

一般講演

9月6日(水)

1A01 - 1A11 : A会場

1B01 - 1B11 : B会場

1A01

飯舘村における6年間の放射線量の推移と除染後の生活空間の現状

(京都大学¹、広島大学²、飯舘村放射能エコロジー研究会³、東北大学⁴、日本大学⁵、原子力資料情報室⁶) ○今中哲二¹、遠藤暁²、菅井益郎³、市川克樹³、林剛平⁴、豊田直巳³、澤井正子⁶、上澤千尋⁶、佐久間淳子³、石田喜美恵³、伊藤延由³、馬場広行³、糸長 浩司⁵、浦上 健司⁵、小澤祥司³

私たちのグループは、福島原発事故が発生した2011年3月より飯舘村内の放射能汚染状況を継続的に調査してきた。この6年間続けて来た“走行サーベイ調査”、ならびに避難指示解除を前に昨年に実施した“家屋周辺サーベイ調査”の結果を紹介しておく。

全村の走行サーベイ：村内主要道路上を車で走行しながら約200カ所の定点で停車して車内放射線量率を測定する調査を続けている。測定には、日立アロカ社製 CsI サーベイメータ PDR-111 を用い、車の遮蔽効果を見積もるため、毎回数カ所で車内と車外の線量率を測定している。図1は、今年4月までの6年間で8回の調査について、平均値の推移をプロットしたものである。2011年3月29日の測定値平均は10.7 μ Sv/hであったが、2017年4月1日の平均値は0.60 μ Sv/hと、この6年間に18分の1に減少した。測定値と理論的減衰曲線は初めの4年間はほぼ一致しているが、2017年4月の測定値平均は理論値より40%ほど小さな値となっている。この測定値と理論値のズレについては、2014年頃から大規模に実施されてきた除染の効果を反映している可能性が考えられる。

各地区の家屋周辺サーベイ：避難指示解除後に村へ戻るかどうかを検討するにあたって、家屋周辺の放射線量は判断するための基本情報である。除染完了後の各地区の放射線状況を把握することを目的に、地元の方々の協力を得て昨年、飯舘村前田地区(5月20日)、上飯樋地区(10月9日)、蕨平地区(11月24日)、小宮地区萱刈庭組(11月24日)の計249戸(村全体の16%)について家回り4カ所(入口道路、玄関前、庭、母屋裏)での地上1m空間線量を測定する家屋周辺サーベイを行った。表1に示すように、除染後の家回りの空間線量率平均値は0.5~1.0 μ Sv/h程度である。家屋透過係数を0.4とし屋内16時間・屋外8時間モデルで帰村した場合の外部被曝を見積もると年間3~5mSvとなる。

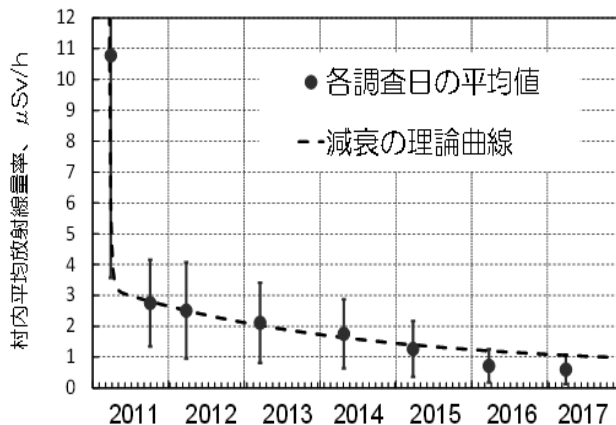


図1. 走行サーベイによる飯舘村路上放射線量の推移

表1. 家屋周辺サーベイ調査結果のまとめ

| 地区名 | 戸数 | 空間線量率平均値、 μ Sv/h | | | |
|-----|-----|----------------------|------|------|------|
| | | 入口道路 | 玄関前 | 庭 | 母屋裏 |
| 前田 | 55 | 0.68 | 0.42 | 0.60 | 0.78 |
| 上飯樋 | 125 | 0.48 | 0.37 | 0.51 | 0.68 |
| 蕨平 | 48 | 0.99 | 0.79 | 1.01 | 1.13 |
| 萱刈庭 | 21 | 0.86 | 0.65 | 0.93 | 1.09 |

Observation of radiation situation in Iitate village during six years after the Fukushima-1 NPP accident and the current radiation level around living areas after decontamination.

IMANAKA, T., ENDO, S., SUGAI, M., ICHIKAWA, K., HAYASHI, G., TOYODA, N., SAWAI, M., KAMISAWA, C., SAKUMA, J., ISHIDA, K., ITOU, N., BABA, H., ITONAGA, K., URAGAMI, K., OZAWA, S.

1A02 AMS を用いた福島原発周辺土壌の ^{36}Cl の定量

(筑波大学¹、金沢大学²、AIST³、JAEA⁴、慈恵医大⁵)○太田祐貴¹、末木啓介¹、笹公和¹、高橋努¹、松中哲也²、松村万寿美¹、戸崎裕貴³、細谷青児¹、高野健太¹、落合悠太¹、佐藤志彦⁴、吉川英樹⁴、中間茂雄⁴、箕輪はるか⁵

【緒言】 福島第一原発事故により、莫大な量の放射性核種が環境中に放出された。 ^{36}Cl (半減期: 30.1 万年)もまた放出が疑われる核種である。しかし、汚染地域の土壌中に含まれる ^{36}Cl を報告する研究は三宅ら(2015)の 1 件だけである。さらなる研究により ^{36}Cl の放出量と他の放射性核種の放出挙動との関係性を評価することが求められる。そこで本研究では、筑波大学加速器質量分析(AMS)装置を用いて得た $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ から ^{36}Cl 蓄積量(Bq/m²)の算出を行い、放出量の大きい ^{137}Cs や ^{36}Cl と同じハロゲンである ^{129}I との比較検討を行った。

【実験】 試料は福島県浪江町・双葉町・大熊町の 31 地点で採取した表層 5 cm の土壌を用いた。この土壌に対して、土壌の 3 倍量の 0.01 M HNO₃ による抽出を 5 回繰り返し、無機塩素(Cl_{inorg})と抽出性有機塩素(Cl_{orgex})を抽出した。Cl_{orgex} を活性炭に吸着させて除去し、Cl_{inorg} のみの分画としてから、一部を分取してイオンクロマトグラフィーにより土壌中の Cl_{inorg} 濃度を求めた。この分画に担体を添加し、これを 30%過酸化水素、3 M NH₃ で処理した後、10 mL 以下まで加熱濃縮した。濃縮液から AgCl を沈殿させた後、AMS による ^{36}Cl の測定の際に妨害となる ^{36}S の除去を行ってから、AMS により Cl_{inorg} の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を求め、 ^{36}Cl 蓄積量を求めた。また、酸抽出前の土壌の γ 線をゲルマニウム半導体検出器により測定し、 ^{137}Cs 蓄積量についても求めた。

【結果と考察】 浪江町の 10 地点(原発からの距離: 7.6-28.8 km, NW)で得られた $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は 0.138~6.86×10⁻¹² となった。原発周辺における事故前の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は 0.09~1.14×10⁻¹² である[2]。事故前よりも明らかに大きな $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を示したのは 6.65~6.86×10⁻¹² を示した 2 地点であった。 ^{36}Cl 蓄積量は 0.132-3.96 mBq/m² となり、先の 2 地点とさらに別の 1 地点で ^{36}Cl 蓄積量が 2.93-3.96 mBq/m² という値を示し、事故前の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ (平均 4.6×10⁻¹³)を用いて計算した ^{36}Cl 蓄積量 0.12~0.85 mBq/m² よりも明らかに大きな値となった。これら 3 地点では事故による ^{36}Cl の降下により蓄積量の増加が考えられる。また、 ^{36}Cl 蓄積量と ^{129}I 、 ^{137}Cs 蓄積量には明確な相関が見られなかった。

事故による明確な影響が見られた 3 地点はいずれも原発から約 8 km に位置する試料であった。本発表では原発から 1.4-8.1 km の 20 地点と ^{129}I 蓄積量の大きかった 22.7 km における 1 地点に関するデータも合わせて報告する。 ^{36}Cl 蓄積量の原発からの方向・距離依存性や、原発 8 km 以内における ^{137}Cs や ^{129}I との相関の可能性について検討する予定である。

[1] Y. Miyake *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **361**, 627-631 (2015)

[2] R. Seki *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **259**, 486-490 (2007)

Quantitative analysis of ^{36}Cl in surface soils near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant using accelerator mass spectrometry

OHTA, Y., SUEKI, K., SASA, K., TAKAHASHI, T., MATSUNAKA, T., MATSUMURA, M., TOSAKI, Y., HOSOYA, S., TAKANO, K., OCHIAI, Y., SATOU, Y., YOSHIKAWA, H., NAKAMA, S., MINOWA, H.

1A03

東京湾における海洋放射能調査

— 海底土、海水中のセシウム 134、137 濃度の経年変化 —

(日本分析センター)○豊岡慎介、新田済、金子健司、岸本武士、磯貝啓介

【はじめに】東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う放射能汚染の実態把握を目的とした、国の総合モニタリング計画の一環として、河川からの流入など放射性物質の蓄積が懸念される東京湾内の 23 地点において、平成 24 年度から定期的に表層海底土、表層海水を採取し放射性セシウムを定量する調査を実施してきた。そのうち 4 地点においては平成 25、26 年度に柱状採泥による深度別分布調査を、また平成 28 年度は柱状採泥による蓄積量の調査を行った。

【調査方法】海底土は、海底表層から深さ 3cm までを採取した。深度別分布調査では海底表層から 2cm 毎に 20cm までを採取した。蓄積量の調査では海底表層から深さ 20cm 以上となるよう採取した。十分に混合し吸引ろ過したものを 105℃で乾燥後、2mm 孔径のふるいでふるい分けし、マリネリ容器(容量 700mL)に詰め測定試料とした。表層海水は、表層から深さ 1m までを採取し、塩酸を添加した。50L を分取してセシウムをリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)により捕集し、測定容器(U-8)に詰め測定試料とした。ゲルマニウム半導体検出器を用いて 70,000 秒以上測定し、放射能濃度を算出した。

【結果及び考察】平成 25～28 年度における各採取地点の海底土の放射性セシウム濃度の年間最高濃度を区分けした結果を図 1 に示す。高い値を示す地点数はこの 4 年間で減少したが、荒川と旧江戸川の河口沖合に位置する K-T1 と木更津港付近の C-P8 は調査開始以来比較的高い値を示していることが判った。また経年変化において同様の傾向を示す地点同士は、周辺環境、海底地形、底質などに類似点があった。一方 K-T1 と M-C1 は同じ河川の河口の地点であるが河口から距離が離れている K-T1 の方が放射性セシウム濃度が高かった(図 2)。この原因として底質の違いが考えられた。

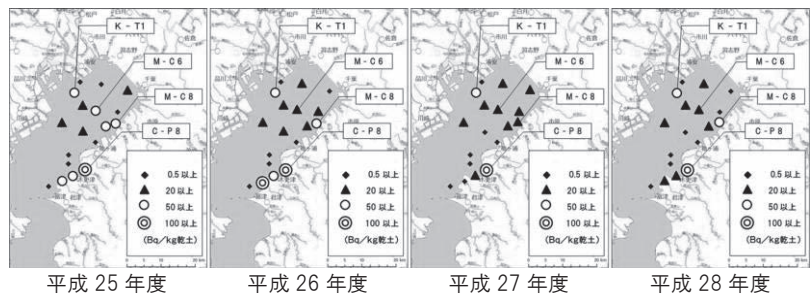


図 1 海底土中 Cs-137 の年間最高濃度値の比較

海水では放射性セシウム濃度が冬季に低くなる季節変動が見られた。そこで最寄りの河川からの影響と考え、流域都市の月別降水量との関係を調べた結果、海水の放射性セシウム濃度と降水量の変動には相違点を認めた(図 3)。

海底土、海水いずれも検出された放射性セシウムは $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比から事故由来であることを確認した。

なお本調査結果は原子力規制庁からの委託事業「東京湾環境放射能調査(平成 25～28 年度)」の成果の一部である。

なお本調査結果は原子力規制庁からの委託事業「東京湾環境放射能調査(平成 25～28 年度)」の成果の一部である。

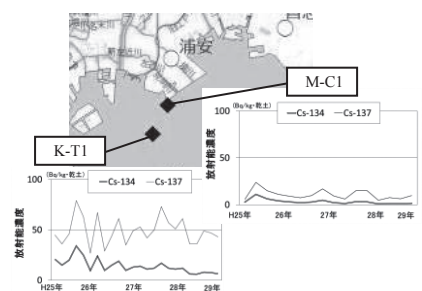


図 2 K-T1 と M-C1 の位置関係と海底土の放射性セシウム濃度の経年変化

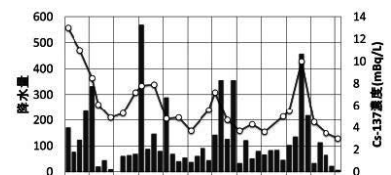


図 3 流域都市における月別降水量と海水の放射性セシウム濃度の経年変化

Radioactivity monitoring in the Tokyo Bay - temporal variations of ^{134}Cs and ^{137}Cs in sea sediment and seawater

TOYOOKA, S., NITTA, W., KANEKO, K., KISHIMOTO, T., ISOGAI, K.

【緒言】 2011年3月11日の東日本大震災に伴う津波により発生した東京電力福島第一原子力発電所事故は大量の放射性セシウムを環境中に放出した。海洋への放射性セシウムの流入は、原子力発電所からの直接流入や大気からのフォールアウトによる経路が存在する。流入した放射性セシウムの一部は海底堆積物に収着し、粒子の再懸濁、再移動や放射性セシウムの海水への再溶出、さらには河川から粒子に吸着した形態で流入することによる濃度変動の可能性が考えられる。本研究では、福島原発事故由来の放射性セシウムが沈着する3つの沿岸域で採取した海底堆積物の放射性セシウム濃度を測定するとともに、人工海水・1M 酢酸アンモニウム・10%過酸化水素を用いた抽出実験を行い、放射性セシウムの存在形態について検討した。

【実験】 2014、2015年度に宮城県阿武隈川河口沖、福島県新田川沖、福島第一原発沖で海底堆積物を採取し、深さ0-3 cm、3-10 cm、以降10 cm間隔でカッティングを行った。乾燥後に不純物を除いて2 mmメッシュのふるいを通し、均一化を行ってから容器にパッキングしてGe半導体検出器により¹³⁴Csと¹³⁷Csの放射能濃度を測定した。また、固液比1:10で2日間、回転数60 rpmの条件で人工海水による溶出実験をそれぞれ2回ずつ行い、その溶出液中の放射性セシウムの測定結果から溶出率を計算した。さらにその残渣の一部を用いて1M 酢酸アンモニウムと過酸化水素による抽出実験を行い、それぞれの抽出率を計算した。

【結果と議論】 図1には本研究で採取した海底堆積物の¹³⁷Cs放射能濃度と含水率の関係を示した。堆積物の深さ0-20 cm層について、¹³⁷Cs放射能濃度と含水率の間に正の相関がある。図2には人工海水による溶出実験の結果を示した。溶出率は14%以下であり、福島原発沖の堆積物は他の沿岸域と比べて全体的に溶出率が高かった。河川粒子が多く供給される阿武隈川河口沖堆積物の¹³⁷Cs放射能濃度は500 Bq/kg-dry以上の高い値で、¹³⁷Csは人工海水にほとんど溶出しなかった。また、¹³⁷Csの溶出率が比較的高い福島原発沖の堆積物は¹³⁷Cs放射能濃度が低く、海水への再溶出は濃度変動にほとんど影響しないと考えられる。そのため、放射性セシウムの大部分は海底堆積物中の微細粒子に強く吸着した形態で存在し、¹³⁷Cs放射能濃度の変動要因としては、主に粒子の再懸濁による移動が寄与している可能性が考えられる。

本研究の大部分は、平成26、27年度原子力規制庁放射性物質測定調査委託費(海域における放射性物質の分布状況の把握等に関する調査研究)事業において実施された。

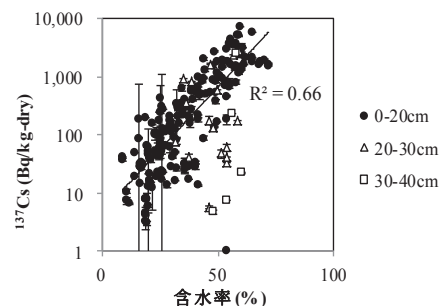


図1 含水率と¹³⁷Cs放射能濃度

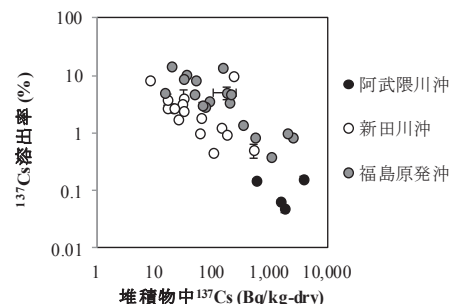


図2 表層堆積物から人工海水への¹³⁷Cs溶出率

福島第一原子力発電所近傍におけるダスト中の放射性セシウム含有粒子の分布調査

(東京慈恵会医科大学¹、JAEA²、筑波大学³)○箕輪 はるか¹、吉川 英樹²、中間 茂雄²、佐藤 志彦²、末木 啓介³

【緒言】 2011年3月の福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性物質の中には、水溶性成分だけでなく不溶性で粒子状の物質が存在することが明らかになってきている^{1),2)}。本研究では、このような放射性セシウム含有粒子について、沈着した平面上での表面分布および、原発近傍での空間分布を調べた。

【試料】 福島第一原子力発電所より約8km圏内の双葉町・大熊町、計27ヶ所の建物内において、2014年1月から2016年11月に調査を行なった。車庫・倉庫・台所の換気扇周辺など、屋外からの空気が入り雨に曝されない場所を選び、ダスト試料を採取した。棚の上など平滑な面から10×10cmの粘着シートおよびスミア濾紙にてダストを採取した。また同時に近い所でヘラやブラシにより採取したダストから放射性セシウム含有粒子を抽出した。

【結果と考察】 ダストが付着した粘着シート試料の放射線画像を、イメージングプレート(BAS-MS2040, Fujifilm) および画像解析装置 Typhoon FLA7000(GE Healthcare) を用いて取得した。

放射線画像には粒子状スポットが見られ、粒子状スポットの大きさと濃さ(放射能強度を示す)およびその個数は、採取場所により大きな違いがみられた。代表的な例として(1)原発の南3km地点および(2)原発の北北西1.5km地点で採取した試料の放射線画像を図1に示す。放射線画像中の黒化度(PSL値)を用いて全体の放射能に占める粒子状スポットの割合を算出し、粒子状スポットに含まれる放射エネルギーの頻度分布を求めた(図2)。スミア濾紙試料はGe半導体検出器によるγ線スペクトロメトリーを行ない、¹³⁴Csおよび¹³⁷Csを定量した。定量値から2011年3月時点での¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比を算出し、その地点で沈着した放射性物質の起源原子炉およびその混合比を推定した。ダスト試料より抽出した粒子はSEMによる分析を行ない、形態観察および化学組成を求めた。これらのデータをもとに、原発近傍での放射性セシウム含有粒子の空間分布を求め、粒子の起源と運搬・沈着過程について考察する。

【参考文献】 ¹⁾ Adachi, K. *et al.* 2013. *Sci. Rep.* 3, 2554, 1-5

²⁾ Y. Satou *et al.* 2016. *Anthropocene.* 14, 71-76

Research for the distribution of radiocesium-bearing particles in dust from near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant
MINOWA, H., YOSHIKAWA, H., NAKAMA, S., SATOU, Y., SUEKI, K..

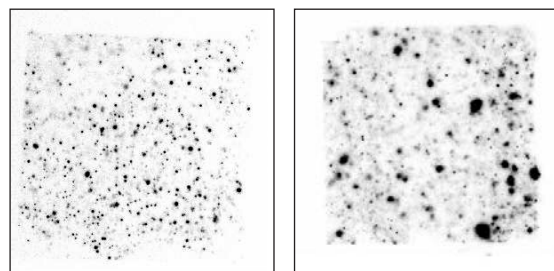


図1. 粘着シート試料の放射線画像
左(1) 原発南3km地点、右(2) 原発北北西1.5km地点

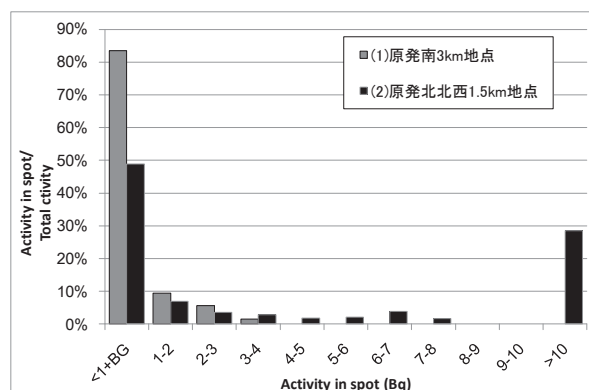


図2. 粒子状スポットの放射能分布

福島原発事故により放出された 放射性セシウムと金属元素を含む不溶性微粒子の生成模擬実験

(阪大院理¹、阪大 RI セ²、東大院理³)

○藤田将史¹、二宮和彦¹、篠原厚¹、吉村崇²、小暮敏博³

【緒言】福島原発の事故により環境中に大量の放射性元素が放出された。これらの中で、高濃度の放射性 Cs を含み、水や酸に不溶な粒子態で放出されたものがあることが分かっている[1]。この粒子は粒径が数 μm のガラス質の球体で、主成分の SiO_2 の他に Cs や Zn、Fe といった金属元素を含んでいることが知られている[2,3]。また水や酸に対して不溶性であることも報告されているが、このような粒子の生成過程は不明である。この粒子は事故時に原子炉建屋内で生成したと考えられ、その生成過程を明らかにすることは、事故時の炉内環境を考える上で重要である。これまで本研究グループでは、燃料から揮発した CsOH と SiO_2 が反応し、このような粒子が生成したという仮説を立て[4]、この仮説に基づき不溶性の模擬粒子の生成を行い、その形状や元素組成を調べてきた[5]。本研究では金属を含有した模擬粒子について、透過電子顕微鏡(TEM)およびエネルギー分散型 X 線分光器(EDS)を用いた観察を行い、模擬粒子表面だけでなく内部の構造について詳細に調べた。

【実験】これまで報告してきた方法により模擬粒子を作成し[5]、カーボンテープ上に固定した。大阪大学の走査型電子顕微鏡(SEM)および EDS による観察を行った後、東京大学において集束イオンビーム(FIB)により模擬粒子を切断し、TEM や EDS を用いて内部構造を調べた。

【結果と考察】図 1 に FIB を用いて切断した模擬粒子の切断面の TEM 像と、図中の EDS-3 の範囲での EDS 分析結果を示す。模擬粒子内部全体の組成は、既に報告したものと同様、Si と O を主成分とし、Cs の他に Fe や Zn が含まれていることが分かった。一方で、実際の粒子にはほとんど含まれていない Ca や Al、Mg といった元素についても含まれていることが分かった。また、TEM 観察時に得られた模擬粒子の結晶回折パターンからは、模擬粒子は結晶質ではなくガラス質であることが分かった。

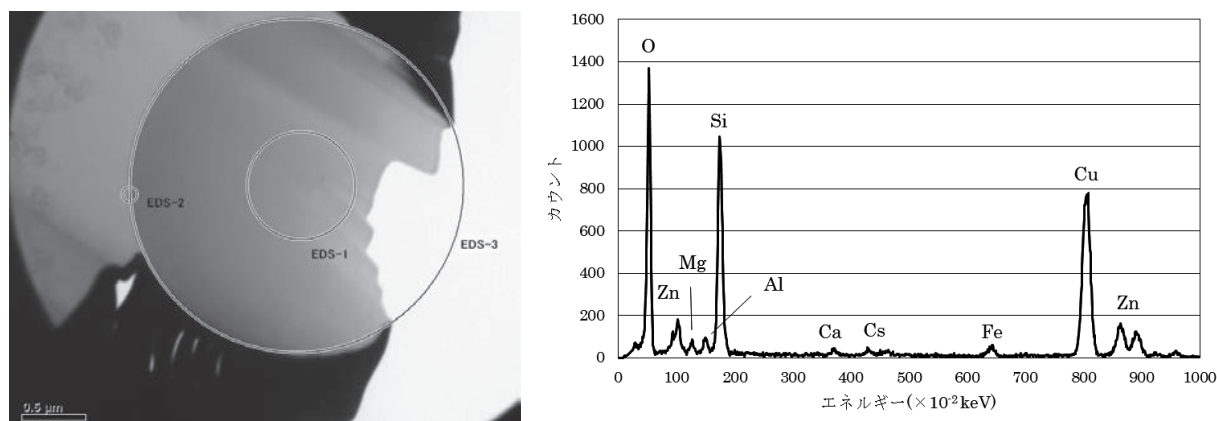


図 1. 模擬粒子切断面の TEM 像 (左) と左図中 EDS-3 における EDS 分析結果 (右)

【参考文献】

[1] K. Adachi *et al.*, Sci. Rep. **3** (2013) 2554 [2] Y. Abe *et al.*, Anal. Chem. **86** (2014) 8521–8525 [3] N. Yamaguchi *et al.*, Sci. Rep. **6** (2016) 20548 [4] 吉村崇, 第 16 回「環境放射能」研究会プロシーディング [5] 藤田将史 他, 第 60 回放射化学討論会

Production experiments of the insoluble Cs-concentrated particles released by the FDNPP accident
FUJITA, N., NINOMIYA, K., SHINOHARA, A., YOSHIMURA, T., KOGURE, T.

(東大院理¹、東大アイソトープ²、筑波大数物系³、原子力機構⁴、金沢大⁵、金沢大⁶)○栗原雄一¹、三浦輝¹、桧垣正吾²、坂口綾³、田中万也⁴、長尾誠也⁵、山本政儀⁶、高橋嘉夫¹

【緒言】 2011年3月に起こった福島第一原発の事故により、原子炉から大量の核分裂生成物(FPs)が環境中へ放出された。放出されたFPsの内、放射性Csの同位体は放出量の多さや比較的長い半減期(例えば¹³⁷Cs: $T_{1/2} = 30$ y)などから、その放出形態や環境中での動態が注目されている。放射性Csの放出形態の一つとして、Adachi et al. (2013)¹⁾により発見された放射性Csを高濃度に含むシリカガラスの微粒子(RCs particles)がある。この微粒子は損壊した原子炉内で生成された可能性が高いため、その物理・化学的な特性を理解することにより、事故時の原子炉内の様々な情報を得られると考えられる。しかし、RCs particlesを環境試料から分離し、様々な分析に供するには多大な労力と時間を必要とするため、RCs particlesに関する包括的な情報は限られている。本研究では、福島第一原発近郊の様々な地域で採取された黒い物質(放射性物質が高濃度に凝集した道路粉塵)²⁾からRCs particlesを回収し、その分布状況、粒子の形状や元素組成及び放射性Csの放射能比などを調べた。

【実験】 実験には、原発近郊の南相馬市、飯舘村、浪江町、双葉町、大熊町及び広野町で採取された黒い物質を用いた。試料中のRCs particlesの分離は以下の手法で行った。まず、試料のIP画像をもとにRCs particlesを含むと考えられるフラクションを分画した。分画したフラクション(0.1 g程度)をプラスチック製の試験管に入れ、MQ水を加えた。このRCs particlesと夾雑物とが共存する試験管を十分攪拌した後、直ちに二分割し、それぞれNaIシンチレーションカウンターによる放射能を行った。放射能が検出された試験管について、再度MQ水を加え、攪拌・二分割・放射能測定といった一連の操作を30回繰り返すことにより、RCs particlesを分離した。この分離操作を行った後、RCs particlesをMQ水とともにカプトンテープ上に滴下し乾燥させ、SEM-EDS分析、 γ 線測定を行った。

【結果と考察】 黒い物質から分離したRCs particlesの大きさ及び形状については、双葉町では数十～数百 μm の大きな粒子で形状は不定形がほとんどを占めており(数十 μm の球形も幾つか存在)、南相馬市では数十 μm の球形と数 μm の小さな球形の粒子が混在しているという特徴が見られた。上記以外では主に数 μm の小さな球形の粒子として存在していた。元素組成については、大きな粒子では、不定形・球形ともに、Si, Mg, Al, Caなどを主要構成元素としEDSスペクトル上ではCsのピークは見られないといった特徴が見られたのに対し、数 μm の小さな球形の粒子は既報¹⁾と同様の組成を示した。¹³⁴Cs/¹³⁷Cs放射能比の測定結果と西原ら(2012)³⁾の推定値とを比較したところ、大きな粒子はUnit 1由来、小さな粒子はUnit 2あるいはUnit 3由来であることが推定された。以上の結果から、大きな粒子と小さな粒子は、その発生源及び生成過程が異なることが示唆された。さらに、小さな粒子内でも組成の違いや¹³⁷Cs放射能と体積との関係から、異なる生成過程が存在することが示唆された。

【参考文献】

- 1) K. Adachi et al.: *Sci. Rep.*, **3**, 2554 (2013)
- 2) M. Yamamoto et al.: *J. Environ. Radioact.*, **132**, 31 (2014)
- 3) 西原健司、岩元大樹、須山賢也: JAEA-Data/Code 2012-018 (2012)

Radioactive cesium-bearing particles in black substances

KURIHARA, Y., MIURA, H., HIGAKI, S., SAKAGUCHI, A., TANAKA, K., NAGAO, S., YAMAMOTO, M., TAKAHASHI, Y.

福島河川における2013年から4年間にわたる粒子状ヨウ素¹²⁹Iのフラックス

(筑波大学¹、金沢大学²、福島県³、福島大学⁴)○松中哲也^{1,2}、笹公和¹、高橋努¹、恩田裕一¹、谷口圭輔³、脇山義史⁴、末木啓介¹

【緒言】

福島第一原子力発電所事故によって放出された長寿命の¹²⁹I(半減期:1,570万年)は8.01 GBqと推定され、高い化学的活性や¹³⁷Cs(半減期:30.1年)との挙動の違いの観点から、陸域から海洋環境にわたる移行挙動を長期的に把握することが必要な核種の1つである。本研究では、放射能汚染が比較的強かった福島県相馬郡飯舘村から南相馬市を通り太平洋に注ぐ新田川を対象とし、河川水と懸濁物質(Suspended substance:SS)の¹²⁹I濃度と¹³⁷Cs濃度、および¹²⁹I/¹³⁷Cs比に着目して事故起源の¹²⁹Iと¹³⁷Csの動態に関して以下2点を明らかにすることを目的とした。

- 1) 2013年から2016年にわたる河川における粒子状¹²⁹Iと¹³⁷Csの月間フラックス変動
- 2) 河川における懸濁態と溶存態の¹²⁹Iと¹³⁷Csの挙動

【実験】

新田川の上流域は、原子力発電所から北西へ30–40 kmに位置し、600–3000 kBq m⁻²の¹³⁷Csが沈着した地域である。目的1の試料は、河口から上流へ5.5 kmの原町地点において、SSサンプラーを用いて2013年から2016年かけて連続的に採取したSSである。目的2の試料は、上流から下流にわたる5つの定点において、2014年から2016年にかけて採取した河川水とSSである。乾燥・粉碎させたSS(0.5 g)中のヨウ素は、熱加水分解法にて気化させた後、アルカリ溶液中にトラップした。これらのアルカリ溶液、および0.45 μmのフィルターでろ過した河川水1 Lに対して、2 mgのヨウ素キャリアを加えた後、ヨウ素を溶媒抽出・逆抽出で精製し、硝酸銀を添加してヨウ化銀のターゲットを作製した。筑波大学の加速器質量分析計でターゲットの¹²⁹I/¹²⁷I比を測定し、ICP-QQQ-MSを用いて¹²⁷I濃度を測定した後、試料の¹²⁹I濃度を算出した。得られたSSの¹²⁹I濃度、および原町地点で観測した月平均の濁度と流量から、以下の式を用いて粒子状¹²⁹Iの月間フラックスを算出した。

$$^{129}\text{I フラックス (Bq month}^{-1}\text{)} = ^{129}\text{I 濃度 (Bq kg}^{-1}\text{)} \times \text{濁度 (kg m}^{-3}\text{)} \times \text{流量 (m}^3\text{ month}^{-1}\text{)}$$

【結果と考察】

新田川において、2013年に月別で採取したSSの¹²⁹I濃度と¹³⁷Cs濃度は、それぞれ0.92–4.1 mBq kg⁻¹と16–31 kBq kg⁻¹の範囲にあった。¹²⁹I濃度は各月に観測された最大濁度と相関があったのに対し(R²=0.90)、¹³⁷Cs濃度と最大濁度との間には相関性が認められなかった(R²=0.07)。濁度の増加に伴う¹²⁹I濃度の増加は、降雨イベントによって上流域から放射能汚染の強い土壌粒子が下流域に運ばれた事を明瞭に反映していると考えられた。粒子状の¹²⁹Iと¹³⁷Csの月間フラックスは、それぞれ0.024–43 kBq month⁻¹と0.70–330 GBq month⁻¹の間で変動し、降水量が多い時期に高くなる傾向にあった。また、SSと溶存物質の¹²⁹I/¹³⁷Cs比、および¹²⁹Iと¹³⁷CsのKd値から、¹²⁹Iは¹³⁷Csに比べて懸濁態から溶存態へ移行しやすいと考えられた。

Monthly flux of particulate ¹²⁹I in river of Fukushima from 2013 to 2016

MATSUNAKA, T., SASA, K., TAKAHASHI, T., ONDA, Y., TANIGUCHI, K., WAKIYAMA, Y., SUEKI, K..

【緒言】沿岸域における放射性物質の動態を把握する場合、陸域から流入した土砂や浮遊砂が海底堆積物となって蓄積する経路及び再懸濁による再移動を検討する必要がある。放射性セシウムは、陸域では降水・河川水が淡水であるため再溶出は少ないと考えられるが、海域においては、海水が多く陽イオンや陰イオンを含むため放射性セシウムの収着した海底堆積物から海水への再溶出の可能性も指摘されている。そのため、長期的な放射性セシウムの動態評価が必要である。本研究では、福島第一原子力発電所沖沿岸域でセジメントトラップ実験を行い、沈降粒子の沈積状況と海底堆積物粒子の再懸濁による再移動の効果を検討した。

【実験と方法】福島第一原子力発電所沖の海域で、平成27年10月6日～平成27年11月6日の間、深度30 m (測点1)、60 m (測点2) に時系列式セジメントトラップを設置し、7期間 (トラップ試料1～5は1期間5日間、トラップ試料7は1日間) の沈降粒子を捕集した。また、測点1では、平成27年12月26日～平成28年1月26日に2回目のセジメントトラップ実験を実施した。実験期間は同様に7期間 (トラップ試料1～5は1期間5日間、トラップ試料7は1日間) で沈降粒子を捕集した。採取したセジメントトラップ試料は凍結乾燥・秤量後に容器に封入し、金沢大学低レベル放射能実験施設の低レベルバックグラウンドGe半導体検出器で測定した。

【結果と議論】平成27年10月6日～平成27年11月6日のセジメントトラップ実験では、最初の捕集期間 (平成27年10月6日～11日) には、他の期間に比べて2桁高い全粒子束を観測した。この時の沈降粒子試料は砂質であり、中央粒径は測点1で33 μm 、測点2では133 μm であった。一方、平成27年12月26日～平成28年1月26日の期間に実施したセジメントトラップ実験では、トラップ試料5～7の平成28年1月20日～26日の期間に他の期間に比べて2桁高い全粒子束が観測され、トラップ試料5は砂質の沈降粒子であった。これらの結果は、細粒の懸濁粒子に加えて砂質の粒子が再懸濁し移行していることを示唆している。

沈降粒子の全粒子束の増加につれて沈降粒子の¹³⁷Cs放射能濃度は、測点1については、実験期間が異なっても、その変動傾向は一致していた。一方、測点2は異なる変動傾向であり、全粒子束の増加に対して急激に増加し、粒子に含まれる¹³⁷Cs放射能濃度が増加する、つまり、異なる起源の粒子の負荷が示唆される。

セジメントトラップ実験時に実施した流況調査では、せん断応力と海底堆積物近傍の濁度に正の相関性がみられ、砂質粒子が観測された全粒子束が高い期間の平成27年10月6日～11日と平成28年1月20日～26日には、観測点が台風と低気圧の西側に位置し、実験海域の底層で南北流が卓越した時期と一致している。この結果は、水深30～60 mの沿岸域では、気象条件が海底堆積物粒子の移動性の支配要因として重要であることを示している。

本研究は平成27年度原子力規制庁 放射性物質測定調査委託費(海域における放射性物質の分布状況の把握等に関する調査研究)事業において実施された。

Transport behavior of particulate forms of radiosecium observed at sediment trap experiments off the Fukuhsima Dai-ichi Nuclear Power Plant
NAGAO, S., TERASAKI, S., ODANO, N., ASAMI, M.

1A10

多摩川流域における河川の流れるによる底質中放射性セシウムの移行

(明治大院理工¹、明治大理工²、JAEA³)○秋山将人¹、奥村真吾¹、下野有美²、越智康太郎³、萩原健太²、小池裕也²

【緒言】 東京電力福島第一原子力発電所事故により、環境中に多量の放射性セシウム (^{137}Cs) が放出された。事故から 6 年が経過した現在でも、陸上に降下した放射性セシウムが河川を通じ海洋へと流れる二次拡散が生じている。河川集水域における放射性セシウムのモニタリングは、汚染状況の把握の必要性、中長期的な変動追跡の重要性という観点から実施されている。しかし、事故発生から現在に至るまで、都市河川におけるその挙動に関する報告例は非常に少ない。本研究では、低線量地域かつ都市河川である多摩川集水域の本流と支流において底質を採取し、放射性セシウムの定量分析を行い、流水による移行を調査した。

【実験】 底質試料は、2012 年 2 月から 2017 年 6 月にかけて多摩川上流域から下流域まで計 50 地点の底質を採取した。試料は、スコップにより表層 5 cm 未満、1 kg を採取しポリ袋に保存した。採取した底質試料は 105 °C で 24 時間乾燥を行い、目開き 2 mm のふるいに通した。ふるい分けた試料をねじ口 U 式容器 U-8 に充填し、高純度ゲルマニウム半導体検出器で 6 時間以上ガンマ線測定し、放射能濃度を算出した。また、全ての試料において採取日を基準に半減期補正を施した。

【結果と考察】 多摩川 50 採取地点の概略図と底質中放射性セシウム濃度を Fig. 1 に示す。上流域の放射性セシウム濃度は低い傾向を示し、下流域では高い傾向を示した。この結果より多摩川での放射性セシウムは河川の流水により移行していることが示唆される。一方で、多摩川支流では上流域の放射性セシウム濃度が高い地点も存在した。

次にサンプリング地点の中で放射性セシウム濃度が高い野川 (採取地点: 38-44) における、源流とサンプリング地点からの距離と、底質中放射性セシウム濃度との関係を Fig. 2 に示す。野川では上流から下流にかけて放射性セシウム濃度は減少し、高い負の相関 ($r = -0.93$) が得られた。上流域に堆積していた放射性セシウムが、流水に伴う底質の移行により下流へと徐々に拡散されている事がわかる。これらは野川の流量が多摩川本流より少ない事に起因すると考えられる。この結果より底質中放射性セシウムの移行過程が、河川環境により異なることが確認された。

The transport of radiocesium in sediments by flow of river at Tamagawa river watershed
AKIYAMA, M., OKUMURA, S., SHIMONO, A., OCHI, K., HAGIWARA, K., KOIKE, Y.

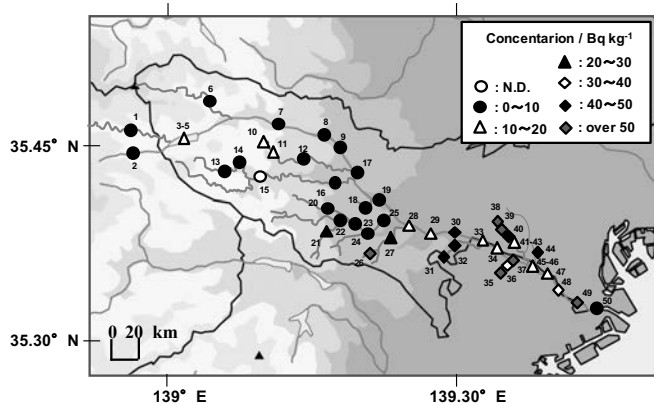


Fig. 1 Activity concentration of ^{137}Cs in sediment at Tamagawa river.

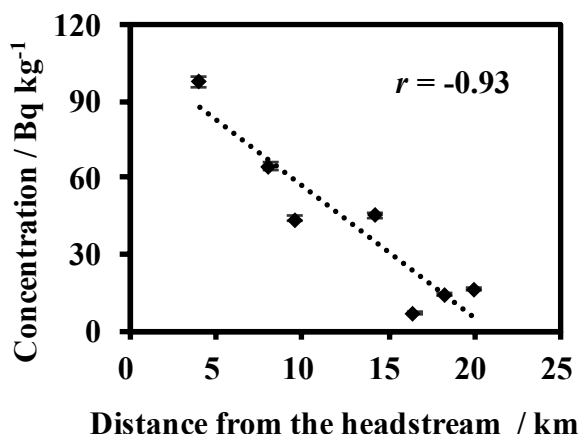


Fig. 2 Variation in the activity concentration of ^{137}Cs in sediment with distance from the headstream of Nogawa river.

1A11

福島地域の河川において放射性セシウム含有微粒子がセシウムの固液分配に与える影響

(東大院理¹、筑波大²、金沢大³、原子力機構⁴、東大アイソトープ総セ⁵)
○三浦輝¹、栗原雄一¹、坂口綾²、長尾誠也³、田中万也⁴、桧垣正吾⁵、
高橋嘉夫¹

【はじめに】福島原発事故により大量の放射性セシウム (RCs) が放出されたが、その一部には、シリカを主成分とする不溶性の放射性セシウム含有微粒子 (CsBP) が存在する (Adachi et al., 2013)。CsBP 中の RCs は不溶性であるため、河川中の RCs の固液分配を担う層状珪酸塩粒子への吸脱着反応には関与しないと考えられる。Konoplev et al. (2016) は、福島河川における RCs の固液分配係数 (K_d) はチェルノブイリと比較して1-2桁高いことを示しており、この理由のひとつとして CsBP の存在を挙げている。本研究では、河川懸濁粒子中の全 RCs 量に対する CsBP 中の RCs 量の割合を求めることで、CsBP が K_d に与える影響を調べることを目的とした。

【実験】試料として、阿武隈川7地点および口太川2地点で、2012-2016年の期間にフィルターによるろ過によって採取された河川懸濁粒子 ($>0.45 \mu\text{m}$) と、ろ過後の河川水 ($<0.45 \mu\text{m}$) を用いた。懸濁粒子と河川水の RCs の放射能を Ge 半導体検出器 (HPGe) により測定し、見かけの K_d を算出した。イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィと湿式分離法 (Kurihara et al., submitted) により懸濁粒子中の CsBP を分離し、SEM-EDS による観察を行った。放射能測定により、懸濁粒子中の全 RCs 量に対する CsBP 中の RCs 量の割合を求め、RCs の影響を除いた真の K_d 値を推定した。

【結果と考察】SEM-EDS 観察の結果、分離された CsBP は、大きさが1-3 μm 程度、RCs 以外に鉄や亜鉛を含み、Adachi et al. (2013)などで報告されている CsBP と同様の形状・元素組成を持っていた。またこれらは、Satou et al. (2016)や小野ら (2017)で報告のある福島原発から約 20 km 以内に沈着した大きさが数十から数百 μm である CsBP とは異なる形状をしていた。河川懸濁粒子の採取に用いた全フィルターの約90%では CsBP は見つからなかったが、見つかった場合には懸濁粒子中の全 RCs の1-46%程度が CsBP 中の RCs であることがわかった。特に、2014年と2015年の口太川では30%、46%と高い割合を示した。これは口太川が、RCs 沈着量が高い山木屋地区を集水域に持つためと考えられる。しかし、仮に CsBP の寄与が50%程度あったとしても、 K_d を1-2桁増加させるほどではなく、チェルノブイリ (Pripyat 川) において K_d が低いのは、他の要因 (鉱物の種類、高い有機物濃度) を考える必要がある。

The effect of radiocesium-bearing microparticles on the solid-water distribution coefficient of radiocesium in rivers in Fukushima.

*MIURA, H., KURIHARA, Y., SAKAGUCHI, A., NAGAO, S., TANAKA, K., HIGAKI, S., TAKAHASHI, Y..

1B01

複数の化学状態における $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期測定および内部転換電子分光測定

(阪大院理¹、JAEA²)○重河優大¹、笠松良崇¹、安田勇輝¹、金子政志²、篠原厚¹

【緒言】 $^{235\text{m}}\text{U}$ は ^{235}U の第一励起準位の核種であり、ほぼ 100%の分岐比で内部転換によって脱励起する。励起エネルギーが 76.8 eV と非常に小さいため、内部転換の際は原子核と外殻の軌道殻電子が相互作用する。従って、外殻電子の状態、すなわち化学状態に応じて、内部転換の確率（壊変定数）がわずかに変化することが知られている[1]。過去にいくつかの化学状態について $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期変化が観測されているが、半減期変化の原因は十分に理解されていない。本研究では、半減期に加えて内部転換電子のエネルギースペクトルを測定し、両者を様々な化学状態について比較することによって、 $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期変化の過程を解明することを目指した。今回、高効率阻止電場型電子分光装置を開発し、反跳核捕集装置[2]を用いて作製した非常に薄い $^{235\text{m}}\text{U}$ 試料に対して半減期及び内部転換電子のエネルギースペクトルを測定することに成功した。さらに、 $^{235\text{m}}\text{U}$ の化学状態をガス反応によって変化させた場合、半減期とエネルギースペクトルの変化が観測された。半減期変化の原因をエネルギースペクトルと相対論的 DFT 計算によって定性的に説明することができた。

【実験】 反跳核捕集装置[2]を用いて、 ^{239}Pu 線源 ($\phi 18\text{ mm}$, $10.5\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$) から反跳エネルギーによって飛び出してくる $^{235\text{m}}\text{U}$ を窒素 1 気圧の条件で銅板表面に捕集した。その後、Fig. 1 の阻止電場型電子分光装置を用いて、半減期及び内部転換電子エネルギースペクトルをそれぞれ複数回測定した。また、銅板に捕集後の $^{235\text{m}}\text{U}$ に HF ガス、HCl ガス、もしくは O_2 ガスを反応させ、同様に測定を行った。

【結果と考察】 銅板表面の $^{235\text{m}}\text{U}$ の半減期が $26.35 \pm 0.03\text{ min}$ 、HF ガスを反応させた場合の半減期が $25.94 \pm 0.03\text{ min}$ となり、フッ化物イオンの配位によって半減期が明確に減少することが分かった。また、両者の試料について内部転換電子エネルギースペクトルの取得に成功し、6p 電子ピークの強度比が異なっていることが分かった。DFT 計算によって強度比の変化を説明することができ、半減期が減少する原因についても定性的な説明を与えることができた。

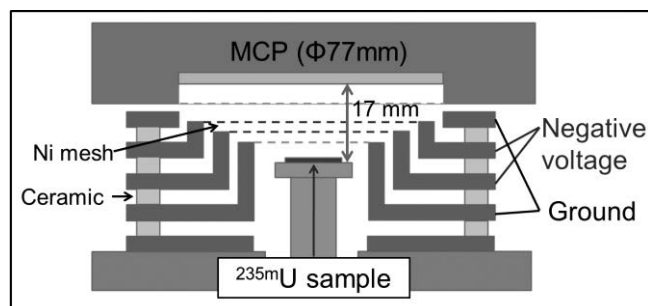


Fig. 1 The retarding-field electron spectrometer for measuring half-lives and energy spectra of $^{235\text{m}}\text{U}$.

[1] M. N. Mevergnies, P. D. Marmol, Phys. Lett. **49B**(5), 428-430 (1974).

[2] Y. Shigekawa, Y. Kasamatsu, A. Shinohara, Rev. Sci. Instrum. **87**, 053508 (2016).

Measurement of the half-lives and the internal-conversion electron energy spectra for several chemical forms of $^{235\text{m}}\text{U}$

SHIGEKAWA, Y., KASAMATSU, Y., YASUDA, Y., KANEKO, M., SHINOHARA, A.

1B02

^{254}Rf の自発核分裂における核分裂片の全運動エネルギー測定

(新潟大¹、理研仁科セ²) ○後藤真一¹、加治大哉²、土谷翔太¹、青野竜士¹、森本幸司²、羽場宏光²、大江一弘¹、工藤久昭¹

【はじめに】

我々は、超重核の自発核分裂特性に関するより詳細な知見を得るため、主に自発核分裂で壊変する同位体が比較的多い Rf を対象とした核分裂特性の系統的な測定を計画している。青野らは $^{208}\text{Pb} + ^{48}\text{Ti}$ 反応により生成する ^{253}Rf および ^{254}Rf の自発核分裂事象を観測し、励起関数を測定した。また、 ^{254}Rf の自発核分裂における核分裂片の全運動エネルギー (TKE) を得た。比較のために測定した ^{256}Rf における TKE との関係が、これまでの系統性から大きく外れていたものの、統計精度が十分ではなく結論が得られなかった[1]。本研究では、 ^{254}Rf の自発核分裂における TKE を統計精度よく測定するため、生成断面積が比較的大きいと考えられる $^{206}\text{Pb} + ^{50}\text{Ti}$ 反応により自発核分裂事象を測定した。

【実験】

実験は理化学研究所重イオン線形加速器 (RILAC) および気体充填型反跳分離装置 (GARIS) を用いて行った。 $^{206}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)$ 反応にて ^{254}Rf を生成し、比較のために $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)$ 反応にて ^{256}Rf を生成した。 ^{50}Ti ビームのターゲット中心でのエネルギーは ^{206}Pb において 241 MeV, ^{208}Pb において 239 MeV であり、平均ビーム電流は 280 pA であった。標的は $60 \mu\text{g cm}^{-2}$ の炭素箔に濃縮 ^{206}Pb および ^{208}Pb を真空蒸着したものを使用し、それぞれ約 $350 \mu\text{g cm}^{-2}$, 約 $400 \mu\text{g cm}^{-2}$ であった。16 個の標的を直径 30 cm の回転円盤に取り付け、照射中は 2000 rpm で回転させた。生成核は GARIS (He ガス圧 73 Pa, 磁気剛性 2.05 T m) によりビームと副反応生成物から分離され、GARIS の焦点面に設置した位置感応型検出器 (PSD; $58 \times 58 \text{ mm}^2$, 16 strips) とそれを取り囲む半導体検出器 (SSD) で壊変事象を観測した。

【結果と考察】

核分裂生成物に対する検出器の較正を兼ねて、はじめに ^{256}Rf の測定を行った。 ^{256}Rf と考えられる自発核分裂事象が 740 イベント観測され、これは青野らが報告した結果から予想される 745 イベントと矛盾しない。また、壊変時間分布から得られた半減期は $6.30 \pm 0.22 \text{ ms}$ であり、文献値 $6.70 \pm 0.10 \text{ ms}$ [2] と一致した。予備的な結果では、 ^{254}Rf の自発核分裂事象は 226 イベント観測され、壊変時間分布から得られた半減期は $28.3 \pm 1.8 \mu\text{s}$ であり、文献値 $29.6^{+0.7}_{-0.6} \mu\text{s}$ [3] と一致した。発表では、さらに詳細な解析結果について報告する。

【参考文献】

- [1] 青野竜士 他, 2015 日本放射化学会年会, 2A01.
- [2] B. Singh, Nucl. Data Sheets **141**, 327 (2017).
- [3] I. Dragojević, *et al.*, Phys. Rev. C **78**, 024605 (2008).

Measurement of total kinetic energy of fission fragments in SF decay of ^{254}Rf

GOTO, S., KAJI, D., TSUCHIYA, S., AONO, R., MORIMOTO, K., HABA, H., OOE, K., KUDO, H.

1B03

107 番元素 Bh の化学研究に向けた $^{248}\text{Cm} + ^{23}\text{Na}$ 反応による Bh 同位体の合成とその壊変特性

(理研¹, IMP², 大阪大³, 東北大⁴, 新潟大⁵, 九州大⁶, 原子力機構⁷, オスロ大⁸, 山形大⁹) ○小森有希子¹, 羽場宏光¹, F. Fan², 加治大哉¹, 笠松良崇³, 菊永英寿⁴, 近藤成美³, 工藤久昭^{1,5}, 森本幸司¹, 森田浩介^{1,6}, 村上昌史¹, 西尾勝久⁷, J. P. Omtvedt⁸, 大江一弘⁵, Z. Qin², 佐藤大輔⁵, 佐藤望¹, 佐藤哲也⁷, 重河優大³, 篠原厚³, 武山美麗^{1,9}, 田中泰貴^{1,6}, 豊嶋厚史⁷, 塚田和明⁷, 若林泰生¹, Y. Wang², S. Wulff⁸, 山木さやか¹, 矢納慎也¹, 安田勇輝³, 横北卓也¹

【緒言】 2000年, Wilkら[1]は, $^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne}, xn)^{271-x}\text{Bh}$ 反応を用いて 107 番元素 Bh の新同位体 ^{266}Bh と ^{267}Bh の合成を報告した. 同年, Eichlerら[2]は, 直ちにこの長寿命の ^{267}Bh ($T_{1/2} = 17$ s) を利用し, BhO_3Cl の化学合成とその気相化学分離に成功した. しかし, 標的物質である ^{249}Bk ($T_{1/2} = 320$ d) の半減期は非常に短く標的を入手し難いこと, 従来実験法では副反応生成物からの妨害放射線によって Bh 同位体の検出が困難であることなどのため, その後 Bh の化学研究は全く行われていない. 我々のグループでは, ^{249}Bk の代わりに ^{248}Cm を Bh 同位体合成の標的に利用し, GARIS ガスジェット法[3]によって副反応生成物を除去し, 理研で次世代の Bh の化学研究を展開することを目指している. 今回, $^{248}\text{Cm} + ^{23}\text{Na}$ 反応によって Bh 同位体を合成し, 反応断面積, α エネルギーや半減期などの壊変特性を取得したので報告する.

【実験】 理研重イオン線形加速器で加速した ^{23}Na イオン ($E_{\text{lab}} = 121, 126, 131, 135$ MeV; 3 μA) を $^{248}\text{Cm}_2\text{O}_3$ 標的 (260, 270, 290 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) に照射し, $^{248}\text{Cm}(^{23}\text{Na}, xn)^{271-x}\text{Bh}$ 反応により Bh 同位体を合成した. GARIS の焦点面にガスジェット搬送装置 (100 mm i.d. \times 20 mm) を配置し, GARIS (He 圧力: 33 Pa, 磁気剛性: 2.12 Tm) によって分離した Bh 同位体を He (80 kPa) 中に捕獲, KCl エアロゾルに吸着させてガスジェット法により化学実験室に搬送した. 回転式連続放射線計測装置を用いて, α/SF (SF: 自発核分裂) スペクトロメトリーを行った.

【結果と考察】 本研究では, α - α - α , α - α ならびに α -SF の時間相関事象をそれぞれ 7, 13, 13 事象観測できた. $^{265,266,267}\text{Bh}$ の α 壊変生成物であるそれぞれ $^{261,262,263}\text{Db}$ と $^{257,258,259}\text{Lr}$ の既知の壊変特性[1,4,5-7]をもとに相関事象を解析したところ, 明確に ^{265}Bh と ^{267}Bh に同定できる α - α 事象はなく, $^{266}\text{Bh} \rightarrow ^{262}\text{Db} (\rightarrow ^{258}\text{Lr})$ に同定できる α - α ($-\alpha$) ならびに α -SF をそれぞれ 11, 12 事象観測できた. ^{266}Bh の α 粒子エネルギー (E_α) は, $E_\alpha = 8.62\text{--}9.40$ MeV の範囲内であった. 半減期は $10.0^{+2.6}_{-1.7}$ s で, 先行研究[1,5,6]の約 8 倍であった. この不一致の原因については考察中であるが, 長寿命の ^{266}Bh を利用した Bh の化学研究が可能である. 一方, $^{248}\text{Cm}(^{23}\text{Na}, 5n)^{266}\text{Bh}$ 反応の励起関数は, $E_{\text{lab}} = 131$ MeV で最大値 ($\sigma = 57 \pm 13$ pb) を示すことが分かった. この断面積は, Eichlerら[2]が化学研究に利用した $^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne}, 4n)^{267}\text{Bh}$ 反応の断面積 ($\sigma \approx 70$ pb [1]) と同程度であった.

【参考文献】 [1] P.A. Wilk et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 2697 (2000). [2] R. Eichler et al., Nature **407**, 63 (2000). [3] H. Haba et al., Chem. Lett. **38**, 426 (2009). [4] Z.G. Gan et al., Eur. Phys. J. A **20**, 385 (2004). [5] Z. Qin et al., Nucl. Phys. Rev. **23**, 400 (2006). [6] K. Morita et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 103201 (2012). [7] R.B. Firestone and V.S. Shirley, *Table of Isotopes*, 8th ed., Wiley, New York, 1996.

Production of isotopes of element 107, Bh in the $^{248}\text{Cm} + ^{23}\text{Na}$ reaction and their decay properties for chemistry studies of Bh

KOMORI, Y., HABA, H., FAN, F., KAJI, D., KASAMATSU, Y., KIKUNAGA, H., KONDO, N., KUDO, H., MORIMOTO, K., MORITA, K., MURAKAMI, M., NISHIO, K., OMTVEDT, J. P., OOE, K., QIN, Z., SATO, D., SATO, N., SATO, T., SHIGEKAWA, Y., SHINOHARA, A., TAKEYAMA, M., TANAKA, T., TOYOSHIMA, A., TSUKADA, K., WAKABAYASHI, Y., WANG, Y., WULFF, S., YAMAKI, S., YANO, S., YASUDA, Y., YOKOKITA, T.

1B04

GARIS-II+MRTOF を用いた短寿命核精密質量分析

(理研仁科セ¹、九大理²、高工研³、筑波大⁴、埼玉大⁵、IBS⁶、NMSU⁷、McGill Univ.⁸)

○庭瀬暁隆^{1,2}、和田 道治^{1,3}、P. Schury³、伊藤 由太^{1,8}、木村 創大^{1,4}、M. Rosenbusch¹、加治 大哉¹、森本 幸司¹、羽場 宏光¹、山木 さやか^{1,5}、田中 泰貴^{1,2}、森田 浩介^{1,2}、高峰 愛子¹、宮武 宇也³、平山 賀一³、渡邊 裕³、J.Y. MOON^{3,6}、向井 もも⁴、H. Wollnik^{1,7}

【緒言】

原子の質量測定から導出される結合エネルギーは、原子核の存在や安定性を決定するための基本的な物理量である。我々は、多重反射型飛行時間測定式質量分析器(MRTOF)[1]を用いた短寿命核種の直接質量測定に関する研究を進めている。

【実験】

実験は、理研重イオン線形加速器(RILAC)施設で行った。種々の重イオン融合反応によって生成した短寿命核は、気体充填型反跳分離装置(GARIS-II)[2]によって一次ビームや副反応生成物から分離し、焦点面に設置した高周波イオンガイドガスセルに輸送した。ガスセル内で減速・熱化後、イオントラップへと導き、階下に設置された MRTOF によって質量測定を行った。(図 1)

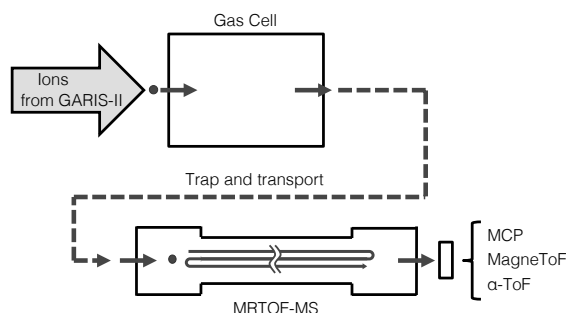


図 1. MRTOF 質量分析器の構成概念図

【結果・展望】

2016-2017 年にわたる複数回のマシンタイムにおいて、原子番号 99 番以上の 10 核種を含む、総計 80 の核種の直接質量測定に成功した。

今後、超重核に起因する崩壊連鎖において既知核へ到達する前に自発核分裂する場合に備えて研究を進めていく。超重核は極めて小さな生成断面積ゆえに生成率が低く、限られたイベント数から核種の同定を行う必要がある。超重核の質量と崩壊特性を同時に測定することによって、合成した超重核を一意に識別する事が可能になる。

また、崩壊特性を同時に測定することで、得られた飛行時間信号が分子イオン等による偶発的なものではなく、確実に超重核起因のものであると判断をする事ができ、単一イオンでの測定を可能にする。我々は概念図(図 1)の MRTOF イオン検出部分に設置されたイオン検出器(MCP, MagneToF[3])を、飛行時間信号および崩壊時の α 線を同時に計測可能するための検出器(α -TOF)に置き換えを進めている。本講演では質量測定の現状に加え、超重核の質量測定に向けた α -TOF の開発状況についても報告を行う。

【参考文献】

[1] P. Schury et al. Nucl. Instrum. Methods Phys. B **335**, 39(2014)

[2] D. Kaji et al. Nucl. Instrum. Methods Phys. B **317**, 311(2013)

[3] <https://www.etp-ms.com>

High-precision mass measurements of short-lived nuclei with MRTOF+GARIS-II

NIWASE,T., WADA,M., SCHURY,P., ITO,Y., KIMURA,S., ROSENBUSCH,M., KAJI,D., MORIMOTO,K., HABA,H., YAMAKI,S., TANAKA,T., MORITA,K., TAKAMINE,A., MIYATAKE,H., HIRAYAMA,Y., WATANABE,Y., MOON,J.Y., MUKAI,M., WOLLNIK,H.,

1B05

コンプトンカメラ (ETCC) 撮像用テクネチウム同位体製造研究

(量研機構¹、原子力機構²、京都大学³、東海大学⁴、京都薬大⁵) ○初川雄一¹、塚田和明²、橋本和幸¹、佐藤哲也²、浅井雅人²、豊嶋厚史²、永井泰樹¹、谷森達³、園田信也³、株木重人⁴、木村寛之⁵、高田淳史³、水本哲也³、早川岳人¹、高木聖也²

【緒言】天体物理学研究用に開発されたコンプトンカメラの核医学診断研究への応用について検討されている。しかしコンプトンカメラの適応には高エネルギーガンマ線放出核種が必要であり、核医学 RI として最も用いられている Tc-99m が発する 141 keV のガンマ線ではコンプトン散乱の確率がきわめて少なくこの目的には Tc-99m は不適である。Tc-99m の代わりに高エネルギー放出テクネチウム同位体をコンプトンカメラ撮像と組み合わせれば新しい核医学診断法を開発することが可能になる。本研究では 500 から 800 keV の高いエネルギーのガンマ線放出核種である Tc-95m($T_{1/2}=60$ d)および Tc-96($T_{1/2}=4$ d)を生成し、これらのコンプトンカメラ撮像実験を行い核医学診断法開発に向けた基礎研究を行った。[1] 本研究では照射ターゲットとして濃縮同位体を用いているがテクネチウム抽出後に再利用のための回収法を開発した。

【実験】既報のように酸化モリブデン照射試料はアンモニアにより溶解液へ希塩酸添加によりモリブデン酸の沈殿析出を行い、溶液中に留まるテクネチウムイオンを分離した。この Tc-95m および Tc-96 を用いて ETCC (Electron Tracking Compton Camera) による撮像実験や標識化合物合成試験に用いた。[1] 沈殿したモリブデン酸から三酸化モリブデンへの回収実験を、文献2を参考にして行った。テクネチウムイオンを分離したモリブデン酸沈殿を過酸化水素水で溶解し、この溶解液を蒸発乾固させたのちに 600°C で 30 分間加熱した。得られた物質をメノウ乳鉢で粉末 X 線結晶構造解析法により構造解析を行い生成物の同定を行った。

【結果・考察】図-1 に得られた生成物と三酸化モリブデンの粉末 X 線回折を示す。X 線回折パターンから本実験で生成物が三酸化モリブデンであることが分かった。強度の相違は不十分な微細化のために結晶構造の配向性が現れたためである。これから本法による三酸化モリブデンの回収が確認できた。

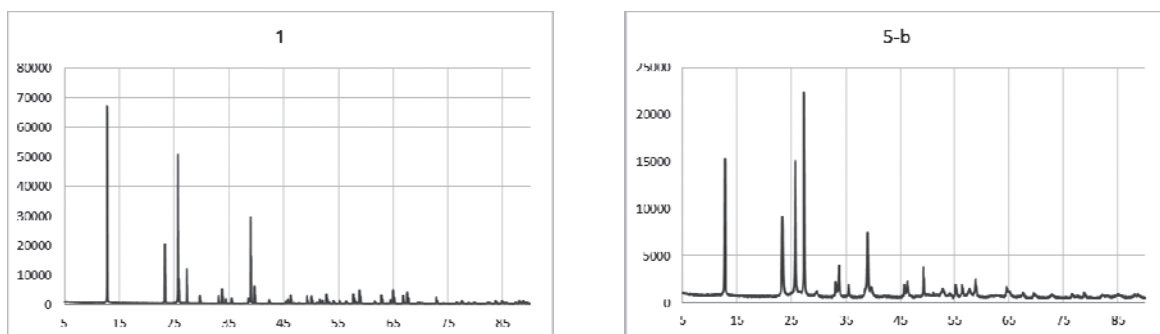


図-1 MoO3 (右) と生成物 (左) の粉末の X 線回折。縦軸は強度、横軸は散乱角

【文献】[1]初川、他 2016 放射化学会要旨 2A03、

[2]DOWA エコシステム：特公平 2011-184282

Production of Tc isotope for Compton Camera(ETCC) imaging

HATSUKAWA, Y., TSUKADA, K., HASHIMOTO, K., SATO, T., ASAI, M., TOYOSHIMA, A., NAGAI, Y., TANIMORI, T., SONODA, S., KABUMOTOKI, S., KIMURA, H., TAKADA, A., MIZUMOTO, T., HAYAKAWA, T., TAKAKI, S.

1B06

球状リン脂質二重膜を用いた核医学診断用 ^{99m}Tc 材料の合成法の検討と物性評価

(筑波大¹、九州大学²)○栗田紗緒里¹、山崎信哉¹、落合朝須美²、宇都宮聡²、坂口綾¹、末木啓介¹

【緒言】 現在日本では核医学診断に用いられている ^{99m}Tc およびその親核種である ^{99}Mo の国産化が検討されている。そのひとつとして中性子照射 $^{100}\text{Mo}(n, 2n)^{99}\text{Mo}$ による ^{99}Mo の製造と昇華法による回収法が報告されている。昇華法では、 ^{99}Mo に中性子を照射後、昇華温度の違いを利用して ^{99m}Tc と ^{99}Mo を分離する。今回この製造プロセスの簡易化を目的とし、 ^{99m}Tc のみを抽出するための材料について検討した。この目的のために、我々はサブミクロンサイズのモリブデン酸カルシウムに着目した。モリブデン酸カルシウムの昇華温度は現状用いられている三酸化モリブデンよりも高い。また、材料中における ^{99m}Tc の拡散係数を考慮するとモリブデン酸カルシウムの粒径を小さくするほど回収効率の増加が期待される。本研究では、材料の合成方法として球状リン脂質二重膜（リポソーム）をテンプレートに用いた合成法に着目した。リポソームをテンプレートに用いた合成法の研究は盛んに行われており、生体適合性のある炭酸カルシウムやリン酸カルシウムナノ粒子などが報告されている。そこで、本研究ではリポソームをテンプレートに用いてサブミクロンサイズのモリブデン酸カルシウムを合成した。また、リポソームのテンプレート効果および生成物の形態や粒径に対する実験条件（濃度条件・時間）の依存性について検討した。

【実験】 リポソームはホスファチジルコリン（卵由来）とコレステロールを重量比 2 : 1 で混合して調製した。リポソームの内部に封入するモリブデン酸ナトリウム溶液の濃度を変化させて実験を行った。ゲルろ過クロマトグラフィーによりリポソーム内部に封入されなかったモリブデン酸イオンを分離した後、得られたモリブデン酸イオン封入リポソーム（ML）を 20 mM の塩化カルシウム溶液と 1 : 1 で混合した後、攪拌時間を変えて反応させた。反応前後の懸濁物の表面状態を確認するためゼータ電位測定を行った。その後、反応溶液を孔径 100 nm メンブレンフィルターを用いて吸引ろ過し、フィルター上の固相の形状と粒径および元素組成について電子顕微鏡（TEM、SEM-EDS）を用いて観察した。また、モリブデン酸イオンの濃度を定量し固相の生成率を求めた。リポソームのテンプレート効果を観るため、比較実験としてリポソームを添加しない条件（無機的条件）で同様の実験操作を行った。

【結果】 SEM 及び TEM 観察により、リポソーム存在下においてモリブデン酸カルシウムの生成が確認された。一方で、今回の実験条件では、無機的条件下では生成物がほぼ見られなかった。ゼータ電位の結果から、ML のみの場合のゼータ電位は -40 mV から -50 mV の値であったが、20 mM 塩化カルシウム溶液を添加した後のゼータ電位は約 0 mV まで増加した。このことから、負に帯電しているリポソーム表面にカルシウムイオンが濃集し、リポソーム表面が粒子生成の反応場として作用している可能性が示唆された。本講演では、生成した粒子の分析結果に加え、リポソーム存在下と無機的条件下での粒子生成の相違について、SEM・TEM・モリブデン酸イオン濃度の定量結果などに基づいて議論する。

Synthesis of submicron-sized calcium molybdates, using liposome as a template, and characterization of their physicochemical properties

KURITA, S., YAMASAKI, S., OCHIAI, A., UTSUNOMIYA, S., SAKAGUCHI, A., SUEKI, K..

(理研仁科センター¹)○矢納慎也¹、羽場宏光¹、小森有希子¹、横北卓也¹、
高橋和也¹、佐藤望¹、小山内美奈子¹

【緒言】 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ ($T_{1/2} = 28.7$ h, $E_{\gamma} = 268$ keV) は、近年、短寿命の Ba トレーサーとしてその製造頒布が期待されてきた。核医学分野では、骨を対象としたシンチグラフィに有用な RI として注目されている[1]。Dmitriev と Panarin[2]は、 $^{133}\text{Cs}(\alpha, pn)^{135\text{m}}\text{Ba}$ と $^{139}\text{La}(p, an)^{135\text{m}}\text{Ba}$ の両反応による $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の生成収率を比較し、エネルギーが 22 MeV/unit charge までは前者、それ以上では後者の収率が高くなることを報告した。本研究では、将来 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ を国内の研究機関に頒布することを目的とし、理研 AVF サイクロトロン (AVF) を用いて効率的に製造可能な $^{133}\text{Cs}(\alpha, pn)^{135\text{m}}\text{Ba}$ 反応に着目し、精製 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の製造法を検討した。

【実験】 ^{133}Cs 標的は、化学純度 99.9% の CsCl 粉末を 120 °C で 2 時間乾燥させた後、直径 12 mm、厚さ 410 mg cm⁻² の円盤状に加圧成型して作製した。これに AVF で加速したエネルギー 50.5 MeV、強度 114 enA の α ビームを 30 分間照射した。照射後、CsCl 標的を 8 M HNO₃ に溶解した後、3 M HNO₃ に調製し、Sr レジン (Eichrom 製、粒径 100–150 μm) を充填したクロマトグラフカラムへ着点した。まず、3 M HNO₃ で Cs 標的や La 同位体などの副反応生成物を溶離させ、最後に 0.01 M HNO₃ で $^{135\text{m}}\text{Ba}$ を溶離させた。ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーを行い、生成放射能、放射性核種純度、化学収率などを評価した。

【結果・考察】照射終了時から 2.6 時間後に測定した非破壊標的の γ 線スペクトルには、 $^{133\text{m}, 133\text{g}, 135\text{m}}\text{Ba}$ 、 $^{132, 133, 135}\text{La}$ 、 ^{132}Cs 、 $^{34\text{m}, 38, 39}\text{Cl}$ などの多数の γ 線ピークが検出された。化学精製後に得た $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の γ 線スペクトルを Fig. 1 に示す。目的の $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の他は、 $^{133}\text{Cs}(\alpha, p3n)^{133}\text{Ba}$ 反応によって生成した $^{133\text{m}}\text{Ba}$ ($T_{1/2} = 38.9$ h) と $^{133\text{g}}\text{Ba}$ ($T_{1/2} = 10.51$ y) の γ 線ピークのみが検出された。 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の生成収率は、50.5 MeV で、 2.1 ± 0.1 MBq e μA^{-1} h⁻¹ であった。本収率値は、より低エネルギー (43.5 MeV) の既報値[2]と比較して 4 倍以上小さい。この不一致の原因は不明である。一方、TALYS コードによる反応断面積の理論計算値[3]から予測される収率に比べて、1.7 倍高い値であった。今回得た収率値から、50.5 MeV、3 e μA 、24 時間の α ビーム照射によって、約 120 MBq の $^{135\text{m}}\text{Ba}$ が製造可能であることが分かった。 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の放射性核種純度は、照射終了時において約 70% であった。 α ビームのエネルギーを下げて照射することにより、 $^{133\text{g}, \text{m}}\text{Ba}$ の生成を抑え、 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の放射性核種純度を向上させることが可能である。 $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の化学収率は、約 80% であった。標的物質である Cs の除染係数は、 ^{132}Cs を用いて評価したところ、 $> 2.8 \times 10^2$ であった。討論会では、ICP-MS を用いて評価した化学元素濃度や $^{135\text{m}}\text{Ba}$ の比放射能についても報告する。

[1] R. P. Spencer et al., J. Nucl. Med. **12** (1971) 216.

[2] P. P. Dmitriev and M. V. Panarin, At. Energ. **46** (1979) 55.

[3] A. J. Koning and D. Rochman, Nucl. Data Sheets **113** (2012) 2841.

Production of purified $^{135\text{m}}\text{Ba}$ for fee-based distribution using the $^{133}\text{Cs}(\alpha, pn)^{135\text{m}}\text{Ba}$ reaction
YANO, S., HABA, H., KOMORI, Y., YOKOKITA, T. TAKAHASHI K., SATO N., OSANAI M.

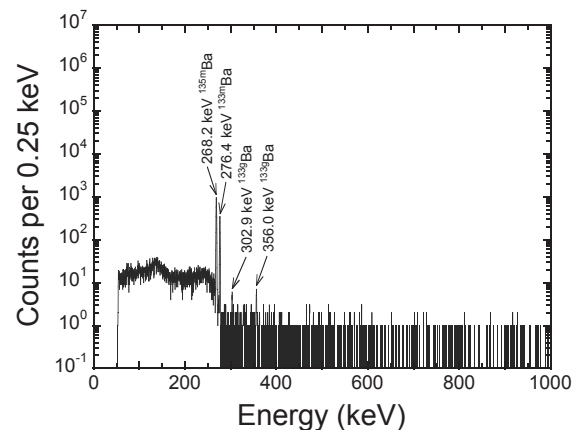


Fig. 1. γ -ray spectrum of the purified $^{135\text{m}}\text{Ba}$. The spectrum was measured for 480 s after the cooling time of 5.1 h.

【緒言】 近年、 α 放射体による RI 内用治療が実施されるようになった。RI 内用治療への適用が考えられている α 放射体の中でハロゲン元素のアスタチン ^{211}At は、7.2 時間の適度な半減期を持つため、その標識薬剤の様々な癌に対する適用が期待されている。 ^{211}At の新しい供給方法となる $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ ジェネレータの研究開発を、我々と金沢大学の共同研究プロジェクトとして進めている。我々は、乾式化学に基づいた化学分離法で分離、精製するジェネレータシステムを構築し、その性能試験と装置改良を繰り返し実施し、最適分離条件を調べた。

【実験】 原子力機構タンデム加速器施設において 60 MeV ^7Li をビスマス金属薄膜標的に照射して、核反応 $^7\text{Li}(^{209}\text{Bi},5n)^{211}\text{Rn}$ でジェネレータ原料 RI の ^{211}Rn (半減期 14.6 時間) を製造した。 ^{211}Rn は乾式化学に基づく専用の分離装置 (図 1) を用いてビスマス標的から分離精製した。 ^{211}Rn の生成量を γ 線測定にて定量した後、650 °C の電気炉でビスマス標的を加熱し、融解することで ^{211}Rn を分離し、ヘリウム気流で液体窒素温度に冷却したコールドトラップへ導き、捕集した。装置内での ^{211}Rn の挙動を γ 線モニター (CdZnTe) で観測し、分離操作の効率化、最適化を図った。分離精製から約 15 時間後、 ^{211}Rn の EC 壊変で生成した ^{211}At をエタノールで抽出してトレーサー溶液を調整した。トレーサー溶液から作成した線源を α 線測定して ^{211}At を定量した。

【結果】 装置内に設置した 3 台の γ 線モニターの時間変化 (図 2) より、 ^{211}Rn を短時間に効率よく、高い放射性核種純度で捕集できたことを確認した。最適化した分離条件での ^{211}At の回収率 (n=3) は、2 mL 毎に分画したエタノール溶液に対して、順次 35%、8%、1%であった。

【結論】 乾式化学に基づいたジェネレータシステムを構築し、 $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ ジェネレータ実用化のための基礎基盤技術を確立した。

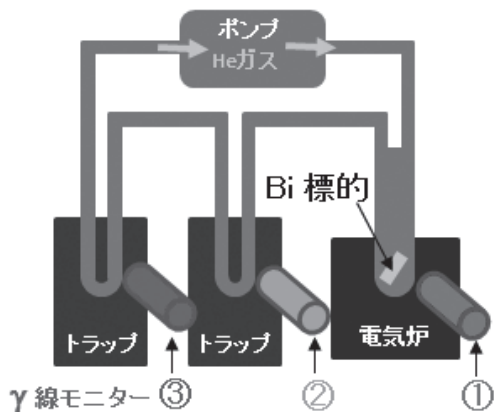


図 1 分離装置の模式図

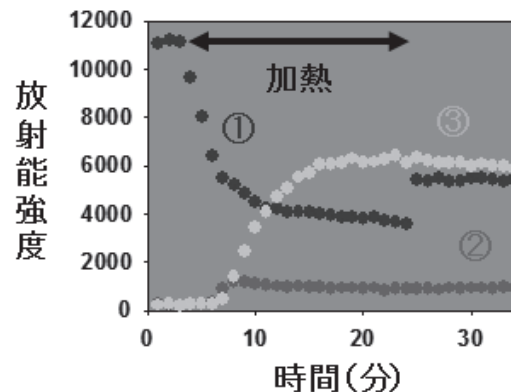


図 2 ^{211}Rn 放射能の時間変化

これまでに実施したシステムの改良、高度化など研究開発の詳細、ならびに、今後の研究開発計画について講演で報告する。

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費 JP2360013, JP15K04741 の助成、平成 26 年度 (原子力) 機構内競争的資金制度を受けたものです。

Development of a $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ generator based on dry-chemistry
NISHINAKA, I., HASHIMOTO, K., MAKII, H.

1B09 飽和炭化水素溶媒に対するアスタチンの抽出挙動

(金沢大学医薬保健¹、金沢大学理工²、原子力機構先端研³、阪大院理⁴、阪大RIセ⁵) ○鷺山 幸信¹、新 裕喜²、横山 明彦²、豊嶋 厚史^{3,4}、神田 晃充⁴、篠原 厚⁴、吉村 崇⁵

【緒言】アスタチン-211 (^{211}At)は、適度な半減期(7.21h)で α 線を放出することから、アイソトープ治療への応用が期待されている。そして薬剤への標識化の検討や、標識化合物を用いた担がん動物の治療評価実験を行うためにも、加速器を用いて製造した ^{211}At を、ターゲット物質から効率的に分離しトレーサー溶液として供給する技術の高度化が求められている。ターゲットから ^{211}At を分離する方法には管状炉を用いて加熱により分離する乾式分離法と、硝酸でターゲットを溶解し、ジイソプロピルエーテルを用いて溶媒抽出分離を行う湿式分離法がある。このうち湿式分離法を高度化するためには、ターゲットとの分離後の工程を考慮した最適な溶媒抽出系の確立が重要であるが、決定的なものは報告されていない。一方、我々のグループは ^{211}At の新たな供給方法として $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$ ジェネレーターを検討しており、ジェネレーターの材料として、ドデカン等の飽和炭化水素に注目している。本研究ではドデカンをアスタチンの湿式分離法に応用することが可能か検討するために、手始めにアスタチンの飽和炭化水素溶媒に対する抽出挙動を調べたので報告する。

【実験】大阪大学核物理研究センターのK-70 AVFサイクロトロンから供給される α ビームを27-28MeVまで加速してBi金属標的に照射し、 $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ 反応により ^{211}At を製造した。照射後の標的は大阪大学ラジオアイソトープ総合センターならびに金沢大学アイソトープ理工系研究施設に移送した。溶媒抽出実験に用いた飽和炭化水素溶媒は、直鎖状の分子構造を持つヘキサン、オクタン、デカン、ドデカン、テトラデカン、ヘキサデカン及びヘキサンの構造異性体である2-メチルペンタン、3-メチルペンタン、2,3-ジメチルブタンを用いた。照射後のBi金属標的を6M HNO₃で溶解し、Bi³⁺イオンと ^{211}At を含む6M HNO₃溶液とした後、蒸留水を加えてそれぞれ4, 2, 1M HNO₃溶液を作成し、これらを ^{211}At のストック溶液とした。溶媒抽出の諸検討では、1)各濃度の硝酸溶液中のBi³⁺イオンのドデカンに対する抽出挙動、2) ^{211}At の抽出挙動の硝酸濃度依存性、3)ドデカンと硝酸中の ^{211}At の溶液抽出平衡到達時間、4)1M HNO₃溶液中の ^{211}At の各種飽和炭化水素溶媒に対する抽出挙動を調べた。抽出を行う際の ^{211}At 入り硝酸溶液と各種飽和炭化水素溶媒は同容積を混合し10分間攪拌した。攪拌後、両相を一定量別々の密閉容器に分取し、Ge半導体検出器またはNaI(Tl)シンチレーションカウンターを用いて、X線を測定した。得られた計数率を基に水相と有機相中の ^{211}At の濃度比として分配比(D値)を算出した。

【結果と考察】1) Bi³⁺イオンはいずれの硝酸濃度においてもドデカン中には抽出されなかった。2)硝酸濃度が高くなるにつれてD値は減少傾向を示した。3)1M HNO₃中の ^{211}At は攪拌時間の増加に従ってドデカンに対するD値が上昇し、10分以上で抽出平衡に到達した。4)1M HNO₃中に保持した ^{211}At の時間を一定に保って行った溶媒抽出実験は、溶媒の分子量が増えるにしたがって、D値は増加する傾向を示した。また、ヘキサンでは低いD値を示したが、その他の構造異性体ではいずれも高いD値を示した。討論会ではこれらの結果を総合的に議論する予定である。

Extraction behavior of Astatine into hydrocarbon solvent

WASHIYAMA, K., SHIN, Y., YOKOYAMA, A., TOYOSHIMA, A., KANDA, A., SHINOHARA, A., YOSHIMURA, T.

1B10

樹脂担持二官能性試薬を用いた簡便な ^{211}At 標識薬剤合成法の開発

(阪大院理¹、原子力機構先端研²、阪大院理基礎セ³、阪大理⁴、阪大 RI セ⁵)

○神田晃充¹、豊嶋厚史^{2,3}、池田卓海¹、市村聡一郎⁴、張子見^{1,3}、吉村崇^{3,5}、篠原厚^{1,3}

【緒言】現在、 ^{211}At (半減期 7.2 h) の α 線内用療法に向けた研究が盛んに行われている。医療応用にあたっては大量の放射能を扱うため、 ^{211}At の加速器による製造、化学分離、薬剤標識といった一連の操作を自動化することが課題の一つとなっている。そこで本研究では薬剤標識過程を乾式分離装置と接続したカラムフロー式で行うことによって分離・標識手順の自動化を行うことを目指して開発を進めている。これまでに、 At を樹脂担持試薬に一度保持し、その後低分子薬剤や抗体薬剤のアミノ基へと At を移行できる樹脂を新規に開発し、これを用いてアミンやタンパク質に At を標識する実験をバッチ法で行った[1]。今回は、開発した樹脂を用いたカラムフロー標識実験を行ったので報告する。

【実験】大阪大学核物理研究センターの AVF サイクロトロンにおいて $^{209}\text{Bi}(\alpha, 2n)^{211}\text{At}$ 反応によって ^{211}At を製造した。これを乾式分離法によって化学分離し、蒸留水溶液として ^{211}At 試料を調製した。標識の一例としてタンパク質標識のスキームを Fig.1 に示す。標識対象のタンパク質として Bovine Serum Albumin (BSA) を用いた。樹脂との反応後の溶液を遠心フィルターによって限外ろ過し、上清の放射能を測定して標識を確認した。この後、上清に残ったタンパク質を比色定量法(BCA 法)によって定量して放射能収率を補正した。また、タンパク質を加えずに同様の標識操作を行い(ブランク試料)、これらと比較した。

【結果と考察】限外ろ過後の上清には、加えた At の 4.3 % が存在していた。一方、ブランク試料の上清には 0.5 % しか存在していなかった。この結果から、目的通り樹脂を介したカラムフロー法によってタンパク質を標識できることが示された。補正後の放射能収率は 5.6 % であった。今後、反応条件や樹脂の検討により収率を改善していく予定である。発表では、アミンのカラムフロー標識実験についても発表する。

【参考文献】 [1] A. Kanda *et al.*, 10th International Symposium for Targeted Alpha Therapy (2017).

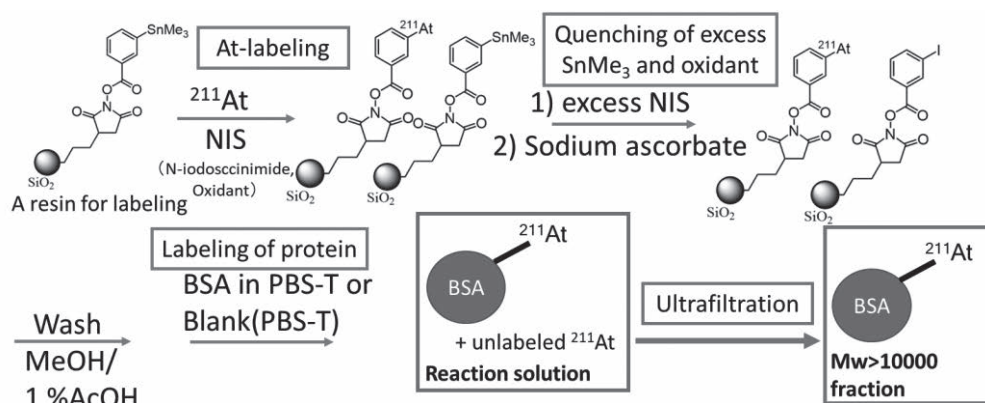


Fig.1. Scheme of labelling of protein with ^{211}At .

Development of a simplified synthesis method for ^{211}At -labeled medicine using resin-supported bifunctional reagent

KANDA, A., TOYOSHIMA, A., IKEDA, A., ICHIMURA, S., ZHANG, Z., YOSHIMURA, T., SHINOHARA, A.

1B11

核医学用 ^{211}At 生成の効率化に向けたカメラ型アルファ線イメージング

(日本原子力研究開発機構¹、量研機構²、株式会社フォトロン³)

○瀬川 麻里子¹、西中 一朗²、井上 徹³、藤 暢輔¹

【緒言】 低い線量でも高い治療効果が期待される α 放射性同位体 ^{211}At の利用に高い注目が集まっており、 ^{211}At を大量かつ安定的に生成する手法の開発が急務となっている。また、 α 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}At 試料のリアルタイム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}At から放出される低線量 α 線をリアルタイムで定量する可視化技術の開発を実施した。ここで医療系のニーズとして高感度かつ高解像のそれぞれに特化した2種類の装置が求められている事が判明したため、本研究では2種類の撮像システムを開発し原子力機構で生成した低線量の ^{211}At を用いてこれらの性能を評価した。

【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。高解像度撮像システムは α 線シンチレータ、マクロレンズ、浜松フォトニクス社製 CCD カメラ、制御用コンピュータで構成される。高感度撮像システムでは、高解像システムにリレーレンズ及びイメージインテンシファイアが加わる。試料として、タンデム加速器にて生成、化学分離された ^{211}At を用いた。この α 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画像解析を行った。

【結果】 高解像撮像システムによる撮像時間 1000 秒の ^{211}At 試料可視化画像と一晩かけて撮像した従来法(イメージングプレート)による画像とを比較した(図1参照)。図中の明るい個所は ^{211}At を滴下した領域となっている。このように、本撮像システムを用い約 1000 秒という時間で、実験の成否を判断するのに必要な高解像度の画像を取得可能である事が分かった。また、本発表では開発した撮像システムの空間解像度、及び得られた画像から導出した半減期の精度、数十 Bq という低い放射線量の ^{211}At に対するリアルタイムで可視化した結果を示す。

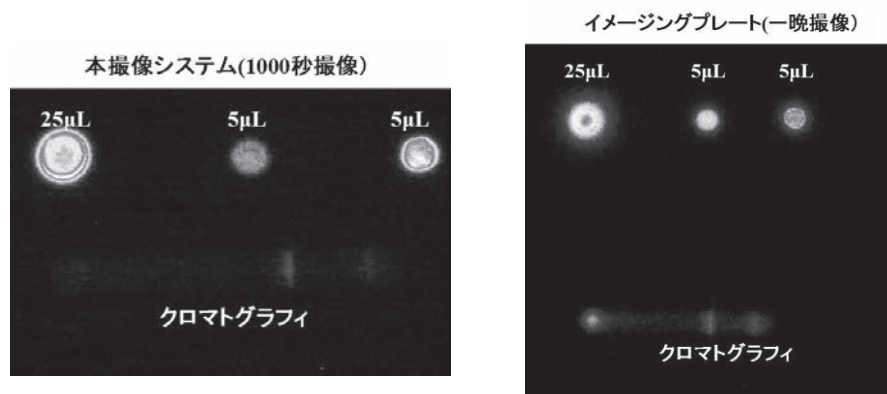


図1 本撮像システム及びイメージングプレートによる ^{211}At 可視化画像

Developments of quantitative imaging system for alpha-emitting radioisotope ^{211}At
SEGAWA, M., NISHINAKA, I., INOUE, T., TOH, Y.