroscopy thus was employed for the investigation of the interacting nature of impurity hydrogen atoms and vacancy-type defects in single crystal ZnO. In order to clarify the observation of their thermal behavior, the sample was implanted with  $^1\text{H}^+$  using the Van de Graaff accelerator of Osaka University. After the implantation, the positron lifetime became shorter, which suggests that the hydrogen atoms were captured by various vacancies to form vacancy-hydrogen complexes. The complexes decompose by heat treatment, and most of the hydrogen atoms captured were annealed out at 773 K. In the present session, detailed temperature-dependent thermal behaviors of hydrogen atoms and vacancy-type defects are discussed.

### 3A01 CuO surface area dependence for tritium recovery

Y. Uemura<sup>1</sup>, S. Sakurada<sup>1</sup>, H. Fujita<sup>1</sup>, K. Azuma<sup>1</sup>, M. Hara<sup>2</sup>, Y. Hatano<sup>2</sup>, A. Taguchi<sup>2</sup>, T. Chikada<sup>3</sup>, Y. Oya<sup>3</sup>  
 (<sup>1</sup>Grad. School of Sci. & Technol. Shizuoka Univ.,  
<sup>2</sup>Hydrogen Isotope Res. Center, University of Toyama,  
<sup>3</sup>College of Sci., Academic Institute, Shizuoka Univ.)

Tritium is widely used as a tracer of hydrogen isotopes. However, the recovery of a small amount of tritium at radiation facilities is usually unreasonable due to higher basic safety standards of tritium. To enhance the social acceptance, tritium should be recovered as much as possible without complex procedures. In this study, CuO surface area dependence for the tritium recovery was evaluated.

It was found that the tritium recovery was clearly controlled by temperature, carrier gas flow velocity, and CuO surface area. The reaction rate constant above 473 K for CuO particle size of 1.0 and 0.2 mm could be expressed by the following equations,  $k_1$  [ $\text{s}^{-1}$ ]=  $5.4 \times 10^5 \exp(-0.65$  [eV] /  $k_B T)$  and  $k_2$  [ $\text{s}^{-1}$ ]=  $1.3 \times 10^6 \exp(-0.64$  [eV] /  $k_B T)$ , respectively. The activation energy was not changed among these samples, while the frequency factor was increased as the particle size was increased. It can be said that the tritium conversion rate was affected by dissociative adsorption site. The reaction rate constant was also increased with increasing the carrier gas flow velocity even if tritium exhaust rate was constant, leading to the saturation of dissociative adsorption sites. However, it was constant at over 50 sccm in the case of CuO particle size of 0.2 mm. It was indicated that dissociative adsorption site was in an unsaturated state.

### 3A02 The analysis of organically bound tritium by combustion method

SHIMA, N.<sup>1</sup>, TAMARI, T.<sup>1</sup>  
 (<sup>1</sup>Kyushu Environmental Evaluation Association)

The organically bound tritium (OBT) has been investigated by tritium monitoring in the environment.

OBT analysis for low concentration measurement requires much amount of sample and time consuming. In this study, we determined the detection target of OBT concentration in 10 Bq/kg for screening analysis. 2g of dried fish samples (edible part) were combusted in quartz tube with  $\text{O}_2$  gas, and combustion water was collected by cold trap. The time required to obtain the distilled combustion water was 3 hours. The tritium activity was measured with a low background liquid scintillation counter (LSC LB-7, Hitachi LTD) after mixing the distilled sample water with scintillation cocktail (Ultima Gold uLLT) in 20mL low diffusion plastic vial. The detection limit by 100 min LSC measurement were 40 Bq/L (as combustion water), 6 Bq/kg (as fish fresh). These results are practical as screening.

### 3A03 Distribution of long-lived artificial radionuclides in environment of Niigata Prefecture

SUZUKI, T., ONO, T., YAMAZAKI, K.  
 (Niigata Prefectural Institute of Environmental Radiation Monitoring)

Radioactive concentrations of Pu isotopes,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in environmental samples (soil, sea sediment and Sargassum seaweeds) of Niigata Prefecture were investigated to evaluate the influence of Fukushima Daiichi nuclear power station (FDNPS) accident and to clarify the radiation levels of those long-lived artificial radionuclides.

Pu isotopes were analyzed using by alpha ray spectrometry and Quadrupole ICP-MS method. According to the ratios of  $^{238}\text{Pu}$  to  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  to  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$  to  $^{239+240}\text{Pu}$ , observed Pu isotopes were considered to be originated from past atmospheric nuclear testing.

The values of Pu isotopic ratio ( $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  (activity ratio),  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  (atomic ratio),  $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  (activity ratio)) of sea sediment were similar to the values of Sargassum seaweed, on the other hand, the values of Pu isotopic ratio of soil were smaller. This result suggested that pollution sources were different.

The influence of FDNPS accident on  $^{137}\text{Cs}$  was observed clearly in soil and sea sediments. That estimated from the relationship between  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  measured by High Purity Ge semiconductor detector.

Concentration level of  $^{90}\text{Sr}$  analyzed by  $\beta$ -ray counter after chemical separation was within the range of the measured values before the FDNPS accident.

### 3A04 Thorium soil-to-plant transfer factor issues: effect of measurement methods

TAGAMI, K.<sup>1</sup>, UCHIDA, S.<sup>1</sup>, Tabei, K.<sup>2</sup>  
 (<sup>1</sup>Biospheric Assessment for Waste Disposal, Natl. Inst. Radiol. Sci., QST, <sup>2</sup>Tokyo Nuclear Service Co.)

Recent IAEA TRS-472 (2010) collated the soil-to-plant transfer factors (TFs) of thorium, and the values in tropical area were slightly higher than those in temperate area for herbaceous plants. When we checked the data closely, it

was found that probably because measurement method differences affected to the tendency, that is, gamma spectrometry and inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). In this study, therefore, we carried out detailed literature survey together with brown rice TF measurements by both gamma spectrometry and ICP-MS.

The literature survey results showed that TFs obtained by Ge detecting systems were 2-3 orders of magnitude higher than those observed by ICP-MS. The reason was probably because of ignorance of Ra-228 in the Th series isotopes. In soil, Th series isotopes are in equilibrium conditions so that determination of progeny agreed well with the Th-232 concentrations. However, Ra uptake by plants was much higher than Th because Ra is a member of alkaline earth elements, which include Ca as an essential element for plants. Using five brown rice-soil sets, we found one orders of magnitude difference between TFs of Th determined by ICP-MS and gamma spectrometry. Thus it was clear that gamma-spectrometry resulted over estimation of Th TF.

### **3A05 Determination of ultra-low levels of Np-237 in seawater by ICP-MS/MS**

SAKAGUCHI, A.<sup>1</sup>, EIGL, R.<sup>2</sup>, HONDA, M.<sup>1</sup>, OHNO, T.<sup>3</sup>, KAKUTA, S.<sup>3</sup>, SHIKAMORI, Y.<sup>4</sup>, TAKAKU, Y.<sup>5</sup>, YAMASAKI, S.<sup>1</sup>, SUEKI, K.<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Univ. of Tsukuba, <sup>2</sup>Hiroshima Univ., <sup>3</sup>Gakushuin Univ., <sup>4</sup>Agilent, <sup>5</sup>IES)

For the determination of the long-lived radionuclide <sup>237</sup>Np in seawater, we have improved the measurement sensitivity of the triple quadrupole ICP-MS system (Agilent 8800). For efficient sample introduction, a high efficiency desolvation system was used instead of a nebulizer. In addition, to achieve enhanced ion transmission, the following adjustments/tunings were performed: changing the shapes and orifices of the skimmer cones, reducing the pressure in the differentially-pumped system (interface) and adjusting the skimming position of the skimmer cone. As a result, measurement sensitivity was improved about 15-20 times compared to that of conventional ICP-MS for environmental analysis thus permitting measurement of <sup>237</sup>Np in surface waters (few L to 10 L). However, the chemical yield for <sup>237</sup>Np was about 50% due to the low co-precipitation yield by Fe(OH)<sub>3</sub> in the first stage of sample pretreatment. Further studies are needed to improve the chemical yield.

### **3A06 Application of automatic analysis system of Strontium-90 to analysis of environmental sample**

FUJITA, H.<sup>1</sup>, NOJIMA, T.<sup>2</sup>, NAGAOKA, M.<sup>1</sup>, OSAWA, T.<sup>1</sup>, H., ONO, H.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>KEK, <sup>3</sup>Kantogiken Co.Ltd.)

An automatic strontium-90 radioactivity analysis system has been improved in each apparatus of wet decomposition, chemical separation and ion exchange. Firstly, a pressured air spraying equipment was added to

the wet decomposition apparatus, in order to suppress bumping of sample solution. Secondly, stirrer was selected to mix sample solution in the chemical separation apparatus instead of mixing by an articulated robot. Finally, status monitoring apparatus using laser was adopted to check solution status in an ion exchange column because older system with image analysis unit was difficult to detect a drop of solution. All improvement was successful to analyze strontium-90 radioactivity. After the development, the system were used in performance test to analyze ashed seaweed samples. The obtained radioactivity concentration was agreed to results by analyzed by analyst.

### **3A07 Study of Selective Measurement for <sup>89</sup>Sr and <sup>90</sup>Sr by Extractive Scintillator with a Liquid Scintillation Counter**

SAKAI, H.<sup>1</sup>, UESUGI, M.<sup>2</sup>, YOKOYAMA, A.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Grad. School Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Adv. Sci. Res. Cent., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ.)

Radiostrontium is known to be produced from neutron fission of uranium. The element of Sr, a congener of Ca, tends to be accumulated in bone. Especially, <sup>90</sup>Sr is of relatively longer half-life and its decay product <sup>90</sup>Y causes human health damage due to highly energetic electron emission. So the nuclides need monitoring in environment. <sup>90</sup>Sr and <sup>89</sup>Sr were accidentally released from Fukushima Daiichi nuclear power plants in 2011. In the accident, the <sup>89</sup>Sr activity was much higher than that of <sup>90</sup>Sr, but <sup>89</sup>Sr decreases faster than <sup>90</sup>Sr because half-life of <sup>89</sup>Sr is 50.52 days. We have developed a new method for the determination of radiostrontium in seawater. In general, Cerenkov technique is used to determine <sup>89</sup>Sr and <sup>90</sup>Y. In this study, we examined a selective measurement for <sup>89</sup>Sr and <sup>90</sup>Sr by extractive scintillator with a liquid scintillation counter. The two layer HDEHP extraction method is found to be available for the measurement of the <sup>90</sup>Y activity or the <sup>89</sup>Sr+<sup>90</sup>Sr+<sup>90</sup>Y activity. The method has high counting efficiencies of <sup>89</sup>Sr, <sup>90</sup>Sr, and <sup>90</sup>Y and low background in the measurements. It enables rapid determination of the radiostrontium within three days.

### **3B01 Chemical State of Isolated <sup>57</sup>Fe Atoms Decayed from <sup>57</sup>Mn Implanted into a C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>/Ar matrix**

SUZUKI, M.<sup>1</sup>, SATO, Y.<sup>1</sup>, TANIGAWA, S.<sup>1</sup>, KOBAYASHI, Y.<sup>1,2</sup>, YAMADA, Y.<sup>3</sup>, KUBO, K.<sup>4</sup>, MIHARA, M.<sup>5</sup>, NAGATOMO, T.<sup>2</sup>, SATO, W.<sup>6</sup>, MIYAZAKI, J.<sup>7</sup>, SATO, S.<sup>8</sup>, KITAGAWA, A.<sup>8</sup>  
(<sup>1</sup>Univ. Electro-Commun., <sup>2</sup>RIKEN, <sup>3</sup>Tokyo Univ. Sci., <sup>4</sup>ICU, <sup>5</sup>Osaka Univ., <sup>6</sup>Kanazawa Univ., <sup>7</sup>Hokuriku Univ., <sup>8</sup>NIRS)

The in-beam Mössbauer spectrum of <sup>57</sup>Fe produced after <sup>57</sup>Mn implantation in a mixture matrix of ethylene and argon was measured at 17 K. The exotic Fe species and the chemical states of Fe atoms were discussed on the basis of obtained Mössbauer parameters and density

functional theory (DFT) calculations.

The experiment was performed at the heavy-ion accelerator in the National Institute of Radiology Sciences.  $^{57}\text{Mn}$  was produced by the nuclear fragmentation reaction between  $^{58}\text{Fe}$  beams with the energy of 500 MeV/nucleon and a production target of  $^9\text{Be}$ . Then, the  $^{57}\text{Mn}$  was electromagnetically separated and optimized, and implanted into the mixture matrix of ethylene and argon. The sample was produced on a metallic plate cooled at 17 K by a closed-cycle helium refrigerator<sup>1)</sup>. The ratio of ethylene to argon was 3:7. The Mössbauer  $\gamma$ -ray of 14.4 keV was detected by a parallel-plate avalanche counter (PPAC). DFT calculations were carried out using the ORCA program<sup>2)</sup>.

The in-beam Mössbauer spectrum obtained at 17 K was tentatively analyzed by four components, a singlet and three doublets. Two components, a singlet and a doublet, among them were assigned to be  $\text{Fe}^+$  ( $3d^7$ ) and  $\text{Fe}^+$  ( $3d^64s^1$ ) respectively<sup>3)</sup>, from our results of the in-beam Mössbauer spectra obtained in the mixture matrices of methane and argon. It was suggested from DFT calculations that monoiron species of two kinds of  $\text{Fe}(\text{C}_2\text{H}_4)$  with different charge states were produced.

References:

- 1) Tanigawa, S., et al. *Hyp. Int.* **2016**, 237, doi 10.1007/s10751-016-1261-1.
- 2) Neese, F. *Wiley Interdisc. Rev. Comp. Mol. Sci.*, **2012**, 2, 73-78.
- 3) Yamada, Y., et al. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **2003**, 255, 419-423.

### **3B02 Mössbauer spectra of the rock-salt structured iron nitride**

YAMADA, Y.<sup>1</sup>, SATO, M.<sup>1</sup>, KOBAYASHI, Y.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Dep. of Chem., Tokyo Univ. of Sci., <sup>2</sup>Grad. Sch. of Info. and Eng., The Univ. of Elect.-Com.)

It has been reported that FeN has two phases:  $\gamma''$ -FeN (ZnS structure) and  $\gamma'''$ -FeN (NaCl structure). These two phases are generally formed simultaneously, making it difficult to produce a single phase. We previously reported that the yields of the two phases could be varied and that pure  $\gamma''$ -FeN and  $\gamma'''$ -FeN could be obtained by varying the substrate temperature during pulsed laser deposition (PLD). We also reported that Mössbauer spectra revealed that  $\gamma''$ -FeN and  $\gamma'''$ -FeN are respectively paramagnetic and antiferromagnetic at low temperatures, and that a minor component due to defects in  $\gamma'''$ -FeN showed a higher hyperfine magnetic field of 50 T at 5 K. In the present study, a single phase  $\gamma'''$ -FeN film without containing defects was produced at the higher substrate temperature 773 K, and Mössbauer spectra of the film were measured at temperatures between 6 and 300 K to observe the temperature dependence of the hyperfine magnetic field.  $\gamma'''$ -FeN was found to be antiferromagnetic exhibiting a hyperfine magnetic field of 30 T at a temperature of 6 K having a Néel temperature at 230 K.

### **3B03 $^{119}\text{Sn}$ Mössbauer study on Sn-TiO<sub>2</sub> nanocrystals with ferromagnetic and photocatalytic properties**

NOMURA Kiyoshi<sup>1</sup>, GANESHRAJA A. Sundaram<sup>2</sup>, WANG Junhu<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>PIRC, Tokyo Univ. of Sci., <sup>2</sup>MEDC, Dalian Inst. Chem. Phys, Chin, Aca. Sci.)

Sn-TiO<sub>2</sub> nanocrystals were synthesized by a simple hydrothermal method without any magnetic element, surfactant and dispersant material. The Sn-TiO<sub>2</sub> samples were denoted as Sn-Ti-x (x represents the atom ratio % of Sn/Ti, x = 0 – 1.37). The low level Sn doped samples are defined as x < 0.3, and the high level Sn doped samples as x > 0.3.  $^{119}\text{Sn}$  Mössbauer spectra were collected at room temperature using  $\text{Ca}^{119\text{m}}\text{SnO}_3$  source moved in a constant acceleration mode. The velocity scale was calibrated using a  $\alpha$ -iron foil absorber and  $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$  source.  $\text{CaSnO}_3$  was used as the reference of isomer shift.

Mössbauer spectra of low level Sn doped samples were decomposed into a doublet and a sextet of  $\text{Sn}^{4+}$  because the samples showed relatively strong ferromagnetism. Mössbauer spectra of high level Sn doped samples were analyzed by one doublet and two sextets because the samples showed weak ferromagnetism. Three kinds of Sn species may be distinguished as a  $\text{Sn}(\text{Ti})\text{O}_2$  and two different magnetic arrangements of  $\text{Sn}(\text{Ti})\text{O}_2$  with more oxygen defects or with 2Ti atoms substituted at 2Sn atom sites. Magnetic components are considered to be due to the defect induced magnetism and due to the antiferromagnetic component or paramagnetic relaxation, respectively.

### **3B04 Correlation between the bonding property of f-orbital electron and the separation behavior of minor-actinides**

KANEKO, M.<sup>1</sup>, WATANABE, M.<sup>1</sup>, MIYASHITA, S.<sup>2</sup>, NAKASHIMA, S.<sup>2,3</sup>

(<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>Grad. Sch. of Sci., Hiroshima Univ., <sup>3</sup>N-BARD, Hiroshima Univ.)

To understand the separation mechanism of minor-actinides (MA) from lanthanides (Ln) is important for the development of partitioning and transmutation of high-level radioactive waste. We aim to discuss the bonding nature between MA/Ln ions and ligands with the separation behavior of MA from Ln, which leads to the elucidation of the separation mechanism of MA from Ln. In this study, we demonstrate the separation behavior of MA from Ln at molecular level by means of density functional calculations and discuss how the bonding properties of valence electrons contribute to the selectivity of MA.

### **3B05 Structure determination of extracted strontium complex from neutral contaminated water.**

YAMAMURA, T., TAKAHASHI, A., NAGAI, M., SHIRASAKI, K.

(Institute for Materials Research, Tohoku Univ.)

Typical long-lived fission products  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  included in the contaminated water had been removed by solid columns with resins, whereas it brought about problems of the huge amount of solid wastes unable to reduce their volumes. Recently we have studied solvent extraction in order to remove these nuclides. Using 1,2-dichloroethane, 1-octanol or chloroform as a diluent and crown ethers can functions as extractants of cesium and strontium from acid solutions [1,2]. The diluents have risks of fires, explosions and environmental soundness. In our previous works, the solvent extraction of uranium from nitric acid solution was conducted by HFC-43-10mcc (Chemours Company; Vertrel XF) -TBP system [3]. The diluents show excellence in the noninflammability, the low toxicity, and chemical stability.

In this study, we investigated the extraction mechanism of Sr from neutral solution in the case of the use of azeotrope of HFC-43-10mcc as a diluent.

[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, J. Nucl. Sci. Technol., 47 (2010) 515.

### **3B06 Catalytic effect of metal colloid on uranium(V) reduction**

KITATSUJI, Y., OUCHI, K., OTOBE, H.  
(Japan Atomic Energy Agency)

Redox behaviors of actinide ions in a low-acid solution are complicated and have been unclear, because they tend to form hydroxide complexes, colloids and precipitates. Recently, autocatalysis of the reduction of U(V) to U(IV) in the solution where U(IV) forms hydroxide colloid was reported; U(IV) colloid formed as reduction product catalyzes the electrolytic reduction of U(V). In this study, possibility of catalysis of Zr(IV) colloid which was analogous of U(IV) colloid on the reduction of U(V) was investigated. When U(VI) was electrolyzed at a constant potential in order to reduce to U(V) in the solution of pH 3.0 containing 10 mM Zr(IV), the increase of the reduction current was observed in initial stage of electrolysis. This results indicates that U(VI) was reduced further to U(IV) without catalysis of U(IV) colloid, and that Zr(IV) colloid also acts as catalyst. Intensity of catalysis depends on concentration of Zr(IV), condition of preparing colloid and acidity of the solution.

### **3B07 Development of correction methods for time-of-flight prompt gamma-ray analysis at ANNRI**

HUANG M.<sup>1</sup>, TOH Y.<sup>1</sup>, EBIHARA M.<sup>2</sup>, KIMURA A.<sup>1</sup>, NAKAMURA S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>2</sup>Tokyo Metropolitan Univ.)

Nickel-based super alloys generally have complicated chemical compositions. In many studies, their compositions were determined by X-ray fluorescence (XRF) method since the alloys were not destroyed before testing their properties. However, XRF cannot detect the

deep layer of alloys (typically under 0.1-mm depth). Therefore, thick alloys are hardly examined directly by XRF. Prompt gamma-ray analysis (PGA) and neutron resonance capture analysis (NCRA) are well-known non-destructive methods which are applicable to thick samples. Unfortunately, PGA is not very sensitive to some elements (e.g. Nb) and NCRA lacks of sensitivity to some light elements. At J-PARC ANNRI, the two methods have been combined as a new analytical method, TOF-PGA, which overcomes the disadvantages of PGA and NCRA. It is feasible to apply the new method to the examinations on materials with complicated chemical compositions. In this study, concentrations of Ni, Cr, Ti, Co, Al, B in two nickel-based super alloys were determined by PGA while W, Ta, Mo, Nb, Re, Ru and Hf were quantitatively analyzed by TOF analysis or TOF-PGA. The accurate results of present study show that the TOF-PGA technique is a powerful tool for the composition analysis on super alloys.

### **3B08 Radiocarbon Dating of kohitsugire calligraphies written by kana where it has been thought that they were copied from the second half in the 11th century to the first half in the 12th century: Dating of Misyo-tirashi-uta-gire attributed to Fujiwara no Yukinari and Minbu-gire attributed to Minamoto no Toshiyori ODA, H.<sup>1</sup>, IKEDA, <sup>2</sup>**

(<sup>1</sup>ISEE., Nagoya Univ., <sup>2</sup> Fac. of Letter, Chuo Univ.)

Kana (the Japanese syllabaries) is said to have been accomplished in the middle 11<sup>th</sup> century. Earlier documents, records and books have not been confirmed only a few examples. Even in elegant calligraphy of Heian period, there is a case in which details of the inscription age is not clear. In such a case, at present, it is often to be a calligraphy written in Insei period (1050-1130). Therefore, in this study, we performed radiocarbon dating for two calligraphies of Insei period. Paper sample weighting 10-50mg were cut from the margins of the calligraphies. The sample were soaked in H<sub>2</sub>O to peel away the original sheets from the lining. They were then washed in H<sub>2</sub>O, 1.2N HCl and 1.2N NaOH. Graphite target was prepared from each sample. Radiocarbon ages were measured using the CAMS-500(NEC, U.S.A) at Paleo Labo Co., Ltd., Japan. Calibrated radiocarbon age of Misyo-tirashi-uta-gire attributed to Fujiwara no Yukinari showed the age from the late 10<sup>th</sup> century to the early 11<sup>th</sup> century; it is a rare example precedent to the insei period. However, calibrated radiocarbon age of Minbu-gire attributed to Minamoto no Toshiyori indicated the middle 17<sup>th</sup> century; it is a copy or counterfeit written in several centuries later.

### **P01 Dynamics of radioactive cesium in sediments of Yatsu tideland from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident**

YAMAMOTO, S., SOEMORI, A., SHOZUGAWA, K., MATSUO, M.  
(Univ. of Tokyo)

In order to clarify behaviors of radioactive cesium in the hydrosphere released by the FDNPP accident, we measured its vertical distribution in sediments at three sites from Yatsu tideland. Investigations were carried out in March and November 2015. The data were compared with those of Tokyo bay and Hanami river, which are located a few kilometers southeast from Yatsu tideland.  $^{134}\text{Cs}$  was detected at each site of Yatsu tideland, with the deepest detection of  $^{134}\text{Cs}$  at 25-30 cm. By calculating the ratio of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , it was confirmed that almost all of the radioactive Cs was derived from the FDNPP accident. Considering that Yatsu tideland gradually loses its sediment, finding radioactive Cs at this depth can suggest sinking of Cs in Yatsu tideland. Comparing the samples from March and November, there was a decrease of Cs from 26.8 Bq/kg to 9.4 Bq/kg in surface layers (0-5 cm), and from 13.7 Bq/kg to 2.0 Bq/kg in deeper layers (25-30 cm), while sediments of Hanami river marked more than 200 Bq/kg in both layers. These results may reflect closed nature of Yatsu tideland which discharges Cs rather than stores it due to no inflow river, in contrast to the feature of Hanami river which has relatively large drainage basin and therefore collects larger amount of Cs to itself and Tokyo bay.

#### **P02 Characterization of radiocesium in Tamagawa river**

OKUMURA, S.<sup>1</sup>, OCHI, K.<sup>1</sup>, HAGIWARA, K.<sup>2</sup>, NAKAMURA, T.<sup>3</sup>, KOIKE, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ., <sup>2</sup>Org. Strategic Coordinant. Res. Intellect. Prop., Meiji Univ., <sup>3</sup>Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ.)

A large amount of radiocesium released into the atmosphere was deposited on urban area because of the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in 2011. The quantitative status of radiocesium obtained continual monitoring in the river watershed is important for estimating environmental impact to downstream. Activity concentrations of radiocesium were determined for the suspended, dissolved and sediment samples collected from the Tamagawa River watershed. The dissolved and suspended  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were detected in river water samples gathered at several points at Tamagawa River basin. These results show that the behavior of dissolved and suspended radiocesium in river water were different. Activity concentrations of suspended radiocesium in river water showed temporal increase in the period after rainfall or rainfall. It is important to estimate chemical form of radiocesium in river water samples for confirming transportation at Tamagawa River watershed with the river water, and contribution of the weather condition such as rainfall.

#### **P03 Radioactivity monitoring in the Tokyo Bay – temporal variations of $^{134}\text{Cs}$ and $^{137}\text{Cs}$ in sea sediment and seawater –**

TOYOOKA, S.<sup>1</sup>, NITTA, W.<sup>1</sup>, KANEKO, K.<sup>1</sup>, KISHIMOTO, T.<sup>1</sup>, ISOGAI, K.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Japan Chemical Analysis Center)

After the accident of Fukushima Dai-ichi NPP, a large amount of radioactive materials had been released into the environment and distributed widely in the Kanto area. Atmospheric radioactive materials deposited on the ground surface by rainfall, were transported by natural phenomenon or anthropogenic action. And finally flowed into the Tokyo Bay via the rivers, and deposited on sediment.

Radioactivity monitoring of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  at 23 points in the Tokyo Bay has been carried out since 2013 to estimate the influence of Fukushima Dai-ichi NPP accident. In recent three years, activity concentrations has been decreased at most points. However, point “K-T1” and “C-P8” which are located off Arakawa and Kyu-Edogawa, and near Kisarazu Port, activity concentrations maintained relatively high during this monitoring. It was estimated to be caused by continuous supply of radioactive materials from the rivers. In the depth of seabed samples profile, Radioactive Cs peaks were observed at 7cm depth at “K-T1” and “M-C6” which is located at the north central part of the Tokyo Bay, and radioactivity concentrations decreased with depth. The radioactivity concentrations in seawater has showed gradual decrease with time.

Judging by the  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  activity ratio with decay correction, it is confirmed that the radioactive Cs found in sediment and seawater samples had been derived from the accident of Fukushima Dai-ichi NPP.

#### **P04 Distribution of radioactive cesium in the soil around Akagi Onuma region**

NAGAHASHI, T.<sup>1</sup>, MATSUURA, H.<sup>1</sup>, IMAGAWA, S.<sup>1</sup>, UCHIYAMA, T.<sup>1</sup>, SUZUKI, K.<sup>2</sup>, YUASA, Y.<sup>2</sup>, WATANABE, S.<sup>2</sup>, ARAI, H.<sup>2</sup>, NOHARA, S.<sup>3</sup>, OKADA, Y.<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Fac. of Eng., Tokyo City Univ., <sup>2</sup>Gunma Pref. Fisheries Expt. Sta., <sup>3</sup>NIES)

In the Lake Akagi Onuma, exceeding radioactive cesium over the standard value had been detected from the pond smelt due to the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident until 2014. To elucidate the mechanism of slow decay trend of radioactive concentration in the pond smelt, the study on kinetics of radioactive material in the soil, including the surrounding area around the lake is important. In this study, we have collected the sediments at inflow, outflow and central points in the Lake Akagi Onuma. In addition, the soil of Jizodake, which is located near the Lake Akagi Onuma has been also sampled. The radioactivity of all the collected samples have been measured by a high-purity Ge semiconductor detector. Radioactivity concentration (Cs-137) in the sediment was found to be reduced to 1/100 at a depth of 10 cm from the surface layer. Moreover, radioactivity in the soil of Jizodake was found to decrease until depth of 15cm. It is considered that other ingredients, such as roots, would disturb penetration of radioactive Cs in the soil at mountain area, on the contrary to the case at the lake sediment.

#### **P05 Cesium isotopic ratio variation about cesium dissolved in river water and included bottom sediment after the FDNPP accident**

Ryohei Tomita<sup>1</sup>, Tetsuya Matsunaka<sup>2</sup>, Maki Honda<sup>1</sup>, Yukihiko Satou<sup>3</sup>, Masumi Matsumura<sup>2</sup>, Tsutomu Takahashi<sup>2</sup>, Aya Sakaguchi<sup>4</sup>, Hiroyuki Matsuzaki<sup>5</sup>, Kimikazu Sasa<sup>2,4</sup>, Keisuke Sueki<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Grad. School of Pure and Appl. Sci., Univ. Tsukuba,

<sup>2</sup>Res. Facility Center for Sci. and Tec., Univ. Tsukuba,

<sup>3</sup>Japan atomic energy agency, <sup>4</sup>Pure and Appl. Sci., Univ.

Tsukuba, <sup>5</sup>MALT, The Univ. Museum, The Univ. Tokyo)

To observe the dynamics of radionuclides, which has been dispersed from FDNPP, in river water and sediment, we investigated the concentration of radiocesium <sup>137</sup>Cs, radioiodine <sup>129</sup>I and their stable isotopes (<sup>133</sup>Cs and <sup>127</sup>I) dissolved in riverine water and included sediment. Water samples were collected at 6 points in the Ohori River system, Chiba (about 200 km away from the FDNPP). Additional two inflow waters to this river were sampled at the same time. Bottom deposits (Sediment) were collected at 4 points, one was collected before river water pouring, and the others were collected after input. Water samples were filtrated with membrane filter (pore size 0.20 μm), and the radioactivity of <sup>137</sup>Cs in the filtrated water was determined by HP-Ge gamma spectrometry. <sup>133</sup>Cs was determined by ICP-MS. Sediment samples were analyzed by sequential extraction. The extraction procedure consisted of 4 steps, resulting in 5 fractions (4 extracts and one residue). 4 extracts include water-soluble, ion-exchange, reductive dissolution and organic decomposition. <sup>137</sup>Cs radioactivity and <sup>133</sup>Cs concentration of these fractions were determined by analytical methods as with the water samples. We observed that <sup>137</sup>Cs / <sup>133</sup>Cs ratio of sediment rose as approaching estuary and had constant value of dissolved water to sediment double ratios. It is considered that cesium involved sediment and it dissolved water were in equilibrium quickly.

#### **P06 Analysis of trace elements and radioactive cesium in rice plants**

YANAGA, M.<sup>1</sup>, MIYOSHI, H.<sup>2</sup>, HIGAKI, S.<sup>3</sup>, MORI, K.<sup>4</sup>, NISHIZAWA, K.<sup>5</sup>, GOTO, S.<sup>6</sup>, SERA, K.<sup>7</sup>

(<sup>1</sup>Fac. of Sci., Shizuoka Univ., <sup>2</sup>ARREMC, Tokushima Univ., <sup>3</sup>RIC, Tokyo Univ., <sup>4</sup>ING corp., <sup>5</sup>Emer. Prof., Nagoya Univ., <sup>6</sup>Takizawa Lab., JRIA, <sup>7</sup>Cyclo. Res. Center, Iwate Medical Univ.)

PIXE analytical technique was applied to determine concentration of trace elements in paddy water, irrigation water (pond water and spring water) and leaves of rice plants in mountainous region in Fukushima-city. It was also examined that the effects of adding stable isotopes of cesium and rubidium into paddy water on concentrations of trace elements in leaves of rice plants and the transfer factors from paddy soil to rice of radioactive cesium derived from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

accidents in March, 2011. PIXE analytical data for the leaves of rice plants indicated that a major portion of added stable isotope of cesium adsorbed into soil. On the other hand, the transfer factors of radioactive cesium for the unhulled rice cultivated with the water which stable cesium had been added in were much larger than those for cultivated with water in which nothing had been added. This implies that the cesium atoms added were replaced with radioactive cesium ones in soil.

#### **P07 Production experiments of the insoluble Cs-concentrated particles released by the FDNPP accident**

FUJITA, N.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>1</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Science, Osaka University,

<sup>2</sup>Radioisotope Research Center, Osaka University)

By the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP), many amounts of radioactive nuclides were released into the environment. Among them, the existence of Cs-concentrated particles with a diameter of about 2 μm was reported. The main component of the particle is SiO<sub>2</sub>, and it also contains Cs, Fe, and Zn. The chemical property of the particle is glassy and insoluble in water and acid. In this study, we produced the simulated particles by generating a splash of SiO<sub>2</sub> in melting CsOH in 300~500 °C temperature condition. Moreover, we were able to produce particles containing Fe and Zn by putting galvanized iron piece in melting CsOH. We observed the produced particles using Scanning Electron Microscope (SEM) and Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDX), and we found that the particles have the similar shape and chemical composition with observed insoluble Cs-concentrated particles.

#### **P08 Suppression of radiocesium elution by water-repellent treatment of municipal waste incinerator fly ash**

FUKUDA, D.<sup>1</sup>, IWAHANA, Y.<sup>2</sup>, KUME, T.<sup>3</sup>, FUJII, K.<sup>1</sup>, HAGIWARA, K.<sup>2</sup>, OHBUCHI, A.<sup>4</sup>, KOIKE, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ., <sup>2</sup>Org. Strategic Coordinant. Res. Intellect. Prop., Meiji Univ., <sup>3</sup>Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ. <sup>4</sup>X-ray Inst. Div., Rigaku Corp.)

Incinerator fly ashes of municipal solid waste (MSWI fly ashes) with high concentration of radiocesium are generated, when the MSW containing a lot of radiocesium incinerates. Radiocesium in MSWI fly ashes easily leaches from the ash by contact with environmental water, was reported. A water-repellent effect was investigated for the suppression of elution of radiocesium in MSWI fly ashes. Water-repellent was sprayed on the fly ash, and raw or treated ashes were carried out Notice No. 13 tests of the Ministry of Environment, Japan. A rate of water-soluble radiocesium decreased after the water-repellent treatment. This method is applicable to stabilization for radiocesium in the MSWI fly ashes.

### **P09 Determination of Strontium-90 in Food Samples Using Automatic Radiochemical Analysis System**

Shigeru Bamba<sup>1</sup>, Takahisa Matsue<sup>2</sup>, Ken Fujimori<sup>2</sup>, Hirofumi Seto<sup>2</sup>, Rie Kodama<sup>2</sup>, Takao Morimoto<sup>1</sup>, Masahiko Shibazaki<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Japan Chemical Analysis Center, <sup>2</sup>Precision Shibazaki Co., LTD)

The analysis of strontium 90 needs radiochemical separation, it is very time consuming, therefore it is difficult to analyze many samples. Japan Chemical Analysis Center and Precision Shibazaki Co., LTD has developed the Automatic Radiochemical Analysis System. This system can analyze strontium 90 in ashed food samples automatically, with the method based on MEXT's Radiation Measurement Method. Series No.2, Revised in 2003. In this study, to confirm the robustness and validity of the Automatic Radiochemical Analysis System, many kind of food samples were analyzed with this system. Minor troubles were observed in this study such as delay of filtration. The analysis system and the program of the control unit had been modified to prevent these problems. After improvement of the system, no troubles had been confirmed. About fifty ashed food samples were analyzed with the Automatic Radiochemical Analysis System, chemical recoveries of strontium in food samples were above 60%. Also the reference material (fish bone, distributed by The Japan Society for Analytical Chemistry) was analyzed, and its result was good agreement with the certified value.

The development of the Automatic Radiochemical Analysis System was carried out with supporting by JST(Japan Science and Technology Agency)-SENTAN program.

### **P10 Research of a rapid analysis for radiostrontium in sea water by ion exchange chromatography**

MINOWA, H.<sup>1</sup>, KATO, Y.<sup>2</sup>, OGATA, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Radioisotope Res. Facility, Jikei Univ., <sup>2</sup>Healthcare BU, Hitachi Ltd., <sup>3</sup>RIC Medical Division, Nagoya Univ.)

New standard method for the analysis of radiostrontium in environmental samples is desired against the conventional time-consuming complicated procedures with deleterious substances. The purpose of this work is to develop a simple, quick and safety analysis of radiostrontium. We applied an artificial seawater spiked with <sup>85</sup>Sr for a cation exchange column (Dowex<sup>TM</sup> 50W-X8). After loading the solution on the column to absorb cations, untargeted elements such as calcium and magnesium was washed out from the column with ammonium acetate-methanol solution. Continuously, strontium was eluted from the column with 4M HCl solution. Powdered-calcium carbonate was added and the eluate was heated for one hour at 80°C under alkali conditions (pH>9). Then, carbonate was precipitated by cooling at room temperature for one night. The precipitate was collected on a membrane filter (Isopore<sup>TM</sup>, Millipore Corp.), and packed after dried. The activity of <sup>85</sup>Sr in the precipitate was measured by a NaI detector (Ohyo Koken

Kogyo Co., Ltd.) and that in the solutions were determined using a well-type NaI gamma counter, ARC-7001 (Hitachi, Ltd.). Under appropriate conditions, strontium yield was 95%. The time required in this procedure was two days, although it took about two weeks in the conventional manner. Simple method for the analysis of radiostrontium in seawater became possible by this chemical separation procedure.

### **P11 Rapid source preparation for radiostrontium analysis using solid-phase extraction disk**

FUJII, K.<sup>1</sup>, KURIHARA, Y.<sup>2</sup>, OHBUCHI, A.<sup>3</sup>, NAKAMURA, T.<sup>4</sup>, KOIKE, Y.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ., <sup>2</sup>Org. Strategic Coordinant. Res. Intellect. Prop., Meiji Univ., <sup>3</sup>X-ray Inst. Div., Rigaku Corp., <sup>4</sup>Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ.)

Conventional analyses of Radiostrontium (<sup>90</sup>Sr) are time-consuming especially if secular equilibrium between <sup>90</sup>Sr and <sup>90</sup>Y needs to be achieved. An analytical method for Sr and Y in soil sample has been developed using the radiochemical separation with solid-phase extraction resin cartridges and disks. In this study, Sr, Y, and other  $\beta$ -ray emitting radionuclides in a geochemical reference material, JSO-1 (soil), were separated using a combination of two Sr resin<sup>®</sup> cartridges and DGA resin<sup>®</sup> cartridge. The soil sample pretreated with acidic cleavage was passed through these cartridges. Each eluate collected from two kinds of separated cartridge was loaded on the chelating disk. The disk-shaped chelating resin enables a simple concentration of Sr or Y in each eluate for X-ray fluorescence spectrometry. A spike test for two analytes showed good recoveries (about 100%) for soil sample. The present analytical method using solid-phase extraction disk for radiostrontium is more rapid than the conventional method.

### **P12 Ra isotopes in fresh groundwaters**

TOMITA, J.<sup>1</sup>, MIYATA, Y.<sup>2</sup>, HAMA, K.<sup>1</sup>, SAKAGUCHI, A.<sup>3</sup>, NAGAO, S.<sup>2</sup>, YAMAMOTO, M.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>2</sup>LLRL, Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Tsukuba Univ.)

To investigate the extent of Ra isotope activities and their constraining factor in the fresh groundwater systems, fresh groundwater samples were collected from Fukushima, Ibaraki and Gifu prefectures, Japan. Radium isotopes in the water samples collected were co-precipitated by BaSO<sub>4</sub>, and then, both <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra activities were measured by  $\gamma$ -ray spectrometry. The <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra activities of fresh groundwater samples ranged from 0.07 to 35 and less than detectable (0.15) to 76 mBq L<sup>-1</sup>, respectively. These values were lower than the guidance level of Ra in drinking water proposed by WHO (<sup>226</sup>Ra: 10<sup>3</sup>, <sup>228</sup>Ra: 10<sup>2</sup> mBq L<sup>-1</sup>). The <sup>226</sup>Ra activities (8.0-35 mBq L<sup>-1</sup>) of water samples from Gifu prefecture were higher than those from Fukushima (0.15-2.7 mBq L<sup>-1</sup>) and Ibaraki (0.07-2.9 mBq L<sup>-1</sup>) prefectures. The groundwater samples from Gifu



prefecture were more reducing and had higher salinity than those from Fukushima and Ibaraki prefectures. Therefore, Ra isotopes of the groundwater samples from Gifu prefecture were more easily maintained in the water phase than those of Fukushima and Ibaraki prefectures.

### **P13 Chemical forms of thorium and radium isotopes in silicate minerals**

SHIOBARA, R.<sup>1</sup>, KURIHARA, Y.<sup>2</sup>, NAKAMURA, T.<sup>3</sup>, KOIKE, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ., <sup>2</sup>Org. Strategic Coordinant. Res. Intellect. Prop., Meiji Univ., <sup>3</sup>Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ.)

The leaching efficiency of thorium and radium isotopes in radioactive minerals was mainly estimated to be dependent on the history of decay processes. From leaching experiments on some minerals, the observed leaching behavior could not be explained by decay processes. The chemical forms of radionuclides are also important factor for estimation of the leaching behavior of decay products of <sup>238</sup>U and <sup>232</sup>Th. The powder sample of silicate minerals was treated with the sequential extraction method recommended by Community Bureau of Reference (BCR). The BCR sequential extraction procedure was carried out for two silicate minerals; thorite and yttrialite. In fractions after the BCR three- or two-step sequential extraction procedure, the activity concentration of radium isotopes was determined by gamma-ray spectrometry, and that of thorium isotopes was determined by alpha-ray spectrometry coupled with an isotope dilution analysis, respectively. Thorium series nuclides leached more effectively than uranium series nuclides in yttrialite. Results of thorite was different from it of yttrialite. Therefore, it is assumed that leaching behavior of thorium and radium isotopes is depended on chemical forms in mineral.

### **P14 Improvements of rapidness for plutonium analysis in soil with a TEVA resin-Disc**

YAMAMORI, K.<sup>1</sup>, UESUGI, M.<sup>2</sup>, YOKOYAMA, A.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. School Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Adv. Sci. Res. Cent., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ.)

In case of the accident of nuclear facilities, rapid reports of monitoring results are required for safety management. In particular, plutonium quantitative analysis in a soil takes the most time among analyses until making a report. It usually takes at least five days to complete it. In a conventional analysis process, the purification and separation processes take about 12 h in order to remove co-existent interfering substances. Therefore, in this study, we improved the purification and separation processes by applying a TEVA resin disc that is one of solid-phase extraction tools instead of conventional method of the anion exchange resin.

The experimental results demonstrate the separation is completed in about 30 minutes and interfering species with U, Th and Am can be removed with slight volume of

washing liquid. Further, we achieved elimination of Pu without a reducing agent in the process. The recovery rate in the analysis has been improved by the use of potassium permanganate oxidation agent as well.

### **P15 Feasibility study of americium estimation method by alpha-ray measurement for age dating of single plutonium particles**

YASUDA, K., SUZUKI, D., KANAZAWA, K., MIYAMOTO, Y., ESAKA, F., MAGARA, M.

(Research Group for SG Analytical Chemistry, JAEA)

We are applying a screening technique with alpha-ray measurement to the analysis of particles containing nuclear materials in swipe samples. In the present study, individual plutonium particles with known purification dates prepared from a standard reference material (NBS SRM947) were measured with alpha-ray spectrometry. The obtained (<sup>241</sup>Am+<sup>238</sup>Pu)/<sup>239+240</sup>Pu activity ratios for the particles with the diameters of less than 2 micrometers were consistent with the reference values within the uncertainties. These results indicate that alpha spectrometry can be applied to the quantitative analysis of <sup>241</sup>Am in individual plutonium particles.

### **P16 Development of automatic sequential separation technique for ultra-trace multi-elements including actinides**

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

(Research Group for SG Analytical Chemistry, JAEA)

Plutonium and Americium in environment originate from nuclear bomb tests and accidental releases from nuclear power plants. Isotope ratios and elemental abundances of these actinides provide information on the source terms and the elapsed time. These ultra-trace elements in the environmental samples have to be separated from the matrix to measure the abundances precisely and accurately. It is essential to separate americium from lanthanides which may much exist in an analytical sample. But, it is hard to separate americium and lanthanides due to the similar chemical properties. In our previous works, we accomplished the development of sequential separation of U, Th, Pb, lanthanides and Pu using a single anion-exchange column and mixed acids. The objective of this work is to include americium sequential separation in this separation system. As a step toward this accomplishment, americium and lanthanides in a spike solution was separated by a well-established anion-exchange technique using a mixed media of methanol, hydrochloric acid, and ammonium thiocyanate. All americium was retained on the column in the lanthanides fraction, and 90% of them were yielded in the following objective fraction. However, the heavier lanthanides, including Sm to Lu were also eluted with Am in the objective fraction. This result indicates more effective eluent should be optimized.

**P17 Dosimetry study by electron spin resonance spectroscopy using milk teeth of children**

OKA, T.<sup>1</sup>, TAKAHASHI, A.<sup>2</sup>, KOARAI, K.<sup>3</sup>, NISHIYAMA, J.<sup>3</sup>, KINO, Y.<sup>3</sup>, SEKINE, T.<sup>1</sup>, SHIMIZU, Y.<sup>4</sup>, CHIBA, M.<sup>4</sup>, SUZUKI, T.<sup>4</sup>, OSAKA, K.<sup>4</sup>, SASAKI, K.<sup>4</sup>, SHINODA, H.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Institute for Excellence in Higher Education, Tohoku University, <sup>2</sup>Graduate School of Science, Tohoku University, <sup>3</sup>Tohoku University Hospital, <sup>4</sup>Graduate School of Dentistry, Tohoku University)

The release of radioactive materials from the nuclear power plant accident and the nuclear weapon tests in atmosphere results in an ionization radiation exposure to people, the precise dosimetry is required on the point of view of the radiation protection, radiation safety, and so on. Electron spin resonance (ESR) method is one of a powerful tool that has been used in the study of dosimetry by measuring CO<sub>2</sub> radicals of teeth. In this work, we attempted to isolate enamel from dentine by newly developed protocol, and the dosimetry of Japanese children was studied by ESR spectroscopy using milk teeth.

Intensity of the CO<sub>2</sub> radical of enamel isolated by the new protocol was similar to that of enamel isolated by the usual protocol. The new protocol can isolate enamel from dentine as same as the usual way, and much easier and faster than the usual way.

A part of this study is the result of "Establishment of the dosimetry protocol using milk teeth of children" carried out under the Strategic Promotion Program for Basic Nuclear Research by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan.

**P18 Efforts towards the environmental restoration in Fukushima Environmental Safety Center**

ABE H., YOSHIKAWA H., TOKIZAWA T., and ASAZUMA S.  
(JAEA)

Japan Atomic Energy Agency (JAEA) Fukushima Environmental Safety Center is conducting research/development and support activities towards the restoration of environment in Fukushima accompanied by the accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, and early return of the residents to their home town. JAEA has conducted R & D on the following three issues mainly (1)"Constructing monitoring system", (2)"Assessing radioactive-Cs migration in the environment" and (3) "Building of recontamination and volume reduction method for removed contaminated materials".

Some airborne monitoring systems were developed to estimate the environmental radioactivity level and to make air dose rate maps. For example, gamma rays from the ground are detected by LaBr<sub>3</sub> detector installed in an aircraft (e.g. un-manned helicopter). We applied these monitoring techniques above forest, cultivated land, and river side.

Transport behavior of radioactive-Cs was assessed from

contaminated forest to river and sea in Fukushima area, and some model of radioactive-Cs migration were developed to calculate air dose rate for the future biosphere to predict the radiation dose for the residents.

A computer simulation system for decontamination was developed to support the management of decontamination project of local government based on our pilot verification and knowledge database.

**P19 Changes of surface run-off substances and air dose rate in Fukushima mountainous forest**

ISHII, Y., MITACHI, K., ABE, H., and NIIZATO, T.  
(JAEA)

Mountainous forest is currently one of the most important sources of radioactive cesium released from the Fukushima daiichi Nuclear Power Plant Accident in Fukushima. This study reports the changes in amounts and concentrations of radioactive cesium of the surface run-off substances and dose rate at forest observation plots in Ogi district of Kawauchi-mura and Yamakiya district of Kawamata-machi, and Ogaki soil saving dam, Fukushima during 2013 - 2015.

**P20 Particle size and chemical form of atmospheric aerosols as a carrier of radioactive materials**

MURAMATSU, H.<sup>1</sup>, MATSUBARA, R.<sup>1</sup>, HIWATASHI, M.<sup>2</sup>, and KONDO, A.<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Fac. of Edu., Shinshu Univ., <sup>2</sup>Grad. Sch. of Edu., Shinshu Univ.)

Considerable amounts of radioactive material were released to the environment due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in March of 2011. It is important for us to solve the problems concerning migration and diffusion processes of radioactive materials in the environment. Making use of one of the cosmogenic radionuclides, <sup>7</sup>Be, we tried to estimate the particle size distributions of atmospheric aerosols attached <sup>7</sup>Be and the chemical form of atmospheric aerosol particles as a carrier of radioactive materials, by using a 12 stage cascade low pressure impactor (Tokyo Dylec Co., LP-20) and a high performance liquid chromatography (HPLC, Shimadzu). We found that there prominently exist SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and NH<sub>4</sub><sup>+</sup> for anion and cation species, respectively, in aerosol particles suspending in surface air. Average particle size of aerosols including SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> and NH<sub>4</sub><sup>+</sup> was estimated to be ca. 0.5-0.6 μm in diameter, which closely resembled that of <sup>7</sup>Be-aerosols. So, we conjecture that sulfate, probably ammonium sulfate, would be the potential transport medium for <sup>7</sup>Be.

**P21 Nationwide survey for <sup>129</sup>I activity concentration of surface soil in Japan - influence of the Fukushima Dai-ichi nuclear plant accident (FDNPA) -**

WANG, XS., YAMAMICHI, M., SHINOHARA, H., BAMBA S., OHTA, Y., ISOGAI, K.  
(Japan Chemical Analysis Center)

In order to investigate the impacts of radioactive iodine on the surface soil by the releases from FDNPA, nationwide survey for  $^{129}\text{I}$  (half-life:  $1.57 \times 10^7$  yrs) activity concentration was carried out by JCAC during the past three years, as a part of official environmental radioactivity monitoring consigned by MEXT and NRA. Samples (surface soil: 0-5cm depth) at 49 sites in the 47 prefectures of Japan were collected in 2010 and 2012, which are represented for before and after the accident, respectively. For the calculation of  $^{129}\text{I}$  of samples, an effective and reliable analytical technology for radioactive iodine reported recently was selected in this work, according to the isotopic ratio of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  by accelerator mass spectrometry and stable iodine  $^{127}\text{I}$  by inductively coupled plasma mass spectrometry. In addition,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  of same samples were measured by gamma-ray spectrometry to evaluate the origin of  $^{129}\text{I}$ .

As the results, both of the  $^{129}\text{I}$  activity concentration and isotopic ratio of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  after accident were observed higher for 16 sites located around the east area in Japan.  $^{137}\text{Cs}$  activity concentration presented an identical tendency to indicate the impacts on the surface soil of releases from FDNPA. Moreover, the correlation between the increment of  $^{129}\text{I}$  and  $^{134}\text{Cs}$  for total 13 sites (Iwate, Yamagata, Miyagi, Fukushima, Tochigi, Gunma, Saitama, Chiba, Tokyo, Kanagawa, Yamanashi, Nagano and Shizuoka), which could be observed  $^{134}\text{Cs}$  after accident among all of 49 sites, presented a good linear coefficient relationship after removal of the effect from fallout of nuclear test and operation of nuclear fuel reprocessing facilities located in the Europe. Therefore, it is reasonable to conclude that increment of  $^{129}\text{I}$  existed around the above-mentioned area (east Japan) is caused by the influence of FDNPA.

## **P22 Distribution of $^{129}\text{I}$ concentration in the Arctic Ocean and North Pacific**

KUDO, A.<sup>1</sup>, YAMAGATA, T.<sup>2</sup>, NAGAI, H.<sup>2</sup>, KUMAMOTO, Y.<sup>3</sup>, NISHINO, S.<sup>3</sup>, MATSUZAKI, H.<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Integ. Basi. Sci., Nihon Univ., <sup>2</sup>Coll. of Human. and Sci., Nihon Univ., <sup>3</sup>JAMSTEC., <sup>4</sup>MALT., Tokyo Univ.)

Measurements of the  $^{129}\text{I}$  concentration were conducted on surface water and depth profile samples collected in the North Pacific Ocean, Bering and Chukchi Seas and Arctic Ocean during the R/V Mirai MR-14-04,05 and MR-15-03 cruise in 2014-2015. The  $^{129}\text{I}$  concentration of the surface water in the Arctic Ocean ( $10.0 \times 10^7$  atoms/kg) was about ten times higher than in the North Pacific Ocean ( $1.47 \times 10^7$  atoms/kg) and Bering ( $1.17 \times 10^7$  atoms/kg) and southern Chukchi Seas ( $1.60 \times 10^7$  atoms/kg). The low  $^{129}\text{I}$  concentration in the southern Chukchi Sea reflect inflow of the low  $^{129}\text{I}$  Pacific Water through the Bering Strait. The vertical profile at stn.009 ( $75^\circ\text{N}, 162^\circ\text{W}$ ) in the Arctic Ocean indicates the presence of the Atlantic Water in 300-800m depth with  $^{129}\text{I}$  concentration up to  $114 \times 10^7$  atoms/kg, which is slightly higher than in 2013 ( $89 \times 10^7$  atoms/kg). The increase of  $^{129}\text{I}$  concentration indicates the effect of continuing discharge from the nuclear fuel

reprocessing facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France). The  $^{129}\text{I}$  inventory at stn.073 ( $47^\circ\text{N}, 160^\circ\text{E}$ ) was estimated to  $2.7 \times 10^{12}$  atoms/ $\text{m}^2$ , which was fairly lower than in 2012 ( $4.3 \times 10^{12}$  atoms/ $\text{m}^2$ ). The decrease may be explained as removal of the  $^{129}\text{I}$  enriched seawater released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident by lateral transportation.

## **P23 Recent levels of environmental tritium in Niigata prefecture**

SEINO, U., KOHNOSU, Y., YAMAZAKI, K., MARUTA, F.  
(Niigata Prefectural Institute of Environmental Radiation Monitoring)

Radioactive concentrations of tritium in precipitation, air moisture, fresh water and seawater were investigated to monitor the influence of Kashiwazaki Kariwa Nuclear Power Station and to clarify recent levels of environmental tritium in Niigata prefecture.

Tritium was analyzed using liquid scintillation counting. Recent concentrations of environmental tritium in Niigata prefecture were less than the detection limit of liquid scintillation counting without tritium enrichment. (about 0.4Bq/L) In this study, all samples were analyzed using enrichment by electrolysis of solid polymer electrolyte before liquid scintillation counting. Therefore, the values of low concentrated samples were able to determine.

The mean concentration of precipitation and air moisture were 0.53 Bq/L and 0.59 Bq/L in last five years. The mean concentration of fresh water and seawater were 0.37 Bq/L and 0.098 Bq/L in last three years.

The value of internal radiation exposure that was calculated using typical concentrations of environmental tritium in Niigata prefecture was much lower than radiation dose limit (1mSv/year).

## **P24 Development for mock-up gamma-ray source applied by SLA 3D printer and natural radionuclide**

NISHIMAGI, S.<sup>1</sup>, KOIKE, Y.<sup>2</sup>, TAKAHASHI, M.<sup>3</sup>, SAITO, T.<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Shokei Gakuin Univ., <sup>2</sup>Sch. Sci. & Tech., Meiji Univ., <sup>3</sup>DASH, Osaka Univ.)

When the radioactivity in environmental samples was quantified by gamma-ray spectrometry, geometric conditions of the sample greatly affect the measurement.

It is ideal that the valuable sample (e.g. archaeological collection) is measured by non-destructive measurement. Hence, it was attempted that the mock-up gamma-ray source is manufactured and non-destructive measurement by using a 3D scanner and stereolithography apparatus (SLA) type 3D printer.

The light curable resin for 3D printer was mixed with  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ , which was known the radioactivity. And the digital data of the sample (hokutolite) that was modeled in 3D scanner has created a mock-up gamma-ray source in the SLA printer.

The sample and the mock-up source, respectively, were placed on a jig and measured by gamma-ray spectrometry. The efficiency curve was parallel translation by using the obtained radioactivity. Then, concentration of the sample was calculated by the detection efficiency of the translated efficiency curve.

The radium concentration of hokutolite used by non-destructive samples were 30 - 60Bq/g, and, were relatively close values of previous reports. Therefore by utilizing the measurement method, it has enabled non-destructive measurement of radioactivity sample having an arbitrary shape.

#### **P25 Development of preparation method of radiocarbon dating of bronze implement: On the decomposition temperature of basic copper (II) carbonate, verdigris and malachite**

ODA, H.<sup>1</sup>, YAMADA, T.<sup>2</sup>, TSUKAMOTO, T.<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>ISEE., Nagoya Univ., <sup>2</sup>Gangoji Institute Res. Cultural Property)

Verdigris is rust generated in bronze implement. It is produced from Cu contain in bronze and CO<sub>2</sub> in the atmosphere. Once verdigris is formed, it has the property which prevents formation of a new verdigris more. Extraction and radiocarbon dating of the carbon contained in verdigris give the age in which the rust was formed is obtained, and also estimation of the age for which bronze ware was used. Usually, in radiocarbon dating of verdigris, CO<sub>2</sub> is emitted by heating at 2h and 250°C. However, the condition was determined by artificially synthesized CuCO<sub>3</sub> · Cu(OH)<sub>2</sub>, not necessarily optimal condition for the verdigris generated in bronze implement. In this study, therefore, we searched for the temperature of carbon extraction from synthesized CuCO<sub>3</sub> · Cu(OH)<sub>2</sub>, verdigris generated in bronze implement and malachite. The yield of CO<sub>2</sub> from synthesized CuCO<sub>3</sub> · Cu(OH)<sub>2</sub> saturated at 250°C and that of malachite saturated at 350°C. Verdigris emitted CO<sub>2</sub> over 250 °C. The yield increased with increasing temperature. It can be caused by release carbon in the impurities with increasing temperature.

#### **P26 Development of rapid <sup>14</sup>C-AMS using CO<sub>2</sub> gas ion source**

MATSUNAKA, T., SASA, K., HOSOYA, S., TAKAHASHI, T., MATSUMURA, M., SUEKI, K.  
(AMS group, Univ. of Tsukuba)

To develop the rapid <sup>14</sup>C measurement system, gas ion source and automatic sample preparation system were installed with tandem accelerator at the University of Tsukuba. Technical innovation of accelerator mass spectrometry system for <sup>14</sup>C is expected in terms of speed-up and high repeatability without graphite treatment in the sample preparation. An optimum CO<sub>2</sub> flow ratio of 1.6 μl min<sup>-1</sup> to the gas source was determined by keeping constant pressure of 11 – 12 Torr in manifold and sample bellow of gas handling system, and maximum <sup>12</sup>C<sup>-</sup> current

of 4.4 – 4.6 μA were extracted from the gas source. The ratios of <sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C and <sup>14</sup>C/<sup>13</sup>C in the CO<sub>2</sub> samples (500 μgC and 1 mgC), which were purified from IAEA-C1, IAEA-C7, and NIST-HOxII using automatic sample preparation system, were measured by the tandem accelerator. A terminal voltage of 3 MV was chosen for acceleration and <sup>14</sup>C<sup>3+</sup> was counted by gas detector. The concentrations of <sup>14</sup>C in CO<sub>2</sub> were calculated to be 49.11±0.57 pMC (percent modern carbon) for IAEA-C7 and 132.14±1.14 pMC for NIST-HOxII, which were overlapped with each consensus values within the error range. The error of <sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C in NIST-HNOxII was 0.6%, meanwhile, background of gas source was 0.48±0.05 pMC (42,920 year BP).

#### **P27 Chelate extraction of group 4 elements, Zr and Hf, using a flow injection analysis method**

YAMADA, R.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>1</sup>, GOTO, S.<sup>1</sup>, KUDO, H.<sup>2</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>, KOMORI, Y.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Niigata Univ., <sup>2</sup>Fac. of Sci., Niigata Univ., <sup>3</sup>RIKEN Nishina Center.)

In the previous study, we investigated solvent extraction behavior of Zr and Hf, which were homologs of Rf using di(2-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP) and 2-thenoyltrifluoroacetone (TTA) as chelate extractants. However, these solvent extraction experiments by a batch method required shaking time of several ten minutes to reach extraction equilibrium. Therefore, more rapid extraction is necessary for short-lived Rf experiment. In this study, we performed chelate extraction of Zr and Hf with a rapid extraction apparatus using a flow injection analysis (FIA) method. Radiotracers of <sup>88</sup>Zr and <sup>175</sup>Hf were produced by irradiating <sup>89</sup>Y and <sup>nat</sup>Lu targets with a deuteron beam using the AVF cyclotron at RIKEN. Perchloric or nitric acid solution containing these radiotracers was pumped by a double plunger pump and mixed with TTA or HDEHP in toluene solution in an extraction coil. After centrifugation of the effluent from the extraction coil, the aliquot of each phase was subjected to γ-ray spectrometry using a Ge detector. Dependences of distribution ratios (*D*) of Zr and Hf on contact time in the extraction coil showed that the *D* values with contact time of around 13 s were about one-tenth of those obtained in the batch experiments. Therefore, contact time should be increased to attain extraction equilibrium.

#### **P28 Solvent extraction behavior of lighter homologs of rutherfordium, zirconium and hafnium, with 4-isopropyltropolone**

OOE, K.<sup>1</sup>, YAMADA, R.<sup>1</sup>, GOTO, S.<sup>1</sup>, KUDO, H.<sup>2</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>, KOMORI, Y.<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Niigata Univ., <sup>2</sup>Fac. of Sci., Niigata Univ., <sup>3</sup>RIKEN Nishina Center)

We have been investigating chelate extraction behavior of Zr and Hf with TTA and HDEHP for aqueous chemical studies of element 104, Rf. However, it takes about several

tens of minutes to attain extraction equilibrium with these chelating agents. In this study, 4-isopropyltropolone (IPT), which showed fast kinetics in the extractions of Mo and W, was used for chelate extraction of Zr and Hf. Radiotracers of  $^{88}\text{Zr}$  and  $^{175}\text{Hf}$  were produced using the AVF cyclotron at RIKEN. These radiotracers were chemically separated from target materials. Sulfuric acid solution containing the radiotracers was mixed with an equal volume of IPT in toluene solution. After shaking and centrifugation, the aliquot of each phase was separated and subjected to  $\gamma$ -ray spectrometry using a Ge detector. The dependences of distribution ratios of Zr and Hf on shaking time showed that the extraction equilibrium for Zr and Hf in 3 M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  was attained within 45 s. This time for equilibrium with IPT is very fast compared to TTA and HDEHP extraction, and this extraction system would be applicable to Rf experiment. In the presentation, we will also report the mechanism of Zr and Hf extraction with IPT.

**P29 Extraction of group-5 elements, Nb and Ta, from HF solutions into Aliquat 336 resin: dependence of the distribution coefficients on the extractant concentration**

SATO, D.<sup>1</sup>, MURAKAMI, M.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>1</sup>, MOTOYAMA, R.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>2</sup>, KOMORI, Y.<sup>2</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>3</sup>, MITSUKAI, A.<sup>3</sup>, KIKUNAGA, H.<sup>4</sup>, GOTO, S.<sup>1</sup>, KUDO, H.<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. Sci. and Tech., Niigata Univ., <sup>2</sup>Nishina Center for Accelerator Based Science, RIKEN., <sup>3</sup>Japan Atomic Energy Agency., <sup>4</sup>Research Center for Electron Photon Science, Tohoku Univ., <sup>5</sup>Department of Chemistry, Niigata Univ.)

We studied liquid-liquid and solid-liquid extraction behaviors of Nb and Ta from HF solutions with Aliquat 336 for the chemical experiment of Db. However, the chemical behavior of Nb in liquid-liquid extraction was different from that in the solid-liquid extraction. This discrepancy may be attributed to the difference in extracted species in both extractions. In this work, dependence of the distribution coefficient ( $K_d$ ) of Nb and Ta on the Aliquat 336 concentration in resin was studied to clarify the extracted species in the solid-liquid extraction. Radiotracers of  $^{95}\text{Nb}$  and  $^{179}\text{Ta}$  were dissolved in HF solutions of various concentrations and then were mixed with the 20-52 wt% Aliquat 336 resin in a syringeless filter tube. After shaking and filtration, each supernatant was separately collected in a sample tube, and was subjected to  $\gamma$ -ray spectrometry to deduce the  $K_d$  values. As the result, dependence of  $K_d$  values on the extractant concentration showed a linear relation for both Nb and Ta. This result is different from that in the liquid-liquid extraction in which the same slope value was obtained for Nb and Ta. In the presentation, the results in other HF concentration will also be reported and compared with the results of our previous liquid-liquid extraction.

**P30 Solvent extraction of Nb and Ta with triisooctyl amine from hydrochloric acid solution—Effect of the preparation method of Ta tracer—**

MOTOYAMA, R.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>1</sup>, MURAKAMI, M.<sup>2</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>, GOTO, S.<sup>1</sup>, KUDO, H.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Niigata Univ., <sup>2</sup>JAEA, <sup>3</sup>RIKEN Nishina Center <sup>4</sup>Fac. of Sci., Niigata Univ.)

We carried out the solvent extraction of niobium (Nb) and tantalum (Ta) with triisooctyl amine in xylene solution from hydrochloric acid solution for chemical experiment of dubnium (Db). It has been reported that the extraction yield of Nb is greater than that of Ta in this system. Radiotracers,  $^{95}\text{Nb}$  and  $^{179}\text{Ta}$ , were produced in the  $^{nat}\text{Zr}(d, xn)$  and  $^{nat}\text{Hf}(d, xn)$  reactions, respectively. These radiotracers were chemically isolated by an anion-exchange method. The tracers were preserved in 1 M HF (stock solution). An aliquot of the stock solution was evaporated to dryness and the residue was dissolved in 10 M HCl. Aqueous solution of 10 M HCl containing the tracers (and carriers) was mixed with an equal volume of 0.12 M TiOA in xylene solution, and the mixture was shaken for fixed time. The radioactivity of each phase was measured by a Ge detector. The concentration of stable isotope of aqueous phase was measured by ICP-AES. The results showed that when Ta tracer was evaporated to dryness with 1 M HF and conc. HCl after evaporation of the stock solution of Ta, the distribution ratio ( $D$ ) of Ta became lower. It also became lower, when carriers were added.

**P31 Solvent extraction of W in the HF-Aliquat336 solution systems using a flow solvent extractor**

MITSUKAI, A.<sup>1,2</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>2</sup>, KOMORI, Y.<sup>3</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>, ASAI, M.<sup>2</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, SATO, T.K.<sup>2</sup>, NAGAME, Y.<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Eng., Ibaraki Univ., <sup>2</sup>Advanced Sic. Res. Center., JAEA, <sup>3</sup>Nishina Center, RIKEN)

Recently, we have started studying a new experimental method using a rapid and continuous solvent extraction apparatus FSE (Flow Solvent Extractor) for the aqueous chemistry of the heaviest elements. In this work, solvent extraction behavior of W, which is the lighter homologue of Sg, was examined from HF into toluene with an amine extractant Aliquat336 by a batch method. In the experiments, the radioisotope  $^{181}\text{W}$  ( $T_{1/2} = 121.8$  d) was produced in the  $^{181}\text{Ta}(d, 2n)^{181}\text{W}$  reaction and was used as a radiotracer after the separation from the Ta target. After purification,  $^{181}\text{W}$  dissolved in  $10^{-4}$  M HF / 1 M HCl as stock solution. 700  $\mu\text{L}$  of aqueous solution containing 10  $\mu\text{L}$  of the stock solution mixed with same volume of the organic solution. The mixture was then shaken for 10 minutes, centrifuged 30 seconds and 500- $\mu\text{L}$  aliquots were separately taken from both the phases into plastic tubes. These two samples were then separately subjected to  $\gamma$ -ray spectrometry with a Ge detector to determine the amounts of  $^{181}\text{W}$  in the two phases. Distribution ratio ( $D$ ) was defined by the equation of  $D = (A_{\text{org}} / V_{\text{org}}) / (A_{\text{aq}} / V_{\text{aq}})$ , where  $A_{\text{org}}$  and  $A_{\text{aq}}$  are the radioactivities in organic and

aqueous phases, respectively, and  $V_{\text{org}}$  and  $V_{\text{aq}}$  are volumes of organic and aqueous phases, respectively.  $D$  values were then examined as a function of HF concentration in the range of concentration from  $10^{-4}$  to 5 M. As a result,  $D$  values of W were increased above  $10^{-2}$  M. This shows that anionic fluoride complexes are extracted by Aliquat336.

### **P32 Redox and solvent extraction behavior of astatine**

TOYOSHIMA, A.<sup>1,2,3</sup>, KANDA, A.<sup>2</sup>, IKEDA, T.<sup>4</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>5</sup>, SHINOHARA, A.<sup>2</sup>, YANO, S.<sup>3</sup>, KOMORI, Y.<sup>3</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Advanced Sci. Res. Center, Japan Atomic Energy Agency, <sup>2</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>3</sup>Nishina Center for Accelerator-based Sci. RIKEN, <sup>4</sup>Fac. of Sci., Osaka Univ., <sup>5</sup>Radioisotope Center, Osaka Univ.)

Astatine (At) is reported to be oxidized more easily than its homolog iodine. Champion *et al.* recently reported redox potentials of At in 0.1 M HClO<sub>4</sub>. However, the reported reactions are still ambiguous because they only observed variations of adsorption or extraction values as a function of potential given by redox couples. In this presentation, we will report redox and solvent extraction behavior of At investigated using a flow electrolytic column (FEC) apparatus. <sup>211</sup>At with a half-life of 7.22 h was produced in the <sup>209</sup>Bi( $\alpha$ , 2n)<sup>211</sup>At reaction at the AVF cyclotrons of RCNP, Osaka University and RIKEN Nishina Center. After the irradiation, <sup>211</sup>At was separated from the Bi target by a distillation method. Then, electrolysis of At was carried out using a FEC in 1.0 M HClO<sub>4</sub>. After the electrolysis, solvent extraction with HDEHP was performed to identify the oxidation states. The extraction yields increased gradually in the potential range between -0.2 and 0.2 V vs. a SSE, were constant within the error from 0.2 V to 0.6 V, and showed a higher value at 0.8 V. The step-wise increases of the extraction yields seem to be due to the oxidation of At ions.

### **P33 Production of Highly-purified <sup>67</sup>Cu for Cancer Therapy with Accelerator Neutrons by Deuterons**

HASHIMOTO, K.<sup>1</sup>, KAWABATA, M.<sup>2</sup>, SAEKI, H.<sup>2</sup>, SATO, S.<sup>2</sup>, TSUKADA, K.<sup>3</sup>, SUGO Y.<sup>1</sup>, NAGAI Y.<sup>1</sup>, HATSUKAWA, Y.<sup>1</sup>, WATANABE, S.<sup>1</sup>, ISHIOKA, N. S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, <sup>2</sup>Chiyoda Technol Corporation, <sup>3</sup>Japan Atomic Energy Agency,)

Copper-67 is an attractive radionuclide for cancer therapy, because of emissions of medium energy beta particle (a mean energy of 141 keV) and gamma rays (91, 93, 185 keV) suitable for imaging, and its appropriate half-life (62 hours). However, the use of <sup>67</sup>Cu in clinical research has been limited due to the difficulty in obtaining a sufficient amount of <sup>67</sup>Cu. In this study, we have investigated the production of <sup>67</sup>Cu by the <sup>68</sup>Zn( $n, x$ )<sup>67</sup>Cu reaction ( $x=n'p, d$ ) using fast neutrons from the <sup>nat</sup>Be( $d, n$ ) reaction. The highly-purified <sup>67</sup>Cu was obtained from an irradiated <sup>68</sup>ZnO sample which includes <sup>65</sup>Ni, <sup>67</sup>Ga, <sup>65,69m</sup>Zn etc. by three columns (cation exchange resin

AG50W, chelate resin chelex-100 and anion exchange resin AG1-X8). By using the obtained <sup>67</sup>Cu solution, the specific radioactivity of <sup>67</sup>Cu was estimated by the dependence of DOTA concentration upon the labeling yield of <sup>67</sup>Cu-DOTA.

### **P34 Development of a <sup>211</sup>Rn/<sup>211</sup>At Generator with a Closed Extraction System of Syringes via the Determination of the Relevant At/Rn Separation Factor**

YAMADA, N.<sup>1</sup>, SHIN, Y.<sup>2</sup>, OOE, S.<sup>2</sup>, MURAKAMI, K.<sup>2</sup>, HASHIMOTO, K.<sup>3</sup>, NISHINAKA, I.<sup>3</sup>, WASHIYAMA, K.<sup>4</sup>, YOKOYAMA, A.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Coll. and Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>QuBS., QST., <sup>4</sup>Inst. Med. Pharm. Health Sci., Kanazawa Univ.)

<sup>211</sup>At ( $T_{1/2} = 7.2$  h) is an  $\alpha$ -emitter, which has the advantages of limiting radiation damage outside a tumor and high efficiency of energy transfer to the tumor. However, the nuclide has a limit of usage in time and in a remote location due to its short half-life. Thus, we have been developing the <sup>211</sup>At generator by milking from <sup>211</sup>Rn ( $T_{1/2} = 14.6$  h). In present study, we investigated separation factor in the dodecane and alcohol solution systems to look for a better combination for extraction. <sup>211</sup>Rn was produced in the <sup>209</sup>Bi( $^7\text{Li}, 5n$ )<sup>211</sup>Rn reaction at the JAEA tandem accelerator. The target was dissolved in a HNO<sub>3</sub> solution and the product was extracted to dodecane. The dodecane was sealed in a syringe. The syringe was connected to another syringe filled with an alcohol solution of methanol or ethanol with N-Bromosuccinimide. After mixing and separation of the phases, the activities of <sup>211</sup>Rn and <sup>211</sup>At in the solution was measured by Ge detector and PERALS liquid scintillation system. The separation factors were obtained from the data. These results show that the factors in ethanol are higher than those in methanol and the best factor of  $22 \pm 1$  is attained for 90% ethanol.

### **P35 An attempt for separation/labeling of <sup>211</sup>At with resin-supported organotin reagents**

KANDA, A.<sup>1</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>1,2</sup>, IKEDA, T.<sup>3</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>4</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>Advanced Sci. Res. Center, Japan Atomic Energy Agency, <sup>3</sup>Fac. of Sci., Osaka Univ., <sup>4</sup>Radioisotope Center, Osaka Univ.)

Recently, <sup>211</sup>At ( $T_{1/2} = 7.2$  h) is the focus of attention for its potential applicability for alpha targeted therapy. In this study, we are attempting to simplify the purification and preparation procedures of <sup>211</sup>At-labelled compounds by developing a resin which can perform purification and labeling at the same time, with focusing on the difference in chemical reactivity between astatine and bismuth. The resin was prepared to support 3-trimethylstannyl benzoic acid N-hydroxysuccinimide ester for labeling astatine to antibodies. Astatine-211 was produced with a bismuth oxide target in the reaction of <sup>209</sup>Bi( $\alpha, 2n$ )<sup>211</sup>At at the AVF

cyclotron of RCNP, Osaka Univ. After dissolution and pH adjustment, 5 ml of the  $^{211}\text{At}$  solution was reacted with 1.5 g resin under an oxidative condition of N-iodosuccinimide (NIS) to replace trimethylstannyl group with astatine. After all residual stannyl groups were replaced to iodine with an excess of NIS, 5 ml of n-butylamine 15 mg/ml solution was added and stirred for 20 min. The supernatant was analyzed by HPLC and a gamma counter. As a result, the replacement of trimethylstannyl group and astatine was observed. However, subsequent labeling with the ammine was not observed. In addition, astatine was reacted with aromatic rings of styrene residue rather than trimethylstannyl group. Presently, availability of various base resins without aromatic rings is examined and each preparation procedure is optimized with  $^{125}\text{I}$ .

### **P36 Development of Real-Time RI Imaging System to Visualize Ion Transport in Plants.**

SUGITA R.<sup>1</sup>, KOBAYASHI I. N.<sup>1</sup>, HIROSE A.<sup>1</sup>, TANOI K.<sup>1,2</sup>, NAKANISHI M. T.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo, <sup>2</sup>PRESTO, Japan Science and Technology Agency (JST))

We have been developing the real-time radioisotope imaging system (RRIS) to visualize the element absorption manner in plants, non-destructively, using the commercially available radioisotopes. The system enabled to image how the radioisotope was taken up by the root and the following translocation and accumulation manner in the whole plant, after application of the radioisotope to a culture solution. Further, we also developed the system to visualize the assimilation process of  $^{14}\text{CO}_2$  gas supplied from the up-ground part. When each radioisotope,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{28}\text{Mg}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{42}\text{K}$ ,  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ , and  $^{137}\text{Cs}$ , was employed as an ion tracer, ion movement from root to shoot over 24 h was clearly observed in *Arabidopsis*. Among these nuclides,  $^{28}\text{Mg}$  and  $^{42}\text{K}$  are not commercially available because of their very short half-lives. In the case of  $^{28}\text{Mg}$  (half-life: 21 hours), we produced  $^{28}\text{Mg}$  by irradiating Al foil with He beam using an accelerator.  $^{42}\text{K}$  (half-life: 13 hours) was prepared from  $^{42}\text{Ar}$  gas, sealed in a cylinder, by the milking method. The distribution profile along the main branch was flat for  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{42}\text{K}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ , and  $^{137}\text{Cs}$ . In contrast, high accumulation in the basal part of the main branch was found for  $^{28}\text{Mg}$ ,  $^{45}\text{Ca}$ , and  $^{54}\text{Mn}$ .

### **P37 Muonic atom extraction experiment by using intense negative muon beam at J-PARC MUSE**

YOSHIDA, G.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>1</sup>, INAGAKI, M.<sup>1</sup>, TOYODA, M.<sup>1</sup>, AOKI, J.<sup>1</sup>, KAWAMURA, N.<sup>2</sup>, MIYAKE, Y.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. sch. Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>KEK)

Muonic atom is an atomic system which has a negative muon substituted an electron. Due to a muon mass is 200 times heavier than an electron, the radius of muonic

orbital is much smaller than electronic orbital. Therefore, the charge of nucleus (Z) is strongly shielded by the atomic muon, and electron arrangement of muonic Z atom is similar to that of Z-1 atom, but the detail still has not been investigated. The final goal of our study is investigation of chemical properties of muonic atom by provoking chemical reaction. For this purpose, we aim to establish muonic atom beam extraction and handling technique. It is known that muonic atom becomes highly positive charged ion just after its formation, because muon is captured in a highly excited state of atom and immediately de-excites to muonic ground state by emitting Auger electrons. Using this property of muonic atom, we had developed the muonic atom extraction system by time of flight technique using electric field. In the presentation, we will report present status on development of muonic atom extraction system and preliminary result of accelerator experiment at J-PARC.

### **P38 Mössbauer Spectroscopic Study on the Composition of Fe-containing Chondrites**

NAKAGAWA, M.<sup>1</sup>, KANO, Y.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>1,2</sup>, EBIHARA, M.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. School Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Grad. School Sci. Eng., Tokyo Metropolitan Univ.)

Chondrites are the most primary source of parent bodies; compositional studies on minerals containing iron, the main constituent element of chondrites, are therefore very important for obtaining information on the formation process of our solar system. In this work, we obtained room-temperature Mössbauer spectra for the compositional study of an ordinary chondrite Saratov (L4) and a carbonaceous chondrite Allende (CV3). The spectrum observed for Saratov consists of components assignable to olivine, pyroxene, FeS, Fe-Ni, and Fe<sup>3+</sup>-containing phase, and that for Allende only olivine, FeS, and Fe<sup>3+</sup> phase. In the present paper, we propose a new method for the chemical classification of chondrites using literature values of the Mössbauer parameters reported for other various chondrites in addition to our data of Saratov and Allende. The correlation between the atomic ratio of iron in oxidized minerals (silicate and oxide) and that in reduced minerals (Fe-Ni and FeS) demonstrates the possibility of their chemical classification. In the presentation, we also discuss other ways for the classification.

### **P39 Chemical states of iron in the ancient woods excavated from the foothills of Mt. Chokai and their ashes**

YAMAUCHI, S.<sup>1</sup>, KURIMOTO, Y.<sup>1</sup>, YAMAGISHI, T.<sup>2</sup>, SAKAI, Y.<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Akita Pref. Univ., <sup>2</sup>Seikei Univ., <sup>3</sup>Daido Univ.)

Umoregi is ancient wood buried under the ground for a long time and much more expensive than ordinary wood as material for furniture or construction owing to its dark

color tone. Ash made from umoregi was sold in as a top-quality products because of its smoothness. Umoregi is often iron-rich, and iron has been expected to be the cause of umoregi color. Few reports are, however, available on iron contained in Umoregi or its ash.

To understand the chemical states of iron species, we recorded Mössbauer spectra of umoregi woods and their ashes. Umoregi woods were sugi, keyaki, konara and kuri buried about 2,500 years ago and excavated from the foothills of Mt. Chokai. Sugi and keyaki are dark brown and deep green, respectively. Konara and kuri are black. From the Mössbauer parameters, iron contained in umoregi woods was likely to be high-spin  $\text{Fe}^{3+}$  and  $\text{Fe}^{2+}$  was undetectable. The Mössbauer spectra of umoregi ashes showed several sextets, suggesting that the ashes contain  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$ , and  $\text{CaFe}_2\text{O}_4$ .

#### **P40 Calcium substitution effect on magnetic properties of $\text{Sr}(\text{Sn}_{(1-x)}\text{Fe}_x)\text{O}_{3-\delta}$**

SHIGEYO SUZUKI<sup>1</sup>, TOMOYA MIZUNUMA<sup>1</sup>, KIYOSHI NOMURA<sup>1,2</sup>, ATSUSHI OKAZAWA<sup>3</sup>, YUYA KOIKE<sup>1</sup>.

(<sup>1</sup>Meiji Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Sci., <sup>3</sup>Tokyo Univ.)

It was reported that  $\text{SrSn}_{(1-x)}\text{Fe}_x\text{O}_3$  with  $x \geq 8\%$  shows the ferromagnetism. It could be applied to RT dilute magnetic semiconductor. In this report, the chemical pressure on  $\text{SrSn}_{0.92}\text{Fe}_{0.08}\text{O}_3$  was studied by doping Ca ions into Sr sites.  $\text{Sr}_{(1-y)}\text{Ca}_y\text{Sn}_{(1-x)}\text{Fe}_x\text{O}_3$  were prepared by using a sol-gel method and heated at 400 °C for 2 hours and at 1000 °C for 2 hours. These oxides were investigated by X-ray diffractionmetry (XRD), a vibrating sample magnetometer (VSM) and Mössbauer spectrometry. Perovskite oxides with 30 - 40 nm in diameter were obtained and the lattice parameters decreased with the increase of Ca doping rates. All samples showed the larger ferromagnetism than  $\text{SrSnFeO}_{3-\delta}$  without Ca. Only paramagnetic doublets were observed in the Mössbauer spectra of  $\text{SrSnO}_3$  doped with less than 10 % Ca although the VSM results showed ferromagnetism. The substitution of Sr site by Ca ions decreased the volume of unit cell. It is considered that the chemical pressure due to the decrease of lattice parameter enhanced the ferromagnetism.

#### **P41 Separation and purification of Pm for $\text{Pm}@C_{2n}$ synthesis with higher specific radioactivity**

MIYAUCHI, S.<sup>1</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, KIKUNAGA, H.<sup>2</sup>, KUBUKI, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>ELPH, Tohoku Univ.)

Endohedral metallofullerenes (EMFs), which are fullerenes including metal atoms, have attracted interest because of their unique physical and chemical properties. Previously, we reported the synthesis of  $\text{Pm}@C_{2n}$  using  $^{143}\text{Pm}$  produced by photonuclear reaction of natural Sm and revealed that the oxidation state of Pm in the  $C_{82}$  fullerene cage is +3. However, further information about

the properties of  $\text{Pm}@C_{2n}$  has not been obtained because of large amount of Sm preventing the synthesis of  $^{143}\text{Pm}@C_{2n}$  with high specific radioactivity in spite of the requirement of the high specific radioactivity. Therefore, we tried to separate Pm from large amount of Sm by cation exchange chromatography.

The commercially produced cation exchange column of Inertsil CX (GL Science inc.) was employed for the Pm separation using 0.2 M  $\alpha$ -hydroxoisobutyric acid ( $\alpha$ -HIBA) as the eluent.

As the results of HPLC separation, Sm and Pm were observed in the fraction from 18 to 22 minute and from 22 to 30 minute, respectively. The value of peak resolution evaluated from these retention time is found to be 1.65. In conclusion, the specific radioactivity of  $^{143}\text{Pm}$  would be estimated to be 1700 times larger than before separation if the fraction from 22 to 30 minute are collected under above separation condition.

#### **P42 Dependence of valence states of molybdenum for its isotope separation coefficients**

TACHIBANA, Y.<sup>1</sup>, KANESHIKI, T.<sup>2</sup>, NOGAMI, M.<sup>3</sup>, SUZUKI, T.<sup>1</sup>, NOMURA, M.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Eng., Nagaoka Univ. of Tech., <sup>2</sup>Lab. for Advanced Nuclear Energy, Tokyo Institute of Technology, <sup>3</sup>Fac. of Sci. and Tech., Kindai Univ.)

$^{99m}\text{Tc}$  with  $T_{1/2} = 6.015$  h is of great interest to the medical application of nuclear diagnostics.  $^{99}\text{Mo}$  which is a raw material of  $^{99m}\text{Tc}$ , is produced by using nuclear research reactors with highly enriched  $^{235}\text{U}$  and supplier have some serious worries for nuclear proliferation. Therefore, it has been strongly expected to develop novel domestic production technologies of  $^{99}\text{Mo}$  without highly enriched  $^{235}\text{U}$ . Recently, some researchers have suggested to produce  $^{99}\text{Mo}$  by means of  $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ ,  $^{100}\text{Mo}(n, 2n)^{99}\text{Mo}$  reactions. However, before their reactions, it has also been required to enrich  $^{98}\text{Mo}$  or  $^{100}\text{Mo}$  previously for preparation of the enriched  $^{99}\text{Mo}$  because of comparatively low natural abundance of  $^{98}\text{Mo}$  and  $^{100}\text{Mo}$ . So we have performed some chromatographic isotope separation experiments of hexavalent Mo using typical resins in aqueous HCl solutions and we still have not obtained satisfied isotope separation coefficients of hexavalent Mo. To improve them dramatically, we have focused on chemical behavior between pentavalent and hexavalent states on chromatographic fractionation of Mo isotope in aqueous HCl solutions. Based on this viewpoint, we have examined on the effect of valence state for Mo isotope fractionation behavior using typical anion-exchange resins in HCl solutions.

#### **P43 Inspection of rotating object with positron-emitting nuclides**

KAMBARA, T., YOSHIDA, A., HABA, H.  
(RIKEN Nishina Center)

We develop a method to image the 2-dimensional distribution of an RI source of a positron-emitting nuclide



on a rotating object for industrial applications. The method is same in principle as 2-dimensional positron-emission tomography (PET) but the instrument is simpler and less expensive with minimal composition of detectors. A pair of collimated detectors is on the both sides of a continuously rotating object with positron-emitting source and makes linear back-and-forth motion. When the source is on the line between the detectors (LOR) two 511-keV gamma-ray photons from positron annihilation can be detected simultaneously. A sinogram is obtained from the detection rate plotted as a function of the rotation angle and displacement of LOR.

We have tested the method with a prototype instrument with two sets of NaI(Tl) detectors on both sides of a rotating turntable (140-mm diameter) that holds Na-22 sources. The turntable rotated at 150rpm and the detectors moved back-and-forth in parallel over 148-mm span by 2-mm step. Obtained sonograms were treated with maximum likelihood-expectation maximization (MLEM) algorithm to reproduce the source distribution. The full width at half maximum of reproduced image of a point source was about within 3 mm, and the shapes of two-dimensional sources were well reproduced.

#### **P44 Nondestructive analysis of radioactive nuclides in J-PARC ANNRI**

TOH, Y.<sup>1</sup>, EBIHARA, M.<sup>2</sup>, HUANG, M.<sup>1</sup>, KIMURA, A.<sup>1</sup>, NAKAMURA, S.<sup>1</sup>, SEGAWA, M.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Nucl. Sci. and Eng. Center, JAEA, <sup>2</sup>Dep. of Chem., TMU)

The Accurate Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument (ANNRI) has been designed and developed for prompt gamma-ray analysis (PGA), nuclear cross-section data measurement, and nuclear astrophysics. We have developed the nondestructive analytical method (TOF-PGA) which combines PGA and TOF by using an intense pulsed neutron beam at J-PARC/MLF/ANNRI.

We have attempted to apply TOF-PGA to the specific detection of radioactive isotopes in simulated samples of platinum group metals in four-group partitioning process. The Ge detector array, a combination of two cluster-Ge detectors and seven large coaxial-Ge detectors and BGO anti-Compton shields, is used for measurement of the simulated samples. Pure metal samples of platinum group provided clear peaks on the PGA and TOF spectra. However, a large number of peaks on the PGA and TOF caused interference with other peaks in simulated samples. By contrast, TOF-PGA method allows us to eliminate or at least to greatly suppress the interference from the other nuclides. In this study, we will provide more details of analysis and experimental results.

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

## 発表者索引

## 発表者アルファベット順索引

(\*は登壇者を示す)

### — A —

Abe, H. 阿部寛信 P18\*, P19  
 Akiyama, K. 秋山和彦 2B01\*, 2B02, P41  
 Aoki, J. 青木 順 P37  
 Arai, H. 新井 肇 P04  
 Asai, M. 浅井雅人 1B07, 1B08, 2A03,  
 P31  
 Asazuma, S. 浅妻新一郎 P18  
 Azuma, K. 東 奎介 3A01

Fujita, H. 藤田啓恵 3A01  
 Fujita, H. 藤田博喜 3A06\*  
 Fujita, N. 藤田将史 P07\*  
 Fukuda, D. 福田大輔 P08\*  
 Fukuda, M. 福田光順 2B08  
 Fukuda, T. 福田智一 1A05, 1A06  
 Fukumoto, M. 福本 学 1A05, 1A06  
 Furukawa, J. 古川 純 1A11  
 Furuta, E. 古田悦子 2A07\*

### — B —

Baba, H. 馬場 宏 2A06\*  
 Bamba, S. 伴場 滋 P09\*, P21  
 Borshevsky, A. A. Borshevsky 1B08

Ganeshraja, A. S. A. S. Ganeshraja 3B03  
 Goto, S. 後藤真一 1B06, 1B07, 1B11,  
 P27, P28, P29, P30  
 Goto, S. 後藤祥子 P06  
 Grund, J. J. Grund 1B07

### — C —

Caffee, M. W. M. W. Caffee 1B03  
 Chiba, M. 千葉美麗 1A05, 1A06, P17  
 Chikada, T. 近田拓未 3A01

### — H —

Haba, H. 羽場宏光 2S01, 1A08, 1A09,  
 1B01, 1B04, 1B06,  
 1B10, 2A02, 2B02,  
 P27, P28, P29,  
 P30, P31, P32, P43  
 P02, P08

### — D —

Düllmann, Ch. E. Ch. E. Düllmann 1B07, 1B08

Hagiwara, K. 萩原健太 1B03  
 Hagiwara, M. 萩原雅之 P12  
 Hama, K. 濱 克宏 3A01  
 Hara, M. 原 正憲 1B05, 2A01, 2A03,  
 2A04, P33\*, P34

### — E —

Eberhardt, K. K. Eberhardt 1B07  
 Ebihara, M. 海老原 充 1A08\*, 1A09,  
 3B07, P38, P44  
 Eichler, R. R. Eichler 1B07  
 Eigl, R. R. Eigl 3A05  
 Esaka, F. 江坂文孝 P15

Hatano, Y. 波多野雄治 3A01  
 Hatazawa, J. 畑澤 順 2A05  
 Hatsukawa, Y. 初川雄一 1B05, 2A03\*, 2A04,  
 2B01, P33

### — F —

Fan, Q. Q. Fan 1A01, 1A02  
 Fujii, K. 藤井健悟 P08, P11\*  
 Fujimori, K. 藤森 憲 P09  
 Fujisawa, T. 藤澤照功 2B05, 2B08

Hayakawa, T. 早川岳人 2A03  
 Higaki, S. 桧垣正吾 1A01, P06  
 Higemoto, W. 髭本 亘 2B03  
 Hirose, A. 廣瀬 農 P36  
 Hirose, K. 廣瀬健太郎 1B07  
 Hiwatashi, M. 樋渡瑞幹 P20  
 Honda, M. 本多真紀 3A05, P05  
 Hoshino, M. 星野萌生 2A07  
 Hosoda, K. 細田 和夫 2A08

Hosoya, S.	細谷青児	P26	Kimura, H.	木村寛之	2A03
Huang, M.	黄 明輝	3B07*, P44	Kino, Y.	木野康志	1A04, 1A05, 1A06, 2B04*, P17
— I —					
Ichikawa, S.	市川進一	1B08	Kishimoto, T.	岸本武士	P03
Ikeda, H.	池田隼人	2A05*	Kitagawa, A.	北川敦志	3B01
Ikeda, K.	池田和臣	3B08	Kitatsuji, Y.	北辻章浩	3B06*
Ikeda, T.	池田卓海	P32, P35	Koarai, K.	小荒井一真	1A05*, 1A06, P17
Imagawa, S.	今川 峻	P04	Kobayashi, N. I.	小林奈通子	P36
Inagaki, J.	稲垣純平	1B10	Kobayashi, Y.	小林義男	3B01, 3B02
Inagaki, M.	稲垣 誠	2B03, P37	Kodama, R.	児玉理恵	P09
Ishii, Y.	石井康雄	P19*	Kohnosu, Y.	鴻巣祐也	P23
Ishimaru, T.	石丸 隆	1A01	Koike, Y.	小池裕也	P02, P08, P11, P13, P24, P40
Ishioka, N. S.	石岡典子	1B05, P33	Komatsuda, S.	小松田沙也加	2B06, 2B07*
Isogai, E.	磯貝恵美子	1A05, 1A06	Komori, Y.	小森有希子	1B04, 1B06, 1B10*, 2A02, P27, P28, P29, P31, P32
Isogai, K.	磯貝啓介	P03, P21	Kondo, A.	近藤 茜	P20
Itabashi, Y.	板橋康弘	1A04	Kondo, N.	近藤成美	1B09*
Ito, T. U.	伊藤 孝	2B03	Koriyama, S.	郡山慎一	1A04
Iwahana, Y.	岩鼻雄基	P08	Kratz, J. V.	J. V. Kratz	1B07, 1B08
Iwamoto, N.	岩本信之	1B05	Kubo, K.	久保謙哉	3B01, 2B03
Iwamoto, Y.	岩元洋介	1B03	Kubuki, S.	久富木志郎	2B01, P41
— K —					
Kabuki, S.	株木重人	2A03	Kudo, A.	工藤 輝	P22*
Kaji, D.	加治大哉	2S01*, 1B06*, 1B10, 2A02	Kudo, H.	工藤久昭	1B11, P27, P28, P29, P30
Kakuta, S.	角田紳一郎	3A05	Kudou, Y.	工藤祐生	1B09
Kamada, H.	鎌田裕生	1B07	Kumamoto, Y.	熊本雄一郎	P22
Kambara, T.	神原 正	P43*	Kume, T.	久米冬馬	P08
Kanazawa, K.	金澤和仁	P15	Kurihara, Y.	栗原雄一	1A01, P11, P13
Kanda, A.	神田晃充	P32, P35*	Kurimoto, Y.	栗本康司	P39
Kanda, J.	神田穰太	1A01	Kurosawa, T.	黒沢 崇	1A03
Kaneko, K.	金子健司	P03	Kusama, K.	草間経二	2A07
Kaneko, M.	金子政志	3S02*, 3B04*	— M —		
Kaneshiki, T.	金敷利隆	P42	Maeda, E.	前田英太	2A01
Kaneya, Y.	金谷佑亮	1B07*, 1B08	Magara, M.	間柄正明	P15, P16
Kano, Y.	加納康大	P38	Makii, H.	牧井宏之	1B07, 1B08
Kasamatsu, Y.	笠松良崇	3S01*, 1B02, 1B07, 1B09, 1B10	Maruta, F.	丸田文之	P23
Kato, Y.	加藤結花	P10	Matsubara, R.	松原梨沙子	P20
Kawabata, M.	川端方子	1B05, 2A04*, P33	Matsue, T.	松江登久	P09
Kawamura, N.	河村成肇	2B03, P37	Matsumoto, M.	松本幹雄	1B04, 2A02
Kikunaga, H.	菊永英寿	1B01*, 1B10, P29, P41	Matsumura, M.	松村万寿美	P05, P26
Kimura, A.	木村 敦	3B07, P44	Matsunaka, T.	松中哲也	P05, P26*
Kimura, E.	木村栄一	1A04	Matsuo, M.	松尾基之	P01
			Matsuta, K.	松多健策	2B08
			Matsuura, H.	松浦治明	P04

Matsuzaki, H.	松崎浩之	1A08, 1A09, P05, P22	Nakagawa, M.	中川真結	P38*
Mihara, M.	三原基嗣	2B08, 3B01	Nakajima, T.	中島丈博	1A04
Minato, F.	湊 太志	1B05	Nakajima, T.	中島映至	1A09
Minowa, H.	箕輪はるか	P10*	Nakamura, S.	中村詔司	3B07, P44
Mitachi, K.	三田地勝昭	P19	Nakamura, T.	中村利廣	P02, P11, P13
Mitsugashira, T.	三頭聰明	1B02	Nakanishi, T. M.	中西友子	P36
Mitsukai, A.	水飼秋菜	1B07, 1B08, 1B10, P29, P31*	Nakashima, S.	中島 覚	3B04
Miura, H.	三浦 輝	1A01*, 1A02	Nanbu, A.	南部明弘	1B03*
Miura, T.	三浦太一	2B03	Nemoto, K.	根本圭介	1A03
Miyake, Y.	三宅康博	2B03, P37	Nihei, N.	二瓶直登	1A03*
Miyamoto, Y.	宮本ユタカ	P15, P16*	Niizato, T.	新里忠史	P19
Miyashita, S.	宮下 直	1B07, 3B04	Ninomiya, K.	二宮和彦	3S03*, 1A07, 1A11, 1B03, 2B03, P07, P37
Miyashita, Y.	宮下由香	2B01	Nishiizumi, K.	西泉邦彦	1B03
Miyata, Y.	宮田佳樹	P12	Nishimagi, S.	西間木史織	P24*
Miyauchi, S.	宮内翔哉	P41*	Nishinaka, I.	西中一朗	2A01*, P34
Miyazaki, J.	宮 淳	3B01	Nishino, S.	西野茂人	P22
Miyoshi, H.	三好弘一	P06	Nishio, K.	西尾勝久	1B07
Mizumoto, T.	水本哲也	2A03	Nishiyama, J.	西山純平	1A05, 1A06*, P17
Mizunuma, T.	水沼丈史	P40	Nishizawa, K.	西澤邦秀	P06
Mori, K.	森 一幸	P06	Nitta, W.	新田 濟	P03
Moriguchi, Y.	森口祐一	1A08, 1A09	Nogami, M.	野上雅伸	P42
Morimoto, K.	森本幸司	2S01, 1B06, 1B10	Nohara, S.	野原精一	P04
Morimoto, T.	森本隆夫	P09	Nojima, T.	野島健大	3A06
Morita, K.	森田浩介	2S01	Nomura, K.	野村貴美	2A08*, 3B03*, P40
Morito, Y.	森戸祐幸	2A08	Nomura, M.	野村雅夫	P42
Motoishi, S.	本石章司	2A04			
Motoyama, R.	本山李沙	1B10, P29, P30*			
Murakami, K.	村上拳冬	P34			
Murakami, M.	村上昌史	P29, P30			
Muramatsu, H.	村松久和	P20*			
Muranoi, T.	村野井 友	1A04*			

— O —

			Obuchi, A.	大淵敦司	P08, P11
			Ochi, K.	越智康太郎	P02
			Oda, H.	小田寛貴	3B08*, P25*
			Ogata, Y.	緒方良至	P10
			Ohara, T.	大原利眞	1A09
			Ohkubo, Y.	大久保嘉高	2B06, 2B07
			Ohno, T.	大野 剛	3A05
			Ohta, Y.	太田裕二	P21
			Ohte, N.	大手信人	1A03
			Ohtsuki, T.	大槻 勤	1B01, 1B02
			Oka, T.	岡 壽崇	1A05, 1A06, P17*
			Okada, Y.	岡田往子	P04
			Okazawa, A.	岡澤 厚	P40
			Okumura, S.	奥村真吾	P02*
			Omtvedt, J. P.	J. P. Omtvedt	1B10
			Onda, Y.	恩田裕一	1A07
			Ono, H.	小野洋伸	3A06
Nagahashi, T.	長橋孝将	P04*			
Nagai, H.	永井尚生	1A08, P22			
Nagai, M.	永井満家	3B05			
Nagai, Y.	永井泰樹	1B05, 2A03, 2A04, P33			
Nagakawa, Y.	永川栄泰	1A08, 1A09			
Nagame, Y.	永目諭一郎	1B07, 1B08, P31			
Nagao, S.	長尾誠也	P12			
Nagaoka, M.	永岡美佳	3A06			
Nagase, M.	永瀬将浩	1B09			
Nagatomo, T.	長友 傑	3B01			
Naguwa, R.	名桑 良	1B07			

Ono, T.	大野峻史	3A03	Schädel, M.	M. Schädel	1B07, 1B08
Ooe, K.	大江一弘	1B07, 1B08, 1B10, 1B11, P27, P28*, P29, P30	Segawa, M.	瀬川麻里子	P44
Ooe, S.	大江崇太	P34	Seino, U.	清野詩子	P23*
Osa, A.	長 明彦	1B07, 1B08	Sekimoto, S.	関本 俊	1A08, 1B03
Osaka, K.	小坂 健	1A05, 1A06, P17	Sekine, T.	関根 勉	1A05, 1A06, P17
Osawa, T.	大澤崇人	3A06	Sera, K.	世良耕一郎	P06
Oshimi, Y.	押見吉成	1B11	Seto, H.	瀬戸博文	P09
Otobe, H.	音部治幹	3B06	Shibata, M.	柴田理尋	1B07
Ouchi, K.	大内昂輝	1B09	Shibata, S.	柴田誠一	1B03, 1B04, 2A02
Ouchi, K.	大内和希	3B06	Shibazaki, M.	柴崎昌彦	P09
Oura, Y.	大浦泰嗣	1A08, 1A09*	Shigekawa, Y.	重河優大	1B02, 1B03, 1B08, 1B09, 1B10
Oya, Y.	大矢恭久	3A01	Shigihara, T.	嶋原 隆	1A04
	— P —		Shikamori, Y.	鹿籠康行	3A05
Pershina, V.	V. Pershina	1B07	Shima, N.	島 長義	3A02*
	— R —		Shima, T.	嶋 達志	1B03
			Shimizu, H.	清水弘通	2B08*
			Shimizu, Y.	清水良央	1A05, 1A06, P17
			Shimomura, K.	下村浩一郎	2B03
			Shimosegawa, E.	下瀬川恵久	2A05
			Shin, Y.	新 裕喜	P34
Runke, J.	J. Runke	1B07	Shinoda, H.	篠田 壽	1A05, 1A06, P17
	— S —		Shinohara, A.	篠原 厚	1A07, 1A11, 1B02, 1B03, 1B09, 2A05, 2B03, P07, P32, P35, P37
Saeki, H.	佐伯秀也	1B05, 2A04, P33	Shinohara, H.	篠原宏文	P21
Saito, T.	齊藤 敬	P24	Shiobara, R.	塩原良建	P13*
Sakaguchi, A.	坂口 綾	1A01, 1B10, 3A05*, P05, P12	Shirai, K.	白井香里	1B07, 1B11*
Sakai, H.	酒井浩章	3A07*	Shirai, N.	白井直樹	1A08, 1A09
Sakai, Y.	酒井陽一	P39	Shirasaki, K.	白崎謙次	3B05
Sakama, M.	阪間 稔	1B07, 1B08	Shozugawa, K.	小豆川勝見	P01
Sakurada, S.	桜田翔大	3A01	Sigekawa, Y.	重河優大	1B07
Sakurai, N.	櫻井 昇	1A08, 1A09	Singu, K.	新宮一駿	1B07
Sasa, K.	笹 公和	1A10, P05, P26	Soemori, A.	添盛晃久	P01
Sasaki, K.	佐々木啓一	1A05, 1A06, P17	Sonoda, S.	園田伸也	2A03
Sato, D.	佐藤大輔	1B07, 1B08, 1B10, P29*	Steinegger, P.	P. Steinegger	1B07
Sato, T. K.	佐藤哲也	2S03*, 1B07, 1B08*, 2A03, P31	Stora, T.	T. Stora	1B08
			Strasser, P.	P. Strasser	2B03
			Sueki, K.	末木啓介	1A10, 3A05, P05, P26
Sato, M.	佐藤美穂	3B02	Sugita, R.	杉田亮平	P36*
Sato, N.	佐藤 望	1B10, 2A02*	Sugo, Y.	須郷由美	1B05, P33
Sato, S.	佐藤眞二	3B01	Suzuki, A.	鈴木杏菜	1A07*
Sato, S.	佐藤俊一	P33	Suzuki, D.	鈴木大輔	P15
Sato, W.	佐藤 渉	2B05, 2B06*, 2B07, 2B08, 3B01, P38	Suzuki, K.	鈴木究真	P04
Sato, Y.	佐藤祐貴子	3B01	Suzuki, M.	鈴木聖人	3B01*
Satou, Y.	佐藤志彦	1A10*, P05	Suzuki, S.	鈴木茂世	P40*

Suzuki, T.	鈴木敏彦	1A05, 1A06, P17	Trautmann, N.	N. Trautmann	1B07
Suzuki, T.	鈴木貴博	3A03*	Tsukada, K.	塚田和明	1B05*, 1B07, 1B08, 2A03, P31, P33
Suzuki, T.	鈴木達也	P42			
			Tsukamoto, T.	塚本敏夫	P25
			Tsuruta, H.	鶴田治雄	1A08, 1A09

— T —

Tabei, K.	田部井 健	3A04
Tachibana, Y.	立花 優	P42*
Tada, J.	多田順一郎	1A03
Tagami, K.	田上恵子	3A04*
Taguchi, A.	田口 明	3A01
Takada, A.	高田淳史	2A03
Takahashi, A.	高橋 温	1A05, 1A06, P17
Takahashi, A.	高橋 晃	3B05
Takahashi, J.	高橋純子	1A07
Takahashi, K.	高橋和也	1B04, 2A02
Takahashi, M.	高橋賢臣	P24
Takahashi, N.	高橋成人	1B03, 2A05
Takahashi, T.	高橋 努	P05, P26
Takahashi, Y.	高橋嘉夫	1A01, 1A02*
Takaku, Y.	高久雄一	3A05
Takamiya, K.	高宮幸一	1B01, 1B02, 2A06
Takeda, S.	武田晋作	1B08
Takenaka, S.	竹中聡汰	2B05*
Takeuchi, N.	竹内宣博	2A04
Takeyama, M.	武山美麗	1B06
Tamari, T.	玉利俊哉	3A02
Tanaka, K.	田中万也	1A02
Tanaka, K.	田中康介	2B02*
Tanaka, T.	田中泰貴	1B10
Tanigawa, S.	谷川祥太郎	3B01
Taniguchi, T.	谷口拓海	2A01
Tanimori, T.	谷森 達	2A03
Tanoi, K.	田野井慶太郎	P36
Terai, T.	寺井隆幸	2A08
Terashima, C.	寺島千晶	2A08
Thörler-Pospiech, P.	P. Thörler-Pospiech	1B07
Toh, Y.	藤 暢輔	3B07, P44*
Tokizawa, T.	時澤孝之	P18
Tomita, J.	富田純平	P12*
Tomita, R.	富田涼平	P05*
Tomitsuka, T.	富塚知博	1B07
Toyoda, M.	豊田岐聡	P37
Toyooka, S.	豊岡慎介	P03*
Toyoshima, A.	豊嶋厚史	1B07, 1B08, 1B10, 2A02, 2A03, P29, P31, P32*, P35

— U —

Uchida, S.	内田滋夫	3A04
Uchiyama, T.	内山孝文	P04
Uemura, Y.	植村有希	3A01*
Uesugi, M.	上杉正樹	3A07, P14

— W —

Wakabayashi, Y.	若林泰生	1B06
Wakitani, Y.	脇谷雄一郎	1B04
Wang, J.	王 軍虎	3B03
Wang, XS.	王 曉水	P21*
Washiyama, K.	鷺山幸信	2A01, P34
Watanabe, K.	渡邊慶子	1B04, 1B10, 2A02
Watanabe, M.	渡邊雅之	3B04
Watanabe, S.	渡辺 智	1B05, P33
Watanabe, S.	渡辺晋一郎	2A05
Watanabe, S.	渡辺 峻	P04
Watanabe, Y.	渡辺裕夫	2A07

— Y —

Yakushev, A.	A. Yakushev	2S02*, 1B07
Yamada, N.	山田記大	P34*
Yamada, R.	山田亮平	P27*, P28
Yamada, T.	山田崇裕	1B04
Yamada, T.	山田哲也	P25
Yamada, Y.	山田康洋	3B01, 3B02*
Yamagata, T.	山形武靖	1A08, P22
Yamagishi, T.	山峯崇之	P39
Yamaguchi, Y.	山口喜朗	1A07
Yamaki, S.	山木さやか	1B06, 1B10
Yamamichi, M.	山道美和子	P21
Yamamori, K.	山守航平	P14*
Yamamoto, M.	山本政儀	3S04*, P12
Yamamoto, S.	山本 駿	P01*
Yamamura, T.	山村朝雄	3B05*
Yamasaki, S.	山崎信哉	3A05
Yamauchi, S.	山内 繁	P39*
Yamazaki, K.	山崎興樹	3A03, P23

Yanaga, M.	矢永誠人	P06*
Yano, S.	矢納慎也	1B04*, 1B06, 1B10, 2A02, P32
Yashima, H.	八島 浩	1B03
Yasuda, K.	安田健一郎	P15*, P16
Yasuda, Y.	安田勇輝	1B02*, 1B09
Yokoyama, A.	横山明彦	2A01, 3A07, P14, P34
Yoshida, A.	吉田 敦	P43
Yoshida, G.	吉田 剛	2B03*, P37*
Yoshikawa, H.	吉川英樹	P18
Yoshimura, T.	吉村 崇	1A11, P07, P32, P35
Yuasa, Y.	湯浅由美	P04
Yunoki, A.	柚木 彰	2A08

— Z —

Zang, Z.	張 子見	1A07, 1A11*
----------	------	-------------



本年会・討論会の開催にあたりましては、  
以下の企業、団体からご協力をいただきました。  
厚く感謝申し上げます。

#### 協賛

サンゴバン(株)

#### 広告

キャンベラジャパン (株)

(株) 日立製作所

(株) 日本環境調査研究所

サンゴバン (株)

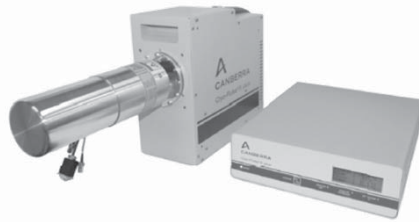


# ≫≫ キャンベラジャパンの放射線計測システム

放射線計測の基礎から応用まで  
広範で卓越した製品を提供しています。



電気冷却式 クライオスタット  
Cryo-Pulse® 5 plus  
(クライオパルス 5 プラス)



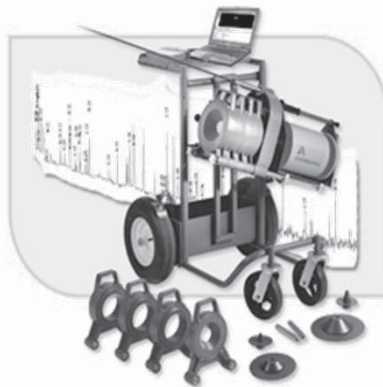
電気冷却式 液体窒素循環型クライオスタット  
Cryo-Cycle™ II  
(クライオサイクル II)



ゲルマニウム半導体検出器



PIPS® 荷電粒子検出器



ISOCSTM :  
ガンマ線分析システム



InSpector1000™ : 可搬型  
デジタルスペクトロサーベイメータ



5XLBシリーズ:  
低バックグラウンド  $\alpha$  /  $\beta$  自動計測システム



LB4200 型:  
多チャンネル低バックグラウンド  
 $\alpha$  /  $\beta$  計測システム



ガンマアナリスト:  
サンプルチェンジャー付  
ガンマ線自動分析システム

放射線 安全性 さらなる水準へ

キャンベラジャパン株式会社

東京本社 TEL 03-5835-5402 大阪営業所 TEL 06-4806-5662

www.canberra.com/jp/

E-mail jp-sales@canberra.com

# サーベイメータ

**HITACHI**  
Inspire the Next

# LUCREST



「光」を表すlux。「最上、頂上」を表すcrest。  
LUCRESTには、最上の光を提供することで、  
人や社会の「見えない不安」を照らし「安全」そして「見える安心」へと  
変えていくという信念がこめられています。

## 特長

- 明るい場所でも視認性の良い液晶表示
- タッチパネルディスプレイで直感的な操作
- 堅牢・軽量・コンパクトなマグネシウム合金筐体
- 瞬時値／連続値のメモリ保存が可能
- 検出器側にメモリスイッチ・  
時定数切替スイッチを装備
- USB接続でメモリデータ読み出し可能

## ラインナップ



LUCRESTは、株式会社日立製作所の登録商標です。

 株式会社 日立製作所

[www.hitachi.co.jp/healthcare](http://www.hitachi.co.jp/healthcare)

## ラジオアイソトープ (RI) 取扱施設

Radioisotope(RI) handling facility

## 医療放射線 (核医学検査、放射線治療) 取扱施設

Medical radioactive rays handling facility

## 加速器取扱施設

Accelerator handling facility



技術開発研究所 (埼玉県吉川市)

- 放射線関係法令に基づく放射線モニタリング
  - ・作業環境モニタリング 線量当量率測定  
放射性表面汚染密度測定  
空気中の放射性物質濃度測定  
水中の放射性物質濃度測定
  - ・個人モニタリング 放射線被ばく管理
  - ・施設周辺の環境モニタリング 環境試料の放射能測定
- RI取扱施設および機械装置等の保守管理業務
- RI取扱施設設計・施工・コンサルティング
- RI施設廃止工事
- 放射線関係法令に基づく各種申請書作成
- 放射線管理関連業務
- 施設管理コンサルタント業務
- 放射線業務従事者教育訓練
- 高度医療機器販売
- RI管理関連ソフト開発、遮蔽用具・什器商品開発等

<http://www.jer.co.jp/>

作業環境測定機関登録 11-4 (放射性物質)

管工事業 / とび・土工事業 / 機械器具設置工事業 / 建具工事業

ISO9001 認証

**株式会社 日本環境調査研究所**  
青森、仙台、柏崎、福島、茨城、東京、名古屋、大阪

東京営業所 〒342-0008 埼玉県吉川市旭 8-3  
本社 〒160-0023 東京都新宿区西新宿 6-24-1

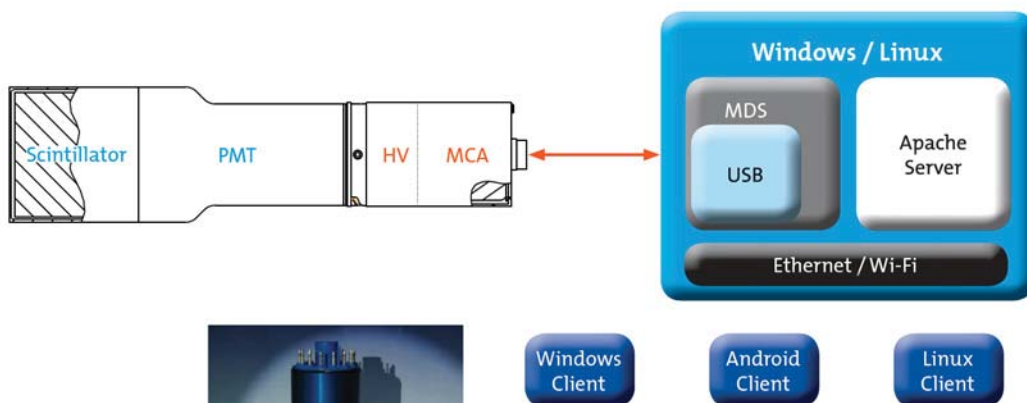
Tel. 048-991-9461 Fax. 048-991-9460  
Tel. 03-5322-2271 Fax. 03-5322-2272



SAINT-GOBAIN サンゴバンは、素材からフローブ・特殊用途まで、グローバル・スタンダードな世界品質のシンチレータを皆様に提供いたします。

## Sensor-Kit MCA-BASE

**Scintillation Detectors**  
(NaI,LaBr<sub>3</sub>,BGO,Plastic, . . . )  
+Divider + MCA + HV are only in  
**One-body or Two-bodies**

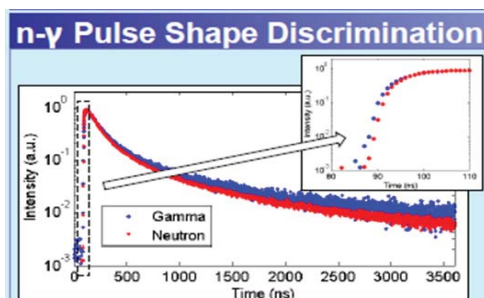


## LaBr<sub>3</sub> (Ce)



FWHM=2.8% @662keV  
Decay Time 16 nsec

**New! 中性子用シンチレータ**  
**Cs<sub>2</sub>LiLaBr<sub>6</sub> (Ce<sup>3+</sup>)**  
**[CLLB:Ce<sup>3+</sup>]**



**サンゴバン株式会社**

〒102-0083 東京都千代田区麴町 3-7  
Tel 03-3263-0559 Fax 03-5212-2196

URL <http://www.saint-gobain.co.jp/product/category/crystal/>  
お問合せ [yasuo.watanabe@saint-gobain.com](mailto:yasuo.watanabe@saint-gobain.com) (担当 渡辺)

2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会  
研究発表要旨集

編集・発行：2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会  
実行委員会（委員長：工藤 久昭）

事務局：新潟大学理学部化学科 核化学研究室内  
〒950-2181 新潟市西区五十嵐 2 の町 8050  
E-mail: sorc60@chem.sc.niigata-u.ac.jp

発行日：2016 年 9 月 1 日

印刷：共立印刷株式会社

※ 許諾・許可なしに本要旨集の全部もしくは一部の  
転載，翻訳，複写，その他の複製を禁じます。

© 2016 日本放射化学会