2T01

樹木への原発事故由来降下物の吸着

（清水建設技研[1]、筑波大数理物質[2]、筑波大加速器[3]、筑波大生命環境[4]、KEK放射線[5]、JAEA[6]、日大文理[7]）○木下哲一[1]、末木啓介[2]、笹公和[3]、高橋努[3]、松村万寿美[3]、佐藤志彦[4]、黄穎斬[4]、五十嵐訓[2]、半田晃士[2]、北川潤一[5]、西村朋紘[6]、佐藤正教[7]、山形武靖[7]

2011 年 3 月の福島原発事故の際に、おびただしい量の放射性物質が環境中に放出され、テルルやセシウムなどの不揮発性の物質は降雨による湿性沈着により地表に降下した。ヨウ素は粒子状とガス状の 2 つの形態が観測されており、地域差もあるが湿性沈着と乾性沈着の割合がそれぞれ約 50%ずつと報告されている(Morino, et al., 2011)。森林では、降下した核種は樹木に吸着し、降雨により洗い流されたと予想されるが、吸着割合や核種ごとの差などは予測困難である。我々のグループは 2011 年 4 月下旬に福島県内の 6 地点において森林内で上空が樹木で覆われた場所とそこから約 2 km 以内の開けた平地で土壌の採取を行い、^{131}I、^{137}Cs、^{129m}Te の降下量の比較を行った。

森林内と森林外の土壌への降下量の比は ^{131}I は ^{129m}Te と ^{137}Cs よりも大きく差が見られる。森林内/森林外降下量の比の平均値は、^{131}I は 0.38、^{129m}Te は 0.050、^{137}Cs は 0.037 であった。^{131}I は 62%、^{129m}Te は 95%、^{137}Cs は 96%が樹木に吸着していることを示す。アメダスによると対象とした地域では、原発事故から土壌採取を行った 4 月下旬までに約 20 mm の降雨量（積算値）が観測されている。また、^{129m}Te と ^{137}Cs はほぼ 100%が粒子状態で、^{131}I は九州では約 50%が粒子状態、50%がガス状態と観測されている(Momoshima et al., 2012)。^{129m}Te と ^{137}Cs より、樹木に降下したエアロゾルは 20 mm 程度の降雨では、ほぼ全量が樹木に吸着した状態で存在する。一方で、ガス状の ^{131}I は一度樹木に吸着した後、降雨により樹木から洗い流されたが、粒子状の ^{131}I は ^{129m}Te や ^{137}Cs と同様に樹木に吸着していたものと考えられる。

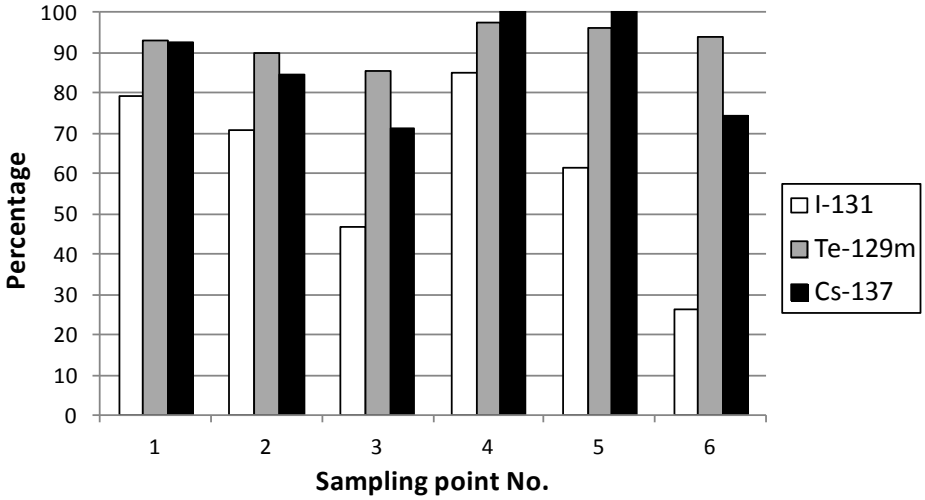

Fig. 1　Percentages of the nuclides present on vegetation.

Morino, Y., Ohara, T., Nishizawa, M., Geophys. Res. Lett. **38**, L00G11 (2011).

N. Momoshima, S. Sugihara, R. Ichikawa, H. Yokoyama., J. Environ. Radioact. **111**, 28-32 (2012).

Adsorptions of radioactive contaminants from the Fukushima nuclear accident on vegetation

KINOSHITA, N., SUEKI, K., SASA, K., TAKAHASHI, T., MATSUMURA, M., SATOU, Y., WONG, Y.S., IKARASHI, S., HANDA, K., KITAGAWA, J., NISHIMURA, T., SATO, M., YAMAGATA, T.

2T02

福島・茨城・群馬県における河川水の放射性セシウムの放射能濃度

（金沢大環日セ[1]、金沢大院自然[2]、アクアマリンふくしま[3]、群馬県水試[4]）
○長尾誠也[1]、金森正樹[2]、富原聖一[3]、鈴木究真[4]、落合伸也[1]、山本政儀[1]

【緒言】福島第一原子力発電所から環境中に放出された放射性セシウムは陸上の広範囲に沈着し、福島県と茨城県、群馬県の山間部に比較的高い放射性セシウムの蓄積量を示している。そのため、中長期にわたる放射性セシウムの移行動態と生態系への影響を評価するためには、河川流域から河川への放射性セシウムの移行量と移行プロセスを明らかにする必要がある。本研究では、2011 年 12 月、2012 年 4 月に阿武隈川、久慈川、那珂川、利根川等で河川水を採取し、河川水の放射性セシウム濃度を測定した。発表では、各流域における放射性セシウムの放射能濃度から移行挙動を検討した結果を報告する。

【実験】福島県内の河川は、空間線量のデータを基にして阿武隈川上流（白河市）、中流（本宮市）、下流（伊達市、丸森町、岩沼市）、宇多川、新田川、夏井川、鮫川を調査対象として選定し、河川流心の表層水 15～20L を 2011 年 12 月 6-7 日に採取し、河川水の水質を多項目水質計により測定した。群馬県では利根川、烏川、渡良瀬川で 2011 年 12 月 15-16 日に観測を実施した。2012 年 4 月 17 日には群馬県の上記の３測点で、茨城県は久慈川と那珂川で 4 月 16-17 日、福島県では 4 月 17 日～19 日に同様の調査を実施した。

河川水中の放射性セシウム（^{134}Cs、^{137}Cs）は、リンモリブデン酸アンモニウム沈殿法により分離し、金沢大学低レベル放射能実験施設、あるいは尾小屋地下実験施設の Ge 検出器で測定した。なお、^{134}Cs に関してはサム効果の補正を行った。溶存態と粒子態の放射性セシウムの分画には、孔径 0.45 μm のカートリッジフィルターを使用し、ろ液の放射性セシウムの放射能濃度を測定し、溶存態と懸濁態の放射性セシウムの割合を見積もった。

【結果と議論】 2011 年 12 月の阿武隈川河川水の ^{137}Cs の放射能濃度は 41 mBq/L から 120 mBq/L の変動幅を示し、下流の伊達市で最大値を示した。宇多川では 37 mBq/L、飯舘村を流れる新田川では 189 mBq/L と高い値であった。一方、福島県南部の夏井川と鮫川では、11 mBq/L から 28 mBq/L と阿武隈川に対して低い放射能濃度を示し、群馬県の利根川、烏川、渡良瀬川ではほぼ同じ放射能濃度（7.7-13 mBq/L）であった。^{134}Cs/^{137}Cs の放射能濃度比は、^{134}Cs を 2011 年 3 月 11 日に壊変補正した場合、0.97-1.10 とほぼ 1 前後であり、福島原発由来の放射性セシウムであることを示唆している。河川水中の放射性セシウムの放射能濃度は、河川流域土壌への放射性セシウムの蓄積量水平分布とほぼ一致している。つまり、事故後 9 ヶ月経過した時点でも、河川水中の放射性セシウムの放射能濃度は、河川流域環境に左右されていることが考えられる。

阿武隈川と宇多川、新田川河川水における ^{134}Cs、^{137}Cs の粒子態の割合を見積もった。その結果、阿武隈川上流から下流までの 5 測点で 61～89%、宇多川で 58%、新田川で 80%、全体としては平均値 70 ± 12%であり、平水時に放射性セシウムはかなりの割合で粒子態として河川を移動していることをが明らかとなった。

Radioactivity of radiocesium in river waters from Fukushima, Ibaraki and Gunma prefectures, Japan
NAGAO, S., KANAMORI, M., TOMIHARA, S., SUZUKI, K., OCHIAI, S., YAMAMOTO, M.

2T03

砂浜における放射性セシウムの浸透特性

（筑波大院生命[1]、筑波大院数理[2]、慈恵医大・アイソ[3]、名大院医[4]）
○佐藤志彦[1]、末木啓介[1,2]、笹公和[2]、箕輪はるか[3]、緒方良至[4]

2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所事故で放出した様々な放射性核種は、降雨等により大地に沈着した。その後の降雨により表面から地中に浸透し、その浸透作用は土壌粒径に大きく依存することを、2011 年６月に採取した試料で確認し、昨年の放射化学討論会にて報告した。その報告で砂浜における浸透作用は極めて大きく、沈降した放射性セシウムは地表面ではなく、深度５センチ付近にその多くが蓄積し、継続的に深部へ浸透が進む可能性を示唆した。そこで砂浜を初回採取から１年経過した本年６月に再度サンプリングを行い、深度分布の経年変化を追跡した。前年と同じ福島県いわき市の人工的に造成された海岸公園の砂浜から、深度 30 センチのコアサンプルを採取した。また今回は地面を掘削し、壁状の土壌断面サンプルも採取した。30 センチコアサンプルは圧縮率を考慮し、深度方向に 1cm ずつとなるよう切断し核種の定量を行った。また断面試料はイメージングプレートにそのまま曝射し像を得た。

事故から１年が経過し、検出できた事故由来の核種は ^{134}Cs と ^{137}Cs のみであった。図１（左）に示すように、これらの放射性核種は、テールを引くように分布し、深度 12-13cm 付近に最も蓄積していた。また図１（右）のイメージングプレートの像でもその関係は確認することができた。土壌の粒径測定によると、^{137}Cs が保持されていた表層から深度 15cm までの土壌平均粒径は 200-300μm（95%）の範囲に収まっており、粒径がほぼ均一であることが確認された。さらに核種量に減衰補正を施し、前年の核種量と比較すると、85%以上がそのまま地中に存在していた（図 1 は減衰補正済）。これは地表に沈着した放射性核種が、降雨によってそのまま地中へ浸透し、保持されていると考えられる。そして粒径が均一な条件では、現在の集積深度よりさらに浸透する可能性があり、より詳細な動態解明が必要であることを確認した。

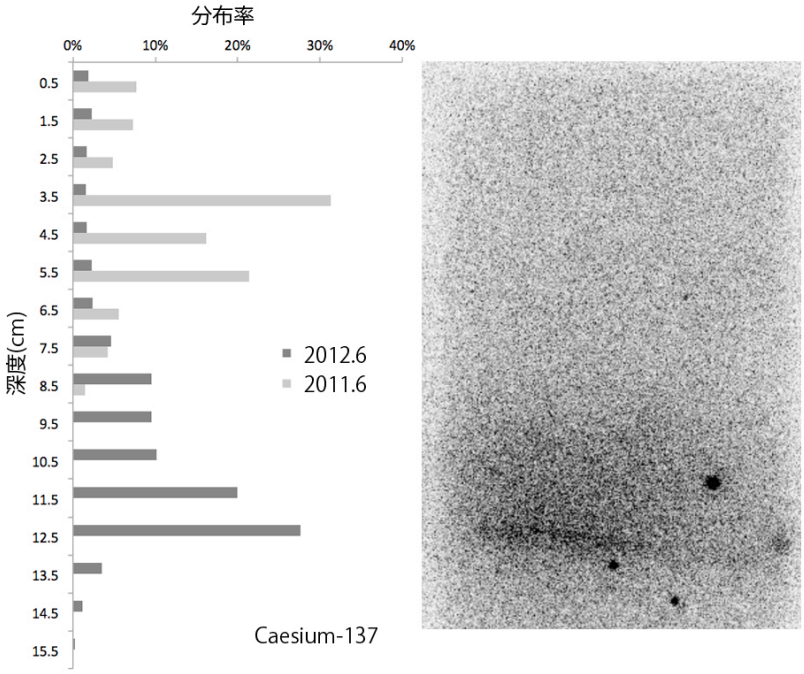

図 1 本年と昨年の核種分布比較(左)と、IP 像(右)

Penetration characteristic of radiocaesium in the sandy beach
SATOU, Y., SUEKI, K., SASA, K., MINOWA, H., OGATA. M.,

2T04 福島県沿岸部の貝類に含まれる放射性核種

（名大院・医[1]、慈恵医大・アイソトープ[2]、筑波大院・生命環境[3]、愛知医大・医[4]）
○緒方良至[1]、箕輪はるか[2]、佐藤志彦[3]、小島貞男[4]

【緒言】東電福島第一原発事故で大気中および海洋に大量の放射性物質が放出された。海洋では、食物連鎖を通じて、特定の種で特定の核種が濃縮されることがある。イカやホタテから ^{110m}Ag が検出されたとの報告もある(1)。我々は、福島県いわき市久ノ浜および広野町沿岸で貝類を採取し、γ核種分析を試みた。

【方法】広野町高萩の浜辺でカサガイ（ベッコウガサ、Japanese Grata Limpet、*Cellana grata*）を、久之浜漁港の岸壁でカキ（マガキ、Japanese oyster、*Crassostea gigas*）およびイガイ（ムラサキイガイ、Common Blue Mussel、*Mytilus edulis Linnaeus*）を、広野町沖でツブガイ（ヒメエゾボラ、Arthritic Whelks、*Neptunea arthritica*）およびウニ（ムラサキウニ、Purple sea urchin、*Anthocidaris crassispina*）を採取した。貝は、タワシで殻表面を洗浄した後、殻と身に分離した。カサガイ・ツブガイでは、さらに、身を筋肉質と内臓に分けた。貝殻および身をオーブンで 100℃前後で数時間かけて乾燥した。乾燥した試料を高純度 Ge 半導体検出器で測定し、γ核種分析を行った。測定結果から、生重量に対する放射能濃度(Bq/kg)を計算した。一部の海域から海水を採取し、このうち 2 L を蒸発乾固することによって濃縮し、Ge 検出器で測定した。

【結果と考察】 全ての貝類の身で放射性セシウム（^{134}Cs, ^{137}Cs）を検出した。また、カサガイ、カキ、ツブガイでは、^{110m}Ag を検出した。生重量に対する放射能濃度は各核種とも検出下限（～0.1 Bq/kg）から 300 Bq/kg の範囲であった。カキとイガイは同じ場所から採取したにもかかわらず、カキからは ^{110m}Ag が検出され、イガイからは検出されなかった。ツブガイとウニは、ともに、沖合の刺し網にかかったものであるが、ツブガイ内臓では高濃度の ^{110m}Ag が検出された一方、ウニでは ^{110m}Ag は検出されなかった。これは食性の違いによるものと推察される。カサガイ、ツブガイの内臓で、^{110m}Ag は、^{137}Cs の 3～10 倍の放射能を示した。貝類では、ヘモシアニンが血液色素としての働きを持ち、このヘモシアニンの銅が銀（^{110m}Ag）に置換されることにより Ag が濃縮すると推測されている。

殻の放射性核種濃度は、身に比べて低く、また、カキ以外では、殻の部分で ^{110m}Ag は検出されなかった。この原因として、カキの殻表面は非常に複雑で、表面に付着した藻やフジツボなどの物質が充分に除去できなかったことが考えられる。

放射性セシウム、^{110m}Ag 以外の人工のγ核種は検出下限以下であった。天然放射性核種としては ^{40}K 以外にカサガイの内臓で比較的高濃度の ^{7}Be が検出された。貝類の種によって ^{137}Cs に対する ^{110m}Ag の比に違いがあった。また、放射性セシウムおよび銀は、筋肉より内臓に蓄積されやすいことが分かった。食物連鎖でより上位にいる生物における核種分布に興味が持たれる。海水の ^{110m}Ag は、検出下限以下であった。また、場所によって、海水中の放射性セシウムの濃度に差があった。

海産生物のモニタリングでは、放射性セシウムだけでなく放射性銀にも注目すべきである。

---

(1) 保健医療科学院 http://trustrad.sixcore.jp/ag-110m.html

Radionuclides in shellfishes collected on and off the coast of Fukushima
OGATA, Y., MINOWA, H., SATOU, Y., KOJIMA, S.

2T05

福島第一原子力発電所で放出されたヨウ素１２９の測定による ヨウ素１３１の分布の再構築の試み

（東大院工[1]、日大文理[2]、日大院総合基礎科学研究[3]）〇三宅泰斗[1]、松崎浩之[1]、藤原健[1]、斉藤拓巳[1]、山形武靖[2]、本多真紀[3]

【緒言】 2011 年 3 月の福島第一原子力発電所事故により多量の放射性物質が放出された。福島事故を起源とする被ばく量を知ることはそれだけで重要であるが、その中でも、事故当初大きな線量を持っていたと考えられるヨウ素 131 の分布を知ることが必要である。しかしながら、ヨウ素 131 は、半減期が約 8 日であり短期間で崩壊し今後測定することができない。もう一つの重要な核種であるセシウム 137 は現在でも測定することが可能であるが、チェルノブイリ事故で得られた知見から、ヨウ素とセシウムの挙動は違い、セシウムはヨウ素 131 の分布の再構築には適さないと考えられる。一方、同様に漏出したヨウ素 129 も加速器質量分析法にて現在も測定可能である。また、ヨウ素 129 はヨウ素 131 の同位体であるため、これらの同位体比を求めることにより、事故当初のヨウ素 131 の分布の再構築が可能であると考えられる。本研究では福島第一原子力発電所周辺の土壌について実際に同位体比を求め、ヨウ素 131 の分布の再現を試みた。

【実験】 測定した試料は、福島第一原子力発電所から 60km 圏内において 2011 年 4 月 20 日に採取され、ヨウ素 131 が決定された表層土壌である。試料は全部で 50 点あり、主に水田と森林から採取された。各試料を均質化し焼成した後、溶媒抽出･逆抽出で土壌中のヨウ素を回収した。その後硝酸銀を加えることでヨウ化銀の沈殿を作成し、加速器質量分析(AMS)にて土壌中のヨウ素 129 を、ICP-MS にてヨウ素 127 をそれぞれ測定した。

【結果･考察】 AMS により得られたヨウ素 129 の沈着量は原子力発電所から 60km 圏内において 11.8～6.06×10^{3}mBq/m^2 の範囲となった。また、濃度で表すと 1.71×10^{-4}～9.13×10^{-2}Bq/kg となった。ヨウ素 127 については 0.21～17.4ppm で分布していた。同位体比を求める前に、事故前に測定されたデータと比較して、バックグラウンドに影響されていると考えるものを除いた。2011 年 3 月 11 日時点のヨウ素 131 とヨウ素 129 の平均の同位体比を求め、その後、ヨウ素 129 の沈着量からヨウ素 131 の分布を再構築の可能性を検討した。

Reconstruction of I-131 distribution by measuring I-129 released from Fukushima Daiichi NPP accident

MIYAKE, Y., MATSUZAKI, H., FUJIWARA, T., SAITO, T., YAMAGATA, T., HONDA, M.

2T06

ICP-MS によるヨウ素 129 分析法の開発と土壌試料への応用

(学習院大[1]、アジレント[2]、東大院[3])○大野 剛[1]、遠山知亜紀[1]、中野かずみ[2]
村松康行、松崎浩之[3]

【緒言】東日本大震災により生じた福島第一原子力発電所の事故で多量の放射性ヨウ素 131 が放出された。ヨウ素 131 の半減期は 8.02 日と短く、詳細なデータが必要とされる避難区域内では、試料採取・放射能測定が不十分だったため、ヨウ素 131 の分布に関する知見は限定的である。本研究では、ヨウ素 131 と同様に放出された長半減期のヨウ素 129（半減期 1570 万年）をトレーサーとして、避難区域内のヨウ素 131 の分布状況を詳細に把握するための技術開発に取り組む。これまでヨウ素 129 の測定には、中性子放射化分析法や加速器質量分析法が用いられてきた。特に、加速器質量分析法（AMS）は検出下限が低く、$^{129}I/^{127}I$ が 10^{-14} レベルの極微量ヨウ素 129 を検出することができる。しかし、その目的で使用できる施設は限られ、また試料前処理および分析に時間が掛かるため、大量の試料分析には不向きな点がある。近年、コリジョンセル・リアクションセルを装備した誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)に反応ガスとして酸素を用いた測定法が開発され、$^{129}I/^{127}I$ が 10^{-8} レベルのヨウ素 129 を検出することが可能となり、ICP-MS による迅速分析の有用性が示されつつある。

【実験】 ヨウ素 129 を分析する際に問題となるのは、アルゴンプラズマガス中の不純物である $^{129}Xe^{+}$や $^{127}IH_2^{+}$などの分子イオンによるスペクトル干渉である。本研究ではオクタポールリアクションシステムを搭載した四重極 ICP-MS(Agilent 7700x)を用い、酸素をリアクションガスとし、ヘリウムをコリジョンガスとして同時に用い、リアクション・コリジョン効果により、$^{129}Xe^{+}$や $^{127}IH_2^{+}$などのスペクトル干渉を低減させることを試みた。
土壌試料中のヨウ素を ICP-MS で分析するためには、土壌試料からヨウ素を回収する必要がある。本研究では、Pyrohydrolysis 法を用いてヨウ素の回収を行った。加熱分離によって得られた溶液にはヨウ素以外の元素も含まれる。本研究では、四塩化炭素を用いた溶媒抽出法によりヨウ素の精製を行った。

【結果と考察】 分析法の妥当性を評価するために、標準試料 NIST SRM 3231 L.I ($0.981\pm0.012\times10^{-6}$) 100 倍希釈溶液の測定を行ったところ、$1.11\pm0.13\times10^{-6}$ (1σ, n=5)となり誤差の範囲で良い一致が得られた。また、1 測定には 0.5 pg のヨウ素 129 を消費した。 ICP-MS の迅速性を活かすために、分析前処理法の簡略化が可能かどうか検討を行った。ヨウ素 129 の汚染がほとんどない土壌試料を Pyrohydrolysis 法により回収し、溶媒抽出法により精製することなく ICP-MS で測定した結果、質量数 129 に信号が検出された。これは Pyrohydrolysis 法により、ヨウ素以外の元素も回収され、これらの元素がコリジョンセル内で酸素と結合し、酸化物等の分子イオンがスペクトル干渉を起こしたものと考えられる。また溶媒抽出法によってヨウ素を精製した試料からは妨害イオンの信号は見られなかったことから、ICP-MS によるヨウ素 129 の測定には Pyrohydrolysis 法と溶媒抽出法との組み合わせで十分であると考えられる。本発表では標準試料の分析結果に加え、事故後に福島県で採取した土壌試料についての分析結果も紹介する予定である。

Determination of I-129 by ICP-MS and its application to soil samples
OHNO, T., TOYAMA, C., NAKANO, K., MURAMATSU, Y., MATSUZAKI, H.

2T07

福島エリアの河川水・湖水中のヨウ素 129 濃度の測定

（東大工[1]、東大院工[2]、日大院総合基礎科学研究[3]、日大文理[4]）〇徳山裕憲[1]、松崎浩之[2]、三宅泰斗[2]、本多真紀[3]、山形武靖[4]

【はじめに】 2011 年 3 月 11 日の東日本大震災によって起こった福島第一原子力発電所の事故の結果、^{129}I を含む多くの放射性核種が環境中に放出された。加速器質量分析による、^{129}I の定量は極めて感度が高いため、河川水や湖水中の ^{129}I の濃度を測定することで福島第一原発事故による影響が明瞭に分かる。本研究では、福島第一原発周辺の河川水や湖水中の ^{129}I の濃度を測定し、事故により放出された放射性同位体の分布や、放射性核種の移行を調べる可能性について吟味した。

【実験】 試料は、2011 年 12 月、2012 年 3 月、2012 年 6 月に福島第一原発周辺で採取した河川水と湖水を用いた。これらの試料を溶媒抽出したものに硝酸銀を加えて AgI を生成し、東京大学 MALT で加速器質量分析による定量を行った。

【結果】

2012 年 6 月に採取した河川水、湖水中の ^{129}I 濃度を Fig.1 に示す。福島第一原発から南西地域では、3.88 × 10^7atoms/L から 4.44 × 10^7atoms/L であり、原発事故前の 2006 年に東京都世田谷区で採取された水道水中の ^{129}I 濃度 2.69× 10^7atoms/L と比べて大きな違いは見られなかった。一方飯舘村・南相馬市では、1.51×10^8atoms/L から 3.32×10^9atoms/L となり、1 年以上経過しても事故の影響が見られた。

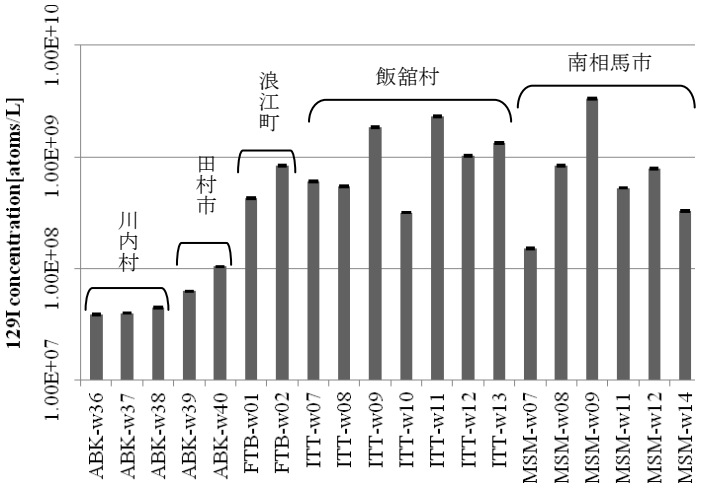

Fig.1 2012 年 6 月に採取した河川水、湖水試料中の ^{129}I 濃度

また、2011 年 12 月、2012 年 3 月、2012 年 6 月に同地点で採取した河川水、湖水中の ^{129}I 濃度を Fig.2 に示す。MSM-w5(横川ダム：南相馬市原町)を除く地点で ^{129}I 濃度は 12 月から 3 月では約 1.3-1.5 倍に、3 月から 6 月では約 1.3-3.9 倍に増加している。これは樹木及びその落葉などに付着していた ^{129}I の流出や、積雪・雪解け、降水量の増減等の季節的な変化が原因として考えられる。河川・湖沼において ^{129}I が希釈される様子を調べるには、長期的な定点観測が必要である。

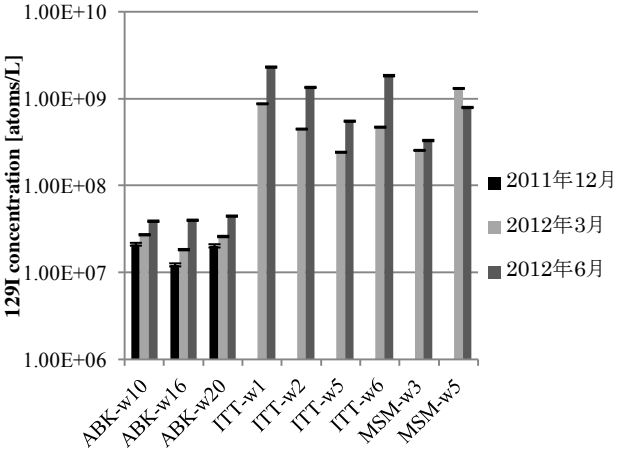

Fig.2 同地点で採取した試料中の ^{129}I 濃度の時間変化

Iodine 129 concentration in river and lake water in the Fukushima area
TOKUYAMA, H., MATSUZAKI, H.,MIYAKE, Y., YAMAGATA, T., HONDA, M.

2T08

環境中の放射性セシウムの濃縮手法に関する研究

(東大院総合文化[1]、東大アイソトープ総合センター[2])
○小豆川勝見[1]、野川憲夫[2]、松尾基之[1]

【緒言】 福島第一原子力発電所事故によって放出された放射性セシウムは、環境中では土壌と高い親和性を持つことから、天地返しや表層土壌の埋設のような物理的な土壌の移動以外に放射性セシウムを人間の管理下におくことが困難な状況が続いている。本研究では、放射性物質の除染とは環境中に拡散した放射性セシウムを濃縮し、管理出来る状況を広げていくことであるという立場に基づき、茨城県守谷市における公園と雨水用水路の除染方法について報告する。なお、守谷市は放射性物質汚染対処特措法に基づく汚染状況重点調査地域に指定され、谷が多い地形であることから局所的には極めて高い汚染が確認されている。

【実験】公園の除染では、まず現場で容易に行うことができる放射性セシウムの抽出法を探索した。そのため、0.01, 0.1, 1, 8M HNO_3 を土壌（表層 1 cm, ^{134}Cs, ^{137}Cs 合算値で 8 - 12 kBq/kg）に対して加えて室温で振盪させ、遠心分離で上澄みを採取し 0.45μm メンブレンフィルターで濾過後、液体シンチレーションカウンタ（LSC）によって 1 試料あたり 600 秒間の全 β 線測定を行った。次に抽出液に対して粒径を調整したゼオライトとプルシアンブルー（$Fe_4[Fe(CN)_6]_3$）を添加して十分に振盪し、放射性セシウムを吸着させた。吸着後の溶液を LSC で測定することで吸着剤による放射性セシウムの濃縮率を求めた。なお、全 β 線測定では天然核種の吸脱着も評価に加えている可能性があるため、土壌は吸脱着前後で Ge 半導体検出器を用いて γ 線測定も行った。また実地ではサーベイメータを用いた詳細な汚染マッピングを行った。雨水用水路の除染実験では、現地で比較的容易に入手可能である稲わらともみ殻を目の細かいネットに入れ、市内の用水路に上流から下流にかけて 1 m 間隔で 2012 年 1 月から 3 月までの 2 ヶ月間水没させ静置した。その前後で Ge 半導体検出器を用いて γ 線を測定し、これに合わせて走査型電子顕微鏡（SEM）観察を行った。

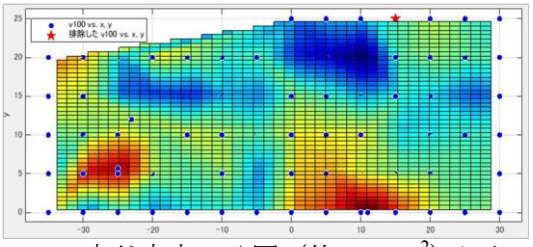

Fig. 1 守谷市内の公園（約 2500m^2）における詳細な空間線量率マッピング。地上高 5 cm で測定

【結果と考察】公園の除染実験では、土壌の粒径にかかわらず 8M HNO_3 が放射性セシウムの抽出に最適であることを確認した。さらにプルシアンブルーは 8M HNO_3 の強酸存在下でも高い吸着能力を示し、元の土壌から体積比で 6-90 倍の濃縮を行うことに成功した。濃縮後のプルシアンブルーは放射性廃棄物として処分した。この除染方法は放射性セシウム抽出後の土壌を中和後に元の場所に返すことができるため、汚染土壌が発生しないメリットがある。さらに公園の地上高 5 cm で空間線量率のマッピングを行ったところ（Fig.1）、公園内の汚染は一様ではなく、砂よりも土で構成されている場所に高い汚染があり、更にその中でも僅かにくぼんだ場所や遊具の下で汚染が相対的に高いことが分かった。そのため、広い面積を対象とした除染はこのような場所から優先的に行うことを計画している。また、用水路から回収した稲わらともみ殻からは放射性セシウムが 3 - 14 kBq/kg 検出され、両者とも高い吸着能を示した。もみ殻の表面を SEM 観察すると菌類が覆い尽くしており（Fig.2）、これを 30%過酸化水素水で洗浄すると、全ての放射性物質が溶液側に移行していた。このことから、もみ殻に付着する菌類が放射性セシウムを濃縮していることが明らかになった。これらの材料は回収後に焼却することによって更に体積を小さくすることができるため、稲わらやもみ殻は放射性セシウムの吸着剤として極めて有効であることが明らかになった。

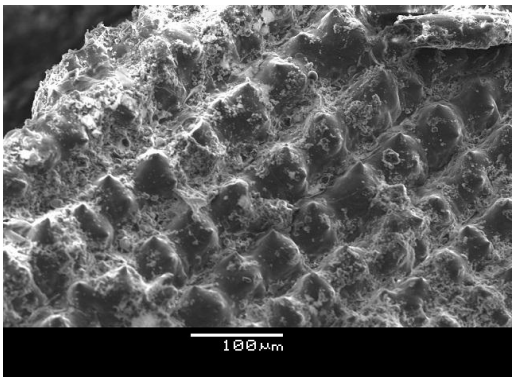

Fig.2 2 ヶ月間用水路に静置したもみ殻の表面

Decontamination of radioactive cesium in the environment
SHOZUGAWA, K., NOGAWA, N., MATSUO, M.

2T09 竹および筍に取り込まれた放射性セシウムの分布：イメージングプレートを用いた解析

（慈恵医大・アイソトープ[1]、名大院・医[2]、筑波大院・生命環境[3]）○箕輪はるか[1]、緒方良至[2]、佐藤志彦[3]

【はじめに】環境に放出された放射性セシウムが野生植物に取り込まれると、長期間にわたってその周辺の環境中で循環されることが考えられる。タケノコは放射性セシウム濃度が高くなる場合があることが報告されている。これは、タケが葉あるいは根から放射性セシウムを吸収して植物体内で転流しタケノコに濃集させるためと推定される。本研究では、放射性セシウムのタケ内部および竹林での挙動を調べることを目的として、タケノコおよびタケの根・枝・葉を採取し、イメージングプレートを用いて画像解析を行なった。

【試料と測定】2012 年 5 月に、福島県伊達郡川俣町山木屋地区内の竹林にてモウソウチク (*Phyllostadhys edulis*) のタケノコ（地中の筍、成長して地上に出た若竹）・根・枝・葉、および竹林の土壌・落葉を採取した。竹林内の空間線量（1m）は 2.9μSv/h であった。試料はイメージングプレート BAS 2040（Fujifilm）に数日～２週間程度曝写し、イメージアナライザ Typhoon FLA 7000 (GE Healthcare)を用いて放射線画像を取得した。タケノコ試料は水平方向に厚さ約 5mm ずつ切断し、Auto Well Gamma System ARC-380CL (Aloka)、および一部の試料はゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性物質濃度を求めた。

【結果】Fig.1 に示すように、タケノコ内部では放射性物質が先端に濃集していることが見て取れる。これは放射性セシウムであることがγ線測定によって確認された。放射性セシウムの含有量は、このタケノコ１本（約 500g）あたり ^{134}Cs 約 500Bq、^{137}Cs 約 700Bq であった。成長して地上に出た若竹の画像からは、本体（桿）の先端部分だけでなく成長後剥がれ落ちる皮（桿鞘）の先端にも放射性物質が多く存在していることがわかった（Fig.2）。タケの枝と葉の放射線画像からは、先端の葉に放射性物質が多く存在する様子がみられた (Fig.3)。

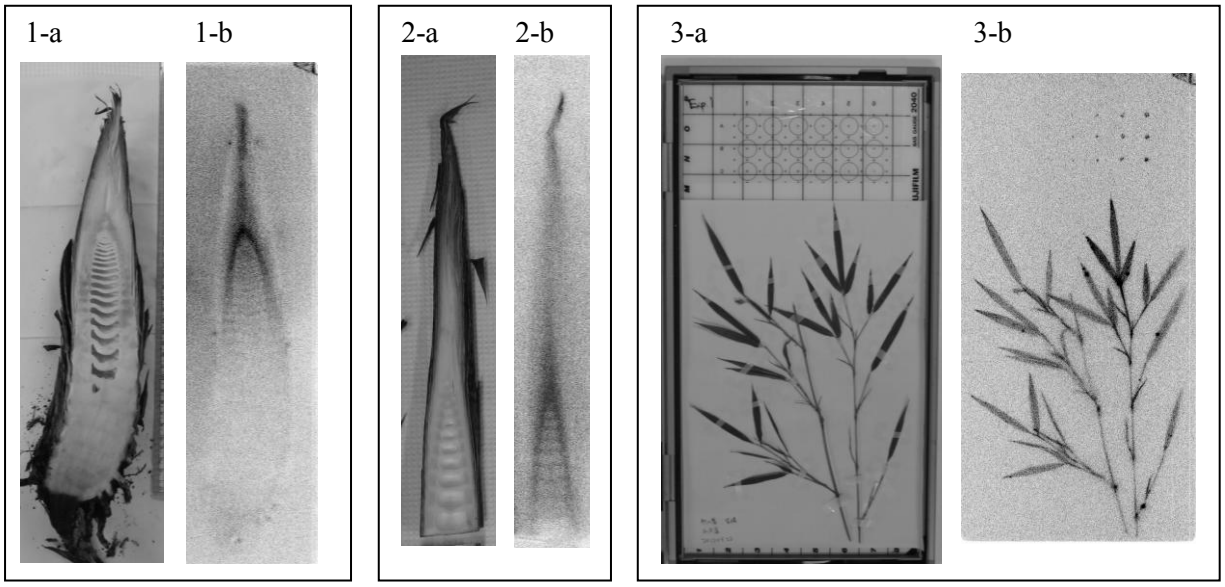

Fig. 1. タケノコ（地中） a) 写真、b) 放射線画像（曝写 166 時間）
Fig. 2. 成長したタケノコ（地上部） a) 写真、b) 放射線画像（曝写 332 時間）
Fig. 3. タケの枝と葉（一年目の枝の先端の葉） a) 写真、b) 放射線画像（曝写 308 時間）

Distribution of radiocesium in bamboo leaves, roots and shoots: application of an imaging plate
MINOWA, H., OGATA, Y., SATOU, Y.

2T10 タケノコ中の放射性セシウム濃度低減の遅延に関する考察

（放医研）○田上恵子、内田滋夫

【緒言】東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性セシウム濃度は、樹木の葉では低減し続けていることが報告されているが、タケノコでは、１年目に比べ、２年目でも放射性セシウム濃度がほとんど低減しない産地があった。直接沈着−吸収・転流が顕著であった事故直後の試料と比較し、さらに１年経過する間にどのような現象が起きていたのであろうか。本報告では竹林における放射性セシウムの挙動について、調査結果を元に考察をする。

【実験】 茨城県内のタケノコ生産農家の協力を得て、2011 年 5 月 9 日、10 月 20 日、2012 年 4 月 28 日に、竹林内のほぼ同じ試料採取位置で、竹枝（葉付き）、落葉層および土壌のサンプリングを行った。また、タケノコがあれば、タケノコも測定した。なお、落葉層は葉が大半であった。採取した枝は、葉の付いた比較的細いもの（直径 2cm 未満）であり、実験室に持ち帰った後に枝と葉に分けた。それぞれの試料は乾燥させた後に粉砕し、測定試料とした。葉、枝については洗浄した試料も測定を行った。

タケノコ中の ^{137}Cs の 2011 年と 2012 年の濃度データを比較するために、厚生労働省とりまとめの食品中の放射性物質の検査結果（http://www.mhlw.go.jp/shinsai_jouhou/shokuhin.html）を用いた。2011 年のデータでは、放射性セシウムとして $^{134+137}$Cs が示されている場合があるが、そのようなデータでは、半分が ^{137}Cs に起因するものとして値を求めた。

【結果及び考察】我々が同じサンプリング地域で採取したタケノコでは、2011 年試料の ^{137}Cs 値が 33 Bq/kg-生（１本の測定値）であったが、2012 年の値は 18-78 Bq/kg-生（４検体）であり、ほとんど変化が見られなかった。図１には、食品中のモニタリングデータを福島、茨城および千葉県についてまとめた結果を示した（茨城と千葉県では 2011 年のデータは報告されていない）。福島県内のデータは、2011 年に比べ 2012 年は濃度が減少しているが、2011 年と 2012 年にそれぞれ 2 点以上の測定値がある A 市と B 村について見ると、濃度の変化がわずかであり、我々のデータと同様の傾向にある。また、2012 年度のデータでは、福島県、千葉県、茨城県のデータで大きな違いが見られない。

2011 年から 2012 年にかけての竹林内での ^{137}Cs 濃度は、2011 年 5 月では落葉層＞葉＞枝＞土壌の順であったが、10 月には落葉層＞土壌≫葉、枝に変わっていた。また落葉層中の濃度は約 1/6 に減少していた。葉や枝に直接沈着したものは、落葉等に伴い落葉層に加わった一方で、落葉層は分解が進み土壌へと変化していったことが伺えた。2012 年のサンプリングではタケノコの根圏域が落葉層から有機物を多く含む土壌に広く分布していたことが確認できたことから、その根圏域に分布する放射性セシウムを取り込んだと考えられた。

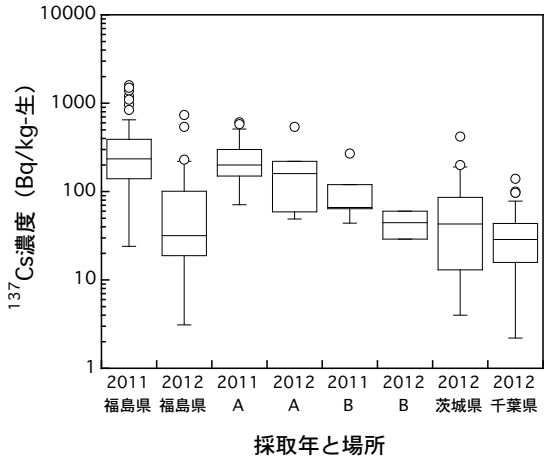

図１ 地域毎に比較したタケノコ中の ^{137}Cs 濃度（食品のモニタリング・データより抜粋）

Consideration on the delay of radiocesium concentration decrease in bamboo shoots
TAGAMI, K., UCHIDA, S.

2B01

シーボーギウム（Sg）の酸化還元研究にむけた同族元素 Mo と W の電解還元

（原子力機構[1]、オスロ大[2]、マインツ大[3]、理研[4]、大阪大[5]、首都大[6]、金沢大[7]、筑波大[8]）　○豊嶋厚史[1]、宮下直[1]、大江一弘[1]、浅井雅人[1]、佐藤哲也[1]、塚田和明[1]、北辻章浩[1]、永目諭一郎[1]、Matthias Schädel[1]、Jon Petter Omtvedt[2]、Jens Volker Kratz[3]、羽場宏光[4]、笠松良崇[5]、篠原厚[5]、和田彩佳[6]、秋山和彦[6]、大浦泰嗣[6]、横山明彦[7]、末木啓介[8]

【はじめに】我々のグループでは、超アクチノイド元素シーボーギウム（Sg）の酸化還元電位測定を計画している。酸化還元は溶液中における価電子の授受反応であるため、電位測定によって重い元素に特徴的な相対論効果による電子軌道のエネルギー変化に関する情報が得られると期待できる。我々はこれまでにバッチ的な電解クロマトグラフ実験によってノーベリウムやメンデレビウムの酸化還元に成功しているが、今回実験に用いる ^{265}Sg は半減期が約 10 秒と短く生成断面積も小さいため、その手法をそのまま適用してデータを得るのは難しい。そこで我々は、フロー電解カラム装置と連続溶媒抽出装置 SISAK とを組み合わせて用い、Sg の連続的な電解実験を行う事を計画している。本研究ではその実験に先立ち、フロー電解カラム装置を用いて Sg の軽い同族元素 Mo と W の電解実験を行ったので報告する。

【実験】まず、実際に Mo と W を還元できるか確認するためサイクリックボルタンメトリ（CV）測定を行った。Na_2MoO_4 と Na_2WO_4 を 0.1 M [H, Li]Cl 溶液に溶解し、0.01 M の Mo と W の溶液試料（pH 1-7）を調製した。これらの試料をフロー電解カラム装置に導入し、-1.0 V から 0.3 V(Ag/AgCl 電極)の間で CV 測定を行った。次に、無単体の ^{181}W を用いてトレーサーレベルでの還元実験を行った。原子力機構タンデム加速器において ^{181}Ta(p, n)反応により ^{181}W(半減期 121 日)を生成した。陰イオン交換法により Ta 標的から ^{181}W を分離し、10 M HCl 水溶液に保存した。トレーサー実験では保存溶液を蒸発乾固した後 0.1 M HCl 水溶液に溶解して使用した。200 μL のトレーサー溶液をフロー電解カラム装置に導入し、1000 μL の 0.1 M HCl 水溶液を-0.8 V から 0.6 V までの電圧を印加したカラム電極に流した。捕集した溶出液から 1000 μL 分取して 1000 μL の 10^{-4} M ヒノキチオール（トルエン溶媒）と混合し、1 分間振とう後 30 秒遠心分離した。その後、両相から 800 μL ずつ分取してそれぞれのγ線を測定した。

【結果と考察】CV 測定では、Mo と W の両元素とも pH が大きくなるにつれて電解反応に基づく電流が減少し、pH 5-6 では電解反応が全く観測されなかった。塩基性水溶液で生成される WO_4^{2-} や MoO_4^{2-} の還元電位はそれぞれ-1.5V、-1.0 V と報告されており、pH が大きくなるにつれてこれらの量が増加したために電解反応が観測されなくなったと考えられる。また、トレーサー実験では、電解後の ^{181}W の抽出量は印加電圧に対して変化を示さず一定であった。本実験では電解後の溶出液を有機相と混合して振とうしている。そのため、一度カラム電極内で還元された W が、溶出後の抽出中に再び 6 価に酸化された可能性が考えられる。

Electrolytic reduction of Mo and W as lighter homologues of seaborgium (Sg)

TOYOSHIMA, A., MIYASHITA, S., OOE, K., ASAI, M., SATO, T. K., TSUKADA, K., KITATSUJI, Y., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M., OMTVEDT, J. P., KRATZ, J. V., HABA, H., KASAMATSU, Y., SHINOHARA, A., WADA, A., AKIYAMA, K., OURA, Y., YOKOYAMA, A., SUEKI, K.

2B02 Sg の酸化還元研究に向けた Mo と W の溶媒抽出

(原子力機構[1], オスロ大[2], マインツ大[3], 理研[4], 大阪大[5], 首都大[6], 金沢大[7], 筑波大[8]) ○宮下直[1], 豊嶋厚史[1], 大江一弘[1], 浅井雅人[1], 佐藤哲也[1], 北辻章浩[1], 塚田和明[1], 永目諭一郎[1], Matthias Schädel[1], Jon Petter Omtvedt[2], Jens Volker Kratz[3], 羽場宏光[4], 笠松良崇[5], 篠原厚[5], 秋山和彦[6], 大浦泰嗣[6], 横山明彦[7], 末木啓介[8]

【緒言】我々は超アクチノイド元素であるシーボーギウム(Sg)の酸化還元電位の測定を目的に研究を行っている。Sg の酸化還元電位の測定には、異なる酸化状態の Sg を迅速に分離し測定する必要がある。そのためフローカラム電極による電気分解と迅速連続溶媒抽出装置(SISAK)による異なる酸化状態の分離を組み合わせたオンライン実験を計画している。本研究ではオンライン実験に先立ち、同族元素である Mo と W を様々な抽出剤を用いて溶媒抽出を行い、その抽出挙動を調べた。

【実験】原子力機構タンデム加速器において ^{181}Ta(p, n)反応により合成した ^{181}W をトレーサとして用い、様々な抽出剤を用いた溶媒抽出における抽出平衡の到達時間を以下の手法により調べた。水相として 0.10 mol/L の塩酸水溶液、有機相として di-(2-ethylhexyl)phosphoric acid (HDEHP)、1-phenyl-3-metyl-4-benzoyl-5-pyrazolone(PMBP)、3-isopropyl-tropolone(HT)をそれぞれ含むトルエン溶液を用いた。また HDEHP および PMBP では協同抽出剤として tributylphosphate(TBP)を添加した協同抽出も行った。同体積の各相をバイアルに取り、振とう器により 10 秒から 5 時間まで振とうした。遠心分離器により相分離を行った後、各相を分取し放射能量を Ge 半導体検出器により測定した。得られた値から各時間における抽出率を求めた。

【結果】0.10 mol/L HDEHP-トルエン溶液を用いた場合、抽出速度は遅く、平衡到達時間はおよそ 5 時間であった。また 5.0×10^{-2} mol/L PMBP-トルエン溶液を用いた場合も同様に抽出速度は遅く、平衡到達時間は 1 時間であった。一方、HT-トルエン溶液を用いた場合、図に示したように抽出速度は速く、0.10 あるいは 3.0×10^{-4} mol/L どちらの条件においてもおよそ 20 秒で平衡に到達することが分かった。また協同抽出剤として TBP を添加した場合、平衡到達時間はほとんど変わらないことが確認された。以上の結果から、Sg の還元電位の測定に対して HT を用いることが可能であることが示唆された。

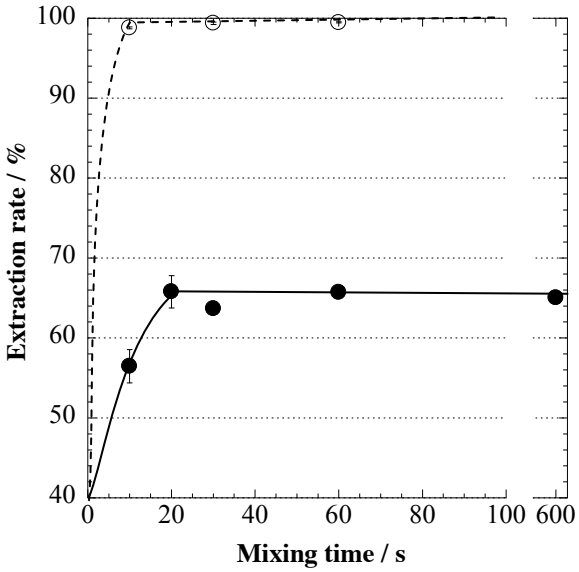

図　振とう時間に対する抽出率の変化
水相：0.10 mol/L 塩酸水溶液
有機相：HT-トルエン溶液
○:0.10 mol/L　●:3.0×10^{-4} mol/L

Solvent extraction of Mo and W for redox studies of Sg

MIYASHITA, S., TOYOSHIMA, A., OOE, K., ASAI, M., SATO, T. K., KITATSUJI, Y., TSUKADA, K., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M., OMTVETT, J. P., KRATZ, J. V., HABA, H., KASAMATSU, Y., SHINOHARA, A., AKIYAMA, K., OURA, Y., YOKOYAMA, A., SUEKI, K.

2B03

Sg の酸化還元研究に向けた迅速溶媒抽出装置 SISAK の改良

(原子力機構[1]、茨城大[2]、オスロ大[3]、マインツ大[4]、理研[5]、大阪大[6]、首都大[7]、金沢大[8]、筑波大[9])○大江一弘[1]、 塚田和明[1]、 浅井雅人[1]、 佐藤哲也[1]、 豊嶋厚史[1]、宮下直[1]、永目諭一郎[1]、Matthias Schädel[1]、金谷佑亮[2]、Hans V. Lerum[3], Jon Petter Omtvedt[3]、Jens Volker Kratz[4]、羽場宏光[5]、笠松良崇[6]、篠原厚[6]、秋山和彦[7]、大浦泰嗣[7]、横山明彦[8]、末木啓介[9]

【緒言】 本研究グループでは、溶媒抽出法および電気化学的酸化還元法を用い、106 番元素シーボーギウム(Sg)の酸化還元電位を決定することを目的に研究を進めている。Sg 実験の際には、フロー電解カラムと迅速溶媒抽出装置 SISAK を組み合わせて利用し、まず SISAK デガッサーを用いてガスジェット搬送された Sg を溶液に溶解してガス排気を行い、フロー電解カラムで Sg の酸化還元を行った後、酸化数の変化を SISAK 液液遠心分離機を用いた溶媒抽出により調べる計画である。しかし、現状では両装置が対応している流速に大きな差があるため、SISAK を低流速で利用するための開発が必要である。本研究では、SISAK デガッサーをより低い流速でも利用可能にするため、新しいデガッサーの開発を行ったので報告する。

【実験】 新たに開発したデガッサーは、疎水性のテフロンメンブレンフィルターが持つ、ガスは通すが水溶液は通さないという性質を利用して気液の分離を行うものである(以下新デガッサーをメンブレンデガッサー(MDG)と称す)。この MDG を用い、ガスジェット搬送物の溶液化効率の測定を行った。

溶液化効率測定実験は、Oslo Cyclotron Laboratory において行った。^{nat}Zr または ^{nat}Ni ターゲットと ^{4}He ビームとの核反応により合成した短寿命核反応生成物を、He/KCl ガスジェット搬送システムを用いて化学実験室まで搬送した(He ガス流量 1.5 L/min)。その後ガスジェットを気液の混合を促す装置であるミキサーに水溶液(イオン交換水または 0.5 M H_2SO_4 水溶液)と共に導入し、MDG において気液分離を行った。溶出液を捕集した後、Ge 検出器を用いた γ 線測定を行い、溶液化効率の算出を行った。

【結果と考察】Fig. 1 に結果の例を示す。SISAK の通常の流速である 0.4 mL/s では、ミキサーなしで 80%程度の高い溶液化効率を得た。一方流速 0.1 mL/s では、ミキサーを使用しない場合に溶液化効率が大きく低下した。しかしながらミキサーを使用することで効率は大きく改善することがわかり、今回開発した MDG が低流速にも対応可能であることがわかった。

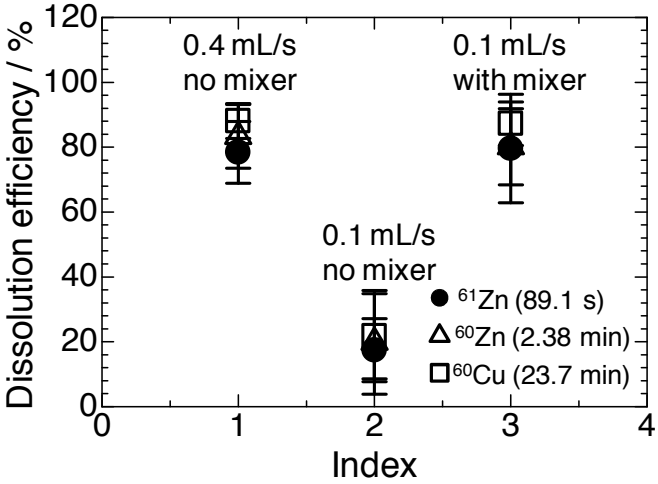

Fig. 1. MDG を用いた溶液化効率測定実験結果
使用溶液：0.5 M H_2SO_4

Improvement of rapid liquid-liquid extraction apparatus SISAK for redox studies of Sg

OOE, K., TSUKADA, K., ASAI, M., SATO, T. K., TOYOSHIMA, A., MIYASHITA, S., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M., KANEYA, Y., LERUM, H. V., OMTVEDT, J. P., KRATZ, J. V., HABA, H., KASAMATSU. Y., SHINOHARA, A., AKIYAMA, K., OURA, Y., YOKOYAMA, A., SUEKI, K.

2B04 表面電離イオン化法を用いたローレンシウム(Lr, Z = 103)の第一イオン化電位測定

(原子力機構 [1], 茨城大院 [2], 理研 [3], CERN[4], マインツ大 [5]) ○佐藤哲也 [1], 佐藤望 [1], 浅井雅人 [1], 塚田和明 [1], 豊嶋厚史 [1], 大江一弘 [1], 宮下直 [1], 永目諭一郎 [1], Matthias Schädel[1], 長明彦 [1], 金谷佑亮 [1, 2], 市川進一 [1, 3], Thierry Stora[4], Jens Volker Kratz[5]

【緒言】第一イオン化電位は価電子の束縛エネルギーを直接反映する物理量であるため、その値を実験的に決定することで、対象原子の電子状態に関する知見を得ることができる。103番元素ローレンシウム(Lr)は、相対論効果による最外殻電子軌道の再配置により、他のアクチノイドに比べ非常に低いイオン化電位を持つと予想されており、興味深い。しかしながら、現在知られている Lr 同位体はすべて短寿命であり、生成断面積も小さいため、原子が多数必要な従来法によるイオン化電位測定は非常に困難である。

我々のグループでは、高温の金属表面で起こる表面電離過程に着目した。表面電離過程におけるイオン化効率は、金属表面の仕事関数および温度、ならびに対象原子のイオン化電位に依存する。この関係を利用することで、シングルアトムレベルでしか扱えない Lr のイオン化電位の決定が期待できる。本研究では、表面電離イオン化法により短寿命 Lr のイオン化・質量分離をおこない、対応する希土類元素ルテチウム短寿命核種(Lu)との比較をおこなった。

【実験】実験は原子力機構タンデム加速器に設置されたオンライン同位体分離装置(ISOL)を用いておこなった。^{249,250,251}Cf(^{11}B , xn)反応により ^{256}Lr ($T_{1/2}$ = 27 s)を合成するとともに、比較対象として ^{164}Lu($T_{1/2}$ = 3.1 min)を ^{158}Dy(^{11}B,5n)反応によって合成した。合成した核反応生成物を He/CdI_2 ガスジェット搬送法を用いて表面電離イオン源へと搬送し、表面電離された対象核種イオンを ISOL によって質量分離した。ISOL 末端で対象イオンを収集したのち、放射線測定によって同定・定量し、イオン化効率を決定した。

【結果】イオン化に係る高温金属表面にレニウムを使用し、イオン源温度 2600 K で、質量数 256 について得られた α 線スペクトルを図に示す。^{256}Lr およびその孫核種の ^{252}Fm 由来の α 線ピークが明瞭に観測できた。これは、Lr をイオン化し質量分離することのできた初めての結果である。このとき、Lu のイオン化効率が 20%であるのに対し、Lr のイオン化効率は 42%であった。同様の傾向は、高温金属表面にタンタルを使用し、イオン源温度を変化させた場合にも観測することができた。このことは、Lu よりも Lr のイオン化電位が低いことを示唆している。

発表では、Lu 以外の短寿命希土類元素核種のイオン化効率についても併せて議論する。

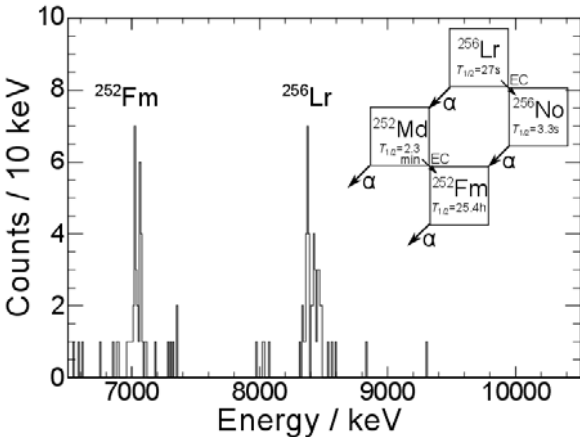

図. 質量数 256 について得られたα線スペクトル.

Ionization potential measurement of lawrencium (Lr, Z=103) by the surface ionization method

SATO, T. K., SATO, N., ASAI, M., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., OOE, K., MIYASHITA, S., NAGAME, Y., SCHÄDEL, M., OSA, A., KANEYA, Y., ICHIKAWA, S., STORA, T., KRATZ, J. V.

2B05 GARIS ガスジェット法によるドブニウムの化学実験対象核種 ^{262}Db の製造

（理研仁科セ [1]，阪大院理 [2]，東北大・電子光セ [3]，新潟大理 [4]，原子力機構先端基礎研究セ [5]）○羽場宏光 [1]，大関和貴 [1]，笠松良崇 [2]，加治大哉 [1]，金谷淳平 [1]，菊谷有希 [2]，菊永英寿 [3]，工藤久昭 [4]，工藤祐生 [1]，小森有希子 [2]，酒井隆太郎 [1]，篠原厚 [2]，住田貴之 [1]，豊嶋厚史 [5]，西尾勝久 [5]，村上昌史 [4]，森田浩介 [1]，森本幸司 [1]，米田晃 [1]

【はじめに】我々のグループでは，理研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，超重元素（原子番号 $Z \geqq 104$）の化学的性質を調べるための新しい化学元素分析システムの開発を進めている[1]．今回，105 番元素ドブニウム（Db）の化学実験の対象とできる同位体 ^{262}Db を ^{248}Cm(^{19}F,5n)^{262}Db 反応によって合成し，GARIS を用いて質量分離した後，化学実験室まで引き出すことに成功したので報告したい．

【実験】GARIS の焦点面にガスジェットチャンバー（100 mm i.d.×20 mm）を設置し，その真空隔壁には，開口率 84%のハニカムグリッドで支持した厚さ 0.5 μm のマイラー箔を用いた．理研重イオンリニアックで加速した ^{19}F^{6+}イオン（103 MeV; 4 pμA）を ^{248}Cm$_2$O$_3$ 標的（230 または 330 μg cm^{-2}）に照射し，^{248}Cm(^{19}F,5n)^{262}Db 反応によって ^{262}Db を合成した．GARIS（He ガス圧：32 Pa，磁気剛性：1.73–2.09 Tm）によって分離した ^{262}Db 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，回転式連続 α 線測定装置を用いて α/SF（SF：自発核分裂壊変）スペクトロメトリーを行った．

【結果と考察】本研究では，^{262}Db に帰属される α-α ならびに α-SF 相関事象をそれぞれ 52，2 事象観測できた．^{262}Db の α エネルギー（E_α）として，E_α = 8.47 ± 0.05 MeV（分岐比 I_α = 70 ± 7%）と 8.68 ± 0.05 MeV（30 ± 7%）が観測された．今回の α エネルギー分解能では，既報[2]の E_α = 8.45 MeV（75%），8.53 MeV（16%），8.67 MeV（9%）のうち，8.53 MeV を明確に確認することはできなかった．また，E_α = 8.68 MeV は，既報[2]の 3 倍の強度であった．^{262}Db の α 壊変から求めた半減期は，$T_{1/2}$ = 40 ± 12 s で，文献値[2]（$T_{1/2}$ = 34 ± 4 s）に一致した．さらに，本研究では，総計 77 事象の SF 壊変が観測された．この SF 成分の半減期は，$T_{1/2}$ = 36 ± 7 s で，上述の ^{262}Db の半減期に良く一致した．^{262}Db の SF 分岐比は，b_{SF} = 53 ± 5%と見積もられた（文献値：$b_{SF} \approx$ 33%[2]）．一方，娘核 ^{258}Lr の壊変データとして，$T_{1/2}$ = 3.1 ± 0.6 s，b_{SF} = 4 ± 3%を得た（文献値：$T_{1/2} = 3.9^{+0.4}_{-0.3}$ s，b_{SF} < 5%[2]）．今回の ^{262}Db ならびに ^{258}Lr の壊変データを用いて，永目ら[3,4]による ^{248}Cm(^{19}F,5n)^{262}Db 反応の断面積を再評価し，103 MeV で σ = 2.1 ± 0.7 nb を得た．一方，^{248}Cm(^{19}F,4n)^{263}Db 反応によって生成する ^{263}Db に帰属される α-α ならびに α-SF 事象は観測されず，断面積の上限値として 0.12 nb を得た．討論会では，^{nat}Ge(^{19}F,xn)^{88}Nb ならびに ^{nat}Gd(^{19}F,xn)^{170}Ta 反応を用いて行った Db の軽い同族元素の製造実験についても報告する．

【参考文献】

[1] H. Haba *et al.*, Chem. Lett. **38**, 426 (2009).

[2] R. B. Firestone and V. S. Shirley, *Table of Isotopes*, 8th ed. (Wiley, New York, 1996).

[3] Y. Nagame *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 85 (2002).

[4] K. Tsukada *et al.*, Radiochim. Acta **97**, 83 (2009).

Production of ^{262}Db for chemical studies of dubnium using the GARIS gas-jet system

HABA, H., OZEKI, K., KASAMATSU, Y., KAJI, D., KANAYA, J., KIKUTANI, Y., KIKUNAGA, H., KUDO, H., KUDOU, Y., KOMORI, Y., SAKAI, R., SHINOHARA, A., SUMITA, T., TOYOSHIMA, A., NISHIO, K., MURAKAMI, M., MORITA, K., MORIMOTO, K., YONEDA, A.

2B06 アクチノイド偶々核の第一励起準位エネルギー測定

(原子力機構[1]、阪大院理[2])○浅井雅人[1]、塚田和明[1]、豊嶋厚史[1]、佐藤哲也[1]、永目諭一郎[1]、佐藤 望[1]、石井哲朗[1]、笠松良崇[2]

【はじめに】

偶々核の第一励起準位エネルギー$E(2^+)$は、原子核の変形度の大きさや閉殻構造、集団運動的な性質を明らかにする良い指標となる。陽子数 $Z = 50, 82$、中性子数 $N = 82, 126$ の閉殻で囲まれた領域では、閉殻から離れるに従って原子核の変形度が増大し、それに応じて $E(2^+)$が大きく低下することが知られている。一方、$Z = 82, N = 126$ を超える領域では、アクチノイド核領域で大きな四重極変形を示すことは知られているが、$E(2^+)$のデータは実験の困難さのためほとんど得られていない。重アクチノイド核の $E(2^+)$の系統性は、$Z = 82, N = 126$ の次の閉殻の位置を反映するため、超重核領域の殻構造を明らかにする上でも重要である。本研究では、高分解能 α 線測定と α - γ 同時計数測定により、^{232}Pu, ^{236,238,240}Cm, ^{244,246}Cf, ^{250,252}Fm の $E(2^+)$を初めて精度良く決定し、重アクチノイド核領域の $E(2^+)$の系統性を明らかにした。

【実験】

実験は原子力機構タンデム加速器を用いて行った。^{233}U(^{12}C,5n)^{240}Cf, ^{235}U(^{12}C,5n)^{242}Cf, ^{238}U(^{12}C,4n)^{244}Cf, ^{238}U(^{16}O,6n)^{248}Fm 反応で合成した ^{240,242,244}Cf, ^{248}Fm を回転円盤型測定装置へガスジェット搬送し、娘核の基底状態と第一励起準位へ遷移する 2 本の α 線のエネルギーを精密に測定することで $E(2^+)$を決定した。^{232}Pu の $E(2^+)$は、^{240}Cf の α 崩壊で生成される ^{236}Cm の α 線測定により決定した。^{246}Cf, ^{250,252}Fm の $E(2^+)$は、Cf 標的と ^{12}C ビームを用いて親核の ^{250}Fm, ^{254,256}No を大量に合成し、α - γ 同時計数測定により $2^+ \rightarrow 0^+$遷移に伴う非常に微弱な γ 線を観測することで決定した。この 3 核種については $4^+ \rightarrow 2^+$遷移の γ 線も観測した。

【結果と考察】

図 1 に ^{248}Fm の α 線スペクトルを示す。エネルギー分解能 12 keV で測定することで、基底状態と第一励起準位へ遷移する 2 本の α 線を分離して観測することができ、それらのピークエネルギーのエネルギー差から±0.5 keV の精度で $E(2^+)$を決定した。γ 線測定では、±0.1～0.2 keV の精度で $E(2^+)$を決定した。これらの実験結果から重アクチノイド核領域の $E(2^+)$の系統性を明らかにした。$E(2^+)$は、Cm および Cf 同位体において最小値を取り、その後陽子数の増加とともに増大することが明らかになった。この傾向は、陽子数 114 の球形閉殻の存在を考慮することで定性的に説明できる。また、^{252}Fm において極小値を取ることを初めて明らかにし、$Z = 100$ と $N = 152$ の二重変形閉殻の存在を実験的に明らかにした。

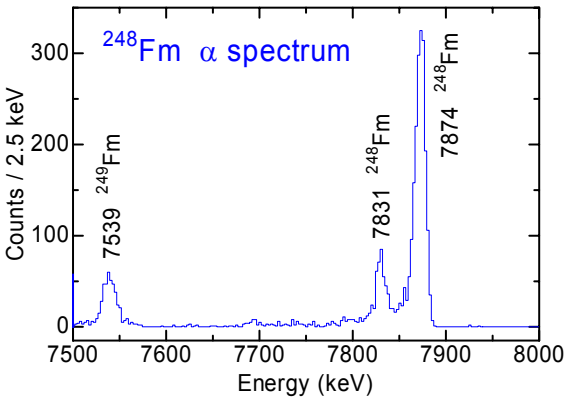

図 1: ^{248}Fm の α 線スペクトル。

Measurements of the first excited-state energies in even-even actinide nuclei

ASAI, M., TSUKADA, K., TOYOSHIMA, A., SATO, T. K., NAGAME, Y., SATO, N., ISHII, T., KASAMATSU, Y.

2B07 変形度の異なる入射核による核融合反応励起関数への影響

（金沢大院自然[1]、金沢大理工[2]、阪大院理[3]、原子力機構[4]）○戸田 光祐[1], 上野 慎吾[2], 高橋 成人[3], 笠松 良崇[3], 横北 卓也[3], 大江 一弘[4], 横山 明彦[2]

【序論】本研究グループでは、ランタノイド元素をターゲットとして、変形核－球形核系の核融合反応における変形度の影響について研究を行ってきた。この結果、ターゲットに変形核を用いることで、球形核に比べて励起関数が低エネルギーから始まることが分かった[1)]。

本研究では、これまでの ^{16}O を入射核とした ^{nat}Lu+O（変形核－球形核系）実験と、入射核に変形核 ^{20}Ne を用いた、^{165}Ho+^{20}Ne（変形核－変形核系）について実験を行い、比較を試みた。特に後者は複合核として ^{185}Ir を生成する系であり、これは先に本研究グループで行った ^{169}Tm+^{16}O（変形核－球形核系）の実験[2)]の複合核と同じである。これらの同一の複合核系において、入射核の変形度の影響がその核融合反応励起関数にどのように出るかを検証した。

【実験】まず、^{nat}Lu または ^{165}Ho 標準溶液を高純度金属箔（Al；純度 99.999 %、Ti；純度 99.99+ %）に電着し、電着ターゲットとした。長寿命反応生成物測定のため、この電着ターゲットを数枚重ねスタックとし、大阪大学核物理研究センターにて ^{16}O または、^{20}Ne イオンを照射した。照射後、各ターゲットに分けたものをポリエチレンシートに封入し、Ge 半導体検出器を用いて測定した。また、短寿命反応生成物測定にはガスジェット法を用いた。これは反跳で飛び出した反応生成物をガスジェットで実験室まで輸送し、これをフィルターで捕集し、スタック法と同じくポリエチレンシートに封入後、Ge 半導体検出器で測定した。両者の測定結果から、反応断面積を求めた。

【結果・考察】^{nat}Lu を用いた変形核－球形核系実験において、測定結果から質量数 183－188 の反応生成物が検出された。また ^{165}Ho を用いた変形核－変形核系実験では、測定結果から質量数 175－181 の反応生成物が検出された。これらの実験結果と、原子核の変形度を考慮した計算コード HIVAP を用いて計算した、理論的な励起関数を比較・検討した。図 1 は一例として、^{165}Ho+^{20}Ne（変形核－変形核系）反応で得られた質量数 177 の反応生成物の実験値と、計算コード HIVAP から得た理論値、また先行研究[2)]で得られた質量数 177 の生成物の実験値をそれぞれプロットしたものである。図に示されたように、理論計算である HIVAP の結果と概形が一致していることが分かった。また、入射核が球形である先行研究の系よりも、変形核を用いた今回の系の方が理論値、実験値共に低エネルギーから反応が開始している。しかし、実験値が理論値よりも低エネルギー側でも、反応生成物が出来ているようにも見える。これについては今後、詳細な検討をすべきと考える。

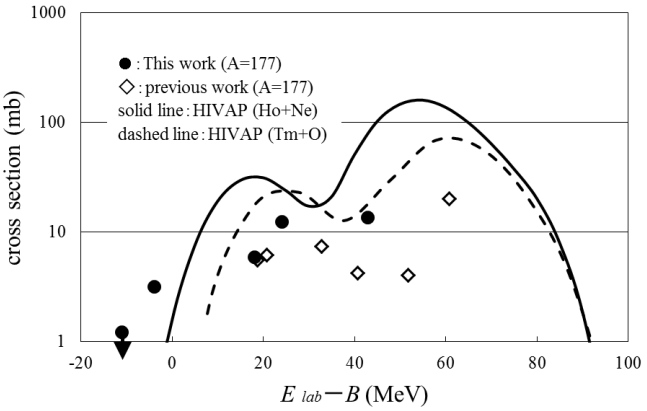

図 1. ^{165}Ho+^{20}Ne 反応および ^{169}Tm+^{16}O 反応の励起関数。矢印は上限値を示す。

【参考文献】

1) 貝谷他，第 54 回放射化学討論会 研究発表要旨集 1A01 (2010)
2) 浅野他，第 53 回放射化学討論会 研究発表要旨集 3B06 (2009)

Excitation Functions for Fusion Reaction with Projectiles of Different Deformation

TODA, K., UENO, S., TAKAHASHI, N., KASAMATSU, Y., YOKOKITA, T., OOE, K., YOKOYAMA, A.

2B08 ^{208}Pb+^{70}Zn 反応を用いた ^{277}Cn の生成と壊変特性

(理研仁科セ [1], 原子力機構先端セ [2], 新潟大院自 [3], 山形大理 [4], 山形大院理工 [5], 東大 CNS[6], 埼玉大理 [7], 東京理大理工 [8]) 住田貴之 [1], 森本幸司 [1], ○加治大哉 [1], 大関和貴 [1], 鹿取謙二 [1],酒井隆太郎 [1], 長谷部裕雄 [1], 羽場宏光 [1], 米田晃 [1], 吉田敦 [1], 森田浩介 [1], 佐藤望 [2], 若林泰生 [2], 光岡真一 [2], 後藤真一 [3], 村上昌史 [3], 刈屋佳樹 [3], 門叶冬樹 [4], 森谷透 [4], 眞山圭太 [5], 武山美麗 [5], 井手口栄治 [6], 山口貴之 [7], 千葉順成 [8]

はじめに

cold fusion における系統的な励起関数測定から，1n チャンネルに対する半値幅が 4~5 MeV 程度であることが知られている。この狭さと極小生成断面積に故に，新元素探索における適切な入射エネルギー選択が重要課題となる。入射条件の確度向上を目的として，新たに ^{208}Pb+^{70}Zn 反応における励起関数を測定した。

実験

実験は，理研重イオン線形加速器施設で行った。主要な実験条件を以下に示す。

Exp. date: 17th-Jun-2011 ~ 30th-Nov-2011
Net irradiation time: 96 days
Target composition and thickness:
C/^{208}Pb=60/ave. 630 μg/cm^2
Projectile, Energy: ^{70}Zn,
E_{in} = 347.5, 351.5, 355.5 MeV in front of target
Total beam dose: 5.1×10^{18}, 9.7×10^{18}, 8.2×10^{18}
for E_{in} = 347.5, 351.5, 355.5 MeV
Average beam intensity: 2.8×10^{12} s^{-1}

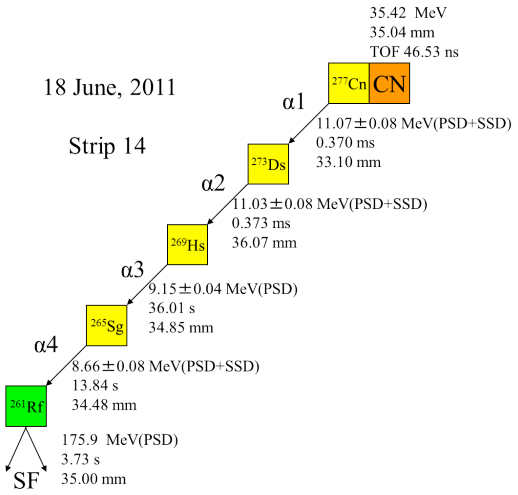

図 1. 観測された ^{277}Cn 起因のアルファ壊変連鎖[1]。各々の原子核の壊変エネルギー，壊変時間，観測位置を示した。

結果と考察

E_{in}=351.5 MeV において，^{208}Pb+^{70}Zn 反応における蒸発残留核 ^{277}Cn 起因のアルファ崩壊連鎖を 1 事象観測した(図 1)。理研における 2004 年の ^{277}Cn 測定結果[2]も合わせると，励起エネルギーE^*_{CN}=15.2 MeV のときに生成断面積は$\sigma=0.17^{+0.16}_{-0.10}$ pb となる。本講演では，励起関数測定結果ならびに新規に得られた ^{277}Cn に起因する壊変連鎖について詳細に報告する。

参考文献

[1] T. Sumita, K. Morimoto, D. Kaji et al., RIKEN Accel. Prog. Rep. 45, (2012).
[2] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji et al., JPSJ 76, 043201(2007).

Production and decay properties of ^{277}Cn produced in the reaction of ^{208}Pb+^{70}Zn

SUMITA, T., MORIMOTO, K., KAJI, D., OZEKI, K., KATORI, K., SAKAI, R., HASEBE, H., HABA, H., YONEDA, A., YOSHIDA, A., MORITA, K., SATO, N., WAKABAYASHI, Y., MITSUOKA, S., GOTO, S., MURAKAMI, M., KARIYA, Y., TOKANAI, F., MORIYA, T., MAYAMA, K., TAKEYAMA, M., IDEGUCHI, E., YAMAGUCHI, T., CHIBA, J.

2B09 Db の実験に向けた Nb, Ta, Pa の Aliquat 336/HCl 系での溶媒抽出

(阪大院理[1]、阪大 RI セ[2])○横北卓也[1]、小森有希子[1]、木野愛子[1]、中村宏平[1]、笠松良崇[1]、高橋成人[1]、吉村崇[2]、篠原厚[1]

【緒言】 第 5 族元素であるニオブ (Nb) とタンタル (Ta) は HF に容易に溶解するため、105 番元素ドブニウム (Db) の研究は主に HF を含む溶液系で行われてきた。これまでの研究で Db は Ta よりも Nb や擬似同族元素であるプロトアクチニウム (Pa) と似た挙動を示すと報告されている。Db についてはフッ化物錯体以外にも塩化物錯体に関する研究も行われているが、Aliquat 336/HCl 系の逆相クロマトグラフィーによって 1 条件のみが報告されているにすぎない。そこで、本研究ではマイクロ化学チップを用いた溶媒抽出法により Db の塩化物錯体の研究をより詳細に調べることを目指して研究を行っていくことを考えている。今回は、Db 実験の条件検討と比較のための基礎研究として同族元素と擬似同族元素の ^{95}Nb、^{179}Ta、^{233}Pa を用いて Aliquat 336/HCl 系での溶媒抽出の研究を行った。

【実験】 ^{95}Nb と ^{179}Ta は大阪大学核物理研究センターにて ^{nat}Zr(p, xn)^{95}Nb、^{nat}Hf(p, xn)^{179}Ta 反応で製造した。また、^{233}Pa は ^{237}Np のα壊変生成物を用いた。これらを文献 [1] の操作で精製した後に、H_3BO_3 を加えてフッ化物イオンを除いたものを ^{95}Nb と ^{179}Ta は 1 M HCl に ^{233}Pa は 0.01 M HCl にストックした。溶媒抽出は ^{95}Nb、^{179}Ta、^{233}Pa を含んだ 0.1 – 11 M HCl 1 ml と同体積の 10^{-5} – 0.1 M Aliquat 336-四塩化炭素溶液を加えて、25 °C の恒温槽中で 10 s – 120 min 振とうして行った。その後、遠心分離を 1 min 行った後に水相と有機相を同体積ずつ分取して、各相の ^{95}Nb、^{179}Ta、^{233}Pa のγ線または X 線をゲルマニウム半導体検出器で測定し、分配比を求めた。水相の HCl 濃度は NaOH 水溶液による滴定から調べた。

【結果・考察】0.1 M Aliquat 336-四塩化炭素溶液への ^{95}Nb、^{179}Ta、^{233}Pa の溶媒抽出における分配比の HCl 濃度依存性を調べた結果を Fig. 1 に示す。Nb、Ta、Pa 共に HCl 濃度の上昇に伴い分配比が大きくなっており Cl^-との錯形成が進行し、陰イオン錯体の形成が予想される。また、分配比は Pa > Nb > Ta となっており、この結果はフッ化物錯体の陰イオン交換の結果 [1] と逆であった。また、8 M HCl において分配比の Aliquat 336 濃度依存性を調べた結果から、Nb と Pa は Cl^-と電荷が−1 の陰イオン錯体を形成するということが予想され、Ta は Cl^-と陰イオン錯体を形成しにくいということが確認された。

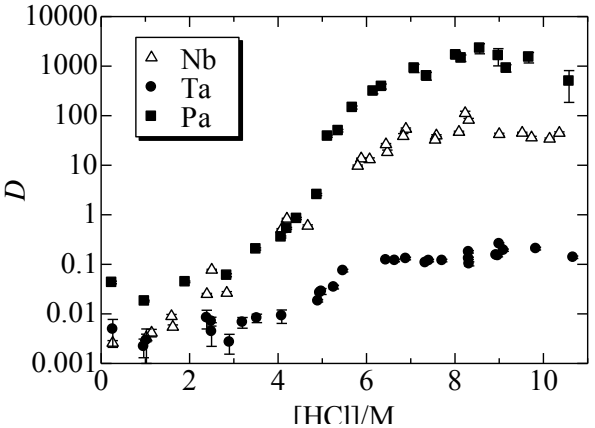

Fig. 1. The distribution ratios (D) of ^{95}Nb, ^{179}Ta, and ^{233}Pa with 0.1 M Aliquat 336 in carbon tetrachloride as a function of HCl concentration.

[1] Y. Kasamatsu, et al., J. Nucl. Radiochem. Sci., **8**, 69 (2007).

Solvent extraction of Nb, Ta, and Pa into Aliquat 336 from HCl solutions for Db chemistry
YOKOKITA, T., KOMORI, Y., KINO, A., NAKAMURA, K., KASAMATSU, Y., TAKAHASHI, N., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A..