

2024年9月23日(月)

開会式

2024年9月23日(月) 9:30 ~ 9:45 A会場(11階会議ホール「風」)

開会式

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 10:00 ~ 11:00 A会場(11階会議ホール「風」)

1A1

座長:大浦 泰嗣(東京都立大学)

10:00 ~ 10:20

[1A01]

福島県帰還困難区域に生息するイノシシ体内の放射性セシウムと安定セシウムの検討

*福島 美智子¹、小松 仁⁴、飯沼 勇人²、辻 大和¹、菅原 祐弥³、望月 翔太³、坂田 隆¹、村上 貴美恵⁴、神田 幸亮⁴ (1. 石巻専修大学、2. 京都大学、3. 福島大学、4. 福島県環境創造センター)

10:20 ~ 10:40

[1A02]

JRR3 PN3を用いたふっ素の放射化分析

*三浦 勉¹、石本 光憲² (1. 国立研究開発法人産業技術総合研究所、2. 東京大学原子力専攻)

10:40 ~ 11:00

[1A03]

米国地質調査所地球化学比較標準物質中のCl, Br, I含有量の再測定

*海老原 充¹、白井 直樹²、関本 俊³ (1. 東京都立大学、2. 神奈川大学、3. 京都大学)

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 11:10 ~ 12:00 A会場(11階会議ホール「風」)

1A2

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

11:10 ~ 11:30

[1A04]

即発γ線分析装置 (PGA) の過去現在未来

*大澤 崇人¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

11:30 ~ 12:00

[1A05]

「もんじゅ」サイト新試験研究炉の概要と実験装置整備計画

*佐藤 信浩¹ (1. 京都大学複合原子力科学研究所)

部会

2024年9月23日(月) 12:10 ~ 13:30 A会場(11階会議ホール「風」)

放射化分析部会

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 13:30 ~ 14:30 A会場(11階会議ホール「風」)

1A3

座長:富田 純平(日本原子力研究開発機構)

13:30 ~ 13:50

[1A06]

ICP-MSによる超ウラン元素及びベータ核種分析に対するオゾンリアクションの効果と検証

*松枝 誠^{1,2}、川上 智彦³、照山 優子³、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)

13:50 ~ 14:10

[1A07]

SIトレーサブルな¹³⁵Cs質量分率の測定とその不確かさ評価*浅井 志保¹、田嶋 大洋²、坂口 綾²、佐藤 泰¹ (1. 産業技術総合研究所、2. 筑波大学)

14:10 ~ 14:30

[1A08]

アクチノイド分離を目的としたクリプタンド担持吸着剤の開発

*柳澤 華代^{1,2}、及川 博史³、橋本 淳一³、Sudowe Ralf⁴、高貝 慶隆^{2,5} (1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学、3. ジーエルサイエンス株式会社、4. コロラド州立大学、5. 福島大学環境放射能研究所)

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 14:40 ~ 16:00 A会場(11階会議ホール「風」)

1A4

座長:浅井 志保(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

14:40 ~ 15:00

[1A09]

二次イオン質量分析法を用いた含浸粒子のPu同位体比測定手法の開発

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

15:00 ~ 15:20

[1A10]

加速器質量分析法(AMS)による大型陽子加速器施設内の電源ケーブル被覆中³⁶Clの定量*吉田 剛¹、渡邊 瑛介¹、山崎 翔太²、塩原 良建²、石田 正紀¹、津金 聖和¹、松村 宏¹、松村 万寿美³、三橋 正裕²、山田 正明²、大石 晃嗣²、豊田 晃弘¹、中村 一¹、三浦 太一¹、笹 公和³ (1. KEK、2. 日環研、3. 筑波大学)

15:20 ~ 15:40

[1A11]

ミュオン寿命法による鉄中炭素の深さ選択的非破壊定量分析—日本刀への適用—

*久保 謙哉¹、薬師 康生²、二宮 和彦²、吉田 剛³、稲垣 誠⁴、竹下 聡史³、反保 元伸³、渡邊 瑛介³、ストラッサー パトリック³、河村 成肇³、下村 浩一郎³、三宅 康博³、邱 奕寰⁵、髭本 亘⁵、齋藤 努⁶ (1. ICU、2. 広島大、3. 高エネ研、4. 京大、5. 原研、6. 歴博)

15:40 ~ 16:00

[1A12]

ミュオン誘起ガンマ線を用いた微量成分の元素分析手法の開発

*稲垣 誠¹、二宮 和彦²、吉田 剛³、中田 拓希¹、薬師 康生²、渡邊 瑛介³、久保 謙哉⁴ (1. 京都大学、2. 広島大学、3. 高エネルギー加速器研究機構、4. 国際基督教大学)

セッションE 原子力・アクチノイド化学及び関連分野

2024年9月23日(月) 16:10 ~ 17:10 A会場(11階会議ホール「風」)

1A5

座長:鈴木 達也(長岡技術科学大学)

16:10 ~ 16:30

[1A13]

二酸化ウランの過酸化水素水浸漬および乾燥過程のラマン分光分析

日下 良二¹、*井上 将男¹、熊谷 友多¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

16:30 ~ 16:50

[1A14]

低酸素雰囲気下における UO_2 - Fe_3O_4 系の共晶反応に関する研究*秋山 大輔¹、井野 広海¹、桐島 陽¹ (1. 東北大学)

16:50 ~ 17:10

[1A15]

マイクロ流体デバイスを利用した模擬燃料デブリの溶解特性評価

*塚原 剛彦¹、井戸田 直和¹、XU Tongyu¹、土津田 雄馬²、佐藤 志彦²、北垣 徹² (1. 東京工業大学、2. 日本原子力研究開発機構)

ポスターフラッシュトーク

2024年9月23日(月) 17:15 ~ 17:45 A会場(11階会議ホール「風」)

ポスターフラッシュトーク1

座長:秋山 和彦(東京都立大学)

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 9:50 ~ 11:00 B会場(10階1001-2室)

1B1

座長:佐藤 哲也(日本原子力研究開発機構)

9:50 ~ 10:20

[1B01]

KISSでの核分光実験で迫る重元素合成の謎

*平山 賀一¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構和光原子核科学センター)

10:20 ~ 10:40

[1B02]

新元素合成のための最適反応エネルギー推定に向けた $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ 融合反応の励起関数測定*山ノ内 邑希^{1,2}、坂口 聡志^{1,2}、庭瀬 暁隆^{1,2}、nSHE Collaboration³ (1. 九州大学、2. 理研仁科センター、3. nSHE Collaboration (ANU, IMP, IPHC, JAEA, Kyushu Univ., Niigata Univ., ORNL, Osaka Univ., RIKEN Nishina Center, Saitama Univ., Tohoku Univ., UTK, and Yamagata Univ.))

10:40 ~ 11:00

[1B03]

超重元素実験のためのMCP-ToF検出器の高度化の検討

*宮下 直人¹、坂口 聡志¹、庭瀬 暁隆¹、山ノ内 邑希¹、北川 尚幸¹、藤井 友喜¹ (1. 九州大学大学院)

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 11:10 ~ 12:10 B会場(10階1001-2室)

1B2

座長:菊永 英寿(東北大学)

11:10 ~ 11:30

[1B04]

シリコンドリフト検出器を用いた超重核の内部転換電子測定

*浅井 雅人¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

11:30 ~ 11:50

[1B05]

GAGGシンチレータ検出器の性能評価のための単色β線源の開発

*藤井 友喜¹、庭瀬 暁隆¹、田中 裕典¹、北川 尚幸¹、宮下 直人¹、道本 優也¹、山ノ内 邑希¹、坂口 聡志¹ (1. 九州大学)

11:50 ~ 12:10

[1B06]

鉛標的へのミュオン吸収核反応による生成核種分布測定

*二宮 和彦^{1,2}、浅利 駿介²、吉村 崇²、久保 謙哉³、梅垣 いづみ⁴、反保 元伸⁴、河村 成肇⁴、三宅 康博⁴、下村 浩一郎⁴、齋藤 努⁵ (1. 広島大学、2. 大阪大学、3. 国際基督教大学、4. 高エネルギー加速器研究機構、5. 国立歴史民俗博物館)

部会

2024年9月23日(月) 12:10 ~ 13:30 B会場(10階1001-2室)

核化学部会総会

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 13:30 ~ 14:30 B会場(10階1001-2室)

1B3

座長:後藤 真一(新潟大学)

13:30 ~ 13:50

[1B07]

光核反応を用いたLu-177製造及びLuレーザーを用いたルテチウムフラーレン研究

*田村 彩乃¹、東福 滯和¹、秋山 和彦¹、菊永 英寿²、久富木 志郎¹ (1. 東京都立大学、2. 東北大学先端量子ビーム科学
研究センター)

13:50 ~ 14:10

[1B08]

1価のTh-229mの半減期の決定

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

14:10 ~ 14:30

[1B09]

Th-229mの壊変機構の解明に向けた固体試料の電子状態解析

*益田 遼太郎^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、安田 勇輝¹、橋場 奏^{1,2}、重河 優大²、内藤 智也^{2,3}、宮本 祐樹⁴、吉村 浩
司⁴、篠原 厚⁵、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学大学院、2. 理化学研究所、3. 東京大学、4. 岡山大学、5. 大阪青山大学)

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 14:40 ~ 16:00 B会場(10階1001-2室)

1B4

座長:村上 昌史(大阪大学)

14:40 ~ 15:00

[1B10]

相対論的密度汎関数法による ^{235}mU ハロゲン化物の半減期と電子状態に関する研究

*橋場 奏^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、益田 遼太郎^{1,2}、重河 優大²、羽場 宏光²、笠松 良崇^{1,2} (1. 阪大院理、2. 理化学研究所)

15:00 ~ 15:20

[1B11]

ジチオリン酸系における102番元素ノーベリウムの高圧抽出オンライン実験

*王 瑞麟^{1,2}、金子 政志¹、永田 光知郎¹、風間 裕行¹、渡邊 瑛介^{2,3}、横北 卓也^{2,4}、板倉 悠大^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、フルト エニー^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、橋場 奏^{1,2}、羽場 宏光²、重河 優大²、南部 明弘²、清水 弘通²、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 高エネルギー加速器研究機構、4. 東北大学)

15:20 ~ 15:40

[1B12]

Rfの化学的性質解明に向けたソフトドナーによるZr, Hfの溶媒抽出

*板倉 悠大^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、永田 光知郎¹、王 瑞麟^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、羽場 宏光²、金山 洋介²、重河 優大²、南部 明弘²、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学理学研究科化学専攻、2. 理化学研究所)

15:40 ~ 16:00

[1B13]

Sg(Z=106)を模擬したMoオキシ塩化物の等温ガスクロマトグラフ挙動

*名取 日菜^{1,2}、佐藤 哲也^{1,2}、浅井 雅人²、伊藤 由太²、塚田 和明²、宮地 優太^{1,2}、永目 諭一郎² (1. 茨城大院理工、2. 原子力機構先端研)

部会

2024年9月23日(月) 12:10 ~ 13:30 C会場(910室)

若手の会

ポスターセッション

2024年9月23日(月) 17:45 ~ 18:45 会場(10階1001-1室+展望ロビー)

ポスターセッション

[1P01]

Rfの化学研究に向けたDGAを用いた4族元素の固液抽出実験及び機械学習手法の応用

*柴本 恭佑^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、王 瑞麟^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、板倉 悠大^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、重河 優大²、殷 小杰²、金山 洋介²、南部 明弘²、羽場 宏光²、塚原 聡¹、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所)

[1P02]

102番元素ノーベリウムの共沈実験に向けた2族元素のマロン酸の沈殿実験及び共沈実験

*紺野 未夢¹、金子 政志¹、風間 裕行¹、永田 光知郎¹、中西 諒平¹、王 瑞麟¹、板倉 悠大¹、Khult Enni¹、柴本 恭佑¹、益田 遼太郎¹、高宮 幸一²、稲垣 誠²、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学、2. 京都大学)

[1P03]

ノーベリウムの化学研究に向けたDGA樹脂による2族元素の固液抽出研究

*Khult Enni¹、柴本 恭佑¹、王 瑞麟¹、板倉 悠大¹、紺野 未夢¹、森 健太¹、青戸 宏樹¹、金子 政志¹、風間 裕行¹、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学)

[1P04]

TOMA担持樹脂に対するフッ化物イオンの吸着特性

*沼尻 大空¹、後藤 真一¹ (1. 新潟大学)

[1P05]

超重元素シーボーギウムの溶液化学研究に向けたWのHF/HNO₃系における陰イオン交換実験*宮地 優太^{1,2}、佐藤 哲也^{1,2}、塚田 和明²、浅井 雅人²、伊藤 由太²、名取 日菜^{1,2}、永目 諭一郎² (1. 茨城大院理工、2. 原子力機構先端研)

[1P06]

量子化学計算による102番元素ノーベリウムのアンミン錯体生成反応の予測

*板倉 悠大^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、永田 光知郎¹、王 瑞麟^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、橋場 奏^{1,2}、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学理学研究科化学専攻、2. 理化学研究所)

[1P07]

超重元素合成のための電解析出によるターゲット作製

*池田 航貴¹、後藤 真一¹、加治 大哉² (1. 新潟大学、2. 理化学研究所)

[1P08]

⁶⁷Cu大量製造へ向けた亜鉛と銅の熱分離挙動*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 (1. 株式会社千代田テクノロ、2. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

[1P09]

JRR-3を用いたLu-177製造に関する生成量評価

*藤野 隼輔¹、橋本 和幸¹、佐伯 秀也²、河内 幸正²、川端 方子²、千葉 悠介¹ (1. 原子力機構、2. 千代田テクノロ)

[1P10]

高速中性子照射により生成した^{196m}Auのγ線放出確率の測定*長 泰秀¹、後藤 真一¹、塚田 和明²、浅井 雅人²、佐藤 哲也²、伊藤 由太²、菊永 英寿³ (1. 新潟大学、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学)

[1P11]

光核反応による放射化シスプラチンの製造

*横北 卓也¹、本多 佑記¹、木村 寛之²、重河 優大³、羽場 宏光³、菊永 英寿¹ (1. 東北大学、2. 金沢大学、3. 理研)

[1P12]

 $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ 反応の励起関数検証の試み*菊永 英寿¹、横北 卓也¹、白崎 謙次¹ (1. 東北大学)

[1P13]

核セキュリティを支える核鑑識技術-ISCNにおける最近の研究開発と今後-

*山口 知輝¹、木村 芳紀¹、海野 勇次²、細井 雅春²、松本 哲也³、関根 勝則⁴ (1. 日本原子力研究開発機構核不拡散・核セキュリティ総合支援センター、2. 検査開発株式会社、3. 株式会社パワーコンピュータ、4. 原子力エンジニアリング株式会社)

[1P14]

もんじゅサイト新試験研究炉における中性子放射化分析関連装置の計画

*稲垣 誠¹、高宮 幸一¹、三浦 勉²、鷲山 幸信³、秋山 和彦⁴、大澤 崇人⁵、笠松 良崇⁶、白井 直樹⁷、土谷 邦彦⁵、吉田 剛⁸、佐藤 信浩¹ (1. 京都大学、2. 産業技術総合研究所、3. 福島県立医科大学、4. 東京都立大学、5. 日本原子力研究開発機構、6. 大阪大学、7. 神奈川大学、8. 高エネルギー加速器研究機構)

[1P15]

微量の放射性核種の検出に向けた脱溶媒ネブライザーによるICP-MSの測定性能の向上

*小荒井 一真¹、松枝 誠¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

[1P16]

バイオアッセイ手法の開発及び国際相互比較の実績

*楊 国勝¹、金 ウンジュ¹、妹尾 初穂¹、鄭 建¹、古渡 意彦¹、栗原 治¹ (1. 国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構)

[1P17]

 ^{211}At の品質標準化に向けた溶出液の分析 (1) ^{211}At -メタノール溶液のHPLC分析*渡辺 茂樹¹、村上 昌史²、佐々木 一郎¹、永津 弘太郎¹、大矢 智幸¹、市瀬 潤¹、水飼 秋菜³、梶山 和希⁴、白神 宜史²、今 教禎²、大江 一弘²、豊嶋 厚史²、石岡 典子¹ (1. 量研、2. 阪大放射線機構、3. 阪大院理、4. 阪大理)

[1P18]

 ^{211}At の品質標準化に向けた溶出液の分析 (2) ^{211}At 水溶液のHPLC分析*村上 昌史¹、渡辺 茂樹²、佐々木 一郎²、石岡 典子²、大矢 智幸²、市瀬 潤²、永津 弘太郎²、水飼 秋菜³、梶山 和希⁴、白神 宜史¹、今 教禎¹、大江 一弘¹、豊嶋 厚史¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 量子科学技術研究開発機構、3. 大阪大学大学院理学研究科、4. 大阪大学理学部)

[1P19]

医師主導治験に向けた合成装置による ^{211}At PSMA-5の安定供給 -基礎から臨床へ-*仲 定宏^{1,2}、白神 宜史³、大江 一弘³、栗本 健太^{1,2}、堺 俊博¹、今 教禎³、Xiaojie Yin⁴、羽場 宏光⁴、豊嶋 厚史³、渡部 直史^{1,3}、富山 憲幸^{1,3} (1. 大阪大学大学院医学系研究科 放射線医学、2. 大阪大学医学部附属病院 薬剤部、3. 大阪大学放射線科学基盤機構、4. 理研仁科加速器科学研究センター)

[1P20]

弱塩基性水溶液中におけるヨードチロシン誘導体の ^{211}At フロー電解標識*水飼 秋菜¹、白神 宜史²、村上 昌史²、梶山 和希³、木村 禎亮⁴、大江 一弘²、今 教禎²、角 永 悠一郎²、豊嶋 厚史² (1. 大阪大学大学院、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 大阪大学、4. アルファフュージョン株式会社)

[1P21]

低速RIビームを用いた医療用At-211製造技術の開発

*園田 哲¹、羽場 宏光¹、中下 輝士¹、重河 優大¹、藤原 孝成¹、富田 英生²、Rosenbusch Marco¹ (1. 国立研究開発法人 理化学研究所、2. 名古屋大学)

[1P22]

CdTe検出器を用いた核医学治療用核種¹⁷⁷Luのカラム分離モニタリングの試み

*鷺山 幸信¹、白崎 謙次²、小川 数馬³、山村 朝雄⁴ (1. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、2. 東北大学金属材料研究所、3. 金沢大学新学術創成研究機構、4. 京都大学複合原子力科学研究所)

[1P23]

⁶⁴Cuの核医学利用を目的としたSドナーを有するサイクレンを用いた新規環状配位子の開発

*前田 遥香¹、永田 光知郎²、金子 政志¹、風間 裕行¹、青戸 宏樹¹、川岸 英峻³、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学大学院 理学研究科、2. 大阪大学 Core-FC、3. 大阪大学 理学部)

[1P24]

赤外線ファイバーレーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成手法開発

*中田 拓希¹、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)

[1P25]

地衣類中の放射性セシウムの長期観測

*土肥 輝美¹、飯島 和毅¹、吉村 和也¹、大村 嘉人²、藤原 健壮¹、金井塚 清一³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 国立科学博物館、3. 原子力エンジニアリング (株))

[1P26]

非水溶媒系中の塩化物イオン濃度が塩化ウラン(IV)の酸化還元特性に与える影響

*植野 雄大¹、大内 和希¹、渡邊 雅之¹ (1. 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構)

[1P27]

ジグリコールアミド酸型配位子保持リポソーム系における実条件への適用に向けた基礎研究

*清水 壮太¹、上原 孟¹、山崎 信哉²、坂口 綾²、高久 雄一²、末木 啓介² (1. 筑波大学大学院理工情報生命学術院数理工物質科学研究群化学学位プログラム、2. 筑波大学 数理工物質系)

[1P28]

イオン液体 - DMF混合系におけるヨウ化ウラン(IV)の酸化還元反応

*大内 和希¹、小松 篤史¹、植野 雄大¹、北辻 章浩¹、渡邊 雅之¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

[1P29]

pH領域下におけるD2EHPAによるAc-228の抽出挙動の評価

*宮脇 琢斗¹、白崎 謙次²、中瀬 正彦³ (1. 東北大学大学院、2. 東北大学金属材料研究所、3. 東京工業大学)

[1P30]

メスbauer分光法を用いた還元的環境における粘土鉱物中のFeの酸化状態と構造の分析

*森井 志織¹、蓬田 匠^{1,2}、中田 正美¹、岡 壽崇¹、北辻 章浩¹、高橋 嘉夫² (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京大学)

開会式

2024年9月23日(月) 9:30 ~ 9:45 A会場(11階会議ホール「風」)

開会式

9:30 ~ 9:45

開会式

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 10:00 ~ 11:00 A会場(11階会議ホール「風」)

1A1

座長:大浦 泰嗣(東京都立大学)

10:00 ~ 10:20

[1A01]

福島県帰還困難区域に生息するイノシシ体内の放射性セシウムと安定セシウムの検討

*福島 美智子¹、小松 仁⁴、飯沼 勇人²、辻 大和¹、菅原 祐弥³、望月 翔太³、坂田 隆¹、村上 貴美恵⁴、
神田 幸亮⁴ (1. 石巻専修大学、2. 京都大学、3. 福島大学、4. 福島県環境創造センター)

10:20 ~ 10:40

[1A02]

JRR3 PN3を用いたふっ素の放射化分析

*三浦 勉¹、石本 光憲² (1. 国立研究開発法人産業技術総合研究所、2. 東京大学原子力専攻)

10:40 ~ 11:00

[1A03]

米国地質調査所地球化学比較標準物質中のCl, Br, I含有量の再測定

*海老原 充¹、白井 直樹²、関本 俊³ (1. 東京都立大学、2. 神奈川大学、3. 京都大学)

1A01

福島県帰還困難区域に生息するイノシシ体内の放射性セシウムと安定セシウムの検討

(石巻専修大理工¹、京都大²、福島大³、福島県環境創造セ⁴)○福島美智子¹、小松仁⁴、飯沼勇人²、辻大和¹、菅原裕弥³、望月翔太³、坂田隆¹、村上貴美恵⁴、神田幸亮⁴

【緒言】帰還困難区域に生息する野生動物の体内に蓄積する放射性セシウムの移動のメカニズムの考察を目的として、帰還困難区域内外のイノシシの胃内容物および筋肉のCs-137の季節変動と相関を検討した。また、放射性セシウムと安定セシウムの生体中の挙動を検討するため、帰還困難区域内外のイノシシの筋肉、血液、肝臓の放射性セシウムを計測後に、安定セシウムを中性子放射化分析で分析して、濃度の相関を検討した。

【実験】(1)胃内容物：帰還困難区域内外で捕獲されたイノシシの胃内容物の一部をCs-134およびCs-137の放射能を計測後、エタノール固定。その一部を分取して、顕微鏡下で分析。(2)イノシシ臓器試料：帰還困難区域の試料は2023年5月から9月に捕獲された24個体(オス20個体、メス4個体。双葉町4個体、浪江町16個体、大熊町4個体、葛尾村1個体)、対象としての帰還困難区域外の試料は2021年12月から2023年2月に二本松市で捕獲された21個体(オス14個体、メス7個体)とした。筋肉、血液、肝臓を凍結乾燥後に粉末にして、Cs-134およびCs-137の放射能を計測後、一部を中性子放射化分析試料とした。(3)中性子放射化分析：安定セシウムの定量のため、試料を5MWで1時間照射、1月間の冷却後にCs-134を計測。

【結果と考察】(1)胃内容物と筋肉：2023年度中の数ヶ月間に捕獲されたイノシシ(帰還困難区域内102頭、帰還困難区域外55頭)の胃内容物および筋肉に含まれる区域内試料のCs-137レベルは、区域外のそれらと比べてそれぞれ約24倍および17倍であった。また、区域内に関しては胃内容物、筋肉ともに11月に捕獲された個体の平均値が、他の月に比べて際立って高い値となった。これらは区域内のイノシシの生育地域の表土に含まれるCs-137レベルが高いことが原因であると思われる。(2)イノシシ臓器における安定セシウムとCs-137の相関：帰還困難区域内で捕獲されたイノシシの臓器のうち、肝臓に関する安定セシウムとCs-137のレベルの関係を図1に示す。肝臓および筋肉には高い相関が見られた。これより、イノシシの体内に摂取された土壌や食物に含まれるCs-137の可溶性画分は、安定セシウムとともに体内で代謝して肝臓や筋肉に蓄積すると推測される。

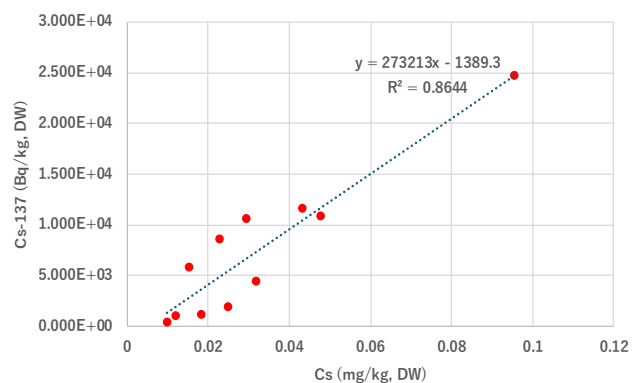


図1. 2023年度に帰還困難区域内で捕獲されたイノシシの肝臓における安定セシウムとCs-137の関係

Survey on Radioactive Cesium Migration between Environment and Body of Wild Boar (*Sus scrofa*) Living in Fukushima Prefecture

FUKUSHIMA M., KOMATSU H., IINUMA Y., TSUJI Y., SUGAWARA Y., MOCHIZUKI S., SAKATA T., MURAKAMI K., KANDA K.

1A02 JRR3 PN3 を用いたふっ素の放射化分析

(産総研¹、東大開放研²)○三浦勉¹、石本光憲²

【緒言】 従来から環境規制の対象となっているふっ素及びその水溶性塩だけでなく日用品、製品等の固体試料中のふっ素含有の有無を迅速に判定するスクリーニング用途の簡易、迅速なふっ素分析法の開発が期待されている。日本原子力研究開発機構研究炉 JRR3 には、秒単位の半減期を持つ誘導放射性核種を測定できる放射化分析用気送照射設備 PN3 が整備されている。本発表では、現在開発を進めている半減期 11 秒の ^{20}F を測定するふっ素の中性子放射化分析法について報告する。

【実験】 重量分析法で純度を決定した NaF から調製したふっ化物イオン標準液 (F: 11.2 mg/g) をろ紙 (Advantec Toyo, No. 5C) に添加後、ポリエチレン袋に熱溶封しふっ素比較標準試料を作成した。既知量の Sc 溶液 (Sc: 0.5 mg/g) をろ紙に添加した内標準試料も調製した。純度が認証されたふっ素を含有する高純度有機化合物認証標準物質 (NMIJ CRM 4601-c 3, 5-ビストリフルオロメチル安息香酸)、ふっ素の参考値が付与された炭化けい素認証標準物質 (NMIJ CRM 8001-a)、ABS (Acrylonitrile-butadiene-styrene) 樹脂、PC (polycarbonate) 樹脂を、それぞれポリエチレン袋に熱溶封し、分析試料とした。比較標準試料、分析試料それぞれに内標準試料を付随させ、高純度ポリエチレンキャプセル (Al: 0.15 $\mu\text{g/g}$) に充填し、JRR3 PN3 (熱中性子フルエンス率: $1.9 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$, Cd 比: 300) で 5 秒間照射した。照射終了後 7 秒程度で排気フード内に設置された Ge 検出器 (Canberra GC1518) まで搬送し、10 秒間 γ 線を測定した。5 分間静置し生成放射能を減衰させた後、再び 5 秒照射するサイクルを 5 回繰り返し、個別のスペクトルファイルを保存した。それぞれの γ 線スペクトル中の ^{20}F (半減期 11 秒, 1633 keV) と内標準 $^{46\text{m}}\text{Sc}$ (半減期 18 秒, 142 keV) の計数率を照射終了時に減衰補正し、定量値を算出した。ふっ素の定量値は 5 秒照射 1 回分の γ 線スペクトル上の $^{46\text{m}}\text{Sc}$ の計数率で規格化した ^{20}F 計数率から計算する単一照射法と 5 回分の内標準で規格化した計数率を積算する積算法の 2 法で求めた。

【結果】 $^{46\text{m}}\text{Sc}$ を内標準として利用することで、単一照射法、積算法の双方で良好な直線性を示すふっ素の検量線が得られた。NMIJ CRM 4601-c 中のふっ素定量値、NMIJ CRM 8001-a 炭化けい素中のふっ素の定量値は単一照射法、積算法ともそれぞれの認証値及び参考値と不確かさの範囲内で一致し、本法の妥当性を検証することに成功した。ABS 樹脂 (単一照射法: $<6 \text{ mg/kg}$ 、積算法: $<2 \text{ mg/kg}$)、PC 樹脂 (単一照射法: $<5 \text{ mg/kg}$ 、積算法: $<2 \text{ mg/kg}$) からはふっ素は検出できなかったが検出限界値を求めた。単一照射法と積算法を比較すると、積算法がより不確かさの小さい測定、検出限界の低減が可能であった。一方、ふっ素の有無を判定するスクリーニングを目的とした場合、30 秒以内で測定が完了する単一照射法の迅速性が有用である。固体試料中のふっ素は社会的関心が高い分析対象であり、今後は工業材料以外の穀物等の農産物、土壌、地質試料への本法の応用展開を進める。

Instrumental neutron activation analysis of F at JRR3 PN3
MIURA T., IHIMOTO, M.

1A03

米国地質調査所地球化学比較標準物質中の Cl, Br, I 含有量の再測定

(都立大理¹、神奈川大理²、京都大複合研³)○海老原充¹、白井直樹²、関本俊³

【緒言】 ハロゲン元素は地球化学や宇宙化学の分野で重要な元素群であるが、他の元素と比較してそのデータの質や量に関して乏しく、研究の発展を阻害しているのが現状である。岩石試料中のハロゲン元素の定量には中性子放射化分析 (NAA) 法、特に放射化学的 NAA (RNAA) 法が最も多く用いられてきた。最近では、中性子照射で生じた希ガスを質量分析する手法 (NI-NGMS)、負イオン表面電離型質量分析計による同位体希釈分析法 (ID-TIMS)、誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 法などが実施されている。本研究では、米国地質調査所で調整され、頒布されている地球化学標準物質 17 試料中の 3 ハロゲン元素 (Cl, Br, I) の含有量を NAA により定量した。これらの試料について、2017 年に RNAA 法による定量値を公表したが (Sekimoto and Ebihara, 2017)、その後、I の値に疑念が生じ、I を含めた 3 元素について再定量を行った。各試料について、3~5 回繰り返して分析を行い、一部試料については INAA によって定量値を求めた。これらの値の分析値をもとに、2017 年の定量値の信頼性を評価した。

【実験】 ハロゲン元素の定量は RNAA、機器 NAA (INAA) とも、比較法でおこなった。岩石標準物質 2 試料と比較標準試料を照射用カプセルに入れ、中性子照射を行った。中性子照射は京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉 (KUR) の圧気送管照射孔 Pn-1 で行った。RNAA 法の操作は基本的に文献 (Ebihara et al., 1977) に記した方法に準じた。概略は以下の通り。中性子照射終了から約 10 分間冷却し、試料をニッケルるつぼ中でアルカリ溶解した。放射化学的に精製後、Cl と Br を銀塩として、I をパラジウム塩として、それぞれ沈殿させ、ガンマ線測定用試料とした。化学操作は 2 試料並行して行った。すべての試料のガンマ線測定が終了した後、再放射化法によって化学収率を求めた。

【結果と考察】 本研究で行った RNAA と INAA によって得られた分析結果については、すでに論文として公表した (Ebihara et al., 2023)。以下に、得られた結果とその結果に基づく考察をまとめる。

- (1) 今回の分析値を 2017 年の値と比較すると、Cl と Br の値は再現したが、I の値は 1/4 から 1/6 低い値が得られた。
- (2) INAA で分析値が得られた試料では、INAA 値と RNAA 値の間で良い一致が認められた。2017 年発表の I の分析値は誤りであることが示唆された。
- (3) 2017 年に発表した I の定量値を求めた時期に用いた比較標準試料を再度照射して生成した ¹²⁸I 放射能強度を求めたところ、予想される値の数分の一であった。
- (4) この I 比較標準試料に認められた含有量減少は、同一比較標準試料を繰り返し中性子照射したために生じたものと推察された。度重なる中性子や γ 線の照射によって、I が 2 重に封入したポリエチレン袋から揮散した可能性が高い。

【引用文献】 Ebihara et al, (1977) JRNC 216, 107-112; Ebihara et al. (2023) GGR 47, 931-944; Sekimoto and Ebihara (2017) GGR 41, 213-219.

Redetermination of mass fraction of three halogens (Cl, Br, I) for USGS geochemical reference materials
EBIHARA, M., SHIRAI, N., SEKIMOTO, S.

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 11:10 ~ 12:00 A会場(11階会議ホール「風」)

1A2

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

11:10 ~ 11:30

[1A04]

即発γ線分析装置 (PGA) の過去現在未来

*大澤 崇人¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

11:30 ~ 12:00

[1A05]

「もんじゅ」サイト新試験研究炉の概要と実験装置整備計画

*佐藤 信浩¹ (1. 京都大学複合原子力科学研究所)

1A04 即発 γ 線分析装置 (PGA) の過去現在未来 (原子力機構)○大澤崇人

【緒言】 令和3年に10年ぶりにJRR-3が稼働を再開してから3年が経過し、その間だけでもPGAは大きく進化してきた。そこで本講演では、これまでのPGAの歴史を俯瞰した上で、今後PGAがどのように進化していく可能性があるのかについて解説したい。

【PGAの過去】 即発 γ 線分析に関する最初の論文が発表されたのは1966年であるが[1]、それ以降、本分析法の名称は現在に至るまでかなりの混乱が見られ、未だに統一される気配がない[2]。Prompt gamma activation analysisが最も一般的に用いられているようだが、原子力機構ではPGAを建設した米沢仲四郎が一貫してPrompt gamma-ray analysisの名称を使用していたことから、これを継承している[3]。この名称問題は本分析法の本質に関わる問題であると同時に、即発 γ 線分析の歴史を紐解く視座を提供するものであるため、「PGAの過去」を俯瞰する目的で講演では少し詳しく解説したい。

【PGAの現在】 現在PGAにおいては多関節ロボットが導入され、LabVIEWで開発された制御プログラムによる完全自動化が達成されている[4]。自動分析システムはJRR-3再稼働前に既に開発していたが、JRR-3再稼働後も度重なる高度化によって大幅な進化を遂げている。このような装置は国内外に見いだせない。PGAの現状について、本講演では技術的ハイライトを幾つか紹介する。特に、近年ヘリウムの価格高騰に伴って導入された二酸化炭素供給システムや、Ge検出器用液体窒素自動供給装置、新たに開発した γ 線測定プログラムと進化し続ける制御プログラム(AutoPGA)について概説する。

【PGAの未来】 PGAでは更なる高度化を目指した技術開発が進められており、その一部は本学会の講演(3A10即発ガンマ線二次元イメージング技術の開発、3B06 JRR-3におけるCdTe検出器を用いたBNCT-SPECTの開発)において詳しく紹介される予定である。これらの講演で紹介していない高度化および高経年化対策について、本講演では少し紹介する。具体的には、Gas Electron Multiplier (GEM)型中性子検出器の導入によるビームプロファイルの撮影や、PGAで使用しているGe検出器の高経年化対策等について紹介する。

[1] Isenhour, T. L.; Morrison, G. H. (1966) Modulation Technique for Neutron Capture Gamma Ray Measurements in Activation Analysis. *Anal. Chem.* 38, 162–167. [2] 大澤崇人 (2023) 中性子即発 γ 線分析とはいかなる分析法なのか. *放射化分析* 34, 34-50. [3] 米沢仲四郎 (1994) 中性子を利用する即発 γ 線分析法の名称について *ぶんせき* 1994, No. 1, 60-61. [4] Osawa T. (2016) Automatic prompt gamma-ray analysis system: Automation of an existing large-scale analytical device. In "Automation and Control Trends" Eds. by Pedro Ponce, Arturo Molina Gutiérrez, and Luis M. Ibarra. Pp.149-166, InTech, Croatia.

The Past, Present, and Future of Prompt γ -ray analysis system (PGA)
OSAWA T.

1A05 「もんじゅ」サイト新試験研究炉の概要と実験装置整備計画

(京大複合研) ○佐藤信浩

【緒言】 高速増殖炉「もんじゅ」の廃止措置にともない同サイトに建設されることが決定した新試験研究炉は、中性子ビーム利用を主目的とする熱出力 10 MW 級の研究炉として、日本原子力研究開発機構、京都大学、福井大学の 3 機関によって具体的な設計や整備に関する検討が進められている。新試験研究炉は、西日本における原子力科学・中性子利用研究の中核的拠点としてふさわしい機能の実現と、地元への貢献が求められている。多様な分野の学術研究や産業利用において持続的に活用していくために、中性子ビーム利用に加え中性子照射利用も含めた多目的利用を視野に入れ、汎用性と先端性のバランスが取れた多様な実験装置群の設置に向けた検討が現在進められている。本講演では、京大複合研が中心となって進めている中性子照射利用設備やホットラボを含む新試験研究炉の実験装置に関する検討の進捗状況、および実験装置の整備を進めていくための検討体制構築について報告する。

【検討の概要】

中性子放射化分析は、4 つの中性子ビーム実験装置（中性子小角散乱、中性子イメージング、中性子粉末回折、中性子反射率測定）とあわせて、新試験研究炉に優先的に設置する実験装置として位置づけられている。また、必要な照射設備として、気相照射設備、水力照射設備、直送照射設備、および照射した放射化試料を取り扱うホットラボトリの整備案が現在検討されている（*cf.* 1P14 稲垣他）。これらの優先装置に加えて、炉心近傍や炉室内に設置する複数の実験装置について前倒しで検討が進められている。

これらの実験装置の検討にあたっては、装置ごとに装置整備プロセスに取り組む専門家チームであるタスクフォースを編成し、このタスクフォースによって具体的な装置の検討を進めることとした。2023 年度にタスクフォースのメンバー候補の選出を行い、2024 年度よりタスクフォースの活動を開始した。タスクフォースの活動は、まず Phase 1 として装置整備に関する全体計画を立案と基本仕様の策定を行う。その後、基本仕様に関する適切なレビュープロセスを経た後に、Phase 2 として実験装置の詳細設計や実際の設置作業を進めることとなる。Phase 1 では国内外施設の稼働状況調査や既存施設の課題抽出を行うとともに、新試験研究炉での特徴づけや広汎な利用の促進に関する方策を検討し、10–20 年後の利用開始を見据えた各実験装置の基本仕様の策定を進めることとしている。また、新試験研究炉の実験装置運用や利用支援に携わる人材の育成確保、ならびに関連コミュニティの維持発展を図る目的で、KUR や JRR-3 等の既存の中性子施設を利用したプロトタイプ装置開発や解析高度化、あるいは利用分野の開拓等の取組みも、実験装置の仕様検討や設計設置に関する活動と並行して進める。

新試験研究炉の稼働開始直後から活発な利用を促すためには、完成までの期間、長期的な展望に立脚して関連分野の学術や技術の継承・発展を促し周辺環境を整えることが不可欠である。今後、実験装置整備のプロセスを着実に遂行しながら、研究機関、学術コミュニティ、産業界、地域社会などの意見・要望を取り入れ、その協力と支援のもとに人材・産業・技術・学術の育成に繋がる全国的な利用推進環境を構築することが、本プロジェクトの重要なミッションである。

Experimental facility for the new research reactor at the "Monju" site
SATO, N..

部会

2024年9月23日(月) 12:10 ~ 13:30 A会場(11階会議ホール「風」)

放射化分析部会

座長:三浦 勉(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

12:10 ~ 13:30

部会

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 13:30 ~ 14:30 A会場(11階会議ホール「風」)

1A3

座長:富田 純平(日本原子力研究開発機構)

13:30 ~ 13:50

[1A06]

ICP-MSによる超ウラン元素及びベータ核種分析に対するオゾンリアクションの効果と検証

*松枝 誠^{1,2}、川上 智彦³、照山 優子³、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)

13:50 ~ 14:10

[1A07]

SIトレーサブルな¹³⁵Cs質量分率の測定とその不確かさ評価*浅井 志保¹、田嶋 大洋²、坂口 綾²、佐藤 泰¹ (1. 産業技術総合研究所、2. 筑波大学)

14:10 ~ 14:30

[1A08]

アクチノイド分離を目的としたクリプタン担持吸着剤の開発

*柳澤 華代^{1,2}、及川 博史³、橋本 淳一³、Sudowe Ralf⁴、高貝 慶隆^{2,5} (1. 日本原子力研究開発機構、2. 福島大学、3. ジーエルサイエンス株式会社、4. コロラド州立大学、5. 福島大学環境放射能研究所)

1A06

ICP-MS による超ウラン元素及びベータ核種分析に対するオゾンリアクションの効果と検証

(原子力機構¹、福島大²、化研³)○松枝誠^{1,2}、川上智彦³、照山優子³、高貝慶隆²

【緒言】 超ウラン元素及びベータ核種の放射線計測は、煩雑かつ時間のかかる前処理工程が必要であり、検体処理の労力や高線量試料による被ばくリスクの増大が懸念される。誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) を用いた手法は、装置内のコリジョン・リアクションセル (CRC) にて、イオンと各種ガスを反応させ、人の手で行ってきた前処理工程を省略し、分析対象と干渉物質を迅速に分離する技術が開発されてきた。なかでも、酸化反応による分離技術は、多くの放射性同位体 (RI) の分析に利用されているが¹⁾、RI 分析への適用例はない。今回、超ウラン元素およびベータ核種の ICP-MS 分析におけるオゾンリアクションの効果を検証し、RI 分離法の開発を目指した。

【実験】 ICP-MS/MS は PerkinElmer 社製 NexION5000 を用いた。オゾン発生装置は、エコデザイン社製ラボゾン 15 LOG-LC15G を用いた (本装置は、オゾンと O₂ の混合ガスを供給し、この混合ガスをここでは「オゾンガス」という)。オゾン発生量は、安定的に供給できる最低量の 100 mL/min に設定した (この時、オゾン濃度は約 11% であり、残りの約 89% は O₂ となる)。CRC へと導入可能なガス流量は 0.0-3.0 mL/min のため、オゾンのガスラインを 2 つに分岐し、一方は ICP-MS/MS の CRC へと導入し、超過分のガスはもう一方のラインからオゾン分解器を通して、ドラフトチャンバーへと排気した。そして、分析対象の元素群と各分析における干渉物質の標準液を ICP-MS/MS 内へと導入してオゾンに対する各元素の反応性を調査した。

【結果と考察】 オゾンガスは、O₂ や N₂O などの酸化性ガスよりも強い反応性を示した。超ウラン元素では、分析対象と干渉物質 (²³⁸Pu-²³⁸U や ²⁴¹Am-²⁴¹Pu など) がいずれも 2 酸化物 (UO₂⁺、PuO₂⁺ など) へと変換され、質量分離には利用出来なかった。ベータ核種分析では、¹³⁵Cs 分析と ¹²⁹I 分析に効果が見られた。¹³⁵Cs 分析では、Cs⁺ 強度を維持しつつ干渉物質の ¹³⁵Ba⁺ を除去し、分離後の Ba⁺/Cs⁺ は 1.4×10^{-3} を得たが、従来法の N₂O の方が低い値を得た (Ba⁺/Cs⁺ = 1.3×10^{-5})。 ¹²⁹I 分析では、¹²⁹I⁺ を ¹²⁹I¹⁶O⁺ (*m/z* 145) および ¹²⁹I¹⁶O₂⁺ (*m/z* 161) へと変換した (O₂ や N₂O はほぼ変換されなかった)。オゾン流量が 2.0 mL/min 以上において、*m/z* 145 と *m/z* 161 のバックグラウンドは 0-2 cps となり、¹²⁹I 分析の干渉物質である ¹²⁹Xe⁺ 由来の ¹²⁹Xe¹⁶O⁺ と ¹²⁹Xe¹⁶O₂⁺ は精密に除去された。検出下限値は ¹²⁹I¹⁶O⁺ 検出が 0.32 mBq/L、¹²⁹I¹⁶O₂⁺ 検出が 0.18 mBq/L となり、¹²⁹I¹⁶O₂⁺ 検出がより高感度となった (オゾン流量: 2.5 mL/min)。また、安定同位体 (¹²⁷I¹⁶O₂⁺) の水素化物が *m/z* 161 へと与える影響を評価し、¹²⁹I¹⁶O₂⁺/¹²⁷I¹⁶O⁺ = 2.1×10^{-10} の値となり、従来法²⁾ で得られた値 (¹²⁹I⁺/¹²⁷I⁺ = 4.6×10^{-10}) より影響が低いことが確認された。

【参考文献】

[1] Y. B. Zhu, Chem. Commun., **60**, 3974-3977 (2024).

[2] M. Matsueda, Anal. Sci., **38**, 1371-1376 (2022).

Effectiveness and validation of ozone reaction for analysis of transuranic elements and beta-nuclides by ICP-MS

MATSUEDA, M., KAWAKAMI, T., TERUYAMA, Y., TAKAGAI, Y.

1A07

SIトレーサブルな ^{135}Cs 質量分率の測定とその不確かさ評価○浅井志保¹、田嶋大洋²、坂口綾²、佐藤泰¹ (1. 産総研、2. 筑波大)**背景と目的**

^{135}Cs は、高レベル放射性廃棄物の処分安全評価上重要な核種の1つであり、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) 等の質量分析計を用いる定量法の開発が進められている。しかし、 ^{135}Cs の認証標準物質が入手できないため、現状では分析値の信頼性を明確に示すことが難しい。本研究では、 ^{135}Cs を SI (国際単位系) トレーサブルに値付けする手法を開発し、 ^{135}Cs 定量の標準物質を作成することにより、 ^{135}Cs 分析値の信頼性向上への貢献を目指す。

実験

キャリアフリー ^{137}Cs 溶液 (アイソトープ協会から購入) を値付け元液とし、JCSS (計量法トレーサビリティ制度) ^{137}Cs 放射能標準液と JCSS セシウム標準を基準として、 ^{137}Cs 質量分率、 ^{133}Cs 質量分率、および $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 原子数比をトレーサブルな手法で算出した。 ^{137}Cs 放射能濃度は、Ge 半導体検出器による γ 線計測で得られた ^{137}Cs 放射能濃度を質量分率に変換、 ^{133}Cs 質量分率は ICP-MS で測定した。得られた $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 原子数比を参照値とし、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} \text{ 原子数比}) / (^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} \text{ 計数率比})$ から $^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ の質量差別効果補正係数 $R_{135/133}$ を算出した (Fig. 1)。そして、 $^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 計数率比を $R_{135/133}$ によって補正し ^{135}Cs 質量分率を決定した。また、環境分野で分析ニーズがある $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 原子数比も決定した。

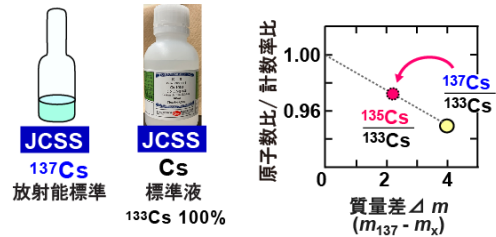


Fig. 1 $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 原子数比と計数率比から質量差別効果補正係数を算出する方法

結果

ICP-MS によって $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 計数率を正しく測定するためには、実験環境から混入する Ba (^{137}Ba) や ^{137}Cs の崩壊で生じる ^{137}Ba 等に由来する同体重干渉の回避が不可欠である。そこで、装置内で Ba を除去できる N_2O ガスモードを適用し、値付け元液希釈液中 ^{135}Cs の予想質量分率である約 20 pg/g 付近での計数率の相対標準偏差が <0.2% に抑えられ、かつ Ba の計数率がほぼゼロとなる測定条件を決定した。得られた条件下で、値付け元液希釈液中の ^{133}Cs 、 ^{135}Cs 、および ^{137}Cs を測定し、算出した $R_{135/133}$ によって質量差別効果を補正した。その結果、 ^{135}Cs 質量分率および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 原子数比は、それぞれ $21.88 \text{ ng/g} \pm 0.88 \text{ ng/g}$ ($k=2$) および 1.010 ± 0.052 ($k=2$) となった。質量分率および原子数比の決定法と不確かさ評価の詳細は口頭発表にて説明する。

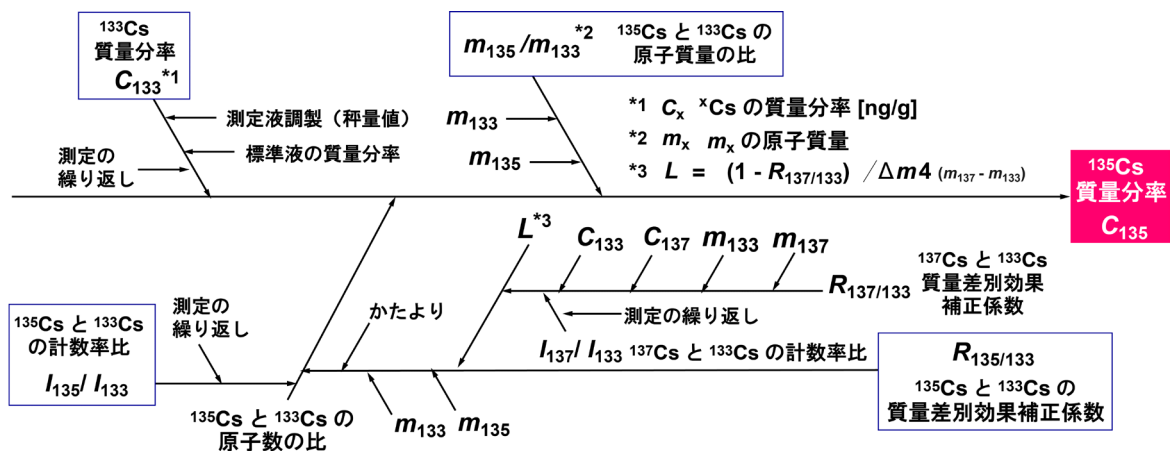


Fig. 2 ^{135}Cs 質量分率決定における不確かさの要因図

Measurement of mass fraction of ^{135}Cs with SI traceability and evaluation of the uncertainty
Shiho Asai, Taiyo Tajima, Aya Sakaguchi, Yasushi Sato

1A08

アクチノイド分離を目的としたクリプタンド担持吸着剤の開発

(原子力機構¹、福島大理工²、ジーエルサイエンス株式会社³、コロラド州立大⁴、福島大環境放射能研究所⁵)○柳澤華代^{1,2}、及川博史³、橋本淳一³、Ralf Sudowe⁴、高貝慶隆^{2,5}

【緒言】アクチノイドのうち、UやPu、Am、Cmなどは核燃料やラジオアイソトープとして使用される無機資源であり、これらの無機資源を持続的かつ安定的に供給するためには、使用済み核燃料や海水からの分離が重要である。また、これらアクチノイドの分析においても前処理としての分離は不可欠であり、核鑑識、核実験監視、環境影響評価、原子力施設の廃止措置などさまざまな分野で有用である。そのため、アクチノイドの効率的な分離法が求められており、さらなる技術開発が必要とされている。近年普及している固相抽出(SPE)は溶媒抽出よりも操作が容易で、使用する試薬量が少ないため低環境負荷であるという利点がある一方、アクチノイドに対する元素選択性に乏しく、単離には複数のSPE樹脂を組み合わせる必要がある。クラウンエーテルの類縁体であるクリプタンドは、かご状の空洞径に近いイオン径を持つカチオンを高選択的に捕捉できる。特に、クリプタンド222(N(CH₂CH₂OCH₂CH₂OCH₂CH₂)₃N)は、さまざまな有機溶媒中でUと錯体形成することが報告されているが、SPE樹脂への応用はほとんど例がなく、また、U以外のアクチノイドとの錯体形成に関する研究もほとんど実施されてこなかった。そこで、本研究ではクリプタンド222を多孔質シリカゲルに担持した新規SPE樹脂を開発し、U、Pu、Am、Cmに対する吸着特性を調査することで、アクチノイドの選択的分離への応用可能性を評価した。

【実験】調製したクリプタンド222担持吸着剤の平均粒子径は111±15 μm (n=494、デジタルマイクロスコープによる画像解析)であり、熱重量測定-示差熱分析の結果からシリカゲルに含まれるクリプタンド222の含有率は約13%と見積もられた。アクチノイドに対する吸着性能を調査するため、吸着剤0.05 gとpH調製した標準液1.5 mL(U: 10 pg mL⁻¹ B/Th/U混合標準液、Pu、Am、Cm: 各50Bq mL⁻¹ 単一核種標準液)を2 mLチューブに分取し、25°Cで2時間振とうした。孔径0.45 μmのPTFEシリンジフィルターを用いて得たる液を誘導結合プラズマ質量分析装置(U)及びα/β弁別機能付き液体シンチレーションカウンター(Pu、Am、Cm)により測定した。Fig.1にpH-分配係数(K_d)曲線を示す。pH7においてアクチノイドは高い分配挙動を示すが、相互分離が出来ないことがわかった。その一方で、pH2におけるPuのK_dは1028 cm³ g⁻¹と他のアクチノイドの値よりも1-2桁高く、クリプタンド222担持吸着剤がPuの選択的分離において有用であることが示された。

【結論】クリプタンド222担持吸着剤に対するU、Pu、Am、Cmの吸着特性を調査し、pH2においてPuの元素選択性を見出した。

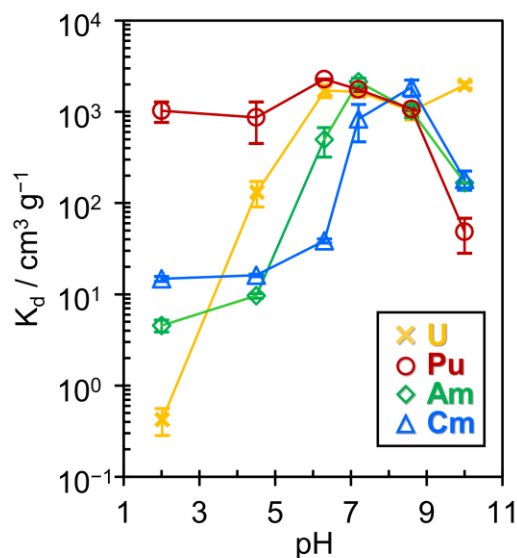


Fig.1 Effect of pH on K_d

Cryptand-supported adsorbents for actinide separation

YANAGISAWA, K., OIKAWA, H., HASHIMOTO, J., SUDOWE, R., TAKAGAI, Y.

セッションD 放射化分析及び放射性核種の分析化学

2024年9月23日(月) 14:40 ~ 16:00 A会場(11階会議ホール「風」)

1A4

座長:浅井 志保(国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

14:40 ~ 15:00

[1A09]

二次イオン質量分析法を用いた含浸粒子のPu同位体比測定手法の開発

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

15:00 ~ 15:20

[1A10]

加速器質量分析法(AMS)による大型陽子加速器施設内の電源ケーブル被覆中³⁶Clの定量*吉田 剛¹、渡邊 瑛介¹、山崎 翔太²、塩原 良建²、石田 正紀¹、津金 聖和¹、松村 宏¹、松村 万寿美³、三橋 正裕²、山田 正明²、大石 晃嗣²、豊田 晃弘¹、中村 一¹、三浦 太一¹、笹 公和³ (1. KEK、2. 日環研、3. 筑波大学)

15:20 ~ 15:40

[1A11]

ミュオン寿命法による鉄中炭素の深さ選択的非破壊定量分析—日本刀への適用—

*久保 謙哉¹、薬師 康生²、二宮 和彦²、吉田 剛³、稲垣 誠⁴、竹下 聡史³、反保 元伸³、渡邊 瑛介³、ストラッサー パトリック³、河村 成肇³、下村 浩一郎³、三宅 康博³、邱 奕寰⁵、髭本 亘⁵、齋藤 努⁶ (1. ICU、2. 広島大、3. 高エネ研、4. 京大、5. 原研、6. 歴博)

15:40 ~ 16:00

[1A12]

ミュオン誘起ガンマ線を用いた微量成分の元素分析手法の開発

*稲垣 誠¹、二宮 和彦²、吉田 剛³、中田 拓希¹、薬師 康生²、渡邊 瑛介³、久保 謙哉⁴ (1. 京都大学、2. 広島大学、3. 高エネルギー加速器研究機構、4. 国際基督教大学)

1A09

二次イオン質量分析法を用いた含浸粒子の Pu 同位体比測定手法の開発
(原子力機構¹)○富田涼平¹、富田純平¹、鈴木大輔¹、安田健一郎¹

【緒言】保障措置環境試料に含まれる核燃料物質の微粒子を分析する技術の開発では、含有する元素や同位体比が既知の様々な粒子を用いて、同位体比分析の正確さと精度や混在する元素の影響を評価する必要がある。我々はこれまでに同位体標準溶液を多孔質シリカ粒子に含浸させる手法(含浸法)を開発し、本法を用いて技術開発を進めている。本研究では、プルトニウム(Pu)同位体標準溶液を用いた含浸法で同位体比が既知の Pu 含浸粒子を作成し、この粒子を用いて二次イオン質量分析法(SIMS)で Pu 同位体比を測定する方法を検討した。本来、Pu 同位体標準粒子を用いて、Pu の同位体差別効果(マスバイアス)の補正項を評価する必要があるが、そのような粒子は入手困難である。そこで、代替手段としてウラン(U)同位体標準粒子で補正項を決定し、その後に質量分散制御部の電圧を調整することでマルチコレクター型検出器の位置を変更せずに Pu の同位体比を測定する方法を考案した。

【実験及び結果】Pu 量として 40 µg を含む同位体標準溶液(SRM Pu947:²⁴⁰Pu/²³⁹Pu=0.2406±0.0003)を多孔質シリカ粒子に含浸させて同位体比が既知の Pu 含浸粒子を作成した。この Pu 含浸粒子を試料台上に回収し、大型二次イオン質量分析計(LG-SIMS:IMS-1300HR³,CAMECA)により次の手順で Pu 同位体比を測定した。最初に、U 同位体標準粒子(NBS U100)を用いて検出器間効率とマスバイアスの補正項を決定した。次いで Pu 含浸粒子と同様の方法で作成した U 含浸粒子を用いて U 水素化物生成比を決定し、この値を Pu 水素化物生成比として代用した。その後、Pu の各同位体の二次イオンがそれぞれ対応する検出器に精密に入射されるように質量分散制御部の電圧を調整し、Pu 同位体比を測定した。測定では、酸素イオンビーム(O⁻)を強度 1.5~5.0 nA、照射範囲 20~30 µm² の条件で粒子に照射し、8 秒間の二次イオンの計測を 40 回繰り返して同位体比を求めた。図 1 に Pu 同位体標準溶液の保証値(—)とその標準偏差の 2 倍の範囲(---)、20 個の Pu 含浸粒子の測定結果(○)を示した。個々の Pu 含浸粒子の測定結果は標準偏差の 2 倍の範囲内(測定精度 1.6%)で Pu 同位体標準溶液の保証値と一致する正確さを示した。以上の結果から、U 標準粒子等を用いて補正項を決定したのちに、質量分散制御部の設定を変更し、Pu 同位体に適した条件に調整することで、SIMS による Pu 同位体比測定が可能であると示された。一方で、測定値全体の正確さを評価すると 20 個の Pu 含浸粒子の測定平均は保証値から 0.4%低くなる極僅かな偏りが見られた。本法で適応した Pu の水素化物生成比を U の水素化物生成比で代用する補正が Pu 同位体比の測定結果の正確さを低下させた可能性が考えられる。

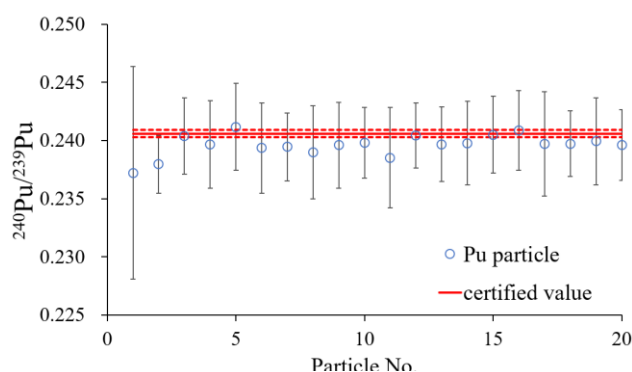


図 1:Pu 含浸粒子の同位体比測定結果

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

Development to measure plutonium isotope ratio of the immersed particles by secondary ion mass spectrometry.

Tomita, R., Tomita, J., Suzuki, D., Yasuda, K.

1A10

加速器質量分析法(AMS)による大型陽子加速器施設内の電源ケーブル被覆中 ^{36}Cl の定量

(KEK¹、日環研²、筑波大³)○吉田剛¹、渡邊瑛介¹、山崎翔太²、塩原良建²、石田正紀¹、津金聖和¹、松村宏¹、松村万寿美³、三橋正裕²、山田正明²、大石晃嗣²、豊田晃弘¹、中村一¹、三浦太一¹、笹公和³

【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。電磁石用電源ケーブルには、難燃性確保のため塩素含有被覆が施されているものがあり、 $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ 反応で生じる ^{36}Cl は半減期が 30 万年と影響が長期に及ぶが、 β 線放出が主で γ 線を出さず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)により被覆中に生成した ^{36}Cl の定量を試みた。

【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。被覆中に生成した ^{36}Cl を AMS で分析するためには、①被覆の塩素含有量の決定、②水溶液中へ Cl^- として抽出、という課題をクリアする必要がある、それぞれ、①中性子放射化分析法による ^{38}Cl 放射能からの塩素濃度定量、②試料焼成による燃焼ガスの水トラップ捕集による含 Cl^- 溶液の調製、という手段により解決できた。これら結果の詳細は既に昨年

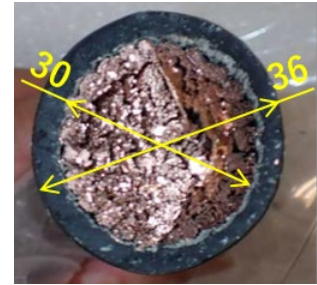


図 1 電源ケーブル断面

の放射化学会で報告済みである。今回は、続編として、③AMS 妨害イオン種である ^{36}S のイオンクロマトグラフィーによる定量および希釈除去、④AMS 試料調製のための化学操作(AgCl 沈殿精製)、⑤AMS スペクトルの解析と ^{36}Cl 放射能の決定、について報告する。

【結果】 代表して⑤について簡潔に述べる。筑波大学 6MV タンデム加速器にて ^{36}Cl 定量のための AMS を行った。図 2 に同位体希釈調製($^{36}\text{Cl}/^{\text{nat}}\text{Cl} \sim 10^{-11}$)を行った試料の AMS スペクトルを示す。検出器のドリフトチェンバーは静電場を印加した 5 対の平行平板電極で構成されており、 ^{36}Cl と ^{36}S のシグナルを分離するために、1 段目と 2 段目のエネルギー損失(dE)を横軸、4 段目と 5 段目の dE を縦軸として二次元にプロットした。目視でも鮮明に ^{36}Cl のカウントが判別できた。グラフより、 ^{36}Cl カウントの 1σ の領域を抽出し、①の放射化分析で決定した被覆中の塩素含有量を参照することで、 ^{36}Cl の生成量を決定した。講演では、具体的な定量値ならびに、予稿では載せきれなかった予備分析実験の結果についても議論する。

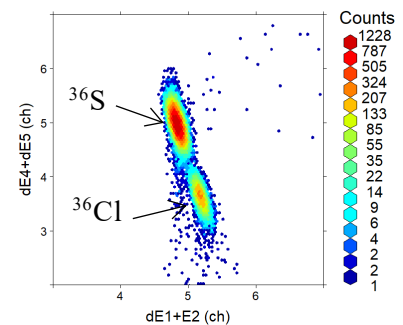


図 2 被覆試料の AMS スペクトル

Determination of ^{36}Cl activity in power cable jackets installed in the large scale proton accelerator facility by accelerator mass spectrometry (AMS)

YOSHIDA G., WATANABE E., YAMAZAKI S., SHIOBARA R., ISHIDA M., TSUGANE K., MATSUMURA H., MATSUMURA M., MITSUHASHI M., YAMADA M., OISHI K., TOYODA A., NAKAMURA H., MIURA T., SASA K.

1A11

ミュオン寿命法による鉄中炭素の深さ選択的非破壊定量分析 —日本刀への適用—

(ICU¹、広島大²、高エネ研³、京大⁴、原研⁵、歴博⁶)○久保謙哉¹、薬師康生²、二宮和彦²、吉田剛³、稲垣誠⁴、竹下聡史³、反保元伸³、竹渡邊瑛介³、ストラッサー パトリック³、下村浩一郎³、邱奕寰⁵、髭本 亘⁵、齋藤 努⁵

【緒言】 物質に停止した負ミュオンは、平均寿命 2.2 μs で自然崩壊して電子になるか、原子核に吸収されて消滅していく。原子核吸収の速度は原子核の原子番号に従って速くなるため、壊変電子数の時間変化を測定すると、負ミュオンを捕獲した原子の原子番号が大きいほど負ミュオンの寿命が短く観測される。このことを複数の元素からなる物質に適用すると、崩壊電子の時間スペクトルの寿命解析によって、物質を構成する元素の定量分析ができる。特にパルスミュオンビームを用いると、重元素中の微量軽元素の分析が可能であることから、鉄鋼中の炭素の分析を最初の目標とした。炭素原子中の負ミュオンの寿命は 2.0 μs 、鉄原子中では 0.20 μs と 10 倍の違いがある。日本刀は炭素含有量の違いによって機械的性質が異なる鉄素材が層状に重なる構造になっている。今回は負ミュオンの照射エネルギーを上げ、以前の測定よりもさらに刀の中心に近い部分の分析結果を得たので報告する。

【実験】 J-PARC MLF MUSE D1 エリアで負ミュオンビームを日本刀(九州肥後同田貫兵部)の長さ方向の中心付近(切先から 30 cm)に照射した。ビームエネルギーを変化させ、刀(鉄鋼)の表面からの深さによる炭素濃度の違いを測定した。また刃の中心部分の素材が表に現れている握り部分(なかご, handle)を測定した。鉄鋼標準試料の測定から検量線を作成した。負ミュオンの照射エネルギーが大きい時に、負ミュオンに起因して発生する中性子によってビームライン周辺の放射線レベルが上がるため、照射エネルギーの高い測定では、ビームラインの一部の電磁石の設定を最適値からずらすことによりビーム強度を下げて実験を行った。

【結果】 負ミュオンの壊変電子の時間スペクトルを、寿命の異なる成分とバックグラウンドの和として解析した。寿命が 2.0 μs の成分を炭素に由来するもの、0.20 μs のものを鉄由来として分離し、検量線との比較から炭素と鉄の濃度比を求めた。負ミュオンの照射エネルギーから算出した停止深さに対する炭素含有量をなかごの値とともに Fig. 1 に示す。刀の厚みは約 5.3 mm であり、刃の外側の部分は炭素濃度が高くて硬い鋼が使われ、中心付近は炭素濃度が低いしなやかな鋼が使用されていることを非破壊的な測定によって確認した。

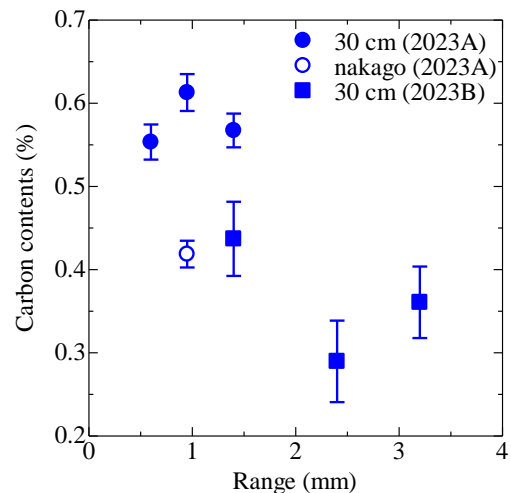


Fig. 1. Carbon content at muon stopping site.

Muon Lifetime Method for Non-destructive Depth Profiling of Carbon in Japanese Sword

KUBO, M. K., YAKUSHI, K., NINOMIYA, K., YOSHIDA, G., INAGAKI, M., TAKESHITA, S., TAMPO, M., WATANABE, E., STRASSER, P., KAWAMURA, N., SHIMOMURA, K., MIYAKE, Y., CHIU, I-H., HIGEMOTO, W., SAITO, T.

1A12

ミュオン誘起ガンマ線を用いた微量成分の元素分析手法の開発

(京都大¹、広島大²、高エネ機構³、国際基督教大⁴) ○稲垣誠¹、二宮和彦²、吉田剛³、中田拓希¹、薬師康生²、渡邊瑛介³、久保謙哉⁴

【緒言】素粒子の一種であるミュオンを物質に照射すると、ミュオンが原子核の持つクーロン場に捕らえられ、ミュオンが原子軌道を形成することでミュオン原子と呼ばれる原子系ができる。ミュオン原子が形成される際に、元素に固有のエネルギーを持つ X 線（ミュオン特性 X 線）が放出されるので、これを用いて元素分析を行うことが可能である（ミュオン元素分析）。ミュオンの原子への捕獲確率が原子番号に依存することから、ミュオン元素分析は質量当たりで元素によらず概ね等しい感度を持つ。これは同時多元素分析が可能である等の利点となる一方、概ね 1 wt%未満の微量な元素に対しては、試料中の主成分の元素から出る X 線に微量な元素から出る X 線が埋もれてしまい、検出が難しくなるという欠点となる。本研究では、X 線に加え、ミュオンが原子核に吸収されることにより生成する不安定核からの γ 線を用いることで、ミュオン元素分析の検出感度を向上することを目指した。

【実験】実験は、茨城県にある加速器施設 J-PARC のミュオン施設 MUSE において行った。Fe 粉末と Si 粉末の混合試料、または Si を含む鋼鉄の標準試料に 30 MeV/c のミュオンビームを照射し、X 線、及びミュオンが原子核に吸収されて生成した核種からの γ 線を測定した。今回は、Fe に対する Si の濃度がそれぞれ 33 wt%、11 wt%、3.93 wt%、1.48 wt%、0.39 wt%の試料を用いた。X 線は試料から約 100 cm、 γ 線は試料から約 9 cm の位置に置いた Ge 半導体検出器で測定した。検出器からのデータは、ミュオンのパルスビーム到達からの経過時間と放射線のエネルギーとを紐づけたリスト形式で取得し、X 線はビーム同期成分、 γ 線は非同期成分と時間成分を分けた解析を行った。

【結果と考察】測定した全ての試料において、Fe の X 線（1257 keV）が検出された。Si の X 線（400 keV）は、Si 濃度 33 wt%、11 wt%、3.93 wt%の試料では検出されたが、1.48 wt%、0.39 wt%の試料では検出限界未満であった。一方で、Si 濃度が 0.39 wt%までの全ての試料において、Si に由来する ^{28}Al （半減期 2.2 min）からの γ 線（1779 keV）が検出された。半減期の短い ^{28}Al の放射能はビーム照射によって短時間で飽和し、飽和放射能は試料中の Si の量に比例する。このことを用い、 ^{28}Al からの γ 線と Fe の X 線との強度比と、試料中の Si/Fe 濃度比との相関を取り検量線を作成したところ、良い直線性を示した（Fig. 1）。この結果から、X 線のみを用いたミュオン元素分析では検出の難しかった 1 wt%未満の成分を、 γ 線を併用することで定量可能であることが示された。今後、他の元素への展開や、即発ガンマ線の本手法への応用の試みを進めていく。

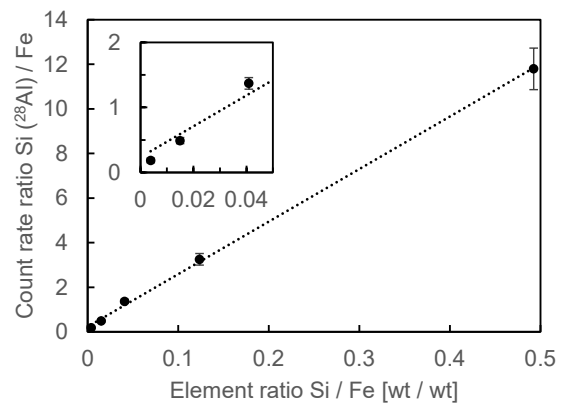


Fig. 1 Si 由来 ^{28}Al からの γ 線と Fe のミュオン特性 X 線との強度比と試料中の Si/Fe 濃度比との相関

Development of an elemental analysis method for trace components using muon-induced gamma rays
INAGAKI, M., NINOMIYA, K., YOSHIDA, G., NAKADA, H., YAKUSHI, K., WATANABE, E., KUBO, K.

セッションE 原子力・アクチノイド化学及び関連分野

2024年9月23日(月) 16:10 ~ 17:10 A会場(11階会議ホール「風」)

1A5

座長:鈴木 達也(長岡技術科学大学)

16:10 ~ 16:30

[1A13]

二酸化ウランの過酸化水素水浸漬および乾燥過程のラマン分光分析

日下 良二¹、*井上 将男¹、熊谷 友多¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

16:30 ~ 16:50

[1A14]

低酸素雰囲気下における UO_2 - Fe_3O_4 系の共晶反応に関する研究*秋山 大輔¹、井野 広海¹、桐島 陽¹ (1. 東北大学)

16:50 ~ 17:10

[1A15]

マイクロ流体デバイスを利用した模擬燃料デブリの溶解特性評価

*塚原 剛彦¹、井戸田 直和¹、XU Tongyu¹、土津田 雄馬²、佐藤 志彦²、北垣 徹² (1. 東京工業大学、2. 日本原子力研究開発機構)

1A13

二酸化ウランの過酸化水素水浸漬および乾燥過程の
ラマン分光分析

(日本原子力研究開発機構) 日下良二、○井上将男、熊谷友多

【緒言】

最近我々は、二酸化ウラン(UO_2)を過酸化水素(H_2O_2)水に浸漬し、実験室温度・湿度条件で乾燥させると、化学的に不安定なアモルファス状の過酸化ウラニルが生成されることを発見した[McGrady et al. 日本放射化学会第66回討論会(2022)]。本研究では、このアモルファス過酸化ウラニルの生成メカニズムを理解するため、過酸化水素水浸漬中および乾燥過程での *in situ* ラマン分光分析を行った。

【実験】

XRD 分析によって同定した UO_2 粉末試料を約 1 μg 分取し、過酸化水素水(1 mM)浸漬中および乾燥過程での顕微ラマン分光測定を行った。測定場所によってスペクトル形が異なったため、10 か所以上の点分析を行った。アモルファス過酸化ウラニルは試料の最表面に存在しにくいことから、試料深部に対する測定も行った。これらの測定サイクルを複数回繰り返し、実験データの再現性を確認した。水溶液中の測定は水浸レンズを用いた。

【結果・考察】

得られたラマンスペクトルの代表例を図 1 に示す。浸漬前の分析において基本的には UO_2 の信号が観測されたが、測定場所によっては八酸化三ウラン(U_3O_8)が約 3 割の確率で観測された。この U_3O_8 の信号は過酸化水素水に浸漬直後、水溶液中で完全に消失した。一方、過酸化ウラニル($\sim 820 \text{ cm}^{-1}$ と $\sim 865 \text{ cm}^{-1}$ の鋭いバンド)の生成が浸漬中に確認され、図 2 のように数時間程度成長した後に変化が見られなくなる様子が観測された。乾燥過程では、過酸化ウラニルの信号は乾燥後速やかに減衰し、同時にアモルファス過酸化ウラニル($\sim 750 \text{ cm}^{-1}$)の生成および U_3O_8 の再生成も観測された。

以上のことから、アモルファス過酸化ウラニルは浸漬過程では形成されず、乾燥過程で形成されることが明らかとなった。また、アモルファス過酸化ウラニル形成に対し、 U_3O_8 の再生成および過酸化ウラニルの消失が関与している可能性が示唆された。

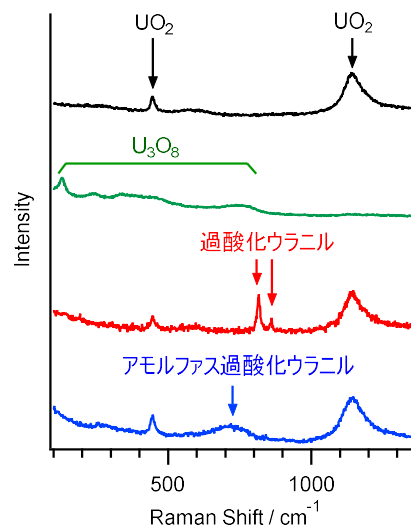


図 1: 浸漬前 (黒、緑)、浸漬中 (赤) および乾燥過程 (青) のラマンスペクトル

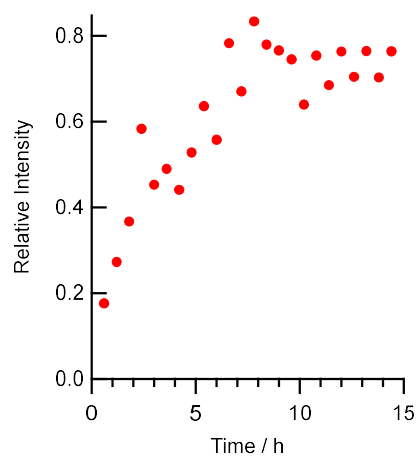


図 2: 過酸化水素水浸漬中の過酸化ウラニルのラマン信号強度の時間変化 (820 cm^{-1} ピーク値)

Raman spectroscopic analysis of uranium dioxide during immersion in hydrogen peroxide solution and drying process

Ryoji Kusaka, Masao Inoue, Yuta Kumagai.

1A14

低酸素雰囲気下における UO_2 - Fe_3O_4 系の共晶反応に関する研究(東北大¹)○秋山 大輔¹、井野 広海¹、桐島 陽¹

【緒言】原子炉の過酷事故時には、燃料成分の UO_2 と鉄等の炉心構造材成分が反応し、燃料デブリが生じる。そのため、燃料デブリの性状を評価するためには U - Fe - O 系の相関係を知る事が重要である。 UO_2 と酸化鉄は共晶反応が生じるが、共晶組成や共晶温度の酸素濃度依存性についてはほとんど報告されていない。本研究では、低酸素濃度下における UO_2 と Fe_3O_4 の共晶反応の酸素濃度依存性について評価を行った。

【実験】 UO_2 粉末と Fe_3O_4 粉末をモル比 $U:Fe=25:75$ で混合した試料を、 $Ar+O_2$ 混合ガス(酸素濃度 130 ppm, 250ppm, 1200ppm, 3300ppm, 4700ppm)を 100 ml/min 流しながら TG-DTA 測定を行った。測定は室温から 1500°Cまで、10°C/min、もしくは 20°C/min で昇温した。試料熔融時の吸熱反応から、各酸素濃度における UO_2 - Fe_3O_4 系の共晶温度を決定した。TG-DTA 測定後 SEM-EDX 分析を行い、共晶組成を求めた。

【結果と結論】TG-DTA 測定から得られた共晶温度の酸素濃度依存性を図 1 に示す。図 1 より、酸素濃度が増加するにつれて共晶温度が低下する傾向が確認された。また、TG-DTA 測定後の試料を SEM-EDX を用いて分析した結果を図 2 に示す。今回の酸素濃度条件においては、共晶組成に有意な酸素濃度依存性は確認されなかった。Evans らが報告した共晶組成[1]よりも若干ウランの割合が小さくなったが、本研究で用いた SEM-EDX が半定量分析であることから、この差が有意なものかどうかは不明である。これらの結果より、共晶反応が UO_2 - Fe_3O_4 となる低酸素雰囲気下において、共晶組成はほぼ一定となるが、共晶温度が酸素濃度によって約 80°C程度変化することが確認された。

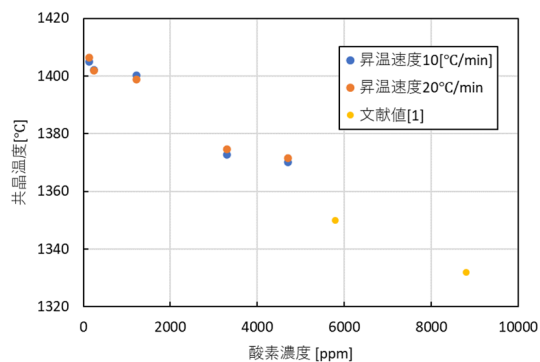


図 1 UO_2 - Fe_3O_4 系における共晶温度と酸素濃度の関係

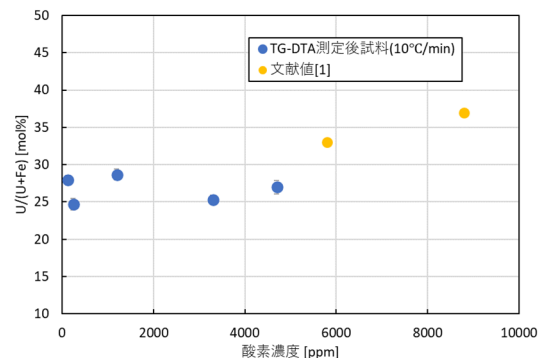


図 2 UO_2 - Fe_3O_4 系における共晶組成と酸素濃度の関係

【参考文献】

[1] W. D. J. Evans and J. White, Equilibrium Relationships in the System UO_2 - Fe_3O_4 -O, Trans. Brit. Ceram. Soc., 63 705-724 (1964)

Study on the eutectic reaction in the UO_2 - Fe_3O_4 system under low oxygen atmosphere
AKIYAMA, D., INO, H., KIRISHIMA, A.

1A15

マイクロ流体デバイスを利用した模擬燃料デブリの溶解特性評価
(東工大・ZC研¹、JAEA²)○塚原剛彦¹、井戸田直和¹、XU Tongyu¹、土津田雄馬²、佐藤志彦²、北垣徹²

【緒言】 1F 事故により生成した燃料デブリの取出し・保管管理方法を検討する上で、燃料デブリの溶解・変性挙動の把握は重要な課題の一つとなっている。溶解や変性について様々な研究が行われており、水の放射線分解に伴って生成した H₂O₂ により UO₂ の酸化・溶解が引き起こされる反面、(U,Zr)O₂ 固溶体では U の溶解が抑制されることが明らかになっている[1]。しかし、これら研究は静的なバッチ試験で実施され、溶解の進行に伴って溶液性状が変化するため、溶解速度や溶解機構を正確に評価することが困難である。一方、我々はこれまで、マイクロ流体デバイスを駆使して、様々な核種を極微量かつ高速・高効率に分離分析する技術と方法論を構築してきた[2]。本研究では、模擬燃料デブリを組み込んだ新規マイクロデバイスを開発すると共に、燃料デブリの固液界面で起こる動的な溶解挙動を速度論的に評価・解析することを目的とした。**【実験】** ポリジメチルシロキサン上に加工したマイクロ流路内に、焼結合成した模擬燃料デブリペレット ((U_{0.7}Zr_{0.3})O₂, Φ10) を埋め込んだ後、シリンジポンプと接続することで、マイクロデバイスとした(図1)。反応溶液(純水、H₂O₂、HNO₃)を流速 1 uL/min でマイクロ流路内に導入し、デブリペレット接触後に出口側で回収した溶液中の U 濃度を ICP-OES/ICP-MS にて測定した。また、比較のためバッチ試験も実施した。

【結果と考察】 U 濃度の経時変化を調べたところ、H₂O₂ 処理では、送液直後から U 濃度が急激に増加し、10 日後には約 15 倍まで到達するが、その後、一定に収束していく傾向を示した。一方、純水及び HNO₃ 処理では、時間と共に緩やかに U 濃度が増加した。また、H₂O₂ 濃度の増加及び流速の増加に伴って U 濃度は増加することも確認した。そこで、U 溶出速度 (mg/mm²h⁻¹) の時間依存性を求めたところ、H₂O₂ によるマイクロ試験時のみ極めて大きな溶解速度が得られた(図2)。また、この値は時間経過に伴って急激に減少し、20 日程度で一定値に収束することも確認できた。この収束値は、バッチ試験で得られた値と同様である。これらの結果から、H₂O₂ が燃料デブリ表面に接触すると、反応の初期段階で U 溶出が急激に進行するものと考えられる。

なお、本研究の一部は、JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 JPJA22F22717857 の助成を受けたものです。

【参考文献】 [1]. Y. Kumagai et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, (2022) 59, 961, [2]. T. Tsukahara et al., *ACS Earth and Space Chem.* (2021) 5, 588, *J. App. Phys.*, (2022) 132, 060902.

Evaluation of Dissolution Behavior of Simulated Fuel Debris Using Microfluidic Device
TSUKAHARA T., IDOTA N., XU T., DOTSUTA Y., SATOU Y., KITAGAKI, T.

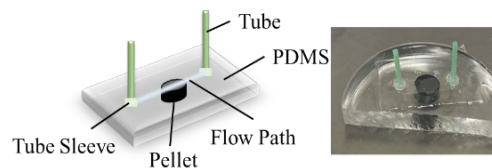


図 1. 燃料ペレット組込型マイクロ流体デバイス

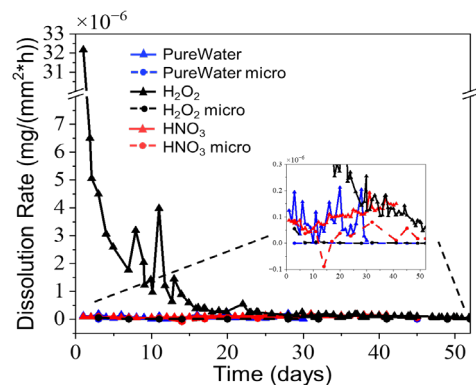


図 2. U 溶出速度の時間依存性

ポスターフラッシュトーク

2024年9月23日(月) 17:15 ~ 17:45 A会場(11階会議ホール「風」)

ポスターフラッシュトーク1

座長:秋山 和彦(東京都立大学)

17:15 ~ 17:45

フラッシュトーク

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 9:50 ~ 11:00 B会場(10階1001-2室)

1B1

座長:佐藤 哲也(日本原子力研究開発機構)

9:50 ~ 10:20

[1B01]

KISSでの核分光実験で迫る重元素合成の謎

*平山 賀一¹ (1. 高エネルギー加速器研究機構和光原子核科学センター)

10:20 ~ 10:40

[1B02]

新元素合成のための最適反応エネルギー推定に向けた $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ 融合反応の励起関数測定*山ノ内 邑希^{1,2}、坂口 聡志^{1,2}、庭瀬 暁隆^{1,2}、nSHE Collaboration³ (1. 九州大学、2. 理研仁科センター、3. nSHE Collaboration (ANU, IMP, IPHC, JAEA, Kyushu Univ., Niigata Univ., ORNL, Osaka Univ., RIKEN Nishina Center, Saitama Univ., Tohoku Univ., UTK, and Yamagata Univ.))

10:40 ~ 11:00

[1B03]

超重元素実験のためのMCP-ToF検出器の高度化の検討

*宮下 直人¹、坂口 聡志¹、庭瀬 暁隆¹、山ノ内 邑希¹、北川 尚幸¹、藤井 友喜¹ (1. 九州大学大学院)

1B01

KISS での核分光実験で迫る重元素合成の謎

(高エネルギー加速器研究機構 和光原子核科学センター¹) ○平山賀一¹

プラチナやウラン等の重元素は、どのような天体環境で合成されたのか？ 高温(10億度)および高中性子密度($\sim 10^{20}/\text{cm}^3$)の爆発的な天体環境下において、速い中性捕獲反応によって合成されたと考えられているが、その詳細は未だ解明されていない。解明には観測された太陽系の元素存在量スペクトルの質量数 $A \sim 195$ (プラチナが含まれる) およびウラン領域に現れるピーク構造を理解する必要がある。その際、天文観測・天体物理学と並んで原子核の核データが不可欠となっている。しかしながら、これらの2つの領域の中性子過剰核を原子核反応で生成・分離して核分光実験をすすめることがこれまで困難であったため、核データがほとんど無い状況である。

KEK 和光原子核科学センターでは、これらの中性子過剰核を生成する原子核反応として従来の核破砕反応よりも生成断面積が3桁以上大きい多核子移行反応[1]に着目し、反応生成物を効率良く捕集・分離するための装置として元素選択型質量分離器(KEK Isotope Separation System : KISS 装置)[2,3,4]を開発した。KISS 装置では、アルゴンガスセル内で捕集した反応生成物を熱化・中性化させた後、レーザー共鳴イオン化法で元素選択的にイオン化(原子番号 Z 選択)し、双極電磁石の磁場を使って質量数 A を選別することで原理的に一核種のみを分離できるため、高精度核分光研究を展開できる。

崩壊核分光用に高検出効率・低バックグラウンドレートを実現したガス検出器(3DT-MSPGC)[5]を、精密な質量測定および粒子識別用に精密質量測定器 MRTOF-MS[6]を設置し、精密崩壊核分光、精密質量測定、他施設では困難な高融点元素のレーザー共鳴イオン化核分光[4,7]を進めてきた。重元素の起源となる天体環境の解明を目指して、更なる核分光研究の進展をはかるため、KISS 装置の高度化[8,9]を開始した。

本公演では、これまでの研究結果と今後の将来計画である KISS-1.5/2 について発表する。

参考文献

- [1] Y.X. Watanabe *et al.*, Phys. Rev. Lett. 115, 172503 (2015).
- [2] Y. Hirayama *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. B 353, 4 (2015).
- [3] Y. Hirayama *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. B 412, 11 (2017).
- [4] Y. Hirayama, Eur. Phys. J. Spec. Top. 024, 01099 (2024).
- [5] Y. Hirayama *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A 997, 165152 (2021).
- [6] J.Y. Moon *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. 52, 138 (2019).
- [7] Y. Hirayama *et al.*, Interactions 245, 41 (2024).
- [8] T. Aoki *et al.*, <https://arxiv.org/abs/2209.12649v2>.
- [9] 特別推進研究 24H00008 (研究代表者: 渡邊 裕)

Unraveling the heavy element synthesis through nuclear spectroscopy at KISS
HIRAYAMA, Y

1B02

新元素合成のための最適反応エネルギー推定に向けた

 $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ 融合反応の励起関数測定

(九州大学¹、理研仁科センター²、nSHE Collaboration (ANU, IMP, IPHC, JAEA, Kyushu Univ., Niigata Univ., ORNL, Osaka Univ., RIKEN Nishina Center, Saitama Univ., Tohoku Univ., UTK, and Yamagata Univ.)³)○山ノ内 希^{1,2}、坂口 聡志^{1,2}、Pierre Brionnet²、庭瀬 暁隆^{1,2}、for nSHE Collaboration³

我々は 118 番元素オガネソンを超える新たな元素の探索に取り組んでおり、理化学研究所で 119 番新元素合成実験が進行中である。核融合反応により超重核が生成される確率は極めて低く、実験期間は年単位に及ぶ。そのため、生成断面積を最大にする最適な実験条件を決定すること、特に最適な入射エネルギーを推定することは極めて重要である。我々は、この目的のため、準弾性散乱障壁分布の測定による最適入射エネルギーの推定方法を開発している[1,2]。実際に新元素合成に使用される反応系である $^{51}\text{V}+^{248}\text{Cm}$ 系と $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ 系は ^{159}Tb が ^{248}Cm に近い四重極変形パラメータを持つ点において類似した系である。本研究では、 $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ 系における準弾性散乱障壁分布および融合生成断面積の励起関数を測定し、両者の比較から変形原子核を含む融合反応の反応機構を明らかにし、最適な入射エネルギー推定の精度を向上させることを目的とした。

本発表では、特に $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ 融合反応の励起関数の測定について報告する。実験は理研超伝導重イオン線形加速器施設 (SRILAC)[3]にて行った。蒸発残留核(ER)は、気体充填型反跳分離器 GARIS-III を用いて選別し、焦点面に設置された Si 検出器によって検出した。停止した蒸発残留核の崩壊連鎖からの α 線は Si 検出器を用いて検出された。Si 検出器のエネルギースペクトルを 30 以上の核種からの α 線ピークに分解し、融合反応における全ての反応チャンネルごとに励起関数を導出した (図 1 に xn 放出チャンネルの励起関数を示す)。得られた励起関数から ER 生成断面積が最大となる入射エネルギーを決定した。本発表では、主に測定手法、解析手法及び得られた実験結果について報告する。

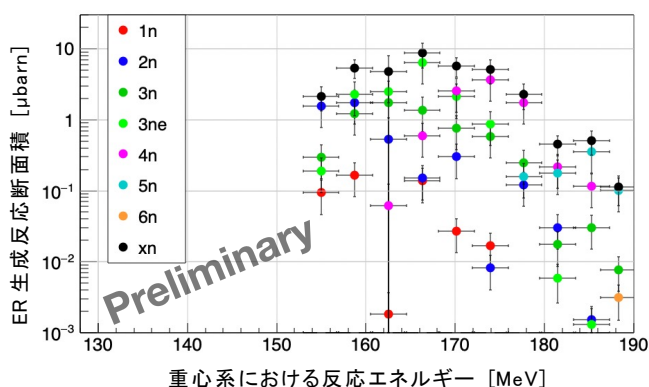


図 1. $^{159}\text{Tb}(^{51}\text{V}, xn)^{210-xn}\text{Ra}$ 系の ER 断面積

【参考文献】

- [1] T. Tanaka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **124**, 052502 (2020).
 [2] M. Tanaka, S. Sakaguchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 084201 (2022).
 [3] H. Sakai *et al.*, Eur. Phys. J. A **58**, 238 (2022).

Excitation function measurement of the $^{51}\text{V}+^{159}\text{Tb}$ fusion reaction for estimating the optimal reaction energy for producing new element 119
 YAMANOUCI Y., SAKAGUCHI S., BRIONNET P., NIWASE T., FOR NSHE COLLABORATION

1B03

超重元素実験のための MCP-ToF 検出器の高度化の検討

(九大院理¹)○宮下 直人¹, 坂口 聡志¹, 庭瀬 暁隆¹, 山ノ内 邑希¹,
北川 尚幸¹, 藤井 友喜¹

我々は「安定の島」と呼ばれる、長寿命の超重核が存在するとされている領域の探索を行っている。現在知られている超重元素は寿命の極めて短い核のみであるが、安定の島領域では原子核の閉殻構造により、 α 崩壊や自発核分裂の半減期が長くなると予想されている。しかしながら、この領域の原子核の生成は非常に難しく、人類の大きな挑戦と言っても過言ではない。

原子核の殻補正エネルギーを色の濃淡として表現した核図表(図1,[1])を見ると、半減期の長いことを示す色の濃い安定の島は、既知の核よりも中性子過剰側にあるため、従来の超重元素合成に用いられてきた安定核同士の融合反応では到達できない。そこで我々のグループでは理研において中性子過剰核ビームを用いた融合反応研究の実験を計画している。

先行研究により、その実験で用いる不安定核ビーム粒子の速度を測定するための MCP 型飛行時間検出器(MCP-ToF)(図2)の開発が進んでいるが、シミュレーションが正確に行えていないことや、MCP-ToF にビームが入射する位置によって検出効率が低下するなどの問題が確認されている。

本研究では、その MCP-ToF の高度化を目指し、イオン光学シミュレーション(SIMION)を用いて、電子輸送軌道の詳細な解明をし、輸送効率などの向上の可能性を検討した。

まず、MCP-ToF の二次電子放出膜、加速グリッド、反射グリッドの構造を SIMION 内に取り込み、先行研究で行われた電圧のデータを用いて二次電子の輸送効率をシミュレーションした。その結果、二次電子放出膜へのビーム入射位置が中心から離れた点において輸送効率が低下することがわかった(図3)。MCP-ToF の両サイドから補正電場を加えることで輸送効率は向上し、二次電子放出膜の端の方でも輸送効率が 20%以下から 90%近くまで回復することがわかった。

本講演ではシミュレーションや実験の詳細と進捗、今後の展望について報告する。

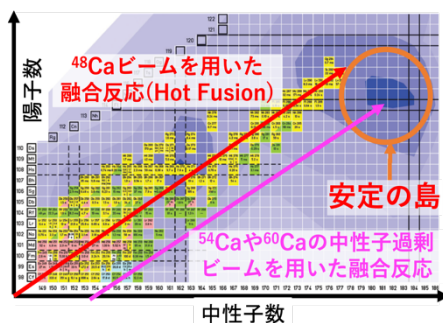


図1: 核図表と融合反応の経路

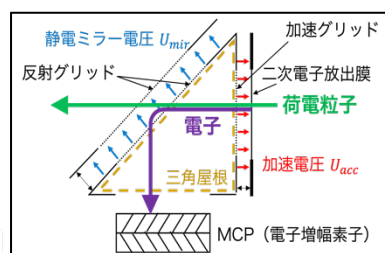


図2: MCP-ToF の概略

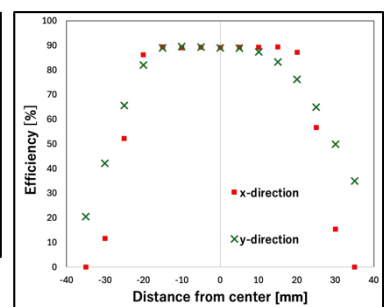


図3: 二次電子の輸送効率

(SIMION によるシミュレーション)

【参考文献】

[1]: S. Hofmann, Journal of Physics G Nuclear and Particle Physics 42(11):114001 (2015)

Advancement of the MCP-ToF detector for superheavy element experiments

MIYAHITA, N., SAKAGUCHI, S., NIWASE, T., YAMANOUCHI, Y., KITAGAWA, N., FUJII, T.

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 11:10 ~ 12:10 B会場(10階1001-2室)

1B2

座長:菊永 英寿(東北大学)

11:10 ~ 11:30

[1B04]

シリコンドリフト検出器を用いた超重核の内部転換電子測定

*浅井 雅人¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

11:30 ~ 11:50

[1B05]

GAGGシンチレータ検出器の性能評価のための単色β線源の開発

*藤井 友喜¹、庭瀬 暁隆¹、田中 裕典¹、北川 尚幸¹、宮下 直人¹、道本 優也¹、山ノ内 邑希¹、坂口 聡志¹ (1. 九州大学)

11:50 ~ 12:10

[1B06]

鉛標的へのミュオン吸収核反応による生成核種分布測定

*二宮 和彦^{1,2}、浅利 駿介²、吉村 崇²、久保 謙哉³、梅垣 いづみ⁴、反保 元伸⁴、河村 成肇⁴、三宅 康博⁴、下村 浩一郎⁴、齋藤 努⁵ (1. 広島大学、2. 大阪大学、3. 国際基督教大学、4. 高エネルギー加速器研究機構、5. 国立歴史民俗博物館)

1B04 シリコンドリフト検出器を用いた超重核の内部転換電子測定 (原子力機構先端基礎セ)○浅井雅人

【緒言】 原子核はある特定の陽子数・中性子数で閉殻構造を取り安定になる。陽子数・中性子数共に閉殻となる2重閉殻核は特に安定となり、 ^{208}Pb は現在知られている最も重い2重閉殻核である。 ^{208}Pb より重い2重閉殻核は陽子数114、中性子数184付近の超重核領域に現れると予測されているが、その位置や安定性の予測は様々で理論的にも実験的にも確立していない。殻構造は陽子や中性子の一粒子軌道のエネルギー間隔や順序に直接的に現れるため、励起準位構造を実験的に明らかにすることが超重核の殻構造の解明に重要である。 α - γ 核分光は生成量の極めて少ない超重核の励起準位測定に適用できる数少ない実験手法の一つであり、多くの実験が行われている。しかし α 崩壊で励起される低励起準位からの γ 線は一般的にエネルギーが低く、内部転換係数が大きいため γ 線を観測できないことが多い。一方で、内部転換電子を測定できれば効率よく準位構造を研究できる。しかし超重核の内部転換電子測定は、低エネルギーの電子を高効率、高分解能で測定することが難しいためほとんど実測例がない。そこで本研究では高エネルギー分解能のX線検出器として放射光実験や蛍光X線分析に使われているシリコンドリフト検出器(SDD)を超重核の低エネルギー内部転換電子測定に適用することを考え、検出器の試験を実施した。

【実験】 SDDはテクノAP製XSDD50-01WLを使用した。本検出器は検出器前面の真空窓がなく、直接真空チェンバー内に挿入して使用する。 ^{241}Am α 線源を検出器表面から約2cmの位置に設置して内部転換電子のエネルギースペクトルを測定し、それらのエネルギー分解能等を評価した。

【結果】 図1に測定された内部転換電子のエネルギースペクトルを示す。 ^{241}Am の α 崩壊に伴う59.5 keV γ 遷移のL1, L2, L3, M, N内部転換電子のピークが良く分離して観測された。L3電子(42 keV)のエネルギー分解能(FWHM)は約460 eVであった。同じエネルギーの γ 線やX線と比べると分解能は落ちるが、超重核の内部転換電子分光に使用するには十分な性能であることを確認できた。

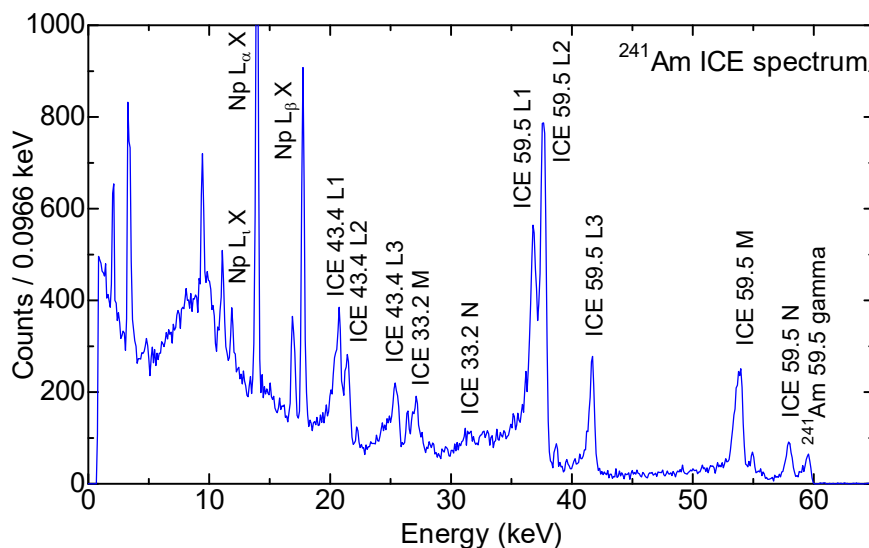


図1: ^{241}Am α 線源から放出される内部転換電子(ICE)やX線をSDDで測定して得られたエネルギースペクトル。

Internal-conversion-electron measurement for superheavy nuclei using Si drift detector
ASAI, Masato

1B05

GAGG シンチレータ検出器の性能評価のための単色β線源の開発

(九大院理¹) ○藤井友喜¹、庭瀬暁隆¹、田中裕典¹、北川尚幸¹、
宮下直人¹、道本優也¹、山ノ内邑希¹、坂口聡志¹

爆発的天体環境における速い中性子捕獲過程(r過程)は、金やプラチナなど、鉄より重い元素の起源として有力視されている。r過程はアクチノイド核の核分裂によって終焉を迎えると予想されているが、終焉部原子核の崩壊特性に対する理論予測は質量モデルや天体環境に強く依存し、不定性が大きい。これは終焉部に位置する中性子過剰核の崩壊様式に関する実験データ、特にこれらの核分裂障壁についての理解が進んでいないためである。

そこで我々は、r過程終焉部に位置する核の崩壊様式を明らかにすることを最終目的とし、中性子過剰アクチノイド核の核分裂障壁および質量分布を測定するための新検出器系(図1)の開発に着手した。核反応で生成された中性子過剰アクチノイド核は捕集薄膜で停止し、β崩壊を起こす。崩壊後の娘核の励起エネルギーが核分裂障壁より高い場合、β遅延核分裂が起こる。したがって核分裂を誘起するβ線の最大エネルギーを親核・娘核の質量差から減じることにより核分裂障壁を得ることができる。本研究ではβ線の検出にCe:GAGG(CeドープのGd₃(Al,Ga)₅O₁₂)シンチレータを採用した。GAGGはγ線とβ線の両方に感度を持つため、β遅延核分裂の過程における、β崩壊によるβ線、β崩壊後の脱励起によるγ線の両方を測定することができる。これにより、核分裂障壁とβ崩壊もしくは核分裂後に遷移した励起準位の両方が決定可能である。またGAGG結晶には潮解性がないため、窓をつけることなく直接真空中に設置でき、β線/γ線のエネルギーを高い精度で測ることができる。GAGGはγ線の原子核分光実験にすでに適用されており、一定の性能が評価されている一方、β線が入射した際の応答はよくわかっていない。そのため我々は電子線加速器やβ線源を用いたエネルギー・位置分解能、応答特性のテストを計画中である。

分解能の測定のためには単一エネルギーのβ線が必要であるが、一般的なβ線源は連続スペクトルを有する。そこで、本研究ではGAGG検出器の電子に対する性能評価のため、単一エネルギーのβ線を放出するβ線源を作製することを目的とした。具体的には、市販の標準β線源とネオジム磁石を組み合わせ、磁場によって検出器に入射するβ線のエネルギーを選別する。本研究ではその第一段階としてGeant4を用いたシミュレーションを行い、単一エネルギーの電子を取り出すのに必要な磁場の強さ、遮蔽材料・厚さ、コリメータの直径など、様々な条件を試行し、最適なセットアップを考察した。シミュレーションの一例を図2に示す。

本講演では、シミュレーションの内容と結果および今後の展望について報告を行う。

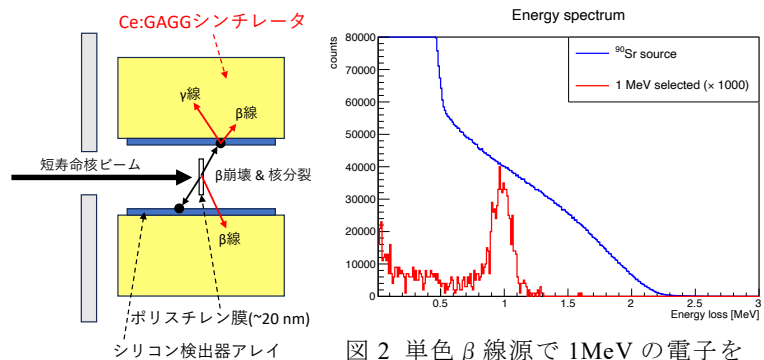


図1 開発する検出器系

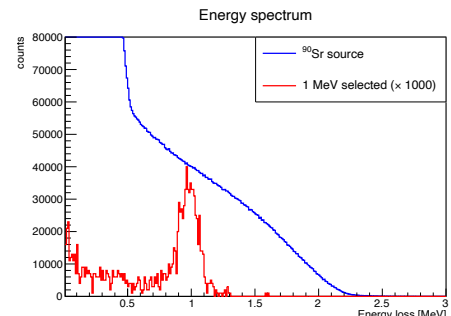


図2 単色β線源で1MeVの電子を選別した場合のエネルギースペクトル(Geant4シミュレーション)

Development of monoenergetic beta-source for evaluation of GAGG scintillator's performance
Fujii T., Niwase T., Tanaka Y., Kitagawa N., Miyashita N., Michimoto Y., Yamanouchi Y., Sakaguchi S.

1B06

鉛標的へのミュオン吸収核反応による生成核種分布測定

(広島大¹、阪大²、ICU³、高エネ研⁴、歴博⁵)○二宮和彦^{1,2}、浅利駿介²、吉村崇²、久保謙哉³、梅垣いづみ⁴、反保元伸⁴、河村成肇⁴、三宅康博⁴、下村浩一郎⁴、齋藤努⁵

【緒言】近年、加速器技術の進歩に伴い大強度のミュオンビームを作ることが可能となり、様々な研究への利用が進んでいる。負電荷を持ったミュオンは、電子と同じように原子核(Z)と束縛してミュオン原子軌道を作り、ミュオン原子(μZ)を形成する。ミュオン原子からは、高エネルギーで透過力の高い特性 X 線が放出され、これを用いた非破壊元素分析法の研究が進められている[1]。ミュオン原子を形成したのち、ミュオンは原子核への吸収反応を起こす。具体的には、ミュオンの負電荷が原子核に取り込まれ、高励起状態の Z-1 原子核を形成する(ミュオン吸収核反応)。この Z-1 原子核からは、励起状態の解消のために中性子の放出やガンマ線の放出が起こる。これらの生成核は、元素分析研究での残留放射能となり、また加速器施設自体の放射能生成に寄与する。しかしながら、ミュオン吸収核反応における生成核の分布の実験的なデータは不足している。本研究では、鉛を対象としてミュオン吸収核反応の生成核分布の実験データ取得を行った。

【実験】ミュオン実験は、大強度陽子加速器施設(J-PARC)におけるミュオン研究施設(MUSE)で実施した。鉛の4つの安定同位体(A=204, 206, 207, 208)の濃縮標的へのミュオン照射を行い、特性 X 線、ガンマ線の測定を Ge 半導体検出器で行った。J-PARC ではパルス状のビームが得られるために、ビームと同期しない成分を取り出すことで、低いバックグラウンドでのガンマ線の測定が可能である。また照射後、鉛標的は遮蔽付きの検出器で測定を行い、長寿命の生成核についても定量した。

【結果と考察】鉛の安定同位体標的の照射後得られたガンマ線スペクトルを図1に示す。スペクトル解析から鉛へのミュオン核吸収反応による Z-1 原子であるタリウムの同位体生成を確認した。具体的には、 ^{202}Tl ($T_{1/2} = 12.2 \text{ d}$)、 ^{201}Tl ($T_{1/2} = 73.1 \text{ h}$)、 ^{200}Tl ($T_{1/2} = 26.1 \text{ h}$)、 ^{199}Tl ($T_{1/2} = 7.42 \text{ h}$) などが同定され、これらの生成は半減期の観点からも確かめられた。また、その収率は、中性子放出数がある場合で最大となっており、放出中性数が多くなるほど収率が減少するというミュオン吸収核反応の過去の知見をよく再現した[2]。

【参考文献】

- [1] Ninomiya, K., J. Nucl. Radiochem. Sci., 19 (2019) 8-13
 [2] Measday, D. F., Phys. Rep. 354 (2001) 243-409

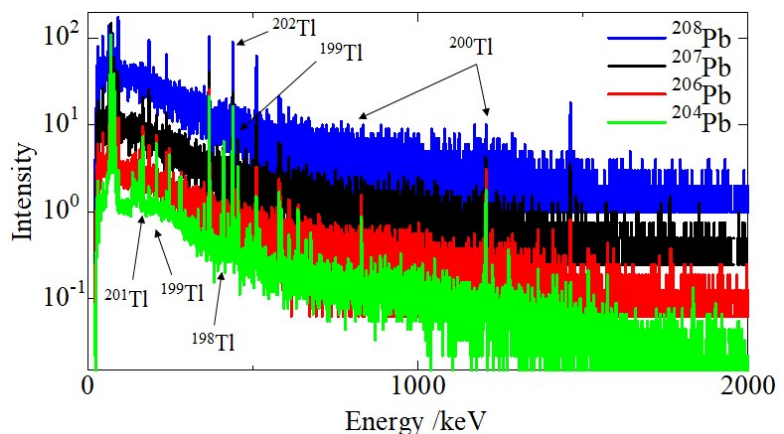


図1: 標的ごとのミュオン照射後のガンマ線スペクトル

Production yields of muon induced nuclear reaction for lead targets

NINOMIYA, K., ASARI, S., YOSHIMURA, T., KUBO, MK., UMEGAKI, I., TAMPO, M., KAWAMURA, N., MIYAKE, Y., SHIMOMURA, K., SAITO, T.

部会

2024年9月23日(月) 12:10 ~ 13:30 B会場(10階1001-2室)

核化学部会総会

12:10 ~ 13:30

部会

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 13:30 ~ 14:30 B会場(10階1001-2室)

1B3

座長:後藤 真一(新潟大学)

13:30 ~ 13:50

[1B07]

光核反応を用いたLu-177製造及びLuトレーサーを用いたルテチウムフラーレン研究

*田村 彩乃¹、東福 滯和¹、秋山 和彦¹、菊永 英寿²、久富木 志郎¹ (1. 東京都立大学、2. 東北大学先端量子ビーム科学研究センター)

13:50 ~ 14:10

[1B08]

1価のTh-229mの半減期の決定

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

14:10 ~ 14:30

[1B09]

Th-229mの壊変機構の解明に向けた固体試料の電子状態解析

*益田 遼太郎^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、安田 勇輝¹、橋場 奏^{1,2}、重河 優大²、内藤 智也^{2,3}、宮本 祐樹⁴、吉村 浩司⁴、篠原 厚⁵、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学大学院、2. 理化学研究所、3. 東京大学、4. 岡山大学、5. 大阪青山大学)

1B07

光核反応を用いた Lu-177 製造及び Lu トレーサーを用いたルテチウムフラレン研究

(都立大理¹、東北大 RARIS²)○田村彩乃¹、東福滯和¹、秋山和彦¹、菊永英寿²、久富木志郎¹

【緒言】 放射性同位元素(RI)内用療法に用いる核種の一つとして注目されている ^{177}Lu は約 6.7 日の比較的短い半減期を持ち、 β 線と γ 線ともに放出することにより治療と診断の融合(セラノスティクス)が可能とされている。 Lu-177 の製造方法として原子炉中性子を用いて $^{176}\text{Yb}(n, \gamma)^{177}\text{Yb}$ 反応で得られた ^{177}Yb の娘核種として ^{177}Lu を得る間接法が主流であるが標的との化学分離などに課題がある。近年提唱されている電子線形加速器(電子 LINAC)を用いた $^{178}\text{Hf}(\gamma, p)^{177}\text{Lu}$ 反応による製造方法では、Hf と Lu の化学分離が容易であることが最大の利点といえる^[1]。本研究では光核反応による ^{177}Lu の製造を試み、その生成放射エネルギーや副生成物である $^{177\text{m}}\text{Lu}$ との生成比を評価した。

現在、 ^{177}Lu を用いた放射性医薬品として Lu-177-DOTA-TATE が神経内分泌腫瘍の核医学治療に使用されている。それと同様に核医学治療におけるドラッグデリバリーシステムとして RI 内包フラレンの応用が期待されていることから、我々はキャリアフリーの ^{177}Lu を内包した金属フラレンの生成を試みた。

【実験】 約 0.1 g の HfO_2 を直径 9 mm のペレット状に成形し高純度の Al 箔で包装した。この試料を石英管に減圧封入し、東北大学先端量子ビーム科学研究センターの電子線形加速器を用いて最大エネルギー 30~60 MeV の制動放射線を 10 分間または 60 分間照射した。得られた照射試料から放出される γ 線より、生成核種の放射エネルギーを調べた。また照射した HfO_2 にフッ化水素酸を加え溶解し硝酸で希釈し、LN レジンを用いて Hf と Lu を分離した。また精製した Lu トレーサーに ^{139}Ce トレーサーを比較対象として加えた硝酸溶液を多孔質炭素棒に含浸させ、焼結した後、これを陽極としてアーク放電(He 雰囲気、圧力: 60 kPa、DC: 80 A)を行った。生成したススから CS_2 を用いて抽出したフラレン粗抽出物を γ 線測定し、金属フラレン(MFs)の収率を調べた。

【結果】 図 1 は 50 MeV 照射試料から放出される 208 keV の γ 線をモニタした減衰曲線である。化学分離後の Lu 試料から得られた $^{177\text{m}}\text{Lu}/^{177}\text{Lu}$ の放射能比は 10^{-5} 程度であり、光量子放射化による ^{177}Lu 製造では副生成物である $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の生成を抑えることが分かった。図 2 に LN レジンを用いた抽出クロマトグラムを示す。Lu は LN レジンに保持される一方、標的の Hf はフッ化物錯体形成により保持されず、Hf と Lu が容易に分離できることを確認した。またこの化学分離で得られたキャリアフリーの ^{177}Lu を用いた MFs 合成では、キャリア存在下で合成した MFs に比べ収率が 1 割にも満たないことが分かった。

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

Production of Lu-177 by Photonuclear Reaction and Study of Lutetium Metallofullerenes Using Lu Tracer
TAMURA, A., TOFUKU, M., AKIYAMA, K., KIKUNAGA, H., KUBUKI, S.

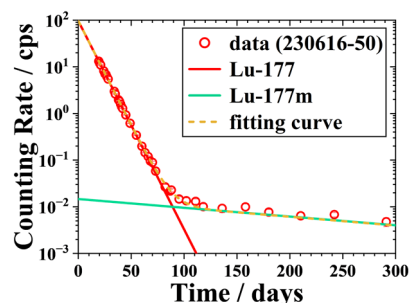


図 1. 208 keV における減衰曲線

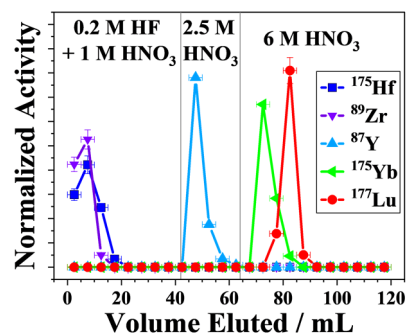


図 2. LN レジンによる溶出挙動

1B08

1 価の Th-229m の半減期の決定

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

【緒言】 ^{229m}Th の第一励起準位 (^{229m}Th) は、8.36 eV[1]という極端に低い励起エネルギーを持つため、電子状態に応じて壊変過程 (内部転換、 γ 線放出、電子架橋遷移) が変化する。これまでに ^{229m}Th の内部転換電子[2]と γ 線[3]が観測されたが、電子架橋遷移は未だ観測されていない。電子架橋遷移で壊変する電子状態の有力な候補として、1 価の ^{229m}Th イオン ($^{229m}\text{Th}^+$) が挙げられる。 $^{229m}\text{Th}^+$ の半減期はサブミリ秒から数秒程度と予測されているが[4]、半減期測定に成功した例はない。本研究では、イオントラップに捕捉した $^{229m}\text{Th}^{2+}$ と NO ガスの反応により $^{229m}\text{Th}^+$ を生成し、トラップ中における $^{229m}\text{Th}^+$ の個数の経時変化を測定することで、 $^{229m}\text{Th}^+$ の半減期決定を目指した。

【実験】 昨年度報告した手法[5]により、 ^{233}U 線源から反跳脱出する $^{229m.g}\text{Th}^{2+}$ (^{229m}Th 2%) を低速イオンビームとして引き出し、イオントラップに導入した。イオントラップには 0.4 Pa の Ar/NO 混合ガス (NO 分圧: $<10^{-5}$ Pa) を導入した。イオンを一定時間トラップした後、四重極質量分離器によって目的の質量電荷比 (m/z) のイオンを選別し、MCP 検出器に運搬した。MCP 表面の電圧を -2000 V に設定することでイオン自体の信号を検出し、 -35 V に設定することで MCP 上で中性化された ^{229m}Th から放出される内部転換電子[2]を検出した。まず、トラップなしとトラップあり (トラップ時間 0.1 s) の場合の質量スペクトルを測定した。次に、半値幅 3 μs 程度の $^{229m.g}\text{Th}^+$ バンチを作成し、MCP まで引き出すことで、 ^{229m}Th の内部転換電子の検出を確認した。最後に、 $^{229m}\text{Th}^+$ の半減期を求めるため、トラップ時間を変化させて (0–16 s)、 $^{229m}\text{Th}^+$ の個数 (MCP: -2000 V) および $^{229m}\text{Th}^+$ の個数 (^{229m}Th の内部転換電子数, MCP: -35 V) を測定した。

【結果】 質量スペクトルの測定 (図 1) により、トラップ中での電荷交換反応で $^{229m.g}\text{Th}^+$ が大量に生成されたことが分かった。 $^{229m.g}\text{Th}^+$ のバンチを MCP に引き出す実験では、半減期 7(2) μs の減衰曲線を観測した。この値は先行研究[6]と一致しており、 ^{229m}Th の内部転換電子を検出できたことが分かった。次に、 $^{229m}\text{Th}^+$ の個数のトラップ時間依存性を測定すると、逐次反応 $^{229m}\text{Th}^{2+} \rightarrow ^{229m}\text{Th}^+ \rightarrow ^{229m}\text{ThO}^+$ に対応した成長減衰曲線 (曲線 A) が観測された。一方、 $^{229m}\text{Th}^+$ の個数については、原子核壊変による $^{229m}\text{Th}^+$ の減少が加わるため、成長減衰曲線の形が変化した (曲線 B)。曲線 A と曲線 B を比較することで、 $^{229m}\text{Th}^+$ の半減期を決定することに成功した。複数の NO 分圧について同様の測定を実施し、 $^{229m}\text{Th}^+$ の半減期が誤差範囲内で一致することを確認した。

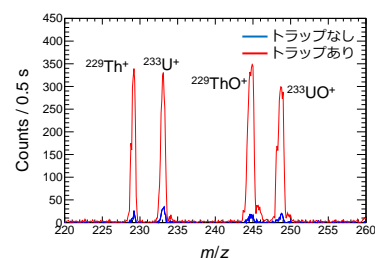


図 1. 質量スペクトル

[1] J. Tiedau *et al.*, Phys. Rev. Lett. **132**, 182501 (2024). [2] L. von der Wense *et al.*, Nature **533**, 47 (2016). [3] S. Kraemer *et al.*, Nature **617**, 706 (2023). [4] F. F. Karpeshin *et al.*, Nucl. Phys. A **969**, 173 (2018). [5] 重河優大他, 日本放射化学会第 67 回討論会(2023), 1B02 (2023). [6] B. Seiferle *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 042501 (2017).

Determination of the nuclear decay half-life of singly charged Th-229m

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

1B09

Th-229m の壊変機構の解明に向けた固体試料中の電子状態解析

(¹大阪大学大学院, ²理化学研究所, ³東京大学, ⁴岡山大学, ⁵大阪青山大学)○益田遼太郎^{1,2}、金子政志¹、風間裕行¹、安田勇輝¹、橋場奏^{1,2}、重河優大²、内藤智也^{2,3}、宮本祐樹⁴、吉村浩司⁴、篠原厚⁵、笠松良崇^{1,2}

【緒言】 ^{229m}Th は ²²⁹Th の第一励起核であり、その励起エネルギーは 8.4 eV (波長 150 nm) [1]と報告されている。この励起エネルギーの小ささ故に、^{229m}Th は化学状態によって原子核の壊変経路が変化する。^{229m}Th の壊変経路は内部転換 (IC) と γ 線遷移、電子架橋遷移 (EB) が競合する過程である。壊変経路の 1 つである γ 線遷移についてはイオン状態 (^{229m}Th^{+,3+}) を保持することで観測されているが[1][2][3]、報告されている半減期は様々である。そこで本研究では、密度汎関数法(DFT)を用いた計算により γ 線が観測された条件 (イオントラップを模擬した Th 単体、CaF₂, MgF₂, LiSrAlF₆ 結晶中) や本研究で実施予定の条件 (希ガス固体) の Th の電荷や電子状態解析を行い、各試料の Th の電子状態が壊変に与える影響を評価した。

【実験】 Quantum Espresso version 7.3 を用いて固体の DFT 計算 (PBE 汎関数/PAW 擬ポテンシャル 平面基底関数) による (CaF₂, MgF₂, LiSrAlF₆, 希ガス (Ne, Ar) 固体) 中の Th のモデル化を行った。Thⁿ⁺ (n=0~4) を 1 原子/イオン置換したモデルまたは間隙に配置したモデルの構造最適化を行い (Figure 1)、その構造から切り出したモデルに対して ADF を用いた孤立系の DFT 計算 (B3LYP 汎関数/QZ4P 基底関数) による一点計算を行い、natural bond orbital(NBO)解析を行った。

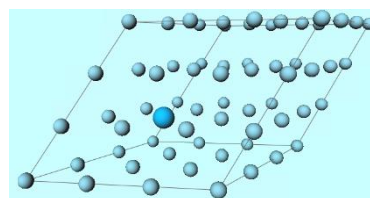


Figure 1. Ar 固体中に Th を配したモデル

【結果と考察】

Table 1 に電荷解析の結果、各結晶中に存在する Th の電荷状態における NBO 解析に基づく Th の電子配置 (NEC) と価電子数 (valence electrons) を示す。いずれの結晶中

Table 1:各結晶中の Th の NEC と valence electrons

condition	NEC	valence electrons
Ar(^{229m} Th ²⁺)	7s ^{0.28} 5f ^{1.17} 6d ^{1.93}	3.40
Ne(^{229m} Th ³⁺)	7s ^{0.06} 5f ^{1.05} 6d ^{0.16}	1.28
CaF ₂ (^{229m} Th ³⁺)	7s ^{0.19} 5f ^{0.61} 6d ^{0.80}	1.63
MgF ₂ (^{229m} Th ³⁺)	7s ^{1.88} 5f ^{0.43} 6d ^{0.89} 7p ^{0.04}	3.24
LiSrAlF ₆ (^{229m} Th ²⁺)	7s ^{0.61} 5f ^{0.62} 6d ^{1.81}	3.05

でも Th は γ 線遷移するイオン状態で存在し、Th と周辺原子との相互作用の結果 Th の価電子軌道に電子の流れ込みが確認された。また、EB は Th の 7s 電子を主に関与する過程であり、NBO 解析による HOMO・LUMO に存在する Th の 7s 由来の電子の個数を調べた。Ar、MgF₂、LiSrAlF₆ 中でのみ 7s 電子が存在していることが分かった。したがって、Ar、MgF₂、LiSrAlF₆ 中では EB に関与する電子が存在するため γ 線遷移と EB が競合して壊変し、半減期は変化すると考えられる。

[1] R. Elwell *et al.*, Phys. Rev. Lett. **133**, 013201 (2024).

[2] A. Yamaguchi *et al.*, Nature **629**, 62 (2024).

[3] T. Hiraki *et al.*, Nat. Commun. **15**, 5536 (2024).

Electronic State Analysis of Solid Th Compound for Elucidating the Decay Mechanism of Th-229m
MASUDA, R., KANEKO, M., KAZAMA, H., YASUDA, Y., HASHIBA, S., SHIGEKAWA, Y., NAITO, T., MIYAMOT, Y., YOSHIMURA, K., SHINOHARA, A., KASAMATSU, Y.

セッションA 核化学

2024年9月23日(月) 14:40 ~ 16:00 B会場(10階1001-2室)

1B4

座長:村上 昌史(大阪大学)

14:40 ~ 15:00

[1B10]

相対論的密度汎関数法による ^{235}mU ハロゲン化物の半減期と電子状態に関する研究*橋場 奏^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、益田 遼太郎^{1,2}、重河 優大²、羽場 宏光²、笠松 良崇^{1,2} (1. 阪大院理、2. 理化学研究所)

15:00 ~ 15:20

[1B11]

ジチオリン酸系における102番元素ノーベリウムの固液抽出オンライン実験

*王 瑞麟^{1,2}、金子 政志¹、永田 光知郎¹、風間 裕行¹、渡邊 瑛介^{2,3}、横北 卓也^{2,4}、板倉 悠大^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、フルト エニー^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、橋場 奏^{1,2}、羽場 宏光²、重河 優大²、南部 明弘²、清水 弘通²、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所、3. 高エネルギー加速器研究機構、4. 東北大学)

15:20 ~ 15:40

[1B12]

Rfの化学的性質解明に向けたソフトドナーによるZr, Hfの溶媒抽出

*板倉 悠大^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、永田 光知郎¹、王 瑞麟^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、羽場 宏光²、金山 洋介²、重河 優大²、南部 明弘²、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学理学研究科化学専攻、2. 理化学研究所)

15:40 ~ 16:00

[1B13]

Sg(Z=106)を模擬したMoオキシ塩化物の等温ガスクロマトグラフ挙動

*名取 日菜^{1,2}、佐藤 哲也^{1,2}、浅井 雅人²、伊藤 由太²、塚田 和明²、宮地 優太^{1,2}、永目 諭一郎² (1. 茨城大院理工、2. 原子力機構先端研)

1B10

相対論的密度汎関数法による ^{235}mU ハロゲン化物の半減期と電子状態に関する研究

(阪大院理¹、理化学研究所²)○橋場 奏^{1,2}、金子政志¹、風間裕行¹、益田遼太郎^{1,2}、重河優大²、羽場宏光²、笠松良崇^{1,2}

【緒言】 ^{235}mU 核種は 76.7 eV の非常に低い励起エネルギーをもち、内部転換により崩壊するとき外殻電子と相互作用することからその半減期が化学状態により変化することが知られている[1]。本研究グループではこれまで ^{235}mU ハロゲン化物に対し半減期と内部転換電子スペクトルの測定を行ってきたが、半減期の序列は $\text{Cl} > \text{Br} > \text{I} > \text{F}$ と単なる原子番号順ではなく、その理由は解明されていない。本研究では相対論的量子化学計算により ^{235}mU ハロゲン化物の半減期変化の序列を電子状態の観点から考察した。

【実験】 DFT 計算は ORCA version 5.0 および DIRAC 23 を用いた。まず、 ^{235}mU ハロゲン化物の化学状態を推定するため、 UO_2^{2+} にハロゲン、水がそれぞれ異なる個数配位した化合物についてスカラー相対論レベル、PBE0 汎関数、SARC-TZVP (U, I 原子)、def2-TZVP (その他原子) 基底関数での構造最適化および spin-orbit X2C レベル、PBE0 汎関数、Dyall.v3z 基底関数での一点計算を行った。続いて、それぞれのハロゲン化物について推定した化合物 $[\text{UO}_2\text{F}_5]^{3-}$, $[\text{UO}_2\text{X}_4]^{2-}$ (X = Cl, Br, I) について spin-orbit X2C レベル、Dyall.v3z 基底関数で複数の LDA, GGA, Hybrid 汎関数について一点計算を行った。一点計算により得られた波動関数をもとに Projection analysis を行った。

【結果】 Projection analysis により得られた 6p 軌道の状態密度と内部転換電子スペクトルの比較および実験条件から ^{235}mU ハロゲン化物の化学状態を実験項に示したウラニル化合物と推定した。次に、複数の汎関数を用いて半減期計算のベンチマークを行ったところ PBE 相関項 100%、PBE 交換項 50%、Hartree-Fock 厳密交換項 50% で構成される PBE50 汎関数が最も適していることがわかった。最適な汎関数による半減期の計算結果を解析したところ、図 1 に示すようにフッ化物とその他の

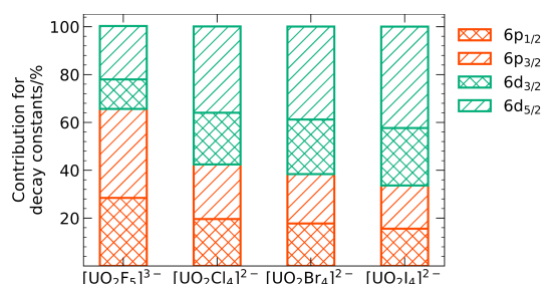


図 1. 半減期変化への各 ^{235}mU 原子軌道の寄与 (UO_2^{2+} からの差分)

のハロゲン化物の間で内部転換の半減期変化へ寄与する原子軌道の割合が異なることがわかった。この違いについて、それぞれのハロゲン化物の U-O 結合距離の違いに着目したところ、 $[\text{UO}_2\text{F}_5]^{3-}$ はその他のハロゲン化物 ($\approx 1.75 \text{ \AA}$) に比べ特異的に長い U-O 結合距離 (1.81 \AA) を持つことがわかった。ここから、フッ化物においてはイオン間の反発による U-O 結合距離の伸長による 6p-hole[2]の減少効果が、その他のハロゲン化物ではハロゲンの電子供与の効果が大きく寄与していることがわかった。結合距離、電子供与の効果はそれぞれが半減期に対しハロゲンの原子番号の順、逆順に寄与する。この二つの効果が競合し、特徴的な半減期変化が引き起こされていると考えられる。

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

[2] S. Larsson and P. Pyykko, Chem. Phys., **101**, 355 (1986).

Study on the half-life and electronic structure of ^{235}mU halides by relativistic density functional theory
HASHIBA S., KANEKO M., KAZAMA H., MASUDA R., SHIGEKAWA Y., HABA H., KASAMATSU Y.

1B11

ジチオリン酸系における 102 番元素ノーベリウムの固液抽出オンライン実験

(大阪大学¹、理研仁科セ²、高エネルギー加速器研究機構³、東北

大学⁴)○王 瑞麟^{1,2}、渡邊 瑛介^{2,3}、横北 卓也^{2,4}、板倉 悠大^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、フルト エニー^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、橋場 奏^{1,2}、羽場 宏光²、重河 優大²、南部 明弘²、金山 洋介²、清水 弘通²、金子 政志¹、永田 光知郎¹、風間 裕行¹、笠松 良崇^{1,2}

【緒言】102 番元素ノーベリウム(No)はアクチノイドの後ろから 2 番目の元素であり、他の f ブロック元素と異なり、水溶液中では主に 2 価の陽イオンとして安定に存在し、化学的性質もアルカリ土類金属と似ている[1]。近年我々の研究グループで行った Sr レジン(DtBuDCH18O6 含浸樹脂)を用いた硝酸系オンライン抽出実験から、No はアルカリ土類金属よりも軟らかい酸としての挙動が観測され[2]、さらなる No の化学研究が求められている。本研究では No²⁺のアルカリ土類金属と異なる化学性質を調べるために、Sr レジンとバッチ型固液抽出装置(AMBER)[3]を用いて ²⁵⁵No の Sr レジン/320 mM ジチオリン酸系の加速器オンライン固液抽出実験を行った。

【実験】オンライン実験に使用する ²⁵⁵No ($T_{1/2}=3.5$ min)は、理化学研究所 AVF サイクロトロンを利用し、²⁴⁸Cm(¹²C,5n)²⁵⁵No 反応により製造した。同時に、核反応のモニターならびに溶液化効率の算出のために ¹⁶²Yb ($T_{1/2}=18.9$ min) を ^{nat}Gd(¹²C,xn)¹⁶²Yb 反応にて製造した。He/KCl ガスジェットにてこれらの核反応生成物を化学実験室に搬送した。AMBER の溶液化部に捕集された核反応生成物を 320 mM ジチオリン酸溶液に溶解させた後、反応容器中で Sr レジンと 30, 120, 180 秒間振とうし、固液抽出実験を行った。Ta 皿に溶液のみを捕集し、迅速に蒸発乾固した後、自動 α 粒子測装置[4]を用いて、 α 線測定を行った。測定後の試料は Ge 検出器を用いて、 γ 線測定を行った。溶液の標準放射能を調べるため、樹脂を使用せずに同様の操作を行う比較実験も行った。固相と液相の放射能濃度比から、分配係数 K_d を算出した。

【結果】上記の実験を約 100 回行い、図 1 のような α スペクトルが得られた。²⁵⁵No の α イベントは 28 カウント観測され、この系におけるアルカリ土類金属と No の K_d の大きさの順はイオン半径順とは異なる結果が示された。この結果から No とアルカリ土類金属の Sr レジンに抽出される挙動には違いが生じていると考えられる。発表では、量子計算結果を用いて電子状態の観点から固液抽出実験の結果について考察する。

【参考文献】[1]R. Silva et al., Inorg. Chem. **13**, 2233-2237 (1974).[2]渡邊 瑛介, 大阪大学大学院理学研究科博士論文(2023).[3] Y. Kasamatsu et al., Radiochim. Acta **103**, 513-521 (2015) [4] H. Haba et al., RIKEN Accel. Prog. Rep. **45**, 204 (2012).

Online solid-liquid extraction experiments of element 102, nobelium in dithiophosphoric acid system

WANG, R., WATANABE, E., YOKOKITA, T., ITAKURA, Y., KONNO, M., KHULT, E., SHIBAMOTO, K., S, HASHIBA, HABA, H., SHIGEKAWA, Y., NAMBU, A., KANAYAMA, Y., SHIMIZU, KANEKO, M., KAZAMA, H., NAGATA, K., KASAMATSU, Y.

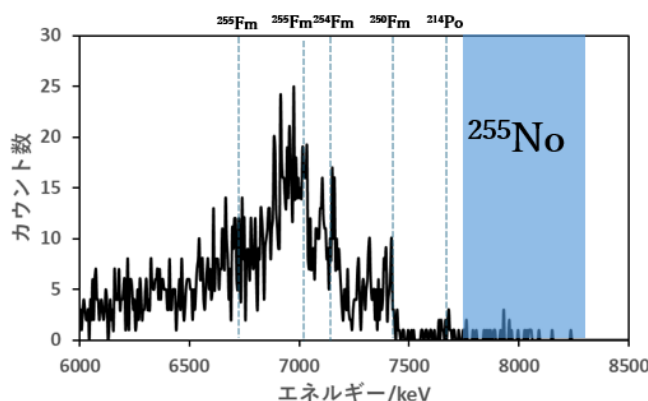


図 1 全実験で得られた ²⁵⁵No の α スペクトル

1B12

Rf の化学的性質解明に向けたソフトドナーによる Zr, Hf の溶媒抽出 (大阪大学理学研究科化学専攻¹、理化学研究所²) ○板倉 悠大^{1,2}、金子政志¹、風間裕行¹、永田光知郎¹、王瑞麟^{1,2}、紺野未夢^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、柴本恭佑^{1,2}、羽場宏光²、金山洋介²、重河優大²、南部明弘²、笠松良崇^{1,2}

【緒言】原子番号が 100 を超えるような元素は、相対論効果の影響で周期律を逸脱する可能性があり、興味を持たれている。しかし、一度に取り扱える量が少ないために化学実験を行うことが難しく、化学的性質は未解明な点が多い。104 番元素ラザホージウム (Rf) は最も重い 4 族元素である。先行研究からは、種々の硬い塩基との相互作用が同族元素 Zr, Hf より弱いことが示された[1,2]。そこで本研究では Rf のより軟らかい酸としての性質を調べるため、軟らかい塩基を用いた実験と相対論的量子化学計算を行い、軌道相互作用を通して Rf に働く相対論効果を議論することを目的とする。溶液系で比較的速く平衡到達するジエチルヘキシルリン酸の類縁体に着目し、ジブチルリン酸 (HDBP) およびジエチルジチオリン酸 (HDEDTP) を配位子として用いた。本発表では Zr(IV), Hf(IV) の溶媒抽出挙動および簡易的なモデル錯体の量子化学計算によるこれらの配位子と四価金属との結合性解析の結果を報告する。

【実験】10 μL の硝酸系 ^{88}Zr , ^{175}Hf 溶液、予備平衡で飽和させた 490 μL の硝酸と 500 μL の配位子を含む CCl_4 を 20°C にて混合し、規定の時間振とうした。各相を分離し、 γ 線測定によって放射能 A を求め、 $D = A_o V_a / A_a V_o = A_o d_o w_a / A_a d_a w_o$ という式から分配比 D を求めた。ただし、 d , w は各相の密度および重量であり、添え字の o と a は有機相、水相を表す。pH の調整に過塩素酸を用いた。量子化学計算は ADF を使用して X2C(spin-orbit)-PBE0/TZ2P//ZORA(spin-free)-PBE0/TZ2P レベルで行った。

【結果】 ^{88}Zr , ^{175}Hf を用いたトレーサー実験の結果、HDBP 系では 3 min, HDEDTP 系では 5 min の振とうで平衡に到達することがわかった。これは ^{261}Rf の半減期 68 s より長い、自動装置で平衡到達にかかる時間を短縮することにより ^{261}Rf 実験に適用可能な範囲であると考えている。分配比の配位子濃度依存性および硝酸濃度依存性の結果から、HDBP 系においては $[\text{M}(\text{dbp}_2\text{H})_n(\text{NO}_3)_{4-n}]$ として抽出されており、Zr(IV) では $n = 2-3$, Hf(IV) では $n = 3$ であった

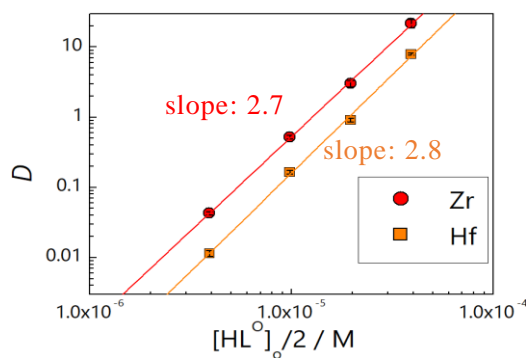


図 1 分配比の HDBP 濃度依存性

(図 1)。HDEDTP 系においては Zr(IV), Hf(IV) の抽出挙動にほとんど違いがないことが示唆された。また、化学結合特性を評価するため、1:1 の簡易的なモデル錯体 $[\text{M}(\text{dbp})]^{3+}$ および $[\text{M}(\text{dedtp})]^{3+}$ ($\text{M} = \text{Zr}, \text{Hf}, \text{Rf}$) について NBO, QTAIM 解析を行った結果、Rf(IV) は M-S 結合が M-O 結合より相対的に安定であることがわかった。さらに、 $[\text{Rf}(\text{dbp})]^{3+}$ 錯体の M-O 結合は Zr, Hf と比較してイオン性が強いが、 $[\text{Rf}(\text{dedtp})]^{3+}$ 錯体の M-S 結合は Zr, Hf と同程度の共有結合性をもつことが示唆された。

[1] H. Haba *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **126**, 5219 (2004).

[2] Y. Kasamatsu *et al.*, *Nat. Chem.*, **13**, 226 (2021).

Solvent extraction of Zr and Hf with soft ligands toward the chemical study of Rf

ITAKURA Y., KANEKO M., KAZAMA H., NAGATA K., WANG R. KONNO M., KHULT E., SHIBAMOTO K., HABA H., KANAYAMA Y., SHIGEKAWA Y., NAMBU A., KASAMATSU Y.

1B13 Sg (Z = 106) を模擬した Mo オキシ塩化物の 等温ガスクロマトグラフ挙動

(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、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 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、Sg のモデル実験のため、オフライン等温ガスクロマトグラフ装置を構築し、Sg の同族元素である Mo を対象に、オキシ塩化物の揮発性を調べた。

本実験装置は、105 番元素 Db の揮発性研究で実績のあるオンライン実験装置¹⁾をもとに、2 つの ²⁵²Cf 線源を備えた ²⁵²Cf 槽、化学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。²⁵²Cf の自発核分裂で生成する 3 つの短寿命 Mo 同位体 ¹⁰⁴Mo (半減期 $t_{1/2} = 60$ s)、¹⁰⁵Mo ($t_{1/2} = 35.6$ s) および ¹⁰⁶Mo ($t_{1/2} = 8.7$ s) 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した。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 (SOCl₂) にバブリングさせて、反応室に供給した。生成した Mo 揮発性化合物分子を一定温度に保った等温カラムに導入し、カラム末端からの溶出量を観測した。

各短寿命 Mo 同位体について得られたカラム温度-相対収率曲線 (等温ガスクロマトグラム) の一例を図 1 に示す。それぞれの等温ガスクロマトグラム曲線について、モンテカルロシミュレーションにより Mo オキシ塩化物の吸着エンタルピー ($-\Delta H_{\text{ads}}$) を求めたところ、得られた実験値は半減期にかかわらず誤差の範囲で一致し、MoO₂Cl₂ のマクロ量からの予想値 $-\Delta H_{\text{ads}} = 77$ kJ/mol²⁾ とよく一致した。

発表では、反応室温度や塩素化剤中の酸素濃度など、目的の Mo 揮発性オキシ塩化物の生成条件および、種々の実験条件において得られた等温ガスクロマトグラフ挙動の検討結果について報告する。

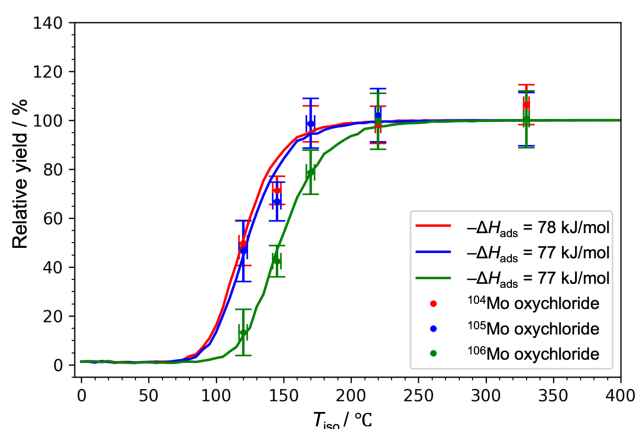


図 1: 反応室温度を 550°C とし、塩素化剤として O₂/SOCl₂ を使用した際の Mo オキシ塩化物のカラム温度-収率曲線

- 1) N. M. Chiera et al., *Angew. Chem. Int. Ed.* 60 (2021) 17871-17874.
- 2) N. M. Chiera et al., *Inorg. Chim. Acta* 486 (2019) 361-366.

Isothermal Gas Chromatographic Behavior of Mo Oxychlorides as a Model of Element 106, Seaborgium
NATORI, H., SATO, T.K., ASAI, M., ITO, Y., TSUKADA, K., MIYACHI, Y., NAGAME, Y.

部会

2024年9月23日(月) 12:10 ~ 13:30 C会場(910室)

若手の会

12:10 ~ 13:30

部会

ポスターセッション

2024年9月23日(月) 17:45 ~ 18:45 会場(10階1001-1室+展望ロビー)

ポスターセッション

[1P01]

Rfの化学研究に向けたDGAを用いた4族元素の固液抽出実験及び機械学習手法の応用

*柴本 恭佑^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、王 瑞麟^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、板倉 悠大^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、重河 優大²、殷 小杰²、金山 洋介²、南部 明弘²、羽場 宏光²、塚原 聡¹、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学、2. 理化学研究所)

[1P02]

102番元素ノーベリウムの特沈実験に向けた2族元素のマロン酸の特沈実験及び共沈実験

*紺野 未夢¹、金子 政志¹、風間 裕行¹、永田 光知郎¹、中西 諒平¹、王 瑞麟¹、板倉 悠大¹、Khult Enni¹、柴本 恭佑¹、益田 遼太郎¹、高宮 幸一²、稲垣 誠²、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学、2. 京都大学)

[1P03]

ノーベリウムの化学研究に向けたDGA樹脂による2族元素の固液抽出研究

*Khult Enni¹、柴本 恭佑¹、王 瑞麟¹、板倉 悠大¹、紺野 未夢¹、森 健太¹、青戸 宏樹¹、金子 政志¹、風間 裕行¹、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学)

[1P04]

TOMA担持樹脂に対するフッ化物イオンの吸着特性

*沼尻 大空¹、後藤 真一¹ (1. 新潟大学)

[1P05]

超重元素シーボーギウムの溶液化学研究に向けたWのHF/HNO₃系における陰イオン交換実験*宮地 優太^{1,2}、佐藤 哲也^{1,2}、塚田 和明²、浅井 雅人²、伊藤 由太²、名取 日菜^{1,2}、永目 諭一郎² (1. 茨城大院理工、2. 原子力機構先端研)

[1P06]

量子化学計算による102番元素ノーベリウムのアンミン錯体生成反応の予測

*板倉 悠大^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、永田 光知郎¹、王 瑞麟^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、柴本 恭佑^{1,2}、橋場 奏^{1,2}、笠松 良崇^{1,2} (1. 大阪大学理学研究科化学専攻、2. 理化学研究所)

[1P07]

超重元素合成のための電解析出によるターゲット作製

*池田 航貴¹、後藤 真一¹、加治 大哉² (1. 新潟大学、2. 理化学研究所)

[1P08]

⁶⁷Cu大量製造に向けた亜鉛と銅の特分離挙動*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 (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)

[1P09]

JRR-3を用いたLu-177製造に関する生成量評価

*藤野 隼輔¹、橋本 和幸¹、佐伯 秀也²、河内 幸正²、川端 方子²、千葉 悠介¹ (1. 原子力機構、2. 千代田テクノル)

[1P10]

高速中性子照射により生成した^{196m}Auのγ線放出確率の測定

*長 泰秀¹、後藤 真一¹、塚田 和明²、浅井 雅人²、佐藤 哲也²、伊藤 由太²、菊永 英寿³ (1. 新潟大学、2. 日本原子力研究開発機構、3. 東北大学)

[1P11]

光核反応による放射化シスプラチンの製造

*横北 卓也¹、本多 佑記¹、木村 寛之²、重河 優大³、羽場 宏光³、菊永 英寿¹ (1. 東北大学、2. 金沢大学、3. 理研)

[1P12]

$^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ 反応の励起関数検証の試み

*菊永 英寿¹、横北 卓也¹、白崎 謙次¹ (1. 東北大学)

[1P13]

核セキュリティを支える核鑑識技術-ISCNにおける最近の研究開発と今後-

*山口 知輝¹、木村 芳紀¹、海野 勇次²、細井 雅春²、松本 哲也³、関根 勝則⁴ (1. 日本原子力研究開発機構 核不拡散・核セキュリティ総合支援センター、2. 検査開発株式会社、3. 株式会社パワーコンピュータ、4. 原子力エンジニアリング株式会社)

[1P14]

もんじゅサイト新試験研究炉における中性子放射化分析関連装置の計画

*稲垣 誠¹、高宮 幸一¹、三浦 勉²、鷲山 幸信³、秋山 和彦⁴、大澤 崇人⁵、笠松 良崇⁶、白井 直樹⁷、土谷 邦彦⁵、吉田 剛⁸、佐藤 信浩¹ (1. 京都大学、2. 産業技術総合研究所、3. 福島県立医科大学、4. 東京都立大学、5. 日本原子力研究開発機構、6. 大阪大学、7. 神奈川大学、8. 高エネルギー加速器研究機構)

[1P15]

微量の放射性核種の検出に向けた脱溶媒ネブライザーによるICP-MSの測定性能の向上

*小荒井 一真¹、松枝 誠¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

[1P16]

バイオアッセイ手法の開発及び国際相互比較の実績

*楊 国勝¹、金 ウンジュ¹、妹尾 初穂¹、鄭 建¹、古渡 意彦¹、栗原 治¹ (1. 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構)

[1P17]

^{211}At の品質標準化に向けた溶出液の分析 (1) ^{211}At -メタノール溶液のHPLC分析

*渡辺 茂樹¹、村上 昌史²、佐々木 一郎¹、永津 弘太郎¹、大矢 智幸¹、市瀬 潤¹、水飼 秋菜³、梶山 和希⁴、白神 宜史²、今 教禎²、大江 一弘²、豊嶋 厚史²、石岡 典子¹ (1. 量研、2. 阪大放射線機構、3. 阪大院理、4. 阪大理)

[1P18]

^{211}At の品質標準化に向けた溶出液の分析 (2) ^{211}At 水溶液のHPLC分析

*村上 昌史¹、渡辺 茂樹²、佐々木 一郎²、石岡 典子²、大矢 智幸²、市瀬 潤²、永津 弘太郎²、水飼 秋菜³、梶山 和希⁴、白神 宜史¹、今 教禎¹、大江 一弘¹、豊嶋 厚史¹ (1. 大阪大学放射線科学基盤機構、2. 量子科学技術研究開発機構、3. 大阪大学大学院理学研究科、4. 大阪大学理学部)

[1P19]

医師主導治験に向けた合成装置による ^{211}At PSMA-5の安定供給 -基礎から臨床へ-

*仲 定宏^{1,2}、白神 宜史³、大江 一弘³、栗本 健太^{1,2}、堺 俊博¹、今 教禎³、Xiaojie Yin⁴、羽場 宏光⁴、豊嶋 厚史³、渡部 直史^{1,3}、富山 憲幸^{1,3} (1. 大阪大学大学院医学系研究科 放射線医学、2. 大阪大学医学部附属病院 薬剤部、3. 大阪大学放射線科学基盤機構、4. 理研仁科加速器科学研究センター)

[1P20]

弱塩基性水溶液中におけるヨードチロシン誘導体の ^{211}At フロー電解標識

*水飼 秋菜¹、白神 宜史²、村上 昌史²、梶山 和希³、木村 禎亮⁴、大江 一弘²、今 教禎²、角永 悠一郎²、豊嶋 厚史² (1. 大阪大学大学院、2. 大阪大学放射線科学基盤機構、3. 大阪大学、4. アルファフュージョン株式会社)

[1P21]

低速RIビームを用いた医療用At-211製造技術の開発

*園田 哲¹、羽場 宏光¹、中下 輝士¹、重河 優大¹、藤原 孝成¹、富田 英生²、Rosenbusch Marco¹ (1. 国立研究開発法人 理化学研究所、2. 名古屋大学)

[1P22]

CdTe検出器を用いた核医学治療用核種¹⁷⁷Luのカラム分離モニタリングの試み

*鷲山 幸信¹、白崎 謙次²、小川 数馬³、山村 朝雄⁴ (1. 福島県立医科大学先端臨床研究センター、2. 東北大学金属材料研究所、3. 金沢大学新学術創成研究機構、4. 京都大学複合原子力科学研究所)

[1P23]

⁶⁴Cuの核医学利用を目的としたSドナーを有するサイクレンを用いた新規環状配位子の開発

*前田 遥香¹、永田 光知郎²、金子 政志¹、風間 裕行¹、青戸 宏樹¹、川岸 英峻³、笠松 良崇¹ (1. 大阪大学大学院 理学研究科、2. 大阪大学 Core-FC、3. 大阪大学 理学部)

[1P24]

赤外線ファイバーレーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成手法開発

*中田 拓希¹、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)

[1P25]

地衣類中の放射性セシウムの長期観測

*土肥 輝美¹、飯島 和毅¹、吉村 和也¹、大村 嘉人²、藤原 健壯¹、金井塚 清一³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 国立科学博物館、3. 原子力エンジニアリング (株))

[1P26]

非水溶媒系中の塩化物イオン濃度が塩化ウラン(IV)の酸化還元特性に与える影響

*植野 雄大¹、大内 和希¹、渡邊 雅之¹ (1. 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構)

[1P27]

ジグリコールアミド酸型配位子保持リポソーム系における実条件への適用に向けた基礎研究

*清水 壮太¹、上原 孟¹、山崎 信哉²、坂口 綾²、高久 雄一²、末木 啓介² (1. 筑波大学大学院理工情報生命学院数理解物質科学研究群化学学位プログラム、2. 筑波大学 数理解物質系)

[1P28]

イオン液体 - DMF混合系におけるヨウ化ウラン(IV)の酸化還元反応

*大内 和希¹、小松 篤史¹、植野 雄大¹、北辻 章浩¹、渡邊 雅之¹ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

[1P29]

pH領域下におけるD2EHPAによるAc-228の抽出挙動の評価

*宮脇 琢斗¹、白崎 謙次²、中瀬 正彦³ (1. 東北大学大学院、2. 東北大学金属材料研究所、3. 東京工業大学)

[1P30]

メスバウアー分光法を用いた還元的環境における粘土鉱物中のFeの酸化状態と構造の分析

*森井 志織¹、蓬田 匠^{1,2}、中田 正美¹、岡 壽崇¹、北辻 章浩¹、高橋 嘉夫² (1. 日本原子力研究開発機構、2. 東京大学)

1P01

Rf の化学研究に向けた DGA を用いた 4 族元素の固液抽出実験及び機械学習手法の応用

(大阪大学¹、理化学研究所²)○柴本 恭佑^{1,2}、金子 政志¹、風間 裕行¹、王 瑞麟^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、板倉 悠大^{1,2}、紺野 未夢^{1,2}、重河 優大²、殷 小杰²、金山 洋介²、南部 明弘²、羽場 宏光²、塚原 聡¹、笠松 良崇^{1,2}

【緒言】 原子番号が 104 番を超える超重元素は、相対論効果の影響で化学的性質が周期律から逸脱する可能性があり、興味を持たれている。しかし、低生成率及び短半減期に基づく制約により実験研究は少ない[1]。有機配位子を超重元素の実験に適応することで、配位子の電子状態や結合性を制御することによって、超重元素の化学探求は深化することが期待される。本研究では、Rf のオンライン実験に diglycolamide(DGA)が適応可能であるかを同族の Zr, Hf を用いて調べた。さらに、反応系の検討が重要である超重元素において、適切な配位子探索への機械学習の適応を目指して、溶媒抽出データベースを用いた分配比予測モデルを構築した。

【実験】 理化学研究所 AVF サイクロトロンで照射製造した ⁸⁸Zr と ¹⁷⁵Hf を精製後、トレーサー溶液として硝酸/DGA レジン固液抽出における硝酸濃度(4.0~0.10M)及び振とう時間(1~60 分)依存性を調べた。構造を特定するため、アミド窒素に 4 つのメチル基がついた TMDGA を合成し、Zr との錯体を合成し、結晶構造の解析を試みた。機械学習では、溶媒抽出特性が網羅的に収集された SEDATA[2]を学習させ、金属と配位子の情報から分配比を予測するモデルの構築を行った。また、実際に Rf の文献値を用いて学習を行った。

【結果と考察】 図 1 に Zr と Hf の分配比の振とう時間依存性を示す。1~60 分の間でおよそ一定の値を取っており 1 分程度で平衡に到達している可能性が示され、Rf 実験への適応可能性を見出した。また、分配比の硝酸濃度依存性におけるスロー解析の結果より、抽出化学種が $[\text{Zr}(\text{NO}_3)_4(\text{DGA})_x]$, $[\text{Hf}(\text{NO}_3)_{2-4}(\text{DGA})_y]$ であると示唆された。

機械学習による予測モデルの構築では、SEDATA から抽出する金属名、抽出剤の名前、分配比が得られ、金属名を原子番号や第一イオン化エネルギーなどの記述子に変換した。一方、抽出剤は有機配位子の構造から特徴量を算出するツールキットである RDKit を用いて記述子に変換した。分配比を教師データに設定し、予測値が実験値を再現するように学習を行った。詳細な結果についてはポスター発表にて紹介する。

[1] Schädel, M. *Philos. Trans. R. Soc. A* **373**, 2037 (2015)

[2] Watarai, H. *et al. Solvent Extr. Res. Dev., Jpn.* **7**, 197-205 (2000).

Solid-liquid extraction of group 4 elements using DGA and application of machine learning methods toward chemical study of Rf (2024)

SHIBAMOTO K., KANEKO M., KAZAMA H., WANG R., KHULT E., ITAKURA Y., KONNO M., SHIGEKAWA Y., YIN X., KANAYAMA Y., NAMBU A., HABA H., TSUKAHARA S., KASAMATSU Y.

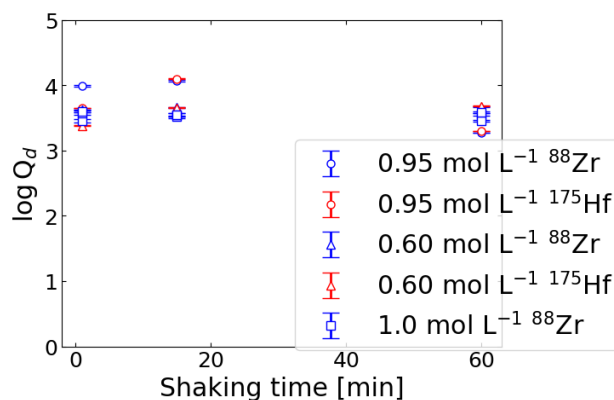


図 1 元素濃度比の振とう時間依存性

1P02

102 番元素ノーベリウムの共沈実験に向けた 2 族元素のマロン酸沈殿実験及び共沈実験

(大阪大¹、京都大²)○紺野未夢¹、金子政志¹、風間裕行¹、永田光知郎¹、中西諒平¹、王瑞麟¹、板倉悠大¹、Khult Enni¹、柴本恭佑¹、益田遼太郎¹、高宮幸一²、稲垣誠²、笠松良崇¹

【緒言】原子番号 102 番のノーベリウム(No)は、水溶液中で安定に 2 価の酸化状態をとるといふ他のアクチノイドとは異なる性質を示し、その化学的振る舞いを理解することは重元素の特性解明において重要である。これまでに我々は水溶液中における No²⁺の錯形成挙動を理解するため、無機配位子を沈殿剤とした共沈法^[1]に基づく研究を行い、キャリアとなる 2 族元素(Ca, Sr, Ba)との挙動の比較から、No の化学的性質を調べてきた。本研究では、配位子によるキレート効果や分子構造などが No の化学的挙動にもたらす影響をより詳細に調査するため、有機配位子であるマロン酸との反応に注目した。No の共沈実験に向けて、マロン酸による Ca, Sr, Ba の沈殿実験を行い、キャリア元素を決定した。観測された沈殿挙動及び沈殿物の分析並びに量子化学計算により、マロン酸との錯形成について考察を行った。

【実験】マロン酸(1.370 g)及びマロン酸二ナトリウム(3.973 g)を水溶液(200 mL)に溶解することにより、pH=6 および 7 のマロン酸緩衝液を調製した。⁴⁷Ca、⁸⁵Sr、¹³³Ba をそれぞれ 10 μ L 含む金属塩化物溶液とマロン酸緩衝液を室温で混合し 5 分攪拌し、沈殿実験を行った。上澄み液及び沈殿物に含まれる ⁸⁵Sr、¹³³Ba を Ge 半導体検出器により定量し、沈殿収率を決定した。続いて候補キャリア元素として選定した Ba を用いて、Ba 濃度およびマロン酸緩衝液の濃度を変化させた沈殿実験を行った。決定した濃度条件で ⁸⁵Sr の共沈実験も実施した。量子化学計算には、ソフトウェアに ORCA を用い、金属元素とマロン酸イオンの錯形成挙動について DFT 計算を行った。

【結果】Ca 及び Sr の沈殿試験では、何れの場合も沈殿物の生成が確認されなかった。一方、Ba の沈殿試験では、良好な結晶性の沈殿物が得られた。本結果に基づき、Ba を用いて沈殿挙動の Ba 濃度及びマロン酸緩衝液の濃度依存性を調査した結果、pH=7, 200mM の条件で最も高い収率である約 75%で沈殿が得られた(図 1)。沈殿挙動と共沈挙動の比較を行うため、同様の条件で ⁸⁵Sr のマロン酸バリウム共沈実験を行い、共沈収率を求め、Sr の共沈挙動とマクロ量のマロン酸沈殿挙動と一致することが分かった。今後、⁴⁷Ca を用いた共沈実験を行い沈殿挙動と共沈挙動の比較を行い、No の共沈実験に適した条件の検討を行っていく。

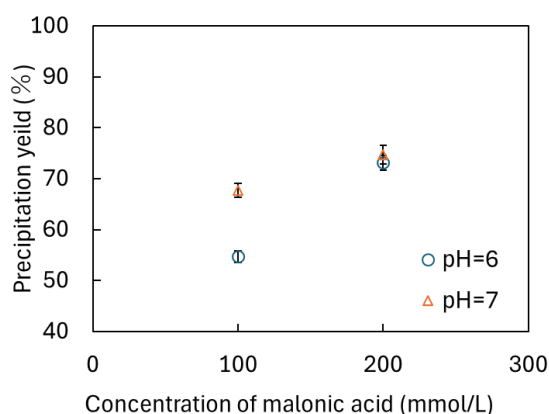


図 1. Ba とマロン酸緩衝液の沈殿収率

[1] Y. Kasamatsu, *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.* **118**, 105 (2016).

Malonate Precipitation and Coprecipitation of group 2 elements for Coprecipitation experiments of Nobelium

KONNO, M., KANEKO, M., KAZAMA, H., NAGATA, K., NAKANISHI, R., WANG, R., ITAKURA, Y., KHULT, E., SHIBAMOTO, K., MASUDA, R., TAKAMIYA, K., INAGAKI, M., KASAMATSU, Y.

1P03

Solid-liquid extraction of group 2 elements with DGA-resin towards the chemical study of element 102, nobelium

(Osaka University¹) ○Enni Khult¹, Kyosuke Shibamoto¹, Ruilin Wang¹, Yudai Itakura¹, Miyu Konno¹, Kenta Mori¹, Hiroki Aoto¹, Masashi Kaneko¹, Hiroyuki Kazama¹, Yoshitaka Kasamatsu¹

【Introduction】 The heavy element nobelium (No) with Z of 102 is an actinide having unique chemical properties. No exhibits +2 oxidation state in aqueous solutions and its behavior is similar to that of group 2 elements, with an ionic radius between Ca²⁺ and Sr²⁺. However, No²⁺ may have a softer acidic nature, contrasting with the hard acid characteristics of group 2 metal ions. Further research is needed to understand the chemical properties of No, which could be influenced by relativistic effects. For systematic chemical study of No, we propose extraction with diglycolamide (DGA) ligands (Figure 1), because they allow various structural modifications to tune extraction properties. The purpose of the present work is to investigate the solid-liquid extraction of group 2 elements from nitric acid by DGA-resin towards online experiment with ²⁵⁵No.

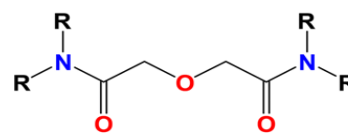


Figure 1. Diglycolamides (DGA). TODGA: R = *n*-octyl.

【Experiments】 In this work, solid-liquid extraction of group 2 elements from nitric acid was performed by batch method with TODGA-resin as solid phase and ⁸⁵Sr(II) and ¹³³Ba(II) tracer solutions as liquid phase in the range of nitric acid concentration from 0.2 to 4 M and extraction time from 1 min to 75 min. Density functional theory (DFT) calculations were performed using ORCA v5.0 program.

【Results and discussion】 The nitric acid concentration dependencies of the solid-liquid distribution ratios were investigated and found to be in agreement with the results of an extraction chromatography study of TODGA-resin^[1]. The time needed to reach extraction equilibrium for ⁸⁵Sr was evaluated to be <3 min, sufficient for an online experiment with ²⁵⁵No (*T*_{1/2}=3.5 min). DFT calculations were also conducted to support the extraction results. Optimized geometries of [M(DGA)₃]²⁺ complexes (M=Ca, Sr, Ba) were obtained and bonding analyses were performed. The bond lengths M-O_{ether} and M-O_{carbonyl} were in linear correlation with ionic radii, which indicates ionic electrostatic interaction between the metal ion and the donor atoms of the ligand. Relative stability of the complexes was then studied via single point calculations of Gibbs free energies. The stability of the DGA complexes of group 2 metal ions decreases in order of Ca(II), Sr(II), Ba(II), which reproduces the trend of distribution ratios in extraction Ca(II)>Sr(II)>Ba(II)^[1]. Next, we plan to perform DFT calculations for No(II) complexes to predict the relative stability.

[1] Horwitz, E.P. *et al.* Solvent Extr. Ion Exch. **23** 3, 319-344 (2005)

Solid-liquid extraction of group 2 elements with DGA-resin towards the chemical study of element 102, nobelium (2024)

KHULT E., SHIBAMOTO K., WANG R., ITAKURA Y., KONNO M., MORI K., AOTO H., KANEKO M., KAZAMA H., KASAMATSU Y.

1P04

TOMA 担持樹脂に対するフッ化物イオンの吸着特性

(新潟大学院自然)○沼尻大空、後藤真一

【緒言】イオン対抽出剤として知られる Trioctylmethylammonium chloride (TOMA-Cl) を担持した樹脂を用いた固相抽出における吸着相互作用は、イオン交換的であると考えられているが、イオン交換樹脂の吸着特性と完全には一致せず、その詳細は解明されていない。例えば、濃度 10 M 程度のフッ化水素酸からの Nb と Ta の錯陰イオンのイオン交換では、互いに近い分配係数を示すが、TOMA 担持樹脂を用いた場合は、Nb の分配係数は Ta よりもかなり小さく、また、フッ化水素酸濃度依存性も異なっている。Nb と Ta は、この濃度のフッ化水素酸中では異なる錯イオンを形成することが報告されており [1]、TOMA 担持樹脂の抽出特性は、イオンの電荷だけでなく、化合物の何らかの性質を反映していると考えられる。本研究では、TOMA 担持樹脂による固相抽出機構を明らかにするために、飽和吸着量や、フッ化水素酸中の陰イオンの吸着挙動など、担持樹脂の基礎的性能を調べることにした。

【実験】担持体となるスチレンジビニルベンゼン共重合体樹脂 (CHP20/P30) を 1 g 程度量り取り、メタノールを加え、スターラーで攪拌・懸濁させた。TOMA-Cl を 0.4 g 量り取り、メタノールに溶かし、CHP20/P30 に加えた。24 時間攪拌したのち、メタノールを蒸発させるために 24 時間放置し、80 °C の真空オーブンで質量が一定になるまで加熱した。

はじめに、TOMA 担持樹脂に吸着する陰イオンの最大量である飽和吸着量を測定した。Cl 型の TOMA 担持樹脂は NO₃⁻ をよく吸着することが分かっている。NO₃⁻ が Cl⁻ と交換するとして、種々の濃度の NO₃⁻ を含む水溶液を用いて脱離する Cl⁻ を定量した。40 wt% TOMA-Cl 担持樹脂 21 mg を 2 mL のポリプロピレンチューブに入れ、種々の濃度の NaNO₃ 水溶液を 1.2 mL チューブに加え、25 °C、1500 rpm で振とうした。遠心分離したのち、水溶液を 200 μL 分取し、チオシアン酸水銀(II)法により Cl⁻ を定量した。

【結果】NO₃⁻ の吸着は Cl⁻ との単純な交換平衡によるものと仮定し、平衡定数 K 、飽和吸着量 q をパラメータとしてフィッティングしたところ、実験値をよく再現した。その結果、平衡定数は $K = 2.20$ 、飽和吸着量は $q = 0.699 \mu\text{mol mg}^{-1}$ となった。本実験で使用した 40 wt% 担持樹脂の場合、担持されている TOMA は $0.723 \mu\text{mol mg}^{-1}$ であるので、担持した TOMA のほぼすべてが陰イオンの吸着に関与し、担持樹脂への吸着は Cl⁻ との交換であることが分かった。発表ではフッ化水素酸中の陰イオンの吸着挙動についても報告する。

【参考文献】

[1] Yu. A. Buslaev *et al.*, J Fluor. Chem. **29** (1985) 51.

Adsorption properties of fluoride complex anions on TOMA-supported resin
NUMAJIRI, S., GOTO, S.

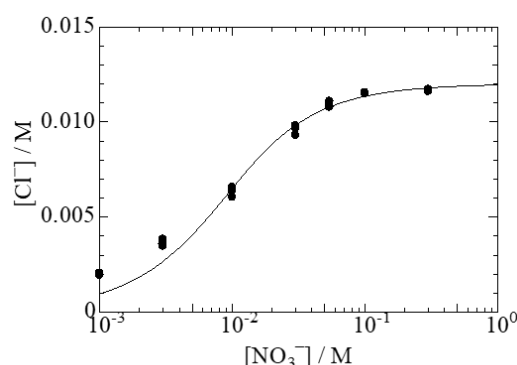


図 1. TOMA 担持樹脂中の Cl⁻ 定量結果

1P05

超重元素シーボーギウム(Sg)の溶液化学研究に向けた タングステン(W)の HF/HNO₃系における陰イオン交換実験

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

【緒言】 106番元素 Sg は、陽イオン交換実験により 5×10^{-4} M HF/0.1 M HNO₃ 水溶液中において陰イオン化合物を形成することが示唆されている[1]。我々のグループでは、Sgの詳細な陰イオン交換挙動を調べるために、3段イオン交換カラムを用いた実験を計画している。この手法は、陽イオン交換カラム、陰イオン交換カラム、そして陽イオン交換カラムの順に、連続したイオン交換カラムを用いることで、²⁴⁸Cm(²²Ne, 5n)反応による²⁶⁵Sg合成時に生成する副生成物の影響を除き、半減期が10秒ほどしかない²⁶⁵Sgの陰イオン交換挙動の観測を可能とする。本研究では、同族元素であるWを用いてSg実験に向けた実験条件の検討をおこなった。

【実験】 実験で用いた¹⁸¹W($T_{1/2} = 121.2$ d)は、原子力機構タンデム加速器施設においてTa標的への陽子または重陽子照射により合成し、イオン交換分離法により無担体トレーサーとして調製した。Wの陰イオン交換挙動を調べるため、 10^{-4} M ~ 1 M HF/0.1 M HNO₃に調製したWトレーサー溶液に陰イオン交換樹脂(三菱化学製 MCI GEL CA08Y)を加え、一定時間振盪させたのちに、振盪前後の水溶液中の放射能を測定して分配係数(K_d)を求めた。いくつかのHF濃度についてイオン交換樹脂へのW吸着の平衡到達時間を調べたのち、HF濃度に対する K_d 値の変化を求めた。

【結果・考察】 水溶液温度 70 °Cならびに 25 °Cについて、それぞれHF濃度を 10^{-4} M、 10^{-2} Mおよび1 Mとしたときの計6条件で平衡到達時間測定をおこなった。その結果、温度・HF濃度によらず、どの実験条件においても3分未満で平衡に到達していることを確認した。これを踏まえて、温度を70 °C、振盪時間を10分間としてHF濃度に対する K_d 値の変化を調べたところ、HF濃度が 10^{-4} M ~ 10^{-2} Mでは、 K_d 値はHF濃度増加にともなって単調に減少するのに対し、 10^{-2} M周辺から増加に転じた(図1)。この挙動は、文献

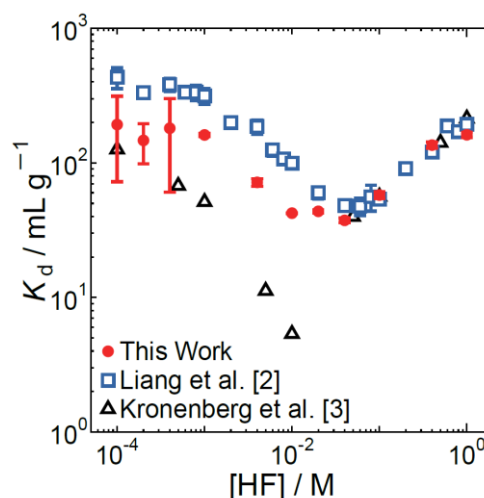


図1. 10^{-4} M ~ 1 M HF/0.1 M HNO₃におけるWの K_d 値のHF濃度依存性

[2, 3]で報告されたものとよく似ており、それぞれの濃度範囲でWが異なる化学種で存在することを示唆している。しかしながら、HF濃度が高い領域ではどちらの報告でも再現性よく一致するのに対し、 10^{-2} Mより低い濃度範囲では K_d 値の絶対値は大きく異なっている。今回得た結果は文献[2]に近く、低いHF濃度領域での挙動について詳細な検討が必要であることを示唆している。発表では、HF/HNO₃中でのWの化学種についても議論する。

[1] M. Schädel et al., *Radiochim. Acta* 77 (1997) 149-159.

[2] X. H. Liang et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 292 (2012) 917-922.

[3] A. Kronenberg et al., *Radiochim. Acta* 92 (2004) 395-403.

The anion exchange experiment using W in HF/HNO₃ for liquid phase chemistry of element 106, Sg (1. Graduate School of Sci. and Eng., Ibaraki Univ., 2. ASRC, JAEA) ○Yuta Miyachi^{1,2}, Tetsuya Sato^{1,2}, Kazuaki Tsukada², Masato Asai², Yuta Ito², Hina Natori^{1,2}, Yuichiro Nagame²

1P06

量子化学計算による 102 番元素ノーベリウムのアミン錯体生成反応の予測

(大阪大学理学研究科化学専攻¹、理化学研究所²)○板倉 悠大^{1,2}、金子政志¹、風間裕行¹、永田光知郎¹、王瑞麟^{1,2}、紺野未夢^{1,2}、Khult Enni^{1,2}、柴本恭佑^{1,2}、橋場奏^{1,2}、笠松良崇^{1,2}

【緒言】原子番号が 100 を超えるような元素は、相対論効果の影響で周期律を逸脱する可能性があり、興味を持たれている。しかし、一度に取り扱える量が少ないために化学実験を行うことが難しく、その性質は未解明な点が多い。102 番元素ノーベリウム (No) はアクチノイド元素において唯一水溶液中で+2 価を最安定にとり、化学的性質は 2 族元素に類似している[1]。本研究室では、独自に開発した手法により No および 2 族元素の水酸化サマリウム共沈挙動を調べ、No は 2 族元素と違いアミン錯体を形成する可能性を示してきた。比較対象である 2 族元素の水酸化サマリウム共沈挙動がマクロ量水酸化物沈殿の挙動と一致しないという課題があったが、マクロ量水酸化物沈殿挙動には炭酸塩が影響を与えていることが示された[2]。本研究では、水酸化サマリウム共沈挙動をもとに、No(II)アミン錯体形成の可能性を量子化学計算により検証した。No とアンモニアとの錯形成定数を反応ギブズエネルギーから $\ln K^0 = -\Delta G^0/RT$ という関係式を用いて予測し、アミン錯体の電子状態解析から No(II)と 2 族元素や Yb(II)とのアミン錯体の安定性の違いについて議論した。

【計算】全ての量子化学計算は ORCA v5.0.3 を使い、スカラー相対論 ZORA ハミルトニアンによる密度汎関数法を適用した。構造最適化には B3LYP 汎関数、一点計算には PBE0 汎関数を用い、基底関数として TZVP 基底系を全元素に割り当てた。金属錯体については、アコ錯イオン $[M(H_2O)_n]^{2+}$ 及び 1:1 アミン錯イオン $[M(NH_3)(H_2O)_{n-1}]^{2+}$ ($M = Mg, Ca, Sr, Ba, Yb, No; n = 6-9$) をモデル化し、第一配位圏より外側については連続誘電体近似(COSMO)により考慮した。得られた波動関数を用いて、Mulliken, NBO, QTAIM 法に基づいて電子状態解析を行った。錯形成定数は NIST Database[3]の実験値を用いた。

【結果】2 族元素のアミン錯体形成反応に関する $\ln K'$ を ΔG^0 に対してプロットした結果(図 1)、よい線形関係を示した。この関係性から、No(II)のアミン錯体の $\ln K'$ を予測した結果、Ca(II), Sr(II)よりも大きく、Mg(II)と同程度の錯形成定数を持つ可能性が示された。これはイオン半径から予測される傾向と異なり、非常に興味深い結果である。さらに、NBO, Q-TAIM 解析の結果、Yb(II)及び No(II)は 2 族元素と比較してアンモニアと共有結合的な相互作用を示すことがわかった。結合次数及び PDOS 解析の結果、No(II)では 5f 軌道が共有結合性に寄与し、Yb(II)よりもアンモニアとの結合が強いことがわかった。結論として、No(II)の強い共有結合性が 2 族元素との共沈挙動の違いの一因であることが示唆された。

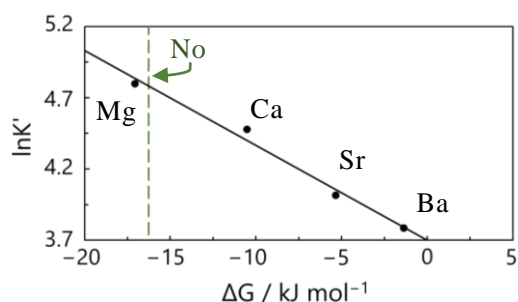


図 1 $\ln K'$ vs. ΔG プロット

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

[2] 板倉ら、日本放射化学会第 67 回討論会(2023), 1P04

[3] D. R. Burgess, NIST SRD 46. (2004).

Prediction of ammine complexes formation of nobelium by DFT calculation

ITAKURA Y., KANEKO M., KAZAMA H., NAGATA K., WANG R. KONNO M., KHULT E., SHIBAMOTO K., HASHIBA S., KASAMATSU Y.

1P07

超重元素合成のための電解析出によるターゲット作製

(新潟大院自然¹、理研²)○池田航貴¹、後藤真一¹、加治大哉²

【緒言】 超重元素の合成に利用される Cm などのアクチノイドターゲットは、2-プロパノールを溶媒とする分子めっき法で作製されることが多い。しかし、この方法では密着性が低く、大強度ビームに対する耐久性が課題である。また、不純物が付着しやすいという問題があり、新たなターゲット作製法の開発が望まれている。そこで本研究では、水溶液系の電着として Cm 精製から直接ターゲットを調製できる硝酸系による電解析出法に着目した。アクチノイドのモデルとしての Sm を用い、高効率かつ均一な表面で約 $500 \mu\text{g cm}^{-2}$ 程度の厚いターゲットを得るための条件を検討した。

【実験】 電着溶液として、硝酸サマリウム(III)六水和物を種々の濃度の硝酸 5 mL に溶解させ、Sm として 0.5 mg mL^{-1} の溶液とした。初期 pH はこの時の硝酸濃度により調整した。この溶液 1 mL に純水 10 mL を加えて全量を 11 mL にして、内径 17 mm のガラスセルに入れた。厚さ 0.05 mm の SUS304 をカソード、0.8 mmφ の白金線をアノードとし、渦巻き状にしてカソードから 5 mm の位置に配置した。電着後、 α 線スペクトロメータを用いて ^{147}Sm からの α 線を測定し、計数率から厚さと電着効率を算出した。

【結果と考察】 α 線源の作製で一般的に行われる定電流条件[1]で、初期 pH を変化させ、電着効率、表面状態などを調べた。その結果、pH2.4 のとき電着効率は 90% で最大となり、この時の厚さは約 $200 \mu\text{g cm}^{-2}$ であった。より厚いターゲットを作製するために、pH2.4 で Sm 濃度を増加した溶液で電着を行ったが厚さはわずかに厚くなる程度で、電着効率は大きく低下した。さらに、電着物の粒子は大きくなり、剥離しやすくなった。

次に電着物の化学形と、表面状態を詳細に調べるため、EPMA 測定を行った(図 1)。その結果、電着物は水酸化物であり、電着時間を長くすると、電着効率は変化しないが表面が均一になることが分かった。

発表では定電圧での結果などについても報告する。

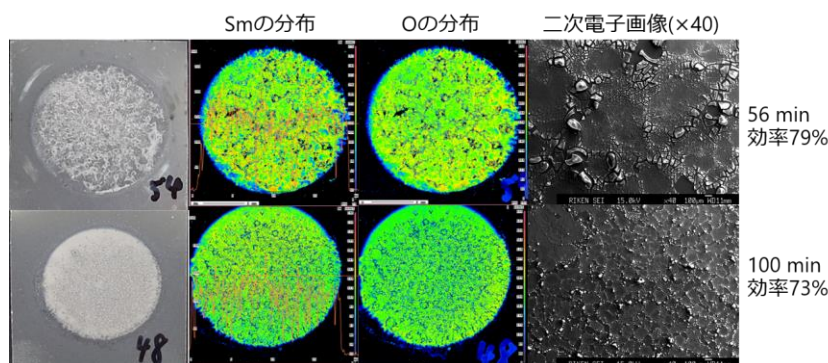


図 1 EPMA 測定の結果

【参考文献】

1. P.A.L. Da Cruz *et al.*, Nucl. Instrum. and Methods A286 (1990) 453–456.

Target Preparation Using Electrocrystallization for Synthesis of Superheavy Elements
IKEDA, K., GOTO, S., KAJI, D.

1P08

⁶⁷Cu 大量製造へ向けた亜鉛と銅の熱分離挙動

(株)千代田テクノ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

【緒言】⁶⁴Cu と ⁶⁷Cu は Theranostics (Therapeutics + Diagnostics) に用いる核種として注目されている。我々は ^{64,67}Cu の大量製造を目指し、加速器中性子を金属 Zn に照射して ^{64,67}Cu を生成し、熱分離法と固相抽出クロマトグラフ法を用いて ^{64,67}Cu の分離精製を行う手法の開発に取り組んでいる。

高純度・大量の ^{64,67}Cu の製造と定常的な供給を達成するためには高額な濃縮 ^{64,68}Zn の再利用が不可欠である。熱分離法では Zn と Cu の蒸気圧差を利用して Zn のみを昇華し、Cu と分離している。ターゲット中に γ 線を放出する放射性 Zn が存在すれば、トレーサーとして分離装置外から Zn の分離挙動を観測できるが、ターゲットが濃縮 ⁶⁴Zn や ⁶⁸Zn の場合、生成される放射性 Zn が少ないため、Zn の昇華する状況を観測できない。本発表では、^{64,67}Cu 大量製造の試料として濃縮 Zn を利用することを想定し、外部から Zn 昇華の観測をすることなく熱分離するために、亜鉛の分離挙動を評価した。

【実験】東北大学 RARiS のサイクロトロンまたは電子線形加速器で照射した ^{nat}Zn を入れたガラス容器を熱分離装置内に設置し、減圧下、600 °C で加熱した。昇華した Zn は回収管に析出し回収される。Zn 昇華中は CZT (CdZnTe) 半導体結晶を用い、装置外部から試料設置部の ^{65,69m}Zn の γ 線ピークを観測した。加熱温度が 600 °C に到達した時点の ^{65,69m}Zn のピーク面積を 100% とし、ピーク面積の減少が止まった時点で Zn が全て昇華したと判断し、Zn 重量と昇華時間の関係を求めた。また、加熱中の装置内の圧力はどの試験時も 10⁻⁵ hPa 台であり、Zn 昇華速度に影響は与えていない。

【結果】Zn 昇華速度はターゲットの量に依存して変化することが明らかになった。我々の製作した熱分離装置での Zn 重量と熱分離時間の関係は下記の式で求められる。

$$T=W/(0.0081W+0.089) \quad ※T:時間 (min)、W:重量 (g)$$

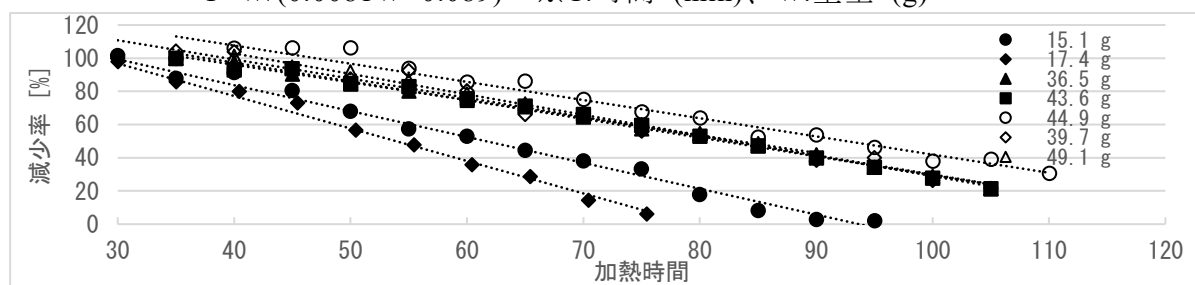


図 試料設置部の ⁶⁵Zn 由来 γ 線ピーク面積の減少

参考文献

1) Y. Sugo et. al., J. Phys. Soc. Jpn. 86, 023201 (2017)

Behavior of Zinc and Copper during Thermal Separation for ⁶⁷Cu Mass Production

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

1P09

JRR-3 を用いた Lu-177 製造に関する生成量評価

(原子力機構¹、千代田テクノロ²)○藤野隼輔¹、橋本和幸¹、佐伯秀也²、河内幸正²、川端方子²、千葉悠介¹

【緒言】 ^{177}Lu (半減期: 6.65 日) は神経内分泌腫瘍の治療薬として、ルタテラが国内承認されており、さらなる治療薬開発が期待されている核種の 1 つである。しかし、 ^{177}Lu は海外からの輸入に依存しており、輸送トラブル等により国内流通及び薬剤開発等に影響を及ぼすことが懸念される。そのため、原子力機構で ^{177}Lu の一部を国内で製造可能かどうかを確認するため、JRR-3 を用いた ^{177}Lu の生成量評価を実施した。原子炉を用いた ^{177}Lu の製造方法は、 $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$ 反応による直接法と $^{176}\text{Yb}(n,\gamma)^{177}\text{Yb}$ 反応により生成する ^{177}Yb (半減期 1.91 時間) の β 壊変による ^{177}Lu を利用する間接法があり、直接法は ^{177}Lu の生成量が比較的多いが、同時に生成する長半減期 (160.4 日) の $^{177\text{m}}\text{Lu}$ を含む。一方、間接法では原理的に無担体 (no carrier added) の ^{177}Lu が得られ、かつ $^{177\text{m}}\text{Lu}$ を含まないが、Yb と Lu の分離操作が必要である。

【実験】照射試料として、ISOFLEX (USA) 製の Lu_2O_3 (^{176}Lu 濃縮度 64.3%) 又は Yb_2O_3 (^{176}Yb 濃縮度: 99.9%) の 1 M 硝酸溶液を調製し、100 μL を石英アンプルに注入して重量評価した後 (0.1 mg Lu 又は 0.1 mg Yb 相当)、蒸発乾固させた。また、約 5 mg の Yb 試料を直接石英アンプルに封入したものも作成した。溶封した石英アンプルをアルミ製照射キャプセルに充填し、JRR-3 の水力照射設備 (HR-1, 熱中性子束: $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{s}$) にて 1、7、14 日照射した後に電離箱及び Ge 検出器にて放射能を測定した。

【結果】直接法及び間接法により得られた ^{177}Lu の生成量を Fig.1 及び Fig.2 に示す。Fig.1 に示した直接法による実測値 (照射直後) は、熱中性子法による計算値を約 4 割上回る結果であり、熱外中性子による影響が大きいことが確認できる。比放射能は、14 日照射の場合で 400 GBq/mg Lu であり、海外製の ^{177}Lu 製品 (LuMark) の比放射能 ($> 500 \text{ GBq/mg Lu}$) より低い値である。また、 $^{177\text{m}}\text{Lu}$ の割合 ($^{177\text{m}}\text{Lu}/^{177}\text{Lu}$) は、照射時間が長くなるほど増え、0.004~0.007% であり、ルタテラの基準値 ($< 0.05\%$) を下回っていることを確認した。一方、間接法による ^{177}Lu 生成量 (Fig.2: ^{177}Yb の壊変を待ため、照射後 3 日経過時の評価) は、14 日照射の場合、0.5 GBq/mg Yb であり、熱中性子法による計算値の約 90% ほどであった。

【まとめ及び今後の展望】JRR-3 を用いた ^{177}Lu の直接法により、薬剤開発等の非臨床試験に十分な量の ^{177}Lu を製造できることを確認した。また、間接法では、10-100 mg の ^{176}Yb の照射により、5-50 GBq の ^{177}Lu を製造可能であり、Yb/Lu 分離法の開発が、今後の課題である。

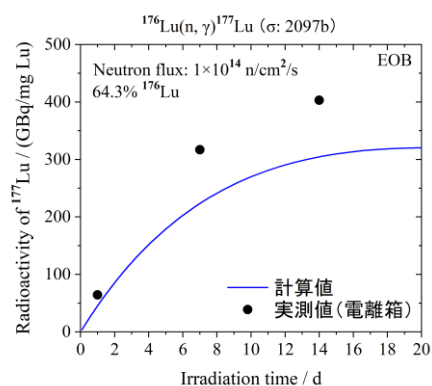


Fig.1 直接法による ^{177}Lu の生成量評価

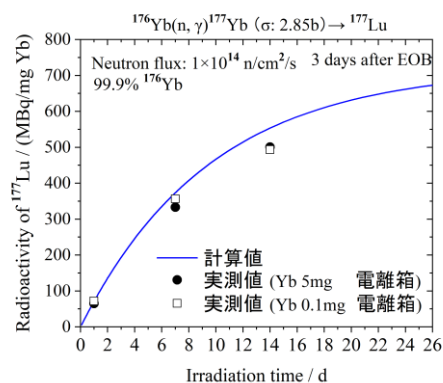


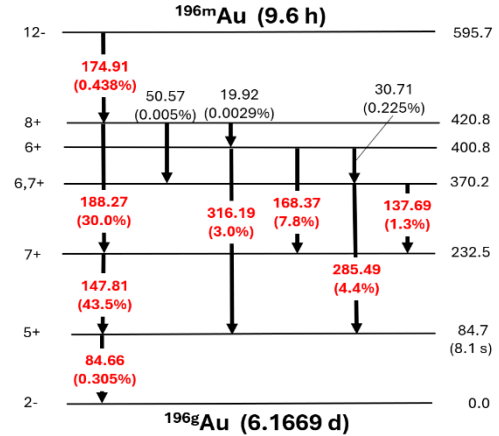
Fig.2 間接法による ^{177}Lu の生成量評価

Evaluation of Lu-177 production in the research reactor JRR-3
Fujino S., Hashimoto K., Saeki H., Kawauchi Y., Kawabata M., Chiba Y.

1P10

高速中性子照射により生成した ^{196m}Au の γ 線放出確率の測定(新潟大院自然¹、日本原子力研究開発機構²、東北大学³)○長泰秀¹、後藤真一¹、塚田和明²、浅井雅人²、佐藤哲也²、伊藤由太²、菊永英寿³

【緒言】金は中性子モニターとして広く利用されており、 $^{197}\text{Au}(n,2n)$ 反応で生成する ^{196}Au からは高速中性子束の量を得ることができる。しかし、 ^{196m}Au ($t_{1/2} = 9.6$ h) については、放射能が γ 線ピークごとにばらつく結果が得られており、 γ 線放出確率の文献値[1]が誤っている可能性が考えられた。本研究では、 ^{196m}Au の γ 線放出確率を高い精度で求めるとともに、 ^{196m}Au と同じ半減期で減衰するものの、文献[1]において遷移が不明となっている 263.8 keV の遷移を確定させることとした。

図 1 ^{196m}Au の壊変図[1]

【実験】実験は JAEA 20 MV タンデム加速器施設にて行なった。タンデム加速器で 25 MeV に加速した約 500 nA の重陽子ビームを Be コンバータに照射することで高速中性子を発生させた。ターゲットは 25 mm 角、厚さ 80 μm (20 $\mu\text{m} \times 4$) および 100 μm (50 $\mu\text{m} \times 2$) の金箔とし、それぞれ 1 時間高速中性子を照射した。照射後、最初に照射したターゲットのうちの 1 枚 (20 μm) を用いて γ - γ 同時計測を行なった。また、2 回目の照射ターゲットについて、2 時間の γ 線測定を約 10 日間行なった。

【結果】今回測定できた ^{196m}Au の γ 線は、図 1 の赤字のものとして 263.8 keV であった。比較的 γ 線放出確率の大きい ^{196m}Au の 188.3 keV の γ 線に対する相対的な放出確率の値を求めた。相対放出確率はほとんどのピークで文献[1]より小さい値となり、最新の報告[2]を再現した(図 2 下)。84.7 keV については、最新の報告とも異なっていたが、これまでの値に比べ高い精度で測定することができた(図 2 上)。また、 ^{196g}Au の放射能の成長・減衰から ^{196m}Au の放射能を求め、放出確率の絶対値を求めた。 ^{196m}Au の 188.3 keV について、 0.2926 ± 0.0070 と決定した。この値は、文献[1]では 0.300 ± 0.015 、文献[2]では 0.3352 ± 0.0097 であり、いずれよりも小さい値となった。発表では γ - γ 同時計測の結果を含めて詳細を報告する。

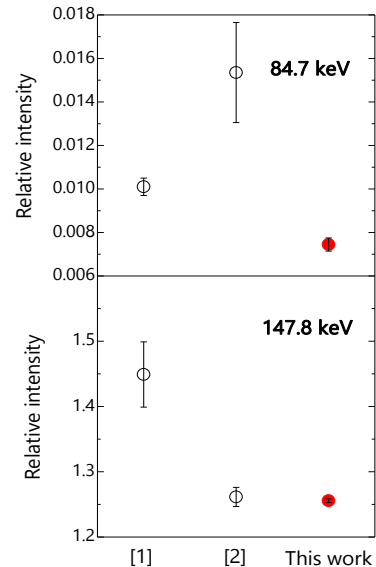


図 2 相対的な放出確率の比較

[1] X. Huang, Nucl. Data Sheets **108** (2007) 1093.[2] K. Moody *et al.*, J. Phys. G **47** (2020) 045116.

Measurement of γ -ray intensity of ^{196m}Au by fast neutron irradiation
CHO Y., GOTO S., TSUKADA K., ASAI M., SATO T., ITO Y., KIKUNAGA H.

1P11

光核反応による放射化シスプラチンの製造

(東北大 RARiS¹、金沢大 ReCEMHD²、理研仁科セ³)○横北卓也¹、本多佑記¹、木村寛之²、重河優大³、羽場宏光³、菊永英寿¹

【緒言】

シスプラチンは、DNA との付加物形成により、がん細胞に細胞毒性を及ぼし、アポトーシスを誘導させることで、様々な種類のがん治療に利用できる抗がん剤である。一方、この作用は標的部位以外でも引き起こされ、様々な副作用の原因となっている[1]。このため、シスプラチンの副作用軽減のため、シスプラチンの類縁体の合成や、放射性 Pt を使用した生体内分布が研究されている。このような研究の原料として使用される放射化シスプラチンの製造に制動放射線を利用すると一部が変性するため、大量製造は困難であった。そこで、金属 Pt に制動放射線を照射し、金属 Pt を原料とした放射化シスプラチンの合成による放射化シスプラチンの製造法を開発した。

【実験】

^{191,195m}Pt の製造量を確認するため、Pt 金属板 (~67 mg; 直径: 1 cm) を石英管に封入し、東北大学先端量子ビーム科学研究センターの大強度電子線形加速器で、30、50、55 MeV に加速した電子ビームを 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照射した。照射した試料は Ge 検出器で γ 線測定を行った。

シスプラチンの合成は、金属 Pt を王水で加熱しながら溶解させた後、溶液を乾固した。この試料に、濃塩酸を加え乾固する操作を繰り返した後、KCl を含む HCl を加え、沈殿を作製した。この試料にヒドラジン・一水和物を加え、沈殿がなくなるまで加熱攪拌した。その後、濃塩酸を加え、攪拌しながら溶液を乾固させた。続いて、KI 水溶液を加え、加熱攪拌した後、室温にし、NH₃ 水溶液を滴下し、攪拌し、沈殿を作製した。溶液と沈殿を PP チューブに移し、遠心分離 (4800 rpm; 10 分) を行い、固液分離を行った。沈殿に AgNO₃ 水溶液を加え、攪拌後、湯浴で加熱した。その後、遠心分離 (4800 rpm; 10 分) をし、溶液を分取した。この溶液に HCl と KCl を加え、湯浴で加熱した後、冷蔵庫で一晩冷却した。遠心分離 (4800 rpm; 10 分) をし、固液分離をし、沈殿を冷水で洗浄した後、乾燥させ、シスプラチンを得た。得られたシスプラチンの同定のため、沈殿の一部を XRD 及び、NaCl 水溶液に溶解し、UV-Vis スペクトルを測定した。

【結果・考察】

55 MeV、152 μ A、7 h 照射により、比放射能 65 kBq/mg の ¹⁹¹Pt 及び 124 kBq/mg の ^{195m}Pt が製造された。また、XRD 及び UV-Vis スペクトルの測定から得られた化合物をシスプラチンと同定し、合成したシスプラチンの収率は 13%であった。本手法は、シスプラチンへの制動放射線照射に比べ、放射化シスプラチンの製造量向上が可能である。今後、シスプラチンの合成収率を向上させ、Pt 金属の照射時間を延ばすことで、より比放射能の高い放射化シスプラチンの製造量向上を目指す計画である。

[1] S. A. Aldossary, Biomed. Pharmacol. J. **12**, 7 (2019).

Production of radioactive cisplatin by photonuclear reaction

YOKOKITA, T., HONDA, Y., KIMURA, H., SHIGEKAWA, Y., HABA, H., KIKUNAGA, H.

1P12

 $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ 反応の励起関数検証の試み(東北大 RARiS¹、東北大金研²)○菊永英寿¹、横北卓也¹、白崎謙次²

【緒言】 $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)^{225}\text{Ra}$ 反応は核医学治療に使われる核種 ^{225}Ac を製造するための核反応経路の一つである。本反応の励起関数は ^{225}Ac 製造可能量の推定など様々な用途で用いられる。しかしながら、光核反応の励起関数の測定は、光子のエネルギーを決めるための装置など大型の機器を必要とするため容易ではない。また、反応生成物のラジウムはそれ自身の放射能および娘核種であるラドンの飛散による汚染が問題となるため、ターゲットとして扱いにくい。そのため、 $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ 反応の励起関数は、これまで実験的に求められたことはなく、原子核反応コードを基にした推定値[1]が利用できるのみである。そこで本研究ではこの推定値の正確さを確かめるため、放射化法を基に検証を行ったので報告する。

【実験】 光核反応により照射終了時に生成する放射エネルギー A_{EOB} は以下の式で表せる。

$$A_{EOB} = n \cdot f \cdot Y(E_0) \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

$$Y(E_0) = \int_0^{E_0} \Phi(E) \sigma(E) dE$$

ここで、 n はターゲット量、 f は電子ビーム量、 E_0 は加速電子のエネルギー、 $Y(E_0)$ はこの照射系における 1 電子あたりの生成収率、 λ は生成 RI の壊変定数、 t は照射時間、 $\Phi(E)$ はターゲットに入射する 1 電子あたりの制動放射線スペクトル、 $\sigma(E)$ は励起関数である。照射後の A_{EOB} を再現できる $\sigma(E)$ を探すことが本研究の目標である。計算に必要な $\Phi(E)$ は照射条件から光子輸送計算コード[2]を用いて計算することができるが、その絶対値を正確に再現することは困難である。そこで反応断面積が精度良く求められている Au を、Ra と同じジオメトリで照射することにより $\Phi(E)$ を補正した。

片側が閉じられた石英管に約 20 kBq の塩化ラジウムの溶液と Au 標準溶液を加え、加熱することで乾固した。その石英管を He 雰囲気中で熔融封入したものを照射ターゲットとした。照射は東北大学先端量子ビーム科学研究センターの大強度電子線形加速器で行った。25, 30, 40 および 50 MeV に加速した電子ビームを水冷 Ta 板に照射して発生させた制動放射線を、照射ターゲットに水冷下で照射した。ビーム電流は約 140 μA で 8 時間照射した。照射後のターゲットは $^{225}\text{Ra}(T_{1/2}:14.8 \text{ d})$ から $^{225}\text{Ac}(T_{1/2}:9.9 \text{ d})$ が成長するまで 2 週間程度放置してから、高純度 Ge 検出器を用いた γ スペクトロメトリーを行った。

【結果】 照射後の試料から ^{225}Ac の娘核種である ^{221}Fr および $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ 反応で生成する ^{196}Au から放出される γ 線のピークが明確に観測できた。本講演では、実験から求めた ^{225}Ra 及び ^{196}Au の放射能比と原子核反応コードを基にした推定値から計算した放射能比の比較を行い、 $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ 反応の励起関数の信頼性について議論する。

【参考文献】

[1] 例えば TENDL-2023 (https://tendl.web.psi.ch/tendl_2023/tendl2023.html) など

[2] PHITS Ver. 3.34: T. Sato et al., J. Nucl. Sci. Technol. 61, 127 (2024)

Attempt to verify the excitation function of the $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ reaction
KIKUNAGA H., YOKOKITA, T., SHIRASAKI, K.

1P13 核セキュリティを支える核鑑識技術-ISCN における最近の研究開発と今後

(日本原子力研究開発機構核不拡散・核セキュリティ総合支援センター¹、検査開発株式会社²、株式会社パワーコンピュータ³、原子力エンジニアリング株式会社⁴)○山口 知輝¹、木村 芳紀¹、海野 勇次²、細井 雅春²、松本 哲也³、関根 勝則⁴

【緒言】 日本原子力研究開発機構核不拡散・核セキュリティ総合支援センター(ISCN)では、核・放射性物質の盗取・密輸を始めとした規制外の核・放射性物質に関連する核セキュリティ事案への対応を支援する核鑑識に関し、我が国の技術的能力の整備と国際社会における能力向上への貢献を目的とした研究開発を進めている。

【ISCN における核鑑識技術開発について】

核鑑識とは、犯罪や核・放射線テロ (RN テロ) 行為などの現場で押収された規制外の核・放射性物質を分析測定し、物理的・科学的な特徴からそれらの起源・履歴などを特定することで、法執行機関による捜査活動を支援する情報を提供する技術的手段を指すものである。ISCN では、平成 23 年度から文部科学省核セキュリティ強化等補助金事業の一環で核鑑識に関する技術開発を進めている。

平成 23 年度に核鑑識技術開発を開始した当初は、主に IAEA ガイドライン等で推奨される分析技術や、以前の MORC (規制外の核・放射性物質) 関連の事件で検証された分析技術に焦点を当て、核鑑識ラボの能力の確立に取り組み、核鑑識分析技術の基礎的能力を取得した。その後、この基盤をもとに、その能力を強化するとともに、その成果を国際社会と共有することを目指してきた。

近年は、ステークホルダーのニーズに応え、in-situ ウラン年代測定や代替クロノメーター分析法、粒子サンプルの顕微鏡画像解析などの高度化に取り組んでいる。国内外のパートナーのニーズに基づき、核鑑識の社会実装のための技術開発に焦点を拡大した。これには、「テロ事案発生後」の核鑑識、低コストの分析ツールの開発、AI などの新興技術の応用、および多角的なサンプル分析のための新しいシグネチャーなどの分野が含まれる。また、特に国内の学界やアジアなどの新興国と人材育成の経験を共有することも、プロジェクトの重要な目標の一つとして取り組んできた。これら技術開発テーマを通じて、US-DOE/NNSA、EC-JRC、ITWG、FNCA などの国際的なパートナーと積極的に協力してきたところである。

本発表では、核鑑識に関する ISCN における最近の研究開発成果の概要を報告し、今後の展望を議論する。

Nuclear Forensics Technology supporting Nuclear Security -Recent R&Ds and Future Prospects at ISCN- (2024)

YAMAGUCHI, T., KIMURA, Y., UMINO, Y., HOSOI, M., MATSUMOTO, T., SEKINE, K.

1P14

もんじゅサイト新試験研究炉における中性子放射化分析関連装置の計画

(京都大¹、産総研²、福島県立医大³、都立大⁴、原子力機構⁵、大阪大⁶、神奈川大⁷、高エネ機構⁸)○稲垣誠¹、高宮幸一¹、三浦勉²、鷺山幸信³、秋山和彦⁴、大澤崇人⁵、笠松良崇⁶、白井直樹⁷、土谷邦彦⁵、吉田剛⁸、佐藤信浩¹

【緒言】 福井県敦賀市の「もんじゅ」サイトを活用し、新たな試験研究炉が設置されることとなった。その設置に向け、日本原子力研究開発機構、京都大学、福井大学が連携し、新試験研究炉の設計とその利用に関する検討を進めており、京都大学では、実験装置ごとに装置検討委員会を編成し、実験装置に関する検討を進めている。新試験研究炉は、中性子ビーム利用に適する出力 10 MW 程度の中出力炉として計画されており、約 50 m×120 m の敷地に、原子炉本体施設、中性子ビームを用いて実験を行うビームホール、中性子を照射した試料等の放射性同位体 (RI) を取り扱うホットラボラトリ、原子炉管理棟などを配置することを予定している。本発表では、これらのうち、中性子放射化分析・研究用 RI 製造に関連する実験装置およびホットラボラトリについて行った検討について報告する。

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

新試験研究炉における中性子放射化分析および研究用 RI 製造に関連する実験装置について、必要となる装置の案を検討した。照射装置として、水力照射管、気送照射管、および吊り下げ式照射装置を検討した。水力照射管は、事業用の RI 製造等に 2~3 基が専有されると想定し、研究用として 2~3 基、総数で 5 基を計画した。気送照射管は、炉心からの距離に変化を持たせることで中性子スペクトルに変化を持たせ、総数で 6 基を計画した。また、KUR の傾斜照射孔に類似する装置として、吊り下げ式照射装置を計画した。これは、比較的大型の試料を炉頂から吊り下げる形で照射を行う装置である。この他、詳細は講演にて発表する。

Plan for equipment related to neutron activation analysis in the new research reactor at the Monju site
INAGAKI, M., TAKAMIYA, K., MIURA, T., WASHIYAMA, K., AKIYAMA, K., OSAWA, T., KASAMATSU, Y., SHIRAI, N., TSUCHIYA, K., YOSHIDA, G., SATO, N.

1P15

微量の放射性核種の検出に向けた脱溶媒ネブライザーによる ICP-MS の測定性能の向上

(¹日本原子力研究開発機構)

○小荒井一真¹、松枝誠¹

【緒言】ICP-MS の性能向上に伴い、近年は幅広い放射性核種に対して ICP-MS 法が適用され始めている。ただし、ICP-MS 法の検出下限値 (LOD) では極微量の環境試料中の核種を検出できないという課題もある。LOD を低減させるためには、検出感度の向上と測定干渉の抑制も必要である。測定干渉として想定されるものとして、各質量数でのバックグラウンドノイズや同重体 (⁸⁸SrHH、¹²⁷IHH、⁹⁸MoH など) が挙げられる。脱溶媒ネブライザーは、イオン化効率の改善による感度上昇や溶媒由来の干渉の除去が期待でき、LOD の低減に寄与する可能性がある。本発表は、難分析核種の ⁹⁰Sr、¹²⁹I、⁹⁹Tc を対象に脱溶媒ネブライザーにより LOD を改善し、ICP-MS での放射性核種測定のパフォーマンスを向上できないか検討した。

【実験方法】各試験は ICP-MS/MS (NexION5000、パーキンエルマー社製) を用いた測定により行った。ICP-MS と接続するネブライザーは標準導入系と脱溶媒ネブライザー (APEX Ω、ESI 社製) の 2 つを用いた。測定モードは MSMS モードとした。リアクションガスは、それぞれ次のように設定した; 酸素+アンモニア (⁹⁰Sr 測定時)、; 酸素+二酸化炭素 (¹²⁹I 測定時)、; 酸素のみ (⁹⁹Tc 測定時)。⁹⁰Sr、¹²⁹I、⁹⁹Tc の検量線は RI 標準溶液により作成した。水素化物の干渉の評価に用いる試料は、安定 Sr、Mo は単元素標準液、安定 I はヨウ化アンモニウム水溶液により調整した。

【結果と考察】表 1 に脱溶媒ネブライザーと標準導入系での測定結果を示す。測定感度は検量線の傾き、バックグラウンドノイズはバックグラウンド等価濃度 (BEC) により評価した。3 核種のいずれの測定においても、脱溶媒ネブライザーにより感度が向上した。Sr、Tc の感度上昇が約 10 倍程度であるのに対し、I は 76 倍感度が上昇しており、脱溶媒によるイオン化効率の向上は特にヨウ素に対して効果的であったと考えられる。また、BEC も 3 核種について低下し、バックグラウンドノイズも脱溶媒ネブライザーにより低減できた。その結果、3 核種いずれも LOD を 1/4~1/12 低減することができた。水素化物による干渉は、⁸⁸SrHH、¹²⁷IHH、⁹⁸MoH による ⁹⁰Sr、¹²⁹I、⁹⁹Tc への干渉によって評価した。⁸⁸SrHH、¹²⁷IHH からの干渉はアバNdダンス感度により評価した結果、脱溶媒ネブライザー (1.1×10^{-10} (90/88)、 4.1×10^{-9} (129/127)) と標準導入系 (1.9×10^{-10} (90/88)、 3.3×10^{-9} (129/127)) で同等であった。⁹⁸MoH による干渉は標準導入系では 10 ng mL^{-1} で干渉が発生したが、脱溶媒ネブライザーを用いた場合、 100 ng mL^{-1} まで干渉を抑制できた。このように、脱溶媒ネブライザーは感度上昇と測定干渉の抑制の両方で効果があり、ICP-MS 法で微量核種分析において有効な装置セッティングといえる。

表. ICP-MS/MS での測定性能

	脱溶媒ネブライザー			標準導入		
	⁹⁰ Sr	¹²⁹ I	⁹⁹ Tc	⁹⁰ Sr	¹²⁹ I	⁹⁹ Tc
感度 / cps (Bq L ⁻¹) ⁻¹	0.64	260	3900	0.077	3.4	380
BEC / Bq L ⁻¹	3.5	2.8×10^{-2}	1.8×10^{-3}	6.2	1.4×10^{-1}	1.6×10^{-2}
LOD / Bq L ⁻¹	2.2	8.0×10^{-3}	1.3×10^{-3}	8.9	9.6×10^{-2}	6.1×10^{-3}

Improvement of analysis performance of ICP-MS with desolvating nebulizer for detection of trace radionuclides
KOARAI, K., MATSUEDA, M.

1P16

バイオアッセイ手法の開発及び国際相互比較の実績

(量子科学技術研究開発機構)○楊国勝、金ウンジュ、妹尾初穂、鄭建、古渡意彦、栗原治

As the “core advanced radiation emergency medical support center” designated by Japan’s Nuclear Regulation Authority, one of the main missions of the National Institutes for Quantum Science and Technology (QST) is to maintain and improve its dose assessment capability for radiation-exposed individuals. One of the essential issues learned from the Pu/Am internal contamination accident occurred in the Oarai, Japan, is to adequately provide timely dose information for prompt decision-making in emergency radiation therapy via bioassay samples. The bioassay-specified laboratories for radiation emergency therapy are quite limited in the world. To strengthen the dose assessment competence, simple and rapid urinary and fecal bioassays have been developed to determine ultra-trace actinide isotopes, ^{90}Sr , and ^3H , combining mass spectrometric and radiometric methods in our bioassay laboratory. Subsequently, these mass spectrometric and radiometric methods were applied to participate in the annual intercomparison organized by the Association for the PROMotion of Quality COntrol in RADiotoxicological Analysis (PROCORAD), France, for method validations and proficiency test, since 2016. With the expansion of capability in our bioassay laboratory, the participating items have increased from original 2 to present 7: 1) uranium in urine; 2) actinides in urine; 3) urine with DTPA-actinides; 4) strontium-90 in urine; 5) tritiated urine; 6) organically bound tritium; 7) actinides in fecal ashes. The QST bioassay laboratory was certified as TOP LABOs for the analyses of radionuclides in urine and feces using the performance index such as Z-score. These give us confidence to improve the capability of our bioassay laboratory to screen 5–10 persons simultaneously in case of internal contamination accident with radionuclides, especially for actinides such as Pu, Am/Cm, and U.

The development of bioassays and their application in intercomparison
Yang, G., Kim, E., Seno, H., Zheng, J., Kowatari, M., Kurihara, O.

1P17

 ^{211}At の品質標準化に向けた溶出液の分析 (1) ^{211}At -メタノール溶液の HPLC 分析

(量研高崎研¹、阪大放射線機構²、量研量医研³、阪大院理⁴、阪大理⁵)
 ○渡辺茂樹¹、村上昌史²、佐々木一郎¹、大矢智幸³、市瀬潤³、永津弘太郎³、水飼秋菜⁴、梶山和希⁵、白神宜史²、今教禎²、大江一弘²、豊嶋厚史²、石岡典子¹

【緒言】加速器で製造される ^{211}At は、半減期 (7.2 時間) による供給範囲の制約があることから、将来の ^{211}At を用いる核医学治療での需要を満たすためには複数の製造拠点からの供給が必要となる。そして、 ^{211}At は反応性が高く、多様な化学形態をとることから、 ^{211}At 核医学治療の社会実装には、複数拠点から供給される ^{211}At 原料の品質を統一する事が不可欠である。そこで、我々は ^{211}At の品質基準を見出し、大規模製造までを網羅した品質管理システムの開発を目指している。今回、 ^{211}At 原料の化学形態の解明と品質標準化に向けた基礎検討として量研高崎研で製造した ^{211}At -メタノール溶液の HPLC 分析を行ったので報告する。

【実験】 ^{211}At は、量研高崎研イオン照射研究施設の AVF サイクロトロンを用いて ^{209}Bi ($\alpha, 2n$) ^{211}At 反応により生成した後、乾式分離法により Bi から ^{211}At を分離した。 ^{211}At の回収にはクロロホルム (0.5 mL) を用い、窒素ガスでクロロホルムを留去した後、メタノールで溶解して HPLC 分析を行った。HPLC 分析の固定相には YMC J'sphere ODS-M80 逆相カラム (4.6 mm i.d. × 250 mm) を用い、移動相には 0.05 M リン酸テトラブチルアンモニウム水溶液とアセトニトリルの 1:1 混合溶液を用いた (流速 1 mL/min) [1]。また、 ^{211}At -メタノール溶液に 0.05 M ピロ亜硫酸ナトリウム水溶液あるいはアスコルビン酸ナトリウム水溶液を添加した還元条件、および、過ヨウ素酸ナトリウムを加えた酸化条件での ^{211}At についても HPLC 分析を行った。

【結果】メタノールに溶解した ^{211}At (10 MBq) を HPLC で分析した結果を図 1 に示す。HPLC 分析の結果から、分離直後のメタノール溶液には複数の化学形態が含まれ、経過時間と共に変化していく結果が得られた。また、これらの化学形態は、還元条件での生成が考えられる At (保持時間 8.9 min.) とは異なることが示唆される結果が得られた。本発表では、阪大で製造・分析した結果との比較等についても示す予定である。

【謝辞】本研究は、福島国際研究教育機構(F-REI)の委託研究費 (JPFR24040203) により実施した。

【参考文献】 [1] E. R. Balkin et al., Appl. Sci. **3**, 636-655 (2013).

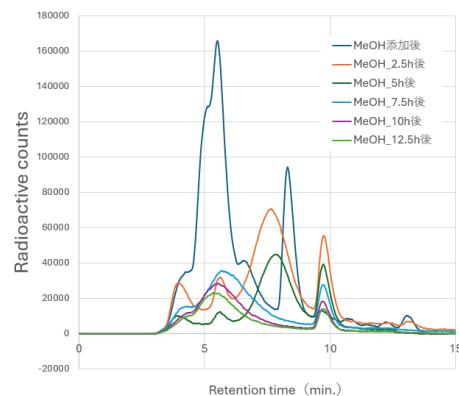


図 1. ^{211}At -メタノール溶液の HPLC クロマトグラム例

Analysis of ^{211}At eluates toward its quality standardization: (1) HPLC analysis of ^{211}At methanol solutions

WATANABE S., MURAKAMI, M., SASAKI, I., OHYA, T., ICHINOSE, J., NAGATSU, K., MITSUKAI, A., KAJIYAMA, K., SHIRAKAMI, Y., KON, Y., OOE, K., TOYOSHIMA, A. ISHIOKA, N.S.

1P18

 ^{211}At の品質標準化に向けた溶出液の分析 (2) ^{211}At 水溶液の HPLC 分析

(阪大放射線機構¹、量研高崎研²、量研量医研³、阪大院理⁴、阪大理⁵)
 ○村上昌史¹、渡辺茂樹²、佐々木一郎²、石岡典子²、大矢智幸³、
 市瀬潤³、永津弘太郎³、水飼秋菜⁴、梶山和希⁵、白神宜史¹、今教禎¹、
 大江一弘¹、豊嶋厚史¹

【緒言】加速器で製造される ^{211}At は、供給範囲がその半減期 (7.2 時間) による制約を受けることから、将来の核医学治療での需要を満たすためには、複数の製造拠点からの供給が必要となる。また、 ^{211}At は反応性が高く、多様な化学形態をとることから、 ^{211}At 核医学治療の社会実装には、複数拠点から供給される ^{211}At 標識原料の品質を統一する事が不可欠である。そこで、我々は化学形態に基づく ^{211}At の品質基準を見出し、大規模製造までを網羅した品質管理システムの開発を目指している。今回、 ^{211}At 原料の化学形態の解明と品質標準化に向けた基礎検討として、阪大から供給される ^{211}At 水溶液の HPLC 分析を行ったので報告する。

【実験】 阪大核物理研究センターの AVF サイクロトロンを用いて $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ 反応により ^{211}At を製造した。乾式蒸留法により ^{211}At を分離し、蒸留水で回収して原液とした。原液 10–20 μL を HPLC で分析し、NaI(Tl)検出器を用いてクロマトグラムを取得した。固定相には YMC J'sphere ODS-M80 逆相カラム (4.6 mm i.d. \times 250 mm) を使用し、移動相には 0.05 M リン酸テトラブチルアンモニウム水溶液とアセトニトリルの 1:1 混合溶液を流速 1 mL/min で用いた[1]。また、溶液中における At の化学形態推定のため、ピロ亜硫酸ナトリウムやアスコルビン酸を添加した溶液 (還元条件)、過ヨウ素酸ナトリウムを添加した溶液 (酸化条件) での ^{211}At についても同様にクロマトグラムを取得した。

【結果】 ^{211}At 原液に対して得られたクロマトグラムの例を図 1 に示す。計 11 回の分析を実施し、いずれも保持時間が 7.6 min のピークが主に見られ、時間経過とともにピーク高さの減少が観測された。小さなピークの保持時間や高さは原液ごとに違いが見られた。還元条件においては、異なる保持時間 (約 12 min) にほぼ単一のピークが見られたことから、原液中の At は At 以外の化学形態を持つと推測した。発表では、酸化条件との比較や量研高崎研での分析結果との比較についても示す予定である。

【謝辞】 本研究は、福島国際研究教育機構(F-REI)の委託研究費 (JPFR24040203) により実施した。

【参考文献】

[1] E. R. Balkin et al., Appl. Sci. **3**, 636-655 (2013).

Analysis of ^{211}At eluates toward its quality standardization: (2) HPLC analysis of ^{211}At stored in aqueous solutions

MURAKAMI, M., WATANABE, S., SASAKI, I., ISHIOKA, N.S., OHYA, T., ICHINOSE, J., NAGATSU, K., MITSUKAI, A., KAJIYAMA, K., SHIRAKAMI, Y., KON, Y., OOE, K., TOYOSHIMA, A.

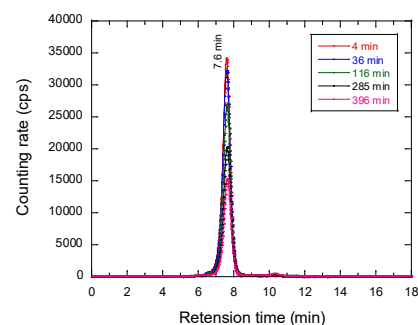


図 1. ^{211}At 水溶液の HPLC クロマトグラムの例。

1P19 医師主導治験に向けた合成装置による $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5の安定供給 - 基礎から臨床へ -

(阪大院医¹、阪大病院薬²、阪大放機構³、理研⁴)

○仲定宏^{1,2}、白神宜史³、大江一弘³、栗本健太^{1,2}、堺俊博¹、今教禎³、
Xiaojie Yin⁴、羽場宏光⁴、豊嶋厚史³、渡部直史^{1,3}、富山憲幸^{1,3}

【緒言】 前立腺特異的膜抗原 (PSMA) は、前立腺がんにおけるセラノスティクスの主要な標的である。大阪大学で開発された PSMA を標的とする $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 は、前立腺がんモデルマウスにおいて正常臓器への副作用が少なく、優れた腫瘍増殖抑制効果を示し、特に転移性去勢抵抗性前立腺がんを標的とした新たな α 線治療薬として期待されている (1)。我々は、大阪大学医学部附属病院での医師主導治験にむけて $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 を自動合成装置でスケールアップ生産するため、合成手順を最適化し、ヒト静脈内へ投与可能な品質であることをプロセスバリデーションにて確認した。

【実験】 ^{211}At は、理化学研究所または大阪大学核物理研究センターの AVF サイクロトロンを用いて、 $^{209}\text{Bi}(^4\text{He}, 2n)$ の核反応で製造した。照射された Bi ターゲット中の ^{211}At は、阪大病院の治験薬 GMP 製造施設に設置された自動精製装置を用いて精製した。 $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 の製造では、まず、 ^{211}At をトラップ管から反応器に回収する手順を検討した。次に、自動合成装置の使用に伴い、反応器を 1.5 mL フッ素樹脂チューブから 10 mL ガラスバイアルに変更し、反応液量を増加した際の標識率及び反応器への残存放射能を確認した。反応液は固相抽出カラム (HLB) で精製し、滅菌フィルターを通して 15 mL 溶液として回収した。最適化した合成手順にて $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 を 6 ロット (各ターゲット 3 回) 製造し、静脈内投与用の無菌注射剤としての品質を評価した。

【結果】 7%炭酸水素ナトリウム注射液 700 μL をトラップ管に 5 分間保持させることで、トラップ管から 90%以上の ^{211}At が回収された。反応器としてガラスバイアルを用い、反応液 1 mL (^{211}At 溶液 700 μL 、1 mg/mL PSMA-5 前駆体 10 μL 、0.1 M ヨウ化カリウム水溶液 290 μL) で 95°C、45 分間反応させたところ、 $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 の標識率は 70% 以上であり、反応器内の残存放射能は 5%以下であった。最適化した条件下で自動合成装置により製造された $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 は、合成時間約 130 分で放射化学収率は 29 \pm 3% であった。また、放射化学的純度は合成終了時で 96 \pm 1%、合成 6 時間後でも 90%以上を維持した。さらに、その他の品質試験項目についても、すべて $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 の規格基準を満たしていることを確認した。

【まとめ】 治験薬 GMP 準拠の下、医師主治験の実施に十分な品質を有する $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 を自動合成装置により安定して得ることができた。

【参考文献】

(1) T. Watabe et al., Eur J Nucl Med Mol Imaging., 38 (2023) 329-336.

Stable Supply of $[^{211}\text{At}]$ PSMA-5 Solution by Automated Synthesizer for Investigator-Initiated Clinical Trials -From Basic to Clinical-

NAKA, S., SHIRAKAMI, Y., OOE, K., KURIMOTO, K., SAKAI, T., KON, Y., Xiaojie, Y., HABA, H., TOYOSHIMA, A., WATABE, T., TOMIYAMA, N.

1P20

弱塩基性水溶液中におけるヨードチロシン誘導体の ^{211}At フロー電解標識

(阪大院理¹、阪大放射線機構²、阪大理³、アルファフュージョン株式会社⁴)○水飼秋菜¹、白神宜史²、村上昌史²、梶山和希³、木村禎亮⁴、大江一弘²、今教禎²、角永悠一郎²、豊嶋厚史²

【緒言】 アルファ線核医学治療に用いられる ^{211}At は、基質を標識する事で放射性薬剤を製造できる。これまでに我々が開発したボロノ基を有する基質との ^{211}At 置換反応では、非常に高い標識収率が得られている一方[1]、ボロノ基の長期安定性や液性の制限が課題となる。本研究では、常温常圧下で酸化還元剤の添加を必要とせず、多様な基質、液性に適用可能で環境負荷の低い手法として電解標識に着目した。今回は弱塩基性溶液である炭酸水素ナトリウム溶液中において、フロー電解法により ^{211}At を電解酸化させ、AtとIの交換反応によりヨードチロシン誘導体の標識を行ったので報告する。

【実験】 833 mM 炭酸水素ナトリウムと 167 mM 塩化ナトリウムの混合溶液 (pH=7.9-8.3) を電解質とし、フロー電解装置[2]を用いて-200-1000 mV (vs Ag/AgCl)の範囲で印可電圧を変化させて ^{211}At を電解した。 ^{211}At 化学種について推定するために、電解後の溶液を分取し、展開溶媒 (MeCN:H₂O=2:1)を用いて薄層クロマトグラフィー(TLC)を行った後、イメージングプレート(IP)を用いて ^{211}At の分布を観測した。また、電解酸化した ^{211}At を含む溶液と 3-ヨード-L-チロシン溶液を混合する事で標識を行った。

【結果】 結果の例を図 1 に示す。図 1(a)に示す電解前の TLC 分析では複数の ^{211}At スポットが存在している一方、図 1(b)に示す印可電圧 800 mV での電解後の分析では、 R_f 値 0.05 付近に一つのスポットが観測された。pH-電位図[3]から、At(III)に電解酸化された可能性が考えられる。さらに、この酸化された ^{211}At と 3-ヨード-L-チロシンと混合させると図 1(c)に示したように、 R_f 値 0.58 付近にスポットが現れた。IP 撮像後の TLC プレートにニンヒドリンを塗布すると、当該スポット近傍にヨードチロシン誘導体が呈色された事から、当該ピークは 3-アスタト-L-チロシンだと推定される。討論会では、他のヨードチロシン誘導体の標識結果及びそれらの Radio-HPLC の結果についても報告する。

【参考文献】

- [1] Y. Shirakami et al Sci. rep 11, 12982 (2021)
 [2] A. Toyoshima et al., JACS **131**,9180 (2009).
 [3] L. Liu et al., Inorg. Chem **61**, 13462 (2022).

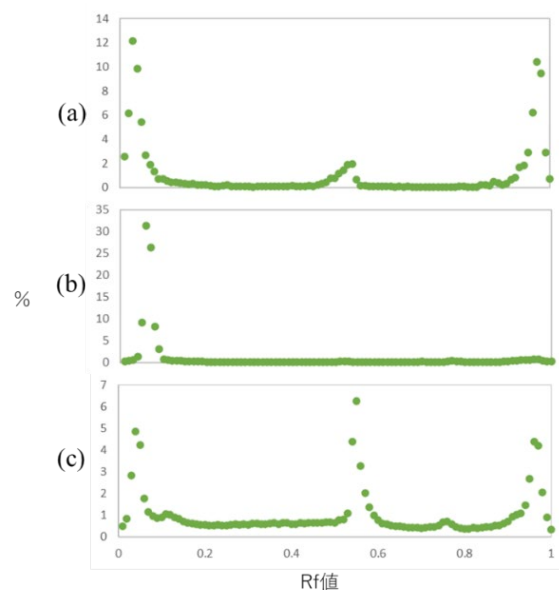


図 1 (a) 電解前 (b) 電解後
 (c)標識後の TLC 展開の結果
 (pH=7.9-8.3、印可電圧 800 mV)

^{211}At Flow-Electrolytic Labeling of Iodotyrosine derivative in weakly basic aqueous solution
 MITSUKAI A., SHIRAKAMI Y., MURAKAMI M., KAJIYAMA K., KIMURA S., OOE K., KON Y., KADONAGA Y., TOYOSHIMA A.

1P21

低速 RI ビームを用いた医療用 At-211 製造技術の開発

(理研仁科セ¹、東大総文²、理研光量子³、名大工⁴)○園田 哲¹、羽場宏光¹、中下輝士^{1,2}、重河優大¹、藤原孝成³、
富田英生⁴、佐藤 望¹、Rosenbusch Marco¹

【緒言】現在、核医学分野で利用される RI は原子炉および加速器を用いて製造されている。ここで使用される標的には目的とする RI 以外の不要な副産物が多種多様生成するため、標的から目的の RI のみを高純度で分離・精製する技術が不可欠である。国内で医療用 RI を製造する機関は主に乾式または湿式分離法を利用して目的の RI を抽出している。これらの方法は高い分離能力と収集効率を持つ一方、気化 RI 漏洩のリスク、腐食性化学薬品の使用、精製前のターゲット材の化学処理の必要、とりわけ RI 副産物のなかで同位体分離できないという難題があり相補的な分離技術の開発が求められている。

本研究の目的は、同位体分離を可能とする新しい医療用 RI 製造法を開発し、その実用可能性を ²¹¹At 生成から評価し、本手法の技術確立を目指すことである。本手法の独創性は、レーザー共鳴イオン化法とガスセルを利用して同位体分離された RI ビームを生成することであり、現在国内で使われている化学的な分離手法とは異なる医療用 RI 製造に向けた初の試みである。本手法が確立すれば ²¹¹At の製造において2次的な生成で危惧される ²¹⁰Po の存在を気にせずに、²¹¹At 生成断面積の最大値に適合する加速器エネルギーを使用できる。またアスタチンの物理・化学性質は未知の部分が多いのでガス中における分子の相互作用等を合わせて観測することを視野に入れている。

【実験】2022 年より理研ラジオアイソトープ実験棟において本研究のための実験室を新たに立ち上げた。当手法はレーザー共鳴イオン化に用いる高出力レーザーが必要であり、YAG レーザーを主とする励起光源および色素レーザー、チタンサファイアレーザーを導入して紫外から近赤外域まで3色独立な波長をもつレーザー光を生成する体制を構築した。アスタチンのレーザーイオン化波長は、過去の測定結果から引用すると第1ステップ 216.3nm、第2ステップ 795.5nm、第3ステップ 532nm からなり、この3色のレーザー光を同時にアスタチン原子に照射して段階的に励起、イオン化を行うものである。

はじめの予備実験として、これらの波長のレーザー光を用いて真空中におけるアスタチン原子のレーザーイオン化を観測した。理研 AVF サイクロトロンを用いて ²⁰⁹Bi (α , 2n) ²¹¹At 反応で ²¹¹At を製造し、照射した Bi 標的を真空中に配置して抵抗加熱によって ²¹¹At 原子を生成させそれらにレーザー光を照射して生成イオンの収量を観測した。その結果、アスタチンイオン化第1ステップ付近の波長掃引において共鳴イオン化波長におけるイオン収量の増大を観測することができた。

現在ガスセル内でアスタチンレーザーイオン化を行う装置を整備しており、本格的な分離収集実験を始める予定である。

Development of production method for medical-use At-211 with low-energy RI-beam
SONODA T., HABA, H., NAKASHITA T., SHIGEKAWA Y., FUJIWARA T., TOMITA H., N. SATO
ROSENBUSCH M.

1P22

CdZnTe 半導体検出器を用いた核医学治療用核種 ^{177}Lu のカラム分離モニタリングの試み

(福島医大先端研¹、東北大学金研²、金沢大学新学術³、京都大学複合研⁴)○鷲山幸信¹、白崎謙次²、小川数馬³、山村朝雄²

【緒言】抽出クロマトグラフィーは、希土類であるイッテルビウム(Yb)と医学的に重要なルテチウム-177(^{177}Lu , $T_{1/2}=6.64$ 日)の化学分離に広く用いられている技術である。しかし、Yb と Lu の化学的類似性から、グラム量の Yb ターゲットから無担体の ^{177}Lu を分離するには、大きなカラムサイズと多くの溶離液が必要となる。また、数 GBq の放射能に由来する高線量下のカラム内で Yb から ^{177}Lu を分離するため、遮蔽環境下で安全に ^{177}Lu 画分のみを選別抽出することが化学分離操作上求められる。その際、市販の CdZnTe 半導体検出器は小型で USB から電源を供給できるため、高線量下でのオンライン遠隔測定に適している。そこで本研究では、濃縮 ^{176}Yb を用いて ^{177}Lu を製造し、オンラインでのモニタリングと化学分離について評価した。

【実験】CdZnTe 検出器は Kromek 社製の RadAngel を使用した。濃縮 $^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$ 粉末は Isoflex 社から購入し、 ^{176}Yb の濃縮度は 99.14% であった。 $^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$ 試料(^{176}Yb , 1.0mg)を京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉 KURR で 5MW の出力で 6 時間照射し、照射後の $^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$ は硝酸で溶解し、4M に調整した。この溶液を抽出 LN2-Resin (Eichrom 社製)を含むジャケット付き 11 mm ϕ x 240 mm ガラスカラム(桐山化学社製)に加え、約 500 mL の 1.5 M 硝酸を加えてカラム分離操作を行った。カラムから溶出した溶液はチューブを通じてフラクションコレクターに回収し、その際にチューブを CdZnTe 検出器に接触させオンライン測定を行った。溶出液は 250 滴を 1 画分として 50 本以上の試験管に回収した。溶出画分の確認には Ge 半導体検出器 (ORTEC) を使用し、CdZnTe 検出器モニタリングで得られた溶出曲線と比較した。

【結果】Ge 検出器を用いた定性分析により、照射 5 日後の試料中に高放射能の ^{177}Lu と低放射能の ^{175}Yb ($T_{1/2}=4.19$ 日)が生成していることを確認した。図 1 は Ge 検出器(左)と CdZnTe 検出器(右)で得られた溶出曲線を示す。ROI は ^{175}Yb の 396keV(13.2%)と ^{177}Lu の 208keV(10.4%)の光電ピークの間チャンネルに設定した。CdZnTe 検出器と Ge 検出器で得られた ^{175}Yb と ^{177}Lu の溶出曲線は同じ傾向を示した。以上より、今回のカラム分離条件において 1.0mg の Yb 標的と ^{177}Lu の分離が可能であることおよび CdZnTe 検出器を用いたオンライン測定でその評価ができることが示された。

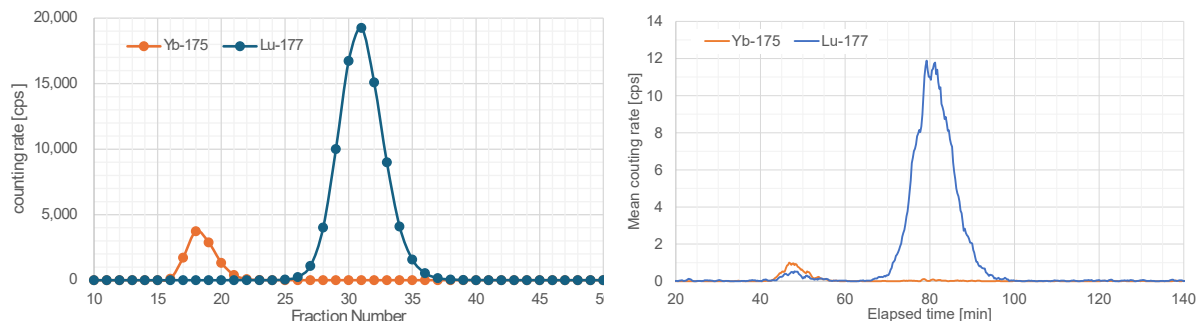


Fig. 1. Elution profile of extraction chromatography with an 11 mm ϕ x 240 mL column packed with LN2 resin measured with a Ge detector (Left) and a CdZnTe detector (Right)

Evaluation of ^{177}Lu column separation monitoring by using a CdZnTe detector
WASHIYAMA K., SHITRASAKI, K., OGAWA K., YAMAMURA T.

1P23

⁶⁴Cu の核医学利用を目的とした S ドナーを有するサイクレンを用いた新規環状配位子の開発

(阪大院理¹、阪大 Core-FC²、阪大理³)○前田遥香¹、永田光知郎²、金子政志¹、風間裕行¹、青戸宏樹¹、川岸英峻³、笠松良崇¹

【緒言】⁶⁴Cu は半減期 12.7h と短い半減期を持ち、陽電子や β⁻線、オージェ電子を放出して崩壊するため、がんの診断や治療への使用が期待されている。Cu の核医学利用に向けた臨床研究が盛んに行われているが、多くの研究結果から生体内において血液中的のアルブミンやセルロプラスミンによって Cu(II) が Cu(I) に還元されることによる脱錯体化が指摘されている。そこで、本研究では生体内で Cu(II) が還元されずに錯体構造を保持すること、Cu(II) に還元された場合に脱錯体化を防ぐことを目的として、図 1 に示すような S ドナーを含んだ新規配位子の合成を目指す。さらに、量子化学計算を用いて構造最適化を行い、新規配位子を用いた Cu 錯体の解析を行う。

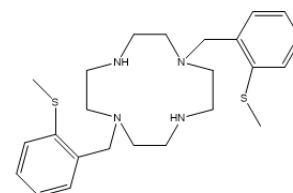


図 1 新規配位子の構造

【実験と計算】 まず、密度汎関数法(DFT)を用いて Cu 錯体の構造最適化を行うためのベンチマークを行った。キレート配位子としてサイクレン骨格を有する Cu 錯体の単結晶構造 11 個を対象とし、既報の論文^{[1][2]}を参考に設定した計算条件を 2 つ検討した。ZORA-OPBE/SARC-def2-TZVP を条件 1、ZORA-M06-L-D3Zero/SARC-def2-TZVP を条件 2 とし、最適な条件を決定した後、新規配位子と Cu との錯体の構造最適化を行った。また、既報の合成方法^{[3][4]}を用いて新規配位子の合成を行い、得られた生成物は TLC と ¹H NMR により同定した。

【結果と考察】 構造最適化のベンチマーク計算の結果、条件 1 よりも条件 2 の方が単結晶の Cu-配位子結合距離をよく再現する結果となった。条件 2 を用いて新規配位子を用いた Cu 錯体をモデリングし構造最適化を行った結果、図 2 で示すようにサイクレンの窒素 4 つと硫黄 1 つが配位した 5 配位の錯体を得られ、サイクレンの Cu-N の平均結合距離は 2.099 Å、Cu-S の結合距離は 2.473 Å であった。配位子合成は、サイクレンの保護を目的に合成を行い、NMR により確認した。また、側鎖の合成も行い、生成物を TLC 及び ¹H NMR により、高純度で得られたことを確認した。本発表では、構造最適化を用いた Cu 錯体の詳細な解析や配位子合成の進捗について報告する。

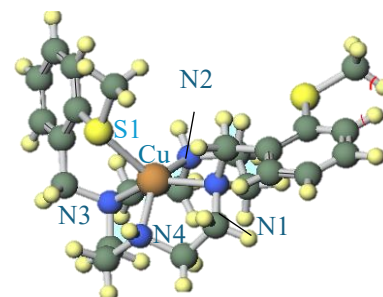


図 2 新規配位子を用いた Cu 錯体の最適化構造

[1] Tosato M.; et al. *Inorg. Chem.* 2021, 60, 15, 11530.

[2] Davut A.; et al. *Spectrochim. Acta A* 2024, 305, 15, 123489.

[3] Han Vinh Huynh.; et al. *Organomet.* 2010, 29, 6, 1479.

[4] Kento I.; et al. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* 2021, 32, 15, 127713.

Development of a new cyclic ligands introducing S-donor atoms into cyclen framework for nuclear medicine application of ⁶⁴Cu (2024)

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

1P24 赤外線ファイバーレーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成手法開発

(京都大¹, 都立大²)○中田拓希¹, 稲垣誠¹, 秋山和彦², 大槻勤¹

【緒言】医療用放射性核種の体内での運搬を担う分子として、放射性核種内包フラーレンに着目した。放射性核種内包フラーレンはアーク放電法による生成が報告されているが¹, その際放射性物質によって装置内が汚染される。本研究ではレーザー蒸発法を応用した新規手法を開発し、放射性物質の汚染を抑えた手法での生成を目指した。

【実験】フラーレン生成実験：初めに本手法でのフラーレン生成実験を行い、フラーレン生成における最適生成条件を探索した。60 mg 程度のグラファイトを石英管に入れ、ステンレス製のチャンバー内に設置して Ar ガスによる置換を行った。石英管内のグラファイトに対して、300 W, 1080 nm の赤外線ファイバーレーザーを照射した。照射後は試料の入った石英管に対して直接 2 mL の *o*-ジクロロベンゼン(*o*-DCB)を加え、10 分間の超音波抽出を行った。抽出した試料は 0.50 μm 孔径メンブレンフィルターによって濾過し、濾液を高速液体クロマトグラフィー(HPLC)によって分析を行った。

放射性 Ce 内包フラーレン生成実験：電子線形加速器を用いて放射性 Ce を含む放射性 CeO₂ 試料を作成し、60 mg 程度のグラファイトに対して 0.8 at% 程度になるよう混合した試料を作成して石英管に入れた。この混合試料に対して上記フラーレン生成実験で得られた最適生成条件でのレーザー照射を行い、照射後は *o*-DCB 又はアニリンを加えて超音波抽出を行った。抽出した試料は 0.50 μm 孔径メンブレンフィルターによって濾過し、濾液を Ge 半導体検出器によって γ 線スペクトル測定を行った後、HPLC によって分析及び成分分離を行い、その溶離液についても γ 線スペクトル測定を行った。

【結果及び考察】フラーレン生成実験による最適生成条件探索の結果、レーザーの集光を行うことにより HPLC にて検出可能な量の C₆₀ フラーレン及びその他高次フラーレンを得ることができた。またチャンバー内に封入する Ar 圧力を変化させつつ C₆₀ フラーレンの生成量を確認した結果、50 kPa にて生成量が極大値となったため、放射性 Ce 内包フラーレン生成実験ではこの条件にてレーザー照射を行うこととした。

放射性 Ce 内包フラーレン生成実験におけるレーザー照射試料の γ 線スペクトル測定では、*o*-DCB 及びアニリン抽出液それぞれに放射性 Ce 由来のピークが存在し、それぞれの溶液に放射性 Ce を含む成分が溶解していることが確認できた。またその後の HPLC による成分分離を行った溶離液の γ 線スペクトル測定では、それぞれの抽出液において C₇₆, C₇₈ 成分が分離されている付近の溶離液において放射性 Ce 由来のピークカウント極大が見られた。これら結果よりそれぞれの抽出液に同一の放射性 Ce を内包したフラーレン成分が存在しており、本手法によって放射性核種内包フラーレンの生成に成功したと結論付けた。

[1] K. Sueki *et al.*, *Chem. Phys. Lett.* **300**, 140-144 (1999).

Development of a new method for generating radionuclide endohedral fullerenes by IR fiber laser
NAKADA, H. INAGAKI, M. AKIYAMA, K. OHTSUKI, T.

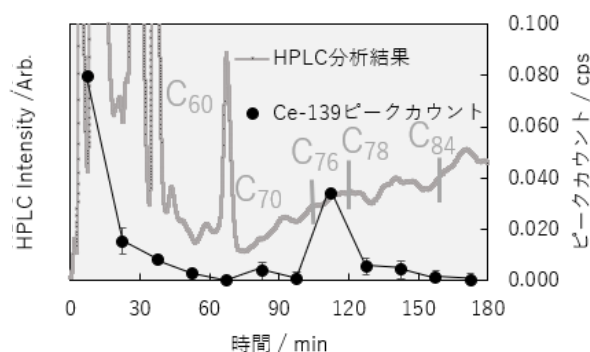


図1 アニリン抽出液の HPLC 分析結果及び溶離液の γ 線スペクトル測定結果

1P25

地衣類中の放射性セシウムの長期観測

(原子力機構¹, 科博², NECO³)○土肥輝美¹, 飯島和毅¹, 吉村和也¹, 大村嘉人², 藤原健壯¹, 金井塚清一³

【緒言】 地衣類（藻類と共生する菌類の総称）は、大気圏核実験が活発化してきた 1960 年代より、その放射性セシウム(Cs)濃度の高さと食物連鎖による被ばく影響が懸念されてきた。福島第一原子力発電所事故後、演者らは地衣類が放射性 Cs を保持する仕組みを、生体組織中の放射性 Cs の存在位置や化学形態から調べてきたが、Cs が地衣類に留まる期間、地衣類中の Cs の時間変化と化学形態との関連性は分かっていない。今回、採取を要しない同一個体の継続的な観測試験を試み、Cs の生物学的半減期や単位面積あたりの ¹³⁷Cs 初期放射能(kBq m⁻²)を推定したので、その結果を報告する。

【試験】 観測試験は、福島県浪江町で 2013 年 7 月から 2016 年 3 月まで実施した。対象はサクラの樹幹に生育するウメノキゴケ類の地衣類 ($n=19$) で、個体毎に識別番号を付し、地衣類からの単位時間あたりの放射線 (cpm) を GM 管式サーベイメータ(TGS-146B)で測定した(図 1)。測定器の機器効率は、³⁶Cl (β) の校正定数より 0.213 (cps Bq⁻¹) とした。計数率の測定結果をもとに、¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs の β 線・ γ 線放出率の計数率への寄与、測定器の β 線・ γ 線の検出効率 2 ケース ($\epsilon_\gamma=0.1 \epsilon_\beta$, $\epsilon_\gamma=0.5 \epsilon_\beta$)^[2]を考慮し、残差平方和が最小となる単位面積あたりの ¹³⁷Cs 初期放射能と地衣類からの Cs の生物学的な排出定数 (s⁻¹) をエクセルのソルバー機能を用いて決定した。

【結果と考察】 地衣類の Cs の生物学的半減期は 4.5-7.9 年、単位面積あたりの ¹³⁷Cs 初期放射能は 30-160 (kBq m⁻²)と推定された ($\epsilon_\gamma=0.1 \epsilon_\beta$) (図 2)。本研究と同地点の地衣類中 ¹³⁷Cs 濃度は 285-634 (kBq kg⁻¹) (2012 年 12 月時点)^[1]で、これは 54-120 (kBq m⁻²) に換算され^[3]、上述の推定値と同程度であることから妥当な推定結果と考えられる。一方で、近縁種の事故初期の ¹³⁷Cs 濃度の実測値は無いため、チェルノブイリの事例を参照すると、事故直後の 1986 年 6 月から 1987 年 9 月にオランダで調べられた近縁種の ¹³⁷Cs 濃度の生物学的半減期は 2.7 年^[4]であった。このことは観測開始時期（事故直後かどうか）によっては、地衣類からの Cs 排出の速さが異なる可能性を示唆する。



図 1 観測試験の様子

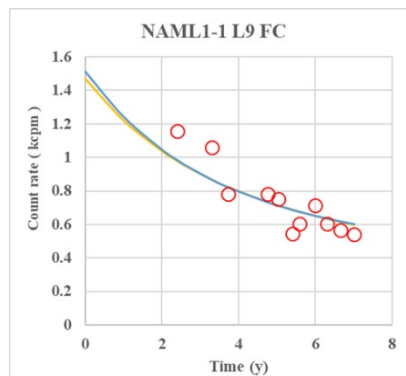


図 2 GM 管式サーベイメータで測定した同一個体の地衣類の計数率の時間変化。赤丸は実測値、実線はフィッティング結果を表す。

【参考文献】

[1] Dohi et al., J. Environ. Radioact 146 (2015). [2] Kobayashi. (2020). [3] Dohi et al., PLoS ONE 16(5): e0251828. (2021). [4] Sloof & Wolterbeek, J. Environ. Radioact 16 (1992).

Long-term monitoring of radiocaesium in lichens

DOHI. T., Iijima. K., YOSHIMURA. K., OHMURA. Y., FUJIWARA. K., KANAIZUKA. S.

1P26

非水溶媒系中の塩化物イオン濃度が塩化ウラン(IV)の酸化還元特性に与える影響

(国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構)

○植野 雄大、大内 和希、渡邊 雅之

【緒言】近年、イオン液体と有機溶媒を混合した非水溶媒中の塩化ウラン (UCl_4) の酸化還元反応において、塩化物イオン (Cl^-) の添加による酸化還元反応の可逆性の向上が確認された¹。反応の可逆性は、電気化学デバイスなどへの応用に向けて重要なファクターとなる。本研究では、 Cl^- 濃度が UCl_4 の酸化還元特性に与える影響の解明を目的とした。そのために、 UCl_4 を含む 1-ethyl-3-methylimidazolium chloride (EmimCl) と有機溶媒の混合溶液を作製し、サイクリックボルタンメトリー (CV) 測定を実施した。

【実験】溶媒には *N,N*-ジメチルホルムアミド (DMF) を使用し、 Cl^- 濃度の目標濃度を $x \text{ mol/L}$ ($x = 0.1, 0.2, 1.0$) とし、所定の量の EmimCl を DMF に溶解させたのち、 UCl_4 を 10 mmol/L の濃度となるように添加した。CV 測定では作用極にはグラッシーカーボン ($3 \text{ mm}\phi$)、対極には白金線を使用した。参照極には AgCl を 0.1 mol/L 溶解させた $x \text{ mol/L}$ EmimCl-DMF 溶液に Ag 線を浸漬し、 Ag/Ag^+ 電極として用いた。

【結果】CV 測定の結果を図 1 (a) に示す。 Cl^- 濃度の増大に伴い、還元ピーク電位 (E_p^c) と酸化ピーク電位 (E_p^a) の差が減少した。走査速度を 10 mV s^{-1} から 50 mV s^{-1} とし、各測定で得られた E_p^c と還元ピーク電流から酸化体 (U^{4+}) の拡散係数 (D_0)、酸化還元反応における標準反応速度定数 (k_0) の評価を行った。 k_0 の評価には Nicholson 関数を用いた。その結果を図 1 (b) に示す。 D_0 の Cl^- 濃度依存性はほとんど見られなかった一方で、 k_0 は Cl^- 濃度とともに単調に増大した。以上より、 Cl^- 濃度とともに電極反応速度が増大し、 UCl_4 の酸化還元反応の可逆性が向上したと考えられる。

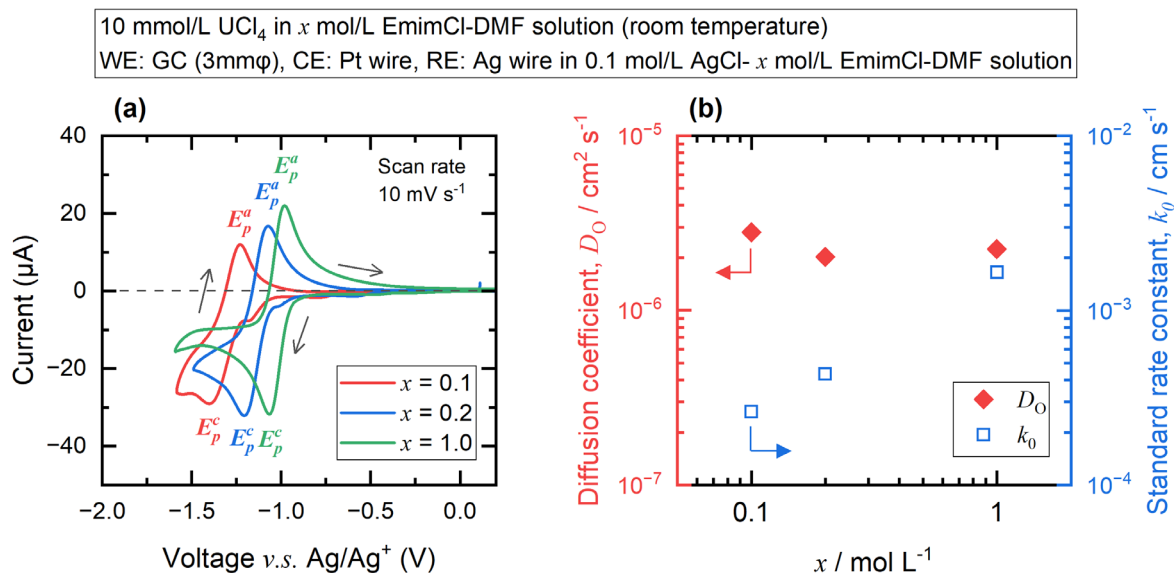


図 1 (a) 10 mmol/L UCl_4 - $x \text{ mol/L}$ EmimCl-DMF ($x = 0.1, 0.2, 1.0$) 溶液のサイクリックボルタモグラム (掃引速度 10 mV s^{-1})。 (b) 酸化体 (U^{4+}) の拡散係数並びに酸化還元反応における標準速度定数の EmimCl 濃度依存性。

(1) Ouchi, K.; Komatsu, A.; Takao, K.; Kitatsuji, Y.; Watanabe, M. *Chem. Lett.* **2021**, 50 (6), 1169–1172.

Influence of chloride ion concentration on redox reaction of uranium (IV) chloride in a non-aqueous solvent
UENO K., OUCHI, K., and WATANABE, M.

1P27

ジグリコールアミド酸型配位子保持リポソーム系における実条件への適用に向けた基礎研究

(筑波大院数理物質¹、筑波大数理物質系²)○清水壮太¹、上原孟¹、山崎信哉²、坂口綾²、高久雄一²、末木啓介²

【緒言】 工業的に需要が高く、供給量が限られるランタノイド(Ln)元素を高レベル放射性廃液から回収・相互分離し再利用する技術として、本研究ではジグリコールアミド酸(DGAA)型配位子を保持させた球状リン脂質二重膜(リポソーム)を吸着媒体として用いる分離法に着目している。これまでに、リポソームに封入する配位子の濃度の上昇に伴い Ln 吸着量が増加することを示したが【1】、具体的な反応機構は不明であった。そこで本研究では、DGAA 配位子と Ln のみの系を用いて水溶液中における Ln-DGAA 錯体形成メカニズムの解明を試みた。

【実験】 水溶液中における Ln と DGAA の反応に着目するため、従来使用していた配位子と同様の DGAA の構造を持ち、アルキル鎖部分が短く水に溶解しやすい *N,N*-Dipropyldiglycolamic acid (D3DGAA)を合成した。0.02M NaOHaq を用いて pH を 3.0 に調整した D3DGAA 水溶液を、同じく pH を 3.0 に調整した Nd(NO₃)₃ 水溶液に少しずつ滴下し、吸光度滴定を行った(測定波長:550~600 nm)。得られた吸収スペクトルから、Nd-D3DGAA 錯体の構造並びに溶液中の化学種比の同定を試みた。

本手法を実際の高レベル放射性廃液の条件下に適応するにあたり、リポソームへの Ln 吸着に対する他元素の競争反応について検討を行った。配位子として *N,N*-Dioctyldiglycolamic acid (D8DGA)を封入した、卵黄ホスファチジルコリン(PC)を主成分とするリポソームを調製し、Eu(NO₃)₃ 水溶液と混合した。この溶液に、核分裂生成物に含まれる成分として Fe、Cs、Zr、Ru、Al、Zn の 6 元素を Eu に対し 1000 倍の濃度になるように加えた。ろ過を行いリポソーム及び吸着した金属元素を取り除き、ろ液中の金属イオン濃度を誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)により定量することで、妨害となる金属イオンの影響を調べた。

【結果・考察】 D3DGAA と Nd の滴定における吸収スペクトルを図 1 に示す。本実験の結果から、DGAA の濃度増加に伴い吸収スペクトルの形状が変化することが確認でき、複数の化学種を形成することが示唆された。解析の結果、Nd と D3DGAA は濃度比に応じて 1:1, 1:2, 1:3 の 3 種類の錯体を形成していることが示唆された。

本発表ではさらに、実際の分離条件下における分離・回収性能や実現可能性についても議論する。

【1】 清水壮太ら、日本放射化学会第 67 回討論会要旨(2023), 3A04

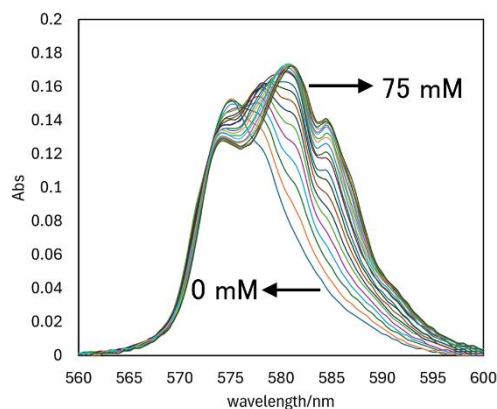


図 1 Nd-D3DGAA 錯体の吸収スペクトル (図中の濃度は溶液中の D3DGAA 濃度を示す)

Basic Study on diglycolamidate-type ligand-retaining liposome systems for Application to Real Conditions (2024)
SHIMIZU.S, UEHARA.T, YAMASAKI.S, SAKAGUCHI.A, TAKAKU.Y, SUEKI.K

1P28 イオン液体 - DMF 混合系におけるヨウ化ウラン(IV)の酸化還元反応

(日本原子力研究開発機構)○大内 和希、小松 篤史、植野 雄大、北辻 章浩、渡邊 雅之

【緒言】 ウランの非水溶液化学は、ウランの有益な利用法探索のために触媒や電気化学分野において活発に研究されている。先行研究では、イオン液体と *N,N*-ジメチルホルムアミド (DMF) の混合系において塩化ウラン(IV) (UCl_4) の酸化還元反応が比較的可逆 (準可逆) であることを見出している¹。本研究では、ハロゲン化物の知見を拡充するためにヨウ化ウラン(IV) (UI_4) の酸化還元挙動を電気化学測定により評価した。

【実験】 イオン液体 1-Ethyl-3-methylimidazolium Bis(trifluoromethanesulfonyl)imide ($[\text{EtMeIm}^+][\text{Tf}_2\text{N}^-]$) と DMF を 1:1 で混合した溶媒に UI_4 を溶解した。 UI_4 中に含まれる不純物の U(VI) は白金黒を用いる水素還元により U(IV) に還元した。電気化学測定では作用極にグラッシーカーボンディスク (1.6 mm ϕ)、対極に白金線、参照極に 1:1 $[\text{EtMeIm}^+][\text{Tf}_2\text{N}^-]$ -DMF に AgCl 線を浸漬した Ag/AgCl 電極を用いた。印加電位はフェロセン (Fc) の酸化還元電位により補正した。

【結果と考察】 UI_4 のボルタモグラムを測定した (図 1a)。還元ピーク (E_p^{c1}) と酸化ピーク (E_p^{a1}) は、 UI_4 試料でのみ、-1.7 V と -1.1 V に観測された。これらのピークは、U(III)/U(IV) 対の反応によるものである。酸化還元ピーク E_p^{a2}/E_p^{c2} と E_p^{a3}/E_p^{c3} は、ヨウ化物イオン試料でも観測されたことからヨウ素由来である I/I_2 と I_2/I_3^- の反応によるものと同定できる²。U(III)/U(IV) 対の酸化還元ピーク電位差は約 0.6 V と大きく、反応の可逆性は低かった。塩化物イオンの添加による UCl_4 の酸化還元反応の可逆性が向上した¹ ことから、0.4 M のヨウ化物イオンを $[\text{EtMeIm}^+][\text{I}^-]$ として添加したところ、ピーク電位差は約 0.2 V まで小さくなった (図 1b)。この反応の可逆性を評価するために Nicholson 関数から電荷移動速度 k_s を算出した。得られた k_s は $1.3 \times 10^{-4} \text{ cm s}^{-1}$ と準可逆領域 ($1.8 \times 10^{-6} < k_s < 2.5 \times 10^{-2}$) であった。以上より、 UI_4 の U(III)/U(IV) 対はヨウ化物イオンの添加により可逆性が向上し準可逆反応となることが分かった。

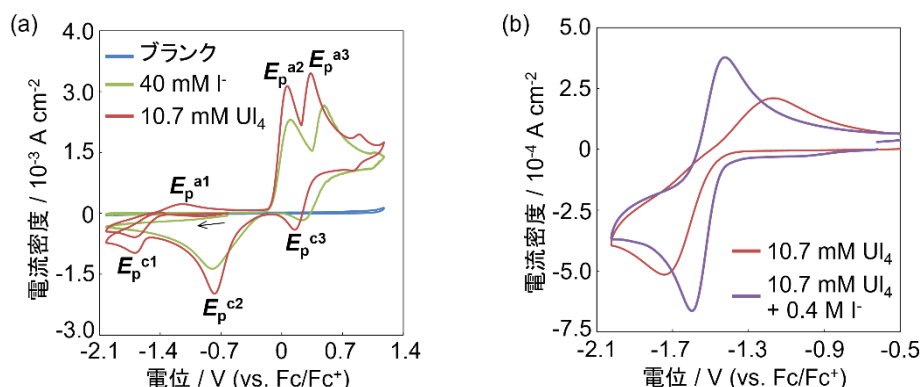


図 1 UI_4 のサイクリックボルタモグラム (a) とヨウ化物イオン ($[\text{I}^-] = 0.4 \text{ M}$) の添加によるボルタモグラムの変化 (b)。スキャン速度 0.1 V s^{-1} 。

1 K. Ouchi et al., *Chem. Lett.* **2021**, 50(6), 1169–1172.

2 C. L. Bentley et al., *Anal. Chem.* **2016**, 88, 1915–1921.

Redox reaction of Uranium (IV) iodide in an ionic liquid-DMF mixture
OUCHI K., KOMATSU A., UENO K., KITATSUJI Y., WATANABE M.

1P29

pH 領域下における D2EHPA による ^{228}Ac の抽出挙動の評価 Evaluation of extraction behavior of ^{228}Ac by D2EHPA under pH region.

(東北大金研¹、東工大²)○宮脇琢斗¹、白崎謙次¹中瀬正彦²

¹ *Institute for Materials Research, Tohoku University*

² *Laboratory for Zero-Carbon Energy, Institute of Innovative Research, Tokyo Institute of Technology*

【緒言】 アクチニウム (Ac) の同位体である ^{225}Ac を用いた標的アルファ線治療法が高い関心を集めている。一方で、Ac の取り扱いの難しさから、配位化学に関する情報が他のアクチノイド元素と比較して不足している。また、緩衝剤を用いた pH 領域での溶媒抽出についての知見は、TTA を抽出剤とするものなど限られている。トリウム (Th) 系列に属する ^{228}Ac は 911keV に放出率 25.8% の γ 線ピークがあり、放射線計測による定量が可能な同位体である。 ^{232}Th から分離精製した $^{228}\text{Ra}/^{228}\text{Ac}$ ジェネレータは、約 30 時間で放射平衡に至るため ^{228}Ac の再採取が 1 日間隔で実験可能になる。従って、Ac の基本的な錯体化学や熱力学に関する基礎研究の対象核種として ^{228}Ac が有望である。本研究では、 $^{228}\text{Ra}/^{228}\text{Ac}$ ジェネレータを用いて、pH 領域下における D2EHPA による ^{228}Ac の抽出挙動について、振とう時間、抽出剤濃度依存性、pH を指標として評価する。

【実験】 酸化トリウムを塩酸に溶解し、水酸化ナトリウムの添加により Th 水酸化物沈殿として大半のトリウムを除去した。その後、微量の溶存 Th、ナトリウム等を、陽イオン交換樹脂を通すことにより分離し、DGA 樹脂を用いた抽出クロマトグラフィーによる精製を行った。分離精製した $^{228}\text{Ra}/^{228}\text{Ac}$ ジェネレータが放射平衡に至るのを待ち、BDGA 樹脂を通して ^{228}Ac を分離精製し、この ^{228}Ac を用いて溶媒抽出を行った。水相の pH を、緩衝剤を用いて目標値になるよう調整し、抽出剤のプロトン放出による pH 変化が見られなくなるまで、予備抽出を行った。水相の pH が目標値に留まっていることを確認した後、分離精製した ^{228}Ac を用いて本抽出を行った。その後、水相と有機相の一部を分取し、Ge 半導体検出器により γ 線を計測し、 ^{228}Ac の定量を行い、分配比を評価した。

【結果及び考察】 グッド緩衝剤(ADA)、抽出剤として D2EHPA を用いた Ac 溶媒抽出実験における予備抽出時の pH 変化、本抽出での振とう時間依存性、抽出剤濃度依存性の結果を報告する。緩衝剤濃度を変化させると Ac^{3+} の分配比が変化することから、 Ac^{3+} と緩衝剤との相互作用があると考えられる。

【文献】

- 1) K. E. Aldrich et al., *Inorganic Chemistry*, 2020, 59, 3200-3206.
- 2) T. Sekine, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.* 1967, 4, 6, 308-311.

Evaluation of extraction behavior of ^{228}Ac by D2EHPA under pH region.
Takuto MIYAWAKI, Kenji SHIRASAKI, and Masahiko NAKASE

1P30

メスバウアー分光法を用いた還元的環境における粘土鉱物中の Fe の酸化状態と構造の分析

(日本原子力研究開発機構¹、東京大学²)○森井志織¹、蓬田匠^{1,2}、中田正美¹、岡壽崇¹、北辻章浩¹、高橋嘉夫²

【緒言】 粘土鉱物は放射性廃棄物地層処分時に放射性核種の環境中への拡散を防ぐための緩衝材として利用することが計画されている。特に近年、粘土鉱物構造中の鉄 (Fe) が環境中において共存元素と酸化還元反応を引き起こすことで、共存元素を水に可溶性な化学種から不溶性な化学種に変え固定化する性質があることが報じられている^[1]。一方、放射性廃棄物を長期間埋設する際には、酸化還元電位などの地下環境が変化する可能性がある。それに伴い地下において粘土鉱物中の Fe の酸化状態や配位構造も変化する可能性があるが、その詳細は明らかになっていない。そこで本発表では、粘土鉱物を特定の電位で電解して鉱物構造中の Fe の酸化状態を変化させ、メスバウアー分光測定によって鉱物中の Fe の酸化状態と配位構造を明らかにした結果を報告する。

【実験】 構造中に Fe (全て Fe(III)) を 20 wt%程度含有しているノントロナイト (粘土鉱物標準試料 NAu-1) を、粘土鉱物試料 (以下試料) として使用した。実験は酸素濃度 10ppm 程度の嫌気性グローブボックス内で全て行った。電気化学実験用セル^[2]を用いて、pH 7.5 の支持電解質含有溶液に標準水素電極電位 (vs SHE) -0.5 V の電圧を印加し、さらに試料の電子授受反応を促進する電子伝達物質を添加した。そこへ試料を懸濁させ、電解を行った。約 20 mg の試料の電解を行い、電解中に流れた電気量を算出することにより、試料中の全 Fe のうち Fe(II) に還元された割合を調べた。電解後の試料をメスバウアー分光法により測定し、Fe の酸化状態と配位構造を調べた。

【結果・考察】 電解中に流れた電気量から、試料中に含まれる全 Fe のうち約 36 % が Fe(II) に還元されたと考えられた。電解後の試料のメスバウアースペクトルを図 1 に示す。ピークフィット解析をしたところ、Fe(III) と Fe(II) が試料中に存在すると考えられた^[2] (図 1 赤点線、青点線)。以上より、pH 7.5 の溶液中において -0.5 V vs SHE の電圧を印加すると、粘土鉱物構造中の Fe(III) の一部が Fe(II) に還元されることが、電解時の電気量とメスバウアースペクトルの双方から明らかになった。発表では、電解前後の試料のメスバウアースペクトルを比較し、Fe の配位構造の変化を議論する。

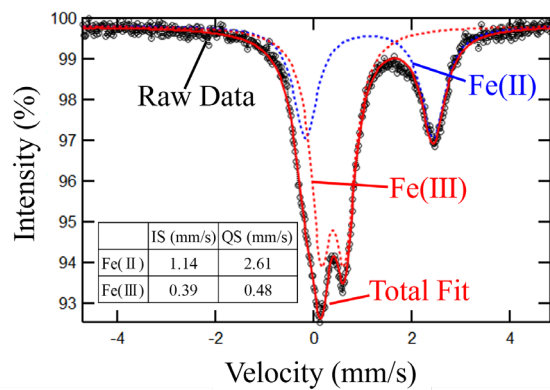


図 1. pH 7.5 の溶液中において -0.5 V vs SHE で電解した粘土鉱物試料のメスバウアースペクトル

(IS : Isomer shift, QS : Quadrupole splitting)

[1] Joe-Wong, C., et al. (2017) *Environ Sci Technol* **51**, 9817-9825.

[2] Gorski, C. A., et al. (2012) *Environ Sci Technol* **46**, 9369-9377.

Analysis of redox and structural properties of Fe in clay minerals by Fe-57 Mössbauer spectroscopy MORII S., YOMOGIDA, T., NAKADA, M., OKA, T., KITATSUJI, Y., TAKAHASHI, Y.