2023年9月22日(金)

A会場

特別講演

PL2

座長:遠藤 暁(広島大学大学院先進理工系科学研究科)
09:00 ～ 09:50 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2S01] 原爆による「黒い雨」領域推定のための基礎的研究

*五十嵐 康人[1] （1. 京都大学）

09:00 ～ 09:50

奨励賞 受賞講演

奨励賞受賞講演

座長:北辻 章浩(日本原子力研究開発機構)
16:10 ～ 16:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2S02] アクチノイドの溶液内複合反応研究と微少量分析法開発

*大内 和希[1] （1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）

16:10 ～ 16:40

セッションC 環境放射能

2C1

座長:齋藤 凜太郎(ジーエルサイエンス株式会社)、小池 裕也(明治大学)
10:00 ～ 11:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2A01] 海水循環トレーサー利用に向けた海水中の^{237}Np分析法の確立

*榊枝 優真[1]、中島 朗久[1]、永井 歩夢[2]、細川 浩由[2]、横山 明彦[3]、羽場 宏光[4]、南部 明弘[4]、重河 優大[4]、鄭 建[5]、瀬古 典明[6]、保科 宏行[6]、Hain Karin[7]、Wiederin Andreas[7]、末木 啓介[8]、山崎 信哉[8]、高久 雄一[8]、坂口 綾[8] （1. 筑波大学 大学院 理工情報学術院 数理物質科学研究群 化学学位プログラム、2. 金沢大学大学院 自然科学研究科、3. 金沢大学 理工研究域、4. 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター、5. 量子科学技術研究開発機構 量子生命・医学部門 放射線医学研究所、6. 量子科学技術研究開発機構 量子技術基盤研究部門 高崎量子応用研究所、7. ウィーン大学 物理学科 アイソトープ物理学専攻、8. 筑波大学 数理物質系）

10:00 ～ 10:20

[2A02] 海水中の極微量^{99}Tc高感度分析法の開発

*高見 佳[1]、鍋山 雄樹[1]、初川 雄一[2]、塚田 和明[3]、浅井 雅人[3]、末木 啓介[4]、山崎 信哉[4]、高久 雄一[4]、坂口 綾[4] （1. 筑波大学理工学群化学類、2. 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門、3. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター、4. 筑波大学 数理物質系）

10:20 ～ 10:40

[2A03] Sr収着剤を用いた海水中の放射性ストロンチウムの迅速測定法の改良

*箕輪 はるか[1]、緒方 良至[2]、小島 貞男[2]、有信 哲哉[2]、加藤 結花[3]、杉原 真司[4] （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、4. 九州大学）

10:40 ～ 11:00

セッションC 環境放射能

2C2

座長:小池 裕也(明治大学)
11:10 ～ 12:10 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2A04] オホーツク海、道東海域における^{134}Cs濃度の経年変動からみた海水循環

*真下 海成[1]、井上 睦夫[1]、谷内 由貴子[2]、中野渡 拓也[2]、帰山 秀樹[2]、乙坂 重嘉[3]、長尾 誠也[1] （1. 金沢大学、2. 水産機構・資源研、3. 東京大学）

11:10 ～ 11:30

[2A05] インド洋～南大洋の137Csの空間分布

*光主 隼大[1]、真下 海成[1]、井上 睦夫[1]、長尾 誠也[1]、熊本 雄一郎[2] （1. 金沢大学、2. JAMSTEC）

11:30 ～ 11:50

[2A06] 放射性セシウムと放射性ヨウ素を用いた北極海の海水循環研究

*熊本 雄一郎[1]、浜島 靖典[2]、西野 茂人[1]、井上 睦夫[2]、永井 尚生[3]、松崎 浩之[4]、山形 武靖[4]、村田 昌彦[1]、菊地 隆[1] （1. 国立研究開発法人海洋研究開発機構、2. 金沢大学、3. 日本大学、4. 東京大学）

11:50 ～ 12:10

セッションC 環境放射能

2C3

座長:桧垣 正吾(東京大学)
13:40 ～ 15:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[3A13] 広島原爆によって生成したウランを含有する降下物粒子の検出手法の開発

*東江 直樹[1]、高宮 幸一[1]、稲垣 誠[1]、沖 雄一[1]、福谷 哲[1]、八島 浩[1]、芝原 雄司[1]、足立 友紀[2]、五十嵐 康人[1] （1. 京大複合研、2. （株）アトックス）

13:40 ～ 14:00

[2A08] 質量分析法を用いた酸化還元環境の異なる地下水における^{234}U/^{238}U同位体比の変動把握

*栗林 千佳[1]、谷水 雅治[1] （1. 関西学院大学大学院理工学研究科）

14:00 ～ 14:20

[2A09] 多重検出器型 ICP質量分析計を用いた東京湾堆積物中人為的ウランの同位体分析及び起源識別

©一般社団法人日本放射化学会

*山本 康太[1]、大野 剛[2]、北村 豪[2]、高橋 宏明[1]、平田 岳史[3]
（1. 原子力規制庁、2. 学習院大学、3. 東京大学）
14:20 ～ 14:40

[2A10] 別府湾の堆積物を用いた表層環境への I-129導入史の復元

*史 志圓[1,2]、加 三千宣[3]、笹 公和[2]、松村 万寿美[2]、高橋 努[2]、高久 雄一[4]、山崎 信哉[4]、末木 啓介[2,4]、坂口 綾[2,4]
（1. 筑波大学大学院 理工情報生命学術院 生命地球科学研究群 環境学学位プログラム、2. 筑波大学 AMSグループ、3. 愛媛大学 沿岸環境科学研究センター、4. 筑波大学 数理物質系）
14:40 ～ 15:00

B会場

セッションE 原子力・アクチノイド化学及び関連分野

2E1

座長:風間 裕行(日本原子力研究開発機構)
10:00 ～ 11:00 B会場 (学士会館)

[2B01] 原子炉過酷事故時に於ける燃料溶融反応のその場測定技術の開発 (1)装置開発と加熱試験

*小無 健司[1]、松尾 悟[1]、有田 裕二[2]、新納 圭亮[2]、生田 陸人[2]、矢板 毅[3]、谷田 肇[3]、小林 徹[3]、福田 竜生[3]、小畠 雅明[3]、伊藤 あゆみ[4]、吉田 健太[1]（1. 東北大学、2. 福井大学、3. 日本原子力研究開発機構、4. 東京工業大学）
10:00 ～ 10:20

[2B02] 原子炉過酷事故時に於ける燃料溶融反応のその場測定技術の開発(2)解析

*伊藤 あゆみ[1]、小無 健司[2]、松尾 悟[2]、有田 裕二[3]、新納 圭亮[3]、生田 陸人[3]、矢板 毅[4]、谷田 肇[4]、小林 徹[4]、福田 竜生[4]、小畠 雅明[4]（1. 東京工業大学、2. 東北大学、3. 福井大学、4. 日本原子力研究開発機構）
10:20 ～ 10:40

[2B03] $(Zr,Ce)O_2$固溶体の溶解挙動の考察

*小林 大志[1]、池田 篤史[2]、松村 大樹[2]、佐々木 隆之[1]（1. 京都大学大学院、2. 日本原子力研究開発機構）
10:40 ～ 11:00

セッションE 原子力・アクチノイド化学及び関連分野

2E2

座長:小林 大志(京都大学)
11:10 ～ 12:10 B会場 (学士会館)

[2B04] 質量分析による高確度アクチノイド分析のためのアクチノイド相互分離

*Ikhwan Fauzia Hanum[1]、風間 裕之[2]、阿部 千景[3]、小無 健司[3]、中瀬 正彦[1]、鈴木 達也[4]（1. 東京工業大学 、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学、4. 長岡技術科学大学）
11:10 ～ 11:30

[2B05] ICP-MS/MSのリアクションセル内におけるアクチノイド気相反応の反応定数評価

*風間 裕行[1]、小無 健司[2]、鈴木 達也[3]、関尾 佳弘[1]、前田 宏治[1]、小山 真一[1]、阿部 千景[2]、永井 康介[2]（1. 日本原子力研究開発機構、2. 東北大学、3. 長岡技術科学大学）
11:30 ～ 11:50

[2B06] 多段分離型 ICP-MSによるアクチノイド同位体の一斉検出

*松枝 誠[1,2]、川上 智彦[3]、照山 優子[3]、寺島 元基[1]、飯島 和毅[1]、古川 真[2,4]、高貝 慶隆[2]（1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学、3. 株式会社 化研、4. PerkinElmer Japan 合同会社）
11:50 ～ 12:10

セッションF 核医学・生物関連放射化学

2F1

座長:鷲山 幸信(福島県立医科大学)
13:40 ～ 15:00 B会場 (学士会館)

[2B07] ^{211}At 分析装置の感度補正法の開発

*瀬川 麻里子[1]、前田 亮[1]、藤 暢輔[1]、西中 一朗[2]（1. 日本原子力研究開発機構、2. 量子科学技術研究開発機構）
13:40 ～ 14:00

[2B08] Rn/Atジェネレーターにおけるラドンの気相回収条件の最適化について

*田中 皐[1]、清水 悠介[1]、井田 朋智[1]、西中 一朗[2]、浅井 雅人[3]、横山 明彦[1]（1. 金沢大学、2. 量研機構、3. 原子力機構）
14:00 ～ 14:20

[2B09] アスタチン化学種の揮発性

*西中 一朗[1]、橋本 和幸[2]（1. 量子科学技術研究開発機構、2. 日本原子力研究開発機構）
14:20 ～ 14:40

[2B10] 熱化学転換法で溶解させた ThO_2溶液からの $MgCO_3$を用いた Raの抽出と照射ターゲット生成

*尹 鳳[1]、麻 卓然[1]、田端 千紘[2]、福谷 哲[2]、外山 真理[2]、山村 朝雄[2]、鈴木 達也[1]（1. 長岡技術科学大学、2. 京都大学複合原子力科学研究所）
14:40 ～ 15:00

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

17:00 ～ 17:50 学士会館ラウンジ (学士会館ラウンジ)

©一般社団法人日本放射化学会

[2P01] 高速中性子による RI製造のための中性子スペクトルと励起関数の検証

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

[2P02] ノーベリウムのシュウ酸カルシウム共沈

中西 諒平[1,2]、*笠松 良崇[1,2]、大髙 咲希[1,2]、渡邉 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）

[2P03] 等温ガスクロマトグラフ法による106番元素 Sgの気相化学研究に向けたモデル実験

*名取 日菜[1,2]、佐藤 哲也[1,2]、浅井 雅人[2]、伊藤 由太[2]、内馬場 優太[1,2]、Gong Gyeongmin[1,2]、塚田 和明[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）

[2P04] 核医学応用に向けた高周期 pブロック元素のDOTAM錯体合成とその理論計算

*青戸 宏樹[1]、永田 光知郎[1]、金子 政志[1]、前田 遥香[1]、川岸 英峻[2]、笠松 良崇[1] （1. 阪大院理、2. 阪大理）

[2P05] ^{nat}Te(γ,x)^{125}Sb反応による Sb-125の製造

*横北 卓也[1]、本多 佑記[1]、菊永 英寿[1] （1. 東北大学）

[2P06] メスバウアー分光法による Rコンドライト PCA91002中鉄含有鉱物組成の研究

*石井 勇希[1]、中川 真由、古川 未来[1]、海老原 充[2]、佐藤 渉[1] （1. 金沢大学、2. 東京都立大学）

[2P07] 47都道府県に設置されたモニタリングポストの精度管理調査結果

*杉山 翠[1]、細田 芽生[1]、田中 博幸[1]、磯貝 啓介[1] （1. 公益財団法人　日本分析センター）

[2P08] 電気化学的手法を用いた環境水中のヨウ化物イオンの選択的定量法の開発

中村 司[1]、*山崎 信哉[1]、西塚 魁斗[1]、坂口 綾[1]、高久 雄一[1]、末木 啓介[1] （1. 筑波大学）

[2P09] 陽イオン界面活性剤を用いたセシウム137吸着鉱物の除染効果の経時変化

*松嶋 亮人[1]、中島 覚[1] （1. 広島大学自然科学研究支援開発センター）

[2P10] X線吸収分光法による模擬風化処理した雲母中ウランのスペシエーション

*蓬田 匠[1]、東 晃太朗[2]、河村 直己[2]、北辻 章浩[1]、高橋 嘉夫[3] （1. 日本原子力研究開発機構、2. 高輝度光科学研究センター、3. 東京大学）

[2P11] 多摩川本流における存在形態分析を用いた底質中 ^{137}Cs の移行調査

*清水 優伸[1]、高橋 亘[1]、加世田 大雅[2]、小池 裕也[1] （1. 明治大学　理工学部、2. 明治大学院　理工学研究科）

[2P12] 多摩川集水域宿河原における河川水及び底質中放射性セシウム濃度の定点観測

*高橋 亘[1]、清水 優伸[1]、加世田 大雅[2]、小池 裕也[1] （1. 明治大学　理工学部、2. 明治大学院　理工学研究科）

[2P13] 赤城大沼における夏季・冬季成層化における放射性セシウム濃度の変動

*大鳥 慎治[1]、藤田 知樹[1]、阿久津 崇[2]、鈴木 究真[2]、塩澤 佳奈子[2]、杉本 亮[3]、長尾 誠也[1] （1. 金沢大学、2. 群馬県水産試験場、3. 福井県立大学）

[2P14] 熱感応性界面活性剤の相分離現象による金属酸化物微粒子の抽出

*中川 太一[1,2]、松枝 誠[1]、寺島 元基[1]、高貝 慶隆[2] （1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学）

[2P15] 電子スピン共鳴による野生動物の歯を用いた線量測定法の進展と課題

*光安 優典[1]、岡 壽崇[2]、高橋 温[3]、木野 康志[1]、関根 勉[4]、山下 琢磨[4]、清水　良央[5]、千葉 美麗[5]、鈴木 敏彦[5]、小坂 健[5]、佐々木 啓一[5]、鈴木 正敏[6]、福本 学[7]、篠田 壽[5] （1. 東北大学大学院理学研究科、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学病院、4. 東北大学高度教養教育・学生支援機構、5. 東北大学歯学部、6. 東北大学災害科学国際研究所、7. 理化学研究所）

[2P16] 2018-2022年夏季の日本海における海水中のトリチウム濃度分布

*三木 志津帆[1]、東畑 顕[1] （1. 水産研究・教育機構　水産資源研究所）

[2P17] 大規模陽子加速器施設で使用された電源ケーブル被覆中の^{36}Clの定量に向けた基礎的検討

*吉田 剛[1]、豊田 晃弘[1]、石田 正紀[1]、山﨑 翔太[2]、三橋 正裕[2]、Bui Thien[4]、西川 功一[3]、津金 聖和[1]、山田 正明[2]、八島 浩[5]、松村 宏[1]、渡邉 瑛介[1]、中村 一[1]、塩原 良建[2]、大石 晃嗣[2]、桝本 和義[1]、三浦 太一[1]、別所 光太郎[1] （1. 高エネルギー加速器研究機構、2. 日本環境調査研究所、3. 量子科学技術研究開発機構、4. 総合研究大学院大学、5. 京都大学）

[2P18] アクチノイド化合物に向けた高精度相対論的CASPT2プログラムの開発

*増田 康人[1]、野田 紘平[1]、岩室 寿美果[3]、樫野 理子[2]、阿部 穣里[1] （1. 広島大学大学院　先進理工系科学研究科、2. 広島大学、3. 東京都立大学大学院　理学研究科）

[2P19] 赤外線ファイバーレーザーによるフラーレンの生成と放射性核種内包に向けた基礎実験

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

©一般社団法人日本放射化学会

[2P20] ^{64,67}Cu製造のための Znターゲット回収法およびペレット作成法の検討

*太田 朗生[1]、川端 方子[1]、高島 直貴[1]、本石 章司[1]、佐伯 秀也[1]、塚田 和明[2]、橋本 和幸[2]、永井 泰樹[1]、本村 新[1] （1. 株式会社千代田テクノル、2. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）

[2P21] 野生ニホンザル (*Macaca fuscata*) の食物の中性子放射化分析とその摂取量の推定

*福島 美智子[1]、辻 大和[1] （1. 石巻専修大学）

[2P22] ボーリングコアの放射性セシウム濃度の測定結果から見た熱海市における土石流災害

*矢永 誠人[1]、北村 晃寿[1] （1. 静岡大学）

[2P23] 我が国の校庭等の土壌中の天然放射性核種濃度と空間線量率について

*田上 恵子[1]、内田 滋夫[1] （1. 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構）

[2P24] 原子力発電所の低レベル放射性廃棄物中の放射性核種の分析に関する考察

*楊 波[1]、劉 義保[1]、楊 凡[1] （1. East China University of Technology）

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)
16:40 〜 17:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

部会

アルファ放射体・環境放射能部会定例部会

座長:小池 裕也(明治大学)
12:40 〜 13:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

B会場

部会

核化学部会総会

12:40 〜 13:40 B会場 (学士会館)

C会場

部会

原子力化学・アクチノイド化学部会総会

12:40 〜 13:40 C会場 (教育学部K棟K109講義室)

A会場

会員総会

会員総会

15:10 〜 16:10 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2sorc67A-1510-1add] 会員総会

15:10 〜 16:10

©一般社団法人日本放射化学会

特別講演

PL2

座長:遠藤 暁(広島大学大学院先進理工系科学研究科)

2023年9月22日(金) 09:00 ～ 09:50 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2S01] 原爆による「黒い雨」領域推定のための基礎的研究

*五十嵐 康人[1] (1. 京都大学)

09:00 ～ 09:50

©一般社団法人日本放射化学会

2S01 原爆による「黒い雨」領域推定のための基礎的研究

(京大複合研[1])○五十嵐康人[1]

【緒言】1945 年の広島・長崎への原爆投下による放射性降下物の沈着地域、いわゆる「黒い雨」の正確な推定に向け、2021 年 1 月から 2023 年度まで実施中の調査研究の概要を紹介する。（１）シミュレーションモデルと（２）その検証データを得ることの２本柱で調査研究は進められている。本稿では方法までを記載する。

【方法】原子爆弾の投下後の気象状況や放射性物質の拡散状況、大規模な爆発や火災が気象に与える影響等を考慮に入れた気象モデルによる放射性物質の沈着状況再現のため、（１）気象シミュレーションモデルを以下のように構築し一連の作業を行った。

１）爆発再現計算取り組み： 市販の Computed Fluid Dynamics モデルで、爆発雲の再現計算を実施した。爆発雲での爆弾由来物質の情報を気象モデルに与えるため、燃焼、爆発のシミュレーション技術（爆発モデル）を用いて、爆発開始から爆発雲の形成までの再現計算を実施した。

２）気象モデルによる雲形成・降雨再現計算： 計算を複数のプロセスに分割して実施し、原子雲の再現とその時間発展に関する計算の個別の実施可能性について検討、広島の事例につき本格的な計算を実施した。また、モデル計算の不確実性の評価にも留意して検討を行った。気象データとしては、米国海洋気象庁（NOAA）が作成した 20 世紀再解析データ（20CRv3）のアンサンブル平均データを選択した。計算領は、朝鮮半島を含む領域（3600 m 格子）> 西日本（1200 m 格子）> 広島周辺（400 m 格子）と云う三重の入れ子構造をした計算領域を採用した。最後に気象モデルの中に、爆発雲・街区火災・衝撃塵由来の物質を導入し、沈着計算を実施した。

次に（２）放射性降下物の拡散状況に係る調査に関する研究だが、モデル結果の検証データ入手を目的に調査に着手した。すなわち、原爆投下に伴って発生した放射性物質を含む降水現象や沈着があったと推定される地域を含む広島の広範な領域（5 km 格子で約 100 格子）で表土試料を採取し、放射性物質等の分析に供し、放射性降下物の拡散状況を調査した。調査では、長崎市での既存調査および、森林土壌の流出に関する研究例に着目し、森林での採取手法（スクレーパー・プレート法）を採用した。

前者の堆積物試料では底質中の層序に保存された ^{137}Cs、^{241}Am、微粒子状炭素（微粒炭）、Cu 等重金属の濃度ピークの共通した増大から長崎原爆のクローズイン・フォールアウト（CiF）としての痕跡確認がなされている。これらは「黒い雨」沈着の証拠－核爆発に由来する①^{137}Cs 等の放射性物質、②熱線照射による街区火災由来の微粒炭が、互いに混合しながら共通したプロセスで輸送され、おそらく、③衝撃波で地表から舞い上がった衝撃塵－放射化物とも一緒に降水過程と乾性過程で地表面へ沈着した証拠と考えられる。後者の森林環境中の土壌柱では、グローバル・フォールアウト（GF）由来 ^{137}Cs と大気由来の過剰 ^{210}Pb が、土壌未かく乱地点ではきれいに成層して残留していることが示されている。このような結果が広島・長崎の未かく乱の表土でも期待できると考え、検討・調査を実施した。詳細は講演で述べる。

謝辞：本調査研究は厚生労働省からの受託により進められている。記して感謝します。

Basic Research for Estimating the Area of "Black Rain" Caused by the Atomic Bomb Explosion
IGARASHI Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

奨励賞 受賞講演

奨励賞受賞講演

座長:北辻 章浩(日本原子力研究開発機構)

2023年9月22日(金) 16:10 〜 16:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2S02] アクチノイドの溶液内複合反応研究と微少量分析法開発

*大内 和希[1] （1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）

16:10 〜 16:40

©一般社団法人日本放射化学会

2S02 アクチノイドの溶液内複合反応研究と微少量分析法開発

(日本原子力研究開発機構[1])○大内和希[1]

【緒言】ウラン（U）やネプツニウム（Np）などのアクチノイドは溶液中で 3~6 価の原子価を比較的安定にとる．その反応性は各種原子価によって異なることから，溶液内反応の素過程の解明や分離手法を開発するうえで原子価状態を把握・制御することが重要である．本発表では，原子価状態に着目し取り組んだ反応研究や分析法の開発について講演する．

【溶液内の反応研究】<u>還元に伴う析出反応</u>　従来, 主に平衡状態での錯生成反応が研究されてきたが，本研究では電解と水晶振動子マイクロバランスの組合せにより，電極反応と析出反応を速度論的な相関を調べることで，析出物形成が 3 段階に進むことを見出し，反応の過程で形成されるコロイド粒子が U の還元を促進する特異な触媒作用を明らかにした[1]．また，形成した U 析出物を X 線吸収微細構造や電気化学インピーダンス法により分析し，U(IV)が水酸化物として析出し，時間経過とともに酸化物に変化する反応機構を明らかにした[2]．得られた知見は，地下環境のような還元雰囲気におけるアクチノイド移行などへの展開が期待される．

<u>イオン液体－有機混合溶媒中の電極反応</u>　劣化 U の有効利用法として期待されている，U を電極活物質とするレドックスフローバッテリー開発の基礎となる各種原子価状態の U の電極反応特性を調べた．水溶液中では不安定である U(III)及び U(V)がイオン液体中で安定化することに着目し，高粘度なため充放電効率の低下やポンプによる送液に課題があるイオン液体に有機溶媒を混合して粘度を下げることを着想した．結果として，イオン液体－有機混合溶媒中の U(IV)塩化物が，カーボン電極を作用極とすることで繰返し性の高い U(III)/U(IV)の電解が実現できることを見出した[3].

【微少量分析法の開発】<u>マイクロ化学チップによる微少量 U 試料の分析手法の開発</u>
マイクロ流路に陰イオン交換樹脂を充填したマイクロ流路カラムを作製し，高効率なイオン分離に適したカラム形状を調べ，幅及び深さ方向に配列する樹脂の必要数を明らかにした．知見に基づき設計・製作した分離カラムを高濃度の Cs を含む海水試料に適用して U を分離し分析に成功した．[4].

<u>ゲル電気泳動による $Np(V)O_2^+$の微量分析法</u>　蛍光プローブを利用する手法に着目し，複数の蛍光プローブ群からなる化学ライブラリーの中からポリアクリルアミドゲル電気泳動（PAGE）を用いる速度論的手法により，解離不活性な $Np(V)O_2^+$－フルオレセイン修飾フェナントロリン-2,9-ジカルボン酸錯体を見出した．この蛍光プローブは錯形成に伴い $Np(VI)O_2^{2+}$を $Np(V)O_2^+$に自動還元する特異な性質を有する．この原理に基づく PAGE 分析により検出限界 68 pmol dm^{-3}（17 fg）の極微量検出を達成し，模擬使用済み核燃料等の分析への適用にも成功している[5].

これらの微小試料の分析法は 1 F で発生する高線量の放射性試料分析時の被ばく低減に大きく貢献する技術として期待される．

[1] K. Ouchi et al., *ECS Trans.*, **2017**, 75(27), 51–57. [2] K. Ouchi et al., *RSC Adv.*, **2023**, 13, 16321–16326. [3] K. Ouchi et al., *Chem. Lett.*, **2021**, 50, 1169–1172. [4] K. Ouchi et al., *Anal. Sci.*, **2021**, 37, 1789–1194. [5] K. Yamagata, K. Ouchi et al., *Inorg. Chem.* **2023**, 62, 730−738.

Studies on complex reactions of actinides in solution and development of analytical methods for small amounts of samples

OUCHI, K.

© 一般社団法人日本放射化学会

セッションC　環境放射能

2C1

座長:齋藤 凜太郎(ジーエルサイエンス株式会社)、小池 裕也(明治大学)
2023年9月22日(金) 10:00 ～ 11:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2A01] 海水循環トレーサー利用に向けた海水中の^{237}Np分析法の確立

*榊枝 優真[1]、中島 朗久[1]、永井 歩夢[2]、細川 浩由[2]、横山 明彦[3]、羽場 宏光[4]、南部 明弘[4]、重河 優大[4]、鄭 建[5]、瀬古 典明[6]、保科 宏行[6]、Hain Karin[7]、Wiederin Andreas[7]、末木 啓介[8]、山崎 信哉[8]、高久 雄一[8]、坂口 綾[8] （1. 筑波大学大学院 理工情報学術院 数理物質科学研究群 化学学位プログラム、2. 金沢大学大学院 自然科学研究科、3. 金沢大学 理工研究域、4. 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター、5. 量子科学技術研究開発機構 量子生命・医学部門 放射線医学研究所、6. 量子科学技術研究開発機構 量子技術基盤研究部門 高崎量子応用研究所、7. ウィーン大学 物理学科 アイソトープ物理学専攻、8. 筑波大学 数理物質系）

10:00 ～　10:20

[2A02] 海水中の極微量^{99}Tc高感度分析法の開発

*高見 佳[1]、鍋山 雄樹[1]、初川 雄一[2]、塚田 和明[3]、浅井 雅人[3]、末木 啓介[4]、山崎 信哉[4]、高久 雄一[4]、坂口 綾[4] （1. 筑波大学理工学群化学類、2. 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門、3. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター、4. 筑波大学 数理物質系）

10:20 ～　10:40

[2A03] Sr収着剤を用いた海水中の放射性ストロンチウムの迅速測定法の改良

*箕輪 はるか[1]、緒方 良至[2]、小島 貞男[2]、有信 哲哉[2]、加藤 結花[3]、杉原 真司[4] （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、4. 九州大学）

10:40 ～　11:00

©一般社団法人日本放射化学会

2A01 海水循環トレーサー利用に向けた海水中の ^{237}Np 分析法の確立

(筑波大院 数理物質[1]、金沢大院 自然[2]、金沢大 理工[3]、理研仁科セ[4]、量研機構 放医研[5]、量研機構 高崎研[6]、ウィーン大 物理[7]、筑波大 数理物質系[8]) ○榊枝 優真[1]、中島 朗久[1]、永井 歩夢[2]、細川 浩由[2]、横山 明彦[3]、羽場 宏光[4]、南部 明弘[4]、重河 優大[4]、鄭 建[5]、瀬古 典明[6]、保科 宏行[6]、Hain Karin[7]、Wiederin Andreas[7]、末木 啓介[8]、山﨑 信哉[8]、高久 雄一[8]、坂口 綾[8]

【緒言】^{237}Np ($T_{1/2}$＝2.144×10^{6} 年)はその物理化学的性質から、重要核種として放射性廃棄物中のみならず環境におけるモニタリングが重要視されている。一方で、海洋循環を明らかにするためのトレーサーとしての利用も近年注目されており、環境中の ^{237}Np 定量がますます重要になっている。しかし、海水中の極微量 ^{237}Np は低放射能であり、従来の α 線測定法では大量の海水と煩雑な実験操作が必要とされている。また、精度の良い ^{237}Np の質量分析に必須である、化学分離の収率・分析装置の検出効率の補正を行う“スパイク”が従来存在していなかった。そこで本研究では、海水中の Np 質量分析法の確立に向けて Np のスパイクの製造、及び簡便な Np 濃集法の検討を行った。

【実験】〈^{236g}Np スパイクの製造〉 Np 質量分析用のスパイクとして ^{236g}Np ($T_{1/2}$＝1.55×10^{5} 年)に着目し、^{232}Th+^{7}Li 反応による合成を試みた。質量分析時の同重体干渉の原因となる ^{236m}Np や、分析対象核種である ^{237}Np の生成割合が少なく、目的の ^{236g}Np の生成が優位となる条件を検討した。まず Li^{+}ビームの照射エネルギー39.6 − 28.6 MeV の範囲で Np 同位体の核反応断面積を取得し、励起関数を作成した。スパイク合成に最適な照射エネルギー付近の Li^{+}ビームを 30 時間 ^{232}Th 箔に照射し、パイロットスパイクの製造を試みた。〈Np 濃集法の検討〉 PP・PE 製の不織布にアミドキシム基をグラフト重合させたアミドキシム型吸着剤を作製した。短半減期核種 ^{239}Np ($T_{1/2}$＝2.356 日)を添加した海水を用いて Np 回収法の最適化を行った。これまでの実験から得られた条件により Np を吸着させた吸着材から、Np を効率よく脱離する方法について塩酸、硝酸の濃度を変えて検討を行った。

【結果】〈^{236g}Np スパイクの製造〉 ^{232}Th+^{7}Li 反応により妨害核種となり得る ^{236m}Np、^{237}Np の他、スパイク候補核種である ^{236g}Np の生成が確認された。それぞれの Np 同位体の実測データにより作成した励起関数から、最も高い ^{236g}Np/^{237}Np 原子比は 8.18±1.31%と求まり、その照射エネルギーは 31 MeV 付近であることが明らかとなった。合成したパイロットスパイク中の Np 同位体組成の値付けが完了したため、今後は実試料の分析に利用する予定である。〈Np 濃集法の検討〉 脱離条件の検討において、最適化した Np 回収条件により得られた海水中 Np の吸着率は 92.4±4.7%であった。また、最も高い脱離率は 0.5 M 硝酸による 72.1±3.8%であった。今後、溶液中に脱離されたマトリクス元素の除去についても検討を進めていく。

Establishment of an analytical method for ^{237}Np in seawater for application as an oceanic circulation tracer

SAKAKIEDA, Y., NAKAJIMA, A., NAGAI, A., HOSOKAWA, H., YOKOYAMA, A., HABA, H., NAMBU, A., SHIGEKAWA, Y., ZHENG, J., SEKO, N., HOSHINA, H., KARIN H., ANDREAS W., SUEKI, K., YAMASAKI, S., TAKAKU, Y., SAKAGUCHI, A.

© 一般社団法人日本放射化学会

2A02 海水中の極微量 ^{99}Tc 高感度分析法の開発

(筑波大学理工学群化学類[1]、量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門[2]、原子力機構先端基礎研究センター[3]、筑波大学 数理物質系[4])○高見 佳[1]、鍋山 雄樹[1]、初川 雄一[2]、塚田 和明[3]、浅井 雅人[3]、末木 啓介[4]、山崎 信哉[4]、高久 雄一[4]、坂口 綾[4]

【序論】 核分裂生成核種である ^{99}Tc($T_{1/2}$=21.1 万年)は人類の核活動により環境に放出された。海水では水溶性化学種(TcO_4^-)の存在により拡散されやすく、環境動態トレーサー利用や放射線防護の観点から、海水中における ^{99}Tc の濃度定量が重要視されている。しかし、^{99}Tc は長半減期であり特に一般海水中では極低濃度であることから、放射線分析や質量分析のいずれにおいても測定が困難である。そのため、従来の ^{99}Tc 定量法では大量の海水および煩雑な分離濃縮操作が必要である。本研究では、質量分析法を用いて海水中極微量 ^{99}Tc を迅速・簡便に定量することを最終目的とし、ICP-MS の高感度化、海水からの迅速・簡便な ^{99}Tc 分離濃縮法の検討、^{95}Mo(p, n)反応による ^{95m}Tc 収率トレーサー製造を試みた。

【実験】 **<ICP-MS 高感度化>**プラズマ生成部への試料導入効率やイオン化効率向上、分析部へのイオン透過効率向上による高感度化を行った。また S/B 比の改善を目的として、He ガス導入によるバックグラウンド(BG)低減を試みた。分析に必要な海水量は、装置設定の最適化後に得られた ^{99}Tc のバックグラウンド相当濃度(BEC)を用いて見積もった。**<化学分離法検討>**高感度化した ICP-MS による ^{99}Tc 分析時の妨害核種(^{98}Mo、^{99}Ru)除去や、海水中の ^{99}Tc の濃縮を目的として、TEVA®レジンによる化学分離法を検討した。分析に必要な海水量をレジン(2 ml)に連続的に流した後、1 M 硝酸で洗浄、8 M 硝酸で Tc を溶離する一連の実験において、吸着、洗浄、溶離条件を変えることにより Tc(Re)の高収率、Ru、Mo の高除去率を目指した。**<トレーサー製造>**同位体濃縮(濃縮度 94.74%)した $^{95}MoO_3$ に 10 MeV のプロトンを照射し、^{95m}Tc を製造した。アルミナカラム、TEVA®レジンを用いて分離法の検討を行い、最終的に溶離した Tc フラクション溶液の γ 線分析および質量分析を行うことで、^{95m}Tc、^{99}Tc、^{98}Mo 濃度をそれぞれ定量した。これらの結果から ^{99}Tc 分析におけるトレーサーとしての使用可能性を検討した。

【結果と考察】 **<ICP-MS 高感度化>**試料溶液の脱溶媒化、差動排気室の高真空化、He ガスによる BG 低減の結果、最終的な感度は一般的な ICP-MS の約 60 倍に上昇した。このときの ^{99}Tc の BEC は 0.56 ppq であった。一般的な海水中の ^{99}Tc 濃度から、分析に必要な海水量は約 1.5 L(BEC の 10 倍)と計算された。**<化学分離法検討>** 1 M 硝酸によるカラム洗浄では、洗い流速が遅いほど妨害核種の除去係数が大きくなることが分かった。実海水試料量に適用した実験において、100 ml の 1 M 硝酸を用いて約 1 ml/min で洗浄した場合、Tc フラクション中の ^{98}Mo および ^{99}Ru は BEC 以下であった。この時の Tc(Re)回収率は 92±5%であった。**<トレーサー製造>**海水からの Tc 化学分離に要する ^{95m}Tc に混入する Mo は 100 ng と算出され、分析する海水中 Mo 総量の 1/1200 であった。また、^{95m}Tc トレーサー中に分析対象核種である ^{99}Tc は含まれていたものの、これら ^{95m}Tc/^{99}Tc 比(Bq/fg)を正確に定量することで、トレーサーとして使用可能である。

Development of a highly sensitive analytical method for ultra-trace 99Tc in seawater
TAKAMI K., NABEYAMA Y., HATSUKAWA Y., TSUKADA K., ASAI M., SUEKI K., YAMASAKI S., TAKAKU Y., SAKAGUCHI A.

© 一般社団法人日本放射化学会

2A03 Sr 収着剤を用いた海水中の放射性ストロンチウムの迅速測定法の改良

(東京慈恵会医科大学[1]、愛知医科大学[2]、日本レイテック[3]、九州大学[4])
○箕輪 はるか[1]、緒方 良至[2]、小島 貞男[2]、有信 哲哉[2]、加藤 結花[3]、杉原 真司[4]

【緒言】 我々は環境中の放射性 Sr の迅速・安全・安価な分析法の開発を進めている。ケイ酸バリウムを主成分とする収着剤“ピュアセラム MAq”(日本化学工業)が Sr を選択的に吸着(収着)することを利用し、収着させた ^{90}Sr の β 線を測定し定量する方法を開発した。これまでの研究により、海水の主成分元素(Na, K, Ca, Mg)は本収着剤にほぼ収着せず(<1%)、^{137}Cs を用いた実験で Cs 収着率は 0.001%以下であった。Sr の収着には SO_4^{2-} イオンが必要で、難溶性の硫酸ストロンチウムとして収着すると考えられる。海水 100 mL あたり収着剤 150 mg を使用した 2〜4 時間の撹拌により Sr が 90%以上収着した。本研究ではこの放射性 Sr 迅速測定法の改良を目指し、より低濃度の試料に適用するため複数の測定法を比較検討した。

【実験】 ^{90}Sr トレーサーを添加した海水 100 mL に対し収着剤 150 mg の割合で投入し、4 時間撹拌して試料水中の Sr を 90%以上収着させた。収着剤を集め Sr の β 線を以下の４つの方法で測定した。(1)ガスフローカウンタによる測定(LBC 法)、(2)プラスチックシンチレーションボトル(Plastic Scintillation Bottle, PSB)を用いた液体シンチレーションカウンタによる測定(PSB 法)、(3)乳化シンチレータを用いた液体シンチレーションカウンタによる測定(汎用 LSC 法)。(4)ゲル懸濁シンチレーションカクテルを用いた液体シンチレーションカウンタによる測定(ゲル懸濁法)。測定時間 60 分として検出限界値を算出した。

【結果と考察】 (1) **LBC 法**:海水試料 50 mL に収着剤 75 mg を適用し、低 BG ガスフローカウンタ(LBC-4601, Hitachi Ltd.)により測定した場合、検出限界値は 0.6 Bq L^{-1} となった。収着剤が 100 mg を超えると自己吸収の影響で定量的な測定が困難となる。^{85}Sr を用いた実験による本収着剤の Sr 収着能力から算出すると、標準的な海水(Sr 濃度: 8 mg/kg)の場合、この方法での試料量の限度は 50 mL 程度である。この測定法は少ない試料量で迅速に低コストで測定したい場合に有用である。(2) **PBS 法**:濾紙に回収した収着剤をポリエチレンフィルムで熱圧着し、2 個のプラスチックシンチレータに挟み、低 BG 液体シンチレーションシステム(AccuFLEX LSC-LB7, Hitachi Ltd.)で測定した。収着剤は最大 150 mg、海水試料量 100 mL まで適用可能であり、検出限界値は 0.5 Bq L^{-1} であった。この方法は廃シンチレータなどの廃液を出さない測定法である。(3) **汎用 LSC 法**:収着剤を乳化シンチレータ(Clear-sol II, Nakarai Tesque)とともにバイアルに入れ、汎用液体シンチレーションカウンタ(LSC-6100, Aloka)で測定した。収着剤は最大 750 mg、海水試料量 500 mL まで適用可能であり、検出限界値は 0.12 Bq L^{-1} であった。この方法は汎用性の高い方法である。(4) **ゲル懸濁法**:収着剤をゲル懸濁シンチレーションカクテル(Ecoscint-GL, National Diagnostics Inc.)で懸濁させ、液体シンチレーションカウンタで測定した。収着剤は最大 1.5 g、海水試料量 1 L まで適用可能であった。検出限界値は 0.06 Bq L^{-1} であり、本研究において最も低い濃度まで測定可能であった。

【結論】 本分析法の化学操作は簡便で操作時間は 5 時間以下であり、劇物を使用しない。測定目的、現有機器、コストなどを考慮し、適切な測定方法を選択することができる。本法が海水中放射性 Sr の有効な分析法であることを示した。

Improvement of rapid analysis of radiostrontium in seawater using Sr sorption-reagent
MINOWA H., OGATA Y., KOJIMA S., ARINOBU T., KATO Y., SUGIHARA S.

© 一般社団法人日本放射化学会

セッションC　環境放射能

2C2

座長:小池 裕也(明治大学)

2023年9月22日(金) 11:10 ～ 12:10 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2A04] オホーツク海、道東海域における^{134}Cs濃度の経年変動からみた海水循環

*真下 海成[1]、井上 睦夫[1]、谷内 由貴子[2]、中野渡 拓也[2]、帰山 秀樹[2]、乙坂 重嘉[3]、長尾 誠也[1] （1. 金沢大学、2. 水産機構・資源研、3. 東京大学）

11:10 ～　11:30

[2A05] インド洋～南大洋の137Csの空間分布

*光主 隼大[1]、真下 海成[1]、井上 睦夫[1]、長尾 誠也[1]、熊本 雄一郎[2] （1. 金沢大学、2. JAMSTEC）

11:30 ～　11:50

[2A06] 放射性セシウムと放射性ヨウ素を用いた北極海の海水循環研究

*熊本 雄一郎[1]、浜島 靖典[2]、西野 茂人[1]、井上 睦夫[2]、永井 尚生[3]、松崎 浩之[4]、山形 武靖[4]、村田 昌彦[1]、菊地 隆[1] （1. 国立研究開発法人海洋研究開発機構、2. 金沢大学、3. 日本大学、4. 東京大学）

11:50 ～　12:10

©一般社団法人日本放射化学会

2A04 オホーツク海、道東海域における ^{134}Cs 濃度の経年変動からみた海水循環

(金沢大[1]、水産機構・資源研[2]、東京大学[3])○真下海成[1]、井上睦夫[1]、谷内由貴子[2]、中野渡拓也[2]、乙坂重嘉[3]、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 FDNPP 事故由来であり、供給場所とその時期 (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、さらにオホーツク海南西域における ^{134}Cs 濃度の鉛直分布を比較することにより、本海域を取り巻く海水循環および縁海の汚染物質貯蔵を議論する。

【実験】 2018-2023 年の北光丸調査航海にて北海道道東海域表層海水試料を、2017-2023 年の蒼鷹丸航海にてオホーツク海南西域で鉛直海水試料 (～100 L/試料) を採取した。リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 沈殿法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使用した極低バックグラウンド γ 線測定法を適用し、^{134}Cs、^{137}Cs 濃度を測定した。

【結果と考察】 北海道道東沖では表層の ^{134}Cs 濃度 (原発事故時に壊変補正) が、2020 年に最大値を示した (図. 1)。福島原発由来の ^{134}Cs が主要海流とともに反時計回りに北太平洋を循環、アメリカ西海岸近海を経由し 10 年かけて道東に到達したことが考えられた。一方、2023 年 1 月に、その濃度は再度上昇した。これに対し道東沖へ影響をもたらすオホーツク海西南域では、表層の ^{134}Cs 濃度および ^{134}Cs インベントリー (水柱単位面積当たりの ^{134}Cs 総量) が 2017 年から 2022 年まで徐々に上昇を続けている。本年会では、オホーツク海における ^{134}Cs の循環パターン、親潮寒流域への影響を議論する。

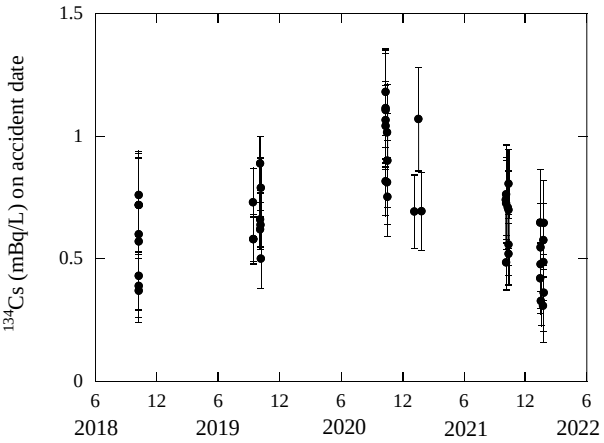


図.1 北海道道東沿岸～沖合の ^{134}Cs 濃度

【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、蒼鷹丸の船長、乗組員、および同乗研究者の皆様に感謝いたします。

Temporal Variations in ^{134}Cs Concentration in the southwestern Sea of Okhotsk and off Doto; Implications for Water Circulations in northern North Pacific Ocean.(Kanazawa-Univ.)
Mashita, K., Inoue, M., Taniuchi, Y., Nakanowatari, T., Otosaka S., Nagao S.

© 一般社団法人日本放射化学会

2A05

インド洋～南大洋の ^{137}Cs の空間分布

(金沢大[1]、JAMSTEC[2])○光主隼大[1]、真下海成[1]、井上睦夫[1]、長尾誠也[1]、熊本雄一郎[2]

【緒言】^{137}Cs は 1950 年代からの大気圏内核実験などにより海洋表層にもたらされた人工放射性核種である。海水に溶存性であることから、その濃度分布は海水循環のトレーサーとして頻繁に使用されてきた。一方で太平洋に比べ、インド洋、特に南インド洋南部から南大洋の鉛直の報告例はない。本結果は、溶存汚染物質の循環パターンを推測するうえでも重要である。

【実験】インド洋～南大洋（0°S～60°S）において 2019 年 12 月～2020 年 1 月に JAMSTEC 調査船「みらい」航路上の 6 地点の水深 0-1000m で海水試料(～40L/試料)を採取（図 1)。リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 沈殿法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 Ge 検出器を使用した極低バックグラウンドγ線測定法を適用し、^{137}Cs 濃度を測定した。

【結果と考察】各地点の ^{137}Cs 鉛直プロファイルを図 2 に示す。20°S 以北では、深層ほど大きく減少した。一方で、~30°S–60°S では、鉛直変動は小さく、さらに南大洋に近づくほど濃度が減少した。地点ごとに異なる鉛直分布は、それぞれの海域の鉛直混合を反映する。本年会では先に報告のある ^{226}Ra, ^{228}Ra 濃度とも比較しながら、溶存成分の循環プロセスを議論する。

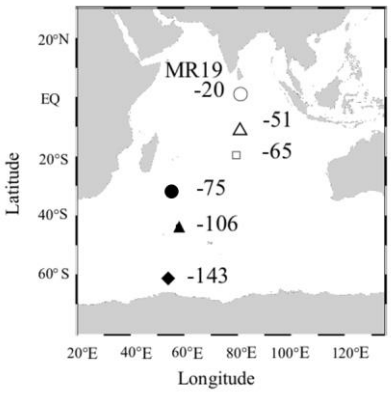


図.1 試料採取地点

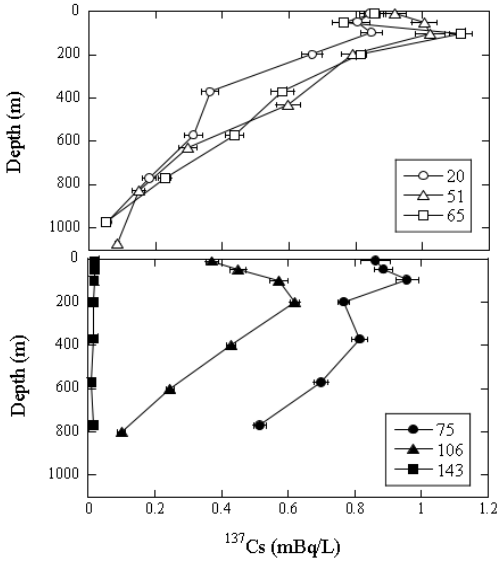


図.2 ^{137}Cs 濃度の鉛直分布

【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、JAMSTEC 調査船みらいの船長、乗組員、および同乗研究者の皆様に感謝いたします。

Spatial distribution of ^{137}Cs concentrations in the Indian Ocean and Southern Ocean (2023)
MITSUNUSHI, H., MASHITA, K., INOUE, M., NAGAO, S., KUMAMOTO, Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

2A06 放射性セシウムと放射性ヨウ素を用いた北極海の海水循環研究

(海洋研究開発機構[1]、金沢大[2]、日本大[3]、東京大[4])○熊本雄一郎[1]、浜島靖典[2]、西野茂人[1]、井上睦夫[2]、永井尚生[3]、松崎浩之[4]、山形武靖[4]、村田昌彦[1]、菊地隆[1]

【緒言】 温暖化に伴う北極海の夏季の海氷減少は、同海の海水循環に影響を与えていると考えられる。しかし、その実態は未解明の部分も多い。1960 年代以降英国セラフィールド、仏国ラ・アーグの核燃料再処理工場から北部北大西洋に放出された放射性セシウム（Cs-137）と放射性ヨウ素（I-129）は、極向きの表面海流に沿って北極海に流入した。それらの北極海中濃度の時間変化から、同海における海水循環の時間スケールとその変化が議論することができる。2020 年の観測で我々が得た最新の結果を含めて、その研究成果を紹介する。

【方法】 Cs-137 と I-129 を測定するための海水試料は、海洋研究開発機構の「みらい」MR20-05C 航海（2020 年 9～11 月）中、北極海カナダ海盆の観測点（北緯 74.5 度／西経 161.9 度）において、表層から深度 800 m までの 9 層で採取された。Cs-137 は、海水約 40L にキャリア Cs を添加後、硝酸酸性下でリンモリブデン酸アンモニウムに選択的に吸着させることによって濃縮した。測定は、金沢大学低レベル放射能実験施設の低バックグランド仕様 Ge 半導体検出器を用いて行った。I-129 は、海水約 1L にキャリア I を添加後、溶媒抽出されたものをヨウ化銀沈殿として回収した。測定は、東京大学タンデム加速器研究施設の加速器質量分析計を用いて行った。

【結果と考察】 北極海カナダ海盆の深度 800 m 以浅の海水は、大まかに 2 つの起源を持つ。ひとつはおおよそ 200 m 以浅の低温・低塩分の太平洋起源水であり、その下層の高温・高塩分の大西洋起源水とは明瞭に区別される。また核燃料再処理工場からの漏洩のため、大西洋起源水の Cs-137 と I-129 濃度は太平洋起源水よりも高い。2020 年の観測結果でも、深度 200～800 m の大西洋起源水の Cs-137 と I-129 濃度（2～3 Bq m^{-3} と 2～3×10^{12} atoms m^{-3}）は、深度 200 m 以浅の太平洋起源水の濃度（1～2 Bq m^{-3} と 0.1～1×10^{12} atoms m^{-3}）よりも高かった。Cs-137 と I-129 はともに核燃料再処理工場にその起源を持つが、放出履歴が異なるため I-129／Cs-137 濃度比は 1980 年以降徐々に増大している。もし北部北大西洋の流出海域の表層海水が北極海カナダ海盆に輸送されるまでの間に、その濃度比が大きく変わっていないと仮定すると、流出海域とカナダ海盆のそれらを比較することによって、両海域間の表層水輸送時間を推定できる。2020 年にカナダ海盆で得られた濃度比より、流出海域からカナダ海盆に大西洋起源水が到達するのに約 25 年を要したことが推定された。一方、カナダ海盆のほぼ同じ観測点において 1993 年に測定された大西洋起源水の I-129／Cs-137 濃度比（Smith et al., 1998）からは、その輸送時間は 10 年程度と短く見積もられた。このことは、北極海カナダ海盆表層に存在する高気圧性循環流（Beaufort Gyre）の十数年スケールの変動によって、北極海の表層循環パターンが変化していることを示唆している（Smith et al., 2021）。

【謝辞】 本研究は、the Arctic Challenge for Sustainability (ArCS) Project, the Arctic Challenge for Sustainability II (ArCS II) Project (JPMXD1420318865)、金沢大学環日本海域環境研究センター共同研究（19042、20042、22076）の補助を受けて実施された。

Studies on the water circulation in the Arctic Ocean by means of radiocesium and radioiodine

KUMAMOTO Y., HAMAJIMA Y., NISHINO S., INOUE M., NAGAI H., MATSUZAKI H., YAMAGATA T., MURATA A., KIKUCHI T.

© 一般社団法人日本放射化学会

セッションC　環境放射能

2C3

座長:桧垣 正吾(東京大学)

2023年9月22日(金) 13:40 ～ 15:00 A会場 (サタケメモリアルホール)

[3A13] 広島原爆によって生成したウランを含有する降下物粒子の検出手法の開発

*東江 直樹[1]、高宮 幸一[1]、稲垣 誠[1]、沖 雄一[1]、福谷 哲[1]、八島 浩[1]、芝原 雄司[1]、足立 友紀[2]、五十嵐 康人[1] （1. 京大複合研、2. （株）アトックス）

13:40 ～　14:00

[2A08] 質量分析法を用いた酸化還元環境の異なる地下水における$^{234}U/^{238}U$同位体比の変動把握

*栗林 千佳[1]、谷水 雅治[1] （1. 関西学院大学大学院理工学研究科）

14:00 ～　14:20

[2A09] 多重検出器型 ICP質量分析計を用いた東京湾堆積物中人為的ウランの同位体分析及び起源識別

*山本 康太[1]、大野 剛[2]、北村 豪[2]、高橋 宏明[1]、平田 岳史[3] （1. 原子力規制庁、2. 学習院大学、3. 東京大学）

14:20 ～　14:40

[2A10] 別府湾の堆積物を用いた表層環境への I-129導入史の復元

*史 志圓[1,2]、加 三千宣[3]、笹 公和[2]、松村 万寿美[2]、高橋 努[2]、高久 雄一[4]、山﨑 信哉[4]、末木 啓介[2,4]、坂口　綾[2,4] （1. 筑波大学大学院 理工情報生命学術院　生命地球科学研究群　環境学学位プログラム、2. 筑波大学 AMSグループ、3. 愛媛大学　沿岸環境科学研究センター、4. 筑波大学 数理物質系）

14:40 ～　15:00

©一般社団法人日本放射化学会

3A13 広島原爆によって生成したウランを含有する降下物粒子の検出手法の開発

(京大複合研[1]、(株)アトックス[2])○東江直樹[1]、高宮幸一[1]、稲垣誠[1]、沖雄一[1]、福谷哲[1]、八島浩[1]、芝原雄司[1]、足立友紀[2]、五十嵐康人[1]

【緒言】広島原爆により生成したと推測される ^{235}U を含有する降下物粒子の探索手法として、重液分離とフィッショントラック法を組み合わせた手法を考案した。黒い雨降雨域内とされる地点、及び域外とされる地点で採取した土壌試料を対象とし、本手法を適用した結果、降雨域内とされる地点からは ^{235}U 含有粒子によるものと推測される飛跡集合体が多数検出された。しかし、天然ウランが多く存在する条件では、原爆由来かどうかの識別が困難であることがわかった。

【実験】実験には広島県内の地点A(爆心地から西に数kmの黒い雨降雨域内とされる地点)、地点B(爆心地から東に約25 kmの黒い雨降雨域外とされる地点)の2地点で採取した土壌試料を用いた。1層あたり深さ10 mmずつ土壌を採取し、深さ300 mmまで合計30層採取した。

重液分離とフィッショントラック法を組み合わせた分析法を用い、土壌試料中に存在する ^{235}U を高濃度で含有する(濃縮ウラン)粒子の検出を試みた。地点A･B各層の土壌試料5 gを、比重3 g/mlのポリタングステン酸ナトリウム溶液で重液分離し、高比重粒子を抽出した。抽出した高比重粒子を固体飛跡検出器(CR-39)に密着させ、京都大学研究用原子炉にて約 10^{10} n/cm^2/sの中性子線束で1時間照射した。照射後CR-39をエッチングし、光学顕微鏡で観察すると、濃縮ウラン粒子の存在を示唆する飛跡の集合したクラスターが観察された。このようなクラスターを計数し、深度毎に比較した結果、地点Aのクラスター数が、地点Bより明らかに多くなったため、地点Aで観察されたクラスターには原爆由来の濃縮ウラン粒子が含まれている可能性があると考えた。また地点Aでは、^{137}Cs の放射能濃度が40-50 mmの層で最大値となり、深度が進むにつれて減少したため、クラスター数も同様の傾向を示すと推測したが、250-260 mmの層で最大値となった。

次にクラスター数が最大値となった地点Aの250-260 mmの層の照射試料を対象に、SEM/EDXを用い、外観観察や元素分析を行ない、クラスターを形成したと考えられる濃縮ウラン粒子を複数特定した。以上のことから、本手法により濃縮ウラン粒子の検出が可能であることがわかった。

SEM/EDXで発見した濃縮ウラン粒子を含む照射試料を対象に、イオン交換法などを用いた前処理を行い、ウランを抽出し、TIMSにて同位体分析を行なった。その結果、照射試料に含まれる $^{235}U/^{238}U$ は天然存在比と同程度であった。したがって、250-260 mmの層のクラスターを作った粒子のほとんどが天然ウランであり、原爆由来の ^{235}U 含有粒子が存在したとしても、極微量であると推測した。そのため、粒子を特定するためには、検出方法のさらなる改善が必要と結論された。

Development of a detection method for uranium-bearing fallout particles produced by the atomic bomb in Hiroshima

(1. Kyoto Univ., 2. ATOX CO., LTD.) ○Naoki Toe[1], Koichi Takamiya[1], Makoto Inagaki[1], Yuichi Oki[1], Satoshi Fukutani[1], Hiroshi Yashima[1], Yuji Shibahara[1], Tomonori Adachi[2], Yasuhito Igarashi[1]

© 一般社団法人日本放射化学会

2A08 質量分析法を用いた酸化還元環境の異なる地下水における $^{234}U/^{238}U$ 同位体比の変動把握

(関西学院大院理工[1])○栗林千佳[1]、谷水雅治[1]

水溶液中のウラン（U）は酸化還元電位（Eh）の変化に伴って化学形態が変化し、酸化的な環境ではU(VI)の溶存種として安定であるのに対し、還元的な環境ではU(IV)の沈殿物を生成する。この化学形態の変化は地下水中でのUの溶解度に影響を与えるため、地層処分の安全評価の観点から、地下水環境中におけるUの挙動を把握することは重要である。

Uは^{234}Uと^{238}Uの半減期の違いにより、閉鎖系において数百万年経過すると、両核種の放射壊変速度が等しくなる放射平衡が観測される。しかし、岩石中の鉱物からの^{234}Uの優先的な溶出により、地下水中のUは放射非平衡状態である場合が多く、また、放射非平衡の程度（*AR*）は帯水層の母岩の種類や地下水年代に依存して変動する。さらに、還元的な地下水では、^{238}Uが不溶性のUO_2として優先的に除去されるため、*AR*が増大することが知られている。この地下水環境ごとに*AR*が異なる値をとる性質を利用し、ウラン同位体比（$^{234}U/^{238}U$ 比）は地下水流動を把握するための有用なトレーサーとしての応用が試みられている。本研究では、地下水環境における*AR*の保存性の高さと、酸化還元環境の変化に伴うUO_2の生成によって*AR*が増大する性質に着目し、$^{234}U/^{238}U$ 比を用いた地下水環境中でのU の挙動の把握を試みた。そこで、従来の$^{234}U/^{238}U$ 比の分析法である放射線計測法に対して検出感度の高い質量分析法を用いて、Ehの異なる地下水中の*AR*の変化を測定し、*AR*とEhの関係性について検討した。

本研究では2地域の地下水試料を用いた。熊本県阿蘇山西麓地域は、阿蘇山に由来する第四紀火砕流堆積を帯水層とし、流動に伴って酸化的な環境から還元的な環境に変化しEhの減少がみられることから、当該地域の浅層地下水を用いて1つの地下水系における*AR*の変動を調査した。北海道幌延地域は、鮮新世～第四紀に形成した珪藻質泥岩および中新世～鮮新世に形成した珪質泥岩を帯水層とし、UO_2沈殿が生成するほど還元的な地下水である。このことから、当該地域の低流動性の深層地下水を採取し、極端な還元環境下における*AR*の変動を調査した。質量分析法を用いた$^{234}U/^{238}U$ 比分析法として、これらの地下水試料中の主要溶存元素を、鉄共沈法および陰イオン交換分離法を用いて除去したのち、二重収束多重検出型ICP質量分析装置（NEPTUNE）で$^{234}U/^{238}U$ 同位体比を測定し、壊変定数から*AR*を算出した。*AR* = 1のとき、放射平衡状態を表す。

分析の結果、熊本県阿蘇山西麓地域の浅層地下水の*AR*は1から3を示し、*AR*は約+100 mV Ehより低い環境で増加した。これは放射線計測法を用いて*AR*を測定した先行研究（Priestly *et al.*, 2018）の傾向と一致した。また、北海道幌延地域の深層地下水の*AR*は2から11であり、*AR*とEhの関係性について論じている先行研究の中で最もウラン濃度が低い地下水環境における*AR*が得られたことがわかった。

Variation of $^{234}U/^{238}U$ isotope ratios in groundwater under different redox environments
KURIBAYASHI, C., TANIMIZU, M.

© 一般社団法人日本放射化学会

2A09 多重検出器型 ICP 質量分析計を用いた東京湾堆積物中人為的ウランの同位体分析及び起源識別

（原子力規制庁[1]、学習院大[2]、東京大[3]）○山本康太[1]、大野剛[2]、北村豪[2]、高橋宏明[1]、平田岳史[3]

【緒言】人間活動において利用されたウランは、濃縮、再処理、核反応等の履歴に応じて固有の同位体組成を持つ。^{236}U は天然には実質的に存在しないが、使用済燃料から回収したウランを原料に用いた場合、ウラン濃縮の副産物（減損ウラン）中には ^{236}U が含まれる。この減損ウランの天然ウランへの混入は、高い ^{236}U/^{238}U 及び低い ^{235}U/^{238}U によって特徴付けられる。そのため、環境試料中の ^{236}U/^{238}U 及び ^{235}U/^{238}U は、人為的ウランの起源を特定するための良い指標である。^{236}U/^{238}U 及び ^{235}U/^{238}U の測定には表面電離型質量分析計[1]、二次イオン質量分析計[2]、三連四重極型 ICP 質量分析計[3]、多重検出器型 ICP 質量分析計（MC-ICP-MS）[4]等が用いられている。MC-ICP-MS には、感度（^{238}U$^+$の透過率約 0.5%）、精度（^{235}U/^{238}U <1‰）及び迅速性（約 20 分／試料）について優位性がある。他方、^{238}U$^+$、^{235}UH$^+$及び ^{196}Pt^{40}Ar$^+$の ^{236}U$^+$への質量スペクトル干渉が課題である。本研究では、長半減期核種の分析に係る要素技術の科学的・技術的知見を蓄積することを目的としてこれらの課題に対処し、取得した同位体比に基づき東京湾堆積物の地球化学標準物質である JMS-1 中の人為的ウランの起源を識別した。

【実験】JMS-1 粉末 0.05 g を白金るつぼ中で炭酸ナトリウム 0.5 g と混合し、1000 °C で 20 分間加熱することで融解した。融解試料を放冷した後、6 M HCl に溶解させた。また、東京湾内外の太平洋沿岸海水を採取し、ウランをフェリハイドライトに吸着させ、続いて 6 M HCl に溶解させた後、分液操作により鉄をメチルイソブチルケトン相に除去した。いずれの試料も抽出クロマトグラフィーにより化学分離を行った。ウラン同位体比測定には、RPQ レンズを用いたエネルギーフィルタを搭載した MC-ICP-MS を用いるとともに脱溶媒試料導入法を採用した。

【結果と考察】アルカリ融解した試料の質量スペクトル上には、るつぼ由来の Pt 及びイオン源由来の Ar からなる ^{196}Pt^{40}Ar$^+$の信号が認められたため、質量分解能を高めて ^{236}U$^+$のピークと分離した。実質的に ^{236}U を含まない石灰岩の地球化学標準物質である JLs-1 を分析した際の *m/z* 236.18 及び 238.18 における信号強度の比から、^{238}U$^+$テーリング及び ^{235}UH$^+$による干渉の程度は、合わせて(2.1–2.5) × 10^{-8} と見積もられた。この値と ^{236}U 含有試料の ^{238}U$^+$の信号強度との積を、^{236}U 含有試料の ^{236}U$^+$の信号強度の実測値から差し引くことにより、^{236}U 含有試料の ^{236}U$^+$の正味の信号強度を算出した。以上の測定及び解析条件の下、海水試料の ^{236}U/^{238}U は(2.5–7.9) × 10^{-9} と求められた。また、JMS-1 は海水と比べて高い ^{236}U/^{238}U（(66–94) × 10^{-9}）及び低い ^{235}U/^{238}U（(7.241–7.249) × 10^{-3}）を有していた。本結果は、減損ウランが東京湾堆積物に混入したことを示唆する。以上をとおして、要素技術（試料の溶解、化学分離、質量分析等）に係る知見を得た。

本研究は、原子力規制庁と JAEA、東京大、東京工業大、QST 及び京都大との共同研究「長半減期放射性核種等の特性評価方法に関する研究」の成果の一部を含む。

【参考文献】[1] Richter et al., Int. J. Mass Spectrom. 193 (1999) 9–14. [2] Ranebo et al., J. Anal. At. Spectrom. 24 (2009) 277–287. [3] Tanimizu et al., J. Anal. At. Spectrom. 28 (2013) 1372–1376. [4] Lin et al., Anal. Chem. 91 (2021) 8442–8449.

Isotopic analysis and source identification of anthropogenic uranium in Tokyo Bay sediments using a multi-collector ICP-mass spectrometer

Yamamoto K., Ohno T., Kitamura G., Takahashi H., Hirata T.

© 一般社団法人日本放射化学会

2A10 Reconstruction of ^{129}I Input History to the Surface Environment Using a Sediment Core from Beppu Bay

(Univ of Tsukuba, Environmental Studies[1], Univ of Tsukuba, AMS Group[2], Ehime Univ, CMES[3], Univ of Tsukuba, Institute of Pure and Applied Sciences[4]○SHI Z[1,2], KUWAE M[3], SASA K[2], MATSUMURA M[2], TAKAHASHI T[2], TAKAKU Y[4], YAMASAKI S[4], SUEKI K[2,4], SAKAGUCHI A[2,4]

[Introduction] The Earth's environment has changed dramatically due to human activities, now it is already in a new geological epoch: the Anthropocene. To describe this new geological time scale, Global Boundary Stratotype Section and Point (GSSP) is considered as a promising way to give a definition of the Anthropocene.[1] In many certificated parameters of GSSP, radionuclides have been considered as important age markers. Iodine-129 (^{129}I) is a long half-life fission product, which mainly released from human nuclear activities, and has now been used as a powerful tool to trace the human nuclear activities. In this study, the variation of iodine isotopes (^{127}I and ^{129}I) in sediments was aimed to obtain to evaluate the possible usage of anthropogenic ^{129}I as a geological time marker for the Anthropocene.

[Materials and method] A sediment core was collected from Beppu Bay (33° 16'40.6"N, 131° 32'35.2"E; 70.7m water depth) in September 2019 using multiple corers, and cut into 1 cm segments from the sediment surface to in 90cm depth. Each layer dated by the ^{210}Pb, ^{137}Cs and stratigraphic methods.[2] Iodine was extracted by TMAH leaching method and the Pyrohydrolytic Procedure method. The iodine ^{127}I concentrations were measured by ICP-MS with ^{185}Re as an internal standard solution.^{129}I/^{127}I ratios were measured by AMS after appropriate chemical separation.

[Results and discussion] Iodine isotope fluxes have been successfully constructed from 1930 to 2019, and their origin has been separated into terrigenic and authigenic sources. Variation of authigenic ^{127}I flux is relatively uniform from 1930 to 1997, suggesting that ^{127}I was deposited constantly during this period. For the flux of authigenic ^{129}I, it showed that the migration of ^{129}I was occurred in the deeper layers. The variation is basically the same as the ^{129}I/^{127}I ratio from the Iki island coral core.[3] This suggests that the input history of authigenic ^{129}I was successfully reconstructed from this core. However, the variation also suggests that ^{129}I is not a perfectly ideal radionuclide to use as an age marker for the GSSP because it does not show the specific peak like ^{239}Pu, and also has migration in the sediments.

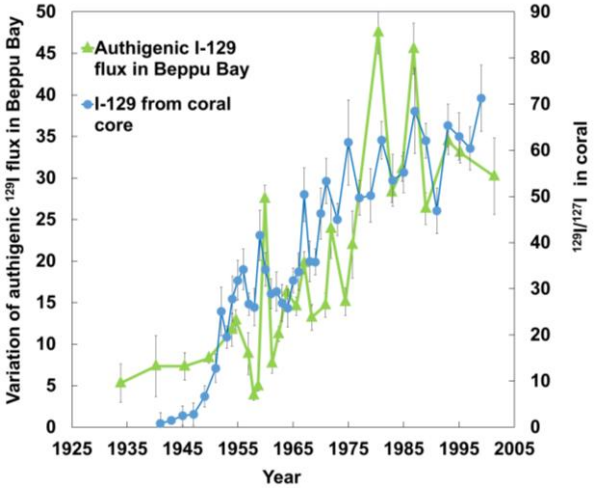


Fig.1 Authigenic ^{129}I variations from Beppu Bay sediments and coral core of Iki Island

[References][1] Waters et al.,2018, Nat Rev Earth Environ 178,379-429. [2] Kuwae et al., 2023, Anthr Rev 10(1),49–86. [3] Sakaguchi et al., 2018, Mar Environ Res 142,91-99.

© 一般社団法人日本放射化学会

セッションE　原子力・アクチノイド化学及び関連分野

2E1

座長:風間 裕行(日本原子力研究開発機構)

2023年9月22日(金) 10:00 ～ 11:00 B会場 (学士会館)

[2B01] 原子炉過酷事故時に於ける燃料溶融反応のその場測定技術の開発 (1)装置開発と加熱試験

*小無 健司[1]、松尾 悟[1]、有田 裕二[2]、新納 圭亮[2]、生田 陸人[2]、矢板 毅[3]、谷田 肇[3]、小林 徹[3]、福田 竜生[3]、小畠 雅明[3]、伊藤 あゆみ[4]、吉田 健太[1] （1. 東北大学、2. 福井大学、3. 日本原子力研究開発機構、4. 東京工業大学）

10:00 ～　10:20

[2B02] 原子炉過酷事故時に於ける燃料溶融反応のその場測定技術の開発(2)解析

*伊藤 あゆみ[1]、小無 健司[2]、松尾 悟[2]、有田 裕二[3]、新納 圭亮[3]、生田 陸人[3]、矢板 毅[4]、谷田 肇[4]、小林 徹[4]、福田 竜生[4]、小畠 雅明[4] （1. 東京工業大学、2. 東北大学、3. 福井大学、4. 日本原子力研究開発機構）

10:20 ～　10:40

[2B03] (Zr,Ce)O_2固溶体の溶解挙動の考察

*小林 大志[1]、池田 篤史[2]、松村 大樹[2]、佐々木 隆之[1] （1. 京都大学大学院、2. 日本原子力研究開発機構）

10:40 ～　11:00

©一般社団法人日本放射化学会

2B01 原子炉過酷事故時に於ける燃料溶融反応のその場測定技術の開発 (1)装置開発と加熱試験

(東北大学[1]、福井大学[2]、原子力機構[3]、東工大[4])○小無健司[1]、松尾悟[1]、有田裕二[2]、新納圭亮[2]、生田陸人[2]、矢板毅[3]、谷田肇[3]、小林徹[3]、福田竜生[3]、小畠雅明[3]、伊藤あゆみ[4]、吉田健太[1]

【目的】 東京電力福島第一発電所事故のような過酷事故時に、核燃料の溶融反応がどのように始まるかはその後の事故進展シナリオを考える上で重要である。図1に示すように核燃料と被覆管(ここでは Zr と示す)が接する面で反応し、様々な相を形成すると考えられている。しかし、実際には高温での実験が難しいため、どのように反応が進展するか分かっていない。本研究では、新しく開発された加熱手法と SPring-8 の放射光を用いて、高温での燃料の反応をその場観測する手法の開発を目指している。

【実験方法】最近、タングステン板にスリットを入れ、試料を装荷し、試料を高温まで加熱する方法が開発された(図2)[(1)]。W 板には幅 60μm 程度のスリットが設けられており、その先端に試料を装荷した。W ホルダーに電流を流し試料を～3,000K まで加熱した。W 試料ホルダーの厚さは 500μm であり。このスリットに試料を装荷した。実際の密度は理論密度よりも低く放射光(X 線)が透過することが出来る。試料を透過した X 線を用いて X 線回折と XAFS 測定を行った。本研究では、この方法を応用し、高温での核燃料の溶融反応がどのように始まるかをその場その場観察する。

【結果】UO_2 の模擬として Y_2O_3 を用いて、高温での Zrと Y_2O_3 の反応を調べた。Y_2O_3 の融点(2,425℃)以上に加熱し、温度上昇につれてどのような反応が起こるかを、X 線回折と XAFS(X 線吸収微細構造)を用いてその場観察することに成功した。

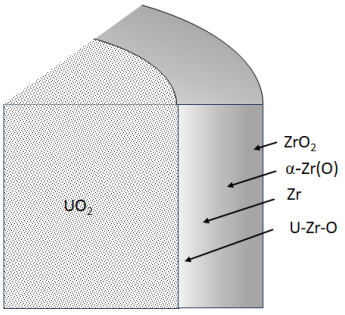


図 1 核燃料と被覆管の反応相

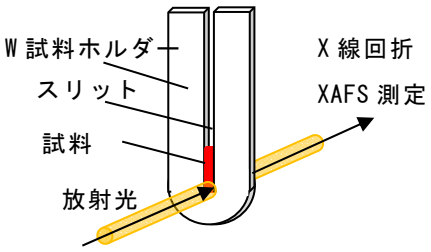


図 2 高温加熱用 W 試料ホルダー

参考文献
(1) 小無健司、有田裕二、矢板毅、森本恭一、渡辺博道、他 特願 2022-132855、「試料加熱ホルダーとその使用方法」

Development of in-situ measurement technology for fuel melting reactions during severe reactor accidents(1) Device development and heating test
KONASHI K., ARITA, Y. ,NIINO Y., IKUTA R. YAITA T., TANIDA H., KOBAYASHI T, FUKUDA T., KOBATA M., ITOH A.

© 一般社団法人日本放射化学会

2B02 原子炉過酷事故時に於ける燃料溶融反応のその場測定技術の開発 (2) 解析

(東工大[1]、東北大学[2]、福井大学[3]、原子力機構[4]) ○伊藤あゆみ[1]、小無健司[2]、松尾悟[2]、有田裕二[3]、新納圭亮[3]、生田陸人[3]、矢板毅[4]、谷田肇[4]、小林徹[4]、福田竜生[4]、小畠雅明[4]

【緒言】東京電力福島第一発電所事故のような過酷事故時に、核燃料の溶融反応がどのように始まるかはその後の事故進展シナリオを考える上で重要である。これまでは UO_2 るつぼに Zr を装荷した試料を高温まで加熱し、試験後にその反応物を室温で観察することで情報を得ていた。本研究では、新しく開発された加熱手法と SPring-8 の放射光を用いて高温での燃料の反応を直接観測する手法を開発する。従来の事故解析に用いられている燃料溶融モデルは、UO_2-Zr るつぼ高温加熱試験後試料から Zr に溶解した U 量を分析し温度と保持時間に対して関数化したものである。しかし、当該モデルには昇温／降温過程における反応の影響がすべて含まれているうえに、試料寸法の違いによっても溶融速度が異なる例が報告されており不確かさが大きい。そこで、本研究では、燃料溶融が始まる条件評価に対する不確かさを低減するために、開発したその場測定技術を用いて得られるX線回折像とXAFS(X線吸収微細構造)スペクトルから燃料溶融に至る構造変化を解明する。

【解析】UO_2 の模擬物質として Y_2O_3 を用いて、高温での Zr と Y_2O_3 の反応をその場観察し、Zr の酸化・溶融、Y_2O_3 溶融反応過程における XRD および XAFS スペクトルを得た(本シリーズ発表(1))。試料を透過したX線の回折像を1次元プロファイル化した。また、測定された透過光強度を入射 X 線エネルギーと吸収係数のスペクトルに変換後、吸収端エネルギーの決定とバックグラウンド除去処理を行い、吸収エッジジャンプに対して正規化した。これらのデータを用いて、(1)XRD 回折パターンの分析、(2)Zr-K 吸収スペクトル(XANES)の線形解析による Zr 酸化程度の推定、(3)EXAFS(広域 X 線吸収微細構造)振動成分に対する光電子散乱構造解析、を実施した。図 1 は、Zr-K 吸収端の XANES 解析によって得られた Zr-Y_2O_3 反応過程における吸収変化の推移である。金属 Zr の酸化と溶融のタイミングで不連続な変化がみられ、また、XRD 回折パターンが変化するタイミングと整合した。その場観察の測定結果から反応過程を解析できることを確認した。

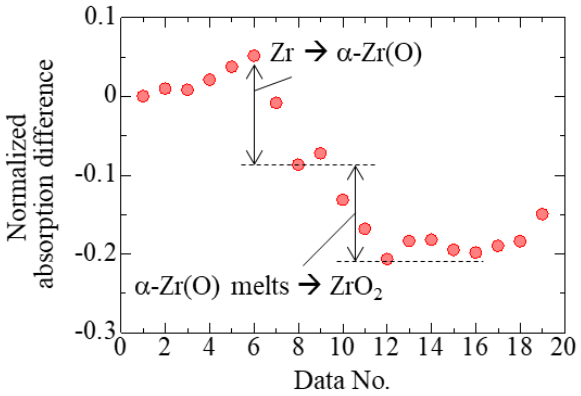


図 1 Zr-Y_2O_3 反応過程吸収変化

【結論】今回は、UO_2 の模擬として Y_2O_3 を用いて高温での Zr との反応をその場観察し、データ解析から反応過程を評価することに成功した。この実験装置を核燃料が取り扱得るように改良することにより、UO_2 と Zr の高温での反応をその場測定から分析出来るようになると考えられる。

Development of in-situ measurement technology for fuel melting reactions during severe reactor accidents (2) Data Analysis

ITOH A., KONASHI K., MATSUO S., ARITA, Y. ,NIINO Y., IKUTA R. YAITA T., TANIDA H., KOBAYASHI T, FUKUDA T., KOBATA M.

© 一般社団法人日本放射化学会

2B03 $(Zr,Ce)O_2$ 固溶体の溶解挙動の考察

(京大院工[1]、原子力機構[2])○小林大志[1]、池田篤史[2]、松村大樹[2]、佐々木隆之[1]

【緒言】放射性廃棄物処分の安全評価では、地層処分環境下での放射性核種の溶解度を予測する必要がある。これまでの研究では、核種ごとの溶解度試験から支配的な溶解度制限固相を同定することで核種の溶解度評価が行われてきたが、固溶体のように複数の核種から構成される固相の溶解挙動に関する知見は、その解釈の複雑さから十分に確立されていない。金属酸化物の固溶体は、核分裂生成物核種を含む使用済み燃料や、福島事故による燃料デブリの主成分の一つである$(Zr,U)O_2$固溶体のように、多価金属イオンとして振る舞う複数の核種からなる典型的な固相状態の一つであり、その溶解挙動の把握は、処分の安全評価にとって重要な課題と考えられる。本研究では、酸化物固溶体として、4価金属イオンであるZrとCeによる$(Zr,Ce)O_2$固溶体に着目した。水溶液中では、ZrはZr(IV)として安定である一方、Ceは酸化還元雰囲気によりCe(IV)およびCe(III)として存在する。所定のZr/Ce比で調製した$(Zr,Ce)O_2$固溶体をpHおよび酸化還元雰囲気が異なる試料溶液に浸漬し、ZrおよびCeの溶解度を測定するとともに、浸漬前後の詳細な固相分析を行い、$(Zr,Ce)O_2$固溶体の溶解挙動の考察を行った。

【実験】硝酸ジルコニル(IV)二水和物および硝酸二アンモニウムセリウム(IV)からZr(IV)およびCe(IV)の母溶液をそれぞれ調製し、所定のモル比で混合し、ポリビニルアルコールを加えた。撹拌しながら200℃で蒸発乾固させた後、電気炉において1000 ℃の大気雰囲気下で4時間加熱した。次に、作成した$(Zr,Ce)O_2$固溶体をイオン強度I = 0.5 M ($NaClO_4$)、pH 0.8～8.0の試料溶液に添加した。このとき、還元剤として$SnCl_2$ (1 mM)を添加した試料溶液を併せて調製した。所定の期間、25℃で静置した後、固相を分離および乾燥し、浸漬前の固相試料と併せて粉末X線回折（PXRD）およびX線吸収分光法（XANESおよびEXAFS）を用いて測定した。また、試料溶液の上澄み液0.5 mLを分取、限外ろ過（3kDa）した後、ろ液に含まれるZrおよびCe濃度をICP-MSにより定量した。

【結果と考察】Zr/Ceモル比＝7/3で調製した固相の浸漬前後のPXRDパターンを図1に示す。浸漬前の固相では、CeO_2(cubic)およびZrO_2(tetragonal)に相当する回折ピークが見られた。Sn(II)を含む酸性pHの試料溶液に浸漬した場合、28.5°付近のCeO_2(cubic)のピークが低角側にシフトするような傾向が見られ、浸漬後では固溶体の組成が変化したと考えられた。さらに、CeのXANESおよびEXAFSスペクトルの因子分析では、Sn(II)を含む酸性pHにおいて、特にCeO_2(cubic)純相の存在割合が増加するような傾向が示唆された。発表では、さらにZrおよびCe溶解度と合わせて、$(Zr,Ce)O_2$固溶体の溶解挙動について考察する。

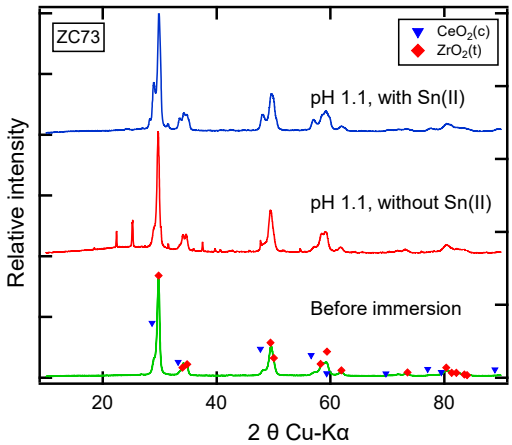


Fig. 1　Zr/Ceモル比=7/3で調製した固相の浸漬前後のPXRDパターン

Solubility of Zirconium-Cerium Oxide Solid Solutions in Aqueous Systems
KOBAYASHI T., IKEDA-OHNO A., MATSUMURA D., SASAKI T.

© 一般社団法人日本放射化学会

セッションE　原子力・アクチノイド化学及び関連分野

2E2

座長:小林 大志(京都大学)

2023年9月22日(金) 11:10 ～ 12:10 B会場 (学士会館)

[2B04] 質量分析による高確度アクチノイド分析のためのアクチノイド相互分離

*Ikhwan Fauzia Hanum[1]、風間 裕之[2]、阿部 千景[3]、小無 健司[3]、中瀬 正彦[1]、鈴木 達也[4] （1. 東京工業大学　、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学、4. 長岡技術科学大学）

11:10 ～　11:30

[2B05] ICP-MS/MSのリアクションセル内におけるアクチノイド気相反応の反応定数評価

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

11:30 ～　11:50

[2B06] 多段分離型 ICP-MSによるアクチノイド同位体の一斉検出

*松枝 誠[1,2]、川上 智彦[3]、照山 優子[3]、寺島 元基[1]、飯島 和毅[1]、古川 真[2,4]、高貝 慶隆[2] （1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学、3. 株式会社 化研、4. PerkinElmer Japan 合同会社）

11:50 ～　12:10

©一般社団法人日本放射化学会

2B04 質量分析による高確度アクチノイド分析のためのアクチノイド相互分離

(東京工業大学[1]、日本原子力研究開発機[2]、東北大学[3]、長岡技術科学大学[4])○Fauzia Hanum Ikhwan[1]、風間 裕之[2]、阿部 千景[3]、小無 健司[3]、中瀬 正彦[1]長岡技科大[4]

1. Introduction

The mutual separation of actinides have been studied extensively, in order to develop the nuclide separation methods as pre-treatment for highly precise and accurate analyzes of actinides in spent fuels and nuclear fuel debris by using mass-spectrometry such as ICP-MS. For actinide analyses by mass spectrometry, the mutual separation of actinides is required in order to remove the isobaric interference (^{238}U/^{238}Pu,^{241}Pu/^{241}Am,^{243}Am/^{243}Cm). Through chromatographic separation by using impregnated resin commercially provided by Triskem International and Eichrom Technologies, the separations of actinides elements are achieved and a new route of mutual nuclide separation method is successfully designed.

2. Experimental

The adsorption behaviors of actinides on the impregnated resins (TBP, CMPO and TODGA), in HCl and HNO_3 solution were investigated by batch experiments. We obtained the distribution coefficient of trivalent actinides and lanthanides in 0.5M to 10M of HCl and HNO_3 solutions. In the next step, we carried out the column separation experiments by ~8.5 mL resin packed in Muromac mini column L with the 10 cm column height. Th, U, Pu, Am, Cm, Eu, Nd, and Gd were added in feed solutions. 0.5 mL feed solution was injected from above of column and eluted by desired concentration of acid solutions. Nuclides in collected 1mL fractions eluted from the column was detected and measured by using Gamma-ray spectrometer, alpha spectrometer, and ICP-MS/MS, Agilent 8900.

3. Result

We confirm that U and Pu can be separated from trivalent actinides and Lanthanides by using TBP resin in HNO_3 system, 0.1M acid is used to recovery the Pu and U from this resin. TRU resin is planned to use for extraction of trivalent actinides (Am and Cm) and Lanthanides from other fission products, while separation of Am from Cm is conducted by using DGA resin in 1M HCl system.

Acknowledgment

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

References

[1] F.H. Ikhwan et al, (2023). J.Nucl. Sci.& Technol. (online) DOI: 10.1080/00223131.2023.2231937

Mutual Actinide Separation for High Accurate Actinide Analyzes by Mass Spectrometry

Fauzia Hanum Ikhwan[1], Kazama Hiroyuki[2], Abe Chikage[3], Konashi Kenji[3], Masahiko Nakase[1], suzuki Tatsuya[4]

© 一般社団法人日本放射化学会

ICP-MS/MS のリアクションセル内におけるアクチノイド気相反応の反応定数評価

2B05

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

【緒言】トリプル四重極誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS/MS)は、直列に配置された二つの質量分離部の間に位置するセルに反応ガスを導入することで同重体干渉の抑制が可能であり、高精度かつ迅速性が求められる燃料デブリ分析への活用が期待される。燃料デブリの処理等の方策を検討する上で重要なアクチノイド核種分析では、^{242m}Am/^{242}Cm や ^{243}Am/^{243}Cm 等の様々な同重体干渉が予想される。ICP-MS/MS でこれらを分別するためには、セル内で生じるアクチノイドイオン(An^+)と反応ガスとの気相反応を理解することが重要である。本研究では、O_2 を導入した際の An^+の反応挙動を調査し、反応のモデル化及び数値解析を行うことによる反応定数評価を試み、ICP-MS/MS における An^+と反応ガスの反応性を実験及び理論の双方から明らかにすることを目的とした。

【実験】^{237}Np、^{241}Am、^{244}Cm を 10^3 ng/L 含む 0.8 mol/L 硝酸水溶液を調製し、セルに O_2 を 0、0.15、0.30、0.45、0.60、0.75 mL/min の流量で導入し、ICP-MS/MS(Agilent 8900)による測定を行った。第1質量分離部では An^+のみを通し、セルにおける O_2 との反応後、第2質量分離部で各アクチノイドの生成イオン(An^+、一酸化物イオン(AnO^+)及び二酸化物イオン(AnO_2^+))を検出した。

【結果と考察】各元素において、An^+、AnO^+、AnO_2^+が確認された。低い O_2 流量(0～0.15 mL/min)では、流量が増加するのに伴い An^+の強度は減少し、AnO^+の強度が増加する傾向が確認された。より高い O_2 流量では、AnO^+の強度は減少し、AnO_2^+の強度が増加する傾向が確認された。これらの挙動から、セル内で $An^+ + O_2 \xrightarrow{k_1} AnO^+ + O$ 及び $AnO^+ + O_2 \xrightarrow{k_2} AnO_2^+ + O$ の逐次反応が進行したと考えられる。検出された An^+、AnO^+、AnO_2^+の強度割合をそれぞれ n_A、n_B、n_C、O_2 流量(mL/min)を Φ とし、式(1)-(3)に示す連立微分方程式の解を求めることより衝突理論に基づく反応定数 k_1 を評価したところ、Np^+、Am^+、Cm^+の k_1 についてそれぞれ 27、14、16 の値が得られた。反応定数の妥当性を評価するため、Am^+、Cm^+の k_1 を Np^+の k_1 で規格化し、既往の気相反応研究で報告されている反応速度定数の比と比較したところ、良い一致を示した(表1)。以上より、ICP-MS/MS のセル内で生じるアクチノイド気相反応の反応性に関する物理的パラメータとして、反応定数の決定に成功した。得られた反応定数は、ICP-MS/MS 測定におけるイオン種の強度や核種分別の程度を推定する際等に有用である。

$$\begin{cases} \dfrac{dn_A(\phi)}{d\phi} = -k_1 n_A(\phi) & (1) \\ \dfrac{dn_B(\phi)}{d\phi} = k_1 n_A(\phi) - k_2 n_B(\phi) & (2) \\ \dfrac{dn_C(\phi)}{d\phi} = k_2 n_B(\phi) & (3) \end{cases}$$

表 1. $An^+ + O_2 \rightarrow AnO^+ + O$ の反応定数比の比較

反応速度定数の比 $k(An)/k(Np)$[1]		反応定数の比(本研究) $k_1(An)/k_1(Np)$	
Am	Cm	Am	Cm
0.47	0.54	0.52	0.59

本件は、令和 4 年度-令和 5 年度文部科学省「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の研究課題「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の成果を含む。

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

Estimation of Reaction Constants of Actinide Ions with O_2 in Reaction Cell in Triple Quadrupole Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

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

© 一般社団法人日本放射化学会

2B06 多段分離型 ICP-MS によるアクチノイド同位体の一斉検出

(原子力機構[1]、福島大[2]、化研[3]、PerkinElmer Japan[4])○松枝誠[1,2]、川上智彦[3]、照山優子[3]、寺島元基[1]、飯島和毅[1]、古川真[2,4]、高貝慶隆[2]

【緒言】福島第一原子力発電所（1F）の滞流水などに含まれるアクチノイド（An）の分析には主にαスペクトロメトリーが利用されるが、煩雑かつ時間のかかる前処理工程が必要である。一方、ICP-MS は同位体の一斉分析による迅速化が期待できるが、An 同士の同重体干渉（例：^{241}Am-^{241}Pu、^{238}Pu-^{238}U）や、安定同位体の多原子イオンの干渉（例：^{240}Pu-^{200}Hg^{40}Ar、^{244}Cm-^{207}Pb^{37}Cl）により定量が阻害される。従来の ICP-MS 法では、これらの干渉物質を全て分離することは難しかった。本研究では、1F の主要 An（Th、U、Np、Pu、Am、Cm の同位体）の一斉分析に向けて、装置導入前の固相抽出（SPE）および ICP-MS 内のコリジョン・リアクションセル（CRC）における気相反応を組み合わせた干渉物質の分離を検討した。また、さらなる迅速化に向けて、フローインジェクション（FI）装置と ICP-MS を接続した自動分析システムを構築した。

【実験】SPE 樹脂として、Triskem 社製 DGA resin を選定し、PEEK カラム（内径 3.5 mm ×長さ 50 mm）に充填して使用した。この SPE カラムへ、4 M HNO_3+0.1 M $NaNO_2$+0.2 M $Fe(NO_3)_3$ の溶液条件下にて U、Am、Pu、Th を収着させ、以下に示す溶離液を①～④の順で通液して逐次溶出した（①U 溶出：0.2 M HNO_3、②Am 溶出：0.5 M HCl、③Pu 溶出：0.5 M HCl+1.0% アスコルビン酸、④Th 溶出：0.1 M シュウ酸アンモニウム）。ICP-MS の CRC には O_2 ガスを導入し、同重体の An および安定同位体由来の多原子イオンの分離を検討した。また、試料・洗浄液・溶離液を自動送液するために Gilson 製オートサンプラー（1 台）、6 方ロータリーバルブ（2 台）、6 方スイッチングバルブ（1 台）、ペリスタルティックポンプ（2 台）を組み合わせた FI 装置を構築した。FI 装置から ICP-MS（パーキンエルマー社製 NexION2000）へトリガーケーブルを用いて測定開始信号を送ることで一連の分離操作からデータ取得までを自動化した。この分析システムを用いて、複数の An を含む溶液を測定した。

【結果と考察】DGA resin を充填したカラムに An は 95%以上吸着され、4 つの溶離液により U、Am、Pu、Th は記載の順に逐次溶出された（Cm は Am と共に溶出、Np は Th と共に溶出される）。この時、^{238}Pu、^{239}Pu、^{240}Pu に対する ^{238}U、^{238}UH、^{238}UH$_2$ の干渉は 1/400 以下、^{241}Am と ^{241}Pu との相互干渉は 1/30 以下に低減された。CRC に O_2 ガスを導入した結果、酸化物の形成（^{241}AmO（m/z 257）、^{241}PuO$_2$（m/z 273））により ^{241}Am と ^{241}Pu との相互干渉は 1/50 以下まで低減した（同時に、Cm は 1 酸化物、Th、U、Np は 2 酸化物を形成する）。また、CRC に O_2 ガスを導入しつつ、最大 10 mg/L の安定同位体（Hf、Ta、W、Ir、Pt、Au、Hg、Tl、Pb および Bi）を ICP-MS へと導入したところ、m/z 250 以上に多原子イオンは観測されず、An 酸化物のバックグラウンドへの干渉は観察されなかった。最終的に、これらの分離機構を一つに統合した自動分析システムを用いて、10 核種（^{232}Th、^{235}U、^{238}U、^{237}Np、^{240}Pu、^{242}Pu、^{241}Am、^{244}Cm、^{245}Cm、^{246}Cm）を一斉検出した。分析時間は 1 試料あたり 40 分以内となった。

Simultaneous determination of actinide isotopes by inductively coupled plasma-mass spectrometry incorporating cascade separation step.
MATSUEDA. M., KAWAKAMI. T., TERUYAMA. Y., TERASHIMA. M., IIJIMA. K., FURUKAWA. M., TAKAGAI. Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

セッションF　核医学・生物関連放射化学

2F1

座長:鷲山 幸信(福島県立医科大学)

2023年9月22日(金) 13:40 ～ 15:00 B会場 (学士会館)

[2B07] ^{211}At 分析装置の感度補正法の開発

*瀬川 麻里子[1]、前田 亮[1]、藤 暢輔[1]、西中 一朗[2] （1. 日本原子力研究開発機構、2. 量子科学技術研究開発機構）

13:40 ～　14:00

[2B08] Rn/Atジェネレーターにおけるラドンの気相回収条件の最適化について

*田中 皐[1]、清水 悠介[1]、井田 朋智[1]、西中 一朗[2]、浅井 雅人[3]、横山 明彦[1] （1. 金沢大学、2. 量研機構、3. 原子力機構）

14:00 ～　14:20

[2B09] アスタチン化学種の揮発性

*西中 一朗[1]、橋本 和幸[2] （1. 量子科学技術研究開発機構、2. 日本原子力研究開発機構）

14:20 ～　14:40

[2B10] 熱化学転換法で溶解させた ThO_2溶液からの $MgCO_3$を用いた Raの抽出と照射ターゲット生成

*尹 鳳[1]、麻 卓然[1]、田端 千紘[2]、福谷 哲[2]、外山 真理[2]、山村 朝雄[2]、鈴木 達也[1] （1. 長岡技術科学大学、2. 京都大学複合原子力科学研究所）

14:40 ～　15:00

©一般社団法人日本放射化学会

2B07 ^{211}At 分析装置の感度補正法の開発

(原子力機構[1]，量研機構[2])○瀬川　麻里子[1]，前田　亮[1]，藤　暢輔[1]，西中　一朗[2]

【緒言】 α線を放出する ^{211}At を利用したがん新療法の実用化には、半減期が 7.2 時間と短い ^{211}At を無駄に損失することなく、その生成量（放射能）と化学形を迅速に分析する技術が必要である。そこで、我々は化学分析の一つである薄膜クロマトグラフィを試料として用いた高感度α線撮像システムの実用化研究を行っている。シンチレータ及び CCD/CMOS カメラから構成される本システムを実運用する場合、カメラセンサーの劣化等に起因した“放射線に対する感度の変化”（感度のずれ）が生じる。この感度のずれは放射能量の評価値に直接影響を及ぼすため、分析精度を維持するには感度のずれを検知し補正する必要があった。そこで、本研究では常時発光する RI 含有物質を ^{211}At と同時に撮像して相関を取得し、RI 含有物質からの光により規格化して装置の感度のずれを補正する新手法を開発し、薄膜クロマトグラフィで使用される低放射能の ^{211}At に対して本手法の適用性を検証した。

【実験及び結果】 シリカゲル上に放射能の異なる ^{211}At を 9 点滴下した試料（検量試料）を用意した。シンチレータには発光量の多い ZnS（厚さ 12 μm の透明フィルムに密度 3.25 mg/cm^2 の ZnS 粉末を塗布）、RI 含有物質として LYSO 結晶（Lu:Y:SiO=1.9:0.1:5）を使用した。LYSO は、^{176}Lu が放射する 600 keV 以下の X 線により常時微弱な光（内標準光）を放出している。図 1 に、検量試料（白破線部）及び LYSO（黒破線部）を同時に撮像した 2 次元画像を示す。測定時の放射能は 17~ 155 Bq であり、白破線部の左上から右下に向かって放射能が高くなる。ここで、感度のずれを模擬するため測定時間を 30、50、200、300 秒（300 秒時のみカメラ増幅率を 1 から 1/16 に変更）として撮像し、^{211}At の輝度値と放射能の相関を求めて、実験条件に起因する輝度値のずれを確認した（図 2(a)、統計誤差はマーカサイズより小さい）。さらに、図 2(b)に示すように、LYSO からの内標準光を用いて ^{211}At の輝度値を規格化したところ、輝度値のずれが解消され、放射能評価に影響がない程度で一致している事を明らかにした。以上から、装置の感度のずれを本手法により補正可能であるとの見通しを得た。発表では、補正の精度や実用化に向けた進捗等についても報告する。

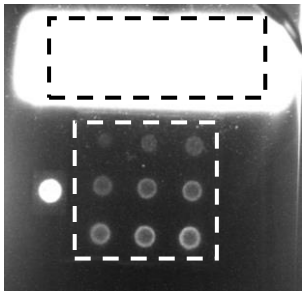


図 1 検量試料及び LYSO 画像

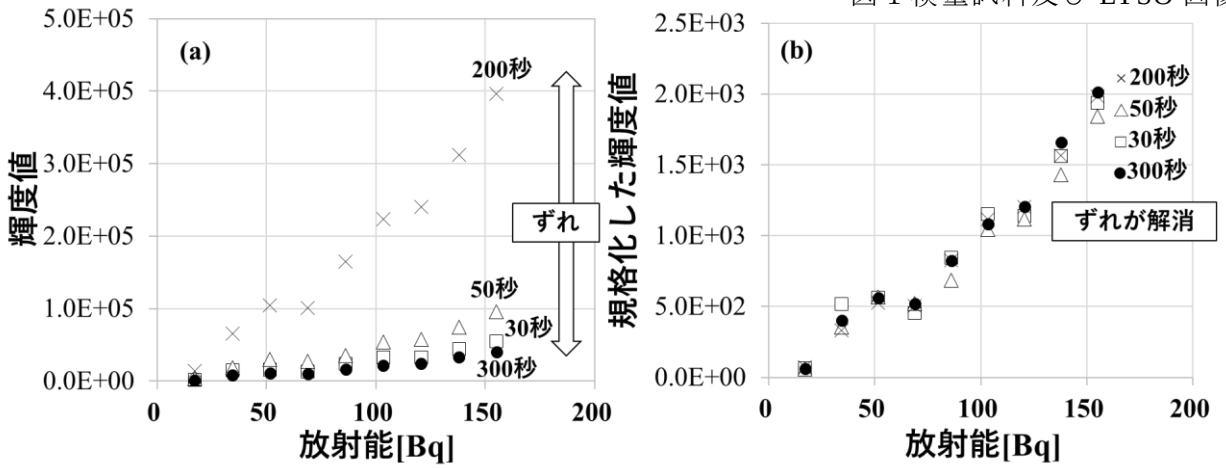


図 2(a)検量試料の輝度値と放射能の相関(b)規格化した輝度値と放射能の相関

Development of a correction method for an analyzer of ^{211}At, M. SEGAWA, M. MAEDA, Y. TOH, I. NISHINAKA

© 一般社団法人日本放射化学会

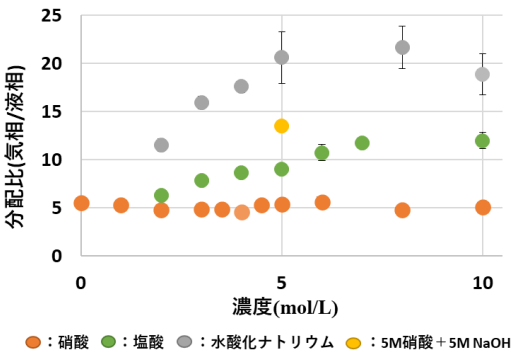
2B08 Rn/At ジェネレーターにおけるラドンの気相回収条件の最適化について

(金沢大学[1]、量研機構[2]、原子力機構[3])○田中皐[1]、清水悠介[1]、井田朋智[1]、西中一朗[2]、浅井雅人[3]、横山明彦[1]

【緒言】 Rn/At ジェネレーターシステムの開発は核医学利用が期待される ^{211}At のミルキングを可能にする。前回の報告【1】より、ターゲットを溶解する硝酸濃度によって Rn の気相回収効率が大幅に変化するという結果を得た。また、塩酸溶液には硝酸溶液より明らかに溶存しにくいことも分かった。このように Rn が酸溶液に溶解するメカニズムは未だ詳細には判明していない。本研究では、Rn の液相―気相間の分配比を調べることでその溶存機構を考察し、気相回収条件の最適化を図ることを目的とした。

【実験】 Rn ターゲットの作成法や気相回収法については前回の報告【1】と同様の手法を用いた。気相回収後の硝酸溶液中の Rn の放射能と、回収した Rn ガスの放射能を Ge 半導体検出器で定量した。次に、様々な濃度の硝酸溶液、塩酸溶液、水酸化ナトリウム溶液、硝酸と水酸化ナトリウムの中和溶液、エタノールと硝酸の混合溶液を準備し、ここに Rn ガスを吹き込むことでその分配比 ：(気体中の Rn 放射能濃度) / (溶液中の Rn 放射能濃度) の濃度依存性を調べた。

【結果と考察】 Rn ガスを吹き込んだ際の各溶液における分配比のプロットを図に示した。横軸は各溶液の濃度を示しており、縦軸は分配比を示している。プロットはオレンジが硝酸溶液、緑が塩酸溶液、灰色が水酸化ナトリウム溶液、黄色が中和溶液である。硝酸溶液における 0M は水に Rn ガスを吹き込んだ場合である。前回【1】とは異なる結果で、硝酸溶液における分配比の濃度依存性はあまり見られず、水と大差ないことが判明した。また、ターゲット溶解で得られた結果とも一致している。これはこれまでの実験操作を再検討し、改善した結果であると考えている。それとは逆に、塩酸溶液、水酸化ナトリウム溶液では明らかな濃度依存性がみられ、各溶液の濃度が上昇するにつれ、Rn が溶液に溶存しにくくなることが分かった。これは、濃度が上昇することでイオン強度が大きくなり、非極性分子である Rn が溶存しにくくなっているからであると考えられる。一方、硝酸溶液では水と同じ分配比で濃度に依存しないことから、硝酸イオンは Rn の溶存を阻害しないことを確認した。以上より、現在の結果ではジェネレーターの気相回収では硝酸以外のイオンの添加による回収効率の向上が期待できる。エタノールを加えた場合の結果については発表にて報告する。



図：各溶液の分配比濃度依存性

【参考文献】
【1】田中皐ら、日本放射化学会第 66 回討論会要旨(2022), 1P02

Optimization of Conditions for Gas Phase Recovery of Radon for the Rn/At Generator
TANAKA, K., SHIMIZU, Y., IDA, T., NISHINAKA, I., ASAI, M., YOKOYAMA, A.

© 一般社団法人日本放射化学会

2B09 アスタチン化学種の揮発性

(量研高崎[1]、原子力機構東海[2])○西中一朗[1]、橋本和幸[2]

【緒言】近年、α放射性 RI 標識薬剤による標的アイソトープ治療は、治療効果が高く、副作用の少ない新しいがんの治療法として注目されている。国内では、加速器で製造する ^{211}At（$t_{1/2}$=7.2 h）の利用が着目され、At について基礎から医療まで幅広く研究が行われている。At の高い揮発性は良く知られた特有な化学特性であり、放射性防護の観点からも注視されているが、その揮発機構は十分理解されていない。
先行研究において、アンモニアと還元剤の存在条件での TLC 分析により、At が極めて高い揮発性を示すことを明らかにし、At(0)の生成による揮発機構を提唱した[1,2]。 本研究では、アンモニア、還元剤を異なる割合で配合した At エタノール溶液について、溶媒と At の揮発性を詳細に調べることで、溶存 At 化学種の揮発機構を検証した。
【実験】原子力機構タンデム加速器で、60 MeV $^{7}Li^{3+}$イオンを Bi 薄膜標的に照射して、核反応 ^{209}Bi(^{7}Li,5n)^{211}Rn によって ^{211}Rn（$t_{1/2}$=14.7 h）を製造した。乾式化学に基づく ^{211}Rn/^{211}At ジェネレータ装置を用いて、照射後 Bi 標的から ^{211}Rn を分離精製した[3]。約 15 時間後、^{211}Rn の EC 壊変で生成した ^{211}At をエタノールで抽出し、トレーサー溶液を調製した。1.5 ml チューブに 400 μl の ^{211}At トレーサー溶液を分取し、そこにエタノール、水、アンモニア水、ヒドラジン水溶液を異なる割合で配合し、約 800 μl の試料溶液を調製した。チューブ蓋を開放してドラフト内に静置し、20 時間経過する間に計 4 回、試料溶液の重量と放射能濃度を測定した。
【結果と考察】At エタノール溶液の結果を時間変化として図に示した。データ点は 3 試料の平均値、誤差は標準偏差である。溶液重量（上）は時間とともに減少し、溶媒の揮発を表す。放射能濃度（中）は増加していることから、At は溶媒に比べて揮発性が小さいことが分かる。これら測定値から求めた溶液中の全放射能（下）は At の揮発を表す。このように実験結果は、溶媒と At の揮発性の違いを明確に示す。配合の異なる 9 種類の試料についての結果詳細は講演で報告する。水、アンモニアの存在下で At は揮発し、ヒドラジン存在下では揮発が抑制された。還元剤が溶存 At 化学種を At^{-}(－Ⅰ)に保ち、揮発を抑制したことを示唆する。一方、アンモニアと還元剤の存在条件での At の揮発性は、TLC 分析と本研究では大きく異なる。これら At に特有な揮発性に基づき、At の揮発機構について考察する。

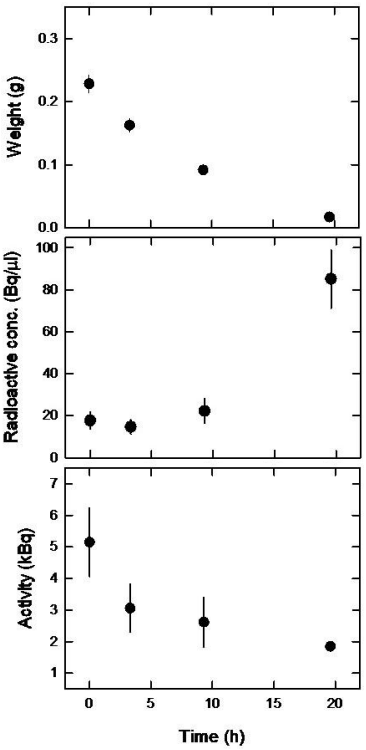


図 At エタノール溶液の重量（上）、放射能濃度（中）、全放射能（下）の時間変化

【参考文献】
1) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 322(2019)2003-2009.
2) 2022 日本放射化学会年会・第 66 回放射化学討論会, 1A07.
3) 2017 日本放射化学会年会・第 61 回放射化学討論会, 1B13.

Volatility of astatine chemical species
NISHINAKA, I., HASHIMOTO, K.

© 一般社団法人日本放射化学会

2B10

熱化学転換法で溶解させた ThO_2 溶液からの $MgCO_3$ を用いた Ra の抽出と照射ターゲット生成

(長岡技術科学大学[1]、京都大学複合原子力科学研究所[2])○尹 鳳[1]、麻 卓然[1]、田端 千紘[2]、福谷 哲[2]、外山 真理[2]、山村 朝雄[2]、鈴木 達也[1]

【緒言】 ^{225}Ac はアルファ治療放射性薬物同位体であり、^{225}Ac の生産量は ^{225}Ac の需要を満たさず、新たな製造法を開発する必要がある。我々は、希土類元素鉱山に大量に存在するトリウム残渣中の ^{232}Th の子孫核種 ^{228}Ra に注目し、中性子照射より、$^{229}Th/^{225}Ac$ ジェネレータとして得ることを提案している。そこで、^{232}Th から ^{228}Ra を分離するとともに、^{228}Ra ターゲットを作成するための基礎的な研究を行った。

【実験】 ThO_2 は酸やアルカリに不溶であるため、化学反応により ThO_2 を可溶性トリウム化合物に変換することを提案した。CCl_4、CCl_3CCl_3、$AlBr_3$ を選択し、密閉容器内で加熱により ThO_2 と化学反応させた。その後、反応生成物を HCl 及び HNO_3 に溶解し、濾過してトリウムの水溶液を得た。CeO_2 は常に 4 価アクチノイド系元素のシミュレーション材料として出現するため、CeO_2 との最適な反応条件を探索した。加熱時間と温度はそれぞれ 400℃ 12h、400℃ 4h、300℃ 12h、300℃ 4h である。実験結果によると、試料は 300℃で 12h 加熱するトリウム溶解率が比較的安定で高いため、300℃で 12h 加熱することは ThO_2 実験の反応条件である。

トリウム溶液中からのラジウムの分離およびラジウムターゲットの製造のため、マグネシウムを用いた共沈殿法を用いた。そして、ターゲットは MgO をベースにしたものを提案している。マグネシウムはアルカリ土類金属の中で最も小さい中性子捕獲断面積を持っており、また、MgO は様々な薬剤に含有させて用いることもあり生体中に入っても安全だからである。

まず、Ca、Sr、Ba の 3 つの元素を用いてラジウムの共沈殿挙動をシミュレーションした。ラジウム含有量が低いため、シミュレーションした実験サンプルを計器で検出するのは難しい。そのため、Ca、Sr、Ba の濃度を増加させ、Na_2CO_3 が過剰になると、Ca、Sr、Ba がほぼ完全に沈殿することを発見した。

Na_2CO_3 と $MgCl_2{\cdot}6H_2O$ を反応させて生成した水和炭酸マグネシウムを用いて加熱実験を行い、温度が 400℃以上になれば水和炭酸マグネシウムは酸化マグネシウムに変換できることを発見した。したがって、ラジウム−マグネシウム共沈で得られたサンプルを 400℃で 0.5 時間加熱し、ラジウムを含む MgO に変換した。

【結論】 ThO_2 は熱化学転換法を用いた前処理により溶解できることを確認した。共沈法によりトリウムからラジウムを分離することに成功し、ターゲットの材料としての沈殿物を得ることができることを確認した。

Extraction of Ra and Target Fabrication Method for Neutron Irradiation by Magnesium Carbonate Co-precipitation from ThO_2 solution dissolved by thermochemical conversion

Yin F., Ma Z.R., Tabata C., Fukutani S., Toyama M., Yamamura T., Suzuki T..

© 一般社団法人日本放射化学会

ポスターセッション

ポスターセッション

2023年9月22日(金) 17:00 ～ 17:50 学士会館ラウンジ (学士会館ラウンジ)

[2P01] 高速中性子による RI製造のための中性子スペクトルと励起関数の検証

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

[2P02] ノーベリウムのシュウ酸カルシウム共沈

中西 諒平[1,2]、*笠松 良崇[1,2]、大髙 咲希[1,2]、渡邉 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）

[2P03] 等温ガスクロマトグラフ法による106番元素 Sgの気相化学研究に向けたモデル実験

*名取 日菜[1,2]、佐藤 哲也[1,2]、浅井 雅人[2]、伊藤 由太[2]、内馬場 優太[1,2]、Gong Gyeongmin[1,2]、塚田 和明[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）

[2P04] 核医学応用に向けた高周期 pブロック元素の DOTAM錯体合成とその理論計算

*青戸 宏樹[1]、永田 光知郎[1]、金子 政志[1]、前田 遥香[1]、川岸 英峻[2]、笠松 良崇[1] （1. 阪大院理、2. 阪大理）

[2P05] $^{nat}Te(\gamma,x)^{125}Sb$反応による Sb-125の製造

*横北 卓也[1]、本多 佑記[1]、菊永 英寿[1] （1. 東北大学）

[2P06] メスバウアー分光法による Rコンドライト PCA91002中鉄含有鉱物組成の研究

*石井 勇希[1]、中川 真由、古川 未来[1]、海老原 充[2]、佐藤 渉[1] （1. 金沢大学、2. 東京都立大学）

[2P07] 47都道府県に設置されたモニタリングポストの精度管理調査結果

*杉山 翠[1]、細田 芽生[1]、田中 博幸[1]、磯貝 啓介[1] （1. 公益財団法人　日本分析センター）

[2P08] 電気化学的手法を用いた環境水中のヨウ化物イオンの選択的定量法の開発

中村 司[1]、*山崎 信哉[1]、西塚 魁斗[1]、坂口 綾[1]、高久 雄一[1]、末木 啓介[1] （1. 筑波大学）

[2P09] 陽イオン界面活性剤を用いたセシウム137吸着鉱物の除染効果の経時変化

*松嶋 亮人[1]、中島 覚[1] （1. 広島大学自然科学研究支援開発センター）

[2P10] X線吸収分光法による模擬風化処理した雲母中ウランのスペシエーション

*蓬田 匠[1]、東 晃太朗[2]、河村 直己[2]、北辻 章浩[1]、高橋 嘉夫[3] （1. 日本原子力研究開発機構、2. 高輝度光科学研究センター、3. 東京大学）

[2P11] 多摩川本流における存在形態分析を用いた底質中 ^{137}Cs の移行調査

*清水 優伸[1]、高橋 亘[1]、加世田 大雅[2]、小池 裕也[1] （1. 明治大学　理工学部、2. 明治大学院　理工学研究科）

[2P12] 多摩川集水域宿河原における河川水及び底質中放射性セシウム濃度の定点観測

*高橋 亘[1]、清水 優伸[1]、加世田 大雅[2]、小池 裕也[1] （1. 明治大学　理工学部、2. 明治大学院　理工学研究科）

[2P13] 赤城大沼における夏季・冬季成層化における放射性セシウム濃度の変動

*大鳥 慎治[1]、藤田 知樹[1]、阿久津 崇[2]、鈴木 究真[2]、塩澤 佳奈子[2]、杉本 亮[3]、長尾 誠也[1] （1. 金沢大学、2. 群馬県水産試験場、3. 福井県立大学）

[2P14] 熱感応性界面活性剤の相分離現象による金属酸化物微粒子の抽出

*中川 太一[1,2]、松枝 誠[1]、寺島 元基[1]、高貝 慶隆[2] （1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学）

[2P15] 電子スピン共鳴による野生動物の歯を用いた線量測定法の進展と課題

*光安 優典[1]、岡 壽崇[2]、高橋 温[3]、木野 康志[1]、関根 勉[4]、山下 琢磨[4]、清水　良央[5]、千葉 美麗[5]、鈴木

©一般社団法人日本放射化学会

敏彦[5]、小坂 健[5]、佐々木 啓一[5]、鈴木 正敏[6]、福本 学[7]、篠田 壽[5] （1. 東北大学大学院理学研究科、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学病院、4. 東北大学高度教養教育・学生支援機構、5. 東北大学歯学部、6. 東北大学災害科学国際研究所、7. 理化学研究所）

[2P16] 2018-2022年夏季の日本海における海水中のトリチウム濃度分布

*三木 志津帆[1]、東畑 顕[1] （1. 水産研究・教育機構　水産資源研究所）

[2P17] 大規模陽子加速器施設で使用された電源ケーブル被覆中の^{36}Clの定量に向けた基礎的検討

*吉田 剛[1]、豊田 晃弘[1]、石田 正紀[1]、山﨑 翔太[2]、三橋 正裕[2]、Bui Thien[4]、西川 功一[3]、津金 聖和[1]、山田 正明[2]、八島 浩[5]、松村 宏[1]、渡邉 瑛介[1]、中村 一[1]、塩原 良建[2]、大石 晃嗣[2]、桝本 和義[1]、三浦 太一[1]、別所 光太郎[1] （1. 高エネルギー加速器研究機構、2. 日本環境調査研究所、3. 量子科学技術研究開発機構、4. 総合研究大学院大学、5. 京都大学）

[2P18] アクチノイド化合物に向けた高精度相対論的 CASPT2プログラムの開発

*増田 康人[1]、野田 紘平[1]、岩室 寿美果[3]、樫野 理子[2]、阿部 穣里[1] （1. 広島大学大学院　先進理工系科学研究科、2. 広島大学、3. 東京都立大学大学院　理学研究科）

[2P19] 赤外線ファイバーレーザーによるフラーレンの生成と放射性核種内包に向けた基礎実験

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

[2P20] ^{64,67}Cu製造のための Znターゲット回収法およびペレット作成法の検討

*太田 朗生[1]、川端 方子[1]、高島 直貴[1]、本石 章司[1]、佐伯 秀也[1]、塚田 和明[2]、橋本 和幸[2]、永井 泰樹[1]、本村 新[1] （1. 株式会社千代田テクノル、2. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）

[2P21] 野生ニホンザル (*Macaca fuscata*) の食物の中性子放射化分析とその摂取量の推定

*福島 美智子[1]、辻 大和[1] （1. 石巻専修大学）

[2P22] ボーリングコアの放射性セシウム濃度の測定結果から見た熱海市における土石流災害

*矢永 誠人[1]、北村 晃寿[1] （1. 静岡大学）

[2P23] 我が国の校庭等の土壌中の天然放射性核種濃度と空間線量率について

*田上 恵子[1]、内田 滋夫[1] （1. 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構）

[2P24] 原子力発電所の低レベル放射性廃棄物中の放射性核種の分析に関する考察

*楊 波[1]、劉 義保[1]、楊 凡[1] （1. East China University of Technology）

©一般社団法人日本放射化学会

2P01 高速中性子による RI 製造のための中性子スペクトルと励起関数の検証

(新潟大院自然[1]，新潟大理[2]，東北大 ELPH[3])○高村怜士[1]，長泰秀[2]，後藤真一[1]，菊永英寿[3]

【緒言】高速中性子を用いた RI 製造において，製造量を正確に見積もるには，精確な中性子スペクトルと励起関数が必要となる．しかし，特に中性子スペクトルは実験的に得ることは難しく，シミュレーションに頼らざる得ないが，確からしさの検証が進んでいない．本研究では，重陽子とグラファイトにより生成する高速中性子スペクトルを PHITS によりシミュレーションし，放射化法により得られる中性子スペクトルで重みづけされた励起関数の積分値を再現するか検証した．また，確からしい中性子スペクトルを用いて，様々な核種に対する励起関数の検証も行った．

【実験】実験は東北大学 CYRIC にて行った．高速中性子は重陽子をグラファイトに照射することで発生させた．重陽子のエネルギーは 20, 25, 30, 35 MeV，電流は約 200 nA とし，得られた高速中性子を厚さ 0.1 mm の Ni, Cu, Zn, Zr, Mo および厚さ 0.05 mm の Au の金属箔に照射した．一定時間照射後，適当な時間冷却したのち，高純度 Ge 半導体検出器による γ 線スペクトロメトリにより核種の同定，定量を行った．

照射直後の放射能A_{EOB}は，

$$A_{\mathrm{EOB}} = Nf\left(1-e^{-\lambda\tau}\right)\int_0^{E_\mathrm{d}} P(E)\sigma(E)dE$$

N：ターゲット厚，f：重陽子ビーム量，τ：照射時間
$P(E)$：規格化された中性子スペクトル，$\sigma(E)$：励起関数

と表される．本研究では積分の項をまとめて積分断面積と呼び，観測された核種が得られる反応について積分断面積を求めた．また，比較のため，PHITS ver.3.28 [1]により中性子スペクトルをシミュレーションし，TENDL-2021[2]の励起関数を用いて，積分断面積の計算値を得た．

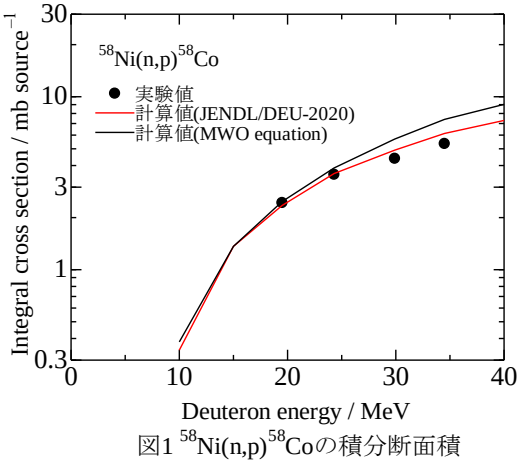


図1 ^{58}Ni(n,p)^{58}Coの積分断面積

【結果と考察】TENDL-2021 が実験値をよく再現している ^{58}Ni(n,p)^{58}Co の結果を図 1 に示す．PHITS において重陽子の反応断面積を精度よく記述する MWO 式[3]を用いた場合と，最近実装された重陽子反応により生成する高速中性子スペクトルをよく再現する JENDL/DEU-2020[4]を用いた場合の積分断面積の計算値も示した．実験値と計算値と比較すると，JENDL/DEU-2020 を用いた場合がよく再現することが分かった．発表では，ほかの反応も含めて中性子スペクトルおよび励起関数の検証結果の詳細について報告する．

【参考文献】

[1] T. Sato, *et al.,* J. Nucl. Sci. Technol. **55**, 684–690 (2018).
[2] A.J.Koning *et al*., Nucl. Data Sheets **155**, 1–55 (2019).
[3] K. Minomo *et al*., J. Nucl. Sci. Technol. **54**, 127–130 (2017).
[4] S. Nakayama *et al*., J. Nucl. Sci. Technol. **58**, 805–821 (2020).

Verification of Neutron Spectrum and Excitation Functions for Radioisotope Production using Fast Neutrons

TAKAMURA, R., CHYO, Y., GOTO, S., KIKUNAGA, H.

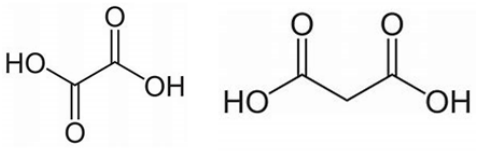
© 一般社団法人日本放射化学会

2P02 ノーベリウムのシュウ酸カルシウム共沈

（大阪大学[1]、理研[2]、サレジオ高専[3]、大阪青山大[4]）中西諒平[1,2]、○笠松良崇[1,2]、大髙咲希[1,2]、渡邉瑛介[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、これまでに重元素の共沈挙動を調べるための実験装置を開発し、その実験手法を確立してきた。そして、No の水酸化サマリウム共沈挙動を初めて調べることに成功した。本研究では、多座で配位する有機配位子（シュウ酸やマロン酸、図 1）との反応を新たに調べることを目的として、2 族元素や No のシュウ酸沈殿に関する挙動を調べた。



シュウ酸 $C_2H_2O_4$ H_2ox　　マロン酸 $C_3H_4O_4$ H_2mal

図 1. シュウ酸とマロン酸の構造

【実験】まず、2 族元素である Ca、Sr、Ba、Ra を用いた基礎実験として、シュウ酸沈殿挙動とシュウ酸カルシウム共沈挙動を様々な溶液濃度、振とう時間に対して調べた。金属イオンの定量は、放射性トレーサー（^{133}Ba, ^{152}Eu, ^{226}Ra）を用いた場合は放射線測定により、安定同位体を利用した場合は EDTA 滴定により行った。

基礎実験にて決定した実験条件下で No のシュウ酸カルシウム共沈実験を行った。理化学研究所の AVF サイクロトロンを用いて ^{248}Cm(^{12}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共沈実験を行った。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。

【結果と考察】Ca のシュウ酸沈殿実験では、シュウ酸濃度として 10-100 mM の範囲で、また pH が 3 と 4 の条件にて 100%の高い収率が 3 分以内の振とう時間で得られた。これより、Ca が共沈実験時のキャリアとして適していることが分かった。また、Sr、Ba と重くなるにつれて収率が低下し、平衡に到達する時間も遅くなった。ただし、カルシウムへの共沈挙動は、迅速になることから No の共沈実験は可能であると判断した。

No のシュウ酸カルシウム共沈収率は、100%を超える高い値となった。ただし、α線の分解能が悪く、誤差が大きいことが今後の課題となった。No のイオン半径は Ca や Sr に近いため、収率が 100%の Ca と同様の結果とはいえる。しかし、Ca と No の相互比較ができないため、条件を変更した実験が今後必要であると考えられる。

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

Coprecipitation of nobelium with calcium oxalate

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

© 一般社団法人日本放射化学会

2P03 等温ガスクロマトグラフ法による 106 番元素 Sg の気相化学研究に向けたモデル実験

(茨城大院理工[1]、原子力機構先端研[2])
○名取日菜[1,2]、佐藤哲也[1,2]、浅井雅人[2]、伊藤由太[2]、内馬場優太[1,2]、Gong Gyeongmin[1,2]、塚田和明[2]、宮地優太[1,2]、永目諭一郎[2]

原子番号が 100 を超える超重元素では、強い相対論効果の影響によって、化学的性質が同族元素からの予想とは異なる可能性が指摘されている。我々の研究グループでは、106 番元素シーボーギウム (Sg) の化学的性質を明らかにするため、迅速性に優れる気相化学分離法の開発を進めている。

本研究では、解析用プログラムおよび等温ガスクロマトグラフ装置の開発・実験を行った。解析用プログラムでは、Zvara による単一揮発性分子の固体表面への吸脱着輸送モデル[1]をもとに、目的分子のカラム表面吸着滞在時間および気体中移動距離を決定づける表面振動数および拡散係数の温度依存性を考慮して、短寿命揮発性分子の等温ガスクロマトグラフ挙動をシミュレーションすることで、目的揮発性分子の吸着エンタルピーを求める。これと並行し、オフライン等温ガスクロマトグラフ実験装置を構築した。本装置は、105 番元素ドブニウムの揮発性研究で実績のあるオンライン実験装置[2]をもとに、2 つのカリホルニウム 252 (^{252}Cf)線源を備えた ^{252}Cf 槽、反応室および等温カラム、そしてクラスタリング槽からなる。^{252}Cf の自発核分裂によって生成した核分裂生成物をキャリアガスによって反応室へと輸送し、塩素化剤との反応によって揮発性化合物を合成する。塩素化剤として酸素単体もしくは酸素を含む窒素ガスを塩化チオニル ($SOCl_2$) にバブリングさせて、反応室に供給した。生成した揮発性化合物分子を一定温度に保った等温カラムに通過させ、カラム末端への到達量を観測した。

実験では、構築した気相化学分離装置を用いて、Sg の同族元素であるモリブデン(Mo)の揮発性オキシ塩化物生成について、種々の条件で検討したのち、等温ガスクロマトグラムを取得した。半減期が異なる 3 つの短寿命 Mo 同位体 ($^{104, 105, 106}$Mo) について、等温カラム温度-収率曲線を求め、解析用プログラムを適用して Mo オキシ塩化物の吸着エンタルピーを求めたところ、得られた実験値は MoO_2Cl_2 のマクロ量からの予想値 ΔH_{ads} = 77 kJ/mol とよく一致した（図 1）。発表では、種々の実験条件における検討結果も含めて報告する。

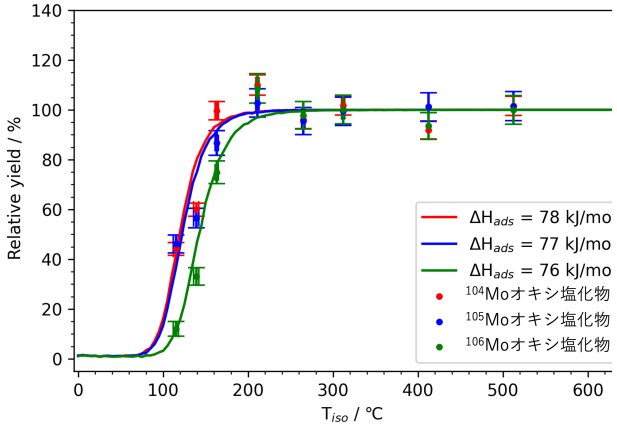


図 1:反応室温度を 550℃とし、塩素化剤として $O_2/SOCl_2$ を使用した際の Mo オキシ塩化物のカラム温度-収率曲線

1) I. Zvara, Radiochim. Acta **38** (1985) 95-101.
2) N. M. Chiera et al., Angew. Chem., **60** (2021) 17871-17874.

Model Experiments for Gas-Phase Chemical Studies of Element 106, Seaborgium, using Isothermal Gas Chromatography
NATORI, H., SATO, T.K., ASAI, M., ITO, Y., UCHIBABA, Y., GONG, G., TSUKADA, K., MIYACHI, Y., NAGAME, Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P04 核医学応用に向けた高周期 p ブロック元素の DOTAM 錯体合成とその理論計算

(阪大院理 [1]、阪大理 [2])○青戸宏樹 [1]、永田光知郎 [1]、金子政志 [1]、前田遥香 [1]、川岸英峻 [2]、笠松良崇 [1]

【緒言】第 6 周期 p ブロック元素に含まれる核種である ^{212}Pb および ^{212}Bi は、短い半減期や検査に適した同位体の存在によってセラノスティクスな核医学治療への応用が期待されている。また Pb や Bi は原子番号が大きく、相対論効果によって軽い同族元素では見られない、配位原子による配向性の変化などの特徴的な差異を示すことが知られている。そこで、Pb や Bi を含む第 6 周期 p ブロック元素を系統的に研究することは、高周期 p ブロック錯体の化学的性質の解明に寄与することができると考えられ、核医学のみならず錯体化学的にも興味が持たれる。本研究では、Pb^{2+}を核医学利用する際に用いられている大環状配位子 DOTAM（1,4,7,10-(carbamoylmethyl)-1,4,7,10-tetraazacyclododecane）を用いて、周期表上で Pb, Bi 周辺の第 6 周期 p ブロック元素の新規錯体合成を行うとともに、量子化学計算を用いた解析を行った。

【実験】既報の手法 [1, 2] を用いて合成した DOTAM は、^{1}H NMR, FT-IR および CHN 元素分析により同定した。この DOTAM を用いて、Pb, Tl,または Bi 塩と還流することで各錯体を合成した。得られた生成物をそれぞれ ^{1}H NMR, EDX, FT-IR, CHN 元素分析によって同定し、単結晶が得られた Pb^{2+}, Tl^+錯体については単結晶 X 線構造解析により構造を決定した。また密度汎関数法に基づくベンチマーク計算により最適な条件を決定し、6p ブロック元素の DOTAM 錯体の構造最適化及び一点エネルギー計算を行った。

【結果と考察】得られた DOTAM を用いて Pb^{2+}および新規錯体である Tl^+, Bi^{3+}の錯体合成に成功した。各錯体の FT-IR 測定の結果、配位子単体と比較してアミド基の C=O 伸縮振動バンドが 5～30 cm^{-1} 程度低エネルギー側へシフトすることが観察された。これは中心金属イオンへの配位によって C=O 結合が長くなったためであると考えられる。図 1 に[Pb(DOTAM)]$^{2+}$の結晶構造を示した。Pb^{2+}, Tl^+錯体はいずれも 8 配位構造（正反四角柱型）を有しており、金属イオンと配位子は 1:1 の錯体を形成していた。それぞれの錯体の結合距離を比較することで、Pb^{2+} は Tl^+と比較して環上窒素原子に 0.035 Å程度近く配位していることが観察され、Pb^{2+}は Tl^+と比べて 12 員環によって安定化されていると考えられる。また本発表では、配位子や錯体合成の詳細な同定、解析についてのみでなく、量子化学計算を用いた電子状態解析についても併せて報告する。

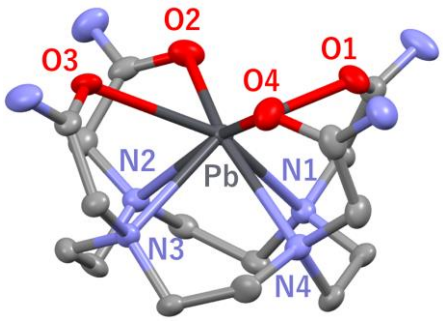


図 1. [Pb(DOTAM)]$^{2+}$の結晶構造

(1) Maumela, H.; *et al*. *JACS* **1995**, *117* (25), 6698-6707.

(2) Amin, S.; *et al*. *Angew. Chem*. **1994**, *33* (7), 773-775.

Synthesis and theoretical study of heavier p-block DOTAM complexes for use to nuclear medicine therapy (2023)

AOTO, H., NAGATA, K., KANEKO, M., MAEDA, H., KAWAGISHI, E., KASAMATSU, Y.,

© 一般社団法人日本放射化学会

2P05 $^{nat}Te(\gamma,x)^{125}Sb$ 反応による Sb-125 の製造

（東北大 ELPH[1]）○横北卓也[1]、本多佑記[1]、菊永英寿[1]

【緒言】 ^{125}Sb は半減期が 2.7 年あり、原子炉で生じる核分裂生成物の中の γ 線放出核種の中で、放射能の割合が多い成分となる。このため、^{125}Sb は福島第一原子力発電所の多核種除去設備の浄化対象 62 核種の内、主要 7 核種にも含まれている [1]。したがって、原子力分野において、^{125}Sb の除去や環境・化学動態を研究に利用可能な Sb トレーサーは需要がある。Sb の RI トレーサーの中には、^{125}Sb と ^{124}Sb ($T_{1/2}$ = 60.20 d) といった比較的長半減期のものがあり、長い期間トレーサー実験に使用することが可能である。これまで、東北大学電子光理学研究センターでは、短寿命 RI 供給プラットフォームでの頒布目的で、Sb トレーサーの製造方法を開発してきた [2]。今回、Sb トレーサーの分離精製手法改良のため、アスコルビン酸を用いた沈殿分離と陰イオン交換分離の 2 つの実験を行った。

【実験】 照射用標的は $^{nat}TeO_2$ (nat: 天然同位体組成) ペレットとし、石英管に封入した。この標的を東北大学電子光理学研究センターの大強度電子線形加速器で、50 MeV に加速した約 150 μA の電子ビームを 3 mm 厚の Ta を主とした水冷式コンバーターで制動放射線に転換して水冷しながら 1 時間照射した。照射した標的の一部を分取し、未照射の $^{nat}TeO_2$ を混ぜたものを用いて 2 種類の分離精製実験を行った。本実験の Sb と Te の分離精製挙動は、^{124}Sb (E_γ = 602.7 keV) と ^{121}Te (E_γ = 573.1 keV; $T_{1/2}$ = 16.78 d) の γ 線スペクトロメトリーから調べた。

沈殿分離実験では、1.5 g の $^{nat}TeO_2$ を 8 mL の 6 M HCl に溶解させ、還元剤として 6.6 g のアスコルビン酸を加え、沈殿をつくった。4 時間後、固液分離を行い、溶液試料を Ge 検出器で測定した。

陰イオン交換実験では、1.0 g の $^{nat}TeO_2$ を 15 mL の 2 M HCl に溶解させ、陰イオン交換カラム (15 mL) に着点した。その後、315 mL の 2 M HCl、75 mL の 4 M HNO_3 を流した。この実験では、15 mL 溶液を捕集し、それぞれの溶液試料を Ge 検出器で測定した。

【結果・考察】 沈殿分離実験では、沈殿試料として Te が除去され、溶液試料中には Sb がほぼ全量残っていることが確認できた。このとき、Te の除染係数は、6×10^{-3} であった。

陰イオン交換実験では、2 M HCl では、大部分の Sb は樹脂に吸着し、Te は溶離した。その後、通液した 4 M HNO_3 により、Sb は溶離した。この実験による Sb の化学収率は 86%であり、Te の除染係数は 3×10^{-3} であった。

今後、標的量を増加した Sb トレーサーの製造を計画しており、その際は、沈殿分離を行った後、陰イオン交換カラムクロマトグラフィーを行う手法での Sb の精製を検討している。

【参考文献】

(1) 環境省「放射線による健康影響等に関する統一的な基礎資料 令和 4 年度版」, 第 6 章.
(2) 池田隼人 他, 日本放射化学会第 66 回討論会 (2022), 1P08, 東京, 2022 年 9 月.

Production of Sb-125 by $^{nat}Te(\gamma,x)^{125}Sb$ reaction
YOKOKITA, T., HONDA, Y., KIKUNAGA, H.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P06 メスバウアー分光法による R コンドライト PCA91002 中鉄含有鉱物の研究

（金沢大院自然[1]、都立大院理[2]）
○石井勇希[1]、中川真由[1]、古川未来[1]、海老原充[2]、佐藤渉[1]

【緒言】隕石は地球上で我々が受動的に得られる唯一の地球外物質であり、太陽系の生成時の環境や進化の過程を紐解くための重要な情報源である。我々はその中でも世界的に発見数が少ない R コンドライトに分類される南極隕石 PCA91002 中の鉄を含有する鉱物組成を研究対象としている。R コンドライトは通常の隕石で見られる鉄-ニッケル合金や金属状態の鉄がほとんど存在せず、酸化的環境で進化した形跡を示す特徴がある。本研究では、鉄原子核位置での電子密度、電場勾配、超微細磁場を高感度で捉えることが可能な ^{57}Fe メスバウアー分光法によって、鉱物中の鉄原子の存在状態を特定し、PCA91002 の進化の過程に関する情報を得ることを目的としている。

【実験】メスバウアー分光測定においては、隕石の複雑なスペクトルを念頭において、速度軸の走査範囲を限定して測定した。スペクトルの解析に、MossA[1]を使用した。速度軸の較正は室温での純鉄のスペクトルを用いて行った。

【結果】図 1 に PCA91002 の室温でのメスバウアースペクトルを示す。PCA91002 中にはカンラン石（Olivine）とトロイライトが含まれていることが分かった。カンラン石には２つの金属サイト（M1 と M2）が存在していることが分かっている。本試料の M1、M2 を比較すると M2 成分の強度の方が高い結果となった。地球上の一般的なカンラン石では M1 成分の方が強度が高いことが知られており、PCA91002 ではこれと異なる傾向を示している。先行研究によればカンラン石を加熱すると、M1 成分と M2 成分の強度比が大きく変化する [2]。従って、カンラン石の M1 、M2 成分の強度比は隕石の熱履歴を知る上で重要な要素となりうる可能性がある。今後はカンラン石を様々な温度で加熱したものについてメスバウアー分光測定を行い、各成分の強度比を調べ、熱履歴との関係性に関する知見を深めていく予定である。

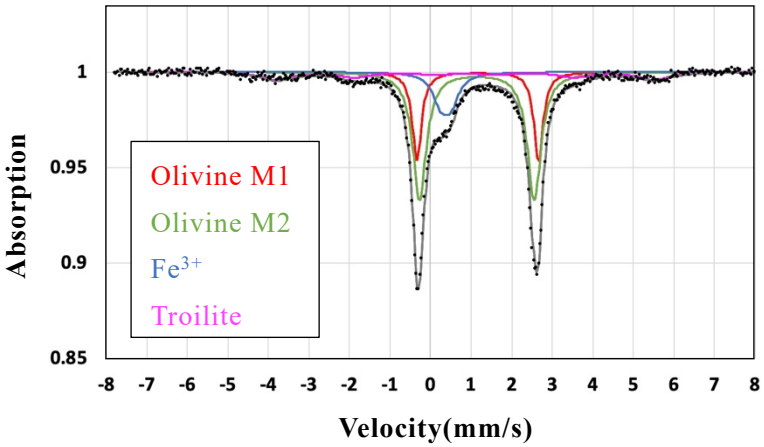


図 1　PCA91002 のメスバウアースペクトル（室温）
カンラン石の M2 成分の半値幅は同じ条件で測定した純鉄の値で固定

[1] Prescher, C., McCammon, C., Dubrovinsky, L.:J. Appl. Cryst. **45**, 329 (2012).
[2] Mariola Ka,dziłka-Gaweł *et al.* The Canadian Mineralogist **57**, 105 (2019).

Study on the composition of iron-bearing minerals in an R chondrite PCA91002 by Mössbauer spectroscopy
ISHII, Y., NAKAGAWA, M., FURUKAWA, M., EBIHARA, M., SATO, W.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P07 47都道府県に設置されたモニタリングポストの精度管理調査結果

(日本分析センター)○杉山翠、細田芽生、田中博幸、磯貝啓介

【緒言】

原子力規制庁委託事業である環境放射能水準調査の一環として、日本全国に設置された、空間放射線量率を測定しているモニタリングポスト（NaI(Tl)シンチレーション検出器）を対象に、測定値の品質保証に資するための精度管理調査を実施している。2016年～2022年までで全国47都道府県を一巡したため､その結果について報告する。

【調査方法】

(1) in-situ 校正等の線源照射試験

国家標準とトレーサビリティのとれたワーキングスタンダード（電離箱線量計または ^{137}Cs 線源）を用いた in-situ 校正を実施した。また、校正と併せてエネルギー特性試験も実施した。校正には ^{137}Cs 線源を、エネルギー特性試験には ^{241}Am、^{57}Co、^{133}Ba 及び ^{137}Cs 線源を用いた照射を行い、60 keV～660 keV 付近までの範囲で機器の健全性の確認を行った。検討基準はモニタリングポストと基準値の差が±20 %以内とした。

(2) バックグラウンドでの比較測定試験

可搬型 NaI(Tl)スペクトロメータを用いてモニタリングポストの周辺の空間放射線量率を測定することにより、モニタリングポスト設置地点の空間放射線量率を推定し、比較を実施した。検討基準はモニタリングポストと推定値との差が±15 %以内とした。

(3) 核種組成確認測定試験

モニタリングポストの周辺において可搬型ゲルマニウム半導体検出器による測定を行い、モニタリングポストの空間放射線量率に寄与する核種組成を評価した。

【結果】

(1) in-situ 校正等の線源照射試験

2016年～2022年までに in-situ 校正を実施した57台（47都道府県のうち、一部の都道府県では複数台及び2回目の調査を実施）のモニタリングポストの校正定数は 0.91～1.07 の範囲であり、空間放射線量率の測定が適切に実施されていることを確認した。エネルギー特性試験を実施した結果、^{241}Am（60 keV）を除いたエネルギーについては検討基準内で一致した。^{241}Am については、一部検討基準を外れた事例が見られたが、検出器カバーや断熱材の遮へい等の検出器の構造による影響が一因と考えられた。

(2) バックグラウンドでの比較測定試験

調査を実施した全てのモニタリングポストにおいて検討基準内で一致しており、周辺の空間放射線量率分布を反映した測定値が得られているものと考えられた。

(3) 核種組成確認測定試験

東京電力福島第一原子力発電所事故の影響を受けた自治体のモニタリングポストにおいては、人工放射性核種である放射性 Cs が検出され、今後も物理減衰による空間放射線量率の低下が考えられる。それ以外の自治体のモニタリングポストにおいては、自然放射性核種のみによる組成であることを確認できた。今後何らかの影響で空間放射線量率に変動があった場合には、人工放射性核種による影響または周辺環境の変化等を把握するための基礎データに資することができると考えられる。

(1)～(3)の調査の結果、国内における空間放射線量率の測定が適切に実施されていることを確認した。

National quality control survey results for air dose rate meters installed at monitoring stations in 47 prefectures

SUGIYAMA M., HOSODA M., TANAKA H., ISOGAI, K.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P08 電気化学的手法を用いた環境水中のヨウ化物イオンの選択的定量法の開発

（筑波大学[1]）中村 司[1]、○山崎 信哉[1]、西塚 魁斗[1]、坂口 綾[1]、高久 雄一[1]、末木 啓介[1]

【緒言】

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、 核関連施設等から放出された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と考えられる。そこで本研究では、電気化学的手法を用いた環境水中ヨウ素の化学形態別回収、定量法の確立を目的とし、銀電極を用いた I^-の選択的回収法について測定条件の最適化を行った。さらに、最適化した条件で実試料中の I^-濃度を定量し、HPLC-ICP-MS の定量値と比較した。

【実験】

作用電極に銀電極、参照電極に Ag/AgCl 電極（3M NaCl)、対極に白金電極を用い、0.1 M KNO_3 を支持電解質として用いた。$K^{127}I$ 溶液（最終濃度 0-100 μM）に $K^{125}I$（3 kBq）を添加して定電位電解を行った。I^-を AgI として電気化学的に回収した後、NaI シンチレーション検出器を用いて溶液中に残る ^{125}I 濃度を定量し、I^-の回収率を求めた。電解電位、電解時間、電極面積と溶液量の比について最適化を行った。

I^-溶液に IO_3^-を加えて定電位電解を行い、I^-の選択性を検討した。実験は上記で最適化した条件を用いた。全ての測定溶液に $K^{125}I$（3 kBq）を添加して I^-の回収率を決定した。次に、I^-の回収率に対する I^-濃度の依存性について検討した。さらに、ハロゲンイオンの妨害を検討するため、高塩濃度条件下（0.7 M NaCl または人工海水）での I^-の回収率を調べた。

本法の実試料への適用可能性について調べた。2020 年 8 月 18 日に式根島（34.29043N, 139.06304E）において採取した海水、及び 2022 年 12 月 19 日に茨城県つくば市の松美池（36.10764N, 140.10259E）において採取した水を、孔径 0.45 μm のシリンジフィルターを用いてろ過したものを試料として用いた。試料中の I^-濃度は本法（n=3）及び HPLC-ICP-MS（n=1）を用いてそれぞれ決定した。

【結果と考察】

印加電圧を変化させて I^-の回収率を求めた結果、+50 mV のとき最も効率が良い結果が得られた。次に、電解時間、電極面積及び溶液量を変化させて I^-の回収率を検討した結果、電極面積/溶液量比を大きくすることで、反応が 5 分以内に定常状態に達した。

IO_3^-の濃度に関わらず、$^{125}I^-$の回収率に有意な変化は見られなかったことから、本法により選択的に I^-を回収できることが分かった。0.4 nM の I^-溶液に 0.7 M の Cl^-を加えると、I^-回収率は 60%から 40%に減少した。また、I^-濃度が低くなるにつれて I^-回収率も減少した。これらの結果から、本法により I^-を選択的に回収することは可能であるが、定量に用いる場合は回収率の補正が必要となることが示唆された。

本法に標準添加法を組み合わせて環境試料中の I^-濃度を決定したところ、式根島海水が 261±124 nM、松美池が 146±86 nM となり、HPLC-ICP-MS による定量値（それぞれ 198, 161 nM、n=1）と誤差範囲内で一致した。以上より、本電気化学的手法は環境水中の I^-の選択的回収、定量に対して有効と考えられる。

NAKAMURA T., YAMASAKI S., NISHIZUKA K., SAKAGUCHI A., TAKAKU Y., SUEKI K.
Development of selective determination of iodide ions in environmental water using electrochemical methods.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P09 陽イオン界面活性剤を用いたセシウム 137 吸着鉱物の除染効果の経時変化

(広島大自然科学セ)○松嶋亮人、中島 覚

【緒言】粘土鉱物に吸着された ^{137}Cs は除染が非常に困難であり、汚染土壌において鉱質土層の表層から移動しなくなることが知られている。^{137}Cs で汚染された粘土鉱物からの除染効率の経時変化を調べるために、^{137}Cs を吸着させた 4 種類の粘土鉱物(Illite、Kaolinite、Na-Bentonite、Ca-Bentonite)を 2 種類の陽イオン界面活性剤(Benzyldodecyldimethyl ammonium bromide (BDAB)と Dodecyltrimethylammonium bromide(DTAB))で除染処理し、その除染効率の変化を経時的に調べた。

【実験】4 種類の粘土鉱物 10g に 10 kBq (100mM CsCl 水溶液)の ^{137}Cs をそれぞれ加え、25°C で 24 時間振とう (200 min^{-1})することで粘土鉱物に ^{137}Cs を吸着させた。次に 2,400 rpm で 10 分間遠心し、上清を捨てた後に 100ml のイオン交換水を加えて沈殿を懸濁し、同様に遠心することで沈殿を洗浄した。その後、沈殿を 80°C で 24 時間乾燥させることで ^{137}Cs 吸着粘土鉱物を得た。続いて、^{137}Cs 吸着粘土鉱物作成日から 1、10、20、30、60 日後に以下の方法で ^{137}Cs 吸着粘土鉱物中の ^{137}Cs 量を測定することで除染効率の経時変化を調べた。^{137}Cs 吸着粘土鉱物 0.125g に 1.25 ml の BDAB または DTAB 水溶液を加え、25°C で 24 時間ボルテックスミキサーを用いて攪拌した。次に 5,000 rpm で 10 分間遠心し、上清を捨てた後に 1 ml のイオン交換水を加えて沈殿を懸濁し、同様に遠心することで沈殿を 3 回洗浄した。沈殿は 80°C で 24 時間乾燥させた後、Ge 半導体検出器で ^{137}Cs (661.49 keV, 85.00 %)の放射能を測定した。

【結果】Illite の除染効率は BDAB と DTAB の濃度が 10 mM までは除染効率は上昇し、10 mM 以上の濃度では 70%程度の除染効率でほぼ一定となった。また、30 日目で 30 mM と 50 mM で除染効率の低下が見られた。Kaolinite の除染効率は BDAB と DTAB の濃度が 10 mM までは急速に上昇し、10 mM 以上の濃度では 90%程度の除染効率でほぼ一定となった。Na-Bentonite の除染効率（図 1）は BDAB と DTAB の濃度が 50 mM までは緩やかに上昇し、その後一定となった。しかし、30 日目と 60 日目では DTAB による除染効率で約 65%から約 50%に低下していた。Ca-Bentonite の除染効果は BDAB と DTAB の濃度が 100 mM まで緩やかに上昇し、界面活性剤の濃度が高い場合 BDAB の方が DTAB より高い除染効果を示したが、Na-Bentonite で見られた時間経過による除染効率の低下は見られなかった。

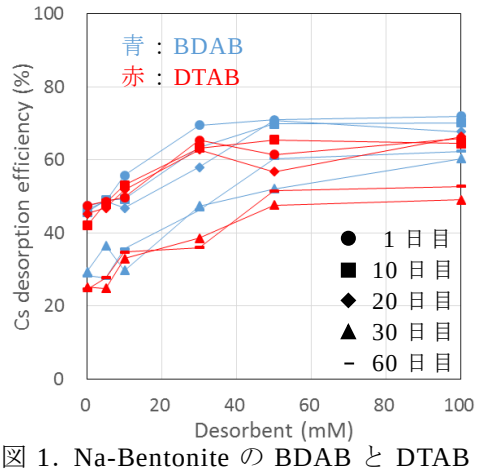


図 1. Na-Bentonite の BDAB と DTAB による除染効率

【考察】1:1 層の構造層を持つ Kaolinite は、層間距離が短く ^{137}Cs が層間に入れないため容易に除染さたが、フレイドエッジサイトを有する Illite はサイトに ^{137}Cs が入るため、Kaolinite に比べて緩やかに除染が進んだと考えられる。2:1 層の層構造を持つ Na-Bentonite は層間距離が長く ^{137}Cs を容易に取り込み、時間経過により除染しにくい場所まで ^{137}Cs が移動した可能性がある。Ca 型は Na 型と比べて層間距離が短く、^{137}Cs が移動しにくいため、時間経過による変化が見られなかった可能性がある。

Time course of decontamination effect of cesium-137 adsorbed minerals using cationic surfactants
Akihito Matsushima, Satoru Nakashima

© 一般社団法人日本放射化学会

2P10 X 線吸収分光法による模擬風化処理した雲母中ウランのスペシエーション

(原子力機構[1]、JASRI[2]、東京大学[3])○蓬田　匠[1]、東　晃太朗[2]、河村 直己[2]、北辻 章浩[1]、高橋 嘉夫[3]

【緒言】旧ウラン(U)鉱山である人形峠や東濃の U 鉱床では、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。黒雲母の層状構造に沿った U の濃集が観測されている[1]が、黒雲母に U が濃集する際の詳細なメカニズムは明らかになっていない。U(VI)は水に可溶で移行しやすい一方、U(IV)は不溶性沈殿を形成することが一般的に知られており、黒雲母中での還元反応によって U が保持されている可能性がある。また、黒雲母の層間は風化によって発達することが知られているが、風化に伴う黒雲母の構造変化が U 還元に与える影響は未解明であった。そこで本研究では、層間のカリウム(K)を抽出する模擬風化処理[2]を黒雲母に行い、作成した模擬風化黒雲母に U を吸着させた。これらの黒雲母試料中に保持された U の化学種を X 線吸収端近傍構造分光法(XANES)と高エネルギー分解能蛍光検出(HERFD-)XANES により分析し、風化処理が黒雲母への U 濃集反応に与える影響を調べた。

【実験】ニチカ製のインド産黒雲母鉱物標準を試料として用いた。黒雲母は、粉砕機によって粉末化したものを試料として用いた。風化処理は、大気雰囲気下、またはグローブボックス(H_2: 0~5%, O_2<5ppm)中で行った。1.7 M NaCl と 0.01 M エチレンジアミン四酢酸溶液中で、0.2 M のテトラフェニルホウ酸ナトリウムを添加し、50 ℃で 3 日間、2 週間、3 週間反応させて黒雲母の K を抽出し、模擬風化黒雲母試料を作製した。U の吸着試験は、グローブボックス(H_2: 0~5%, O_2<5 ppm)内で行った。U 濃度を 0.05 mM とし、pH 4, 6 に調製して 24 時間反応させた。反応後、超純水で洗浄した後に風乾させ、直径 7 mm のペレットとして成形した。成形したペレットは、ハイバリアフィルムによって三重に密封し、SPring-8 BL01B1、BL39XU において U L_{III} 端 XANES 測定を行った。

【結果と考察】U を吸着させた模擬風化黒雲母の HERFD-XANES スペクトルを取得した。まず、HERFD-XANES スペクトルの形状を U(IV)、U(V)、U(VI)の標準スペクトルと比較したところ、ピーク位置は U(IV)および U(VI)とほぼ同じ位置に検出された。HERFD-XANES スペクトルでは、U(V)のピークトップが U(IV)や U(VI)と比較して高エネルギー側に検出される特徴がある[3]が、U(V)の位置でのピークは観測されず、黒雲母中での U の還元種は主に U(IV)であることが示された。黒雲母中の U(IV)の還元種の割合を定量的に評価するため、U(IV)の標準として UO_2、U(VI)の標準として $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ を用い、線形結合フィッティングにより XANES スペクトルを解析した。その結果、未風化の黒雲母に U を吸着させた際には、U(IV)の割合はほぼ 0 %であり、還元は生じず U(VI)の吸着種のみが存在していた。一方、模擬風化処理した黒雲母では、K 抽出率が増加するに従って U(IV)の還元種の割合も増加した。3 週間の K 抽出を行った黒雲母では、吸着した U の約 30 %が U(IV)として観測されており、模擬風化処理により生成した黒雲母の層間が U の還元サイトとして重要な機能を持つことが示された。

【参考文献】[1]H.Yoshida et al., J. Nucl. Sci. Technol., 1994, 31, 803-812. [2]R.Kitayama et al., Euro. J. Soil Sci., 2019, 71,641-653. [3]T. Yomogida et al., Inorg. Chem. 2022, 61,20206-20210.

Speciation of uranium in artificially weathered mica by X-ray absorption spectroscopy
YOMOGIDA, T., HIGASHI, K. KAWAMURA N., KITATSUJI, Y., TAKAHASHI, Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P11 多摩川本流における存在形態分析を用いた底質中 ^{137}Cs の移行調査

(明治大理工 [1]、明治大院理工 [2])○清水優伸 [1]、高橋亘 [1]、加世田大雅 [2]、小池裕也 [1]

【緒言】福島第一原子力発電所事故由来の ^{137}Cs は、関東圏の多摩川集水域で検出されており、特に底質に多く存在している。これまでの調査で、多摩川本流は上流から下流にかけて ^{137}Cs 濃度が上昇することが確認されている [1]。本研究では多摩川本流で採取した底質を逐次抽出法による存在形態分析に供し、^{137}Cs の移行形態を調査した。

【実験】底質は、2018 年 12 月に多摩川本流の青梅リバーサイド(No.1)、関戸橋(No.2)、六郷土手(No.3)において(Fig. 1)、それぞれの地点で表層から 5 cm までを約 1 kg 採取した。採取した底質は 105℃ で 24 時間以上乾燥させ、目開き 2 mm の篩でふるい分けをした。この操作で得た粒径 2 mm 以下の底質を分析試料とした。試料 5 g を分取し、Tessier の逐次抽出法 [2]に準じて、イオン交換(IE)態、炭酸塩(CB)態、Mn/Fe 酸化物(OX)態、有機物(OB)態を抽出した。OB 態抽出後の残渣を吸引ろ過し、105℃ で 24 時間以上乾燥させ、残留物(RES)態を得た。逐次抽出により得られた 4 種類の抽出液と RES 態を高純度 Ge 半導体検出器(PGT, Inc., IGC-10200NPR)で放射能分析を行った。

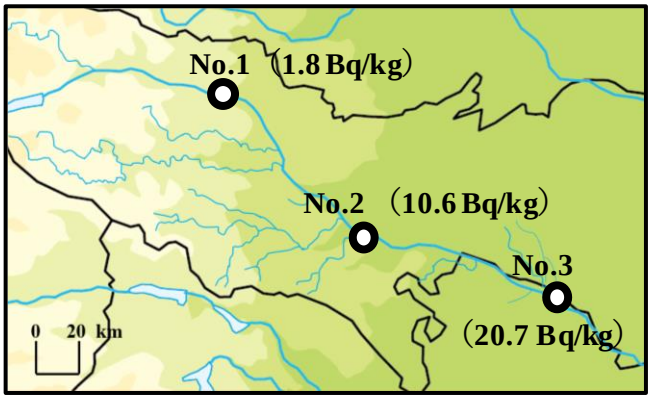


Fig. 1 Map of sediment sampling points in the Tama River watershed. Value in parentheses indicates the ^{137}Cs concentration in the sediment.

【結果と考察】逐次抽出により得られた底質中 ^{137}Cs の形態別存在割合を Fig. 2 に示す。底質中の ^{137}Cs は下流に行くにつれ RES 態の割合が増加した。RES 態中 ^{137}Cs は結晶構造内に存在する最も溶出しにくい形態である [3]。現在の底質中の ^{137}Cs は、RES 態を主とした不溶性の形態で多摩川本流を移行していることが示唆された。

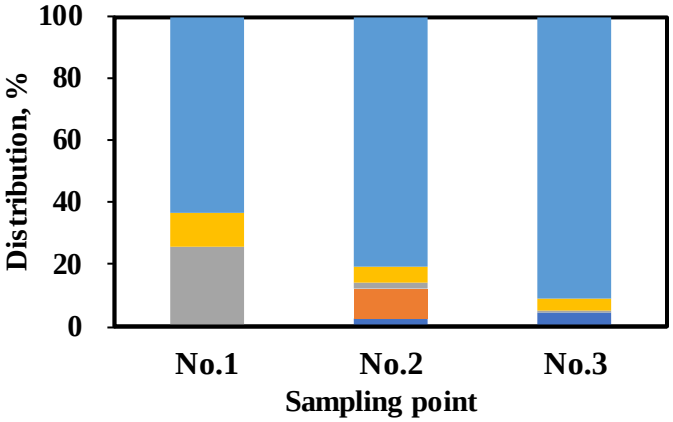


Fig. 2 Chemical state distribution of ^{137}Cs in sediment collected from the mainstream of the Tama River.
■: IE fraction; ■: CB fraction; ■: OX fraction; ■: OB fraction; ■: RES.

【参考文献】

1) 秋山将人ら, 2018 年日本放射化学会年会・第 62 回放射化学討論会講演要旨集, 1B02 (2018).
2) A. Tessier, *et al.*, *Anal. Chem.*, **51**, 844-851 (1979).
3) 齋藤陽一ら, 分析化学, **62**, 1013-1021 (2013).

Investigation of ^{137}Cs migration in sediment of in the mainstream of the Tama River using chemical state analysis
SHIMIZU M., TAKAHASHI T., KASEDA T., KOIKE Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P12 多摩川集水域宿河原における河川水及び底質中放射性セシウム濃度の定点観測

(明治大理工[1]、明治大院理工[2])○高橋亘[1]、清水優伸[1]、加世田大雅[2]、小池裕也[1]

【緒言】福島第一原子力発電所事故により大量の放射性核種が拡散された。事故から10年以上経過した現在も、^{137}Csは土壌や河川水中で検出されており、関東圏の多摩川集水域でも確認されている[1,2]。明治大学放射化学研究室では、2012年より多摩川集水域の宿河原で河川水と底質を継続的に採取している。本研究では、宿河原での定点モニタリングから得られた^{137}Cs濃度の経年変化を報告する。

【実験】河川水および底質は、2012～2023年に宿河原で採取した。河川水20 Lをガラス繊維濾紙（Cytiva, 粒子保持能: 0.7 μm）で加圧濾過し、濾物を懸濁態試料、濾液を溶存態試料とした。溶存態試料5 Lに対してリンモリブデン酸アンモニウム三水和物2 g、塩酸30 mLを加え、撹拌機で1時間撹拌後、約17時間静置した。得られた沈殿物を定量濾紙（ADVANTEC, 粒子保持能: 4 μm）で自然濾過し、濾紙ごとU-8容器に充填した。懸濁態試料は、105℃で24時間以上乾燥させ、U-8容器に充填した。底質は、105℃で24時間以上乾燥させ、目開き2 mmの篩でふるい分けした。この操作で得られた粒径2 mm以下の底質を分析試料とした。試料を円錐四分法により縮分し、U-8容器に高さ5 cmで充填した。充填した測定試料を高純度Ge半導体検出器（PGT, Inc., IGC-10200NPR）でγ線測定し、^{137}Csの濃度を算出した。

【結果と考察】放射能分析から算出した2012～2023年における5～7月の河川水溶存態および底質中^{137}Cs濃度の経年変化をFig.1に示す。溶存態と比較して底質中^{137}Cs濃度の減少率は高かった。一方、溶存態は底質より緩やかな減少が観測された。河川水中^{137}Csは下流への移行が進んでいると考える。現在は溶存態と底質ともに^{137}Cs濃度の変化量が小さいため、^{137}Csの供給と移行が平衡関係にあると推察される。

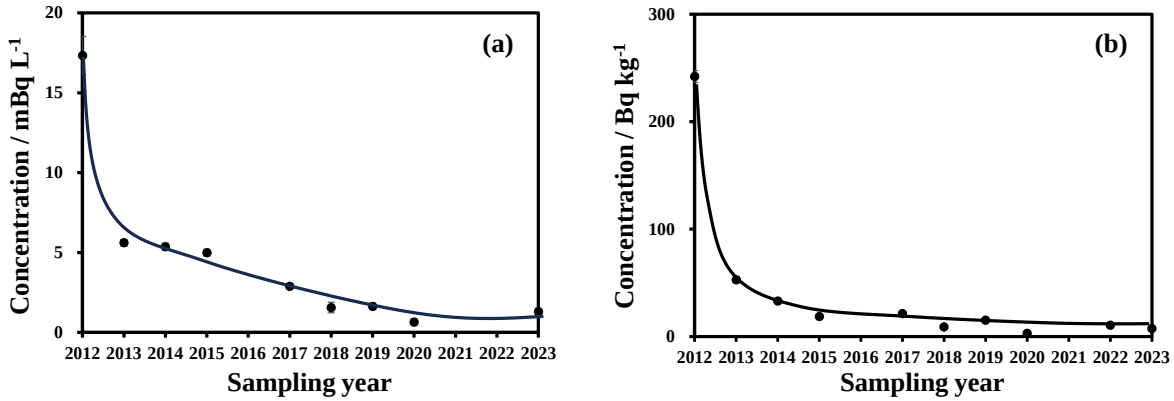


Fig. 1 Secular variation in ^{137}Cs concentration in river water dissolved matter (a) and sediment (b) sampled at Shukugawara.

【参考文献】

1) Hagiwara, K. *et al.*, *Radioisotopes*, **70**, 227-237 (2021).
2) 猪瀬聡史ら, 放射化学, **45**, 1-8 (2022).

Fixed-point observation of radioactive cesium concentration in river water and bottom sediments sampled at Shukugawara in Tama River watershed
TAKAHASHI T., SHIMIZU M., KASEDA T., KOIKE Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P13 赤城大沼の夏季・冬季成層化における放射性セシウム濃度の変動

(金沢大[1]、群馬水試[2]、福井県立大[3])○大鳥慎治[1]、藤田知樹[1]、
阿久津崇[2]、鈴木究真[2]、塩澤佳奈子[2]、杉本亮[3]、長尾誠也[1]

【はじめに】 2011 年 3 月 11 日の東京電力福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性セシウムが大気中・海洋中に放出された。群馬県の山岳湖沼、赤城大沼における湖水中の全放射性セシウム濃度は、他の湖沼水系に比べ減少傾向が緩やかであることが報告されている。その原因は湖沼の閉鎖性による低い湖水交換能と夏季底泥からの放射性セシウムの溶出が関与している可能性が考えられている。先行研究により、夏季の底層水で放射性セシウムとアンモニウムイオン濃度に正の相関関係があることから堆積物とのイオン交換が放射性セシウムの溶出に関与することが示唆された。本研究では、成層化が進行する夏季とともに冬季について、赤城大沼底層水中の放射性セシウム濃度が増加する原因・溶出機構を検討した。

【試料採取・測定】 2022 年 1 月 20 日、2 月 22 日、3 月 18 日、6 月 21 日、10 月 3 日に赤城大沼の湖心において、湖水を水深 5 m 間隔で表層から 4 点、底泥から 50cm の底層水を水中ポンプによりろ過試料とバルク試料をそれぞれ約 20 L ずつ採取し、同時に栄養塩と鉄分析用試料も採取した。10 月の観測では、湖心に加え流出部・流入部においても水深 5m 間隔で表層から 3 点・底層の計 4 点で湖水試料を採水した。湖水はリンモリブデン酸アンモニウム沈殿法を用いて放射性セシウムを分離・回収した。その後、ゲルマニウム半導体検出器を用いたγ線測定法を適用して Cs-137 放射能濃度を測定した。湖水の鉄濃度は比色分析法により測定した。アンモニウム態窒素濃度はインドフェノール法、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素、ケイ酸態ケイ素濃度についてはフローインジェクション分析法により測定した。

【結果・考察】 水温躍層が形成された 2022 年 3 月、10 月の湖水中 Cs-137 放射能濃度を図 1 に示す。溶存態 Cs-137 濃度は水深が深くなるほど増加した。水深 15m 以深の底層水の溶存態 Cs-137 濃度の平均値は、冬季の 1 月から 3 月、夏季の 6 月から 10 月にかけて、それぞれ 39.5 から 41.2 mBq/L、22.4 から 46.8 mBq/L まで増加した。湖水中の溶存酸素濃度は 3 月、10 月ともに水深 15m 以深で 0 mg/L と還元環境を示した。また、水深 10m 以深の溶存態 Cs-137 濃度とアンモニウムイオン濃度との間には正の相関関係が存在した。これらの結果から、夏季とともに冬季においても湖水の成層化・還元環境への移行に伴い底層水への Cs-137 の溶出が起こっていることが示唆された。発表においては 2023 年冬季の結果や 10 月の 3 地点観測による湖内全体の溶出性、溶出が湖水中放射性セシウムの減少に及ぼす影響についても触れる。

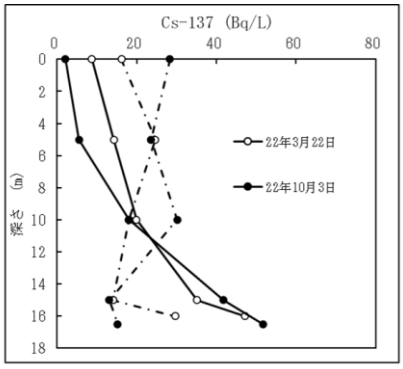


図1 3月、10月湖水中Cs-137濃度の
鉛直分布(実線が溶存態、破線が粒子態)

The flux of radiocesium concentration in summer and winter stratification in Lake Akagi
S. Otori, T. Fujita, T. Akutsu, K. Suzuki, K. Shiozawa, Ryo. Sugimoto, S. Nagao

© 一般社団法人日本放射化学会

2P14 熱感応性界面活性剤の相分離現象による金属酸化物微粒子の抽出

(JAEA[1], 福島大理工[2])○中川太一[1,2], 松枝誠[1], 寺島元基[1], 高貝慶隆[2]

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所（1F）の廃炉作業において，燃料デブリ性状の把握は重要であるが，性状を直接確認することは困難である。そこで燃料デブリが起源と考えられる汚染水中の微粒子に着目した。汚染水中の微粒子は，燃料デブリや滞留水中の堆積物よりも線量が低く採取が容易である。しかし，汚染水中の微粒子は，粒子濃度が低いため，前濃縮が必要である。従来の濃縮法であるフィルター濾過や遠心分離では，微粒子が凝集体を形成してしまい，粒径や形態が変化してしまう。これらの課題を解決するために，本研究では，熱感応性界面活性剤の相転移温度（曇点）を境に均一溶液から相分離することを利用した曇点抽出法を使用した。界面活性剤は，微粒子の表面に吸着することで微粒子を保護し，微粒子自体の凝集を抑制することが可能である。今回，燃料被覆材として使用されるジルコニウムと構造材に含まれる鉄とクロムの曇点抽出法による抽出及びゼータ電位の影響を明らかにしたので報告する。

【実験】金属酸化物微粒子（粒子径 100 nm 程度）を抽出実験に使用した。微粒子溶液に 0.1 M KOH と 0.1 M HCl を加えて pH 調整を行った。微粒子溶液に抽出剤として両性イオン界面活性剤（ジメチルノニルアンモニオプロピルサルフェート（C_9-APSO$_4$））を加え，曇点（65°C）以上に加熱し均一溶液とした。その後，混合溶液を曇点以下まで冷却し，相分離を引き起こし，遠心分離機で微小液体相（界面活性剤相）と水相を完全に分離した。水相，均一溶液と微小液体相をシングルパーティクル誘導結合質量分析計（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】pH 調整をせず（pH 5）に抽出を行った結果，ZrO_2 微粒子（粒径：119±48 nm）は，抽出率 90%以上であった。抽出後の粒子径は 119±65 nm であり抽出前後でほとんど変化がないことがわかった。TEM 観察においても微小液体相中に ZrO_2 微粒子を確認した。これにより抽出前の粒子径と形態が変化していないことを確認した。pH2-12 に調整し，抽出した結果，pH2-10 では 90%以上と高い抽出率を示したが，pH12 において，抽出率は 33%と低下した（図 1）。pH12 条件で ZrO_2 微粒子は強い負電荷（-25 mV）を帯びている。また，pH12 条件下の C_9-APSO$_4$ ミセルも計測すると負電荷（-25 mV）を帯びていた。このことから静電斥力によって微粒子と界面活性剤が反発し，界面活性剤の微粒子への吸着が阻害されたため抽出率が低下したと考えられる。ZrO_2 以外にも Fe_2O_3 と Cr_2O_3 において同様の抽出挙動が確認できた。Cr_2O_3 は pH12 条件で-46 mV と強い負電荷を帯び，抽出率は 15%まで低下した。一方で Fe_2O_3 も-36 mV と負電荷を帯びていたが抽出率は 60%と ZrO_2 と比較しても高い。元素組成や表面積の違いにより，界面活性剤の微粒子への吸着挙動が異なり，抽出挙動に影響している可能性がある。

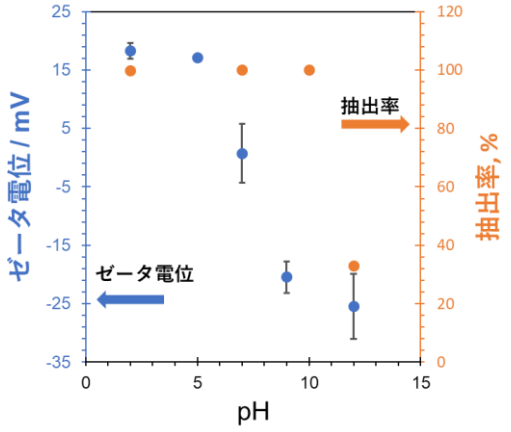


図 1　pHとZrO_2微粒子のゼータ電位・抽出率の関係

Extraction of metal oxide particles by phase-separation phenomenon of thermosensitive surfactants
NAKAGAWA T., MATSUEDA M., TERASHIMA M., TAKAGAI Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

各自の講演番号を記入して下さい。サイズ改変不可。間違えないようご注意下さい！
不要アイテムは全て削除して下さい。

2P15 電子スピン共鳴による野生動物の歯を用いた線量測定法の進展と課題

（東北大学大学院理学研究科[1]、日本原子力研究開発機構[2]、東北大学病院[3]、東北大学高度教養教育・学生支援機構[4]、東北大学歯学部[5]、東北大学災害科学国際研究所[6]、理化学研究所[7]）○光安 優典[1]、岡 壽崇[2]、高橋 温[3]、木野 康志[1]、関根 勉[4]、山下 琢磨[4]、清水 良央[5]、千葉 美麗[5]、鈴木 敏彦[5]、小坂 健[5]、佐々木 啓一[5]、鈴木 正敏[6]、福本 学[7]、篠田 壽[5]

【緒言】 福島第一原子力発電所（FDNPP）の事故によって、帰還困難区域内の生物は低線量率慢性被ばくをうけた。低線量率慢性被ばくによる放射線生物学的影響の研究は限られており、正確な被ばく線量の推定をベースにして、FDNPP 事故による放射線影響を明らかにする必要がある。当研究室では、野生動物を用いて放射線影響の解明を行っているが、行動履歴の不明な野生動物の正確な被ばく量を決定するために、歯を用いた電子スピン共鳴（ESR）線量測定に着目した。この方法では、低線量被ばくをした野生動物を用いた被ばく線量推定が可能であり、これを野生動物に最適化する方法を研究している。本研究では、γ 線照射を行ったニホンザルの歯の ESR の線量応答と線量推定への影響について報告する。

【実験】 コントロール地域で捕獲された 3 頭のニホンザルから延べ 56 本の歯を抜歯した。サルの歯は砕いたのち 0.425-1.000 mm の粒径に揃え、2.4 g/cm^3 のメタタングステン酸ナトリウム水溶液でエナメル質を分離した。水酸化ナトリウム水溶液で 2 時間洗浄したのち、酢酸とエタノールでエッチングを行った。それぞれの歯の試料のうち、左右下顎大臼歯 1 本を除いた試料を半分に分け、個体ごとに均一化し、それぞれ 6 サンプルを作成した。
放射線の照射は JAEA の放射線標準施設棟（茨城県東海村）にある ^{60}Co ガンマ線を用いて照射を行った。線量は各個体の 6 サンプルを 0（照射しない）、100、200、500、1000、2000 mGy に割り振って照射した。
ESR 測定は JES-320（日本電子）を用いた。測定によって得られた ESR スペクトルはフィッティングによって放射線によって誘起される CO_2^- ラジカルの寄与のみを抽出した。測定によって得られた ESR スペクトルおよび得られたラジカル強度が、個体差がどの程度存在するのかを調べた。また、吸収線量とラジカル強度の関係式を調べた。また、実際に FDNPP 事故により被ばくをした野生動物の線量推定を行う場合は、吸収線量とラジカル強度の関係式（線量応答直線）を用いるが、この直線の個体差や誤差についても報告する。

Progress and problems in dosimetry using electron spin resonance in wild animal teeth
MITSUYASU. Y., OKA T., TAKAHASHI A., KINO y., SEKINE T., YAMASHITA T., SHIMIZU Y., CHIBA M., SUZUKI T., OSAKA K., SASAKI K., SUZUKI M., FUKUMOTO M., SHINODA H.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P16 2018–2022 年夏季の日本海における海水中のトリチウム濃度分布

（水産機構）○三木志津帆、東畑顕

【緒言】 トリチウムは、宇宙線と大気中の原子との核反応により定常的に生成され降雨により陸水域へ、河川等から海洋へ流入している。また、1980 年まで実施されていた大気圏内核実験により多量のトリチウムが大気中に放出され、海洋へも流入した。海峡が浅く狭い日本海は半閉鎖的環境であり、太平洋側と異なるトリチウム濃度の分布を示す。1987 年の日本海の海水中の平均トリチウム濃度は、水深 0-200 m で 0.43 Bq/L, 200 m 以深で 0.15 Bq/L、水深 1,000 m でも 0.19 Bq/L を示した地点があり、さらに大和堆北部に位置する日本海盆では水深 2,000 m においてもトリチウムが検出した（Watanabe et al., 1991）。大気圏内核実験の影響が薄れた現在の日本海における海水中のトリチウム濃度は、放射壊変により低濃度で推移していると考えられる。本研究では、2018 年以降の夏季における日本海の海水中のトリチウム濃度を測定し、その鉛直分布を明らかにする。

【実験と結果】 2018-2022 年に日本海盆 (43º00’N, 138º21’E)、2019 年および 2021 年に大和堆南東に在る大和海盆（38º30’N, 135º00’E）、2020 年および 2021 年に大和堆の浅瀬を含む大和海嶺（39º50’N, 135º53’E）、2018 年および 2020 年に大和堆南西の対馬海盆（36º11’N, 132º20’E）において、それぞれ調査船・蒼鷹丸により海水を鉛直採水した。海水試料は常圧蒸留法により精製後、トリチウム電解濃縮装置で 6-8 倍に濃縮し、これを供試水とした。供試水は同量のシンチレータと混合して静置後、液体シンチレーションカウンタで測定し、試料中のトリチウム濃度を算出した。日本海盆で採取した海水試料中のトリチウム濃度の多くは九州環境管理協会で分析された。

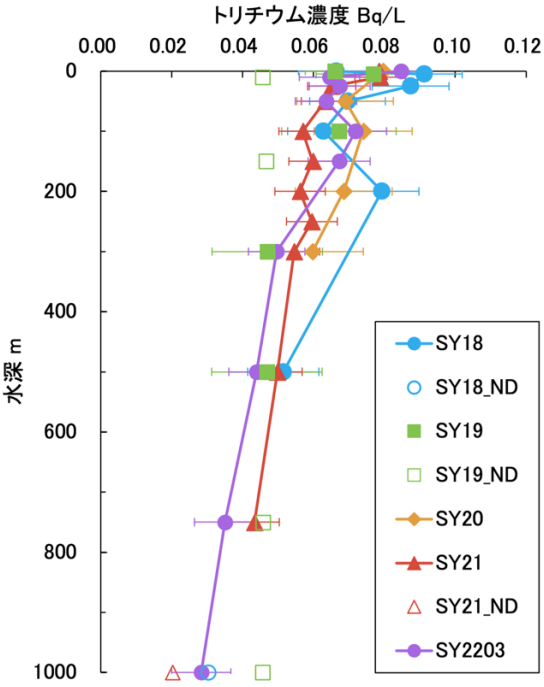


図. 日本海盆におけるトリチウム濃度の鉛直分布

図に日本海盆における海水中のトリチウム濃度の鉛直分布を示す。トリチウム濃度は、表層も水深 1,000 m においても、1987 年の約 1/5-1/6 程度の濃度まで低下している。日本海表層海水のトリチウム濃度は、大気や周辺沿岸の陸水域からの流入の他対馬暖流の影響を受けるが、高くても 0.1 Bq/L 程度であり、日本沿岸の太平洋側における表層海水と同レベルである。水深 1,000 m においては、太平洋側でトリチウムが検出しない一方、日本海では現在もトリチウムが検出している。

参考文献：Watanabe et al., 1991. Tritium in the Japan Sea and the renewal time of the Japan Sea deep water. Marine Chemistry 34, 97-108.

Tritium concentration in sea water in the Japan Sea, summer 2018-2022

MIKI, S., Touhata, K.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P17 大規模陽子加速器施設で使用された電源ケーブル被覆中の ^{36}Cl の定量に向けた基礎的検討

(KEK[1]、日環研[2]、QST[3]、総研大[4]、京大[5])○吉田剛[1]、豊田晃弘[1]、石田正紀[1]、山﨑翔太[2]、三橋正裕[2]、山田正明[2]、西川功一[3]、津金聖和[1]、BuiThien[4]、八島浩[5]、松村宏[1]、渡邉瑛介[1]、中村一[1]、塩原良建[2]、大石晃嗣[2]、桝本和義[1]、三浦太一[1]、別所光太郎[1]

【緒言】大型加速器施設であるKEKの旧12GeV陽子シンクロトロン施設(KEK-PS)では放射化による様々な核種の生成・残留が予想され、廃止に向けた障害となっている。電磁石への電源供給ケーブルは、絶縁と強度を確保するために塩素化ポリエチレンで被覆されている。塩素の安定同位体として75.6%含まれる ^{35}Cl が、加速器運転中に発生する中性子と反応して生じる ^{36}Cl は半減期が30万年と影響が長期に及ぶが、純β核種で測定が困難であるため、生成量や分布が明らかにされてこなかった。そこで我々は、長半減期核種の定量で成果を上げている加速器質量分析法（AMS）によるケーブル被覆中の ^{36}Cl の分析を検討している。AMSの前処理として有機物中の共有結合塩素を水溶液中に Cl^- として取り出す必要があるが、確立された手法が存在しなかった。この度、我々は、ケーブル被覆試料を酸素気流中で燃焼させ発生する気体を水を用いるバブリング方式にて捕捉し、Cl^- を得る方法を開発した。また、塩素含有量が不明であったケーブル被覆に対して中性子放射化分析による定量を試み、濃度を明らかにした。

【実験】図1に測定対象であるKEK-PS主リングトンネル内より採取したセプタム電磁石の電源ケーブル（外径:36mm, 芯線:30mm）を示す。我々はケーブル被覆に対して、①SEM-EDS、XRFによる表面状態および元素分布の観察、②中性子放射化分析による含有塩素の定量（^{38}Cl の放射能より推定）、③燃焼ガス捕集法によるAMS試料（含 Cl^- 溶液）の調整、④イオンクロマトグラフィーによるAMS試料中の生成イオン種の定性および定量、の一連の化学操作および分析を行った。

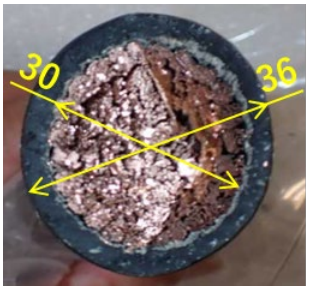


図1 電源ケーブル断面

【結果】代表して③および④について簡潔に述べる。被覆0.5gを分取し、石英管内の酸素気流中で燃焼させ、発生した気体を2段の純水トラップへ通した。昇温、燃焼は段階的に130分かけて行われ、その間に発生した全ての気体を捕集した。捕集水のpHを測定したところ1段目: 1.5、2段目: 2.0と何れも酸性を示すことがわかった。イオンクロマトグラフィーにより捕集水に含まれるイオン種を調べたところ、1段目からは Cl^-(2,180 mg/L)、2段目からは Cl^-(1.6 mg/L)、SO_4^{2-}(21 mg/L)、NO_3^-(5 mg/L) が検出された。1段目、2段目ともにAMSに必要な Cl^- 量が存在することがわかった。硫黄の安定同位体である ^{36}S は、^{36}Cl の同重体であるためAMSにおける妨害因子であり試料から極力取り除くことが望ましい。実験結果からは SO_4^{2-} が検出されたが、Baとの沈殿生成で除去できる見込みである。

Fundamental study for quantification of ^{36}Cl activity in power cable jackets used in large proton accelerator facility at KEK

YOSHIDA G., TOYODA A., ISHIDA M., YAMAZAKI S., MITSUHASHI M., YAMADA M., NISHIKAWA K., TSUGANE K., BUI N. T., YASHIMA H., MATSUMURA H., WATANABE E., NAKAMURA H., SHIOBARA R., OISHI K., MASUMOTO K., MIURA T., BESSHO K.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P18 アクチノイド化合物に向けた高精度相対論的 CASPT2 プログラムの開発

(広島大院先進理工[1]、都立大院理[2]、広島大理[3])○増田康人[1]、野田紘平[1]、岩室寿美果[2]、樫野理子[3]、阿部穣里[1]

【緒言】一般にアクチノイド原子は、相対論効果を大きく受けることに加えて原子軌道が擬縮重している。そのためアクチノイド化合物の電子状態計算を行うには、高精度な相対論効果と波動関数の多配置性を考慮する必要がある。我々はこれらの要件を満たすプログラムの開発を目指し、高精度な相対論的量子化学計算プログラム DIRAC を基に、多配置摂動論(complete active space second order perturbation theory, CASPT2)を計算可能とするプログラムの開発を行ってきた。またさらなる計算精度向上のために Improved Virtual Orbital(IVO)や RASPT2(restricted CASPT2)も実装しており、現在プログラムパッケージとして公開準備中である。本発表では、我々が開発したプログラムと適用した理論の特徴を紹介し、UO_2^{2+}分子の基底・励起状態計算への応用例を報告する。

【理論】 CASPT2 では、まず摂動の参照関数を作るために、完全活性空間(CAS)内で発生する全励起配置の線形結合を取り、その係数を変分的に決定する(CAS configuration interaction, CASCI)。その後、CASCI の解を 0 次波動関数として、さらに 1,2 電子励起させた状態を摂動論的に考慮する(CASPT2)。一方 RASPT2 では、大きい活性空間を用いたときに現実的な計算コストにするために、CASCI よりも少ない配置の線形結合になるよう制限をかけた理論である。

【ベンチマーク計算】UO_2^{2+}分子の基底状態と励起状態に対して、U-O 間の結合長 *R* を変化させて計算し、基底状態と励起状態のポテンシャルエネルギー曲線を求めた。DIRAC で厳密二成分相対論法(exact-two-component Hamiltonian, X2C)に基づく Hartree-Fock 計算を行った後、我々の開発した RASPT2 プログラムを実行した。基底関数は Dyall の cv2z、cv3z、cv4z を用いた。図 1 は最も良い cv4z 基底を用いた RASPT2 法による基底・励起状態のポテンシャルエネルギー曲線である。表 1 の垂直励起エネルギーは、比較のため、過去で用いられた *R* の距離で算出したものを示す。UO_2^{2+}の垂直エネルギーに関する理論計算は、先行研究が非常に多いため、詳細な比較は当日発表する。

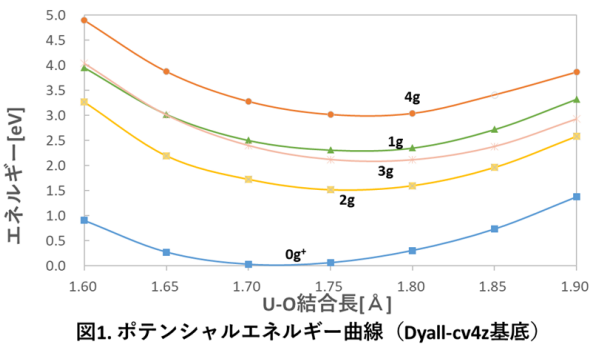


図1. ポテンシャルエネルギー曲線（Dyall-cv4z基底）

表1.各励起状態への垂直励起エネルギー[eV]

	RASPT2	SO-IHFSCCSD[1]	EOM-CCSD [2]
	Dyall-cv4z	dyall.v3z	ECP
Ω	R=1.708[Å]	R=1.708[Å]	R=1.708[Å]
1_g	2.047	1.843	2.525
2_g	1.181	1.764	2.454
3_g	1.921	1.919	3.598
4_g	2.826	2.592	3.246

【参考文献】

[1]Tecmer, P. et al, *J. Chem. Phys.***141** 041107 (2014)
[2]Zhang, S. and Wang, F. *J. Phys. Chem. A* **121** 3966 (2017)

Development of a high-precision relativistic CASPT2 program for actinide compounds.
MASUDA, Y., NODA, K., IWAMURO, S., KASHINO, R., ABE, M.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P19 赤外線ファイバーレーザーによるフラーレンの生成と放射性核種内包に向けた基礎実験

(京大[1]、都立大[2])○稲垣誠[1]、秋山和彦[2]、大槻勤[1]

【緒言】放射性同位体(RI)は医学的診断や治療に広く用いられ、悪性腫瘍などの早期診断や治療に成果を上げている。RIを診断や治療に用いるにあたり、体内でRIを運搬し患部に集積させる技術(DDS)が求められている。その実現のためには、RI を保持し、かつ患部に集積する機能を持つような分子が必要となる。その候補の一つにフラーレンがある。フラーレンはそのかご状構造内に金属原子などを内包できるので[1]、フラーレンを化学的に修飾し、患部に集積するような機能を持たせることができれば、フラーレンは RI の DDS を担う分子となり得る。そこで、本研究では、RIのDDSへの応用に向けた基礎研究として、RIを内包したフラーレンの簡便な生成法の開発を目指すこととした。

【実験】フラーレン生成実験:石英容器内のグラファイト粉末に連続波赤外線レーザーを照射することによりフラーレンの生成を試みる実験を行った。石英容器にグラファイトを入れ、真空に引いたのち、アルゴンガスで置換した(0.1 atm, 0.5 atm, 0.9 atm)。その後、試料に対し、容器の外側からレーザーを照射した。用いたレーザーは波長1080 nm、出力300 Wの連続波ファイバーレーザーである。照射後、試料に *o*-ジクロロベンゼン(*o*-DCB)を加え、可溶成分を抽出した。抽出した溶液および固形分をメンブレンフィルターでろ過し、ろ液を高速液体クロマトグラフィー(HPLC)により分析した。

RI内包フラーレン生成実験:グラファイトと放射性 CeO_2 の混合試料にレーザーを照射し、RIを内包したフラーレンの生成を試みる実験を行った。上述の実験と同じ装置を用い、石英容器に試料を入れ、容器内を0.1 atmのアルゴンガスで置換し、レーザーを照射した。照射後、試料に *o*-DCB を加え、可溶成分を抽出した。抽出した溶液および固形分をメンブレンフィルターでろ過し、Ge 半導体検出器を用いてろ液のガンマ線測定を行った。次いで、固形分の残ったメンブレンフィルターにピリジンを通して可溶成分を再抽出し、同様にガンマ線測定を行った。

【結果と考察】フラーレン生成実験において、アルゴンガス 0.1 atm, 0.5 atm, 0.9 atm の 3 条件で得られた溶液のHPLCから、3条件共に C_{60} フラーレンが検出され、0.1 atmおよび0.5 atmの条件において C_{70} フラーレンが検出された。すなわち、今回の手法によってフラーレンを生成することに成功した。今回の3条件においては、圧力が低いほど C_{60} の生成量が大きく、0.1 atmにおける生成量が最大となった。

RI内包フラーレン生成実験において得られたピリジン溶液のGe半導体検出器によるガンマ線スペクトルを図5に示す。*o*-DCB溶液では ^{141}Ce に由来するガンマ線は観測されなかったが、ピリジン溶液では ^{141}Ce に由来するガンマ線が観測された。CeO_2 は *o*-DCB およびピリジンに不溶でありメンブレンフィルターを通過しないことから、この結果は、*o*-DCB に不溶でピリジンに可溶な ^{141}Ce を含む化合物が生成したことを示している。今後、本化合物の同定を進めていく。

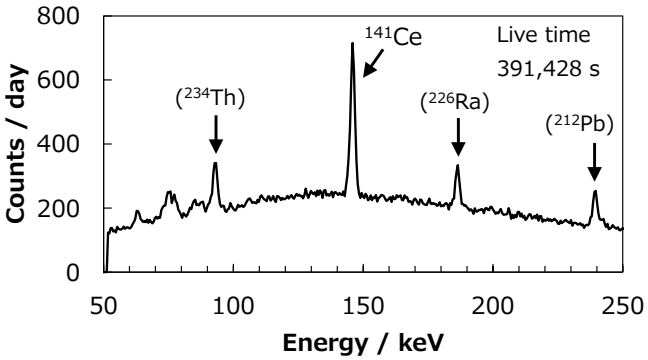


図 1. ピリジン溶液のガンマ線スペクトル

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

Fundamental experiments for the production of radionuclide endohedral fullerenes using an infrared fiber laser

INAGAKI, M., AKIYAMA, K., OHTSUKI, T.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P20

^{64,67}Cu 製造のための Zn ターゲット回収法およびペレット作成法の検討

（（株）千代田テクノル[1]、（国研）原子力機構[2]） ○太田 朗生[1]、川端 方子[1]、高島 直貴[1]、本石 章司[1]、佐伯 秀也[1]、塚田 和明[2]、橋本 和幸[2]、永井 泰樹[1], 本村 新[1]

【緒言】^{64}Cu と ^{67}Cu はセラノスティクス（治療＋診断）に用いる核種として注目されている。しかし、^{64,67}Cu は大量製造法が確立していないため、薬剤開発研究の進展を妨げている。そこで、当グループでは ^{64,67}Cu の大量製造を目指し、加速器で発生させた高速中性子（加速器中性子）を金属亜鉛に照射して ^{64,67}Cu を生成させ、熱分離法と固相抽出クロマトグラフ法による ^{64,67}Cu の分離精製に取り組んでいる。高純度かつ大量の ^{64}Cu 及び ^{67}Cu の製造を達成するためには高額な濃縮試料 ^{64}Zn と ^{68}Zn の利用が必要であり、定常的に供給するためには、これらの濃縮試料の再利用が不可欠である。亜鉛ターゲットは減圧下で加熱することで、亜鉛と銅の沸点の差を利用し、亜鉛のみを昇華させる。昇華した亜鉛は低温領域の石英管内側壁面に析出され回収可能で、ペレット状に再成形することでターゲットとして再利用することを目的とする。本発表では、この再利用方法の基礎検討について報告する。

【実験】未照射金属亜鉛約 50g を入れたガラス容器を熱分離装置内に設置し、減圧下、650℃で 120 分加熱した。昇華した亜鉛は回収管から回収され別の試験管に入れ、窒素雰囲気中 450℃で 60 分加熱し、溶融させた。60 分経過後、加熱を停止し、固化した亜鉛をガラス管から取り出し、形状を確認した。成形した亜鉛ペレットを用いて加速器中性子を照射し、^{64,67}Cu を合成、続いて分離精製を行い、再利用へ向けて亜鉛を回収した。

【結果】亜鉛の昇華では 50g のうち 44g の昇華およびガラス面への析出を確認した。また、ペレット成型では、照射に支障のない形状での製作に成功した。これらのペレットを用いて、^{64,67}Cu を合成、分離後、亜鉛を回収した結果、約 97%の回収に成功した。このことから本手法で製作できる溶融ペレットは ^{64,67}Cu 製造に適しており、濃縮試料のリサイクルが可能であることが示唆された。当日は今後の課題も含めて発表する。

図１　析出された亜鉛

図２　亜鉛ペレット

Investigation of Zn target recovery and pellet preparation method for ^{64,67}Cu production

OHTA A., KAWABATA M., TAKASHIMA N., MOTOISHI S., SAEKI H., TSUKADA K., HASHIMOTO K. , NAGAI Y., MOTOMURA A.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P21 野生ニホンザル（*Macaca fuscata*）の食物の中性子放射化分析とその摂取量の推定

（石巻専修大理工）○福島美智子、辻大和

【緒言】野生動物の栄養摂取量の検討は、基礎分野および応用分野において希少種の保全施策の策定に重要である。霊長類は、その生命を維持するためにエネルギーやタンパクに加えて、微量元素（ミネラル分）も必要とする。飼育下の実験ではミネラル分の必要量が推定されているが、野生化のサルが食物から摂取するミネラル量に関する知見がほとんど得られていない。申請者のひとり辻は、2004-2005 年にかけて、宮城県石巻市金華山島に生息する、人付けされた野生ニホンザル（*Macaca fuscata*、以下サル）が採食した食物を採集した。金華山島は宮城県牡鹿半島から 0.7 km 離れた島で、金華山神社があるだけで住民はいない。そのため、純野生個体の採食行動を詳細に記録できる稀有なフィールドである。これらの試料に含まれる微量元素濃度を京都大学総合原子力科学研究所（KUR）で中性子放射化分析（NAA）し、微量元素の摂取量を推定した。この知見は、 霊長類学・哺乳類学上きわめて有用な資料になると期待される。

【実験】〈行動観察＞2004 年 6 月～2005 年 5 月の毎月、成獣メス（n=17）を対象に行動観察を行い、各個体の採食品目と量を記録した。サルによる採食が確認された 146 品目中 121 品目をサンプリングし、熱乾燥後に粉末試料に調整した。これらのうち、採食割合の高い 55 品目を KUR の NAA 試料とした。内訳は、葉 16 品目、花 6 品目、木の芽 4 品目、果実・種子 13 品目、木の皮 4 品目、堅果類 7 品目、草、海藻類、キノコ類、巻貝類、昆虫類各 1 品目であった。〈中性子放射化分析＞分析目的元素 17 元素のうち、Na, K, Mg, Ca, V, Mn, Cu, Cl, I の 9 元素は 1 MW で 1.5 分間の照射、3 分間の冷却時間後、コンプトンサプレッションシステムを付属した Ge 検出器でガンマ線を 10 分間計測した。Rb, Cs, Sc, Cr, Fe, Co, Zn, Se の 8 元素は 5 MW で 1 時間の照射を行い、1 月間の冷却後に Ge 検出器で生成放射能の計測を行った。得られた結果の一例を図 1 に示す。ヒトの食す食品と比較した場合、サルの食物中の元素濃度の特徴として Mn 濃度の高さが挙げられる。図 1 においても特に葉、堅果類の Mn 濃度は他の品目よりも高いことが見て取れる。ある個体に関して 5 月の一部元素の推定摂取量を算出してみると、Ca: 87mg, Mg: 411mg, Fe: 36.5 mg, Zn: 1.24 mg, Cu: 0.3 mg, Mn: 2.2 mg（単位は 1 日、体重 kg あたり）となった。これらはヒトの摂取元素量に比較して非常に高い値になる。その理由の一つに、食べ物に付着している土壌由来の元素濃度が考えられる。野生動物によく見られる土壌の摂取と関連して、金華山の土壌の元素濃度分析を現在すすめている。

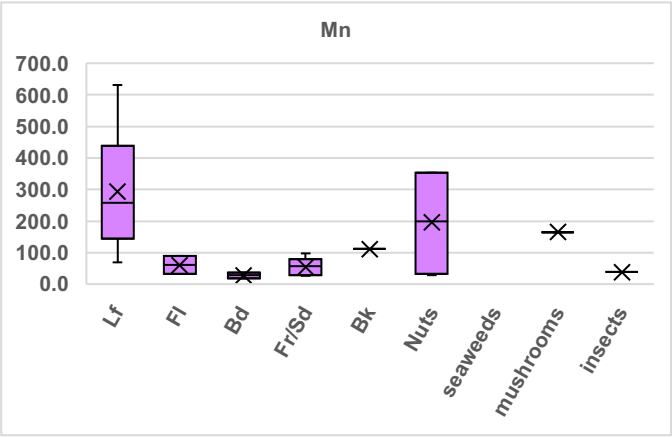


図 1　サルの食品群に含まれる Mn 濃度（単位：mg/kg, dry wt）

Estimation of trace element intake and mineral balance of wild Japanese macaques (*Macaca fuscata*) by neutron activation analysis
FUKUSHIMA, M., TSUJI, Y.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P22 ボーリングコアの放射性セシウム濃度の測定結果から見た熱海市における土石流災害

(静岡大理)○矢永誠人、北村晃寿

【緒言】2021 年 7 月 3 日午前 10 時半頃、静岡県熱海市伊豆山地区の逢初川で大規模な土砂災害が発生した。この大規模な土石流は現地での観測史上最多の降水量により引き起こされたものであるが、流れた土砂は逢初川源頭部の違法な盛土に由来していると考えられている。大きな被害をもたらした土砂災害の原因を考える上で、いつ頃、どのような土砂が盛土として施工されたのか、また、どのように崩落したのかを考える必要がある。特に、盛土が施工された時期や土砂の流出を考察する上で、時間の指標を与えるトレーサーの存在は大きい。

そこで我々は、静岡県が掘削した土石流堆積物で埋積された砂防堰堤のボーリングコア試料及び逢初川の源頭部の未崩落の盛土のボーリングコア試料について、放射能測定を行ったのでその結果について報告する。

【実験】採取した試料は 60℃で 24 時間乾燥後、重量を測定し、13～86 g の試料を U8 容器に入れ、高純度 Ge 半導体検出器（SEIKO EG&G 社 GMX25P4-70）を用いて 10～96 時間の γ 線測定を行った。

【結果】砂防堰堤の埋積土のボールングコア試料についての測定結果を表に示した。

深度 3.88-3.85 m 及び 3.82-3.78 m の試料からは ^{134}Cs と ^{137}Cs が検出された。2011 年 3 月に減衰補正した放射能比が 1 であることから、この放射性セシウムが東京電力福島第一原子力発電所事故に由来するものと推定される。深度 5.00-5.05 m で ^{137}Cs が検出されているが、これは 1950 年代から 1960 年代初頭にかけての大気圏核実験に由来するものと考えられ、その ^{137}Cs が土壌に固着されているものと仮定すると、堰堤の内側では、約 50 年の年月をかけて 1 m の土壌が堆積されたと考えることができる。

他方、深度 3.78 m までの多くの層でも ^{137}Cs のみが検出されているが、これは放射性セシウム濃度が低いこと、また、原発事故から時が経過しているために ^{134}Cs が検出できなかったためと考えられる。すなわち、盛土のうち、まず原発事故に由来する放射性セシウムが含まれる表層部分が流れ出して砂防堰堤を埋めたのではないかと考えられる。なお、当日は、源頭部の試料の分析結果についても報告する。

表　砂防堰堤の埋積土の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度

深度 / m	Cs-137(Bq/kg乾土) (2011/03/15補正値)	Cs-134(Bq/kg乾土) (2011/03/15補正値)
0.00-0.05	ND (< 1.6)	ND (< 73)
0.35-0.40	5.9 ± 0.7	ND (< 50)
0.90-0.95	ND (< 1.8)	ND (< 59)
1.00-1.05	3.7 ± 0.7	ND (< 59)
1.20-1.25	6.6 ± 0.9	ND (< 75)
2.95-3.00	6.7 ± 0.8	ND (< 60)
3.00-3.05	7.5 ±0.9	ND (< 73)
3.63-3.67	4.3 ± 1.2	ND (< 112)
3.67-3.70	7.7 ±0.9	ND (< 101)
3.70-3.74	7.5 ±0.8	ND (< 68)
3.74-3.78	2.6 ±0.3	ND (<31)
3.78-3.82	51.8 ± 0.8	52.3 ± 14.7
3.85-3.88	184.5 ± 1.7	179.5 ± 19.6
3.95-4.00	ND (< 2.7)	ND (< 83)
4.80-4.85	ND (< 3.3)	ND (< 103)
4.95-5.00	ND (< 4.2)	ND (< 126)
5.00-5.05	3.5 ± 1.0	ND (< 93)
5.50-5.55	ND (< 2.9)	ND (< 92)
5.95-6.00	ND (< 3.1)	ND (< 99)
6.50-6.55	ND (< 3.2)	ND (< 96)
7.00-7.05	ND (< 3.6)	ND (< 130)
7.55-7.60	ND (< 4.0)	ND (< 125)
8.00-8.05	ND (< 2.9)	ND (< 80)
8.67-8.74	ND (< 3.2)	ND (< 99)
10.50-10.55	ND (< 2.3)	ND (< 81)
11.50-11.55	ND (< 1.8)	ND(< 62)

Debris flow disaster in Atami City, as suggested by the measurements of radioactive cesium concentration in drilling core samples
YANAGA, M., KITAMURA, A.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P23 我が国の校庭等の土壌中の天然放射性核種濃度と空間線量率について

(量研機構)○田上恵子，内田滋夫

【緒言】放射性廃棄物の長期の生活圏評価では,地表変遷が予測されることから，土壌-土壌溶液間分配係数データ（Kd）等は，様々な土壌を対象に取得しておくことが望ましい。これまでに我々は全国の農耕地土壌を対象とした Kd 取得を行なってきたが，農耕地以外の土壌の Kd データを得るために量研（旧放医研）のアーカイブ土壌を用いることとした。これは全国の公立学校の校庭土を中心として収集されているものであるが，その地域の土壌を反映しているかどうかについては情報に乏しい。土壌採取時に取得された空間線量率と土壌中の天然放射性核種濃度（^{40}K，^{232}Th 及び ^{238}U）の関係を明らかにすることで，アーカイブ土壌の採取地点における代表性について検討した。

【実験】 量研保管のアーカイブ土壌は，1970-75 年に採取後風乾し，ポリスチレン容器に詰めて，暗所にて温度管理せずに保管されていた約 1000 点である。本研究にはこのうち 150 点余りを用いた。各試料をϕ = 2 mm のフルイを通過した試料を U-8 容器に 100 g 以上詰めて密封し 1 ヶ月以上放置後，Ge 半導体検出装置（Seiko EG&G）により 10 万秒測定して定量した。非農耕地土壌であれば ^{238}U 及び ^{232}Th 系列核種濃度は平衡に達していると考えられることから，子孫核種を使って定量を行った。なお，比較する空間線量率測定は Abe S. ら（J. Nucl. Sci. Technol. 18, 21-45, 1981)に依った。

【結果及び考察】アーカイブ試料のϕ<2 mm の分布割合の平均は 84.7%（範囲: 34.2 - 99.9%）であった。平均の仮比重 1.45 g/cm^3 （範囲: 1.01-1.84 g/cm^3)は，農耕地土壌(N=237)の平均値 0.88 g/cm^3 よりも重かった。

本研究のように放射能測定法による土壌中の ^{40}K，^{232}Th 及び ^{238}U の定量はよく行われている。その定量性に関し，農耕地土壌を用いて，放射能測定法による各核種の定量結果と ICP-MS 法や ICP-OES 法で測定した結果とを比較したところ相関が高く，適切に定量できていると言えた。

アーカイブ土壌中の天然放射性核種濃度の定量結果と空間線量率との比較を Fig. 1 に示した。それぞれの相関における p 値は<0.001 と小さく，相関があると言えた。これによりアーカイブ土壌は，採取地点の代表的な性質を持つことを示すことができた。

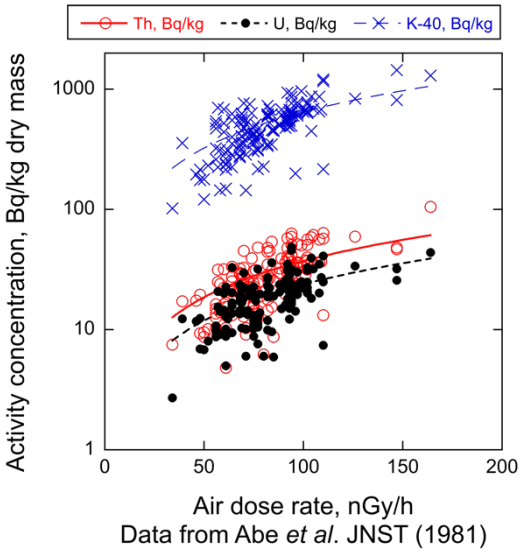


Fig. 1. Activity concentrations of natural radionuclides plotted against previously observed air dose rates.

本研究には，経済産業省資源エネルギー庁委託事業「令和５年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（JPJ007597）【地層処分安全評価確証技術開発（核種移行総合評価技術開発）】」の成果の一部を利用した。

Correlations between activity concentrations of natural radionuclides in soils collected from campuses of Japanese schools and air dose rates

TAGAMI, K., UCHIDA, S.

© 一般社団法人日本放射化学会

2P24 原子力発電所の低レベル放射性廃棄物中の放射性核種の分析に関する考察

(東華理工大学)○楊波、劉義保、楊凡

Exemption and clearance of radioactive wastes are crucial processes to minimize the radioactive waste and improve the economic benefits in nuclear power plants. The activity concentration of radionuclides are the key factors of source analysis, which determine the efficiency of exemption and clearance of radioactive waste. The activity concentration may vary from materials and radionuclides. In this study, a nuclear power plant was selected as a research area. Radioactive waste samples including water, resin, fabric, and metals were collected from different parts of the nuclear power plant. The water samples were sampled from Reactor Cavity and Spent Fuel Pit Cooling and Treatment system (PTR), Nuclear Island Vent and Drain system (RPE) and Sewage Recovery system (SRE). Resin samples were collected from Steam Generator Blowdown system (APG) and Solid Waste Treatment system (TES). Fabric samples were collected from TES. Metal samples were collected from Residual Heat Removal system (RRA) and ventilation filters were sampled from Fuel Building Ventilation system (DVK).

According to the requirement of the radioactive protection department of the nuclear power plant, the radionuclides including Mn-54, Co-58, Fe-59, Co-60, Nb-94, Ag-110m, Sb-124, Sb-125, I-129, Cs-137, H-3, C-14, Ni-63, Sr-90, Tc-99, Pu-239 and Cm-242 were selected and measured by HPGe Gamma-Ray Spectrometer, Liquid Scintillation Counting and Alpha Spectrometer. The results were validated by comparing with the data measured by Shanghai Xinman Sensing Technology Co., Ltd, China Institute for Radiation Protection and China Institute of Atomic Energy. Consistent results were found among values measured by different institutes.

The results showed that only RPE surface drainage waste with low nuclear isotopes concentration could be directly exempted. Materials with moderate nuclear isotope concentration including APG resin, SRE decontamination water and DVK ventilation filter frame could be exempt after shortly storage and decay, due to the nearly 90% radionuclides were Co-60 and Ag-110m. Materials with high nuclear isotopes concentration including PTR process drainage waste, TES resin, DVK ventilation filter and reactor core wipe could not be compatible with the requirements of exemption and clearance.

Discussion on the Analysis of Radionuclides in the Radioactive Waste of a Nuclear Power Plant
YANG, B., LIU, Y., YANG, F.

© 一般社団法人日本放射化学会

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22日(金) 16:40 〜 17:00 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

©一般社団法人日本放射化学会

部会

アルファ放射体・環境放射能部会定例部会

座長:小池 裕也(明治大学)

2023年9月22日(金) 12:40 〜 13:40 A会場 (サタケメモリアルホール)

©一般社団法人日本放射化学会

部会

核化学部会総会

2023年9月22日(金) 12:40 〜 13:40 B会場 (学士会館)

©一般社団法人日本放射化学会

部会

原子力化学・アクチノイド化学部会総会

2023年9月22日(金) 12:40 〜 13:40 C会場 (教育学部K棟K109講義室)

©一般社団法人日本放射化学会

会員総会

会員総会

2023年9月22日(金) 15:10 〜 16:10 A会場 (サタケメモリアルホール)

[2sorc67A-1510-1add] 会員総会

15:10 〜　16:10

©一般社団法人日本放射化学会

15:10 〜 16:10 (2023年9月22日(金) 15:10 〜 16:10 A会場)

[2sorc67A-1510-1add] 会員総会

©一般社団法人日本放射化学会