

研究発表要旨

9月24日(月)

1A01 ~1A14 : 口頭発表 A会場
1B01 ~1B13 : 口頭発表 B会場

1A01

104 番元素ラザホージウム（Rf）のフッ化水素酸/硝酸系における陽イオン交換樹脂への吸着挙動

（静岡大理放射研^a，茨城大院理工^b，原子力機構^c）

○石井康雄^a，宮下直^a，森友隆^a，菅沼英夫^a，當銘勇人^b，笠松良崇^c，
豊嶋厚史^c，浅井雅人^c，西中一郎^c，塚田和明^c，永目諭一郎^c

【緒言】 これまでに 104 番元素ラザホージウム（Rf）の水溶液中におけるフッ化物イオンとの相互作用を陰イオン交換法によって調べ、6 フッ化物錯体の形成が同族元素である Zr および Hf のそれよりも著しく弱いことを明らかにしてきた[1, 2]。本研究では Rf の低次フッ化物錯体の形成を調べるため、HNO₃/HF 水溶液系における Rf の陽イオン交換挙動を 4 価の陽イオンである Zr、Hf および Th の挙動と比較をおこなった。

【実験】 原子力機構タンデム加速器を用いて、⁸⁹Y(*p,2n*)および¹⁷⁵Lu(*p,n*)反応により製造した⁸⁸Zr(83.4 d)および¹⁷⁵Hf(70.0 d)、さらに天然ウランより分離した²³⁴Th(24.1 d)をトレーサーとしてバッチ法による陽イオン交換実験を行った。

AIDA(α線測定装置結合型自動迅速イオン交換分離装置)を用いた加速器オンライン実験で Rf の陽イオン交換挙動を調べた。原子力機構タンデム加速器施設において、²⁴⁸Cm(¹⁸O, 5n)により合成した²⁶¹Rf (*T*_{1/2} = 78 s)を He/KCl ガスジェット搬送法により AIDA へ搬送し 130 秒間捕集した。これを 250 μL の HNO₃/HF 水溶液で溶解し、1.6 mm i.d. × 7.0 mm または 1.0 mm i.d. × 3.5 mm の陽イオン交換カラムへ溶解展開させ、その溶出液を Ta 皿に捕集した。その後、0.1 M HF/0.1 M HNO₃ によってカラム中の残留物を溶出させ、別の Ta 皿に捕集した。これらを蒸発乾固させた後、600 mm² の PIPS 検出器で²⁶¹Rf の α 線を測定しその分配係数を求めた。またイオン交換における動的条件と静的条件の検討のため、同装置により¹⁵²Ge (¹⁸O, xn)および¹⁵²Gd (¹⁸O, xn)によって合成した¹⁶⁹Hf (*T*_{1/2} = 3.42 min)および⁸⁵Zr (*T*_{1/2} = 7.86 min)の溶離曲線を取得しバッチ法との比較を行った。

【結果】 HF/0.1 M HNO₃ において Zr、Hf、Th および Rf は、フッ化物イオン濃度の増加に従いその *K*_d 値が減少した。これは、これらのイオンにフッ化物イオンが配位することによって、陽イオン交換樹脂への吸着性能が減少したものと考えられる。また Rf も Zr、Hf、Th と同様にフッ化物イオンとの錯形成をしていると考えられる。また、陽イオン交換樹脂への吸着の強さの順序は Zr ~ Hf > Rf > Th となり、これは各元素のイオン半径の大きさの順序と一致していた。発表ではフッ化物イオン濃度が一定条件における *K*_d 値の硝酸濃度依存性についても併せて報告する。

[参考文献] [1] H. Haba *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 5219 (2004). [2] A. Toyoshima *et al.*, submitted to *Radiochim. Acta*.

Adsorption behavior of element 104 rutherfordium on cation-exchange resin in HF/HNO₃ solution
ISHII, Y., MIYASHITA, S., MORI, T., SUGANUMA, H., TOUME, M., KASAMATSU, Y.,
TOYOSHIMA, A., ASAI, M., NISHINAKA, I., TSUKADA, K., NAGAME, Y.

1A02

105 番元素 Db の HF/HNO₃ 混合水溶液中における化学挙動

(原子力機構¹, 茨城大院理工², 理研³, 首都大院理工⁴, 新潟大理⁵, 阪大院理⁶, 金沢大院自然⁷, 徳島大医⁸, IMP⁹, GSI¹⁰) 笠松良崇¹, ○當銘勇人^{1,2}, 豊嶋厚史¹, 塚田和明¹, 浅井雅人¹, 石井康雄¹, 西中一朗¹, 佐藤哲也¹, 篠原伸夫¹, 永目諭一郎¹, 羽場宏光³, 菊永英寿³, 秋山和彦⁴, 後藤真一⁵, 石川剛⁵, 工藤久昭⁵, 佐藤渉⁶, 大江一弘⁶, 栗林隆宏⁶, 篠原厚⁶, 木下哲一⁷, 荒井美和子⁷, 横山明彦⁷, 阪間稔⁸, Z. Qin⁹, Ch. E. Düllmann¹⁰

【はじめに】

我々はこれまでに 105 番元素ドブニウム(Db)のフッ化物錯体形成を調べるため、バッチ法により HF/HNO₃ 混合水溶液中における軽同族元素 Nb、Ta 及び擬同族元素 Pa の陰イオン交換挙動を調べてきた[1]。本発表では、この結果をもとに開始した Db の陰イオン交換実験の予備的な結果を報告する。

【実験】

原子力機構タンデム加速器施設において、²⁴⁸Cm(¹⁹F, 5n)反応により ²⁶²Db(半減期 34 秒)を合成し、He/KCl ガスジェット法によりα線測定装置結合型イオン交換分離装置(AIDA)に搬送した。75 秒間捕集後、120 μL の 0.89 M HF/0.3 M HNO₃ で溶解し、陰イオン交換カラム(1.0 mm i.d. × 3.5 mm)に導入した。カラムからの溶出液をフラクション 1 として Ta 皿に捕集した。次に陰イオン交換樹脂(MCI GEL CA08Y)に吸着した ²⁶²Db を 150 μL の 0.015 M HF/6 M HNO₃ で溶出し、その溶出液をフラクション 2 として別の Ta 皿に捕集した。これらの試料を He ガス及びハロゲンランプを用いて蒸発乾固し、²⁶²Db もしくはその娘核種 ²⁵⁸Lr からのα線を PIPS 検出器を用いて測定した。また、^{nat}Ge(¹⁹F, xn)、^{nat}Gd(¹⁹F, xn)反応で合成した ⁸⁸Nb(14.3 分)及び ¹⁷⁰Ta(6.76 分)の溶離挙動も Db と同じ条件下で調べた。

【結果と考察】

陰イオン交換実験を約 3000 回繰り返して行った結果、²⁶²Db もしくはその娘核種 ²⁵⁸Lr 起源のα線エネルギー領域において総計 11 カウント観測した。陰イオン交換樹脂に ⁸⁸Nb が約 76%、¹⁷⁰Ta が 99%以上吸着したのに対し、²⁶²Db の吸着率は 70%以下であった。0.89 M HF/0.3 M HNO₃ ([F] = 3 × 10⁻³ M)の濃度条件では、陰イオン交換樹脂に対する吸着率の順列が Ta > Nb ~ Db となることがわかった。

参考文献 [1]笠松他、第 50 回放射化学討論会 4P14(2006).

Chemical behavior of element-105, Db, in mixed HF/HNO₃ solutions

KASAMATSU, Y., TOUME, H., TOYOSHIMA, A., TSUKADA, K., ASAI, M., ISHII, Y., NISHINAKA, I., SATO, T. K., SHINOHARA, N., NAGAME, Y., HABA, H., KIKUNAGA, H., AKIYAMA, K., GOTO, S., ISHIKAWA, T., KUDO, H., SATO, W., OOE, K., KURIBAYASHI, T., SHINOHARA, A., KINOSHITA, N., ARAI, M., YOKOYAMA, A., SAKAMA, M., QIN, Z., DÜLLMANN, CH. E.

(新潟大理¹・機器分析セ²・原子力機構³) ○石川剛¹, 後藤真一²,
工藤久昭¹, 豊嶋厚史³, 塚田和明³, 浅井雅人³, 永目諭一郎³

[はじめに] これまで Rf の化学的性質を調べるため4族元素塩化物の気相化学実験に取り組んできた。搬送法として He ガスと KCl エアロゾルを用い、反応剤に HCl を使った場合、系内の残留酸素による不揮発性酸化塩化物の生成や KCl による石英カラムの劣化が問題となっていた。そこで KCl の代わりに、酸素除去効果の高いカーボンクラスターをエアロゾルとして用いたところ、²⁵²Cf の核分裂生成物を用いた実験では、搬送効率は KCl を用いた場合とほぼ同等の結果であり、また、揮発性化合物の生成が確認できたので、カーボンクラスターによるガスジェット搬送はオンライン実験に十分適用できることが示唆された[1]。本発表では、Zr, Hf を用いたオンライン実験の結果について報告し、Rf の気相化学実験への適用について議論する。

[実験] 原子力機構タンデム加速器を用い、¹⁹F(^{nat}Ga, 5n) および ¹⁹F(^{nat}Eu, 5n) により合成した ⁸⁵Zr($T_{1/2} = 7.86$ m), ¹⁶⁵Hf($T_{1/2} = 76$ s), ¹⁶⁷Hf($T_{1/2} = 2.05$ m) の気相化学反応の挙動を調べた。

本実験で用いた装置の概

念図を Fig. 1 に示した。上記の反応で合成された核種はカーボンクラスターに乗って反応室に送られる。反応室で反応剤 HCl によって揮発性化合物になり、450°C に加熱された等温カラムを通過して HPGe 検出器の前で冷却捕集される。様々な条件下で直接捕集との比較による反応効率を beam-on と同時に測定を開始する growth と beam-off 後の decay の測定とともに行った。

[結果と考察] 直接捕集では Eu ターゲットに含まれる Sm によって合成される Lu が検出されたが、気相化学実験では Hf の子として生成するものしか検出されなかったので、不揮発性の化合物の分離がしっかりおこなわれていることが確認できた。最適な条件下で Zr, Hf の反応効率はそれぞれ約 15% と約 40% だった。KCl では Zr, Hf 共に反応効率は約 5% であり、カーボンクラスターの酸素除去効果によるものと考えられる。しかし、反応剤に Cl₂/CCl₄ を用いた場合の反応効率は 80% であり、反応条件についてさらに検討する必要がある。

[1]石川 他, 第 50 回放射化学討論会

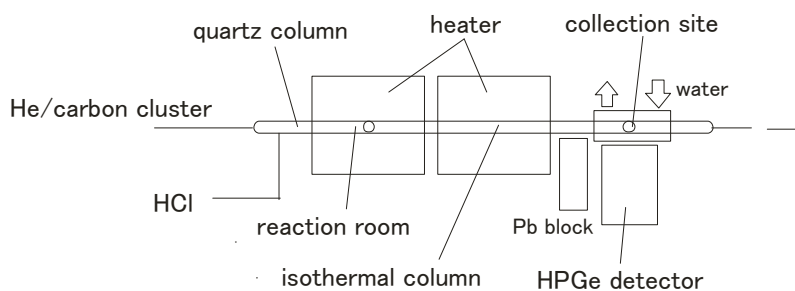


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus

Gas phase chemistry of the group-4 elements using carbon cluster transport system

ISHIKAWA, T., GOTO, S., KUDO, H., TOYOSHIMA, A., TSUKADA, K., ASAI, M., NAGAME, Y.

【序】重元素合成は、新元素合成や新同位体合成、または核壊変・核構造などの核化学・核物理研究のために重要な研究手法であり、低エネルギーの重イオン核融合反応がよく利用される。二つの原子核が融合するとき、励起状態の高い複合核をつくる。複合核が軽粒子放出でエネルギーを放出すれば、残留核として重元素が合成される。近年注目されている超アクチノイド元素合成においても精密な反応機構の理解が必要となっている。そのためには、核融合反応断面積の基礎的データが重要である。本研究では、アクチノイドと同様に変形核であるランタノイド近傍の、Ba 及び La をターゲットとして、¹⁶O との核融合反応実験を行い、昨年放射化学討論会で励起関数の一部について報告した。しかし、報告したデータについては、エネルギーとビーム量の較正の問題、短寿命な生成核種が測定されていないという問題点があった。そこで今回これらの不足を補う行うための実験を行った。そして求めた反応生成物の放射能から断面積を計算し、理論的な励起関数と比較した。

【実験】照射は大阪大学核物理研究センターにて、¹⁶O イオンを用いて行った。入射エネルギーの確認のために、Rh ターゲットでの照射を行い、データを文献値と比較した。また、ビーム量の較正は Al によるモニター反応を利用するので、Al ターゲットを Au キャッチャーとあわせて照射することによって反跳成分の補正を行った。短寿命生成核種の測定のためには、以下のようなガスジェット搬送システムを用いた照射を行った。天然同位体組成の La をアルミホイルに電着してターゲットを調製した。このターゲットに ¹⁶O⁶⁺ イオンを照射した。反応生成物は生成後すぐにガスジェット搬送システムを用いて実験室まで搬送された。ここで、直径 55 mm 長さ 55 mm である円筒形の反跳チャンバーで得た生成物は、KCl クラスタに吸着され、He ガスとともにキャピラリーチューブによって 70 m 離れた実験室までメカニカルブースターポンプにて搬送された。その後、生成物をフィルターで捕集し、Ge 検出器を用いた γ 線測定を繰り返して生成物の同定と定量を行った。

【結果と考察】Rh ターゲットへの ¹⁶O の照射より、ビームエネルギーに大きなずれはないことが確認できた。ただし、計算コード SRIM でのエネルギー損失の計算を再検討し、入射エネルギーを求め直した。反跳成分の補正実験では、約 40 % の反跳がみられた。また、今回の γ 線測定の結果、新たに同定された短寿命核種とそれぞれの半減期を右の表に示す。以上の結果をあわせて現在正確な励起関数について検討している。

表 La+¹⁶O 核融合反応で同定された短寿命生成核種とその半減期

核種	半減期
¹⁵² Tb	4.2 m
¹⁵⁰ Tb	5.8 m
¹⁴⁹ Tb	4.16 m
¹⁴⁸ Tb	2.2 m, 60 m
¹⁴⁷ Tb	1.87 m

Study on the synthesis of heavy elements using the Ba+¹⁶O and La+¹⁶O reaction systems(II)

ARAI, M., NANRI, T., ASANO, A., KINOSHITA, N., OE, K., TAKAHASHI, N., SAITO, T., YOKOYAMA, A.

(東工大原子炉研) ○野村雅夫、鈴木達也、藤井靖彦

【緒言】安定同位体の基となる化学平衡の同位体効果は分子内の原子による振動の量子効果に起因すると理論的に説明されてきた。しかし近年、特に原子価等化学種間の電子状態が大きく変化する場合は核と電子間の作用による核内電場効果により、いわゆる発光スペクトルで観察される Field Shift 同位体効果が化学平衡においても生じる事が分かってきた。本研究ではウラン酸化還元イオン交換クロマトグラフィー実験における各同位体間の分離係数 (ε) と、各ウラン同位体の核電荷半径 $\langle r^2 \rangle$ との相関関係についての検討、およびその他元素についての錯体反応においても、同様な相関関係の存在が確認できるかどうか比較検討する。

【実験】ウラン酸化還元イオン交換クロマトグラフィーでは、陰イオン交換樹脂を用いた U(IV)-U(VI) の交換反応を利用した実験である¹⁾。その他元素の錯体反応を利用したクロマトグラフィーでは、陽イオン交換樹脂をガラス製のカラム (直径 0.8 又は 1cm、長さ 100cm、5 本程度) に充填し、元素を吸着させ、錯形成剤で溶離展開して置換クロマトグラフィーで、所定の展開距離泳動後、フラクションコレクターで流出液を分取した実験である。

【結果および考察】クロマトグラフィーの結果について、フラクション別に収集された試料の同位体の濃縮係数を求め、さらに、3 同位体プロットから傾き θ を求めた¹⁾。その θ と各同位体の質量差について Fig.1 に示す。また、同位体 238,236 ペアを 1 とした相対的な $\delta \langle r^2 \rangle$ についても示した。その他元素、Pb について、野村、他 (1999) の報告では、²⁰⁷Pb のみ体積効果の示唆をしている²⁾。今回、再評価をおこない、各同位体間の同位体効果と各同位体の核電荷半径の差 ($\delta \langle r^2 \rangle$) との相関関係から、錯体反応においてもウランと同様の同位体効果の存在が示唆された。

また、Gd についても、測定されたデータ³⁾ 等から θ の計算、各同位体間の同位体効果と各同位体の核電荷半径の差 ($\delta \langle r^2 \rangle$) との相関関係から、ウランと同様の検討をした。

【参考文献】

- 1) : M. Nomura, et al., J. Am. Chem. Soc., **118**, 9127-9130 (1996)
- 2) : 野村雅夫, 他, 第 47 回質量分析総合討論会 講演要旨集 1-O3-07, 84-85 (1999)
- 3) : J. Chen, et al., J. Nucl. Sci. Technol., **29**, 1086-1092 (1992)

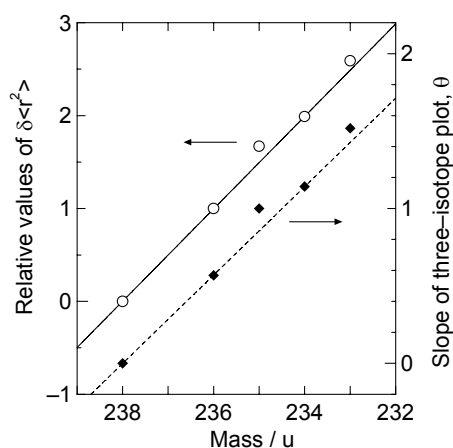


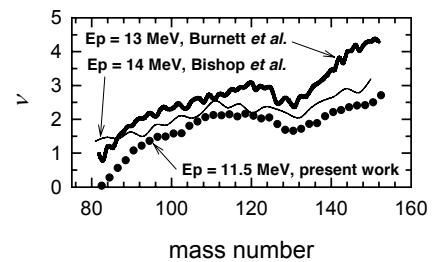
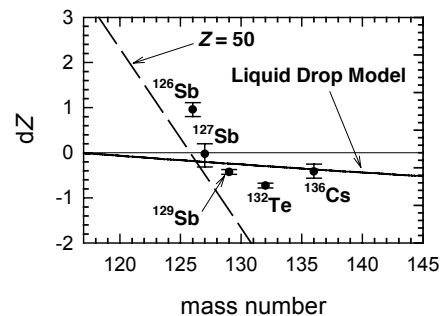
Fig. 1. The relation among the mass difference and the slope of the three-isotope plot, θ , and relative value $\delta \langle r^2 \rangle$.

(1原子力機構先端研、²東大理、³都立大名誉教授)○西中一朗¹、谷川勝至²、永目諭一郎¹、中原弘道³

核分裂によって大きな原子核が二つに分かれる瞬間、生成する2つの分裂片間でどのように励起エネルギー、質量、核電荷が分配されるのだろうか？この基本的な疑問に対して、核分裂機構解明を目指した実験的、理論的研究が盛んに行われてきた。核分裂で生成する分裂片の質量分布、運動エネルギー分布、放出中性子数など様々な物理量の測定が行われているが、実験の困難さのため、分裂片からの放出中性子数について信頼の高いデータは極めて少ない。放出中性子数は、分裂片間での励起エネルギーや核電荷の分配を調べる上で重要な物理量である。そのため、励起エネルギーと核電荷の分配機構は、いまだ未解決な研究課題である。 ^{232}Th 陽子誘起核分裂については、放射化学的手法で求めた核分裂生成物の生成断面積、および飛行時間測定法で求めた分裂片の質量分布と放出中性子数について信頼性の高い実験データがある[1]。最近、これらの実験データを改めて解析し直すことで、分裂片間での核電荷分極を精度よく調べることができた。その結果、原子核の液滴的性質と陽子数50に基づく殻効果が、核電荷の分配に重要な役割を果たしていることが解った[2]。今回、 ^{233}U 陽子誘起核分裂について放出中性子数と核電荷分極について解析したので報告する。

^{233}U 陽子誘起核分裂において二重飛行時間測定法で求めた分裂片の飛行時間データ[3]に基づいて、分裂片からの放出中性子数を分裂片質量数の関数として求めた(図1)。それは sawtooth 構造と呼ばれる質量依存性を示すが、文献値[4]に比べて小さな値であった。これらのデータを核分裂過程のエネルギー平衡の観点から評価し、本研究のデータが最も信頼できることを確認した。この放出中性子数と分裂片の質量分布、核分裂生成物の生成断面積[5]から、核電荷分極の大きさを表すパラメータ dZ を求め、分裂片質量数の関数として図2に示した。 dZ は分裂核と同じ核電荷密度から予測される核電荷の値(分極がない時の値)からの差を示す。実験値から求めた核電荷分極 dZ が、原子核の液滴模型と陽子数 $Z=50$ の殻効果から期待される傾向とよく一致していることがわかる。

講演では、データ解析について解説し、 ^{233}U 熱中性子核分裂、 ^{232}Th 陽子誘起核分裂の文献値との比較から、励起エネルギー分配や核電荷分極について議論する。

図1 中性子数 ν の質量依存性図2 核電荷分極 dZ の質量依存性

参考文献

- [1] H. Kudo *et al.*, Phys. Rev. C **25**, 3011 (1982); I. Nishinaka *et al.*, Phys. Rev. C **70**, 0146090 (2004).
 [2] 西中他, 第49回放射化学討論会 1A01, (2005); I. Nishinaka *et al.*, Eur. Phys. J. A (in press).
 [3] I. Nishinaka *et al.*, Int. Nucl. Phys. Conf. 2007 (INPC2007) G2-5, (2007).
 [4] C. J. Bishop *et al.*, Nucl. Phys. A **150**, 129 (1970); S. C. Burnett *et al.*, Phys. Rev. C **3**, 2034 (1971).
 [5] T. Ohtsuki *et al.*, Phys. Rev. C **44**, 1405 (1991).

Characteristics of neutron multiplicity and nuclear charge polarization in proton-induced fission of ^{233}U
 NISHINAKA, I., TANIKAWA, M., NAGAME, Y., NAKAHARA, H.

(理研仁科セ, 東北大・核理研, 京大炉, 原子力機構, 金沢大院自然, 東北大・多元研, 東北大高教セ) ○菊永英寿, 広瀬健太郎, 大槻勤, 高宮幸一, 笠松良崇, 中西孝, 三頭聰明, 関根勉

【はじめに】 これまでに ^7Be から ^{235}mU までの約 10 核種が, 化学形により半減期が変化すると報告されている。近年, ^7Be について国内では T. Ohtsuki *et al.*[1]が, また国外では Y. Nir-El *et al.*[2]他, 数グループが金属中, 酸化物, フラーレン中など多様な化学形で精密な半減期測定を行ない, Be 原子の化学状態と半減期の関係について興味深い結果を出し始めている。一方, 本研究対象である ^{99m}Tc では 1950 年代に K. T. Bainbridge *et al.*[3]が初めて, KTcO_4 , Tc_2S_7 , ReTcS_7 , $\text{Tc}(\text{metal})$ の 4 化学形で半減期変化を観測した。しかし, その後は 1980 年に H. Mazaki *et al.*[4]により追試が行なわれたのみであり, 実験例は少ない。本研究では ^{99m}Tc についてより多くの化学形で半減期を測定することを計画しており, 今回最初の実験として KTcO_4 , Tc_2S_7 の化学形で半減期を測定したので報告する。

【実験】 約 5 mg の ^{100}Mo を東北大学原子核理学研究施設の電子ライナックを用いて最大エネルギー 50 MeV の制動放射線で水冷しながら 8 時間照射した。照射後の Mo 同位体を陰イオン交換カラム法で精製した後, 22 時間放置して ^{99m}Tc を成長させた。生成した ^{99m}Tc を Mo 同位体から陰イオン交換カラムとアルミナカラムを用いて分離・精製した。それを KTcO_4 , Tc_2S_7 の各化学形の線源に調整して γ 線スペクトロメトリーを行った。測定は文献[1]と同様の装置を用いて, KTcO_4 と Tc_2S_7 の線源を交互に 60 時間以上測定した。また ^{137}Cs を参照線源として同時に測定し, pile-up 等の補正を行った。

【結果】 得られたスペクトル例を図に示す。Tc-99m の親核である ^{99}Mo の光電ピークは認められず, スペクトル及び壊変曲線から ^{99m}Tc の半減期測定に影響を与えない程度まで ^{99}Mo が除去できていることが確認できた。また, KTcO_4 形と Tc_2S_7 形で測定した ^{99m}Tc の半減期を比べると Tc_2S_7 形で測定した半減期が長くなり, このことは文献[3,4]と一致している。詳細な半減期はその他の化学形で測定した値も含め, 討論会において報告する。

【参考文献】 [1] T. Ohtsuki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 112501 (2004); *ibid.* **98**, 252501 (2007); [2] Y. Nir-El *et al.*, Phys. Rev. **C 93**, 012801(R) (2007); [3] K. T. Bainbridge *et al.*, Phys. Rev. **90**, 430 (1953); [4] H. Mazaki *et al.*, Phys. Rev. **C 21**, 344 (1980)

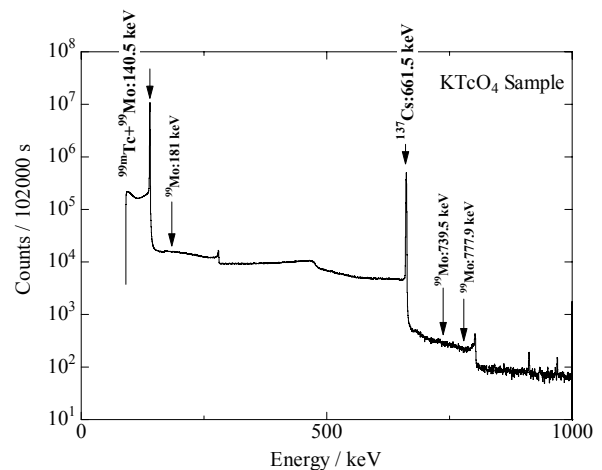


図 本研究で得られた γ 線スペクトルの例

Precision measurement of the half-life of ^{99m}Tc

Kikunaga, H., Hirose, K., Ohtsuki, T., Takamiya, K., Kasamatsu, Y., Nakanishi, T., Mitsugashira, T., Sekine, T.

1. 緒言

島弧のマグマは、沈み込む海洋プレートから放出される流体とマントルとの相互作用によって発生すると考えられている。ウランおよびラジウムはトリウムに比べて流体によって移動しやすいため、島弧の火山噴出物中では、ウラン系列の ^{238}U - ^{230}Th - ^{226}Ra 間は、 ^{238}U と ^{226}Ra が多い $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U} < 1$ 、 $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th} > 1$ の放射非平衡になることが想定される。これまでに、伊豆弧に属する三宅島の火山噴出物中では、 ^{238}U と ^{226}Ra が多い $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U} < 1$ 、 $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th} > 1$ の放射非平衡が観測されている¹⁾。我々は、伊豆弧に属する新富士火山および伊豆大島火山噴出物中の $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ の放射能強度比の観測を行った。

2. 試料・実験操作

試料には、新富士火山および伊豆大島火山の噴出物を用いた。試料は精粉碎した後、HF-HClO₄-HNO₃ の混酸により分解した。試料中のウランとトリウムは、陰イオン交換樹脂を用いて分離し、UTEVA Spec. resin と TEVA Spec. resin によりそれぞれを精製した後、ステンレス皿に電着してアルファ線スペクトロメトリ用の線源を作製し、同位体希釈分析法により定量した。一方、試料中の ^{226}Ra は試料を測定容器に入れて密封し、 ^{226}Ra の娘核種が放射平衡に達するまで 30 日以上保管した後、 ^{214}Pb の 351 keV のガンマ線を分析線としてガンマ線スペクトロメトリにより定量した。

3. 結果・考察

表に岩石標準試料である JB-1a, b の ^{238}U 、 ^{230}Th 、 ^{226}Ra および ^{232}Th の比放射能とウラン系列核種間の放射能強度比を掲げる。

Table U-Th-Ra data for the GSJ rock reference materials, JB-1a, b

Sample	Specific activity [mBq g ⁻¹]				Activity ratio		
	²³⁸ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²³² Th	²³⁴ U/ ²³⁸ U	²³⁰ Th/ ²³⁸ U	²²⁶ Ra/ ²³⁰ Th
JB-1a	20.5 ± 0.3	20.5 ± 0.2	-	36.4 ± 0.5	1.00 ± 0.01	1.00 ± 0.01	-
JB-1b	-	-	20.5 ± 0.4	-	-	-	1.00 ± 0.02
Imai <i>et al.</i> ²⁾	19.5	-	-	36.7	-	-	-

岩石標準試料のウランとトリウムの定量結果は、推奨値に近い値であった。また、ウラン系列核種間は放射平衡に達していることが確認できた。

図に ($^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$)₀-($^{238}\text{U}/^{230}\text{Th}$) の放射能強度比ダイアグラムを示す。新富士火山および伊豆大島火山噴出物中の ^{238}U - ^{230}Th - ^{226}Ra 間は、 ^{230}Th に比べて ^{238}U と ^{226}Ra が多い $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U} < 1$ 、 $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th} > 1$ 放射非平衡であった。これは、ウランおよびラジウムはトリウムに比べて流体によって移動しやすいため、沈み込むプレートから放出される流体によって、マントルに多く添加されたためであると考えられる。

参考文献

- 1) T. Yokoyama, K. Kobayashi, T. Kuritani, and E. Nakamura, *J. Geophys. Res.*, **108**, doi:10.29/2002JB002103 (2003)
- 2) N. Imai, S. Terashima, S. Itoh and A. Ando, *Geochem. J.*, **29**, 91-95 (1995)

^{238}U - ^{230}Th - ^{226}Ra radioactive disequilibria in the volcanic products from younger Fuji and Izu-Oshima volcanoes
KURIHARA, Y., TAKAHASHI, M. and SATO, J.

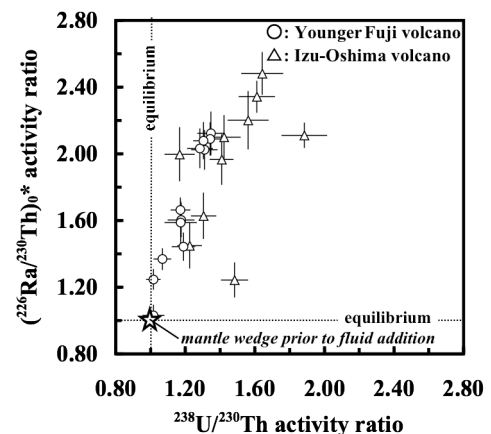


Fig. ($^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$)₀-($^{238}\text{U}/^{230}\text{Th}$) activity ratio diagram for the volcanic products from younger Fuji and Izu-Oshima volcanoes. *: ($^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$) activity ratio at the time of the eruption.

(首都大院理工¹, 筑波大², 高エネ研³) ○大浦泰嗣¹, 山崎俊輔¹, 橋詰二三雄¹, 海老原充¹, 戸崎裕貴², 笹公和², 長島泰夫², 高橋努², 松四雄騎², 玉理美智子², 末木啓介², 松村宏³, 別所光太郎³, 三浦太一³

隕石中に存在する宇宙線生成核種は、照射年代などの年代測定や、宇宙空間での大きさの推定など、宇宙化学的に重要な役割を果たしている。 ^{36}Cl (半減期 30 万年, β^- 壊変)は宇宙線生成核種の一つで、南極産石質隕石の金属(Fe/Ni 合金)相を用いた落下年代測定によく用いられる。しかし、 ^{36}Cl はFeやNiの核破砕反応以外にもケイ酸塩相に多く含まれるKやCaなどからも核破砕反応により生成し、さらに、二次中性子による捕獲反応により塩素からも生成していると考えられる。これらの標的元素での陽子による核破砕反応の励起曲線は標的ごとに系統的に変化しており、隕石中での標的元素それぞれの ^{36}Cl 生成率を求めることで、宇宙線照射環境を詳しく推定できる可能性がある。そこで、異なる石質隕石を用いて、標的元素ごとの ^{36}Cl 生成率の測定を試みた。

Barwell 石質隕石と Allegan 石質隕石を用いて、まず、物理的ならびに化学的方法により金属相とケイ酸塩相 5 相に分離した。これら各相の主要元素組成を中性子放射化分析法で調べた。塩素濃度に関しては放射化学的光量子放射化分析法により定量中である。また、 ^{36}Cl 濃度は、各鉱物相から塩素をAgClとして化学分離した後、筑波大学タンデム加速器による加速器質量分析計により求めた。

Barwell 隕石での全岩中 ^{36}Cl 濃度は 8.1 dpm/kg で、金属相ではこれより高く 22.4 dpm/kg であり、ケイ酸塩相では 6.83 - 8.67 dpm/kg であった。Allegan 隕石の ^{36}Cl 濃度もほぼ同様な傾向であった。全岩ならびに各鉱物相の元素組成と ^{36}Cl 濃度を用いた連立方程式により各元素からの生成率を計算したが、妥当な値を得られなかった。そこで、 ^{36}Cl 生成への寄与が大きいと考えられる 2 つの元素群、(K+Ca)と(Fe+Ni)、の生成率を推定した。Fig.1 に Barwell 隕石における元素濃度に対して ^{36}Cl 濃度をプロットした。 ^{36}Cl 濃度は (K+Ca)濃度とともに増加し、(Fe+Ni)濃度の増加につれて減少する。一次式で近似し、元素濃度が 100%での切片より、(K+Ca)と(Fe+Ni)の生成率として 247 dpm/kg と 25 dpm/kg をそれぞれ得た。この約 10 倍の差は、励起関数では、陽子エネルギー200-300MeVに相当する。Allegan 隕石での生成率は、それぞれ 234 dpm/kg と 24 dpm/kg であり、2 つの隕石でほぼ同じ値が得られた。今後、塩素による寄与の程度を検討するとともに、同じ隕石で深さが異なる試料での生成率を調べていきたい。

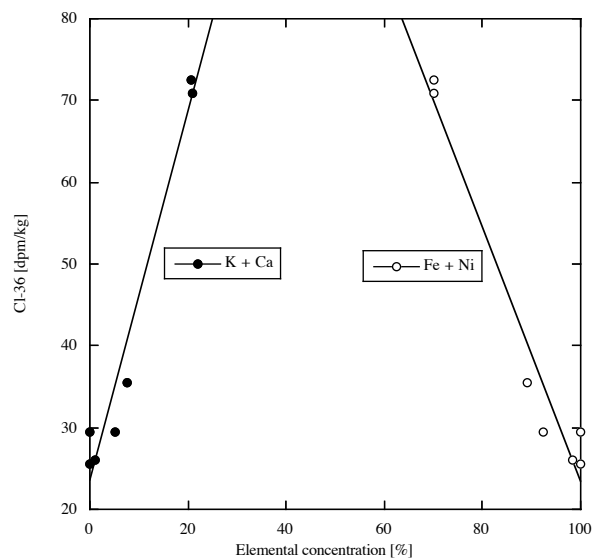


Fig.1. ^{36}Cl concentration vs. target elemental concentration for the Barwell meteorite.

Production rate of ^{36}Cl in chondritic meteorites.

OURA, Y., YAMAZAKI S., HASHIZUME F., EBHARA M., TOSAKI Y., SASA K., NAGASHIMA Y., TAKAHASHI T., MATSUSHI Y., TAMARI M., SUEKI K., MATSUMURA H., BESSHO K., MIURA T.

¹ 学習院大理、² 弘前大工、³ 東大工、⁴ 極地研

○村松康行¹、保科真弓¹、堀内一穂²、松崎浩之³、本山秀明⁴

<序論>

¹⁰Be（半減期 150 万年）は宇宙線と酸素や窒素原子との相互作用により、大気中で生成されている。地球に入射する宇宙線は太陽風や地球磁場の影響を受けるため、生成核種の量はそれに伴い変化する。極地の氷床中には過去に生成された ¹⁰Be が降雪とともに積もっており、過去の生成量に関する情報が記録されている。

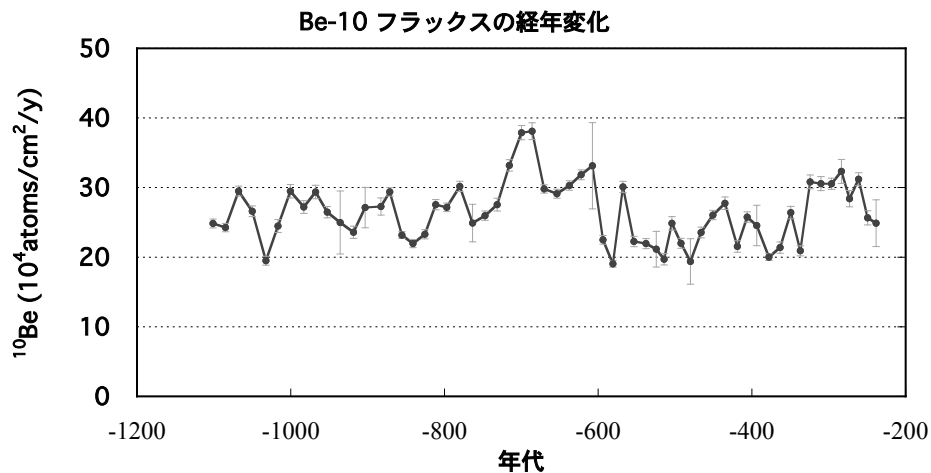
本研究では、南極ドームふじ氷床コア（浅層コア）中の ¹⁰Be を加速器質量分析法（AMS）により定量し、その深度分布に関する情報を得る。分析結果より、過去における ¹⁰Be の生成量の変化を調べ、太陽活動などの変動との関係を考察する。

<実験>

AMS 測定の際に ¹⁰Be と同重体である ¹⁰B が妨害となるため、陽イオン交換樹脂（MCI GEL CK08P 75-150 μm）を用い分離条件を調べた。今回の分析では試料はドームふじで採取した氷床コア 60 サンプル（深度：95m-122m；暫定年代：紀元前 1100 年から 238 年に相当）を用いた。陽イオン交換樹脂により Be を分離した後、Be(OH)₂ の沈殿を作成し、それを 850°C で焼いて BeO とした。これを東京大学の AMS で ¹⁰Be/⁹Be 比を測定し、濃度を求めた。また、氷中の微量の安定 Be (⁹Be) 濃度を調べるため、ICP-MS を用い分析法の検討も行った。

<結果>

AMS の測定結果から、氷 1 g 中の ¹⁰Be 濃度を求め、さらに雪の堆積速度を考慮し ¹⁰Be フラックス（単位面積 cm² に年間堆積する原子数）を計算した。結果を図に示す。¹⁰Be のフラックスは約 20×10⁴ から 40×10⁴ atoms/cm²/y の間で変動していることがわかった。弥生時代前期（B.C. 700 年付近）に ¹⁰Be のピークが認められ、これは太陽活動や地磁気の低下などにより宇宙線の強度が上昇したためと考えられる。発表では、得られた ¹⁰Be の経年変化を、樹木の年輪などの研究から求められている ¹⁴C 濃度のデータとも比べて議論する予定である。



AMS analysis of Be-10 in ice core collected from Dome Fuji

MURAMATSU Y., HOSHINA M., HORIUCHI K., MATSUZAKI H., MOTOYAMA H.

(放医研)○大久保 綾子、鄭 建、中西 貴宏、青野 辰雄、山田 正俊、日下部 正志、帰山 秀樹

【はじめに】

大気核実験や核燃料再処理施設から放出されたプルトニウム同位体は、海洋における物質循環の有用なトレーサーとなることから、これまで多くの研究が行なわれてきた。最近では、表面電離型質量分析法および誘導結合プラズマ質量分析法の開発により、アルファ線計測法では困難であった $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位対比の測定が環境試料について行なわれ、プルトニウムの起源の同定に用いられている。

海水中のプルトニウムは、粒子濃度の高い沿岸海域においても、多くは溶存態で存在することが報告されているが (Dai et al., 2001)、海洋でのプルトニウムの輸送過程を把握する目的で、セジメントトラップ実験による粒子態プルトニウムの研究が行なわれてきた。本研究では、2006年3月に核燃料再処理施設の試運転が始まった青森県六ヶ所村の沿岸域における、バックグラウンドレベルの粒子態プルトニウムの分布を把握することを目的とし、調査を行なった。

【試料と方法】

2005年6月の六ヶ所村沖における調査航海では、現場型大量濾過装置を用いて、各層5000Lの濾過を行い、大粒子 ($>70\mu\text{m}$) および小粒子試料 ($1-70\mu\text{m}$) を採取した。試料は実験室において全分解した後、陰イオン交換樹脂を用いてトリウムおよびプルトニウムを精製し、誘導結合プラズマ質量分析装置 (Finnigan Element 2) を用いてプルトニウム同位体 (^{239}Pu , ^{240}Pu) を測定した。トリウム同位体はアルファ線スペクトロメーターおよびベータ線カウンターで測定をした。

【結果と考察】

大粒子・小粒子中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位対比は、0.196-0.237の範囲にあった。これらの値は、西部北太平洋の表面海水について報告された値 (0.199-0.225) (Norisuye et al, 2006, Yamada et al., 2006) に一致し、global fallout (0.180) に比べて高い値であった。

大粒子中の $^{239+240}\text{Pu}$ 比放射能は、小粒子中の値に比べて低かった。これは、大粒子に比べて小粒子の比表面積が大きいためであると考えられる。また、別の原因としては、粒子に含まれる有機物の溶存物質への再生がプルトニウムの再生に比べて速いことが考えられた。言い換えると、古い粒子ほど高い $^{239+240}\text{Pu}$ 比放射能を持つといえる。

大粒子中の ^{230}Th 比放射能は、生物生産の活発な有光層で低く、有光層直下から深層にかけてほぼ一定の値となった。有光層内では生物起源粒子による希釈の影響が大きいと考えられる。講演の中では、 ^{230}Th の鉛直分布から推定した Pu 同位体フラックスの結果について議論する。

Vertical distribution of particulate Th and Pu off Aomori

Okubo, A., Zheng, J., Nakanishi, T., Aono, T., Yamada, M., Kusakabe, M., Kaeriyama, H.

海水中の有機物の挙動と放射性核種相互の関係
(静岡大・放医研・環境科技研・金沢大) ○鈴木 款、青野辰雄、
石川義郎、山本政義

地球温暖化等の環境変動に伴い海洋および陸上の生態系がどのように変化あるいは応答するのかを理解することは極めて重要な課題である。海洋の低次生態系は栄養塩（硝酸塩、リン酸塩、鉄等）、植物プランクトン、動物プランクトン、微生物、原生動物により構成されている。海水中の有機物は粒子態および溶存態、さらには粒子態有機物は様々なサイズ、溶存有機物は様々な分子量およびコロイド部分に分けられる。これらの複雑な有機物の生産速度、分解速度、沈降速度、粒子化速度および捕食速度を知ることはCO₂ および栄養塩とのバランスおよび海洋生態系の維持機構を理解する上で極めて重要である。そのために、近年有機物の実態解明に関する研究は活発に行われている。この変化の激しい有機物の挙動を短寿命放射性核種を用いて研究し、それらの研究から海洋の生態系、特に低次生態系の安定性とダイナミクスに関する研究を行うことが目的である。海洋の有機物動態の複雑なシステムを定量的に把握するためには、有機物の分解速度、あるいは年齢の測定と有機物の変化に関する分解あるいは捕食の過程を区別する研究が必要である。この研究をする手段として、天然に存在している放射性同位体の幾つかを同時に測定することにより新たな段階を切り開くことができる。特に短寿命の放射性核種である、P-32、Th-234、Pb-210の測定と有機物のサイズ別分画を組み合わせることにより、粒子状有機物、植物、動物プランクトン、微生物の間の有機物動態の時間スケールを明らかにすることが目的である。実験場所として静岡大学の目の前が駿河湾であり、駿河湾は海洋研究の場所としては、外洋性の湾として、本研究をするのに適している。調査船としては静岡県水産試験所の駿河丸が定期的に利用できる。また、駿河湾の表層、380mおよび680mの海水は常時ポンプにより汲み上げられている。焼津の水産試験所内に500Lの水槽がすでに設置されている。本水槽に海水を入れてメソコスム実験を行う。これらの実験装置と現場観測により、海水中の有機物を粒子および溶存に、粒子をサイズ別（2 μm, 0.4 μm）に分けて捕集濃縮する。これらの捕集した有機物中の炭素/窒素、有機物成分および実験時のプランクトン種、バクテリアとP-32/33, Pb-210/Po-210, Th-234、の放射性核種を測定する。研究結果から、粒子態²³⁴Thの80%が0.6-500 μm 粒子画分にあった。実験開始から生物の活動が著しく大きくなるまでの期間は、0.6-500 μm 粒子サイズの²³⁴Thが約150 dpm/m³/dayの割合で除去される。クロロフィル濃度が著しく上昇した期間（プランクトンブルーム初期）は、粒子態²³⁴Thの海水からの除去割合が極めて小さくなる。一方³²Pは深さと共に減少し、粒子態有機物の回転速度を計算すると11日から30日程度であることが明らかになった。これらの回転速度は季節により異なる。有機物生産の高い時期には回転速度は速いことが示唆された。

Co relationship on the behaviors between radionuclide and organic matter in seawater

SUZUKI Y., AONO T., ISHIKAWA Y., YAMAMOTO M.

(六文協¹,青い森・科学 BBL²) 石川とみゑ¹, 二本柳晴子¹, 小笠原春枝¹, 槇 さち², 對馬和子², 長内侑子², ○荒谷美智^{1,2}

【はじめに】放射線は、原子または原子核から出ると考えてよいが、原子は勿論、核も放射線も目には見えない。しかしながら、初心者または子供に楽しく理解してもらうため何か目に見える巧いモデルがないかと長い間、模索してきた。偶々、寺田寅彦の科学随筆『線香花火』に出会って「火球」を励起状態の核と見做すならば、「火球」から出る火花を放射線と見立てることが可能なことに気が付いた。中学生、幼稚園の父母会、大人も子供も来る科学行事、生涯学習の場などで試みたところ、いずれも好評を博したので報告する。

【方法：道具立てと実験】共同研究者の中に茶商を営む者がおり、安全性のため花火は茶箱の中で行うことを提案し、以後もっぱらこの方法を採用している。花火は、まず、線香花火、次に、ねずみ花火を用いた。来場者は花火を見たり、あるいは、自分でやったりした後、放射線測定の方に進む。放射線測定器としてはベータ線簡易測定器（愛称：ベータちゃん）を用いた。測定試料としては、土、砂、その他岩石・鉱物などの無機物、建物の壁、床、乾燥した植物、また、動物としては各自の身体を用いた。自然における高レベル放射性試料としてブラジルの砂、数種を測定実験の最後に用いることにしている。その後、鉄板や試料自体を遮蔽体として遮蔽実験を行い、安全性の基礎を理解してもらう。

【結果】この方法により放射線というものが、何か火の玉のようなところから出てくる、ということが大人にも子供にも直観的に理解されたことは明白であった。花火を見て誰でもまず面白いと感じる。出てくる源と、出てくるもののイメージは極めて鮮明である。核（ベータ放射体）も放射線（ベータ線＝高エネルギー電子）も目には見えないが、直前に火球から出る火花を見ているので離散的に飛び出してくることが分かり、数値的に低レベル（身体も含めて身の周りのレベル）と高レベル（普通の数百倍、千倍に近い）の区別も容易く理解された。

【考察】説明で、「お空の星（恒星、太陽も）は、核反応（核融合）が起こっているところだ、ということが 20 世紀になって解り、鉄までは融合で出来るが、それ以上は中性子で太り、最後に重くなり重力で潰れて爆発し宇宙塵となって飛び散ってしまう。これが超新星爆発。昔から「客星」として記録されており、小柴先生がニュートリノで見つけたのも超新星。飛び散った宇宙塵にはウランのような重い元素もあって、地球には元々、ウランのように重くて放射性の元素があった。19 世紀の終りにキュリー夫人がラジウムを発見し、人類は核分裂からエネルギーを取り出すことを知った」ところに到って終る。説明は相手の年齢、関心の度合い、核アレルギーの有無、などにより適当なところでやめる。ある中学生では、大学の教養課程位まで行ってしまったケースもある。子供は柔軟で、学習意欲は無限である。何人かの主婦は「この世の中の観方が変わった」と述べた。その後、線香花火だけでなく、ねずみ花火も用いるようになり現在も工夫を重ねている。

Radiation education using fireworks

ISHIKAWA, T., NIHON'YANAGI, H., OGASAWARA, H., MAKI, S., TSUSHIMA, K., OSANAI, Y., ○ARATANI, M.

(¹阪大院理、²京大原子炉)○佐藤 渉¹、斎宮芳紀¹、篠原 厚¹、大久保嘉高²

【はじめに】

酸化亜鉛 (ZnO) は、ウルツ鉱型の構造をもつ典型的なn型半導体として知られている。この物性の起源に関しては、格子間の過剰亜鉛や酸素空孔に基づいて議論が展開されていたが、近年、不純物水素がドナーとして格子間に存在していることが報告され、大いに注目を集めた[1]。この現象のように、ZnOは極微量の不純物の存在によって伝導度が変わることが知られており、不純物の導入による物性の制御が興味深い研究対象となっている。本研究では、不純物としてインジウムを添加したZnOの伝導度の変化に着目し、¹¹¹Cd (\leftarrow ¹¹¹In) をプローブとする γ 線摂動角相関法で局所場を観察し、バルクの物性[2]との関連を調べた。

【実験】

In(NO₃)₃ · 3H₂Oのエタノール溶液にZnO粉末を加え、エタノールが完全に蒸発するまで攪拌して粉末試料を得た。In濃度は500 ppmと5,000 ppmとなるように調整した。これら2種類の粉末試料とInをドーピングしないZnO粉末 (undoped ZnO) を別々に錠剤成形して、1,000°Cで3時間焼成した。3種類の焼成試料に¹¹¹Inの塩酸溶液を滴下し、1,100°Cで4時間焼成して摂動角相関測定用の試料とした。測定には従来の4検出器法を採用し、室温から973 Kの温度範囲において、角相関スペクトルの温度依存性を調べた。

【結果】

Fig. 1 に In を 5,000 ppm ドープした試料で得られた摂動角相関スペクトルを示す。プローブ核と外場との電気四重極相互作用を反映する典型的なスペクトルであり、振幅に顕著な温度依存性が見られる。これは温度変化が現れなかった undoped ZnO とは対照的な結果である。また、500 ppm ドープした試料については両者の混合状態を示すスペクトルが得られた。本発表では、この振幅の温度変化が可逆的であることを踏まえて測定結果を議論する予定である。

【参考文献】

- [1] K. Shimomura *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 255505 (2002).
 [2] R. Wang *et al.*, J. Solid State Chem. **122**, 166 (1996).

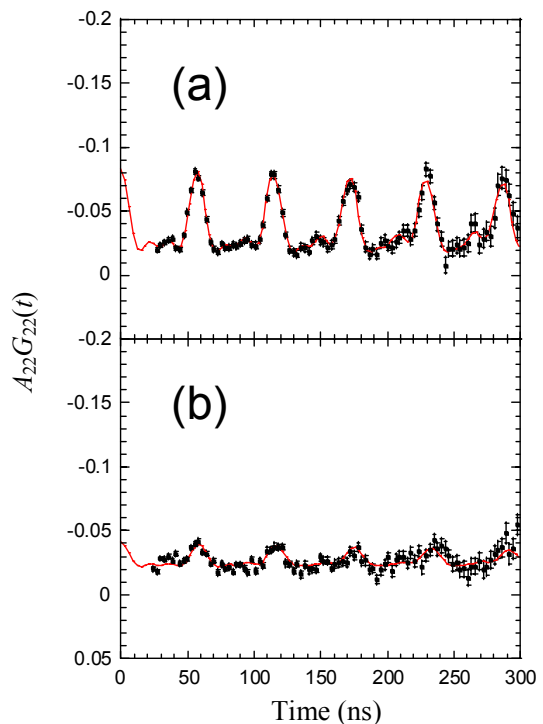


Fig. 1. TDPAC spectra of ¹¹¹Cd (\leftarrow ¹¹¹In) in 5,000-ppm In-doped ZnO at (a) 673 K and (b) 298 K. Solid lines are preliminary fits to the data.

Local Fields of ZnO Observed by Means of the TDPAC Method

SATO, W., ITSUKI, Y., SHINOHARA, A., OHKUBO, Y.

(阪大院理¹, 高エネ研², 国際基督教大³) ○二宮和彦¹, 中垣麗子¹, 杉浦啓規¹, 中塚敏光¹, 佐藤渉¹, 吉村崇¹, 松村宏², 久保謙哉³, 三浦太一², 西山樟生², 篠原厚¹

【はじめに】

負の電荷を持ったパイ中間子もしくはミュオンが原子系へと導入された、パイ中間子原子およびミュオン原子は、その形成過程についてこれまで多くの研究が行われてきている。一方で、これらエキゾチックアトム形成後の電子状態について注目した研究はほとんど行われていない。電子エックス線のエネルギーは、エックス線放出時の負の電荷の粒子の存在準位と電子状態に影響を受ける。このことから本研究グループでは、パイ中間子原子およびミュオン原子から放出される電子エックス線に注目し、電子エックス線のエネルギーの精密測定からパイ中間子原子およびミュオン原子形成後の電子状態や原子過程の考察を試みてきた。

【実験】

本研究に関する一連の実験は高エネルギー加速器研究機構において行った [1]。さらに計算実験として、パイ中間子およびミュオンのカスケード過程の計算を行い、さらに種々の原子状態におけるパイ中間子原子およびミュオン原子の電子エックス線のエネルギーの計算を行った。

【結果と考察】

実験で得られた電子エックス線スペクトルのフィッティングを行い、パイ中間子原子およびミュオン原子から放出される電子エックス線のエネルギーを求めた。これらの結果について図 1 に示す。電子エックス線放出時の負の電荷の粒子の準位についてカスケード計算による見積もりを行ったところ、以前に予想したように [1]、パイ中間子およびミュオンが主量子数 6~8 程度を持つときに電子エックス線の放出が最も起こっていることがわかった。これらの状態にあるときの電子エックス線エネルギーを理論計算より見積もり、さらに電子空孔が存在するときの電子エックス線のエネルギーについても計算した。これら計算結果を実験結果と比較を行い、電子エックス線のエネルギーからパイ中間子原子およびミュオン原子形成後の電子状態に関する考察を行ったのでその結果を報告する。

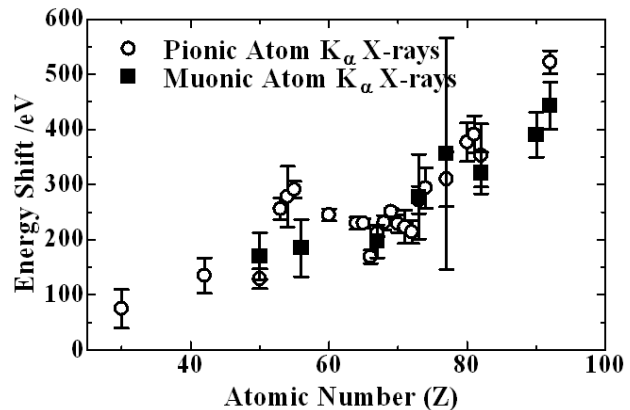


図 1: パイ中間子原子のおよびミュオン原子から放出される電子エックス線エネルギー

【参考文献】

[1] 二宮 他 第 50 回放射化学討論会 2B01 (2006)

Investigation of atomic processes after the formation of pionic and muonic atoms.

NINOMIYA, K., NAKAGAKI, R., SUGIURA, H., NAKATSUKA, T., SATO, W., YOSHIMURA, T., MATSUMURA, H., KUBO, K., MIURA, T., NISHIYAMA, K., SHINOHARA, A.,

(東北大理) ○二瓶英和、木野康志、関根勉

陽電子と電子の束縛状態はポジトロニウム(Ps)と呼ばれ、スピン一重項のパラポジトロニウム(p-Ps)、三重項のオルソポジトロニウム(o-Ps)の二つの状態がある。真空中における o-Ps の寿命(142 ns)は p-Ps に比べ約 1000 倍長い。物質中の o-Ps はナノサイズの欠陥や空隙に局在化し、ピックオフ反応によって 1 ns 程度まで短寿命化される。o-Ps の寿命はその環境中での元素配列等により大きく変化する。現在 o-Ps の寿命を用いた物質のナノ構造の研究や材料評価が盛んに行われている。試料中に O₂ 分子が存在する場合 o-Ps は著しく短寿命化することが知られている。この短寿命化は O₂ 分子内の電子と陽電子が対消滅するピックオフ反応に加え、O₂ の不對スピンによって o-Ps が短寿命の p-Ps に変換されるスピン転換反応が起こるためと考えられるが、これらの断面積等の基本的物理量すら明らかになっていない。O₂ のスピン転換断面積は寿命測定だけではピックオフ消滅断面積と分離できずこれまで測定されなかったが、o-Ps 寿命と消滅γ線エネルギーの同時測定を行い、初めてスピン転換断面積を求めた。

実験では ²²Na から放出される陽電子を O₂ と CO₂ の混合気体中で止め o-Ps を生成した。²²Na のβ崩壊に伴う即発γ線と消滅γ線による陽電子寿命測定と、さらにもう一つの消滅γ線のドップラー広がりも測定する寿命運動量相関測定を行った。o-Ps の消滅速度は O₂ 数密度に比例し(図 1)、消滅γ線スペクトルには、スピン転換反応によるドップラー広がり狭い成分と、ピックオフ反応による広い成分が観測された(図 2)。これらから O₂ および CO₂ との消滅断面積を求めた。

$$\sigma_{\text{spin}}(\text{O}_2) = (1.44 \pm 0.32) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$$

$$\sigma_{\text{pickoff}}(\text{O}_2) = (0.23 \pm 0.05) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$$

$$\sigma_{\text{pickoff}}(\text{CO}_2) = 3.1 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$$

スピン転換は o-Ps が分子と衝突、散乱される過程であり、衝突中に陽電子と電子が同じ座標を占めねばならないピックオフ反応より断面積が大きく、O₂ による短寿命化はスピン転換が主因であることが分かった。またパウリ斥力が働かないため O₂ とのピックオフ断面積は CO₂ よりも 7 倍程度大きな値になった。

Spin conversion reaction of o-Ps with O₂

NIHEI, H., KINO, Y., SEKINE, T.

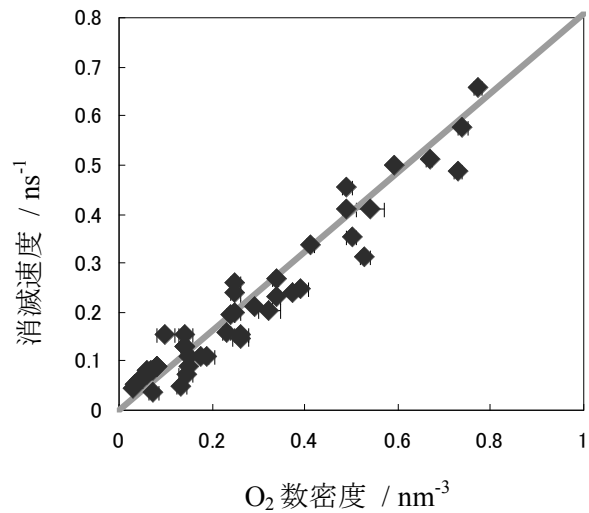
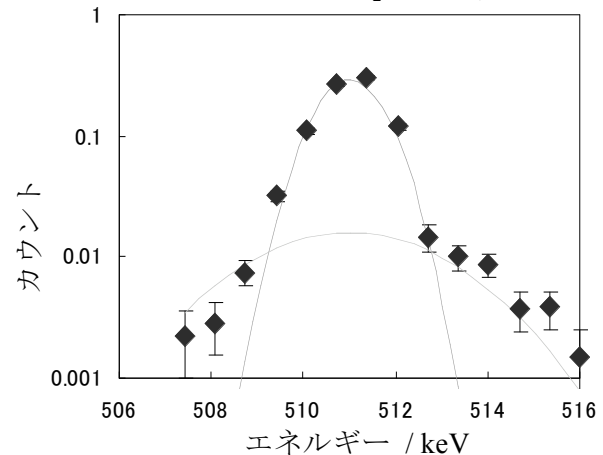
図 1. 消滅速度の O₂ 数密度依存性

図 2. o-Ps の消滅γ線スペクトル

(東北大理、高エネ研) ○木下翔一、木野康志、関根勉、鈴木健訓

【序】

陽電子は電子と同じ大きさの質量・電荷を持ち、反対の電荷を持つ電子の反粒子である。物質中では、電子と衝突して対消滅するが、その前に陽電子と電子の束縛状態であるポジトロニウム (Ps) を形成することがある。Ps の束縛エネルギーは 6.8 eV と浅いため、熱化した陽電子の Ps 生成強度は β^+ 線による放射線効果で物質中に生成した自由電子数に依存し、寿命は結晶中の空孔の大きさに依存する。このため、PALS (Positron annihilation lifetime spectroscopy) により結晶状態や電子や陽電子の移動度等についての研究が行われてきた。今回、極性基をもつ分子について固相から液相までの広い温度領域における Ps 生成機構を PALS により系統的に調べた。

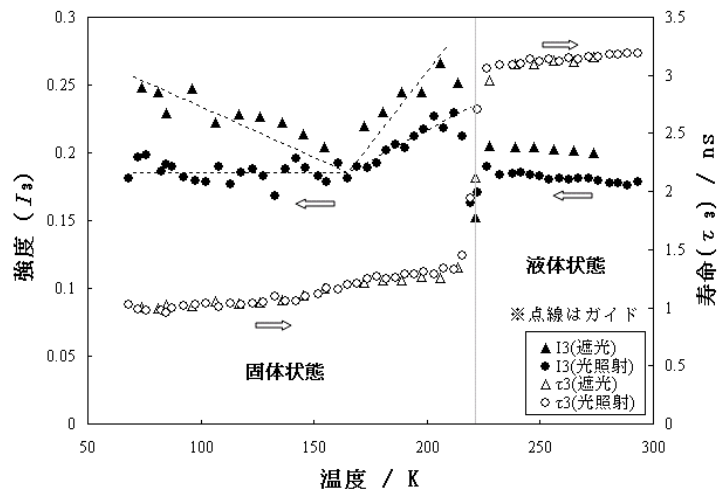
【実験】

陽電子線源 (^{22}Na) をカプトン膜内に密封し、脱気した試料 (ヘキサノール、融点 220 K) 内に封入した。クライオスタットを用いて温度を 5 K/h で 70~300 K の範囲で連続的に変化させ、各温度における陽電子寿命を測定した。また、試料に可視光を照射した場合と照射しない場合について比較した。

【結果】

陽電子寿命スペクトルは 3 つの寿命成分を持ち、そのうち最も長寿命の成分 (0.9~3.5 ns) が o-Ps と考えられる。この成分の生成強度を I_3 、寿命を τ_3 とし、図 1 に測定によって得た I_3 と τ_3 の温度依存性を示す。低温固体では、自由電子が捕捉されて浅い束縛の準安定状態となり、陽電子と結合して Ps をつくることのできるため、Ps 生成強度が増加することが知られている。

この捕捉電子は可視光により束縛が解ける。低温では、可視光の有無による生成量の差は温度の上昇とともに小さくなり、150 K 近傍で捕捉電子は存在できなくなった。この温度はヘキサノールのガラス転移点に一致している。しかし、150 K 以上では可視光の有無によって I_3 に再び差が生じている。これは極性の無い分子には見られなかった傾向である。ガラス転移点より高温では分子の自由度が一部解放されているので、アルコールのヒドロキシル基による水素結合が関係する新たな Ps 生成機構の存在を示唆している。また、 τ_3 は温度の上昇に伴って長くなっており、高温ほど空孔サイズが増加し、可視光の有無によって結晶構造には変化が無いことがわかる。

図1. τ_3 および I_3 の温度依存性

Temperature Dependence of the Positronium Formation in Hexanol

KINOSHITA, S., KINO, Y., SEKINE, T., SUZUKI, T.

固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究(XII)－タングステンカーバイドに照射された重水素の化学的挙動に及ぼす照射温度依存性－
(静岡大理放射研) ○鈴木祥子、菊池洋平、吉河朗、大矢恭久、奥野健二

【緒言】次世代のエネルギー源のひとつとして、D-T 核融合発電が検討されている。核融合炉内におけるプラズマ対向機器であるダイバータにはプラズマ中の不純物を除去するとともに、第一壁への熱負荷を低減させる役割がある。ダイバータはプラズマに直接曝されるため、高融点である炭素と低スパッタ率であるタングステンの併用が検討されている。これらは、プラズマ中の高エネルギー粒子によるスパッタや熱衝撃のため、ダイバータ表面でタングステンカーバイド(WC)を含む再堆積層を形成すると考えられる。また、堆積した WC にはプラズマより漏洩した高エネルギートリチウムが照射されるため、その化学的挙動の解明は核融合炉の安全性を評価する上で重要な課題である。そこで、本研究では WC に打ち込まれた高エネルギートリチウムの捕捉・脱捕捉過程等の化学的挙動に及ぼす照射温度依存性を解明するために、重水素を用い、各照射温度で照射された重水素の化学的挙動を昇温脱離(TDS)法および X 線光電子分光(XPS)法を用いて評価した。

【実験】試料としてアライドマテリアル社製の多結晶 WC を用いた。はじめに不純物を除去するために 1323 K で 10 分間の加熱処理を行った後、重水素イオン(D₂⁺)照射をエネルギー 1.0 keV、フラックス $1.0 \times 10^{18} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2}$ にて 323 - 873 K の各照射温度で行った。照射後、XPS 測定を行うとともに TDS 測定を昇温速度 0.5 K s^{-1} として室温から 1323 K まで行った。

【結果・考察】図に各照射温度で D₂⁺照射した際の D₂ TDS スペクトルを示す。Gaussian 分布関数を用いたピーク解析の結果、400、490、590、930 K 付近に重水素の脱離ピークが存在することが明らかになった(図中の Peak 1- Peak 4)。これらは、これまでの研究により、Peak 1, Peak 2 は WC 格子間サイト、Peak 3 は炭素空孔、Peak 4 は C-D 結合として捕捉された重水素に起因する脱離ピークであることが報告されている [1]。Peak 1 は照射温度が 423 K 以上では見られず、573 K 以上では Peak 1 に加え、Peak 2、Peak 3 も見られなかった。また、XPS の結果から、W-4f のピークでは、照射温度 423 K での照射後、高エネルギー側に化学シフトが見られ、照射温度 573 K での照射後、低エネルギー側への化学シフトが見られた。一方 C-1s のピークでは、加熱処理後と比較して、照射温度 323 K での照射後、高エネルギー側へシフトし、照射温度 473 および 573 K では更なる化学シフトは見られなかった。これらのことから、Peak 1 は 2 つの C と 3 つの W からなる格子間サイト、Peak 2 は 3 つの C と 2 つの W からなる格子間サイトからの脱離であることが示唆された。さらに、照射温度 673 K 以下では C-C 結合に寄与するピーク面積が減少したのに対し、673 K 以上では増加した。よって 673 K 以上における照射では D₂⁺照射中の加熱によって炭素が試料表面上に偏析することが示唆された。[1]H. Kimura et al., *Fusion Eng. Des.* **81**, (2006) 295.

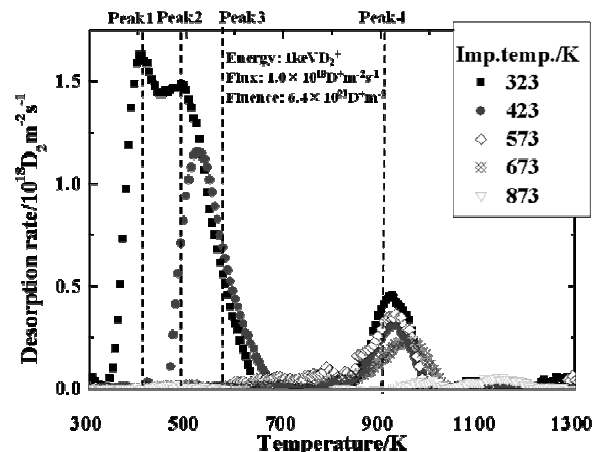


図 各照射温度で D₂⁺照射した際の D₂ TDS スペクトル

Studies on hot atom chemical behavior of energetic ions in solids (XII) -Implantation temperature dependence on chemical behavior of deuterium implanted into tungsten carbide -
SUZUKI, S., KIKUCHI, Y., YOSHIKAWA, A., OYA, Y., OKUNO, K.

【緒言】D-T 核融合炉内の第一壁において、不純物のプラズマ内への混入抑制および除去のため、壁コンディショニングとして、第一壁にボロンを蒸着させるボロニゼーションが実施・検討されている。壁表面に蒸着されたボロン膜には酸素や炭素等の不純物が含有され、プラズマより漏出する高エネルギーのトリチウムが打ち込まれることが予想される。トリチウムは放射性核種であるためボロン膜に打ち込まれたトリチウムの滞留量や捕捉状態の解明は、核融合炉の安全性評価の観点から重要な研究課題である。これまで当研究室では、高純度ボロン膜および酸素含有ボロン膜に対し、高エネルギー重水素イオン(D₂⁺)を照射し、膜中に捕捉された重水素の化学的挙動を解明してきた。しかし、ボロン膜内には不純物として酸素のみでなく、炭素も含有することが予想される。そこで本研究では炭素含有ボロン膜にD₂⁺照射し、膜中における重水素の化学状態に及ぼす炭素不純物の影響について、X線光電子分光(XPS)法および昇温脱離(TDS)法を用いて評価した。

【実験】プラズマ化学気相蒸着(P-CVD)法により炭素濃度がそれぞれ8-51%の炭素含有ボロン膜を調製した。調製したボロン膜について1200 Kにて10分間の加熱処理を行った後、室温にてイオンエネルギー1.0 keV D₂⁺、イオンフラックス1.0×10¹⁸ D⁺ m⁻² s⁻¹、イオンフルエンス7.3×10²¹ D⁺ m⁻²にてD₂⁺照射を行った。照射後、XPS測定および、TDS測定を昇温速度を0.5 K s⁻¹として、室温から1200 Kまで行った。

【結果・考察】図に51%の炭素を含有したボロン膜に対して、D₂⁺照射を行った際のD₂ TDSスペクトルおよびGaussian分布関数を用いたピーク解析の結果を示す。図よりD₂のTDSスペクトルはPeak 1~3の脱離ピークから成ることがわかった。また、Peak 3は高純度ボロン膜では見られない脱離ピークであることがわかった。また、炭素濃度の増加に伴いPeak 1、Peak 2は減少するが、Peak 3は増加することがわかった。これらのことから、炭素濃度の増加に伴いPeak 3として捕捉された重水素の滞留量は増加するため、Peak 3は炭素に捕捉された重水素の捕捉サイトであることが示唆された。ここで、各炭素濃度を持つボロン膜におけるD₂⁺照射前後でのB-1s、C-1sXPSスペクトルのピークエネルギーおよび半値幅から、膜中でボロンおよび炭素はいくつかの異なる化学状態で存在していることがわかった。また、これらのピークはB-1sXPSスペクトルに関してはB-B結合およびB-C結合、C-1sXPSスペクトルに関してはC-B結合およびC-C結合に帰属された。加えてTDSから得られたPeak 3のD₂滞留量と、XPSスペクトルから得られたB-1sにおけるB-C結合に由来するピーク面積およびC-1sにおけるC-B結合に由来するピーク面積にはそれぞれ滞留量が増加するにつれ、XPSスペクトルのピーク面積も増加するという相関があることから、Peak 3はB-C-D結合として捕捉されたD₂の脱離であると考えられる。従ってボロン膜に炭素を添加することにより重水素は高温側に新たな捕捉サイトとしてB-C-D結合を形成することが示唆された。

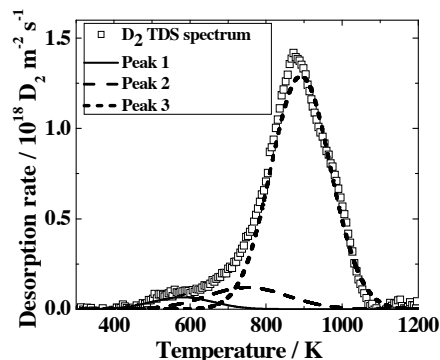


図 炭素濃度 51%の炭素含有ボロン膜におけるD₂ TDSスペクトル

Studies on hot atom chemical behavior of energetic in solids(XIII) - Effects of carbon impurity on chemical behavior of energetic deuterium implanted into carbon-contained boron film

TOKUNAGA, T., YOSHIKAWA, A., KIKUCHI, Y., ISHIKAWA, H., SUDA, T., IGARASHI, E., OYA, Y., OKUNO, K.

固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究(XIV)－固体トリチウム増殖材 Li_2TiO_3 中に照射された重水素の捕捉過程に関する研究－

(静岡大理放射研) ○稲垣祐治、須田泰市、石川寛匡、吉河朗
大矢恭久、奥野健二

[緒言] 核融合炉ブランケットシステムにおけるトリチウム増殖材は、D-T 反応により生成した中性子との ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ や ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha)\text{T}$ 反応により燃料であるトリチウムを増殖させる役割を持つ。このため核融合炉の安全性評価およびトリチウム回収機構の確立の観点から増殖材中へのトリチウムの捕捉過程の解明は重要である。そこで本研究では、トリチウム増殖候補材のひとつであるチタン酸リチウム(Li_2TiO_3)に対しトリチウムを模擬した重水素イオン(D_2^+)を照射し、その捕捉過程を昇温脱離法(TDS)およびX線光電子分光法(XPS)を用いて明らかにした。

[実験] 試料としてフルウチ化学株式会社製 Li_2TiO_3 粉末を焼結したものをを用いた。1000 K にて10分間の加熱処理を行い不純物除去した後、 D_2^+ 照射をイオンエネルギー3.0 keV、イオンフラックス $2.0 \times 10^{18} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ にて行った。なお、イオンフルエンス依存性実験では室温にてイオンフルエンスを $(0.1-2.0) \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$ と変化させ、照射温度依存性実験ではイオンフルエンス $1.0 \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$ とし、照射温度を室温から 673 K まで変化させて D_2^+ 照射を行った。 D_2^+ 照射後 XPS 測定を行い、次いで TDS 測定を昇温速度 5 K min^{-1} にて室温から 1000 K まで行った。

[結果・考察] 本研究で得られた重水素 TDS スペクトルに対して Gaussian 分布関数を用いてピーク解析を行った結果、4つのピークに分離できることが明らかとなった。熱中性子照射を行った Li_2TiO_3 のトリチウム TDS スペクトルの結果[1]との比較から、ピーク 1 (380 K) およびピーク 2 (420 K) は試料表面近傍からの脱離、ピーク 3 (500 K) およびピーク 4 (600 K) はバルク内からの重水素の脱離であることがわかった。特にピーク 3 およびピーク 4 はそれぞれ酸素空孔にひとつの電子がトラップされた E'-center からの脱離、O-D 結合の分解による脱離であると考えられた。図に各イオンフルエンスで D_2^+ 照射した際の各捕捉サイトにおける重水素滞留量を示す。イオンフルエンス $0-0.75 \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$ の領域において、重水素は E'-center へ優先的に捕捉され、 $0.75 \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$ 以上でほぼ飽和に達することがわかった。また、E'-center への捕捉が飽和した $1.0 \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$ 以上では、イオンフルエンスの増加に伴って O-D 結合として重水素が捕捉されることが明らかとなった。以上の結果より、照射された重水素は E'-center へ優先的に捕捉され、E'-center への捕捉が飽和に達した後、O-D 結合を形成することが示唆された。本発表では照射温度依存性実験の結果も踏まえて、 Li_2TiO_3 の重水素捕捉過程に関して詳細な議論を行う予定である。

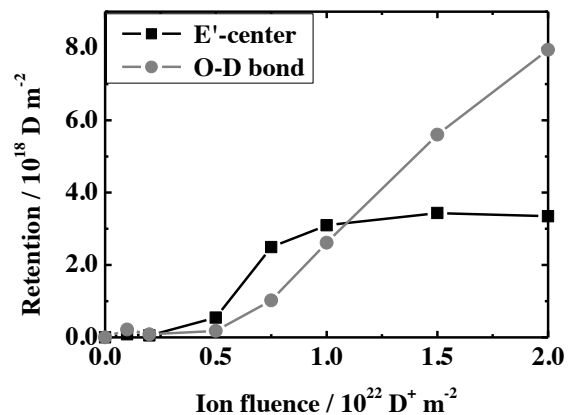


図 イオンフルエンスの変化に伴う各捕捉サイトの重水素滞留量の変化

[1] M. Oyaidzu, *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **329-333** (2004) 1313.

Studies on hot atom chemical behavior of energetic ions in solids(XIV) -Trapping processes of deuterium implanted into solid tritium breeding material, Li_2TiO_3 -
INAGAKI, Y., SUDA, T., ISHIKAWA, H., YOSHIKAWA, A., OYA, Y., OKUNO, K.

【序】レーザーアブレーションによって、蒸気圧が低い試料でもその化学組成を保持したまま容易に気化することができる。この蒸発法を用いて薄膜を作るのがレーザー蒸着法である。我々はこれまでに α - Fe_2O_3 や Fe_3O_4 等の酸化鉄固体をAl基板上にレーザー蒸着し、その組成や構造を調べてきた。その結果、結晶成長過程で酸素脱離が起き、蒸発源とは異なった化学組成を持つ酸化鉄薄膜が生成することがわかった。また、酸素雰囲気下で純鉄をレーザー蒸発させて基板上に蒸着させると、気相での酸化反応により Fe_3O_4 、 γ - Fe_2O_3 、 Fe^{3+} 微粒子などの酸化鉄が得られ、未反応の α -Feが薄膜に含まれることを明らかにした。本研究では、任意の組成を持った酸化鉄薄膜を作り分けることを目的として、酸素雰囲気下での酸化鉄のレーザー蒸着を行い、酸化鉄薄膜の生成機構に関する知見を得た。

【実験】自作の圧力制御装置により、真空容器内が5~670Paの任意の酸素圧力になるようにしながら、YAGレーザー(New Wave, TEMPEST 10, 532 nm, 84 mJ/pulse, 10 Hz)を用いて、ヘマタイト固体をレーザー蒸発した。これをレーザー照射試料から4 mm離れた位置に保持したAl基板上に蒸着させた。金属鉄のレーザー蒸着も同様に行った。得られた薄膜を室温で⁵⁷Co/Rhを線源としてメスバウアースペクトルを測定し、表面形状を走査型電子顕微鏡SEMにより観察した。

【結果および考察】レーザー照射試料固体を Fe_2O_3 として酸素圧力0~200Paの雰囲気中で得られた酸化鉄薄膜のメスバウアースペクトルをFig.1に示す。真空中で Fe_2O_3 をレーザー蒸着した場合(Fig.1a)には、純粋な Fe_2O_3 薄膜は得られず常に2価鉄を含んだ薄膜が得られたのに対し、酸素雰囲気下でレーザー蒸着することにより Fe_2O_3 薄膜の生成が可能となった。酸素圧力が7Paの場合(Fig.1b)には、ほぼ純粋な Fe_2O_3 薄膜が生成したが、酸素圧力が高くなるにつれて Fe_3O_4 と酸化鉄微粒子によるダブルレット成分が増大した。 Fe_2O_3 をレーザー蒸発すると $\text{Fe}:\text{O} = 2:3$ の組成比を持った蒸気が生成するため、十分なエネルギーを保持した酸化鉄微粒子が基板上に到達し酸化鉄結晶が生成するが、酸素脱離を補うためには適量の酸素を導入する必要があると考えられる。しかし、酸素圧力を高くしすぎると酸化反応と同時に微粒子が冷却されるために基板での結晶成長に必要なエネルギーが十分でなくなったと考えられる。

一方、 α -Feをレーザー蒸発試料として酸素圧力を変化させて同様の測定を行うと、酸素圧力によらず α -Feの生成量が約60%で一定となった。この場合、気相中の酸化反応で Fe_2O_3 を生成するには酸素が十分ではなく、薄膜には未反応の α -Feが残った。気相反応を促進するために酸素圧力を大きくしても酸化鉄微粒子のみが増大し、 Fe_2O_3 結晶の膜を生成することは出来なかった。

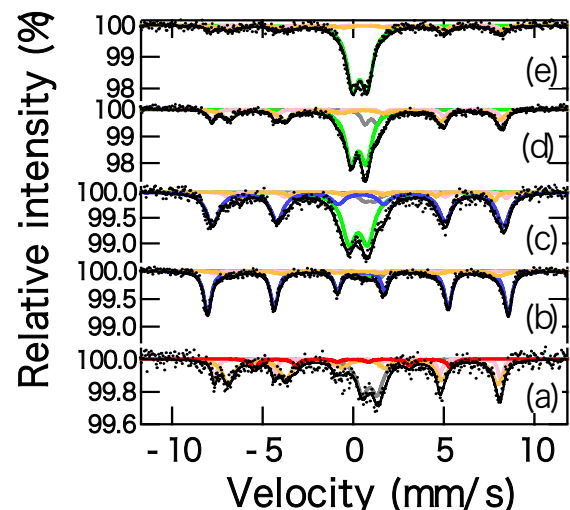


Fig.1 Mössbauer spectra of the films produced by laser deposition of Fe_2O_3 in O_2 atmosphere. (a) In vacuum, and the O_2 pressures are (b)7Pa (c)45Pa (d)120Pa, and (e)200Pa..

Composition change of oxide thin films produced by laser deposition depending on oxygen pressure and generation temperature

KOUNO, Katsuhiko., KATOU, Hirokazu., KOBAYASHI, Yoshio., YAMADA, Yasuhiro.

(東理大¹・理研²) ○加藤宏和¹・高野勝弘¹・小林義男²・山田康洋¹

【序】鉄薄膜の磁気配向は製膜方法によって制御可能であり、抵抗加熱法による製膜では垂直磁気配向し、レーザー蒸着法による製膜では面内磁気配向することを報告してきた。これらの結果は鉄原子の内部エネルギーや蒸気密度の差によるものと考えられる。本研究では、これら蒸着法の中間の性質をもつアークプラズマガン (APG) を用いた製膜を行い、生成した鉄薄膜の磁気配向をメスバウアー分光法により測定した。その結果、アルミ基板の表面に溝(幅 100 nm、深さ 10 nm)がある場合には、この溝に沿って面内に一次元に磁気配向することが明らかになった。

【実験】真空排気 (10^{-4} Pa) した容器中に保持したアルミ基板(40 μ m 厚)上に、鉄を蒸発源とした APG(ULVAC 製, APG-1000)により鉄薄膜を生成した。1パルスあたりの蒸発量は 1.1×10^{-6} mol / pulse で蒸着量は 4.0×10^{-9} mol / pulse と見積もられる。これを 1 Hz で 12500 pulse 導入し鉄薄膜を得た。この鉄薄膜をメスバウアー分光法・SEM・AFM により観測した。

【結果及び考察】SEM と AFM の観察から、アルミ基板表面には圧延時にできたナノスケールの溝(深さ約 10 nm、巾約 100 nm)が確認された。この基板の上に APG を用いて鉄薄膜(膜厚 814 nm)を生成したところ、その表面にはアルミ基板と同様な凹凸が見られた。この鉄薄膜のメスバウアースペクトルを Fig. 1 の様に様々な角度で測定した。まず Fig. 1(a)のように測定した場合、メスバウアースペクトルには一組の α -Fe によるセクステットが観察され、その強度比(表 1)からほぼ面内に磁気配向していることが分かった。さらに、Fig. 1(b)・(c)のように γ 線と溝の角度がそれぞれ 45°、90°となるようにして測定したところ、セクステットの強度比(表 1)に明らかな差が見られ、溝に沿って 1 次元に磁気配向していることが明らかとなった。強度比の実測値と完全な一次元磁気配向を仮定した強度比の理論値を比較すると、完全には一致せず、磁気配向にある程度の乱れがあることが分かった。磁気配向の角度が面外方向と面内方向にそれぞれ正規分布していると仮定して 3 つの測定値を全て満足するように角度分布を見積もると、面外方向には標準偏差 18°、面内方向については標準偏差 31°の分布を持っていることが分かった。一方、アルミ基板表面を化学研磨によって溝をなくした基板を用いて同様の実験を行ったところ上記のような磁気配向はみられず、面内に磁気配向するのみであった。

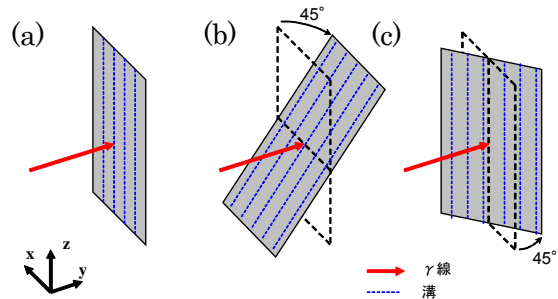


Fig. 1. Geometries used in Mössbauer measurements

表 1 メスバウアースペクトルの強度比

	実測値	γ 線-溝 角度	理論値
(a)	3:3.2:1:1:3.2:3	90°	3:4:1:1:4:3
(b)	3:1.7:1:1:1.7:3	45°	3:1.33:1:1:1.33:3
(c)	3:3.0:1:1:3.0:3	90°	3:4:1:1:4:3

Control for spin orientation according to substrate surface shape of iron thin films produced by arc-plasma-gun

KATO, H., KONO, K., KOBAYASHI, Y., YAMADA,

Magnetic and nano-structure analysis of SnO₂ doped with Sb and Fe

K. Nomura¹, C. Barrero^{1,2}, K. Kuwano³, Y. Yamada³, J. Sakuma⁴,
M. Takahashi⁴, T. Saito⁴, E. Kuzman⁵ and A. Ooki¹

(¹Univ. Tokyo, ²Antioquia Univ., ³Tokyo Univ. Sci., ⁴Toho Univ., ⁵Etoves Lorand Univ.)

We have studied the effect of the simultaneous Fe and Sb doping on the magnetic and crystallographic properties in SnO₂ nanocrystals. The samples, which were prepared by a sol-gel method, consisted of rutile type SnO₂ and were free of any impurity phase. ¹¹⁹Sn-, ⁵⁷Fe-, and ¹²¹Sb-Mössbauer spectroscopies demonstrate that Sn⁴⁺, Fe³⁺ and Sb⁵⁺ are the only oxidation states for these ions in the SnO₂ structure. For most samples, the presence of antimony did not improve M_s , but for Sn_{0.85}Sb_{0.05}Fe_{0.1}O_{2-δ}, this value was increased up to 14 times as shown fig.1. This only sample exhibited magnetic sextets in its ⁵⁷Fe Mössbauer spectrum in addition to two doublets, whereas for the other samples only two doublets were observed as shown fig.2. For a restricted Sb/Fe ratio, the magnetic ordering of the iron ions can be activated. The origin of the magnetic interactions is considered due to the existence of exchange interactions between the iron ions mediated by free-carriers in an impurity band. The doping Sb⁵⁺ into SnO₂ increase the free carriers, and the excess doping of Fe³⁺ induce the oxygen vacancy.

Sb, Fe をドーブした SnO₂ のナノ構造解析
野村貴美、Cesar Barrero、桑野敬介、山田康洋、佐久間絢子、高橋 正、斉藤敏明、Erno Kuzmann、大木継秋

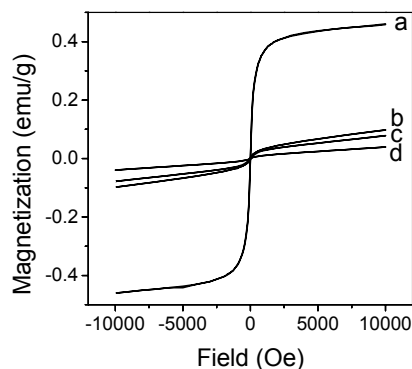


Fig.1 Magnetization curves for samples: a) Sn_{0.85}Sb_{0.05}Fe_{0.1}O_{2-δ}, b) Sn_{0.8}Sb_{0.1}Fe_{0.1}O_{2-δ}, c) Sn_{0.9}Fe_{0.1}O_{2-δ}, d) Sn_{0.85}Sb_{0.1}Fe_{0.05}O_{2-δ}.

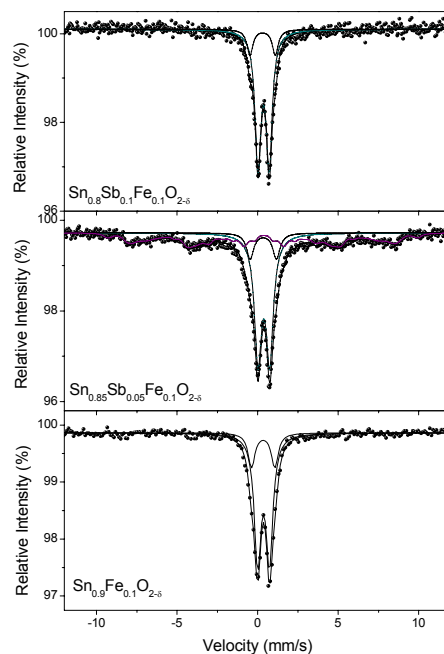


Fig.2 ⁵⁷Fe Mössbauer spectra of Sn_{0.9-x}Sb_xFe_{0.1}O_{2-δ} with x=0.1, 0.05, and 0.0.

(近畿大院産技術^{*1}、近畿大産業理工^{*2})○安光寛記^{*1}、松井亮太^{*1}、栗本広志^{*1}、西田哲明^{*1,2}

[序論]

当研究室で開発されたバナジン酸塩ガラス（登録商標 NTA ガラス）は、ナノレベルの超精密加工や放電針、発熱体などへの応用が期待され、一部実用化が始まっている。NTA ガラスは、熱処理（再加熱）するとガラス骨格を構築する鉄およびバナジウムの四面体の歪みが小さくなる（構造緩和すること）がメスバウアースペクトルによって明らかになっており、構造緩和により電気伝導度（ σ ）が数桁上昇する。本実験では、適度な熱処理によって σ の値を段階的に変化させた NTA ガラスを作成して、構造緩和と活性化エネルギーの相関を明らかにする目的で実験を行った。

[実験]

BaCO_3 、 V_2O_5 、 Fe_2O_3 の必要量を秤り取り、めのう乳鉢を用いてよく粉砕し、混合した後、これを白金のつぼに入れて $1000\text{ }^\circ\text{C}$ で 90 分間熔融した。熔融物をステンレス板（室温）の上に流し出すことにより、ガラス試料を調製した。粉末試料を用いて示差熱分析（DTA）を行い、その結果を基にして熱処理温度を決定した。熱処理した一連の NTA ガラスのメスバウアースペクトルは室温で定加速度法により測定し、異性体シフトの基準物質として金属鉄も用いた。室温から $100\text{ }^\circ\text{C}$ の範囲で σ を測定することにより活性化エネルギーの値を求めた。

[結果と考察]

NTA ガラスを 350 、 370 、 400 および $500\text{ }^\circ\text{C}$ で熱処理した後、 σ を測定した。熱処理前の σ は $2.8 \times 10^{-6}\text{ S cm}^{-1}$ であったが、例えば、 $500\text{ }^\circ\text{C}$ で 60 min の熱処理後は $4.3 \times 10^{-2}\text{ S cm}^{-1}$ となった。Fig. 1 にこれらの NTA ガラスのメスバウアースペクトルを示す。Fig. 1 から、 σ が高くなると四極分裂（ Δ ）が小さくなることが分る。Fig. 2 には熱処理により σ を段階的に上昇させた NTA ガラスの σ と活性化エネルギーの関係を示す。活性化エネルギーの値が小さくなると σ が直線的に高くなることが分る。

NTA ガラスを熱処理するとバナジウム及び鉄から成る四面体の歪みが小さくなり、このとき電気伝導度の活性化エネルギーが減少するため、電子ホッピングの確率が上昇すると結論される。

Electric Conductivity and Mössbauer Spectra of Vanadate Glass.

YASUMITSU, H., MATSUI, R., KURIMOTO, H., NISHIDA, T.

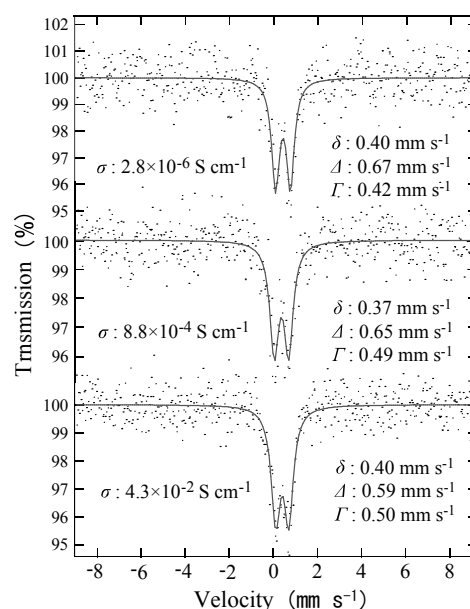


Fig. 1. 熱処理した NTA ガラスのメスバウアースペクトル

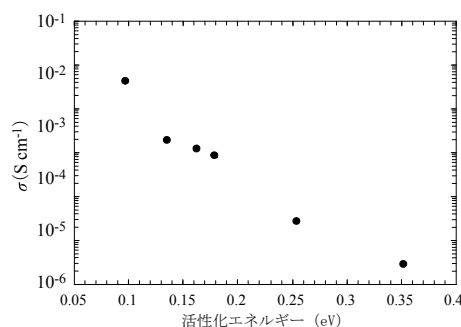


Fig. 2. 熱処理した NTA ガラスの電気伝導度と活性化エネルギー

有機・無機ハイブリッド化合物を用いたマルチフェロイック特性の発現

(広大院理、広大 N-BARD、広大院先端) ○速水真也、浦上大輔、中島 覚、鈴木孝至、井上克也

<序論>

最近、複合機能という観点から、強誘電かつ強磁性（複合フェロ）を示す“マルチフェロイック物質”をキーワードとした研究が有機・無機・金属錯体にもわたる分野で活発化している。マルチフェロイック物質は、強誘電性、強磁性、強弾性の中から 2 つ以上の性質をあわせ持つ物質はマルチフェロイック物質と呼ばれている。このような物質では、磁場によって電気分極をあるいは電場によって磁性をコントロールすることができ、巨大電気磁気効果を示す可能性がある。したがって従来の単体の場合よりもずっと低エネルギーで駆動可能な新たなアクチュエータ・センサ材料創製のアプローチとして注目されている。そこでマルチフェロイック物質の開発にあたり $[R\text{-amine}]_2\text{FeCl}_4$ を合成し、その構造、磁氣的性質および誘電特性について調べることにした。

<実験>

$\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ とアミン誘導体の塩酸塩をモル比 1 : 2 で約 50°C の水中で混合、攪拌し、冷却することによって無色の単結晶を容易に得ることができた。これらの構造解析、磁気測定および誘電測定を行った。

<結果と考察>

二次元構造でペロブスカイト型骨格を有する $[R\text{-amine}]_2\text{FeCl}_4$ を合成した。ここで R はプロピルとブチルのアルキル鎖のものをそれぞれ $[\text{C3A}]_2\text{FeCl}_4$ 、 $[\text{C4A}]_2\text{FeCl}_4$ とした。単結晶構造解析の結果より C3A が FeCl_4 の二次元シート間に位置し一つの鉄(II)イオンは六つの塩素イオンが配位しており軸位の塩素にアンモニウムイオンが水素結合している構造であった。またこれらの化合物の磁化率測定の結果寄り、両者ともに 90 K 付近で弱強磁性体となった。さらにこれらの化合物の誘電測定を行った結果、室温で比誘電率の著しい増大が観測され、強誘電性を示した。これらの結果は、室温以下で強誘電体へと転移すること、および 90 K 以下で弱強磁性体へと転移することが分かった。すなわち 90 K 以下で強誘電・強磁性を示すマルチフェロイック特性を発現させる可能性を示唆しており、今後 ME 効果などを調べていく必要がある。

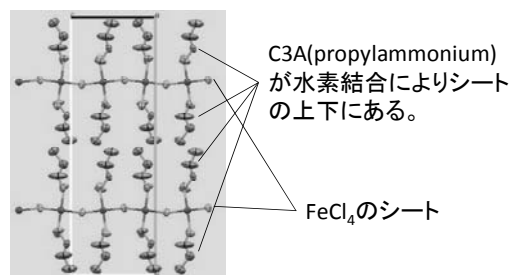


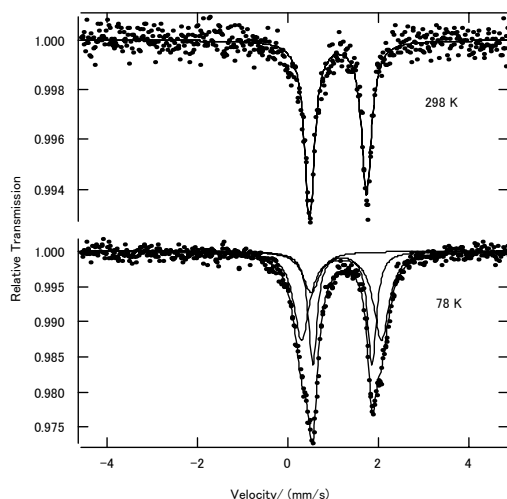
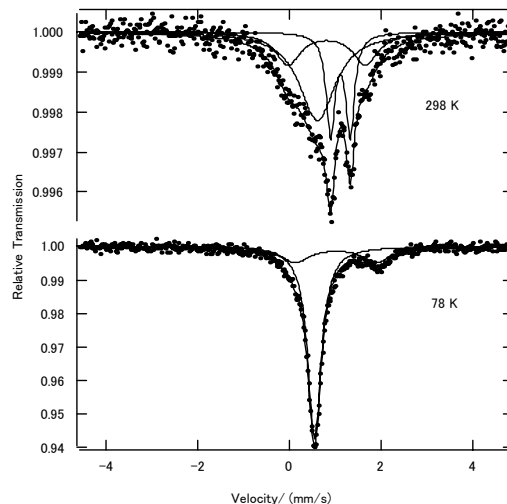
図1 $[\text{C3A}][\text{FeCl}_4]$ の単結晶構造解析による構造。

Multiferroic property for organic-inorganic hybrid compounds

HAYAMI, S., URAKAMI, D., NAKASHIMA, S., SUZUKI, T., INOUE, K.

【はじめに】1,3-ビス(4-ピリジル)プロパン(bpp)で架橋した集積型錯体 $\text{Fe}(\text{NCX})_2(\text{bpp})_2$ ($\text{X}=\text{S}, \text{Se}, \text{BH}_3$)は珍しい集積構造を示す。即ち、 $\text{Fe}(\text{NCS})_2(\text{bpp})_2$ は6配位の中心金属としては珍しい二次元相互貫入構造をとる¹⁾。この錯体は高スピン種のみであるが、粉末 X 線回折により類似の構造と考えられる $\text{Fe}(\text{NCBH}_3)_2(\text{bpp})_2$ (**1**)ではスピנקロスオーバー(SCO)現象が観測される¹⁾。本研究では、合成方法についてさらに検討し、 $\text{Fe}(\text{NCX})_2(\text{bpp})_2$ の構造とSCO挙動について検討した。

【結果と考察】メタノールとベンゼンを溶媒として合成した錯体はベンゼンを包接しており、 $\text{Fe}(\text{NCBH}_3)_2(\text{bpp})_2 \cdot 2(\text{benzene})$ (**2**)と考えられた。**2**のメスバウアースペクトルを図1に示す。室温でIS値は1.08mm/sであり二価高スピンを示す。QS値(1.24mm/s)は**1**の0.44 mm/sより大きい。78Kで二組の高スピン種が観測され、異なる鉄サイトの存在が示唆される。さらにわずかに低スピン種も観測される。この錯体を空气中に放置しておくことと内側のダブルレットが消え、低スピン種となることがメスバウアースペクトルから分かった。そこで**2**を120°Cで放置することによりベンゼンを脱離させた。得られた $\text{Fe}(\text{NCBH}_3)_2(\text{bpp})_2$ (**3**)のメスバウアースペクトルを図2に示す。室温のスペクトルは複雑であるが、シャープな成分のパラメータは**1**に近い。78Kでは大部分が低スピンになり、SCO挙動を示す。これは**1**の変化に類似しているが、室温でブロードな成分が見られる点異なる。**3**の粉末X線回折は**1**に類似していたが、回折はブロードであった。**3**をベンゼンに浸すとまたベンゼンを包接することも確認され、ベンゼンの包接によりSCOを制御できた。これらのスピン変化は磁化率測定の結果からも支持された。

Fig. 1 Mössbauer spectra of **2**.Fig. 2 Mössbauer spectra of **3**.

1) M. Atsuchi et al., *Chem. Lett.*, **2007**, *36*, 1064.

Mössbauer spectroscopic study of the assembled iron complexes bridged by 1,3-bis(4-pyridyl)propane
NAKASHIMA, S., ATSUCHI, M., INOUE, K.

研究発表要旨
9月24日(月)

1P01 ~1P34 : ポスター P会場

(金沢大院自然) ○鈴木大介、新井理太、横山明彦

【序論】

固体飛跡検出器はプラスチックや雲母等の絶縁性固体を材質とし、粒子が検出器中を通過すると、その飛跡に沿ってトラックを生成する。核反応生成物の測定に固体飛跡検出器を用いれば半減期の短い核種や、安定核種も検出することが可能である。また、検出器が小型で電源不要であることも利点として挙げられる。本研究では、固体飛跡検出器を用いた粒子弁別のため、 ^{12}C イオンについて、エネルギーとエッチピット形状の相関データの取得を試みた。固体飛跡検出器としてエネルギー分解能のよい CR-39 を用いて、これまでデータの少なかった 66 MeV から 250 MeV のエネルギー領域で ^{12}C イオンの照射実験を行った。エッチピットの観察には光学顕微鏡では困難なエッチピットの深さ情報が得られる原子間力顕微鏡 (AFM : Atomic Force Microscope) を用い、照射後の試料をエッチングして生成したエッチピットの深さと開口部の面積について、入射したビームエネルギーとの相関関係について検討した。

【実験】

若狭湾エネルギー研究センターに設置されている多目的シンクロトロン・タンデム加速器システム (W-MAST : Wakasawan Energy Research Center Multipurpose Accelerator System with Synchrotron and Tandem) において 250 MeV の $^{12}\text{C}^{6+}$ ビーム照射実験を行った。2 cm 角に切った CR-39 固体飛跡検出器を照射試料とし、その前面にディグレーダとしてそれぞれ 1.0 mm (66 MeV)、0.8 mm (103 MeV)、0.6 mm (140 MeV)、0.4 mm (177 MeV) の厚みの Al 板を置き、それぞれ括弧に示したビームエネルギーに調整した試料と Al 板無しの試料 (250 MeV) を用意し、計 5 種類のビームエネルギーによるトラックを生成させた。照射後の試料を 6 M NaOH 水溶液で 70 °C、15 分間エッチングし AFM 観察用試料とした。

【結果・考察】

66 MeV、103 MeV、177 MeV、250 MeV の 4 種類のエネルギーでの ^{12}C ビーム照射によって生成したエッチピットについて AFM で観察を行い、深さ、面積とエネルギーとの相関関係について検討した。各エネルギーでのエッチピットの深さ、面積の分布のグラフをそれぞれ図 1、図 2 に示す。横軸は深さ(面積)を、縦軸は全エッチピット数を 1 としたときの、その深さ(面積)でのエッチピットの比率である。ガウス分布を想定したフィッティングによる曲線として掲載した。まず、エッチピットの深さに関して言えばビームエネルギーが高くなるにつれて、深くなっている。そして、面積についてはエネルギーが高くなるにつれて、小さくなる傾向を読み取ることができる。ただし、データのばらつきが大きいためエッチングの最適条件などについても検討していく必要がある。

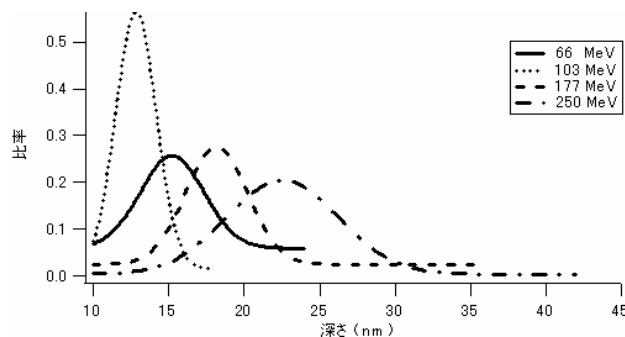


図 1. エッチピット深さとエネルギーの相関

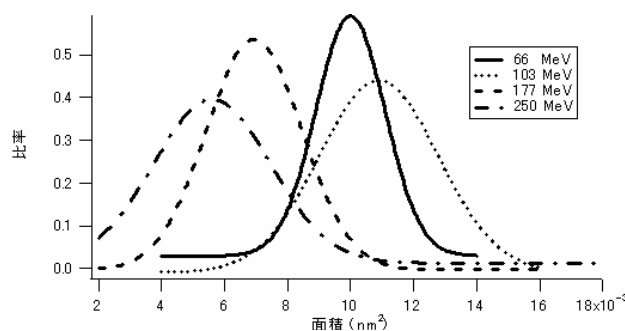


図 2. エッチピット面積とエネルギーの相関

Observation of Etch Pit Shape in CR-39 with Atomic Force Microscope for the Samples Irradiated with 250 MeV C-12 ions

SUZUKI, D., ARAI, M., YOKOYAMA, A.

(金沢大院自然¹、金沢大理²、高エネ研³、理研⁴) ○南里朋洋¹、
荒木幹生²、鈴木大介¹、木下哲一³、菊永英寿⁴、羽場宏光⁴、横山明彦¹

【はじめに】超アクチノイド元素 Rf の溶媒抽出能を調べるために、その同族体である Zr、Hf の逆相クロマトグラフ樹脂への吸着挙動を調べた。Rf を用いる実験では、核反応で製造した Rf をエアロゾルに吸着させ実験室まで輸送し化学操作を行う、オンライン実験が必要不可欠である。本研究では、リン酸トリブチル(TBP)を保持した逆相クロマトグラフ用固定相(TBP-Resin)を調製し、その樹脂の抽出能を測定するため、⁸⁸Zr、¹⁷⁵Hf トレーサーを用いたバッチ実験により Zr、Hf の分配係数 K_d を決定した。また、Rf を用いたオンライン実験に適用できるようにするため、加速器で生成した ⁸⁵Zr および ¹⁶⁹Hf をマイクロカラムへ輸送するオンライン実験を行い、迅速化学分離により Zr、Hf の溶離曲線を得た。これらの曲線から K_d 値を求めバッチ実験の結果と比較をした。これらは、Rf を用いた実験と比較できるデータとなる。

【実験】バッチ実験に使用したトレーサーは、大阪大学核物理研究センターAVF サイクロトロンにて、それぞれ ⁸⁹Y(p, 2n)⁸⁸Zr 反応、¹⁷⁵Lu(p, n)¹⁷⁵Hf 反応により製造したシングルトレーサーと理化学研究所で製造したマルチトレーサーを用いた。TBP-Resin は、スチレンジビニルベンゼン共重合体を(粒径 30 μm)を保持担体として以下の手順で調製した。保持担体を 110°C で 6 時間真空乾燥後秤量し、メタノール中で攪拌しながら樹脂に保持させたい量の TBP を滴下した。一晚攪拌後、さらに攪拌しながら赤外ランプで温め、十分にメタノールを蒸発させた後、110°C で 6 時間乾燥して TBP-Resin を調整した。調整した TBP-Resin の抽出能を調べるために以下の手順でバッチ実験を行った。TBP-Resin を遠沈管にはかり取り、全量が 3 mL になるようにトレーサー溶液と各濃度の塩酸を加えた。攪拌後、遠心分離し溶液を 1 mL を測定容器に分取し、γ線測定を行い分配係数 K_d を求めた。オンライン実験は、理化学研究所 AVF サイクロトロンにて実施した。ターゲットは Be 箔上に Gd の電着を行い、その上に Ge を蒸着させ作成した。^{nat}Ge(¹⁸O, xn)⁸⁵Zr 反応、^{nat}Gd(¹⁸O, xn)¹⁶⁹Hf 反応で製造した生成物の ⁸⁵Zr、¹⁶⁹Hf を KCl エアロゾルに吸着させガスジェットで輸送し、溶液化を行い TBP-Resin を詰めたマイクロカラム(1.6 mm i.d.×7.0 mm)に通し、各塩酸濃度での溶離液のフラクションを捕集した。γ線測定によって溶離曲線を得た。これより保持体積を求めて K_d 値を導いた。

【結果と考察】バッチ実験とオンラインでのマイクロカラム実験で得た Zr、Hf の K_d 値を Fig.1 に示す。測定した塩酸濃度 5–10 M で Zr の K_d 値は Hf の K_d 値よりも大きくなった。また、マクロ量の K_d 値と比べ、今回測定した K_d 値の絶対値はマクロ量の値より大きくなっているが、 K_d 値の変化の傾向は一致している。バッチ実験で得た値とオンラインのマイクロカラム実験で得た値は、良く一致しており、Rf を用いた実験に適用でき、Zr、Hf と Rf の吸着挙動を比較することができると思われる。

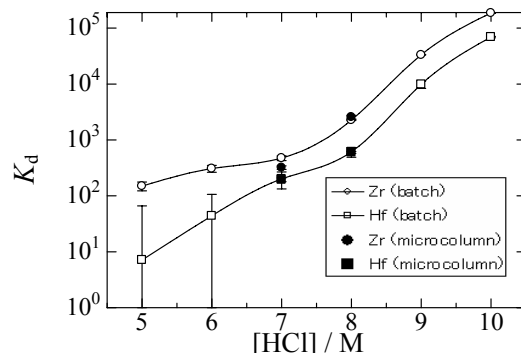


Fig. 1 Variations of distribution coefficients of Zr and Hf on 18.5-wt.% TBP-Resin as a function of HCl concentration.

Study on the reversed phase chromatography in trace concentration for solution chemistry of transactinide elements

NANRI, T., ARAKI, M., SUZUKI, D., KINOSHITA, N., KIKUNAGA, H., HABA, H.,
YOKOYAMA, A.

1P03

核分裂片の原子番号測定のための飛行時間・エネルギー検出器の開発

(新潟大理¹、新潟大機器分析センター²、理化学研究所仁科加速器研究センター³)

○川崎拓馬¹、後藤真一²、工藤久昭¹、加治大哉³、森本幸司³、大西哲哉³

[はじめに]

アクチノイドの低エネルギー核分裂において、核分裂片の質量分割が対称な分裂と非対称な分裂が確認されている。このうち非対称核分裂について、これまで研究から核分裂片の殻効果が分裂機構に影響を与えていると考えられている¹⁾。さらに詳細に殻効果の影響を実験的に確認するには、これまでに測定されている核分裂片の質量数(A)と運動エネルギー(E)に加えて原子番号を同時に測定することが有効である。荷電粒子の阻止能(dE/dx)は質量数、運動エネルギーおよび原子番号に依存する。飛行時間(TOF)と電離箱によるエネルギー測定から質量数を求めることができるので、電離箱での阻止能を測定できれば、原子番号を決定できる。ただし、原子番号を分解能よく測定するためには、検出のための膜などによるエネルギーロスを極力さげなくてはならない。そこで本研究では、阻止能の測定可能なマルチアノード電離箱と膜をしよ

うしない、大面積タイミング検出器の開発を目的としている。

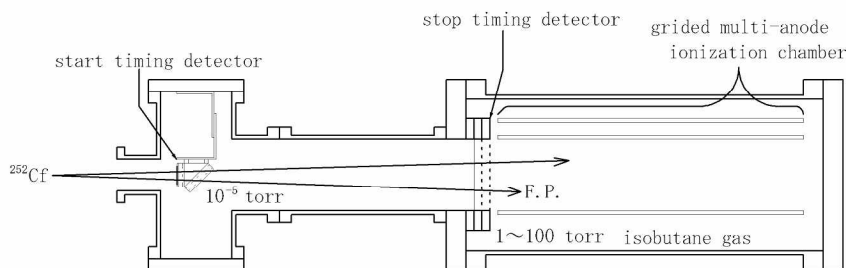


Fig.1 Experiment

[実験]

ストップ検出器として用いられる大面積タイミング検出器としては、平行平板なだれ検出器(PPAC)がよく用いられているが、気体を導入するため膜が使用される。そこで、今回はグリッド電離箱の入口付近にワイヤーを平行に使用した検出器を導入した。核分裂片が検出器を通過すると、電極の間隙および真空切りの膜で電子が生成し、その電子をガス増幅により検出する。

[結果と考察]

ストップ検出器のワイヤー面の距離 1.6 mm、圧力 100 torr の条件で、得られた波高は小さかったが、核分裂片が通過したとき生じる電子なだれのパルスを観測することができた。公園では、さらに改良を加えたタイミング検出器の性能について議論する。

[参考文献] 1) S. Goto, Studies on the Mass Splitting Process in Low-Energy Fission of Actinides

Development of timing and kinetic energy detector for measuring atomic number of fission fragments

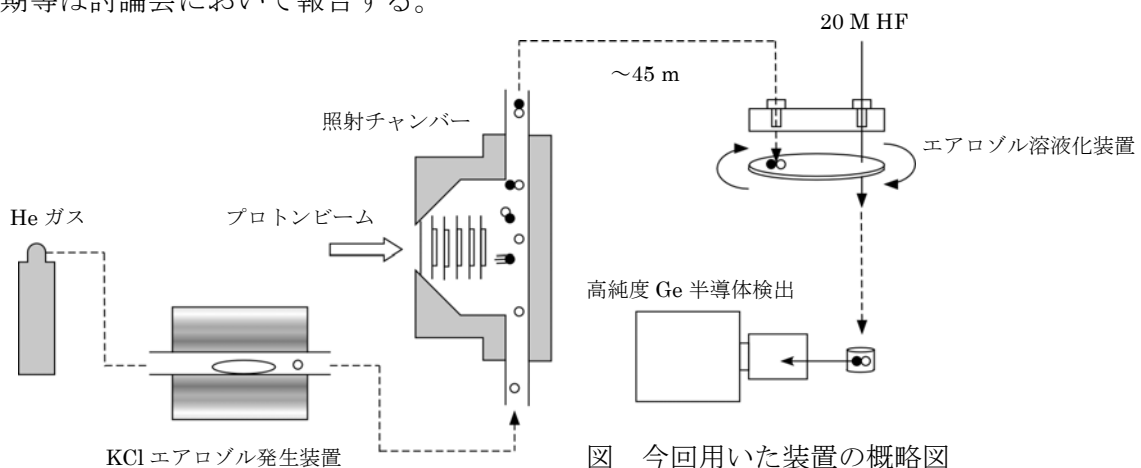
Kawasaki, T., Goto, S., Kudo, H., Kaji, D., Morimoto, K., Ohnishi, T.

(理研仁科セ, 原子力機構, サイエンスサービス) ○菊永英寿, 笠松良崇, 羽場宏光, 加治大哉, 森本幸司, 坂本一郎

【はじめに】 Nb-90m の大部分は約 2.3 keV の M2 遷移を經由して壊変する。この遷移は内殻電子の放出がエネルギー的に禁止され、また内部転換係数も大きいため、 ^{90m}Nb は化学形により半減期が変化することが期待される。Nb-90m は現在報告されている中でも最も化学状態の影響を受けて壊変定数が大きく変化する核種の 1 つであり、数%の壊変定数の変化も報告されている[1, 2]。しかし、約 19 秒という半減期の短さのため精度の良い半減期測定は困難であり、その変化量は実験手法により大きくばらついている[1-5]。そこで本研究では短寿命核種 ^{90m}Nb の半減期を精密に決定するため、ガスジェット運搬装置を利用した半減期測定を試みたので報告する。

【実験】 実験装置の概要を図に示す。Nb-90m は厚さ 3 μm の Al 箔に蒸着又は電着した ^{nat}Zr ターゲットに約 14 MeV のプロトンビームを照射することで起こる $^{90}\text{Zr}(p,n)^{90m}\text{Nb}$ 反応で製造した。製造された ^{90m}Nb をガスジェット運搬装置によって化学実験室に輸送し、エアロゾル溶液化装置に 1 分間捕集した。捕集された ^{90m}Nb を 20 M HF 溶液で溶解し、 γ 線スペクトロメトリーを行った。測定は ^{137}Cs を参照線源として同時に測定し、pile-up 等の補正を行った。

【結果】 得られた γ 線スペクトル中には ^{90m}Nb と ^{137}Cs の光電ピーク以外は消滅放射線が確認できる程度であり ^{90m}Nb の半減期測定の妨害となるピークは無いことが確認できた。今後、繰り返し測定することで、精度良く ^{90m}Nb の半減期測定が出来ると期待できる。今回得られた半減期等は討論会において報告する。



【参考文献】 [1] J. A. Cooper *et al.*, Phys. Rev. Lett. **15**, 680 (1965); [2] A. Olin, Phys. Rev. C **1**, 1114 (1970); [3] J. S. Geiger *et al.*, Can. J. Phys. **47**, 949 (1969); [4] W. Weirauch *et al.*, Z. Phys. **209**, 289 (1968); [5] A. Meykens *et al.*, Z. Phys. A **284**, 417 (1978)

Development of a gas-jet transport system for precision measurement of the half-life of ^{90m}Nb
Kikunaga, H., Kasamatsu, Y., Haba, H., Kaji, D., Morimoto, K., Sakamoto, I.

(阪大院理) ○大江一弘、田代祐基、吉村崇、高橋成人、佐藤渉、
篠原厚

[はじめに]

102番元素ノーベリウム(Nb)および106番元素シーボーギウム(Sg)の酸化還元反応を行うことを目的とし、我々はこれまでフロー電解セルを用いた基礎実験を行ってきた。しかし、これまで用いてきたフロー電解セルでは、現在我々のグループで重元素化学操作用の装置として用いているマイクロチップとの接続が困難かつ、酸化還元効率が不十分であるといった問題点があった。

そこで今回、新たな酸化還元反応用の装置として、マイクロチップに電極を組み込んだ電極マイクロチップの開発を行った。

[実験]

電極マイクロチップはフォトリソグラフィとウェットエッチング法を用いて作製した。作製した電極マイクロチップの概念図を図1に示す。電極マイクロチップは流路が形成されている流路基板と、電極が形成されている電極基板とからできている。流路基板の材質にはゴム状のポリマーであるポリジメチルシロキサン(PDMS)を用いた。作製した流路の幅は1 mm、長さは56 mm、深さはおよそ20 μm である。電極基板はスライドガラス上に蒸着した電極からできており、作用電極(長さ47 mm)および対電極には金電極を用いた。この金電極はスライドガラスとの接着性をあげるために、スライドガラス上に蒸着したクロムの上に蒸着している。参照電極には、PDMSに差し込んだ銀線を用いた。

作製した電極マイクロチップを用い、Nbの模擬実験として酸化還元電位がよく似ているセリウム(Ce)を用いて酸化還元効率の測定を行った。 ^{139}Ce トレーサーを0.1 M NaClO_4 溶液に溶かし、シリンジポンプを用いて電極マイクロチップに導入した。溶液フロー下において定電位をかけ、電極マイクロチップから溶出してきた溶液を硝酸溶液に溶かし、トリブチルリン酸(TBP)を含む有機相と混ぜて溶媒抽出を行った。これにより酸化されていない Ce^{3+} と酸化された Ce^{4+} を分離し、酸化還元効率の見積もりを行った。発表では、電極マイクロチップの作成方法および酸化還元効率測定実験の結果について報告する。

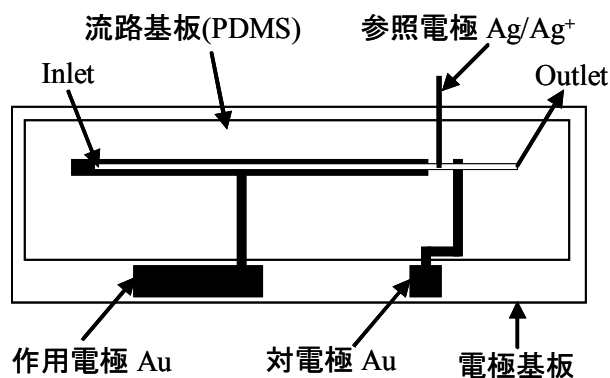


図1 作製した電極マイクロチップ概念図

Development of microchannel-microelectrode chip for redox reaction of heavy elements

Ooe, K., TASHIRO, Y., YOSHIMURA, T., TAKAHASHI, N., SATO, W., SHINOHARA, A.

(東大院工、埼玉大、東理大、KAST) ○野村貴美、鈴木陽介、
矢嶋龍彦、山田康洋、広瀬靖

【目的】室温強磁性を示す透明な酸化物はスピントロニクス材料として有望視されている。一方、ZnO に In_2O_3 を混合した IZO はアモルファスで、かつ透明な半導体になることが報告されている。本研究では、アモルファス IZO に Fe イオンをドープして磁化率とメスバウアースペクトルの測定を行った。一部は Fe のクラスターになることが確かめられた。

【実験】In : Zn=1 : 1 の割合で、 ^{57}Fe を 1%、3%、5% ドープした粉末をゾルゲル熱分解法により作製した。これらの粉末を錠剤成型ターゲット材として、真空度 10^{-2} と 10^{-6} Torr および基盤温度、室温と 300°C において、それぞれのレーザーアブレーションにより IZO 薄膜を形成させた。得られた試料は X 線回折(XRD)、振動試料型磁力計(VSM)、転換電子メスバウアースペクトロメトリー (CEMS) により解析した。

【結果】XRD 測定の結果、 10^{-2} Torr で結晶化が見られたが、 10^{-6} Torr ではブロードなピークから非晶質であることを確かめた。図 1 のように、室温で製膜した後 400°C で 1 時間アニールした試料の Kerr 効果の測定では、強磁性を示すヒステリシスが観測された。CEMS スペクトル(図 2) から、ドープした鉄は常磁性 Fe (III) と Fe (II) の 2 種類のダブルレット (D1: $\delta=0.35$ mm/s, $\Delta=0.85$ mm/s) (D2 : $\delta=0.77$ mm/s, $\Delta=2.19$ mm/s) と $\alpha\text{-Fe}$ の磁気分裂成分($\delta=0.01$ mm/s, $\epsilon=0$, $B_{\text{hf}}=33.0\text{T}$)からなることが分かった。アニール前は、Fe (II) と Fe (III) の常磁性からなる黒い膜であったが、アニール後半透明になり、Fe (II) の酸化により Fe (III) になり、一部は還元して $\alpha\text{-Fe}$ が析出されることがわかった。

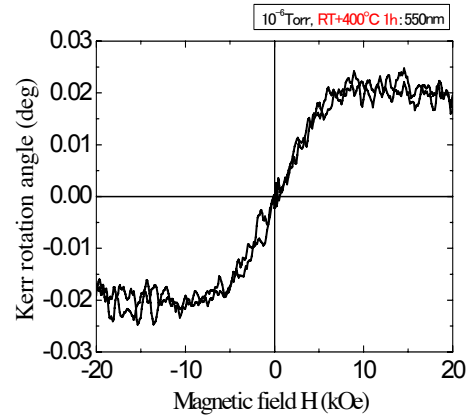


図 1 10^{-6} Torr : 室温で製膜した後、 400°C で 1 時間アニールした試料の 550nm におけるカー効果。

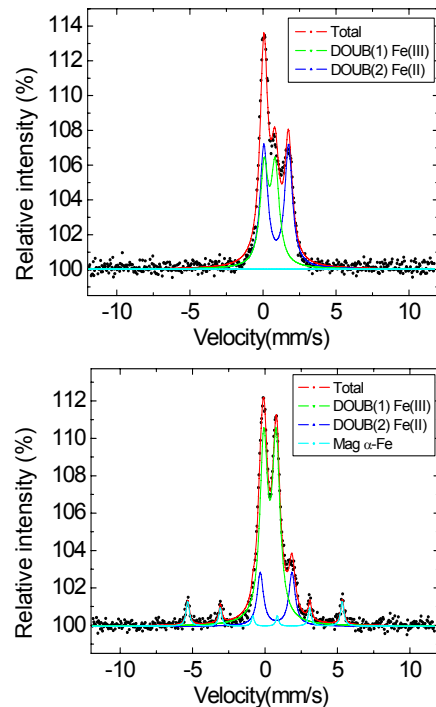


図 2 10^{-6} Torr, 室温で製膜した試料とその後、 400°C で 1 時間アニールした試料のメスバウアースペクトル。

Magnetic properties and nano-structure of amorphous IZO thin film doped with Fe

NOMURA Kiyoshi; SUZUKI Yousuke; YAJIMA Tatsuhiko; YAMADA Yasuhiro; HIROSE, Yasushi.

【目的】近年、 ZnO 、 TiO_2 、 SnO_2 などに微量の Fe 、 Co や Mn などの遷移金属イオンをドープした薄膜や粉末は室温で強磁性を示すことが報告され、電荷と磁性を制御する次世代のスピン트로ニクス材料として注目を浴びている。 ITO は液晶ディスプレイの透明電極として広く用いられている。

本研究では磁性 Fe イオンをドープした ITO の希薄磁性半導体としての挙動を調べるために In_2O_3 に異なる濃度の Sn^{4+} および Fe^{3+} をドープした試料粉末を作製し、磁化率とメスバウアースペクトルの測定から磁気特性とナノ構造を解析した。

【実験】測定に用いた試料粉末はゾル・ゲル法を用いて作製した。金属スズ、金属インジウムをそれぞれ塩酸、硝酸に溶かしクエン酸とエチレングリコールを混合し 0.01mol/l の Sn ゾルと In ゾルを作製した。 0.01mol/l の Fe 水溶液はクエン酸水溶液に金属鉄を溶かして作製した。 In ゾル、 Sn ゾル、 Fe 水溶液を所定の組成比になるよう混合し、 150°C で加熱濃縮してゲル化し、空气中 250°C で2時間仮焼成した。その後 500°C で空气中2時間焼成して $\text{ITO}(\text{Fe})$ 粉末を得た。得られた試料は粉末X線回折(XRD)、振動試料型磁力計(VSM)、メスバウアースペクトルによる測定を行った。

【結果】XRDを測定した結果、いずれも In_2O_3 の立方晶の結晶系を示した。磁化率の測定では、図1のA,B,C酸化物各組成の飽和磁化(M_s)はA: 0.03 emu/g , B: 0.02 emu/g , C: 0.00 emu/g であった。なお、インジウムに鉄のみをドープした酸化物では強磁性的な振る舞いは見られなかった。メスバウアースペクトル(図2)には2種類の常磁性的なピークの外、大きさ(A: 15.9T B: 13.1T C: 10.3T)の異なる内部磁場の成分がわずかに観察された。磁化率測定によると Sn 濃度が Fe 濃度より高い場合に室温での強磁性的な振る舞いを示した。 In_2O_3 中に Sn^{4+} をドープすると電子のキャリア密度を高めるために、キャリア電子が Fe^{3+} のスピン間の相互作用を強めていると考えられる。

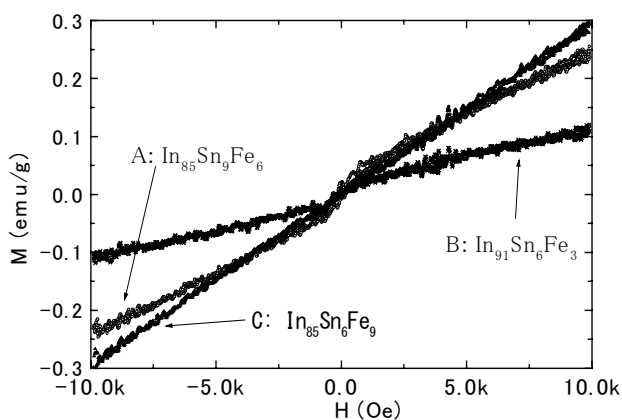


Fig1 Magnetization of Fe doped ITO

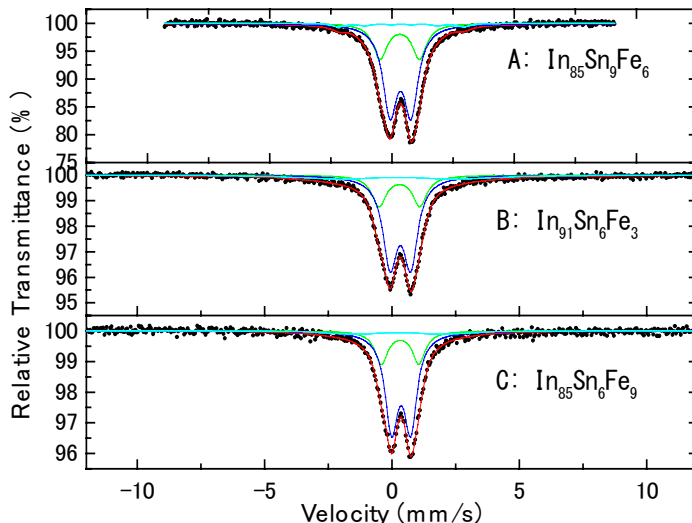


Fig.2 Room Temperature Mossbauer Spectra of Fe doped ITO

(阪大院理¹、高エネ研²)○中垣麗子¹、二宮和彦¹、杉浦啓規¹、中塚敏光¹、佐藤渉¹、吉村崇¹、松村宏²、三浦太一²、篠原厚¹

【はじめに】

本研究グループではこれまでパイ中間子原子形成後の電子状態を考察するために電子 X 線エネルギーの精密測定をおこなってきた。電子 X 線エネルギーはパイ中間子原子の電子状態の他に、電子エックス線放出時のパイ中間子の存在準位に影響される。この影響を見積もるためにはパイ中間子捕獲後の原子過程を解明する必要があり、つまりパイ中間子の初期状態についての知見が必要である。本研究では、実験より得られたパイオニック X 線強度分布からパイ中間子捕獲の初期過程についての考察を行った。

【実験】

本実験は高エネルギー加速器研究機構の 12GeV 陽子シンクロトロン加速器研究施設(KEKPS)でこれまでの実験と同様のセットアップの元で行った[1]。ターゲットとして Z=29~92 の単体、および化合物を用い、パイ中間子原子形成後に放出されるパイオニック X 線を三台の半導体ゲルマニウム検出器で測定した。

また、パイ中間子原子におけるカスケード過程について、ミュオン原子カスケードプログラム[2]をパイ中間子原子用に改訂したものを用いて計算した。初期の主量子数、角運動量子数、電子の再充填の有無を計算のパラメーターとしてパイオニック X 線の強度分布について計算し、実験値との比較を行った。

【結果と考察】

本実験ではターゲットにより形状が違ふこと、および化合物ターゲットにおいては対象とする元素以外へのパイ中間子の捕獲があることから、これらの影響を取り除くために強度の強いパイオニック X 線を基準値(100)としてそれぞれのパイオニック X 線の相対強度を求めた。具体的にはパイ中間子が主量子数 6 から 5 へ脱励起する 6-5 遷移のパイオニック X 線の強度を基準値とした。Fig 1 に示すように主量子数が 1 変化する($\Delta n=1$)X 線遷移強度については大まかには計算値は実験値を再現している。また、 $\Delta n=2, 3$ の遷移時に放出されるパイオニック X 線については異なる初期角運動量を仮定することで、パイオニック X 線強度比が大きく変化することがわかった。そこでこれらの遷移のデータから実験値のパイオニック X 線強度比を再現するパイ中間子の初期状態の検討を行った。本発表では、化学形の違いや気体ターゲットの場合における捕獲初期状態の変化について報告する。

【参考文献】

- [1] 二宮 他 第 50 回放射化学討論会 2B01(2006)
 [2] V. R. Akylas *et al.*, *Comput. Phys. Commun.*, **15**(1978)291.

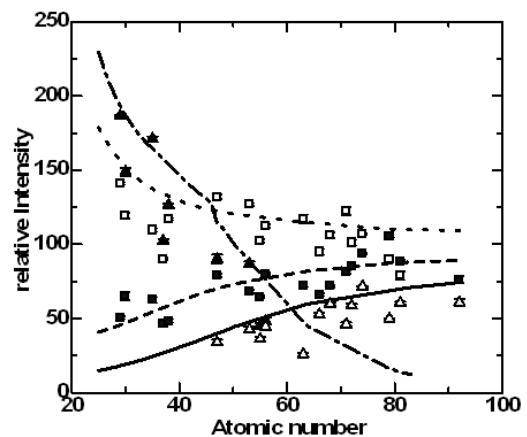


Figure 1: The experimental relative intensities for 4-3, 5-4, 7-6 and 8-7 transitions are indicated by closed triangles, open squares, closed squares and open triangles, respectively. Also lines represent the calculated values(dashed-dotted line: 4-3, dotted line: 5-4, dashed line: 7-6, solid line: 8-7).

Investigation of initial process in negative pion capture by measuring pionic X-ray intensities

NAKAGAKI, R., NINOMIYA, K., SUGIURA, H., NAKATSUKA, T., SATO, W., YOSHIMURA, T., MATSUMURA, H., MIURA, T., SHINOHARA, A.,

¹¹¹Agを用いたPAC法による金属錯体と生体分子中の超微細場測定(金沢大院自然¹、金沢大理²、高エネ研³、原子力機構⁴、阪大院理⁵、京大炉⁶)○山崎逸郎¹、伊原 清²、木下哲一³、片岡邦重¹、横山明彦¹、村上幸弘⁴、
佐藤 渉⁵、大久保嘉高⁶

【序】これまで生体分子の金属イオン活性位の機能解明を目的としたγ線摂動角相関法の適用について研究を行い、プローブ親核に¹¹¹In($T_{1/2}=2.80$ d)や¹¹⁷Cd($T_{1/2}=2.49$ h)、^{111m}Cd($T_{1/2}=48.5$ min)を用いて銅タンパク質マビシアニンやその変異体、さらに金属キレート錯体の電場勾配値を測定し、マビシアニンの配位の特異性を指摘した。しかし、これらの核種は半減期が短く、統計の良いデータを取ることが難しい、短時間で試料を作成しなければならないといった問題があった。本研究では金属タンパク質に取り込ませるPAC親核種に¹¹¹Ag(\rightarrow^{111} Cd, $T_{1/2}=7.45$ d)を用いて同様の実験を行い、より統計の良いデータを得ることを目的とした。そのためにまず¹¹¹Agトレーサーの作成手法について検討し、今後行う予定である生体試料のPAC測定結果との比較に用いるために種々の錯体化合物を作成して実際にPAC測定を試み、得られたデータについて検討した。

【実験】日本原子力研究開発機構原子力科学研究所のJRR-3またはJRR-4原子炉にて天然存在比のPd箔に熱中性子照射を行った。¹¹⁰Pd(n,γ)¹¹¹Pd反応によって生じた¹¹¹Pd($T_{1/2}=23.4$ min)を5日間放置して十分にβ⁻壊変させて¹¹¹Agを製造するとともに、照射の際に同時に生成する副生成物を減衰させた。その後京都大学原子炉実験所に運搬して照射後のPd箔から化学分離によって¹¹¹Agを取り出し、各種化合物を調製して測定試料とした。PAC測定は、4台のBaF₂シンチレーション検出器を用いたシステムにて行った。

【結果】¹¹¹Agトレーサー作成については、遠心分離機を用いた沈殿分離によって測定可能な量の¹¹¹AgをPdターゲットから化学分離することに成功した。測定した試料のうち、塩化銀のPACスペクトルには明確な摂動パターンが見られなかった。これは塩化銀が立方対称の岩塩型結晶構造をとっておりプローブ核周辺の電場の偏りがないためだと思われる。その他摂動が観測された試料の配位子及び配位原子とPAC測定の解析結果(EFG:電場勾配)をTable 1に示した。比較対象として、¹¹¹AgとPACプローブ核が同じ^{111m}Cdを用いて求めた試料の電場勾配も同表に示した。

配位構造が類似していることを考慮し、N配位試料とS配位試料を比較すると電場勾配値が大きく異なり、配位原子の種類に依存していることがわかる。配位原子の等しいアンモニア錯体とo-フェナントロリン錯体は配位数が異なるにも関わらず近い値が得られた。S配位試料を^{111m}Cdデータと比較すると近い値となっており¹¹¹Ag核による測定は^{111m}Cdと同様に局所場を反映している。今後、同様の実験を生体試料に適用する予定である。

Ligand	Donor atoms of ligand	EFG /10 ²² V·m ⁻²
ammine	N,N	2.83
o-phenanthroline	N,N,N,N	2.90
bismuthiol	S,S,S,S	1.00
cupferron	O,O,O,O	0.74*
DDC	S,S,S,S	0.94*

*Data with ^{111m}Cd tracer

Measurement of hyperfine field in metal complexes and mavycyanin by PAC method using ¹¹¹Ag probe
YAMAZAKI, I., IHARA, K., KINOSHITA, N., KATAOKA, K., YOKOYAMA, A., MURAKAMI, Y., SATO, W., OHKUBO, Y.

(ICU¹・理研²・KEK³) ○久保謙哉¹、角山智子¹、渡邊功雄²、
西山樟生³

リン酸カルシウム($\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$, TCP)に X 線を照射すると、中性水素原子が生成し、隣り合ったリン酸基の中間に室温でも数ヶ月間安定に存在することが ESR 測定から結論されている [1]。この水素原子は、TCP を水溶液系から合成した際に H^+ として取込まれていたものが、X 線照射で生成した電子と結合したものと推定されている。ミュオニウムは水素原子の軽い同位体とみなされ、 μSR 測定によって求められる超微細相互作用から、その位置や動的挙動を感度よく知ることが出来る。また ESR では測定不可能な H^+ の analog として正ミュオンを用いることができる。 H^+ や H が安定に存在するのであれば、TCP に正ミュオンを TCP に打込み μSR 測定することにより、X 線照射を経ずに TCP 中の水素の挙動を調べることができる。

我々は、KEK-MSL と RIKEN-RAL のパルスミュオン施設を利用して TCP の μSR 測定を行ってきたが、これまでの実験では、TCP 中のミュオニウムのスピン緩和速度が大きく、KEK-MSL や RIKEN-RAL の時間分解能では、ミュオニウムスピン回転を明瞭に観察することができず、縦磁場デカップリング法によって間接的にミュオニウムの生成を示してきた。今回は Paul Scherrer Institut (PSI、スイス) の DC ミュオンビームを用いることにより、チャンネル幅を 0.675 ns として測定を行ったので結果を報告する。

PSI では陽子加速器からの 590 MeV 1.8 mA の陽子ビームをグラフィットターゲットに照射してパイオンを生成している。パイオンの崩壊生成物のミュオンビームを利用する 6 ポートのうちのひとつである表面ミュオンポート piE3 で、GPS (General Purpose Surface-Muon Instrument) を使用した。ミュオニウムの標準試料としてクォーツを用い、ミュオン偏極度の確認には金属円盤を使用した。TCP 試料は粉末を加圧成型したものを焼成して、 $0.3 \text{ gcm}^{-2} 15 \text{ mm } \phi$ としたものを用いた。

横磁場 50 G でのスペクトルを Fig. 1 に示す。ミュオニウムスピンの回転が明瞭に観測され、ミュオニウムが生成していることが直接的に確認できた。スピン緩和速度が非常に大きく、この統計では $0.2 \mu\text{s}$ 以降では回転はほとんど見えない。ミュオニウムの感じている磁場の分布が広いと推測される。

[1] K. Nakashima, J. Yamauchi, *J. Amer. Chem. Soc.*, **127** (2005) 1606.

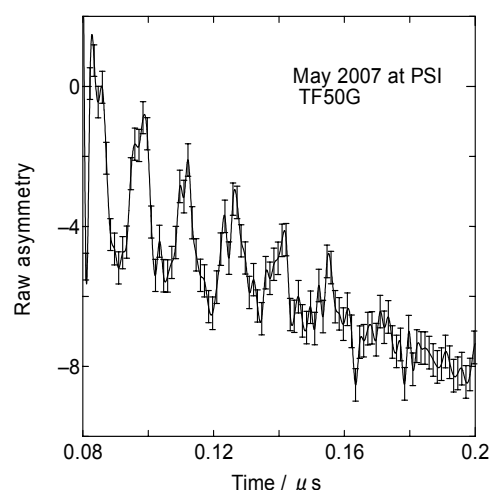


Figure 1. Muonium precession signal of TCP at RT.

Muonium in calcium phosphate

KUBO, M. K., KAKUYAMA, T., WATANABE, I., NISHIYAMA, K.

二硫化鉄の中性子インビームメスバウアースペクトルの温度依存性

(ICU¹・理研²・東理大理³・首都大東京⁴・阪大理⁵・大同工大⁶・原科研⁷・サンゴバン⁸)○久保謙哉¹、鶴岡洋児¹、小林義男²、山田康洋³、
 荘司準⁴、佐藤渉⁵、高山努⁶、酒井陽一⁶、渡辺裕夫^{6,8}、瀬川麻里子⁷、
 松江秀明⁷、篠原厚⁵

中性子捕獲反応による化合物の物理的・化学的変化を *in situ* で観測するために、中性子インビームメスバウアー分光法の開発を行ってきた。中性子ビームは、磁氣的に収束が困難であり、捕獲反応の閾エネルギーが存在せず、ビームはもとよりビームの散乱線があたる物質全てがバックグラウンドの原因となりうる。このため S/N のよいメスバウアースペクトルの測定は、“ビームの近くには試料以外ものを置かない” というのが最善である。核反応直後の生成物の観察のためには低温での測定が望まれるが、試料を囲むクライオスタットがノイズ源となる。我々は、クライオスタット窓やコールドフィンガー、クライオスタット設置法、ビームコリメータ等を種々改良し、液体窒素温度での ⁵⁷Fe メスバウアースペクトルを得ることができるようになった。

鉄化合物試料としては、二硫化鉄を選んでいる。これは、二硫化鉄の鉄含有率が高いことと、室温でも 78K でも常磁性で磁気分裂がなく、一組のダブルットのスペクトルを与えるために、ピーク強度が大きく限られたビームタイムでの測定に有効なためである。二硫化鉄には pyrite と marcasite の二つの結晶形がある。Fe^{II} と S₂²⁻ が岩塩型の結晶構造をとっている pyrite の 78K での測定についてはすでに報告した。今回は pyrite と少しだけ構造の異なる marcasite の 78K での測定結果を報告する。

試料の marcasite は Hannover 産の天然鉱物を粉碎粉末化した後加圧成型し、60 mgcm⁻² × 30φ の円盤とした。クライオヘッドから 1mm 厚の 4N アルミニウム板のコールドフィンガーをのぼし、板に 32 φ の穴を開け、穴を覆うアルミニウムフویل上に試料を固定した。熱シールドとしては、スーパーインシュレーションを 3 重にして用いた。

得られた marcasite の 78K での中性子インビームメスバウアースペクトルを Fig. 1 に示す。室温での結果は二組のダブルットで解析されたが、このスペクトルも主要な成分は 2 成分と考えられた。

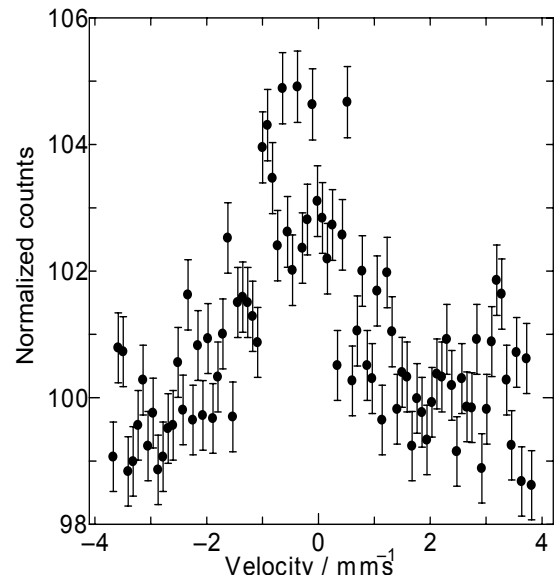


Figure 1. A neutron in-beam Mössbauer spectrum of iron disulfide(marcasite) at 78K.

Temperature dependence of neutron in-beam Mössbauer spectra of iron disulfide

KUBO, M. K., TSURUOKA, Y., KOBAYASHI, Y., YAMADA, Y., SHOJI, H., SATO, W., TAKAYAMA, T., SAKAI, Y., WATANABE, Y., SEGAWA, M., MATSUE, H., SHINOHARA, A.

(大同工大) ○小木曾了、酒井陽一、高山努

1. はじめに

鉄あるいは鉄鋼の環境中での腐食は応用工学的に重要である。これまでに大気中、水溶液中での腐食の研究は多数行われてきている。しかし腐食過程の化学反応の詳細についてはよくわからない点も多い。本研究では、以前報告した繊維状鉄（スチールウール）を鉄として用い、水溶液中に浸したまま（*in-situ*）で腐食生成物の透過 ^{57}Fe -メスバウアースペクトル測定結果を再検討した。さらに、以前の研究では着目していなかった初期段階（数時間～数日以内）の腐食生成物についても実験を行った。腐食生成物中の鉄の存在状態や構造を解明することを目的とした。

2. 実験方法と結果

繊維状鉄としては市販のスチールウールを用いた。繊維状鉄をポリエチレン袋に入れ、純水、塩化ナトリウム（ NaCl ）水溶液、あるいは硝酸ナトリウム（ NaNO_3 ）水溶液を注入した。水溶液の濃度はいずれも 0.55M とした。そのまま、測定ジオメトリを変えないよう工夫しながらメスバウアースペクトル測定を、数日間の間隔で浸漬後 2～100 日の範囲で繰り返した。925MBq の ^{57}Co (Rh) 線源を装着したトポロジクス・システムズ社製分光器を用いて、20°C で行った。メスバウアースペクトルは市販の解析プログラムである MOSSWINN3.1 を用いて行った。100 日後の生成物の主成分は、純水と NaCl 水溶液の場合マグネタイト (Fe_3O_4) であることがわかった。

一方、初期段階の生成物のメスバウアー分析は、ヤスリで磨いた鉄板の上に水溶液を滴下し、生成した腐食生成物をろ紙で拭き取り収集し行った。図 1 に、塩化ナトリウム 0.5mol/l の滴下後、約 20 時間の生成物のメスバウアースペクトル（室温測定）を示した。スペクトルのドップラー速度軸の基準は純鉄 ($\alpha\text{-Fe}$) であった。このスペクトルのパラメータから、この条件での初期生成物はレピドクロサイト ($\gamma\text{-FeOOH}$) あるいはアカガネアイト ($\beta\text{-FeOOH}$) が考えられる。

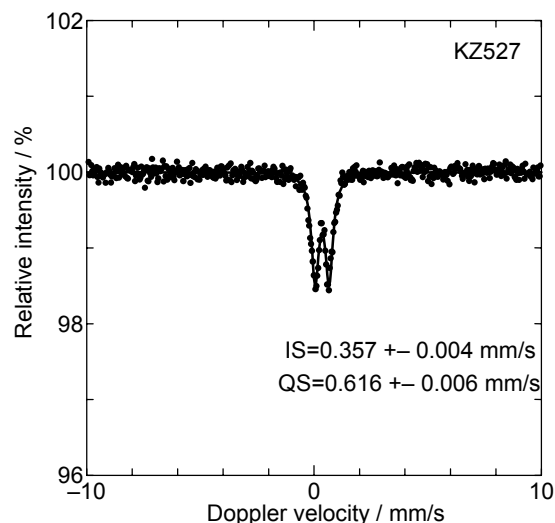


図 1. NaCl 水溶液/鉄板の腐食生成物（滴下後 20 時間）のメスバウアースペクトル（20°C）

Mossbauer analysis of corrosion products of iron in aqueous solutions

OGISO, R., SAKAI, Y., TAKAYAMA, T.

カーボンナノチューブに生成したナノワイヤのメスバウア分光

1P133

(信州大院教育¹, 信州大教育², 信州大工³)

○永田佳奈子¹, 村松久和², 田島千聖², 金隆岩³, 遠藤守信³

[目的]

カーボンナノチューブ(以後 CNT)の生成過程で金属触媒を用いている。その際, CNT に金属が内包されることが分かっている。透過型電子顕微鏡観察より今回用いた試料中にはナノワイヤ(nanowire)が含まれていることが確認されている。ナノワイヤは, 多層ナノチューブ中に金属や化合物を詰め込んだものであり, 鉄を主成分としたものであると推測されている。そこで, 今回はこのナノワイヤにはどのような化学状態の鉄が含まれているか, また, 用いる触媒量や CNT 生成条件が, CNT に含まれるナノワイヤの量や化学状態にどのように影響し, 関係しているのかを, メスバウア分光法を用いて調べた。

[実験]

信州大学工学部遠藤研究室で合成されたCNTを吸収体としてメスバウア測定を行った。用いたCNTは生成条件が異なる4種類を用いた。A ; tt25rrt(フェロセンの使用量 : 5wt%, 生成温度 : 800°C), B ; tt28rrt(3wt%, 800°C), C ; tt30rrt(10wt%, 800°C), D ; tt31rrt(3wt%, 750°C)である。これらのCNTをそれぞれ直径20mmφ, 高さ5mmアクリル容器に入れ, 密閉する。これを吸収体とし, ⁵⁷Coを線源として, 吸収法にてメスバウアスペクトルを測定した。得られたスペクトルを最小二乗法(「Recoil」プログラム)によりメスバウアパラメータを求めた。

[結果および考察]

tt25rrt, tt28rrt, tt30rrt においては 0 mm/s 付近に大きな吸収が見られ, singlet であると考えられる。(図 1) さらに, その周りの小さな吸収は磁気的分裂をしている 4 組の sextet である。よって, 異なる 5 つの状態で鉄が存在していると考えられる。それぞれのメスバウアパラメータより化学状態は純鉄, 炭化物, 酸化物であると推測された。

一方, tt31rrt は他の 3 つとスペクトル形状が異なっており, (図 2) singlet の吸収よりも周りの sextet の吸収の方が大きくなっている。また, sextet は 5 組あると考えられ, 同様の解析から, 純鉄, 酸化物, 炭化物であると推測できる。その中でも, 大きな吸収を示しているのは炭化物であると推測される。

これらの試料の中で, 生成条件のうち生成温度のみが異なる tt28rrt(3wt%, 800°C), tt31rrt(3wt%, 750°C)のメスバウアスペクトルを比較すると, 単純に吸収強度のみから判断するならば, 残存している鉄の量は tt31rrt の方が多い。触媒となる鉄の源であるフェロセンの使用量が同じであっても, 合成時の温度が低い方が鉄を含む物質が CNT 内部に多く残存すると思われる。また, sextet の占める面積が大きいことから tt31rrt には tt28rrt よりも大きく成長した結晶が含まれていると推測される。

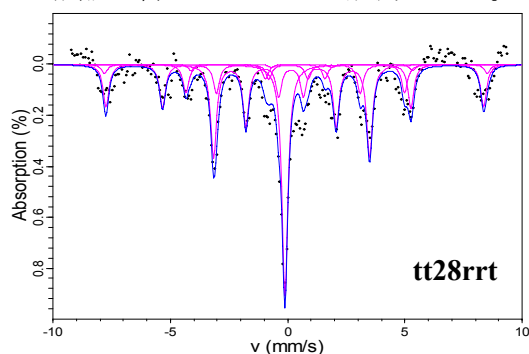


図 1 Mössbauer spectrum of nanowires produced in CNTs. (at room temperature, tt28rrt)

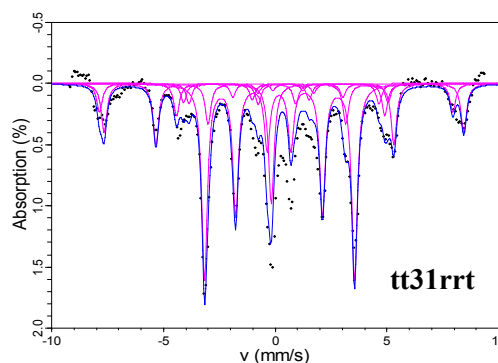


図 2 Mössbauer spectrum of nanowires produced in CNTs. (at room temperature, tt31rrt)

Mössbauer spectroscopy of nanowires produced in carbon nanotubes

NAGATA, K., MURAMATSU, H., TAJIMA, C., KIM, Y.A., ENDO, M.

(信州大院教育¹, 信州大教育², Leuven大核放射線物理研³)
 仲神克彦¹, 永田佳奈子¹, ○村松久和², S.Gheysen³

【はじめに】

電磁波誘起透明化現象 (EIT) とは、量子状態の重ね合わせと量子干渉によって、共鳴的に吸収されるべき電磁波が、あたかも物質が透明になったかのように物質を透過する現象である。この現象を利用すれば、反転分布を必要としないレーザー発振が可能となり、さらにこの現象が γ 線で確認できれば、 γ 線レーザーの開発が可能になるかもしれない。本研究ではEITと呼ばれる現象を γ 線で検証できる系を探し出すことが目的である。その候補として期待されるFePSe₃の単結晶の合成が出来たので、それを吸収体に用いることによって、メスバウア共鳴吸収と準位交差 (level crossing) の手法を使って、EITの検証実験を試みた。

【実験】

Fe, P, Seの粉末を化学量論量はかりとり、メノウ乳鉢を用いてよく混合し、合成の際の高温に耐えることの出来るバイコールガラスにそれぞれを真空封入した。その後電気炉で、およそ1ヶ月間、840°Cで焼成した。冷却は1日40°Cずつ設定温度を下げ、ゆくことよって行った。粉末X線構造解析を行うとともに、生成物を吸収体としてメスバウア効果の測定を行った。その際、得られたFePSe₃単結晶 (箔状、9mm²) に対して、 γ 線を垂直に入射させることによって、メスバウアスペクトルを測定し、室温から30Kまでの温度において、その吸収強度を詳細に調べた。

【結果および考察】

室温では、非対称な四極子分裂ダブルレット ($\Delta = 1.47$ mm/s) のみが観測された。(FIG.1) この物質は、102K付近で反強磁性転移が始まり、この温度付近のメスバウアスペクトルからは、相転移している相としていない相が共存していることが観測された。四極子分裂ダブルレットは温度を下げていくと反強磁性転移によって6本に分裂するはずであるが、 γ 線が結晶の主軸に平行に入射しているために、 $\Delta m = \pm 1$ の遷移のみが許容となり、4本の吸収線のみが観測されている。問題となる量子干渉が起こると思われる遷移は、FIG.1下のスペクトルにある二組のダブルレットそれぞれにおける左側のピーク同士、すなわち $m = -3/2 \leftrightarrow m = -1/2$ と $m = 1/2 \leftrightarrow m = -1/2$ である。メスバウアパラメータの温度依存性および理論的考察から得られる合理的なパラメータのセットを用いたフィッティングによって求められた理論曲線を実線で示してある。点で示される測定値と実線を比較すると、吸収率が3%近く減少しており、メスバウア共鳴吸収の欠損があるように思われる。

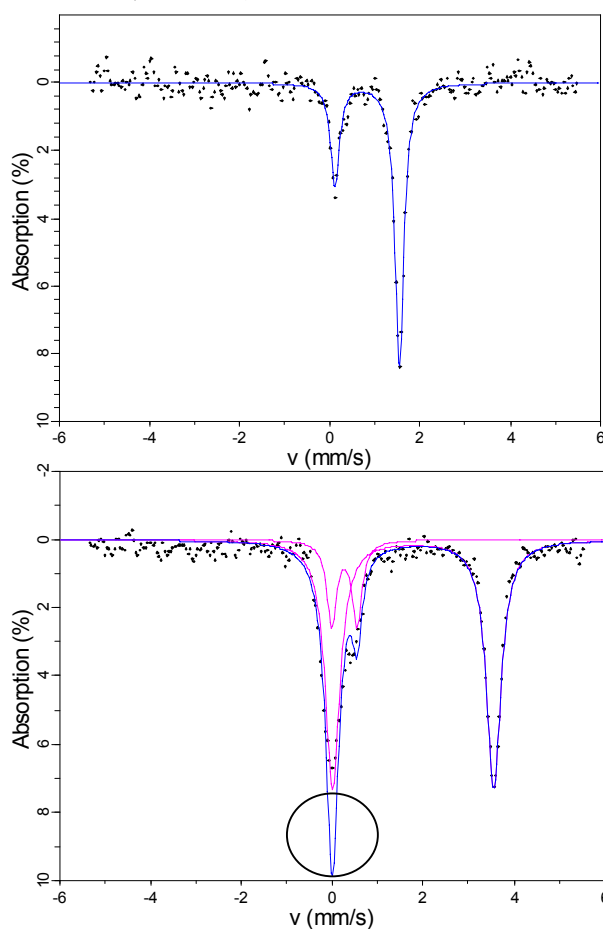


FIG.1. Mössbauer spectra taken with a source $Rh^{57}Co$ and FePSe₃ single crystal absorber at room temperature (upper) and 30K (lower).

(近大院産技¹、九大院総理工²、九大先導研³)○松井 亮太¹、早稲田 哲也²、岡田 重人³、山木 準一³、西田 哲明¹

【序論】

当研究室で開発された新規正極材料 LiFeVPO_x はコバルトやニッケルを含まない（レアメタルフリー）正極として期待されるが、電池電圧がやや低いことが解決すべき課題として残されている。そこで鉄の一部を電池電圧の高いコバルトに置換したガラスを作製し、電池特性の向上を目的として電気伝導度測定やメスバウアースペクトルの測定を行った。

【実験】

正極材料の組成が $\text{LiFe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{VPO}_x$ 、 $\text{LiFe}_{0.25}\text{Co}_{0.75}\text{VPO}_x$ となるように試料を作製した。前者をシリーズ 1、後者をシリーズ 2 とする。実験では Li_2CO_3 、 Co_3O_4 、 Fe_2O_3 、 V_2O_5 、 P_2O_5 をそれぞれのモル比になるように計算して電子天秤で全量が 5 g になるように秤り取った。それらを乳鉢で均一になるまで混合してから白金るつぼに入れた。これを予め 1100 °C に設定しておいた電気炉に入れて 90 min 熔融し、白金るつぼの外側を氷水に浸けて急冷した。作製したガラスの DTA を測定して、熱処理温度を決定した。熱処理前と熱処理後のそれぞれの試料で電気伝導度とメスバウアースペクトルの測定を行った。その後、電池特性の測定を行った。

【結果と考察】

シリーズ 1、シリーズ 2 ともに均一で光沢があるガラスを作製することができた。これらガラスの DTA の結果はシリーズ 1 の T_g は 395 °C、 T_c は 465 °C であった。シリーズ 2 では T_g は 368 °C、 T_c は 460 °C であった。この結果より両方とも 500 °C、200 min の熱処理を行った。熱処理前と熱処理後の試料のメスバウアースペクトルを Fig. 1 に示す。メスバウアパラメータでは、まず異性体シフト (δ) の値より、全てのサンプル中で鉄は 3 価であることがわかる。また、線幅の値よりすべてのサンプルがガラスであることがわかる。四極分裂 (Δ) の値がシリーズ 1、シリーズ 2 のいずれにおいても熱処理後に減少していることから、熱処理によりガラス骨格の歪みが小さくなり、構造緩和されたと考えられる。その結果、 V^{IV} から V^{V} への電子ホッピングが容易となり、電気伝導度が高くなった。熱処理前と熱処理後と比較すると、シリーズ 1、シリーズ 2 ともに著しく電気伝導度が上昇することが確認された。

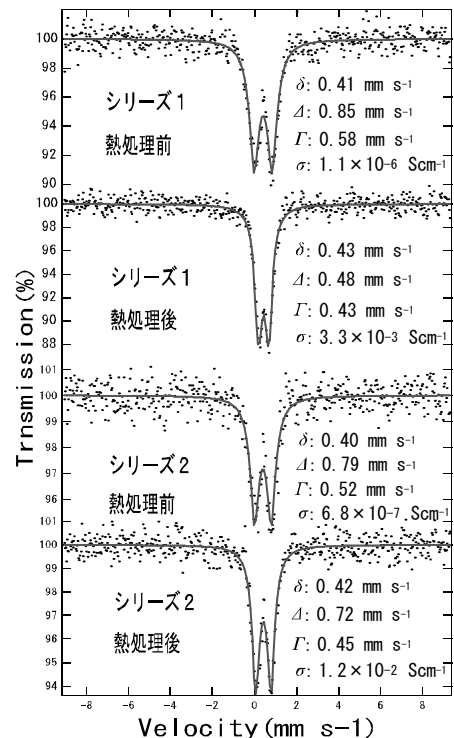


Fig.1. 熱処理前および熱処理後の正極材料のメスバウアースペクトル

(近畿大院産業技術¹, 近畿大産業理工², 九大院総理工³, 九大先端研⁴) ○栗本広志¹, 早稲田哲也³, 岡田重人⁴, 山木準一⁴, 西田哲明²

[序論] リチウムイオン二次電池の代表的な 4.0 V 系正極活性物質として LiCoO₂, LiNiO₂, LiMn₂O₄ が存在する。ホスホオリビン型 LiFePO₄ 正極は, 理論容量が 170 mAh/g と高く, 3.4 V vs. Li⁺/Li の作動電圧, さらには高価な, あるいは環境中に有毒な遷移金属を使用しない点から注目されている。

一般的な酸化ガラスについて, ガラス転移温度 (T_g) と Fe^{III} の四極分裂 (Δ) の間には直線関係が成立することが知られている ($T_g-\Delta$ 則)。 $T_g-\Delta$ 則では, 直線の傾きが 680 °C/mm s⁻¹ の場合, Fe^{III} が四面体の NWF (network former) として存在し, 直線の傾きが 260 °C/mm s⁻¹ の場合においては, Fe^{III} が八面体の NWF として存在する。また, Fe^{III} が NWM (network modifier) として存在するときには, 直線の傾きは 35 °C/mm s⁻¹ となる。

[実験] Li₂CO₃ (あるいは Na₂CO₃), FeO, V₂O₅, P₂O₅ を化学量論的に混合させ, さらに 5 wt.% の活性炭素を添加し, 1100 °C で 45~50 min, 窒素ガス中で試料を溶解した後, 融液を冷却した銅板で挟み込み急冷ガラス化させて, xLi₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅, xNa₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅ (x=0, 0.5, 1, 1.5) ガラスを合成した。試料は 370 MBq の ⁵⁷Co(Pd) を線源とするメスバウアースペクトルの測定により鉄の酸化状態と配位状態の解析を行った。DTA では, 基準物質として α -Al₂O₃ 粉末を使用し, 昇温速度 10 °C/min で測定した。

[結果と考察] Fig. 1 に xLi₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅ (x=0, 0.5, 1, 1.5) ガラスのメスバウアースペクトルを示す。xLi₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅ ガラスにおいて, アルカリ金属の増加に伴い Fe^{II} の面積強度の減少が見られるが, これは NWM として存在する Li⁺ により NBO (nonbridging oxygen) が増加し, Fe^{II} と結合するためではないかと考えられる。また, xLi₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅ (x=0, 0.5, 1, 1.5) ガラスの T_g と Δ の直線関係に関しては, 直線の傾きが a=464, xNa₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅ (x=0, 0.5, 1, 1.5) ガラスにおいては, a=365 となった。電池特性およびガラスの構造に関しては当日報告する予定である。

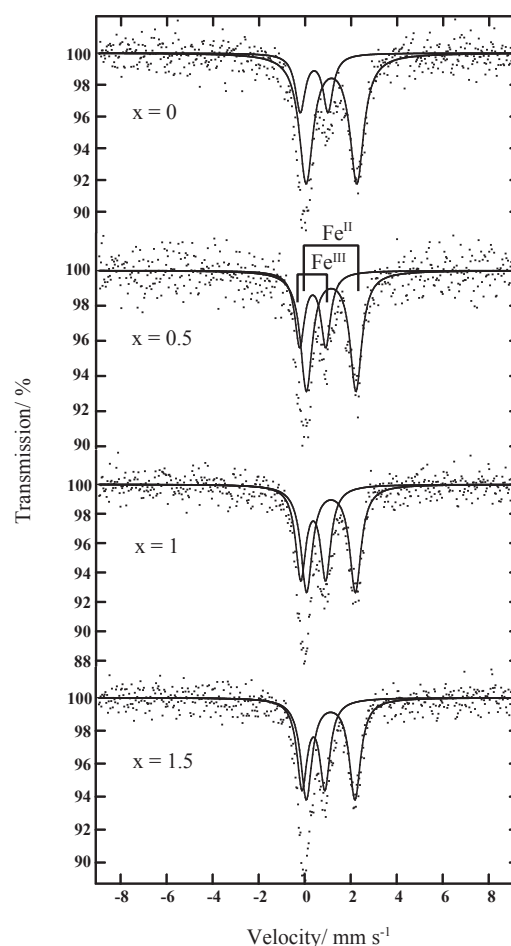


Fig.1. Mössbauer spectra of xLi₂O-2FeO-V₂O₅-P₂O₅ (x=0, 0.5, 1, and 1.5) glasses measured at room temperature.

(大阪大谷大薬¹, 阪大院理², 産総研³, 阪大 RI セ⁴)森本正太郎¹, 〇池田泰大², 田淵光春³, 川瀬雅也¹, 斎藤直⁴

Li_2MnO_3 [1]は定比組成では単斜晶であるが、 Li_2MnO_3 に Fe を添加した酸化物も安定に合成することが可能であり、層状岩塩型構造($\alpha\text{-NaFeO}_2$ 型)を持つことからリチウム 2 次電池の正極材としての可能性が検討されてきた[2]。この酸化物群では Fe の添加により Li の組成も変化し、その組成は $\text{Li}_{1+x}(\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y)_{1-x}\text{O}_2$ で表されることが明らかとなっており、遷移金属サイトの平均価数は+3 よりも大きい。本研究では最も結晶性の良い試料が合成できる $y = \text{Fe}/(\text{Fe}+\text{Mn}) = 0.3$ の組成のものに注目し、メスバウアー効果測定により Fe の価数状態を調べることを目的とする。なお合成された試料は、その X 線回折図形に対して Rietveld 解析を行い、層状岩塩型構造の単相であることを確認している。

低温(5 K)で測定したメスバウアースペクトルの代表的な例を Fig. 1 に示す。このスペクトルは個々のアイソマーシフトの違いにより内部磁場の分布を仮定した 2 つの sextet と 1 つの doublet で解析することが可能であった。sextet はその内部磁場の大きさから、高スピン 3 価(内部磁場の平均値が 46 T)および高スピン 4 価(内部磁場の平均値が 14 T)と考えることができる。4 価成分の内部磁場の平均値は $\text{Sr}_{0.5}\text{La}_{1.5}\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_4$ の内部磁場に非常に近いものとなっていることを付記する。doublet はそのアイソマーシフトが -0.6 mm/s 程度であることから、その価数は 5 価もしくはさらに高原子価になっていることが期待される。講演では焼成条件により Li と遷移金属イオン比すなわち x の値の異なる試料との比較することにより、前述の解釈が正しいかどうか、すなわちこの系での Fe の高原子価状態が実現する可能性について検討する。

Fe の高原子価状態がこの系で実現するとすれば、この層状岩塩型化合物は非ペロブスカイト系酸化物で、低温ながら高原子価鉄の安定化が起こるきわめて興味深い物質系であり、今後詳細に検討していく価値があると考えられる。

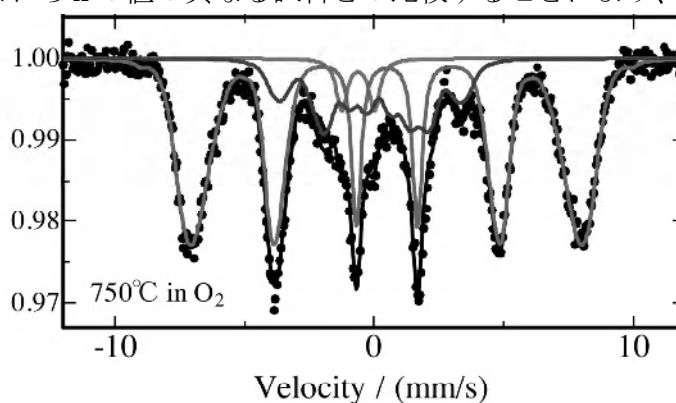


Fig. 1 Mössbauer spectrum at 5 K of 30%Fe-doped Li_2MnO_3 annealed at 750°C in O_2 .

[1] M.H. Rossow, D.C. Liles and M.M. Thackeray, *J. Solid State Chem.*, 104, 464 (1995).

[2] M. Tabuchi, A. Nakashima, H. Shigemura, K. Ado, H. Kobayashi, H. Sakaebe, H. Kageyama, T. Nakamura, M. Kohzaki, A. Hirano, and R. Kanno, *J. Electrochem. Soc.*, 149, [5], A509 (2002).

Mössbauer study of Fe-substituted layered oxide Li_2MnO_3

MORIMOTO, S., IKEDA, Y., TABUCHI, M., KAWASE, M., SAITO, T.

(原子力機構¹、東工大原子炉研²) ○渡辺茂樹¹・石岡典子¹・片瀨竜也²・渡辺智¹・鈴木伸郎¹・石井里美¹・松橋信平¹

1. はじめに

^{64}Cu は半減期 12.7 時間の放射性核種で、 $\text{EC}+\beta^+$ 壊変(61%)、 β^- 壊変(39%)と壊変形式が多様であることから、PET 診断やガン治療など医学分野において広く利用されている核種の一つである。これまで我々は、キレート部位を導入した抗体(TETA-NuB2)へ高収率で標識することを目的として、 ^{64}Cu の新規製造方法を決定し、定常製造を可能にしてきた。現在では得られた ^{64}Cu の PET 診断薬としての評価を行っている^[1]。一方で、銅は植物における必須元素の一つであり、生きた植物における動態を可視化した報告はない。そこで、 ^{64}Cu の新規利用法として、植物生理学的分野において ^{64}Cu トレーサーの有用性を示すことは大変に意義深い。我々が開発した植物研究用ポジトロンイメージング装置(Positron Emitter Tracer Imaging System; PETIS)は、植物における物質動態の可視化が可能であることから、ポジトロン放出核種である ^{64}Cu のトレーサーとしての有用性が十分期待できる。

そこで本発表では、開発した ^{64}Cu の製造法及び PETIS によって計測した植物中の ^{64}Cu の動態について報告する。

2. 実験

^{64}Cu の製造は JAEA の AVF サイクロトロンを用いて $^{64}\text{Ni}(p, n)^{64}\text{Cu}$ 反応により行った。濃縮度 99.6%の ^{64}Ni から精製した ^{64}NiO 150 mg をターゲットとして、入射エネルギー 20 MeV の陽子ビーム (5 μA) を 1 時間照射した。照射した ^{64}NiO を濃塩酸に溶解させた後、イオン交換法を用いて目的の核種である ^{64}Cu の分離・精製を行った。得られた ^{64}Cu 110 MBq を播種後約 25 日のダイズへ供与し、PETIS により非侵襲的に 3 日間測定した。さらに、溶出液中の ^{64}Ni を含んだフラクションを回収し、加熱処理等による ^{64}NiO への再ターゲット化を行った。各溶液における分析は、高純度 Ge 検出器を用いた。

3. 結果・考察

照射により 330 MBq の ^{64}Cu が生成した。 ^{64}NiO ターゲットからイオン交換法による分離を行った結果、270 MBq の ^{64}Cu (回収率 89%)を得た。得られた ^{64}Cu の放射核種純度は、99%以上であった。 ^{64}Ni の再ターゲット化については、99%以上の回収率でほとんどロス無く ^{64}Ni の回収に成功した。植物実験では、PETIS による測定を行った結果、時間が経過するにつれて ^{64}Cu が根から茎を経て移行し、36 時間後に先端の葉に到達して集積する様子を可視化することに成功した (Fig. 1)。

この結果は ^{64}Cu トレーサーが医学利用だけでなく、PETIS を用いることで植物生理学的な研究においても有用なトレーサーであることを示す結果である。

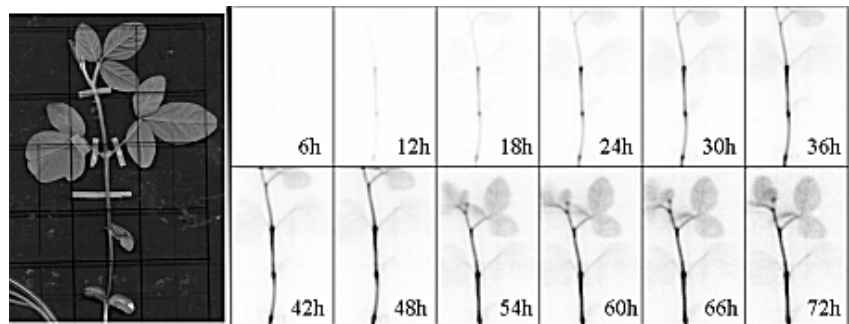


Fig.1 PETIS による ^{64}Cu 分布の 6 時間毎の積算イメージ

参考文献

[1] Y. Iida et al., 17th International Symposium on Radiopharmaceutical Sciences, Aachen, Germany (2007)

Production of ^{64}Cu as a biotracer and applications to *in vivo* imaging of ^{64}Cu in a plant.

Sh. Watanabe, N. S. Ishioka, T. Katabuchi, Sa. Watanabe, N. Suzui, S. Ishii, S. Matsuhashi

1. はじめに

PET (ポジトロン断層画像撮像法) は、がんの画像診断法の一つとして、近年急速に普及を遂げている。PET を支える放射性薬剤の開発では、数十年来 ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F を用いた研究が行われてきた。これらの核種以外にも、核的性質をもとに PET 診断に応用可能なポジトロン放出核種が提案されており、その有用性を明らかにすることは大変意義深い。本研究では、 ^{18}F と同属である ^{76}Br ($T_{1/2}$:16.0 h, I_{β^+} :57%) に注目し、 ^{76}Br の製造法並びに ^{76}Br 結合抗体 (^{76}Br -NuB2) によるがん診断薬としての有効性について評価する。

2. 実験方法

^{76}Br は、直接法 ($^{76}\text{Se}(p,n)^{76}\text{Br}$) と間接法 ($^{79}\text{Br}(p,4n)^{76}\text{Kr}$ ($T_{1/2}$:14.6 h) \rightarrow ^{76}Br) により製造した。いずれも天然同位体組成のターゲットを用いた。直接法では、 SeO_2 水溶液を $1\mu\text{A}$ の陽子ビーム (20MeV) で 20-30 分間照射した。生成した ^{76}Br は、陰イオン交換樹脂 (SepPak QMA, Waters) を用いて SeO_2 水溶液から分離精製した。間接法では、錠剤化した NaBr (1.2 g) を 0.5 - $1\mu\text{A}$ の陽子ビーム (65MeV) で 5-10 分間照射した。 ^{76}Kr 含有 NaBr の溶解には、 H_2SO_4 を用いた。 NaBr 溶解液中の ^{76}Kr は、あらかじめ添加した Zn 粒と H_2SO_4 から発生した H_2 をキャリアガスとして利用し、減圧バイアル瓶内の H_2O 中にトラップした。 ^{76}Kr 回収後、 ^{76}Br への壊変を待った後 (一晩放置)、 ^{76}Kr 回収容器からトラップ水を回収した。各溶液における ^{76}Br の定量は、Ge 検出器により行った。直接・間接法で得られた ^{76}Br は、bromoperoxidase を用いて抗体 (NuB2) に直接標識後、担がんマウスに ^{76}Br -NuB2 ($1\sim 4\mu\text{Ci}$ /匹) を投与し、その体内動態を調べた。

3. 結果及び考察

SeO_2 水溶液及び NaBr ターゲットについて、単位照射条件当たりにおける ^{76}Br の回収量を比較すると、 NaBr ターゲットの方がより多くの生成量が期待できる (下表参照)。TIARA における最大照射条件 ($3\mu\text{A}\times 16$ 時間) から ^{76}Br の生成量を算出すると、約 360MBq となる。この値は、 ^{76}Br -NuB2 の標識率 (約 10%) の向上を見込んでも、臨床使用を考えると満足であるとは言いがたく、より多くの生成量が必要である。

担がんマウスにおける ^{76}Br -NuB2 の体内動態を調べた結果、 ^{76}Br -NuB2 が腫瘍へ高く移行することを認めた。この結果は、 ^{76}Br を用いたがん診断薬の有効性を示している。

標識原料としての ^{76}Br 製造量の確保は、臨床応用に向けて最も重要な部分であり、今後も引き続き、製造量の確保に向けた改良を進める。 ^{76}Br を用いたがん診断薬の開発については、抗体以外にも低分子化合物への導入も今後検討していく。

SeO₂ 及び NaBr ターゲットにおける ^{76}Br 回収量

製造法	ターゲット	エネルギー	^{76}Br (kBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{min}$)
$^{76}\text{Se}(p,n)^{76}\text{Br}$	0.1% SeO_2	20 MeV	21
直接法	10% SeO_2		24
$^{79}\text{Br}(p,4n)^{76}\text{Kr}\rightarrow^{76}\text{Br}$	NaBr	65 MeV	126
間接法			

Production of ^{76}Br PET-radionuclide and ^{76}Br -labeled antibody for PET imaging of cancer diagnosis
ISHIOKA, N.S., IIDA, Y., WATANABE, Sh., YOSHIOKA, H., HANAOKA, H., SUZUI, N., MATSUHASHI, S., ENDO, K.,

(昭和薬大¹、放医研²) 佐久間泰亘¹、長山敦子¹、松岡圭介¹、
本田智香子¹、松本謙一郎²、○遠藤和豊¹

【はじめに】生体では活性酸素種やフリーラジカルにより酸化傷害が生じ、それが種々の疾病や、老化、発癌にもつながることが明らかになってきた。セレンは金属、非金属両方の性質を持つ必須元素であり、抗炎症性、免疫促進効果、抗癌性がある。酸化ストレスのモデルとして Se 欠乏ラットを用い、生体内での活性酸素種の除去に関わる抗酸化酵素 GSH-Px 活性、SOD 活性、CAT 活性、抗酸化物質 GSH、酸化ストレスの指標である TBARS を測定し、放射化分析法による Mn, Fe, Co, Cu, Zn, Se の定量値と比較しそれらの関係を検討した。

【実験】(株)日本医科学動物資材研究所(東京)から購入した妊娠確定 13 日目 Wistar 系ラットに、Se 欠乏 (SeD) 餌 (オリエンタル酵母株式会社、東京) を与えた。飲料水にはミリ Q 処理水を用いた。コントロール (SeC) 群には同様の餌とミリ Q 処理水に Se として 0.8ppm (セレン酸ナトリウム : 亜セレン酸ナトリウム : セレノ-L-メチオニン = 1 : 1 : 8) を添加し飲料水とした。肝臓はホモジェネートし、超遠心分離により、核 (NU)、ミトコンドリア (MT)、ミクロソーム (MC)、可溶性画分 (CS) に分離した。Mn, Cu の定量には各画分試料を秤量しポリエチレンシートで 2 重封入し、10 秒間中性子照射した。Fe, Co, Zn, Se の定量には各画分試料を石英ガラスに封入し、1 時間照射した。照射は日本原子力研究所、JRR-PM3 あるいは JRR-4 原子炉でおこない、ガンマ線スペクトロメトリーによりそれぞれの核種を定量した。

【結果】8 週齢の Se 量は雌雄ともに各肝細胞画分において SeC 群よりも SeD 群で有意に低下していた。Fig. 1 に 8 週齢雄性ラット肝細胞画分である NU, MT, MC, CS の鉄量 (乾燥重量濃度) を示した。Fe 濃度は SeD 群、SeC 群ともに MC 画分においてもっとも多く、次に MT 画分、Nu 画分と CS 画分はほぼ同じレベルであった。また同じ画分においては Se 欠乏群のほうが有意に多かった。この傾向は、雌性においても同様であった。しかし、雌性では両群ともその絶対値は 3 倍以上多いことが示された。Cu 濃度に関しては 8 週齢雄性ラット NU, MT 画分では 15-16mg/kg、MC 画分で 11-13 mg/kg、CS 画分では 11-16 mg/kg であった。誤差を考慮すると SeD 群と SeC 群には大きな違いはない。その他、Zn については雄性 CS 画分において 140-145mg/kg で雄性の他の画分 (83-90 mg/kg) より有意に多かった。

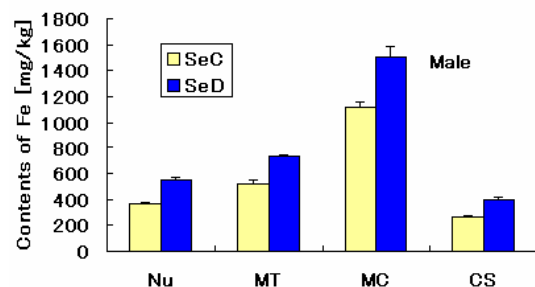


Fig. 1 Contents of Fe in the liver cell fractions of Se-deficient and Se-control male rat groups.

Oxidative stress by Se-deficiency and trace elements in cell fractions of rat liver

SAKUMA, Y., NAGAYAMA, A., MATSUOKA, K., HONDA, C., MATSUMOTO, K., ENDO, K.

はじめに

我々は α 線放出核種 ^{227}Th ($T_{1/2}=18.72\text{d}$)の核医学治療への応用を目指し、特に転移性骨腫瘍への適応を検討してきたなかで ^{227}Th -EDTMP を有用キレート薬剤として提案してきた。本研究では、 ^{227}Th -EDTMP を用いた転移性骨腫瘍モデルラットへの治療を検討した。

実験

Sprague-Dowley系7週齢雌ラットの左頸骨にラット乳がん細胞MRMT-1を 1×10^3 個移植し骨転移モデルを作成した。移植後3週間でX線撮影により骨転移による頸骨上の骨病変を確認した後、骨転移の状態に応じて複数のラットのグループ分けを行った。コントロール群にはPBSを、治療群には ^{227}Th -EDTMPを最大耐用線量以下の250kBq/kg体重として尾静脈投与した。投与前および投与後3週間まで経時的に治療効果と毒性を調べた。治療効果の評価にはvon Frey式痛覚試験と腫瘍体積測定を行った。毒性評価には体重測定や、血球数計測を行った。von Frey式痛覚試験ではフィラメントをラットの足底に垂直にあて、ラットが足をあげる機械刺激の閾値(ニュートンで表記)を測定した。解析では右足底と骨転移のある左足底の機械刺激の閾値の左右比を求めた。

結果と考察

ラット乳がん細胞MRMT-1を移植したラットはX線撮影により、移植後3週間で左頸骨に溶骨を認めた。 ^{227}Th -EDTMP投与による疼痛緩和効果および腫瘍増殖抑制効果を図1, 2に示す。コントロール群は治療開始後から徐々に左右の痛みの閾値比が大きくなってきているのに対して、治療群は治療開始後2週間以降から閾値比が下がってきた。腫瘍体積は治療開始直後も大きくなっていったが、 ^{227}Th -EDTMP投与時に腫瘍体積が小さかったと考えられるものはコントロール群や腫瘍体積が投与初期から大きかったものに比べて増殖が抑制されていることが示唆された。今回の検討では疼痛緩和効果や腫瘍増殖抑制効果が示唆されたが、飛程が短い α 線は腫瘍移植後3週間よりも早い時期の骨転移状態のほうが、治療効果が上がると考えられる。今後は最適治療開始時期の決定や既に臨床で応用されている薬剤(ビスフォスフォネート製剤)、さらに $^{223}\text{RaCl}_2$ との比較を行い、 ^{227}Th -EDTMPの持つ優位性や問題点を明らかにする必要がある。

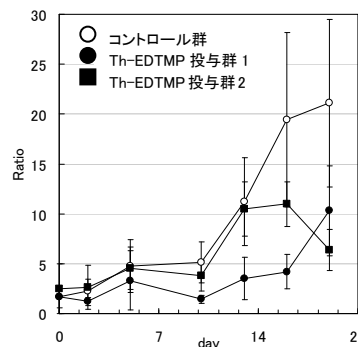


図1 von Frey式痛覚測定試験による機械刺激の閾値の左右比

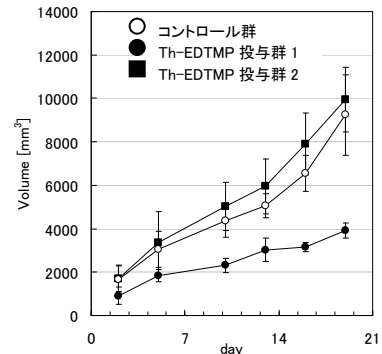


図2 骨転移部位の腫瘍体積

Treatment for bone metastasis by using alpha-emitting radiopharmaceutical, ^{227}Th -EDTMP.

WASHIYAMA, K., OGAWA, K., AMANO, R., MITSUGASHIRA, T., KINUYA, S.

(東大 RIC¹、原子力開発機構²) ○ 野川憲夫¹、池田圭士郎¹、森川尚成¹、
本石章司²、松岡弘充²、橋本和幸²

1. 緒言

レニウム-186 ($T_{1/2}$, 90h; E_{β} , 1.1 MeV; E_{γ} , 137 keV)とレニウム-188 ($T_{1/2}$, 17h; E_{β} , 2.1 MeV; E_{γ} , 153 keV)は β 線を放出し、放射線治療に期待される核種である。 ^{188}W からその娘核種である ^{188}Re を得るために高い吸着容量を有する高分子ジルコニウム化合物 (PZC、基本構造 - O - Zr - Zr - Cl) を用いたジェネレータを実用化するための条件、および骨癌治療効果及び癌性骨疼痛緩和作用が期待されるメソ - 2、3 - ジメルカプトコハク酸 (DMSA) の pH が 1 ~ 14 での $^{186/188}\text{Re} - \text{DMSA}$ の合成条件について検討した。

2. 実験

0.5 g の PZC と pH 7 に調製した 0.05 ml の ^{188}W 溶液 (1.40×10^{-4} mol、257 mg の W を含む) を混合し 90°C で 3 時間加熱した後、カラム (直径 2 cm、長さ 24 cm) に充填した。次に、食塩水で PZC を洗浄し、 $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ ジェネレータとした。3~4 日後純水を流し溶出液を 1 cc ずつ分取して、それぞれの放射能を γ 線カウンタ (バーキンエルマー ジャパン、コブラ 5003) で測定した。

DMSA、SnCl₂ (還元剤) および過レニウム酸アンモニウム ($\text{NH}_4^{186/188}\text{ReO}_4$) の水溶液を、pH を 1 ~ 14 に調整し、90°C で加熱した。5 μ l の反応液を TLC プレートで展開 (アセトン溶媒) 後、バイオ・イメージングアナライザー (富士写真フィルム、BAS - 1500 Mac) で測定し、 $^{186/188}\text{Re} - \text{DMSA}$ の放射化学的収率を調べた。

3. 結果・考察

PZC と ^{188}W 溶液の加熱溶液をカラムに充填した場合、 ^{188}W の保持率は約 97% であった。また、 ^{188}Re は最初の 1 ml に 70% 溶出した。(Fig.1)。

放射化学的収率は pH が 1 付近では 90% 以上であるが pH を 6 に上げると 20% まで低下した。加熱時間を長く SnCl₂ の量を増やし、Re に対して Sn のモル比を 10 にすると放射化学的収率は約 40% に上昇した。今後は、pH が中性付近でも放射化学的収率が 90% 以上になる合成条件について検討する。

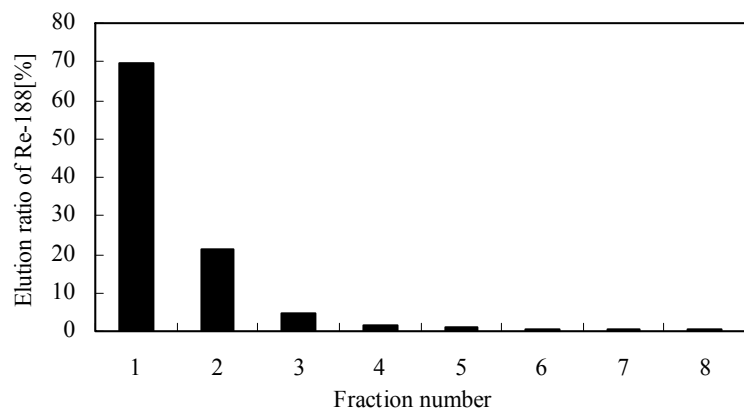


Fig.1 Elution ratio of Re-188 from the PZC generator

Study of the PZC $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator and of the synthesis condition of ^{186}Re - and $^{188}\text{Re-DMSA}$

NOGAWA, N., IKEDA, K., MORIKAWA, N., MOTOISHI, S., MATSUOKA, H., HASHIMOTO, K.

低バックグラウンド γ 線測定の日本海海水試料への適用により
得られた知見--多核種同時測定を中心に--

(金沢大環日本海域¹、中央水研²)

○中野佑介¹、井上睦夫¹、皆川昌幸²、小村和久¹

^7Be 、 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{228}Th および ^{234}Th といった海水中に微量に存在する天然および人工放射性核種は、古くから海洋化学の分野で重要な役割を果たしてきた。ラジウム同位体、 ^{137}Cs が溶存成分として水塊の動きを探るトレーサーであるのに対し、粒子に強く反応する ^7Be 、 ^{210}Pb およびトリウム同位体は粒子の関わる物質循環のトレーサーとして多くの報告例がある。これら半減期および地球化学的挙動の異なる複数の核種を組み合わせることにより、海水の物質循環に関する総括的な議論が可能になる。当研究施設では尾小屋地下測定施設を利用した低バックグラウンド γ 線測定の適用により、少量 (20 L) の海水試料での多核種同時測定が可能となった。

本研究での実験スキームをFig.1 にまとめた。20 Lの海水試料にBa、Be、Pb、Feおよびリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) キャリアを加えることにより、 BaSO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 、AMP沈殿物とともに、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^7Be 、 ^{210}Pb 、 ^{228}Th 、 ^{234}Th および ^{137}Cs を共沈回収した。本過程では、それぞれ ^{226}Ra (0.7 mBq/g-Ba) および ^{210}Pb (検出限界以下) 汚染の特に小さいBa、Pbキャリアを使用した。

今夏 (7/14~8/10) の「H19年度蒼鷹丸調査航海 (中央水研)」において日本海沖合 (水深 3700 m 地点; $41^\circ 01' \text{N}$ $137^\circ 01' \text{E}$) で鉛直方向に 14 試料 (~50 L; 5, 10, 50, 100, 150, 200, 500, 750, 1000, 1500, 2000, 2500, 3000, 3500 m) を採取し、船上で本化学処理法を適用し、上陸後、迅速に γ 線測定を開始した。

今年会では、海水試料の多核種同時測定を目的とした低バックグラウンド γ 線測定法の確立、日本海海水試料の測定例およびそれらがもたらす知見について報告する。

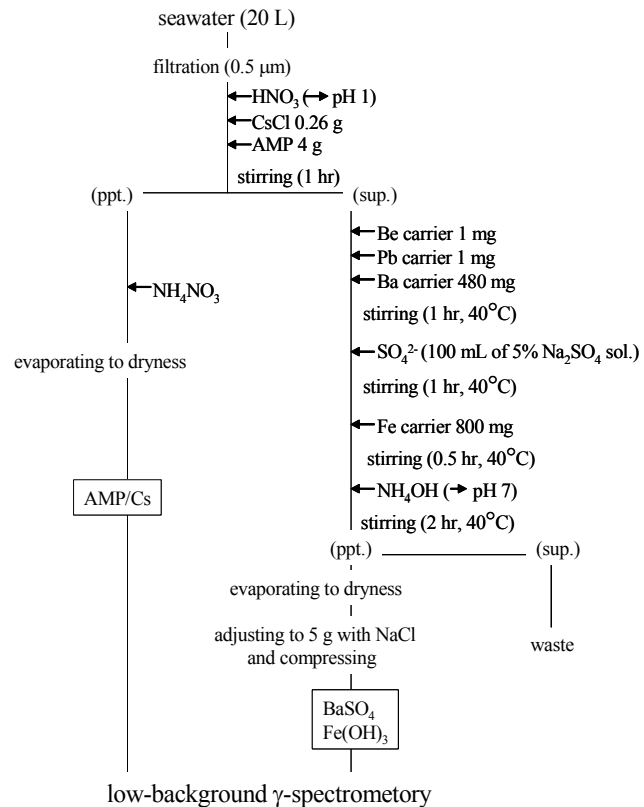


Fig.1 Experimental scheme for coprecipitation processing of seawater samples

Measurements of multi-radionuclides in seawater samples from the Sea of Japan by applying low-background γ -spectrometry and their implications

Nakano, Y., Inoue, M., Minakawa, M., Komura, K.

愛知川周辺の地下水動動に関する考察

(¹大妻女子大社会情報、²大阪教育大水研) 堀内 公子¹、島田裕花¹、
小林 正雄²

<研究目的>

琵琶湖の愛知川流域は豊富で上質な地下水に恵まれた地域であり、古くから上水源として利用されてきた。また豊富な水を利用しての農業が行なわれ、日本有数の穀倉地域でもある。近年この地域で農地の下の地層の1つである砂利層が良質の建築材料となることから、砂利採取工事が計画され作業が始められつつある。砂利を採取したあと別の場所での廃土を補填し表層土で覆って従来どおりの農地として使用することは問題ないとされている。しかし、補填される廃土の性質を始め、その工事による地下水環境・農作物に及ぼす影響が懸念されている。それに伴う地下水障害を未然に防止するために水質及び同位体など、将来の地下水の適正利用、保全、管理のための基礎データを得ることを目的とした。

<研究方法>

砂利採水地点、水道水源地点、地下水面及び流水方向調査地点等に於ける既存の深井戸、浅井戸、河川水等について愛知郡側（右岸）、八日市側（左岸）について選定を行い、サンプリング試料とした。

ラドン濃度をはじめ採水深度、水温、pH、電気伝導度、そして HCO_3^- や SiO_2 、 SO_4^{2-} 等の水質、採水地の地層のデータを調査し、ラドンを指標として調査地域の地下水の動きを考察した。

<結果及び考察>

深層地下水は表層水と異なり水温に季節変動はみられなかった。愛知川流域は良質な砂利層が広く存在する透水性のよい地域であるが右岸は比較的シルトを含んだ層が多く、左岸では砂礫、砂利層が多くなっているが、左岸の方にラドン濃度の多い。愛知川から離れた採水地点のラドン濃度が高く、川周辺のラドン濃度が低い所から、愛知川による涵養が予想される。ストレーナーを切った調査井に於いて深度別に採水した試料のラドン濃度を見ると場所により深くなるほどラドン濃度が減少することから、深い帯水層の地下水は浅いものに比べて動きが遅いと予想される。

以上の知見を基に愛知川周辺の地下水の動きを考察したので、報告する。

Consideration concerning movement of groundwater in the river Echi area whose index is Radon

HORIUCHI, K., SHIMADA, Y., KOBAYASHI, M.

1P25 東部太平洋における海水柱中の $^{239,240}\text{Pu}$ の分布

(金沢大院自然¹, 高エネ機構²) ○隅 貴弘¹, 木下 哲一², 横山 明彦¹,
中西 孝¹

【はじめに】 環境 $^{239,240}\text{Pu}$ の主な発生源は大気圏内核実験 (1945~1980 年) であるが, フォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ をトレーサとして Pu がどのようなメカニズムと時間スケールで海水中から海底堆積物中へ除去されていくかについて知見を深めておくことは, 原子力施設などから Pu が海洋に漏出した際の影響予測に資するものである。本研究では, Pu の海洋動態を解明する研究の一環として, データが少ない東部太平洋において, フォールアウト Pu の分布状況を調べた。

【実験】 海水試料: 東大海洋研・白鳳丸の KH 03-1 次研究航海の際に東部太平洋の 10 測点で深度別の大量採水が行なわれた。海水試料 (1 試料 約 250 L) は塩酸性 (~pH 2) とし, 船上で収率トレーサ ^{242}Pu と ^{243}Am を添加後, 鉄共沈が行なわれ, 水酸化物沈殿が持ち帰られた。

Pu の化学分離・測定: 持ち帰られた水酸化物沈殿について, 東大海洋研で, まず Th と Pa の分離が行われ, その後, 本研究で Pu の分析を行った。Pu フラクシオンを 8M 硝酸溶液とし, 亜硝酸ナトリウムで Pu を IV 価に調整してから, 硝酸系での陰イオン交換樹脂カラム法により Pu の分離・精製を行った。精製された Pu を電着し, Si 半導体検出器を用いる α 線スペクトロメトリにより Pu 同位体の定量を行った。

【結果と考察】 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布は, 深度 600 m 付近に濃度極大層があり, 中層で比較的低濃度となり, 海底付近で濃度が上昇する。濃度極大層の $^{239,240}\text{Pu}$ は溶存状態であると考えられる。また, 海底近傍で濃度が上昇しているのは, 一旦海底堆積物に沈積した Pu が再溶出しているためと考えられる。南半球で ^{238}Pu が明瞭に検出された。同じ経度の北半球側と南半球側で $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布パターンに差があり, $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比も大きく異なるので (Fig.1), 北半球と南半球で水塊は相互に混ざり合っていないと考えられる。

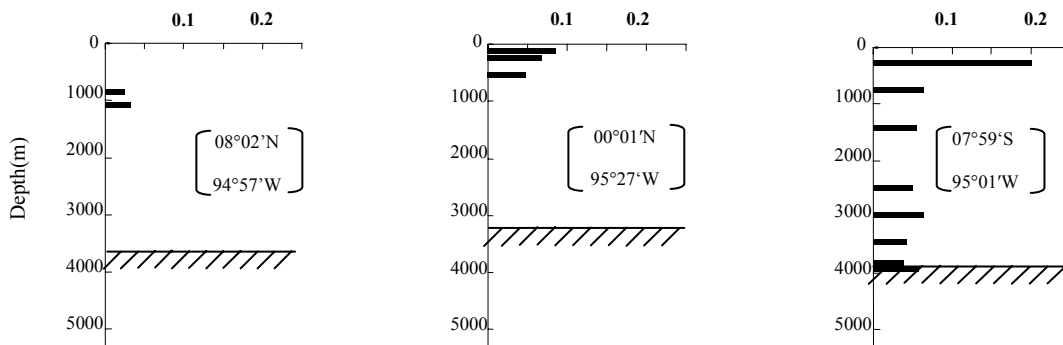


Fig. 1 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio

$^{239,240}\text{Pu}$ in the water columns of the Eastern Pacific

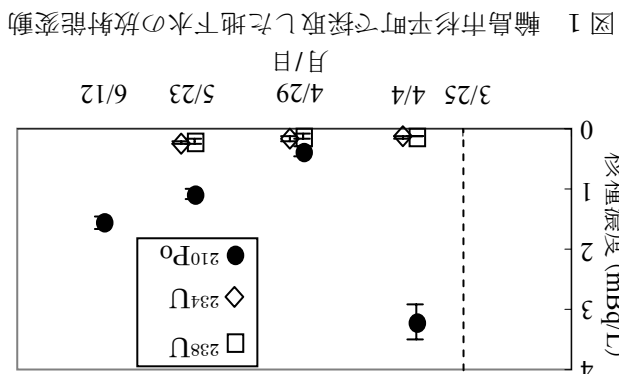
SUMI, T., KINOSHITA, N., YOKOYAMA, A., NAKANISHI, T.,

(金沢大院自然¹, 金沢大理²) ○山田 記大¹, 上杉 正樹¹,
清水 健彦², 横山 明彦¹, 中西 孝¹

【はじめに】 2007年3月25日に能登半島沖でM6.9の地震(本震)が起こった。地震と放射能(とくに地下水のRn濃度)の相関関係について1960年代から研究が行われており、我が国では平成7年(1995年)兵庫県南部地震の直前に断層の真上で地下水および空気中のRn濃度の増加が観測された。今回の平成19年(2007年)能登半島地震においても、地震前に地表大気のRn濃度上昇を示唆するデータが得られている。本研究では、地震後の輪島市において地下水の天然放射性核種濃度にどのような経時変化がみられるかを調べ、地震との関係について考察を試みた。

【実験】 輪島市の2地点(門前町, 杉平町)において、4月4日から1か月に1回の頻度で地下水試料を採取し、試料水18Lに ^{232}U - ^{228}Th トレーサ、 ^{209}Po トレーサとFe担体・Ba担体を既知量添加後、鉄共沈(U・Th・Po同位体を捕集)と BaSO_4 共沈(Ra同位体を捕集)を逐次行った。水酸化鉄(III)を2M HClで溶解し、溶解しなかった BaSO_4 をろ別した後、2M HCl溶解部分についてSiとFeの除去を行うことから、銀板法によるPoの捕集、次いで塩酸系陰イオン交換樹脂カラム法によるUとThの粗分離を行った。Uフラクションを溶媒抽出法で精製し、Thフラクションを硝酸系陰イオン交換樹脂カラム法で精製した後、それぞれをスタンバイ板に電着した。Po, U, Thの電着試料について α 線スペクトロメトリを行い、 $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ 沈殿については密封して2週間放置後 γ 線スペクトロメトリを行った。

【結果と考察】 輪島市杉平町で採取した地下水における ^{238}U , ^{234}U , ^{210}Po 濃度の経時変化を図1に示す。なお、 ^{210}Po については、採水～Po電着の間における ^{210}Po からの成長を補正していない。図1において、(1) ^{238}U 及び ^{234}U 濃度はほとんど変化せず、 ^{234}U 濃度はほぼ1で一定であるが、(2) ^{210}Po 濃度は親核種の ^{238}U ・ ^{234}U 濃度より高く、かなり変動することになった。 ^{238}U ・ ^{234}U 濃度及び $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比にほとんど変動が無いことから、今回の地震において輪島市杉平町では震度6強であったが新たな地下水水路は生成していないと考えられる。高濃度の ^{210}Po の原因として、本震及び余震に伴って大量の ^{222}Rn が地下水に供給されたためと考えられる。地震前のデータが無いので、今後も本研究を継続して平常時の変動範囲を把握した上で4月4日の ^{210}Po のデータについてさらに考察する予定である。



伊豆弧における流紋岩の $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ と $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ 放射能強度比

(明治大理工) ○高橋 賢臣、栗原 雄一、佐藤 純

1. 緒言

伊豆弧の火山は、沈み込む海洋プレートから放出される流体とマントルとの相互作用によって発生すると考えられている。ウランおよびラジウムはトリウムに比べて流体によって移動しやすいため、伊豆弧の火山噴出物では、ウラン系列の $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}-^{226}\text{Ra}$ 間は ^{238}U と ^{226}Ra が多い放射非平衡になることが想定される。そこで、本報では伊豆弧のマグマで結晶分化の最終段階に相当する流紋岩について $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ と $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ の放射能強度比の観測を行ったので結果を報告する。

2. 試料

神津島産火山岩：838年の噴火による流紋岩質噴出物 (Tj₁ - Tj₄)

新島産火山岩：886年の噴火による流紋岩質噴出物 (My₁ - My₃)

3. 実験操作

試料は精粉碎した後、HF-HClO₄-HNO₃の混酸により酸分解した。試料中のウランとトリウムは、UTEVA Spec. resinを用いて単離し、TTA-ベンゼンで精製・抽出して、有機相をステンレス製の試料皿に焼付けアルファ線スペクトロメトリ用の線源とし ^{238}U と ^{230}Th を定量した。一方、試料中の ^{226}Ra は、試料を測定容器に入れ密封し、 ^{226}Ra の娘核種が放射平衡に達するまで30日以上保管した後ガンマ線スペクトロメトリにより定量した。

4. 結果

測定結果をTable 1に示す。神津島・新島の両火山からの噴出物の $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能強度比は0.97 - 1.18の範囲にあり、 $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ 放射能強度比は0.71 - 1.04の範囲であった。

Table U, Th and Ra data in the volcanic products from Kozu-shima and Niijima

Sample		Specific activity (mBq·g ⁻¹)			Activity ratio	
		²³⁸ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²³⁰ Th / ²³⁸ U	²²⁶ Ra / ²³⁰ Th
Kozu-shima	Tj ₁	18.17 ± 0.04	21.42 ± 0.54	-	1.18 ± 0.03	-
	Tj ₂	18.69 ± 0.74	19.88 ± 0.10	18.06 ± 0.31	1.06 ± 0.04	0.91 ± 0.02
	Tj ₃	19.63 ± 0.47	18.67 ± 1.30	18.72 ± 0.54	0.95 ± 0.07	1.01 ± 0.07
	Tj ₄	21.01 ± 1.00	21.48 ± 0.91	20.38 ± 0.40	1.02 ± 0.07	0.95 ± 0.04
Niijima	My ₁	12.48 ± 0.14	13.03 ± 0.72	9.28 ± 0.22	1.06 ± 0.06	0.71 ± 0.04
	My ₂	16.92 ± 0.63	16.79 ± 1.65	17.56 ± 0.45	0.97 ± 0.10	1.04 ± 0.10
	My ₃	17.83 ± 0.28	17.88 ± 0.02	-	1.00 ± 0.02	-

²³⁰Th/²³⁸U and ²²⁶Ra/²³⁰Th activity ratios in rhyolite from Izu arc volcanoes

TAKAHASHI, M., KURIBARA, Y., SATO, J.

(学習院大¹、東京大²) ○上野弘貴¹、村松康行¹、松崎浩之²、
土屋(春原)陽子²

大気中 ^{14}C (半減期 5730 年)は宇宙線起源の中性子と大気上層 ^{14}N との(n,p)反応により生成される。 ^{14}C はすぐに酸化され $^{14}\text{CO}_2$ となり大気中の炭素サイクルに取り込まれる。そのため当時の大気中 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比は CO_2 を光合成により取り込んだ植物に記録されていると考えられる。また銀河宇宙線は、太陽活動期に発達する太陽系磁場により遮られて減少する。そのため地球に入射する宇宙線量は太陽活動と密接に関連おり、大気中 ^{14}C 濃度と気候変動との相関が示唆されている。

本研究では、屋久杉の年輪から 1 年ごとに試料を採取して加速器質量分析法(AMS)を用い $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比を測定する方法を検討し、過去における大気中 ^{14}C 濃度の経年変化を調べた。またここでは 7 世紀頃の万葉寒冷期に着目し、年代範囲西暦 561~801 年の年輪試料中 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比を測定した。

本研究では 1937 年に切り倒されたと推定される樹齢 1670 年の屋久杉を用いた。この杉の年輪を 1 年ごとに分け、酸処理等により当時の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比を固定している α セルロースを抽出した。そして α セルロース中の炭素を完全に酸化し CO_2 とした後、学習院大で設計した小型真空ラインを導入して精製した。その後鉄触媒による水素還元法によって CO_2 からグラファイトを生成し、東京大学のAMSを用いて $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 同位体比を測定した。

今回AMSによる測定で少量の試料(木の試料で約 20mg、 α セルロースで 3mg)からグラファイト 1mgを生成し十分な精度($\pm 3\sim 5\%$)のデータが得られた。Fig1.に得られた $\Delta^{14}\text{C}$ 値(‰)の経年変化とIntCal04 のデータを表す。 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は測定した試料中 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比と標準物質NISTシュウ酸の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比とのずれを千分率で示したものである。IntCal04 は欧米の試料から構成された年代

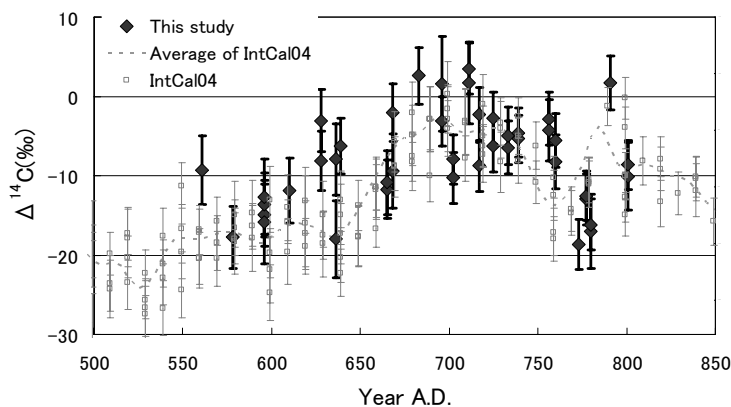


Fig.1 Carbon 14 record obtained in a Yaku cedar tree

較正データベースである。本研究の測定結果はIntCal04 とほぼ同様の変動が見られた。しかし細部に目を向けると西暦 600~700 年ごろにIntCal04 より高い $\Delta^{14}\text{C}$ 値を示し、日本特有の変動である可能性がある。また、西暦 700 年付近に $\Delta^{14}\text{C}$ 値の最大値を示しており、これは西暦 620~740 年頃の万葉寒冷期と関連していると考えられる。

Radiocarbon analysis in tree rings of Yaku-cedar by AMS for investigating secular variation of atmospheric $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios

UENO, H., MURAMATSU, Y., MATSUZAKI, H., TSUCHIYA(SUNOHARA), Y.

大気中元素状炭素粒子の ^{14}C 測定前処理における同位体分別

(静大理¹、東大院工原²) 和田秀樹¹, 中島賢邦¹, 松崎浩之²,
鈴木款¹, 岩田弘志¹, 阿久津翔吾¹

はじめに： 大気中エアロゾルの元素状炭素粒子(EC)の起源を特定するためには安定同位体や放射性同位体組成が有効である。加速器質量分析法(以降AMSという)により、放射性炭素(^{14}C)測定は十分可能になった。AMS測定は、ECを分離し、酸化剤による燃焼の後、グラファイト化する。この処理過程で不純物、硫黄、窒素、ハロゲン等が含まれる時、鉄粉上でのグラファイト化は妨害される。しかし、銀線、サルフィックスを使う事でグラファイト試料生成が可能となった。グラファイト化の過程で収率が十分でないと同位体分別が起きる。本研究では、AMSで ^{14}C 測定をするためのグラファイト化の過程において、炭素 12, 13, 14 の分別過程に従来考えられていた質量依存則とは異なる関係を見いだした。

結果：標準試料のNIST シュウ酸は、酸化銅で酸化した後、鉄粉を入れた石英管に、水素ガスと二酸化炭素を導入して、約 640°C で還元してグラファイト化する。静岡大学の場合、NIST 試料のグラファイトへの変換率は、40-90%であり、収率とともに炭素同位体比は変化し、 $\delta^{13}\text{C}$ と $\delta^{14}\text{C}$ の関係はほぼ1:2の割合で変化する関係が認められた。ところが、エアロゾル中の元素状炭素粒子(EC)の測定において、同一試料を用いてサルフィックスの量を変えて不純物を除去した二酸化炭素をグラファイト化して炭素 12, 13, 14 の同位体分析を行った結果(図1と図2参照)、生成されたグラファイトの $\delta^{13}\text{C}$ と $\delta^{14}\text{C}$ 値の関係は、1:2の関係から大きくはずれ、1:5の関係が認められた。サルフィックスを使用した時、質量の依存の割合が大きくなり補正值の意味を再考する必要がある。

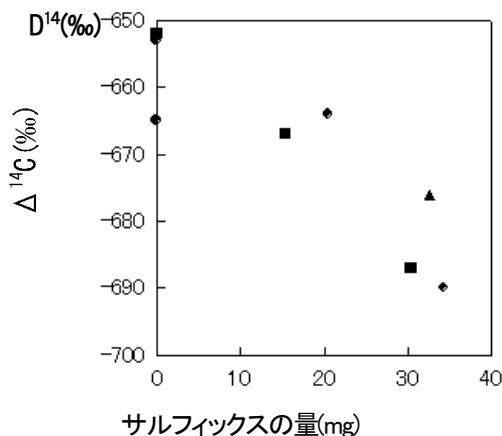


図1

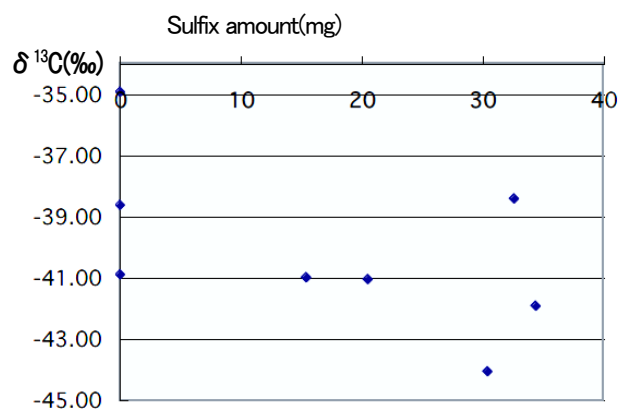


図2

Mass-dependent isotopic fractionation during preparation of elemental carbon for studying the origin of atmospheric aerosol

Hideki Wada, Kuniyoshi Nakajima, Hiroyuki Matuzaki, Yoshimi Suzuki, Hiroshi Iwada, Shougo Akutsu (Shizuoka Univ.)

宇宙線生成核種 ^{26}Al , ^{10}Be の定量による照射年代測定

(京大院工¹, 京大炉², 東大院工学系³, KAERI⁴)

○北條浩章¹, 関本俊², 高宮幸一², 沖雄一², 柴田誠一², 佐々木隆之¹,
松崎浩之³, S.H.Kim⁴, J.H.Moon⁴, Y.S.Chung⁴, 馬原保典²

[はじめに] 2次宇宙線(中性子、ミューオンなど)と地表の石英との核反応により原位置で生成され蓄積してきた長寿命放射性核種 ^{26}Al ($T_{1/2} = 7.17 \times 10^5$ yr), ^{10}Be ($T_{1/2} = 1.51 \times 10^6$ yr) を定量することで表面露出年代、埋没年代、侵食速度、地殻変動など地形の形成プロセスを考察する情報を得ることが出来る。当研究室ではこれまでに珪岩に対し ^{26}Al の深度分布を調べ照射年代と侵食速度が求められたが⁽¹⁾、今回、採取岩石から分離した石英について、 ^{26}Al に加え ^{10}Be を同一試料から分離し加速器質量分析(Accelerator Mass Spectrometry : AMS)で同位体比を求め、その岩石に含まれる ^{27}Al 含有量(ppm)を中性子放射化分析によって求めることで、石英中に生成した ^{26}Al , ^{10}Be の生成量の定量を行ったので報告する。

[実験と結果] 分析地域は、内陸部準平原で地層の鍵層を形成していないため、地質学的手法で侵食速度を得ることが難しい阿武隈高原に着目し、その風化花崗岩丘陵である。露頭(地表0 m)、深度(0.2 m、0.5 m、1.0 m、1.5 m)の各地点から採取した岩石から分離した石英試料(1.0-1.5 g)を塩酸処理および1%HF, 1% HNO_3 処理⁽²⁾し石英の精製を行い、Be キャリアを添加し混酸(HF, HNO_3 , HClO_4)で加圧溶解(4 atm, 150 °C)した。pH を調整し目的イオンを沈殿法で回収し、陰イオン・陽イオン交換法で単離し沈殿法で得た水酸化物を電気炉で酸化物に焼成した。AMS 用カソードにプレスし、東京大学タンデム加速器研究施設において ^{26}Al -, ^{10}Be -AMS に供した。また、韓国原子力研究所(KAERI)の研究用原子炉の PTS-IIIにおいて中性子放射化分析を行い ^{27}Al 含有量を測定した。これらの測定結果から ^{26}Al , ^{10}Be を定量し、深度プロファイルを作成した。その結果、深度方向に核種濃度が減少していることが分かった。さらに、侵食速度について考察を進めている。

文献 (1) S. Shibata. et. al., J. Nucl. Radiochem. Sci., 2006, 7, 33-35. (2) C.P. Kohl, K. Nishiizumi, Geochim. Cosmochim. Acta, 1992, 56, 3583-3587.

Table. 1. Preliminary results of in situ-produced ^{10}Be and ^{26}Al concentrations measured

Sample ID	Depth (cm)	Nuclide concentration (10^5 atoms/g)	
		^{10}Be	^{26}Al
FL0	0	2.57 ± 0.94	47.62 ± 7.04
KL1	52	2.31 ± 0.96	43.03 ± 10.43
KL2	130	2.32 ± 0.95	60.06 ± 20.04
KL3	260	1.02 ± 0.84	32.99 ± 6.78
KL4	390	0.79 ± 0.87	29.18 ± 4.67

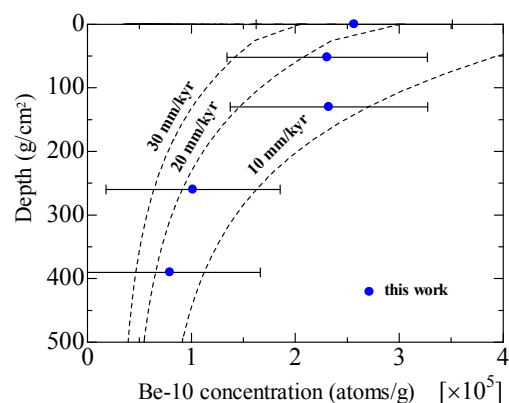


Fig. 1. Depth profile of the Be-10 concentrations. Broken curves represent steady-state erosion equilibrium profiles in various erosion rates.

Measurement of exposure age by determination of secondary cosmic-ray-induced ^{26}Al and ^{10}Be
HOJO, K., SEKIMOTO, S., TAKAMIYA, K., OKI, Y., SHIBATA, S., SASAKI, T., MATSUZAKI, H.,
KIM, S. H., MOON, J. H., CHUNG, Y. S., MAHARA, Y.

(N I F S) ○朝倉大和、田中将裕、河野孝央、宇田達彦

核融合科学研究所では大型ヘリカル実験装置(LHD)を用いた重水素実験を予定している。重水素実験ではD-D核融合反応によって真空容器内でわずかながらトリチウムが生成されることから、トリチウムの安全管理を目的に、高分子膜を利用した気相中トリチウム除去装置とプロトン導電性セラミックスを利用した高感度トリチウムモニターの実用化を進めている。各要素技術の適用性評価結果と実用化の見通しを以下に要約する。

1. 気相中トリチウム除去装置

トリチウムを酸化して水蒸気の化学形態に変換後、吸着剤により脱湿除去する方法が一般的である。これに対して、乾燥空気の製造用に市販されている中空糸状高分子膜モジュールが適用できれば、吸着剤の再生運用が不要となり、設備の小型化とコストの低減が見込める。

これまでの適用性評価で、図1に示す構造の市販高分子膜モジュールで、供給側を加圧、透過側を常圧運転条件とし、露点と目標露点の偏差を制御指標としてパージガス流量をPID制御することにより、モレキュラシーブ(MS)吸着塔と同様の極低露点(−60℃以下)を長期間安定に維持可能であることを実証した。

また、装置起動後に目標露点に到達するまでの時間遅れを解消するために、高分子膜除湿装置とMS吸着塔を組合わせた装置を考案、試作し、有効性と実用性を検証した。現在、LHDトリチウム除去装置に適用することを想定して詳細な設備設計を進めている。

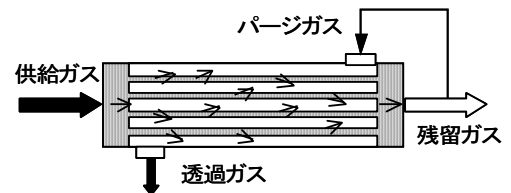


図1 高分子膜モジュールの構造

2. 高感度トリチウムモニター

重水素実験時のトリチウム安全管理の一環として、電気化学的水素ポンプと比例計数管を組み合わせたスタック排気ガス監視用トリチウムモニター(図2)の開発を進めている。

本計測システムを実用化するための要素技術として、プロトン電解セルを応用した水素ポンプの実用化を(株)TYKとの共同研究として推進してきた。その結果、空気中の水蒸気を分解し水素ガスとして抽出・濃縮する水素ポンプとして、試験管型プロトン導電性酸化物($\text{CaZr}_{0.9}\text{In}_{0.1}\text{O}_{3-\alpha}$ 、TYK製)を適用し、電極仕様の改良と共に電解セルの薄肉、長尺化により1本当りの水素抽出速度として1.8cc/minが達成できるようになった。また、Arガスを封入・循環した閉ループ中への水素ポンプ運転により、運転時間にほぼ比例してArガス中の水素濃度を任意に増加(濃縮)できることが検証でき、モニター試験に進む計画である。

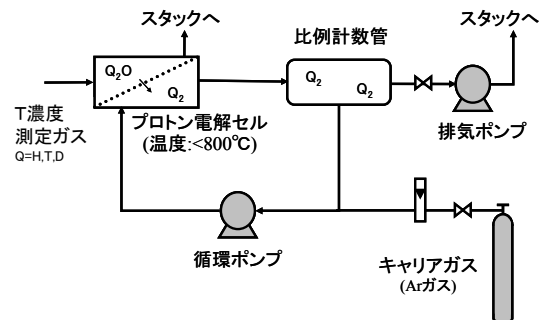


図2 トリチウムモニターの構成

Development of key technologies for safety treatment of tritium in NIFS

ASAKURA, Y., TANAKA, M., KAWANO, T., UDA, T.

義務教育課程または必修課程として中学・高校で教えらるべき放射線・放射能の基礎的知識

^aNPO法人放射線教育フォーラム, ^b青森大学大学院, ^c広領域教育研究会, ^d千葉大学先進科学研究教育センター, ^e県立船橋高, ^f文京学院大付属女子中・高, ^g立教新座中・高

○松浦辰男^a、江田 稔^{a,b}、飯利雄一^{a,c}、黒杭清治^a、廣井 禎^a、三門正吾^{a,d}、船田 優^{a,e}、谷田貝秀雄^{a,f}、渡部智博^{a,g}

われわれ NPO 法人放射線教育フォーラムは、放射線、放射能、原子力、学校教員の有志により 1994 年に発足し、2000 年に NPO 法人の認証を受けたボランティア組織であり、エネルギー・環境及び放射線・原子力の正しい知識を普及させることを目的として、①勉強会・シンポジウムの開催、②論文誌発行等による情報発信、③要望書による政策提言などの活動を行っている。中でも、学校における放射線・放射能に関する教育をもっと充実させることに重点を置いて、「教育課程検討委員会」で検討し、種々の努力をしている。

これに関して、2005 年 8 月 15 日付けにて、「エネルギー・環境教育の充実のための学習指導要領の改善について」という要望書を文部科学省(初等中等教育局)ならびに中央教育審議会に提出した。さらに、それを補足するために、2006 年 10 月 31 日付けにて「義務教育課程において学ばせたい「放射線教育」の内容についての提案」なる文書を同じく文部科学省初等中等教育局に提出した。この文書の内容は、

(1) まえがき、(2) 放射線に関する教育の必要性、(3) 小・中学校の教科書における放射線等の記述の実情、(4) 学校教育における放射線関係の知識を形成する上での問題点、(5) 今回の提案——義務教育において取り扱うべき放射線関係の内容、(6) 原爆に関する教育について、からなっている。

さらに、教育課程検討委員会では、このうちの (5) の各学校のどの段階、特に義務教育課程又は必修科目でどのような内容を教えるべきかについて、具体的に検討している。その内容というのは、① 放射線・放射能の本質、放射線の人体影響、放射線の種々の利用の現状、② 天然の放射線・放射能がこの環境に存在すること、③ 放射線の被ばくを防ぐには、(a)線源からの距離を取る、(b)遮蔽体を置く、(c) 作業時間を短縮する、という 3 つの方法があるということである。本発表では、これらの内容を紹介する。

Fundamental knowledge about radiation and radioactivity which should be taught as compulsory course at junior or senior high schools

MATSUURA, T.,^a EDA, M.,^{a,b} IIRI, Y.,^{a,c} KUROKUI, S.,^a HIROI, T.,^a MIKADO, S.,^{a,d} FUNADA, M.,^{a,e} YATAGAI, H.,^{a,f} WATANABE, T.,^{a,g} (^aRadiation Education Forum, ^bAomori Univ., ^cKoryoiki Kyoiku Kenkyukai, ^dChiba Univ., ^eFunabashi S. High School, ^fBunkyo Gakuin High School, ^gRikkyo Niiza High School)

放射線教育フォーラムにおける専門委員会活動について

^aNPO法人放射線教育フォーラム、^b青森大学大学院、
^c大妻女子大学社会情報学部、^d放射線影響協会

○松浦辰男 ^a、江田稔 ^{a,b}、堀内公子 ^{a,c}、河村正一 ^a、金子
正人 ^{a,d}、田中隆一 ^a

NPO 法人放射線教育フォーラムには現在、①「教育課程検討委員会」、②「実験教材検討委員会」、③「リスク問題検討委員会」、④「低レベルの人体影響に関する検討委員会」、⑤「教科書記述調査検討委員会」、⑥「マスコミ報道に関する検討委員会」の6つの専門委員会があって活動を行っている。これらの委員会の報告書はフォーラムの年度末報告書に収録されている。最近のこれら委員会の活動内容を紹介する。

①「教育課程検討委員会」——放射線の現代社会における役割の重要性にかんがみて、今後の市民の教養として不可欠な放射線、広くエネルギー・環境問題を学校現場でどのように取り上げるべきかについて検討している。

②「実験教材検討委員会」——放射線教育のうち、実習による放射線に関する学習方法について検討している。基本的内容は、環境放射線を簡単な測定器で測定して、少量の放射線が常時身の回りに存在することを体験として実感することである。

③「リスク問題検討委員会」——我々の身边には、種々の原因による危険性が存在するが、特に、科学技術の社会への応用において、ベネフィットと共に必然的に存在するリスクをいかに学校教育において取り上げるべきかを検討している。

④「低レベルの人体影響に関する検討委員会」——国民の間には放射線の影響について過度の不安感がある。この原因のひとつに発がんや遺伝的影響のリスクが、大線量から極低線量まで、「しきい」値のない直線的な比例関係にあると仮定していることがある。この委員会では、最近の新しい実験的データや疫学的データを基に、一般人が「放射線を正當に怖がる」ような教育に役立つ資料を作る事をめざす。

⑤「教科書記述調査検討委員会」——約10年前は、高校や中学で使用されている教科書における原子力・放射線関係の記述が、理科の教科書においてさえ明らかに科学的な誤りがあり、理科以外の教科書では科学的な不正確さのほかに価値観的に偏った記述が多かった。以来我々は、教科書における不正確・不的確な記述を詳しく具体的に指摘するのが仕事となった。最近は、大きな誤り・偏りが少なくなっている。

⑥「マスコミ報道に関する検討委員会」——マスメディアの放射線・原子力に関する報道は、その科学的客観性よりも、その報道をいかにセンセーショナルに、また一般人が抱いている感情に迎合することをめざしているように思えることがある。この様な報道を批判して、正しい情報が行き渡ることを願って、この委員会は存続している。

Workshop activities at Radiation Education Forum

MATSUURA, T.,^a EDA, M.,^{a,b}, HORIUCHI, K.,^{a,c} KAWAMURA, S.,^a KANEKO, M.,^{a,d}
TANAKA, R.^a (^aRadiation Education Forum, ^bAomori Univ., ^cOtsuma Women's Univ.,
^dRadiation Effects Association,)

1. はじめに

平成13年度から主に文系の教職員を対象とする「原子力体験セミナー文系コース」が実施されるに当たって、NPO法人放射線教育フォーラムがこの事業に協力し、「エネルギー・環境・放射線セミナー」を新規事業として開設した。このセミナーは、教職員等のエネルギー・環境・放射線などに対する理解を深めることにより、中学校では平成14年度から、高等学校では平成15年度から始まっている「総合的な学習」の時間などを通じて正しい知識が生徒に普及することを目指すものである。

この事業は「エネルギー環境問題、放射線及び原子力問題に対する一般市民の公正な判断力資質の養成とこの分野における将来の人材の確保及び育成のために、学校及び社会におけるこの分野の教育の充実と正しい知識の普及を図り、もって公益の増進に寄与する」というNPO法人放射線教育フォーラムの目的にかなったものである。

2. セミナーの概要

セミナーは全国10地区（北海道地区、東北地区、北関東地区、南関東地区、静岡・山梨地区、愛知・岐阜・三重地区、富山・石川・福井地区、近畿地区、中国・四国地区、九州・沖縄地区）で開催した。このうち1日開催のコースと2日開催のコースをそれぞれの地区で設けた。

コース内容は、放射線教育フォーラムの会員が中心となってそれぞれの分野の専門家により、主として中学校・高等学校の文系職員等教育関係者を対象として総合的な学習に時間の授業に役立つような内容で企画した。（1）教育システムと教育問題（2）21世紀のエネルギー・環境問題、（3）自放射線・放射能の基礎と利用（3）パネル討論会・トピクス（4）放射線を観察するための実習と演示（5）見学会（6）交流会

3. 実施結果

平成13年度から6年間実施した結果は次の通りである。

参加者の目標は南関東地区で200名とし、それ以外の地区では60名とし、合計750名（平成13年度）とした。平成14年度の参加者の目標は600名（南関東地区で160名、その他の地区はそれぞれ50名）平成15年度のそれは550名（南関東地区で100名、その他の地区は50名）で計画した。それぞれの年度は500名をやや下回る参加者であった。平成16年度、平成17年度、平成18年度は、募集定員500名のところ、それぞれ533名、570名、487名であった。また、参加者から得られたアンケート結果は、ほぼ良好な調査結果であった。

4. 今後の課題

文系教員の参加者数が半数以下であること、コースの内容と「総合的な学習の時間」、各地区の創意工夫、意見交換会、さらに産・官・学・市民との協力の在り方についても検討を行う。