

一般講演

9月11日(金)

3A01-3A11:A 会場

3B01-3B11:B 会場

(阪大院医¹、阪大放射線機構²、理研仁科センター³、阪大核物⁴) ○大江一弘^{1,2}、渡部直史^{1,2}、白神宜史²、森大輝³、横北卓也³、小森有希子³、羽場宏光³、畑澤順^{2,4}

【緒言】 現在、主にがんの治療として、放射性核種を用いた核医学治療が行われているが、治療用の放射性核種は原子炉で製造されているものがほとんどであり、その供給は輸入に頼っている状況である。そのため、治療用の放射性核種を国内の様々な場所で稼働している加速器を用いて製造供給することに期待が寄せられている。本研究ではそのような治療に利用可能かつ加速器で製造可能な放射性核種として、 β -放出核種である ^{111}Ag (半減期 7.45 d) に着目した。今回、 $^{nat}\text{Pd}(d,x)^{111}\text{Ag}$ 反応における生成反応断面積の測定と、 ^{111}Ag の金属 ^{nat}Pd ターゲットからの化学分離法の検討を行ったので報告する。

【実験】 反応断面積の測定では、理化学研究所 AVF サイクロトロンを用い、複数の ^{nat}Pd 金属箔(厚さ 12.5 μm)を積層にしたターゲットに 24 MeV の重水素ビームを照射して ^{111}Ag を製造し、各 Pd 金属箔中に生成した ^{111}Ag を Ge 検出器による γ 線測定により定量した。 ^{111}Ag の化学分離の検討では、照射後の Pd ターゲットを硝酸、塩酸の混酸を用いて溶解した。溶液を蒸発乾固し、残渣を 1 M HNO_3 溶液に溶解して陰イオン交換カラムに導入した。1 M HNO_3 溶液により ^{111}Ag の溶出を行った後、濃 HNO_3 溶液により ^{nat}Pd の溶出を行った。各溶出液について、Ge 検出器を用いた γ 線測定を行い、 ^{111}Ag の定量、および $^{nat}\text{Pd}(d,x)$ 反応により同時に生成していた $^{111\text{m}}\text{Pd}$ (半減期 5.5 h) の定量を行った。

【結果と考察】 本測定で得られた、ビームエネルギー 3.9-16.6 MeV における $^{nat}\text{Pd}(d,x)^{111}\text{Ag}$ 反応の励起関数を Fig. 1 に示す。ピークトップがビームエネルギー 9 MeV 付近、反応断面積 40 mb 程度であることを確認できた。これらの結果は既報値と¹⁾⁻³⁾と矛盾しない結果である。 ^{111}Ag の陰イオン交換分離では、1 M HNO_3 溶液による溶出により、 $^{111\text{m}}\text{Pd}$ の溶出が始まる前に、ほとんどの ^{111}Ag を溶出できることを確認した。 ^{111}Ag の回収率は 99% 以上と非常に高効率であった。また、濃 HNO_3 溶液による溶離により、カラムに残った $^{111\text{m}}\text{Pd}$ を溶出できることを確認し、その回収率も約 98% と高収率であることが分かった。 $^{nat}\text{Pd}(d,x)$ 反応では種々の Ag 同位体が生成するため、 ^{111}Ag の製造には高価な ^{110}Pd 濃縮ターゲットの利用が必須となるが、本化学分離法でターゲットの再利用も可能と期待される。

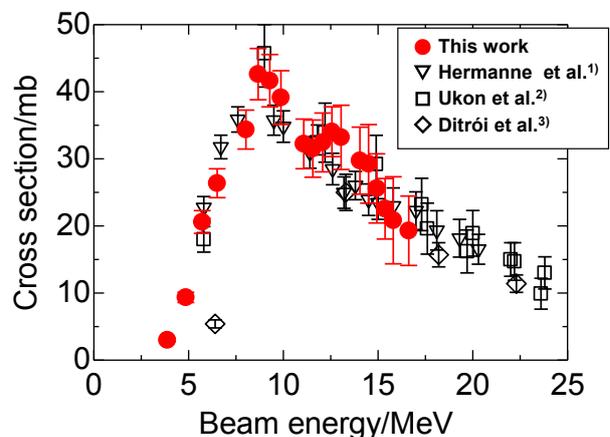


Fig. 1. $^{nat}\text{Pd}(d,x)^{111}\text{Ag}$ 反応の励起関数

- 【参考文献】** 1) A. Hermanne et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. **217**, 193 (2004).
 2) N. Ukon et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. **426**, 13 (2018).
 3) F. Ditrói et al. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. **270**, 61 (2012).

Production and chemical purification of Ag-111 toward nuclear medical application
 Ooe K., Watabe T., Shirakami Y., Mori D., Yokokita T., Komori Y., Haba H., Hatazawa J.

Tc-95, Tc-96 を用いた ETCC 撮像による新しい診断法の開発

(量研機構¹、東海大学・医²、東海大学・理³、京薬大・薬⁴、原子力機構⁵)○初川雄一¹、株木重人²、櫛田淳子³、幾田敦也³、木村寛之⁴、浅井雅人⁵、塚田和明⁵

【緒言】

現在最も主要な核医学診断法である Tc-99m/SPECT に代わる診断法として、Tc-95, Tc-96 とコンプトンカメラ撮像の組み合わせた新たらしい核医学診断法の開発を行っている (1)。本研究で Tc-99m の代替として考慮したテクネチウム同位体、Tc-95, 96 は Tc-99m と違い高いエネルギーのガンマ線を放出するため従来の検出法である SPECT には適さない。500 から 800 keV の高いエネルギーのガンマ線放出核種である Tc-95 および Tc-96 の検出法としてコンプトンカメラ (Electron Tracking Compton Camera) に着目し、ETCC による Tc-95 の撮像実験を通して核医学診断法開発に向けた基礎研究を行った。(2) ETCC は前段のガスカウンターと後段のシンチレーター検出器からなり、それぞれの検出器における“散乱ガンマ線”と、“散乱電子”の観測によりコンプトン散乱の関係式に基づき散乱角を計算し線源の方向を求めることができ、これより線源の画像を再構築できる。本研究では 765.8 keV のエネルギーのガンマ線放出核種である Tc-96 ($T_{1/2}=2.7$ d) を生成し、これを標識しマウスへ投入しその ETCC 撮像実験を行った。

【実験】

陽子照射によって生成した Tc-96 を含む錠剤状の三酸化モリブデンターゲット ($^{96}\text{MoO}_3$ 94.8%, $\phi 10\text{mm} \times 2\text{mm}$; 206mg) の化学分離を行い、単離した過テクネチウム酸溶液を DTPA キット (富士フィルム富山化学株式会社) でジエチレントリアミン五酢酸テクネチウム標識をおこないマウスへの投与し、その後 ETCC による撮像実験を行った。得られたデータは逐次近似画像再構成法の一つである SOE (Stochastic Origins Ensembles) 法により 3 次元画像の再構築を行った。

【結果および考察】

ETCC 撮像実験から得られたデータを SOE 法により再構築した Tc-96 線画像を得た。X 線 CT 画像を別途測定し、この ETCC で得られたマウス画像中に Tc-96 線源の再構築画像をはめ込むことにより画像である。本研究によりマウスへ投入した Tc-96 標識 DTPA 化合物をトレーサーとして投与したマウスの ETCC 撮像に成功した。本会議では Tc-95 及び Tc-96 による Tc-99m の代替の可能性についても議論する。

【文献】

- (1) T. Hayakawa, Y. Hatsukawa, and T. Tanimori, *Heliyon*, 4, e00497 (2018).
- (2) Y. Hatsukawa, et. al., *PlosONE* 13 (12), e0208909 (2018).

PETIS によるヒ素高蓄積植物モエジマシダ体内におけるヒ素の
輸送過程の追跡

(東北大・院環境¹、東北大・CYRIC²、東北大・ELPH³、量研・高崎研⁴、
(株)フジタ⁵)○黄田毅¹、銭照杰¹、簡梅芳¹、井上千弘¹、池田隼人^{2,3}、
渡部浩司²、菊永英寿³、鈴木伸郎⁴、尹永根⁴、河地有木⁴、北島信行⁵

【緒言】

飲料水と灌漑用水のヒ素(As)汚染は世界中で多くの人々にとって深刻な問題となっている。As 汚染水の浄化法としては、金属酸化物顆粒を用いた吸着法、イオン交換法、凝集-ろ過法が知られている。金属酸化物顆粒を用いた吸着法では、活性アルミナや酸化鉄で覆われた砂、水酸化鉄顆粒が用いられ、それらに As を吸着させる。この方法のデメリットとしては高コストであることが挙げられる。As 高蓄積植物を用いた phytofiltration は化学的除去法に比べて低コストであるため、生活用水や農業用水用の井戸水が汚染されていたときの As 除去に利用することが可能である。特に発展途上国において実用化が期待されている。モエジマシダ(*Pteris vittata*) は As 除去に有効であり、土壌で栽培すると 1-2 kg dry biomass/m² とよく生育し、さらに乾燥重量 1 kg あたり 22,000 mg の As を羽片 (fronds, 地上部の葉) に蓄積する。またモエジマシダは As(V)の化学形態の As を優先的に根から吸収することが知られているものの、根から地上部への As の輸送過程は明らかにされていない。本研究では As のポジトロン放出核種である ⁷⁴As(V)をトレーサとし、植物体内のポジトロンの分布を非破壊的に可視化する Positron-emitting tracer imaging system(PETIS)を利用して、植物が生きたままの状態での As の根から吸収と羽片へ移行の過程を検討した。

【実験】

胞子から発芽させ、約 6 ヶ月間水耕栽培で生育させたモエジマシダを実験に用い、比較対照としてヒ素非蓄積植物であるシロイヌナズナ(*Arabidopsis thaliana*)を用いた。短寿命 RI 供給プラットフォーム(RIPF)により、池田ら(日本放射化学会第 64 回討論会(2020) P33)の方法で提供された ⁷⁴AsO₄³⁻を水耕溶液に一定量添加し、同時に非 RI の AsO₄³⁻を用いて溶液中の As 濃度を調整した。As が根を経由して地上部に移行していく過程を PETIS により 7 日間モニタリングすることで追跡した。

【結果】

シロイヌナズナでは根で As の蓄積が確認されたが、地上部への輸送はほとんど見られなかったのに対し、モエジマシダでは根から吸収された As が根に滞留することなく、根茎を経由し、羽片に移動していく過程を捉えることができた。また時間毎の画像データから、培地から根、根茎を経て羽片に移行する各段階の As の移行速度を見積もることができた。

【まとめ】

PETIS によりヒ素高蓄積植物であるモエジマシダによる As 吸収と植物体内での輸送過程を詳細に捉えることができた。また ⁷⁴As を用いたモエジマシダのイメージング画像も当日の発表において示す。

Imaging the arsenic translocation and accumulation in arsenic hyperaccumulator *Pteris vittata* using Positron Emitting Tracer Imaging System(PETIS)

KOHDA, T.¹, QIAN, Z.J.¹, CHIEN, M.F.¹, INOUE, C.¹, IKEDA, H.^{2,3}, WATABE, H.², KIKUNAGA, H.³, SUZUI, N.⁴, YIN, Y.G.⁴, KAWACHI, K.⁴, KITAJIMA, N.⁵

【緒言】 福島第一原子力発電所事故以来、放射性汚染水による生体への放射線影響が問題視されている。DNA の二重鎖切断 (DNA double-strand breaks : DSBs) 挙動評価は放射線傷害を評価する上で重要な指標となる。また放射線防護の観点から、DNA 損傷を防ぐ機構の理解が必要不可欠である。 α 、中性子線と比較して低 LET 放射線である β 、 γ 線の場合、DNA 損傷の要因として放射線誘起ラジカルによる間接作用が最も大きいと考えられているため、ラジカルを除去する抗酸化作用を持つ天然物質に注目が集まっている。中でも静岡の特産である茶には、生理活性の高い茶カテキンが含まれているため、この DSBs 防御効果を LET の異なる種々の放射線 (^3H - β 線、 ^{45}Ca - β 線、 ^{60}Co - γ 線) を用いて評価することとした。本研究ではゲノムサイズの長鎖 DNA に、茶カテキンの主要成分であり生理活性の強い(-)-epigallocatechin gallate (EGCg) を加えた試料に対して放射線を照射して損傷を加えた後、蛍光顕微鏡を用いた DNA 一分子観察法によって画像解析することで、DNA 二重鎖切断効率を定量的に評価した。

【実験】 T4 バクテリオファージ DNA (T4 GT7: 166 kbp) を各濃度に調整した EGCg 溶液に加え、各種放射線を照射した。YOYO-1 を用いて蛍光染色を施した後、DNA をガラス皿に貼り付け、蛍光顕微鏡によって DNA を観察した。撮影した画像から DNA の長さを測定し、DNA 平均長さを算出することで各試料における DNA 二重鎖切断回数を定量的に評価した。

右図は、EGCg を添加した ^{60}Co - γ 線照射試料における DNA 切断回数を表したグラフである。EGCg 無添加の結果と比較すると、EGCg を添加した試料では DNA 切断回数の減少が見られた。これは、EGCg が ^{60}Co - γ 線照射によって混合液中に発生したラジカルと反応することで、DNA との反応を抑制したためであると考えられる。グラフを線形フィットした傾きから計算した各試料の DNA 切断速度は、EGCg 無添加試料では 0.38 回/Gy、EGCg 添加試料では低濃度順に 0.25、0.30、0.24 回/Gy となっており、EGCg 添加によって損傷速度の減少が見られた。また EGCg 濃度を 1 μM から増加させても DNA 二重鎖切断速度の更なる減少は見られず、EGCg による防御能は 1 μM で飽和したと考えられる。過去の研究^[1]では茶抽出物摂取後に血漿中の EGCg 濃度が約 4 μM まで達したことが確認されており、生体内でも抗酸化作用を示す可能性が示唆された。

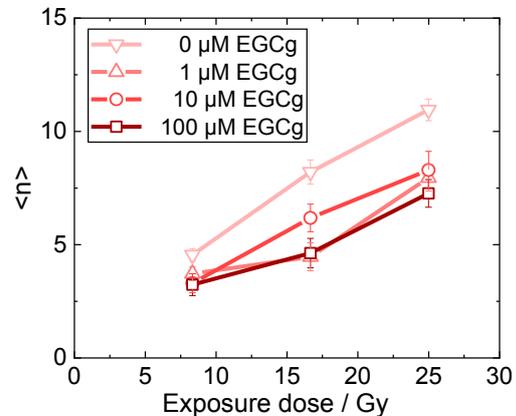


図 ^{60}Co - γ 線照射試料における EGCg 濃度依存性

[1] K. Nakagawa, et al., Biosci. Biotech. Biochem., 61 (12), 1981-1985 (1997)

3A05

$^{211}\text{Rn} / ^{211}\text{At}$ ジェネレータシステムに必要な ^{207}Po の除去法の最適化

(金沢大院自然¹、福島医大先端セ²、量研東海³、理研仁科セ⁴、
金沢大理工⁵)

○青井 景都¹、新 裕貴¹、川崎 康平¹、丸山 峻平¹、鷲山 幸信²、
西中 一朗³、羽場 宏光⁴、Yang Wang⁴、横山 明彦⁵

【序論】 アスタチン-211 (^{211}At) は核医学治療への応用が期待されている α 線放出核種である。 ^{211}At は半減期が 7.2 時間と短いため、製造拠点から離れた研究施設での利用は、制限を受ける。そのため、 ^{211}At より長い半減期の親核種 ^{211}Rn ($t_{1/2} = 14.7$ h) から ^{211}At をミルクキングする $^{211}\text{Rn} / ^{211}\text{At}$ ジェネレータの開発が ^{211}At の利用範囲拡大の観点から期待される。 ^{211}Rn の分岐壊変により ^{207}Po ($t_{1/2} = 5.80$ h) も同時生成する。 Po は骨や肝臓に集積しやすく、体内で正常な組織を傷つける恐れがあるため、ジェネレータから ^{211}At をミルクキングする際には分離する必要がある。我々は分離手法の検討過程でミルクキングをした ^{211}At の 0.01M HCl 溶液にアスコルビン酸を添加し、陽イオン交換樹脂に通すことで ^{207}Po を樹脂に吸着させ、 ^{211}At のみを回収できることを見いだした。そこで、本研究ではアスコルビン酸の添加量および陽イオン交換樹脂の量を変化させ、 ^{211}At と ^{207}Po を分離する最適条件を検討した。

【実験】 JAEA タンデム加速器を用いて $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 5\text{n}) ^{211}\text{Rn}$ 反応で ^{211}Rn を製造した。照射した Bi 標的をプラスチックシリンジ内で 6M 硝酸に溶解させた後、空气中に捕集した Rn ガスを別のシリンジに移し、 ^{211}At を成長させた。この ^{211}At を 0.01M HCl 溶液として回収した。カラムに詰めた陽イオン交換樹脂 (DOWEXTM 50W_{X8}) に ^{211}At 溶液を 3mL 流し、0.01M HCl を 6mL 流して樹脂に対する吸着性を調べた。 ^{211}At 溶液にはアスコルビン酸を 0.1, 0.5, 1, 2, 3 wt% の濃度で添加し、また樹脂の量は 0.1, 0.3, 0.5, 0.7 g と変化させた。樹脂からの溶解液は液体シンチレーションカウンターを用いて ^{211}At の α 線を測定し、さらに Ge 半導体検出器で ^{207}Po の γ 線を測定して、それぞれの核種の回収率と吸着率を求めた。

【結果・考察】 図 1 に ^{211}At 回収率と ^{207}Po 除去率のアスコルビン酸濃度依存性を示す。

^{207}Po はアスコルビン酸の濃度に依存せず高い除去率を示したのに対し、 ^{211}At の回収率は 1% の濃度で極大を示した。これは樹脂に流しても溶液中の ^{211}At は陰イオンにコントロールできているためと考えられる。また、陽イオン交換樹脂の量の増加に伴い、樹脂量の増加に伴い、 ^{211}At の回収率は減少し、他方 ^{207}Po の除去率は増加した。本検討ではアスコルビン酸濃度が 1%、陽イオン交換樹脂 0.5 g の分離係数が 35 を示し、この条件が $^{211}\text{Rn} / ^{211}\text{At}$ ジェネレータにおける ^{211}At と ^{207}Po の分離方法として適していると考えられる。

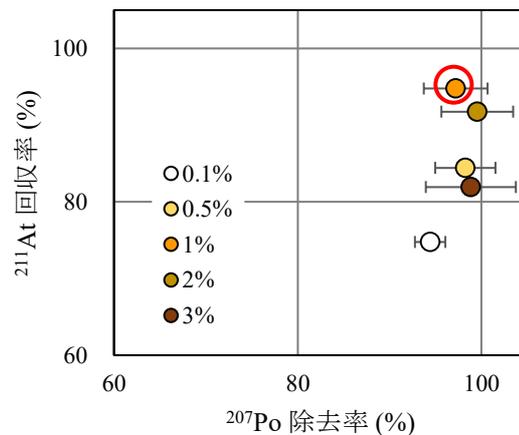


図 1 陽イオン交換樹脂 (0.5g) による ^{211}At 回収率と ^{207}Po 除去率のアスコルビン酸濃度変化

Search for an optimized condition of ^{207}Po elimination for the $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ generator system
AOI, K., SHIN, Y., KAWASAKI, K., MARUYAMA, S., WASHIYAMA, K., NISHINAKA, I.,
HABA, H., WANG, Y., YOKOYAMA, A.

3A06

薄層クロマトグラフィーを利用したアスタチン化学種同定による溶媒抽出の最適化

(金沢大院自然¹、金沢大理工²、量研東海³、福島医大先端セ⁴、理研仁科セ⁵)○丸山峻平¹、川崎康平¹、青井景都¹、東美里²、西中一朗³、鷲山幸信⁴、羽場宏光⁵、横山明彦²

【緒言】近年、 α 線放出核種を用いた内用療法の研究が盛んになっており、核種の入手のしやすさや外来治療が可能といった側面からアスタチン-211(^{211}At)が注目されている[1]。入手法として $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ 反応や、親核である ^{211}Rn を製造し、ミルキングによって娘核である ^{211}At を得る方法も報告されている[2]。 At の化学的性質はハロゲンのあり、他のハロゲン元素に比べ最も金属的性質を持つ。またアスタチンは短寿命の放射性核種しか持たない放射性元素であり、多種の化学種の存在が報告されているがその詳細は不明である。 At 利用のためには化学種や化学的挙動を知る必要がある。本研究の目的は、溶媒抽出挙動に関係する At 化学種について、イメージングプレート(IP)放射能測定を伴う薄層クロマトグラフィー(TLC)を用いて、溶液中の At の化学種同定、及びその分布を求めることである。

【実験】 α 線照射した Bi ターゲットを6M HNO_3 で溶解させ、 HNO_3 溶液からドデカンに ^{211}At を抽出した。さらに、0.01~9M HCl に逆抽出した各溶液をDIPE(ジイソプロピルエーテル)へと抽出した。各DIPE試料溶液をTLCに10 μl 滴下し、乾燥後50% EtOH 溶液で展開した。試料溶液はPERALS液体シンチレーションで、TLCはIPで放射能測定した。

【結果と考察】右の図に結果を示した。 HCl/DIPE 系では1M HCl の抽出率が最も低く、低濃度 HCl と高濃度 HCl で抽出率が増加した。また、TLCの結果から濃度が高い HCl で抽出したDIPEほど、存在する化学種の酸化数が大きい傾向を示した。

【参考文献】

- [1] 豊嶋厚史, 篠原厚, At の核化学, *RADIOISOTOPES*, **67**, 461-469 (2018)
- [2] Maeda, E. et al., Extraction of astatine isotopes for development of radiopharmaceuticals using a ^{211}Rn - ^{211}At generator, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **303**, 1465-1468, (2015)

Study on solvent extraction and speciation of astatine species with a thin layer chromatography
MARUYAMA, S. KAWASAKI, K. AOI, K. HIGASHI, M. NISHINAKA, I. WASHIYAMA, K. HABA, H. YOKOYAMA, A.

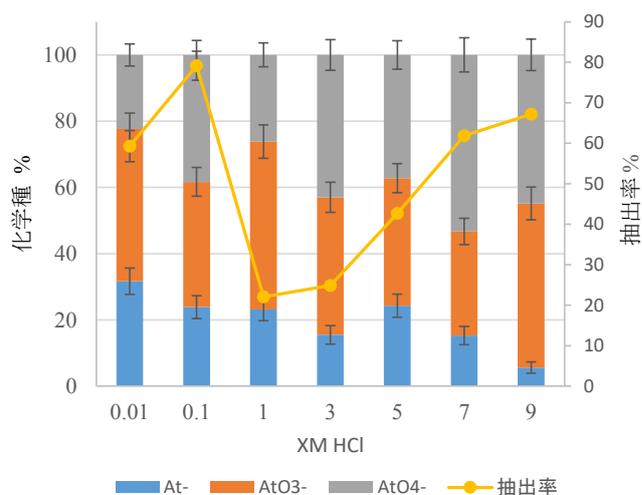


図1 DIPE溶媒抽出とTLC化学種同定の結果

(阪大院理¹、阪大院医²、阪大放科³)○黄栩昊¹、加藤弘樹²、角永悠一郎³、下山敦史¹、樺山一哉¹、大江一弘²、豊嶋厚史³、篠原厚¹、深瀬浩一¹

【緒言】

α 線核医学治療は、 α 線放出薬剤を投与し、体内でがん細胞に α 線を照射する治療法である。 α 線は、高いがん殺傷効果を持つ一方、飛程がヒト細胞数個分と短いため、周囲の正常細胞や臓器への侵襲が少ない。加えてアスタチン-211(^{211}At)は、半減期が7.2時間と比較的短く、投薬後速やかに体内から放射線源が消失する。そのため、通院による治療が可能であり、がん患者の生活の質(QOL)の向上が期待できる。

ハロゲン族である ^{211}At は、局所投与後ヨウ素と同様に甲状腺へ集積する。一方、Atは金と強く結合する。甲状腺への集積を防ぐため、 ^{211}At を金ナノ粒子に担持させた。これを腫瘍に直接注入し、腫瘍を治療する方法について検討を行っている。

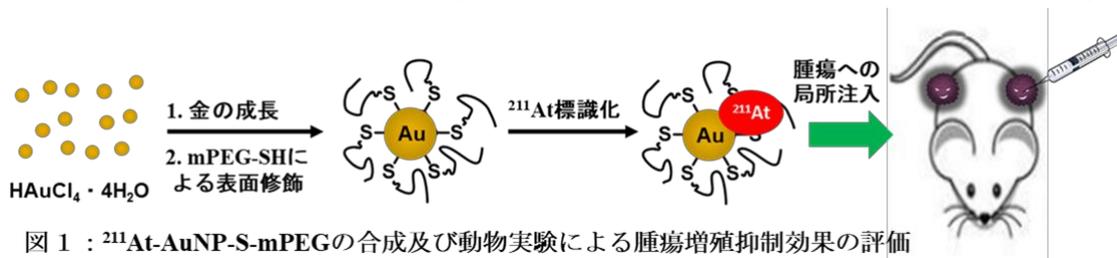
【実験】

^{211}At 標識金ナノ粒子を合成した(図1)。還元条件下、 $\text{HAuCl}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 水溶液を加熱し、直径13 nm・30 nm・60 nm・120 nmの金ナノ粒子(AuNP)を得た¹⁾。金表面は、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルチオール(mPEG-SH)で修飾した²⁾。反応生成物に対し ^{211}At 標識化を行い、 ^{211}At 標識金ナノ粒子($^{211}\text{At-AuNP-S-mPEG}$)を得た。標識化に用いた ^{211}At は、ビスマス-209(^{209}Bi)に α ビームを照射後、乾式蒸留したものをを用いた。

C6グリオーマを皮下移植した腫瘍担持ラットを作成し、腫瘍に30 nmと120 nmの $^{211}\text{At-AuNP-S-mPEG}$ を直接投与した。投与後、 ^{211}At の体内分布を評価した。腫瘍サイズの経過を観察しつつ、投与39日後、腫瘍を摘出し腫瘍増殖抑制効果を評価した。

【結果、考察】

合成したAuNPを透過電子顕微鏡(TEM)で観察し、粒子サイズにばらつきが少ないことを確認した。AuNP-S-mPEGの ^{211}At 標識化は、水溶媒中、混合・振とうのみで定量的に進行した。局所投与後、30 nmと120 nmサイズの $^{211}\text{At-AuNP-S-mPEG}$ は腫瘍内に滞留することを、単一光子放射断層撮影(SPECT)により確認した。30 nmの $^{211}\text{At-AuNP-S-mPEG}$ は、120 nmサイズより強い腫瘍増殖抑制効果が認められた。これは、30 nmサイズの方が腫瘍内でより拡散し、腫瘍全体に効率的に α 線が照射されたためと考えられる。一方、サイズが小さすぎると、腫瘍周囲の血管より $^{211}\text{At-AuNP-S-mPEG}$ が漏れ出す可能性があり、サイズの検討においては絶妙なバランスが要求される。



References 1) Ziegler, C.; Eychmüller, A. *J. Phys. Chem. C* **2011**, *115*, 4502–4506. 2) Manson, J.; Kumar, D.; Meenan, B. J.; Dixon, D. *Gold Bull.* **2011**, *44*, 99–105.

Synthesis of astatin-211 labeled gold nanoparticles and evaluation of anti-tumor effect

Xuhao Huang, Hiroki Kato, Yuichiro Kadonaga, Atsushi Shimoyama, Kazuya Kabayama, Kazuhiro Ooe, Atsushi Toyoshima, Atsushi Shinohara, Koichi Fukase

【緒言】難治性のがんに高い治療効果が期待される α 放射性同位体 ^{211}At の利用に注目が集まっており、 ^{211}At を大量かつ安定的に生成する手法の開発が急務となっている。それには ^{211}At 試料を短時間で定量評価可能な 2 次元画像化技術が必要とされている。そこで、本研究では ^{211}At の放射能と化学状態を短時間で同時分析する技術の確立を目的とし、 α 放射性同位体の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 線撮像システムを開発した。発表者らはこれまで、主に基礎研究等に用いられる低線量の ^{211}At に対して本技術の定量性などを評価してきた。一方で、前臨床・臨床研究では主に数十 kBq～数百 MBq の高線量 ^{211}At が使用されているため [1]、これらの ^{211}At に対する当該技術の適用性を検証する必要があった。そこで本報では、高線量の ^{211}At を使用し、開発した撮像システムの定量性を評価した結果を発表する。

【実験】量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 TIARA 施設にて 40 MeV に加速した α ビームをビスマスターゲットに照射し ^{211}At を生成した。さらに、乾式蒸留法により化学分離して得られた ^{211}At 溶液 (752.4 ± 18.5 kBq/5 μl) を 12 点シリカゲルに滴下し、画像の輝度値を検量する試料を用意した (以後、検量用 ^{211}At 試料と呼ぶ)。撮像システムには ZnS (Ag) シンチレーター (サイズ 15cm \times 15cm、厚さ 3 μm 、密度 3.25 mg/cm²)、浜松ホトニクス社製 CCD カメラ (ORCA-R2)、CCTV レンズ (LM8JC1MS) を使用した。同施設にて、開発した撮像システムにより検量用 ^{211}At 試料から発生する α 線を可視光に変換して撮像し、測定時間を 50 ミリ秒 \sim 2 秒間で変えて 2 次元画像を取得した。

【結果】検量用 ^{211}At 試料の可視化画像を図 1(a, b) に示す。画像は、カメラの暗電流に起因するバックグラウンドを差し引いている。測定時間は図 1(a) 2 秒 (b) 50 ミリ秒、撮像時の検量用 ^{211}At 試料の放射能は 628.3 \sim 7540 kBq であった。図 1(a, b) の破線部に示す 7540 kBq まで両者とも可視化に成功していることから、撮像時間の調整により 7540 kBq の約 40 倍(2 秒/50 ミリ秒) に相当する 300 MBq 程度の高線量 ^{211}At に対しても本技術の適用が可能であるとの見通しを得た。発表では画像解析によって得られた測定時間毎の輝度値と放射能の線形性、及び定量性を議論する。

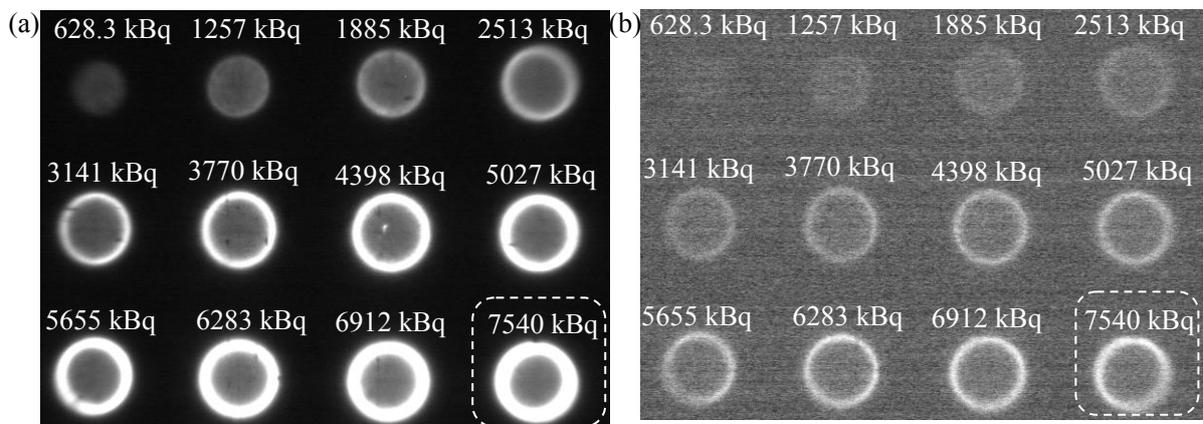


図 1 検量用 ^{211}At 試料の 2 次元可視化画像 (a) 測定時間 2 秒 (b) 測定時間 50 ミリ秒

(図中の数字は撮像時の ^{211}At の放射能を示す。)

参考文献: [1] D. Scott Wilbur, Nature Chemistry 5, 246, (2013)

Analytical method for radioactivity and chemical forms of ^{211}At

SEGAWA, M., MAEDA, M., TOH, Y., NISHINAKA, I., WATANABE, S., ISHIOKA, N.,

3A09

核医学利用に向けたアスタチン化ナトリウム $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ の高純度調製
(阪大放機構¹、阪大核物²、阪大医³、阪大理⁴) ○白神宜史^{1,2}、大江一弘^{1,3}、兼田加珠子^{1,4}、寺本高啓¹、渡部直史^{1,3}、豊嶋厚史^{1,2}、篠原厚^{1,4}、畑澤順^{1,2}

【緒言】 ヨウ化ナトリウム ($[^{131}\text{I}]\text{NaI}$) は、ナトリウム・ヨード共輸送体 (NIS と略す) を介して甲状腺に取り込まれる。特に甲状腺がん細胞は NIS を強発現するので、 $[^{131}\text{I}]\text{NaI}$ (β 線放出核種) は甲状腺がんの標準治療法として汎用されている。しかしながら、一部の甲状腺がん患者では、 $[^{131}\text{I}]\text{NaI}$ による治療が必ずしも奏功しない。 ^{211}At (α 線放出核種) は、 ^{131}I と化学的性質が類似しており、さらに ^{131}I が放出する β 線より LET の大きな α 線を放出する。そこで $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ は甲状腺がんの強力な治療薬になるのではないかと期待されているが、未だに臨床応用は実現されていない。その原因を品質面から解明すべく、アスタチン化物イオン($^{211}\text{At}^-$)の放射学的純度および安定性について検討した。

【実験】 阪大核物理研究センター、理研および量研機構のサイクロトロンを利用して $^{209}\text{Bi}(\alpha, n)^{211}\text{At}$ の核反応により ^{211}At を製造し、乾式蒸留法で分離精製し、注射用蒸留水に溶解して $[^{211}\text{At}]$ バルク水溶液を得た。この $[^{211}\text{At}]$ バルク水溶液に、炭酸水素ナトリウム (最終濃度 2.3w/v%) およびアスコルビン酸 (最終濃度 1w/v%) を加えて室温下で1時間静置して試料を調製した。試料は、薄層クロマトグラフ法(TLC)、薄層板：シリカゲル G60, 展開溶媒：アセトニトリル/水(2/1), および高速液体クロマトグラフ法(HPLC)、カラム：RP-C18, 溶離液 20mM テトラブチルアンモニウムクロライド/アセトニトリル(7:3), 流速：1mL/min で分析した。

【結果】 $[^{211}\text{At}]$ バルク水溶液中では複数の ^{211}At 化学種が混在し、その酸化状態は、主にI価およびIII価であると推測された(図1, 上段)。このバルク水溶液にアスコルビン酸を添加すると高純度のアスタチン化物イオン, $^{211}\text{At}^-$, が生成することが TLC (図1, 下段) および HPLC (図2) により確認された(放射化学的純度>95%)。本試料は約7時間安定であった。

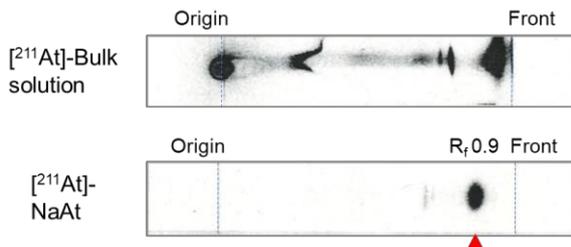


図1. $[^{211}\text{At}]$ 試料の TLC 分析結果

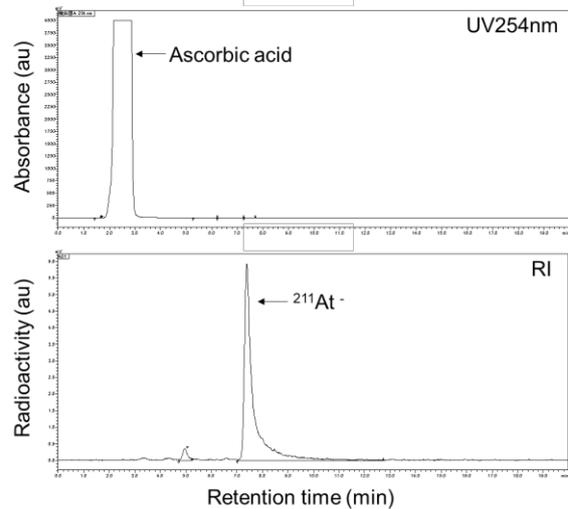


図2. $[^{211}\text{At}]$ 試料の TLC 分析結果

【結論】 ^{211}At はアスコルビン酸添加水溶液中 (弱塩基性) で高純度のアスタチン化物イオンとして調製可能であった。

Preparation of $[^{211}\text{At}]$ Pure Sodium Astatide (NaAt) for Nuclear Medicine Application
SHIRAKAMI, Y., OOE, K., KANEDA, K., TERAMOTO, T., WATABE, T., TOYOSHIMA, A., SHINOHARA, A., HATAZAWA, J.

3A10

がん細胞型アミノ酸トランスポーターを標的とした At-211 標識核医学治療薬の検討

(1_阪大放機構、2_阪大理、3_阪大核物、4_阪大医) ○兼田加珠子^{1,2}、白神宜史^{1,3}、大江一弘^{1,4}、寺本高啓¹、渡部直史^{1,4}、下山敦史^{1,2}、真鍋良幸^{1,2}、樺山一哉^{1,2}、豊嶋厚史^{1,2,3}、深瀬浩一^{1,2}、篠原厚^{1,2}

【背景】 がん細胞型アミノ酸トランスポーター Large neutral amino acid transporter 1 (LAT1) はその特異的発現から抗腫瘍薬の分子標的として注目されている。近年、診断・治療が同時に行えるセラノスティクスの実現可能な核医学治療に脚光があたり始めた。そこで、短寿命アルファ線核種である ²¹¹At を LAT1 に高親和性のアミノ酸誘導体に標識し、核医学治療薬としての可能性の検討を行うこととした。

【目的】 標識アミノ酸誘導体を取り込ませ、がん細胞特異的に殺細胞性を発揮させることで、核医学治療薬としての有用性が期待できる。高い特異性と取り込み量は高い抗腫瘍効果をもたらすと考えられる。より有用な標識化合物を選定するため、複数の標識体を比較する。

【実験】 核反応 ²⁰⁹Bi ($\alpha, 2n$) ²¹¹At により ²¹¹At を製造し、乾式蒸留法で分離精製した ²¹¹At を用いて、がん細胞型アミノ酸トランスポーターに親和性のあるアミノ酸誘導体に標識を行った。標識化合物の品質の確認は薄層クロマトグラフィー (TLC)、そして親和性の確認は LAT1 を細胞表面に過剰に発現させた hLAT1/HEK293 細胞および hLAT2/HEK293 細胞、そしてコントロールとして Mock/HEK293 細胞を用いて行った。

【結果】

LAT1 への高親和性を持つアミノ酸誘導体において、高い取り込み量を両立させることは難しいことが明らかとなった。また、前駆体を用いた標識も困難であることが明らかとなった。しかしながら、標識に成功したアミノ酸誘導体は担がんモデルにおいて著明な抗腫瘍効果を認めることができている。今後は LAT1 高親和性のアミノ酸誘導体の標識法の検討と共に、より適したアミノ酸誘導体の選択、各種モデルにおける検証を続けていくことが必要である。

Investigation of drug for ²¹¹At-labeled nuclear medicine targeting to cancer specific amino acid transporter.

KANEDA K., SHIRAKAMI N., OOE K., TERAMOTO K., WATABE T., SHIMOYAMA A., MANABE Y., KABAYAMA K., TOYOSHIMA A., FUKASE K., SHINOHARA A.

α 放射体 ^{211}At 標識イミノビオチンの作成と安定性評価

(福島医大先端研¹、東大院薬²、東大 ISC³、東大先端研⁴) ○ 鷲山幸信¹、
粟生木美穂¹、巽俊文²、山次健三²、杉山暁³、西嶋剣一¹、城寶大輝¹、
高峰英¹、趙松吉¹、金井求²、児玉龍彦⁴、高橋和弘¹

【緒言】 腫瘍特異的に集積する抗体に β 線や α 線を放出する RI を標識し種々のがんを治療する方法は放射免疫療法として核医学で用いられている治療法の一つである。しかし、抗体は約 15 万の分子量を持つため、血中からのクリアランスが遅く、腫瘍を治療できる線量の放射能を投与しても正常組織の被ばくが相対的に高くなり、多くのがんでは十分な治療効果が望めない。そこで、RI 標識薬剤の腫瘍集積と治療を担う RI の機能を分割し、個々の役割を担う薬剤を逐次的に投与し体内で結合させるプレターゲティング法が期待されている。我々は腫瘍集積性を持つ化合物として低い免疫原性を持つストレプトアビジン変異体 (Cupid) と抗体フラグメント (scFv) との融合タンパク質を作製し、RI の標識薬剤として種々の改変イミノビオチン (Psyche) を合成した。両者はアビジン-ビオチン特有の高い親和性を持つ。本研究では、福島医大で製造した ^{211}At の各種 Psyche への標識検討および標識した化合物の安定性を評価した。

【実験】 CEA 抗原陽性の anti-CEA scFv-Cupid は東大先端研で産生した。Cupid との結合部位を修飾した Psyche-B, -J, -N, -P の 4 種は東大院薬で合成し、 ^{211}At との標識のために有機スズ置換基を導入した。 ^{211}At は福島医大先端研の中型サイクロトロン MP-30 を用いて製造した。 ^{211}At に対して酸化剤 NBS と各種 Psyche を加え 10 分間反応させた後、HPLC で未反応の Psyche を分離した。得られた ^{211}At -Psyche 標識画分を固相抽出カートリッジに通し、HPLC 溶媒と分離精製して最終的に PBS 溶液とした。精製後の ^{211}At -Psyche は 1) PBS 溶液 2) 血漿溶液に加えて安定性を評価した。また、PBS および血漿中での Cupid との結合も確認した。

【結果】 Psyche はいずれの種類も 50~90% の標識率を示した。PBS 中では 24 時間後も高い安定性を示した一方、血漿中ではそれぞれが異なる結果を示し、早いものは 1 時間で完全に分解した。これは血漿中の酵素が Psyche の特定部位を認識したためと考えられる。討論会では酸化剤濃度による標識率の変化および各種 ^{211}At -Psyche と Cupid との結合性について、実験結果を元に議論する。

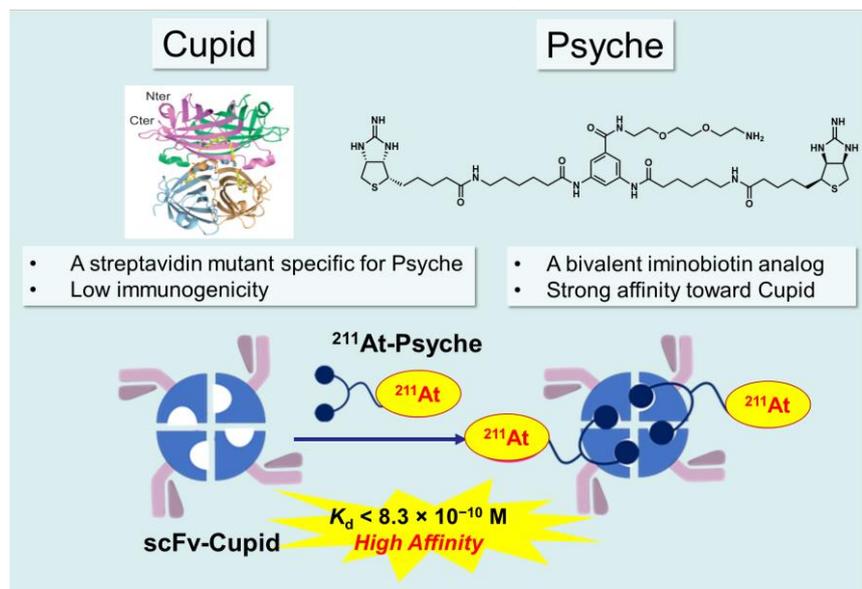


Fig.1 Cupid & Psyche system for pretargeting radionuclide therapy

Preparation and stability evaluation of ^{211}At -labeled iminobiotin for pretargeting radioimmunotherapy
WASHIYAMA, K., AOKI, M., TATSUMI, T., YAMATSUGU, K., SUGIYAMA, A., NISHIJIMA, K.,
JOHO, T., GAO, H., ZHAO, S., KANAI, M., KODAMA, T., TAKAHASHI, K.

3B01

大気由来放射性核種 ^7Be と ^{210}Pb を用いた貯水池-集水域系における土壌粒子の動態把握

(金大自然¹、金大環日セ²) ○鶴岡幹矢¹、落合伸也²、松木篤²、長尾誠也²

【緒言】 河川流域における土壌粒子などの地表物質の侵食・運搬作用は、陸域から海洋への物質の流出に関係している。地表物質の動態を把握することは、流域の環境変動を予測し適切な処置を取るために必要である。本研究では、流出する地表物質の集積地である貯水池とその集水域を一つの系として着目し、天然放射性核種である ^7Be (半減期 53 日) と ^{210}Pb (半減期 22 年) をトレーサーとして用い、土壌粒子の動きを追跡・観測することを試みた。

【実験】 2016 年 6 月から毎月 1 回、石川県珠洲市に位置する金沢大学能登学舎の屋上に水盤を設置し降水試料を採取した。試料はイオン交換樹脂に通して放射性核種を捕集した。2018 年 5 月から近傍の農業用貯水池である新池にてセディメントトラップを 1 箇所設置し、降水試料と同じタイミングで堆積物試料を採取した。樹脂および堆積物試料は Ge 半導体検出器で測定し放射性核種の降下量と堆積量を求めた。また、池の流出口に設置した水位計による水の流出量と、水中の放射性核種の濃度から系外への放射性核種の流出量を求めた。さらに、堆積物供給源の情報を得るために、2020 年 1 月 29 日に集水域の尾根、谷それぞれ一地点から土壌コアを採取した。

【結果】 ^7Be および ^{210}Pb の降下フラックスはそれぞれ $1.09\text{--}23.61\text{ Bq/m}^2/\text{day}$ 、 $0.34\text{--}5.42\text{ Bq/m}^2/\text{day}$ であり、秋から冬にかけて増加し夏に向かって減少する傾向がみられた。 ^7Be および ^{210}Pb の堆積フラックスはそれぞれ $0.99\text{--}9.24\text{ Bq/m}^2/\text{day}$ 、 $1.78\text{--}9.16\text{ Bq/m}^2/\text{day}$ であり、降下フラックスとおおむね同じ変動傾向がみられた。貯水池-集水域系において、放射性核種の貯水池への堆積量と系外への流出量の合計は貯水池への降下量と集水域からの運搬量の合計と等しいと仮定し、系内での放射性核種の収支計算に基づいて集水域からの運搬量を求めた。その結果、 ^{210}Pb の堆積量は集水域からの運搬量によるものが大部分を占めた。一方で、 ^7Be の集水域からの運搬量は ^{210}Pb と比較して小さく、堆積量は大気からの直接降下による影響が大きかった。このことから、集水域からの土壌粒子の運搬の時間スケールは ^7Be の半減期よりも十分長いと推定された。また、集水域にて採取された土壌コアにおいて、 ^7Be は 90% 以上が最表層の落葉に分布していた。このことは、降下した ^7Be の大部分が落葉にトラップされ土壌粒子への移行に時間を要することを示唆しており、上記の収支計算による結果を支持していると考えられる。

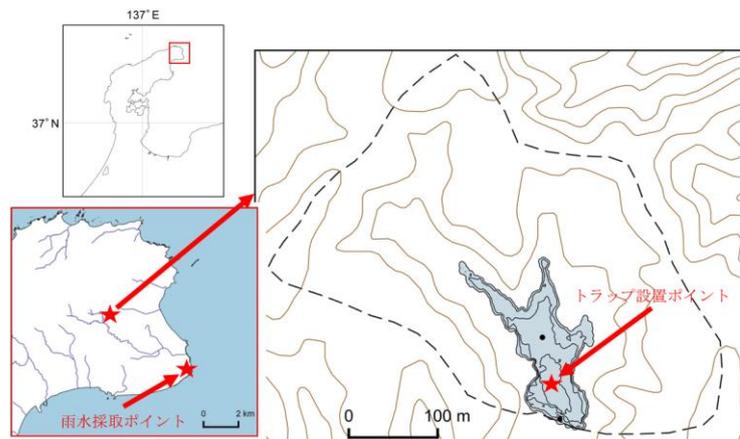


図 1：調査地域の概略

3B02

Fe(II)を含むスメクタイトによる U(VI)の U(IV)への還元

(¹東大院理、²NUMO) ○竹田早英桂¹、孫静¹、浜本貴史²

石田圭輔²、田中雅人¹、板井啓明¹、高橋嘉夫¹

【緒言】

ウランの地下環境での挙動の解明は、放射性廃棄物の安全な地層処分の確立、地球の大気組成の変化やウラン資源の研究、放射性核種除去などにおいて非常に重要である。酸化的环境下ではウランは主に水に溶解しやすい UO_2^{2+} や $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ として存在し、還元的环境下では錯体が水に非常に溶けにくいいため沈殿を作ったり固相に吸着されたりする。地層中でのウランの形態を知るために、人形峠で採取した黒雲母試料中のウランの分布と価数を XRF-XAFS で調べた。また、粘土鉱物中で鉄の酸化反応によるウランの還元を調べるために、スメクタイトのサイトにある鉄を還元処理し、様々な条件下でウランの 6 価を吸着させる実験を行った。この試料の XANES を測定することでウランがどの程度還元されているかを見た。

【実験】 層状ケイ酸塩の例として、2 八面体型で Fe としては +3 価をスメクタイト試料 {クニピア F: $(\text{Na}_{0.42}\text{K}_{0.008}\text{Ca}_{0.068})(\text{Si}_{13.91}\text{Al}_{0.09})(\text{Al}_{1.56}\text{Mg}_{0.31}\text{Fe}^{3+}_{0.09}\text{Fe}^{2+}_{0.01})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ } を用いた。以後の実験は、グローブボックス (Coy 社製; アルゴン: 水素 = 97%:3%; 酸素分圧 5 ppm 以下) 内で行った。クニピア F を亜ジチオン酸により還元処理し、ろ過により回収して以後の実験に用いた。クニピア F 懸濁溶液 (固液比 XX g/L) にウラニル溶液 (XX mM) を加え、ウランを吸着したクニピア F を得た。pH や支持電解質 (塩化ナトリウムあるいは炭酸水素ナトリウム) を変化させた実験を行った。クニピア F に吸着されたウランの価数・化学種を SPring-8 BL01B1 における XAFS 実験より推定した。またクニピア F 中の鉄の化学種も同様に XAFS 法により調べた。

【結果と考察】 還元処理を施していないクニピア F にグローブボックス内でウランを吸着させ、XANES 測定をしたところ、ウランは 6 価のままだった。試料に還元処理を施した場合、吸着されたウランは 4 価に還元されていた。炭酸イオン存在下では U(VI) が炭酸錯体として安定化するため、還元されにくくなることが分かった。試料中の U(IV)/U(VI) 比は、クニピア F 中の Fe(II)/Fe(III) 比の増加とともに大きくなるため、U(VI) への還元は層状ケイ酸塩中の Fe(II) の割合によって決まるといえる。Fe の EXAFS 測定から、八面体相中での Fe(II)-O 距離は通常の 6 配位 8 面体中の Fe(II)-O より短く、これが Fe(III) への酸化され易さや強い還元力を生んでいると推定される。天然の花崗岩コア試料中の黒雲母を採取・分析すると、黒雲母中で U は 4 価に還元され濃集することが示唆された。これらの結果から Fe(II) を含むスメクタイトなどの層状ケイ酸塩によって U(VI) は U(IV) に還元、固定されることが分かった。これは放射性廃棄物の地層処分に関係し、地層中でのウランの挙動推定に重要な知見を与える。今後 EXAFS 法により、クニピア F 中に含まれる U が UO_2 の沈殿として存在しているか、粘土鉱物との表面錯体を形成しているかなどを解析していく。

An example of abstract for 2020 Annual Meeting of the Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences (JNRS)

HANDAI T., TOYONAKA, H.

【緒言】 ウラン (U) やトリウムの子孫核種であるラジウム (Ra) は放射性元素であり、放射壊変により希ガスのラドンを生成することやアルカリ土類金属であるため地下水に移行しやすいことなどから、生体への影響が懸念される元素である。近年、ウラン鉱山周辺だけでなく、天然試料や飲料水でも Ra 濃度が基準値を超えた例が世界的に報告され、Ra の環境挙動の解明に関心が高まっている。先行研究では室内実験で得られた分配係数の比較から粘土鉱物へ多く吸着することが示唆された報告もあるが、Ra の比放射能が高く分光法の適用が難しいことなどからその詳細は不明である。そこで本研究では、日本原子力研究開発機構 (JAEA) 人形峠環境技術センターにある旧ウラン鉱床周辺のコア試料の分析により、粘土鉱物存在下での環境中 Ra の挙動を解明することを目的とした。

【試料・分析】 人形峠旧ウラン鉱床周辺では Ra 濃度が比較的高く、ウラン濃集層の下に風化花崗岩層が存在することから粘土鉱物も豊富に存在する。そのため粘土鉱物の存在下での Ra²⁺の移行過程を調べる上で、人形峠ウラン鉱床周辺は最適な調査地域である。コア試料中の化学組成や鉱物組成は蛍光 X 線(XRF) 法と X 線回折 (XRD) 法により調べた。Ra²⁺の移行を調べるため、ガンマ線スペクトロメトリによりコア試料中の放射性核種の放射能を測定し、²²⁶Ra/²³⁸U 放射能比を求めた。Ra²⁺が濃集したと考えられる、²²⁶Ra/²³⁸U の値が高い試料について、Ra²⁺のホスト相を調べるため逐次抽出実験を行い、さらに Ba をアナログとした放射光 μ -XRF-X 線吸収微細構造(XAFS)-XRD 法により局所分析を行った。また、粘土鉱物への濃集を調べるため水簸法による粘土鉱物の回収と分析を行った。粘土鉱物の種類の同定はエチレングリコール処理と XRD 法により行った。

【結果・考察】 ²²⁶Ra/²³⁸U 放射能比は、ウラン濃集層では 1 より小さい値 (約 0.8) を示したが、強風化花崗岩層上部で 1 より大きい値 (約 6) を、強風化花崗岩層下部や弱風化花崗岩層では 1 の値を示した。元素の移行がない場合、放射平衡により放射能比は 1 となることから、強風化花崗岩層上部での Ra の固定が示唆された。さらに、放射能比が 1 より高い強風化花崗岩層上部の試料について逐次抽出実験を行ったところ、粘土鉱物を多く含むフラクションに Ra が多く分配された。また、Ba をアナログとした局所分析である放射光 μ -XRF-XAFS-XRD 法の結果でも、Ba の局所的な濃集部に粘土鉱物の存在が確認された。さらに、水簸法により得た粘土鉱物中の Ra と U の放射能を測定した結果、²²⁶Ra/²³⁸U 放射能比はバルク試料よりも高い値 (約 9) を示し、粘土鉱物による Ra の吸着・固定を支持する結果となった。粘土鉱物種の特定のため、水簸法で得た試料にエチレングリコール処理を行い XRD 法を適用したところ、処理により底面間隔が広がったことから、強風化花崗岩層中に含まれる主な粘土鉱物種はスメクタイトであることも特定された。以上のことから、風化花崗岩層など、粘土鉱物 (特にスメクタイト) が存在する環境中において、Ra は粘土鉱物に特異的に吸着し、固定されることがわかった。これは Ra の環境動態解明だけでなく、Ra の除去手法開発等にも資する結果である。

Fixation of radium by adsorption on clay minerals in the environment

YAMAGUCHI, A., KURIHARA, Y., OKUMURA, M., HIGAKI, S., TAKAHASHI, Y.

【緒言】青森県六ヶ所村の再処理施設の稼働に伴い大気中に放出される人工放射性核種のうち、 ^{85}Kr (半減期：10.76年)の放出量(Bq)が最大であることから、稼働前の2006年から大気中 ^{85}Kr 濃度水準の把握を目的として全国調査を行っている。2006～2019年度の大気中 ^{85}Kr 濃度調査結果から、全球の ^{85}Kr インベントリや欧州再処理施設からの放出量との関連を考察した。

【調査方法】日本国内5地点において大気を流量1L/minで1週間連続捕集し、 ^{85}Kr を含む希ガスを液体窒素温度に冷却した活性炭に吸着捕集した。次いで、活性炭を305℃に加熱し、希ガスを脱離・回収した。ガスクロマトグラフ(GC)を用いてKrを分離・精製した後、GMカウンターを用いて ^{85}Kr のβ線を測定するとともに、定量用GCにより安定Kr量(mL)を定量した。得られた ^{85}Kr 比放射能(Bq/mL)を大気中の安定Kr存在比(1.14 mL/m³)を用いて大気中 ^{85}Kr 濃度(Bq/m³)に換算した。

【結果】2006～2019年度の大気中 ^{85}Kr 濃度は、国内の再処理施設の試験や福島第一原子力発電所事故に伴う一時的な上昇を除くと、1.30～1.60 Bq/m³の範囲内であり平均は1.46 Bq/m³であった。

(図1)

全球における ^{85}Kr のインベントリ(蓄積量)は2009年時点で5500 PBq^{※1}(P(ペタ)=10¹⁵)と推定されており、物理減衰による年間減少割合を6.25%^{※2}とした場合、1年に約340 PBqの ^{85}Kr が大気中から除去されると推定される。これを閾値として世界における大型再処理施設であるLa Hague(仏)やSellafield(英)、六ヶ所再処理施設からの ^{85}Kr 年間総放出量と比較すると、年毎の ^{85}Kr インベントリ増減を推定できる。算出した ^{85}Kr インベントリの増減推移と本調査で得られた千葉市における ^{85}Kr 濃度の推移を比較すると、2006～2013年まで年間の推定 ^{85}Kr 増減量がマイナスとなり、千葉市における ^{85}Kr 濃度(2008～2013年)も減少もしくは横ばいの傾向が認められ、年間の推定 ^{85}Kr 増減量の変化が減少しプラスに転じている2014年頃から、千葉市における ^{85}Kr 濃度(2014～2016年)も増加傾向が認められた。(図2)これらの結果から、本調査で得られた ^{85}Kr 濃度の年毎の変動は、世界の再処理施設の稼働状況(^{85}Kr 放出状況)との関連が認められることが分かった。

なお、本調査結果は原子力規制庁委託費(環境放射能水準調査)事業の成果の一部である。

※1 J. Ahlswede et al. (2013), J. Environmental Radioactivity., 115, 34-42

※2 A. Bollhöfer et al. (2019), J. Environmental Radioactivity., 205-206, 7-16

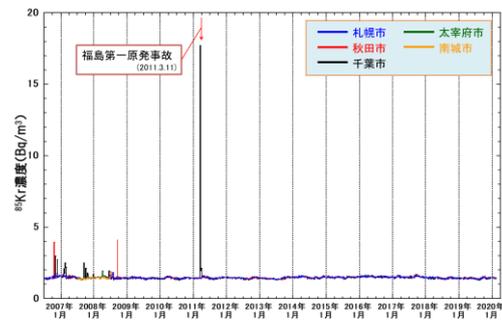


図1 大気中 ^{85}Kr 濃度調査結果 (2006年度～2019年度)

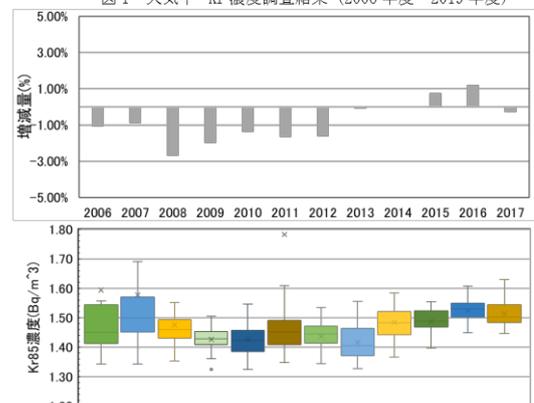


図2 主な再処理施設からの放出による推定 ^{85}Kr 増減量(%)と千葉市における ^{85}Kr 濃度の比較(2006-2017)

3B05

$^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比の空間分布からみた日本海の粒子除去

(金沢大¹、水産資源研究所²、日水研³) ○亀山紘旭¹、井上睦夫¹、花木祥太郎¹、諸角季生¹、城谷勇陸¹、竹原亮成¹、森田貴己²、三木志津帆²、本多直人³、長尾誠也¹

【序論】

トリウム同位体 (^{228}Th ; 半減期 1.91 年, ^{234}Th ; 半減期 24 日) は海洋環境において粒子吸着性であり、一部は粒子とともに海水から除去される。それゆえ、溶存性であるそれら親核種 ^{228}Ra , ^{238}U との放射能比、すなわち $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ および $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、粒子さらには粒子吸着性成分の挙動を探る重要な指標となる。東シナ海大陸棚浅層海水混合比の季節変動が大きく、流速が速い(滞留時間~3 か月)日本海表層(対馬暖流域)海水における粒子除去の議論には、 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 放射能比よりも半減期の短い ^{234}Th 濃度 ($^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比) が有効である。本研究では、 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比の空間分布および季節変動をもとに、日本海における粒子除去過程を議論する。

【試料・実験】

2016–2019 年 7–8 月に日本海で海水~20 L を採取した(図.1)。さらに季節変動を調べるため、2019, 2020 年 2 月にも同様に海水採取を行った。表層採水はバケツ、鉛直海水採取は CTD センサー-ニスキン採水ボトルを使用し、水深 0–1000 m 以浅で計 16 層を採水した。未ろ過海水に BaSO_4 および $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法を適用、ラジウム、トリウム同位体を分離した。石川県小松市の尾小屋地下測定室に設置したゲルマニウム検出器を利用した低バックグラウンドガンマ線測定法により ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th , ^{234}Th 放射能濃度を測定した。

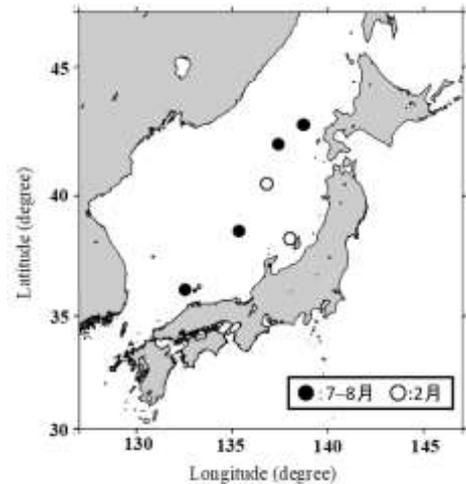


図.1 海水採取地点

【結果】

我々の研究で、日本海においては、上部固有水層に至るまで $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比の非平衡が確認され、さらに海盆ごとに異なる鉛直分布を示すことが分かりつつある。対馬海盆では、 $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比が 0.6–0.7 (50–1000 m 水深) と比較的低い値が得られた。さらに 2020 年 7–8 月の蒼鷹丸調査航海で採取される海水試料についても、化学処理、γ線測定を行い、議論に加える予定である。

本年会では、これらの $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比の空間分布の結果、さらには塩分、ラジウム (^{226}Ra , ^{228}Ra) 濃度などから得られる水塊構造とも比較しながら、日本海の鉛直方向の粒子除去をその季節変動も含め考察する予定である。

謝辞：海水採取にご協力いただいた、蒼鷹丸、北光丸の同乗研究者、船長および乗組員の皆様に感謝いたします。

Spatial distributions of $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ activity ratio in the Japan Sea and the implications for scavenging effects

KAMEYAMA, H., INOUE, M., HANAKI, S., MOROKADO, T., SHIROTANI, Y., TAKEHARA, R., MORITA, T., MIKI, S., HONDA, N., NAGAO, S.

3B06

^{134}Cs の空間分布からみた北太平洋北西部における海水循環

(金沢大 LLRL¹、水産資源研究所²)○竹原亮成¹、井上睦夫¹、花木祥太郎¹、松中哲也¹、森田貴己²、三木志津帆²、黒田寛²、谷内由貴子²、葛西広海²、長尾誠也¹

【緒言】

2011年3月の福島第一原子力発電所事故によって大量の放射性セシウムが海洋環境中に放出された。特に、半減期が2.06年と短いことから、現在海水中で検出される ^{134}Cs は福島原発事故由来である。よって、 ^{134}Cs は海洋環境中における物質循環のトレーサーとして有効である。本研究では ^{134}Cs 濃度を利用することにより、北太平洋北西部、特に水塊が複雑に混合している道東沿岸から沖合を中心に海水循環を議論する。

【試料・実験】

2018-2019年に図1で示した地点で、表層海水試料を30-120L採取した。未ろ過海水を硝酸酸性にした後、リンモリブデン酸アンモニウム沈殿法を用いて ^{134}Cs および ^{137}Cs を分離、回収した。その後、尾小屋地下測定室を利用し、低バックグラウンド γ 線測定法を適用することで、 ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度を測定した。

【結果】

北太平洋北西部における ^{134}Cs 濃度は0.2-1.0 mBq/L、平均値は0.6 mBq/Lであった(事故時補正值)。この ^{134}Cs 濃度分布は親潮、宗谷暖流、オホーツク海表層海水の混合を反映していると考えられる。本年会では、これらの供給源である海流の ^{134}Cs 濃度、さらにはラジウム同位体濃度、塩分に注目することにより、道東沿岸から沖合における水塊の混合を議論する。

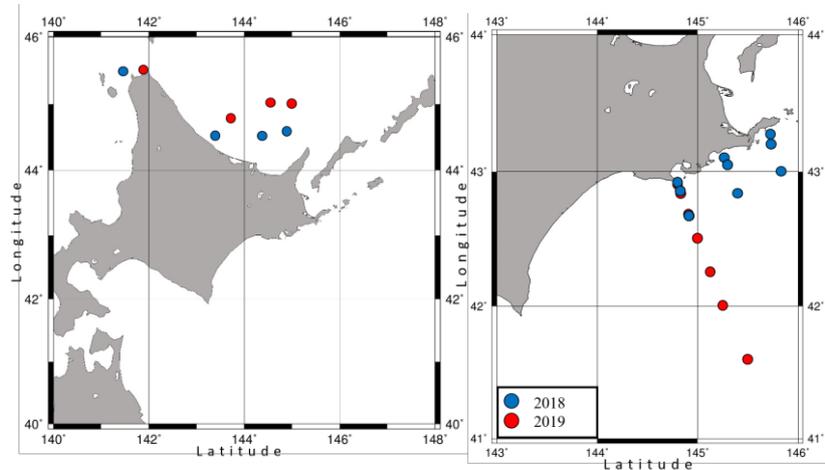


図1 海水試料採取地点

【謝辞】 海水試料採取にご協力いただいた、蒼鷹丸、北光丸、うしお丸、若鷹丸の同乗研究者、船長及び乗組員の皆様に感謝いたします。

Spatial distribution of ^{134}Cs concentration in surface water of the northwestern North Pacific Ocean
TAKEHARA, R., INOUE, M., HANAKI, S., MATSUNAKA, T., MORITA, T., MIKI, S., KURODA H., TANIUCHI, Y., KASAI, H., NAGAO, S

3B07

ケイ酸バリウム (BaSi₂O₅) を主成分とする Sr 吸着剤に対する海水中の陽イオン吸着挙動

(慈恵医大¹, 名大², 日立製作所³, 愛知医大⁴) ○箕輪はるか¹, 緒方良至², 加藤結花³, 小島貞男⁴

【緒言】 ケイ酸バリウム(BaSi₂O₅)を主成分とする Sr 吸着剤 (ピュアセラム®MAq、日本化学工業) は、Sr を高い効率で吸着・捕集するため、環境中の放射性 Sr の分析に有用と考えられる。本吸着剤を用いて海水中の放射性 Sr を分析するにあたり、影響を及ぼす可能性のある元素の挙動を明らかにすることを目的とした。本研究では、定量目的の元素の Sr、放射線施設や原子力事故において Sr と共に検出されることの多い Cs、また海水の主成分元素である Na, K, Mg, Ca、さらに海水中に存在する天然放射性核種として Ra, Pb について、本吸着剤と海水の分配係数を測定したので報告する。

【実験】 人工海水 (ダイゴ人工海水 SP, 日本製薬, Sr 濃度 7 mgSr/L) 100 mL に放射性トレーサーをスパイクし、Sr 吸着剤 100 mg を加え振とうした。一定時間経過後にメンブレンフィルタ (孔径 0.45 μm) で濾過した。濾液を測定し元素濃度を求めた。⁹⁰Sr は液体シンチレーションカウンタ (LSC-7400, 日立製作所) で、¹³⁴Cs は HPGe 半導体検出器 (GEM-35190S, Ortec) で測定した。また Na, K, Mg, Ca は放射性スパイクを入れずに同様の操作を行い ICP-AES (Thermo Jarrel Ash, IRIS/AP) で測定した。

天然放射性核種の分析のため、²³²Th を含むランタン用マントルから ²²⁸Ra トレーサー溶液を溶出・精製して調製した。人工海水 100 mL に ²²⁸Ra トレーサーをスパイクし Sr 吸着剤を 40 mg 加えた。2 時間振とう後、直ちに吸引濾過し、固相を濾紙 5C 上に捕集し純水で洗浄後、ポリ袋に封入した。濾液および固相試料を HPGe 半導体検出器 (GEM-35190S, Ortec) で測定した。約 1 カ月にわたり測定を繰返し、²¹²Pb, ²²⁸Ra, ²²⁸Ac の結果より液相残存率を求め、分配係数を算出した。

Table 1 人工海水-Sr吸着剤系における分配係数

元素	液相残存率(%)	固相吸着率(%)	分配係数Kd
Sr(⁹⁰ Sr)	0.7	99.3	1.4E+02
Cs(¹³⁴ Cs)	99.9998	0.0002	2.0E-06
Na	99	1	1.0E-02
K	99	1	1.0E-02
Mg	99	1	1.0E-02
Ca	99	1	1.0E-02
Pb(²¹² Pb)	14	86	6.1E+00
Ra(²²⁸ Ra)	0.15	99.85	6.7E+02
Ac(²²⁸ Ac)	0.15	99.85	6.7E+02

【結果および考察】 各元素の液相残存率およびそれらから計算した分配係数を Table1. に示した。液相[人工海水]と固相[Sr 吸着剤]の系で、Cs, Na, K, Mg, Ca の液相残存率は 99%以上であり、これらの元素は液相に分配され、Sr と容易に分離できる。²¹²Pb の液相残存率は 14%であり、主に固相に分配されるものの、液相にも残存する。一方、Ra, Ac は Sr と同様に固相に定量的に吸着する。本吸着剤の Sr の吸着には難溶性の SrSO₄ が関与していることが示唆されているが、Ra, Pb についても硫酸塩 RaSO₄, PbSO₄ の状態で吸着していると推察される。本吸着剤は Sr のみならず海水からの Ra および Ac の捕集にも利用できる可能性が示唆された。

Adsorption behavior of cations in seawater on barium silicate-based adsorbent for Sr.
MINOWA H., OGATA Y., KATO Y., KOJIMA S.

【緒言】 廃止措置終了確認において、敷地内で検出された ^{137}Cs のうち福島第一原子力発電所(1F)事故由来の ^{137}Cs はバックグラウンドとして差し引くことが認められている。 $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比により ^{137}Cs 起源を同定できる可能性があるが、そのためには土壌から Cs を分離・精製して質量分析をする必要がある。そこで、Calix[4]arene-bis(tert-octylbenzo-crown-6)(BOBCalixC6)を用いた土壌からの Cs 分離法を開発し、茨城県東海村で採取した環境土壌試料中の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比を測定した。

【実験】 0.015 M BOBCalixC6 の 1-オクタノール溶液を有機相、10 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の Na, Mg, Al, K, Ca, Fe, Sr, Mo, Sn, Sb, Cs, Ba を含む 3 M HNO_3 溶液を水相とし、同体積を遠沈管に入れ、室温(19~22 $^{\circ}\text{C}$)で 30 分間振とうして抽出を行った(E)。遠心分離により相分離を行った後、有機相を別の遠沈管に移し、同体積の 0.5 M HNO_3 溶液と 30 分間振とうして洗浄を行った(S)。相分離後、有機相を別の遠沈管に移し、3 倍量の 1 mM HNO_3 を加え、50 $^{\circ}\text{C}$ の恒温槽中で 30 分間振とうして Cs を逆抽出した(B)。相分離後の有機相を繰り返し使用して新しい水相からの Cs 分離操作を 5 回繰り返した。

東海村の 3 地点で土壌を採取し、450 $^{\circ}\text{C}$ で灰化後、濃硝酸と共に密閉容器に入れて 200 $^{\circ}\text{C}$ で 4 時間加熱した。ろ過後の硝酸溶液を蒸発乾固し、約 150 ml の 3 M HNO_3 溶液に調製した。この溶液(15 ml)を水相として、上述と同様の溶媒抽出法を 5 回、2 セット繰り返し Cs を分離した。Cs を逆抽出した水溶液すべてを一つにまとめ、蒸発乾固した後、5 ml の 3 M HNO_3 溶液とし、新しい BOBCalixC6 溶液で溶媒抽出を行った。最終的な逆抽出の水相を濃縮し、一部を Re フィラメント上で乾固し、表面電離型質量分析計(Finnigan MAT-261, サーマフィッシャー社製)で $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比を分析した。

【結果】 表に同じ有機相を繰り返し 5 回使用した時の各工程における水相中の元素量の初期量に対する百分率の平均値をそのばらつきと共に示す。5 回の繰り返しによる変化はいずれの元素においても小さく、多量の試料を複数回に分けて分離する場合には試薬を節約できることが分かった。また、Na, Mg, Al, Ca, Fe, Sr, Ba はほとんど有機相に抽出されず、Cs と分離された。一方、一部の K, Mo, Sn は有機相に抽出されたが、洗浄により大部分を Cs と分離することができた。

東海村の土壌の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比は、4 試料について、2011/3/11 時点換算で 0.38 ± 0.25 、 0.55 ± 0.82 、 0.364 ± 0.028 、 0.38 ± 0.38 という値が得られた。1F 近傍の ^{137}Cs 濃度が 16900 Bq/g の試料の分析では 0.3634 ± 0.0005 という高い精度で同位体比が測定出来たが、東海村で採取した 1 Bq/g を下回る試料の分析は標準偏差が大きくなった。

表 5 回繰り返し試験での各元素の各工程における水相中存在率(%)の平均値

	Na	Mg	Al	K	Ca	Fe	Sr	Mo	Sn	Sb	Cs	Ba
E	98 \pm 0.9	101 \pm 1	97 \pm 1	75 \pm 2	100 \pm 1	100 \pm 1	100 \pm 1	68 \pm 2	95 \pm 3	96 \pm 4	4 \pm 0.3	99 \pm 1
S	0.2 \pm 0.1	ND	ND	20 \pm 3	ND	ND	0.1 \pm 0.01	26 \pm 1	10 \pm 1	1 \pm 1	6 \pm 0.2	ND
B	0.1 \pm 0.04	ND	ND	4 \pm 0.6	ND	ND	0.1 \pm 0.01	8 \pm 1	ND	ND	90 \pm 3	ND

本研究は原子力規制委員会原子力規制庁「平成 31 年度廃止措置・クリアランスに関する検討」として実施したものである。

3B09

プラスチックシンチレータボトルを用いた低エネルギー放射線のスペクトル分析

(日立製作所¹、名大・RIC分館²、慈恵医大・アイソトープ³、愛知医大⁴)

○加藤結花¹、緒方良至²、箕輪はるか³、小島貞男⁴

【緒言】著者らは放射性ストロンチウムを捕集したフィルタやディスクをプラスチックパウチフィルムで封じ、プラスチックシンチレータボトル (PSB、Fig. 1) に組み込み、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ (LSC-LB7、日立製作所) で測定する方法を開発し、研究報告を行ってきた。本法の従来法では、 ^{90}Sr - ^{90}Y 放射平衡時に、 ^{90}Y の計数効率ほぼ 100% であるが、 ^{90}Sr の計数効率は約 40% と低かった。そこで、加熱圧着フィルムにプラスチックシンチレータフィルム (PSF) を用いることで、 ^{90}Sr の計数効率を 90% 以上と大幅に向上させることに成功した。この方法を用いれば測定が困難な低エネルギー β 線を高感度で検出できることが期待される。代表的な低エネルギー β 線放出核種である ^3H (18.6keV)、 ^{63}Ni (66.9keV)、 ^{14}C (157keV) に着目し、PSF でパウチしたそれらの核種の線源を調製し、先に述べた測定法により得られた β 線スペクトルの解析を行ない、計数効率などに関する知見が得られたので報告する。

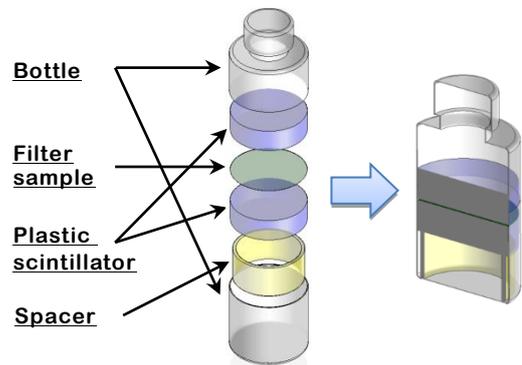


Fig. 1 Assembly of the plastic scintillator bottle

【実験】 ^3H または ^{14}C で標識されたアミノ酸の水溶液を、(1)メンブレンフィルタに滴下・風乾させ、上下から PSF ではさみパウチした測定試料、(2)PSF に直接滴下・風乾させ、上に PSB をのせパウチした測定試料、として調製した。測定試料を PSB にセットし、LSC-LB7 にて測定しスペクトル分析した。 ^3H 、 ^{14}C の放射能測定には液シンを用いた。 ^{63}Ni については ^{63}Ni 標準溶液 (NiCl_2 、0.1M HCl) を用いて(2)の測定試料を作成し、測定・分析を行なった。

【結果と考察】(1)メンブレンフィルタを使用した試料の計数効率は、 ^3H 、 ^{14}C でそれぞれ、0.62%、37.2%であった。(2)PSF に直接滴下した試料の計数効率は、 ^3H 、 ^{63}Ni 、 ^{14}C でそれぞれ、14.4%、37.0%、83.7%と(1)に比べて高い結果が得られた。これはメンブレンフィルタによる自己吸収を回避できたことによると考えられる。

Fig.2 に ^3H 、 ^{63}Ni 、 ^{14}C のスペクトル分布を示す。横軸はエネルギー、縦軸は 1 keV あたりの計数効率である。 ^3H では約 18keV、 ^{63}Ni では約 50keV、また ^{14}C では約 140keV までの連続スペクトルとして得られ、それらのエンドポイントはそれぞれの β 線最大エネルギーとほぼ等しかった。

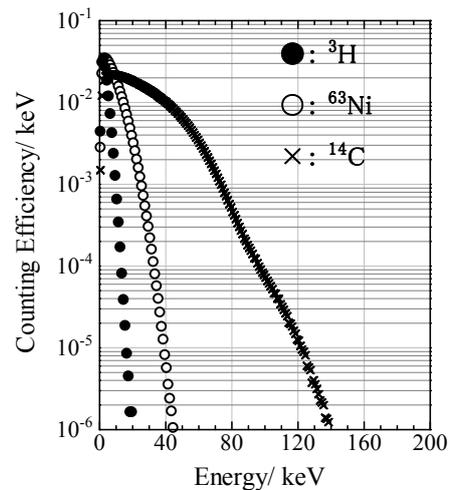


Fig. 2 Beta-ray spectra of ^3H 、 ^{63}Ni and ^{14}C .

Spectrum analysis of low energy radiation using a plastic scintillator bottle
KATO, Y., OGATA, Y., MINOWA, H., KOJIMA, S.

3B10

下限数量以下の Ge-68/Ga-68 ジェネレーターの教育利用(3): 土壌フミン酸を題材とする環境教育プログラムへの導入の可能性

(武蔵大¹, 根津化研², 元北里大³, 放医研⁴, 福島県医大⁵, 理研名誉⁶) ○薬袋佳孝^{1,2}, 新澤和裕³, 永津弘太郎⁴, 鷲山幸信⁵, 野崎正^{3,6}

【緒言】 放射性同位元素としての下限数量に満たない放射性核種の利用は、RI 施設などの特別な実験室や設備を必要とするものではない。このため、一般の社会人を含めた広い範囲の放射線教育や原子力教育などでの活用が期待されて来た。

野崎を中心に、下限数量 100kBq 以下の Ge-68/Ga-68 ジェネレーターの放射化学教育ないしは化学教育での利用法の開発にあたって来た。このジェネレーターの親核種 Ge-68 (半減期 271 日)は EC 壊変で娘核種 Ga-68 (半減期 67.7 分, β - γ , EC)となる。両核種には放射平衡が成立し得るので、ミルキングにより無担体の Ga-68 を継続的に得ることが出来る。

昨年度の本年会では、野崎により、これまでの研究の展開と現状について報告した(これを第一報とし、今回は第三報とする)。今回は Ga-68 とフミン酸との錯生成反応に着目して、どのような教育内容がどのように提供し得るのかについて報告する。

【実験教育プログラムの構成】 原型となる土壌フミン酸についての環境教育プログラムについては、中高生向けの実験講座などでの実践例がある。原型は、(1)土壌の化学についての事前学習、(2)土壌の採取、(3)土壌フミン酸の抽出、(4)土壌フミン酸の単離、(5)土壌フミン酸の溶解、(6)土壌フミン酸の粘土鉱物への吸着、(7)土壌フミン酸による金属イオンの捕集、(8)土壌フミン酸との錯体の生成、(9)土壌フミン酸の環境での役割についての考察、(9)土壌の化学へのフィードバックなどの学習項目で構成される。これらの項目のうち、(2)~(8)が実験項目である。

第一報でも紹介した教育用 Ge-68/Ga-68 ジェネレーターからのミルキングで得られる Ga-68 については、(7),(8)でのトレーサー利用を想定している。

【Ga-68 トレーサーの教育プログラムへの導入】 原型の実験教育プログラムでは Co^{2+} や Cu^{2+} などの有色の金属イオンの水溶液を用いて来た。しかし、分光光度計などの分析機器は教育現場に十分には普及していない。このため、視察による水溶液の色の変化に基づいて、フミン酸と金属イオンの相互作用を評価して来た。ところが、フミン酸自体が有色であるため、この評価はかなり難しい。放射性トレーサーの利用も検出器の確保が前提となる。しかし、FDNPP 以降、簡易放射線量計やサーベイメータが普及したため、大学教養、高校、一般を対象としての利用は現実的ともなっている。

実験項目(6)に Ga-68 トレーサーを導入した場合には、フミン酸を吸着した粘土鉱物をトレーサーを含む水溶液と混合して、固相への Ga-68 の移行状況を観察する。固液分配に関する実験である。実験項目(7)では金属イオンの溶存状態を扱う。トレーサーを粘土鉱物や金属酸化物に吸着させておき、フミン酸溶液と混合して溶液への移行状況を調べる実験となる。大学化学系の教育プログラムでは、これらの実験をより定量的に実施する。錯生成や吸着などの化学の基礎概念を学ぶための実験教材と位置付けることで、大学専門での化学教育に貢献し得える内容とした。

Educational use of Ge-68/Ga-68 generator under legally defined level as radioactive material (3): introduction to experimental program on role of humics in soil environment
MINAI, Y., NIIZAWA, K., NAGATSU, K., WASHIYAMA, K., NOZAKI, T.

【緒言】 Zn は、Cu や Fe と比べても、その利用に関する歴史が謎に包まれている金属元素である。日本では、16 世紀後半の遺跡から出土した真鍮(ヨーロッパ由来の精錬亜鉛を用いて生産されたと思われる)が最古の事例である。美福門院藤原得子発願紺紙金字一切経(荒川経)は、得子の夫である鳥羽法皇没後三回忌にあたる平治元(1159)年に高野山に納められた一切経 5048 卷の総称である。紺紙に銀色の界を引き、金字によって和洋写経体の経文が書写されている。典型的な金泥経とされてきた荒川経であるが、近年の研究(西山, 2015)により、この金字は Au によるものではなく真鍮(Cu, Zn)によるものであることが判明した。一方で、荒川経は平安時代書写とされていることから、これが正しければ、平安時代に日本において Zn 利用があったことになる。そこで、この点を明らかにすべく、荒川経断簡についての ¹⁴C 年代測定を行った。

【実験・結果】 荒川経の断簡から 1.0cm² の紙片を採取し分析試料とした。まず三晩吸水させた後、金字筆写のある本紙を剥離した。表裏二層に剥離されたが、裏面が後世の裏打紙であるか、紙漉きの際に生じた和紙の層であるかの判断が困難であったため、両者とも測定をした。超音波洗浄(H₂O)、1.2N HCl_{aq} と 1.2N NaOH_{aq} による交互洗浄の後、CuO による酸化と H₂ による還元を経てグラファイトを調製し、AMS(パレオ・ラボ Compact-AMS, 米国 NEC 社製, 1.5SDH)により ¹⁴C 年代測定を行った。¹⁴C 年代は、較正曲線 IntCal13(Reimer et al., 2013)によって暦年代に換算した。結果を表 1 に示す。

表 1. 測定結果(誤差範囲 2σ)

試料	¹⁴ C 年代 [BP]	較正暦年代 [cal AD]
荒川経(表面)	969±38	1020(1031)1050, 1083()1126, 1135()1151
荒川経(裏面)	970±40	1020(1031)1050, 1083()1126, 1135()1151

【考察】 荒川経の奉納は 1159 年であるが、この紺紙金字経を書写せしめ、法勝寺金堂での供養を行ったのは、久安六(1150)年 10 月 2 日のことである。書写のための料紙はその 1～数年前に生産されているはずであり、較正暦年代の下限と一致している。なお、表面と裏面の年代には有意な差はない。絹本を除いて、成立直後に裏打ちが施されることは少ないため、この裏面は紙漉きの際に生じた和紙の層である可能性が高い。この測定結果から、荒川経の書写が平安時代であったこと、当時の日本で既に真鍮の利用があったことを結論付けることができる。現代的な価値観では、真鍮は金よりも安価なものとなる。しかしながら、院政政権の中枢にあった鳥羽法皇の供養に対して経費削減がなされたとするよりも、当時の日本における真鍮の稀少価値は金に比べて必ずしも低いものではなかったと考える方が自然である。荒川経以外に平安期の真鍮製品が知られていないため推測にとどまるが、今後、こうした金属の利用に関する歴史、価値観の変遷などを知る上で、荒川経は重要な学術資料となるであろう。なお、発表では荒川経以外の古来より有名な金泥銀泥経の測定についても併せて報告する。

Radiocarbon dating of Bifukumon'in-Fujiwara-no-Nariko-hotsugan-konshi-kinji-issaikyo sutra:
Natural scientific evidence for the use of Zn in the Heian period, Japan
ODA H., NISHIYAMA, Y., IKEDA K.