研究発表要旨
9 月 30 日（水）

3A01 ～ 3A13：口頭発表　A 会場（国際会議場）

3A01

J-PARC 中性子源特性試験装置における中性子共鳴吸収を用いた即発γ線分析

（原子力機構・量子ビーム応[1]、原子力機構・J-PARC セ[2]、国際基督教大[3]、国立歴史民俗博物館[4]）　○松江 秀明[1]、春日井 好己[2]、原田 正英[2]、前川 藤夫[2]、久保 謙哉[3]、齋藤 努[4]

【はじめに】 J-PARC 物質・生命科学実験施設（MLF）の中性子源に昨年 5 月 30 日に初ビームが供給され MLF の BL10 ビームラインに設置された中性子源特性試験装置(NOBORU)でもパルス中性子ビームが観測された。この度、昨年 12 月 13 日と今年 1 月 28 日の二度に渡って、NOBORU にて即発γ線測定実験を行う機会が得られた。NOBORU で得られるパルス中性子ビームの中性子エネルギー分布は熱から熱外中性子領域に及び、通常の即発γ線測定のみならず、中性子飛行時間測定（TOF）を利用すれば中性子共鳴即発γ線スペクトル測定も可能である。本実験では即発γ線分析における主な分析対象元素及び比較的低エネルギーに中性子共鳴吸収を持つ元素の即発γ線測定及び即発γ線 TOF 測定を行った。さらに、中性子共鳴即発γ線分析のデモンストレーションとして厚さ方向に不均一組成を有する小判の非破壊バルク分析に応用した。

【実験】 図 1 に示す測定系を用いて即発γ線測定を行った。γ線測定には可搬型 Ge 検出器を用い、バックグラウンドγ線及び散乱中性子の遮蔽のためにそれぞれ鉛ブロックと天然 LiF タイルで遮蔽を行った。測定試料は試料-検出器間距離 45 cm の位置にテフロンフレームに固定して設置した。即発γ線エネルギー測定では、H、B、Cd 等の即発γ線分析において主な分析対象元素、TOF 測定では、Ag、In、Ta、Au 等の比較的低エネルギーに中性子共鳴吸収を持つ元素の測定を行った。小判試料としては、国立歴史民俗博物館から提供された天保小判を用いた。天保小判はテフロンフレームに固定しそのまま TOF 測定を行った。天保小判の Au/Ag 組成比定量のための標準試料としては、それぞれ既知量の Ag 板を Au 板で挟んで調製したものを用いた。

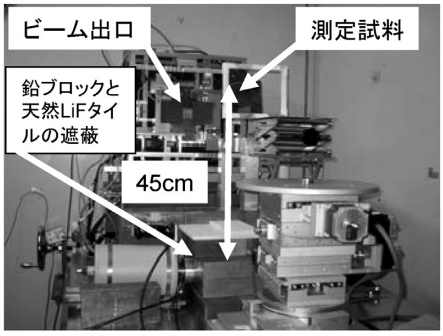


図1　NOBORUにおける即発γ線測定系

【結果と考察】 オンビーム時のバックグラウンドγ線スペクトルでは、Ge, In 等の Ge 検出器に由来するγ線ピークが確認されたが比較的良好なスペクトルが得られた。また、H、B、Cd の即発γ線スペクトルの測定も可能であった。TOF 測定では Ag、In、Ta、Au の中性子共鳴吸収 TOF スペクトルが得られ、明確な中性子共鳴ピークが確認された。天保小判では、図 2 に示す即発γ線 TOF スペクトルが得られた。金濃度定量には、0.45 msec の Au+Ag の複合ピークと Ag の 0.25 msec の単一ピークのピーク強度比を利用し、Au/Ag 標準試料のピーク強度比と比較した。その結果、天保小判の金濃度として 54 ± 1% が得られた。この値は、天保小判の文献値 57%と良い一致を示した。

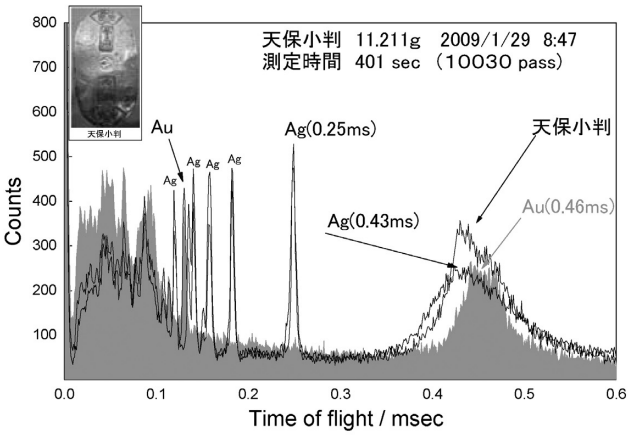


図 2　天保小判（（国立歴史民俗博物館提供）の中性子共鳴吸収TOF即発γ線スペクトル
(同測定条件におけるAu及びAg 標準試料の測定スペクトルも併記した)

Prompt gamma-ray analysis on J-PARC NOBORU
MATSUE H., KASUGAI Y., HARADA M., MAEKAWA F., KUBO K., SAITO T.

3A02

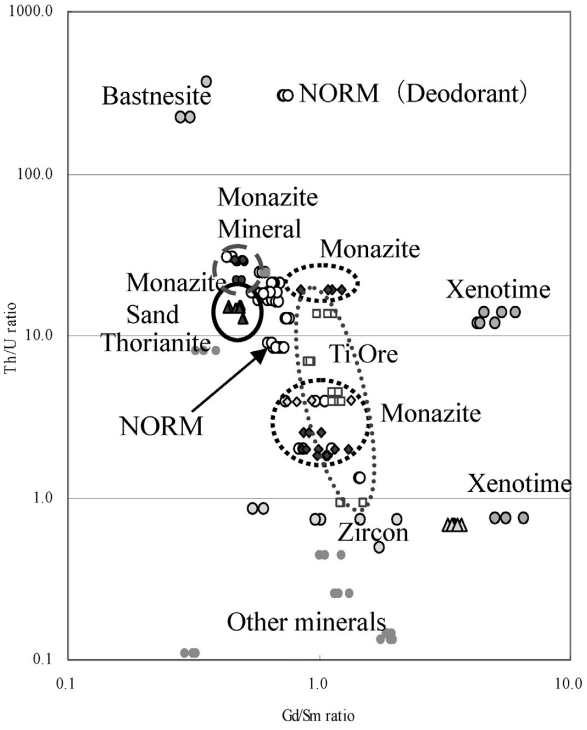
NORM 放射線源として用いられる鉱石の識別法の検討

(お茶の水女子大学[1]、慈恵医大[2]、都立大[3]、放医研[4])
○古田悦子[1]、箕輪はるか[2]、中原弘道[3]、岩岡和輝[4]、米原英典[4]

【はじめに】自然起源放射性物質は NORM(**N**aturally **O**ccurring **R**adioactive **M**aterial)と呼ばれ、現在その放射線防護上の管理について検討されているところである。NORM のうち一般消費財である NORM(本研究においては NORM と記す)は、製造者以外に消費者等の放射線被ばくの可能性を高める。本年 6 月には「ウラン又はトリウムを含む原材料、製品等の安全確保に関するガイドライン」が発効された。NORM の指定原材料としては、モナザイト、バストネサイト、ジルコン、ウラン鉱石、トリウム鉱石、チタン鉱石等が挙げられている。しかし、各 NORM の放射線源がどの鉱石なのか等は、科学的に解明されている訳ではない。NORM である化粧品に Sm,Gd の含有量が多いことは既に発表した[1)]。NORM に含まれる Gd/Sm 比(PGAA)と Th/U 比(HPGe)を比較することにより、NORM 放射線源となり得る鉱石の識別法を確立した。

【実験】NORM は、日本国内において流通販売され容易に入手可能な 27 種類を試料とした。工業用原材料は、チタン鉱石 9 種類、ジルコニウムサンド 2 種類である。比較用鉱石、鉱物はモナザイト、バストネサイト等の 27 種類を試料とした。試料の Th･U 系列の放射能は HPGe 検出器を用い求めた。試料は FEP フィルムに封入し、原研 JRR-3 の PGAA(熱中性子束；1.6×10^{8} n cm^{-2} s^{-1})において 300-50,000 秒照射、測定した。標準試料は、原子吸光用試薬 (和光純薬) の Sm、Gd と、岩石標準試料 JR-2 ， JA-2 を用いた。

【結果および考察】NORM 中の Th,U の濃度間に相関関係はなかったが、Sm, Gd の濃度は直線関係を示した。他方、鉱石の Th,U および Sm,Gd の濃度は同一鉱石では近い値を示したものの、相関関係はなかった。一方、NORM 及び鉱石中の Th/U を Gd/Sm の濃度比と比較した場合(右図)、NORM の殆どが、モナザイト群および Ti 鉱石と一致した。さらに、Ti 鉱石中の Th,U 濃度が NORM に比べ低いこと、NORM の PGAA スペクトル中に Ti の γ 線が検出できないことから、NORM の放射線源は、モナザイトであると識別できた。



Relationship between Th/U ratio and Gd/Sm ratio.

【まとめ】一般消費財としての NORM の放射線源はモナザイトであると識別できた。Th/U に対する Gd/Sm 比を求める本法は、NORM 放射線源を求めるための極めて有効な識別法である。

1） 放射化学討論会講演要旨集, 3P06, 8, p114 （2007）.

Identification method of ores used for the radiation source in NORM

E.FURUTA[1], H.MINOWA[2], H.NAKAHARA[3], K.IWAOKA[4] and H.YONEHARA[4]
1;Ochanomizu University Graduate School, 2;Jikei University School of Medicine, 3;Tokyo Metropolitan University, 4;National Institute of Radiological Sciences

3A03 雪氷中のダスト粒子に含まれる人為起源物質比の推定

(東大院総合[1]、原子力機構[2])○小豆川勝見[1]、松尾基之[1]、大島真澄[2]、 藤暢輔[2]、木村敦[2]、小泉光生[2]

[はじめに] 本研究では降雪環境の異なる国内の複数の地点において冬期に積雪した雪氷試料を採取し、その中に含まれる大気粉塵(ダスト)中の粗大粒子の Enrichment Factor(EF)に着目することによって、冬期季節風によって風送された各元素の人為起源物質比の検討を行った。雪氷中のダスト濃度は極めて希薄かつ高マトリクスであり、その定性･定量にはバックグラウンドが低く高感度な分析手法が期待されるため従来の機器中性子放射化分析(INAA)法に加え、多重即発ガンマ線分析(MPGA)法による測定も行い、希薄試料における測定条件の最適化を試みた。

[実験] 分析に供した試料は 07-08 シーズンに丸山(新潟)、立山連峰(富山-長野県境)、金精峠(群馬-栃木県境)で採取された積雪である。採取地点周辺では融雪による run-off の可能性は極めて低いと判断し、降雪以外のダスト供給源はないと考えた。採取した試料は自然融解後、清浄な環境下で孔径 0.45μm のメンブランフィルターで一定量濾過した。濾紙は適切なサイズに切断し、ポリエチレンおよび FEP フィルムでシールした。STELLA による MPGA 測定では 24 台の Ge 検出器(BGO 含む)を用いて γ-γ 測定を行い、試料毎に 1 時間の測定を 5 回繰り返した。各リストデータをソーティングし 2 次元マトリクス同士を演算することによって、1 時間から 5 時間までの累積測定時間の結果を得た。またブランク(濾紙)のオフセットも上記の手法により考慮した。なお濾紙上にあるダスト試料の正味の重量は測定することが困難であるため、標準参照試料との比較から得られる重量値から EF を求めた。また S については高エネルギー加速器研究機構 Photon Factroy において X 線吸収微細構造(XAFS)法を同試料に適用した。

[結果と考察] 表に丸山および室堂(立山連峰･西側)地点で得られた試料の V および Zn の EF を挙げた。MPGA による 1 時間測定は誤差が大きく十分な精度が得られず本試料の測定時間として明らかに不適であり、測定時のセットアップではおおよそ 3 時間程度の測定時間が必要であることが分かる。また Zn は MPGA 測定で非常に感度が悪いと報告されている[1]が、測定時間とともに誤差が改善される傾向が見られ、室堂試料では 3 時間以上の測定によって、INAA の結果と調和的になることが明らかになった。ダスト中の V および Zn はそれぞれ石油燃料燃焼に由来するが、Zn は室堂で特に高い値(40 程度)を示し、冬期においての人為起源物質の負荷が大きいことが示唆される。V も同様の発生源であると推定されるが、揮発後に凝縮し微少粒子化することで水溶性が高い特徴があり、これが EF<1 になる理由と考えられる。本研究で用いた粗大粒子は大気に放出後速やかに乾性沈着によって大気中から除去されるため、発生源からの移動距離は最大でも数 10km とされる[2]。採取した室堂付近では道路からの巻き上げダストおよび除雪車によるディーゼル排煙による汚染が目視できたものの、丸山は周辺には明確な人為起源の供給源は見あたらなかったことも EF と調和的である。また XAFS 法によりダストに含まれる硫化物および硫酸塩の分離を行い、興味深い知見が得られたので併せて報告する。

[参考文献]

1) 木村、大島、*鉄と鋼*、**90**(12), 1004 (2004)
2) Wilson W.E., Suh H.H. *J. Air & Waste Manage. Assoc*. **47**, 1238 (1997)

Table. Enrichment factors (EF) measured by MPGA and INAA at sampling points. The values in parentheses indicate errors which arise in each measurement

	Z	Stations	EF (n=3)					
			INAA	MPGA				
				3600s	7200s	10800s	14400s	18000s
Zn	65,67	Maruyama	7.50(0.7)	2.62(1.0)	3.52(0.8)	3.35(1.8)	3.78(0.8)	3.15(1.0)
		Murodo	41.4(4.0)	n.d(-)	74.8(68)	39.6(21.3)	41.3(21.0)	35.3(20.7)
V	52	Maruyama	0.20(0.1)	0.08(0.0)	0.148(0.0)	0.142(0.0)	0.145(0.0)	0.141(0.0)
		Murodo	1.80(0.2)	n.d(-)	2.83(1.0)	1.46(0.3)	1.58(0.3)	1.26(0.3)

Estimation of the anthropogenic matter ratio of dust particles trapped in snow core
SHOZUGAWA, K., MATSUO, M., OSHIMA, M., TOH, Y., KIMURA, A., KOIZUMI, M.

3A04

多重即発ガンマ線分析法の宇宙地球化学的試料への適用

（首都大院理工[1]，原子力機構[2]）○渡部良[1]，大浦泰嗣[1]，海老原充[1]，
大島真澄[2]，藤暢輔[2]，木村敦[2]，小泉光生[2]，古高和禎[2]，村上幸弘[2]

【はじめに】即発ガンマ線分析（PGA）は高感度な非破壊多元素同時定量法であるが，各元素から放出される即発ガンマ線の数が多いため，放出するガンマ線強度が小さい微量元素は主要元素のガンマ線の妨害により検出が困難になることが多い。多重ガンマ線検出法を利用した PGA である多重即発ガンマ線分析（MPGA）ではカスケード即発ガンマ線の同時計数により，ピークの分解能が向上する。よって，MPGA ではガンマ線の重畳が減少するため従来の PGA で測定困難な微量元素の定量や定量値の確度向上が期待される。

本研究では MPGA で宇宙地球化学的試料を正確に定量するために再現性， S/N 比，試料重量などについて検討を行った。

【実験】照射と測定は日本原子力研究開発機構の JRR-3M 冷中性子ビームラインに設置された MPGA 装置で行った。FEP フィルムに封入した試料を CO_2 雰囲気下で 2×3 cm^2 の冷中性子で照射しながら，クローバー型 Ge 検出器 8 台と BGO シンチレータで構成された検出器システムで即発ガンマ線を測定した。測定データはイベントごとに記録し，測定終了後，sorting により 2 次元スペクトルを作った。不感時間を補正するために ^{133}Ba 標準線源を常に同時に測定した。

【結果】 異なる sorting 法で得られたピークの S/N 比を比較した。normal 法に比べて, add-back と anticoincidence 法では約 2 倍 S/N 比が向上した。add-back 法は同一クローバー検出器内の Ge 検出器で同時に検出したガンマ線エネルギーを足し，1 つのコンプトン散乱しなかったガンマ線として処理する。よって，偽のイベントを含む可能性の低い anticoincidence 法を採用することにした。

MPGA に適した試料量を検討するために重さの異なる JB-1a（9.59 mg，48.2 mg，144 mg）と JB-1（206 mg）を照射し，Fe，Ti，Si からのガンマ線ピークの S/N 比と計数率を比較した（Fig. 1）。S/N 比は試料量増加と共に 150 mg までは増加し，その後ほぼ一定となった。また，計数率も不感時間のため試料量に比例せず，150 mg を超えると試料量増加に見合った計数率の向上はほとんど見込めない。そのため，150 mg～200 mg 程度の試料量が測定に適していると判断した。

上記の検討結果より JB-1（206 mg）を比較標準試料として Allende 隕石（233 mg）と Gold Basin 隕石（153 mg）を分析した。Si，Fe，Ti，K，Ca，Mn，Co のピークを確認できた。^{133}Ba の計数率を用いて不感時間の補正を行い，Si，Fe，Ti の定量を試みた結果，Fe，Si は文献値と± 3%以内でよく一致し，Ti は系統的に 15%程低かった。現在，ほとんど主要元素からのガンマ線しか確認していないが，今後，微量元素の定量性についても検討する予定である。

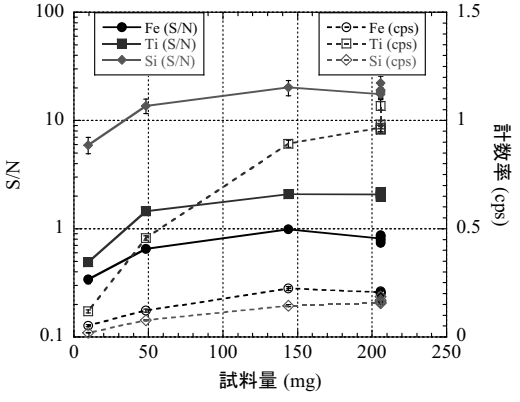


図1 試料量と各元素ピークのS/N比および計数率との関係

Application of multiple prompt gamma ray analysis (MPGA) to geochemical and cosmochemical samples

WATANABE, R., OURA, Y., EBIHARA, M., OSHIMA, M., TOH, Y., KIMURA, A., KOIZUMI, M., FURUTAKA, K., MURAKAMI, Y.

3A05 ユレライト隕石中の微量希土類元素の放射化学的中性子放射化分析による定量

(首都大院理工)○粟飯原はるか、大浦泰嗣、海老原充

【はじめに】 希土類元素 (Rare Earth Elements; REEs) は地球・宇宙化学で最も重要な元素グループの一つである。分化した石質隕石であるユレライト中では希土類元素が枯渇しており、正確な定量値を求めるためには放射化学的中性子放射化分析 (Radiochemical Neutron Activation Analysis ; RNAA) 法が最も信頼性の高い分析法といえる。本研究では RNAA によりいくつかのユレライト隕石の希土類元素を正確に定量することを目的とした。正確な希土類元素のデータを得るためには ^{235}U の中性子誘導核分裂による軽希土類元素 (light REEs; LREEs) への寄与を出来るだけ正しく補正する必要があるが、本研究ではその点に特に焦点を当て分析値の評価を行った。

【実験】 ユレライト隕石とともに比較参照試料として Allende 隕石とかんらん岩の岩石標準試料 JP-1 の分析も並行して行った。各試料約 70 mg を石英管に封入し、希土類元素の化学標準試料とともに日本原子力研究開発機構の研究炉 JRR-3 にて中性子照射を行った。RNAA の操作は Minowa and Ebihara (2003) [1]を基にしたが、これは水酸化物・フッ化物沈殿の生成と二つのカラム分離から構成される。化学収率は誘導結合プラズマ原子発光分析により求めた。

【結果・考察】 希土類元素 10 元素 (La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Tm, Yb, Lu) が定量された。ユレライトの CI-chondrite で規格化した希土類元素のパターンは中希土類元素が枯渇しているいわゆる V 字型パターン、または相対的に軽希土類元素が枯渇し重希土類元素に豊む右上がりのパターンを示した。軽希土の枯渇はおそらく斜長石成分の欠如の結果であると考えられる。一方、V 字型パターンは軽希土に豊富な地球成分による汚染か、ユレライト母天体上での火成プロセスで生成した液体成分をトラップしたためと考えられる。

本法では La, Ce, Nd の定量には ^{140}La, ^{141}Ce, ^{147}Nd を用いるが、これらの核種は中性子誘導核分裂 ^{235}U (n, f) の生成物としても生成される。従ってこれら 3 元素の正確な定量値を得るためには ^{235}U の核分裂からの寄与を見積もり、補正を行う必要がある。核分裂により生成される ^{141}Ce, ^{147}Nd の β 崩壊の親核種の半減期が短いために中性子捕獲後、短時間で ^{141}Ce, ^{147}Nd が生成されるが、^{140}La は ^{140}Ba との間で過渡平衡が成立し、さらに化学分離操作の途中で La と Ba の分離が起こるため、寄与の見積もりが複雑になる。Ba と La の分離は ^{131}Ba を用いたトレーサ実験により RNAA の分離操作過程で完全に実現されることを確認した。 U/LREEs 比が低い Allende 隕石での La, Ce, Nd への核分裂生成物の寄与は 0.1%以下であり、どの元素の定量値に対してもその寄与分を無視することができるが、高い U/LREEs 比を持つ JP-1 では La, Ce, Nd への寄与がそれぞれ 4%, 21%, 25% にまで達した。中性子誘導核分裂の補正を行うには正確な U 濃度を知ることが不可欠であるが、ユレライト隕石の U 濃度の報告値はほとんどない。希土類元素濃度と同じように非常に欠乏しているとの報告があり、Allende 隕石同様、核分裂の影響は深刻ではないと予想される。しかし、地球に落下後、長時間経過して回収された隕石では、地上での風化等の影響により U 濃度が高くなっている可能性もあり、同一試料に対して希土類元素と同時に U の濃度を求める必要がある。今後希土類元素と U の同時定量法の検討を行う予定である。

[1] H. Minowa and M. Ebihara, Anal. Chim. Acta 498 (2003) 25.

Determination of trace lanthanoids in ureilite meteorites by radiochemical neutron activation analysis
AIHARA, H., OURA, Y., EBIHARA, M.

3A06 浅間火山からの噴出物における $^{230}Th/^{232}Th$ 放射能比

(明大研究・知財戦略機構[1]、電力中研[2]、明大[3])○栗原雄一[1]、高橋賢臣[2]、佐藤 純[3]

【はじめに】沈み込み帯の火山から噴出するマグマは、沈み込むプレートから放出される H_2O を主体とする流体がマントルへ付加することによって発生すると考えられている。ウランはトリウムに比べて H_2O を主体とする流体によって移動し易いため、沈み込み帯の火山の下で発生したばかりのマグマでは、^{238}U-^{230}Th 間が、^{230}Th に比べて ^{238}U が多い $^{230}Th/^{238}U < 1$ の放射非平衡になると考えられる。これまでに、伊豆弧の火山噴出物では、$^{230}Th/^{238}U < 1$ の放射非平衡であることが報告されている[1)-3)]。また、$(^{230}Th/^{232}Th)$-$(^{238}U/^{232}Th)$ 放射能比ダイアグラムにおけるプロットの分布から、伊豆−マリアナ弧の下のマントルにおける U/Th 比は、0.3 ($^{238}U/^{232}Th$ 放射能比で約 1) よりも高い値であることが報告されている[1)-4)]。我々は、浅間火山からの噴出物における ^{238}U-^{230}Th 間の放射平衡・非平衡を観測し、浅間火山の下のマントルにおける U/Th 比について考察した。

【試料・実験】試料には、浅間火山の 4 世紀に噴出した下の舞台溶岩流および 1108 年の追分火砕流・上の舞台溶岩流、1783 年の天明降下軽石・鎌原火砕流・鬼押出し溶岩流を用いた。試料中の U と Th の同位体は、試料を HF-$HClO_4$-HNO_3 の混酸により分解した後、陰イオン交換樹脂を用いて分離した。さらに、UTEVA Spec. resin と TEVA Spec. resin によりそれぞれを精製した後、ステンレス皿に電着して α 線スペクトロメトリ用の線源を作製し、同位体希釈法により U と Th の同位体を定量した。

【結果・考察】浅間火山の噴出物についての $(^{230}Th/^{232}Th)$-$(^{238}U/^{232}Th)$ 放射能比ダイアグラムを図 1 に示す。また、伊豆−マリアナ弧の火山噴出物についてのデータも同ダイアグラム上にプロットした[1)-4)]。浅間火山の噴出物は、伊豆−マリアナ弧の火山噴出物と同様に、^{230}Th に比べて ^{238}U が多い $^{230}Th/^{238}U < 1$ の放射非平衡であった。これは、沈み込む海洋プレートからの H_2O を主体とする流体によって、ウランがトリウムよりも多くマントルウェッジに付加されたためであると考えられる。浅間火山の噴出物における $^{230}Th/^{232}Th$ 放射能比は、0.91-0.95 の範囲にあり、伊豆−マリアナ弧の値 (1.02-1.67) に比べて低い値であった。$(^{230}Th/^{232}Th)$-$(^{238}U/^{232}Th)$ 放射能比ダイアグラムにおいて、浅間火山の噴出物のプロットは、伊豆−マリアナ弧のプロットとは明らかに異なる一群を形成していた。このことから、浅間火山のマグマは、伊豆−マリアナ弧とは異なる U/Th 比を持つマントルから生成され、その値は、0.3 ($^{238}U/^{232}Th$ 放射能比で約 1) よりも低い値であると考えられる。

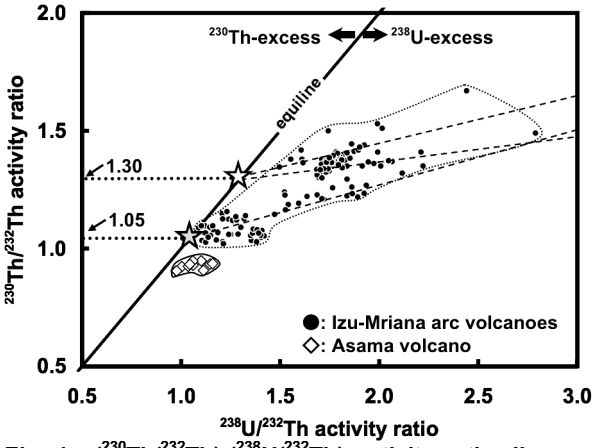


Fig. 1 $(^{230}Th/^{232}Th)$-$(^{238}U/^{232}Th)$ activity ratio diagram for the products from Asama volcano. Solid circles represent data sets for Izu-Mriana arc volcanoes[1)-4)].

参考文献

1) T. Yokoyama, K. Kobayashi, T. Kuritani and E. Nakamura, *J. Geophys. Res.*, **108**, doi:1029/2002JB002103 (2003)

2) Y. Kurihara, M. Takahashi and J. Sato, *RADIOISOTOPES*, **56**, 795-809 (2007)

3) S. Fukuda, S. Nakai, K. Niihori, M. Tsukui, S. Nakada, T. Fujii and K. Tani, *Geochem. J.*, **42**, 461-479 (2008)

4) T. Elliott, T. Plank, A. Zindler, W. White and B. Bourdon, *J. Geophys. Res.*, **102**, 14991-15019 (2003)

Activity ratio of $^{230}Th/^{232}Th$ in the products from Asama volcano, Japan

KURIHARA, Y., TAKAHASHI, M., SATO, J.

3A07

C-14 をトレーサーとした河川水懸濁態有機物の動態研究

(金沢大・環日セ [1]、環境研・化学環境 [2]、北大院・地球環境 [3]、原子力機構・基礎工学 [4])○長尾誠也 [1]、荒巻能史 [2]、入野智久 [3]、内田昌男 [2]、柴田康行 [2]、外川織彦 [4]

【はじめに】陸域から海洋へ供給される溶存態および懸濁態有機物は、地球表層での炭素循環において重要な移行成分と考えられている。懸濁態有機物は河川から海洋への有機炭素の移行量の 40～60%を占め、炭素循環のみならず、沿岸生態系の維持等に関係している。最近では、雪解けや降雨時に移行する有機物の重要性が指摘され、起源やその移行挙動に関する研究が進められている。懸濁態有機物の起源推定や移行性に関しては、$\delta^{13}C$ 値、リグニン含量やその組成、脂肪酸の組成等が用いられてきた。有機物のバルクの特徴を把握することができる$\Delta^{14}C$ と$\delta^{13}C$ 値とを組み合わせた解析評価手法は、陸域での有機物の移行動態を検討するトレーサーとしての有効性が報告されている。本研究では、流域から河川への懸濁態有機物の流入機構を明らかにするため､流域環境が異なる 7 つの河川の下流域における懸濁態有機物の$\Delta^{14}C$ と$\delta^{13}C$ 値を測定した結果を報告する。

【実験】石狩川、十勝川、沙流川、別寒辺牛川、久慈川、那珂川、鬼怒川の下流域で 2002～2007 年の 8 月から 9 月にかけて、河川表層水を流心より採水した。河川水中の懸濁粒子は、河川水 19～50 L から連続遠心法により分離し、凍結乾燥した後に粉末試料とした。C-14/C-12 の測定は、原子力機構青森研究開発センターと国立環境研究所の加速器質量分析計を使用した。測定した値は$\Delta^{14}C$=(((pMC/100)-1)x1000)として表した。また、C-13/C-12 の測定は、質量分析計により行い、$\delta^{13}C$ 値として表した。懸濁粒子の有機炭素含量、全窒素含量は元素分析計により測定した。

【結果と議論】河川懸濁粒子の特徴は、観測する年や季節により河川の流況や流域環境に関連し変動することが報告されている。そのため、8～9 月の期間における対象河川での変動幅を把握するため、石狩川において 2004 年の 8 月と 9 月、2006 年の 8 月と 9 月の計 5 試料について$\delta^{13}C$ 値と$\Delta^{14}C$ 値を測定した。それぞれの平均値は-26.8±0.3‰と-181±32‰であり、この程度の変動が観測した 2 ヵ月間に流域毎に起こる可能性が考えられる。

本研究で対象とした、7 つの河川水懸濁態有機物の$\delta^{13}C$ 値は、-28.8～-22.7‰の範囲を示した。低層湿原を流れる別寒辺牛川の懸濁態有機物の 2004 年と 2005 年 2 試料の$\delta^{13}C$ 平均値は-28.8±0.1‰と他の河川に比べて低い。一方、那珂川では$\delta^{13}C$ 値が-22.7‰と高く、その以外の河川では-26.8～-25.8‰とほぼ一定の値を示した。

河川水懸濁態有機物の$\Delta^{14}C$ 値は-296～+20‰と$\delta^{13}C$ 値に比べて比較的大きな変動を示した。低層湿原を流れる別寒辺牛川では、+18±2‰と核実験以後の比較的新しい有機物の寄与が大部分を占めている。それ以外の主に褐色森林土を有する流域の河川では、-296～-94‰といずれも見かけ上古い有機物の移行を示唆している。全体的な傾向として、$\Delta^{14}C$ 値 vs$\delta^{13}C$ 値、C/N モル比 vs$\delta^{13}C$ 値には明瞭な関係は認められなかった。これらの結果は、河川懸濁粒子の有機物の起源は、それぞれの河川流域の特徴に依存して支配されていることが考えられる。

Study on dynamics and sources of POC in river systems using ^{14}C as a tracer

NAGAO S., ARAMAKI T., IRINO T., UCHIDA M., SHIBATA Y., TOGAWA O.

3A08

地下水中の Kr-85 の分離

(京大・炉[1]、九大・RI センター[2]、九大・大院理[3]、産総研・地圏[4]、熊大・理[5]、地球研[6])○太田朋子[1]、馬原保典[1]、百島則幸[2]、井上史士[3]、井川怜欧[4]、嶋田 純[5]、窪田卓見[1]、谷口真人[6]

【はじめに】Kr-85 は半減期 10 年の放射性核種であり、滞留時間が数 10 年のスケールの地下水の年代測定に適用できることが期待できる[1]。地下水中の Kr 同位体は大気由来であるが、現在、大気中の ^{85}Kr 濃度は 1.5 Bq/m^3 であるので、大気と平衡の地下水中の ^{85}Kr の濃度は極低濃度である。^{85}Kr は液体シンチレーションカウンター, LSC, で測定できるが、^{85}Kr を検出するためには、10^4 L オーダーの大量の試料水から Kr 同位体を分離・捕集する必要がある。

地下水中の ^{85}Kr の分離は試料水を加熱して溶存 Kr を degassing する手法[2]などがあるが、大量の試料水をフィールドで分離する手法としては困難である。近年、Probst et al.[3]は、地下水中の ^{85}Kr の分離に中空糸膜を利用した手法の検討を行っているが、この手法はフィールドで大量の試料水から溶存ガスのみを分離できるので、従来の分離手法と比較してフィールドに適していると考えられる。しかし、この手法による Kr の分離効率は 70%以下であり、さらなる分離効率の改良が望まれている。筆者らは、フィールドで大量の地下水から ^{85}Kr を効率よく分離・捕集するために、中空糸膜を備え付けた Kr 抽出ラインを作成し、分離手法の検討を行った。

【Kr トレーサー試験】試料水中の Kr の分離は、水用フィルター、中空糸脱気モジュール、真空ポンプ、ガスボンベをとりつけたものを用いた。抽出ラインは全て SUS 製である。抽出装置の詳細と性能特性等は Ohta et al.[4] に記載してある。Kr トレーサー試験用の試料水は、高純度 Kr ガスを水道水へ添加させたものを用いた。Kr を混合させた試料水を Kr 抽出装置へ通水させ、抽出装置へ通す前後の試料水を採取した。試料水中の Kr の分離効率は、Kr 抽出装置でガスを分離する前後の水中の Kr 濃度を指標とした。Kr 抽出装置の分離性能の検討を行ったところ、24L/min の分離速度で 99%の Kr を水中から分離することが可能であった。

【フィールドワークへの応用】この抽出装置を用いて、本邦の 3 つの地下水から ^{85}Kr の分離・捕集を行った。捕集した Kr を分離・精製し、^{85}Kr の放射能強度と Kr 量を各々LSC と GC で測定を行った（LSC による ^{85}Kr の測定の詳細は Momoshima et al.[5] に記述がある）。この分離手法を用いてフィールドにて、10^4L オーダーの地下水から効率よく ^{85}Kr の抽出を行うことが可能であった。

【参考文献】

1) Bauer, S. et al., *J. Hydrology*, **248**, 14-34 (2001).
2) Oeschger, H. et al, *Groundwater Hydrol.*, **2**, 179 (1974).
3) Probst, P. C. et al., *Proceedings of the 4th Mini Conference on Noble Gases in the Hydrosphere and in Nature Gas Reservoirs held at GFZ Postsdam* (2007).
4) Ohta, T. et al., *J. Hydrology*, (*in-press*).
5) Momoshima, N. et al., *J. Environ. Radioactivity* (Submit).

Separation of dissolved ^{85}Kr in groundwater

Ohta, T., Mahara, Y., Momoshima, N., Inoue, F., Ikawa, R., Taniguchi, M., Kubota, T., Shimada, J.

3A09

環境試料中の極微量ウラン、トリウム、鉛およびランタノイドの逐次イオン交換分離・分析

(原子力機構)○宮本 ユタカ、安田 健一郎、間柄 正明、木村 貴海

【はじめに】UやTh、Pb、ランタノイドの元素存在度や同位体組成は岩石や隕石鉱物、大気浮遊じん等の環境試料の成因や起源などを調べるプローブになり得る。サブngレベル量のこれらの元素をICP-MSで正確に定量・同位体比分析するためには簡便な化学分離法を確立することが必要である。高純度あるいは生成が容易な試薬から成る溶離液による単純な化学分離法を検討してきた結果、酢酸やメタノールを主成分とする溶離液を用いることで逐次分離が可能となった。しかし、Thの溶出が緩慢であるためPbの分画にThの一部が混入する問題が残されていた[(1)]。今回、酢酸＋塩酸混合溶媒を用いることで完全なTh分離が達成でき、環境試料への応用が可能となったので報告する。

【実験方法】ポリエチレン製カラム(5.5 mmϕ×42 mm [カラム容積 1 ml])に詰めた陰イオン交換樹脂(ムロマック 1x8、Cl 形、100-200 mesh)をイオン交換分離に用いた。ICP-MS 校正溶液から調製した U, Th, Pb, ランタノイド等の元素を含む試料溶液 500µl(各元素量 50 ng)をカラムに吸着させた後、溶離液で分離した(流速：0.1～0.4 ml/min.)。4 ml 毎にテフロンビンに集めたカラム溶出液を 2%硝酸溶液 2 ml に調整し、元素の溶出量を ICP-MS で定量した。

【結果と考察】酢酸および塩酸の濃度をそれぞれ 60～80%、0.2M～1M と変えた酢酸＋塩酸混合溶媒で分離し Th の溶出挙動を調べた結果、酢酸濃度を低くするほど、そして塩酸濃度を高くするほど Th が早く溶離することが分かった。また酢酸濃度を 60%にすると Pb は Th とともに溶出した。Th 分離に最適な溶離液の組成は 70%酢酸＋1M 塩酸、液量は 22 ml であった。更に 0.005M のフッ化水素酸をこの溶離液に添加すると、Th の溶離ピークが鋭くなり Th が溶出しやすくなった。これは陽イオンの Th フルオロ錯体が形成されることによるものと考えられる。U でも同様に 0.5M 塩酸＋0.005M フッ化水素酸で溶離すると溶離ピークが鋭くなり溶出しやすくなった。これらの溶離液を使って目的元素を逐次分離した溶離曲線の例を図 1 に示す。分離目的である U, Th, Pb,ランタノイド(La, Lu で代表)の他に同位体分析の際にマトリックス効果による系統的誤差を与えるアルカリ金属(Rb で代表)やアルカリ土類金属(Sr で代表)、Fe についても示した。Sr や Fe の一部がそれぞれランタノイドや U の分画に混入するが、目的元素は除染係数 100 以上で逐次分離することが出来た。この逐次分離法を標準岩石試料に応用した結果についても報告する。

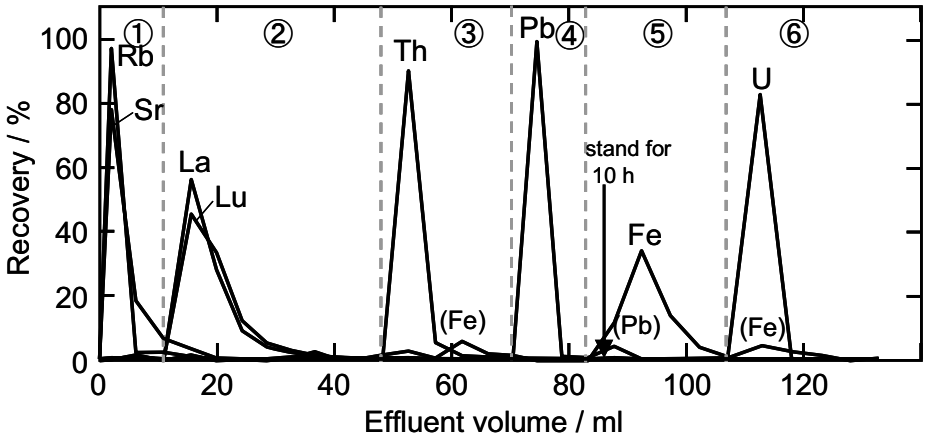


Fig. 1: Chromatogram of Rb, Sr, La, Lu, Th, Pb, Fe and U with the mixtures of CH_3COOH, HCl and HNO_3.

(1) 宮本他、第 52 回放射化学討論会要旨集 (J.Ncul.Radiochem.Sci., suppl. 9) p.27 (2008).

Sequential ion-exchange separation and analysis of trace uranium, thorium, lead and lanthanides in environmental samples

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

3A10

東部太平洋 (2003 年)における Am-241 の海水中濃度分布

(金沢大院・自然科学[1]、筑波大・応用加速器[2]、金沢大・理工[3])
○永岡 美佳[1]、隅　貴弘[1]、木下哲一[2]、横山 明彦[3]、中西 孝[3]

【はじめに】大気圏内核実験（1945−1980 年）により種々の人工放射性核種(核分裂生成物や超ウラン核種)が環境中に放出され，地球表面積の約 70 %を占める海洋が主に汚染された。^{241}Puから生成した^{241}Amも核実験に由来する環境汚染核種である。^{241}Amはα放射体であり，海産物を通して体内へ摂取されると内部被ばくの原因となるので，海洋でのAm同位体の分布や挙動に関する知見を得ておく必要がある。また海洋において放射性核種は海洋環境中で起こる生物地球化学的過程に組み込まれ，Amは粒子親和的，Puは溶存的であるとされ，Amの方が海底方向へ速やかに除去されると考えられる。しかしまだ，海洋のデータは十分ではないため，様々な海域で海水と海底堆積物のAmの研究が行われている。

【実験】東大海洋研 白鳳丸KH-03−1（HY） 研究航海の際に，東部太平洋（10測点）で深度別海水が約250 Lずつ採取された（Fig. 1）。海水試料は船上で塩酸酸性とし，既知量の収率トレーサとFe^{3+}担体が添加され鉄共沈が行われた。陸上に持ち帰られた水酸化物沈殿から，陰イオン交換樹脂カラム法によってAmを粗分離し，さらに精製の後，電着線源を調製してα線スペクトロメトリにより^{241}Amを定量した。

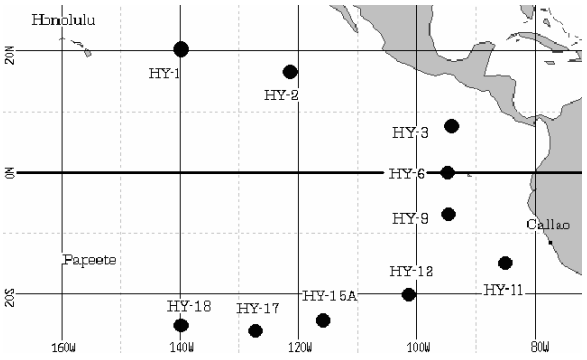


Fig. 1 Location of sampling stations

【結果と考察】同測点における^{239,240}Pu, ^{241}Amの深度分布，及び^{241}Am/^{239,240}Pu放射能比の一例をFig. 2 に示す。この測点での^{241}Am の深度分布パターンはおおよそ^{239,240}Puに似ている。しかし，海底付近ではPuの再溶解とみられる濃度の増加が見られるのに対し，Amでは逆である。^{241}Am/^{239,240}Pu放射能比において，表層と海底付近で低い値が観測された。これは，表層から中層にかけてAmの沈降が速やかであること，また海底付近でもAmとPuの沈降挙動に差があることが分かった。

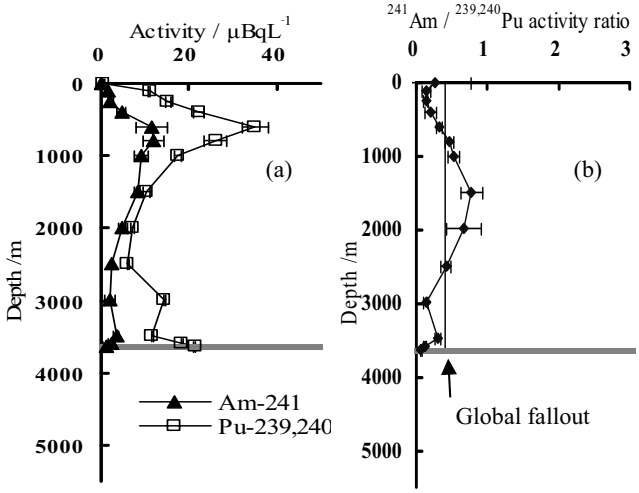


Fig. 2　(a) Depth profiles of ^{241}Am and ^{239,240}Pu and (b) ^{241}Am / ^{239,240}Pu activity ratio at HY-3 station

Distribution of ^{241}Am concentration in water column of eastern Pacific in 2003.
NAGAOKA, M., SUMI, T., KINOSHITA, N., YOKOYAMA, A., NAKANISHI, T.

3A11 ^{223}Raを収率トレーサに用いた^{226}Raの液体シンチレーション測定

(金沢大院自然[1]，金沢大理工[2])
○上杉正樹[1]，日南宗一郎[1]，横山明彦[2]，中西　孝[2]

【はじめに】　飲料水や地下水に含まれる ^{226}Ra は極微量であり，γ線スペクトロメトリーによる分析では 100 L 程度の試料からの Ra 濃集が必要で，$BaSO_4$ 共沈法が広く行われている。液体シンチレーション（液シン）法やα線スペクトロメトリーによる分析では回収率測定用の Ba の使用量に制約がある。ラジウムの回収率補正用トレーサに人工放射性核種 ^{133}Ba（$T_{1/2}$=10.5y）を使用する場合もあるが，γ線測定や液シン測定では使えない。一方，^{223}Ra（$T_{1/2}$=11.4d）はマイナーな天然放射性核種であり，154keV と 269keV のγ線が主要なγ線である。また ^{223}Ra には長寿命の子孫核種は存在せず，γ線測定で回収率を求めた後，放置すれば消滅する。そこで，^{223}Ra をラジウムの濃集及び液シン測定のトレーサに用いて供試量の削減を図ることを考えた。さらに Ra 濃集法については，Ba^{2+}担体を使用しない方法として水酸アパタイト[HAp : $Ca_{10}(PO_4)_6(OH)_2$]共沈法の適用を検討した。また，液シン測定では測定容器中のラドンの移動，γ線の計数への影響について検討した。

【実　験】　① ^{223}Ra トレーサの調製：^{227}Ac（$T_{1/2}$=21.8y）を添着した陽イオン交換樹脂カラムから，3M HNO_3 で溶離した。

② 水酸アパタイト共沈法による Ra 濃集の検討：Ra の濃集において，Ca^{2+}担体量と濃集率の関係を調べた。試料水に ^{223}Ra (10 Bq)，Ca^{2+}担体（10～70 mg/L の範囲で 6 段階）及びリン酸アンモニウムを加え，アンモニア水で pH を 9 として水酸アパタイトを生成させた。沈殿を遠心分離し，硝酸で溶解した後，測定容器に移してγ線測定を行った。

③ 精製分離と測定：カラムに陽イオン交換樹脂 1 g を詰めてイオン交換樹脂カラムを調製し，②で得た硝酸溶液にクエン酸アンモニウムを添加し，pH を 3 に調整した後，イオン交換樹脂カラムに流した。通液後のイオン交換樹脂を 25 mL バイアルに移し，トルエンシンチレータ 10 mL を加えて密栓をした。直ちにγ線を測定し，^{223}Ra 計数率から Ra の回収率を求めた。1 ヶ月後，液シン法で ^{226}Ra を測定した。この液シン法では，^{223}Ra 及び子孫核種が放出するγ線の計数率寄与を見積もった。また ^{226}Ra 0.3Bq を含む 3 試料（水溶液，陽イオン交換樹脂，硫酸バリウム）を水層に入れ，シンチレータ 10 mL を加えてから時間を追ってシンチレーション測定を行い，計数率の変化からラドンの移動を観察した。

【結果と考察】　１．水酸アパタイト共沈法で Ca^{2+}担体 30 mg/L 以上でラジウムの 95%以上が回収できた。

２．陽イオン交換樹脂カラムによる精製において，担体の Ca^{2+}はクエン酸添加により Ra から分離された（Ca^{2+}がカラムを通過し，Ra^{2+}がカラムに捕集される）。

３．ラドンが測定バイアル中でイオン交換樹脂から水へ，さらにシンチレータへと移動する際，^{222}Rn（$T_{1/2}$=3.8d）[←^{226}Ra]と ^{219}Rn（$T_{1/2}$=4s）[←^{223}Ra]の寿命の差により ^{222}Rn と ^{219}Rn が分離され，^{222}Rn のみが計数されることを確認した。

４．液体シンチレーションスペクトルの ^{223}Ra に起因するγ線の寄与は低エネルギーパルスの切捨てで削減される。

以上により，^{226}Ra の定量に ^{223}Ra トレーサが有効であることが分かった。

Determination of ^{226}Ra by liquid scintillation spectrometry using ^{223}Ra as yield tracer
UESUGI, M., HINAMI, S., YOKOYAMA, A., NAKANISHI, T.

3A12 ラジウム−226 の土壌−植物間移行係数の推定について

（放射線医学総合研究所）○田上恵子，内田滋夫

【はじめに】ラジウム-226（^{226}Ra）は，カルシウムと化学的性質が類似しているため，人体に取り込まれると骨に沈着し，生物学的半減期は数十年にも及ぶ可能性が指摘されている。また，放射性廃棄物の長期安全評価においても，^{226}Ra は重要核種に挙げられている。放射性核種が環境中に放出されてから人体へ到る経路において，土壌−植物間の移行は重要なものの一つであり，これを表す環境移行パラメータである移行係数（TF）は「植物（農作物可食部）中濃度（Bq/kg-dry）」/「土壌中濃度（Bq/kg-dry）」で定義される。^{226}Ra に関しては，土壌中の濃度は比較的容易に測定できるものの，農作物中の濃度が低いために定量値が少なく，したがって TF データ数が少ないのが現状である。そこで本研究では，土壌や植物の元素濃度を利用して，^{226}Ra の TF を簡便に推定する方法について検討した。

【材料および方法】日本全国の農耕地から農作物の可食部と収穫後に採取された土壌（作土層）を 2002-2006 年にかけて採取した。畑作物は 79 試料（葉菜類，果菜類，芋類，根菜類等），玄米は 63 試料である。農作物は乾燥後，試料の一部を 450℃で灰化し，そのうち 15g を用いて公定法に準じ放射化学分析による定量を行った。土壌は 2mm のふるいを通過した風乾試料をさらに 110℃で恒量にしたもの（約 60-70g）をプラスチック容器に封入し，放射平衡を待って Ge 半導体検出器による核種分析により ^{226}Ra を定量した。また，農作物および土壌試料はそれぞれ風乾後粉砕した試料を用いて，マイクロウェーブ分解法により湿式溶解し，得られた溶液を適宜希釈して ICP 質量分析装置および ICP 発光分光分析装置により約 50 元素の濃度を定量した。

【結果および考察】本研究では，^{226}Ra の可食部中濃度と土壌中濃度をそれぞれ推定し，最終的に TF を推定する方法について検討を行った。まず，全ての可食部中の ^{226}Ra 濃度について種々の元素濃度との相関を調べたところ，最も高い相関係数（r）が得られたのはバリウム（Ba）濃度であった（r=0.89, p<0.001）。植物中および経根吸収時の挙動をみると，Ba と Ra にほとんど差がないことから，このように高い相関が得られたものと考えられる。同様に土壌試料についても相関の高い元素を調べたところ，ウラン（U）濃度が ^{226}Ra 濃度と最も相関が高かった（r=0.82, p<0.001）。この傾向は世界各地の非汚染地で得られた U と ^{226}Ra の相関と同様であった。これらの相関式より，^{226}Ra の TF 推定式を作成し，得られた推定値を実測の TF 値と比較した（図１）。その結果，推定値は実測値の値と高い相関を示した（各 TF の対数値間の r=0.88, p<0.001）。したがって，本推定法により，簡便に ^{226}Ra の TF を推定ができることがわかった。

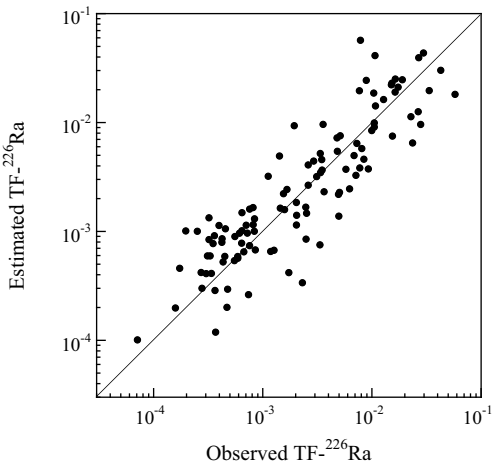


図１ ^{226}Ra の土壌−植物間移行係数の実測値と推定値の比較

謝辞：本研究は，資源エネルギー庁放射性廃棄物共通技術開発調査費の予算で行われた。

Estimation of soil-to-plant transfer of radium-226
TAGAMI, K., UCHIDA, S.

3A13

東アジアにおける ^{210}Pb の降下挙動について

（上智大・理工 [1]、国環研 [2]、台湾大海洋 [3]、金沢大 LLRL[4]） ○廣瀬 勝己 [1)]
木川田 喜一 [1)] 土井 妙子 [2)] C.-C. Su[3)] 山本 政儀 [4)]

【はじめに】 ^{210}Pb は 22.3 年の半減期をもつラドンの壊変生成物であり、地球化学のトレーサーとして幅広く研究されている。特に、陸地表面から放出されたラドンは大気中で壊変して生成した ^{210}Pb は大気エアロゾルのトレーサーとして重要である。^{210}Pb 降下量については古くから研究されているが、総合的に研究された例は少ない。1990 年代から 2000 年代にかけて、^{210}Pb 降下量の研究が行われ、^{7}Be 降下量と良い相関を示すことや、^{210}Pb 降下量に地域的特性（特に、日本海沿岸では異常に高い降下量が観測）や経年変動を示すことが明らかになってきた。しかし、地域特性や経年変動の原因については不明な点が多い。ここでは、最近報告されたデータをとりまとめ、^{210}Pb 降下量の地域特性や経年変動の原因について議論した結果を報告する。

【データ】^{210}Pb 降下量のデータは Yamamoto et al., 2006 (J. Environ. Radioact., 86, 110-131), Hirose et al., 2004(Atmos. Environ., 38, 6601-6608)及び Su and Huh, 2003 (Geophys. Res. Lett., 30, 2018)により報告されたデータを用いた。降下物試料はいずれも一週間ないし１ヶ月の大気降下物（降水及び降下塵）を採取、蒸発濃縮（乾固）後γ線スペクトロメトリーで ^{210}Pb を定量している。なお、用いるデータは全て月間降下量の値に換算した。

【結果】^{210}Pb 降下量の地域特性を明らかにするために、2000 年の年間降下量の緯度分布を調べた。その結果、日本海沿岸の地点の場合、既に Yamamoto が指摘しているように異常に高い降下量を示すことが確認できた。一方、日本海沿岸の地点を除くと、明瞭な ^{210}Pb 降下量の緯度分布は見られない。更に、降水中の ^{210}Pb 濃度を降下量と降水量から評価すると、降水中の ^{210}Pb 濃度は、緯度依存性を示し高緯度になるに従って濃度が高くなる傾向にある。^{210}Pb 降下量は季節変動を示し、冬期に降下量が高く夏期に低くなる。このような季節変化は日本海沿岸地域で顕著であり、その他の地点では明瞭ではない。結果として、冬期の ^{210}Pb 降下量は地域により大きな変動を示すのに対し、夏期は降下量も低く地域的な変動も小さい。同様な傾向は降水中の ^{210}Pb 濃度でも見られた。このような結果から、夏期と冬期では、^{210}Pb 降下挙動に差異があることが分かる。したがって、冬期（１,2 月）と夏期(7,8 月)について、気象要素（特に、降水量）との関連を調べた。冬期について降水量と ^{210}Pb 降下量との関係を調べた所、日本海沿岸地点とその他の地点で異なったグループに属することが分かった。同様なグループ分けは、降水中の ^{210}Pb 濃度と降水量の関係からも明らかになった。何れのグループも、降水中の ^{210}Pb 濃度は降水量の増大と共に減少する傾向を示した。一方、夏期の場合、降水中の ^{210}Pb 濃度と降水量の関係を調べた所、日本海沿岸地点とその他の地点で差は見られなかった。ただし、冬期と同様降水中の ^{210}Pb 濃度は降水量の増加と共に減少した。

^{210}Pb 降下量の長期変動については、Su and Huh は 1998 年に顕著な ^{210}Pb 降下量の増大を観測し、その増加の原因としてエルニーニョ現象との関連で議論している。一方、辰口では 1998 年には ^{210}Pb 降下量の減少を観測している。既に議論したように冬期と夏期の間で、^{210}Pb 降下挙動は異なっている。従って、冬期と夏期に分けて、^{210}Pb 降下量や降水中の ^{210}Pb 濃度の経年変動を調べた。その結果、冬期の降水中の ^{210}Pb 濃度については、台湾の測点と同様、1998 年に濃度の極大が見られた。^{210}Pb 降下量の経年変動は気候要因と密接に関連している。

^{210}Pb deposition in the far east Asia
HIROSE, K., KIKAWADA, K., DOI, T., SU, C.-C., YAMAMOYO, M.

研究発表要旨
9 月 30 日（水）

3B01 ～ 3B13：口頭発表　B 会場（会議室 2）

3B01 高速中性子を用いた医療用 RI の製造研究

(原子力機構)○初川雄一、橋本雅史、永井泰樹、金政浩、瀬川麻里子、
原田秀郎、今野力、落合謙太郎、高倉耕祐、岩本信之、岩本修

【はじめに】 ^{99}Mo/^{99m}Tc ジェネレーターを初めとして放射性同位体は幅広く医療の分野で利用されているが、多くの RI は輸入に頼っているのが現状である。例えば ^{99}Mo/^{99m}Tc ジェネレーターは海外の原子炉で高濃縮ウランを照射しその核分裂生成物より ^{99}Mo を分離して製造している。しかし、製造に用いられている原子炉の老朽化や高濃縮ウランの利用等に問題があり、将来的に安定な供給が疑問視されている。(1) そこで新たな医療用 RI の製造法の開発が期待されており、現在原子炉中性子を用いた ^{98}Mo(n_{th},γ)^{99}Mo 反応による製造研究も進められている。(2) 発表者らは ^{99}Mo/^{99m}Tc ジェネレーターの製造における加速器中性子を用いた ^{100}Mo(n,2n)^{99}Mo 反応の有用性について指摘してきた。(3) 従来の研究に基づき上記の 2 つの反応断面積を比較すると ^{98}Mo(n_{th},γ)^{99}Mo 反応が 140mb であるのに対して ^{100}Mo(n,2n)^{99}Mo 反応では 10MeV 以上の中性子に対して 1~1.5b ほどの高い断面積になっている。(図-1)

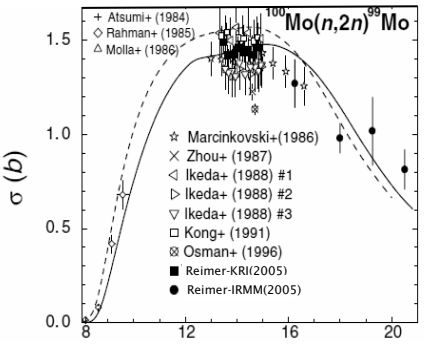


図-1 高速中性子による (n,2n) 反応の励起関数 (4)

本研究では加速器により発生する高速中性子を用いることにより新しい放射性同位体の製造方法を開発することを目的とし高速中性子による医療用RI製造の有意性について実験的に確かめるものである。

【実験】 実験は原子力機構の核融合中性子工学用中性子源施設（Fusion Neutronics Source ; FNS）にて行い、D-T 中性子核融合反応により生成する 14MeV の加速器中性子を用いた。FNS は 400 keV 重陽子加速器で 0°と 80°の 2 つのビームラインを有する。0°ビームラインでは 20 mA 重陽子ビームで 4×10^{12} n/s の中性子が発生し, 80°ビームラインでは 2 mA で 2×10^{11} n/s の中性子を得ることが出来る。本研究では 80°ビームラインを使い中性子線源位置から 10cm の距離に Mo や Ti、Cs などをターゲットとして設置し 6 時間から 24 時間の高速中性子照射を行い、適当な冷却期間の後 Ge 半導体検出器でガンマ線測定を行った。ターゲットはそれぞれ Nb フォイルを上流側、下流側に設置し ^{93}Nb(n,2n)^{92m}Nb 反応の反応率から中性子フラックスを算出し、得られたガンマ線強度から反応断面積を求めた。

【まとめ】 ^{100}Mo(n,2n)^{99}Mo 反応に加えて、Ti, Cs をターゲットとする高速中性子との（n,p）,（n,α）反応の反応断面積を得ることが出来た。得られた反応断面積から実際の生成量の見積もりを行い新たな医療用 RI 製造法として可能性を論じる。

文献

1)”提言-我が国における放射性同位元素の安定供給について”日本学術会議 2008 年 7 月 24 日
2)山林尚道、第 46 回アイソトープ・放射線研究発表会予稿集（2009 年 7 月）
3)Y. Nagai and Y. Hatsukawa, J. Phys. Soc. Jpn., 78, 033201 (2009)
4)P. Reimer, et al., Phys. Rev. C71, 044617 (2005)

Production of Radioisotopes for Nuclear medicine using fast neutron reactions HATSUKAWA, Y., HASHIMOTO, M., NAGAI, Y., KIN, T., SEGAWA, M., HARADA, H., KONNO, C., OCHIAI, K., TAKAKURA, K., IWAMOTO, N., IWAMOTO, O.

3B02

^{nat}Hf 標的を用いた希土類元素マルチトレーサーの製造

(理研仁科セ)○江崎豊，羽場宏光，笠松良崇

【緒言】希土類元素（REE）のマルチトレーサーは，多数の REE を同一実験条件下で同時に追跡することが可能で，これまでに化学，生物，地質学や環境科学などの幅広い分野で利用されてきた[1,2]．これまで理研 REE マルチトレーサーは，理研 K540 リングサイクロトロン（RRC）からの 135MeV/nucl. ^{14}N ビームによる ^{197}Au 標的の核破砕反応後、Au の酢酸エチルを用いた抽出除去によって製造されてきた[1,3]．しかしながらこの手法では，^{197}Au から生成する Hf から Pt までの多数の放射性核種のため，γ 線スペクトロメトリーにおける REE の検出感度は低く，また定量できる REE の数も僅か数元素と限られてきた．そこで本研究では，天然同位体組成の ^{nat}Hf を標的として，REE に特化したマルチトレーサーの製造法を開発することを目的とする．金属 Hf 標的は従来の Au 標的よりも大強度重イオンビームの長時間照射に安定で，さらに REE 同位体の生成断面積が ^{197}Au よりも大きいなどの利点がある．

【実験】金属 ^{nat}Hf 箔（純度 99.9%, 厚さ 165mg/cm^2）を 2 枚，^{197}Au 金属箔（厚さ 465mg/cm^2）とビームモニター用 ^{nat}Cu 金属箔（厚さ 43mg/cm^2）1 枚ずつを標的ホルダにスタックし，RRC からの 135MeV/nucl. ^{14}N ビーム（ビーム強度 : 0.6pμA）を照射した．短寿命と長寿命の核種を効率的に定量するため，30min と 59h の 2 回の照射を行った．照射後，^{nat}Hf 標的 1 枚を Fig. 1 に示した手順に従って化学分離し，他方を非破壊試料として化学収率や分離係数の評価に用いた．一方，^{197}Au 標的を用いた従来法と比較するため，Fig. 1 と同様の陰･陽イオン交換法で ^{197}Au 標的から REE を分離した．分離したマルチトレーサーに対して，Ge 検出器を用いてγ線スペクトロメトリーを行った．

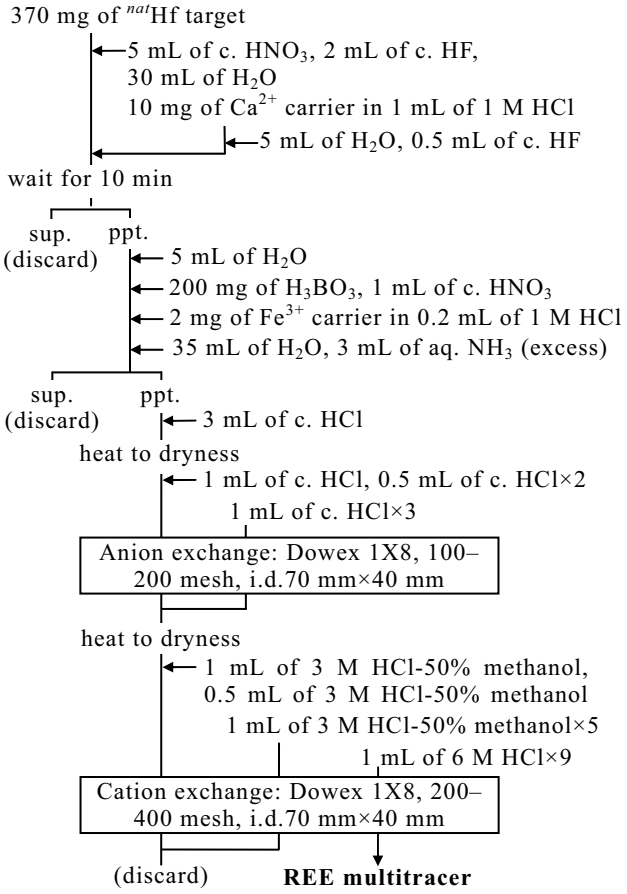


Fig. 1. Schematic diagram for separation of the REE multitracer from a ^{nat}Hf

【結果】^{nat}Hf の短時間照射においては，予備的ながら，Y，Ce，Eu，Gd，Tb，Dy，Ho，Er，Tm，Yb 及び Lu の合計 16 核種を同定できた．化学収率は 80%以上で，Hf に対する分離係数は，^{175}Hf の 343keV のγ線から評価して，3×10^{-3} であった．討論会では，長時間照射の結果や ^{197}Au 標的の結果も合わせて報告する．

【参考文献】[1] F. Ambe (ed.), RIKEN Rev. **13** (2001).
[2] S. Enomoto *et al.*, Biomed. Res. Trace Elements **16**, 233 (2005).
[3] S. Ambe *et al.*, Chem. Lett. **20**, 149 (1991).

Production of rare earth multitracer from ^{nat}Hf target
EZAKI, Y., HABA, H., KASAMATSU, Y.

3B03

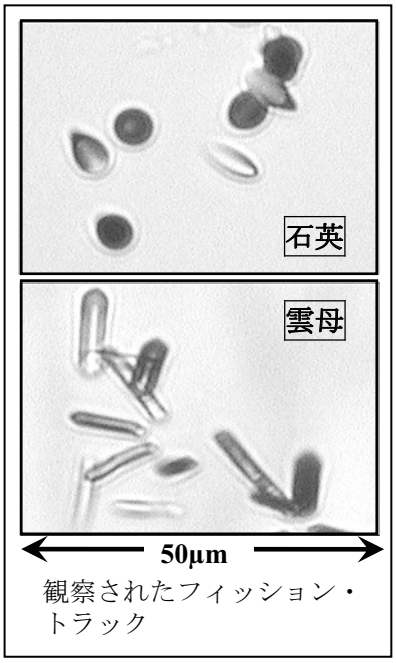
フィッション・トラック法による Pa-231 光核分裂反応断面積の測定

（金沢大院自然[1]、東北大核理研[2]、金沢大理工[3]）
○西川　恵[1]、大槻　勤[2]、廣瀬健太郎[2]、佐藤　渉[3]、横山明彦[3]、中西　孝[3]

【はじめに】フィッション・トラック法は、放射能測定が不可能ないしは困難な安定または超長半減期核分裂片や超短半減期核分裂片の検出も可能であり、小さい核分裂反応断面積の測定にも適している。これらの利点を生かして、本研究ではフィッション・トラック法による光核分裂反応断面積の測定を試みた。本研究で測定対象にした核種は^{231}Pa（半減期 3.276×10^4年、α放射体）である。^{231}Paは、研究に必要な量を確保するのが難しい核種であるばかりでなく精製および純度の確認も困難な核種である。そのため核反応に関する実測データの取得は遅れている。そこで本研究では、核反応データの実測的取得が少ない^{231}Paの光核分裂反応断面積について、天然ウラン（以下^{n}Uと記す）と^{232}Thを比較対象とする‘フィッション・トラック数/ターゲット原子数’の相対的な評価から研究を始めることとした。

【実　験】本研究では、まずトラック検出材の種類と最適エッチング条件を検討するために、合成石英板と白雲母板を検出材とする実験を行った。ターゲット核種（^{231}Pa、^{n}U、^{232}Th）の濃度既知溶液の既知量をそれぞれ高純度石英板（1cm×1cm×1mm）上に蒸発乾固させ、これに熱アニーリング処理と濃硝酸煮沸洗浄を施した白雲母板（インド ビハール州産、1cm×1cmの薄片）を密着させてアルミニウム箔で包み、照射試料とした。Pa、U、Thの各照射試料とバックグラウンド用試料、ビームモニター用Co箔を１セットとして、東北大学原子核理学研究施設で最大エネルギー20 MeVの制動放射線（電子線形加速器からの電子ビームを白金板で制動放射線に転換、電子線によるトラック検出材の加熱を避けるためにスイープマグネットで未転換電子を除去）を照射した。照射後、石英と雲母をエッチングし、洗浄・乾燥を行ってから、デジタルスコープを用いてトラックの観察と計数を行った。

【結果と考察】石英板は表面に傷や汚れが少なく、トラックの計数が容易である半面、検出材そのもののエッチング剤による腐食（バルクエッチング）速度が速く、エッチング条件のコントロールが難しいという欠点がある。検討の結果、石英板については 28%フッ化水素アンモニウム水溶液をエッチング剤に用い、超音波を印加しながら 15 分間エッチングを行うのが適当であると分かった（右図上）。雲母は、バルクエッチングがほとんど無いためトラック検出効率が良いと言われているが、表面に傷や汚れが多いこと、天然ウランによるトラックがバックグラウンドとなること、エッチング中の剥離によってトラックが失われるなどの欠点をもつ。検討の結果、雲母については 48%フッ化水素酸を用い、超音波なしで 40 分間エッチングを行うのが適当であることが分かった（右図下）。



観察されたフィッション・トラック

発表では、同時に照射した^{231}Pa、^{n}U、^{232}Thについて、‘光核分裂トラック数/ターゲット原子数’（T）をT(^{231}Pa)/T(^{n}U)、T(^{231}Pa)/T(^{232}Th)として比較した結果を報告する。

Measurement of Pa-231 photofission cross-section by fission track method
NISHIKAWA, M., OHTUKI, T., HIROSE, K., SATO, W., YOKOYAMA, A., NAKANISHI, T.

3B04

中間エネルギー領域の Cu、Nb 中性子核反応断面積測定(II)

(阪大院理[1]、原子力機構[2]、京大原子炉[3]、阪大 RCNP[4]、高エネ研[5]、パデュー大[6]、国立歴史民俗博物館[7]、カリフォルニア大[8])○尾本隆志[1]、二宮和彦[1,2]、中垣麗子[1]、高橋成人[1]、関本俊[3]、宇都宮敬[3]、八島浩[3]、柴田誠一[3]、嶋達志[4]、木下哲一[5]、松村宏[5]、萩原雅之[5]、岩元洋介[2]、佐藤大樹[2]、M. W. Caffee[6]、今村峯雄[7]、西泉邦彦[8]、篠原厚[1]

【序論】これまで行われてきた中性子核反応の実験は、原子炉や重金属ターゲットへの荷電粒子入射で得た白色中性子を利用する場合がほとんどであり、低エネルギー領域(＜10MeV)での実験データは豊富に存在するが、中高エネルギー領域（＞50MeV）のデータ、特に単色の中性子を用いた実験はほとんどない。中性子は電荷を持たないため、低エネルギーでの核反応はユニークな挙動を示すのに対し、高エネルギーでは電荷の影響が相対的に小さくなり、同じハドロンである陽子と似ていると予測されている。このような差異がどの程度のエネルギー領域まで存在するのか、また中性子と陽子の核反応機構の相違について興味が持たれているが、中高エネルギー領域においては陽子と比較できる中性子核反応の実験データはない。また、中高エネルギーの中性子による核反応の知見は、加速器施設の遮蔽体の蓄積放射能の評価や、隕石や地表面に対する宇宙線の照射暦の評価において基礎データとして必要とされている。本研究では、昨年度報告した 368 MeV の単色中性子を用いた実験[1]に加え、新たに 282 MeV の単色中性子を用いた実験を行ったので報告する。

【実験】本研究グループでは、大阪大学核物理研究センターN0 コースにおいて、^{7}Li(p,n)反応により発生する中性子を二つの方向で利用することで、新たに単色中性子を得る手法を確立した[2]。本実験では 300 MeV の陽子の入射により中心エネルギー282 MeV の単色中性子を得た。これを Cu 及び Nb の金属板へ照射し、HP-Ge 検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリーにより、照射試料中に生成した放射性元素を定量し、Cu、Nb の 282 MeV 単色中性子による主に核破砕生成物の生成断面積を導出した。

【結果と考察】本実験で得られた核反応断面積を 368 MeV の単色中性子入射の実験[1]と比較した結果、標的核からの質量数減少の小さな核種 (Cu 中の ^{60}Co、^{56}Co など)は同程度の値が得られたのに対し、質量数減少の大きな核種(^{46}Sc、^{48}V など) では本実験の方が小さな値が得られた。この生成量のエネルギー依存性は、陽子、α粒子による核破砕反応の生成核分布とも一致する。そこで中性子による核破砕反応について定量的な議論を行うために、核破砕反応に関する Rudstam の経験式[3]を用いて核反応断面積の実験値のフィッティングを行った。昨年度発表したデータを合わせることで、中性子核反応による核種生成量は陽子と同様の入射粒子エネルギー依存を示しており、また一方で陽子と比べて入射粒子の電荷に寄与すると考えられる生成量の差があることが分かった。

【参考文献】

[1] 尾本　他　第 52 回放射化学討論会 3A08(2008)

[2] 二宮　他　第 52 回放射化学討論会 1P17(2008)

[3] G. Rudstam Z. Naturforschg. **21** (1966) 1027

Cross section measurements of neutron-induced reactions for Cu and Nb in the intermediately energy region (II)

OMOTO, T., NINOMIYA, K., NAKAGAKI, R., TAKAHASHI, N., SEKIMOTO, S., UTSUNOMIYA, T., YASHIMA, H., SHIBATA, S., SHIMA, T., KINOSHITA, N., MATSUMURA, H., HAGIWARA, M., IWAMOTO, Y., SATOH, D., M. W. CAFFEE, IMAMURA. M., NISHIIZUMI, K., SHINOHARA, A.

3B05

Th-229g の半減期測定

（阪大院理[1]，東北大多元物質科学研[2]，東工大原子炉研[3]）
○菊永英寿[1]，三頭聰明[2]，鈴木達也[3]，野村雅夫[3]，篠原厚[1]

【はじめに】 ^{229}Th はネプツニウム系列（4n+1 系列）に属するα放出核種であり，天然にほとんど存在しないため，トリウムトレーサーとして用いられてきている[1]。^{229}Th は数千年の半減期を持つために，放射能測定だけではなく同位体希釈質量分析法での測定も行われており[2]，その半減期は重要な値である。しかしながら，これまで行われた半減期測定は，7340±160 y [3]，7880±120 y [2]と 7%程度の差がある。そこで本研究では ^{233}U-^{229}Th，^{232}U-^{228}Th の 2 つの壊変連鎖を用いて ^{229}Th の半減期を求めたので報告する。

【実験】 質量数 233, 234, 235, 236, 238 の同位体比を TIMS で測定してある約 10 mg の U 同位体から，陰イオン交換樹脂カラム(Muromac 1×8, 200-400 mesh)を用いて Th 同位体を取り除いた。U 同位体の一部を分取し，水酸化サマリウム共沈法[4]で線源を作成してα線スペクトロメトリーを行うことで ^{232}U/^{233}U 同位体比を求めた。

次に，精製した U 同位体を 3 日から 289 日放置して，Th 同位体を成長させた。この Th 同位体を陰イオン交換樹脂カラム(Muromac 1×8, 200-400 mesh)を用いて U 同位体および娘の Ra 同位体から分離，精製して水酸化サマリウム共沈法[4]で線源を作成してα線スペクトロメトリーを行うことで ^{228}Th/^{229}Th 同位体比を求めた。

【結果と考察】 得られた U 同位体のαスペクトルを Fig. 1 に示す。^{232}U と ^{233}U のαピークは明確に分かれており，TIMS で測定した U 同位体比も考慮すると，^{232}U/^{233}U 同位体比は 4.62×10^{-7} であった。Fig. 2 に得られた Th 同位体のαスペクトルを示す。^{228}Th/^{229}Th 同位体比を求める際，^{228}Th の 5423 keV ピークに ^{224}Ra の 5449 keV ピークが重なるため，^{224}Ra の 5685 keV ピークを用いてその寄与を見積もり補正した。^{232}U/^{233}U 同位体比，Th 同位体の成長時間および ^{232}U ($T_{1/2}$ = 68.9±0.4 y [5]), ^{233}U ($T_{1/2}$ = 159200±200 y [5]), ^{228}Th ($T_{1/2}$ = 1.9116±0.0016 y [5])の各半減期から ^{229}Th の半減期を求めたところ，7896±66 y の半減期が得られた。この半減期は Goldstein and Murrell [2]の値に一致している。Hagemann ら[3]の値と一致しない理由は，おそらく Th 同位体から U 同位体の分離が不十分だったために ^{233}U の計数が ^{229}Th の計数に加わり，半減期が短く算出されたと考えられる。

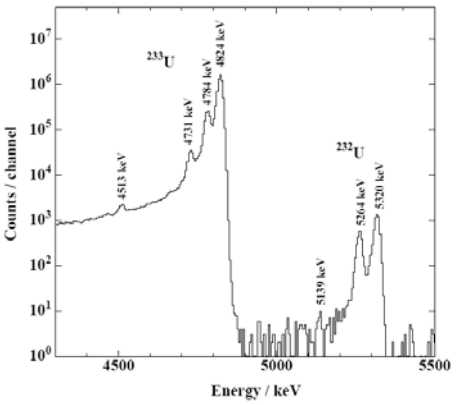


Fig. 1. U 同位体のαスペクトル

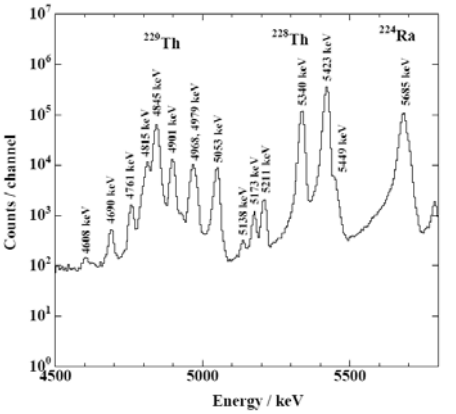


Fig. 2. Th 同位体のαスペクトル

参考文献
[1] M. T. Crespo, Appl. Radiat. Isot. **53**, 897 (2007)
[2] S. J. Goldstein and M. T. Murrell, Phys. Rev. C40 (1989) 2793.
[3] F. Hagemann et al., Phys. Rev. 79 (1950) 435.
[4] H. Kikunaga et al., Appl. Radiat. Isot. 67 (2009) 539.
[5] R. B. Firestone and V. S. Shirley, eds., Table of Isotopes (John Wiley & Sons, Inc., 1996), 8th ed.

Measurement of the half-life of Th-229g

KIKUNAGA, H., MITSUGASHIRA, T., SUZUKI, T., NOMURA, M., SHINOHARA, A.

3B06

希土類領域ターゲットと酸素−16 重イオン核融合励起関数における核変形度の影響（金沢大院自然[1], 阪大院理[2], 金沢大理工[3]）

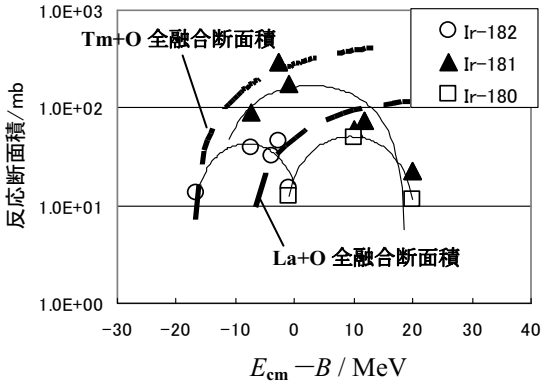
○浅野敦史[1], 貝谷英樹[1], 荒木幹夫[1], 西川恵[1], 大江一弘[2], 菊永英寿[2], 高橋成人[2], 横山明彦[3]

【序論】現在重元素合成では、超アクチニド元素を合成するような重い系が興味を持たれている。このような系では生成断面積が極めて小さく、効率よく合成する条件を知るためには反応機構を理解することが重要である。アクチノイド原子核は変形核であり、その変形度は大きい。標的核にこのような変形核を用いた場合、球形核を用いた場合と比べ生成確率に影響があらわれ、クーロン障壁程度の低エネルギーにおいて球形核を用いた場合よりもやや低いエネルギーで核融合が始まることが期待される。

本研究では比較的変形度の大きい ^{169}Tm(回転楕円体の回転軸方向の長さを a、回転軸に垂直方向の長さを b とすると a/b=0.95)をターゲットとして用い、^{16}O との核融合反応による反応生成物の放射能から断面積を求め、以前行った変形度の小さい ^{nat}Ba(a/b=1.01)、および ^{nat}La(a/b=1.01)の断面積および理論的な励起関数と比較し、核変形度が励起関数にどのような影響を与えているか考察した。

【実験】実験は大阪大学核物理研究センターにて ^{16}O ビームを用い、スタック法（長寿命生成物測定）、及びガスジェット法（短寿命生成物測定）の 2 通りの方法によって行なった。スタック法では高純度のアルミホイル(99.999%)に電着した Tm ターゲットを 2 枚ないし 3 枚重ね合わせてスタックにし、ターゲット中心エネルギー72MeV～112MeV の ^{16}O イオンを 5 分～60 分間照射した。照射後各ターゲットに分けてポリエチレンシートに封入し、Ge 半導体検出器を用いてγ線測定を行った。ガスジェット法ではスタック法と同様のターゲットについて同様の ^{16}O イオンで 1 分間、5 分間、20 分間の照射をそれぞれ行った。反応生成物は生成後を直ちに KCl クラスターに吸着し、He ガスとともにキャピラリーチューブによって 70 m 離れた RI 実験室まで搬送した。搬送された反応生成物をフィルターで捕集しポリエチレンシートに封入し同様のγ線測定を行った。

【結果と考察】測定された生成物の放射能とモニター反応によるビーム量測定値から、個々の生成物の反応断面積を求めた。Tm+O から得られた生成物の断面積を図に示し、それらの断面積を結んだものを実線で、La+O および Tm+O から得られた完全融合反応経由生成物の断面積をすべて足し合わせた励起関数を破線で図に示した。グラフの横軸は各重心系の入射エネルギーからクーロンバリアを差し引いた値である。2 つの励起関数を比較すると Tm+O の方が低エネルギーから励起関数が立ち上がっていることがわかる。このことから変形度の大きい Tm では、変形度の小さい La に比べ変形による影響が表れている可能性が考えられる。



Nuclear deformation effect on the excitation function of heavy ion fusion reaction on rare earth targets with the O-16 projectile.

Asano, A., Kaiya, H., Araki, M., Nishikawa, M., Ooe, K., Kikunaga., H., Takahashi, N., Yokoyama, A.

3B07

$^{19}F + ^{209}Bi$ 反応におけるサブバリヤー融合阻害

（原子力機構・先端基礎セ [1]、理研・仁科セ [2]、東大・理 [3]、新潟大・分析セ [4]）
○西中一朗 [1]、笠松良崇 [2]、谷川勝至 [3]、後藤真一 [4]、浅井雅人 [1]

【はじめに】近年、重イオン核融合反応において融合障壁より低いエネルギー、いわゆるサブバリヤー領域では、標準的な理論モデルの予測に比べて、核融合が大きく阻害されていることが発見され、原子核反応研究分野でのトピックスとして注目されている[1]。ところがサブバリヤー領域での核融合断面積の測定は困難なため研究例が限られる。サブバリヤー融合阻害現象を調べるため、$^{19}F + ^{209}Bi$ 反応における核融合断面積の励起関数を放射化法で求めた。

【実験】原子力機構タンデム加速器照射コースにて、83-135 MeV ^{19}F ビームを真空蒸着法で生成した 150-220 μg/cm^2 厚の ^{209}Bi 金属薄膜ターゲットに 30 分から 8 時間照射した。核分裂生成物を捕集したアルミ箔と薄膜ターゲットを測定試料とし、γ線スペクトルメトリーによって生成核種を同定し、定量した。90 MeV 以下の入射エネルギーで照射した試料については、モリブデンを化学分離して核分裂生成物 ^{99}Mo の生成量を定量した。化学収率（49-80%）は、原子力機構 JRR-3 気送管を用いた中性子放射化法によって求めた。

【結果と考察】^{99}Mo の生成断面積と核分裂断面積の励起関数を図（黒丸と黒四角）に示す。核分裂断面積（0.08-650 mb）は、^{99}Mo の生成断面積を全核分裂に対する相対収率で規格化して求めた。相対収率は 90 MeV より大きい入射エネルギーでの核分裂生成物の質量収率曲線からもとめた。半導体検出器を用いて測定した文献値（白丸）[2]よりも約２桁小さい核分裂断面積まで測定することができた。この反応系では複合核が核分裂せずに残留核を形成する確率は極めて小さい。したがって核分裂断面積を融合断面積と見做すことができる。

入射エネルギー86 MeV 以下では、融合断面積は一次元の融合障壁透過モデル[3]による予測値（実線）よりも小さくなる傾向を示した。このエネルギーは、原子核の質量公式から予測されるターゲット核と入射核とが接した配置でのポテンシャルエネルギーV_{KNS} = 86.8 MeV [4]とよく一致した。

講演では、結合チャンネル計算などのモデル計算や、他の反応系での実験データとの比較を行い、融合阻害現象の機構について考察する。

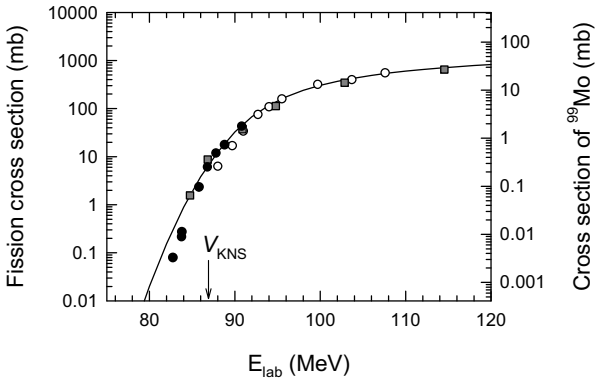


図　^{99}Mo の生成断面積と核分裂断面積の励起関数

参考文献

[1] C. L. Jiang et al., Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 052701-1-4.
[2] A. M. Samant et al., Eur. Phys. J. A **7** (2000) 59-64.
[3] B. B. Back et al, Phys. Rev. C **32** (1985) 195-213.
[4] T. Ichikawa et al., Phys. Rev. C **75** (2007) 064612-1-4.

Study of sub-barrier fusion hindrance in $^{19}F + ^{209}Bi$ reaction

NISHINAKA, I., KASAMATSU, Y., TANIKAWA, M., GOTO, S., ASAI, M.

3B08

新しい気体充填型反跳分離装置 GARIS-II の開発

(理研仁科セ[1]、原子力機構先端基礎研究セ[2])

○加治大哉[1]、森本幸司[1]、佐藤望[2]、米田晃[1]、森田浩介[1]

はじめに

理化学研究所では、気体充填型反跳分離装置 GARIS を前段分離とした新しい超重元素化学研究が展開され始めている。超重元素化学対象核種を生成するためにはアクチノイド標的を用いた重イオン融合反応(ホットフュージョン)を用いるが、生成した超重核の反跳速度が遅いために分離装置に充填された気体原子と散乱してイオン光学系の焦点面において像が広がり、通過効率が比較的小さな値をとる。現在、理研ではホットフュージョン反応によって生成する超重核の分離・収集に特化した新たな分離装置 GARIS-II を開発している[1]。本講演では、GARIS-II の開発の現状について報告する。

デザイン・仕様

GARIS-II は 5 個の電磁石から構成され，Q_v-D-Q_h-Q_v-D という配置をとる。この配置は，超重元素研究用の気体充填型反跳分離装置としての初デザインである。各電磁石の仕様を**表 1** に示す。GARIS の低バックグラウンド環境を意識して，その上で立体角を大きくできるように考慮してデザインを決定した。GARIS-II のイオン光学特性は，計算コード TRANSPORT [2]により解析を行った。GARIS-II の角度アクセプタンスは±48 mrad(X)/±118 mrad(Y)であり，立体角は 20.2 msr である。GARIS の約 2 倍の通過効率が期待される。充填ガスとの多重散乱による像の広がりを抑えるため，全長は GARIS の 5.76 m より短い 5.12 m と設計した。探索可能な超重核の最大磁気剛性は，2.44 Tm である。GARIS-II では，充填ガスとして He 以外に He-H_2 混合ガスの使用も検討している。超重元素化学研究として重要となる反応系 ^{248}Cm(^{22}Ne,5n)^{265}Sg を例として，水平および垂直方向に対する beam envelope を**図 1** に示した。

Q_v	最大磁場勾配	12.2 T/m
	ボア径	150 mm
	磁極長	330 mm
D	磁極間距離	150 mm
	最大磁場	1.69 T
	偏向角	30 °
	中心軌道半径	1440 mm
	入射面角度	0 °
	出射面角度	30 °
Q_h	最大磁場勾配	4.70 T/m
	ボア径	300 mm
	磁極長	250 mm
Q_v	最大磁場勾配	5.27 T/m
	ボア径	300 mm
	磁極長	450 mm
D	磁極間距離	200 mm
	最大磁場	0.86 T
	偏向角	7°
	中心軌道半径	2850 mm
	入射面角度	0 °
	出射面角度	-7 °

表 1　GARIS-II の電磁石の仕様[1]

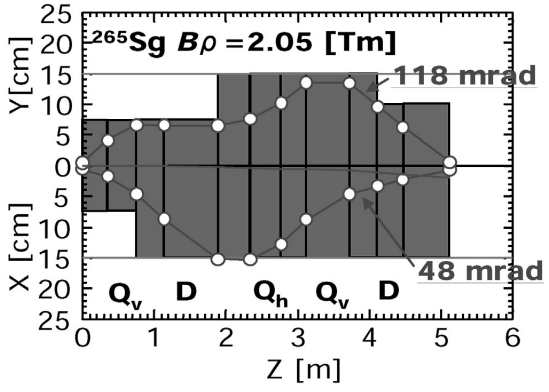


図 1　TRANSPORT によって計算した ^{265}Sg に対する beam envelope[1]

参考文献

[1] D. Kaji et al.: RIKEN Accel. Prog. Rep. **42**, (2009) [In print].

[2] K. L. Brown et al.: SLAC Report **91** Rev. 1, 1974.

Development of a new gas-filled recoil ion separator GARIS-II

KAJI, D., MORIMOTO, K., SATO, N., YONEDA, A., MORITA, K.

3B09

GARIS 直結型ガスジェット搬送システムによる超重元素化学実験対象核種 ^{261}Rf の製造

(理研仁科セ，阪大院理[1]，原子力機構先端基礎研究セ[2])
○羽場宏光，大江一弘[1]，大関和貴，笠松良崇，加治大哉，工藤祐生，
小森有希子[1]，佐藤　望[2]，篠原　厚[1]，森田浩介，森本幸司，米田　晃

【はじめに】 我々のグループでは，理研重イオンリニアック施設（RILAC）に既設の気体充填型反跳核分離装置（GARIS）の焦点面にガスジェット搬送装置を設置し，物理的に前段分離された超重元素（原子番号 Z≧104）を液体クロマトグラフやガスクロマトグラフなどの化学分析装置に導入する新しい化学分析システムの開発を進めている．これまで，それぞれ ^{169}Tm(^{40}Ar,3n)，^{208}Pb(^{40}Ar,3n)ならびに ^{238}U(^{22}Ne,5n)反応によって生成する ^{206}Fr，^{245}Fm，^{255}No を用いて，GARIS 直結型ガスジェット搬送装置の開発研究を行ってきた[1,2]．今回，大口径のガスジェットチャンバーと回転式 ^{248}Cm 標的を新たに開発し，^{248}Cm(^{18}O,5n)反応によって生成する 104 番元素 Rf の化学実験対象核種 ^{261}Rf を化学実験室まで引き出すことに成功した[3]．

【実験】GARIS の焦点面にガスジェットチャンバー（D100mm×L20mm）を設置し，開口率 78%のサポートグリッドで支持した厚さ 0.5μm のマイラー箔を用いて両者を仕切った．RILAC で加速された ^{18}O イオン（95.5MeV，5pμA）を Ti 箔（0.90mg cm^{-2}）に電着した ^{248}Cm$_2$O$_3$ 標的（280μg cm^{-2}）に照射し，^{248}Cm(^{18}O,5n)反応によって ^{261}Rf（半減期 68s）を合成した．GARIS（He ガス圧 33Pa，磁気剛性 1.73Tm）によって質量分離した ^{261}Rf をガスジェットチャンバー内で He ガス中に捕獲し，KCl エアロゾルとともに化学実験室に搬送し，回転式 α 線連続測定装置（MANON）を用いて α 線スペクトロメトリーを行った．

【結果と考察】 Fig. 1 に，MANON で測定された ^{261}Rf の α 線スペクトルを示す．多核子移行反応などで生成する大量の副反応生成物は GARIS によって分離除去され，目的の ^{261}Rf とその娘核種 ^{257}No（25s）を極低バックグラウンド下で計測することができた．7.687MeV のピークは，天然放射性核種 ^{222}Rn の娘 ^{214}Po の α 線である．^{261}Rf のガスジェット効率は，焦点面 Si 検出器を用いた別の実験の結果と比較して求め，52±12%であった．一方，GARIS の分離効率は，反応断面積 13nb[4]を仮定して，D100mm の焦点面に対して 7.8±1.7%であった．討論会では，^{nat}Ge(^{18}O,xn)^{85}Zr ならびに ^{nat}Gd(^{18}O,xn)^{169}Hf 反応を用いて行った Rf の軽い同族元素の製造実験についても報告する．

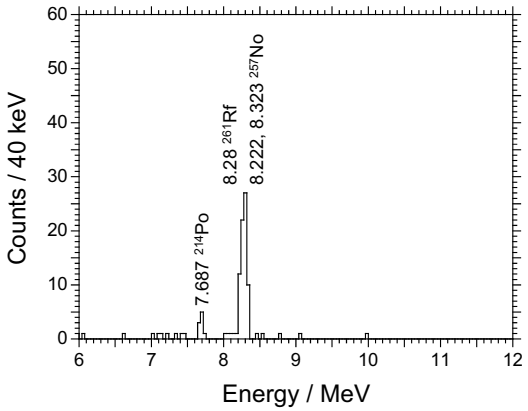


Fig. 1. Sum of α-particle spectra measured in the seven top detectors of MANON for 210 s after 30-s aerosol collection. The beam dose of 6.3×10^{17} was accumulated. The He flow rate was 2 L min^{-1} and the chamber pressure was 49 kPa. The temperature of the KCl aerosol generator was 620 °C.

【参考文献】

[1] H. Haba *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. **8**, 55 (2007).
[2] H. Haba *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. **9**, 27 (2008).
[3] H. Haba *et al.*, Chem. Lett. **38**, 426 (2009).
[4] Y. Nagame *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 85 (2002).

Production of ^{261}Rf for chemical studies using the gas-jet transport system coupled to GARIS
HABA, H., OOE, K., OZEKI, K., KASAMATSU, Y., KAJI, D., KUDOU, Y., KOMORI, Y., SATO, N., SHINOHARA, A., MORITA, K., MORIMOTO, K., YONEDA, A.

3B10

Cf 標的を用いた長寿命 Fm, Es トレーサーの製造と核分光

（原子力機構・先端基礎セ [1]、理研・仁科セ [2]）○浅井雅人 [1]、塚田和明 [1]、笠松良崇 [1,2]、佐藤哲也 [1]、豊嶋厚史 [1]、永目諭一郎 [1]

【はじめに】 重アクチノイドの化学的性質を調べる際、マクロ量の試料を入手できないことは大きな実験的制約である。そのため多くの実験はトレーサー量の試料を用いて行われるが、Cm よりも重い元素ではトレーサー量の入手すら難しい。Fm のトレーサーは、重イオン加速器を用いることで例えば ^{238}U(^{16}O,4n)^{250}Fm 反応によって合成可能である。しかし ^{250}Fm の半減期は 30 分で生成量も少なく、且つ α 線測定でしか観測できないので使い勝手は悪い。本研究では、半減期 1 日以上で γ 線測定によって観測可能な Fm 及び Es 同位体を重イオン核反応によって比較的大量に合成することに成功したので報告する。

【実験】 Fm, Es 同位体は、Cf 標的に ^{12}C ビームを照射して合成した。直径 1.4 mm、厚さ 420 μg/cm^2 の Cf 標的（同位体比：63% ^{249}Cf, 12% ^{250}Cf, 25% ^{251}Cf）を作成し、原子力機構タンデム加速器を用いて約 600 pnA の ^{12}C ビーム（71 MeV）をピンポイントに照射した。標的から反跳脱出した生成核を He/KCl ガスジェット法により実験室まで搬送し、生成核の付着した KCl 微粒子を薄膜上に捕集した。捕集した KCl は一定時間毎に 0.1 M 硝酸にて溶解・回収し、計 3 日間の照射後硝酸メタノール系の陰イオン交換分離法により、Fm 及び Es を KCl や他の核反応生成物、反跳によって飛び出した標的物質（Cf）から分離し、サマリウム共沈法により線源を作成した。

【結果】 Fig. 1 に化学分離して得られた Fm, Es 線源の γ 線スペクトルを示す。Fm 及び Es の EC 崩壊によって放出された Es 及び Cf の特性 X 線が非常に強く観測されている。X 線強度の時間減衰（Fig. 2）から、主な生成核は ^{253}Fm（半減期 3 日）と ^{251}Es（半減期 33 時間）であることが判った。2 時間の測定で 1 万カウント以上の Es $K_{\alpha1}$X 線が観測されており、工夫次第で Fm 及び Es を対象にした様々な化学実験が可能である。また、α 線測定においても 100 Bq 程度の ^{252}Fm（半減期 25 時間）や 10 Bq 程度の ^{253}Es（半減期 20 日）が観測された。

今回の照射実験は、元々は ^{259}Rf（半減期 3 秒）の α - γ 核分光実験が目的であり、照射後の化学分離も ^{253}Fm の α - γ 核分光実験を目的としたもので、今回の成果はその副産物として得られた。講演では元々の目的である核分光実験の結果についても報告する。

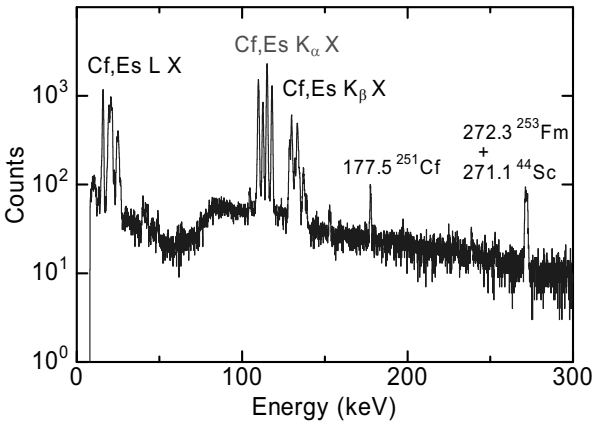


Fig. 1: Gamma-ray spectrum of the Fm and Es tracer measured for 2 h after 4.5-d cooling.

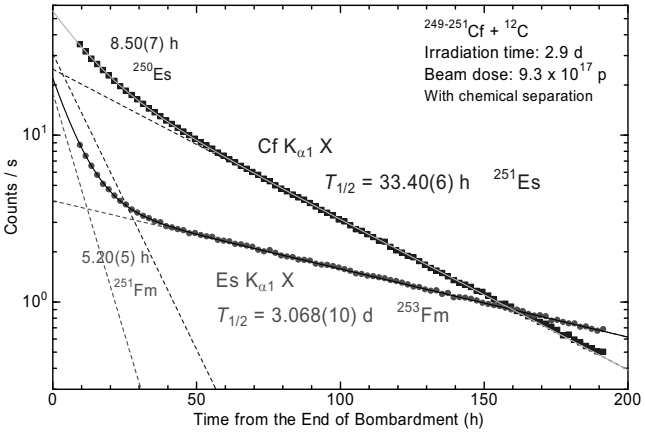


Fig. 2: Decay curves of Es and Cf $K_{\alpha1}$X rays in the Fm and Es tracer.

Production of long-lived Fm and Es tracers using a Cf target and its application to nuclear spectroscopy
ASAI, M., TSUKADA, K., KASAMATSU, Y., SATO, T.K., TOYOSHIMA, A., NAGAME, Y.

3B11

新同位体 ^{263}Hs の生成および壊変特性

(理研仁科セ[1]、原子力機構先端基礎研究セ[2]、京大基礎物理研[3]、東大原子核科学研究セ[4]、筑波大[5]、東京理科大[6]、埼玉大[7]) ○加治大哉[1]、森本幸司[1]、佐藤望[2]、羽場宏光[1]、市川隆俊[3]、井手口栄治[4]、小浦寛之[2]、工藤祐生[1]、小沢顕[5]、大関和貴[1]、住田貴之[1,6]、山口貴之[7]、米田晃[1]、吉田敦[1]、森田浩介[1]

はじめに

^{208}Pb(^{58}Fe,n)^{265}Hs 反応による 108 番元素(Hs)同位体 ^{265}Hs の初観測以来、^{264,266,267,269,270,271}Hs の壊変特性が調べられている。中性子欠損側 Hs 同位体 ^{263}Hs は、過去にその生成が報告されているが[1,2]、α 壊変エネルギーおよび半減期等の壊変特性が知られておらず核種の同定には至っていない。そこで、理研重イオン線形加速器を用いて、^{206}Pb(^{58}Fe,n)反応および ^{208}Pb(^{56}Fe,n)反応により ^{263}Hs の直接生成を試みた。

実験

RILAC から供給される 287.7 MeV ^{58}Fe ビームを ^{206}Pb(400 μg/cm^2, 濃縮度 99.3%)に照射し，^{206}Pb(^{58}Fe,n)^{263}Hs 反応を起こさせた。また、クロスボンバードメントとして、280.4 MeV ^{56}Fe ビームを ^{208}Pb 標的(440 μg/cm^2, 濃縮度 98.4%)に照射し, ^{208}Pb(^{56}Fe,n)^{263}Hs 反応も起こさせた。これらの反応によって生成した ^{263}Hs を気体充填型反跳分離装置により入射粒子や副反応生成物から分離した後，検出器系へ搬送した。検出器系は，飛行時間検出器と位置敏感型シリコン半導体検出器を組み合わせたものを用いた。核種同定は，生成核およびその娘核に固有なα線および自発核分裂を観測することによって行った。

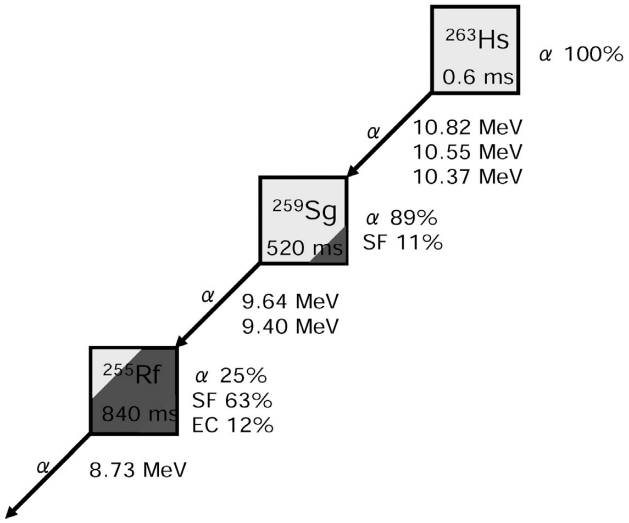


図 1. 観測された新核種 **^{263}Hs** 起因のアルファ壊変連鎖[3]。各々の原子核の壊変エネルギー，壊変時間，分岐比を示した。

結果と考察

^{206}Pb+^{58}Fe 反応において 8 壊変連鎖を観測し，一方，^{208}Pb+^{56}Fe 反応において 1 壊変連鎖を観測した。これら壊変連鎖が既知核 ^{259}Sg および ^{255}Rf に到達(壊変特性が一致)していることを根拠として，^{263}Hs に起因する壊変連鎖であると結論づけた。今回観測した新核種 ^{263}Hs の半減期およびα壊変エネルギーは，$T_{1/2}$=0.6 ms および E_α=10.82,10.55, 10.37 MeV であった。

参考文献

[1] Yu. Ts. Oganessian et al., Z. Phys. A **319**, 215 (1984).
[2] A. Ghiorso et al., Phys. Rev. C **51**, R2293 (1995).
[3] D. Kaji et al.: J. Phys. Soc. Jap. **78**, 035003 (2009).

Productions and decay properties of a new isotope of ^{263}Hs

KAJI, D., MORIMOTO, K., SATO, N., HABA, H., ICHIKAWA, T., IDEGUCHI, E., KOURA, H., KUDO, Y., OZAWA, A., OZEKI, K., SUMITA, T., YAMAGUCHI, T., YONEDA, A., YOSHIDA, A., MORITA, K.

3B12

^{264,265}Hs の合成及び崩壊特性の研究

（原子力機構先端基礎研究セ[1]、理研仁科セ[2]、京大基礎物理研[3]、東大原子核科学研究セ[4]、筑波大[5]、東京理科大[6]、埼玉大[7]）○佐藤望[1]、加治大哉[2]、森本幸司[2]、羽場宏光[2]、市川隆敏[3]、井手口栄治[4]、小浦寛之[1]、工藤祐生[2]、小沢顕[5]、大関和貴[2]、住田貴之[2,6]、山口貴之[7]、米田晃[2]、吉田敦[2]、森田浩介[2]

【はじめに】原子核が閉殻を形成することで安定な性質を示す陽子や中性子の数は魔法数と呼ばれており、現在は最大の魔法数として陽子数 $Z = 82$、中性子数 $N = 126$ が知られている。また、次の魔法数は、理論的には $Z = 114$、120 等や $N = 184$ であると予想されている。これらの原子核は球形と予想されているが、超重核領域の $Z = 108$、$N = 152$、162 には、原子核が変形しているにもかかわらず、他の核に比べてα崩壊エネルギーが小さいという安定な性質を持つ原子核が存在することが最近の実験によって明らかになった。特に、変形二重魔法核の ^{270}Hs（$Z = 108$、$N = 162$）やその周囲の核は詳しい性質が研究されている[1]。しかし、中性子の少ない Hs 同位体は、生成された個数が少ないこともあり、その性質はあまり知られていない。そこで、理化学研究所において ^{263,264,265}Hs の合成実験を行い、それらの崩壊特性を研究した。

本講演では ^{264,265}Hs の性質について述べる。^{263}Hs に関しては、加治氏が講演番号 3B11 にて講演予定である[2]。

【実験】理研線形加速器 RILAC を用いて ^{208}Pb(^{58}Fe, *xn*) [$x = 1,2$]及び ^{207}Pb(^{58}Fe, *n*) 反応により ^{264,265}Hs を合成し、気体充填型反跳分離装置 GARIS によって核融合生成物を分離・収集し、GARIS の焦点面に設置された位置検出型シリコン検出器にインプラントした。そこで観測されたα線や自発核分裂イベントにより、崩壊特性を研究した。

【結果・考察】^{208}Pb(^{58}Fe, *n*)^{265}Hs 反応では、断面積の最大値として(51^{+46}_{-29}) pb が得られた。この時の入射エネルギーは標的の中心で 220.5 MeV であり、入射系に Audi ら[3]、複合核に Myers and Swiatecki の質量公式[4]を適用して求めた複合核の励起エネルギーは約 15 MeV になる。これは、過去に理研で行われた Pb 及び Bi 標的を用いた超重核合成の反応断面積が最大となるエネルギーの系統性を支持する結果である[5]。また、変形魔法数 $N = 152$ へのアプローチとして、^{264}Hs の崩壊特性に関する統計を向上させることができた。
その結果を図 1 に示す。

【参考文献】
[1] J. Dvorak *et al.,* Phys. Rev. Lett. **100,** 132503 (2008)
[2] D. Kaji *et al.,* J. Phys. Soc. Jap. **78,** 035003 (2009)
[3] G. Audi *et al.,* Nucl. Phys. **A 729,** 337 (2003)
[4]W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. **A 601,** 141 (1996)
[5]K. Morita, 日本物理学会誌 **60,** 698 (2005)

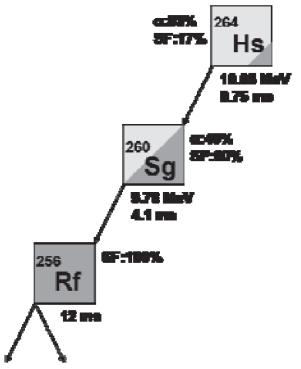


図 1：^{264}Hs の崩壊連鎖。

Production and decay properties of ^{264,265}Hs
SATO, N., KAJI, D., MORIMOTO, K., HABA, H., ICHIKAWA, T., IDEGUCHI, E., KOURA, H., KUDOU, Y., OZAWA, A., OZEKI, K., SUMITA, T., YAMAGUCHI, T., YONEDA, A., YOSHIDA, A., MORITA, K.

3B13

^{248}Cm+^{23}Na による ^{266}Bh の生成と崩壊特性

(理研仁科セ[1]、原子力機構先端基礎研究セ[2]、京大基礎物理研[3]、山形大学[4]、新潟大学[5]、東大原子核科学研究セ[6]、大阪大学[7]、筑波大[8]、埼玉大[9]) ○森本幸司[1], 森田浩介[1], 加治大哉[1], 羽場宏光[1], 大関和貴[1], 工藤祐生[1], 佐藤望[12], 住田貴之[1], 米田晃[1], 市川隆敏[13], 藤森康之[4], 後藤真一[5],井手口栄治[6], 笠松良崇[1], 鹿取賢治[1], 小森有希子[7], 小浦寛之[2], 工藤久昭[5], 大江一弘[7], 小沢顕[8], 門叶冬樹[4], 塚田和明[2], 山口貴之[9], 吉田敦[1]

【はじめに】これまでに、理研気体充填型反跳核分離装置（GARIS）を用い ^{209}Bi(^{70}Zn,n)^{278}113 反応による 2 例の新元素 ^{278}113 の生成が報告されている[1,2]。その崩壊連鎖は既知核である ^{266}Bh とその娘核である ^{262}Db に到達しているが、^{266}Bh の報告例は乏しい[3,4]。^{278}113 の崩壊連鎖と既知核とのつながりをより確実にするために、GARIS を用いて ^{248}Cm(^{23}Na,5n)^{266}Bh 反応による ^{266}Bh の生成を試みその崩壊特性の研究を行った。

【実験】理研 RILAC から供給される 126, 130 および 132MeV の ^{23}Na ビームを、直径 10cm の回転式 ^{248}Cm ターゲットに照射し ^{248}Cm(^{23}Na,5n)^{266}Bh 反応による ^{266}Bh 生成を試みた。蒸発残留核は、ガス充填型反跳核分離装置 GARIS で分離され、焦点面に設置したシリコン検出器箱に打ち込み観測を行った。ビーム照射中は計数率が高いため、ビームは 3 秒 ON その後 3 秒 OFF を繰り返し、計数率の低い OFF 期間中に ^{266}Bh と思われる崩壊が観測にかかった場合にはさらにビームを 100 秒 OFF にして信頼度の高い崩壊連鎖の観測を行った。

【結果・考察】

^{248}Cm+^{23}Na 反応により、合計 32 の崩壊連鎖を観測した。そのうち、14 崩壊連鎖は明確に ^{266}Bh からの崩壊連鎖であると結論し、10 崩壊連鎖を ^{266}Bh からの崩壊連鎖の可能性が高い連鎖であると結論した。残りの崩壊連鎖は、^{267}Bh からの崩壊連鎖および同定不能な崩壊連鎖とした。観測された ^{266}Bh からのα線のエネルギーは 9.05 から 9.23MeV に分布しており、娘核である ^{262}Db は報告されている半減期と矛盾無くα崩壊および自発核分裂する事が確認された[5]。これらの結果は、前述の新元素 ^{278}113 の崩壊連鎖中に観測されている ^{266}Bh および ^{262}Db の観測結果を追認するものとなった。

【参考文献】

[1] K. Morita *et al.,* J. Phys. Soc. Jan. **73,** 2593 (2004)
[2] K. Morita *et al.,* J. Phys. Soc. Jan. **76,** 045001 (2007)
[3] P. A. Wilk *et al.,* Phys. Rev. Lett. **85,** 2967 (2000)
[4] Z. Qin *et al.,* Nucl. Phys. Rev. **23,** 400 (2006)
[5]K. Morita *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. **78**,064201 (2009)

Production and Decay Properties of ^{266}Bh and its daughter nuclei

MORIMOTO, K., MORITA, K., KAJI, D., HABA, H., OZEKI, K., KUDOU, Y., SATO, N., SUMITA, T., YONEDA, A., ICHIKAWA, T., FUJIMORI, Y., GOTO, S., IDEGUCHI, E., KASAMATSU, Y., KATORI, K., KOMORI, Y., KOURA, H., KUDO, H., OOE, K., OZAWA, A., TOKANAI, F., TSUKADA, K., YAMAGUCHI, T., YOSHIDA, A.