

講演発表

第1日 10月3日(月)

1912

1913

1914

第1日 10月3日(月)

核 反 応 I A 0 1 ~ I A 1 0

核 壊 変 I A 1 1 ~ I A 1 4

ト リ チ ウ ム I B 0 1 ~ I B 0 7

放 射 化 学 分 析 I B 0 8 ~ I B 1 1

ホ ッ ト ア ト ム 化 学 I B 1 2 ~ I B 1 4

環 境 放 射 能 I C 0 1 ~ I C 1 4

1A01

高励起複合核 ^{105}Ag からの重粒子放出

(原研、阪大理*、都立大理**) ○永目諭一郎、池添博、馬場澄子、
畑健太郎、関根俊明、市川進一、井出野一実、横山明彦*、初川雄一**、
大槻勤**

〔緒言〕 質量非対称崩壊模型¹⁾は、軽粒子(陽子、 α 粒子 etc)から対称質量分割生成物に至るすべての重粒子が高励起複合核から統計的に崩壊する可能性を予言している。これら重粒子の崩壊確率は、質量分割時における conditional saddle²⁾のポテンシャルエネルギーに強く依存すると考えられている。我々は、これら重粒子放出に対する角運動量の効果を、特に conditional saddle に及ぼす角運動量の影響という観点から、重イオン核反応を用いて調べている³⁾。今回は、 $^{37}\text{Cl} + ^{68}\text{Zn}$ 反応系における入射粒子エネルギー依存性、及び同じ複合核 ^{105}Ag を生成する $^{160} + ^{89}\text{Y}$ 反応系で重粒子を測定し、高励起複合核からの重粒子放出の可能性について検討した。

〔実験〕 ターゲットには、濃縮同位体 ^{68}Zn (755 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$)、及び ^{89}Y (433 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) フォイルを用いた。照射は、原研タンデム加速器から得られる ^{37}Cl ビームで、入射エネルギー156 - 177 MeV、及び ^{160}Y ビーム144 MeVで行った。反応生成物のエネルギースペクトル、角度分布、電荷分布の測定には、ガス電離箱 ΔE (イソブタン: 15 torr)と、E 検出器に位置感応型のシリコン半導体検出器(45mm \times 8mm、450 μm 厚)を用いた ΔE -E(PSD)カウンターテレスコープを使用した。また生成物の質量分布の測定には、飛行時間法(TOF)を用いた。スタート信号には、C-フォイル(30 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) マイクロチャンネルプレートを使用し、ストップ信号及びエネルギー信号の取り出しには、シリコン表面障壁型半導体検出器(250 μm 厚)を用いた。使用した飛行距離は約 65 cm で、時間分解能はおおよそ 280 ps であった。

〔結果と考察〕 ΔE -E 測定法により、原子番号(Z)毎に識別された各反応生成物のエネルギースペクトルを求めた。これらスペクトルの strongly damped 成分(準弾性散乱ピークを除いた)の重心系における平均運動エネルギーは、二つの球形核を仮定した時に得られるクーロンエネルギーにほぼ相当していた。次に strongly damped 成分のみを積分して得られた角度分布は、入射粒子近傍の生成物では $d\sigma/d\theta_{\text{cm}}$ で前方ピークを示したが、角度後方で得られた生成物はすべて、 $1/\sin\theta_{\text{cm}}$ に従い、平衡過程からの放出と考えられる。図1には、角度分布が $1/\sin\theta_{\text{cm}}$ を示す角度領域についてのみを θ 方向で積分した各 Z の断面積を示す。図から明らかのように、 $Z_{\text{CN}}/2$ (Z_{CN} は複合核の原子番号)を中心とする成分と、 $Z \lesssim 9$ の二つの成分から成っている。この電荷分布を、入射粒子の持込む角運動量 J の効果を考慮に入れた液滴模型に基づく統計模型^{1, 4)}の計算値(図中点線)と比較してみると、実験データの傾向をよく再現していることがわかる。この結果、 $Z \lesssim 9$ の領域では複合核から非対称分割的に、又 $Z_{\text{CN}}/2$ 近傍の生成物は、特に複合核の角運動量分布の大きい部分が発見して、対称分割的に生成していると考えられる。ここで興味深

ながめゆいちろう、いけぞえひろし、ばばすみこ、はたけんたろう、せきねとしあき、
いちかわしんいち、いでのかずみ、よこやまあきひこ、はつかわゆういち、おおつきつとむ

いのは、対称分割生成物の分布巾が計算値よりも巾広く、 $Z_{CN}/2$ 近辺で平らな形をしている。分布巾の傾向を更に詳しく調べるために、TOF 法を用いて質量分布を求めた。図2に一例を示す。対称分割生成物がはっきりと観測できるが、電荷分布同様に巾広の平らな形状を示している。図3は、この分布の半値巾(FWHM)を複合核を形成する最大の角運動量 J_{max} の関数でプロットしてある。ここで FWHM は核温度 T の影響を相殺するために $T=1.6$ MeV に規格化してある。FWHM は関与する角運動量の増加と共に増加する傾向にあることがわかる。これは、conditional saddle の静的ポテンシャルだけを考えると逆の傾向になり説明できない。従って分布巾の解釈には、角運動量を考慮に入れた動的効果を考える必要がある。

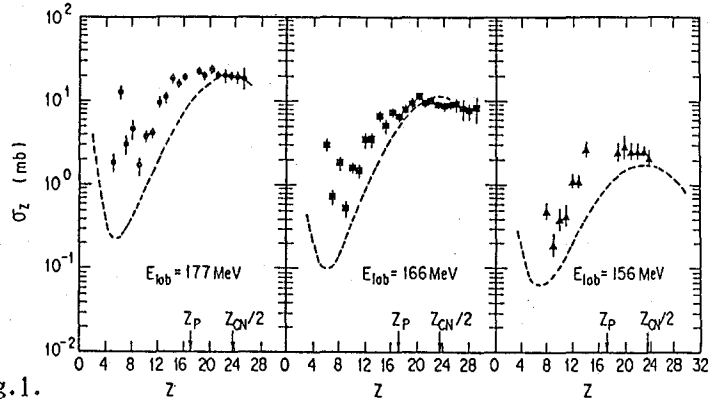


Fig.1.

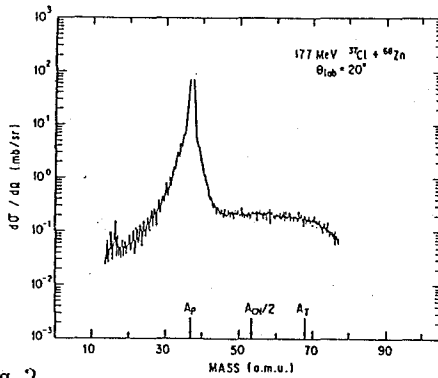


Fig.2

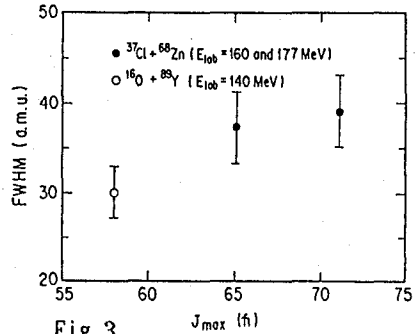


Fig.3

References

- 1). L.G. Moretto, Nucl. Phys. **A247**, 211 (1975).
- 2). K.T. Davies and A. Sierk, Phys. Rev. **C31**, 915 (1985).
- 3). 永目他、第31回放射化学討論会、1A10(1987).
- 4). W.J. Swiatecki, Aust. J. Phys. **36**, 641 (1983).

COMPLEX FRAGMENT EMISSION FROM THE HIGHLY EXCITED COMPOUND NUCLEUS ^{105}Ag

Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Yuichiro NAGAME, Hiroshi IKEZOE, Sumiko BABA, Kentaro HATA, Toshiaki SEKINE, Sin-ichi ICHIKAWA and Kazumi IDENO, Faculty of Science, Osaka University, Akihiko YOKOYAMA, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Yuichi HATSUKAWA and Tsutomu OHTSUKI

1A02

重イオン核反応をプローブとした超鉛元素の核分裂

(都立大理・東大核研^{*})

○小林貴之、末木啓介、大槻勤、塚田和明、初川雄一^{*}

中原弘道

【はじめに】

核分裂についての研究は、現在までに各種の実験が行われデータが集積されてきたが、そのなかでも核分裂における質量分割についてはアクチノイド元素からプレアクチノイド元素に変化するにつれて変化が著しいことが知られている。

特に $^{226}\text{Ra} + p$ や $^{226}\text{Ra} + \alpha$ の系における核分裂の質量収率曲線は3つ山になることが知られており非常に興味深い領域である。したがって、この周辺の領域 ($Z = 86 \sim 90$) における質量分割についてのデータは、対称分割領域からアクチノイドにいたる非対称分裂までの系統的な情報を与えるとともに、核分裂現象を理解するために重要であると考えられる。

現在この領域でターゲットとなりうる核種は ^{226}Ra 以外には存在していない。そこで我々は、加速器を用いた重イオン核反応を利用してこれらの核種を生成させることにした。重イオン核反応ではいろいろな反応のチャンネルがあるが、このうち α 粒子等が放出された後に残留核が核分裂を起こす場合、これらの粒子がもつエネルギーを測定できれば、核分裂を起こした残留核のエネルギーを決定することが可能である。特に本実験では前平衡過程を経て高速の α 粒子を放出するチャンネル等、放出粒子が多くエネルギーを持ち去る場合を選ぶことにより、核分裂を起こした残留核の励起エネルギーを低く抑えた場合についてのデータを得ることが可能であろう。

今回は $^{209}\text{Bi} (^{14}\text{N}, \alpha xn) ^{219-x}\text{Ra}$ の反応系から得られたデータ、特に生成した $^{219-x}\text{Ra}$ の核分裂現象について報告したい。

【実験】

実験は東京大学原子核研究所 SF-サイクロトロンで行った。ターゲットはセルフサポートの ^{209}Bi 金属箔 ($500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) に $110\text{MeV } ^{14}\text{N}^{5+}$ 70nA を照射した。反応による放出粒子は $\Delta E - E$ カウンターテレスコープを4台ビーム方向前方 (-15° 、 $+15^\circ$ 、 $+30^\circ$ および $+165^\circ$) に、核分裂片は2台のPSD (浜松ホトニクス社製、ORTEC社製) を $+90^\circ$ と -70° に図1に示すように設置して測定した。回路系は $\Delta E - E$ カウンターテレスコープと2台のPSDとのコインシデンス、および $\Delta E - E$ カウンターテレスコープとどちらかのPSDとコインシデンスしたものを選択できるようにゲートがかけられるようにした。

【実験結果】

実験結果は現在解析中だが、 α 粒子とPSDとのコインシデンスにより得られた核分

こばやし たかゆき、すえき けいすけ、おおつき つとむ、つかだ かずあき、
はつかわ ゆういち、なかはら ひろみち

裂片のエネルギースペクトルとこのときの α 粒子のエネルギースペクトルを図2, 3に示す。(α 粒子のエネルギーはビームの弾性散乱によってキャリブレーションしたものである。) 照射粒子数 4.47×10^{15} における α 粒子と核分裂片とのコインシデンスイベント数は 3500程度と少なかった。今後は核分裂片のエネルギーのキャリブレーションについては、pulse height defectを Kaufmanらの方法で補正することと、 α 粒子のエネルギーを選択することで核分裂片の運動エネルギーと α 粒子のエネルギーとの関連を調べる予定である。

図1. 測定系

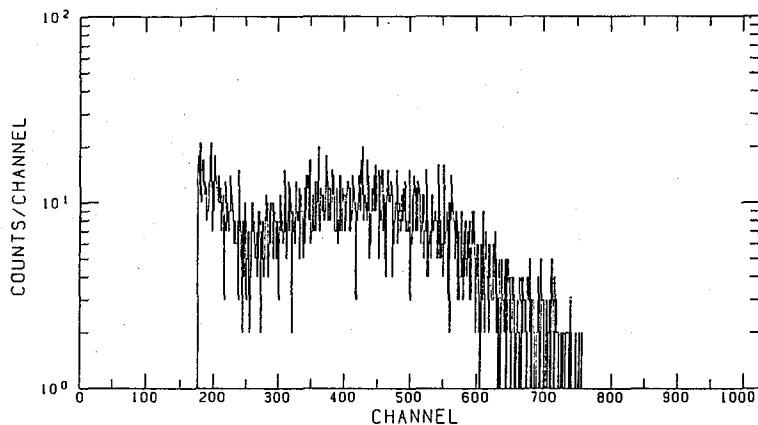
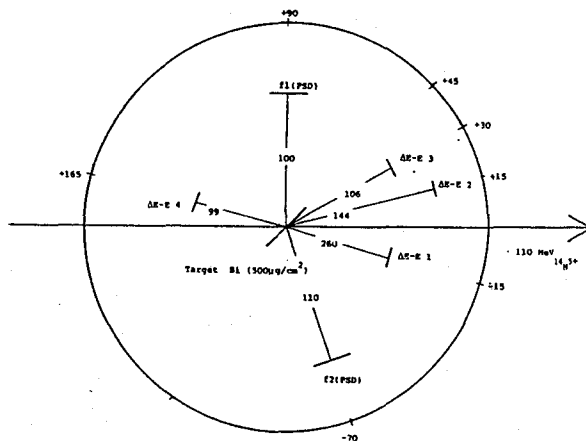
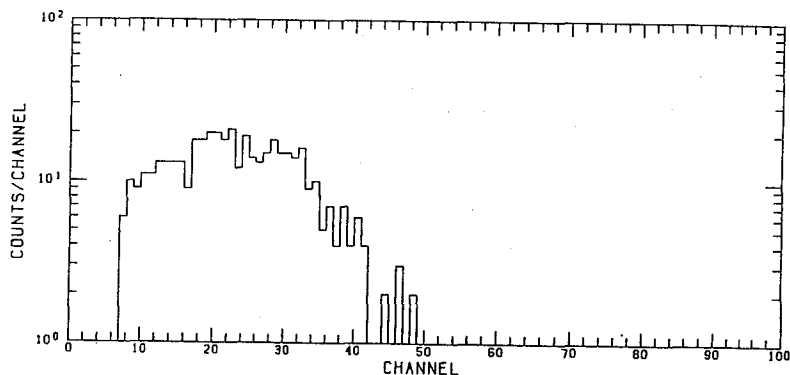


図2.

α 粒子とコインシデンスした核分裂片のエネルギースペクトル

図3.
核分裂片とコインシデンスした α 粒子のエネルギースペクトル



STUDIES OF THE MODE OF MASS DIVISION IN THE FISSION OF TRANS-LEAD ELEMENTS

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Takayuki KOBAYASHI,
Keisuke SUEKI, Tsutomu OHITSUKI, Kazuyuki TSUKADA, Hiromich NAKAHARA
Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Yuichi HATSUKAWA

(新潟大・理) ○谷川勝至、工藤久昭、小林 潔、橋本哲夫
(東北大・サイクロ) 藤岡学、篠塚勉、和田道治、池上均、砂押仁

【はじめに】 原子核分裂の反応機構について、現在までにさまざまな研究がなされてきたが、いまだに統一的な解明には至っていない。核分裂の反応機構を検討する上で、核分裂直後の分裂片の持つ角運動量を調べることは興味深い。とりわけ、分裂時(scission point)における原子核の様子を探るのに有用な情報が得られる。いままで核分裂片の角運動量を調べる方法としては、① 核分裂片の角度分布の測定、② 核分裂片から放出される γ 線や中性子の数の測定、③ 核異性体生成比の測定などが行われてきた。本研究では、測定や核種の同定・定量が比較的容易な核異性体生成比の測定を行った。核分裂直後の分裂片は高い励起状態にあり、中性子や γ 線を出して安定になる。このときスピンの異なる核異性体を持つ原子核が存在すると分裂時に付与された角運動量に応じて核異性体間の生成比に差が生じる。 γ 線や中性子も角運動量を持ち去るので、核異性体生成比は直接には分裂時の角運動量を反映しないが、一般的傾向を検討するには良い手段である。従来、核分裂生成物は通常の質量分離装置や放射化学的な分離の後に測定されるため分離に時間を要し、長寿命核種の測定に限られた。本研究では短寿命核種まで測定でき、最近注目されているイオンガイド型同位体分離装置(IGISOL)を用いて核異性体生成比を測定し、いくつかの知見を得たので報告する。

【実験】 反応系には対称、非対称の質量分割が混在する $^{238}\text{U} + p$ を選んだ。今回のビーム照射および測定はすべて東北大学サイクロトロン、IGISOLにて行った。この測定における元素や質量数によるIGISOLの輸送効率のちがいは、反応断面積の比をとるためすべて消去される。陽子のエネルギーは24, 18, 13 MeVの3点で行い、ビーム強度は標的上で約 $2\mu\text{A}$ であった。核種の同定および定量はGe(Li) γ 線スペクトロメトリーによった。測定はビーム照射と同時に開始し、各質量数あたり約1~2時間測定した。またリストモードによる壊変を追う測定も行った。 γ 線スペクトルの解析はピーク解析プログラムSAMPOで行い、一部手計算によった。

【結果と考察】 今回の実験で測定された核異性体のある核種は全部で12組、半減期では1.21s (^{97}mY)~2.3h (^{132}I)であった。親娘関係の明かなものについては、親からの壊変を補正して独立収率を求めた。Table 1に得られた核異性体生成比(以後Rと略)を示す。なお、Rは高いスピンを持つ核異性体の収率を低いスピンのもので割った値である。Fig. 1は核異性体のスピンの差が4であるRを、陽子の入射エネルギーに対してプロットしたものである。通常、Rは励起エネルギーと共に増加し、異なる核種でもスピンの差が同じならばRも同じであるといわれているが、個々の質量数や核種でかなりのちがいが見られる。また対称分裂領域の ^{116}Ag ではかなり高いRが測定された。一方、 ^{130}Sn , ^{132}Sb , ^{134}I は他と比較して低いRを示していることから、Shell効果があるものと思われる。次に核分裂片の持つ角運動量の見積りであるが、これにはD.G. MadlandとT.R. Englandによるモデル¹⁾を使って求めた。これは核分裂直後の分裂片が持つ角運動量の分布が統計模型に従うこと、つまり角運動量Jの確率分布は

$$P(J) = P_0 (2J-1) \exp \{ - (J+0.5)^2 / \langle J^2 \rangle \}$$

たにかわまさし、くどうひさあき、こばやしきよし、はしもとてつを、ふじおかまなぶ、しのづかつとむ、わだみちはる、いけがみひとし、すなおしひとし

$$\langle J^2 \rangle^{1/2} = J_{rms} \text{ (Root Mean Square)}$$

で生成すると仮定している。ここで J_{rms} が分裂片の持つ角運動量の平均2乗根となる。さらに、この確率分布を持つ分裂片がそれぞれのスピンを持つ核異性体へと壊変する際に、2つのスピンの中点で分岐するとしている。以上の仮定に基づき、 R と $\langle J^2 \rangle$ の関数が分裂片の質量数やスピンのちがいによって場合分けされている。このモデルに今回測定された核異性体の質量数やスピンの値を代入し、得られた R と $\langle J^2 \rangle$ の関係から各々の J_{rms} を求めたのが Table 2 である。これまでの研究では6~8桁程度とされてきたが、この範囲外の値もあり、陽子入射により核分裂核に持ち込まれる角運動量とも併せて現在解析中である。

Table 1 得られた核異性体生成比 (R)

Nuclide (High spin, Low spin)	Isomeric yield ratio (R)		
	13MeV	$\frac{\delta H}{\delta L}$ 18MeV	24MeV
⁹⁷ Y (9/2, 1/2)		2.40 ± 0.21	2.14 ± 0.27
⁹⁹ Nb (9/2, 1/2)	0.552 ± 0.067	1.05 ± 0.13	0.655 ± 0.064
¹⁰² Tc (5, 1)			0.0846 ± 0.0709
¹¹⁶ Ag (5, 2)		5.40 ± 2.92	15.8 ± 58.3
¹²⁶ In (8, 3)			1.14 ± 0.13
¹³⁰ Sn (7, 0)		0.973 ± 0.146	
¹³⁰ Sb (8, 4)		2.29 ± 0.18	
¹³² Sb (8, 4)	0.490 ± 0.061	0.505 ± 0.039	0.480 ± 0.045
¹³² I (8, 4)	0.710 ± 0.096	1.73 ± 0.28	2.54 ± 0.36
¹³⁴ I (8, 4)	0.171 ± 0.046	0.173 ± 0.031	0.456 ± 0.082
¹³⁸ Cs (6, 3)	1.93 ± 0.08	11.4 ± 4.6	2.59 ± 0.93
¹⁴⁸ Pr (4, 1)		0.0657 ± 0.126	0.326 ± 0.316

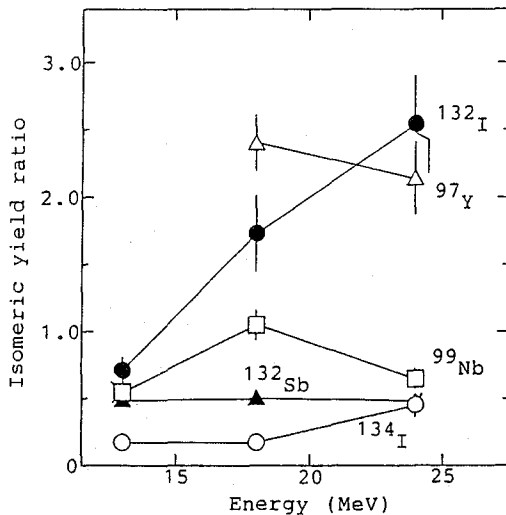


Fig.1 エネルギーと核異性体生成比の関係

Table 2 求められた分裂片の角運動量

Nuclide (High spin, Low spin)	J_{rms} (ħ)		
	13MeV	18MeV	24MeV
⁹⁷ Y (9/2, 1/2)		5.8 ± 0.2	5.5 ± 0.3
⁹⁹ Nb (9/2, 1/2)	3.4 ± 0.1	4.1 ± 0.2	3.2 ± 0.1
¹⁰² Tc (5, 1)			2.0 ± 0.3 0.5
¹¹⁶ Ag (5, 2)		10.3 ± 2.3 3.0	17.1 ± 19.5 17.1
¹²⁶ In (8, 3)			8.0 ± 0.3
¹³⁰ Sn (7, 0)		5.3 ± 0.3	
¹³⁰ Sb (8, 4)		11.4 ± 0.4	
¹³² Sb (8, 4)	6.4 ± 0.3	6.5 ± 0.2	6.4 ± 0.2
¹³² I (8, 4)	7.3 ± 0.3	10.1 ± 0.7	11.9 ± 0.7
¹³⁴ I (8, 4)	4.8 ± 0.3	4.8 ± 0.2	6.3 ± 0.4
¹³⁸ Cs (6, 3)	8.2 ± 0.1	18.2 ± 3.2 3.9	9.3 ± 1.3 1.6
¹⁴⁸ Pr (4, 1)		1.9 ± 0.5 1.9	2.7 ± 0.6 1.2

参考文献 1) D.G.Madland and T.R.England: Nucl.Sci.Eng., 64, 859, (1977)

ISOMERIC YIELD RATIO OF FISSION PRODUCTS IN PROTON-INDUCED
FISSION OF ²³⁸U

Faculty of Science, Niigata University, Masashi TANIKAWA,
Hisaaki KUDO, Kiyoshi KOBAYASHI and Tetsuo HASHIMOTO
Tohoku University, Cyclotron Radioisotope Center,
Manabu FUJIOKA, Tsutomu SHINOZUKA, Michiharu WADA,
Hitoshi Ikegami and Hitoshi Sunaoshi

(新潟大・理) ○工藤久昭、谷川勝至、金子洋介、橋本哲夫

(東北大・サイクロ) 藤岡学、篠塚勉、和田道治、池上均、砂押仁

〔序〕演者らはこれまで核分裂片の電荷分布の測定に関して、IGISOL (イオンガイド型同位体分離装置) の利用可能性を検討してきた。その結果IGISOLは非常に有効な手段であることがわかった。¹⁾ 従来、低エネルギー荷電粒子による核分裂においては、電荷分布はガウス型分布をしており、その中心電荷 (Z_0) は液相模型で比較的良好に説明され、分布の幅 (σ) は核分裂核、分裂片の質量数及び励起エネルギーには依存しないとされてきた。しかしながらIGISOLによる実験の結果、以前の報告とはかなり異なった様相を示していることが示唆された。¹⁾ 講演では $^{238}\text{U} + p$ に於ける核分裂生成物の電荷分布のエネルギー依存性、質量数依存性について詳細な検討をくわえたので報告する。

〔実験〕実験は東北大学サイクロトロンにて行った。実験の詳細については前回の発表の通り¹⁾であるが、今回はMCSを用いての半減期解析も併用した。

〔結果と考察〕以下の考察においては核分裂片の電荷分布はガウス分布であると仮定している。またIGISOLにおける輸送効率の元素依存性を除去するために元素間の相対収率の比をとって解析を行った。

(1) 中心電荷 (Z_0): ここでは第一次近似として分布の幅は分裂片の質量数及び入射エネルギーに対して一定であるとした。まず、入射エネルギー依存性であるが、全体的にみると、これまでの報告と同じように入射エネルギーの増加と共に中心電荷も増加しているが、その程度は質量数によってかなり異なっていることがわかった。Fig. 1に例としてプロトンエネルギーが24MeVのときの中心電荷と18MeVのときの差を示した。次に中心電荷の分裂片の質量数依存性であるが、UCDモデルのように質量数に対して直線的に変化をするのではなく、各々の質量数の間で異なった変化量を示した。特にTable.1からわかるようにA=144はA=143よりも、A=141はA=140よりも中心電荷は小さい。しかもこの傾向は入射エネルギーを変えても保存されている。これらの結果は、分布の幅を一定と仮定したために出てきたものかも知れないけれども、一般に言われているshellの近傍でないことが興味深い。

(2) 分布幅 ($C=2\sigma^2$): 分布幅の入射エネルギーに対する変化をTable 2に示す。これらの値は、各々の質量数で測定された分布幅の平均値の差である。誤差

くどうひさあき、たにかわまさし、かねこようすけ、はしもとてつを、ふじおかまなぶ、しのずかつとむ、わだみちはる、いけがみひとし、すなおしひとし

は大きいけれども分布幅はエネルギーと共にわずかながらも増加しているように思われる。また分裂片の質量数に対しては、これまでの報告とはかなり異なった結果が得られた。(Table 3) すなわち、分布幅は各々の質量数でかなり差異があるようにみられる。

[参考文献]

- 1) 工藤ら、第31回放射化学討論会 2A01,2A02(1987)

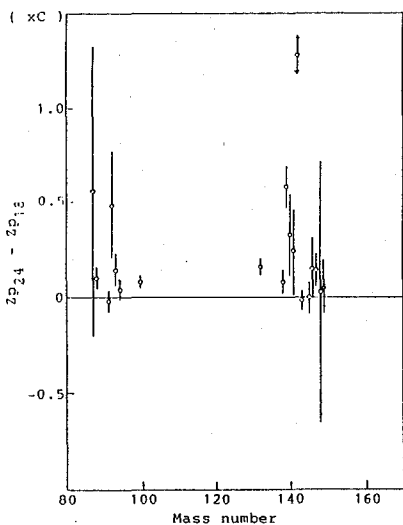


Fig.1. Difference between the most probable charge at 24 MeV (Z_{p24}) and that at 18 MeV (Z_{p18}).

Table 2. The averaged difference of the reciprocal of the width parameter at different proton energies.

Average	
$1/C_{24} - 1/C_{18}$	-0.084 ± 0.054
$1/C_{18} - 1/C_{13}$	-0.057 ± 0.113
$1/C_{24} - 1/C_{13}$	-0.114 ± 0.113

Table 1. Difference of the most probable charge between the neighboring mass numbers. These varules are in unit of the width parameter C.

A1	A2	$Z_{p^{A1}} - Z_{p^{A2}}$ (Percent Error)		
		24MeV	18MeV	13MeV
149	148	1.19(26.7)		0.56(18.0)
148	147	0.19(154.)		0.63(9.36)
147	146	0.60(45.3)	0.55(28.4)	0.63(8.39)
146	147	0.32(82.1)	0.77(27.9)	0.89(8.66)
145	144	0.24(73.6)	0.83(16.5)	0.85(6.51)
144	143	-0.22(83.3)	-0.08(152.)	-0.78(6.71)
143	142	0.52(55.6)		0.83(14.2)
142	141	0.18(158.)		0.67(19.0)
141	140	-0.21(132.)	-0.11(139.)	-0.29(51.4)
140	139	0.41(61.7)	0.73(20.0)	0.40(36.3)
139	138	0.57(34.2)	0.19(74.9)	0.48(20.9)

Table 3. The difference of the reciprocal of the width parameter between different mass chains.

Mass number	i	j	$1/C^i - 1/C^j$		
			24MeV	18MeV	13MeV
148	146		-0.83 ± 1.60		
145	144		-0.69 ± 0.23		-0.16 ± 0.45
145	143		-0.73 ± 0.22		-0.41 ± 0.13
144	143		-0.05 ± 0.28	0.30 ± 0.14	-0.26 ± 0.44
141	139		0.10 ± 0.15	0.52 ± 0.35	0.08 ± 0.33
93	92		2.08 ± 0.70	1.23 ± 1.79	
93	91		1.19 ± 0.64	1.26 ± 0.37	
92	91		-0.89 ± 0.32	0.03 ± 1.75	
88	87		2.06 ± 1.06		

STUDY ON CHARGE DISPERSION OF FISSION PRODUCTS BY USE OF IGISOL(3)

Faculty of Science, Niigata University, Hisaaki KUDO,
 Masashi TANIKAWA, Yousuke KANEKO and Tetsuo HASHIMOTO
 Tohoku University, Cyclotron Radioisotope Center,
 Manabu FUJIOKA, Tsutomu SHINOZUKA, Michiharu WADA,
 Hitoshi Ikegami and Hitoshi Sunaoshi

(阪大理、原研*) ○杜明進、高橋成人、横山明彦、馬場宏
*馬場澄子、*畑健太郎、*永目諭一郎

【緒言】 核分裂における観測諸量のうちで、核電荷分布は二次的な情報と見なされるのが普通である。ところで著者らは、核電荷分布の測定から核分裂の機構、特に pre-fission neutron と post-fission neutron についての情報が得られることを示した¹⁾。また重イオン誘起核分裂における核電荷分布の測定は、軽イオンや中性子によるウラン近傍の核についてはよく行なわれているのに反し、これまであまり行なわれていない。重イオン誘起核分裂において、これまで核電荷分布はUCD仮説でよく近似されると考えられており、それ以上あまり詳しい議論がなされていない。そこで、重い核分裂系 ($Z \sim 100$) における核電荷分布の測定を行ない、核分裂機構の解明を試みた。今回は85 MeVと90 MeVでの実験結果について報告する。

【実験】 実験には26.2 μm 厚のアルミ箔上に電着した3種類のウランターゲット (^{233}U , ^{235}U , ^{238}U) を用いた。約1.0 mg/cm^2 厚のウランターゲットを、日本原子力研究所のタンデム加速器からの ^{12}C (85 MeV, 90 MeV) で照射した。3種類の融合核について励起エネルギーが同じになるように、適当な厚みのアルミ箔を用いて入射エネルギーを調節した。詳しくは第31回放射化学討論会²⁾で述べた。

【結果と考察】 今回の実験で質量80付近から151迄の核分裂生成核種について生成断面積が求められた。A=132, 133および135については3種類のターゲット全部で、A=129については ^{233}U に対して、それぞれ3つの同重体が観測された。そこで、それぞれについて核電荷分布曲線を次式により求めた。

$$P_A(Z) = Y_A \exp [-(Z-Z_p)^2/2\sigma^2] \quad (1)$$
 ここで $P_A(Z)$ は得られた質量鎖における核電荷 Z を持った核種の部分収率で $2\sigma^2$ は収率曲線の幅を表わすパラメーターである。Fig. 1 に90 MeVにおいて3つの系について得られた核電荷分布曲線を示す。さらに Table 1 に個々の同重体の組について得られた核電荷分布曲線の分散 σ を示す。これらの平均値 1.10 ± 0.05 は中性子誘起核分裂について得られている値0.69よりかなり大きな値であった。さらにいくつかの質量

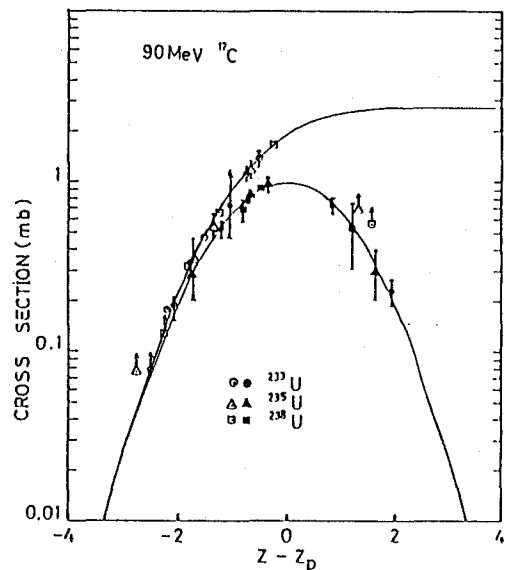


Fig. 1. The charge dispersion curve

どうみんじん、たかはしなると、よこやまあきひこ、ばばひろし、ばばすみこ、
はたけんたろう、ながめゆいちろう

鎖について、最確核電荷 Z_p を得られた核電荷分布の幅を用いて求めた。2種類のエネルギー反応系で得られた Z_p と核分裂片の質量 A^* の関係から $(\partial Z_p / \partial A^*)_{A_F, Z_F, E_x}$ の値を求めた結果、3種類の核についてはほぼ同じ値0.39が得られた。この値は中性子や軽イオン核分裂について得られている値¹⁾とほぼ同じである。さらに $(\partial Z_p / \partial A_F)_{Z_f, A^*, E_x}$ を核分裂片の質量に対してプロットした図をFig. 2に示す。得られた偏微分係数の値は-0.13程度であり、この値も中性子や軽イオン核分裂について得られている値と同じ範囲内に納まっている。 $(\partial Z_p / \partial E_x)_{A_F, Z_F, A^*}$ の値については測定したエネルギー範囲が十分広くないため、有意な結論を得るには至っていない。現在までに得られた結果およびNewtonらのfission neutronのデータ³⁾を基にして重イオン核分裂についての反応機構の考察を試みる。

Table 1. The charge dispersion for A=129,132,133 and 135

A	E _{Lab}	charge dispersion (σ)		
		²³⁸ U	²³⁵ U	²³³ U
129	85			≤ 1.10
	90			≤ 1.10
132	85	0.95 ± 0.05	1.05 ± 0.05	1.15 ± 0.05
	90	1.05 ± 0.05	1.10 ± 0.05	1.15 ± 0.05
133	85	1.10 ± 0.05	1.15 ± 0.05	1.05 ± 0.05
	90	≥ 1.05	≥ 1.2	≥ 1.10
135	85		1.10 ± 0.05	1.10 ± 0.05
	90		1.10 ± 0.05	1.10 ± 0.05

conclusion: $\sigma = 1.10 \pm 0.05$

thermal neutron fission: $\sigma = 0.69$

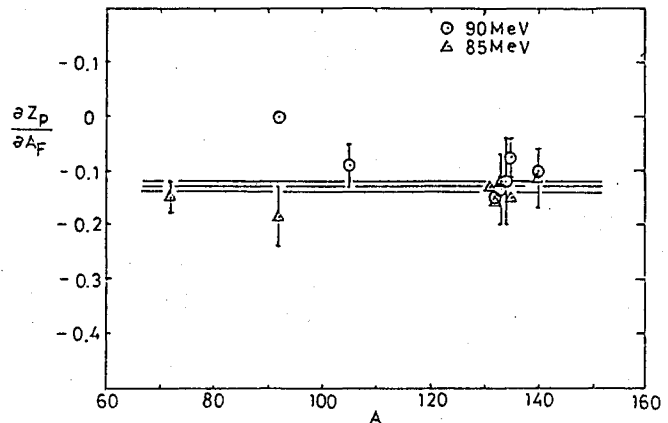


Fig.2. The relationship between $\partial Z_p / \partial A_F$ and A_F

【参考文献】

- 1) H. Umesawa, H. Baba and S. Baba, Nucl. Phys. A160 (1970) 65.
- 2) 杜ら、第31回放射化学討論会、1A14 (1987).
- 3) J. O. Newton et al. Nucl. Phys. A483 (1988) 126.

¹²C-INDUCED FISSION OF ²³³U, ²³⁵U AND ²³⁸U

Faculty of Science, Osaka University, Ming-Jinn DUH, Naruto TAKAHASHI
 Akihiko YOKOYAMA, Hiroshi BABA
 Japan Atomic Energy Research Institute, Sumiko BABA, Kentaro HATA,
 Yuichiro NAGAME

(阪大理) ○吉崎信樹、斎藤 直、若松智之、古谷栄樹、湯川直樹、
早野修一、舩分宏昌、小林 洋、馬場 宏

【はじめに】 これまで、 $^{232}\text{Th} + ^3\text{He}$ 反応系における核分裂について放射化学的手法を用いた研究を行ってきた¹⁾。核分裂片の質量分布、運動エネルギー分布、励起関数などの測定から、この系において2つの核分裂モードが存在する可能性を示すことができた。さらに、この反応系における核分裂への非複合核反応過程からの影響を調べるため、上記の研究に付随した結果と新たな測定結果から得られた ^{232}Pa 、 ^{233}Pa の励起関数(図1)を検討した。図1より、実験値は、統計模型を用いた核反応計算コードALICEから得られた計算結果と比較して、著しく大きな値を示すことがわかる。このことから、この系では、 ^3He が不安定な粒子であるため、複合核反応だけではなく非複合核反応が生じている可能性が大きいと考えられる。しかしながら、他方このエネルギー領域においては、入射粒子の Break-up 等の非複合核反応過程の核分裂への寄与は重要ではないとの実験的報告もある²⁾。そこで、今回は上記の系における非複合核反応過程及びその核分裂への影響を調べるために、カウンター法を用いた実験を行なうことにした。

【実験】 実験は大阪大学理学部付属原子核実験施設(OULNS)サイクロトロン³⁾の3Cコースの大型散乱槽でおこなった。入射粒子としては22MeV ^3He ビームを使用し、ターゲットは ^{232}Th をNi箔上に蒸着したもの(0.4mg/cm²厚)を用いた。まず最初の実験としては、 $\Delta E - E$ Si(Au)カウンターテレスコープを用いたシングルス測定(20°-160°)を行ない、Stripping、Pick-up、あるいは、Break-up 反応の結果生じると考えられる p, d, t, ^4He の測定を行なった。次の実験では、核分裂片の測定に4つのSi(Au)検出器を用意し、 $\Delta E - E$ カウンターテレスコープ(140°)とのコインシデンス測定を行ない、pf, df, tf, ^4He f 反応を測定した。4つのSi(Au)検出器は In-plane 上に40°, 80°, 90°, 160°の位置に配置した。データ収集には、CAMAC-PC98システムを使用した。この結果から、放出軽粒子別に、軽粒子を放出した残留核の各励起エネルギーごとの核分裂確率、角度分布等の情報を得る目的で解析中である。

【結果と考察】 まず、 $\Delta E - E$ カウンターでのシングルス測定結果から経験式を使い粒子識別を行なった後、各放出軽粒子のエネルギースペクトルを求めた。これから、一定のエネルギー範囲の粒子を放出する断面積を求め、角度積分を行ない全放出断面積を求めた。結果は表1に示す。これからわかるようにp, d, t, ^4He の全放出断面積は、対応する生成物 ^{232}Pa 、 ^{233}Pa についての放射化法の結果と比較して著しく大きい。これは、(^3He , pX)、(^3He , dX)、(^3He , tX)反応が、主には Break-up 反応を経由して複合核を生じないためではないかと推察される。特に Proton の断面積は、相対する Deuteron の断面積に対しても

よしざきのぶき、さいとうただし、わかまつさとし、ふるやしげき、ゆかわなおき、
はやのしゅういち、くさわひろあき、こばやしひろし、ばぼひろし

大きく、(${}^3\text{He}, \text{pdX}$)反応ではなく(${}^3\text{He}, 2\text{pnX}$)反応が主に起きている様子を示している。以上、このように非複合核反応が、この系において支配的であると思われるので、その核分裂に対する影響を考えることは興味深い。また、これまでの研究により、この系での励起関数が低エネルギー領域で一定になる傾向も示されており、これも Break-up 反応からの寄与であるとも考えられる。講演では、(${}^3\text{He}, \text{Xf}$)反応の調査から得られたデータをもとに、この系で生じる反応全般について考察を行なう予定である。

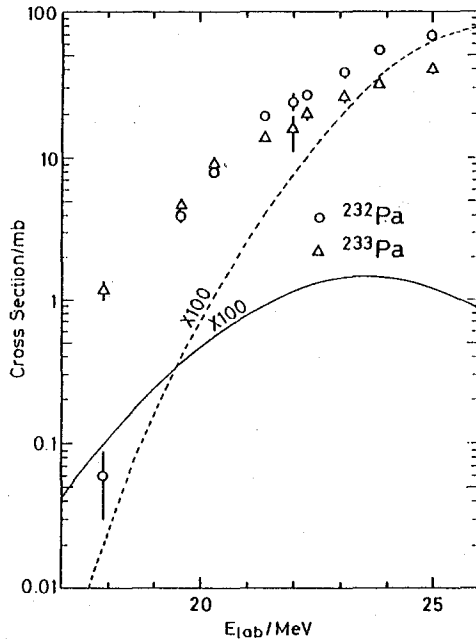


図 1. ${}^{232}\text{Pa}$ と ${}^{233}\text{Pa}$ の励起関数。点線と実線は、それぞれ ${}^{232}\text{Pa}$ と ${}^{233}\text{Pa}$ の計算値を100倍して示している。

表 1. 放出軽粒子の断面積

放出軽粒子	全放出断面積 (mb)
Proton	3744 ± 71
Deuteron	698 ± 22
Triton	61 ± 3
${}^4\text{He}$	209 ± 27

【文献】

- 1) 若松ら、第31回放射化学討論会講演予稿集(福岡、1987年10月) p.34.
若松ら、日本化学会第56春季年会講演予稿集(東京、1988年4月) p.I-803.
- 2) A.Gavron, H.C.Britt, E.Konecny, J.Weber, and J.B.Wilhelmy, Phys.Rev.C **13**, 2374 (1976).

FISSION IN THE REACTION SYSTEM OF ${}^{232}\text{Th}$ AND ${}^3\text{He}$

Department of Chemistry, Faculty of Science, Osaka University,

Nobuki YOSHIKAWA, Tadashi SAITO, Satoshi WAKAMATSU, Shigeki FURUYA, Naoki YUKAWA, Shuichi HAYANO, Hiroaki KUSAWAKE, Hiroshi KOBAYASHI, Hiroshi BABA

(金沢大・理¹⁾, 東大・核研²⁾, 名古屋大・理³⁾, 追手門学院大・経⁴⁾)○S.R.Sarkar¹⁾, 梶瀬 彰¹⁾, 松本克美¹⁾, 正谷光博¹⁾, 宮本ユタカ¹⁾小三田栄¹⁾, 浜島靖典¹⁾, 坂本 浩¹⁾, 柴田誠一²⁾, 古川路明³⁾,藤原一郎⁴⁾

[Introduction] This work concerns yield measurements of $^{139}\text{La}(\gamma, \pi^\pm)$, (γ, π^-xn) and $(\gamma, xnyp)$ reactions at bremsstrahlung end-point energies (E_0) ranging from 125-1000MeV with an aid of suitable radiochemical separation. Extensive investigations have been performed on light, medium-weight and heavy nuclei, i.e. from ^{27}Al to ^{209}Bi by the members of our laboratories and the results were reported elsewhere¹⁻³. The ^{133}Cs target allowed the most extensive measurements among them⁴. The aim of this work is to establish further the reported systematic features found for both photopion and photospallation reactions. Natural La is chosen as a target as it is essentially monoisotopic, very close to ^{133}Cs , and also allows measurements of (γ, π^\pm) and (γ, π^-xn) for x up to 7~9. The characteristic features of the measured yields of photonuclear reactions, σ_0 in unit of $\mu\text{b}/\text{eq.g.}$, corrected for the secondary contribution and of the cross-sections per photon of energy k, $\sigma_k(k)$ in unit of μb , will be discussed by comparing with the previous ones on other targets. The results of the photospallation of ^{139}La are also preliminary, but will be included in the discussion.

[Experimental] La_2O_3 of high purity (99.99%) were irradiated with uncollimated beams from the 1.3GeV ES of INS, Univ. of Tokyo and the 300MeV LINAC of LNS, Tohoku Univ. The target thickness was 2.5×10^{21} nuclei per sq. cm on average. The details of the irradiation, monitor and counting procedures are similar to those described previously for other work from our group¹⁻⁴.

[Results and Discussion] Variation of the observed yields of ^{135}Ce in $\mu\text{b}/\text{eq.g.}$ as a function of E_0 is exemplified in fig 1. The E_0 dependence curve evinces the existence of two components: one from the photopion reaction $^{139}\text{La}(\gamma, \pi^-4n)$ and the other from the secondary proton reaction $^{139}\text{La}(p, 5n)$. Other examples, ^{139}Ce and ^{139}Ba yields, are given in fig 2. The extents of contribution of the secondary reaction are shown by the dashed lines which were obtained by the method reported previously^{1-3, 4}. The contribution of the secondaries decreases as the number of emitted neutrons increases. It is remarkable that the yield ratio of $^{139}\text{Ce}/^{139}\text{Ba} [= \sigma_0(\gamma, \pi^-) / \sigma_0(\gamma, \pi^+)]$ is as high as about 5, as is also evident in fig 4 below. The $\sigma_k(k)$ are illustrated in fig 3. The unfolding of $\sigma_0(E_0)$ into $\sigma_k(k)$ was performed with LOUHI-82 code. The dotted curves in fig 3 are obtained by interpolation for the stable Ce nuclides. All the excitation curves are of similar resonant shape with FWHM of about

S.R. サーカー, くぬぎせあきら, まつもとかつみ, まさたにみつひろ,
みやもとゆたか, こさんださかえ, はまじまやすのり, さかもとこう,
しばたせいいち, ふるかみちあき, ふじわらいちろう

70±15 MeV. Fig 4 shows the variation of cross section at the peak of the excitation curves as a function of number of emitted neutrons. The results of this study are compatible with the reported results on ^{133}Cs target as well as those on other targets. The total cross-section for $^{139}\text{La}(\gamma, \pi^- xn)^{139-x}\text{Ce}$ ($x=0$ to 7) is compared with the total photoabsorption cross-section $A_1 \cdot \sigma_{TN}$ in fig 5., where σ_{TN} being an average of the single nucleon photoabsorption cross section and A_1 the target mass number (=139). The total cross section amounts only to $5 \cdot 10^{-2}$ of the $139 \cdot \sigma_{TN}$ and the peak of the total locates at $k=230\text{MeV}$ which is very low compared with the peak location of $k=320\text{MeV}$ for $139 \cdot \sigma_{TN}$. Theyields of some of the spallation products of ^{139}La are illustrated as a function of E_0 in fig 6. These are also still preliminary, but the trend of the yield curves for the spallation products is comparable with the reported ones for ^{133}Cs . When one takes the total inelastic cross section of 100mb estimated from the spallation results and $\Sigma \sigma_a(\gamma, \pi^- xn) = 2.0\text{mb}$, the ratio of the two ($2.0 \cdot 10^{-2}$) would reasonably explain the ratio of $5 \cdot 10^{-2}$ mentioned above.

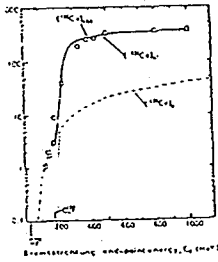


fig 1 Yield curve of ^{135}Ce

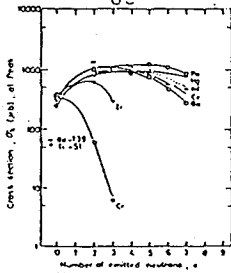


fig 4 Variation of cross sections at peaks

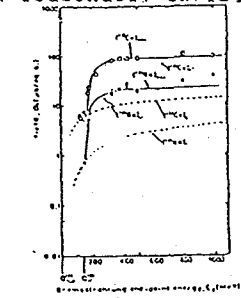


fig 2 Yield curve of ^{139}Ce and ^{139}Ba

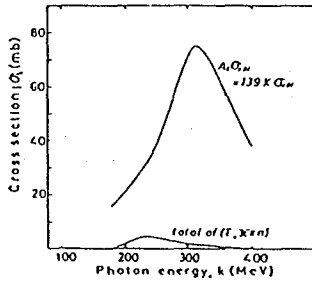


fig 5 Comparison of $A_1 \cdot \sigma_{TN}$ with total of $(\gamma, \pi^- xn)$

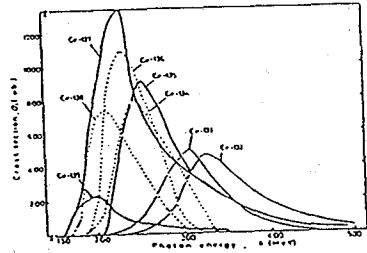


fig 3 Excitation function of $\text{La} \rightarrow \text{Ce}$

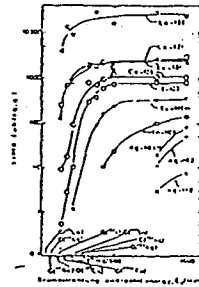


fig 6 Yields of spallation

Refs.

- 1)坂本 他, 第25,26,29,30,31回放化討論会及び日化年会(1988);
- 2)Shibata et al., Phys.Rev. C35 254(1987);
- 3)Sakamoto et al., Nucl.Phys.(1988 in press);
- 4)Sakamoto et al., Phys.Rev.C.(1988 submitted)

PHOTONUCLEAR REACTION OF LA-139

— π^\pm EMITTING REACTION AND PHOTOSPALLATION REACTION —

Fac. of sci., Kanazawa Univ.¹⁾, Inst. for Nucl. study, Univ. of Tokyo²⁾
 Fac. of sci., Nagoya Univ.³⁾, School of Economics, Ottemongakuin Univ.⁴⁾
 S.R.SARKAR¹⁾, Akira KUNUGISE¹⁾, Katsumi MATUHOTO¹⁾, Kitsuhiro HASATANI¹⁾
 Yutaka MIYAHOTO¹⁾, Sakae KOSANDA¹⁾, Yasunori HAKAJIHA¹⁾, Koh Sakamoto¹⁾
 Seiichi SHIBATA²⁾, Michiaki FURUKAWA³⁾, Ichiroh FUJIWARA⁴⁾

(日大・文理、東大核研*) 佐藤睦子、○今村峯雄*、柴田誠一*
佐藤信吾*

はじめに

高エネルギー粒子が関与する宇宙環境や大型加速器周辺での核種生成には、100MeV 以下の中中性子が大きく寄与する。ところが現状ではこうした高速中性子による反応断面積は d-T 反応による中性子エネルギー域 (<20MeV) 以外ではほとんど得られていない。我々は昨年より、特に長半減期の放射性核種 ^{10}Be 、 ^3H 、 ^{14}C などの励起関数を測定する目的で、 ^9Be (p, n) ^9B 反応で発生する準単色中性子 ($E_n < 38\text{MeV}$) を用いて励起関数を測定する実験を行っている。既に $^{14}\text{N} + n \rightarrow ^{10}\text{Be} + x$ 反応については昨年の本討論会で報告したが、今回 Au、Cs、Y、Cu、Fe、Ni、Si、Mg ターゲットについて短半減期核種について得たデータについて報告し、一部文献との比較や複合核モデル計算 (ALICE) との比較を行い、こうした準単色中性子を用いての測定の有効性と限界について議論する。

実験

核反応断面積測定は高純度金属箔ターゲットを p + Be によって発生させた準単色中性子場で照射し、その生成放射能から求める放射化法によった。準単色中性子発生装置は核研 SF サイクロトロン の RI ボンバードコースに設置したものをを用いた。この装置は 1mm (又は 2mm) の Be 金属板をターゲットとして、これに 20 - 40 MeV 陽子を照射し中性子を発生させる。Be 板の後方 1.2cm は水を循環させ冷却し、同時に陽子ビームを止める。発生した中性子はこの冷却水及びフランジ (Al 2mm) により散乱を受けるが、ピークの構造に対してはほとんど影響しない。中性子束の角度分布は照射エネルギーによって異なるが、中心より $\pm 5^\circ$ 以内では 10%、 $\pm 3^\circ$ 以内では 5% 以内でフラットである。モニターとして中性子反応断面積のよく測定されている $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ が用いられるが、本実験では鳥居らが同じ条件で測定した H recoil による中性子束の測定結果 (NE213 スペクトロメーター) を用い (文献 1)、Al 箔モニターについては補助的に用いた。

先に述べた金属箔 (10×10mm) を互いに生成核種が干渉しないような組合せのスタックにして約 3 時間照射した。生成放射性核種の同定及び定量は pure Ge 検出器 (一部 Ge-Li) による γ 線測定によって、(注目する放射性核種の半減期にしたがって) 適当な時間間隔をおいて測定した。なお親からの流れ込みがある場合は補正を行った。検出器の校正には Amersham の混合標準線源 ($\pm 1.5 \sim 3\%$) を使用した。

結果と考察

本実験で求めた核反応及び Q 値を表 1 に示す。ターゲットとして天然組成のものを用いたので 1 部の反応については個々の核反応モードに対する断面積でなく、元素に対する実効断面積としてのみ得られる。断面積を求める方法は前回の $^{14}\text{N} + n \rightarrow ^{10}\text{Be} + x$ 反応に関する報告で行ったのと同じ方法によった。すなわち中性子のエネルギー域を各々の照射のピークエネルギー (j) に対応していくつかの領域にわけ、各々に対応する平均生成断面積 σ_j として求めた。この場合、照射 j に対する核種の全生成量は $n_j = N_T (\sigma_j f_{jj} + \sum_i \sigma_i f_{ij})$

さとうむつこ、いまむらみねお、しばたせいいち、さとうしんご

(但し、 N_T =ターゲットの原子数、 f_{ij} =照射エネルギー域*i*の中性子束)となるので簡単な unfolding により σ_j を求めることができる。

結果の一例を図1に示す。この例では文献値との一致はよい。またALICEの計算結果とも励起関数の形は似ている。

p-Be中中性子は図2に示すように低エネルギー側では単色性が悪くなり、20MeV以下での測定に対しては精度が悪くなる。しかし、ここで見たようにp-Beからの準単色中中性子を用いて±15%程度の精度で中性子反応断面積を求めることが可能で、これは文頭で述べたような宇宙科学等で問題となる生成核の評価には有効である。なお、本実験ではALICEの計算に際し初川氏(核研)のお世話になった。

文献 1) 鳥居ら、原子核研究32(1987)89 2) D. I. Garber & R. R. Kinsey, BNL325(1976)

表1 測定した核反応モードと反応のQ値

Reaction mode	Q value	Reaction mode	Q value	Reaction mode	Q value	Reaction mode	Q value
$^{197}\text{Au}(n,4n)^{194}\text{Au}$	-23.1 MeV	$^{63}\text{Cu}(n,3n)^{61}\text{Cu}$	-19.7 MeV	$^{nat}\text{Ni}(n,x)^{61}\text{Co}$	-0.5 MeV etc.	$^{nat}\text{Si}(n,x)^{28}\text{Mg}$	-13.0 MeV etc
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$	-9.0	$^{65}\text{Cu}(n,2n)^{64}\text{Cu}$	-9.9	$^{nat}\text{Ni}(n,x)^{58}\text{Co}$	0.4 etc.	$^{28}\text{Si}(n,\alpha p2n)^{22}\text{Na}$	-34.1
$^{133}\text{Cs}(n,2n)^{132}\text{Cs}$	-9.0	$^{65}\text{Cu}(n,p)^{65}\text{Ni}$	-1.4	$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$	-12.2	$^{28}\text{Si}(n,\alpha p)^{24}\text{Na}$	-23.1
$^{133}\text{Cs}(n,p)^{133}\text{Xe}^m$	0.1	$^{nat}\text{Fe}(n,x)^{56}\text{Mn}$	-2.9 etc.	$^{nat}\text{Ni}(n,x)^{57}\text{Co}$	-8.2 etc.	$^{27}\text{Al}(n,\alpha2n)^{22}\text{Na}$	-22.5
$^{133}\text{Cs}(n,p)^{133}\text{Xe}^g$	0.4	$^{nat}\text{Fe}(n,x)^{54}\text{Mn}$	0.1 etc.	$^{58}\text{Ni}(n,pn)^{56}\text{Co}$	-19.6	$^{24}\text{Mg}(n,p2n)^{22}\text{Na}$	-23.3
$^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}^m$	-21.2	$^{54}\text{Fe}(n,p2n)^{52}\text{Mn}^m$	-21.3	$^{58}\text{Ni}(n,3n)^{56}\text{Ni}$	-22.1	$^{nat}\text{Mg}(n,x)^{24}\text{Na}$	-4.7 etc.
$^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$	-11.5	$^{54}\text{Fe}(n,p2n)^{52}\text{Mn}^g$	-20.9	$^{58}\text{Ni}(n,p3n)^{55}\text{Co}$	-29.6		
		$^{nat}\text{Fe}(n,x)^{52}\text{Fe}$	-24.1 etc.				
		$^{nat}\text{Fe}(n,x)^{51}\text{Cr}$	0.8 etc.				

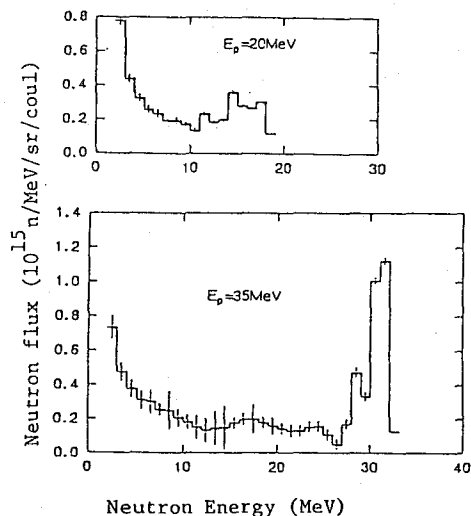


図2 本実験で用いた p-Be 中中性子のスペクトル例

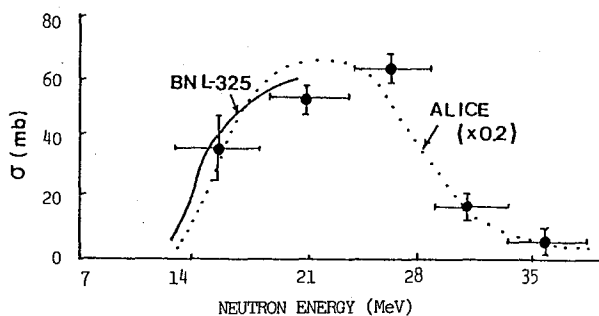


図1 $^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$ 反応の励起関数、測定値と文献値及び計算 (ALICE) との比較

Measurement of neutron-induced cross sections with pseudo-monoenergetic neutrons up to $E_n = 38$ MeV

College of Humanities and Sciences,
Nihon University
Institute for Nuclear Study,
University of Tokyo

Mutsuko SATOH

Mineo IMAMURA, Seichi SHIBATA
Shingo SATOH

1A10

AMSによる雨水中の ^{10}Be の測定 - 宇宙線による大気中の ^{10}Be 生成速度の推定

(日大文理¹、東大核研²、東大原セ³、東大理⁴、東大宇宙線研⁵、愛媛大教養⁶)
○永井尚生¹、今村峯雄²、小林紘一³、吉田邦夫⁴、大橋英雄⁵、柴田誠一²、
長谷部信行⁶、山下 博⁴、本田雅健¹

[序] ^{10}Be は半減期 1.5×10^6 年の核種であり、地球上では ^{14}C と同様に宇宙線により主として大気中の窒素との核反応により生成する。生成した ^{10}Be はエアロゾルに吸着し、雨水により地表(海面)に降下し深海底に堆積する。最近AMS(加速器質量分析)の発達により極微量の ^{10}Be 測定が可能となり、海底・湖沼・河川堆積物の堆積速度、Mnノジュールの成長速度等の研究に用いられている。本研究ではこれらの地球化学試料に対する研究において重要な要因である ^{10}Be の生成速度を求めることを目的とし、東京において1-2ヶ月毎に採取した(1975-1987)雨水試料について、AMS(加速器質量分析)により ^{10}Be の測定を行った。同時に ^7Be ・ ^{137}Cs 等雨水に含まれる他の核種について γ 線測定を行った。

[実験] 試料の採取及び化学処理は次の2つに分けられる

(#1) 1974-1979に早稲田大学理工学研究所屋上で採取した試料(採取面積 $9.2-19.8\text{m}^2$)は、投げ込みヒーターを用いて蒸発乾固し、 γ 線測定^{1,2)}を行なった後、一部(約10g)を $\text{HF}+\text{HNO}_3$ で溶解しBe担体0.3-2mgを加え、溶媒抽出・陽イオン交換によりBeを分離精製した。

(#2) 1983-1987に日本大学文理学部屋上で採取した試料(採取面積 1.62m^2 、あらかじめ蒸留水20-30 ℓ にBe担体約2mgを加え、試料のpHを2-3に保つために濃塩酸を加えた)は吸引口過し、固形成分は口紙と共に灰化した。口液は陽イオン交換樹脂に通し、流出液はガスバーナーで蒸発乾固し、樹脂に吸着した成分は6N塩酸で流出させた。大部分の試料ではBeは樹脂に吸着しており、この部分について#1と同様の化学処理を行なった。 γ 線測定は3種類の試料全てについて行なった。

精製したBe試料は濃縮 ^{17}O を加え、ガスバーナーで真空中 $900-1000^\circ\text{C}$ に加熱しBeOとした後、銀粉と混合し、AMS用試料ホルダーに詰め、東京大学原子力総合センタータンデムファンデグラフ加速器において ^{10}Be のAMSを行なった。

[結果] AMS及び γ 線測定により得られた結果を図1に示す。

1) 東京における ^{10}Be 、 ^7Be 、 ^{137}Cs の平均降下速度(atoms/cm²/sec)は (#1) 1975.1-1977.4, ^{10}Be : 0.099, ^7Be : 0.036, ^{137}Cs : 0.10 (#2) 1984.11-1987.4, ^{10}Be : 0.094, ^7Be : 0.038, ^{137}Cs : 0.006 (1984.11-1986.3)。

2) それぞれの期間で、大部分の試料について ^{10}Be 、 ^7Be 、 ^{137}Cs の降下速度の間に相関関係が認められる。特に前二者は全期間を通じて平行的。

3) Chernobyl事故の影響は ^{137}Cs に顕著に現れているのに対し、 ^{10}Be 、 ^7Be については全く見られない。

4) 降下速度の季節変動の特徴として、“spring maximum”の傾向が認められる。

ながい ひさお、いまむら みねお、こばやし こういち、よしだ くにお、おおはし ひでお、
しばた せいいち、はせべ のぶゆき、やました ひろし、ほんだ まさたけ

得られた ^{10}Be の降下速度から、地球全体の平均生成速度を求めるためには、降水量、緯度効果及び周辺土壤に蓄積された ^{10}Be の寄与等の補正を必要とするが、その係数を 0.3^3 と仮定すると $0.03 \text{ atoms/cm}^2/\text{sec}$ と推定される。

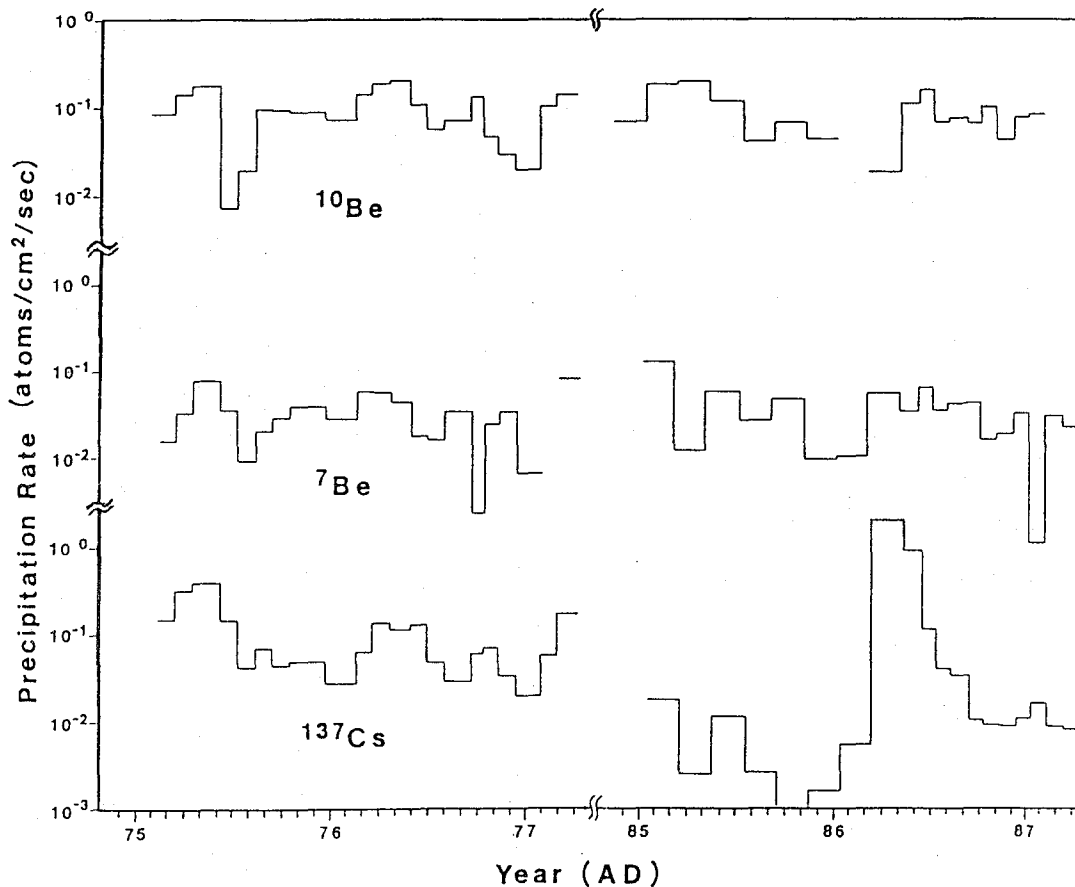


図1 東京における ^{10}Be , ^7Be , ^{137}Cs の降下速度(1975.1-1977.4, 1984.11-1987.4)

[文献] 1) N.Hasebe et al., J.Geophys.Res., 86 (1981) 520

2) 長谷部信行 他, 早稲田大学理工学研究所報告, 92 (1980) 91

3) 井上照夫 他, 日本地球化学会年会(1983)

AMS MEASUREMENTS OF ^{10}Be IN RAIN WATER - ESTIMATION OF THE PRODUCTION RATE OF COSMOGENIC ^{10}Be IN THE ATMOSPHERE

College of Humanities and Sciences,
Nihon Univ.

Inst. for Nuclear Study,¹ Research Center
for Nuclear Science and Technology²,
Faculty of Science³ and Inst. for Cosmic
Ray Research⁴, Univ. of Tokyo

Faculty of General Education, Ehime Univ.

Hisao NAGAI, Masatake HONDA

Mineo IMAMURA¹, Koichi KOBAYASHI²,
Kunio YOSHIDA³, Hideo OHASHI⁴,
Seiichi SHIBATA¹, Hiroshi YAMASHITA³

Nobuyuki HASEBE

トリチウムの β 壊変によるニュートリノ質量測定のためのLB膜線源の調製

(東大核研¹・東工大理²・東北大理³・神戸大理⁴・東大RIセンター⁵)

○柴田誠一¹・永淵照康²・羽賀勝彦³・繁田正昭⁴・野川憲夫⁵・

森川尚威⁵・加藤貞幸¹・川上宏金¹・大島隆義¹・鶴飼熊太郎¹

はじめに ニュートリノは原子核の β 壊変の際に放出される β 線の連続エネルギースペクトルを説明するために、1931年 Pauli により導入された素粒子である。その質量はほとんどゼロに近いと考えられてきた。ところが、1980年になってソ連の Lubimov らのグループがトリチウムの β 壊変を用いて、初めて $14\text{eV} < m_\nu < 46\text{eV}$ というニュートリノ質量に対する下限値を報告した(1)。これは素粒子物理、宇宙物理学上きわめて重要な問題をもつため Lubimov らの実験結果を検証すべく世界中でその追試実験が開始された。トリチウムを使った測定は現在世界10数ヵ所で行われているが、そのうち既に結果を出しているのは我々のグループを含めて4ヵ所である(2-4)。

東大核研での実験 我々のグループでは東京大学原子核研究所に設置された空芯ベータスペクトロメーターを用いて実験を行っている。これまで、1985年と1986年に2回のデータ収集を行い上限値として 29eV を得た(5)。現在、更に統計精度を上げて3回目のデータ収集を開始するための準備を進めている。

この実験では良質の線源調製が重要である。 β 線の最大エネルギーが 18keV と低いため線源としては厚さが非常に薄く、かつ均一なものが必要である。一方、統計精度を上げるにはできるだけ強い線源が必要となる。この相矛盾する条件を満たすため、大面積、高強度線源を Langmuir-Blodgett(LB)法(6)を用いて調製し、測定の際の分解能劣化を防ぐために Bergkvist が導入した非等価ポテンシャル法(7)を採用した。このような β 線源として LB膜(アラキジン酸カドミウム)を用いることにより、

- (1) 線源の厚さが、2分子膜で $0.6\mu\text{g}/\text{cm}^2$ と非常に薄く、均一性に優れるため線源でのエネルギー損失の影響が小さい。したがって、測定系のエネルギー分解能の劣化を防ぐことができる。
- (2) ^3H β 線源と ^{109}Cd 標準線源 (^{109}Cd の KLL オージェスペクトルを用いて ^3H の β スペクトルの絶対エネルギーの較正およびスペクトロメーターの応答関数の測定を行う) が化学的に同じ構造(図1)で厚さが均一で等しいことにより応答関数を実験的に求めることができ、その信頼性も高い。
- (3) 線源面積を大きくすることにより放射能強度を高めることができ、測定の統計精度を向上させることができる。(1,2回目の測定の線源の大きさは $25\text{mm} \times 100\text{mm}$ で強度は 8 mCi 今回は $60\text{mm} \times 200\text{mm}$, 40 mCi)

が実現できるからである。

線源調製 図2に我々のグループが開発したLB膜累積装置を示す。まずテフロン製プールを 10^{-4} mol の CdCl_2 溶液で満たし下層液とする。パラフィン処理を施した絹糸を仕切

しばたせいいち、ながふちてるやす、はがかつひこ、しげたまさあき、のがわのりお、もりかわなおたけ、かとうさだゆき、かわかみひろかね、おおしまたかよし、うかいくまろう

り糸として液面に浮かべる。そして 3.3×10^{-3} mol のアラキジン酸のベンゼン溶液をマイクロシリンジでフロートと反対側に滴下し、下層液表面に展開させる。下層液の pH は 7.0 ± 0.1 温度は $16 - 20$ °C で累積を行う。ここで ^{109}Cd の標準線源調製の場合は下層液として ^{109}Cd (~ 10 mCi) を含む CdCl_2 溶液を用い、 ^3H β 線源の場合は ^3H でラベルされたアラキジン酸 (200 Ci/mmol) を用いる。テフロンプールの大きさは $200\text{mm} \times 210\text{mm}$ で深さは ^3H の場合 5mm で、 ^{109}Cd の場合限られた放射能強度の ^{109}Cd を用いてできるだけ高放射能の LB 膜を調製するため 0.7mm と可能な限り浅くした。

展開後、アルミパイプに送風することによりアクリル台を浮上させる。更にパイプに角度をつけることにより斜面を滑り落ちるアクリル台の重さをピアノ線により雲母製フロートに伝え、絹糸を通して表面圧力 $30 - 40$ dyn/cm で押し、水平付着法により線源基板上にアラキジン酸カドミウムの膜を移しとり線源とした。LB 膜累積に普通用いられる垂直浸せき法を採用しなかったのは基板の裏面の放射能による汚染を避けるためと下層液量を少なくするためである。できた線源の均一性は autoradiography と、その X 線写真の photometry により確認している。徹底した使用器具の洗浄、下層液中の有機物、表面の汚れの除去などにより均一な線源を再現性よく調製することに成功した。

現在、 $60\text{mm} \times 200\text{mm}$ の ^3H 、 ^{109}Cd 線源の調製が終わり測定の前準備中である。今回は線源強度と検出器の効率の向上により質量の決定精度として ~ 10 eV を目指している。

References

- (1) V. A. Lubimov et al., Phys. Lett. **94B**(1980)266. (2) H. Kawakami et al., ibid, **187B**(1987)198. (3) M. Fritschi et al., ibid, **173B**(1986)485. (4) J. F. Wilkerson et al., Phys. Rev. Lett. **58**(1987)2023. (5) H. Kawakami et al., J. Phys. Soc. Jpn. (1988) in press. (6) K. B. Blodgett, J. Am. Chem. Soc. **56**, (1935)1007; K. B. Blodgett and I. Langmuir, Phys. Rev. **51**(1939)964. (7) K. E. Bergkvist, Nucl. Phys. **B39**(1972)317.

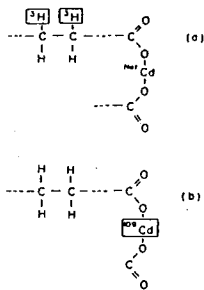


図1 標識化線源の化学構造の一部
(a)トリチウム線源 (b) ^{109}Cd 線源

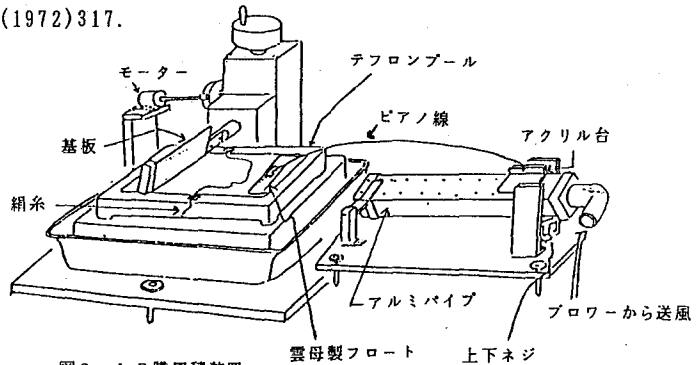


図2 LB膜累積装置

PREPARATION OF LB FILM SOURCE FOR NEUTRINO MASS MEASUREMENT BY ^3H β -DECAY

(Inst. for Nucl. Study, Univ. of Tokyo,¹ Tokyo Inst. of Technology,² Tohoku Univ.,³ Kobe Univ.,⁴ Radioisotope Centre, Univ. of Tokyo⁵)

Seiichi SHIBATA,¹ Teruyasu NAGAFUCHI,² Katsuhiko HAGA,³ Masaaki SHIGETA,⁴ Norio NOGAWA,⁵ Naotake MORIKAWA,⁵ Sadayuki KATO,¹ Hirokane KAWAKAMI,¹ Takayoshi OHSHIMA,¹ and Kumataro UKAI¹

(東大核研、都立大理¹⁾、理研²⁾、原研³⁾、LBL⁴⁾)

初川雄一、大槻勤¹⁾、塚田和明¹⁾、末木啓介¹⁾、中原弘道¹⁾、
河野功²⁾、篠原伸夫³⁾、間柄正明³⁾、D.C. Hoffman⁴⁾、
K.E. Gregorich⁴⁾

^{245}Es 、 ^{247}Es を中心にアインスタイニウム同位体の壊変特性、特に α 壊変について研究し、新たな α 線の分岐を観測しそれぞれの遷移について考察を行い、壊変様式の推定を行った。

$^{238}\text{U}(^{14}\text{N}, xn)^{252-x}\text{Es}$ 、 $^{233}\text{U}(^{14}\text{N}, xn)^{247-x}\text{Es}$ 、 $^{237}\text{Np}(^{12}\text{C}, xn)^{249-x}\text{Es}$ 、 $^{249}\text{Cf}(p, xn)^{250-x}\text{Es}$ 、反応を利用して質量数 249 ~ 243 のアインスタイニウム同位体を合成し、 α 線スペクトルを測定した。 α スペクトルはSi(Au)表面障壁型半導体検出器で測定を行いSignalは、Clock pulseと一緒にList modeでMTに書き込み、この時間情報を基に半減期の解析を行った。得られた α 線スペクトルは、 α 線のエネルギー、半減期で同定を行い、アインスタイニウム同位体ではさらに励起関数に依った。得られたEs同位体の α 線は、同一の条件で得られた ^{212}Po (8.784 MeV)或は、 ^{211}Po (7.270 MeV)の α 線スペクトルを基準形状として作ったモデル関数の重ね合わせとして、コンピュータプログラムELSAC¹⁾を用いた最小自乗法により解析を行った。

実験結果をTable 1にまとめた。エネルギーの誤差はFittingの誤差のみで半減期の誤差と共に σ を表す。このうち ^{247}Es の三本(7.323, 7.275, 7.213 MeV)と ^{245}Es の四本(7.780, 7.730, 7.699, 7.654 MeV)の α 線は各々の半減期もそれぞれ誤差範囲内で一致しており各々 ^{247}Es 、 ^{245}Es から発せられたものとした。これら α 線の内最大の遷移確率をもつ、をそれぞれ親娘の核状態が同じ許容遷移とし、さらに低エネルギー側の2本の α 線その回転帯への遷移と仮定して、これらの遷移について推察を行った。ニルソングダイアグラムによると $\epsilon = 0.2 \sim 0.3$ では、97番目の陽子レベルは3/2-[521]、99番目の陽子は7/2+[633]が予想され、この二つの準位は接近している。事実既知核種である ^{255}Es 、 ^{253}Es 、 ^{249}Bk の基底状態では7/2+[633]、 ^{247}Bk 、 ^{245}Bk 、 ^{251}Es では3/2-[521]である。そこでこの二つの準位について本研究で得られたアインスタイニウム同位体 α 壊変の結果について考察を行った。回転帯のエネルギー準位は、 $E_i = \hbar^2/2\mathcal{I} I(I+1)$ で表せる。質量数241~251の奇A核の7/2+[633]と3/2-[521]の回転帯で、この関係式から慣性能率 \mathcal{I}_{eff} を求めこれを剛体の慣性能率 \mathcal{I}_{rig} との比をとるとFig. 1が得られた。同様にして ^{247}Es 、 ^{245}Es の α 壊変の結果を基にプロットしてみると ^{245}Es では3/2-[521]が、 ^{247}Es では7/2+[633]として娘核の慣性能率を求めると、近傍の核で求められた結果と良く一致した。また回転帯においてバンドヘッドとその第一励起準位とのエネルギー差と、第一励起準位と第二励起準位とのエネルギー差との比を求めると $K=7/2$ では、 $E_2/E_1=1.22$ が、 $K=3/2$ では、 $E_2/E_1=1.40$ が期待される。

はつかわゆういち、おおつきつとむ、つかだかずあき、すえきけいすけ、
なかはらひろみち、こうのいさお、しのはらのぶお、まがらまさあき、
D.ホフマン、K.グレゴリッチ

^{247}Es , ^{245}Es について考えてみると
 ^{245}Es では $E_2/E_1=1.45 \pm 0.35$ であり、
 ^{247}Es では $E_2/E_1=1.29 \pm 0.09$ という
 値が得られ、これらの結果も ^{245}Es
 の基底状態が $3/2^-$ [521]であり
 ^{247}Es の基底状態が $7/2^+$ [633]である
 事を示唆している。これらより
 ^{247}Es は基底状態が $7/2^+$ $7/2$ [633]で
 あり観測された三本の α 線は ^{243}Bk
 の基底状態 $7/2^+$ [633]とその回転帯
 $9/2^+$ $11/2^+$ への遷移であると結論づ
 けた。 ^{245}Es では、 $3/2^-$ $3/2$ [521]が
 基底状態で ^{241}Bk の $3/2^-$ [521]への
 Favored transitionとその回転帯
 $5/2^-$, $7/2^-$ への遷移が観測された。
 尚 ^{245}Es の最も高エネルギーの α 線
 7.780 MeVは、 ^{241}Bk の基底状態
 $7/2^+$ [633]への遷移と考えられる。

Table I
 Summary of experimental results on einsteinium

	Half-Life	α -particle energy(keV)	Intensity (%)
^{249}Es	1.7 ± 0.7 hr	6776 ± 2	93 ± 14
		6716 ± 12	7 ± 5
^{248}Es	28 min	6907 ± 5	28 ± 12
		6879 ± 5	63 ± 14
		6848 ± 14	9 ± 8
^{247}Es	4.55 ± 0.26 min	7323 ± 1	86 ± 4
		7275 ± 3	12 ± 2
		7213 ± 5	2 ± 0.7
^{246}Es	8.2 ± 3.6 min	7360	100
^{245}Es	66 ± 6 sec	7780 ± 3	5 ± 1
		7730 ± 1	79 ± 6
		7699 ± 5	13 ± 4
		7654 ± 6	3 ± 1
^{243}Es	21 ± 5 sec	7907 ± 4 7885 ± 1	69 ± 15 31 ± 14

* 現在、名大工
 文献
 1) 五十棲泰人、
 小俣和夫、
 藤田雄三、
 原子核研究 30 53

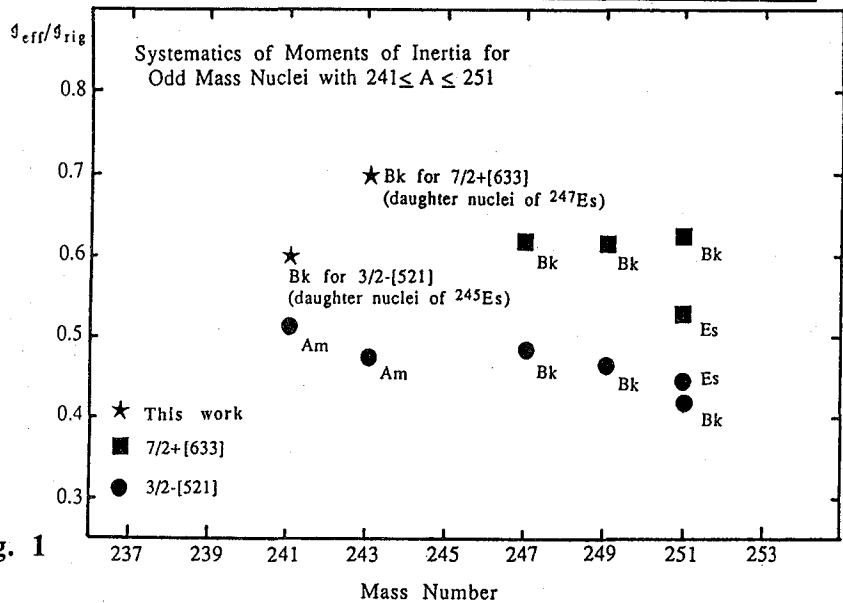


Fig. 1

DECAY PROPERTIES OF EINSTEINIUM ISOTOPES (2)

Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Yuichi HATSUKAWA
 Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University,
 Tsutom OHTSUKI, Kazuaki TSUKADA, Keisuke SUEKI, Hiromichi NAKAHARA
 Cyclotron Laboratory, RIKEN, Isao KOHNO
 Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute,
 Nobuo SHINOHARA, Masaaki MAGARA
 Lawrence Berkeley Laboratory, University of California,
 Darlean C. HOFFMAN, Kenneth E. Gregorich

1A13 S I S A Kを用いた短寿命核種の分離と測定

(原研、都立大*) ○篠原伸夫、市川進一、飯村秀紀、*塚田和明

【はじめに】

演者らは、重イオン核反応で生成する短寿命アクチノイド核種の測定を目的に、ヘリウムジェット装置、迅速アルファ線測定装置、迅速イオン交換装置および迅速溶媒抽出装置S I S A K (Short-lived Isotopes Studied by the AKUFVE-technique)から構成されるオンライン計測システムの開発を進めている。このうちヘリウムジェット装置は、核反応生成物を放射能測定装置または化学分離装置まで搬送する手段である。S I S A Kは、水相と有機相を混合(抽出操作)し、引き続いて遠心力を利用して2相分離を行う装置であり、抽出・分離に要する時間が ~ 0.5 秒と短くてしかも多段階の抽出分離ができるため、短寿命核種を研究する際の1つの有効な手段である¹⁾。

ここでは、ヘリウムジェット装置とS I S A Kを用いた短寿命核種の迅速化学分離について報告する。

【実験】

分離試験は、原研タンデム加速器を用いた $^{12}\text{C}+^{\text{nat}}\text{Ag}$ 反応で生成するヨウ素および $^{180}\text{O}+^{\text{nat}}\text{Mo}$ 反応で得られるズズを対象とした。Fig. 1は、Degassing unit (ガスを抜くための遠心器)とS I S A Kから成るヨウ素を分離するための抽出装置の概略である。ここで、真空ポンプを使用しない加圧方式のヘリウムジェット法により、反応生成物を照射チェンバー内(圧力 $1.5\text{kg}/\text{cm}^2$)でヘリウムガス中のエアロゾルに捕捉して化学実験室のStatic mixerに運び、キャリアガスと硫酸溶液を混合して反応生成物を水相に移した。さらにDegassing unitによりヘリウムガスを抜き、溶液を化学分離システムに注入した。こののち最初の抽出操作を行ってヨウ素を四塩化炭素に抽出し、第2段階で水相に逆抽出した。最後に、クロロホルムを用いて水相を洗浄した。この3段階の抽出操作の前後に、HPGeを用いて溶液の放射能測定を行った。

また、ズズの抽出では、ヨウ化カリウムを含む硫酸中でSn(IV)のヨウ化物を生成させ、これを四塩化炭素に抽出し²⁾、水で逆抽出する2段階の分離操作を行った。

【結果】

$^{12}\text{C}+^{\text{nat}}\text{Ag}$ 反応系において、ヨウ素の化学分離前後に測定したガンマ線スペクトルを Fig. 2に示す。 ^{117}I ($T_{1/2}=2.2$ min)および $^{118\text{m}}\text{I}$ (8.5 min)の生成と、これらの核種が化学分離されることを確認した。2つのスペクトルを比較して、化学分離後でS/N比が向上していることがわかる。また、 $^{180}\text{O}+^{\text{nat}}\text{Mo}$ 系を用いた実験では、 ^{106}Sn ($T_{1/2}=1.9$ min)や ^{108}Sn (10.5 min)が分離された。

これらの検討の結果、二つの液相間で短時間でしかも定量的に分配する抽出系を選択することにより、重イオン核反応で生成する短半減期の核種をオンラインで化学分離できることを確認した。現在、 ^{252}Cf の自発核分裂によって得られる短寿命核種と、重イオン核反応によって生成する短寿命アクチノイド核種を測定する実験を進めている。

しのはら のぶお、いちかわ しんいち、いいむら ひでき、つかだ かずあき

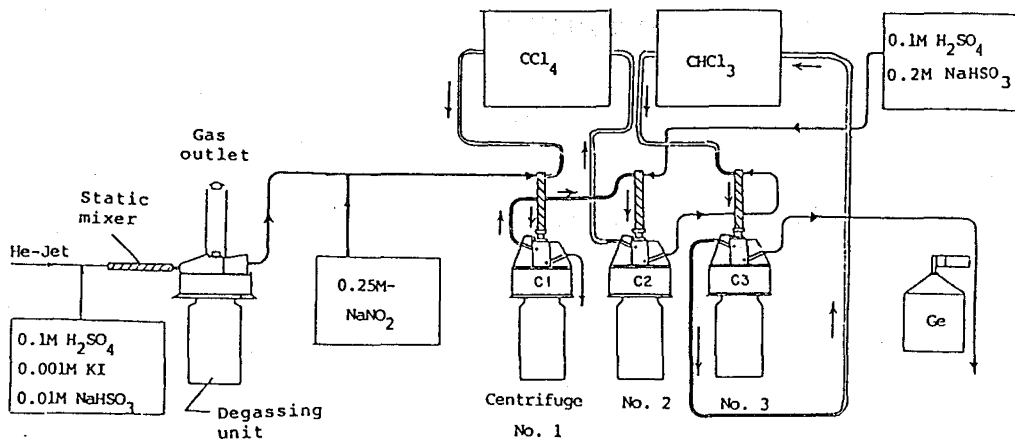


Fig.1 重イオン核反応で生成する短寿命ヨウ素を抽出分離するためのSISAKシステム

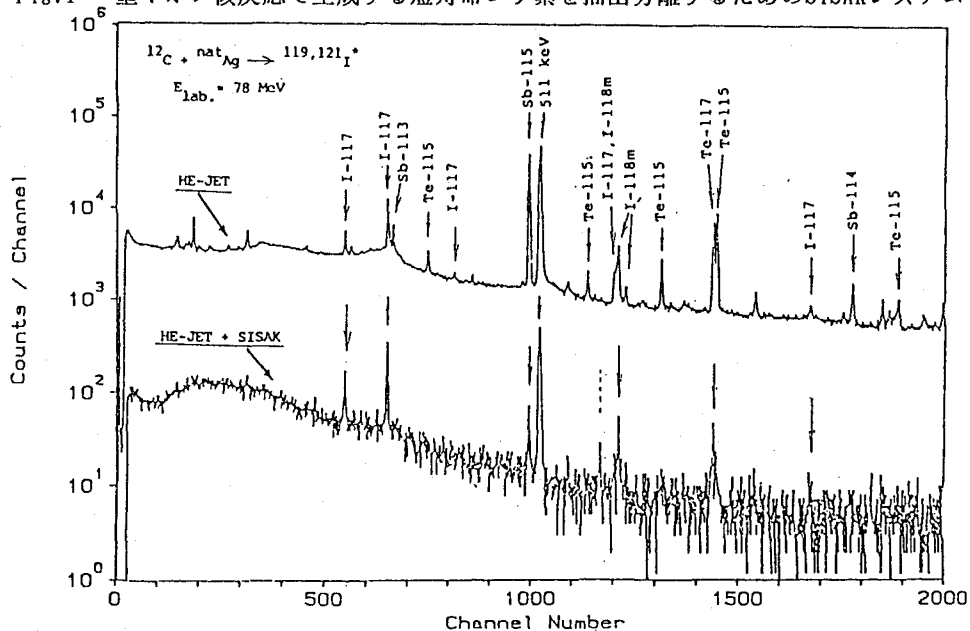


Fig.2 SISAKによるヨウ素の抽出分離の前後に測定したガンマ線スペクトル

参考文献

- 1) G.Skarnemark et al.: Phys. Scr. 34(6A)(1986)597.
- 2) A.R.Byrne et al.: Anal. Chim. Acta, 59(1972)81.

SEPARATION AND MEASUREMENT OF SHORT-LIVED NUCLIDES WITH SISAK

Department of Chemistry, Japan Atomic Energy Research Institute, Nobuo SHINOHARA,
 Shin-ichi ICHIKAWA, Hideki IIMURA
 Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Kazuaki TSUKADA

1A14

オンライン迅速化学分離装置の開発(2)

(都立大・理) ○塚田和明 末木啓介 小林貴之

大槻 勤 中原弘道

(原研) 篠原伸夫 市川進一 小林義威 星三千男

【はじめに】 超プルトニウム元素を含むアクチノイドや中性子過剰核などの生成反応機構・崩壊形式(α , β , EC及び自発核分裂)・化学的性質などを調べるために、いろいろな研究が進められてきている。これらの核種の生成には重イオン核反応を用いることが多いが、これらの反応で生じる副生成物は目的とする核種の放射能を測定する際に障害となり易い。従って、これらの副生成物を分離し除去することが望ましい。特に、反応断面積が小さく($\leq 100 \mu\text{barn}$)、半減期が短い核種($T_{1/2} \leq 10 \text{min}$)を取り扱う時は、この分離操作を迅速確実にかつ何度も繰り返し行わなければならない。このような理由から当研究室では、試料採取から測定までを自動化した迅速化学分離装置の開発を進めてきた。

今回は、この迅速化学分離装置を日本原子力研究所・タンデム型バンデグラフ加速器に設置してあるHe-jet装置に接続し、 ^{252}Cf の核分裂生成物を用いたオンライン実験と、 $^{nat}\text{Er} + ^{18}\text{O}$ の照射実験を行うことができたので、その結果と共にこの化学分離装置について報告する。

【装置】 化学分離装置は前回の討論会で報告¹⁾したように、パーソナルコンピューター(NEC製PC-8801)により制御され、内部のインジェクター・自動切換バルブ・ポンプ・電磁弁などを予めプログラムされた順に動かすことができ、繰り返し行う実験も容易にできる。He-jet装置によって運ばれてきた核反応生成物はこの化学分離装置内のインジェクターで溶液化される。次に化学分離を行い、プログラムで指定した必要なフラクションのみを選択的に取り出し、ホットプレート上の試料皿に採取し蒸発乾固後放射能などの測定を行う。(図-1)

現在、この化学分離装置は分離方法として原研・白田らによって報告^{2,3)}され、当研究室でも検討してきた⁴⁾イオン交換クロマト法を用いている。

【実験・結果】

(1) ^{252}Cf の核分裂生成物をHe-jet装置によって迅速に運び溶液化する実験を行った。その結果、溶液化されて最終的に得られた生成物の収率は約20%であり、これはHe-jet装置自身の輸送効率とそれほど変化がない。このことから、このインジェクターによる溶液化の効率は100%に近いと予想される。現在、He-jet装置のより良い条件の下で、このCf線源を用いてランタノイドの分離実験を行っている。

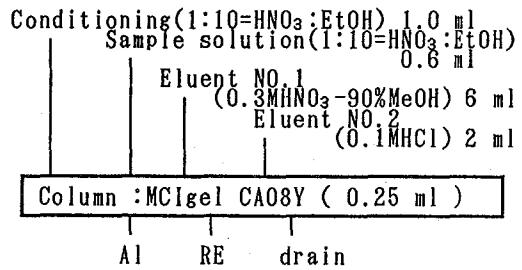
(2) タンデム加速器を用いて ^{nat}Er ターゲットに120 MeVの ^{18}O を照射して中性子過剰核の ^{169}Ho ・ ^{168}Ho ・ ^{168}Dy を検出する実験を行った。図-2に示すようなランタ

つかだかずあき すえきけいすけ こばやしたかゆき おおつきつとむ

なかはらひろみち しのはらのぶお いちかわしんいち こばやしよしほ ほしみちお

ノイドを群分離する化学操作を数十回行ったがtransfer 反応によって生成する中性子過剰核の γ 線は検出できなかった。この化学分離操作で、蒸発残留核の $^{188}\text{Os} \cdot ^{181}\text{Os}$ やターゲットのbacking に使ったアルミ箔の核反応生成物である $^{28}\text{Al} \cdot ^{29}\text{Al}$ などは0.3%以下に減った。本実験条件では、生成核の生成断面積が0.5 mbarn程度であれば検出可能なので、このtransfer 反応の断面積はそれ以下であると考えられる。このような結果がこの迅速ら、化学分離装置は数十回の繰り返し実験において、十分に安定して作動し、化学分離できることが確認できた。但し、0.5 mbarn以下の反応断面積と予想される核種の γ 線を検出するためには、さらに測定方法を工夫することが必要であろう。

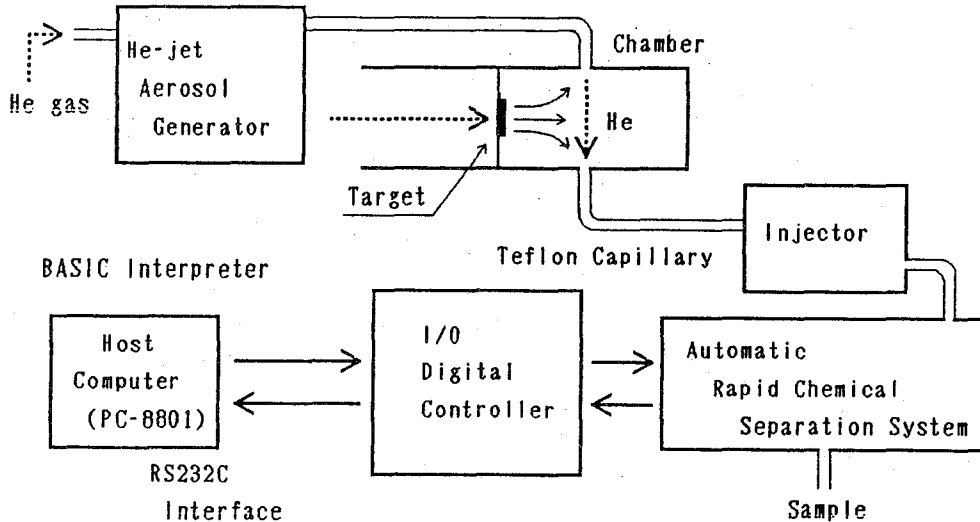
今後、生成した測定試料を自動的に測定する装置を製作し、照射試料の採取から測定まで自動化することを考えている。



(図-2) 化学分離手順

- 【文献】 1) 末木他, 第31回放射化学討論会予稿集, P07 (1987)
 2) S.Usuda et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 109, 353-361 (1987)
 3) S.Usuda et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 111, 399-410 (1987)
 4) 塚田他, 第31回放射化学討論会予稿集, 3A07 (1987)

(図-1) オンライン迅速化学分離装置



DEVELOPMENT OF ON-LINE RAPID CHEMICAL SEPARATION SYSTEM (II).

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University,
 Kazuaki TSUKADA, Keisuke SUEKI, Takayuki KOBAYASHI, Tsutomu OTSUKI,
 Hiromichi NAKAHARA.

Department of Chemistry, Japan Atomic Energy Research Institute,
 Nobuo SHINOHARA, Shinichi ICHIKAWA, Yoshii KOBAYASHI, Michio HOSHI.

(原 研) ○ 工藤 博司 奥野 健二

1. 目的: トリチウム製造用ターゲット物質および核融合炉ブランケット材候補物質の選択ならびにトリチウム回収技術開発の基礎となるデータベースの整備を目的として、リチウム含有酸化物セラミックス (Li_2O , LiAlO_2 , Li_2SiO_3 , Li_4SiO_4 , Li_2ZrO_3 , Li_8ZrO_6 など) および合金 (Li-Al, Li-Pb 系) を対象に、中性子照射によって生成するトリチウムの存在状態および加熱放出挙動を研究した。今回は、酸化物結晶中でトリチウムの拡散機構を論ずる上で興味深い実験結果が得られたので報告する。

2. 実験: Li_2O 結晶 (純度 99%, 平均粒径 10 μm) および Li_2ZrO_3 結晶 (99%, 10 μm) は Cerac/Pure社製のを、 γ - LiAlO_2 結晶 (99%, 12 μm)、 Li_2SiO_3 結晶 (98%, 30 μm) および Li_4SiO_4 結晶 (99%, 10 μm) は Lithium Corporation of America社製のものを使用した。 Li_8ZrO_6 結晶 (10 μm) は Li_2O と ZrO_2 の4:1混合物をアルゴン雰囲気中870 Kで24時間加熱して調製し、X線回折により六方晶形であることを確認した。試料は全て超高真空中で920 Kに12時間以上加熱・脱ガス後石英アンブルに減圧封入し、JRR-4原子炉で $2\text{-}8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の中性子フルエンスに照射した。照射後、試料は液体窒素温度で保存した。

照射済の試料を真空中で等温加熱し、気相に遊離したHTOの放射能測定から結晶中でのトリチウムの拡散係数を求めた。

3. 結果および考察: 拡散係数のArrheniusプロットを図1に示す。この図から分るように、今回の実験で対象とした酸化物結晶中でのトリチウムの拡散能の大小関係は

$$D(\text{Li}_8\text{ZrO}_6) > D(\text{Li}_4\text{SiO}_4) > D(\text{Li}_2\text{O}) > D(\text{Li}_2\text{ZrO}_3) > D(\text{Li}_2\text{SiO}_3) \\ > D(\gamma\text{-LiAlO}_2)$$

となり、結晶中のLi原子密度の増加とともにトリチウムの拡散能が高くなる傾向にある。合金や金属間化合物では、Liがトリチウム (T^-) の捕捉サイトとしてはたらしき拡散能を低下させるのに対して[1]、全く逆の傾向であった。この違いはトリチウムの原子価状態に起因するものと考えられる。トリチウムの原子価状態を、間接的ではあるが重水溶解-ガスクロマトグラフ法[2]に

くどう ひろし、 おくの けんじ

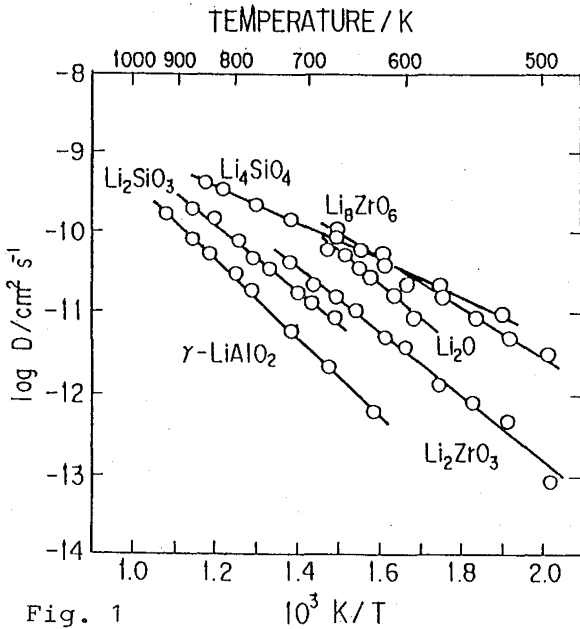


Fig. 1 Arrhenius plot of diffusion coefficients for T^+ in oxidic ceramic materials

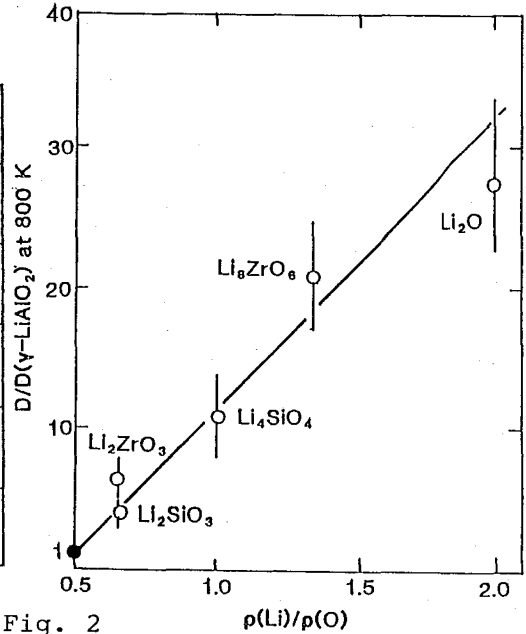


Fig. 2 Tritium (T^+) diffusivity in oxidic ceramics relative to $\gamma\text{-LiAlO}_2$ plotted against the Li-to-O atomic density ratio

より分析したところ、 LiAl などの金属間化合物や合金では主として T^- として存在するが、酸化物結晶中では T^+ として存在することが判明した。したがって、金属間化合物等では水素化物 LiT の形成が捕捉効果を生むのに対して、酸化物結晶中では $\text{O}T^-$ 基と Li^+ イオンの相互作用がトリチウム(T^+)の拡散に重要な役割を演ずると考えられる。 O^{2-} イオンの拡散速度は Li^+ や T^+ イオンの拡散速度に比べて非常に遅く、相対的には殆ど動かないと考えてよいので、 T^+ は O^{2-} の格子点を移動すると解釈することができる。

図2に、800 Kにおける T^+ の拡散能の酸化物結晶中のリチウムと酸素の原子密度の比に対するプロットを、 $\gamma\text{-LiAlO}_2$ を基準として示す。拡散能は、原子密度比 $\rho(\text{Li})/\rho(\text{O})$ に比例して高くなっている。 OH^- 基の Li^+ による分極などを考慮しながら、トリチウムの拡散機構について考察する。

[1] T. Hayashi, K. Okuno, H. Kudo, H. Amano: *J. Less-Common Met.*, in press (1988).

[2] K. Okuno, H. Kudo: *J. Nucl. Mater.*, 138 (1986) 31.

TRITIUM DIFFUSION IN LITHIUM-BEARING OXIDIC CRYSTALS AND A ROLE OF Li^+ IONS

Japan Atomic Energy Research Institute, Hiroshi KUDO and Kenji OKUNO

(九大工) ○岡井富雄 (九大理) 高島良正

1. 緒言

環境中におけるトリチウムの動態を調べるため、多種多様な試料のトリチウム濃度が測定されているが、このうち動植物の試料については組織含有水中のトリチウムと組織に結合しているトリチウムの濃度が分別して測定されている。組織に結合しているトリチウムの場合は、乾燥法により組織含有水を除いた試料を酸素ガス雰囲気中で燃焼して水として、放射能測定を行っている。市販の酸素ボンベには不純物として30ppm以下のメタンが含まれていることがメーカーにより報告されており、試料燃焼時にこのメタンも燃焼されて水となり試料燃焼水に含まれることになる。このメタンは空気から酸素を精留した時に、除去されずに酸素ガスに混入した大気中のメタンと予想される。我々の測定では、大気中のメタン状トリチウムの比放射能は約 4×10^4 TUと非常に大きいので、酸素ガスに含まれるメタン状トリチウムの試料燃焼水への影響は無視出来ない。従って、我々は酸素ガス中のメタン状トリチウムを測定して、試料燃焼水への影響（最終的には、組織に結合しているトリチウム濃度測定値の信頼性）を調べ、次にメタン状トリチウムの除去方法についても検討を加えたので、これらの結果について報告する。

2. 実験方法

日本の場所による酸素ガス中のメタン状トリチウム濃度の違いを調べるため、11箇所（札幌、仙台、千葉、新潟、金沢、岡崎、尼崎、広島、坂出、北九州、鹿児島）の酸素ボンベガスを購入して実験した。1000ℓのバルーン2個に酸素ガス900ℓとトリチウムを含まないメタンガス3ℓを各々入れて、図1に示す装置でメタンを燃焼して水とし、モレキュラシーブ4Aに捕集した。捕集した水はマントルヒーターでモレキュラシーブ4Aを加熱し、窒素ガスを流してコールドトラップ法で回収した。回収した水は、液体シンチレーションカウンターで放射能測定した。酸素ガス中のメタン存在比はガスクロマトグラフ法で測定した。

3. 結果および考察

日本各地の酸素ボンベガスによる測定結果を表1に示す。酸素1800ℓ中のメタン状トリチウム濃度は6.21~9.19dpmであった。地域別で見ると北日本の方が西日本より全般的に濃度が少し大きかった。酸素ガス中のメタン存在比は10~25ppmであり、メーカーにより報告されているように30ppm以下であった。比放射能をトリチウム濃度とメタン存在比から計算すると $0.9 \sim 2.5 \times 10^4$ TUとなり、大気中の値の $1/4 \sim 1/2$ であった。このことは、酸素ガス中のメタンが大気起源のメタンだけでなく、酸素精留時にトリチウムを含まないメタンが混入していることを意味している。大気中メタンの比放射能を 4×10^4 として計算すると、酸素ガス中のメタン状トリチウム

おかいとみお たかしまよしまさ

の存在比は表1に示すように5.2~7.7ppmとなり、メタン存在比が10~25ppmと大きく異なっていたとしても、メタン状トリチウムの存在比はほぼ同じであることがわかった。次に、メタン状トリチウムの存在比を7.7ppmとして試料燃焼水へのメタン状トリチウムの影響を計算した。酸素ガス100ℓを流して乾燥試料100gを燃焼し、燃焼水50gのうち40gを液シンで測定したとすると、メタン状トリチウムの影響分は4.6pCi/ℓ-H₂Oとなる。この値は液シンで20分間50回測定した時の統計誤差(1σ=約6pCi/ℓ-H₂O)より小さいので、酸素ガスの使用量が100ℓ程度で試料のトリチウム濃度が大きい場合は問題ないと思われるが、酸素ガス使用量が多い場合や電解濃縮法等と組み合わせた精密測定の場合にはメタン状トリチウムの影響を除く必要があると思われる。メタン状トリチウムの除去については、①400℃に加熱した白金触媒で燃焼して水として除去。②ドライアイスで冷却した活性炭でホールドアップ除去。の二つの方法で実験した。その結果、白金触媒の方法が最適であった。

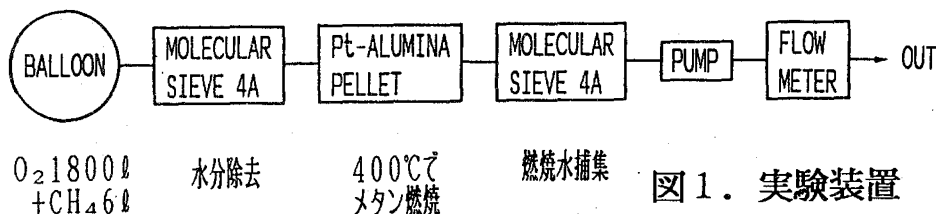


図1. 実験装置

表1. 日本各地の酸素ボンベガスによる測定結果

採取場所	³ H濃度 ^{A)} (dpm)	メタン存在比 (ppm)	メタン状トリチウムの存在比 (ppm)	比放射能 (TU)
札幌	8.53	12	7.1	2.4x10 ⁴
仙台	8.67	25	7.3	1.2x10 ⁴
千葉	6.99	16	5.8	1.4x10 ⁴
新潟	7.48	10	6.3	2.5x10 ⁴
金沢	9.19	18	7.7	1.7x10 ⁴
岡崎	6.67	21	5.6	1.1x10 ⁴
尼崎	7.08	22	5.9	1.1x10 ⁴
広島	6.44	20	5.4	1.1x10 ⁴
香川	6.68	15	5.6	1.5x10 ⁴
北九州	7.18	20	6.0	1.2x10 ⁴
	6.21	24	5.2	0.9x10 ⁴
鹿児島	7.05	12	5.9	2.0x10 ⁴

A) 酸素1800ℓ中のメタン状トリチウム濃度

MEASUREMENT OF TRITIATED METHANE CONTAINED IN OXYGEN GAS AS AN IMPURITY.

Faculty of Engineering, Kyushu University, Tomio OKAI
Faculty of Science, Kyushu University, Yoshimasa TAKASHIMA

(新潟大・理) 橋本哲夫、○野中雅史、羽広綾子、久保田知明

【はじめに】

現在の環境水中の極低レベルトリチウム（以下Tと略記）濃度を精度よく測定するために、電解濃縮法が広く用いられている。陰極にFeを用いたNi-Fe電解濃縮法が、高い分離係数（ $\beta \sim 30$ ）を与えることから、最近多くの研究室で採用されている。

我々の研究室でも、Ni-Ni、Ni-Fe多重電極による電解濃縮法や、NMRを用いた電解前後の重水素（以下Dと略記）濃度測定によるT濃縮率補正法を検討してきた。しかしながら、これまでの電極からの結果では、 $\beta \sim 30$ という高い値は得られておらず、十分なT濃縮法とはなっていない。そこで今回の実験では、新しい濃縮法の開発をめざし、質量分析器を用いた水素ガス同位体分析の結果やFe管を陰極としたFe-Pt電解濃縮法の基礎データについて、以前の濃縮法と比較検討を行った。また、低レベルT濃度測定に重要な検出効率補正法についても、我々の研究室で開発してきた α 放射体を用いた内部標準線源法²⁾の簡便化への基礎的な検討を行ってきているので、併せて報告する。

【実験】

(1) 質量分析器を利用した水素ガスの同位体分析

電解濃縮の基礎条件の検討を行うために、電解で発生する水素ガス中のD/Hを調べた。陽極はPt線、陰極には数種の遷移金属を電極試料とし、Dを含む（ $H_2O:D_2O$ (1:1, w/w)）溶液の電気分解で発生した水素ガスをトラップする。捕集した水素ガスをシリンジで約1ccとり、質量分析器でM/e=1~6のピークを分析することにより水素ガス中のD/Hを求め、各種金属電極による濃縮率の目安とした。

(2) Fe-Pt電解濃縮法

電解中の爆発危険性をできるだけ少なくし、かつ陽極としての白金使用量をできるだけ抑えようという観点から、Fe管とPt線を用いた装置を考察した。図1に電解濃縮装置図を示す。陰極は内部表面積が約100cm²のFe管で、この中心に陽極としてPt線（0.5mm ϕ ）が接触しないように配置されている。電解試料液は、アルカリ性にした後外部からペリスターポンプで送り込まれ、電解中に循環させることにより通常のバッチ法と同じ電解が行える。電解はあらかじめ、濃・HClで処理したFe-Pt電極を用いて、電流密度50mA/cm²でV₀/V \sim 10程度をめざして行っている。

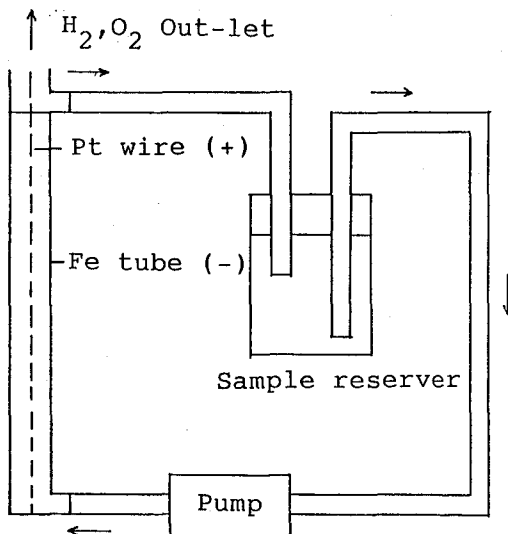


図1. Fe-Pt電解濃縮装置図

- 1) 橋本、野中、酒井ら：新潟大学災害研年報，9，135-143（1987）。
- 2) 橋本、酒井、野中ら：Radioisotopes，37，印刷中。

はしもとてつを、のなかまさふみ、はびろあやこ、くぼたともあき

【結果と考察】

(1) 図2に質量分析器で分析した水素ガス中のD/Hと、電解質濃度(ここではNaOH)との関係を示す。これは、D/H=1のNaOH溶液と、陰極にFe、Co、Niを用いたときの結果である。Niでは、若干NaOH濃度依存性が見られるが(α値にして約3)、Fe、CoではNaOH濃度に関係なくほぼ一定のH発生率(α値にして約4)を与えており、Tの濃縮に有利であることが示唆された。しかしながらこの結果は、長時間電解による電極表面の変化とか、他の電解質やD濃度によって変化する可能性もあり、これらの点を詳しく調べる必要があると考えられた。

(2) (1)の結果をもとに、今回はα値の最も高かったFeと陽極には安定なPtを組み合わせて電解濃縮実験を行った。表1にFe-Pt電極で得られた結果の一例をNi-Ni多重電極から得られた結果とともに示す。Fe-Ptのデータは内径11mmのFe管使用の結果で、 $V_n/V=3\sim5$ と低濃縮の場合であり、β値が10程度とあまり高い値は得られていない。これはFe管とPt線の距離(この場合約5mm)が関係しているのではないかと考え、さらに細いFe管を用いて濃縮実験を続けている。また、循環速度をコントロールすることで電解された溶液量に相当する液を連続的に供給する方法も現在検討している。更にα放射体を内部標準試料として、T検出効率の補正を行うための簡便法として金属細線への ^{210}Po を析出させたものを使用しようとした。現在、Pt、Pd、Au、Al、Ni、などへの ^{210}Po の析出条件の検討および ^{210}Po 析出細線挿入によるシンチレーションスペクトルの変化を調べている。図3にスペクトルの一例を示す。

表1. Fe-Pt電極およびNi-Ni多重電極から得られた分離係数

Fe-Pt		Ni-Ni	
β	α	β	α
25.5	4.64	7.09	3.89
10.4	4.78	10.19	4.65
8.4	5.47	9.20	4.17
11.1	4.32	7.26	3.76
		12.07	5.09
		10.20	4.45

$\beta = -\ln(V_n/V)/\ln R$, $\alpha = -\ln(V_n/V)/\ln R$

FUNDAMENTAL EXPERIMENTS FOR DETERMINATIONS OF ENVIRONMENTAL TRITIUM CONCENTRATION - ELECTROLYTIC ENRICHMENT USING FE-PT ELECTRODES AND NEW CORRECTION OF DETECTION EFFICIENCY USING ALPHA EMITTER -

Faculty of Science, Niigata University, Tetsuo HASHIMOTO, Masafumi NONAKA, Ayako HABIRO and Tomoaki KUBOTA

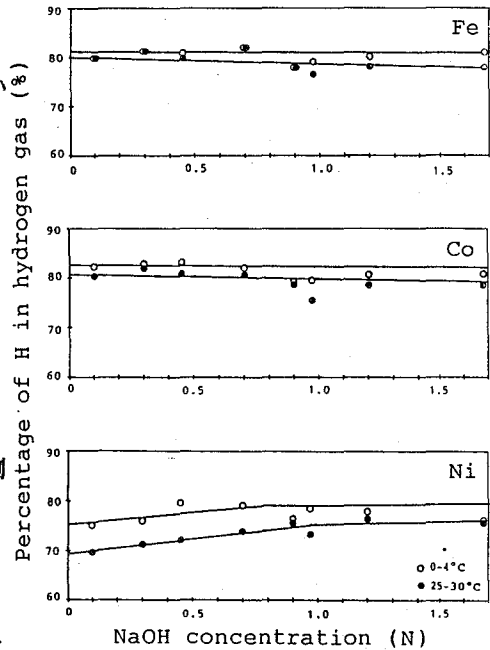


図2. NaOH濃度と発生した水素ガス中のH原子の割合の関係

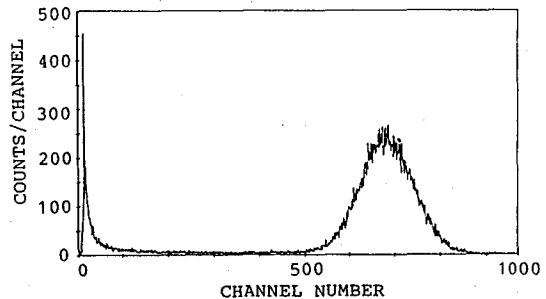


図3. Al線へ析出した ^{210}Po によるシンチレーションスペクトル

小型電解濃縮装置による
トリチウム濃度の測定(九大R Iセ・九大理*) ○加治俊夫、田中義昭*、百島則幸*、
高島良正*

〔緒言〕

当研究室では、環境トリチウムの変動測定とその解析を継続して行っており、演者らはその中で特に水圏におけるトリチウムの挙動に着目している。これまでに、当研究室で開発した大型電解濃縮装置を低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターと組合せて用い、海水及び湖水中のトリチウム濃度の深度プロフィールを精度良く求め重要な情報を提供してきた。

今回、更に土壌や植物試料の燃焼水等の少量の試料水から効果的に濃縮ができるような小型電解濃縮装置を完成した。電極は多重式とし三枚板(陽2、陰1)の露出型であるが、電解の進行に伴う液面の減少と共に電流を減少させ電流密度を一定に保てるようにした。電流の減少は最初はマニュアル操作で行っていたが、その後汎用パーソナル・コンピュータによる制御法に改良した。従来法と比較しながら、この装置の有用性について報告する。

〔方法〕

1. 電解濃縮装置

電解用ガラスセルは、200mlから10ml程度までの体積濃縮が可能ないようにFig. 1に示すような構造とした。電解中の残液量が一目で判るように、セルの前面には目盛りを付した。電極は、陽極にニッケル(JIS 第1種A, 厚さ1mm)と陰極に軟鋼(JIS 第2種SS41, 厚さ1mm)を使用した。電極表面積は68.25cm²、極板間隔は2mmとし、電流密度は75mA/cm²に保てるように液面の減少と共に最初はマニュアルで、改良後は汎用パーソナル・コンピュータによる外部制御で電流を減少させた。電解は、2.0°Cに保たれた恒温槽中で8本のセルを直列に連結して行った。改良後の装置全体のブロック図を、Fig. 2に示す。

コンピュータによる外部制御は、EPSON PC-286VからD/Aコンバータ(4CH, 12ビット, コンテック社製)を経て、GP-1B対応直流定電圧定電流電源(メトロニクス社製)に電圧を出力させることにより行った。言語は、BASICを用いた。

2. 試料及び測定

試料水は、脱イオン水及び以前測定した深海水の残液を用いた。試料水の調製法は、これまでの大型電解濃縮法と同じである。但し、電解前の蒸留は電導度計で100 μ S/cm以下になるまで繰り返し、また体積が最大20倍濃縮されるため電解開始時の過酸化ナトリウム添加量をこれまでの0.8%から0.25-0.5%に減少させた。

電解終了後の測定は、20mlのテフロンバイアルにこの試料水10mlとPackard社製の乳化シンチレータPico-fluor LLT 10mlを加え、3日間放置後Aloka社製の低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターLB-IIで20分x50回測定を行った。

かじとしお、たなかよしあき、ももしまのりゆき、たかしまよしまさ

〔結果及び考察〕

Table 1に、太平洋の深海水中のトリチウム濃度の測定結果を示す。以前大型電解濃縮装置を用いた測定で予想外の高値を得た海水残液について、今回小型電解装置を用いて追試（マニュアル法）を試みたものである。結果はSample-2を除いて、統計誤差1 σ の範囲内で良好一致を示した。この時の β 値は39.6、理論上の検出限界は0.65TUであった。

また脱イオン水を用いた予備実験では、電解濃縮後の試料体積のばらつきがC.V.で1.2%、最大最小の差で0.4mlと小さかった。従ってこの小型電解濃縮装置では安定した β 値が得られることが期待され、スタンダードフリーの測定に充分利用できると考えられる。

尚、20mlの低カリガラスバイアルを用いてPackard社製の低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターTRI-CARB 2250CAにより20分x50回測定を行い、従来法との比較を行ったので、併せて報告する予定である。

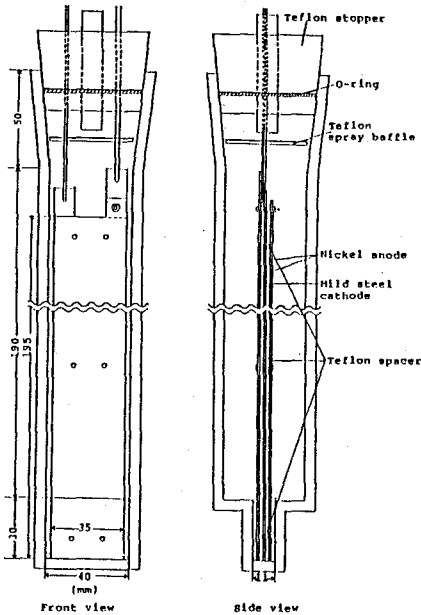


Fig. 1. Electrolytic cell. (small-volume type)

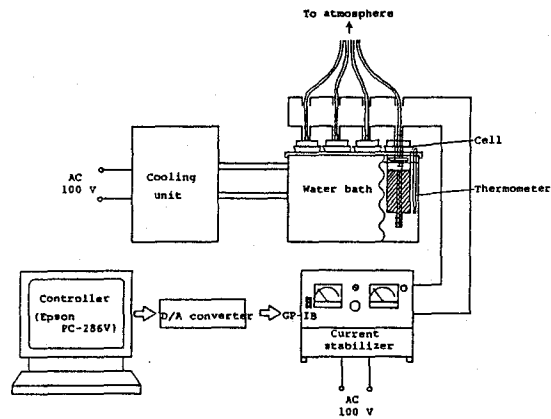


Fig. 2. Apparatus for small-volume electrolytic enrichment.

Table 1. Comparison of ^3H conc. measured by large- and small-volume electrolytic enrichment devices (TU)

Sample No.	1	2	3	4	5
Type					
large-volume	1.06 \pm 0.36	2.40 \pm 0.35	1.72 \pm 0.28	1.27 \pm 0.27	1.04 \pm 0.29
small-volume	1.01 \pm 0.36	1.33 \pm 0.35	1.20 \pm 0.42	1.21 \pm 0.34	0.46 \pm 0.34

MEASUREMENT OF TRITIUM CONCENTRATIONS BY USING THE SMALL-VOLUME ELECTROLYTIC ENRICHMENT DEVICE

Radioisotope Center, Kyushu University, Toshio KAJI
Faculty of Science, Kyushu University, Yoshiaki TANAKA, Noriyuki MOMOSHIMA, and Yoshimasa TAKASHIMA

(原研) ○平林孝園、Suta Poosittisak、佐伯正克

【緒言】

ステンレス鋼表面のトリチウム汚染抑制、即ちトリチウム収着(吸着+吸収)抑制は、比放射能の高いトリチウムを用いる核融合関連研究を推進する上で、極めて重要な研究課題である。この観点から、筆者らは、嫌トリチウム表面の創製を目標として、ステンレス鋼(SUS-316)の表面性状とトリチウム収着性の相関に関する研究を進めており、既に、ステンレス鋼の表面に熱的または化学的に酸化皮膜を形成すると、トリチウム収着性が減少すること、また、表面のクロム原子の化学性状がトリチウム収着性に重大な影響を及ぼすことなどを見だし報告した¹⁾。

本報では、ステンレス鋼の表面を電気化学的に金属クロムで修飾した後、加熱酸化による化成処理を行うと、トリチウム収着性を著しく低減化し得ることを見だし、更に、この化成被覆表面の化学構造、原子結合状態とトリチウム収着性との相関について検討したので報告する。

【実験】

試料片は、オーステナイト系ステンレス鋼(SUS-316)であり、大きさ $3 \times 1 \times 0.125 \text{ cm}^3$ に切断した後、研磨紙及びアルミナ懸濁液($5 \sim 0.05 \mu\text{m}$)を用いて表面研磨し、さらにアセトンで超音波洗浄したものである。また、用いたHT-gasの濃度は、 $51.7 \text{ TBq} \cdot \text{mol}^{-1}$ (T:H=1:40.5)である。

ステンレス鋼表面への金属クロムの電着は、323 K の CrO_3 -0.5M H_2SO_4 溶液中、 $8.3 \sim 50 \text{ A/dm}^2$ の一定電流密度で 1 ~ 180 分間行った。次に、この金属クロムにより表面修飾したステンレス鋼を、空气中、423 ~ 973 K の範囲の一定温度下で 2 時間加熱酸化することにより、化成処理を行った。

クロムで化成被覆処理したステンレス鋼の表面化学性状は、EPMA 及び ESCA により調べ、その表面のトリチウム収着性は、以下のようにして調べた。試料片を、予め高真空中、573 K で 2 時間排気した後、13.3 kPa の HT-gas に 293 K で 7 日間接触させることにより行った。接触終了後、試料片を 20 分間真空排気してもなお試料表面に残っているトリチウムを、以下、収着トリチウムとした。収着トリチウムの量は、試料片を He 気流中、5 K/min の昇温速度で 1273 K まで加熱し、その際放出される HT 及び HTO の各量を、各々 ガス・プロポーション・カウンター及び液体シンチレーション・カウンターにより測定することにより求めた。

【結果と考察】

クロム電着時間を変えて、ステンレス鋼表面に厚さの異なる金属クロム層を形成し、その表面のトリチウムの収着性を調べた。図 1 に、クロム電着時間とトリチウム収着量との関係を示した。図から明らかなように、金属クロム層が厚くなるにつれてトリチウム収着性は増大し、特に、

ひらばやしたかくに、スータ・プーティスィサク、さえきまさかつ

脱離時にガス分子(HT)状になる成分は著しく増大する。

次に、電流密度を一定(25 A/dm²)にして、10 分間金属クロム電着を行い、更に、このクロムで修飾したステンレス鋼表面を、大気中、種々の温度下で加熱酸化し化成処理した。図2に、酸化温度とトリチウム収着量との関係を示した。図から、573 ~ 773 K の温度下で化成処理したステンレス鋼表面では、トリチウム収着性が著しく抑制されていることがわかる。この処理により、トリチウム収着性は、未処理ステンレス鋼あるいはクロム金属表面のその数分の一まで低減化できた。

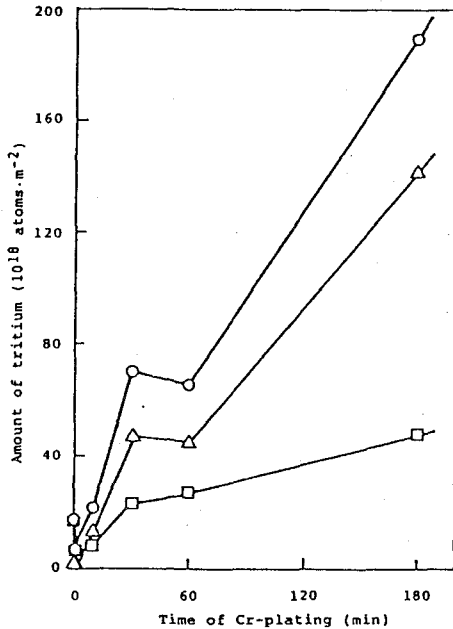


図1 クロム電着時間とトリチウム収着量との関係 [トリチウム収着量(○)及び脱離時のトリチウム化学形; HTO (□), HT (△)]

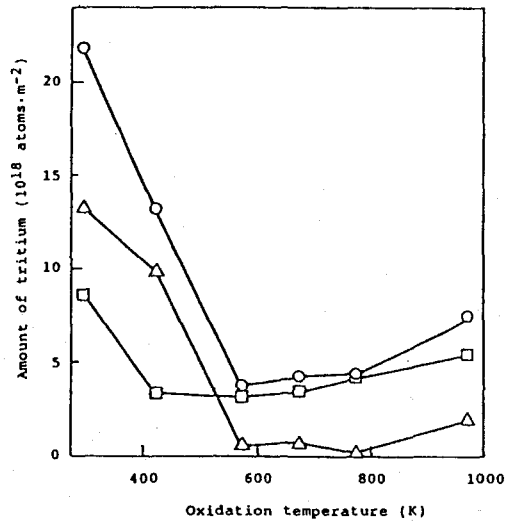


図2 クロム修飾表面の酸化温度とトリチウム収着量との関係 [記号は図1と同じ]

この際電着された金属クロム層の厚さは、EPMA測定の結果、約 3 μm であった。更に、化成被覆後の表面層を X線光電子分光学的に調べた結果、厚さ 3 μm のクロム層の外層約 1 μm のみが Cr₂O₃ 状の Cr(III) になっていることを見だし、クロム化成被覆にともなう表面稠密化がトリチウム収着性を低減化すると推察した。

1) 平林、佐伯、佐々木、K.-W. Sung: Inter. Symp. on Fusion Nucl. Technol., p.19 (1988)

DEPRESSION OF TRITIUM SORBABILITY OF STAINLESS STEEL BY SURFACE MODIFICATION

Department of Chemistry, Japan Atomic Energy Research Institute,
Takakuni HIRABAYASHI, Suta POOSITTISAK, Masakatsu SAEKI

(九大理) 百島則幸、○長谷文昌、高島良正

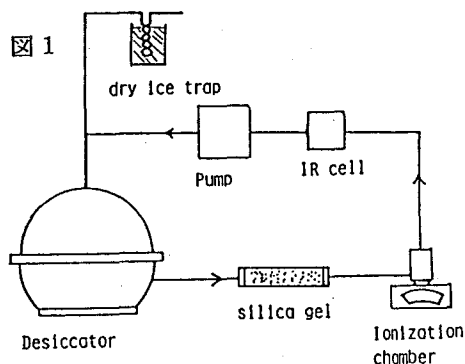
(はじめに)

核融合施設から平常運転時、あるいは事故時に環境中に放出されるトリチウムのうちトリチウムガス (T_2) の占める割合は極めて高いと予想される。それ故トリチウムガスの環境中での挙動を十分に把握しておくことは重要である。トリチウムガスは様々な要因によってトリチウム水に転換されるが土壌、植物などは特に重要な因子である。本研究では植物に注目し、植物へのトリチウムガスの沈着速度を求めた。また組織結合型トリチウム (TBT) への沈着速度も合わせて分析した。

(実験)

植物及びそれに付着する微生物によるトリチウムガスの取り込みとその酸化を調べるため、図1に示す装置によって植物(まさき)にトリチウムガスを曝露させた。まずデシケータのなかに植物の葉を枝ごと入れた。その枝の切口には水が十分供給できるように十分に水に湿らせた綿をつけ、さらにラップで包んだ。次に注射器で二酸化炭素を適度の濃度になるように注入した。トリチウムガスは含まれるHTO形のものを取り除くためにドライアイスラップを通して注入した。明暗の条件で実験を行うため、明実験の時は陽光ランプで光を照射し、暗実験の時は暗幕で全体を包んだ。デシケータの中のトリチウムガス濃度は電離箱によって、また二酸化炭素濃度はIR分光器で分析した。一定時間曝露後、すぐに植物の葉を取り出し真空凍結乾燥装置を用い含有水 (TFWT) を回収した。さらに組織中の交換可能なトリチウムと交換不可能なトリチウムを区別するために乾燥した試料を小さく粉碎し、バックグラウンド水に浸し再び真空凍結乾燥を行った。この操作を二回繰り返し交換可能なトリチウムを洗いだした。次にその乾燥させた試料を燃焼装置を用いて燃焼し組織結合型トリチウム (TBT) を燃焼水として回収した。この燃焼水は過マンガン酸カリウム、過酸化ナトリウム、活性炭を加え数回蒸留をした。測定は試料水8mlと乳化シンチレータ (Aquasol-II) 12mlを20mlのテフロンバイアルに混合し、アロカ製の低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ (LB-II) で行った。

さらに光合成成長過程におけるトリチウムガスの取り込みを調べるため寒天培養地に植物の種 (アルファルファ、法蓮草) を植え付けそれを閉鎖系にしたデシケータに入れ発芽成長させた。植物がある程度成長したところで曝露を止め植物をとりだし真空凍結乾燥で含有水を、燃焼により組織結合型トリチウムを回収した。



ももしまのりゆき、ながたにふみよし、たかしまよしまさ

Experimental apparatus

(結果と考察)

表1に曝露実験の結果を示す。電離箱の測定からは、はっきりしたトリチウムガス濃度の減少は見られなかった。しかし表1から明らかなようにいずれの場合にも植物によるトリチウムガスの酸化が起きており、各部分にトリチウムが取り込まれていることがわかった。植物へのトリチウムの取り込みは次の式で表される。

$$T = Vd \cdot C \cdot A \cdot t$$

ここで T: トリチウム濃度(pCi) Vd: 沈着速度(cm/s)
 C: 大気中のトリチウム濃度(pCi/cm³) A: 葉の全面積(cm²) t: 時間(s)

TFWTの測定値から得られた沈着速度は10⁻⁸cm/s程度であった。交換可能な部分へのトリチウムの取り込みはTFWTの約10%程度であることがわかった。TBTへの沈着速度は2.1X10⁻⁸~7.4X10⁻¹¹cm/s程度であった。明条件の場合が暗条件の場合よりも若干高いようである。また図2、3からTFWT,TBTと二酸化炭素消費量との間にはいくらかの相関もあるように思われる。

表1

	Tritium gas conc. (pCi/cm ³)	TFWT Vd (cm/s)	Exchangable Tritium.Vd (cm/s)	TBT Vd (cm/s)	CO ₂ consump. (mg/cm ² /h)	
A	210	9.9x10 ⁻⁸	1.0x10 ⁻⁸	----	1.63x10 ⁻²	light
B	186	9.4x10 ⁻⁹	2.7x10 ⁻⁹	1.1x10 ⁻⁸	6.37x10 ⁻³	darkness
C	130	8.5x10 ⁻⁹	2.1x10 ⁻⁸	4.8x10 ⁻⁹	0.78x10 ⁻³	darkness
D	127	2.1x10 ⁻⁸	3.9x10 ⁻⁹	8.0x10 ⁻⁹	2.01x10 ⁻²	light
E	63	5.5x10 ⁻⁸	3.9x10 ⁻⁹	2.0x10 ⁻⁸	8.49x10 ⁻³	light
F	154	2.6x10 ⁻⁸	2.7x10 ⁻⁹	7.4x10 ⁻⁹	0.92x10 ⁻³	light
G	2660	1.7x10 ⁻⁸	1.2x10 ⁻⁹	1.2x10 ⁻⁸	8.10x10 ⁻³	light
H	1715	3.8x10 ⁻⁹	3.2x10 ⁻¹⁰	7.4x10 ⁻¹¹	9.10x10 ⁻⁵	light

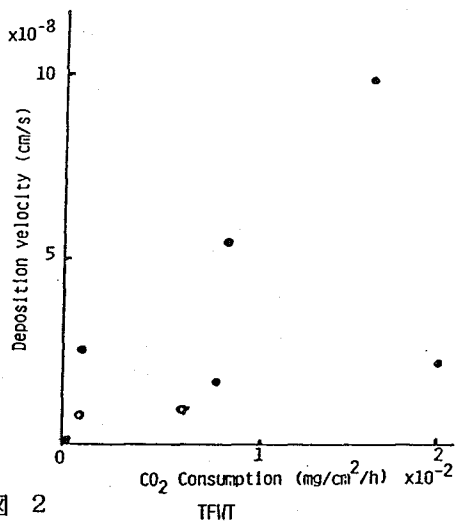


図2

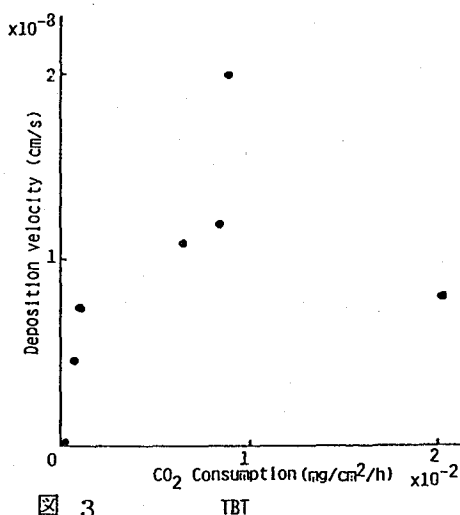


図3

OXIDATION OF MOLECULAR TRITIUM BY VEGETATION

Faculty of Science, Kyushu University,
 Noriyuki MOMOSHIMA, Fumiyoshi NAGATANI, and Yoshimasa TAKASHIMA

1B07

樹木年輪中トリチウムの定量とその解析

(金沢大・LLRL)

○ 齋 幹夫、小村和久、上野 馨

(北陸大・薬)

山田芳宗、西本千枝子、桐山典城

【はじめに】

環境中に分布しているトリチウムは、その大部分が水の形で存在している。したがって、動植物の体内にも水や有機物の形で広く存在し、その濃度は環境のトリチウム濃度と深い関係にある。このことに着目すると、生体中に存在するトリチウム濃度を測定することにより、環境中のトリチウムの時間的・空間的変動に関する知見を得ることができる。

樹木の場合、年輪中に固定されているトリチウム（組織結合トリチウム）は、樹木の生育地域における年輪形成時の環境トリチウムレベルを反映していると考えられる。この組織結合トリチウムを正確に測定するため、樹木の代謝活動によって変化を受けない成分であるセルロースを純度良く分離精製し、そのトリチウムを定量して、樹木の生育地域の環境トリチウム濃度の時間的変動について検討した。

【実験】

試料として石川県辰口町で1987年4月に伐採した松の木（直径50cm長さ約1m）を用いた。年輪毎にさかのぼって分離した木材チップ約400gを35atmの水蒸気で2分間反応させ急激に減圧して爆砕した。爆砕したチップをEtOHで1時間抽出後、0.6M-NaClO₂（酢酸酸性下）、次いで17.5%-NaOHで処理して約100gのαセルロースを得た。αセルロース中の水酸基の交換可能な水素原子をトリチウムフリーの水素原子と置換させるため、トリチウムフリー水で調製した0.4M-HCl中で1時間煮沸した。塩酸を洗い流した後、105°Cで24時間乾燥し、35mmφ×10mmのdiskに成型後、高純度酸素（99.99%）気流中で燃焼した。-110°Cのコールドトラップで集めた燃焼水は、550°Cに加熱した酸化銅を通し、KMnO₄を加え12時間還流した後蒸留を行い、液体シンチレーション測定に供した。

測定試料は、トリチウムフリー水を加え40mlとした燃焼水（約30～50ml）と乳化シンチレーター（Instagel）60mlを100mlのテフロンバイアルに入れて混合し調製した。トリチウムの定量はアロカ製の低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタLSC-LB1で1000分間測定した。クエンチングの補正はESCR法により行った。

【結果】

Table 1に、松の木の年輪中の組織結合トリチウム濃度の値を示す。表の値は、年輪形成時からのトリチウムの放射性壊変による減少を補正してある。年輪の組織自由水、松葉および周辺で採取した湧水のトリチウム濃度も共に示す。

いとうみきお、こむらかずひさ、うえのかおる、やまだよしむね、にしもとちえこ、きりやまのりき

1983年から1987年にかけての年輪の組織結合トリチウム濃度は60-65pCi/lとほとんど変化していないが、さらに古い1980年の試料は 86.4pCi/l, 1976年では100pCi/l以上の高い値となっている。

年輪の組織結合トリチウムに影響を及ぼすと考えられる降水中および大気水蒸気中トリチウム濃度(月平均)の1983年から1986年の変動を、Fig. 1に示す。降水の月平均トリチウム濃度は春と秋に高く51.3pCi/lから10.8pCi/lまで変動しているが、年平均濃度はほとんど変化していない。また、大気水蒸気中トリチウム濃度も降水のそれと同様の傾向を示した。

これに対し、1983年から1987年の組織結合トリチウムの濃度は、同時期の降水中トリチウム濃度や大気水蒸気中トリチウム濃度よりかなり高く、年輪の組織自由水や松葉および松の木の生育地点付近の湧水のトリチウム濃度に近かった。このことは、年輪の組織結合トリチウムが、湧水と起源を同じくする木の根の周囲の土壌水から供給されたことを示唆している。また、1970年代の年輪の組織結合トリチウム濃度が近年の年輪の組織結合トリチウム濃度より高いことは、根の周囲の土壌水が核実験の影響を受けておりそのトリチウム濃度が年とともに減少していることを示している。

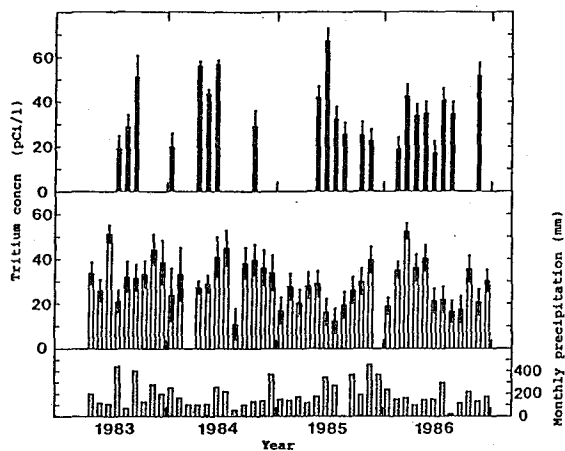


Fig. 1 Variations of tritium concentration in precipitation and atmospheric vapor in 1983-1986 observed at Tatsunokuchi-machi in Ishikawa Prefecture.

Table 1 Tritium concentrations in cellulose samples isolated from annual rings of a pine tree.

sample	tritium concentration (pCi/l)
cellulose of 1987 tree ring	63.4 ± 7.4
cellulose of 1986 tree ring	63.3 ± 9.3
cellulose of 1985 tree ring	64.6 ± 7.0
cellulose of 1984 tree ring	65.1 ± 6.5
cellulose of 1983 tree ring	64.7 ± 4.6
cellulose of 1980 tree ring	86.4 ± 6.3
cellulose of 1976 tree ring	104.1 ± 4.5
free water in 1987 tree ring	49.9 ± 4.7
free water in 1987 pine needles	61.9 ± 5.1
spring water near a pine tree	59.3 ± 6.5
surface soil water	46.7 ± 7.8

DETERMINATION OF TRITIUM CONCENTRATION IN TREE RINGS

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University,
Mikio ITOH, Kazuhisa KOMURA, Kaoru UENO
School of Pharmacy, Hokuriku University,
Yoshimune YAMADA, Chieko NISHIMOTO, Noriki KIRIYAMA

アルカリ土類金属元素の 不足当量分析

(NTT光エレクトロニクス研究所)

○ 加藤正明, 重松俊男

1. はじめに

不足当量分離を用いる分析法(不足当量分析法)は, 化学分離に伴う目的元素の回収率を求める必要がなく, 放射能測定のみで定量できるため, 種々の元素の定量に使用されている¹⁾. また, 不足当量分析の条件を選択することにより, 正確で再現性のよい分析が可能となる²⁾. ここでは, ジシクロヘキサノ-18-クラウン-6 (DC18C6)と, 8-アニリノ-1-ナフタレンスルホン酸 (ANS)を用いる, アルカリ土類金属元素, バリウム, ストロンチウム の不足当量分離の条件について検討した. 得られた結果と, 超伝導酸化物中のバリウムとストロンチウムの定量に応用した結果を報告する.

2. 実験

2. 1 試薬および装置

放射性同位元素の¹³³Ba ($T=10.7y$, $E_{\gamma}=303, 356 \text{ keV}$) は, 日本アイソトープ協会より無担体溶液として購入した. 使用にあたっては, $0.2 \mu\text{Ci/ml}$ $0.1M$ 塩酸溶液に調製した.
⁸⁵Sr ($T=64.8d$, $E_{\gamma}=514 \text{ keV}$) は, 炭酸ルビジウムのプロトン照射により製造し, 陽イオン交換法により無担体分離して³⁾, 最終的に $0.1 \mu\text{Ci/ml}$ $0.1M$ 塩酸溶液に調製した.

また, DC18C6は, 1,2-ジクロロエタンに溶解して使用した.

放射能測定には, NaI(Tl)シンチレーション検出器と Ge(Li)半導体検出器を使用した.

2. 2 不足当量分離

¹³³Ba で標識したバリウム担体溶液 (あるいは⁸⁵Srで標識したストロンチウム担体溶液) に ANS溶液を添加し, pHを調整する. DC18C6溶液を加えて振とうし, バリウム (あるいはストロンチウム) を抽出する. 遠心分離後, 有機相, 水相から一定量を分取し, 両相の放射能を測定する.

3. 結果と考察

3. 1 アルカリ土類金属元素の不足当量分離

不足当量分離の条件: DC18C6をアルカリ金属元素に対して不足当量とし, ANSを過剰量とした場合, バリウム, ストロンチウムともに, $4 \leq \text{pH} \leq 10$ の範囲で不足当量分離が可能となる. また, DC18C6を過剰量とし, 不足当量の ANSを用いた場合も同様に, $4 \leq \text{pH} \leq 10$ の範囲で不足当量分離が可能であり, ANSを不足当量試薬とすることもできる. 一方, 分離量に対するDC18C6とANSの添加量の影響の検討から, DC18C6およびANSと, バリウムあるいはストロンチウムの反応比として, それぞれ, 1:1, 2:1を得た.

共存イオンの影響: バリウムの不足当量分離においては, バリウムと同量のアルカリ金

かとうまさあき, しげまつとしお

属元素、アルカリ土類金属元素のイオンが共存しても、 Sr^{2+} イオン以外は不足当量分離の妨害とはならないが、希土類元素のイオンや Cu^{2+} イオンは妨害となった。

一方、ストロンチウムの不足当量分離においては、ストロンチウムと同量の Ba^{2+} イオン、 Cu^{2+} イオンが共存すると不足当量分離の妨害となるが、他のアルカリ金属元素、アルカリ土類金属元素のイオンはほとんど妨害にならなかった。

不足当量分離における希土類元素のイオンと Cu^{2+} イオンの妨害は、ジエチレントリアミン五酢酸(DTPA)をマスキング剤に使用することにより除去できた。また、バリウムの不足当量分離における Sr^{2+} イオンの妨害、あるいはストロンチウムの不足当量分離における Ba^{2+} イオンの妨害は、バリウムをあらかじめ分離することで除去した。すなわち、ジベンゾ-24-クラウン-8(DB24C8)/ANS抽出系を用いてバリウムを選択的に抽出し、ストロンチウムと分離した。バリウムについては、その後、塩酸で逆抽出した。

3. 2 アルカリ土類金属元素の不足当量分析

バリウムの定量： RI添加法により、ユウロピウム-バリウム-銅系酸化物セラミクス中のバリウムの組成を決定した(表1)。

表1. Eu-Ba-Cu系酸化物セラミクス中のBaの定量

試料	Ba (μg)	Ba組成 (%)
1	263.7 ± 0.5	31.97 ± 0.07
2	233.6 ± 1.4	28.59 ± 0.17
3	241.8 ± 1.4	29.49 ± 0.17

ストロンチウムの定量： 放射化法により、ランタン-ストロンチウム-銅系酸化物薄膜中のストロンチウムを定量し、 $12.0 \pm 0.4 \mu\text{g}$ を得た。

以上のように、DC18C6/ANS不足当量分離系を用いることにより、バリウム、ストロンチウムの定量を可能とした。

参考文献

1. 鈴木, 井村, ぶんせき, 1987, 106.
2. M. KATO, T. SHIGEMATSU, K. SHIKANO, H. YONEZAWA, J. Radioanal. Nucl. Chem., 119, 237(1987).
3. J. W. WINCHESTER, W. H. PINSON, Jr., Anal. Chim. Acta, 27, 93(1962).

SUBSTOICHIOMETRIC DETERMINATION OF ALKALINE EARTH METALS

NTT Opto-electronics Laboratories,
Masaaki KATO, Toshio SHIGEMATSU

1B09 石綿へのニオブの取着

(金沢大・理) ○中西 孝、島 幸子

【はじめに】 広島、長崎における原爆爆発時の速中性子線量に関する実測データは今までのところ $^{32}\text{S}(n,p)$ 反応で生成した ^{32}P (半減期 14.3日) のものしかない。被爆から43年後の今日では、 $^{93}\text{Nb}(n,n')$ 反応によって生成した $^{93\text{m}}\text{Nb}$ (半減期 13.6年) が、被爆試料中に残留し、検出できるかも知れない速中性子誘導放射性核種の1つと考えられている。¹⁾ しかし、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の測定を行おうとすれば、まず被爆試料中の主要元素からNbを化学分離する必要がある。

我々は、広島原爆の被爆試料(例えば鉄材)について $^{93\text{m}}\text{Nb}/\text{Nb}$ の測定を試みようとする予察的検討を始め、既報の種々のNbの化学分離法の中に、今回の我々の目的に適したNbの予備濃集法を探った。そして、ガラス繊維ろ紙(以下 GFF) へのNbの迅速・高収率取着法²⁾ に着目してその研究を追試するとともに、GFF に類似の物質である石綿(比表面積は GFF よりも大きいと予想される)を検討してみた。その結果、石綿は GFF よりも優れたNb取着特性を示すことが明らかになったのでここに報告する。

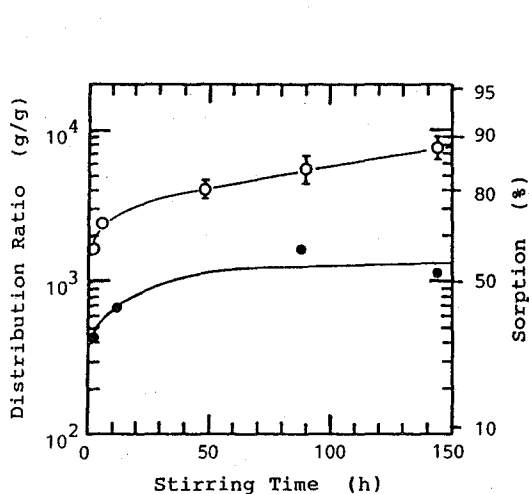
【実験】 本実験に用いたNbのトレーサーは、 ZrCl_4 試薬を原子炉で照射して得た ^{95}Nb である ($^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr} \xrightarrow{\beta^-} ^{95}\text{Nb}$)。最初は $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ の混合物(さらに ^{181}Hf も含まれる) で実験を始め、Nbの石綿への選択的取着と 8M (or 4M) $\text{H}_2\text{SO}_4 - 0.1\text{M}$ HFによる脱離回収ができるようになってからは、この方法で調製した ^{95}Nb を用いた。石綿は、市販のクリソタイル型のもので、 c.HCl による煮沸洗浄を繰り返した後蒸留水とアセトンで洗浄し、 80°C 、1hの減圧乾燥を行って使用した。ガラス繊維ろ紙(GFF) は、東洋GA100 を無処理のまま用いた。

石綿(or GFF、以下同様)と水溶液間における ^{95}Nb の分配比の測定はバッチ法により行った。すなわち、 ^{95}Nb トレーサー溶液(6.5M HNO_3) 1ml を100ml テフロンびんに秤取りし、所定の水溶液 100ml 程度を添加、水溶液の質量を秤量した後、約 0.1g の石綿を秤量添加し、密栓をしてマグネチックスターラーで所定の時間攪拌した。次に、石英綿を詰めた内径10mmのガラスカラムに先のテフロンびんの内容物を注ぎ、石綿をカラムにろ別回収した。このガラスカラムのサイズに合わせて作った試験管に ^{95}Nb トレーサー溶液 1ml を別途分取しておき、それを比較標準として、石綿回収カラムの γ 線スペクトロメトリーを行い、766keVピークの計数率から石綿への ^{95}Nb の取着率を求めた。さらに、(取着率(%)/石綿の質量) / {(100 - 取着率(%))/水溶液質量} により分配比を算出した。

【結果と考察】 (1) ガラス繊維ろ紙(GFF) においてNbの取着率が最も高いと報告されている HNO_3 系²⁾ についてまず実験を行った。攪拌時間を48h と一定にし、 HNO_3 濃度を 0.1~13.3 M の範囲で変化させながら石綿への ^{95}Nb の取着分配比を測定した結果、分配比の HNO_3 濃度依存性はあまりなく、3000~4700 (g/g, 以下同単位) であった。なお、 ^{95}Nb を取着した石綿をガラスカラムの石英綿上にろ別回収(ろ過速度~ 100ml/10min) するさいの石英への ^{95}Nb の取着分配比は0.5 以下で、石綿への取着率測定において石英綿への取着分をとくに補正する必要は

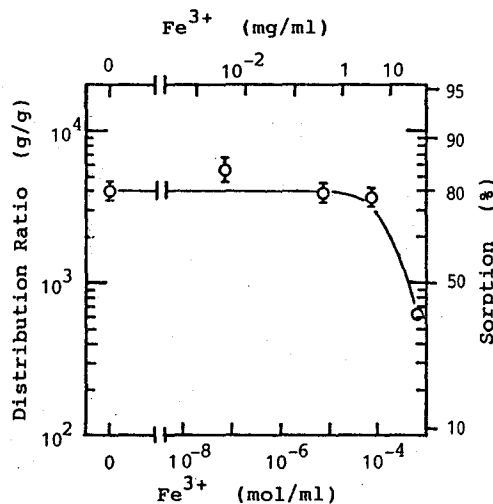
なかにし たかし、しま さちこ

ない。(2) HNO_3 濃度を6.5Mと一定にし、攪拌時間を1~144hの範囲で変化させて石綿とGFFへの ^{95}Nb の吸着分配比を測定した結果をFig. 1に示す。GFFに比べて石綿の ^{95}Nb 吸着特性は優れている。(3) 溶液の種類を HCl (5.8M)、 H_2SO_4 (4.5~18M)、 HClO_4 (1.1~4.6M)として石綿への ^{95}Nb の吸着分配比を比較した結果(攪拌時間48h)、 HCl で700程度、 H_2SO_4 で6~60と HNO_3 に比べて低いのに対し、 HClO_4 では2700(1.1M)~18000以上(4.5M)と HNO_3 に比べてあまり遜色がないかなり高い値を示すことが分かった。(4) 共存イオンとNbの濃度の分配比への影響については、鉄材試料を想定して Fe^{3+} 濃度について検討した結果(Fig. 2)、 Fe^{3+} 濃度が4mg/ml以下であれば4000程度の分配比が維持され、 Nb^{4+} 濃度もほぼ現実的と考えられる10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以下では分配比を低下させないことを確かめた。(5) 石綿に吸着された ^{95}Nb は、吸着直後であれば、8M(or 4M) H_2SO_4 - 0.1M HF 約30mlを約7.5ml/hで、カラムに回収した石綿に通じてやることにより90%以上が溶離回収された。また、0.4Mシュウ酸も溶離剤として H_2SO_4 - HFとほぼ同等の効力を示した。なお、 ^{95}Nb を吸着してから2,3日以上放置すると70~80%の ^{95}Nb しか溶離されず、残りの20~30%は石綿からきわめて脱離しにくくなった。



^{95}Nb added : carrier free,
 ~ 30 Bq/reaction-system
 solid*/soln.** = $\sim 0.1\text{g}/\sim 100\text{g}$
 * asbestos(O), glass fiber filter(●)
 ** 6.5M HNO_3

Fig. 1 Batch sorption of ^{95}Nb on asbestos and glass fiber filter (effect of stirring time).



^{95}Nb added : carrier free,
 ~ 30 Bq/reaction-system
 solid*/soln.** = $\sim 0.1\text{g}/\sim 100\text{g}$
 * asbestos
 ** 6.5M HNO_3

stirring time = 48 h

Fig. 2 Batch sorption of ^{95}Nb on asbestos (effect of Fe^{3+} concentration).

1) 竹腰秀邦, 安田加代子, 原爆放射線量の実験的再評価(昭和59年度科学研究費補助金(総合研究A)研究成果報告書), 60-66 (1985).

2) M. Weis et al., Radiochim. Acta, 42, 201-203 (1987).

SORPTION OF NIOBIUM ON ASBESTOS

Faculty of Science, Kanazawa University

Takashi NAKANISHI, Sachiko SHIMA

1B10

Redox SSE-IDA 法による硫酸溶液中のタリウムの定量

(静大・理) ○吉岡潤江、春田真弓、長谷川紈彦
(筑波大・化) 池田長生

【序】 第30回放射化学討論会において、Redox SSE-IDA 法 (Sub- and super-equivalence method of isotope dilution analysis) により、 ^{204}Tl 試料中に含まれる非放射性タリウムの定量を HClO_4 - HCl 系で行った¹⁾。今回、 H_2SO_4 溶液中のタリウムの定量の為の詳細な基礎検討を行い、新たな知見を得たので報告する。

【実験】 試薬及び試料 tracer soln. : $^{204}\text{Tl(I)}$ soln. (Tl_2SO_4 , 1.36mci/ml, 0.34 mg Tl/ml in 0.05M H_2SO_4 , Amersham Japan Ltd.) を 0.05 M H_2SO_4 で必要な濃度に希釈。
 Tl(I) carrier soln. : Tl_2SO_4 (99.99%) の水溶液を必要な濃度に希釈。
 Tl(III) carrier soln. : Tl_2O_3 (99.99%) の 0.1M HCl soln. を必要な濃度に希釈。
 Tl(I) と Tl(III) の分離試薬 : 20% TBP (in C_6H_6)、 反応試薬 : KBrO_3 、
基本操作 $^{204}\text{Tl(I)}$ でラベルした試料溶液 (0.1 ml) に、連続的に変化させた種々の濃度の carrier soln. (0.1 ml) を加えた。次に、 H_2SO_4 (0.1 ml), HCl (0.1 ml) を添加し、総ての試料溶液中の酸濃度、容積を等しくした後、不足当量の KBrO_3 を添加した。酸化後、 Tl(III) と未反応の Tl(I) を分離し、GMカウンターにより放射能測定した。分析値は SSE-IDA 法の原理^{1), 2)} に従って、 Tl(III) の放射能より求めた。

【結果】 1) Tl(I) と Tl(III) の分離条件の検討 1.1) 分離法としては、酢酸イソアミル並びに TBP (in C_6H_6) による抽出法、 Na_2CrO_4 による沈澱法のうち TBP 抽出法が最も適していた。1.2) 分離のための酸濃度条件は、TBP 抽出法では、2N 以上、 Na_2CrO_4 沈澱法では、1N 以下であった。1.3) 分離時間は、5分で充分であった。
2) 反応試薬 KBrO_3 による酸化条件の検討 2.1) H_2SO_4 (0.25~1.5 N) 溶液中では、 HClO_4 系¹⁾ のときと同様、酸化還元反応は、ほとんど起こらなかった。 H_2SO_4 溶液中で、 Tl(I) を酸化するには、 $[\text{Cl}^-] = 0.3 \text{ N}$ 以上が必要であった (Fig. 1)。2.2) Tl(I) の定量的な酸化に必要な酸濃度は、 $[\text{H}^+] = 1.3 \sim 2.5 \text{ N}$, ($[\text{Tl(I)}] = 2.6 \mu\text{g/ml}$) であった (Fig. 2)。2.3) 酸化時間は、 HClO_4 - HCl 系では、数 10 秒で平衡に達したのに対し、 H_2SO_4 - HCl 系では、5分を要した。2.4) 定量的な酸化に必要な Tl(I) の濃度条件は、 $[\text{Tl(I)}] = 1 \mu\text{g/ml}$ 以上であった。 $[\text{Tl(I)}] = 0.2 \mu\text{g/ml}$ になると、酸化量は理論値に対し 80% しか酸化されなかった (Fig. 3)。また、このような希薄な濃度になると、酸化量にもかなりのばらつきが見られた。2.5) 妨害イオンの影響を調べた結果、 Mn(II) , Te(IV) , Sn(II) , Se(IV) , Pb(II) は、 Tl(I) の酸化還元反応をほとんど妨害しなかった。ところが、 As(III) , Sb(III) の妨害は大きく、それらの反応は Tl(I) の酸化反応より優先した。

しおか ひろえ、 はるたまゆみ、 はせがわくにひこ、 いけだながお

3) 分析結果 妨害物質の反応が、分析物質と競争反応をする場合³⁾にも、SSE-IDA 法で良好な結果が得られたが、今回の様な、妨害物質の反応が分析物質のそれよりも優先する場合は、SSE-IDA 法では大きな誤差を生じた。しかし、Subst-IDA 法では良好な結果が得られた。この事実は理論的に説明出来る。最後に、妨害元素を含まない試料の SSE-IDA 法による検出限界を Table 1 に示した。

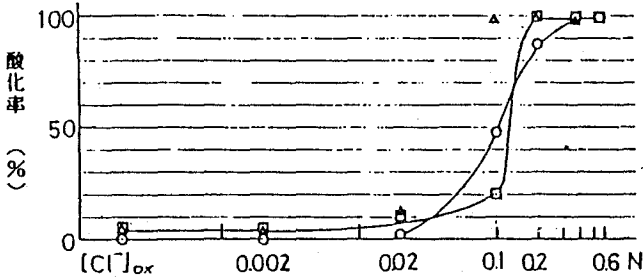


Fig. 1 硫酸溶液中の TI(I) の酸化率に対する $[Cl^-]$ の影響
 ○ : $[TI(I)] = 17.85 \mu g/ml$, $KBrO_3/TI(I) = 0.6$ $[SO_4^{2-}] = 1.9N$
 △ : $[TI(I)] = 17.85 \mu g/ml$, $KBrO_3/TI(I) = 5.7$ $[SO_4^{2-}] = 1.9N$
 □ : $[TI(I)] = 178.5 \mu g/ml$, $KBrO_3/TI(I) = 0.6$ $[SO_4^{2-}] = 1.9N$

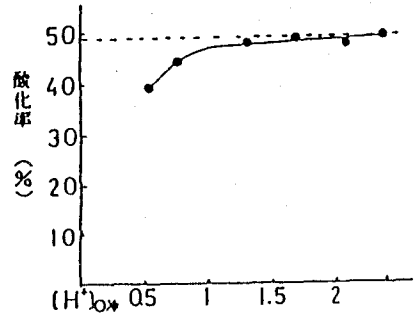


Fig. 2 酸化率に対する $[H^+]$ の影響
 $[TI(I)] = 2.59 g/ml$,
 $[Cl^-]_{ox} = 0.5N$, $KBrO_3/TI = 0.48$

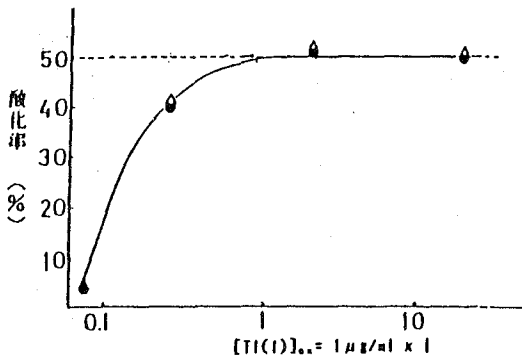


Fig. 3 酸化率に対する $[TI(I)]_{ox}$ の影響
 ● : キャリヤー無し
 △ : キャリヤー添加、 $[TI(III)]_{ox} = 100.9 \mu g/ml$
 $[H^+]_{ox} = 1.9N$, $[SO_4^{2-}]_{ox} = 1.5N$, $[Cl^-]_{ox} = 0.4N$
 $[H^+]_{ox} = 1.6N$, $[SO_4^{2-}]_{ox} = 1.2N$, $[Cl^-]_{ox} = 0.1N$
 $KBrO_3 : TI(I)$ の 1/2 酸化

Table 1 SSE-IDA 法による検出限界

$[TI(I)]_{ox}$ ($\mu g/ml$)	Taken TI (μg)	Error k=2 (%)	Error k=3 (%)
2.07	1.04	+1.6	/
0.61	0.30	+4.3	+2.1
0.54	0.27	+7.3	+2.6
0.34	0.17	-0.4	-1.9
0.22	0.11	-35.5	-3.0
		-9.2	-32.5
		-35.2	-41.7

$[H^+] = 1.9N$, $[SO_4^{2-}] = 1.5N$, $[Cl^-] = 0.4N$

- 1) Hiroe Yoshioka and Kunihiko Hasegawa, Analyst, 112,855,(1987).
- 2) J.Klas, J.Tolgyessy, E.H.Klehr, Radioanal. Radiochem. Letter, 18(2),83,(1974)
- 3) Hiroe Yoshioka and Tomihisa Kambara, Talanta, 31(7),509,(1984).

DETERMINATION OF THALLIUM IN SULFURIC ACID SOLUTION BY SSE-IDA

Faculty of science, Shizuoka university, Hiroe YOSHIOKA, Mayumi HARUTA,
 Kunihiko HASEGAWA, Department of Chemistry, University of Tsukuba, Nagao IKEDA.

(静大理) ○宮木美典, 吉岡潤江, 長谷川窓彦

〔はじめに〕

化学分析で用いられるテルルのトレーサーとしては、 ^{127m}Te ($T_{1/2}=109\text{d}$)、 ^{125m}Te ($T_{1/2}=58\text{d}$)の2つの放射性同位体があげられる。このため本実験では比較的安価で購入し易い ^{125}Sb ($T_{1/2}=2.77\text{yr}$)の塩酸溶液から、 ^{125m}Te を分離することを試みた。分離法としてはイオン交換法(バッチ法)及び溶媒抽出法の2つ方法を用い、これより得られた結果について比較してみる。

^{125}Sb は強塩基性陰イオン交換樹脂のCl⁻形に吸着されることが知られている¹⁾²⁾。また強塩基性陰イオン交換樹脂においてSb(V)は塩酸濃度が高くなるにつれて分配係数が増加することが報告されている¹⁾。ところで、高濃度の塩酸溶液中ではSb(V)はSb(III)に還元されてしまう。この5価から3価への還元を避けるため、Br₂の共存下でイオン交換を行った。

溶媒抽出法ではSb(III)の抽出分離剤としてBPA (in CHCl₃ soln.)を用いた。購入した ^{125}Sb ($^{125}\text{SbCl}_3$ in 3M-HCl)は自己放射線により酸化されSb(V)になっているため、亜硫酸ガスによりSb(III)に還元して用いた³⁾⁴⁾。

〔実験〕

試料溶液には放射平衡にある $^{125}\text{Sb}-^{125m}\text{Te}$ の塩酸溶液(Amersham社製)を用いた。イオン交換樹脂には強塩基性陰イオン交換樹脂Cl⁻形(DIAION CA08P mesh75~150 μm)を用い、バッチ法にて分離を行った。操作はFig.1に示す。溶媒抽出法はFig.2の手順で行った。

^{125}Sb の放射能は29.7keV及び400keV(427, 463keV)、 ^{125m}Te は30.9keVを用いて測定を行った。

計数は井戸型NaI(Tl)シンチレーションカウンタ(Aloka シンチレーション)で測定。

〔結果と考察〕

イオン交換法

9M-塩酸濃度中でアンチモンが5価の状態を維持するためのBr₂濃度は20~30%が必要であった。

Sbの樹脂への吸着は約10分で平衡に達しこの時点で99%以上吸着した (Fig.3)。

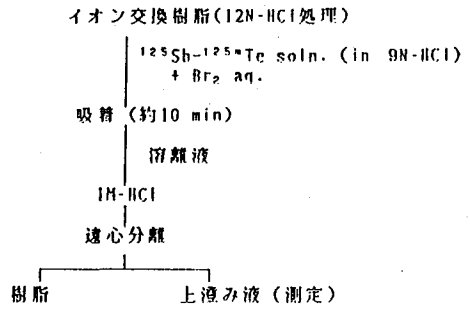


Fig.1 イオン交換(バッチ法)

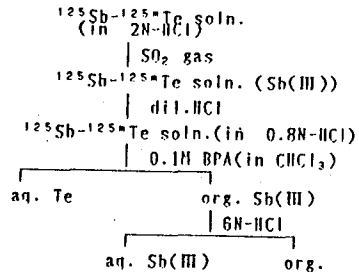


Fig.2 溶媒抽出

みやきよしのり よしおかひろえ はせがわくにひこ

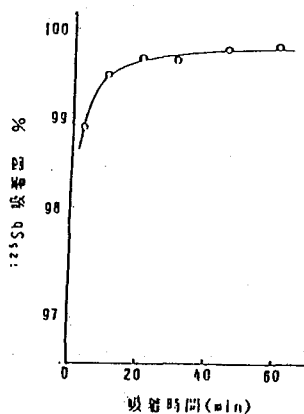


Fig. 3 ^{125}Sb 抽出率に対する吸着時間の影響 (バッチ法)

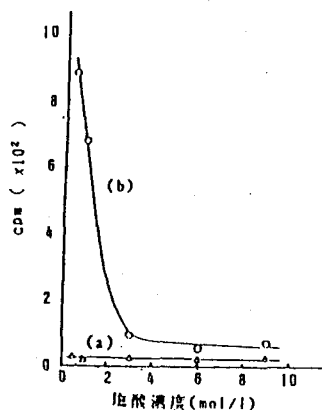


Fig. 4 ^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ の溶離量に対する塩酸濃度の影響 (バッチ法)
(a) ^{125}Sb (b) $^{125\text{m}}\text{Te}$

樹脂に吸着させた試料溶液(in 9M-HCl)からの ^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ の溶離量に対する塩酸濃度の影響は(Fig.4)、1M-HCl以下の濃度において分離後の溶液中の ^{125}Sb の存在率は約1%であった。

^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ の溶離量に対する溶離時間の影響を調べた結果10分前後が最適であった。溶離時間を長くすると分離後の溶液中の ^{125}Sb の存在率は増加した。

以上の基礎実験より得られた結果を基にして ^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ の分離を行った。その結果 $^{125\text{m}}\text{Te}$ の収率は約50%、 ^{125}Sb の存在率は約1%であった。

溶媒抽出

基礎実験として、BPA(in CHCl_3)抽出による ^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ の残存率に対する抽出時間の影響をしらべた(Fig.5)。抽出時間は1分以上で平衡に達した。

キャリアを添加せずに行った溶媒抽出法で ^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ を抽出分離をした結果、 ^{125}Sb は99%以上抽出された。しかし $^{125\text{m}}\text{Te}$ は同時に抽出されてしまい、水層には約15%しか残らない。

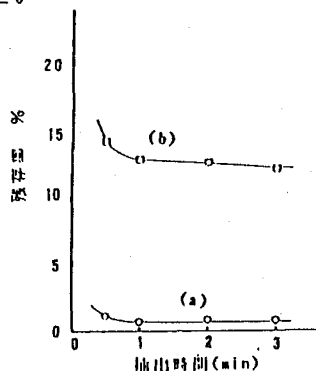


Fig. 5 ^{125}Sb と $^{125\text{m}}\text{Te}$ の残存率に対する抽出時間の影響
(a) ^{125}Sb (b) $^{125\text{m}}\text{Te}$

- 1) Y.Yosino et al. Japan Analyst 6,1957,160
- 2) Y.Maruyama et al. Radiochem Radioanal Lett 44,1980,249
- 3) T.Kambara et al. J.Radioanal Chem 36,1977,87-94
- 4) 第20回放射化学討論会講演予稿集 p.24(1976)

SEPARATION OF $^{125\text{m}}\text{Te}$ FROM ^{125}Sb - $^{125\text{m}}\text{Te}$
COMPARISON OF EXTRACTION METHOD AND ION-EXCHANGE METHOD
Faculty of Science, Shizuoka University,
Yoshinori MIYAKI, Hiroe YOSHIOKA, Kunihiko HASEGAWA

(大放研) ○ 朝野武美、桐谷玲子、藤田慎一

緒言 トリチウムの核壊変による核酸塩基の分解について研究を行っている。前回、(2-¹⁴C, 5-³H) ウラシルの酸素飽和水溶液中での分解について報告した。今回、脱気水溶液中での分解について、これまでと同様に放射線分解を抑制するための「希釈剤添加法」を用いることにより、研究を進め、トリチウム壊変当りの標識ウラシルの分解率を求めると共に、核壊変による分解生成物の分析を行った。

実験 我々が合成した(2-¹⁴C, 5-³H) ウラシルを用い(合成に富山大学トリチウム科学センター施設を利用)、同放射性ウラシル水溶液に希釈剤として60倍、180倍、360倍の重量比に相当する非放射性ウラシルを加え(放射性ウラシルの放射線分解率を抑制し、かつ変化させる)、脱気水溶液中、5℃で数100日間放置した。反応条件をTable 1-Conditionsに示す。放置後の放射性ウラシル水溶液について、高速液体クロマトグラフ分離を行い、溶離液の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定した。放射性ウラシルの、核壊変による、トリチウム壊変当りの分解率および分解生成物の収率を次式によって求めた。

$$\text{Decomp. } \% / ^3\text{H decay} = \frac{B - A}{0.32(1 - e^{-\lambda t})(1 - R)} \quad (1)$$

$$\text{Yield of Products } \% / ^3\text{H decay} = \frac{D - C}{0.32(1 - e^{-\lambda t})(1 - R)} \quad (2)$$

A(またはC)は³H放射能から求められた放射性ウラシルの分解率(または分解生成物の総収率)を%で表した値、B(またはD)は¹⁴C放射能から求められた同様な値である。Rは放射線分解率で、ここではA/100に等しい。0.32はウラシルの³H標識率である。

結果と考察 希釈剤添加法を用いることにより、放射線分解を抑制し、核壊変効果による分解を観測することができた。Table-1のResults-1は放射性ウラシルの分解率、またResults-2は分解生成物の総収率を示す。両者の値は良く一致しており、約10%/³H decayであった。これらの値は、先に得られた酸素飽和水溶液中での値(55%)より小さく、また放射性シトシンについて得られた値(脱気水溶液中:40%、酸素飽和水溶液中:80%)より小さい。Fig. 1は分解生成物のHPLC-ラジオクロマトグラムで、希釈剤の添加量が180倍の場合である。6個の分解生成物のピークが見られる。ピークd, e, f, gは³Hに比べて¹⁴Cが富んでおり、希釈剤濃度依存性を考慮することにより、核

あさの たけよし、きりたに れいこ、ふじた しんいち

Table 1. The percentage decomposition of [2-¹⁴C,5-³H]uracil and percentage yield of products following β-decay of tritium in degassed aqueous solutions.

Run		4	5	6				
Conditions	Rad. act. soln. ³ H μCi/ml	333	332	305				
	¹⁴ C μCi/ml	1.93	1.92	1.84				
	Wt. ratio, $\frac{\text{Ur}}{[2-^{14}\text{C}, 5-^3\text{H}]\text{Ur}}$	60	180	360				
Decay time / days		355	536	385	570	387	565	
Results 1	Decomp. of uracil	A (³ H) / %	4.84	1.99	0.98	1.48	0.88	1.40
		B (¹⁴ C) / %	4.95	2.21	1.30	1.72	1.54	1.90
	B - A / %	0.11	0.22	0.32	0.24	0.66	0.50	
	$0.32(1 - e^{-\lambda t})(1 - R)$	0.017	0.024	0.019	0.025	0.019	0.027	
	Decomp. / %/tritium decay	6.47	9.17	16.84	9.60	34.73	18.52	
average (16±9) %/tritium decay								
Results 2	Yield of Products	C (³ H) / %	1.18	1.85	0.88	1.39	0.80	1.60
		D (¹⁴ C) / %	1.35	2.05	1.13	1.59	0.97	1.74
	D - C / %	0.17	0.20	0.25	0.20	0.17	0.14	
	$0.32(1 - e^{-\lambda t})(1 - R)$	0.017	0.024	0.019	0.025	0.019	0.027	
	Yield of prods. / %/tritium decay	10.00	8.32	13.15	8.00	8.94	5.18	
average (9 ± 2) %/tritium decay								

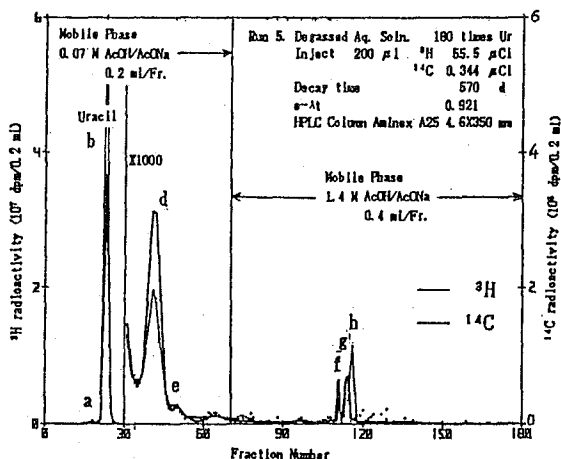


Fig. 1 HPLC-radiochromatograms of (2-¹⁴C,5-³H)uracil in degassed aqueous solutions stored for 570 days in refrigerator.

壊変効果および放射線照射効果によって生じたものであることが分かった。ピーク d はウラシルの 5 位のトリチウムが OH 基に変わったイソバルピツール酸と推測され、その核壊変による生成率は 2 ~ 5 % / ³H decay と算出された。

CHEMICAL EFFECTS OF β-DECAY IN TRITIUM LABELLED URACIL IN DEGASSED AQUEOUS SOLUTION.

Osaka Prefectural Radiation Research Institute
Takeyoshi ASANO, Reiko KIRITANI, Shinichi FUJITA

(東北大・理) ○新海 裕美子、伊澤 郡蔵、吉原 賢二

【緒言】

${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$ 反応による反跳トリチウム反応は、固相系では分子間の相互作用が強いいため、エネルギー面からの考察は困難である。しかし、試料を粉末ではなく薄膜の系とすれば、トリチウムが薄膜表面に衝突するときのスペクトルを予測することは可能である。

演者らは、試料としては、超共役化合物であるトランス-スチルベンを用い、スカベンジャーとして酸素を、またモデレーターとしてヘリウム(${}^4\text{He}$)を加え、気相系の反跳トリチウム反応の反応の実験方法によって、ホット反応を検討した。

【実験】

内径16mm、高さ40mmの石英アンプルに、ヘリウムと Mylar 膜に厚さ10 μm に塗布した薄膜状トランス-スチルベンを封入、試料によっては、スカベンジャーとして酸素、モデレーターとしてヘリウムを加えてある。試料は、日本原子力研究所JRR-4炉T-パイプで3分照射した。

Fig. 1に照射試料の分離法を示す。これら分離したHT, HTO, Labile-T, by-products, Mylar膜は、それぞれ液体シンチレーションカウンター(Aloka LSC-1000)で放射能を測定し、生成物間のトリチウムの分布を調べた。再結晶したトランス-スチルベンについては、安息香酸に酸化し、ベンゼン環と二重結合部のトリチウムの分布を求めた。

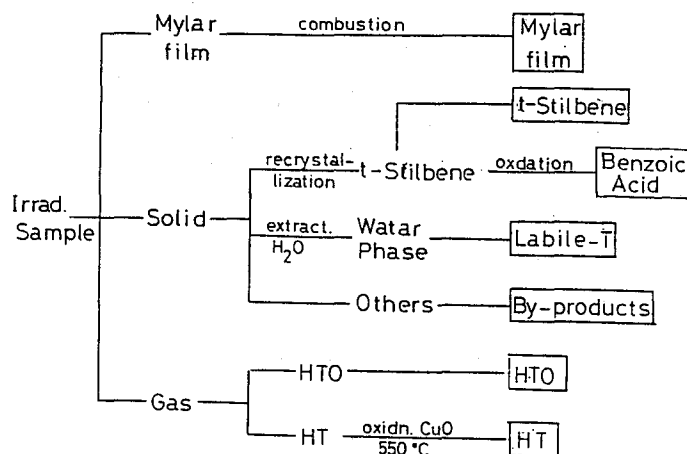


Fig.1. Separation Scheme

しんかいゆみこ、いざわぐんぞう、よしはらけんじ

【結果・考察】

トランス-スチルベンの系の生成物の収率は、HTOが25%、HTが5%、Mylarが35%で、親分子であるトランス-スチルベンの収率は約2%と少ない。また、これ以外に、アンブルに打ち込まれたトリチウムが、30%程度見出された。

モデレーターとしてヘリウムを系に加えると、熱エネルギー領域の反応生成物と考えられるHTOの収率は増加し、高エネルギーの反応生成物と考えられるMylar, アンブルの収率は減少した。トランス-スチルベンからのホット反応生成物であるHTは減少するが、トランス-スチルベンとby-productsの収率については、一定の傾向はみられなかった。

モデレーターの効果をより明確にするため、計算によってMylar膜に到達するトリチウムの量を求めた。また、Mylar膜のみの照射を行い、実験値と計算値を比較検討した。

スカベンジャーとして酸素を加えると、HTOの収率は増加するが、HT, Mylar, アンブルの収率は減少した。トランス-スチルベンの収率は、

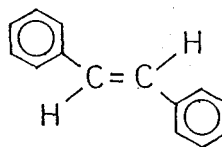
1/10以下に減少した。これは、トランス-スチルベンにトリチウムが付加し生成したラジカルが、酸素と反応しているためと考えられ、トランス-スチルベンの化学量の減少が認められた。

トリチウムの分子内分布については、Table 1に示した。酸素によって収率は大きく変化した。ヘリウムを加えても大きな変化は認められなかった。

Table 1. Intramolecular Distribution of Tritium in *t*-Stilbene

System	C = C	ϕ
Free TSB	31.4 ± 3.7	68.6 ± 3.7
TSB + He (40cm)	28.4 ± 4.2	71.6 ± 4.2
TSB + He (130cm)	26.5 ± 0.1	73.5 ± 0.1
TSB + O ₂ (20cm)	53.6 ± 6.9	46.4 ± 6.9
TSB + O ₂ (20cm) + He (40cm)	72.5 ± 4.9	27.5 ± 4.5
TSB + O ₂ (20cm) + He (110cm)	68.4 ± 8.3	31.6 ± 8.3

TSB: *t*-Stilbene



THE RECOIL TRITIUM REACTION WITH TRANS-STILBENE IN A THIN FILM

Faculty of Science, Tohoku Univ., Yumiko SHINKAI, Gunzou IZAWA, Kenji YOSHIHARA

1B14

$^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ 反応による有機化合物のトリチウム化

(東大・R I, 千葉大・教養*, 原研・東海**) ○野川憲夫, *大橋國雄, 大林秀教, 上原けい子, **松岡弘充, **茂木照十三, **守屋孝, 森川尚威

はじめに

$^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ 反応を利用して, 高比放射能のトリチウム標識有機化合物を得るには, 照射容器の形体, 試料とヘリウム-3の量, 照射時間などの種々の条件を選定しなければならない。なお試料の厚みについては, ポリエチレンテレフタレート薄膜の積層試料のトリチウム化の実験から, 約 0.48mg cm^{-2} より薄く調製するのが良いとの結果を得ている。今回は, 高比放射能のトリチウム標識化合物を得るため, β -プソイドウリジンは各種の条件下で, また安息香酸は薄膜状試料で, それぞれトリチウム化を行った。

実験

β -プソイドウリジン: 石英容器S形(4 mm i.d., 80 mm ℓ)とL形(16 mm i.d., 18 mm ℓ)に入れ, ヘリウム-3(CEA, 99.9%)を充填し, 熔封した。容器の外側には ^{59}Co の放射化検出器を装着した。中性子照射は, 日本原子力研究所のJRR-4原子炉のTまたはSパイプで行った。精製は, ゲルクロマトグラフィー(Sephadex G-10, カラム 1 cm i.d. \times 150 cm ℓ), イオン交換クロマトグラフィー(DOWEX 1 \times 8, カラム 1.2 cm i.d. \times 2.3 cm ℓ), ペーパークロマトグラフィー(Whatman 3MM, 溶媒 イソ酪酸-1Nアンモニア水(5:3)), さらにペーパークロマトグラフィー(Whatman 3MM, 溶媒 n-ブタノール(水飽和))により行った。 β -プソイドウリジンの比放射能は, クロマトスキャナー(Berthold, TLC-Multi-Tracemaster LB284)で得られるクロマトグラムに基づき, 溶媒抽出した β -プソイドウリジンの吸光度(260nm)と液体シンチレーションカウンターの計数値とから決定した。

安息香酸: 昇華装置を用いて安息香酸を付着させたポリエチレン2,6-ナフタレート(PEN)製支持フィルムを石英試験管内に円筒状に挿入し, この内側にPENフィルムのカバー膜を付けた場合(図1)と付けない場合の試料をそれぞれ作製した。また, 石英試験管の内壁に昇華法により安息香酸を薄片状に直接付着させた試料も作製した。次に室温でヘリウム-3を導入し石英試験管を熔封した。中性子照射はドライアイスで冷却して行った。開封後の照射容器内をエーテルで洗浄し, 0.05M H_2SO_4 で3回, 水で1回洗った後, エーテルを除去し, 減圧乾燥した。高速液体クロマトグラフ装置(東ソー,

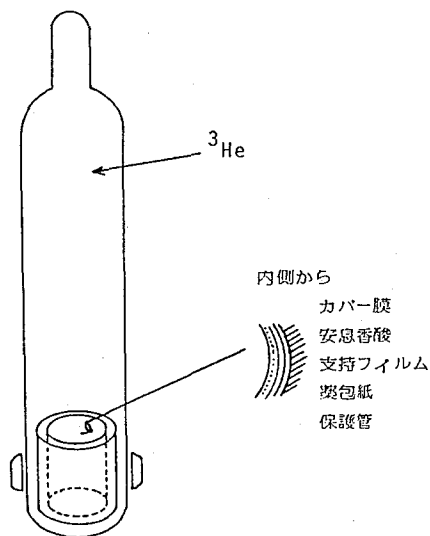


図1 照射試料

のがわのりお, おおはしくにお, おおばやしひでのり, うえはらけいこ, まつおかひろみつ
もきてるとみ, もりやたかし, もりかわなおたけ

HLC-803A)を用い、メタノール溶媒下で安息香酸を分取し、その放射能を決定した。

結果と考察

今回のS形容器の照射時間は180および360分で、前回の最大照射時間(120分)よりかなり長くしたが、 β -プソイドウリジンの比放射能は照射時間に比例して上昇した。L形は β -プソイドウリジンに対するヘリウム-3の割合が高く、かつ反応効率の高い形体であるため、比放射能はS形の10倍程度高くなると考えられる(図2)。

付着量の少ない安息香酸にカバーを付けない試料(No.1と2)では、約1分の中性子照射にもかかわらず、照射容器から安息香酸を回収することが出来なかった。カバーを付けると安息香酸は回収され、その放射能はカバーがやや厚かったにもかかわらず

$1.1 \times 10^{10} \text{ Bq mol}^{-1}$ を示した。比較的厚い試料(No.4と5)の放射能は、 $1 \sim 2 \times 10^{11} \text{ Bq mol}^{-1}$ となり、従来の値($2.4 \times 10^8 \text{ Bq mol}^{-1}$, 照射条件: 0.5 g, ^3He 19Torr, JRR-4 25分照射)に比べ約500倍高くなった。今回の結果から、試料の厚みの制御と放射線分解を抑えた長時間の中性子照射が可能になれば比放射能の高いトリチウム標識化合物を得ることができると思われる。

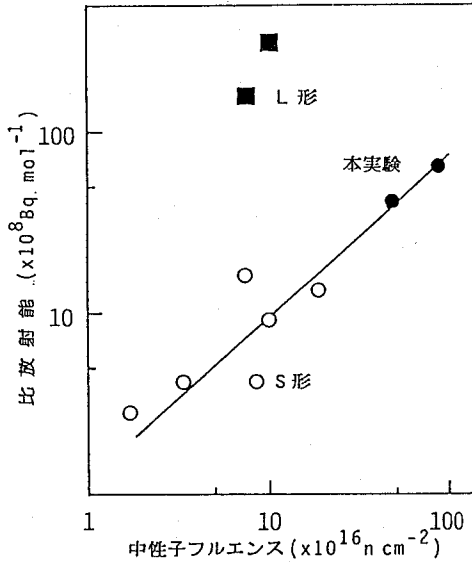


図2 β -プソイドウリジン(ψ)の熱中性子フルエンスの上昇に伴う比放射能の変化
モル比($\psi/^3\text{He}$) S形: 13~17
L形: 0.8~1.3

表1 安息香酸の照射条件と比放射能

No.	付着量 mg cm^{-2}	カバー膜 mg cm^{-2}	^3He Torr	照射時間 s	熱中性子フルエンス $\times 10^{15} \text{ n cm}^{-2}$	比放射能 $\times 10^{10} \text{ Bq mol}^{-1}$
1	0.085	無	600	66	2.80	回収不可
2	0.082	無	388	66	2.74	回収不可
3	0.090	0.31	388	66	2.84	1.1
4	約0.3	無	388	66	2.38	1.3
5	約0.3	無	388	66	2.23	2.1

RECOIL TRITIATION OF ORGANIC COMPOUNDS BY $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ REACTION
Radioisotope Centre, The University of Tokyo, Norio NOGAWA, Hidenori OOBAYASHI,
Keiko UEHARA, Naotake MORIKAWA
Department of Chemistry, College of Arts and Sciences, Chiba University, Kunio
OOHASHI
Japan Atomic Energy Research Institute, Hiromitsu MATSUOKA, Terutomi MOKI,
Takashi MORIYA

(青山学院大理工)

○矢板 毅・斎藤 裕子・木村 幹

はじめに

天然水中に存在する放射性核種の分布は様々な要因によって支配されている。その要因としては、例えば溶出、沈殿、吸着、イオン交換などの化学的作用によるものや壊変による生成や消滅あるいは反跳による放出などの物理的要因によるものなどがある。天然水系においてはこれらの要因が複雑に影響しあい個々の核種の分配が決定される。この要因を知る目的でウラン・トリウムをはじめとした壊変生成物に着目し、これら核種の天然水中での分布について考えてみることにした。天然水試料としては、山梨県増富鉱泉水を用いた。当鉱泉は強い放射能を持つ鉱泉であり、その放射能の源はウラン・トリウム壊変系列の核種によるものであることが知られている。しかし今までにラジウム、ラドンの定量例は多いがウラン、トリウムについては少なくこれら親核種との平衡関係について見ることは非常に興味深い。

分析方法

ウラン・トリウムについては、右図に示したような手順にしたがって分離・定量を行った。ところで、海水を除く天然水中のウラン・トリウムの存在量はそれぞれおよそ 0.1~数 ppb, 0.01~数 ppb 程度であり大量の試料についての濃縮が必要となってくる。しかし、本研究で用いた増富鉱泉水は多量の塩を含み試料の多少によって分離操作に影響を与えることがあった。そこで試料の量を極力少なくし予備濃縮の段階で塩の除去に注意を払い、トリウムについては放射化分析法も併用した。

ラジウムについては、試料にバリウムを担体として加えBaSO₄と共沈させ、これを石英アンブルに封入しそれぞれの娘核種の放射平衡達成後 ²¹⁴Pb、²²⁸Ac ²¹²Pbのγ線を測定することにより定量をおこなった。(*)α-ray spectrometry

ラドンについては、試料を採取ののち密封し娘核種の放射平衡達成後²¹⁴Pbを D₂-CCl₄により抽出しβあるいはγ線を測定することにより定量を試みた。

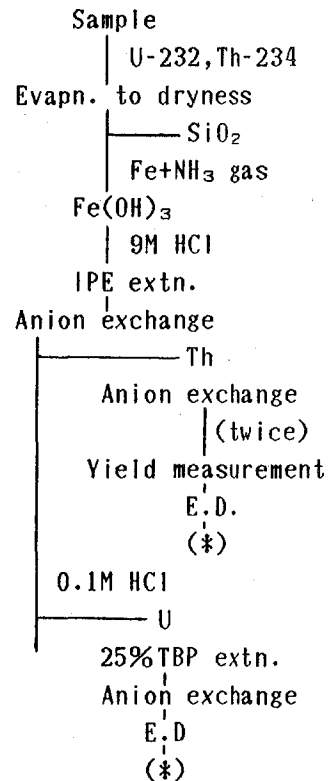


図 分析手順

やいたつよし ・ さいとうゆうこ ・ きむらかん

結果及び考察

以上のような方法によって得られた結果の一部を下に示した。

表1 増富鉱泉におけるウラン・トリウム・ラジウム

採取地点	^{238}U ($\mu\text{g/l}$)	^{234}U (fCi/l)	^{230}Th (fCi/l)	^{226}Ra (pCi/l)
津金楼	0.29 ± 0.02	80 ± 3	110 ± 20	410 ± 30
津金楼下	1.52 ± 0.05	500 ± 2	4.5 ± 0.3	40 ± 4
金泉湯	0.070 ± 0.007	42 ± 4	8 ± 3	100 ± 50

^{232}Th ($\mu\text{g/l}$)	^{228}Ra (pCi/l)	^{228}Th (pCi/l)	^{224}Ra (pCi/l)	^{235}U (fCi/l)
1.1 ± 0.1	120 ± 20	3.6 ± 0.4	710 ± 50	4.2 ± 0.7
0.04 ± 0.02	30 ± 7	1.8 ± 0.2		34 ± 2
0.03 ± 0.02	200 ± 40	2.4 ± 0.5	750 ± 70	1.6 ± 3.3

表2 津金楼試水中の核種の存在比

$A^{234}\text{U}/A^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$	$A^{224}\text{Ra}/A^{228}\text{Th}$	$A^{226}\text{Ra}/A^{238}\text{U}$
0.82 ± 0.05	3.8 ± 0.4	200 ± 30	4200 ± 400

上の表1より増富鉱泉には親核種であるウラン・トリウムはほぼ一般的な天然水程度しか存在せずラジウム等の元素とは非平衡にあり、さらに放射能の源は主にラジウム以下の核種によるものであることがわかった。これらの原因としてラジウムの選択的な溶出がある程度関係しているようである。このことは、 ^{228}Ra の娘核種である ^{228}Th が ^{232}Th よりかなり過剰に存在していることや、上の表2の $A^{224}\text{Ra}/A^{228}\text{Th}$ 、 $A^{226}\text{Ra}/A^{238}\text{U}$ などの値からも理解される。

また津金楼あるいは金泉湯の定量値においては、比較的トリウム壊変系列に属する核種が多いという特徴がある。

URANIUM AND THORIUM IN NATURAL WATER SYSTEM

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University,
Tsuyoshi YAITA, Yuko SAITO, Kan KIMURA

(地質調査所) 金井 豊

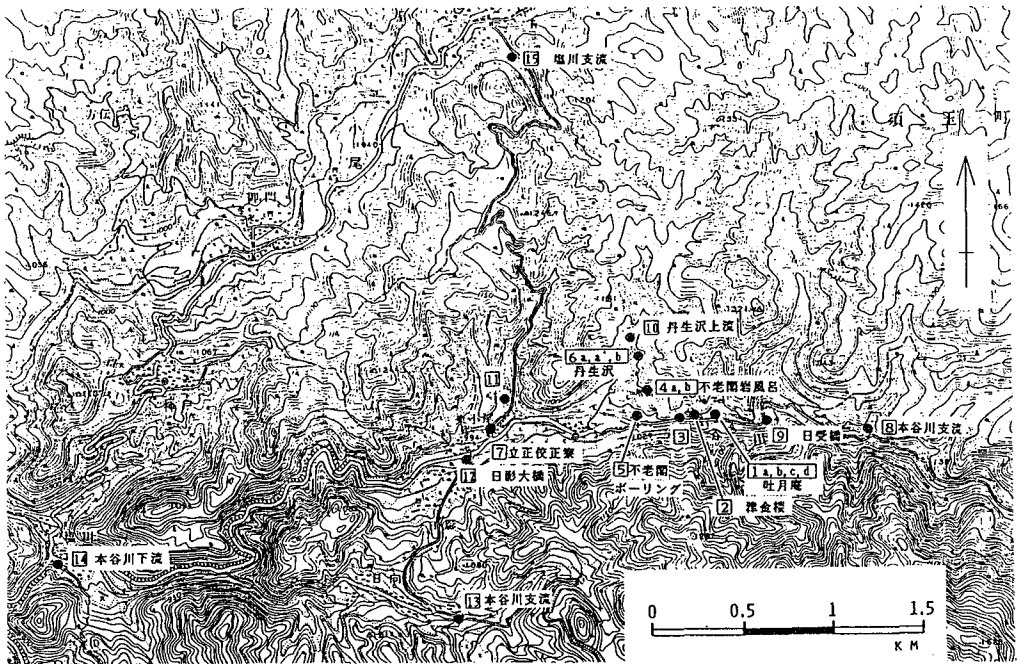
[はじめに]

増富温泉は、武田信玄公の時代に湯治場として利用され始めたといわれているが、石津によってラジウムエマナチオンを多量に含むことが明らかになってから、わが国で最高のラドン含有量を誇る高放射能温泉として有名である。当地域についての研究は古くから中井、黒田、横山、中西、岩崎、杉原など多くの研究者によってなされてきている。しかしながら、ウランについての研究は中西を除いてはほとんどされておらず、またその分析試料数もきわめて少ないため、当地域におけるウランの挙動を明らかにするには不十分である。

本研究では、当地域の湧出水及び河川水を採取し、その中に含まれるウラン・ラジウム・ラドン等のウラン系列核種の分析を行い、ウランをはじめとするウラン系列核種の挙動について検討を試みた。また、湧出地点に堆積した沈澱物も採取してその化学組成を明らかにし、沈澱物の化学組成とウラン系列核種の挙動についても検討を試みた。

[試料及び分析方法]

水質分析用試料の採取地点を第1図に示した。1から7までが湧出水、8から15までが河川水である。沈澱堆積物として、第1図の1吐月庵にて湧出口からの流路に沿って4試



第1図 試料採取地点

かない ゆたか

料、6丹生沢にて同様に流路に沿って6試料、さらに2津金楼の脇にて過去の沈澱物5試料を採取した。また、比較のために1吐月庵の脇にてマサ化した花崗岩を採取した。

溶存ラドンの定量は、現地において1リットルの試料水を分液ロートに取り液体シンチレータを加えた後よく振とうしてラドンを抽出、バイアルに移して実験室に持ち帰り、液体シンチレーションカウンターにて測定を行った。装置には、バックードジャパン社製1550型液体シンチレーションカウンターを使用した。ラジウムは、硫酸バリウムと共沈させた後、EDTAで溶かしキュリー瓶に移して一ヶ月放置、ラジウムとラドンを平衡にして、そのラドンを定量した。ウランは磷酸アルミニウム共沈後、硫酸酸性とし、硫酸型強塩基性陰イオン交換樹脂によってウランを分離精製した。その一部を炭酸ナトリウム・炭酸カリウム・フッ化ナトリウムの融剤でペレットを作り、その蛍光を測定した。装置にはアロカ社製FluorimeterFMT-4Bを使用した。その他の成分は一般の水質分析法に従った。

沈澱物は風乾後、植物破片等を取り除いてから微粉碎し、分析に供した。分析は、重量法(SiO_2)、ICP発光分光法、原子吸光法、イオン交換-蛍光法(U)、キュリー瓶-液体シンチレーション法(Ra)を用いて行った。

[結果と考察]

溶存ラドンは、地点3の津金楼不老閣中間点で578Bq/lと高濃度であったが、7立正佼成寮排出口では、途中で散逸しているためか低かった。ウラン濃度はいずれも低く、ラドンの平衡量の数千分の1程度しか溶存していなかった。ラジウムはウランの平衡量よりも多いが、7立正佼成寮排出口を除いてはいずれもラドンの方が平衡量をうわまっており、黒田が指摘するように湧水の流路途中でラドンの供給がなされているのであろう。ウランは、炭酸イオンと可溶性錯体を形成して溶存していると考えられるが、濃度的にはかなり低いことが明かとなった。

湧水の主成分は、 $\text{Na}-\text{Cl}-\text{HCO}_3$ であり、その中に含まれる鉄はその多くが Fe^{2+} であった。また、流下に伴う温度・酸化還元電位・電気伝導度の減少も認められており、温度低下に伴う溶解度の減少の他に、 Fe^{2+} の空気酸化・ HCO_3 の減少・pHの増大・ Fe^{3+} の沈澱等が連続して起こり、沈澱物が生じているのであろう。丹生沢の湧出口では水酸化鉄の沈澱が主であるが、流下に伴い炭酸カルシウムに変わっていくのが認められた。また、水酸化鉄中の $\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ の増加、 $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{K}_2\text{O}$ 等の減少も認められた。吐月庵では、丹生沢ほど顕著な傾向は見られないが、それは後者よりも流れが速いためであろうと考えられる。

このような沈澱物の中に含まれるウランは少なく、水酸化鉄の沈澱物の方が炭酸カルシウムの沈澱物よりも多いという傾向は必ずしも成り立っていないようである。また、丹生沢の沈澱物では、ラジウムがカルシウムの同族元素であるにもかかわらず炭酸カルシウムの沈澱物よりも水酸化鉄の沈澱物の方がラジウム濃度が高いという傾向にあった。この傾向はバリウムにおいても認められた。

BEHAVIORS OF URANIUM SERIES NUCLIDES IN MASUTOMI SPRING DISTRICT, YAMANASHI PREFECTURE.

Geological Survey of Japan, Yutaka KANAI

1C03 湖底堆積物中の²³⁷Np, Pu同位体, ²⁴¹Amの分布と挙動 -三方五湖-

(金沢大・理・LLRL) ○山本 政儀, 茶谷 和秀, 山内 喜通,
小村 和久, 上野 馨

1)はじめに

核燃料サイクルの本格化に伴い, 超ウラン元素のフィールド研究やそれをシミュレートするための室内研究がますます重要になっている。本研究では, フィールド研究が世界的にも極めて少ないNpについて, この元素の水圏環境における水底への沈積挙動の知見を得ることを目的に, 五湖すべてが異なった形態と水質を有する福井県三方五湖の湖底堆積物コア中のフォールアウト起源の²³⁷Npを同じ起源のPu同位体(²³⁸Pu, ²³⁹, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu), ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs および天然放射性核種である²¹⁰Pbとともに定量し, 考察を行なった。

2)実験

試料は1986年11月に図1に示す日向湖(海水, 最大深度: 40m, 採取深度: 40m), 水月湖(汽水, 34m, 30m), 菅湖(汽水, 14m, 11m)の●印で示す地点でコア試料採取用のエックマン・バージ採泥器(14cm×14cm×25cm)で採取した。船上で3cm毎に分けた後, 実験室に持ち帰り, 110°C乾燥, 粉碎, 混合した。

まず, 試料50gをディスク状(50mmφ×10mm^t)にし, γ線スペクトロメトリーにより¹³⁷Cs, ²¹⁰Pbなどを定量した。その後試料80~120gに²³⁹Np, ²³⁸Pu, ²⁴³Amトレーサーを添加し, 王水溶解→TOA抽出→LaF₃共沈→硝酸系陰イオン交換→酢酸系陰イオン交換によりNpを化学分離・精製しα線スペクトロメトリーにより²³⁷Npを定量した。Pu, Amについては, TOA抽出のさいの水層を用いて, 陰イオン交換(Pu: 硝酸系, Am: 硝酸-エタノール系)により逐次分離・精製を行ない, ²³⁷Npと同様にα線スペクトロメトリーにより²³⁸Pu, ²³⁹, ²⁴⁰Puと²⁴¹Amを定量した。²⁴¹Puは, Pu精製試料の一部を用いて, 液体シンチレーションカウンター(Pu試料1M HCl 5ml + Instagel 95ml:100ml Teflon vial)によるβ線測定により定量した。

3)結果と考察

図2に日向湖, 水月湖, 菅湖の湖底堆積物の²³⁷Np, ²³⁹, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs濃度の深度分布を示す。

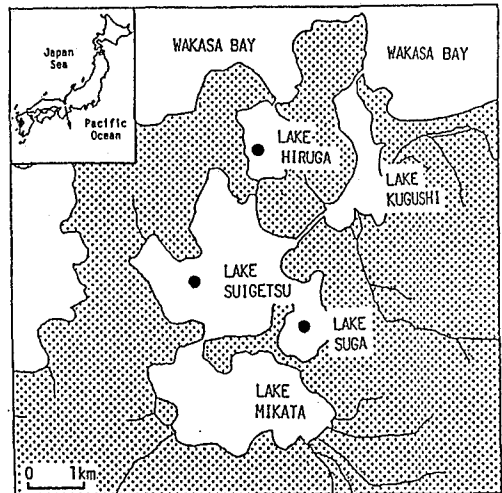


Fig. 1 Sampling locations of sediment cores in the Mikata Five Lakes in Fukui Pref.

やまもとまさよし, ちゃたにかずひで, やまうちよしやす, こむらかずひさ, うえのかおる

堆積物中の深度はcmではなく g/cm^2 単位で示してある。図上部に ^{210}Pb から求めた堆積速度(日向湖: $55mg/cm^2/y$, 水月湖: $37mg/cm^2/y$, 菅湖: $47mg/cm^2/y$)から推定した各コア試料の堆積年代も併せて示した。図からわかるように, いずれの湖底土についても, ^{237}Np が ^{241}Am , $^{239,240}Pu$ と比べて非常に低いレベルであるが検出でき, その深度分布は ^{241}Am や $^{239,240}Pu$ と比較的よく類似している。表1に, 深度分布から求めた各核種の蓄積量とそれらの放射能比をまとめて示した。 ^{237}Np や $^{239,240}Pu$ の蓄積量は日向湖, 菅湖の方が水月湖(部分循環湖)より多いが, $^{237}Np/^{239,240}Pu$ 放射能比は $0.10\sim 0.11\%$ とほぼ一致している。この放射能比はこれまでに測定してきた深さ20mまでの土壌試料についての値 $0.3\sim 0.4\%$ と比べて $1/3\sim 1/4$ であり, Np が Pu にと比べて堆積物に移行しにくいことが示唆される。他の核種間の放射能比は $^{239,240}Pu/^{137}Cs$ 比を除いて, 土壌試料で測定してきた値とよく一致している。

Table 1 Inventories of ^{237}Np , Pu isotopes, ^{241}Am and ^{137}Cs estimated from the sediment cores in Lakes Hiruga, Suigetsu and Suga of the Mikata Five Lakes, and their activity ratios

Nuclides	Lake Hiruga	Lake Suigetsu	Lake Suga
Deposition (MBq/km^2)			
^{237}Np	0.17 ± 0.02	0.11 ± 0.02	0.19 ± 0.03
^{238}Pu	5.94 ± 0.30	4.57 ± 0.47	6.97 ± 0.53
$^{239,240}Pu$	157 ± 4	109 ± 4	163 ± 4
^{241}Pu	555 ± 15	410 ± 16	605 ± 18
^{241}Am	53.3 ± 2.0	31.4 ± 1.2	51.3 ± 1.5
^{137}Cs	409 ± 16	580 ± 10	957 ± 17
Activity ratio			
$^{237}Np/^{239,240}Pu$	0.0011 ± 0.0002	0.0010 ± 0.0002	0.0011 ± 0.0002
$^{238}Pu/^{239,240}Pu$	0.038 ± 0.002	0.041 ± 0.004	0.042 ± 0.003
$^{241}Pu/^{239,240}Pu$	3.53 ± 0.13	3.76 ± 0.20	3.71 ± 0.14
$^{241}Am/^{239,240}Pu$	0.34 ± 0.01	0.29 ± 0.02	0.31 ± 0.01
$^{239,240}Pu/^{137}Cs$	0.38 ± 0.02	0.19 ± 0.01	0.17 ± 0.01

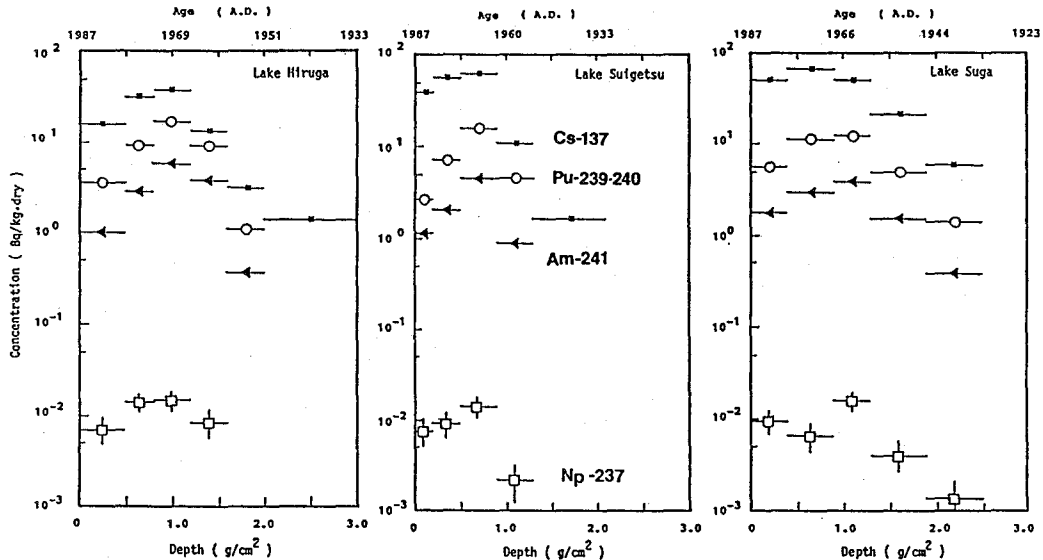


Fig. 2 Depth profiles of ^{237}Np , $^{239,240}Pu$, ^{241}Am and ^{137}Cs in sediment cores.

DISTRIBUTION AND BEHAVIOR OF ^{237}Np , Pu ISOTOPES AND ^{241}Am IN SEDIMENT CORES FROM MIKATA FIVE LAKES

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University
 Masayoshi YAMAMOTO, Kazuhide CHATANI, Yoshiyashu YAMAUCHI, Kazuhisa KOMURA
 and Kaoru UENO

1C04 外洋海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am の限外ろ過

(金沢大・理) 中西 孝、○佐藤光吉

【はじめに】 空中核実験に由来する $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の深度分布を現在の外洋において測定すると、海域により差はあるが、大抵の場合、海面下300~800mに1つの濃度極大を持つ分布パターンを示す。そして、海水柱の中の全 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am の半分以上はまだ1500m以浅の層に存在している。今後、この深度分布がどのように変わっていくのかということは、海洋にもたらされたPuやAmがどのようなタイムスケールでどのように海洋で循環し、海水中から海底堆積物に除去されるのかという観点から重要であり、観測を今後も継続しなければならないが、一方で、PuやAmがどのような物理・化学的形態をとっているのかという面の知見の蓄積は、Pu、Amの海洋での循環や除去過程を将来的に予測したり、海水循環のトレーサとしての利用の可否を判断する上で重要である。

そこで本研究では、外洋海水中の、とくに濃度極大部分の、 $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am が溶存種であるのか、あるいはコロイド的ないしは懸濁粒子吸着態であるのかを限外ろ過法により検討してみた。

【実験】 今回限外ろ過法による検討を試みた海水は、東大海洋研・白鳳丸のKII-87-2次研究航海のさいに、 $25^{\circ}15'N$ 、 $124^{\circ}30'E$ (南西諸島・石垣島北方、東シナ海南端)において採取されたものである。深度別に採取された大量海水(約250ℓ/試料)から、深度700m層のものを約60ℓ分取し、これを更にほぼ3等分して(①、②、③とする)以下の実験を行った。700m層を選んだ理由は、 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の濃度極大層をそこに予想したからである(実際は約400m層であったことが後に判明)。

まず①(17.3ℓ)については、全 $^{239,240}\text{Pu}$ 、全 ^{241}Am 濃度定量用とし、採取後ただちにHClでpH~2とし、 Fe^{3+} 150mg、 ^{242}Pu トレーサー3.68mBq、 ^{243}Am トレーサー3.58mBqを添加し、約6h放置後アンモニア水でpH~8とし、鉄共沈法によりPuとAmを予備濃縮した。

②(21.3ℓ)は、ADVANTEC UH-1限外フィルター(公称の分画分子量 10^3 、150mmφ)により、 $3\text{kg}/\text{cm}^2$ の加圧を行って限外ろ過を行った(ろ過速度~0.2ℓ/h)。ろ過された海水は①と同様に処理した。ろ過に使用したフィルターは小片に切断し、トレーサーを添加してc.HNO₃で煮沸した後上澄みを分離し、 Fe^{3+} を加えて鉄共沈を行った。限外ろ過前の海水を入れていたポリエチレン容器および限外ろ過後、フィルターを取り去ったろ過器はそれぞれd.HClで洗浄し、それぞれの洗液について①に準じた処理を行った。

③(20.3ℓ)については、ADVANTEC UK-10限外フィルター(公称の分画分子量 10^4 、150mmφ)により、 $3\text{kg}/\text{cm}^2$ の加圧下で限外ろ過を行った(ろ過速度~2ℓ/h)。ろ過海水、フィルター、ろ過前海水用ポリエチレン容器、ろ過器の処理等は②の場合と同様に行った。

鉄共沈法により予備濃縮されたPuとAmは、陰イオン交換樹脂カラム法により分離・精製し、電着線源のα線スペクトロメトリーを行って $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am を定量した。

なかにし たかし、 さとう みつよし

【結果と考察】 わずか20ℓの海水でも限外ろ過には長時間を要した。一方、比較的^{239,240}Pu、²⁴¹Am濃度の高い海水を用いたが、20ℓ程度の海水量では、これらの核種の定量のためのα線スペクトロメトリーにおいてもかなり長時間を要した。

得られた結果を Tableに示す。全^{239,240}Pu濃度は38.1μBq/ℓであり、全²⁴¹Am濃度は18.5μBq/ℓであった。したがって、²⁴¹Am/^{239,240}Pu放射能比は約0.49で、フォールアウトの値としてはほぼ妥当である。

フィルターに捕捉されたり、容器等に吸着した分の評価をまだ完全には終わっていないが、^{239,240}Puについては公称の分画分子量 10^3 の限外フィルターをもほぼ100%通過し、海水柱の濃度極大層のPuは低分子量の化学種などみかけ上溶解態とされるものであることが分かった。フォールアウトPuは海水中から除去されにくいことを予測させる反面、海水循環のトレーサーとして利用し得ることを示すと考えられる。

一方、²⁴¹Amは^{239,240}Puにくらべて限外ろ過に対する挙動のみならず容器等への吸着挙動においてもかなり複雑であることが分かった。フィルターに捕捉されたAmはフィルターに捕捉されるような粒子吸着態で海水中に存在する可能性以上に、ろ過中にフィルターに吸着した可能性がある。このことは反面で、海水中のAmの定量において、海水中のAmを比較的単純な吸着捕集法で海水から直接予備濃縮できる可能性を示唆するとも考えられる。

なお、KH-88-3 次研究航海（北部および東部北太平洋、ベーリング海）においても同様の実験を行ったので、その結果についても若干報告したい。

Table Ultrafiltration of ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am in seawater (25°15.3'N, 124°30.2'E)

^{239,240} Pu 38.1±4.1 μBq/l (≒ 100%)	seawater		²⁴¹ Am 18.5±2.9 μBq/l (≒ 100%)	seawater	
	20.3 l UK-10	21.3 l UH-1		20.3 l UK-10	21.3 l UH-1
in filtrate	107 ± 19 %	98 ± 15 %	in filtrate	14.8 ± 6.8 %	24.5 ± 6.0 %
on filter			on filter	31.9 ± 7.4 %	38.4 ± 9.3 %
adsorbed on container			adsorbed on container	34.6 ± 6.3 %	35.7 ± 7.1 %
adsorbed on filter cell			adsorbed on filter cell	< 10 %	< 10 %

ULTRAFILTRATION OF ^{239,240}Pu AND ²⁴¹Am IN THE OPEN OCEAN WATER

Faculty of Science, Kanazawa University

Takashi NAKANISHI, Mitsuyoshi SATOH

1C05 液シンからの α 計数時間相関を利用したTh系列核種の新しい絶対測定法について

(新潟大・理) 橋本哲夫・〇久保田知明・野中雅史・羽広綾子・酒井裕二

1. 環境放射能測定や放射年代測定などにおいては、対象となる試料中の微量のU、Thの絶対量を個別に求める必要のある場合が多い。従来、微量のU、Thの定量には、化学分離操作を伴う α 線スペクトロメトリーや中性子放射化分析法が用いられてきたが、これらは複雑な操作や原子炉などの大規模な設備を必要とする。そこで、本研究では昨年を引き続き、検出効率で有利な液体シンチレーション法を利用し、 α 計数の時間相関を用いた新しいTh系列核種の絶対測定法について検討し、開発した方法につき天然試料への応用も試みたので以下報告する¹⁾。

2. Th系列中での $^{220}\text{Rn}(55.3\text{s}) \rightarrow ^{216}\text{Po}(0.145\text{s}) \rightarrow ^{212}\text{Pb}$ の比較的短時間に連続して起こる α 壊変事象のみを、時間間隔分布から特異的に抽出測定し、その結果得られる ^{220}Rn 成分の定量値からTh系列の絶対測定を行おうとするのが時間相関法である。

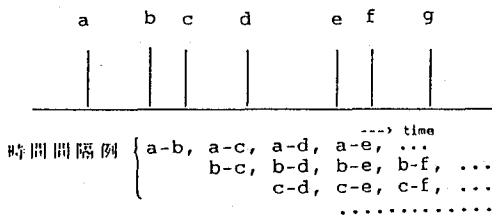


図1. 多重時間相関法の原理

従来の報告では、隣接2事象間だけの時間間隔を対象にしていたが、この場合指数関数を有する目的事象の時間間隔分布(以下タイムスペクトルと呼ぶ)は、同様に指数関数を示すランダムなバックグラウンド事象と重なり合う。その結果、相関事象とバックグラウンド事象との区別が特に高計数率試料では困難となり、信頼性のある絶対量を求めることが不可能であった。そこで今回は、これらの点を改良することを目指した。時間間隔を図1のようにとることにより、全てのランダムな事象の頻度は時間間隔によらず一定値となる。ランダムなバックグラウンド事象中に指数関数を示す相関事象が混在する時のタイムスペクトルは次式で与えられる。

$$y(t) = B + A \exp(-\lambda t) \quad \text{--- ①}$$

- t : スタートとストップまでの経過時間(時間間隔)
- y(t) : 経過時間tでの積算計数值
- λ : ^{216}Po の壊変定数, A : ^{220}Rn の絶対壊変率
- B : ランダムな事象によるバックグラウンド

実測されたタイムスペクトルを①式にフィッティングすることで、定数Aから ^{220}Rn の絶対壊変率が求まることになる。

測定装置は低バックグラウンドLSC、MCA、タイムアナライザー、マイクロコンピュータから構成されている。シンチレーター発光に伴うMCAのSCA出力からの信号をマイコンに入力し、事象の発生時間をすべて記録する。測定後得られた時間データを時間間隔に変換することによりタイムスペクトルを計算する。

はしもとてつを、くばたともあき、のなかまさふみ、はびろあやこ、さかいゆうじ

3. 娘核種と放射平衡にある ^{232}U を液体シンチレータ(Aquasol II)と混合したものを測定試料とし、 ^{232}U の絶対量を変えて測定したところ、図2に示すように実験値は広い範囲で含有放射能強度とよく一致しており、また、Th系列以外の核種を含む場合においても、 α スペクトロメトリの結果とよく一致していた。

次に天然試料への応用として、強放射能温泉として知られている秋田県玉川温泉水中の ^{224}Ra 及び ^{228}Th の定量に適用を試みた。この温泉水の採取を上流から下流まで数地点において行い²⁾、試料水45mlとシンチレータ55mlの測定用試料について本測定法を適用した。得られたタイムスペクトルの一例を図3に示す。測定時間を変化させることによる測定値の違いを調べた結果、 10^{-2}Bq (45ml中)程度の ^{224}Ra 含有水については5000秒から50000秒までほぼ一致した値を与えていることが分かった。当方法で壊変を追っていくことにより玉川温泉水には ^{224}Ra 成分が見い出されたので、放置時間を変えた二回測定により、各採取地点における $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Th}$ の比を求めることができた。

現在、さらに天然試料への応用を引き続き検討中である。

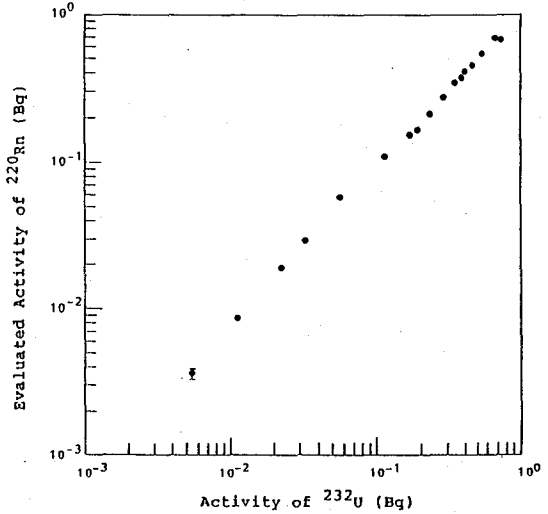


図2. 時間スペクトルから求めた ^{220}Rn の放射能強度

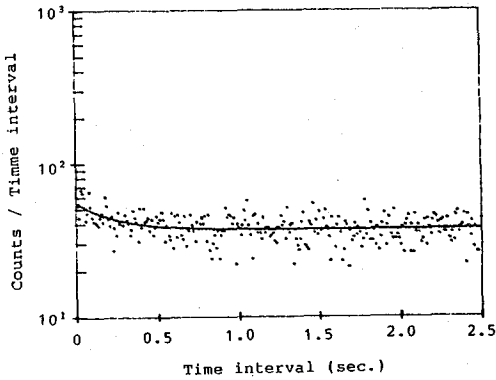


図3. 玉川温泉水からのタイムスペクトル

- 1) Hashimoto, Sakai : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 印刷中.
- 2) 橋本、増村、高橋、外林 : Radioisotopes, 31, 331-337(1982).

A NEW DETERMINATION METHOD OF TH-SERIES USING TIME INTERVAL ANALYSIS COMBINED WITH LIQUID SCINTILLATION DETECTION FOR ALPHA-PARTICLES

Faculty of Science, Niigata University,
Tetsuo HASHIMOTO, Tomoaki KUBOTA, Masafumi NONAKA,
Ayako HABIRO and Yuji SAKAI

(新潟大・災害研, 新潟大・理*) ○仲川隆夫・橋本哲夫*

1. 水中の ^{222}Rn はトルエンやキシレンのシンチレーターに抽出後、液体シンチレーションカウンター (LSC)によって定量する方法が一般的であるが、操作や補正の煩雑な点・ ^{222}Rn の回収率の再現性などに問題があった。これらの点を解決することを考え、近年普及してきている 100mlまでの大容量バイアルを使用できる低バックグラウンド仕様の LSCを使用して、 ^{222}Rn を含む試料水を前処理なしに乳化シンチレーターに混入後、マルチチャンネルアナライザ (MCA)を接続した LSCで測定する ^{222}Rn 濃度の直接測定法を検討した。

2. 測定装置は、1024チャンネルの MCAを接続した低バックグラウンド仕様のLSC(Aloka, LSC-LB1), パーソナル・コンピュータ(PC-9801) から構成されている。試料水は、新潟県内の地すべり地等で地下水を採取した。採取した試料水は、酸素びんに気泡をたてないように静かに取り、氷冷しながら低温下で速やかに実験室に持ち帰った。前処理なしの試料水50mlと液体シンチレーター(Packard社のPico-Fluor LLT)を50ml取り、100ml のテフロンバイアルで混合後、放射平衡に達するまで4時間以上、LSCの測定温度である約12℃の冷蔵庫内で放置したものを測定試料とした。測定時間は、100秒~80,000秒の範囲内であった。MCAで測定したデータをPC-9801に転送後、計数・図化処理をおこなった。なお、実験に用いた試料水の電解質濃度の範囲内では、測定に不都合な白濁・分離等の現象は見られなかった。

3. 測定の結果、Fig.1のような波高分布をもつ2個の幅広い α 線由来のスペクトルが得られた。これらのピーク面積の壊変を追うと、半減期は3.823日となり ^{222}Rn のそれと一致することや ^{222}Rn を含むことが確認されている実験室内の大気を液体シンチレーターに吸引後、測定すると同様なエネルギーをもつピークが出現することから、これらのピークは ^{222}Rn とその娘核種 ^{218}Po , ^{214}Po に由来することがわかった。液体シンチレーション法による α 放射体の計数効率ほぼ100%であることが知られているので、バックグラウンドを差し引いたピーク面積から試料水中の ^{222}Rn 濃度をただちに求めることができる。

直接法では試料水を前処理なしで液体シンチレーターと混合するために、試料水の溶存成分・着色や濁りによる種々のクエンチング(化学クエンチング, 色クエンチング等)によって測定が不可能になることが考えられる。水自体が弱いクエンチャーであることに着目し、含水量を変化させて、測定に与えるクエンチングの影響

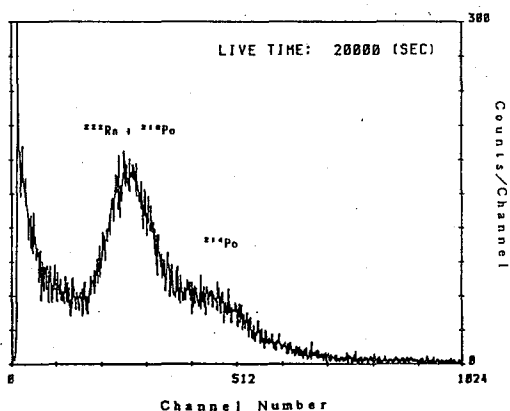


Fig.1 液体シンチレーションスペクトルの例
新潟県長岡市蓬平地すべり地で採水

なかがわたかお, はしもとてつを

響を調べた。クエンチングの程度は、 β 線による寄与を除いた α スペクトル（バックグラウンドを含む）の重心チャンネルで表した。Fig. 2に含水量とスペクトルの重心の関係を示す。含水量の増加に伴って重心は低エネルギー側へシフトし、含水量との間に一次の相関が認められる。しかし、LSC-MCA システムによる α 放射体の定量では、クエンチングを起こした試料についてもスペクトル上でピークの全面積が得られる限り測定が可能であるという利点を持っている。これまでに測定をおこなった範囲内では、クエンチングのために測定不能となった例を経験していない。

また、Fig.2の測定例では、同一地点の地下水を別々の酸素ビンに入れて持ち帰ったものについて、それぞれ異なった含水量で測定試料を作成した。採水時に換算した ^{222}Rn 濃度は互いに一致しており、本法の再現性の良さを示している。Fig.3に、50mlの試料水を直接法で測定した場合の測定誤差（ ^{222}Rn 濃度の相対誤差）と測定時間との関係を示す。100分測定の場合、20pCi/lの ^{222}Rn 濃度を相対誤差5%以下で測定可能となることがわかる。さらに、直接法の検出限界を α 放射体を含まないバックグラウンド水を測定した時の計数誤差（ 3σ ）から算出すると、試料水50mlで100分測定の場合約2pCi/lとなり、この時の相対誤差は約12%である。

4. 直接法の利点は、従来のトルエン等を用いる抽出法での操作の煩雑さと ^{222}Rn 回収率の問題を解決すること、MCAを用いるために ^{222}Rn やその娘核種以外の α 放射体の混入をチェックでき、測定結果の信頼性を向上できることにある。直接法の欠点である試料水の電解質濃度、着色や濁りの問題については、実験をおこなった範囲内の試料水では測定可能であったことから、多くの天然水について直接法の適用が期待できる。

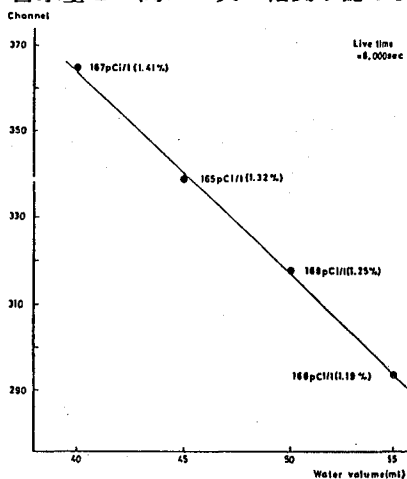


Fig.2 含水量とスペクトルの重心の関係 100分測定。採水時に換算した濃度と相対誤差(%表示)を示す。

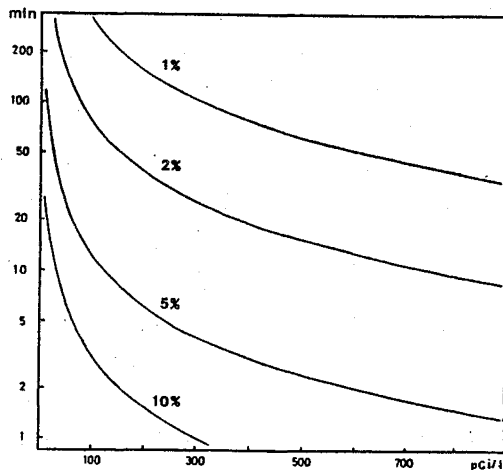


Fig.3 測定時間と測定誤差の関係 50mlの試料水を測定した場合

DIRECT DETERMINATION OF ^{222}Rn CONCENTRATIONS IN NATURAL WATERS USING LIQUID SCINTILLATION COUNTING TECHNIQUE

Research Institute for Hazards in Snowy Areas, Niigata University, Takao NAKAGAWA, Faculty of Science, Niigata University, Tetsuo HASHIMOTO

1. はじめに ICP質量分析法は、検出限界が低いこと、測定が簡便で迅速であることから、応用が急速に拡がりつつある。本法では複雑なスペクトルの重畳による妨害はなく、主なバックグラウンド質量ピークは100a.m.u以下に存在するので、重元素の定量に特に有利である。当グループでは、放射線影響の観点から、人体・食品試料中の放射性核種の分析を行ってきており、Th-232やU-238のような長半減期核種への本法の適用を検討してきた。本法では極低レベルのThやUを容易に測定できるが、他の元素がある濃度以上で混在すると、シグナル強度の増大や抑制が生じる(マトリクス効果)。これについては、なお不明な点が多い。これらの点を踏まえて本研究では、内標準法、分離法等を検討し、生体試料中のTh-232、U-238を定量した。

2. 装置・試料 装置は、VG Isotopes Plasma Quad PQ2 Plus を用いた。試料は、米国NBS SRM生物試料、国立公害研CRM生物試料と所内標準(Human Bone)である。試料は乾式灰化後、高純度硝酸(多摩化学 TP AA-100)等で湿式分解を加え溶液化し、適宜希釈して用いた。測定に際しては、1M硝酸溶液とした。

3. 内標準元素の選定 Th,Uと類似した挙動を示す元素を知る為、種々の希釈段階のNBS Human Lung溶液にIn,Tb,Ho,Tl,Bi,Th及びUを添加して連続測定を行い、各々のシグナル強度の時間変動を観測した。結果の一部をFig.1に示す。マトリクス濃度が低い溶液では、時間経過に伴いシグナル強度が上昇する傾向があり、質量依存性があるように思われる。1000ppmの濃度の試料では、サンプリングコーン等へマトリクス元素が沈着して、目詰まり現象が発生し、シグナルが劇的に減少した。Fig.2にTh,Uと各元素のシグナル比の時間変化の典型例を示す。比は、Th,Uのいずれについても増加傾向を示したが、その割合は質量に反比例した。Tl,Biの強度比は変動が小さく、Th,Uとよく似た挙動をとることがわかった。以上の結果より、Th,Uに質量の近いTlまたはBiを内標準とし補正を行うのが適当と結論された。

4. 内標準法による生物試料中のTh-232,U-238の定量 TlおよびBiを、標準試料、各測定試料に100ppb添加して、Th-232,U-238の定量を行った。測定時間は約1分間で2ないし3回の繰り返し測定を行った。Table1に、TlまたはBiで内標準補正を行って得られた定量値を示す。Tl,Biによる定量値はお互いに良く一致しており、また文献値とも一致する。従って、本法は生物試料の分析に充分応用できる。

5. イオン交換分離を用いた測定等 Human Lung, Human Boneについてマトリクス元素を硝酸-メタノールあるいは塩酸-メタノール系を用いた陰イオン交換法で除去し、Th,Uの定量を試みた。硝酸系でThが、塩酸系でUが捕集される。本法では鉄が混入してくるが、内標準のTl,Biのシグナル強度をモニターした結果ではマトリクス効果は認められなかった。但し、回収率の点でまだ問題があり検討を要する。この他に、標準添加法による定量、 α 線スペクトロメトリーによる定量法との比較を現在検討している。

いがらしやすひと、かわむらひさお、しらいしくにお、たかくゆういち

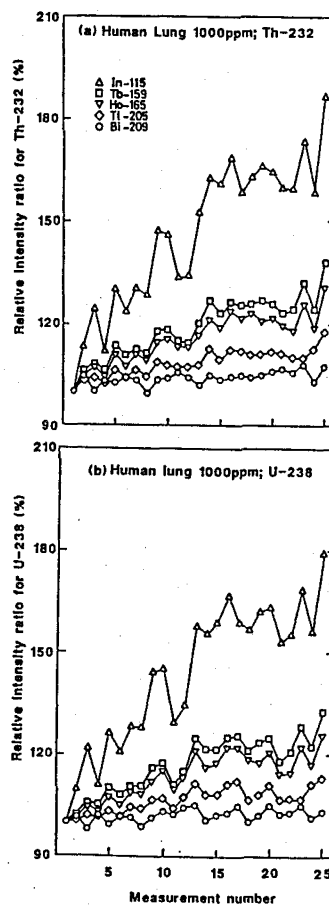
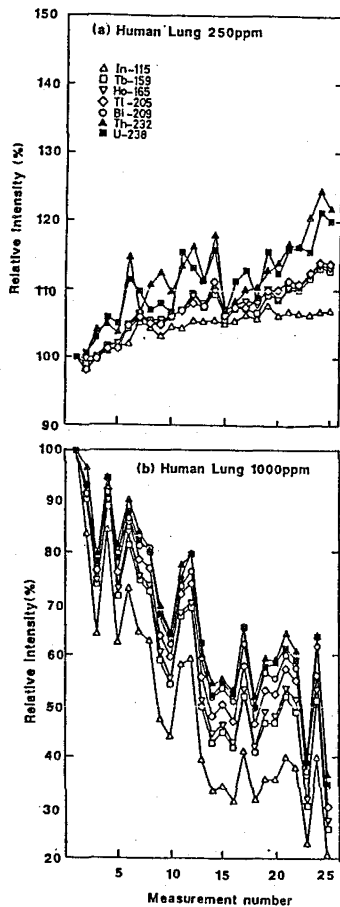


Fig. 1 Time variation of signal intensity Fig. 2 Time variation of signal intensity ratio;
(a) Th-232/M (b) U-238/M (M is the element tested)

Table 1 Th-232 and U-238 concentrations in biological samples

Sample	n	In.Std.	Observed Concn. (ppb)		Literature Value (ppb)	
			Th	U	Th	U
Orchard Leaves	2	Tl	68.1 ± 0.1	32.7 ± 2.3	64	29
Bovine Liver	2	Bi	66.5 ± 0.7	31.9 ± 1.9	-	0.71
Mussel	3	Tl	3.45 ± 0.28	0.87 ± 0.02	-	0.71
		Bi	3.55 ± 0.36	0.89 ± 0.00	-	0.71
	3	Tl	45.6 ± 1.0	100 ± 1	39,40,41	77
		Bi	43.7 ± 0.5	96.5 ± 2.9	-	-
Chlorella	3	Tl	8.73 ± 0.41	139 ± 3	5.6	130
		Bi	8.67 ± 0.24	136 ± 1	-	-
Human Bone	3	Tl	166 ± 21	58.2 ± 3.9	-	-
		Bi	172 ± 16	60.2 ± 5.4	-	-
Human Lung	3	Tl	40.4 ± 1.8	7.80 ± 0.38	52	8.1
		Bi	40.2 ± 1.1	7.77 ± 0.25	-	-

DETERMINATION OF Th-232 AND U-238 IN BIOLOGICAL SAMPLES BY INDUCTIVELY COUPLED PLASMA - MASS SPECTROMETRY

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences,
Yasuhito IGARASHI, Hisao KAWAMURA, Kunio SHIRAISHI
Marubun Corporation, Yuichi TAKAKU

(都立大・理、多摩化学工業^{*}) ○海老原 充、篠永妙子、中原弘道、
清水俊平^{*}、長 連英^{*}、村上悠紀雄^{*}

はじめに

^{129}I は原子力発電所等の原子力利用施設から大気中に放出される代表的な放射性核種である。その半減期が 1.6×10^7 年と長いために、徐徐にはあるが ^{129}I の量は地球規模で確実に増加していると指摘されている。一度大気中に放出された ^{129}I は地上に降下し、長い年月とともに地上の安定ヨウ素と同一の地球化学的挙動をとるに至る。そしてその一部は食物連鎖から人体に摂取され、主として甲状腺に蓄積される。 ^{129}I による体内被曝を正しく評価するためには、環境試料や生体試料中の ^{129}I の比放射能を知る必要がある。 ^{129}I の比放射能を求めるためには、 ^{129}I の放射能測定に加えて、安定ヨウ素を正確に定量する必要がある。

ヨウ素の分析法としては、重量分析法、容量分析法、比色分析法、イオン電極法等、これまで多くの方法が報告されてきた。しかしヨウ素含有量の小さい試料の分析にはこれらの方法は適さず、中性子放射化分析法がほとんど唯一の分析法として利用されている。ヨウ素の安定核種は ^{127}I のみであり、熱中性子吸収断面積(6.2バーン)に比べて熱外中性子に対して大きな共鳴積分値(150バーン)を持つ。従って、非破壊分析(INAA)においても、たとえばカドミウムなどの熱中性子フィルターを用いて試料を照射することにより、ヨウ素の検出限界を下げる事が可能となる。

本研究においては、まずいくつかの生体標準試料についてINAA法によりヨウ素の定量を行なった。この際、カドミウム・フィルターを用いる場合と、用いない場合の両方を試み、定量値や誤差等を比較した。次いで、前濃縮法とINAA法を併用した生体試料中の微量ヨウ素の定量法を開発すべく、種々の検討を行なった。前濃縮法では試料の分解が重要な操作となる。試料、特に生体試料の分解法としては酸とアルカリによる方法が用いられるが、ヨウ素などの揮発性の高い元素を分析する場合、酸による分解は目的元素の揮散の可能性があり、適さない。アルカリを用いて分解する方法ではこの様な可能性は小さいとされるが、アルカリ融剤を用いて溶融する方法では開放系で加熱する必要があり、揮散の可能性については常に留意する必要がある。本研究ではアルカリ溶融の代わりに、アルカリで温浸分解する方法を用いた。使用した試薬は多摩化学工業(株)の高純度四メチル水酸化アンモニウム(Tetramethylammonium Hydroxide, 以下TMAHと略記する)で、常温での分解のほか、閉鎖系で加熱する、いわゆる加圧分解法についてもヨウ素の揮散という観点から検討した。

非破壊中性子放射化分析 (INAA)

国立公害研究所で調製・配布されている環境標準試料のうち、ムラサキイガイ(mussel)、ホンダワラ(sargasso)についてそのヨウ素含有量をINAA法により求めた。量を変えた3種類の試料をそれぞれ作製し、標準試料とともにカドミウム・キャプセルに入れ、立教大学原子力研究所のTRIGA II

えびはら みつる、しのなが たえこ、なかはら ひろみち、しみず しゅんぺい、
ちよう つらひで、むらかみ ゆきお

型原子炉のF孔(熱中性子束=1.5 X 10¹² cm⁻² sec⁻¹)で2~5分間照射した。分析結果の一部を表1に示す。表1ではヨウ素の定量値のほか、計測誤差(1σ)、文献値も併せて示した。両試料とも得られた定量値の再現性は高く、それぞれの平均値はともに文献値と良い一致を示した。本実験結果より、数ppm程度のヨウ素含有量をもつ試料についてはカドミウム・フィルターを用いるINAA法により十分定量可能であると考えられる。

Table 1 Iodine in NIES reference samples

sample	amount/mg	I/ppm	error/X	literature value/ppm
Mussel	52.0	5.8	3.2	
	98.2	5.3	2.9	4.2±1.3
	190.1	5.4	2.2	
Sargasso	9.7	558	0.6	
	20.9	528	0.4	520±20
	32.8	531	0.4	

TMAH分解法に伴うヨウ素の揮散の検討

ヨウ素の放射性トレーサー ¹³¹I (半減期: 8.04d)を用いて、TMAH試薬による生体試料分解時のヨウ素の揮散について検討した。

試料(ムラサキガイ)100mgをテフロン製分解容器にとり、TMAH試薬2mlと約10000Bqの無担体

¹³¹Iを加え、分解時間と分解温度を変化させて、ヨウ素の揮散の程度を調べた。実験条件、及び結果を表2に示す。表2で明らかのように、今回試みたずれの実験条件

Table 2 Recovery of iodine after TMAH-digestion

Exp. #	temp./°C	duration time/h.	open (o) or closed (c)	recovery/%
1	90	3	c	99.9
2	r. t.	18	c	101.4
3	r. t.	18	o	101.4
4	r. t.	46	c	101.0
5	r. t.	46	o	101.7
6	90	18	c	101.1
7	90	46	c	100.4
8	150	18	c	101.9

下でもヨウ素の揮散は認められず、* r. t. room temperature TMAH試薬の有効性が確かめられた。

前濃縮法とNAA法による生体試料中の微量ヨウ素の定量

TMAHによる試料の分解、溶媒抽出によるヨウ素の前濃縮とNAA法を組合わせた生体試料中の微量ヨウ素の定量法を開発すべく、種々の検討を加えた。実験法の概略は以下の通りである: 試料分解後、硝酸でpH1-2にし、亜硫酸ナトリウムを加えて短時間振りまぜる。次いで亜硝酸ナトリウムとベンゼンを加え、有機層にヨウ素を抽出する。水層を棄て、有機層に亜硫酸水素アンモニウム水を加え、ヨウ素を水層に逆抽出する。水層の一部をとり、NAA法によりヨウ素を定量する。前濃縮段階でのヨウ素の損失は予め既知量の無担体 ¹³¹Iを加えることにより補正する。現段階ではベンゼン層へのヨウ素の抽出率が約10%と小さく、定量値を求めるに至っていない。定量的な抽出が実現できるよう、各段階での実験条件を詳細に検討中である。

NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF IODINE IN BIOLOGICAL MATERIALS USING TMAH-DIGESTION METHOD

Faculty of Science, Tokyo Metropolitan Univ., Mitsuru EBIHARA, Taeko SHINONAGA
Hiromichi NAKAHARA,
Tama Chemicals Co., Ltd., Shunpei SHIMIZU, Tsurahide CHOU, Yukio MURAKAMI

はじめに

放射性核種に対して吸着性を有する物質を粒状あるいは繊維状の保持体に付加することにより試水中からの分離を効率よく行うことが出来る。¹⁾

さきに、放射性ヨウ素に対して吸着性を有することが知られている銀あるいはその化合物を粒状のイオン交換樹脂あるいは非イオン性樹脂(XAD樹脂)に付加した“吸着体”の作成法について予備的な検討を行った。その結果、金属状銀あるいは塩化銀、ヨウ化銀を付加した“吸着体”は水溶液中の放射性ヨウ素(I⁻)に対して吸着効果のあることが示された。²⁾

ヨウ素は多くの化学形を示すことが知られている。環境試料(水溶液)中で放射性ヨウ素はI⁻とともにIO₃⁻が重要な化学種であり、³⁾また、Biと形成する陰イオンBiI₄⁻は分光化学的に利用される興味のある化学種である。本実験では、引続きこれら化学種の吸着挙動を調べた。

また、最近Ag, Cu, Pb形にしたclinoptiloliteが放射性ヨウ素(I⁻)に吸着性を示すことが報告⁴⁾されているが、本実験でもAg形の陽イオン交換樹脂への吸着効果を調べた。

実験および結果

1. “吸着体”の作成

i) 陽イオン交換樹脂(R⁺)を保持体とする場合 — Dowex 50W, Amberlite 200C等を銀イオン形(R-Ag)にしたのち塩化物溶液を加えると塩化銀が樹脂の網目構造内に沈殿する(“(AgCl)R⁺”)。これを還元して黒色金属銀を生成させる。

ii) 陰イオン交換樹脂(R⁻)を保持体とする場合 — Dowex 1, Amberlite IRA-904等を塩素イオン形(R-Cl)にしたのち硝酸銀溶液を加えると塩化銀が樹脂粒内に沈殿する(“(AgCl)R⁻”)。これを還元して“(Ag)R⁻”を作成する。

iii) 非イオン性樹脂(R)を保持体とする場合 — Amberlite XAD-2, XAD-7を硝酸銀溶液に浸漬したのち、還元して金属銀を生成させる(“(Ag)R”)。

イオン交換樹脂の場合も iii)と同様の方法で作成することができる。

2. 吸着実験

吸着の基礎データはバッチ法で求めた。すなわち¹²⁵Iを含む各種水溶液10mlに0.1gの“吸着体”を加えて振り混ぜ、一定時間経過後水溶液相あるいは樹脂相の放射能を測定して吸着の程度を調べた。

3. 結果

得られた結果の一部を略記する。

i) AgあるいはAgCl, AgIの付加: イオン交換容量あるいは空間容量の大きいもの程付加量は大きい。イオン交換樹脂の場合にはくり返し付加が可能である。非イオン性樹脂はXAD-2に比し親水性で空間容量の大きいXAD-7の方が付加量が大きい。

いまいきよこ, わたりかずお, しぼたただお, とみたたけし, いざわまじみ

ii) ^{125}I の吸着:

(a) 陽イオン交換樹脂; 図1に, Amberlite 200C のNa形 (R-Na) および Ag形 (R-Ag) への ^{125}I の吸着を示す。Ag形とすることにより ^{125}I は陽イオン交換樹脂にも吸着されるようになる。また, ^{125}I の定量的な吸着には適量の I 担体が必要なことも示された。なお $^{125}\text{IO}_3$ は Na形, Ag形いずれにもほとんど吸着されない。

200C に AgCl , AgI および Ag を付加した吸着体 (" AgCl) $\cdot\text{R}^{\oplus}$ ", (" AgI) R^{\oplus} ", (" Ag) R^{\oplus} ") には ^{125}I はいずれも約80%の吸着を示す。

(b) 陰イオン交換樹脂; ^{125}I は Dowex 1x8, IRA-904 の Cl形, I形に約95%が吸着される。これに AgCl , AgI , Ag を付加することによりいずれもほぼ定量的に ^{125}I が吸着されるようになる。しかし, IO_3^- の吸着は I^- に比べて小さい。

(c) 非イオン性樹脂: XAD-7 への I^- , IO_3^- の吸着は小さいが, ^{125}I (I^-) は AgCl , AgI , Ag を付加することにより80~95%が吸着されるようになる。

iii) BiI_4^- の吸着:

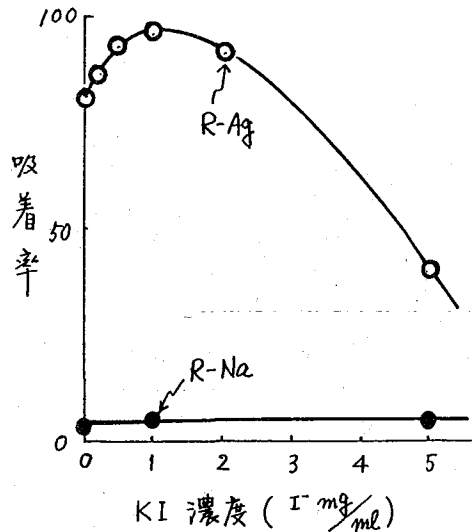
陽イオン交換樹脂や非イオン性樹脂には陰イオン種は一般に吸着されない。しかし, ヨウ素がビスマスと生成する陰イオン種 BiI_4^- はこれらにも吸着されることが示された。とくに, XAD-7 へは高い吸着性を示し, KI 濃度 0.01~0.1 M で 10^3 を超える分配係数値が得られた。

水中の放射性ヨウ素の捕集, とくに多量処理や迅速性が要求される場合には, 粒状吸着体を利用するのが有利であるのでカラム法による捕集も試みた。

また, 溶液の種類, 共存物質の影響, 吸着体の安定性等についても検討を加えた。

なお, 保持体として巨大網状構造のイオン交換樹脂を用いれば, 2種類以上の吸着物質を付加することも可能である。さきに金属銀とフェロシアン化銅の2種の吸着性物質を多重付加することにより, 放射性ヨウ素 (I^-) と放射性セシウムの同時吸着について報告したが, 他核種の吸着についても検討を加えた。

図1. 200C への ^{125}I の吸着。



文献

- 1) 渡利一夫; *Radioisotopes* 32, 567 (1983)
- 2) 今井靖子他; 日本放射線影響学会第30回大会 1987. 11.
- 3) Y. Muramatsu et al.; *J. Radiat. Res.*, 28, 326 (1983)
- 4) G. D. Grader; *J. Radioanal. & Nucl. Chem.*, 116(2), 341 (1987)

ADSORPTION BEHAVIOR OF RADIOIODINE IN AQUEOUS SOLUTIONS

ADSORPTION ON ION EXCHANGE RESINS AND NON-IONIC RESIN

National Institute of Radiological Sciences, Kiyoko IMAI, Kazuo WATARI, Sadao SHIBATA, Toho University, Takeshi TOMITA, Japan Atomic Power Co., Masami IZAWA

1C11

海水を主成分とする実験室廃液中の放射性核種の除去

——とくに放射性Ruを中心にして——

(放医研)

○渡利一夫, 今井靖子, 小柳卓, 喜多尾憲助

はじめに

RI実験室からの放射性廃液は、通常、凝集沈殿処理により放射能の除去あるいは低減化が行われる。しかし、放射性ルテニウムが含まれているとしばしば凝集沈殿液中に残る場合があり、廃液処理上の問題となっている。核燃料再処理においても凝集沈殿処理後の低レベル放射性廃液中に含まれる放射能の主成分はルテニウムであり最も処理しにくい核種として知られている。

本実験では、海水を主成分とする実験室廃液中の放射性核種、とくにルテニウムの処理を目的として吸着法による除去効果を検討した。

実験

放射性ルテニウム: トレーサー実験には ^{106}Ru の塩化物、ニトロシルニトратおよびニトロシルニトロ化合物(それぞれ、 ^{106}Ru -クロロ、 $^{106}\text{RuNO}$ -ニトратおよび $^{106}\text{RuNO}$ -ニトロで表す)を合成して用いた。

試料溶液: 海水および海水を主成分とする実験室廃液を用いた。実験室廃液は放医研那珂湊支所におけるもので、放射性核種として ^{103}Ru , ^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{54}Mn , ^{60}Co (^{57}Co)等が、また、少量の酸、アルカリ等の試薬類、洗剤等も含まれておりpHは3-7のうち性である。海産生物を飼育前および飼育後のものについても検討した。

吸着体: イオン交換樹脂、非イオン性樹脂、キレート樹脂、活性炭、医王石の他、フェロシアン化金属を付加した陰イオン交換樹脂(例えば“フェロシアン化ニッケル-陰イオン交換樹脂”は“(NiFC)R”で表す)を用いた。また、非イオン性樹脂(XAD)にオキシンを添加する方法についても検討を加えた。

吸着実験: 試料溶液10~150 mlに吸着体0.1~1.5 gを加え振り混ぜる。試料溶液および振とう後の溶液相あるいは吸着体の放射能を測定して吸着率を求めた。

結果

実験室廃液中の放射性核種の吸着: 表1に24時間振とう後の各種吸着体への吸着を示す。海水中の放射性核種は、それぞれの化学的性質あるいは経過時間等によりイオン形、非イオン形あるいは有機態で存在することが知られている。¹⁾ 本実験で用いた廃液の場合にはその組成も変化するので、存在状態はより一層複雑となることが考えられ、吸着のデータも核種により相当の中が認められた。

◎陽および陰イオン交換樹脂への吸着はいずれの核種も一般に低いが、廃液中の塩濃度が高くイオン交換吸着がおさえられるためと考えられる。

◎非イオン性樹脂(XAD-7)への吸着も一般に小さい。XAD樹脂は水中の有機物や有機態の金属元素を吸着する性質があるが本実験の条件下では放射性核種の有機態への移行が少ないためと考えられる。しかし、オキシンを共存させると吸着性は増大する。とくにZn,

あたりかすお いまいきよこ こやなきたく きたおけんすけ

Mn が定量的に吸着されるようになる。

◎活性炭の場合、化学吸着、機械的吸着、還元反応、有機錯体の疎水的吸着、錯陰イオン種の吸着等が考えられその機構は複雑である²⁾が、Cs, Sr以外の核種は相当量が吸着される。とくに、Ruの吸着率が大きいことは興味深い。

◎医王石はCsおよびZnに大きな吸着性を示すが、含有するclinoptiloliteによる無機イオン交換吸着が関与していると思われる。またchelex 100はMn, Znに高い吸着性を示した。

◎“(NiFC)R”は保持体の陰イオン交換能とともに、フェロシアン化ニッケルの保有する吸着能も加わるため、Srを除く多くの核種に高い吸着性を示す。

表1. 実験室廃液中の放射性核種の吸着率

放射性核種 吸着体	¹³⁷ Cs	⁸⁵ Sr	⁵⁷ Co	⁶⁵ Zn	⁵⁴ Mn	¹⁰³ Ru
Dowex 50WX4 (Na形)	≒10	30~40	5~50	5~20	10~50	10~40
Amberlite 200C (Na形)	≒15		10~20	0~40	10~50	20~50
Dowex 1X4 (Cl形)	≒0	≒0	10~40	50~80	0~40	20~50
Amberlite IRA-904 (Cl形)	≒0	10~30	20~50	80~90	0~40	50~80
(NiFC)・904	≒100	5~10	80~90	80~100	70~100	70~95
Amberlite XAD-7	≒0	≒0	5~90	0~60	0~40	5~20
XAD-7+oxime	≒0		40~90	≒100	≒100	10~40
活性炭	≒0	5~20	60~80	50~70	20~50	70~80
chelex 100	≒0	≒30	30~90	70~100	30~100	30~60
医王石	≒70	<5	20~70	85~95	30~80	50~70

表2. 海水中の¹⁰⁶Ruの吸着率

¹⁰⁶ Ru化学種 吸着体	¹⁰⁶ Ru-700	¹⁰⁶ RuNO-ニトロ
200C (Na形)	25 (11)	4 (15)
IRA-904 (Cl形)	73 (72)	95 (85)
(NiFC)・904	97 (92)	97 (97)
XAD-7	32 (9)	8 (8)
XAD-7+oxime	63 (36)	33 (45)
活性炭	76 (66)	95 (77)
chelex 100	83 (48)	68 (87)
医王石	95 (56)	40 (91)

(): ¹⁰⁶Ru添加後11日経過の海水

海水中の放射性ルテニウムの吸着：表2に海水中の¹⁰⁶Ruの各種吸着体への吸着を示す。

海水中でRuの存在状態や捕集法については、これまでに多くの報告がある。最近、木村ら¹⁾は電気透析法、濾紙電気泳動法あるいはペーパークロマトグラフ法により、時間経過による化学形の变化を調べているが、本実験での陽および陰イオン交換樹脂への吸着挙動でも類似の傾向が得られた。とくにRuNO-ニトロ錯体については陰イオン種としての存在が多いと考えられるが、活性炭への吸着も大きい。活性炭へのニトロ錯体の吸着についてはAbeatsuら³⁾が明らかにしているが、海水の場合にもその効果が認められた。また、“(NiFC)R”に対してはいずれの化学種も比較的高い吸着を示した。

放射性廃液の処理に吸着法を用いる場合、含まれる放射性核種の化学的性質に留意して吸着体を選択する必要がある。そして吸着体は物理的、化学的に安定であり、多量の試水処理能力があることが望ましい。

放射性ルテニウムの場合には化学形による吸着挙動の差が小さい吸着体を用いるか、あるいはあらかじめ廃液中の化学形をそろえた後除去をする必要がある。

本実験では、これらについて基礎的検討を行った結果について報告する。

文献 1) 木村 雄一 他 ; 保健物理, 23, 105 (1988)

3) E. Abeatsu et al. ; Annals of Nucl. Energy,

2) 木村 優 ; ぶんせき 297 (1981)

上, 399 (1979), 原子力院工学部同位元素研究委員会(1978)

DECONTAMINATION OF RADIONUCLIDES IN LABORATORY EFFLUENT MAINLY COMPOSED OF SEAWATER ——— ESPECIALLY, REMOVAL OF RADIORUTHENIUM ———
National Institute of Radiological Sciences
Kazuo WATARI, Kiyoko IMAI, Taku KOYANAGI, Kensuke KITAO

(九環協、ORNL*、九大・理**) ○馬田敏幸、松岡信明、白石直典、
百島則幸*、高島良正**

1. はじめに

43番元素テクネチウムは天然に安定同位体の存在しない数少ない元素であり、質量数90~110の放射性同位体が存在する。Tcの同位体で質量数の大きなものは、ウラン、プルトニウムの核分裂によって生成され、熱中性子による ^{235}U の核分裂では ^{99}Tc の核分裂収率は6.14%であり、 ^{137}Cs (5.94%)、 ^{90}Sr (5.90%)等とともに最も生成率の高い核種の一つである。

^{99}Tc は ^{238}U の天然における自発核分裂、核実験、原子炉運転、使用済み核燃料の再処理及び $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の医学利用等によって環境に放出されているが、半減期が 2.13×10^5 年と非常に長いので環境中に放出されると長期間の滞留・蓄積が懸念される。

日本における原子力施設は海岸の近くに立地し、又、日本人は海産生物に食料の多くを頼っている。したがって、本格的な核燃料サイクルの稼働に先立って、現時点での海洋環境中の ^{99}Tc 濃度を把握しておく必要がある。

本研究では、海水及び海藻中の ^{99}Tc と ^{137}Cs の分析を試みた。

2. 実験

2-1 海水中の ^{99}Tc 、 ^{137}Cs の分析

海岸の海水280ℓについて図-1に示す方法に従って ^{99}Tc を分析した。 ^{137}Cs は図-1の硫化物沈殿のろ液にリンモリブデン酸アンモニウムを加え3時間攪拌した後、沈殿物を集め乾燥後Ge(Li)半導体検出器で測定した。

2-2 海藻中の ^{99}Tc 、 ^{137}Cs の分析

海藻は潮間帯に生息しているものを手で採取し、その場所の海水で軽く洗い水をよく切った後実験室に持ち帰り、105℃で乾燥後450℃で灰化した。この灰化試料2kg生相当を分取して図-1の方法で ^{99}Tc を分析した。 ^{137}Cs は灰化試料を容器に詰めGe(Li)半導体検出器で測定した。

3. 結果

海水中の ^{99}Tc と ^{137}Cs の濃度及び放射能比を表-1に示す。海水Iは福井県沿岸の日本海で、又海水IIは九州一円の海岸で採取した試料である。 ^{99}Tc は20試料のうち8試料で計数誤差以上の計数が認められたのでこれを有意の放射能とした。海水IとIIを比較しても ^{99}Tc の濃度に有意な差は認められない。8試料の濃度は $0.5\text{--}2.2 \times 10^{-3}\text{pCi}/\ell$ で平均値は $1.41 \times 10^{-3}\text{pCi}/\ell$ であった。この値はHolmら¹⁾が1983年に第一鉄・第二鉄共沈法で分析したバルト海の海水の値 $1.84 \times 10^{-3}\text{pCi}/\ell$ に近い。

一方 ^{137}Cs の濃度は $0.07\text{--}0.14\text{pCi}/\ell$ で平均値は $0.10\text{pCi}/\ell$ であり、これはわが国の海水中の一般的な濃度である。

$^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は $0.01\text{--}0.03$ が得られた。これはバルト海の値 $4\text{--}5 \times 10^{-3}$ よりやや大きい。このことについては今後 ^{99}Tc と ^{137}Cs の海洋でのスキヤベンジ効果と合わ

うまたとしゆき、まつおかのぶあき、しらいしなおすけ、
ももしまのりゆき、たかしまよしまさ

せて検討していく必要がある。

今回分析に供した海藻は佐賀県玄海町で採取したホンダワラで褐藻類の一種である。
 0.33pCi/gの ^{99}Tc が検出されたが ^{137}Cs は検出されなかった。佐賀県玄海町の海水中
 ^{99}Tc 濃度を使ってホンダワラの ^{99}Tc 濃縮係数を求めると183が得られた。
 他の海藻についても現在分析中である。

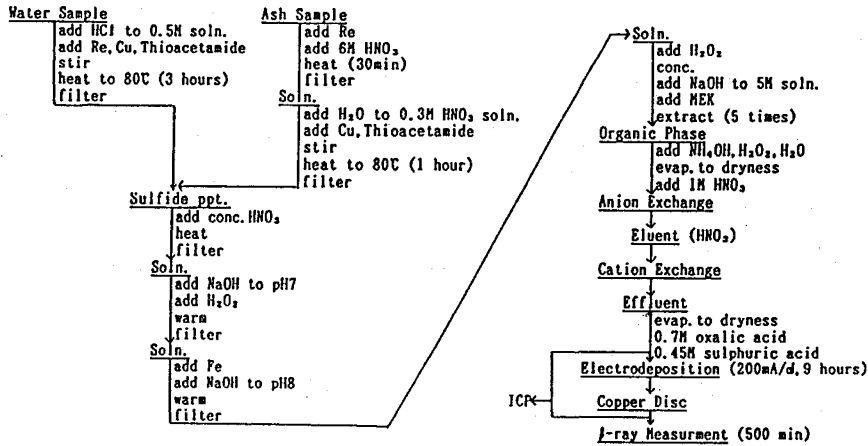


Fig.1 Analytical Procedure for ^{99}Tc

Table 1 Concentration of ^{99}Tc and ^{137}Cs in Seawater and $^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$ Ratio

Sample	Sampling point	$^{99}\text{Tc}(\times 10^{-3}\text{pCi/l})$	$^{137}\text{Cs}(\text{pCi/l})$	$^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$
Sea Water I	原電敦賀取水口	—	0.08±0.07	—
	原電敦賀放水口①	1.0±0.6	0.10±0.06	0.01±0.008
	原電敦賀放水口②	—	0.10±0.07	—
	敦賀湾	—	0.11±0.05	—
	丹生湾	1.1±0.5	0.11±0.05	0.01±0.006
	関電大阪付近①	—	0.09±0.06	—
	関電大阪付近②	2.2±0.5	0.08±0.06	0.03±0.02
	関電高浜内ノ湖①	—	0.10±0.05	—
	関電高浜内ノ湖②	—	0.14±0.05	—
関電高浜取水口付近	—	0.13±0.05	—	
Sea Water II	宮崎県日向市	—	0.11±0.06	—
	宮崎県日南市	0.5±0.4	0.07±0.08	0.01±0.01
	鹿児島県佐多町	2.0±0.5	0.12±0.05	0.02±0.001
	鹿児島県川内市	1.2±0.5	0.08±0.06	0.02±0.02
	長崎県野母崎町	1.2±0.5	0.09±0.07	0.01±0.01
	長崎県平戸市	—	0.10±0.06	—
	佐賀県玄海町	1.8±0.6	0.14±0.05	0.01±0.005
	福岡県津屋崎町	—	—	—
福岡県豊前市	—	0.10±0.06	—	
大分県津久見市	—	0.07±0.08	—	

Sampling Date : Seawater I 1987, 11, 22~24
 Seawater II 1988, 1, 5~27

文献

1) Holm E., Rioseco J. and Mattsson S., "Technetium in the Environment", Elsevier Applied Science Publishers, London 61-68(1986)

TECHNETIUM-99 IN ENVIRONMENTAL SAMPLES
 Kyushu Environ. Eval. Assoc., Toshiyuki UMATA, Nobuaki MATSUOKA,
 Naosuke SHIRAISHI,
 Oak Ridge National Laboratory, Noriyuki MOMOSHIMA,
 Faculty of Science, Kyushu University, Yoshimasa TAKASHIMA

1C13

加速器質量分析法を用いた長寿命放射性核種 ^{14}C の測定

—火山ガス中の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ の測定—

(共立薬大、東大核研¹⁾、東大原総セ²⁾、東大理³⁾、都立大理⁴⁾)

○吉川英樹、今村峯雄¹⁾、小林紘一²⁾、吉田邦夫³⁾、中原弘道⁴⁾

(はじめに) 東京大学原子力総合センターのタンデム加速器では、地球化学・宇宙化学・考古学試料中の ^{10}B ・ ^{14}C ・ ^{26}Al についての測定が定常的に行えるようになった。 ^{14}C の測定に関しては、蒸焼き法により調製した試料で検出感度 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比で 3×10^{-16} 以下(年代換算で約67000年)再現性2%を得ている。しかし CO_2 ガスの状態を経る化学処理を必要とする CO_2 ガス試料、炭酸塩試料においては、現代の炭素(“現代炭素”)の混入の問題が深刻である¹⁾²⁾。 CO_2 ガスを経る試料処理の各過程での“現代炭素”による汚染を検討し、改良した結果 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比で 2×10^{-15} になった。天然のガス試料で ^{14}C の少ないと思われる火山ガスについて測定してみた。

(試料処理法) フィールドにおいて火山ガスのサンプルは真空採気びん中の NaOH により固定され、実験室に持ち帰ってくる。同操作により採取可能なCの量は、代表的な火山ガス(99%:水蒸気、0.6%: CO_2)で考えると60-70mgである。このように微量なサンプルに対して、加速器質量分析法(AMS)では、1個のターゲットを作るのに最低1mgのCを必要とし、化学処理での取扱を考えると約10mgのCがあれば十分なので同法の適用が可能である。アルカリ及び真空採気びんの調製は真空グローブボックスを用いて窒素雰囲気下で行い、空気(現代炭素)の混入を防止した。

アルカリからの CO_2 の回収は1+1硫酸を直接加えることにより CO_2 を発生させる。他の酸性ガス、水分との分離、空気の混入を防止するために、同操作は真空ラインを用いて行われ、コールドトラップ操作により CO_2 を精製する。 CO_2 は750℃の高温下でMgと反応させアモルファス炭素に還元する。最終的にターゲットはアモルファス炭素に銀の粉末をバインダーとして重量比1:2で混合し、銅のコーンに詰め用いる。

(実験結果) 上記試料処理過程での各段階における“現代炭素”の混入経路を調べる目的で、まず各試薬中に含まれる ^{14}C の測定を行うことにした。Mgについては前回報告した¹⁾炭素含有量の少ないものを用いることにした。銀は ^{14}C 含有量の少ない試料を用いて比較し、入手できた製造元の異なる2種類の銀の粉末を用いた。各々の ^{14}C 測定の結果0.44%と0.06%(現代炭素混入率)であったので後者を選択した。一方、器具の洗浄に用いる有機溶媒と、真空ラインの回転ポンプのオイルについても ^{14}C 測定を行った。有機溶媒としてはアセトン、四塩化炭素、トルエンをテストした。これら試料は有機バインダーを含まない硝子繊維濾紙を用いて、空気中で不完全燃焼させ得られたすすを捕集しサンプルとした。結果を次の頁に示す。アセトン、四塩化炭素については現代炭素が混入する可能性があるが、風乾後、

よしかわひでき、いまむらみねお、こばやしこういち、よしだくにお、なかはらひろみち

どのくらい残留するかは不明なので明らかにはできないが、洗浄の最終段階ではなるべく蒸留水を使用する事にした。

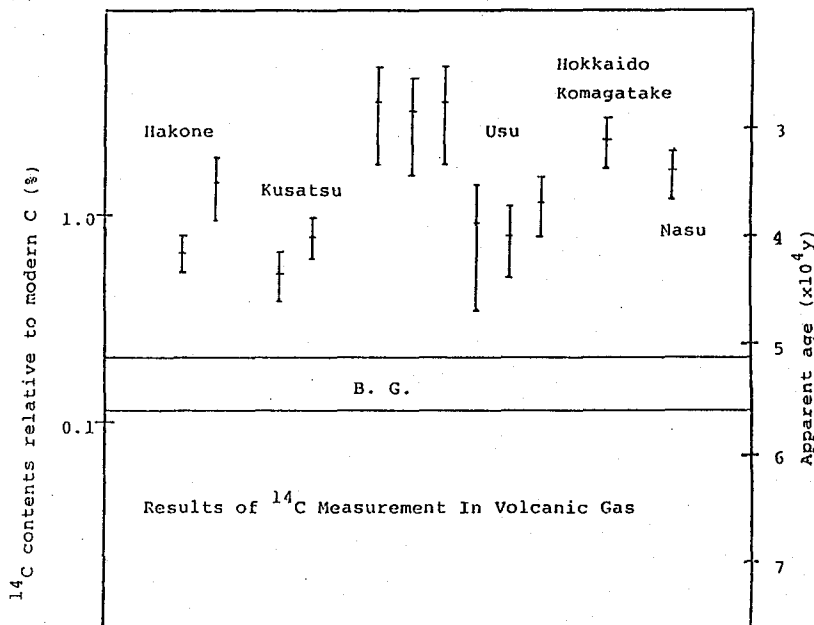
以上の実験の後、石灰岩（推定年代：約3億年）を用いてCO₂ ガスを発生させ試料処理過程全体での測定下限を求めた結果(¹⁴C/¹²C)_s/¹⁴C/¹²C)_m=0.0017±0.004, (s:sample, m:modern)

有機溶媒及びオイル中の”現代炭素”混入率

試料	¹⁴ C/ ¹² C	年代換算	混入率 (%)
アセトン	(3.5±1.7)×10 ⁻¹⁵	49000±4000	0.29
四塩化炭素	(2.0±0.3)×10 ⁻¹⁴	34000±1000	0.7
トルエン	<3.6×10 ⁻¹⁶	<67000	<0.030
回転ポンプオイル	<3.8×10 ⁻¹⁶	<67000	<0.032

であった。これは¹⁴C/¹²C比では、2×10⁻¹⁵になる。

左に本邦での代表的な火山ガス中に含有する¹⁴Cの測定結果を示した。



(文献)

- 1)吉川 他, 第30回放射化学討論会予稿集, p56,(1986)
- 2)吉川英樹 他, 分析化学, 36(11),755,(1987)

MEASUREMENT OF LONG-LIVED NATURAL RADIOACTIVITY ¹⁴C USING ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY --MEASUREMENT OF ¹⁴C/¹²C IN VOLCANIC GAS--

Laboratory for Radiopharmaceutical Chemistry, Kyoritsu College of Pharmacy,
 Hideki YOSHIKAWA
 Institute for Nuclear Study, University of Tokyo, Mineo IMAMURA
 Research Center for Nuclear Science and Technology, University of Tokyo,
 Koichi KOBAYASHI
 Faculty of Science, University of Tokyo, Kunio YOSHIDA
 Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University, Hiromichi NAKAHARA

(はじめに)

南西諸島において河川水、海水を採取し、そのトリチウム濃度を調査した。得られた測定結果とそれに基づく離島における環境トリチウムの特異性について報告する。

(調査方法)

河川水、海水の採取は、1986年11月及び1987年8月から9月の晴れた日に行った。試料の採取地点を図.1に示す。10の島々において、河川水は12河川について、その上流と下流の計24か所、海水は11か所で試料を採取しトリチウム濃度を調べた。海水については陸水の混入を調べるため硝酸銀滴定法により塩化物イオン濃度を求めた。トリチウム濃度の測定は液体シンチレーションカウンター(Aloka LSC-LB1)で行った。

(結果と考察)

表.1に河川水中のトリチウム濃度を示す。河川水中のトリチウム濃度は7.7~32.5pCi/lの範囲で、平均16.0pCi/lであった。この表から河川水中のトリチウム濃度は大きな流域面積をもつ河川では、高い値を示し、小さな流域面積をもつ河川では、低い値を示す傾向にあることがわかる。例えば、流域面積23km²以上の河川では、トリチウム濃度は平均約19pCi/lであり流域面積が20km²以下の河川では、トリチウム濃度は平均約13 pCi/lである。流域面積の大きい

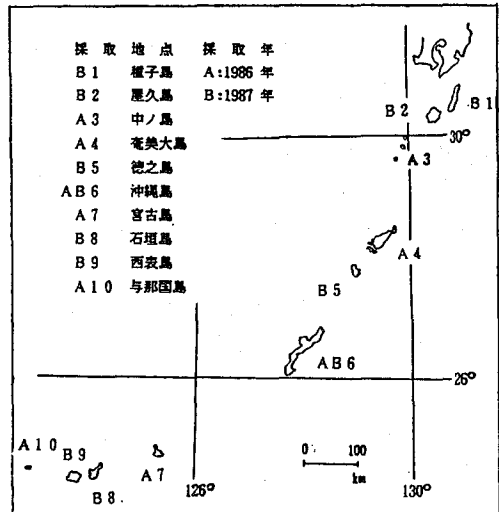


図.1 試料採取地点

河川でトリチウム濃度が高くなっているのは、過去の高いトリチウム濃度の水を含む地下水が、混入してきているためと考えられる。しかし、屋久島や西表島の流域面積の大きな河川水中のトリチウム濃度が低い値を示しているのは、表.1に示したように降水量が他の島に比べて著しく多く、低いトリチウムレベルの降水の河川への直接流入や、降水による地下水の押し出し効果が高く、河川に流れ出る地下水のトリチウム濃度が、すでにかなり低いレベルに落ちていることから来ると解釈される。また、これらの河川の上流と下流では、トリチウム濃度の有為な差は見られなかった。

表.2 に海水中のトリチウム濃度及び塩化物イオン濃度を示す。塩化物イオン濃度は通常の海水レベルであり陸水の混入は見られないので、トリチウム濃度はこの海域を代表していると考えられる。海水中のトリチウム濃度は、4.0~14.4pCi/lで平均8.7pCi/lであった。この値は、太平洋

いまむらひろか、したんしょうじ、しもぞのせいか、ふくだだいざぶろう、たかしまよしまさ

中心部表面海水中のトリチウム濃度に近く、四面海に囲まれた小さな離島の沿岸海域のトリチウム濃度に及ぼす陸水の影響は、小さいことを示す。

離島の河川水及び海水中のトリチウム濃度は、表.1、表.2の1982年又は1983年の全国平均データと比較すると河川水で31%、海水で43%となっており減衰を考慮しても低い値を示していることがわかる。また、河川水中のトリチウム濃度に比べて海水中のトリチウム濃度は低く、採取地点間の濃度差は小さい。

表.1 河川水中のトリチウム濃度

採取地点	濃度 (pCi/l)	A	B	C		
屋久島	宮之浦川 (下流)	14.0±5.1 ¹⁾	13.8	63	16	3514
	宮之浦川 (上流)	13.6±5.0				
西表島	浦内川 (下流)	16.5±6.1	16.8	54	19	2323
	浦内川 (上流)	17.0±5.2				
沖縄島	比謝川 (下流)	32.5±6.1	22.0	50	18	1579
	比謝川 (上流)	11.4±6.2				
奄美大島	役勝川 (下流)	12.2±5.8	19.6	45	15	1839
	役勝川 (上流)	26.9±6.1				
徳之島	秋利神川 (下流)	20.7±5.2	22.3	34	13	1230
	秋利神川 (上流)	23.9±5.2				
沖縄島	大井川 (下流)	18.8±5.2	18.1	23	11	1579
	大井川 (上流)	17.3±5.1				
沖縄島	源河川 (下流)	10.5±5.0	9.3	20	13	1579
	源河川 (上流)	8.1±5.8				
種子島	大川田川 (下流)	25.8±5.1	24.5	-	-	1731
	大川田川 (上流)	23.2±5.2				
中ノ島	大川 (下流)	12.0±6.0	11.3	-	-	-
	大川 (上流)	10.6±6.0				
石垣島	名蔵川 (下流)	13.3±6.1	13.1	-	-	1496
	名蔵川 (上流)	12.8±6.0				
宮古島	映田川 (下流)	7.7±5.8	9.4	-	-	1663
	映田川 (上流)	11.1±6.2				
与那国島	田原川 (下流)	10.7±6.1	12.1	-	-	1934
	田原川 (上流)	13.5±6.1				
平均	16.0±6.5 ²⁾	-	-	-	-	-
全国平均 (1982年) ³⁾	51.5±11.8	-	-	-	-	-

- A 流域面積 (km²)
 B 流路延長 (km)
 C 雨量:1986年 (mm)
 - はデータなし。(A, B については流路延長が、10km未満のため)
 1) : 計数誤差
 2) : 標準偏差
 3) : N.Momoshima et al.: J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, 104/3/141-150/1986/

(まとめ)

南西諸島における海水中、河川水中のトリチウム濃度は、日本各地のそれと比べて低かった。また海水中のトリチウム濃度は河川水中のそれよりも低く採取地点間の濃度差が小さかった。大きな流域面積をもつ河川では、小さな流域面積をもつ河川より、トリチウム濃度が、高い傾向にあった。

表.2 海水中のトリチウム濃度

採取地点	濃度 (pCi/l)	C (g/l)
中ノ島 十島村	4.0±6.0 ¹⁾	18.9
奄美大島 瀬戸内町	8.3±5.9	19.3
沖縄島 糸満市	10.4±5.8	20.0
宮古島 城辺町	7.4±5.7	19.3
与那国島 与那国町	12.9±5.8	19.3
屋久島 上屋久町	8.5±6.0	18.8
種子島 中種子町	4.0±6.0	19.0
徳之島 徳之島町	5.9±6.1	19.3
沖縄島 名護市	10.4±5.9	19.5
石垣島 石垣市	14.4±6.1	19.0
西表島 竹富町	9.5±5.9	19.5
平均	8.7±3.3 ²⁾	19.2
全国平均 (1982年) ³⁾	20.2±3.4	-
全国平均 (1983年) ³⁾	19.3±5.6	-

- 1) : 計数誤差
 2) : 標準偏差
 3) : N.Momoshima et al.: J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, 104/3/141-150/1986

Characteristics of environmental tritium concentration in Southwest Islands, Japan

Kagoshima Prefectural Institute of Environmental Science, Hiroka IMAMURA, Syoji SHITANDA, Seika SHIMOZONO, Daizaburo FUKUDA, Faculty of Science, Kyushu University, Yoshimasa TAKASHIMA

