

# 研究発表要旨

## 3 日目

9 月 27 日 (日)

3A01-3A04 A 会場

3B01-3B05 B 会場

# 3A01

## $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 5n) ^{211}\text{Rn}$ 反応をして生成する $^{211}\text{At}$ の製造条件の最適化

(金沢大医薬保健<sup>2</sup>、金沢大理工<sup>3</sup>、原子力機構先端基礎<sup>4</sup>、原子力機構量子ビーム<sup>4</sup>)

○鷺山幸信<sup>1</sup>、前田英太<sup>2</sup>、西中一朗<sup>3</sup>、横山明彦<sup>2</sup>、橋本和幸<sup>4</sup>、牧井宏之<sup>3</sup>

**【緒言】**半減期 7.2 時間の  $\alpha$  放射体  $^{211}\text{At}$  は核医学において、がん治療への応用が期待されるアイソトープの一つである。製造には  $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$  反応を利用し、アルファ粒子を 28MeV まで加速可能なサイクロトロン施設が求められる。しかし、仮に加速器があったとしても  $^{211}\text{At}$  の半減期が短いがゆえに、その利用は製造拠点近辺施設に制限されてしまい、遠隔地や多くの施設への供給は難しい。われわれは、 $^{211}\text{At}$  の親核種  $^{211}\text{Rn}$  (半減期 14.6 時間) を  $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 5n) ^{211}\text{Rn}$  反応で製造し、ジェネレータ系として供給することで、製造拠点到に依存せず  $^{211}\text{At}$  に関する基礎研究と臨床応用の発展が可能になると考えてきた。本研究では  $^{211}\text{Rn} / ^{211}\text{At}$  ジェネレータを作成するための  $^{211}\text{Rn}$  製造に関して、核反応断面積の測定を基に、エネルギーと照射時間及びターゲットからの化学分離の観点から製造条件の最適化への検討を行う。

**【実験】**実験は日本原子力研究開発機構のタンデム加速器を用いて行った。10 $\mu\text{m}$  厚の高純度 Al 箔に Bi (1.2-1.5mg/cm<sup>2</sup> 厚) を真空蒸着した標的から成るターゲットスタックを複数作成し、60MeV の  $^7\text{Li}$  ビームを 2-3 時間照射して  $^{211}\text{Rn}$  を製造した。 $^7\text{Li}$  ビームのカレントについては 1 分ごとの電荷量を照射ライン末端のファラデーカップで確認し、平均 150-200nA になるように調整した。スタック内の各 Bi 標的に入射するエネルギーは OSCAR コードで計算した。照射後、スタックから Bi 標的を分けて、それぞれを照射後数分から最大 2 週間後まで Ge 検出器で  $\gamma$  線測定を行った。 $\gamma$  線スペクトルよりターゲットの照射直後の  $^{211}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{At}$  などの放射能を定量し、 $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 5n) ^{211}\text{Rn}$ ,  $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 6n) ^{210}\text{Rn}$ ,  $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, p5n) ^{210}\text{At}$  の核反応断面積を算出した。

**【結果と考察】**本研究では  $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, xn)$  反応で生成した  $^{211}\text{Rn}$  と  $^{210}\text{Rn}$  の核反応断面積を求めた。また  $^{210}\text{At}$  は  $^{210}\text{Rn}$  からの EC 壊変による流れ込みを補正した独立収率として求めた。本研究で得られた  $^{211}\text{Rn}$  の励起関数は先行研究[1]の結果とよく一致している。これに対し、 $^{210}\text{At}$  の反応断面積はどのエネルギー領域においても低い値を示した。この違いは、先行研究で示された  $^{210}\text{At}$  の励起関数が  $^{210}\text{Rn}$  の EC 壊変による流れ込みを含む蓄積収率であるためと考えられる。発表時にはさらに理論計算および追加で行った実験結果を併せて詳細に議論する。

### 【参考文献】

- [1] G. -J. Meyer and R. M. Lambrecht, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 31, 351 (1980).
- [2] M. Dasgupta et al., Phys. Rev. C 66, 041602 (2002).
- [3] M. Dasgupta et al., Phys. Rev. C 70, 024606 (2004).

Optimisation of the production parameters of  $^{211}\text{At}$  via the  $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 5n) ^{211}\text{Rn}$  reaction  
 WASHIYAMA, K., MAEDA, E., NISHINAKA, I., YOKOYAMA, A., HASHIMOTO, K., MAKII, H.

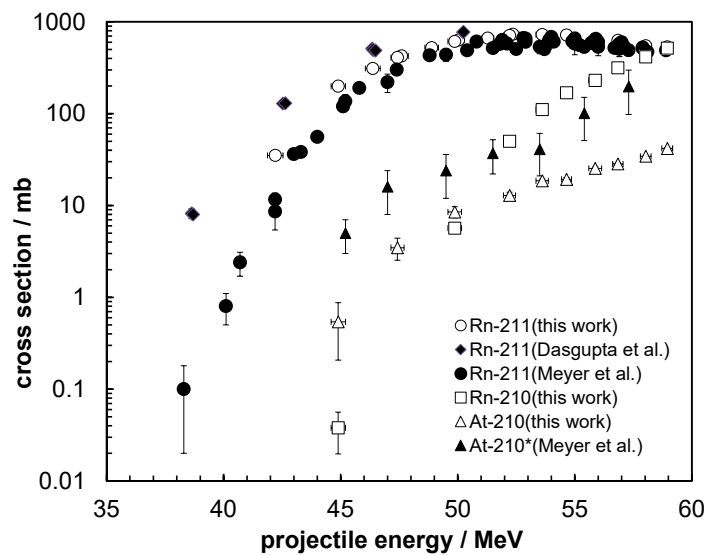


図 1.  $^{209}\text{Bi} (^7\text{Li}, 5n) ^{211}\text{Rn}$  反応の励起関数

# 3A02

## 核反応 $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5\text{n})^{211}\text{Rn}$ での $\alpha$ 放射線療用法用 $^{211}\text{At}$ の製造

(原子力機構先端基礎<sup>1</sup>、金沢大学医薬保健<sup>2</sup>、金沢大学理工<sup>3</sup>、原子力機構量子ビーム<sup>4</sup>)○西中一朗<sup>1</sup>、鷲山幸信<sup>2</sup>、横山明彦<sup>3</sup>、前田英太<sup>3</sup>、橋本和幸<sup>4</sup>、牧井宏之<sup>1</sup>

**【緒言】** 近年、 $\alpha$  放射性同位体の内用治療は新しい癌の治療法として期待されている。我々の研究グループでは、加速器でのみ製造可能な半減期 7.2 時間の  $^{211}\text{At}$  (アスタチン) に着目し、一般に  $^{211}\text{At}$  の合成に用いられる核反応  $^{209}\text{Bi}(^4\text{He},2\text{n})^{211}\text{At}$  でなく、 $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5\text{n})^{211}\text{Rn}$  反応で半減期 14.7 時間の  $^{211}\text{Rn}$  (ラドン) を製造し、 $^{211}\text{Rn}$  の EC 壊変で生成する  $^{211}\text{At}$  を利用する  $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$  ジェネレータの研究開発を進めている。 $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5\text{n})^{211}\text{Rn}$  反応では、低融点、低熱伝導率の Bi 金属標的に 60 MeV の  $^7\text{Li}^{3+}$  イオンビームを照射して、希ガスの  $^{211}\text{Rn}$  を製造する。そのため、ビーム照射時の標的での発熱によって Bi 金属標的が溶解しない条件で照射する必要がある。独自に開発した循環 He ガスによる冷却機能を備えた照射装置について He ガスの冷却効果を調べた。

**【実験】** Bi 標的は厚さ 5 mm ( $135 \text{ mg/cm}^2$ ) の Al 合金 (A5052) 板に真空蒸着法で作製した。原子力機構タンデム加速器施設の照射室に設置した照射装置を用いて、Al 板及び Bi 標的に 60 MeV の  $^7\text{Li}^{3+}$  イオンビームを照射した。照射時の標的表面温度を放射温度計で計測し、同時に表面状態をカメラで目視観測した。標的の表面温度について、循環 He ガスの①圧力 (0-105 kPa) 依存性、②流量 (0-20 L/min) 依存性を調べた。

**【結果と考察】** Al 板を照射した場合 (図中●)、真空 (0 kPa) での放射温度計は、 $110^\circ\text{C}$  以上の計測値を示し、Al 板は発熱のため大きく変形した。He ガスの冷却効果は非常に大きく、希薄に (約 1 kPa) 存在するだけで、表面温度は常温  $20^\circ\text{C}$  からわずかな上昇に抑えることができ、1 kPa 以上での圧力依存性は小さい (図 1)。また、照射装置内を循環する He の流量依存性も小さい (図 2)。一方、Bi 標的の場合、He 圧力 1 kPa 以上では、Al と同様に圧力、流量依存性はともに小さい。温度上昇は、Al に比べてわずかに大きく、標的が厚いほど大きい (図 2)。これはビスマス金属の熱伝導率  $8 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$  がアルミ合金の  $138 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$  に比べて約 1/17 小さいことに起因する。

講演では、最適照射条件に加えてトレーサの分離、精製についても簡単に紹介する。

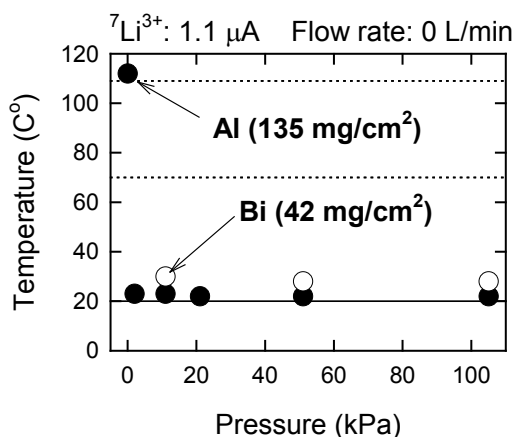


図 1 標的表面温度の He 圧力依存性

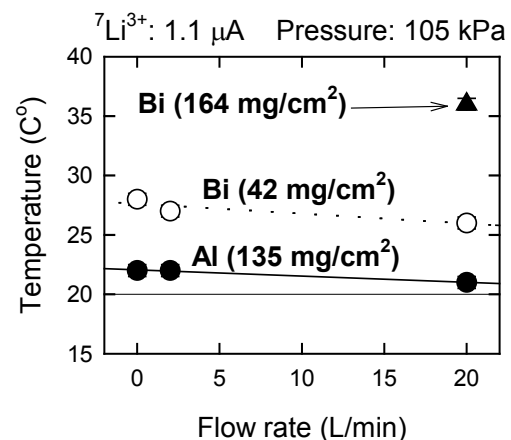


図 2 標的表面温度の He 流量依存性

Production of  $^{211}\text{At}$  for alpha radiotherapy via  $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5\text{n})^{211}\text{Rn}$

N ISHINAKA, I., WASHIYAMA, K., YOKOYAMA, A., MAEDA, E., HASHIMOTO, K., MAKII, H.

### 3A03

## 低線量 $\alpha$ 線放出核 $^{211}\text{At}$ の定量的可視化に向けた撮像システムの開発

(日本原子力研究開発機構<sup>1)</sup> ○瀬川 麻里子<sup>1</sup>、西中 一朗<sup>1</sup>、井上 徹<sup>1</sup>、橋本 和幸<sup>1</sup>、呉田 昌俊<sup>1</sup>

**【緒言】** 低い線量でも高い治療効果が期待される  $\alpha$  放射性同位体  $^{211}\text{At}$  の利用に高い注目が集まっており、 $^{211}\text{At}$  を大量かつ安定的に生成する手法の開発が急務となっている。また、 $\alpha$  放射性同位体の研究において必要不可欠な薄膜クロマトグラフィ等の化学分析、または生体組織内での被ばく線量評価のため  $^{211}\text{At}$  試料の 2 次元画像化に基づく定量評価が必要とされている。そこで本研究では、 $^{211}\text{At}$  からの放出される低線量  $\alpha$  線をリアルタイムで定量する可視化技術の開発を目的とする。本年度は、 $\alpha$  線用シンチレータ及び CCD カメラを用いた撮像システムを開発し、低線量  $^{211}\text{At}$  を用い撮像システムの時間変化に対する定量性について評価した。

**【実験】** 実験は日本原子力研究開発機構タンデム加速器施設ホット実験室にて実施した。実験システムは  $\alpha$  線シンチレータ、マクロレンズ、浜松フォトンクス社製 CCD カメラ、制御用コンピュータで構成される。本撮像システムの視野は約 1.6 cm x 2.1 cm 角、ピクセルあたりの解像度は 0.016 [mm/pixel]、空間解像度は約 17.5  $\mu\text{m}$  程度であった。タンデム加速器にて生成 ( $^{209}\text{Bi}(^7\text{Li},5n)^{211}\text{Rn} \rightarrow ^{211}\text{At}$ ) 及び化学分離された  $^{211}\text{At}$  を約 1 cm 角の銀板に 129 Bq/5  $\mu\text{L}$  滴下し  $\alpha$  線源を作成した。この  $\alpha$  線源をシンチレータで覆い、シンチレータからの発光をカメラで撮像し可視化した。

**【結果】** 撮像開始から 10 分、100 分後の可視化結果を図 1 に示す。撮像は 300 秒毎に積算し、35 時間ほど継続した。図中の明るい個所は  $^{211}\text{At}$  を滴下した領域となっている。300 秒毎の積算画像において、相対的に明るい個所(領域 A)と  $^{211}\text{At}$  全領域(領域 B)、またバックグラウンドとして  $^{211}\text{At}$  から放出される  $\alpha$  線の影響が少ない領域(図 1 中、点線で囲まれた領域)を定義した。これらの領域における輝度値の時間変化を図 2 に示す。バックグラウンド値を差し引いて  $^{211}\text{At}$  の半減期を求めた結果、3%の誤差で評価値 ( $T_{1/2} = 7.22 \text{ h}$ ) と一致した。以上から本撮像システムでは、 $^{211}\text{At}$  からの放出される  $\alpha$  線の時間変化を高精度で撮像可能であることがわかった。

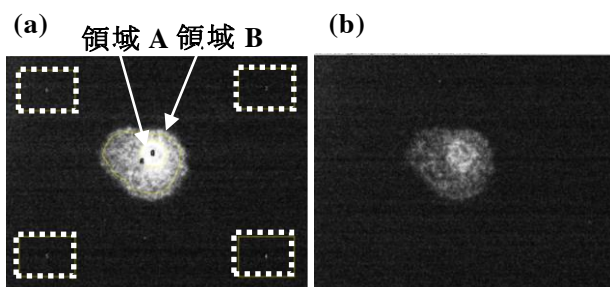


図 1 300 秒毎に積算した  $^{211}\text{At}$  可視化画像 (視野 : 1.6 x 2.1 cm)

(a)撮像開始から 10 分後の画像

(点線部はバックグラウンド領域として定義)

(b)撮像開始から 100 分後の画像

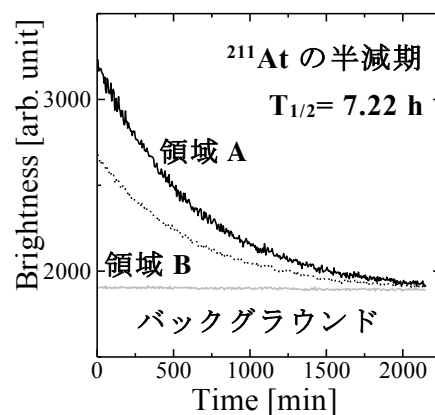


図 2  $^{211}\text{At}$  可視化画像(300 秒毎積算)から読み取った輝度値の時間変化

Developments of quantitative imaging system for alpha-emitting radioisotope  $^{211}\text{At}$   
SEGAWA, M., NISHINAKA, I., INOUE, T., HASHIMOTO, K., KURETA, M.

【緒言】緩歩動物クマムシは、体長 1mm 以下の節足動物に近縁な水生微生物である。クマムシの最大の特徴は、水分が無くなり乾燥状態になると、様々なストレス耐性能力を持つことである。休眠状態のクマムシのガンマ線耐性は 4,500~5,000Gy であることを、本発表者のこれまでに明らかにした。クマムシは休眠状態ではない活動状態でも休眠状態以上の放射線耐性を持つが、その詳細なメカニズムは徐々に明らかになってきています。そこで本研究では、クマムシが優れた放射線耐性を持つ機構を明らかにするために放射線による間接作用の影響について明らかにすることとした。またラジカル反応に寄与する過酸化水素水の濃度耐性について検討した。

【実験】市街地に歩道脇で採取した、ギンゴケからオニクマムシ (*Milnesium tardigradum*) を集めて実験に使用し。活動状態のオニクマムシをシャーレに 10 匹単位で入れ、ガンマ線照射を 3,500Gy から 6500Gy まで照射した。温度効果を見るために、シャーレ内の水の温度を低温と常温にして照射を行い生存率の変化を調べた。線量率効果については、

1000Gy を 6 回に分けて照射を行い、一括照射の場合と生存率の比較を行った。さらに水中の活性種の影響を評価するために、過酸化水素水を 50mM から 100mM まで濃度を変えてオニクマムシを入れて 12 時間後と 24 時間後の生存率を調べた。

【結果】オニクマムシは、6,500Gy まで耐えることが分かった。ただ 3000Gy からは一時的に影響を受けるが、照射からの回復が見られた (図 1.)。また温度効果も見られた (図 2.)。その他、線量率効果も見られた。活動状態のクマムシは、ガンマ線の間接作用を受けている可能性と放射線の影響からの回復があることが示唆された。また影響を受ける過酸化水素の濃度は 60mM から 80mM の間で生存率が低下するのが分かった。今後は卵から成体までの放射線の影響の調査と生存率との関係をガンマ線の間接作用の観点から実験を進めて行くつもりである。

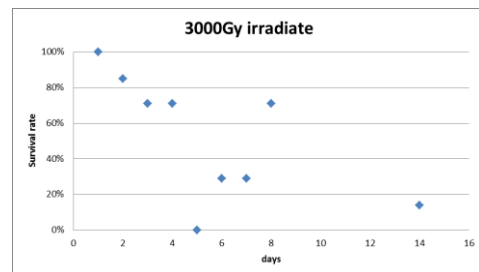


図 1.3000Gy 照射の生存率

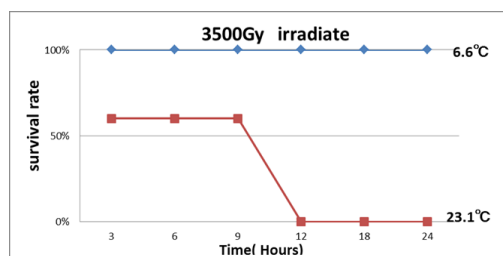


図 2.ガンマ線の温度効果

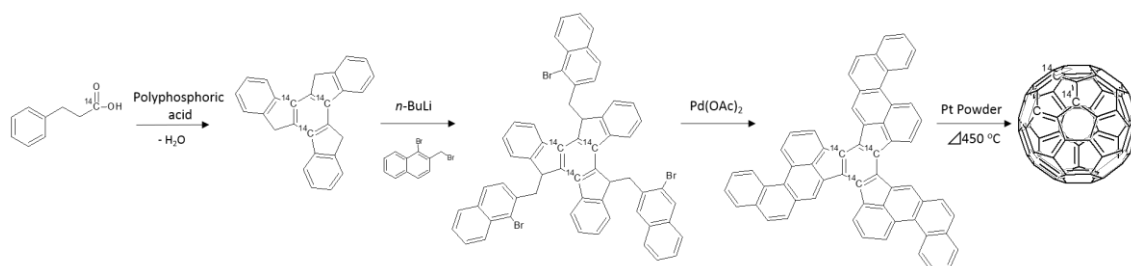
## 3B01

 $^{14}\text{C}$  標識した  $\text{C}_{60}$  全合成の試み

(首都大院理工)○秋山和彦、只井智浩、久富木志郎

【はじめに】近年、フラーレン( $\text{C}_{60}$ )やその誘導体はラジカル消去能の高さや抗 HIV 活性を有することから化粧品や医薬品の有効成分として注目を集めている。医薬化粧品として利用するためには、その物質の体内動態を明らかにする必要があるが、これを調べる有効な手段の一つとして標識化合物を利用した放射性トレーサー法が挙げられる。これまでに  $^{14}\text{C}$  標識された  $\text{C}_{60}$  ( $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$ ) の合成は、炭素電極に  $^{14}\text{C}$  標識された化合物を吸着させ、通常フラーレン合成と同様にアーク放電法を用いて行なわれてきた[1,2]。しかしながら、この合成法は生成した  $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$  の比放射能にばらつきが大きく、また、放射性煤が副生成物として大量に生じるなど多くの問題点を抱えている。近年、 $\text{C}_{60}$  を有機合成的な手法を用いて生成しようという試みがなされている[3]。この手法を  $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$  合成に適用することが可能であれば、均質な比放射能をもつ  $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$  が得られるばかりでなく、放射性煤などによる汚染の懸念を払拭できると期待される。そこで、我々は 3-フェニルプロピオン酸[ $^{14}\text{C}$ ]を出発物質とした  $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$  の全合成を試みた。

【実験】 3-フェニルプロピオン酸[ $^{14}\text{C}$ ](0.69 GBq/mmol)をポリリン酸と共に加熱しトルクセン( $\text{C}_{27}\text{H}_{18}$ )を合成した。この THF 溶液に  $n\text{-BuLi}$  を滴下して  $\text{C}_{27}\text{H}_{18}$  をリチオ化し、1-ブロモ-2-ブロモメチルナフタレンと反応させて  $\text{C}_{60}\text{H}_{36}\text{Br}_3$  を合成した。合成した  $\text{C}_{60}\text{H}_{36}\text{Br}_3$  を Pd 触媒による環化反応にて  $\text{C}_{60}$  の前駆体となる  $\text{C}_{60}\text{H}_{30}$  とした。この前駆体のクロロホルム溶液を白金粉末に滴下・乾燥後、真空下で  $450^\circ\text{C}$  に加熱することで  $\text{C}_{60}$  を得た。各ステップにおける放射能は液体シンチレーションカウンターにて測定した。

Scheme 1:  $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$  全合成のスキーム

$^{14}\text{C}$  の標識位置は 3-フェニルプロピオン酸[ $1\text{-}^{14}\text{C}$ ]を用いた場合のものを示した。

【結果】 各合成ステップにおける生成物( $\text{C}_{27}\text{H}_{18}$ ,  $\text{C}_{60}\text{H}_{39}\text{Br}_3$ ,  $\text{C}_{60}\text{H}_{30}$ ,  $\text{C}_{60}$ )の収率は、それぞれ、28%, 5%, 0.04%,  $6.5 \times 10^{-5}\%$  となり、最終的な  $\text{C}_{60}$  の収率は極めて少なかった。得られた  $\text{C}_{60}[^{14}\text{C}]$  の比放射能はおおよそ 2 MBq/mmol と見積もられ、原料の比放射能から見積もられる値(2.1 MBq/mmol)と誤差範囲内で一致していた。収量の低下の原因として  $\text{C}_{60}\text{H}_{39}\text{Br}_3$  の合成過程において、異性体などの極めて性質の類似した副生成物が生成することが NMR 測定から分かっており、これらの存在が  $\text{C}_{60}$  生成の過程で反応を阻害している可能性がある。今後、これら副生成物を除去することで収率向上が見込まれる。参考文献

[1] SCRIVENS, W. A., *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **116**, 4517 (1994). [2] TADAI, T., *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **303**, 1233 (2015). [3] OTERO, G., *et al.*, *Nature*, **454**, 865 (2008).

Attempt of Total Synthesis for  $^{14}\text{C}$  labeled  $\text{C}_{60}$   
AKIYAMA, K., TADAI, T., KUBUKI, S.

## 3B02

### プロメチウム内包フラーレンの合成とその性質

(首都大院理工<sup>1</sup>、東北大電子光セ<sup>2</sup>)○宮内翔哉<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、  
菊永英寿<sup>2</sup>、久富木志郎<sup>1</sup>

【緒言】金属内包フラーレンは特異な電子状態と分子構造を持つ極めて興味深い物質である。これまでに、様々な金属元素の内包が報告されており、特にランタノイド元素についてはプロメチウム(Pm)を除き全ての元素の内包が報告されている[1]。Pmは周期表においてネオジム(Nd)とサマリウム(Sm)に隣接する人工放射性元素であり、その化学的性質がNd及びSmと非常に類似することが知られている。しかし、Nd及びSmのフラーレン内部での酸化状態はそれぞれ3価及び2価であることが知られており、フラーレン内部におけるPmの酸化状態について非常に興味を持たれる。本研究では、光核反応を用いて製造したPmを用いて内包フラーレンの合成を行い、その性質を調べた。

【実験】Smの光核反応によるPm同位体生成量を調べるため、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 100 mgを石英管に封入し東北大学電子光理学研究センターにおいて最大エネルギー20, 30, 40, 50 MeVの制動放射線を30分間照射した。次に、ここで得られたデータを元にして、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 約1 gを最大エネルギー50 MeVにて6時間照射を行い、金属内包フラーレン合成に用いるPmの製造を行った。照射後、試料を硝酸塩エタノール溶液として、多孔質炭素棒に含浸させ、700 °Cで焼結した。この炭素棒を陽電極としてアーク放電法にて金属内包フラーレンの合成を行った。合成した金属内包フラーレンをトルエンに溶解し、Buckyprepカラムを用いた高速液体クロマトグラフィー(HPLC, 流速: 3.2 mL・min<sup>-1</sup>, 溶媒: トルエン)で展開した。この溶出成分について保持時間38~90分までを1分毎に分画し、放出されるγ線を高純度Ge半導体検出器で測定した。また比較対象として<sup>147</sup>Ndを内包したフラーレンの合成も行い、Pmと同様の実験を行なった。

【結果】光核反応による各Pm同位体生成量を調べた結果、50 MeVの照射において生成した<sup>143</sup>Pm(半減期265日)が金属内包フラーレンの合成に最適であることが分かった。

図1に<sup>143</sup>Pmを内包したフラーレンをHPLC展開して得られたクロマトグラムと各分画の放射能を示した。Sm@C<sub>82</sub>が溶出する保持時間38~42分までの分画では<sup>143</sup>Pmの放射能は検出限界以下であった。一方、Nd@C<sub>82</sub>が溶出する保持時間58~68分の方画からは62分に<sup>147</sup>Nd及び<sup>143</sup>Pmの放射能が観測された。この結果はフラーレンに内包されたPmの酸化状態が3価であることを強く示唆している。

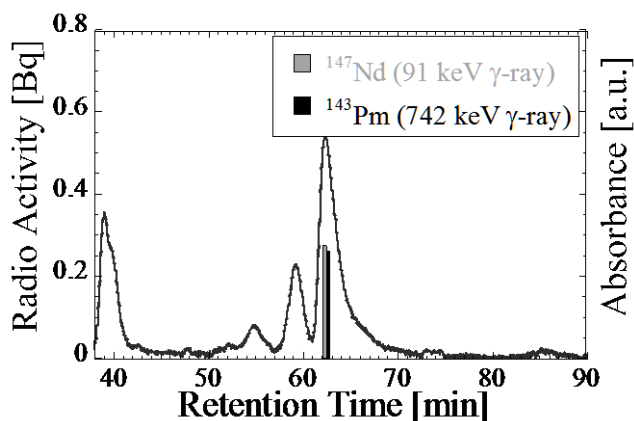


図1 保持時間38~90分までのHPLCクロマトグラムと分画における<sup>143</sup>Pm及び<sup>147</sup>Ndの放射能

[1]Shinohara, H. *Rep. Prog. Phys.* **63**, 843-892 (2000).

Synthesis and Characterization of Promethium Endohedral Metallofullerenes  
MIYAUCHI, S., AKIYAMA, K., KIKUNAGA, H., KUBUKI, S.

### 3B03

## 高速中性子照射の反跳効果を利用した放射性金属内包フラーレンの生成率向上

(首都大院理工<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>)○宮下由香<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、久富木志郎<sup>1</sup>

**【緒言】** 放射性金属内包フラーレンの生成法の一つとして、核反応の反跳効果を利用して空フラーレンに放射性金属元素を注入する方法が注目されている。この方法は高い比放射能を持った生成物が得られることから、金属内包フラーレンの核医学応用を目指す際に有用であると考えられている。これまで様々な核反応の反跳効果が利用されてきたが、例えばプロトンなどの核反応を用いた場合にはフラーレン分子の放射線損傷により生成率が減少することが知られている<sup>[1]</sup>。一方で、電荷を持たない高速中性子を用いることで、クーロン相互作用などによるフラーレンの損傷を減らし生成率向上が見込まれる。我々はこれまでに、Sr 塩に高速中性子を照射することにより生成した<sup>85</sup>Srを反跳効果を利用してフラーレンC<sub>60</sub>に注入することで放射性ストロンチウム内包フラーレン(<sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>)の生成に成功した<sup>[2]</sup>。本研究では、Sr 塩の種類を変化させ、<sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>の生成率向上を目指した。

**【実験】** Sr 塩と C<sub>60</sub> の混合物に、日本原子力研究開発機構の核融合中性子源(FNS)にて DT 反応で生じる 14 MeV の高速中性子を照射した。この試料を CS<sub>2</sub>、アニリン、HCl<sub>aq</sub> の順で抽出し、それぞれの溶液から放出される <sup>85</sup>Sr 由来のγ線(514 keV)を Ge 半導体検出器で測定した。<sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>の生成率は、アニリン溶液中の <sup>85</sup>Sr の割合から評価した。また各 Sr 塩について走査型電子顕微鏡(SEM)による観測を行った。

**【結果・考察】** これまでの結果から、Sr 塩として Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> と SrC<sub>2</sub>O<sub>4</sub>·H<sub>2</sub>O を用いた際の比較により密度および粒径が小さい塩を用いた場合に生成率が上昇することが明らかになっている<sup>[2]</sup>。今回新たにより粒径の小さい SrCO<sub>3</sub> を用いて、<sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>の生成率の比較を行った。図は、Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、SrC<sub>2</sub>O<sub>4</sub>·H<sub>2</sub>O、SrCO<sub>3</sub>の SEM 画像とそれぞれの Sr 塩を用いた際の <sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>の生成率を示している。今回の結果からも、粒径が小さい Sr 塩を用いた際に <sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>の生成率が上昇することが示唆され、SrCO<sub>3</sub>を用いた場合に最大である約 6.8%の生成率となった。本手法は、従来のアーク放電法での放射性金属内包フラーレンの生成率である約 0.1%<sup>[3]</sup>と比較して非常に効率的であることが明らかとなった。

[1] T. Ohtsuki, *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **112**, 2834 (2000). [2]宮下他、2014 日本放射化学学会年会・第 58 回放射化学討論会 P48(2014). [3] K. Akiyama *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **123**, 181 (2001).

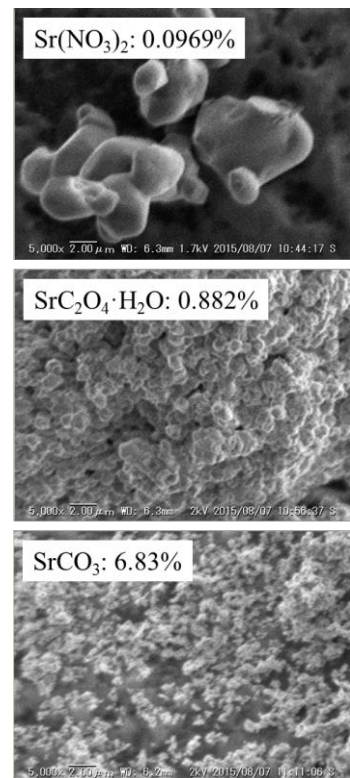


図 用いた Sr 塩の SEM 画像と <sup>85</sup>Sr@C<sub>60</sub>の生成率(%)。

(Sr 塩 : 生成率)

**Improvement in production yield of radioactive strontium endohedral fullerene using nuclear recoil**  
MIYASHITA, Y., AKIYAMA, K., HATSUKAWA, Y., KUBUKI, S..



# 3B04

## 放射性有機廃液の発生を抑えた LSC 測定技術

(お茶大院<sup>1</sup>、日立アロカメディカル<sup>2</sup>)○古田悦子<sup>1</sup>、岩崎紀子<sup>1</sup>、加藤結花<sup>2</sup>、古澤孝良<sup>2</sup>、吉村共之<sup>2</sup>

【緒言】2011年の福島第一原子力発電所事故以来、従来 RI 施設において行われてきた低エネルギーベータ線測定が各所で行われている。この測定には、殆どの場合、液体シンチレーションカウンター (LSC) が用いられている。膨大な汚染物に対してわずかな量ではあるが、測定の都度、新たな廃棄物、すなわち取り扱いが面倒な放射性有機廃液が発生している。この有機廃液を発生させない固体シンチレータを用いた LSC 測定法を開発したので、その詳細を報告する。

【実験】用いた固体シンチレータは、0.5mm 厚の板状の BC-400 (サンゴバン) ; PS-sheet と粒状の EJ-200(G-tech) ; PS-pellet である。いずれも LSC 用低カリガラスバイアルに入れ Tri-Carb3110TR を用い測定した。PS-sheet は 13mm×50mm にカットし、1 枚に試料を滴下乾燥後、別の一枚を被せて試料体としてバイアルに垂直に立て測定した。揮発性試料 (例 ; トリチウム水) に対して PS-pellet を用い、バイアルに隙間無く約 15g 詰めた。この場合のバイアルキャップは uGV2(Meridian Biotechnologies Ltd)を用いた。試料は、<sup>3</sup>H-methionine, HTO などを用いた。

【結果および考察】計数効率の時間変化を、PS-sheet を用いた場合を図 1 に、PS-pellet を用いた場合を図 2 に示した。試料滴下前に、PS-sheet 表面を親水化処理した場合トリチウムの計数効率は増した。これは、接触面積が増大するためである。一方、PS-pellets

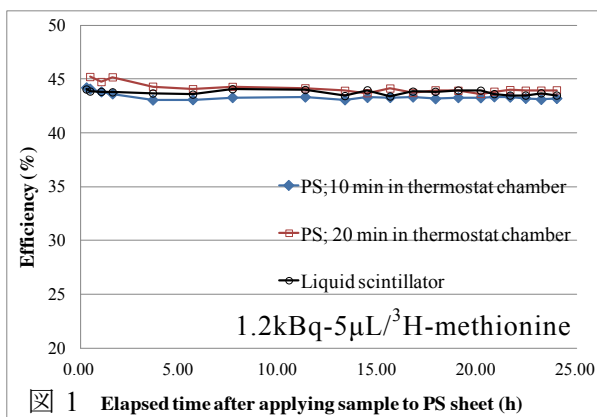


図 1 Elapsed time after applying sample to PS sheet (h)

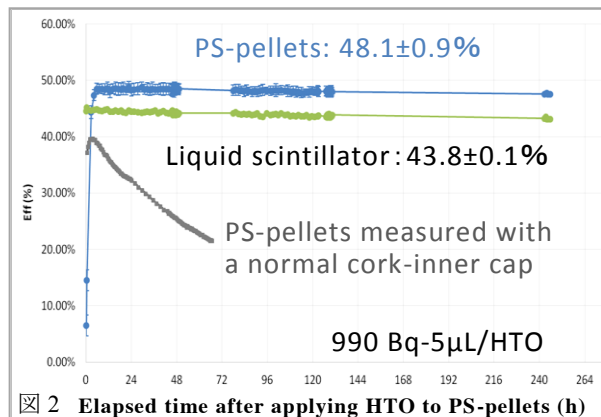


図 2 Elapsed time after applying HTO to PS-pellets (h)

では、親水化は逆効果であった。これは、HTO 試料中の H<sub>2</sub>O 分子がペレット表面を覆う形になり、HTO の接近を妨げるためと考えられる。最大飛程の短いトリチウムであっても、4π 測定の液体シンチレータを用いた場合と遜色の無い結果が得られた。<sup>3</sup>H-methionine では 2.1Bq~400 Bq/5µL、HTO では 3.8 Bq ~330 Bq/50µL の間で、良い直線関係が得られている。さらにこれら PS は通常の扱いで、洗浄により再使用可能であり、固体廃棄物の発生も抑えることが可能である。

【今後の計画】既存の 20mL バイアルを用いた場合、試料滴下量に限界があった。今後は、既存の LSC であって 145mL が測定可能な LSC-LB7 (日立アロカメディカル) での測定、およびプラスチックシンチレーションカウンターの開発を行う予定である。

Liquid scintillation counting method with little liquid organic waste  
Furuta, E, Iwasaki, N., Kato, Y., Furusawa, T., Yoshimura, T.

## 【緒言】

核鑑識とは、捜査当局によって押収された核物質 (NM) や放射性同位元素 (RI) の組成、物理・化学的形態などを分析して、出所、履歴、輸送経路、目的を明らかにする技術的手段である (図 1 参照)。核鑑識技術により、不正に使用された NM や RI の起源を特定し、犯人を刑事訴追できる可能性が高まることから、核鑑識は核テロなどに対する国際的な核セキュリティ体制強化の一翼を担うことができる。本発表では、日本原子力研究開発機構 (原子力機構) で開発した核鑑識技術を紹介するとともに、日本の核鑑識体制にも言及し、核鑑識における放射化学の役割を考察する。

## 【核鑑識分析】

原子力機構では核鑑識に必要な基本的分析技術を開発した。それらは、①NM の同位体組成を分析する技術、②その NM に含まれる不純物を測定する技術、③ウランとその壊変核種であるトリウムの同位体比からウランの精製年代を測定する技術、④粒子の形状を電子顕微鏡撮

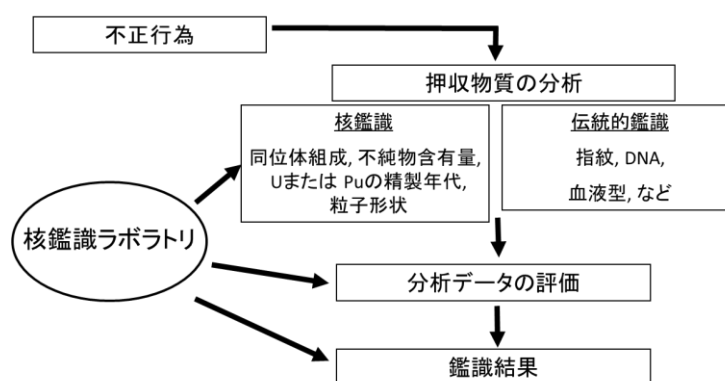


図1. 不正核物質の分析

影して画像データとする技術である。さらに、⑤NM や RI を分析して得られた実測データをライブラリのデータベースに蓄積されているデータと照合して核物質 NM の出所・履歴などを明らかにするためのプロトタイプ核鑑識ライブラリを開発した。現在、原子力機構では核鑑識技術の応用に向けた高度化研究を進めている。これらの技術の基盤となるが放射化学であり、核鑑識と放射化学は密接な関係がある。放射化学の進歩によって核鑑識技術の高度化も達成されることになる。

## 【核鑑識の課題】

核セキュリティの重要性が国際的に認識されているが、我が国においても核鑑識体制を構築する必要がある。核鑑識ラボラトリは核鑑識体制の構成要素のひとつであり、分析施設、押収試料保管施設を包含するとともに、証拠能力としての分析結果の品質を保証するシステムが必要となる。また、国内核鑑識ライブラリでは、データベースと属性評価手法の信頼性を担保するものでなければならない。核属性の割り出しに不可欠な科学的知見や、NM や RI の特徴に関する解釈、さらには核鑑識専門家の育成の観点からも放射化学の役割は重要である。