

講演発表

第1日 10月1日(金)

A会場

核 反 応 1A01~1A16

B会場

アクチノイド化学 1B01~1B03

テクネチウム化学 1B04~1B06

ホットアトム化学 1B07~1B12

X線への化学効果 1B13~1B14

C会場

環 境 放 射 能 1C01~1C15

(阪大理、京大原子炉*) ○宮内貴宏、斎藤 直、高橋成人、横山明彦、
矢野大作、森 茂久、馬場 宏
中込良廣*、玉井忠治*

《はじめに》

最近アクチノイド領域の低エネルギー核分裂において、マルチモード核分裂について議論されている。Brosaらの random neck rupture model¹⁾では複数の fission path の存在を示唆しており、 $^{235}\text{U} + n_{th}$ 系には superlong と呼ばれる質量分割が対称なモードと standard-II と呼ばれる主たる非対称モード以外に、standard-I と呼ばれる質量分布、エネルギー分布共より幅の狭い非対称モードの3つのモードが存在すると主張している。そこで非対称モードが2つの別々のモードに分かれているかどうかを検証するために ^{235}U (n_{th}, f) 反応における primary mass distribution、fragment mass の関数としての運動エネルギー分布を核分裂片二重エネルギー測定法で測定する実験を行った。

《実験》

実験は京都大学原子炉実験所 KUR スーパーミラー中性子導管設備で行った。導管より強度 $6 \times 10^7 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ の熱中性子ビームが得られる。核分裂片の運動エネルギーは Si 表面障壁型 (SSB) 検出器を用いて測定した。ターゲットには ^{235}U (濃縮度 99.91%) を薄膜にして用いた。薄膜はウラニルジベンゾイルメタンを酢酸エチルに溶解しコロジオンを加えた溶液を水面上に滴下して作製した。直径 8mm、厚み約 $5 \mu\text{gU/cm}^2$ のものを使用した。分裂した2つのフラグメントは、それぞれSSB検出器に入射する。2つのフラグメントの timing と pulse shape によりイベントを選別した。CAMAC システムで取り込んだデータをフロッピーディスクにリストモードで記録してオフラインで解析した。

《解析》

解析は Schmitt の式²⁾と質量保存及び運動量保存則によって行い、即発中性子の補正には Ref.³⁾ の $\nu(m, \text{TKE})$ 値を用いた (TKE: フラグメント全運動エネルギー)。

TKE 分布はガウス分布であることと、standard-II と呼ばれる成分について

$$\text{TKE}(m) = \text{TKE}(m_f/2)(1 - \mu^2), \quad \mu = 2A^{-1}(m - m_f/2), \quad \sigma_{\text{TKE}}(m)/\text{TKE}(m) = \text{const.}$$

(m_f は fissioning mass)

を仮定し、非対称な質量分割の領域で2成分 fit した。

《結果と考察》

図1に得られた質量分布、図2に平均全運動エネルギー分布とその幅、さらに各々の2成分フィッティングの結果を示す。standard-I と呼ばれる成分の挙動は他のアクチノイドの系⁴⁾のそれと同じ傾向を示している。また現在得られた結果の物理的意味を検討中であ

みやうちたかひろ、さいとうただし、たかはしなると、よこやまあきひこ、やのだいさく、もりしげひさ、ばばひろし、なかごめよしひろ、たまいただはる

り、まとめて報告したい。

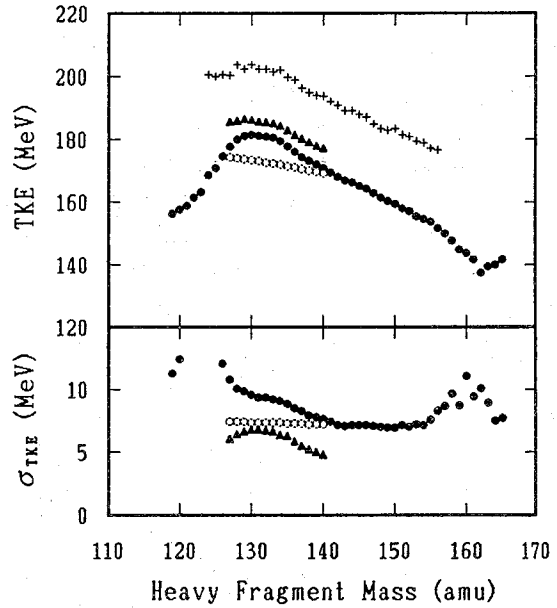
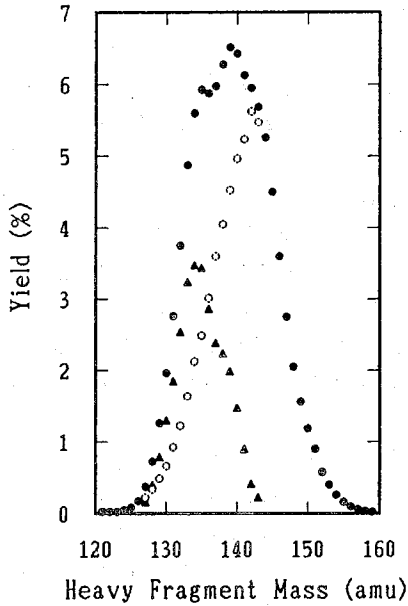


図1. $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ の重核分裂片質量分布と2成分fitの結果。 図2. TKE分布、 σ_{TKE} と各々の2成分fitの結果。
 ●は今回の実験値、▲はstandard-Iと呼ばれる成分、
 ○はstandard-II “ “ +は平均のQ値⁵⁾。

参考文献

- 1) U. Brosa, S. Grossmann and A. Müller, Proc. of XVth Intern. Symp. on Nucl. Phys., Gaussig, Dresden, GDR, Nov. 1986.
- 2) H.W. Schmitt et al., Proc. Symp. Physics and Chemistry of Fission, Vol.1, 531 (1965) IAEA.
- 3) M. Derengowski and E. Melkonian, Phys. Rev. C2, 1554(1970).
- 4) S.D. Beizhin, S.V. Zhdanov, M.G. Itkis, V.N. Okolovich, G.N. Smirenkin and M.I. Subbotin, Sov. J. Nucl. Phys. 50, 386(1989).
- 5) W. Lang, H.-G. Clerc, H. Wohlfarth, H.Schrader and K.-H. Schmidt, Nucl. Phys. A345, 34(1980).

MULTI-MODE FISSION OF ^{235}U INDUCED BY THERMAL NEUTRONS

Takahiro MIYAUCHI, Tadashi SAITO, Naruto TAKAHASHI, Akihiko YOKOYAMA,
 Daisaku YANO, Shigehisa MORI, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University
 Yoshihiro NAKAGOME, Tadaharu TAMAI, Research Reactor Institute, Kyoto University

(阪大理・原研*) ○二谷訓子、矢野大作、高橋成人、馬場 宏
篠原伸夫*

【はじめに】

アクチノイド領域の自発核分裂ないし熱中性子誘起核分裂は、20MeV を越すエネルギーでの核分裂と様相が大きく異なっており、後者の核分裂で見られるような核分裂諸量の整然とした系統性を示さない。このことは、両者の中間エネルギーで、核分裂のモードが変化していることを期待させる。また、過去において後者の反応を $^{238}\text{U} + \text{p}$ 系について研究したところ、その存在下限が14MeVであることを示唆する結果が得られた¹⁾。ところで、この14MeVというエネルギーは、 ^{238}U の巨大双極子共鳴による核分裂が観測される領域でもあるので、核分裂のモードの変化がどのあたりで起こっているか、そして、その変化に共鳴が関与しているかを検証するために、放射化学的手法を用いて、 $^{238}\text{U} + \text{p}$ 系で核分裂時の生成断面積の測定を行ない、電荷分布、質量分布について考察を行なった。

【実験】

実験は、大阪大学理学部附属原子核実験施設サイクロトロン、pビーム(ターゲット中心で、6.4, 8.6, 9.5MeV)と、日本原子力研究所タンデム加速器のpビーム(同、10.2, 11.2, 12.7MeV)を使用して行なった。ターゲットには $1.5 \sim 3 \text{mg/cm}^2$ のUを 1.5mg/cm^2 のAl箔に電着したものを用い、核分裂生成物を捕獲する為に 22.5mg/cm^2 の捕集箔を前後に重ねた。照射は、約50nA $\sim 1 \mu\text{A}$ で短寿命核種測定用として30分、長寿命核種測定用として3時間行ない、照射したターゲットは、Ge半導体検出器で非破壊 γ 線測定を行なった。測定した γ 線データはBOBコードで解析し生成断面積を求めた。また、それらの試料の他に化学分離用のターゲットも照射し、試料からI、Sb、希土類の元素を分離し、 γ 線を測定し同様に解析を行なった。

【結果・考察】

励起エネルギー13.9, 14.8, 16.5MeVでの核分裂片の質量分布を図1に示す。それぞれ、低エネルギー領域特有の軽フラグメントと重フラグメントの分布が非対称な様相を示している。これらの結果より、核分裂の様相は励起エネルギーが16.5MeVでも、まだ変化していないことがわかった。エネルギーが増加するにつれ、それらの質量分布は重フラグメントの山が軽フラグメントの山より大きく増加し、等しい高さに近づいており、形も重フラグメントの山が丸くなってきている。このことより、これらのエネルギーではまだ低エネルギー特有の様相を示しているが、高エネルギー核分裂への遷移が起こり始めていると思われる。しかし $A=130$ 付近の殻効果はまだ強いようである。また、軽フラグメントの山について見ると、エネルギーの増加に従い低質量側($A=90$ 付近)がふくらんできているのがわかる。図2に核分裂反応と(p, n)反応の励起関数を示す。得られたこれらの結果を、過去の高エネルギーでの実験結果と詳細に比較し、考察を行なう予定である。

にたにのりこ、やのだいさく、たかはしなると、ばばひろし、しのはらのぶお

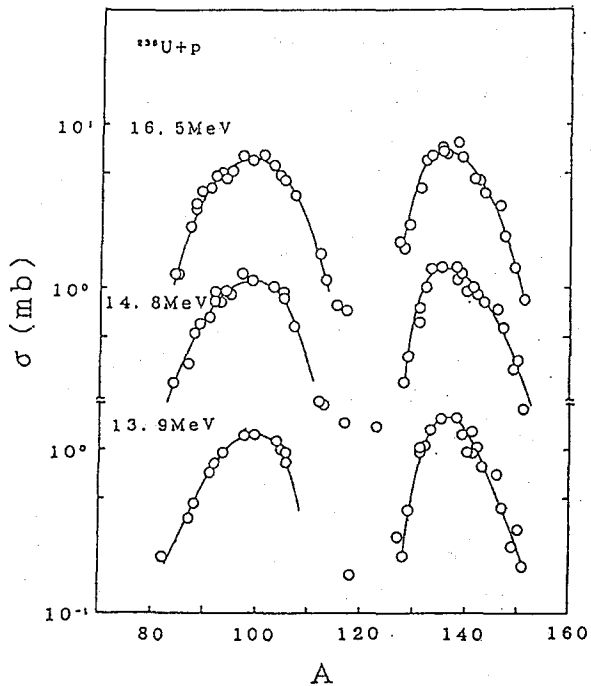
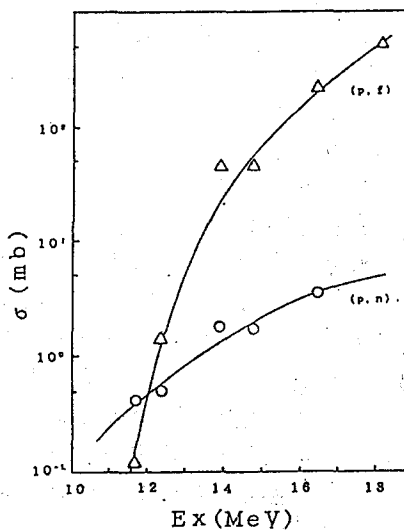


図1 励起エネルギー 13.9, 14.8, 16.5MeV での核分裂片の質量分布

図2 $^{238}\text{U} + \text{p}$ 系の核分裂反応と (p, n) 反応の励起関数



【参考文献】

- 1) S.Baba et al., Nucl. Phys. A175 (1971) 177.

FISSION OF $^{238}\text{U} + \text{p}$ SYSTEM IN THE GIANT DIPOLE RESONANCE REGION
 Noriko NITANI, Daisaku YANO, Naruto TAKAHASHI, Hiroshi BABA,
 Faculty of Science, Osaka University
 Nobuo SHINOHARA, Japan Atomic Energy Research Institute

(阪大理) ○森 茂久、後藤 和夫、山口 貴行、
二谷 訓子、宮内 貴宏、横山 明彦、
齋藤 直、馬場 宏

《はじめに》アクチノイド核の核分裂では、励起エネルギー 20MeV の前後でその様相が変化することが知られている。この変化の一因として、この境界領域で何らかの集団運動による励起が、関与している可能性が考えられる。この核分裂の様相の変化を詳細に調べるために、我々は、放射化学的手法^{1), 2)}により $^{238}\text{U} + \text{p}$ 系における核分裂断片の生成断面積の測定を行い、電荷分布、質量分布を求めて考察を試みたが、本実験では、さらにカウンター法により運動エネルギー分布を求めることによって、異なる側面から調べることを目的としている。

《実験》本実験には、大阪大学理学部附属原子核実験施設サイクロトロン³⁾の 9.8MeV pビームを使用した。ターゲットは ^{238}U を $0.89\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の Ni フォイル上へ電着したものを用い、その厚さは $0.46\text{mg}/\text{cm}^2$ であった。これをビームに対して 45 度方向に設置した。

検出器には、2台のシリコン表面障壁型検出器 (SSD) を使用し、各々ビームに対して、 90 度、 -88 度方向に設置した。イベントのデータ収集は、PC-CAMAC システムで行った。なお、SSD に散乱された陽子が、大量に侵入するために核分裂イベントに散乱陽子によるパルスのパイルアップが無視できなかったため、スペクトロスコーピーアンプからのパイルアップリジェクション信号を CAMAC ADC に導入し、データ解析時に参照した。

《結果及び考察》パイルアップリジェクション信号を同時に検出したイベントを除くと、同時計数イベントの 58% が無効になった。この結果、得られたデータを解析したところ、図-1の (a) 質量分布、(b) 核分裂片の運動エネルギー (KE) の 1st moment, (c) 2nd moment の様になった。これらから、特にきわだった微細構造はうかがえなかった。この事は、低エネルギー核分裂に見られる特徴がある程度消失していることを示しているとおもわれる。放射化法^{1), 2)} による質量分布と (a) を比較すると、対称領域の生成率が大きくなった。この原因には、本実験の分解能が大きく関わっているものと思われる分解能の更なる向上を、現在検討しているところである。

本実験における $^{238}\text{U} + \text{p} \rightarrow ^{239}\text{Np}$ 反応の励起エネルギーは、 15.0MeV であるので ^{238}U の巨大双極子共鳴 ($14\text{MeV} \sim$) に対する領域で行われたことになる。核分裂の様相の変化を見るためには、このエネルギー領域の上、又は、下で、さらなる実験を執り行う必要がある。

もりしげひさ、ごとうかずお、やまぐちだかゆき、にたにのりこ、みやうちたかひろ、よこやまあきひこ、さいとうただし、ばばひろし

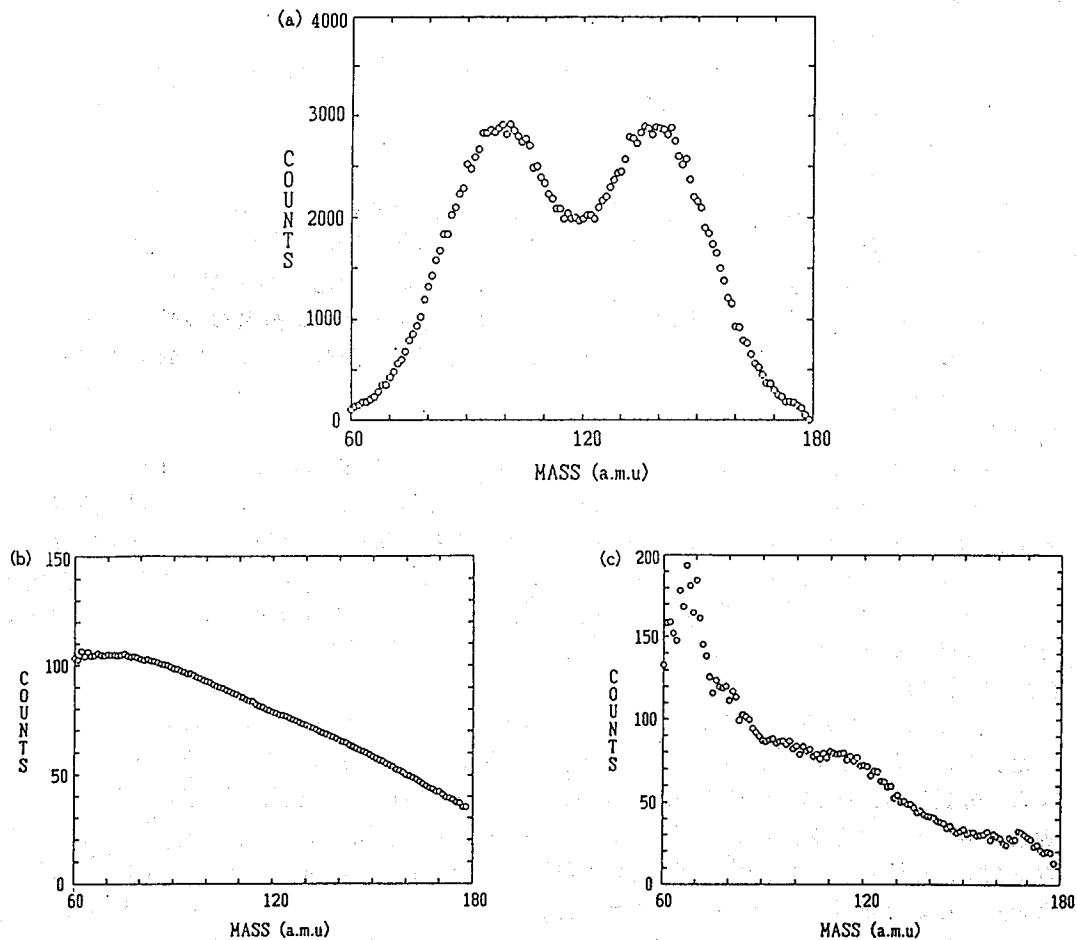


図-1. $^{238}\text{U} + \text{p}$ 系における核分裂片の

- (a) 質量分布
- (b) KEの1st moment
- (c) KEの2nd moment

《文献》 1) 二谷ら、第34回放射化学討論会講演予稿、1A15、(1990)
 2) 二谷ら、第35回放射化学討論会講演予稿、1A02、(1991)

STUDY ON FISSION MECHANISM OF PROTON INDUCED FISSION OF U-238

Shigehisa MORI, Kazuo GOTO, Takayuki YAMAGUTI, Noriko NITANI, Takahiro MIYAUCHI
 Akihiko YOKOYAMA, Tadashi SAITO, Hiroshi BABA.

(東北大核理研・原研、都立大理) ○大槻勤、永目諭一郎、池添博、
塚田和明、西中一郎、関根俊明、
中原弘道

【はじめに】

昨年、Double-TOF を用いた ^{232}Th の陽子誘起核分裂での速度分布、運動エネルギー分布、そしてその質量分布等について報告をおこなったが¹⁾、今回は ^{238}U の陽子誘起核分裂の実験結果についても解析をおこなったので報告する。これらの結果から Multi-Mode あるいは Scission Point Model との比較を行い、また、対称分裂と非対称分裂の運動エネルギーを鉛、ビスマス領域から重アクチノイド核領域までの分裂核の関数として系統的に理解できるかどうか検討する。

【実験】

ターゲットとしてカーボン箔 ($10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) 上に ^{232}Th 蒸着したものを、また、ニッケル箔 ($8.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) 上に ^{238}U を電着したものをもちいた。照射は原研タンデム加速器から得られる Proton ビームで入射エネルギー 13 MeV を用いておこなった。TOF のスタート信号取り出しにアヴァランシェカウンター (PPAC)、ストップ信号取り出しにカーボン箔 ($30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) - マイクロチャンネルプレート (MCP) を使い、これら 2 組の MCP-PPAC によって分裂片どうしの速度の同時計数測定をおこなった。速度の校正は ^{252}Cf 線源を用いておこなった。

【結及び考察】

分裂片から中性子が等方的に出ていると仮定し、飛行中にその平均速度が変化しないと仮定すると、その速度分布の比から Primary の質量分布 (中性子放出前の質量分布) が得られ、また、分裂片の速度より分裂片の運動エネルギーが得られる。分裂片の質量数の関数として運動エネルギー分布を見ると (ここでは $A=126 \sim 131$ の領域に限って)、図 1(a),(b) の様になる (図 1(a),(b) はそれぞれ、 $^{232}\text{Th}+p$ 、 $^{238}\text{U}+p$ 系の運動エネルギー分布を示す)。 $^{232}\text{Th}+p$ 系の分裂片の質量数 $A=128 \sim 130$ では、運動エネルギーに二つの成分があることがわかる。また、 $^{238}\text{U}+p$ 系の運動エネルギー分布でも $^{232}\text{Th}+p$ 系ほど明確ではないが、分裂片の質量数 $A=126 \sim 128$ の領域で二つの成分の存在を示唆するような "Sholder shape" が認められた。図 1(a),(b) にはそれぞれの成分が Gauss 分布であると仮定して得られた最適の Fitting の様子を一緒に示した。 $^{232}\text{Th}+p$ 系と $^{238}\text{U}+p$ 系で図 1(a),(b) のように、分解された二つの運動エネルギー分布の平均値を Hoffman²⁾ らの自発核分裂による運動エネルギーの Systematics に当てはめてみると図 2 の様になる。横軸 ($Z^2/A^{1/3}$) は液滴モデルで用いられるクーロン効果のパラメータで縦軸は全運動エネルギーの平均値をとってある。実線は Viola³⁾ らの Systematics を示している。 $^{232}\text{Th}+p$ 系と $^{238}\text{U}+p$ 系の分解された運動エネルギーの平均値を○と△で示す。驚いたことに、低い運動エネルギーの成分は Viola³⁾ らの Systematics に一致し、また、高い運動エネルギーの成分は 185MeV 程度にも及ぶことがわかる。一般には、Viola らの Systematics は液滴モデルで予想される運動エネルギーの傾向を示すと言われており、ここで求められた低い運動エネルギーの成分は液滴的な性質を持つ対称分裂の成分であることを示唆している。

おおつきつとむ、ながめゆいちろう、いけぞえろし、つかだかずあき、
にしなかいちろう、せきねとしあき、なかはらひろみち

また、高い運動エネルギーの成分は Scission point 近傍で強く殻構造の影響を受けた成分で、非対称分裂を導くと理解される。 $^{232}\text{Th}+p$ 系と $^{238}\text{U}+p$ の系の高い運動エネルギー成分を延長すると破線のようになる。これは ^{258}Fm や ^{260}Md につながり、その他一連の核分裂においても殻構造が影響した成分はこの線上にのることが期待される。

- 1) T.Ohtsuki et al. Phys. Rev. Lett., 66, 17(1991).
- 2) D.C.Hoffman, Nucl. Phys., A502, 21c(1989).
- 3) V.E.Viola et al. Phys. Rev., C31, 1550(1985).

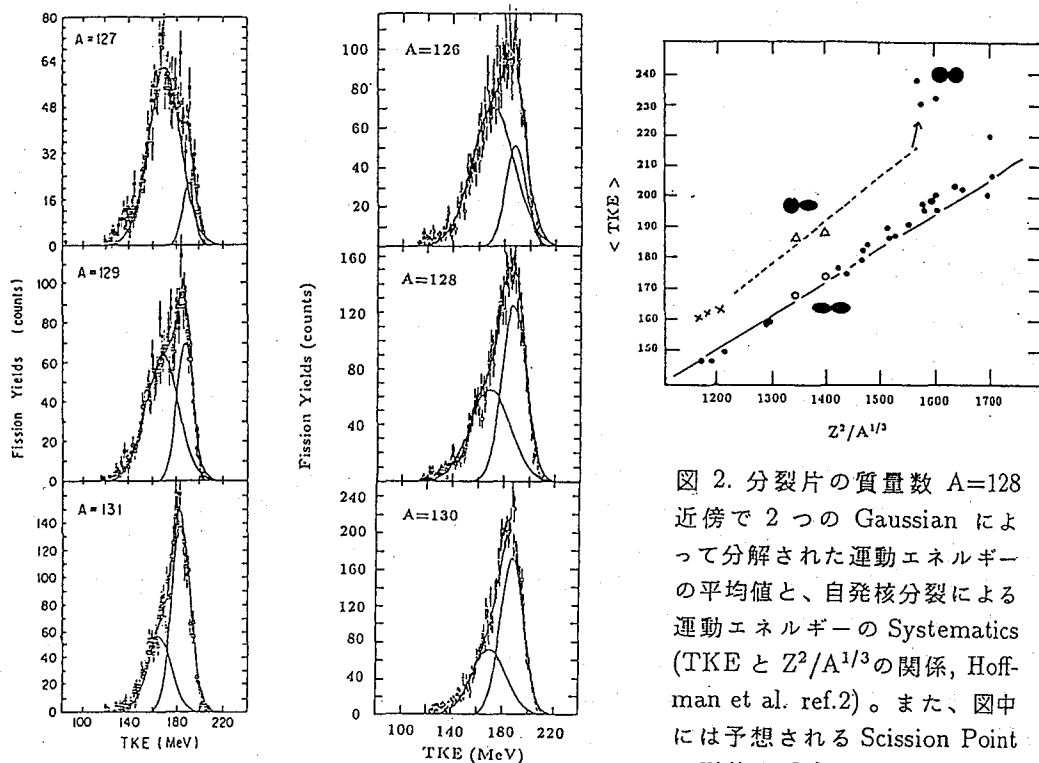


図1(a). $^{232}\text{Th}+p$ 系の核分裂における分裂片の質量数 $A=127, 129, 131$ の Total Kinetic Energy。
 図1(b). $^{238}\text{U}+p$ 系の核分裂における分裂片の質量数 $A=126, 128, 130$ の Total Kinetic Energy。

図2. 分裂片の質量数 $A=128$ 近傍で2つの Gaussian によって分解された運動エネルギーの平均値と、自発核分裂による運動エネルギーの Systematics (TKE と $Z^2/A^{1/3}$ の関係, Hoffman et al. ref.2)。また、図中には予想される Scission Point の形状を Schematic にしめした。

STRUCTURE FOR KINETIC ENERGY DISTRIBUTION FROM FISSION OF LIGHT ACTINIDES.

Tsutomu OHTSUKI, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

Kazuaki TSUKADA, Ichiro NISHINAKA, Hiromichi NAKAHARA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University.

Yuichiro NAGAME, Hiroshi IKEZOE, Toshiaki SEKINE, Japan Atomic Energy Research Institute.

(新潟大・理、東北大・サイクロ*) ○工藤久昭、丸山昌彦、橋本哲夫、
藤岡学*、篠塚勉*、砂押仁*、深代康之*、古川雅昭*

【緒言】 イオンガイド型同位体分離装置(IGISOL)は、分離時間が短く、輸送効率の元素依存性があまりないことや、室温で安定に運転できることから短寿命核種の測定に有効に用いられている。IGISOLにおいては、核反応で生成した生成物をヘリウム中で熱化し、1+イオンとして残存する生成物を質量分離している。従って、反跳エネルギーの大きな生成物を効率よくガス中に捕獲するためには標的室のガス圧を高くした方がよい。しかしながらガス圧が高くなると、粒子照射によって生じる弱プラズマの強度も増加することになる。プラズマ密度が高くなると、反跳イオンが電子と再結合し1+イオンとして引き出される割合が減少するので、輸送効率は低下することになる¹⁾。演者らはこれまでIGISOLを用いて核分裂生成物の測定を行ってきたが、核分裂生成物は反跳エネルギーが大きく、ほぼ等方的な角度分布であるので、薄い金属箔などでプラズマの生成する部分と核分裂片が熱化される部分に分離することができ、プラズマ効果の軽減が期待できる。このような目的から、核分裂生成物測定用のIGISOL chamberを製作したので報告する。

【製作】 今回製作したIGISOL chamberを図1に示す。全体はアルミニウムでできている。入射粒子は5 μ mのハーバー箔を通り抜けたあと45°に傾けた2枚の標的で核反応を起こす。生成した核分裂片はほぼ等方的に放出されるが、一部は90%透過性のメッシュ2枚ではさんである1 μ mのチタン箔を通り抜けそこで熱化される。熱化された核分裂生成物はヘリウムガスとともに1.2mm ϕ の径を持つ出口孔より排出される。その後生成物イオンは電場に導かれ質量分離器へと導入される。熱化部分の体積は約4.5cm³であり、これまでのchamberに比べて約2.5倍になっている。標的を冷却するために、ヘリウムガスはビーム照射部分を通して熱化部分へと流れるようになっている。また図中のoff-line用電極はテスト用の放電を行うための電極であり、材質はデルリンである。on-line時には取り外しができるようになっている。

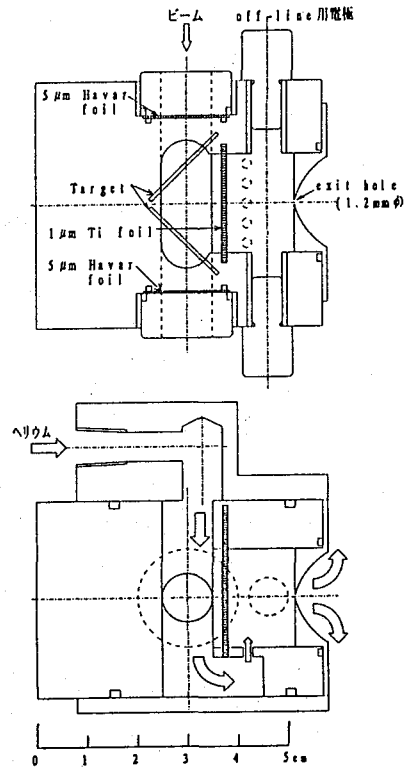


図1 IGISOL TARGET CHAMBER

くどうひさあき、まるやままさひこ、はしもとてつお、ふじおかまなぶ、しのずかつとむ、
すなおしひとし、ふかしろやすゆき、ふるかわまさあき

【テスト実験】 厚さ約100mg/cm²の²³²Th箔2枚を標的とし、24 MeV陽子照射によって生成する⁸²As(T_{1/2}=19.1s)及び¹¹⁶Pd(T_{1/2}=12.7s)の収量を測定しIGISOLの輸送効率の検討を行った。収量の測定は、実際の測定位置であるテープ捕集位置で行い、核種の同定定量はHPGeを用いたγ線スペクトロメトリーによった。

【結果と考察】 IGISOLにおいては、熱化した1+イオンの中性になる時間（再結合時間）が長く、拡散して壁に到達する時間が長ければ長いほどその効率は上昇すると考えられる。今回製作したIGISOL chamberをこのような観点からこれまでのものと比較してみる。1μA、20MeV陽子照射場合で弱プラズマが存在するとき、再結合時間は約10msと見積もられているが²⁾、今回の場合のようにプラズマがない状況でははるかに長くなる。また熱化部分の中心から壁までの平均拡散時間は体積の増加分とプラズマがないということから少なくとも5倍以上(>20ms)になっているものと思われる。一方、排気時間は体積増加分(約2.5倍)だけ長くなっている。しかし、この時間は再結合時間や拡散時間に比べて短いので(～7ms)、半減期がある程度長い核種(>100ms)に対しては問題がないと考えることができる。

プラズマ効果を検討するため、入射粒子の強度を変化させたときの収量の変動を調べた。結果を図2に示す。完全にプラズマ効果がない場合には、入射粒子数あたりの核分裂生成物の収量は入射粒子の強度に対して変化しないはずであるが実験ではわずかではあるが依存性がみられた。これは核分裂生成物のエネルギー損失が大きいため熱化室において核分裂生成物によって生成された電子による影響がでているものと考えられる。

テープ捕集位置での実際の収量についてであるが、これまでのCHAMBERに比べて約2倍の収量が得られた。これは、立体角がこれまでのものの約30%であることを考慮すると、プラズマ効果の軽減と熱化部分の体積増加によっておよそ7倍の収量増加ということに相当する。

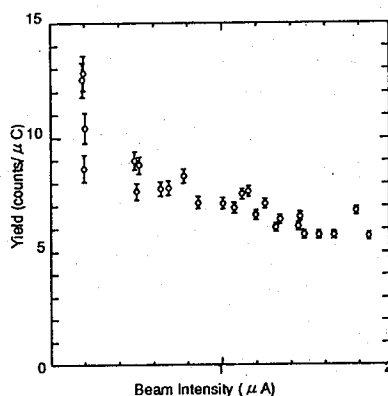


図2 ビーム強度に対する収量の変化
収量は陽子1μC当たりの¹¹⁶Pdの
114.7keVγ線の計数をとってある。

(参考文献)

- 1) M.Yoshii et al. Nucl. Instr. Meth. B26(1987)410, K.Morita et al. Nucl. Instr. Meth. B26(1987)406.
- 2) J.Arje et al. Nucl. Instr. Meth. B26(1987)384.

CONSTRUCTION OF IGISOL TARGET CHAMBER FOR MEASUREMENT OF FISSION PRODUCTS

Hisaaki KUDO, Masahiko MARUYAMA, Tetsuo HASHIMOTO, Faculty of Science, Niigata University

Manabu FUJIOKA, Tsutomu SHINOZUKA, Hitoshi SUNAOSHI, Yasuyuki FUKASHIRO, Masaaki FURUKAWA, Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

(新潟大・理) ○丸山昌彦、工藤久昭、橋本哲夫

(東北大・サイクロ) 藤岡学、篠塚勉、砂押仁、深代康之、古川雅昭

〔はじめに〕

演者らはこれまで、 $^{238}\text{U}+p(24, 18, 13\text{MeV})$ 系における核分裂生成物の電荷分布を広い質量数領域($A=82\sim 149$)にわたって測定してきた。その結果、分布の中心電荷および幅が一次分裂片の生成 Q_{gg} 値と相関があることが明らかになった¹⁾。そこで今回はtargetを ^{232}Th に代え、同様の関係を確かめるべく実験を始めた。現在までに質量数82, 99, 116, 121について測定を行っている。今回の講演では、 $^{232}\text{Th}+p$ 系の電荷分布について $^{238}\text{U}+p$ 系での実験結果と比較し、いくつかのモデルを用いて検討をしたので報告する。

〔実験〕

実験は東北大学サイクロトロン、およびIGISOLにて行った。IGISOLのtarget chamberとして新しい核分裂生成物測定用のもの(1A05参照)を採用し、陽子エネルギー24MeVで照射を行った。核種の同定、定量はMCSを用いての半減期解析を併用した γ 線測定によった。

〔結果と考察〕

核分裂生成物の電荷分布はガウス形の分布であると仮定し、系が異なっても分布の幅は同じであると近似した。さらに元素間の相対収率の比をとることでIGISOLにおける輸送効率の元素依存性を消去している。入射エネルギー24MeVでのThとUの系における中心電荷の比較を行った。実験から得られた相対独立収率の一例を図1に示す。Thの方がUの分裂片よりも中心電荷が大きい側にずれていることがわかる。これは $^{232}\text{Th}+p$ の系の核分裂核の電荷密度が少し大きい($^{231}\text{Pa}=0.394, ^{237}\text{Np}=0.392$)ことによって、分裂片がより中性子欠損側に生成したためと考えられる。また、質量数82, 121のThとUの系における中心電荷の差(dZ_p 、分布幅(C)の単位)を図2に示す。図より分裂片の質量数が異なると中心電荷の差も異なっていることがわかる。このことは、ある質量数での固有の電荷分布は単純な核分裂核の電荷密度だけによって決定されていないことを示している。

これら実験結果を定量的に解釈するうえで、いくつかのモデルを用いて考察した。まず、1次分裂片の Q_{gg} 値依存性を調べた。1次分裂片の質量数は統計モデルに基づくGROGI-2コード²⁾によって推定した。その際、分裂片が利用できるエネルギー(E_d)は次式により求めた。

$$E_d = (E_x + Q - TKE) \times (A_0 / A_f)$$

ここで E_x は核分裂核の励起エネルギー、 Q は1次分裂片が生成されときの Q_{gg} 値、 TKE は分裂片の全運動エネルギー³⁾⁴⁾、 A_0 は1次分裂片の質量数、そして A_f は核分裂核の質量数である。対象としている質量数における中心電荷は Q_{gg} 値が最大となる分割の場合であるとし、ThとUの差の形で求めた(図2における Q_{gg})。

次に、一般的に知られているMPE(minimum potential energy)仮定⁵⁾、およびUCD

まるやままさひこ、くどうひさあき、はしもとてつお、ふじおかまなぶ、しのずかつとむ、すなおしひとし、ふかしろやすゆき、ふるかわまさあき

(unchanged charge distribution) 仮定から推定される中心電荷の差を求めた。MPEにおける分裂片の質量はGreenの質量公式によるものを用いた。UCDについては分裂後の中性子放出数の補正を考慮したもの(UCD)としないもの(UCD')を示してある。

実験値の dZ_p は上述したようにC単位で表しているが、およそC=1とすれば、質量数82については1次分裂片の質量数が核分裂核の電荷密度を保存しているUCD仮定に近い値をとっている。また、対称質量分割によって生成した質量数121ではどのモデルでも実験値を説明できなかった。他の質量数については現在解析中であるので、それらと合わせて詳細な検討をする。

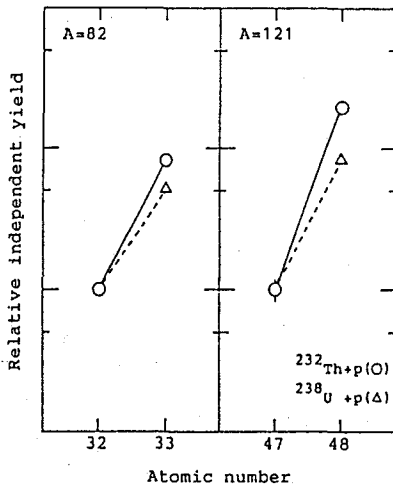


図1 相対独立収率

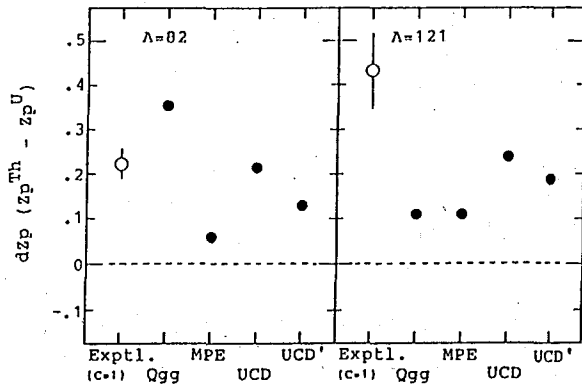


図2 $^{232}\text{Th}+p$ の系と $^{238}\text{U}+p$ の系における中心電荷の差

【参考文献】

- 1) 工藤ら、第31回放射化学討論会 2A01,2A02 (1987)、同第32回 1A04 (1988)、第33回 1A06 (1989) 丸山ら、第34回 1A11 (1990)
- 2) J.R.Grover and J.Gilat, Phys.Rev.157,802,(1967)
- 3) I.F.Croall and J.G.Cuninghame, Nucl.Phys.A125,402,(1969)
- 4) M.Strecker, R.Wien, P.Plischke and W.Scobel, Phys.Rev.C41,2172,(1990)
- 5) J.A.Mchugh and M.C.Michel, Phys.Rev.172,1160,(1968)

CHARGE DISPERSION OF FISSION PRODUCTS IN THE PROTON-INDUCED FISSION OF ^{232}Th
 Masahiko MARUYAMA, Hisaaki KUDO, and Tetsuo HASHIMOTO, Faculty of Science,
 Niigata University
 Manabu FUJIOKA, Tsutomu Shinozuka, Hitoshi SUNAOSHI, Yasuyuki FUKASHIRO,
 and Masaaki FURUKAWA, Cyclotron Radioisotope Center, Tohoku University

(金沢大理、東大核研^{*}、追手門大経^{**}) ○大浦泰嗣、矢沢 明
坂本 浩、柴田誠一^{*}、藤原一郎^{**}

【序】我々のグループは、制動放射線照射により引き起こされる光核破碎反応や π 放出反応の系統性を調べ、報告してきた。これまでに、当グループは、希ガスの生成収率の測定を行ってきたが十分なデータがまだ集積していない。そこで、今回は、標的核にLa、Cs、I、Rbを選び、実験方法を再検討し、希ガスの収率測定を行い、これまでに得ていた値の確認及び補充と、各反応の系統性との整合を調べた。

【注目した核反応】

- ① $^{139}\text{La}(\gamma, 3pxn)^{136-x}\text{Xe}$
- ② $^{133}\text{Cs}(\gamma, pxn)^{133-x}\text{Xe}$
- ③ $(\gamma, \pi^+)^{133}\text{Xe}$
- ④ $^{127}\text{I}(\gamma, \pi^-xn)^{127-x}\text{Xe}$
- ⑤ $^{87}\text{Rb}(\gamma, \pi^+)^{87}\text{Kr}$

【実験方法】

<照射> 試薬特級 $^{139}\text{LaCl}_3$ 、 $^{133}\text{CsCl}$ 、 K^{127}I 、及び99% $^{87}\text{RbCl}$ を600mg/cm²または900mg/cm²に加圧整形し、非破壊測定用1枚、化学分離用1～3枚をビームモニタ(13mg/cm²または270mg/cm²のAlまたは92mg/cm²Au)とともに、東北大核理研300MeV電子LINAC(制動放射線最大エネルギー $E_0=80\sim 250\text{MeV}$)と東大核研1.3GeV電子シンクロトロン($E_0=275\sim 1000\text{MeV}$)で照射した。

<化学分離> これまでの希ガスの分離は、試料を適当な溶媒で溶解し、アスピレーターで排気しながらHeガスをキャリアーとして流し、放出した希ガスを液体窒素温度のU字管中の活性炭に吸着捕集し、U字管のまま γ 線測定を行っていた。

今回は図1に示す硬質ガラス製抽出精製系を用いて希ガスを分離捕集した。操作は次のように行った。まず系を予め0.1～0.01Torrまで排気し(RP～V4、V5間)、活性炭フィンガーCF(予め110°Cで減圧乾燥後、さらに系内でガスバーナー加熱により脱気)とコールドトラップT2を液体窒素で冷却しておく。照射後、V3を閉じ、試料を石英製試料管STに入れV5、V1を通して排気し、排気が完了後、V5を閉じ、試料管をガスバーナーで加熱し、試料を十分熔融した後、加熱をやめ、V4を開け、放出した希ガスを活性炭に一定時間さらす。希ガス以外の揮発成分はT2に捕集される。希ガス捕集後、活性炭をアクリル製測定容器(ゴム製Oリング付きネジ蓋式、内径25mm、外径35mm)に移し、 γ 線測定試料とする。

< γ 線測定> Ge半導体検出器で行い、光電ピークのエネルギーと半減期から核種を同定した。測定試料と同形状の ^{152}Eu と ^{182}Ta の線源から計数効率曲線を作成し定量を行った。化学収率は、同時照射した非破壊試料と化学分離試料の特定核種の光電ピークを比較して求めた。

【結果と考察】

まず希ガスの捕集条件を、活性炭の量、捕集時間、フィンガーの内径をそれぞれ変化させて調べた。活性炭量、捕集時間とも変化させた範囲内では有意な差はみられなかった。一方内径25mmのフィンガーは、内径10mmのものより2倍収率が高かった。捕集条件は、フィンガーの内径=25mm、活性炭量=2g、捕集時間=10～15分とした。この条件で、分離の所用時間は約30分で、化学収率は平均で70～100%である。また、 γ 線測定容器を幾何効率が一定となり、繰り返し使えるネジ蓋式アクリル製容器としたが、大変密封性がよく、観測した半減

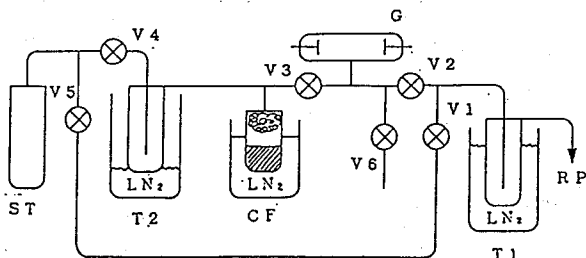
おおうらやすじ、やざわあきら、さかもとこう、しばたせいいち、ふじわらいちろう

期から推定すると容器からの逃げはなかった。

図2に収率曲線の1例として、 $^{127}\text{I}(\gamma, \pi^-)^{127}\text{Xe}$ の場合を示す。以前に得た結果とよく一致している。他の π 放出反応と同様にQ値付近に肩のある二段構造となっている。破線が二次粒子反応による寄与を見積ったもので、点線が正味の (γ, π^-) 反応の収率である。二次粒子反応による寄与を正確に推定するためには、Q値以下でのデータの蓄積がもう少し必要である。

図3に800MeVでの③、④、⑤の反応の正味の収率を、これまでの π 放出反応の結果と共に標的核の質量数の関数として示した。これまでに見いだされた傾向と矛盾しない結果が得られた。

講演では①、②の光核破碎反応の場合と合わせて詳細を報告する。



V1-V6: ガラスコック ST: 試料管
T1: オイルトラップ G: ガイスラー管
T2: コールドトラップ RP: 油回転ポンプ
CF: 活性炭フィンガー

図1 希ガス抽出精製系略図

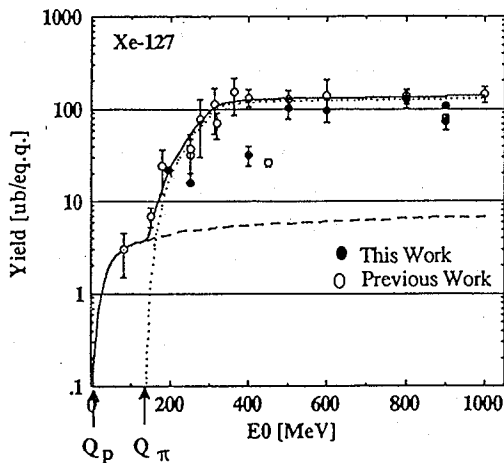


図2 $^{127}\text{I}(\gamma, \pi^-)^{127}\text{Xe}$ 収率曲線

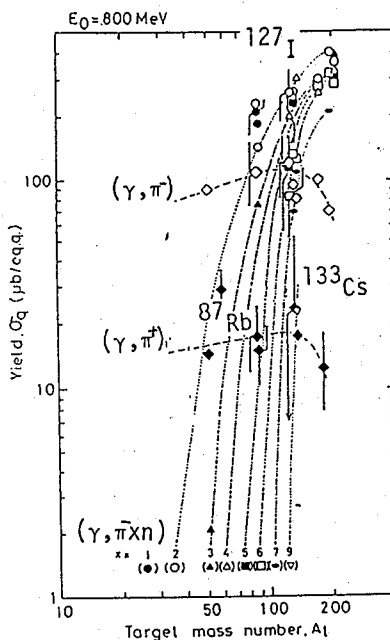


図3 π 放出反応質量収率曲線

ISOTOPIC YIELDS OF NOBLE GASES PRODUCED BY PHOTONUCLEAR REACTIONS.

Yasuji OURA, Akira YAZAWA, Koh SAKAMOTO, Faculty of Science, Kanazawa University.

Seiichi SHIBATA, Institute for Nuclear Science, University of Tokyo.

Ichiro FUJIWARA, School of Economics, Ottemongakuin University.

(東大核研¹、金沢大理²、名大理³、追手門学院大経⁴、日大文理⁵、東大原セ⁶) ○柴田誠一¹、今村峯雄¹、坂本 浩²、川口浩一²、沖崎昌平²、土田早苗²、古川路明³、藤原一郎⁴、永井尚生⁵、小林絃一⁶

【はじめに】 高エネルギー核反応のうち、質量数 30 位までの軽い粒子の放出過程 (fragmentation process) は、その放出機構についてさまざまなモデルが提唱されているが、いまなお明確な描像が得られていない。そのうち、光核反応における軽い核の生成収率については、ほとんどデータが報告されていない。そこで、われわれは陽子と光子による核反応の軽い核の放出過程について比較検討するために、この数年光核反応で生成した ${}^7\text{Be}$, ${}^{10}\text{Be}$ の収率の測定を行ってきた。これまで、Cu および O からの生成収率については既に報告したが、¹⁾ 今回更に、Al, Cl, Co, Y について ${}^7\text{Be}$, ${}^{10}\text{Be}$ の収率を測定したので報告する。

【実験】 照射は制動放射線の最大エネルギーが 250 MeV 以上では東大核研の電子シンクロトロン、250 MeV 以下では東北大核理研の電子ライナックを用いて行った。ターゲットはビームの大きさに合わせて、シンクロトロンでは 25 mm 角 (厚さ 0.1-1 g/cm²)、ライナックでは 10 mm ϕ (厚さ 10-100 mg/cm²) とし、Al の内部ビームモニターとともにスタックとして照射した。モニター反応により求めたビーム強度は、シンクロトロンの場合は 10^8 - 10^9 equivalent quanta/sec、ライナックの場合は 10^{12} - 10^{13} eq.q./sec で、照射時間はそれぞれ 4-6 hr、5-20 min であった。

照射後、キャリアーを加えターゲットを酸で溶解し、EDTA で妨害元素をマスクした後、Be-アセチルアセトン錯体を四塩化炭素により抽出した。更に、硝酸で逆抽出し得られた無機相を蒸発乾固して ${}^7\text{Be}$ を測定した。その後、陽イオン交換法により Be を精製し、真空中で焼いて BeO として加速器質量分析法により ${}^{10}\text{Be}$ を測定した。 ${}^7\text{Be}$ については分離前に非破壊測定も行った。

【結果と考察】 今回行った収率測定のうち Al ターゲットについての結果を Fig. 1 に示す。既に報告した Cu, O ターゲットの結果も含めて比較すると、 ${}^7\text{Be}$, ${}^{10}\text{Be}$ ともにターゲットの質量が増加するにつれ収率は減少した。一方、昨年報告した 12 GeV 陽子で照射した Al から Au にいたる数種のターゲットについて加速器質量分析法により ${}^{10}\text{Be}$, ${}^{26}\text{Al}$ を測定した結果では、 ${}^{10}\text{Be}$ についてはターゲットの質量数が増加するにつれ、その生成断面積も急激に大きくなる傾向を示した。(Fig. 2²⁾) 陽子でのこの結果は、ターゲットの質量が増加するにつれ ${}^{10}\text{Be}$ の生

しばたせいいち、いまむらみねお、さかもとこう、かわぐちこういち、おきざきしょうへい、つちださなえ、ふるかわみちあき、ふじわらいちろう、ながいひさお、こばやしこういち

成に対し fragmentation 過程の寄与が大きくなることを明確に示している。しかし、光子ではターゲット質量が増加しても、この放出過程の寄与は大きくならないことを示している。光核反応については、更に Ag および Au ターゲットからの ${}^7\text{Be}$, ${}^{10}\text{Be}$ の収率を現在測定中であり、その結果も含めて、このような相違がなぜ生じるのかについて議論する予定である。

また、収率の比 (${}^{10}\text{Be}/{}^7\text{Be}$) については、O ターゲットでは光子の場合と陽子の場合とでほぼ等しく、Cu ターゲットについても光子で 0.6 ± 0.1 と陽子の場合の 0.47 よりやや高い値を示すものの、これまでの Ni, Fe の文献値³⁾ から推測していたような光子照射と陽子照射における差異はないようである。

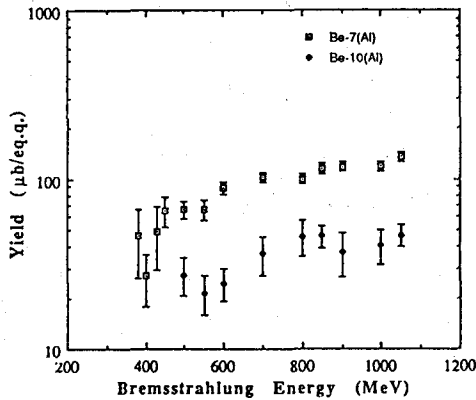


Fig. 1. Yield of ${}^7\text{Be}$ and ${}^{10}\text{Be}$ from Al target.

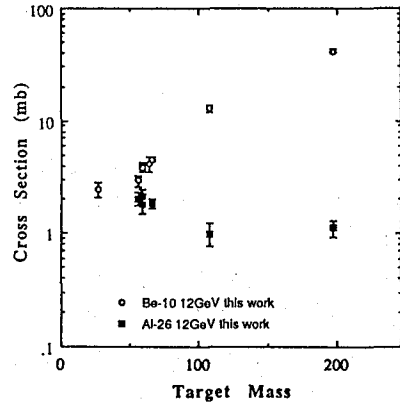


Fig. 2. ${}^{10}\text{Be}$ and ${}^{26}\text{Al}$ cross sections at $E_p=12\text{GeV}$ as a function of target mass.

【文献】

- 1) 柴田ら、第33回放射化学討論会（広島）1989年 10月
- 2) 柴田ら、第34回放射化学討論会（東京）1990年 10月
- 3) G.M. Raisbeck and F. Yiou, "Spallation nuclear reactions and their applications", ed. by B.S.P. Shen (Reidel, Boston, 1976) p83

MEASUREMENTS OF ${}^7\text{Be}$ AND ${}^{10}\text{Be}$ PRODUCED BY PHOTONUCLEAR REACTIONS AT INTERMEDIATE ENERGIES

Seiichi SHIBATA, Mineo IMAMURA, Inst. for Nucl. Study, Univ. of Tokyo
Koh SAKAMOTO, Kohichi KAWAGUCHI, Shohei OKIZAKI, Sanae TSUCHIDA, Dept. of Chem., Fac. of Sci., Kanazawa Univ.

Michiaki FURUKAWA, Dept. of Chem., Fac. of Sci., Nagoya Univ.

Ichiro Fujiwara, Otemon-gakuin Univ.

Hisao NAGAI, Coll. of Humanities and Sci., Nihon Univ.

Kohichi KOBAYASHI, Res. Center for Nucl. Sci. and Tech., Univ. of Tokyo

(東北大理、Inst. of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences, Budapest, Hungary) ○鍛冶東海、吉原賢二、
J. Sárfár*, L. Lakosi*, Á. Veres*

目的

(γ , γ') 核反応に関しては従来、giant dipole resonance (GDR) 領域において核反応断面積に double-hump が存在するといわれていたが、最近は2,3の核種でこの2番目のものはほとんど無視するほど小さいことが実験的に証明されている¹⁾。

1953年に Beth と Ashkin は GDR での粒子放出について double-hump の問題を取り扱い²⁾、1956年に Fuller と Hayward らは実験よってこの事を確認した³⁾。その後かなりの年月が経過するが、この点は実験と理論の両面より詳しく検討がされていない。特に、この領域は particle の放出を詳細に考慮に入れた考察がなされていない。

$^{103}\text{Rh}(\gamma, \gamma')$ $^{103\text{m}}\text{Rh}$ の場合、Bogdakevich ら³⁾ は GDR の顕著な第2のピークをみとめているが、我々の実験では、それはきわめて小さいと結論できた⁴⁾。本研究では preequilibrium 過程などを考慮に入れて理論的考察をおこなった。

考察

この GDR 領域では励起レベルからの particle の放出がおこっている。この領域ではいわゆる複合核モデルで記述される平衡状態からはずれた preequilibrium を考慮すべきである。本研究では、このような立場に立ち、かつスピン依存性をとり入れた γ 線カスケードモデルを適用した。

なお equilibrium level density は次に示す parity independent の式を使用した。

$$\rho(E, J) = \frac{\sqrt{\pi} \exp(2\sqrt{a(E-\Delta)})}{12a^{1/4}(E-\Delta)^{5/4}} R(J, \sigma)$$

ここで、 $R(J, \sigma)$ は

$$R(J, \sigma) = \frac{2J+1}{2\sqrt{2\pi}\sigma^3} \exp\left(-\frac{(2J+1)^2}{8\sigma^2}\right)$$

E は励起エネルギー、 J はレベルのスピン、 Δ は pairing energy で、Nemirovsky と Adamchuk の値を採用した。 a は level density parameter で Abdemalek と Stavinsky の値を使用した。 σ は spin cutoff parameter で Gilbert と Cameron の値を使用した。

次頁に示す quasi-bound particle-hole の density ω は Akkermans と Gruppelaar の式⁵⁾を使用した。

かじはるみ、よしはらけんじ、よーじえふ しゃーふぁー、らすろー らこし、
あーるぱっと べれしゅ

$$\omega(n, E, J) = \sqrt{\left(\frac{\pi}{3\sqrt{a}(E-\Delta)}\right)} \frac{g[g(E-\Delta) - A_{ph}]^{n-1}}{p!h!(n-1)!} R(J, \sigma_n)$$

$n=p+h$ で、 p は particle の数、 h は hole の数、 n は exciton state の spin cutoff parameter は Reffo と Herman の値を採用した。そのほか、種々の考察をして得られた integral cross section を Fig.1 に実線で示した。

図中の●印は我々の実験結果¹⁾である。初期の実験である Bogdankevichら(▲印)⁴⁾、Sierraら(■印)⁶⁾の実験値も示した。

以上 preequilibrium の過程を導入した計算によって、理論的には実験結果を再現できることがわかった。これは GDR の2番目のピークは (γ , γ') 核反応に関して殆ど無視しうる程に小さいことを意味する。

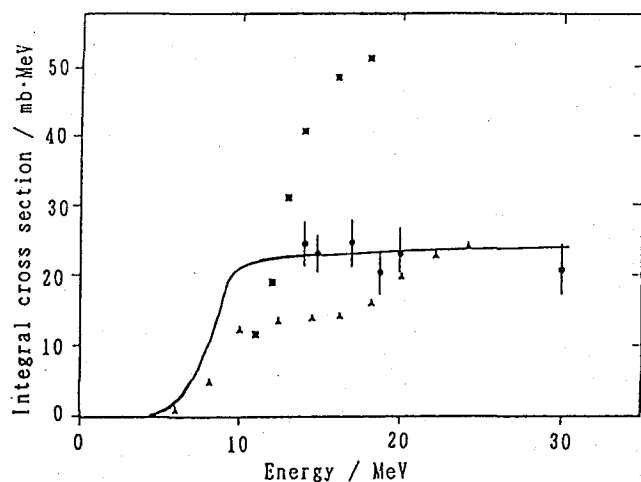


Fig.1 Energy dependence of experimental and calculated integral cross sections for ^{103m}Rh production.

- 1) 吉原賢二他 第34回放射化学討論会講演要旨集 1P01 p.264 (1990).
- 2) H. A. Bethe, J. Ashkin, Exp. Nucl. Phys. Vol.1. ed. by E. Segré (J. Wiley & Sons, New York, 1953) p. 345.
- 3) E. G. Fuller, E. Hayward, Phys. Rev. 101, 692 (1956).
- 4) O. V. Bogdankevich, L. E. Lazareva, A. M. Moiseev, JETP 12, 853 (1961).
- 5) J. M. Akkermans, H. Gruppelaar, Z. Phys. A321, 605 (1985).
- 6) C. S. R. Sierra, V. L. Telegdi, Phys. Rev. 90, 439 (1953).

CROSS SECTION OF NUCLEAR ISOMER EXCITATION BY (γ , γ') AT THE GIANT DIPOLE RESONANCE REGION.

Harumi KAJI, Kenji YOSHIHARA, Faculty of Science, Tohoku University
 József SÁFÁR, László LAKOSI, Árpád VERES, Inst. of Isotopes of the Hungarian Academy of Sciences, Budapest, Hungary

1A10

中間エネルギー ^{14}N , ^{15}N 及び ^{40}Ar ビーム照射による核反応生成物
- I (種々のターゲットについての収率分布及び反跳飛程)

(名大理, 愛知医大¹, 理研², 阪大理³, 東大核研⁴) ○谷口勇仁,
篠原厚, 古川路明, 小島貞男¹, 大久保嘉高², 安部文敏²,
竹迫和浩³, 齋藤直³, 柴田誠一⁴

【はじめに】 中間エネルギー重イオン(10 - 200MeV/u)によって誘起される核反応は, 近年さかんに研究されているが, 系統的な生成物の収率などの基礎的データはいまだに少ない。またその反応機構に関しては十分に解明されておらず, 複雑な反応機構を明らかにするにはさらに多くの研究が必要である。本研究では中間エネルギー領域において, 広範囲の反応系・エネルギーにわたり放射化法によって反応生成物の断面積を測定し核反応の基礎データとすること, および収率や運動量移行等の系統的变化から反応機構に関し情報を得ることを目的としている。ここでは, 現在までに行った実験の中からV, Cu, Nb, Iのターゲットに ^{40}Ar (59, 95MeV/u), ^{15}N (70MeV/u)及び ^{14}N (135MeV/u)ビームを照射した例について実験結果を述べ, 次の講演で結果の解析の現状について報告する。¹⁾

【実験】照射には理研リングサイクロトロンE3bコースの落送球照射装置²⁾を使用した。ターゲットとして10-30 μm 厚の金属箔を用い, その前後にターゲットから反跳する生成物を捕らえるためにマイラーもしくはAlのキャッチャーフォイルをおいてスタックとし, 重イオンを照射した。表1に照射条件を示した。照射後ターゲットは非破壊のまま約3カ月間 γ 線測定を行った。得られたスペクトルデータはBOB76 γ 線解析コードによってピーク解析し, ソーティング, Decay解析, 核種の同定などを行った。

【結果及び考察】図1に実験結果の例として, Nb + ^{40}Ar (59MeV/u)で観測された核種につき, 得られた断面積から荷電分布を考慮した質量分布曲線を示した。また, 図2には, キャッチャーフォイルへ移行した放

表1. 重イオン照射の照射条件

ビーム	E_{LAB} (MeV/u)	標的	照射時間 (時間)	総電気量 (nC)
$^{40}\text{Ar}^{13+}$	95	V	0.936	31605
		Cu	1.500	99640
		Nb	1.439	79128
$^{15}\text{N}^{7+}$	70	V	0.942	301459
		Cu	1.008	416536
		Nb (S)	0.113	54159
		Nb (L)	1.624	97321
		I (S)	0.169	144742
		I (L)	1.554	94658
$^{14}\text{N}^{7+}$	135	V (S)	0.137	61646
		V (L)	1.536	161922
		Cu (S)	0.078	40716
		Cu (L)	1.731	239018
		Nb (S)	0.049	21268
		Nb (L)	1.664	173312
		I (S)	0.107	20023
		I (L)	2.580	150188
$^{40}\text{Ar}^{13+}$	59	V	1.147	79208
		Cu	1.680	110223
		Nb	1.113	89984
		I (S)	0.175	24254
		I (L)	1.003	78519

(S), (L)はそれぞれ短時間照射, 長時間照射を示す。

たにぐちゆうじん, しのはらあつし, ふるかわみちあき, こじまさだお, おおくぼよしたか, あんべふみとし, たけさこかずひろ さいとうただし, しばたせいいち

射能の比率から求めた生成物の平均反跳飛程を示した。当日は反応生成物の収率および平均反跳飛程の実験結果のまとめを提示し、それに基づく定性的な議論を進め、次の講演の議論に役立つ基礎データとする予定である。

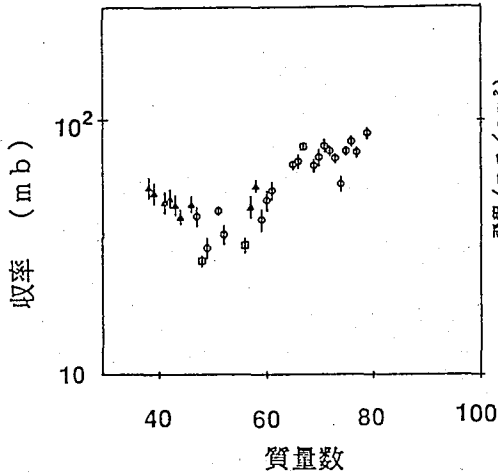


図1 ^{40}Ar (59 MeV/u) + Nbの質量分布

- : 実測核種数 > 70%
- : 実測核種数 > 40%
- △: 実測核種数 ≤ 40%

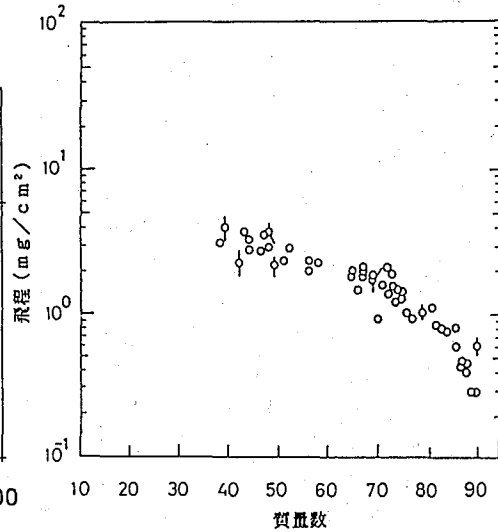


図2 ^{40}Ar (59 MeV/u) + Nbの平均反跳飛程

【参考文献】

- 1) 篠原 ら, 本講演要旨 1 A 1 1
- 2) 古川 ら, 日本化学会第59回春季年会 3 F 5 3 7 (1990)

NUCLEAR REACTION PRODUCTS IN THE INTERACTION OF INTERMEDIATE ENERGY ^{14}N , ^{15}N AND ^{40}Ar IONS -I (YIELDS AND MEAN RECOIL RANGES FOR VARIOUS REACTION SYSTEMS)

Eugene TANIGUCHI, Atsushi SHINOHARA, Michiaki FURUKAWA, Department of Chemistry, Faculty of Science, Nagoya University

Sadao KOJIMA, Aichi Medical University

Yoshitaka OHKUBO, Fumitoshi AMBE, Inst. Phys. Chem. Res. (RIKEN)

Kazuhiro TAKESAKO, Tadashi SAITO, Faculty of Science, Osaka University

Seiichi SHIBATA, Institute for Nuclear Study, The University of Tokyo

1A11

中間エネルギー ^{14}N 、 ^{15}N 及び ^{40}Ar ビーム照射による核反応生成物
- II (ターゲットフラグメンテーション部分に関する考察)

(名大理, 愛知医大¹, 理研², 阪大理³, 東大核研⁴) ○篠原厚,
谷口勇仁, 古川路明, 小島貞男¹, 大久保嘉高², 安部文敏²,
竹迫和浩³, 齋藤直³, 柴田誠一⁴

【はじめに】 中間エネルギー重イオン (10 - 200MeV/u) によって誘起される核反応の研究は近年精力的に進められているが, 生成物の収率などの基礎的な実験結果の蓄積が不十分であるのみならず, その反応機構を解明するための結果の解析についても必ずしも行きとどいていない。複雑な反応機構を明らかにするにはさらに詳細な考察が必要のように感じられる。本研究では, 多種類の粒子を広いエネルギー範囲にわたって加速できる理研リングサイクロトロンの特徴を生かし, 広い質量数の範囲について放射能測定によって反応生成物の生成断面積と平均反跳飛程の測定を進めている。ここでは, 現在までにまとめられた結果の中から V, Cu, Nb, I のターゲットに ^{40}Ar (59, 95MeV/u), ^{15}N (70 MeV/u) および ^{14}N (135MeV/u) ビームを照射した反応系の平均反跳飛程の測定結果¹⁾を解析し, 運動量移行などの系統的变化を求め, 質量分布の結果とあわせて反応機構に関する知見を得ることを目的とした。特にターゲット核付近の生成物の生成機構に重点をおいて考察した結果を報告する。

【解析】 様々な反応系について各々の生成核の平均反跳飛程の実験値から運動量の移行量を計算し, 質量数の関数として表した。後方への反跳が認められる場合には, 前方-後方比 (F/B) による考察も予定している。また Cu に対する生成断面積の測定値から荷電分布を推定して得た質量分布を利用して, Rudstam に始まる取扱にならぬ, A ~ 35 から ~ 55 にいたる領域の傾斜を表すパラメーター P を求め, 陽子誘起反応²⁾, 光子核反応³⁾を含む他の多くの系で得られている値との比較を試みている。

【結果及び考察】 実験結果の例として, 図 1 に平均反跳飛程の実験値より計算して求めた Cu に ^{40}Ar イオン (26, 59, 95MeV/u) を照射した際の運動量移行量の分布を示した。入射エネルギーが 26MeV/u の照射では他の二つの場合と異なって大きな運動量移行が観測され, ターゲット核より重い生成核で特にその傾向が著しい。入射エネルギーが 59, 95MeV/u の際の実験結果には大きな差が認められない。図 2 には, Nb を ^{40}Ar イオン (59, 95MeV/u) で照射した際の運動量移行量の分布を示した。Cu の場合よりも二つの照射エネルギーに対する差があるようにみえる。

【参考文献】

- 1) 谷口ら, 本講演要旨 1A10
- 2) S. Shibata et al., Phys. Rev. C35 254 (1987)
- 3) J.B. Cumming, P.E. Haustein, T.J. Ruth, G.J. Virtes, Phys. Rev. C17 1632 (1978)

たにぐちゆうじん, しのはらあつし, ふるかわみちあき, こじまさだお, おおくぼ
よしたか, あんべふみとし, たけさこかずひろ さいとうただし, しばたせいいち

図1 Cuの ^{40}Ar 照射の際の運動量移行

○: 26 MeV/u
 □: 59 MeV/u
 △: 95 MeV/u

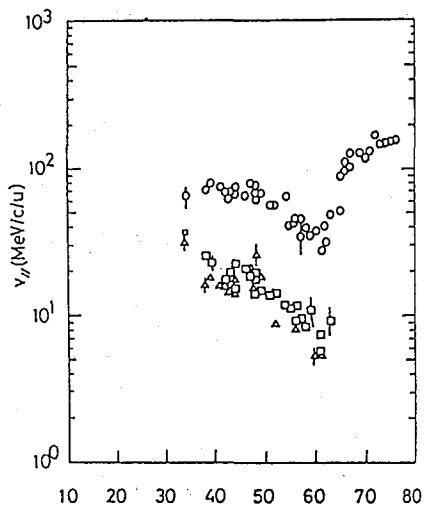
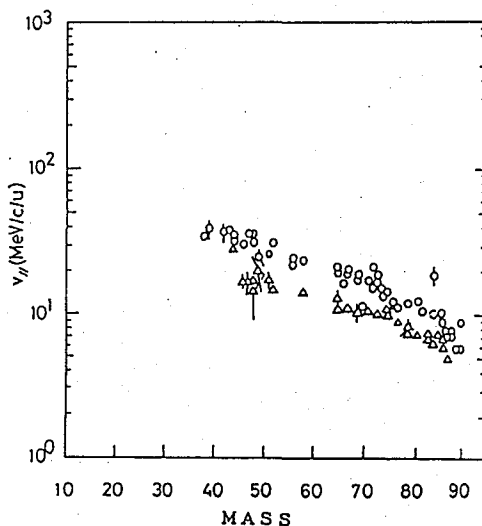


図2 Nbの ^{40}Ar 照射の際の運動量移行

○: 59 MeV/u
 △: 95 MeV/u



NUCLEAR REACTION PRODUCTS IN THE INTERACTION OF INTERMEDIATE ENERGY ^{14}N , ^{15}N AND ^{40}Ar IONS -II (THE MECHANISM OF TARGET FRAGMENTATION)

Atsushi SHINOHARA, Eugene TANIGUCHI, Michiaki FURUKAWA, Department of Chemistry, Faculty of Science, Nagoya University

Sadao KOJIMA, Aichi Medical University

Yoshitaka OHKUBO, Fumitoshi AMBE, The Inst. Phys. Chem. Res. (RIKEN)

Kazuhiro TAKESAKO, Tadashi SAITO, Faculty of Science, Osaka University

Seiichi SHIBATA, Institute for Nuclear Study, The University of Tokyo

1A12

$^{40}\text{Ar} + ^{141}\text{Pr}$ 融合反応系における角運動量効果

(阪大理、理研*、名大理**) 舛分宏昌、○竹迫和浩、斎藤 直、
横山明彦、桐生 大、渡辺誠也、高橋成人、馬場 宏、大久保嘉高*、
篠原 厚**

【はじめに】

完全融合反応においては臨界角運動量 L_{CR} が存在し、融合断面積 σ_{FU} との間に、

$$\sigma_{FU} = \frac{\pi \hbar^2}{2 \mu E_{CM}} (L_{fu} + 1)^2 \quad (1)$$

なる関係が成り立つことが知られている¹⁾。ただし、得られる最大の角運動量を L_{max} とするとき

$$L_{fu} = \min \{L_{max}, L_{CR}\} \quad (2)$$

である。

また、蒸発残留核生成断面積 σ_{ER} に対しても以下の関係が成り立つと考えられる。

$$\sigma_{ER} = \frac{\pi \hbar^2}{2 \mu E_{CM}} (L_{er} + 1)^2 \quad (3)$$

$$L_{er} = \min \{L_{max}, L_{ER}\} \quad (4)$$

ここで、 L_{ER} は核分裂と粒子蒸発の単位幅が等しくなる角運動量であり、粒子蒸発に対する臨界角運動量と考えることができる。この二式から、十分大きな入射エネルギーに対しては両断面積は入射エネルギーに逆比例すると予測される。

大半の実験データはこの関係を満足する²⁾。しかし、金より軽い複合核を生成する系においては、融合断面積から核分裂断面積を引いて得た蒸発残留核生成断面積は、必ずしもこの関係を満たさない。そこで、この理論の検証のため、 $^{40}\text{Ar} + ^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{181}\text{Ir}$ の系で、放射化学的手法により様々な入射エネルギーにおける残留核の生成断面積を直接求める実験を行なった。

【実験】

理研リングサイクロトロン(RRC)E3コース落送球照射装置を用い³⁾、10~95MeV/uの範囲の四つの ^{40}Ar 照射エネルギーで実験を行なった。モノアイソトピックな ^{141}Pr 箔をターゲットに選り、それをA1箔やC箔、マイラー等ではさんだものをスタックとした。また、一つの照射エネルギーで異なるエネルギー点を得るため、適当な厚みのA1箔をデグレーダーとして用いた。照射後すべての箔を分離して、捕集した核反応生成物をGe半導体検出器を用い非破壊のままγ線測定を行なった。

【結果と考察】

decay解析により、箔毎に生成核種を同定・定量し、その質量分布・飛程などから生成核種を蒸発残留核成分・核分裂成分及び非複合核過程による生成核種に分離した。その後蒸発残留核成分と核分裂成分の断面積を求め、その和を融合断面積とした。求めた断面積を、Bass模型の計算値とともに図1に示す。融合断面積及び蒸発残留核生成断面積ともは

くさわけひろあき、たけさこかずひろ、さいとうただし、よこやまあきひこ、
きりうまさる、わたなべせいや、たかはしなると、ばばひろし、おおくぼよしたか、
しのはらあつし

ば(1)式及び(3)式から予測される比例性を満たしている様子が見てとれる。我々のデータの断面積はエネルギーに対して逆比例しており、前述の予測をこの系については実証出来たと考える。(1)式及び(3)式から求めた角運動量 L_{er} 及び L_{fu} を表1に示す。角運動量とも 7.2~9.8MeV の入射エネルギーにおいてはほぼ一定の値をとっており、臨界角運動量に達している様子が見てとれる。

解析の結果、ターゲット中心でのエネルギーが 93.7MeV/u の実験においては、質量分布は典型的な核破碎反応の様相を示した。このことから、この入射エネルギーにおいては、完全融合反応は支配的でなく、核破碎反応が主な反応であることが分かった。また、入射

エネルギー約58MeV/u の実験については現在解析中であるが、やはり同様の描像が見てとれると予測している。この二つの実験に関しては、核励起に対する limiting behavior について考慮する。

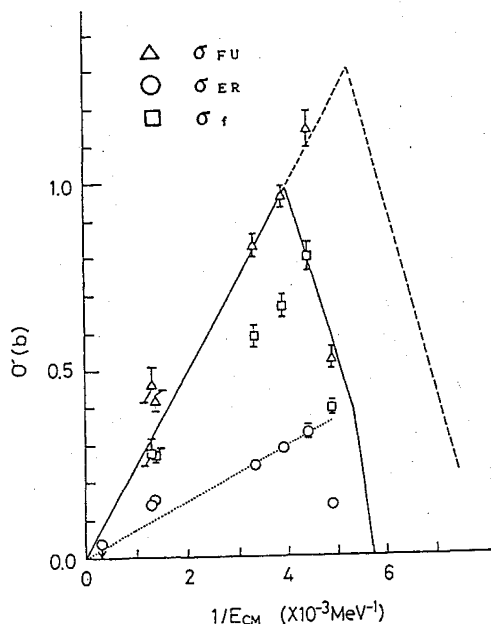


図1. 断面積のエネルギー依存性

表1. 断面積と臨界角運動量

E_{lab} MeV/u	E_{cm} MeV	σ_{ER} mb	σ_{FU} mb	L_{er} h	L_{fu} h
6.6	204	134 ± 7	530 ± 30	35	71
7.2	226	335 ± 20	1140 ± 50	59	110
8.2	252	289 ± 13	960 ± 30	58	106
9.8	304	241 ± 8	830 ± 30	58	109
23.5	732	148 ± 4	420 ± 30	71	119
24.8	773	147 ± 5	460 ± 50	72	129

【参考文献】

- 1) R. Bass, "Nuclear Reactions with Heavy Ions", Springer-Verlag, Berlin (1980).
- 2) S. Baba, et.al. Z.Phys., A331, 53 (1988).
- 3) S. Ambe, et.al. Chem.Lett., 1991, 149.
- 4) W. P. Zank, et.al. Phys.Rev. C33, 519 (1986).
- 5) 舩分ら、日本化学会第59春季年会講演予稿集 p.124.

ANGULAR MOMENTUM EFFECT IN THE $^{40}\text{Ar}+^{141}\text{Pr}$ FUSION REACTION SYSTEM

Hiroaki KUSAWAKE, Kazuhiro TAKESAKO, Tadashi SAITO, Akihiko YOKOYAMA, Masaru KIRIU, Seiya WATANABE, Naruto TAKAHASHI, Hiroshi BABA, Faculty of Science, Osaka University, Yoshitaka OHKUBO, The Institute of Physical and Chemical Research, Atsushi SHINOHARA, Faculty of Science, Nagoya University

(原研) ○篠原伸夫、市川進一、間柄正明

(都立大*、東北大核理研**) 塚田和明*、大槻勲**

はじめに

Z=50閉殻近傍の中性子過剰核種の研究は、変形核構造や核分裂機構を理解するための一分野として注目されているが、半減期が短いために迅速に分離・測定しなければならず、壊変データや生成断面積などの基礎的な情報はほとんどない。そこでこの基礎データの取得を目的に、 ^{252}Cf の自発核分裂およびアクチノイドの重イオン核反応で生成する短寿命ルテニウム同位体に着目し、これを迅速化学分離して γ 線を測定する実験をおこなった。本討論会では、 $^{107-112}\text{Ru}$ に関する壊変データおよび重イオン核反応の生成断面積について報告する。

実験

約 $2\mu\text{g}$ の ^{252}Cf の電着線源 (Fontenay-aux-Roses Lab.製, France) を用いて、ルテニウム同位体の壊変データを測定した。また原研タンデム加速器を用いて、アクチノイド (^{232}Th , $^{233,235,238}\text{U}$, ^{237}Np , ^{244}Pu) に陽子ならびに重イオン (^{12}C , ^{19}F) を照射して、核分裂反応によるルテニウム同位体の生成断面積を測定した。これらの実験では生成核種をヘリウムジェット法で迅速搬送し、さらにオンライン溶媒抽出装置SISAK¹⁾を用いてルテニウムを単離したのち、オンラインで γ 線スペクトルを測定した。図1は ^{252}Cf を用いた実験の概要である。

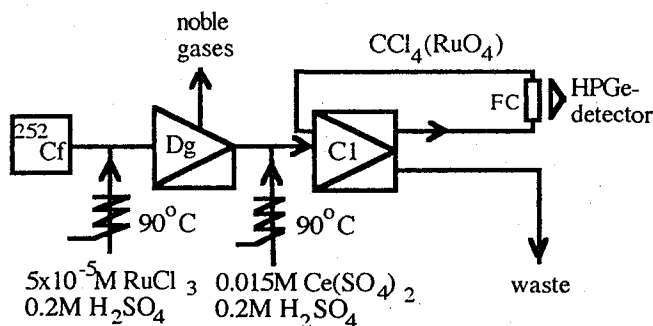


Fig.1 Flow sheet of the SISAK chemical separation system for the fast separation of ruthenium.

Dg, C1 and FC stand for degasser, centrifuge and flow cell, respectively. The aqueous solutions are preheated to about 90°C .

結果および考察

[$^{107-112}\text{Ru}$ の壊変データ] 溶媒抽出分離後の有機相を測定した γ 線スペクトルの解析結果から、観測された γ 線の大部分はルテニウム同位体(質量数107-112)およびこれらの娘核種のロジウム同位体の β 壊変に起因することがわかった。本分離法によれば、半減

しのはらのぶお、いちかわしんいち、まがらまさあき、つかだかずあき、おおつきつとむ

期数秒の核種を分離精製することが可能である。 ^{252}Cf 線源から化学分離装置を経て検出器に至るまでの搬送時間(約2秒)を補正して、各 γ 線の相対強度 I_{rel} を決定した。このうちこれまでほとんど報告例のなかった $^{110-112}\text{Ru}$ の γ 線データを表1に示す。

Table 1. Energies and intensities of γ -rays following the β decay of $^{110-112}\text{Ru}$.

Isotope	$T_{1/2}^{(2)}$ (s)	E_{γ} (keV)	$I_{\text{rel}}/\text{fission}$ (cps)	I_{rel} (%)		$I_{\gamma}^{(3,4)}$ (%)
				this work	Ref.5)	
110Ru	12.0(1)	96.04(20)	1.30(34)	6.1(17)	6	15.8(44)
		112.51(6)	21.2(13)	100.0(61)	100	
		373.68(4)	2.55(36)	12.0(17)		
111Ru	2.12(7)	211.61(6)	5.96(84)	54.0(82)		20.7(41)
		249.65(17)	<1.06(30)	<9.6(28)		
		303.63(6)	8.28(66)	75.0(73)		
		381.40(4)	11.04(61)	100.0(55)		
112Ru	1.75(7)	326.82(5)	7.2(4)			

[Ruの核分裂収率]上記の実験で得られた壊変データを用いて、アクチノイドの陽子ならびに重イオン誘起核分裂反応によるルテニウム同位体の生成断面積を測定した。このうち $p, ^{12}\text{C}, ^{19}\text{F}+^{238}\text{U}$ 系の測定結果を図2に示す。C+U系ならびにF+U系において、ルテニウム同位体の収率分布は類似の傾向を示すが、 $p+U$ 系とは違っている。重イオン核反応の同位体収率分布は、peripheral collisionによる低エネルギー核分裂と、central collisionによる高励起状態からの核分裂(あるいは核子蒸発)の2つのモードによって、軽イオン反応系よりも広がるとの報告⁶⁾があり、本実験結果はこれを裏付けるものと考えらる。

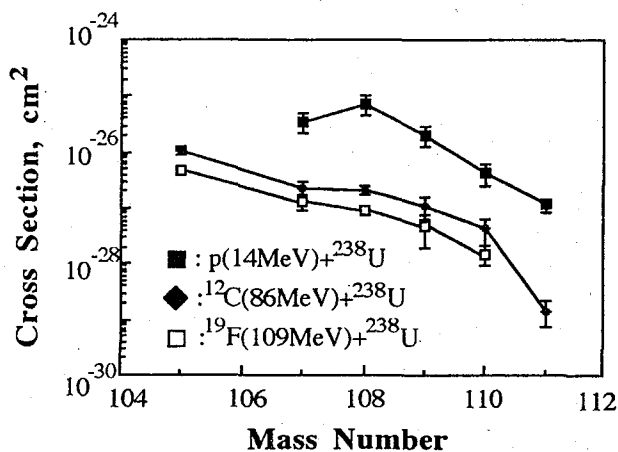


Fig. 2 Isotopic distribution of Ru produced in the systems of $p+^{238}\text{U}$, $^{12}\text{C}+^{238}\text{U}$ and $^{19}\text{F}+^{238}\text{U}$.

文献

- 1)篠原伸夫, 他, 第32回放射化学討論会講演予稿集(東海1988年10月) p.32. 2)M.Kaffrell, et al., IKMz 86-1, p.7 (1986). 3)J.B.Wilhelmy, UCRL-18978 (1969). 4)B.F.Rider, NEDO-12154-3(C) (1981). 5)G.Franz and G.Herrmann, J. Inorg. Nucl. Chem., **40**, 945 (1978). 6)M.de Saint Simon, et al., Phys. Rev. C**26**, 2447 (1982).

GAMMA-RAY MEASUREMENT OF SHORT-LIVED RUTHENIUM ISOTOPES SEPARATED BY SISAK
Nobuo SHINOHARA, Sin-ichi ICHIKAWA, Masaaki MAGARA, Japan Atomic Energy Research Institute
Kazuaki TSUKADA, Tokyo Metropolitan University, Tsutomu OTSUKI, Tohoku University

(原研、 動燃*、東北大核理研**、名大工***)
 原田 秀郎*、関根 俊明、○小林 勝利、初川 雄一
 重田 典子、 大槻 勤**、加藤 敏郎***

1. はじめに

昨年の本討論会において演者らは、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応の 2200 m s^{-1} 中性子断面積と共鳴積分の測定について発表した¹⁾。今回は ^{137}Cs と同じく、放射性廃棄物の中でも長半減期核種として問題になる、 ^{90}Sr の消滅処理の可能性評価に必要な熱中性子反応断面積を測定したので報告する。なお、 $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ 反応による熱中性子反応断面積については、これまで三つの報告があるが、約60倍も違っている($0.8 \text{ b}^{2)}$ および $0.014 \text{ b}^{3)}$ 。

^{91}Sr は γ 線を放出するが、 ^{90}Sr は純 β 線放出核種なので、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応の場合のように、同じ γ 線スペクトルで生成核種とターゲット核種の γ 線の比較が出来ない。そこで、 γ 線 (514 keV) を放出する ^{85}Sr を一定量加えて ^{90}Sr のトレーサとして実験を行った。

2. 実験

^{90}Sr 放射能はガスフロー比例計数管を用い、 ^{85}Sr の放射能は大型の高純度 Ge 検出器 (相対効率: 90%) により測定した。2 MBq の ^{90}Sr 溶液と 0.016 MBq の ^{85}Sr 溶液の混合溶液 (SrCl_2) をポリエチレン製小瓶に入れ、蒸発乾固したものをターゲットとして、フラックス・モニター (Co/Al、Au/Al 合金、モリブデン線) とともにカプセルに封入し、原研の JRR-4 原子炉の Tパイプで 10 分間照射した。

照射後、放射能測定上妨害となる ^{90}Y を陽イオン交換法により除去した。溶離液として 2 M HNO_3 を用い、 Sr^{2+} イオンは Y^{3+} イオンの前に溶離した。得られた $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ 溶液に Sr キャリアーを加え、 SrCO_3 の沈澱を生成させた。この沈澱を吸引る過し、赤外線ランプで乾燥した後、マイラー箔で包みさらにポリエチレン袋に封入して測定試料とした。

カスケード γ 線によるコインシデンスロス を 3% 以下にするため、検出器と測定試料の距離は 7 cm とし、その間にアクリル板と鉛板を置いた。また、検出器と測定試料は、厚さ 5 cm の鉛遮蔽箱の中に格納した。 γ 線スペクトルデータは、1 時間毎にフロッピーディスクに自動的に収集した。検出器計数効率は、混合標準線源を用いて校正した。

はらだひでお、せきねとしあき、こばやしかつとし、はつかわゆういち
 しげたのりこ、おおつきつとむ、かとうとしお

3. 結果と考察

Fig. 1 に得られた γ 線スペクトルを示す。750 keV および 1024 keV γ 線ピークの崩壊曲線から半減期を求め、2 回の実験値の荷重平均値より 8.7 ± 0.9 h を得た。この値は、 ^{91}Sr の半減期 9.52 ± 0.06 h に誤差の範囲内で一致した。フラックス・モニターから求めた Westcott Convention による中性子束 $n v_0$ ($4 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) と熱外中性子の割合 $r(T/T_0)^{1/2}$ ($= 0.03$) および ^{91}Sr と ^{85}Sr の放射能比から反応断面積 $\hat{\sigma} = 15.3 \pm 1.3$ mb を得た。この値は、L. A. Mcvey, ら³⁾ の報告値と一致した。

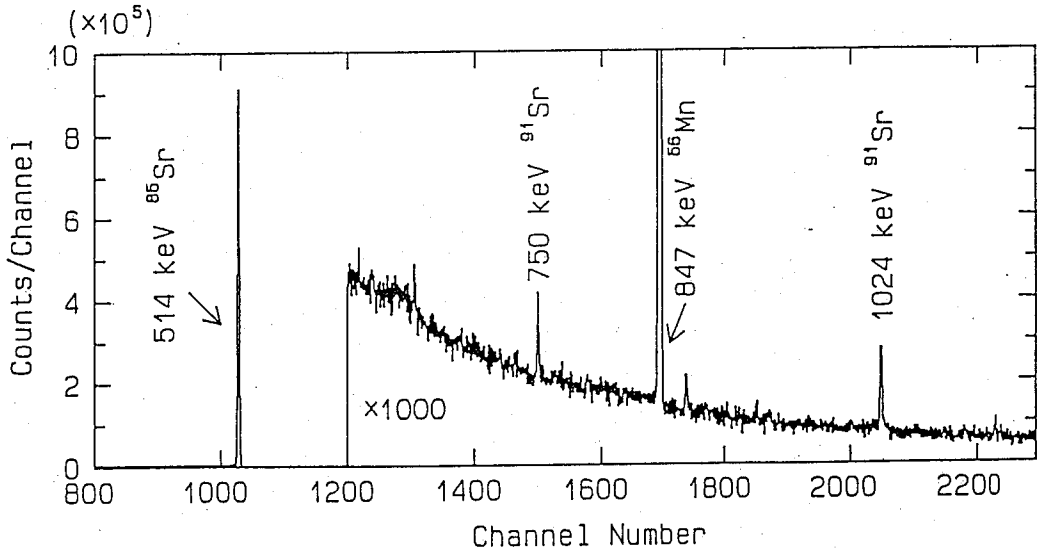


Fig. 1 Gamma-ray spectrum of a neutron-irradiated $^{85}\text{Sr}-^{90}\text{Sr}$ sample.

- 1) 関根俊明、初川雄一、小林勝利、原田秀郎、渡邊尚、加藤敏郎：第34回放射化学討論会 2A01(1990)； H. Harada, H. Watanabe, T. Sekine, Y. Hatsukawa, K. Kobayashi, T. Katoh : J. Nucl. Sci. Tech. 27, 577 (1990)
- 2) G. Zeisel : Acta. Phys. Austr. 23, 223 (1966)
- 3) L. A. Mcvey, R. L. Brodzinski, T. M. Tanner : J. Radioanal. Chem. 76, 131 (1983)

MEASUREMENT OF THE THERMAL NEUTRON CROSS SECTION OF THE $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ REACTION

Hideo HARADA, Power Reactor & Nuclear Fuel Development Corp.

Toshiaki SEKINE, Katsutoshi KOBAYASHI, Yuichi HATSUKAWA, Noriko SHIGETA, Japan Atomic Energy Research Institute.

Tsutomu Ohtsuki, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

Toshio KATOH, Faculty of Nuclear Engineering, Nagoya University.

(高エネ研) ○沼尻正晴 三浦太一 鈴木健訓 沖 雄一
近藤健次郎 高崎 稔 田中万博 家入正治

1 はじめに

加速器施設ではビーム損失によって加速器構造体や周辺機器内に様々な核種の残留放射能が生成する。なかでも ${}^3\text{H}$, ${}^7\text{Be}$, ${}^{22}\text{Na}$, ${}^{54}\text{Mn}$ などの長寿命核種は、放射化した物を取り扱う際に問題となる。トリチウムは、高エネルギーの陽子に対して比較的断面積が大きく半減期が12年と長い核種である。また、低エネルギーβ線放出核のため、他のγ線放出核に較べて生成量の測定が難しい。陽子と原子核との反応では、入射陽子のエネルギーが数百 MeV以上になると核破碎反応が主となる。また、生成核種の断面積は、数 GeV以上で入射エネルギーに依存しないことが知られている。トリチウム生成断面積のエネルギー依存性と標的核依存性がわかれば、数 GeV以上の陽子加速器施設において生成するトリチウムの量を評価できると考えられる。ここでは、9種の金属に対する12GeV陽子のトリチウムの生成断面積を求めた。また、高エネルギー加速器におけるトリチウム生成が放射線管理を行う上で重要な問題であることを講演で議論する。

2 実験

高エネルギー物理学研究所の12GeV陽子シンクロトロンから取り出されたビームを用いて AlからPbまでの9種類の金属標的に対して照射実験を行った。標的の厚さは20~400mg/cm²である。照射陽子数は 3.3×10^{14} 個で、これはAlの放射化による ${}^{27}\text{Al}(p, 3pn){}^{24}\text{Na}$ 反応の断面積を用いて求めた。照射した金属試料は強酸で融かし、金属中に生成したトリチウムをHTOとして回収した。トリチウムの生成量はトリチウムからのβ線を液体シンチレーションカウンターによって測定し求めた。

3 結果と考察

ターゲットの厚さが薄い場合には、標的試料からのトリチウムの反跳を考えなくてはならない。質量数の大きい生成核の多くは、反跳飛程が小さい(Cuで1~3mg/cm²)ので、散乱の補正が容易である。12GeV陽子に対する照射実験でのトリチウムの飛程を知るため、Cu標的核の厚さに対するトリチウムの生成量を求めた。その結果、反跳飛程はCuで約100mg/cm²(反跳エネルギーは10MeV程度)であることがわかった。核破碎反応は、おおまかに核内カスケード過程と蒸発過程の2段階の反応で説明できる。核破碎反応で生成するトリチウムの多くは、蒸発過程の

ぬまじりまさはる、みうらたいち、すずきたけのり、おきゆういち、
こんどうけんじろう、たかさきみのる、たなかかずひろ、いえいりまさはる

ものであると予想されている。反跳したトリチウムの角度分布は、ほぼ等方であることが他の実験結果[1]より得られている。

トリチウムの生成断面積としてAl~55mb, Pb~650mbなどが得られた。我々の得た12GeVでの結果と他の陽子エネルギーでの結果[2,3]とを比較すると図1に示されるように、数GeV以上では断面積にエネルギー依存性のないことがわかる。また、標的核の原子量Aと断面積 σ (mb)との関係は図2に示すように、Alを除いて $\sigma = 95 \exp(A/107)$ という簡単な式で表わされる。これは、同じ図中の陽子エネルギーが0.6GeV付近でのKrugerとHeymann[4]の結果と同様の傾向を示している。

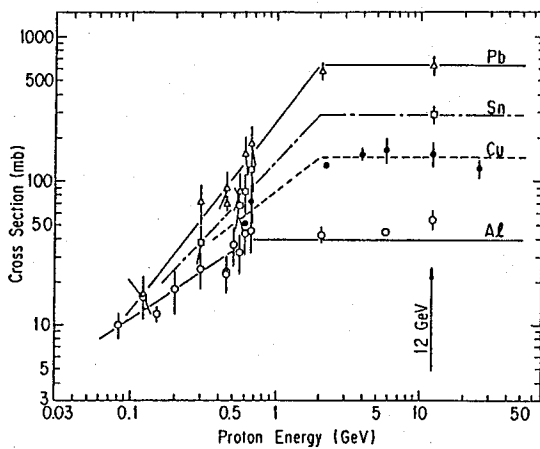


図1 トリチウムの生成断面積と入射陽子のエネルギーとの関係

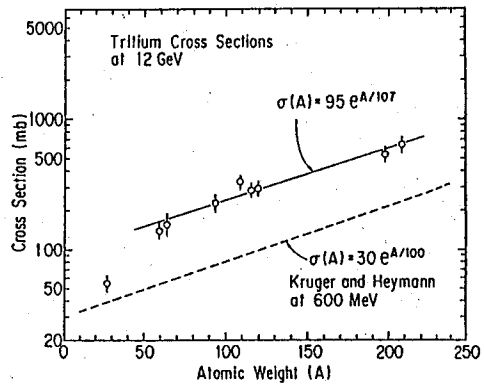


図2 トリチウムの生成断面積と標的核の原子量との関係

参考文献

1. E.K.Hyde, G.W.Butler, A.M.Poskanzer, Phys. Rev. C4, 1759(1971).
2. E.Bruninx, CERN 61-1(1961), CERN 61-9(1962), CERN 64-17(1964).
3. J.B.Cumming et al., Phys. Rev. C10, 739(1974).
4. S.T.Kruger and D.Heymann, Phys. Rev. C7, 2179(1973).

TRITIUM CROSS SECTION FOR 12GeV PROTONS

Masaharu NUMAJIRI, Taichi MIURA, Takenori SUZUKI, Yuichi OKI,
Kenjiro KONDO, Minoru TAKASAKI, Kazuhiro TANAKA, Masaharu IEIRI
National Laboratory for High Energy Physics

(都立大・理) ○西中一朗、谷川勝至、塚田和明、小林貴之、
末木啓介、中原弘道

〈はじめに〉

核分裂の質量分布は対称性、非対称性、分布の幅などの形状や、また励起エネルギー依存性などの面から、様々な分裂核について調べられてきた。これらの質量分布を分裂核の陽子数 Z 、中性子数 N にたいして系統的に調べていくことは分裂機構の解明の重要な手がかりであると考えられる。軽アクチノイド領域では U 、 Th の軽粒子誘起核分裂などによってかなりよく研究され非対称分割の質量分布であることが知られているが、この非対称性が複合核の中性子数とともにどのように変化していくのか興味深い点である。そこで本研究では複合核が ^{228}Pa (中性子欠損核) になる反応系 ($^{208}\text{Bi} + ^{16}\text{O}$) において核分裂生成物の質量分布を調べてきた。測定方法として放射化学的手法を用いた。核分裂生成物の放射能の計測は詳細な質量分布を求める際に有効であるが、中性子欠損核からの核分裂では核分裂生成物の電荷分布の補正などの問題が生じる。前回の討論会での講演では Rb 、 Sb 、 Cs の同位体分布の入射エネルギー変化から電荷分布とそれに関係の強い中性子放出について考察を行った。今回は新たに得られたデータも含め核分裂生成物の電荷分布、中性子放出、そして同位体分布から求めた質量分布について検討する。

〈実験〉

照射は東京大学原子核研究所の SF サイクロトロンで行い、照射後ターゲット及び核分裂生成物捕集用のアルミ箔を γ 線測定した。収率はその放射能から求めた。ターゲット位置での $^{16}\text{O}^{5+}$ ビームの平均入射エネルギーは、 $E_{\text{lab}} = 103, 99, 95, 91, 89, 87, 86, 84 \text{ MeV}$ である。同位体分布を求めた Rb 、 Cs 、 Sb は化学分離した後、測定を行った。

〈結果・考察〉

中性子欠損核からの核分裂生成物は β 安定線に近接した核種が多く生成する。したがって放射能測定によって測定できる核種には β 壊変による同重体鎖列中の親核種からの流れ込みがない独立収率であるものが多い。また累積収率のように直接質量分布を求めることができる核種が少ないのもこのためである。同位体分布とはそれぞれの同位体についての独立収率を表したものであり図 1 に示した。同位体分布では励起エネルギーが増大するにしたがって同位体全体の収率は増大し、また最確値 A_p (most probable mass) は小さくなる傾向がある。 A_p のエネルギー変化は、励起エネルギーの増大が中性子放出によって解消されていることを示しており、前回の討論会では中性子放出のモデル計算によってこの事象の理解をはかった。今回もこの件について更に検討する予定である。

また同位体分布は $Z = 51, 53, 55$ の隣り合う奇陽子数同位体について得られているので、これから質量分布を推定する方法を検討した。それぞれの分布をガウス分布と仮定すると最小自乗法により分布の媒介変数を求めることができる。この変数から実験データを

にしなか いちろう、 たにかわ まさし、つかだ かずあき、 こばやし たかゆき、
すえきけいすけ、 なかはら ひろみち

内挿、外挿すると $Z = 50 \sim 56$ の偶陽子数同位体分布が得られる (図 2)。さらにそれぞれの質量に対して収率を積算したものが質量収率となる。(この方法は反応系の複合核が奇陽子数核であり、分裂片は奇核、偶核の対を成しているため奇偶効果がないという推測に基づいている。) 図 3 はこの方法を用いて求めた質量分布であり、分布の幅や形状などからも質量分布がよく表されていると推察する。

多くの入射エネルギーで同位体分布、質量分布が得られているので、これらの励起エネルギー変化や同位体分布にみられる質量分布の非対称性についても検討し発表する。

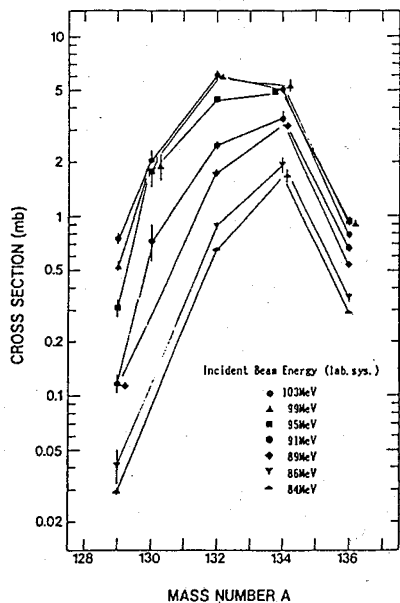


図 1 Cs 同位体分布

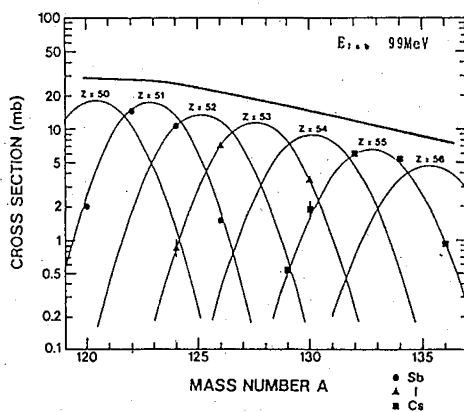


図 2 同位体分布と質量分布

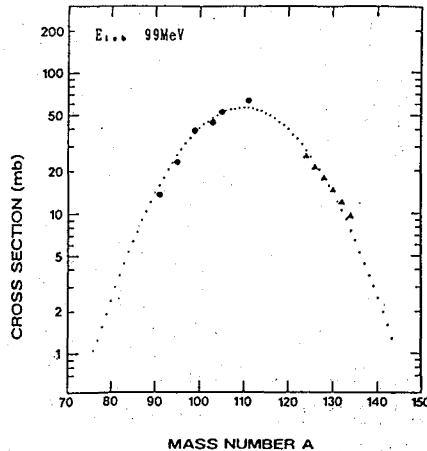


図 3 質量分布

【参考文献】

西中他、第34回放射化学討論会、1A10(1990)

MASS AND ISOTOPIC YIELD DISTRIBUTIONS IN FISSION PRODUCTS FROM ^{16}O INDUCED FISSION OF ^{209}Bi

Ichiro NISHINAKA, Masashi TANIKAWA, Kazuaki TUKADA, Takayuki KOBAYASHI, Keisuke SUEKI and Hiromichi NAKAHARA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University

(東北大金研・金沢大医技短*) ○塩川佳伸・天野良平*

【はじめに】

我々はアクチナイド化合物合成のマイクロテクニクの開発を目的として、ランタノイド(III)・トリウム(IV)・ウラン(VI)の昇華性ジピバロイルメタン(dpm)キレートを金属源とした化学気相析出法による2成分系化合物の調製を検討してきた。酸素・水蒸気・フロン12を反応ガスとした場合には結晶のよい析出物(酸化物・フッ化物)が得られるのに対して、硫化水素・アンモニアの場合には満足な結果が得られていない。これまでの反応容器ではキレートガスと反応ガスとの混合物を昇華部である低温部から反応部である高温領域に比較的遅い速度(100ml/mincm²程度)で導入して析出物を得ていたが、このため選択できる反応温度がキレートの熱分解温度付近に限定されており、電気陰性度の高いフッ素や酸素との化合物が主として得られるのは当然とも言えよう。従って、今後のマイクロテクニク開発の方向として次の2点が考えられる。(1)キレートガスを速い速度で反応部に導入して反応ガスと混合することで高い反応温度を実現することにより電気陰性度の低い元素との化合物の合成を試みる。(2)固相反応を利用した通常の方法では化合物合成に長時間を要するのに対して気相反応を用いた化学気相析出法は反応速度が極めて速いという特徴を生かして、これまでの反応容器に多少の改良を加えることにより、2種類以上の金属を含む混合酸化物の物質探索を試みる。前者については現在反応容器を試作中であり、本講演では後者の試みについて述べる。

【実験】

反応容器はこれまでのものを改造して、ガラス管(φ15mm)を2つのキレート昇華部(各々130mm)及び反応部(200mm)に分けてこれらを独立に温度制御しキャリアーガスでキレートを反応部に移行させると共に反応ガスは反応部に直接導入する方式とした。

U(dpm)₄の合成: UCl₄から合成する方法が知られているが、ここでは別の方法を採用した。UO₂(NO₃)₂・6H₂Oを0.5MHClに溶解させ白金黒の下でU(VI)を水素還元して濃緑色のU(IV)を得た。これにあらかじめ不活性ガスで溶存酸素を除いたdpmのメタノール溶液を加えた後水酸化ナトリウム溶液でpHを約8として得た濃い茶色の沈澱をろ過・風乾した。真空昇華法で精製を試みたところ、少量のU(VI)のdpmキレートの混入が認められた。U(dpm)₄とUO₂(dpm)₂は沈着部を180°Cに保つことにより昇華法で互いに分離出来ることが判った。精製したU(dpm)₄は空气中で保存でき、約5カ月後の赤外線吸収スペクトルにもU(VI)のウラニル構造に対応する吸収は認められなかった。

【結果と考察】

混合酸化物の合成では目的とする化合物に対応して、昇華部から反応部に導入される各々のキレートの量をコントロールする必要がある。この量は蒸発温度、キャリアーガスの流量、キレートの表面積、キレートを入れた磁製ポート内での局所的なキャリアーガスの流れ

しおかわよしのぶ、あまのりょうへい

方などにも依存すると予想される。そこでキャリアガス(He)の流量をマスフローコントローラーで500ml/minとしたときのキレートの蒸発速度とその温度依存性を調べた。U(dpm)₄と

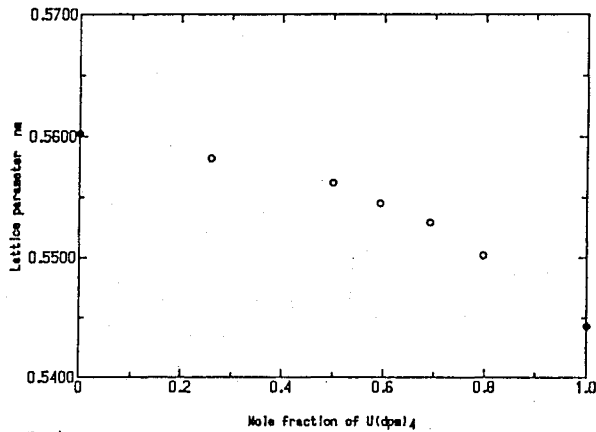


図 1 Lattice parameter for $(U_{\gamma}Th_{1-\gamma})O_{2+x}$ Fluorite phase

とTh(dpm)₄の蒸気圧はほとんど同じ温度依存性を持つが蒸発速度のそれは著しく異なることが判った。これはキレートの表面積の違いによるものであろう。U(dpm)₄は綿状に近い粉末であるのに対してTh(dpm)₄は細かい粒状である。他方、Sr(dpm)₂とBa(dpm)₂は調べた温度領域では液相であり、蒸発速度の温度依存性はほぼ同じであった。磁製ボート内での局所的なキャリアガスの流れの影響を検討するためキレートの量を17~49mgまで変えたが蒸発速度には大き

な変化はなかった。以後の実験ではキレートの量は約30mgとした。

反応部に導入される各々の気相キレートの割合と反応で生成する固相化合物中での金属の割合は必ずしも同じではないと予想される。U(dpm)₄とTh(dpm)₄を金属蒸気源として水蒸気と反応させることにより蛍石構造を持つ酸化物固溶体を得られることが判ったので、気相のdpmキレートのモル分率と固溶体の格子定数との関係を調べ、その結果を図1に示した。なお反応温度は520°Cである。これによれば気相中でのU(dpm)₄のモル分率が増加するに従って固溶体中でのウランの分率も増加してしていること示しており、気相の各々のキレートの分率の調整は目的の化合物を調製するために重要であることが判る。しかし、U(dpm)₄の分率が0.26の場合にはTh(dpm)₄の一部は未反応のまま反応部を通過していることから、気相の金属キレートの割合が同じであっても反応温度によって固相中での金属の割合が異なる場合も有り得ると推定される。従って、次講演で述べる2種類の金属を含む昇華性β-ジケトンキレートの化学気相析出法への応用はこのような問題の解決する1つの手段と考えられる。

気相のU(dpm)₄に対するBa(dpm)₂のモル比を1から8まで変えて515°Cから550°Cの温度で水蒸気と反応させたところ、モル比が2の場合に単一相の析出物が得られた。これは格子定数0.439nmを持つ単純立方格子として指数付けされることからBaUO₃であろう。BaUO₃は通常Ba(NO₃)₂とUO₂を空気中で900°Cに加熱して得たBaUO₄を1200°Cで50時間以上水素還元して調製することと比較すると、気相反応を利用した本法では直接BaUO₃が短時間で合成できるという特徴を有していることが判る。

PREPARATION OF TERNARY OXIDES OF ACTINIDE BY CHEMICAL VAPOR DEPOSITION USING β-DIKETONE CHELATES

Yoshinobu SHIOKAWA, Institute for Materials Research, Tohoku University

Ryohei AMANO, School of allied Medical Professions, Kanazawa University

我々は、β-ジケトンキレートを金属蒸気源とする化学気相析出(CVD)法を、機能性ランタノイドおよびアクチノイド固体化合物の極微量合成法として利用しようとしている。これまで特に、揮発性、熱安定性に優れたランタノイドおよびアクチノイドのジビバロイルメタンキレートを原料に用いてきた。これらキレートは気相でも安定(アルゴンやヘリウムの不活性ガス雰囲気中での分解温度が約600℃)であり、キレートガスの移行に問題はなく、ランタノイドやアクチノイド元素のCVD原料として優れたキレートであることがわかった。一方、CVD法による、2成分以上の金属を含む化合物の合成に興味を寄せられている。前講演で、2成分のジビバロイルメタンキレートをを用いるCVD法による2成分金属含有の酸化物の合成を報告した。その中でアルカリ土類元素バリウムのジビバロイルメタンキレートが我々の系で金属蒸気源として利用でき、バリウムとウランを含む混合酸化物を合成できることを示した。CVD法原料としてアルカリ土類金属ジビバロイルメタンキレートが使用出来ることにより、CVD法の利用価値が広がってきた。さらにアルカリ金属や他の典型元素の重金属のCVD原料の開発も重要である。そこで今回、アルカリ金属とランタノイド金属の両方を含むヘキサフロロアセチルアセトンキレート $M(I)Ln(hfa)_4$ 、 $M(I)$ はアルカリ金属、 Ln はランタノイド金属を示す)の揮発性と熱安定性を検討し、そのCVD原料としての可能性について論じた。

【実験】 キレート $M(I)Ln(hfa)_4$ のなかで今回は、アルカリ金属 $M(I)$ としてCs+を、ランタノイド金属 $Ln(III)$ は軽ランタノイドとしてNd(III)を、重ランタノイドとしてYb(III)を選び検討した。CsLn(hfa)₄ はLippardの方法にしたがって合成した。エタノール中でCs⁺とH-hfa (1:1)から合成したCs(hfa)と、LnCl₃とをエタノール性水溶液中で(4:1)の割合で反応させ合成した。合成収率はランタノイドの収率で計算してNd(III)で70%、Yb(III)で94%であった。再結晶精製は50%エタノール、1-ブタノールによる他に昇華法でも行った。精製したCsLn(hfa)₄ につき質量分析および熱測定(TG-DTA)を行った。質量分析法でのイオン生成は電子線衝撃(70eV、300μA)で試料室温度200℃で行った。本質量分析法の測定範囲は質量数1000以下であった。熱測定は理学電気TAS-200システムを用いてN₂ガス雰囲気下(流速500ml/min)で昇温速度10K/minで室温から400℃まで測定した。

【結果と考察】 精製キレート CsYb(hfa)₄ の電子線衝撃による質量分析で得られる主な質量数のものを表1にまとめた。フラグメン

表1. CsYb(hfa)₄の質量スペクトル

質量数	強度	推定フラグメント
927	s	CsYb(hfa) ₃ ⁺
794	m	Yb(hfa) ₃ ⁺
725	s	(COCHCOCF ₃)Yb(hfa) ₂ ⁺
587	s	Yb(hfa) ₂ ⁺
537	s	?
350	s	?
133	vs	Cs ⁺
69	s	CF ₃ ⁺

s = strong, m = medium, v = very

あまのりょうへい、しおかわよしのぶ

トのイオン形も推定した。キレートガスがCsYb(hfa)₄の形であるとする”molecular ion”は質量数m=1134になるが、本質量分析法では質量数1000以上が測定出来ないため直接フラグメントの中に”molecular ion”を観測できなかった。しかしフラグメントの中に質量数m=927のところからリガンド分子(hfa=207)だけが解離した形のCsYb(hfa)₃⁺がはっきり観測されていることは、第一遷移金属アセチルアセトンキレートの質量分析でリガンド分子の解離フラグメントが強く観測される事実を考えあわせると、キレートガスの化学形がCsYb(hfa)₄の形であると推定できる。ネオジムのキレートについてもまったく同様の結果でCsNd(hfa)₄の形のキレートガスになっていることを示した。

図1にCsYb(hfa)₄とYb(dpm)₃の熱測定の結果を示し比較した。TG-DTAカーブに示すように、Yb(dpm)₃では重量減少は100%、176°Cの融解および蒸発による2つのDTA吸熱ピークが観測された。一方CsYb(hfa)₄では重量減少は97.3%で、205°Cでの融解および蒸発(297°C)の2つのDTA吸熱ピークと303、311°Cに2つのDTA発熱ピークが観測された。結果より両キレートの熱化学的性質を比較するとYb(dpm)₃はTG実験の275°Cまでの温度範囲の加熱に際して昇華、融解、蒸発以外の過程はなく、キレートガスはYb(dpm)₃の形と考えられる。一方CsYb(hfa)₄はTG実験範囲(～313°C)で昇華、融解、蒸発以外に300°C付近から何らかの分解反応がおこり、そのために重量減少も100%に至らないと考えられる。

CsYb(hfa)₄の形のキレートガスを得るためには300°C以下の温度で揮発させる必要がある。ネオジムについても両キレートのTG-DTAを比較した。ジピバロイルメタンキレートはYbの場合と同様であった。ヘキサフロロアセチルアセトンキレートでは精製キレートでCsNd(hfa)₄・H₂O形で60-70°Cで脱水、CsNd(hfa)₄となり、以後はCsYb(hfa)₄と同様昇華、融解、蒸発さらに分解反応が280°Cおこり、TGの重量減少が73.8%となり分解物がかなり残留した。今後これらキレートのガスとしての安定性、ガスの移動、反応ガスとのCVD反応についての知見を得たい。

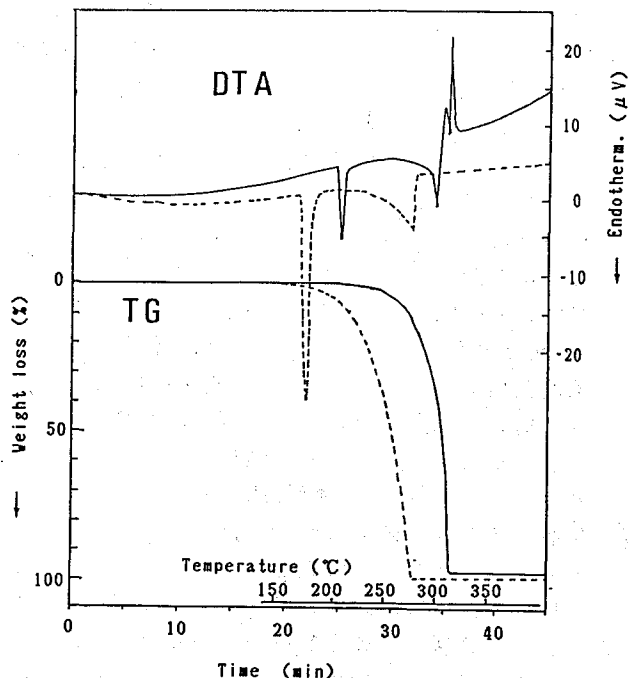


図1. TG-DTA曲線
CsYb(hfa)₄(—), Yb(dpm)₃(- - -)

A SOURCE CHELATE FOR CHEMICAL VAPOR DEPOSITION METHOD : PROPERTIES OF SOME LANTHANOID β-DIKETONE CHELATES CONTAINING ALKALI METAL

Ryohei AMANO, School of Allied Medical Professions, Kanazawa University
Yoshinobu SHIOKAWA, Institute for Materials Research, Tohoku University

(東大理・原研東海*)○桑原孔一郎、葉袋佳孝、目黒義弘*、富永 健

[序] 環境中のアクチノイドの挙動に影響する要因の一つにフミン酸等の有機物とアクチノイドとの錯生成がある。フミン酸は多種の官能基を含む複雑な有機高分子で、その性質・構造は産状等により多岐にわたる。このため、金属イオンとの錯生成についての実験結果の詳細な解析には困難を伴う。また、生成定数の測定方法により実験値が大きく異なることもさらに検討を要する課題である。本研究ではフミン酸のモデル化合物としてポリアクリル酸 ($-\text{CH}_2\text{CHCOOH}-$)_n に着目し、溶媒抽出法や滴定法によりユウロピウム(Ⅲ)との錯体の生成定数の測定を試みた。また、一塩基酸のプロピオン酸および二塩基酸の2-メチルグルタン酸 $\text{CH}_3\text{CH}(\text{COOH})\text{CH}_2\text{CH}_2\text{COOH}$ についても同様の測定を行った。

[実験] Aldrich製の平均分子量既知のポリアクリル酸(PAA)を実験に用いた。PAA等の当量濃度 C_A を約14meq/lとしてpH滴定によりプロトン交換容量・解離度 $\alpha \cdot pK_a$ を求めた。この滴定では逆滴定(過剰の0.1M NaOHにPAA等を溶かし窒素雰囲気下0.1M HClO_4 で滴定)とともに順滴定(0.05M NaOHで滴定)も行ない、同様にプロトン交換容量などを求めた。溶媒抽出法の抽出相にはジ(2-エチルヘキシル)リン酸(DEHP)トルエン溶液を用い、濃度は $[(\text{DEHP})_2] = 0.7\text{mM}$ (プロピオン酸に対しては0.05mM)とした。水相の C_A は0~約28meq/lの間ではほぼ等間隔にとりイオン強度は0.1(NaClO_4)とした。pH緩衝剤として3-クロロプロピオン酸(pH 約3.4)、酢酸(pH 約4.6)、塩酸ヒドロキシルアミン(pH 5.0~5.2)を用いた。 ^{152}Eu (水相中で 10^{-11}M 以上 10^{-8}M 以下)をトレーサーとして用い、溶媒抽出後NaI(Tl)検出器で各相の放射能の比を求め分配係数を求めた。水相のpHは溶媒抽出後にも測定した。pH滴定ではユウロピウムのモル濃度 C_{Eu} を4または7mM、イオン強度は0.1(NaClO_4)、 C_A を約14meq/lとして、中和滴定の順滴定と同様の操作を行なった。

[結果と考察] 溶媒抽出では分配係数の逆数は解離PAA濃度に比例して増加し、この濃度領域での1:1錯体のみの生成を示唆している。Eu(Ⅲ)に対するDEHPの溶媒抽出挙動を考慮して、1:1錯体の生成定数 β_1 を算出した¹⁾(表1)。

滴定法によるプロピオン酸についての $\log \beta_1$ は平均配位数が小さすぎるためBjerrum法では求められず、精度は劣るが単純計算で求めた。2-メチルグルタン酸については酸解離定数の測定値 pK_1 4.13、 pK_2 5.21を用いてBjerrum法で計算した。表1には比較のため一塩基酸として滴定曲線を解析して得た生成定数を示した。二塩基酸として解析した場合には一段解離したイオンを配位子とする生成定数(β_1)が求められた。Bjerrum法でさらに高次の生成定数を求めるには、金属イオン濃度を低くして平均配位数が大きくなるようにする必要がある。しかし、この場合には滴定曲線が金属イオンを含まない場合とほとんど変らなくなるため、得られる生成定数の信頼性に問題がある。このため本実験では β_1 のみを求めた。滴定法によるプロピオン酸との生成定数は溶媒抽出法による生成定数に比べて著しく小さく、溶媒抽出法による生成定数の再検討の必要を示唆す

くわはらこういちろう、みないよしとか、めぐろよしひろ、とみながたけし

る。PAAとの生成定数の滴定法による測定に関しては、平均分子量250,000のPAAで本実験の C_{Eu} では沈殿を生じるなどの問題があり、実験条件についてさらに検討を加えている。

PAAに比べて隣接カルボキシル基間距離が小さいポリマレイン酸 $(-CHCOOH-)_{2n}$ では Am^{3+} との錯体の3次の生成定数まで報告されている²⁾。 Eu^{3+} や Am^{3+} については高分子カルボン酸の高次の錯生成能には隣接カルボキシル基間の距離が影響を及ぼしている可能性がある。フミン酸との生成定数¹⁾では同様の溶媒抽出法で β_2 も求められており、カルボキシル基が局所的に近接した構造を有していることを示唆する。また、 β_1 の値もPAAに比べて著しく大きいなどの違いがあり、両者の生成定数の相違についてさらに検討を進めている。PAAについては Cu^{2+} との錯生成で Eu^{3+} より1桁大きい生成定数が報告されている³⁾。さらに系統的研究が必要であるが、PAAにおいても生成定数はイオン半径や荷電の違いにより大きく変化するとみられる。

表1. ユウロピウムとの1:1錯体の生成定数(22°C).

	溶媒抽出法		滴定法		
	pH	$\log \beta_1$	C_{Eu}/mM	pH	$\log \beta_1$
プロピオン酸	3.42	3.74	7	4.49	1.86
	4.63	3.23			
2-メチル グルタン酸			7	4.52	2.39
			4	4.36	2.34
PAA	3.44	3.77			
(2,000)*	4.65	5.51			
	4.98	6.18			
PAA	3.40	3.88			
(250,000)*	4.64	5.99			
	5.22	7.14			

*平均分子量

- 1) R. A. Torres and G. R. Choppin, *Radiochim. Acta*, **35**, 143(1984)
- 2) F. X. Koppord and G. R. Choppin, *Radiochim. Acta*, **42**, 29(1987)
- 3) H. P. Gregor, L. B. Luttinger, E. M. Loebl, *J. Phys. Chem.*, **59**, 34(1955)

FORMATION CONSTANTS OF EUROPIUM(III)-POLYELECTROLYTE COMPLEXES

Kouichirou KUWAHARA, Yoshitaka MINAI, Takeshi TOMINAGA, Faculty of Science,
University of Tokyo

Yoshihiro MEGURO, Japan Atomic Energy Research Institute

(東北大理・静岡大理*) ○橋本雅史・大森 巍*・吉原賢二

【緒言】

Tc(III) 錯体の合成法として、有望視されているものにヘキサキス(モノチオウレアト)テクネチウム(III)イオンとの配位子交換反応を利用する手法がある。前回この方法により文献未記載の Tc(III)-EDTA 錯体の合成に成功し、その反応機構についての報告を行ったが、今回も引き続き Tc(III)-EDTA 錯体の化学特性についての研究を行い、また類似の構造を持つコンプレキサンである HEDTA との錯体の合成についても検討した。

【実験】

ここでは主に HEDTA 錯体の合成について述べる。チオ尿素錯体溶液に過剰量の HEDTA 溶液を加えて液温を 25 °C に保ち配位子交換反応を進行させた。反応溶液の pH は 0.30 M 酢酸ナトリウム溶液を用いて調整し、イオン強度は NaCl を用いて 1.0 とした。反応の進行は、一定時間毎に反応溶液の紫外-可視吸光スペクトルを測定し、チオ尿素錯体の吸収ピークの減衰より判断した。またペーパークロマトグラフィーで各化学種を分離して放射能を測定し、その経時変化からも確認した。なお、放射能測定は GM カウンターによって行った。

【結果および考察】

(1) Tc(III)-HEDTA 錯体生成の確認

反応溶液の紫外-可視吸光スペクトルにおいて、チオ尿素錯体の吸収ピークは時間がたつにつれて減衰していき(図 1 428nm, 493nm)、最終的には EDTA 錯体と類似な二個のピークを示す。また、ペーパークロマトグラフィーより得られたヒストグラムにも、EDTA 錯体と同様の R_f 値を持つ化学種の生成が見られた。

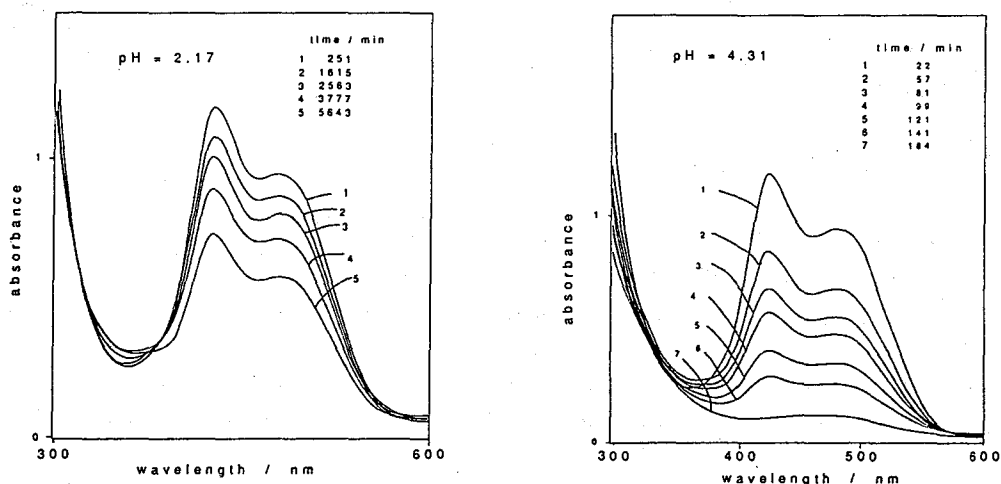


Fig. 1 UV-Vis. spectrum of reaction mixture

はしもとまさし、おおもりたかし、よしはらけんじ

(2)見かけの生成反応速度定数

Tc に対して HEDTA が過剰に存在するので、錯体の生成反応は擬似一次反応が期待され、反応速度 R は見かけの反応速度定数 k_{obs} と $[Tc(tu)_6^{3+}]$ とを用いて

$$R = k_{obs}[Tc(tu)_6^{3+}]$$

と表せる。また

$$\ln \frac{[Tc(tu)_6^{3+}]_t}{[Tc(tu)_6^{3+}]_0} = \ln(1-F) = -k_{obs} \cdot t$$

という関係が導かれる。そこで $\ln(1-F)$ vs. t プロットを行うと、原点を通る直線が得られた。その傾きから k_{obs} が求められた(図 2)。 k_{obs} の値は、EDTA のそれに比べ、 $pH = 2.2$ においておよそ $1/30$ という結果が得られた。

(3)生成錯体の化学特性

配位子交換反応により得られた Tc(III)-EDTA, Tc(III)-HEDTA 錯体を電気泳動にかけると、前者は anion 方向、後者は cation 方向へと泳動される成分が見られ、また両者ともに泳動されない中性物質を含むことが確認された(図 3)。また、反応生成物の紫外可視吸収スペクトルは両者共に 368 nm, 480 nm 近傍に吸収極大を持つ事も確認された。現在、反応機構に対してさらに考察を加えると共に、得られた錯体の同定を行っている。

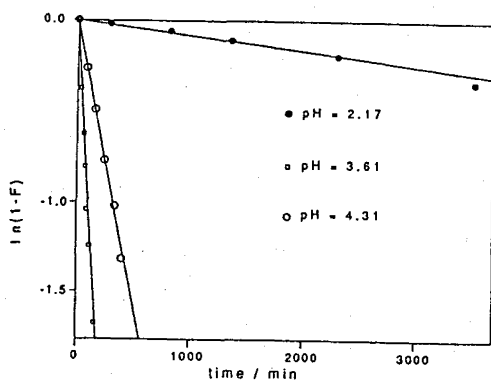


Fig. 2 $\ln(1-F)$ vs. time

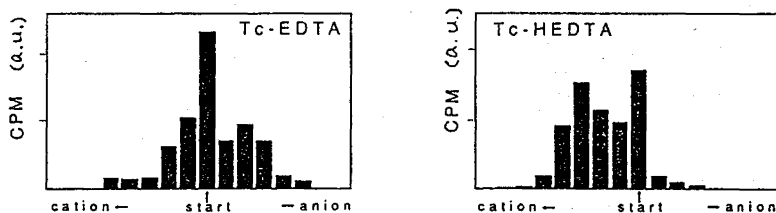


Fig. 3 Electrophoretogram of Tc complexes

STUDY OF THE COMPLEX FORMATION OF TECHNETIUM(III) WITH EDTA AND HEDTA AS POLYAMINOPOLYCARBOXYLIC ACIDS

Masashi HASHIMOTO, Takashi OMORI*, Kenji YOSHIHARA

Faculty of Science, Tohoku University

*Faculty of Science, Shizuoka University

(東北大理、静岡大理*) ○ A. Mutalib、大森 巍*、吉原賢二

1. 序

前回は [M(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺ タイプの錯体について報告した [1]。この物質は CH₃CN 配位子を容易に交換することが予想され、アセチルアセトンと他の配位子を含む混合配位子錯体の出発物質として有用であると考えられる。

そこで本研究では [M(acac)₂L](L=dpm, dbm, bza) の混合配位子錯体合成のためにこの物質を使用し、きわめて短時間内にかなり高い収率で目的を達成することができたので報告する。

2. 実験

アセトニトリルは和光純薬特級、ジピバロイルメタン、ジベンゾイルメタン、ベンゾイルメタンは同仁化学の試薬を用いた。赤外スペクトルの測定には島津 IR-470 を使い、KBr ペレットとしたものを 400-4000 cm⁻¹ の波長範囲で測定した。溶液の吸収スペクトルは日立 100-500 分光光度計によって測定した。

交換反応の出発物質である [Tc(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺ および [Ru(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺ は文献 [1,2] によって合成した。

M(acac)₂(β-dik) (M=Tc, Ru) は 0.054 mmol の [M(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺ を 11 ml のエタノールに溶かし、β-ジケトンのエタノール溶液、および KHCO₃ を加え 15 分間攪拌して合成した。溶液はロータリーエバポレータで蒸発乾固した。生成した固体はベンゼンに溶解し、アルミナカラムに通した。赤色の溶離液はさらにシリカゲルカラムにチャージし、ベンゼンとベンゼン-エーテル (9:1 v/v) で溶離した。溶離液を減圧蒸発して目的生成物を得た。

3. 結果と考察

[Tc(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺、[Ru(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺、それぞれをベンゾイルアセトンと反応させた場合の吸収スペクトル変化を図 1、図 2 に示す。反応溶液中のベンゾイルアセトンの濃度の増加と共に、テクネチウムでは 387 nm のピークが減少し、ルテニウムでは 573 nm のピークが減少している。反応は 5 分以内にほぼ終了した。

生成した Tc(acac)₂(β-dik) および Ru(acac)₂(β-dik) のスペクトルは Table 1 に示すとおりである。また IR スペクトルにはアセチルアセトンに関する 3100 cm⁻¹ (ν(CH)) ; 3000 および 2920 cm⁻¹ (ν(CH₃)) ; 1422, 1360, 1030 および 940 cm⁻¹ (ν(CH)) がみとめられ、1378 cm⁻¹ (ν(CO)) ; 1520 cm⁻¹ (ν(C=C)) もみられた。

[Tc(acac)₂(CH₃CN)₂]⁺ を出発物質とし、アセトニトリルとの置換反応を利用する混合配位ムタリブ アブドウル、 おおもりたかし、よしはらけんじ

子錯体の合成法は、選択的な置換が可能でありまた短時間で達成される利点があるので今後有望なものと思われる。

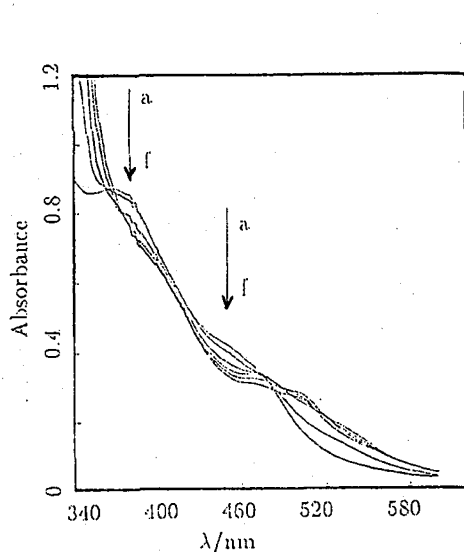


Fig. 1 Spectral change of $[\text{Tc}(\text{acac})_2(\text{CH}_3\text{CN})_2]\text{ClO}_4$
 $[[\text{Tc}(\text{acac})_2(\text{CH}_3\text{CN})_2]\text{ClO}_4]: 2.99 \times 10^{-4} \text{ M}$
 $[\text{bza}]/10^{-5} \text{ M} : (\text{a}) 0; (\text{b}) 5.98; (\text{c}) 11.96;$
 $(\text{d}) 17.94; (\text{e}) 23.92; (\text{f}) 29.90$

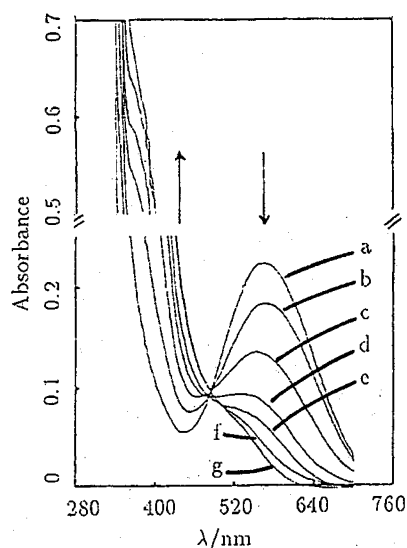


Fig. 2 Spectral change of $[\text{Ru}(\text{acac})_2(\text{CH}_3\text{CN})_2]\text{ClO}_4$
 $[[\text{Ru}(\text{acac})_2(\text{CH}_3\text{CN})_2]\text{ClO}_4]: 1.16 \times 10^{-4} \text{ M}$
 $[\text{bza}]/10^{-5} \text{ M} : (\text{a}) 0; (\text{b}) 2.33; (\text{c}) 4.66;$
 $(\text{d}) 6.99; (\text{e}) 9.32; (\text{f}) 11.65; (\text{g}) 13.98$

Table 1. uv-vis spectral absorbances for bis(acetylacetonato)(β -diketonato) technetium(III) and ruthenium(III) complexes

Metal	β -diketone	λ/nm
Tc	dpm	535, 360, 276, 240, 207
	dbm	535, 505, 360, 276
	bza	502, 348, 288(sh), 278, 270, 207
Ru	dpm	488, 363, 280, 210
	dbm	510, 352, 279
	bza	495, 335, 278, 250, 210

4. References

1. A. Mutalib, T. Omori and K. Yoshihara, The 1991 Annual Meeting of Chemical Society of Japan, 3A 347, March 1991
2. Y. Kasahara et.al., Chem. Lett., 381, 1990

LIGAND SUBSTITUTION REACTION OF $[\text{M}(\text{acac})_2(\text{CH}_3\text{CN})_2]^+$ ($\text{M} = \text{Tc}, \text{Ru}$)

Abdul MUTALIB, Takashi OMORI*, Kenji YOSHIHARA
 Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University

*Department of Chemistry, Faculty of Science, Shizuoka University

(静岡大理) ○川崎幹生、田中義宏、鈴木康之、大森 巍、長谷川園彦

【緒言】

環境中のテクネチウムの分析、放射性廃液からのテクネチウムの分離、回収が問題になっているが、いずれもテクネチウムの濃縮過程が含まれている。最も安定な化学形である過テクネチウム酸イオンは陰イオン交換樹脂へ強く吸着することが知られている。そのため吸着した過テクネチウム酸イオンを溶離するには困難が伴う。本研究ではテクネチウムの濃縮および回収を効果的に行うための知見を得るために、過テクネチウム酸イオンの陰イオン交換樹脂への吸着挙動の基礎的検討を行った。バッチ法により硝酸、過塩素酸溶液からの過テクネチウム酸イオンの陰イオン交換樹脂への分配比を求め、吸着機構について考察を試みた。

【実験】

1) 試薬 ^{99}Tc は過テクネチウム酸アンモニウム溶液として入手したものをそのまま使用した。 ^{99}Tc が過テクネチウム酸イオンの化学形になっていることは、ペーパークロマトグラフィーによって確認した。陰イオン交換樹脂(Dowex 1-x8, 200-400 mesh)は所定の処理をした後使用した。その他の試薬は特級品をそのまま使用した。

2) 実験操作 所定濃度の酸およびそのナトリウム塩を含む溶液に過テクネチウム酸イオン溶液を加えて、イオン強度が2.0の溶液を調製した。過テクネチウム酸イオンの濃度は($1.48\text{E-}9$ mol/ml)以下とした。この溶液より10.0mlを三角フラスコに取り出し、一定量の陰イオン交換樹脂を加えて、一定温度で一時間以上振り混ぜた。過テクネチウム酸イオンの分配比(テクネチウムのイオン交換体中の濃度と外部溶液中の濃度との比と定義する)は、振とう後の溶液中より一定量取り出して放射能を測定し、標準溶液の放射能と比較することにより求めた。

3) 放射能測定 アロカ製液体シンチレーションカウンター(LSC-1000)を用いて放射能を測定した。

【結果および考察】

1) 平衡に達するまでの時間

過テクネチウム酸イオンが陰イオン交換樹脂と分配平衡に達するまでの時間を検討した結果は図1に示されている。硝酸、過塩素酸は10分後には平衡に到達していることが観察される。

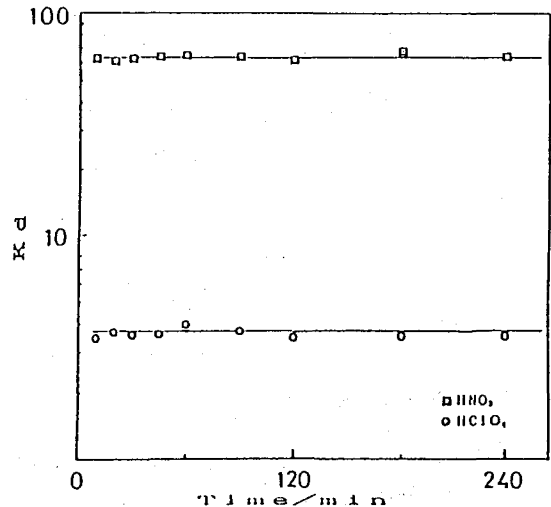


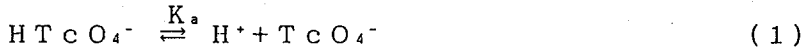
図1 振とう時間による分配比の変化
かわさきみきお、たなかよしひろ、すずきやすゆき、おおもりたかし、はせがわくにひこ

2) 各種酸における分配平衡

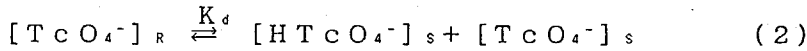
分配比と酸濃度の関係を図2に示した。硝酸系ではイオン強度一定のもとで酸濃度が高くなるにつれて分配比が小さくなるという傾向がある。過塩素酸系では、分配比の酸濃度の依存性は認められず、温度が高くなると分配比が低くなるが、その割合は硝酸系に比べて小さいことが認められた。

【分配平衡式の誘導】

過テクネチウム酸の解離平衡



を考慮すると、過テクネチウム酸イオンの分配平衡は



のように表せる。ここで添え字 R は樹脂相、S は溶液相を示す。したがって過テクネチウム酸イオンの分配係数 K_{d0} を

$$K_{d0} = [\text{TcO}_4^-]_R / [\text{TcO}_4^-]_S$$

とすれば、分配比は次式ようになる。

$$K_d = \frac{K_{d0}}{1 + [\text{H}^+] / K_a} \quad (3)$$

分配比と酸濃度の関係を調べるために、(3)式を変形して

$$\frac{1}{K_d} = \frac{1}{K_a K_{d0}} [\text{H}^+] + \frac{1}{K_{d0}} \quad (4)$$

と導き、 $1/K_d$ と $[\text{H}^+]$ の関係を、硝酸系についてプロットしたのが図3である。

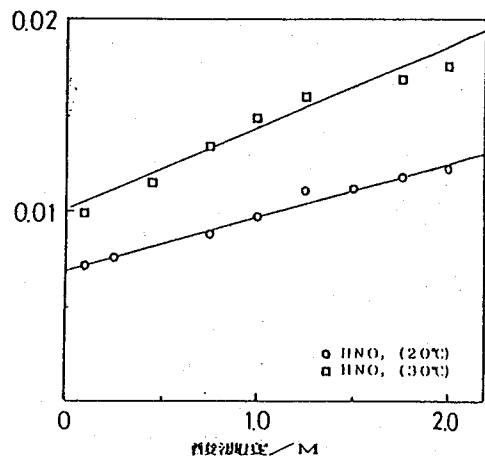
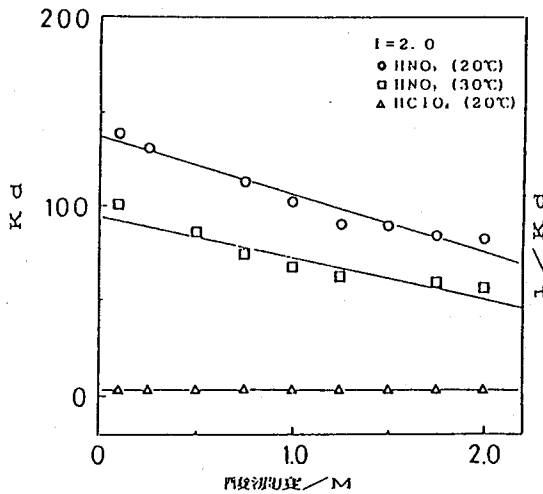


図2 酸濃度による分配比の変化 図3 酸濃度による $1/K_d$ の変化

The Adsorption Behavior of Pertechnetate to Anion Exchange Resins
Mikio KAWASAKI, Yoshihiro TANAKA, Yasuyuki SUZUKI, Takashi OMORI,
and Kunihiro HASEGAWA, Faculty of Science, Sizuoka University

(東北大理) ○松江秀明、 関根勉、 吉原賢二

【緒言】

これまで我々はフェロセン、ルテノセン、オスモセンなどのメタロセン・マトリックス中で(n, γ)反応あるいは(γ , n)反応などの核反応により生成した反跳原子がどのような化学的挙動を示すかを研究してきた。特に生成した放射性同位体が親分子の化学形を保持する確率つまりメタロセンの保持収率に着目して、保持収率と平均反跳エネルギーの関係を検討し、さらには規格化出現エネルギーの概念などを用いて、その反跳原子が最終的に反応する領域の大きさなどを考察することができた。今回は反跳原子が最終的に反応を起こす領域について考察するため、メタロセン- β -シクロデキストリン包接体中のメタロセン中心金属からの反跳原子の挙動について実験を行い興味深い結果を得た。これまでは反跳原子の反応領域を制御する試みとしてシリカゲル吸着系、ポリマー希釈系などを用いた固相希釈系での研究は行われたことはあるが、分子レベルでターゲット錯体を遮蔽した系に関する報告は今回が初めてである。

【実験】

メタロセン- β -シクロデキストリン包接体は高橋ら¹⁾の合成法に従って、各メタロセンと β -シクロデキストリンの水溶液を60℃で一晩攪拌して調製した。熱中性子照射については日本原子力研究所のJRR-4原子炉、そして立教大学原子力研究所のTRIGA Mark II原子炉により、また制動放射線照射については東北大学原子核理学研究施設の300 MeV LINAC ($E_{\gamma\text{max}}$ 50 MeV) によって行った。すべての試料はドライアイス温度以下の低温において照射し、化学処理の直前までドライアイス中で保存した。照射試料からのメタロセンの分離は図2のスキームに従って行った。この分離法はシクロデキストリンに包接されたメタロセンがベンゼンによって抽出される性質を利用している。

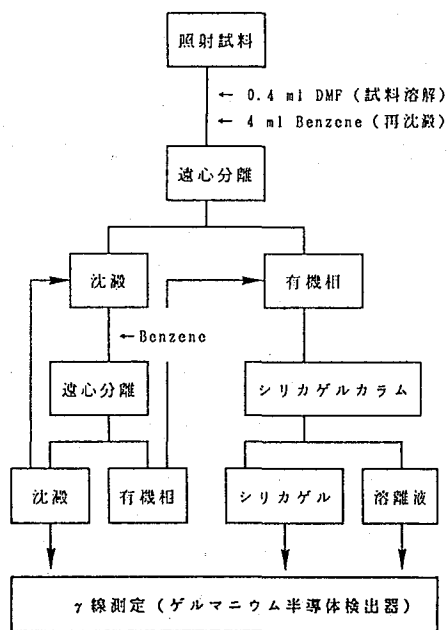


Fig. 1. Chemical Separation Scheme.

まつえひであき、せきねつとむ、よしはらけんじ

【結果と考察】

表1にシクロデキストリン包接体中のメタロセンおよびメタロセン単独系のそれぞれの核反応における保持収率を示す。表1に示されている核反応は平均反跳エネルギーの低い順に並べてある。平均反跳エネルギーは(n, γ)反応の場合、オスミウムで100 eV以下、ルテニウムで100 ~ 200 eV、鉄で300 eV以上である。また(γ, n)反応においてその平均反跳エネルギーは10 keV以上であり、反跳エネルギー効果は飽和していると考えられる。表1より(n, γ)反応のエネルギー領域においてメタロセン単独、シクロデキストリン包接体共に同位体効果が認められる。この際、反跳エネルギーが小さいほど同位体効果が大きくなることが認めれる。さらにメタロセン単独の場合と包接体を比較すると、特に(n, γ)反応の反跳エネルギー領域では反跳エネルギーが大きくなるほどその収率の差が大きくなっている。これはシクロデキストリンがメタロセンを希釈しているのみではなく、メタロセンに対する遮蔽効果が存在していることを示唆している。この遮蔽効果は反跳エネルギーの小さいほど大きいと考えられる。また(γ, n)反応ではメタロセン単独の系では見られた、各メタロセン間の明かな収率の変化は見られなくなっている。以上のメタロセンとその包接体に関する現象をシクロデキストリンによる希釈効果と遮蔽効果によって説明することを試みる。

Table 1. Metallocene Yields in Metallocene Matrices and in β-CD Compounds.

Target	Nuclear Reaction	Metallocene Yield(%)	
		in MCP ₂ Matrix	/ in β-CD
OsCp ₂	¹⁹² Os(n, γ) ¹⁹³ Os	10.3 ± 0.1	8.9 ± 0.2
	¹⁸⁴ Os(n, γ) ¹⁸⁵ Os	5.8 ± 0.1	
RuCp ₂	¹⁰² Ru(n, γ) ¹⁰³ Os	12.3 ± 0.1	4.1 ± 1.0
	¹⁰⁴ Ru(n, γ) ¹⁰⁵ Ru	11.8 ± 0.3	
FeCp ₂	⁹⁶ Ru(n, γ) ⁹⁷ Ru	10.6 ± 0.1	2.5 ± 0.1
	⁵⁸ Fe(n, γ) ⁵⁹ Fe	14.8 ± 0.1	
OsCp ₂	¹⁸⁶ Os(γ, n) ¹⁸⁵ Os	0.9 ± 0.1	2.5 ± 0.3
	¹⁸⁴ Os(γ, n) ^{183m} Os	1.6 ± 0.2	
RuCp ₂	¹⁰⁴ Ru(γ, n) ¹⁰³ Os	6.6 ± 0.2	2.4 ± 0.4
	⁹⁸ Ru(γ, n) ⁹⁷ Ru	6.6 ± 0.1	
FeCp ₂	⁵⁴ Fe(γ, 2n) ⁵² Fe	19.0 ± 0.8	1.4 ± 0.4

- 1) A. Harada, Y. Hu, S. Yamamoto, S. Takahashi, J. Chem. Soc. DALTON TRANS., 1988, 726.

CHEMICAL BEHAVIOR OF RECOIL ATOMS IN METALLOCENES AND METALLOCENE-CYCLODEXTRIN INCLUSION COMPOUNDS

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University

Hideaki MATSUE, Tsutomu SEKINE, Kenji YOSHIHARA

(筑波大化) 荘司 準

序：金属錯体における核変換に伴う生成核種の錯形成は、一般にいくつかのプロトンの寄与の結果と言えるが、個々の素過程の状況を実験的に把握できる系は甚だ少ない。金属錯体の微視的均一性をそなえた混晶系が使えれば、この点はかなり打開できるのであるが、配位子が大きくなると、この目的にかなった試料を調製するのもまた容易ではない。そこで演者等はそれにかわるものとして、ML₂M'L'型の水溶性金属卟啉錯体イオン会合体を合成し、研究を続けてきた。具体的には、Fig. 1 に示すような水溶性金属卟啉錯体に着目している。今回は、中心金属として、化学的特性が比較的似ていて且つ質量差のある Zn - Cd の組合せをとりあげてみた。

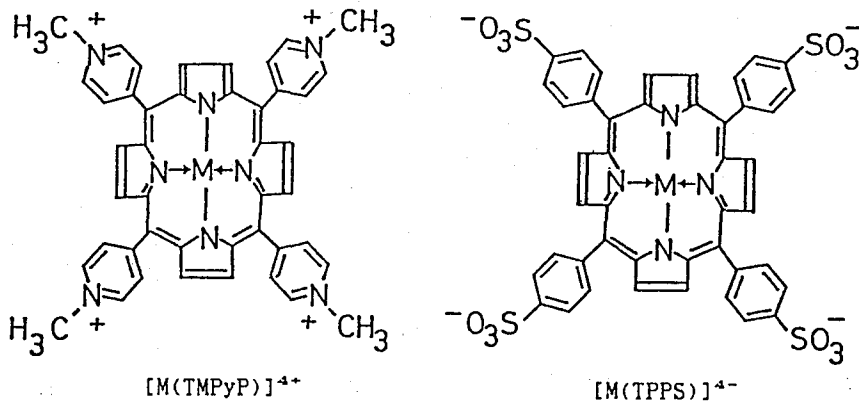


Fig. 1 今回用いた錯体イオンの化学構造

TMPyP = $\alpha, \beta, \gamma, \delta$ -tetrakis(4-N-methylpyridyl)porphine

TPPS = tetra(p-sulfophenyl)porphine

実験：1) 試料の調製 市販の無金属配位子を購入し、金属塩との選流により中心金属を導入した。イオン会合体は、陰陽両成分イオンの溶液を合し、生成する沈殿を濾取して得た。元素分析および可視部の吸収スペクトルの測定のもの、試料を照射に供した。

2) 照射 熱中性子照射は原研 JRR-4 気送管で 2 分間ドライアイス温度下で行った。制動放射線照射は東北大核理研電子ライナックを利用し、最大エネルギー 50 MeV の光子を -130°C の条件下で未転換電子を除去しつつ約 7 - 8 時間照射した。

3) 化学分離 照射した試料は、塩化アンモニウム-アンモニア-水-エタノールの冷混合溶媒に溶かし、イオン交換法と沈殿法を併用して各錯体成分を分離した。

4) 放射能測定 半導体検出器と PHA により各フラクションの γ 線スペクトルを測定した。

しようじ ひとし

結果と考察：得られた結果は、試行回数も少なくまだ予備的なものであるが、その一部を Table 1 に示す。配位子が非常に大きいことと、会合体の溶解度が小さいことが相まって統計のよくない結果となることはしばしばであったが、それでも生成核種の錯体生成についての傾向を読み取ることができた。

Table 1. Complex Yields(%)*

Compound Used	[Cd(TMPyP)][Zn(TPPS)]		[Zn(TMPyP)][Cd(TPPS)]	
	M(TMPyP)	M(TPPS)	M(TMPyP)	M(TPPS)
⁶⁵ Zn	16 ± 1 6 ± 6	1.9 ± 0.2 <1.5	1.4 ± 0.6 <3	24 ± 3 21 ± 8
¹¹⁵ Cd	0.6 ± 0.2 <2	0.79 ± 0.07 <2.5	0.19 ± 0.06 0.2 ± 0.2	9.6 ± 0.1 5.9 ± 0.8

Compound Used	[Cd(TMPyP)][Cd(TPPS)]		[Zn(TMPyP)][Zn(TPPS)]	
	M(TMPyP)	M(TPPS)	M(TMPyP)	M(TPPS)
⁶⁵ Zn	- -	- -	0.9 ± 0.2 0.8 ± 0.2	1.1 ± 0.2 1.0 ± 0.2
¹¹⁵ Cd	0.19 ± 0.05 2.3 ± 0.9	14 ± 1 22 ± 2	- -	- -

*Upper value ----- Thermal neutron irradiation
Lower value ----- Bremsstrahlung irradiation.

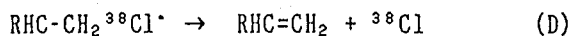
すなわち、いずれも両方の照射に共通して見られることであるが、異なる元素を中心金属とした会合体では、⁶⁵Zn 核種は安定な Zn 中心金属の位置に入るよりもずっと高い確率で相手の中心の Cu を結果的に置換した。一方 Zn のみを含む会合体では、⁶⁵Zn 核種は双方に同程度に分布した。（⁶⁵Zn についてもこれらの傾向は同様であった。）また ¹¹⁵Cd は一般に TPPS 側に容易に入っていく傾向を示した。反跳エネルギーが桁違いに異なる核反応の間で、絶対値は多少異なるにせよ、錯体収率が同じ傾向を示したことは、反跳種は化学反応のエネルギー領域に達してから配位子との親和性によってその最終的状態がきまったと言えるであろう。現段階では、Zn と Cd の間の質量差が結果に特に影響しているとは認められない。なお、この ⁶⁵Zn 核種の特異的挙動は、以前報告した [M(TMPyP)][M'(TCPP)] (M, M' = Cu, Zn) (TCPP = tetra(p-carboxyphenyl)porphine) の場合の ⁶⁵Cu の挙動とたいへんよく似ている。

RECOIL BEHAVIOURS IN WATER-SOLUBLE METALLOPORPHYRIN ION ASSOCIATES IN SOLID (IN THE CASE OF Zn - Cd COMBINATION)

Hitoshi SHOJI, Department of Chemistry, University of Tsukuba

ホットアトム効果を利用した気相化学反応の研究1、
 $\text{Sn}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$ への塩素原子付加にともなう非RRKM分子内エネルギー移動
 (大同工大・カリフォルニア大学アーバイン校)
 ○酒井陽一、R. S. アイアー、F. S. ローランド

はじめに リーとローランドはサーマル ^{38}Cl 原子とエチレンまたはプロピレンの気相反応を研究し、第一ステップは ^{38}Cl 原子のビニル基への付加であることを示した。生成した励起ラジカル $\text{RHC}-\text{CH}_2^{38}\text{Cl}^{\cdot}$ ($\text{R}=-\text{H}, -\text{CH}_3$)は次の2過程のうちのどちらかの反応をする。



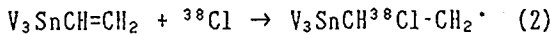
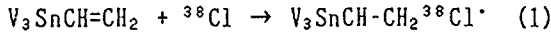
反応(D)は単分子分解過程である。反応(S)は衝突安定化反応であり、その速度は系の全圧力Pに比例する。単分子分解反応と衝突安定化反応が等しい速度で起こる圧力を $P_{1/2}$

($k_D = k_S [\text{M}]$ at $P = P_{1/2}$ 、あるいは $k_D = k_S P_{1/2}$)を彼らは求めたが $\text{H}_2\text{C}-\text{CH}_2^{38}\text{Cl}^{\cdot}$ に対しては $P_{1/2} = 800 \pm 120 \text{ Torr}$ 、 $\text{CH}_3\text{HC}-\text{CH}_2^{38}\text{Cl}^{\cdot}$ では $150 \pm 50 \text{ Torr}$ であった[1,2]。ここで k_S はほぼ一定であるとしてよいので、 $P_{1/2}$ 値は k_D のメジャーと考えてよい。分子内の励起エネルギーのランダム化の範囲は分子全体であり、かつ極めて速いこと前提とするRRKM理論は、励起種の振動自由度が大きいほど単分子分解速度は小さくなることを予測する。したがって $\text{H}_2\text{C}-\text{CH}_2^{38}\text{Cl}^{\cdot}$ 、 $\text{CH}_3\text{HC}-\text{CH}_2^{38}\text{Cl}^{\cdot}$ に対して得られた結果はRRKM理論に矛盾しない。本研究ではテトラビニルスズ $\text{Sn}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$ と塩素原子との反応について、励起種の分子内エネルギー移動に着目して調べた。

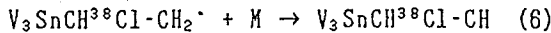
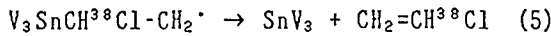
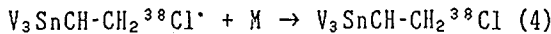
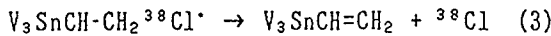
実験 試料は標準的な真空ラインを用い、 $\text{Sn}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$ 、クロロトリフルオロメタン CClF_3 、アルゴンArの混合気体を20mlのピレクス管中に封入し調製した。全圧は130~4300Torrの範囲で、 $\text{Sn}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$ を1.0Torr、Arを20Torrとし、残りの圧力は CClF_3 によった。 $\text{Sn}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$ は塩素原子に対する反応分子であり、Arは熱中性子フラックスモニターである。 CClF_3 は(n, γ)反応によって生成する ^{38}Cl のソース分子であり、同時にホット ^{38}Cl 原子をサーマルな状態にするモデレータとしての役割、励起ラジカルの衝突安定化に対するバスガス分子としての役割も担っている。 CClF_3 から生成する ^{38}Cl の95%はサーマル状態となり、5%が他の分子などとホット反応することが、これまでの研究よりわかっている。熱中性子照射はカリフォルニア大学アーバイン校のTRIGA I型炉で、10kW、室温、1.0分の条件で行った。照射済み試料中の ^{38}Cl 標識生成物を標準的なラジオガスクロマトグラフにより分離・測定し、放射化学収率を求めた。

結果と考察 測定されたガスクロマトグラムにおいて、 ^{38}Cl 放射能の大部分は塩化ビニル $\text{CH}_2=\text{CH}^{38}\text{Cl}$ として検出された。 $\text{CH}_2=\text{CH}^{38}\text{Cl}$ の放射化学収率の圧力依存性を図1に示す。図より2つのことが見て取れる。即ち、[I]低圧側では収率は95%近くであり、サーマル ^{38}Cl のほとんどすべてが $\text{CH}_2=\text{CH}^{38}\text{Cl}$ の化学形となる。[II]全圧力が高くなるにつれて、収率は減少するが、高圧側では一定値(約65%)となる。以上の実験結果を基に以下のように反応キネティクスを提案する(以下 $\text{V} = -\text{CH}=\text{CH}_2$ とする)。第一ステップはビニル基への付加であり、すべてのサーマル ^{38}Cl は次のどちらかの反応パスをとる。

さかいよういち、R.S. あいあー、F.S. ろーらんど



生成したそれぞれの励起ラジカルは分解と衝突安定化反応の両方のパスに進み得るだろう。



以上の過程で圧力依存性に関わるものは反応(4)と(6)であるが、両反応ともが関与しているとする、収率は高压側では零に向い減少し続けることになり、実験事実[II]と矛盾する。そこで、ここでは分解反応(5)は安定化反応(6)に比べて十分速い、 $k_5 \gg k_6 [M]$ と仮定した。これはSn-Cが弱い結合であるという事実からも妥当であろう。以上の考察により導かれる反応キネティクスを図2に示す。ここでは単分子分解反応(3)で放出された ${}^{38}Cl$ は付加反応(1)または(2)にリサイクルされる。このキネティクスに基づく、収率Yは全圧Pの関数として次のように表される。

$$Y = C \left[k_2 + \frac{k_1 k_2 P_{1/2}}{(k_1 + k_2)P + k_2 P_{1/2}} \right] \quad (7)$$

ここでCは規格化定数、 $P_{1/2}$ は $V_3SnCH-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ ラジカルに対するもので、 $k_3 = k_4 P_{1/2}$ である。図1の曲線は $P_{1/2}$ をいろいろな値として、(7)式を用い実験点をフィットしたものである。ベストフィットは $P_{1/2} = 500 \sim 800$ Torrの範囲にあることがわかる。この値は $H_2C-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ に対する値 (800 ± 120 Torr) と近く、 $CH_3HC-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ のもの (150 ± 50 Torr) よりはずっと大きくなっており、RRKM理論からの予測に反する結果である。これは、 $V_3SnCH-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ の振動自由度は60であるが、実質的な有効振動自由度は $H_2C-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ と同じ15程度であり、また $CH_3HC-CH_2{}^{38}Cl$ の24よりは小さいことを意味している。したがって、 $V_3SnCH-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ から ${}^{38}Cl$ が分解放出される反応(3)のタイムスケールでは励起エネルギーの移動・均一化の範囲は塩素が付加した1つのビニル基内であり、他の3つのビニル基へのエネルギー移動が起こっていないと考えることができる。即ち、中心金属のスズがエネルギー移動を”ブロック”するということである。 $V_3SnCH-CH_2{}^{38}Cl^{\cdot}$ ラジカルは非RRKM的挙動を示す一例であるといえよう。

[1,2] F.S.C.Lee and F.S.Rowland, J. Phys. Chem., 81 1235 (1977), 81 1222 (1977)

STUDY OF GAS-PHASE CHEMICAL REACTIONS USING HOT ATOMS 1 - NON-RRKM INTRAMOLECULAR ENERGY TRANSFER FOLLOWING ATOMIC CHLORINE ADDITION TO TETRAVINYLITIN

Yoichi SAKAI, Daido Institute of Technology

R. S. IYER and F. S. ROWLAND, University of California, Irvine

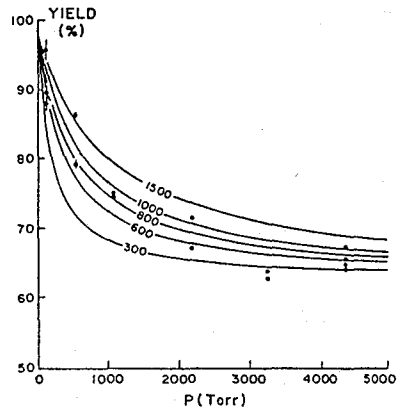


図1、 $CH_2=CH{}^{38}Cl$ 収率Yの全圧P依存性。曲線は式(7)による。数値は $P_{1/2}$ (Torr)を示す。

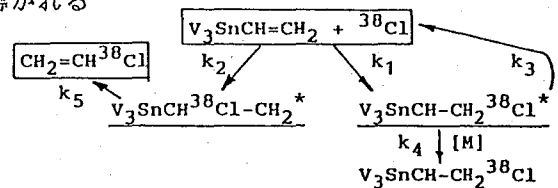


図2、反応キネティクス($V=CH=CH_2$)。

1B10

反跳インプラネーションによる中心金属置換反応に対するエネルギー付与の効果 (1) ^{51}Cr の反跳インプラネーション

(東北大理) ○宮川 篤・関根 勉・吉原賢二

【緒言】

演者らのグループは、従来より各種の β -ジケトン錯体に対する反跳インプラネーション反応の特性について研究を行ない、その反応機構を考察するうえでいくつかの特徴的な様相を観察することができた。

β -ジケトン錯体に金属原子を打ち込んだ場合に起こる中心金属置換反応の収率が、その金属原子のターゲットへの入射エネルギーに依存し、しかも数十 keV という高いエネルギーまで影響を受けるという現象は、同じ高エネルギー粒子の反応であるターゲット内ホットアトム反応においてはみられないものであり、反跳インプラネーション反応の理解に重要な知見を与えると思われる。

本報告では、薄膜法を用いて反応収率の入射エネルギー依存性を調べる実験を引き続き行なった。 ^{51}Cr を $\text{Fe}(\text{acac})_3$, $\text{Fe}(\text{dpm})_3$, $\text{Rh}(\text{acac})_3$ に打ち込む系についてその結果をまとめ、さらに $\text{Fe}(\text{tfa})_3$ に打ち込む系についてのデータを加えて、ターゲットの違いによる入射エネルギー依存性の変化などについての考察を行なった。

【実験】

$\text{Fe}(\text{tfa})_3$ についての実験は従来行ってきた方法と同様である。マイラー膜上に真空蒸着法によってCr金属薄膜をつくり、その上に常法によって合成した $\text{Fe}(\text{tfa})_3$ を昇華法によって反跳Cr原子の飛程に対して無限厚となるようにつけた。

照射条件は次の通りである。

$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$: 立教大学原子力研究所 TRIGA MARK II

熱中性子束 $8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 照射時間 5 hr

ドライアイス温度で照射

$^{52}\text{Cr}(\gamma, n)^{51}\text{Cr}$: 東北大学原子核理学研究施設 LINAC

$E_{\gamma \text{ max}} = 50 \text{ MeV}$ 電流値 $100 \mu\text{A}$ 照射時間 7 hr

照射温度 $-100 \sim -130 \text{ }^\circ\text{C}$

$^{51}\text{V}(p, n)^{51}\text{Cr}$: 東北大学サイクロトロン・RIセンター AVFサイクロトロン

$E_p = 15 \text{ MeV}$ 電流値 $1 \mu\text{A}$ 照射時間 10 min

照射温度 $\sim -100 \text{ }^\circ\text{C}$

照射後、捕集体をベンゼンで洗い落とし、シリカゲルカラムクロマトグラフィーにかけて $^{51}\text{Cr}(\text{tfa})_3$ 成分とその他の成分に分離し、それぞれに含まれる ^{51}Cr の放射能を pure Ge 半導体検出器によって測定した。

みやかわあつし、せきねつとむ、よしはらけんじ

【結果・考察】

Fig. 1 に、これまでに得られた4つの実験系における置換収率の入射エネルギー依存性の結果を示す。いずれの場合にも20～30 keVのあたりでその収率が急激に上昇し、それ以上のエネルギー領域では飽和するという傾向が現われている。しかし、その変化の様子は反応対象錯体によって若干異なっている印象を受ける。

そこで、それぞれのエネルギーでの置換収率を $\text{Fe}(\text{acac})_3$ を基準として比をとってみる。

まず、中心金属の違いによる効果を $\text{Rh}(\text{acac})_3$ の結果から見てみると、収率比は(n, γ) 反応: 0.768, (γ , n) 反応: 0.784 とあまり大きな違いはない。これに対し、配位子の違いによる効果は、 $\text{Fe}(\text{dpm})_3$ の場合、(n, γ) 反応: 1.90, (γ , n) 反応: 1.67～1.30、 $\text{Fe}(\text{tfa})_3$ の場合、(n, γ) 反応: 1.20, (γ , n) 反応: 0.875～0.824 と大きく変化している。

収率が反跳原子の入射エネルギーによって変化することは反跳原子のターゲット中での衝突過程において、核阻止能で表される弾性衝突的な過程が大きく関与していることはすでに報告しているが、その変化の大きさについては上記のようにターゲット分子の化学的効果、とくに配位子による効果がかなり影響していることがわかった。すなわち、得られる置換収率を定式化するうえで、核阻止能の項に加え、ターゲット分子の化学的状態を表す項が必要であることを示している。

また、反跳原子のターゲット中での挙動、エネルギー付与の様子をさらに細かくみるため、Monte Carlo 法によるシミュレーションを行ない、インプラネーション反応についての理解をさらに深める。

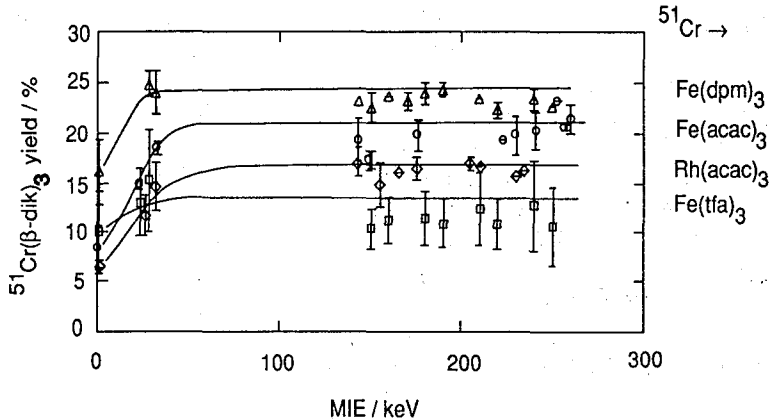


Fig. 1. 反跳 ^{51}Cr による置換収率の入射エネルギー依存性。

CONSIDERATION OF ENERGY DEPOSITION ON THE SUBSTITUTION REACTION OF CENTRAL METAL ATOM BY RECOIL IMPLANTATION (I)

IMPLANTATION OF RECOIL ^{51}Cr ATOMS

Atsushi MIYAKAWA, Tsutomu SEKINE, Kenji YOSHIHARA

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University

(東北大理) 宮川 篤・本間弘一・関根 勉・○吉原賢二

1. 概要

本報では Rh 薄膜線源から反跳ロジウムを $\text{Rh}(\text{acac})_3$ の薄膜中にインプラントした結果とその解釈などについて述べる。

ロジウムの反跳インプラネーション反応の際には、阻止能の違いからクロムの反跳インプラネーションのときに比べて収率の立ち上がりをもう少し詳しく考察できる利点がある。 $\text{Rh} + \text{Rh}(\text{acac})_3$ のインプラネーション反応では収率-エネルギー曲線に変曲点の存在が見えてきたことが著しい特色である。

最近流行している Biersack らの照射損傷モデルによっては、単純にこの種の曲線を説明できない。そこで本報では高圧・高温衝撃波が反応促進に関与するとみなす新しいモデルによって数式的に取り扱い、収率-エネルギー曲線の変曲点を説明できた。この種の実験は本報告が最初の試みであり、今後のインプラネーション反応の研究に新しい局面を開くものと思われる。

2. 実験

パラジウム薄膜上に $\text{Rh}(\text{acac})_3$ を蒸着して照射のための薄膜試料とした。東北大学原子核理学研究施設の 300 MeV ライナックによってこの薄膜試料を照射した。パラジウム中で $^{106}\text{Pd}(\gamma, p)^{105}\text{Rh}$ 反応によって生成した ^{105}Rh は反跳によって薄膜中を走り、 $\text{Rh}(\text{acac})_3$ 薄膜中にインプラントされ、ここで減速して化学反応を行ない $^{105}\text{Rh}(\text{acac})_3$ を生じる。パラジウム薄膜の厚さを変化することによって反跳 ^{105}Rh が $\text{Rh}(\text{acac})_3$ に入射する時の平均エネルギーを制御できる。 $\text{Rh}(\text{acac})_3$ はベンゼンに溶解し、シリカゲルカラムクロマトグラフィーによって分離した。放射能測定は Ge(Li) 検出器によって行なった。

3. 結果

Fig. 1 には $\text{Rh} + \text{Rh}(\text{acac})_3$ の錯体収率と平均入射エネルギー (MIE) の関係を示す。63 keV 付近に変曲点認められる。平均入射エネルギーを飛程すなわち penetration depth に変換したものが Fig. 1 の上のスケールである。変曲点は penetration depth 約 50 nm のところに位置している。

まず照射損傷についての Biersack らの取り扱いでこの系を扱う。Fig. 2 に示すような損傷の分布および静止位置の分布が得られる。両曲線の重なり部分が化学反応収率の増大に対応すると考えると、Fig. 3 のような収率-エネルギー曲線となり、Fig. 1 の実験結果とはあわない。

そこで、インプラネーションの際衝撃波現象で発生する高温・高圧が収率を増大させると考え、これに対する反応モデルを作ることとする。見かけの収率 Y_{obs} は次のように表される。

$$Y_{\text{obs}} = Y_0 + Y = Y_0 + k \int S_n(E) \cdot E_f(r) \cdot F(r) \, dr \quad (1)$$

ここで Y_0 は反応の初期収率、 S_n は核阻止能、 $E_f(r)$ は化学反応効率、 $F(r)$ は距離による減衰項である。これを整理し

$$Y \propto k S_n \left(1 - \frac{1}{1+r^n} \right) \quad (2)$$

の形の式が得られる。

n によってこの式の数値は変化するが、Fig. 4 のように $n=4$ くらいの値で Fig. 1 の曲線は再現できる。

熱的損傷回復で random walk recombination の理論でも変曲点が出る場合があるが、Fig. 1 のような曲線にはならない。瞬間的な高圧高温の作用の結果と考えるのが最も妥当であろう。

みやかわあつし、ほんまこういち、せきねつとむ、よしはらけんじ

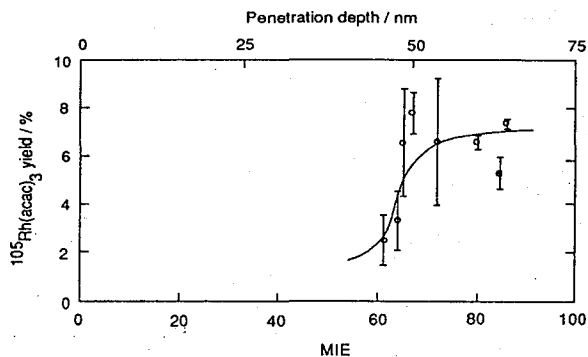


Fig. 1. Yield of $^{105}\text{Rh}(\text{acac})_3$ as a function of mean implantation energy (MIE) and penetration depth.

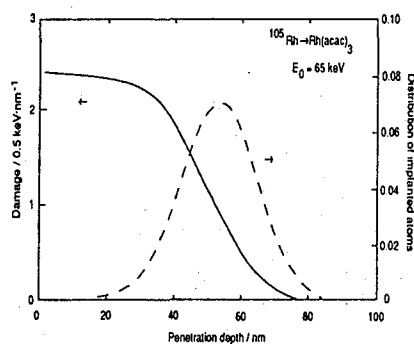


Fig. 2. Calculated damage concentration and distribution of implanted atoms in implantation of ^{105}Rh ($E_0=65\text{keV}$).

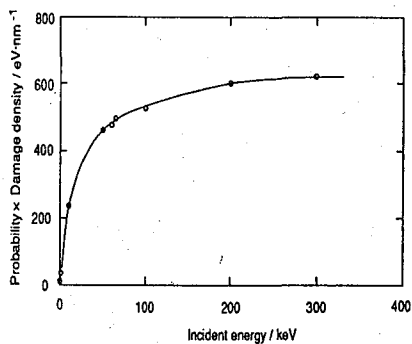


Fig. 3. Product of probability and damage density as a function of incident energy.

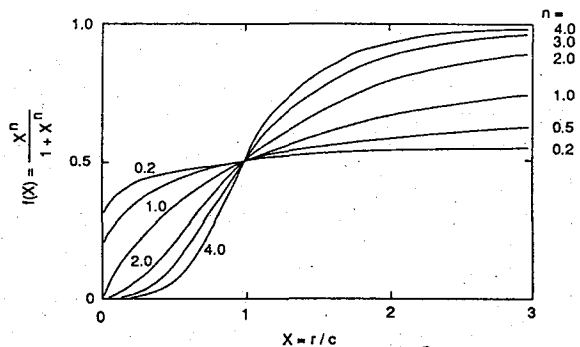


Fig. 4. Shape of a function $f(X)=X^n/(1+X^n)$ with different n .

CONSIDERATION OF ENERGY DEPOSITION ON THE SUBSTITUTION REACTION OF CENTRAL METAL ATOM BY RECOIL IMPLANTATION (2)
 IMPLANTATION OF RECOIL ^{105}Rh ATOMS
 Atsushi MIYAKAWA, Koichi HOMMA, Tsutomu SEKINE, Kenji YOSHIHARA
 Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University

1B12

クロムのホットアトムの出現エネルギーに及ぼす錯体リガンドの影響
(立教大原研*1・立教大理*2・立教大一般教養*3)

○松浦辰男*1・伊藤 寿*2・広田玲子*2・佐々木研一*3

1. 目的 種々のβジケトン型クロム錯体を中性子照射して⁵¹Crの「初期リテンション」を求め、その値と⁵¹Crの反跳エネルギースペクトルの積分から、⁵¹Crのホットアトムを生じさせるのに必要な最低のエネルギー「出現エネルギー」を求める。そしてこの値に錯体の大きさやリガンドの種類、照射温度などが如何に影響があるかを調べ、ホットアトム反応の初期過程の理解に役立たせる。

2. 実験 今回は新しい錯体として、右ページの下欄に示すような3種、トリス(ジイソブタノイルメタナト)クロム(III), Cr(dibm)₃, トリス(ヘキサフルオロアセチルアセトナト)クロム(III), Cr(hfa)₃, トリス(ヘプタフルオロブタノイルピバロイルメタナト)クロム(III), Cr(fod)₃, を照射試料とした。これらの錯体は塩化クロム(III) 6水和物または硝酸クロム(III) 9水和物にそれぞれのリガンド単体をエタノールまたは水-エタノール溶液中で約100℃で反応させ、クロマトグラフィーと昇華により精製した。照射は、錯体100 mgをベンゼン10mlに溶かし、これにスカベンジャーとして塩化第二鉄のエタノール溶液1 mlを加えてFe³⁺濃度を約0.02mol/lとしたものを、トリガ型原子炉のF孔で種々の温度(室温、氷温(〜-10℃),ドライアイス温度,液体窒素温度)で2分間行い、分離は溶媒抽出によった。

3. 結果 これらの錯体における室温の照射での⁵¹Crの出現エネルギーは第1表に示す通りである。これらの値をこれまでにデータが得られている錯体, Cr(acac)₃, Cr(bzac)₃, Cr(dpm)₃, Cr(dbm)₃, Cr(tfa)₃の値とともに横軸にリガンドの分子量を取ってプロットしたものが図1である。この図から、出現エネルギーはこれまでの傾向と同じく、錯体の分子量とともに上昇はするが、リガンド内のフッ素原子数が多くなると全体の傾向からずれてくるのがわかった。

またリテンションの照射温度への依存性については図2に示す。その他の錯体同様、室温ではリテンションは最低であるが、それより低温の凍結溶液では温度依存性は単調でない。Cr(dibm)₃, Cr(hfa)₃ではこれまでに調べた5種の錯体同様、温度依存性は極大値を示すが、Cr(fod)₃については単調な傾向が観察された。

4. 考察 Cr(hfa)₃とCr(fod)₃のようなリガンド内のフッ素原子数が多くなったときに、従来の傾向(これについては、錯体の中心でホットアトムが生成し、それが錯体中から外へ出てくるときリガンドの重さに比例して抵抗を受けて減速するという、簡単なモデルで理論的に計算した結果と実験値がよく一致していた)からずれてくる原因については次のようなことが考えられるので、この線に沿った考察を進めている。すなわち、

(1) フッ素原子はほぼ同じ重さのメチル基にくらべて空間的にコンパクトなので、錯体全体としては隙間の多い構造であるから、ホットアトムが中から出て来やすい。

(2) ホットアトムのエネルギーを減速させるのはリガンドの重さだけが関係するのではなくて、リガンドを構成している全原子の結合エネルギーも大いに関係がある。

まつうらたつお・いとうひさし・ひろたれいこ・ささきけんいち

表1 3種の錯体における初期リテンションと出現エネルギー

錯体の種類	錯体の分子量	初期リテンション (%) *	出現エネルギー (eV)
Cr(dibm) ₃	517	0.472 ± 0.045 (3)	68.5 ± 3.7
Cr(hfa) ₃	673	0.422 ± 0.031 (2)	64.5 ± 2.5
Cr(fod) ₃	937	0.753 ± 0.035 (5)	90.1 ± 2.6

* 括弧内数字は実験回数

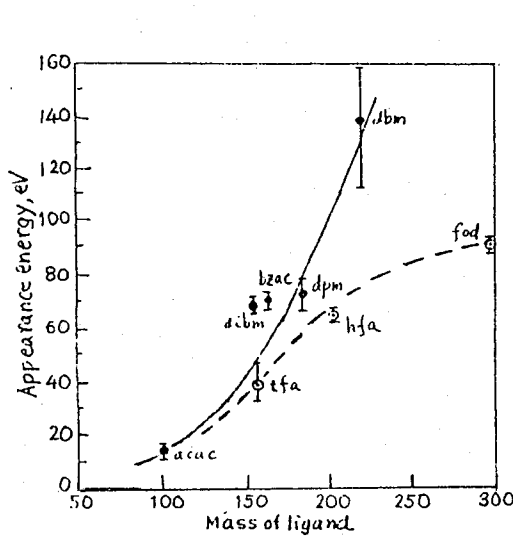


図1. 出現エネルギーと錯体配位子の分子量との関係

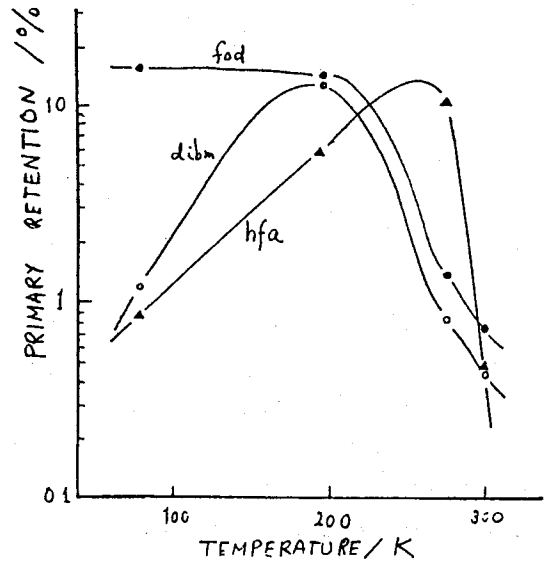
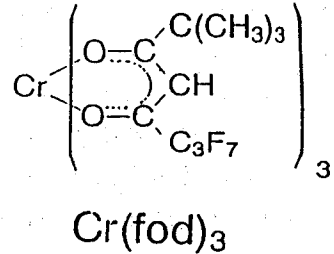
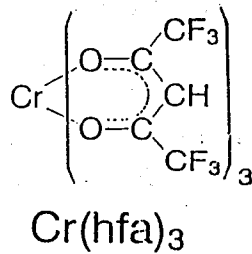
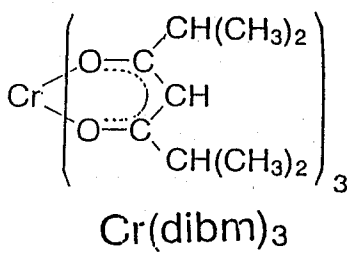


図2. 初期リテンションの温度依存性



EFFECT OF LIGAND OF COMPLEX ON THE APPEARANCE ENERGY OF CHROMIUM HOT ATOM
 Tatsuo MATSUURA, Institute for Atomic Energy, Rikkyo University
 Hisashi ITO, Reiko HIROTA, Faculty of Science, Rikkyo University
 Ken-ich SASAKI, Faculty of General Education, Rikkyo University

(宮城教育大学) 玉木洋一

1. はじめに

EC 壊変による電子軌道の空孔は主として K 殻に生成され、外殻からの電子遷移により特性 X 線が発生する。この X 線は壊変時の核種の化学状態などを反映していると考えられる。このような壊変に伴う X 線の精密測定は ^{56}Fe , ^{197}Hg , ^{181}W 等の核種について行われており、内殻電離方法とピークエネルギーシフトとの関係などが論議されている¹⁾。一方、X 線を用いた状態分析の分野では軽元素を中心に結合状態とエネルギーシフト、プロファイルの変化との関係について多くの研究が行われている。

本研究では、幾つかの ^{51}Cr 標識化合物について ^{51}Cr の壊変に伴う K α 線を波長分散型 X 線分析装置を用いて測定し、化学状態によるエネルギーシフト (ケミカルシフト) を求めることを目的とし、壊変核種の化学状態を非破壊で分析する方法の 1 つとしての基礎的検討を行ったのでその結果を報告する。

2. 実験

測定試料である ^{51}Cr 標識化合物は Cr 金属, Cr_2O_3 , K_2CrO_4 , $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ であり、日本原子力研究所 JRR-2 のサイクル照射で得た。その放射能は 37-74 MBq であった。X 線測定に用いた X 線分析装置はローランド半径 300 mm で平板型分光結晶 (LiF (200)) を用いたものであり、ソーラーズリットは分散角 0.23° のものを 2 ヶ、検出器はガスフロープロポーションナルカウンターを用いた。X 線の吸収を少なくするため分光経路は He ガスで置換した。K α 線の測定は $2\theta = 75.8-78.3^\circ$ の範囲で 1 ステップ 0.01° 、100 秒で行った。測定されたカウントは非常に弱いため、この測定を 20-100 回繰り返し、積算した。得られた VK α 線スペクトルの例を Fig.1 に示す。VK α_1 線での分解能は (FWHM) 約 7 eV であった。また種々の V 化合物について同じ装置により蛍光 X 線スペクトルも測定し、装置の安定性の確認と共に EC 壊変との違いの検討に用いた。測定は ^{51}Cr 標識化合物、V 化合物とも 3-7 回行ない測定精度を高めた。

Fig.1 に見られるようにこの装置の分解能は十分ではなく、K α_1 、K α_2 線の重なりが大きい。このためスペクトル分離を行ってピーク位置を精確に求める方法をとった。プロファイル関数は両側に多項式の裾を加えた双曲線関数が測定スペクトルと最も良く一致し、これを用いた。X 線スペクトルの測定では分光結晶の熱膨張が原因で測定温度の変化によってピークシフトが起こる。このため測定は $\pm 0.5^\circ\text{C}$ 以内の温度で行い、

たまきよういち

ピーク位置について温度補正を行った。

3. 結果と考察

実験結果を Table 1 に示す。K α ₁、K α ₂線のピークエネルギーはV金属の値からの差として表し、誤差は標準偏差で示した。K₂⁵¹Cr₂O₇のK α ₂線を除いて誤差は0.4 eV以下であり、精度の良い値が得られた。この表にみられるように⁵¹Cr標識化合物、V化合物とも酸化数の増加により、K α ₁、K α ₂線は低エネルギー側にシフトしており、K α ₁とK α ₂線とでエネルギーシフトの大きさにほとんど差はない。また、金属からのエネルギーシフトの大きさは Fig. 1 VK α Spectra Induced by EC Decay ⁵¹Cr標識化合物、V化合物ともほぼ同じである。これは酸化数の変化によるケミカルシフトであると考えられる。この結果はEC壊変時の核種について化学状態の分析をこの方法で行うことができることを示している。また、⁵¹Cr標識化合物とV化合物との比較では⁵¹Cr標識化合物の方がエネルギーシフトが大きい結果となり、内殻電離の手段の違いによるものであると考えられる。

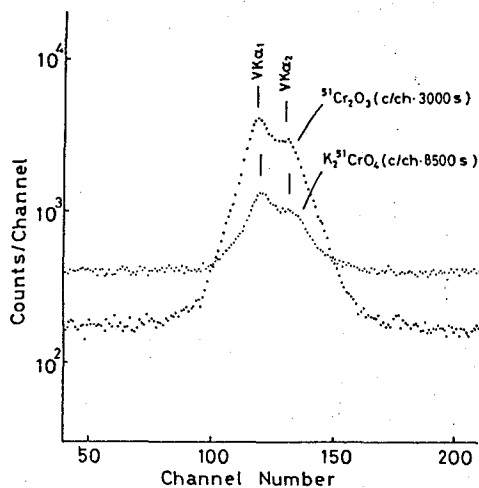


Table 1 Energy Shift for VK α ₁ and VK α ₂ Peaks in ⁵¹Cr-labeled and Vanadium Compounds

Compound	Formal Oxidation Number	Peak Energy Shift (eV)	
		K α ₁	K α ₂
⁵¹ Cr metal	-	-0.49 ± 0.24	-0.52 ± 0.14
⁵¹ Cr ₂ O ₃	III	-0.67 ± 0.12	-1.01 ± 0.36
K ₂ ⁵¹ CrO ₄	VI	-1.27 ± 0.32	-1.18 ± 0.37
K ₂ ⁵¹ Cr ₂ O ₇	VI	-1.11 ± 0.34	-1.25 ± 0.78
V metal	-	- ± 0.12	- ± 0.17
V ₂ O ₃	III	-0.17 ± 0.25	-0.11 ± 0.24
V ₂ O ₅	V	-0.52 ± 0.09	-0.49 ± 0.07
NH ₄ VO ₃	V	-0.53 ± 0.05	-0.44 ± 0.12

文献 1) 例えば K.-C.Wang et al, Phys. Rev. A, 18, 2580(1978).

ENERGY SHIFT OF KX-RAYS IN ⁵¹CR LABELED COMPOUNDS

Yoichi TAMAKI, Miyagi University of Education

(東北大理、静岡大理*) ○飯原順次、福原功一朗、大森巍*、吉原賢二

1. 序

蛍光 X 線の化学的效果については、エネルギーシフト、サテライト線の発生等が、さまざまな化合物について検討されている。われわれの研究室では EC および IT 壊変に伴って発生する KX 線の強度が化学状態により変化することを見いだした。さらに、ニオブおよびモリブデンの各種化合物において LX 線の強度変化に着目して研究を行った。その結果、価電子殻からの遷移である L_{γ_1} および $L_{\beta_{2,15}}$ の強度が原子の化学状態変化と相関性があることが判った。

今回は、ヨウ素およびアンチモンの各種化合物の LX 線の化学的效果に着目した。アンチモン化合物の化学的效果については、 L_{γ_1} および $L_{\beta_{2,15}}$ のエネルギーシフトの変化が報告されている¹⁾。ヨウ素およびアンチモンの価電子は 5p 電子であり、化学的效果が直接あらわれるのは $L_{\gamma_4}(L_{I}O_{II,III})$ であると考えられる。そこでわれわれは、直接的な化学効果による L_{γ_4}/L_{β_3} の変化および間接的な化学的效果による L_{γ_1}/L_{β_1} および $L_{\beta_{2,15}}/L_{\beta_1}$ 変化について検討する。

2. 実験

ヨウ素およびアンチモンの LX 線を波長分散型蛍光 X 線分析装置で測定した。励起には Cr 管球を用い、40kV, 20mA で行った。分光結晶は $Ge(111)[2d=6.53\text{\AA}]$ を用い X 線検出にはガスフロー型比例計数管を用いて行った。

測定試料は市販の特級試薬を錠剤成型器により直径 13mm のペレットに加圧成型してターゲットとした。

3. 結果および考察

図 1 に金属アンチモンの LX 線スペクトルを示す。ヨウ素化合物においても同様のスペクトルが得られたが、 L_{γ_4} 近辺に X 線管球からの Cr KX 線があるため L_{γ_4} のピークはこれにより妨害され認めることは出来なかった。このスペクトルをフィッティングして各ピークの面積を求め、自己吸収の補正を行い各ピークの強度比を計算した。

表 1 に得られたヨウ素およびアンチモン化合物の X 線強度比を示す。 L_{γ_1} および $L_{\beta_{2,15}}$ はヨウ素、アンチモン化合物ともに僅かな変化が認められた。しかし化合物間でははっきりとした相関は認められなかった。それに対して、 L_{γ_4}/L_{β_3} は 0.260-0.413 と非常に大きく変化していることが認められた。また、その強度比はアンチモンの酸化数が大きくなるにしたがって増大する傾向を示した。

いいはらじゅんじ、ふくはらこういちろう、おおもりたかし、よしはらけんじ

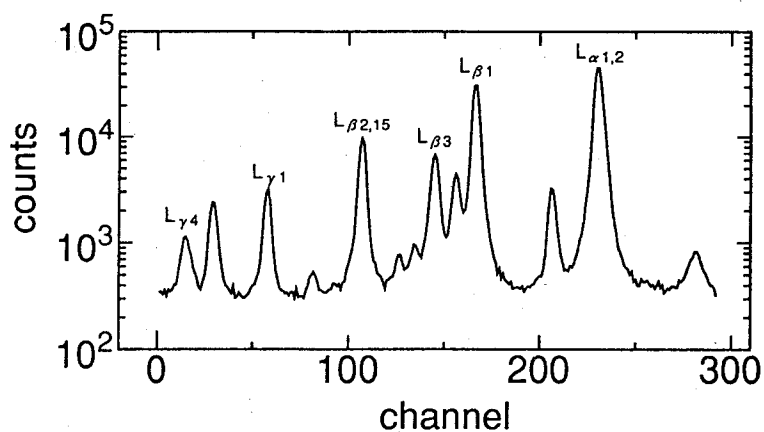


図 1. 金属アンチモンの LX 線スペクトル。

表 1. アンチモン化合物の LX 線強度比。

化合物	L_{γ_1}/L_{β_1}	$L_{\beta_{2,15}}/L_{\alpha_1}$	L_{γ_4}/L_{β_3}
Sb	0.123 ± 0.011	0.142 ± 0.004	0.260 ± 0.059
Sb_2O_3	0.132 ± 0.002	0.147 ± 0.002	0.270 ± 0.017
$K_2H_2Sb_2O_7$	0.150 ± 0.006	0.168 ± 0.005	0.413 ± 0.053
KI	0.133 ± 0.006	0.195 ± 0.006	ND
HIO_3	0.130 ± 0.009	0.173 ± 0.003	ND
$NaIO_4$	0.124 ± 0.012	0.193 ± 0.002	ND

ND: Not determined.

References

1) S.Yasuda and H.Kakiyama, BUNSEKI KAGAKU, 33,498(1984)

CHEMICAL EFFECT OF LX-RAYS IN IODINE AND ANTIMONY COMPOUNDS.

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tohoku University,
 Junji IIHARA, Koichiro FUKUHARA, Takashi OMORI, Kenji YOSHIHARA

(九大理・九大RIセ*) ○千々岩崇仁・兵頭成俊・杉原真司*・大崎 進*・
高島良正

[はじめに]

当研究室では通常あるいはアクシデント等によって導入された放射性核種の挙動を予測するためのモデルを作成することを目的として、様々な環境パターンに応じた環境放射能の分布について分析を行ってきた。

今回は、全国的に分布している火山灰土「黒ボク土」を採取し、試料とした。黒ボク土は火山灰を母材としており、アロフェンやAl、Fe-腐植複合体を多量に含む土壌であり、比表面積が大きく、透水性、通気性などが大きな、日本に古来なじみの深い土壌である。特に磷に対する特異的吸着性を持ち、陰イオン交換容量が大きいので、微量に吸着した ^{32}P 、及び ^{35}S を定量し、追跡する。殊に ^{32}P は半減期が短いため、短期間で素早く大量に処理可能な定量法の確立が先決であった。そこで、定量法の確立、さらにその定量法によって定量される元素の土壌中の分布を調べて、土壌中の陰イオン元素の挙動を知るトレーサーとして利用できる可能性を研究した。

[方法及び結果]

土壌試料は、1991年7月14日大分県九重町（久住山の北方約9km）において、 50cm^2 、深さ6cm前後までの土壌コアを採取した。これは、茎、土、根を含めたリター上部と、その下層すなわち土と根を、1.5cmおきに切断し、乾燥させ、乳鉢で細かく搗り潰し試料とした。

土壌は、草木を含め有機物を分解するために灰化し、その上澄み液をFig.1のように処理した。P、Sともに精製のために最終的には固体の MgNH_4PO_4 と BaSO_4 の形にし、シンチレーターと共にゲル化剤をいれて均一に分散させ、液体シンチレーションカウンターで定量した。さらに、土性を知るために土壌の比重や三相分布、有機物含量などを調べた。

測定の結果をTable.1に示す。 ^{32}P は多少 ^{33}P とのコンタミナンスが考えられるが、おおよそのところ半減期追跡は一致し、分離精製法は確立できたとしてよい。 ^{35}S は、スペクトルに別のピークが見受けられ、半減期追跡にもあまり一致性が見られない。そこで、今後更に半減期追跡をつづけるつもりである。

ちぢわたかひと、ひょうどうなるとし、すぎはらしんじ、おおさきすすむ、たかしまよしまさ

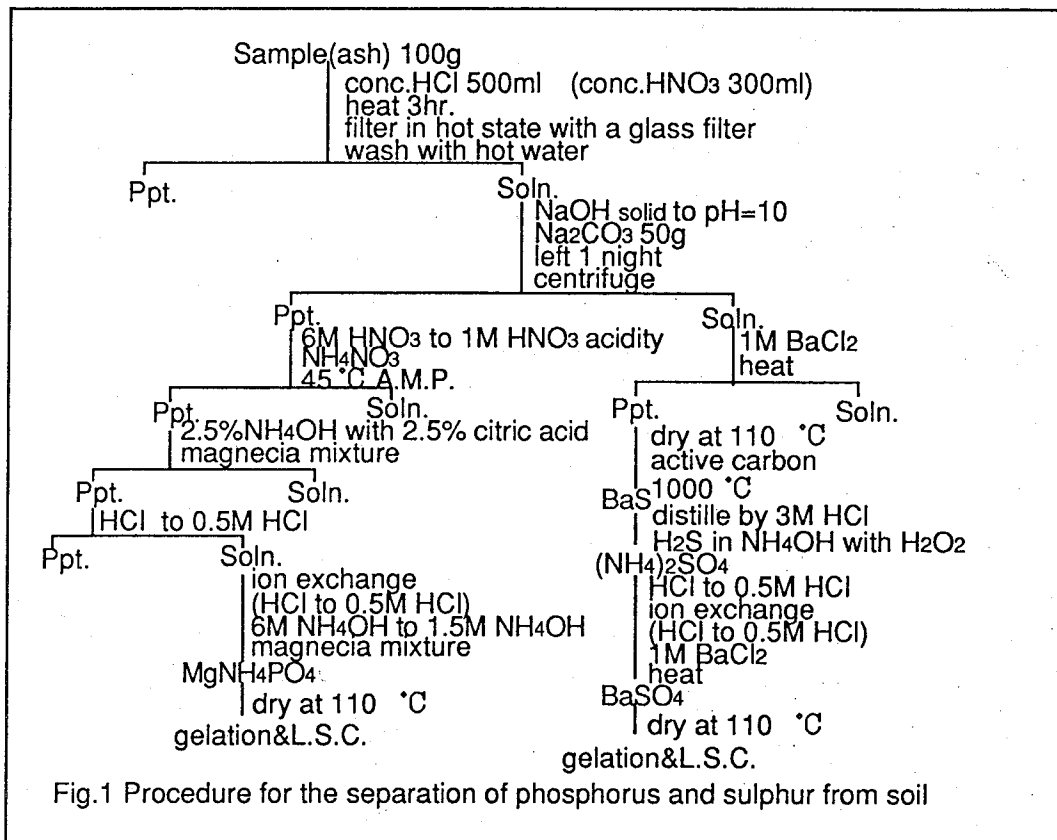


Table.1 ³²P and ³⁵S and ⁷Be in the Kuju volcanic soils

Depth(cm)	³² P(Bq g ⁻¹)		³⁵ S(Bq g ⁻¹)	⁷ Be(Bq g ⁻¹)
	HNO ₃	HCl		
litter	0.0380	---	0.0180	0.0104
0.0~1.5	0.0230	0.0023	0.0200	0.0037
1.5~3.0	0.0160	0.00027	0.0250	0.0000
3.0~4.5	0.0170	0.00060	0.0200	---
4.5~6.0	---	0.00057	0.0210	---

DETERMINATION OF COSMOGENIC ³²P AND ³⁵S IN VOLCANIC ASH SOILS

Takahito CHIIWA , Narutosi HYODOU , Yosimasa TAKASIMA , Faculty of Science , Kyushu University

Shinji SUGIHARA , Susumu OSAKI , Radioisotope Center , Kyushu University

(九大R Iセ・九大理*) ○杉原真司、大崎 進、千々岩崇人*、
高島良正*

〔はじめに〕

当研究室では、種々の環境試料に対して放射能等の分析が行なわれているが、今回は、昨年に引き続き、火山灰土壌について深度分布を測定した。昨年は、まず ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 等の天然又は人工の放射性核種を γ 線スペクトロメトリー、 ^{90}Sr は、イオン交換法による分離後チェレンコフ測定、また、安定金属元素を中性子放射化分析により定量した。今回は、環境中に放出された元素の挙動を予測するため、元素の存在状態を分別溶解法を使用して求めた。今回使用した火山灰土「黒ボク土」は全国的に分布している代表的な火山灰土であり、黒色の腐植質を非常に多く含む耕作土壌である。採取地点は、できるだけ人間活動の影響のない場所である。測定結果については、これまでに測定した土壌の結果と比較しながら、元素の分布や移動の違いについて検討を行った。

〔方法〕

土壌試料は、1989年11月に大分県九重町において長さ約80cmにわたり採取した柱状土壌コアを使用した。柱状コアを約1cm間隔で切断し乾燥させ、乳鉢で細かくすりつぶし測定試料とした。放射性核種は、pureGe-LEPS及びGe(Li)半導体検出器を用いて測定した。放射化分析は、各試料約10mgを石英管に封入し日本原子力研究所JRR-4(Tパイプ)で1時間照射した(熱中性子束 $8 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)。照射試料は冷却した後、 γ 線スペクトロメトリーにより各元素を定量した。比較標準としては、JB-1、JG-1を使用した。 ^{90}Sr は、塩酸抽出後、イオン交換法により分離し、 ^{90}Y を液体シンチレーション測定器を使用して、チェレンコフ光測定により求めた。分別溶解法は、Tessierらの方法(Anal. Chem. Vol51, 844)を使用し、5つの存在状態に分別した。分別した溶液中の元素濃度は、原子吸光法により求めた。ただし鉄濃度は吸光光度法により求めた。

〔結果と考察〕

採取地点の地層分布は、表面から約27cmまでが黒色の黒ボク層、その下に黒褐色の層が10cm、黄褐色の層が8cmあり、その下にはさらに黒色の均一な層がある。黒色の層は、全体的に約70%の含水率を示し、有機物含量は重量比で固層の約30~40%を示している。昨年の報告で、 ^{210}Pb は約15cmまで、 ^{137}Cs は約35cmまで分布し、 ^{90}Sr は約70cmまで分布しているが、その中で約30cmまで移動している部分と、それより深くまで移動している易動性の部分があること、 ^{40}K は試料中の鉱物組成をよく反映し地層の

すぎはらしんじ、おおさきすすむ、ちぢわたかひと、たかしまよしまさ

変化と対応した分布をしていることを報告した。また安定元素は、 ^{40}K と同様の分布をする元素と一定濃度を示す元素があった。

今回、分別溶解法により、表面にイオン吸着している状態 (Exchangeable)、弱酸性の条件下で影響を受ける状態 (Bound to carbonates)、還元条件下で溶出するFe、Mnの酸化物に含まれている状態 (Bound to Fe-Mn oxides)、有機物に含まれている状態 (Bound to organic matter)、鉱物結晶中に含まれる状態 (Residual) の5つの状態に分別した。測定した元素は、Fe、Mn、Co、Zn、Ca、Mg、Srである。図1に各元素の状態別の割合を示す。Co、Ca、Mg、Srは、95%以上が鉱物に由来する状態に分布しており、 ^{40}K の分布と同様である。未耕作土壌等では、Ca、Mgなどはその他のフラクションにも多く分配されていた。これは、黒ボク土が重金属を多く含むという性質を持ち、そのほとんどがResidualフラクションに含まれているためである。Fe、Mnは、Bound to Fe-Mn oxides フラクションにも多く存在している。Znはその他Bound to organic matterやBound to carbonatesフラクションにも存在していることがわかる。これらの3元素について深度による変化を見てみると、土壌の組成によって変化が観測され、Residualと Bound to Fe-Mn oxidesフラクションはほぼ同濃度を示しているが、20~40 cmにかけて、Residualフラクションが2倍高い。40 cm以下の黒ボク層でのみBound to organic matterフラクションに分布している。上層の黒ボク層には分布していないため、腐植の結合状態が徐々に変化していると思われる。Mnについては、Residualフラクションは、上層で低く、約40 cmまで徐々に上昇し、その後一定である。それに対してBound to Fe-Mn oxides フラクションは20~35 cmにかけて低濃度となっている。これは、Feの同一フラクションの分布と全くことなり、存在状態が異なっている。黒ボク土に存在する多くの腐植成分は、有機物としてよりも鉱物と強く結合した状態で存在しフラクションとしては、Residualに分布している。

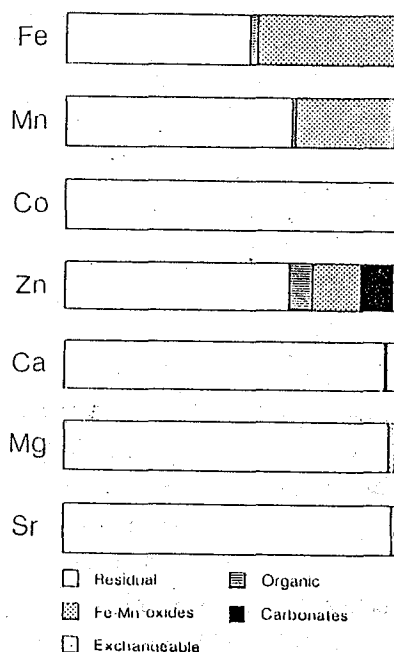


図1 元素の各フラクションへの分配

DISTRIBUTION AND MIGRATION OF ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITIES IN SOILS (3)

Shinji SUGIHARA, Susumu OSAKI, Radioisotope Center, Kyushu University

Takahito CHIJIWA, Yoshimasa TAKASHIMA, Faculty of Science, Kyushu University

(九大理) ○小藤博英・江藤一郎・百島則幸・高島良正

(はじめに)

森林の樹木は、根から栄養分として種々の元素を吸い上げ成長していく過程において、その導管組織が機能を失うと同時に、細胞壁のイオン交換サイトに結合していた陽イオンは固定され保存されていくと考えられる。従って、樹木年輪中の陽イオン分布は土壤溶液の長期間にわたる変化を知るために役立つことが期待される。

放射性降下物である ^{90}Sr と ^{137}Cs は人工放射性核種であり、地表面への蓄積量は図1、2に示しているように1960年代に最大となり、それ以前はほとんど増加していない。年輪中の ^{90}Sr と ^{137}Cs の分布と地表面への蓄積パターンの関係を考察することにより、地表面で起こった変化を樹木がどのように記録しているかを調べることができる。

また ^{90}Sr と ^{137}Cs はそれぞれアルカリ土類金属、アルカリ金属であることから、樹木年輪中の他のアルカリ土類金属、アルカリ金属の分布と比較してその挙動について考察した。

(実験)

試料は本学農学部演習林(福岡県粕屋郡)で1990年4月24日に伐採した樹齢約70年の杉の木を用いた。胸高半径は22.5cmで樹高は22mであった。試料の地面から70cm~150cmの部分を実約5cmの厚さの円盤に分け年輪5年ごとにのみで分割し、450℃で48時間灰化したのち、安定元素はICP発光光度法で定量した。一部は石英管に封入し日本原子力研究所で中性子放射化分析法で分析した。

^{90}Sr と ^{137}Cs は放射化学分析により他元素と分離したのち ^{90}Sr は娘核種である ^{90}Y の β 線を低バックグラウンド 2π ガスフローGM計数装置で、 ^{137}Cs はGe(Li)半導体検出器で放出 γ 線を測定した。

(結果)

5年ごとの年輪で分析した ^{137}Cs と安定Csの分布は極めて良く似ていた。心材部(木の中心部の色の濃い部分で、水や栄養分を運ぶ機能はない)の濃度はほぼ一定であったが、辺材部(木の周辺部の色の薄い部分で年輪が古くなるにつれて機能を失っていく)では心材辺材境界部分から樹皮に向かうにつれ濃度がいったん減少後再び増加するという傾向を示した。 ^{137}Cs と安定Csの分布の類似性から、図1に示すように ^{137}Cs の比放射能はほぼ一定であった。1927~30年の樹木中心部にも ^{137}Cs が存在していることから ^{137}Cs と安定Csは樹木中ではよく混合し、年輪を越えて移動していると結論される。また、Naを除いた他のアルカリ金属もCsと似たような分布をしていることが見いだされた。

それに対し、5年ごとの年輪中の ^{90}Sr の分布は安定Srの分布とは全く異なり、図2に示

こふじひろひで えとういちろう ももしまのりゆき たかしまよしまさ

すようにフォールアウトの地表面への蓄積パターンを反映しているといえる。安定Sr濃度は年輪間でほぼ一定であることから、 ^{90}Sr の比放射能も ^{90}Sr の濃度分布と良く似ている。図2では、フォールアウトの地表面での蓄積量が1960年前半に急激に増加しているのに対し、樹木中の ^{90}Sr 濃度は1940年から1960年にかけてなだらかに増加している。このことは、蓄積量が最大となった1960年代前半には、1940~60年の年輪はまだ辺材であり、土壤溶液を取り込んでいたことを示している。その後、成長によって仮導管が順次機能を失うにつれ ^{90}Sr を固定していったと考えられる。

以上のことからCsは樹木中で容易に年輪を越えて移動するが、Srは年輪を越えて移動しないと言える。

このようにSrが年輪間を越えて移動せず、過去の土壤溶液化学に起こった変化を記録しているという事実は、酸性雨による土壤溶液化学の時間的変化(歴史)を、年輪中のSrイオンの分布の解析から評価できる可能性を示唆している。

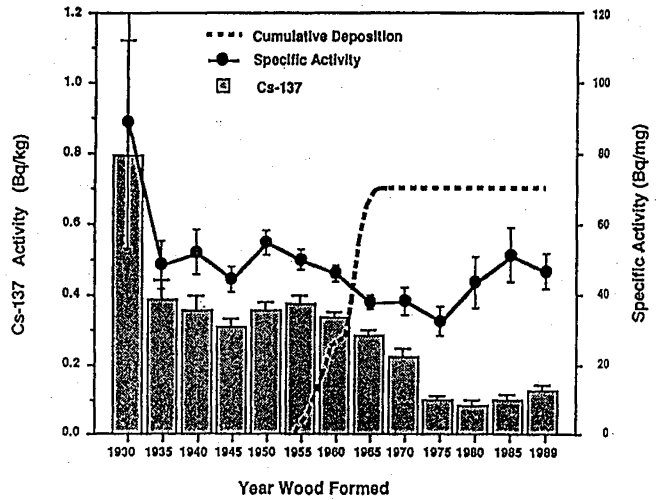


Fig. 1 ^{137}Cs の濃度と比放射能

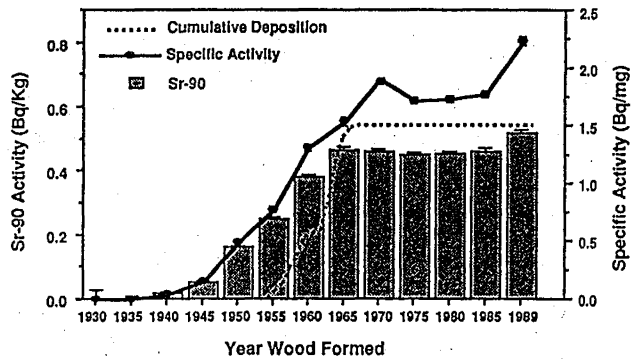


Fig. 2 ^{90}Sr の濃度と比放射能

RELATIONSHIP BETWEEN DISTRIBUTION OF ^{90}Sr AND ^{137}Cs IN ANNUAL RINGS OF A CEDER TREE AND FALLOUT PATTERN ON THE GROUND

Hirohide KOFUJI, Ichiro ETOH, Noriyuki MOMOSHIMA, Yoshimasa TAKASIMA,
Faculty of science, Kyushu University

(九大工・九大理*) ○岡井富雄・才所美和子*・百島則幸*
高島良正*

1. はじめに 我々は1984年より九州大学構内で一週間毎に大気中トリチウムを水蒸気状(HTO)、水素状(HT)およびメタン状(CH₃T)に分別捕集して、現在の大気中トリチウムのバックグラウンドレベルおよびその変動要因を調べている。1984年から1990年までの過去7年間における大気中トリチウム濃度を時系列解析することによって、興味ある結果が得られたので報告する。

2. 実験 大気を月曜日から土曜日までサンプリングして、大気中に存在するトリチウムを、HTO, HT, CH₃Tに分別してそれぞれ水の形で捕集した。捕集した水は標準的測定法¹⁾に従って処理し、アロカ製の液体シンチレーションカウンタ-LB-1で20分x50回の放射能測定を行なった。

3. 結果と考察 Fig. 1に大気水分中トリチウム濃度(Bq/l-H₂O)、絶対湿度及び大気中HTO濃度(mBq/m³-air)の7年間の測定結果を月平均値にまとめて示した。水分中トリチウムは7年間を通して7-8月に濃度が一番低くなった。これは7-8月に福岡がトリチウム濃度の低い海水が水蒸気となって運ばれてくる海洋性気団の影響を受けるためである。HTO濃度は夏場に高く、冬場に低くなるという1年を1サイクルとする周期があり、7-8月のデータを除くと絶対湿度とは0.95という非常に良い正の相関があった。これは湿度がおよそ4-21g/m³まで約5倍も変動するのに対して、水分中のトリチウム濃度は1.6-2.3Bq/lとほとんど変動していないためである。Fig. 2に大気中のHTO, HT及びCH₃T濃度(mBq/m³-air)の月平均値を示す。HT濃度についてはHTO濃度のような季節変動は見られなかった。時系列解析を行なうと、HT濃度には3.5年の周期があるという結果と周期性はないという結果が得られたが、3.5年の周期については1988年の異常な濃度上昇に起因したものであり、HT濃度には周期性はないと思われる。CH₃T濃度についてもHT濃度と同様に季節変動は見られず、時系列解析の結果からも周期性はないことがわかった。Fig. 3に大気中のHTO, HT及びCH₃T濃度の経年変動を示した。HT濃度は1985年から1987年まで減少していたのが1988年に上昇し、その後また減少している。1985年-1987年と1988年-1990年の濃度減少より大気中HTの滞留時間を計算すると、おのおの4.7年と4.8年が得られた。この値はMasonとÖstlundが1968年から1978年にかけて広範な大気中HT濃度の測定を実施して求めた平均滞留時間4.8年と同じである。一方、CH₃TもHTと同様に1988年以後減少しており、1988年-1990年の濃度減少から滞留時間を計算すると6.0年が得られた。この値もEhnhaltによって報告されているメタンガスの滞留時間4-7年と一致している。以上のことから次のことが明らかとなった。①HTO濃度は核実験以前のレベル近くまで現在もう減少している。②それに対し、HTとCH₃Tの現在の濃度は核実験以前に比べてHTが約200倍、CH₃Tが約30倍高く、おのおの4.8年と6.0年の滞留時間で減少している。③1988年にHTとCH₃Tの濃度が同じように上昇し、

おかいとみお、さいしよみわこ、ももしまのりゆき、たかしまよしまさ

その後濃度が予想される滞留時間で減少していることは、1988年に施設から大気中に大量のトリチウムの放出があり、しかもその後はトリチウムがそれほど放出されていないことを意味する。しかし、この発生源は今のところ不明である。

文献1) T.Okai and Y.Takashima.
J. Radioanal. Nucl. Chem.,
130 (1989) 399

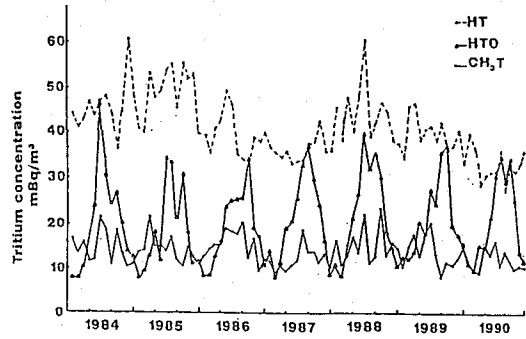


Fig.2 Variation of monthly average tritium concentrations in the atmosphere.

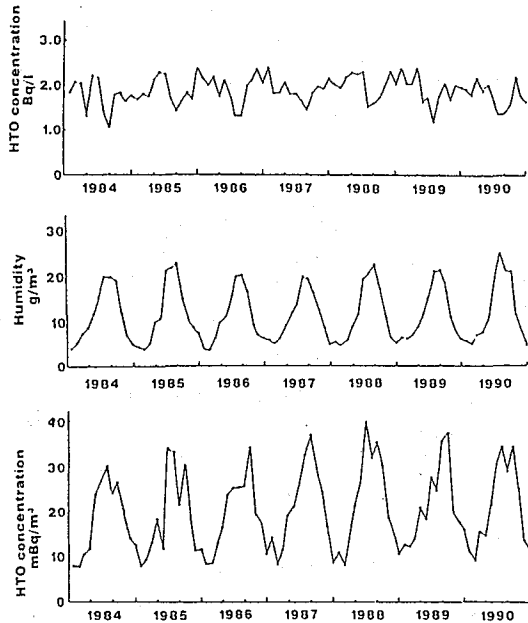


Fig.1 Variation of monthly average tritium concentrations and humidity in the atmosphere.

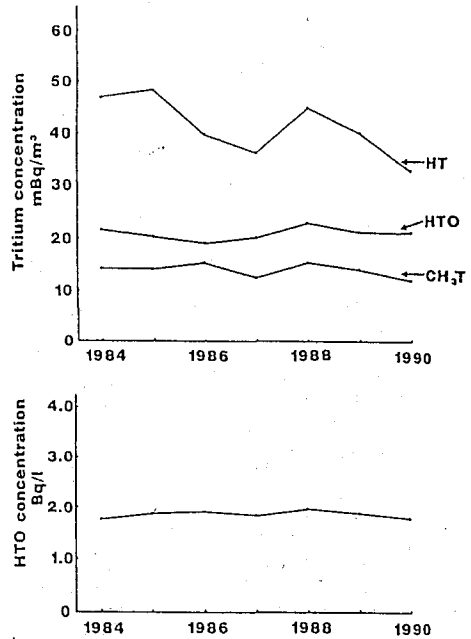


Fig.3 Variation of annual average tritium concentrations in the atmosphere.

VARIATIONS OF ATMOSPHERIC HTO, HT AND CH₃T CONCENTRATIONS OVER THE PAST SEVEN YEARS

Tomio OKAI, Faculty of Engineering, Kyushu University
Miwako SAISYO, Noriyuki MOMOSHIMA and Yoshimasa TAKASHIMA,
Faculty of Science, Kyushu University

1C05

メタノール液シン法による現代大気炭酸ガス¹⁴C濃度の調査(Ⅱ)

(阪府大附研) ○柴田せつ子、川野瑛子

産業革命に始まる化石燃料の消費は大気炭酸ガス増加を招き近年では過去に例の無い高濃度となりさらに増加の傾向にある。この様な大気炭酸ガスの増加は人類未来に大きな不安を投げかけている。さて現在の大気炭酸ガス¹⁴C濃度は過去の核実験の後遺症により自然状態より若干高い状態で推移しているが、化石燃料は¹⁴Cフリーであるため化石燃料由来の炭酸ガスの放出は、大気炭酸ガス¹⁴C濃度希釈の方向に作用する。即ち単純には¹⁴C濃度の低い地域は化石燃料による汚染の進んだ地域、近隣に¹⁴C放出源が無ければ¹⁴C濃度の高い地域はクリーンな地域と見なされる。私共では各地で同時期に生育する植物体の¹⁴C濃度から大気炭酸ガス¹⁴C濃度の地域分布を追跡したいと考え、全国から収集した1982年産稲種子の¹⁴C濃度を測定、その結果を第33回放射化学討論会で報告した。今回1987年についても同様の方法で調査したので、1982、1987両年の結果を基に日本における大気炭酸ガス¹⁴C濃度の地域分布について報告する。全国33地点(沖縄、埼玉、栃木、青森等追加)から米粒を収集、メタノール液シン法を用いて¹⁴C濃度測定を行った。その結果を表1に示す。全国平均値は $16.07 \pm 0.19 \text{ dpm/gC}$ であり1982年($16.68 \pm 0.17 \text{ dpm/gC}$)から5年間で3.65%、年率で平均0.73%の減少であった。この値はその間の炭酸ガスの年増加率0.4%の約2倍に相当する。さて米粒¹⁴C濃度の最低値は1982年と同じく東京都立川市であり埼玉県熊谷市、香川県高松市と続く。一方、¹⁴C濃度の高い、即ちクリーンな地域は1982年には北海道の2地点であったが、1987年では茨城県水戸市ついで山形県山形市であり北海道は6番目であった。さらに詳しく緯度との関係を見るため大気炭酸ガス $\delta^{14}\text{C}$ を求め、 $\delta^{14}\text{C}$ の緯度依存性を調べた(図1)。

表1 1987年日本産米粒¹⁴C濃度

産地名	緯度(N°)	¹⁴ C dpm/gC	産地名	緯度(N°)	¹⁴ C dpm/gC
1 沖縄県那覇市	26.3	16.25 ± 0.06	18 千葉県千葉市	35.6	15.84 ± 0.09
2 鹿児島県鹿児島市	31.6	16.37 ± 0.09	19 東京都立川市	35.7	15.72 ± 0.09
3 長崎県諫早市	32.8	16.07 ± 0.08	20 千葉 佐倉市	35.7	16.14 ± 0.07
4 大分県宇佐市	33.5	16.02 ± 0.07	21 福井県福井市	36.1	15.98 ± 0.06
5 高知県南国市	33.6	15.91 ± 0.09	22 埼玉県熊谷市	36.2	15.74 ± 0.06
6 福岡県行橋市	33.7	15.84 ± 0.08	23 茨城県水戸市	36.4	16.46 ± 0.09
7 和歌山県那珂郡	34.2	16.14 ± 0.09	24 栃木県宇都宮市	36.6	15.94 ± 0.09
8 香川県高松市	34.3	15.76 ± 0.08	25 長野県須坂市	36.7	16.05 ± 0.06
9 広島県東広島市	34.4	15.88 ± 0.09	26 福島県郡山市	37.4	16.26 ± 0.08
10 奈良県橿原市	34.5	16.18 ± 0.09	27 新潟県長岡市	37.4	16.03 ± 0.08
11 大阪府堺市	34.6	15.88 ± 0.05	28 山形県山形市	38.3	16.39 ± 0.09
12 兵庫県明石市	34.7	15.93 ± 0.07	29 宮城県古川市	38.6	16.28 ± 0.09
13 静岡県掛川市	34.8	16.07 ± 0.07	30 青森県黒石市	40.6	16.04 ± 0.07
14 京都府亀岡市	35.0	15.94 ± 0.09	31 北海道亀田郡	41.9	16.26 ± 0.09
15 滋賀県蒲生郡	35.1	16.11 ± 0.08	32 北海道岩見沢市	43.1	16.17 ± 0.07
16 愛知県愛知郡	35.2	16.19 ± 0.08	33 北海道旭川市	43.8	16.17 ± 0.09
17 島根県出雲市	35.4	16.32 ± 0.09	全国平均値		16.07 ± 0.2

その結果1982年に見られた緯度依存性、即ち高緯度地域で高い $\delta^{14}\text{C}$ を示す傾向は1987年には全く観察され無かった。ついで全測定値からクリソな地点を抽出し同様のプロットを試みた。1982、1987両年について産地を緯度 2° 単位のエリアに分け、各エリアにおける $\delta^{14}\text{C}$ の最高値について緯度依存性を調べた。その結果を図2.3に示す。クリソな地域のプロットにおいても1987年には緯度依存性は無く両年で地域分布に相違があると判断される。また図2.3では各エリアにおける $\delta^{14}\text{C}$ の平均値もプロットしているが1987年には緯度 34° から 36° の地域で $\delta^{14}\text{C}$ 値の平均値は大きく落込みこれらの地域で化石燃料汚染の進んでいる状況が伺える。しかし各エリアの最高値のプロットではそのような激しい落込みは見られないことから、この地域における化石燃料汚染もロー加な汚染に留まっているものと推定される。なを1982年に観察された緯度依存性についての考察は当日に譲る。

Fig.1 Distribution of delta C14 in 1987

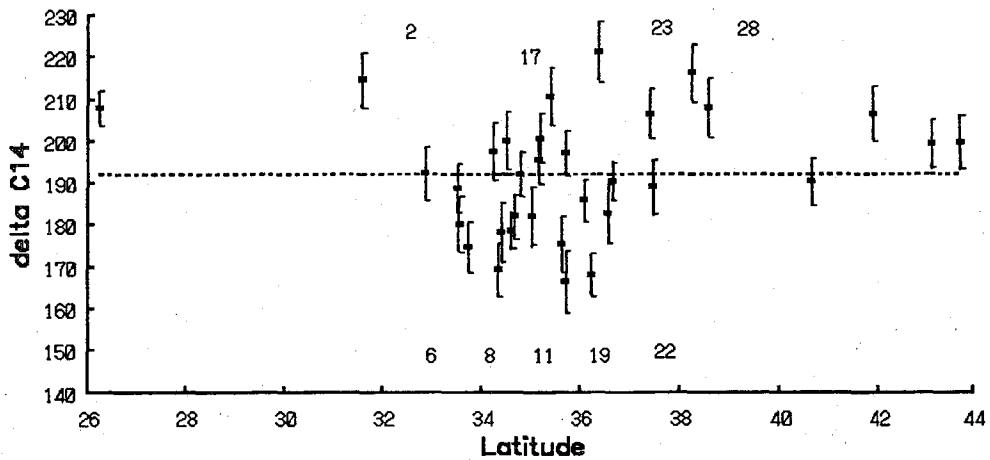


Fig.2 delta C14 in 1982.

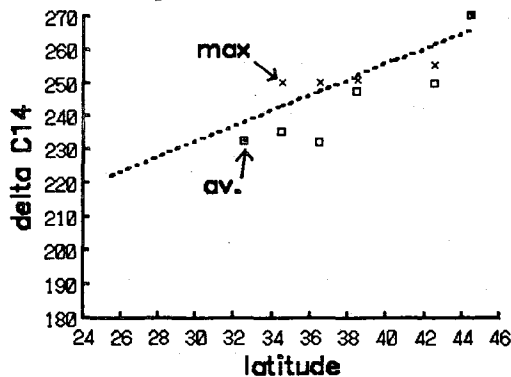
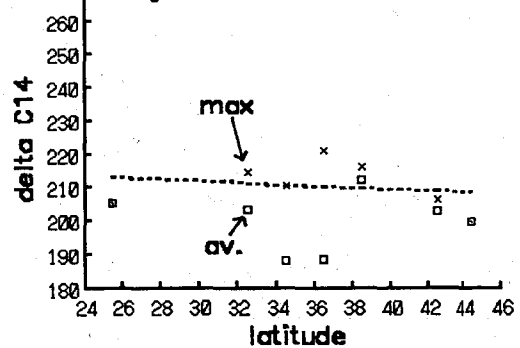


Fig.3 delta C14 in 1987



OBSERVATIONS OF MODERN RADIOCARBON VARIATIONS IN ATMOSPHERIC CO₂ OVER JAPAN ISLANDS BY METHANOL-LSC METHOD (II).

Setsubo SHIBATA, Eiko KAWANO, Research Institute for Advanced Science and Technology, University of Osaka Prefecture

(九大理、九大R Iセ*) ○兵頭成俊、杉原真司*、大崎 進*、
高島良正

【はじめに】 大気汚染は大きく分けて、気体状汚染と粒子状汚染の二つに分けられる。事故直後や工場、都市における気体状汚染による影響は大きい、移動速度が大きく希釈されやすく、また拡散モデルも種々提案されている。これに対して、粒子状汚染は地球規模の汚染を除けば局在しやすく、その部分に大きな影響を与え、また再浮遊などにより複雑な挙動をとりやすい。そこで、自然放射能や微量元素の分布から、大気中に浮遊している粒子(エアロゾル)の発生源から滞留時間、除去機構を調べる事を目的とした。

大気中には、いろいろな元素の放射性同位体が数多く存在している。これらの放射性核種のほとんどはエアロゾル粒子表面に吸着され、この放射性エアロゾルの挙動は大気中のエアロゾル粒子の挙動により決定される。つまり、それらの粒子に含まれる自然放射能の種類、濃度、さらに安定元素の割合から粒子の起源を推定できる。また、大気中では、 ^{238}U の壊変により希ガスである ^{222}Rn ($T_{1/2}=3.8\text{日}$)が地表から放出され、途中の短寿命核種を経て、 ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\text{年}$)、 ^{210}Bi ($T_{1/2}=5.01\text{日}$)、 ^{210}Po ($T_{1/2}=138\text{日}$)が順次生成するが、それは比較的長い寿命のため、エアロゾルに付着している。そこで、 $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ または $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ の放射能比よりエアロゾルの平均滞留時間が推定できることが知られている (Tsunogai and Fukuda, 1974)。そこで、今回はまず、これら核種の分離、測定に必要な分析法の確立について主に検討した。

【方法】 定量したい核種は ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Bi 、 ^{210}Po 、 ^{90}Sr 、 ^{35}S 、 ^{32}P 等である。そのうち ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb は γ 線放出体なので、容易に定量できた。また、 ^{210}Po は α 線放出体なので、銀板に沈着させ α 線測定し定量できた。その際、収率トレーサーとして一定量の ^{208}Po を添加した。しかし、 ^{210}Bi 、 ^{90}Sr 、 ^{35}S 、 ^{32}P は β 線放出体であるため、それぞれ分離精製する必要がある。そのためサンプル中の元素量を無視できるくらいの十分な担体をそれぞれ分析前に添加し、さらに収率決定としても用いた。

エアロゾル試料には、5段階の粒度別に選別捕集するアンダーセンハイボリュームエアサンプラーとハイボリュームエアサンプラーを用い、雨試料には底面積約 0.5m^2 のコンテナを6つ用いて、九州大学理学部R I倉庫屋上(地上4m)で捕集したものをを用いた。さらに、安定元素の分析に関しては、メンブランフィルターで捕集したサンプルをプラズマ燃焼させ、ICP又は原子吸光分析した。

【結果と考察】 各核種の分離精製は、Fig. 1のとおりである。まず採取したサンプルの γ 線スペクトルをGe半導体検出器を用いて測定し、 ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb を定量した。次に、 HNO_3 抽出を行い、水酸化鉄の共沈を行った。その沈殿は $0.5\text{M}\text{HCl}$ で溶かし、銀板を加えて加熱し、Poを沈着させた。その後、 H_2S を飽和しPb、Biを硫化物として沈殿させ、

ひょうどうなるとし、すぎはらしんじ、おおさきすすむ、たかしまよしまさ

pH2.5で両元素を分離した。 ^{210}Bi はAQUASOL-2をくわえて β 線測定し、 ^{210}Pb は約2ヶ月放置した後、放射平衡になった ^{210}Bi を測定することで定量した。次に、 ^{32}P についてはリンモリブデン酸アンモニウムの沈殿をつくり、アンモニア水に溶かし、さらにリン酸マグネシウムアンモニウムとして精製した後、チェレンコフ光の測定をした。 ^{90}Sr は、イオン交換法により分離し、 ^{90}Y のチェレンコフ光を測定することで定量した。 ^{35}S は、 BaSO_4 として沈殿させた後、 Sn(II) -強リン酸で精製し、蛍光剤を加えてゲル化し β 線測定した。以上、 β 線測定には低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置"Quantulus"を用いた。

予備実験として、一定量の担体を加えて分析を行った結果、各元素ともかなりの収率が得られた。しかし、サンプルを分析してみると若干のコンタミがあり、分離された核種が半減期にそって減少しなかった。特に ^{210}Bi に ^{210}Pb , ^{210}Po のコンタミがあり、定量が困難であった。測定時間を長くし、減衰曲線より不純物の分を差し引いたり、またPoの沈着後さらに銀粉を加えてPoを完全に分離するとか、Pb, Biをイオン交換により分離するなど分析法の改良を検討している。

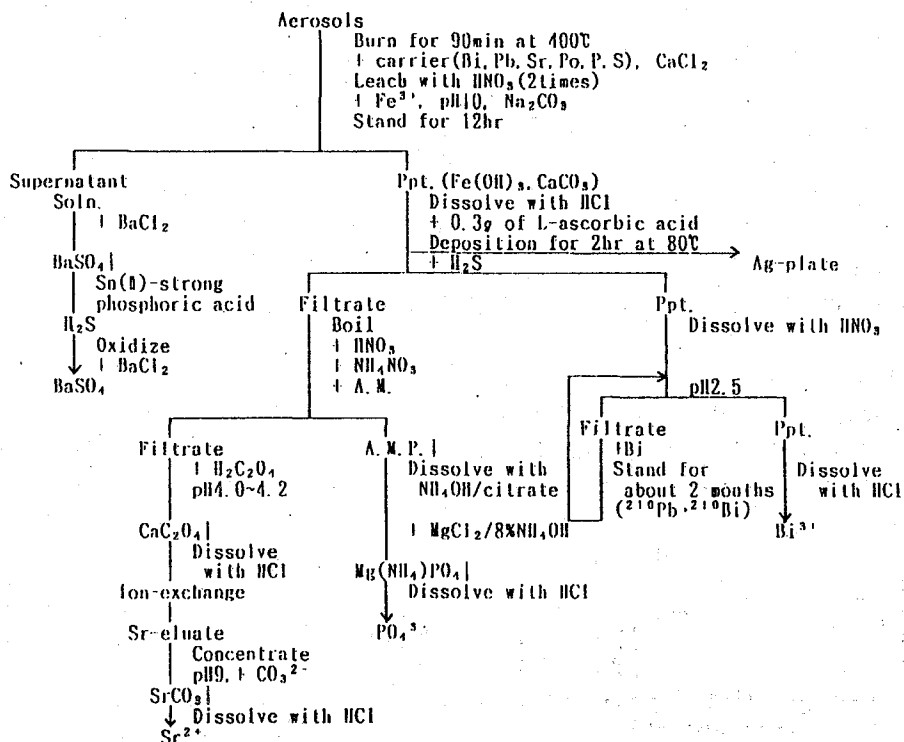


Fig. 1. The schematic diagram for the determination of ^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po , ^{90}Sr , ^{35}S , and ^{32}P .

DISTRIBUTION OF RADIONUCLIDES IN AEROSOLS

Narutoshi HYODO, Yoshimasa TAKASHIMA, Faculty of Science, Kyushu University
Shinji SUGIHARA, Susumu OSAKI, Radioisotope Center, Kyushu University

(高エネ研) ○三浦 太一、沖 雄一、沼尻 正晴、鈴木 健訓、
近藤 健次郎

1. 緒言 自然環境中のラドン及びその娘核種の挙動を理解する上で、 ^{222}Rn の娘核種である ^{218}Po の物理化学的性質を調べることは、非常に重要であり、これまで様々な観点から研究が進められている。しかしラドン娘核種の挙動は、まだ十分理解されておらず、実験室において基礎実験を行ないラドン娘核種の挙動状態を解明する必要がある。例えば ^{218}Po の電荷状態に関して、Porstendorferら¹⁾は、壊変直後の ^{218}Po の90%が+1価の状態にあると報告しているが、自然大気中における ^{218}Po の帯電割合は、環境条件により大きな違いがあるものの、90%よりかなり低い値を示している。これは、大気中では壊変直後の ^{218}Po は、大気電場、空気中の湿度及び二酸化窒素等の空気中の不純物ガスの影響を受け、電気的に中和されるためだと推定されるが、詳細は解っていない。

演者らは、各種のガス系における ^{218}Po の荷電状態及び拡散係数に関し実験を行い、空気中の湿度と ^{218}Po の拡散係数の関係に関しては、湿度が1.5mg/l ~ 8.5mg/lの範囲において、拡散係数は、 $0.05\text{cm}^2/\text{s}$ で一定であることを、また荷電状態は、周囲のガスのイオン化ポテンシャルが小さいほど ^{218}Po の中性化の速度は遅いが、電子親和力が大きい場合はこの傾向から外れることを、前回までの討論会^{2,3)}において報告した。今回新たに数種類のガス中における ^{218}Po の荷電状態を測定した。前回までの結果と合わせ、希ガス等の不活性ガス中と二酸化窒素等の活性ガス中での荷電状態の違いから、 ^{218}Po の中和過程における周囲のガスの影響を議論する。また自然環境中での ^{218}Po の荷電状態を解明するため、湿度の違う空気中での荷電状態についても報告する。

2. 実験 ^{226}Ra 線源から成長してくる ^{222}Rn と、Ne、Kr、Xe等の希ガス、 NO_2 等の活性ガス及び湿度を変えた混合空気(窒素79%及び酸素21%を混合したもの)を混合し、平行平板型 decay chamber に導入した。この chamber は2枚のステンレス円盤を5cmのテフロン spacer で区画したもので、内容積は 2450cm^3 である。内面は鏡面

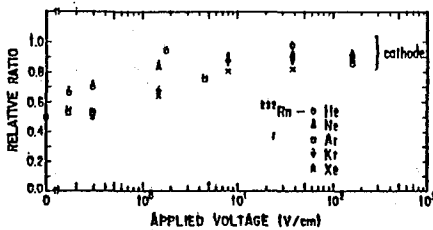


図1 希ガス中において陰極に捕集された ^{218}Po の割合と印加電圧

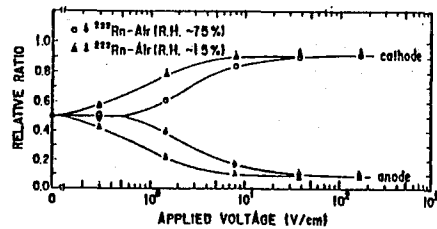


図2 空気中において陰極及び陽極に捕集された ^{218}Po の割合と印加電圧

みうら たいち、おき ゆういち、ぬまじり まさはる、すずき たけのり、
こんどう けんじろう

仕上げされており、円盤中央に 4cmφ の脱着可能な小型円盤が取り付けられている。ガス導入後、両円盤間に 0.3 ~ 1000V の電圧を印加した。ラドン及び娘核種の放射平衡が成立後試料ガスを速やかに排気し、両極の小型円盤上に捕集された ^{218}Po の放射能を測定した。測定は、表面障壁型Si検出器で、 ^{218}Po の α 線を測定することで行った。decay chamber に導入した ^{222}Rn 濃度は、試料ガスの一部を電離箱で測定し定量した。また空気中の湿度は、3mg/l~18mg/l の範囲で変化させた。試料ガス中及び試料ガスを chamber内 に導入する際に混入する不純物は、主として実験室内大気であり、合わせて数十ppmと見積られる。

3. 結果及び考察 希ガス- ^{222}Rn 系について得られた結果を図1示す。また空気- ^{222}Rn 系について得られた結果を図2に示す。横軸は、両極間に印加した電場勾配であり、縦軸は、陰極側小型円盤に付着した ^{218}Po の放射能の陽極及び陰極側小型円盤に付着した ^{218}Po の放射能の和に対する割合である。図2には、参考のため陽極側小円盤に付着した ^{218}Po の放射能の割合も示した。両円盤間に電圧が印加されていない場合、中性及び帯電した ^{218}Po は、拡散により両円盤に均等に付着する。電圧を印加することにより陰極側円盤に付着する ^{218}Po が増加している。これは、試料ガス中でプラスの電荷を帯びた状態にある生成直後の ^{218}Po が、陰極板に捕集されるためである。

希ガス- ^{222}Rn 系では、陰極側へ付着する ^{218}Po の割合は、印加電圧が同じ場合試料ガスのイオン化ポテンシャルが低くなるに従い減少している。ところが、イオン化ポテンシャルのほぼ等しいXe(I.P.:12.1V)ガスと、活性ガスである CH_4 (I.P.:12.6V)ガスにおいて192Vの電圧を印加した場合について陰極側へ付着した割合を比較すると、Xeでは82%であるのに対し CH_4 では59%³⁾と大きく違っている。またAr(I.P.:15.8V)と SF_6 (I.P.:15.7V)でも同様であり、希ガス系と活性ガス系で生成直後の ^{218}Po の中和過程に大きな違いがあることを示唆している。

湿度の違う空気中において陰極側へ付着する ^{218}Po の割合は、印加電圧200V以下では、湿度が高い方が低くなっている。これは、 Po イオンまたは PoO イオンと水分子の反応が当然湿度が高い方が促進され、その結果高湿度の方が ^{218}Po の中和速度が速くなるためだと考えられる。

また今までppmオーダーの酸素が存在する雰囲気では、生成した ^{218}Po は酸素と反応し PoO イオンとして存在すると考えられていた。しかし PoO よりイオン化ポテンシャルが低い NO_2 ガス中において、高電圧を印加した場合陰極に捕集された ^{218}Po の割合は、約55%であり、これは Po イオンが存在することを示していると考えられる。

- 参考文献 1) J. Porstendorfer and T. T. Mercer, Health Phys., 37 (1979) 191.
2) 村松ら 第31回放射化学討論会 講演予稿集 (1987) p.90.
3) 三浦ら 第34回放射化学討論会 講演予稿集 (1990) p.192.

PHYSICO-CHEMICAL BEHAVIOR OF RADON-DAUGHTERS IN GAS PHASE (3)

Taichi MIURA, Yuichi OKI, Masaharu NUMAJIRI, Takenori SUZUKI and Kenjiro KONDO,
National Laboratory for High Energy Physics

(阪大理) ○福島昭三、三藤安佐枝

§ 1 R n 測定法の必要性

ウラン探鉱の過程で、不用意に投棄された低品位の U 鉱石や U 残土による環境汚染（流水に運ばれた二次的堆積物も含む）が、各地で問題となっている。空気中の R n とその壊変生成物が呼吸器管に与える線量当量を今まで過小評価していたことが近年明らかにされて¹⁾、関係地域の住民に不安が高まっている。その不安解消のために、先ずその汚染の現状を科学的に把握する必要がある。

身体に影響を与える要因としては、1) U 残土などからの γ 線を主とする外部放射線、2) R a を中心とする可溶成分による農産物の放射能汚染、3) U 残土などから湧出する R n による空気汚染、の三種類が考えられる。このうち、1) や 2) に関する調査はそれほど問題なく行われている。ところで、3) については今までに多種多様な測定方法が提案され、また多くの実態調査の結果が発表されている。しかし屋外の空気中 R n はかなり微量の放射能測定を行わねばならないという困難がある上、R n の濃度自体が気象条件により激しく変動し、繰り返し測定はしばしば再現性に乏しい結果を与える。それが測定方法の誤差によるものか、対象濃度の本来のバラつきを示すものか判定困難であることが多い。このような事情から、R n の空気中濃度の測定には決定的な標準法が未だ確立されていない。更に多少とも大地は必ず R n の発生源であり、空気は風によって地表を移動し、上空に拡散する。そこである地点で異常に高い空気中濃度が発見された場合、それはその近傍に R n を多く湧出する原因地面が存在する可能性を暗示しはするが、ある特定の地面が R n の汚染源であることを直接証明することはできない。そのためには、その地面から湧出する R n 量を直接測定するのが最も確実である。しかしその測定方法も未だ確立されていない。そこで我々は屋外空気中 R n 濃度並びに地表からの R n 湧出量の測定方法を研究した。ただし、測定の対象地は山地であることが多く、測定機材の搬入、電源確保等が容易ではないこと、測定対象の拡大のためには、試料の採集に特別な知識や技術を必要とせず、いわゆる「市民」の参加も可能なこと、材料が入手し易く高価なものを含まないこと、等の条件を考慮しながら開発を行った。

§ 2 ^{214}Pb γ 線による ^{222}Rn の定量

^{222}Rn (3.8 d) を定量する方法として、Ge 検出器で娘の ^{214}Pb (27 m) の 352 keV γ ピーク（分岐度 37.1%）を測定する。これは R n は分離が容易であり、また ^{214}Pb は R n 捕集後数時間で完全な平衡量となり、かつ 352 keV ピークには妨害が少ないためである。

§ 3 活性炭による R n の捕集とその安定性

γ 線の計数効率は試料の容積が小さいほど有利である。純粋 ^{222}Rn の体積は 1 kBq 当り 1.78×10^{-11} cc と実質 0 に等しい。R n が活性炭に、特にドライアイス温度でよく吸着される事を利用して、空気中の R n を収率よく活性炭に吸着させ、その活性炭を一定

ふくしま しょうぞう、みとう あさえ

の測定容器に封入して γ 線測定に供することができる。ただこのRnの吸着は水に妨害されることが知られている。大気中の水分は天候により大きく変動するから、活性炭トラップを通すに先立って試料空気を除湿するのが安全である。このため空気を先ず0℃、続いて-70℃のトラップを通して乾燥させた。活性炭は種々実験の結果、ツルミコール2GSが優れていることがわかった。一旦-70℃付近で活性炭に吸着したRnは、室温に戻し開放気中で容器の詰め替えを行っても、約1%程度しか脱着しないことが確かめられた。

§ 4 屋外での試料空気の採取

I) 大気中Rn濃度を測定するには、軟質塩ビ製約120リットルの空気採取袋を現場に持参し、足踏式ふいごで所定の地上高から空気を採取し、持ち帰って活性炭へのRn吸着処理を行う。Rn濃度が低いところではBqオーダーのRn総量を含むよう大量の空気を採取し処理する必要がある。

II) 地面から湧出するRn量を測定するには、地面に約40 x 60 cm²のプラスチック製「下枠」を埋設し、その上に同型の「上枠」を重ね、更にその上枠を底辺として軟質塩ビ製直方体の袋を接着する。変形防止のため袋の内外に支持フレームを組み立てる。内側フレームは後に袋の内容空気を完全に追出すときには簡単に分解できる構造となっている。地表から湧出したRnは、拡散によって袋一杯に広がる。所定の時間そのまま静置した後、袋の中に溜ったRnを捕捉するため上下の枠の間にアルミ製の仕切板を挿入する。上枠の下縁にはパッキングがあり気密な接触が保たれる。なお採取袋の内側に外部から操作できる攪はん扇を用意し、仕切板挿入に先だて内部を良く混合する。多数のクリップを用いて仕切板を上枠に固定し袋中の空気が漏れないように保ちながら運搬する。

§ 5 湧出量測定結果の検討

大地から湧出するRn量はU残土等で問題のある数地点で測定を試み、通常の畑での対照測定と比較した。ある特定地点では常に対照点の数百ないし数千倍のRn量が捕集されるが、これをRnの湧出速度 Bq/m²·sec とどのように関連付けられるか検討実験を行っている。自然状態で湧出速度に影響を与える要因は気温、土壌温度、大気湿度、土壌の含水量、日照強度、風向、風力、またそれらの過去何日にも及ぶ経過など非常に多岐にわたると考えられ、条件のコントロールは困難である。そこで、実験室内にU含量の高い土で箱庭の如きものを作り、その土壌表面からのRn湧出量を測定して上記「袋法」で得られる「湧出量」を吟味する。この方法では袋の中のRn濃度に比例して土壌へのRnの逆戻り吸着が起こる可能性があり、この場合捕集Rn量は捕集時間に比例せず、飽和傾向を示すことが考えられる。そこで地面に細長いチャンネルを設置して風を流し、風に乗ってくるRn量を捕集する「流し法」と比較する。予備実験段階では袋法は捕集時間が一昼夜程度では飽和傾向を示さないが、流し法の50%程度の湧出量が観測されており、更に検討を重ね、結果を報告したい。

文 献

*1) UNSCEAR 1988 Report, p47, Annex A.

TECHNIQUES TO MEASURE ²²²Rn EMANATION FROM THE GROUND
Shouzhou FUKUSHIMA, Asae MITO, Faculty of Science, Osaka University

(金沢大理) ○中西 孝, 濱 克宏

【はじめに】

推定ウラン埋蔵量が我が国最大と言われる月吉鉱床(岐阜県)の主鉱体部は約1千万年前に二次的に形成されたものであることが、ウラン鉱物のU-Pb, Pb-Pb年代測定等から推論されている。その形成過程において重要な役割を演じた水は、一方でウラン鉱床を破壊する重要な要因でもある。我々は、長期にわたって月吉ウラン鉱床が保存されてきた地球化学的メカニズムを探る研究の一環として、この鉱床の鉱体部近傍及び周辺の地下水についてウラン同位体(U-238, U-234)濃度をある程度継続的に測定して ^{238}U 濃度及び $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の変動幅と変動の系統性を把握するとともに $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比による地下水の地下滞留時間(地下水の年代)の推定を試みた。さらに、地下水の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比による年代値と ^{238}U , ^{234}U , ^{234}Th の3核種による年代値との比較も試みた。

【実験】

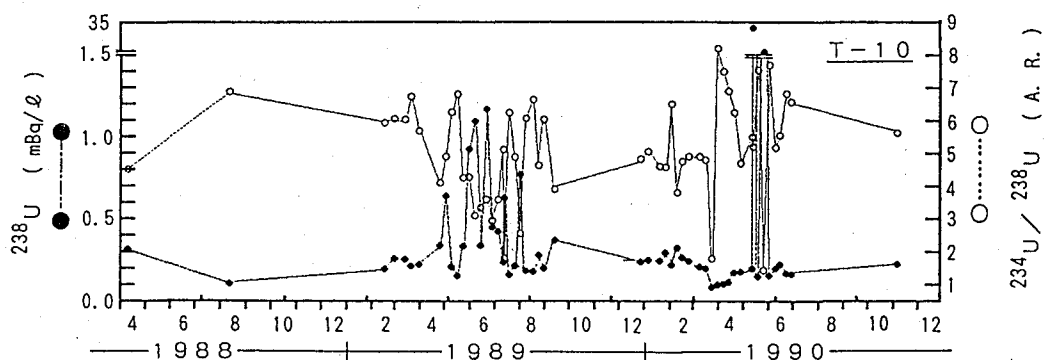
月吉ウラン鉱床の鉱体部近傍の地下調査坑内から(及び鉱山周辺の地表から)のボーリング孔を通じて湧出する(またはポンプアップされる)地下水を試料とした。1分析あたり1ℓ(標準的な場合の量)を孔径0.4 μmのニュークリポア・フィルターでろ過してから、ろ過水と懸濁物の双方についてU-238とU-234の定量を行った。すなわち、塩酸酸性(pH~2)としたろ過水(または、濃硝酸-過塩素酸で分解して希塩酸溶液とした懸濁物部分)に既知量のU-232トレーサを添加した後、鉄共沈法またはキレート樹脂法によるウランの予備濃縮、陰イオン交換樹脂カラム法によるウランの分離精製、電着線源の調製、α線スペクトロメトリを順次行った。本研究の初期において、研究対象とした地下水中のウラン同位体は濃度、放射能比ともに経時的な恒常性がみられずかなり変動していることが分かったので、1週間~数か月間隔の地下水採取とウラン同位体の測定を2年間余り継続して ^{238}U 濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の変動の幅と系統性についての調査をまず行った。そして、その変動様式が比較的単純であることが確認された地下水の湧出孔に焦点を絞って、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比に基づく地下水年代推定を行い、さらにその値をクロスチェックする目的で別途120ℓの地下水採取を行い、 ^{238}U , ^{234}U , ^{234}Th 濃度の定量とこの3核種による年代推定も行った。なお、 ^{234}Th の定量においては収率トレーサとして ^{230}Th (予め定量された地下水中の ^{230}Th 含量に比べて大過剰)を用い、化学操作等はウランのそれに準じて行った。

【結果と考察】

月吉ウラン鉱床の鉱体部近傍及び周辺の地下水中の ^{238}U 濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、湧出口ごとに異なるばかりでなく経時的にも変動することが分かった(図1, 付帯誤差は7~22%)。その経時的変動は、帯水層の条件(酸化還元条件など)を異にする複数の地下水流が経時的に混合比を変えながら湧出口に到達しているか、帯水層の変化(新たな亀

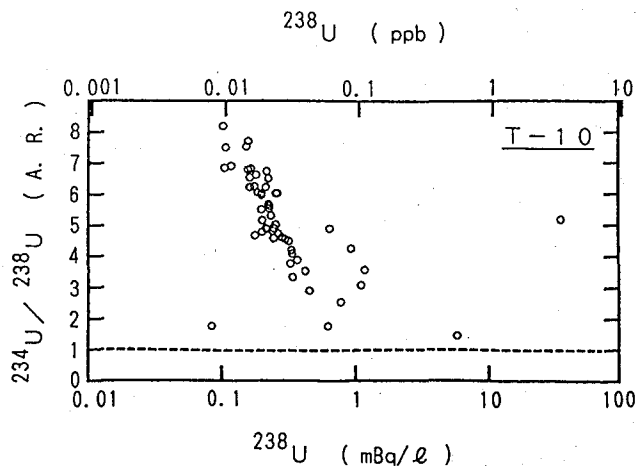
なかにし たかし, はま かつひろ

裂の発生など)を示唆していると考えられる。相対的に ^{238}U 濃度が低いときに $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が高くなり、相対的に ^{238}U 濃度が高くなると $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が低くなるような単純な変動の場合(図1, 2)は、酸化還元条件が ^{238}U 濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比に変動をもたらす主要因と考えられる。そして、最も高い $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の地下水が最も確かな古い年代情報を保存していると考えて $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比に基づく年代測定法(Andrews et al., 1989)を適用した結果、約1,700年の値が得られた(ただし、未測定の数種のパラメータの変動幅を考慮すると40~190,000年の範囲となる)。一方、 ^{238}U , ^{234}U , ^{234}Th の3核種による方法(木越, 1973)では約92,000年の値が得られた。また、地下水から分離された懸濁物(地下水で風化された帯水層の地質媒体極表層の剥離物と考えられる)中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比から、帯水層の水履歴は長いもので240,000年以上であることが推論された。



↑
図1 ろ過地下水中の ^{238}U 濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の経時的変動(一例)。

→
図2 ろ過地下水中の ^{238}U 濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の経時的変動における相関関係(一例)。



DATING OF GROUNDWATER WITH URANIUM AND THORIUM ISOTOPES

Takashi NAKANISHI, Katsuhiro HAMA

Faculty of Science, Kanazawa University

(青山学院大理工) ○矢板 毅・斎藤裕子・木村 幹

【はじめに】 使用済核燃料廃棄物の地層処分の問題にともなって、地下水における天然放射性核種の挙動が注目されている。地下水中の天然放射性核種（特にウランおよびトリウム壊変系列核種）は、一般に岩石-水相互作用の結果として放出されたものである。ゆえにこれら核種の挙動を理解するために重要なこととしては、その地下水が滞留する湧出母岩について、あるいはその地下水がどのような起源、性質を持った水であるかを知ることである。これらのことを十分考慮した上で、放射性核種の挙動について評価すべきであろう。そこで、本研究では、化学組成および同位体組成などから温泉水の起源、成因を考え、ウラン・トリウムの挙動について検討することにした。研究対象地域としては、長野県鹿塩温泉を選んだ。鹿塩温泉は、本州中央部の南アルプス連峰の谷間であり本邦最大の活断層である中央構造線の近くに位置する。鹿塩温泉は高濃度の食塩泉であり、その塩濃度は時として海水のそれを上回り ($Cl_{max.} = 23500\text{ppm}$, 益田ら, 1988; $Cl_{s.} = 19833\text{ppm}$) 古くは食塩の代用として用いられたこともある。このような塩水には、しばしば放射能泉が見出されることも多く、それらとの比較対象として有益であると考えられる。

【分析方法】 ウラン・トリウムについては、イオン交換法および溶媒抽出法により分離、精製し α 線スペクトロメリーにより定量を行った。他の主要および微量成分はINAA ICP法、原子吸光法、吸光光度法によった。水の酸素同位体は CO_2 交換法により CO_2 として水素同位体は亜鉛還元法により H_2 として質量分析計に導入し測定した。さらに、サンプリング時にアルカリ度、水温、pH、酸化還元電位、電導度、溶存酸素量の測定も行った。

【結果および考察】 鹿塩温泉の主要化学成分としては、 Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Cl^- が挙げられ、特に、 Cl^- 濃度は最高で16000ppmであった。下のTableに各主要成分の塩化物イオンに対する当量比を示した。なお比較対象として海水の当量比も示した。これより、明ら

Table The equivalent ratios of Na,K,Mg,Ca, SO_4 ,Br/Cl in Kashio springs.

	Na/Cl	K/Cl	Mg/Cl	Ca/Cl	SO_4 /Cl	Br/Cl
Kashio 4	0.87	0.057	0.014	0.106	0.00001	0.0009
Kashio 3	0.82	0.051	0.014	0.102	0.00004	0.0012
Kashio 2	0.77	0.048	0.012	0.102	0.00007	0.0008
Kashio 1	0.87	0.032	0.011	0.090	0.0002	0.0009
Sea water	0.84	0.018	0.19	0.037	0.10	0.0015

やいたつよし・さいとうゆうこ・きむらかん

かなこととして、海水に比べるとナトリウムはほぼ同程度であり、カリウムおよびカルシウムに富み、マグネシウムおよび硫酸イオンが劣化していることが分かる。温泉中で保存的な元素である臭化物イオンは、やや低めか同程度の値を示した。Fig.1に $\delta D, \delta^{18}O$ の関係、Fig.2に δD とCl⁻の関係を示した。Fig.1では、天水線(GMWL; Craig,1961)

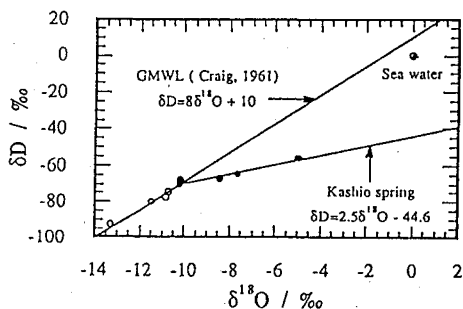


Fig. 1 The relationship between δD and $\delta^{18}O$ in Kashio spring waters.

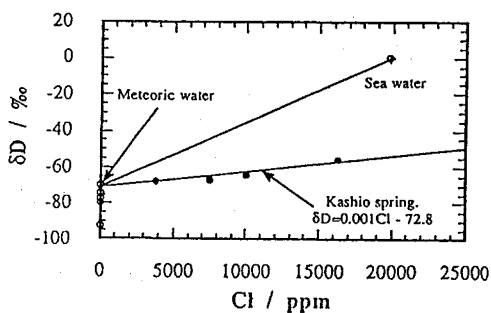


Fig. 2 The relationship between δD and Cl in Kashio spring waters.

から離れた傾向を示し、明らかにMeteoric water-Deep brineの混合系であることが、わかる。また、Fig.2においてSea water-とKashio spring-Meteoric water mixing lineとが異なっており、単純な海水起源水ではなく、何らかの変成を受けているか、あるいは別起源の深部水の存在を示唆している。

ウラン含有量は、0.数ppb以下のオーダーにあった。Fig.3から、ウランのフラックスとして二つの存在が考えられ、同位体的に深部水により近い試料であったKashio 4の試料においてウラン同位体比(ARs)が高かった。

トリウムは、非常に微量であり、検出限界以下であったが、²²⁸Thは平衡から考えて大過剰量存在した。

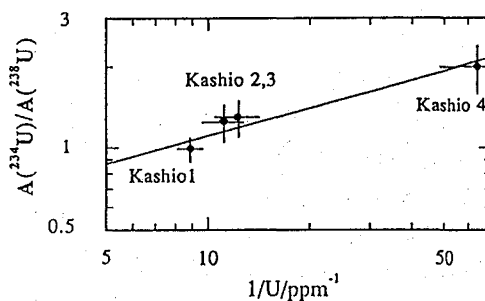


Fig.3 The relationship between ARs and reciprocal of U contents in Kashio springs

Chemical compositions, Uranium and Thorium in Kashio spring.

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University

Tsuyoshi YAITA, Yuko SAITO and Kan KIMURA

[はじめに]

環境中の ^{99}Tc (2.14×10^5 年) 測定法には放射能測定法と質量分析法がある。いずれにしても、環境中の ^{99}Tc は極めて低濃度であるため信頼できる分析法の確立が必要とされる。

放射能測定法では、最大エネルギー292keVの β 線を低バックグラウンド仕様のカウンターで測定する。分析法は他の β 線放出核種を完全に除去できるものでなければならない。当研究室では低バックグラウンドGMカウンターで海水中の ^{99}Tc を測定したが、300リッターの海水を回収率50%で処理したとすれば検出限界は0.05mBq/lとなる。試料の計数率が低いため ^{99}Tc であることの確認は、吸収体を用いた β 線エネルギーからの評価は困難であり、長時間放置(例えば1年)後に計数値の変化がないことから間接的に行うことになる。一方、質量分析法は質量を直接測定するため放射能分析法のような問題はない。しかし、当該質量を持つ妨害元素や化学種があればそれらの元素の除去が必要となる。

[実験]

本実験では、(1) ICP-MSによる ^{99}Tc 測定の基礎的条件、(2) 環境試料測定のための分析法の検討を行なった。ICP-MSは横河電気製PMS2000であり、質量検出部は四重極型であるため同重体の分離はできない。試料溶液は一定量をペリスタポンプでアルゴンプラズマ部に導入するようになっている。

[結果と考察]

ICP-MS測定の問題点と分析法

質量分析法で一番問題となるのは ^{99}Ru であり、pptレベルの ^{99}Tc を測定するためにはRuの完全な除去が必要となる。 ^{98}MoH の生成も考慮する必要があるが、表1に示すようにハイドライドの生成は無視できる。また、検量線のpptレベルでの直線性は図1に示すように極めてよい。

表1 ICP-MS測定による各質量の計数値(注参照)。積算時間は10秒である。

質量	95	96	97	98	99	100	101
Ru (1ppb)	303	7197	255	2507	15342	15784	21328
Mo (1ppb)	9679	10684	6132	15131	31	6268	17
抽出試薬ブランク未精製	16154	44610	6021	11783	206	805	108
抽出試薬ブランク精製後	1809	4406	1133	2811	33	1171	23
Ru, Mo (1ng) 抽出分離	2346	4361	1469	3476	59	1443	25
1N 硝酸	363	939	236	172	47	58	22

(注) 測定感度が測定日で異なるため、正確な比較には標準試料による補正が必要。

もしまのりゆき、ムハマド・サヤド、たかしまよしまさ

検討中の分析法を図2に示す。海水からの ^{99}Tc の濃縮は、前回の本討論会で報告した反復濃縮法を用い ^{99}Tc は水酸化鉄に共沈して回収する。大量の鉄(5g)を除く操作に伴う損失は約1割であり、 ^{99}Tc の回収率は85~90%であった。鉄からの回収操作を2度行なうと95%以上の ^{99}Tc は回収されることになる。陰イオン交換での回収率は85~90%であった。Ruの除去はアルカリ条件下でシクロヘキサノンで行なう。表1に示すようにRuの除去はほぼ完全に行なわれると思われる。 K_2CO_3 、シクロヘキサノン、シクロヘキサンにはRuが不純物として含まれているので、試薬の精製が必要となる(表1)。溶媒抽出での回収率は約90%であった。本分析法全体での回収率は60~70%であると思われる。

ICP-MSでの検出限界

質量99のバックグラウンドを5cps、7.5pg/mlの ^{99}Tc の計数率が52cpsとすれば、検出限界は約0.97pg/ml(0.6mBq/ml)となる。 ^{99}Tc 濃度が0.1mBq/lの海水100リッターを処理して、最終溶液量を5mlにすれば2mBq/mlのICP-MS測定溶液が得られことになり、十分検出可能と考えられる。そのためには、質量99のブランク計数値が安定していることと分析法からのブランク計数値の増加がないことが大切な条件となる。

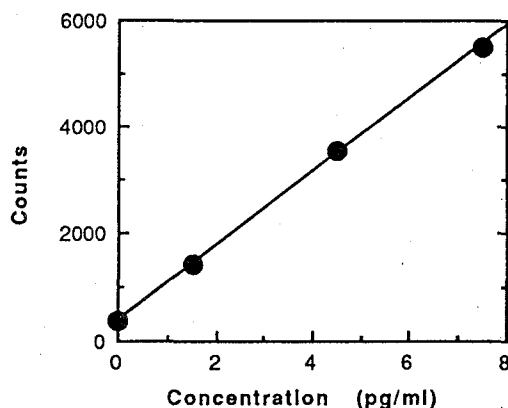


図1 ^{99}Tc の検量線

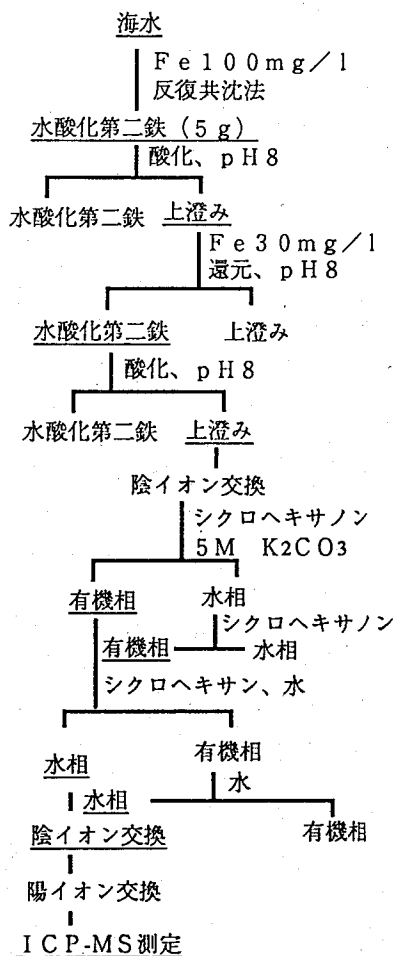


図2 ^{99}Tc 分析法

ANALYTICAL PROCEDURE FOR ^{99}Tc BY ICP-MS

Noriyuki MOMOSHIMA, Muhammad SAYADO, Yoshimasa TAKASHIMA

Faculty of Science Kyushu University

(放医研) ○平野茂樹、松葉満江、鎌田 博

緒言 環境中の⁹⁹Tcについてはかなり前から英国およびフランスの再処理施設近辺の海水と海藻中の濃度が高い事が知られていた。日本でも最近数年間にその分析例が報告されるようになって来たが、未だ関心は高くない。その理由として日本で使用された核燃料の大部分が英国で再処理されていたためにその再処理廃棄物が国内に多量に存在しなかった事が第一であろう。しかし今後、廃棄物が日本に返還されてその量が徐々に増し、また日本国内の再処理量が増加して来ると事情は異なる。

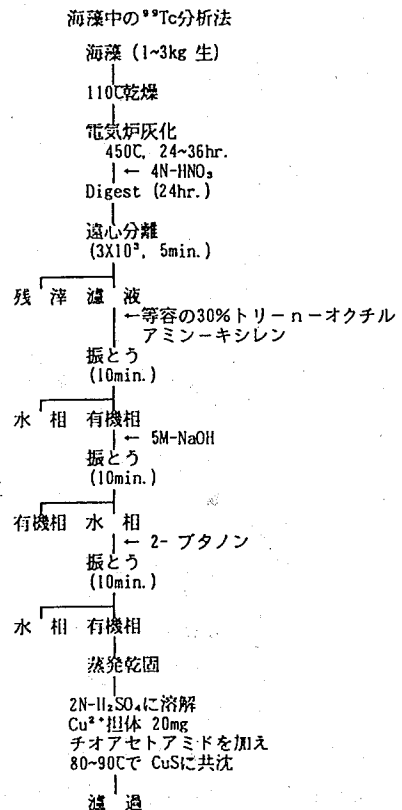
⁹⁹Tcの廃棄物としての処理・処分で問題となる点は幾つかある。第一の問題点はその半減期(2.14×10⁵年)の長さであり、核分裂収率が高い事と相まってその処分或いは保管に際して慎重に対策を講じなければならない。放射壊変のみによる減衰では10⁶年の保管を考えねばならず、これは常識的には無理な処分方法であろう。今のところ消滅処理等の処分法が確立していない状況ではこの核種の環境中の挙動の知識を出来る限り多く収集する必要がある。

演者らは1988年以来、環境試料中のこの核種の分析法を開発すると共に、各地の海産試料中の⁹⁹Tc濃度を定量して来たのでその結果を報告する。

試料 分析に用いた海藻は主に茨城県那珂湊市にある放医研・那珂湊支所近辺の海岸で採取したものと、この地点より北に約60km離れた北茨城市と、南に約70kmのところにある銚子市の海岸で採取したものである。また、青森県水産増殖センターの協力により得られた試料についても分析を行なった。

分析に供した海水も主に放医研那珂湊支所でポンプ揚水したものについて分析を行なった。また青森県の六ヶ所村(太平洋)と鰹ヶ沢(日本海)でポンプ揚水した海水をそれぞれ1m³ずつ分析した。更に東大海洋研の白鳳丸、KH-90-3次航海で得られた太平洋赤道近辺の7点で採取した海水についても分析を行なった。

分析法 採取した海藻は5等分し、それぞれ磁製皿に入れ110℃で乾燥した後450℃で36時間電気炉で灰化した。灰は4N-HNO₃を加えてホットプレート上で24時間加温した後、遠心分離した上澄液について右図に示す様に分析を行なった。



ひらのしげき、まつばみつえ、かまだひろし

海水は内径70mmのカラムにBio-rad AG 1-X8, C₀-型、50~100メッシュの樹脂を500ml 充てんし、これに毎分500ml の流速で通し⁹⁹Tcを前濃縮する。1,000リットルの海水を通した後、樹脂を2回水洗いし、4N-HNO₃を樹脂と同量加え、樹脂ごと分液ロートに移し海藻の場合と同じように30% TOA-Xyleneで抽出する。

環境試料中の微量の⁹⁹Tcを分析定量する際に常に問題となるのは収率の測定である。収率を測定する決定的な方法が無いので演者らはこれまで^{95m}Tcを用いた10分の一の規模のホットランを行い、そこで得られた収率を環境試料の定量の際に便宜的に用いて来た。今回も収率には従来と同じ値、0.7を用いて定量を行った。

海藻の分析については濃硝酸による湿式灰化による方法でホットランを行ったが、同じ地点、同じ時期に採取した海藻について湿式法と450℃電気炉灰化法で⁹⁹Tcを分析した結果が良く一致したので今回は多量の試料の分析に便利な電気炉灰化法を用いて行った。

結果および考察 海藻中の⁹⁹Tcは那珂湊市の海岸ではこれまでの測定ではウミトラノオ (*Sargassum thunbergii*) では2 Bq/kg・生から0.05Bq/kg・生くらいの範囲で大きく変化する事がわかっているが、1990年後半から1991年の前半にかけては大きな濃度変動は無かった。表1に2月から7月までの⁹⁹Tcの濃度を記した。4月に約140mBq/kg・生の少し高い値が見られるが、それ以外は50~70mBq/kg・生の値であり、これが恐らく那珂湊で採取されるウミトラノオのバックグラウンド値と思われる。これに対し北茨城市の五浦で採取したウミトラノオの⁹⁹Tc濃度は10mBq/kg・生前後である。また千葉県銚子市で採取されたヒジキ (*Hizikia fusiforme*) は2 mBq/kg・生であった。ヒジキはウミトラノオに比べ⁹⁹Tcの濃縮係数が $\frac{1}{2}$ くらいであるので、銚子のヒジキの⁹⁹Tcの値を原子力施設の影響の無い場所におけるバックグラウンド値とすると、五浦のウミトラノオの6月、7月の値は少し高いが、その変動の原因はわからない。

昨年後半から今年前半にかけて那珂湊市で採水した海水中の⁹⁹Tcは特に大きな変化は無く、37mBq/m³を超える値は測定されなかった。また青森県六ヶ所村で採水した海水については⁹⁹Tcを検出する事が出来なかったが、日本海側の鯨ヶ沢で採水した海水については 6.0 ± 2.3 mBq/m³ の値が得られた。

白鳳丸のKH-90-3 次航海では赤道をはさんで7点でそれぞれ1 m³の海水を採取し、分析したが、一点を除きBGレベルであった。但し05°N, 160°Eで 3.0 ± 2.9 mBq/m³ の値が得られた。

海藻中の⁹⁹Tc濃度

	平成3年 2月	3月	4月	5月	6月	7月
ウミトラノオ 那珂湊	55.6 ± 10.8 mBq/kg・raw	57.6 ± 22.2	139.3 ± 32.0	63.3 ± 18.9	73.9 ± 21.3	63.1 ± 10.9
ウミトラノオ 五浦	—	—	2.94 ± 1.19	—	10.9 ± 1.7	14.9 ± 3.2
ヒジキ 銚子	—	—	2.0 ± 0.4	—	2.3 ± 1.1	2.2 ± 1.1

DETERMINATION OF ⁹⁹Tc IN SEAWATER AND SEAWEEDES

Shigeki HIRANO, Mitsue MATSUBA, Hiroshi KAMADA, National Institute of Radiological Sciences

(金沢大理) ○中西 孝, 村松真文

【はじめに】

大気圏内核実験に由来する 239 、 240 Pu(以下Puと略記)の地表への年間降下量は、1985年以降において1960年代前半(大気圏内核実験が盛んに行われた)の約1/3,000のレベルでほぼ横ばいとなってきており(気象研等のデータによる)、陸域にいったん降下・土壌粒子に吸着したのち再浮遊したものが近年の大気中Pu及び大気中から地表に降下するPuの大部分と考えられている。近年の外洋表層に降下しているPuの大部分もこのような履歴のものと考えられる。一方、近年の北太平洋におけるPu濃度の深度分布をみると、海面下約800 mの濃度極大層とそれ以深(海底堆積物も含めて)に海水柱中のPu蓄積量の大部分が含まれ、表層海水中のPu濃度はかなり低い。さらに、北太平洋表層海水中のPu濃度は地表へのPu年間降下量の減少傾向にほぼ対応して経年的に減少してきており、表層海水中のPuはその採水前の数年間に海面に降下したものであることを示唆している。従って、近年の北太平洋表層海水中のPu濃度は陸域で再浮遊した土壌粒子の北太平洋へのフラックスを反映していると考えられ、フォールアウトPuをトレーサとして陸起源物質の大気経路による外洋へのフラックスの評価が可能と考えられる。なお、海洋への陸起源物質のフラックスは、それを栄養源とする植物プランクトンの量(従って二酸化炭素消費量)を規定する因子であるので、海洋表層への陸起源物質フラックスの評価は海洋の二酸化炭素吸収量の評価、ひいては大気中の二酸化炭素増加による気候変動予測に対する海洋の緩衝機能の評価に関係する。本研究では、北太平洋を対象に表層海水中のPu(及び 241 Am(以下Amと略記))濃度の測定とその測定結果に基づく陸起源物質のフラックスの予察的解析を試みた。

【実験】

東シナ海(1987年)及び北部北太平洋、ベーリング海(1988年)での東大海洋研・白鳳丸の研究航海に乗船して採取・トレーサ添加・共沈処理を行った約40測点の表層海水について、Pu及びAmの化学分離・精製、電着線源の調製、 α 線スペクトロメトリー(手順の概要は科技庁のプルトニウム分析法及びNakanishi et al., 1990に準ずる)を順次行ってPu-239, 240及びAm-241の定量を行った。

【結果と考察】

日本～北米大陸間の太平洋を横断する30～45°N帯の観測点列における表層海水中のPu及びAm濃度(1988年)の測定結果を図1に示す。図1のPuのデータは、日本近海の比較的高濃度から北米大陸近海の低濃度(日本近海の約1/10)へと低下していく傾向を最も明確に示している。しかし、この緯度帯の東側太平洋の表層海水中 Am/Pu放射能比は陸域に降下・蓄積しているものの値(約0.3)よりもはるかに高く、海水中でのPuとAmの何らかの挙動の差を反映していると考えられる。

一方、北太平洋への大気経路による陸起源物質のフラックスにおいてアジア大陸がその

なかにし たかし, むらまつ まさふみ

主要な発生源と考えられるが、アジア全域にわたっての表層土壌中のPu及びAmのデータは非常に乏しく、日本の水田土壌についての測定値 (Yamamoto et al., 1983) が唯一と言ってよい状況である。そしてまず、日本の太平洋側の水田土壌中のPu濃度 (0.08~0.6 mBq/g, 平均 0.3 mBq/g) 及びAm濃度 (0.03~0.2 mBq/g, 平均 0.09 mBq/g) はアジア大陸表層土壌中のそれらを代表すると仮定して図1の結果を試行的に解析したところ、けた違いに莫大な量の陸起源物質が太平洋に輸送されている結果になった。すなわち、表層土壌中のPu, Am濃度のままで土壌粒子が外洋に輸送されているのではないらしいことが分かった。次に、大気浮遊塵中のPu, Am濃度のデータを用いて再検討を試みた。しかし、そこにおいて大気浮遊塵に担われたPu, Amの大気中濃度 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ 等の単位) のデータはあるが、大気浮遊塵そのものの中のPu, Am濃度 (mBq/g-dust等の単位) の実測値は非常に少ないことが判明した。大気浮遊塵を捕集したフィルターについてのPu, Amの研究のほとんどにおいて、ろ過した大気体積は測定していても浮遊塵の質量の測定がほとんどなされていないのが大方の現状であるからである。従って、大気浮遊塵中のPu濃度に関する非常に乏しいデータに頼らざるをえないが、15 mBq/g-dust のレベルであるとして以下の推定を行った。図1に示した表層海水中のPu濃度 0.5~4 $\mu\text{Bq}/\ell$ を15 mBq/g-dust で割ると、30~270 $\mu\text{g-dust}/\ell$ の値が得られる。表層海水中のPu濃度は海面下100 m までの混合層中で均一であり、約10年間分の大気浮遊塵が滞留していることによるものとすれば、30~270 $\mu\text{g-dust}/\text{cm}^2/\text{y}$ のフラックスが算出される。この値はMidwayでの評価値 50 $\mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{y}$ (植松, 1987) と一応オーダー的に矛盾はしない。

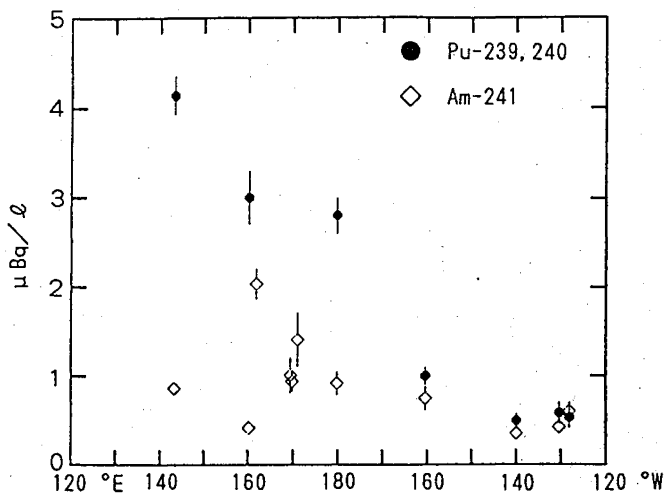


図1 太平洋の30~45 °N 帯における表層海水中的 $^{239, 240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度の経度分布 (1988年 6~8 月) .

ESTIMATION OF LAND-ORIGINATED AIR-DUST FLUX TO THE OCEAN ON THE BASIS OF DETERMINATION OF PLUTONIUM CONCENTRATION IN SURFACE WATER

Takashi NAKANISHI, Masafumi MURAMATSU
Faculty of Science, Kanazawa University

(金沢大LLRL) ○山本政儀, 桑原 潤, 小村和久, 上野 馨

1)はじめに

イギリスのSellafield 核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染されているIrish海は、その汚染レベルが高く超ウラン元素等の挙動についての知見を得る格好のフィールドである。演者らは、これまでIrish海の表層堆積物およびコア堆積物中の ^{237}Np をPu同位体、 ^{241}Am と共に測定し、 ^{237}Np の堆積物への沈積挙動を検討してきた。

今回は、これら試料中のCm同位体 ($^{244}\text{Cm}(T_{1/2}=18.1\text{y}, \alpha)$, $^{243}\text{Cm}(T_{1/2}=28.5\text{y}, \alpha, \text{EC})$, $^{242}\text{Cm}(T_{1/2}=162.8\text{d}, \alpha)$) の測定を試みた。Cm同位体は、高燃焼度の使用済核燃料の初期再処理廃液中において、全 α 放射能の中で最も高い割合で含まれており、局地的な α 汚染を引き起す可能性がある点で重視されている。

2)試料および測定

試料は、1988年7月にIrish海周辺の沿岸や河口の24地点で採取した表層堆積物(深さ1cm)およびEsk Bayの河口で採取した深さ25cmのコア試料(直径8.2cm, 1cm毎に切断)を用いた(Fig.1)。 ^{237}Np , Pu同位体, ^{241}Am などは測定済みである。Cmの分析は、試料1~数十gを用い、この元素が化学分離・精製, 電着中, Amと同じ化学挙動を取るYAMATOらの方法(塩酸-メタノール-チオシアン酸-陰イオン交換)を用いて行った。 α 線スペクトロメトリーにより $^{243}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ (α 線スペクトロメトリーでは ^{243}Cm と ^{244}Cm の α 線エネルギーが接近しているため弁別不可能)と $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比を測定した。絶対量は ^{243}Am をトレーサとして別に求めた ^{241}Am 濃度を上記の放射能比に乗じて求めた。

3)結果と考察

(1)Fig.2(A)に実際の試料から分離・精製したCm(Am)同位体の α -スペクトル例を示す。

^{242}Cm を計数誤差10%以内で測定するためには、 ^{241}Am が50~100万カウントに達する。Fig.2(B)に示す ^{243}Cm と ^{244}Cm を含む標準溶液の α -スペクトルとの比較から、試料には ^{243}Cm がほとんど含まれていないことがわかる(以後 $^{243}\text{Cm}, ^{244}\text{Cm} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$)。

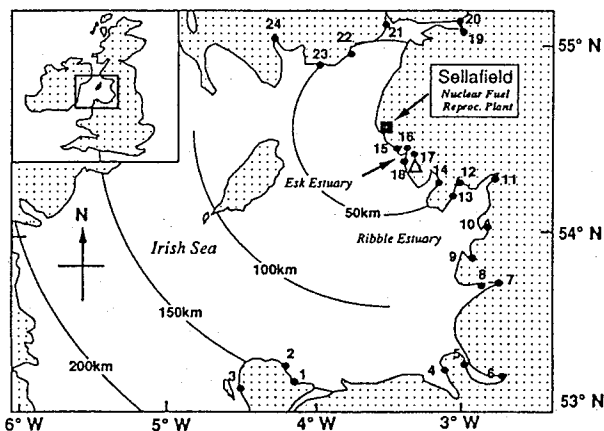


Fig.1 Sampling locations of (●) surface sediments and (Δ) core sediment.

やまもとまさよし, くわはらじゅん, こむらかずひさ, うえのかおる

- (2) Irish海周辺の沿岸や河口の24地点からの試料中の ^{244}Cm と ^{242}Cm については、Esk Bayで最も高い7.1Bq/kgと1.2Bq/kgの値がそれぞれ検出され、放出口からの距離が遠くなるにつれて濃度が漸減している。 $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比および $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比は測定日(試料採取から12~15ヶ月経過)での値で(0.28~0.39)% および(0.025~0.058)%であった。
- (3) ^{242}Cm については、Unsupported ^{242}Cm と $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2}=141\text{y}$, IT)から生成するSupported ^{242}Cm が存在している可能性があるので、Esk Bayの堆積物約20gを用いてCm(Am)を分離・精製し、2年あまり定期的に測定を繰り返してみた。Fig.3にその結果を示すが、Supported ^{242}Cm ,すなわち親核種の $^{242\text{m}}\text{Am}$ が $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比で(0.033±0.001)%存在していることがわかった。
- (4) Esk Bayからのコア試料については、深さ20cmまでの試料について ^{244}Cm , ^{242}Cm が検出でき、 $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比および $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比でそれぞれの(0.12~0.35)%, (0.017~0.046)%であった。

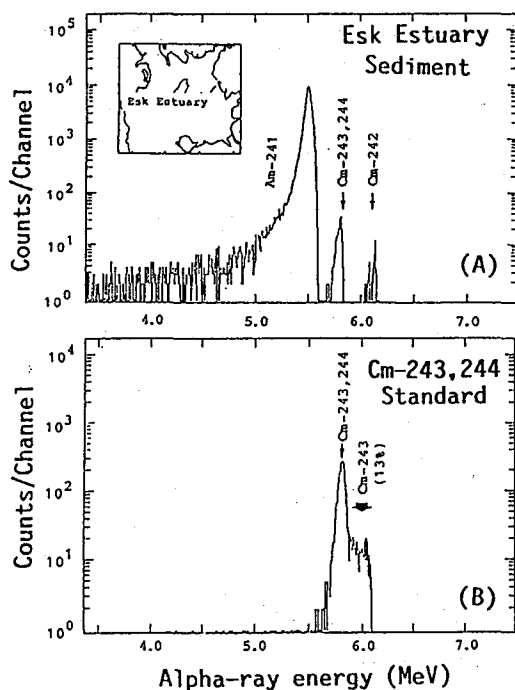


Fig.2 Alpha-ray spectra of (A) Cm(Am) fraction from the sediment sample and (B) Cm-234,244 standard.

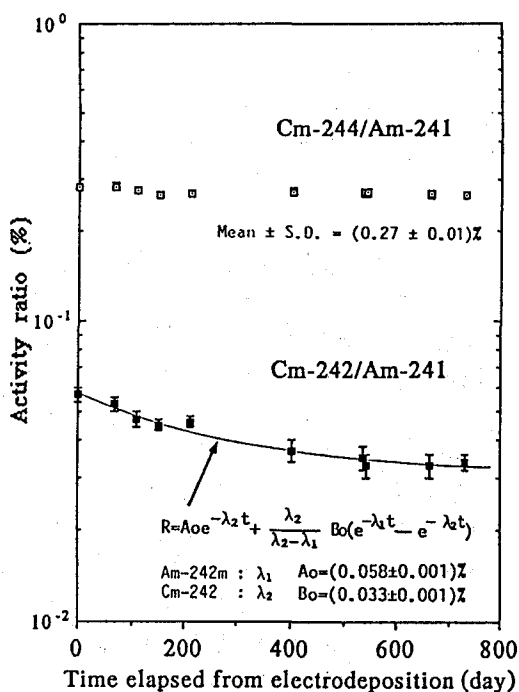


Fig.3 Decay of Cm-244/Am-241 and Cm-242/Am-241 activity ratios in sediment from Esk Estuary.

Cm Isotopes in Coastal Sediments in the Irish Sea

Masayoshi YAMAMOTO, Jun KUWAHARA, Kazuhisa KOMURA, Kaoru UENO,
 Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University.

(九環協、九大理*) ○松岡信明・岡村正紀・平井英治・高島良正*

【はじめに】 チェルノブイル原発事故はわが国の環境にも大きな影響を及ぼし、特に事故直後の東日本の ^{137}Cs 降下量は米ソによる大気圏内核実験停止直後とほぼ同じレベルに達した。九州での事故影響は東日本の1/10程度でそれほど大きくなかったが、いろいろな試料に核種の環境挙動を知る上で十分な量の放射能が検出された。当研究室では事故直後の約1ヶ月間に大気浮遊塵、雨水、河川水、水道水、牛乳、野菜及び海藻を、継続的あるいは定期的に採取し放射能測定を行った。これらのデータを総合的にとりまとめたところ、核種の環境挙動について二、三の注目すべき知見が得られたのでここに報告する。

【方法】 大気浮遊塵はエアサンプラー（柴田HVC-1000, 吸引速度 $1\text{m}^3\cdot\text{min}^{-1}$ ）を用いてろ紙（アドバンテックGB100R）上に毎日24時間捕集した。これと別に、5段のアンダーセン型分粒装置を装着したエアサンプラー（吸引速度 $0.56\text{m}^3\cdot\text{min}^{-1}$ ）で、4～7日間の粒径別捕集を数回行った。捕集終了後ろ紙を細かく切り、全体を厚さ5mm、直径48mmの円板状に圧縮成型して、Ge半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーを行った。

雨水は降雨毎に 0.5m^2 の水盤で集め、約1lをAgI共沈法による ^{131}I の捕集に供し、残りはロータリーエバポレーターで100mlまで濃縮して、それぞれGe半導体検出器による γ 線スペクトロメトリーを行った。他の水試料も同様に処理した。

生体試料（海藻、牛乳、牧草）は 110°C で6時間乾燥後、粉末化して γ 線スペクトロメトリーに供した。海藻は通常現地海水でよく洗浄したが、一部試料について、①現地海水で洗浄、②現地海水で洗浄後水道水で洗浄、③現地海水及び水道水で洗浄後水道水中で30分間煮沸、の三つの異なった前処理法を適用した。

【結果と考察】 事故後約1ヶ月間の福岡市における大気浮遊塵中の放射能の変動をFig. 1に示す。調査は1986年5月7日に開始しているので、このデータで汚染空気の福岡への最初の到着を特定することはできない。しかし、5月1～6日の間に一括捕集した雨水（降雨日1, 3, 6日）中には ^{131}I と ^{103}Ru が検出されたので、福岡への汚染空気の到着も日本の他の地域と同様5月3日あたりであったと考えられる。

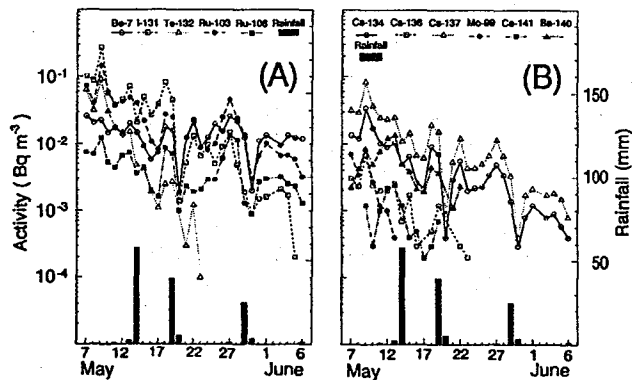


Fig. 1 大気浮遊塵中放射性核種の濃度変動

まつおかのおあき、おかむらまさき、ひらいえいじ、たかしまよしまさ

大気浮遊塵の放射能レベルは日本海側の福井より一桁低い、太平洋側の筑波とほぼ同じレベルであった。また、5月9日に福岡で採取した牧草中の ^{131}I 濃度(34.8 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$)は、同時期に台湾で採取された牧草より一桁高かった。これらから、極東では汚染空気の主流が日本の北部地域を通過したが、山岳地形が日本海側から太平洋側への放射性ダストの通過を大きく妨げたと考えられる。

Fig. 2は5月6~10日の間に福岡で捕集された大気浮遊塵の質量と浮遊塵中放射性核種濃度の粒径分布を対数確率紙上にプロットしたものである。この図から、チェルノブイル起源の放射性核種の中で、 ^{131}I の分布が他の核種に比べて大きな粒径へシフトしていることがわかる。このことは他の期間の測定でも同様であり、空気力学的放射能中央径(AMAD)は ^{131}I 以外の核種で $0.57\sim 0.85\mu\text{m}$ 、 ^{131}I で $0.94\sim 1.15\mu\text{m}$ であった。ちなみに浮遊粒子自体の質量中央径(MMD)は $2.9\sim 6.6\mu\text{m}$ であった。 ^{131}I の粒径分布が大きな方へシフトする理由は、大気中のガス状 ^{131}I の存在によって説明できる。すなわち、大気中のチェルノブイル起源 ^{131}I として粒子状の他にガス状の存在が報告されており、汚染空気の移動中にガス状 ^{131}I が比較的大きなMMDを有する浮遊粒子と結合することによって、捕集場所における浮遊塵中 ^{131}I のAMADが他の核種より大きくなると考えられる。

Table 1は事故後福岡県志賀島で採取された海藻の ^{131}I 濃度を示す。マクサ(紅藻類)は他の海藻(褐藻類)に比べて ^{131}I 濃度が高く、水道水で30分間煮沸した場合でも約80%が残留していることから、 ^{131}I が組織と強く結合していると考えられる。従って、マクサに取り込まれた ^{131}I は調理によって除去されにくいと考えられる。志賀島の海藻採取地点は外洋に面しているため海藻の放射能汚染レベルはそれほど高くなかったが、別に行った閉鎖性海域のマクサの継続的調査ではより高濃度の ^{131}I ($2770\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ wet wt)と、 ^{103}Ru ($339\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ wet wt)その他の核種が検出された。閉鎖性海域のマクサの放射能実測値をもとに、 ^{131}I と ^{103}Ru の濃縮係数ならびに生物学的半減期を計算した。 ^{131}I 及び ^{103}Ru の濃縮係数はそれぞれ 3×10^3 及び 5×10^3 であった。 ^{131}I の生物学的半減期は17.4dであった。 ^{103}Ru のマクサからの除去には二つのコンポーネントが考えられ、それぞれ5.5d以下及び32.9dの生物学的半減期を有すると考えられた。閉鎖性海域のマクサの調査結果を用いて、当該マクサを1日当たり10g直接摂取した場合の ^{131}I による預託実効線量を見積ったところ、 $2.5\times 10^{-3}\text{mSv}$ が得られた。

Table 1. チェルノブイル事故後福岡県志賀島で採取された海藻中の ^{131}I

種 類	採 取 日	^{131}I 濃度($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ wet wt) ¹⁾		
		Treatment 1 ²⁾	Treatment 2 ³⁾	Treatment 3 ⁴⁾
マクサ	May 12, 1986	114 ± 7	110 ± 8	89.1 ± 7.2
ヒジキ	May 17, 1986	62.5 ± 2.7	62.6 ± 2.9	14.1 ± 1.5
ウミトラノオ	May 17, 1986	28.3 ± 2.5	20.0 ± 2.5	8.27 ± 1.68
ワカメ	May 17, 1986	11.2 ± 1.8	6.83 ± 1.68	3.93 ± 1.34

¹⁾ 誤差は計数誤差

²⁾ Treatment 1: 現地海水で洗浄

³⁾ Treatment 2: 現地海水で洗浄後、水道水で洗浄

⁴⁾ Treatment 3: 現地海水と水道水で洗浄後、水道水中で30分間煮沸

STUDY ON THE ENVIRONMENTAL BEHAVIOR OF CHERNOBYL DERIVED RADIONUCLIDES IN KYUSHU
 Nobuaki MATSUOKA, Masaki OKAMURA, Eiji HIRAI, Kyushu Environ. Eval. Assoc.
 Yoshimasa TAKASHIMA, Faculty of Science, Kyushu University

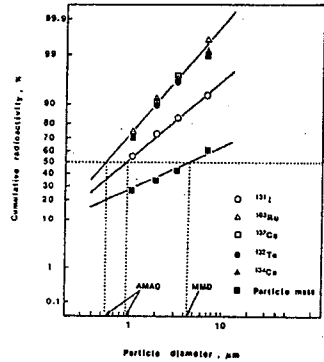


Fig. 2 1986年5月6~10日の大気浮遊塵中の核種の粒径分布

