

2023年9月21日(木)

A会場

開会式

開会式

08:50 ~ 09:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

特別講演

PL1

座長:塚田 和明(日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター)

09:00 ~ 09:50 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1S01] 新元素の核化学

*羽場 宏光¹ (1. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター)

09:00 ~ 09:50

特別セッション 新試験研究炉計画

特別セッション: 新試験研究炉計画

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

13:40 ~ 15:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1S02] もんじゅサイト新試験研究炉の性能と利用に係る概念

*新居 昌至¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

13:40 ~ 14:00

[1S03] もんじゅサイト新試験研究炉の実験装置整備計画の概要

*高宮 幸一¹、稲垣 誠¹、日野 正裕¹、杉山 正明¹、川端 祐司¹、佐藤 信浩¹ (1. 京都大学)

14:00 ~ 14:20

[1S04] もんじゅサイトの新試験研究炉 ~福井大学の取組~

*宇埜 正美¹ (1. 福井大学)

14:20 ~ 14:40

B会場

セッションA 核化学

1A1

座長:浅井 雅人(日本原子力研究開発機構)

10:00 ~ 10:50 B会場 (学生会館)

[1B01] 原子核時計実現にむけたトリウムイオンのレーザー分光

*山口 敦史^{1,2}、重河 優大¹、羽場 宏光¹、菊永 英寿³、白崎 謙次³、和田 道治⁴、香取 秀俊^{1,2} (1. 理化学研究所、2. 東京大学、3. 東北大学、4. 高エネルギー加速器研究機構)

10:00 ~ 10:30

[1B02] Th-229mの電子架橋遷移の観測に向けた Th-

229mイオンの引き出しとトラップ

*重河 優大¹、山口 敦史²、床井 健運³、佐藤 望¹、笠松 良崇³、和田 道治⁴、羽場 宏光¹ (1. 理研仁科セ、2. 理研香取研、3. 阪大院理、4. KEK和光原子核科学セ)

10:30 ~ 10:50

セッションA 核化学

1A2

座長:菊永 英寿(東北大学)

11:10 ~ 12:10 B会場 (学生会館)

[1B03] ^{235m}Uハロゲン化物の半減期変化と相対論密度汎関数計算による電子密度との相関*益田 遼太郎^{1,2}、金子 政志¹、澤村 慶¹、橋場 奏¹、重河 優大²、篠原 厚^{1,3}、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 大阪青山大学)

11:10 ~ 11:30

[1B04] ²⁵⁹Mdの自発核分裂片質量-全運動エネルギー分布測定*浅井 雅人¹、石橋 優一²、塚田 和明¹、佐藤 哲也¹、青木 涼太^{1,3}、伊藤 由太¹、内馬場 優太^{1,3}、Orlandi Riccardo¹、Gong GyeongMin^{1,3}、洲崎 心み¹、西尾 勝久¹、廣瀬 健太郎¹、牧井 宏之¹、西中 一朗⁴、阪間 稔⁵、久保野 茂⁶ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 九州大学、3. 茨城大学、4. 量子科学技術研究開発機構、5. 徳島大学、6. 理化学研究所)

11:30 ~ 11:50

[1B05] 高精度質量分析器による蒸発残留核断面積の励起関数測定

*庭瀬 暁隆¹、和田 道治¹、Schury Peter¹、木村 創大¹、B rionnet Pierre²、Chaoyi Fu³、羽場 宏光²、平山 賀一¹、石山 博恒²、伊藤 由太⁴、加治 大哉²、宮武 宇也¹、森本 幸司²、Rosenbusch Marco²、高峰 愛子²、渡邊 裕¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構、2. 理研仁科センター、3. 香港大、4. 日本原子力研究開発機構)

11:50 ~ 12:10

セッションA 核化学

1A3

座長:後藤 真一(新潟大学)

13:40 ~ 15:00 B会場 (学生会館)

[1B06] ²³²Th+⁷Li核反応における α 線放出生成物の定量*細川 浩由¹、永井 歩夢¹、榊枝 優真²、干場 香湖¹、南部 明弘³、重河 優大³、羽場 宏光³、坂口 綾²、横山 明彦¹ (1. 金沢大学、2. 筑波大学、3. 理化学研究所)

13:40 ~ 14:00

[1B07] 太陽電池検出器のエネルギー・時間分解能および放射線耐性の評価

*能見 幹都¹、坂口 聡志^{1,2}、浅井 雅人^{1,2,3}、甲斐 民人¹、杉山 晃一¹、鄭 淳讀⁴、富松 太郎¹、長江 大輔²、永田 優斗¹、庭瀬 暁隆⁴、松浦 開¹、松永 壮太郎¹、武藤 大河¹、森田 浩介^{1,2} (1. 九州大学理学府、2. 九州大学超重元素研究センター、3. 日本原子力研究開発機構、4. KEK和光原子核科学センター)

14:00 ~ 14:20

[1B08] 反跳相関崩壊分光に向けた²¹⁴Ra²⁺イオンの in-trap崩壊測定

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

14:20 ~ 14:40

[1B09] アルファ線核医学治療用アスタチン-211の大規模製造装置の開発

*安良田 寛^{1,2}、栗原 嵩司^{1,2}、中村 伸悟^{1,2}、佐藤 望²、殷小杰²、南部 明弘²、重河 優大²、金山 洋介²、荒井 秀幸^{1,2}、長澤 豊¹、羽場 宏光² (1. 金属技研株式会社、2. 理研)

14:40 ~ 15:00

セッションA 核化学

1A4

座長:横山 明彦(金沢大学)

15:10 ~ 16:10 B会場(学生会館)

[1B10] ガスクロマトグラフィーと量子化学計算を用いた At芳香族化合物のハロゲン結合エネルギーの導出

*床井 健運¹、豊嶋 厚史²、金子 政志¹、篠原 厚^{2,3}、大江 一弘²、今 教禎²、羽場 宏光⁴、YIN Xiaojie⁴、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学大学院理学研究科、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 大阪青山大学、4. 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター)

15:10 ~ 15:30

[1B11] 102番元素ノーベリウムの硝酸系および塩酸系でのクラウンエーテルを用いた固液抽出

*渡邊 瑛介^{1,2}、中西 諒平¹、横北 卓也^{3,4}、王 瑞麟¹、大高 咲希¹、板倉 悠大¹、益田 遼太郎¹、重河 優大⁵、南部 明弘⁵、殷小杰⁵、羽場 宏光⁵、金子 政志¹、柴本 恭佑¹、高宮 幸一⁶、篠原 厚^{1,7}、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学、2. 高エネルギー加速器研究機構、3. サレジオ工業高等専門学校、4. 東北大学、5. 理化学研究所、6. 京都大学、7. 大阪青山大学)

15:30 ~ 15:50

[1B12] ノーベリウムの硫酸バリウム共沈

大高 咲希^{1,2}、*笠松 良崇^{1,2}、中西 諒平^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,2}、板倉 悠大^{1,2}、王 瑞麟^{1,2}、益田 遼太郎^{1,2}、金子 政志¹、羽場 宏光²、重河 優大²、南部 明弘²、殷小杰²、横北 卓也³、篠原 厚^{1,4} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. サレジオ高専、4. 大阪青山大学)

15:50 ~ 16:10

A会場

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

1D1

座長:大浦 泰嗣(東京都立大学)

10:00 ~ 11:00 A会場(サタケメモリアルホール)

[1A01] ミュオン元素分析法の開発とその応用

*二宮 和彦¹ (1. 大阪大学)

10:00 ~ 10:30

[1A02] 放射光軟X線分光で探る有機薄膜の反応・物性

*和田 真一¹ (1. 広島大学大学院 先進理工系科学研究科)

10:30 ~ 11:00

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

1D2

座長: 國分 陽子(日本原子力研究開発機構)

11:10 ~ 12:10 A会場(サタケメモリアルホール)

[1A03] ウラン含浸粒子の SIMS分析時に生じる帯電の解消と同位体比分析への影響

*富田 涼平¹、富田 純平¹、安田 健一郎¹、鈴木 大輔¹、宮本 ユタカ¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

11:10 ~ 11:30

[1A04] 模擬プルトニウム粒子作成技術の開発

*富田 純平¹、富田 涼平¹、鈴木 大輔¹、安田 健一郎¹、宮本 ユタカ¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

11:30 ~ 11:50

[1A05] 核鑑識のための α 線スペクトロメトリによるウラン年代測定法の検証及び高度化

*横山 明彦¹、上杉 正樹¹、松井 芳樹²、海野 勇次²、木村 祥紀²、山口 知輝² (1. 金沢大学、2. 日本原子力研究開発機構)

11:50 ~ 12:10

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

1D3

座長:松江 秀明(日本原子力研究開発機構)

15:10 ~ 16:10 A会場(サタケメモリアルホール)

[1A06] 即発 γ 線分析装置 (PGA) の高度化の現状

*邱 奕寰¹、大澤 崇人¹、野澤 拓也¹ (1. 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構)

15:10 ~ 15:30

[1A07] INAAとPIXEによる大気浮遊塵試料の経時変化に関する基礎研究

*羽倉 尚人¹、松井 隆祥¹、内山 孝文¹、松浦 治明¹ (1. 東京都大学)

15:30 ~ 15:50

[1A08] 光量子放射化分析におけるフラックス補正その2

宗村 陽¹、MD Sultanur Reza¹、*大浦 泰嗣¹ (1. 東京都立大学)

15:50 ~ 16:10

学士会館ラウンジ

ポスターセッション

ポスターセッション

16:40 ~ 17:30 学士会館ラウンジ (学士会館ラウンジ)

[1P01] アスタチン化学種分析に向けたヨウ素のキャピラリー電気泳動

*大江 一弘¹、吉村 崇¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構 附属ラジオアイソトープ総合センター)

[1P02] 光核反応による Lu-177の製造

*田村 彩乃¹、秋山 和彦¹、菊永 英寿²、久富木 志郎¹ (1. 東京都立大学、2. 東北大学電子光物理学研究センター)[1P03] ^{229m}Thの γ 線観測に向けた放射性試料を用いた希ガスマトリックス単離実験*益田 遼太郎^{1,2}、安田 勇輝¹、橋場 奏¹、重河 優大²、宮本 祐樹³、吉村 浩司³、篠原 厚^{1,4}、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 岡山大学、4. 大阪青山大学)[1P04] ノーベリウム²⁴⁷の化学的性質解明に向けた水酸化ストロンチウム沈殿の分光分析と量子化学計算*板倉 悠大^{1,2}、笠松 良崇^{1,2}、金子 政志¹、永田 光知郎¹、王 瑞麟^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,3}、大高 咲希¹、中西 諒平¹、篠原 厚⁴ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 高エネルギー加速器研究機構、4. 大阪青山大学)

[1P05] 塩素化シリカ表面のガス気流中での安定性

*石下 燎矢¹、後藤 真一¹ (1. 新潟大院自然)

[1P06] 光核反応による中長半減期核種の製造量評価

*菊永 英寿¹、横北 卓也¹ (1. 東北大学)[1P08] 道東沿岸～沖合の²²⁶Ra、²²⁸Ra濃度の空間分布からみた海水循環*畠山 陽多¹、井上 睦夫¹、光主 隼大¹、真下 海成¹、谷内 由貴子²、中野渡 拓也²、帰山 秀樹²、長尾 誠也¹、亀山 紘旭¹ (1. 金沢大学、2. 水産機構・資源研)[1P09] 海水の微弱¹³⁴Cs測定法の改良と福島原発事故への応用*松長 祥太郎¹、真下 海成¹、井上 睦夫¹、谷内 由貴子²、中野渡 拓也²、帰山 秀樹²、長尾 誠也¹ (1. 金沢大学低レベル放射能実験施設、2. 水産研究・教育機構)

[1P10] トリチウム測定におけるシンチレーションカクテルのケミルミネッセンス減衰特性

*島 長義¹、玉利 俊哉¹ (1. 一般財団法人 九州環境管理協会)[1P11] 福島土壌中の¹³⁷Csと⁹⁰Srの移行と土壌成分および陽イオン交換容量の調査*山本 康平¹、吉村 崇^{1,2}、二宮 和彦^{1,2} (1. 大阪大学大学院理学研究科、2. 阪大放射線機構)

[1P12] ALPS処理水放出に向けた福島沿岸でのトリチウム動態解析のための新たな取り組み

*高田 兵衛¹、大槻 哲¹、佐藤 俊¹、三浦 輝²、西野 圭佑²、和田 敏裕¹、戸田 亮二³、西川 淳⁴ (1. 福島大学、2. 電力中央研究所、3. 東京大学、4. 東海大学)

[1P13] 福島第一原子力発電所事故後の千葉市における空間線量率の経年変化について

*西森 千幸¹、田中 博幸¹、磯貝 啓介¹ (1. (公財) 日本分析センター)

[1P14] 環境放射能のデータベースを発行しよう

*末木 啓介¹、恩田 裕一¹ (1. 筑波大学)[1P15] 加速器質量分析装置を用いた²¹⁰Pbの測定法の検討*高橋 穂高¹、笹 公和²、高橋 努²、松村 万寿美²、高久 雄一³、山崎 信哉³、末木 啓介³、Froehlich Michaela⁴、坂口 綾³ (1. 筑波大学数理物質科学研究群化学学位プログラム、2. 筑波大学AMSグループ、3. 筑波大学数理物質系、4. オーストラリア大学 物理学部 原子核物理学・加速器応用学科)

[1P16] もんじゅサイト新試験研究炉におけるホットラボラトリーの計画

*稲垣 誠¹、高宮 幸一¹、日野 正裕¹、杉山 正明¹、川端 祐司¹、佐藤 信浩¹ (1. 京都大学)

[1P17] LSC測定による遮蔽鉛中 Pb-210スクリーニング法の検討

*安次富 政貴¹、玉利 俊哉¹ (1. 一般財団法人 九州環境管理協会)

[1P18] MA/Ln分離のための BTPPhen型配位子における置換基導入効果についての DFT研究

*深澤 優人¹、中島 寛¹ (1. 広島大学)[1P19] α 微粒子のリアルタイム質量検出を指向した肥大化濃縮装置の開発*永田 光知郎¹、豊嶋 厚史²、高宮 幸一³、古谷 浩志⁴、床井 健運¹、河井 洋輔¹、吉村 崇²、豊田 岐聡¹、篠原 厚⁵ (1. 大阪大学大学院理学研究科、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 京都大学複合原子力科学研究所、4. 大阪大学リノベーション・工作支援センター、5. 大阪青山大学)

[1P20] 土壌から単離した微生物のセシウム耐性能の解析

*稲田 晋宣¹、トリヨノ バスキ¹、丸山 史人²、松嶋 亮人¹、木庭 亮二³、寺元 浩昭³、宗岡 亜依³、中島 覚¹ (1. 広島大学自然科学研究支援開発センター、2. 広島大学IDEC国際連携機構、3. 広島大学技術センター)

[1P21] ランタノイド内包フラレンに関する HPLC溶出挙動の熱力学的解析とその再現性の確認

*中村 大生¹、黒田 拓真¹、西村 峻¹、秋山 和彦¹、高宮 幸一²、久富木 志朗¹ (1. 東京都立大学、2. 京都大学複合原子力科学研究所)

A会場

ポスターフラッシュトーク

フラッシュトーク

座長:秋山 和彦(東京都立大学)、鈴木 達也(長岡技術科学大学)
16:20 ~ 16:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

部会

放射化分析部会

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)
12:40 ~ 13:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

B会場

部会

若手の会

12:40 ~ 13:40 B会場 (学士会館)

開会式

開会式

2023年9月21日(木) 08:50 ~ 09:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

特別講演

PL1

座長:塚田 和明(日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター)

2023年9月21日(木) 09:00 ~ 09:50 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1S01] 新元素の核化学

*羽場 宏光¹ (1. 理化学研究所仁科加速器科学研究センター)

09:00 ~ 09:50

1S01 新元素の核化学

(理研仁科セ)○羽場宏光

超重元素の探索とその核的・化学的性質の研究は、核化学の最も重要な研究課題の一つである[1,2]。本講演では、理研における超重元素の核化学研究の現状と展望について概説する。ニホニウム (Nh) の発見[3]に成功を収めた理研重イオン線形加速器 (RILAC) は、119 番以降のさらなる新元素の発見を目指して、2017 年より 3 年間かけてアップグレードが行われた[1,4]。ここでは、特に 28 GHz ECR イオン源の導入と加速器の超伝導化 (SRILAC) によって、重イオンビームの強度が 5~10 倍に高められた。さらに、超重元素イオンの収集効率が ^{278}Nh の合成に用いられた理研気体充填型反跳核分離装置 (GARIS) に比べて約 2 倍大きい GARIS-III が開発された[4]。現在、我々は、SRILAC と GARIS-III を用いて、 $^{248}\text{Cm}(^{51}\text{V}, xn)^{299-x}119$ 反応による 119 番新元素の探索を進めている。一方、超重元素の化学研究においては、GARIS の焦点面にガスジェット搬送装置を設置し、物理的に前段分離された超重元素を液体クロマトグラフやガスクロマトグラフ等の化学分析装置に導入する化学分析システムの開発を進めている[5,6]。これまで、化学実験に利用できる長寿命の $^{261}\text{Rf}^{a,b}$, ^{262}Db , $^{265}\text{Sg}^{a,b}$, ^{266}Bh をそれぞれ $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)$, $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F}, 5n)$, $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne}, 5n)$ 並びに $^{248}\text{Cm}(^{23}\text{Na}, 5n)$ 反応によって合成し、生成断面積や壊変データを取得してきた[7,8]。そして、ドイツ重イオン科学研究所他 13 機関との国際共同研究の下、超重元素初のカルボニル錯体 $\text{Sg}(\text{CO})_6$ の化学合成に成功した[9]。その後は $\text{Sg}(\text{CO})_6$ の熱分解実験[10]や Bh, Hs, Mt のカルボニル錯体合成に向けた基礎実験を進めている[11-13]。一方、理研 AVF サイクロトロン施設では、金沢大学、大阪大学、新潟大学の各グループが中心となり、従来型のガスジェット搬送装置と独自の迅速溶液化学分離装置を用いて、Rf[14-16]や Db[17]の溶液化学研究を展開している。

参考文献

- [1] H. Haba, Nat. Chem. **11**, 10 (2019).
- [2] H. Haba, Chem. Eng. News, August 5, 36 (2019).
- [3] L. Öhrström and J. Reedijk, Pure Appl. Chem. **88**, 1225 (2016).
- [4] H. Sakai *et al.*, Eur. Phys. J. A **58**, 238 (2022).
- [5] 羽場宏光, 放射化学 **30**, 7 (2014).
- [6] 羽場宏光, Radioisotopes **67**, 527 (2018).
- [7] H. Haba, EPJ Web Conf. **131**, 07006 (2016).
- [8] H. Haba *et al.*, Phys. Rev. C **102**, 024625 (2020).
- [9] J. Even *et al.*, Science **345**, 1491 (2014).
- [10] I. Usoltsev *et al.*, Radiochim. Acta **104**, 141 (2015).
- [11] Y. Wang *et al.*, Phys. Chem. Chem. Phys. **17**, 13228 (2015).
- [12] S. Cao *et al.*, Phys. Chem. Chem. Phys. **18**, 119 (2016).
- [13] Y. Wang *et al.*, Phys. Chem. Chem. Phys. **21**, 7147 (2019).
- [14] T. Yokokita *et al.*, Dalton Trans. **45**, 18827 (2016).
- [15] A. Yokoyama *et al.*, Radiochim. Acta **107**, 27 (2019).
- [16] Y. Kasamatsu *et al.*, Nat. Chem. **13**, 226 (2021).
- [17] M. Murakami *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. **48**, 279 (2015).

Nuclear chemistry of new elements
HABA H.

特別セッション 新試験研究炉計画

特別セッション：新試験研究炉計画

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

2023年9月21日(木) 13:40 ~ 15:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1S02] もんじゅサイト新試験研究炉の性能と利用に係る概念

*新居 昌至¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

13:40 ~ 14:00

[1S03] もんじゅサイト新試験研究炉の実験装置整備計画の概要

*高宮 幸一¹、稲垣 誠¹、日野 正裕¹、杉山 正明¹、川端 祐司¹、佐藤 信浩¹ (1. 京都大学)

14:00 ~ 14:20

[1S04] もんじゅサイトの新試験研究炉 ～福井大学の取組～

*宇埜 正美¹ (1. 福井大学)

14:20 ~ 14:40

1S02 もんじゅサイト新試験研究炉の性能と利用に係る概念 (原子力機構¹)○新居昌至¹

【緒言】平成28年12月の原子力関係閣僚会議において、「もんじゅ」を廃止措置する旨の政府方針を決定した際、将来的に「もんじゅ」サイトを活用し新たな試験研究炉（以下、「新試験研究炉」とする）を設置することとされた。その後の検討で、西日本における原子力の研究開発・人材育成の中核的拠点としてふさわしい機能を実現するとともに地元振興への貢献の2つの観点から、中性子ビーム利用を主目的とする中出力炉（10MW未満）が適切であるとされ、令和2年度以降は、原子力機構、京都大、福井大の三機関が政府から選定され、概念設計等を進めてきた。

【炉心設計】中性子ビーム利用を主目的とする新試験研究炉では、できるだけ高い熱中性子束を達成することが望まれる。また、運転持続可能日数は、試験研究炉の稼働率に直結するため、できるだけ長期間、燃料交換無しに運転を持続できることが望まれる。これらの設計目標については、原子力機構で稼働中のJRR-3（熱出力20MW）の性能を参考に設定し、JRR-3の半分の出力10MWでJRR-3と同等程度の熱中性子束を得ることを目指した。燃料要素は研究炉で一般的な低濃縮ウランシライド板状燃料とし、設計目標を満たす炉心として、図1に示すce20炉心（燃料要素20体、運転持続可能日数416日、燃焼度55%）と呼ぶ5x5の燃料要素配置から中心と四隅の5体分を照射孔とした炉心構成を最適とした。

【原子炉の利用】新たな試験研究炉には多岐にわたる研究成果やイノベーション創発への貢献が期待されている。そこでce20の炉心構成を念頭に、求められる利用の検討方針として、①高い性能を持つ冷中性子源（CNS）、②学術研究及び産業利用における多様なニーズに応えるビーム利用、③使い勝手の良い照射設備の3つを軸に検討を行った。照射設備に関しては、最低限設置すべき照射実験装置として中性子放射化分析装置を挙げ、それに必要な照射設備として、気送照射設備及び水力照射設備を挙げた。また、近年診断と治療を兼ね備えるセラノスティクスという概念に対応できるラジオアイソトープ（RI）の重要性が顕著になっており、医療用RI製造の可能性についても検討した。

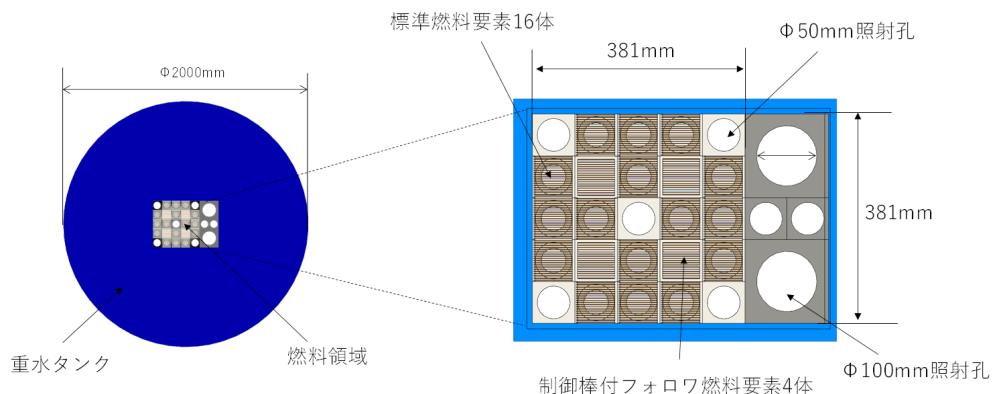


図1 新試験研究炉の炉心概念図

Concepts for characteristics and utilization of the new research reactor at the Monju-site
ARAI M.

1S03

もんじゅサイト新試験研究炉の実験装置整備計画の概要

(京都大学¹)○高宮幸一¹、稲垣誠¹、日野正裕¹、杉山正明¹、川端祐司¹、佐藤信浩¹

福井県敦賀市「もんじゅ」サイトにおける新たな試験研究炉の設置に向け、京都大学では日本原子力研究開発機構・福井大学とともに2022年度までにその概念設計を行った。京都大学は中性子のビーム利用や照射利用に関する設備、ホットラボラトリ施設などの実験設備やその運用体制についての検討を担当した。照射設備やホットラボラトリ施設の検討においては、日本放射化学会から多くの要望や有用なコメントをいただき、概念設計に反映させることができた。2023年度からはこの概念設計をもとに、具体的な設計に向けた取り組みを継続して進めている。

概念設計で提案された研究炉本体は定格熱出力が10MWであるが、コンパクト炉心であるため20MWであるJRR-3と同等レベルの中性子線の取り出しや照射が可能な設計となっている。中性子照射設備では、中性子放射化分析に必要な設備を優先して整備する計画である。したがって中性子放射化分析に関連する装置類を主軸とした設計を行うことになるが、研究レベルでのRI製造や核燃料物質を用いた照射も可能な、汎用的な照射設備にする必要があると考えている。また、中性子放射化分析法による元素分析ではメールインサービスの実現を目指しており、そのためにk0法を用いた体系的なサービス体制の構築を検討している。具体的には、中性子照射のための試料の挿入、取り出しなどの操作を高い安全性を担保しつつ可能な限り自動化することで、効率的な分析ができるような設計とし、試料の照射から測定、保管までの各作業の省力化を実現したいと考えている。ホットラボラトリでは前述の中性子放射化分析に関連する照射設備と測定器だけでなく、照射試料を用いた化学実験、物理実験を行うことができる実験室も設置したいと考えている。また、 α 線放出核種や少量ではあるが核燃料物質を使用した実験も実施可能な施設とすることで、より多くのニーズに応えたいと考えている。ホットラボラトリを設置できるスペースが限られていることもあり、複層階でのフロアデザインを考えており、実験目的や取り扱う物質をもとに階層ごとに設備や機能を分けた設計とすることを検討している。中性子ビーム利用設備については、中性子小角散乱、中性子粉末回折、中性子イメージング、中性子反射率測定のための装置を優先して整備する4種の装置として計画が進められている。

これらの優先して整備される実験装置については、装置ごとにタスクフォースを編成し、各タスクフォースでは京大複合研に加え関連分野の大学や類似施設の研究者や技術者も一緒になって、導入する装置の検討、整備、そして運用までを担うことが計画されている。また、これらの計画は10年以上の継続が必要になるため、長期にわたる装置整備を息切れせずに継続できるよう、体制や環境を整えることが課題のひとつである。そのため、若手の積極的な登用も重要であると考えており、日本放射化学会の若手会員のみならずにも積極的なご協力をお願いしたい。

Overview of the experimental equipment installation plan for the new research reactor at the Monju site
TAKAMIYA K., INAGAKI M., HINO M., SUGIYAMA M., KAWABATA Y., SATO N.

1S04 もんじゅサイトの新試験研究炉 ～福井大学の取組～ (福井大)○宇埜正美

【緒言】令和2～4年度の文科省の受託事業「もんじゅサイトに設置する新たな試験研究炉の概念設計及び運営の在り方検討」に引き続き、令和5年度からの詳細設計においても、福井大学は日本原子力研究開発機構(JAEA)、京都大学と連携し参画している。福井大学のこれまでの取り組み、伴走型連携の構築と人材育成について紹介する。

【これまでの取り組み】

伴走型連携では、福井県と連携した地元企業のニーズの調査の他、情報発信の方法やJ-PARKCにおける茨城県・茨城大学の連携の調査・検討、さらにはメールインなど中性子利用の代行サービスやトライアルユースを行う際の支援方法について、調査および検討を行ってきた。地元企業へのニーズ調査では、中間素材メーカーの多い福井県では多岐に渡る利用可能性があり、それら企業との対話の結果、大学と連携した新規技術の導入や社外エキスパートによる指導などの技術的支援、ビーム利用申請時期や利用タイムの柔軟性さらにはメールイン等への期待があることがわかった。また同業企業の共同プロジェクトや地元経済界での議論の活発化など企業・地域間の連携を希望していること、トライアルユースのサポートなどの要望も出されている。

また人材育成では、学内の試験研究炉の利用や中性子科学に興味を示している教員と連携して医学利用と材料分析に関して年2回のセミナーを実施してきている。これまでの他大学におけるカリキュラムや人材育成の調査結果より、中性子科学等に関する講義を受講するのは、研究室配属後に中性子を利用する可能性のある学生であることがわかった。そのため福井大学の学部を超えた研究拠点形成のための制度、「研究ファーム」において中性子科学のパイロットファームを立ちあげ、福井大教員の中性子利用の促進に向けたコミュニティを形成した。

福井県が主体となって行っている活動としては、福井県内の企業に対してアンケート調査だけでなく、石川県および富山県の企業に対してもアンケート調査を行った。その結果、懸念事項として地元企業からは「技術支援」や「利用費用」があげられていたが、石川県や富山県の企業からは加えて「アクセス」や「原子炉の安全性」の回答があった。また、企業向けに2回の講習会とKURや近代炉の見学を行っている。福井県の活動に福井大学等の中核機関が協力して行っている活動としては、福井大学以外の福井工業大学や福井県立大学でのセミナーや福井大学の教育学部や医学部の学生に向けたセミナーも実施した。さらには高校生向けの資料を作成し、福井大学におけるオープンキャンパス等で高校生向けセミナーも行った。

【今後の計画】

今後は、地元との連携構築に向けての活動を継続するとともに、建設計画に対応させ産業利用を促進する体制と役割分担、必要人材育成等についての具体的プランを関係機関と連携して策定する。また学内で中性子科学の研究および教育を担う部門の設置や人材の配置、学外との協力体制についての検討を加速していく。

New research reactor at the Monju site, - the activity of University of Fukui -
UNO, M.

セッションA 核化学

1A1

座長:浅井 雅人(日本原子力研究開発機構)

2023年9月21日(木) 10:00 ~ 10:50 B会場 (学士会館)

[1B01] 原子核時計実現にむけたトリウムイオンのレーザー分光

*山口 敦史^{1,2}、重河 優大¹、羽場 宏光¹、菊永 英寿³、白崎 謙次³、和田 道治⁴、香取 秀俊^{1,2} (1. 理化学研究所、2. 東京大学、3. 東北大学、4. 高エネルギー加速器研究機構)

10:00 ~ 10:30

[1B02] Th-229mの電子架橋遷移の観測に向けた Th-229mイオンの引き出しとト ラップ

*重河 優大¹、山口 敦史²、床井 健運³、佐藤 望¹、笠松 良崇³、和田 道治⁴、羽場 宏光¹ (1. 理研仁科セ、2. 理研香取研、3. 阪大院理、4. KEK和光原子核科学セ)

10:30 ~ 10:50

1B01

原子核時計実現にむけたトリウムイオンのレーザー分光

(理化学研究所¹、東京大学²、東北大学³、高エネルギー加速器研究機構⁴)○山口敦史^{1,2}、重河優大¹、羽場宏光¹、菊永英寿³、白崎謙次³、和田道治⁴、香取秀俊^{1,2}

【緒言】

トリウム 229(Th-229)は、励起エネルギーが 8.3 eV の原子核遷移をもつ [1-5]。8.3 eV はレーザーを作成できるエネルギーである。すなわち、Th-229 は原子核を直接レーザー分光できる。その応用として注目されているのが、この原子核遷移の共鳴周波数を基準とする原子核時計である。本研究では、原子核時計の実現にむけて、Th-229 イオンのトラップとレーザー分光実験をすすめている。

【実験】

原子核時計を実現するため、Th-229 イオンのトラップ装置を構築した。本研究では、レーザー冷却に利用可能な電子遷移をもつ 3 価の Th-229 イオン (Th-229³⁺) をトラップする。図 1 に、装置の概念図を示す。Th-229 のイオン源として、ウラン 233 (U-233) を利用する。U-233 はアルファ崩壊して Th-229 に壊変するため、金属基板表面に U-233 を電着した線源を用意しておく、線源表面から反跳イオンとして Th-229 イオンが放出される。これらの Th-229 イオンを、ヘリウムバッファガスとの衝突で冷却し、RF カーペットと呼ばれるイオン収集装置で、イオンビームとして取り出し、イオントラップまで輸送する。

U-233 を Th-229 のイオン源として使用する利点として、定常的に Th-229 イオンが得られる点に加えて、原子核がエネルギー 8.3 eV の励起状態(アイソマー状態と呼ばれる)にある Th-229 イオンが約 2% の分岐比で得られる点が挙げられる。これらのイオンをトラップしレーザー分光することで、アイソマー状態の原子核パラメータやその寿命といった、原子核時計の実現に不可欠なパラメータを実験的に決定することができる。

講演では、3 価の Th-229 イオンのトラップとレーザー分光、特にアイソマー状態の Th-229 イオンのレーザー分光に関する実験について、最新の成果を報告する。

[1] B. R. Beck *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 142501 (2007). [2] B. Seiferle *et al.*, Nature **573**, 243 (2019). [3] A. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **123**, 222501 (2019). [4] T. Sikorsky *et al.*, Phys. Rev. Lett. **125**, 142503 (2020). [5] S. Kraemer *et al.*, Nature **617**, 706 (2023).

Laser spectroscopy of thorium ions toward a nuclear clock

YAMAGUCHI, A., SHIGEKAWA, Y., HABA, H., KIKUNAGA, H., SHIRASAKI, K., WADA, M., KATORI, H.

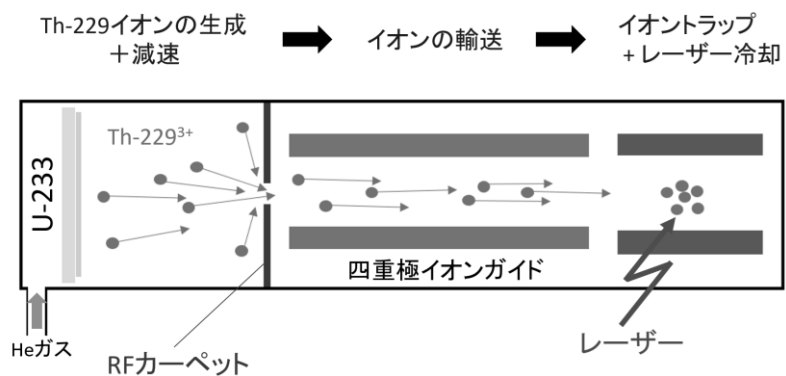


図 1: 本研究で開発した Th-229³⁺ イオントラップ装置の概念図。

1B02

Th-229m の電子架橋遷移の観測に向けた Th-229m イオンの引き出しとトラップ

(理研仁科セ¹、理研香取研²、阪大院理³、KEK 和光原子核科学セ⁴)○重河優大¹、山口敦史²、床井健運³、佐藤望¹、笠松良崇³、和田道治⁴、羽場宏光¹

【緒言】 ^{229m}Th の第一励起準位 (^{229m}Th) は 8.34 eV[1] という極端に低い励起エネルギーを持つため、壊変過程が化学状態に依存して変化する。過去の研究では、 ^{229m}Th が中性原子の時は内部転換で脱励起し ($T_{1/2} = 7(1) \mu\text{s}$) [2]、 ^{229m}Th が MgF_2 に導入された場合には γ 線放出で脱励起する ($T_{1/2} = 670(102) \text{ s}$) [1] ことが観測された。一方、 ^{229m}Th は電子架橋遷移という第 3 の脱励起過程によって壊変する可能性がある[3]。電子架橋遷移は電子遷移を介した高次の γ 線放出であり、半減期はミリ秒～数秒程度と予測されている[3]。我々は、電子架橋遷移観測への第一段階として、 $^{229m}\text{Th}^+$ [3]や ^{229m}Th 酸化物イオン等の半減期の測定を目指している。それらのイオンは、イオントラップ中に $^{229m}\text{Th}^{2+}$ を導入し、活性なガスと化学反応させることで生成する。トラップされた ^{229m}Th の個数 (MCP で検出された内部転換電子の個数[2]) とトラップ時間の関係調べること、対象の化学種に対する ^{229m}Th の半減期を求められる。今回、 $^{229m}\text{Th}^{2+}$ を引き出してトラップする装置を開発し、 $^{229m}\text{Th}^+$ の生成と観測に成功したので報告する。

【実験】 本研究では図 1 に示す装置を開発した。 ^{233}U 線源から飛び出した $^{229m,g}\text{Th}^{2+}$ は、RF カーペットガスセルにより真空中へ引き出され、イオントラップに導入される。その後、四重極質量分離器 (QMS) によって対象のイオンのみが選択され、MCP 検出器まで引き出される。MCP の電圧を切り替えることで、イオンもしくは ^{229m}Th の内部転換電子を検出できる[2]。まず、イオントラップに Ar ガスを導入し、トラップなしとありの場合でイオンの質量スペクトルを測定した。次に、 $^{229m,g}\text{Th}^+$ を MCP 表面に引き出し、内部転換電子を測定した。さらに、 $^{229m,g}\text{Th}^+$ のイオン数と内部転換電子数をトラップ時間に対して測定した。

【結果】 トラップなしの場合、 10^3 個/s 以上の $^{229m,g}\text{Th}^{2+}$ が引き出され、 $^{229m,g}\text{Th}^+$ はほとんど引き出されないことが分かった。一方、トラップありの場合、Ar 中の不純物との化学反応による $^{229m}\text{Th}^+$ の生成が観測された。 $^{229m}\text{Th}^+$ が MCP 上で中性化した後に放出する内部転換電子の測定を実施し、7 μs 程度の半減期の減衰曲線を観測することに成功した。次に、トラップ時間の増加に応じて $^{229m,g}\text{Th}^+$ のイオン数が成長・減衰する様子 ($^{229m,g}\text{Th}^{2+} \rightarrow ^{229m,g}\text{Th}^+ \rightarrow \text{X}$) を観測した。内部転換電子数 ($^{229m}\text{Th}^+$ の個数) を測定した場合、 $^{229m}\text{Th}^+$ が壊変する分、成長減衰曲線の形がイオン数の場合に比べて異なることが分かった。最終的に $^{229m}\text{Th}^+$ の半減期を 0.1–1 s 程度と見積もることに成功した。

[1] S. Kraemer *et al.*, *Nature* **617**, 706 (2023). [2] B. Seiferle *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 042501 (2017). [3] F. F. Karpeshin *et al.*, *Nucl. Phys. A* **969**, 173 (2018).

Extraction and trapping of ^{229m}Th ions for observing electronic bridge process

SHIGEKAWA Y., YAMAGUCHI, A., TOKOI, K., SATO, N., KASAMATSU, Y., WADA, M., HABA, H.

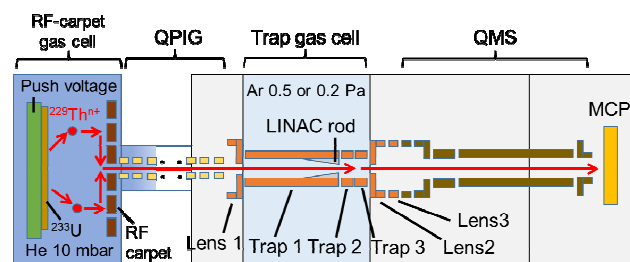


図 1. ^{229m}Th イオンの引き出し・トラップ装置

セッションA 核化学

1A2

座長:菊永 英寿(東北大学)

2023年9月21日(木) 11:10 ~ 12:10 B会場 (学生会館)

[1B03] ^{235m}U ハロゲン化物の半減期変化と相対論密度汎関数計算による電子密度との相関

*益田 遼太郎^{1,2}、金子 政志¹、澤村 慶¹、橋場 奏¹、重河 優大²、篠原 厚^{1,3}、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 大阪青山大学)

11:10 ~ 11:30

[1B04] ^{259}Md の自発核分裂片質量-全運動エネルギー分布測定

*浅井 雅人¹、石橋 優一²、塚田 和明¹、佐藤 哲也¹、青木 涼太^{1,3}、伊藤 由太¹、内馬場 優太^{1,3}、Orlandi Riccardo¹、Gong GyeongMin^{1,3}、洲崎 ふみ¹、西尾 勝久¹、廣瀬 健太郎¹、牧井 宏之¹、西中 一朗⁴、阪間 稔⁵、久保野 茂⁶ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 九州大学、3. 茨城大学、4. 量子科学技術研究開発機構、5. 徳島大学、6. 理化学研究所)

11:30 ~ 11:50

[1B05] 高精度質量分析器による蒸発残留核断面積の励起関数測定

*庭瀬 暁隆¹、和田 道治¹、Schury Peter¹、木村 創大¹、Brionnet Pierre²、Chaoyi Fu³、羽場 宏光²、平山 賀一¹、石山 博恒²、伊藤 由太⁴、加治 大哉²、宮武 宇也¹、森本 幸司²、Rosenbusch Marco²、高峰 愛子²、渡邊 裕¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構、2. 理研仁科センター、3. 香港大、4. 日本原子力研究開発機構)

11:50 ~ 12:10

1B03

 $^{235\text{m}}\text{U}$ ハロゲン化物の半減期変化と相対論密度汎関数計算による電子密度との相関(大阪大学¹、理研²、大阪青山大学³)○益田遼太郎^{1,2}金子政志¹、澤村慶¹、橋場奏¹、重河優大²、篠原厚^{1,3}、笠松良崇^{1,2}

【緒言】 $^{235\text{m}}\text{U}$ は、76.8 eV の励起エネルギーを持ち、この値は他の核種と比べて非常に低い励起エネルギーであり、内部転換の際に原子核が外殻電子と相互作用するため、壊変定数が化学状態に応じて変化する[1]。本研究では、 $^{235\text{m}}\text{U}$ に様々なハロゲンと反応させることで半減期を系統的に調べ、また内部転換電子エネルギースペクトルを測定し、半減期と相互に比較することで軌道殻電子が半減期変化にどのように寄与するのか調べた。さらに、相対論 DFT 計算により各ハロゲン化ウラニルの電子状態を解析することで、半減期変化の理論的考察を行った。

【実験】 ^{239}Pu の α 壊変に伴って放出される $^{235\text{m}}\text{U}$ を窒素ガス中にトラップし、負電圧を印加することで銅箔表面に捕集した。銅箔表面の $^{235\text{m}}\text{U}$ に酸素ガス、あるいはハロゲン化水素溶液 (HF, HCl, HBr, HI) を N_2 ガスでバブリングさせることで発生させたガスを反応させた。その後、銅箔を磁気ボトル型電子分光装置に導入し、内部転換電子の時間依存性を測定した。測定されたデータに対して、指数関数に一定のバックグラウンドを加えた関数をフィッティングすることで、各試料における半減期を求めた。また、阻止電圧として -70~0V の負電圧を印加し、負電圧に対して電子のカウント数の変化を観測し、内部転換電子のエネルギースペクトルを得た。

相対論 DFT 計算は、spin-orbit ZORA レベルにおいて PBE-D3 汎関数、TZ2P (U 原子)、TZP (その他の原子) 基底関数を用いて、ハロゲン化ウラニル $[\text{UO}_2\text{X}_4]^{2-}$ (X = F, Cl, Br, I) の構造最適化及び一点計算を行った。

【結果・考察】 実験の結果、半減期を酸化剤 (26.41 ± 0.02 min)、フッ化物 (25.30 ± 0.04 min)、塩化物 (26.13 ± 0.09 min) に加え、新規に臭化物 (25.79 ± 0.023 min)、ヨウ化物 (25.47 ± 0.03 min) と決定した。また、相対論 DFT 計算により得られた $[\text{UO}_2\text{X}_4]^{2-}$ のウラン核位置での電子密度 (contact density) を計算し、半減期とプロットした結果、X = F を除いて正の相関が

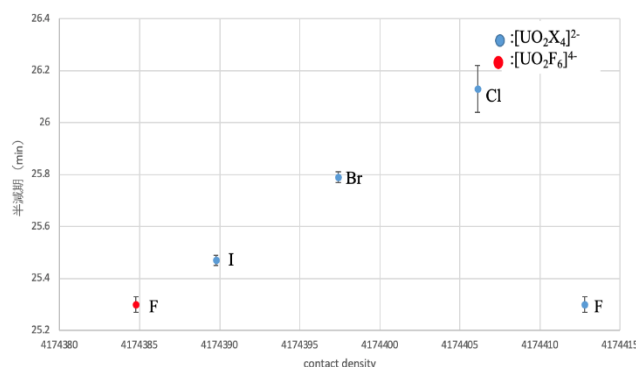


図 1. 半減期、電子密度と電気陰性度の関係

得られた (図 1)。これは、contact density が大きいほど内部転換確率が上がり、その結果として半減期が長くなったものと考えられる。また、X = F については、より多くの F がエクアトリアル位に配位した $[\text{UO}_2\text{F}_6]^{4-}$ を考慮した結果、contact density が減少し、ヨウ化物よりも短い半減期を説明する結果となった。本発表では、内部転換電子エネルギースペクトルの結果と合わせて半減期変化の起源について詳細に議論する。

[1] M. Neve de Mevergnies, *et.al.*, Phys. Lett., **49B**, 428 (1974).

Correlation between variation on half-lives of $^{235\text{m}}\text{U}$ halides and electron densities by means of relativistic density functional theory calculation

MASUDA, R., KANEKO, M., SAWAMURA, K., HASHIBA, S., SHIGEKAWA, Y., SHINOHARA, A., KASAMATSU, Y.

1B04

 ^{259}Md の自発核分裂片質量-全運動エネルギー分布測定

(原子力機構¹、九州大学²、茨城大学³、量研機構⁴、徳島大学⁵、理研⁶) ○浅井雅人¹、石橋優一²、塚田和明¹、佐藤哲也¹、青木涼太^{1,3}、伊藤由太¹、内馬場優太^{1,3}、Orlandi Riccardo¹、Gong GyeongMin^{1,3}、洲寄ふみ¹、西尾勝久¹、廣瀬健太郎¹、牧井宏之¹、西中一朗⁴、阪間 稔⁵、久保野 茂⁶

【緒言】

中性子過剰フェルミウム (Fm) 同位体の自発核分裂片の質量分布は、 ^{256}Fm ではアクチノイド核種に典型的な質量非対称分布を示すのに対して、中性子が2個多い ^{258}Fm で突然極めて分布幅の狭い質量対称分裂に変化する[1]。Fm よりも重い中性子過剰 Md, No, Lr, Rf 同位体でも、質量数 257 付近を境に非対称分裂から対称分裂に変化するが、その対称分裂の質量分布幅は ^{258}Fm と比べるとかなり広く、2つの核分裂片の運動エネルギーの和である全運動エネルギー (TKE) の値も ^{258}Fm と比べるとかなり低い[1]。このことは分裂の瞬間の核分裂片の変形度が前者と後者で大きく異なることを示しており、同じ対称分裂でこのような違いが現れる原因を明らかにすることは興味深い。本研究では、実験的にも理論的にも性質が良く判っていない TKE の低い対称核分裂が起こる原因を明らかにすることを目的に、過去の実験結果[1,2]から3種類の核分裂が混合していると期待される ^{259}Md の自発核分裂の分裂片質量分布と TKE 分布の相関を精度良く測定する実験を行った。

【実験】

^{259}Md は、原子力機構タンデム加速器によって 120 MeV に加速された ^{18}O ビームを ^{254}Es 標的に照射し、多核子移行反応によって合成した。オンライン同位体分離装置 ISOL を用いて核反応生成物から ^{259}Md を同位体分離して炭素薄膜に捕集し、自発核分裂に伴う2つの核分裂片の運動エネルギーを2台の Si 検出器で同時計数測定した。合計 24 日間の実験で ^{259}Md の自発核分裂を約 300 事象観測した。

【結果】

観測された2つの核分裂片の運動エネルギーの値から、核分裂片の質量数と TKE を導出した。過去の文献[1,2]では、質量-TKE の2次元分布の精度の良い結果が報告されておらず、今回得られた質量-TKE の2次元分布から、TKE の高い対称分裂、TKE の低い対称分裂、非対称分裂の混合の様子を明らかにすることができた。発表では ^{259}Md の結果に加えて、同じ実験条件で過去に我々が測定した ^{258}Fm と ^{259}Lr の質量-TKE の2次元分布の結果についても紹介し、それらの比較から中性子過剰フェルミウム同位体領域における3種類の核分裂の競合及び混合について議論する。

【参考文献】

- [1] E.K. Hulet et al., Phys. Rev. C 40, 770 (1989); M.R. Lane et al., Phys. Rev. C 53, 2893 (1996).
[2] J.F. Wild et al., Phys. Rev. C 26, 1531 (1982).

Measurement of mass and total kinetic energy distribution for spontaneous fission of ^{259}Md
ASAI, M., ISHIBASHI, Y., TSUKADA, K., SATO, K.T., AOKI, R., ITO, Y., UCHIBABA, Y., ORLANDI, R., GONG, G.M., SUZAKI, F., NISHIO, K., HIROSE, K., MAKII, H., NISHINAKA, I., SAKAMA, M., KUBONO, S.

1B05

高精度質量分析器による蒸発残留核断面積の励起関数測定

(高エネ研¹、理研仁科セ²、香港大³、原子力機構⁴、九大理⁵)

○庭瀬暁隆^{1,5}、和田道治¹、Schury Peter¹、木村創大¹、Brionnet Pierre²、
Chaoyi Fu³、羽場宏光²、平山 賀一¹、石山博恒²、伊藤由太⁴
加治大哉²、宮武宇也¹、森本幸司²、Rosenbusch Marco²、
高峰愛子²、渡邊裕¹

【緒言】

多重反射型飛行時間測定式質量分光器 MRTOF-MS[1]は原子核の精密質量測定のために開発された装置である。我々の研究グループではこれまでに、MRTOF-MSを用いることで超重元素原子核の直接質量測定[2,3]や、中性子過剰ウランの新同位体の同定[4]に成功してきた。MRTOF-MSはペニングトラップといった他の精密質量測定装置と違ってパラメータ掃引の必要がなく、広い質量帯域の原子核を同時に測定することを可能とする能率的な装置である。

MRTOF-MSによって計測される種々のイオンは、それぞれ異なった位置に自身の飛行時間ピークを形成する。従ってMRTOF-MSは高精度な質量測定装置であると同時に、高感度なイオン検出器であると言える。本研究ではMRTOF-MSの新たな利用法の開拓として、蒸発残留核の励起関数測定を実施した。融合反応によって生成される広い脱励起チャンネルの原子核を飛行時間によって識別し、その収量を測定する。MRTOFでの測定はイオン計測であるため、生成核種の半減期や崩壊様式によらない収量測定を実施することが可能となる。

【実験】

実験は理化学研究所の加速器施設において実施した。理研リングサイクロトロンによって加速された⁵¹Vビームを¹³⁹La標的へと照射し、⁵¹V+¹³⁹La系の融合反応で生成される諸核種を気体充填型反跳分離装置GARIS-II[5]によって一次ビームから分離し焦点面へと輸送する。GARIS-II下流には高純度ヘリウムガスセルとイオントラップ系によって構築されたMRTOF装置群が結合しており、輸送されてきた核種はその飛行時間測定から同定を行う。リングサイクロトロンは加速エネルギーを自由に調整することができないため、本実験では¹³⁹La標的直前に角度調整が可能なアルミニウム板を設置することで、標的への入射エネルギーを変更できるようにした。結果、標的中心での入射エネルギー220MeVから268MeVまでの領域において、質量数184から187までの総計10核種の収量を一挙に測定することに成功をした。本講演では実験の詳細について講演を行う。

【参考文献】

- [1] P. Schury *et al.*, Nucl. Instrum. Methods., Phys., B, 335 (2014) 39.
- [2] P. Schury *et al.*, Phys. Rev. C 104 (2021) L021304.
- [3] T. Niwase *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. 23 (2023) 1.
- [4] T. Niwase *et al.*, Phys. Rev. Lett. 130 (2023) 132502.
- [5] D. Kaji *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. B 317 (2013) 311.

Excitation function measurement of fusion evaporation reaction by direct ion counting with high-precision mass spectrograph

NIWASE, T., WADA, M., SCHURY, P., KIMURA, S., BRIONNET, P., CHAOYI, F., HABA, H., HIRAYAMA, Y., ISHIYAMA, H., ITO, Y., KAJI, D., MIYATAKE, H., MORIMOTO, K., ROSENBUSCH, M., TAKAMINE, A., WATANABE, X, Y.,

セッションA 核化学

1A3

座長:後藤 真一(新潟大学)

2023年9月21日(木) 13:40 ~ 15:00 B会場 (学生会館)

[1B06] $^{232}\text{Th} + ^7\text{Li}$ 核反応における α 線放出生成物の定量

*細川 浩由¹、永井 歩夢¹、榊枝 優真²、干場 香湖¹、南部 明弘³、重河 優大³、羽場 宏光³、坂口 綾²、横山 明彦¹ (1. 金沢大学、2. 筑波大学、3. 理化学研究所)

13:40 ~ 14:00

[1B07] 太陽電池検出器のエネルギー・時間分解能および放射線耐性の評価

*能見 幹都¹、坂口 聡志^{1,2}、浅井 雅人^{1,2,3}、甲斐 民人¹、杉山 晃一¹、鄭 淳讚⁴、富松 太郎¹、長江 大輔²、永田 優斗¹、庭瀬 暁隆⁴、松浦 開¹、松永 壮太郎¹、武藤 大河¹、森田 浩介^{1,2} (1. 九州大学理学府、2. 九州大学超重元素研究センター、3. 日本原子力研究開発機構、4. KEK和光原子核科学センター)

14:00 ~ 14:20

[1B08] 反跳相関崩壊分光に向けた $^{214}\text{Ra}^{2+}$ イオンの in-trap崩壊測定

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

14:20 ~ 14:40

[1B09] アルファ線核医学治療用アスタチン-211の大規模製造装置の開発

*安良田 寛^{1,2}、栗原 嵩司^{1,2}、中村 伸悟^{1,2}、佐藤 望²、殷 小杰²、南部 明弘²、重河 優大²、金山 洋介²、荒井 秀幸^{1,2}、長澤 豊¹、羽場 宏光² (1. 金属技研株式会社、2. 理研)

14:40 ~ 15:00

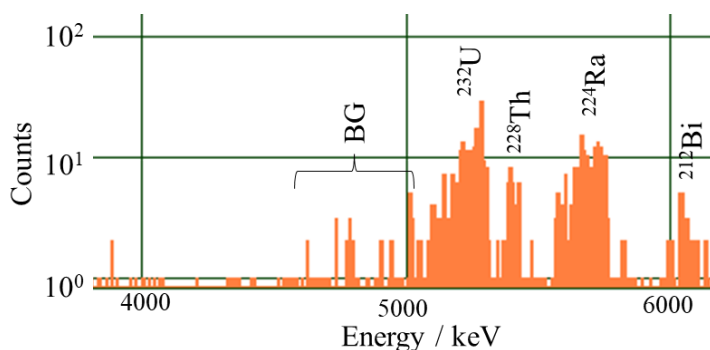
1B06

 $^{232}\text{Th}+^7\text{Li}$ 核反応における α 線放出生成物の定量(金沢大院自然¹、筑波大数理²、金沢大理工³、理研仁科セ⁴)○細川 浩由¹、永井 歩夢¹、榊枝 優真²、干場 香湖³、南部 明弘⁴、
重河 優大⁴、羽場 宏光⁴、坂口 綾²、横山 明彦³

【緒言】 $^{237}\text{Np}(T_{1/2}=2.1 \times 10^6 \text{ y})$ は、核実験等のため環境中に微量に存在し、環境モニタリングの対象核種である。この定量のために、加速器質量分析(AMS)による質量分析が期待されているが、適切なトレーサーが開発されていない。そのために当研究グループでは、 $^{232}\text{Th}+^7\text{Li}$ 核反応による $^{236g}\text{Np}(T_{1/2}=1.5 \times 10^5 \text{ y})$ 製造を検討している。 ^7Li を用いた本反応系では、 ^{236g}Np を合成する入射粒子の全てがターゲット核と融合する完全融合反応と ^7Li が α と t に分裂し一部のみがターゲット核と融合する不完全融合反応が特徴的に起き、完全融合反応を阻害する可能性がある。これまで、不完全融合反応に関するPa同位体、U同位体などを γ 線測定と質量分析によって同定定量し、反応について調査してきた。本研究では、 α 線測定により測定可能な生成物を新たに見つけて反応の全体像を補完することを目指している。

【実験】照射ターゲットとして硝酸トリウム溶液を用いて電着した試料を用いた。この試料を2枚(それぞれ ^{232}Th 約1mg)重ねたスタックターゲットを理化学研究所 AVF サイクロトロンにて ^7Li イオンで3時間照射した。この時それぞれの試料への照射エネルギーは41.1MeV、39MeVであった。PaからUへの流れ込みについて調べるため、照射後すぐにターゲットを溶解し、Paを特異的に吸着させるTK400を用いてPa成分とTh成分の分離を行った。約1か月後、分離したPa成分をもう一度TK400を用いてPa成分とU成分に分離し、PaとUを硫酸-アンモニア系で電着した。Pa成分について γ 線測定では定量できていない ^{231}Pa 、U成分については ^{232}U を測定対象とした。 α 線測定はSi半導体検出器を用いた α スペクトロメトリーを行った。

【結果・考察】図1にTK400で2回精製後のPa成分のスペクトルを示した。ここでは ^{231}Pa の生成は確認することができなかった。 ^{231}Pa の生成断面積の上限値は41.1MeVで5.7mb未満、39MeVで4.9mb未満となった。また、TK400で2回目分離の際のU成分では ^{232}U のスペクトルが見られた。 ^{232}U の生成断面積を計算した結果、41.1MeVで4.1mb以上、39MeVで6.8mb以上となった。測定された ^{232}U が不完全融合反応で生成された $^{232}\text{Pa}(T_{1/2}=1.32 \text{ d})$ が壊変したものであることが明らかとなった。また、 ^{231}Pa の生成断面積の上限値は不完全融合過程の $^{232}\text{Th} + t$ の理論計算値と矛盾はない。

図1 TK400で2回分離後のPa成分の α 線スペクトルDetermination of alpha emitting products in the $^{232}\text{Th}+^7\text{Li}$ nuclear reactionHOSOKAWA, H., NAGAI, A., SAKAKIEDA, Y., HOSHIBA, K., NAMBU, A., SHIGEKAWA, Y.,
HABA, H., SAKAGUCHI, A., YOKOYAMA, A.

1B07

太陽電池検出器のエネルギー・時間分解能および放射線耐性の評価

(九州大学理学府¹、九州大学超重元素研究センター²、
日本原子力研究開発機構³、KEK 和光原子核科学センター⁴)

○能見 幹都¹、坂口 聡志^{1,2}、浅井 雅人^{1,2,3}、甲斐 民人¹、
杉山 晃一¹、鄭 淳讚⁴、富松 太郎¹、長江 大輔²、永田 優斗¹、
庭瀬 暁隆⁴、松浦 開¹、松永 壮太郎¹、武藤 大河¹、森田 浩介^{1,2}

アクチノイド核の核分裂には核分裂片の質量数がほぼ等しい対称分裂とそれらが大きく異なる非対称分裂があるが、どちらの現象がより顕著に起こるかは親核の核子数に依存して急激に変わりうる。また、中性子過剰アクチノイド核の核分裂に対する安定性は超ウラン核合成の起源である r-process と密接な関係があり、広く興味の対象となっている。

核分裂片などの重イオンの検出においてはシリコン検出器が一般的に用いられるが、シリコン検出器は放射線損傷によって性能が低下することが知られている。その問題を解決する手段として、太陽電池検出器が注目されている。太陽電池検出器はシリコン検出器と同様に半導体ダイオードであり、空乏層に放射線が入射した際に生成される電子正孔対を収集することでエネルギー・時間の情報が得られる。特長としては極めて安価で、自由な大きさ・形状に加工ができる。また、放射線耐性に優れるとされているが、具体的なデータは乏しい。

そこで我々は、太陽電池検出器とシリコン検出器の放射線耐性を評価し比較するためのビーム照射実験を行った。

実験では九州大学のタンデム加速器を用いて 66 MeV, 3 kcps の 127I ビームを太陽電池検出器とシリコン検出器に直接照射した。ビーム照射によってエネルギースペクトルのピークがシフトするか、エネルギー分解能が低下するかを調べた。

また同時に、時間分解能の評価、長時間の照射、異なる大きさの太陽電池検出器の比較なども行った。

その結果、太陽電池検出器はシリコン検出器と比較して分解能に劣るものの、右図のように放射線照射によるエネルギースペクトルのピークシフトやエネルギー分解能の低下が極めて小さく、放射線耐性に優れていることが分かった。

このことから、高バックグラウンド条件下での核分裂片測定にも有用であるといえる。本講演では、実験の詳細と得られた結果について紹介する。

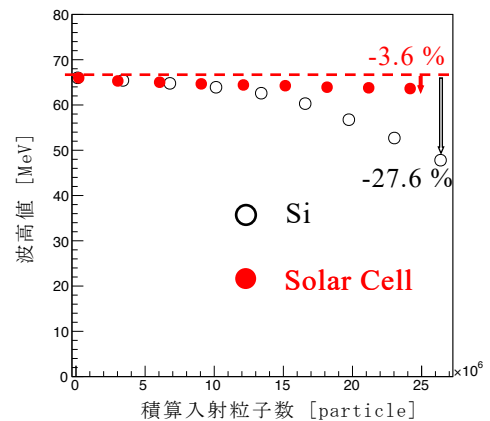


図 太陽電池検出器とシリコン検出器の放射線耐性比較

Evaluation of energy and time resolution and radiation tolerance of solar cell detectors
Mikito Nomi¹, Satoshi Sakaguchi^{1,2}, Masato Asai^{1,2,3}, Tamito Kai¹, Koichi Sugiyama¹,
Sun-Chan Jeong⁴, Taro Tomimatsu¹, Daisuke Nagae², Yuto Nagata¹, Toshitaka Niwase⁴,
Haruki Matsuura¹, Sotaro Matsunaga¹, Taiga Muto¹, Kosuke Morita^{1,2}

1B08

反跳相関崩壊分光に向けた $^{214}\text{Ra}^{2+}$ イオンの in-trap 崩壊測定

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

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

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

一方、高周波電極至近での半導体検出器の使用は電磁ノイズによる影響が懸念されるため、 ^{241}Am 線源及び $^{214}\text{Ra}^{2+}$ イオンを用いて、PIN フォトダイオード検出器の動作試験と in-trap 崩壊測定の実証を行った。

前者では、トラップ-検出器間距離及びシールドメッシュ構造を最適化し、分解能を維持できる測定条件を見出した。後者では、実際にイオンをトラップする条件で測定を行い、エネルギー分解能(図2)やカウント数のトラップシーケンス相関から、in-trap 崩壊測定を確認できた。また、カウント数の減衰の時間依存性から、数秒以上のトラップ寿命が達成できていることを確認した。

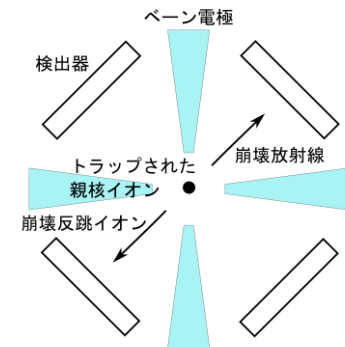


図1: ベーン電極型イオントラップと崩壊測定の概略図

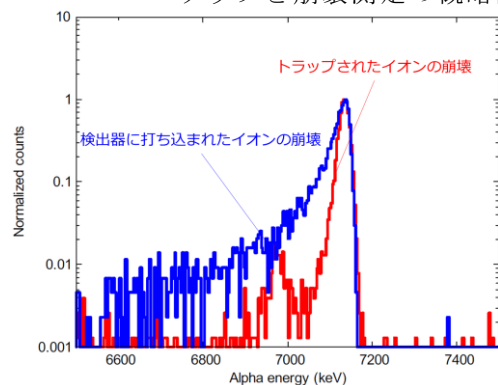


図2: トラップ内及び検出器に打ち込まれたイオンの崩壊で観測された ^{214}Ra の α 線スペクトル。ピーク幅の違いは、崩壊位置(トラップ中心または検出器表面)が反映されていると考えられる。

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

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

In-trap decay measurements of $^{214}\text{Ra}^{2+}$ ions for decay-recoil-correlated spectroscopy
UCHIBABA, Y., ITO, Y., SATO, T.K., AOKI, R., ASAI, M., GONG, G., TSUKADA, K., NATORI, H., MIYACHI, Y., NAGAME, Y.

1B09

アルファ線核医学治療用アスタチン-211の大規模製造装置の開発

(金属技研株式会社¹、理研²)○安良田寛^{1,2}、栗原嵩司^{1,2}、中村伸悟^{1,2}、佐藤望²、殷小杰²、南部明弘²、重河優大²、金山洋介²、荒井秀幸^{1,2}、長澤豊¹、羽場宏光²

【緒言】

核医学治療に用いられるアルファ (α) 線放出核種、アスタチン-211 (^{211}At) は、加速器を用いて約 28 MeV まで加速した ^4He ビームを Bi 標的に照射し、 $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ 反応によって製造される。しかし、標的である Bi 金属の融点 (271.5°C) と熱伝導率 ($7.97\text{W/m}\cdot\text{K}$) が低いため、従来装置[1]ではビーム強度を $40\ \mu\text{A}$ ($^4\text{He}^{2+}$ として) 以上に増大すると、Bi 標的が融けてしまい、 ^{211}At を定量的かつ大量に製造できない問題が生じていた。そこで、我々の研究グループでは、将来より大量の ^{211}At を製造・供給していくため、高速回転する Bi 標的と ^{211}At の化学分離器を併せ持つ画期的な ^{211}At 製造装置を考案した。本発表では、本装置の動作原理と性能試験の結果を報告する。

【実験】

図 1 に、今回開発した ^{211}At 製造装置 (照射チャンバー部) の概念図を示す。理研リングサイクロトロンを用いて 29 MeV まで加速した $^4\text{He}^+$ イオンは、Be 真空窓 ($14\ \mu\text{m}\times 2$) を通過し、金属 Bi 標的に照射される。照射中、Bi 標的容器は He ガス ($100\ \text{kPa}$) 中で回転 (800 または $2000\ \text{rpm}$) させて冷却した。照射後、回転を停止し、標的容器を誘導加熱装置により 450°C 以上に加熱し、 ^{211}At を気化させ、He 気流 (0.5 または $0.25\ \text{L/min}$) に乗せて 110°C に熱したフッ素樹脂管 (内径 $1.5\ \text{mm}\times$ 長さ $12\ \text{m}$) を通して化学実験室に搬送した。化学実験室では、液体窒素で冷却したフッ素樹脂管トラップ (内径 $1\ \text{mm}\times$ 長さ $1\ \text{m}$) または活性炭トラップ (内径 $4\ \text{mm}\times$ 長さ $50\ \text{mm}$) を用いて ^{211}At を回収した。回収後、それらのトラップを Ge 半導体検出器で測定し、 ^{211}At の収量を評価した。本研究では、まず、 $0.25\ \mu\text{A}$ のビーム強度で 6 分間 Bi 標的を照射し、装置の動作原理を確認した。その後、ビーム強度を $25\ \mu\text{A}$ に増大し、実用レベルでの ^{211}At 製造を試みた。

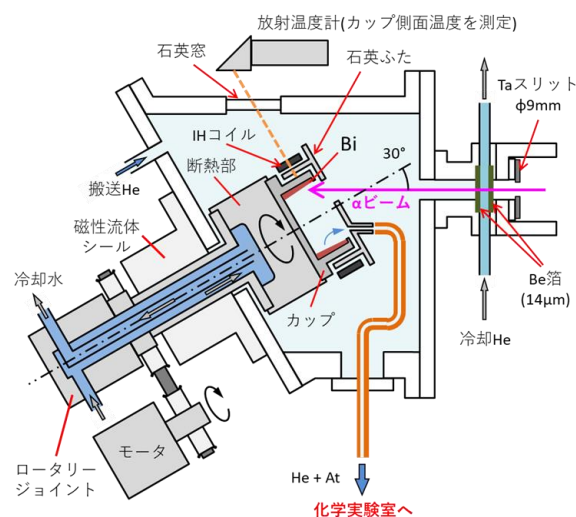


図 1 照射チャンバー部の概略図

【結果と考察】

$0.25\ \mu\text{A}$ での ^{211}At 製造・回収実験の結果、従来装置[1]を用いた場合と同等の高い収率 (約 80%) が得られた。一方、従来装置[1]の限界を超える $25\ \mu\text{A}$ での実験では、1.5 時間の照射で一般的な研究に必要とされる約 200 MBq の精製 ^{211}At を製造することができた。

【参考文献】

[1] 羽場宏光, Drug Delivery System **35**, 114 (2020).

Development of a large-scale production system of astatine-211 for targeted alpha-particle therapy
ARATA, H., KURIHARA, T., NAKAMURA, S., SATO, N., Yin, X., NAMBU, A., SHIGEKAWA, Y., KANAYAMA, Y., ARAI, H., NAGASAWA, Y., HABA, H.

セッションA 核化学

1A4

座長:横山 明彦(金沢大学)

2023年9月21日(木) 15:10 ~ 16:10 B会場 (学生会館)

[1B10] ガスクロマトグラフィーと量子化学計算を用いた At芳香族化合物のハロゲン結合エネルギーの導出

*床井 健運¹、豊嶋 厚史²、金子 政志¹、篠原 厚^{2,3}、大江 一弘²、今 教禎²、羽場 宏光⁴、YIN Xiaojie⁴、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学大学院理学研究科、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 大阪青山大学、4. 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター)

15:10 ~ 15:30

[1B11] 102番元素ノーベリウムの硝酸系および塩酸系でのクラウンエーテルを用いた固液抽出

*渡邊 瑛介^{1,2}、中西 諒平¹、横北 卓也^{3,4}、王 瑞麟¹、大高 咲希¹、板倉 悠大¹、益田 遼太郎¹、重河 優大⁵、南部 明弘⁵、殷 小杰⁵、羽場 宏光⁵、金子 政志¹、柴本 恭佑¹、高宮 幸一⁶、篠原 厚^{1,7}、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学、2. 高エネルギー加速器研究機構、3. サレジオ工業高等専門学校、4. 東北大学、5. 理化学研究所、6. 京都大学、7. 大阪青山大学)

15:30 ~ 15:50

[1B12] ノーベリウムの硫酸バリウム共沈

大高 咲希^{1,2}、*笠松 良崇^{1,2}、中西 諒平^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,2}、板倉 悠大^{1,2}、王 瑞麟^{1,2}、益田 遼太郎^{1,2}、金子 政志¹、羽場 宏光²、重河 優大²、南部 明弘²、殷 小杰²、横北 卓也³、篠原 厚^{1,4} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. サレジオ高専、4. 大阪青山大学)

15:50 ~ 16:10

1B10 ガスクロマトグラフィーと量子化学計算を用いた At 芳香族化合物のハロゲン結合エネルギーの導出

(阪大院理¹、阪大放射線機構²、大阪青山大³、理研仁科セ⁴)

○床井健運¹、豊嶋厚史²、金子政志¹、篠原厚^{2,3}、大江一弘²、今教禎²、羽場宏光⁴、YIN Xiaojie⁴、笠松良崇¹

【緒言】ハロゲン結合は、ハロゲン化合物とルイス塩基間に働く分子間相互作用であり、FからIまで重くなるほど結合は強い。Iより重いAtにはさらに強いハロゲン結合形成が予想される一方、相対論的効果の影響によってAtはIよりハロゲン結合が弱くなるという理論予測もなされており[1]、実験によって明らかにする事が重要である。通常、ハロゲン結合エネルギー(HBE)は分光法を用いて測定されるが、短寿命核種しか存在せず微量でしか扱えないAtには適用できない。そこで我々はトレーサー量でも実験が可能なガスクロマトグラフィー(GC)に着目した。本研究では、ルイス塩基樹脂を用いたGC実験で決定する吸着エンタルピー(ΔH)と量子化学計算の併用によってHBEを導出する方法を新たに開発し、At化合物のHBEを求めたので報告する。

【実験】ハロゲン化合物としてハロペンタフルオロベンゼン(C_6F_5X , $X = Cl, Br, I, At$)を選び、ルイス塩基としてチオウレア担持シリカゲル樹脂を使用した。実験にはGC装置(島津GC-2014)を用いた。外径5mm、内径3mmのテフロン管にルイス塩基を50cm充填して分析カラムとして用いた。At以外の C_6F_5X に対し、ガス流量10mL/minならびにカラム温度140-150°Cにおける保持時間を測定した。カラム温度に対する保持時間の変化に対してフィッティング[2]を行い ΔH を導出した。また、量子化学計算により C_6F_5X とルイス塩基間のHBEを算出し、 ΔH とHBEとの関係式を観測した。次にAtClと C_6F_5I とのハロゲン交換反応を利用して C_6F_5At の合成を行い、HPLC分析により同定した。合成した C_6F_5At に対して、カラム温度150°Cの条件でGC実験を行った。カラムから溶出した C_6F_5At を冷却捕集し、CdTeZn検出器を用いて ^{211}At の壊変に伴う特性X線を測定した。捕集量の変化から保持時間を取得し ΔH を算出した。

【結果と考察】At以外の C_6F_5X のGC実験の結果、 ΔH とHBEは直線関係にあることを見出した。その傾きから複数のチオウレアと C_6F_5X がハロゲン結合による相互作用をしている事が推測された。At化合物のHPLC分析では、観測したAtのピークは C_6F_5I と一致し、 C_6F_5At 合成に成功した事が示された。 C_6F_5At のGC実験の結果、36時間の分析においても C_6F_5At は分析カラムから溶出されない事がわかった。この結果から C_6F_5At の ΔH の下限値を-80 kJ/molとして評価し、上述の直線関係式を用いて C_6F_5At のHBEが30 kJ/mol以上であることを初めて実験的に見出した。この値は C_6F_5I のHBEよりかなり大きく、 C_6F_5At のハロゲン結合が C_6F_5I より著しく強い事が初めて示された。 C_6F_5At のハロゲン結合の詳細については討論会で報告する。

【参考文献】

[1] Galland, N. *et al.*, *New J. Chem.* **42**, 10510-10517, (2018).

[2] Greene, S. A. & Pust, H. *J. Phys. Chem.* **62**, 55-58 (1958).

Derivation of halogen binding energies of At aromatic compounds using gas chromatography with the aid of quantum chemical calculations

TOKOI, K., TOYOSHIMA, A., KANEKO, M., SHINOHARA, A., OOE, K., KON, Y., HABA, H., YIN, X., KASAMAYSU, Y.,

1B11

102 番元素ノーベリウムの硝酸系および塩酸系でのクラウンエーテルを用いた固液抽出

(大阪大学¹、高エネルギー加速器研究機構²、サレジオ工業高等専門学校³、東北大学⁴、理化学研究所⁵、京都大学⁶、大阪青山大学⁷)

○渡邊瑛介^{1,2}、中西諒平¹、横北卓也^{3,4}、王瑞麟¹、大高咲希¹、板倉悠大¹、益田遼太郎¹、重河優大⁵、南部明弘⁵、殷小杰⁵、羽場宏光⁵、金子政志¹、柴本恭佑¹、高宮幸一⁶、篠原厚^{1,8}、笠松良崇¹

【緒言】ノーベリウム(No)は原子番号 102 番のアクチノイド元素であり、過去に行われたイオン交換等の研究では水溶液中で Ca や Sr と類似した挙動を取ることが報告されている[1]。我々はこれまで、クラウンエーテルを担持した Sr レジン系での No の抽出挙動を通じて No の電子状態を調べることを目標に、バッチ型固液抽出装置(AMBER)[2]を用いて ²⁵⁵No の Sr レジン/3.5 M HNO₃ 系の加速器オンライン固液抽出実験を行った。振とう時間 60 秒において No の分配係数が $Ca \leq No < Sr$ のような大小関係であることを報告したが、同時に行った理論計算は No の分配係数は Sr よりも高くなることを示唆していたため、さらなる検証が必要であった[3]。本研究では 3.5 M HNO₃ 系における振とう時間 180 秒ならびに 7.6 M HCl 系における振とう時間 60 秒の分配係数を新たに取得し、得られた抽出データを通して No の電子状態の考察を行った。

【実験】理化学研究所 AVF サイクロトロンにて ²⁵⁵No ($T_{1/2}=3.5$ min)を ²⁴⁸Cm(¹²C,5n)²⁵⁵No 反応にて製造した。核反応のモニターならびに溶液化効率の算出のために ¹⁶²Yb ($T_{1/2}=18.9$ min)も ^{nat}Gd(¹²C,xn)¹⁶²Yb 反応にて同時に製造した。He/KCl ガスジェットにてこれらの核反応生成物を化学実験室に搬送した。AMBER の溶液化部に捕集された核反応生成物を 3.5 M HNO₃ または 7.6 M HCl にて溶解した後、反応容器中で Sr レジン(50-100 μm, Eichrom 社)と 60-180 秒間振とうし接触させた。空圧により反応容器から溶液のみを取り出し、Ta 皿に捕集した。Ta 皿上の溶液試料を迅速に蒸発乾固した後、自動 α 粒子計測装置を用いて、α 線測定を行った。測定後の試料は Ge 検出器を用いて、γ 線測定を行った。溶液の標準放射能を調べるため、樹脂を使用せずに同様の操作を行う比較実験も行った。固相と液相の放射能濃度比を用いて分配係数 (K_d) を算出した。

【結果と考察】上記の実験を合計 72 回行い、²⁵⁵No の α イベントを 173 カウント観測した。3.5 M HNO₃ における振とう時間 180 秒での No の K_d 値は Sr と同じかそれ以上と求まった。この傾向は当初の理論計算による予測と一致した。その一方で硝酸系に比べて分配係数の差が表れにくい塩酸系においては、振とう時間 60 秒における No の分配係数は Sr, Ba, Ra と同程度であった。これらの結果から硝酸系においてはクラウンエーテルと硝酸イオンが直接 No²⁺に配位する No(NO₃)₂(DtBuCH18C6)が安定的に形成されていることが示唆された。さらに相対論的 DFT に基づく電子状態解析により、包摂錯体中の No²⁺は Ca²⁺や Sr²⁺に比べてより軟らかい酸として存在することが示唆された。

【参考文献】 [1]R. Silva *et al.*, *Inorg. Chem.* **13**, 2233-2237 (1974). [2]Y. Kasamatsu *et al.*, *Radiochim. Acta* **103**, 513-521 (2015). [3]渡邊ら、日本放射化学会第 66 回討論会(2022), 1A18.

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

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

1B12 ノーベリウムの硫酸バリウム共沈

(大阪大学¹、理研²、サレジオ高専³、大阪青山大⁴)大高咲希^{1,2}、○笠松良崇^{1,2}、中西諒平^{1,2}、渡邊瑛介^{1,2}、板倉悠大^{1,2}、王瑞麟^{1,2}、益田遼太郎^{1,2}、金子政志¹、羽場宏光²、重河優大²、南部明弘²、殷小杰²、横北卓也³、篠原厚^{1,4}

【緒言】 原子番号の大きな重元素では、軌道殻電子に働く相対論効果の影響が大きくなり、化学的性質にまで影響を及ぼすと考えられている。そのため、重元素の化学的性質を調べることは非常に興味深い課題であるが、1度に取り扱うことができる原子数が1個レベルになるため、実験が難しくその性質はほとんど調べられていない。

本グループでは、近年102番元素ノーベリウム(No)の化学研究を進めている。Noはfブロック元素の中で唯一水溶液中で2価イオンとして安定に存在し、2族元素との類似性が知られている[1]。我々は、独自に確立した重元素の共沈挙動を調べる実験手法によりNoの水酸化サマリウム共沈挙動を調べたが、2族元素の水酸化物沈殿の性質は非常に複雑であり、考察が困難であった。今回は、2族元素と1対1で反応し、安定な沈殿を作成することが知られている硫酸イオンとの反応を調べた。

【実験】 我々はすでに2族元素であるCa、Sr、Ba、Raを用いた基礎実験として、その硫酸沈殿挙動と硫酸バリウム共沈挙動を様々な溶液濃度に対して調べ、Noの実験を実施するために適した実験条件を決定していた。今回は、Noの加速器オンライン共沈実験を行うために、まずはオンライン実験手法の改良を行った、その後、実際に理化学研究所のAVFサイクロトロンを用いて $^{248}\text{Cm}(^{12}\text{C},5n)$ 反応により ^{255}No を製造し、オンライン実験用の吸引ろ過装置を用いて硫酸バリウム共沈実験を行った(図1)。標準試料と沈殿試料の α 線カウントを測定し、共沈収率を算出した。

また、2族元素やNoの硫酸錯体の量子化学計算を行い、結果の考察に利用した。

【結果と考察】 今回の実験では、これまでは手動で行っていた溶液の滴下や溶液の混合操作をポンプや装置を利用する方法に変更することでより安定した実験を実現し、化学収率なども実験全体を通して安定させることができた。

得られた硫酸バリウム共沈収率を2族元素と比較すると、 $\text{Ca} < \text{Sr} < \text{No} < \text{Ba} \approx \text{Ra}$ という順序であった。これは、これまでに調べられてきたNoの化学実験結果とは傾向が異なっており、単純なイオン半径の順番とは一致しなかった。このような結果に対して、量子化学計算の結果も考慮して、Noと2族元素の化学結合に関する違いなどについて考察を行ったので、本発表にて報告する。

[1] R. J. Silva et al., *Inorg. Chem.* **13**, 2233 (1974).

Coprecipitation of nobelium with barium sulfate

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

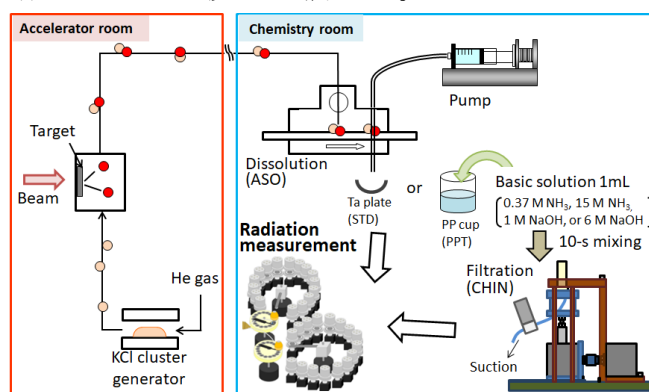


図1. 加速器オンライン共沈実験の概要図

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

1D1

座長:大浦 泰嗣(東京都立大学)

2023年9月21日(木) 10:00 ~ 11:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1A01] ミュオン元素分析法の開発とその応用

*二宮 和彦¹ (1. 大阪大学)

10:00 ~ 10:30

[1A02] 放射光軟X線分光で探る有機薄膜の反応・物性

*和田 真一¹ (1. 広島大学大学院 先進理工系科学研究科)

10:30 ~ 11:00

1A01 ミュオン元素分析法の開発とその応用

(阪大放射線機構)○二宮和彦

素粒子の一つであるミュオン（ミューオン、ミュー粒子ともいう）は、近年の加速器の大強度化に伴い大量に生成することができるようになり、様々な利用研究が進んでいる量子ビームのひとつである。現在、世界中のミュオン施設では、ミュオンを利用した非破壊元素分析法[1]の開発、応用研究が進められている。

ミュオンは電子と同じ負電荷を持っているために、電子と同じように原子核の周りにミュオン原子軌道を形成し、ミュオン原子と呼ばれるエキゾチックな原子を形成する。ミュオンは電子の 207 倍の質量を持っているために、その原子軌道は原子核に極めて近く、大きな結合エネルギーを持つ。それゆえにミュオン原子軌道間遷移に伴い放出されるミュオン特性 X 線も高いエネルギーを持つ。例えば、炭素では 75 keV の特性 X 線が観測され、鉄では 1250 keV、鉛では約 6 MeV の特性 X 線が放出される。このような高エネルギーで透過力の高い X 線を元素分析に利用するのがミュオン元素分析法である。ミュオン元素分析法は蛍光 X 線分析では難しい軽元素の分析や、物質内部の分析が可能であり、またミュオンビームのエネルギーを選択することで物質中での停止深さを選択できることから、表面から内部に至る元素の深度分布の情報を得ることができるなど優れた特性を持つ。ミュオン元素分析法は、50 年以上前にその可能性は指摘されていたものの[2]、当時の加速器の制約等から分析法としての開発研究は進んでいなかった。

筆者らは、2009 年から日本国内におけるミュオン利用施設、茨城県東海村に設置された大強度陽子加速器施設 (J-PARC) および大阪大学核物理研究センターの MuSIC を利用して、ミュオン元素分析法の開発を進め、世界をリードする研究成果を挙げてきた。具体的には、ミュオン特性 X 線測定による元素分析法を確立するために、定量性の確認[3]や元素深度分布分析の実証[4,5]を行った。さらには三次元元素分布の取得[6]、同位体分析[7]や化学状態分析[8]の可能性を指摘するなど、分析法のさらなる発展を目指した基礎開発でも成果を挙げている。そしてこの分析法を使って、破壊することのできない貴重試料等の分析、具体的には文化財[9, 10]や隕石や小惑星試料[11]の分析についても進めている。本講演においては、ミュオン元素分析法についてその原理と、この分析法を適用したいくつかの応用研究例について紹介する。

【参考文献】

- [1] K. Ninomiya, J. Nucl. Radiochem. Sci., **19**, 8 (2019) [2] H. Danniel, Nucl. Med. **8**, 311 (1969)
[3] K. Ninomiya et al, Bull. Chem. Soc. Jpn., **85**, 228 (2012) [4] K. Terada et al, Sci. Rep., **4**, 5072 (2014) [5] K. Ninomiya et al, Anal. Chem., **87**, 4597 (2015) [6] I. Chiu et al, Sci. Rep., **12**, 5261 (2022) [7] K. Ninomiya et al, J. Radioanal. Nucl. Chem., **320**, 801 (2019) [8] K. Ninomiya et al, Bull. Chem. Soc. Jpn., **95**, 1769 (2022) [9] K. Shimada-Takaura et al, J. Nat. Med., **75**, 532 (2021) [10] 齋藤努 他、文化財科学 **84**, 1 (2022) [11] T. Nakamura et al, Science, **379**, eabn8671 (2023)

Development of non-destructive elemental analysis method using muon and its application for precious samples
Kazuhiko Ninomiya (Institute for Radiation Sciences, Osaka University)

1A02 放射光軟X線分光で探る有機薄膜の反応・物性 (広島大学 先進理工・放射光セ)○和田真一

広島大学には HiSOR と呼ぶ小型の放射光リングがある。日本国内には、現在東北に建設中のリングを含めて 10 の施設があり、日本は放射光大国ともいえる。放射光は真空紫外線から硬X線にわたる高エネルギー領域で指向性の高い強力な光を発生できる。高エネルギーな硬X線では、回折や散乱を用いた構造研究が主力である。一方、小型施設である HiSOR は低エネルギーな真空紫外・軟X線領域に強度をもっており、例えば光電子分光やオージェ電子分光は、電子状態や表面状態、元素分析手法として広く利用されている。我々は軟X線の特徴に着目した化学・物理現象の解明を目指して研究を進めている。

可視・紫外線より 2 桁以上も波長が短くなったX線でも、電子遷移による物質の光吸収が起こる。波長が短くなる分、高エネルギーの電子遷移が起こることになるが、重要な特徴として、1s 軌道電子といった内殻電子を励起できる点が挙げられる。内殻電子は強く原子核に束縛されているため、特定の原子に局在して存在している。そのため、内殻電子励起は価電子励起とは異なる局所的な電子遷移である。また内殻電子の結合エネルギーは、化学結合環境を含めた原子種に固有であるため、内殻励起によって分子内の特定の原子を選択的に励起することができる(図1参照)。

内殻励起は高エネルギー遷移のため、その後の緩和過程も価電子励起の場合とは大きく異なる。軽元素での代表的な緩和として、オージェ崩壊とよばれる無輻射緩和が短時間(数フェムト秒)の内に起こり、多くの場合、価電子軌道上に2個の正孔をもったイオン状態(通常1価イオンの励起状態または2価イオン状態)に至る。このオージェ終状態もまた不安定であり、2正孔間のクーロン反発が引き金となるイオン性解離が励起原子近傍で起こることになる。このようなサイト選択的な化学結合切断を我々は分子メス(図2)と呼んでいるが、内殻共鳴励起反応の局所性・選択性の典型的な例である。また、非常に速いオージェ崩壊を電子分光することで、フェムト秒オーダーでの電子緩和過程を評価することもできる。このような、軟X線放射光を用いて有機薄膜を対象に得られた研究例を紹介します。

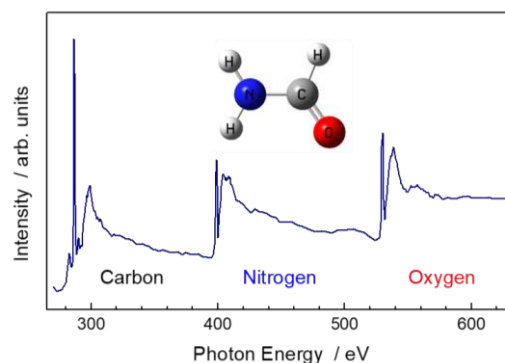


図1 炭素,窒素,酸素の各原子をもつホルムアミド薄膜での、元素選択的な内殻励起スペクトルの例。

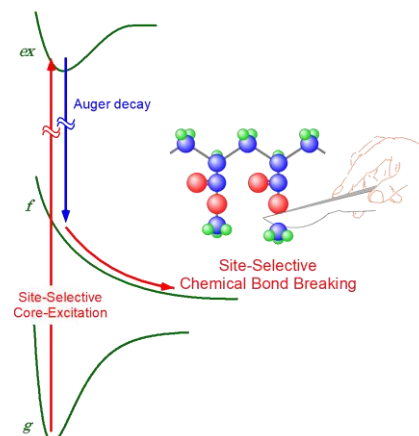


図2 内殻励起による選択的結合切断反応の概念図。

Reactions and properties of organic thin films probed by synchrotron soft X-ray spectroscopy
WADA, S.

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

1D2

座長: 國分 陽子(日本原子力研究開発機構)

2023年9月21日(木) 11:10 ~ 12:10 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1A03] ウラン含浸粒子の SIMS分析時に生じる帯電の解消と同位体比分析への影響

*富田 涼平¹、富田 純平¹、安田 健一郎¹、鈴木 大輔¹、宮本 ユタカ¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

11:10 ~ 11:30

[1A04] 模擬プルトニウム粒子作成技術の開発

*富田 純平¹、富田 涼平¹、鈴木 大輔¹、安田 健一郎¹、宮本 ユタカ¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

11:30 ~ 11:50

[1A05] 核鑑識のための α 線スペクトロメトリによるウラン年代測定法の検証及び高度化

*横山 明彦¹、上杉 正樹¹、松井 芳樹²、海野 勇次²、木村 祥紀²、山口 知輝² (1. 金沢大学、2. 日本原子力研究開発機構)

11:50 ~ 12:10

1A03

ウラン含浸粒子の SIMS 分析時に生じる帯電の解消と
同位体比分析への影響(原子力機構¹⁾○富田涼平¹、富田純平¹、鈴木大輔¹、安田健一郎¹、宮本ユタカ¹

【緒言】保障措置環境試料に含まれる核燃料物質の微粒子を二次イオン質量分析法(SIMS)で分析する技術の開発では、分析対象元素の同位体比が保証された様々な標準粒子を用いて、測定値の正確さや精度、混在する元素の影響を評価する必要がある。我々はこれまでに同位体比標準溶液を多孔質シリカ粒子に含浸させる手法(含浸法)の開発に成功し、従来法よりも簡便に様々な組成の粒子が作成可能になった。しかし、この方法で作成した含浸粒子を大型 SIMS 装置(LG-SIMS:CAMECA IMS1300HR³)で分析すると、正の酸素イオン(O₂⁺)を照射した時に約半分の粒子で帯電し、ウラン同位体比測定が困難になる課題があった。そこで、この含浸粒子の帯電を解消し、正確に同位体比を測定できる手法の確立を試みた。

【実験および結果】ウラン同位体比標準粉末(²³⁵U/²³⁸U=0.1136)1 mg を溶解してから含浸法で粒子を作成した。試料台上に含浸粒子を回収した後、炭素蒸着を施して導電層を形成させることで、O₂⁺を照射した時に生じる帯電の解消を試みた。炭素蒸着後は O₂⁺を照射しても帯電は観察されず、1 個の含浸粒子に均一に分布しているウランのイメージを正確に得ることが可能になった。その後、炭素蒸着を

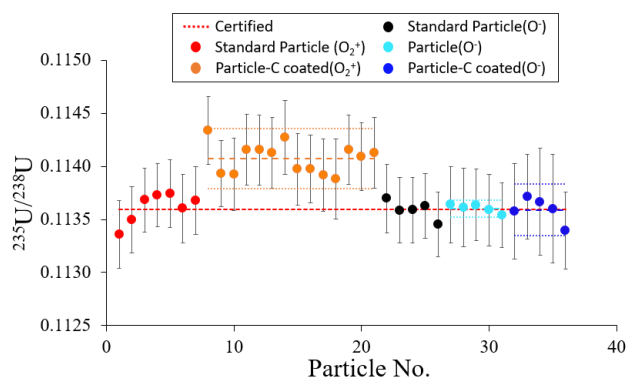


図1:帯電を解消した含浸粒子のウラン同位体比分析結果

施した含浸粒子のウラン同位体比(²³⁵U/²³⁸U)を LG-SIMS で測定した。測定条件は O₂⁺強度 80~150 pA、照射面積 10~15 μm²とし、8 秒間の計測を 40 回繰り返して 1 粒子を測定した。O₂⁺による測定結果を図 1 に標準の保証値(---)、標準粒子 (●)、炭素蒸着を施した含浸粒子 (●)とその平均と標準偏差(2σ)を破線と点線で示した。含浸粒子の測定平均は保証値に対して系統的に 0.4% 高く、この偏りは個々の測定結果の不確かさ(2σ)の範囲を超えていた。そこで、照射する一次イオンを正から負の酸素イオン(O⁻)に変更し、炭素蒸着の有無で条件を分けて帯電の観察と ²³⁵U/²³⁸U を測定した。測定条件は O⁻強度 1 nA、照射面積 15~20 μm²とし、他は O₂⁺と同様とした。O⁻を照射した場合は、両方の試料条件で帯電が解消され、測定結果は図 1 に標準粒子(●)、炭素蒸着なしの含浸粒子(●)、炭素蒸着ありの含浸粒子(●)とそれぞれの平均とその標準偏差(2σ)を破線と点線で示した。どの試料条件でも保証値に対する偏りは±0.01%以下であり、個々の測定結果も不確かさ(2σ)の範囲で保証値と一致した。以上の結果から、O⁻の照射が含浸粒子の帯電の解消と正確なウラン同位体比測定に有効であると示された。O₂⁺の照射と導電性物質の蒸着による帯電の解消でウラン同位体比が系統的な偏りを示した理由は今後追及する必要があるが、O⁻の照射は一次イオン自身が試料表面の電荷収支を緩和する点が横方向へ帯電を逃がす導電性物質の蒸着と異なり、これがウラン同位体比測定の正確さの違いを引き起こしたと考えられる。

本発表には、原子力規制庁から委託を受けて実施した「保障措置環境分析調査」の成果の一部が含まれる。

Analytical method to remove electrostatic discharge on uranium particle based by porous silicon particle and the effect of discharge for uranium isotopic ratio analysis by SIMS
Tomita, R., Tomita, J., Suzuki, D., Yasuda, K., Miyamoto, Y.

1A04

模擬プルトニウム粒子作成技術の開発

(原子力機構)○富田純平、富田涼平、鈴木大輔、安田健一郎、

宮本ユタカ

【緒言】原子力施設内の核物質は、その原子力活動固有の同位体比を有する。このため、保障措置環境試料に付着する核物質粒子を一粒毎に同位体測定することで、原子力活動情報をより詳細に知ることができる。これまでウラン粒子に対しては IRMM が SI トレサブルな同位体標準粒子試料を調製するなど、同位体測定に必要な標準試料の開発が進められているが、プルトニウム (Pu) 粒子については、比放射能が高いため、純粋な酸化プルトニウムからなる粒子状試料の調製や販売方法に高い障壁があった。同位体標準の Pu 溶液を市販の多孔質シリカビーズの空隙に浸透させた粒子を用いれば、同位体組成測定装置調整や分析法の検討に使用可能であろうと着想し、極微量プルトニウムを含む模擬微小粒子を作成するに至った。本発表では、同位体比既知の Pu を含む粒子 (以後、模擬 Pu 粒子) の作成法を述べるとともに、マルチコレクタ型 ICP-MS (MC-ICP-MS) により測定した模擬粒子の Pu 同位体組成の精度や確度について、評価したので報告する。

【実験】含浸させる Pu 量が少ないことから、走査電子顕微鏡 (SEM) による模擬 Pu 粒子の探索を容易にする標識用元素として、ビスマス (Bi) を添加した。Pu (CRM Pu947) 40 μg と標識用 Bi 500 μg を含む 2% 硝酸溶液にシリカビーズを加え、Pu を含浸させた。シリコンウエーハ上に回収した粒子を走査型電子顕微鏡 (SEM) による観察とエネルギー分散型 X 線 (EDS) 分析から模擬 Pu 粒子を特定し、マニピュレータにより粒子を一粒ずつ拾い上げた。その粒子を硝酸とフッ化水素酸により溶解し、マルチコレクタ型 ICP-MS (MC-ICP-MS) により Pu 同位体比を測定した。

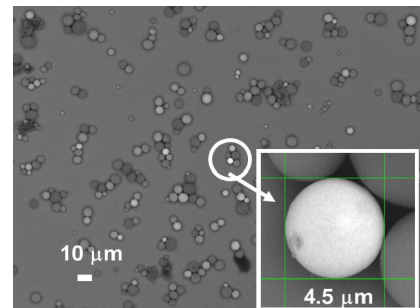
【結果と考察】作成した粒子の SEM 画像 (反射電子像) と EDS 分析結果 (図) から、付着量の差はあるものの、Bi 及び Pu がシリカビーズ粒子に含浸していることが確認された。作成した模擬 Pu 粒子 (5 粒子) を酸分解した溶液を MC-ICP-MS で測定した結果、得られた $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は CRM Pu947 の保証値と標準偏差 (2σ) の範囲内で一致した。この時の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の相対標準偏差 (2σ) は 0.5~1.2%、保証値からの相対偏差は 0~0.12% であった。今後、この方法を用いて様々な同位体組成の模擬 Pu 粒子を作成するとともに、微小 Pu 粒子を用いた Pu 精製時期推定法や SIMS による Pu 同位体比測定等の技術開発を行う予定である。

本発表には、原子力規制庁から委託を受けて実施した「保障措置環境分析調査」の成果の一部が含まれる。

Development of Pu particle preparation technique

TOMITA, J., TOMITA, R., SUZUKI, D., YASUDA, K., MIYAMOTO, Y.

(a) SEM画像 (反射電子像)



(b) EDSスペクトル

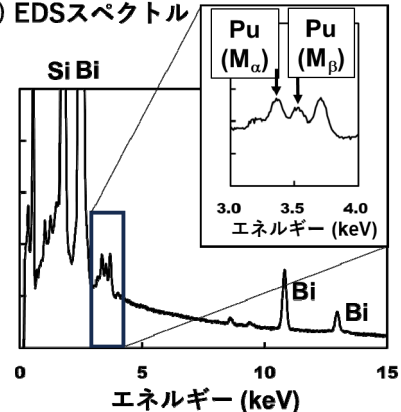


図 作成した模擬Pu粒子のSEM画像 (反射電子像) とEDSスペクトル

1A05 核鑑識のための α 線スペクトロメトリによるウラン年代測定法の検証及び高度化

(金沢大¹、原子力機構²) ○横山明彦¹、上杉正樹¹、松井芳樹²、海野勇次²、木村祥紀²、山口知輝²

【緒言】「核の鑑識活動 (nuclear forensics)」では、捜査当局によって押収、採取された核物質は、形状、組成、物理的及び化学的形態等が分析されてその物質の出所、履歴、輸送経路、目的等が明らかにされる。現在、原子力機構と金沢大学は協力して、 α 線スペクトロメトリによる核鑑識ウラン年代測定法の確立に向けて、化学分離法を含めた分析結果の精度検証を行っている。また、 α 線スペクトロメトリによるウラン年代測定について、分析精度の向上や分析時間の迅速化に資する技術的課題を抽出し、それらの解決に向けて測定技術を検討した。

【実験】ここで採用した U-Th 年代測定法は、親核種の ^{234}U と娘核種の ^{230}Th の同位体比を測定し、時間と共に起こる、親核種から娘核種への壊変量を計算することによって行う。計算の基となる測定値として、 α 線スペクトロメトリにより放射能比を実測しつつ、年代測定に必要な試料の分離方法や測定方法及び ^{230}Th の検出条件について検証した。天然ウラン標準試料を 8M 硝酸で溶解し、ウランから微量のトリウムを化学分離するため、固相抽出法の TEVA (2 mL カートリッジ) 及び UTEVA レジン (1 mL カラム) を用いることとした。 ^{234}U の定量は ^{230}Th 定量用の 100 倍希釈液を使用し、UTEVA を適用した。化学回収率の補正には、 ^{232}U (^{228}Th) トレーサを採用した。ここで、 ^{234}U の定量には ^{232}U を、 ^{230}Th の定量には共存する ^{228}Th が使用できる。質量分析で使用される ^{233}U は ^{234}U と、同様に ^{229}Th は ^{230}Th と、 α 線のエネルギーが近いため干渉するので α 線測定には不向きである。なお、 ^{232}U (^{228}Th) トレーサの濃度は ICP-MS 用ウラン標準溶液を基に標定した。なお電着方法は硫酸アンモニウム法で、2 時間の通電によりウランとトリウムの 90%以上の回収が可能である。

【結果と考察】 ^{234}U の定量と ^{230}Th の定量はそれぞれ行う必要があるが、特に微量に存在する ^{230}Th の定量のため、放射能 10^4 倍の U から Th を分離する必要があるが、図のように測定に成功した。ここで TEVA カートリッジを適用して、8M 硝酸による洗浄を増やすことにより、ウランのトリウム分画混入を防いだ。さらに UTEVA による精製を試みたが、ウランは除去しきれなかった。なお、TEVA-disk による迅速化も試みたが、 ^{230}Th の回収率が著しく低下した。最終的に化学分離の結果から、トリウム分画のウランが除去しきれない場合の対策として、 ^{238}U と ^{234}U の放射能比により、 ^{230}Th ピークへの寄与分を補正することとした。計数誤差を 5%以下とするには、測定対象核種の各ピークで 400 カウント以上が必要となるが、この方法では、測定試料中の ^{230}Th が 20mBq 存在すれば良く、製造後 10 年程度の年代測定には数mgのウラン試料が有れば、測定を 1~3 日程度行うことにより、測定が可能である。

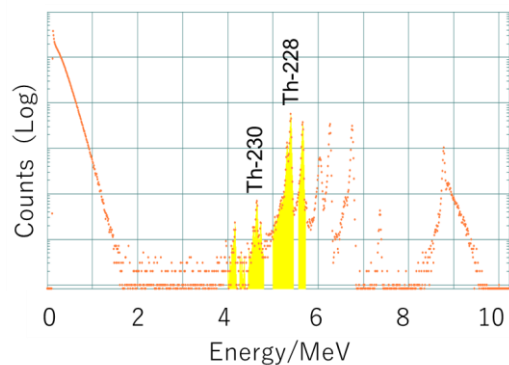


図 Th 分画の α 線スペクトル

Validation and advancement of uranium dating method by alpha spectrometry for nuclear forensics
YOKOYAMA, A., UESUGI, M., MATSUI, Y., UMINO, Y., KIMURA, Y., YAMAGUCHI, T.

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

1D3

座長:松江 秀明(日本原子力研究開発機構)

2023年9月21日(木) 15:10 ~ 16:10 A会場 (サタケメモリアルホール)

[1A06] 即発 γ 線分析装置 (PGA) の高度化の現状

*邱 奕寰¹、大澤 崇人¹、野澤 拓也¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

15:10 ~ 15:30

[1A07] INAAとPIXEによる大気浮遊塵試料の経時変化に関する基礎研究

*羽倉 尚人¹、松井 隆祥¹、内山 孝文¹、松浦 治明¹ (1. 東京都市大学)

15:30 ~ 15:50

[1A08] 光量子放射化分析におけるフラックス補正その2

宗村 陽¹、MD Sultanur Reza¹、*大浦 泰嗣¹ (1. 東京都立大学)

15:50 ~ 16:10

1A06 即発 γ 線分析装置 (PGA) の高度化の現状 (JAEA)○邱奕寰、大澤崇人、野澤 拓也

【緒言】 即発 γ 線分析法は中性子を用いた放射化分析の一種であり、現状で研究炉 JRR-3 に設置されている PGA が実試料の分析が可能な国内唯一の装置である。本装置は 30 年ほど前に建設された古い装置であるが、東日本大震災後に多関節ロボットを用いた自動分析システムが導入され、LabVIEW による高度な制御システムによって試料交換から γ 線分析まで行う完全な自動化が達成された[1]。本講演では 2021 年の JRR-3 再稼働後に行われたアップデートについて紹介する。

【PGA の高度化計画】 近年行われている PGA の大規模アップデートでは、以下 4 つのシステム開発が行われている。すなわち、①中性子検出器によるフラックスの常時計測、②ヘリウムガス自動回収および二酸化炭素利用システム、③Ge 検出器への液体窒素自動供給システム、④CAEN の MCA を用いた新測定プログラムの開発、である。それぞれについて簡単に解説する。

中性子の強度を常時監視するために、PGA の上流に中性子 ^3He 検出器を設置して中性子を常時モニターできるようにした。検出器の位置は Z 軸ステージで変更できるため、下流に影響のない範囲で検出器の位置を変化させ、実際の測定感度との相関を確認した。このシステムにより分析の確度が向上する。

ヘリウムガスの価格高騰と供給不足を踏まえ、これまで使用後に全て大気中に拡散させていたヘリウムガスを回収するシステムを開発している。PGA の上部に屋根を設置して上昇してくるヘリウムガスを集め、装置下部のタンクに回収して再利用する。またヘリウムガスの高騰への対応として、ヘリウムの代わりに二酸化炭素を用いるシステムを開発した。流路と流量は LabVIEW から統合制御されている。

液体窒素自動供給システムは、窒素ポンプを用いて液体窒素の自加圧容器を加圧し、自動的に液体窒素を供給できる。簡単なリレー制御で事足りるため、LabVIEW ではなく PLC で独立に動作させている。

即発 γ 線の測定に関しては、これまでセイコーEG&G の MCA7600 を用いていたが、専用ソフトを使用しなければならないため制約が大きかった。そこで自作プログラムによる測定を可能にするために CAEN の MCA を導入し、LabVIEW で直接 γ 線が測定できるプログラムを自作することとした。これにより、制御プログラムと測定プログラムが統合され、既成のソフトの制約が排除された。これにより単純な自動分析だけでなく、試料ごとに測定時間を変化させることも可能になった。

[1] Osawa T. (2016) Automatic prompt gamma-ray analysis system: Automation of an existing large-scale analytical device. In "Automation and Control Trends" Eds. by Pedro Ponce, Arturo Molina Gutiérrez, and Luis M. Ibarra. Pp.149-166, InTech, Croatia, ISBN 978-953-51-4760-2.

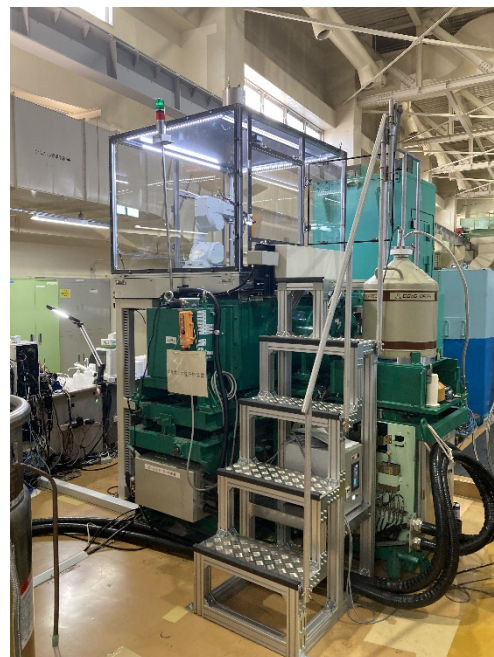


図 1 : 自動即発 γ 線分析装置

The Status of Prompt Gamma-ray Analysis System (PGA).
Chiu I., Osawa T., Nozawa T.

1A07 INAA と PIXE による大気浮遊塵試料の経時変化に関する基礎研究 (都市大¹)○羽倉尚人¹、松浦治明¹、内山孝文¹、松井隆祥¹

【緒言】 東京都市大学（旧名称：武蔵工業大学）には、神奈川県川崎市に原子力研究所（都市大原研）がある。研究用原子炉「武蔵工大炉」（熱出力 100 kW、TRIGA-II 型）は、1963 年 1 月から 1989 年 12 月まで運転し、2004 年 4 月からは廃止措置を開始している^[1]。原子炉を運転していた当時は、ホウ素中性子捕捉療法（BNCT）や機器中性子放射化分析（INAA）などを利用した研究が実施され、全国共同利用施設として広く利用された。原子炉施設としては廃止措置に移行したが、放射線施設としての利用は継続しており、理工学部・原子力安全工学科や大学院・総合理工学研究科・共同原子力専攻の学生を中心に教育・研究用の利用を継続している。2013 年には、新たな柱となる実験装置の導入が検討され、静電型加速器の導入を決定した。1.7 MV ペレトロン・タンデム加速器（都市大タンデム）を構築し、2018 年には変更許可の手続きを完了し、運転を開始した^[2]。本設備は、原子炉室内の BNCT 実施時に施療室として使用していたプレハブ小屋の内に配置している。加速器から引き出される 2 ~ 3 MeV のプロトンビームを利用して荷電粒子励起 X 線分光（PIXE）法による元素分析などを実施している。原子炉施設の廃止措置完了には、解体した廃棄物の研究施設等廃棄物埋設事業実施主体への引き渡しを完了させる必要があるが、現在のところ、その引き渡しを実施する目途が立っていないため、当面の間、保管管理を継続していくことになる。

【実験】 都市大原研では 2002 年 10 月から敷地内にて大気浮遊塵試料および降下物試料のサンプリングを実施している。Be-7、Pb-210 などの放射能測定や、INAA による微量元素分析を実施してきた。2011 年 3 月には、福島第一原子力発電所事故に伴い、飛来した放射性セシウムが検出されたことから、逐次抽出法による化学形態の違いに関する検討がなされた。難溶性成分と水溶性成分の比率について、事故から 1 年半にわたる時系列で示した。大気浮遊塵中の放射性セシウムを担っている粒子は複数存在することや、土壌中の放射性セシウムに比べ移動能が高いことなどが示された^[3]。また、屋外エリアモニタで常時観測している空間線量率の推移と放射性セシウム濃度との相関関係から存在形態の考察を行った^[4]。2018 年に都市大タンデムでの PIXE 実験が可能になると大気浮遊塵試料も測定の対象とするようになった。2019 年には京大炉での INAA 利用申請により大気浮遊塵試料の測定を再開した。中断していた間に INAA を行っていた研究者が定年などにより退職し、人的な入れ替わりが生じているため、基礎的な検討から再び始めている現状にある。

参考文献

- [1] T. Uchiyama, et al., KONTEC2013, pp376-379 (2013).
- [2] 羽倉尚人ら：日本原子力学会和文論文誌, Vol.17, No.3/4, pp.111-117 (2018).
- [3] 中町鴻ら：分析化学, 64, 589 (2015).
- [4] 羽倉尚人ら：分析化学, 66, 201 (2017).

Basic Study on Trace Elemental Analysis of Airborne Particulate Matters in an Environment by INAA & PIXE
HAGURA N., MATSUURA H., UCHIYAMA T., MATSUI T.

1A08

光量子放射化分析におけるフラックス補正その2

(都立大理)宗村陽, MD. Sultanur Reza, ○大浦泰嗣

【はじめに】光量子放射化分析(PAA)は、中性子放射化分析(NAA)と同様に非破壊多元素同時分析法の一つで、主に (γ, n) 反応により生成した核種を利用するために、NAAでは定量困難な元素の定量が可能である。我々は、電子線形加速器で生成した制動放射線を利用したPAAを行っている。試料を石英管内に直列に封入し、電子ビームの進行軸上に平行において照射を行うため、試料に照射される制動放射線はビーム下流ほど減少する。そのため、正確な定量には光子束補正が不可欠である。初期には金箔を光子束モニタとして、また、NaClを二次中性子束モニタとして利用し、これらの評価は以前に報告した[1]。最近、Niをコンパレータとしたと単一コンパレータ法による定量のため、Ni箔を光子束モニタとしている。一方、二次中性子束は以前と同様にNaClを利用しているが、最近、以前と異なる二次中性子束の変動が観測された。そこで、あらためて光子束と二次中性子束の補正について検討したので報告する。

【実験】直径10 mmの金属箔(Ni, Au, Co, Zr, ステンレス, ならびにニッケルシルバー)、粉末試薬(NaCl, MgO, Sc_2O_3 , Fe_2O_3 , Mn, As_2O_3 , KBr, Sm_2O_3)、および地球化学標準試料(JB-1a, JSO-2)のそれぞれ複数個を石英管に詰め、東北大学電子光物理学研究センターの電子線形加速器で最大エネルギー(E_0)22 MeV または 33MeV の制動放射線で、30 分間または 4 時間照射した。照射後、これらの試料を Ge 半導体検出器で測定した。

【結果と考察】正確な定量には、光子束モニタである ^{57}Ni と元素定量に用いる放射性核種の放射能がビーム上流から下流へ同じ割合で減少しなければならない。ニッケル箔中の ^{57}Ni と他の試料中の ^{57}Ni の計数率は同じように減少した。また、 ^{57}Ni と同様に (γ, n) 反応で生成する核種も ^{57}Ni と類似した減少率であった(図1の実線)。しかし、 (γ, pxn) 反応等の (γ, n) 反応以外の反応で生成する核種については、減少の仕方は必ずしも一致しなかった(図1の破線)。反応のしきいエネルギー(Q_{th})とグラフの傾きには明確な系統性は見られなかったが、大きい Q_{th} では傾きが小さく、小さい Q_{th} では傾きが大きい傾向はあるようである。図1の場合、比較標準試料を最も上流に置くと、積算質量3gで定量値が最大20%異なることになる。比較標準試料を全試料の中間におけば、全体的な不確かさを低減することができる。

図2に二次中性子による (n, γ) 反応生成核種の計数率の変化を示した。核種により変化が大きく異なった。初期の実験では、 ^{24}Na は積算質量とともに減少したが、現在は増加している。核種間の違いは、中性子エネルギー分布を反映していると考えられるが、現在のところ系統性は見いだせていない。

[1]大浦・海老原, 第54回放射化学討論会 1P20 (2010)

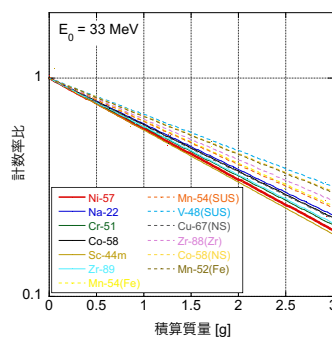


図1 光核反応で生成した放射性核種の計数率変化。近似線のみ示した。実線は (γ, n) 反応で生成した核種、破線は他の反応により生成した核種。積算質量は、最上流からの試料質量の和。

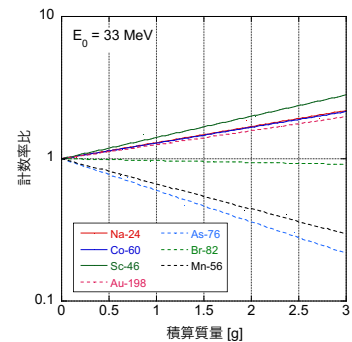


図2 (n, γ) 反応で生成した放射性核種の計数率変化。近似線のみ示した。実線は4時間照射、破線は30分間照射。積算質量は、最上流からの試料質量の和。

Flux correction for proton activation analysis - II
MUNEMURA A., MD. S. REZA, OURA Y.

ポスターセッション

ポスターセッション

2023年9月21日(木) 16:40 ~ 17:30 学生会館ラウンジ (学生会館ラウンジ)

- [1P01] アスタチン化学種分析に向けたヨウ素のキャピラリー電気泳動
*大江 一弘¹、吉村 崇¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構 附属ラジオアイソトープ総合センター)
- [1P02] 光核反応による Lu-177の製造
*田村 彩乃¹、秋山 和彦¹、菊永 英寿²、久富木 志郎¹ (1. 東京都立大学、2. 東北大学電子光物理学研究センター)
- [1P03] ^{229m}Thの γ 線観測に向けた放射性試料を用いた希ガスマトリックス単離実験
*益田 遼太郎^{1,2}、安田 勇輝¹、橋場 奏¹、重河 優大²、宮本 祐樹³、吉村 浩司³、篠原 厚^{1,4}、笠松 良崇^{1,2}
(1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 岡山大学、4. 大阪青山大学)
- [1P04] ノーベリウム²⁴¹の化学的性質解明に向けた水酸化ストロンチウム沈殿の分光分析と量子化学計算
*板倉 悠大^{1,2}、笠松 良崇^{1,2}、金子 政志¹、永田 光知郎¹、王 瑞麟^{1,2}、渡邊 瑛介^{1,3}、大高 咲希¹、中西 諒平¹、篠原 厚⁴ (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 高エネルギー加速器研究機構、4. 大阪青山大学)
- [1P05] 塩素化シリカ表面のガス気流中での安定性
*石下 燎矢¹、後藤 真一¹ (1. 新潟大院自然)
- [1P06] 光核反応による中長半減期核種の製造量評価
*菊永 英寿¹、横北 卓也¹ (1. 東北大学)
- [1P08] 道東沿岸～沖合の²²⁶Ra、²²⁸Ra濃度の空間分布からみた海水循環
*畠山 陽多¹、井上 睦夫¹、光主 隼大¹、真下 海成¹、谷内 由貴子²、中野渡 拓也²、帰山 秀樹²、長尾 誠也¹、亀山 紘旭¹ (1. 金沢大学、2. 水産機構・資源研)
- [1P09] 海水の微弱¹³⁴Cs測定法の改良と福島原発事故への応用
*松長 祥太郎¹、真下 海成¹、井上 睦夫¹、谷内 由貴子²、中野渡 拓也²、帰山 秀樹²、長尾 誠也¹ (1. 金沢大学低レベル放射能実験施設、2. 水産研究・教育機構)
- [1P10] トリチウム測定におけるシンチレーションカクテルのケミルミネッセンス減衰特性
*島 長義¹、玉利 俊哉¹ (1. 一般財団法人 九州環境管理協会)
- [1P11] 福島土壤中の¹³⁷Csと⁹⁰Srの移行と土壤成分および陽イオン交換容量の調査
*山本 康平¹、吉村 崇^{1,2}、二宮 和彦^{1,2} (1. 大阪大学大学院理学研究科、2. 阪大放射線機構)
- [1P12] ALPS処理水放出に向けた福島沿岸でのトリチウム動態解析のための新たな取り組み
*高田 兵衛¹、大槻 哲¹、佐藤 俊¹、三浦 輝²、西野 圭佑²、和田 敏裕¹、戸田 亮二³、西川 淳⁴ (1. 福島大学、2. 電力中央研究所、3. 東京大学、4. 東海大学)
- [1P13] 福島第一原子力発電所事故後の千葉市における空間線量率の経年変化について
*西森 千幸¹、田中 博幸¹、磯貝 啓介¹ (1. (公財) 日本分析センター)
- [1P14] 環境放射能のデータベースを発行しよう
*末木 啓介¹、恩田 裕一¹ (1. 筑波大学)
- [1P15] 加速器質量分析装置を用いた²¹⁰Pbの測定法の検討
*高橋 穂高¹、笹 公和²、高橋 努²、松村 万寿美²、高久 雄一³、山崎 信哉³、末木 啓介³、Froehlich Michaela⁴、坂口 綾³ (1. 筑波大学数理物質科学研究群化学学位プログラム、2. 筑波大学AMSグループ、3. 筑波大学数理物質系、4. オーストラリア大学 物理学部 原子核物理学・加速器応用学科)
- [1P16] もんじゅサイト新試験研究炉におけるホットラボラトリの計画
*稲垣 誠¹、高宮 幸一¹、日野 正裕¹、杉山 正明¹、川端 祐司¹、佐藤 信浩¹ (1. 京都大学)

[1P17] LSC測定による遮蔽鉛中 Pb-210スクリーニング法の検討

*安次富 政貴¹、玉利 俊哉¹ (1. 一般財団法人 九州環境管理協会)

[1P18] MA/Ln分離のための BTPPhen型配位子における置換基導入効果についてのDFT研究

*深澤 優人¹、中島 覚¹ (1. 広島大学)

[1P19] α 微粒子のリアルタイム質量検出を指向した肥大化濃縮装置の開発

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

[1P20] 土壌から単離した微生物のセシウム耐性能の解析

*稲田 晋宣¹、トリヨノ バスキ¹、丸山 史人²、松嶋 亮人¹、木庭 亮二³、寺元 浩昭³、宗岡 亜依³、中島 覚¹ (1. 広島大学自然科学研究支援開発センター、2. 広島大学IDEC国際連携機構、3. 広島大学技術センター)

[1P21] ランタノイド内包フラーレンに関する HPLC溶出挙動の熱力学的解析とその再現性の確認

*中村 大生¹、黒田 拓真¹、西村 峻¹、秋山 和彦¹、高宮 幸一²、久富木 志朗¹ (1. 東京都立大学、2. 京都大学複合原子力科学研究所)

1P01

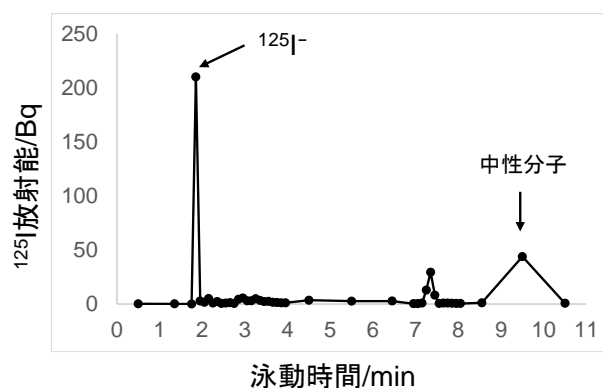
アスタチン化学種分析に向けたヨウ素のキャピラリー電気泳動

(阪大 RI セ¹)○大江一弘¹、吉村崇¹

【緒言】 標的アルファ線治療用核種としてアスタチン-211(²¹¹At)の利用に大きな注目が寄せられている。治療用核種としての利用に際して ²¹¹At の薬剤への標識が重要となるが、At は非常に複雑な化学挙動を示すことから、標識時の At 化学種によって標識収率に影響が出ることが予想され、At 化学種の解明は非常に重要と考えられる。本研究では、水溶液中の At の化学種解明に向け、キャピラリー電気泳動法による分析を計画しており、まず同族元素であるヨウ素化合物および放射性ヨウ素を用いて予備的検討を行ったので報告する。

【実験】 キャピラリー電気泳動装置として Agilent 7100 キャピラリー電気泳動システムを使用した。キャピラリーにはフューズドシリカキャピラリー i.d. 50 μm × 33 cm または内壁の表面修飾により電気浸透流が逆向きに流れる COSMO(+)キャピラリー i.d. 50 μm × 33 cm を使用した。ヨウ素化合物として NaI、KIO₃、NaIO₄ を、放射性トレーサーとして ¹²⁵I を使用し、0.01 M リン酸バッファー (pH 6.3) に溶解してサンプル溶液とした。泳動液として 0.01 M リン酸バッファー (pH 6.3) を使用し、各ヨウ素サンプルを 10 kV または -10 kV の印加電圧で泳動した。NaI 等の検出にはオンライン UV 検出を用い、¹²⁵I は溶出側の泳動液入りバイアルを一定時間ごとに交換して各サンプルをガンマカウンター (PerkinElmer 2480 WIZARD²) で測定することにより検出した。

【結果と考察】 陰イオンの泳動条件では、I⁻ が 2.0 min、IO₃⁻ が 3.2 min、IO₄⁻ が 2.7 min 付近に溶出することが確認された。¹²⁵I をこの条件で泳動したところ、大部分が I⁻ の泳動時間に観測されることを確認し (Fig. 1)、At⁻ についても同様の泳動時間に観測されると考えられる。一方 I⁻ 以外の成分も確認されており、おそらく水の放射線分解生成物との反応により ¹²⁵I の酸化物が生成しているためではないかと考えられる。

Fig. 1. ¹²⁵I の電気泳動図

ヨウ素は放射線分解により HIO を生成することが報告されており¹⁾、7.5 min 付近または 9.5 min 付近に観測された成分の可能性が考えられる。また、陽イオンの泳動条件で ¹²⁵I を泳動したところ、溶出バイアルには放射能は観測されなかった。At はヨウ素とは異なり、At⁺、AtO⁺等の成分が存在することが報告されており²⁾、At の陽イオンが存在する場合は高感度に検出できると期待される。今後さらに ¹²⁵I の分析を進め、²¹¹At のキャピラリー電気泳動により化学種の分析を進める予定である。

【参考文献】

1. A.M. Deane and P.E. Potter, eds. Proceedings of the specialists' workshop on iodine chemistry in reactor safety (1986).
2. K. Berei et al., Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry, 8th ed., Astatine. Springer (1985).

Analysis of iodine with a capillary electrophoresis method for speciation of astatine
OOE K., YOSHIMURA, T.

1P02

光核反応による Lu-177 の製造

(都立大理¹、東北大 ELPH²)○田村彩乃¹、秋山和彦¹、菊永英寿²、
久富木志郎¹

【緒言】放射性同位元素(RI)内用療法に用いる核種の一つとして ^{177}Lu が有望視されている。約 6.7 日の比較的短い半減期を持ち、 β 線と γ 線ともに放出することにより治療と診断の融合(セラノスティクス)が可能である。 Lu-177 の製造方法として原子炉中性子を用いた $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ 反応による直接法と、 $^{176}\text{Yb}(n, \gamma)^{177}\text{Yb}$ 反応で得られた ^{177}Yb の娘核種として ^{177}Lu を得る間接法がある。直接法では標的となるルテチウムの安定同位体が大量に存在するため ^{177}Lu の比放射能が低く、間接法では Lu と Yb の相互分離が困難であることが欠点である。また現在 ^{177}Lu の供給は国外の原子炉で製造したものの輸入に頼っている。原子炉の代替として近年提唱されている電子線形加速器(電子 LINAC)を用いた $^{178}\text{Hf}(\gamma, p)^{177}\text{Lu}$ 反応を使う製造方法では、Hf と Lu の化学分離が容易であることに加えて、 ^{177}Lu の核異性体である $^{177\text{m}}\text{Lu}$ (半減期約 160 日)の生成を直接法に比べ抑えることができるとの報告がある^[1]。本研究では高エネルギー領域での光核反応による ^{177}Lu の製造を試み、その生成放射エネルギーや副生成物である $^{177\text{m}}\text{Lu}$ との生成比などを調べた。また照射後の試料について LN レジンを用いた抽出クロマトグラフィーによる Hf と Lu の化学分離を試みた。

【実験】約 0.1 g の HfO_2 を 9 φmm のペレット状に形成し高純度の Al 箔で包装した。この試料を石英管に減圧封入し、東北大学電子光理学研究センターの電子線形加速器を用いて最大エネルギー 30~60 MeV の制動放射線を 10 分間照射し ^{177}Lu の製造を行った。得られた照射試料から放出される γ 線を Ge 半導体検出器で測定することにより、生成核種の放射エネルギーを調べた。また照射した HfO_2 にフッ化水素酸を加え溶解し硝酸で希釈した溶液を、LN レジンを用いた抽出クロマトグラフィーにて Lu の化学分離を行った。精製した Lu の 208 keV における γ 線計数率の減衰曲線から ^{177}Lu と $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の放射能比を求めた。

【結果】図 1 は制動放射線の最大エネルギーに対するそれぞれの生成核の放射エネルギーを示しており、エネルギーの増加に伴い ^{177}Lu の生成量が増加する傾向が確認された。また図 2 は LN レジンを用いて化学分離した Lu 試料から放出される 208 keV の γ 線をモニタした減衰曲線である。現在得られているデータから $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の寄与は確認できなかったことから検出限界値を求めたところ、 $^{177\text{m}}\text{Lu}/^{177}\text{Lu}$ の放射能比は 2.2×10^{-3} % 以下(直接法では 1.5×10^{-2} %^[2])であり電子 LINAC による ^{177}Lu の製造が非常に有効であることが分かった。

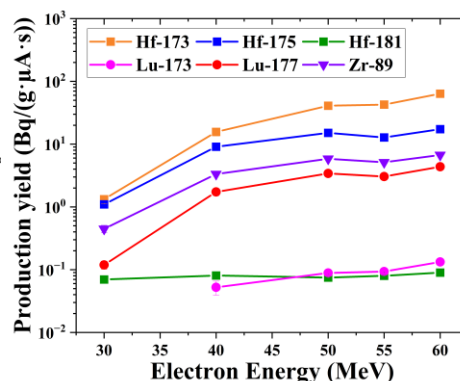


図 1. 照射エネルギーに対する生成

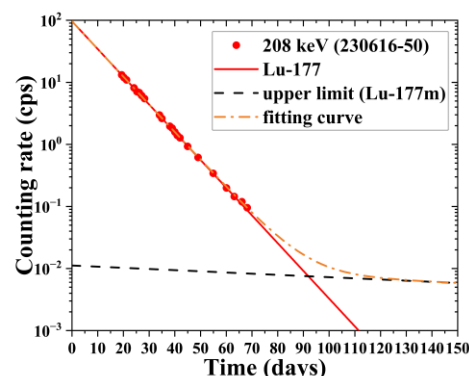


図 2. 208 keV における減衰曲線

[1] A. G. Kazakov, et al., *Molecules*, **27**, 3179 (2022).

[2] S. Chakraborty, K. V. Vimalnath, S. P. Lohar, et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **302**, 233 (2014).

The production of Lu-177 by photonuclear reaction (2023)

TAMURA, A., AKIYAMA, K., KIKUNAGA, H., KUBUKI, S.

1P03

 ^{229m}Th の γ 線観測に向けた放射性試料を用いた希ガスマトリックス単離実験(大阪大学¹、理研²、岡山大³、大阪青山大学⁴) ○益田遼太郎^{1,2}、安田勇輝¹、橋場奏¹、重河優大²、宮本祐樹³、吉村浩司³、篠原厚^{1,4}、
笠松良崇^{1,2}

【緒言】 ^{229m}Th は励起エネルギーが 8.30 ± 0.92 eV と求められている励起核であり[1,2]、この値は他の核種と比べて3~6桁小さい。この励起エネルギーの小ささ故に、 ^{229m}Th は化学状態によって原子核の壊変経路が変わるといふ他の核種には見られない性質をもつ可能性がある。また、精度が 10^{-19} の原子核時計の唯一の候補でもある。しかし、 ^{229m}Th が γ 線を放出すると期待される化学状態を安定に保持することが難しい。本研究では、 ^{229m}Th の γ 線を直接観測し、その波長からより高精度に励起エネルギーを求めさらに壊変経路の変化を直接観測するために、希ガスマトリックス単離法を用いて γ 線遷移が主となる $^{229m}\text{Th}^{+,2+}$ 状態を安定に維持することを目指している。そのために、本研究で開発した希ガスマトリックス単離装置[3]の基礎実験として、放射性試料を用いた光子測定を行った。

【実験】 ^{229m}Th の光子測定に向けて、長時間の安定で低ノイズの光子測定条件の決定を行った。まずは、放射性試料を用いないバックグラウンド測定を行った。その後、 γ 線放出核種 ^{137}Cs 、 α 線放出核種 ^{228}Th を用いた光子測定実験を行った。続いて、GM 冷凍機により冷却された試料台に、10 cc/min で Ar ガス (純度 99.9994 %) を吹き付け希ガス固体を生成した。希ガス固体条件下でのバックグラウンド測定と ^{137}Cs を用いた光子測定も行った。

【結果・考察】 バックグラウンド測定では、ノイズ低減に取り組み、結果として24 h以上の長時間にわたる安定した光子測定を実現した。平均計数率は0.28 cpsであり、この値は見積もられた ^{229m}Th の光子の計数率(100~2000 cps) [3]よりも十分に小さい値である。また、 ^{137}Cs 線源を用いた光子測定ではチェレンコフ光由来の高計数率の光子は観測されなかった。図1に ^{233}U と同様の α

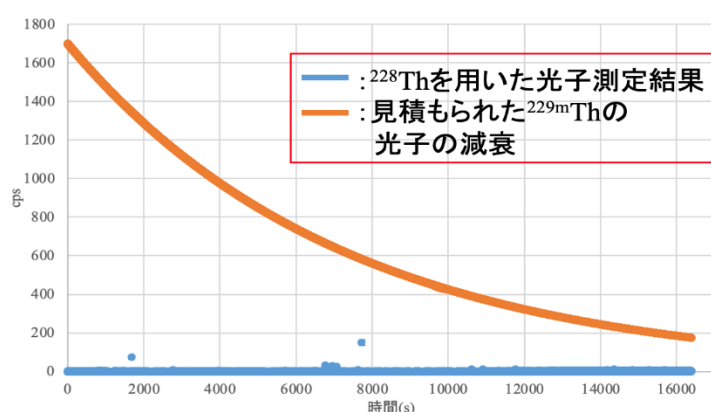


図1.光子測定結果と ^{229m}Th の光子の減衰(見積り)

線放出核種である ^{228}Th を用いた光子測定結果と見積もられた ^{229m}Th の光子の減衰を示す。 ^{137}Cs の光子測定と同じく α 線放出核種を用いた場合でも、チェレンコフ光などの妨害光子は観測されず、 ^{229m}Th の光子測定に影響がないことが分かった。

以上より、 ^{229m}Th の γ 線測定を実現するための実験条件を決めることができた。

[1] A. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 123, 222501 (2019). [2] S. Kraemer *et al.*, Nature, **617**, 706(2023). [3] 益田ら、日本放射化学会第66回討論会(2022), 1P20.

Rare gas matrix isolation using radioactive sample for γ -ray measurement of ^{229m}Th
MASUDA, R., YASUDA, Y., HASHIBA, S., SHIGEKAWA, Y., MIYAMOT, Y., YOSHIMURA, K., SHINOHARA, A., KASAMATSU, Y.

1P04

ノーベリウムの化学的性質解明に向けた水酸化ストロンチウム沈殿の分光分析と量子化学計算

(大阪大学¹、理化学研究所²、高エネルギー加速器研究機構³、大阪青山大学⁴)○板倉悠大^{1,2}、笠松良崇^{1,2}、永田光知郎¹、金子政志¹、王瑞麟^{1,2}、渡邊瑛介^{1,3}、大高咲希¹、中西諒平¹、篠原厚^{1,4}

【緒言】原子番号が100を超えるような元素は、相対論効果の影響で周期律を逸脱する可能性があり、興味を持たれている。しかし、一度に取り扱える量が少ないために化学実験を行うことが難しく、性質は未解明な点が多い。102番元素ノーベリウム(No)は、アメリカウム以降のアクチノイド元素において唯一水溶液中で+2価を最安定にとり、性質は2族元素に類似している[1]。本研究室では、独自に開発した手法によりNoおよび2族元素の水酸化サマリウム共沈挙動を調べ、Noは2族元素と違いアンミン錯体を形成する可能性を示したが、比較対象である2族元素の水酸化サマリウム共沈挙動がマクロ量水酸化物沈殿の挙動と一致しないという課題があった。2族元素の水酸化物沈殿の質量分析やXAFS測定による分析の結果、2族元素はマクロ量では多核錯体を形成し、ミクロ量とは異なる沈殿挙動をとる可能性が指摘された。本研究では水酸化ストロンチウム沈殿試料のXAFS、ラマンスペクトル測定を行い、XAFSスペクトルには新たな手法を取り入れて解析を行った。さらに、XAFS測定から得られた局所構造をもとにストロンチウム多核錯体の構造を量子化学計算により推定した。

【実験】XAFS測定はあいちシンクロトロン光センターBL5S1で行った。ラマンスペクトル測定は大阪大学基礎工学研究科で行った。XAFSスペクトル測定では、水酸化ストロンチウム、硝酸ストロンチウム、水酸化ストロンチウム沈殿試料を測定した。ラマンスペクトル測定では、水酸化ストロンチウム、水酸化ストロンチウム八水和物、炭酸ストロンチウム、水酸化ストロンチウム沈殿試料を測定した。

【結果】異なる条件から沈殿させた沈殿試料間でXANESスペクトルに差はみられなかった。沈殿試料の動径構造関数には、第二近接圏にピークが存在し、EXAFSスペクトルのウェーブレット変換によってこのピークがストロンチウムの寄与である可能性が示された(図1)。さらに、沈殿試料の動径構造関数にSr-OおよびSr-Srの散乱経路を使用した非線形カーブフィッティングを行い、沈殿試料中でのストロンチウム原子の原子間距離を4.19 Å、近接数を7~8と決定した。また、沈殿試料のラマンスペクトルは炭酸ストロンチウムに類似していた(図2)。これにより、炭酸イオンが沈殿挙動に影響を与えている可能性が示唆された。今後はこの可能性をより詳細に検討し、炭酸イオンの影響の有無および程度、また炭酸イオンの存在しない条件下での沈殿実験を行うことを考えている。

[1] R. J. Silva *et al.*, *Inorg. Chem.* **13**, 2233 (1974).

Spectroscopic analysis and quantum chemical calculations of strontium hydroxide precipitate toward the chemical study of nobelium

Itakura, Y., Kasamatsu, Y., Nagata, K., Kaneko, M., Wang, R., Watanabe, E., Otaka, S., Nakanishi, R., Shinohara, A.

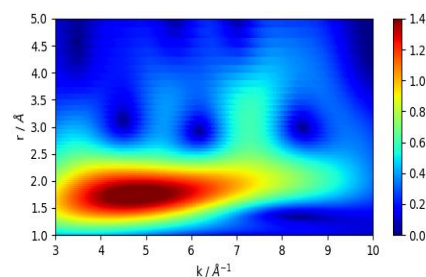


図1 沈殿試料のEXAFSスペクトルのウェーブレット変換

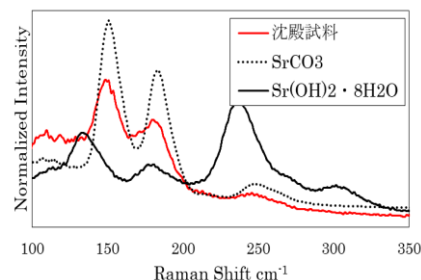


図2 取得したラマンスペクトル

1P05 塩素化シリカ表面のガス気流中での安定性

(新潟大院自然¹⁾○石下燎矢¹、後藤真一¹

【緒言】 超重元素 Rf の化学的性質を解明するため、これまで Rf とその同族元素 Zr, Hf の塩化物に対する気相化学研究が行われてきたが、石英ガラスに対する吸着エンタルピーは報告ごとに値や大小関係が異なっていた[1]。当研究室では、カラム表面を事前に塩素化して実験ごとに同一な表面状態とし、Zr, Hf 塩化物のオフライン等温クロマトグラフィ実験を行った。その結果、蒸気圧曲線から予想される揮発性の序列と矛盾しない吸着エンタルピーを得た[2]。しかし、Rf のオンライン実験のような長時間連続した実験で、このようなカラム表面が安定に維持できるか分かっていない。そこで本研究では、石英ガラスの代わりにシリカ粉末を用い、塩素化表面が気体の組成や温度に対してどの程度安定であるかを検証することとした。

【実験】 本実験で用いた装置の概略図を図1に示す。内径 4.15 mm の石英管に市販のシリカ粉末(サンスフェア NP-200:無孔質, 平均粒径 20 μm , 比表面積 100 m^2/g) 0.5 g を詰めて電気管状炉に設置し、 CCl_4 をバブリングした N_2 ガスを流しながら 600 $^\circ\text{C}$ で 2 時間加熱することで表面を塩素化した。その後、種々の雰囲気中に曝して一定時間ごとに試料を分取し、1 M NaOH 水溶液によりシリカに残存する塩素を洗浄・溶出した。遠心分離して上澄み液を採取し、チオシアン酸水銀(II)法を用いて塩素を定量した。

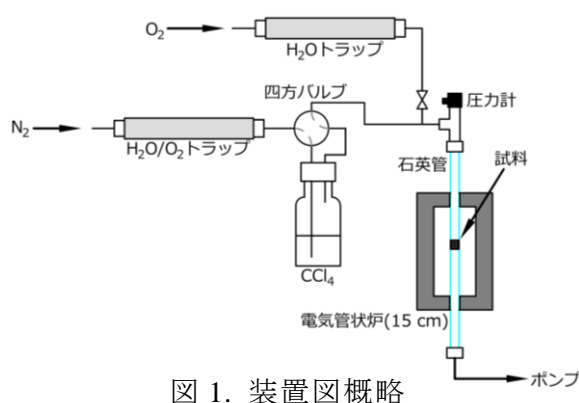


図 1. 装置図概略

【結果と考察】 塩素化したシリカ粉末を、湿度の異なる空気中に曝した際の表面塩素の保持割合の時間変化を図2に示す。乾燥状態(相対湿度 24%)では 16 時間の曝露でも塩素量は変化しなかったが、高湿状態(相対湿度 84%)では 4 時間で 70%程度まで減少し、その後一定となった。表面の塩素には、水分の存在下で比較的容易に脱離するものと、脱離しにくいものの 2 種類の状態がある可能性が示唆された。

発表では、組成や温度条件を変化させた N_2 ガス気流中での結果についても議論する。

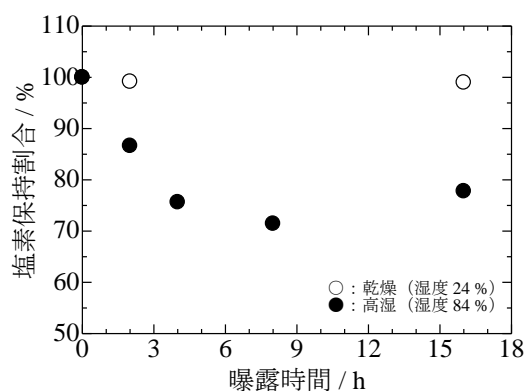


図 2. 静止空気中での塩素化表面の安定性

【参考文献】

- [1] A. Türlér *et al.*, Chem. Rev. **113** (2013) 1237.
 [2] K. Shirai *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci. **21** (2021) 7.

Stability of chlorinated silica surface in gas flow
 ISHIOROSHI, R., GOTO, S.

1P06 光核反応による中長半減期核種の製造量評価

(東北大 ELPH)○菊永英寿、横北卓也

【緒言】 放射性同位元素 (RI) は様々な分野で使われている。身近な所では RI から放出される放射線を利用した煙感知器や透過型厚み計, 放射線滅菌設備などが知られている。また, 極微量の RI (いわゆる無担体 RI) をある系に添加して, その RI の放射線を測定することで元素の移動や分布を調べる RI トレーサー法は広い分野で使われる強力なツールである。当センターでも電子線形加速器による光核反応を用いて, ^{43}K や ^{47}Sc , $^{64,67}\text{Cu}$ などの短寿命 RI を製造・供給してきた。一方, 光核反応はその反応効率の良さ (熱損失の低さ) から多量のターゲットを用いた大量 RI 製造に向いている。そのため, 中長半減期核種でもそれなりの放射能を製造できる。本研究では当センターを用いて中長半減期核種がどの程度製造できるか検討したので報告する。

【検討内容】 光核反応による RI 製造では一般に電子加速器を利用する。そこで, まずは電子ビームから発生するエネルギーが全てターゲット物質によって止められたときに生成する最大 RI 製造量を求める。これは荷電ハドロンによる核反応では無限厚さのターゲットに対する核反応生成量 (Thick Target Yield [1]) として定義されているものを電子に拡張したものと考えればよい。検討は PHITS コード[2]を用いて行った。十分に大きなターゲット物質として一辺が 10 m の立方体を置き, そこに 10-60 MeV の電子ビームを入射した。ターゲット物質は ^3Li から ^{92}U までの中から常温で固体の元素を中心に 73 元素の単体を選択した。光核反応における照射終了時の放射能 A_{EOB} は以下の式で表せる。

$$A_{EOB} = \mathbf{n} \cdot \mathbf{f} \cdot \int_0^{E_0} \mathbf{P}(\mathbf{E}) \sigma(\mathbf{E}) d\mathbf{E} \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

ここで, \mathbf{n} はターゲット量(厚み), \mathbf{f} は電流量, \mathbf{E}_0 は加速電子のエネルギー, $\mathbf{P}(\mathbf{E})$ は 1 電子当たりの制動放射線スペクトル, $\sigma(\mathbf{E})$ は励起関数, λ は生成 RI の壊変定数, t は照射時間である (ここでは電子の影響は無視している)。最大 RI 製造量を求めるためには励起関数が必要となるがここでは TENDL 2021 データベース [3]を利用した。光核反応を起こす制動放射線の発生量は重元素ほど多いため, 軽元素の場合, 電子ビームを重元素コンバータに照射して, 発生した制動放射線を照射する 2 ターゲット法を用いる。そこで, PHITS コードで, 最も制動放射線が多くなる重元素コンバータ (ここでは ^{73}Ta , ^{78}Pt) の厚みを決定して, その直後に一辺が 10 m の立方体を置き RI 製造量を求めた。重元素コンバータの有無を比較して, 最も RI が製造できる条件を決定した。

【結果】 Ta コンバータを使用して, 10 MeV の電子ビームを照射したときは, ^{64}Gd までは Ta コンバータを利用すると RI 製造量が多くなる。電子ビームのエネルギーが上がるにつれ, その境目は軽元素側になり, 60 MeV では ^{13}Al となる。当日は最大 RI 製造量を元に現実的な照射条件を加味して, その製造効率や中長半減期核種の製造量について議論する。

【参考文献】 [1] N. Otsuka and S. Takacs., Radiochim. Acta 103 (2015) 1. [2] T. Sato et al., Journal of Nuclear Science and Technology 54 (2017) 617. [3] https://tendl.web.psi.ch/tendl_2021/tendl2021.html

Estimation of the production of medium and long-lived nuclides from photonuclear reactions.
KIKUNAGA, H., YOKOKITA, T.

1P08

道東沿岸～沖合の ^{226}Ra , ^{228}Ra 濃度の空間分布からみた海水循環

畠山陽多¹・井上睦夫¹・亀山紘旭¹・光主隼大¹・真下海成¹・谷内由貴子²・中野渡拓也²・帰山秀樹²・長尾誠也¹ (1 金沢大学、2 水産機構・資源研)

【はじめに】ラジウム同位体 (^{226}Ra , 半減期 1600 年; ^{228}Ra , 半減期 5.75 年) は海洋環境において溶存性核種であり、海水と共に循環する。主な供給源は沿岸堆積物や浅層大陸棚で、 ^{228}Ra の短い半減期を反映して、沿岸域の表層海水では、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比が高くなる。北海道道東の沿岸から沖合にかけての生物生産性が高く、漁場として重要である。本研究では、ラジウム同位体を海水循環のトレーサーとして用い、道東海域における海水循環(図.1)を議論する。

【試料・実験】2018 年から 2023 年に、道東海域にて表層海水約 20 L/試料を採水した。一部の地点では、鉛直方向にも採取した (水深 0-1000 m)。採取地点を図.2 に示す。海水試料に硝酸を加えて pH1 とした後、 BaSO_4 共沈法でラジウム同位体を分離・回収した。尾小屋地下測定室に設置したゲルマニウム半導体検出器を用いた低バックグラウンドガンマ線測定法により、 ^{226}Ra および ^{228}Ra 濃度を測定した。

【結果・考察】2018 年から 2022 年の道東海域表層における ^{228}Ra 濃度は大きく変動した (L1-01 地点 $0.98\text{mBq/L} \rightarrow 1.39\text{mBq/L} \rightarrow 0.94\text{mBq/L}$)。特に 2020 年前後の ^{228}Ra 濃度の変動幅が大きかった。本海域を構成する親潮、宗谷暖流、東樺太海流などの混合比の大きな経年変動を反映していると考えられた。

謝辞: 海水試料採取に協力いただいた水産研究・教育機構の調査船北光丸の同乗研究者、船長および乗組員の皆様に感謝いたします。

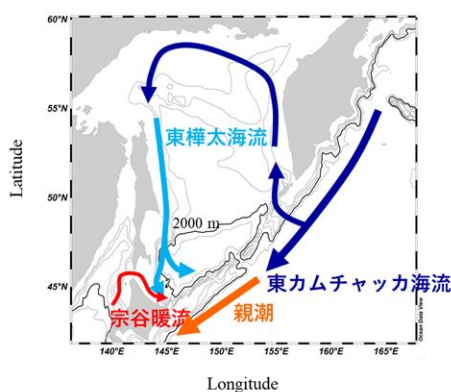


図.1 道東を取り巻く海流

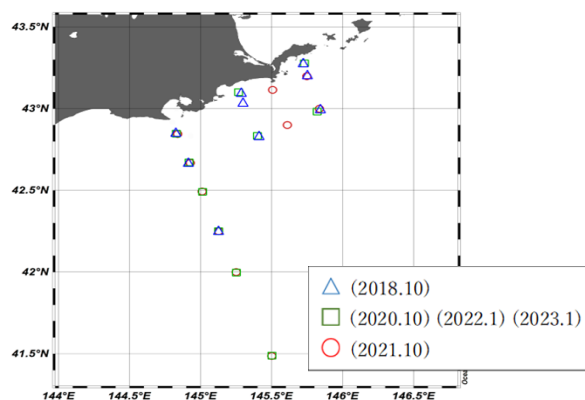


図.2 海水試料採取地点

Spatial distribution of ^{226}Ra and ^{228}Ra concentrations and seawater circulations off southeastern Hokkaido

HATAKEYAMA.Y, INOUE.M, KAMEYAMA.H, MITUMUSHI.H, MASHITA.K, YANIUCHI.Y, NAKANOWATARI.T, KAERIYAMA.H, NAGAO.S

1P09

海水の微弱 ^{134}Cs 測定法の改良と福島原発事故への応用

(金沢大学低レベル放射能実験施設¹、水産研究・教育機構²)○松長祥太郎¹、真下海成¹、井上睦夫¹、谷内由貴子²、中野渡拓也²、帰山秀樹²、長尾誠也¹

【緒言】 2011年の福島原子力発電所事故により、膨大な量の放射性セシウム (^{134}Cs , ^{137}Cs) が海洋環境中に放出された。海洋環境中に放出された時期・海域が明らかな ^{134}Cs は、原発事故直後より現在に至るまで北太平洋北西域の有効な海水循環の化学トレーサーである。一方、福島原発事故後12年が経過した現在でも、これら ^{134}Cs を利用した海水循環研究における残された課題は多い。例として、東カムチャッカ海流域～道東沖表層の ^{134}Cs 濃度は、放射壊変および海洋拡散により、低バックグラウンドガンマ線測定の実用でも、検出限界以下となっている。本研究ではこれに対応するため、 ^{40}K 除去処理過程を組み込んだ極低レベル ^{134}Cs 測定法を、極微弱 ^{134}Cs (0.005～0.01 mBq/L) の親潮寒流海水試料に適用する。

【実験】 リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 沈殿法により、海水試料から放射性セシウムを回収する。本研究では、多量の海水を処理した AMP 試料からの妨害核種カリウム-40 (^{40}K) の効果的および簡便な除去法の確立を目指す。尾小屋地下測定室に設置した高検出効率の井戸型 Ge 検出器を用いた低バックグラウンド γ 線測定法を適用する。

【今後の展望】 AMP 試料からの ^{40}K の分離過程を経て、測定用試料容量の減量がもたらされる。これにより3倍程度検出効率の高い井戸型 Ge 検出器の使用が可能になる。さらに多量の海水の処理も可能となる。妨害核種除去処理に低バックグラウンドガンマ線測定 (地下測定室 + ^{210}Pb 遮蔽材を利用) を併用することにより、検出限界濃度を地上レベルの AMP 測定 ^{134}Cs の 1/100 まで低減することを目指す。本研究では、本手法を通常の低バックグラウンド γ 線測定では検出限界以下の東カムチャッカ海流域～道東沖の ^{134}Cs 測定に適用する。

謝辞：海水試料採取に協力いただいた水産研究・教育機構の調査船北光丸の同乗研究者、船長および乗組員の皆様に感謝いたします。

Improvement of analytical method for low-level ^{134}Cs in seawaters and the application to the FDNPP accident

MATSUNAGA, S. MASHITA, K. INOUE, M. TANIUCHI, Y. NAKANOWATARI, T. KAERIYAMA, H. NAGAO, S.

1P10 トリチウム測定におけるシンチレーションカクテルのケミルミネッセンス減衰特性

(九州環境管理協会¹) ○島 長義¹、玉利俊哉¹

【緒言】

トリチウム測定では、一般的に液体シンチレーション測定法が用いられる。試料水とシンチレータを混合し測定用試料とするが、混合後は化学的疑似発光（ケミルミネッセンス）が発生し測定値に影響を与えるため、これが収まった後に測定を行う必要がある。市販のシンチレータ数種を用い、試料調整直後からのケミルミネッセンス減衰状況を観察し、測定開始までの必要静置期間について考察した。

【実験】

Ultima Gold uLLT、Ultima Gold AB、Ultima Gold XR (Perkin Elmar) 等、数種のシンチレータを用い、蒸留精製した無トリチウム水を 100 mL テフロンバイアルまたは 20 mL 低拡散ポリバイアル中に含水率 50 %のシンチレーションカクテルとして混合し、測定試料とした。調整直後から低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（LSC-LB5、日本レイテック）を用い、数十分の繰り返し測定を行った。

【結果】

ケミルミネッセンスによる計数率上昇はカクテル作成直後に著しく、その後指数関数的に減衰した。その後緩やかに減衰した後に、およそ一定の計数率を示すデータが多かった。初期減衰にかかる期間、その後の緩やかな減衰の期間は、シンチレータの種類によって様々であった。ケミルミネッセンスによる影響は、試料水の精製の程度、更にはシンチレータの製造ロットによっても異なる可能性があり、必要静置期間は慎重に検討する必要がある。100 mL、145 mL 等の大型バイアルを使用した大容量カクテルでは数日の静置は必須といえる。大容量カクテルを使用した測定は、測定供試量を多くできるため、より低い検出下限値を得ることができるが、迅速性とトレードオフとなることを前提とする必要がある。一方、20 mL 低拡散ポリバイアルによる小容量カクテルでは、いずれのシンチレーションカクテルでも数時間の静置で測定可能であることが確認された。迅速性を優先させる測定では、より低い検出下限値を得ることを求めず、小容量カクテルによる測定を行うほうが良い。性能指数の評価を含め、詳細は発表当日に報告する。

Chemiluminescence decay characteristics of different scintillators in tritium measurements
SHIMA N., TAMARI, T.

1P11 福島土壤中の ^{137}Cs と ^{90}Sr の移行と土壌成分および陽イオン交換容量の調査

(阪大院理¹、阪大放射線機構²)○山本康平¹、吉村崇^{1,2}、二宮和彦^{1,2}

【緒言】2011年3月11日に起こった東日本大震災により福島第一原発事故が発生した。原発から放出された様々な放射性核種のうち ^{137}Cs と ^{90}Sr は、半減期が長く事故から10年以上が経過した現在でも環境中に残存しており、これらの環境動態が注目されている。 ^{137}Cs と ^{90}Sr はその化学的性質が異なるため、土壌中の移行挙動に違いが見られることが期待される。一方で、有機物が多いなど特徴的な日本の土壌におけるこれら放射性核種の環境動態はほとんどわかっていない。本研究では、福島県内の原発事故による汚染があった地域の土壌における ^{137}Cs と ^{90}Sr の放射能の深度分布を調査した。さらに土壌の鉱物組成や元素組成、陽イオン交換容量を分析した。深度分布の評価には重量緩衝深度を採用し、鉱物組成や元素組成、陽イオン交換容量との関係を調べた。

【実験】2016年6-9月にかけて福島県12地点で表層から20cmまでサンプリングを行い、2.5cm間隔で切り分けた。試料を10-50g分取しGe検出器で ^{137}Cs の放射能を定量した。その後、電気炉にて110°Cで水分を除き、次に400°Cで一晩加熱し有機物を分解した。濃硝酸50mlとキャリアーとして ^{88}Sr 5mgを土壌に加え、8時間加熱することで金属イオンを抽出した。自然ろ過した溶液からSrレジンをを用いてSrを分離し、液体シンチレーションカウンターを用いてチェレンコフ光測定をすることで ^{90}Sr の放射能を定量した。放射能測定後、ICP-MSで ^{88}Sr を測定することで化学収率を決定した。鉱物組成の分析には粉末X線回折装置、元素組成には蛍光X線分析装置、陽イオン交換容量の測定には振とう抽出法を用いた。

【結果、議論】 ^{137}Cs は100-3000 kBq/m²、 ^{90}Sr は10-900 Bq/m²の範囲で存在した。先行研究から過去に沈着した ^{90}Sr は深層まで一定の濃度で分布していることが報告されていたため、各地点の ^{90}Sr が定量できた最も深い層の濃度をその地点の ^{90}Sr のグローバルフォールアウト(0.44-1.09 mBq/g)として全ての層から差し引いた。また、2層目以降まで ^{137}Cs 濃度が表層と同程度の濃度を示した4地点は、攪乱が起こっている可能性があるかと判断し議論から除いた。未攪乱土壌の深度分布について重量緩衝深度を求めたところ、 ^{137}Cs は平均0.86 g/cm²、 ^{90}Sr は平均1.23 g/cm²であり、 ^{90}Sr の方が土壌深部に移行していることが分かった(表1)。この傾向は、先行研究で示されている内容と一致しており、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の粘土鉱物への結合形態の違いが原因と考えられた。地点ごとに重量緩衝深度と粘土鉱物や陽イオン交換容量との関係を調べたが、明確な相関は見られなかった。これは放射性核種の沈着量に対して、粘土鉱物の吸着サイトや陽イオン交換容量が飽和しているためと考えられる。

地点	^{137}Cs	^{90}Sr
	重量緩衝深度(g/cm ²)	重量緩衝深度(g/cm ²)
富岡1	0.73 ± 0.05	1.19 ± 0.06
富岡2	0.64 ± 0.03	1.25 ± 0.10
富岡3	0.88 ± 0.06	1.35 ± 0.13
双葉1	1.35 ± 0.03	0.98 ± 0.24
双葉2	0.82 ± 0.03	1.28 ± 0.05
飯館1	1.24 ± 0.05	1.78 ± 0.31
飯館2	0.58 ± 0.09	0.84 ± 0.03
大熊	0.60 ± 0.06	1.03 ± 0.03

表1 未攪乱土壌の ^{137}Cs と ^{90}Sr の重量緩衝深度

Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Fukushima and investigation of soil composition and cation exchange capacity

YAMAMOTO, K., YOSHIMURA, T., NINOMIYA, K.

1P12

ALPS 処理水放出に向けた福島沿岸でのトリチウム動態解析のための新たな取り組み

(福島大¹、電力中央研究所²、東京大学³、東海大学⁴)○高田兵衛¹、大槻哲¹、佐藤俊¹、三浦輝²、西野圭佑²、和田敏裕¹、戸田亮二³、西川淳⁴

【緒言】 ALPS 処理水の海洋放出に備え、我々は放出前の 2021 年度から福島第一原発周辺海域でトリチウム動態解析調査を行っている。この調査の新たな取り組みとして、海水と海洋生物の同日採取を行い、同周辺海域でのトリチウムの動きや放出後の変化を捉えることを目的としている。本研究では漁船ならびに東北海洋生態系調査研究船新青丸航海 (KS-21-23 : 2021 年 10 月 7~17 日) 等で採取した試料のトリチウム濃度を示すとともに、放出前のバックグラウンドデータの役割も述べる。

【調査】 2021 年 4 月から 2~3 か月に 1 度、漁船を用いて福島第一原発から南東 5 km 程度の沿岸海域の観測点 (OZoffs4 : 北緯 37 度 22.44 分、東経 141 度 4.06 分、水深 20 m) において、表層および底層の海水を採取するとともに、同観測点周辺で釣りによる魚類採集を行った。採集された魚類は大気や水道水によるトリチウムの汚染を避けるよう、速やかにビニール袋に入れて、分析まで冷凍保管した。また、2021 年 10 月 7 日~17 日にかけて、新青丸にて福島第一原発近傍から沖合にかけて同様の調査を行い、加えて、動物プランクトンについても ORI ネット (口径 1.6 m、目合 335 μm) を用いて数百 g~数 kg 採集し、魚類と同様に冷凍保管した。

【分析】 採取された海水は、福島大学の研究室にて孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターにてろ過後、ろ液を用いてトリチウムの測定を行った。トリチウムは減圧蒸留 - トリプユアによる電解濃縮を行い、濃縮液にシンチレータを添加し、液体シンチレーションカウンタにて測定を行った。採集した魚類および動物プランクトンは、トリチウムの汚染を避けるため、一切の水道水を用いずに肉部を分取し、凍結乾燥機にて水分と肉部に分けた。水分は TFWT として、海水同様の処理を行った。

【結果と考察】 2021 年に OZoffs4 で採集された魚類 (シロメバル、ヒラメ、ホシザメ) の TFWT 濃度は 0.059~0.11 Bq/kg-wet で平均が 0.082 Bq/kg-wet であった。同時に採取された海水のうち底層のトリチウム濃度は 0.064~0.117 Bq/L で平均が 0.084 Bq/L であった。新青丸航海で得られた動物プランクトンのうち、測定が終了した試料での TFWT は 0.086 Bq/kg-wet (測点 Y04 : 北緯 37 度 5.47 分、東経 141 度 3.42 分、水深 61 m)、0.13 Bq/kg-wet (測点 NP3 : 北緯 37 度 24 分、東経 141 度 18 分、水深 121 m) であった。採集された魚類のうち、ヒラメの TFWT 濃度は 0.063~0.088 Bq/kg-wet であった。得られた結果のうち、観測点 OZoffs4 での濃度比 (海洋生物中 TFWT/海水中トリチウム) は 0.73~1.1 で平均は 0.90 であり、青森の再処理施設のアクティブ試験からのトリチウム放出期間 (2006~2008 年度) 以外の、2003~2012 年度の青森および岩手県沖合で得られたトリチウムの濃度比と一致した。このことから、福島第一原発周辺海域においても海洋生物への TFWT としての濃縮は確認されなかった。本研究で得られた成果は今後の海洋放出後のトリチウム濃度変化を理解する上での基準 (バックグラウンドデータ) となるであろう。

Study on tritium dynamics in Fukushima coastal seawater for discharge of ALPS treated water

Takata, H., Ohtsuki, S., Satoh, S., Miura, H., Nishino, K., Wada, T., Toda, R., Nishikawa, J.

1P13 福島第一原子力発電所事故後の千葉市における空間線量率の経年変化について

(公益財団法人日本分析センター)○西森 千幸、田中 博幸、磯貝 啓介

【緒言】日本分析センター（千葉市）では、NaI (Tl) シンチレーション検出器等を備えたモニタリングポストにおいて、敷地内における空間線量率等の連続測定を行っている。2011年3月の東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、「事故」という。）時に、空間線量率は最大約 $0.5 \mu\text{Gy/h}$ まで上昇したが、その後減少傾向にあり、現在はほぼ横ばいとなっている。

【方法】空間線量率測定器はNaI (Tl) シンチレーション式モニタ（日本レイテック製）、放射性核種の組成は屋外に設置したGe半導体検出器（セイコー・イージーアンドジー製）を用いて連続測定を行い、事故時から2022年末までの約12年間分のデータを集計した。これらの測定データから、検出された放射性核種、空間線量率に寄与する核種の組成、実効半減期について調べた。

【結果及び考察】2011年3月の事故時から同年6月までと2022年12月の経時変化を図1に示す。事故以前の空間線量率は $0.02 \mu\text{Gy/h}$ を示していたが、事故後の3月15日15時に最大値 $0.49 \mu\text{Gy/h}$ を示した。その際の人工放射性核種は ^{133}Xe （半減期は約5日）、 ^{131}I （同約8日）、 ^{132}I （同約2時間）等が検出され、空間線量率への寄与割合として ^{133}Xe が約93%を占めた。その後、3月21日に再び高い空間線量率を示したが、これは、空気中に存在していた放射性物質が降雨により地表面に湿性沈着したものと考えられる。この時、人工放射性核種としては ^{131}I 、 ^{132}I 、 ^{134}Cs （同約2年）、 ^{137}Cs （同約30年）等が検出されたが、その後、半減期の短い放射性ヨウ素等が検出されなくなり、2011年6月中旬以降は人工放射性核種としては放射性セシウムのみを検出となった。さらに事故から11年経過した2022年には ^{134}Cs もほぼ検出されなくなり、現在、日本分析センター（千葉市）敷地内において ^{137}Cs だけが検出されており、空間線量率への寄与割合として約35%を占めている（事故前は不検出）。放射性セシウムにおいては物理半減期よりも早い減衰がみられた。

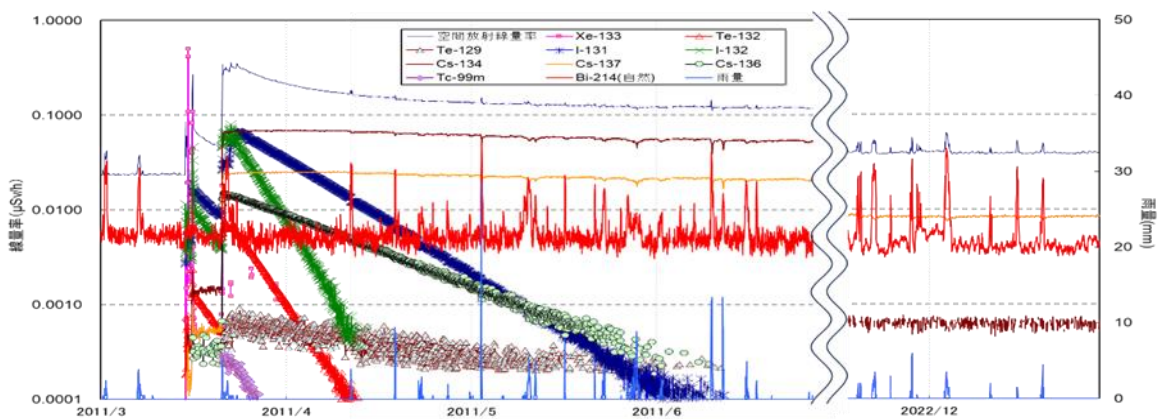


図1 空間放射線量率の経時変化

Reference: N. Nagaoka, et al., Health Phys., 2012, 102(4), 437-442.

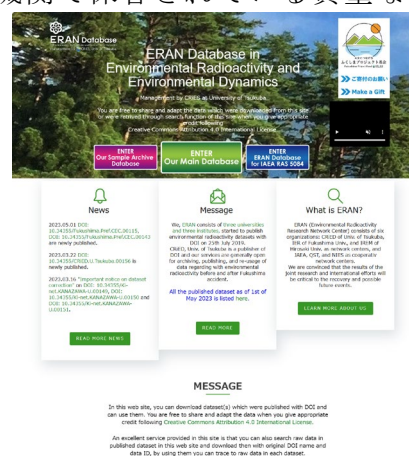
Temporal variation of air absorbed dose rate in Chiba City after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident
NISHIMORI, C., TANAKA, H., ISOGAI, K.

1P14 環境放射能のデータベースを発行しよう

(筑波大 CRiES¹)○末木啓介¹、恩田裕一¹

【緒言】 東電福島第一原子力発電所の原発事故後に多くの研究者により測定された貴重かつ膨大なデータを次世代に残す必要がある。これらの大量のデータは専門雑誌などに掲載されているが、発表論文中の多くのデータは必要かつ十分な情報として提供されていない場合がある。最近の電子化された論文には付録として多くの添付ファイルをつけて公開していることも見受けられるが、ある特定の場所からすべてのデータにたどり着けるようにしていくことによりデータの利便性を高める必要がある。2019年から開始した放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点(ERAN)の事業としてデータセットにデジタルオブジェクト識別子(DOI)を付与して発行する事業を行っている。今回はその事業内容の紹介と皆様からの投稿を期待しその案内を行う。

【現状】 筑波大学放射線・アイソトープ地球システム研究センター(CRiES, 旧アイソトープ環境動態研究センターCRiED)では環境放射能データベース(ENVRAD)をJaCLに出版社登録を行い、DOI:10.34355を付与して2019年6月から筑波大学のサーバー上よりデータベースを運用している¹⁾。このデータベースはweb siteとしてはURLが<https://www.ied.tsukuba.ac.jp/database/>から入ることができる。このデータベースには環境放射能にかかわる様々な数値データから今までに公表されている関連論文のリストまでいろいろな形式で電子出版している。現在様々な機関で保管されている貴重な環境試料で共同利用に提供可能なものをリスト化して公開している。さらに電子的な出版物としては数値データだけではなくグラフィックデータも公開できるようにしてきた。すでに専門雑誌等に報告してまとめられているデータでも詳細な情報が不足している場合やデータを専門誌などに公表する機会が失われてしまった場合に、そのデータに正確な情報を付加して誰でもが取り出せ利用可能でいつでも検索可能な電子メディアでの発行物としていくことができる。これら貴重な多くのデータを次世代に残していくことを使命としてこのデータセットを出版している。



【将来】 今後は、福島関連の環境放射能データのみならず様々な広範囲の環境放射能から地球環境にかかわるデータまで広い範囲に展開して公開していく予定である。皆さんが持つおられる様々な環境観測データを公開していく一つの方法としてこのデータベースを考えてほしい。環境放射能データベース(ENVRAD)の出版への問い合わせはdoidataset@ied.tsukuba.ac.jpをお願いします。

Reference

- 1) M. Aoyama and N. Otani, RADIOISOTOPES, 72, 37-42 (2023).

DOI: 10.3769/radioisotopes.72.37.

Let's publish a database of environmental radioactivity.
SUEKI K., ONDAY Y.

1P15

加速器質量分析装置を用いた極微量核種 ^{210}Pb の測定法の検討

(筑波大数理物質科学研究群¹、筑波大 AMS グループ²、筑波大数理物質系³、オーストラリア大物理⁴)○高橋穂高¹、笹公和^{2,3}、高橋努²、松村万寿美²、高久雄一³、山崎信哉³、末木啓介^{2,3}、Froehlich Michaela⁴、坂口綾^{2,3}

【緒言】 ^{210}Pb は半減期 22.2 年のウラン系列核種であり、約 100 年未満の環境試料の年代測定に用いられている。 ^{210}Pb にはさまざまな測定法が存在するが、濃度の低い環境試料を、短時間で多数測定する方法は存在していない。本研究では、加速器質量分析装置(AMS)を用いた ^{210}Pb の測定法を確立し、環境試料への適応を目指す。ここでは環境試料として特にサンゴに着目し、サンゴ試料からの鉛分離・濃縮法の検討と、AMS による分析ターゲットとしての最適な鉛化合物の検討を行った。

【実験】〈サンゴ試料中の鉛の分離・濃縮〉サンゴ中の鉛の分離には、AG 1-X8 陰イオン交換樹脂を用いることとした。粉末状に均質化したサンゴ試料を 0.7 M HBr に溶解し、安定鉛をキャリアとして添加した。溶液試料を 1.5 mL の樹脂に通し、洗浄後、6 M HNO₃ で鉛を溶離した。樹脂に導入前後の溶液を一部分取し、サンゴの主要構成元素と鉛を測定することで、元素の除去率と鉛の回収率を求めた。

〈鉛化合物の合成と AMS イオン源ビームテスト〉鉛(II)溶液を出発物質として、 $\alpha\text{-PbO}$ 、 $\beta\text{-PbO}$ 、 Pb_3O_4 、 $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 、 PbCO_3 、 PbF_2 の 6 つの鉛化合物を合成し、X 線結晶構造解析(XRD)によりその生成を確認し、AMS イオン源でビーム引き出しテストを行った。最もビーム強度が高かった化合物に対して、イオン化補助剤である Ag、Au、Fe、Al、Nb、Ta を混合し、負イオンビーム強度が高くなる条件を検討した。さらに、イオン化補助剤と試料との配合割合を変えて、ビーム強度変化の確認も行った。

これらすべての実験結果を踏まえ、AMS による分析に適した試料をサンゴから合成し、ビーム強度を確認した。

【結果と考察】〈サンゴ試料中の鉛の分離・濃縮〉ICP-MS 測定の結果、樹脂分離操作前後で、サンゴの主要な構成元素は 99.9% 以上除去され、Pb は 102 ± 2% 回収できていることが確認された。〈鉛化合物の合成と AMS イオン源ビームテスト〉XRD の結果、 $\beta\text{-PbO}$ 、 Pb_3O_4 、 $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ 、 PbCO_3 の合成が確認できた。 $\alpha\text{-PbO}$ 様の化合物に関しては、XRD ピークパターンが一致しなかったが、物性データと色の一致が確認できた。また、 PbF_2 は合成が確認できなかった。AMS イオン源でのビーム引き出し実験の結果は、 $\alpha\text{-PbO}$ 様の試料と Ag を 2:1 で混合した試料から、 PbO_2^- のビームとして、最も高い電流値が得られた(図 1)。サンゴ試料中の鉛の分離・濃縮法と鉛化合物の合成法とを合わせ、サンゴ試料から $\alpha\text{-PbO}$ 様の試料を合成した試料からは、約 80 nA のビーム電流が得られた。

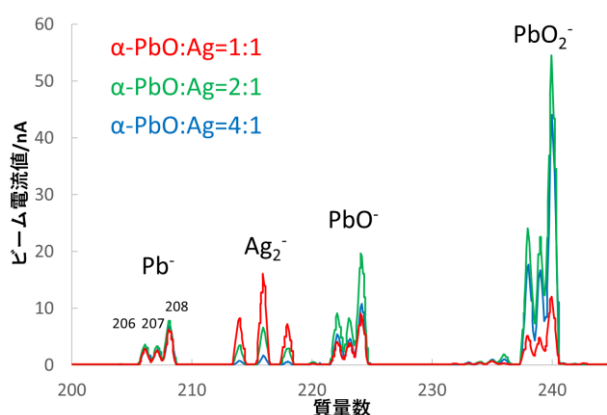


図 1 AMS イオン源ビーム引き出し実験

Development of a method for measuring ^{210}Pb using an accelerator mass spectrometry
TAKAHASHI H., SASA K., TAKAHASHI T., MATSUMURA M., TAKAKU Y., YAMASAKI S., SUEKI K., FROEHLICH M., SAKAGUCHI A.

1P16

もんじゅサイト新試験研究炉におけるホットラボラトリーの計画

(京大)○稲垣誠、高宮幸一、日野正裕、杉山正明、川端祐司、佐藤信浩

【緒言】福井県敦賀市の「もんじゅ」サイトを活用し、新たな試験研究炉を設置されることとなった。その設置に向け、日本原子力研究開発機構、京都大学、福井大学が連携し、新たな試験研究炉の設計とその利用に関する検討を進めている。新たな試験研究炉は、中性子ビーム利用を主目的とした出力 10 MW 程度の中出力炉として計画されており、約 50 m×120 m の敷地に、原子炉本体施設、中性子ビームを用いて実験を行うビームホール、中性子を照射した試料等の放射性同位体 (RI) を取り扱うホットラボラトリ、原子炉管理棟などを配置することを予定している。本発表では、これらのうち、ホットラボラトリーの規模と備えるべき設備等について検討を行ったので報告する。

【検討内容】既存の類似施設を参考に、新たな試験研究炉におけるホットラボラトリについて検討を行った。ホットラボラトリの必要面積については、京都大学研究用原子炉 (KUR) のホットラボラトリを参考にし、最低限必要な実験室及び管理用の設備の種類及び面積を検討した結果、約 2 千平方メートル程度が必要であると見積もった。現在の施設レイアウト案においてホットラボの占める範囲は 23 m×34 m 程度であるので、必要面積を確保するためにはホットラボラトリを多層階化する必要がある。ホットラボラトリには、放射化分析や RI 製造のための照射試料の研究炉への挿入と取り出しを行うための各照射ポート、照射物を取り扱うためのフードやグローブボックスを備えた実験室及び各種検出器を備えた測定室が必要となる。短寿命の核種を速やかに化学処理し、測定を行うような場合を考えると、照射ポート、実験室、測定室は安全かつ速やかに作業者が移動あるいは照射試料を移送できるよう配置する必要がある。また、基礎化学研究、検出器開発、少量核燃照射、トレーサー製造などの実験研究の需要があり、それらに必要な設備を備える必要がある。以上のことなどを勘案し、図 1 のようなホットラボラトリの構成案を作成した。

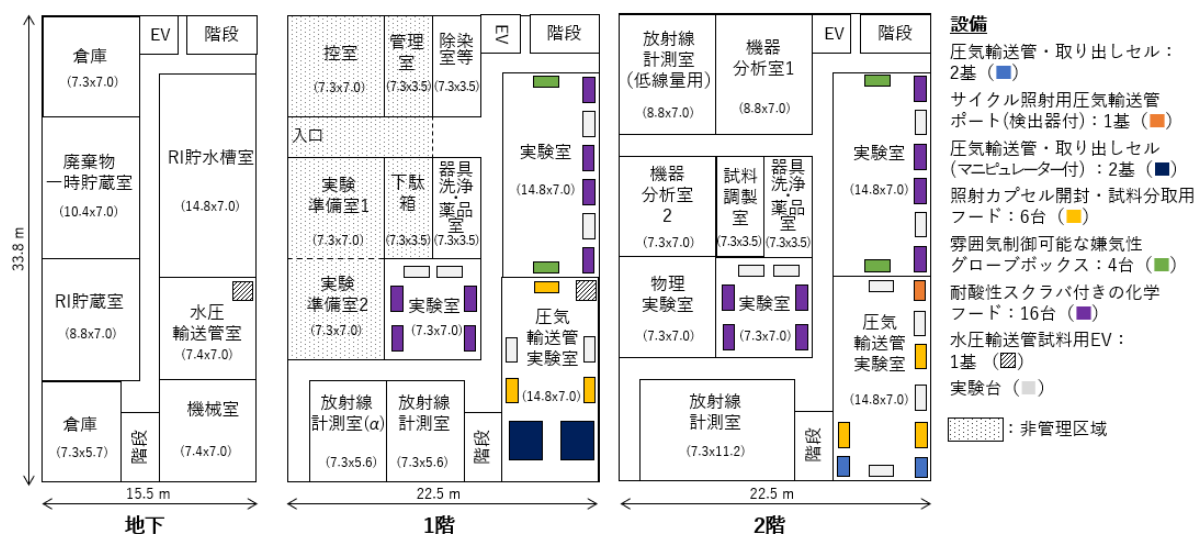


図 1. ホットラボラトリの構成案

Plan for a hot laboratory at the new research reactor to be constructed on the "Monju" site
INAGAKI, M., TAKAMIYA, K., HINO, M., SUGIYAMA, M., KAWABATA, Y., SATO, N.

1P17

LSC 測定による遮蔽鉛中 Pb-210 スクリーニング法の検討

(一般財団法人九州環境管理協会¹⁾○安次富 政貴¹、玉利 俊哉¹

【緒言】 環境放射能分析では、低バックグラウンド測定システムが必要であり、遮蔽に用いる鉛中のPb-210濃度の情報が重要である。一般的なPb-210の分析方法は、Pb-210の低エネルギー γ 線の直接測定、放射平衡のPo-210の α 線スペクトロメトリ等あるが、多数の鉛を一斉にスクリーニングするには不向きである。少量の鉛切削試料を酸溶解-シンチレーションカクテル作成-液体シンチレーションカウンタ (LSC) 測定、といった極めて簡易なスクリーニング法を検討したものを報告する。

【実験】 研磨済み鉛ブロックから削りだした試料 0.1~1.0 g を 3M HNO₃ 約 5 mL で溶解、穏やかに濃縮、希釈後 0.1 M HNO₃ 6 mL として 20 mL 低拡散ポリバイアル中で Ultima Gold AB (PerkinElmer) 12 mL と混合し、LSC (Raytech, LB 7) で 100 分測定した。また結果の比較のため、いくつかの試料についてトレーサ添加、酸溶解後 Ag 板へ電着し、 α 線スペクトロメトリによる測定 (Canberra Alpha Analyst) を行った。

【結果】 鉛溶解物の LSC 測定スペクトルの一例を図 1 に示す。妨害核種の大きな影響は特にみられず、Pb-210 (β)、Po-210 (α) のピークと Bi-210 (β) のベースラインからなる単純なスペクトルが観察された。Pb-210、Po-210 計数効率、鉛供試量 (~1.0 g) によって大きな違いはないことが確認され、それぞれ約 83 %、90 % であった。また Pb-210、Bi-210、Po-210 が平衡である場合、鉛供試量 0.5 g、LSC 測定時間 100 min における検出下限値は、Pb-210 で 30 Bq/kg、Po-210 で 17 Bq/kg と見積もられた。

購入から確実に 2 年以上経過し、Pb-210 - Po-210 が平衡となっている複数の鉛ブロックを対象に、本スクリーニング法を適用して得られた Pb-210 (β)、Po-210 (α) 濃度を比較したところ、いくつかの試料では Pb-210 に対して Po-210 が低濃度となった (図 2)。これらの多くは鉛溶解時に残渣が認められたもの (硬化剤として含まれるアンチモンの加水分解によるものと考えられる) であるが、Po が共沈し感度低下を招いた可能性が高い。Pb-210 について α スペクトロメトリによる結果と比較したところ (図 3)、溶解時に残渣が認められた試料を含め良く一致しており、溶解時残渣が Pb-210 測定に影響を及ぼしていないことがわかった。

以上、Po-210 定量に課題を残すものの、Pb-210 については本法により迅速にスクリーニング可能であるといえる。

Study of screening method of Pb-210 in lead brick for shielding using LSC measurement
ASHITOMI M., TAMARI, T.

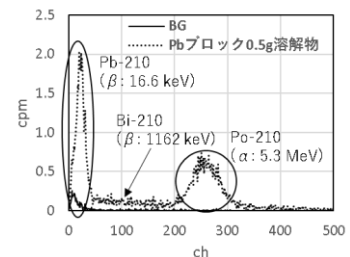


図 1 鉛試料 LSC 測定スペクトル

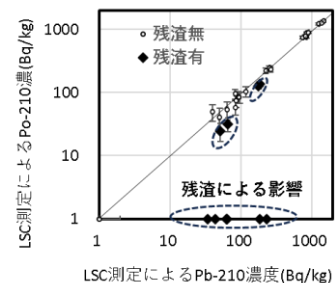
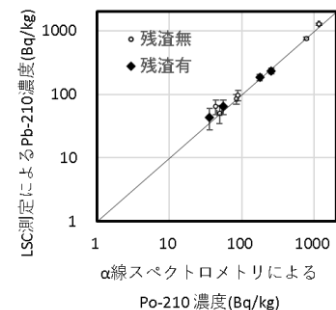


図 2 LSC 測定による Pb-210、Po-210 濃度の比較

図 3 α 線スペクトロメトリと LSC 測定による Pb-210 濃度の比較

1P18

MA/Ln 分離のための BTPhen 型配位子における置換基導入効果についての DFT 研究

(広島大院先進理工¹、広島大 N-BARD²)○深澤優人¹、中島 覚²

1. 緒言

原子力発電により生じる使用済核燃料の再処理後の廃液には、非常に長い放射能半減期をもつ核種であるマイナーアクチノイド(MA)が含まれており、廃液の保管期間の長期化の原因となっている。そこで、溶媒抽出法により MA だけを選択的に取り除く研究が近年盛んに取り組まれている。溶媒抽出法の研究においては抽出剤と呼ばれる様々な種類の有機配位子が開発されており、そのうち 2,9-ビス(1,3,4-トリアジニル)-1,10-フェナントリン(BTPhen, Fig. 1)を基本骨格として持つ抽出剤は高い MA 抽出能や分離能を発揮することがわかっている。また先行研究[1]では、BTPhen 型抽出剤のフェナントリン環 5,6 位の水素を臭素に置き換えると抽出能がさらに向上したことが報告されている。先行研究に倣い臭素置換数を変化させた場合、実験結果と同様に臭素置換数が多いほど Am 選択性が向上することが示された[2]。また臭素以外のハロゲン(F, Cl, I)で置換した場合について、抽出剤の電子状態が官能基から影響を受けている可能性が示唆された[2]。本研究では、置換基が抽出や分離に及ぼす効果をさらに調査するため、様々な種類の置換基(X = F, CN, CH₃, NH₂)を導入した場合について、量子化学計算を用いた解析を行った。

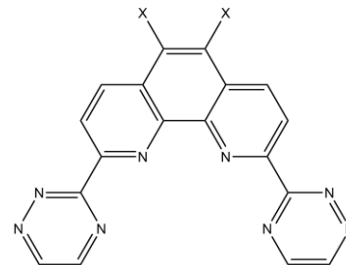


Fig. 1 X₂BTPhen の構造 (X = H, F, CN, CH₃, NH₂)

2. 方法

すべての計算プロセスは量子化学計算プログラム ORCA(ver4.1.0)により行った。計算モデルは、結晶構造データベース(CSD)に収録されている BTPhen 型配位子とランタノイドが成す錯体の結晶構造をもとに、不要な側鎖の除去や原子の置換を行い作成した。錯体の中心金属としては、代表的な MA であるアメリシウム(Am³⁺)と、分離能を評価するため Am と同族のランタノイドであるユウロピウム(Eu³⁺)を用いた。相対論効果は ZORA-SARC により考慮し、構造最適化計算には汎関数 BP86/SVP を、一点エネルギー計算には汎関数 B2PLYP/TZVP を適用した。エネルギー計算の結果から錯体生成 Gibbs エネルギーを算出した。併せて結合鞍点(BCP)解析や自然密度解析(NPA)などを行い、結果を比較した。

3. 結果および考察

生成する錯体の錯体生成 Gibbs エネルギー解析の結果を比較すると、電子求引的な置換基を導入した場合には置換前よりも安定性が低下する一方で、電子供与的な置換基を導入した場合には安定性が向上するという異なる変化が見られた。また抽出剤の Am 選択性に関してはいずれの置換基を導入した場合でも向上するという結果が示された。すなわち、電子求引基を導入すると、Eu、Am 錯体の不安定化の差により、一方で電子供与基を導入すると、Eu、Am 錯体の安定化の差により選択性が向上する。

[1] A. Aster et al., *Chem. Commun.*, **49**, 8534-8536 (2013).

[2] Y. Fukasawa and S. Nakashima, *RSC Advances*, **13**, 2476-2482 (2023).

Investigation of substitution effect for BTPhen-type ligand for MA/Ln separation
FUKASAWA Y, NAKASHIMA S.

1P19 α 微粒子のリアルタイム質量検出を指向した肥大化濃縮装置の開発

(阪大院理¹、阪大放射線機構²、京大複合研³、阪大リノ⁴、大阪青山大⁵)
 ○永田光知郎¹、豊嶋厚史²、高宮幸一³、古谷浩志⁴、床井健運¹、河井洋輔¹、吉村崇²、豊田岐聡¹、篠原厚^{5,2}

【緒言】 福島第一原発に残る燃料デブリの取出し作業には、デブリを切断して容器に格納する事が想定されている。本研究ではその作業によって生じる ^{239}Pu など α 線放出核種を含む微粒子 (α 微粒子) が環境へ漏洩することや、作業者の内部被ばくを防ぐため、作業環境中の α 微粒子を質量分析し、 α 線放出核種をリアルタイムで検出する手法の開発を行っている。昨年度報告したように、ウランを含む模擬 α 微粒子を高感度かつオンライン検出する装置開発の一つとして、肥大化濃縮装置の開発を行なっている。本発表では、この濃縮装置を用いたときの粒径や化学組成の変化について分析を行った結果について報告する。

【実験】 UO_2 顆粒および ZrO_2 粉末から合成した $\text{U}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_2$ ($x = 0, 0.1, 0.5, 0.975$) ペレットを模擬デブリとして用いた。照射チェンバーにペレットを配置し、レーザーアブレーションを行って模擬 α 微粒子を製造した。生成した微粒子は PILS(微粒子捕集装置)を用いて捕集し液体化した後、その液体を肥大化濃縮装置(図 1)に導入し、乾燥した微粒子を OPC や SMPS を用いて測定すると共にカスケードインパクト上に捕集した。模擬 α 微粒子の粒径分布の測定は動的光散乱法、電気移動度法、慣性法を用いた。この慣性法において、インパクト上に捕集した微粒子を用いて、ICP-MS により元素濃度(Zr, U)を定量した。

【結果】 標準微粒子である PSL 粒子を用いて肥大化濃縮装置の性能を確認したところ、微粒子濃度が高く ($> 63 \text{ mg/mL}$) なければ、粒径分布の代表径が増大しないことが判明した。一方、模擬 α 微粒子の溶液中濃度は低く、代表径の増大は観測されなかった。また、濃縮装置通過後に捕集した U/Zr 組成比は、ペレットの U/Zr 組成比と一致しなかった。このとき、Zr は検出限界未満のシグナルしか得られず、U のみ定量できた。この要因として、装置内部に微粒子が吸着してしまったことや、レーザーアブレーションにより化学変化が生じたためと考えている。本装置で U を定量した結果から捕集効率を算出すると $0.12 \pm 0.02\%$ であることが判った。発表ではその他の試料の元素定量の結果、SEM/EDS による微粒子の粒径や化学組成の解析や、本装置の改善すべき点についても報告する。

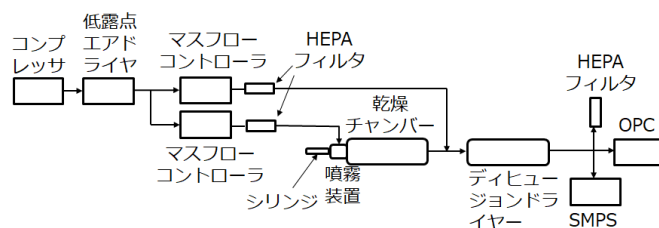


図 1. 肥大化濃縮装置の概略図.

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

Development of device for particle enlargement and concentration for real-time mass analysis of fine particles containing alpha-emitting radionuclides

Nagata, K., Toyoshima, A., Takamiya, K., Furutani, H., Tokoi, K., Kawai, Y., Yoshimura, T., Toyoda, M., Shinohara, A.

1P20

土壌から単離した微生物のセシウム耐性能の解析

(広島大 N-BARD¹、広島大 IDEC²、広島大技術センター³) ○稲田 晋宣¹、Triyono Basuki¹、丸山 史人²、松嶋 亮人¹、木庭 亮二³、寺元 浩昭³、宗岡 亜依³、中島 覚¹

【緒言】

2011年東京電力福島第一原子力発電所事故により大量の放射性物質が放出され、特に Cs-137 が注目された。Cs は K や Na と同じアルカリ金属に属している。K や Na は生物に必須な元素として知られているが、Cs は生物に対して毒性を有するとの報告がある。微生物は生育の過程において様々な物質を吸収し、様々な機能に利用していると考えられる。このような微生物の機能を環境浄化に利用するためには、その物質に対して耐性を有することが必要である。我々は Cs の化学的性質に着目し、Cs が微生物の生育に与える影響を確認した。また土壌中より Cs 耐性菌を単離し解析を行なった。

【実験】

Cs の影響を広島大学構内の地水中に存在する微生物（群）を用いて検討した。Cs を含む固体培地上に池水を接種し、生育するコロニー数の変化を確認することで Cs の影響を確認した。その結果、Cs はその添加量の増加に従って微生物の生育を阻害し、50mM の高濃度では生育を強く阻害した。また色素生産能を欠失する微生物種が確認されるなど、Cs は微生物の生育に影響を及ぼすことが確認された。一方で、生育においては、Cs に対する耐性が微生物種により異なることを確認した。

Cs に対する耐性機構を詳細に解析するために、Cs に耐性を有する微生物の単離を試みた。その結果、土壌から Cs に耐性を有する微生物の候補株を取得した。本単離株の Cs 耐性を確認した結果、固体培養では 0mM Cs (コントロール) と比較して 100mM Cs 存在下でコロニー形成数の大幅な変化が確認されなかった。さらに高い濃度においても耐性を持つことが明らかとなった。本株の 16S rDNA の塩基配列の相同性解析から本株は *Bacillus* 属であると推定された。Cs 耐性について *Bacillus* 属の基準株と比較を行なった結果、基準株と比較して本株は高い Cs 耐性を有していることが明らかとなった。

本単離株のゲノム全体の塩基配列の決定を含めたゲノム構造の解析を行なった結果、本株の染色体は約 5.37Mbp で構成され、約 5,000 個の構造遺伝子を有していることが明らかとなった。また複数のプラスミドを保持している可能性が示唆された。本株の Cs 耐性機構について詳細な解析を行なっている。

【参考文献】

Examination of Cs tolerant bacteria interaction with Cs⁺ in aqueous solution and soil by using ¹³⁷Cs tracer.

T. Basuki, K. Inada, and S. Nakashima

AIP Conference Proceedings 2295, 020007 (2020), doi.org/10.1063/5.0031817

Study on the Cs tolerant microorganism isolated from soil

INADA, K., BASUKI, T., MARUYAMA, F., MATSUSHIMA, A., KOBA, R., TERAMOTO, A., MUNEOKA, A. NAKASHIMA, S.

1P21

ランタノイド内包フラーレン(Ln@C₈₂)に関する HPLC 溶出挙動の熱力学的解析とその再現性の確認

(都立大院理¹、京大複合研²)○中村大生¹、黒田拓真¹、西村峻¹、秋山和彦¹、高宮幸一²、久富木志郎¹

【緒言】金属内包フラーレン(EMF)はフラーレンが金属原子を内包した包接化合物である。ランタノイド元素を一つ内包したフラーレン(Ln@C₈₂)では Ln から C₈₂ ケージへ 2 または 3 つの電子が移動しており、Ln@C₈₂ の電子状態は電荷移動数と C₈₂ ケージの構造に大きく依存している^[1]。また、EMF の一般的な分離法である高速液体クロマトグラフィー(HPLC)法では、固定相と試料との相互作用(保持時間)は EMF の電子状態とケージの構造に依存している。しかし Pyrenyl 基を固定相とする Buckyprep カラムを用いた HPLC 分離において電荷移動数とケージの構造が同じ Ln@C₈₂ に注目したところ、その保持時間が内包する Ln 元素によって僅かに異なることが確認された^[2]。この保持時間の差が Ln@C₈₂ のどのような性質に由来するのか明らかにするため、先行研究ではラジオクロマトグラフィー法を用いて La から Er までの Ln を内包した Ln@C₈₂ を同時展開することで保持時間決定を試みたが、長半減期核種の Ce, Tb については Dy, Er などの短半減期核種と同時に分析することが出来ず、一部の結果は予想されたものよりかなり大きな保持時間を示した。本研究では前述の Tb について、得られた保持時間や熱力学的解析により得られた吸脱着エンタルピー ΔH の再現性を確認することを目的とし、半減期に依存しない試料作製方法によって先行研究結果を検証した。

【実験】La, Tb, Dy の酸化物を用いて、原子数比が Ln(La, Tb):C=1:100, Dy:C=1:200 となるように炭素棒を作成しアーク放電用の電極とした。これを He 雰囲気下、圧力 50kPa, 直流電流 60A の条件でアーク放電し、得られたススを回収した。このススを *o*-ジクロロベンゼンで還流し、得られたフラーレン粗抽出物から TiCl₄ 法^[3]によって EMF 成分を分離した。この EMF 成分に含まれる Ln@C₈₂ を単離するために Buckyprep カラムを用いた HPLC 分離を行った。Dy を含む炭素棒を用いて生成した粗抽出物については、Dy@C₈₂ と保持時間の近い Dy₂@C₈₂ などを除去するために TiCl₄ 法による EMF 分離後に 5PBB カラムによる前段分離を行い、得られた試料を Buckyprep カラムによって単離した。単離された La, Tb, Dy@C₈₂ 溶液を混合させた後、室温及び-10°Cでそれぞれ Buckyprep カラムを用いた HPLC 展開を行った。室温では Ln@C₈₂ の溶出ピーク付近である 55~70 分を 20 秒ごとに分取し、-10°Cでは同様に 80~105 分を 60 秒ごとに分取した。その後、各分画を 12.7φmm のろ紙(ADVANTEC, BLAINE TEST PAPER)ろ紙にそれぞれ吸収・乾燥させ、京都大学研究用原子炉(KUR)の気送管 Pn-2 孔(熱中性子束: 5.10x10¹² n/cm² sec)において 4 時間熱中性子照射を行った。この放射化した試料の放射能を Ge 半導体検出器で測定し、各 Ln@C₈₂ の保持時間を調べた。

【結果と考察】今回の実験で確認された Ln@C₈₂ の保持時間と保持比を表 1 にそれぞれ示した。La の保持比を基準とした Tb, Dy の保持比を先行研究の結果と比較したところ、短半減期核種である Dy では非常によく一致していた。一方で、長半減期核種である Tb では-10°Cの k_{Tb}/k_{La} について先行研究の値より小さく、 ΔH について比較したところ Tb の値が有意に大きくなっていることが分かった。

表 1 室温及び-10°Cにおける Ln@C₈₂ の HPLC データおよび ΔH

元素	La	Tb	Dy	k_{Tb}/k_{La}	k_{Dy}/k_{La}	
RT	保持時間(分)/	59.95/	61.92/	60.89/		
	保持比(k) (本研究)	10.99	11.38	11.18	1.04	1.02
	保持時間(分)/	57.72/	59.16/	58.98/		
	保持比(k) (先行研究)	9.63	9.90	9.86	1.03	1.02
-10°C	保持時間(分)/	86.04/	89.86/	88.11/		
	保持比(k) (本研究)	15.61	16.35	16.01	1.05	1.03
	保持時間(分)/	84.31/	90.03/	86.59/		
	保持比(k) (先行研究)	14.53	15.58	14.95	1.07	1.03
ΔH [KJ/mol]	本研究	7.46	7.68	7.63		
	先行研究	7.94	8.70	8.06		

[1] K. Akiyama *et al.*, *J. Phys. Chem. A*, **104**, 7224-7226 (2000). [2] D. Fuchs *et al.*, *J. Phys. Chem.* **100**, 725-729 (1996). [3] K. Akiyama *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **134**, 9762 (2012).

Thermodynamic Analysis of HPLC Elution Behavior of Lanthanide Endohedral Fullerene (Ln@C₈₂) and Confirmation of Its Reproducibility.

NAKAMURA, D., KURODA, T., NISHIMURA, S., AKIYAMA, K., TAKAMIYA, K., KUBUKI, S.

ポスターフラッシュトーク

フラッシュトーク

座長:秋山 和彦(東京都立大学)、鈴木 達也(長岡技術科学大学)

2023年9月21日(木) 16:20 ~ 16:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

フラッシュトークの詳細はこちら

部会

放射化分析部会

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

2023年9月21日(木) 12:40 ~ 13:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

部会

若手の会

2023年9月21日(木) 12:40 ~ 13:40 B会場 (学士会館)
