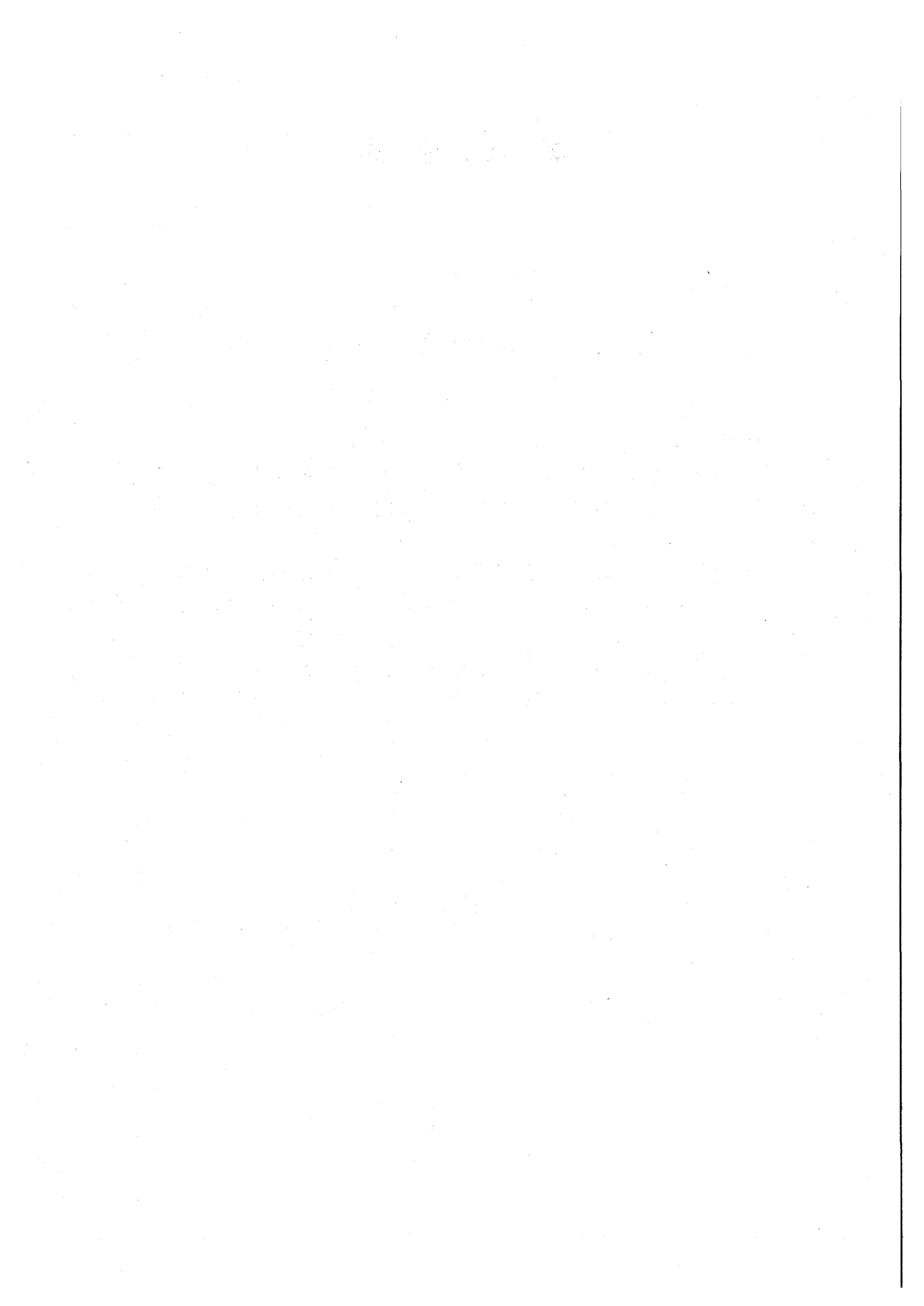


講演発表

第3日 9月25日(水)

A会場	3A01~3A03	9:15~10:00
	3A04~3A07	10:15~11:15
B会場	3B01~3B03	9:15~10:00
	3B04~3B07	10:15~11:15
C会場	3C01~3C03	9:15~10:00
	3C04~3C08	10:15~11:30



脳内マンガン濃度および取込挙動の放射化学研究； 胎仔 - 乳仔 - 成長期マウスの脳におけるその変化

(金沢大医, 理研*) 辻 孝枝, 蛭沼利江子*, 榎本秀一*, 天野良平

【はじめに】

マンガン(Mn)の生体内での動きとその機能は未解明なことが多い。我々の研究室では、放射化学の手法を用いて脳内における Mn の動きと機能を追求している。本研究では、胎仔、乳仔、成長期マウスに ^{54}Mn を用いて、Mn の脳内での挙動、特に胎仔期に取込まれた Mn の乳仔、成長期にわたる残留の様子、成長期初期に取込まれた Mn の脳内局所分布の変遷、さらに脳内 Mn 濃度の成長に伴う増加の様子について、マルチトレーサー法、中性子放射化分析法およびオートラジオグラフ法を用いて検討したので報告する。

【方法】

理研リングサイクロトロンで加速した重イオンを照射した銀ターゲットからマルチトレーサーを無担体分離して、生理食塩水に溶解しマルチトレーサー注射溶液を調製した。これを以下のような動物実験に使用した。①胎仔期に取込まれた ^{54}Mn の乳仔期、成長期にわたる残留を追求する実験では、妊娠 16 日目の ICR 母マウスにマルチトレーサー注射溶液 0.1ml を尾静脈投与し、出産後 RI を保持しない母マウスに RI を保持した仔を育てさせ 1,3,6,15,28 日経過時に 3 匹づつエーテル麻酔下で灌流し、頭頂骨、脳、血液、肝臓を摘出し測定試料とした。②成長期初期に取込まれた ^{54}Mn の脳内局所分布の変遷を追及する実験では、成長期にあたる 5 週齢 ICR マウスにマルチトレーサー溶液を 0.1ml 尾静脈投与し、90 秒、3 時間、1 日、7 日、20 日経過時にエーテル麻酔下で灌流、解剖した。脳の脈絡叢、小脳、橋・延髄、大脳皮質、海馬、線条体 6 部位と脊髄、血漿を摘出し測定試料とした。また、各経過時にオートラジオグラフィをとった。③成長過程における脳内 Mn を定量する実験では、生後 2,5,10,20,27,37,43 日経過時にエーテル麻酔下で灌流し、頭頂骨、脳、肝臓、脊髄、血液を摘出し凍結乾燥後中性子放射化分析用試料とした。京都大学原子炉実験所にて中性子照射し、Mn 量を定量した。

【結果および考察】

成長過程における脳内 Mn 定量の結果より、母乳を飲んでいる時期の脳内 Mn 濃度は低値(0.15ppm)である、しかし成長が進むにつれて脳内 Mn 濃度は次第に増加し一定値(0.47ppm)を保っていることがわかった。脳内 ^{54}Mn の残留率の検討結果では、胎仔期に取込まれた Mn は長く多く脳内に残留していた。これらのことより、乳仔脳では Mn を特に必要としているため Mn 濃度は増加していて、 ^{54}Mn は脳内に多く残留すると考える。それ以降は脳内に Mn が入ってくる割合と排出される割合が平衡状態となるため、Mn 濃度は一定の値を保っていると考えられる。また成長期マウス脳での Mn 取込は、短時間に脈絡叢に非常に多く集積していることから、血中 Mn は脈絡叢に集められそこから他の必要としている脳局所に分布、集積していくものと思われる。約 3 週間経過時では、脈絡叢 > 橋・延髄 > 小脳 > 脊髄 > 海馬 > 線条体 > 大脳皮質の順に Mn を集積していることがわかった。しかし時間経過と共にどの部位も取込が減少していく中、海馬、線条体中の Mn の保持が高いことに注目できる。すなわち海馬、線条体中の Mn は、成長期脳における重要な役割を果たしていることを示唆していると考えられる。また脊髄中に多く Mn が集積することもここでの新しい知見である。

Radiochemical study of manganese concentration and its uptake behavior in brain - Their changes in fetal, suckling and developmental mice -

Tsuji, T., Hirunuma, E., Enomoto, S., Amano, R.

壊変系列生成核種の生体内動態

(金沢大医、東北大金研*)

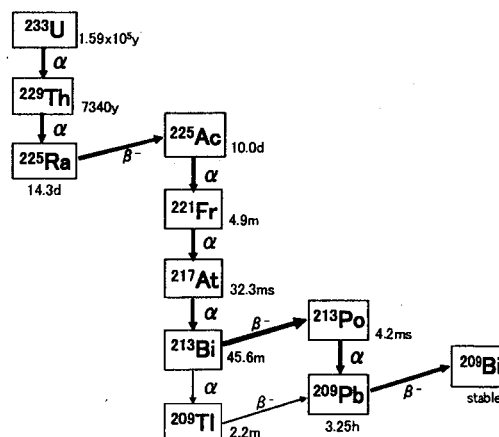
○鷲山幸信、天野良平、絹谷清剛、塩川佳伸*

【はじめに】 α 線放出核種の医学応用を目的として本研究室ではこれまでにネプツニウム系列 ($4n+1$) 核種に着目し基礎的実験を行ってきた。 α 線の特徴である1) 飛程が短い、2) LET が高い、ことは放射免疫療法などのがん治療において他の放射線 (β^- 線、 γ 線、内部転換電子など) よりも有効である。しかも α 線を放出する核種は安定元素以上の原子番号を有するものが多く、複数回壊変を伴うものが多いため、他の放射線によるものよりも多くの放射線照射が可能であり、放射能の低減化が可能である。しかし、壊変を伴うことにより放射性核種は元素が変遷するため、壊変後の核種がどのような speciation をとるのか、またその結果、どのような生体内動態を示すかを把握する必要がある。したがって、本研究ではネプツニウム系列 (Figure 1.) 中の ^{225}Ra 及び ^{225}Ac をマウスに投与し、生体内で壊変により生成する娘核種がどのように分布するかを調べた。

【実験】 8 週齢 ICR 系雄マウスを ^{213}Bi 、 ^{225}Ac 、 ^{225}Ra 投与群の 3 つに分けた。まず単一で投与した場合の取込み率を評価するために $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ ジェネレータから溶離した ^{213}Bi トレーサー溶液を、マウスに尾静脈注射し、30 分、1 時間、3 時間、6 時間後に解剖し、肝臓、腎臓、脾臓、大腿骨、血液、尿を摘出・採取し、 γ 線スペクトロメリーを行い、各臓器における単位重量当たりの注射量に対する取込み率 (%dose/g) を算出した。次に娘核種の存在しない ^{225}Ra と ^{225}Ac トレーサー溶液を調製し、それぞれマウスに尾静脈注射した後、一週間飼育し娘核種の成長を待った。その後解剖し、肝臓、腎臓、脾臓、大腿骨、血液、尿を摘出・採取し、 γ 線スペクトロメリーを行い、各臓器への取込み率を求めた。また娘核種の各臓器への集積は親核種との放射能の比として算出し評価した。

【結果と考察】 ^{225}Ra 投与マウスにおける ^{225}Ra の取り込みは骨にほとんどが集積し、血液や軟組織の取り込みはわずかであった。一方、 ^{225}Ac 投与マウスにおける ^{225}Ac の取込みは肝臓が最も多く、次いで骨、脾臓に集中したのに対し、 ^{225}Ra 投与マウスでの ^{225}Ra から成長した娘核種 ^{225}Ac の集積は骨が最も高く、次いで肝臓、脾臓であった。Ra は向骨性元素であるため、ほとんどの ^{225}Ra が骨に集積している。また壊変後の娘核種も同様に骨中にとどまっていることから、 ^{225}Ac も向骨性を示すと考えられる。

^{225}Ra 、 ^{225}Ac の娘核種である ^{213}Bi はいずれも肝臓や骨から腎臓への移行が見られた。これは Bi が向骨性を示さない元素であるためと考えられる。討論会ではこれらの詳細について報告する。

Figure 1. Neptunium ($4n+1$) seriesBiodistribution of neptunium $4n+1$ decay chain nuclides in mice.

Washiyama. K., Amano. R., Kinuya. S., Shiokawa. Y.

放射線による脂質過酸化に対する茶カテキンの防御効果

(静岡大・理¹、静岡県立大・環境研²) ○土屋春樹¹、
大橋康典¹、鈴木弓子¹、田口英之¹、吉岡寿²、吉岡潤江¹

【はじめに】

生体内で過剰に発生したヒドロキシルラジカル(HO·)をはじめとした活性酸素種が老化、発癌、種々の疾病の原因となることが明らかになってきている。そして、近年の健康志向の高まりとともに、活性酸素種を消去できる天然抗酸化物質の研究が盛んになってきている。当研究室においても DNA 鎖切断を指標として茶カテキンの活性酸素消去能について研究してきた¹⁾。また、脂質の過酸化の主な因子もやはり活性酸素種であり生体において細胞が老化する原因の一部と考えられている。したがって、脂質過酸化を抑制する物質に関する研究も大変有用である。本研究では、脂質二重膜リポソームにおける脂質過酸化に対する茶カテキンの防御効果について調べた。

【実験】

本実験では細胞膜のモデルとして単膜リポソームを用いた。まず、日本油脂製卵黄レシチン(95%)に 16-DOXYL stearic acid(16-NS)(Ardlich)を加えてリポソームを形成、これに種々の濃度の茶カテキン(99% ナカハラ科学)を含むリン酸緩衝溶液(pH 7.0)を加えキャピラリーに採取、封入した。これらの試料を室温で⁶⁰Coガンマ線照射した後、室温で ESR 測定をした。

【結果および考察】

Fig. 1 は未照射試料の 16-NS 濃度の⁶⁰Coガンマ線照射時間依存性を示している。

16-NS 残存率は添加したカテキン濃度に依存して多くなった。つまり、これは茶カテキンが脂質中の 16-NS と競争反応によって脂質の過酸化を抑制しているためと考えられる。

発表では 4 種の茶カテキンでの結果について報告し、またこの防御効果についての考察を行う予定である。

【参考文献】

1)Y. Ohashi et al. *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, 66(4), 847-852 (2002)

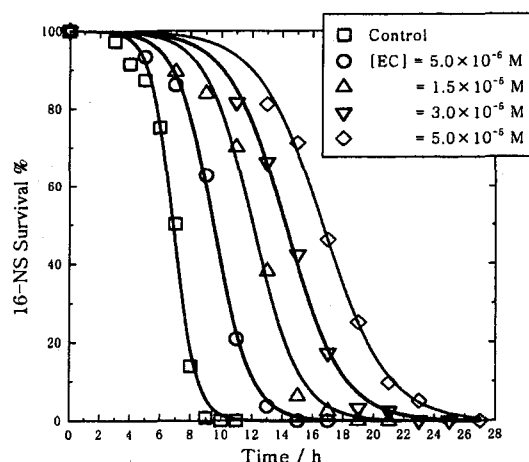


Fig. 1 16-NS survival ratio vs. time

[Egg PC] = 2.5 × 10⁻² M Micro wave power: 19.87 mW
[16-NS] = 5.0 × 10⁻⁶ M Receiver Gain: 5.02 × 10⁴
[Egg PC]/[16-NS] = 5000 Mod. Frequency: 100.0 kHz
Mod. Amplitude: 0.70 G
Conversion Time: 327.68 ms
Time Constant: 655.36 ms
Sweep Time: 167.722 s

Protecting Effect of Four Green Tea Catechins against Lipid Peroxidation Induced by Radiation.
TSUCHIYA, H., OHASHI, Y., SUZUKI, Y., TAGUCHI, H. YOSHIOKA, H., YOSHIOKA, H.

熱処理による石英の熱ルミネッセンス(TL)特性変化と不純物との関係
(新潟大院自^{*1}、新潟大理^{*2})

○山口 貴弘^{*1}、三田村 直樹^{*2}、橋本 哲夫^{*2}

1. はじめに 石英は電離放射線との相互作用により、青色もしくは赤色の熱ルミネッセンス(Thermoluminescence: TL)が観測される。青色熱ルミネッセンス(BTL)の発光原因は、石英中のSiO₂基本構造におけるSi部位へのAlの同形置換に由来するAlホールセンターと、準安定状態に捕獲された電子との再結合によるものと考えられている。石英の α - β 転移温度は573°Cであるが、含まれる不純物の種類とその量に依存し変化する。当研究室では、BTLを示すマダガスカル産石英を高温で熱処理することにより、BTLから赤色TL(RTL)へと変化することを報告してきた。ここでは、このTL特性変化が、石英中に含まれる不純物となんらかの関係があると考え、OH不純物を顕微IR分光器で、金属不純物を示差走査熱量測定(DSC)を用い、不純物に関する情報を得ようとした。一方、ESR測定により、熱処理前後での水素ラジカル(H⁰)とAlホールセンターの挙動を調べた。

2. 実験手順 マダガスカル産水晶を、隣り合った箇所厚さ1mmの薄片2枚に調製した。一枚はそのままで、残りは、1100°Cで100時間の熱処理を施した。その後、X線を照射し、カラーセンターイメージ(CCI)、熱ルミネッセンスカラーイメージ(TLCI)の観察を行い、そのパターンを基にカラー部、カラーレス部の小薄片にした。再度X線を照射し、TL波長分光、TL測定を行い熱処理による特性変化を調べた。IR吸収スペクトル測定及び示差走査熱量測定を行い、不純物の情報を得た。また、ESR測定を行うことにより、熱処理による水素ラジカル(H⁰)及びAlホールセンターの挙動を調べた。

3. 結果と考察 熱処理なしのものでは、はっきりとしたカラーセンターのパターンが見られ、温度上昇に伴うTLの発光パターンと一致した。しかし熱処理を行ったものでは、全体的に色濃いカラーセンターが確認され、また非常に強い発光が見られた。さらに発光色が、青色から赤色へと変化していることが分かり、TL波長分光より発光ピークは、470 nmから630 nmへの変化であった。このことから、発光センターの準位が変化したことが示唆された。IR測定からは、熱処理なしのものでは、カラーレス部で著しいAl-OH、Li-dependent OHの吸収が見られた。従来の研究とも合致しており、OH不純物の強い吸収が見られる部位では、BTLの原因であるAlホールセンターが、放射線との相互作用により生成した水素ラジカルと結合し、カラーセンターの消滅とBTLの減少をもたらすと考えた¹⁾。一方、熱処理により、OH不純物由来の吸収は減少するとともに、右図に示すようにDSC測定からは、 α - β 転移温度の低下が確認された。熱処理により、原子の再配列を伴う脱水縮合がおき、OH基が減少し自由に振舞うことのできるLiが増加したため転移温度の低下が生じ、それゆえTL感度が増加したと考えた。また、ESRの結果からもOH基の減少が裏付けられた。

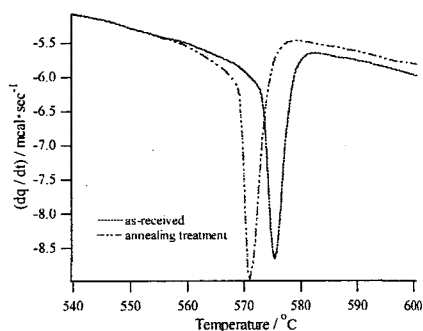


図 石英の熱分析からのDSC曲線

1) 橋本・柳川・山口, 分析化学, 51 巻, 527-532 (2002).

Dependence of TL property changes on impurities in quartz accompanied with thermal treatment
YAMAGUCHI, T., MITAMURA, N. and HASHIMOTO, T.

赤色熱ルミネッセンス (RTL) を示す天然石英粒子の熱処理による TL
及び光励起ルミネッセンス (OSL) 感度変化
(新潟大院自、新潟大理) ○中川貴博、橋本哲夫

1. はじめに 環境中の電離放射線と相互作用した石英粒子は加熱や光照射の刺激を与えることにより、それぞれ熱ルミネッセンス (thermoluminescence, TL)、光励起ルミネッセンス (optically stimulated luminescence, OSL) の発光現象が起こる。OSL 測定は、環境放射線量に関する情報、焼成考古遺物の年代や真贋情報を秘めている為、現在注目されている。これまで、火山起源の石英粒子や焼成考古遺物の石英粒子は赤色 TL (RTL) を示すことが知られている。しかしながら、人工的に加熱が行われた焼成試料からの RTL 石英粒子は BSL (blue-light stimulated luminescence) に感度が良いのに対し、火山起源の RTL 石英粒子では BSL 発光感度が悪いことがわかってきている。そこで本実験では、この原因解明の為、研究室で開発したルミネッセンス自動測定システム¹⁾を用いて、火山起源 RTL 石英粒子の熱処理による TL 及び OSL 感度変化を調べた結果について報告する。

2. 実験 火山灰起源の石英試料①愛島(宮城県)、②湯田(岩手県)を用いた。これらの試料から石英粒子を抽出し、粒径を 75-125 μm に揃え、測定試料とした。これらの試料を TL カラー画像 (TLCD) 撮影及び TL スペクトルを測定し、RTL 特有の発光 (620 nm にピーク) を予め確認した。次に、これらの試料の熱処理による感度変化を調査する為、電気炉にて 450°C、700°C、1000°C で 6 時間の熱処理を行った。これらの熱処理を施した試料及び熱処理を行わなかった試料 (original sample or as-received) に一定線量 42.5 Gy の X 線を照射後、青色 TL (BTL)、RTL、BSL 測定を行い、熱処理による感度変化実験を行った。

3. 結果・考察 熱処理温度の上昇につれ BTL では強度が 7 倍、BSL (下図参照) は 40 倍に増加し、RTL は逆に 2/3 に減少した。この原因として熱処理による石英試料中の格子欠陥の変化が考えられる。BTL、RTL において、発光強度の増減が得られたが、RTL の方が BTL よりも発光強度が強く、ピークがより高温側で観測されることから、焼成考古遺物では RTL 年代測定が有効である。また、熱処理の結果として BSL 強度が増加した焼成考古遺物においては、RTL 及び BSL 測定により年代測定が可能である。そこで、新薬師寺屋根瓦を用いて厚さ方向に対する RTL、BSL 測定での天然蓄積線量の変化についても報告する。

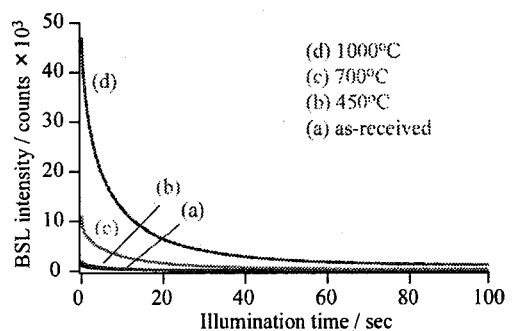


図 火山起源の石英粒子(湯田)の熱処理による BSL 感度変化

1) T., Hashimoto, T., Nakagawa, et al., J. Nucl. Sci., 39, 108-109 (2002).

Sensitivity changes in thermoluminescence (TL) and optically stimulated luminescence (OSL) by annealing treatment of volcanic quartz grains

NAKAGAWA, T., HASHIMOTO, T.

1. **はじめに** 長い年月にわたり天然放射線を受けた石英などの絶縁性白色鉱物は、熱や光による刺激を受けることにより熱ルミネッセンス (thermoluminescence, TL) や光励起ルミネッセンス (optically stimulated luminescence, OSL) のような発光現象をもたらす。これらルミネッセンス発光量は、過去の加熱や太陽光曝による消去 (ゼロセット) 以後に受けた蓄積放射線量に比例しており、その場での年間線量との関係に基づくルミネッセンス年代測定への利用が注目されている。また、火山性石英や人工的に加熱を受けた石英粒子は、普遍的に赤色 TL (RTL) を示すことがわかってきている。本実験では、新潟県奥三面遺跡において採取した縄文式土器片を用い、抽出した石英粒子について RTL 特性を確認し、RTL 測定を用いた単分画再現 (SAR) 法を初めて適用して蓄積線量を見積もった。その後周辺土壌や土器試料自身より測定した年間線量に基づいて年代を見積もり、OSL 測定法からの値と比較した。また、縄文遺跡の家屋跡に存在していた炉跡からの焼石についても抽出石英粒子を用いてルミネッセンス年代情報取得の可能性を調べた。

2. **実験方法** 採取試料を粉碎した後に水洗し、酸、塩基処理し、重液を用いて石英成分を分離し、粒子試料とした。土器・焼石試料および試料採取周辺土壌からのγ線スペクトルより年間線量を求めた。各種ルミネッセンスの発光色を確認するため、人工的に X 線を 2kGy 照射し、写真撮影および微弱光オンライン分光器システム (IPDA) を用いて TL 波長分光を行った。この結果を基に光電子増倍管と光学フィルターを選択した。RTL 測定は、粒子試料を 1°C/秒で 50~450°C の温度範囲で加熱し、毎秒毎の発光を光電子増倍管で検出した。OSL 測定では、石英成分に青色光 (青色 LED、470nm に発光ピークを示す) 励起を用いた OSL (BSL) を適用した。これらのルミネッセンス測定には、研究室で開発したルミネッセンス自動測定システムを用い、単分画に対して天然 RTL 測定の後人工的に X 線を既知線量照射し、再び RTL 測定の操作を繰り返す単分画再現 (SAR) 法を適用した。天然蓄積放射線量を基に、年間線量を用いて得たルミネッセンス年代値を予想年代と相互比較した。

3. 結果および考察 IPDA

測定より、今回用いた石英試料は全て RTL を示すことがわかった。SAR 法により求めた蓄積線量を使用し、年間線量で除する事により

年代を評価できた。その結果の一部を表に示す。石英からの RTL 年代結果については縄文土器の様式や堆積層から予想される値に非常に近くなり、信頼できる評価ができた。一方、BSL 測定法からは、いずれの土器試料も低い年代値が見積もられた。今回、同一地点から採取した土器片および焼石試料とも同程度の RTL 年代値を示したことから、焼石は被熱によりそれ以前のシグナルは同時にゼロセットされており、炉跡からの焼石試料を用いても年代測定が可能であることを確認できた。

表 抽出石英試料からの年代値比較 (奥三面遺跡アチャ平)

Sample	予想年代 (年)	年間線量		
		(mGy/year)	RTL年代 (年)	BSL年代 (年)
土器 (A)	4000	3.47 ± 0.11	3800 ± 1100	3300 ± 600
土器 (B)	6000	2.18 ± 0.09	7200 ± 1800	2900 ± 400
土器 (C)	6000	3.69 ± 0.12	7200 ± 800	n.d.
焼石	4000	2.43 ± 0.09	4800 ± 1600	n.d.

Single grain (単一粒子) 法を用いた環境蓄積線量からの
火山起源石英粒子の起源同定

(新潟大院自、新潟大理*) ○八幡 崇、野村幸子*、橋本哲夫*

1. はじめに

天然に広く存在する石英や長石などの絶縁性白色鉱物は、電離放射線との相互作用の結果、様々な発光現象 (ルミネッセンス) を示すことが広く知られている。当研究室では、加熱の際に観測される青色の発光 (BTL) の他に、火山由来の石英に特有な赤色発光 (RTL) を示す石英粒子が存在することを、新潟県阿賀野川河口から抽出した石英粒子の TL カラー写真より、世界に先駆けて発見、報告してきた^{1,2)}。さらに、これらの石英粒子に対して RTL 単分画再現法 (SAR) 測定を行った結果、石英が有している蓄積線量に大きなばらつきがあることが分かってきた。

そこで、本研究では火山噴火由来の石英粒子の蓄積線量評価を行うとともに、新しい手法である単一粒子 (single grain) 法を初めて適用し、得られた個々の石英粒子の蓄積線量を比較することで石英粒子の起源を探る可能性を追究した。

2. 実験方法

石英粒子の蓄積線量評価は当研究室が開発したルミネッセンス自動測定システムを用いて評価した³⁾。測定は、天然 RTL 発光強度 (NRTL) を測定後、同試料に対してルミネッセンス自動測定システムに取り付けられている小型 X 線発生装置にて人工照射を行い、再び測定 (ARTL) を繰り返した。人工照射線量に対する積算発光強度をプロット (線量応答曲線) し、天然 RTL 積算発光強度を内挿することにより天然蓄積線量を評価する単粒子再現法 (SGR, single grain regenerative-dose method) を用いた。

3. 結果および考察

新しい手法である SGR 法を新潟砂丘砂 (B) の 72 個の石英粒子に対して適用した結果、様々な蓄積線量を有している石英粒子が含まれており、図のヒストグラムのように少なくとも 4 つ以上の蓄積線量のピークを形成していることが明らかとなった。このピークの蓄積線量はそれぞれ異なる火山由来の石英粒子であることが考えられることから、この新潟砂丘砂は複数の火山由来の混合噴出物によって形成されていることが明らかとなった。さらに、阿賀野川上流に位置している火山弾から抽出した石英粒子の蓄積線量とこのピークの蓄積線量を比較した結果、蓄積線量の一致したものがあることからこの新潟砂丘砂の形成にはこの火山 (福島県、沼沢火山) も一部寄与したことも明らかとなった。

- 1) Hashimoto *et al.*, *Geochem. J.*, **20**, 111 (1986), 2) *idem*, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, **16**, 3 (1989), 3) *idem*, *J. Nucl. Sci. Tech.*, **39**, 108 (2002).

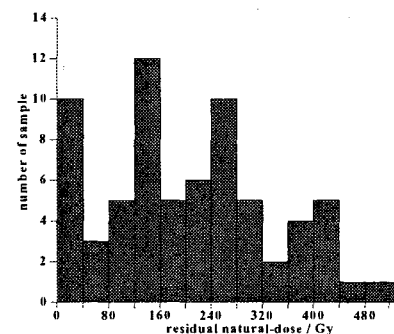


図 single grain 法から得られた蓄積線量ヒストグラム

Identification of volcanic quartz origins from equivalent dose using RTL from a single grain.

YAWATA, T., NOMURA, S., HASHIMOTO, T.

荒川底質中の元素及び化学状態の垂直分布

(東大院理、東大院総合文化) ○片岡正樹、松尾基之

【はじめに】荒川は東京湾にそそぎ込む一級河川であり、中・下流域では人口の集中している地域を横断している。このような都市の中を流れる河川は人間活動による汚染が起きていると考えられ、河川底質にはその汚染が記録されていると考えられる。そこで本研究では、INAA (機器中性子放射化分析)、PGA(中性子誘起即発 γ 線分析)を用いて30数元素の定量を行い、それらの垂直分布を調べた。また、河口域底質中では海水起源の硫酸イオンが還元され、悪臭を持つ硫化水素が発生し問題となっている。そこで、底質中で硫化物を生成すると考えられるFe, Mnについてメスバウアー分光法、XAFS (X線吸収微細構造)法をそれぞれ用いて、深さごとに化学状態分析を行い、底質中での硫化物の分布を調べた。

【実験】試料はアクリルパイプを用いて垂直方向に約50cmのコアとして採取した後、現地で3cmごとに切り分け、変質を防ぐために窒素ガス中に封入した。得られた試料は4気圧の窒素を用いて加圧濾過を行い、間隙水を取り除き、メスバウアー分光法を用いてFeの化学状態分析を、また、XAFS法を用いてMnの化学状態分析を行った。試料はその後、風乾しINAA, PGA測定に用いた。INAA, PGA法は日本原子力研究所 JRR-4, JRR-3M でそれぞれ行った。また、XAFS法の測定は高エネルギー加速器研究機構(KEK)の放射光実験施設においてLytle型検出器を用いた蛍光法で行った。

【結果と考察】得られた底質は表層部では泥質であり粒径が細かく、中層から深層にかけては砂質であり、粒径が大きかった。我々はこれまでに東京湾内に位置する干潟や都市の内部河川底質について研究を行ってきたが、それらの地点では粒径が中層から深層部で細くなる傾向があり、荒川の底質は粒径の分布が他の地点と大きく異なっていた。元素分析の結果、Al, Ti等の垂直分布は他の地点と同様の傾向を示したが、希土類元素の一部は他の地点とは逆に、深くなるに従って減少する傾向が見られた。これらの元素は粒径が細かいほど表面積が大きくなることで吸着しやすくなり、粒径の分布と相関があるものと考えられた。また、Crは汚染の少ない谷津干潟と比較すると高濃度で存在していた。メスバウアー分光法を用いた鉄の状態分析ではpyrite (FeS_2)と常磁性高スピン Fe^{3+} が非常に隣接したピークを有しているため、pyriteのピーク位置を固定し、解析を行った。解析により、pyriteは中層部に多く存在する傾向が見られた(Fig. 1)。また、pyriteの増加に伴い常磁性高スピン Fe^{3+} が急激に減少していた。中層部において底質中は著しく還元的になっており、主に Fe^{3+} がpyriteになり底質中に固定されたものであると解釈された。この傾向は他の地点と一致した。このことから粒径や塩分濃度等の環境因子や人為的な負荷の影響によらず、pyriteは中層部で極大をとる傾向が見られることがわかり、様々な環境の汽水域で鉄が底質中から発生した硫化水素をトラップしているということがわかった。また、XAFS法を用いたMnの状態分析から底質の表層部に MnS が多く含まれている傾向が見られた。

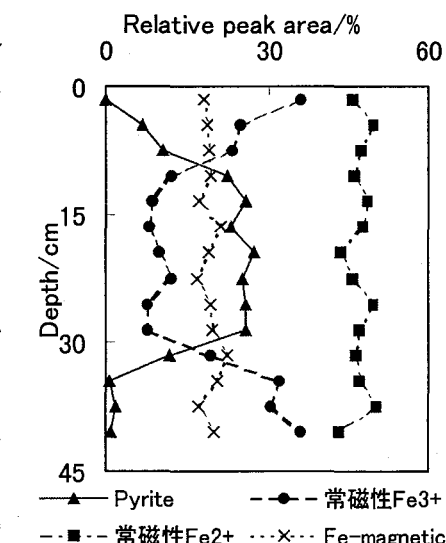


Fig. 1 メスバウアー分光法による鉄の各成分の垂直分布

Vertical distribution of elements and their chemical states in Arakawa-river sediment
KATAOKA, M., MATSUO, M.

黄砂の鉄とホウ素のメスバウアー分光法と即発 γ 線
ドップラー広がり法によるキャラクタリゼーション

(大同工大、国際基督教大^a、原研東海^b)

○酒井陽一、大下一政、久保謙哉^a、松江秀明^b、米沢仲四郎^b

緒言 中国深部砂漠地帯からの春先の“贈りもの”黄砂は年々規模の増大を示している。特に2002年春は西日本に留まらず中部日本、北海道地域まで観測され話題となった。黄砂は砂塵嵐として巻き上げられた微粒子が偏西風によって移動し降下する。対流圏での物質移動、我国の土壌の起源、地球温暖化、酸性雨現象への影響などに関連し大気・地球・環境科学的に興味ある物質である。本研究では、名古屋市で採取した黄砂中の鉄とホウ素の化学的キャラクタリゼーションを、それぞれ ^{57}Fe メスバウアー分光法と即発 γ 線ドップラー広がり法で試みた。

実験方法 2002年3月下旬名古屋市緑区で黄砂を採取した。清浄な塗料つき金属表面に一昼夜で降下した黄砂をティッシュペーパーで拭き取り、水中に懸濁させたのち濾別・風乾し試料とした。 ^{57}Fe メスバウアースペクトルの測定・解析は通常の方法で行った。スペクトルのドップラー速度軸の基準は $\alpha\text{-Fe}$ である。黄砂中の鉄、ホウ素の定量と即発 γ 線ドップラー広がり測定は原研JRR-3Mの冷中性子ビームガイドに設置された即発 γ 線分析装置を用いて行った。 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応で生成する ^7Li から放出される即発478keV- γ 線のドップラー広がりピークの解析は我々が開発した方法で行った(Kubo and Sakai; J. Nucl. Radiochem. Sci., Vol. 1, 83-85 (2000))。

結果 黄砂中の鉄、ホウ素の含有量は、それぞれ4.4%、59ppmであった。図1に室温で測定した黄砂のメスバウアースペクトルを示す。ヘマタイト($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$)、 Fe^{2+} 、 Fe^{3+} 化学種が観測されている。図中の括弧内数値は相対吸収面積(%)である。図2は即発478keV- γ 線のドップラー広がり線形である。横軸は478keVからのシフトである。低エネルギー側の鋭いピークは ^{24}Na によるものである。解析の結果黄砂中での ^7Li 減速定数 D は $1.82 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ と求められた。減速定数は810keVの反跳エネルギーをもって生成した ^7Li の減速の時定数である。 ^7Li を減速させる物質の元素組成、密度についての情報を与える。

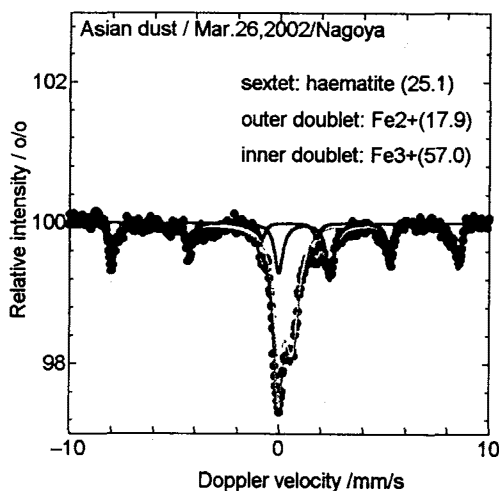


図1：黄砂の ^{57}Fe メスバウアースペクトル
室温測定

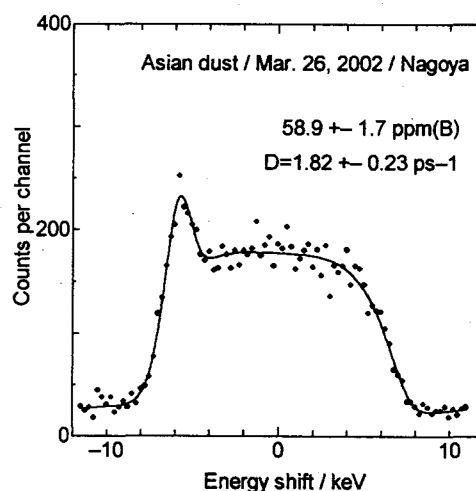


図2：黄砂の即発478keV- γ 線のドップラー
広がり線形 (横軸= $E_\gamma - 478$)

Characterization of iron and boron in Asian dusts by Mössbauer spectroscopy and prompt γ ray Doppler broadening

SAKAI, Y., OHSHITA, K., KUBO, M. K., MATSUE, H., YONEZAWA, C.

レーザー蒸発法によって生成した鉄薄膜

(東理大理) 松本耕・平山慎一郎・増川節子・○山田康洋

はじめに これまで我々はレーザー蒸発した鉄原子の反応に着目し、低温マトリックス単離法とメスbauer分光法を用いて様々な新奇化学種を測定してきた。レーザー蒸発により鉄単原子ばかりでなく鉄微粒子も同時に生成し、未反応の鉄による磁気分裂成分の観測から基板面と平行なスピンの配向が見られた。金属多層膜や鉄薄膜に関しては、すでに多くの研究が報告されており、特にメスbauer分光法は、鉄のスピンの配向を知る有効な手段であることが知られている。ここでは、レーザー蒸発した鉄を直接アルミニウム基板上に蒸着し、そのメスbauerスペクトルを測定した結果について報告する。

実験 レーザー蒸発による薄膜生成は真空中(10^{-1} Pa)で行った。Nd:YAG レーザーの第2高調波(512 nm, 200 mJ/pulse)を凸レンズで集光して金属鉄をレーザー蒸発した。これを 30 mm の距離をおいたアルミニウム基板上に室温で蒸着させて鉄薄膜を得た。測定は $^{57}\text{Co}/\text{Rh}$ を線源として透過法により行った。

結果と考察 図1に得られた鉄薄膜のメスbauerスペクトルを示す。蒸着量が少ない場合(図1a)には α 鉄による330 kOeの内部磁場をもつ成分の他にブロードな成分が見られる。これは様々な粒径を持つ鉄微粒子によるものと考えられる。さらに蒸着量を増すと(図1b)、ブロードな成分のみとなる。内部磁場分布を仮定して解析したところ、ピーク強度比は3:4:1:1:4:3に近く、磁化が基板面内に寝ていることがわかる。さらに蒸着量を増やすと(図1c)再び α 鉄による330 kOeの成分が強くなり、最も蒸着量が多い場合(図1d)には磁場分布を持ったブロードな成分は消滅した。この場合にもピーク強度比は3:2.5:1:1:2.5:3となり面内磁化の傾向を示した。一方、鉄ワイヤーを抵抗加熱して蒸発させ、同様にアルミニウム基板上に蒸着させた試料では、基板面に対して垂直に磁化する傾向が見られた。以上のように、レーザー蒸発により鉄薄膜を生成すると、面内に磁化する傾向が見られた。

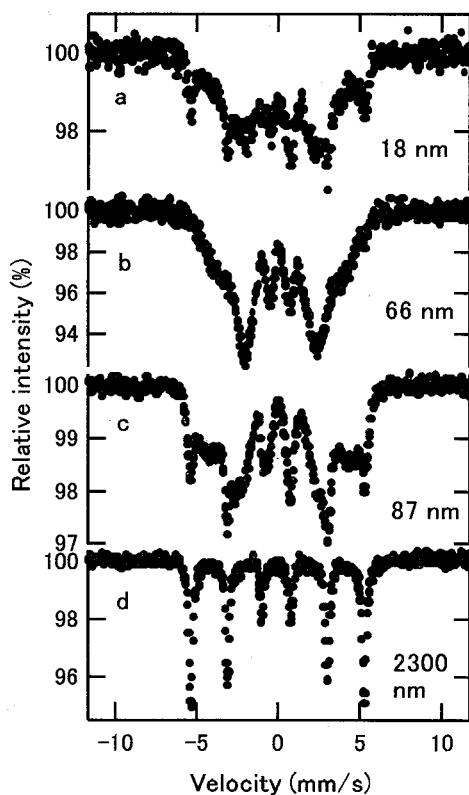


図1 レーザー蒸発法によりアルミニウム基板上に蒸着した鉄薄膜のメスbauerスペクトル(室温)重量から見積られる膜厚を図中に示す。a, b, cは ^{57}Fe , dは天然同位体存在比のFeを使用した。

IRON FILM PRODUCED BY LASER-EVAPORATION

MATSUMOTO, K., HIRAYAMA, S., MASUKAWA, S., YAMADA, Y.

粉末 C_{60} へのプローブ核の植え込みによる γ 線摂動角相関測定

(¹理研・²東工大院理工・³東大院理・⁴都立大院理・⁵京大炉)
佐藤渉¹・上野秀樹¹・渡辺寛¹・小川博嗣²・三好永哲²・今井伸明³・
吉見彰洋¹・米田健一郎¹・亀田大輔²・小林義男¹・末木啓介⁴・
大久保嘉高⁵・旭耕一郎^{1,2}

【はじめに】

フラーレン類は五員環と六員環のネットワークが球殻状に閉じた構造を持つ炭素の新しい同素体である。これらの分子が内包や外接によって異種原子と隣接するフラーレン化合物は、半導体や超伝導体としての性質等、物質科学の観点で非常に興味深い物性を示す。本研究では原子核をプローブとする γ 線摂動角相関法によって、 C_{60} 分子とそれに隣接するプローブ核との相互作用についての情報を得て、プローブ周辺の局所場の観察を行った。

【実験】

本研究ではフラーレン分子間隙にプローブを導入する方法として、不安定核の植え込み法を採用した。実験は理研の入射核破砕片分離装置 (RIPS) と京大原子炉のオンライン同位体分離装置 (ISOL) を用いて行った。前者ではリングサイクロトロンで加速した一次ビーム (^{22}Ne) の入射核破砕反応によって生成した ^{19}O を[1]、後者では核分裂片の ^{140}Cs を銼剤成型した C_{60} 粉末に植え込んだ[2]。これらの親核はそれぞれプローブの ^{19}F と ^{140}Ce へと β 崩壊する。 ^{19}O は短寿命核 ($t_{1/2} = 26.9$ s) であるため、オンラインで角相関測定を行い、 ^{140}Cs については娘核の ^{140}Ba と ^{140}La が放射平衡に達した後、測定を開始した。カスケード γ 線の検出には、時間分解能に優れる BaF_2 シンチレーターを用いて 90° 方向と 180° 方向の同時計測を行った。RIPS でのオンライン測定では、16本の検出器を4つの独立した面に4本ずつ設置して検出効率の向上を図った。

【結果と考察】

図1に ^{19}F プローブの時間スペクトルを示す。角相関の異方性 $[A_{22}G_{22}(t)]$ がゆっくり緩和してゆく中で、核スピンの歳差運動を示唆する周期的な成分が観測されている。これはプローブが動的な揺動を受けている成分と核外場との電気四重極相互作用をもつ成分が混在していると解釈できる。一方 ^{140}Ce プローブでは明らかな静的摂動が時間スペクトルに現れた。スペクトルに温度依存性が見られないことから、 ^{140}Ce 核は C_{60} 分子の回転運動の影響を受けない環境に存在しているものと考えられる。これら二つの実験結果をもとに、電荷やイオン半径の異なるプローブの周囲の環境について考察する。

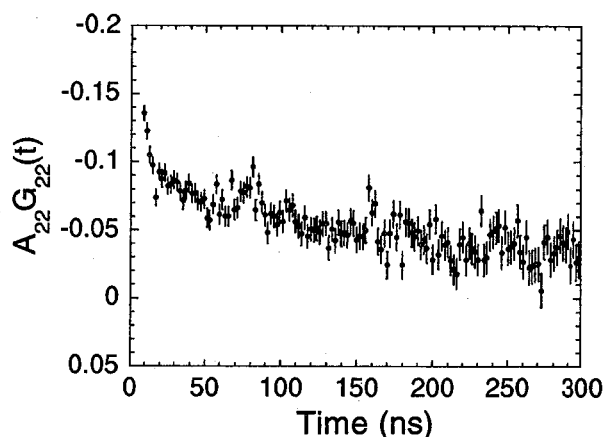


図1. 室温での粉末 C_{60} 中 ^{19}F の摂動角相関

【参考文献】

- [1] W. Sato *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem., in press.
[2] K. Sueki *et al.*, KURRI Prog. Rep. 2001, in press.

TDPAC Studies Using Probes Implanted in Powder C_{60}

SATO, W., UENO, H., WATANABE, H., OGAWA, H., MIYOSHI, H., IMAI, N., YOSHIMI, A., YONEDA, K., KAMEDA, D., KOBAYASHI, Y., SUEKI, K., OHKUBO, Y., ASAHI, K.

二酸化炭素の臨界点近傍における陽電子寿命

(東北大理、東大原総セ^A、高工研^B)

木野康志、関根勉、塚越智、工藤博司、伊藤泰男^A、鈴木健訓^B

物質中に打ち込まれた陽電子は、原子分子中の電子との直接衝突（自由消滅）やポジトロニウム生成を経て消滅する。消滅までの時間（寿命）は物質の性質により0.1~100 nsと大きく変化する。また、陽電子消滅は局在化された微小領域（~nm）で起こるため、超臨界流体のミクロな構造や物性、特に超臨界状態での密度の揺らぎ等を明らかにするためのプローブになると考えられる。一方、超臨界点近傍では単一の物質でも物性値を大きく変えることが出来るため、陽電子と物質との相互作用を調べるのに都合が良い。

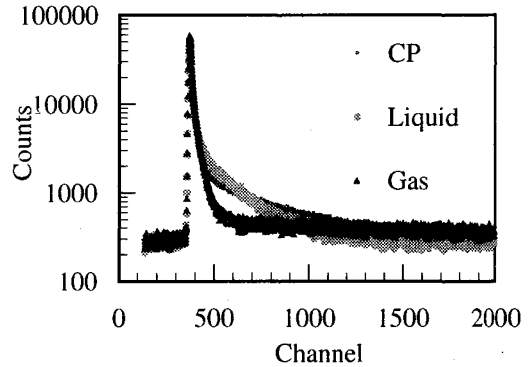


図1. 二酸化炭素中における陽電子寿命スペクトル。CP (31.5 °C, 7.5 MPa)、Liquid (15.6 °C, 14.3 MPa)、Gas (15.6 °C, 4.0 MPa) (1 channel = 0.0236 ns)

本研究では、二酸化炭素（臨界温度31.1 °C、臨

界圧力7.38 MPa）中に打ち込まれた陽電子の寿命およびその強度を同時計数法により測定した。得られた陽電子寿命スペクトル(図1)に、装置の時間分解能を畳み込んだ3つの指数減衰曲線とバックグラウンドの和を χ^2 フィットし、3種類の寿命とその強度を得た(図2)。3種類の減衰曲線は、パラポジトロニウム(寿命 ≈ 0.125 ns)消滅を含む第1成分、自由消滅による第2成分、オルトポジトロニウム(寿命 ≈ 140 ns)消滅による第3成分に帰属することができる。第1成分はほぼ一定であるのに対し、第2、第3成分は、圧力-温度曲線での気液境界線および臨界点と等しい密度線上において、寿命、強度とも大きく変化した。今回は陽電子の寿命と二酸化炭素の密度との関係について報告する。

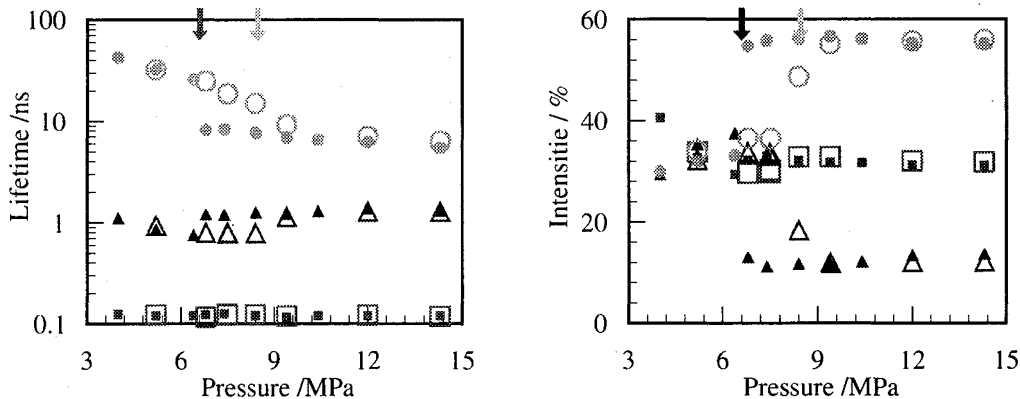


図2. 陽電子寿命と強度の温度圧力依存性。記号は第1成分■, □、第2成分▲, △、第3成分●, ○を示す。矢印は26.2°C(■, ▲, ●)における気液境界圧力(6.61 MPa)を↓、37.3°C(□, △, ○)において超臨界密度をあたえる圧力(8.47 MPa)を↓でそれぞれ示す。

Positron lifetimes in the vicinity of critical point of carbon dioxide
Kino, Y., Sekine, T., Tsukakoshi S., Kudo, H., Ito, Y. and Suzuki, T.

(東北大理、理研^A)

木野康志、山中信弘^A、高野靖史、工藤博司

陽電子と水素原子(H)の散乱におけるポジトロニウム(Ps)生成断面積と陽電子消滅断面積を時間依存チャネル結合法を用い計算した。この方法では散乱における陽電子と電子の波動関数の時間発展を視覚的にとらえることが出来る。図1に入射エネルギー30 eVのときのs波の波動関数の時間発展の様子を示す。等高線は対数表示で、 r と R はそれぞれ電子と陽電子の動径座標を示す。横軸 R に沿った成分はHの波動関数を、 $R=r$ の対角線上の成分はPsの成分を、縦軸 r に沿った成分はHのイオン化をそれぞれ示す。(a)は始状態におけるHの1s状態を示す。(b)でみえる細かい振動は入射波と散乱波の干渉により生じたものである。(c)は弾性衝突、非弾性衝突、イオン化及びPs生成の重ね合わせである。

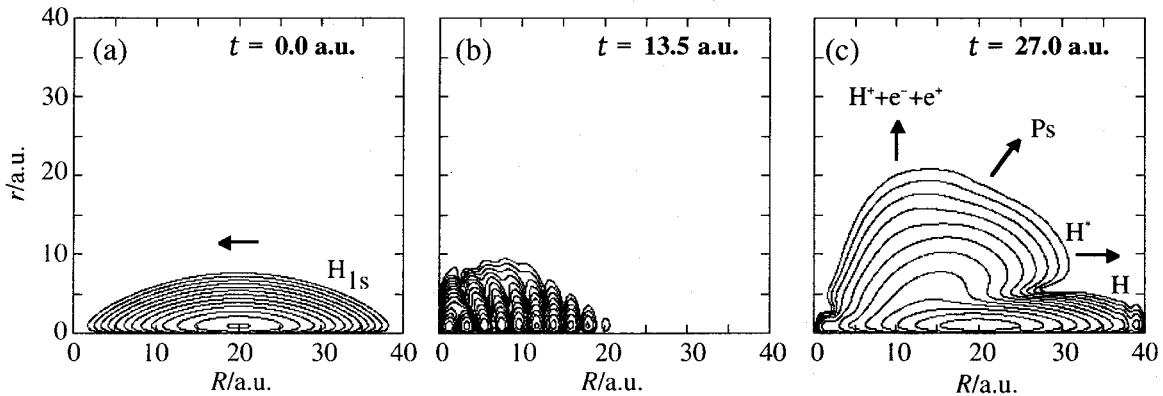


図1. $H + e^+ \rightarrow p + Ps$ 反応における波動関数(波束)の時間発展、 $1 \text{ a.u.} \approx 2.4 \times 10^{-17} \text{ s}$

Ps生成断面積は実験値と良く一致した(図2-i)。 2γ 消滅($H + e^+ \rightarrow p + 2\gamma$)断面積(図2-ii)は入射エネルギーの減少とともに増加する。このことは断面積の空間分布(図2-iii)より、Hの内側ではクーロン相互作用が支配的になり消滅のエネルギー依存は少ないが、外側では陽電子の速度が遅いためHの周囲での滞在時間が増え消滅の確率が増すためであると理解できる。

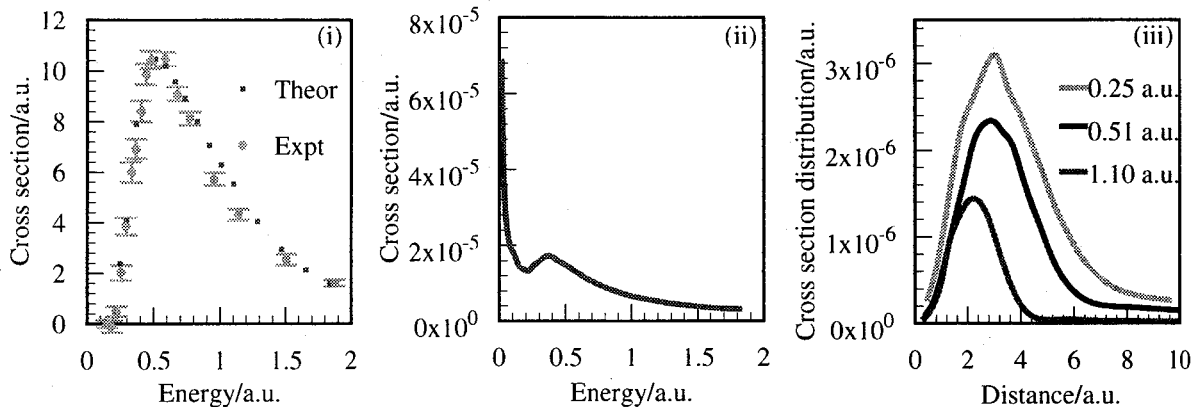


図2. (i) Ps生成断面積、(ii) 2γ 消滅断面積、(iii) 2γ 消滅断面積の空間分布

Positronium formation and positron annihilation cross sections in positron-hydrogen collisions
Kino, Y., Yamanaka, N., Takano, Y. and Kudo, H.

負パイ中間子捕獲に伴う電子X線スペクトルの測定

(阪大院理¹、京大原子炉²、金沢大院自然³、金沢大理⁴、高工研⁵)
 後藤邦夫¹、笠松良崇¹、高宮幸一²、豊嶋厚史¹、正司 譲¹、二宮和彦¹、
 菊永英寿³、木下哲一³、横山明彦⁴、浜島泰典⁴、三浦太一⁵、○篠原 厚¹

【はじめに】 負のパイ中間子（もしくはミュオン）が物質中で静止すると、中間子原子が形成される。その物質中での形成過程や挙動は物質の分子構造や状態に影響される。これまで、我々のグループ（ π AX）では、化学的観点からパイ中間子原子の形成過程と中間子水素原子から他原子へのパイ転移過程を実験的に研究し、過程全体を記述できる捕獲モデルを提唱した。しかしこれまで、観測量（パイオニック X 線（ π X 線）や π^0 壊変）は捕獲過程の終状態に対応しているにもかかわらず、捕獲モデルでは分子の状態の保持を仮定していた。今後さらに中間子原子形成過程の微視的な理解を目指すには、捕獲過程と捕獲後の分子の状態に関する情報を得る新しい実験手段が必要となる。ここでは、高エネルギー加速器研究機構の陽子加速器（KEK-PS）のテスト実験（T465/480/499）として行われた、 π X 線と原子系からの特性 X 線（eX 線）の同時相関測定法の開発と予備測定の結果について報告し、次期実験計画について議論する。

【実験】 テスト実験は、KEK-PS の $\pi\mu$ チャネルの旧 π AX 実験システムを利用し、測定系として、2 台の低エネルギー用 Ge 半導体検出器からの各エネルギーシグナルと時間差シグナルをリストモード収集出来るものを構築した。実験は次のような内容で行われた。

- 1) 相関測定のための新測定系と遮蔽の評価
- 2) X 線測定テスト (Nb、Ag、Ta、Pb ターゲット)
- 3) 時間相関測定テスト (Ta、Pb ターゲット)

図 1 に得られたスペクトルと各 π X 線と同期する eX 線スペクトルの例を示す。現セットアップでは統計が悪いが、Ta ターゲットに対し Hf の KX 線が観測された。

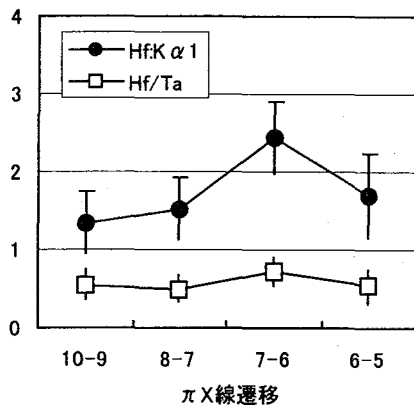
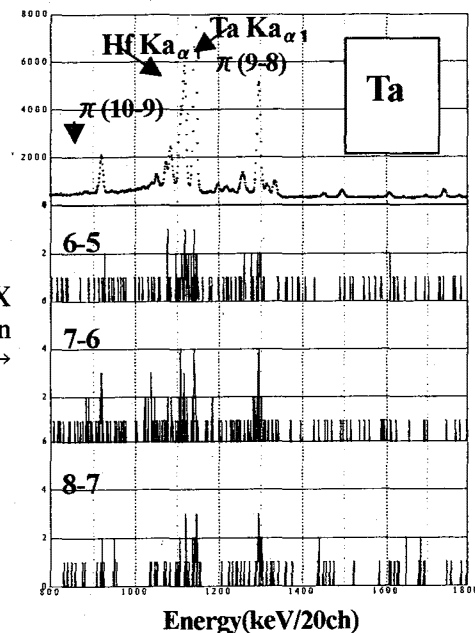


Fig. 1. An example of eX - π X-ray correlation spectra.

Fig. 2. Dependence of the intensities of eX rays on the pionic transitions.



【結果及び考察】 次期 π AX 実験では、捕獲後の分子（原子）内再配列を eX 線の微細構造の変化から調べることを検討している。第 3 周期元素の化合物を想定すると、ある π 遷移により K 電子がイオン化（Auger 過程）された時点で分子構造が保持されているかどうか、価電子からの遷移に対応する K_{β} X 線の強度変化等に現れるはずである。図 2 で分かるように、各遷移に対する eX 線 (Hf : KX 線) の強度変化にある程度の相関が観測され、本方法論の妥当性が示された。現在、より高効率なセットアップと 2~3 keV まで高分解能で測定できるシステムを準備中である。

Measurements of Electronic X-Ray Spectrum Following Pion Capture Process

GOTO, K., KASAMATSU, Y., TAKAMIYA, K., TOYOSHIMA, A., SHOJI, Y., NINOMIYA, K., KIKUNAGA, H., KINOSHITA, K., YOKOYAMA, A., HAMAJIMA, Y., MIURA, T., SHINOHARA, A.

旧尾小屋鉱山地下測定室の検出器特性

金沢大 LLRL ○小村和久、浜島靖典

[はじめに] 旧尾小屋銅鉱山（石川県小松市南東）のトンネル内の地下測定室（水深 270m 相当）が稼動して 7 年になる。この間、科研費(A,B)等の研究助成による検出器の導入があり、2002 年 7 月現在、8 台の極低バックグラウンド Ge 検出器が稼動している。一研究室の検出器所有台数としては世界トップにランクされる。地下測定室は辰口町の研究室から約 21km、アクセス時間 25-30 分と極めて便利なところに位置している。また小松空港や JR 小松駅から約 30 分で到達できる近距離にあり航空機を利用した宇宙線照射実験で半減期 1 時間以下の短寿命宇宙線誘導核種の測定も可能である。

[検出器特性] 所有している同軸型 1 台、平板型 3 台、井戸型 4 台の Ge 検出器及び Si β 線検出器の仕様、バックグラウンド計数等の概要を表に示す。これらの検出器は全て極低バックグラウンド仕様である。新規導入の Ge 検出器 (*印) は遮蔽の改善段階にあり、運搬時の宇宙線誘導核種の減衰があるので、バックグラウンド計数を今後低減できる見込みである。100-2000keV 領域のバックグラウンド計数は地上での遮蔽時と比較して約 2 桁低く、検出限界はおおよそ 1cpd である。神岡（水深 2700m 相当）を含む世界の大深度地下施設と比較して宇宙線起源のミュオン強度は数桁は高いが、旧金沢城で使用されていた鉛瓦廃材から作成した鉛遮蔽の適用により、水深 300m の地下測定室としては世界トップクラスのバックグラウンド計数を達成している。

[測定例] 地下測定のメリットは従来の装置では検出不可能な極微量の放射能の検出・測定の実現、必要な試料量の大幅な低減とそれに伴う時間的・空間的分解能の大幅向上、測定時間の大幅短縮、測定精度の向上である。これまでの測定例として JCO 臨界事故による中性子誘導核種、根上、つくば、神戸隕石中の宇宙線生成核種、環境中性子誘導核種、広島・長崎原爆被ばく試料中の ^{152}Eu 及び ^{60}Co 、雨水・湖水・河川水中の ^{22}Na 、大気浮遊塵中の ^7Be 及び ^{210}Pb の高時間分解能測定、沿岸の海水および海藻中の天然および人工放射性核種等がある。

Table 1. Low background detectors in Ogoya underground laboratory

Detector type	Rel. efficiency or size	Company	0.1-2.0 MeV Background (cpm)#	Year of install	Remarks
coaxial Ge	93 %	Eurisys	1.12	1995	
well Ge	65 %	Eurisys	1.20	1998	well 21mm ϕ x60 mm
	37 %	Canberra	0.82	2000	well 10mm ϕ x60 mm
	73 %	Eurisys	1.60*	2002	well 21mm ϕ x60 mm
	70 %	Eurisys	1.75*	2002	well 21mm ϕ x60 mm
planar Ge	28cm ² x2cm	Eurisys	0.50	1995	
	38cm ² x3cm	Eurisys	0.62*	2002	New
	38cm ² x3cm	Eurisys	0.75*	2002	New
Si beta	300mm ²	Canberra	0.02 (0.03-2MeV)	1993	Anti coincidence by NaI

background count as of July, 2002

Characteristics of low background Ge and Si detectors in Ogoya underground Laboratory.
KOMURA, K, HAMAJIMA, Y.

つくばにおける最近のプルトニウム降下量について

(気象研, KINS) 廣瀬勝己、五十嵐康人、青山道夫、

C.-S. Kim, C.-K. Kim

気象研究所地球化学研究部では 1957 年以降降下物中のプルトニウムの測定を行ってきた。1985 年以降は大気圏中国核実験による成層圏フォールアウトの影響もなくなり、ほとんど同じレベルを推移している。レベルは低いけれども一定レベルを維持している降下物中のプルトニウムの起源を解明することは重要な課題である。最近の降下物中の人工放射能の起源として、土壌粒子の再浮遊が主要であると考えられている。特に、つくばで観測されている降下物中の人工放射性核種(^{137}Cs など)の起源として黄砂が重要であるとの仮説を提案してきた。この仮説を検証するため最近のプルトニウム降下量の季節変化を解析すると共にプルトニウム同位体を測定した結果を報告する。

つくばで月間降下物(降水/落下塵)を採取面積 4 m^2 の降水採取器で採取した。採取した降下物は、全て蒸発乾固した。固形物の重量を測定したのち、 γ 線スペクトロメトリーで ^{137}Cs を分析した。その後、酸で分解して、イオン交換法により分離精製したのち、プルトニウム画分はステンレス板上に電着し、 α 線スペクトロメトリーで定量した。また、一部の試料を韓国原子力安全院に送付し、高分解能 ICP/MS でプルトニウム同位体比($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$)を測定した。

1985 年以降 2000 年までの $^{239,240}\text{Pu}$ 年間降下量は 1.7 から $6\text{ mBq/m}^2/\text{y}$ の範囲にあった。この間、最も低い値は 1989 年に、最も高い値は 2000 年に観測された。1985 年以前と比べて、プルトニウム年間降下量は過去 15 年間系統的な変化を示していない。一方、つくばにおける月間 $^{239,240}\text{Pu}$ 降下量は毎年類似の季節変化を示す。特に、年間降下量が大きな年は明瞭な春期の降下量極大がみられる。春期の極大の出現時期は、日本における大陸からの風送塵(黄砂)の飛来の時期と一致している。従って、つくばで観測されるプルトニウムのかなりの部分は大陸由来の風送塵に由来する可能性が高い。1999 年の降下物試料についてプルトニウム同位体比を高分解能 ICP/MS で測定した。その結果、春期の比較的降下量が高い試料については、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (原子比)は 0.18 (グローバルフォールアウトの値)に近い値であった。すなわち、春期の降下物中のプルトニウムの大部分はグローバルフォールアウトにより地表に降下したプルトニウムの再浮遊したものである。

Recent trend on plutonium deposition observed at Tsukuba

HIROSE, K., IGARASHI, Y., AOYAMA, M., KIM, C.S., KIM, C.K.

青森県六ヶ所村の畑地における Pu の分布

○大塚良仁、五代儀貴、柿内秀樹、久松俊一、稲葉次郎
((財) 環境研)

[緒言] 青森県六ヶ所村に建設の進められている再処理工場では、大量の Pu が取り扱われ、万一の事故等で環境中に放出される可能性がある。本研究では、再処理工場の本格稼働前に、六ヶ所村における Pu の分布とその変動要因を知ることを目的とする。調査は、年度毎に六ヶ所村村内の畑地、水田、果樹園、森林、未耕地の順に行う予定であり、今回は畑地の調査結果について発表する。

[実験] 試料採取は、六ヶ所村 13 地点とコントロール 3 地点 (弘前市、東北町、八戸市) の合計 16 地点で行った。これらの地点において、直径 75 mm 長さ 1 m の土壌コアを一地点につき 5 本採取した。それぞれのコアを性状の異なる 3~5 層に分け、原則として 5 本分をまとめたものを分析試料とした。この分析試料を 450 度で 8 時間加熱し、有機物成分を分解除去した。これに回収率モニターとして既知量の ^{242}Pu を添加し、8 M 硝酸で 8 時間加熱し、Pu を浸出させた。この浸出液から化学分離した Pu を ICP-MS で測定し、 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu を定量した。更に、分析試料の一部を、プラスチック容器 (U-8) に移し、 γ 線スペクトロメトリーにより ^{137}Cs を測定した。

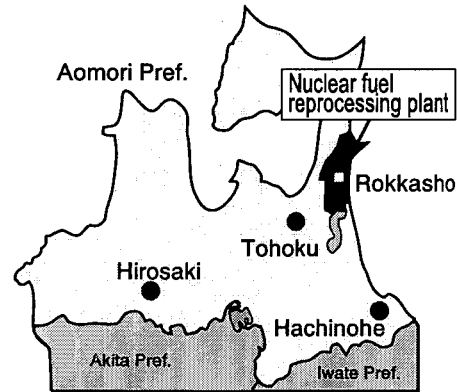


Fig. Sampling sites

[結果] 六ヶ所村の多くの畑地では、ナガイモ等の栽培のため約 1 m まで耕作されており、Pu の深度分布は大きく乱されていた。ナガイモの耕作履歴がなく、Pu 深度分布に乱れのない 3 地点における $^{239+240}\text{Pu}$ インベントリーの平均は 120 Bq m^{-2} であり、八戸市の値 (103 Bq m^{-2}) に近く、弘前市 (223 Bq m^{-2}) の半分程度であった。全試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、 0.18 ± 0.04 であり、global fallout の値と一致した。 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs 濃度は、土壌が攪乱されているにもかかわらず、比較的良い相関を示し ($r=0.97$)、これらの核種の畑地における挙動は、ほぼ等しいことを示唆している。また、 $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 0.032 ± 0.008 であり、北緯 $30 \sim 40^\circ$ における fallout の $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ を 2001 年に換算した値 0.03 と一致した。以上の結果は、六ヶ所村の畑地中の Pu が、global fallout 由来のものであることを示している。また、再処理工場由来の Pu を評価する際に、Pu 同位体比や $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比が有効となると考えられた。

本研究は、青森県からの受託事業により行われた成果の一部である。

Distribution of plutonium at plowed fields in Rokkasho, Aomori.

○OHTSUKA, Y., IYOGI, T., KAKIUCHI, H., HISAMATSU, S. & INABA, J. (IES)

大気中の分子状水素の捕集

(核融合研) 佐久間 洋一, (名大院工) 飯田 孝夫, 小金澤 孝之,

(日本空調サービス) 田中 将裕, (新大工) 太田 雅壽

(はじめに) 大気中に約0.5ppm含まれる分子状水素を集めそのトリチウム濃度を直接測定するモニター装置開発のための基礎研究である。大気中HT濃度は約25mBq/m³-airで比放射能は水蒸気より5桁以上大きい。分子状水素を集められれば容易にトリチウム濃度測定ができる。大気から水蒸気と酸素を取り除いて水素とメタンを添加した状態の模擬ガスを使い水素を収集する実験をおこなった。

(実験および結果) 日本パイオニクス社製高純度水素ガス精製装置JLS-E・LSを用いて水素ガス透過実験をおこなった。窒素ベースでアルゴン1%、水素・メタンそれぞれ500ppm含むガスを、(1)供給圧力0.6MPa、流速0.5, 1, 2, 3L/min、透過側圧力<1Paと、(2)供給圧力0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6MPa、流速1L/min、透過側圧力<1Pa、で水素透過実験をおこなった。水素およびメタンの測定はガスクロでおこなった。パラジウム膜の温度は420°Cである。結果を図1および図2に示す。図1から水素透過量が試料ガス供給圧の増加と共に増加していることが、また図2からは供給量の増加と共に水素透過率が減少していることが分かる。

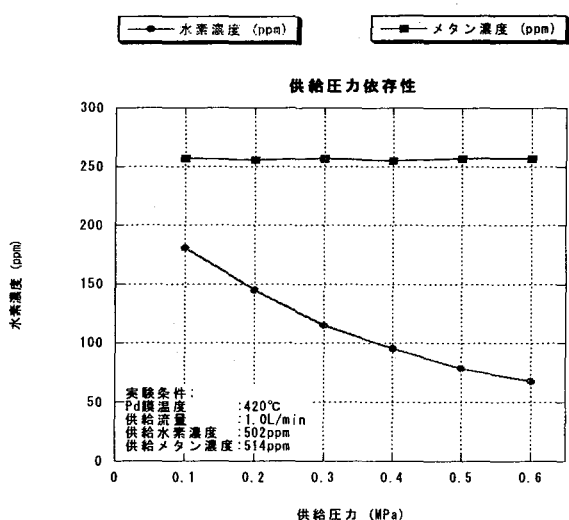


図1 透過水素の供給圧依存性

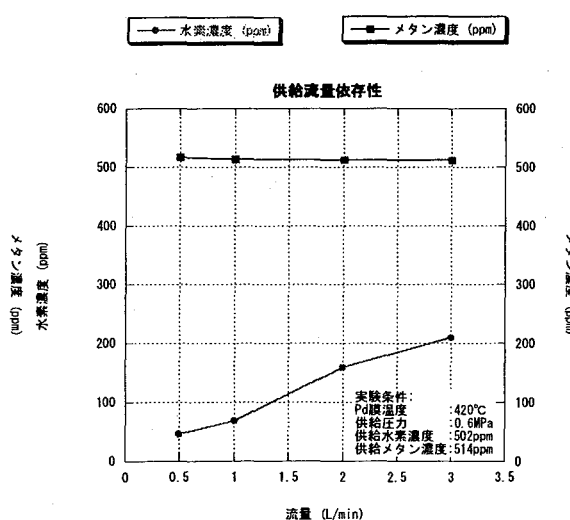


図2 透過水素の供給量依存性

(考察) 実験結果からトリチウムモニターへの適用を試みた。実験結果を外挿すると、供給圧力1.0MPa、水素濃度500ppm、供給流量2L/min(空気換算約2.5L/min)とすると水素透過率は80%、回収水素は8時間あたり約0.8Lで、その中に通常の大気の場合は約20mBqのトリチウムを含むことになる。

(まとめ) パラジウム透過膜によって模擬大気から低濃度の水素を集めることができた。

COLLECTION OF MOLECULAR HYDROGEN IN THE AIR
SAKUMA Y., IIDA T., KOGANEZAWA T., TANAKA M., OHTA M.

電解濃縮を用いた環境水中トリチウム濃度測定的时间効率化

(¹名大院工、²核融合研、³名大医保健、⁴日本空調サービス(株)、
⁵学習院大理、⁶富大理、⁷富大水素研)

小金澤孝之¹、飯田孝夫¹、佐久間洋一²、山西弘城²、緒方良至³、
辻成人⁴、垣内正久⁵、佐竹洋⁶、鳥養祐二⁷

1. はじめに

環境水中トリチウム濃度は液体シンレーションカウンタ(液シン)を用いて測定するのが一般的である。我々は電解濃縮を行わない環境水中トリチウム濃度測定には不純物除去のための測定前の蒸留を濾過に代替可能であると報告した[1]。しかし、近年の環境水中トリチウム濃度は $2\sim 0.5\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ と低く、液シンでの直接測定は難しい。そこで環境水中トリチウムを濃縮する必要があるのだが、その方法として一般的であり、有効とされているものは電解濃縮法である。しかし、電解濃縮を行う際には電解前後に蒸留作業を行うのが定法であり、その作業や蒸留器具の洗浄には多大の労力を要する。そこで、電解前の蒸留を濾過に代替、電解質を添加せずに電解可能なSPE(固体高分子電解質)膜電解装置[2]を用いて電解後の蒸留を省略可能かを検討し、環境水中トリチウム濃度測定的时间効率化を試みた。

2. 実験

2-1. 電解装置からの不純物溶出

電解後の蒸留を省略可能かを検討するために、試料水に超純水を用い、電解装置内に40日間放置、電解濃縮の容積減比10/1、同じく100/1の前処理を行い、トリチウム濃度と不純物濃度を測定した。トリチウム濃縮倍率の算出にはトリチウム濃縮倍率と重水素濃縮倍率の関係式を用いた[3]。不純物濃度を測定した結果、いずれの試料にもSPE膜の成分であるF、 SO_4^{2-} が検出されたが、液シン測定ではこれらの不純物によるクエンチングの影響はなかった。

2-2. 環境試料水のトリチウム濃度測定

電解前の蒸留に代替する濾過法として、精密濾過(MF濾過)と逆浸透膜濾過(RO濾過)を用いた。MF濾過にはポアサイズ $0.1\mu\text{m}$ のフィルタ、RO濾過にはNaCl除去率94%の逆浸透膜を使用した。試料水に井戸水、雨水、河川水、池水を用い、処理法として蒸留、蒸留後に濃縮、RO濾過した後に濃縮、MF濾過した後に濃縮の五つの処理法を行い、トリチウム濃度、不純物濃度を測定した。RO濾過のほうがMF濾過より多くの不純物を除去可能であった。濃縮を行った試料にはいずれも多量の不純物が検出されたが、液シン測定ではクエンチングの影響はなかった。

3. 結論

環境水中トリチウム濃度を測定する際の電解前の蒸留をMF濾過、RO濾過の濾過法に代替、また、SPE膜電解濃縮装置を用いる際の電解後の蒸留は省略してもクエンチングの点からは問題ない。

参考文献

- [1] Yoichi SAKUMA et al., Proc. 10th International Congress on Radiation Protection, P-4a-248, (May 15-19, 2000, Hiroshima, Japan).
[2] 斎藤正明他, Radioisotopes, 45(1996)pp285-292
[3] 垣内正久, Radioisotopes, 48(1999)pp79-86

Time efficiency of tritium measurement in the environmental water by electrolysis enrichment
KOGANEZAWA, T., IIDA, T., SAKUMA, Y., YAMANISHI, H., OGATA Y., TSUJI, N.,
KAKIUCHI, M., SATAKE, H., TORIKAI, Y.

環境試料中のヨウ素-129迅速分析法について

(日本分析セ) 岸本武士、○磯貝啓介、大木善之、森本隆夫

1. はじめに

再処理施設における緊急時環境放射線モニタリングのためのヨウ素-129分析法に関して、環境試料中のヨウ素を固相抽出ディスクを用いて迅速、かつ、簡便に他のハロゲン元素等のマトリックスから分離・精製し測定試料とする方法及びICP-MSを用いたヨウ素-129測定法に関する検討を行い、検出下限値及び分析所要時間について中性子放射化分析法等の従来法¹⁾と比較した。

2. 実験方法

(1)固相抽出ディスクによるヨウ素の分離・精製法(固相抽出法)に関する検討

試料溶液のpHの影響、通液速度の影響、ヨウ素の交換容量の評価、共存する陰イオンの影響、硝酸を用いた溶離法の検討を行った。

(2)ICP-MS測定に関する検討

アルゴンガス中の不純物Xe-129による影響の検討、塩濃度の検討、測定に適したヨウ素の化学形に関する検討、インジウムを内標準とした検量線の作成と検出下限値の検討、メモリー効果の検討を行った。

(3)環境試料への適用

各種環境試料(大気浮遊じん、降下物、飲料水、葉菜、牛乳及び土壌)を用いてヨウ素回収率を確認した。

3. 結果および考察

(1)試料溶液のpHは2~14の範囲で回収率への影響はないこと、通液速度は溶離時のみ流速を遅く(9mL/分)すれば、捕集時は流速が速く(220mL/分)でも定量的な回収率が得られること、ヨウ素の交換容量はディスク1枚あたり約40mgであること、硝酸イオン以外の陰イオンの影響は認められないこと、固相抽出ディスクに吸着したヨウ素を1M硝酸15mLで定量的に溶離・回収できることが判った。

(2)市販のアルゴンガスの純度の差に伴う不純物Xe-129のバックグラウンドへの影響に差は認められないこと、安定した測定のためには測定溶液中の全塩濃度を0.1%以下にする必要があること、ヨウ素の化学形は1M硝酸溶液の場合にはヨウ素酸イオン(IO_3^-)の方がヨウ化物イオン(I^-)に比べ感度が安定すること、測定値の安定性から判断した最適な検量線範囲は0.1~30 ng/mLであり、その検出下限値は0.1ng/mLであること、安定ヨウ素のメモリー効果が高く、残留濃度を検出下限値以下にするためには15分以上の洗浄が必要であることが判った。

(3)ヨウ素回収試験の結果、いずれもほぼ80%以上の回収率が得られた。

4. 結論

簡便、かつ、迅速なヨウ素-129測定試料の調製手法として、固相抽出ディスクを用いた固相抽出法を適用した。ICP-MSを用いた安定ヨウ素(ヨウ素-127)及びヨウ素-129の検出下限値は各々0.1ng/mL及び0.7mBq/mLであった。これは中性子放射化分析法¹⁾に対しほぼ二桁高いものの、 γ 線あるいは β 線計測法による放射化学分析法¹⁾と同程度であり、緊急時の環境モニタリングに適用できることを確認した。本法は、試料の前処理から測定までの一連の分析・測定操作を12時間以内に終了できる。

なお、本検討結果は文部科学省からの委託事業「環境試料測定法調査」(平成12,13年度)によって得られた成果の一部である。

参考文献

1) 文部科学省放射能測定法シリーズ26「ヨウ素-129分析法」(平成8年)

A rapid analytical method for ^{129}I determination in environmental samples using an anion exchange resin disk and ICP-MS

(KISHIMOTO, T., ISOGAI, K., Ohki, Y., MORIMOTO, T.)

放射性核種をトレーサーとした河川水懸濁粒子の移行挙動研究
(北大院地球環境¹、原研²)

長尾誠也¹、上野隆²、永野哲志²、柳瀬信之²、都築克紀²

はじめに

河川水中の懸濁粒子は、河川流域の土壌あるいは岩石の風化生成物等が起源とされ、陸域の土壌特性、河川水の特徴、降雨等により、その濃度や特性が変動すると考えられている。本研究では、懸濁粒子の移行動態を把握し、起源を推定するための手法として、土壌での存在形態および流入経路が異なる K-40、Cs-137、Pb-210 をトレーサーとして用いる妥当性と有効性に関する検討を、久慈川を実験フィールドとして行った。

試料と方法

2001年4月から2002年1月までの計17回、久慈川の下流の定点(新落合橋、河口から約9km)で河川水をポンプで100L採取し、実験室に持ち帰った。実験室では、冷却機付き連続遠心機により懸濁粒子を河川水から分離し、風乾した。季節あるいは降雨の影響により、採取できた懸濁粒子は0.09-20gであった。懸濁粒子中のK-40、Cs-137、Pb-210の放射能濃度は、井戸型Ge検出器で定量した。Pb-210については、Pb-214から過剰Pb-210(exPb-210)を計算した。

結果と議論

観測期間の懸濁粒子(SS)の濃度は、河川流量の増加とともに増加する傾向であった(図1)。一方、懸濁粒子のK-40含量は、流量25m³/sec以上でほぼ一定の値を示した。これは、流量が多い場合は、同じ起源からの供給が考えられる。

図2には、K-40含量に対するCs-137及びexPb-210含量をプロットした。その結果、懸濁粒子の放射性核種の関係は2つのグループに分類され、河川水の流量に対応していた。また、K-40含量に対するCs-137とexPb-210のプロットが若干異なっていた。これらのことは、懸濁粒子の起源あるいは移行動態が流量の多い時期と少ない時期では明らかに異なることを示唆している。

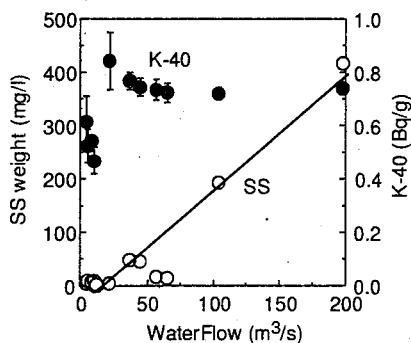


図1 懸濁粒子の濃度、K-40含量と流量との関係

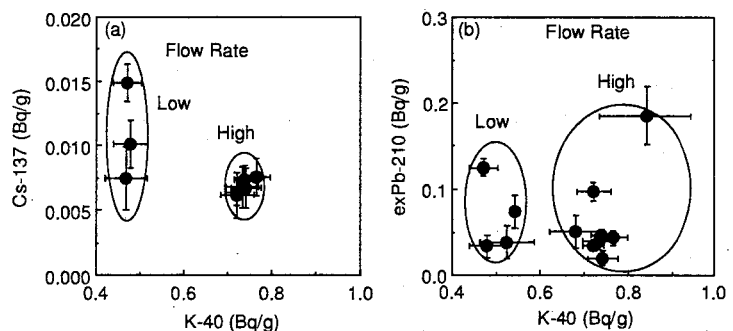


図2 懸濁粒子に含まれる放射性核種含量の変動

Study on the migration behavior of suspended particles in river waters by using radionuclides as a tracer
NAGAO, S., UENO, T., NAGANO, T., YANASE, N., TSUDUKI, K.

湖水環境中の極微量 ^{22}Na 測定法の開発とその応用(金沢大 LLRL¹ (財)環境研² 金沢学院大³ 琵琶湖研⁴)○坂口 綾¹、山本 政儀¹、大塚 良仁²、佐々木 圭一³横田 喜一郎⁴ 小村 和久¹

<はじめに> ^{22}Na ($T_{1/2}=2.6$ y, β^+ , $\gamma:1275$ keV)は大気中の Ar と宇宙線との核破碎反応で生成する宇宙線生成核種である。この核種は、 ^7Be と共に成層圏-対流圏における空気塊の移行過程及び、エアロゾルのトレーサーとして用いられてきた。一方、水圏では測定困難であるために、他の地球化学分野への応用は殆どなされなかった。しかし、近年になって整備されてきた石川県小松市尾小屋町にある地下測定室(270 m.w.e)の極低バックグラウンド Ge 検出器を用いることで、500 L 以上の湖水・河川水から ^{22}Na の測定が可能になってきた。 ^{22}Na は主に降水により地上に供給され、水環境中においては安定な Na と同様、保存性物質として挙動すると考えられる。そこで降水、河川による ^{22}Na の湖への供給量と湖水中の ^{22}Na 溶存量を見積もり、 ^{22}Na の収支を明らかにすることで、湖水中における可溶性成分の平均滞留時間の評価や、河川集水域における可溶性降下物の移行挙動のトレーサーとしての利用など、水文学への展開が期待できる。

本研究では、淡水試料中の溶存主成分である Mg、Ca、Si の除去による線源の減容化、及び ^{40}K ($\gamma:1461$ keV)のコンプトン散乱に起因するバックグラウンドの低減化をめざした Na の化学分離・濃縮法を構築し、 ^{22}Na の γ 線測定精度を向上させた。さらに本化学分離法を用いて琵琶湖湖水及びその流入河川水を分析し、得られた値から琵琶湖水系における ^{22}Na の平均滞留時間の算定を試みた。

<方法> 測定試料の減容化と ^{40}K 除去の化学分離法構築のために以下のトレーサー実験を行った。まず、琵琶湖湖水の主溶存陽イオン濃度を模した Ca、Mg、Na、Si 及び K に既知量の ^{22}Na を添加した模擬試料を作成し、Ca と Mg を炭酸塩として、Si を酸化物として沈殿除去した。K は $\text{Na}[\text{B}(\text{C}_6\text{H}_5)_4]$ (通称カリボール)用いて沈殿除去した。残りの溶液を蒸発乾固後、Ge 半導体検出器で ^{22}Na 放射能を測定し、本スキームにおける ^{22}Na の回収率を検討した。

実試料中の ^{22}Na 分析用に琵琶湖北湖南部水深 51 m 地点において 10、20、30、40 m の各 4 層、流入河川である安曇川、野洲川(2 河川合わせた流入量は全流入量の 25%)さらに唯一の流出河川である瀬田川においてポンプを用いて各々約 500 L 採水した。水中の ^{22}Na (Na)イオンは、イオン交換樹脂カラム(Amberlite 系樹脂、カラム: 73 mm ϕ × 430 mm)を用いて捕集した。湖水の主要イオン濃度と採取水量、樹脂の交換容量及び安全裕度等を考慮して、1.8 L の樹脂を用いた。試料水は、糸巻きフィルター(0.5 μm 孔相当)を通して、カラムに約 2 L $\cdot\text{min}^{-1}$ の流速で流した。同時に、Na の捕集効率を評価するために、カラム通過後の水を採取した。樹脂に吸着させた Na を HCl で溶離後、溶離液を蒸発乾固した。その残渣を平型 Ge 検出器で γ 線測定した後、上記の分離法によりマトリックス除去を行った。得られた溶液を蒸発乾固させたものを地下測定室内の同軸型低バックグラウンド Ge 検出器で ^{22}Na の γ 線測定を実施した。

<結果> 分離スキームによる ^{22}Na 回収率は $98 \pm 2\%$ ($n=5$)であった。その際に、K は 95%以上除去されており、本分析法が湖水中の ^{22}Na 測定に十分適用可能であることを確認した。これまでに 14 試料(湖水: 4 層 × 2 seasons、河川水: 3 河川 × 2 seasons)の測定を行った。その結果、湖水中の ^{22}Na 濃度は 20–32 mBq $\cdot\text{m}^{-3}$ であり、河川水では、湖水よりもやや高い 27–40 mBq $\cdot\text{m}^{-3}$ であった。これらの値と、併測した ^{22}Na 降水量から琵琶湖水系における ^{22}Na 収支を見積もると琵琶湖への ^{22}Na 供給源は、大気のみならず河川も大きく寄与していることが分かった。琵琶湖及び集水域での ^{22}Na 平均滞留時間は、それぞれ約 11 年、約 19 年と見積もられた。

Measurement of low-level cosmogenic ^{22}Na and its application to fresh water system
SAKAGUCHI,A., YAMAMOTO,M., OHTSUKA,Y., SASAKI,K., YOKOTA,K., KOMURA,K.