

2022年9月15日(木)

A会場

開会式 | 開会式

開会式

座長: 梶垣 正吾 (東大)

09:00 ~ 09:20 A会場 (小柴ホール)

基調講演 | プレナリートーク

基調講演

座長: 鷲山 幸信 (福島県立医大)

09:20 ~ 10:00 A会場 (小柴ホール)

[1S01] 臨床用放射性医薬品製造のための放射化学への
IAEAの貢献*Amirreza Jalilian¹、Aruna Korde¹、Celina Horak¹、Melissa Denecke¹ (1. International Atomic Energy Agency)

09:20 ~ 10:00

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

座長: 池田 隼人 (東北大)

10:00 ~ 11:10 A会場 (小柴ホール)

[1A01-04-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A01] アスタチン標識化合物の設計と応用

*上原 知也¹ (1. 千葉大学大学院薬学研究院)

10:00 ~ 10:25

[1A02] 低免疫原性ストレプトアビジン変異体と改変ビオチンを用いるプレターゲットングシステムの開発

*巽 俊文¹、山次 健三¹、杉山 暁²、趙 松吉³、粟生木 美穂³、西嶋 剣一³、右近 直之³、下山 彩希³、譚 成博³、城實 大輝³、織内 昇³、高橋 和弘³、清水 洋平¹、高橋 和希¹、安 藝 翔⁴、児玉 龍彦⁴、鷲山 幸信³、金井 求¹ (1. 東京大学大学院薬学系研究科、2. 東京大学アイソトープ総合センター、3. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、4. 東京大学先端技術研究センター)

10:25 ~ 10:40

[1A03] Rnの液相回収と Atのイオン液体抽出による²¹¹Rn/²¹¹Atジェネレータシステムの開発*永井 雄太¹、我那覇 功也¹、西中 一朗⁵、鷲山 幸信⁴、殷 小杰²、南部 明弘²、羽場 宏光²、横山 明彦³ (1. 金沢大学大学院自然科学研究科、2. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、3. 金沢大学理工研究域、4. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、5. 量子科学技術研究開発機構)

10:40 ~ 10:55

[1A04] DIPE HCl系と HCl イオン液体系の²¹¹At溶媒抽出における線量効果について*我那覇 功也¹、永井 雄太¹、西中 一朗²、鷲山 幸信³、殷 小杰⁴、南部 明弘⁴、羽場 宏光⁴、横山 明彦⁵ (1. 金沢大学自然科学研究科、2. 量子科学技術研究開発機構、3. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、4. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、5. 金沢大学理工研究域)

10:55 ~ 11:10

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

座長: 鷲山 幸信 (福島県立医大)

11:20 ~ 12:30 A会場 (小柴ホール)

[1A05-08-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A05] 胃癌腹膜播種モデルマウスを用いた²¹¹At標識抗

FGFR4抗体による放射線免疫療法の検討

*久下 恒明^{1,2}、増田 寛喜^{1,2}、杜 婉瑩¹、保田 智彦³、杉山 暁⁴、羽場 宏光⁵、巽 俊文⁶、秋光 信佳⁴、熊倉 嘉貴⁷、吉田 寛²、瀬戸 康之¹、和田 洋一郎⁴、野村 幸世¹ (1. 東京大学大学院 医学系研究科消化管外科学、2. 日本医科大学 消化器外科、3. 日本医科大学千葉北総病院 外科・消化器外科、4. 東京大学 アイソトープ総合センター、5. 国立研究開発法人理化学研究所 仁科加速器科学研究センター、6. 東京大学大学院 薬学系研究科、7. 埼玉医科大学医学部総合医療センター放射線科)

11:20 ~ 11:35

[1A06] 電解酸化反応を用いたチロシン上ヨウ素-アスタチン置換反応

*中川 創太^{1,2,3}、角永 悠一郎⁴、大江 一弘^{5,6}、寺本 高啓⁶、床井 健運¹、永田 光知郎^{5,6}、吉村 崇^{5,6}、羽場 宏光⁷、王 洋⁷、笠松 良崇¹、豊嶋 厚史⁶、深瀬 浩一^{1,6}、篠原 厚^{6,8} (1. 阪大院理、2. 名大院医、3. 国がん 先端医療開発セ、4. 阪大院医、5. 阪大RIセ、6. 阪大放射線機構、7. 理研、8. 大阪青山大学)

11:35 ~ 11:50

[1A07] アスタチン化学種の薄層クロマトグラフィー

*西中 一朗¹、橋本 和幸² (1. 量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所、2. 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所)

11:50 ~ 12:05

[1A08] ルテチウム-177を用いた核医学治療薬~病院臨床の実際と日本放射化学会に寄せる期待~

*高野 祥子¹ (1. 横浜市大放射)

12:05 ~ 12:30

部会 | 部会

核化学部会

座長: 豊嶋 厚史 (阪大)

13:10 ~ 13:40 A会場 (小柴ホール)

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

座長: 石岡 典子 (QST)

13:45 ~ 14:25 A会場 (小柴ホール)

[1A09-10-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A09] Cu-64創薬最前線

*吉井 幸恵¹ (1. 量子科学技術研究開発機構)

13:45 ~ 14:10

[1A10] 標的 α 線治療における遊離²²⁵Ac除去に関する錯体化学的検討*品田 光洋^{1,2}、吉本 光喜³、吉井 幸恵²、松本 博樹²、高橋 正²、五十嵐 千佳²、檜原 扶紀子²、立花 知子²、土井 あやの³、東 達也²、藤井 博史³、鷲山 幸信⁴ (1. 東邦大学大学院理学研究科、2. 量子科学技術研究開発機構、3. 国立がん研究センター東病院 機能診断開発分野、4. 福島県立医科大学 先端臨床研究センター)

14:10 ~ 14:25

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

座長: 豊嶋 厚史 (阪大)

14:35 ~ 15:45 A会場 (小柴ホール)

[1A11-14-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A11] 阪大 RCNPにおける RI大量製造のための加速器施設のアップグレード

*福田 光宏¹ (1. 大阪大学核物理研究センター)

14:35 ~ 15:00

[1A12] 精密質量測定による新同位体²⁴¹Uの同定*庭瀬 暁隆¹、渡辺 裕¹、平山 賀一¹、向井 もも²、Schury Peter¹、Andreyev Andrei³、飯村 俊⁴、石山 博恒²、鄭 淳諱¹、宮武 宇也¹、Rosenbusch Marco¹、谷口 秋洋⁵、和田 道治¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構、2. 理研仁科センター、3. ヨーク大、4. 立教大、5. 京大複合研)

15:00 ~ 15:15

[1A13] ²³²Th+⁷Li核反応によって生成する U同位体の ICP-MSによる定量*永井 歩夢¹、細川 浩由¹、中島 朗久²、坂口 綾²、南部 明弘³、重河 優大³、羽場 宏光³、横山 明彦⁴ (1. 金沢大学大学院自然科学研究科、2. 筑波大学数理物質系、3. 理化学研究所 所仁科加速器科学研究センター、4. 金沢大学理工研究域)

15:15 ~ 15:30

[1A14] 超重元素原子科学研究に向けた電子ビーム誘起プラズマ(EBGP)イオン源の開発

*青木 涼太^{1,3}、佐藤 哲也^{1,3}、内馬場 優太^{1,3}、宮地 優太^{2,3}、Gong Gyeongmin^{1,3}、名取 日菜^{2,3}、伊藤 由太³、浅井 雅人³、塚田 和明³、永目 輸一郎³ (1. 茨城大院理工、2. 茨城大理、3. 原子力機構先端研)

15:30 ~ 15:45

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

座長: 後藤 真一 (新潟大)

15:55 ~ 17:10 A会場 (小柴ホール)

[1A15-19-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A15] イオントラップされた不安定核の崩壊分光に向けたベーン電極型ポールトラップの開発

*内馬場 優太^{1,2}、伊藤 由太²、青木 涼太^{1,2}、宮地 優太^{2,3}、Gong Gyeongmin^{1,2}、名取 日菜^{2,3}、佐藤 哲也^{1,2}、浅井 雅人²、塚田 和明²、永目 諭一郎² (1. 茨城大学大学院理工学研究科量子線科学専攻、2. 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター極限重元素核科学研究グループ、3. 茨城大学理学部)

15:55 ~ 16:10

[1A16] 多核子移行反応を用いたアクチノイド領域のアイソマー核分光

*杉山 晃一¹、郷 慎太郎¹、富松 太郎¹、甲斐 民人¹、長江 大輔¹、石橋 優一¹、松永 壮太郎¹、永田 優斗¹、西畑 洸希¹、鷲山 公平¹、坂口 聡志¹、森田 浩介¹、Orlandi Riccardo²、西尾 勝久²、牧井 宏之²、浅井 雅人²、静間 俊行³、井手口 栄治⁴、Thanh Pham Tung⁴、庭瀬 暁隆⁵ (1. 九州大学、2. 原研 ASRC、3. QST、4. 阪大 RCNP、5. KEK)

16:10 ~ 16:25

[1A17] Th-229mの γ 線観測に向けた Pa-229のフッ化物結晶への導入法及び光子測定装置の開発*重河 優大¹、Wang Yang¹、Yin Xiaojie¹、南部 明弘¹、羽場 宏光¹ (1. 理化学研究所)

16:25 ~ 16:40

[1A18] クラウンエーテルを用いた102番元素ノーベリウムの硝酸系固液抽出実験

*渡邊 瑛介^{1,2}、笠松 良崇^{1,2}、横北 卓也³、中西 諒平^{1,2}、大高 咲希^{1,2}、板倉 悠大¹、益田 遼太郎^{1,2}、王 瑞麟^{1,2}、重河 優大²、南部 明弘²、殷 小杰²、羽場 宏光²、高宮 幸一⁴、篠原 厚⁵ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. サレジオ工業高等専門学校、4. 京都大学、5. 大阪青山大学)

16:40 ~ 16:55

[1A19] Rfの共沈実験に向けた Zr, Hf, Thのシュウ酸, マロン酸系でのフロー式共沈実験

*中西 諒平^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,2}、大高 咲希^{1,2}、王 瑞麟¹、板倉 悠大^{1,2}、速水 翔¹、羽場 宏光²、南部 明弘²、篠原 厚³、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 大阪青山大学)

16:55 ~ 17:10

ポスターフラッシュトーク | ポスターフラッシュトーク

ポスターフラッシュトーク

座長: 鈴木 達也 (長岡技科大)、秋山 和彦 (都立大)
17:15 ~ 17:35 A会場 (小柴ホール)

企業広報セッション | 企業広報セッション

AD

座長: 別所 光太郎 (KEK)
17:35 ~ 17:50 A会場 (小柴ホール)

[1A22-22-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A22-22-1add] クリアパルス株式会社

17:35 ~ 17:42

[1A22-22-2add] 西進商事株式会社

17:42 ~ 17:49

B会場

基盤セッション 環境放射能 | 基盤セッション C: 環境放射能

基盤セッション C: 環境放射能

座長: 別所 光太郎 (KEK)
10:00 ~ 11:20 B会場 (206室)

[1B01-04-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B01] 人工放射性核種の ICP-MS分析に関する話題

*鄭 建¹ (1. 量子科学技術研究開発機構)

10:00 ~ 10:25

[1B02] 加速器質量分析法における環境中の難測定核種の検出技術に関する進展

*笹 公和¹ (1. 筑波大学)

10:25 ~ 10:50

[1B03] 別府湾の堆積物中ウラン同位体の分析—人新世の時代区分定義への取り組み—

*高橋 穂高¹、坂口 綾²、Hain Karin³、Wiederin Andreas³、加 三千宣⁴、高久 雄一²、山崎 信哉²、末木 啓介² (1. 筑波大学大学院 理工情報生命学術院 数理物質科学研究群 化学学位プログラム、2. 筑波大学 数理物質系、3. ウィーン大学 物理学科 アイソトープ物理学専攻、4. 愛媛大学 沿岸環境科学センター(CMES) 環境動態解析部門)

10:50 ~ 11:05

[1B04] 福島第一原発事故直後に東京周辺の広範囲に飛来し

た CsMPsの分析

*高久 侑己¹、桧垣 正吾¹、廣田 昌大²、鍵 裕之¹ (1. 東京大学、2. 信州大学)

11:05 ~ 11:20

基盤セッション 環境放射能 | 基盤セッション C: 環境放射能

基盤セッション C: 環境放射能

座長: 小池 裕也 (明治大)
11:30 ~ 12:30 B会場 (206室)

[1B05-08-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B05] ²¹⁰Pbと XAFS法による皇居お堀の堆積環境の解析

*Sun Jing¹、Otosaka Shigeyoshi¹、Itai Takaaki¹、Takahashi Yoshio¹ (1. 東京大学)

11:30 ~ 11:45

[1B06] 北極海—太平洋における¹²⁹Iの分布

*永井 尚生¹、山形 武靖¹、松崎 浩之² (1. 日本大学文理学部自然科学研究所、2. 東京大学総合研究博物館)

11:45 ~ 12:00

[1B07] 水田土壤中ウランの土壌—土壌溶液分配係数に関する考察

*田上 恵子¹、鄭 建¹、浜本 貴史²、澁谷 早苗²、内田 滋夫¹ (1. 量子科学技術研究開発機構、2. 原子力発電環境整備機構)

12:00 ~ 12:15

[1B08] 食品環境放射能標準物質の開発と普及の10年そしてこれから(3)魚肉・魚骨灰

*三浦 勉¹、葉袋 佳孝²、米沢 伸四郎³、荒川 史博⁵、岡田 往子⁴、岡田 章⁷、小島 勇夫⁶、大澤 隆夫⁶、柿田 和俊⁶、平井 昭司⁴ (1. 国立研究開発法人産業技術総合研究所、2. 武蔵大学、3. 日本国際問題研究所、4. 東京都市大学、5. 日本ハム中央研究所、6. (公社)日本分析化学会、7. 元東芝)

12:15 ~ 12:30

部会 | 部会

アルファ放射体・環境放射能部会

座長: 小池 裕也 (明治大)
12:30 ~ 13:00 B会場 (206室)

基盤セッション 原子力化学・アクチノイド化学 | 基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

座長: 桐島 陽 (東北大学)、鈴木 達也 (長岡技科大)
13:40 ~ 15:00 B会場 (206室)

[1B09-12-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B09] 福島第一原子力発電所で採取した試料の分析の現状と課題

*平井 睦¹ (1. 東京電力ホールディングス (株))

13:40 ~ 14:05

[1B10] 福島第一原子力発電所2号機トラス室滞留水の α 核種を含有する微粒子の検出と分析

*蓬田 匠¹、大内 和希¹、岡 壽嵩¹、北辻 章浩¹、駒 義和¹、今野 勝弘² (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京電力ホールディングス)

14:05 ~ 14:30

[1B11] 樹脂を用いた模擬デブリ溶解液からのウラン回収

*IKHWAN FAUZIA HANUM¹、鈴木 達也¹、風間 裕行²、阿部 千景³、小無 健司³ (1. 長岡技術科学大学、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学)

14:30 ~ 14:45

[1B12] ICP-MS/MSによるアクチノイド核種相互分別に向けた気相反応挙動の予測

*風間 裕行¹、関尾 佳弘¹、前田 宏治¹、小山 真一¹、鈴木 達也²、小無 健司³、阿部 千景³、永井 康介³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 長岡技術科学大学、3. 東北大学)

14:45 ~ 15:00

基盤セッション 原子力化学・アクチノイド化学 | 基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

座長: 桐島 陽 (東北大学)、鈴木 達也 (長岡技科大)

15:10 ~ 16:20 B会場 (206室)

[1B13-16-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B13] アクチノイド化合物のための相対論的電子相関プログラムの開発

*阿部 穰里¹ (1. 広島大学)

15:10 ~ 15:35

[1B14] アモルファス過酸化ウラニルの新しい生成経路の発見

*マックグレイディ ジョン¹、熊谷 友多¹、日下 良二¹ (1. JAEA 原子力基礎工学研究センター)

15:35 ~ 15:50

[1B15] メカノケミカル法を用いたセリウムを含む

Brannerite化合物の合成に関する研究

*三島 大輝¹、秋山 大輔¹、桐島 陽¹、岡本 芳浩² (1. 東北大学、2. JAEA)

15:50 ~ 16:05

[1B16] 次世代核燃料再処理に向けたマイナーアクチノイド抽出のための新規溶媒探査

*中瀬 正彦¹、渡邊 真太¹、針貝 美樹¹、田端 千尋²、山村 朝雄³、松井 孝太⁴、小林 徹²、梶谷 孝¹、柿木 浩一⁵、塚本 泰介⁵、島田 隆⁵ (1. 東京工業大学、2. 原子力機構、3. 京都大学、4. 名古屋大学、5. 三菱重工業)

16:05 ~ 16:20

C会場

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

座長: 中島 覚 (広大)

10:00 ~ 11:20 C会場 (207室)

[1C01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C01] 負ミュオン寿命法による鉄鋼中微量炭素の非破壊深度分布測定

*稲垣 誠¹、久保 謙哉²、二宮 和彦³、浅利 駿介³、吉田 剛⁴、竹下 聡史⁴、梅垣 いづみ⁴、下村 浩一郎⁴、河村 成肇⁴、ストラッサー パトリック⁴、三宅 康博⁴、伊藤 孝⁵、髭本 亘⁵、齋藤 努⁶ (1. 京都大学、2. 国際基督教大学、3. 大阪大学、4. 高エネルギー加速器研究機構、5. 日本原子力研究開発機構、6. 国立歴史民俗博物館)

10:00 ~ 10:15

[1C02] ランタノイド内包フラレン ($\text{Ln}^{3+}@\text{C}_{82}^{3-}$) における HPLC溶出挙動の熱力学的解析

*黒田 拓真¹、西村 峻¹、秋山 和彦^{1,2}、羽場 宏光²、高宮 幸一³、久富木 志郎¹ (1. 都立大院理、2. 理研仁科セ、3. 京大複合研)

10:15 ~ 10:30

[1C03] 輝尽発光材料の光照射前後における Eu発光中心の局所状態観察

*伊藤 史菜¹、小林 義男¹、渡辺 裕夫¹、落合 隆夫¹ (1. 電気通信大学大学院)

10:30 ~ 10:45

[1C04] スピントロスオーバーを示す超分子錯体化合物の 61Ni メスバウアー分光

*北澤 孝史¹、北清 航輔¹、上田 大生¹、藤本 大地¹、新井 駿祐¹、小林 康浩²、北尾 真司²、窪田 卓見²、瀬戸 誠² (1. 東邦大学理学部、2. 京都大学複合原子力科学研究所)

10:45 ~ 11:00

[1C05] 高圧下中性子回折実験から地球深部の水素を探る

*鍵 裕之¹ (1. 東京大学大学院理学系研究科)

11:00 ~ 11:20

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

座長: 久保 謙哉 (ICU)

11:25 ~ 12:30 C会場 (207室)

[1C06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C06] 光子時空間相関を用いたイメージング・計測手法の開拓

*島添 健次¹ (1. 東京大学)

11:25 ~ 11:45

[1C07] 酸化亜鉛中不純物インジウムの状態制御による電気伝導度の飛躍的向上

*佐藤 渉¹、高田 真宏¹、清水 弘通¹、小松田 沙也加¹、吉田 靖雄¹、森山 暁栄¹、島村 一利¹、大久保 嘉高² (1. 金沢大学、2. 京都大学)

11:45 ~ 12:00

[1C08] 摂動角相関法による Cd フェライト中の超微細場測定 — Cd 濃度依存性及び温度依存性の観察

*藤井 光樹¹、小中 將彰²、伊東 泰佑¹、佐藤 渉^{1,2} (1. 金沢大学大学院 自然科学研究科、2. 金沢大学 理工学域)

12:00 ~ 12:15

[1C09] SrTiO₃中にドーピングされた¹¹¹Cdの占有サイトと熱安定性の研究

*小松田 沙也加¹、佐藤 渉²、谷口 秋洋³、谷垣 実³、大久保 嘉高³ (1. 金沢大学人間社会研究域、2. 金沢大学理工研究域、3. 京都大学複合原子力科学研究所)

12:15 ~ 12:30

部会 | 部会

原子核プローブ部会

座長: 久保 謙哉 (ICU)

13:10 ~ 13:40 C会場 (207室)

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

座長: 佐藤 渉 (金沢大)

13:40 ~ 14:25 C会場 (207室)

[1C10-12-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C10] Fe(3,4-lutidine)₂[Ag(CN)₂]₂中のγ線由来スピン状態変化の考察

*北清 航輔¹、北澤 孝史¹ (1. 東邦大学)

13:40 ~ 13:55

[1C11] YIGの磁性に及ぼす Bi ドーピングの効果

*吉田 実生¹、渡辺 裕夫¹、小林 義男^{1,2} (1. 電気通信大学大学院、2. 理研仁科センター)

13:55 ~ 14:10

[1C12] Nbをドーピングした Fe₂O₃のメスbauer スペクトルと可視光触媒への応用

Rahman Habibur¹、Zhang Bofan²、久富木 志郎²、*中島 覚¹ (1. 広島大学、2. 東京都立大学)

14:10 ~ 14:25

基盤セッション 生物関連放射化学 | 基盤セッション G: 生物関連放射化学

基盤セッション G: 生物関連放射化学

座長: 井伊 博行 (和歌山大)

14:35 ~ 15:50 C会場 (207室)

[1C13-15-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C13] 自然界から学ぶ放射性物質の長期固定プロセス

*鈴木 庸平¹ (1. 東京大学大学院理学系研究科)

14:35 ~ 15:00

[1C14] 樹木中セシウムの化学状態と森林生態系における放射性セシウムの動態の関係

*田中 万也¹、金指 努²、竹中 千里³、高橋 嘉夫⁴ (1. 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター、2. 福島大学環境放射能研究所、3. 名古屋大学大学院生命農学研究科、4. 東京大学大学院理学系研究科)

15:00 ~ 15:25

[1C15] 森林内における放射性セシウム分布とこのこへの移行

*佐々木 祥人¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

15:25 ~ 15:50

基盤セッション 生物関連放射化学 | 基盤セッション G: 生物関連放射化学

基盤セッション G: 生物関連放射化学

座長: 鈴木 庸平 (東大)

16:00 ~ 17:05 C会場 (207室)

[1C16-18-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C16] 微生物による燃料デブリの溶解促進

*大貫 敏彦^{1,2,3}、Liu Jiang³、土津田 雄馬³、北垣 徹³、中瀬 正彦² (1. 大妻女子大、2. 東京工業大学、3. 日本原子力研究開発機構)

16:00 ~ 16:25

[1C17] 常在細菌による模擬燃料デブリの溶解

*劉 江¹、土津田 雄馬¹、北垣 徹¹、高野 公秀¹、香西 直文¹、大貫 敏彦^{1,2} (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京工業大学)

16:25 ~ 16:50

[1C18] In vitroで形成させたヒドロキシアパタイトに吸着した Ra-226の局所構造解析

*永田 光知郎¹、山口 瑛子^{2,3}、小林 徹²、下条 晃司郎²、横山 啓一²、谷田 肇²、矢板 毅²、高橋 嘉夫³、吉村 崇¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東京大学大学院理学系研究科)

16:50 ~ 17:05

336室

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

18:00 ~ 19:00 336室

[1P01] α線核医学治療用核種 Pb-212の製造に向けた Th-

228線源の取扱方法の検討

*南部 明弘¹、殷 小杰¹、重河 優大¹、羽場 宏光¹、富田 翔²、福森 麻衣²、田沢 周作² (1. 理研仁科センター、2. (株)アトックス)

[1P02] ラドンの気相回収過程に関わる硝酸溶液への溶解について

*田中 卓¹、永井 雄太¹、我那覇 功也¹、田鶴 久典⁴、井田 智明²、西中 一朗³、横山 明彦² (1. 金沢大学大学院 自然科学研究科、2. 金沢大学理工研究域、3. 量子科学技術研究開発機構、4. 金沢大学 理工学域)

[1P03] 核医学利用に向けた光核反応による Sc-47の大量製造

*菊永 英寿¹、豊嶋 厚史²、池田 隼人^{1,3}、本多 佑記¹ (1. 東北大学電子光物理学研究センター、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター)

[1P04] ¹³¹I内用療法の PHITSによる甲状腺と周辺リスク臓器の平均吸収線量評価

川口 (松本) 絵里佳^{2,1}、*阪間 稔¹、藤本 憲市³、生島 仁史¹、佐瀬 卓也⁴ (1. 徳島大学大学院医歯薬学研究所、2. 堀場製作所、3. 香川大学、4. 核融合科学研究所)

[1P05] 核医学利用に向けた Ce-141の加速器製造と分離精製の検討

*大江 一弘¹、渡部 直史^{2,3}、白神 宣史³、南部 明弘⁴、羽場 宏光⁴、畑澤 順⁵ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構附属ラジオアイソトープ総合センター、2. 大阪大学大学院医学系研究科、3. 大阪大学放射線科学基盤機構、4. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、5. 大阪大学核物理研究センター)

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

18:00 ~ 19:00 336室

[1P06] Production cross sections of ²²⁵Ac and ²²⁵Ra in the ²³²Th(¹⁴N,xnyp) reactions(2)

*殷 小杰¹、南部 明弘¹、押切 忍^{1,2}、鈴木 健太郎^{1,2}、日野 明弘²、羽場 宏光¹ (1. 理研仁科センター、2. PDRファーマ株式会社)

[1P07] Production of ⁴⁴Ti via the ⁴⁵Sc(p,2n)⁴⁴Ti reaction for ⁴⁴Ti/^{44g}Sc generator development

*殷 小杰¹、福地 知則²、渡辺 恭良²、羽場 宏光¹ (1. 理研仁科センター、2. 理研生命機能科学研究センター)

[1P08] 短寿命 RI供給プラットフォームにより東北大から新たに供給可能となった核種

*池田 隼人^{1,2}、菊永 英寿²、渡部 浩司¹ (1. 東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター、2. 東北大学電子

光物理学研究センター)

340室

基盤セッション 原子力化学・アクチノイド化学 | 基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学
18:00 ~ 19:00 340室

[1P19] 厳密2成分相対論法に基づく密度行列繰り込み群の新規プログラム開発

*吉田 玲¹、波田 雅彦¹、中谷 直輝¹、阿部 稜里² (1. 東京都立大学、2. 広島大学)

[1P20] 各種の粘土鉱物における Eu吸着状態についての研究

*向井 広樹¹ (1. 東京大学大学院理学系研究科)

[1P21] メスバウアー分光法による福島第一原子力発電所の滞留水に含まれる放射性微粒子の Fe分析

*大内 和希¹、中田 正美¹、蓬田 匠¹、岡 壽崇¹、駒 義和¹、北辻 章浩¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

基盤セッション 環境放射能 | 基盤セッション C: 環境放射能

基盤セッション C: 環境放射能

18:00 ~ 19:00 340室

[1P22] 大気中放射性キセノン濃度の水準調査

*吉田 森香¹、新田 済¹、大槻 孝之¹、磯貝 啓介¹ (1. 公益財団法人 日本分析センター)

[1P23] 能登半島における1950年以降の I-129と Cs-137の沈着量変動

*松中 哲也¹、落合 伸也¹、松村 万寿美²、高橋 努²、末木 啓介²、笹 公和² (1. 金沢大学、2. 筑波大学)

[1P24] 福島原発事故に由来する不溶性微粒子の模擬生成

*稲垣 誠¹、関本 俊¹、高宮 幸一¹、沖雄 一¹、大槻 勤¹ (1. 京都大学)

[1P25] 大容量エアサンプラを用いた大気浮遊じん中 Pu濃度の経年変化

*鈴木 颯一郎¹、佐藤 昭二¹、新田 済¹、大槻 孝之¹、磯貝 啓介¹ (1. 公益財団法人 日本分析センター)

[1P26] 人工および天然放射性核種からみた南インド洋～南大洋における表層海水循環

*光主 隼大¹、真下 海成¹、井上 睦夫¹、松中 哲也¹、猪俣 弥生¹、林 政彦²、長尾 誠也¹ (1. 金沢大学、2. 福岡大学)

基盤セッション 生物関連放射化学/特別セッション 福島第一原発事故関連研究の最前線 | 基盤セッション G: 生物関連放射化学/特別セッション 1: 福島第一原発事故関連研究の最前線

基盤セッション G: 生物関連放射化学

18:00 ~ 19:00 340室

[1P27] レーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成に

に向けた基礎実験

*稲垣 誠¹、秋山 和彦²、関本 俊¹、大槻 勤¹ (1. 京都大学、2. 東京都立大学)

[1P28] 福島第一原子力発電所周辺の微生物および放射線の微生物への影響

*土津田 雄馬¹、北垣 徹¹、佐藤 志彦¹、大貫 敏彦^{1,2} (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京工業大学)

[2P20] 燃料デブリ取り出し作業での生成を模擬したウラン微粒子の分析

*豊嶋 厚史¹、高宮 幸一²、永田 光知郎¹、古谷 浩志³、床井 健運⁴、寺本 高啓¹、稲垣 誠²、河井 洋輔⁴、吉村 崇¹、豊田 岐聡⁴、篠原 厚^{5,1} (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 京都大学複合原子力科学研究所、3. 大阪大学科学機器リノベーション・工作支援センター、4. 大阪大学大学院理学研究科、5. 大阪青山大学)

341室

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

18:00 ~ 19:00 341室

[1P09] ガスクロマトグラフィーを用いた At のハロゲン結合エネルギーの導出法の開発

*床井 健運^{1,2}、青戸 宏樹³、渡邊 瑛介^{1,2}、篠原 厚^{4,5}、王 洋²、羽場 宏光²、笠松 良崇^{1,2}、豊嶋 厚史^{2,4} (1. 大阪大学大学院 理学研究科、2. 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター、3. 大阪大学 理学部、4. 大阪大学 放射線科学基盤機構、5. 大阪青山大学)

[1P10] Th ターゲット中に生成する Np の単離を目的とした高除染係数溶媒抽出法の検討

*細川 浩由¹、瀬戸 彩乃²、永井 歩夢¹、中島 朗久³、坂口 綾³、羽場 宏光⁴、横山 明彦² (1. 金沢大学大学院自然科学研究科、2. 金沢大学理工学研究域、3. 筑波大学数理工学系、4. 理化学研究所仁科加速器科学センター)

[1P11] アスタチン化合物の表面増強ラマン分光

*寺本 高啓¹、加納 英明²、WANG Yang³、羽場 宏光³、豊嶋 厚史¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 九州大学大学院理学研究院、3. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター)

[1P12] ⁵⁹Co のミュオン原子核捕獲反応生成物の測定

*浅利 駿介¹、Chiu I-Huan¹、新倉 潤²、佐藤 朗¹、Amato Alex³、Biswas Sayani³、Gerchow Lars³、二宮 和彦¹、吉村 崇¹ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. ポールシェラー研究所)

[1P13] 12族元素の気相化学のための HgCl₂ のオフライン等温クロマトグラフィ

*島田 尚樹¹ (1. 新潟大学院自然科学研究科数理物質科学専攻化学コース 核化学研究室)

[1P14] ^{229m}Th の γ 線測定に向けた希ガスマトリックス単離装置の開発

*益田 遼太郎^{1,2}、安田 勇輝¹、澤村 慶¹、重河 優大²、宮本 祐樹³、吉村 浩司³、篠原 厚⁴、笠松 良崇^{1,2} (1. 国立大学法人大阪大学大学院、2. 理化学研究所仁科加速研究センター、3. 国立大学法人岡山大学、4. 学校法人大阪青山大学)

[1P15] ノーベリウム⁹²の化学的性質解明にむけた2族元素の水酸化物及び硫酸沈殿実験と化学種分析

*大高 咲希^{1,2}、笠松 良崇^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,2}、中西 諒平^{1,3}、速水 翔¹、澤村 慶¹、篠原 厚³ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 大阪青山大学)

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

18:00 ~ 19:00 341室

[1P16] Fe の導入による La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ の磁気特性制御

*内野 葉月¹、高梨 恵司²、佐藤 渉² (1. 金沢大院自然、2. 金大理工)

[1P17] Pm を内包した二金属内包フラーレンの安定性に関する研究

*秋山 和彦^{1,2}、諏訪 智也¹、羽場 宏光²、菊永 英寿³、久富木 志郎¹ (1. 都立大院理、2. 理研仁科セ、3. 東北大ELPH)

[1P18] SrTiO₃ ペロブスカイトの⁵⁷Fe メスパウアースペクトルと永久磁石による影響

*野村 貴美¹、高橋 正¹、小林 康浩²、村 唯花³、小池 裕也³、名嘉 節⁴ (1. 東京医科大学RI研究室、2. 京都大学原子炉研究所、3. 明治大学理工学部、4. 物質材料研究機構)

開会式 | 開会式

開会式

座長: 桧垣 正吾 (東大)

2022年9月15日(木) 09:00 ~ 09:20 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

基調講演 | プレナリートーク

基調講演

座長: 鷲山 幸信 (福島県立医大)

2022年9月15日(木) 09:20 ~ 10:00 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[1S01] 臨床用放射性医薬品製造のための放射化学への IAEAの貢献

*Amirreza Jalilian¹、Aruna Korde¹、Celina Horak¹、Melissa Denecke¹ (1. International Atomic Energy Agency)

09:20 ~ 10:00

1S01 IAEA contribution to radiochemistry for the production of radiopharmaceuticals for clinical use

Amirreza Jalilian¹, Aruna Korde, Celina Horak and Melissa Denecke

Department of Nuclear Sciences and Applications, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria

Radioisotopes are the critical component of radiopharmaceuticals, produced via cyclotrons, research reactors, electron beams and waste sources. Without contribution of chemical sciences esp. radiochemistry, production of high-quality radioisotopes cannot be achieved, especially in the case of high specific activity products where a radioisotope with the highest chemical and radiochemical purity is required (usually using cyclotrons and reactors). According to IAEA cyclotron database more than 1200 machines are operating worldwide [1], preparing a wide variety of Positron Emission Tomography (PET) and Single Photon Emission Computed Tomography (SPECT) radioisotopes in high specific activity as well as carrier free quality. In recent decades radioisotopes ranging from metals to halides have been prepared through liquid, solid and gas targets [2]. Their accurate production, separation, quality control is critical for the preparation of final radiopharmaceuticals in right quality and quantity. Metallic SPECT radioisotopes including In-111, Ga-67, Tl-201, Rb-82m etc. were initially produced by the cyclotrons, while for PET radioisotopes, historically non-metals such as F-18, I-123, I-124, N-13, O-15 were initially produced and used in practice [3]. Metallic PET radioisotopes such as Cu-64, Cu-61, Ga-68, Sc-43,44, etc. are produced and in some cases routinely used in the radiopharmaceutical production [4, 5, 6]. All custom separation techniques from solid phase chromatography, liquid-liquid extraction, electrophoresis, electrodeposition, sublimation etc. have been used in the radiochemistry and radiopharmaceutical sciences and improved in many cases for integration into automated/robotic modules to avoid radiation exposure and keeping constant production conditions and yields. On the other hand, routine quality control techniques for radiopharmaceuticals are widely used such as HPLC, RTLC, FPLC, GC etc. for production of radiopharmaceuticals in high quality [7].

References:

- 1 Pages - Cyclotrons used for Radionuclide Production (iaea.org)
- 2 Standardized High Current Solid Targets for Cyclotron Production of Diagnostic and Therapeutic Radionuclides, Technical Reports Series No. 432, 2004, IAEA
- 3 IAEA RADIOISOTOPES AND RADIOPHARMACEUTICALS SERIES No. 3 CYCLOTRON PRODUCED RADIONUCLIDES: GUIDANCE ON FACILITY DESIGN AND PRODUCTION OF ¹⁸F, ¹²³I, ¹²⁴I, ¹³N, ¹⁵O, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY VIENNA, 2012 I
- 4 Cyclotron Produced Radionuclides: Emerging Positron Emitters for Medical Applications: ⁶⁴Cu and ¹²⁴I, IAEA Radioisotopes and Radiopharmaceuticals Reports No. 1, 2016.
- 5 Gallium-68 Cyclotron Production, IAEA TECDOC No. 1863, English, 2019
- 6 Q J Nucl Med Mol Imaging, IAEA contribution to the development of ⁶⁴Cu radiopharmaceuticals for theranostic applications. 2020 Dec;64(4):338-345.
- 7 Quality Control in the Production of Radiopharmaceuticals, IAEA TECDOC No. 1856, 2018.

IAEA contribution to radiochemistry for the production of radiopharmaceuticals for clinical use
JALILIAN, A. (IAEA)

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

座長: 池田 隼人 (東北大)

2022年9月15日(木) 10:00 ~ 11:10 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[1A01-04-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A01] アスタチン標識化合物の設計と応用

*上原 知也¹ (1. 千葉大学大学院薬学研究院)

10:00 ~ 10:25

[1A02] 低免疫原性ストレプトアビジン変異体と改変ビオチンを用いるプレターゲットングシステムの開発

*巽 俊文¹、山次 健三¹、杉山 暁²、趙 松吉³、粟生木 美穂³、西嶋 剣一³、右近 直之³、下山 彩希³、譚 成博³、城寶 大輝³、織内 昇³、高橋 和弘³、清水 洋平¹、高橋 和希¹、安藝 翔⁴、児玉 龍彦⁴、鷲山 幸信³、金井 求¹ (1. 東京大学大学院薬学系研究科、2. 東京大学アイソトープ総合センター、3. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、4. 東京大学先端技術研究センター)

10:25 ~ 10:40

[1A03] Rnの液相回収と Atのイオン液体抽出による²¹¹Rn/²¹¹Atジェネレータシステムの開発

*永井 雄太¹、我那覇 功也¹、西中 一朗⁵、鷲山 幸信⁴、殷 小杰²、南部 明弘²、羽場 宏光²、横山 明彦³ (1. 金沢大学大学院自然科学研究科、2. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、3. 金沢大学理工研究域、4. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、5. 量子科学技術研究開発機構)

10:40 ~ 10:55

[1A04] DIPE HCl系と HCl イオン液体系の²¹¹At溶媒抽出における線量効果について

*我那覇 功也¹、永井 雄太¹、西中 一朗²、鷲山 幸信³、殷 小杰⁴、南部 明弘⁴、羽場 宏光⁴、横山 明彦⁵ (1. 金沢大学自然科学研究科、2. 量子科学技術研究開発機構、3. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、4. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、5. 金沢大学理工研究域)

10:55 ~ 11:10

(2022年9月15日(木) 10:00 ~ 11:10 A会場)

[1A01-04-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

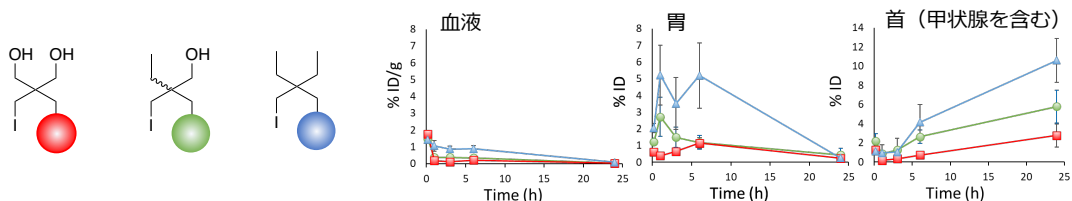
Zoomはこちら

1A01

アスタチン標識化合物の設計と応用

(千葉大院薬)○上原知也

核医学治療とは、細胞傷害性のある放射線を放出する放射性核種を含む薬剤を生体に投与し、体内から患部を放射線照射することにより治療を行う治療法である。従来、 β 線を放出する放射性核種が多く用いられてきたが、近年、 α 線を放出する放射性核種が注目されている。 α 線は短い飛程の中に高いエネルギーを付与できるため、放射性核種を標的へと選択的に集めることができれば、高い治療効果と低い副作用が期待できる。実際、アルカリ土類金属の α 線放出核種であるラジウム-223 (^{223}Ra)はカルシウムと同様に骨代謝の盛んな部分に集積することから、骨転移した前立腺がんの治療薬剤として本邦でも認可されており、従来使用されていた β 線放出核種であるストロンチウム-89では得られなかった延命効果を示すなど高い治療効果を示している。また、前立腺がんを高発現する前立腺がん膜特異的膜抗原に結合する薬剤に α 線放出核種であるアクチニウム-225 (^{225}Ac)を標識した薬剤では、全身転移したがん患者を寛解に導く症例が報告されるなど、 α 線放出核種を用いた高い治療効果が示されている。このようなことから、 α 線放出核種を用いた新たな治療薬剤の開発が期待されているが、 ^{223}Ra の場合アルカリ土類金属であるため ^{223}Ra を安定に化合物に結合させることが困難なこと、 ^{225}Ac の場合、様々な施設で製造法が検討されているが、その供給量が乏しく汎用性に乏しいという問題がある。一方、半減期7時間の α 線放出核種であるアスタチン-211 (^{211}At)は中型サイクロトロンにより産生でき、ハロゲン族であることから、有機化学的に標識可能であるため、治療用の α 線放出核種として期待されている放射性核種の一つである。 ^{211}At を様々ながんへの応用を行うためには、 ^{211}At をターゲティング分子に結合した薬剤の開発が必要であるが、現在汎用されているベンゼン環を母体とした標識薬剤を用いた場合、生体内に投与すると ^{211}At がベンゼン環から外れてしまうことが問題となっている。特にこのような現象は、低分子の薬剤において顕著に見えられ、半減期の短い ^{211}At の利用を困難としていた。このような中我々は、有機化学的に安定にハロゲン元素を保持するネオペンチル構造に着目し、 ^{211}At 標識薬剤としての有用性を評価した。放射性ヨウ素を用いた基礎検討の結果、水酸基を2分子導入することで、生体内において放射性ヨウ素を安定に保持できることを見出し(図)、本薬剤を ^{211}At 標識したところ、 ^{211}At 標識薬剤においても生体内で安定に ^{211}At を保持できることを見出した。本発表では、ネオペンチル構造を用いた ^{211}At 標識薬剤の開発とそれを用いた新たな薬剤について概説する。



(図) 2分子の水酸基を含むペオペンチル基(赤)は1分子(緑)あるいは水酸基を含まない(青)ネオペンチル基標識薬剤に比べ、脱ヨウ素の指標となる胃や首への放射活性の集積が低値を示した。

Chemical design of astatine-211-labeled compounds and their application
UEHARA T.

1A02

低免疫原性ストレプトアビジン変異体と改変ビオチンを用いる
プレターゲティングシステムの開発(東大院薬¹、東大 ISC²、福島医大先端研³、東大先端研⁴)○異 俊文¹、山次 健三¹、杉山 暁²、趙 松吉³、栗生木 美穂³、
西嶋 剣一³、右近 直之³、下山 彩希³、譚 成博³、城寶 大輝³、
織内 昇³、高橋 和弘³、清水 洋平¹、高橋 和希¹、安藝 翔⁴、
児玉 龍彦⁴、鷲山 幸信³、金井 求¹

【緒言】 再発や転移により体内にひろがった進行がんに対して副作用の少ない治療薬を開発することは、がん研究の最大の課題となっている。近年、抗体に放射性核種を担持した放射線内用療法の研究が行われており、特にがん細胞殺傷能力が高い α 線を放出する²¹¹Atの使用が注目を集めている。しかし、抗体に直接²¹¹Atを担持させた場合には、高分子である抗体の長い血中滞留時間のためにがん組織以外での内部被曝が深刻な問題となる。そのため、がん抗原を認識するターゲティング分子と²¹¹Atを別々に投与するプレターゲティング戦略が有効であると考えられている。

【実験及び結果】 我々は、ストレプトアビジンに各種アミノ酸変異を導入することによって免疫原性と内在性ビオチンへの親和性を低減した改変型ストレプトアビジン（以下、Cupid）を開発した。そしてさらにCupidに対して特異的な親和性を示すようにビオチンを改変し、高い親和性($K_d = 10^{-11}$ M)を有するビスイミノビオチン（以下、Psyche）を開発することに成功した¹。次にPsycheを²¹¹At標識するため、芳香族スズ化合物をPsycheに結合した標識前駆体を用いて検討を行った。検討の結果、0.5%の酢酸を含むメタノール中、²¹¹Atの酸化剤に0.2当量のNBSを用いた場合にPsycheを損壊することなく95%の放射化学収率で標識反応を進行させることに成功した。CEA抗原を高発現する胃がん細胞MKN45を移植したゼノグラフトマウスに抗CEA一本鎖抗体-Cupid結合体を投与し、その24時間後に²¹¹At-Psycheを投与するプレターゲティングを試みたところ、²¹¹At-Psycheの投与6時間後に25.8% ID/g、24時間後に50.0% ID/gの腫瘍集積率を達成した。さらに、治療効果を確認するため、胃がん細胞MKN45を移植したゼノグラフトマウスを用いて、腫瘍体積変化の測定を行ったところ、抗CEA抗体-Cupid結合体の投与24時間後に²¹¹At-Psycheを1.11 MBqおよび0.37 MBq投与した治療群において、放射線量依存的な腫瘍増殖抑制効果が確認された（Fig. 1）。本Cupid-Psycheシステムは、Cupidに結合させる抗体部分を変更することで、がん種に応じた治療が可能であると考えられ、進行がんの治療に向けた新しいプラットフォームになることが期待される。

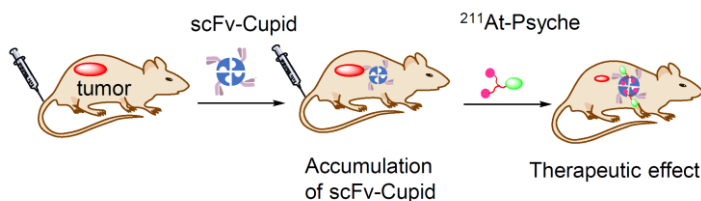


Fig. 1 Cupid & Psyche system for pre-targeting therapy

1) Sugiyama, A. et. al, *Proc. Jpn. Acad., Ser. B*, **2019**, 99, 602-611.Development of pre-targeting system using low immunogenic streptavidin mutants and ²¹¹At-labeled bis-iminobiotin

Tatsumi, T., Yamatsugu, K., Sugiyama, A., Zhao, S., Aoki, M., Nishijima, K., Ukon, N., Shimoyama, S., Gao, F., Joho, T., Oriuchi, N., Takahashi, K., Shimizu, Y., Takahashi, K., Aki, S., Kodama, T., Washiyama, K., Kanai, M.

1A03

Rn の液相回収と At のイオン液体抽出による $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ ジェネレータシステムの開発

(金沢大院自然¹、量研東海²、福島医大先端セ³、理研仁科セ⁴、金沢大理工⁵)○永井雄太¹、我那覇功也¹、西中一朗²、鷲山幸信³、殷小杰⁴、南部明弘⁴、羽場宏光⁴、横山明彦⁵)

【緒言】 ^{211}At は α 線内用療法への応用が期待される核種の一つである。 ^{211}At の半減期は 7.21 時間と服用には利用しやすい反面、加速器から離れた医療用施設での利用は困難である。この問題を解決するため、当研究グループでは親核種である ^{211}Rn から ^{211}At をミルキングして利用する、 $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ ジェネレータシステムの開発を行なっている。本研究では、迅速かつ簡便に行える湿式分離法を採用し、 ^{211}At の標識を行いやすい水相への回収を目的とした。その中で特に、近年グリーンケミストリーの観点から注目され、種類の豊富さから抽出のコントロールも行いやすいと考えられるイオン液体を用いた ^{211}At 溶媒抽出を利用することで、 ^{211}Rn の分離と水相への ^{211}At 抽出を検討した。

【実験】 ^{211}At の化学分離法を検討するため、 ^{211}At の製造及び調製について述べる。加速器を用いて α 線を照射した Bi 標的を 6M HNO_3 で溶解した後、 HNO_3 濃度を 1M に希釈した。1M HNO_3 溶液からドデカンに ^{211}At を抽出した後、0.1, 1, 3M HCl 溶液にさらに抽出した。HCl 溶液からイオン液体 1-Methyl-3-n-octylimidazolium Bis(trifluoromethanesulfonyl)imide に ^{211}At を抽出した後、0.1, 1, 3M NaOH 溶液に逆抽出した。抽出前後のドデカン、HCl 溶液、イオン液体について ^{211}At の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定した。ドデカンから HCl へ溶液の ^{211}At の逆抽出率、HCl 溶液からイオン液体への抽出率、イオン液体から NaOH 溶液への逆抽出率を求めた。

【結果】今回考案した湿式分離スキームを図 1 に示す。 ^{211}Rn から壊変した ^{211}At を使用する前に、 $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ 反応により製造した ^{211}At を用いてドデカンから NaOH 溶液に逆抽出するまでの、At 抽出率をそれぞれ確認した。その結果、ドデカンから 3M HCl 溶液の逆抽出率は $97.5 \pm 0.5\%$ 、3M HCl 溶液からイオン液体の抽出率は $91.7 \pm 0.4\%$ 、イオン液体から 0.1M NaOH 溶液の逆抽出率は $80.1 \pm 1.8\%$ となり、ドデカンに回収した ^{211}At を標識可能な 0.1M NaOH 溶液に 71.6% 回収できることがわかった。また、先行研究[1]によると $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li}, 5n)^{211}\text{Rn}$ 反応により製造した ^{211}Rn をドデカンに $82 \pm 7\%$ 回収できることがわかっており、このスキームは有用であると考えられる。実際に ^{211}Rn を用いて行った実験については、発表で詳細に議論する。

【参考文献】[1]E. Maeda *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. **303** (2015) 1465.

Development of $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ generator system via liquid phase recovery of Rn and ionic liquid extraction of At

NAGAI, Y., GANAHA, K., NISHINAKA, I., WASHIYAMA, K., YIN, X., NAMBU, A., HABA, H., YOKOYAMA, A.

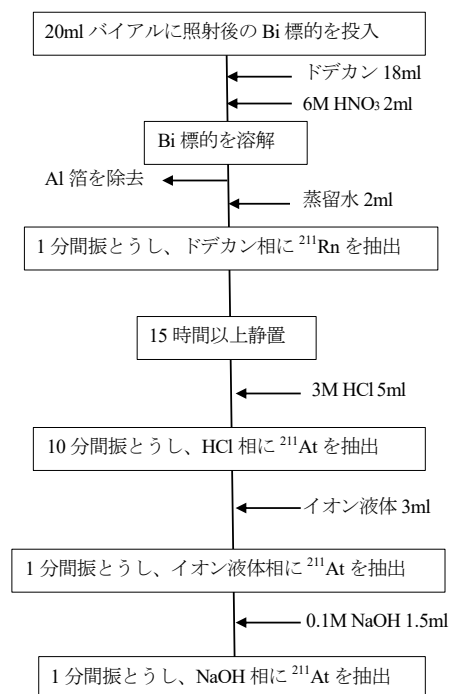


図 1 湿式分離スキーム

1A04 DIPE/HCl 系と HCl/イオン液体系の ^{211}At 溶媒抽出における線量効果について

(金沢大院自然¹、量研東海²、福島医大先端セ³、理研仁科セ⁴、金沢大理工⁵)○我那覇功也¹、永井雄太¹、西中一朗²、鷲山幸信³、殷小杰⁴、南部明弘⁴、羽場宏光⁴、横山明彦⁵

【序論】アイトープ治療に有用なアスタチン同位体として ^{211}At が注目されている。臨床応用のためには数 GBq の放射能を製造することが必要であるが、高線量ではトレーサー溶液中の At が複数の酸化状態を取ることが知られており、その結果、低線量では高い収率で標識できたものが、高線量で標識の収率が低下する事例も報告されている。この原因として、高い放射能強度の At 由来の α 線が溶媒の放射線分解を引き起こし、放射線分解により発生したラジカルが At 自身の酸化状態に影響を及ぼしていると考えられている。したがって At の化学的性質、 α 線による溶媒の放射線分解機構とその At に及ぼす影響の解明が急務である。本研究では、高い放射能強度の ^{211}At を安定的に得るために、化学状態の変化を想定して、線量が溶媒抽出に及ぼす影響について調査することを目的とした。

【実験】短寿命 RI 供給プラットフォームによる理化学研究所からの供給、または福島県立医科大学からの供給による α 線を照射した Bi ターゲットから At を塩酸へ回収した。その後、At の放射能濃度が 0.090 kBq/mL ~ 1.2 MBq/mL である塩酸を用いて DIPE/HCl 系、HCl/イオン液体(本研究では、1-メチル-3-n-オクチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミド、以下 $[\text{C}_8\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$)系の二種の系をそれぞれ 0.5 mL : 0.5 mL の体積で抽出を行い、抽出系による分配比の変化から放射線分解の効果を調査した。この際、初めに DIPE, $[\text{C}_8\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ へ抽出した時間を開始時間とし、At を溶媒中に存在させる時間を変化させることで、それぞれの溶媒の吸収線量を変化させた。

【結果】Fig.1 にはそれぞれ本研究の DIPE と $[\text{C}_8\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ の吸収線量と吸収線量が最も小さいときの分配比を 1 とした分配比の相対値を示した。一次関数でフィットしたところ、どちらも吸収線量が高い場合に分配比が減少するような線量効果が見られた。DIPE のデータにばらつきが大きく、現時点では二つの系を比較することは難しい。どちらの系に線量効果が大きいかは今後調査していく。

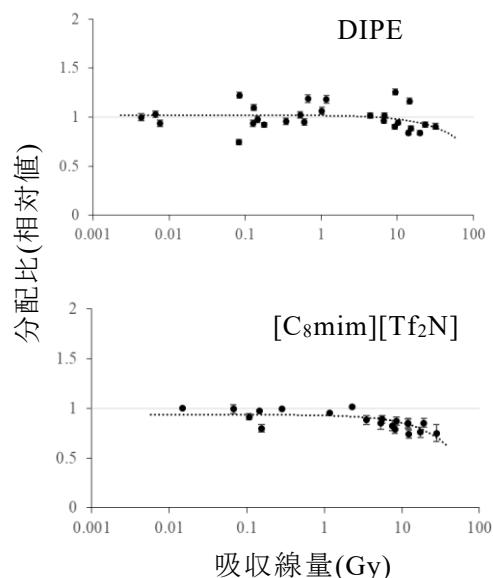


Fig.1 DIPE と $[\text{C}_8\text{mim}][\text{Tf}_2\text{N}]$ の吸収線量と分配比(相対値)の関係

Dose effects on solvent extraction of ^{211}At in the DIPE/HCl and HCl/Ionic Liquid systems
 GANAHA, K., NAGAI, Y., NISHINAKA, I., WASHIYAMA, K., YIN, X., NAMBU, A., HABA, H., YOKOYAMA, A.

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

座長: 鷲山 幸信 (福島県立医大)

2022年9月15日(木) 11:20 ~ 12:30 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[1A05-08-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A05] 胃癌腹膜播種モデルマウスを用いた ^{211}At 標識抗 FGFR4 抗体による放射線免疫療法の検討

*久下 恒明^{1,2}、増田 寛喜^{1,2}、杜 婉瑩¹、保田 智彦³、杉山 暁⁴、羽場 宏光⁵、巽 俊文⁶、秋光 信佳⁴、熊倉 嘉貴⁷、吉田 寛²、瀬戸 康之¹、和田 洋一郎⁴、野村 幸世¹ (1. 東京大学大学院 医学系研究科消化管外科学、2. 日本医科大学 消化器外科、3. 日本医科大学千葉北総病院 外科・消化器外科、4. 東京大学 アイソトープ総合センター、5. 国立研究開発法人理化学研究所 仁科加速器科学研究センター、6. 東京大学大学院 薬学系研究科、7. 埼玉医科大学医学部総合医療センター放射線科)

11:20 ~ 11:35

[1A06] 電解酸化反応を用いたチロシン上ヨウ素-アスタチン置換反応

*中川 創太^{1,2,3}、角永 悠一郎⁴、大江 一弘^{5,6}、寺本 高啓⁶、床井 健運¹、永田 光知郎^{5,6}、吉村 崇^{5,6}、羽場 宏光⁷、王 洋⁷、笠松 良崇¹、豊嶋 厚史⁶、深瀬 浩一^{1,6}、篠原 厚^{6,8} (1. 阪大院理、2. 名大院医、3. 国がん 先端医療開発セ、4. 阪大院医、5. 阪大RIセ、6. 阪大放射線機構、7. 理研、8. 大阪青山大学)

11:35 ~ 11:50

[1A07] アスタチン化学種の薄層クロマトグラフィー

*西中 一朗¹、橋本 和幸² (1. 量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所、2. 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所)

11:50 ~ 12:05

[1A08] ルテチウム-177を用いた核医学治療薬～病院臨床の実際と日本放射化学会に寄せる期待～

*高野 祥子¹ (1. 横浜市大放治)

12:05 ~ 12:30

(2022年9月15日(木) 11:20 ~ 12:30 A会場)

[1A05-08-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1A05 胃癌腹膜播種モデルマウスを用いた腹膜播種に対する²¹¹At 標識抗 FGFR4 抗体による放射線免疫療法の検討

(東大医学系研究科消化管外科学¹、日医大消化器外科²、日医大千葉北総病院³、東大アイソトープ総合センター⁴、東大薬学系研究科⁵、理研仁科加速器研究センター⁶、埼玉医大放射線科⁷)○久下恒明^{1,2}、杜婉瑩¹、増田寛喜^{1,2}、保田智彦^{1,3}、杉山暁⁴、巽俊文⁵、羽場宏光⁶、瀬戸康之¹、吉田寛²、秋光信佳⁴、和田洋一郎⁴、野村幸世¹

【緒言】胃癌は世界で最も一般的な癌腫の一つであるが、進行するにつれしばしば腹膜播種をきたす。しかし現時点で腹膜播種に対する効果的な治療法はなく、そのため腹膜播種を伴った胃癌の予後は非常に悪い。最近、腹膜播種に対する新たな治療法として放射線免疫療法が注目されている。これは腫瘍に関連した抗原に対する抗体に放射性同位元素を標識して投与することにより、腫瘍に特異的に到達させるものである。その中で α 線は飛程が短く、高 LET の放射線を放出する特性から、特に播種や微小転移などの治療により適していると期待されている。 α 線を放射する核種のうち²¹¹At は半減期が約 7.2 時間と短く、安全性も高いと考えられる。

一方、我々は、免疫コンピテントなマウスに移植可能なマウス胃癌細胞 YTN を世界で初めて樹立し、実験に供している。このうち YTN16 は線維芽細胞成長因子受容体 4 (FGFR4) を高発現しており、²¹¹At と抗 FGFR4 抗体を Conjugate し腹膜播種モデルマウスに投与することで、胃癌腹膜播種の α 線内照射療法の治療実験を免疫コンピテントなマウスを用いて行うことが可能と考えた。これまでも腹膜播種に対する放射線免疫療法の有効性を示す報告はいくつか存在するものの、いずれもヌードマウスを中心に行われており、免疫能を有するマウスでの放射線免疫療法の報告はない。今回 C57BL/6 マウスを用いた胃癌腹膜播種モデルで放射線免疫療法の有効性を検証する。

【実験】C57BL/6 マウスに対し、YTN16 1.0×10^7 個を腹腔内投与し胃癌の腹膜播種モデルマウスを作成した。YTN16 投与 3 週間後に²¹¹At (1.0MBq)を腹腔内、静脈内及び胃内に、抗 FGFR4 抗体と結合させた²¹¹At (1.0MBq)を腹腔内、静脈内にそれぞれ投与した。4.5 時間後、16 時間後、23 時間後に各臓器への放射能の集積を γ カウンターで測定した。

その結果、腹膜への²¹¹At の集積は、投与経路別では静脈内や胃内投与より腹腔内投与の方が高かった。また、5 つの群のうち抗 FGFR4 抗体結合²¹¹At を腹腔内投与した群で最も効率的に腹膜へ集積した。

抗 FGFR4 抗体を結合させることで²¹¹At がより効率的に腹膜播種へ集積させることができ、抗 FGFR4 抗体結合²¹¹At による放射線免疫療法は胃癌腹膜播種に対する有効な治療法の選択肢となり得る。

The efficacy of astatine-211-labeled anti-fibroblast growth factor receptor 4(FGFR4) antibody on dissemination of gastric cancer in immunocompetent mice
Kuge K, Masuda H, Du W, Yasuda T, Sugiyama A, Haba H, Tatsumi T, Akimitsu N, Kumakura Y, Yoshida H, Seto Y, Wada Y, Nomura S

1A06

電解酸化反応を用いたチロシン上ヨウ素-アスタチン置換反応

(阪大院理¹、名大院医²、国がん先端医療開発セ³、阪大院医⁴、阪大RIセ⁵、阪大放射線機構⁶、理研⁷、大阪青山大⁸) ○中川創太^{1,2,3}、角永悠一郎⁴、大江一弘^{5,6}、寺本高啓⁶、床井健運¹、永田光知郎^{5,6}、吉村崇^{5,6}、羽場宏光⁷、王洋⁷、笠松良崇¹、豊嶋厚史⁶、深瀬浩一^{1,6}、篠原厚^{6,8}

【緒言】アスタチン-211(²¹¹At)は核医学治療への利用が期待される放射性同位元素である。核医学治療の為には分子標的薬に²¹¹Atを標識することが重要であるが、分子標的薬の一つである α -メチル-L-チロシンへの²¹¹At標識法には毒性の高い有機金属等を用いる方法しかなく、新たな標識法の開発が望まれる。そこで本研究では電解酸化反応に着目した。Atは複数の酸化数を取り多様な化学種を形成するため、反応には化学種の制御が重要である。本研究では様々な印加電圧や溶液条件下で²¹¹Atの電解酸化反応を詳細に調べ、反応性の高い²¹¹At化学種を生成することでチロシンに²¹¹Atを標識する新たな方法の開発を行った。

【実験】²⁰⁹Bi($\alpha, 2n$)²¹¹At反応によって²¹¹Atを製造し、乾式蒸留法による²⁰⁹Bi標的からの分離後、蒸留水に溶解して²¹¹Atストック溶液を得た。ストック溶液にNaCl、HCl、NaIを添加して990 mM NaCl/10 mM HCl/100 mM NaI溶液とした。電解には微量の物質の電解に適したフロー型電解装置を用いた[1]。電解装置に500-1000 mV(vs Ag/AgCl)の電圧を印加し、990 mM NaCl/10 mM HClを流速50 μ L/minで流し²¹¹Atストック溶液を20 μ L注入して電解酸化を行った。溶出液を α -メチル-L-チロシンを模擬したN-アセチル-L-チロシンと混合し、最終溶出液を捕集してHPLCで分析することで²¹¹Atの標識化を評価した。

【結果と考察】図1(a)(b)に、印加電圧700 mVおよび900 mVでの最終溶出液、また図(c)にN-アセチル-3-ヨード-L-チロシンのHPLCクロマトグラムを示す。有機物のヨウ素化体とアスタチン化体は近い溶離時間を持つため、図1(b)のピークの化合物はN-アセチル-3-アスタト-L-チロシンだと考えられる。その放射化学純度は89 \pm 8%であった。一方、印加電圧700 mVでは該当ピークの放射化学純度は22 \pm 2%であった。これらの違いから、900 mV付近で²¹¹Atの状態が変化し標識されたことが分かる。さらに反応機構の詳細な検討を行った結果、本反応は中間体として生成したN-アセチル-3-ヨード-L-チロシン上のヨウ素と²¹¹Atの置換反応により進行することが明らかになった。

【参考文献】[1] A. Toyoshima et al., J. Am. Chem. Soc. **131**, 9180-9181 (2009).

Iodine-astatine substitution reaction on tyrosine using electrolytic oxidation reaction
NAKAGAWA S., KADONAGA Y., OOE K., TERAMOTO T., TOKOI K., NAGATA K., YOSHIMURA T., HABA H., WANG Y., KASAMATSU Y., TOYOSHIMA A., HUKASE K., SHINOHARA A.

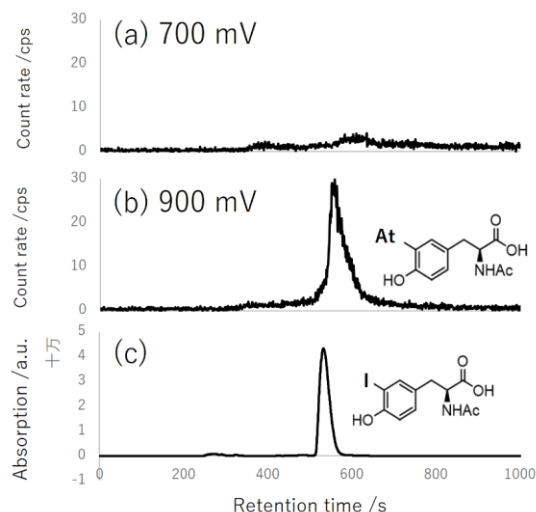


図1. HPLC クロマトグラム

(a)700 mV(b)900 mV を印加した際の溶出液のNaI放射線検出器による分析
(c)N-アセチル-3-ヨード-L-チロシンのUV-vis 吸光分析

1A07

アスタチン化学種の薄層クロマトグラフィー

(量研東海¹、原子力機構²)○西中一朗¹、橋本和幸²

【緒言】

α 放射性RI標識薬剤による標的アイソトープ治療が新しいがん治療として注目されている。この α 標的アイソトープ治療での利用が期待されているアスタチンは、同じハロゲン元素のヨウ素と異なる化学特性を示すことが現象的に知られているが、何に起因しているのか分かっていない。アスタチン標識薬剤の合成や体内での安定性の観点からも、アスタチンの化学特性を理解することが重要である。先行研究^{1),2)}では、薄層クロマトグラフィーにより、アスタチンの安定な化学種は、 At^- 、 AtO_3^- 、 AtO_4^- であること、また、これらのアスタチン化学種は、対応するヨウ素化学種に比べて、容易に酸化、還元されることを明らかにした。本研究発表では、展開溶媒や、酸化剤と還元剤によって、 At^- 、 AtO_3^- 、 AtO_4^- の存在率が変化することを詳細に調べることで新たに分かったアスタチンの化学特性について報告する。

【実験】

原子力機構タンデム加速器で、60 MeV $^7\text{Li}^{3+}$ イオンを鉛と錫の薄膜標的に照射して、核反応 $^{\text{nat}}\text{Pb}(^7\text{Li},\text{xn})^{207-211}\text{At}$ 、 $^{\text{nat}}\text{Sn}(^7\text{Li},\text{xn})^{119-126}\text{I}$ によって、アスタチンとヨウ素のRIを製造した^{3),4)}。簡易乾式分離法によって、金属標的からそれぞれのRIを熱分離、精製し、1.8 mlのエタノールあるいは水を溶媒として、RIトレーサー溶液を調製した^{1)-3),5)}。アスタチン水溶液については、酸化剤 KIO_4 、還元剤 Na_2SO_3 、 H_2H_4 を加えた溶液を調製した。調製した試料溶液2-5 mlを、12×2 cmのシリカゲルプレート(Merck Silica gel 60 F354 aluminum sheet)の上で、3種類の溶媒(エタノール/水、エタノール/アンモニア、メタノール/クロロホルム)で約8 cm展開して、薄層クロマトグラフ分析した。分析後乾燥したシリカゲルプレートの放射能分布をイメージングプレートで撮像した。

【結果と考察】

ヨウ素とアスタチンのイメージングプレート画像の一部を図に示す。分離された成分の R_f 値と強度を求めた。 R_f 値から、ヨウ素の化学形は I^- ($R_f=0.75-0.94$)であり、アスタチンは At^- ($R_f=0.68-0.87$)、 AtO_3^- ($R_f=0.52-0.71$)、 AtO_4^- ($R_f=0$)であることを確認した。くわえてアスタチン化学種については、展開溶媒によって化学種の存在率が大きく異なるものがあることを観測した。この観測結果からクロロホルムあるいはアンモニアとの相互作用によるアスタチンに特有な化学特性を新たに見出した。

【参考文献】

- 1) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 318(2018)897-905.
- 2) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 322(2019)2003-2009.
- 3) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 304(2015)1077-1083.
- 4) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 314(2017)1947-1965.
- 5) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 327(2021)869-875.

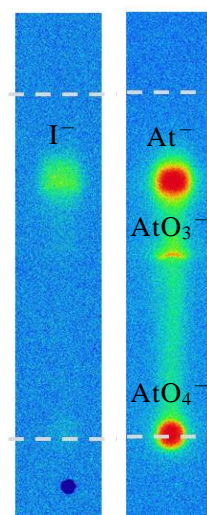


図 画像

分析試料：エタノール溶液
展開溶媒：メタノール/クロロホルム

Thin layer chromatography for astatine chemical species
NISHINAKA I., HASHIMOTO K.

1A08

ルテチウム-177 を用いた核医学治療～病院臨床の実際と日本放射化学会に寄せる期待

(横浜市立大学大学院医学研究科放射線治療学¹) ○高野祥子¹

【緒言】近年、核医学治療と呼ばれる医学分野が急速に発展し、臨床応用が拡大している。核医学治療とは、放射性核種を含む腫瘍特異的な薬剤を患者体内に投与することで、放射性核種を腫瘍に集積させ、腫瘍内部から放射線照射を行い、がん細胞などの縮小・消滅を狙う放射線治療の一種である。古くは1930年代から放射性元素そのものの生体内での代謝を利用した治療として、甲状腺疾患に対する放射性ヨウ素の内服などが行われてきたが、2000年代に入り腫瘍特異的な低分子化合物に、キレートと金属核種を付加する薬剤開発手法が多用されるようになり、急激にその研究と臨床応用が進んだ。

この腫瘍特異的な低分子化合物とキレート・金属核種を組み合わせる最大の利点は、金属核種の部分だけを、診断用の γ 核種やPET核種に替えることで、標的の分布を可視化し、治療効果や副作用の予測を可能にすることができることである。

(=Radio-theranostics) Radio-theranostics を指向した薬剤のうち、近年の治療薬の代表格が、Lu-177 (ルテチウム 177) を用いた Peptide Receptor Radionuclide Therapy; PRRT (ペプチド受容体核医学治療) である。PRRT の対象疾患である神経内分泌腫瘍は、腫瘍細胞表面にソマトスタチン受容体を過剰発現する性質があり、この受容体特異的なペプチド (ソマトスタチンアナログ) と Lu-177 を、キレートを用いて結合させた標的薬剤を静脈注射することで、治療が行われる。

【病院における臨床導入までの道のり】PRRT 製剤は、欧州で多くの種類が開発され、1990年代から臨床応用が開始された。2000年代には、多くの臨床実績が報告され、欧米ではガイドライン上で治療選択肢の一つと位置付けられるまでの治療法となったが、本邦ではなかなかその導入が進まなかった。原因は放射性物質に対する法規制である。当時医薬品として承認される前段階の放射性薬剤に対する規制は、ヒトへの投与を行うには適さず、また薬剤投与後の患者さんを安全に管理するための放射線治療病室は建設費や維持費に対する病院負担感が強く、緊迫した不足状態にあった。長年の多くの困難を経たが、PRRT 製剤の一つ Lu-177 DOTATATE は、2021年9月遂に本邦でも薬事承認を得て、現在は一般臨床として多くの患者さんの福音となっている。

本講演では、これまでの経緯と現在の病院臨床の実際、問題点などに触れながら、日本放射化学会に医療現場から期待することをお伝え出来ればと思う。

Radionuclide therapy using Lutetium-177: Clinical Practice in Hospitals and Expectations for the Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences
TAKANO S.

部会 | 部会

核化学部会

座長: 豊嶋 厚史 (阪大)

2022年9月15日(木) 13:10 ~ 13:40 A会場 (小柴ホール)

[Zoomはこちら](#)

特別セッション 核医学の礎を担う放射化学の新展開 | 特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

座長: 石岡 典子 (QST)

2022年9月15日(木) 13:45 ~ 14:25 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[1A09-10-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A09] Cu-64創薬最前線

*吉井 幸恵¹ (1. 量子科学技術研究開発機構)

13:45 ~ 14:10

[1A10] 標的 α 線治療における遊離²²⁵Ac除去に関する錯体化学的検討

*品田 光洋^{1,2}、吉本 光喜³、吉井 幸恵²、松本 博樹²、高橋 正²、五十嵐 千佳²、檜原 扶紀子²、立花 知子²、土井 あやの³、東 達也²、藤井 博史³、鷲山 幸信⁴ (1. 東邦大学大学院 理学研究科、2. 量子科学技術研究開発機構、3. 国立がん研究センター東病院 機能診断開発分野、4. 福島県立医科大学 先端臨床研究センター)

14:10 ~ 14:25

(2022年9月15日(木) 13:45 ~ 14:25 A会場)

[1A09-10-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1A09

Cu-64 創薬最前線

(量子科学技術研究開発機構)○吉井幸恵

【緒言】

がんは死因第一位を占める疾患で有効な診断法・治療法の開発が求められている。我々はこれまでに放射性核種である ^{64}Cu に注目し、がんの新しい診断・治療法を開発してきた。 ^{64}Cu は PET で検出できる陽電子放出核種であると同時に、がん細胞に障害を与える β^- 線・オージェ電子を放出する核種でもあるため、PET イメージングのみならず、内照射治療目的にも使用できる。本講演では我々が現在行っている ^{64}Cu 標識薬剤の最新研究をご紹介します。

【日本発放射性薬剤 ^{64}Cu -ATSM による悪性脳腫瘍に対する革新的治療法】

悪性脳腫瘍は現在、再発した場合の有効な治療法が乏しく、新規治療法が開発が望まれる。既存治療法が奏功しない原因として、腫瘍内部が低酸素化し治療抵抗性になることが知られる。これに対し我々は、低酸素化した腫瘍に高集積し治療効果を発揮する放射性薬剤 ^{64}Cu -ATSM を開発している。これまでに、 ^{64}Cu -ATSM が悪性脳腫瘍に対し高い治療効果を有することを非臨床試験で示してきた。また、非臨床毒性試験を実施し、本薬の治療薬としての安全性を確かめてきた。さらに、PET 臨床研究においては、 ^{64}Cu -ATSM が患者の悪性脳腫瘍に高集積することが示されている。こうした背景から我々は、 ^{64}Cu -ATSM を治療目的で、世界で初めて人へ投与するファースト・イン・ヒューマン試験として、悪性脳腫瘍患者を対象とした第 I 相臨床試験を開始した。本講演では、本試験の開発プロセスと概要につき説明したい。

【膵がんの早期診断・早期治療を可能にする ^{64}Cu 標識放射性抗体の開発】

膵がんは、最も生存率が低い難治がんの一種で、予後改善のために早期診断法が開発が望まれる。特に、1cm 未満の早期膵がんの発見・治療はより高い生存延長効果が得られると報告されており、非常に重要である。近年、血液バイオマーカーによる早期膵がん患者スクリーニング法が世界各国で臨床開発され、実用化しつつある。しかし、現状の画像診断法では 1cm 未満の早期膵がんの膵臓内での位置を明らかにできず、適切な治療計画を策定することは困難である。これに対し我々はこれまでに、多くの膵がんに過剰発現する EGFR に対する抗体を ^{64}Cu で標識した放射性抗体を開発し、マウス非臨床試験より本薬を腹腔投与することで、従来法の静脈投与に比べ、膵がんを高集積させられることを明らかにすると共に、従来法 (FDG-PET 等) では検出できない 3mm~1cm の早期膵がんを明瞭に描出できることを明らかにした。本講演では、本研究の概略と展望をお話したい。

Frontline of development for Cu-64 radiopharmaceuticals
YOSHII Y.

1A10

標的 α 線治療における遊離 ^{225}Ac 除去に関する錯体化学的検討

(QST¹、東邦大院理²、国立がんセンター東病院³、福島医大⁴)○品田光洋^{1,2}、吉本光喜³、吉井幸恵¹、松本博樹¹、高橋正¹、五十嵐千佳¹、檜原扶紀子¹、立花知子¹、東達也¹、藤井博史³、鷲山幸信⁴

【背景および目的】 ^{225}Ac を用いた標的 α 線治療のin vivo研究では、薬剤から遊離した ^{225}Ac が主に肝臓に蓄積され、予期しない毒性を引き起こす可能性があるとして複数の基礎研究から報告されている。様々な薬剤を使用した ^{225}Ac TATの今後の臨床開発を加速させるためには、遊離 ^{225}Ac による予期しない毒性に対処する方法を準備することも必要である。本研究では、遊離した ^{225}Ac を排出するために様々なキレート剤のin vivoでの効果を比較し、実現可能性を評価した。

【実験】9つの候補キレート剤(D-penicillamine、dimercaprol、Ca-DTPA、Ca-EDTA、CyDTA、GEDTA、TTHA、Ca-TTHA および DO3A)をin vitro およびin vivoで評価した。遊離 ^{225}Ac の生体内分布と線量測定をin vivoキレート実験前にマウスで調べた。 ^{225}Ac (10 kBq/mouse)をマウスに静脈内投与し、1時間後に未処理のコントロールマウスを除いてキレート剤(原則 150 mg/Kg)溶液で処理し、4時間後の ^{225}Ac の分布を測定した。

【結果と考察】4時間後の放射能分布の結果から、特に有意な差が得られた肝臓及び尿の ^{225}Ac 活性の生体内分布の違いの図を示した。Ca-DTPA、Ca-EDTA、GEDTA、TTHA、およびCa-TTHAが ^{225}Ac の肝臓取り込みにおける減少を示した。また、 ^{225}Ac の尿中排泄は、Ca-DTPA、TTHA および Ca-TTHA で有意に促進された。これらの結果からCa-DTPA および Ca-TTHA が優れていることが分かった。Ca-DTPA および Ca-TTHA の24時間後の放射能分布は、マウス生体内で肝臓での遊離 ^{225}Ac の保持をそれぞれ22%、30%と大幅に減少させた。これらのキレート剤のうち、Ca-TTHA で全身臓器でのより高い ^{225}Ac 減少傾向が観察され、心臓、肺、腎臓、脾臓等の臓器でも ^{225}Ac の有意な減少が観察された。さらに、これらのキレート剤の使用により除去された ^{225}Ac は、尿・糞として排泄されることも明らかになった。これらの結果から5つまたは6つのカルボキシ基を有するアミノポリカルボン酸キレート剤であるCa-DTPA および Ca-TTHA が全身クリアランスに効果的であることがわかった。

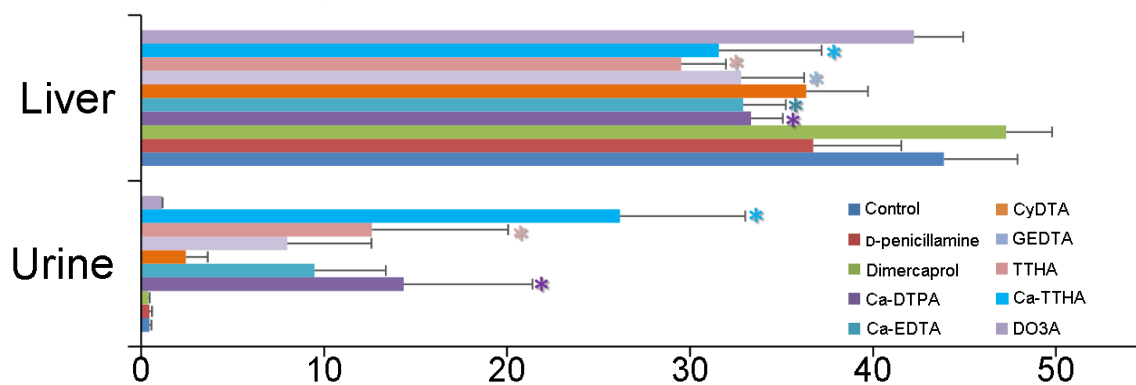


図 1: 肝臓と尿の% ID / g

Coordination chemical study on free ^{225}Ac removal in targeted alpha therapy

SHINADA, M., YOSHIMOTO, M., YOSHII, Y., MATSUMOTO, H., TAKAHASHI, M., IGARASHI, C., HIHARA, F., TACHIBANA, T., FUJII, H., and WASHIYAMA, K.

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

座長: 豊嶋 厚史 (阪大)

2022年9月15日(木) 14:35 ~ 15:45 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[1A11-14-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A11] 阪大 RCNPにおける RI大量製造のための加速器施設のアップグレード

*福田 光宏¹ (1. 大阪大学核物理研究センター)

14:35 ~ 15:00

[1A12] 精密質量測定による新同位体²⁴¹Uの同定

*庭瀬 暁隆¹、渡辺 裕¹、平山 賀一¹、向井 もも²、Schury Peter¹、Andreyev Andrei³、飯村 俊⁴、石山 博恒²、鄭 淳讚¹、宮武 宇也¹、Rosenbusch Marco¹、谷口 秋洋⁵、和田 道治¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構、2. 理研仁科センター、3. ヨーク大、4. 立教大、5. 京大複合研)

15:00 ~ 15:15

[1A13] ²³²Th+⁷Li核反応によって生成する U同位体の ICP-MSによる定量

*永井 歩夢¹、細川 浩由¹、中島 朗久²、坂口 綾²、南部 明弘³、重河 優大³、羽場 宏光³、横山 明彦⁴ (1. 金沢大学大学院自然科学研究科、2. 筑波大学数理物質系、3. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、4. 金沢大学理工研究域)

15:15 ~ 15:30

[1A14] 超重元素原子科学研究に向けた電子ビーム誘起プラズマ(EBGP)イオン源の開発

*青木 涼太^{1,3}、佐藤 哲也^{1,3}、内馬場 優太^{1,3}、宮地 優太^{2,3}、Gong Gyeongmin^{1,3}、名取 日菜^{2,3}、伊藤 由太³、浅井 雅人³、塚田 和明³、永目 輸一郎³ (1. 茨城大院理工、2. 茨城大理、3. 原子力機構先端研)

15:30 ~ 15:45

(2022年9月15日(木) 14:35 ~ 15:45 A会場)

[1A11-14-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1A11

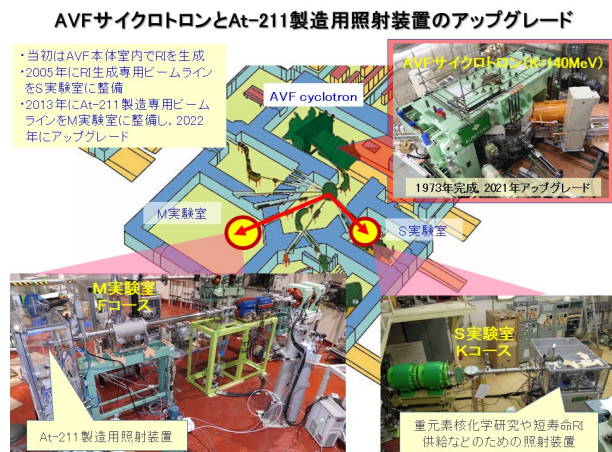
阪大 RCNP における RI 大量製造のための加速器施設のアップグレード

(大阪大核物理研究センター¹、大阪大学放射線科学基盤機構²) ○福田光宏¹、依田哲彦¹、神田浩樹¹、安田裕介¹、豊嶋厚史²、今教禎²

【緒言】 大阪大学核物理研究センターは、1971年に全国共同利用センターとして発足し、1973年に AVF サイクロトロン (K=140MeV) が完成して 1976 年から共同利用実験を開始した。1991 年には後段のリングサイクロトロン (K=400MeV) が完成し、数 MeV から 400MeV までの幅広い加速エネルギー範囲の陽子ビームなどを供給できるようになった。2018 年には国際共同利用・共同研究拠点に認定され、国内外に開かれた加速器施設としてより一層他機関との連携を強めながら多様な分野での研究開発にイオンビームを供給している。2005 年に RI 製造専用ビームラインを整備し、核化学研究のビームタイムも定期的に確保されるようになった。さらに 2013 年には At-211 製造専用ビームラインも増設し、2018 年には年間の RI 生成ビームタイムが 600 時間を超えるまでに増加している。2016 年には阪大 RCNP が幹事機関となって理研 RIBF、東北大 CYRIC・ELPH、量研量医研・高崎研の加速器施設が連携した短寿命 RI 供給プラットフォームが立ち上がり、科研費を獲得した基礎研究などへの短寿命 RI の供給も開始した。近年、多様な分野での RI 利用研究の裾野が広がり、とりわけ At-211 を用いたアルファ線核医学治療に関わる研究開発が急激に発展してきたことから、2019 年度より短寿命 RI の安定供給と大量製造なども目標の一つとした AVF サイクロトロンのビーム強度増強と RI 取扱設備等の更新を進めている。

【加速器施設のアップグレード】 加速器施設の共用を開始して以来 50 年近く経過し、加速器及び建屋設備の老朽化が著しくなってビームの安定供給が困難になってきたこと、一方で RI の大量製造や二次粒子 (中性子やミュオン) ビームの高強度化などの要求も年々強まってきたことから、2019 年 2 月にサイクロトロンの運転を停止し、加速器施設のアップグレード工事に着手した。イオンビームの高強度化を図るため、イオン源の加速電圧を 50kV 以上まで高めただけでなく、AVF サイクロトロンの本体電磁石以外の構成機器を全て更新し、高強度ビームの入射・加速・引出しの効率を大幅に向上させるためのアップグレードを実施した。建屋においては、ビーム強度増強に対応するように遮蔽壁を増設しただけでなく、老朽化した排水・空調設備や本体室・実験室等の内装も更新した。また、核化学・核医学用セミホットラボなども更新し、At-211 をはじめとした短寿命 RI の大量製造に最適な実験環境を整備した。

【ビームコミッショニング】 2022 年 4 月中旬に 65MeV 陽子ビームの取り出しに成功し、5 月上旬に施設検査に合格した後は本格的なビームコミッショニングを進めている。これまでに陽子 65MeV、⁴He²⁺ 29MeV の加速を行い、ビームライン機器や実験装置の立ち上げも兼ねた試験的なビーム供給も始めている。



Upgrade of the RCNP accelerator facility for RI mass production
FUKUDA M., YORITA T., KANDA H., YASUDA Y., TOYOSHIMA A., KON Y.

1A12

精密質量測定による新同位体 ^{241}U の同定

(高エネルギー加速器研究機構¹、理研仁科センター²、ヨーク大³、立教大⁴、京大複合研⁵) ○庭瀬 暁隆¹、渡辺 裕¹、平山 賀一¹、向井 もも²、Peter Schury¹、Andrei Andreyev³、飯村俊⁴、石山博恒²、鄭 淳讚¹、宮武宇也¹、Marco Rosenbusch¹、谷口秋洋⁵、和田道治¹

原子核の質量は、その構成物である陽子や中性子の質量の総和から常に1%程度軽い。この差は原子核の全結合エネルギーに相当し、核の安定性を決定する指標となるかつ、核子間相互作用を議論する際の重要な鍵となる物理量である。網羅的な質量測定は原子核の構造に関する実験的な理解を深めると同時に、安定の島や天体での元素合成過程といった、極限領域原子核の性質解明へ向けた重要な知見を与える。

これまでに数多くの原子核の質量が測定されてきたが、中性子過剰アクチノイド核は融合反応や核破砕反応といった従来の不安定核合成手法ではアクセスが難しく、未発見・未測定核種が未だ多く存在する。入射核と標的核間の相互作用によって、入射・標的核の近傍核種を生成する多核子移行反応はこれらの核種を能率的に生成する実現性を持った原子核反応である。

KEK 元素選択型同位体分離装置 KISS[1] は、多核子移行反応によって生成される中性子過剰核を、レーザー共鳴イオン化と分析磁石によって特定の原子番号と質量数の核種を選択し分光測定を行う装置群である。理研リングサイクロトロンによって供給される重イオンビームと KISS との組み合わせにより、これまでに我々は N=126 近傍核種の β - γ 線分光やレーザー核分光測定に成功をしてきた。近年、多重反射型飛行時間測定式質量分光器 MRTOF[2] を KISS 後段へと設置し、多核子移行反応で生成される核種の直接質量測定実験へ向けた準備を進めてきた。

本研究では $^{238}\text{U}+^{198}\text{Pt}$ 系によって生成された入射核様の多核子移行反応生成物を KISS-MRTOF を用いて質量測定を行った。実験セットアップを図 1 に示す。実験の結果、新同位体 ^{241}U を含む総計 12 核種の中性子過剰アクチノイド核の精密質量測定に成功した。本講演では実験の詳細と結果について報告を行う

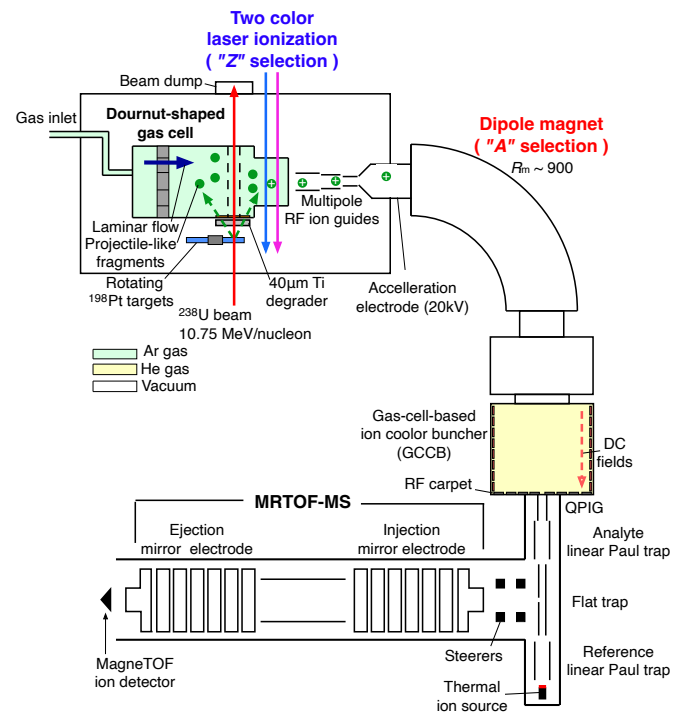


図 1. KISS-MRTOF の実験装置概略図

【参考文献】

- [1] Y. Hirayama et al., Nucl. Instrum. Meth. B 353, 4-15 (2015).
 [2] P. Schury et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. B, 335 (2014) 39.

Identification of new isotope ^{241}U from precise mass measurement

NIWASE, T., WATANABE, Y. X., HIRAYAMA, Y., MUKAI, M., SCHURY, P., ANDREYEV, A. N., IIMURA, S., ISHIYAMA, H., JEONG, S. C., MIYATAKE, H., ROSENBUSCH, M., TANIGUCHI, A. WADA, M.

1A13

 $^{232}\text{Th}+^7\text{Li}$ 核反応によって生成する U 同位体の ICP-MS による定量(金沢大院自然¹、筑波大数理²、理研仁科セ³、金沢大理工⁴)○永井 歩夢¹、細川 浩由¹、中島 朗久²、坂口 綾²、南部 明弘³、
重河優大³、羽場 宏光³、横山明彦⁴

【序論】 核実験等のため環境中に微量に存在する ^{237}Np ($T_{1/2}=2.1 \times 10^6$ y) は、放射能による測定が困難であり、加速器質量分析(AMS)による質量分析にはそのためのトレーサーが必要である。著者らの研究グループでは、トレーサーの候補である $^{236\text{m}}\text{Np}$ ($T_{1/2}=1.5 \times 10^5$ y) の製造を $^{232}\text{Th}+^7\text{Li}$ 核反応によって試みている。この核反応の副生成物である $^{236\text{m}}\text{Np}$ が壊変し生成する ^{236}U , ^{236}Pu は $^{236\text{g}}\text{Np}$ のトレーサー利用の妨害となる。また、不完全融合反応によっても U 同位体は生成され、妨害核種となりうる。このようなトレーサー核種の同重体は、長寿命核種であり放射線での定量が困難となる。一方、高精度な同位体分析が可能である高分解能 ICP 質量分析計(HR-ICP-MS)によって定量可能と考えた。本研究では Th ターゲット中の U 同位体と核反応によって生成される U 同位体について HR-ICP-MS による定量を行いトレーサーの有用性について検討する。

【実験】 ターゲットとして用いる 2 枚の ^{232}Th foil の一部(3.64, 2.44 mg)を切り取って溶解し、HR-ICP-MS を用いて照射前のターゲット中に不純物としてある U 同位体の定量を行った。理化学研究所 AVF サイクロトロンにて ^{232}Th foil を 2 枚(25.46, 27.06 mg)重ねたターゲットに 43 MeV ^7Li イオンを約 8 時間照射した。照射した Th ターゲットを溶解し、UTEVA レジンを用いて化学分離を行った U 成分を希釈し HR-ICP-MS を用いて U 同位体の定量を試みた。測定対象として ^{232}Th , ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U を選び、検量線溶液には XSTC-13 (SPEX 社)を用いた。

【結果】 HR-ICP-MS を用いて測定した未照射 Th ターゲット中の ^{238}U 濃度は、各々 0.148 ± 0.004 , 0.116 ± 0.011 mg/g であった。 ^{235}U は天然存在比で存在し、他の U 同位体は検出限界以下であった。Th ターゲット中の ^{235}U が照射場の中性子を吸収し生成される ^{236}U の生成量は目的である $^{236\text{g}}\text{Np}$ に対して約 10^{-7} 倍であった。このことから中性子による妨害核種の影響は小さいと言える。また、Figure 1 に示した照射後の Th ターゲット中の U 同位体比から ^{233}U , ^{234}U が天然存在比を大きく超えており、核反応による生成が確認された。今後、生成反応断面積を求める方向で進めていく。

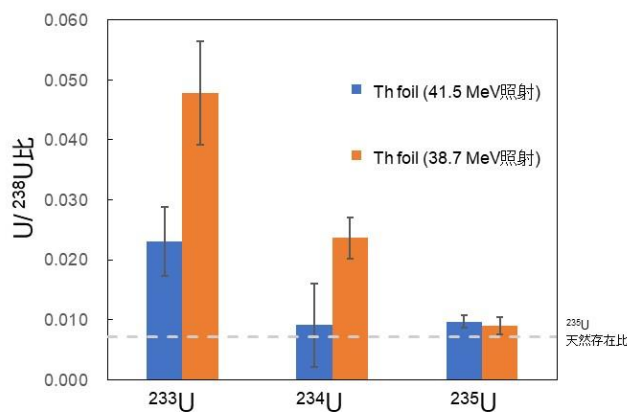


Figure 1 照射後の Th ターゲット中の U 同位体比

Determination of U isotopes produced in the nuclear reaction of $^{232}\text{Th}+^7\text{Li}$ by ICP-MS

NAGAI, A., HOSOKAWA, H., NAKAJIMA, A., SAKAGUCHI, A., NAMBU, A., SHIGEKAWA, Y., HABA, H., YOKOYAMA, A.

1A14

超重元素原子科学研究に向けた 電子ビーム誘起プラズマ(EBGP)イオン源の開発

(茨城大院理工¹、茨城大理²、原子力機構先端研³)

○青木涼太^{1,3}、佐藤哲也^{1,3}、内馬場優太^{1,3}、宮地優太^{2,3}、
Gong Gyeongmin^{1,3}、名取日菜^{2,3}、伊藤由太³、浅井雅人³、
塚田和明³、永目諭一郎³

原子番号が 100 を超える超重元素は、加速器を用いた重イオン核反応によって合成される。合成される同位体はすべて短寿命・低生成量であり、一度に一個ないし数個の原子しか扱うことができない実験の難しさから、その化学的性質はよくわかっていない。我々は、超重元素イオンビームを物理・化学研究に応用するため、短寿命単一原子に適用可能な新しいイオン源の開発をおこなっている。

開発したイオン源には、重アクチノイドなどを主なイオン化対象とした従来の表面電離法よりも、より広い範囲の原子あるいは分子に適用できる電子ビーム誘起プラズマ(Electron Beam Generated Plasma, EBGP)法¹⁾を採用した。

本研究で構築したガスジェット結合型 EBGP イオン源の模式図を図 1 に示す。本イオン源では、グリッド構造を持つ円筒形アノード電極を中央に配置した。アノード電極をカソード電極が覆い、さらに2つのフィラメントが取り囲む構造となっている。アノード電極内には、カソード電極内部表面から発生した熱電子が、カソード-アノード間の電位差によって加速され、円筒軸方向に向かって入射される。核反応によって合成した核反応生成物は、He/CdI₂ ガスジェット搬送法²⁾によってアノード電極内に導入される。アノード電極内部をイオン化室として、電子衝撃によって核反応生成物がイオン化される。

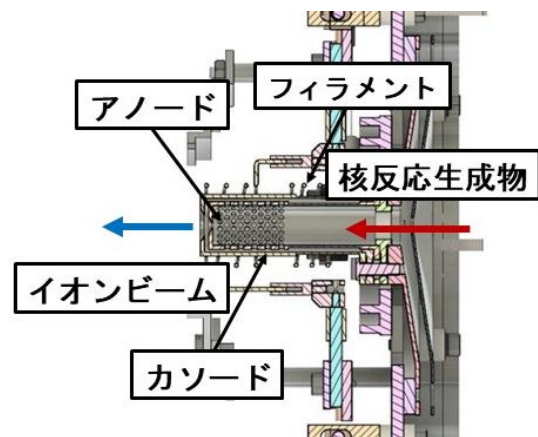


図 1. 本研究で開発したガスジェット結合型 EBGP イオン源概略図

実験では、本 EBGP イオン源を、テストベンチおよびオンライン同位体分離器(Isotope Separator On-Line, ISOL)に装着し、各種貴ガスまたは CdI₂ 等を用いて、イオンビーム生成条件を調べた。その結果、イオン源が安定して動作することを確認するとともに、イオンビームの生成を確かめた。発表では、EBGP イオン源のイオンビーム発生のための最適動作条件ならびに今後の展望について報告する。

【参考文献】

- 1) J. M. Nitschke, Nucl. Instrum. Method A 236 (1985) 1-16.
- 2) T. K. Sato et al. J. Radioanal. Nucl. Chem. 303 (2015) 1253 – 1257.

Development of an Electron-Beam-Generated-Plasma (EBGP) ion source for study of atomic and chemical properties of superheavy elements

AOKI, R., SATO, T.K., UCHIBABA, Y., MIYACHI, Y., GONG, G., NATORI, H., ITO, Y., ASAI, M., TSUKADA, K., NAGAME, Y.

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

座長: 後藤 真一 (新潟大)

2022年9月15日(木) 15:55 ~ 17:10 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[1A15-19-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)**[1A15] イオントラップされた不安定核の崩壊分光に向けたベーン電極型ポールトラップの開発**

*内馬場 優太^{1,2}、伊藤 由太²、青木 涼太^{1,2}、宮地 優太^{2,3}、Gong Gyeongmin^{1,2}、名取 日菜^{2,3}、佐藤 哲也^{1,2}、浅井 雅人²、塚田 和明²、永目 諭一郎² (1. 茨城大学大学院理工学研究科量子線科学専攻、2. 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター極限重元素核科学研究グループ、3. 茨城大学理学部)

15:55 ~ 16:10

[1A16] 多核子移行反応を用いたアクチノイド領域のアイソマー核分光

*杉山 晃一¹、郷 慎太郎¹、富松 太郎¹、甲斐 民人¹、長江 大輔¹、石橋 優一¹、松永 壮太郎¹、永田 優斗¹、西畑 洸希¹、鷲山 公平¹、坂口 聡志¹、森田 浩介¹、Orlandi Riccardo²、西尾 勝久²、牧井 宏之²、浅井 雅人²、静岡 俊行³、井手口 栄治⁴、Thanh Pham Tung⁴、庭瀬 暁隆⁵ (1. 九州大学、2. 原研 ASRC、3. QST、4. 阪大 RCNP、5. KEK)

16:10 ~ 16:25

[1A17] Th-229mの γ 線観測に向けた Pa-229のフッ化物結晶への導入法及び光子測定装置の開発

*重河 優大¹、Wang Yang¹、Yin Xiaojie¹、南部 明弘¹、羽場 宏光¹ (1. 理化学研究所)

16:25 ~ 16:40

[1A18] クラウンエーテルを用いた102番元素ノーベリウムの硝酸系固液抽出実験

*渡邊 瑛介^{1,2}、笠松 良崇^{1,2}、横北 卓也³、中西 諒平^{1,2}、大高 咲希^{1,2}、板倉 悠大¹、益田 遼太郎^{1,2}、王 瑞麟^{1,2}、重河 優大²、南部 明弘²、殷 小杰²、羽場 宏光²、高宮 幸一⁴、篠原 厚⁵ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. サレジオ工業高等専門学校、4. 京都大学、5. 大阪青山大学)

16:40 ~ 16:55

[1A19] Rfの共沈実験に向けた Zr, Hf, Thのシュウ酸, マロン酸系でのフロー式共沈実験

*中西 諒平^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,2}、大高 咲希^{1,2}、王 瑞麟¹、板倉 悠大^{1,2}、速水 翔¹、羽場 宏光²、南部 明弘²、篠原 厚³、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 大阪青山大学)

16:55 ~ 17:10

(2022年9月15日(木) 15:55 ~ 17:10 A会場)

[1A15-19-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1A15

イオントラップされた不安定核の崩壊分光に向けたベーン電極型ポールトラップの開発

(茨城大¹、原子力機構²)○内馬場優太^{1,2}、伊藤由太²、佐藤哲也^{1,2}、青木涼太^{1,2}、浅井雅人²、Gong Gyeongmin^{1,2}、宮地優太^{1,2}、永目諭一郎²、名取日菜^{1,2}、塚田和明²

不安定核のうち原子番号 100 を超える超重核は、強大なクーロン斥力に反して比較的安定となる場合がある。この要因である核構造などの基本的特性は、第一義には結合エネルギーに依っており、直結する核質量の測定が極めて重要である。そのため我々は、多重反射型飛行時間測定式質量分析器 MRTOF[1]を用いた超重核の精密質量測定計画を進めている。MRTOF では、測定対象イオンの飛行時間から質量を精密に決定する。このとき、しばしば僅かな質量差の同重体イオンや不純物分子イオンの混在により、正確な測定が困難になり得る。この正確性をより高めるためには、混在し得る核種を放射線測定により事前に把握することが有効である。加えて、親核の崩壊と関連した娘核イオンの測定により、不純物イオンを排除した確度の高い測定が可能となる。

本研究では、前述の崩壊分光による核種の事前同定や崩壊関連した質量測定を目的として、特殊な電極構造を持つポールトラップを開発した。トラップ内で保持された不安定核イオンの崩壊に伴う放射線と反跳イオンの相関[2]から、バックグラウンドをほぼ排除した崩壊分光が実現できる。開発したトラップは、トラップ中心から検出器を仰ぐ立体角を最大化するために、薄い板状のベーン電極(図 1)を用いた。これにより、検出器の構造を最適化することで、一般的な円形電極型と比較して約 3 倍となる 70% 程度の幾何学的効率が実現可能となる。

一方、ベーン電極型では、トラップ電場が理想的な四重極場から逸脱することにより、トラップ特性に影響が出ることが懸念される。従って、実際に円形及びベーン電極型ポールトラップを製作し、Rb⁺イオンを用いてトラップ容量とトラップ寿命について系統的に評価した。前者では、いずれも大きな差は見られず、一度に約 10⁷ 個程度のイオンを保持できることが分かった。後者では、円形電極型で数十分程度、ベーン電極型でも数分程度が達成できた(図 2)。この違いは、前述の電場の歪みによる影響と考えられるが、トラップ条件の最適化によって、今後より長寿命の実現が期待される。

[1] H. Wollnik, M. Przewloka, Int. J. Mass Spectrom. Ion Process. 96 (1990) 267

[2] N.D. Scielzo et al., Nucl. Instrum. Meth. A 681 (2012) 94

Development of a vane-shaped electrode Paul trap for decay spectroscopy of trapped radioactive ions
UCHIBABA, Y., ITO, Y., SATO, T.K., AOKI, R., ASAI, M., GONG, G., MIYACHI, Y., NAGAME, Y., NATORI, H., TSUKADA, K.

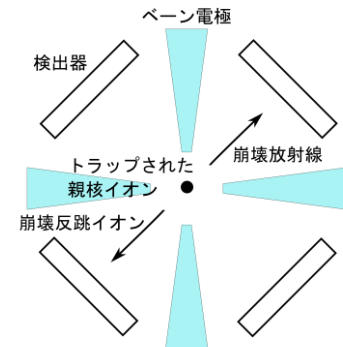


図 1: ベーン電極型イオントラップと崩壊測定の概略図

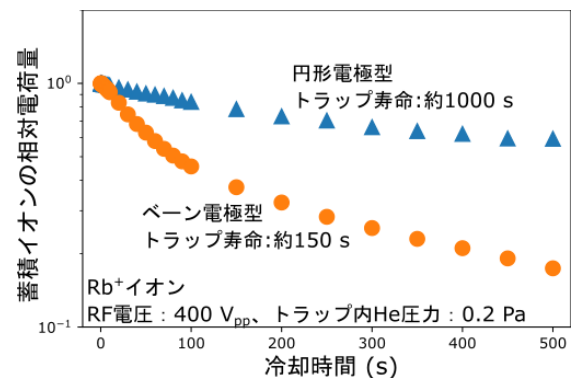


図 2: 円形及びベーン電極型ポールトラップによる蓄積イオンの相対電荷量の冷却時間依存性。相対電荷量が 1/e になる時間をトラップ寿命とした。

1A16 多核子移行反応を用いたアクチノイド領域のアイソマー核分光

(九大理¹, 原研 ASRC², QST³, 阪大 RCNP⁴, KEK⁵, 理研⁶,
東工大 IIR⁷, 筑波大 CCS⁸)

○杉山晃一¹, 郷慎太郎^{1,6}, 富松太郎¹, 甲斐民人¹, 長江大輔^{1,7},
石橋優一¹, 松永壮太郎¹, 永田優斗¹, 西畑洗希¹, 鷲山広平^{1,8}, 坂口聡志¹,
森田浩介¹, Riccardo Orlandi², 西尾勝久², 牧井宏之², 廣瀬健太郎²,
伊藤由太², 洲寄ふみ², 佐藤哲也², 塚田和明², 浅井雅人^{1,2},
静間俊行³, 井手口栄治⁴, Tung Thanh Pham⁴, 庭瀬暁隆⁵

超重核領域には、人類未踏の原子核領域「安定の島」の存在が予言されている。この領域の原子核は二重魔法数、またはそれに近い核子数を持つ。しかし、安定の島に属する原子核を直接合成することはできないため、その性質は明らかになっていない。その核構造を議論するための方法として、アクチノイド核の核構造を調べることが考えられる。アクチノイド核は系統的に四重極変形が発達していることが知られており、安定の島に現れる一粒子軌道の一部はアクチノイド核に現れる^{[1],[2]}。そこで、アクチノイド核を対象とした核分光研究を行なうことにより、超重核の詳細な核構造への指標を得ることを目指している。

本研究では、原子力機構タンデム加速器施設にて、 $^{18}\text{O} + ^{248}\text{Cm}$ の多核子移行反応を用いたインビーム γ 線核分光実験を行なった。アイソマースコープ法^[2]と呼ばれるアイソマーに特化した実験手法を用いることで、バックグラウンドの少ない測定を実現した。実験セットアップの概略図を図1に示す。標的と検出器の間にタングステン (W) シールドを設置し、標的からのバックグラウンド γ 線を遮蔽した。Si 検出器アレイによりビーム由来の粒子の ΔE -E を測定することで粒子識別をし、核子移行反応の分類を行った。昨年の放射化学会では本手法の原理検証を報告した。本講演では実験で測定されたアイソマー状態を報告し、核構造について議論する。

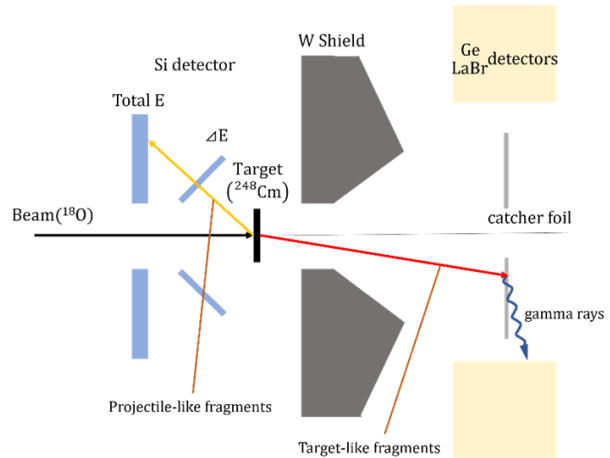


図1 実験セットアップの概略図

[1] T. Ishii *et al.*, *Physical Review C* **78**, 054309 (2008)

[2] R.-D. Herzberg *et al.*, *nature* **442**, 896-900 (2006)

[3] T. Ishii *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **395**, 210-216 (1997)

SUGIYAMA, K.¹, GO, S.¹, TOMIMATSU, T.¹, KAI, T.¹, NAGAE, D.¹, ISHIBASHI, Y.¹,
MATSUNAGA, S.¹, NAGATA, Y.¹, NISHIBATA, H.¹, WASHIYAMA, K.¹, SAKAGUCHI, S.¹,
MORITA, K.¹, ORLANDI, R.², NISHIO, K.², MAKII, H.², HIROSE, K.², ITO, Y.², SUZAKI, F.²,
SATO, T. K.², TSUKADA, K.², ASAI, M.^{1,2}, SHIZUMA, T.³, IDEGUCHI, E.⁴, PHAM, T. T.⁴,
NIWASE, T.⁵

1A17

Th-229m の γ 線観測に向けた Pa-229 のフッ化物結晶への導入法及び光子測定装置の開発

(理研仁科セ)○重河優大、Wang Yang、Yin Xiaojie、南部明弘、羽場宏光

【緒言】 ^{229m}Th の第一励起準位(^{229m}Th)は、8.3 eV 程度[1]という極端に低い励起エネルギーを持つ。そのため、化学状態に依存して ^{229m}Th の壊変過程が変化したり、原子核時計を作製できたりすると期待されている。近年 ^{229m}Th の内部転換過程が初めて観測されたが[2]、 γ 線放出過程は未だ観測されていない。 ^{229m}Th の γ 線を観測するためには、 ^{229m}Th の軌道殻電子の結合エネルギーを十分に高くして、内部転換を禁制にする必要がある。内部転換禁制を実現する候補の一つが、 CaF_2 等のフッ化物結晶にドーピングされた ^{229m}Th である。我々は、 ^{229m}Th を CaF_2 結晶にドーピングするために、親核の ^{229}Pa をドーピングするという手法を考案した。 ^{229}Pa から EC 壊変で生成された ^{229m}Th の反跳エネルギーはほぼ 0 であるため、 ^{229}Pa を F と配位させれば、 ^{229m}Th も F と配位した状態になり、 ^{229m}Th の γ 線が放出されると期待される。本研究では、 ^{229}Pa 試料から放出される ^{229m}Th の γ 線 (~150 nm の真空紫外光) を高い S/N で測定するための光子測定装置を開発した。さらに、 ^{229}Pa をイオン化・加速して結晶に打ち込むための手法を開発した。

【実験】 図 1 に示す光子測定装置を開発した。光電子増倍管(PMT1)を-25 度に冷却することで ^{229m}Th の γ 線を低ノイズで測定できる。さらに、放射線起源のバックグラウンド光子を低減するため、バンドパスフィルタ(151±20 nm の光子用)とシンチレーション光を測定するための光電子増倍管(PMT2)を設置した。装置の性能評価と

^{229}Pa 試料から発生するバックグラウンド光子数の評価のため、理化学研究所の AVF サイクロトロンにおいて、1 μA の 30 MeV プロトンを ^{232}Th 金属箔(138 mg/cm²)に 10 時間照射することで ^{229}Pa を製造した。 ^{229}Pa を陰イオン交換法により分離した後、 ^{229}Pa 溶液を CaF_2 結晶に滴下・乾固し、光子測定装置で測定した。一方、 ^{233}Pa を用いて、表面電離法による Pa のイオン化・結晶への打ち込みの試験を実施した。ここでは、Re フィラメントに Pa 還元用のコロイド状グラファイトを塗布し、1 μL の ^{233}Pa 溶液 (19.1 kBq)を滴下した。フィラメントに 5.5 A の電流を流して 2000 度まで加熱することで ^{233}Pa をイオン化し、 CaF_2 結晶に -15 kV を印加することで ^{233}Pa イオンを結晶に打ち込んだ。

【結果】

^{229}Pa 試料(^{229}Pa 48 kBq, ^{232}Pa 2.5 kBq, ^{230}Pa 6.6 kBq)の光子測定では、測定開始時に 9 s⁻¹ 程度のバックグラウンド光子が PMT1 で観測された。PMT2 を用いたアンチコインシデンスにより、バックグラウンド信号を 3 分の 1 程度に低減できた。この結果から、100 kBq の ^{229}Pa 試料を用いることで、 ^{229m}Th の γ 線を観測でき、半減期を 25%程度の精度で決定できると見積もられた。一方、 ^{233}Pa のイオン化・ CaF_2 結晶への打ち込みの効率は 0.53(1)%であった。従って、19 MBq 以上の ^{229}Pa を製造すれば、100 kBq の ^{229}Pa をドーピングした CaF_2 結晶を作製できると分かった。

[1] B. Seiferle *et al.*, Nature 573, 243 (2019). [2] L. v. d. Wense *et al.*, Nature 533, 47 (2016).

Development of Pa-229 implantation method into fluoride crystals and photon measurement apparatus toward observation of gamma rays from Th-229m
SHIGEKAWA, Y., WANG, Y., YIN, X., NAMBU, A., HABA, H.

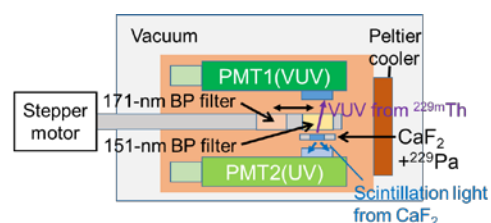


図 1. ^{229m}Th 真空紫外光測定装置

1A18 クラウンエーテルを用いた 102 番元素ノーベリウムの硝酸系固液抽出実験

(大阪大学¹, 理化学研究所², サレジオ工業高等専門学校³, 京都大学⁴, 大阪青山大学⁵) ○渡邊瑛介^{1,2}, 笠松良崇^{1,2}, 横北卓也³, 中西諒平^{1,2}, 大高咲希^{1,2}, 板倉悠大^{1,2}, 益田遼太郎^{1,2}, 王瑞麟¹, 重河優大², 南部明弘², 殷小杰², 羽場宏光², 高宮幸一⁴, 篠原厚⁵

【緒言】ノーベリウム(No)は原子番号 102 番のアクチノイド元素であり、過去に行われたイオン交換等の研究では水溶液中で Ca や Sr と類似した挙動を取ることが報告されている[1]。近年我々の研究グループで行った水酸化サマリウム共沈実験では、No のみが NH₃ と錯イオンを形成するというアルカリ土類金属と異なる性質が示唆され[2]、さらなる No の化学研究が求められている。我々はこれまで、クラウンエーテルを担持した Sr レジン系での No の抽出挙動を通じて No の電子状態を調べることを目標に、²⁵⁵No 実験の条件を探索してきた[3]。本研究では、バッチ型固液抽出装置(AMBER)[4]を用いて ²⁵⁵No の Sr レジン/3.5 M HNO₃ 系の加速器オンライン固液抽出実験を行った。

【実験】 ²⁵⁵No ($T_{1/2}=3.5$ min)は、理化学研究所 AVF サイクロトロンを利用し、²⁴⁸Cm(¹²C,5n)²⁵⁵No 反応にて製造した。同時に、核反応のモニターならびに溶液化効率の算出のために ¹⁶²Yb ($T_{1/2}=18.9$ min) を ^{nat}Gd(¹²C,xn)¹⁶²Yb 反応にて製造した。He/KCl ガスジェットにてこれらの核反応生成物を化学実験室に搬送した。AMBER の溶液化部に捕集された核反応生成物を 3.5 M HNO₃ にて溶解した後、反応容器中で Sr レジン (50–100 μm, Eichrom 社)と 60 秒間振とうし接触させた。空圧により反応容器から溶液のみを取り出し、Ta 皿に捕集した。Ta 皿上の溶液試料を迅速に蒸発乾固した後、自動 α 粒子計測装置を用いて、α 線測定を行った。測定後の試料は Ge 検出器を用いて、γ 線測定を行った。溶液の標準放射能を調べるため、樹脂を使用せずに同様の操作を行う比較実験も行った。固相と液相の放射能濃度比から、分配係数 (K_d) を算出した。

【結果】 上記の実験を 60 回行い図 1 のような α 線スペクトルが得られた。²⁵⁵No の α イベントは 28 カウント観測された。3.5 M HNO₃ における No の K_d 値は約 5 mL g⁻¹ と求まり、分配係数の大きさの序列は Ca ≤ No < Sr となった。このことから我々は、No²⁺ はわずかにクラウンエーテル (DtBuDCH18C6) に包摂され抽出されたと考えている。発表では、包摂状態の電子状態計算についても述べる。

【参考文献】 [1] R. Silva *et al.*, *Inorg. Chem.* **13**, 2233-2237 (1974). [2] 二宮秀美, 大阪大学大学院理学研究科修士論文(2019). [3] 渡邊ら, 日本放射化学会第 65 回討論会(2021), 1P03. [4] Y. Kasamatsu *et al.*, *Radiochim. Acta* **103**, 513-521 (2015).

Solid-liquid extraction of nobelium with crown ether in HNO₃ system

WATANABE, E., KASAMATSU, Y., YOKOKITA, T., NAKANISHI, R., OTAKA, S., ITAKURA, Y., MASUDA, R., WANG, R., SHIGEKAWA, Y., NAMBU, A., YIN, X., HABA, H., TAKAMIYA, K., and SHINOHARA, A.

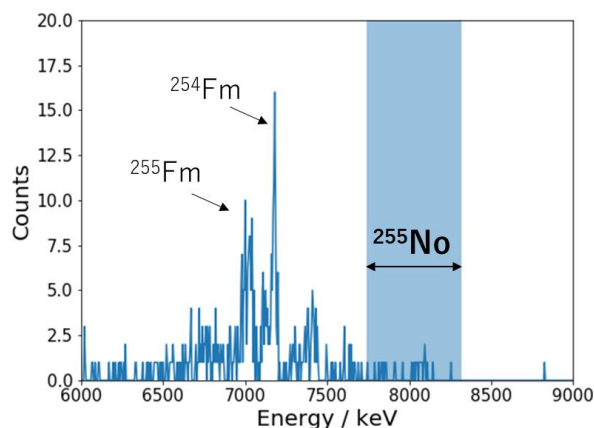


図 1. 得られた ²⁵⁵No の α 線スペクトル

1A19

Rf の共沈実験に向けた Zr, Hf, Th のシュウ酸、マロン酸系でのフロー式共沈実験

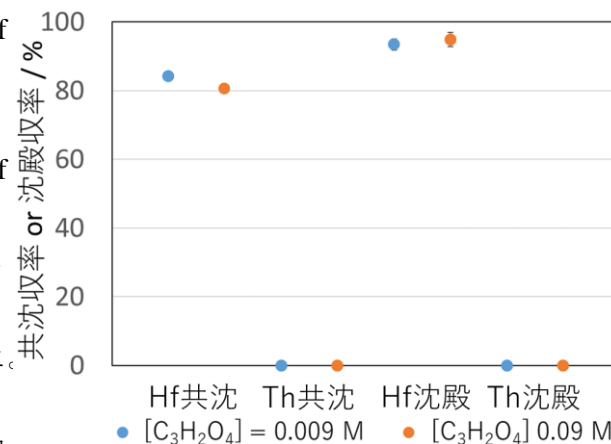
(阪大院理¹、阪大理²、理研仁科セ³、大阪青山大⁴)○中西諒平^{1,3}、渡邊瑛介^{1,3}、大高咲希^{1,3}、玉瑞麟¹、板倉悠大^{2,3}、速水翔¹、羽場宏光³、南部明弘³、篠原厚⁴、笠松良崇^{1,3}

【緒言】 本研究では 104 番元素ラザホージウム (Rf) とキレート錯体を形成する可能性のある有機酸配位子としてシュウ酸とマロン酸に着目した。シュウ酸イオン ($C_2O_4^{2-}$) やマロン酸イオン ($C_3H_2O_4^{2-}$) は、4 族元素イオン Zr^{4+} , Hf^{4+} や擬同族元素 Th^{4+} と錯体を形成し[1]、錯イオンや沈殿を形成することから、Rf とともに反応し錯体が形成されると考えられる。Rf とシュウ酸塩やマロン酸塩との共沈実験を行い、Rf の共沈挙動とキレート配位子の大きさ・形状の関係性から、Rf のキレート錯形成に関するイオン半径や結合性を議論することができると考えている。本研究では、Rf の共沈実験に向けて、シュウ酸トリウム、マロン酸ジルコニウムをそれぞれキャリアとした Zr, Hf, Th の共沈実験を行い、Rf の共沈実験の実験条件を決定した。また、迅速な沈殿反応に必要な反応温度 90°C で連続実験を行うためにフロー式共沈実験装置を作成し、加速器オンラインの共沈実験を行うための実験条件を調べた。

【実験】 ^{88}Zr , ^{175}Hf , ^{228}Th トレーサーを用いて $Th(C_2O_4)_2$ あるいは $Zr(C_3H_2O_4)_2$ との共沈挙動を調べた。RI トレーサー溶液 10 μ L を、キャリア元素 (Th 30 μ g または Zr 60 μ g) を含む 0.1 M 過塩素酸溶液 50 μ L と混合した。そこへシュウ酸 (0.010-0.90 M) またはマロン酸 (0.010-0.10 M) 溶液 500 μ L を加え、シュウ酸系では 80°C で 60 秒、マロン酸系では 90°C で 70 秒間振とうした。吸引ろ過後、沈殿の γ 線測定または α 線測定を行い、共沈収率を求めた。フロー式共沈実験では、90°C 湯浴中で加熱した PTFE 製チューブを用いて、キャリア金属溶液と配位子溶液を T 型コネクタで混合し共沈実験を行った。

【結果・考察】 図 1 にバッチ式のマロン酸ジルコニウム共沈実験の結果を示す。Hf と Th の共沈収率は、それぞれのマクロ量でのマロン酸沈殿収率と一致した。このことからマロン酸ジルコニウム共沈挙動から Rf のマロン酸との沈殿 (錯形成) 挙動を調べることができると考えられる。また、シュウ酸トリウム共沈実験においても、Zr と Hf の共沈挙動はマクロ量のシュウ酸沈殿挙動と一致した。装置を用いたフロー式共沈実験では、バッチ式実験のときと同様にキャリア量の沈殿挙動を観測することができた。今後、より安定して長時間実験できる条件を調べ、 ^{261}Rf の加速器オンライン実験に向けた準備を進めていく。

図 1. ^{175}Hf と ^{228}Th のマロン酸ジルコニウム共沈収率とマクロ量 Hf と Th のマロン酸沈殿収率



[1] T. Kobayashi et al., *Radiochim. Acta* **97**, 237-241 (2009).

Coprecipitation experiment of Zr, Hf and Th in oxalic or malonic acid system using flow reactor toward the experiment of Rf

NAKANISHI, R., WATANABE, E., OTAKA, S., WANG, R., ITAKURA, Y., HAYAMI, S., HABA, H., NAMBU, A., SHINOHARA, A., KASAMATSU, Y.

ポスターフラッシュトーク | ポスターフラッシュトーク

ポスターフラッシュトーク

座長: 鈴木 達也 (長岡技科大)、秋山 和彦 (都立大)

2022年9月15日(木) 17:15 ~ 17:35 A会場 (小柴ホール)

[Zoomはこちら](#)

[フラッシュトークの詳細はこちら](#)

企業広報セッション | 企業広報セッション

AD

座長: 別所 光太郎 (KEK)

2022年9月15日(木) 17:35 ~ 17:50 A会場 (小柴ホール)

[Zoomはこちら](#)

[1A22-22-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1A22-22-1add] クリアパルス株式会社

17:35 ~ 17:42

[1A22-22-2add] 西進商事株式会社

17:42 ~ 17:49

(2022年9月15日(木) 17:35 ~ 17:50 A会場)

[1A22-22-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

17:35 ~ 17:42 (2022年9月15日(木) 17:35 ~ 17:50 A会場)

[1A22-22-1add] クリアパルス株式会社

17:42 ~ 17:49 (2022年9月15日(木) 17:35 ~ 17:50 A会場)

[1A22-22-2add] 西進商事株式会社

基盤セッション 環境放射能 | 基盤セッション C: 環境放射能

基盤セッション C: 環境放射能

座長: 別所 光太郎 (KEK)

2022年9月15日(木) 10:00 ~ 11:20 B会場 (206室)

Zoomはこちら

[1B01-04-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B01] 人工放射性核種の ICP-MS分析に関する話題

*鄭 建¹ (1. 量子科学技術研究開発機構)

10:00 ~ 10:25

[1B02] 加速器質量分析法における環境中の難測定核種の検出技術に関する進展

*笹 公和¹ (1. 筑波大学)

10:25 ~ 10:50

[1B03] 別府湾の堆積物中ウラン同位体の分析—人新世の時代区分定義への取り組み—

*高橋 穂高¹、坂口 綾²、Hain Karin³、Wiederin Andreas³、加 三千宣⁴、高久 雄一²、山崎 信哉²、末木 啓介² (1. 筑波大学大学院 理工情報生命学術院 数理物質科学研究群 化学学位プログラム、2. 筑波大学 数理物質系、3. ウィーン大学 物理学科 アイソトープ物理学専攻、4. 愛媛大学 沿岸環境科学センター(CMES) 環境動態解析部門)

10:50 ~ 11:05

[1B04] 福島第一原発事故直後に東京周辺の広範囲に飛来した CsMPsの分析

*高久 侑己¹、桧垣 正吾¹、廣田 昌大²、鍵 裕之¹ (1. 東京大学、2. 信州大学)

11:05 ~ 11:20

(2022年9月15日(木) 10:00 ~ 11:20 B会場)

[1B01-04-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1B01 人工放射性核種の ICP-MS 分析に関する話題

(量子科学技術研究開発機構)○鄭 建

Anthropogenic radionuclides (hereinafter referred to as artificial radionuclides) have been released into the environment: from nuclear weapons tests and the manufacturing or handling facilities of nuclear weapons; from nuclear facilities such as nuclear power plants and nuclear fuel reprocessing plants during their normal operation and in accidents; from medical and industrial uses; and from a failed satellite launch. From the 1950s to the 1980s, 543 atmospheric nuclear weapons tests were conducted. In those atmospheric nuclear weapons tests, global fallout containing artificial radionuclides fell onto the earth's surface and it is the main source of artificial radionuclides in the environment.

Nuclear energy is the inevitable choice for many countries to meet the problems of climate change, to fulfill carbon emission reduction commitments, and to realize the vision targets of achieving carbon peaks and carbon neutrality. However, when considering the relationship between nuclear energy usage and the accompanying environment impacts, it is not possible to ignore the environmental contamination due to the emission of artificial radionuclides and the effects of radiation exposure to humans. Therefore, the behavior of various artificial radionuclides in the environment is one of the most important research themes in environmental sciences. Especially, depending on conditions at the time of a nuclear accident, the types and concentrations of radionuclides released to the surrounding environment differ. To more accurately predict radiation dose for human exposure in the future, investigation of the behavior of radionuclides in the environment is an urgent issue. On the other hand, artificial radionuclides, such as ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{237}Np , ^{241}Am , ^{236}U and ^{129}I , are widely used geochemical tracers for understanding the various processes of material transport in the environment.

Due to the desirable analytical characteristics, such as high sensitivity, good accuracy, rapidness of analysis, wide dynamic range for quantification, and the capability of providing isotope ratio analysis, ICP-MS techniques have found wide applications in radiation protection studies regarding radioactive contamination assessment, environmental behavior of radionuclides, soil-to-plant transfer of radionuclides for radiation dose estimation, characterization of radioactive waste for geological disposal, and the nuclear forensics. After the Fukushima accident, in response to the strong demand for the determination of radionuclides in various environmental samples for radioactive contamination assessment, a remarkable number of analytical methods based on ICP-MS were newly developed for the analysis of actinides and important fission products. These methods further expanded the application of ICP-MS for environmental radioactivity studies. This lecture describes the recent progress on ICP-MS analysis of artificial radionuclides in environmental samples in Japan after the nuclear accident and discusses future research prospects for mass spectrometric techniques in radionuclide analysis.

Recent progress on ICP-MS analysis of artificial radionuclides in the environment
National Institutes for Quantum Science and Technology (QST)
○ZHENG, J.

1B02 加速器質量分析法における環境中の難測定核種の検出技術に関する進展

(筑波大数理物質)○笹 公和

加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) は、極微量の難測定核種の検出法として、その利用が急速に進展している分析手法である。通常の質量分析法では妨害同重体の影響により検出が困難となる、フェムト同位体レベル(10^{-15})までの難測定核種の検出を得意としている。AMS の測定対象核種は、 ^{14}C (半減期 $T_{1/2} = 5,730$ yr) が最もよく知られているが、その他にも ^{10}Be (1.36×10^6 yr), ^{26}Al (7.17×10^5 yr), ^{36}Cl (3.01×10^5 yr), ^{41}Ca (1.03×10^5 yr), ^{129}I (1.57×10^7 yr) などが一般的な測定対象核種となっている。AMS では装置の小型化が進展しており、現在は 500 kV 程度のタンデム加速器や 200 kV 台のシングルステージ型加速器により ^{14}C を検出する小型 AMS 装置が普及している。また、数 100 kV の加速電圧で ^{10}Be などの検出が可能な AMS 装置も出始めている。一方で、5 MV 以上のタンデム加速器を用いた多核種測定用 AMS 装置の開発も進展している。2012 年以降には、6 MV の加速電圧を有する加速器質量分析装置が開発され、現在、世界で 5 台が稼働している。筑波大学では、2016 年より 6 MV タンデム加速器質量分析装置が稼働しており、AMS による一般的な全測定対象核種の高感度検出が可能となっている。また、国内では、筑波大学の他に、東京大学と JAEA 東濃の 5MV タンデム加速器において、多核種 AMS が実施されている。

筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置では、5 枚電極型ガス電離箱を用いて核種検出を実施している。主に長半減期放射性ハロゲンである ^{36}Cl と ^{129}I の検出技術の向上を進めている他に、難測定核種である ^{41}Ca の高感度検出に国内で初めて成功している。 ^{41}Ca -AMS では、 CaF_2 試料から負分子イオンの $^{41}\text{CaF}_3^-$ を引き出しており、加速電圧 6 MV により、 $^{41}\text{Ca}^{5+}$ を 32.5 MeV まで加速している。 ^{41}Ca の検出下限として $^{41}\text{Ca}/\text{Ca} \sim 3 \times 10^{-15}$ を達成しており、測定精度は同位体比 9.76×10^{-12} の標準試料に対して約 3% となっている。また、 ^{90}Sr の AMS では、加速電圧 6 MV により $^{90}\text{Sr}^{8+}$ を 51.8 MeV まで加速して測定を実施している。 ^{90}Sr は、ウランやプルトニウムなどの核分裂生成物であり、原子力発電所での事故や 1950 年代に実施された大気圏内核実験により、環境中に供給された放射性核種である。しかし、純 β 線放出核種である ^{90}Sr の分析には複雑な化学操作と時間が掛かるため、迅速な定量手法の開発が求められている。現在、 ^{90}Sr -AMS の検出限界として、 $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 6 \times 10^{-13}$ (~ 3 mBq) を達成している。

世界では AMS の新しい検出技術として、イオンクーラーとレーザー光脱離法 (Laser Photo-Detachment: LPD) を用いて加速器入射前の負イオンについて選択的に電子を剥ぎ取り、妨害同重体を除去する方法が試みられている。LPD を用いた検出法は、東京大学の他にオタワ大学やウィーン大学 VERA などが開発が進められている。特に VERA では、 ^{36}Cl , ^{90}Sr , ^{135}Cs の LPD を用いた AMS が実用段階に入りつつあり、 ^{90}Sr では検出限界として $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 5 \times 10^{-15}$ を達成している。LPD を用いた検出法については、検出効率の問題があるが、AMS 検出技術のブレイクスルーをもたらす可能性を有している。

本発表では、最新の AMS による核種検出技術を紹介するとともに、6 MV タンデム加速器質量分析装置に関する核種検出技術の進展と研究展望について報告する。

Advances in technology for the detection of difficult to measure radionuclides in the environment by accelerator mass spectrometry
SASA K.

別府湾の堆積物中ウラン同位体の分析

—人新世の時代区分定義への取り組み—

1B03

(筑波大 数理物質科学 化学¹、筑波大 数理²、VERA, Univ. of Vienna³、
愛媛大 CMES⁴) ○高橋穂高¹、坂口綾²、Karin Hain³、Andreas
Wiederin³、加三千宣⁴、高久雄一²、山崎信哉²、末木啓介²

【緒言】現在、我々は 1.2 万年前から続く完新世という地質年代区分に存在している。人類誕生後、特に 1950 年代以降では様々な人間活動による大規模な地球環境変化が引き起こされており、「人新世」が新たな地質年代として提案されている。人新世の設定には、人類が地球システムに影響を与えた事を示すキーマーカーの情報が保持されている GSSP(国際境界模式層)を決める必要がある。別府湾は、堆積速度が早く還元的な環境で層が乱されず堆積しており、豊富なキーマーカーが記録されていることから、過去の人為活動を高い時間分解能で復元できる GSSP の有力な候補地として国際的に注目を集めている。本研究では、長半減期人工放射性 U が人類の核活動のキーマーカーや地層の年代マーカーになり得るかを検討するため、別府湾から採取された堆積物中のウラン(U)同位体組成(^{238}U 、 ^{233}U 、 ^{236}U)について堆積深度ごとに分析・解析を行った。

【実験】別府湾(33°16'40.6" N, 131°32'35.2" E; 水深 70.7 m)で採取された直径 8.2 cm, 全長 90 cm の堆積物コアを 1 cm ごとにカットし ^{210}Pb , ^{137}Cs 法および層序学的方法で年代決定したものを分析試料とした。凍結乾燥した各層の堆積物 2 g を 450°C で灰化後、8M HNO_3 で 3 時間煮沸抽出を行った。抽出後の残渣は $\text{HNO}_3+\text{HClO}_4+\text{HF}$ 混酸により全分解した。得られた抽出溶液と残渣分解溶液中の元素および ^{238}U 濃度を誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)により定量することで堆積物中のそれぞれの元素濃度を求めた。硝酸抽出フラクションおよび残渣フラクション中の U をそれぞれ UTEVA 樹脂により分離濃縮後、鉄水酸化物に共沈したものを 800°C で燃焼することで AMS 用の試料を作製した。この試料中の $^{233}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ を AMS により定量した。実際の分析は 1944 年から 1995 年の間の 25 試料に対して行った。

【結果と考察】人工ウランの起源情報をもつ $^{233}\text{U}/^{236}\text{U}$ 比は、1957 年頃に $(3.04 \pm 0.24) \times 10^{-2}$ の顕著なピークを示した。これは大気圏内核実験により供給された人工ウランであり、特に Pu 同位体分析結果(Yokoyama et al., 2022)も考慮すると、PPG(太平洋核実験場)で行われた castle 作戦の可能性が示唆された。積算 $^{233}\text{U}/^{236}\text{U}$ 比は $(1.46 \pm 0.07) \times 10^{-2}$ と計算され、欧州で報告されているグローバルフォールアウトの代表的な比 $(1.40 \pm 0.15) \times 10^{-2}$ (Hain et al., 2020)と同様な値であった。海水(自性)起源の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は 1950 年代初頭から増加し、1962 年頃に最大となった。この比の変動は、地域固有の U 汚染を伴わない表層環境へのウランの導入史を表しており、これまで堆積物等で年代マーカーとして用いられてきた ^{137}Cs 濃度の変動とも整合的であった。このように、本研究により人工 U 同位体比が人新世 GSSP 設定のキーマーカーさらには長期にわたり年代マーカーとして利用可能であることが示された。

【参考文献】Yokoyama et al., 2022, Sci Rep 12, 10068.; Hain et al., 2020, Nat Commun 11, 1275.

Reconstruction of Time Series Changes on Uranium Isotopic Composition in the North West Pacific Using a Beppu Bay Sediment Core

TAKAHASHI H., SAKAGUCHI A., KARIN H., ANDREAS W., KUWAE M., TAKAKU Y., YAMASAKI S., SUEKI K.

1B04 福島第一原発事故直後に東京周辺の広範囲に飛来した CsMPs の分析

(東京大¹、信州大²)○高久侑己¹、桧垣正吾¹、廣田昌大²、鍵裕之¹

【緒言】 東日本大震災に伴い発生した福島第一原発事故により、膨大な量の放射性物質が環境中に拡散された。その中でも放射性セシウムは半減期が約 30 年と長く、福島第一原発から環境中に拡散されたものは土壌中の鉱物の粒子に吸着したものと、ケイ酸塩ガラス微粒子 (CsMP) 中に固溶した 2 種類の形態があることが報告されている。CsMP は 2,3 号機由来の Type-A と 1 号機由来の Type-B の 2 種類が存在し、Type-A はサイズが小さく球状、放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) が 1.05~1.08 をとる特徴を持っており、Type-B はサイズが大きく不定形で、放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) が 0.94 をとる特徴を持っていることが報告されている。また、CsMP は福島県のみならず関東地方の広範囲に飛来したことが報告されており、その挙動や特性を調べることは非常に重要である。そこで我々は、2011 年 3 月 15 日から 20 日の間、関東地方の 6 箇所（茨城県東海村、牛久市、千葉県我孫子市、千葉市、埼玉県川口市、東京都荒川区）スミア法を模した手法で採取した CsMP を分析し、その特性を調べた。

【実験】 ベランダの手すりや車のボンネット等の屋外にある平滑な面をティッシュで優しく拭き取り試料とした。試料から wet 法を用いて CsMP を単離し、以下の実験を行った。

(1) イメージングプレート (IP) によるカウント分布

IP で短時間感光し、その後 IP リーダーにて輝点からカウント分布を解析した。

(2) Ge 半導体検出器によるセシウム (^{134}Cs 、 ^{137}Cs) の放射能評価

単離した CsMP をプラスチックケースに入れ、測定時間 600,000 秒で Ge 半導体検出器を用いて放射能測定を行った。得られたスペクトルから 2011 年 3 月 11 日時点の放射能値を出し、放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) を求めた。

【結果と考察】

IP の結果 (Fig.1) により、茨城県牛久市で発見された 2 つの CsMPs に、輝点が不定形かつカウントの平面分布がまばらなものが含まれていることが分かった。また、セシウムの放射能評価を行ったところ $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 値が各々で 1.15 と 1.03 をとったことから、2,3 号機由来の Type-A であることが示唆された。不定形かつ Type-A の CsMPs はこれまでに報告^{1,2)}されているが、関東地方に不定形の CsMPs が報告された研究例は未だ無く、本研究で発見された CsMPs の特性を、SEM 等を用いて今後行う計画である。

【参考文献】

- 1) Higaki, S (2017), *J. Environ. Radioact.* 177, 65-70
- 2) Yamaguchi, N (2018), *Geochem. J.* 52, 123-126

Analysis of Cesium-bearing microparticles widely spread around Tokyo immediately after the FDNPP Accident
TAKAKU, Y., HIGAKI, S., HIROTA, M., KAGI, H.

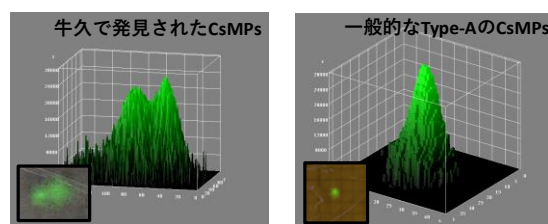


Fig.1 本研究で発見された CsMPs と Type-A の輝点とカウント分布の比較

基盤セッション 環境放射能 | 基盤セッション C: 環境放射能

基盤セッション C: 環境放射能

座長: 小池 裕也 (明治大)

2022年9月15日(木) 11:30 ~ 12:30 B会場 (206室)

Zoomはこちら

[1B05-08-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B05] ^{210}Pb と XAFS法による皇居お堀の堆積環境の解析

*Sun Jing¹、Otosaka Shigeyoshi¹、Itai Takaaki¹、Takahashi Yoshio¹ (1. 東京大学)

11:30 ~ 11:45

[1B06] 北極海—太平洋における ^{129}I の分布

*永井 尚生¹、山形 武靖¹、松崎 浩之² (1. 日本大学文理学部自然科学研究所、2. 東京大学総合研究博物館)

11:45 ~ 12:00

[1B07] 水田土壤中ウランの土壌—土壌溶液分配係数に関する考察

*田上 恵子¹、鄭 建¹、浜本 貴史²、澁谷 早苗²、内田 滋夫¹ (1. 量子科学技術研究開発機構、2. 原子力発電環境整備機構)

12:00 ~ 12:15

[1B08] 食品環境放射能標準物質の開発と普及の10年そしてこれから(3)魚肉・魚骨灰

*三浦 勉¹、葉袋 佳孝²、米沢 仲四郎³、荒川 史博⁵、岡田 往子⁴、岡田 章⁷、小島 勇夫⁶、大澤 隆夫⁶、柿田 和俊⁶、平井 昭司⁴ (1. 国立研究開発法人産業技術総合研究所、2. 武蔵大学、3. 日本国際問題研究所、4. 東京都市大学、5. 日本ハム中央研究所、6. (公社)日本分析化学会、7. 元東芝)

12:15 ~ 12:30

(2022年9月15日(木) 11:30 ~ 12:30 B会場)

[1B05-08-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

²¹⁰Pb-derived ages for molecular geochemical reconstruction of contaminant history into Tokyo Palace Moat

○Jing Sun ¹, Shigeyoshi Ootosaka ¹, Takaaki Itai ¹, and Yoshio Takahashi ¹,

(¹Univ. of Tokyo)

Accurate reconstructions of past sedimentary redox conditions are necessary to investigate the evolution of the atmosphere's composition and the relationship between geochemical cycles and climatic changes. In this study, Tokyo Palace Moat mainly recharged by atmospheric depositions was chosen to elucidate the geochemical reconstruction of trace elements using X-ray absorption near edge structure and other geochemical analyses. A ²¹⁰Pb-derived chronology was employed to reconstruct the historical accumulation of major (Fe and Al) and trace (Mn, Pb, Zn, and Cd) elements in the site during about two centuries (1832-2019). The sediment core was characterized by lower levels of Mn, Pb, Zn, and Cd during the Edo Period, but concentrations of these trace elements abruptly increased after 1870 as contaminants probably due to the industrial revolution during the Meiji Restoration. Both sedimentological and chemical data suggested that four major changes occurred during the periods of Edo period, Meiji Restoration, the Great Kanto Earthquake, and implementation of stricter environment regulations. Manganese speciation predominantly consisted of manganese carbonate (Mn II) and birnessite (Mn IV) along the sediment core. It suggested that sediments were not deposited under permanent euxinic conditions, but rather periodically euxinic or anoxic conditions, in accordance with the results of total sulfur and total organic matter. In comparison, Fe was primarily hosted by magnetite and hematite in the Edo period and Meiji Restoration, together with magnetite, hematite, and pyrite from 1889, supported by XRD results. That is probably attributed that sulfur concentration was not sufficient to form FeS₂ before 1874. Similarly, quantitative analysis of Zn speciation indicated that Zn was mainly present as ZnCO₃ rather than ZnS. A geochemical model was applied to quantitatively distinguish natural and anthropogenic sources of trace elements. Ratios of Pb, Zn, and Cd from the anthropogenic input reached high up to 90% after the Meiji Restoration in comparison with the Edo period. Results may be applied to molecularly estimate the impacts of anthropogenic and natural sources on trace elements in response to the atmospheric input in sedimentary environments.

^{210}Pb と XAFS 法による皇居お堀の堆積環境の解析

○Jing Sun ¹, Shigeyoshi Otsuka ¹, Takaaki Itai ¹, and Yoshio Takahashi ¹,

(¹Univ. of Tokyo)

本研究では、元素による皇居お堀の歴史変遷を柱状堆積物の分析から明らかにした。得られた柱状試料の ^{210}Pb 法による堆積期間は 1832 年から-2019 年であった。金属元素濃度の経年変化として、主成分元素の二つである Al と Fe の濃度変動は小さく、微量元素 (Mn, Pb, Zn, Cd) は 1870 年代から増加傾向を示した。マスバランスモデルを用いて、近年の堆積物中の人為起源の微量元素は 90%を超えることがわかった。

1B06 北極海－太平洋における ^{129}I の分布

(日大文理¹、東大博物館²) ○永井尚生¹、山形武靖¹、松崎浩之²

[緒言] 現在の環境中に存在する ^{129}I ($1.57 \times 10^7 \text{y}$) の大部分は人為起源のものであり、その殆どは Sellafield (U.K.) と La Hague (France) の2ヶ所の核燃料再処理工場から放出されたものである。 ^{129}I の一部(1%前後)は大気中に放出されて、残りは全て海洋へ放出されている。Sellafieldではアイリッシュ海、La Hagueではイギリス海峡から北海を経てノルウェー海へ輸送され、フラム海峡またはバレンツ海を通り北極海へ輸送される。放出源付近の海域の表層の ^{129}I 濃度は $10^{11} \text{ atoms L}^{-1}$ [1]であり北部北太平洋表層の ^{129}I 濃度 $1-2 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ [2]の 10^4 倍に達する。このため ^{129}I は北極海において海水のトレーサーとして用いられ、放出源から最も遠いカナダ海盆においても、 ^{129}I 濃度の増加が観察されている[3]。本研究では、カナダ海盆南部における ^{129}I 濃度の鉛直分布および経年変化を観察した。

[実験] 北極海において JAMSTEC みらい MR13-06, 14-05, 15-03, 17-05C, 19-03C, 20-05C (2013-2020) 航海により、水深 800-3000m までの海水を CTD-CMS を用いて採取した。試料に I 担体 1mg を加え溶媒抽出により精製し、AgI 沈澱を生成させ東大 MALT において ^{129}I -AMS 測定を行った。

[結果と考察] 2013-2015 年カナダ海盆南部における ^{129}I 濃度の鉛直分布(図1)は海水の鉛直構造に従った層構造・値を示した。 ^{129}I 濃度は表層(海水融解水)0-50m の $15 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ から減少し亜表層(50-200 m)の上部で $4-8 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と極小値を示し、ベーリング海峡を通り輸送された低 ^{129}I 濃度の太平洋水の影響が見られ、これ以深では ^{129}I 濃度は $80 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ に増加し大西洋水の存在が認められた。また、各年の平均値は 79, 85, $82 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ とほぼ一定であったが、2017-2020 においては3倍以上に急増し、モデル計算によるメンデレエフ海嶺付近の濃度変動予測[4]とは約12年の time-lag で一致した(図2)。また、2ヶ所の再処理工場からの放出は1990年台に急増し、1996年には 2 TBq/yr に達した。これに対応する形でカナダ海盆南部において ^{129}I 濃度の急増が約25年の time-lag で観察された。

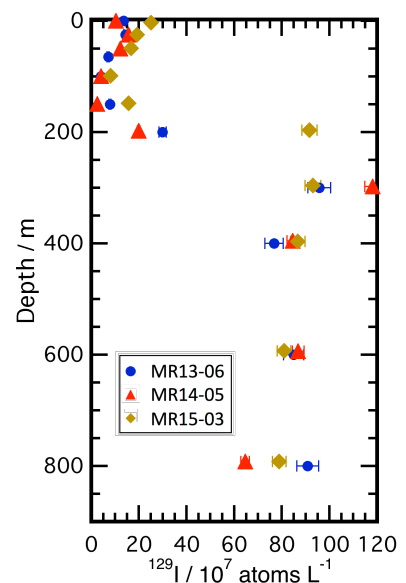


図1 カナダ海盆南部における海水中 ^{129}I 濃度の鉛直分布 (MR13-15: 2013-2015)

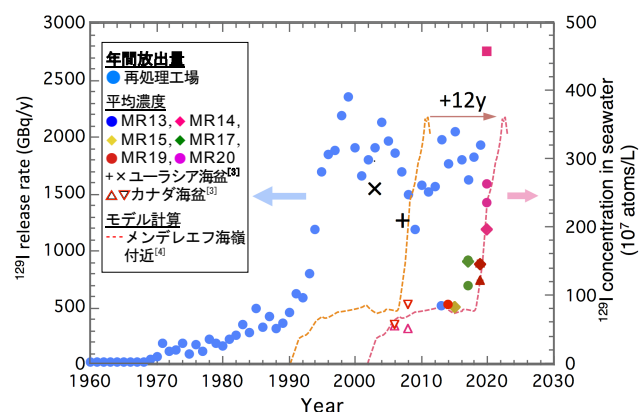


図2 再処理工場からの ^{129}I 放出量とカナダ海盆南部における海水中 ^{129}I 濃度(MR13-20: 2013-2020)の経年変動

[1] A. Aldahan et al., Appl. Geochem. 22 (2007) 606. [2] H. Nagai et al., Nucl. Instr. Meth. B361 (2015) 680. [3] J.N. Smith et al., J. Geophys. Res. 116 (2011) C04024. [4] M. Karcher et al., J. Geophys. Res. 117 (2012) C08007.

Distribution of ^{129}I in seawater in the Arctic Ocean and the Pacific Ocean
NAGAI H., YAMAGATA T., MATSUZAKI H.

1B07 水田土壌中ウランの土壌-土壌溶液分配係数に関する考察

(量研¹、原環機構²) ○田上恵子¹、鄭 建¹、浜本貴史²、澁谷早苗²、
内田滋夫¹

【緒言】放射性廃棄物処分の長期安全評価における生活圏の環境移行パラメータ値の確度向上のため、我が国の土壌-土壌溶液分配係数 (K_d [L/kg] = 土壌中濃度 [Bq/kg または g/kg] / 土壌溶液中濃度 [Bq/L または g/L]) の取得が重要である。ウラン (U) は安全評価上の注目核種の一つであり、IAEA-TRS472 (2010) は代表値として 200 L/kg を示している。ただし、これまでのデータ取得実験は土壌中の U (数 $\mu\text{g/g-soil}$) に対し添加量が多く (0.15-1 mg-U/g-soil)、実際に希薄な量の U が環境中で動きやすいのか不明である。そこで U について全国の水田土壌を対象に、脱離法により K_d を取得した。

【材料および方法】分析方法を決めるために、まず水田土壌として代表的な土壌群である低地水田土、グライ低地土、灰色低地土の3種類を用いて低濃度 U 添加による収着と土壌中に元々含まれる U の溶出の経時変化をバッチ法により調べた。ポリプロピレン容器に分取した風乾土壌 ($\phi < 2$ mm) 3 g に対して超純水を 30 mL 添加し (固液比 1:10)、24 時間予備振とうを行った後、添加実験では U を含む ICP 用標準液を添加し 26 $\mu\text{g/L}$ に調整した (0.26 $\mu\text{g-U/g soil}$)。脱離実験は標準液無添加 (Control) である。添加・脱離実験とも標準液を添加した時点から 3h, 1d, 3d, 7d, 14d に3試料ずつ破壊的に回収し、遠心分離後 0.2 μm フィルターで土壌溶液をろ過し、ICP-MS で U を定量した。

次に、上記で得た実験条件の下、全国から収集した水田土壌 98 試料について、脱離法により K_d を求めた。すなわち固液比 1:10 において土壌から溶出した U 濃度を測定し、予め測定しておいた土壌中の全量濃度を使って K_d を算出した。

【結果及び考察】添加および脱離による土壌溶液中の U 濃度の経時変化について、低地水田土の結果を Fig.1 に示す。3種類の土壌とも同様の傾向となった。添加と脱離の差分が実際に添加した標準溶液由来の U 濃度になる。添加 U 濃度は添加直後から減少し、3 h では3種類の土壌とも添加量の 3% 未満となった。時間と共に収着が進み7日後には脱離した U 濃度と差が無くなったことから添加した U はほぼ土壌に収着したと言える。 K_d を求めると 10^4 オーダー以上と評価できた。なお、脱離実験においても初期は溶液中濃度が高くなったが、その後減少し、3日目以降はほぼ一定となった。脱離 K_d は 10^5 オーダーであった。

農耕地ではリン酸肥料添加により U が長期間負荷され、土壌中の U のほぼ半分に達すると評価されている (田上、内田、*Radioisotopes* **55**, 71, 2006)。添加された U からのみ土壌溶液中に溶出したと評価しても、98種類の土壌について、低濃度 U による脱離 K_d は 10^3 - 10^5 のオーダーとなり、添加 K_d 実験と同程度であった。

Consideration on the Soil-Soil Solution Partitioning Coefficient of Uranium in Paddy Fields
TAGAMI, K., ZHENG, J., HAMAMOTO, T., SHIBUTANI, S., UCHIDA, S.

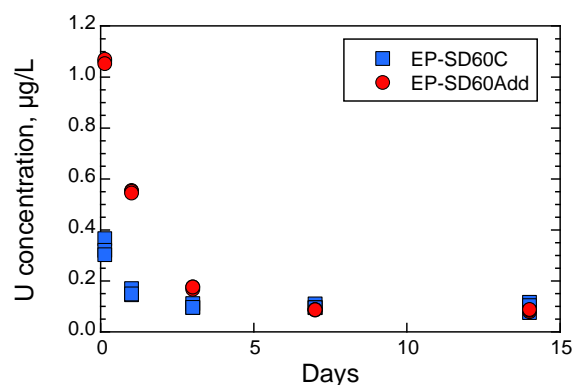


Fig. 1 Changes of U concentrations in soil solutions with time in sorption and desorption tests. EP-SD60: Soil code (soil type: lowland paddy soil), C: control test, and Add: standard U solution added test.

1B08 食品環境放射能標準物質の開発と普及の 10 年そしてこれから (3) 魚肉・魚骨灰

(産総研物質計測¹、武蔵大²、国際問題研³、都市大⁴、日本ハム中研⁵、分析化学会⁶、元東芝⁷)○三浦勉¹、薬袋佳孝²、米沢仲四郎³、荒川史博⁵、岡田往子⁴、岡田章⁷、小島勇夫⁶、大澤隆夫⁶、柿田和俊⁶、平井昭司⁴

【緒言】2011 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故に対応するため、JST「放射能環境標準物質の開発」では、⁴⁰K、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 放射能濃度を認証した玄米、大豆粉末、牛肉、しいたけを電量とする複数の放射能分析用標準物質を開発し、頒布するとともに、開発した標準物質を試験試料として活用した放射能測定技能試験を継続的に実施してきた。ここでは ⁴⁰K、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度だけでなく、⁹⁰Sr 放射能濃度も認証した放射能分析用魚骨灰標準物質の作成と共同実験による値付け結果を総括するとともに、今後の放射能分析用標準物質開発に向けて、必要とされる品目、値付け対象核種、放射能濃度レベルに関して望ましい方向性を考え、議論したい。

【原料選定と作成】放射能分析用魚肉・魚骨灰標準物質は ⁴⁰K、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs に加えて ⁹⁰Sr 放射能濃度 (⁹⁰Sr 目標値：約 10 Bq/kg) の値付けを目標にした。そのため、原料選定のために複数の海産物を採取し、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、⁹⁰Sr 放射能濃度を予備測定した。予備分析の結果、⁹⁰Sr 放射能濃度の目標値を満たす可能性を示したコモンカスベを標準物質の原料に選定した。東日本太平洋沿岸域で採取した 511 kg のコモンカスベを解体し、頭部・尾部・内臓を除去し肉部 164 kg、骨部 75 kg を得た。肉部・骨部を 105°C で乾燥した。骨部は乾燥後 500°C で 48 時間加熱し灰化した。乾燥後した肉部、灰化した骨部をさらに粉砕し V 型混合器で均質化した。最終的に肉部 (魚肉) を 35.5 kg、骨部 (魚骨灰) の 6.9 kg を回収した。回収した魚肉・魚骨灰を容器 (魚肉：U8 容器・100 mL 容器・1 L 容器、魚骨灰：U8 容器・100 mL 容器) に瓶詰めし、候補標準物質とした。

【共同分析法による値付け】候補標準物質の均質性は γ 線スペクトロメトリー (¹³⁴Cs、¹³⁷Cs)、ICP-OES 測定 (⁴⁰K) による測定値から評価した。値付けは国内の複数試験所が参加する共同分析法に基づいて決定した。共同分析法の参加機関数は、魚肉の γ 線放出核種の測定に 14 機関、魚骨灰の γ 線放出核種測定に 9 機関、魚骨灰の ⁹⁰Sr 分析に 16 機関が参加した。共同分析結果から決定した認証値及びその拡張不確かさ (基準時間：2014 年 11 月 1 日 0:00:00) は、魚肉 [⁴⁰K: (349±29) Bq/kg, ¹³⁴Cs(62±5) Bq/kg, ¹³⁷Cs(196±14) Bq/kg]、魚骨灰 [⁴⁰K: (783±43) Bq/kg, ⁹⁰Sr: (11.5±1.2) Bq/kg, ¹³⁴Cs: (141±10) Bq/kg, ¹³⁷Cs: (445±29) Bq/kg] であった。魚骨灰中の ⁹⁰Sr 放射能濃度は目標値とした約 10 Bq/kg を満たした。

【頒布状況・今後の標準物質開発に向けて】現在、魚肉標準物質の在庫数は余裕があるが、魚骨灰は作成数が少なかったため残数が少なく、今後の ⁹⁰Sr 分析の精度管理の需要に対応できない可能性がある。また、魚骨灰の安定 Ca・Sr 濃度はそれぞれ 305 g/kg、2.42 g/kg と比較的高い値を示すため、ICP 質量分析法による ⁹⁰Sr 測定の妥当性評価に活用することが難しい。これらの点は今後の標準物質開発の重要な指針となる。

Ten years of development and dissemination of environmental radioactivity reference materials for food and environment analysis (3) Fish meat and fish bone ash
MIURA T., MINAI T., YONEZAWA C., ARAKAWA F., OKADA Y. OKADA A. KOJIMA I., OSAWA T., KAKITA K., HIRAI S.

部会 | 部会

アルファ放射体・環境放射能部会

座長: 小池 裕也 (明治大)

2022年9月15日(木) 12:30 ~ 13:00 B会場 (206室)

[Zoomはこちら](#)

基盤セッション 原子力化学・アクチノイド化学 | 基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

座長: 桐島 陽 (東北大学)、鈴木 達也 (長岡技科大)

2022年9月15日(木) 13:40 ~ 15:00 B会場 (206室)

Zoomはこちら

[1B09-12-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B09] 福島第一原子力発電所で採取した試料の分析の現状と課題

*平井 睦¹ (1. 東京電力ホールディングス (株))

13:40 ~ 14:05

[1B10] 福島第一原子力発電所2号機トーラス室滞留水の α 核種を含有する微粒子の検出と分析

*蓬田 匠¹、大内 和希¹、岡 壽嵩¹、北辻 章浩¹、駒 義和¹、今野 勝弘² (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京電力ホールディングス)

14:05 ~ 14:30

[1B11] 樹脂を用いた模擬デブリ溶解液からのウラン回収

*IKHWAN FAUZIA HANUM¹、鈴木 達也¹、風間 裕行²、阿部 千景³、小無 健司³ (1. 長岡技術科学大学、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学)

14:30 ~ 14:45

[1B12] ICP-MS/MSによるアクチノイド核種相互分別に向けた気相反応挙動の予測

*風間 裕行¹、関尾 佳弘¹、前田 宏治¹、小山 真一¹、鈴木 達也²、小無 健司³、阿部 千景³、永井 康介³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 長岡技術科学大学、3. 東北大学)

14:45 ~ 15:00

(2022年9月15日(木) 13:40 ~ 15:00 B会場)

[1B09-12-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1B09 福島第一原子力発電所で採取した試料の分析の現状と課題 (東京電力ホールディングス)○平井睦

【緒言】現時点において、福島第一原子力発電所からの燃料デブリ本体の試料は取得されていないものの、1～3号機格納容器(PCV)内、及び近傍から汚染物試料が採取されるようになってきている。これらのサンプルには、事故進展由来の汚染が付着している可能性があり、これらを詳細に分析することにより、燃料デブリ分布や核分裂生成物(FP)の化学的特性に関する検討など、廃炉に役立つ知見が得られると考えられることから、東京電力 HD は、廃炉・汚染水対策事業「燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発」等と協働し、サンプル分析を進めてきた。特に、これらサンプルに付着した微粒子は、粒子形成時の炉内の温度や雰囲気等の状況を反映した情報を含んでいることが期待されるため、U 含有粒子を中心に組成、組織、結晶構造の分析が進められている。ここでは、特徴的な粒子について微細組織分析結果ならびに粒子形成プロセスの検討結果を中心に紹介する。

【分析結果の概要と形成過程の推定】採取したサンプル上の U 含有粒子を SEM/EDS により探索し、FIB/STEM/EDS/電子線回折により、粒子の組成、組織、結晶構造を測定した。一例として、図 1 に 2 号機シールドプラグ上養生シートから採取した粒子の HAADF(High-Angle Annular Dark Field)像を示す。本粒子は 2 μm 程度の微小な粒子で、内部には、立方晶(U,Zr,Fe,Cr)O₂ と立方晶(Fe,Cr)₃O₄ が共存し、微細に分布している。この粒子は、U-Zr-Fe-Cr-O 融体が冷却過程において両相が分離・凝固したものと推定される。析出物サイズは冷却過程における物質移動の結果であることから、本粒子は、粒子形成時の温度や雰囲気に関する情報を含んでおり、また、FP やアクチノイドを含む粒子は、その組成、同位体比が燃焼の特徴を示す可能性がある。このように、粒子に含まれる種々の情報は、事故進展理解に役立つものと期待される。

今後、炉内状況把握を進めていくためには、事故進展の流れに沿った forward analysis と実測情報に基づく backward analysis とを互いに連携しながら進めていくことが肝要であり、そのためにも、目的に応じて分析を適切に実施し、それらを統合することが重要と思われる。

—謝辞—

本研究は、経済産業省「平成 26 年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金(総合的な炉内状況把握の高度化)」 「平成 28 年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握・分析技術の開発)」 「平成 30 年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発)」の研究の一部を含む。

Current status and issues of analysis of samples collected at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant
HIRAI, M.

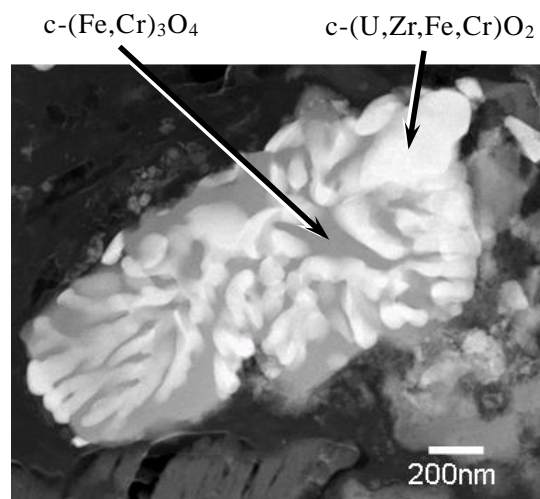


図 1 2 号機シールドプラグ上養生シートから採取した試料の HAADF 像

1B10

福島第一原子力発電所 2 号機トールス室滞留水の α 核種を含有する微粒子の検出と分析

(原子力機構¹、東京電力 HD²)○蓬田匠¹、大内和希¹、岡壽崇¹、北辻章浩¹、駒義和¹、今野勝弘²

東京電力福島第一原子力発電所(1F)は、2011年3月11に発生した地震とそれに伴う津波によって大きな損害を被った。当時、6基の原子炉のうち1から3号機は運転中であり、炉心の核燃料が損傷し、その崩壊熱を除去するために淡水や海水が投入された。投入された水は建屋の地下に留まり、これに核燃料の成分が溶解して高放射性の滞留水を形成した。滞留水には、核分裂生成物やウラン(U)に由来するアクチニドなどの放射性核種が含まれており、これらを除去する化学処理プロセスが構築され、処理された淡水を再利用する循環冷却システムが確立された。滞留水は計画的な処理により減らされてきたが、原子炉建屋の地下の滞留水に高い濃度の α 核種が含まれていることが判明している。Uの他、プルトニウム(Pu)などの α 線を放出する核種を滞留水から効果的に除去する技術を検討するため、滞留水中の α 核種の存在形態の把握が喫緊の課題となった。

そこで我々は、1F2号機トールス室滞留水に含まれる微粒子に焦点を当て、 α 核種の存在形態を把握することを目的とし、粒度分布計を用いた粒径分析、ICP-MSや α 線スペクトロメータを用いた濃度分析、SEM-EDXなどを用いた粒子分析を行い、滞留水中の α 核種を含む微粒子の検出と分析を行った。

まず、滞留水中のどの粒径の粒子が最も α 核種を多く含むのかを調べるため、滞留水中の固形分を孔径10, 1, 0.1, 0.02 μm のフィルタにより段階的にろ過した。ICP-MS及び α 線測定により各分級の α 核種を定量分析した。その結果、U、全 α 核種濃度ともに10 μm 以上の分級に α 核種の99%以上が分布するという結果となった。

次に、 α 核種含有粒子の存在形態を把握するため、 α 核種を含む微粒子の選択的検出を試みた。これまで、1Fサイト内外における、1Fより飛散したUやPuを含む放射性微粒子の分析は、微粒子中に共存するCs由来の γ 線をイメージングプレートやNaIシンチレーション検出器で検出・同定した粒子に対して行われてきた。我々は、SEM-EDXによる自動粒子計測と、アルファトラック法による微粒子検出手法を組み合わせる方法で、 α 核種そのものを検出することを試みた。検出された α 核種微粒子の組成分析を行った結果、Uは最大で数 μm 程度のUを主成分とする微粒子が存在する一方、他の α 核種(Pu, Am, Cm)は鉄粒子に付着した形態で存在することが明らかとなった。

以上の結果より、滞留水中の固形分では、Uと他の α 核種で主要な存在形態が異なる場合があることが明らかになり、滞留水処理を進めるための技術開発や滞留水中での核種の挙動推定を行う上で重要な基礎データを得ることができた。

Detection and analysis of particles containing alpha-emitters in stagnant water at torus room of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station's Unit 2 reactor
Yomogida T., Ouchi K., Oka, T., Kitastuji Y., Koma Y., Konno K.

1B11

TBP 樹脂を用いた模擬デブリ溶解液からのウラン回収

Fauzia Hanum Ikhwan¹, 風間裕行², 阿部千景³, 小無健司³, 鈴木達也¹
長岡技科大¹, JAEA², 東北大³

1. Introduction

Tributylphosphate (TBP) is widely used as extractant in liquid – liquid separation of uranium and plutonium from spent fuel, this method is well-known as PUREX¹. Tamura et al² and Glatz et al³ reported chromatographic extraction of uranium from other fission products by using TBP impregnated resin (TBP resin) in HNO₃. In the present study, recovery of uranium from simulated debris solution by column separation was performed by using TBP resin commercially supplied by TrisKem Int.³, in HO₃ and HCl solutions. In addition, we also investigated the behaviors of other actinides.

2. Experimental

7.75 mL of TBP resin was prepared in the Muromac mini column L. The resin height is 9 cm. We prepared the feed solutions with U in 6 mol/L (M) of HNO₃ or HCl solution. 0.5 mL of the U solution was feed in the above column. 20mL of 6 M HNO₃ or HCl solution was added in this column for the adsorption of U. After this, U was eluted by 0.1 M HNO₃ or HCl solution. U and the stable isotopes of other elements were detected by ICP-MS/MS, Agilent 8900.

3. Results and Discussion

We confirmed that extraction of U from the simulant debris solution. In addition, we also confirmed that extraction of U can be successfully done not only in HNO₃ system but also in HCl system. Uranium high affinity to TBP resin in the high concentration acid, while washing with less than 0.1M acid and water can completely recover the uranium from TBP resin. In addition, Am and Cm as trivalent actinides elements has no absorption on TBP resin and eluted together at the first time when resin was rinsed by 6M of acid. Thorium has similar behavior with U on TBP resin in high HNO₃ media. In contrast, behavior of Th is similar to trivalent actinides on the resin in HCl system.

Acknowledgment

This work is financially supported by the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (through concentrating wisdom) from the Japan Atomic Energy Agency / Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science.

References

- [1] Kenju Watanabe., (1964). Journal of Nuclear Science and Technology, 1, No 5, p.155-162
- [2] N. Tamura., C.Yonezawa, (1974) J. Radioanal. Nucl. Chem, Vol. 20, p. 455-462
- [3] J. P. Glatz., H. Bokelund.,S. Valkiers, (1984) Inorganica Chimica Acta, 94, p.129-130
- [4] C. Dirks C et al, 2014. 17th Radiochemistry conference, Marianske lazne (Tcheque Republic)

*Fauzia Hanum Ikhwan¹, Hiroyuki Kazama², Abe Chikage³, Konashi Kenji³ and Tatsuya Suzuki¹
Uranium recovery from simulated debris solution using TBP resin

1B12

ICP-MS/MS によるアクチノイド核種相互分別に向けた気相反応挙動の予測

(原子力機構¹、長岡技科大²、東北大³)○風間裕行¹、関尾佳弘¹、前田宏治¹、小山真一¹、鈴木達也²、小無健司³、阿部千景³、永井康介³

【緒言】 トリプル四重極誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS/MS)は、直列に配置された二つの質量分離部の間に位置するコリジョン・リアクションセル(CRC)に反応ガスを導入することで同重体干渉の低減が可能であることから、高精度かつ迅速性が求められる燃料デブリ分析への応用が期待される。燃料デブリ分析の対象となるアクチノイド核種は、 $^{238}\text{U}/^{238}\text{Pu}$ や $^{243}\text{Am}/^{243}\text{Cm}$ 等、様々な同重体干渉が予想され、ICP-MS/MS でこれらを分別するためには、CRC へのガス導入に伴う分子イオン生成挙動を把握することが重要である。近年、アクチノイド気相反応の速度論的研究において、アクチノイド単原子イオン(An^+)と酸素ドナーを含むガスとの反応で生成される一酸化物イオン(AnO^+)の生成効率は、基底状態の An^+ から反応活性種(電子配置: $[\text{Rn}]5f^{n-2}6d7s$ 又は $[\text{Rn}]5f^{n-2}6d^2$)に励起される際のエネルギー差と相関があることが報告されている[1]。本研究では、この知見を CRC 内での気相反応に応用し、ICP-MS/MS 測定におけるアクチノイド核種の反応挙動を予測するための相関関係を調査した。

【実験】 ^{232}Th 、 ^{238}U 、 ^{237}Np 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 又は ^{244}Cm を 10^3 ng/L 含む 0.8 mol/L 硝酸水溶液を調製し、CRC に CO_2 を 0.30 mL/min の流量で導入し、ICP-MS/MS(Agilent 8900)による測定を行った。ここで、第 1 質量分離部では An^+ のみを通し、CRC における CO_2 との反応後、第 2 質量分離部で各アクチノイドの生成イオン(An^+ 、 AnO^+ 及び二酸化物イオン(AnO_2^+))を検出した。

【結果と考察】 検出された信号より、各元素において An^+ 、 AnO^+ 及び AnO_2^+ が確認された。各分子イオンの信号強度を An^+ の信号強度で除することにより規格化を行い、 An^+ の基底状態と $[\text{Rn}]5f^{n-2}6d^2$ の電子配置とのエネルギー差に対してプロットしたところ、相関関係が確認された(図 1)。本結果から、CRC に CO_2 を導入した ICP-MS/MS 測定におけるアクチノイド系列の気相反応挙動を定量的に予測することが可能と考えられる。本発表では、CRC に N_2O を導入した結果及び CRC ガス流量依存性についても報告する。

本件は、令和 3 年度-令和 4 年度文部科学省「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の研究課題「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の成果を含む。

[1] Gibson, J. K. et al., *Coord. Chem. Rev.*, **2006**, *250*, 776-783.

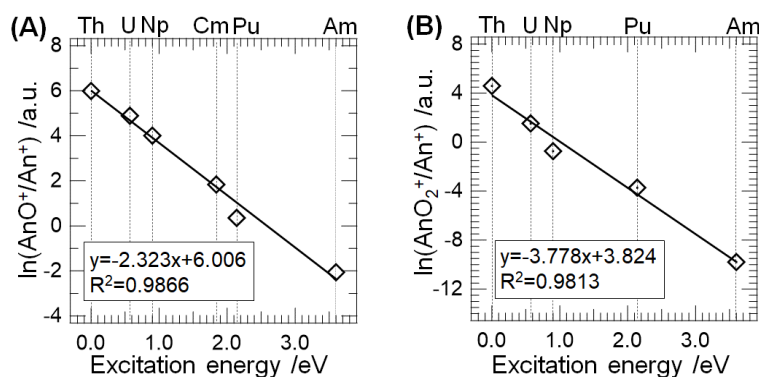


図 1 An^+ の基底状態と $[\text{Rn}]5f^{n-2}6d^2$ とのエネルギー差に対する規格化検出強度, (A) AnO^+ , (B) AnO_2^+ .

Prediction of Actinide Molecular Ion Formation in Collision/Reaction Cell of Triple Quadrupole ICP-MS

KAZAMA, H., SEKIO, Y., MAEDA, K., KOYAMA, S., SUZUKI, T., KONASHI, K., ABE, C., NAGAI, Y.

基盤セッション 原子力化学・アクチノイド化学 | 基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

座長: 桐島 陽 (東北大学)、鈴木 達也 (長岡技科大)

2022年9月15日(木) 15:10 ~ 16:20 B会場 (206室)

Zoomはこちら

[1B13-16-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1B13] アクチノイド化合物のための相対論的電子相関プログラムの開発

*阿部 穰里¹ (1. 広島大学)

15:10 ~ 15:35

[1B14] アモルファス過酸化ウラニルの新しい生成経路の発見

*マックグレイディジョン¹、熊谷 友多¹、日下 良二¹ (1. JAEA 原子力基礎工学研究センター)

15:35 ~ 15:50

[1B15] メカノケミカル法を用いたセリウムを含む Brannerite 化合物の合成に関する研究

*三島 大輝¹、秋山 大輔¹、桐島 陽¹、岡本 芳浩² (1. 東北大学、2. JAEA)

15:50 ~ 16:05

[1B16] 次世代核燃料再処理に向けたマイナーアクチノイド抽出のための新規溶媒探査

*中瀬 正彦¹、渡邊 真太¹、針貝 美樹¹、田端 千尋²、山村 朝雄³、松井 孝太⁴、小林 徹²、梶谷 孝¹、柿木 浩一⁵、塚本 泰介⁵、島田 隆⁵ (1. 東京工業大学、2. 原子力機構、3. 京都大学、4. 名古屋大学、5. 三菱重工業)

16:05 ~ 16:20

(2022年9月15日(木) 15:10 ~ 16:20 B会場)

[1B13-16-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1B13 アクチノイド化合物のための相対論的電子相関プログラムの開発 (広島大理化)○阿部穰里

【緒言】 アクチノイド化合物の研究は放射性廃棄物の処理に関連して重要であるが、実験を遂行するためには、寿命による制限、安全性の確保、許認可の必要性、と様々な障壁を超える必要がある。こうした問題を回避するためにも、理論計算によるアクチノイド化合物の電子状態の解明が期待されるが、顕著な相対論効果や複雑な電子相関効果（擬縮退軌道由来の電子相関効果）を考慮する必要があり、既存の汎用的なソフトウェアで定量的な議論をすることは難しい。2006年に阿部らは、相対論と電子相関を高精度に考慮できる、4成分相対論法による CASCI/CASPT2 プログラムを、UTChem プログラムを基盤として開発した [1]。しかし4成分法は計算コストが高く、アクチノイド化合物の実用的な計算には適さない。一方、フリーソフトの DIRAC [2] に搭載されている厳密2成分相対論法は、4成分法とほぼ等価の精度を保ちつつ、低い計算コストで実行可能である。そこで本研究では既存の CASCI/CASPT2 プログラムを DIRAC に接続できるよう改変し、さらにアクチノイド化合物が計算可能なプログラムになるよう、さまざまな観点からプログラムの改善を行っている。

【理論】 CASPT2 法は、複数の電子配置が支配的な寄与を与える系（擬縮退状態や結合解離過程）を記述するのに優れた方法であり、これをアクチノイド系についても適応していく。CASCI/CASPT2 法の概略を図に示す。フロンティア軌道近傍の擬縮退する軌道群を active 空間に設定し、この空間内で完全配置を生成し配置間相互作用計算を行う(CASCI)。さらに inactive、secondary 軌道まで拡張した 1, 2 電子励起配置の効果を取動論で取り込むことで動的電子相関を考慮する(CASPT2)。アクチノイド化合物の場合、active 空間に *d*、*f* 軌道が含まれる必要があり、一般の分子より大きな active 空間が必要になる。

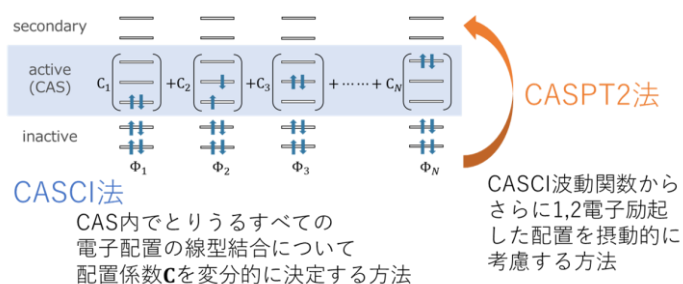


図 CASCI/CASPT2 法の概要

【開発の現状】 DIRAC に接続できるような CASCI/CASPT2 プログラムの開発には成功し、CASCI/CASPT2 プログラムの並列化計算の対応も完了している。しかしながら active 空間のサイズによって計算コストが膨大になるため、active 空間をより大きくとれる方法として、①密度行列繰り込み群 (DMRG) を用いた CASPT2 や、②制限付き CASPT2 法 (RASCI/RASPT2) の適応を行っている。内殻励起の記述が可能な RASCI/RASPT2 法についても検討している。

【参考文献】

- [1] M. Abe et al, J. Chem. Phys., 125, 234110 (2006)
 [2] DIRAC, a relativistic ab initio electronic structure program, Release DIRAC21 (2021), written by R. Bast, et al.
 Development of relativistic electron correlation program for actinide compounds
 ABE M.

1B14 アモルファス過酸化ウラニルの新しい生成経路の発見

(JAEA) ○John McGrady、熊谷友多、日下良二

Uranyl peroxides are found throughout the nuclear fuel cycle in the form of studtite ($\text{UO}_2\text{O}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) and its dehydrated form metastudtite ($\text{UO}_2\text{O}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$). Recently, the formation of an amorphous phase has been identified upon thermal treatment and irradiation of uranyl peroxides. The amorphous phase has been shown to be highly reactive with water generating O_2 gas which has important implications for the handling of nuclear materials.

In this study, we found new formation pathways for amorphous uranyl peroxide under ambient conditions without any thermal treatment and irradiation. UO_2 powder was immersed in 1 mM H_2O_2 solution and the UO_2 surface oxide was analysed using z-axis Raman spectroscopy. At the interface, Raman peaks typical of studtite were observed due to oxidation of UO_2 by H_2O_2 . Underneath the studtite layer, an amorphous uranyl peroxide peak was observed $\sim 750 \text{ cm}^{-1}$. After drying the immersed powder, the amorphous phase Raman signal greatly increased indicating the mechanism of amorphous phase formation involved dehydration. Reimmersion of the amorphous phase into water showed rapid decomposition of the amorphous phase by the disappearance of the Raman peak at $\sim 750 \text{ cm}^{-1}$, and the release of gas was observed via the Raman optical microscope.

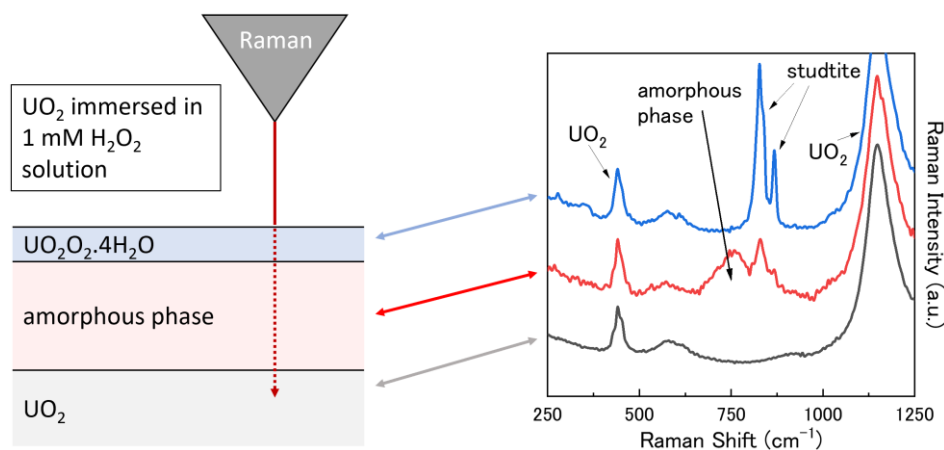


Fig 1: Z-axis Raman analysis of UO_2 after immersion in 1 mM H_2O_2 solution showing the generation of amorphous uranyl peroxide within the oxide.

This work has significant implications for the handling of nuclear materials through the fuel cycle, and is applicable to the storage of debris from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant where the high levels of radiation are likely to generate substantial amounts of uranyl peroxide at the fuel surface due to H_2O_2 generation via water radiolysis.

Finding New Pathways of Amorphous Uranyl Peroxide Generation
MCGRADY J., KUMAGAI, Y., KUSAKA, R

1B15

メカノケミカル法を用いたセリウムを含む Brannerite 化合物の合成に関する研究

(東北大学¹、JAEA²)○三島大輝¹、秋山大輔¹、桐島陽¹、岡本芳浩²

【緒言】 日本では核燃料サイクルの方針のもとで Pu を再利用する予定であるが、計画が予定通りに進まず Pu の保管量が増え続けている。国際条約上 Pu の平和利用以外の保有は禁じられており日本でも余剰分の処分が検討されているが、具体的な方法は決まっていない。海外での研究ではチタン酸塩である Brannerite (ATi_2O_6)が Pu の固化に有望であるとの報告があるが、合成に 1300°C で 24 時間以上の加熱を必要とし管理やコストの観点から大量に取り扱うことが工学的に容易ではない。そこで本研究では Pu の代替元素とした Ce を含む Brannerite 化合物の合成プロセスの低温化と短時間化を検討した。

【実験】 原料となる UO_2 、 CeO_2 、 TiO_2 は、 UO_2 と CeO_2 を物質量比 U:Ce=9:1(MOX 燃料を想定)、U:Ce=5:5 (再処理後 MOX 粉末を想定)、U:Ce=0.:10(比較のため)となるよう秤量し、さらに TiO_2 を(U+Ce):Ti=1:2 となるよう秤量した。本研究では新たな合成プロセスとして、遊星ボールミルを使った磨砕処理により試料に機械的エネルギーを加えて反応性を向上させる、メカノケミカル法を採用した。ここでは目的のモル比となるよう粉末試料を秤量し、その後遊星ボールミルで磨砕混合を行った。比較として遊星ボールミルを用いない乳鉢による混合による試料の合成も行った。混合をした試料 0.1 g を $\Phi 7\text{mm}$ のペレットとし、電気炉で大気または Ar 気流下で $900\sim 1300^\circ\text{C}$ の温度で 6 時間加熱を行った。

【結果と考察】 U:Ce=5:5, 0:10 のボールミル混合試料では Brannerite 化合物である $\text{U}_{0.5}\text{Ce}_{0.5}\text{Ti}_2\text{O}_6$ 、 CeTi_2O_6 の生成が確認されたが、U:Ce=9:1 のボールミル混合試料では大気雰囲気下では U が酸化され U_3O_8 が生成し、Ar 気流化では未反応の UO_2 が確認された(図 1)。そこで U が 5 価を取った場合に Brannerite 結晶内の電気的中性を補償するため、 Gd_2O_3 を $\text{U}^{5+}:\text{Ce}^{3+}:\text{Gd}^{3+}=9:1:8$ となるように追加した。この結果、大気雰囲気下

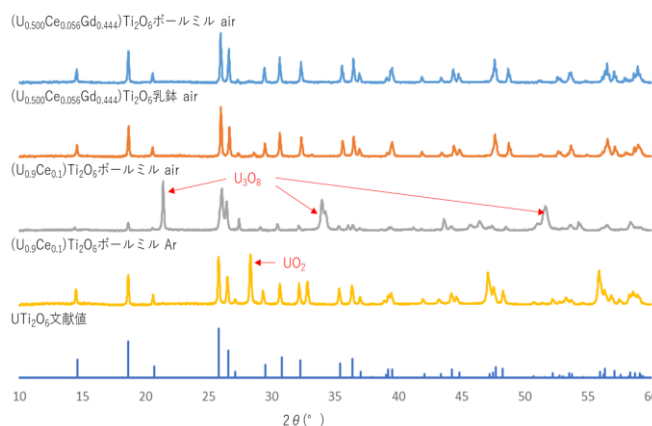


図 1. 1300°C 加熱後試料の粉末 XRD 解析結果

1300°C の加熱でボールミル、乳鉢混合共に Brannerite 単相の生成が確認でき、従来の方法に比べ 1/4 以下の時間で合成することができた。本発表では加熱温度の低温化における結果と、合成した Brannerite の固相分析(SEM-EDX、XAFS 分析)についても述べる。

Study on the synthesis of Brannerite compounds containing Cerium using the mechanochemical method

MISHIMA T., AKIYAMA D., KIRISHIMA A., OKAMOTO Y.

1B16

次世代核燃料再処理に向けたマイナーアクチノイド抽出のための新規溶媒探査

(東工大¹、原子力機構²、京大³、名大⁴、三菱重工⁵)○中瀬正彦¹、渡邊真太¹、針貝美樹¹、田端千尋²、山村朝雄³、松井孝太⁴、小林徹²、梶谷孝¹、柿木浩一⁵、塚本泰介⁵、島田隆⁵

【緒言】 2050年までのゼロカーボン化に向け、原子力と再生可能エネルギーの協奏的な利活用が重要である。原子力の課題である廃棄物問題解決のため、次世代核燃料再処理へのマイナーアクチノイド(MA)分離導入を目指した研究開発を展開している。

【背景と目的】 六ヶ所再処理工場は軽水炉使用済燃料を想定しているが、使用済燃料の高燃焼度化、MOX燃料利用により高レベル廃液中の高発熱性のMAが増加し、処分が困難になると懸念される。従ってMA分離が重要だが、3価同士のMAと希土類元素(RE)の分離は困難な系である。そこで抽出剤開発に加えて溶媒検討から実施している。例

えば難燃性フッ素系溶媒では高い安全性、第三相形成抑制、溶媒効果による抽出性能向上も期待される。抽出、新規溶媒の化工物性取得、化学計算、機械学習も援用した効率的な溶媒探査を目指している(図1)。

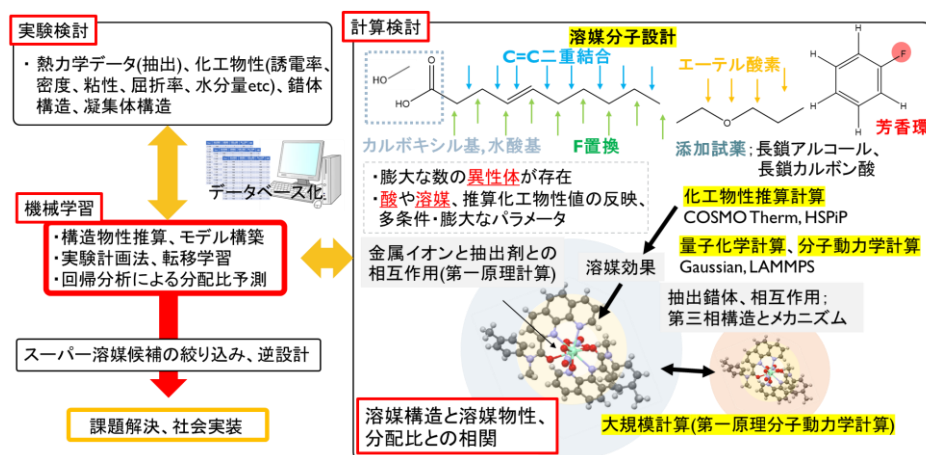


図1 新規溶媒探査の流れ

【実験、計算結果と考察】 炭化水素系、フッ素系溶媒を始めとした多様な有機溶媒を準備し、REとしてLa、Nd、Eu、MAとしてAm、Cmの抽出試験を行った。抽出剤は原子力再処理分野で有名なDGA、NTAアミド、CMPO等を用いた。その結果、溶媒に応じた抽出性能の変化が見られた。実験や物性推算計算(COSMO、HSP)で得られた溶媒化工物性、化学計算(DFT、MD)により得られた錯体の生成エンタルピーや結合性、溶媒効果の検証を行い、実験・計算データの重回帰処理等により相関関係が見出された。

【展開】 詳細な抽出に及ぼす溶媒効果発現メカニズムを理解するため、溶液中の錯体構造や第三相構造をXAFS法や溶液散乱法と計算による検証を進めている。ガウス回帰処理による実験計画法、REの抽出データからMAの抽出データを推察する転移学習適用スキームを整備し、引き続きMA抽出データの拡張と工学適用を目指す。

【謝辞】 文部科学省原子力システム研究開発事業 JPMXD0222682447、東北大金研 20F0023, 202012-IRKAC-0019, 202112-IRKAC-0026の助成を受けたものです。

Exploration of novel solvent for Minor Actinide separation for the future reprocessing of nuclear-spent fuels

NAKASE M., WATANABE S., HARIGAI M., TABATA C., YAMAMURA T., MATSUI K., KOBAYASHI T., KAJITANI T., KAKINOKI K., TSUKAMOTO T., SHIMADA T.

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

座長: 中島 覚 (広大)

2022年9月15日(木) 10:00 ~ 11:20 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[1C01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

- [1C01] 負ミュオン寿命法による鉄鋼中微量炭素の非破壊深度分布測定
*稲垣 誠¹、久保 謙哉²、二宮 和彦³、浅利 駿介³、吉田 剛⁴、竹下 聡史⁴、梅垣 いづみ⁴、下村 浩一郎⁴、河村 成肇⁴、ストラッサー パトリック⁴、三宅 康博⁴、伊藤 孝⁵、髭本 亘⁵、齋藤 努⁶ (1. 京都大学、2. 国際基督教大学、3. 大阪大学、4. 高エネルギー加速器研究機構、5. 日本原子力研究開発機構、6. 国立歴史民俗博物館)
10:00 ~ 10:15
- [1C02] ランタノイド内包フラーレン ($\text{Ln}^{3+}@\text{C}_{82}^{3-}$) における HPLC 溶出挙動の熱力学的解析
*黒田 拓真¹、西村 峻¹、秋山 和彦^{1,2}、羽場 宏光²、高宮 幸一³、久富木 志郎¹ (1. 都立大院理、2. 理研仁科セ、3. 京大複合研)
10:15 ~ 10:30
- [1C03] 輝尽発光材料の光照射前後における Eu 発光中心の局所状態観察
*伊藤 史菜¹、小林 義男¹、渡辺 裕夫¹、落合 隆夫¹ (1. 電気通信大学大学院)
10:30 ~ 10:45
- [1C04] スピנקロスオーバーを示す超分子錯体化合物の ^{61}Ni メスbauer 分光
*北澤 孝史¹、北清 航輔¹、上田 大生¹、藤本 大地¹、新井 駿祐¹、小林 康浩²、北尾 真司²、窪田 卓見²、瀬戸 誠² (1. 東邦大学理学部、2. 京都大学複合原子力科学研究所)
10:45 ~ 11:00
- [1C05] 高圧下中性子回折実験から地球深部の水素を探る
*鍵 裕之¹ (1. 東京大学大学院理学系研究科)
11:00 ~ 11:20

(2022年9月15日(木) 10:00 ~ 11:20 C会場)

[1C01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1C01

負ミュオン寿命法による鉄鋼中微量炭素の非破壊深度分布測定

(京大複合研¹、国際基督教大学²、阪大放射線機構³、阪大院理⁴、高エネ機構放射線⁵、高エネ機構ミュオン⁶、原子力機構先端研⁷、国立歴史民俗博物館⁸)○稲垣誠¹、久保謙哉²、二宮和彦³、浅利駿介⁴、吉田剛⁵、竹下聡史⁶、梅垣いづみ⁶、下村浩一郎⁶、河村成肇⁶、ストラッサー・パトリック⁶、三宅康博⁶、伊藤孝⁷、髭本亘⁷、齋藤努⁸

【緒言】 負電荷を持ったミュオンは、物質に打ち込まれて停止すると物質内の原子に捕獲されてミュオン原子を形成する。その後ミュオンは、電子への崩壊（寿命 2.2 μs ）もしくは原子核への吸収で消滅する。ミュオンの原子核への吸収速度は原子番号とともに大きくなり、崩壊電子の寿命スペクトルをから物質中のどの原子にミュオンが捕獲されたのかを調べることができる。ミュオンの物質への入射エネルギーを調整することで、ミュオンの停止位置を制御できることから、非破壊で深度選択的な元素分析が期待できる。我々はこれにより鋼鉄中の微量な炭素の定量分析ができると考え、分析手法の開発を行ってきた。本発表ではその最新の研究成果について報告する。

【実験】 実験は世界最高強度のパルスミュオン源である J-PARC MLF ミュオン施設において実施した。化学分析により炭素の含有量が分かっている鉄板（表 1 参照、それぞれ 5 x 5 x 0.5 cm^3 ）3 枚を積層した試料に対し、それぞれの層に停止するように入射エネルギーを調整してミュオンを照射した。崩壊電子を大立体角のシンチレーション検出器システムで測定し、図 1 に示す時間スペクトルを得た。また、別に成分既知の標準試料（炭素含有量 0.002%、0.42%、4.46%の鉄板）の分析を行い、炭素の含有率とミュオンで得られた鉄と炭素のシグナル強度の関係を調べた。

【結果と考察】 標準試料の分析から検量線を作成したところ、炭素の含有率と炭素のシグナル強度間で良好な直線関係が得られた。これにより積層した鉄試料の炭素含有量を定量し、表 1 に示すように化学分析による値と一致した。本研究により、ミュオン寿命解析で深さ数 mm に存在する 1% に満たない炭素の非破壊の定量分析が可能であることを示した。今後はこの手法を貴重な鉄製の文化財などに適用し、その炭素量の分析を進めていく予定である。

表 1: 積層鉄試料の炭素濃度の化学分析値とミュオンによる分析値

	化学分析	ミュオン分析
No. 1	0.51%	0.50(2)%
No. 2	0.20%	0.19(1)%
No. 3	1.03%	1.05(3)%

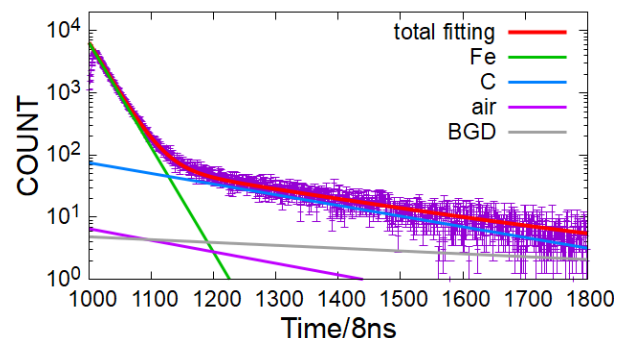


図 1: 炭素含有量 1.03% の鉄板にミュオンを停止させたときに得られた時間スペクトル

Non-destructive and depth-selective quantification of sub-percent carbon in steel by the negative muon lifetime method

INAGAKI, M., KUBO, K., NINOMIYA, K., ASARI, S., YOSHIDA, G., TAKESHITA, S., UMEGAKI, I., SHIMOMURA, K., KAWAMURA, N., STRASSER, P., MIYAKE, Y., ITO, T., HIGEMOTO, W., SAITO, T.

1C02 ランタノイド内包フラーレン ($\text{Ln}^{3+}@\text{C}_{82}^{3-}$) における HPLC 溶出挙動の熱力学的解析

(都立大院理¹、理研仁科セ²、京大複合研³)○黒田拓真¹、西村峻¹、秋山和彦^{1,2}、羽場宏光²、高宮幸一³、久富木志郎¹

【緒言】 金属内包フラーレンの高速液体クロマトグラフィー(HPLC)溶出挙動は炭素ケージの構造及び内包金属からケージへの移動電子数に依存することが知られている。一方で、我々はこれまでの研究から一連のランタノイド金属原子(Ln)を内包した $\text{Ln}@\text{C}_{82}$ フラーレンでは内包金属の違いにより保持時間に微小な差が生じることを見出している。先行研究では、ラジオクロマトグラフィー法を用いた多元素同時分析により La から Gd までの Ln を内包した $\text{Ln}@\text{C}_{82}$ の精密な保持時間が決定され[1]、4f 軌道の不対電子数の差が保持時間へ影響を与える可能性が示唆された[2]。本研究では、HPLC 展開時の温度を変化させ、得られた詳細な保持時間から一連の $\text{Ln}^{3+}@\text{C}_{82}^{3-}$ の HPLC 溶出挙動について熱力学的解析を行うことで、HPLC 溶離挙動の微小な差が内包ランタノイド金属のどのような性質に由来するか調べた。

【実験】 合成・単離した $\text{Ln}@\text{C}_{82}$ (Ln: La, Ce, Pr, Tb, Dy, Ho, Er) を、京都大学研究用原子炉 KUR の圧気輸送管(Pn-2) (出力 1MW、熱中性子束 $5.5 \times 10^3 \text{ N/cm}^2/\text{s}$) にて熱中性子照射を 4 時間行い、 $\text{Ln}@\text{C}_{82}$ を放射化した。短半減期核種である $\text{Ln}_s@\text{C}_{82}$ (Ln_s : ^{140}La , ^{142}Pr , ^{165}Dy , ^{166}Ho , ^{171}Er) と長半減期核種である $\text{Ln}_l@\text{C}_{82}$ (Ln_l : ^{141}Ce , ^{160}Tb) を別々に混合し、それぞれ HPLC 展開(カラム: Buckyprep、移動相: トルエン、流速: 3.2 mL/min、測定温度: 室温, 0°C, -10°C)した。溶出成分は室温については 20 秒ごと、0°C, -10°C では 1 分ごとに分取し、各分画から放出される γ 線を Ge 半導体検出器で測定し、得られたラジオクロマトグラムから各 $\text{Ln}@\text{C}_{82}$ の保持時間を決定した。

【結果】 得られた $\text{Ln}@\text{C}_{82}$ の保持時間から保持比 k を算出し、温度の逆数($1/T$)に対する $\ln k$ の変化を図に示した。HPLC における吸脱着平衡定数 K と保持比 k には相関があり、このプロットの傾きから van't Hoff 式を用いて ΔH および ΔS を導出した。下表に導出した ΔH を示す。この結果から 4f 軌道の不対電子数と ΔH に有意な関係性は見られなかった。本発表では ΔH の詳細な解析結果と ΔS についての解析結果も報告する。

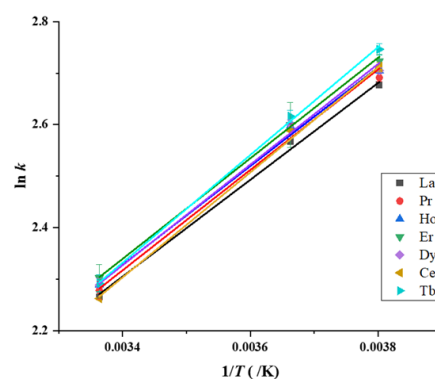


図 $\text{Ln}^{3+}@\text{C}_{82}^{3-}$ の van't Hoff プロット

表 van't Hoff プロットによる ΔH の導出結果

Ln	La	Ce	Pr	Tb	Dy	Ho	Er
4f 軌道の不対電子数	0	1	2	6	5	4	3
ΔH (kJ/mol)	7.941	8.638	7.983	8.698	8.064	8.022	8.051

[1] 秋山和彦他、2009 日本放射化学会年会・第 53 回放射化学討論会 1P28(2009)

[2] 雨倉啓他、2019 日本放射化学会年会・第 63 回放射化学討論会 3B09(2019)

Thermodynamic analysis for HPLC elution behavior of lanthanoids metallofullerenes $\text{Ln}^{3+}@\text{C}_{82}^{3-}$
KURODA T., NISHIMURA S., AKIYAMA K., HABA H., TAKAMIYA K., KUBUKI, S.

1C03

輝尽発光材料の光照射前後における Eu 発光中心の局所状態観察

(電通大院)○伊藤史菜、渡辺裕夫、落合隆夫、小林義男

【緒言】 不完全 4f 電子殻を有する Eu や Dy, Er, Yb などの希土類元素をドープした蛍光体は、様々な光源および液晶ディスプレイ、イメージングプレート (IP) などに用いられている。Eu をドープした輝尽発光材料は、高い発光効率の可視光ルミネッセンスを示し、長時間の残光発光を有する。残光現象を示すことから、光照射で励起された電子が伝導帯に遷移して、近くの空孔にトラップされ、時間をかけて基底状態に戻っているのではないかと示唆されている。しかし、Eu ドープした蛍光材料の発光特性の起源となる Eu の電子状態については、未だ結論に至っていない。本研究は、BaFBr:Eu を試料として、光照射下における Eu の励起状態と準安定状態の電子配置とその生成メカニズムを ^{151}Eu メスバウアー分光法等により解明することを目的とする。Eu は、BaFBr の Ba サイトを置換し、BaFBr のバンドギャップ間に不純物 Eu の新たなエネルギー準位(バンドギャップ 3.2 eV と 2.1 eV)が導入され、この準位への電子の遷移で発光すると考えられている。

【実験】 $\text{Ba}_{1-x}\text{Eu}_x\text{FBr}$ ($x=0, 0.10, 0.25, 0.5, 0.75, 1$) をゾルゲル法で作製した。Eu の出発物質として $\text{EuBr}_3(\text{III})$ 、 $\text{EuBr}_2(\text{II})$ を用いてそれぞれで作製し、X 線回折、発光量子収率、吸収法メスバウアーの測定を行なった。

【結果と考察】 $\text{EuBr}_3(\text{III})$ で調製した $\text{Ba}_{1-x}\text{Eu}_x\text{FBr}$ の粉末 X 線回折パターンは、BaFBr とほぼ同じであった。量子収率測定からはバンドギャップ 3.2 eV (390 nm) による発光は見られたが、2.1 eV (590 nm) の発光は見られなかった。 ^{151}Eu メスバウアー吸収スペクトルからは、Eu(II) のピークが見られず、Eu(III) のみのピークとなった。

一方、 $\text{EuBr}_2(\text{II})$ から作製した $\text{Ba}_{1-x}\text{Eu}_x\text{FBr}$ の X 線回折パターンも $\text{EuBr}_3(\text{III})$ で調製した試料やと BaFBr と同様の結果を得た。BaF₂ の回折線も見られたが、Eu を含む試料と BaF₂ の発光波長は異なるので、量子収率の測定には影響を与えないと考えた。Ba_{0.5}Eu_{0.5}FBr の量子収率測定では、390 nm (3.2 eV) および 590 nm (2.1 eV) の発光が見られ、Eu 導入による新たなエネルギー準位を確認できた (図 1)。これらの結果から、Eu は Ba を置換していると思われるが、 ^{151}Eu メスバウアー吸収スペクトルからは Eu(II) のピークが見られなかった。

発光現象にともなう Eu の電子状態を観察するには、吸収法よりも内部転換電子メスバウアー分光法 (CEMS) が最適な測定手段である。Eu の内部転換係数 α (e/γ)=28 という報告もあり、高効率で測定できるので、現在 $\text{Ba}_{1-x}\text{Eu}_x\text{FBr}$ の CEMS 測定を進めている。

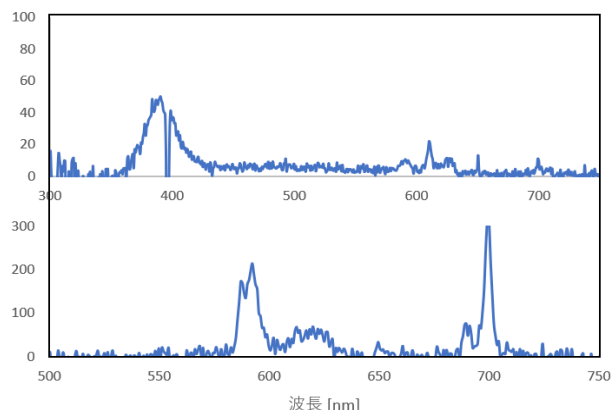


図 1 $x=0.5$ の励起光 290 nm (上) と 390 nm (下) の発光スペクトル。

Observation of local states of Eu atoms of the photo-stimulated luminescent center under light irradiation. (Univ. Electro-Commun.) ITO M., WATANABE Y., OCHIAI T., KOBAYASHI Y.

1C04 スピントスオーバーを示す超分子錯体の⁶¹Ni メスバウアー分光

(東邦大理¹, 東邦大複合物性センター², 京大複合原子力科学研究所³)
 ○北澤 孝史^{1,2}, 北清 航輔¹, 上田 大生¹, 藤本 大地¹, 新井 駿祐¹
 小林 康浩³, 北尾 真司³, 窪田 卓見³ 瀬戸 誠³

多様な配位形式をとる Ni 金属錯体化学分野の研究において、⁶¹Ni メスバウアー分光は極めて魅力ある研究手法と考えられる。そこで、今回 Ni²⁺の配位様式が多様なことからまず基礎科学的データを得る目的で、2D Hofmann 型高分子錯体として Fe(Ligand)₂[M(CN)₄] (M = Ni²⁺)を合成し、⁶¹Ni メスバウアーを測定したので報告する。

京都大学複合原子力科学研究所内のライナックにて、⁶²Ni-14at%V 合金を(γ, p)反応で ⁶¹Co を生成し、メスバウアー線源を作成した。すなわち、電子線加速器ライナックで **31 MeV**に加速された電子を X 線コンバータである Pt ターゲットに照射し、そこから発生する制動 X 線を照射し (γ, p) 反応にて合金内で生成する ⁶¹Co をメスバウアー線源となる。メスバウアー線源は、半減期 100 分なので約 3 時間の測定を繰り返し行った。キャリブレーションは Fe 箔の ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を行った後 Ni-14at%V 合金の ⁶¹Ni メスバウアー測定を行い、そのピーク位置を速度ゼロとした。メスバウアースペクトルは線源及び試料ともに **16 K**で測定を行った。直接法で得られた異なる SCO 挙動を示す 2 次元 Hofmann 型超分子錯体で Fe²⁺イオンが高スピン状態から低スピン状態へ 100 % SCO 転移する Fe(pyridine)₂Ni(CN)₄ と高スピンの 50 %が低スピン転移する Fe(3-methylpyridine)₂Ni(CN)₄, 同じく 50 %SCO 転移する Fe(3-Cl-pyridine)₂Ni(CN)₄ の ⁶¹Ni メスバウアースペクトルを **Fig. 1** に示す。得られたメスバウアーパラメータは、四極子相互作用の違いが関連している可能性があり、これが SCO 挙動の違いに関連している可能性もあり、2 次元 Hofmann 型超分子錯体において、Fe²⁺の SCO 挙動の違いが Ni²⁺の状態に影響を及ぼしている可能性を示唆している。

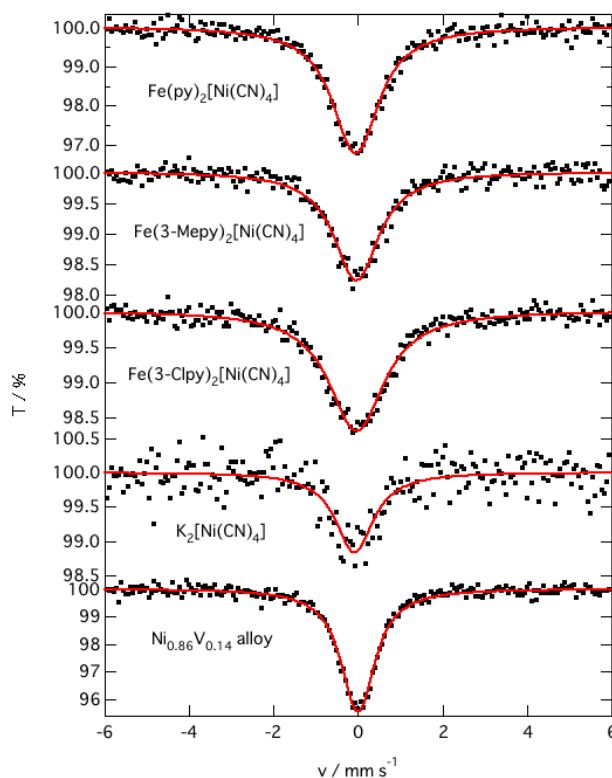


Fig.1 ⁶¹Ni Mössbauer Spectroscopy for Supramolecular Bridging Cyanide Complexes

Fe(pyridine)₂Ni(CN)₄, Fe(3-methyl-pyridine)₂Ni(CN)₄, Fe(3-Cl-pyridine)₂Ni(CN)₄

⁶¹Ni Mössbauer Spectroscopy for Supramolecular Bridging Cyanide Complexes
 KITAZAWA, T., KITASE, K., UEDA, D., FUJIMOTO, D., ARAI, S., KOBAYASHI, Y.,
 KITAO, S., KUBOTA, T., SETO, M.

1C05 中性子回折実験から地球深部の水素を探る (東大院理¹) ○鍵 裕之¹

水惑星である地球は、その表面の約7割が海で覆われている。地球上の水の大部分を占める海水の質量(1.4×10^{21} kg)を地球の質量(6.0×10^{24} kg)で除することで求めた現在の地球の水濃度は0.02 wt%となる。一方、地球の原料と考えられる隕石中の水濃度は約2 wt%で、両者には2桁もの開きがある。揮発性の高い水が地球の進化過程で宇宙空間に飛散した可能性だけでなく、地球深部を構成する鉱物に安定な化学形態で水が現在も取り込まれている可能性もある。1990年代以降に盛んに進められた高温高压実験により、深さ410 km以下のマントル遷移層を構成する主要なケイ酸塩鉱物(たとえば wadsleyite, ringwoodite)に2-3 wt%の水がOHイオンとして安定に取り込まれることが明らかになった。これらの鉱物以外にも多量の水をOHイオンとして取り込むことができる含水高密度相が複数報告されている。一方、地球核はFeを主成分とする合金と考えられるが、地震学的な観測によって求められた核の密度はFeの密度よりも1割近く低く、水素、酸素、ケイ素、硫黄などの軽元素が鉄に取り込まれている可能性が高い。原子番号と原子量が最も小さく、宇宙元素存在度も最も高い水素は地球核に含まれる軽元素の有力な候補である。

地球深部を構成する物質にどのように水素が取り込まれているかを明らかにすることは、地球深部での水素の budgetを知るためにも、そして地球深部における水素のふるまいを知るためにもきわめて重要である。中性子回折は、地球深部の高温高压条件におかれた結晶構造中のどこにどれだけの水素原子が取り込まれているかを知ることができる唯一の手法である。X線回折は電磁波(光)であるX線が電子と相互作用するため、原子量1の水素に対してほぼ無力であるが、中性子は原子核によって散乱されるため水素原子による中性子散乱も強く観察される。また、大型加速器からの陽子を水銀ターゲットに照射して得られるパルス中性子ビームを利用したTOF(time of flight)測定による中性子回折実験は、試料からの開口角が強く制限される高压実験には大変有利である。我々はJ-PARC MLFに建設された高压ビームライン(BL11, PLANET: Pressure Leading Apparatus for Neutron Diffraction)に設置された大型6軸プレス(圧姫)を用いた高温高压下中性子回折測定によって、地球深部に存在しうる高压鉱物や地球核の主成分となる鉄中に水素がどのような構造で取り込まれているかを調べている。

PLANETでは10 GPa程度までの圧力領域での高温高压実験は標準的な試料構成を用いることでルーチン的に実行可能である。一方、地球深部、特にマントル遷移層以深の圧力条件(約13 GPa以上)を達成するためには新たな技術開発が必要である。我々は高温高压下中性子回折測定の圧力上限を高めることを目的として、8個の2段目アンビルを用いたMA6-8加圧方式の開発を進め(Sano-Furukawa et al., 2021)、14.7 GPa, 800 Kでの $\text{Fe}_{0.95}\text{Si}_{0.05}$ の中性子回折パターンを報告した(Mori et al., 2021)。本講演では、PLANETビームラインでの高温高压下中性子回折測定の現状、地球核の進化に深く関連する金属鉄の水素化挙動の中性子回折測定による高温高压下その場観察について報告する。特に、鉄の水素化過程に鉄以外の元素、すなわちケイ素、硫黄、ニッケルなどの地球核に存在が推定されている元素が与える影響について述べたい。

Neutron diffraction experiments at high pressure for studying hydrogen in the deep Earth
KAGI, H.

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

座長: 久保 謙哉 (ICU)

2022年9月15日(木) 11:25 ~ 12:30 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[1C06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C06] 光子時空間相関を用いたイメージング・計測手法の開拓

*島添 健次¹ (1. 東京大学)

11:25 ~ 11:45

[1C07] 酸化亜鉛中不純物インジウムの状態制御による電気伝導度の飛躍的向上

*佐藤 渉¹、高田 真宏¹、清水 弘通¹、小松田 沙也加¹、吉田 靖雄¹、森山 暁栄¹、島村 一利¹、大久保 嘉高² (1. 金沢大学、2. 京都大学)

11:45 ~ 12:00

[1C08] 摂動角相関法による Cd フェライト中の超微細場測定 — Cd 濃度依存性及び温度依存性の観察

*藤井 光樹¹、小中 將彰²、伊東 泰佑¹、佐藤 渉^{1,2} (1. 金沢大学大学院 自然科学研究科、2. 金沢大学 理工学域)

12:00 ~ 12:15

[1C09] SrTiO₃中にドーピングされた¹¹¹Cdの占有サイトと熱安定性の研究

*小松田 沙也加¹、佐藤 渉²、谷口 秋洋³、谷垣 実³、大久保 嘉高³ (1. 金沢大学人間社会研究域、2. 金沢大学理工研究域、3. 京都大学複合原子力科学研究所)

12:15 ~ 12:30

(2022年9月15日(木) 11:25 ~ 12:30 C会場)

[1C06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1C06

光子空間相関を用いたイメージング・計測手法の開拓

(東京大学¹)○島添健次¹

【緒言】 PET(Positron Emission Tomography)や SPECT(Single Photon Emission Computed Tomography)等の核医学手法は高感度に病態の検出が可能な非常に強力な医学診断手法である。一方で従来の核医学手法においては放射性トレーサーの集積のみが可視化可能である。我々は核医学計測における局所化学状態の計測や分子間相互作用の計測を目指した光子時空間相関を用いたイメージング・計測手法の検討・開発を行ってきた。本講演ではそのような多光子の時空間相関を計測するシステムの開発と局所環境計測・イメージングの応用展開について展望する。

【手法】 PET や SPECT ではイメージングの再構成は LOR(Line Of Response)を 360 度方向から取得することにより行うトモグラフィを手法用いている。本研究においては 1 分子の挙動を観測するため、¹¹¹In や ¹⁷⁷Lu 等のカスケード崩壊を行い、ガンマ線光子を連続的に放出する核種に着目した。カスケード核種からの複数の光子を、同時にコインシデンスを取って観測・入射方向を測定することで 1 つのコインシデンスイベントに対して 1 点に位置を特定することが可能となる。本手法を Double Photon Emission Imaging (DPEI)と名付けた。例えば SPECT ですでに臨床的に利用されている ¹¹¹In は 171 keV と 245 keV のガンマ線を 85 ns の時定数で放出を行う。入射方向の特定には Compton 散乱から方向推定を行うコンプトンイメージング(電気式コリメーション)方式とコリメーターを用いる機械的コリメーション方式があり得るがこれまでどちらを用いた場合でも従来手法と比較して高い信号バックグラウンド比を実現可能であることを報告してきた[1][2]。基本的には DPEI で得られる情報も RI の集積情報である。

我々は DPEI による分子位置特定手法とカスケード崩壊のときに生じる中間準位と原子核周囲の外場の超微細相互作用を用いて、更に分子周囲の化学的情報の可視化が可能ではないかと考えた。研究では液体の ¹¹¹InCl₃ の pH を変えたサンプルの周囲を 512 チャネルの GAGG ガンマ線検出器で囲んだ検出体系を構築しガンマ線の放出相関を網羅的に同時計測した。またイメージング検出器と組み合わせた可視化試験を実施した。

【結果と展望】

pH3 から 5 の領域において 1 本目に対する 2 本目のガンマ線放出相関の有意な変化が観測された。また機械式コリメーターを用いたイメージングにより集積と局所化学情報の両方の観測が可能であることが示された[3]。講演では本手法の他の手法と組み合わせた応用可能性や計測体系の改良について議論することとしたい。

【参考文献】

- [1] Uenomachi, Mizuki, et al. "Double photon emission coincidence imaging with GAGG-SiPM Compton camera." *NIMA* 954 (2020): 161682.
- [2] Uenomachi, Mizuki, et al. "Simultaneous multi-nuclide imaging via double-photon coincidence method with parallel hole collimators." *Scientific Reports* 11.1 (2021): 1-11.
- [3] Shimazoe, Kenji, Mizuki Uenomachi, and Hiroyuki Takahashi. "Imaging and sensing of pH and chemical state with nuclear-spin-correlated cascade gamma rays via radioactive tracer." *Communications Physics* 5.1 (2022): 1-8.

Development of Multi-Photon Time Space Correlation Measurement and Imaging method
SHIMAZOE K.

1C07 酸化亜鉛中不純物インジウムの状態制御による電気伝導度の飛躍的向上

(金沢大理工¹、金沢大院自然²、金沢大人社³、金沢大総合技術⁴、京大複合研⁵)○佐藤 渉^{1,2}、高田真宏²、清水弘通²、小松田沙也加³、吉田靖雄^{1,2}、森山暁栄²、島村一利⁴、大久保嘉高⁵

【緒言】 酸化亜鉛 (ZnO) は 3.4 eV のバンドギャップをもつため、完全結晶であれば絶縁体となる物質であるが、不純物の導入によってバンドギャップ中にそれらの準位を形成することで、光学特性や電気特性が大きく変化する。従って、不純物の存在状態を把握し制御することは、半導体物性を制御することに通じ、機能性材料としての応用を目指す上で大変重要である。我々はこれまで、ZnO 中でドナーとして機能するインジウム (In) を不純物として添加した In-doped ZnO (IZO) を合成し、¹¹¹Cd (←¹¹¹In) をプローブとする γ 線摂動角相関 (PAC) 法で ZnO 中の不純物 In 周辺の局所構造を調べてきた。しかし、固相反応法によって導入された不純物 In は ZnO 中で ZnIn₂O₄ を基本骨格とするナノ構造体を形成し、この構造体が電気伝導の妨げとなっていることが判明した。本研究では、原子レベルでの観察によって、このナノ構造体から In 原子を放出させて Zn 位置に置換させる方法を見出し、置換 In 濃度と電気伝導度との相関関係を明らかにし、伝導度を飛躍的に向上させることに成功したので報告する[1]。

【実験】 粉末 ZnO への非放射性 In の導入では、これまでと同様の固相反応法を採用し[1]、0.5 at.% IZO を合成した。その後 ¹¹¹Cd (←¹¹¹In) の HCl 溶液を滴下し、試料中にプローブを熱拡散させた。ZnO 中に形成された ZnIn₂O₄ 様のナノ構造体から In を放出・拡散させるため、石英管中に真空で封じた試料を 1273 K で加熱し、これを室温に戻して開封して PAC 測定を行った。その後再び別の石英管に真空封入して熱処理をした後に PAC 測定をするという操作を複数回繰り返した。同様の熱処理を行ったプローブを含まない試料の電気伝導度を測定し、Zn 置換成分比と電気伝導度との相関を調べた。

【結果と考察】 真空中での熱処理によって、Zn 置換成分が熱処理時間とともに増加することが明らかとなった。ナノ構造体からの In の放出は、真空加熱によって構造体から酸素原子が脱離し、電荷バランスが崩れたことが原因であると考えられる。PAC 測定試料と同様の熱処理を施したプローブを含まない IZO の電気伝導度と In の Zn 置換成分割合の関係を Fig. 1 に示す。両者にはきれいな相関関係が観測され、真空中での熱処理によって、電気伝導度を格段に増加させることに成功した。In が実際にドナーとして寄与していることを、In の挙動を原子レベルで観察することで示すことができた。本法は In のみならず、他のドナー元素について、更には他の半導体中の不純物の状態制御にも応用できる可能性を示すものである。

【参考文献】

[1] W. Sato *et al.*, Phys. Rev. Mater. **6**, 063801 (2022).

Atomic level control of association-dissociation behavior of In impurities in polycrystalline ZnO
SATO, W., TAKATA, M., SHIMIZU, H., KOMATSUDA, S., YOSHIDA, Y., MORIYAMA, A., SHIMAMURA, K., OHKUBO, Y.

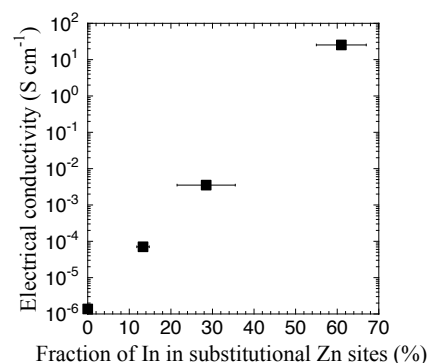


Fig. 1: Dependence of the electrical conductivity of IZO on the fraction of In in substitutional Zn sites.

1C08

摂動角相関法による Cd フェライト中の超微細場測定 —Cd 濃度依存性及び温度依存性の観察

(金沢大院自然¹、金沢大理工²)○藤井光樹¹、小中將彰²、伊東泰佑¹、佐藤渉^{1,2}

【緒言】スピネル化合物は構成元素の種類や占有サイトにより電氣的、磁氣的特性が変化する物質である。それらの基礎物性を調べることは機能性材料としての応用に向けて大変重要である。摂動角相関(PAC)法による先行研究において、逆スピネル型構造をもつ Fe₃O₄ に導入された ^{111m}Cd プロブ核は A サイトを占有し、超微細磁場による静的な摂動パターンを示した[1]。フェリ磁性を示す Fe₃O₄ に Cd を徐々に導入し、正スピネルの CdFe₂O₄ に組成を近づけてゆくと、スピングラスが形成され始め、磁性が変化してゆく過程は非常に興味深い。そこで本研究では Cd_xFe_{3-x}O₄ 中の局所的磁気特性の変化を追跡するため、¹¹¹Cd(←¹¹¹In)プロブを用いた PAC 測定により、各試料中の超微細場の Cd 濃度依存性及び温度依存性を調べた。

【実験】Fe₃O₄, Fe₂O₃ および CdO 粉末を混合し、錠剤成型後、真空中 1373 K で 45 分間焼成して Cd_xFe_{3-x}O₄ 試料を作成し、粉末 X 線回折法によって二次相が生成していないことを確認した。放射性 ¹¹¹In を試料に滴下し、真空中 1373 K で 3 時間熱拡散を行い PAC 測定を行った。

【結果】Fig.1 に Cd_xFe_{3-x}O₄(x=0.25, 0.46)のラーモア周波数 (ω_L) の温度依存性を示す。次式による解析により、x=0.25 および x=0.46 の磁気転移温度(T_C)はそれぞれ 753 K および 658 K であることを特定し、Cd 濃度の増加に伴い T_C が低下する傾向が確認された。

$$\omega_L(T) = \omega_L(0)(1 - T/T_C)^\beta$$

ここで β は臨界指数である。また、本測定の最低温度での ω_L が x=0.25 より x=0.46 の方がわずかに大きい結果となった。この結果を受け、低温での ω_L と Cd 濃度依存性の相関を調べるため Cd_xFe_{3-x}O₄(x=0.1~0.5)で Cd 濃度を変えながら PAC 測定を行った。Fig.2 に Cd_xFe_{3-x}O₄(x=0.1~0.5)の 15 K と室温での ω_L の Cd 濃度依存性を示す。室温では Cd 濃度の上昇と共に ω_L が低下する傾向が見られた。一方、15 K では x=0.1~0.4 間で ω_L がわずかに上昇する傾向が見られ、室温と低温では異なる Cd 濃度依存性が観測された。本発表では、磁気転移点の Cd 濃度依存性と内部磁場の温度依存性について詳細に議論する。

[1] W. Sato *et al.*, *J. Appl. Phys.* **120**, 145104 (2016).

Observation of Cd concentration dependence and temperature dependence of hyperfine fields in Cd_xFe_{3-x}O₄ by means of PAC spectroscopy with the ¹¹¹Cd(←¹¹¹In) probe
FUJII, M., KONAKA, M., ITO, T., SATO, W.

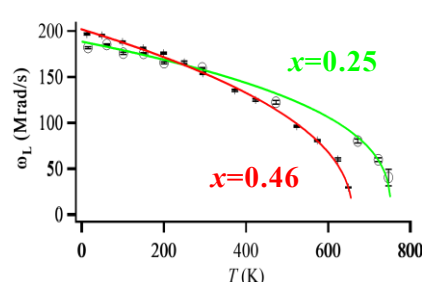


Fig.1: Cd_xFe_{3-x}O₄(x=0.25, 0.46)のラーモア周波数の温度依存性

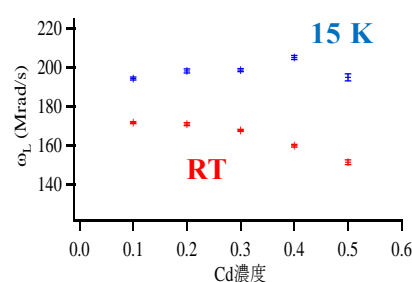


Fig.2: Cd_xFe_{3-x}O₄(x=0.1~0.5)のラーモア周波数の Cd 濃度依存性

1C09

SrTiO₃中にドーピングされた¹¹¹Cdの占有サイトと熱安定性の研究(¹金大人社, ²金大理工, ³京大複合研)○小松田沙也加¹, 佐藤 渉², 谷口秋洋³, 谷垣 実³, 大久保嘉高³

【緒言】チタン酸ストロンチウム(SrTiO₃)は立方晶で対称性の高いペロブスカイト酸化物である。Ti⁴⁺サイトに対し価数が低いFe³⁺, Ga³⁺, In³⁺等の不純物元素が置換すると、ドーパント近傍に電荷補償の酸素欠陥V_Oを生じ光触媒機能等の物性が向上すると報告されている。ほかにもSr²⁺をイオン半径の小さいCd²⁺等の元素で置換し結晶格子の歪みを生じることで強誘電体としての性質を示す可能性も示唆されている。このように不純物元素の占有状態がSrTiO₃の物性を制御する重要な因子となっており、SrTiO₃の物性を精密に制御・設計するには、微量導入された不純物元素の占有サイトを原子レベルで解明し、物性への影響を調べる必要がある。そこで我々は、γ線摂動角相関(TDPAC)法を採用しSrTiO₃中にドーピングされた不純物位置での局所構造を研究している。TDPAC法において最も一般的で強力なプローブとして¹¹¹Cd(←¹¹¹In)や¹¹¹Cd(←^{111m}Cd)がある。先行研究より、¹¹¹Cd(←¹¹¹In)をプローブとしたTDPAC測定は既に行われており、SrTiO₃中のInの占有サイトについて調べられた。本発表では、¹¹¹Cd(←^{111m}Cd)をプローブとして採用したTDPAC測定を行い、占有サイトについて調べた結果を報告する。

【実験】化学量論組成比でSr:Ti=1:1となるように混合したSrCO₃, TiO₂の粉末をメノウ乳鉢中で混合し、得られた粉末試料を錠剤成型してSrTiO₃の前駆体となるペレットを作成した。¹¹⁰CdO約3mgを¹¹⁰Cd(n,γ)^{111m}Cd反応により中性子放射化させた後、6Mの塩酸10μLに溶かし、^{111m}Cd塩酸溶液を作成した。この^{111m}Cd塩酸溶液を前駆体のペレットに滴下し、空气中1473Kで1.5時間焼成した。得られた試料を粉碎してセラミックス管に入れ、室温、空气中でTDPAC測定した。

【結果と考察】Fig.1(a)に先行研究で得られたSrTiO₃中¹¹¹Cd(←¹¹¹In)のTDPACスペクトル、Fig.1(b)に本研究で得られたSrTiO₃中¹¹¹Cd(←^{111m}Cd)のTDPACスペクトルを示す。解析結果より、Fig.1(a)では分布のない3つの電場勾配値 $17.6(28) \times 10^{21} \text{ V/m}^2$, $16.8(27) \times 10^{21} \text{ V/m}^2$, 0 V/m^2 、Fig.1(b)では分布の大きい2つの電場勾配値 $4.89(98) \times 10^{21} \text{ V/m}^2$ ($\delta=21\%$)、 $37(10) \times 10^{21} \text{ V/m}^2$ ($\delta=37\%$)がそれぞれ得られた。以上の結果より、In³⁺はSrTiO₃中に均一に分散し、対称性が高く電場勾配ゼロの立方晶SrTiO₃中のSrまたはTiサイトと、その他に電場勾配のある2サイトを占有することが分かった。電場勾配のある2サイトは、Ti⁴⁺位置を置換したIn近傍に酸素空孔が存在する可能性が考えられる。一方Cd²⁺は非常に不規則な局所構造をとり、特定の占有サイトに存在しない可能性が示唆された。発表ではSrTiO₃中のIn³⁺またはCd²⁺の存在状態についてより詳細に議論し、さらに試料のバルク物性へのドーピング効果について調べた結果を報告する。

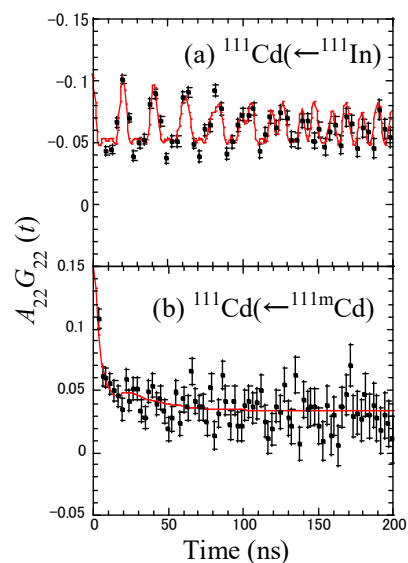


Fig.1 TDPAC spectra of (a) ¹¹¹Cd(←¹¹¹In) and (b) ¹¹¹Cd(←^{111m}Cd) in SrTiO₃ at room temperature

Studies on Site Occupation and Thermal Stability at ¹¹¹Cd Site in SrTiO₃

KOMATSUDA, S., SATO, W., TANIGUCHI, A., TANIGAKI, M., OHKUBO, Y.

部会 | 部会

原子核プローブ部会

座長: 久保 謙哉 (ICU)

2022年9月15日(木) 13:10 ~ 13:40 C会場 (207室)

[Zoomはこちら](#)

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

座長: 佐藤 渉 (金沢大)

2022年9月15日(木) 13:40 ~ 14:25 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[1C10-12-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C10] Fe(3,4-lutidine)₂[Ag(CN)₂]₂中の γ 線由来スピン状態変化の考察

*北清 航輔¹、北澤 孝史¹ (1. 東邦大学)

13:40 ~ 13:55

[1C11] YIGの磁性に及ぼす Biドーピングの効果

*吉田 実生¹、渡辺 裕夫¹、小林 義男^{1,2} (1. 電気通信大学大学院、2. 理研仁科センター)

13:55 ~ 14:10

[1C12] Nbをドーピングした Fe₂O₃のメスバウアースペクトルと可視光触媒への応用

Rahman Habibur¹、Zhang Bofan²、久富木 志郎²、*中島 覚¹ (1. 広島大学、2. 東京都立大学)

14:10 ~ 14:25

(2022年9月15日(木) 13:40 ~ 14:25 C会場)

[1C10-12-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1C10

Fe(3,4-lutidine)₂[Ag(CN)₂]₂ 中の γ 線由来スピン状態変化の考察(東邦大理¹⁾○北清航輔¹、北澤孝史¹

【緒言】 Hofmann 型構造とは、Fe・Ni・Cd などの中心金属のエクアトリアル位に直線二配位[M(CN)₂](M = Ag, Au)又は平面四配位[M(CN)₄](M = Ni, Pd, Pt)が、アキシシャル位にピリジン系配位子が配位した Fig. 1 のような 2 次元層状構造のことである。次に、スピクロスオーバー(SCO)現象とは、温度や圧力・光等の要因により中心金属のスピン状態が可逆的に変化する現象のことを指し、分子センサーなどへの応用が期待されている。八面体六配位鉄由来の SCO 現象では $S = 0$ と $S = 2$ の間でスピン状態が変化し、このような錯体において、⁵⁷Fe Mössbauer 分光法による研究が多数の研究室で行われている¹⁾。これは、⁵⁷Fe Mössbauer スペクトルの異性体シフト・四極子分裂の幅・分裂数が鉄の価数、スピン状態、鉄周辺の環境に依存するため、SCO 現象による中心鉄の環境変化を分析することが可能であるためである。今回は、Fe-Ag 系 Hofmann 型錯体 Fe(3,4-lutidine)₂[Ag(CN)₂]₂ を合成し、その物性を調べた。

【実験】 錯体は直接法により合成した。まず、Fe(II)源である Mohr 塩を容器中で水に溶解し、そこに配位子、K[Ag(CN)₂]水溶液の順に滴下し、生じた沈澱を濾過した。生成物について元素分析により目的の組成であることを確認した後、磁化率測定・結晶構造解析及び ⁵⁷Fe Mössbauer 測定を行った。まず、磁化率

測定では、Fig.2 に示すように完全な高スピン状態から低スピン状態への 2 段階のスピン転移を示した。次に、単結晶 X 線構造解析では、この錯体は Hofmann 型二層構造をとっており、Ag - Ag 間の相互作用があり、室温での高スピン状態、155 K での中間状態、低温側での低スピン状態の 3 つの状態があることが明らかになった。¹⁾また、⁵⁷Fe Mössbauer 測定では Fig. 3 で示すように通常の Hofmann 型錯体とは異なり室温で二種類以上の Fe サイトが存在することを示唆するスペクトルが得られた。このスペクトルを Doublet と Singlet として Fitting すると Fig. 3 上図のようになり、実際のスペクトルの左右非対称な分布とはずれが見られた。そこで Doublet 2 つとして Fitting すると Fig. 3 下図のようになり、実際のスペクトルとよく適合した Fitting となった。この 2 つの Doublet については異性体シフトの大きい方は $S = 2$ の高スピン状態のピークであると考えられ、異性体シフトの小さい方は $S = 0$ の低スピン状態のピークと考えられるが四極子分裂が比較的大きいことから $S = 1$ の中間状態のものである可能性も考えられる。

1) J. A. Rodríguez-Velamazán, K. Kitase, E. Palacios, M. Castro, Á. Fernández-Blanco, R. Burriel, T. Kitazawa, *Crystals.*, **2019**, *9*, 433..

Discussion of γ -ray induced spin transition effect on Fe(3,4-lutidine)₂[Ag(CN)₂]₂
KITASE, K., KITAZAWA, T.

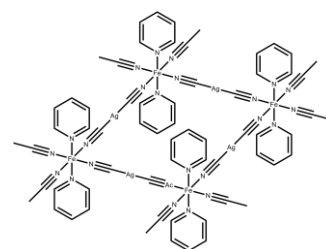


Fig. 1. Hofmann 型構造

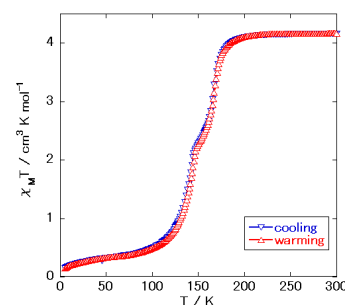


Fig. 2. 錯体の磁気挙動

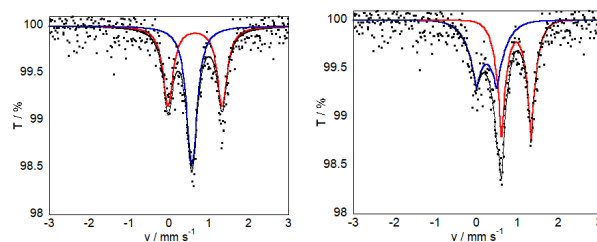


Fig. 3. Mössbauer スペクトル

1C11

YIGの磁性に及ぼすBiドーピングの効果

(電通大院¹、理研仁科センター²)○吉田実生¹、渡辺裕夫¹、小林義男^{1,2}

【緒言】

希土類鉄ガーネット RIG ($R_3Fe_5O_{12}$, $R=Y, Eu, Gd, Dy$) は、特色のある磁気特性を示すため、数多くの研究がされている。RIGの中でも、Biを添加したイットリウム鉄ガーネット (YIG:Bi) は、優れた磁気光学材料として知られ広く応用されている。応用例の一つである光アイソレータは、ファラデー効果により戻り光を防ぐため、光ファイバ等で利用される。本研究では、YIG:Biを試料とし、Bi添加によるバルクの磁性に及ぼす影響を調べるために、粉末X線回折、磁化測定、メスbauer分光法を行った。

【実験】

YIG:Biは、ゾル・ゲル法により調製した。 $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$, $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$, $Bi(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ を化学量論比でそれぞれ秤量して、純水に溶解し攪拌した。その後、クエン酸とアンモニア水を加えた。これを80°C 2 h保持し、さらに100°C 48 hで乾燥させた後、900°C 3 hで焼成した[1]。 $Bi_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ の $x=0, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0$ の5種類の試料を作製した。

【結果および考察】

磁化測定の結果から、 $Bi_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.5, 1.0$)の試料は磁気ヒステリシス曲線を得た(Fig. 1)。77 Kの飽和磁化の値は室温の値より上昇した。77 Kの飽和磁化の値は、Bi添加量によらず、ほぼ一定の値であった。77 Kで測定した $x=0, 0.5, 1.0$ のメスbauerアスペクトルは、 a サイトと d サイトの2成分の Fe^{3+} の磁気分裂で解析できた (Fig. 2)。スペクトルの面積強度比は、 a サイト : d サイト = 2 : 3となっており、結晶構造中でのサイト数の比と一致した。77 Kの内部磁場の値は、室温の値より増加したが、Bi添加による内部磁場の増大は認められなかった。 a サイトの Fe^{3+} が Y^{3+} の c サイトへの再配置を示唆する報告もあったが、本研究ではそのような結果は認められなかった。これらに加えて、粉末X線回折の結果について議論する。

【参考文献】

[1] M. Niyafar et al., *Physica Status Solidi*, **253** (2016) 554.

The effect of Bi doping on the magnetic properties of YIG
Yoshida M., Watanabe Y., Kobayashi, Y.

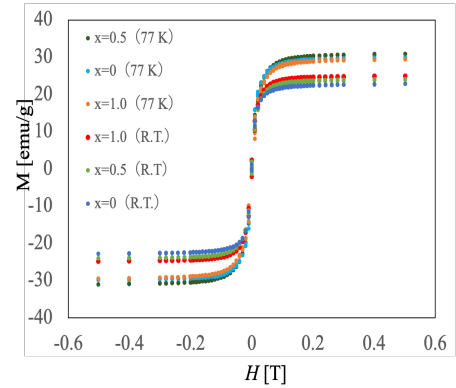


Fig. 1. M-H curve at 300 K and 77 K of $Bi_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.5, 1$).

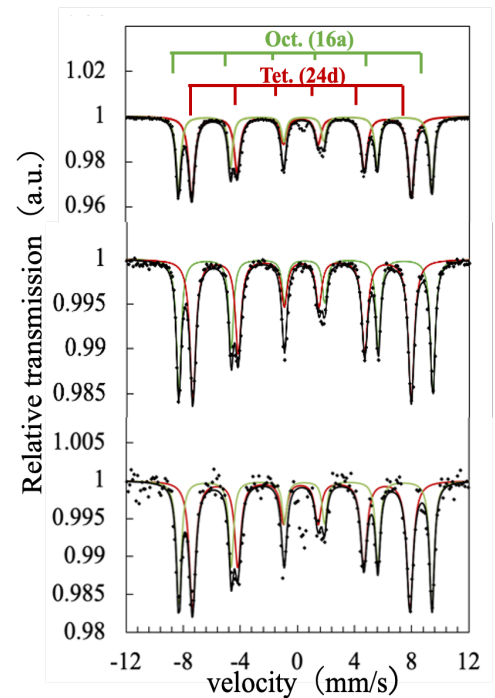


Fig. 2. ^{57}Fe Mössbauer spectra at 77 K of $Bi_xY_{3-x}Fe_5O_{12}$ ($x=0, 0.5, 1$).

1C12

Nb をドーピングした Fe_2O_3 のメスバウアースペクトルと可視光触媒への応用(広島大学¹、都立大学²) Rahman Habibur¹、Zhang Bofan²、久富木 志郎²、○中島 覚¹

【緒言】酸化鉄は、 Fe_3O_4 、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ などとなり、フェリ磁性や反強磁性など多彩な磁性を示す。酸化鉄に様々な金属をドーピングすることによりその磁性を制御できる。Nb をドーピングした $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ではモーリン転移が抑制されることが報告された¹⁾。一方、ゾルゲル法によって作成したケイ酸塩ガラスは、バンドギャップの小さい $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (2.2 eV) の寄与により、可視光応答型の光触媒になることが確認された²⁾。そこで本研究では、Nb をドーピングした $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を用いて光触媒活性の評価を行った。

【実験】 Nb を様々な割合でドーピングした Fe_2O_3 ナノ粒子をゾルゲル法で合成した。試料は様々な温度で焼結した。メスバウアー測定は通常の方法を用いて行い、光触媒活性の測定ではメチレンブルー (MB) 分解試験を行った。

【結果と考察】 700℃で焼結した試料では、Nb が 3.8, 5.7, 7.4, 9.1, 20, 40at% と増加すると、可視光照射下における MB 分解速度定数 k の値は、それぞれ 0.0108, 0.0128, 0.0222, 0.0133, 0.0601, 0.0641 min^{-1} のように増加傾向がみられた。図 1 に 40at% Nb の試料のメスバウアースペクトルを示す。 FeNbO_4 のダブルレットの強度が増加するものの、モーリン転移が抑制されたスペクトルを示している。Nb の割合が増加すると粒径が小さくなる傾向があるので、表面積が大きくなったために k の値が大きくなったものと考えられる。

600℃と 700℃で焼結した 7.1Nb- Fe_2O_3 の MB 分解速度定数 k の値は、それぞれ 0.0714, 0.0222 min^{-1} であった。それらの試料の室温でのメスバウアースペクトルを図 2 に示す。600℃で焼結した試料ではブロードな成分が観測されたことから、粒系の小さな成分が大きな k の値に寄与したものと考えられる。

文献

- 1) R. Habibur and S. Nakashima, *Applied Phys. A*, **128**, 564 (2022).
- 2) Y. Takahashi et al., *Hyperfine Interact.*, **226**, 747-753 (2014).

Mössbauer spectra of Nb-doped Fe_2O_3 and its application to visible-light photocatalysis
RAHMAN H., THANG, B., KUBUKI S., NAKASHIMA S.

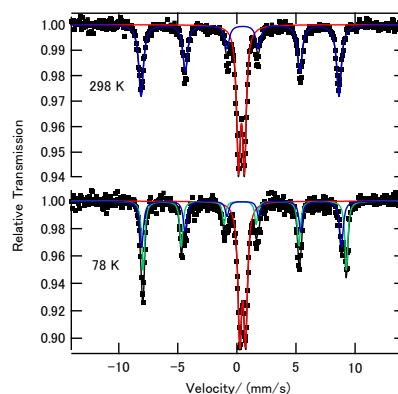


Fig. 1. Mössbauer spectra of 40Nb- Fe_2O_3 .

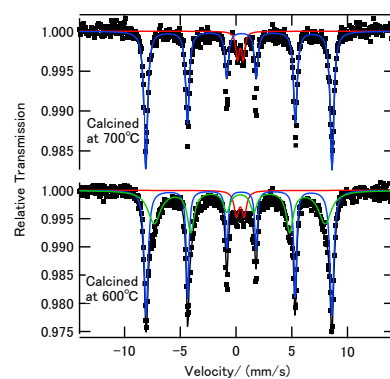


Fig. 2. RT Mössbauer spectra of 7.4Nb- Fe_2O_3 .

基盤セッション 生物関連放射化学 | 基盤セッション G: 生物関連放射化学

基盤セッション G: 生物関連放射化学

座長: 井伊 博行 (和歌山大)

2022年9月15日(木) 14:35 ~ 15:50 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[1C13-15-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C13] 自然界から学ぶ放射性物質の長期固定プロセス

*鈴木 庸平¹ (1. 東京大学大学院理学系研究科)

14:35 ~ 15:00

[1C14] 樹木中セシウムの化学状態と森林生態系における放射性セシウムの動態の関係

*田中 万也¹、金指 努²、竹中 千里³、高橋 嘉夫⁴ (1. 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター、2. 福島大学環境放射能研究所、3. 名古屋大学大学院生命農学研究科、4. 東京大学大学院理学系研究科)

15:00 ~ 15:25

[1C15] 森林内における放射性セシウム分布とこのへの移行

*佐々木 祥人¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

15:25 ~ 15:50

(2022年9月15日(木) 14:35 ~ 15:50 C会場)

[1C13-15-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1C13 自然界から学ぶ放射性物質の長期固定プロセス

(東京大学大学院理学系研究科¹⁾)○鈴木庸平¹

自然界において放射性物質は、素になる岩石からの溶脱、移動を経て固定される。固定の時空間スケールの程度は、元素の種類や反応場の地球科学的特徴に応じて様々である。長半減期核種は、数10万年から数100万年スケールでの挙動を扱う必要性から、ナチュラルアナログを用いた研究が行われている。特にウランは、長半減期核種として研究の重要性が福島第一原発事故後に増している。ウラン鉱床の形成には、元素の長期固定プロセスが関与しており、国内で最大の鉱床がある東濃地域を対象に研究が行われてきた。瑞浪超深地層研究所は、東濃ウラン鉱床の南端部に建設されており、地質・水理・地球化学分野を横断する調査が行われてきた。本研究では、東濃ウラン鉱床におけるウランの長期固定プロセスについて、瑞浪超深地層研究所の地下施設で得られた地下水中の微生物と岩石コア中の二次鉱物からミクロな情報を得ること目的とした。

地下水中に生息する微生物のメタゲノム解析や活性測定により、鉱体を胚胎する堆積岩の基盤である花崗岩中では、メタンや硫黄化合物を代謝する微生物が生息することが明らかになりつつある。硫化水素を含む淡水の地下水では、ウラン濃度が非常に低く、熱力学計算により結晶質のコフィン石 (USiO_2) と平衡状態であった。花崗岩亀裂を充填する炭酸塩脈は、微生物の有機物代謝により形成したことが、炭素安定同位体組成から明らかとなった。深度200メートルから採取された炭酸塩脈には、様々な元素が様々な化学形態で長期固定されており、具体的には、

- 1) ウランはリンに富むコフィン石のナノ粒子として、炭酸カルシウム内に包埋され、ウラン-鉛年代測定から、100万年間炭酸カルシウム内に封じ込められていた。
- 2) アメリシウムのアナログ元素となる希土類元素は、シリカに富むゼノタイム(YPO_4)構造をして、ウランのナノ粒子と同様に炭酸カルシウム内に包埋されていた。
- 3) セシウムは炭酸カルシウム内に包埋されている粘土に吸着して、ヨウ素とストロンチウムは炭酸カルシウム結晶内に取り込まれていた。
- 4) トリウムは+4価で安定なため、不動態元素として知られるが、炭酸カルシウム内で、シリカを含む固相として取り込まれていた。

花崗岩深部で1)～4)の長期固定が起きた要因は、植物由来のキレート剤による不動態元素の易動化、微生物による炭酸カルシウム形成と炭酸カルシウムによる粒子や元素の取り込み、微生物によるケイ酸塩とリン酸塩鉱物形成とリン酸塩鉱物による元素固定が、複合的に地下水流動場に沿って起きたためと考えられる。

これらの過程を自然界で再現するために現在研究を行っている、生物分解性キレート剤による粘土に吸着した放射性セシウムの易動化、地圏環境における微生物による炭酸カルシウムとリン酸塩鉱物の形成促進に関する研究についても発表する。

Natural processes involved in long-term immobilization of radionuclides.
SUZUKI, Y.

1C14

樹木中セシウムの化学状態と森林生態系における放射性セシウムの動態の関係

(原子力機構先端基礎研究セ¹、福島大環境放射能²、名大³、東大院理⁴)
○田中万也¹、金指努²、竹中千里³、高橋嘉夫⁴

【緒言】 東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性セシウム(Cs)は、福島県を含む広範囲の陸域に沈着した。特に、森林は福島県の面積の約70%を占めていることから、放射性Csの環境動態の理解のために多くの調査・研究が行われて来た。それらを通じて、樹木中に取り込まれた放射性Csが時間とともに転流(樹木中を移動)していることが分かってきた。これは、放射性Csが樹木中で動きやすい化学形態であることを示唆している。しかし、樹木中でのCsの化学状態について直接的に調べた研究はなかった。そこで本研究では、広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)法を用いて樹木中でのCsの化学状態を明らかにすることを目的とした。

【実験】 本研究では、福島県における代表的な常緑樹であるスギ・アカマツ及び落葉広葉樹であるコナラ・コシアブラをそれぞれ研究対象とした。福島県川俣町の森林において採取した樹木試料を樹葉、樹皮、心材、辺材の部位ごとに切り分け粉碎した。粉碎した試料は各々1 M CsCl水溶液に浸してCsを吸着させた。参照試料としてCs吸着セルロース(樹木の主要成分)試料を調製した。Cs吸着試料のEXAFSスペクトル測定は、高エネルギー加速器研究機構のPhoton Factoryにて行った。

【結果及び考察】 スギ試料のCs-L_{III}吸収端EXAFSスペクトルの解析結果を図1に示す。樹葉、樹皮、心材、辺材、及びセルロース試料のEXAFSスペクトルは互いに類似し、さらに水和Cs⁺イオン(CsCl水溶液)のスペクトルと類似していた。また、EXAFSスペクトルの解析結果から得られた動径構造関数には、Cs⁺イオンに配位する水分子の酸素原子に由来するピークのみが見られた(図1)。このことは、Csが樹木の各部位及びセルロースに外圏錯体として静電的に吸着していることを示している。こうした外圏錯体によるCs吸着はスギだけでなく、アカマツ、コナラ、コシアブラに対しても同様の結果が得られた。樹木組織表面のCs吸着サイトとしては、負に帯電したカルボキシル基やヒドロキシ基等が考えられる。しかし、こうした外圏錯体が比較的弱い吸着形態であることや、樹幹流や樹液中の他の陽イオン(K⁺やCa²⁺など)との競合を考えると、実際の樹木組織にはCsはほとんど吸着しないと考えられる。以上のことから、福島県の森林においても樹木中に取り込まれた放射性Csは、動きやすい化学形態(例えばCs⁺イオン)を保ちながら樹体内を転流していると解釈出来る。本研究で得られた結果やそれらに基づく解釈は、実際に報告されている観測事実と整合的である。

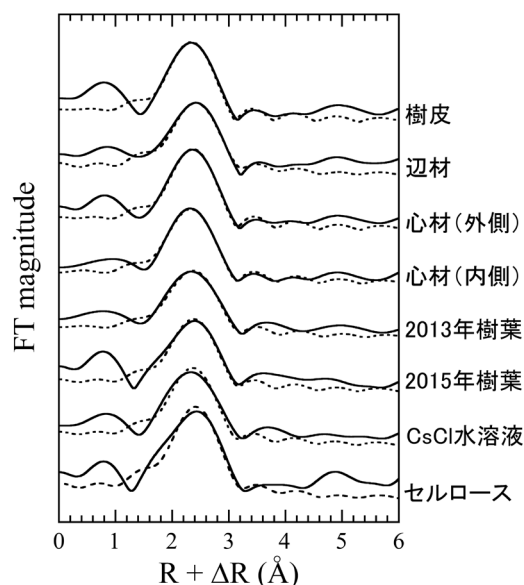


図1. スギの樹皮、辺材、心材及び樹葉のCs-L_{III}吸収端EXAFSスペクトル解析結果.

Speciation of Cs in tree tissues and its implication for dynamics of radiocesium in forest systems
TANAKA, K., KANASASHI, T., TAKENAKA, C., TAKAHASHI, Y.

1C15 森林内における放射性セシウム分布ときのこへの移行

(日本原子力研究開発機構) ○佐々木祥人

【緒言】 2011年3月11日に発生した東日本大震災による津波が原因で起こった東京電力福島第一原子力発電所の事故により、放射性物質が放出され、半減期が長い ^{137}Cs が現在、環境中に残存している。福島県の県土の約70%は森林であるものの、そのほとんどが未除染のままである。森林からの放射性セシウムの流出は非常に小さく、長期にわたり森林内に放射性セシウムが残るものと考えられる。森林で採取される野生きのこの放射性セシウム濃度は高く、利用が制限されている。森林で生育する落葉広葉樹のコナラは、きのこの原木栽培に利用されてきたが、これらも放射性セシウムを含むため利用が制限されている。本件では、落葉広葉樹林内に生じた野生きのこへの放射性セシウム移行、野生きのこが生育する落葉広葉樹林の林床およびコナラの植物体における放射性セシウムの分布について報告する。

【方法】 2020年の秋に川俣町山木屋地区のコナラ林にて試料の採取を行った。林床表面の土壌採取は、 $15 \times 30 \text{ cm}^2$ の面積で1-2 cmの深さごとに土壌を採取した。コナラの植物体は、コナラを3本切り倒し、枝、葉および幹(外樹皮、内樹皮、辺材、心材に分離)を採取した。植物体の地下部は、切り倒したコナラから1 m離れた位置に深さ1 mのトレンチを掘削し、深さごとに植物根を採取した。野生きのこは、樹木の根と共生している菌根性きのこや木や落ち葉を腐らせる腐生性きのこにわけて採取分析を行った。林床から発生している菌根性きのこについては子実体を採取し、粗大なリターを除き子実体基部の土壌を100 mL容量の深さ5 cmの土壌サンプラーで採取した。木や落ち葉から発生している腐生性きのこも同様に子実体を採取し、子実体の基部の有機物を採取した。また、採取した腐生性きのこの子実体周辺の土壌を採取した。採取した土壌から ^{137}Cs 沈着量を算出し、子実体の濃度を除することで面移行係数(m^2/kg)を求めた。「子実体の ^{137}Cs 濃度」を「土壌の ^{137}Cs 濃度、木および落ち葉の ^{137}Cs 濃度」で除することで移行係数(無次元数)を求めた。

【結果および考察】 コナラの樹木全体において葉の放射性セシウム濃度が最も高かった。樹幹部の外樹皮は、葉と同程度の濃度であり、内樹皮、辺材、心材の順で ^{137}Cs 濃度が低下する傾向があった。林床においては、土壌表面深さ5 cmまでに放射性セシウムの9割程度が留まっていた。一方、地下部の深度1 mの根においても、地上部の樹幹部の内樹皮および辺材と同程度の ^{137}Cs 濃度が検出され、樹木全体に ^{137}Cs が移動し分布していることが示された。きのこの ^{137}Cs 濃度は、菌根性きのこで約1-1000 (kBq/kg-乾燥)、腐生性きのこで約1-50 (kBq/kg-乾燥)の範囲であり、菌根性きのこは ^{137}Cs 濃度の幅が広く、 ^{137}Cs 濃度が高いものも多く存在することがわかった。最も ^{137}Cs 濃度の高い種はクサウラベニタケであった。面移行係数は、菌根性きのこは腐生性きのこに比べ高いものがあった。腐生性きのこの子実体が発生している基部直近の木や落ち葉の濃度および子実体の濃度から求めた移行係数は、菌根性きのこの子実体が発生している基部直近の土の濃度および子実体の濃度から求めた移行係数と近い値となった。発表では、これらの結果に加えて、同地点で採取した材を用いた腐生性きのこの培養試験の結果についても報告する。

Radiocesium distribution in forests and transfer to mushrooms
Yoshito S.

基盤セッション 生物関連放射化学 | 基盤セッション G: 生物関連放射化学

基盤セッション G: 生物関連放射化学

座長: 鈴木 庸平 (東大)

2022年9月15日(木) 16:00 ~ 17:05 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[1C16-18-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[1C16] 微生物による燃料デブリの溶解促進

*大貫 敏彦^{1,2,3}、Liu Jiang³、土津田 雄馬³、北垣 徹³、中瀬 正彦² (1. 大妻女子大、2. 東京工業大学、3. 日本原子力研究開発機構)

16:00 ~ 16:25

[1C17] 常在細菌による模擬燃料デブリの溶解

*劉 江¹、土津田 雄馬¹、北垣 徹¹、高野 公秀¹、香西 直文¹、大貫 敏彦^{1,2} (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京工業大学)

16:25 ~ 16:50

[1C18] In vitroで形成させたヒドロキシアパタイトに吸着した Ra-226の局所構造解析

*永田 光知郎¹、山口 瑛子^{2,3}、小林 徹²、下条 晃司郎²、横山 啓一²、谷田 肇²、矢板 毅²、高橋 嘉夫³、吉村 崇¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東京大学大学院理学系研究科)

16:50 ~ 17:05

(2022年9月15日(木) 16:00 ~ 17:05 C会場)

[1C16-18-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

1C16

微生物による燃料デブリの溶解促進

(大妻女子大¹、東工大²、JAEA³)○大貫敏彦^{1,2,3}、Liu Jiang³、土津田 雄馬³、北垣 徹³、中瀬 正彦²

【緒言】 福島第一原子力発電所の損傷した原子炉格納容器 (PCV) からの燃料デブリ回収に必要な信頼できるリスクと安全性を推定するためには、燃料デブリの劣化を理解することが重要である。地下水は PCV の損傷による亀裂を介して冷却水中に流れ込んでいるため、地下水中の微生物が PCV に侵入している。このことは、燃料デブリが解体・取り出しまで地下水中の微生物と接触していることを示している。従属栄養好気性細菌 *Bacillus subtilis* の Fe (0) と CeO₂/ZrO₂ から成る模擬燃料デブリとの接触は Fe (0) 相 [1] の優先的溶解と沈殿を示した。自然界には様々な微生物が遍在しており、その一部は不溶性 Fe (III) イオンを溶解するシデロホアを産生する。本研究では、モデル微生物としてシデロフォア産生微生物を用いて、燃料デブリの劣化に及ぼす影響を調べた。

【実験】 燃料デブリ模擬ペレット試料 (以下ペレット試料と呼ぶ) を作製するため、CeO₂ と ZrO₂ の固溶体を溶融固化して形成し、金属鉄を加えた後溶融こかせた。微生物としては、Kimura らが発見したシデロホア産出微生物 *Pseudomonas* 種及び *Bacillus* 種の 2 種(以下、SB) を用いた。寒天培地上に置いたメンブレンフィルター上で SB を前培養した後、細の上にペレット試料を静かに載せて 50 日間接触させた。接触したペレット試料、フィルタ及び寒天培地上に析出した沈殿を SEM - EDS, 二次イオン質量分析計 (SIMS)、Rutherford 後方散乱分光分析 (RBS) 及び弾性反跳検出分光分析 (ERDA) により分析した。

【結果及び考察】 SB と接触したペレット試料の SEM-EDS 分析から、Fe を含む沈殿物が、ペレット試料だけでなく、フィルター上および寒天培地上に検出された。フィルター及び寒天培地中に Fe 含有沈殿物が検出されたことから、ペレット試料中の Fe が溶解して、ペレット試料から離れたことを示している。さらに、フィルター上あるいは培地上で沈殿したことは、ペレット試料から離れた Fe イオンは酸化沈殿することを示している。ペレット上では、微生物細胞と Fe を含む沈殿物が検出された。Fe を含む沈殿物の RBS と ERDA 分析から、分解生成物が Fe 酸化水酸化物であることを示した。Zr と Ce は SIMS 分析によりフィルタ上に少量検出されたが、Zr と Ce の溶解は限定的であった。

これらの結果は、SB の存在は、PVC 内に酸素が供給される条件では、燃料デブリの Fe 金属領域を優先的に分解し、燃料デブリの劣化を加速する。さらに、SB により溶解した Fe は細胞付近で Fe 酸化水酸化物として沈殿する過程と、デブリから離れて移動する過程があることが明らかとなった。

Enhance of degradation of nuclear fuel debris, (OWU¹, TITECH², JAEA³) TOSHIHIKO OHNUKI^{1,2,3}, LIU J. ², DOTSUTA Y. ², KITAGAKI T. ², NAKASE M. ³

1C17 常在細菌による模擬燃料デブリの溶解

(日本原子力研究開発機構¹、東京工業大学²) ○劉江¹、土津田雄馬¹、北垣徹¹、高野公秀¹、香西直文¹、大貫敏彦²

背景及び目的：福島第1原子力発電所事故では、冷却機能の喪失により核燃料が溶融し、高温反応して燃料デブリが生成した。原子炉建屋周囲には地下水が継続的に流入しているため、地下水中に存在する微生物が燃料デブリの一部と接触し、相互作用により放射性核種の溶出が促進される可能性も考えられる。しかし、微生物による燃料デブリに対する影響はこれまで評価されていないため、本研究では微生物が燃料デブリに与える影響について検討した。

方法・結果：福島第1原子力発電所の周辺地域から地下水を採取し、地下水中の微生物叢を特定した。その中から2種類の常在細菌を選定した。燃料デブリを模擬するため、 CeO_2 、 ZrO_2 、 $\text{Fe}(0)$ 、 SiO_2 の非放射性混合試料、核燃料物質である UO_2 を含む ZrO_2 と $\text{Fe}(0)$ の混合試料を調製した。細菌と上述の燃料デブリ模擬体を鉄欠乏液体培地に一定期間に静置した。模擬体、細菌の菌数、培地の組成の経時変化を分析した。その結果、細菌はCe、Zr、Siの溶出にはほとんど影響しないが[1]、UとFeの酸化溶解を促進することが分かった。また、溶解したFeがナノ粒子として析出し、溶解したUの一部を吸着することを確認した。

結論：これらの結果は、燃料デブリの物理的・化学的特性が、細菌の影響により変化する可能性を示唆している。また、燃料デブリの一部元素が細菌によって選択的に溶出され、燃料デブリの構造欠損を引き起こす可能性も考えられる。細菌によるU(IV)とFe(0)の酸化溶解と同様に、燃料デブリ中の他の物質(核分裂生成物等)も細菌によって溶解が促進する可能性も考えられるため、燃料デブリの管理においては、微生物の影響を考慮する必要がある。

Reference

[1] Liu J, Dotsuta Y, Sumita T, Kitagaki T, Ohnuki T, Kozai N. Potential bacterial alteration of nuclear fuel debris: a preliminary study using simulants in powder and pellet forms. *J Radioanal Nucl Ch.* 2022;331(6):2785-2794.

Dissolution of fuel debris simulants by common bacteria

○Jiang LIU, Yuma DOTSUTA, Toru KITAGAKI, Masahide TAKANO, Naofumi KOZAI, Toshihiko OHNUKI

1C18

In vitro で形成させたヒドロキシアパタイトに吸着した Ra-226 の局所構造解析

(阪大 IRS¹、JAEA²、東大院理³)○永田 光知郎¹、山口 瑛子^{2,3}、小林 徹²、下条 晃司郎²、横山 啓一²、谷田 肇²、矢板 毅²、高橋 嘉夫³、吉村 崇¹

【緒言】 ラジウム(Ra)は Ca と同族のアルカリ土類金属元素である。Ca と類似の性質を利用し、細胞分裂を頻繁に起こすがん細胞に取り込ませることで、Ra は去勢抵抗性の前立腺がんの治療薬として用いられている。そのため、Ra は Sr や Ba と同様、骨の構成成分であるヒドロキシアパタイト(HAp)に吸着すると考えられているが、その化学状態は不明である。生体内の HAp に吸着した Ba や Sr の構造解析の研究では、XRD や XAFS が行われてきた。その結果、Ba や Sr は HAp の表面への吸着だけではなく、内部の Ca と交換すると推定されている。Ra の骨への吸着については生体内分布の情報に限られており、より詳細な化学状態を知ることは、Ra の治療効果の改善にも繋がると考えられる。そこで、本研究では Ra の骨への吸着状態を解明するために、マクロ量の ²²⁶Ra 試料を用いた XAFS 測定を行い、同族の Sr や Ba との結果を比較した。

【実験】 長期保管されていた ²²⁶Ra は、大量の不純物が混入していたため、過酸化水素/硝酸により不純物を酸化分解した。その後、溶液を強酸性陽イオン交換カラム、続いて Sr レジンに通すことで ²²⁶Ra を分離精製した。この ²²⁶Ra/HNO₃ 溶液(pH 3)を用いて 2 種類の XAFS 測定用 ²²⁶Ra のサンプルを調製した。生体内の HAp と同様に六方晶系を有する合成 HAp と ²²⁶Ra とを常温、24 h 反応させた試料を Ra-HAp、石灰化させた骨芽細胞に対して ²²⁶Ra を 35°C、24 h 反応させた試料を Ra-Bone とする。Ra の XAFS 測定は密封線源化した後に、SPring-8 BL22XU にて行った。また、同族の M = Sr, Ba についても硝酸塩を用いて M-HAp, M-Bone の試料を調製し、SPring-8 BL01B1 にて測定を行った。

【結果と考察】 Ra-HAp と Ra-Bone の EXAFS スペクトルの解析によって得られた結果を示す(図 1)。いずれも Ra-O (ca. 2.8 Å)だけでなく、Ra···P (ca. 3.5 Å)に由来する振動が確認されたことから、骨芽細胞由来の HAp に Ra が吸着したことを直接観測することができた。この結果を同族元素の EXAFS スペクトルの解析結果と比較すると、M-O 距離は Sr (2.57 Å) < Ba (2.84 Å) < Ra(2.87 Å)となり、イオン半径が大きくなるにつれて、M-O 距離も増加した。Sr-HAp 及び Ba-HAp に吸着した Sr, Ba の濃度を求めると、それぞれ 1.69、1.58%であった。これらの試料の粉末 XRD 測定を行うと、いずれも未反応の合成 HAp と同じ回折パターンを示したため、反応前後で元の HAp の構造は保持されていることが判った。

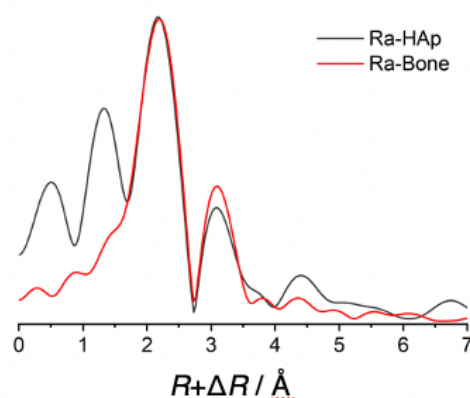


図 1. Ra-HAp と Ra-Bone の動径分布関数

Local structural analysis of Ra-226 adsorbed on hydroxyapatite formed by osteoblast culture
NAGATA K., YAMAGUCHI A., TAKAHASHI Y., KOBAYASHI T., SHIMOJO K., YOKOYAMA K.,
TANIDA H., YAITA T., YOSHIMURA T.

特別セッション 2 核医学の礎である放射化学の新展開

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 336室

- [1P01] α 線核医学治療用核種 Pb-212の製造に向けた Th-228線源の取扱方法の検討
*南部 明弘¹、殷 小杰¹、重河 優大¹、羽場 宏光¹、富田 翔²、福森 麻衣²、田沢 周作² (1. 理研仁科センター、2. (株)アトックス)
- [1P02] ラドンの気相回収過程に関わる硝酸溶液への溶解について
*田中 皐¹、永井 雄太¹、我那覇 功也¹、田鶴 久典⁴、井田 智明²、西中 一朗³、横山 明彦² (1. 金沢大学大学院 自然科学研究科、2. 金沢大学理工研究域、3. 量子科学技術研究開発機構、4. 金沢大学 理工学域)
- [1P03] 核医学利用に向けた光核反応による Sc-47の大量製造
*菊永 英寿¹、豊嶋 厚史²、池田 隼人^{1,3}、本多 佑記¹ (1. 東北大学電子光理学研究センター、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター)
- [1P04] ^{131}I 内用療法での PHITSによる甲状腺と周辺リスク臓器の平均吸収線量評価
川口 (松本) 絵里佳^{2,1}、*阪間 稔¹、藤本 憲市³、生島 仁史¹、佐瀬 卓也⁴ (1. 徳島大学大学院医歯薬学研究部、2. 堀場製作所、3. 香川大学、4. 核融合科学研究所)
- [1P05] 核医学利用に向けた Ce-141の加速器製造と分離精製の検討
*大江 一弘¹、渡部 直史^{2,3}、白神 宜史³、南部 明弘⁴、羽場 宏光⁴、畑澤 順⁵ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構附属ラジオアイソトープ総合センター、2. 大阪大学大学院医学系研究科、3. 大阪大学放射線科学基盤機構、4. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター、5. 大阪大学核物理研究センター)

1P01

α線核医学治療用核種 Pb-212 の製造に向けた Th-228 線源の取扱方法の検討

(理研仁科セ¹、(株)アトックス²)○南部明弘¹、殷小杰¹、重河優大¹、羽場宏光¹、富田翔²、福森麻衣²、田沢周作²

【序論】 α線核医学治療法への応用が期待される ^{212}Pb ($T_{1/2} = 10.6 \text{ h}$) は、長寿命の ^{228}Th が、 ^{228}Th ($T_{1/2} = 1.9 \text{ y}$) → ^{224}Ra ($T_{1/2} = 3.6 \text{ d}$) → ^{220}Rn ($T_{1/2} = 56 \text{ s}$) → ^{216}Po ($T_{1/2} = 0.15 \text{ s}$) → ^{212}Pb と α 壊変して生じるものを化学分離して得られる。我々の研究グループでは、 $^{224}\text{Ra}/^{212}\text{Pb}$ ジェネレーターを開発し、 ^{212}Pb の国内製造・頒布を計画している[1]。しかし、 ^{224}Ra の娘核種である ^{220}Rn は貴ガス元素であり、その空気中の濃度限度が厳しい (400 Bq/m^3 [2])。そのため、 ^{228}Th や ^{224}Ra 線源を取り扱うためには、 ^{220}Rn を封じ込めて安全に作業するための設備が必要である。今回、我々は、理化学研究所ラジオアイソトープ実験棟にグローブボックス (GB) を設置し、 100 MBq 程度の ^{228}Th や ^{224}Ra 線源を安全に取り扱う方法を検討したので報告する。

【実験】 図 1 に GB ($180\text{W} \times 51/65\text{D} \times 77\text{H} \text{ cm}$) の概念図を示す。GB の内部にミニグローブボックス (Mini-GB、 $70\text{W} \times 45\text{D} \times 65\text{H} \text{ cm}$) を設置し、Mini-GB 内で ^{228}Th や ^{224}Ra 線源を取り扱うこととした。作業中、GB の給気・排気バルブを閉じて作業することで、施設の排気系に ^{220}Rn が混入しないようにした。Mini-GB 内の空気は、Mini-GB 内で発生した水や酸の蒸気を捕集するための冷却トラップ (-50°C) と Rn ガスを捕集するための低温チャコールトラップ (-80°C) を通して循環させた。GB 内と実験室内の ^{220}Rn 濃度は、常時 Rn モニター (Bertin Instruments, Alpha Guard DF2000) で測定した。本研究では、Mini-GB 内で最も ^{220}Rn ガスが発生すると想定される条件として、 40 MBq の ^{228}Th を含む約 2 mL の 9 M 塩酸をホットプレートで蒸発乾固後、 37 分間加熱し続けた。

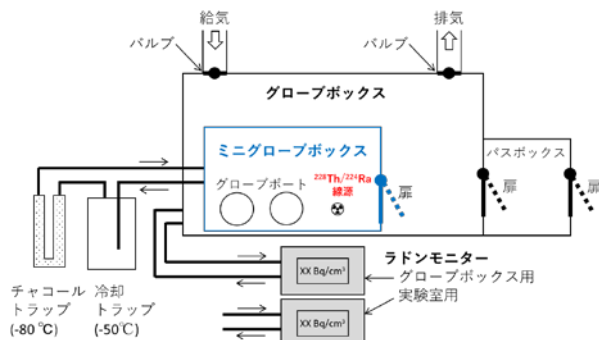


図 1. 開発したグローブボックスの模式図.



図 2. グローブボックスの写真.

【結果】 今回の作業中の実験室の ^{220}Rn 濃度はバックグラウンドと同程度で (約 40 Bq/m^3)、 ^{220}Rn の空気中濃度限度 400 Bq/m^3 より十分に低く保つことができた。GB 中の ^{220}Rn 濃度は 140 kBq/m^3 まで増加したが、施設の排気濃度に変化は見られなかった。以上の結果から、本システムを用いて 100 MBq 程度の ^{228}Th や ^{224}Ra を安全に取り扱えることを確認できた。今後、本 GB システムを用いて $^{224}\text{Ra}/^{212}\text{Pb}$ ジェネレーターの開発を進める予定である。

【参考文献】

- [1] 芝原裕規他、第 61 回日本核医学会学術総会、2021 年 11 月 5 日、名古屋市。
 [2] 令和二年三月十八日 原子力規制委員会告示第六号。

Investigation of handling method of Th-228 for production of Pb-212 for targeted alpha-particle therapy
 NAMBU, A., YIN, X., SHIGEKAWA, Y., HABA, H., TOMITA, S., FUKUMORI, M., TAZAWA, S.

1P02

ラドンの気相回収過程に関わる硝酸溶液への溶解について

(金沢大院自然¹、金沢大理工²、量研東海³) ○田中阜¹、永井雄太¹、我那覇功也¹、田鶴久典²、井田朋智²、西中一朗³、横山明彦²

【緒言】 ラドン-アスタチンジェネレーターシステムの開発は核医学利用が期待される²¹¹Atのミルキングを可能にする。先行研究[1]によると親核種となる²¹¹Rn(半減期 14.6時間)をターゲットから回収する際、密閉系において、ターゲット溶解に用いている6M HNO₃溶液に生成Rnの1~2割ほどが溶存することが確認された。このようにRnが極性溶媒に溶解するメカニズムはまだ明らかになっていない。本研究では、ラドン気相回収法の最適化を目指し硝酸溶液-気相間でのRnの分配比を調べ、その溶存機構を考察した。

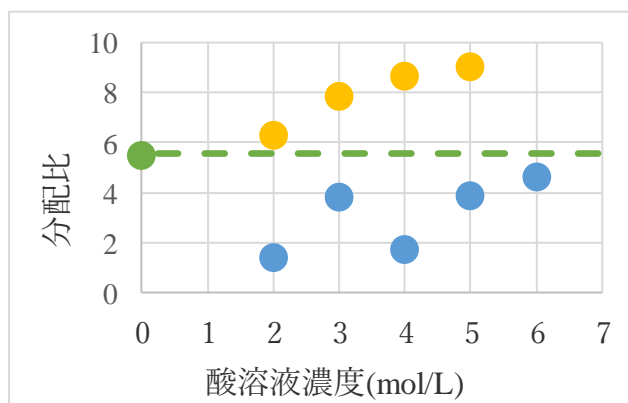
【実験】 タンデム加速器によってAl箔に蒸着したBi金属に⁷Liを照射し、²⁰⁹Bi(⁷Li, 5n)²¹¹Rn反応により²¹¹Rnを製造した。20mLシリンジにBiターゲットを入れ、密封状態で6M HNO₃を用いてターゲットを溶解し²¹¹Rnを気相回収した。残った硝酸溶液中のRnの放射能と、回収したRnガスの放射能をGe半導体検出器で定量した。また、各濃度のHCl水溶液にRnガスを吹き込むことでその分配比の塩酸濃度依存性を調べた。ここでの分配比は(気体中のRn放射能, A_{gas}) / (溶液中のRn放射能, A_{liq})比とする。

【結果と考察】 気相回収したRnガスを塩酸溶液に吹き込んだ際の分配比の濃度依存性を図の黄色のプロットに示した。緑色のプロットは0Mの値でH₂Oの結果を用いており、点線は水における分配比を表している。塩酸系では、塩酸濃度が高くなるにつれて分配比が高くなっている。これは、塩酸濃度が上昇することでイオン強度が大きくなり、非極性分子であるRnが溶存しにくくなっているからであると考えられる。また、水での分配比よりも塩酸系のすべての濃度において分配比が高いことから、水素イオンと塩化物イオンの組み合わせはRn溶存を阻害していると考えられる。ターゲット溶解の際の硝酸水溶液とRnガスとの分配比を図の青色のプロットで示した。硝酸系における分配比は、実際にジェネレーターでターゲット溶解に用いている6Mにおいて最も高く、比較的効率的に気相回収を行えている。また、硝酸系では各濃度において水での分配比よりも値が低くなっている。つまり、Rn溶解度が高くなっており、水よりもイオン強度の大きい硝酸系のほうが溶存しやすいことを示している。ここから、Rnの溶解はH₂Oのみとの相互作用に加えて、硝酸イオンと水素イオンの組み合わせも原因となっていると推測できる。

【参考文献】

[1] 川崎康平, 金沢大学大学院自然科学研究科修士論文(2020)

Dissolution of radon in nitric acid solutions disturbing the gas-phase recovery of radon
TANAKA, K., NAGAI, Y., GANAHA, K., TAZURU, H., IDA, T., NISHINAKA, I., YOKOYAMA, A.



●: 塩酸溶液 ●: 硝酸溶液 ●: 水

図 気相-酸溶液間の分配比濃度依存性

1P03 核医学利用に向けた光核反応による Sc-47 の大量製造

(東北大 ELPH¹, 大阪大 IRS², 東北大 CYRIC³)

○菊永英寿¹, 豊嶋厚史², 池田隼人^{1,3}, 本多佑記¹

【緒言】 質量数 47 のスカンジウム同位体(⁴⁷Sc)は、適度な半減期 ($T_{1/2}$: 3.35 d), 比較的低い β^- 線の最大エネルギー ($E_{\beta^-} = 440$ keV(68%), 600 keV(32%)), および SPECT 撮像に適した γ 線放出特性 ($E_{\gamma} = 159$ keV(68%)) を持つため、核医学検査や治療に利用できると期待されている。本研究グループはこれまで 1 g 以下の Ti 同位体を用いて光核反応によるテスト製造を行い、化学精製まで含めた Sc 同位体の製造法を確立してきた[1]。今回は、核医学のための基礎研究に向けてターゲット量を 5-10 g まで増やした製造試験を行い、大量の ⁴⁷Sc を提供するための検討を行った。また、ターゲット元素の違いによる損傷の違いを比較するため、同程度のターゲット量を用いた ^{nat}CaO および ^{nat}ZnO 照射試験も行ったので報告する。

【実験】 内径 16 mm または 21 mm の石英管に ^{nat}TiO₂ 粉末をテフロン棒で押し固めたもの、または粉末成形プレスで加圧成形したものを熔融封入して照射試料とした。照射は東北大学電子光理学研究センターの大強度電子線形加速器で行った。30 MeV に加速した約 130 μ A の電子ビームを、3 mm 厚の Ta を主とした水冷式コンバータで制動放射線に転換して各試料に水冷しながら 2-6 時間照射した。

照射後の試料は既報[1]の手順をスケールアップして化学分離を行った。試料をフッ化水素酸等に溶解後、一部分取して高純度 Ge 半導体検出器による γ スペクトロメトリーで ⁴⁷Sc 量を定量した。また、残りの試料を担体無添加の陽イオン交換法を用いて精製して、これまでの手順が数 g スケールでも適用できるか検討した。照射後の ^{nat}CaO および ^{nat}ZnO については目視確認後、塩酸で溶解して一部を分取・ γ 測定した。

【結果】 照射後の封入試料の写真を図 1(a), るつぼに移した ^{nat}TiO₂ を図 1(b)に示す。^{nat}TiO₂ は均一に充填されていたが、最も強くビームが照射された部分は体積が減少して黒みがかっていた。この部分は白色の ^{nat}TiO₂ と比べ非常に硬くなっており、フッ化水素酸にも容易に溶解しない。電気炉を用いて空气中 850-900°C に加熱したところ、白色になり、フッ化水素酸で溶解することができた。おそらく、^{nat}TiO₂ の一部が還元して、難溶性の化合物になっていたと思われる。^{nat}CaO や ^{nat}ZnO ではこのような難溶性物質は生じないが、照射前後で性状が変化しており、化学精製の手順を変更する必要がある。発表では現時点での ⁴⁷Sc 製造可能量の見積もりや ⁴⁸Ca(γ, n)⁴⁷Ca \rightarrow ⁴⁷Sc での製造との比較等も含めて報告する。

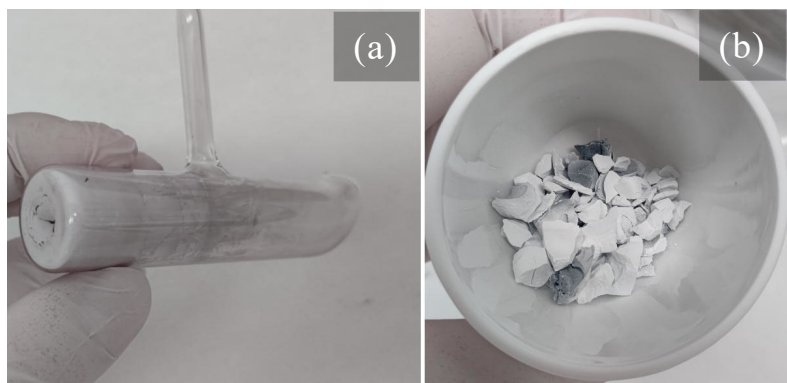


図 1. 照射後の封入試料の外観(a); 内部の ^{nat}TiO₂ (b)

【参考文献】 [1]菊永,日本放射化学会第 64 回討論会(2020)

Mass production of Sc-47 by photonuclear reaction for nuclear medicine application
KIKUNAGA H., TOYOSHIMA, A., IKEDA, H., HONDA, Y.

¹³¹I 内用療法の PHITS による甲状腺と周辺リスク臓器の平均吸収線量評価

1P04

(徳大院医歯薬¹, 堀場製作所², 香大創造工³, 核融合研⁴)川口(松本)絵里佳^{1,2}, ○阪間稔¹, 藤本憲市³, 生島仁史¹, 佐瀬卓也⁴

核医学治療 (RI 内用療法) の中に、最も代表的な甲状腺機能亢進症 (グレーブス病) や甲状腺癌の治療に用いられる放射性ヨード (ヨウ素-131) 内用療法がある。グレーブス病では、標的臓器の甲状腺内で発現したびまん性腺腫に対して Na¹³¹I の放射性薬剤を経口することで、血中から無機ヨードを捕獲し、その壊変に伴い放出される比較的高いエネルギーの放射線 β 線と γ 線の線量付与過程で、甲状腺腫の細胞にダメージを与えて治療する。この治療で投与される放射性薬剤の投与放射能は、300~500 MBq 程度 (ヨウ素-131 の外来治療の限度レベル) にわたり、核医学診断領域と比べて高い。そのため透過性の高いガンマ線やその二次電子の放射線による線量評価、すなわち線源放射能 (source) となる甲状腺からその標的周辺リスク臓器 (target) に亘って、患者及び介助者も含めて線量評価・管理することが重要である。RI 内用療法における放射性薬剤の内部被ばく線量評価で、内用療法全般にわたり標準基準となる ICRP Pub.53 の「MIRD 法」がある。近年、モンテカルロ (MC) 手法が適用可能となり、様々な放射線輸送解析計算コードの開発と人体臓器を的確に再現する ICRP ボクセル人体ファントムの普及で、膨大な MC 計算結果をデータベース化したウェブコンテンツ OpenDose や IDAC-Dose の新たなインターフェースが臨床現場で普及している。

本発表では、RI 内用療法の中でも代表的な一つである甲状腺機能亢進症 (グレーブス病) のヨウ素-131 内用療法における線量評価において、以下の点について考察した。1) 線源臓器となる甲状腺とその標的周辺リスク臓器に対する平均吸収線量評価に関して ICRP Pub.53 との違いを、線源臓器と周辺リスク臓器間の放射線輸送を再現する MC 法の観点で考察し、既述のインターフェースに装備されていない MC 法の「PHITS 計算コード」に着眼し、その比較検証と有用性を示している。2) 臨床現場で用いられている甲状腺の平均吸収線量に関連する Marinelli-Quimby の式を逆転の発想で活用し PHITS 計算で得られる線源臓器と周辺リスク臓器との平均吸収線量の比 (S-value の比) を融合させることで、改めて MC 計算実行すること無く (MC 計算の欠点である計算時間の消費を抑制し)、簡便かつ一斉に周辺リスク臓器 (検証対象: 脾臓, 肝臓, 膵臓, 胸腺) の平均吸収線量の値を導出する画期的な簡便法を提案した。これまで RI 内用療法における放射性薬剤の内部被ばく線量評価で先駆的な役割を果たしてきたのが ICRP Pub.53 (1987) の報告であるが、ここで採用されている MIRD 法では、主要な臓器のみへの Biokinetic behavior model に従った放射性薬剤分布割合より、標的及び周辺リスク臓器個々の限定的な吸収線量評価に留まり、標的と周辺リスク臓器間での放射線輸送に起因する吸収線量を評価していない点や MIRD ファントムを使用している点で、実際の各臓器に対する内部被ばく平均吸収線量を完全に再現しているとはいえない。また近年、高速演算が可能になった計算機技術進歩により、放射線輸送の物理的な現象 (原子レベルでの原子衝突・輸送過程) を忠実に再現できるモンテカルロ (MC) 法が適用可能となり、様々な放射線輸送解析計算コード群 (Geant4, MCNP/MCNPX, EGSnrc/EGS++, FLUKA, GATE, PENELOPE) の開発進展と、人体臓器を正確に再現する ICRP ボクセル人体ファントムの採用により、それら膨大な MC 計算結果をデータベース化したウェブコンテンツ OpenDose や、データベースソフトウェア IDAC-Dose の新たなユーザーインターフェース (UI) が広がっている。その結果、線源臓器及び周辺リスク臓器に対する本論文で提案する簡便な平均吸収線量評価法の妥当性を、従来基準法での値と他の MC 計算コードの結果、さらには PHITS 計算から直接的に導出される値と比較検証することで、臨床現場での容易さに秀でる実用性を有した平均吸収線量評価法であることを示した。

Dose Assessment on the Mean Absorbed Estimates by PHITS for thyroid and ambient risk organs for the administered ¹³¹I radiopharmaceutical

KAWAGUCHI-MATSUMOTO E., SAKAMA M., FUJIMOTO K., IKUSHIMA H., SAZE T.

1P05

核医学利用に向けた Ce-141 の加速器製造と分離精製の検討

(阪大 RI セ¹、阪大院医²、阪大放射線機構³、理研仁科センター⁴、阪大核物⁵)○大江一弘¹、渡部直史^{2,3}、白神宜史³、南部明弘⁴、羽場宏光⁴、畑澤順⁵

【緒言】 現在、核医学治療に用いられている放射性核種はすべて輸入に頼っていることから、国内で稼働している加速器を用いた製造による治療用核種の安定供給が求められている。本研究では、加速器で製造可能な治療用核種の候補として、セリウム 141(¹⁴¹Ce)に着目した。¹⁴¹Ce は半減期 32.5 日の β-放出核であり、加速器を用いて ¹³⁸Ba(α,n)¹⁴¹Ce 反応により製造可能と期待される。主に最大エネルギー435.26 keV、580.7 keV の β-線と 145.4 keV の γ 線を放出することから、β-線による腫瘍の治療に加え、γ 線による単一光子断層撮影(SPECT)によるイメージングも可能と期待される。しかしながら、¹⁴¹Ce はこれまでに核医学分野での利用は行われていないため、本研究では加速器を用いた ¹⁴¹Ce の製造と、Ba ターゲットからの化学分離について検討した。

【実験】 照射ターゲットとして Ba 化合物の中では比較的潮解性の低い BaCl₂ および BaO をターゲット物質として選定し、ペレット状に成型(約 130 mg/cm²)した。理化学研究所の AVF サイクロトロンを用い、29 MeV の α ビームを照射(約 1 μA, 10 min)して ¹⁴¹Ce を製造した。その後、Ge 検出器による γ 線測定を行った。¹⁴¹Ce の化学分離の検討では、照射後の Ba ターゲットを 1 M HCl に溶解後、蒸発乾固し、0.01 M HCl に再溶解後、Ln resin (eichrom 社)カラム(Φ5 mm × 50mm)に着点した。0.01 M HCl により Ba を溶出後、1 M HCl により ¹⁴¹Ce を溶離した。各フラクションを Ge 検出器で測定し、¹⁴¹Ce の定量を行った。その後、ICP-MS による測定により、各フラクション中の Ba の定量を行った。

【結果と考察】 ターゲットに BaCl₂ を用いた ¹⁴¹Ce の製造では、ターゲット中の Cl と α ビームとの核反応により副反応生成物である ³⁸K(半減期 7.636 分)および ^{34m}Cl(半減期 31.99 分)が大量に生成し、減衰するまで ¹⁴¹Ce の検出を妨害することがわかった。一方 BaO をターゲットとした場合、そのような副反応生成物は観測されず、照射直後から ¹⁴¹Ce の検出が可能であったことから、今後ターゲット物質としては BaO を用いることとした。Fig. 1

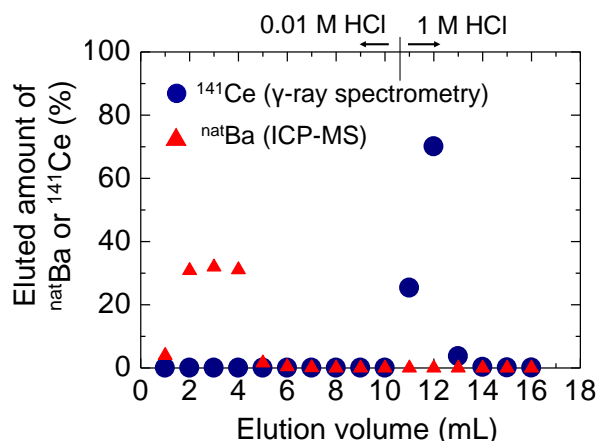


Fig. 1. Ln resin カラムからの ¹⁴¹Ce および Ba の溶離曲線

に Ln resin カラムからの ¹⁴¹Ce および Ba の溶離曲線を示す。0.01 M HCl により Ba が溶離し、その後 1 M HCl により ¹⁴¹Ce が溶離され、分離が可能であることが示された。¹⁴¹Ce の回収率は 99% 以上であった。また、ICP-MS 測定により ¹⁴¹Ce フラクションに混入した Ba は 3 μg 以下であることが分かり、分離係数として 10⁴ 以上であることを確認した。今後薬剤標識の検討を進める予定である。

Investigation of accelerator production and chemical separation of Ce-141 for nuclear medicine application

OOE, K., WATABE, T., SHIRAKAMI Y., NAMBU, A., HABA, H., HATAZAWA, J.

基盤セッション 核化学 | 基盤セッション A: 核化学

基盤セッション A: 核化学

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 336室

[1P06] **Production cross sections of ^{225}Ac and ^{225}Ra in the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)$ reactions(2)**

*殷 小杰¹、南部 明弘¹、押切 忍^{1,2}、鈴木 健太郎^{1,2}、日野 明弘²、羽場 宏光¹ (1. 理研仁科センター、2. PDRファーマ株式会社)

[1P07] **Production of ^{44}Ti via the $^{45}\text{Sc}(p,2n)^{44}\text{Ti}$ reaction for $^{44}\text{Ti}/^{44\text{g}}\text{Sc}$ generator development**

*殷 小杰¹、福地 知則²、渡辺 恭良²、羽場 宏光¹ (1. 理研仁科センター、2. 理研生命機能科学研究センター)

[1P08] **短寿命 RI供給プラットフォームにより東北大から新たに供給可能となった核種**

*池田 隼人^{1,2}、菊永 英寿²、渡部 浩司¹ (1. 東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター、2. 東北大学電子光理学研究センター)

1P06 Production cross sections of ^{225}Ac and ^{225}Ra in the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)$ reactions (2)

(理研仁科セ¹、PDR ファーマ²) ○殷小杰¹、南部明弘¹、押切忍^{1,2}、鈴木健太郎^{1,2}、日野明弘²、羽場宏光¹

【Introduction】 ^{225}Ac has attracted much attention owing to its potential application in targeted alpha therapy. ^{225}Ac and its precursor ^{225}Ra , which is useful as a $^{225}\text{Ra}/^{225}\text{Ac}$ generator, can be produced via spallation reaction of ^{232}Th . The cross sections of ^{225}Ac and ^{225}Ra in the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)$ reactions are essential to evaluate the feasibility of producing ^{225}Ac at RIKEN using RIKEN Ring Cyclotron (RRC). In our previous work [1], we investigated the cross sections of the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)^{225}\text{Ac},^{225}\text{Ra}$ reactions at 132 and 116 MeV/u. In this work, we measured the cross sections at lower energies of 98, 79 and 56 MeV/u. The cross sections of fission products such as ^{140}Ba , ^{141}Ce and ^{143}Ce were also investigated.

【Experimental】 The targets consisted of three assemblies of three metallic ^{232}Th foils, each with a thickness of 69 mg/cm² and a size of 15×15 mm². Two aluminum disks, each with a thickness of 370 mg/cm² and a diameter of 15 mm, were interleaved between the thorium assemblies as beam energy degraders. The stack targets were irradiated with a 100.1 MeV/u ^{14}N beam extracted from RRC. After 2 hours of the irradiation with an 18-pnA intensity beam, the middle ^{232}Th foils in every assembly were subjected to γ -ray spectrometry to determine the production cross sections.

【Results and Discussion】 The cross sections of ^{225}Ac and ^{225}Ra at 98, 79 and 56 MeV/u were determined by following the 440-keV γ -ray intensity of ^{213}Bi on their radioactive decay chain for more than 110 days. In Fig. 1, excitation functions for the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)^{225}\text{Ac},^{225}\text{Ra}$ reactions are shown together with those calculated by the PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) code [2]. The PHITS code reproduces the cross sections of ^{225}Ac above 98 MeV/u, while it underestimates those at the lower energies. The cross sections calculated for ^{225}Ra by the PHITS code are larger than the experimental ones. The calculated values increase with an increase of beam energy, while the experimental ones are independent of the beam energy. In the conference, the cross sections of fission products such as ^{140}Ba , ^{141}Ce and ^{143}Ce will be also presented.

References

- [1] X. Yin *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. **54**, 162 (2021).
 [2] Y. Iwamoto *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **54**, 617 (2017).

Production cross sections of ^{225}Ac and ^{225}Ra in the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)$ reactions (2)
 YIN X., NAMBU A., OSHIKIRI S., SUZUKI K., HINO A., HABA H.

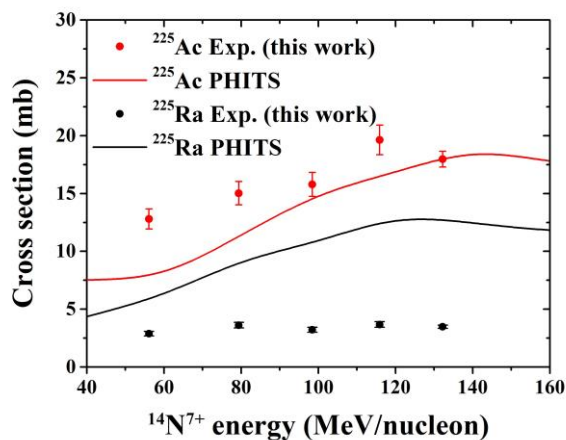


Fig. 1. Experimental and calculated excitation functions for the $^{232}\text{Th}(^{14}\text{N},xnyp)^{225}\text{Ac},^{225}\text{Ra}$ reactions.

1P07

Production of ^{44}Ti via the $^{45}\text{Sc}(p,2n)^{44}\text{Ti}$ reaction for $^{44}\text{Ti}/^{44\text{g}}\text{Sc}$ generator development

(理研仁科セ¹、理研生命機能セ²)○殷 小杰¹、福地知則²、渡辺恭良²、羽場宏光¹

【Introduction】 The medically relevant half-life ($T_{1/2} = 3.9$ h) and high positron branching (94.3%) of $^{44\text{g}}\text{Sc}$ make it a promising radionuclide for PET imaging applications. $^{44\text{g}}\text{Sc}$ can be directly produced via the $^{44}\text{Ca}(p,n)^{44\text{m,g}}\text{Sc}$ and $^{44}\text{Ca}(d,2n)^{44\text{m,g}}\text{Sc}$ reactions. Daily production close to the site where it will be used is essential for these reactions owing to the short half-life of $^{44\text{g}}\text{Sc}$. An alternative method to produce $^{44\text{g}}\text{Sc}$ is using the $^{44}\text{Ti}/^{44\text{g}}\text{Sc}$ generator [1]. In this work, we investigated the production of ^{44}Ti ($T_{1/2} = 59.1$ y) via the $^{45}\text{Sc}(p,2n)^{44}\text{Ti}$ reaction to develop the $^{44}\text{Ti}/^{44\text{g}}\text{Sc}$ generator.

【Experimental】 A metallic ^{45}Sc (99.99%) disk target (#1) with a 10-mm diameter and a 0.90-g/cm² thickness was placed in an irradiation chamber with helium-gas and water cooling [2]. The target was irradiated for 1.25 h with a 30-MeV proton beam from the RIKEN AVF cyclotron. The beam intensity was 0.25 μA . After cooling, ^{44}Ti was separated from the ^{45}Sc target by extraction chromatography with the ZR resin (Triskem International, LLC) [3], and further purified with the BDGA resin. Another ^{45}Sc target (#2) was irradiated for 4.5 days with the intensity of 10 μA .

【Results and Discussion】 The production yields of ^{44}Ti was determined to be 3.6 ± 0.2 kBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}$ for the target #1 using the 1157-keV gamma line of $^{44\text{g}}\text{Sc}$ in radiation equilibrium with ^{44}Ti . This yield almost agrees with the calculated one (3.34 kBq/ $\mu\text{A}\cdot\text{h}$) from the excitation function by L. Daraban *et al.* [4]. Figure 1 shows a gamma-ray spectrum of the purified ^{44}Ti . The gamma-lines of ^{44}Ti and its daughter nuclide of $^{44\text{g}}\text{Sc}$ are clearly seen. The radionuclidic purity of ^{44}Ti is >99.9%.

The chemical yield of ^{44}Ti was 95%. The decontamination factor for the ^{45}Sc target material was determined to be $>10^3$ using the 889-keV gamma-line of ^{46}Sc ($T_{1/2} = 83.8$ d) which was co-produced in the secondary-neutron reaction of $^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$. In the target #2, 3.6 ± 0.2 MBq of ^{44}Ti was produced. We are developing the $^{44}\text{Ti}/^{44\text{g}}\text{Sc}$ generator with long-term stability, high yield of $^{44\text{g}}\text{Sc}$, and no ^{44}Ti breakthrough.

References

- [1] D. Filosofov *et al.*, *Radiochim Acta* **98**, 149 (2010).
- [2] S. Yano *et al.*, *RIKEN Accel. Prog. Rep.* **50**, 261 (2017).
- [3] V. Radchenko *et al.*, *J. Chromatogr. A* **1477**, 39 (2016).
- [4] L. Daraban *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **267**, 755 (2009).

Production of ^{44}Ti via the $^{45}\text{Sc}(p,2n)^{44}\text{Ti}$ reaction for $^{44}\text{Ti}/^{44\text{g}}\text{Sc}$ generator development
YIN X., FUKUCHI T., WATANABE Y., HABA H.

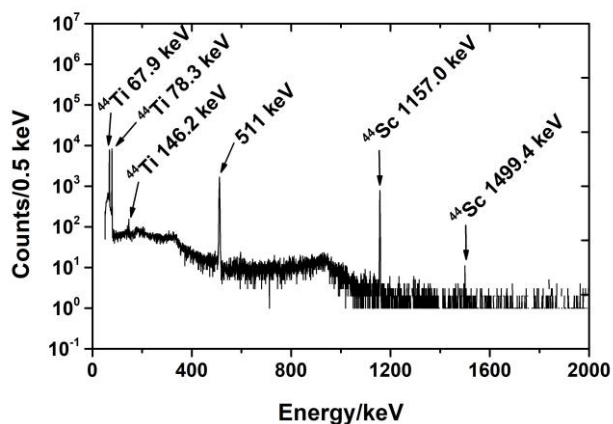


Fig. 1. Gamma-ray spectrum of ^{44}Ti after separation.

1P08

短寿命 RI 供給プラットフォームにより東北大から新たに
供給可能となった核種(東北大 CYRIC¹, 東北大 ELPH²) ○池田隼人^{1,2}, 菊永英寿², 渡部浩司¹

東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター(CYRIC)および電子光理学研究センター(ELPH)は 2016 年より発足した短寿命 RI 供給プラットフォーム(RIPF)に参加している。本プラットフォームでは、基礎開発および研究用の RI を供給し、安全な取り扱いのための技術的な支援を行うことを目的としている。東北大学の CYRIC および ELPH では、そのいずれもが RI 製造を行っている。特に電子加速器を有する ELPH では光核反応による RI 製造を行っているため、サイクロトロンでは製造が難しい中性子過剰核を製造するのに適している。

RIPF の発足から 6 年が経過し、その間にも新たな RI の供給希望も挙がっていたため、新たな RI 供給のための開発も同時に行ってきた。特に東北大学からは植物の研究に利用するための RI の需要が高く、初期から供給していた K-43 や Cd-107 に加えて、Cs-136^[1], Rb-86^[1]および As-74^[2]の供給のため開発を行い、2019 年から 2020 年ごろまでに供給できる体制を整えた。

2021 年から 2022 年にかけて RIPF の新規利用者も増加していき、ごく最近では Tc-95m, I-124, I-126 および Sb-124 などの RI が供給希望核種として挙がっていた。今年度に入って、これらの供給体制を整えることができた。本発表では、新たに開発したこれらの核種の製造法を以下に簡単に紹介する。なお、RI 製造は、Tc-95m, I-124 および I-126 は CYRIC にて、Sb-124 は ELPH にて行った。

【Tc-95m】製造は CYRIC にて行った。Nb 板をターゲットとし、30 MeV の α 粒子を照射した。ターゲットを溶液化した後に大部分の Nb を沈殿分離した。上澄み液を陰イオン交換カラムクロマトグラフィーで Tc-95m を精製した。

【I-124】Te-124 濃縮同位体の TeO₂ をターゲットとし、14 MeV の陽子を照射した。ターゲットを照射後に乾式分離を行うことにより、I-124 のみを 0.1 M NaOH の水溶液として得た。

【I-126】Sb₂O₃ をターゲットとし、30 MeV の α 粒子を照射した。I-126 の分離は I-124 同様に乾式分離によって行い、0.1 M NaOH の水溶液として得た。

【Sb-124】TeO₂ をターゲットとし、55 MeV の電子ビームにより生成した制動放射線を照射した。照射後のターゲットを溶解した後に陽イオン交換カラムクロマトグラフィーで Sb-124 を分離した。

また、これらの核種の他にもこれまでに開発、供給してきた核種についてもまとめ、当日のポスターにて紹介する。

References

- [1] 池田隼人, 菊永英寿, 渡部浩司, 2018 日本放射化学会年会・第 62 回放射化学討論会
- [2] 池田隼人, 菊永英寿, 黄田毅, 銭照杰, 簡梅芳, 井上千弘, 鈴井伸郎, 河地有木, Danni Ramdhani, 渡部浩司, 日本放射化学会第 64 回討論会(2020)

Nuclides newly available from Tohoku University through the short-lived RI supply platform
IKEDA H., KIKUNAGA, H. WATABE H.

基盤セッション 原子力化学・アクチノイド化学 | 基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

基盤セッション F: 原子力化学・アクチノイド化学

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 340室

[1P19] 厳密2成分相対論法に基づく密度行列繰り込み群の新規プログラム開発

*吉田 玲¹、波田 雅彦¹、中谷 直輝¹、阿部 穰里² (1. 東京都立大学、2. 広島大学)

[1P20] 各種の粘土鉱物における Eu吸着状態についての研究

*向井 広樹¹ (1. 東京大学大学院理学系研究科)

[1P21] メスバウアー分光法による福島第一原子力発電所の滞留水に含まれる放射性微粒子の Fe分析

*大内 和希¹、中田 正美¹、蓬田 匠¹、岡 壽崇¹、駒 義和¹、北辻 章浩¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

1P19

厳密 2 成分相対論法に基づく密度行列繰り込み群の新規プログラム開発

(都立大¹、広島大²)○吉田玲¹、波田雅彦¹、中谷直輝¹、阿部穰里^{1,2}

【緒言】福島第一原子力発電所の事故により生じた燃料デブリの処理は、原発の廃炉における重要課題である。しかし燃料デブリには、放射性物質であるアクチノイド化合物が含まれていると予想され、被爆の危険性から直接燃料デブリを採取し分析することは困難である。そこで、安全にアクチノイド化合物の性質を解明するために、量子化学計算に期待が寄せられている。アクチノイド化合物の計算には、顕著な相対論効果と複雑な電子相関効果を考慮する必要があるが、現在使用されている汎用的な量子化学プログラムでは信頼できる精度の計算が難しい。そのため本研究では、アクチノイド化合物の高精度電子状態計算に向けて、厳密 2 成分相対論法に基づく密度行列繰り込み群(DMRG)の開発を行った。

【理論】厳密 2 成分法は 4 成分 Dirac ハミルトニアンからユニタリー変換を行って陽電子解と電子解を分離して解く手法であり、フリーソフトウェアの DIRAC を用いて考慮する。

$$H_4^{Dirac}\Psi_4 = E\Psi_4 \Rightarrow H_2^+\Psi_2 = E\Psi_2, U^\dagger H_4^{Dirac}U \approx \begin{pmatrix} H_2^+ & 0 \\ 0 & H_2^- \end{pmatrix} \quad (1)$$

電子相関に関しては、多項式コストで電子相関エネルギーの精密な計算が可能な DMRG 法を用いる。分子軌道の数 k とすると、配置間相互作用(CI)法では、展開係数 $C^{n_1 \dots n_k}$ の組が 4^k 個になるため計算コストが指数関数的に増大する。一方 DMRG 法では、CI 波動関数の係数を行列 $A[i]^{n_i}$ の積に分解し、さらに特異値分解を用いて行列の次元を圧縮するため、計算コストの増加を多項式オーダーに抑えられる。中谷が開発した非相対論 DMRG プログラム(MPS++, <https://github.com/naokin/mpsxx>)を相対論に対応できるように改変することで、本研究を遂行する。

$$|\Psi_{CI}\rangle = \sum_{n_1 \dots n_k} C^{n_1 \dots n_k} |n_1 \dots n_k\rangle \cong \sum_{n_1 \dots n_k} A[1]^{n_1} \dots A[k]^{n_k} |n_1 \dots n_k\rangle \quad (2)$$

【方法】本研究は、2 つの内容について順次研究を行った。初めに①DIRAC と DMRG プログラムの接続を可能にするために、DIRAC で非相対論計算を行い、得られた分子軌道積分ファイルを、既存の非相対論 DMRG プログラムに読み込めるように改変した。

次に②非相対論 DMRG プログラムを、スピン対称性を省き、空間軌道からスピノールに対応させることで、相対論版 DMRG プログラムに改変した。

【結果と展望】①非相対論における各分子の DMRG の計算結果を表に示す。DIRAC で行った高精度計算手法の FCI、CCSD(T)の結果と比較したところ、良い一致を示した。そのため、DIRAC と非相対論 DMRG プログラムへの接続は成功したと考えられる。

表 非相対論における各分子の DMRG と FCI、CCSD(T)のエネルギー比較 (単位:a.u.)

	H ₂	LiH	H ₂ O	CH ₃ OH	NF ₃	CH ₃ I
CCSD(T)	-	-	-	-108.758000	-339.430943	-617.339453
FCI	-1.078970	-7.139644	-73.296043	-	-	-
DMRG	-1.078970	-7.139644	-73.296043	-108.758000	-339.430954	-617.339459

②相対論計算に関しては、改変した相対論版 DMRG で計算した結果と CCSD(T)の結果は、LiH 分子においては、よい一致を示した。しかし他の分子系ではまだ不具合が生じているため、プログラムを修正し、また対称性の導入や演算の効率化を図ることで、アクチノイド化合物の計算が実現できるように改変中である。

Program development of the density matrix renormalization group based on the exact two-component relativistic approach

YOSHIDA A., HADA M., NAKATANI N., ABE M.

1P20 各種の粘土鉱物における Eu 吸着状態についての研究 (東大院理¹)○向井広樹¹

【緒言】 地層処分事業において、高レベル放射性廃棄物は多重の人工バリアと天然バリアによって覆われる予定だが、数千年以上の時間スケールでは放射性核種が人工バリアから天然バリア中の地下水へ溶出していく可能性が考えられる。それゆえ特に Am-241 (半減期約 433 年)、Am-243 (半減期約 7370 年)、Np-237 (半減期約 214 万年) といった長半減期を持つアクチノイド系列放射性核種の環境中での挙動について理解することは重要となる。一方環境中において、粘土鉱物は優れた吸着能を持ち放射性核種を含む陽イオンの挙動に大きな影響を与えている。フィンランドなどで地層処分が行われる花崗岩には黒雲母が豊富に含まれており、人工バリアにおいてもモンモリロナイトを主成分とするベントナイトが緩衝材として使用されることになっている。ただ陽イオンの吸着・脱離についての性質は、粘土鉱物種によって異なることが知られている。本研究では、アクチノイド系列放射性核種の挙動について理解するため、Am のアナログとして考えられている Eu を用いて種々の粘土鉱物について吸着・脱離実験を行い、さらに Eu を吸着した粘土鉱物について電子顕微鏡を中心とした手法によって直接的に観察・分析を行った。

【実験】 実験試料として黒雲母、 hidroバイオタイト、カオリナイト、モンモリロナイトといった粘土鉱物を用いて、Eu 吸着・脱離実験を行った。吸着実験では、Eu の濃度を塩化ユウロピウムによって 10^{-3} - 10^{-7} M 程度に調整し、pH を 3-9 程度で変化させた。また Eu を吸着した各粘土試料について NaClO_4 (0.1, 1 M) 等を用いて脱離実験を行った。吸着・脱離実験で回収したそれぞれの溶液は誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) によって測定し、Eu の吸着率や脱離率を導出した。そして Eu を吸着した粘土試料について、電子線プローブマイクロアナライザ (EPMA) や透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて観察・分析を行った。

【結果】 吸着実験を Eu: 10^{-4} , 10^{-6} M, pH: 3-9 の溶液で行った結果、各粘土鉱物において pH の上昇とともに Eu 吸着率が上昇する傾向が見られた。特に黒雲母、カオリナイトでは、pH: 5-6.5 あたりで大きく変化していた。また Eu が低濃度 (10^{-6} M) の場合、高濃度 (10^{-4} M) の時より、高い吸着率を各粘土が示していた。低 pH (3-5 程度) においては hidroバイオタイト、モンモリロナイトが比較的高い吸着率を示していたが、高 pH (6.5-9) では、Eu: 10^{-4} , 10^{-6} M でともに、全ての粘土鉱物が高い吸着率を示していた。一方、Eu を吸着した試料 (pH: ~5) について行った脱離実験では、黒雲母、 hidroバイオタイトからはほとんど Eu は脱離しなかったのに対して、カオリナイトからはよく溶出していた。

次に EPMA によって元素マッピングを測定した結果、黒雲母では断面試料の端の方に Eu が濃集しており、 hidroバイオタイトでは端の方からさらに層間に Eu が侵入している様子が見られた。一方、カオリナイトについて走査型透過電子顕微鏡 (STEM) / エネルギー分散型 X 線分光法 (EDS) によって観察・分析すると粒子の表層に Eu が分布していることがわかった。

【謝辞】 本研究は、「平成 31 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 (放射性廃棄物に係る重要な基礎的技術に関する研究調査の支援等に関する業務)」の成果の一部である。

A study of Eu adsorption states in clay minerals
MUKAI, H.

1P21

メスバウアー分光法による福島第一原子力発電所の滞留水に含まれる放射性微粒子の Fe 分析

(原子力機構)○大内和希、中田正美、蓬田匠、岡壽崇、駒義和、北辻章浩

【緒言】 福島第一原子力発電所の原子炉建屋地下で採取された滞留水から α 核種が検出されている¹⁾。我々は滞留水に含まれる α 核種の存在形態を調べ、その大部分は固形分に含まれ、ウランや鉄を主成分とする粒子として存在していることを明らかにしてきた²⁾。本研究では、 α 核種が存在する粒子状固形分の主要構成元素である鉄(Fe)に着目し、メスバウアー分光法により Fe 微粒子の化学種を分析した。

【実験】 2号機トラス室から採取した滞留水試料を 10 μ m フィルタで遠心ろ過し固形分を捕集した。固形分は放射線量を低減するため超純水で洗浄し付着水を除去した。固形分を風乾後、カーボン粉末を混合して測定試料とし、メスバウアー分光測定した。

【結果と考察】 得られたメスバウアースペクトルをピークフィット解析したところ、Fe の大部分は β 形の水酸化鉄(III) (β -FeOOH) であることが分かった(図赤成分)。この化学種は塩化物やフッ化物イオン共存下で形成する³⁾ことから、海水と同程度の塩化物イオン(20000 ppm)を含む滞留水環境¹⁾では妥当な結果といえる。また、微量の Fe(II)も検出され(図青成分)、滞留水の液性を考慮すると水酸化鉄(II)の存在が示唆される。通常、鋼材から溶出した Fe(II)は溶存酸素により酸化されるが、炉内を不活性雰囲気下に保っている状況を考慮すると Fe(III)への酸化が抑制されている可能性がある。

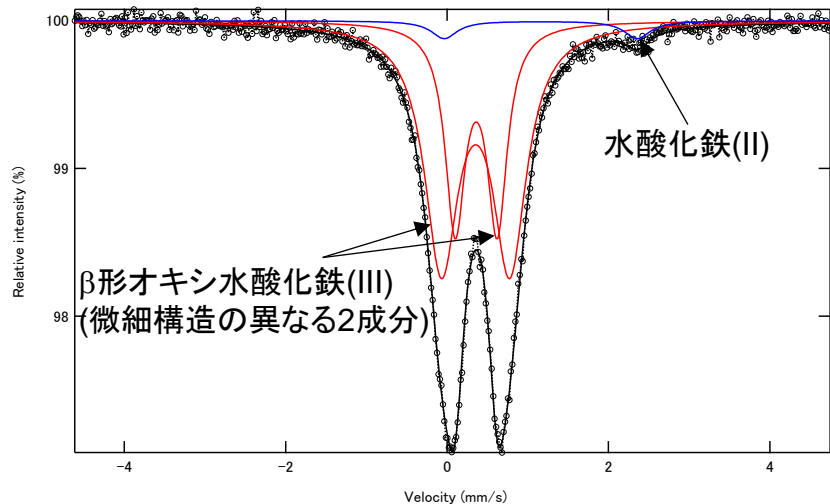


図 滞留水に含まれる粒子のメスバウアースペクトル。

【謝辞】 滞留水試料は東京電力ホールディングス(株)よりご提供いただきました。

【参考文献】

- 1) 東京電力ホールディングス(株), α 核種除去に向けた検討状況のご報告, 第 86 回廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (2021).
- 2) T. Yomogida, K. Ouchi et al. *Sci. Rep.* **2022**, 12, 7191.
- 3) 佐野博敏, 片田元己, メスバウアー分光学—基礎と応用, 学会出版センター, 1996.

Fe analysis of radio-particle in the contaminated water at Fukushima Daiichi NPS with Mössbauer spectroscopy
OUCHI K., NAKADA M., YOMOGIDA T., OKA T., KOMA Y., KITATSUJI Y.

基盤セッション 環境放射能 | 基盤セッション C: 環境放射能

基盤セッション C: 環境放射能

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 340室

[1P22] 大気中放射性キセノン濃度の水準調査

*吉田 森香¹、新田 済¹、大槻 孝之¹、磯貝 啓介¹ (1. 公益財団法人 日本分析センター)

[1P23] 能登半島における1950年以降の I-129 と Cs-137 の沈着量変動

*松中 哲也¹、落合 伸也¹、松村 万寿美²、高橋 努²、末木 啓介²、笹 公和² (1. 金沢大学、2. 筑波大学)

[1P24] 福島原発事故に由来する不溶性微粒子の模擬生成

*稲垣 誠¹、関本 俊¹、高宮 幸一¹、沖 雄一¹、大槻 勤¹ (1. 京都大学)

[1P25] 大容量エアサンプラを用いた大気浮遊じん中 Pu 濃度の経年変化

*鈴木 颯一郎¹、佐藤 昭二¹、新田 済¹、大槻 孝之¹、磯貝 啓介¹ (1. 公益財団法人 日本分析センター)

[1P26] 人工および天然放射性核種からみた南インド洋～南大洋における表層海水循環

*光主 隼大¹、真下 海成¹、井上 睦夫¹、松中 哲也¹、猪俣 弥生¹、林 政彦²、長尾 誠也¹ (1. 金沢大学、2. 福岡大学)

大気中放射性キセノン濃度の水準調査

1P22

(日本分析センター) ○吉田 森香, 新田 済, 大槻 孝之, 磯貝 啓介

【緒言】日本分析センターでは国内における大気中放射性キセノン (Xe) の放射能水準の把握を目的として、2008 年度から大気中 ^{133}Xe 濃度の調査 (原子力規制庁委託事業「環境放射能水準調査」) を開始したが、2016 年頃から不検出が続いていた。そこで 2018 年度に従来の方法に比べて検出下限値が 1 桁低い SAUNA-II を導入し、大気中 ^{133}Xe 、 $^{131\text{m}}\text{Xe}$ 、 $^{133\text{m}}\text{Xe}$ 及び ^{135}Xe 濃度水準の実態を把握し、その経年変化を調査した。

【方法】

1. 従来法 (活性炭冷却捕集およびガスクロ分離による気体計数法)

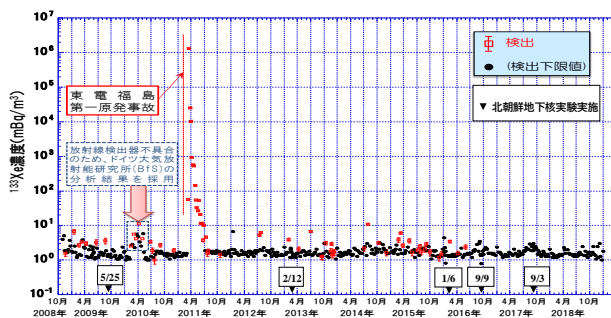
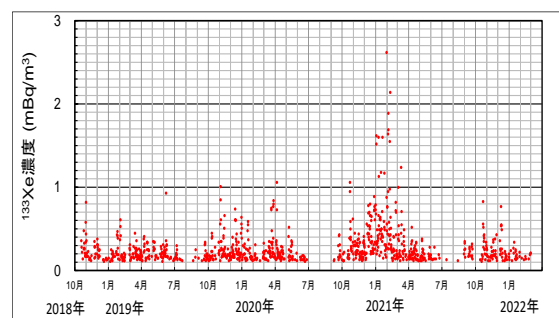
日本分析センター (千葉市) において約 10 m^3 (原則として流量 1 L/分 で 1 週間) の大気を連続吸引し、液体窒素で冷却された吸着捕集容器内の活性炭に希ガスを捕集した。吸着捕集容器を加熱 (約 300°C) して希ガスを脱着し、アルミ缶に封入したものを分析試料とした。分析試料を、ガスクロマトグラフにより分離・精製し、閉鎖系のループに導入した。ガスフロー式の比例計数管により β 線測定を行った後、ガスクロマトグラフにより全 Xe の定量を行い、大気中 ^{133}Xe 濃度 (mBq/m^3) を算出した。

2. SAUNA-II (濃度計算以外は全自動で実施)

日本分析センター (千葉市) において約 16 m^3 の大気を流量約 20 L/分 で 12 時間連続吸引し、モレキュラーシーブカラムによる不純物の除去、活性炭カラムへの希ガスの吸着および加熱 (約 300°C) による脱着を繰り返して Xe を分離・精製した。その後、ガスクロマトグラフでさらに精製し、全 Xe の定量を行った後、 β - γ 同時計数法 (NaI(Tl) 検出器、プラスチックシンチレーション検出器) で測定し、大気中 $^{131\text{m}}\text{Xe}$ 、 ^{133}Xe 、 $^{133\text{m}}\text{Xe}$ 及び ^{135}Xe 濃度 (mBq/m^3) を算出した。

【結果・考察】従来法では大半が不検出であったが、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故後には明らかな濃度の上昇が確認された。また、年に数回程度 ^{133}Xe が検出されていたが、医療用 ^{133}Xe が国内に輸入されなくなった 2016 年頃から不検出が続いており、従来法では医療用トレーサ加工施設から環境中に放出された ^{133}Xe を観測していたものと考えられた (図 1)。SAUNA-II を用いた ^{133}Xe 濃度の調査結果を図 2 に示す。2018 年 10 月から 2022 年 2 月捕集分 ($n=2386$) の ^{133}Xe 濃度範囲は $0.11 \sim 2.62 \text{ mBq/m}^3$ であり、夏場に低く冬場に高い傾向が認められた。また、 $^{131\text{m}}\text{Xe}$ 、 $^{133\text{m}}\text{Xe}$ 及び ^{135}Xe 濃度範囲は $0.04 \sim 1.62 \text{ mBq/m}^3$ 、 $0.04 \sim 0.25 \text{ mBq/m}^3$ 及び $0.54 \sim 0.71 \text{ mBq/m}^3$ であり、検出頻度は ^{133}Xe (990 回)、 $^{131\text{m}}\text{Xe}$ (137 回)、 $^{133\text{m}}\text{Xe}$ (35 回)、 ^{135}Xe (4 回) の順に高い傾向があった。

図 1 のデータは「環境放射能水準調査」の成果の一部である。

図 1. ^{133}Xe 濃度 (従来法)図 2. ^{133}Xe 濃度 (SAUNA-II)

Level Survey of Atmospheric Radioactive Xenon Concentration
YOSHIDA, M., NITTA, W., OTSUKI, T., ISOGAI, K.

1P23

能登半島における 1950 年以降の I-129 と Cs-137 の沈着量変動

(金沢大 LLRL¹、筑波大 AMS²)○松中哲也¹、落合伸也¹、松村万寿美²、高橋努²、末木啓介²、笹公和²

【緒言】

過去 50 年間にわたって日本海底層水の水温上昇と溶存酸素減少が観測され、冬季気温上昇によって日本海の深層循環が弱まりつつあることが示唆されている。日本海において、放射性トレーサーを用いて表層・深層循環の変化を検知することは、近年の地球温暖化に伴う海洋循環の応答性を明らかにする上で重要である。熱中性子核分裂によって生成される人為起源の I-129 (半減期: 1,570 万年) は、日本海において大気、河川、および海流を介して供給され、海水循環トレーサーとしての利用が期待されている。日本海におけるその主な供給プロセスと供給量の実態を把握する必要がある。本研究は、越境汚染物質の 1 つであり主に 1950 年以降の核燃料再処理や核実験に起因する I-129 について、環日本海域における沈着量変動を明らかにすることを目的とした。

【実験】

能登半島七尾市の貯水池において、2011 年 12 月に採取された B11-1 コア (長さ 63 cm) について 1 cm 毎に分割した堆積物を分析試料とした。均一化した乾燥堆積物 (乾燥重量: 1.5 g 程度) をプラスチック容器に密封し、金沢大学 LLRL の Ge 半導体検出器を用いて Pb-210 と Cs-137 を測定した。堆積物中 I-129 の熱加水分解法による抽出と精製は I-129 バックグラウンドが低い金沢大学 LLRL で実施した。堆積物 (0.5 g) から生成した燃焼ガスをトラップしたアルカリ溶液に対し、1 mg の I-127 キャリア (Deepwater iodine, I-129/I-127: $\sim 1 \times 10^{-14}$) を加えて同位体希釈を行った後、ヨウ素を溶媒抽出・逆抽出で精製し、硝酸銀を添加してヨウ化銀ターゲットを作製した。筑波大学の加速器質量分析計でターゲットの I-129/I-127 比を測定し、Purdue 1 (I-129/I-127: 8.38×10^{-12}) を標準として規格化した。ICP-MS を用いて試料の I-127 濃度を測定した後、I-129 濃度を算出した。Cs-137 と Pb-210 に基づく堆積層の形成年代と主に核燃料再処理施設から大気経由で供給される I-129 の沈着量変動を解析した。

【結果と考察】

堆積物中の余剰 Pb-210 ($^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$) 濃度は、表層から深度 29 cm において 84.2–739 Bq/kg (試料採取日に壊変補正済) の範囲にあり、深度 29 cm 以深では未検出であった。質量深度 (Mass depth: g/cm²) に対する余剰 Pb-210 の深度分布を基に堆積速度を解析した結果、表層から 0.836 g/cm²/yr (深度 0–7.5 cm)、0.0638 g/cm²/yr (深度 7.5–15.5 cm)、0.219 g/cm²/yr (深度 15.5–24.5 cm)、及び 0.0332 g/cm²/yr (深度 24.5–29.0 cm) と変化した。一方、Cs-137 濃度は表層から深度 29 cm において 8.6–71.2 Bq/kg (試料採取日に壊変補正済) の範囲にあり、深度 26–27 cm に極大を示す深度分布であった。Cs-137 の極大層は、Pb-210 から算出した堆積速度を基にすると 1962 年に形成されたことが分かった。堆積物中の I-129 は 0.13–93.0 μBq/kg の範囲にあり、沈着量に換算すると 0.004–77.8 nBq/cm²/yr であった。I-129 沈着量は 1946 年以前において 0.004–0.025 nBq/cm²/yr と低いレベルであったのに対し、1946 年以降増加し、1980 年と 2011 年に極大を示した。この傾向は 1950 年以降の核燃料再処理、及び 2011 年の福島原発事故に伴って、大気放出された I-129 の沈着量増加を示唆していると考えられる。

Anthropogenic I-129 and Cs-137 depositions at the Noto Peninsula since 1950

MATSUNAKA, T., OCHIAI, S., MATSUMURA, M., TAKAHASHI, T., SUEKI, K., SASA, K.

1P24

福島原発事故に由来する不溶性微粒子の模擬生成

(京大複合研)○稲垣誠、関本俊、高宮幸一、沖雄一、大槻勤

【緒言】福島第一原子力発電所（FDNPP）の事故により環境中に放出された放射性物質の一つの形態として、放射性セシウム微粒子（radiocesium-bearing microparticle; CsMP）と呼ばれる水に不溶な微粒子が知られている[1]。CsMPは一般的なエアロゾル粒子等とは異なり水に不溶であることから、放出時の形態を環境中で維持していると考えられる。したがって、CsMPの性状や生成過程を解明することで、事故時の炉内状況の解明につながると考えられる。CsMPの原料や生成過程は元素分析などをもとに様々な推定がなされているが、それらは構成元素などをもとにした推定であり、確定的な見解は得られていない。CsMPの原料や生成過程を明らかにするためには、実物の分析のみではなく、推定される原料をもとにCsMPを模擬的に生成し、実物の観測結果を再現することが必要となる。CsMPは、含有するCs-134とCs-137との比に特徴付けられる、Type A・Type Bの少なくとも2つの種類があることが知られている。このうち、Type AはFDNPP 2号機及び3号機に由来すると考えられており、主に直径数 μm の球形の微粒子である。今回は、Type AのCsMPを模擬する微粒子を実験的に生成し、実際のCsMPと比較することで、その生成過程の解明を目指した。

【実験】 SiO_2 を主とする原料を大強度の赤外線レーザーで加熱することで、模擬微粒子の生成を行った（図1）。原料が入ったるつぼをチャンバー内に置き、そこに上面からレーザーを照射し、加熱されて発生した微粒子を含むフュームをインパクターで吸引して捕集した。用いたレーザーは、出力300 W、波長1080 nmのファイバーレーザーである。捕集した微粒子を、走査型電子顕微鏡/エネルギー分散形X線分光器（SEM/EDS）にて分析し、CsMPとの比較検討を行った。

【結果と考察】捕集した模擬微粒子のSEM像を図2に示す。SEM観察により、球状の微粒子が確認された。すなわち、実際のType A-CsMPに類似した、直径数 μm の球形の微粒子の生成に成功した。EDSによる元素分析の結果、模擬微粒子の元素組成はレーザーを照射した原料の組成と類似しているが、一部の元素の含有量に違いがみられた。これは、元素の揮発性の違いによるものと考えられる。Type A-CsMPの生成過程の一つの仮説として、本実験と同様に SiO_2 を多く含む物体が原料となり、それが高温の熔融燃料に接触するなどして急熱されてフュームが発生し、CsMPが生成したという過程が考えられる。

[1] K. Adachi *et al.*, *Sci. Rep.* **3**, 2554 (2013).

Generation of radiocesium-bearing microparticles derived from the Fukushima nuclear accident
INAGAKI, M., SEKIMOTO, S., TAKAMIYA, K., OKI, Y., OHTSUKI, T.



図 1. レーザー照射により微粒子を含むフュームが発生する様子

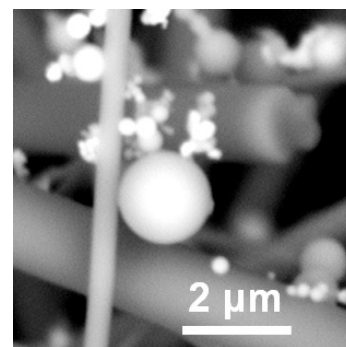


図 1. 生成した微粒子のSEM像(繊維状のものは捕集用フィルターの一部分)

1P25

大容量エアサンプラを用いた大気浮遊じん中 Pu 濃度の経年変化 (日本分析センター)○鈴木 颯一郎、佐藤 昭二、新田 済、大槻 孝之、 磯貝 啓介

【緒言】 原子力規制庁委託事業である「環境放射能水準調査」の一環として、日本分析センターでは 2016 年 3 月より大容量エアサンプラ「Snow White」を用いた大気浮遊じん中放射性核種の高感度分析を行っている。その中で ^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度及び $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比にそれぞれ明瞭な季節変化が確認されたため、その要因について検討した。

【採取及び測定】

1. 試料採取

日本分析センター（千葉市）に設置されている Snow White を用いて、設置高 1 m、流量 $680\text{ m}^3/\text{h}$ で大気を約 3.5 日間連続吸引し、ガラス繊維ろ紙（ $570\times 460\text{ mm}$ ）上に大気浮遊じんを捕集した。（期間：2016 年 2 月 29 日～2022 年 1 月 3 日）

2. ^{137}Cs 測定

ろ紙を専用のプレス機で成型してプラスチック製の測定容器（U8）に詰め、放射能測定法シリーズ 7「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」に準じて ^{137}Cs を測定した。（2017 年 4 月 10 日採取分からは 2 枚（1 週間分）のろ紙を重ねて成型）

3. Pu 分析

^{137}Cs 測定後のろ紙を月毎に粉碎・均質化した後、放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」に準じて、 ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ を測定した。

【結果及び考察】 2016～2021 年における大気浮遊じん中の ^{137}Cs 、 ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の範囲はそれぞれ、 $1.1\times 10^{-3}\sim 1.7\times 10^{-2}\text{ mBq}/\text{m}^3$ 、不検出～ $3.4\times 10^{-6}\text{ mBq}/\text{m}^3$ 及び不検出～ $2.7\times 10^{-5}\text{ mBq}/\text{m}^3$ であり、 ^{137}Cs については 12～2 月、 $^{239+240}\text{Pu}$ は 3～5 月にかけて極大となる季節変動が確認された。この変動に対する黄砂の影響を調べるため、NASA の全球再解析データセットである MERRA2¹⁾を用いて千葉市における月単位大気中土壌粒子濃度を算出した結果、全期間における土壌粒子濃度と $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度には正の相関($R=0.64$)が認められた。

一方、 $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は 3～5 月にかけて極小（平均 1000）、それ以外の期間で極大（平均 4410）となる季節変動が確認された。Rulík ら²⁾はチェコにおける 2007 年時点での $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比を 400 と報告しており、千葉市における $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は 3～5 月にかけてこの値に近づく傾向があった。以上のことから、これら季節変動にはユーラシア大陸から飛来する成分が影響していると考えられた。

【参考文献】

- 1) Gelaro, R., et al. The Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications, Version 2 (MERRA-2), *Journal of Climate*, 30(14), 5419-5454. Retrieved Jul 22, 2022,
- 2) Rulík, P., et al. "Low level air radioactivity measurements in Prague, Czech Republic." *Applied Radiation and Isotopes* 67.5 (2009): 969-973.

The temporal variation of plutonium concentration in atmospheric aerosol by high volume air sampler SUZUKI, S., SATO, S., NITTA, W., OTSUKI, T., ISOGAI, K.

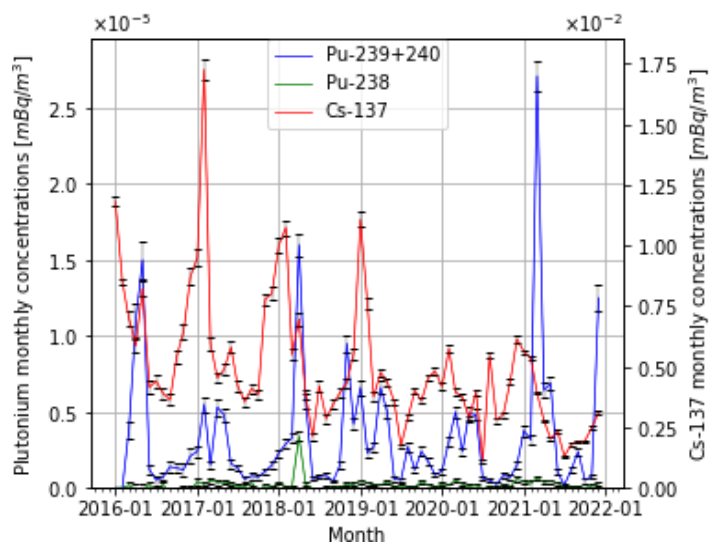


図 1 大気浮遊じん中 ^{137}Cs 、 ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度変動（月単位）

1P26 人工および天然放射性核種からみた南インド洋～南大洋における表層海水循環

(金沢大¹、福岡大²) ○光主隼大¹、真下海成¹、井上睦夫¹、松中哲也¹、猪俣弥生¹、林政彦²、長尾誠也¹

【緒言】

海水に溶解性のラジウム同位体、放射性セシウムは、海水循環に有効なトレーサーであるが、南大洋ではその報告例は著しく少ない。本研究では、砕氷船「しらせ」の航海中(2021-2022年)に採取した南インド洋～南大洋の表層海水に低バックグラウンド γ 線測定を適用、ラジウム(^{226}Ra 、 ^{228}Ra)、放射性セシウム(^{134}Cs 、 ^{137}Cs)の水平分布を求めた。さらには、放射性核種の分布により、本海域における表層海水循環を議論する。

【試料と実験】

図.1に示した15地点においてしらせ航海中の、2021年11月より2022年3月にわたり表層海水試料(60L)を採取した。リンモリブデン酸アンモニウム(AMP)沈殿により放射性セシウムを、さらに上澄み液より BaSO_4 共沈法によりラジウム同位体を回収した。すべてのAMP、 BaSO_4 試料は石川県小松市の尾小屋地下測定室に設置されたゲルマニウム半導体検出器を用いた、極低バックグラウンド γ 線測定を利用し、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{228}Ra および ^{226}Ra 濃度を測定した。

【結果と考察】

40°Sから60°S(110-120°E測線)にかけ、 ^{226}Ra 濃度は上昇、 ^{228}Ra および ^{137}Cs 濃度は減少した。南大洋(>60°S測線)においては、他の海洋の表層海水に比較し、 ^{228}Ra 、 ^{137}Cs 濃度は最低値(それぞれ、 $< \sim 0.02$ mBq/L、0.03 mBq/L)、 ^{226}Ra 濃度は最大値(~ 3 mBq/L)を示した。古い起源、例えば中層海水の大きな寄与が推測された。本年会では、2020～2021年のインド洋西部で得られたデータ(Inoue et al., 2022)と比較することにより、南大洋表層海水の供給源を議論する。

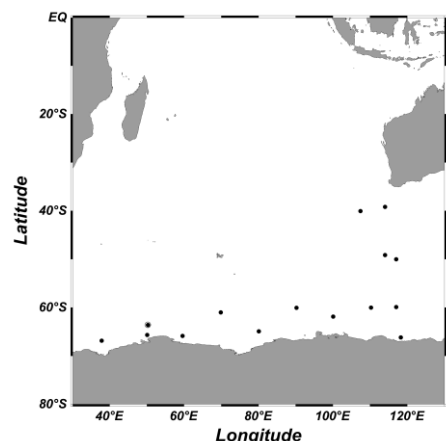


図.1 表層海水採水地点

【謝辞】

本研究で使用した海水試料採取にご協力いただいた、砕氷船しらせの船長、乗組員、および同乗研究者の皆様に感謝いたします。

文献

Inoue, M. et al. (2022) *Scientific Reports* **12**, 1781.

Lateral distributions of artificial and natural radionuclides in the Southern Indian Ocean and Southern Ocean

MITSUNUSHI, H. MASHITA, K. INOUE, M. MATSUNAKA, T. INOMATA, Y. HAYASHI, M. NAGAO, S.

基盤セッション 生物関連放射化学/特別セッション 福島第一原発事故関連研究の最前線 | 基盤セッション G: 生物関連放射化学/特別セッション 1: 福島第一原発事故関連研究の最前線

基盤セッション G: 生物関連放射化学

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 340室

[1P27] レーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成に向けた基礎実験

*稲垣 誠¹、秋山 和彦²、関本 俊¹、大槻 勤¹ (1. 京都大学、2. 東京都立大学)

[1P28] 福島第一原子力発電所周辺の微生物および放射線の微生物への影響

*土津田 雄馬¹、北垣 徹¹、佐藤 志彦¹、大貫 敏彦^{1,2} (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京工業大学)

[2P20] 燃料デブリ取り出し作業での生成を模擬したウラン微粒子の分析

*豊嶋 厚史¹、高宮 幸一²、永田 光知郎¹、古谷 浩志³、床井 健運⁴、寺本 高啓¹、稲垣 誠²、河井 洋輔⁴、吉村 崇¹、豊田 岐聡⁴、篠原 厚^{5,1} (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 京都大学複合原子力科学研究所、3. 大阪大学科学機器リノベーション・工作支援センター、4. 大阪大学大学院理学研究科、5. 大阪青山大学)

1P27 レーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成に向けた基礎実験

(京大複合研¹、都立大理²)○稲垣誠¹、秋山和彦²、関本俊¹、大槻勤¹

【緒言】放射性同位体 (RI) は医学的診断や治療に広く用いられ、悪性腫瘍などの早期診断や治療に成果を上げている。RI を診断や治療に用いるにあたり、正常組織の被ばく低減などの観点から、体内で RI を運搬し患部に集積させる技術 (ドラッグデリバリーシステム ; DDS) が求められている。RI の DDS を実現するためには、RI を保持し、かつ患部に集積する機能を持つような分子が必要となる。

RI を保持する構造を持つ分子には様々なものがあるが、その一つにフラーレンがある。フラーレンはそのかご状構造内に金属原子などを内包できることが分かっており [1]、また、フラーレンはその外側を化学的に修飾することが可能である [2]。したがって、フラーレンを化学的に修飾し、患部に集積するような機能を持たせることができれば、フラーレンは DDS において RI を運搬する分子となり得ることが期待される。

そこで、本研究では、RI の DDS への応用に向けた基礎研究として、RI を内包したフラーレンの簡便な生成法の開発を目指すこととした。今回は、基礎実験として、レーザーによるフラーレンの生成実験を行ったので報告する。

【実験】グラファイトを原料として、希ガス雰囲気下でレーザーを照射することによりフラーレンの生成を試みる実験を行った。実験装置の概略図を図 1 に示す。バルブ付きの石英容器にグラファイトを約 50 mg 入れ、真空に引いたのち、アルゴンガスで置換した。石英容器の外側からファイバーレーザー (波長 1080 nm、出力 300 W) をグラファイトに照射した。レーザー照射後のグラファイトから *o*-ジクロロベンゼンで可溶成分を抽出し、メンブレンフィルターでろ過したのち、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) による分析を行った。

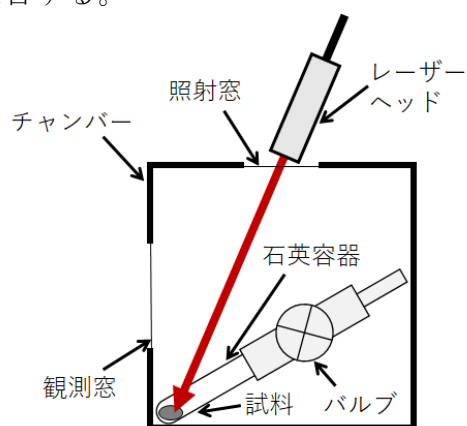


図 1. 実験装置概略図

【結果と考察】HPLC による分析の結果、C₆₀ および C₇₀ のフラーレンの生成が確認された。本手法は、レーザー蒸発法と呼ばれるフラーレン生成法に類似した手法である。一般的に、レーザー蒸発法では Nd:YAG レーザー (第二高調波 ; 波長 532 nm) および加熱用の電気炉を組み合わせた装置が用いられるが [3]、本手法のようなファイバーレーザー (波長 1080 nm) のみを用いた装置によっても簡便にフラーレンが生成可能であることが示された。

[1] Y Chai *et al.*, J. Phys. Chem. **95**, 7564–7568 (1991).

[2] T. Akasaka *et al.*, Nature **374**, 600–601 (1995).

[3] H. Shinohara, Rep. Prog. Phys. **63**, 843–892 (2000).

Fundamental experiments toward the production of radionuclide endohedral fullerenes by laser
INAGAKI, M., AKIYAMA, K., SEKIMOTO, S., OHTSUKI, T.

1P28

福島第一原子力発電所周辺の微生物および放射線の微生物への影響

○土津田 雄馬¹、北垣 徹¹、佐藤 志彦¹、大貫 敏彦^{1,2}

(1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京工業大学)

環境中には多くの微生物が存在している。それらは土壌、湖沼・河川、海、さらには人の体表や腸内など、多種多様な環境に適応し、生態系を築いている。高放射線下においても例外ではなく、かつての過酷事故、スリーマイル島原発事故の際はフィルターが目詰まりや配管腐食、大量の微生物の繁茂による視界不良などの問題が報告されている。また、チェルノービル発電所でも石棺・建屋内で微生物の存在が確認されており、ラボスケールで燃料デブリの分解を促進する微生物が採取されたという報告がある。

福島第一原子力発電所(1F)においても事故直後の海水注水や地下水の流入により、周辺環境から微生物が建屋内へ侵入していると考えられる。廃炉には長い期間を要することから、建屋内に侵入した微生物の特性を理解しておくことはリスク管理において重要である。

本報告では、福島県富岡町内(1Fから10 km圏内)で採取した環境試料(水系試料)の遺伝子解析および培養試験の結果ならびに微生物への放射線照射による影響について紹介する。

採取した環境試料は水質測定の結果、中性でやや嫌氣的かつ溶存態鉄が検出されたことから大気との接触時間の少ない地下水と判断した。地下水中には113科374属の微生物(細菌・古細菌)が存在し、鉄の酸化還元に関連する微生物が多く検出した。また、培養試験においても鉄の酸化還元反応が確認された。また、地下水を用いた燃料デブリ模擬体との混合培養試験では、①鉄酸化細菌による金属片の持続的な酸化、②硫酸還元菌などによる鉄の溶出が確認された。

放射線照射試験では、 γ 線照射下で *Bacillus* sp. と鉄片の混合培養を行ったところ、それほど大きな損傷は検出できなかった。一方、コントロール(微生物を添加していない系)では空孔状の損傷が観察された。また、照射試験後に遺伝子解析を行ったところ、非照射の菌体と比較して遺伝子の変異(特に欠失)が有意に検出された。

これらの結果から、建屋内・炉内では鉄を中心とした腐食が懸念されるが、条件次第では微生物の存在により劣化が緩やかになる可能性も示唆された。

1P28

Microorganisms around Fukushima Daiichi Nuclear Power Station and
radiation effects on microorganisms○Yuma Dotsuta¹, Toru Kitagaki¹, Yukihiro Sato¹, Toshihiko Ohnuki^{1,2}

(1. Japan Atomic Energy Agency, 2. Tokyo Institute of Technology)

There are many microorganisms in the environment. They adapt to a wide variety of environments, such as soil, lakes, rivers, the sea, and even the human body surface and intestines, and build ecosystems. Even under high radiation, and the presence of microorganisms has been reported after the severe accidents. At the Three Mile Island Nuclear Power Plant accident, problems such as clogged filters, pipe corrosion, and poor visibility due to the overgrowth of large amounts of microorganisms have been reported. In addition, the presence of microorganisms has been confirmed in the sarcophagus and inside the building at the Chernobyl Power Plant, and there are reports that microorganisms that promote the decomposition of fuel debris on a laboratory scale have been collected.

At the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F), injection of seawater immediately after the accident and inflow of groundwater, and it is thought microorganisms have invaded the building from the surrounding environment. It is important to understand the characteristics of microorganisms that have invaded the building in risk management since decommissioning takes a long time.

This report introduces the results of gene analysis and culture tests of environmental samples (aqueous samples) collected in Tomioka Town, Fukushima Prefecture (within 10 km from 1F), and the effects of irradiation on microorganisms.

As a result of water quality measurement, the collected environmental sample was judged to be groundwater with a short contact time with the atmosphere because neutral pH, slightly anaerobic and dissolved iron was detected. Microorganisms (bacteria and archaea) of 113 families and 374 genera existed in groundwater, and many microorganisms related to iron redox were detected. The culture tests also confirmed the redox reaction of iron. In a mixed culture test with simulated fuel debris using groundwater, (1) continuous oxidation of metal fragments by iron-oxidizing bacteria and (2) elution of iron by sulfate-reducing bacteria were confirmed.

In the irradiation test, mixed culture of *Bacillus* sp. and iron fragments under γ irradiation did not detect much damage. On the other hand, pore-like damage was observed in the controls (without microorganisms). After the irradiation test gene analysis was performed, gene mutations (especially deletions) were significantly detected compared with non-irradiated cells.

These results suggest that corrosion mainly of iron in the buildings and reactor might be a concern, but depending on the conditions, deterioration may be moderated due to the presence of microorganisms.

2P20

燃料デブリ取り出し作業での生成を模擬したウラン微粒子の分析
(阪大放射線機構¹、京大複合研²、阪大リノ³、阪大院理⁴、大阪青山大⁵) ○豊嶋厚史¹、高宮幸一²、永田光知郎¹、古谷浩志³、床井健運⁴、寺本高啓¹、稲垣誠²、河井洋輔⁴、吉村崇¹、豊田岐聡⁴、篠原厚^{5,1}

【緒言】 福島第一原発に残る燃料デブリの取出し作業では、デブリを小さく切断して容器に収納する事が想定されているが、²³⁹Puなどの α 線放出核種を含む放射性微粒子(アルファ微粒子)が生じる事が懸念されている。我々はアルファ微粒子の環境漏洩や作業者の内部被ばくを防ぐため、微粒子を一個ずつ質量分析し、アルファ核種をリアルタイムで検出する手法の開発を進めている。昨年度報告した模擬微粒子のオンライン質量分析に続き、本発表では、検出装置開発を進めるうえで必要な模擬アルファ微粒子(ウラン微粒子)のSEM/EDSなどを用いた化学分析の結果について報告する。

【実験】 UO_2 顆粒および ZrO_2 粉末から合成した $\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_2$ ($x=0.1, 0.5, 0.975, 0$) ペレットを模擬デブリとして用いた。照射チェンバーにペレットを配置し、レーザーアブレーションを行って模擬アルファ微粒子を製造した。乾燥空気を流速 1 L/min でチェンバーに導入し、微粒子を導電性シリコンチューブを用いてインパクトに輸送してカーボンテープ上に 1-10 分間捕集した。京大複合研の SEM/EDS を用いてカーボンテープに捕集した微粒子試料の表面状態測定を行った。電子の照射エネルギーは 10 kV あるいは 15 kV であった。それぞれの微粒子試料に対して数個の微粒子を選択し、SEM 像ならびに X 線スペクトルを得た。

【実験】 いずれの微粒子試料に対しても SEM 像ならびに X 線スペクトルを観測することができた。測定例として図 1 に ZrO_2 ペレットから製造した微粒子の SEM 像を示している。微粒子の多くは粒径 1 μm 以下の小さな形状であり、1 μm を超える大きな粒子はわずかであることがわかる。図 1 に十字で示した微粒子を EDS 分析した結果を図 2 に示している。C、O、Y、Zr の特性 X 線が観測されている。ZrO₂ に起因する O と Zr 以外に、実験に用いた市販の ZrO ペレットには 8mol% Y_2O_3 が含まれているため Y の特性 X 線が観測された。また、C はカーボンテープ起源である。発表では、他の試料の結果や、走査型モビリティパーティクルサイザーによる微粒子粒径分布、ICP-MS 測定結果などを報告する。

【謝辞】 本研究は日本原子力研究開発機構廃炉国際共同研究センターが実施する「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」共通基盤型原子力研究プログラム(R1-R2 年度)並びに課題解決型廃炉研究プログラム(R3-R5 年度)の支援を受け実施しました。

Analysis of fine particles containing uranium modeled after production in removal process of fuel debris

T. TOYOSHIMA, A., TAKAMIYA, K., NAGATA, K., FURUTANI, H., TOKOI, K., TERAMOTO, T., INAGAKI, M., KAWAI, Y., YOSHIMURA, T., TOYODA, M., SHINOHARA, A.

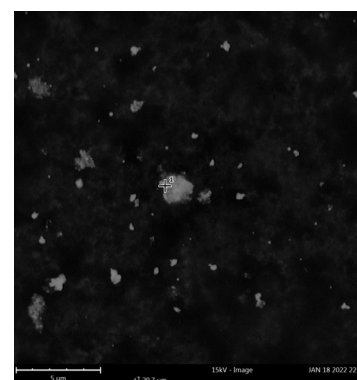


Fig. 1. SEM image of particles from ZrO_2 pellet.

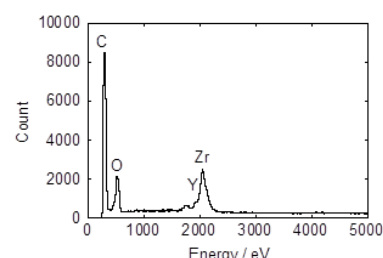


Fig. 2. EDS spectrum of particle from ZrO_2 pellet.

基盤セッション A: 核化学

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 341室

- [1P09] ガスクロマトグラフィーを用いた At のハロゲン結合エネルギーの導出法の開発
*床井 健運^{1,2}、青戸 宏樹³、渡邊 瑛介^{1,2}、篠原 厚^{4,5}、王 洋²、羽場 宏光²、笠松 良崇^{1,2}、豊嶋 厚史^{2,4}
(1. 大阪大学大学院 理学研究科、2. 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター、3. 大阪大学 理学部、4. 大阪大学 放射線科学基盤機構、5. 大阪青山大学)
- [1P10] Th ターゲット中に生成する Np の単離を目的とした高除染係数溶媒抽出法の検討
*細川 浩由¹、瀬戸 彩乃²、永井 歩夢¹、中島 朗久³、坂口 綾³、羽場 宏光⁴、横山 明彦² (1. 金沢大学大学院自然科学研究科、2. 金沢大学理工学研究域、3. 筑波大学数理物質系、4. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター)
- [1P11] アスタチン化合物の表面増強ラマン分光
*寺本 高啓¹、加納 英明²、WANG Yang³、羽場 宏光³、豊嶋 厚史¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 九州大学大学院理学研究院、3. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター)
- [1P12] ⁵⁹Co のミュオン原子核捕獲反応生成物の測定
*浅利 駿介¹、Chiu I-Huan¹、新倉 潤²、佐藤 朗¹、Amato Alex³、Biswas Sayani³、Gerchow Lars³、二宮 和彦¹、吉村 崇¹ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. ポールシェラー研究所)
- [1P13] 12族元素の気相化学のための HgCl₂ のオフライン等温クロマトグラフィ
*島田 尚樹¹ (1. 新潟大学院自然科学研究科数理物質科学専攻化学コース 核化学研究室)
- [1P14] ^{229m}Th の γ 線測定に向けた希ガスマトリックス単離装置の開発
*益田 遼太郎^{1,2}、安田 勇輝¹、澤村 慶¹、重河 優大²、宮本 祐樹³、吉村 浩司³、篠原 厚⁴、笠松 良崇^{1,2}
(1. 国立大学法人大阪大学大学院、2. 理化学研究所仁科加速研究センター、3. 国立大学法人岡山大学、4. 学校法人大阪青山大学)
- [1P15] ノーベリウム の 化学的性質解明にむけた2族元素の水酸化物及び硫酸沈殿実験と化学種分析
*大高 咲希^{1,2}、笠松 良崇^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,2}、中西 諒平^{1,3}、速水 翔¹、澤村 慶¹、篠原 厚³ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 大阪青山大学)

1P09

ガスクロマトグラフィーを用いた At のハロゲン結合エネルギーの導出法の開発

(阪大院理¹、理研仁科セ²、阪大理³、阪大放射線機構⁴、大阪青山大⁵)○床井健運^{1,2}、青戸宏樹³、渡邊瑛介^{1,2}、王洋²、羽場宏光²、笠松良崇^{1,2}、豊嶋厚史^{2,4}、篠原厚^{4,5}

【緒言】ハロゲン結合はハロゲンとルイス塩基間に働く分子間相互作用である。その強さは重ハロゲンほど強くなるため、アスタチン(At)は強固なハロゲン結合を形成することが期待される。ハロゲン結合の強さの指標であるハロゲン結合エネルギー(BE)は、通常、分光法を使用して測定されるが、Atは微量しか扱えないため、その方法では測定できない。そこで本研究では、ルイス塩基樹脂を用いたガスクロマトグラフにおけるハロゲン化合物の吸着エンタルピー(ΔH_a)から BE を評価する方法を考案し、At の模擬としてヨウ素化合物のルイス塩基樹脂に対する ΔH_a と BE の相関関係を調べた。

【実験】ハロゲン化合物としてヨードベンゼン(IB)を、ルイス塩基樹脂としてアミンあるいはチオウレアを担持したシリカゲルを使用した。また、比較として無担持のシリカゲルも使用した。ガスクロマトグラフ装置(島津 GC-2014)は、サンプル気化部、カラム、検出部からなる。また、ガラス管に各樹脂を充填してカラムとして用いた。実験では、装置に He ガスを 10 mL/min で流し、190 °C に加熱したサンプル気化部に IB 溶液をマイクロシリンジで 2 μ L 導入した。カラムから溶出した IB を熱伝導度型検出器を用いて測定した。クロマトグラムを指数関数とガウス関数を組み合わせた関数でフィッティングし、保持時間を決定した。樹脂と流量を固定し、温度を変えたときの保持時間の依存性を柴らの式[1]を用いてフィッティングを行い、 ΔH_a を算出した。

【計算】 ΔH_a と BE の相関関係を導出するため、Gaussian16 を用いて BE を計算した。実験で使用した IB-各ルイス塩基錯体について、 ω B97XD/DGDZVP(I 原子)/cc-pVTZ(I 原子以外)レベルで構造最適化し、MP2/ DGDZVP(I 原子)/cc-pVTZ(I 原子以外)でエネルギー計算を行った。エネルギー計算の際生じる基底関数重なり誤差は Counterpoise 法で修正した。

【結果・考察】計算で求めた BE と実験で求めた ΔH_a の相関を図 1 に示す。アミン、チオウレアの順に BE は増加し、 ΔH_a も共に増加する傾向が観察された。しかし、シリカゲルは BE に比べ ΔH_a

が大きな値となった。シリカゲルのシラノール酸素がヨードベンゼンと水素結合するため、 ΔH_a の増大が起きたと考えられる。討論会では、他の化合物や樹脂の結果と量子化学計算の結果を含め詳細な議論を行う。

【参考文献】[1] 柴 是行・半田 宗：粉体および粉末冶金、11 巻 5 号、p 243-251,(1964).

Development of a method for deriving halogen bonding energies of At using gas chromatography
TOKOI, K., AOTO, H., WATANABE, E., WANG, Y., HABA, H., KASAMAYSU, Y., TOYOSHIMA, A., SHINOHARA, A.,

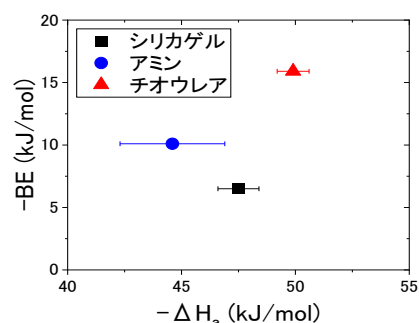


図 1. IB における $-BE$ と $-\Delta H_a$ の相関関係

1P10

Th ターゲット中に生成する Np の単離を目的とした高除染係数溶媒抽出法の検討

(金沢大自然¹、金沢大理工²、筑波大数理³、理研仁科セ⁴)○細川 浩由¹、瀬戸 彩乃²、永井 歩夢¹、中島 朗久³、坂口 綾³、羽場 宏光⁴、横山 明彦²

【序論】²³⁷Np ($T_{1/2}=2.1\times 10^6$ y) は長寿命放射性廃棄物の主要核種の一つであり環境モニタリングが必要である。定量方法として加速器質量分析法 (AMS) が検討されている。AMS は本研究において同位体比を測定する方法であり、測定には Np の内標準同位体トレーサーが必要となる。そこで、Np の同位体の中でも特に半減期の長い ^{236g}Np ($T_{1/2}=1.5\times 10^5$ y) がトレーサーとして期待されている。^{236g}Np の製造法として ²³²Th+⁷Li 反応が検討しているが、生成物はターゲット由来の多量の Th 中に含まれているため化学分離が必要である。本研究ではカラム分離と比較して、安価で一度に多量の試料を分離可能な溶媒抽出法に注目した。当研究室では、Aliquat336 を用いた溶媒抽出法による Th からの Np 分離を試みている。AMS 利用には Th から Np に対する除染係数 10^8 程度必要であり、特に本研究は Th から Np に対する除染係数の向上を目的に、 γ 線が容易に測定可能な ²³⁹Np を化学分離トレーサーとして分離スキームの改善を行った。

【実験】多量 Th から Np を分離する溶媒抽出実験を行った。Aliquat336 が 30wt% になるように溶解させたベンゼンを用いた。水相には塩酸を用い、多量 Th から Np を分離する溶媒抽出実験を行った。²⁴³Am からミルキングで得られた ²³⁹Np 溶液に ²³²Th 溶液を加え、アスコルビン酸で Np を 5 価から 4 価に価数を調整した。スキームの改善として水相は Th から Np 分離に高回収率であった 7M~9M の塩酸を用い、溶媒抽出後の精製を同じ濃度の塩酸を用い複数回 (1~3 回) 行った。抽出相から Np を 0.5M 硝酸で逆抽出し、Ge 半導体検出器で Np の γ 線を測定し Np 回収率を求めた。また、逆抽出後のフラクションを ICP-MS 測定することにより Th の原子個数から Th 除去率を求め、Th から Np に対する除染係数を得た。

【結果と考察】溶媒抽出実験における Np 回収率及び Th から Np に対する除染係数の結果を Table 1 に示す。塩酸濃度 7M~9M の条件では高い Np 回収率が得られた。また、精製回数を増やしても Np 回収率は 80% を超える値が得られ、精製回数による Np 回収率への影響は小さいと考えられる。ICP-MS 測定により求めた除染係数は、精製回数 1 回では $10^3\sim 10^4$ となり、3 回では $10^6\sim 10^7$ と大幅に改善された。実際の AMS 利用のためには除染係数が 10^8 は必要であると考えられる。溶媒抽出後に TEVA 樹脂によるカラム分離を併用することで、さらなる除染係数の向上が期待される。

Table 1 溶媒抽出実験における Np 回収率及び Th から Np に対する除染係数

塩酸濃度(M)	7		8		9	
精製回数	1	3	1	3	1	3
回収率(%)	89.3±3.2	81.3±2.4	91.5±3.3	83.5±2.6	86.7±3.1	82.2±2.7
除染係数	$(3.82\pm 0.39)\times 10^4$	$(2.72\pm 0.15)\times 10^6$	$(6.71\pm 0.75)\times 10^4$	$(3.6\pm 1.0)\times 10^7$	$(7.20\pm 0.27)\times 10^3$	$(1.96\pm 0.08)\times 10^6$

Development of high decontamination coefficient method of solvent extraction for isolation of Np produced in Th target.

HOSOKAWA, H., SETO, A., NAGAI, A., NAKAJIMA, A., SAKAGUCHI, A., HABA, H., YOKOYAMA, A.

1P11

アスタチン化合物の表面増強ラマン分光

(阪大放射線機構¹、九大院理²、理研仁科セ³)○寺本高啓¹、加納英明²、
王 洋³、羽場宏光³、豊嶋厚史¹

【緒言】

アスタチン (^{211}At) はアルファ線核医学治療で使用される核種の候補として注目されている。これまでのところ、アスタチン原子について、波長可変ナノ秒レーザーを用いた多光子イオン化による電子励起状態の観察およびイオン化ポテンシャル、電子親和力の決定が報告されている。しかしながら、 ^{211}At を含む化合物の分光的な知見は乏しい。

ラマン分光法の一つである表面増強ラマン分光法 (Surface Enhanced Raman Spectroscopy: SERS) はプラズモン共鳴による信号増大を利用した分光法である。すなわち、金属表面に付着した分子に対してラマン励起レーザーを照射すると、金などの金属表面がプラズモン共鳴により局所電場強度が増幅される。その結果、ラマン信号強度が $10^6 \sim 10^9$ 倍程度増強する¹⁾。そのため微量試料の検出に適している。

本研究では、表面増強ラマン分光法を用いて、短寿命・微量原子である ^{211}At の化合物の分光計測を行った。

【実験】

$^{209}\text{Bi} (\alpha, 2n)$ 反応により生成した ^{211}At を含む金属 Bi をアルミニウム支持板とともに電気炉で 850°C まで加熱蒸発する乾式分離法により単離した。単離された ^{211}At を蒸留水で抽出し、マイクロバイアルにて採取した。本研究で使用した ^{211}At の量は、実験開始時において $100\mu\text{L}$ 水溶液あたり 1MBq (10^{10} 原子) ほどであった。この ^{211}At 水溶液を金ナノ構造の SERS 基板に滴下し、簡易なラマン分光計を用いて計測を行った。また酸化還元および pH を変えた溶液を用意して、同様に計測を行った。

^{211}At 化合物の同定のために、相対論効果を取り入れた量子化学計算を行なった。

【結果と考察】

精製分離した ^{211}At 水溶液は薄層クロマトグラフィーを用いて化学種の同定を試みると、3つのピークが見られるのがわかった。これらは ^{211}At の酸化物であると考えられ、 ^{211}AtO , $^{211}\text{AtO}^+$, $^{211}\text{AtO}(\text{OH})$ などが候補として挙げられる。 ^{211}At 水溶液に対して SERS 測定を試みると、アスコルビン酸ナトリウムを加えて At が主な化合物であると期待される水溶液では SERS 信号が一切見られなかったが、アスコルビン酸ナトリウムを加えない ^{211}At 水溶液から 530cm^{-1} 付近に微弱なラマン信号を得ることに成功した。詳細はポスターで発表する。

1). S. Ding *et al.*, *Nat. Rev. Mat.*, 1, 1, (2016).

Surface enhanced Raman spectroscopy of astatine compounds
TERAMOTO T., KANO, H., WANG, Y., HABA, H., TOYOSHIMA, A.

1P12

⁵⁹Co のミュオン原子核捕獲反応生成物の測定

(阪大¹、理研²、PSI³、ETH Zurich⁴、SUT⁵) ○浅利駿介¹、I-Huan Chiu¹、新倉潤²、佐藤朗¹、Alex Amato³、Sayani Biswas³、Lars Frieder Gerchow³、Carlos Vigo³、Chennan Wang³、Charles Hillis Mielke III³、Debarchan Das³、Fabian Hotz³、Gianluca Janka⁴、Hubertus Luetkens³、Katharina von Schoeler³、Narongrit Ritjoho⁵、Thomas Prokscha³、Toni Shiroka³、Zaher Salman³、Zurab Guguchia³、二宮和彦¹、吉村崇¹、

【緒言】ミュオンは、-1 の電荷を持ち電子の 207 倍の質量をもつ素粒子である。ミュオンが物質中で停止すると、ミュオンは原子核のクーロン場による束縛状態を形成し、ミュオン原子を形成する。ミュオン原子からはミュオンの軌道間遷移に伴い X 線の放出が起こり、1s 軌道まで脱励起したミュオンはある確率で原子核に吸収され、ミュオン捕獲原子に対して Z-1 原子を形成する。この反応をミュオン原子核捕獲反応という。近年、ミュオン原子から放出される X 線を用いた非破壊元素分析法の開発が進んでいる[1]。これにより破壊できない貴重試料の分析も行われているが、我々はこの分析法をさらに発展させ、ミュオン原子核捕獲反応によって生じた励起核からの γ 線を測定することでも元素分析が可能であると考えた。そこで本研究では、様々な金属ターゲットにミュオンを照射し、放出される X 線および γ 線の強度を詳細に調べた。本討論会においてはそのうち ⁵⁹Co の結果について報告する。

【実験】スイス PSI の π E1 ビームラインにおいて、10 台のゲルマニウム半導体検出器からなる測定システムを構築し、⁵⁹Co へのミュオン照射により生じた X 線と γ 線の測定を行った。ミュオンの入射運動量は 33 MeV/c に設定し、1.5 時間照射した。

【結果と考察】図 1 に得られたスペクトルを示す。ミュオン原子からの特性 X 線とミュオン原子核捕獲反応ののちに放出される γ 線を検出した。ミュオン原子核捕獲反応では、励起した Z-1 原子核からいくつか中性子が放出されることが知られており、中性子が 0~4 個放出した生成物である ⁵⁹, ⁵⁸, ⁵⁷, ⁵⁶Fe の励起準位に由来する γ 線が確認できた。陽子放出による生成物は確認できなかった。講演では、各生成同位体の生成率について、先行研究の結果[2]との比較についても議論する。

【参考文献】

[1] Kayoko Shimada-Takeura, et al., J. Natural Med. (2021) 75:532-539

[2] H. J. Evans., Nucl. Phys. **A207** (1973), 379-400

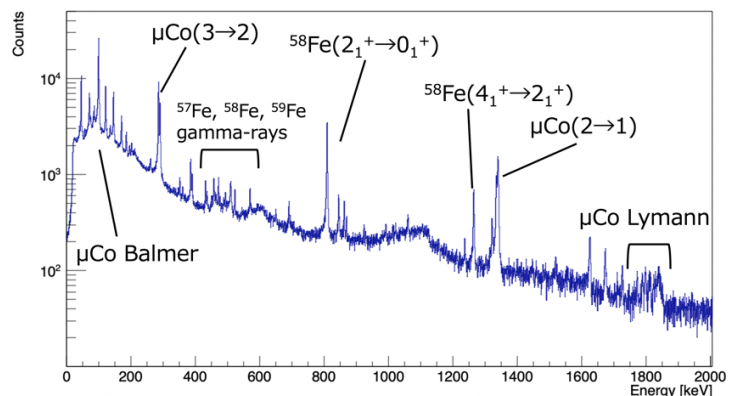


図 1 ミュオンを ⁵⁹Co に照射したときに得られたスペクトル

μ Co は ⁵⁹Co 由来のミュオン特性 X 線

Production measurement of muon nuclear capture reaction for ⁵⁹Co

ASARI S., CHIU I., NIKURA M., SATO A., AMATO A., BISWAS S., GERCHOW L. F., VIGO C., WANG C., MIELKE III C. H., DAS D., HOTZ F., JANKA G., LUETKENS H., SCHOELER K. V., RITJOHO N., PROKSCHA T., SHIROKA T., SALMAN Z., GUGUCHIA Z., NINOMIYA K., YOSHIMURA T.

1P13

12 族元素の気相化学のための HgCl₂ オフライン等温
クロマトグラフィ(新潟大院自然¹)○島田尚樹¹、後藤真一¹

【緒言】 原子番号 104 以降の超重元素では軌道電子に対する相対論的効果の影響が顕著になり、特に 12 族の ¹¹²Cn でその影響が最大になることが予想されている[1]。当研究室では、Cn の化学研究に向けた基礎研究として、同族元素である Hg 用いた化学実験を計画している。本研究では、比較的半減期が長くオフライン実験を行うのに適した核種である ²⁰³Hg ($T_{1/2} = 46.6 \text{ d}$) を ²⁰⁵Tl(γ, np) 反応により製造し、²⁰³Hg の無担体トレーサを用いて、塩化物の等温ガスクロマトグラフィ実験を行った。

【実験】 ²⁰³Hg トレーサの塩酸溶液 40 μL を石英ウールに染み込ませて石英ガラス製のカラム内に導入し、電气管状炉で 100 °C に加熱することで試料を乾燥・揮発させた。揮発した化学種は、温水を循環させて一定温度に保った等温部を通過した後、-10 °C に冷却した捕集部で捕集された。捕集部に設置した高純度 Ge 半導体検出器による γ 線測定を一定時間ごとに繰り返して、等温部を通過した揮発性化学種の累積収率を求めた。

等温ガスクロマトグラフィ実験に先立ち、等温部を除いた装置を用いて、²⁰³Hg トレーサの塩酸溶液を加熱した際の揮発性化合物の揮発挙動を調査した。

【結果と考察】 揮発挙動を確認する実験において、捕集部で測定された ²⁰³Hg の計数率の経過時間に対する推移を図 1 に示す。乾燥開始後 3.6 分からわずかな計数率の上昇が観測され、7.5 分から急激に計数率が上昇した。この時間までに導入した試料に含まれていた水分がすべて蒸発したものと考えられる。揮発後約 6 分で計数率が一定となり、100 °C で揮発しない成分の存在を確認するため 35 分経過後に 350 °C に加熱しても計数率に変化はなかった。実験後、試料導入部分に ²⁰³Hg が検出されなかったことから、揮発収率はほぼ 100 % であった。収率の立ち上がり方から揮発速度を求めたところ 1.77 mg h^{-1} であり、報告されているマクロ量の HgCl₂ に近い[2]ことから、²⁰³Hg は塩化物として揮発したものと考えられる。

発表では、等温クロマトグラフィ実験の結果についても議論する。

【参考文献】

[1] V. Pershina, *Radiochim. Acta* **99** (2011) 459.

[2] H. Arctowski, *Z. Anorg. Allgem. Chem.* **12** (1896) 417.

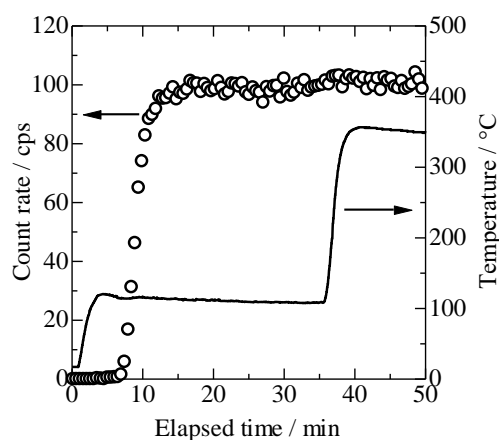


図 1. ²⁰³Hg トレーサの塩酸溶液からの揮発性化合物の揮発挙動

Off-line isothermal chromatography of HgCl₂ for gas phase chemistry of group 12 elements
SHIMADA, N., GOTO, S.

1P14

Th-229m の γ 線測定に向けた希ガスマトリックス単離装置の開発(阪大院理¹, 理研², 岡山大³, 大阪青山大学⁴) ○益田遼太郎^{1,2}安田勇輝¹, 澤村慶¹, 重河優大², 宮本祐樹³, 吉村浩司³, 篠原厚⁴,
笠松良崇^{1,2}

【緒言】

Th-229m は励起エネルギーが $8.30 \pm 0.92 \text{ eV}$ と求められており[1]、この値は他の核種と比べて 3~6 桁小さい値である。この特徴故に、Th-229m は化学状態によって壊変経路が変わるといふ他の核種には見られない性質をもつ可能性がある。また、原子核時計の唯一の候補でもある。しかし、Th-229m が γ 線を放出すると期待される化学状態を安定に保持することが難しく、直接 Th-229m の γ 線を観測した例はない。我々は、Th-229m の γ 線を直接観測し、その波長からより精度の高い励起エネルギーを求めるために希ガスマトリックス単離法を用いて Th²⁺ を安定維持することを目指している。今回、新たに希ガスマトリックス単離装置を開発し、その性能テストを行った。

【装置】

Th-229m の γ 線観測のための装置開発にあたり、真空紫外光を測定でき、かつ Th-229m が γ 線遷移する状態を安定に維持することが求められる。周りが不活性原子である希ガスで囲まれ分子間相互作用が無視でき、孤立状態で実験できる希ガスマトリックス単離法は Th-229m の γ 線観測に適していると考えた。この希ガスマトリックス単離法を利用し、U-233 から α 壊変に伴って反跳される Th-229m を希ガス固体にトラップし、トラップされた Th-229m から放出される γ 線を光電子倍增管で計測するための装置を作製した(Fig.1)。Th-229m の半減期は 5000s[2]と報告されており、この場合期待される計数率は 100 cps である。

【実験】

希ガスは Ar(純度 99.9999 %)を用いた。GM 冷凍機により約 10 K に冷却された基板に、希ガスを吹き付けて希ガス固体を生成した。希ガスの吹き付け量は、マスフローコントローラーで調整した。Th-229m を用いた実験は、約 10 時間の実験時間を要する予定であるので、長時間希ガス固体を生成維持できる希ガスの吹き付け流量を決定した。今後、得られた希ガス固体生成条件を利用して、Th-229m の γ 線観測に取り組む。

[1] A. Yamaguchi et al., Phys. Rev. Lett. 123, 222501 (2019).

[2] Y. Shigekawa et al., Phys.Rev.C.104. 024306 (2021).

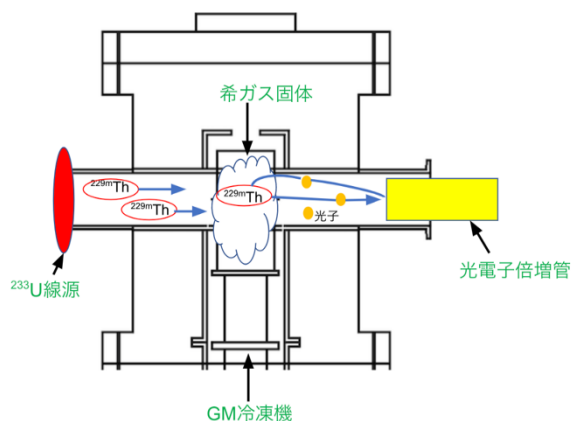


Fig.1 希ガスマトリックス単離法を用いた Th-229m の γ 線観測概略図

Development of Rare-Gas Matrix-Isolation apparatus for γ -ray measurement of ^{229m}Th
 MASUDA, R., YASUDA, Y., SAWAMURA, K., SHIGEKAWA, Y., MIYAMOTO, Y., YOSHIMURA, K.,
 SHINOHARA, A., KASAMATSU, Y.

1P15

ノーベリウム(No)の化学的性質解明にむけた 2 族元素の水酸化物及び硫酸沈殿実験と化学種分析

(阪大院理¹、理研仁科セ²、大阪青山大³)○大高咲希^{1,2}、笠松良崇^{1,2}、渡邊瑛介^{1,2}、中西諒平^{1,2}、速水翔¹、澤村慶¹、篠原厚³

【緒言】原子番号 102 番元素ノーベリウム(No)はアクチノイド元素である。アメリシウム(Am)以降の重アクチノイド元素と全てのランタノイド元素の水溶液中での安定酸化数が +3 であるのに対して、No のみ +2 であり、2 族元素との性質の類似が報告されている。そのため本研究グループが過去に水酸化サマリウム共沈・水酸化物沈殿法を用い、類似元素と考えられている 2 族元素と No の共沈・沈殿挙動を比較することで No の化学的性質の解明に取り組んできた。周期表中の同族元素間の共沈・沈殿挙動が一致する中で 2 族元素だけは一致しなかった。No の性質を 2 族元素との比較から議論するためにこの原因を調べる必要がある。本研究ではエレクトロスプレーイオン化質量分析(ESI-MS)や X 線微細吸収分光(XAFS)という手法を用い、各実験条件で生成した沈殿やろ液中の溶存化学種の特特定を試みた。また、本研究グループでは新たな No の化学的性質解明のための手法として硫酸バリウム共沈法にも取り組んでいる。本研究ではこの硫酸バリウム共沈実験を新しく No に適用するために重元素実験用に開発した半自動吸引ろ過装置の試運転を行った。

【実験】水酸化物沈殿実験は Sr を対象に行った。各濃度の金属溶液(100 µg, 1 mg, 10 mg/10 µl)に 0.01M 塩酸溶液と硝酸溶液を加えたのち、塩基性溶液(希アンモニア水、濃アンモニア水、0.10 M 水酸化ナトリウム、1.0 M 水酸化ナトリウム)を加えて 10 分攪拌した。攪拌後吸引ろ過を行い沈殿とろ液試料を ESI-MS と XAFS に供した。ESI-MS は大阪大学大学院理学研究科・理学部分析機器測定室にある Orbitrap XL(ESI-LIT-orbitrap)を、XAFS はあいちシンクロトロン光 BL5S1 のビームラインで行った。硫酸バリウム共沈実験のために取得された Ba の沈殿挙動を確認することで半自動吸引ろ過装置の試運転を行った。キャリア溶液である BaCl₂溶液(20 µl/10 µl)に 0.01M 塩酸溶液と ¹³³Ba トレーサー溶液を加えたのち、硫酸アンモニウム溶液(0.01 M, 0.10 M, 1.0 M)を加えて 5 分攪拌した。攪拌後半自動吸引ろ過装置を用いて吸引ろ過し、沈殿とろ液の試料をゲルマニウム半導体検出器で γ 線測定することにより放射能を求め、沈殿収率を求めた。

【結果・考察】ESI-MS での測定の結果、金属量の多いろ液試料では Sr の 2 核錯体が観察された。金属と水が多量で塩基性の弱い条件の Be や Mg で確認されている Be₆(OH)₈⁴⁺や Mg₄(OH)₄⁴⁺のような多核錯形成反応が Sr でも生じていることが考えられる。図 1 は水酸化物沈殿実験で生成した沈殿と標準物質として測定した水酸化ストロンチウム八水和物の XAFS スペクトルであり、XANES 領域のスペクトルに変化が見られた。この結果からも沈殿実験においては多核錯形成反応が生じている可能性が考えられる。硫酸バリウム共沈実験では半自動吸引ろ過装置を使った実験でも過去に行われたバッチ式共沈実験と同様の挙動が得られた。

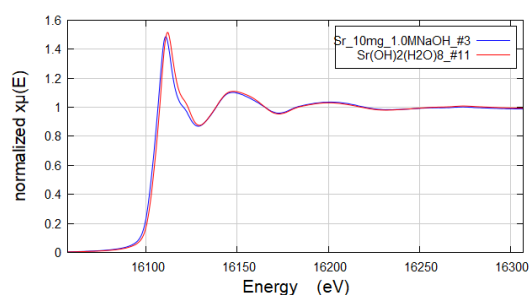


図 1 : 水酸化物沈殿の XAFS スペクトル

Precipitation experiments of alkaline earth elements and speciation analysis toward the chemical study of nobelium

OTAKA, S., KASAMATSU, Y., WATANABE, E., NAKANISHI, R., HAYAMI, S., SAWAMURA, K., SHINOHARA, A.

基盤セッション 原子核プローブ | 基盤セッション B: 原子核プローブ

基盤セッション B: 原子核プローブ

2022年9月15日(木) 18:00 ~ 19:00 341室

[1P16] Feの導入による $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ の磁気特性制御

*内野 葉月¹、高梨 恵司²、佐藤 渉² (1. 金沢大院自然、2. 金大理工)

[1P17] Pmを内包した二金属内包フラーレンの安定性に関する研究

*秋山 和彦^{1,2}、諏訪 智也¹、羽場 宏光²、菊永 英寿³、久富木 志郎¹ (1. 都立大院理、2. 理研仁科セ、3. 東北大ELPH)

[1P18] SrTiO_3 ペロブスカイトの⁵⁷Feメスバウアースペクトルと永久磁石による影響

*野村 貴美¹、高橋 正¹、小林 康浩²、村 唯花³、小池 裕也³、名嘉 節⁴ (1. 東京医科大学RI研究室、2. 京都大学原子炉研究所、3. 明治大学理工学部、4. 物質材料研究機構)

1P16

Fe の導入による $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ の磁気特性制御(金大院自然¹、金大理工²)○内野葉月¹、高梨恵司²、佐藤渉^{1,2}

【緒言】 LaMnO_3 は La が A サイト、Mn が B サイトを占有するペロブスカイト構造をとる酸化物であり、その特長よりスピントロニクス分野における応用が期待されている。先行研究[1]によると、A サイトに Ca を 7 : 3 の割合で導入した $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ には Mn^{3+} と Mn^{4+} 間での電子移動によって二重交換相互作用が働き、磁気転移点 $T_c \sim 250$ K 以下において超巨大磁気抵抗 (CMR) 効果が発現することが明らかとなっている。この CMR 効果は磁気ヘッドや抵抗変化型メモリなどへの応用が期待されているが、実用化のためには T_c が室温付近である方が望ましい。本研究では B サイトへ磁気モーメントの大きな磁性元素である Fe を導入することによって、 T_c の上昇を目指している。Fe 位置での局所情報を得るための手法として ^{57}Fe 透過型メスバウアー分光法を採用し、Fe の濃度を変化させることで、磁性の制御を試みている。

【実験】 Mn の代わりに導入する Fe の量を x として $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{O}_3$ ($x=0.2\sim 0.8$) となるよう試料を合成した。合成方法は 473 K で 1 時間熱処理をして結晶水を蒸発させた La_2O_3 に、 CaCO_3 、 Fe_2O_3 の各粉末を目的とする試料の組成となるように加えて乳鉢で 2 時間混合し、1,273 K で 12 時間仮焼成した。その後、仮焼成試料を再び 2 時間混合して錠剤成型を行った後、1,473 K で 96 時間焼成した。焼成試料に対し XRD 測定を行い、目的とする試料の合成を確認した。そして $x = 0.2, 0.4, 0.6, 0.8$ の試料に対して室温で、更に $x = 0.5$ (Fig. 1), 0.55, 0.6 の試料に対して 8 K から 300 K までの範囲でメスバウアー分光測定を行った。

【結果と考察】 室温における ^{57}Fe メスバウアースペクトルでは、 $x = 0.2$ および 0.4 の試料においてダブルットの 1 成分が観測され、室温で試料が常磁性状態であることが示唆された。しかし $x = 0.6$ および 0.8 の試料ではダブルット 1 成分に加え、セクステットの成分が観測され、内部磁場の発生が示唆された。上記の結果より、 $x = 0.4\sim 0.6$ の試料において T_c が室温付近に存在することが予想される。 $x = 0.5$ (Fig. 1), 0.55, 0.6 において温度を変化させ測定を行い温度依存性を確認したところ、高温から低温への変化に伴い常磁性成分が減少し磁気分裂成分が増大することが明らかとなった。

[1]W.Sato *et al.*, Physical Review B **100**,184111(2019).

Magnetic control of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ by the introduction of Fe
H. UCHINO, K. TAKANASHI, W. SATO

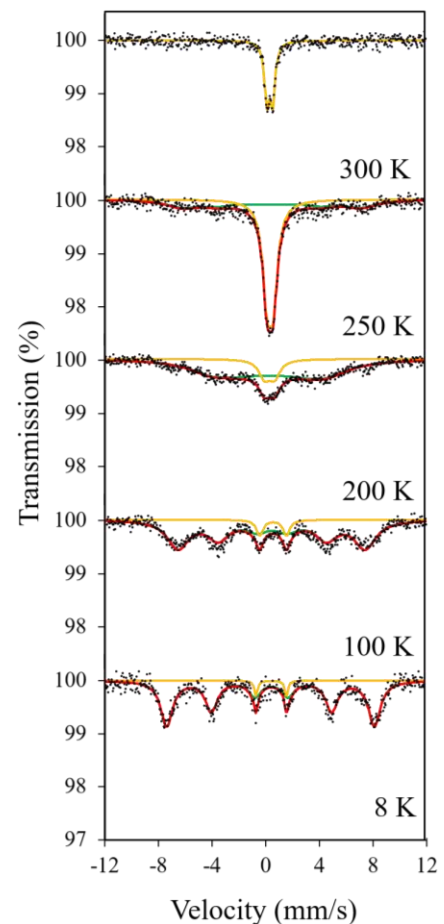


Fig.1 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_3$ の各温度におけるメスバウアー分光スペクトル

1P17

Pm を内包した二金属内包フラーレンの安定性に関する研究

(都立大理¹、理研仁科セ²、東北大 ELPH³)○秋山和彦¹、諏訪智也¹、
羽場宏光²、菊永英寿³、久富木志郎¹

【はじめに】 フラーレン内部に金属原子を内包した金属フラーレンは主にアルカリ土類元素、希土類元素等の金属原子を内包したものが知られており、特にランタノイド元素を内包したものは非常に良く研究されている。[1] このランタノイド元素の一種であるプロメチウム(Pm)は安定な同位体を持たない人工放射性元素として知られており、ランタノイドを内包したフラーレン種の中で Pm フラーレンについてはこれまで全く研究されてこなかった。我々は東北大学電子光理学研究センター(東北大 ELPH)で製造した ^{143}Pm を用いて Pm フラーレンを合成し、主生成物である $\text{Pm}@C_{82}$ はランタン(La)やセリウム(Ce)等と同様に内包金属原子の酸化状態が+3 価であることを明らかにした。[2] 近年、 $M_2@C_{80}$ 型のフラーレンに関して、La 等の軽ランタノイドを内包したものは大気下で安定に存在するが、Nd 以降のランタノイド $M_2@C_{80}$ 型フラーレンは大気下で不安定となる一方、アニオンを形成することで大気下でも安定になることが報告されている。[3] このような背景から Pm を内包した $M_2@C_{80}$ フラーレン種の安定性に興味を持たれる。昨年度の討論会ではトリエチルアミン/アセトン(TEA/AC)混合溶媒による還元抽出とテトラブチルアンモニウムヘキサフルオロリン酸/アセトン(TBAPF₆/AC)溶液を用いてイオンペアクロマトグラフィー(IPC)を組み合わせた還元雰囲気下での分析により La をキャリアとして合成した Pm を内包した $\text{PmLa}@C_{80}$ フラーレンが還元状態で安定であることを報告した。[4] 今回、我々は Pm と対になる金属原子が異なる化学種の安定性を調べるため、Gd をキャリアとして $\text{PmGd}@C_{80}$ フラーレン合成した。

【実験】東北大 ELPH で製造した ^{143}Pm を化学分離によって精製し、理研 AVF サイクロトロンで製造された ^{139}Ce と混合してキャリアとなるそれぞれのランタノイド (La, Gd) と共に多孔質炭素棒に含浸し、アーク放電法によりフラーレンを合成した。TEA/AC 混合溶媒により還元抽出した試料を、TBAPF₆/AC 溶液を用いて IPC に展開(カラム: Buckyprep、流速: 2.25 mL/min)し、溶出成分を 1 分ごとに分取し、Ge 半導体検出器によって γ 線測定を行った。

【結果・考察】図は Gd をキャリアとした Ce 及び Pm フラーレンの IPC チャートを示している。キャリアのみを用いて溶出成分を MALDI-TOF/MS 測定した結果からチャートに確認できるいくつかのピークのうち 40 分前後に溶出するピークが $M_2@C_{80}$ に由来するものであったことから、Pm、Ce 共に Gd をキャリアとした場合も $M_2@C_{80}$ フラーレンを生成し、還元状態で安定に存在する事が明らかとなった。

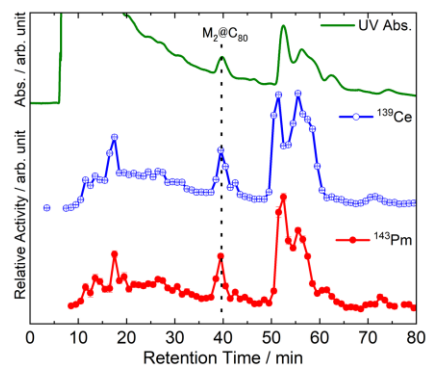


図: Gd をキャリアとして合成した Pm フラーレンの IPC チャート

[1] H. Shinohara, *Rep. Prog. Phys.* **63**, 843 (2000). [2] K. Akiyama *et al.*, *ELPH Annual Rep.* p.13 (2019). [3] A. Velloth *et al.*, *J. Phys. Chem. C.*, **121**, 18169 (2017). [4] 諏訪ら, 第 65 回放射化学討論会 3K08.

Stability of dimetallofullerenes encapsulating Pm

AKIYAMA K., SUZUKI, T. AKIYAMA K., SUWA., HABA H., KIKUNAGA H., KUBUKI S.

1P18

SrTiO₃ ペロブスカイトの ⁵⁷Fe メスバウアースペクトルと永久磁石による影響

(東京医大¹, 京大複合研², 明治大³, 物材研⁴) ○野村貴美¹, 高橋 正¹, 小林康浩², 吉村唯花³, 小池裕也³, 名嘉 節⁴

【緒言】 ペロブスカイト酸化物 SrTiO₃ は、多様な物性の制御が元素置換により可能になる有用な機能性物質のひとつである。たとえ鉄が含まなくても ⁵⁷Fe を 1% ドープすることにより、メスバウアースペクトルによる状態分析が可能になる。錯体合成・熱分解により Ti⁴⁺ の一部を Fe³⁺ や Sn⁴⁺ に置換した SrTiO₃ ペロブスカイトを合成した。それらのメスバウアースペクトルを永久磁石の磁場下で測定すると、磁気緩和スペクトルが強く現れることが分かった。また、Sn⁴⁺ を数% ドープすると磁気緩和成分がより強く現れることが分かった。

【実験】 0.1M SrCO₃ 溶液、0.1M Ti(OCH(CH₃)₂)₄、0.01M ⁵⁷Fe-クエン酸および 0.01M SnCl₄ 溶液を所定の割合で混合し、クエン酸およびエチレングリコールを加えて調合した。攪拌・加熱してゲル化した後 500°C で 2 時間仮焼成し、粉碎後 850°C で 4 時間焼成した。合成した試料の ⁵⁷Fe のメスバウアースペクトル(MS)は Sm-Co 永久磁石のもとで測定した。MS の解析には MossWinn を用いた。

【結果】 熱分解した試料は均一な Sr(Ti_{0.99-x}Fe_{0.01}Sn_x)O₃ ペロブスカイト酸化物になることを XRD から確かめた。Sn ドープにより格子定数が増加する傾向が見られた。Sn の濃度が 4% のときの MS スペクトルを図 1 に示す。MS スペクトルは 2 組の常磁性 Fe³⁺ と配向に伴う sextet の強度(3:4:1:1:4:3)の成分からなる。Fe の濃度が少ないとブロードな磁気緩和スペクトルが磁場下で強く現れることが分かった。磁性原子の置換でなくとも、酸素欠陥や結晶構造の歪により、磁気特性の変化が生じると考えている。

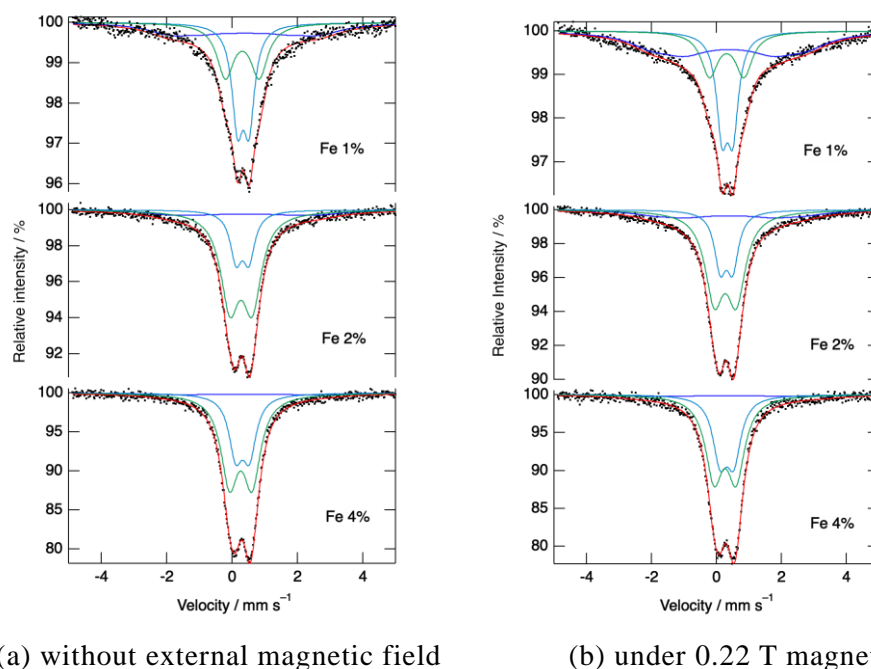


Fig. 1 Mössbauer spectra of Sr(Ti_{0.96-x}Fe_xSn_{0.04})O₃ with and without external magnetic field.

⁵⁷Fe Mössbauer spectra of SrTiO_{3-d} perovskite under permanent magnet

NOMURA, K., TAKAHASHI, M., KOBAYASHI, Y., YOSHIMURA, Y., KOIKE, Y., NAKA, T