

2024年9月25日(水)

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25日(水) 9:40 ~ 11:00 A会場(11階会議ホール「風」)
3A1

座長:島田 垂佐子(日本原子力研究開発機構)

9:40 ~ 10:00

[3A01]

相対論的量子化学計算と機械学習によるマイナーアクチノイド分離配位子のパーツ設計

*住吉 剛¹、森 寛敏¹ (1. 中央大学大学院)

10:00 ~ 10:20

[3A02]

新規出発物質ジメトキシエタン錯体のアクチノイドフタロシアニン錯体合成への利用検討

*齋藤 巧¹、島田 隆¹、吉永 尚生¹、山村 朝雄¹ (1. 京都大学)

10:20 ~ 10:40

[3A03]

リポソームへの導入量及びランタノイド吸着反応に与えるDGA配位子のアルキル鎖の影響

*上原 孟¹、清水 壮太¹、山崎 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 数理物質科学研究群 化学学位プログラム、2. 筑波大学 数理物質系)

10:40 ~ 11:00

[3A04]

塩酸溶液系で抽出クロマトグラフィによるランタノイドの相互分離

*羅 文尊¹、Andri Putra Rahma¹、阿部 千景²、鈴木 達也¹ (1. 長岡技術科学大学、2. 東北大学)

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25日(水) 11:10 ~ 11:50 A会場(11階会議ホール「風」)
3A2

座長:秋山 大輔(東北大学)

11:10 ~ 11:30

[3A05]

ジオポリマーにおけるSrとCsの K_d の解明*木下 哲一¹、堀田 太洋²、中島 均¹、佐々木 勇氣¹、鳥居 和敬¹ (1. 清水建設株式会社、2. 株式会社神戸製鋼所)

11:30 ~ 11:50

[3A06]

東京電力HD福島第一原子力発電所原子炉建屋内スミヤ試料に含まれるMo同位体分析法の開発

*島田 垂佐子¹、飯田 芳久¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

部会

2024年9月25日(水) 12:10 ~ 13:30 A会場(11階会議ホール「風」)

原子力化学・アクチノイド化学部会総会

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25日(水) 13:30 ~ 14:30 A会場(11階会議ホール「風」)

3A3

座長:山村 朝雄(京都大学)

13:30 ~ 13:50

[3A07]

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (1) 核鑑識技術開発及びCTBT技術協力

*井上 尚子¹、山口 智樹¹、木村 祥紀¹、富田 豊¹、古野 朗子¹、木島 佑一¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

13:50 ~ 14:10

[3A08]

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (2) 深層学習モデルを応用した核鑑識技術

*木村 祥紀¹、松本 哲也²、山口 知輝¹ (1. JAEA、2. パワーコンピュータ)

14:10 ~ 14:30

[3A09]

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (3) 放射性希ガス観測による地下核実験の検知

*木島 佑一¹、山本 洋一¹、古野 朗子¹、富田 豊¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

セッションH その他（境界分野への放射化学の新展開など）

2024年9月25日(水) 14:40～15:40 A会場(11階会議ホール「風」)

3A4

座長:鈴木 達也(長岡技術科学大学)

14:40～15:00

[3A10]

即発ガンマ線二次元イメージング技術の開発

*邱 奕寰¹、大澤 崇人¹、野澤 拓也¹、二宮 和彦² (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、2. 広島大学)

15:00～15:20

[3A11]

広島湾沿岸で見つかった溶融粒子とは？

*佐藤 志彦¹、遠藤 暁²、赤時 僚伽²、菖蒲 敬久¹、富永 亜希¹、墨田 岳大³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 広島大学、3. 九州大学)

15:20～15:40

[3A12]

クロロベンゼンを展開溶媒としたランタノイドフラレンのHPLC溶離挙動に関する熱力学的解析

*中村 大生¹、久富木 志郎¹、秋山 和彦¹、高信 昌彦¹、高宮 幸一² (1. 東京都立大学、2. 京都大学複合原子力科学研究所)

閉会式・若手表彰式

2024年9月25日(水) 15:50～16:20 A会場(11階会議ホール「風」)

閉会式

セッションF 核医学・生物関連放射化学

2024年9月25日(水) 9:50 ~ 11:00 B会場(10階1001-2室)

3B1

座長:豊嶋 厚史(阪大・放射線機構)

9:50 ~ 10:20

[3B01]

放射化を用いた薬物動態可視化への挑戦

*片岡 淳¹ (1. 早稲田大学先進理工学部)

10:20 ~ 10:40

[3B02]

核医学用²²⁵Ac製造に向けた石炭灰中の²²⁶Ra利用の可能性伊地知 雄太¹、張 宰雄¹、小原 義之²、横田 季彦³、桧垣 正吾¹、山口 瑛子¹、平山 剛大¹、和田 洋一郎¹、羽場 宏光⁴、*高橋 嘉夫¹ (1. 東京大学、2. 株式会社日本海水、3. 福島エコクリート株式会社、4. 理化学研究所)

10:40 ~ 11:00

[3B03]

アスタチンの熱分離特性

*西中 一朗¹、鷲山 幸信²、橋本 和幸³ (1. 量子科学技術研究開発機構、2. 福島県立医科大学、3. 日本原子力研究開発機構)

セッションF 核医学・生物関連放射化学

2024年9月25日(水) 11:10 ~ 12:10 B会場(10階1001-2室)

3B2

座長:鷲山 幸信(福島県立医科大学)

11:10 ~ 11:30

[3B04]

治験薬アスタチン化ナトリウム ($[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$) の製法及び品質確立*白神 宜史¹、仲 定宏¹、渡部 直史¹、兼田 加珠子¹、大江 一弘¹、羽場 宏光²、村上 昌史¹、豊嶋 厚史¹ (1. 大阪大学、2. 理研)

11:30 ~ 11:50

[3B05]

AuNP-PEG-DOTA- $[^{111}\text{In}]$ RIナノ粒子における配位と摂動角相関のpH依存性*封 博宇¹、Kim Donghwan¹、峯尾 知子¹、島添 健次¹、Moh Hamdan¹、佐藤 健¹、大塚 彩加¹、中村 乃理子¹、太田 誠一¹、巽 俊文⁴、杉山 暁⁴、山次 健三⁵、野村 幸世⁶、寺林 稜平¹、富田 英生⁷、園田 哲⁸、重河 優大⁸、横北 卓也²、上ノ町 水紀³ (1. 東京大学、2. 東北大学、3. 東京工業大学、4. 東京大学アイソトープセンター、5. 千葉大学、6. 星薬科大学、7. 名古屋大学、8. 理化学研究所)

11:50 ~ 12:10

[3B06]

JRR-3におけるCdTe検出器を用いたBNCT-SPECTの開発

*邱 奕寰¹、大澤 崇人¹、墨田 岳大²、池田 瑞²、二宮 和彦³、武田 伸一郎⁴、南 喬博⁴、高橋 忠幸⁴、渡辺 伸⁵ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、2. 九州大学、3. 広島大学、4. 東京大学、5. 宇宙航空研究開発機構)

部会

2024年9月25日(水) 12:10 ~ 12:50 B会場(10階1001-2室)

教育部会総会

座長:篠原 厚(大阪青山大学)

セッションG 教育関連

2024年9月25日(水) 13:00 ~ 14:30 B会場(10階1001-2室)

3B3

座長:横山 明彦(金沢大学)、吉田 剛(高エネルギー加速器研究機構共通基盤研究施設放射線科学センター)

13:00 ~ 13:30

[3B07]

F-REIにおける放射線科学に携わる人材の育成

*渡部 浩司¹ (1. 東北大学先端量子ビーム科学研究センター)

13:30 ~ 13:50

[3B08]

国際化学オリンピックでの放射化学関連テーマの出題(第2報)

*薬袋 佳孝¹ (1. 武蔵大学)

13:50 ~ 14:10

[3B09]

学生実験における中性子放射化分析の実施例

*大浦 泰嗣¹ (1. 東京都立大学)

14:10 ~ 14:30

[3B10]

日本大学文理学部化学科学生実験での放射化学教育(2)

*小林 貴之¹、山形 武靖² (1. 日本大学、2. 東京大学MALT)

教育セミナー

2024年9月25日(水) 14:30 ~ 15:50 B会場(10階1001-2室)

3B4

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25日(水) 9:40 ~ 11:00 A会場(11階会議ホール「風」)

3A1

座長:島田 亜佐子(日本原子力研究開発機構)

9:40 ~ 10:00

[3A01]

相対論的量子化学計算と機械学習によるマイナーアクチノイド分離配位子のパーツ設計

*住吉 剛¹、森 寛敏¹ (1. 中央大学大学院)

10:00 ~ 10:20

[3A02]

新規出発物質ジメトキシエタン錯体のアクチノイドフタロシアニン錯体合成への利用検討

*齋藤 巧¹、島田 隆¹、吉永 尚生¹、山村 朝雄¹ (1. 京都大学)

10:20 ~ 10:40

[3A03]

リポソームへの導入量及びランタノイド吸着反応に与えるDGA配位子のアルキル鎖の影響

*上原 孟¹、清水 壮太¹、山崎 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 数理物質科学研究群 化学学位プログラム、2. 筑波大学 数理物質系)

10:40 ~ 11:00

[3A04]

塩酸溶液系で抽出クロマトグラフィによるランタノイドの相互分離

*羅 文尊¹、Andri Putra Rahma¹、阿部 千景²、鈴木 達也¹ (1. 長岡技術科学大学、2. 東北大学)

3A01

相対論的量子化学計算と機械学習によるマイナーアクチニド分離
配位子のパーツ設計

(中央大学¹)○住吉剛¹、森寛敏¹

【緒言】 複素環配位子を用いた放射性廃液中のマイナーアクチニド (An) とランタニド (Ln) の錯形成分離では、リスクとコストの観点から、置換基導入による分離能向上を、網羅的実験を回避しつつ着実に実施せねばならない。昨年度は、この難題に対し、高精度量子化学データベースに基づく情報化学アプローチが有効であることを報告した。だが当該手法では、錯体と配位子の量子化学計算にコストがかかり、データベース作成に長大な時間を要する。そこで、特徴量作成に高速な半経験的量子化学計算を活用し、さらに学習データ数を最小化できるベイズ最適化モデルを開発し、電子状態インフォマティクスの加速を試みた。TPEN 型 6 座配位子 (図 1; *N,N,N',N'*-Tetrakis(2-pyridylmethyl)ethylenediamine) を例とした配位子設計を紹介する。

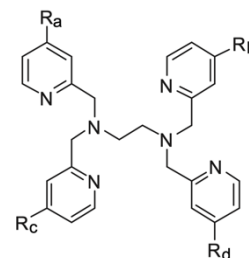


図 1. TPEN 型配位子

【方法】 TPEN 型配位子 (5 万種) と $\{\text{Ln}/\text{An}\}=\{\text{Eu}, \text{Gd}/\text{Am}, \text{Cm}\}$ の錯形成ギブスエネルギーとその差分 ($\Delta G_{\text{Ln}, \text{An}}$) のベイズ最適化に取り組んだ。全配位子の電子状態特徴量の計算には、半経験量子化学計算 (GFN2-xTB) を用いた。学習に必要な少数の正解情報の取得には、相対論的密度汎関数計算 (B2PLYP//BP86) を用いた。

【結果と考察】 $[\text{Ln}/\text{An}(\text{TPEN})(\text{OH}_2)_2]^{3+}$ について、f 軌道に関わる分子軌道を示す (図 2)。

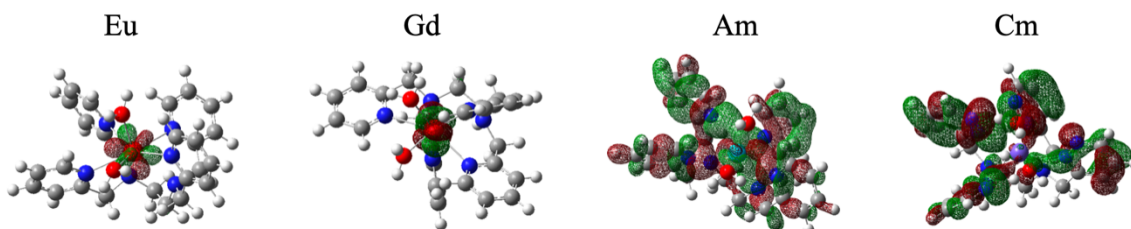


図 2. $[\text{Ln}/\text{An}(\text{TPEN})(\text{OH}_2)_2]^{3+}$ の分子軌道

Ln では、中心金属の 4f 軌道が局在するが、An では、配位子の孤立電子対軌道と 5f 軌道で結合性軌道が形成される。これは、孤立電子対軌道に関する情報を特徴量にすることで、錯形成分離能を機械学習できることを意味する。実際、それらの情報を用いて $\Delta G_{\text{Ln}, \text{An}}$ を学習し予測した結果 (図 3) は、決定係数 (R^2)、平均絶対誤差 (MAE)、平均 2 乗誤差 (RMSD) がそれぞれ、0.90, 18.3/kJ mol⁻¹, 23.3/kJ mol⁻¹ であ

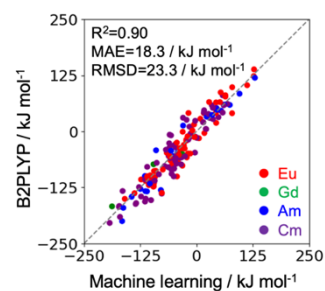


図 3. $\Delta G_{\text{Ln}, \text{An}}$ 予測結果

った。低コストな配位子の計算のみから、 $\Delta G_{\text{Ln}, \text{An}}$ の高精度予測が可能になった。当日は $\Delta \Delta G_{\text{Ln}/\text{An}}$ 予測結果も加え、機械学習の結果から配位子設計指針について議論する。

【謝辞】 ベイズ最適化の活用において、お茶の水女子大・黒木菜保子氏に重要な示唆を頂いた。量子化学計算には、分子科学研究所の資源を使わせて頂いた (24-IMS-C013)。

Minor Actinide Selective Separating Ligands' Design by Electronic Structure Informatics Accelerated with Bayesian Optimization
SUMIYOSHI T., MORI, H.

3A02

新規出発物質ジメトキシエタン錯体の
アクチノイドフタロシアニン錯体合成への利用検討(京都大学¹)○齋藤 巧¹、吉永尚生¹、島田隆¹、山村朝雄¹

【緒言】

フタロシアニン (Pc) は複素共鳴環を有し強い平面性を有し、固有の空孔サイズ 1.94Å に適合する Cu²⁺ (イオン半径 0.57 Å) の錯体は耐光性に優れた塗料として有名である^[1]。Pc は周期表の 70 種類以上の金属イオンと錯体を構成する^[2]。金属イオンをジフタロニトリル法により鑄型反応で、イオン半径の空孔サイズ適合性にかかわらず合成が可能である^[2]。

私たちは、アクチノイド元素系列のウラン (U) の錯体を、電解還元法で調整した UCl₄(H₂O)_n を出発物質とする鑄型反応を固相合成法で行った^[3]。UPc₂ 錯体では配位結合の N-U 間距離 2.42Å^[3]は空孔サイズより大きいため、ダブルデッカー型として二つの Pc 環に配位する。アクチノイド収縮を考慮すると、超ウラン元素では U より Pc 環平面からの変位は小さくなる結果、ダブルデッカーあるいはトリプルデッカーの Pc 平面間距離はより小さくなると期待される。

他方、アメリカシウム、キュリウム等のいわゆるマイナーアクチノイド元素 (MA) の Pc 錯体の合成には至っていない。MA で合成に至っていない原因は放射性物質としての取扱いの困難さにある。しかし、錯体合成のための金属元素の容易な出発物質が見当たらなかったことも大きな問題であったことは知られていない。

近年、ジメトキシエタン (DME) の金属塩が合成に利用され大きな成果を上げている^[4]。DME 錯体は容易に無水物結晶が単離できることで、高純度で同定容易な出発物質を提供する。本研究では、アクチノイドフタロシアニン錯体の合成への利用検討を行った。

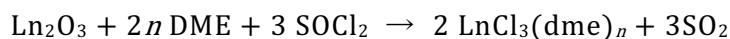
【検討経緯と研究方法】

1. アクチノイドフタロシアニン錯体の合成法

アクチノイド系の研究では、放射性の強弱、放射線の種類 (α/β/γ) によるが、負圧管理 GB 等の利用が必要な場合があり、合成手法に対する制約が大きい。具体的には、①出発物質がその化学形で入手可能であること、②不活性雰囲気 GB 等の追加条件を要求しない、③簡便な方法、④高収率、⑤廃液処理が容易ないし不要、等の条件が必要である。私たちはキャピラリー法までの少量に適用可能な固相合成を構築してきた^[3]。

2. 無水 DME 錯体の合成法の検討

AnCl₄(dme)_x 錯体^[11] はポルフィリン類のコロール錯体の合成に使用された^[5]ように、鑄型反応にも適用可能である。AnCl₄(dme)_x 錯体合成の報告^[6-8]はあるが、依然として①②④等の問題が残っていた。最近、無水環境を必要とせずに酸化物から無水物結晶の合成法^[9]が報告された。



本研究では、本方法をアクチノイドに適用していく検討を進めている。

3. 錯体の昇華精製による分離

本研究では従来の装置^[3]の再構築・整備の後、CuPc 錯体を用いた試験を進めている。

[1] Daniel R. Tackley, et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 3 (2001) 1419. [2] FRANK. H. MOSER, et al., Hassell Street Press. (1963) PHTHALOCYANINE COMPOUNDS. [3] C. Tabata, et al., J. Molecular Structure, 1277 (2022) 134870. [4] Conrad A. P. Goodwin, et al., Angew. Chem., 58 (2019) 11695. [5] Ashleigh L. Ward, et al., J. Am. Chem. Soc. 135 (2013) 13965. [6] Thibault Cantat, et al., Chem. Commun., 46 (2010) 919. [7] Sean D. Reilly, et al., Dalton Trans., 43 (2014) 1498. [8] David D. Schnaars, et al., Dalton Trans., 44 (2008) 6121. [9] Baisch, et al., Inorganica Chimica Acta, 357 (2004) 1538.

Investigation of the use of a new starting material, dimethoxyethane complex, for the synthesis of actinide phthalocyanine complexes
Takumi Saitou, et al.,

3A03

リポソームへの導入量及びランタノイド吸着反応に与える DGAA 配位子のアルキル鎖の影響

(筑波大学 化学学位プログラム¹、筑波大学 数理解物質系²)○上原孟¹、清水壮太¹、山崎信哉²、坂口綾²、高久雄一²、末木啓介²

【緒言】 原子力発電所で生じる使用済核燃料にはマイナーアクチノイドや核分裂生成物(FP)が含まれており、これらは処分の効率化や有用元素の資源化などの観点から、発熱性や半減期、利用目的に応じた分離が求められる。FPに含まれるランタノイド元素(Ln)の分離手法として、Diglycolamic Acid(DGAA)型配位子を封入したリポソームによるLnの吸着及び分離法が提案された【1】が、DGAAアルキル鎖の炭素数とLn吸着量の関係は不明であった。そこで本研究ではLnの吸着挙動に与えるDGAAアルキル鎖の影響について検討した。

【実験】 卵黄 phosphatidylcholine(PC)を主成分とするリポソームに、配位子として *N,N*-dioctyldiglycolamic Acid (D8DGAA), *N,N*-didecyldiglycolamic Acid (D10DGAA), *N,N*-didodecyldiglycolamic Acid (D12DGAA), *N*-dodecyldiglycolamic Acid (C12DGAA)をそれぞれ封入した。リポソームにユウロピウム(Eu)を吸着させたのち、メンブレンフィルターでリポソームを除去し、ろ液中のEu濃度をICP-MSで定量することにより、Eu吸着量を求めた。また、封入する配位子量、及びリポソーム溶液調製から吸着実験までの静置時間を変化させることで、リポソームに安定して封入可能な配位子の最大量(飽和封入量)を求めた。最後に、DGAA封入リポソームと14種のLn(プロメチウムを除く)共存溶液を反応させて、Ln間の吸着選択性を比較した。

【結果】 Eu吸着量はD8DGAA濃度とともに増加したが、時間が経過するとある濃度以上でEu吸着量の低下がみられ(Fig. 1)、封入したDGAAの脱離が見られた。この結果からPC 100 ppmに対するD8DGAAの飽和封入量を14 μM と決定した。同様に、二本鎖のD10DGAA及びD12DGAAの飽和封入量はそれぞれ14 μM 、一本鎖のC12DGAAは42 μM となった。14種のLn共存条件での吸着実験から、全てのDGAAについて重Ln選択性が見られた。また、Ln吸着率は二本鎖DGAAではほとんど一致したが、一本鎖DGAAはより低い吸着率であった(Fig. 2)。

以上より、DGAAアルキル鎖の炭素数の変化は、リポソームへの飽和封入量やLn選択性に寄与しないことが分かった。一方で、アルキル鎖本数の変化は、飽和封入量及びLn選択性に影響することが分かった。一本鎖DGAAの方が吸着率は低い、飽和封入量が多く、吸着できるLn量も多かった。このことから、Lnを回収するためには一本鎖DGAA封入リポソームが効率的であることが示された。

【1】清水壮太ら、日本放射化学会第67回討論会要旨(2023), 3A04

Effect of the alkyl chain of the DGAA ligand on the amount introduced into liposomes and the lanthanide adsorption reaction.

UEHARA T., Shimizu S., YAMASAKI S., SAKAGUCHI A., TAKAKU Y., SUEKI K.

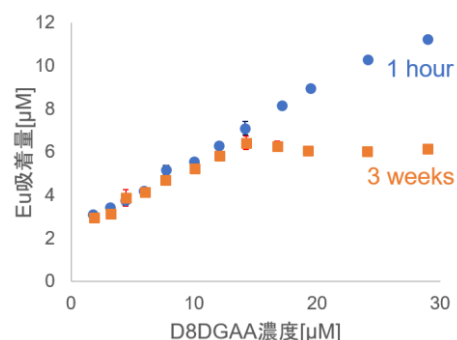


Figure 1 Eu吸着量のD8DGAA濃度依存性

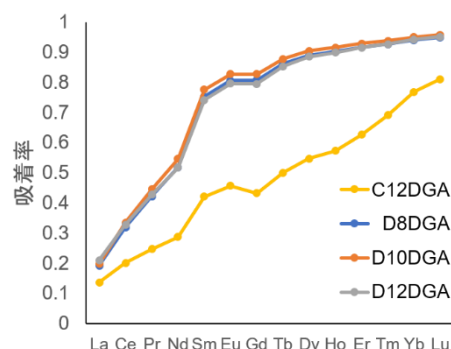


Figure 2 Ln間の吸着選択性

3A04

塩酸溶液系での抽出クロマトグラフィによるランタノイドの相互分離

(長岡技科大¹、東北大²)○羅 文尊¹、Andri Rahama Putra¹、阿部千景²、鈴木達也¹

【緒言】 照射済み燃料やデブリ中のランタノイドの分析は炉内環境の評価に書かすことができないが、同重体干渉除去のため相互分離が求められる。また、核医学の分野で注目を集める、Lu-177にはLuとYbの分離が重要である。ランタノイドは、物理的および化学的性質が非常に似ており、相互分離が難しい元素群である。

本研究では、HDEHP (ジ(2-エチルヘキシル) オルトリン酸) 含浸樹脂へのランタノイドの吸着挙動を、種々塩酸濃度下でクロマトグラフィ実験により調査した。その結果、ランタノイドの相互分離が可能であることを明らかにした。

【実験】 ランタノイドは、SPEX CertiPrep社のXSTC-1標準溶液を用いた。供給溶液は、Pmを除くランタノイドが含まれており、その濃度は 500 ± 20 ppbとした。HDEHP含浸樹脂は粒子サイズが $50 \sim 100 \mu\text{m}$ のLn樹脂(Eichrom Tech.)を用いた。元素の同定および濃度測定には、誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS、Agilent 8900、Agilent Technologies)を用いた。

クロマトグラフィ実験で用いた樹脂の質量は $3 \pm 0.05\text{g}$ で、樹脂カラムの流量と高さはそれぞれ $0.8 \pm 0.1 \text{ mL/min}$ および $90 \pm 3 \text{ mm}$ とした。

【結果と考察】 実験結果計算した、分配係数(mL/g)をFig.1に示す。分離性能を評価するための分離係数(Fig.2)および分解能も求めた。塩酸濃度の低下と共に吸着が強くなるがランタノイドの相互間の吸着の違いは小さくなることを確認した。重ランタノイドの分離では、塩酸濃度が低い時に、可能であることを確認した。軽ランタノイドでは塩酸濃度が低くならないと吸着が弱いことから、低塩酸濃度での分離を行ったが分解能が現状では不十分であると結論した。

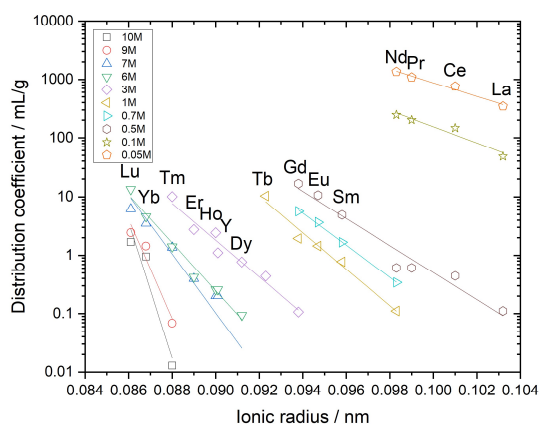


Fig.1. Distribution coefficients (mL/g) for lanthanides (excluding Pm) on Ln resin in HCl

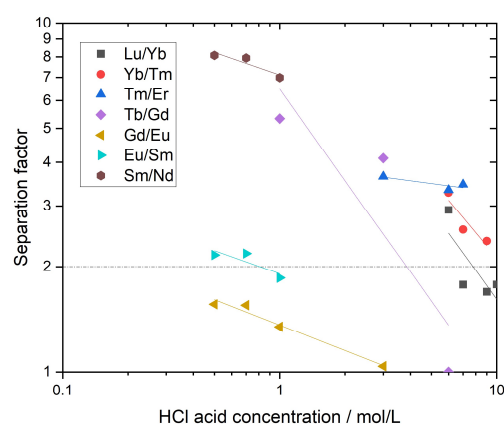


Fig.2. SF values from chromatographic experiment for select lanthanides (excluding Pm) on HDEHP-impregnated resin in HCl system

本研究の一部は、資源エネルギー庁の放射性物質研究拠点施設等運営事業費補助金「放射性廃棄物・燃料デブリのための超微量分析技術開発」の成果を含む。

Mutual separation of lanthanides by extraction chromatography in hydrochloric acid solution
Wenzun Luo., Rahma Putra Andri., Chikage Abe., Tatsuya Suzuki.

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25日(水) 11:10 ~ 11:50 A会場(11階会議ホール「風」)

3A2

座長:秋山 大輔(東北大学)

11:10 ~ 11:30

[3A05]

ジオポリマーにおけるSrとCsの K_d の解明*木下 哲一¹、堀田 太洋²、中島 均¹、佐々木 勇氣¹、鳥居 和敬¹ (1. 清水建設株式会社、2. 株式会社神戸製鋼所)

11:30 ~ 11:50

[3A06]

東京電力HD福島第一原子力発電所原子炉建屋内スミヤ試料に含まれるMo同位体分析法の開発

*島田 亜佐子¹、飯田 芳久¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

3A05 ジオポリマーにおける Sr と Cs の K_d の解明

(清水建設¹、神戸製鋼所²)○木下 哲一¹、堀田 太洋²、中島 均¹、佐々木 勇氣¹、鳥居 和敬¹

ジオポリマーはアルカリ溶液とフライアッシュ等を練り混ぜて作製した硬化体で、セメントに代わる材料として放射性廃棄物の固化への利用が期待されている。放射性廃棄物の固化への利用を目指す場合は、一定基準の圧縮強度を超えるだけでなく放射性核種の高い封じ込め性能があることが好ましい。我々のグループではフライアッシュと高炉スラグに様々な濃度の NaOH 溶液を混ぜて作製したジオポリマーの圧縮強度と K_d について報告した¹⁾。図1に示すように、使用する NaOH 水溶液の濃度と共に Sr と Cs の K_d は共に増加し、また、Sr の K_d は Cs よりも1~2桁大きいことが明らかになった。本研究では、 K_d の大きなジオポリマー作製の可能性を検討するため、これらの K_d の傾向が何に由来するのかを明らかにすることを目的とした。

フライアッシュ：高炉スラグ：NaOH 溶液を 7：3：5 の重量比で混ぜ合わせてジオポリマー試料を作製した。NaOH 溶液には 1~5M の各濃度の溶液を用いた。固化したジオポリマーを粉碎し、²⁹Si-NMR (核磁気共鳴) と PALS (陽電子消滅寿命法) の測定を行った。また、SrCl₂ と CsCl の溶液に一ヶ月間浸した試料について、Sr と Cs の EXAFS (広域 X 線吸収微細構造) の測定を行った。

Sr や Cs はジオポリマー中の空孔内に吸着していることは知られているが、EXAFS より、Sr と Cs からそれぞれ 3.6 Å と 3.9 Å 離れた位置に空孔表面の原子が存在していることが明らかになった。また、PALS より半径 1.2~4.2 Å の空孔が確認されており、EXAFS による原子間距離と PALS による空孔サイズは互いに矛盾のない結果となった。また、²⁹Si-NMR より測定された Si の各化学種の割合を図2に示した。ジオポリマー中の Al は4つの酸素と結合し、AlO₄⁻を形成していることが知られている。Sr と Cs がイオン結合により空孔内に固定されている場合、クーロン力は $q_1 \times q_2 / r$ に比例する。ここで、 q_1 は Sr イオンもしくは Cs イオンの電荷、 q_2 はマイナスに帯電した空孔の電荷、 r は Sr もしくは Cs から空孔表面の原子までの原子間距離を示す。 q_2 は式(1)より見積もった。

$$q_2 = -1 \times A_{Q^4(1Al)} - 2 \times A_{Q^4(2Al)} - 3 \times A_{Q^4(3Al)} - 4 \times A_{Q^4(4Al)} \quad (1)$$

$A_{Q^4(1Al)} \sim A_{Q^4(4Al)}$ は、図2に示した ²⁹Si-NMR より得られる Q⁴(1Al)~Q⁴(4Al) の各化学種の割合を示す。Sr と Cs から空孔表面までの距離は1割程度の差で大差ない。そのため、クーロン力は $q_1 \times q_2$ に比例するとし、図3に $q_1 \times q_2$ と K_d の関係を示した。 K_d はクーロン力 $q_1 \times q_2$ に対して指数関数的に増加する傾向が見られた。Sr と Cs は化学的性質の異なる元素同士であるが、 K_d の傾向はクーロン力により説明可能であることが明らかになった。

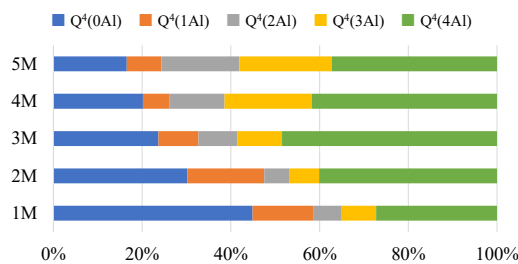


図2 Si の各化学種の割合

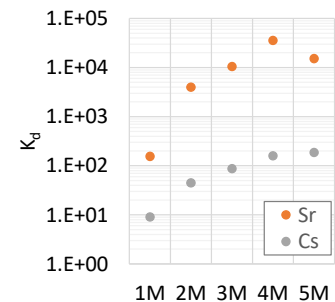


図1 NaOH 溶液の濃度と K_d

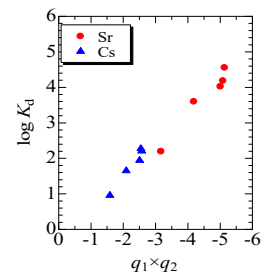


図3 $q_1 \times q_2$ と K_d の関係

参考文献 1) Kinoshita et al., J. Nucl. Radiochem. Sci. 22, 7-13 (2022).

Elucidation of K_d for Sr and Cs on the geopolymers
KINOSHITA, N., HOTTA, M., NAKASHIMA, H., SASAKI, Y., TORII, K.

3A06

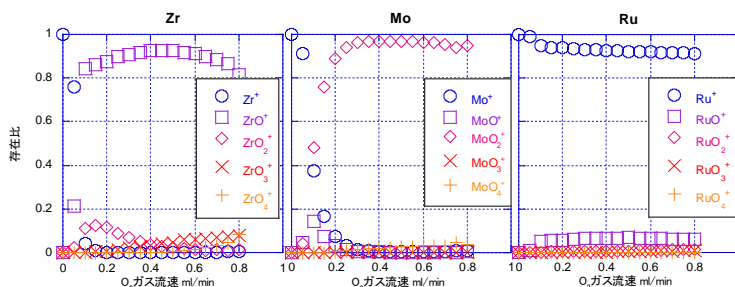
東京電力 HD 福島第一原子力発電所原子炉建屋内スミヤ試料に含まれる Mo 同位体分析法の開発

(原子力機構¹)○島田亜佐子¹、飯田芳久¹

【緒言】東京電力HD福島第一原子力発電所(1F)の事故時の炉内条件や¹³⁷Csの化学形推定のために、原子力規制庁により1Fの原子炉建屋内でスミヤ試料が採取され、原子力機構安全研究センターで放射性核種等を分析している。Mo同位体は炉心溶融が酸化雰囲気条件下で進展した場合にCs₂MoO₄が¹³⁷Csの主要な化学形になる可能性があるため¹、分析対象元素となっている。Mo分析の妨害元素であるZrやRuは化学分離によって大部分が除去されるが、10⁻¹⁰~10⁻¹¹ g/mlの濃度領域での定量となるため、試薬等由来の汚染も問題となる。そこで、測定試料のZr、Mo及びRuをリアクションセルによりO₂と反応させ、質量数をシフトさせることで妨害を除去する定量法を開発した。

【実験】1 ng/mlのZr、MoまたはRuを含む1 M硝酸溶液を調製し、リアクションセルにO₂ガスの流速を変えて流し、ICP-MS/MS(Agilent8900, Agilent Technologies international Japan, Ltd.)で⁹⁰Zr、⁹⁵Mo及び¹⁰¹Ruに対して+0、+16、+32、+48及び+64の計数率をモニタした。各イオン種の計数率を全イオン種の計数率の和で割って存在比を求めた。Zr、Mo及びRuを各1 ng/ml含む混合溶液とMoのみ1 ng/ml含む溶液を調製し、O₂-gasモードでMo同位体比を測定した。

【結果と考察】図に各元素をO₂-gasモードで測定した時の+0、+16、+32、+48及び+60のイオン種の存在比をO₂ガス流速に対してプロットした。いずれの元素でも、+48及び+60はほとんど生成しなかった。Zrでは、O₂ガス流速の増加とともにZr⁺が急激に減少し0.1 ml/min以上ではZrO⁺の存在比が0.8以上となったが、0.1~0.5 ml/minではZrO₂⁺も少量生成した。MoはO₂ガス流速の増加とともにMo⁺が減少し、0.3 ml/min以上ではMoO₂⁺の存在比が0.96以上となった。RuはO₂ガスを流してもRu⁺が主なイオン種であったが、0.07以下のRuO⁺が生成した。この結果よりO₂ガスを

図 各イオン種の存在比のO₂ガス流速による変化

0.6 ml/minで流すことで、Zr、Mo及びRuはそれぞれZrO⁺、MoO₂⁺及びRu⁺となるため分離して定量できることが分かった。次に、0.6 ml/minでO₂ガスを流しながらZr、Mo及びRuの混合溶液に対して、Mo同位体の+32シフトである124、126、127、128、129、130、132を測定したところ、各質量数での計数率の比がMoのみ試料を測定した場合と誤差の範囲で一致し、同濃度のZrやRuが共存した場合でも弁別して測定できることが確認された。

¹ H Tamaki et al. NURETH-18, Portland, OR, August 18-22, 2019.

本研究は原子力規制庁からの受託事業「令和4年度東京電力福島第一原子力発電所プラント内核種移行に関する調査事業」の成果を含む

Development of analytical method for Mo isotopes in smear samples collected at reactor buildings of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

SHIMADAA., IIDA Y.

部会

2024年9月25日(水) 12:10 ~ 13:30 A会場(11階会議ホール「風」)

原子力化学・アクチノイド化学部会総会

12:10 ~ 13:30

部会

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25日(水) 13:30 ~ 14:30 A会場(11階会議ホール「風」)

3A3

座長:山村 朝雄(京都大学)

13:30 ~ 13:50

[3A07]

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (1) 核鑑識技術開発及びCTBT技術協力

*井上 尚子¹、山口 智樹¹、木村 祥紀¹、富田 豊¹、古野 朗子¹、木島 佑一¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

13:50 ~ 14:10

[3A08]

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (2) 深層学習モデルを応用した核鑑識技術

*木村 祥紀¹、松本 哲也²、山口 知輝¹ (1. JAEA、2. パワーコンピュータ)

14:10 ~ 14:30

[3A09]

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (3) 放射性希ガス観測による地下核実験の検知

*木島 佑一¹、山本 洋一¹、古野 朗子¹、富田 豊¹ (1. 日本原子力研究開発機構)

3A07

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学(1) 核鑑識技術開発及び CTBT 技術協力

(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)○井上 尚子¹、山口 智樹¹、古野 朗子¹、木村 芳樹¹、木島 佑一¹

【緒言】

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野は政策と科学技術双方の専門性に支えられる分野であり、放射化学もその 1 つである。原子力機構核不拡散・核セキュリティ総合支援センター(ISCN)では同分野にかかる人材育成支援、技術開発、政策調査研究及び包括的核実験禁止条約(CTBT)に基づく核実験検知体制への技術支援を実施しており、いずれの活動においても放射化学は重要な位置づけを占める。本発表は、本分野で放射化学がどのように必要とされているのか、ISCN が実施している活動における放射化学とその結果としてどのように本分野で国際貢献しているかを概説する。

【核不拡散・核セキュリティ・核軍縮における放射化学】

不拡散の担保である IAEA 保障措置では未申告の核物質や原子力活動がないことの検認のために様々な測定や分析が用いられる。特に、U 試料や環境サンプルと呼ばれるスワイプ試料中の U・Pu の分析には ICP-MS や同位体希釈法を用いた分析法が用いられている。

核セキュリティ分野においては核物質や RI 物質を含む汚い爆弾(RDD)を用いたテロ行為や紛失・盗難にあったこれらの物質が法執行機関により押収された際に、分析測定し、物理・化学的特徴からその起源・履歴等を特定し、捜査活動を支援する「核鑑識」分析がある。JAEA/ISCN ではウランの同位体分析、不純物分析、ウラン年代測定、粒子形状分析・微細構造分析等を行っており、これらは米国、欧州を始めとする機関や国際パートナーと連携しながら進めている。今後 Pu 核鑑識にも着手する計画であり、国際原子力機関(IAEA)とも連携しながら現場初動対応支援のための放射線測定技術開発にも取り組んでいく。

核軍縮分野においては、包括的核実験禁止条約(CTBT)機関の国際監視システム(IMS)が大気中、海中、地下における核実験検知のために微気圧振動、水中音波、地震波に加えて放射性核種(RN)観測・監視を行っている。RN の連続観測は粒子状物質(大気中塵埃)、放射性希ガスの 2 種類の技術が用いられている。前者は HpGE が用いられ、後者は空気を補修しながら大気中のキセノンを分離・精製し、HpGE あるいは β - γ コインシデンス法が用いられ、Xe-133, Xe-131m, Xe-133m, Xe-135 の 4 核種を観測する。粒子状物質の観測によりイレギュラーな値を示した際には、サンプルは 2 つに分割され、世界に 16 か所ある公認実験施設(ラボ)のいずれか 2 か所に送られて HpGE による再分析が行われる。CTBT 機関事務局は ISO/IEC17025/2017 に準拠した品質保証プログラムを通じてラボの品質の維持向上に努めている。

Radiochemistry in the field of Nuclear Non-proliferation, Nuclear Security and Nuclear Disarmament - Nuclear Forensics R&D and CTBT Technology support t- (2024)

INOUE, N., YAMAGUCHI, T., FURUNO, A., KIMURA, Y., KIJIMA, Y.

3A08

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学

(2) 深層学習モデルを応用した核鑑識技術

(JAEA¹、パワーコンピュータ²)○木村祥紀¹、松本哲也²、山口知輝¹

【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、規制外の核・放射性物質に関連した核セキュリティ事案の技術的な対応手段である核鑑識に関し、核・放射線テロの現場初動対応やラボ分析を含む様々な技術的課題を解決するため、深層学習モデルを応用した分析技術等の開発を進めている。

【核鑑識における技術的課題と深層学習モデルの応用】

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おり、これまでIAEAや核鑑識国際技術ワーキンググループなどが発行するガイドラインに示された分析技術を基盤技術と位置づけ整備を進めてきた。また、これらの整備で培った知見をもとに、分析結果の信頼性の向上や、捜査活動に応じてタイムリーに分析結果を提供するため分析の適時性向上を目指した分析技術の高度化に関する研究開発を進め、成果を広く公開することで国際社会における核鑑識技術能力の向上に貢献してきた。

核鑑識における一連のプロセスには、ラボにおける試料測定だけでなく、犯罪やRNテロの現場初動対応及び捜査活動、試料測定データの解析による捜査支援情報の提供が含まれる。そのため、放射線計測、分析化学、核燃料サイクル、原子炉物理、法科学、統計学、データ科学といった幅広い分野の技術の応用が必要となる。ISCNでは近年、法執行機関等との情報共有を通じて技術的課題やニーズの抽出を行い、また未だ認知度が低い核鑑識技術の新興国や大学への展開を目指した研究開発に着手しており、その一環として、以下に示すような深層学習モデルを応用した新しい技術の開発を進めている。

- ① 深層ニューラルネットワークによる核種判定アルゴリズム
- ② 教師なし深層学習によるガンマ線スペクトルディコンボリューション技術
- ③ 深層距離学習によるウラン電子顕微鏡画像の識別技術
- ④ 機械学習による使用済燃料・プルトニウムの重要識別特徴の抽出と試料識別

核鑑識の一連のプロセスに関する様々な技術的課題に対し、人工知能の中心的技術である深層学習モデルは有効なアプローチの一つであり、近年は国際的に見ても研究開発が活発に進められつつある状況である。本発表では、深層学習モデルを応用した核鑑識技術に関する上記の研究結果概要と今後の展望を議論する。

Radiochemistry in the field of nuclear nonproliferation, nuclear security, and nuclear disarmament
(2) Nuclear forensics technologies based on deep learning models (2024)
KIMURA, Y., MATSUMOTO, T., YAMAGUCHI, T.

3A09

核不拡散・核セキュリティ・核軍縮分野の放射化学 (3) 放射性希ガス観測による地下核実験の検知

(日本原子力研究開発機構¹⁾)○木島佑一¹、山本洋一¹、古野朗子¹、富田豊¹

【概要】 原子力機構 (JAEA) では、地球上のあらゆる場所での核爆発を禁ずる包括的核実験禁止条約 (CTBT) に係る国際監視制度の一環として、日本国内の放射性核種監視観測所の運用や、世界中の観測所から得られる放射性核種観測データの解析を担っている。北朝鮮が過去に 6 回実施した核実験のうち、2013 年 2 月に実施された第 3 回核実験に関しては、約 2 か月後の 2013 年 4 月 8 日～9 日に、国内にある高崎観測所で核実験起源とみられる放射性キセノンを検出した。

【同一の放射性プルームに起因するか否かを判定する手法の検討】 2013 年に行った放射性キセノンの同位体比を用いた解析では、不確かさに関する検討が十分になされていないという問題があった。放射性キセノン同位体が 2 核種且つ複数回検出された場合、不確かさも考慮し、それらが同一の放射性プルームに起因するか否かを判定するための解析手法 (放射能比のバンド幅を用いた解析) の検討を行った。そして、第 3 回北朝鮮核実験後に、高崎及びロシアのウラジオストク近郊にあるウスリースク観測所にて検出された放射性キセノンに関して、本手法等を用いて再解析を行った。

【使用データ】 同位体比のバンド幅を用いた解析には、高崎観測所およびウスリースク観測所における Xe-133 および Xe-131m の地表面大気中濃度の時系列データを使用した。解析期間は 2013 年 4 月 8 日～19 日である。また、PSR 解析 (ある地点が放出源と仮定した場合の大気輸送モデルによる計算値と観測値の相関関係から、検出された放射性核種の放出源を推定する解析手法) も実施した。PSR 解析に関しては、2013 年 4 月 8、9、14 及び 15 日の高崎観測所で検出された放射性キセノンの観測値と大気輸送モデルによる計算値との相関、及び、2013 年 4 月 12、13、18 及び 19 日のウスリースク観測所で検出された放射性キセノンの観測値と大気輸送モデルによる計算値との相関を取った。

【結果及び考察】 同位体比のバンド幅を用いた解析の結果、高崎およびウスリースク観測所で検出された放射性キセノンは、それぞれ同一のバンド幅に属しているものの、両者は重なっていないことが明らかになった。つまり、高崎とウスリースクで検出された放射性プルームは異なる放射性プルームに起因しており、放出が 2 回あったことが示唆される。また、PSR 解析の結果、4 月 14 日～15 日に高崎観測所で検出された放射性キセノンおよび 4 月 19 日にウスリースク観測所で検出された放射性キセノンも核実験由来であることが示唆された。今回検討した手法を用いると、より信頼性の高い結果を得ることができるため、今後更なる検証を重ね、実際の核実験に備える予定である。

Radiochemistry in the fields of nuclear nonproliferation, nuclear security and nuclear disarmament (3)
Detection of underground nuclear tests by monitoring radioactive noble gases
KIJIMA, Y., YAMAMOTO, Y., FURUNO, A., TOMITA, Y.

セッションH その他（境界分野への放射化学の新展開など）

2024年9月25日(水) 14:40 ~ 15:40 A会場(11階会議ホール「風」)

3A4

座長:鈴木 達也(長岡技術科学大学)

14:40 ~ 15:00

[3A10]

即発ガンマ線二次元イメージング技術の開発

*邱 奕寰¹、大澤 崇人¹、野澤 拓也¹、二宮 和彦² (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、2. 広島大学)

15:00 ~ 15:20

[3A11]

広島湾沿岸で見つかった溶融粒子とは？

*佐藤 志彦¹、遠藤 暁²、赤時 僚伽²、菖蒲 敬久¹、富永 亜希¹、墨田 岳大³ (1. 日本原子力研究開発機構、2. 広島大学、3. 九州大学)

15:20 ~ 15:40

[3A12]

クロロベンゼンを展開溶媒としたランタノイドフラーレンのHPLC溶離挙動に関する熱力学的解析

*中村 大生¹、久富木 志郎¹、秋山 和彦¹、高信 昌彦¹、高宮 幸一² (1. 東京都立大学、2. 京都大学複合原子力科学研究所)

3A10 即発ガンマ線二次元イメージング技術の開発

(JAEA¹、広大²) ○邱奕寰¹、大澤崇人¹、野澤 拓也¹、二宮和彦²

【緒言】 即発 γ 線分析法(PGA)は、中性子を原子の原子核と核反応を起こさせ、原子核から放出される即発ガンマ線を検出することで元素分析を行う。試料の化学形に影響せず、優れた定量性で試料全体の平均的元素組成が分析できる。日本原子力研究開発機構が所有する研究炉 JRR-3 に設置されている PGA(図1)は国内唯一の即発ガンマ線分析装置である[1]。本研究では、PGA にテルル化カドミウム両面ストリップ型 2 次元イメージング検出器 (CdTe-DSD、[2]) を導入し、PGA で元素の定量と同時に数 mm の空間分布を得る新しい分析法、即発ガンマ線二次元イメージング技術を確立することを目的に実施した。

【実験】 本研究では、CdTe-DSD を PGA 装置に組み込み、サンプルに中性子を照射して放射された即発ガンマ線を測定するイメージング実験を行った。中性子と炭素(C)およびフッ素(F)の反応断面積が小さいことを考慮し、サンプルホルダーにはテフロン(C₂F₄)_n を使用した(図2)。サンプルは中性子との反応断面積が大きい元素 (¹⁵²Eu、¹⁶⁴Dy、¹⁰B) を使って作成し、テフロン糸でサンプルホルダーの中心に固定し、これらの元素に対するイメージングを実施した。

【結果】 本実験では、中性子がサンプルで散乱し、PGA 上に設置された CdTe センサーとタングステン製のコリメータに当たることによって、Cd および W から即発ガンマ線が発生し、大量のコンプトン散乱によるバックグラウンドを作ることが分かった。このため、エネルギースペクトル上では ¹⁵²Eu、¹⁶⁴Dy、¹⁰B の明確な信号ピークは確認できなかったが、即発ガンマ線のデータベースを利用し、予想されるエネルギー範囲を選択することで、それらの元素の二次元分布を得ることができた。図3は ¹⁵²Eu の分布を示す。本研究では、即発ガンマ線の測定を通じて、多元素の同時イメージングが可能なことを示した。本実験の結果から、コンプトン散乱によるバックグラウンドが重要な要因であり、その実用化に向けては最適な遮蔽の配置の検討が必要であることが分かった。



図1. 即発ガンマ線分析装置

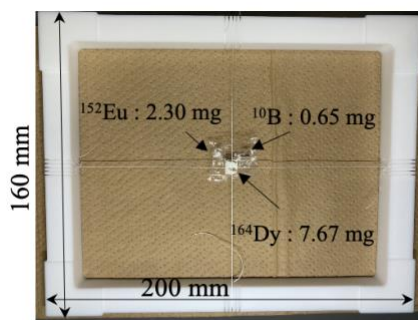


図2. サンプル写真

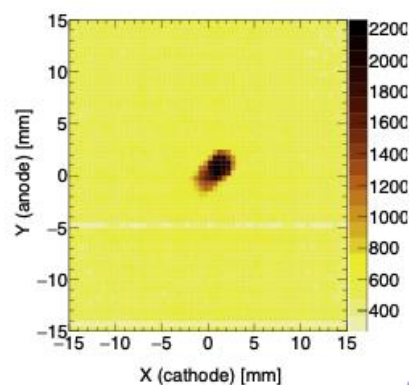


図3. サンプル内の Eu の二次元分布

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

[2] T. Minami et al. (2024), 2-mm-thick large-area CdTe double-sided strip detectors for high-resolution spectroscopic imaging of X-ray and gamma-ray with depth-of-interaction sensing Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 1059, 16902

Development of 2D Elemental Imaging Method for PGA at JRR-3
Chiu I., Osawa T., Nozawa T., and Nimoniya K.

3A11 広島湾沿岸で見つかった溶融粒子とは？

(JAEA¹、広島大²、九州大³)○佐藤 志彦¹、遠藤 暁²、赤時 僚伽²、
菖蒲 敬久¹、富永 亜希¹、墨田 岳大³

【緒言】 2019年に Wannier らは球状のシリカ粒子、鉄酸化物の粒子、気泡を含む飴細工状の粒子、釉薬がかかったような粒子（広島湾粒子）を約 1 万個、宇品島や宮島の砂浜から分離したと報告した[1]。そしてこれらの粒子の由来として最も合理的なのは広島原爆であると発表した。しかし広島湾粒子からは原爆炸裂時に発生するセシウム 137 や核燃料物質の存在は報告されておらず、また戦後 79 年の時を経て、風化の激しい海岸において存在し続けられるかという、根本的な疑問は残されたままであり、原爆由来とするには決定づける証拠が不足している。もし広島湾粒子が原爆由来の場合、黒い雨に代表される原爆影響の範囲を理解する上で重要な手掛かりになる。一方、原爆由来でない場合、新たな環境課題として取組む必要性を示すことになる。

本研究の目的は 6 種類存在する広島湾粒子に対し、それぞれの素性を科学的に解明し、真の由来を特定することにある。由来を推定する手段として放射光を適用し、①広島湾粒子が 79 年余りにおよび存在しうるものか、②広島湾粒子の生成過程として他の事象の有無を検証する、という 2 つの観点から考察した。

【実験】 宇品島を含む広島湾沿岸の 4 地点で海岸砂の採取を行った。6 種類の広島湾粒子のうち、宇品の砂浜から分離した磁性を有する 3 種（Red、Yellow、Black と仮称）に対し 18keV の X 線を用いた透過像による CT（XCT）観察と、70keV の X 線を用いた蛍光 X 線分析（XRF）による構成元素の定性分析を実施した。また比較対象に人為的微粒子の起源として、造船に用いられる溶接棒の金属片と、花火の燃えカスにも蛍光 X 線分析を実施した。

【結果・考察】 XCT で真球状の広島湾粒子には内部に空洞があることが確認された。これは粒子が生成する過程で外側が先に急冷され内部にガスが閉じ込められたことにより生じるものであり、溶融物から瞬間的に粒子が生成したことを示している。また XRF およびエネルギー分散型 X 線分光法で確認した主要構成元素はケイ素、鉄、アルミニウムであり、ウラン等の特筆すべき元素は見られなかった。さらに溶接棒と花火の燃えカスとの比較では、粒子サイズと外観は Black 粒子に似ているものの、広島湾粒子と元素組成は異なっており、広島湾粒子の由来とすることは困難であった。本発表ではさらに追加の結果を踏まえ、広島湾粒子の由来について検討結果を報告する。

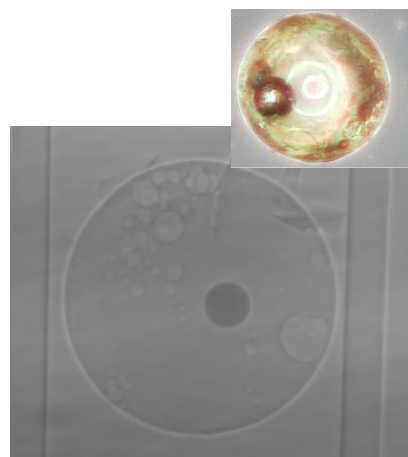


図 1 Yellow 粒子の外観と CT 像

Reference

[1] Wannier et al., Fallout melt debris and aerodynamically-shaped glasses in beach sands of Hiroshima Bay, Japan, Anthropocene, 25 100196 (2019)

Mysterious particles collected in Hiroshima Bay coast

SATOU, Y., ENDO, S., AKAJI, R., SHOBU, T., TOMINAGA, A., SUMITA, T.,

3A12 クロロベンゼンを展開溶媒としたランタノイドフラーレンの HPLC 溶離挙動に関する熱力学的解析

(都立大院理¹、京大複合研²)○中村大生¹、秋山和彦¹、高信昌彦¹、高宮幸一²、久富木志郎¹

【緒言】 金属内包フラーレン(EMF)はフラーレン分子内に金属原子を内包した包接化合物である。ランタノイド元素を一つ内包したフラーレン(Ln@C₈₂)では Ln から C₈₂ ケージへ 2 または 3 つの電子が移動しており、Ln@C₈₂ の電子状態は電荷移動数と C₈₂ ケージの構造に大きく依存している^[1]。また、EMF の一般的な分離法である高速液体クロマトグラフィー(HPLC)法では、固定相と溶質との相互作用(吸脱着エンタルピー: ΔH)は EMF の電子状態とケージの構造に依存しており、溶質分子の性質や溶存状態を明らかにするために非常に重要な情報となる。先行研究では、熱中性子放射化法により、展開溶媒としてトルエンを用いてピレニル固定相における Ln@C₈₂ の HPLC 溶出挙動を得ることに成功した^[2]。Ln@C₈₂ の HPLC 溶出挙動に関するさらなる知見を得るために、本研究ではトルエンと類似した構造を持つクロロベンゼン(CB)を展開溶媒として HPLC 溶出挙動を調べた。また、展開溶媒に用いたクロロベンゼンに含まれる Cl は放射化感度が高く、半減期も短いため、¹⁶⁵Dy などの短半減期核種の測定に影響を与える可能性が懸念される。そのため Cl を除去するために行った試料作成方法についても検討した。

【実験】 Tb, Dy, Ho の酸化物を用いて、原子数比が Ln(Tb, Dy, Ho):C=1:300 となるように炭素棒を作成しアーク放電の陽電極とした。これを He 雰囲気下、圧力 60kPa、直流電流 60A の条件でアーク放電し、得られた煤を回収した。得られた煤から抽出したフラーレンを精製し、得られた Tb, Dy, Ho@C₈₂ を混合して、CB を展開溶媒としたピレニル固定相による HPLC 展開を行い、室温では 2 分、50°C では 30 秒ごとに溶出液を分画した。これらの分画を蒸発乾固した後、CS₂ で再溶解したものを 12.7 φ mm のろ紙へ滴下し、2~3 日間デシケーター内で真空乾燥を行った。十分に乾燥させた各ろ紙をポリエチレン袋に封入し、京都大学研究用原子炉(KUR)の Pn-2 孔(熱中性子束:5.10x10¹² n/cm² sec)において 4 時間熱中性子照射を行った。その後、放射化した試料の放射能を Ge 半導体検出器で測定し、各 Ln@C₈₂ の保持時間を求めた。

【結果】

³⁸Cl の影響については、 γ 線測定の結果、全サンプルにおける 1642keV の ³⁸Cl の平均計数率は 15.6 ± 2.6cps となり、Ln@C₈₂ の γ 線測定への影響は無視できることが分かった。図 1 は CB を展開溶媒とした、室温(左)、50°C(右)における Ln@C₈₂(Ln: Tb, Dy, Ho)の HPLC クロマトグラムを示しており、それぞれの保持時間は室温における Dy, Ho については 44.76 分、及び 44.92 分、50°C における Tb, Dy, Ho については 40.73 分、40.57 分、40.56 分であった。

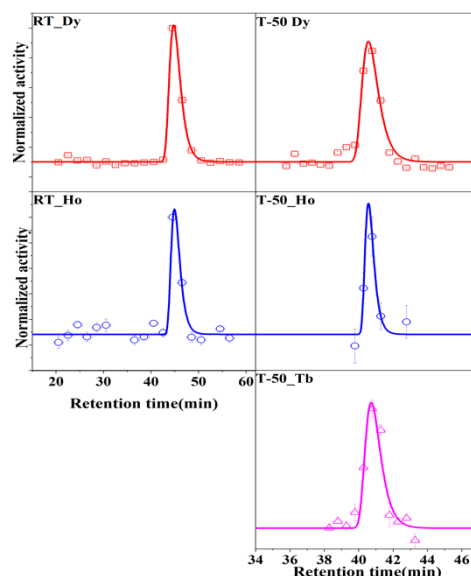


図 1. CB を展開溶媒とした Ln@C₈₂ の HPLC クロマトグラム(左:室温,右:50°C)

[1] K. Akiyama et al., *J. Phys. Chem. A*, **104**, 7224-7226 (2000).

[2] 西村峻, 東京都立大学大学院, 修士論文(2021).

Thermodynamic analysis for HPLC elution behavior of lanthanide fullerenes with a chlorobenzene effluent. NAKAMURA D., TAKANOBU M., AKIYAMA K., TAKAMIYA K., KUBUKI S.

閉会式・若手表彰式

2024年9月25日(水) 15:50 ~ 16:20 A会場(11階会議ホール「風」)

閉会式

15:50 ~ 16:20

閉会式

セッションF 核医学・生物関連放射化学

2024年9月25日(水) 9:50 ~ 11:00 B会場(10階1001-2室)

3B1

座長:豊嶋 厚史(阪大・放射線機構)

9:50 ~ 10:20

[3B01]

放射化を用いた薬物動態可視化への挑戦

*片岡 淳¹ (1. 早稲田大学先進理工学部)

10:20 ~ 10:40

[3B02]

核医学用²²⁵Ac製造に向けた石炭灰中の²²⁶Ra利用の可能性

伊地知 雄太¹、張 宰雄¹、小原 義之²、横田 季彦³、桧垣 正吾¹、山口 瑛子¹、平山 剛大¹、和田 洋一郎¹、羽場 宏光⁴、*高橋 嘉夫¹ (1. 東京大学、2. 株式会社日本海水、3. 福島エコクリート株式会社、4. 理化学研究所)

10:40 ~ 11:00

[3B03]

アスタチンの熱分離特性

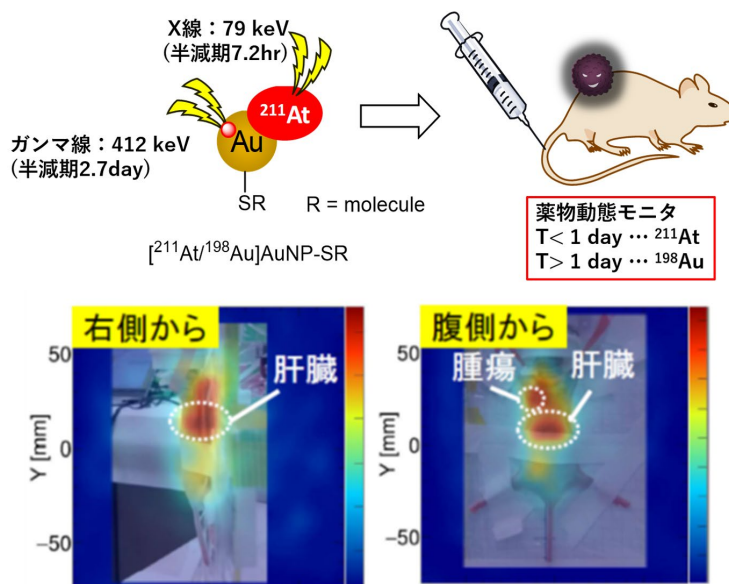
*西中 一朗¹、鷲山 幸信²、橋本 和幸³ (1. 量子科学技術研究開発機構、2. 福島県立医科大学、3. 日本原子力研究開発機構)

3B01 放射化を用いた薬物動態可視化への挑戦

(早大理工先進¹) ○片岡 淳¹

【緒言】 薬物伝達システム(DDS)の研究が世界的に進められている。DDSの実現には体内動態の可視化が必須であるが、薬物は一旦投与すればその動きは掴みづらい。とくにヒト体内での可視化は困難であり、これまで上市されたDDS薬剤はわずか数種類にすぎない。小動物で汎用的なDDS可視化手法は、蛍光色素を用いた光赤外イメージングである。簡単かつ高解像度が得られるが、人体のような厚い対象をイメージングすることはできない。RI核種を標識した薬剤ではSPECTやPETによる可視化、またMRIを用いる手法もあるが、汎用性の低さや解像度の悪さ等の課題がある。また、いずれの手法も可視化用トレーサー(蛍光色素、磁性体、RI)の修飾が必須であり、薬物本来の化学組成が変わる恐れもある。本研究では中性子で薬物そのものを軽微に放射化し、これを可視化する「放射化イメージング」の確立を目指す。

【実験】 本研究では、とくに金ナノ粒子(AuNP)に着目した。ナノ粒子はがん周辺のみで血管壁を抜けて組織中へと透過する性質(EPR効果)が知られている。ナノ粒子に抗がん剤など薬剤を修飾すれば、有効なDDSキャリアとして働くことが期待できる。そこで金ナノ粒子を熱中性子で軽微に放射化し、Au-198から生ずる412 keVガンマ線のイメージングを試みた。通常、コリメータを用いるSPECTでは300keV以上のガンマ線はイメージングできない。またPETは対消滅ガンマ線(511keV)のみが対象となる。本研究では、あらゆる放射化薬剤に対応可能な広帯域コンプトンカメラ(Hybrid CC)や高エネルギーSPECT(HC-SPECT)など複数を開発し、性能評価実験を行った。さらに、甲状腺がんの特効薬であるAt-211を担持させた α 線標的治療薬At-211-AuNP-S-mPEGをマウスに投与し、世界初となる長時間の動態イメージングに挑戦した。本講演では、大阪大学放射線科学基盤機構と共同で実施しているこれら実験の進捗状況について紹介する。



At-211, Au-198 の半減期の違いを用いた、投与直後から1週間にかかる時間スケールでの、薬物動態イメージングの概念と実証結果

New challenges to visualize pharmacokinetics using activation
KATAOKA, J.

3B02

核医学用 ^{225}Ac 製造に向けた石炭灰中の ^{226}Ra 利用の可能性

(東大院理¹、東大ISC²、日本海水³、福島エコクリート⁴、JAEA⁵、理研⁶)
伊地知雄太¹、張宰雄²、小原義之³、横田季彦⁴、桧垣正吾²、
山口瑛子^{1,5}、平山剛大¹、和田洋一郎²、羽場宏光⁶、○高橋嘉夫^{1,2}

2022年原子力委員会策定のアクションプランでは、 α 線放出核種を用いた医療の推進は、国民の福祉に貢献し高い経済効果が見込まれ、国策として重要とされる。本課題では、特に重要な ^{225}Ac の安定供給のボトルネックである ^{226}Ra 資源確保のために、福島地域に特有の産業廃棄物である石炭灰に着目する。石炭は元々 ^{238}U やその系列核種 ^{226}Ra を比較的多く含み、さらに石炭火力発電において Ra は気化せず固相側に残ると予想されるため、石炭灰中の ^{226}Ra 濃度は比較的高いと期待される。石炭灰は有償で引き取る廃棄物であり、福島エコ社が年6万トン程度処理する石炭灰から ^{226}Ra を抽出できれば、国内外に提供可能な ^{226}Ra 資源を定常的に生産できる可能性がある。本課題では、その実現に必須な ^{226}Ra の石炭灰からの抽出・分離・濃縮法を検討し、それを石炭灰処理過程に組み込み、世界的課題である ^{226}Ra 資源の安定供給の問題の解決を図る。これが確立できれば、廃棄物フリー（残渣は砕石へリサイクル）で、少量だが定常的に ^{226}Ra を提供でき、福島復興にも貢献できるなど、様々な面で波及効果がある。

試料として、3種の石炭 A~C とそれを燃焼して得た石炭灰 A~C を実験に用いた。また地質調査所頒布のコールフライアッシュ標準試料 JCFA-1 も調べた。主成分元素はガラスビードを用いた XRF 分析で定量した。 ^{226}Ra 濃度は、試料を密閉し約1ヵ月放置し放射平衡に達した ^{214}Pb 濃度を γ 線分光で定量することで得た。その結果、石炭灰は燃焼前の石炭に比べて5-6倍程度濃縮していた。石炭灰中 ^{226}Ra 濃度は 60-170 Bq/kg 程度で、Cevik et al. (2008)の報告と同程度であり、花崗岩より10倍程度高い。用いた4種の石炭灰から 2 M HCl、7 M HCl、2 M HNO₃、7 M HNO₃ で様々な元素の抽出を行った。 Ra のアナログ元素である Ba では 7 M HNO₃ で平均 50%程度が抽出され、フッ酸を用いずとも比較的高い抽出率が得られた（今後 Ra でも実験予定）。抽出時間は長時間ほど抽出率が低く、抽出後に新たな沈殿が生じることが示唆された。抽出前後の XRD パターンは類似しており、主成分である石英やムライトは抽出前後で変わらない。放射光マイクロ XRF-XAFS 分析 (Photon Factory BL-15A) から Ba は石炭灰の主成分である Al や Si のマトリクス部の周囲に存在し、マトリクス部に Ba が取込まれていないことが比較的高い抽出率の原因であると示唆された。バルク試料の Ba L_{III} 端 XANES から、抽出率が低い試料では BaSO_4 の割合が高いことが示唆された。抽出液からの Ra のカラム分離作では Ra の迅速定量が望ましいため、ICP-MS による定量法の確立を行った。その結果、2 Bq/L 程度の ^{226}Ra 濃度 (=0.06 ppt 程度) は Pb などの共存元素存在下でも定量可能であった。今後、この方法で Ra の Mn ファイバー法による濃縮と、カラム分離 (DGA 樹脂、Sr 樹脂) による Ba 含有溶液からの Ra 単離法を確立する。

実スケールでは一度に 1000 kg 以上の石炭灰を処理する必要があるが、このような大容量の実験は、福島エコ社から得た石炭灰を日本海水社のプラント (小名浜) での処理で Ra 抽出が可能と見込まれる。また Mn ファイバーによる Ra 濃縮は海洋化学分野では実際に利用されており、この方法で一気に実験室レベルの試料量で Ra を扱うことが可能になり、放射能の許認可の問題さえクリアすれば、サイクロトロン等での照射用のターゲット作製に必要な Ra を石炭灰から分離できる可能性がある。

Potential use of ^{226}Ra in coal ash for the production of ^{225}Ac for nuclear medicine; IJICHI Y., JANG J., OHARA Y., YOKOTA S., HIGAKI S., YAMAGUCHI A., HIRAYAMA T., WADA Y., HABA H., TAKAHASHI Y.

3B03 アスタチンの熱分離特性

(量研高崎¹、福島医大²、原子力機構³) ○西中一朗¹、鷲山幸信²、橋本和幸³

【緒言】アルファ放射性核種 ^{211}At は新しいがん治療法である標的アイソトープ治療での利用の観点から注目されている。一般に加速器で核反応 $^{209}\text{Bi}(^4\text{He}, 2n)^{211}\text{At}$ によって製造された ^{211}At は、照射済みの Bi 金属標的を 650°C 以上で加熱・融解する、いわゆる乾式蒸留によって、揮発性 ^{211}At として分離精製されている。揮発した ^{211}At は、ガス流で搬送され、トラップで収集される。核医学利用を目的とした分離は、搬送ガスの種類・流量、トラップ温度など、経験的な分離条件で行われている。一方、揮発性 ^{211}At の化学形や吸着温度などの熱分離特性についての基礎研究はほとんど行われていない。

我々の先行研究¹⁾において、揮発性 ^{211}At のガラス表面への吸着温度をより高い精度で決定した。 ^{211}At の放射能分布とガラス管の温度分布との相関(図1)から、吸着温度 $42 \pm 3^\circ\text{C}$ を得た。くわえて $60 \sim 30^\circ\text{C}$ の狭い温度範囲(吸着ピーク半値幅)に吸着することから、単一の化学種であることを明らかにした。

本研究では、さらに信頼性の高いデータを取得することを目的として、同じ条件で試行回数を増やして実験を行った。

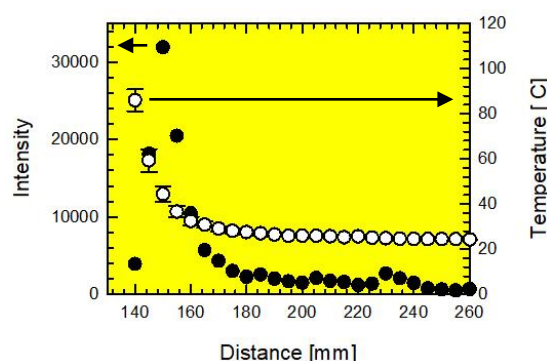


図1 ^{211}At 放射能強度とガラス管温度

【実験】福島県立医科大学の中型サイクロトロン MP-30 から供給される 30 MeV の ^4He ビームを $10\ \mu\text{m}$ 厚のアルミ箔バックングに真空蒸着法により作成した約 3 mg/cm^2 厚の金属 Bi に照射して、約 10 MBq の ^{211}At を合成した。バックングと共に小巻にした照射済み Bi 標的を窒素ガスに置換したガラス管(長さ 750 mm 、外径 6 mm 、内径 4 mm)に封入し、電気炉で $250 \sim 750^\circ\text{C}$ に加熱して、乾式蒸留を行った(図2)。ガラス管の温度と放射能強度を熱電対とガンマ線スペクトロメータで同時計測した。

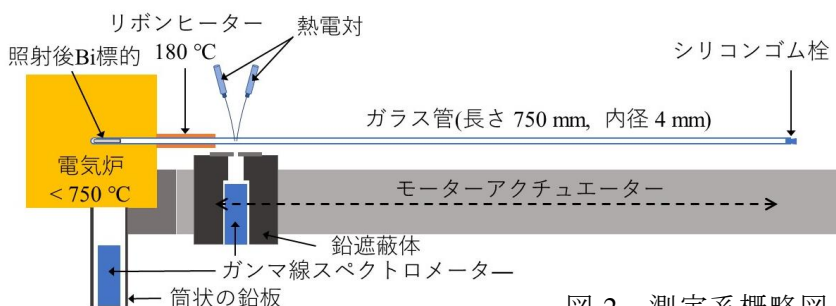


図2 測定系概略図

【結果および考察】得られた揮発性 ^{211}At の吸着温度を過去の実験研究と比較することで、化学形などについて考察する。

【参考文献】

- 1) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 329(2021)1459–1465. DOI: 10.1007/s10967-021-07879-6

Thermal separation characteristics of astatine
NISHINAKA I., WASHIYAMA K., HASHIMOTO K.

セッションF 核医学・生物関連放射化学

2024年9月25日(水) 11:10 ~ 12:10 B会場(10階1001-2室)

3B2

座長:鷺山 幸信(福島県立医科大学)

11:10 ~ 11:30

[3B04]

治験薬アスタチン化ナトリウム ($[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$) の製法及び品質確立

*白神 宜史¹、仲 定宏¹、渡部 直史¹、兼田 加珠子¹、大江 一弘¹、羽場 宏光²、村上 昌史¹、豊嶋 厚史¹
(1. 大阪大学、2. 理研)

11:30 ~ 11:50

[3B05]

AuNP-PEG-DOTA- $[^{111}\text{In}]$ RIナノ粒子における配位と摂動角相関のpH依存性

*封 博宇¹、Kim Donghwan¹、峯尾 知子¹、島添 健次¹、Moh Hamdan¹、佐藤 健¹、大塚 彩加¹、中村 乃理子¹、太田 誠一¹、巽 俊文⁴、杉山 暁⁴、山次 健三⁵、野村 幸世⁶、寺林 稜平¹、富田 英生⁷、園田 哲⁸、重河 優大⁸、横北 卓也²、上ノ町 水紀³ (1. 東京大学、2. 東北大学、3. 東京工業大学、4. 東京大学アイソトープセンター、5. 千葉大学、6. 星薬科大学、7. 名古屋大学、8. 理化学研究所)

11:50 ~ 12:10

[3B06]

JRR-3におけるCdTe検出器を用いたBNCT-SPECTの開発

*邱 奕寰¹、大澤 崇人¹、墨田 岳大²、池田 瑞²、二宮 和彦³、武田 伸一郎⁴、南 喬博⁴、高橋 忠幸⁴、渡辺 伸⁵ (1. 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、2. 九州大学、3. 広島大学、4. 東京大学、5. 宇宙航空研究開発機構)

3B04

治験薬 $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ の製法及び品質の確立

(阪大放機構¹、阪大院医²、阪大院理³、理研⁴) ○白神宜史¹、仲定宏²
渡部直史²、兼田加珠子³、大江一弘¹、羽場宏光⁴、村上昌史¹、
豊嶋厚史¹

【緒言】アスタチン化ナトリウム($[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$)注射液は、 α 線を放出する ^{211}At (半減期 7.2 時間)で標識された核医学治療薬で、甲状腺がんを対象として医師主導治験を実施中である。本治験薬の化学的性質に基づき、医薬品の製造方法及び品質を確立したので報告する。

【実験】阪大及び理研の AVF サイクロトロンを用い $^{209}\text{Bi}(\alpha,2n)^{211}\text{At}$ 核反応により ^{211}At (300 MBq 以上)を製造した。乾式蒸留法で分離精製した後、1%アスコルビン酸-2.3%炭酸水素ナトリウム水溶液に溶解して $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ 注射液を調製した。本剤の自動合成装置を図 1 に示す。Ge 検出器を用いて ^{211}At 由来の X 線及び γ 線を測定し、また異核種(^{210}At)の有無を確認した。薄層クロマトグラフ法(TLC、シリカゲル G60、アセトニトリル/水=2/1)、HPLC(イオン対クロマトグラフ法、ODS、20 mM 塩化テトラブチルアンモニウム/アセトニトリル=7/3、1.0 mL/min)、及び質量分析法(LC/MS、HILIC、50 mM ギ酸アンモニウム/アセトニトリル=15/85、ESI)により放射化学的純度(RCP%)を調べた。

【結果】 ^{211}At として特性 X 線 76.9keV、79.3keV、及び γ 線 687.1keV のピークが観測された。 ^{210}At の γ 線は観測されず、検出限界以下であった。TLC では $R_f=0.8-1.0$ に At⁻が検出されたが(RCP>85%)、テーリングが認められた。HPLC では RT=5.7 分に単一ピーク(At⁻)が検出された(RCP>95%)。LC/MS(陰イオンモード)で $m/z=210.9880$ にピークを認め、At⁻の質量(210.9880)に一致した(図 2)。一方、LC/MS(陽イオンモード)では At⁺に相当するピークは検出されなかった。以上の結果より、本治験薬の化学形がアスタチン化ナトリウム($[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$)であることが同定された[1]。

【結論】アスコルビン酸は、高純度のアスタチン化物イオン($^{211}\text{At}^-$)の調製に適した還元剤であり、300 MBq 以上の $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ 注射液を安定に製造できることがわかった。

【参考文献】 [1] Naka S., et al. EJNMMI Radiopharm Chem 2024; 9:29



図1. $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ の自動合成装置

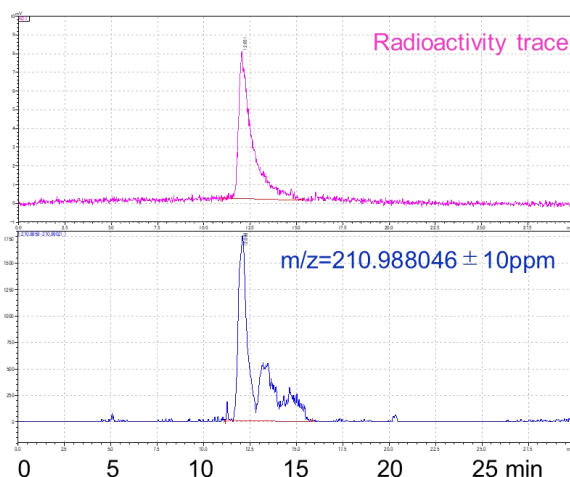


図2. $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$ のLCMS: 上)RI, 下)MS

Production and Quality Control of sodium astatide, $[^{211}\text{At}]\text{NaAt}$, as an Investigational New Drug
SHIRAKAMI Y., NAKA S., Watabe T., KANEDA K., OOE K., HABA H., MURAKAMI M.,
TOYOSHIMA A.

3B05

AuNP-PEG-DOTA- ^{111}In RI ナノ粒子における配位と摂動角相関の pH 依存性

(東京大学¹、東北大学²、東京工業大学³、東京大学アイソトープセンター⁴、千葉大学⁵、星薬科大学⁶、名古屋大学⁷、理化学研究所⁸)

○封博宇¹、Kim Donghwan¹、峯尾知子¹、Moh Hamdan¹、佐藤健¹、大塚彩加¹、中村乃理子¹、太田誠一¹、上ノ町水紀³、巽 俊文⁴、杉山 暁⁴、山次健三⁵、野村幸世⁶、寺林稜平¹、富田英生⁷、園田哲⁸、重河優大⁸、横北卓也²、島添健次¹

【緒言】本研究では、RI 金ナノ粒子 (AuNP-PEG-DOTA- ^{111}In) を設計開発した。 ^{111}In は SPECT 核種であり、カスケード崩壊により放出されるガンマ線が摂動角相関に利用できる。核医学応用に RI ナノ粒子を用いた生体内化学環境検出のため、異なる pH 値で摂動角相関の測定及びキレート化合物の配位数の推定を行った。pH5~8 の範囲で角相関の異方性に区別可能な差異が観測された。

【実験】金ナノ粒子 (AuNP) をポリエチレングリコール (PEG) 修飾し、さらに DOTA を介して放射性同位体インジウム-111 (In-111) をキレートした RI ナノ粒子 (AuNP-PEG-DOTA- ^{111}In) を設計開発した。 ^{111}In 放射性同位元素からのカスケードガンマ線を捕らえるために、直径 87.4mm のリング型ガンマ線検出器アレイを設計した。(Fig.1) リングは 8 つの検出器モジュールで構成されており、各モジュールは 8×8 の HR-GAGG ($2.5 \times 2.5 \times 4\text{mm}$) シンチレーション結晶アレイに、 8×8 のシリコン光電子増倍管 (SiPMs) アレイが接続されている。信号処理はダイナミックな TOT 方式を使用してパルス高さをデジタルパルスに変換し、エネルギー情報および時間情報を得た。171keV 及び 245keV イベントのコインシデンス時間窓 ($-50\text{ns} \sim 600\text{ns}$) のリストモードデータから抽出して、ジオメトリ情報を用いて異なる pH 環境での角度相関の異方性係数を計算した。また、量子化学計算を用いて、異なる pH での配位関係に対応する電場勾配を求め、実験値と比較した。

【結果】pH が上昇すると、異方性係数も増加することが観察された。pH 5~8 の範囲では、異方性係数に測定可能な違いが見られる。展望として、将来的な生体内応用、たとえば癌の早期発見などにおいて可能性を示している。(Fig.2)

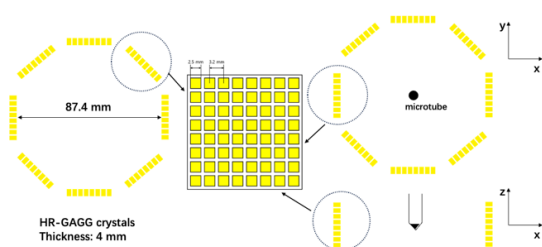


Fig. 1. 検出器のジオメトリ

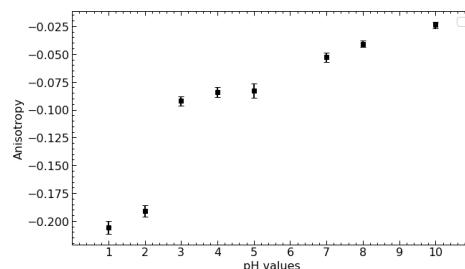


Fig. 2. 異なる pH 環境での異方性係数

The pH dependency of coordination and perturbed angular correlation in AuNP-PEG-DOTA- ^{111}In RI nanoparticles

FENG B., KIM D., MINEO T., MOH H., SATO T., OTSUKA A., NAKAMURA N., OHTA S., UENOMACHI M., TATSUMI T., SUGIYAMA A., YAMATSUGU K., NOMURA S., TERABAYASHI R., TOMITA H., SONODA T., SHIGEKAWA Y., YOKOKITA T., SHIMAZOE K.

3B06

JRR-3 における CdTe 検出器を用いた BNCT-SPECT の開発

(JAEA¹、九大²、広大³、東大⁴、JAXA⁵)○邱奕寰¹、大澤崇人¹、墨田岳大²、池田瑞²、二宮和彦³、武田伸一郎⁴、南喬博⁴、高橋忠幸⁴、渡辺伸⁵

【緒言】 ホウ素中性子捕捉療法(BNCT、図1)は、ホウ素化合物をがん細胞に取り込み、中性子照射により選択的にがん細胞を破壊する放射線治療法である。中性子とホウ素(¹⁰B)が核反応を起こすとα粒子が発生し、その飛程は短さ、線エネルギー付与が高さから、がん細胞のみを破壊できる。近年、加速器を用いたBNCTが注目されており、原子炉を必要としない病院での治療が可能になると期待されている。しかしながらBNCTの問題点として、中性子が照射されている時に、リアルタイムで¹⁰Bがどのぐらい腫瘍領域に蓄積しているかが不明なことが挙げられる。我々はこの課題を解決するために、¹⁰B原子核が中性子と反応して放出する即発γ線をCdTe二次元イメージング検出器(CdTe-DSD、[1])で検出する、BNCT-SPECTの開発を行っている。

【実験】 本実験は、日本原子力研究開発機構のJRR-3に設置された即発ガンマ線分析(PGA)施設で実施した。高純度のニッケルとニッケル・ホウ素化合物から中性子照射サンプルを作成し、そのサイズは、約1.5 × 1.0 mm、厚さは0.2 mm、総質量は約8.86 mgで、¹⁰Bの含有量は約0.3 mgと計算された。サンプルは、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)で作成したホルダーで保持され、42時間の連続照射で¹⁰B由来の即発ガンマ線をCdTe-DSDで測定した。

【結果】 図2のエネルギースペクトル解析では、478 keVの¹⁰Bのガンマ線ピークが確認され、その信号強度は約0.115 cpsで、信号対ノイズ比(SNR)は約25.7%と算出された。このガンマ線の発生源についての2次元の投影画像も取得され、直径11.5 mmの円形の投影画像として得られた(図3)。以上より本研究で、¹⁰Bのリアルタイムイメージングが成功しBNCT-SPECTの道が拓かれた。しかし、散乱中性子がCdTe検出器に当たり、¹¹³Cd由来の即発ガンマ線によるバックグラウンドが、¹⁰Bのイメージングに悪影響を及ぼし、画像の鮮明度が低下することが判明した。この問題を解決するため、追加のリチウム板を配置して散乱中性子の影響を軽減することや、マルチピンホールコリメータを使用して感度を向上させる対策が必要とされる。本講演では、これまでの進捗について報告する。

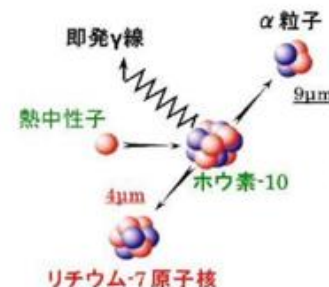


図1. BNCTの原理

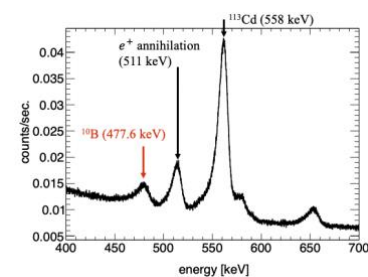


図2: CdTe-DSD エネルギースペクトル

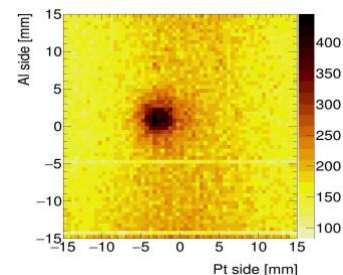


図3: 再構成した¹⁰B分布

[1] T. Minami et al. (2024), 2-mm-thick large-area CdTe double-sided strip detectors for high-resolution spectroscopic imaging of X-ray and gamma-ray with depth-of-interaction sensing Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 1059, 16902

Development of SPECT for BNCT using CdTe-DSD at JRR-3.

Chiu I., Osawa T., Sumita T., Ikeda M., Ninomiya K., Takeda S., Minami M., Takahashi T., Watanabe S.

部会

2024年9月25日(水) 12:10 ~ 12:50 B会場(10階1001-2室)

教育部会総会

座長:篠原 厚(大阪青山大学)

12:10 ~ 12:50

部会

セッションG 教育関連

2024年9月25日(水) 13:00 ~ 14:30 B会場(10階1001-2室)

3B3

座長:横山 明彦(金沢大学)、吉田 剛(高エネルギー加速器研究機構共通基盤研究施設放射線科学センター)

13:00 ~ 13:30

[3B07]

F-REIにおける放射線科学に携わる人材の育成

*渡部 浩司¹ (1. 東北大学先端量子ビーム科学研究センター)

13:30 ~ 13:50

[3B08]

国際化学オリンピックでの放射化学関連テーマの出題(第2報)

*薬袋 佳孝¹ (1. 武蔵大学)

13:50 ~ 14:10

[3B09]

学生実験における中性子放射化分析の実施例

*大浦 泰嗣¹ (1. 東京都立大学)

14:10 ~ 14:30

[3B10]

日本大学文理学部化学科学生実験での放射化学教育(2)

*小林 貴之¹、山形 武靖² (1. 日本大学、2. 東京大学MALT)

3B07 F-REI における放射線科学に携わる人材の育成 (東北大 RARiS¹)○渡部浩司¹

福島国際研究教育機構 (Fukushima Institute for Research, Education and Innovation 略称: 「F-REI: エフレイ」) (<https://www.f-rei.go.jp/>)は福島復興再生特別措置法に基づき、2023年4月1日に設立された特殊法人である。F-REIの本部は福島県浪江町に設置されているが、まだ事務組織しかなく、5年後に研究施設が運用開始予定である。そのミッションは、「福島をはじめ東北の復興を実現するための夢や希望となるものであるとともに、我が国の産業競争力を世界最高の水準に引き上げ、経済成長や国民生活の向上に貢献する、世界に冠たる「創造的復興の中核拠点」を目指す」とある。このミッションを実現するために、1. ロボット、2. 農林水産業、3. エネルギー、4. 放射線科学・創薬医療、放射線の産業利用、5. 原子力災害に関するデータや知見の集積・発信という5つの研究分野が設定され、それぞれ研究の公募が2023年度より開始された。第4分野である「放射線科学」は放射線を利用した科学(核物理学、放射化学、放射線環境科学、核医学・創薬、電子デバイスなど)に焦点を当て、その利活用について検討することが求められている。

5年後にF-REIの地に設置される研究施設は、加速器、ホットラボ、イメージング装置などを所有し、RI創薬から植物イメージングまで、多岐に渡る放射線に関連する研究が実施可能である。この施設に携わる人材の育成は喫緊と課題となっている。放射線科学は極めてブロードな領域であり、放射化学、核物理学、核薬学、核医学、医工学などのまったく異なる専門家を必要とする。さらに、放射線管理を行う放射線取扱主任者は、さまざまな背景を持つ利用者のRI利用方法を理解し、規制科学にも明るい必要がある。さらに、「放射線」という時に負のイメージを持たれがちな研究対象を、一般の方に理解いただき、人類のウェルビーイングに貢献することを発信していく、サイエンスコミュニケーターのような人材も必要となる。今後、日本の若手人口が減少していくフェーズでどのようにこのような人材を育てていくのか課題は尽きない。本発表では、現状の放射線科学に携わる人材育成の現状を整理し、今後の対策について議論する。

Human Resource Development involving Radiation Science at F-REI
WATABE H.

3B08 国際化学オリンピックでの放射化学関連テーマの出題(第2報)

(武蔵大 LASEC・根津化研) ○薬袋佳孝

【はじめに】 国際化学オリンピック International Chemistry Olympiad, IChO は各国(地域)から派遣された高校生を対象としての化学の国際イベントである. 前回の討論会にて第1報として報告した通り, 放射化学関連の出題は東欧諸国を主体とした初期には皆無であり, 第16回大会(1984年, フランクフルト, 西独)で初めて出題された(Table 1).

前報では, 分析対象とした第1回(1968年)から第51回(2019年)までのIChOの運営システム, 沿革, 放射化学関連の出題の概略について報告した. 特に, 第25回(1993年)までのIChO前半期を中心に出題内容の分析結果について述べた. 本報では, 第25回(1993年)以降(特に日本参加の2003年以降)のIChOについて報告する.

【方法】 前報と同様に, IChO-International Information Centre (IChO-IIC)公式web上に公開されている第51回大会(2019年)までの出題(準備問題集を含む)と解答例に基づいて, 内容並びに出題意図の分析に当たった. また, IChOの国内選抜とも位置付けられる化学グランプリ ChGPについても, 同様の分析を試みた.

【結果と考察】 IChO-16, 21 はそれぞれ西独と東独が開催国であった. IChO-25以降は, 放射化学分野からの出題頻度自体が増すとともに, 先進国を中心として様々な地域の開催国(出題国も同じ)が出題するという傾向がみられた(Table 1). 内容についてみると, IChO-16, 21 は他分野への応用を背景としての出題であるが, IChO-25以降は全くの化学や物理学の基礎についての出題と位置付けられる問題も散見される.

各問題の特徴や化学グランプリ ChGPの出題との比較についても報告する.

Table 1. List of questions on radiochemistry and nuclear chemistry at IChO.

Event	Year	Place (City)	Subjects (keywords)
IChO-16	1984	Frankfurt	Carbon-14 dating, Rb-Sr dating
IChO-21	1989	Halle	Phosphorous-32, tracer use
IChO-25	1993	Perugia	Nuclear reaction
IChO-26	1994	Oslo	U-series, fission, decay series
IChO-28	1996	Moscow	Rutherford, Avogadro's number
IChO-30	1998	Melbourne	Pb-210 dating, production of Ga-67
IChO-31	1999	Bangkok	Th-series
IChO-33	2001	Mumbai	Monazite, U-238 and Th-232
IChO-35	2003	Athene	Nuclear reaction, muon
IChO-41	2009	Cambridge	Rutherford, Avogadro constant
IChO-42	2010	Tokyo	Ramsay, cleveite
IChO-47	2015	Baku	FDG, Fluorine-18, diagnosis
IChO-49	2017	Nakhon Pathom	Iron-59, production
IChO-50	2018	Bratislava and Prague	Copper-64, production

Quiz on radiochemistry and its applications in over 50 occasions in International Chemistry Olympiad for high school students: the 2nd report
MINAI, Y.

3B09 学生実験における中性子放射化分析の実施例 (都立大理)○大浦泰嗣

東京都立大学理学部化学科の学生は、必修専門科目として、1年生後期に化学実験、3年生に化学専門実験 I・II(それぞれ半期)を履修する。また、理学部共通専門科目(集中講義)として、放射線実験法 I(座学)・II(実験)も履修可能である。化学専門実験 I の無機分析化学実験では、重量分析、容量分析、比色分析、ICP 発光分析(ICP-AES)、金属錯体、無機固体の各テーマとともに、放射化学も放射性核種を利用した分析化学と言う位置づけでテーマの一つとしている。この放射化学のテーマとして、2001年よりランタン用マントルを利用した ^{212}Bi の放射化学分離とAl箔の中性子放射化分析(INAA)の2つを開始し、現在はINAAのみ実施している。本講演では、INAAの取り組みを紹介する。なお、半数以上の学生は放射化学の講義を履修していないので、放射性核種の基礎的事項の講義も兼ねて実施している。

比色分析とICP-AESでは、未知試料として家庭用アルミ箔を分析しており、INAAでもアルミ箔を試料としている。比色分析では鉄を、ICP-AESでは鉄とチタンを定量しており、INAAでは鉄とともにスカンジウムを定量を行っている。学生は、鉄について異なる3種類の分析手法での定量を経験する。

学生が照射用試料を作成し、中性子照射とガンマ線測定は教員が実施する。学生は、 γ 線スペクトルの生データから、FeとScの濃度を求める。Al箔は2cm四方に切断し、エタノールで表面を拭いた後、1cm四方に折りたたみ、秤量後、高純度ポリエチレン袋に密封する。これらをFeとScの比較標準試料とともに、KUR Pn-2で2時間、あるいは、JRR-3 PN-1またはPN-2で20分間中性子で照射する。学生実験の期間に運転している原子炉を選択し、前年度に利用申請を行っている。計画外の運転中止で、実験を実施できなかったこともあった。照射したAl箔は、都立大RI研究施設において、Ge検出器で10000秒測定する。最初に測定したAl箔は、一連の測定が終了後(約半月後)に再度測定し、 γ 線スペクトルを比較して、ガンマ線ピークの数やピーク強度の減少から、放射性核種の量は時間とともに減衰することを学生に実感してもらう。

学生は、889 keV, 1099 keV, 1121 keV, ならびに1291 keV周辺の計数值データから、まず、 γ 線スペクトルを描く。その後、BG領域とピーク領域を設定して、計数值積分法により正味計数率とその不確かさを手計算する。FeとScの標準試料については、ソフトウェア(HypermetPC)にて解析した正味計数率の値を学生に渡している。計算にあたっては、教員による検算とレポートの採点を若干楽にするために、教員が作成した表に数値を記入することにより計算してもらう。BG領域はピークが存在していないところを選択するように説明するが、 ^{46}Sc の1121 keVピークの計算では、 ^{65}Zn の1115 keVピークをBG領域に含めてしまう学生が必ずいる。

放射化分析法は原理的に核種分析法であるため、原子数比から元素質量比を誘導すること、核反応による誘導放射能を得る式の飽和係数の時間変化のグラフの作成をレポートの課題としている。未知試料と標準試料の同位体存在度は等しいと仮定していること、また、生成核種の半減期の時間だけ照射すると飽和係数は1/2となること、ならびに最大値は1であることの理解を目的としている。

Neutron activation analysis in student experiments
OURA Y.

3B10 日本大学文理学部化学科学生実験での放射化学教育(2)

(日大文理¹、東京大学 MALT²)○小林貴之¹、山形武靖^{1,2}

【はじめに】 昨年度の日本放射化学会第 67 回討論会 (3B10) で報告したように、2022 年度以降、本学科では放射化学関係科目が開講されず、元素の基礎知識として学科専門科目等で放射化学の一部が取り扱われるだけである。学生実験でも、機器・物理化学実験 (含演習) で取り扱う 6 テーマのうち 1 つだけが放射化学関係となっている。このため、学生の放射化学に関する基礎知識を確認し、実験指導の改善や理解度向上を目指して、昨年度から放射化学に関する知識確認小テストを実施している。今年度は新たに放射能に関する学習状況やアンケートも追加したので、これらの結果について報告する。

【実験および小テスト】 実験日程は昨年度と同様に、午後 90 分×3 コマを週 2 日、2 週間の計 4 日間とし、実験初日前までにアンケートを含む小テストを課した。初日は講義科目が減少したカリキュラムに対応するため、放射化学の入門講義を実施した。つぎに GM 計数管の操作に習熟させるため、作動電圧決定、自然計数率測定を行った。その後線源の距離や吸収板を変え、計数効率、幾何学的効率および外部吸収曲線を作成し、ベータ線の最大エネルギー等を求めさせた。後半では、²³⁸U の娘核種 ²¹⁴Pb と ²¹⁴Bi の放射化学分離実験を行い、両者の半減期を求めさせた。その後、復習小テストの実施とレポート提出を課した。必要に応じて実験時間内に追加講義を行うとともに、提出レポート内容に問題がある場合は個別指導を行った。アンケートを含む小テストは昨年度の Blackboard から大学統一 LMS の Canvas に移行した。小テストは、昨年度と同じ 6 問に新たに 4 問を加えた。単一回答、複数回答、および数値入力形式の出題で、正答率が低かった問題は復習小テストにも再度出題し、正答率を比較した。アンケートでは、これまでの放射線や放射能を取り扱った授業を小学校から高等学校までのいずれの科目で取り扱われたか、また文部科学省が作成した副読本^[1]を利用したのかを実験前に尋ねた。更に放射線に対するイメージ等を実験前後の 2 回尋ね、変化が見られるかを確認するとともに報告されている結果^[2]との比較も行った。

【結果と今後】 詳細は講演で示すが、実験前後の小テスト正解率については昨年度と同程度であった。本実験は学部 3 年生配当科目のため、東日本大震災時は小学校低学年であったと見込まれるが、放射線や放射能を取り扱った授業は高校理科で取り扱ったとの回答が最も多く、次いで中学時代の理科と社会でも取り扱ったとの回答が多くみられた。文部科学省副読本利用は想定と異なり、ほとんど利用されていなかった。放射線に関するアンケートは既に報告された結果^[2]と大きな違いは見られなかった。また実験前後でイメージ等は多少変化が見られたが、正しい理解のためには改善が必要であると考えられる。これらの結果を元に今後の教育内容や方法を改善したい。

[1]文部科学省、放射線副読本 ～放射線について考えよう～ (2011).

[2]森田 他、北陸大学紀要 48(2019)1～16.

Education of radiochemistry in student experiments at the Department of Chemistry, College of Humanities and Science, Nihon University part II.
KOBAYASHI, T., YAMAGATA, T.

教育セミナー

2024年9月25日(水) 14:30 ~ 15:50 B会場(10階1001-2室)

3B4

14:30 ~ 15:50

教育セミナー