

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14540

研究課題名（和文）長寿命ベータ崩壊核種の短寿命化の基礎的研究

研究課題名（英文）Fundamental study on shortening the decay time of long-lived beta decay nuclides

研究代表者

谷口 良一（TANIGUCHI, Ryoichi）

大阪府立大学・工学（系）研究科（研究院）・教授

研究者番号：60155215

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,900,000 円

研究成果の概要（和文）：半減期が1000億年の超長寿命の天然ベータ崩壊核種La-138の放射線照射を行った。長寿命ベータ崩壊核種は核を励起すれば、寿命が劇的に短縮されるという可能性が指摘されており、Cs-137の除染を念頭に、短寿命化の可能性を検討した。実験ではLa試料をガンマ線とX線で数百kGy程度照射した。その結果、照射線量に対応した数%程度の減少が観測された。ただし減少が観測されたものはLa金属に限られ、酸化ラントランでは確認されていない。

研究成果の概要（英文）：The method to shorten the decay time of long-lived  $\beta$ -decay nuclides have been investigated by irradiation for the purpose of reducing the radioactive contamination in Fukushima. Theoretically, the decay time can be reduced by nuclear excitation. In this study, the possibility of them was confirmed experimentally by the use of the  $\gamma$ -rays and X-rays irradiation about several hundred kGy with the natural radioisotope La-138 which has a long half-life of about 100 billion years. As the result, a few change of  $\beta$ -decays corresponding to irradiation dose were observed. However the change was only a few percent and it will be necessary to continue the irradiation experiment.

研究分野：放射線計測

キーワード：ベータ崩壊 短寿命化

1. 研究開始当初の背景

原発事故による Cs137 の汚染問題に対して、これを消滅させるという提案はいくつか存在する。ただし、中性子、高エネルギー陽子等の照射による核変換などは、放射性核種を新たに発生させるうえに、照射設備が極めて高価かつ大型であることから実現性に乏しいとされてきた。

ベータ崩壊原子核を励起して短寿命化するという可能性は従来から指摘されてきたが、励起した核レベルの寿命が極めて短く、また低エネルギー領域の核励起に関する基礎データが不足していることもあり、定量的な評価ができない状態が続いてきた。翻って、現在 Cs137 の深刻な汚染問題に直面していることから、いくつかの不確定の要素は含まれてはいるが、本方法を検討した。

2. 研究の目的

今回、線、X線あるいは電子線を照射することで Cs137 の原子核を励起し、ベータ崩壊を短寿命化する方法を検討した。利用する反応は、( , ' )あるいは(e, e')などの非弾性散乱である。この方法は、比較的低エネルギーの光子、電子を用いて照射することから二次的な放射化は、ほぼ皆無である。また用いる装置も可搬性のある小型加速器で十分であり実用性もある。

ただし放射性物質である Cs-137 を照射して研究することは法律的な制約が大きいことから、本研究では、最初に天然ベータ崩壊核種 La-138 の放射線照射を行った。

崩壊は崩壊前の原子核の状態と崩壊後の状態によって崩壊確率が決まるとされている。ただし核の内部構造の大半が不明であることから主要な状態因子である核スピンとパリティを用いて統計的に議論されているのが現状である。表1に測定例を示す。表の右端の log(ft)は崩壊のエネルギーと半減期を乗じた値の常用対数値で、崩壊の確率を示している。パリティもスピンも変化

しない遷移が最も起こりやすく、変化の度合いが大きいほど崩壊は起こりにくくなる。

図1は今回、研究対象としている La-138 の崩壊図である。La138 は天然 La の 0.09%を占める同位体であるが、半減期 1000 億年という超長寿命核である。崩壊は分岐しているが、どちらもスピン変化3であり、第3禁制遷移に分類される。ところが La-138 には低エネルギーの核レベルが多く存在し、これらに励起した場合は禁制度が劇的に下がり、許容遷移あるいは超許容遷移になる。この結果、半減期は1時間以下になると予想される。

表1 原子核パラメータとベータ崩壊確率の関係

	スピン変化	パリティ変化	log(ft)
超許容遷移	0	なし	3.5±0.2
許容遷移	0,±1	なし	5.7±1.1
第1禁制遷移	0,±1	あり	7.5±1.5
第2禁制遷移	±2	なし、あり	12.1±1
第3禁制遷移	±3	あり	18.2±6

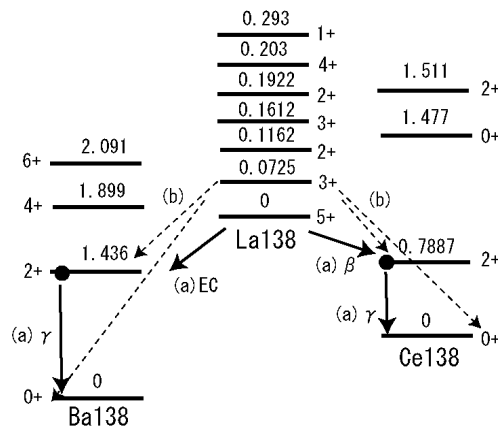
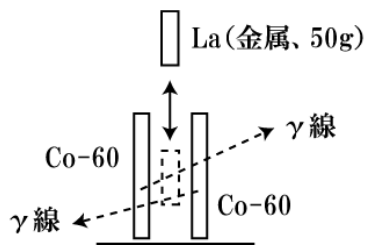


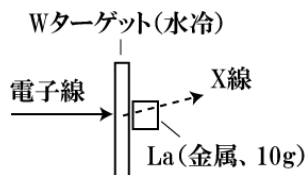
図1 La-138 の崩壊図

3. 研究の方法

実験は図2に示すような体系で La 試料の照射を繰り返し行い、その前後のガンマ線のスペクトルの変化を、Ge 半導体検出器を用いて計測するという操作を反復させて行った。ただし、変化が極めて微小なものであることが予想されることから、分析法の検討、開発を最初に行った。



(a) Co-60 照射体系



(b) 電子線照射体系

図2 La 照射体系

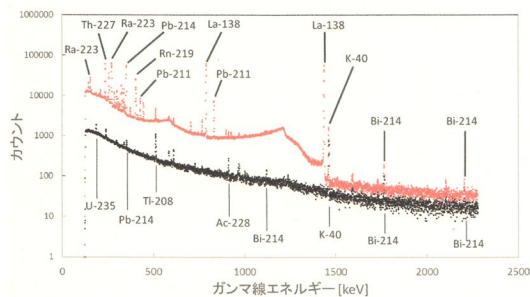


図3 Laのバックグラウンドスペクトル

### 3.1 分析法の検討

照射前の La 試料の 線測定と解析を行った。図3に Ge 検出器で計測したスペクトルを示す。黒線で示したものが試料のないバックグラウンドであり、赤線が La 試料のものである。図のように La 試料のバックグラウンドは極めて特徴的で、Ac 系列の放射線が圧倒的であることが明らかとなった。通常は U 系列、Th 系列が圧倒的で、Ac 系列は痕跡程度である。これは La の精製過程で生じたものと考えられた。以下の実験では、この現象を利用して、Ac 系列からの放射線を基準として La からの放射線の増減を評価した。その結果、0.1%程度の増減が評価可能となった。

## 4. 研究成果

### 4.1 Co-60 照射

最初に La 金属 50g の Co-60 線照射を空气中で行った。線量は 280kGy に達した。その結果を表2に示す。表では、スペクトル中の各ピークの面積変化を表示している。

表2 Co-60 照射によるピークの変化

keV	核種	面積 (35kGy)	面積 (70kGy)	面積 (140kGy)
185.2	U-235	5255	4673	4868
269.8	Ra-223	118678	96855	120929
350.8	Th-227	66838	54321	67895
511.0	Tl-208	21702	21095	21030
609.1	Bi-214	8777	7084	8082
789.0	La-138	90681	73780	91660
832.2	Pb-211	9828	8000	10003
911.4	Ac-228	4355	4265	4123
1436.1	La-138	108713	87759	109205
1461.3	K-40	43864	44348	44121

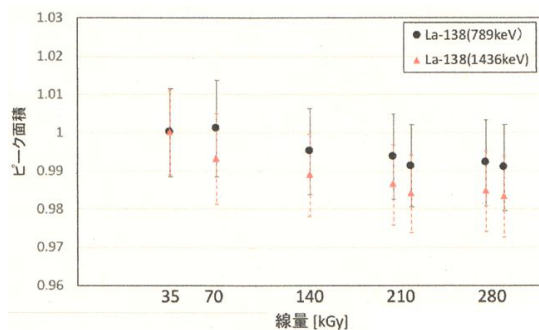


図4 Co照射によるLaピークの変化

表のように、試料にほとんど含まれていない純粋なバック応答である K-40 などの値は変化していないが、試料中から放出された La あるいは Ac 系列からの 線は、ほぼ同期して変化している。これは、測定器における試料の微妙な位置の変化あるいは試料の形状変化であると考え、La の2つのピークの変化を Ac 系列で最も強いピークである Th227 の値で規格化して示したものが図4である。図のように照射線量に対応した減少が観測

されている。図中の赤い点が EC 分岐による線であり、黒い点が崩壊によるものであるが、減少量が若干異なっていることも注目される。この実験では最終的にベータ崩壊が1%程度減少した。この照射は、当初水中で行う予定であったが、水中での爆発の危険性が指摘され、空気中の照射に変更したものである。そのため、次に試料を酸化ランタンの粉末 20g に変更し Co-60 線で水中照射した。この照射は 500kGy の線量に達したが、ベータ崩壊の減少は測定限界以下であった。

#### 4.2 X線照射

La 金属 10g を電子線形加速器の X 線で照射した。電子線のエネルギーは 6~8MeV であった。タングステンターゲットの直後に試料を設置し、合計 2 時間半の照射を行った。その結果を図 5 に示す。図のように照射に対応して最終的に 4%程度の減少が観測された。ただし、減少量は、Co-60 の場合とは逆の傾向を示し、崩壊（黒点）がより多く減少している。また照射線量では Co-60 の空気中照射と同程度であるが、減少量は数倍になっている。

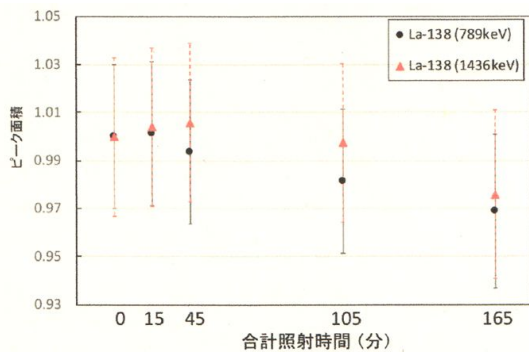


図5 X線照射によるLaピークの変化

3種類の実験の結果、La 金属の照射では、僅かながらベータ崩壊の減少が観測されたが、酸化ランタンの照射では、現時点でも減少は確認されていない。これらの実験結果から見ても未知の要素が多く、その解明のため

実験は今後とも継続する必要がある。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計 3件)

1) 谷口良一、白井志樹、伊藤憲男、宮丸広幸、小嶋崇夫、岡本賢一、辻本忠、La-138 のガンマ線照射によるベータ崩壊の変化、原子力学会春の年会(2018年3月)

2) 谷口良一、白井志樹、伊藤憲男、宮丸広幸、小嶋崇夫、岡本賢一、辻本忠、長寿命ベータ崩壊核種の短寿命化、原子力学会秋の大会(2017年9月)

3) 白井志樹、伊藤憲男、宮丸広幸、岡本賢一、谷口良一、La 中に含まれるアクチニウム系列核種の分析、第54回アイソトープ・放射線研究発表会(2017年7月)

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

谷口 良一 (TANIGUCHI, Ryoichi)  
大阪府立大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号、60155215

##### (4)研究協力者

- ・辻本 忠 (TSUJIMOTO, Tadashi)  
安全安心科学アカデミー、理事長
- ・宮丸 広幸 (MIYAMARU, Hiroyuki)  
大阪府立大学・大学院工学研究科・教授
- ・伊藤 憲男 (ITO, Norio)  
大阪府立大学・大学院工学研究科・助教
- ・小嶋 崇夫 (KOJIMA, Takao)  
大阪府立大学・大学院工学研究科・助教