

$^{254}\text{Es}$  標的を用いて生成する中性子過剰 Fm 領域核の自発核分裂の測定

(<sup>1</sup>原子力機構, <sup>2</sup>量研機構, <sup>3</sup>名古屋大, <sup>4</sup>新潟大, <sup>5</sup>金沢大, <sup>6</sup>徳島大) ○浅井 雅人<sup>1</sup>, 塚田 和明<sup>1</sup>, 廣瀬 健太郎<sup>1</sup>, 豊嶋 厚史<sup>1</sup>, 富塚 知博<sup>1</sup>, Nadine M. Chiera<sup>1</sup>, 伊藤 由太<sup>1</sup>, 牧井 宏之<sup>1</sup>, 永目 諭一郎<sup>1</sup>, 西尾 勝久<sup>1</sup>, Riccardo Orlandi<sup>1</sup>, Kean Kun Ratha<sup>1</sup>, 佐藤 哲也<sup>1</sup>, 鈴木 颯人<sup>1</sup>, 床井 健運<sup>1</sup>, Mark J. Vermeulen<sup>1</sup>, 柳原 陸斗<sup>1</sup>, 西中一朗<sup>2</sup>, 鎌田 裕生<sup>3</sup>, 柴田 理尋<sup>3</sup>, 後藤 真一<sup>4</sup>, 廣瀬 耀<sup>4</sup>, 林 裕晃<sup>5</sup>, 阪間 稔<sup>6</sup>

## 【研究の目的】

中性子過剰 Fm 同位体では、自発核分裂における分裂片の質量分割が  $^{256}\text{Fm}$  と  $^{258}\text{Fm}$  の間で突然非対称から対称へと変化することが知られている。 $^{256}\text{Fm}$  が典型的な質量非対称分裂を示すのに対して、 $^{258}\text{Fm}$  では分布幅が非常に狭く 2 つの分裂片の運動エネルギーの和 (全運動エネルギー: TKE) が非常に大きい極めて特徴的な対称分裂を示す。このような特徴は、 $^{258}\text{Fm}$  が 2 つの球形の Sn 同位体に分裂していることを示唆している。一方、Fm より重い No, Lr, Rf 同位体でも中性子過剰核領域において対称核分裂が観測されている。しかしこれらの対称核分裂では TKE が低く、分裂時に核分裂片が大きく変形していることが示唆される。つまりこの領域では、アクチノイドに典型的な非対称核分裂、TKE の高い対称核分裂、TKE の低い対称核分裂、という 3 種類の異なる核分裂が競合していることになる。

これらの実験データは 1980 年代に集中的に測定された後、再測定は行われていない。特に中性子過剰 Fm 同位体の生成には半減期 276 日の  $^{254}\text{Es}$  を標的として使用することが不可欠であり、実験できる施設がこの 30 年間世界に存在しなかった。また低 TKE 対称核分裂を示す  $^{259}\text{Lr}$ ,  $^{258}\text{No}$  のデータも過去の実験ではエネルギー精度が悪く、核分裂メカニズムの違いを詳細に議論するには不十分であった。

昨年我々は、米国オークリッジ国立研究所 (ORNL) が約 20 年ぶりに製造・分離・精製した  $^{254}\text{Es}$  を約  $0.2\ \mu\text{g}$  入手し、原子力機構タンデム加速器において  $^{254}\text{Es}$  標的を用いた中性子過剰 Fm 領域核の核分裂実験を開始した。本研究では特に上記 3 種類の核分裂の違いを詳細に明らかにすることを目的として、 $^{256}\text{Fm}$ ,  $^{258}\text{Fm}$ ,  $^{259}\text{Lr}$  の自発核分裂の質量分布と TKE の相関を同じ実験装置を用いて精度良く比較・測定し、3 種類の異なる核分裂が競合するメカニズムの解明を目指す。

## 【実験】

$^{256}\text{Fm}$ ,  $^{258}\text{Fm}$  は、 $^{254}\text{Es}$  標的に  $^{18}\text{O}$  ビームを照射し、多核子移行反応で合成した。 $^{259}\text{Lr}$  は  $^{248}\text{Cm}$  標的と  $^{15}\text{N}$  ビームの融合蒸発反応で合成した。生成核はガスジェット搬送法によりオンライン同位体分離装置 ISOL イオン源に搬送され、イオン化・質量分離されて、回転円盤型測定装置に装着された 40 枚の炭素薄膜に順々に捕集された。測定装置には 4 対の Si 検出器が設置され、自発核分裂の 2 つの分裂片の運動エネルギーを同時計数測定した。講演では、実験の詳細と解析結果について発表する。

Spontaneous fission measurements for nuclei around neutron-rich Fm region produced by using an  $^{254}\text{Es}$  target

ASAI, M., TSUKADA, K., HIROSE, K., TOYOSHIMA, A., TOMITSUKA, T., CHIERA, N. M., ITO, Y., MAKII, H., NAGAME, Y., NISHIO, K., ORLANDI, R., RATHA, K. K., SATO, T. K., SUZUKI, H., TOKOI, K., VERMEULEN, M. J., YANAGIHARA, R., NISHINAKA, I., KAMADA, H., SHIBATA, M., GOTO, S., HIROSE, H., HAYASHI, H., SAKAMA, M.

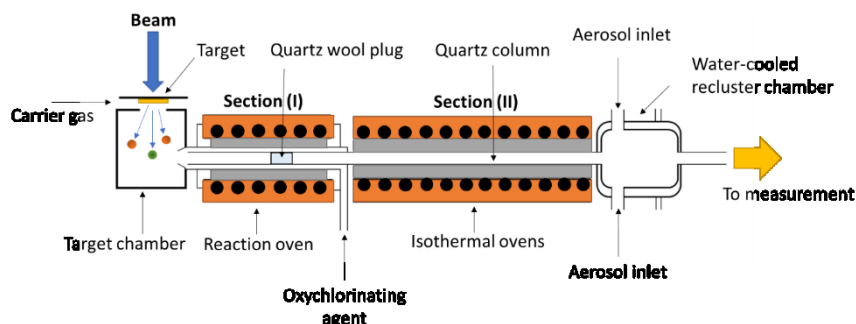
1A02

Formation and thermochemical properties of oxychlorides of Nb and Ta - Towards the gas-phase investigation of the Superheavy Element dubnium (Db) oxychloride.

(<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>Ibaraki Univ., <sup>3</sup>Niigata Univ.) ○Nadine M. Chiera<sup>1</sup>, Tetsuya K. Sato<sup>1</sup>, Masato Asai<sup>1</sup>, Hayato Suzuki<sup>1,2</sup>, Katsuyuki Tokoi<sup>1,2</sup>, Tomohiro Tomitsuka<sup>1,3</sup>, Atsushi Toyoshima<sup>1</sup>, Kazuaki Tsukada<sup>1</sup>, and Yuichiro Nagame<sup>1,2</sup>.

**【Introduction】** Although the completion of the 7th row of the Periodic Table was recently achieved, several questions regarding the chemical behavior of the transactinides still need to be answered. We present here results of two experimental campaigns conducted at the Tandem Accelerator, Japan Atomic Energy Agency (JAEA). This ongoing experiment series aims at investigating the chemical behavior of oxychloride species of the transactinide dubnium ( $Z = 105$ ) - specifically,  $\text{DbOCl}_3$  - in the gas phase. In preparation for the chemical exploration of  $\text{DbOCl}_3$ , isothermal gas-chromatographic experiments with the transition metals niobium and tantalum (dubnium's lighter homologues) were conducted.

**【Experiments & Results】** The exploration of  $\text{NbOCl}_3$  and  $\text{TaOCl}_3$  was performed with the isothermal gas-chromatographic setup (see figure) at the JAEA Tandem accelerator. Short-lived isotopes of  $^{88}\text{Nb}$  (half-life  $T_{1/2} = 14.55$  min) and  $^{170}\text{Ta}$  ( $T_{1/2} = 6.76$  min) were simultaneously synthesized in the nuclear fusion reactions  $^{nat}\text{Ge}(^{19}\text{F}, \text{xn})^{88}\text{Nb}$  and  $^{nat}\text{Gd}(^{19}\text{F}, \text{xn})^{170}\text{Ta}$ , respectively. The yields of  $\text{NbOCl}_3$  and  $\text{TaOCl}_3$  passing through the gas-chromatographic



column as a function of the applied isothermal temperature were recorded. In order to deduce the adsorption enthalpies ( $\Delta H_{\text{ads}}$ ) of  $\text{NbOCl}_3$  and  $\text{TaOCl}_3$  on quartz, the breakthrough curves were analyzed with a Monte-Carlo simulation method based on a kinetic model for gas-adsorption chromatography [1]. Thus,  $\Delta H_{\text{ads}}(\text{NbOCl}_3) = 102 \pm 4$  kJ/mol and  $\Delta H_{\text{ads}}(\text{TaOCl}_3) = 128 \pm 5$  kJ/mol were determined. By employing available literature data, an empirical correlation between the  $\Delta H_{\text{ads}}$  of metal-oxychlorides adsorbing on quartz surfaces and the related macroscopic sublimation enthalpy ( $\Delta H_{\text{subl}}$ ) was derived [2]. Hence,  $\Delta H_{\text{subl}}(\text{NbOCl}_3) = 126 \pm 10$  kJ/mol and  $\Delta H_{\text{subl}}(\text{TaOCl}_3) = 165 \pm 11$  kJ/mol were calculated, in agreement with tabulated data [3].

Based on these findings, the future accomplishment of comparative studies with  $\text{DbOCl}_3$  under the same experimental conditions will provide a final assessment on the relative volatility of Group-5 elements, together with an indication of the magnitude of relativistic effects on the electronic structure of dubnium.

**【References】** [1] I. Zvara, *Radiochim. Acta*, 38, 95 (1985). [2] N. M. Chiera, et al., manuscript submitted for publication (2018). [3] O. Knacke. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, 1991.

Formation and thermochemical properties of oxychlorides of Nb and Ta - Towards the gas-phase investigation of the Superheavy Element dubnium (Db) oxychloride. CHIERA, N. M., SATO, T. K., ASAI, M., SUZUKI, H., TOKOI, K., TOMITSUKA, T., TOYOSHIMA, A., TSUKADA, K., NAGAME, Y.

# 1A03

## 超重元素を対象とした低速原子ビーム源の開発

(<sup>1</sup>原子力機構先端研, <sup>2</sup>新潟大院自然, <sup>3</sup>茨城大院理工, <sup>4</sup>茨城大理) ○富塚知博<sup>1,2</sup>, 床井 健運<sup>1,3</sup>, 佐藤 哲也<sup>1</sup>, 伊藤 由太<sup>1</sup>, 鈴木 颯人<sup>1,4</sup>, 浅井 雅人<sup>1</sup>, 塚田 和明<sup>1</sup>, 豊嶋 厚史<sup>1</sup>, Nadine M. Chiera<sup>1</sup>, 後藤真一<sup>2</sup>, 永目 諭一郎<sup>1,3</sup>

我々は、超重元素原子( $Z > 100$ )の価電子軌道の直接決定を目指して、単一原子レベルに適用可能な高温ノズル型原子ビーム源(Atomic Beam Source: ABS)の開発を行っている。本研究では、高効率で低エミッタンスのビームを取り出すため、安定同位体を用いたオフライン実験を行うとともに、モンテカルロシミュレーションによる最適ノズル形状の検討を行った。

超重元素実験では、核反応生成物はHe/CdI<sub>2</sub>ガスジェット法により核反応槽からABSへ連続的に搬送される。エアロゾル粒子とともにノズル内に導入された核反応生成物は、エアロゾルと分離されてノズルから原子ビームとして取り出される。図1に開発したガスジェット結合式ABSの概略図を示す。主要部はスキマー、2本の加熱用フィラメントおよびタンタル製ノズルから構成されており、スキマーによりHeキャリアガスを差動排気することで、高真空中にビームを取り出すことができる。

オフライン実験では、ガスジェット搬送に用いるCdI<sub>2</sub>で原子ビームを生成した。ノズル出口から射出されたビームの角度分布を調べるため、あらかじめノズル内にCdI<sub>2</sub> 0.143 g (沸点: 713 °C) を置き、真空状態 ( $< 1.2 \times 10^{-3}$  Pa) で約700 °Cまで加熱した。

生成したCd原子ビームをABS出口から125 mmの位置でAl箔上に約70分間捕集し、Al箔を5 mm角に切断して測定用フラクションとした。原子ビームの捕集量は誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)を用いて定量した。並行してノズル形状検討のため、真空中における粒子の運動をモンテカルロ法によりシミュレーションするMolfow+ [1]を用い、オフライン実験結果を評価するとともに、ノズル形状の違いによる影響を計算した。

ノズルの中心軸を0°として、-9°から27°まで測定したCdビームの角度分布を図2に示す。中心軸から対称的に分布し、半値幅(FWHM)が約±14°となった。発表では、シミュレーションとの比較についても議論する。

### 参考文献

[1] Molfow+, <https://molflow.web.cern.ch/>

Development of a slow atomic beam source for superheavy elements

TOMITSUKA, T., TOKOI, K., SATO, T. K., ITO, Y., SUZUKI, H., ASAI, M., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., CHIERA, N. M., GOTO, S., NAGAME, Y.

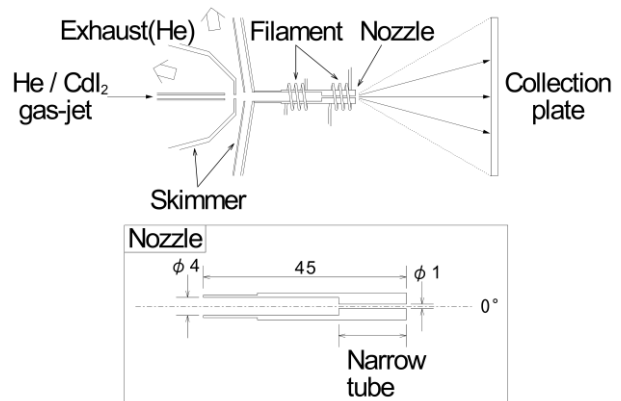


図1. 原子ビーム源およびノズルの形状

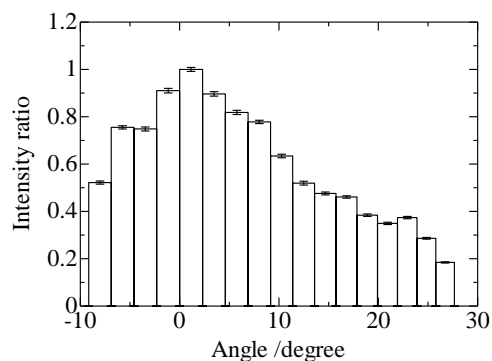


図2. 原子ビームの角度分布

**【Introduction】** The nowadays hottest topic in the field of nuclear chemistry is the gas-phase chemical investigation of carbonyl complexes of superheavy elements (atomic number  $Z \geq 104$ ). In 2014, these investigations culminated in successful experiments performed with the gas-filled recoil ion separator at the RIKEN Linear Accelerator [1]. We showed that element Sg ( $Z = 106$ ) forms a stable carbonyl compound,  $\text{Sg}(\text{CO})_6$ , behaving similarly to its lighter homologs Mo and W in the group 6 of the periodic table. Thus, the door was opened for nuclear chemists to further study the carbonyl complexes of heavier elements such as Bh ( $Z = 107$ ), Hs ( $Z = 108$ ), and even Mt ( $Z = 109$ ). The next achievement is expected for the chemical investigation of mononuclear Bh carbonyls. For this purpose, as the lighter homologs of Bh, the chemical properties of Tc and Re carbonyls in single-atom quantities should be studied in advance. We report here the current investigation of the chemical properties of Tc and Re carbonyls with their short-lived isotopes.

**【Experiment】** Online gas-phase chemistry study with single-atom quantities of Tc and Re carbonyls were carried out with the  $^{252}\text{Cf}$  fission source at IMP and the GARIS gas-jet system [2] at RIKEN. Short-lived  $^{107-108}\text{Tc}$  and  $^{172-177}\text{Re}$  were produced via the spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$  and the  $^{nat}\text{Gd}(^{23}\text{Na}, xn)^{172-177}\text{Re}$  reactions, respectively. Volatile carbonyls of Tc and Re were synthesized and their gas-phase properties were systematically studied using an online low temperature isothermal chromatography (IC) [3]. Moreover, the laser-ablation time-of-flight mass-spectrometry (LA-TOF-MS) technique was employed to deduce the species of the Re carbonyls formed with a small amount of stable Re atoms and CO gas in the gas phase.

**【Results and discussion】** For both Tc and Re carbonyls, the adsorption enthalpy on the Teflon surface was determined to be  $\Delta H_{\text{ads}} = -43 \pm 1$  kJ/mol, and the highest relative chemical yield was measured to be about 25%. Based on the LA-TOF-MS results as well as the density functional theory calculations, the most stable species of Re were suggested to be the carbonyls with the coordination numbers of 6 and 5 for  $\text{Re}^+$  and Re neutral atoms, respectively. And the reaction time for the formation of  $[\text{Re}(\text{CO})_6]^+$  in He and CO mixed gas was estimated to be less than 200  $\mu\text{s}$  based on the timing sequence of LA-TOF-MS. From the experimental observations and the theoretical analyses, the short-lived mononuclear  $\text{Re}(\text{CO})_5$  and  $\text{Tc}(\text{CO})_5$  were deduced to be formed in the IC experiments. Based on the present results, the chemical investigation of Bh carbonyls appears to be possible.

#### 【References】

- [1] J. Even et al., *Science* **345**, 1491 (2014).
- [2] H. Haba et al., *RIKEN Accel. Prog. Rep.* **48**, 293 (2015).
- [3] Y. Wang et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17**, 13228 (2015).

The Study on Carbonyl Complexes of Group VII Elements, Wang, Y., Qin, Z., Fan F., Cao, S., Zhang J., Yang J., Haba, H., Komori, Y., Yokokita, T., Morimoto, K., Kaji, D

(<sup>1</sup>原子力機構、<sup>2</sup>茨城大院理工、<sup>3</sup>筑波大院、<sup>4</sup>阪大院理)○塚田和明<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>1</sup>、廣瀬健太郎<sup>1</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、Nadine M. CHIERA<sup>1</sup>  
床井健運<sup>1,2</sup>、鈴木伸一<sup>1</sup>、柏原歩那<sup>3</sup>、二宮秀美<sup>4</sup>

**【緒言】** マイクロプログラムの試料を得られる最も重い元素である 99 番元素アインスタイニウム (Es) を用いて、JAEA タンデム加速器における Es 標的を用いた核分裂研究、並びに SPring-8 放射光施設における Es の水和構造研究を行ってきた。今回入手した約 0.2  $\mu$ g の <sup>254</sup>Es (半減期 275 日) は、オークリッジ国立研究所 (ORNL) の HFIR 原子炉で 2017 年に照射・生成され、約半年をかけて ORNL で単離を行い、その 4 ヶ月後の 10 月末に JAEA に搬入された。入手時には <sup>254</sup>Es の他に <sup>253</sup>Es、<sup>249,250</sup>Cf、<sup>249</sup>Bk など他の核種も混入していたため、タンデム加速器および SPring-8 放射光実験に最適な状態にするための分離精製、試料調整などを行った。また、単離後も 1 ヶ月で 7.3% の <sup>254</sup>Es が崩壊し、<sup>250</sup>Cf が生じる。実験に必要な標的の純度を確保するためには、数ヶ月に一度は分離・精製し、娘核種と分分離するなど試料を再調整する必要がある。ここでは本分離手法及び試料調整について紹介する。

**【試料調整】** <sup>254</sup>Es の他のアクチノイドとの分離には、錯イオン形成剤として  $\alpha$ -HIB ( $\alpha$ -hydroxyisobutyric acid) を使用した陽イオン交換分離法を利用した [1]。カラムサイズ及び温度条件などを変えて最適化し、図 1 に示すスキームを決定した。図 2 に Es と Cf の分離の様子を示す。本条件下における分離時間は、およそ 2 時間であった。この後、タンデム加速器及び SPring-8 実験に不要な錯形成剤の  $\alpha$ -HIB を除去するため、塩酸系の陽イオン交換分離を実施した。

SPring-8 実験では、本試料を 50  $\mu$ L の 0.1N 過塩素酸に溶解し、プラスチック容器に封入し照射試料とした。

タンデム加速器実験では、分子電着法を利用して約 1mm  $\phi$  の標的を作製した。この時、扱う試料量が極端に少なく、試薬等の不純物の混入など電着時に問題が多々生じたため、更に数段のイオン交換を実施し、試料の再精製と減容を行う必要があった。最終的には、数  $\mu$ L の硝酸溶液にした Es 試料を 2-プロパノール溶液 250  $\mu$ L に混入し、Ni 箔膜または Be 箔上に 600~1000V の電圧で 40 分以上電着し照射試料とした。

**【参考文献】** [1] H. Louise D.C. Hoffman, J. Inor. Nucl. Chem., 3, 243 (1956).

Es Sample Preparation Towards to the Experiment on the JAEA Tandem Accelerator and the SPring-8  
TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., HIROSE, K., ASAI, M., CHIERA, N.M., TOKOI, K., SUZUKI, S., KASHIHARA, Y., NINOMIYA, H.

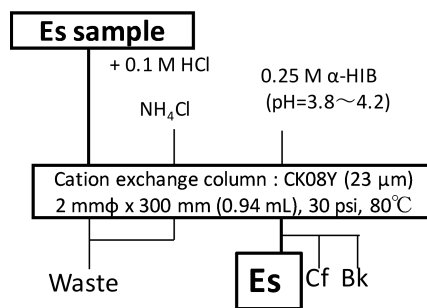


Fig. 1 Purification scheme for the Es sample from its daughter nuclides.

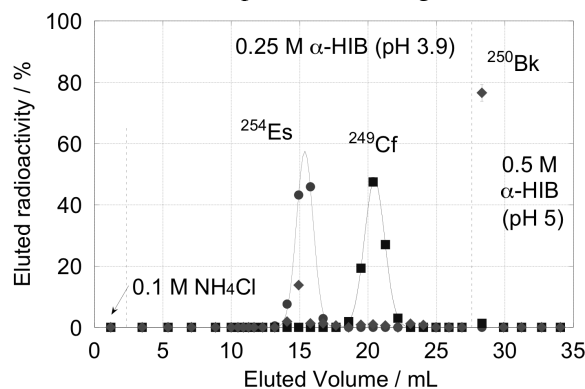


Fig. 2 Typical elution curves on the separation of Es from Cf using  $\alpha$ -HIB solution.

(<sup>1</sup>JAEA 物質科学, <sup>2</sup>京産大, <sup>3</sup>JAEA 先端研) ○矢板 毅<sup>1</sup>、鈴木伸一<sup>1</sup>、小林 徹<sup>1</sup>、塩飽秀啓<sup>1</sup>、土井玲祐<sup>1</sup>、山上浩志<sup>2</sup>、塚田和明<sup>3</sup>、豊嶋厚史<sup>3</sup>、浅井雅人<sup>3</sup>

**【緒言】** 3価アクチノイドのイオン半径においては、原子番号の順に徐々にその大きさが徐々に収縮するというアクチノイド収縮が観察できる。さらに、水和原子間距離においては、ランタノイドの経験を踏まえると、このイオン半径の収縮加え、水和数の減少に伴う原子間距離の不連続的な縮小現象である **Breaking Point** が観察されることが期待される。しかしながら、これまでの3価アクチノイドの水和研究においては、Cfまでにおいてその **Breaking Point** は報告されていない。本研究では、 $\mu$  グラムオーダーを下回る Es について、極微量の元素が検出、測定・解析できる状態のスペクトルの取得が可能なレベルまでファインチューンした SPring-8 JAEA 専用ビームライン BL22XU において水溶液中における 99 番元素 Es を世界で初めて測定し、その水和構造について明らかにしたので報告する。

**【実験】** 実験は SPring-8 における原子力機構専用ビームライン BL22XU において XAFS 測定を実施した。XAFS 測定は、Es の発光エネルギーに対応した、ラウエ結晶を用いるアナライザーを前置した、19 素子の半導体検出器を用いる蛍光測定を実施した。なお、測定は、分光結晶を高速に作動する Quick-scan XAFS モードによった。BL22XU は挿入光源によるビームラインで有り、高輝度 X 線を取り出すことができる。本ビームラインは、輸送チャンネルからおおよそ 100 メートル程度先の RI 実験棟に引き込んである放射性価核種の利用が可能な放射光ビームラインである。RI 棟においては、U, Th などの国際規制物資および密封 Es-254, Cm-248, Am-241, 243 などを始め多くの RI の測定が可能であり、他に ARPES, XMCD, HAXPES などを初めとした様々な測定がセットアップされており、アクチノイド基礎科学および様々な物質材料研究に応用している。試料は、約数十ナノグラム程度の Es-254 を 50 $\mu$ L の 0.1N 過塩素酸に溶解することで作成した。

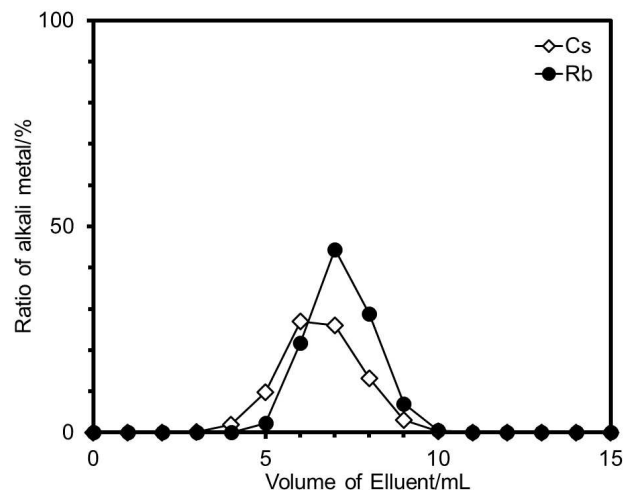
**【結果と考察】** Rb-K 吸収端 XAFS スペクトルの取得による極微量 Es の測定に向けた調整から、構造解析可能なスペクトルの下限、いわゆる XAFS 分析(特に EXAFS)の定量限界は、今回のセットアップでは、4 $\mu$ M 程度の溶液であることが分かった。実際に得られた Es-254 の溶液は、概算で概ね 10 $\mu$ M 程度であり、結果として解析可能なスペクトルを得ることができた。その結果、EXAFS 解析によって原子間距離など複数の構造パラメータが十分な精度で得ることが出来た。また、Es の  $L_{III}$  吸収端のエネルギーは、20.39keV と見積もられた。解析によって得られた Es の水和原子間距離は、Cf(III)まで見られた系統的なアクチノイド収縮のラインから外れた、短い距離であり“Einsteinium Break”として観察された。緒言にも述べたように、ランタノイドにおいても、同様な **Breaking Point** が Eu において観察されている。これについては、これまで配位空間へのパッキングに由来する水和数の変化に伴う現象として解釈されてきたが、内殻電子のコンフィギュレーションの変位がトリガーとなっていることが分かった。本報告では、現象の解釈についても一部紹介する。

Hydration Structure of Einsteinium by Synchrotron Radiation Based Analysis (JAEA, Kyoto Sangyo Univ.) YAITA, T., SUZUKI, S., KOBAYASHI, T., SHIWAKU, H., DOI, R., YAMAGAMI, H., TSUKADAS, K., TOYOSHIMA, A., ASAI, M.

【緒言】アルカリ金属は植物研究の分野において非常に重要な元素であり、特にカリウム(K)は植物における必須元素としてその挙動に着目されてきた。アルカリ金属の植物内の挙動は、キャリアフリーの RI を用いて植物の活動に影響を与えずに追跡することができる。これまでに Cs-137 や Rb-86 などの購入可能な RI トレーサーを用いた研究が行われてきた。我々は制動放射線照射によって K トレーサー(K-42, 43)を製造する方法を確立し、植物の動態を調べることを可能とした。セシウム(Cs)、ルビジウム(Rb)およびナトリウム(Na)トレーサーも制動放射線照射により製造することが可能であるが、複数元素を同時に製造することで、より効率的に実験ができる可能性がある。しかしながら、生成する RI の半減期が核種により様々であり(Table 1), 同じターゲット量から得られる放射能も大きく違うことが考えられる。そこで本研究ではまず個別にキャリアフリーのアルカリ金属 RI の生成量および分離条件を調べることにした。

【実験】RI 製造は東北大学電子光理学研究センターの電子ライナックを用いて行った。50 MeV, 120  $\mu$ A の電子ビームを 2 mm 厚の白金板に照射して発生する制動放射線を CaO, BaO または SrCO<sub>3</sub> ターゲットに照射した。照射後のターゲットに純水とシュウ酸水溶液を加えて Ca, Ba または Sr をシュウ酸塩として沈殿させた。これを遠心分離した後、その上澄み液を陽イオン交換樹脂で充填したカラムにチャージした。このカラムを 0.01 M HCl で洗浄した後 1-1.5 M の HCl で目的物であるアルカリ金属トレーサーを溶出した。

【結果】ターゲット物質をシュウ酸で沈殿させたときに共沈するアルカリ金属は Cs-136 ではおおよそ 15% 程度, Rb-86 においては 20-30% 程度であった。Cs-136 および Rb-86 の化学収率は全体で 60-80% 程度となるが、収率低下の主原因には共沈によるものであった。また、カラムクロマトグラフィーの 1.5 M HCl における Cs-136 および Rb-86 の溶離曲線を Figure 2 に示した。この結果から、Cs-136 と Rb-86 を同時にマルチトレーサーとして供給できることが示唆された。



(Figure 1) Cs および Rb の陽イオン交換クロマトグラフィーにおける溶離曲線 (1.5 M HCl)

(Table 1) 制動放射線照射により製造できるアルカリ金属の RI トレーサー

核種	Na-24	K-42	K-43	Rb-84	Rb-86	Cs-132	Cs-136
半減期	14.96 h	12.36 h	22.2 h	32.8 d	18.7 d	6.47 d	13.16 d

(<sup>1</sup>理研仁科セ,<sup>2</sup>九大理,<sup>3</sup>高エ研,<sup>4</sup>原子力機構,<sup>5</sup>山形大,<sup>6</sup>NMSU) ○庭瀬 暁隆<sup>1,2</sup>, 和田 道治<sup>3</sup>, P. Schury<sup>3</sup>, 伊藤 由太<sup>1,4</sup>, 加治 大哉<sup>1</sup>, M. Rosenbusch<sup>1</sup>, 木村 創大<sup>1</sup>, 森本 幸司<sup>1</sup>, 羽場 宏光<sup>1</sup>, 石澤 倫<sup>1,5</sup>, 森田 浩介<sup>1,2</sup>, 宮武 宇也<sup>3</sup>, H. Wollnik<sup>6</sup>

**【緒言】** 原子核の質量は核種固有な物理量であり、精密に測定する事で原子核の存在限界や安定性に関する知見を得ることができる。我々は、多重反射型飛行時間測定式質量分光器(MRTOF-MS)を用いて超フェルミウム原子核の精密質量測定に成功し[1]、原子番号の大きな超重核への適用に向けてさらなる装置開発を進めている。

超重核は、その小さな生成反応断面積に起因して一度に取り扱える量が極めて少なく、限られた数原子から核種同定を行わなければならない。そのため、測定されたイベントが分子イオンや散乱粒子による偶発事象であるか超重核起因であるかを判別可能にする新しい装置の開発が期待されている。

**【実験】** 超重核イオンの精密質量と崩壊特性(エネルギー/半減期)の相関測定を可能にする MRTOF-MS 用イオン検出器( $\alpha$ -ToF)を開発した。 $\alpha$ -ToF の概念図を図 1 に示す。MRTOF-MS のイオン検出器部にシリコン検出器(SSD)を組み込むことで、イオン検出後に引き続いて起こる $\alpha$ 崩壊や核分裂を検出することができる。イオン検出器部には-2100V 程度の高圧を印可するため、高圧に印可した状態で信号の前置増幅を行った後に波形整形回路へと信号を送信する専用基板も開発した。 $\alpha$ -ToF の原理実証ならびに基本性能(エネルギー分解能, 時間分解能)は、単色 $\alpha$ 線源(<sup>241</sup>Am)および三色線源(<sup>237</sup>Np, <sup>241</sup>Am, <sup>244</sup>Cm)を用いて評価した。

**【結果・考察】** 三色線源を用いた飛行時間-エネルギーの相関測定結果を図 2 に示す。三色線源由来の $\alpha$ 線の入射タイミングと運動エネルギーを同時に測定し、 $\alpha$ -ToF の原理実証を行うことができた。その際、重イオンの入射タイミングとエネルギーの相関測定効率は-2100V を印加時に 89.6%であり、 $\alpha$ -ToF のエネルギー分解能は  $141 \pm 0.9$  keV、時間分解能は  $251.5 \pm 6.8$  ps と評価された。

本講演では、 $\alpha$ -ToF の開発・評価試験結果の報告と、今後の質量測定の計画について講演を行う。

**【参考文献】**[1] Y. Ito et. al., Phys. Rev. Lett. 120, 152501 (2018).

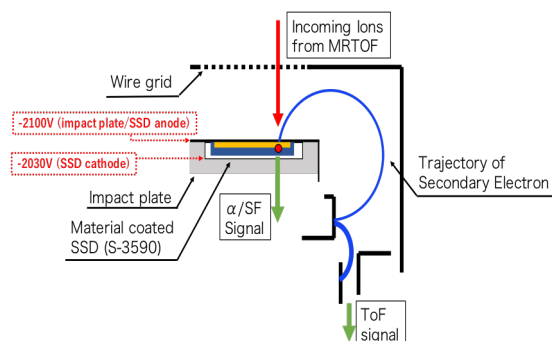


図 1.  $\alpha$ -ToF の概念図

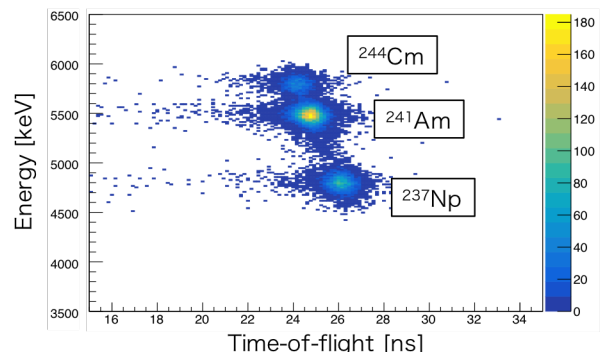


図 2. 三色線源を用いた、ToF-E の相関測定結果

Development and evaluate of the  $\alpha$ -ToF detector for MRTOF-MS.

NIWASE, T., WADA, M., SCHURY, P., ITO, Y., KAJI, D., ROSENBUSCH, M., KIMURA, S., MORIMOTO, K., HABA, H., ISHIZAWA, S., MORITA, K., MIYATAKE, H., WOLLNIK, H.



従来の新元素探索における原子番号の同定には、 $^{278}\text{Nh}$  の合成実験に代表されるように、 $\alpha$  崩壊の系列を既知核までたどるといった手法が用いられてきたが、自発核分裂を起こす核が存在する場合は系列が途切れてしまうという欠点がある。そこで、最近の 119, 120 番元素の実験においては、それ以外の手法で原子番号を決定し、核種を同定することが国際的にも求められている。候補となる核種同定法には、Ge 検出器を用いた娘核の特性 X 線測定やペニングトラップ、MRTOF 等を用いた精密質量測定、そしてガス検出器を用いたブラッグカーブ測定が考えられる。

本研究では 119, 120 番元素のような生成断面積が非常に小さく、かつミリ秒以下の寿命と予測される核に対しても測定可能な手法として、ブラッグカーブ測定による原子番号の直接測定を目指し、イオンチェンバーをベースに検出器を開発した。物質中でイオンが飛行距離当たりに損失するエネルギーは質量と原子番号に依存し、ブラッグカーブと呼ばれる特徴的な曲線を描くが、開発した検出器ではそれを時間情報として読み出す方式を採用している。さらに、超重元素実験で測定される予定の核子あたり 0.2MeV 程度のイオンではブラッグピークを作らないことが予想されているため、FADC を用いたデジタル信号解析によってブラッグカーブ全体の形状で核種の識別を行うことを可能としている。

有限要素法を用いた電場計算を用いて電極等の設計や、それを入力データとして Garfield++ を用いた波形のシミュレーションも行った。また、マイクロチャンネルプレートを用いた飛行時間検出器も開発し、ブラッグカーブ検出器と組み合わせることで原子番号と質量数の両方を測定する準備が整った。

$\alpha$  線源を使ったテスト測定の後、九大タンデム加速器から供給される重イオンビームを用いた性能評価を行った。その結果について発表を行う。

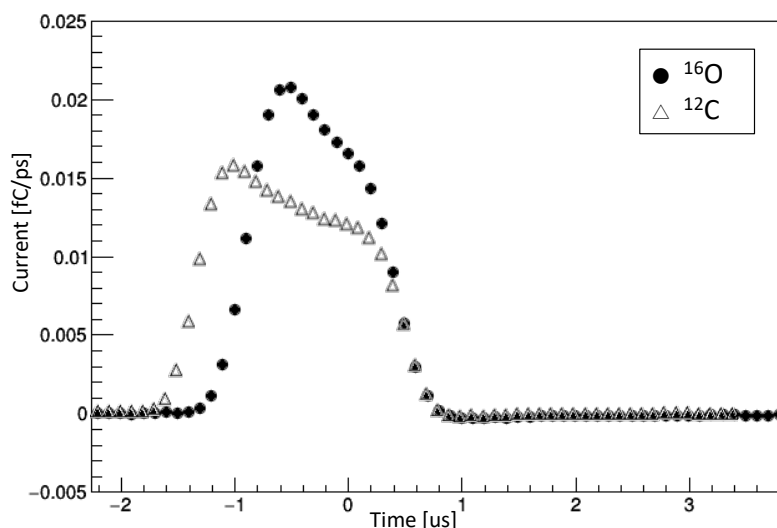


図:  $^{12}\text{C}$  と  $^{16}\text{O}$  のブラッグカーブ

# 1A10

テクネチウム同位体を用いたコンプトンカメラ撮像実験

(<sup>1</sup> 量研機構、<sup>2</sup> 東海大学、<sup>3</sup> 原子力機構)

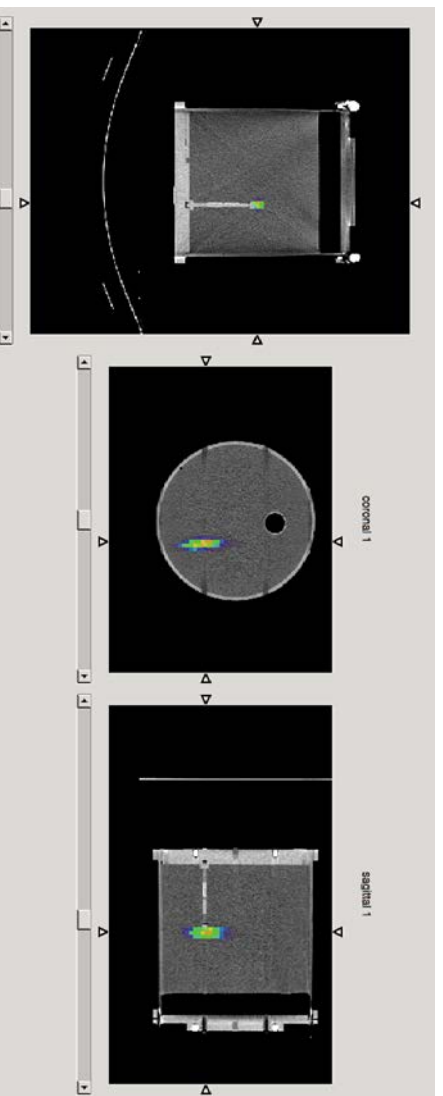
○初川雄一<sup>1</sup>、橋本和幸<sup>1</sup>、株木重人<sup>2</sup>、榎田淳子<sup>2</sup>、塚田和明<sup>3</sup>、浅井雅人<sup>3</sup>、  
豊嶋厚史<sup>3</sup>、西嶋恭司<sup>2</sup>、國枝悦夫<sup>2</sup>

**【緒言】** 重要な核医学診断法である Tc-99m/SPECT に代わる診断法として、Tc-95, Tc-96 とコンプトンカメラ撮像の組み合わせの検討を行った(1)。これらテクネチウム同位体は Tc-99m と違い高いエネルギーのガンマ線を放出するため従来の検出法である SPECT には適さない。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-95 および Tc-96 の検出としてコンプトンカメラ (Electron Tracking Compton Camera) に着目し、ETCC による Tc-95 の撮像実験を通して核医学診断法開発に向けた基礎研究を行った。

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。コンプトンカメラは前段のガスカウンタと後段のシンチレータ検出器からなり、それぞれの検出器における“散乱されたガンマ線”と、“散乱電子”の観測によりコンプトン散乱の関係式に基づき散乱角を計算し、ガンマ線線源の方向を求めることができ、これより線源の画像を再構築できる。本研究では 765.8 keV の高いエネルギーのガンマ線放出核種である Tc-95 ( $T_{1/2}=20$  h) 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(2)。

**【実験】** 陽子照射によって生成した Tc-95 を含む錠剤状の三酸化モリブデンターゲット (<sup>95</sup>MoO<sub>3</sub> 94.8%,  $\phi 10\text{mm} \times 2\text{mm}$ ; 206mg) を撮像試料として水フ렌トム内に置き ETCC による撮像実験を行った。ETCC の前に直径 225mm の水フレントムを設置し、水中に Tc-95 試料を置きそれぞれの位置で 2 時間から 12 時間の ETCC 測定を行った。得られたデータは逐次近似画像再構成法の一つである SOE (Stochastic Origins Ensembles) 法により 3 次元画像の再構築を行った。

**【結果・考察】** 図-1 に ETCC 撮像実験から得られたデータを SOE 法により再構築した Tc-95 線源像を示す。水フレントムの X 線 CT 画像は別に測定し、この水フレントム画像中に ETCC で得られた Tc-95 線源の再構築画像をはめ込んだものである。水フレントムにおけるガンマ線吸収の影響などについても議論する予定である。



**【文献】**(1)Hayakawa T., Hatsukawa Y, Tanimori T., Heliyon 4 (2018) c00497,

(2)初川、他 2016 放射化学会要旨 2A03、2017 放射化学会要旨 1B05

Compton Camera(ETCC) imaging experiment using technetium isotope  
HATSUKAWA, Y, HASHIMOTO, K., KABUKI, S., KUSHIDA, J., TSUKADA, K., ASAI, M.,  
TOYOSHIMA, A., NISHIJIMA, K., KUNIEDA, E.

**【緒言】** 負電荷ミュオンは 2.2  $\mu\text{s}$  の寿命をもち、物質中に入射すると、電子と入れ替わってミュオン原子を生成する。ミュオンは電子の 207 倍の質量をもつため、ミュオン原子の束縛エネルギーは、もとの原子の 207 倍となり、大きさは 207 分の 1 となる。ミュオンが 2 つの原子核を束縛してミュオン分子を生成すると、核間距離が接近し、分子内で核反応が起こる。ミュオン触媒核融合 ( $\mu\text{CF}$ ) ではこのミュオン分子内での核融合反応を利用してきたが、分子生成が共鳴反応であるため重水素・三重水素標的を 10 K 程度に冷やし精密に制御する必要があった。また、核融合生成物である  $\alpha$  粒子の原子軌道にミュオンが捕らわれるミュオン付着によるミュオンの損失により  $\mu\text{CF}$  のサイクル率が制限され、ミュオン生成にかかるエネルギーが回収できなかった。最近、多量のミュオンの新しい生成法が提案され[1]、また負電荷ミュオンビームの品質も向上してきた[2]ため、 $\mu\text{CF}$  が新たな中性子源やエネルギー源として、再び注目を集めるようになってきた。

**【理論】** 我々は、 $\mu\text{CF}$  実現にむけて、ミュオン原子衝突中におこる飛行中ミュオン触媒核融合 ( $\text{IF}\mu\text{CF}$ ) を新たに提案している。従来の  $\mu\text{CF}$  では、ミュオン分子生成が律速となるが、 $\text{IF}\mu\text{CF}$  はこの律速過程を回避する。本研究では、 $\text{IF}\mu\text{CF}$  の基礎となる、ミュオン原子衝突中での核融合反応 ( $d\mu + t \rightarrow \alpha + n + \mu + 17.6 \text{ MeV}$ ,  $d\leftrightarrow t$ ) の計算をおこなった。 $d\mu + t$  衝突の際、ミュオンは核間のクーロン障壁を強く遮蔽する。電子の場合も同様な遮蔽効果があるが、ミュオン原子の場合は、原子の束縛エネルギーと衝突エネルギーが同程度となるため、ミュオン分子形成の効果、さらにはミュオンの質量は原子核と比べて無視できないことによる非断熱効果などにより、核間の接触確率が増え大幅に増加することが予想される。

**【結論】**  $\text{IF}\mu\text{CF}$  の基礎となるミュオン原子衝突中の核融合反応を、厳密な量子小数多体系理論 [3]により精密に計算した。核反応断面積は、通常の熱核融合での断面積よりも三桁以上高い値が得られたが、このときの温度は熱核融合よりも一桁以上低い。つまり、高強度のミュオンが得られれば、自己点火により  $\mu\text{CF}$  を維持できる。今後、核反応後にミュオンが核反応生成物であるアルファ粒子へのミュオン付着や、 $dd$  核反応の分岐比などの計算のため、原子核内部の自由度を取り入れたより詳細な計算が必要とされる。なお、本研究の一部は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものである。

#### 参考文献

- [1] 森義治, 石禎浩, 他, 「高レベル放射性廃棄物低減・資源化の鍵、新たなミュオン粒子生成法へ向け原理実証」京都大学、科学技術振興機構 (JST) 発表 (2017 年 12 月 14 日) [http://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research/research\\_results/2017/171212\\_1.html](http://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research/research_results/2017/171212_1.html)
- [2] Y Miyake et al. J. Phys.: Conf. Ser. **551**, 012061 (2014)
- [3] E. Hiyama, Y. Kino, M. Kamimura, Prog. Part. Nucl. Phys. **51**, 223 (2003)

## 阻止電場—磁気ボトル型電子分光装置の開発および U-235m の内部転換電子分光測定

(<sup>1</sup> 阪大院理, <sup>2</sup> 電通大院情報理工) ○重河 優大<sup>1</sup>, 笠松 良崇<sup>1</sup>, 山北 佳宏<sup>2</sup>, 安田 勇輝<sup>1</sup>, 近藤成美<sup>1</sup>, 渡邊 瑛介<sup>1</sup>, 篠原 厚<sup>1</sup>

【緒言】 <sup>235m</sup>U (励起エネルギー76.8 eV) と <sup>229m</sup>Th (励起エネルギー7.8 eV) は内部転換の際に外殻の電子と相互作用するため、原子核壊変の確率 (すなわち壊変定数) が化学状態に応じて変化する[1,2]. 我々は、<sup>235m</sup>U や <sup>229m</sup>Th の半減期と内部転換電子のエネルギースペクトルを様々な化学状態について測定し比較することで、両核種の脱励起機構を解明することを目指す。<sup>235m</sup>U と <sup>229m</sup>Th 由来の内部転換電子の平均自由行程の長さ (固体中で数原子層程度)、扱える <sup>235m</sup>U や <sup>229m</sup>Th の量の制限により、高い効率で電子を分光測定する必要がある。本研究では、高検出効率と高エネルギー分解能を実現できる阻止電場—磁気ボトル型電子分光装置[3]を開発し、<sup>235m</sup>U 試料を測定することで装置の性能評価を行った。さらに、複数の化学状態の <sup>235m</sup>U について、半減期と内部転換電子エネルギースペクトルを高い精度で取得することに成功した。

【装置開発】 図1の装置を設計・製作した。永久磁石 (強磁場) とソレノイド (弱磁場) により生成される不均一磁場により、原理的には試料から放出された“全ての”電子の運動方向を上向きに揃えて検出器まで捕集できる。電子分光測定は、弱磁場側に置かれた銅製メッシュ (非磁性) に負電圧 (阻止電圧) を印可することで行う。電子検出器には低ノイズのチャンネルトロンを用いた。

【実験】 反跳核捕集装置を用いて <sup>239</sup>Pu 線源から放出される <sup>235m</sup>U を銅箔の表面に捕集し、図1の装置に導入した。まず、阻止電圧 0V で、複数の磁場条件について電子を計数した。磁場条件は、試料と永久磁石の距離 (強磁場の大きさ) とソレノイドに流す電流 (弱磁場の大きさ) を変えることで設定した。次に、銅箔表面の <sup>235m</sup>U と、それに酸性ガス (HF, HCl) を反応させた試料について、半減期と内部転換電子エネルギースペクトルを測定した。

【結果】 試料台と磁石の距離が 6 mm 以上であれば、ソレノイドの電流を大きくしていくと電子計数率が増加し、ある電流値を超えると電子計数率が最大 (~500 cps) となることが分かった。磁場なしの状態での測定結果と比較することで、電子の捕集効率が最大 100%となっていることが確認された。次に、捕集効率が最大になる磁場条件で3種類の化学状態の <sup>235m</sup>U 試料を測定したところ、半減期と内部転換電子エネルギースペクトルを以前よりも高い S/N と分解能で測定することに成功した。HCl ガスを反応させた <sup>235m</sup>U 試料については今回初めて測定に成功した。従って、原子核壊変への化学効果を、高感度・高分解能の電子分光により精度よく研究する手法の開拓にはじめて成功したといえる。

[1] M. Neve de Mevergnies and P. Del Marmol, Phys. Lett. **49B**, 428 (1974). [2] L. v. d. Wense *et al*, Natrue **533**, 47 (2016). [3] Y. Yamakita *et al*, Rev. Sci. Instrum. **71**, 3042 (2000).

Development of a retarding-field magnetic-bottle electron spectrometer and measurements of the internal conversion electrons from U-235m

SHIGEKAWA, Y., KASAMATSU, Y., YAMAKITA, Y., YASUDA, Y., KONDO, N., WATANABE, E., SHINOHARA, A.

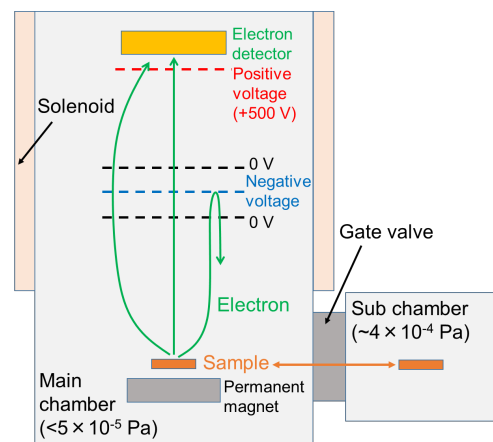


図1. 開発した阻止電場—磁気ボトル型電子分光装置の模式図。

**【緒言】** 2011年3月11日の東日本大震災によって発生した東京電力福島第一原子力発電所(以後、福島原発)事故により、大量の放射性物質が大気中に放出された。福島原発から4月初めまでに大気中に放出された<sup>137</sup>Csの総量は15PBqと推定されており、一部は陸域へと沈着し、空間線量率の増加や農畜産物・水産物の放射能汚染などの問題が発生している。陸域に沈着した放射性物質は、降雨等により流域から河川へ移動し、二次的な拡散を引き起こしている。そのため、河川における放射性核種の移行挙動を詳細に把握することは、河川流域および沿岸海洋への中長期的な生態影響評価に有効である。

本研究では、福島原発事故が発生してから5~7年後の平成27~29年度に福島県浜通地域の河川(阿武隈川、新田川、木戸川、岩沢川、夏井川)を対象に、河川水中の放射性セシウム濃度とともに、その存在形態について比較検討した。

**【実験】** 本研究では、平成27年10月19日と31日、平成28年6月7日、11月18日、及び平成29年6月28-29日と7月4-5日に福島県浜通地域の河川(阿武隈川、新田川、木戸川、岩沢川、夏井川、鮫川)で河川水を流心で採取し、連続遠心法、あるいは孔径0.45µmのフィルターで懸濁粒子を回収した。懸濁粒子は真空凍結乾燥後に金沢大学低レベル放射能実験施設、あるいは尾小屋地下実験施設のGe半導体検出器により放射性セシウム濃度を定量した。また、河川水中の溶存態の放射性セシウムはリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)共沈法で回収した。その後、Ge半導体検出器により河川水の放射性セシウム濃度を定量した。

**【結果と議論】** 福島県浜通り地域の河川環境での放射性セシウム濃度とその移行動態を把握するため、阿武隈川・新田川・木戸川・岩沢川・夏井川で河川水中の放射性セシウム濃度とその存在形態を測定した。平成29年6月と7月の観測での全(溶存態+懸濁態)<sup>137</sup>Cs放射能濃度は4.4~71 mBq/Lの濃度範囲を示した。河川水中の放射性セシウムの存在形態は、懸濁態<sup>137</sup>Csが木戸川では54%、阿武隈川上流から下流までの7測点で73~87%、新田川で80%、夏井川では85%であった。一方、岩沢川では溶存態が98%と高く、観測した3年間を通して溶存態が90%以上を占めていた。岩沢川は岩盤の河床を有する小河川であり、河川水の電気伝導度は他の河川に比べて1桁、溶存有機炭素濃度も2~3倍高く、河川水の水質に反映されているように、流域環境が他の河川とは異なる。河川水の全(溶存態+懸濁態)<sup>137</sup>Cs放射能濃度は46~59 mBq/Lと、浜通りの河川として比較的高い値を示している。河川水の懸濁粒子中の<sup>137</sup>Cs放射能含有量は535~635 Bq/kg-懸濁粒子と新田川や木戸川、阿武隈川下流の伊達の2260~8440 Bq/kg-懸濁粒子、阿武隈川上流と夏井川の910~1150 Bq/kg-懸濁粒子と比べると低い値であった。しかし、懸濁態の割合が78%と高い阿武隈川下流の岩沼で採取した河川水懸濁粒子と同じ程度であった。これらの結果は、岩沢川では河川流域からの溶存態放射性セシウムの供給が大きいため、溶存態放射性セシウムの割合が見かけ上、高くなったと考えられる。

Existence forms of radiocesium in waters from river systems in Hama-Dori area in Fukushima Prefecture, Japan

NAGAOO, S., YAMAGISHI, E., MOROKADO, T., SHIMAMURA, A., TOMIHARA, S., OCHIAI, S.

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所事故により、放射性セシウム ( $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$ ) が拡散され、その半減期の長さから各機関においてモニタリング調査が続けられている。河川においても、福島を中心的に調査が行われているが、上流域の山林地域から下流域の都市圏を流れる都市河川の多摩川集水域では実施されていない。都市河川での底質中放射性セシウムの正確な挙動予測を行うために、多摩川集水域での放射性セシウムの分布を把握する事は非常に重要である。本研究室では、2012 年から多摩川集水域での底質中放射性セシウムの挙動を追ってきた<sup>1,2)</sup>。しかし、これらの結果は時間経過を考慮できていない。そこで、季節毎に多摩川集水域にて底質を採取し、底質中放射性セシウムを定量する事で、都市河川での底質中放射性セシウムの季節変動を調査した。

【実験】底質試料の採取は、冬季 (2017 年 12 月 1 日から 2017 年 12 月 10 日)、春季 (2018 年 3 月 2 日から 2018 年 3 月 4 日)、夏季 (2018 年 6 月 24 日から 2018 年 6 月 26 日) の 3 期間で実施した。試料採取地点は、多摩川本流及び支流にて 45 地点を選定した。底質試料は、スコップを用いて表層 5 cm 未満、1 kg を採取しポリ袋に保存した。採取した底質試料は 105°C で 24 時間乾燥を行い、目開き 2 mm のふるいに通した。ふるい分けた試料をねじ口 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 6 時間以上ガンマ線測定し、放射能濃度を算出した。また、全ての試料において採取日を基準に半減期補正を施した。

【結果と考察】 Fig. 1 に、冬季の多摩川集水域における底質中  $^{137}\text{Cs}$  濃度分布を示す。冬季広域サンプリングの結果、多摩川全域で  $^{137}\text{Cs}$  が検出された。特に、多摩川本流の下流域にて  $^{137}\text{Cs}$  濃度が高い傾向にあった。多摩川本流では河川の流れによる移行と、支流からの底質の流れ込みが下流域の濃度上昇に起因していると考えられる。多摩川支流では、野川 (35-41) と二ヶ領用水 (33)、平瀬川 (32) で高濃度を示した。これらの地点は、流速が緩やかで底質が堆積しやすい地点である。底質が流水により流されず堆積した事で、底質中  $^{137}\text{Cs}$  濃度が上昇したと考えられる。また、流速や流量の異なる本流と支流では、その濃度変動が異なる事が示唆された。この様な、同一河川に対する多地点広域サンプリング調査は、これまでに例が少なく、底質中放射性セシウムの変動を詳細に解析できると考えている。発表では、春季や夏季の広域サンプリング結果も合わせて、多摩川集水域の底質中放射性セシウム濃度の季節変動を考察する。

#### 【参考文献】

- 1) 越智康太郎ら: *Proceedings of the 17<sup>th</sup> Workshop on Environmental Radioactivity*, 33 (2016).
- 2) 秋山将人ら: *Isotope News*, No.756, 91(2018).

Seasonal Variation of the Activity Concentration of Radiocesium in Sediment Sampled at Tamagawa River Watershed  
AKIYAMA, M., HAGIWARA, K., KOIKE, Y.

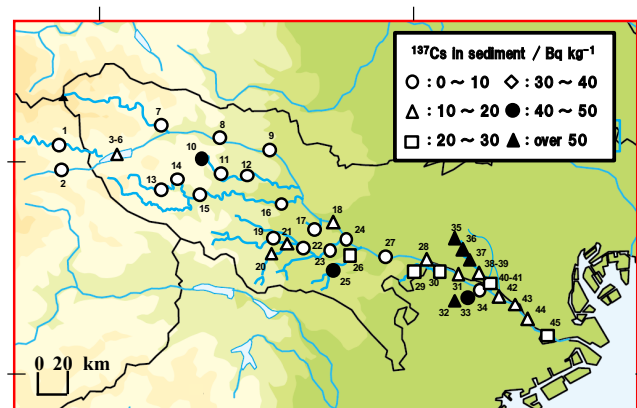


Fig. 1 Activity concentration of  $^{137}\text{Cs}$  in sediment sampled at Tamagawa River in December 2017.

# 1B03

## 能登半島七尾西湾底層水中の Rn-222 水平分布から見た地下水流出の寄与

(<sup>1</sup> 金沢大院自然、<sup>2</sup> 金沢大環日セ、<sup>3</sup> 福井県大海洋生資、<sup>4</sup> ウッズホール研)

○藤田充司<sup>1</sup>、長尾誠也<sup>2</sup>、落合伸也<sup>2</sup>、杉本亮<sup>3</sup>、松中哲也<sup>2</sup>、Matthew A. Charette<sup>4</sup>、Paul B. Henderson<sup>4</sup>

**【緒言】**陸域由来の豊富な栄養塩が供給されるため、沿岸域は高い生物生産性があり、栄養塩供給源として河川水と地下水（海底湧水）の2つの経路が考えられる。河川と異なり、流出場所・状態の特定が困難な地下水の寄与を特定する有効なトレーサーとして <sup>222</sup>Rn が多くの研究で用いられている。<sup>222</sup>Rn はウラン系列に含まれ、水溶性で不活性な希ガスである。地殻中にはウラン系列である <sup>238</sup>U や <sup>226</sup>Ra が多く含まれており、地殻中を流れる地下水中には高濃度の <sup>222</sup>Rn が含まれている一方、地表水中の <sup>222</sup>Rn は大気への拡散や放射壊変により失われる。また、<sup>222</sup>Rn の半減期は約 3.8 日と短いため、リアルタイムで地下水の寄与を調査する指標として用いることが出来る。本研究では、石川県能登半島の半閉鎖的な海域である七尾西湾において海水と周辺の流入河川水・地下水の <sup>222</sup>Rn 濃度を測定し海底湧水の実態を把握することを試みた。

**【調査・測定】**2017 年 11 月、2018 年 4 月・7 月の調査で採取した試料中の <sup>222</sup>Rn 濃度を採取後すぐに静電捕集型ラドン測定器 RAD7 を用いて測定した。また、試料採取地点で直読式総合水質計（CTD）を用いて観測地点の塩分・水温・DO 等を鉛直的に観測した。

**【結果・考察】**図 1 に夏季の成層化が進行している 2018 年 7 月の調査の結果を示した。海水中の <sup>222</sup>Rn 濃度は湾北東部と南西部（二宮川河口）で高濃度となった。地下水の寄与を検討するため、地下水と海水、河川水と海水の混合曲線を図 2 に示した。実線は地下水と湾外海水の保存的混合、破線は二宮川と湾外海水の保存的混合、一点鎖線は熊木川と湾外海水の保存的混合を表している。<sup>222</sup>Rn 濃度が高くなった湾北東部（NW-4,B1,B2）の地点は地下水と湾外海水の保存的混合曲線上にプロットされたため、これらの地点では地下水の寄与が高いことが示唆された。2017 年 11 月の調査では七尾西湾中央部～東部の底層水が高い <sup>222</sup>Rn 濃度となったが、2018 年 4 月の調査では湾南西部で比較的高濃度となった。湾内で <sup>222</sup>Rn 濃度が高くなった地点は調査ごとに異なった。そのため、今後は年間を通じた海底湧水の実態を把握するために調査を継続していく必要がある。

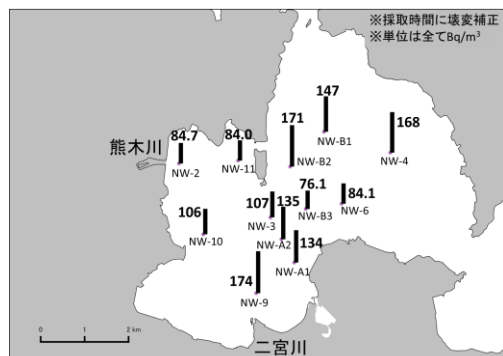


図 1 底層水 <sup>222</sup>Rn 濃度（2018 年 7 年）

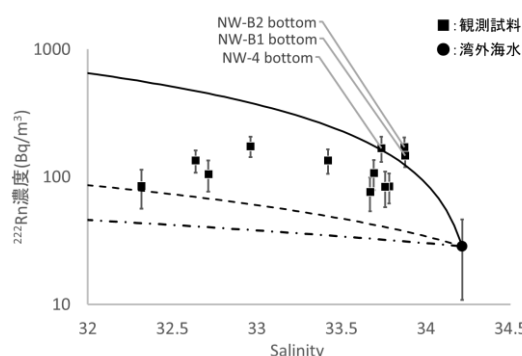


図 2 <sup>222</sup>Rn のミキシングダイアグラム

Contribution of groundwater discharge to bottom water of Nanao West Bay based on <sup>222</sup>Rn horizontal distribution.

FUJITA,A.,NAGAO,S.,OCHIAI,S.,SUGIMOTO,R.,MATSUNAKA,T., M. Charette, P. Henderson

### 1. はじめに

魚などの海産物は比較的高い濃度で  $^{210}\text{Po}$  を含むことが知られている。海産物中の  $^{210}\text{Po}$  及び  $^{210}\text{Po}$  の実質的な親核種である  $^{210}\text{Pb}$  を正しく測定することは、食品に起因する内部被ばく線量評価の観点から、重要である。これまで、食品試料中の  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Po}$  測定に応用された分析法<sup>1)</sup>について、採取後 5 年経過した魚肉（ヒラメ）の凍結乾燥粉末と市販金属鉛試薬から分離した  $^{210}\text{Po}$  溶液及び  $^{209}\text{Po}$  標準液を用いた実験を行い、上記分析法の化学分離ステップ（酸分解、抽出クロマトグラフィー、電着線源作成）ごとの Po の損失を調べたところ、化学分離操作で Po の有意な損失はないことが検証できた。そこで、次の段階として、作成した標準分析手順書に基づいて共通試料を複数機関が分析する共同実験を行い、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Po}$  分析法の能力を評価することを試みた。

### 2. 共同実験に用いる試料

共同実験実施に向け、分析しやすい程度に  $^{210}\text{Po}$  を含む試料が必要である。そこで、共同実験に適した試料の探索を目的として、市販海産物粉末中の  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度を上記分析法<sup>1)</sup>に従い、測定した。その結果、 $^{210}\text{Po}$  濃度は  $1.8 \text{ Bq kg}^{-1}$  から  $106 \text{ Bq kg}^{-1}$  まで分布し、生産地、試料によって大きな差があった。全体的に海藻、貝及びイカ乾燥粉末と比較して、海産魚粉末の  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度が高い傾向にあった。特に粉かつお、いりこ粉末中の  $^{210}\text{Po}$  放射能濃度はそれぞれ  $(106 \pm 4) \text{ Bq kg}^{-1}$ 、 $(32.0 \pm 1.2) \text{ Bq kg}^{-1}$  を示したので、共同実験用試料として選択した。

市販の粉かつお、いりこ粉末を共同分析用試料としてそれぞれ 5 kg 程度、新たに入手した。購入した両粉末試料を V 型混合器で混合、均質化した後、洗浄済みのポリカーボネート製容器に充填し、アルミニウムコートラミネート袋中に封入した。その後、粉かつお、いりこ粉末試料を  $\gamma$  線照射により滅菌し、共同実験用試料とした。

### 3. 共同実験用試料の均質性評価

作成した共同実験用試料の均質性を評価するために、標準分析手順に従い、粉かつお 10 瓶、いりこ粉末 3 瓶を用いて  $^{210}\text{Po}$  を測定した。なお、瓶内ばらつきを評価するために各瓶それぞれ 2 回の  $^{210}\text{Po}$  分析を行った。得られた結果を、JIS Q 0035: 2008<sup>2)</sup>に準じた統計計算でばらつきを評価した。複数試料の  $^{210}\text{Po}$  分析値のばらつきから、かつお粉末の均質性に基づく不確かさは 5.0 %、いりこ粉末の均質性に基づく不確かさは 2.6 % と評価できた。試料中の  $^{210}\text{Po}$  濃度を考慮すれば十分な均質性であり、共同実験には問題がないレベルと判断した。粉かつお、いりこ粉末試料を参加機関に配布し、共同分析を実施した。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Po}$  共同分析の結果は、会場で報告する。

謝辞：本研究は JSPS 科研費 15K00551 の助成を受けたものです。

1) T. Miura, K. Hayano, K. Nakayama, *Anal. Sci.*, 15, 23-28, 1999. 2) JIS Q 0035:2008, 標準物質-認証のための一般的及び統計的な原則、日本工業調査会、2008

Evaluation of Analytical Method for  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  in Marine Product using interlaboratory Comparison  
MIURA, T., OTA, T., TERADA, A.



## 1号機由来不溶性セシウム粒子の多面的分析による 生成シナリオの解明

(<sup>1</sup>原子力機構,<sup>2</sup>筑波大数理,<sup>3</sup>ブリストル大) ○佐藤 志彦<sup>1</sup>, 小島 雅明<sup>1</sup>,  
岡根 哲夫<sup>1</sup>, 末木 啓介<sup>2</sup>, 松尾 一樹<sup>2</sup>, 石井 達也<sup>2</sup>, Peter G. Martin<sup>3</sup>,  
Tom B. Scott<sup>3</sup>

**【緒言】** 福島第一原発事故では不溶性セシウム粒子と呼ばれる放射性粒子が放出したことが知られている。特に1号機から放出した粒子 (Type B) は1粒子に含まれる放射エネルギーが多いため、廃炉作業において偶発的な放出が発生した場合、周辺環境に与える影響は大きく、不測の事故を防止する観点からも生成した場所の特定が急がれる。しかし Type B の生成過程は、ケイ酸の由来が原子炉建屋内で使用されていた断熱材の可能性が指摘されているだけで、生成場所を含む詳細情報は明らかになっていない。そこで本研究ではこれまで外観の観察や、放射光の透過による分析が中心に行われてきた Type B に対し、実験室 X 線 CT およびシンクロトロン放射光トモグラフィ (SR-XRT) による非破壊の内部分析、および硬 X 線光電子分光 (HAXPES) による表面を構成する元素の電子状態を取得し、Type B の保持する基本情報から生成シナリオを検討した。

**【実験】** 実験に用いた粒子は、福島第一原発から北側 3km の地点 (CF-01) で採取した地表部のダストから分離し、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比を含む不溶性セシウム粒子の特徴から1号機由来の Type B であることを確認した上で用いた (Satou 2018)。粒子の内部構造および構成元素の分析は実験室 X 線 CT 装置、および英国 diamond light source (DLS) I13-1 ビームコースで行った。HAXPES は SPring-8 BL22XU (JAEA 専用ビームライン) において KB ミラーを用い、50x45μm に集光した 8keV の放射光で測定した。

**【結果・考察】** X 線 CT で粒子内部に無数の空洞が存在することを確認した。また X 吸収量を強調した CT 像からは (図 1a) 粒子の表面層に高吸収の領域が見られた。さらに SR-XRT による元素分布 CT 像からはケイ素以外の Cs、Fe、Zn などの元素が粒子の表面付近に多く存在することを認めた (図 1b,c)。加えて HAXPES で Fe などの一部元素が低い価数で存在する結果を得た。これらの結果から、従来は断熱材の不純物として考えられていた Fe、Zn 等は、実際にはケイ酸の溶融中、あるいは粒子形成中に固体物として付着したと推定され、水素爆発前に断熱材の溶融が発生していた可能性が示唆された。

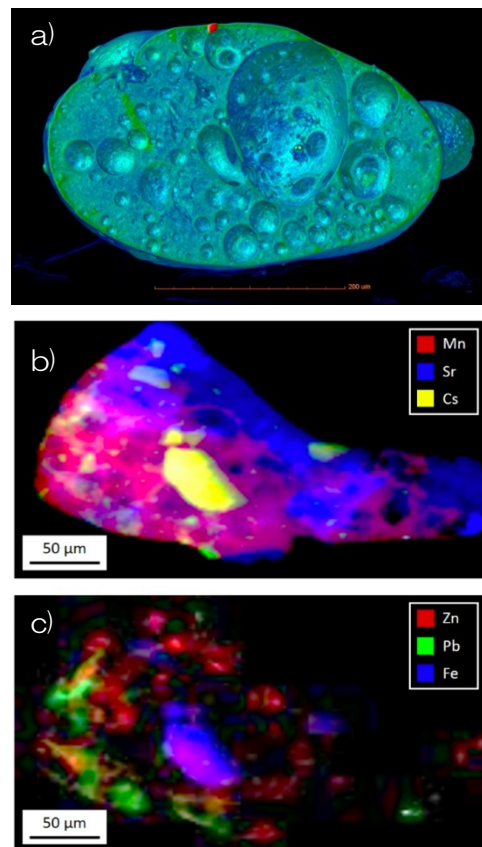


図 1(a) X 線 CT による X 線吸収強調の断面像。(b) Mn, Sr, Cs (c) Zn, Pb, Fe の分布。

## 福島県大熊町で発見された放射性 Cs を含む不溶性粒子の 破壊分析による微量元素定量

(<sup>1</sup> 阪大院理, <sup>2</sup> 筑波大院数理物質科学, <sup>3</sup> 原子力機構)

○五十嵐 淳哉<sup>1</sup>, 張 子見<sup>1</sup>, 二宮 和彦<sup>1</sup>, 篠原 厚<sup>1</sup>, 末木 啓介<sup>2</sup>, 佐藤 志彦<sup>3</sup>

**【緒言】**福島原発の事故により、原子炉から大量の放射性物質が環境中に放出された。これらの中で、SiO<sub>2</sub>の母材に放射性 Cs が濃集した水に不溶な粒子（不溶性粒子）が放出されたことがわかっている[1]。不溶性粒子は水に不溶であることから事故時の状態を保っており、その性質を調べることで事故時の原子炉内環境についての情報を得ることが期待される。これまで形状やその性質により少なくとも2種類の不溶性粒子の存在が確認され、各々生成時に異なる炉内環境が存在したと考えられている[2]。本研究グループは福島県大熊町の土壌から、直径 100 μm 程度の放射性 Cs を低濃度に含んだ不溶性粒子を発見した[3]。この不溶性粒子は<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Csの放射能比から2号機もしくは3号機由来であると推測される[4]。図1に発見された不溶性粒子のSEM像を示す。本研究ではこの不溶性粒子の炉内での生成過程を明らかにするため、Csよりも揮発性の元素であるSrに着目した。

**【実験】**本研究ではSr-Rad Diskによる固相抽出法を用いた破壊分析法[5]により、不溶性粒子中に微量に含まれるSrを定量した。具体的には主成分であるSiO<sub>2</sub>がアルカリに溶解できることを利用し、アルカリ溶融による不溶性粒子の溶液化を行った。この溶液をSr担体と共にSr-Rad Diskへ流し込み、不溶性粒子中に含まれる放射性Sr(<sup>90</sup>Sr)を分離した。そして<sup>90</sup>Srの娘核種<sup>90</sup>Yから放出されるチェレンコフ光の成長を液体シンチレーションカウンタ(LSC)の連続測定にて観察することで<sup>90</sup>Srの放射能を定量した。

**【結果と考察】**図2にLSC測定結果から得た<sup>90</sup>Yの成長曲線を示す。この結果から、福島県大熊町で発見された2号機もしくは3号機由来の不溶性粒子中における<sup>90</sup>Srの放射能は0.04 Bq程度であることがわかった。発表ではこの結果をもとに予想される、福島県大熊町で発見された不溶性粒子の炉内での生成過程について考察する。

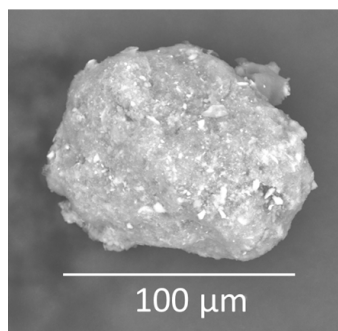


図1.大熊町で発見された  
不溶性粒子のSEM像

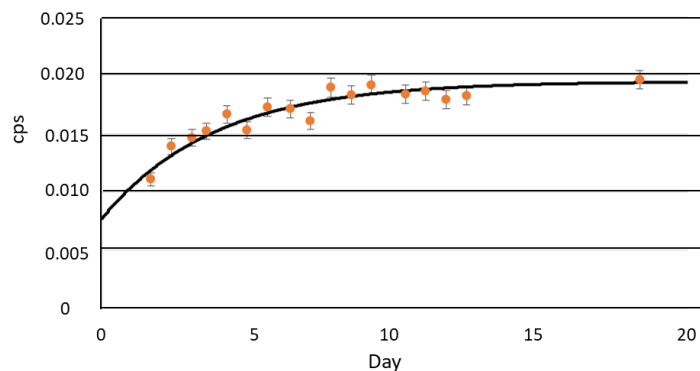


図2.LSC測定結果から得た  
<sup>90</sup>Yの成長曲線

**【参考文献】**[1]K.Adachi et. al., Sci.2013,3,2554[2]Y.Satou et al., Geochem. J. 2018,52, 0514  
[3]J.Igarashi et al.,19th Workshop on Environmental Radioactivity[4]K.Nishihara et al., JAEA-Data/code 2012-018 (2012)[5]Z.Zhang,et.al., J.Nucl.Radiochem.Sci.2016,16,15

Quantity of trace element in insoluble particle including radioactive Cs found in Okuma town, Fukushima prefecture by destruction analysis  
IGARASHI, J., ZHANG, Z., NINOMIYA, K., SHINOHARA, A., SUEKI, K., SATOU, Y.

## 福島第一原発事故で土壌に沈着した $^{125}\text{Sb}$ における 分析法の開発と濃度分布

(<sup>1</sup>金沢大・院自然,<sup>2</sup>金沢大・学際セ,<sup>3</sup>金沢大・理工) ○宮澤 直希<sup>1</sup>,  
上杉 正樹<sup>2</sup>, 横山 明彦<sup>3</sup>,

### 【緒言】

2011年3月11日の東日本大震災による地震と津波で福島第一原子力発電所事故が発生した。陸域では飛散した放射性核種は原発から北西方向に向けて飛散し、地表に沈着した。これらの放射性核種は原子炉内における生成と放出の状況を反映していると考えられるが、福島事故に関する調査研究においてはセシウムの同位体が中心となり多く行われてきた。我々はセシウム以外の放射性核種として、揮発性を有し、土壌への沈着が確認されている  $^{125}\text{Sb}$  (半減期 2.758 y) に着目した。 $^{125}\text{Sb}$  は放出量が少ないため、 $\gamma$ 線測定時には試料中に大量に存在する放射性セシウムの妨害によりピークが隠れてしまい、報告例は少ない。そこで、セシウムのみを除外することができれば測定できると考え、 $^{125}\text{Sb}$  を浸出させた後、リンモリブデン酸アンモニウム吸着法と陰イオン交換樹脂法の適用について検討をしてきた。今回は、さらに土壌からの浸出法における最適条件の追加検討を行ったので、この結果及び測定できた  $^{125}\text{Sb}$  の土壌濃度分布について報告する。

### 【実験】

**最適条件 (浸出) の検討:** 揮発性のアンチモンは一方で土壌吸着性が高い元素であるので、 $^{124}\text{Sb}$  (半減期 60.3 d) トレーサーを用いた土壌への添加実験により土壌中のアンチモンの浸出方法を検討した。王水、塩酸、硝酸による浸出法、フッ酸-塩酸混液分解法及び、アンモニウム塩融解法をそれぞれ比較検討した。

**$^{125}\text{Sb}$  の定量:** 図 1 に条件を勘案して最適化した分析の手順を示す。収率は  $^{124}\text{Sb}$  の回収率で確認した。試料量を 20g として塩酸による浸出の後、陰イオン交換樹脂カラムを適用した。鉄を除去するためアスコルビン酸により溶液中の鉄を 3 価から 2 価に還元した。この時セシウムは樹脂に吸着しない。アンチモンが吸着した樹脂を測定容器 (U-8) に入れ、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーで定量した。

### 【結果】

**浸出の検討:** 土壌の浸出処理において、回収率が最も高いのは塩酸であり、添加したトレーサーの 81% が回収できた。

**$^{125}\text{Sb}$  の定量:** 陰イオン交換樹脂を用いた分離においては、放射性セシウムは 97% 除去でき、アンチモンは 90% 回収できた。浸出も含めた最終的な回収率は、平均すると 70% 程度である。ただし、地点によっては浸出の段階において土壌への吸着により、塩酸でも回収率が低下する試料があり、本検討においてトレーサーの添加は必須である。この手法により、 $^{125}\text{Sb}$  の検出下限値を 2000 Bq/kg から 7Bq/kg まで下げることができた。福島県双葉町の土壌に対して本分析法を適用し  $^{125}\text{Sb}$  の定量に成功した。その結果について、 $^{137}\text{Cs}$  との放射能比及び採取地点の関連から 3 つのグループに分かれることが確認できた。

Development on the Determination Method of Radioactive Antimony and the Obtained Distribution of Its Soil Deposition near Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant  
MIYAZAWA, T., UESUGI, M., YOKOYAMA, A.

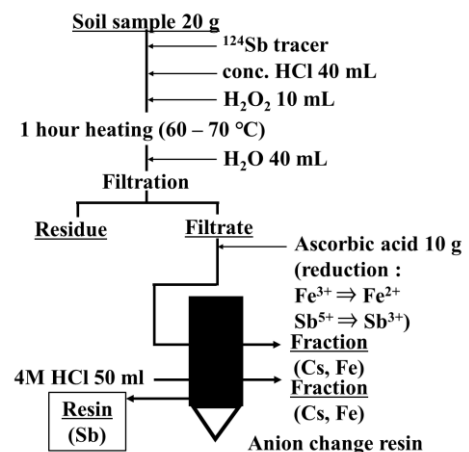


図 1 分析の手順

## SPM 計ろ紙の分析による東日本での福島第一原発事故当時の大気中放射性セシウム濃度

(<sup>1</sup> 首都大院理, <sup>2</sup> RESTEC, <sup>3</sup> 早大教育, <sup>4</sup> 東大院工, <sup>5</sup> 国環研, <sup>6</sup> JAXA)

○大浦泰嗣<sup>1</sup>, 鶴田治雄<sup>2</sup>, 海老原充<sup>3</sup>, 森口祐一<sup>4</sup>, 大原利真<sup>5</sup>, 中島映至<sup>6</sup>

【はじめに】東京電力福島第一原子力発電所事故直後における大気中放射性物質の動態解明のため、東日本の自治体が運用している自動浮遊粒子状物質測定装置(SPM 計)での使用済みテープ状ろ紙に捕集された放射性セシウムの定量を 2011 年末より続けている。2014 年度までに行なった 99 地点での大気中濃度値とこれらより明らかとなった放射性プルームについては既に報告した<sup>1,2,3)</sup>。本発表では、2015 年度から 2017 年度に行なった新たな地点での大気中放射性セシウム濃度を紹介する。本期間では、原発近傍の地点<sup>4)</sup>や同一場所で標高が異なる地点をはじめ、特に原発から遠方の地点への動態の解明を目指した。

【実験】SPM 計ではロール状のテープろ紙が使用されており、この上に 1 時間ごとに SPM が円盤状(スポットと呼ぶ)に捕集される。各スポットの捕集日時を同定した後、1 スポットごとに切断して、 $\gamma$ 線測定用試料を作成した。これらを Ge 半導体検出器で約 1 時間から 3 時間測定を行った。

【結果と考察】先行研究も含めて、図 1 に示す青森県から静岡県までの 148 地点における 2011 年 3 月 12 日から 25 日までの期間内で、プルームが到達したと推定された日時を中心に、1 時間ごとの大気中セシウム濃度を定量した。

青森県内の 2 地点では 3 月 12 日から 25 日までに有意な放射性プルームは検出されなかったが、岩手県内では 3 月 13 日と 21 日に最大で約  $4 \text{ Bq/m}^3$  の  $^{137}\text{Cs}$  を含むプルームが観測された地点があった。盛岡市で 3 月 19 日以降観測された降下物の放射能は 3 月 20-21 日に最大値を示したが、これと時期が一致する。秋田県内でも 1 地点で 3 月 21 日に最大で約  $0.8 \text{ Bq/m}^3$  の  $^{137}\text{Cs}$  が検出された。

長野県内では 3 月 15 日に関東山地の西側で最大約  $30 \text{ Bq/m}^3$  の  $^{137}\text{Cs}$  を含むプルームが観測された。しかし、長野県北部では測定対象期間内において放射性プルームは観測されなかった。

静岡県内では、西部で 3 月 21 日に最大で約  $0.8 \text{ Bq/m}^3$  の  $^{137}\text{Cs}$  を含むプルームが観測された。これは東部では観測されず、プルームは洋上を通り、西部へ直接到達したと考えられる。

東京タワーでは標高の異なる 3 ヶ所(25 m、125 m、225 m)で SPM が捕集され、これらにおける  $^{137}\text{Cs}$  濃度はほとんど一致しており、また、近くの SPM 地点での  $^{137}\text{Cs}$  濃度ともよく一致していることから、少なくとも都心部では高さ 225 m までよく混合されたプルームが到達したと推定される。

[1] Tsuruta et al., *Sci. Rep.* 4, 6717 (2014). [2] Oura et al., *JNRS* 15, 15 (2015). [3] 鶴田他, *エアロゾル研究* 24, 244 (2017). [4] Tsuruta et al., *Geochem. J.* 52, 103 (2018).

テープろ紙を提供していただいた各自治体並びに環境省の関係者に感謝いたします。本研究は、環境省並びに原子力規制庁の委託事業費、文部科学省科学研究費、環境省環境研究総合推進費により行われた。

Atmospheric Radiocesium Concentrations in East Japan just after TEPCO FDNPP Accident by Analysis of Tape Filters Used at Automatic SPM Monitors.

OURA, Y., TSURUTA, H., EBIHARA, M., MORIGUCHI, Y., OHARA, T., NAKAJIMA, T.

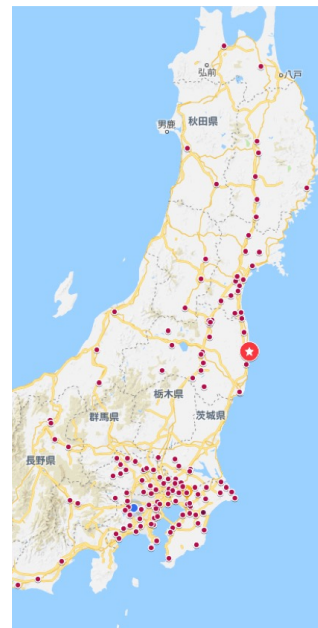


図 1 測定地点

## 福島第一原発事故後の環境中からウシ硬組織への Sr-90 の移行挙動

(<sup>1</sup>東北大・理、<sup>2</sup>東北大・高教機構、<sup>3</sup>東北大病院、<sup>4</sup>東北大・歯、<sup>5</sup>東北大・災害研、<sup>6</sup>東北大・医、<sup>7</sup>岩手大・理工、<sup>8</sup>東北大・農、<sup>9</sup>東京医大)

○小荒井一真<sup>1</sup>、木野康志<sup>1</sup>、西山純平<sup>1</sup>、金子拓<sup>1</sup>、小野拓実<sup>1</sup>、岡壽崇<sup>1,2</sup>、高橋温<sup>3</sup>、鈴木敏彦<sup>4,5</sup>、清水良央<sup>4</sup>、千葉美麗<sup>4</sup>、小坂健<sup>4,5</sup>、佐々木啓一<sup>4</sup>、漆原佑介<sup>6</sup>、福田智一<sup>7</sup>、磯貝恵美子<sup>8</sup>、関根勉<sup>1,2</sup>、福本学<sup>9</sup>、篠田壽<sup>4</sup>

**【緒言】**我々は、東北大学プロジェクト「被災動物の包括的線量評価事業」の中で動物体内の放射能測定を行ってきた。これまで、被災ウシの歯の形成に伴い Sr-90 が取り込まれていることを報告した。つまり、歯中の Sr-90 は歯の形成時期に取り込んだ Sr-90 を記録する。したがって、環境中から歯への移行機構の特徴が明らかになれば、ウシの歯中 Sr-90 から過去の植物や土壌中の存在量を推定が可能になると考えられる。本研究では、安定 Sr や Ca と比較することで、Sr-90 の環境中から歯への移行挙動を調べた。

**【実験】**試料の採取地点は、FNPP 事故に伴う警戒区域内大熊町(2012 年、FNPP より西に 5 km)で、黒毛和種ウシおよび土壌試料を同時に採取した。試料採取時の空間線量率は 30  $\mu\text{Sv h}^{-1}$  であった。ウシの歯は歯種ごとに分割し、その一部を粉碎・乾燥した。土壌試料は風乾後、2 mm 以上の礫を取り除いた。また、土壌の可溶性成分(可給態)は、超純水と 1M 酢酸アンモニウム水溶液により抽出した。この可給態は、土壌からの移行に關与するため、Sr-90 の歯への移行の議論に用いる。また、超純水で 1 週間浸透し、土壌中の懸濁成分を抽出した。この懸濁成分と土壌自体の核種および元素濃度から、固液分配比(Kd)を算出した。歯、土壌可給態中の Sr-90 は、発煙硝酸法または Sr resin 法による化学分離後に放射能を定量した。安定 Sr、Ca は試料の有機物分解後に ICP-AES または ICP-MS により定量した。

**【結果と考察】**土壌での Kd の大小関係は安定 Sr > Ca > Sr-90 であった。つまり、事故により沈着した Sr-90 が最も溶出しやすい状態であったことがわかった。安定 Sr と Ca の Kd の差は元素の水溶性の違いに起因する。このように、土壌中においてそれぞれの元素や核種によって溶出の程度が異なることを示した。次に、可給態からウシの歯への移行経路中での Sr-90 の挙動について議論する。歯と可給態の関係は、Sr-90 比放射能で 歯(事故後)  $\approx$  可給態 > 歯(事故前)、Sr-90/Ca で 可給態 > 歯(事故後) > 歯(事故前)となった。ウシや植物といった生物は、取り込んだ安定 Sr と Sr-90 を区別できないため、比放射能の関係から可給態が事故後に形成した歯の汚染源であったことが示唆された。したがって、歯中の Sr-90 比放射能は可給態の汚染の指標となる [1]。一方で、Sr-90/Ca の関係から、歯への取り込みプロセスで Sr-90 は生体に Ca と区別されながら取り込まれたことが明らかになった。このように、福島事故後の Sr-90 の環境中から歯への移行挙動を明らかにした。

表 1. 大熊町土壌での核種・元素の固液分配比

	Kd / L kg <sup>-1</sup> (平均値 (最大値-最小値))
Sr-90	64 (100-27)
安定 Sr	5300 (9300-2000)
Ca	1700 (3900-690)

[1] K. Koarai *et al.*, *J. Environ. Radioact.*, **183**, 1-6 (2018)

Transfer behavior of Sr-90 from environment to cattle teeth after the Fukushima Daiichi Power Plant accident.

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

# 1B10

## 層状珪酸塩へのハードな陽イオンの吸着構造の系統性：

### セシウムやストロンチウムの比較

(東大院理)

山口 瑛子、○高橋 嘉夫

粘土鉱物などの層状珪酸塩は、様々な金属イオンを吸着することで、多くの金属イオンの地球表層での挙動に影響を与えているが、その吸着種の安定性は、金属イオンによって大きく異なる。ハードな金属イオン（アルカリイオン、アルカリ土類イオン、希土類イオンなど）に注目した場合、その安定性の違いは、各イオンの水和錯体の安定性、層状珪酸塩の siloxane がなす 6 員環との構造的適合性などに関連すると考えられている。また手法的には、熱力学的検討、イオンが吸着された粘土鉱物の層間距離、各種分光法、量子化学計算などにより研究が進められている。このうち我々は、主に広域 X 線吸収微細構造（EXAFS）法を 2:1 型粘土鉱物（パーミキュライト、モンモリロナイト）に吸着された  $K^+$ 、 $Rb^+$ 、 $Cs^+$ 、 $Sr^{2+}$ 、 $Ba^{2+}$ 、 $La^{3+}$ 、 $Y^{3+}$ 、 $Lu^{3+}$ などに適用（Yamaguchi et al., 2018a,b）することで、各イオンの吸着構造の系統的な違いを考察した。また吸着構造と関連がある吸着分配係数  $K_d$  の pH およびイオン強度依存性も調べた。

2:1 型粘土鉱物に吸着されたイオンのうち  $K^+$ 、 $Rb^+$ 、 $Cs^+$  の EXAFS から得られた動径構造関数では、第二近接原子の寄与が大きく、粘土鉱物のシリカ層と何らかの相互作用を持つ内圏錯体の生成が示唆された。一方、 $Sr^{2+}$ 、 $Y^{3+}$ 、 $La^{3+}$ 、 $Lu^{3+}$  では、水和イオンと同じ EXAFS が得られ、主に外圏錯体として吸着されていることが分かった。一方、 $Ba^{2+}$  では、EXAFS に水和イオンとはやや異なる特徴がみられた。 $K_d$  の pH やイオン強度依存性においても、外圏錯体にみられる特徴を持つ  $Sr^{2+}$  に比べて、 $Ba^{2+}$  では pH やイオン強度による変化が小さかった。他にも  $Ba^{2+}$  は雲母中の  $K^+$  と比較的容易に交換する（Meng et al., 2016）など、層状珪酸塩の層間の  $Ba^{2+}$  は、単純な水和イオンではないことが示唆される。また、人形峠のコア試料の化学分析からも、 $Ba^{2+}$  やラジウム（Ra）が粘土鉱物に選択的に吸着することを示す結果が得られている（山口ほか、本年会）。以上のことから、イオン半径を用いて系統的に、粘土鉱物層間の多種の金属イオンの吸着構造の変化が理解できることが分かった。

この系統性は、水和イオンの安定性（水和エンタルピー）のみでは説明できず、粘土鉱物の層構造との相互作用が吸着種の安定化に寄与していると考えられる。またイオン半径が大きいほど内圏錯体が卓越する傾向は、水酸化鉄などへの吸着と比べるとむしろ反対の傾向である。これは、水酸化鉄などの場合の表面水酸基と、2:1 型粘土鉱物のシリカ層における siloxane 6 員環とでは、化学的相互作用に違いがあるためと考えられる。しかし、その正体はまだ明確ではなく、その解明には量子化学計算などのアプローチが不可欠である。

本研究で着目しているイオン半径に対する依存性から、様々な放射化学的・地球化学的・環境化学的研究テーマが導かれる。例えば、 $Cs^+$ 、 $Sr^{2+}$ 、 $Ra^{2+}$  などの放射性核種の挙動解析において、粘土鉱物は地球表層のあらゆる場所に存在することから、この依存性から、これらの放射性核種の地球表層での移動性について系統的な理解や挙動予測が可能になる。

Systematics of adsorption structure of various hard metal ions on phyllosilicates: comparison of strontium and cesium

TAKAHASHI, Y., YAMAGUCHI, A.

## 粘土鉱物への特異的吸着によるラジウムの固定： ウラン鉱床近傍のコア試料解析

(<sup>1</sup>東大院理, <sup>2</sup>原子力機構人形峠センター, <sup>3</sup>原子力機構先端研)

○山口 瑛子<sup>1</sup>, 栗原 雄一<sup>2</sup>, 田中 万也<sup>3</sup>, 小原 義之<sup>2</sup>, 香西 直文<sup>3</sup>, 高橋 嘉夫<sup>1</sup>

**【緒言】** ラジウム (Ra) は放射性元素であり地下水に移行しやすいことなどから、その環境挙動について近年多くの研究がなされている。一方演者らはこれまで、多種イオンの粘土鉱物への吸着反応について系統的に研究を行ってきた。その結果、(i) イオン半径が大きい陽イオンの場合に内圏錯体が形成され安定な吸着種が生成すること、(ii) イオン半径が大きい陽イオンは一般に水酸化鉄への吸着が弱く、こうした陽イオンは粘土鉱物に特異的に吸着する可能性があること、などが示された。この系統性に基づくと、イオン半径が大きい  $Ra^{2+}$  は環境中で粘土鉱物に内圏錯体として強く吸着・固定されることが予測されるが、こうした研究はこれまで殆どない。そのため、この予測を天然環境で実証できれば、 $Ra^{2+}$  の環境挙動やその支配因子の解明に貢献できる。そこで本研究では、日本原子力研究開発機構 (JAEA) 人形峠環境技術センターにある人形峠ウラン鉱山のコア試料を用い、 $Ra^{2+}$  の移行に対する粘土鉱物の役割を解明することを目的とした。

**【試料・分析】** 人形峠ウラン鉱山の周辺では、ウラン (U) とその子孫核種である Ra の濃度が高い。さらに U 鉱石を含む U 濃集層の下層に粘土鉱物を多く含む風化花崗岩層が存在することから、粘土鉱物存在下での  $Ra^{2+}$  の移行過程を天然系で調べ、上記の  $Ra^{2+}$  と粘土鉱物の仮説を実証する上で最適な調査地域である。U 濃集部-花崗岩中の Ra の深さ方向の移行を調べるため、ガンマ線スペクトロメトリにより  $^{226}Ra/^{238}U$  放射能比を求めた。 $Ra^{2+}$  が固定された相を明らかにするため、Ra と類似した挙動を示すバリウム (Ba) をアナログ元素とし、 $^{226}Ra/^{238}U$  比が高い試料を放射光  $\mu$ -XRF-XAFS-XRD で調べ、 $Ba^{2+}$  のホスト相を決定した。さらに  $Ra^{2+}$  のホスト相が粘土鉱物以外である可能性を検討するため、バルク試料中の鉄 (Fe)、マンガン (Mn)、Ba の化学種についても XAFS 法を用いて調べた。

**【結果・考察】**  $^{226}Ra/^{238}U$  の放射能比は、U 濃集層で 1 未満 (約 0.8) であったが、その下位の風化花崗岩層上部では 1 より大きい値 (約 5) を示した。放射能比が放射平衡に達するとこの比が 1 になることや、U 濃集層とその下層に位置する花崗岩層からなる系内の Ra と U のマスバランスの計算結果から、地下水に溶出した  $Ra^{2+}$  と  $UO_2^{2+}$  は、U 濃集層から風化花崗岩層へ移行し、そのうち  $Ra^{2+}$  がより選択的に風化花崗岩層で固定されたと考えられた。また  $\mu$ -XRF-XANES-XRD の結果から、 $Ra^{2+}$  のアナログである  $Ba^{2+}$  の濃集部位で粘土鉱物の存在が確認された。この結果は Fe、Mn、Ba の XAFS 解析結果とも整合的であり、 $Ba^{2+}$  のホスト相は、Fe-Mn 酸化物や炭酸塩などではなく粘土鉱物であることが分かった。これは  $Ra^{2+}$  のホスト相についても同様であると考えられる。これらの結果は、天然環境で  $Ra^{2+}$  が U 濃集層から移行し粘土鉱物に選択的に吸着・固定されることを実証すると共に、イオン半径に基づく系統的な本予測の有用性も支持している。今後はこの結果をさらに堅固なものにするため、逐次抽出やより詳細な地下水の分析、複数のコア試料の分析を行い、粘土鉱物以外のホスト相や地下水の影響、 $Ra^{2+}$  が固定される機構が他のコアでも見られるのかどうかを調べ、環境中の  $Ra^{2+}$  のより詳細な挙動を解明する。

Fixation of Ra by specific adsorption on clay minerals based on analyses of core samples in Ningyo-toge uranium deposit  
YAMAGUCHI, A., KURIHARA, Y., TANAKA, K., OHARA, Y., KOZAI, N., TAKAHASHI, Y.

(<sup>1</sup> 慈恵医大・アイソトープ,<sup>2</sup> 日立製作所・ヘルスケア BU,<sup>3</sup> 愛知医大,<sup>4</sup> 名大・RIC 分館) ○箕輪 はるか<sup>1</sup>, 加藤 結花<sup>2</sup>, 小島貞男<sup>3</sup>, 緒方 良至<sup>4</sup>

【はじめに】 放射性 Sr の分析は原発事故発生時だけでなく平常時の原子力施設等周辺の環境モニタリングにおいても重要である。従来法は劇物を多用し手順が複雑で、化学分離操作に 1 週間、さらに測定まで 2 週間、試料採取からデータ取得まで約 20 日間が必要である。本研究では、環境試料中の放射性 Sr の安全かつ簡易・迅速な分析法を開発し天然海水試料に適用した。測定法の詳細については別報「プラスチックシンチレータボトルを用いた LSC でのスペクトル解析」において発表し、本発表では海水試料からの Sr の化学分離操作について報告する。

【実験】 試料として福島県沿岸・福島沖および三重県沿岸の表面海水を用いた。海水 1 L を、陽イオン交換樹脂 (Dowex 50W-X8) 充填カラム (CV=60 mL) に通し Sr を吸着させた。カラムに 15.4 W/V% 酢酸アンモニウム - メタノール (1:1) 溶液 180 mL を流して Ca, Mg 等の妨害元素を流出させた後、4M-HCl 溶液 360 mL で Sr を溶出させた。溶出液に水酸化ナトリウム水溶液を加え pH > 9 とし、炭酸ナトリウムを加えて加熱沸騰させた後一晩静置し、炭酸塩沈殿を生成・熟成させた。吸引濾過により沈殿をメンブレンフィルタ (MF-Millipore 0.45 μm, Merck) に捕集し乾燥後、厚さ 100 μm のラミネート

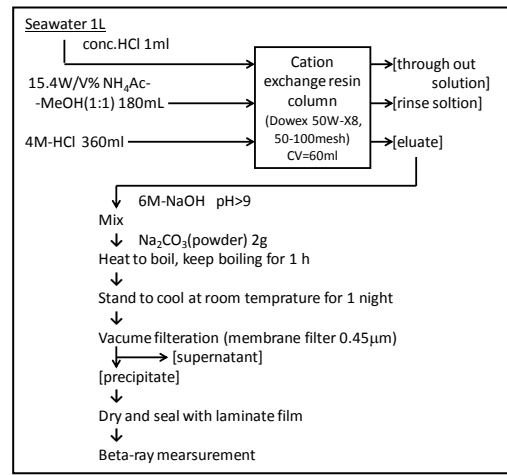


Fig.1 Chemical procedure for Sr

フィルムで密封した。化学分離操作後すみやかに、プラスチックシンチレータボトルを用いて低バックグラウンド液体シンチレーションシステム (AccuFLEX LSC-LB7, Hitachi, Ltd.) により、<sup>90</sup>Sr および <sup>90</sup>Y の β 線を測定 (測定時間 60 分) して <sup>90</sup>Sr を定量した。また <sup>90</sup>Y の成長を確認するため同じ試料を放射平衡到達 (約 3 週間後) まで断続的に測定した。

【結果および考察】 事前のトレーサー実験の結果から Sr 回収率 70% として <sup>90</sup>Sr を定量した。今回分析した海水試料の <sup>90</sup>Sr 濃度はすべて検出下限値未満であった。本研究の測定条件での <sup>90</sup>Sr 検出下限濃度は 0.02 Bq L<sup>-1</sup> であったが、天然放射性核種の混入が疑われる試料があり、実試料における検出下限値は 0.02 - 0.6 Bq L<sup>-1</sup> となった (Table.1)。環境試料レベルの <sup>90</sup>Sr の定量にはさらに天然放射性核種との分離を検討する必要がある。

データ取得までに要した時間は 2 日間 (操作時間約 10 時間) で、従来法よりも迅速に分析できるようになった。本方法は海水試料における放射性 Sr のスクリーニングに利用できる有用な方法である。

Table.1 海水中 <sup>90</sup>Sr 濃度

試料	採取場所	採取年	<sup>90</sup> Sr (Bq L <sup>-1</sup> )
KSR-1	四日市 (三重県)	2017	< 0.1
NSW-5			< 0.2
NSW-1	請戸港 (福島県)	2013	< 0.06
NSW-3	熊川 (福島県)	2014	< 0.6
KSR-4	福島沖	2014	< 0.02



# 1B13 プラスチックシンチレータボトルを用いた LSC でのスペクトル解析

(日立製作所・ヘルスケア BU<sup>1</sup>、慈恵医大・アイソトープ<sup>2</sup>、愛知医大<sup>3</sup>、名大・RIC 分館<sup>4</sup>) ○加藤結花<sup>1</sup>、箕輪はるか<sup>2</sup>、小島貞男<sup>3</sup>、緒方良至<sup>4</sup>

**【緒言】** 放射性ストロンチウムの分析には、イオン交換法、発煙硝酸法、シュウ酸塩法が用いられているが、いずれの方法も手順が煩雑で化学分離操作に時間がかかり、多量の劇物の使用もある。我々は、放射性ストロンチウムの安全かつ簡易・迅速な分析法を研究し、海水試料に適用し報告してきた。海水試料を用いイオン交換法と炭酸塩沈殿を利用した迅速な化学分離の有用性については、別報「簡易迅速 Sr 分析法の天然海水試料への適用」にて報告する。本報では本研究にて開発したプラスチックシンチレータボトルを用いた測定法、特にスペクトル解析を中心に報告する。

**【実験】** 人工海水および天然海水に <sup>90</sup>Sr をスパイクした試料を用い、イオン交換法、炭酸塩沈殿法にてフィルター上に回収した。回収したフィルター試料は乾燥後、ラミネートコーティングを施し、プラスチックシンチレータボトル (Fig. 1) にセットして低バックグラウンド液体シンチレーションシステム (AccuFLEX LSC-LB7, Hitachi, Ltd.) で測定した。ウラン系列の妨害核種の検討として海水試料に <sup>210</sup>Pb をスパイクした試料も用い、同様の方法で化学分離、測定を行った。

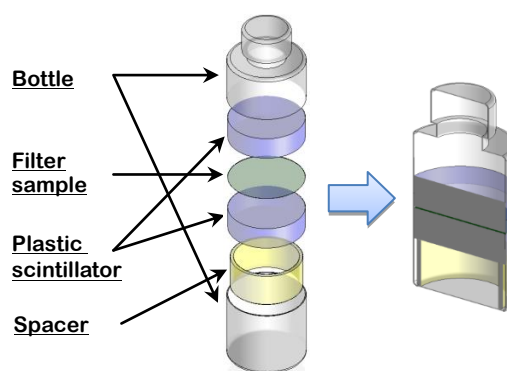


Fig. 1 Assembly of the plastic scintillator bottle (PSB).

**【結果と考察】** 本測定法では、子孫核種である <sup>90</sup>Y を含めた <sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Y の計数効率は 70% (放射平衡時)、BG は 0.14 cps であった。化学分離実験の結果に従い、海水試料 1 L を使用し、化学収率 70%、測定時間 60 分として計算すると、0.02 Bq L<sup>-1</sup> の検出下限が得られた。これは排水中の <sup>90</sup>Sr の法定濃度限度 (30 Bq L<sup>-1</sup>) の 1500 分の 1 となり、本法のスクリーニングとしての有用性が示された。Fig.2 に <sup>90</sup>Sr - <sup>90</sup>Y 平衡状態のスペクトルを示す。液体シンチレータ使用時特有の化学クエンチングが生じておらず、それぞれの核種のスペクトル領域は、最大エネルギーの 546keV、2.28MeV 付近を示した。海水中の妨害核種の検討として <sup>210</sup>Pb を用いた実験についてもスペクトル解析を行った。<sup>210</sup>Pb の 16.6keV、娘核種の <sup>210</sup>Bi の 1.16MeV を確認することができた。PSB を用いる本法は、クエンチングの影響を受けず、それぞれの核種が最大エネルギーを示すことから、スペクトル解析による核種同定の可能性が示唆された。

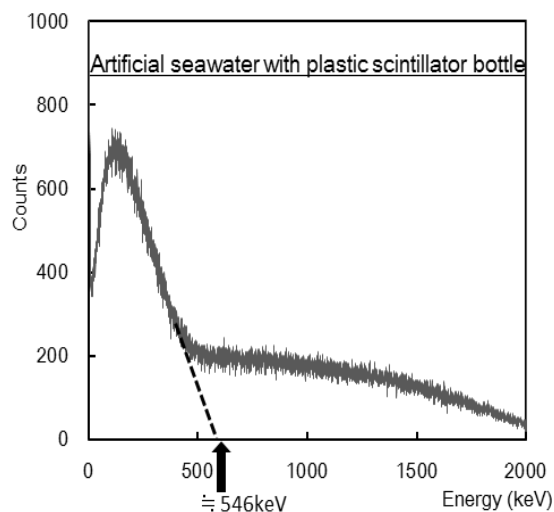


Fig.2 An energy spectrum of <sup>90</sup>Sr - <sup>90</sup>Y.