

2022年9月16日(金)

A会場

基調講演 | プレナリートーク

基調講演

座長:高橋 嘉夫

09:00 ~ 09:40 A会場 (小柴ホール)

[2S01] 放射光 X線分析から見たアクチノイド化学

*矢板 毅¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

09:00 ~ 09:40

特別セッション 福島第一原発事故関連研究の最前線 | 特別セッション 1
福島第一原発事故関連研究の最前線

特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

座長:長尾 誠也(金沢大学)

09:40 ~ 11:25 A会場 (小柴ホール)

[2A01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2A01] 森林生態系における放射性セシウムの動態: これまでの動き、これからの動き

*橋本 昌司^{1,2} (1. 森林総合研究所, 2. 東京大学)

09:40 ~ 10:05

[2A02] 土壌中放射性セシウムの深度分布における放射性微粒子の寄与の推定

*小暮 敏博¹、山口 紀子²、高久 侑己¹、向井 広樹¹、奥村 大河¹ (1. 東京大学院, 2. 農研機構)

10:05 ~ 10:20

[2A03] 東日本太平洋側の河川一沿岸域での溶存態/粒子態セシウム137の動態

*高田 兵衛¹ (1. 福島大学)

10:20 ~ 10:45

[2A04] 海洋循環トレーサとしての福島第一原子力発電所事故起源の放射性セシウム

*熊本 雄一郎¹ (1. 海洋研究開発機構)

10:45 ~ 11:10

[2A05] 魚類生息環境判別技術の開発

*森田 貴己¹、岡村 寛¹、三木 志津帆¹、重信 裕弥¹、天野 洋典²、渡辺 透² (1. 水産研究・教育機構 水産資源研究所, 2. 福島県水産海洋研究センター)

11:10 ~ 11:25

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:豊嶋 厚史(大阪大学)

11:30 ~ 12:30 A会場 (小柴ホール)

[2A06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2A06] 電子線形加速器・活性炭法を用いた

[^{99m}Tc]NaTcO₄の製造とその薬効評価*張 宰雄^{1,3}、熊倉 嘉貴^{2,3}、蓼沼 克嘉⁴、尾関 温子³、和田 洋一郎³、秋光 信佳³、津口 明⁴、菊永 英寿⁵、桧垣 正吾³、上坂 充¹ (1. 東京大学大学院工学系研究科, 2. 埼玉医科大学総合医療センター, 3. 東京大学アイソトープ総合センター, 4. 化研, 5. 東北大学電子光物理学研究センター)

11:30 ~ 11:45

[2A07] 東北大学 CYRICにおける加速器中性子による医療用 RI製造

*塚田 和明¹、伊藤 正俊²、渡部 浩司²、足立 智²、松田 洋平^{2,6}、橋本 和幸^{1,7}、川端 方子^{3,7}、永井 泰樹^{3,7}、岡田 淑平³、本村 新^{3,7}、廣瀬 耀^{3,7}、本石 章司^{3,7}、佐伯 秀也^{3,7}、盛田 琢造⁴、足達 芳嗣⁴、川間 哲雄⁴、森 雅史⁴、谷口 愛美⁴、楠岡 新也⁴、菊永 英寿⁵ (1. 原子力機構, 2. 東北大学 CYRIC, 3. 千代田テクノ, 4. 住友重機械工業, 5. 東北大学 ELPH, 6. 甲南大学理工学部, 7. 量研機構)

11:45 ~ 12:00

[2A08] 有機溶媒を用いた大員環キレートへのジルコニウム89標識技術開発

*井村 亮太^{1,2}、尾関 温子¹、井田 博之²、和田 洋一郎¹、秋光 信佳¹、熊倉 嘉貴³ (1. 東京大学 アイソトープ総合センター, 2. JFEエンジニアリング株式会社, 3. 埼玉医科大学)

12:00 ~ 12:15

[2A09] CIEMAT/NIST法による²²⁵Acの放射能測定*佐藤 泰¹、古川 理央¹、下段 千尋¹、原野 英樹¹ (1. 産業技術総合研究所)

12:15 ~ 12:30

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)

16:50 ~ 17:10 A会場 (小柴ホール)

B会場

基盤セッション 炉材料・照射効果 | 基盤セッション H: 炉材料・照射効果

基盤セッション H: 炉材料・照射効果

座長:大矢 恭久(静岡大学)

09:40 ~ 11:15 B会場 (206室)

[2B01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2B01] 酸化物分散強化(ODS)合金の照射効果

*大野 直子¹ (1. 横浜国立大学)

09:40 ~ 10:05

[2B02] 鉄中の溶質原子の拡散・析出に対する照射効果

*外山 健¹ (1. 東北大学)

10:05 ~ 10:30

[2B03] 核融合炉用低放射化バナジウム合金の析出挙動に及ぼす照射効果

*長坂 琢也^{1,2}、申 晶潔^{1,2}、福元 謙一³、外山 健⁴、藪内 聖皓⁵ (1. 核融合科学研究所、2. 総合研究大学院大学、3. 福井大学附属国際原子力工学研究所、4. 東北大学金属材料研究所、5. 京都大学エネルギー理工学研究所)

10:30 ~ 10:45

[2B04] タングステン二元系合金の照射耐性に及ぼす合金元素の物理化学的特性の影響

*波多野 雄治¹、道澤 大地¹、松本 あずさ¹、外山 健³、藪内 聖皓²、檜木 達也² (1. 富山大学、2. 京都大学、3. 東北大学)

10:45 ~ 11:00

[2B05] JET-ダイバータタイルのトリチウム分析

鳥養 祐二¹、菊地 結太¹、*大和田 篤志¹、増崎 貴²、大塚 哲平⁴、芦川 直子^{2,3}、矢嶋 美幸²、時谷 政行²、大矢 恭久⁵、S. E. Lee⁶、波多野 雄治⁶、朝倉 伸行⁷、林 巧⁷、小柳津 誠⁷、J. Likonen⁸、A. Widdowson⁹、M. Rubel¹⁰ (1. 茨城大学、2. 核融合科学研究所、3. 総合研究大学院大学、4. 近畿大学、5. 静岡大学、6. 富山大学、7. 量子科学技術研究開発機構、8. VTT、9. CCFE Culham Science Centre、10. KTH Royal Institute of Technology)

11:00 ~ 11:15

基盤セッション 炉材料・照射効果 | 基盤セッション H: 炉材料・照射効果

基盤セッション H: 炉材料・照射効果

座長:波多野 雄治(富山大学)

11:20 ~ 12:30 B会場 (206室)

[2B06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2B06] タングステン中の水素同位体移行挙動に対する照射効果

*小林 真^{1,2} (1. 核融合科学研究所、2. 総合研究大学院大学)

11:20 ~ 11:45

[2B07] タングステン中における水素同位体輸送に及ぼすヘリウムの役割

*大矢 恭久¹、孫 飛²、平田 詩織¹、芦川 直子³、檜木 達也⁴、波多野 雄治⁵ (1. 静岡大学、2. 合肥工業大学、3. 核融合科学研究所、4. 京都大学、5. 富山大学)

11:45 ~ 12:00

[2B08] 中性子照射した固体トリチウム増殖材料からのトリチウム放出挙動に関する研究

*一本杉 旭人¹、片山 一成¹ (1. 九州大学)

12:00 ~ 12:15

[2B09] 鉛入り Li₂TiO₃-Li₄SiO₄混合セラミックス材からのトリチウム脱離挙動*平田 詩織¹、周 啓来²、小林 真³、大矢 恭久¹ (1. 静岡大学、2. 武漢理工大学、3. 核融合研)

12:15 ~ 12:30

C会場

特別セッション 放射化学と地球化学との接点 | 特別セッション 3 放射化学と地球化学との接点

特別セッション 3 放射化学と地球化学との接点

座長:木下 哲一(清水建設)、薬袋 佳孝(武蔵大学)

09:40 ~ 10:55 C会場 (207室)

[2C01-03-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2C01] 元素の起源と地球化学

*横山 哲也¹ (1. 東京工業大学理学院地球惑星科学系)

09:40 ~ 10:05

[2C02] 発見から50年: オクロ天然原子炉は何をもたらしたか?

*日高 洋¹ (1. 名古屋大学)

10:05 ~ 10:30

[2C03] 消滅核種ハフニウム-182を用いた年代測定

*佐野 有司¹ (1. 高知大学)

10:30 ~ 10:55

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:大貫 敏彦、佐々木 祥人

11:00 ~ 12:30 C会場 (207室)

[2C04-07-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2C04] 原発災害被ばく後10年間における野生ニホンザルの健康影響評価

*羽山 伸一¹ (1. 日本獣医生命科学大学)

11:00 ~ 11:25

[2C05] 福島県富岡町でのオートラジオグラフィによる植物体の放射性汚染の評価

*井伊 博行¹ (1. 和歌山大学システム工学部)

11:25 ~ 11:50

[2C06] ウラン鉱山たいせき場に自生するヨシにおける重金属蓄積機構: 内生細菌の関与を考慮して

*春間 俊克¹、山路 恵子²、中本 幸弘²、土山 紘平²、高橋 嘉夫³、田中 万也⁴、香西 直文⁴、福山 賢仁⁴ (1. 北海道大学、2. 筑波大学、3. 東京大学、4. 日本原子力研究開発機構)

11:50 ~ 12:15

[2C07] Ra-226除去に向けた微生物を利用したマンガン酸化物生成過程におけるアルカリ土類金属除去

*加藤 友彰¹、Yu Qianqian²、大貫 敏彦¹ (1. JAEA、2. 中国地質大学)

12:15 ~ 12:30

伊藤謝恩ホール

会員総会 | 総会

会員総会

座長: 浅井 雅人(日本原子力研究開発機構 (JAEA))

13:10 ~ 14:10 伊藤謝恩ホール

[2001-1310-1add] 会員総会

13:10 ~ 14:10

パネルディスカッション | プレナリートーク

パネルディスカッション

座長: 高橋 嘉夫

14:10 ~ 15:30 伊藤謝恩ホール

[2S02] パネルディスカッション「放射化学の将来像と若手へのメッセージ」

中西 友子¹、篠原 厚²、三浦 勉³、鷲山 幸信⁴、佐藤 志彦⁵、秋光 信佳¹、*高橋 嘉夫¹ (1. 東京大学、2. 大阪青山大学、3. 産総研、4. 福島県立医大、5. 原子力機構)

14:10 ~ 15:30

奨励賞 受賞講演 | プレナリートーク

奨励賞受賞講演

座長: 森本 幸司、高橋 嘉夫、木野 康志

15:30 ~ 16:30 伊藤謝恩ホール

[2S03-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2S03] 精密質量と崩壊事象の相関測定法の開拓による超重元素の直接質量測定

*庭瀬 暁隆¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構)

15:30 ~ 15:50

[2S04] バライト共沈法の環境放射化学・地球化学的な応用に関する研究

*徳永 紘平¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

15:50 ~ 16:10

[2S05] 硬組織を指標とした福島第一原発事故後の野生動物への⁹⁰Srと¹³⁷Csの取り込みの研究

*小荒井 一真^{1,2} (1. 東北大学、2. 日本原子力研究開発機構)

16:10 ~ 16:30

336室

基盤セッション 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識 | 基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分

析・核鑑識

17:45 ~ 18:45 336室

[2P01] 放射性微粒子のフッ素系界面活性剤の pH 依存相分離現象に基づく均一液抽出

*中川 太一^{1,2}、鈴木 怜花²、松枝 誠^{1,2}、寺島 元基¹、堀田 拓摩¹、岡 壽崇¹、北辻 章浩¹、高貝 慶隆² (1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学)

[2P02] 高速中性子を用いた RI 製造のための励起関数の検証

*久住 健介¹、後藤 真一¹、菊永 英寿²、高村 怜士¹ (1. 新潟大学大学院 自然科学研究科、2. 東北大学 ELPH)

[2P03] レーザーアブレーション-ICP質量分析による⁹⁰Srのマイクロスケールイメージング

*柳澤 華代¹、松枝 誠^{1,2}、古川 真^{1,3}、平田 岳史⁴、高貝 慶隆^{1,5} (1. 福島大学 共生システム理工学類、2. 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同センター、3. (株)パーキンエルマージャパン、4. 東京大学大学院 理学系研究科地殻化学実験施設、5. 福島大学 環境放射能研究所)

[2P04] ¹²⁵I トレーサーを用いた電気化学的手法によるヨウ化物イオンの回収・定量法の検討

*中村 司¹、山崎 信哉²、坂口 綾²、末木 啓介² (1. 筑波大学理工情報生命学術院生命地球科学研究群、2. 筑波大学数理解物質系)

[2P05] バイオアッセイ法の迅速化に向けた水酸化セリウム共沈法による α 線計測試料作製の検討

*前原 勇志¹、永岡 美佳¹、藤田 博喜¹、二瓶 英和²、大野 雅子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株式会社)

[2P06] トリプル四重極型 ICP質量分析計によるヨウ素129スクリーニング手法の開発

*日比野 有希¹、大野 剛²、阿部 美波¹、佐藤 昭二¹、王 曉水¹、伴場 滋¹、岸本 武士¹、磯貝 啓介¹ (1. 公益財団法人日本分析センター、2. 学習院大学)

[2P07] IAEA Proficiency Testにおける全 β 測定の検討

*丹 智史¹、鈴木 颯一郎¹、黒田 知孝¹、板倉 淳子¹、大槻 孝之¹、新田 済¹ (1. 公益財団法人日本分析センター)

[2P08] 放射性廃棄物に含まれる Zr-93 の LA-ICP-MS を用いた簡易分析手法の開発

*森井 志織¹、蓬田 匠¹、浅井 志保²、大内 和希¹、岡 壽崇¹、北辻 章浩¹ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 産業技術総合研究所)

340室

特別セッション 福島第一原発事故関連研究の最前線 | 特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前

線

17:45 ~ 18:45 340室

[2P19] プラスチックシンチーション検出器による放射性粒子中のストロンチウム90の定量

*末木 啓介¹、藤沼 修平¹、山崎 信哉¹ (1. 筑波大学)

[2P21] 東京電力福島第一原子力発電所事故後の福島県内多地点の河川中放射性セシウム濃度の推移

*入澤 歩¹、谷口 圭輔²、竹内 幸生¹、那須 康輝¹、恩田 裕一³ (1. 福島県環境創造センター、2. 津山高専、3. 筑波大学)

[2P22] 海洋堆積物由来の放射性セシウム粒子の溶解特性

*三浦 輝¹、久保 篤史²、石丸 隆³、伊藤 友加里³、神田 稜太³、津旨 大輔¹ (1. 電力中央研究所、2. 静岡大学、3. 東京海洋大学)

[2P23] 不溶性セシウム粒子の放出事象と地表面における分布の考察

*佐藤 志彦¹、末木 啓介²、五十嵐 康人³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 筑波大学、3. 京都大学)

[2P24] 降下物中の放射性セシウムの植物葉による遮断係数

*田上 恵子¹、内田 滋夫¹ (1. 量子科学技術研究開発機構)

基盤セッション 教育関連 | 基盤セッション E: 教育関連

基盤セッション E: 教育関連

17:45 ~ 18:45 340室

[2P25] 明治大学のオムニバス授業「応用化学概論2」における放射線教育

*小池 裕也¹、齊藤 敬²、小川 熟人¹、鈴木 義丈¹ (1. 明治大学、2. 尚絅学院大学)

[2P26] ビーム調整時間を利用した⁶⁸Geの製造と教育用⁶⁸Ge/⁶⁸Gaジェネレータへの応用

*鷲山 幸信¹、佐々木 茂範²、永津 弘太郎³、葉袋 佳孝⁴、高橋 和弘¹ (1. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、2. 住重加速器サービス、3. 量子科学技術研究開発機構量子医科学研究所、4. 武蔵大学リベラルアーツ&サイエンス教育センター)

[2P27] 小学生向け放射線実験 -原子放射線教育から地下深部のHLW核種処分に係わる安全性可視化まで-

*太田 朋子¹、鈴木 達也¹、末松 久幸¹、菊池 崇志¹、内田 雄大²、江 偉華¹ (1. 長岡技科大、2. 長岡高専)

341室

基盤セッション 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識 | 基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

17:45 ~ 18:45 341室

[2P09] 環境水中 I-129分析に向けた Ag⁺担持樹脂による大容量試料中の I回収と競合アニオンの影響

*青木 讓¹、松枝 誠¹、小荒井 一真¹、寺島 元基¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

[2P10] ⁸⁵Sr, ⁹⁰Yダブルトレーサー法による

Sr吸着剤を用いた海水中の⁹⁰Sr分析法の検討

*箕輪 はるか¹、緒方 良至²、小島 貞男²、加藤 結花³ (1. 東京慈恵会医科大学、2. 愛知医科大学、3. 日本レイテック株式会社)

基盤セッション 計測・検出器 | 基盤セッション I: 検出器・計測・イメージング

基盤セッション I: 検出器・計測・イメージング

17:45 ~ 18:45 341室

[2P11] 超伝導転移端検出器を利用したマイクロ蛍光 X線分光法による環境試料中のウランの分析

*蓬田 匠^{1,2}、山田 真也³、一戸 悠人³、佐藤 寿紀³、早川 亮大³、岡田 信二⁴、外山 裕一⁴、橋本 直²、野田 博文⁵、磯部 忠昭⁶、奥村 拓馬⁷、高取 沙悠理⁸、平木 真宏⁸、竜野 秀行⁷、関澤 央輝⁹、新田 清文⁹、栗原 雄一¹⁰、宇留賀 朋哉⁹、北辻 章浩²、高橋 嘉夫¹ (1. 東京大学、2. 日本原子力研究開発機構、3. 立教大学、4. 中部大学、5. 大阪大学、6. 理化学研究所、7. 東京都立大学、8. 岡山大学、9. 高輝度光科学研究センター、10. 京都大学)

基盤セッション その他(境界分野への放射化学の新展開など) | 基盤セッション J: その他

基盤セッション J: その他

17:45 ~ 18:45 341室

[2P12] V-48トレーサーを用いたVRFB用イオン交換膜透過試験(3)

*白崎 謙次¹ (1. 東北大学)

特別セッション 福島第一原発事故関連研究の最前線 | 特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

17:45 ~ 18:45 341室

[2P13] 河川水の¹³⁷Cs動態におけるダム湖の役割

*辻 英樹¹、石井 弓美子¹、境 優¹、渡邊 未来¹、林 誠二¹ (1. 国立環境研究所)

[2P14] 道東沖表層の¹³⁴Cs濃度の経年変動からみた北太平洋北西息の海水循環

*真下 海成¹、井上 睦夫¹、谷内 由貴子²、中野渡 拓也²、長尾 誠也¹ (1. 金沢大学、2. 水産機構・資源研)

[2P15] モンテカルロ計算による玄米試料のガンマ線計数効率の評価

*古川 理央¹、佐藤 泰¹、真鍋 征也¹、下段 千尋¹、原野 英樹¹
(1. (国研) 産業技術総合研究所)

[2P16] 福島原発事故由来の放射性セシウムの稲等による付着と吸収

*野川 憲夫、石井 秀樹¹、林 薫平¹、朴 相賢²、小山 良太¹、原田 直樹³、吉川 夏樹³、野中 昌法³、廣瀬 農⁴、小林 奈通子⁵、田野井 慶太郎⁵、中西 友子⁵ (1. 福島大学、2. 福島県農業協同組合中央会、3. 新潟大学、4. 星薬科大学、5. 東京大学)

[2P17] 蛍光を用いた放射性微粒子(CsMP)の検出可能性

*北 和之¹、阿部 善也²、末木 啓介³、佐藤 志彦⁴、五十嵐 康人⁵ (1. 茨城大学理工学研究科、2. 東京電機大学、3. 筑波大学、4. 日本原子力研究開発機構、5. 京都大学 複合原子力科学研究所)

[2P18] 多摩川支流野川にて採取した底質の放射能および性状分析

*猪瀬 聡史¹、山本 晃輝²、加世田 大雅¹、本多 貴之²、小池 裕也² (1. 明治大学大学院、2. 明治大学)

基調講演 | プレナリートーク

基調講演

座長:高橋 嘉夫

2022年9月16日(金) 09:00 ~ 09:40 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[2S01] 放射光 X線分析から見たアクチノイド化学

*矢板 毅¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

09:00 ~ 09:40

2S01

放射光 X線分析から見たアクチノイド化学

(日本原子力研究開発機構)○矢板 毅

【緒言】 1990年代から KEK PFBL27 でのアクチノイドなど放射性核種への放射光利用がはじまり、講演者はその初期から、PFをはじめ、SPring-8のJAEA専用ビームライン、米国 LBNL の ALS 等により研究を継続してきた。アクチノイドの研究は、放射性物質であるという制約が大きい中で微量の物質利用で研究が進められるわけであるが、高輝度放射光は、極めて大きなツールの一つとなり得る。本発表では、関与してきた研究トピックスをいくつか紹介しつつ、今後の計画などについても紹介する。

【実験】 本講演で紹介する研究は、SPring-8のJAEA専用ビームライン BL11XU および 22XU、米国 LBNL の ALS BL7.0.1 および 11.0.2 などで行われた実験結果であり、測定手法としては、X線吸収微細構造法(XAFS)、単結晶 X線構造解析および軟 X線共鳴非弾性散乱(SX-RIXS)などを用いている。

【トピックス】 ソフトドナー系配位子とMAの共有結合性について 高レベル廃液処理における MA に対する分離・核変換技術の開発が行われている。高速炉、加速器を用いる短寿命核種への核変換では、アクチノイドの単離が不可欠であり、この分離では、主に窒素ドナー系配位子とアクチノイドとの共有結合的相互作用の利用が検討されている。分離のターゲットとなる MA は一般的にはハードなイオンとして区別されるが、Cm および Gd のフェナントロリン錯体における電子状態との比較において共有結合的相互作用の明確な証拠を得ることに成功した。発表では、詳細なスペクトルの解釈を踏まえその意義について紹介する。

多光子励起による Am(III)の選択的酸化 先の分離は、化学的相互作用のみを用いる分離法であるが、我々のグループでは、短パルスレーザーを Am(III)に照射し、禁制遷移である f-f 遷移をゲートとした多段階の電子励起を実現し、Am を 3 価から 5 価に酸化させることに成功した。その結果、多種の 3 価アクチノイド、ランタノイドが存在する溶液中で Am のみを選択的に酸化、化学反応のみでは選択的な分離が難しい酸素ドナー系配位子を用いる抽出分離を実証した。最新の実験計画についても紹介する。

水和におけるアインスタインニウムブレイクについて 実験室で扱えるアクチノイドで最も重い元素であるアインスタインニウムの水和構造を放射光 XAFS 法により明らかにした。水和アクチノイドイオンは、基本的にアクチノイド収縮に沿って水との原子間距離が短くなるが、その系統性から外れることを見いだした。本講演では、ランタノイドなどの水和構造と比較しつつ、そのメカニズムについて簡単に紹介する。

【終わりに】 放射光分析を一例として紹介したが、放射光は未だ先端分析の一つではあるが、電頭急速な発展、あるいはもう一つの重要なプローブである中性子の利用などで、アクチノイドの未解明な特性が徐々に明らかにされるであろう。今後はこの複合的なプローブの利用は極めて重要であると考えているが、それぞれの分析手法におけるアクチノイドの利用はまだ高いハードルがあると思われる。一方で、これらの分析は、その専門家に任せているだけでは、なかなか先に進まない。放射化学などサイエンスとしてこれらの物質を直接扱っている研究者が、一般ユーザーとしての利用の域から飛び出して、積極的に分析手法の高度化などにも関わるのが重要であると考えている。

Actinide Chemistries from Synchrotron X-ray Analyses
YAITA T.

特別セッション 福島第一原発事故関連研究の最前線 | 特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

座長:長尾 誠也(金沢大学)

2022年9月16日(金) 09:40 ~ 11:25 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[2A01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2A01] 森林生態系における放射性セシウムの動態：これまでの動き、これからの動き

*橋本 昌司^{1,2} (1. 森林総合研究所、2. 東京大学)

09:40 ~ 10:05

[2A02] 土壌中放射性セシウムの深度分布における放射性微粒子の寄与の推定
*小暮 敏博¹、山口 紀子²、高久 侑己¹、向井 広樹¹、奥村 大河¹ (1. 東京大学院、2. 農研機構)

10:05 ~ 10:20

[2A03] 東日本太平洋側の河川一沿岸域での溶存態/粒子態セシウム137の動態

*高田 兵衛¹ (1. 福島大学)

10:20 ~ 10:45

[2A04] 海洋循環トレーサとしての福島第一原子力発電所事故起源の放射性セシウム

*熊本 雄一郎¹ (1. 海洋研究開発機構)

10:45 ~ 11:10

[2A05] 魚類生息環境判別技術の開発

*森田 貴己¹、岡村 寛¹、三木 志津帆¹、重信 裕弥¹、天野 洋典²、渡辺 透² (1. 水産研究・教育機構 水産資源研究所、2. 福島県水産海洋研究センター)

11:10 ~ 11:25

(2022年9月16日(金) 09:40 ~ 11:25 A会場)

[2A01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

2A02

森林生態系における放射性セシウムの動態：これまでの動き、これからの動き

(森林総合研究所¹、東京大学²)○橋本昌司¹

【緒言】福島県の面積の約70%が森林である。森林は面積的に広いだけでなく、例えば木材生産や水源林としての機能を通じて、また山村の人たちには山菜やキノコなどの山の幸を採取する場として、人々の生活に密接に関わっている。除染がなされた農地や住宅地と比べ、手つかずの森林では放射性物質（以降、放射性セシウムとする）は森林生態系の中に留まったままとなっている。

【森林生態系における放射性セシウムの動態】チェルノブイリの研究などから、大気から降下した放射性セシウムは、森林内での分布が時間とともに大きく変化することが知られていた。福島事故後も森林内での放射性セシウムの動態を捉え、移行係数を明らかにしていく多くの調査・研究が行われてきた。森林ではまず、樹木に放射性セシウムが付着し、降雨や落葉によってそれが数日から数年の時間をかけて土壌へと移行していった。事故から10年が経過し、森林によっても異なるが、森林に残存している放射性セシウムの90%以上が地表の落葉層も含む森林の土壌部分に分布している。樹木の表面に付着したものや土壌からの吸収により、一部の放射性セシウムは樹木の内部にも取り込まれており、また樹木器官の枯死・脱落（落葉など）により樹体内の放射性セシウムが再び土壌へ戻るといった放射性セシウムの循環が起きている。放射性セシウムの取り込みは、樹木だけに限らず、森林に生息する動物、菌類（キノコ）にも取り込まれている。森林内の多様な種や部位、また環境の中で、時間とともに変化する移行係数が明らかにされてきた。また森林から溪流を通じて放射性セシウムが流出することも心配されたが、多くの観測研究から流域の蓄積量に占める流出率は数%以下であり非常に小さいことが確認されている。

【これからの動き】放射性セシウムは森林生態系の中で大きく動いてきたが、その動きは年々小さくなってきている。6つのモデルを用いた解析によると、今後も引き続き放射性セシウムは大部分が土壌に分布し続ける。しかし、量的には小さいものの、一部は土壌から樹木吸収され、またそれが土壌へ還元されるという循環を続ける。今後の木材利用の再開に重要な指標である幹材の放射性セシウム濃度の予測では、モデルによって予測値が大きく異なった。今後も森林での観測研究を継続するとともに移行プロセスを精緻に捉え・理解していくことが、森林内でのこれからの動きを予測して行くためには必要である。

【参考文献】

- [1] 橋本昌司・小松雅史（2021）森林の放射線生態学. 丸善出版
- [2] S. Hashimoto, M. Komatsu, S. Miura (2022) Forest Radioecology in Fukushima—Radiocesium Dynamics, Impact, and Future. Springer. <https://link.springer.com/book/10.1007/978-981-16-9404-2>
- [3] S. Hashimoto et al. (2020) Forest ecosystems. In: Environmental transfer of radionuclides in Japan following the accident at the Fukushima nuclear power plant, IAEA-TECDOC-1927. <https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TE-1927web.pdf>
- [4] S. Hashimoto et al. (2021) Dynamics of radiocaesium within forests in Fukushima—results and analysis of a model inter-comparison. Journal of Environmental Radioactivity. 238-239: 106721 <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106721>

Dynamics of radiocesium within forests in Fukushima: the first ten years and future
HASHIMOTO S.

2A02 土壌中放射性セシウムの深度分布における放射性微粒子の寄与の推定

(東京大学院¹、農研機構²) ○小暮 敏博¹、山口 紀子²、高久 侑己¹、向井 広樹¹、奥村 大河¹

【緒言】 東京電力福島第一原子力発電所事故で発生した汚染土壌中の放射性セシウム(RCs)は、これまでの研究で2種類の形態、つまり土壌中の鉱物表面に吸着・固定したものの(radiocesium-sorbing mineral, CsSM)と原子炉から放出された珪酸塩ガラス微粒子(radiocesium-bearing microparticle, CsMP)中に固溶したものがわかっている。我々は様々な汚染試料中でこの2種類の形態に含まれるRCsの量比を推定するため、各形態におけるRCsの脱離特性等を調べてきた。そして100 mM 温塩酸処理によってCsSMからRCsがほぼ溶出する一方で、CsMPはあまり溶解しないことを利用した推定法を提案してきた。今回はこの手法を汚染地域から採集した土壌コアに適用し、2種類の形態に含まれるRCsの量比の土壌深度依存性を明らかにすることを目的とした。

【実験】 福島県内の森林表土からライナー採土器によって約30 cmの深度まで土壌を採取し、表面から約1.5 cm間隔で5-8個に切り分け、乾燥後遊星ボールミルで十分に粉碎して各深度での試料とした。各試料の全量を用いて¹³⁷Cs放射能をGe半導体検出器で測定後、以下の実験を行なった。

・温塩酸による溶解実験

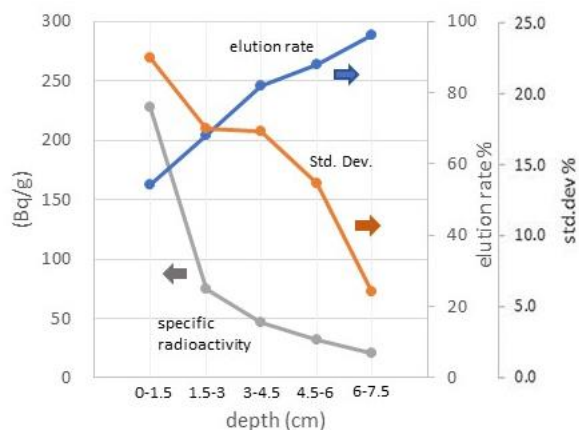
各深度試料から約0.13 gの試料を採取し、90°Cの100 mM塩酸に24時間浸漬した。このときの固液比は300 (mL/g)とした。浸漬後の溶液を0.22 μmのフィルタでろ過し、¹³⁷Cs放射能濃度をGe半導体検出器で測定した。

・少量ずつ分取した土壌試料間の¹³⁷Cs放射能濃度の分散

土壌試料にCsMPのような放射能濃度の大きい粒子が混入した場合、試料採取量が少ないほど放射能測定値の分散が大きくなる筈である。各深度別試料から2 Bq相当量を15個分取し、¹³⁷Cs放射能濃度をオートガンマカウンターで測定し、試料間の標準偏差を求めた。

その他各深度試料でIPへの感光による輝点の強度やその分布を調べた。

【結果と考察】 図1に各深度における¹³⁷Cs放射能濃度(specific radioactivity)、温塩酸による溶出率(elution rate)、少量分取試料間の標準偏差(Std. Dev)を示す。ここで溶出率の計算は、溶出した0.13 gの土壌試料の¹³⁷Cs放射能濃度を、深度別採取試料全量を用いて測定した¹³⁷Cs放射能濃度で除した値とした。表層付近では塩酸溶出率が50%程度であったのに対し、6-7.5 cmの深さでは約95% (誤差は約5%) となっており、下層ほどCsMPの割合が少ないことが示唆された。またこれは下層ほど少量分取土壌の放射能濃度間の標準偏差が小さくなる結果とも整合的である。



Evaluation of depth-dependence of the CsMPs amounts in soils contaminated with radiocesium
KOGURE, T., YAMAGUCHI, N., TAKAKU, Y., MUKAI, H., OKUMURA, T.

東日本太平洋側の河川-沿岸域での溶存態/粒子態セシウム 137 の動態

○高田兵衛¹
(¹ 福島大 IER)

はじめに

福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故により周辺環境へ放出された放射性核種は着実に減少傾向にあり、FDNPP から 30km 以上離れた沖合や外洋海域の海水中の放射性セシウム 137 (^{137}Cs) 濃度はほぼ事故前の値に到達しているものの、FDNPP から同じく離れた陸域に近い沿岸海域では現在でも事故前より高い値が散見される。このことから、「陸域に沈着した ^{137}Cs の河川を介した流出」に着目した。本発表では、特に水質が劇的に変化する河川から沿岸海域での ^{137}Cs の動きや河川からの ^{137}Cs フラックスについて、① 台風などによって引き起こされた河川出水時における河川および沿岸海水での ^{137}Cs 濃度変遷や河川 ^{137}Cs フラックス量、② 塩分変化に伴う河川懸濁粒子に吸着した ^{137}Cs の溶脱作用、③ 溶脱作用を考慮した台風時の沿岸域における溶存態 ^{137}Cs 濃度上昇について議論する。得られた結果は、今後の河川から海洋環境への中長期的な影響を評価するための有用な知見となろう。

台風前後の河川及び沿岸での ^{137}Cs 濃度変遷

事故から 8 年後の 2019 年 10 月に東北に大きな洪水を引き起こした台風 19 号 (Hagibis) によって、沿岸での海水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度に大きな変化をもたらした。この台風前後の FDNPP から南 10~60 km の河川下流 (富岡川、夏井川、鮫川等) とこれらの河口付近の沿岸、ならびに沖合の複数点において 2019 年 6 月から 10 月にかけて調査したところ、台風直後には河川では粒子態 ^{137}Cs 濃度は大幅な増加が見られたものの、溶存態 ^{137}Cs 濃度の大きな増加は見られなかった。その一方で、台風直後の沿岸の海水では溶存態と粒子態 ^{137}Cs 濃度ともに大幅に増加した。そのうち溶存態 ^{137}Cs の濃度上昇は、台風に伴う大雨によって河川から多量に流された土砂に吸着した ^{137}Cs (粒子態 ^{137}Cs) が海水に至ることで、一部が溶脱して溶存態 ^{137}Cs へと移行したのではないかと考えた。過去の文献結果を基に、粒子態 ^{137}Cs が海水中で溶脱する割合を 3~30% とした場合、富岡川等の河口付近で観測された粒子態 ^{137}Cs 濃度を用いて推定すると、観測された溶存態 ^{137}Cs のうち 1.4~66% (中央値: 32%) を占めるという推定結果となり、特に出水時では粒子態 ^{137}Cs からの溶脱による影響が大きいことが示唆された。

台風直後の阿武隈川下流で採取した懸濁粒子を用いた海水溶脱実験と沿岸での溶存態¹³⁷Cs濃度変遷

この大型台風による河川氾濫に伴う沿岸海水の溶存態¹³⁷Cs濃度上昇について、台風直後に阿武隈川下流で採取した河川懸濁粒子を用いた海水での溶脱実験、ならびに阿武隈川河口周辺の溶存態¹³⁷Cs濃度変化のシミュレーションを行った。

洪水中には、河川水中の懸濁粒子濃度が増加し、更に溶存態・粒子態¹³⁷Cs濃度の合計値が台風通過前の約170倍の1700 Bq/m³となった。そのうちすべてが粒子態¹³⁷Cs濃度上昇であり、溶存態¹³⁷Cs濃度は、台風前が3.5 Bq/m³であったのに対して、台風直後は1.3 Bq/m³に減少した。この洪水が発生した4日間の懸濁粒子の流出量は 1.42×10^9 kg、粒子態¹³⁷Csの流出量は 1.1×10^{12} Bqと計算された。この4日間の粒子態¹³⁷Csの流出量は2012年から2015年の約3年間にかけて同じ河川で行われた結果(Taniguchi et al., 2019)の約1年分の流出量に匹敵した。更に、洪水中に阿武隈川下流で採取した河川懸濁粒子(約8割が<63 μmの微細粒子)を用いて、この粒子に吸着している¹³⁷Csが海水中でどれほど溶脱するかを室内実験にて検討した。その結果、<63 μmの微細粒子に吸着した¹³⁷Csの5.5~11%が海水に溶脱したことがわかった。この洪水中の河川流量や¹³⁷Csフラックス量、さらには溶脱実験結果を用いて阿武隈川河口周辺の沿岸海水での溶存態¹³⁷Cs濃度変化についてシミュレーションを行った。その結果、台風通過後、阿武隈川河口周辺の沿岸海水の溶存態¹³⁷Cs濃度は45~125 Bq/m³まで一時的に上昇したと予想された。これは台風前(約3 Bq/m³)に比べて15~41倍であった。ただしこの濃度は海水の希釈効果によって2~3週間程度で洪水前の濃度に戻ったこともシミュレーションによってわかった。

参考文献

Taniguchi et al., 2019. Transport and redistribution of radiocaesium in Fukushima fallout through rivers. *Environ. Sci. Technol.*, 53, 12339-12347.

Distribution of dissolved and particulate cesium-137 in river-sea systems of Fukushima and neighboring prefectures

*H. Takata¹ (¹Inst. Environ. Radioact., Fukushima Univ.)

2A04 海洋循環トレーサとしての福島第一原子力発電所事故起源の放射性セシウム

(海洋研究開発機構) ○熊本雄一郎

【緒言】 2011年3月に発生した福島第一原子力発電所（福島原発）事故によって、15～20 PBqの放射性セシウム、 ^{134}Cs が環境中に放出された。セシウムは海水に溶解易いため、北太平洋に移行した ^{134}Cs の大部分は海水の混合・移流に伴って、北太平洋ほぼ全域およびその縁辺海に広がったことがわかっている。過去10年間の ^{134}Cs の観測結果をレビューするとともに、その海洋循環のトレーサとしての可能性を議論する。

【総量】 過去約10年間の観測及びモデル研究によって、福島原発から放出された ^{134}Cs は、15～20 PBqと推定されている。その内訳は、福島県を中心とした陸地への大気沈着：3 PBq、北太平洋を中心とした海洋への大気沈着：9～12 PBq、福島原発から汚染水の北太平洋への直接流入：3～5 PBqとなっている。また、ほぼ等量の ^{137}Cs も福島原発から放出されたが、その量は英国セラフィールド再処理工場事故（約40 PBq）、及びチェルノブイリ原発事故（約85 PBq）によって放出された量よりも少ない。

【亜寒帯域】 大気中に放出された ^{134}Cs は、卓越する西風によって、黒潮続流の北側、すなわち北緯35度以北の北太平洋亜寒帯域に広く大気沈着した。また、福島原発は黒潮続流の北側（北緯37.5度）に位置するため、汚染水も北太平洋亜寒帯域に直接流入した。それらは反時計回りの亜寒帯循環に沿って表層水中を東に運ばれ、事故から約5年を経過した2016年には北米大陸に到達した。その後現在までに、事故起源 ^{134}Cs は亜寒帯循環に沿って、アラスカ湾、ベーリング海、北極海まで運ばれたことが分かっている。しかしながら、ベーリング海まで到達した ^{134}Cs が東カムチャツカ海流および親潮に沿って、日本近海まで回帰したことを示す観測データはまだ報告されていない。最新の観測研究では、北太平洋亜寒帯域の ^{134}Cs 総量は、約12 PBqと推定されている。

【亜熱帯域】 大気中に放出された ^{134}Cs のうち、どの程度が北緯35度以南の北太平洋亜熱帯域に大気沈着したのかはよくわかっていない。また、黒潮続流から切り離された中規模渦が、亜寒帯域から亜熱帯域に ^{134}Cs を輸送した可能性も指摘されているがその寄与度も不明である。最新の観測研究によって、西部亜熱帯域の ^{134}Cs の総量は約4 PBqと推定されている。上記の亜寒帯域の推定総量約12 PBqと合わせると約16 PBqとなり、その積算総量の推定値と総放出量の見積値12～17 PBqはよく一致する。亜熱帯域での ^{134}Cs の輸送は、亜寒帯域とは異なり北太平洋亜熱帯モード水の亜表層（深度約200～400 m）への沈み込みとその南方への移流によって支配されていることが明らかにされた。福島事故から約10か月後、北緯20度の亜表層で ^{134}Cs が検出された。この水平輸送速度は従来の地衡流的な解析によっては説明することができず、中規模渦に代表されるメソスケール（空間スケール数十～数百 km）、さらにサブメソスケール（0.1～10 km）の現象が事故起源 ^{134}Cs の輸送に寄与していることが示唆された。

【今後の研究】 これまでの研究によって、溶存 ^{134}Cs の広がりを説明するためには、従来の「地衡流的移流+パラメータ化された渦拡散」というモデルだけでは不十分であることが示唆された。半減期約2年の ^{134}Cs を、今後も北太平洋の外洋域で測定し続けることは難しくなりつつある。今後はこれまでに得られている観測結果を整理し、それらを渦解像度海洋モデルの研究に応用することで、新たな成果が期待される。

Fukushima-derived radiocesium as a tracer for the ocean circulation
KUMAMOTO, Y.

2A05

魚類生息環境判別技術の開発

(水産機構・資源研¹、福島海洋研²)○森田貴己¹、岡村寛¹、
三木志津帆¹、重信裕弥¹、天野洋典²、渡辺透²

【緒言】

福島県海域の水産物において、稀に放射性セシウムの基準値（100 Bq/kg-wet）を超過する検体が採取される。こうした検体が採取されること自体が風評の原因となると考えられる。現在でも福島第一原発（F1）港湾内では基準値を超過する検体が採取されていることから、福島県海域で稀に漁獲される基準値超過検体はF1港湾内から出てきたものではないかと推測されているが、放射性セシウムの濃度以外に判断根拠がない。そこで、本研究では、基準値を超過した検体がF1港湾内に生息していた経験の有無を判別する技術を検討した。

【実験】

2017～2021年に、F1港湾内外で採取された魚類66検体から耳石を取り出し、耳石全体のβ線を2πガスフローカウンターで測定した。測定は、耳石1個に対し60min間測定を3回行った。作成した判別技術を用いて、2021年2月、2021年4月、2022年1月に採取された基準値超過検体（全てクロソイ）のF1港湾内生息経験の有無を判別した。

【結果と考察】

F1港湾内から採取された魚類耳石のβ線カウント（3回測定平均値）は、N.D.～3850（n=41）でありF1港湾外の試料ではN.D.～3.89（n=25）であった。5カウント以上検出される試料はF1港湾内からのものだけであることから、判別のための仮の閾値を5カウントと設定した。判別試料の耳石からのβ線カウント（3回測定平均値）は、それぞれ10.9、16.2、39.0であることから、これら3検体ともF1港湾内での生息経験があると推察された。

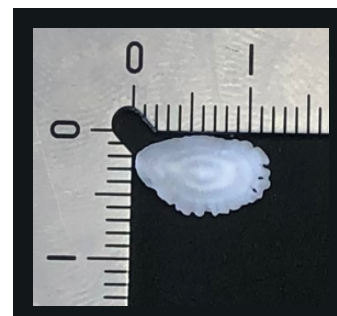


図. 1 クロソイの耳石

現在もF1港湾内では基準値を超える魚類が採取されていることから、F1港湾内の環境が魚類の基準値を超過させる有力な要因である。福島県海域において基準値超過検体が採取されることを防ぐには、F1港湾内の魚類駆除等の対策を強化することは重要であると考えられる。東京電力ホールディングス（株）では、2022年2月よりF1港湾内の魚類駆除対策を強化しており、その対策の成果が期待される。

【謝辞】本研究は、水産機構・資源研と福島海洋研との共同研究「生息環境履歴が魚類の放射能汚染に及ぼす影響把握」の一環として行われた。試料採取にご協力いただいた、福島大学の和田敏裕准教授、高田兵衛特任准教授、金指努研究員、ふくしま海洋科学館の富原聖一獣医師に感謝いたします。

Determination method of fish habitat using total β-ray counts from otolith

MORITA, T., OKAMURA, H., MIKI, S., SHIGENOBU, Y., AMANO, Y., WATANABE, T.

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:豊嶋 厚史(大阪大学)

2022年9月16日(金) 11:30 ~ 12:30 A会場 (小柴ホール)

Zoomはこちら

[2A06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2A06] 電子線形加速器・活性炭法を用いた ^{99m}Tc]NaTcO₄の製造とその薬効評価

*張 幸雄^{1,3}、熊倉 嘉貴^{2,3}、蓼沼 克嘉⁴、尾関 温子³、和田 洋一郎³、秋光 信佳³、津口 明⁴、菊永 英寿⁵、桧垣 正吾³、上坂 充¹ (1. 東京大学大学院工学系研究科、2. 埼玉医科大学総合医療センター、3. 東京大学アイソトープ総合センター、4. 化研、5. 東北大学電子光理学研究センター)

11:30 ~ 11:45

[2A07] 東北大学 CYRICにおける加速器中性子による医療用 RI製造

*塚田 和明¹、伊藤 正俊²、渡部 浩司²、足立 智²、松田 洋平^{2,6}、橋本 和幸^{1,7}、川端 方子^{3,7}、永井 泰樹^{3,7}、岡田 漱平³、本村 新^{3,7}、廣瀬 耀^{3,7}、本石 章司^{3,7}、佐伯 秀也^{3,7}、盛田 琢造⁴、足達 芳嗣⁴、川間 哲雄⁴、森 雅史⁴、谷口 愛美⁴、楠岡 新也⁴、菊永 英寿⁵ (1. 原子力機構、2. 東北大学CYRIC、3. 千代田テクノル、4. 住友重機械工業、5. 東北大学ELPH、6. 甲南大学理工学部、7. 量研機構)

11:45 ~ 12:00

[2A08] 有機溶媒を用いた大員環キレートへのジルコニウム89標識技術開発

*井村 亮太^{1,2}、尾関 温子¹、井田 博之²、和田 洋一郎¹、秋光 信佳¹、熊倉 嘉貴³ (1. 東京大学 アイソトープ総合センター、2. JFEエンジニアリング株式会社、3. 埼玉医科大学)

12:00 ~ 12:15

[2A09] CIEMAT/NIST法による ^{225}Ac の放射能測定

*佐藤 泰¹、古川 理央¹、下段 千尋¹、原野 英樹¹ (1. 産業技術総合研究所)

12:15 ~ 12:30

(2022年9月16日(金) 11:30 ~ 12:30 A会場)

[2A06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

2A06

電子線形加速器・活性炭法を用いた $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ の製造とその薬効評価

(東大工¹、埼玉医大 SMC²、東大 ISC³、化研⁴、東北大 ELPH⁵)○張幸雄^{1,3}、熊倉嘉貴^{2,3}、蓼沼克嘉⁴、尾関温子³、和田洋一郎³、秋光信佳³、津口明⁴、菊永英寿⁵、桧垣正吾³、上坂充¹

【緒言】 ^{99m}Tc は ^{99}Mo の娘核種であり、核医学検査で最も多く利用される医療用放射性核種として知られている。近年、 ^{99}Mo を製造供給する海外原子炉の老朽化に伴い、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ の国産化が求められている。そこで本研究グループは、国産電子線形加速器と国産活性炭カラムクロマトグラフィー装置を用いて $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ を製造する「電子線形加速器・活性炭法」を開発し (Sekimoto S, Tatenuma K, Suzuki Y, et al. J Radioanal Nucl Chem 2017;311:1361–1366)、その医療応用の可能性について検討している。

本発表では、電子線形加速器・活性炭法で製造した $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ のマウス体内分布試験の結果を報告する (Jang J, Kumakura Y, Tatenuma K, et al. Nucl Med Biol. 2022;110–111:1–9)。

【実験】 実験の流れを図 1 に示す。まず、東北大学電子光理学研究センター (ELPH) の大強度電子線形加速器を用いて MoO_3 ターゲットに 8MeV 以上の高エネルギー制動放射線を照射し、 $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ 核反応による ^{99}Mo 製造を行った。製造した ^{99}Mo は東京大学アイソトープ総合センター (ISC) に輸送し、6M の NaOH 溶液で溶解して $[^{99}\text{Mo}]\text{Na}_2\text{MoO}_4$ 溶液を得た。次に、活性炭カラムクロマトグラフィー装置を用いて $[^{99}\text{Mo}]\text{Na}_2\text{MoO}_4$ から $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ を抽出し、 $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ を Slc:ICR マウスに投与して体内分布試験を行った ($n = 6$)。最後に、市販の原子炉由来の $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ を用いて同様のマウス体内分布試験を行い ($n = 4$)、電子線形加速器・活性炭法のマウス体内分布試験結果との比較分析を行った。

体内分布試験の結果、全ての組織・臓器 (甲状腺、唾液腺、血液、心臓、肝臓、腎臓) において電子線形加速器・活性炭法と原子炉法の $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ 摂取率がほぼ同じであることがわかった。この結果から、電子線形加速器・活性炭法由来の $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ が、従来の原子炉法由来の $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ と同様の薬理効果を示すと考えられる。

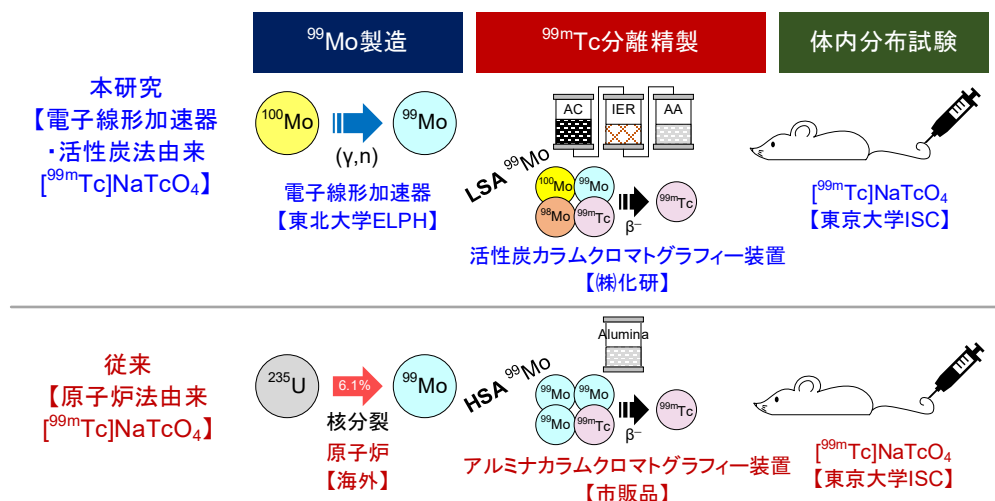


図 1 電子線形加速器・活性炭法の実験の概要

Production of $[^{99m}\text{Tc}]\text{NaTcO}_4$ using an electron linear accelerator and activated carbon column chromatography and evaluation of its efficacy

JANG J., KUMAKURA Y., TATENUMA K., OZEKI A.N., WADA Y., AKIMITSU N., TSUGUCHI A., KIKUNAGA H., HIGAKI S., UESAKA M.

2A07

東北大学 CYRIC における加速器中性子による医療用 RI 製造

(原子力機構¹、東北大学 CYRIC²、千代田テクノル³、住友重機械工業⁴、東北大学 ELPH⁵、甲南大学理工学部⁶、量研機構⁷) ○塚田和明¹、伊藤正俊²、渡部浩司²、足立智²、松田洋平^{2,6}、橋本和幸^{1,7}、川端方子^{3,7}、永井泰樹^{3,7}、岡田漱平³、本村新^{3,7}、廣瀬耀^{3,7}、本石章司^{3,7}、佐伯秀也^{3,7}、盛田琢造⁴、足達芳嗣⁴、川間哲雄⁴、森雅史⁴、谷口愛美⁴、楠岡新也⁴、菊永英寿⁵

【はじめに】 東北大学 CYRIC では、高強度の重陽子を利用し発生する高速中性子による医療用放射性同位元素の大量製造を目指し、産官学のプロジェクト研究 (DATE プロジェクト) を進めてきた。これまでに既存のサイクロトロン加速器を使用した高強度の負重水素イオン加速法の開発から、高強度加速器中性子源の発生と、発生する中性子を用いた医療用 RI 製造と熱分離・精製装置の開発を行い、高強度ビームの利用環境が整いつつあるので、プロジェクトの概要と今後の展開について報告する。

【開発システムの構成】 プロジェクトでは、①高強度の負重水素イオン源の導入、②サイクロトロンへの負重水素イオンの入射試験、③サイクロトロン内部における負重水素イオン加速法開発、④高強度の重イオン照射が可能な炭素回転標的の開発、⑤高いレベルの放射線環境に対応するための自動試料照射搬送システム開発、⑥鉛遮蔽付セル内で生成物の分離・生成が可能な化学分離システム開発などを、参加した各機関が分担して担当した。

【成果】 負重水素イオン加速法を用いた重水素 25MeV、54 μ A のビーム取り出しに成功した。また、加速器内部では既存の加速器を用いて外部イオン源から 100 μ A の負重水素イオンの入射に成功しており、今後、加速後のビーム輸送系を大強度ビームに更に最適化することで 100 μ A のビーム取り出しに対応できる。また、本重水素ビームを用いて、医療用 RI を製造・精製するシステムでは、高いレベルの放射線環境場が予想されるため、ビームラインを照射室内の更に約 1m のコンクリート遮蔽内に設置することとした。また、高強度ビーム (2.5 kW 以上) に対応可能な、直径 45cm、厚さ 1cm の回転式の水冷式炭素標的と、コンクリート遮蔽外から試料の照射が可能な気送管式の自動試料照射搬送装置の開発なども並行して行った。本プロジェクトでは、まずガンの診断と治療が同時に行え近年注目されている ^{64}Cu および ^{67}Cu を、それぞれ $^{64}\text{Zn}(n, p)$ および $^{68}\text{Zn}(n, np/d)$ 反応で製造し、Zn 金属試料から Cu 同位体を単離し、医療用として供することを第一目標として、化学分離装置の開発を進めた。分離・精製には、熱分離手法と湿式の化学分離法を組み合わせる独自の手法を開発し、かつ鉛遮蔽セル内への設置を可能にした (本村ほか, 日本放射化学会第 66 回討論会(2022), 3B07)。

このように、現在までに高強度の負重水素イオンを利用した ^{64}Cu および ^{67}Cu の製造を一貫して行える体制が整った。今後は、他の医療用 RI の製造も視野に入れ、更なる高強度化を進めつつ、医療用 RI 製造の研究開発の拠点化を目指す。

Production of Medical Radioisotopes with Accelerator Based Neutrons at CYRIC, Tokoku Univ.
TSUKADA K., ITOH M., WATABE H., ADACHI S., MATSUDA Y., HASHIMOTO K., KAWABATA M., NAGAI Y., OKADA S., MOTOMURA A., HIROSE H., MOTOISHI S., SAEKI H., MORITA T., ADACHI Y., KAWAMA T., MORI M., TANIGUCHI M., KUSUOKA S., KIKUNAGA H.

2A08

有機溶媒を用いた大員環キレートへのジルコニウム 89 標識技術開発(東大アイソトープ¹、JFE エンジニアリング株式会社²、埼玉医大³)○井村亮太^{1,2}、尾関温子¹、井田博之²、和田洋一郎¹、秋光信佳¹、熊倉嘉貴³

【目的】ペプチドは生体に投与すると短時間で標的抗原（がん）に集積する特長があるため、陽電子放出核種標識ペプチドを PET 診断薬として利用する試みが注目されている。投与された標識ペプチドのうち一部は腫瘍に到達するが、残りは腎臓から放射性尿として排泄される。腎臓や膀胱に集積した放射性尿は周辺臓器のがん診断を妨害する。放射性尿は数時間で体外へ排泄されるため、投与後しばらく時間が経過してから PET 撮像を行えば放射性尿の影響を回避できると想定される。しかしペプチド PET で標準的に用いられる ^{68}Ga は半減期が 68 分と短いため放射性尿排泄後に PET 撮像を行うことが困難である。本研究では長半減期 ^{89}Zr （半減期 78 時間）に注目し、 ^{89}Zr 標識ペプチドであれば放射性尿排泄後に PET 診断を行うことができ、がんのみの描出が可能になると仮定した。

【方法】ペプチド PET イメージングでは図 1 のように大員環キレート DOTA が導入されたペプチドが一般に使用される。ほとんどの金属核種は水系緩衝液中での加熱反応により DOTA と錯体を形成するが、例外的に DOTA 含有薬剤への ^{89}Zr 標識は達成されていなかった。本研究では全く新しい標識手法として、水系緩衝液と有機溶媒の混合液中で ^{89}Zr 標識を行う方法を考案した。標識した ^{89}Zr 標識 PSMA-617 をがんモデルマウスへ投与した。投与 24 時間後に PET スキャン、解剖により薬剤分布を評価した。本研究では図 1 に示す PSMA-617 を実験対象に選択した。

【結果】有機溶媒を用いた新規標識反応方法により ^{89}Zr 標識 PSMA-617 を高い放射化学的収率(89%)で合成することに初めて成功した。[^{89}Zr]Zr-PSMA-617 の投与 24 時間後の PET/CT 像を図 2 に示す。投与 24 時間後には放射性尿は残存しておらず腫瘍のみを選択的に可視化することを実証した。

【結論】本研究では、 ^{89}Zr 標識ペプチド (PSMA-617) を初めて合成した。[^{89}Zr]Zr-PSMA-617 を用いた小動物 PET イメージング実験により、放射性尿の影響を排除してがん選択的イメージングが達成可能であることを実証した。

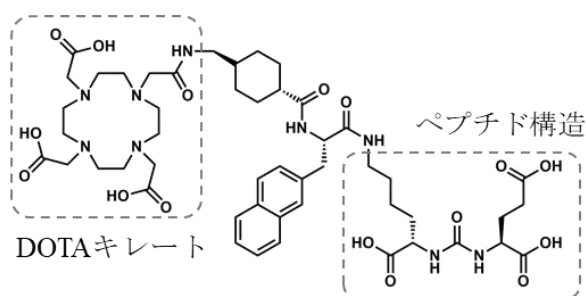
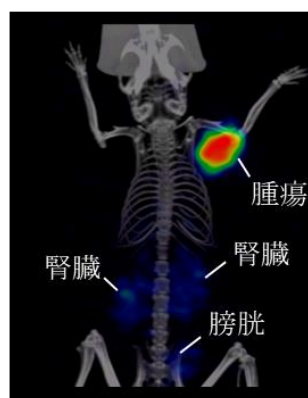


図1 PSMA-617の化学構造

図2 ^{89}Zr 標識PSMA-617のPET/CT像

Development of Radiolabeling Methods of Macrocyclic Chelating Agents with Zirconium-89 Using Organic Solvents.

IMURA R., OZEKI A., IDA H., WADA Y., AKIMITSU N., KUMAKURA Y.

2A09 CIEMAT/NIST 法による ^{225}Ac の放射能測定

(産総研¹)○佐藤泰¹、古川理央¹、下段千尋¹、原野英樹¹

【緒言】 ^{225}Ac は、半減期 10 日で α 崩壊し、放射平衡を成す核種であり、また、癌治療に用いられる核種である。 ^{225}Ac および子孫核種は、 α 崩壊または、 β 崩壊する核種であるので、液体シンチレーションカウンタによる測定と CIEMAT/NIST 法による計数効率計算による放射能測定が適している。しかし、子孫核種の一つである ^{213}Po の半減期は、市販の液体シンチレーションカウンタの不感時間に近い $3.7\ \mu\text{s}$ であり、かつ、市販の液体シンチレーションカウンタの不感時間の正確な値は公表されていないので、 ^{213}Po に対する計数効率を評価して、 ^{225}Ac の放射能測定を行うことは困難である。そこで、産総研で開発した、不感時間が可変である TDCR (Triple to Double Coincidence Ratio) 装置を液体シンチレーションカウンタとして使用して、線源の計数率を測定し、市販の液体シンチレーションカウンタでは、クエンチ指標のみを測定することにした。また、CIEMAT/NIST 法により ^{225}Ac およびその子孫核種の計数効率を算出することで、放射能を求めることとした。

【実験】 ^{225}Ac 溶液約 1g と液体シンチレータ Ultima Gold 約 15g をバイアルに封入した線源を 1 本用意した。これと、産総研で校正値を付与したトリチウムクエンチセットを、パーキンエルマー社製液体シンチレーションカウンタに装荷し、 ^{133}Ba 線源により γ 線を照射して、それぞれのクエンチ指標である tSIE 値を得た。また、この ^{225}Ac 溶液とトリチウムクエンチセットを、TDCR 装置を用いて測定し、それらの 2 本同時計数率を得た。この際、TDCR 装置の不感時間は $8\ \mu\text{s}$ から $100\ \mu\text{s}$ まで変えた。PTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) 製の CIEMAT/NIST 法用計算プログラム MICELLE2 を用いて、 ^{225}Ac 及びその子孫核種の計数効率を、トリチウムの計数効率の数値関数として得た。

【結果】不感時間を長くすることによって、 ^{213}Po に対する計数効率は減少し $100\ \mu\text{s}$ の不感時間によって、 ^{213}Po の計数効率は十分小さくなり、 ^{225}Ac の放射能測定において無視できることが確認できた(図 1)。TDCR 装置での測定で得られたトリチウムクエンチセットの計数効率と、液体シンチレーションカウンタで得られたトリチウムクエンチセットの tSIE 値、及び、CIEMAT/NIST 法による計算で得られた ^{225}Ac 及びその子孫核種の計数効率とトリチウムの計数効率の関係から、 ^{225}Ac 及びその子孫核種の計数効率を tSIE 値の数値関数として得ることができた。これと、 ^{225}Ac 線源の TDCR 装置による計数率から、 ^{225}Ac の放射能を求めることができた。

【結論】TDCR 装置と液体シンチレーションカウンタを用いることにより、 ^{225}Ac の放射能測定が行えるようになった。本方法を用いて、 ^{225}Ac の国家標準を供給することができるようになった。

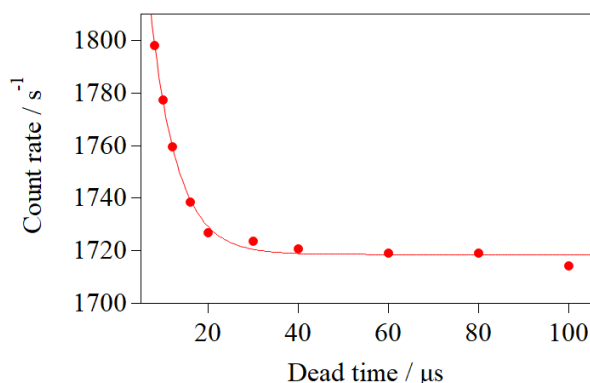


図 1 TDCR 装置の不感時間と ^{225}Ac 線源の計数率

Activity measurement of ^{225}Ac by CIEMAT/NIST method
Sato, Y., Furukawa, R., Shimodan, C., Harano, H.

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16日(金) 16:50 ~ 17:10 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](#)

基盤セッション 炉材料・照射効果 | 基盤セッション H: 炉材料・照射効果

基盤セッション H: 炉材料・照射効果

座長:大矢 恭久(静岡大学)

2022年9月16日(金) 09:40 ~ 11:15 B会場 (206室)

Zoomはこちら

[2B01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2B01] 酸化物分散強化(ODS)合金の照射効果

*大野 直子¹ (1. 横浜国立大学)

09:40 ~ 10:05

[2B02] 鉄中の溶質原子の拡散・析出に対する照射効果

*外山 健¹ (1. 東北大学)

10:05 ~ 10:30

[2B03] 核融合炉用低放射化バナジウム合金の析出挙動に及ぼす照射効果

*長坂 琢也^{1,2}、申 晶潔^{1,2}、福元 謙一³、外山 健⁴、藪内 聖皓⁵ (1. 核融合科学研究所、2. 総合研究大学院大学、3. 福井大学附属国際原子力工学研究所、4. 東北大学金属材料研究所、5. 京都大学エネルギー理工学研究所)

10:30 ~ 10:45

[2B04] タングステン二元系合金の照射耐性に及ぼす合金元素の物理化学的特性の影響

*波多野 雄治¹、道澤 大地¹、松本 あずさ¹、外山 健³、藪内 聖皓²、檜木 達也² (1. 富山大学、2. 京都大学、3. 東北大学)

10:45 ~ 11:00

[2B05] JET-ダイバータタイルのトリチウム分析

鳥養 祐二¹、菊地 絃太¹、*大和田 篤志¹、増崎 貴²、大塚 哲平⁴、芦川 直子^{2,3}、矢嶋 美幸²、時谷 政行²、大矢 恭久⁵、S. E. Lee⁶、波多野 雄治⁶、朝倉 伸行⁷、林 巧⁷、小柳津 誠⁷、J. Likonen⁸、A. Widdowson⁹、M. Rubel¹⁰ (1. 茨城大学、2. 核融合科学研究所、3. 総合研究大学院大学、4. 近畿大学、5. 静岡大学、6. 富山大学、7. 量子科学技術研究開発機構、8. VTT、9. CCFE Culham Science Centre、10. KTH Royal Institute of Technology)

11:00 ~ 11:15

(2022年9月16日(金) 09:40 ~ 11:15 B会場)

[2B01-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

2B01

酸化物分散強化(ODS)合金の照射効果

(横浜国大¹)○大野直子¹

【緒言】

1970年にJ.S. Benjaminがメカニカルアロイニングを開発した当初、ODS合金は航空エンジンのタービンブレードへの適用を目的としていた^[1]。原子力用途として耐スウェリング性の高いフェライト系での合金開発が行われたのは1980年代頃からである。1988年にAsanoら^[2]がMA957の優れたHeバブル制御特性を報告し、1989年にUkaiら^[3]がTi添加によるODS鋼の酸化物粒子微細化を発見して以来、原子炉の炉心材の有力な候補として現在も世界的に開発が進められている。図1はWeb of knowledgeに登録されているODS(oxide dispersion strengthened)と照射(irradiation)をキーワードとした論文数の2022年現在までの推移である。2,500件超のODS合金に関する論文の中で、これまでに約540件の照射に関する報告が存在し、それらのうち180件は中性子照射のものである。

ODS合金が高い耐照射特性を有する理由は、合金マトリクス中に緻密に埋め込まれた酸化物粒子の界面が、照射によって生じる点欠陥やガス原子を捕獲すること、尚且つナノ酸化物粒子が照射下でも概ね安定して存在することによる。酸化物粒子が炭化物や金属間化合物などの微細な析出物粒子と比べて、照射下でも著しく安定である理由は、酸化物粒子構成元素であるY、Oの材料中の固溶限が非常に低く(<1%)、空孔の拡散が可能な温度(概ね>673K)では合金マトリクス中に溶けだしたままでは存在しづらいこと、酸化物の結晶構造が照射を受けた後も比較的安定に存在することによる。

本講演では、酸化物粒子が安定して存在する理由として理解されていることを中心に、照射温度・照射源の種類とエネルギー等に分けて纏めた内容を示し、今後のODS合金の照射研究として必要とされる事項について述べる。

[1] J.S. Benjamin, Met. Trans. 1 (1970) p.2943.

[2] K. Asano et al., J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) pp.928-934.

[3] S. Ukai et al., Proc. Symp. TMS Powder Metall. Com., Indiana, (1989), p.195.

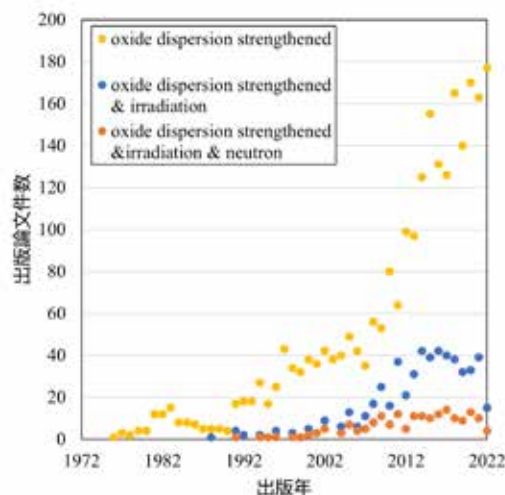


図1 ODS合金とその照射研究に関する出版論文件数の推移

Irradiation effects on oxide dispersion strengthened (ODS) alloys
OONO N.-H.

2B02 鉄中の溶質原子の拡散・析出に対する照射効果

(東北大¹)○外山健¹

原子力分野で用いられる材料の特徴として、高エネルギー放射線環境で利用されることがあげられる。MeV オーダーのエネルギー（化学反応でのエネルギーよりも 10^6 倍も大きい）を持つ放射線に曝された材料では、照射に特有な種々の効果が生じるが、材料学的には、原子が格子点からはじき出されることが最も大きな問題となる。これにより、材料中には熱平衡濃度よりもはるかに多量の原子空孔や格子間原子が導入され、それらが互いに集合することで、空孔クラスターや転位ループと言った格子欠陥集合体が形成される。さらに、過剰な空孔や格子間原子によって溶質（不純物）原子の拡散が著しく促進されることで、溶質クラスターが形成され、粒界では特定元素の偏析／欠乏も生じる。これら微細組織は、照射による材料特性の劣化、すなわち、硬化（脆化）・応力腐食割れ・スエリングなどを引き起こす。

これら微細組織の多くは、サブナノ～ナノメートルサイズとごく小さい。例えば、現行の軽水炉材料での最重要課題の一つである原子炉圧力容器鋼の照射脆化では、照射脆化の主因は直径 2 nm 程度の溶質クラスター（古い鋼材では、特に銅クラスター）や転位ループとされている。これらは材料研究で通常利用される透過電子顕微鏡（TEM）観察のみで理解することは困難であり、3次元アトムプローブ（3D-AP）や陽電子消滅法といった特色ある実験手法も用いた観察、解析が進められている。

本講演では、鉄系材料を例に、拡散や析出に対する照射効果を紹介する。拡散への照射効果研究では、試料として、高純度鉄の一方の端部に高純度銅を蒸着した銅－鉄拡散対を作製し、500℃から 620℃までの種々の温度で電子線照射した。照射後、銅－鉄界面から鉄母材に向かって 3D-AP 測定を行い、銅濃度プロファイルを得た（図 1）。得られた銅濃度プロファイルから鉄中の銅の拡散係数を直接求めた結果、電子線照射下では拡散が顕著に促進されていること、促進の度合いは照射下で存在する原子空孔で良く説明できることが分かった[1]。

講演では、鉄中の銅などの析出が照射下では顕著に促進されることを示し、溶質原子の拡散・析出に対する照射効果を紹介する。

[1] T. Toyama et al., J. Nucl. Mater., 556 (2021) 153176.

（謝辞：東北大金研大洗センターを始めとする共同研究者に謝意を表します。）

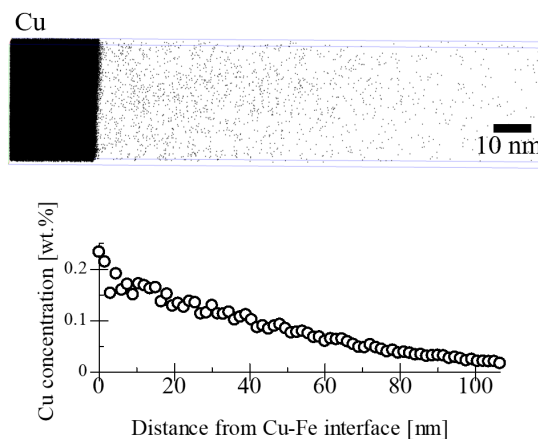


図1：電子線照射された銅－鉄拡散対における銅－鉄界面近傍の銅原子のアトムマップおよび銅濃度プロファイル。

Radiation effect on solute diffusion and precipitation in iron
TOYAMA, T.

2B03

核融合炉用低放射化バナジウム合金の析出挙動に及ぼす照射効果

(核融合研¹、福井大原子力研²、東北大金研³、京大エネ研⁴)○長坂琢也¹、申 晶潔¹、福元謙一²、外山 健³、藪内聖皓⁴

【緒言】バナジウム合金は鉄鋼材料と比較して低放射化特性、高温強度、増殖材液体リチウムとの共存性が良いこと等から、核融合炉ブランケットの構造材料として期待されている。合金元素であるチタンは格子間型不純物炭素、窒素、酸素と析出して母相の延性を改善するスカベンジグ効果を持ち、さらに析出強化も発揮する。照射下で十分な強度と延性を維持するためには、チタンの析出挙動の理解と制御が重要である。

【実験手法】表1に化学成分例を示す。高速増殖炉ではV-15Cr-5Ti合金(BL-21)等が検討されたが、核融合炉では高dpa(はじき出し損傷)での低温延性に優れるV-4Cr-4Ti合金が候補である。中性子及びイオン照射により、照射硬化・脆化を調査している。

【結果と考察】非照射では600℃以上で格子間型不純物がTi-CONとして析出する。中性子照射下では400℃付近から0.1 dpa程度でもTi-CONの析出が観察される。図1にNH2の機械特性と微細組織との相関を示す。Ti-CON析出と転位組織の発達により照射硬化と脆化が進行する。析出物が大きいと、照射硬化が小さくても脆化する場合がある。数10 dpa以上ではさらにTi₅Si₃の照射誘起析出と、それに同期した照射硬化、スエリング抑制の報告があるがその機構は明らかでない[1]。本研究では、イオン照射の結果もあわせて既存データを整理し、析出に及ぼす照射の影響について議論する。

表1 低放射化バナジウム合金の化学成分例 (mass%, *mass ppm)

ID	V	Cr	Ti	C*	N*	O*	Al*	Si*
BL-21 [1]	Bal.	13.7	4.8	180	510	340		1150
US832665 [2]	Bal.	3.25	4.05	170	100	330	355	785
NH2 [3]	Bal.	4.02	3.98	69	122	148	59	270
H44 [4]	Bal.	4.11	3.89	80	30	180	330	940

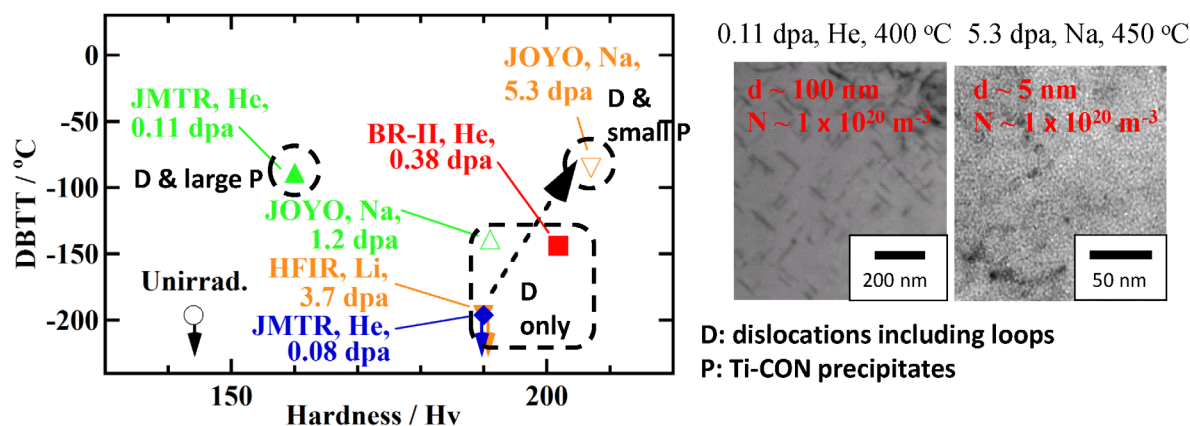


図1 中性子照射後の硬さ、DBTT及び微細組織の相関(照射温度:60~450℃) [5]

[1] H.M. Chung et al., J. Nucl. Mater. 239 (1996) 339-345.

[2] M. L. Grossbeck et al., J. Nucl. Mater., 258-263 (1998) 1778.

[3] T. Nagasaka et al., J. Plasma and Fusion Res. SERIES, 5 (2002) 545.

[4] T. Nagasaka et al., ICFRM-19, Oct. 27-Nov. 1, La Jolla, USA.

[5] T. Nagasaka et al., Fusion Sci. Technol. 60 (2011) 379-383.

Radiation effects on precipitation behavior of low-activation vanadium alloys for fusion reactors
NAGASAKA, T., SHEN, J.J., FUKUMOTO, K., TOYAMA, T., YABUUCHI, K.

2B04 タングステン二元系合金の照射耐性に及ぼす合金元素の物理化学的特性の影響

(富山大¹、東北大²、京大³)○波多野雄治¹、道澤大地¹、

松本あずさ¹、外山 健²、藪内聖皓³、檜木達也³

【緒言】核融合炉プラズマ対向材料であるタングステン(W)が中性子照射を受けると、照射欠陥による捕獲効果のため水素同位体保持量が著しく増大する。これは、真空容器内のトリチウム滞留量の増大につながる重要な問題である。このような観点から我々は、合金元素の添加により照射欠陥の生成と水素同位体保持量の増大を抑制することを目指して研究を進めている。本講演では、W 自己格子間原子(W-SIA)との結合力を基準に選択した4元素(Cr、Mo、Ta、Re)の効果について報告する。

【実験】試料にはWおよびW-0.3%Cr、W-2.5%Mo、W-5%Ta、W-5%Re合金板材(10×10×0.5 mm)を用いた。SuzudoらはDFT計算により、CrとReは比較的強くW-SIAと引力的に相互作用するものの、Moはほとんど相互作用せず、Taは斥力的に相互作用すると予測している[1]。表面を研磨したのち、真空中(10⁻⁵ Pa)で1000℃に1時間試料を加熱した。京都大学DuETにて250℃、500℃、800℃、1000℃で6.4 MeVのFeイオンを0.26 dpaまで照射したのち、²²Na線源を用いて陽電子寿命を測定した。照射後の微細組織を3次元アトムプローブ法で調べた。また、100 kPaの重水素(D₂)ガスに400℃で10時間曝露したうえで、D保持量を昇温脱離法で評価した。

【結果および考察】純Wでは照射前の陽電子寿命は134 psであったが、照射後は約170 psに増大した。これは、照射により空孔やその集合体が形成されたためである。W-2.5%MoおよびW-5%Ta合金でも、Feイオン照射により陽電子寿命が同程度増大した。一方で、W-5%ReおよびW-0.3%Cr合金では、250℃での照射後は僅かな陽電子寿命の増大が見られたが、より高温で照射した場合はほとんど変化がなかった。また、W、W-2.5%Mo、W-5%Ta合金ではFeイオン照射により一桁程度D保持量が増大したが、W-0.3%CrおよびW-5%Re合金では、ほとんど照射効果は見られなかった。以上の結果は、CrおよびRe添加により照射下における空孔型欠陥の回復が著しく促進され、それにより水素同位体の捕獲サイトとして働く空孔型欠陥密度が低下したことを示している。一方で、CrとReでは照射誘起偏析が見られたが、MoおよびTaの分布は照射後も均一であった。これらのことから、以下のように結論した。

- (1) W-SIAと強く引力的相互作用をする合金元素は照射下での空孔型欠陥の回復を促進する。
- (2) その結果、高エネルギー粒子の照射による水素同位体保持量の増大を抑制する。
- (3) W-SIAと強く引力的相互作用をする合金元素は照射誘起偏析を起こす傾向がある。

[1] T. Suzudo, T. Tsuru, A. Hasegawa, J. Nucl. Mater., **505**(2018)15-21.

Correlation between physicochemical properties of alloying elements and radiation tolerance of tungsten binary alloys
HATANO Y., MICHIZAWA D., MATSUMOTO A., TOYAMA T., YABUUCHI K., HINOKI T.

2B05

JET-ダイバータタイルのトリチウム分析

(茨城大学¹、核融合科学研究所²、総合研究大学院大学³、近畿大学⁴、静岡大学⁵、富山大学⁶、量子科学技術研究開発機構⁷、VTT⁸、CCFE Culham Science Centre⁹、KTH Royal Institute of Technology¹⁰) ○大和田篤志¹、鳥養祐二¹、矢嶋美幸²、菊地絃太¹、増崎貴²、大塚哲平⁴、芦川直子^{2,3}、時谷政行²、大矢恭久⁵、S.E.Lee⁶、波多野雄治⁶、朝倉伸行⁷、林巧⁷、小柳津誠⁷、J.Likonen⁸、A.Widdowson⁹、M.Rubel¹⁰

【緒言】JET トカマク装置において、ITER-Like Wall (ILW) 実験が実施され、そのダイバータタイル中のトリチウムの分析を、青森県六ヶ所村のQST六ヶ所研究所で実施した。分析は、 β 線・制動X線を対象とするトリチウムイメージングプレート法 [TIPT(X)・TIPT(β)]、Snの燃焼を利用した完全燃焼法 (FCM) という3つの方法で実施した。その結果、ポロイダル方向のトリチウム分布は、分析方法により異なって見えた。そこで本研究では、トリチウムの深さ方向の分布をFCMにより求めるとともに、TIPTで検出される放射線の脱出深さを計算により評価した。

【実験】プラズマ対向面に平行な向きに薄く切断したタイル試料片をFCMにより測定することで、トリチウムの深さ方向の分布を求めた。また、SRIMコードを用いて、材料中のトリチウムの深さ分布の計算も実施した。WおよびC中でのトリチウムの β 線・制動X線の減衰挙動を、モンテカルロ計算コードPHITSにより計算した。

【結果・考察】タイル中のトリチウムの深さ方向の分布を測定した結果、ほとんどのトリチウムは表面近傍約0.5 mm以内に存在していたが、1 mm以上の深さにもトリチウムは存在した。ILW実験のダイバータタイルは、Cの上に10 μm から20 μm のWを被覆した材料である。SRIM計算より、DD反応で生じる約1 MeVのtritonのW中での飛程が最大でも4 μm 程度であることから、tritonはタイル表面近傍のW層で停止するが、一部は実験の進展とともに内部に拡散し、1 mm以上の深さまで移動したと考えられる。次に、PHITSを用いてトリチウムの β 線・制動X線のWおよびC中での減衰挙動を計算した。図に、W中でのトリチウムの β 線・制動X線の到達距離に対する粒子束の相対強度を示す。材料中で β 線・制動X線が発生時の1%までに減衰する距離は、W中では約0.17 μm ・約2 μm 、C中では約1.2 μm ・約64 μm であることから、TIPTではこれらの深さより表面側に存在するトリチウムの測定が可能である。1 MeVのtritonの表面分布を視覚化するにはTIPT(X)が有効だが、PHITSの計算では制動X線への転換効率は0.4%程度であるため、 β 線と比較して測定効率は高くないと考えられる。TIPTでは照射された領域を含む表面層のトリチウム分布を測定しているが、FCMでは拡散などによりバルクに存在するトリチウムも含んで測定しているため、測定法によって分布が異なって見えたと考えられる。

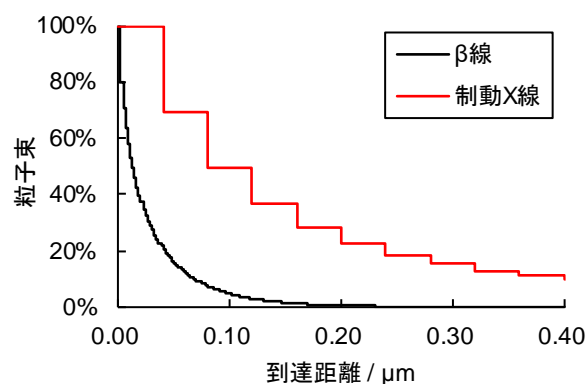


図 W中のトリチウム放射線の減衰挙動計算

Tritium Retention In JET-Divertor Tiles

OWADA A., TORIKAI Y., YAJIMA M., KIKUCHI G., MASUZAKI S., OTSUKA T., ASHIKAWA N., TOKITANI M., OYA Y., S.E.LEE, HATANO Y., ASAKURA N., HAYASHI T., OYAIIDZU M., J.LIKONEN, A.WIDDOWSON, M.RUBEL

基盤セッション 炉材料・照射効果 | 基盤セッション H: 炉材料・照射効果

基盤セッション H: 炉材料・照射効果

座長:波多野 雄治(富山大学)

2022年9月16日(金) 11:20 ~ 12:30 B会場 (206室)

Zoomはこちら

[2B06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2B06] タングステン中の水素同位体移行挙動に対する照射効果

*小林 真^{1,2} (1. 核融合科学研究所、2. 総合研究大学院大学)

11:20 ~ 11:45

[2B07] タングステン中における水素同位体輸送に及ぼすヘリウムの役割

*大矢 恭久¹、孫 飛²、平田 詩織¹、芦川 直子³、檜木 達也⁴、波多野 雄治⁵ (1. 静岡大学、2. 合肥工業大学、3. 核融合科学研究所、4. 京都大学、5. 富山大学)

11:45 ~ 12:00

[2B08] 中性子照射した固体トリチウム増殖材料からのトリチウム放出挙動に関する研究

*一本杉 旭人¹、片山 一成¹ (1. 九州大学)

12:00 ~ 12:15

[2B09] 鉛入り Li_2TiO_3 - Li_4SiO_4 混合セラミックス材からのトリチウム脱離挙動

*平田 詩織¹、周 啓来²、小林 真³、大矢 恭久¹ (1. 静岡大学、2. 武漢理工大学、3. 核融合研)

12:15 ~ 12:30

(2022年9月16日(金) 11:20 ~ 12:30 B会場)

[2B06-09-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

2B06 タングステン中の水素同位体移行挙動に対する照射効果

(核融合研¹、総研大²) 小林 真^{1,2}

【緒言】

核融合炉真空容器壁材料であるタングステンは、中性子などの照射により核融合炉燃料であるトリチウムを含む水素同位体滞留量が大幅に増加することが明らかとなった。これは照射により生じる照射欠陥により水素同位体が安定に捕獲されることが原因と考えられる。このような照射効果を明らかにすると共に、炉運転に伴う照射欠陥蓄積量を定量的に見積もることができれば、真空容器内トリチウム滞留量が予測可能となる。本研究では、照射欠陥の移行現象を予測するための計算コード開発を実装し、照射欠陥に捕獲された水素同位体密度の実測データとの比較から、本コードの妥当性評価を行った。

【計算方法】

本コードでは、タングステン結晶粒を円柱形状($r=0.5 \mu\text{m}$, $z=10 \mu\text{m}$)と簡略化して取り扱う。照射欠陥である原子空孔と格子間原子について、これらの照射欠陥はその集合数によりタングステン中での移行速度が変化する。即ち、集合数・温度に応じて拡散係数、熱分解速度定数、照射欠陥同士の反応速度係数等が異なるため、それらを考慮して計算に組み込んだ。照射イオンとして、 6.4 MeV Fe^{2+} 、 20 MeV W^{6+} などを採用し、イオン照射により発生するノックオン数とカスケード散乱で発生する照射欠陥の数を考慮した分布関数を用いて照射欠陥生成速度を定義した。上記イオン照射量の増加に伴う照射欠陥の深さ分布について評価を行った。

【結果・考察】

図は計算により評価された、照射温度 523 K において、 6.4 MeV Fe^{2+} を照射したタングステン中の原子空孔密度の深さ分布である。最大照射量は SRIM(Stopping Range of Ions in Mater)コードにより評価された欠陥生成速度から外挿して 0.5 dpa 相当である。原子空孔密度の深さ分布は SRIM コードによる評価と類似しているが、飛程である $1.2 \mu\text{m}$ 付近から表面にわかり比較的平坦となること、表面付近で密度が急上昇することなど、差異が確認された。また、原子空孔密度は $0.2\sim 0.3 \text{ dpa}$ 付近から飽和傾向にあることも図から明らかである。このように評価された原子空孔密度について、同様の条件で照射され、重水素吸蔵されたタングステン中の重水素密度分布と比較したところ、分布、密度共に良い一致を示した*。本講演では、原子空孔の集合過程やアニーリング、水素同位体の移行現象との関連も含め議論を行う。

*) Y. Hatano et al., *Nuclear Materials and Energy*, 9 (2016) 93–97.

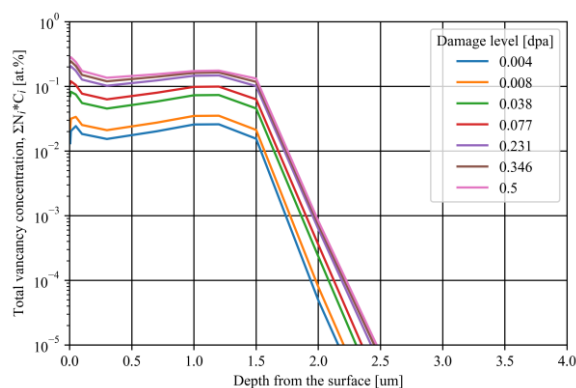


図 照射温度 523 K にて 6.4 MeV Fe^{2+} を照射したタングステン中の原子空孔密度の深さ分布

Radiation effects on the hydrogen migration behaviors in tungsten
KOBAYASHI, I. M.

2B07

タングステン中における水素同位体輸送に及ぼすヘリウムの役割

(静岡大¹、合肥工業大²、核融合研³、京都大⁴、富山大⁵)○*大矢恭久¹、孫飛²、平田詩織¹、芦川直子³、檜木達也⁴、
波多野雄治⁵

【緒言】核融合炉におけるプラズマ対向壁中のトリチウム移行挙動の理解は安全性評価の観点から重要である。DT核融合反応によりヘリウムがプラズマ中で生成し、プラズマ対向壁に照射されるとともに、バルク内では(n,α)反応によりヘリウムが生成する。そのため、水素同位体輸送挙動を理解するためにはヘリウムの役割について明らかにする必要がある。そこで、本研究ではヘリウムの影響をHIDT (Hydrogen Isotope Diffusion and Trapping)シミュレーションで評価するとともに、プラズマ駆動水素透過挙動に及ぼすヘリウムの影響について考察した。

【実験】タングステン試料を京都大学 DuET 装置にて 6.4 MeV Fe³⁺と最大 1MeV までの He⁺を室温から 1073 K までの温度範囲で同時に照射した。その後、静岡大学にて 1 keV D₂⁺照射を室温で 1.0×10²² D⁺ m⁻²まで行った後、昇温脱離(TDS)にて重水素の脱離挙動を調べた。また、HIDT コードを用いてタングステン中での水素の挙動を評価した。さらに、プラズマ駆動透過装置(PDP)を用いて、H+D+He 混合プラズマにおける水素同位体透過挙動について評価した。

【結果と考察】図に 0.1 dpa Fe³⁺および He 照射したタングステンにおける TDS スペクトルおよび HIDT コードを用いてシミュレーションした結果を示す。He 照射効果を考慮するために、照射欠陥のみならず、拡散障壁および捕捉・脱捕捉の影響を考慮することで、HIDT シミュレーションで実験結果をよく再現することが示された。特に、He 照射では重水素の拡散が抑制されるため、バルクでの重水素の滞留が増加する。また、He の存在によりボイド等の捕捉エネルギーが高い捕捉サイトへの重水素滞留が低減されることが示唆された。

PDP にて He 混合プラズマ (H+D+He) 照射を行った際に He を 10%混合すると、高温での水素同位体の透過が一桁以上低減されることが示された。これは上流側表面での He バブル形成が水素同位体の拡散障壁となっていることが示唆され、HIDT シミュレーションの結果とよく一致すると考えられる。

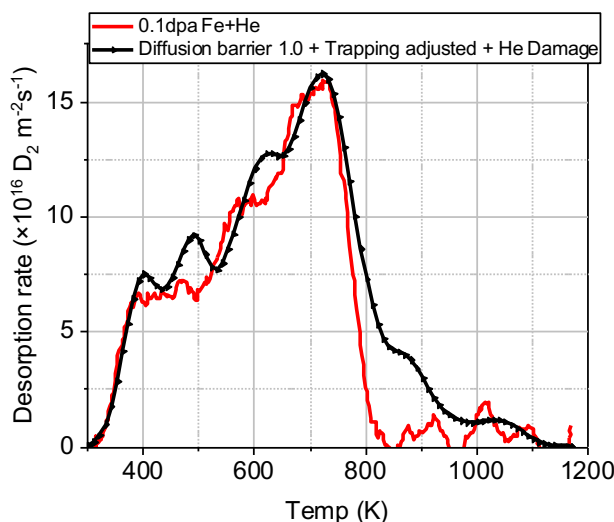


図 0.1 dpa Fe³⁺および He 照射したタングステンにおける TDS スペクトルと HIDT シミュレーション結果

ROLE OF HELIUM ON HYDROGEN ISOTOPE TRANSPORT IN TUNGSTEN
OYA Y., SUN F., HIRATA S., ASHIKAWA N., HINOKI T., HATANO Y.

2B08 中性子照射した固体トリチウム増殖材からのトリチウム放出挙動に関する研究

(九州大¹)○一本杉旭人¹、片山一成¹

【緒言】 核融合炉では、核融合反応生成中性子とリチウムとの核反応により生成された増殖トリチウムを回収・精製・再供給する持続的な燃料サイクルが必須である。燃料サイクル内でのトリチウム移行挙動は増殖材からの放出化学形の影響を受けるため、トリチウム化学形ごとの放出挙動理解が必要となる。本研究では、ITER-TBM ならびに原型炉での候補材料であるリチウムセラミック微小球に対して、京都大学研究用原子炉にて中性子照射試験を行い、トリチウムの放出挙動を観測した。

【実験】 量子科学技術研究開発機構で作製された Li_2TiO_3 ($\text{Li}/\text{Ti} = 2.00$) (以下 Pebble200) 並びに $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 20\text{wt}\% \text{Li}_2\text{ZrO}_3$ (以下 LTZO) を試料として用いた。トリチウム放出挙動が表面反応に大きく影響を受けることから、Ar 及び $1000 \text{ Pa H}_2/\text{Ar}$ ガス流通下で 900°C まで $5^\circ\text{C}/\text{min}$ の等速昇温条件にて、as-received 試料の水分脱離挙動を観測した。また、原型炉ブランケット増殖材充填層の最低温度付近である 300°C で十分な時間水分を脱離させた後、フルエンス $1.65\text{E}10^{15} / \text{cm}^2/\text{sec}$ で熱中性子照射 ${}^6\text{Li} (n, \alpha) {}^3\text{H}$ を実施した。Ar, $1000 \text{ Pa H}_2/\text{Ar}$, $16000 \text{ Pa H}_2\text{O}/\text{Ar}$, $40000 \text{ Pa O}_2/\text{Ar}$ ガス(Pebble200 のみ)を流通し、同様の昇温条件下で加熱し、試料からのトリチウム放出挙動を観測した。酸化銅と 2 つの電離箱、水バブラーを用いて、トリチウムを化学形ごと (HTO/HT) に測定、回収した。

【結果】 Pebble200 の水分放出挙動は、化学吸着水脱離 (300°C)、 LiOH の熱分解 (約 450°C)、 TiO_2 と H_2 との水分生成 (約 720°C) で構成された。LTZO の場合、これに加えて、約 900°C における Zr 酸化物と H_2 との水分生成ピークが確認された。Ar, H_2 雰囲気下での各試料のトリチウム放出実験では、凡そこれらのピーク温度に一致して HTO の化学形で放出された (Fig. 1)。つまり、核変換生成トリチウムが試料内部を拡散した後、一旦は表面で捕捉されるが、水分脱離とともにトリチウムの放出が進行することになる。更に Pebble200 の Ar, H_2 , H_2O 雰囲気下において、高温域におけるブロードな HTO の放出が確認された。各試料の各条件において、HTO での放出がトリチウム放出の 50% を超える結果となり、実際の核融合炉では、材料からの水分脱離や酸化物との水分生成反応が優位な間は HTO での放出が続くと予想される。また、同じ照射条件の試料では、同じ放出量が期待されるが、ページガス種による回収量の差が大きいことも観測された。

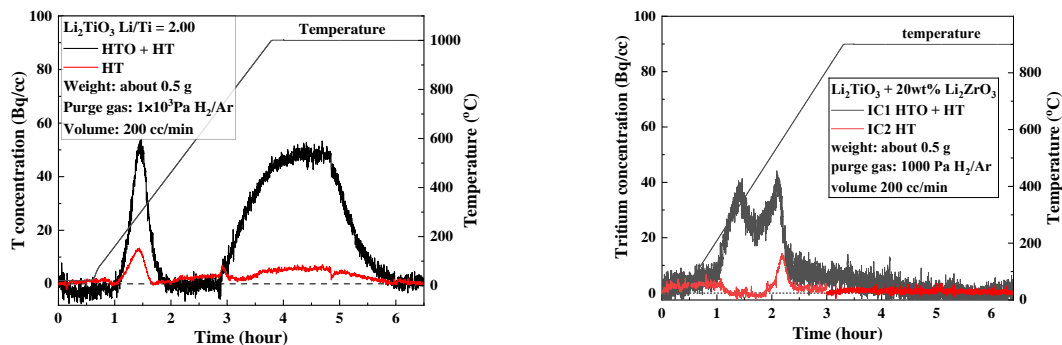


Fig.1 H_2 雰囲気下におけるトリチウム放出挙動 左) Pebble200、右) LTZO

謝辞 本研究は、幅広いアプローチ(BA)活動の支援の下に実施したものである。

Study on Tritium Release Behavior from Neutron Irradiated Li_2TiO_3
IPPONSUGI A., KATAYAMA K.

2B09 鉛入り $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ 混合セラミックス材からのトリチウム脱離挙動

(静岡大¹, 武漢理工大学², 核融合研³)

○平田詩織¹, 周啓来², 小林真³, 大矢恭久¹

研究背景

核融合炉ブランケットではリチウム(Li)と中性子を反応させ、トリチウムを生成する。そのため、ブランケット材料にはより多くのトリチウムを生成させるために Li 原子密度が高いこと、生成したトリチウムを放出しやすいことなどが求められる。 Li_4SiO_4 は Li 原子密度が高く、 Li_2TiO_3 はトリチウム回収が容易であることから、この2つは固体トリチウム増殖材の候補として注目されている。また、 $\text{Li}_4\text{SiO}_4\text{-Li}_2\text{TiO}_3$ 混合セラミックス材はこれらの材料の長所を兼ね備えることが期待されている。本研究では、さらなるトリチウム増殖率増加を目的に、鉛(Pb)を含有させることで中性子増倍効果を高めた鉛 5 wt% 混合 $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4\text{-Pb}$ 試料に注目し、これに中性子照射した後、昇温脱離法(TDS)にてトリチウム放出挙動を評価した。

実験方法

武漢理工大学にて調整した $2\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ 試料および $2\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4\text{-Pb}$ 試料を京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉(KUR)にてフルエンス $3.96 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$ 、速中性子フルエンス $8.64 \times 10^{15} \text{ n cm}^{-2}$ まで中性子照射した。その後、静岡大学のトリチウム TDS 装置にて室温から 1113 K まで昇温速度 $10\text{-}30 \text{ K min}^{-1}$ で TDS を行った。また、加熱によって放出されたトリチウムを水バブラーに集積し、液体シンチレーションカウンターによってトリチウム放出量を評価した。

結果・考察

表 1 液体シンチレーションカウンターでの測定結果

試料	Li 密度 (g cm^{-3})	トリチウム放出量 の理論値(MBq g^{-1})	HTO (MBq g^{-1})	HT (MBq g^{-1})
$2\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4\text{-Pb}$	0.44	76.6	2.65	0.031
$2\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$	0.48	81.6	1.40	0.008

表 1 から各昇温速度でのトリチウム放出量の平均値を比較すると、鉛入り試

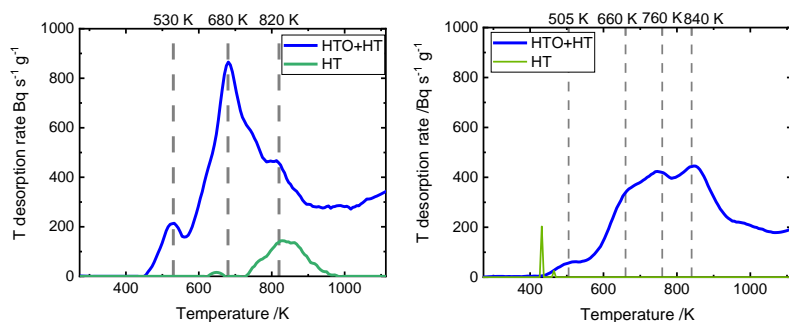


図 1 30 K min^{-1} でのトリチウム TDS スペクトル
(左) $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4\text{-Pb}$ (右) $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$

料のほうがトリチウム放出量は多かった。なお鉛入り試料のトリチウム放出量の理論値は、鉛による中性子増倍効果を考慮していない値である。また図 1 の TDS

スペクトルを比較すると、鉛入り試料の方が脱離速度は速くピークの数が多いことから、鉛を加えたことによってトリチウムの回収が容易になることがわかった。

TRITIUM RECOVERY BEHAVIOR FOR TRITIUM BREEDER $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4\text{-Pb}$ BIPHASIC MATERIAL

HIRATA S., ZHOU Q., KOBAYASHI I. M., OYA Y.

特別セッション 放射化学と地球化学との接点 | 特別セッション 3 放射化学と地球化学との接点

特別セッション 3 放射化学と地球化学との接点

座長:木下 哲一(清水建設)、薬袋 佳孝(武蔵大学)

2022年9月16日(金) 09:40 ~ 10:55 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[2C01-03-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2C01] 元素の起源と地球化学

*横山 哲也¹ (1. 東京工業大学理学院地球惑星科学系)

09:40 ~ 10:05

[2C02] 発見から50年：オクロ天然原子炉は何をもたらしたか？

*日高 洋¹ (1. 名古屋大学)

10:05 ~ 10:30

[2C03] 消滅核種ハフニウム-182を用いた年代測定

*佐野 有司¹ (1. 高知大学)

10:30 ~ 10:55

(2022年9月16日(金) 09:40 ~ 10:55 C会場)

[2C01-03-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

2C01 元素の起源と地球化学

(東京工業大学¹)○横山哲也¹

【緒言】 我々の身の回りのものは全て元素で構成されている。地球上に自然に存在する元素は約 90 種類ある。実験室で人工的に合成される不安定元素を加えると 118 種類の存在が確認されており、すべての元素に固有の名前、原子番号、記号が付けられている。原子は、陽子と中性子からなる原子核と核外電子から構成されている。原子の物理的性質は、原子核を構成する陽子と中性子の数によって特徴づけられ、最終的に元素の性質を支配している。宇宙では、既存の原子核、陽子、中性子、素粒子から核融合反応によって新しい原子核が生み出されてきた。

【元素合成理論】 宇宙において、元素はビッグバンとその後の恒星進化に伴って作られてきた。まず、ビッグバンによって ^1H 、 ^2H 、 ^3He 、 ^4He などの軽核種が合成され、更にごく微量の ^7Li が作られた。その後、星の誕生から死に至るサイクルにおいて、種々の核合成が行われる。主系列星は ^1H を核融合して ^4He を生成し、次いで赤色巨星 (RG) では ^4He を核融合して ^{12}C と ^{16}O が生成される。ここから先の元素合成過程は、星の初期質量に依存する。中小質量星は漸近巨星分枝 (AGB) 段階へと進化し、銀河における C, N, O の重要な供給源となる。AGB 星は核合成を行わない白色矮星に進化するが、連星系の AGB 星は Ia 型超新星となり、 ^{56}Fe などを合成する。一方、RG 段階にある大質量星では、炭素燃焼を引き起こして ^{20}Ne を合成し、その後、ネオン燃焼、酸素燃焼、ケイ素燃焼の連続反応を経て、 ^{56}Ni が生成されるまでに至る。最終的に大質量星の中心核は圧力を失って重力崩壊を始め、外層部の爆発 (重力崩壊型超新星) が起こり、いくつかの爆発的核合成が行われる。一方、鉄より重い核種は、AGB 星などで起こる s プロセスや、重力崩壊型超新星および中性子星合体で生じる r プロセスなどで合成される。また、太陽系に存在するマイナーな核種 (Li, Be, B, p-核種など) を説明するためには、これらとは別の元素合成過程が必要である。

【元素合成と地球化学】 これまで、宇宙における元素合成は天文学的、および理論的アプローチで研究されてきた。一方、近年では質量分析技術の革新により、隕石とその構成要素 (CAI・コンドリュール・プレソーラー粒子など) の同位体組成を精密に決定することが可能になった。特に、プレソーラー粒子の同位体組成分析は、粒子が形成された恒星環境の物理的条件を制約するために極めて重要な役割を果たした。本講演では、宇宙の元素合成について概説し、これに関連して地球外物質の高精度同位体分析による地球化学的応用の最近の進展について紹介する。

Origin of the Elements and Geochemistry
YOKOYAMA, T.

2C02

発見から 50 年：オクロ天然原子炉は何をもたらしたか？

(名大環境¹)○日高 洋¹

中央アフリカ・ガボン共和国東部にあるウラン鉱床の一つ、オクロ鉱床の内部にて核分裂連鎖反応が過去に生じた痕跡があることがフランス原子力庁（CEA）により報告されたのは 1972 年（9 月 25 日）のことであった。いわゆる天然原子炉の発見である。その後、CEA と欧州共同体（EC）を中心に、3 度にわたるコンソーシアム研究が実施され、1999 年にオクロ鉱床は閉山となった。今年天然原子炉発見から 50 周年にあたる。本講演では、50 年の間に天然原子炉をとりまく研究はどのようなものがあったか、何をもたらしたかについてとりまとめることとする。

天然原子炉発見に先駆け、その 16 年前に発表されていた Kuroda(1956)による天然原子炉理論は、21 億年以上前に形成された天然のウラン鉱床が核分裂臨界に達し得る可能性を指摘しており、オクロ鉱床における現象をまさに予言していたということで脚光を浴び、話題となった。

オクロ鉱床は碎石場の敷地面積として約 1000×400m に及ぶ大規模な堆積性のウラン鉱床であるが、そのすべての部分で 20 億年前に原子炉現象が起こったわけではなく、鉱床内に点在する原子炉ゾーンと呼ばれる数～十数 m 径の限られた 16 か所（のちに 15 か所に訂正）の領域において反応の痕跡が見いだされている。原子炉ゾーンでは今から約 20 億年前に ^{235}U を主反応源とする核分裂連鎖反応が 2 万～60 万年にわたり断続的に起こった結果、大量の核分裂生成物と中性子が鉱床内に発生した。これら核分裂生成物の大部分は当時、放射性核種であったが、20 億年を経た現在はずべて安定核種へと壊変し尽くされている。各元素の安定同位体組成の変動度を定量的にみることで、各元素における核分裂起源と非核分裂起源の同位体の比率を算出することができる。原子炉ゾーン内外から採取された試料について各元素の同位体組成を調べることで、核分裂起源核種の保持・拡散の度合いを追跡することが可能となる。これは放射性廃棄物の地層処分のためのナチュラルアナログとして重要な知見を与えるものとしてコンソーシアム研究の主課題となっていた。

上記主要目的以外に、一風変わった研究も展開されている。Shlyakhter(1976)は、天然原子炉内で 20 億年前に引き起こされた核反応のうち、 ^{149}Sm の中性子捕獲反応 $^{149}\text{Sm}(n,\gamma)^{150}\text{Sm}$ による Sm 同位体組成の変動に着目し、素粒子の結合定数の時間変化に制約を与えることを提案した。20 億年前に天然原子炉内で起こった $^{149}\text{Sm}(n,\gamma)^{150}\text{Sm}$ の反応に基づく Sm 同位体変動から算出される ^{149}Sm の中性子捕獲反応断面積と、20 億年の時間が経過した現在の ^{149}Sm の中性子捕獲反応断面積とを比較することで、両者のずれが素粒子の結合定数の変化によるとの考えのもとに、その時間変化の上限 ($<10^{-17} \text{ yr}^{-1}$) を定めた。その後、これを追跡する研究がなされているが、結論に変わりはない (Damour and Dyson, 1994; Fujii et al., 2000; Berengut and Flambaum, 2012)。

また、オクロ鉱床を胚胎する堆積層の上部にあたる黒色頁岩層で 2010 年に発見された大型生物化石は、その大きさや多様性など、地球生命進化史の見地から興味もたれているが、天然原子炉の反応との関係は定かではない (El Albani et al., 2010; 2014)。

50 years anniversary of the first discovery: What did the Oklo natural reactors provide us?
HIDAKA, H.

2C03 消滅核種ハフニウム-182 を用いた年代測定 (高知大海洋コア) ○佐野有司

【緒言】 岩石や鉱物の形成年代を測定する方法には2つのタイプが知られている。第一は地球の年齢と比較できる長半減期の核種の放射壊変を利用するもので ^{238}U - ^{206}Pb 、 ^{87}Rb - ^{87}Sr 法などが知られている。第二は、かつては存在していたが現在では壊変によって検出不可能な量まで減少している消滅核種を利用するもので ^{26}Al - ^{26}Mg 、 ^{129}I - ^{129}Xe 法などが報告されている。前者は大陸地殻の形成、火山活動の推移など様々な地学現象の解明に応用されてきたが、後者は隕石等の太陽系初期や冥王代(40億年以前)の地球試料を対象としてきた。本研究では、後者の代表としてジルコン鉱物を用いた ^{182}Hf - ^{182}W 法の最近の成果について報告する。

【実験】 隕石試料としては、約46億年前に分化した石鉄隕石の一種であるメソシデライト (Asuka882023) のケイ酸塩部分に包有されるジルコン鉱物を用意した。地球試料としては、西オーストラリア・ジャックヒルズ地域で採取された堆積岩から抽出されたジルコン鉱物を用いた。後者については約30億年から44億年までの幅広い年代を示すことが知られている(1)。本研究では、初めに簡易的なレーザーアブレーション-ICP質量分析計により38億年より古い試料を選択した。選ばれたジルコン試料は研磨により鏡面仕上げの後で金蒸着を行った。年代測定はすべて東京大学大気海洋研究所に設置された二次イオン質量分析計(NanoSIMS50)を用いて行った。初めに直径約7 μm の一次酸素イオンビームを照射し、放出されるジルコニウム、ウランおよび鉛同位体イオンを質量分解能4,000で計測した(2)。次に同じイオンビームで質量分解能を10,000まで上げてジルコニウム、ハフニウム、タングステン同位体イオンを測定した。

【結果と解釈】 メソシデライト (Asuka882023) のジルコンの ^{238}U - ^{206}Pb および ^{207}Pb - ^{206}Pb 年代はおおの 4375 \pm 150Ma (1 σ) と 4502 \pm 38Ma (1 σ) であった(3)。一方、消滅核種を用いた年代測定では絶対年代は求まらず、アイソクロン図上での傾きの差から相対年代を求める。これを形成年代に直すためには、アンカーと呼ばれる絶対年代が既知の試料を同じ条件で分析する必要がある。本研究では小惑星ベスタの地殻物質とされ、玄武岩質ユークライトに分類される Agoult 隕石から分離されたジルコンをアンカーとした。この ^{207}Pb - ^{206}Pb 年代は 4554.5Ma と正確に報告されている(4)。 $^{180}\text{Hf}/^{186}\text{W}$ - $^{182}\text{W}/^{186}\text{W}$ のアイソクロン上でアンカーは $^{182}\text{W}/^{180}\text{Hf} = 3.1 \pm 0.7 \times 10^{-5}$ の傾きを示した。一方、メソシデライトは $6.67 \pm 3.70 \times 10^{-6}$ の傾きを示した。傾きの差から求まる相対年代は +21.7 $^{+5.7}_{-10.4}$ Ma (1 σ) となった。従って、Asuka882023 の絶対年代は 4532.8 $^{+5.7}_{-10.4}$ Ma (1 σ) と決定された(3)。メソシデライト・ジルコンと同様の作業をジャックヒルズ・ジルコンについても行っており、詳細は討論会において発表する予定である。

【文献】 (1) Wilde et al. (2001) *Nature* **409**, 175. (2) Takahata et al. (2008) *Gondw Res* **14**, 587. (3) Koike et al. (2017) *Geophys Res Lett* **44**, 1251. (4) Iizuka et al. (2015) *Earth Planet Sci Lett* **409**, 182.

Radiometric dating using extinct nuclide Hf-182
SANO Y.

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:大貫 敏彦、佐々木 祥人

2022年9月16日(金) 11:00 ~ 12:30 C会場 (207室)

Zoomはこちら

[2C04-07-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2C04] 原発災害被ばく後10年間における野生ニホンザルの健康影響評価

*羽山 伸一¹ (1. 日本獣医生命科学大学)

11:00 ~ 11:25

[2C05] 福島県富岡町でのオートラジオグラフィによる植物体の放射性汚染の評価

*井伊 博行¹ (1. 和歌山大学システム工学部)

11:25 ~ 11:50

[2C06] ウラン鉱山たいせき場に自生するヨシにおける重金属蓄積機構: 内生細菌の関与を考慮して

*春間 俊克¹、山路 恵子²、中本 幸弘²、土山 紘平²、高橋 嘉夫³、田中 万也⁴、香西 直文⁴、福山 賢仁⁴ (1. 北海道大学、2. 筑波大学、3. 東京大学、4. 日本原子力研究開発機構)

11:50 ~ 12:15

[2C07] Ra-226除去に向けた微生物を利用したマンガン酸化物生成過程におけるアルカリ土類金属除去

*加藤 友彰¹、Yu Qianqian²、大貫 敏彦¹ (1. JAEA、2. 中国地質大学)

12:15 ~ 12:30

(2022年9月16日(金) 11:00 ~ 12:30 C会場)

[2C04-07-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

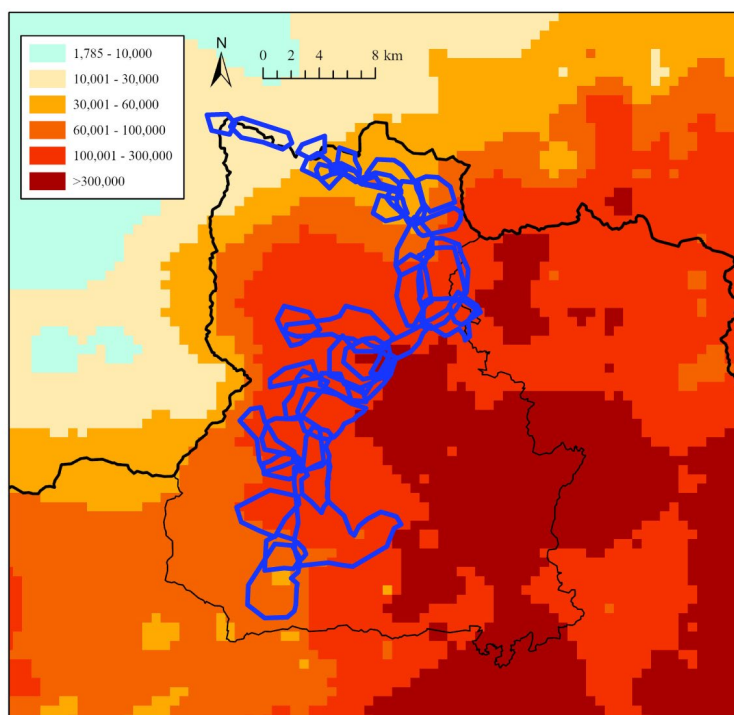
Zoomはこちら

2C04 原発災害被ばく後 10 年間における野生ニホンザルの健康影響評価

(日本獣医生命科学大学)○羽山伸一

2011 年にニホンザルが野生霊長類としては世界で初めて原発による放射線被ばくをした。演者らは福島市に生息する本種を対象に筋肉中放射性セシウム濃度を測定するとともに、臨床医学的検査を実施している。その結果、造血機能の低下、胎子の体成長および脳の発達遅滞を明らかにした。本講演では、被ばく後 10 年間における筋肉中放射性セシウム濃度や胎子成長の経時的推移などを報告する。

図 調査地の放射性セシウム
土壌沈着量 (Bq/m^2 , 2011 年 7
月) とニホンザルの群れ (青色
の囲みが各群れの行動域) の
分布



既発表論文

Hayama S. et al. Concentration of radiocesium in the wild Japanese Monkey (*Macaca fuscata*) over the first 15 months after the Fukushima Daiichi Nuclear Disaster. *PLOS ONE* 8(7): e68530. (2013)

Ochiai K, *Hayama S, et al. Low blood cell counts in wild Japanese monkeys after the Fukushima Daiichi nuclear disaster. *Scientific Reports* 4: 5793. (2014) (*corresponding author)

Hayama S. et al. Small head size and delayed body weight growth in wild Japanese monkey fetuses after the Fukushima Daiichi nuclear disaster. *Scientific Reports* 7: 3528. doi.org/10.1038/s41598-017-03866-8 (2017)

Omi T,..., Hayama S. Distribution of ^{137}Cs in the organs and tissues of wild Japanese monkeys after the Fukushima Daiichi nuclear disaster. *BMC Research Notes* 13, Article number: 121 (2020).

Health impact assessment of wild Japanese monkeys 10 years after exposure to nuclear disaster.
HAYAMA S.

2C05

福島県富岡町でのオートラジオグラフィによる植物体の放射性汚染の評価

(和歌山大学システム工学部)○井伊博行

【緒言】 2011年3月に発生した東日本大震災で東京電力福島第一発電所では炉心溶融、水素爆発に伴い核分裂精製核種（放射性物質）が環境中に放出された。この事件から10年以上経過した状況で、放出された放射性物質の生態系（植物）の影響を調べるために、オートラジオグラフィを用いて植物や周辺生物への放射性物質の取り込み状況を調べた。

【実験】 調査地点は、福島県富岡町の帰宅困難地域外で、事故後10年以上経過した2021年11月以降に植物、昆虫、菌（キノコ）類を採取した。採取したサンプルを乾燥させた後に、イメージングプレートの上に1ヶ月ほど放置してから、スキャナーで感光状態を読み取り解析した。

【結果】 林地では、表層の腐植や腐植土層の上部では放射線の強度が強く、画像処理結果、よく感光していることが分かった。そこで、今回のサンプリングでは、表層の腐食、腐植土層から植物がどの程度放射性物質を吸収するかを調べるために、腐食や腐植土層から根が生えている幼木や1年生の植物（根の浅い）を対象に調べた。その結果、腐食や腐植土層に比べて、植物の多くは、放射性物質をほとんど吸収していないことが分かった。特に、腐食や腐植土層に接している根でも良く水洗いすると、感光せず、吸収されていないことが分かる。一方、カワラタケなどの菌類は、濃度は高い。特に、胞子を放出する側が高い。ただし、カワラタケは、木の樹皮に生えており、樹皮に付着したか、樹皮にまで根から吸収された放射性物質を吸収したものと考えられる。一方、森林の林床に生えて、菌類から栄養を取っている特別な植物（腐食植物）であるツツジ科のギンリョウソウ（光合成をしない）では、放射性物質の濃度が高い。

【考察】 一般の根から土壌栄養分を吸収するタイプの植物は放射性物質濃度が低いが、菌類や菌類から直接栄養を取っている植物は、放射性物質濃度が高いことが、これまでの結果で分かった。腐食や腐植土層に含まれる放射性物質は植物の根からの吸収では移動が小さく、菌類は樹皮にしる、腐植や腐植土層から容易に移動させることが分かった。今までの研究で降下放射性物質は、 ^{137}Cs （半減期約30年）、 ^{134}Cs （半減期約2.1年）と考えられることから、セシウムは腐食や腐植土層から植物の根に移動しにくい状態にあるが、菌類では容易に体内に移動することが分かった。



図1 カワラタケのオートラジオグラフィ
胞子のある側（表が黒い）が高い

図2 ギンリョウソウのオートラジオグラフィ

Evaluation of radioactive contamination for plants using autoradiograph in Tomioka Town, Fukushima, Japan. II, H

2C06

ウラン鉱山たいせき場に自生するヨシにおける重金属蓄積機構：内生細菌の関与を考慮して

(北海道大学¹、筑波大学²、東京大学³、日本原子力研究開発機構⁴)○春間俊克¹、山路恵子²、中本幸弘²、土山紘平²、高橋嘉夫³、田中万也⁴、香西直文⁴、福山賢仁⁴

調査地としたウラン鉱山跡地は坑水処理に利用している鉱さいたいせき場を有する。鉱さいたいせき場では 1998 年以降ヨシの自生が確認されている。ヨシは節根に鉄の沈殿物である鉄プラークを形成し、他の重金属を吸着することで水質を浄化すると考えられている。このように、ヨシのような植物が有する浄化能力を用いた持続可能な浄化処理方法はパッシブトリートメントと呼ばれ、長期的かつ比較的低コストの低い坑水処理技術として注目されている。植物が坑廃水から重金属を吸収・蓄積するためには、植物自身が重金属耐性を有する必要がある。近年、植物に内生する細菌（内生細菌）が植物の重金属耐性を付与あるいは増強することが報告されている。そこで本研究では、内生細菌が関与するヨシの重金属蓄積機構を明らかにすることを目的とした。調査地に自生するヨシの重金属元素分析を行った結果、節根に高濃度の鉄やマンガンおよびウランを高濃度に蓄積しており、特に鉄プラークを形成する節根での蓄積が顕著であったことから、鉄プラークはヨシにおける主要な重金属蓄積部位と考えられた。続いて、ヨシの節根に形成された鉄プラークにおける鉄およびウランの局在部位を SPring-8 の BL37XU で解析したところ、鉄と共にウランの局在が確認された。以上からヨシの節根に形成された鉄プラークがウランを吸着することで、ヨシのウラン吸着能に寄与していると考えられた。また高エネルギー加速器研究機構 Photon Factory の BL-4A および BL-12C において、鉄プラークの化学形態と結晶性を測定した結果、約 90% の鉄がフェリハイドライトであると共に、生物由来の有機物が含まれることが判明した。鉄プラーク形成に関わる有機物の供給源として、内生細菌がある。内生細菌の産生する有機化合物には siderophore という重金属元素と錯体形成する化合物が知られており、代表的な siderophore には catechol 骨格を有するものが多く存在し、本骨格を有する化合物は鉄と沈殿を生じるという報告がある。以上のことから本研究では、本調査地のヨシの節根周囲に確認された鉄プラークの形成に内生細菌の産生する siderophore が関与するという仮説を立てた。本調査地に自生するヨシの節根から内生細菌を分離し、siderophore 産生能を評価したところ、分離された 837 菌株の内生細菌のうち 88.6% に当たる 742 菌株が siderophore 産生能を示した。DNA 解析の結果、高い siderophore 産生能を示した 10 菌株は *Pseudomonas* 属細菌、*Herbaspirillum* 属細菌、および *Rhizobium* 属細菌と同定された。これらの菌株の培養ろ液に二価あるいは三価の鉄イオンを加えたところ、*Pseudomonas* 属細菌と *Rhizobium* 属細菌の培養ろ液において沈殿が確認されたことから、siderophore を産生する内生細菌は鉄プラークの形成に寄与し、ヨシの重金属蓄積に関与すると考えられた。

Heavy metal tolerance of *Phragmites australis* naturally growing at a sedimentation site in an uranium mine associated with endophytic bacteria

Haruma T., Yamaji K., Nakamoto Y., Doyama K., Takahashi Y., Tanaka K., Kozai N., Fukuyama K.

2C07

Ra-226 除去に向けた微生物を利用したマンガン酸化物生成過程におけるアルカリ土類金属除去

(JAEA¹、中国地質大学²)○加藤友彰¹、Yu Qianqian²、大貫敏彦¹

【緒言】 岡山県の人形峠の鉍排水中にはアルカリ土類金属である Ra が検出されている。Ra-226 はその比較的長い半減期及び潜在的な毒性から、環境水中からの除去が求められる。発表者らは、低環境負荷な新規バイオ浄化法として、微生物細胞を用いた MnO_4^- の還元による Mn 酸化物 (biomass-MnOx) 生成過程における重金属イオンの除去法を確立した^[1]。本発表では、Mn 酸化物生成過程における液相からのアルカリ土類金属イオンの除去機構について報告する。

【実験方法】 biomass-MnOx 生成過程における金属の共沈実験 (共沈法) では、あらかじめ培養した *Pseudomonas fluorescens* を洗浄・回収した後、0.1 M NaCl 溶液を加えてストック溶液とした。予め定めたストック溶液量を 4 mg/L のアルカリ土類金属 (Me = Mg^{2+} , Ca^{2+} , Sr^{2+} あるいは Ba^{2+}) が含まれる溶液に加えて、 MnO_4^- を 10 mg/L となるように添加し試料溶液を調整した。試料溶液は、25°C で 24 時間振盪した。浸透終了後に試料溶液の液相と固相を 0.2 μm フィルターで分離し、ろ液中の溶存金属濃度を ICP-OES を用いて測定した。アルカリ土類金属共沈過程における Mn の化学状態は UV/Vis スペクトル分析により、アルカリ土類金属の化学状態は XAFS によりそれぞれ分析した。また、比較のためあらかじめ生成した biomass-MnOx に対する吸着実験 (吸着法) も行った。

【結果】 Ra のアナログ元素として、 Ba^{2+} の共沈法による除去率の経時変化を調べた結果 biomass-MnOx 生成初期において除去率の増加が確認され MnO_4^- 添加から 2 時間で 36% を達成した。しかし、2 時間以降、除去率は時間とともに減少し 24 時間後には 13% となった。一方吸着法により調べた biomass-MnOx に対する Ba^{2+} の除去率は 24 時間後で 6% であり、共沈法よりも少ない除去率であった。他のアルカリ土類金属を用いた場合においても同様の挙動が観察され、その除去率は水和イオン半径に依存し、Sr 及び Ba のような水和イオン半径の小さな元素ほど高くなるということが明らかとなった (図 1)。紫外可視吸収スペクトルと XAFS の分析結果により、biomass-MnOx 生成過程におけるアルカリ土類金属の除去は初期の biomass-MnOx コロイド生成に伴うアルカリ土類金属の収着と、その後の biomass-MnOx の凝集に伴う収着したアルカリ土類金属の溶出が進行する機構であることが明らかとなった。一連の結果から、biomass-MnOx の生成による Ra の除去の有効性を示すとともに、生成した biomass-MnOx の凝集を避けることが重要であることが示唆された。

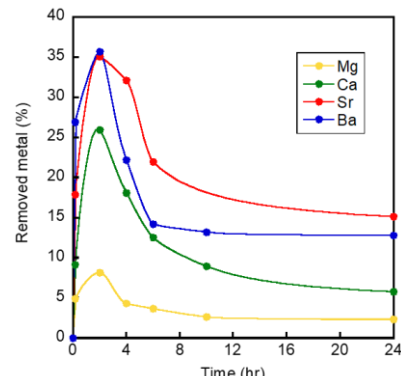


図 1 共沈法におけるアルカリ土類金属除去の経時変化

参考文献 [1] T. Kato et al., Journal of environmental sciences, 86 (2019) 78 – 86.

Removal of alkaline earth metals during the formation of manganese oxide using biomass toward elimination of ²²⁶Ra (JAEA¹, CUG²)
TOMOAKI, K., QIANQUAN, Y., TOSHIHIKO, O.

会員総会 | 総会

会員総会

座長:浅井 雅人(日本原子力研究開発機構 (JAEA))

2022年9月16日(金) 13:10 ~ 14:10 伊藤謝恩ホール

Zoomはこちら

[2001-1310-1add] 会員総会

13:10 ~ 14:10

13:10 ~ 14:10 (2022年9月16日(金) 13:10 ~ 14:10 伊藤謝恩ホール)

[2001-1310-1add] 会員総会

Zoomはこちら

パネルディスカッション | プレナリートーク

パネルディスカッション

座長:高橋 嘉夫

2022年9月16日(金) 14:10 ~ 15:30 伊藤謝恩ホール

Zoomはこちら

[2S02] パネルディスカッション「放射化学の将来像と若手へのメッセージ」

中西 友子¹、篠原 厚²、三浦 勉³、鷲山 幸信⁴、佐藤 志彦⁵、秋光 信佳¹、*高橋 嘉夫¹ (1. 東京大学、2. 大阪青山大学、3. 産総研、4. 福島県立医大、5. 原子力機構)

14:10 ~ 15:30

2S02

パネルディスカッション

「放射化学の将来像と若手へのメッセージ」

(¹ 東京大学、² 大阪青山大学、³ 産総研、⁴ 福島県立医大、⁵ 原子力機構、⁵ 京都大学) 中西 友子¹、篠原 厚²、三浦 勉³、鷲山 幸信⁴、佐藤 志彦⁵、秋光 信佳¹、五十嵐康人⁵、高橋嘉夫¹

マリー・キュリーが数トンものピッチブレンドから 0.1 g のラジウムの分離に成功し、放射化学が誕生してから 120 年が経過した。この間、放射性核種・放射線の科学は、様々な基礎科学のブレークスルーや新エネルギーを生んだ一方で、近年では安全面の懸念がこの分野の持続的発展を阻んでいるようにも思われる。しかし、本来、放射性核種の科学は幅広い学問に貢献する学際的で様々な魅力を持つ研究分野であり、その科学技術の基礎としての重要性は、今も何ら変わることはない。この分野は、周期表のフロンティアの元素を扱うと共に、核合成過程の解明は宇宙での元素合成過程の解明に貢献するなど、人類の夢に直結する研究を牽引している。一方で、近年の α 放射体で標識した薬剤によるがん治療は、全身転移の末期がんを完全に除去し、命のサステナビリティに大きく貢献しており、その基礎は放射化学が担っている。また放射性核種の化学や環境科学は、核エネルギー利用や放射性廃棄物の処理処分の科学の基礎であり、エネルギー・環境のサステナビリティに貢献する。またアクチノイド化学は、様々な物性科学も生んでいる。さらに放射化学を基盤とする量子ビームは、小惑星リュウグウの分析など様々な応用研究が生んでいる。このように放射性核種・放射線の科学は、人類の「夢」と「サステナ」の基礎を担う魅力ある研究分野で、他では代替不可能なツールを提供する。放射化学会は、安全面も含めて、このような分野を発展させ、それを継承する人材を育成する使命を背負っている。これを実現するには、放射化学者自身がこの分野の夢や魅力を語り、外部の意見を率直に取り入れて議論し、若手に語りかけていく必要がある。放射化学会では、こうした議論を重ねたロードマップを作成し、この分野の未来像について議論してきている。今回は、放射化学を俯瞰できる研究者、先端研究を担っている研究者、他分野の研究者の参加によるパネルディスカッションを開催し、会場の参加者と共にこの分野の将来を展望し、また若手研究者を激励して、その発展を奨励する場としたい。そのためにも、パネラーには若手研究者や様々なキャリアパスを持つ方にもご参加頂き、若手研究者の参考になる話しも伺えればと考えている。具体的には、以下に示す各パネラーの方々からショートプレゼンテーションを頂いた後で、放射化学の魅力、新研究炉や福島の新機構、若手人材育成などについて情報交換や意見交換を行いたい(司会: 高橋嘉夫)。

(0) 篠原厚: 最近の放射化学会の取組みの紹介(ロードマップ作成、部会設立)。

(1) 中西友子: 放射化学を俯瞰、その魅力やツールとしての重要性、バイオ応用。

(2) 鷲山幸信: 核医学とその基礎としての放射化学の重要性、若手への激励。

(3) 三浦勉: 新試験研究炉の新設とその利用拡大、研究所へのキャリアパス。

(4) 佐藤志彦: 放射化学会における環境研究、若手研究者育成における指導者の役割。

(5) 秋光信佳(ゲストパネラー): 福島機構、高大連携の取組み、海外武者修行のすすめ。6 件のご発表の後で、五十嵐会長にも加わって頂き、パネルディスカッション開催。当日、参加者から話題提供があれば、それも歓迎いたします。

学生・若手研究者を含めたなるべく多くの方のご参加と活発な意見交換を期待します。

Panel Discussion "Future Vision of Radiochemistry and Message to Young Radiochemists"

奨励賞 受賞講演 | プレナリートーク

奨励賞受賞講演

座長:森本 幸司、高橋 嘉夫、木野 康志

2022年9月16日(金) 15:30 ~ 16:30 伊藤謝恩ホール

Zoomはこちら

[2S03-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

[2S03] 精密質量と崩壊事象の相関測定法の開拓による超重元素の直接質量測定

*庭瀬 暁隆¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構)

15:30 ~ 15:50

[2S04] バライト共沈法の環境放射化学・地球化学的な応用に関する研究

*徳永 紘平¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

15:50 ~ 16:10

[2S05] 硬組織を指標とした福島第一原発事故後の野生動物への⁹⁰Srと¹³⁷Csの取り込みの研究

*小荒井 一真^{1,2} (1. 東北大学、2. 日本原子力研究開発機構)

16:10 ~ 16:30

(2022年9月16日(金) 15:30 ~ 16:30 伊藤謝恩ホール)

[2S03-05-Zoom] セッションのオンライン参加 (Zoom)

Zoomはこちら

2S03

精密質量と崩壊事象の相関測定法の開拓による
超重元素の直接質量測定

(高エネルギー加速器研究機構 和光原子核科学センター)○庭瀬 暁隆

原子核は中性子や陽子といった核子の集合体が、結合エネルギー分だけ軽くなった状態で安定した系と考えることができる。結合エネルギーは核の存在や安定性を決定する指標となり、核子間相互作用を議論するための最も基本的かつ重要な物理量である。原子質量は核種固有の値であるため、精密な測定からその原子番号と質量数を一意に決定することができ、未知の超重元素の直接同定のためのツールとして期待がされている。これまでに世界各国で重核の精密質量測定実験が行われてきたが、測定された最も重い元素は 103 番元素の Lr で、104 番以降のいわゆる超重元素の直接質量測定には未だかつて成功していない。我々はこれまでに、多重反射型飛行時間測定式質量分光器(MRTOF-MS)[1]と気体充填型反跳分離装置(GARIS-II)[2]を用いた SHE-Mass facility において、重核の精密質量測定実験を遂行してきた。

超重元素は、その小さな生成反応断面積に起因して一度に取り扱える量が極めて少なく、限られた数原子から核種同定を行わなければならない。そのため分子イオンや散乱粒子に起因した偶発事象による背景事象から弁別された、確度の高い質量測定が必要となる。本研究では、超重核の直接質量測定を目指して、新検出器 α -TOF[3]の開発を行った。 α -TOF 検出器は、従来の飛行時間検出器に Si 検出器が組み込んであり、重イオンの飛行時間信号の取得とそれに続いた α 崩壊事象の相関取得を可能とする。これによって、一日に数イベント以下の極めて稀な事象においても、崩壊事象を核の足跡とすることで確度の高い精密質量測定を実現する。

α -TOF 検出器は、重核の飛行時間と崩壊特性の相関測定ができるという強みを活かし、MRTOF による核分光研究への適用も期待される。そこで本研究の第二段階では、 α -TOF 検出器を搭載した MRTOF の核分光利用のデモンストレーション実験として、 ^{207}Ra の崩壊-飛行時間の相関測定を行った。MRTOF 単体では分離不可能であった異性体 $^{207\text{m}}\text{Ra}$ を、 α -TOF による崩壊事象との相関から弁別し、 $^{207\text{m}}\text{Ra}$ の励起エネルギーの直接測定に成功をした。更には半減期と α 崩壊分岐比も同時に決定でき、近傍核との系統性から励起状態のスピンを $J^\pi=13/2^+$ と決定した[4]。

本研究の最終段階として 105 番元素 ^{257}Db の質量測定実験を遂行した。総計 105 時間のビーム照射で 11 個の $^{257}\text{Db}^{3+}$ の飛行時間と相関した崩壊イベントを取得。これら 11 事象の飛行時間信号から ^{257}Db の質量を 1ppm の相対精度で決定、世界初となる超重元素の直接質量測定に成功した[5]。本講演では一連の研究成果についての発表を行う。

[1] P. Schury *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. B **335** (2014) 39.

[2] D. Kaji *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. B **317** (2013) 311.

[3] T. Niwase *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. A **953** (2020) 163198.

[4] T. Niwase *et al.*, Phys. Rev. C **104** (2021) 044617.

[5] P. Schury, T. Niwase *et al.*, Phys. Rev. C **104** (2021) L021304.

Direct mass measurement of superheavy nuclides via decay-correlated mass spectroscopy.
NIWASE, T.

2S04 バライト共沈法の環境放射化学・地球化学的な応用に関する研究 (JAEA) ○ 徳永紘平

【はじめに】 福島原発事故により放出された放射性核種の挙動の理解とその環境回復は重要な課題であり、この多量で多様な放射性核種が地表・地下環境にてどのように移行・濃集するかを解明することができれば、地球表層の放射性核種を含むあらゆる元素の長期間に渡る物質循環予測研究として、基礎と応用の両面で重要な研究となる。講演者はこれまで、水-鉱物間での元素の吸着・共沈実験や放射光 X 線吸収微細構造 (XAFS) 法による分析を用いて、環境試料中での元素の分子レベルの情報を引き出し、より本質的な化学的情報に基づいて地球表層における元素循環の素過程や環境影響を明らかにしてきた。本発表ではこれらの分析を基にした最新の成果について報告する。

【過去環境復元の古環境計の開発(地球化学)】 まず講演者は、天然のバライト (BaSO_4) 中に含まれる微量元素の化学状態を放射光 XAFS による分析から特定することにより、バライト中のセレン ($\text{Se(IV)}/\text{Se(VI)}$) とヒ素 ($\text{As(III)}/\text{As(V)}$) の陰イオンの価数比が共存する水の酸化還元状態 (E_h ; 水素電極を基準とした場合の酸化還元電位) を反映し、古環境復元の手法として利用できることを明らかにした。この手法で開発したバライト中のセレンとヒ素の価数比を用いた古環境復元ツールの開発は世界初の試みであり、過去の地球の溶存酸素濃度の復元が可能になるとともに、これまで濃度や同位体比を用いて相対的にしか評価されなかった酸化還元状態の定量的な評価が可能になる。

【陰イオン系核種の効果的な処理処分法の開発(環境放射化学)】 次に講演者は、放射光 XAFS を用いた分析によりバライト中で微量元素を安定化させる局所構造を特定することで、放射性核種処理の分野において新たな知見を明らかにした。本研究で得られた、(1) カルシウムイオン添加によりバライト結晶構造の歪みの程度を増加させることで、他の微量元素の取り込みを促進する効果、(2) リン酸イオン吸着によりバライト表面で二次的な結晶相を生成させることで、固相からの対象元素の溶出を低下させる効果、などは講演者の研究の独自性を示すものであり、バライト共沈法による放射性核種の水溶液中からの効果的な除去と、鉱物構造内での長期的な安定化が可能になる。こうしたアイデアを、福島汚染水処理で問題となる長寿命陰イオン放射性核種であるセレン 79 やヨウ素 129 の陰イオン処理に適用したのは講演者の研究が初めてであり、従来のハイドロタルサイトに代表される層状複水酸化物への吸着処理に代わる、新たな陰イオン系核種の処理処分法としての利用が期待される。

【環境中での放射性核種の移行・濃集挙動の解明(環境放射化学)】 これらの研究に加えて、講演者は放射光 XAFS を用いた分析により環境試料中の元素の化学種や鉱物に対する吸着・脱離のメカニズムを特定することで、天然の環境中での元素循環機構の解明を行っている。例えば日本原子力研究開発機構の人形峠環境技術センターの堆積環境において、土壤中に確認されるシデライト (FeCO_3)、ゲーサイト ($\alpha\text{-FeOOH}$)、フェリハイドライト ($\text{FeOOH}\cdot n\text{H}_2\text{O}$) の鉄鉱物にウラン等の元素はそれぞれ特徴的に取り込まれており、溶存酸素に応じたこれら鉄鉱物の化学状態の変化が天然の堆積環境中での放射性核種の移行・濃集挙動を制限することが示されている。

A study of barite coprecipitation behavior and its application to environmental radiochemistry and geochemistry
Tokunaga, K.

2S05

硬組織を指標とした福島第一原発事故後の野生動物への⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs の取り込みの研究(¹東北大、²日本原子力研究開発機構)○小荒井一真^{1,2}

【緒言】人為起源の放射性核種の中には生物影響が懸念される核種があり、半減期が約 30 年の ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs は長期の内部被ばくに関与する核種である。2011 年の福島第一原子力発電所 (1F) 事故でも環境中に ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs が放出され、生物への取り込み状況の調査が求められた。ただし、測定対象となる動物は人間の管理下ではなく、経時的な取り込み量の追跡が困難であった。そこで、歯や骨といった硬組織の形成メカニズムである、形成時期のみに組織の基質が沈着し、形成後には組織が入れ替わらないという特徴に注目した。この特徴を活用することで、硬組織中の ⁹⁰Sr や ¹³⁷Cs の分析から硬組織の形成時期における生体への 2 核種の取り込みや環境中の核種分布の変化の解明を試みている。本発表ではウシの歯を用いた 1F 事故後の ⁹⁰Sr、¹³⁷Cs の移行挙動の追跡と魚の耳石のような微細な硬組織用の ⁹⁰Sr 分析手法の開発結果について紹介する。

【ウシの歯への ⁹⁰Sr、¹³⁷Cs の移行挙動】レントゲン写真によりウシの歯の形成時期が事故前後のどちらかで歯を分類した。⁹⁰Sr を測定した結果、歯の形成時期が 1F 事故前から事故後になるにつれ歯への ⁹⁰Sr の取り込み量が増加していることを見出し、事故による環境中の ⁹⁰Sr の分布の変化が歯の形成に伴って記録されていることを示した。¹³⁷Cs についても歯ごとに測定を行い 1F 事故に起因する取り込みを確認しただけでなく、歯への取り込み機構が ⁹⁰Sr とは異なり、¹³⁷Cs は歯の形成後にも取り込まれることを初めて明らかにした。現在これらの知見は、ヒト乳歯を用いた乳幼児への 1F 事故由来核種の取り込み調査にも応用されている。

1F 事故後の環境中から歯に至るまでの 2 核種の移行挙動を知るために、土壌や植物中の ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs の測定も行った。2 つの核種だけでなく安定 Sr や Cs、生体の必須元素である Ca、K も合わせて測定し、比放射能や微量元素/必須元素比を用いて、⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs の標識する元素としての硬組織への移行挙動の追跡を試みた。⁹⁰Sr については、ウシ歯の ⁹⁰Sr 比放射能は、土壌の水に可溶性成分の ⁹⁰Sr の汚染を反映していたことが示唆された。また、⁹⁰Sr と Ca は生体へ移行する際に区別されることがわかった。¹³⁷Cs については、ウシの歯の ¹³⁷Cs 比放射能が摂取した食物の汚染を示唆していた。移行の際に安定 Cs や ¹³⁷Cs は K とは区別されずに移行していた。このように ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs が土壌から植物、水などを經由して動物の歯へ移行する際の元素としての挙動を明らかにした。

【硬組織中 ⁹⁰Sr 用 ICP-MS 法の開発】陸域環境の調査で硬組織を有効に活用できたため、魚類の耳石という小さな硬組織を用いて水域環境での ⁹⁰Sr の移行挙動解明にも取り組んでいる。耳石の年輪状組織には魚類の取り込んだ ⁹⁰Sr 量の変化が記録されるが、小さな耳石は ⁹⁰Sr の含有量が少なく、従来の放射能測定法による測定が困難である。そこで僅かな試料量でも ⁹⁰Sr を高感度に分析可能な ICP-MS 法を用いて、分析手法の開発を試みた。化学分離と ICP-MS 内部のリアクションセル反応を組み合わせることで、硬組織中のマトリックスや同重体干渉元素を除去し、初めて 0.1 g の硬組織に含まれる ⁹⁰Sr を ICP-MS 法で分析できた。開発した ICP-MS 法は 1F 事故由来の ⁹⁰Sr を含む硬組織であれば分析可能であり、従来法の困難な耳石をはじめとする微細硬組織に含まれる ⁹⁰Sr を検出できる手法である。

Study on the incorporation of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs into wild animals after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident using hard tissues as an indicator
KOARAI, K.

基盤セッション 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識 | 基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 336室

- [2P01] 放射性微粒子のフッ素系界面活性剤の pH 依存相分離現象に基づく均一液液抽出
*中川 太一^{1,2}、鈴木 怜花²、松枝 誠^{1,2}、寺島 元基¹、堀田 拓摩¹、岡 壽崇¹、北辻 章浩¹、高貝 慶隆² (1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学)
- [2P02] 高速中性子を用いた RI 製造のための励起関数の検証
*久住 健介¹、後藤 真一¹、菊永 英寿²、高村 怜士¹ (1. 新潟大学大学院 自然科学研究科、2. 東北大学 ELPH)
- [2P03] レーザーアブレーション-ICP質量分析による⁹⁰Srのマイクロスケールイメージング
*柳澤 華代¹、松枝 誠^{1,2}、古川 真^{1,3}、平田 岳史⁴、高貝 慶隆^{1,5} (1. 福島大学 共生システム理工学類、2. 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同センター、3. (株)パーキンエルマージャパン、4. 東京大学大学院 理学系研究科地殻化学実験施設、5. 福島大学 環境放射能研究所)
- [2P04] ¹²⁵Iトレーサーを用いた電気化学的手法によるヨウ化物イオンの回収・定量法の検討
*中村 司¹、山崎 信哉²、坂口 綾²、末木 啓介² (1. 筑波大学理工情報生命学術院生命地球科学研究群、2. 筑波大学数理物質系)
- [2P05] バイオアッセイ法の迅速化に向けた水酸化セリウム共沈法による α 線計測試料作製の検討
*前原 勇志¹、永岡 美佳¹、藤田 博喜¹、二瓶 英和²、大野 雅子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株式会社)
- [2P06] トリプル四重極型 ICP質量分析計によるヨウ素129スクリーニング手法の開発
*日比野 有希¹、大野 剛²、阿部 美波¹、佐藤 昭二¹、王 暁水¹、伴場 滋¹、岸本 武士¹、磯貝 啓介¹ (1. 公益財団法人日本分析センター、2. 学習院大学)
- [2P07] IAEA Proficiency Testにおける全 β 測定の見直し
*丹 智史¹、鈴木 颯一郎¹、黒田 知孝¹、板倉 淳子¹、大槻 孝之¹、新田 済¹ (1. 公益財団法人日本分析センター)
- [2P08] 放射性廃棄物に含まれる Zr-93の LA-ICP-MSを用いた簡易分析手法の開発
*森井 志織¹、蓬田 匠¹、浅井 志保²、大内 和希¹、岡 壽崇¹、北辻 章浩¹ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 産業技術総合研究所)

2P01

放射性微粒子のフッ素系界面活性剤の pH 依存相分離現象に基づく均一液液抽出

(JAEA¹、福島大理工²)○中川太一^{1,2}、鈴木怜花²、松枝誠^{1,2}、寺島元基¹、堀田拓摩¹、岡壽崇¹、北辻章浩¹、高貝慶隆²

【緒言】微粒子状の放射性核種は、環境中での動態に影響を及ぼす可能性がある。しかし、環境水中の微粒子は濃度が非常に低いため、分析装置で計測・評価するためには、前濃縮が必要であるが、一般的なフィルターろ過や遠心分離では、濃縮時の凝集により粒径や形態が変化してしまう。近年、相分離現象を利用する金属微粒子の抽出・分離が報告されている。その中でも、フッ素系界面活性剤の相分離現象を利用した均一液液抽出法は、高い濃縮倍率が報告されているが、金属微粒子に対する応用例は少なかった。本研究では、代表的な放射性微粒子として UO_2 に対するフッ素系界面活性剤による均一液液抽出法の抽出挙動を調査するとともに、環境水への適応を検討した。

【実験】 UO_2 微粒子の模擬物質として CeO_2 で検討を行い、 UO_2 微粒子で実証実験を行った。微粒子溶液に 2-プロパノール (IPA) およびフッ素系界面活性剤 Capstone FS-63(図 1)溶液を添加し、硝酸を加え pH 1 以下にすることで相分離を引き起こした(図 2)。その後、遠心分離もしくは静置(大容量抽出時)させ、微小液体相(界面活性剤相)を得た。ナノ粒子トラッキング解析(NTA)、シングルパーティクル誘導結合プラズマ質量分析計(sp-ICP-MS)、および、透過型電子顕微鏡(TEM)で計測した。

【結果と考察】抽出実験の結果、 CeO_2 微粒子(粒径 45.6 ± 18.2 nm)は、抽出率 99%であり、この時の濃縮倍率(全量:7.1 mL/抽出相体積:6.0 μL)は 1183 倍であった。

TEM 観察より、 CeO_2 微粒子が抽出相に確認でき、sp-ICP-MS の結果より粒径 59.8 ± 15.9 nm であることが分かった。これにより抽出前の粒径と変化しなかったことを確認した。 UO_2 微粒子(粒径 123.2 ± 33.9 nm)も同様の抽出実験を行い、抽出率は 95%であった(濃縮倍率:187 倍)。体積比を大きくしたスケールアップ実験(全量:210.6 mL)においても、抽出率 99%を維持することができ、最大濃縮倍率は 12500 倍であった。加えて、この抽出方法が環境試料に対して適応できることを実証するため、 UO_2 微粒子に対して地下水、海水で大容量抽出を行った。地下水からの抽出率は 99% (最大濃縮倍率:7500 倍)であり、有用性が実証された。一方で、海水試料では、FS-63 が固化し遠沈管壁面に付着したが、IPA 量を増加させることで抽出相を形成させることができた。この現象は、イオン対形成が原因であり、IPA 量の増加によりプロトン化した FS-63 の溶解度が上昇し壁面への付着が抑制され抽出相を形成したものと考えられる。このとき、抽出率は 87%、最大濃縮倍率は 7500 倍であり、環境水において UO_2 微粒子を高効率に抽出することが可能であることが分かった。

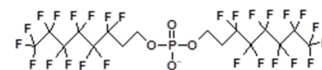


図1, FS-63構造式

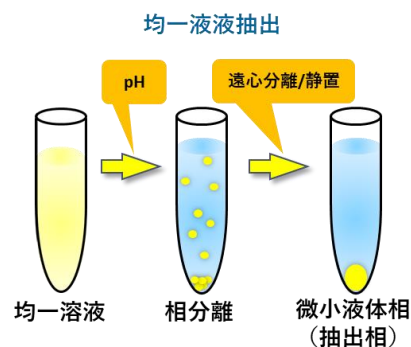


図2, 均一液液抽出概要

Homogeneous liquid-liquid extraction of radioactive particles based on pH-dependent phase separation phenomenon of fluorinated surfactants

NAKAGAWA T., SUZUKI R., MATSUEDA M., TERASHIMA M., HORITA T., OKA T., KITATSUJI Y., TAKAGAI Y.

2P02

高速中性子を用いた RI 製造のための励起関数の検証

(新潟大学院自然¹, 東北大学 ELPH²)○久住健介¹, 高村怜士¹, 後藤真一¹, 菊永英寿²

【緒言】 RI 製造において、(n,2n)反応や(n,p)反応などの高速中性子誘起核反応は反応断面積が比較的大きく、中性子の物質への透過力が強いために、光核反応と同様に RI の大量製造に適している。RI の製造量を精度よく見積もるには、広いエネルギー範囲にわたる精密な励起関数が必要であるが、実測値はあまり多くなく理論計算の確からしさの検証も進んでいない。本研究では、中性子スペクトルで重みづけした励起関数の積分値に着目し、PHITS によりシミュレーションした中性子スペクトル[1]と理論計算あるいは報告された励起関数からの値と、実験により得られた放射能から得た値とを比較することで、励起関数の理論計算や文献値の正確さを検証しようとしている。

【実験】 中性子照射実験は東北大学 CYRIC にて行った。数十 MeV の重陽子をグラファイトに照射することで速中性子を発生させ、Ni, Cu, Zn, Mo, Au の金属箔ターゲットに照射した。一定時間照射後、 γ 線スペクトロメトリにより、生成核種の同定・定量を行った。

実験に先立ち、PHITS によるシミュレーションで、グラファイトやターゲットの大きさ・厚さなどの条件を検討した。

【結果と考察】 40 MeV の重陽子(ビーム径 ϕ 10 mm) を厚さ 5 mm, ϕ 30 mm のグラファイトに照射したとして、生成した中性子の挙動を PHITS でシミュレーションした。中性子の強度分布を図 1 に示す。大部分の中性子は、重陽子ビームの入射方向に発生するが、散乱しやすいため広がりが見られない。そこで、グラファイト後方に密着させて配置するターゲットの大きさを変化させ、照射される中性子量を比較した(図 2)。その結果、 ϕ 30 mm まではターゲットに照射される中性子量は急激に増加するが、それ以上ではゆるやかに増加した。この結果を基に、実際の照射では、25 mm 角のターゲットを用いることとした。

発表では種々のターゲットを用いた高速中性子照射実験の結果について議論する。

【参考文献】

[1] S. Nakayama *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **58**, 805–821 (2021).

Verification of excitation function for RI production using fast neutrons
KUSUMI, K., TAKAMURA, R., GOTO, S., KIKUNAGA, H.

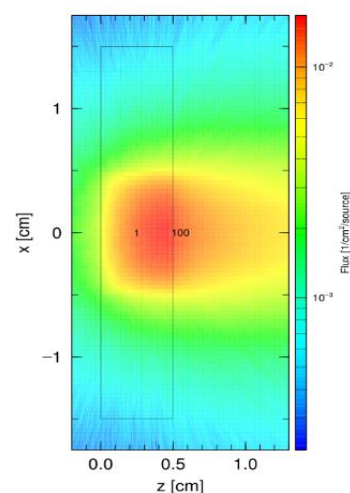


図 1. 重陽子ビーム照射方向に対する中性子の強度分布(横軸左から入射)

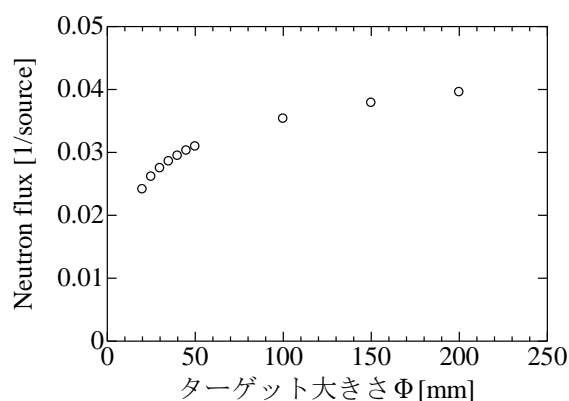


図 2. ターゲットの大きさに対する中性子量の変化

2P03

レーザーアブレーション-ICP質量分析による ^{90}Sr のマイクロスケールイメージング

(福島大理工¹、JAEA²、パーキンエルマー³、東大院理⁴、福島大 IER⁵)○柳澤華代¹、松枝誠^{1,2}、古川真^{1,3}、平田岳史⁴、高貝慶隆^{1,5}

【緒言】 Srの放射性同位体である ^{90}Sr (半減期 28.8年) はCaと類似した化学的性質を持つことから、環境中で移行し易く、体内へ取り込まれた後は骨や歯へ局所的に沈着することが知られている。生体組織への取り込みは、 ^{90}Sr が放出する β 線による内部被ばくの影響を長期化させる恐れがある。このため、福島第一原子力発電所(1F)の事故以降、 ^{90}Sr の環境移行や体内代謝に関する研究に関心が集まっている。また、1Fで発生した燃料デブリの性状把握においても、核燃料物質の主たる核分裂生成物である ^{90}Sr の分析技術確立が重要な役割を果たすと見込まれている。

レーザーアブレーション-ICP質量分析法(LA-ICP-MS)は、試料を溶液化せずに分析できる固体直接分析法の一つである。LA-ICP-MSは優れた感度と空間分解能(4-110 μm)を持つため、分析対象物表面の元素分布を画像として取得するイメージング分析に有用であるが、 ^{90}Sr と近い質量電荷数比(m/z)を持つ同重体イオン($^{90}\text{Y}^+$ 、 $^{90}\text{Zr}^+$)や多原子イオン($^{89}\text{Y}^1\text{H}^+$ 、 $^{74}\text{Ge}^{16}\text{O}^+$ 、 $^{58}\text{Ni}^{16}\text{O}_2^+$)によるスペクトル干渉のため、微量の ^{90}Sr を正確に検出することは困難だった。

本発表では、ダイナミックリアクションセル(DRC)を備えたLA-ICP-MS/MSによる干渉イオンの一斉除去および ^{90}Sr のイメージング分析について報告する。

【実験】 本実験では、レーザーアブレーション装置NWR213(Elemental Scientific Lasers)およびタンデム型ICP質量分析装置NexION 5000(PerkinElmer)を連結して使用した。 ^{90}Sr のイメージング分析のため、高純度タングステン板に ^{90}Sr 標準溶液を2.92 Bq(=0.57 pg)滴下し、蒸発乾固したものを試料とした。また、 ^{90}Sr 無添加試料として担体Srを滴下した試料を準備した。レーザーは、エネルギー: 5 J cm^{-2} 、周波数: 10 Hz、サイズ: 100 μm ×100 μm 、スキャン速度: 100 $\mu\text{m s}^{-1}$ の条件で照射した。 ^{90}Sr のシグナル取得はセルガス流量: 1.6 mL min^{-1} (O_2)、MS/MSモード(Q1=90、Q3=90)で実行した。その結果、 ^{90}Sr 添加試料でのみ m/z 90のシグナルが検出され、その分布は ^{90}Sr 溶液の滴下痕と一致していた。また、放射エネルギーが異なる模擬試料(0、1.76、2.97、5.96 Bq)を測定した結果、添加した放射エネルギーと ^{90}Sr 強度とは良い直線性を示した。本法の検出下限値は1測定点(0.01 mm^2)あたり0.64 mBq(=0.13 fg)と算出された。

【結言】 干渉元素共存下でも試料表面の ^{90}Sr 分布状況を把握できることを示した。本法は質量分析装置による ^{90}Sr のイメージング分析を可能にした初めての例である。

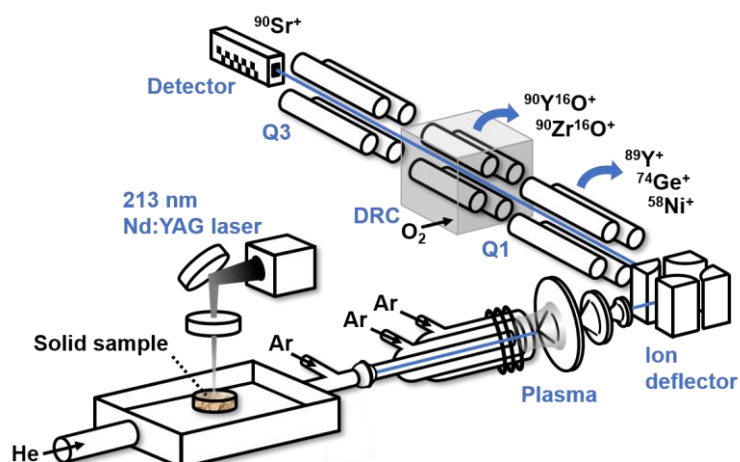


Fig. Illustration of LA-ICP-MS/MS system for ^{90}Sr detection

Microscale Imaging of ^{90}Sr Using Laser Ablation-ICP Mass Spectrometry

YANAGISAWA K., MATSUEDA M., FURUKAWA M., HIRATA T., TAKAGAI Y.

2P04

¹²⁵I トレーサーを用いた電気化学的手法によるヨウ化物イオンの回収・定量法の検討

(筑波大生命地球科学¹、筑波大数理²)○中村司¹、山崎信哉²、坂口綾²、末木啓介²)

【緒言】 環境水中に存在するヨウ素は I⁻や IO₃⁻といった無機ヨウ素や、有機ヨウ素など様々な化学種で存在しており、物理的、化学的、生物的作用によって化学形態が変化する。ヨウ素の環境中での移行や挙動、生体内での影響は化学形態ごとに異なるため、放射性ヨウ素の環境影響評価や生体への影響評価をするためには、化学形態ごとに存在量を知ることが重要である。そこで本研究では、電気化学的手法を用いて化学種ごとにヨウ素を回収、定量する測定法を確立する事を目的とし、銀電極を用いて I⁻をヨウ化銀として回収する方法を検討した。電気化学的手法は、酸化還元反応により制御可能な事から無機態ヨウ素を価数別に回収が可能である上に、小規模且つ可搬な実験系であるため現場での分析が可能である。しかしながら、環境水中のヨウ素濃度は極微量 (ppb オーダー) であるため、電流値が検出できないため回収率を求めることができない。また、測定妨害イオンが高濃度存在する。そこで、最終的に電気化学的手法により環境中ヨウ素化学種の現場分析法確立を目指し、本研究ではまず I⁻の挙動を明らかにするため ¹²⁵Iをトレーサーとして以下の実験を行った。

【実験】 疑似海水 (海産微細藻類用ダイゴ人工海水 SP) 10 ml 中に、最終的に 0.1-10 ppm になるように K¹²⁷I 及び K¹²⁵I (3 kBq) を添加し測定溶液を調製した。作用電極には銀ディスク電極 (3 mm φ) を用いた。銀電極の前処理として -800 mV の電圧を印加した後、0.05 μm アルミナを用いて研磨した。印加電圧は +50 mV (vs Ag/AgCl, 3M NaCl) で行い、試料を攪拌しながら電解濃縮を行った。電解時間を 2-60 分で変化させて、反応の時間依存性を検討した。反応後、溶液中の ¹²⁵I濃度は NaI シンチレーション検出器を用いた γ線測定により、¹²⁷I濃度はリニアスweepボルタンメトリー (LSV) により定量し、電極への回収率を求めた。LSV の掃引速度は 10 mV s⁻¹で行った。

【結果・考察】 ¹²⁷Iの濃度が 10 ppm までは Cl⁻の干渉を受けずに LSV の反応電流が観測され、2 分の電解時間で 1 % のヨウ素を電極に回収できる事が示された。それ以下の濃度になると電流が検出されなかったため、¹²⁵Iにより反応効率を求めた。この結果、海水レベルのヨウ素濃度 (~0.1 ppm) の場合でも 1 % 程度の回収率が得られ、電気化学的手法を用いて簡便かつ現場分析が可能である有効な実験系であることが示唆された。また、電解時間を 1 時間にすると回収率が 10 % となった。このことから、電極面積や溶液量などを最適化することで反応効率をさらに高めることができると考えられる。今後は、I⁻回収率の向上を目指して測定条件の最適化を目指す。

Examination of a method for the recovery and determination of iodide ions by electrochemical methods using ¹²⁵I tracer
Nakamura, T., Yamasaki, S., Sakaguti, A., Sueki, K.

2P05

バイオアッセイ法の迅速化に向けた水酸化セリウム共沈法による
 α 線計測試料作製の検討(日本原子力研究開発機構¹、東京電力ホールディングス株式会社²)○前原 勇志¹、永岡 美佳¹、二瓶 英和²、大野 雅子²、藤田 博喜¹

【はじめに】放射線業務従事者の内部被ばくモニタリング手法の一つとして、排泄物中の放射性物質濃度を定量するバイオアッセイ法がある。緊急時には迅速な定量結果の報告が求められるが、これまでのアクチノイド核種のバイオアッセイ法では、目的元素を分離するために共沈法やイオン交換法を組み合わせ実施し、電着法で計測用試料を作製し、 α 線スペクトロメトリーによる定量を行っており、計測結果を得るまでに4日～10日の期間が必要であった。このため、バイオアッセイ法の迅速化を目指し、水酸化セリウム共沈法[1](以下「共沈法」という。)を電着法の代替えとして使用するための検討を行った。これにより、計測用試料の作製時間の短縮が可能となり、さらに、分析機材が安価であること、強酸化剤を使用しないことなどの利点もある。

【実験方法】アクチノイド核種のバイオアッセイ法は、量子科学技術研究開発機構が報告している複数の固相抽出樹脂を組み合わせた系統分離法[2]を参考とした。共沈法の検討手順は、Am及びCmの精製後の分離液(0.01mol/L HCl)に既知量のトレーサー(Am-241、Am-243及びCm-244)、Ce担体及びH₂O₂を添加した後に、NH₄OH(0.1 mol/L)を加えて水酸化セリウム沈殿を生成させた。その後、水酸化セリウム沈殿をろ過によりフィルター(孔径:0.45 μ m、直径:25 mm)上へ回収し、80%エタノールで洗浄した後に、1インチのステンレス板上に糊付けし、計測用試料とした。この計測用試料は風乾後に、Si半導体検出器を用いて80,000秒計測した。本検討では、共沈時の①pH指示薬、②Ce担体の添加量、③H₂O₂の添加量、④沈殿生成後の放置時間をそれぞれ変化させ、得られた回収率、スペクトルのエネルギー分解能から、共沈法の最適条件を選定した。

【結果と考察】①液性を変化(pH3~10)させての共沈法ではpH6~9で約90%の回収率が得られ、プロモチモールブルー溶液をpH指示薬に決定した。②Ce担体の添加量を変化(10~200 μ g)させての共沈法では全ての範囲で約90%の回収率が得られたため、エネルギー分解能の良い50 μ gに決定した。③H₂O₂の添加量を変化(0~1 mL)させて分析した結果、0 mLの場合を除いて回収率は約90%であり、0.5 mLに決定した。④沈殿生成後に放置する時間を変化(沈殿生成直後~60分)させた結果、放置時間によって回収率の違いは無かったため、沈殿生成直後に溶液をろ過することにした。

本検討で選定した条件で共沈法を行い、電着法と比較した結果、回収率及びエネルギー分解能に差は見られなかった。一方、計測用試料の作製時間は電着法と比較して1/10程度の時間に短縮できた。以上のことから、最適な共沈法による計測用試料作製条件を決定することができた。

[1] Kurosaki, Alternate method of source preparation for alpha spectrometry: no electrodeposition, no hydrofluoric acid, J Radioanal Nucl Chem (2017)

[2] 栗原 治 他, 多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発に関する研究 平成27年度~29年度 総合研究報告書(2018)

Examine on preparation of alpha-ray measurement samples by cerium hydroxide coprecipitation method for rapid bioassay method
MAEHARA Y, NAGAOKA M, NIHEI H, OHNO M, FUJITA H

2P06

トリプル四重極型 ICP 質量分析計によるヨウ素 129
スクリーニング手法の開発

○日比野有希¹、大野剛²、阿部美波¹、佐藤昭二¹、王曉水¹、伴場滋¹、
岸本武士¹、磯貝啓介¹

(公益財団法人日本分析センター¹、学習院大学²)

【はじめに】

原子炉施設等から放出される ^{129}I ($T_{1/2} = 1.57 \times 10^7$ y) は甲状腺に蓄積して内部被ばくを引き起こすおそれがあり、ALPS 処理水の海洋放出に伴う海域モニタリングにおける重要な調査対象核種の一つである。海水中 ^{129}I 分析法については、濃度が低いことから加速器質量分析 (AMS) 法による報告がほとんどであるが、AMS 法で測定できるのは国内に 2 ヶ所のみであり、測定にも時間を要する。そこで今回我々は、汎用性、迅速性に優れたトリプル四重極型 ICP 質量分析計 (ICP-MS/MS) を用いた海水中 ^{129}I スクリーニング手法の開発を試みたので報告する。

【実験】

<前処理> 当センターにて AMS 法への適用実績のある溶媒抽出法を用いた。海水 100g からヨウ素をヘキサンで抽出し、亜硫酸アンモニウムで逆抽出した。 ^{127}I の水素化物が m/z 129 に干渉するため、 ^{127}I キャリアは添加せずに行った。

<添加試験> ^{129}I 濃度既知溶液 tRIC-2 (文献値 ^{129}I : 18.4 mBq/g、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: 3.34×10^{-6}) を 1 mBq/kg になるよう海水試料に添加し、溶媒抽出後 ICP-MS/MS にて ^{129}I を定量した。

<ICP-MS/MS による ^{129}I 定量> 次の 2 通りで定量し、検出下限を算出した。

① tRIC-2 を用いた ^{129}I 検量線法 ② NIST SRM 3231, Level I (認証値 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$: $0.981 \times 10^{-6} \pm 0.012 \times 10^{-6}$) を用い質量差別効果を補正する $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比法

【結果と考察】

<添加試験> ^{127}I の回収率は 63% であった。 ^{129}I の定量値と添加値の比は、① 検量線法は 1.1 ± 0.04 、② 同位体比法は 1.2 ± 0.06 であり、おおむね良好であった。

<検出下限> 検量線法から求めた ^{129}I の装置検出下限は 0.2 mBq/L であり、海水試料の検出下限は 0.03 mBq/kg (供試料量 100 g、回収率 40%) であった。

<まとめ> AMS 法により求めた海水中 ^{129}I 濃度は 0.02~0.04 $\mu\text{Bq/kg}$ 、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は 10^{-11} であり、ICP-MS/MS では検出が難しい。一方、添加試験における 1 mBq/kg 海水の定量結果は良好であったことから、本法は ALPS 処理水の海洋放出に伴う海域モニタリングにおいて環境省の定めた目標検出下限 (10 mBq/L) 未満であることを迅速に確認する手法の一つとして期待できる。

(参考文献) Maki Honda et al., *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, **2018**, 18, 1-4
本研究のために tRIC-2 を提供くださった JAEA 本多真紀様に心から感謝申し上げます。

Development of a Screening Method for Iodine-129 by Triple Quadrupole Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

*Yuki Hibino¹, Takeshi Ohno², Minami Abe¹, Shoji Sato¹, Xiaoshui Wang¹, Shigeru Bamba¹, Takeshi Kishimoto¹, Keisuke Isogai¹ (1. Japan Chemical Analysis Center, 2. Gakushuin Univ.)

2P07

IAEA Proficiency Test における全 β 測定 の 検討(公益財団法人 日本分析センター¹) ○丹 智史¹、鈴木 颯一郎¹黒田 知孝¹、板倉 淳子¹、大槻 孝之¹、新田 濟¹

【はじめに】

日本分析センターは分析技術を客観的に評価するため、継続して IAEA などの国際機関が主催する環境放射能分析の国際相互比較分析プログラムに参加している。2021 年度 IAEA 主催の Proficiency Test において、全 β 測定結果が付与値の約 2 倍高い値となり、評価結果は Not accept となった。

日本分析センターでは全 β 測定に検出器有効径が 1 インチの低バックグラウンド β 線測定装置(LBC)を用いている。2021 年度の全 β 測定試料は、Swipe Sample を模擬した放射性物質が不均一に塗布されたろ紙であり、そのろ紙を 2 インチ試料皿に固定し、測定を行っていた(図 1)。試料の一部分しか検出器有効径を備えていない LBC を用いて不均質な試料を測定したため、測定条件が校正時(一様に均質)と異なる状態となり、測定結果が高くなったものと考えられた。

【検討実験】

実試料は他の核種分析に使用したため、実試料を用いた検討は行えなかった。そこで、放射性物質が含まれる水溶液を 2 インチ試料皿に塗布し、蒸発乾固させて不均質な模擬試料を作製し、同様の傾向の測定結果が再現されるかを確認した。

実試料は放射性物質が中央部分に多く、周辺部分には少なかったため、中央部に水溶液を塗布し、中央部の放射能が高い模擬試料(Sample1)を作製した(図 2)。また、周辺部に水溶液を塗布し、周辺部の放射能が高い模擬試料(Sample2)を併せて作製し、LBC(検出器有効径 1 インチ)により測定を行った。

【結果】

中央部の放射能が高い模擬試料(Sample1)の測定結果は付与値から数倍高い値を示し、実試料の測定結果と同様の傾向が再現された(図 3)。一方、周辺部の放射能が高い模擬試料(Sample2)は、大部分の β 線が検出器の有感領域に到達せず、付与値に対し 20% 程度の値を示した。

以上の結果より、試料サイズに対し検出器有効径が小さい LBC で 2 インチの不均質な試料を測定したことが、付与値と測定結果に大きな差が生じた原因であると確認された。そのため、不均質な試料を測定しなければならない場合は、試料サイズと同等の検出器有効径(2 インチ)を備えた LBC で測定する必要があることが分かった。

※本結果は原子力規制庁からの委託事業「環境放射能水準調査」の成果の一部である。



図 1. 実試料の外観

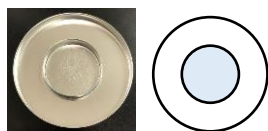


図 2. 模擬試料の外観と模式図

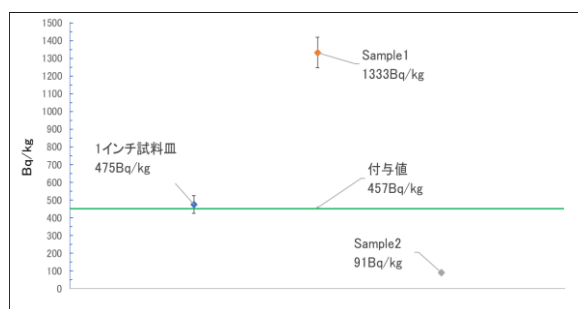


図 3. 測定結果

Study of gross beta measurements in the IAEA Proficiency Test

TAN, S. SUZUKI, S. KURODA, T. ITAKURA, J. OTUSKI, T. NITTA, W.

2P08

放射性廃棄物に含まれる Zr-93 の LA-ICP-MS を用いた簡易分析手法の開発

(JAEA¹、産総研²) ○森井志織¹、蓬田匠¹、浅井志保²、大内和希¹、岡壽崇¹、北辻章浩¹

【緒言】

高レベル放射性廃棄物 (HLW) 等の処分時の安全評価対象核種のひとつである Zr-93 (半減期約 160 万年) の定量分析[1]をより簡便・迅速化する手法として、Zr を選択的に固相抽出した試料をレーザーアブレーション (LA) -ICP-MS で定量分析する技術開発を行っている。本発表では、同位体希釈質量分析法 (IDMS) による定量分析を行うため、LA 測定用試料の作製法とレーザー照射条件を検討した結果を述べる。

【実験】

固相抽出剤として、DGA レジン (Eichrom Technologies 社製) を用いた。Zr をレジンを吸着させた後、測定妨害元素を溶離除去して Zr のみを含む固体試料を調製した[2]。固体試料をそのまま、あるいはメノウ乳鉢ですり潰して粉末化してガラス板上に載せ、LA 測定用試料とした。必要に応じてカーボンテープによる固体試料のガラス板への固定や、ニトロセルロースを主成分とするコーティング剤の固体試料表面への塗布を行った。レーザー照射条件の検討は、レーザー繰り返し周波数 (変更範囲: 2-20 Hz)、レーザースポット径 (変更範囲: 10-100 μm)、レーザーフルエンス (変更範囲: 3-15 J/cm^2) を変えて行った。模擬 HLW 溶液として、Zr の他 13 元素を含む硝酸溶液を調製して用いた。

【結果・考察】

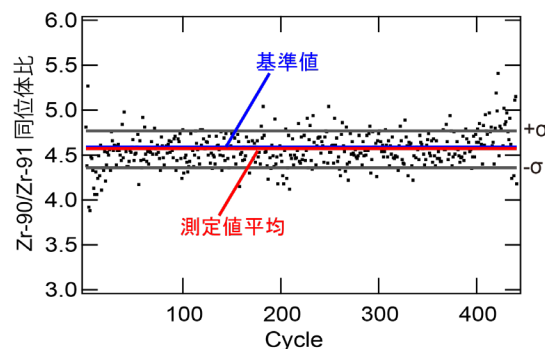
LA 測定用試料の作製法を検討した結果、Zr のみを吸着させたレジンを粉末化し、表面をコーティング処理することにより、測定時に安定なシグナルが得られることが分かった。これは、表面が平滑な試料の場合、アブレーション時に均一に微粒子化されるためと考えられる。レーザー繰り返し周波数 20 Hz、レーザースポット径 50 μm 、レーザーフルエンス 3 J/cm^2 の条件で Zr-90/Zr-91 同位体比を測定した際に、最も基準値 (天然の同位体比) に近い測定結果を得た。

放射性廃棄物分析への適用性を確かめるため、模擬 HLW 溶液から Zr のみを吸着させた固体試料を作製し、同条件で測定した結果、Zr-90/Zr-91 同位体比の平均値は基準値からのずれが 0.5 % 以内で一致した (右上図)。

本手法により Zr 同位体比を精確に測定することができた。発表では IDMS によって HLW 模擬試料中の Zr を定量した結果についても報告する。

[1] Asai, S. et al., *Talanta* **2018**, 185, 98-105.

[2] 森井ら、日本放射化学会第 65 回討論会 (2021) 2P11.



LA-ICP-MS による模擬 HLW 溶液の Zr 同位体比測定結果

Development of a rapid analytical method of Zr-93 by LA-ICP-MS
MORII S., YOMOGIDA T., ASAI S., OUCHI K., OKA T., KITATSUJI Y.

特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 340室

[2P19] プラスチックシンチーション検出器による放射性粒子中のストロンチウム90の定量

*末木 啓介¹、藤沼 修平¹、山崎 信哉¹ (1. 筑波大学)

[2P21] 東京電力福島第一原子力発電所事故後の福島県内多地点の河川中放射性セシウム濃度の推移

*入澤 歩¹、谷口 圭輔²、竹内 幸生¹、那須 康輝¹、恩田 裕一³ (1. 福島県環境創造センター、2. 津山高専、3. 筑波大学)

[2P22] 海洋堆積物由来の放射性セシウム粒子の溶解特性

*三浦 輝¹、久保 篤史²、石丸 隆³、伊藤 友加里³、神田 穰太³、津旨 大輔¹ (1. 電力中央研究所、2. 静岡大学、3. 東京海洋大学)

[2P23] 不溶性セシウム粒子の放出事象と地表面における分布の考察

*佐藤 志彦¹、末木 啓介²、五十嵐 康人³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 筑波大学、3. 京都大学)

[2P24] 降下物中の放射性セシウムの植物葉による遮断係数

*田上 恵子¹、内田 滋夫¹ (1. 量子科学技術研究開発機構)

2P19

プラスチックシンチレーション検出器による放射性粒子中のストロンチウム 90 の定量

(筑波大学)○末木啓介、藤沼修平、山崎信哉

【緒言】福島第一原子力発電所の事故により多くの放射性物質が放出された。この放射性物質のうち、水に不溶性で放射性セシウムによって高濃度に汚染された粒子状の物質が見出されており、この放射性粒子には大きく分けて2種類の存在が確認されている¹⁾。この放射性粒子中に放射性セシウム以外の放射性核種として Sb-125, Pu, Sr-90 について報告がなされている¹⁻³⁾。このうち Sr-90 の定量に関しては張らによってアルカリ溶融からの化学分離を行いチェレンコフ光測定による測定と中村らによる表面障壁型 Si 検出器でβ線測定し PHITS によるシミュレーションとの比較によって求める方法が報告されている²⁾。今研究では放射性粒子を非破壊でプラスチックシンチレーション検出器を用いてβ線測定を行い、Sr-90 の定量をしたので報告する。

【測定】5 cmΦ、1 cm 厚のプラスチックシンチレータをフォトマルに組み込み遮光布で保護した検出器を鉛ブロックでくみ上げた遮蔽体中にセットし、常に一定のジオメトリーで放射性粒子を測定した。得られたスペクトルから長時間測定した実際のバックグラウンドスペクトルを引いたスペクトルを得て定量した。β線スペクトルの標準試料として直径 100μm の陽イオン交換樹脂に Sr-90 および Cs-137 の標準溶液を吸着させ乾燥した測定試料を作成してそれぞれのスペクトルを得た。図 1 に示すように実試料のスペクトルから Sr-90 と放射平衡にある Y-90 のβ線の高エネルギー領域で最も安定して計数が観測される領域を決めて、Sr-90 の標準試料との比較から定量することに成功した。粒子の大きさなどによる検出効率やスペクトルの変化などについては PHITS を用いて検討した。

【結果と考察】Cs-137 が 100 Bq 以上の 32 個の粒子について測定を行った。Sr-90 は 1 個当たり 0.10-67 Bq の範囲で得られた。¹³⁷Cs/⁹⁰Sr は 300 から 3000 の範囲であった。32 個の粒子のうち 31 個は ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比が 0.9 前後と TypeB の特徴を持っていた。SEM によって得られた粒子の大きさ及び SEM/EDS による粒子組成との関係を検討した。31 個中で鉄の酸化物を多く含む 4 個の粒子とケイ酸が主体の粒子に大きな違いはなかった。このことから放射性粒子はその組成と取り込まれた放射性核種の間には大きな依存性はなく放射性核種は炉心から蒸発してきた組成のままで粒子に取り込まれたものと推定した。

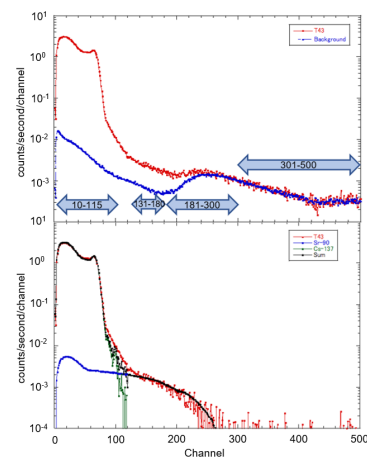


Fig. 1. Upper: Spectra of radioparticle and background. Bottom: Spectra corrected by background of radioparticle and standard sources of Cs-137 and Sr-90.

1)Y. Satou et al., *Geochem. J* 52 (2018) 137. 2)Z. Zhang et al., *EST* 53 (2019) 5868 and S. Nakamura et al., *J Radiation research* 59 (2018) 677. 3)J. Igarashi et al., *Scientific Reports* 9 (2019) 11807.

Determination of strontium-90 in radioactive particles with a plastic scintillation detector
SUEKI K., FUJINUMA S., YAMASAKI S.

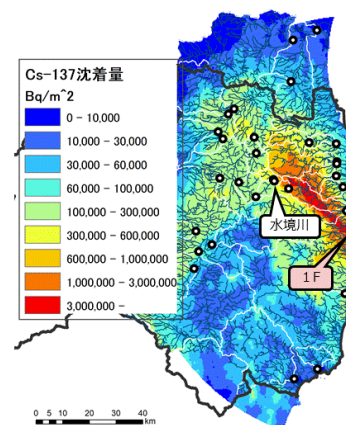
2P21

東京電力福島第一原子力発電所事故後の福島県内多地点の河川中放射性セシウム濃度の推移

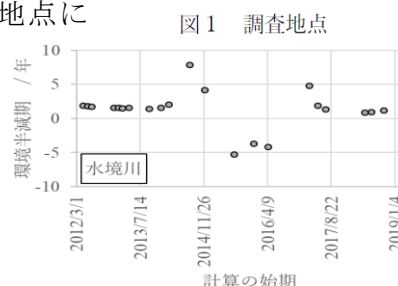
(福島県環創セ¹、津山高専²、筑波大学³)○入澤歩¹、竹内幸生¹、那須康輝¹、谷口圭輔²、恩田裕一³

【緒言】 2011年3月11日に発生した東京電力(株)福島第一原子力発電所事故(以下、「1F事故」という。)により環境中に放出されたCs-137は、総放出量が多く、かつ半減期が約30年と比較的長い。河川はCs-137の主要な輸送経路であることから、河川水中Cs-137の長期的かつ広域的な濃度変動等の把握が1F事故影響を概括するうえで重要である。

Chernobyl原子力発電所事故以降のヨーロッパの河川水中Cs-137濃度推移は、短・中・長期の3つの指数関数の和で表される低下傾向があり、各期間の実効環境半減期は、短期成分は概ね1月以内、中期成分は概ね1-5年、長期成分は6-20年程度であった[1]。本研究においては、2012年から2021年までの、福島県内を流れる河川の懸濁態Cs-137濃度のデータを用い、中期成分の期間における、環境半減期の経時変化の地域差について検討した。



【方法】 モニタリングは、図1中の白抜き丸で示す29地点において、2011年から現在まで継続している。各観測地点に設置された浮遊砂サンプラーで懸濁粒子を捕集し、凍結乾燥後、Ge半導体検出器で懸濁態Cs-137濃度を測定した[2]。すべてのデータは、2011年3月12日に減衰補正した。



Cs-137濃度低減の中期成分を求めるため、1F事故

後1年(2012年3月)以降を解析対象とした。その中から、連続した3年間±30日となるデータセットを抜き出し、当該期間の環境半減期を算出した。解析期間の始期を2012年3月から2019年2月まで変化させ、観測点ごとに、環境半減期の経時変化をプロットした。

【結果と考察】 図2に一例として、阿武隈川支流口太川上流域の水境川地点における環境半減期の推移を示す。初めは2年程度の環境半減期を保っていたが、2014年を始期とする期間から環境半減期が大きくなり(=濃度低下速度が鈍化)、2015年5月を始期とする期間から2016年4月を始期とする期間までは環境半減期が負値をとっている(=濃度が上昇傾向)。その後、1年程度の環境半減期で推移した。

環境半減期の経時変化の原因として、(1)短期成分の残留、(2)長期成分の占める割合の相対的増加、(3)季節変動等に伴う周期的変動、(4)環境要因の変動、が考えられる。

水境川におけるこの経時変化は系統的ではないことから、(4)環境要因の変動(除染土の流出による濃度低下とその収束による濃度上昇等)によるものと示唆される。

【参考文献】 [1] Smith J. et al., *Chernobyl - Catastrophe and Consequences*, Praxis Publishing, (2005). [2] Taniguchi K. et al., *Environ. Sci. Technol.*, **53**, 12339, (2019).

Trends in radiocesium concentrations in river water surveyed at multiple sites in Fukushima Prefecture after the accident at TEPCO's Fukushima Daiichi NPP
IRISAWA A., TAKEUCHI Y., NASU K., TANIGUCHI K., ONDA Y.

2P22

海洋堆積物由来の放射性セシウム粒子の溶解特性

(1 電中研、² 静岡大、³ 東京海洋大)○三浦輝¹、久保篤史²、石丸隆³、伊藤友加里³、神田穰太³、津旨大輔¹

1. はじめに 2011 年の東京電力福島第一原子力発電所事故により、放射性セシウム (Cs) を含む放射性核種が環境中に放出された。事故から 2 年後、放射性 Cs 粒子 (CsMPs) と呼ばれるガラス状の不溶性粒子が初めて報告された (Adachi et al., 2013)。

(i) 粒子の物理・化学的性質が事故当時の炉内の環境を反映していること、(ii) 不溶性であるため長期的に環境中に残存し、生物への影響が懸念されることなどの理由から、CsMPs に関する研究が進められてきた。これまで主に 3 種類の CsMPs が報告されており、放出源がそれぞれ異なる (1-3 号機)。本研究では、3 号機由来の CsMPs (タイプ C, Kubo et al., 2020) に着目して研究を行った。CsMPs の沈着域は、粒子のサイズや密度などの性質と粒子放出時の大気プルームに依存するが、タイプ C は原発から東方向へのプルームによって運ばれ、多くは海洋表層へ沈着したと推定されている。海洋表層への沈着後、短期間 (10~20 日) で海底へ堆積することが計算によって示唆されており (Miura et al., 2021)、主に海洋の堆積物から発見されている。本研究では、溶解実験により、タイプ C の海水中での溶解速度を明らかにすることを目的とした。放射性 Cs の生物への取り込みや、シミュレーションによる移行予測において、Cs の形態 (= 水溶性 or 不溶性) は重要なパラメータである。また、CsMPs 中の Cs は吸脱着反応に無関係に存在するため、海洋の Cs の K_d (固液分配係数) を上昇させることも示唆されており、CsMPs の海洋での分布や溶解速度の解明が望まれる。

2. 方法 2018 年に福島第一原発北東約 20 km 地点で採取した海底堆積物サンプルからタイプ C を単離し、溶解実験に用いた。20°C (福島沿岸表層海水温の年平均) の人工海水にタイプ C を 4-5 か月間入れ、粒子中放射性 Cs の変化量から粒子の溶解速度を算出した。

3. 結果および考察 実験の結果、球形のタイプ C の溶解速度 (半径の減少速度) は 3 $\mu\text{m}/\text{year}$ (20°C 海水) となったが、これはタイプ A の溶解速度 (0.3 $\mu\text{m}/\text{year}$, 20°C 海水, Okumura et al., 2019) と比べて非常に速く、ガラスの組成が異なることが示唆された。溶解速度は水温に比例するため、採取地点によって溶解速度は変動する。例えば本サンプルの採取地点 (水深 120 m) での年平均水温は 10°C 前後であるため、溶解速度は本研究結果よりも遅くなることが推定される。同一地点で 2018 年と 2020 年に採取された堆積物サンプルに含まれる CsMPs を単離し、各 CsMPs (2018 年 13 個、2020 年 16 個) の放射能を比較すると、溶解速度から推定される以上の減少傾向が見られた。溶解によりもろくなった粒子が分割されている可能性がある。今後、異なる温度や生物体内模擬溶液での溶解実験を行う。

Dissolution characteristics of radiocesium-bearing microparticles isolated from marine sediments, H. Miura, K. Atsushi, T. Ishimaru, Y. Ito, J. Kanda, D. Tsumune

2P23

不溶性セシウム粒子の放出事象と地表面における分布の考察

(原子力機構¹、筑波大学²、京都大学³)○佐藤志彦¹、末木啓介²、五十嵐康人³

【緒言】福島第一原子力発電所事故で放出した不溶性セシウム粒子（通称 Type A）について生成過程から環境中における長期的な変化に至るまで様々な研究が行われている。しかし不溶性セシウム粒子が放出した事象は明確に特定されておらず、さらに地表面における存在分布を明らかにした報告もまだない。Type A 粒子が放出したとされる 3 月 15 日は映画「Fukushima50」のタイトルの由来となった、福島第一原発に最小限の要因を残して復旧が行われた時期とも重なり、記録自体が少なく、放出事象を裏付ける情報はオンサイト・オフサイトの双方で不足している。一方 2014 日本放射化学会年会・第 58 回放射化学討論会(@名古屋大学)において佐藤らは環境中へ放出した ^{110m}Ag ($T_{1/2}:250\text{d}$) と ^{137}Cs ($T_{1/2}:30\text{a}$) の比を用いることで福島第一原発より北西方向に位置する帰還困難区域の汚染が、3 つに分けることができることを報告した。北西方向が汚染したのは Type A が放出したと考えられる 3 月 15 日であり、この日に発生した放出イベントや放射性物質の沈着分布を考察することで、Type A 粒子の放出事象と分布を解明できると期待される。そこで本研究では不溶性セシウム粒子が放出したイベントを $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比を用いて推定し、さらにどのように地表面に分布が生じたか考察した。

【考察】

3 月 15 日は未明から放射性物質の放出が発生したことが東日本各地に設置されたモニタリングポストや SPM フィルターから明らかになっている。そして最初に Type A 粒子が発見されたつくばで採取した HV フィルター試料はこの時期に福島第一原発より放出したプルームを捕集している。一方、Satou らが Type A 粒子を報告した北西方向の汚染は 16 時ごろから発生したことが判明しており、Type A 粒子は 1 日近くに渡り原子炉から放出し続けていたと考えられる。また北西方向に最初に沈着した汚染の $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比は約 0.005 (2011 年 3 月 11 日時点 以下、同様) であり、この $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比を示す汚染は Mikami らの報告した土壌調査の結果を再計算すると、福島県内のみならず 15 日の午前中に汚染が発生した群馬県でも確認されており、Katata らによる WSPEEDI を使った 15 日のモデル計算結果とも一致する。さらに $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比を用い北西方向のイベントを分離すると、福島第一原発周辺 15 キロ圏内に $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比 0.005 の場所は存在せず、Ikehara らの行った分析結果とも合致する。以上のことから Type A 粒子は $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比が 0.005 を示した放出イベントで環境中に放出したと推定される。なお具体的な放出源については当日報告する。

【参考文献】

Satou *et al.*, *Anthropocene* 14 (2016) 71-76Mikami *et al.*, *Journal of Environmental Radioactivity* 139 (2015) 320-343Katata *et al.*, *Atmos. Chem. Phys.*, 15 (2015) 1029-1070Ikehara *et al.*, *Inorganic and Analytical Chemistry* 241 (2020) 125019

Consideration of release events of insoluble cesium particles and distribution on the terrestrial
SATOU, Y., SUEKI, K., IGARASHI, Y.

2P24

降下物中の放射性セシウムの植物葉による遮断係数

(量研機構)○田上恵子、内田滋夫

【緒言】大気中に放出された放射性物質は、地表に降下する過程で植物に遮断される。農作物では遮断された放射性核種がそのまま汚染に繋がる。そのため降下量に対し作物中の濃度がどの程度になるのかを推定できれば、内部被ばく低減に役立つ。そのような環境移行パラメータに重量当たりの遮断係数 (f_B , mass interception coefficient) が使われており、植物中の初期放射性核種濃度 (Bq/kg 生) と面積当たりの降下総量 (Bq/m^2) の比で表される。本研究では福島第一原発事故由来の放射性 Cs の f_B と、グローバルフォールアウトが多かった 1960 年代の f_B データについて報告する。

【方法】2011年3月15日から千葉市の量研敷地内において1日2回降下物を採取し ^{137}Cs 降下総量を求めた。その結果から同場所においては3月21-22日の降雨によって放射性物質降下量が最大を示した。降下量が減るのを待ち、3月28日に山菜を敷地内で採取し、直ちに濃度を Ge 半導体検出装置で定量して初期保持量とし、対応する総降下量を使って f_B を導出した。また、食品モニタリングデータから同一地点において連続採取した葉菜試料データを中心に抽出し、その濃度変化から3月20日に遡って初期濃度を導出し、それに対応する降下量については、作物が採取された市町村内の土壌中濃度を半減期補正して f_B の計算に用いた。

グローバルフォールアウト ^{137}Cs (GF-Cs) は、駒村ら¹が小麦に関し1959-1965年は作物中濃度に直接沈着がほぼ100%影響したことを報告している。そこで本研究では1965年までに採取された作物について、ウェザリング²を考慮して初期濃度を求め、また作物の収穫前30日間の降下物中 ^{137}Cs 濃度を総量として f_B を求めた。

【結果及び考察】福島第一原発事故後に得られた葉菜と山菜の重量当たりの遮断係数 f_B と GF-Cs の f_B が複数件得られたキャベツ、ハクサイ、ホウレンソウについて比較した結果を Fig.1 に示す。原発事故由来の放射性 Cs の f_B データの幾何平均値は $0.116 m^2/kg$ 生であった。このデータを GF-Cs の各作物の f_B と比較したところ、キャベツでは有意に低かったが ($p<0.001$)、ホウレンソウとハクサイは有意差がなかったものの、ハクサイではやや低い値だった。葉の表面の形状や構造の違いに加え、結球性の野菜は可食部が直接沈着を受けにくいことが、 f_B に違いが生じた要因と考えられた。

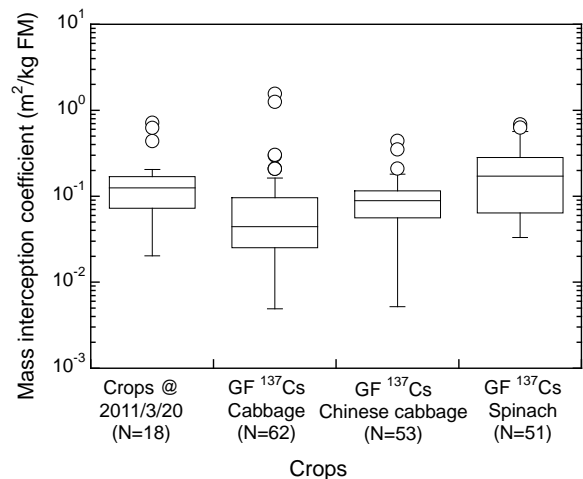


Fig. 1 Mass interception coefficient of radiocaesium for leafy crops using data after the Fukushima nuclear accident and global fallout (GF).

<引用文献> ¹ 駒村ら(2002). *Radioisotopes* **51**, 345-363. ² 田上、内田(2020). *Radioisotopes* **69**, 341-352.

Interception Coefficient of Fallout Radiocaesium by Plant Leaves
TAGAMI, K., UCHIDA, S.

基盤セッション 教育関連 | 基盤セッション E: 教育関連

基盤セッション E: 教育関連

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 340室

[2P25] 明治大学のオムニバス授業「応用化学概論2」における放射線教育

*小池 裕也¹、齊藤 敬²、小川 熟人¹、鈴木 義丈¹ (1. 明治大学、2. 尚絅学院大学)

[2P26] ビーム調整時間を利用した⁶⁸Geの製造と教育用⁶⁸Ge/⁶⁸Gaジェネレータへの応用

*鷺山 幸信¹、佐々木 茂範²、永津 弘太郎³、葉袋 佳孝⁴、高橋 和弘¹ (1. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、2. 住重加速器サービス、3. 量子科学技術研究開発機構量子医科学研究所、4. 武蔵大学リベラルアーツ&サイエンス教育センター)

[2P27] 小学生向け放射線実験 -原子放射線教育から地下深部の HLW核種処分に係わる安全性可視化まで-

*太田 朋子¹、鈴木 達也¹、末松 久幸¹、菊池 崇志¹、内田 雄大²、江 偉華¹ (1. 長岡技科大、2. 長岡高専)

2P25

明治大学のオムニバス授業「応用化学概論2」における放射線教育

(明大理工¹、尚絅学院大²)○小池裕也¹、齊藤敬²、小川熟人¹、鈴木義丈¹

【緒言】 明治大学理工学部応用化学科では、講義科目として「放射化学」を扱っていないため、「応用化学概論2」で放射線にかかわるテーマを取り扱っている。「応用化学概論2」は、「社会で活躍する先輩たちに学び思考力を育むなかで見えてくる将来進むべき道」をテーマに、大学卒業生組織「明治応用化学会」と連携して開講する、学部3年生を対象とした必修科目のオムニバス授業である。卒業生により設立された大学卒業生組織である「明治応用化学会」¹⁾のメンバーを講師に招き、最近の化学業界の現状、進路選びの経験、教職資格等の話を、議論を深めながら語り合い、お互いの意見を交換するアクティブ・ラーニングの形式である。普段の授業とは違った視点、そして雰囲気化学を学ぶことが特徴で、その中で放射線教育を実施している。

【授業内容】 将来の可能性を学生自身が考える授業を目指し、学生自身が化学研究の未来や将来の進路について考える場を提供することが目的である。2022年度の「応用化学概論2」では、全58テーマの中で以下の8テーマを卒業生が講義した。

- (1) 放射線の基礎知識と教育 (その1)
- (2) 放射線の基礎知識と教育 (その2)
- (3) 大学の安全と企業の安全の違いとは?
- (4) 核不拡散のための保障措置と分析化学
- (5) 産業分野における元素分析の利用—蛍光X線分析の活躍—
- (6) 現代社会における放射線利用を知る (2回実施)
- (7) X線回折の基礎
- (8) 一般及び作業環境調査業務—さらにより環境づくり—

授業において学生に提供する情報量が多いため、明治大学のLMSである「Oh-o! Meiji」の活用を試み、より効果的な授業運用を心がけた²⁾。

【授業評価】 「応用化学概論2」では、自ら学ぶテーマを主体的に選択し、最新の化学と社会に必要な知識を卒業生に学ぶことで、幅広い視野と豊かな思考力を育むことを目標とした。授業では、化学メーカー、化粧品メーカー、製薬会社、機械製造会社、鉄道会社、放射線計測会社、中学高校、大学や研究機関などで活躍する卒業生による、さまざまな分野の最先端がテーマとなる。その中で放射化学分野を選択する学生も増えている。また、学部2年生の授業で「最先端化学」というオムニバスの講義科目を実施している。その中でも、「放射線の基礎知識と教育」「都市ごみ焼却飛灰の安全・安心な固化処理をめざして」「福島第一原発の事故と研究者たちの活動」「福島第一原子力発電所における放射線管理及び放射線の状況について」という放射化学関連の講義を企画しており、学生は熱心に受講している。本発表ではオムニバス授業の中で放射線教育を取り入れる試みを紹介する。

【参考文献】

- 1) 明治応用化学会 <http://www.isc.meiji.ac.jp/~chem50an/> (2022年7月23日参照).
- 2) 小池裕也ら, LMSを活用した大学卒業生組織との連携ゼミナール授業, 2019年度ICT利用による教育改善研究発表会論文, 65-68 (2019).

Radiation education in the omnibus class “Introduction to Applied Chemistry 2” at Meiji University
KOIKE, Y., SAITO, T., OGAWA, N., SUZUKI, Y.

2P26

ビーム調整時間を利用した ^{68}Ge の製造と教育用 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレータへの応用

(福島医大先端セ¹、住重加速器サービス²、QST 量医研³、武蔵大⁴) ○ 鷲山幸信¹、佐々木茂範²、永津弘太郎³、葉袋佳孝⁴、高橋和弘¹

【緒言】 ^{68}Ge ($T_{1/2}=270.9\text{d}$) は $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレータの親核種として有用であると共に、 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ の密封線源は PET 装置の校正線源として利用されている。これらのジェネレータや密封線源はヒトの診断に利用するため GBq の放射能が必要である。一方、 ^{68}Ge はその壊変の特徴から、放射化学において放射能と放射線、放射性核種の関係を理解するためのツールとして効果的であると考えられている[1,2]。特に ^{68}Ge は EC 壊変の際に γ 線を放出しないため、数 kBq の放射能を持つカラムで、放射能の減衰や成長を実験的に理解することが可能である。しかし、少量の ^{68}Ge を購入することは不可能に近く、加速器施設で自ら製造するほか術はないが、少量の ^{68}Ge の製造のために定期的にマシンタイムを確保するのは効率的ではない。本研究では加速器のビームダンプに打ち込まれるビームを利用した製造方法を提案する。一般に目的 RI を製造するために加速器では、標的に対して照射するビームのエネルギーや電流、ビーム系を調整する作業が事前に行なわれる。ここでは、ビームダンプに捨てられるビームを利用することを仮定し、短時間の繰り返し照射で ^{68}Ge がどれだけ製造出来るのかを検討した。

【実験】 住重製の中型サイクロトロン MP-30 で 30MeV まで加速した α 粒子を 100 μm 厚の ^{nat}Zn 箔 (ニラコ製、99.95%) に 10 e μA で 5 分間照射し、 $^{nat}\text{Zn}(\alpha, xn)^{68}\text{Ge}$ 反応で生成した ^{68}Ge および副反応生成核種を照射直後 (EOB) から逐次的に γ 線測定を行い、生成した核種の定性および定量分析を行なった。また、30MeV まで加速した α 粒子を 100 μm 厚の ^{nat}Zn 箔に毎週 10 e μA で 5 分間ビームダンプに打ち込むと仮定して 25 週 (約半年) での ^{68}Ge の製造量および副反応生成物の製造量を計算した。

【結果と考察】 100 μm 厚の ^{nat}Zn 金属標的に α 粒子を 10 e μA で 5 分間照射した結果、EOB での各核種の放射能はそれぞれ、 ^{68}Ge 16 kBq; ^{66}Ga ($T_{1/2}=270.9\text{d}$) 30 MBq; ^{67}Ga ($T_{1/2}=78.3\text{h}$) 3 MBq; ^{69}Ge ($T_{1/2}=39.0\text{h}$) 2.3 MBq; ^{65}Zn ($T_{1/2}=243.9\text{d}$) 5kBq であった。毎週定期的に照射した場合、25 週経過後ではそれぞれ ^{68}Ge , 340 kBq; ^{66}Ga 30 MBq; ^{67}Ga 3.9 MBq; ^{69}Ge , 2.4 MBq; ^{65}Zn , 103kBq であった。照射直後は短半減期の ^{66}Ga の生成が最も優勢であり、照射場の線量率が高くなることから、ビームダンプにおける遮蔽に対する工夫が求められる。また、照射後 1 ヶ月の冷却期間を設定することで短半減期の核種は減衰し、Zn ターゲット中には ^{68}Ge (^{68}Ga)、 ^{65}Zn のみが存在することから、線量や化学分離の観点からも充分に取扱がしやすく、 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレータの製造に適していることが判明した。討論会では、ターゲットからの ^{68}Ge の分離精製および $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレータの製造と評価も併せて報告する。

【参考文献】 [1] 鷲山幸信ほか 低レベル放射能の ^{68}Ge を用いた $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレータの作製と放射化学実習への応用, 日本放射線技術学会雑誌 71(10) 983-993 (2015). [2] 野崎正ほか 広い教育分野における $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用いる諸実験の活用—ラジオアイソトープの新利用—, 放射化学 35 64-81 (2017).

Manufacturing of ^{68}Ge in a beam tuning time of cyclotron and its application for a $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ generator in educational use

WASHIYAMA, K., SASAKI, S., NAGATSU, K., MINAI, Y., TAKAHASHI, K.

2P27

小学生向け放射線実験－原子放射線教育から地下深部の HLW 核種処分に係わる安全性可視化まで－

(長岡技科大¹、長岡高専²)○太田朋子¹、鈴木達也¹、末松久幸¹、
内田雄大²、菊池崇志¹、江偉華¹

【長岡技科大における原子力教育】

長岡技術科学大学は柏崎原子力発電所の20km圏内に位置する。柏崎原子力発電所が近い本学の周辺地域では、放射性物質・放射線に関する関心は極めて高い。

本学・量子・原子力統合工学系では、大学院生が原子力の基礎科目や原子力安全工学概論、核燃料サイクル工学、原子力レギュラトリー特論、原子力防災工学、環境放射能と生物影響、計算科学特論等の講義を学ぶ。本学では、放射線防護・放射線安全教育を学ぶ大学院生が、講義・実習で学んだインプットに対するアウトプットのために、量子・原子力系教員とともに立地地域の複数の小学生を対象にした放射線・放射線防護教育に関する講話・実験実習を行う取り組みを行っている。立地地域の小学生への指導を大学院生が自ら行うことで、大学院生の放射線防護に関する説明能力を養い、立地地域で地域住民へ放射線防護・放射線安全教育を行う将来を想定した実践訓練とする。

【立地地域の小学生への放射線防護教育を通じた大学院生の実践教育】

放射線に関する講話・実験実習は、我々の生活に欠かせない食品や農作物を育てるために必要な肥料、建築に必要な岩石など身近なものに自然放射線が含まれることを通じ理解を深めること、霧箱を用いた放射線の可視化教育、原子・原子核の構造の理解、放射線による人・生物に与える影響の理解、さらに日常的に使用する電気の廃棄物となるHLW処分に係わる放射性核種に対する粘土のバリア機能を体験できる教育実習を本学周辺の6つの小学校・2つの中学校で行った。

R3年度の小学生の受講者数は5小学校で合計311名、中学校では126名、合計437名であった。中学校は長岡高専が担当を行った。R4年度は4つの小学校、2つの中学校合計310名の生徒を育成予定である。



Radiation experiment for elementary school students- from atomic radiation basic education to visualization of the safety of HLW nuclear species disposal in the deep underground-
OHTA, T., SUZUKI, T., SUEMATSU, H., UCHIDA, KIKUCHI, T. KOU, I.

基盤セッション 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識 | 基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

基盤セッション D: 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 341室

[2P09] 環境水中 I-129分析に向けた Ag^+ 担持樹脂による大容量試料中の I回収と競合アニオンの影響

*青木 譲¹、松枝 誠¹、小荒井 一真¹、寺島 元基¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

[2P10] ^{85}Sr , ^{90}Y ダブルレーザー法による Sr吸着剤を用いた海水中の ^{90}Sr 分析法の検討

*箕輪 はるか¹、緒方 良至²、小島 貞男²、加藤 結花³ (1. 東京慈恵会医科大学、2. 愛知医科大学、3. 日本レイテック株式会社)

2P09 環境水中 I-129 分析に向けた Ag⁺担持樹脂による大容量試料中の I 回収と競合アニオンの影響

(日本原子力研究開発機構) ○青木讓, 松枝誠, 小荒井一真, 寺島元基

【緒言】 環境水中 I-129 は極微量 ($1.5 \times 10^{-2} \sim 2.0 \times 10^{-1}$ pg/L) であるため, その検出には数リットルレベルの大容量試料を濃縮する必要がある。従来, I の前濃縮に利用されている陰イオン交換性の固相抽出ディスク (3MTM 社製 ANION-SR) は, 大容量試料を濃縮可能だが, I に対して 20 倍以上の硝酸イオンが共存する場合, I の回収率が低下する。そのため, 硝酸イオン濃度が高い河川水, 湖水および雨水試料 ($\text{NO}_3^-/\text{I} = 3.2 \times 10^2, 9.7 \times 10^1$ および 6.6×10^2) では, I の回収率の低下に伴い, 濃縮倍率も低下する。近年, Ag⁺を担持した固相抽出樹脂 (Triskem 社製 CL Resin) は, I-129 の ICP-MS 分析に向けて干渉元素から I の分離回収への利用が検討されている¹⁾。CL Resin は, Ag⁺を利用し I を様々な金属元素から選択的に回収できるため, I の濃縮分離法として期待できるが, I 以外のハロゲンも回収する。そのため, 環境水中のアニオン (Cl⁻, Br⁻, F⁻, NO₃⁻, H₂PO₄⁻) が I の回収に競合する可能性があり, その影響は明らかにされていない。本研究では, I-129 の ICP-MS 分析に向けて CL Resin の I 回収に与える環境試料中の共存陰イオンの影響を調査し, CL Resin による I の濃縮実験を行った。

【実験方法】 CL Resin 1~50 mg を遠沈管へ測り取り, 0.1 μM ~ 0.1 M の陰イオン種を含む 50 mL 試験溶液 (0.1 μM I, 1.0 M 硫酸, あるいは 1.0 M 硫酸ナトリウム, 1.0 M 硫酸アンモニウム) を加え, 振とう機にて 1000 rpm, 25°C で 2 時間混合した。混合試料は, ろ過 (孔径 < 0.45 μm) し, 樹脂をシリンジフィルターに回収した。樹脂は, 超純水 5 mL, 1%NaOH 水溶液 5 mL で洗浄後, 溶離液 (0.35 M Na₂S) 0.5 mL を計 3 回通液し, I を回収した。I 回収液は, 超純水で 100 倍希釈し, ICP-MS/MS を用いて I 濃度を定量した。濃縮倍率は, 元の試験溶液 (0.05 μM I, 1.0 M 硫酸, 10 L) と I 回収に必要な溶離液量から算出した。

【結果と考察】 固液比 (樹脂量/試料量) が 0.02 mg/mL における CL Resin による I 回収率は, 0.1 M の F⁻, NO₃⁻ および H₂PO₄⁻ 共存下 86.9 ~ 99.0% であったが, 0.1 M の Cl⁻, Br⁻ 共存下では 32.2, 33.5% に低下した。そこで, 固液比を 0.1 mg/mL に調節した結果, 0.1 M の Cl⁻ および Br⁻ の影響を受けずに, I を 96.8 ~ 97.8% 以上回収した。硫酸, 硫酸ナトリウムおよび硫酸アンモニウムの溶液条件で I は, 91.9 ~ 95.8% 回収されたため, 液性を硫酸イオン条件に調整することで CL Resin は, I を回収することが示唆された。回収された I の化学形態は, Eh-pH 図から I⁻ であると推定した。これらの結果より, CL Resin は, 硫酸イオン共存下で I を I⁻ として回収できる。また, Ag と各アニオン種との化合物の溶解度の減少に伴い (溶解度: AgNO₃ > AgF > Ag₃PO₄ > AgCl > AgBr > AgI), アニオン種による I 回収への阻害が大きくなることが示唆された。I の濃縮試験において CL Resin は 10 L の試料に含まれる I を, 溶離液 0.5 mL で 54.6%, 1.0 mL で 86.2%, 1.5 mL で 91.9% 回収した。そのため, 溶離液 1.5 mL での溶出の場合, I の濃縮倍率は 6.1×10^3 であった。海水, 河川, 湖, 雨水中の I-129 の濃度は, それぞれ 2.0×10^{-1} , 1.6×10^{-2} , 1.5×10^{-2} , 2.4×10^{-2} pg/L であり, CL Resin を用いた濃縮分離法を適用した ICP-MS 法 (検出下限値: 39.8 pg/L) は, I-129 を原理的に測定可能であることを明らかにした。今後, 環境水に本法を適応し, 環境中での I-129 の動態を明らかにしていく。

(1) J. Aoki et al., JAEA-Research, 2021-002.

Using silver ion-loaded resin for I-129 analysis in environmental water: I recovery in large volume samples and the effect of competing anions.

2P10 ^{85}Sr , ^{90}Y ダブルトレーサー法による Sr 吸着剤を用いた海水中の ^{90}Sr 分析法の検討

(東京慈恵会医科大学¹、愛知医科大学²、日本レイテック株式会社³)

○箕輪はるか¹、緒方良至²、小島貞男²、加藤結花³

【緒言】 環境中の放射性 Sr の迅速・安全・安価な分析のため、ケイ酸バリウムを主成分とする Sr 吸着剤による海水中の Sr 分析法を開発している。 ^{90}Sr を海水から Sr 吸着剤に吸着（収着）させて一定期間保管し、 ^{90}Sr から壊変生成した ^{90}Y を回収しその β 線を測定して海水中の ^{90}Sr を定量する方法を検討する。

放射性 Sr 同位体のうち、 ^{90}Sr （半減期 28.8 年）は β 線のみ放出する核種である。 ^{90}Sr が壊変すると ^{90}Y （半減期 2.7 日）が生成し約 2 週間で放射平衡に達する。 ^{90}Y の β 線（最大エネルギー 2.26 MeV）は、水中でチェレンコフ光を生じ液体シンチレーションカウンタでの計測が可能である。一方 ^{85}Sr （半減期 64.8 日）は EC 壊変による γ 線放出核種で、514 keV（放出率 96%）の γ 線を NaI カウンタまたは Ge 半導体検出器で計測できる。以上を考慮し、本研究では ^{85}Sr 、 ^{90}Y のダブルトレーサー法を用いた。

【実験】 海水試料（海産微細藻類用ダイゴ人工海水 SP、和光純薬、または小笠原諸島の天然海水、小笠原海藻研究会）に ^{85}Sr をスパイクし、Sr 吸着剤“ピュアセラム MAq”（日本化学工業）を加えて攪拌した。攪拌から一定時間経過後、上清をガンマカウンタ 2480 WIZARD2 (Perkin Elmer Co., Ltd.) で測定し、Sr 吸着剤への Sr 吸着率を求めた。

^{85}Sr を吸着させた Sr 吸着剤を EDTA 溶液および NaOH を用いて溶解した。この溶液に ^{90}Y をスパイクしたのち、Y の水酸化物沈殿を生成して ^{90}Y を回収することを試みた。 ^{90}Y は液体シンチレーションカウンタ LSC-6100 (Aloka Co., Ltd.) あるいは、ガスフローカウンタ LBC-4601 (Hitachi Ltd.) で測定した。

^{90}Y トレーサーは ^{90}Sr からのミルキングにより調製した。 ^{90}Sr - ^{90}Y 平衡溶液から MetaSEP Analig Sr-01 カラム (GL Science Inc.) に 0.1M-HCl の条件で ^{90}Sr を吸着させ、 ^{90}Y を溶出させた。このカラムは約 2 週間おいて ^{90}Y が成長したのちに 0.1M-HCl を用いて再び ^{90}Y をミルキングすることができる。

【結果と考察】 Sr 吸着剤への Sr 吸着率を表 1 に示した。適切な条件下では Sr が 95% 以上吸着することがわかった。 ^{90}Sr をトレーサーに用いた場合、 ^{90}Sr と ^{90}Y を明確に区別するためには、 ^{90}Y の減衰後に再測定する必要があるため、結果を得るまでに時間がかかる。 ^{85}Sr と ^{90}Y のダブルトレーサー法を用いると、 ^{90}Y のチェレンコフ測定で ^{85}Sr は検出されず、 ^{85}Sr を測定する NaI カウンタの領域で ^{90}Y の計数効率著しく低い。このため同一試料の ^{85}Sr と ^{90}Y をそれぞれ独立して測定できる。 ^{85}Sr と ^{90}Y のダブルトレーサー法は、このような実験に適している。

表 1. Sr 吸着率

実験 No.	海水試料	試料量	吸着剤	攪拌時間 h	Sr 吸着率 %
A2A-1	人工海水	80 mL	120 mg	2	92.8±2.8
J2A-1	人工海水	80 mL	120 mg	2	93.6±2.2
A2G-11	人工海水	100 mL	150 mg	2	88.4±1.9
				4	95.7±3.4
J2B-2	小笠原	1 L	2.0 g	2	94.7±2.3
J2F-1	小笠原	1 L	2.0 g	2	93.6±4.0
				4	95.8±3.1

Examination of analytical method for ^{90}Sr in seawater using Sr adsorbent by ^{85}Sr , ^{90}Y double tracer method
MINOWA H., OGATA Y., KOJIMA S., KATO Y.

基盤セッション 計測・検出器 | 基盤セッションI: 検出器・計測・イメージング

基盤セッションI: 検出器・計測・イメージング

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 341室

[2P11] 超伝導転移端検出器を利用したマイクロ蛍光 X線分光法による環境試料中のウランの分析

*蓬田 匠^{1,2}、山田 真也³、一戸 悠人³、佐藤 寿紀³、早川 亮大³、岡田 信二⁴、外山 裕一⁴、橋本 直²、野田 博文⁵、磯部 忠昭⁶、奥村 拓馬⁷、高取 沙悠理⁸、平木 貴宏⁸、竜野 秀行⁷、関澤 央輝⁹、新田 清文⁹、栗原 雄一¹⁰、宇留賀 朋哉⁹、北辻 章浩²、高橋 嘉夫¹ (1. 東京大学、2. 日本原子力研究開発機構、3. 立教大学、4. 中部大学、5. 大阪大学、6. 理化学研究所、7. 東京都立大学、8. 岡山大学、9. 高輝度光科学研究センター、10. 京都大学)

2P11

超伝導転移端検出器を利用したマイクロ蛍光 X 線分光法による
環境試料中のウランの分析

(東大院理¹、原子力機構²、立教大³、中部大⁴、大阪大⁵、理研⁶、東京
都立大⁷、岡山大⁸、JASRI⁹、京都大学¹⁰)

○蓬田匠^{1,2}、山田真也³、一戸悠人³、佐藤寿紀³、早川亮大³、岡田信
二⁴、外山裕一⁴、橋本直¹、野田博文⁵、磯部忠昭⁶、奥村拓馬⁷、高取
沙悠理⁸、平木貴宏⁸、竜野秀行⁷、関澤央輝⁹、新田清文⁹、栗原雄一¹⁰、
宇留賀朋哉⁹、北辻章浩²、高橋嘉夫¹

【緒言】 旧ウラン(U)鉱床である人形峠では、層状ケイ酸塩鉱物である黒雲母が U のホスト相の 1 つとして報じられている。しかし、黒雲母が U を保持する詳細なメカニズムは未解明である。このメカニズムを明らかにするためには、黒雲母中での U の分布を正確に把握し、共存元素や風化による構造変化の影響を議論する必要がある。マイクロビームを用いた蛍光 X 線分光法(μ -XRF)は、環境試料に含まれた微量元素の分布を把握するために有効な方法である。しかし、黒雲母には U の蛍光 X 線分析時に測定妨害となるルビジウム(Rb)が多量に含まれており、黒雲母中の U の分布を正確に把握することは、通常用いられる半導体検出器(Silicon Drift Detector: SDD)では困難であった。そこで本発表では、エネルギー分解能 5 eV を達成可能な超伝導転移端検出器(Transition Edge Sensor: TES)を蛍光 X 線分析用の検出器として用い、黒雲母に含まれている U の分布を正確に把握する方法について検討した。

【実験】 人形峠旧ウラン鉱床のボーリングコア試料より、縦 3 mm×横 2 mm の黒雲母を採取した。この黒雲母を樹脂埋め後、ラッピングペーパーを用いて両面を研磨し、厚さ約 50 μ m の黒雲母薄片試料を調製した。SPring-8 BL37XU において、ビームサイズ約 1 μ m のマイクロビーム X 線を用いた蛍光 X 線分析を行った。X 線分析用の検出器として従来用いられている SDD と、TES を同時に用い、入射エネルギー 17.2 keV において試料各部位での μ -XRF スペクトルを取得して、黒雲母に含まれている U と Rb の分布を調べた。

【結果と考察】 マイクロビームを用いたマッピング分析により、試料中で U が存在するスポットを検出し、各分析点において XRF スペクトルを取得した。SDD のエネルギー分解能約 200 eV では、XRF スペクトルで 13.612keV の U $L\alpha$ 線と 13.395keV の Rb $K\alpha$ 線を分離することは困難であり、Rb が多量に存在する場合、U による蛍光 X 線ピークを分離して検出することはできない。一方、TES を用いると、13.615keV の U $L\alpha$ 線と、13.395 keV の Rb $K\alpha$ 線を完全にピーク分離することが可能である。したがって、TES を μ -XRF の検出器として用いることにより、試料中に共存する Rb の影響を除いて、U の分布を正確に把握することが可能になった。発表では、SDD と TES による μ -XRF マッピング分析を比較した結果も報告する。

Analysis of uranium in environmental samples by micro X-ray fluorescence spectroscopy using transition edge sensors

YOMOGIDA, T., YAMADA, S., ICHINOHE, Y., SATO, T., HAYAKAWA, R., OKADA, S., TOYAMA, Y. HASHIMOTO, T., NODA, H., ISOBE, T., OKUMURA, T., TAKATORI, S., HIRAKI, T., TATSUNO, H., SEKIZAWA, O., NITTA, K., KURIHARA, Y., URUGA, T., KITATSUJI, Y., TAKAHASHI, Y.

基盤セッション その他（境界分野への放射化学の新展開など） | 基盤セッション J: その他

基盤セッション J: その他

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 341室

[2P12] V-48トレーサーを用いた VRFB用イオン交換膜透過試験(3)

*白崎 謙次¹ (1. 東北大学)

2P12

V-48 トレーサーを用いた VRFB 用イオン交換膜透過試験(3)

(東北大学金属材料研究所)○白崎 謙次

【緒言】 バナジウム・レドックスフロー電池 (VRFB) [1]は電力貯蔵用二次電池の有力候補として国内外にて広く研究・実用化されている。VRFB では、隔膜を介したバナジウムイオンの膜透過による電流効率の低下、自己放電という課題を有し、この解決のためのイオン交換膜研究が世界中で盛んに行われている。しかし、VRFB は正負極の活物質に単一元素のバナジウムを用いるため、膜透過の原因(拡散、電気泳動、電気浸透)解明に一般的な元素定量法(ICP-AESを用いた濃度測定など)を適用することが困難である。これまでに我々は、放射性バナジウム ^{48}V を元素プローブとすることにより VRFB の膜透過を直接観察する手法を確立した[2]。前回、4つの酸化状態(V^{2+} , V^{3+} , VO^{2+} , VO_2^+)について、VRFB 構成で陽イオン交換膜(Nafion 117)、陰イオン交換膜(Selemion APS)における各酸化状態のバナジウムイオンの拡散による膜透過を簡単に評価した。そこで、今回、膜透過をより詳細に評価するとともに電解液の移動についても検討した。

【実験】 東北大学電子光物理学研究センターの直線加速器を用いた制動 γ 線照射により ^{48}V を製造し、LN レジンを用いたカラムクロマトグラフィーによる精製を行った。精製後の ^{48}V を含む硫酸バナジウム溶液を用い、VRFB における膜透過を Ge 半導体検出器による ^{48}V の定量により評価した。価数不安定性を配慮して、実験は窒素ガス気流下にて実施した。

【結果】 これまでの膜透過評価は、時間に対して濃度が直線的に増加するモデルで実施されてきたが、バナジウム濃度を詳細に評価すると、イオン交換膜の種類、バナジウムイオンの組合せにより直線とは異なる濃度変化を示した(図1)。一方、電解液の体積変化はバナジウムイオンによる明確な違いは生じない(図2)。

[1] E. Sum, M. Skjllas-Kazacos, J. Power Sources, 15 (1985) 179.

[2] K. Shirasaki, T. Yamamura, J. Membr. Sci., 592 (2019) 117367.

VRFB membrane permeability tests using radiotracer ^{48}V (3)
SHIRASAKI, K.

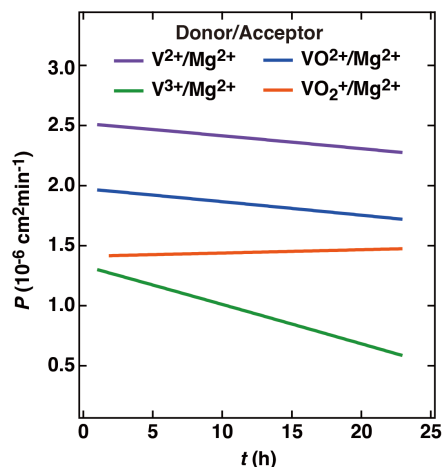


図2. 膜透過の評価結果
(Nafion117膜、対極:MgSO₄)

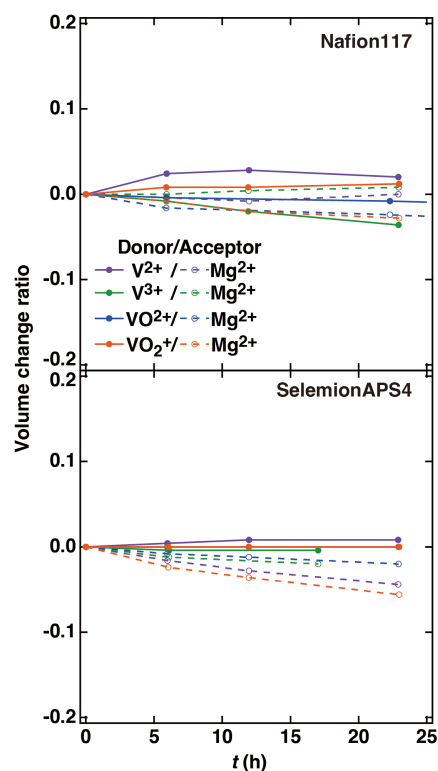


図3. 膜透過実験における電解液移動
(対極: MgSO₄)

特別セッション 1 福島第一原発事故関連研究の最前線

2022年9月16日(金) 17:45 ~ 18:45 341室

[2P13] 河川水の ^{137}Cs 動態におけるダム湖の役割

*辻 英樹¹、石井 弓美子¹、境 優¹、渡邊 未来¹、林 誠二¹ (1. 国立環境研究所)

[2P14] 道東沖表層の ^{134}Cs 濃度の経年変動からみた北太平洋北西側の海水循環

*真下 海成¹、井上 睦夫¹、谷内 由貴子²、中野渡 拓也²、長尾 誠也¹ (1. 金沢大学、2. 水産機構・資源研)

[2P15] モンテカルロ計算による玄米試料のガンマ線計数効率の評価

*古川 理央¹、佐藤 泰¹、真鍋 征也¹、下段 千尋¹、原野 英樹¹ (1. (国研)産業技術総合研究所)

[2P16] 福島原発事故由来の放射性セシウムの稲等による付着と吸収

*野川 憲夫、石井 秀樹¹、林 薫平¹、朴 相賢²、小山 良太¹、原田 直樹³、吉川 夏樹³、野中 昌法³、廣瀬 農⁴、小林 奈通子⁵、田野井 慶太郎⁵、中西 友子⁵ (1. 福島大学、2. 福島県農業協同組合中央会、3. 新潟大学、4. 星薬科大学、5. 東京大学)

[2P17] 蛍光を用いた放射性微粒子(CsMP)の検出可能性

*北 和之¹、阿部 善也²、末木 啓介³、佐藤 志彦⁴、五十嵐 康人⁵ (1. 茨城大学理工学研究科、2. 東京電機大学、3. 筑波大学、4. 日本原子力研究開発機構、5. 京都大学 複合原子力科学研究所)

[2P18] 多摩川支流野川にて採取した底質の放射能および性状分析

*猪瀬 聡史¹、山本 晃輝²、加世田 大雅¹、本多 貴之²、小池 裕也² (1. 明治大学大学院、2. 明治大学)

2P13 河川水中 ^{137}Cs 動態におけるダム湖の役割

(国立環境研究所) 〇辻 英樹、石井 弓美子、境 優、渡邊 未来、林 誠二

【緒言】 ダム湖は流入土砂の多くを貯留するとともにプランクトンの内部生産の場であるため、河川水中の ^{137}Cs 動態は湖内で大きく変化する。本研究では東京電力福島第一原子力発電所近傍のダム湖を対象に、河川水中の ^{137}Cs 動態への影響を明らかにした。

【現地観測】 福島第一原発から約 22 km 北西に位置する横川ダム(南相馬市, 太田川)において、2014年4月～2021年10月に流入水2地点・放流水を毎月採水し(図1)、カートリッジフィルタ法により懸濁態・溶存態の ^{137}Cs 濃度を測定した。 ^{137}Cs 動態に関連する水質項目として、水温、電気伝導度、懸濁物質濃度、主要イオン濃度等を測定した。

【結果と考察】 溶存態 ^{137}Cs 濃度は流入水・放流水ともに水温に連動し夏に高く、冬に低くなる季節変動を示した(図2)。この年変動を余弦曲線で近似したところ、放流水の溶存態 ^{137}Cs 濃度のピークは流入水に比べて約 24 日遅れることがわかった。このダム湖では総流域面積のうち最上流部の流入2河川が占める流域面積が 79%を占めることと、溶存態 ^{137}Cs 濃度が流入水と放流水でほぼ変わらず、湖底からの ^{137}Cs 溶出の影響は小さいと見られることから、この位相差は流入水が放流に至るまでの時間が原因と推察した。溶存態 ^{137}Cs 濃度の年振幅は流入2河川に比べて放流水で小さく、湖水の拡散の影響が見られた。また、溶存態 ^{137}Cs 濃度は夏には流入水のほうが高く、冬には放流水のほうが高くなった。しかし、2019年の台風19号(Hagibis)以降に放流水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は大きく低下し、それ以降は1年を通して常に放流水のほうが濃度が低くなった。その原因としては、ダム湖に大量に流入した、 ^{137}Cs 濃度の低い森林の下層土が湖水中 ^{137}Cs の吸収源になっている可能性がある。

懸濁物質単位重量あたりの ^{137}Cs 濃度は2つの流入河川水に比べて放流水のほうが低かった。この原因としては、流入した粒子状有機物質中の ^{137}Cs が流下過程で溶脱したことや、ダム湖内で増殖したプランクトンが懸濁物質として多く含まれていたことが原因と推察した。2019年の台風19号後は放流水中の懸濁物質中 ^{137}Cs 濃度の急激な低下は観測されなかった。このことから、湖水中の溶存態と懸濁態の ^{137}Cs は独立した挙動を示すことが明らかになった。

懸濁物質単位重量あたりの ^{137}Cs 濃度は2つの流入河川水に比べて放流水のほうが低かった。この原因としては、流入した粒子状有機物質中の ^{137}Cs が流下過程で溶脱したことや、ダム湖内で増殖したプランクトンが懸濁物質として多く含まれていたことが原因と推察した。2019年の台風19号後は放流水中の懸濁物質中 ^{137}Cs 濃度の急激な低下は観測されなかった。このことから、湖水中の溶存態と懸濁態の ^{137}Cs は独立した挙動を示すことが明らかになった。

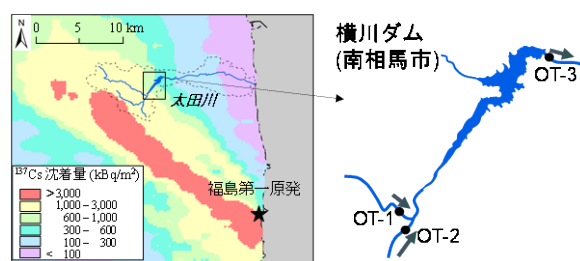


図1 調査地点

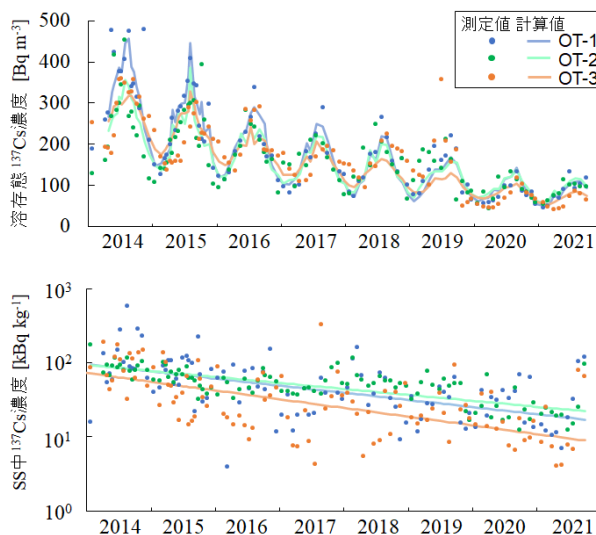


図2 横川ダム流入水・放流水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度と懸濁物質(SS)中 ^{137}Cs 濃度

Role of dam lakes in ^{137}Cs dynamics of river water
TSUJI, H., ISHII, Y., SAKAI, M., WATANABE, M., HAYASHI, S.

2P14

道東沖表層の ^{134}Cs 濃度の経年変動からみた北太平洋北西域の海水循環

(金沢大¹、水産機構・資源研²)○真下海成¹、井上睦夫¹、
谷内由貴子²、中野渡拓也²、長尾誠也¹

【緒言】 ^{134}Cs は 2011 年 3 月の福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故により海洋環境中に放出された人工放射性核種であり、溶存性であることから海水とともに循環する。 ^{134}Cs は短半減期 (2.06 年) ゆえに、現在海水中で検出されるものはすべて FDNPP 事故由来であり、供給源とその時期 (2011 年 3 月) も明らかなことから、海水循環の化学的トレーサーとして非常に有効である。本研究では 2018 年以降の北海道道東沖の ^{134}Cs 濃度の経年変動より、本海域を取り巻く海水循環およびそのタイムスケールを議論する。

【実験】 2020-2022 年の北光丸調査航海において、北海道道東海域において表層海水試料をおよそ 100 L/試料を採取した (図.1)。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回収した。すべての AMP/Cs 試料に対し、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 線測定を適用し、 ^{134}Cs 濃度を測定した。

【結果と考察】 道東親潮流域表層では 2018 年および 2019 年に ^{134}Cs が検出され、

東カムチャッカ海流による運搬による寄与が

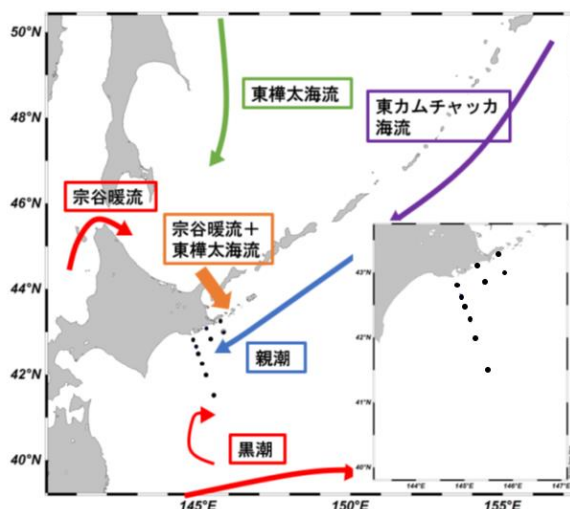
図.1 主要海流と採取地点

考えられた (Inoue *et al.*, 2021)。道東海域においては、2018 年から 2020 年まで ^{134}Cs 濃度は上昇を続け、それ以降は減少に転じた。その原因としては、福島沿岸から放出された北太平洋亜寒帯循環により北太平洋北部まで運搬された ^{134}Cs が東カムチャッカ海流により道東沖に戻ってきた、または年ごとの水塊構造 (例えば、東カムチャッカ海流の混合比) の違い、などがあげられる。

【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、水産機構・資源研の調査船北光丸の船長、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 *et al.* (2020) *Prog. Oceanogr.* **195**, 102587

Seawater circulation in the northwestern North Pacific Ocean; implication from temporal variation of ^{134}Cs concentration off Doto area. (Kanazawa-Univ.)
Mashita, K., Inoue, M., Taniuchi, Y., Nakanowatari, T., Nagao S.



2P15

モンテカルロ計算による玄米試料のガンマ線計数効率の評価

(産総研¹⁾○古川理央¹、佐藤泰¹、真鍋征也¹、下段千尋¹、原野英樹¹

【緒言】 高純度ゲルマニウム半導体検出器（以下、HPGe 検出器）は環境試料の放射能測定に多く用いられている。本研究では、特定標準器にトレーサブルな、放射能が既知の溶液線源を U8 容器に充填した試料を標準とし、モンテカルロ計算コード PHITS¹⁾ を用いて HPGe 検出器による標準の溶液線源の測定を模擬した体系を構築し、U8 容器に充填された玄米試料の自己吸収の補正と高さの補正を行った。

【手法】 標準溶液は U8 容器に高さ 49.7mm まで充填した。HPGe 検出器で標準溶液線源を測定した際の計数効率 $\varepsilon_{\text{water}}$ は $0.0373 \pm 0.009 (k=2)$ [cps/Bq] であった。玄米は U8 容器に高さ 46.8mm まで充填した。式(1)に従って玄米試料の計数効率 $\varepsilon_{\text{rice}}$ を算出した。

$$\varepsilon_{\text{rice}} = \varepsilon_{\text{water}} \times \eta \quad \dots \text{式(1)}$$

η = 高さ補正係数 × 自己吸収補正係数

$$\text{高さ補正係数} = \frac{\text{玄米試料(高さ46.8mm)の計数効率}}{\text{玄米試料(高さ49.7mm)の計数効率}}, \quad \text{自己吸収補正係数} = \frac{\text{玄米試料(高さ49.7mm)の計数効率}}{\text{標準溶液線源(高さ49.7mm)の計数効率}}$$

式(1)より、 η を「PHITS で計算した玄米試料(高さ 46.8mm)の計数効率 / PHITS で計算した標準溶液線源(高さ 49.7mm)の計数効率」として求めた。

産総研の特定標準器である HPGe 検出器 (ORTEC GEM130-108) を模擬した体系を PHITS 上に構築した(図)。玄米はセルローズで近似し、U8 容器内の高さ 46.8mm までに均一に分布しているとし、測定試料を HPGe 検出器上面に設置した状態を模擬した。玄米に含まれる Cs-137 が放出する 662 keV のガンマ線が HPGe 検出器に全吸収される確率をピーク計数効率[cps/photon]とした。計算は PHITS に搭載されている EGS5 を利用した。

【結果】 PHITS で計算した溶液線源(高さ 49.7mm)の計数効率は 0.0439[cps/photon]、玄米試料(高さ 46.8mm)の場合 0.0457[cps/photon]であり、 η は 1.04 となった。測定で求めた $\varepsilon_{\text{water}}$ と PHITS で求めた η から $\varepsilon_{\text{rice}}$ を求める事ができた。また、今後は、本研究で構築した体系を用い、Cs-137 以外の核種を PHITS の計算と標準溶液測定で計数効率を評価し、玄米に対する計数効率曲線を作成し、様々な核種に対して放射能測定が行えるようにする。

Reference

- 1) T. Sato et al., J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684-690 (2018).

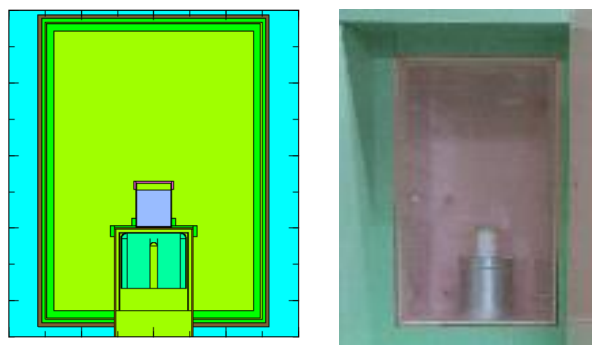


図: PHITS で構築した HPGe 検出器の体系 (左,紫色が U8 容器中の測定試料)と実際の U8 試料の測定の様子(右)

Evaluation of gamma ray counting efficiency of the brown rice sample using the Monte-Carlo calculation

FURUKAWA R., SATO Y., MANABE S., SHIMODAN C., HARANO H.

2P16

福島原発事故由来の放射性セシウムの稲等による付着と吸収

(福島大食¹、JA福島中央会²、新潟大農³、星薬科大薬⁴、東京大農⁵)○野川憲夫、石井秀樹¹、林薫平¹、朴相賢²、小山良太¹、原田直樹³、吉川夏樹³、野中昌法³、廣瀬農⁴、小林奈通子⁵、田野井慶太郎⁵、中西友子⁵

【緒言】

福島第一原子力発電所の事故に伴い放射性物質が今日に至り放出されている。放射性セシウムは、粒子態、溶存態及びこれら混合物となって降下し、植物に付着或いは吸収される。粒子態セシウムについては植物に付着している状況、溶存態セシウムについてはイネの葉に¹³⁷Cs水溶液をスポットした場合のイネ内の¹³⁷Csの挙動について報告する。

【実験】

粒子態セシウム：2013年8月のガレキ撤去の際に飛散したと思われる粒子態セシウムが南相馬市の中太田と小高で採取したイネ、トウモロコシ等の植物に付着している様子をFUJI FILM FLA 3000 (FUJI FILM ライフサイエンス)を用いて観察した。

溶存態セシウム：上から1/3程を切り除いた2Lのペットボトルに埼玉県久喜市の水田の代掻き後の土壌(¹³⁷Cs: 70Bq/kg・乾燥土)を入れ、これに1本のイネ(品種:天のつぶ)を植えた。自然光で育てて出穂の少し前に東大農学部RI施設のバイオトロン(BIOTRON LPH-300, NK System)に搬入した。その後葉身に¹³⁷Cs水溶液(4.9kBq)をスポットした。刈り取り時期になって地上部について¹³⁷Cs分布を観るために粒子態セシウムと同様の方法で観察した。土壌の放射能は乾燥後Ge半導体検出器(GEM-type and GMX-type, ORTEC)で測定した。

【結果と考察】

粒子態セシウム：粒子態セシウムはイネ、トウモロコシ共に主に節に観察された。トウモロコシのIP画像をFig.1に示す。2014年以降も粒子態セシウムが降下するかもしれないとして、中・下太田と小高におけるイネの実証栽培では空気中の¹³⁴Csと¹³⁷Csの濃度を測定することになった。その結果は2014年5月～2017年9月の空気中¹³⁷Cs濃度はほぼ検出下限値濃度($3 \times 10^{-4} \text{Bq/m}^3$)以下であり一桁高い濃度は見られなかった。測定値は地元と農林水産省等に適宜報告した。

溶存態セシウム：葉身にスポットした¹³⁷Csのイネ内分布例をFig.2に示す。¹³⁷Csは分けつしたイネ全体に広がり、葉身と籾に強く観察された。籾への移行割合はスポットされた葉身が二番目の葉より止め葉の方が高かった。根から土壌への溶出割合は、凡そ0.5～2.5%で、スポットの時期が早い程、スポットした葉が止め葉、二番目の葉、三番目の葉と根に近い程、高かった。

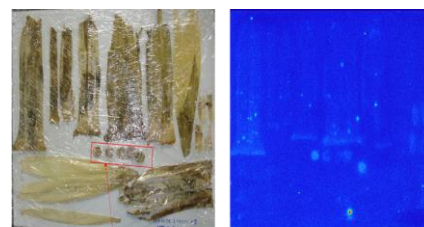
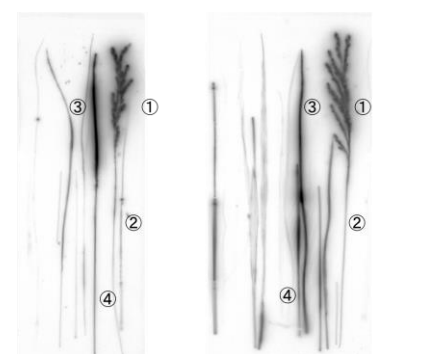


Fig. 1 CORN
Sampling : ODAKA, 2014/3/9 ¹³⁷Cs 199 Bq/kg



Case spotted on the flag leaf Case spotted on the second leaf
Fig. 2 ¹³⁷Cs distribution in rice
① Ear ② Stem ③ Leaf blade ④ Leaf sheath

Adhesion and absorption of radioactive cesium from the Fukushima Daiichi nuclear power accident by rice, etc.

NOGAWA N., ISHII H., HAYASHI K., PARK S., KOYAMA R., HARADA N., YOSHIKAWA N., NONAKA M., HIROSE A., KOBAYASHI N., TANOI K., NAKANISHI T.

2P17 蛍光を用いた放射性微粒子(CsMP)の検出可能性

(茨城大¹、東京電機大²、筑波大³、JAEA/CLADS⁴、京大複合原子力⁵)

○北 和之¹、阿部善也²、末木啓介³、佐藤志彦⁴、五十嵐康人⁵

【緒言】 東京電力福島第一原子力発電所（以下 1F）事故により環境中に放出された放射性セシウム(Cs)の形態の一つとして不溶性放射性微粒子(CsMP)がある。CsMPは空気中に再飛散しうる^[1]ため、廃炉作業において作業従事者に大きな被ばくをもたらすリスク要因とも考えられている。我々は、炉内で事故当時発生した事象の解明と廃炉作業のリスク軽減のため、CsMPの基礎的な物性や α 核種を含む組成について研究を進めるとともに、その知見を活かし効率的なCsMP検出手法をも検討している。

CsMPには、数 μm と微小で高Cs濃度の粒子(タイプA)と、数十～数百 μm と粗大で低Cs濃度の粒子(タイプB)の少なくとも二つのタイプがある^[2]。これまでに、顕微レーザー蛍光分光分析およびSPRING-8の分光分析ビームラインでの各種X線分析により、タイプA粒子試料に波長405nmのレーザー照射により波長520～530nmにピークを持つブロードなスペクトルの緑色蛍光を発光するものがあること、およびそれが粒子中のウラニルイオン(UO_2^{2+})によることも明らかにできた。しかし同じ顕微レーザー蛍光分光分析では、タイプB粒子試料からの蛍光発光は認められなかった。今回、紫外光励起蛍光検出実験を行い、タイプBのCsMPも特有の蛍光を発することを明らかにし、蛍光を利用したCsMP検出の模擬実験を行った。

【実験】 発光波長360、325、310、280nmの各紫外線(UV)LEDからの励起光を試料粒子に照射し、可視域の蛍光スペクトルを分光器(Ocean Optics MAYA2000 PROカスタム品)で検出するUV励起蛍光スペクトル測定装置を自作し、1F周囲の土壌から単離されたタイプB粒子試料について、UV励起による蛍光スペクトルを測定した。

さらに、CsMPを蛍光により効率的に検出するため、市販の生物用蛍光顕微鏡を改造し、上記と同じUV-LEDからの励起光を、角型石英管中を流れる粒子試料に照射し、試料からの蛍光を撮像し、蛍光スペクトルを測定して、CsMP粒子蛍光を検出する装置も試作した。

【結果と考察】 上記UV励起蛍光スペクトル測定装置により、緑色蛍光を発するタイプA粒子試料および緑色蛍光を発しないタイプB粒子試料を対象にUV励起蛍光を測定したところ、タイプA粒子からは405nm励起と同じ緑色蛍光が検出されたのに対し、タイプB粒子試料からは、対象の3粒子試料全てから波長460～480nmにピークを持つブロードなスペクトルの青色蛍光が検出された。これが何に起因するものかについては、現在検討中である。

360nm励起で、タイプAおよびタイプB粒子のいずれからも蛍光が放出されることが分かったので、これらの蛍光を用いてCsMPを検出する模擬実験として、緑色蛍光を発するウランガラス粒子の模擬標的粒子、火山ガラス粒子の模擬妨害粒子を純水中に分散し、送液ポンプで角型石英管中を流し、上記の蛍光顕微鏡を改造した実験装置で検出を試みた。模擬標的粒子からの蛍光を動画として撮像することに成功し、この手法によるCsMPの検出が十分可能であることが確認できた。

【参考文献】 [1] P. Tang et al., *Progress in Earth and Planetary Science* 9(17), 2022

[2] Satou, Y. et al., *Geochemical Journal*, 52, 137-143, 2018.

Detection of Cesium-rich microparticles (CsMP) by using their fluorescence
KITA K., ABE, Y., SUEKI, K., SATOU, Y., IGARASHI, Y.

2P18

多摩川支流野川にて採取した底質の放射能および性状分析

(明治大院理工¹、明治大理工²)○猪瀬聡史¹、山本晃輝²、加世田大雅¹、
本多貴之²、小池裕也²

【緒言】 2011年に発生した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(¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs)は、関東圏の多摩川集水域においても検出されている¹⁾。これまでの多摩川集水域における調査により、支流の野川において放射性セシウムが比較的高濃度で観測された。そこで、本研究では野川にて採取した底質試料を、放射能分析や熱分析、結晶相分析に供することで、底質性状と放射性セシウム濃度との関連性の評価を試みた。

【実験】 底質試料は、2020年12月に野川にて採取した。河川上流より、弁天橋(No.1)、泉橋(No.2)、大沢橋(No.3)、町田橋(No.4)、野川合流点(No.5)とし、それぞれの地点にて表層0~5cm約1kg採取した。採取した底質試料は乾燥機にて105℃で24時間以上乾燥させ、目開き2mmでふるい分けを行った。ふるい分け後の粒形2mm以下の試料を分析試料とした。分析試料に対して、粒度分布測定やJIS A 1226に準じた強熱減量試験、および高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能分析を行った。また、分析試料を粉砕し、熱重量・示差熱分析(TG-DTA)、熱分解ガスクロマトグラフ/質量分析(Py-GC/MS)および結晶相分析に供した。

【結果と考察】 放射能分析および強熱減量試験より得られた相関関係をFig. 1に示す。放射能分析の結果、上流域にて底質中¹³⁷Cs濃度が高く、下流に下ると低くなる傾向が確認された。放射能濃度と強熱減量値の相関係数を算出すると、 $r = 0.776$ となり、強い相関があることがわかった。放射性セシウムは有機物の有するカルボキシル基や、フェノール類などの官能基のマイナス電荷に吸着されると考えられている²⁾。また、TG-DTAの測定結果より、全地点の底質において300℃~400℃付近での重量損失および燃焼にともなう発熱反応が確認されている。これは、有機物の燃焼にともなう減少および発熱であると考えられる。したがって、野川では300℃~400℃付近にて熱分解する有機物が底質に含まれており、それらが放射性セシウムを吸着し河床に堆積している可能性が示唆された。本研究では、Py-GC/MSの測定より具体的な有機物の定性および結晶相分析により底質中の鉱物種の同定も行った。

【参考文献】

- 1) 猪瀬聡史, 齋藤凜太郎, 澤村慶, 小池裕也: *Proceedings of the 22nd Workshop on Environmental Radioactivity*, KEK Proceedings 2021-2, 53 (2021).
- 2) 藤井一至: *水利科学*, 61, 45 (2017).

Analysis of radioactivity and characterization of sediments sampled at the Nogawa river in the Tama river system
INOSE, S., YAMAMOTO, K., KASEDA, T., HONDA, T., KOIKE, Y.

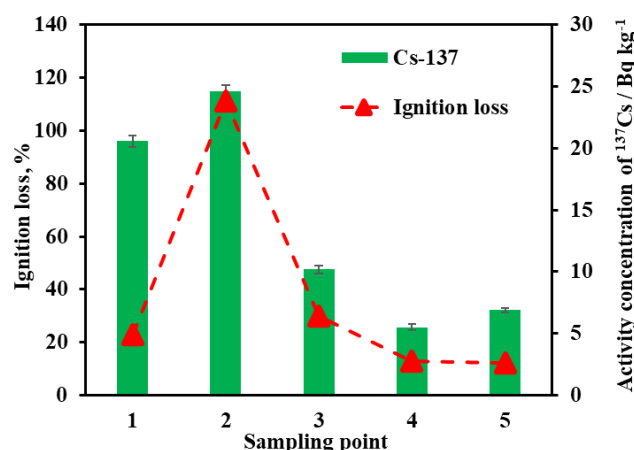


Fig.1 Relationship between activity concentration of ¹³⁷Cs and ignition loss.