## 日本放射化学会第65回討論会(2021)

## 講演要旨集

## 2021年9月22日(水)~9月24日(金)

## 東京都立大学·理化学研究所





### 共催

日本化学会, 日本物理学会, 日本分析化学会, 日本放射線安全管理学会, 日本保健物理学会, 日本薬学会

## 日本放射化学会第65回討論会(2021)日程

時刻		9月22日(水)		9月23日(木)			9月24日(金)			
9 00		発表準備		発表準備			発表準備			
-	15	開会式·学会法人化記念式典 休憩						3K01*	齋藤涼太	
-	30				特別講演 2S01 阿部穰里			放射化分析(2) 座長	3K02	MD. Sultanur Reza
10	45 00		1K01	海老原充	座長	大浦泰嗣 		白井直樹	3K03*	邱奕寰
-	15	境境放射能(1) 座長	1K02	長尾誠也					休憩	
-	30	五十嵐康人	1K03	奥村大河		2K01	岡田往子		3K04	西中一朗
_	45		11/04	笠とけてか	放射化分析(1) 座長	21(01		医薬・生物学に おけるRI利用 座長	21/05+	四 · 20
11	00	環境放射能(2)	11(04	サート		21(02	<b>杉响文</b> 御		31(03*	勿坏防
-	15	坐長 高橋嘉夫	1K05*	梢坦誠	高宮幸一	2K03	大澤宗人	石岡典子	3K06*	中川創太
-	30 45		1K06*	齋藤凜太郎		2K04	三浦勉		3K07*	黄栩昊
12	00				昼食					
-	15		昼食				昼食			
	30	核化	学分科:	会	原子核フ	原子核プローブ分科会		放射化分析分科会		科会
	45									
13	00	核プローブの	1K07	伊東泰佑					3K08*	諏訪智也
-	15 20	化学(1) 应具	1K08*	小松田沙也加	会	員総会		その他分野(1) 座長 豊嶋厚史	3K09	MA Zhuoran
-	45	小林義男	1K09*	北清航輔					3K10	富田純平
14	00	枝プロ_ブの	1K10	Irfan Khan		受賞講演 2S02 海老原 充 座長 三浦 勉			3K11*	富田涼平
_	15	根クロークの 化学(2)	1K11*	佐藤祐貴子	· 受 2S02				休憩	
-	30 45	坐長 小松田沙也加	1K12	小林義里	座長			その他分野(2) 座長	3K12	松村宏
15	00		什珀	.1 11 20					3K13	吉田剛
-	15		怀思			怀思		浅井雅人	3K14	大島直澄
-	30		1K13*	杉山晃一		2K05	田上恵子	_	休憩	
	45	核化学 座長	1K14*	庭瀬暁隆	環境放射能(3) 座長 坂口綾	2K06*	山口瑛子	_	所成 発表(3P01-12) アタイム	
16	15	笠松良崇	1K15*	青木涼太		2K07	小島貞男	ポスターダ		
-	30		1K16*	大谷怜		2K08	緒方良至	□ ⊐.		
-	45	休憩		休憩						
17	00							閉会式・若手優秀賞発表		
	15	ポスター発表(1P01-13)		ポスター発表(2P01-13) コアタイム						
_	30	コアタイム								
10	45									
10	15				若手の会					
-	30	アルファ・環境放射能分科会								
-	45	•					(*は若手優秀発表賞対象講演)			

## 日本放射化学会第 65 回討論会(2021)

#### ■ 実行委員会

大浦	泰嗣(都立大, 共同委員	員長)	羽場 宏光(理	研,共	同委員長)
秋山	和彦(都立大)	久冨フ	木 志郎(都立大)	白井	直樹(都立大)
加治	大哉(理研)	臼田	祥子(理研)	佐藤	望(理研)
重河	優大(理研)	南部	明弘(理研)	Wang	Yang(理研)
Yin Xi	iaojie(理研)	箕輪	はるか(慈恵医大)	小林	貴之(日大)

#### ■ プログラム委員会

羽場	宏光(理研,委員長)				
大浦	泰嗣(都立大)	秋山	和彦(都立大)	久冨木	志郎(都立大)
重河	優大(理研)	箕輪	はるか(慈恵医大)		

#### ■ 大会概要

- 会期: 2021年9月22日(水)~24日(金)
- 会場 : LINC Biz オンライン会議システム
- 主催 : 日本放射化学会
- 共催 : 日本化学会,日本物理学会,日本分析化学会,日本放射線安全管理学会,日本 保健物理学会,日本薬学会
- 協賛:株式会社アトックス,株式会社アールデック,株式会社池田理化,有限会社ウッド ベル,株式会社大阪真空機器製作所,株式会社カイズワークス,金属技研株式 会社,住友重機械工業株式会社,大栄無線電機株式会社,東京ニュークリア・サ ービス株式会社,株式会社千代田テクノル,株式会社テクノエーピー,株式会社ト ミー精工,伯東株式会社,浜松ホトニクス株式会社,ハヤシレピック株式会社,ミリ オンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社,ヤトロ電子株式会社

#### 討論主題 : 1. 核化学

2. 環境放射能

3. 放射化分析

- 4. 原子核プローブの化学
- 5. 医薬・生物学における RI 利用 6. アクチノイド・バックエンド化学
- 7. その他(宇宙・地球科学, 計測・核鑑識技術, 放射線教育など)

#### 参加登録費 : \_\_\_\_\_\_

		事前	当日
放射化学会員	一般	3,000 円	4,000 円
共催·後援学会員	学生	無料	1,000 円
半夕田	一般	6,000 円	7,000 円
于云貝	学生	3,500 円	4,500 円

事務局 : 東京都立大学理学部化学科内

〒192-0397 東京都八王子市南大沢 1-1 理化学研究所仁科加速器科学研究センター核化学研究チーム内 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1 e-mail: sorc2021-office@radiochem.org

### 日本放射化学会第65回討論会(2021) オンライン開催について

日本放射化学会第 65 回討論会(2021)は、LINC Biz の Web 会議システムを利用して、オンラ インで開催します。特別講演、受賞講演、口頭発表、日本放射化学会総会、分科会、若手の会は、 同一のミーティングルームで開催します。

ポスター発表は、該当する講演番号の付与されたチャンネル内で行います。ポスターセッション 中(コアタイム中)は、ビデオ機能により音声で質疑応答が可能です。ポスター発表の閲覧は、討 論会期間中常時可能ですが、コアタイム以外の質疑応答はテキスト入力形式のみで行います。な お、ポスターは9月30日まで閲覧可能とします。

以下に、講演者、ポスター発表者、ならびに聴講者に対する、オンライン講演(ロ頭発表、特別 講演、受賞講演)、ポスター発表それぞれでの注意事項を示しますので、必ずお読みください。 本会議システムのマニュアルは、討論会ホームページよりダウンロードできます。

#### 1)オンライン学会への参加の方法

事前参加登録を推奨していますので、すでに登録済みの方は b.にお進みください。

#### 参加登録、オンライン学会のマイページ

- a. 討 論 会 ウ ェ ブ サ イ ト 「 発 表 ・ 参 加 申 込 み 」 (http://www.radiochem.org/sorc2021/registration.html) ページ内の「参加申し込みはこ ちらをクリックしてください」から登録用ページへアクセスください。「登録用ページ」内の「メー ルアドレス登録」からメールアドレスをご入力いただくと、折り返し送付されるメールにパスワ ードが記載されております。(総会への出席も参加登録が必要です。)メールアドレスのご登 録を完了された方は、ページ下部にある「参加登録」ボタンよりログイン画面にお進みくださ い。ログインページから登録済メールアドレスおよび送付されたパスワードを入力し、登録情 報を入力するページにアクセスください。こちらで必要事項を入力し登録を行ってください。
- b. 討論会当日までに LINC Biz を運営する「株式会社 AIoT クラウド」より、会議システムに参加 するための招待メールが送付されます。こちらのメールから「LINC Biz」会議システムへ登録 を行ってください。登録完了後、会議システムへのログイン用 URL が送付されますので、そち らから各会場へアクセスください。
- c. LINC Biz 内での参加者名は、必ず「氏名(所属略称)」(例:都立大郎(理研仁科セ))と表示してください。参加者名はアカウント設定のニックネームに入力してください。設定変更などの詳細は LINC Biz のマニュアルを参照して下さい。

#### 2) 口頭発表、特別講演、受賞講演

LINC Biz Web 会議システムを使用し、画面共有機能を用いて発表スライド資料を表示すること により、リアルタイムで講演を行います。各会場へは Web 会議システム内「チャンネル」から移動 することができます。発表者はロ頭発表用のスライドをアップロードし、チャンネル内のコメント機 能を使用したテキスト入力形式によって、発表時間外でも質疑応答が可能となっております。積極 的にご利用いただき、議論を深めてください。

#### 講演者に対する注意事項

例年と同様、パワーポイント等で作成した発表スライド資料を準備してください。ロ頭発表は、 発表時間 15 分以内、討論含め 20 分以内です。特別講演と受賞講演は、質疑応答などを含めて 1 時間です。通常の座長制を採用し、質疑応答もビデオ会議チャンネル内で行います。プライベー トチャンネル内のロ頭発表チャンネルから入室してください。講演者と一般聴講者の入室方法は 異なります。

LINC Biz の操作方法等のマニュアルは討論会ウェブサイトに掲載しています。講演や交代を円 滑に進めるためにも、発表スライドの画面共有によるロ頭説明等に十分慣れておくようお願いし ます。

- <u>外部接続の</u>マイクやスピーカーを使用し、マイク、スピーカーの設定をご使用の機器に変更しておいてください。(内部スピーカーのご使用は避けてください。)
- 共有画面が意図した画面になるよう、事前にビデオ会議接続テスト(https://meetingct.lincbiz.jp/)で確認をお願いします。
- 講演時は、画面共有機能により発表スライドを表示し、座長の開始指示後にマイクをONにして発表を開始してください。
- 学会でのオンラインでの発表では、著作物を使用するには、原則として著作権者の許諾が必要となります。著作物の取り扱いには十分にご注意願います。

#### 聴講者に対する注意事項

- 一般聴講者は、メールで連絡する URL に接続し、パスワードを入力すると、口頭発表ビデオ 会議に入室できます。
- 一般聴講者は、基本的に通話、ビデオが許可されていません。質疑応答の際、座長からの 指名を受けた後、通話可能状態になってからマイクを ON にして発言してください。質疑終了 後はマイクをミュート(OFF)にしてください。その際には、外部接続のマイクやスピーカーを使 用し、マイク、スピーカーの設定をご使用の機器に変更しておいてください。(内部スピーカー のご使用は避けてください。)
- 講演者の映像や資料について、保存、撮影(画面キャプチャを含む)、録音、配布を絶対にし ないでください。必要な場合は講演者に個別に依頼してください。

#### 3)ポスター発表

討論会期間中、聴講者は講演番号に相当する「チャンネル」内のポスター会場に掲載されたポ スターを自由に閲覧できます。ポスターコアタイムでは対話形式での発表を行います。コアタイム 外でも、チャンネル内のコメント機能を使用したテキスト入力形式によって、質疑応答が可能とな っております。聴講者はコメント欄に質問を記入し、発表者も同じくコメント欄に返答を記入します。 ロ頭発表の講演者も発表資料をポスターチャンネルに同様に掲載できます。なお、このポスター のコアタイムは設けません。質疑応答は、テキスト形式で随時可能です。

ポスターチャンネルは、各日の全セッション終了後は、懇親目的での利用も可能です。

#### 発表者に対する注意事項

- マニュアルに記載されている投稿可能なファイルの制限事項を遵守ください。制限事項内でご自由に有意義に各自のポスターチャンネルをご利用ください。ポスターやショートプレゼンテーション動画など、複数の資料を掲載可能です。
- ポスターセッション中(コアタイム)、各自のポスター掲載ページを常時確認し、質問に対する 回答や意見交換を行ってください。
- 若手優秀発表賞選考対象者はコアタイム中必ずビデオ会議を開き対話形式での発表を行ってください。
- 学会でのオンラインでの発表では、著作物を使用するには、原則として著作権者の許諾が必要となります。著作物の取り扱いには十分にご注意願います。

#### 聴講者に対する注意事項

- 質問をコメント欄に書き込む際には、<u>所属と氏名がわかるように</u>アカウント設定してください。
- 発表者の映像や資料について、保存、撮影(画面キャプチャを含む)、録音、配布を絶対にしないでください。必要な場合は講演者に個別に依頼してください。

## 日本放射化学会第65回討論会(2021) プログラム

口頭発表 発表時間 15 分以内, 討論含め 20 分以内

ポスター発表 コアタイム 60 分 (9 月 30 日まで掲載)

("\*"は若手優秀発表賞対象講演)

オンライン発表のため発表準備等の時間設定の関係で、時間がずれる可能性があります。

	第1日:9月22日(水)
••••	
	発表準備
• • • • • •	•••••••9:15••••••
	開会式・学会法人化記念式典
•••••	9 : 35·····
1K01	FD1NPP 事故直後に東日本で採取された大気浮遊物質(SPM)中の <sup>129</sup> I 濃度と <sup>129</sup> I/ <sup>137</sup> Cs 放射能比の時系列変化
	( <sup>1</sup> 早稲田大教育, <sup>2</sup> 都立大理, <sup>3</sup> RESTEC, <sup>4</sup> 東大工, <sup>5</sup> 国環研)〇海老原充 <sup>1</sup> , 白井直樹 <sup>2</sup> , 大浦泰嗣 <sup>2</sup> , 鶴田治雄 <sup>3</sup> , 松崎浩之 <sup>4</sup> , 森口祐一 <sup>5</sup>
1K02	福島県沿岸海岸砂における放射性セシウムの鉛直分布 ( <sup>1</sup> 金大環日セ, <sup>2</sup> 金大院自然, <sup>3</sup> 金大理工, <sup>4</sup> ふくしま海洋)〇長尾誠也 <sup>1</sup> , D. I. P. Putra <sup>2</sup> , 南貴大 <sup>2</sup> ,藤生慎 <sup>3</sup> ,富原聖一 <sup>4</sup> ,落合伸也 <sup>1</sup>
1K03	福島原発事故で飛散した放射性ガラス微粒子(CsMP)の溶解特性 (1東大, 2農研機構)〇奥村大河 <sup>1</sup> , 山口紀子 <sup>2</sup> , 三河内岳 <sup>1</sup> , 小暮敏博 <sup>1</sup>
••••	
	【境境放射能(2)】 座長:高橋嘉夫
1K04	福島第一原子力発電所1号機由来の放射性粒子の形状からの考察 (慈恵医大アイソトープ)〇箕輪はるか,吉川英樹
1K05*	福島原発事故に由来する不溶性微粒子のレーザー加熱法による模擬生成実験 (京大複合研)〇稲垣誠,関本俊,高宮幸一,沖雄一,大槻勤
1K06*	都市ごみ焼却飛灰・土壌混合ジオポリマーの放射性 Cs の溶出抑制能力および耐久性の 評価
	( <sup>1</sup> 明治大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup> 明治大学理工学部)〇齋藤凜太郎 <sup>1</sup> ,小川熟人 <sup>2</sup> , 小池裕也 <sup>2</sup>
• • • • •	

#### 

#### 【核プローブの化学(1)】 座長:小林義男

- **1K07** Cd<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>中の局所磁気秩序とその時間変動 (<sup>1</sup>金沢大自然,<sup>2</sup>金沢大理工)〇伊東泰佑<sup>1</sup>,小中將彰<sup>2</sup>,藤井光樹<sup>1</sup>,佐藤渉<sup>2</sup>
- **1K08**\* SrTiO<sub>3</sub> 中にドープされた<sup>111</sup>Cd 位置における局所構造の熱的安定性 (<sup>1</sup> 金大人文,<sup>2</sup> 金大理工,<sup>3</sup> 京大複合研)〇小松田沙也加<sup>1</sup>, 佐藤渉<sup>2</sup>, 大久保嘉高<sup>3</sup>
- **1K09**\* Fe(3,4-lutidine)<sub>2</sub>[Ag(CN)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>における γ 線由来のスピン状態変化の考察 (東邦大理)〇北清航輔,北澤孝史

#### 【核プローブの化学(2)】 座長:小松田沙也加

- 1K10 Photocatalytic degradation of organic dyes and phenol by Iron-silicate Glass under visible light irradiation (<sup>1</sup>都立大院理, <sup>2</sup>Eötvös Loránd Univ.) OIrfan Khan<sup>1</sup>, Kazuhiko Akiyama<sup>1</sup>, Shiro Kubuki<sup>1</sup>, Ernő Kuzmann<sup>2</sup>, Zoltán Homonnay<sup>2</sup>, Katalin Sinkó<sup>2</sup>
- 1K11\* 水素化アルミニウムリチウム固体に注入された<sup>57</sup>Fe(←<sup>57</sup>Mn)核のインビーム・メスバウア ースペクトル (<sup>1</sup>東理大院理,<sup>2</sup>電通大,<sup>3</sup>ICU,<sup>4</sup>阪大理,<sup>5</sup>金沢大理,<sup>6</sup>電機大,<sup>7</sup>理研,<sup>8</sup>放医研) O佐藤祐貴子<sup>1</sup>,山田康洋<sup>1</sup>,小林義男<sup>2</sup>,久保謙哉<sup>3</sup>,三原基嗣<sup>4</sup>,佐藤渉<sup>5</sup>,宮﨑淳<sup>6</sup>, 長友傑<sup>7</sup>,高濱矩子<sup>2</sup>,安藤貴俊<sup>2</sup>,染佳梨子<sup>2</sup>,佐藤方実<sup>2</sup>,佐藤眞二<sup>8</sup>,北川敦志<sup>8</sup>
- 1K12 固体水素マトリックス中の Fe の化学状態 (1 電通大院, 2 東理大理, 3ICU, 4 阪大院理, 5 金沢大院理, 6 理研仁科セ, 7 東大総文, <sup>8</sup>QST)佐藤方実 1, ○小林義男 1, 山田康洋 2, 久保謙哉 3, 三原基嗣 4, 佐藤渉 5, 長友傑 6, 岡澤厚 7, 喜地雅人 1, 濱野健太郎 1, 佐藤眞二 8, 北川敦志 8

••••••15 : 00•••••••••••••••••••

休憩

#### 

#### 【核化学】 座長:笠松良崇

1K13\* アクチノイド核を標的としたアイソマー核分光

(<sup>1</sup>九大理,<sup>2</sup>原研ASRC,<sup>3</sup>QST,<sup>4</sup>阪大 RCNP,<sup>5</sup>KEK)O杉山晃一<sup>1</sup>, 郷慎太郎<sup>1</sup>,
 富松太郎<sup>1</sup>,甲斐民人<sup>1</sup>,長江大輔<sup>1</sup>,石橋優一<sup>1</sup>,松永壮太郎<sup>1</sup>,永田優斗<sup>1</sup>,西畑洸希<sup>1</sup>,
 坂口聡志<sup>1</sup>,森田浩介<sup>1</sup>,Riccardo Orlandi<sup>2</sup>,西尾勝久<sup>2</sup>,牧井宏之<sup>2</sup>,廣瀬健太郎<sup>2</sup>,
 伊藤由太<sup>2</sup>,洲嵜ふみ<sup>2</sup>,佐藤哲也<sup>2</sup>,塚田和明<sup>2</sup>,浅井雅人<sup>2</sup>,静間俊行<sup>3</sup>,井手口栄治<sup>4</sup>,
 Tung Thanh Pham<sup>4</sup>,庭瀬暁隆<sup>5</sup>

- 1K14\* MRTOF と α-TOF 検出器による, α 崩壊に相関した精密質量測定法の開拓 (<sup>1</sup>高工研,<sup>2</sup>理研仁科セ,<sup>3</sup>九大理,<sup>4</sup>香港大,<sup>5</sup>IBS,<sup>6</sup>IMP,<sup>7</sup>中国科学院,<sup>8</sup>蘭州大,<sup>9</sup>阪大 理,<sup>10</sup>山形大,<sup>11</sup>原子力機構,<sup>12</sup>九大超重元素セ,<sup>13</sup>ANU,<sup>14</sup>NMSU,<sup>15</sup>暨南大)
  ○庭瀬暁隆<sup>1,2,3</sup>,和田道治<sup>1</sup>, P. Schury<sup>1</sup>, P. Brionnet<sup>2</sup>, S. D. Chen<sup>4</sup>,橋本尚志<sup>5</sup>, 羽場宏光<sup>2</sup>,平山賀一<sup>1</sup>, D. S. Hou<sup>6,7,8</sup>,飯村俊<sup>9,2,1</sup>,石山博恒<sup>2</sup>,石澤倫<sup>10,2</sup>,伊藤由太<sup>11</sup>, 加治大哉<sup>2</sup>,木村創大<sup>2</sup>, J. Liu<sup>4</sup>,宮武宇也<sup>1</sup>, J. Y. Moon<sup>5</sup>,森本幸司<sup>2</sup>,森田浩介<sup>3,2,12</sup>, 長江大輔<sup>12,3</sup>, M. Rosenbusch<sup>1</sup>,高峰愛子<sup>2</sup>,田中泰貴<sup>13</sup>,渡辺裕<sup>1</sup>, H. Wollnik<sup>14</sup>, W. Xian<sup>4</sup>, S. X. Yan<sup>15</sup>
- 1K15\* 超重元素イオンビーム生成に向けた EBGP(Electron Beam Generated Plasma)イオン源の開発
   (<sup>1</sup>茨城大院理工,<sup>2</sup>原子力機構先端研,<sup>3</sup>茨城大理,<sup>4</sup>徳島大院保健)〇青木涼太<sup>12</sup>, 佐藤哲也<sup>1,2</sup>, 大谷怜<sup>2,4</sup>, 内馬場優太<sup>2,3</sup>, 伊藤由太<sup>2</sup>, 浅井雅人<sup>2</sup>, 塚田和明<sup>2</sup>, 永目諭一郎<sup>2</sup>
- 1K16\* 106 番元素シーボーギウムの揮発性研究に向けた 6 族元素オキシ塩化物の等温ガスクロマトグラフ挙動

   (<sup>1</sup> 徳島大院保健,<sup>2</sup> 原子力機構先端研,<sup>3</sup> 茨城大院理工,<sup>4</sup> 茨城大理,<sup>5</sup> 徳島大院医歯薬)
   〇大谷怜<sup>1,2</sup>, 佐藤哲也<sup>2,3</sup>, 青木涼太<sup>2,3</sup>, 浅井雅人<sup>2</sup>, 塚田和明<sup>2</sup>, 伊藤由太<sup>2</sup>,
   内馬場優太<sup>2,4</sup>, 阪間稔<sup>5</sup>, 永目諭一郎<sup>2</sup>

······16:40······ 休憩 ······17:00······

【ポスター発表】

- **1P01**\* フッ化水素酸系における Nb,Ta の TOMA 担持樹脂に対する吸着挙動 (新潟大院自然)〇角田弘貴,後藤真一
- 1P02\* At が形成するハロゲン結合の解離エネルギー測定に向けた Atl の生成条件と揮発性の 分析 (<sup>1</sup>阪大院理,<sup>2</sup>阪大放射線機構,<sup>3</sup>理研仁科セ,<sup>4</sup>大阪青山大学)〇床井健運<sup>1</sup>, 豊嶋厚史<sup>2</sup>,大江一弘<sup>2</sup>,角永悠一郎<sup>2</sup>,寺本高啓<sup>2</sup>,中川創太<sup>1</sup>,吉村崇<sup>2</sup>,笠松良崇<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>3</sup>,王洋<sup>3</sup>,篠原厚<sup>24</sup>
- **1P03\*** ノーベリウムの化学研究に向けた Ca, Sr, Ba, Ra のクラウンエーテルによる固液抽出 (<sup>1</sup> 阪大院理,<sup>2</sup> 京大複合研,<sup>3</sup> 阪大放射線機構,<sup>4</sup> 大阪青山大)〇渡邉瑛介<sup>1</sup>, 笠松良崇<sup>1</sup>, 中西諒平<sup>1</sup>, 大高咲希<sup>1</sup>, 高宮幸一<sup>2</sup>, 篠原厚<sup>34</sup>
- **1P04** トリウム標的への Li イオン照射によって生じる<sup>236</sup>Uの ICP-MS による定量 (<sup>1</sup>金沢大院自然,<sup>2</sup>筑波大数理,<sup>3</sup>理研仁科セ,<sup>4</sup>金沢大理工)〇永井歩夢<sup>1</sup>, 寺西翔<sup>1</sup>, 坂口綾<sup>2</sup>, 中島朗久<sup>2</sup>, 羽場宏光<sup>3</sup>, 横北卓也<sup>3</sup>, 南部明弘<sup>3</sup>, 横山明彦<sup>4</sup>
- 1P05 月間降水中トリチウム濃度の全国調査 (日本分析センター)〇飯田素代,大槻孝之,吉田森香,新田済,岸本武士,磯貝啓介
- 1P06 Extractability of Pu from agricultural soils and its indication of bioavailability (<sup>1</sup>QST, <sup>2</sup>Inst. Nucl. Phys. Chem., China, <sup>3</sup> Peking Univ.) OYouyi Ni<sup>1,2</sup>, Jian Zheng<sup>1</sup>, Qiuju Guo<sup>3</sup>, Zhaya Huang<sup>2</sup>, Keiko Tagami<sup>1</sup>, Shigeo Uchida<sup>1</sup>
- **1P07** Ge 半導体検出器における<sup>110m</sup>Ag のサム効果補正の検討について (日本分析センター)〇鈴木颯一郎,鈴木勝行,宮田賢,新田済,太田裕二

- 1P08 種々の走行モニタリングシステムによる比較測定 (日本分析センター)〇大槻孝之,杉山翠,田中博幸,太田裕二,磯貝啓介
- **1P09\*** 負ミュオンによる非破壊イメージングに向けた 2mm 厚 CdTe 半導体二次元検出器の開発 (<sup>1</sup> 阪大 IRS, <sup>2</sup>Kavli IPMU, <sup>3</sup> 東大理, <sup>4</sup>JAXA)〇邱奕寰<sup>1</sup>, 二宮和彦<sup>1</sup>, 武田伸一郎<sup>2</sup>, 桂川美穂<sup>2</sup>, 南喬博<sup>32</sup>, 長澤俊作<sup>32</sup>, 高橋忠幸<sup>2</sup>, 渡辺伸<sup>4</sup>
- 1P10 Self-Assembly of Nanosheet Supported Fe-MOFs Heterocrystal as Reusable Catalyst for Boosting Advanced Oxidation Performance via Radical and Nonradical Pathways (<sup>1</sup>都立大院理, <sup>2</sup>Dalian Institute of Chem. Phys., <sup>3</sup>Sheffield Hallam Univ.) OBofan Zhang<sup>1</sup>, Kazuhiko Akiyama<sup>1</sup>, Shiro Kubuki<sup>1</sup>, Liang Zhang<sup>2</sup>, Paul A. Bingham<sup>3</sup>
- 1P11\* シッフ塩基を有するウラニル(VI)三核錯体の合成と酸化還元 (<sup>1</sup>阪大院理,<sup>2</sup>阪大放射線機構 RI セ)〇福村希翔<sup>1</sup>,永田光知郎<sup>2</sup>,吉村崇<sup>2</sup>
- **1P12** V-48トレーサーを用いた VRFB 用イオン交換膜透過試験(2) (東北大金研)〇白崎謙次

【アルファ・環境放射能分科会】

	第2日:9月23日(木)
••••	······9:00·····························
	······································
	【特別講演】 座長:大浦泰嗣
2S01	電子と原子核の相互作用に関連する3つの理論的研究 (広島大院先進理工,都立大院理)〇阿部穣里
••••	·····································
••••	······10:30······ 【放射化分析(1)】 座長:高宮幸一
2K01	中性子放射化分析法による赤城大沼湖水中の安定 Cs 及び微量元素の定量 ( <sup>1</sup> 都市大原研, <sup>2</sup> 群水試)〇岡田往子 <sup>1</sup> , 熊谷尚人 <sup>1</sup> , 渡辺峻 <sup>2</sup> , 鈴木究真 <sup>2</sup>
2K02	k₀-IAEA ソフトウェアを用いた k₀標準化中性子放射化分析-評価と応用- (都立大院理)〇杉崎史都,大浦泰嗣
2K03	JRR-3 即発ガンマ線分装置(PGA)の現状 (原子力機構)O大澤崇人, 佐々木未来, 松江秀明
2K04	JRR-3 即発ガンマ線分析装置を用いた軽元素分析 (¹産総研物質計測, ²原子力機構, ³東大工)〇三浦勉 ¹, 松江秀明 ², 大澤崇人 ², 神野智史 ³
••••	•••••••11 : 50••••••
	【原子核プローブ分科会】【昼食】
• • • • •	13:00
	【会員総会】
••••	
	▲ 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一 一
2S02	中性子放射化分析法の高度化と宇宙地球化学研究への応用 (早稲田大教)〇海老原充
••••	······15:00·····························
• • • • •	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••

#### 【環境放射能(3)】 座長:坂口綾

- 2K05 塩素の土壌-土壌溶液間分配係数について (<sup>1</sup>量研機構,<sup>2</sup>原子力発電環境整備機構)〇田上恵子<sup>1</sup>, 澁谷早苗<sup>2</sup>, 浜本貴史<sup>2</sup>, 石田圭輔<sup>2</sup>, 内田滋夫<sup>1</sup>
- 2K06\* EXAFS による Ra の水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明 (<sup>1</sup>JAEA,<sup>2</sup>東大,<sup>3</sup>阪大)〇山口瑛子<sup>1,2</sup>,永田光知郎<sup>3</sup>,田中万也<sup>1</sup>,小林恵太<sup>1</sup>, 奥村雅彦<sup>1</sup>,小林徹<sup>1</sup>,下条晃司郎<sup>1</sup>,谷田肇<sup>1</sup>,関口哲弘<sup>1</sup>,金田結依<sup>1</sup>,松田晶平<sup>1</sup>, 横山啓一<sup>1</sup>,矢板毅<sup>1</sup>,吉村崇<sup>3</sup>,高橋嘉夫<sup>2</sup>
- **2K07** ケイ酸バリウム(BaSi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)を主成分とする Sr 吸着剤への Ba の吸脱着特性 (<sup>1</sup>愛知医大,<sup>2</sup>大阪産業大,<sup>3</sup>日立製作所,<sup>4</sup>京大複合研,<sup>5</sup>慈恵医大アイソトープ) 〇小島貞男<sup>1</sup>, 緒方良至<sup>1,2</sup>, 加藤結花<sup>3</sup>, 高宮幸一<sup>4</sup>, 箕輪はるか<sup>5</sup>
- 2K08 ケイ酸バリウム(BaSi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)を主成分とする Sr 吸着剤を用いた <sup>90</sup>Sr の測定 一子核種 <sup>90</sup>Y のチェレンコフ測定一 (<sup>1</sup>大阪産業大,<sup>2</sup>愛知医大医,<sup>3</sup>慈恵医大アイソトープ,<sup>4</sup>日立製作所)〇緒方良至 <sup>12</sup>, 小島貞男<sup>2</sup>, 箕輪はるか<sup>3</sup>, 加藤結花<sup>4</sup>

休憩

17:00

#### 【ポスター発表】

- **2P01\*** 低エネルギー励起核種 U-235m のハロゲン化物の半減期変化 (<sup>1</sup> 阪大院理, <sup>2</sup> 理研, <sup>3</sup> 阪大放射線機構, <sup>4</sup>大阪青山大学)〇澤村慶<sup>-1</sup>, 笠松良崇<sup>-1</sup>, 重河優大<sup>-2</sup>, 篠原厚<sup>-34</sup>
- 2P02\* 第一原理分子動力学計算によるノーベリウムの水和構造の理論研究 (1阪大院理,<sup>2</sup>理研 R-CCS,<sup>3</sup>阪大放射線機構,<sup>4</sup>大阪青山大)〇渡邉瑛介<sup>1</sup>, 笠松良祟<sup>1</sup>, 中西諒平<sup>1</sup>, 大高咲希<sup>1</sup>, 中嶋隆人<sup>2</sup>, 篠原厚<sup>34</sup>
- **2P03\*** Rf の共沈実験に向けた Zr, Hf, Th, Eu のシュウ酸, マロン酸沈殿実験 (<sup>1</sup>阪大院理, <sup>2</sup>阪大放射線機構, <sup>3</sup>大阪青山大学)〇中西諒平<sup>1</sup>, 笠松良崇<sup>1</sup>, 渡邉瑛介<sup>1</sup>, 大髙咲希<sup>1</sup>, 篠原厚<sup>23</sup>
- 2P04\* 福島事故で放出された放射性粒子の性状解析と微量放射性核種の分析 (<sup>1</sup> 阪大院理,<sup>2</sup> 阪大放射線機構,<sup>3</sup> 大阪青山大,<sup>4</sup> 慈恵医大)〇村上貴士<sup>1</sup>, 二宮和彦<sup>2</sup>, 五十嵐淳哉<sup>1</sup>, 吉村崇<sup>2</sup>, 篠原厚<sup>2,3</sup>, 箕輪はるか<sup>4</sup>, 吉川英樹<sup>4</sup>
- 2P05 大容量エアサンプラ(Snow White)を用いた大気浮遊じん中ヨウ素 129 濃度の経年変化 (日本分析センター)〇須藤百香,王暁水,飯田素代,日比野有希,宮田賢,岡山杏菜, 太田智子,太田裕二,磯貝啓介
- 2P06\* 海水中 I-129 の ICP-MS 分析に向けた固相抽出法の開発:銀イオン担持樹脂への I 吸着 における干渉元素および共存陰イオンの影響 (日本原子力研究開発機構)〇青木譲,松枝誠,小荒井一真,寺島元基

- 2P07 放射能測定法シリーズ No.7「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」の改訂 (日本分析センター)〇宮田賢, 鈴木勝行, 太田裕二
- 2P08 環境放射線モニタリングにおける精度管理 (日本分析センター)〇太田博
- **2P09** Fe をドープした酸化インジウムにおける希薄磁性観測の試み (<sup>1</sup>金大院自然,<sup>2</sup>金大院自然,<sup>3</sup>金大理工)〇内野葉月<sup>1</sup>, 伊東泰祐<sup>2</sup>, 佐藤渉<sup>3</sup>
- 2P10 核医学用アスタチン抽出に利用できるイオン液体の研究 (1金沢大院自然,2量研東海,3福島医大先端セ,4理研仁科セ,5金沢大理工) 〇永井雄太1,青井景都1,丸山俊平1,西中一朗2,鷲山幸信3,羽場宏光4,横山明彦5
- **2P11\*** 放射性廃棄物に含まれる Zr-93 の定量分析手法の開発 抽出クロマトグラフィーレジン を用いた Zr の吸着分離法の検討— (JAEA)〇森井志織, 蓬田匠, 大内和希, 北辻章浩
- **2P12\*** 顕微ラマン分光法と顕微 X 線分光法によるウラン微粒子の化学状態分析 (<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>東大院理) 〇 蓬田匠 <sup>1,2</sup>, 北辻章浩<sup>-1</sup>, 高橋嘉夫<sup>-2</sup>, 宮本ユタカ<sup>-1</sup>

【若手の会】

#### 第3日:9月24日(金)

#### 発表準備

#### 【放射化分析(2)】 座長:白井直樹

- **3K01\*** 家庭ごみ焼却スラグ中に含まれる有価金属成分の分離 (<sup>1</sup>都立大院理,<sup>2</sup>都立大理,<sup>3</sup>東北大 ELPH)〇齋藤涼太<sup>1</sup>,秋山和彦<sup>1</sup>,土田竜貴<sup>2</sup>, 諏訪智也<sup>1</sup>, Kahn Irfan<sup>1</sup>,菊永英寿<sup>3</sup>,久冨木志郎<sup>1</sup>
- **3K02** Instrumental photon activation analysis using single comparator method at different accelerators (都立大院理)OMD. Sultanur Reza, 大浦泰嗣
- 3K03\* J-PARC におけるミュオン特性 X 線による元素分析の微少試料適用に向けた装置開発 (阪大 IRS<sup>1</sup>, 阪大院理<sup>2</sup>, 理研<sup>3</sup>, Kavli IPMU<sup>4</sup>, ICU<sup>5</sup>, 東大理<sup>6</sup>, KEK<sup>7</sup>, 東京藝大<sup>8</sup>, 東北大 理<sup>9</sup>, 中部大<sup>10</sup>, JAEA<sup>11</sup>, 大阪青山大<sup>12</sup>, 京大複合研<sup>13</sup>, 豊田中研<sup>14</sup>, JAXA<sup>15</sup>) 〇邱奕寰<sup>1</sup>, 二宮和彦<sup>1</sup>, 東俊行<sup>3</sup>, 梶野芽都<sup>2</sup>, 桂川美穂<sup>4</sup>, 久保謙哉<sup>5</sup>, 南喬博<sup>64</sup>, 三宅康博<sup>7</sup>, 水本和美<sup>8</sup>, 長澤俊作<sup>64</sup>, 中村智樹<sup>9</sup>, 岡田信二<sup>10</sup>, 大澤崇人<sup>11</sup>, 下村浩一郎<sup>7</sup>, 篠原厚<sup>1,2,12</sup>, 高橋忠幸<sup>4</sup>, 武田伸一郎<sup>4</sup>, 竹下聡史<sup>7</sup>, 反保元伸<sup>7</sup>, 谷口秋洋<sup>13</sup>, 寺田健太郎<sup>2</sup>, 梅垣いづみ<sup>14</sup>, 和田大雅<sup>9</sup>, 渡辺伸<sup>15</sup>, 吉田剛<sup>7</sup>

休憩

#### 【医薬・生物学における RI 利用】 座長:石岡典子

- 3K04 乾式蒸留分離におけるアスタチンの熱分離特性 (1量研東海,2福島県立医科大学)〇西中一朗<sup>1</sup>,鷲山幸信<sup>2</sup>,橋本和幸<sup>1</sup>
- **3K05\*** エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発 (1東芝エネルギーシステムズ,<sup>2</sup>原子力機構先端研,<sup>3</sup>阪大 RCNP,<sup>4</sup>阪大放射線機構, <sup>5</sup>大阪青山大)〇湯原勝<sup>1</sup>,宮本真哉<sup>1</sup>,和田怜志<sup>1</sup>,中居勇樹<sup>1</sup>,大森孝<sup>1</sup>,塚田和明<sup>2</sup>, 浅井雅人<sup>2</sup>,福田光宏<sup>3</sup>,豊嶋厚史<sup>4</sup>,篠原厚<sup>45</sup>
- **3K06\*** 電解酸化反応を用いた分子標的薬への<sup>211</sup>At 標識化法の開発 (<sup>1</sup> 阪大院理,<sup>2</sup> 阪大放射線機構,<sup>3</sup> 阪大院医,<sup>4</sup> 阪大 RI セ,<sup>5</sup> 理研仁科セ,<sup>6</sup> 大阪青山大) 〇中川創太<sup>1</sup>, 豊嶋厚史<sup>2</sup>, 角永悠一郎<sup>2</sup>, 大江一弘<sup>23</sup>, 寺本高啓<sup>2</sup>, 床井健運<sup>1</sup>, 神田晃充<sup>4</sup>, 吉村崇<sup>24</sup>, 永田光知郎<sup>24</sup>, 笠松良崇<sup>1</sup>, 羽場宏光<sup>5</sup>, 王洋<sup>5</sup>, 篠原厚<sup>26</sup>
- **3K07\*** 新規アルファ線ブラキセラピー開発に向けた At-211 標識金ナノ粒子の合成と機能評価 (<sup>1</sup>阪大院理,<sup>2</sup>阪大院医,<sup>3</sup>阪大放科,<sup>4</sup>理研仁科,<sup>5</sup>大阪青山大)〇黄栩昊<sup>1</sup>, 加藤弘樹<sup>2</sup>, 角永悠一郎<sup>3</sup>, 下山敦史<sup>1</sup>, 樺山一哉<sup>1</sup>, 片山大輔<sup>2</sup>, 大江一弘<sup>2</sup>, 豊嶋厚史<sup>3</sup>, 羽場宏光<sup>4</sup>, 王洋<sup>4</sup>, 篠原厚<sup>3,5</sup>, 深瀬浩一<sup>1,3</sup>

#### 

#### 【その他分野(1)】 座長:豊嶋厚史

- 3K08\* プロメチウムを含む二金属内包フラーレンの安定性 (1都立大院理,2東北大電子光セ)〇諏訪智也1,秋山和彦1,菊永英寿2,久冨木志郎1
- 3K09 Dissolution Method of Substances containing UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> by Thermochemical Conversion for Actinide Analysis (<sup>1</sup>長岡技術科学大, <sup>2</sup>東北大)OMA Zhuoran<sup>1</sup>, 本間佳哉<sup>2</sup>, 小無健司<sup>2</sup>, 鈴木克弥<sup>2</sup>, 鈴木達也<sup>1</sup>
- 3K10 MC-ICP-MS 用いた極微量ウラン・プルトニウム同位体比測定における分子イオンによる 妨害の定評的評価 (原子力機構)〇富田純平,富田涼平,鈴木大輔,安田健一郎,宮本ユタカ
- 3K11\* 高水素化物生成比を示すウラン粒子の全損分析と同位体比変化 (原子力機構)〇富田涼平, 蓬田匠, 富田純平, 鈴木大輔, 安田健一郎, 江坂文孝, 宮本ユタカ

#### 【その他分野(2)】 座長:浅井雅人

- 3K12 放射線発生装置廃止のための放射化測定評価マニュアル (高エネ研)〇松村宏, 桝本和義, 吉田剛, 豊田晃弘, 中村一, 三浦太一
- 3K13 可搬型 γ 線イメージング装置 GeGI5 による加速器放射化評価の可能性 (<sup>1</sup>KEK, <sup>2</sup>筑波大)〇吉田剛<sup>1</sup>, 松村宏<sup>1</sup>, 中村一<sup>1</sup>, 豊田晃弘<sup>1</sup>, 三浦太一<sup>1</sup>, 桝本和義<sup>1</sup>, 笹公和<sup>2</sup>, 森口哲朗<sup>2</sup>, 松村万寿美<sup>2</sup>

#### 【ポスター発表】

- **3P01** アスタチン化合物の分光・可視化にむけた新規手法の提案 (<sup>1</sup> 阪大放射線機構,<sup>2</sup> 阪大医,<sup>3</sup>理研仁科セ)〇寺本高啓<sup>1</sup>, 大江一弘<sup>2</sup>, 王洋<sup>3</sup>, 羽場宏光<sup>3</sup>, 豊嶋厚史<sup>1</sup>
- **3P02** Mn-52 の製造と半減期測定 (<sup>1</sup> 東北大 ELPH, <sup>2</sup> 東北大金研, <sup>3</sup> 東北大 CYRIC) 〇菊永英寿<sup>1</sup>, 白崎謙次<sup>2</sup>, 池田隼人<sup>1,3</sup>
- 3P03 Th-229m の壊変特性の解明に向けた高周波イオン収集・質量分離装置の開発 (<sup>1</sup>理研仁科セ,<sup>2</sup>阪大院理,<sup>3</sup>理研香取研,<sup>4</sup>JST さきがけ,<sup>5</sup>KEK 和光原子核科学セ) 〇重河優大<sup>1</sup>, 床井健運<sup>2</sup>, 山口敦史<sup>3,4</sup>, Wang Yang<sup>1</sup>, Yin Xiaojie<sup>1</sup>, 南部明弘<sup>1</sup>, 佐藤望<sup>1</sup>, 和田道治<sup>5</sup>, 羽場宏光<sup>1</sup>
- **3P04** 北海道道東海域における<sup>134</sup>Csの空間分布と経年変動(2018-2021) (<sup>1</sup>金沢大,<sup>2</sup>水産機構・資源研)〇真下海成<sup>1</sup>,竹原亮成<sup>1</sup>,井上睦夫<sup>1</sup>,亀山紘旭<sup>1</sup>, 谷内由貴子<sup>2</sup>,黒田寛<sup>2</sup>,帰山秀樹<sup>2</sup>,三木志津帆<sup>2</sup>,長尾誠也<sup>1</sup>
- 3P05 <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比の空間分布からみた日本海の粒子吸着性成分の挙動 (<sup>1</sup>金沢大,<sup>2</sup>海洋財団,<sup>3</sup>水産研究・教育機構)〇亀山紘旭<sup>1</sup>, 井上睦夫<sup>1</sup>, 諸角季生<sup>1</sup>, 城谷勇陛<sup>1</sup>, 花木祥太朗<sup>1</sup>, 古澤佑一<sup>1</sup>, 小藤久毅<sup>2</sup>, 森田貴己<sup>3</sup>, 三木志津帆<sup>3</sup>, 長尾誠也
- **3P06** DGA resin を用いた Y 分離による骨中<sup>90</sup>Sr 分析方法の開発 (<sup>1</sup> 原子力機構,<sup>2</sup> 福島大)〇小荒井一真<sup>1</sup>,松枝誠<sup>1,2</sup>,青木譲<sup>1,2</sup>,藤原健壮<sup>1</sup>,寺島元基<sup>1</sup>
- 3P07 モニタリングポストの in-situ 校正による空間放射線量率測定の品質保証 (日本分析センター)〇杉山翠,石川清正,田中博幸,新田済,岸本武士
- 3P08 海域モニタリングの質の保証 (日本分析センター)〇佐野友一,佐久間亜美,太田智子
- 3P09 <sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>mCd)及び <sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>In)プローブを用いた摂動角相関法による Cd<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O4 中の超微細場測定 (<sup>1</sup>金沢大自然,<sup>2</sup>金沢大理工,<sup>3</sup>金沢大自然,<sup>4</sup>京大複合研,<sup>5</sup>金沢大理工)O藤井光樹<sup>1</sup>, 小中將彰<sup>2</sup>, 伊東泰佑<sup>3</sup>, 大久保嘉高<sup>4</sup>, 佐藤渉<sup>5</sup>
- 3P10 加速器中性子によるがん治療用 Sc-47 の製造に関する研究 (<sup>1</sup>原子力機構, <sup>2</sup>量研機構, <sup>3</sup>千代田テクノル)〇塚田和明<sup>1,2</sup>,橋本和幸<sup>2</sup>,橋本慎太郎<sup>1</sup>, 浅井雅人<sup>1</sup>,初川雄一<sup>2</sup>,佐伯秀也<sup>2,3</sup>,川端方子<sup>2,3</sup>,太田朗生<sup>2,3</sup>,本村新<sup>2,3</sup>
- **3P11** HPLC 分析によるランタノイド内包フラーレン(Ln<sup>3+</sup>@C82<sup>3-</sup>)の電子状態に関する研究 (<sup>1</sup>都立大院理,<sup>2</sup>理研仁科セ,<sup>3</sup>京大複合研)〇西村峻<sup>1</sup>,雨倉啓<sup>1</sup>,秋山和彦<sup>1,2</sup>, 羽場宏光<sup>2</sup>,高宮幸一<sup>3</sup>,久冨木志郎<sup>1</sup>
- **3P12** 質量分析法を用いた岩石中<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 放射能比の高精度迅速測定法の確立 (関西学院大院理工)〇栗林千佳,谷水雅治

#### 

15

## 一般講演

# 9月22日(水) 1K01-1K16

# FD1NPP 事故直後に東日本で採取された大気浮遊物質(SPM)中の 1K01 <sup>129</sup>I 濃度と<sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs 放射能比の時系列変化

(早大教育<sup>1</sup>、都立大理<sup>2</sup>、RESTEC<sup>3</sup>、東大工<sup>4</sup>、国環研<sup>5</sup>)○海老原充<sup>1</sup>、 白井直樹<sup>2</sup>、大浦泰嗣<sup>2</sup>、鶴田治雄<sup>3</sup>、松崎浩之<sup>4</sup>、森口祐一<sup>5</sup>

【緒言】2011年に発生した東北地方太平洋沖地震から10年が経過した。地震による被害に加えて、地震で誘起された津波による被害が災害規模を大きくした。特に、津波によって誘発された東京電力福島第一原子力発電所(FD1NPP)事故は、これまでの地震災害の中でも未曾有の結果をもたらした。破損した3基の原子炉から放出された放射性物質は環境中に拡散し、いまなお多くの人々に影響を与えている。本研究は環境中にエアロゾルとして拡散した<sup>129</sup>Iの事故直後の挙動を、同時期に採取された大気浮遊物質(SPM)を組織的に分析することによって明らかにすることを目的とした。あわせて、同じ<sup>235</sup>Uの核分裂片である<sup>137</sup>Csとの放射能比の時系列変化も求めた。

【実験】2011年3月12日から約2週間の間に東日本の41箇所のSPMステーションで 1時間ごとに採取された計920試料について、<sup>129</sup>I濃度を求めた。41箇所の内訳は福島 県17、宮城県1、首都圏(茨城県、千葉県、埼玉県、東京都、神奈川県)23、分析SPM 試料数は順番に752、26、142で、福島県で採取された試料に対して重点的に分析を 行った。SPM 粒子は1時間(1m<sup>3</sup>相当)ごとにガラス繊維(GF)、あるいはフッ素系 樹脂(PTFE)フィルター上に11mm ¢あるいは19mm ¢の円形に捕集され、そのうち の1部(多くの場合1/4か1/6)を分析に用いた。SPM 試料中のヨウ素の化学分離操作 はハロゲン3元素の放射化学的中性子放射化分析法の手法(Ebihara et al., 1997)を改 変して適用した。<sup>129</sup>Iの分離前に一定量の<sup>127</sup>Iを担体として加え、アルカリ溶融によっ て<sup>127</sup>I/<sup>129</sup>Iの同位体平衡を成立させた。最終的にヨウ素をヨウ化銀として回収し、加速 器質量分析法によって<sup>127</sup>I/<sup>129</sup>I比を求め、<sup>129</sup>Iの体積放射能濃度(Bq/m<sup>3</sup>)を計算した。 同一SPM 試料については<sup>137</sup>Cs 濃度も測定済みであり(Oura et al. 2015; Tsuruta et al., 2018)、<sup>129</sup>I濃度に加えて、<sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs 放射能比(Bq/Bq)も併せて求めた。

【結果と考察】2 種類のフィルターで捕集された SPM の<sup>129</sup>I 濃度に系統的な差があることがわかり、考察には GF で捕集した 808 個の SPM 試料の分析データを用いた。データの信頼性を精査した結果、500 のデータは議論に使えるものと判断された。福島県内の SPM ステーションのうち、双葉、楢葉、原町、二本松の4 箇所での<sup>129</sup>I 濃度、および<sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs 放射能比の経時変化を詳細に調べた。双葉では3月12日の朝に低濃度の、ベント後に高濃度の<sup>129</sup>I,<sup>137</sup>Cs が測定された。事故から数日間の双葉での<sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs 比はそれ以降の値に比べて系統的に高かったことが明らかになった。関東地方に流れ込んだ4 つの放射性プルームの特徴についても考察した。大気浮遊粒子状物質(APM や SPM)中の<sup>129</sup>I 濃度から事故当時の<sup>131</sup>I 濃度が推定できる(Ebihara et al., 2018)ことから、本研究のデータは FD1NPP 事故による放射性物質の拡散モデルの評価やその影響評価に寄与するものと期待される。

【引用文献】Ebihara et al. JRNC 216, 107 (1997); Ebihara et al. JER 208-209, 106000 (2019); Oura et al. JNRS 15, 15 (2015); Tsuruta et al. GJ 52, 103 (2018).

Time-series variations of <sup>129</sup>I activity concentrations and <sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs activity ratios for SPM samples collected in eastern Japan just after the FD1NPP accident EBIHARA, M., SHIRAI, N., OURA, Y., TSURURA, H., MATSUZAKI, H, MORIGUCHI, Y.

## 1K02

福島県沿岸海岸砂における放射性セシウムの鉛直分布

(金大環日セ<sup>1</sup>、金大院自然<sup>2</sup>、金大理工<sup>3</sup>、ふくしま海洋<sup>4</sup>)○長尾誠也
 <sup>1</sup>、D. I. P. Putra<sup>2</sup>、南貴大<sup>2</sup>、藤生慎<sup>3</sup>、富原聖一<sup>4</sup>、落合伸也<sup>1</sup>

【緒言】福島県の海岸は、2011 年 3 月 11 日の福島第一原子力発電所事故後に汚染水が 南下したことがシミュレーションの結果から明らかになっている。そのため、事故初 期には海底堆積物とともに、海岸砂への放射性核種の吸着等の影響を考慮する必要が ある。我々のグループでは、海岸の地下 1m 程度に存在する地下水と海岸砂に高濃度の 放射性セシウムが存在することを報告している(Sanial et al., 2017: Nagao et al., 2020)。 また、日本放射化学会第 63 回討論会では、2018 年に採取した海岸砂の鉛直分布の結果 を報告した。今回は同じ測点で 2019 年に採取した砂の測定結果と比較するとともに、 海岸の微視地形をドローンで計測し、標高を基にした地下水の存在深度と放射性セシ ウム濃度との関係を考察した。

【方法】福島第一原子力発電所から約 40 km 南に位置する福島県四倉海岸で 2019 年7月9-10日に海岸砂を鉛直的に採取した(図1)。スコップで地下水が染み出す 深さまで掘った後に、内径 5cm、長さ 30 cm あるいは 60 cm のステンレス製パイプ を圧密しないように砂に押し込み、パイ プを回収後に 5cm 間隔で砂試料を採取し た。実験室では、40°C に設定した乾燥機 で砂試料を乾燥した後に容器に詰め、Ge 半導体検出器で 1-3 日間、<sup>134</sup>Cs と <sup>137</sup>Cs 放



射能濃度を計測した。ドローンにより海岸の微地形を計測・解析した。

【結果と議論】図2は四倉海岸海岸砂の<sup>137</sup>Cs 放射能濃度の鉛直分布を示した。深さ0 cmは海岸砂の表面を基準とした。沿岸に最も近い測点34では<sup>137</sup>Cs 放射能濃度が低く、 14.5-22.9 Bq/kg 乾燥重量(以後、Bq/kg で表示)であった。しかし、陸側に近い測点

30 では<sup>137</sup>Cs 放射能濃度が 1962Bq/kg、測点 8 で 1912Bq/kg、測点 35 では 595Bq/kg と比較的高い値を 示した。また、測点 11 では 5745Bq/kg と高い放射能 濃度であり、狭い海岸内で砂の<sup>137</sup>Cs 放射能濃度に水 平的な分布特性が存在した。そこで、ドローンにより 計測した海岸微地形を標高に換算して測点 30・測点 8・測点 31・測点 11・測点 33 の側線で図 2 の鉛直分 布を検討した。その結果、<sup>137</sup>Cs 放射能濃度の最大値 の標高は、測点 31 で 186cm、測点 33 では 166cm とほ ぼ同じであった。一方、<sup>137</sup>Cs 放射能濃度が約 2 倍高 い測点 11 は、最大放射能度を示す標高が 241 cm と 異なっていた。この結果は、滞水層の違いが<sup>137</sup>Cs 放 射能濃度の違いに反映されたと考えられる。



Vertical distribution of radiocesium concentration in beach sand from Fukushima Prefecture, Japan NAGAO, S., PUTRA, D. I. P., MINAMI, T., FUJIU, M., TOMIHARA, S., OCHIAI, S.

# 1K03 福島原発事故で飛散した放射性ガラス微粒子(CsMP)の溶解特性 (東大院理<sup>1</sup>、農研機構<sup>2</sup>)の奥村大河<sup>1</sup>、山口紀子<sup>2</sup>、三河内岳<sup>1</sup>、小暮

敏博<sup>1</sup>

【緒言】福島原発事故により、損傷した原子炉内部で放射性セシウムを高濃度で含む数 ミクロンの微粒子が形成され、東日本の広範囲に飛散した。この微粒子は CsMP (radiocesium-bearing microparticle) と呼ばれ、球形で特殊な組成を持つ珪酸塩ガラス で構成される。我々は環境中から CsMP を採集して溶解実験を実施し、CsMP が海水中 では純水中よりもはるかに速く溶解することを明らかにした (Okumura *et al.*, 2019)。 CsMP の環境動態解明のためには様々な条件での溶解特性を明らかにする必要がある が、CsMP を採集するのが非常に煩雑で時間のかかる作業であることが課題であった。

最近我々は CsMP の酸性溶液中での溶解速度が非常に遅いことを見出し、汚染された農業資材(不織布)を酸処理することで、そこに付着した CsMP 以外の物質(鉱物等)に吸着した放射性セシウムをほぼ除去することができた(Okumura *et al.*, 2020)。本研究ではこの酸処理した不織布を用いて溶解実験を行い、CsMP を分離・採集することなく様々な溶液中での溶解特性を調べた。

【実験】まず、不織布を90°Cの0.1 M 塩酸に24時間浸漬した。次にこの不織布を60°C の様々な溶液に浸漬し、溶出した放射性セシウム濃度を一定時間毎にゲルマニウム半 導体検出器によって測定することでCsMPの溶解速度を推定した。

【結果】求めた CsMP の溶解速度を下図に示す。横軸は浸漬した溶液の pH、縦軸は溶 解速度(半径減少速度)k(m/s)の常用対数である。なお溶解速度 k は CsMP が完全な 球形であると仮定し、放射能減少量を CsMP の半径減少量に換算して算出した。図の ように溶液中に Na<sup>+</sup>を含まない場合(塩酸,純水, Tris-HCl バッファー)、pH が変わっ ても溶解速度はほとんど変化しなかった。一方、溶液中に Na<sup>+</sup>が含まれる場合は pH が 高いほど溶解が速くなることがわかった。こうした溶解挙動はシリカガラスと類似し ており、高い pH とともに Na<sup>+</sup>のようなアルカリイオンの触媒効果によって、CsMP を 構成する珪酸塩ガラスの溶解が促進されると考えられる。



Dissolution properties of radiocesium-bearing microparticles (CsMPs) released by the Fukushima nuclear accident OKUMURA T., YAMAGUCHI, N., MIKOUCHI, T., KOGURE, T.

## 福島第一原子力発電所1号機由来の放射性粒子の形状からの考察

(慈恵医大アイソトープ)〇箕輪はるか、吉川英樹

【緒言】東京電力福島第一原子力発電所(福島第一原発)の事故で環境中に放出された 放射性物質の存在形態のひとつとして、ケイ酸ガラスを主成分とする、水に不溶性の 放射性粒子の存在が報告されている(Adachi et al., 2013; Satou et al., 2016 ほか)。この 放射性粒子は原子炉内で形成後、環境中でほとんど変化せず、形成時の組成や形態が 保持されていると考えられる。これらの放射性粒子は、形状および大きさ、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 比、比放射能の特徴により、Type A [球状、粒経 1-10µm 程度、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 比 約 1.04、 比放射能大]と Type B [不定形、数 10µm 以上、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 比 約 0.94、比放射能小]に分 類できる。<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 比の値から、Type A 粒子は 2 号機あるいは 3 号機由来、Type B 粒子は1 号機由来と推定されている(小野ら、2017 ほか)。特に1 号機由来の Type B 粒子については、断熱材として使われるガラスウール(ロックウール)がケイ素の供 給源であり、水素爆発によって形成されたと推定されている(佐藤、2019)。本研究で は、福島第一原発のごく近傍で採取した試料から Type B 粒子を分離し、Ge 半導体測 定装置で<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 比を測定するとともに、実体顕微鏡により形状を観察し、外見の 特徴により分類した。また特徴的な繊維状の放射性粒子およびガラスウールの加熱実 験を行い、生成プロセスを推定した。

【試料】福島第一原発 3km 圏の北西方向における、空間線量の高い領域にて土壌・土埃 等の環境試料を採取し、放射性粒子を取り出した。イメージングプレートを用いて放 射性粒子の分布を可視化し、強放射性粒子を分離した。特に 1mm 以上の粒子は、β(γ) GM サーベイメータ(TGS-146B, Hitachi Aloka) で確認し、顕微鏡下で取り出した。

【結果および考察】放射性粒子の実体顕微鏡写真を示す。外見は白色~灰色~黒色が混 合した透明あるいは半透明で、多くの粒子はガラス光沢を持ち、内部に泡構造が存在 していた。2011.3.11 時点での<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 比は約 0.96 を示した。およそ 100 Bq (<sup>137</sup>Cs 2011.3.11 時点)以上の放射能を持つ約 40 個の粒子について、写真に示すように以下の 4 種類に分類した;1. 球状 (Spherical),2. 丸みを帯びた不定形の塊 (Rounded),3. 角ば った不定形の塊 (Angular),4. 繊維状 (Fibrous)。この形状分類 No.1 が最も高温に、No.4 が比較的低温にさらされたと考えられる。発表では環境から採取した放射性粒子の加 熱実験結果を報告する予定である。



放射能は<sup>137</sup>Cs(2011.3.11 時点)

A study of the shape of radioactive particles derived from Fukushima Daiichi Reactor Unit 1 (Jikei Univ.) MINOWA H., YOSHIKAWA, H.

### 福島原発事故に由来する不溶性微粒子のレーザー加熱法による 1K05 模擬生成実験

(京大複合研)〇稲垣誠、関本俊、高宮幸一、沖雄一、大槻勤

【緒言】福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された放射性物質の一つの 形態として、放射性セシウム微粒子(radiocesium-bearing microparticle; CsMP)と呼ば れる水に不溶な微粒子が知られている[1]。CsMP は一般的なエアロゾル粒子等とは異 なり水に不溶であることから、放出時の形態を環境中で維持していると考えられる。 したがって、CsMP の性状や生成過程を解明することで、事故時の炉内状況の解明につ ながると考えられる。CsMP は、含有する Cs-134 と Cs-137 の比に特徴付けられる、 Type A・Type B の少なくとも 2 つの種類があることが知られている。このうち、Type A は福島原発 2 号機及び 3 号機に由来する、主に直径数 µm の球形の微粒子である。今回 は、Type A の CsMP を実験室で模擬的に生成し、実際の CsMP と比較することでその 生成過程の解明を目指した。

【実験】模擬ガラス生成:先行研究[2]で報告さ れている Type A-CsMP の組成を参考に、それを 再現するガラスの生成を行った。 59.7SiO<sub>2</sub>-10.6Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-9.8ZnO-8.7NaCl-6.9Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> -3.0SnO<sub>2</sub>-0.8K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>-0.7Rb<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (wt%)の割合で混 合した原料をアルミナるつぼに入れ、電気炉で 1250°C に加熱しガラスを生成した。生成過程 には直接影響しないと考えられるため、今回は 非放射性の Cs を用いた。

**模擬微粒子生成**:模擬ガラスを大強度の赤外線レ ーザーで加熱することで、模擬微粒子の生成を行

った。模擬ガラスが入ったるつぼをチャンバー内に置き、そこに上面からレーザーを照射 し、加熱されて発生した微粒子を含むフュームをインパクターで吸引して捕集した。用い たレーザーは、出力 300 W、波長 1080 nm のファイバーレーザーである。模擬微粒子生成 時の様子を図 1 に示す。捕集した微粒子を、走査型電子顕微鏡/エネルギー分散形 X 線分 光器(SEM/EDS)にて分析した。

【結果・考察】捕集した微粒子の SEM 像を図 2 に示す。実際 の Type A-CsMP に類似した、直径数 µm の球形の微粒子の 生成に成功した。また EDS による元素分析により、模擬微 粒子は模擬ガラスと同様の組成であることが確認された。 Type A-CsMP の生成過程の一つの仮説として、原料となる SiO<sub>2</sub> を多く含む物体が高温の溶融燃料に接触することで 急熱されてフュームが発生し、CsMP が生成したという過 程が考えられる。また、原料として珪藻土と海水の混合物 や玄武岩なども検討したので、詳細は講演にて報告する。

[1] K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).

[2] T. Okumura et al., Sci. Rep. 10, 1352 (2020).

Laser generation of radiocesium-bearing microparticles derived from the Fukushima nuclear accident INAGAKI, M., SEKIMOTO, S., TAKAMIYA, K., OKI, Y., OHTSUKI, T.

図 1. レーザー照射により微粒子を 含むフュームが発生する様子



図 2. 生成した微粒子の SEM 像 (繊維状のものは 捕集用フィルターの一部)

### 都市ごみ焼却飛灰・土壌混合ジオポリマーの放射性 Cs の溶出 1K06 抑制能力および耐久性の評価

(明治大院理工<sup>1</sup>、明治大理工<sup>2</sup>)〇齋藤凜太郎<sup>1</sup>、小川熟人<sup>2</sup>、小池裕也<sup>2</sup>

【緒言】福島県の対策地域内では、現在(2021年6月末)も、東日本大震災により発生 した災害廃棄物の処理が行われている。また、災害廃棄物の減容化処理により発生す る焼却灰から放射性 Cs が検出されている。放射性 Cs を含む焼却灰は、安定化処理 が義務付けられている。しかし、従来法であるセメント固化法では放射性 Cs の約 20%が溶出するという報告がある<sup>[1]</sup>。本研究では、都市ごみ焼却飛灰の安定化処理法 として、赤玉土を使用した都市ごみ焼却飛灰・土壌混合ジオポリマー固化(GS)法を 検討した。本発表では、都市ごみ焼却飛灰・土壌混合 GS 法による放射性 Cs の溶出 抑制能力および GS 体の耐久性について報告する。

【実験】福島県の一般廃棄物処分場で採取された都市ごみ焼却飛灰と赤玉土(あかぎ園 芸)を 1:1 で混合した試料に、33wt% NaOH 水溶液を固液比 1:0.5 で添加した。その 後、乾燥機を用いて、105 °C,24 時間で養生することで土壌混合 GS 体とした。溶出 試験として、環境省告示第 13 号(環告 13 号)試験およびタンクリーチング試験を 行った。一軸圧縮強度試験は、卓上型引張圧縮試験機(A&D, MCT-1150)により測定した。 紫外線劣化試験は UV 照射装置(ORG, QRU-2161-D90-02,800 W)を用い、紫外線を 24 時間照射した GS 体に対して溶出試験を行った。溶出液と残渣は、ポリスチレン製ねじ口 U 式容器 U-8 に充填し、高純度 Ge 半導体検出器で 8 時間以上 γ 線測定すること で<sup>137</sup>Cs の放射能を算出した。各溶出液と残渣

の測定結果より、溶出率を算出した。

【結果と考察】環告 13 号試験において、未処理 の都市ごみ焼却飛灰では 73.4 %の<sup>137</sup>Cs が溶出 したが、土壌混合 GS 体とすることで溶出率を 約 1%まで抑えることができた(図1)。長期含 浸試験であるタンクリーチング試験においても、 高い溶出抑制効果が確認され、固化体は長期的 な水との接触状態でも安定であることが確認さ れた。一軸圧縮強度試験の結果、 GS 体は約 0.68 MPa であった。埋め立てには、0.98 MPa の 強度が必要であり強度向上のための更なる検討 が必要である。作製した固化体に 24 時間の紫 外線照射を行い、環告 13 号試験を実施した結 果、<sup>137</sup>Cs の溶出量が 1.3 %に上昇した。また、 若干の強度低下も確認された。この他、酸性条



□: 溶出液中 <sup>137</sup>Cs

件下における耐久性の結果と、詳細な紫外線照射試験の評価について報告する。

#### 【参考文献】

[1] 杉橋直行,馬場勇介,遠藤和人:放射性セシウムを含む一般廃棄物焼却灰のセメント固化に関する研究,土木学会論文集,71,1,14-28 (2015).

**Elution suppression capability of radioactive Cs and durability of soil-mixed geopolymer solidified by mixing municipal solid waste incineration fly ash and soil** SAITO, R., OGAWA, N. KOIKE, Y.

#### Cd0.75Fe2.25O4中の局所磁気秩序とその時間変動

(金沢大院自然<sup>1</sup>、金沢大理工<sup>2</sup>)〇伊東泰佑<sup>1</sup>、小中將彰<sup>2</sup>、藤井光樹<sup>1</sup>、 佐藤渉<sup>1,2</sup>

【序論】 スピネル化合物は面心立方構造をもつアニオンの四面体位置である A サイトと八面体位置である B サイトにカチオンが占有する構造を持ち、特にその電気特性、磁気特性について研究が行われている物質である。本研究室ではスピネル化合物に対して摂動角相関法による超微細場の研究を行ってきた[1,2]。先行研究では[2]、正スピネル構造を有する CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>において、Cd の核スピン緩和が観測され、CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>は興味深い物性を示すことが示唆された。そこで、本研究では、CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>と類似した構造をもつ C d<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>に対し、Fe 位置での超微細場の測定を目的としてメスバウアー分光測定を行い、スペクトルの温度依存性ならびに、スピングラス相の時間変動を観測したので報告する。

【実験】 先行研究の試料作製にならい、目的の組成となるように Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CdO の各粉末を秤量し、乳鉢上で1時間混合した。その後錠剤成型を行い、真空中 1100℃ で 45 分間焼成した。XRD によって目的物質の生成を確認した後、試料に対し <sup>57</sup>Fe メ スバウアー分光測定を行った。

【結果と考察】 Fig. 1 に 10K で 24h 毎 に測定された Cd<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>のメスバウア ースペクトルの時間変化を示す。スペク トルは常磁性成分1成分と磁気分裂成分 3成分で解析を行った。スペクトルは長 時間をかけて磁化していくことが示唆 された。これは Cd0.75Fe2.25O4 がスピング ラスとなり、それに伴うエイジング現象 を反映していると考えられる。スピネル 構造では A-A、B-B、A-B 間で超交換相 互作用が働いているが、Bサイトがパイ ロクロア格子を構成しているため、A サ イトを非磁性の Cd イオンが占めること で格子にフラストレーションが生じる と考えられる。各パラメーターの温度依 存性については発表にて議論する。

1K07



メスバウアースペクトル (10 K)

[1] W. Sato et al., J. Appl. Phys, **120**, 145104 (2016).

- [2] W. Sato et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 316, 1289 (2018).
- Time-variation of local magnetic ordering in Cd<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub> T. Ito, M. Konaka, M. Fuji, W. Sato.

# SrTi0<sub>3</sub> 中にドープされた <sup>111</sup>Cd 位置における局所構造の熱的安 1K08 定性

(1金大人社,2金大理工,3京大複合研)

○小松田 沙也加<sup>1</sup>, 佐藤 渉<sup>2</sup>, 大久保 嘉高<sup>3</sup>

【緒言】チタン酸ストロンチウム(SrTiO<sub>3</sub>)は、半導体として光触媒材料等への応用が期待 されるペロブスカイト型酸化物の一つである。特に Ti<sup>4+</sup>サイトに対し価数が低くイオ ン半径の小さい Ga<sup>3+</sup>や In<sup>3+</sup>等の不純物元素が置換されると、ドーパント近傍に電荷補 償の酸素欠陥 V。を生じたり、結晶格子の収縮による歪みが生じることで量子構造が変 化し光触媒機能等の物性を向上させると報告されている。一方で 3 価の不純物元素が Sr<sup>2+</sup>の位置を置換しドナーとして電気伝導性向上へ寄与する可能性も示唆されている。 このように不純物元素の占有状態が SrTiO<sub>3</sub>の物性を制御する重要な因子となっており、 微量導入された不純物元素の占有サイトと果たす機能を原子レベルで調べた情報が必 要不可欠である。そこで我々は、SrTiO<sub>3</sub>に<sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>In)を微量ドープし、これをプロー ブとして用いた y線摂動角相関(TDPAC)法により SrTiO<sub>3</sub>中にドープされた<sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>In) の局在量子構造とその熱的挙動を調べた。

【実験】 試料は市販の酸化チタン(TiO<sub>2</sub>)と炭酸ストロンチウム(SrCO<sub>3</sub>)、<sup>111</sup> In 塩酸溶液を 原料とする固相反応により合成した。TiO<sub>2</sub>とSrCO<sub>3</sub>の粉末が1:1となるようにメノウ 乳鉢中で1時間混合し、得られた粉末をペレット状に錠剤成型した。そのペレットに <sup>111</sup> In 塩酸溶液を滴下し空気中1473 K で24時間焼鈍した。得られた試料を粉砕し石英 管に真空封入した後、273 K~1000 K で TDPAC 測定した。

【結果と考察】Fig.1 に室温と 1000 K における SrTiO<sub>3</sub> 中 <sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>In)の TDPAC スペクト ルを示す。SrTiO<sub>3</sub> の構成元素はすべて非磁性元素であるため、電場勾配を仮定した成

分で解析を行った。解析結果から、室温では電気 四重極周波数 $\omega_{Q1}$  = 48.9(1) Mrad/s、 $\omega_{Q2}$  = 52.1(2) Mrad/s、 $\omega_{Q3}=0$  Mrad/sの3つの成分が観測された。 立方晶ペロブスカイト構造をとる SrTiO3 中の Sr,Ti サイト位置の電場勾配は本来0 であることか ら、ω<sub>03</sub>は欠陥の無い Sr もしくは Ti サイト位置を 置換した<sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>In)由来の成分と考えられる。  $\omega_{01}, \omega_{02}$ の成分は値が 0 ではないことから、格子 間隙を占有しているか、もしくは近傍に欠陥が存 在する Sr, Ti サイトを占有している可能性が挙げ られる。1000 K では、ω<sub>03</sub>=0 Mrad/s の成分と指数 関数的に減衰する成分の2成分を観測した。指数 関数的に減衰する成分は、<sup>111</sup>Cd(←<sup>111</sup>In)プローブ 周辺の局所構造が動的に変動していることを示唆 している。発表では<sup>111</sup>Cd(←<sup>111m</sup>Cd)プローブで同 ーの試料を測定した結果を示しながら、SrTiO<sub>3</sub>の 局所構造の熱安定性についてより詳細に議論する。



Fig.1 TDPAC spectra of  $^{111}Cd(\leftarrow^{111}In)$  in SrTiO<sub>3</sub> at room temperature and at 1000 K

Thermal stability of local structure at <sup>111</sup>Cd doped in SrTiO<sub>3</sub> KOMATSUDA, S., SATO, W., OHKUBO, Y.

## 1K09

**Fe**(3,4-lutidine)<sub>2</sub>[Ag(CN)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>における γ 線由来のスピン状態変化の考察 (東邦大理<sup>1</sup>)〇北清航輔<sup>1</sup>、北澤孝史<sup>1</sup>

【緒言】Hofmann 型構造とは、Fe・Ni・Cd などの中心金属の エクアトリアル位に直線二配位の[M(CN)2](M = Ag, Au)また は平面四配位の[M(CN)4](M = Ni, Pd, Pt)が配位し、アキシャ ル位にピリジン系配位子が配位した Fig.1 のような2次元層 状構造のことである。次に、スピンクロスオーバー(SCO)現 象とは、温度や圧力・光などの要因により中心金属のスピン 状態が可逆的に変化する現象のことを指す。この現象は、 分子センサーなどへの応用が期待されている。鉄由来の SCO 現象を示す錯体において、<sup>57</sup>Fe Mössbauer 分光法に よる研究が当研究室によるものを含め数多く行われて いる<sup>1)</sup>。これは、<sup>57</sup>Fe Mössbauer スペクトルの異性体シフ ト・四極子分裂の幅・分裂数が鉄の価数、スピン状態、 鉄周辺の環境に依存するため、SCO 現象による中心鉄の 環境変化を分析することが可能であるためである。今回 私は、Fe-Ag 系 Hofmann 型錯体 Fe(3,4-lutidine)2[Ag(CN)2]2 を合成し、その物性を調べた。

【実験】錯体は直接法により合成した。まず、Fe(II)源である Mohr 塩を容器中で水に溶解し、そこに配位子、シアン化銀カリ ウム水溶液の順に滴下し、生じた沈澱を濾過した。生成物につ いては、元素分析により目的の組成であることを確認した。 得られた錯体について、磁化率測定・結晶構造解析及び<sup>57</sup>Fe Mössbauer 測定を行った。まず、磁化率測定では、Fig.2 に 示すように完全な高スピン状態から低スピン状態への2 段階のスピン転移を示した。次に、単結晶 X 線構造解析



Fig. 1.Hofmann 型構造



Fig. 3. Mössbauer スペクトル

では、この錯体は Hofmann 型二層構造をとっており、Ag - Ag 間の相互作用があり、 室温での高スピン状態、155 K での中間状態、低温側での低スピン状態の3 つの状態が あることが明らかになった。<sup>1)</sup>また、室温で X 線に長時間露光して測定を行ったところ、 格子の形状が僅かに異なる回折ピークが現れた。最後に、この錯体について室温で <sup>57</sup>Fe Mössbauer 測定を行ったところ、Fig. 3 のように 2 種類のピークが重なったやや非対称 なスペクトルが得られた。これについては、単結晶 X 線構造解析の結果と照らし合わ せると単結晶 X 線構造解析で使用した X 線(Mo K  $\alpha$  線,  $\lambda = 0.71073$  Å, E = 17.44 keV) や <sup>57</sup>Fe Mössbauer 測定で用いた  $\gamma$  線(E = 14.4 keV)により室温で中心鉄サイト周辺の局 所構造の大きな変化を伴う相転移が起きた可能性が考えられる

1) J. A. Rodríguez-Velamazán, K. Kitase, E. Palacios, M. Castro, Á. Fernández-Blanco, R. Burriel, T. Kitazawa, *Crystals.*, **2019**, *9*, 433..

Discussion of Spin transition caused by gamma-ray irradiation on Fe(3,4-lutidine)<sub>2</sub>[Ag(CN)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> KITASE, K., KITAZAWA, T.

### 可視光照射下でのケイ酸鉄ガラスによる有機染料とフェノールの 1K10 光触媒分解

(Tokyo Metropolitan University<sup>1</sup>, Eötvös Loránd University<sup>2</sup>) OKHAN,I.<sup>1</sup>,AKIYAMA,K.<sup>1</sup>,KUBUKI,S.<sup>1</sup>,KUZMANN,E.<sup>2</sup>,HOMONNAY,Z.<sup>2</sup>,SINK O,K.<sup>2</sup>

この作業の目的は、グリーンケミカル技術による有機化合物で汚染された廃水の効果的な処理の開発で す。光触媒を使用したガラスとセラミック 特性は、汚染された廃水中の有機物質の分解に適用できます。 ヘマタイト (α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)は、その光触媒特性と低いバンドギャップエネルギーのために適切な材料です。この 研究では、構造と光触媒の関係を報告します 単純なケイ酸鉄ガラスの能力。その結果、鉄を 20%含む 触媒は、両方のタイプの有機汚染物質の分解に対して優れた触媒特性を示し、6 回のリサイクル後でも メチレンブルー染料の分解に対して優れた安定性を示しました。 62×10<sup>-3</sup> min<sup>-1</sup>の最高の分解速度定数 がメチレンブルー染料で観察された。さらに、フェノールの分解は pH の影響を受けませんでした。つまり、pH を調整または再調整する必要はありません。良好なリサイクル性で可視光光触媒活性を高めるためには、 SiO<sub>2</sub> マトリックス中の α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の沈殿が不可欠であると結論付けられます。

Photocatalytic degradation of organic dyes and phenol by Iron-silicate Glass under visible light irradiation KHAN I., AKIYAMA K., KUBUKI S., KUZMANN E., HOMONNAY Z., SINKO K.

#### 水素化アルミニウムリチウム固体に注注入された<sup>57</sup>Fe(←<sup>57</sup>Mn)核のインビー 1K11 ム・メスバウアースペクトル

(1東理大院理,2電通大,3ICU,4阪大理,5金沢大理,6電機大,7理研,8放医研) ○佐藤 祐貴子<sup>1</sup>, 山田 康洋<sup>1</sup>, 小林 義男<sup>27</sup>, 久保 謙哉<sup>3</sup>, 三原 基嗣<sup>4</sup>, 佐藤 渉<sup>5</sup>, 宮﨑 淳<sup>6</sup>, 長 友 傑<sup>7</sup>, 安藤 貴俊<sup>2</sup>, 高濱 矩子<sup>2</sup>, 染 佳梨子<sup>2</sup>, 佐藤 方実<sup>2</sup>, 佐藤 眞二<sup>8</sup>, 北川 敦志<sup>8</sup>

【緒言】インビーム・メスバウアー分光法は加速器で生成した短寿命核57Mn を直接試料に注入しながら、57Mn のβ-壊変で生じた <sup>57</sup>Fe の第一励起準位から放出されるγ線をオンラインで測定してメスバウアースペクトル を得る手法であり、固体中の希薄なプローブ核の電子状態や反応生成物についての知見を得ることができる。 近年、高圧下で水素化鉄 FeH2が見出されるなど、鉄と水素の反応が着目されている。我々はこれまで水素化 リチウム LiH に<sup>57</sup>Mn を打ち込み、Li 置換位置の Fe が6 配位の水素化物を作ることを報告した[1]。一方、水 素化リチウムアルミニウム(LiAlH4)はLi<sup>+</sup>とAlH4<sup>-</sup>から構成されるイオン結晶[2]であるため、4配位の水素化物 の生成が期待される。本研究ではLiAlH4に57Mn核を注入して、核壊変で生じたFe原子のメスバウアースペ

クトルを観測し、Fe 原子の振る舞いを考察したので報告する。 【実験】実験は、放射線医学総合研究所(現 量子医科学研究所)重イ オン加速器で行った。57Mn ビームは、一次ビーム 58Fe と生成標的 Be 金属との核破砕反応により得た。電磁石で 57Mn のみを分離収束 し、<sup>57</sup>Mnの注入エネルギーを核子あたり 20~30 MeV とした。<sup>57</sup>Mn は試料内で停止し、β壊変後の<sup>57</sup>Feから放出されるγ線を平行平板電 子なだれ型y線検出器 (PPAC) で計数することでメスバウアースペ クトルを測定した。試料を取り囲むように配置したプラスチックシ ンチレータでB線を検出して、PPACで計測したメスバウアーy線との β-γ反同時計数法を用い S/N 比を向上させた。試料は LiAlH4 粉末を 圧縮成型したものを用い、温度を17~300 K に保持した。得られた 実験結果を電子密度の観点から説明するために、密度汎関数法 DFT 計算(ORCA 3.0.3)を行った。汎関数にはB3LYP、Feの基底関数には CP(PPP)、その他の原子の基底関数にはTZVPを用いた。

【結果と考察】LiAIH4に<sup>57</sup>Mn を注入した<sup>57</sup>Fe インビーム・メスバウア



図1.LiAlH4に注入されたFe原子のインビーム・メ



図 2. 成分 A,B の面積強度の温度変化

ースペクトル(17 K)を図1に示す。強度の大きい成分Aと小さい成 分Bの二組のダブレットで解析し、 $A(\delta = -0.22 \text{ mm/s}, \Delta E_0 = 0.65 \text{ mm/s})$ 、 $B(\delta = -1.5 \text{ mm/s}, \Delta E_0 = 1.1 \text{ mm/s})$ で あった。一方、DFT 計算結果と得られたメスバウアーパラメーターとを合わせると、成分A,Bは、それぞれ AI 原子または Li 原子を Fe 原子が置換したことが明らかとなった。スペクトルの2 つの成分の面積強度から 求めた無反跳分率の温度変化を図2に示す。デバイ温度としてAサイトでは194K、Bサイトでは117Kとい う値が得られた。デバイ温度の文献値は460Kである。このことは、Feと周囲のLiAlH4との局所的な結合は、

母物質である LiAlH4 の結合よりも弱いことを示唆している。特に、A サイトと B サイトの間でもデバイ温度 に差が生じており、AサイトのFeの方が、比較的周囲と強く結合していることを具体的なデータで示した。 [1] T. Nagatomo, et al., Hyp. Int., 205, (2012), 125-128.

[2] J.S.Pizey, "Lithium Aluminium Hydride", Horwood-Wiley (1977)

[3] B.Bonnetot, et al., J. Chem. Thermodynamics, 11, (1979), 1197-1202

In-beam Mössbauer spectroscopy of <sup>57</sup>Mn implanted into LiAlH<sub>4</sub>

SATO, Y., YAMADA, Y., KOBAYASHI, Y., KUBO, K., MIHARA, M., SATO, W., MIYAZAKI, J., NAGATOMO, T., ANDO, T., TAKAHAMA, N., SOME, K., SATO, M., SATO, S., KITAGAWA, A.

## 固体水素マトリックス中の Fe の化学状態 1K12

(電通大<sup>1</sup>、東理大理<sup>2</sup>、ICU<sup>3</sup>、阪大院<sup>4</sup>、金沢大院<sup>5</sup>、理研仁科セ<sup>6</sup>、東 大総文<sup>7</sup>、QST HIMAC<sup>8</sup>) 佐藤方実<sup>1</sup>、〇小林義男<sup>1</sup>、山田康洋<sup>2</sup>、久保 謙哉<sup>3</sup>、三原基嗣<sup>4</sup>、佐藤渉<sup>5</sup>、長友傑<sup>6</sup>、岡澤厚<sup>7</sup>、喜地雅人<sup>1</sup>、濱野健 太郎<sup>1</sup>、佐藤眞二<sup>8</sup>、北川敦志<sup>8</sup>

【緒言】次世代のエネルギー源として注目される水素の安定的な利用には、水素と水素貯 蔵材料を構成する元素間の化学的な知見が不可欠である。貯蔵材料としては鉄などの安価 で豊富な金属の応用が期待されているが、鉄の水素化物についての知見は極めて少ない。 本実験では、固体水素マトリックスに短寿命不安定核<sup>57</sup>Mn (*T*<sub>1/2</sub>=89 秒)を注入後、β壊変 で生成した<sup>57</sup>Fe のインビーム・メスバウアースペクトルを測定した。得られたメスバウア ーパラメータと DFT 計算より、Fe 原子の電子状態とその配位環境に関する知見を得たの で報告する。

【実験】実験は、QST HIMAC 2 次ビームラインで行なった。クライオスタットのコールド ヘッドにターゲットセルを固定して十分に冷却した後、Liq. N<sub>2</sub> で予冷した高純度 H<sub>2</sub> ガス を導入して固体水素を作製した。

短寿命核 <sup>57</sup>Mn は、<sup>58</sup>Fe ビームと Be 標的の入射核破砕反応で生成 し、適当な厚さの減速材を通過さ せて固体水素に直接注入した。 【結果】得られた<sup>57</sup>Fe インビー ム・メスバウアースペクトルをそ れぞれ Fig. 1 に示す。スペクトル lt, S1 ( $\delta = -0.66$  mm/s), D1 ( $\delta$  $= -1.29 \text{ mm/s}, \Delta E_0 = 2.59 \text{ mm/s})$ D2 ( $\delta = -0.53$  mm/s,  $\Delta E_0 = 2.43$ mm/s)の3成分で解析した。密度 汎関数計算の結果も合わせて各成 分の化学種は、(a) [Fe(H<sub>2</sub>)<sub>2</sub>]<sup>+</sup>、(b) [HFeH]<sup>+</sup>、(c) [Fe(H<sub>2</sub>)<sub>6</sub>]<sup>3+</sup>と帰属でき た。最適化した化学種の構造を Fig.2 に示す。3つの化学種の生成

機構について議論する。



Fig. 1. <sup>57</sup>Fe in-beam Mössbauer spectrum for <sup>57</sup>Mn implanted into solid hydrogen at 7 K.



Fig. 2. Optimized geometries of (a)  $[Fe(H_2)_2]^+$ , (b)  $[HFeH]^+$ , and (c)  $[Fe(H_2)_6]^{3+}$  using B3LYP/TZVP+ TZV/J. CP(PPP) applied for an iron atom.

Chemical states of Fe atoms in solid hydrogen

SATO, M., KOBAYASHI, Y., YAMADA, Y., KUBO, M. K., MIHARA, M., SATO, W., NAGATOMO, T., OKAZAWA, A., KIJI, M., HAMANO, K., SATO, S., KITAGAWA, A.

#### アクチノイド核を標的としたアイソマー核分光

(九大理<sup>1</sup>, 原研 ASRC<sup>2</sup>, QST<sup>3</sup>, 阪大 RCNP<sup>4</sup>, KEK<sup>5</sup>)
○杉山晃一<sup>1</sup>, 郷慎太郎<sup>1</sup>, 富松太郎<sup>1</sup>, 甲斐民人<sup>1</sup>, 長江大輔<sup>1</sup>, 石橋優一<sup>1</sup>, 松永壮太郎<sup>1</sup>, 永田優斗<sup>1</sup>, 西畑洸希<sup>1</sup>, 鷲山広平<sup>1</sup>, 坂口聡志<sup>1</sup>, 森田浩介<sup>1</sup>, Riccardo Orlandi<sup>2</sup>, 西尾勝久<sup>2</sup>, 牧井宏之<sup>2</sup>, 廣瀬健太郎<sup>2</sup>, 伊藤由太<sup>2</sup>, 洲嵜ふみ<sup>2</sup>, 佐藤哲也<sup>2</sup>, 塚田和明<sup>2</sup>, 浅井雅人<sup>1,2</sup>, 静間俊行<sup>3</sup>, 井手口栄治<sup>4</sup>, Tung Thanh Pham<sup>4</sup>, 庭瀬暁隆<sup>5</sup>

超重核領域には、人類未踏の原子核領域「安定の島」の存在が予言されている。この 領域の原子核を直接合成することはできないが、その性質を議論するにあたり、アク チノイド核の核構造を調べることが考えられる。アクチノイド核は系統的に四重極変 形が発達していることが知られており、安定の島に現れる軌道の一部がアクチノイド 核の励起状態に現れると考えられている<sup>[1]</sup>。そこで、アクチノイド核を対象とした核分 光研究を行なうことにより、超重核の安定性への指標を得ることを目指している。

本研究では、原子力機構タンデム加速器施設にて、<sup>18</sup>O + <sup>248</sup>Cm の多核子移行反応を 用いたインビーム γ 線核分光実験を行なった。アイソマースコープ法<sup>[2]</sup>と呼ばれるア

イソマーに特化した実験手法を用いる ことにより、バックグラウンドの少ない 測定を実現した。実験セットアップの概 略図を図1に示す。タングステン(W)シ ールドにより、ターゲット付近から発生 するバックグラウンドγ線を遮蔽した。 Si 検出器アレイによりビーム由来の粒 子の ΔE-E を測定することで粒子識別を し、核子移行反応の分類を行った。脱励 起γ線は Ge 検出器、LaBr 検出器を用い て測定した。本講演では実験で測定され たアイソマー状態について報告する。

1K13



[1] T. Ishii et al., Physical Review C 78, 054309 (2008)

[2] T. Ishii et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 395, 210-216 (1997)

Isomer spectroscopy using actinide targets SUGIYAMA, K., GO, S., TOMIMATSU, T., KAI, T., NAGAE, D., ISHIBASHI, Y., MATSUNAGA, S., NAGATA, Y., NISHIBATA, H., WASHIYAMA, K., SAKAGUCHI, S., MORITA, K., ORLANDI, R., NISHIO, K., MAKII, H., HIROSE, K., ITO,Y., SUZAKI, F., SATO, T. K., TSUKADA, K., ASAI, M., SHIZUMA, T., IDEGUCHI, E., PHAM, T. T., NIWASE, T.

## 1K14 MRTOF とα-TOF 検出器による、α崩壊に相関した精密質量測定法の開拓 (高工研<sup>-1</sup>、理研仁科セ<sup>-2</sup>、九大理<sup>-3</sup>、香港大<sup>-4</sup>、IBS<sup>5</sup>、IMP<sup>6</sup>、中国科学院 大<sup>-7</sup>、蘭州大<sup>-8</sup>、阪大理<sup>-9</sup>、山形大<sup>-10</sup>、原子力機構<sup>-11</sup>、九大超重元素セ<sup>-12</sup>、 ANU<sup>13</sup>, NMSU<sup>14</sup>, 暨南大<sup>-15</sup>)○庭瀬暁隆<sup>-1,2,3</sup>、和田道治<sup>-1</sup>、P. Schury<sup>1</sup>、P. Brionnet<sup>2</sup>、S. D. Chen<sup>4</sup>、橋本尚志<sup>-5</sup>、羽場宏光<sup>-2</sup>、平山賀一<sup>-1</sup>、D. S. Hou<sup>6,7,8</sup>、飯村俊<sup>-9,2,1</sup>、石山博恒<sup>-2</sup>、石澤倫<sup>-10,2</sup>、伊藤由太<sup>-11</sup>、加治大哉<sup>-2</sup>、 木村創大<sup>-2</sup>、J. Liu<sup>4</sup>、宮武宇也<sup>-1</sup>、J. Y. MOON<sup>5</sup>、森本幸司<sup>-2</sup>、森田浩介 <sup>3,2,12</sup>、長江大輔<sup>-12,3</sup>、M. Rosenbusch<sup>-1</sup>、高峰愛子<sup>-2</sup>、田中泰貴<sup>-13</sup>、渡辺裕 <sup>-3</sup>、H. Wollnik<sup>14</sup>、W. Xian<sup>4</sup>、S.X. Yan<sup>15</sup>

原子質量は原子核の持つ最も基本的かつ重要な物理量であり、エネルギーと質量の 等価性 *E=mc<sup>2</sup>*のために、その原子のもつ全エネルギーに相当する。原子質量は核種の 安定性を決定し崩壊を支配するため、原子核の質量測定研究は核の性質を理解するの に極めて重要である。我々のグループでは、多重反射型飛行時間測定式質量分光器 MRTOF-MS [1]を用いて、重核の精密質量測定を行っている。近年、飛行時間測定用の 検出器に、α線検出用の Si 検出器を組み込んだ α-TOF[2]の開発に成功。重核の飛行時 間とそれに続くα崩壊事象の相関測定が可能となった。

α-TOFを搭載した MRTOF による成果として、最近我々は超重核<sup>257</sup>Dbの直接質量測 定に成功した[3,4]。1日に 2~3 事象の稀なイベントであったが、飛行時間信号はα崩 壊による標識付けによって背景事象から弁別され、確度の高い質量測定を実現した。 α-TOF は崩壊特性の異なる核種は勿論のこと、同一核種においても異なった崩壊特性 を持つ基底状態と異性体を分別することができるため、各準位に起因した質量と崩壊 の相関測定による、核分光研究の実現性がある。

本研究では、α-TOF を搭載した MRTOF による核分光研究の実証実験として、 <sup>51</sup>V+<sup>159</sup>Tbの融合反応によって合成された<sup>206,207</sup>Raの質量とα崩壊の相関測定を行った。 <sup>207</sup>Raは崩壊様式の異なる異性体を有しているため、α-TOF によって標識付けられた崩 壊事象から準位を弁別して基底状態と励起状態それぞれの質量を決定し、両準位の質 量差から異性体の励起エネルギーを決定した。また飛行時間事象とα崩壊事象の数か ら、<sup>207m</sup>Raのα分岐比を決定。部分半減期からα崩壊の換算幅を導出し、これらの系統 性から<sup>207m</sup>Raのスピン・パリティを決定した。本講演では、実験の詳細について報告 を行う。

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

[1] T. Niwase, et al., Nucl. Instrum. Methods., Phys., A, 953 (2020) 163198.

[3] P. Schury, et al., arXiv:2006.02605.

[4] 庭瀬 暁隆, 博士学位論文, 九州大学, http://hdl.handle.net/2324/4474932

Investigation of alpha-decay-correlated mass measurement using an  $\alpha$ -TOF detector equipped MRTOF-MS system.

NIWASE, T., WADA, M., SCHURY, P., BRIONNET, P., CHEN, S., HASHIMOTO, T., HABA, H., HIRAYAMA, Y., HOU, D. S., IIMURA, S., ISHIYAMA, H., ISHIZAWA, S., ITO, Y., KAJI, D., KIMURA, H., LIU, J. J., MIYATAKE, H., MOON, J. Y., MORIMOTO, K., MORITA, K., NAGAE, D., ROSENBUSCH, M., TAKAMINE, A., TANAKA, T., WATANABE, Y, X., WOLLNIK, H., XIAN, W., YAN, S. X.

#### 超重元素イオンビーム生成に向けた

EBGP(Electron Beam Generated Plasma)イオン源の開発
 (茨城大院理工<sup>1</sup>、原子力機構先端研<sup>2</sup>、徳島大院保健<sup>3</sup>、茨城大理<sup>4</sup>)
 ○青木涼太<sup>1,2</sup>、佐藤哲也<sup>1,2</sup>、大谷怜<sup>2,3</sup>、内馬場優太<sup>2,4</sup>、伊藤由太<sup>2</sup>、
 浅井雅人<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>2</sup>

原子番号100を超える元素を超重元素と呼ぶ。超重元素は、加速器を用いた核反応によって合成されるが、短寿命・低生成量であるため、一度に一個の原子しか扱うことができない。このような実験の難しさから、その化学的性質はよくわかっていない。我々の研究グループでは、これまでに重アクチノイドを対象に表面電離イオン源を用いてそれらのイオン化エネルギーの測定に成功した<sup>1,2)</sup>。本研究では、より広い範囲の超重元素を対象に、そのイオンビームを物理・化学研究に応用するため、短寿命単一原子に適用可能な新しいイオン源の開発をおこなった。

新規のイオン源として、電子ビーム誘起プラズマ (Electron Beam Generated Plasma, EBGP)<sup>3)</sup>法を採用した。 EBGP 法では、イオン化に電子衝撃を用いることによ り、表面電離型と比較してイオン化エネルギーのより大 きな原子・分子のイオン化が期待できる。一方、対象と する超重元素同位体の合成には、Cm や Cf といったア クチノイド標的を用いるために、標的とイオン源を分離 し、核反応生成物を迅速に搬送する必要性があることか ら、イオン源とガスジェット搬送法を組み合わせた。

本研究で構築したガスジェット結合型 EBGP イオン 源の模式図を図1に示す。本イオン源では、中央のグリ ッド構造を持つ Anode 電極を Cathode 電極が覆い、さら

に Cathode 電極を 2 つの Filament が取り囲む構造となっている。Anode 電極内がイオン化 室となっており、図中右からガスジェット搬送によって、核反応生成物が導入される。イ オン源動作時には、Filament からの電子衝撃によって Cathode 電極を加熱することにより、 Cathode 電極内表面から熱電子を発生させる。発生した熱電子を Cathode-Anode 間の電位 差によって Anode に向かって加速し、グリッドを通して電極内へと入射することで、Anode 内の原子・分子をイオン化する。

実験では EBGP イオン源および専用テストベンチを構築し、イオン源の安定稼働条件を 調べた。その結果、オフラインで安定してイオンビームが引き出されていることを確認で きた。発表では、EBGP イオン源のイオンビーム発生のための最適動作条件ならびに今後 の展望について報告する。

【参考文献】

1K15

- 1) T. K. Sato et al. Nature 520 (2015) 209.
- 2) T. K. Sato et al. J. Am. Chem. Soc. 140 (2018) 14609.

3) J. M. Nitschke, Nucl. Instrum. Method A 236 (1985)1-16.

Development of an EBGP (Electron Beam Generated Plasma) ion source for superheavy element ion beam generation

AOKI,R., SATO,T. K., OTANI,R., UCHIBABA,Y., ITO,Y., ASAI,M., TSUKADA,K., NAGAME,Y.



図 1. EBGP イオン源概略図

### 106 番元素シーボーギウムの揮発性研究に向けた 6 族元素オキシ 1K16 塩化物の等温ガスクロマトグラフ挙動

(徳島大<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、茨城大<sup>3</sup>、新潟大<sup>4</sup>)〇大谷怜<sup>1,2</sup>、佐藤哲也<sup>2,3</sup>、 青木涼太<sup>2,3</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、伊藤由太<sup>2</sup>、内馬場優太<sup>2,3</sup>、阪間 稔<sup>1</sup>、後藤真一<sup>4</sup>、久住健介<sup>4</sup>、高村怜士<sup>4</sup>、西尾勝久<sup>2</sup>、牧井宏之<sup>2</sup>、Riccardo Orlandi<sup>2</sup>、永目諭一郎<sup>2</sup>

【緒言】超アクチノイド元素では、強い相対論効果の影響により、同族の軽い元素と比較して、化学的性質が異なる可能性がある。本研究では106番元素シーボーギウム(Sg)オキシ塩化物の揮発性に着目した。唯一の先行研究では、Sgの統計に乏しく信頼性に欠ける上、6族元素は複数のオキシ塩化物が揮発性を持つにも関わらず、化学形も曖昧なまま議論されている[1]。今回、Sgを模擬して、同族元素である Mo 及び W の揮発性オキシ塩化物の等温ガスクロマトグラフ挙動を調べたので報告する。

【実験】等温ガスクロマトグラフ装置[2]は反応室、等温カラムおよびクラスタリング槽から構成される。オフライン実験では<sup>252</sup>Cf槽に直結して使用した(図1)。<sup>252</sup>Cfの自発核分裂片<sup>104</sup>Mo( $T_{1/2} = 60$  s)をキャリアガスで反応室に搬送し、反応ガスN<sub>2</sub> + O<sub>2</sub>/SOCl<sub>2</sub> と反応させて揮発性化合物を合成する。生成したオキシ塩化物は、等温カラムを通過したのち、N<sub>2</sub>/KClガスジェット搬送法によって捕集系へと運ばれ、放射線測定が行われる。カラム温度に対する収率変化を取得することで、等温ガスクロマトグラフ挙動を得る。オンライン実験では本装置を核反応標的槽に結合し、<sup>nat</sup>Tb(<sup>19</sup>F, 5n)反応により<sup>173</sup>W( $T_{1/2} = 7.6$  min)を合成して、同様に等温ガスクロマトグラフ挙動を調べた。

【結果】N<sub>2</sub>(80%) + O<sub>2</sub>(20%)/SOCl<sub>2</sub>を反応ガスとして、各種条件で実験を行った。その結果、<sup>104</sup>Moでは反応室温度が1000℃の場合と、800または600℃の場合とで挙動が異なった。これは、それぞれ揮発性の異なるオキシ塩化物が生成されたためと考えられる。 一方、<sup>173</sup>Wでは反応室温度に関わらず、同一のクロマトグラフ挙動が得られた。





Isothermal gas chromatographic behavior of oxychlorides of group-6 elements for volatility study of seaborgium (Sg, Z = 106)

OTANI, R., SATO, T. K., AOKI, R., ASAI, M., TSUKADA, K., ITO, Y., UCHIBABA, Y., SAKAMA, M., GOTO, S., KUZUMI, K., TAKAMURA, R., NISHIO, K., MAKII, H., ORLANDI, R., NAGAME, Y.,

## ポスター発表

# 9月22日(水) 1P01-1P13

### フッ化水素酸系における Nb, Ta の TOMA 担持樹脂に対する吸着挙動 (新潟大院自然)○角田弘貴、後藤真一

【緒言】超重元素の化学研究において、Rf や Db に対してはイオン交換や溶媒抽出によ る液相化学実験が行われてきた。Db のフッ化物錯体に関する実験では1条件のみの結 果しか得られていない場合が多く、また、同族元素 Nb, Ta との関係が矛盾している。 Aliquat 336 担持樹脂を用いた固相抽出の研究が精力的に行われているものの、Nb, Ta に対してもいまだに実験結果から化学形が確定できていないのが現状である。そこで 本研究では、系を単純化するために Aliquat 336の主成分である Trioctylmethylammonium chloride(TOMA-Cl)を抽出剤として用いることとし、TOMA 担持樹脂に対する Nb,Ta の フッ化物錯体の詳細な吸着挙動から化学形について明らかにしようとしている。

【実験】これまで、Aliquat 336 などの担持樹脂に対しては、担持量は求められていたものの、有効に機能する抽出剤の量は調べられていなかった。そこで、TOMA 担持樹脂に含まれている Cl を ClO₄<sup>-</sup>や NO₃<sup>-</sup>と置換して、水相中の Cl<sup>-</sup>を定量することで、陰イオンとの交換に機能する交換基の量を求めることとした。マイクロチューブに約 7 mg の40 wt% TOMA 担持樹脂を加え、種々の濃度に調製した NaClO₄ あるいは NaNO₃ 水溶液400 µL を加えた。25 ℃、1500 rpm で振とうした後、遠心分離機により水相と樹脂を分離し、水相 200 µL を分取してチオシアン酸水銀(II)法により Cl を定量した。

また、Nb, Taのフッ化物錯体の TOMA 担持樹脂への吸着挙動を詳細に調べるため、 水相中に種々の濃度で ClO<sub>4</sub> あるいは NO<sub>3</sub> を共存させて交換基をマスクすることで、 交換基量を変化させることとした。2.7, 10, 27 Mの HFに対して、NaClO<sub>4</sub> あるいは NaNO<sub>3</sub> を加えて種々の陰イオン濃度の水相溶液を調製した。<sup>95g</sup>Nb および <sup>179</sup>Ta トレーサを加 えて 400 µL 分取し 40 wt% TOMA 担持樹脂約 12 mg とともにシリンジレスフィルタ付 きバイアルに加えた。25 °C、1500 rpm で振とう後濾過し、水相 250 µL を分取して高純 度ゲルマニウム半導体検出器を用いて <sup>95g</sup>Nb の γ線および <sup>179</sup>Ta の X 線を測定した。

【結果と考察】種々の濃度のNaClO4あるいはNaNO3水溶液を用いてTOMA 担持樹脂から得られるCl の量を測定した結果を図1に示す。破線は、水相中のClO4 や NO3 が

担持樹脂中の CI-とすべて交換したと仮 定したときの CI-の量の変化を表したも のである。交換に関与する CI の総量は担 持量の約 70%であることが分かった。ま た、今回の条件では、CIO4-と NO3-とで CI-との交換に差は認められなかった。陰 イオン濃度の薄い範囲では、存在する陰 イオン濃度以上の CI-が得られたが、この 理由については現在検討中である。発表 では Nb, Ta トレーサを用いた抽出実験の 結果について議論する。



Adsorption behavior of Nb and Ta on TOMA-supported resin in hydrofluoric acid TSUNODA, H., GOTO, S.
# At が形成するハロゲン結合の解離エネルギー測定に向けた Atl の 1P02 生成条件と揮発性の分析

(阪大院理1、阪大放射線機構2、阪大医3、理研仁科セ4、大阪青山大

学<sup>5</sup>) 〇床井健運<sup>1</sup>、豊嶋厚史<sup>2</sup>、大江一弘<sup>3</sup>、角永悠一郎<sup>2</sup>、

寺本高啓<sup>2</sup>中川創太<sup>1</sup>、吉村崇<sup>2</sup>、笠松良崇<sup>1</sup>、羽場宏光<sup>4</sup>、王洋<sup>4</sup>、篠原厚<sup>2,5</sup>

【緒言】アスタチン(At)はハロゲン族に属する元素であり、その化学的性質は不明な点 が多い。一方、At は他のハロゲン族元素と異なり、水溶液中で安定な陽イオン種を取 るなど、基礎化学的な興味が持たれている。ハロゲン族元素は電子供与帯となるルイ ス塩基との間に引力が働くことがある。この引力をハロゲン結合と呼ぶ。ハロゲン結 合は方向依存性の強い分子間相互作用と知られ、ハロゲン結合の強さは原子番号が大 きいほど強くなるが、At は相対論効果の影響でハロゲン結合の強さが減少し、ヨウ素 と同程度になると指摘されている[1,2]。本研究の最終目標は、気相において[At-ルイス 塩基]錯体の熱分解や、ルイス塩基担持カラムを用いたガスクロマトグラフィー実験を 行い、At とルイス塩基間のハロゲン結合の解離エネルギー測定を行い、結合に対する 相対論効果の影響を明らかにすることである。気相で実験を行うことで、溶媒和など がない純粋な分子同士の相互作用の情報が得られる。本研究では、先行研究でハロゲ ン結合が示唆され[3]、気相での実験に向け揮発性が高いことが期待される AtI を選択 した。気相で実験へ向けて、AtI は溶液中で生成するため、まず溶液中で AtI を生成し、 Atl を揮発させて実験を行う。本研究では、基礎検討として、HPLC を用いて溶液中で の AtI の生成条件について調べた。また、AtI の温度に対する揮発率についての測定を 行った。

【実験】AtI の生成法は先行研究を参考にした[3]。実験に使用した<sup>211</sup>At は、RIKEN や QST で照射された Bi 標的から<sup>211</sup>At を乾式分離し、水溶液の状態で使用した。乾式分 離後の At 溶液を 0.1 M HClO<sub>4</sub>に混合し、さらに NaI を加えてヨウ化物イオン濃度を[I<sup>-</sup>] = 10<sup>-5</sup>-10<sup>-1</sup> M とした。この試料について 5C<sub>18</sub>-AR300 逆相カラムを用いた HPLC 分析を 行い、ラジオクロマトグラムから AtI の生成を観測した。揮発実験は AtI サンプルを 1.5 mL ポリプロピレン容器に 500  $\mu$ L 分注し、ドライバスで所定の温度(70-100 °C)で一 定時間加熱した。加熱後、サンプルの残留放射能を測定することで揮発率を算出した。

【結果】HPLCの結果では I 濃度に依存したピークの変化が観察された。I が 10<sup>-2</sup> M 以上の条件では、ラジオクロマトグラムの主要なピークは一つであり、先行研究から AtI<sup>2</sup> と考えられる[3]。I が 10<sup>-2</sup> M 以下の条件では、ラジオクロマトグラムのピークは複数存在し、10<sup>-2</sup>M 以下で AtI の生成が考えられる。AtI の生成条件の詳細な考察と AtI の 揮発率については、討論会で報告する。

【参考文献】[1] N. Galland, et al., New J. Chem., 42, 10510-10517,2018.

[2] E. Rossi, et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 22, 1897-1910,2020.

[3] N. Guo, et al., Nat. Chem. 10, 428-434, 2018.

Analysis of formation conditions and volatility of AtI for measurement of dissociation energy of halogen bonds formed by At

TOKOI, K., TOYOSHIMA, A., OOE, K., KADONAGA,Y., TERAMOTO, T., NAKAGAWA, S., YOSHIMURA, T., KASAMATSU, Y., HABA, H., WANG, Y., SHINOHARA, A.

#### 1P03 ノーベリウムの化学研究に向けた Ca, Sr, Ba, Ra のクラウンエーテル による固液抽出

(1 阪大院理、2 京大複合研, 3 阪大放射線機構, 4 大阪青山大)○渡邉瑛 介<sup>1</sup>, 笠松良崇<sup>1</sup>, 中西諒平<sup>1</sup>, 大高咲希<sup>1</sup>, 高宮幸一<sup>2</sup>, 篠原厚<sup>3,4</sup>

【緒言】

ノーベリウム(No)は原子番号 102 番のアクチノイド元素である。過去のイオン交換実験 からは、No は Ca と Sr と類似した化学挙動を取ると報告されている」。一方で我々のグル ープでは、No のみが NH<sub>3</sub>と錯イオンを形成するなど、アルカリ土類金属とは異なる性質 を見出しており<sup>2</sup>、さらなる研究が求められている。Ca<sup>2+</sup>と Sr<sup>2+</sup>との化学挙動に明確な差が ある反応系を用いることで No<sup>2+</sup>のより詳しい化学的性質の解明につながることが期待さ れる。本研究は、クラウンエーテルが担持された Sr レジンによる固液抽出系において、酸 の種類を変えることで二族元素の抽出選択性の傾向が変わること<sup>3</sup>に着目した。抽出され る包摂錯体の分子構造の変化に伴う分配係数の変化を系統的に調べることで、No のもつ電 子状態を調べることが目標である。No の研究に用いられる<sup>255</sup>No は半減期 3.5 分の人工放 射性同位元素であるため、迅速に抽出平衡に到達する必要がある。本研究では、バッチ法 に基づき、Ca, Sr, Ba, Ra の固液抽出実験を行い、No の化学実験への適用可能性を調べた。 【実験】

放射性トレーサー<sup>45</sup>Ca, <sup>85</sup>Sr, <sup>133</sup>Ba, <sup>226</sup>Ra を含む硝酸または塩酸溶液と、Sr レジン 50-70 mg とを接触させ、1, 30, 1440 分間振とうした。遠心分離により液相のみを取り出し、各核種 の  $\gamma$ 線を Ge 半導体検出器により測定した。樹脂を含まないサンプルも作成し、間接的に 樹脂に吸着した金属イオンの量を算出し、分配係数  $K_d$ を求めた。

【結果と考察】

Figure 1 に振とう時間を変化させたときの K<sub>d</sub>値の変化の様子を示す。振とう時間 1 分で K<sub>d</sub>値が一定になっていることから、抽出平衡に 1 分以内で到達していることが示唆された。

また得られた K<sub>d</sub>値は先行研究<sup>3</sup>とよく一致し ていた。塩酸系についても同様に速い平衡到 達が観測され、Sr レジンを用いた固液抽出系 が No 実験に適用可能であることが示唆され た。当日の発表では、量子化学計算に基づく 理論研究のほか、抽出化学種の分光分析につ いても併せて報告する。

- 1. R. Silva et al., Inorg. Chem. 1974, 13, 2233.
- 二宮秀美,大阪大学大学院理学研究科修 士論文(2019).
- D. V. Filosofov et al., Solv. Extr. Ion Exch. 2015, 33, 496.



Figure 1. Sr レジン/3.5 M HNO3 系における Sr, Ba, Ra の分配係数の振とう時間依存性

Solid-liquid extraction of Ca, Sr, Ba, Ra using crown ether towards the study of element 102, No WATANABE, E., KASAMATSU, Y., NAKANISHI, R., OTAKA, S., TAKAMIYA, K., SHINOHARA, A.

# トリウム標的への Li イオン照射によって生じる <sup>236</sup>U の ICP-MS に 1P04 よる定量

 (金沢大院自然<sup>1</sup>、筑波大数理<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>、金沢大理工<sup>4</sup>)
 ○永井 歩夢<sup>1</sup>、寺西 翔<sup>1</sup>、坂口 綾<sup>2</sup>、中島 朗久<sup>2</sup>、羽場 宏光<sup>3</sup>、 横北 卓也<sup>3</sup>、南部 明弘<sup>3</sup>、横山明彦<sup>4</sup>

【序論】核実験等のため環境中に微量に存在する<sup>237</sup>Np(*T*<sub>1/2</sub>=2.1×10<sup>6</sup> y)は放射能による 測定が困難であり、加速器質量分析(AMS)での定量の場合にはそのためのトレーサーが 必要である。著者らの研究グループでは、トレーサーの候補である<sup>236g</sup>Np(*T*<sub>1/2</sub>=1.5×10<sup>5</sup> y)の製造を<sup>232</sup>Th+<sup>7</sup>Li 核反応によって試みている。<sup>236g</sup>Np をトレーサーとして利用する 場合、副生成物である準安定状態の<sup>236m</sup>Np が壊変し生成する<sup>236</sup>Pu,<sup>236</sup>U が質量分析の 妨害となる。また<sup>232</sup>Th ターゲット中の不純物である<sup>235</sup>U が中性子を吸収することでも <sup>236</sup>U が生成され、妨害核種となりうる可能性が考えられる。このようなトレーサー核 種の同重体は、ppt レベルの検出限界で高精度な同位体存在比分析が可能である高分解 能 ICP 質量分析計(HR-ICP-MS)によって定量可能と考えた。本研究では核反応により製 造される U 同位体と Th ターゲット中の U 同位体について HR-ICP-MS による定量を目 的とした。また、Au をモニターとして照射中に発生する中性子を見積もり、<sup>236</sup>U の生 成量について検討した。

【実験】理化学研究所 AVF サイクロトロンにて<sup>232</sup>Th ターゲットに 43 MeV<sup>7</sup>Li イオンを 照射し UTEVA レジンを用いて U 成分の化学分離を行った。また、照射室内の中性子 の影響を調べるため<sup>7</sup>Li 照射中のビームコース末端に、中性子束のモニターとして Au 金属箔 (220.02 mg),<sup>236</sup>U 生成の確認のために U 電着試料 (0.87 mg)を設置した。照射 後 Au 箔について Ge 半導体検出器を用いた γ線分光法により中性子束を求めた。また、 U 電着試料は濃硝酸で溶解し溶液中の U 濃度が 0.1, 1 ng/g になるように希釈し HR-ICP-MS を用いて測定した。検量線溶液には XSTC-13 (SPEX 社)を用いた

【結果】Au 箔から<sup>196</sup>Au, <sup>198</sup>Au の γ 線ピークが観測されそれぞれの放射能から熱中性子 束 6.54×10<sup>5</sup> s<sup>-1</sup> 高速中性子束 1.55×10<sup>7</sup> s<sup>-1</sup> の結果を得た。また、 Table 1 に示した HR-ICP-MS による U 電着試料の同位体測定結果から、照射前の<sup>235</sup>U の存在比は約0.7 % とほぼ天然存在比であるのに対し、照射場に置いた U 電着試料は<sup>235</sup>U が熱中性子を吸 収し<sup>236</sup>U が生成されることを確認した。この値はモニターによる熱中性子束により推

定される<sup>236</sup>U 生成量と誤差の範囲で 一致した。本発表では、Th ターゲッ トの ICP-MS 測定結果についても示 し、<sup>235</sup>U からの<sup>236</sup>U 生成量を推定す る。

Table 1 U 電着試料中の U 同位体比

	照射試料 <b>1</b>	照射試料2	未照射試料
235/238	0.62~0.82	0.61~0.84	0.63~0.85
236/238	0~5×10 <sup>-4</sup>	1~7×10 <sup>-4</sup>	N.D

Determination of <sup>236</sup>U in a Th target irradiated with Li ions by ICP mass spectrometry NAGAI, A., TERANISHI, K., SAKAGUCHI, A., NAKAJIMA, A., HABA, H., YOKOKITA, T., NANBU, A., YOKOYAMA, A.

#### 月間降水中トリチウム濃度の全国調査

### 1P05

#### (日本分析センター)○飯田 素代、大槻 孝之、吉田 森香、新田 済、 岸本 武士、磯貝 啓介

#### 【緒言】

日本分析センターでは、環境放射能水準調査(原子力規制庁委託)の一環として、原子力 発電所、再処理施設等周辺の放射線監視結果との比較検討に資するため、むつ市、福島市、 千葉市及び京都市で採取した月毎の降水中のトリチウム濃度及び降下量を調査している。上 記4地点におけるトリチウム濃度及び降下量の経年変化と月間降水量との関係、さらに千葉 市におけるトリチウム降下量とBe-7降下量との相関について考察した。

#### 【方法】

#### 1.試料採取

国内4か所(むつ市、福島市、千葉市及び京都市)に設置した降水採取装置を用いて、1 ヶ月毎に降水を採取した。

2.分析

放射能測定法シリーズ 9「トリチウム分析法」(平成 14 年改訂)の電解濃縮法に準じた。 なお、降水量が 0.6L 以下の月については蒸留法を行った。

測定はアロカ株式会社製の低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタを使用した。

【結果・考察】

トリチウム濃度と降下量の結果を表1に示す。全地点において、春先にトリチウム濃度が 高くなる傾向を示した。

千葉市のトリチウム降下量と Be-7 降下量(2015.4 - 2021.1)の関係を図1に示す。トリチウムは原子力施設などからの放出に加え、宇宙線により生成する天然放射性核種であるので、同じく宇宙線で生成する Be-7 と比較すると r=0.84 (n=70) となり、良い相関を示した。

なお、本調査結果は原子力規制庁からの委託事業「環境放射能水準調査」の成果の一部で ある。

	濃度	降下量
地尽(詞重朔间)	(Bq/L)	$(Bq/m^2)$
むつ市(2015.12 2021.1)	0.15 - 1.2	6.5 - 130
福島市(2015.12 2021.1)	0.081 - 1.0	3.6 - 160
千葉市(2007.42021.1)	0.097 - 1.5	1.5 - 170
京都市(2017.12 2021.1)	0.14 - 0.76	6.6 - 110





図 1. 千葉市のトリチウム降下量と Be-7 降下量の関係 Nation-wide survey of Tritium Concentration in Monthly Fallout IIDA,M., OTSUKI,T., YOSHIDA,M., NITTA,W., KISHIMOTO,T., ISOGAI,K.

### 1P06 Extractability of Pu from agricultural soils and its indication of bioavailability (量研機構<sup>1</sup>、核物化研<sup>2</sup>、北京大<sup>3</sup>) 倪有意<sup>1,2</sup>、〇鄭建<sup>1</sup>、郭秋菊<sup>3</sup>、黄 召亜<sup>2</sup>、田上恵子<sup>1</sup>、内田滋夫<sup>1</sup>

【緒言】For plutonium in the soil, not all of it is bioavailable for plants. Therefore, appropriately evaluating the bioavailable fraction of Pu in soil can be viewed as imperative for better quantifying the transfer ability and understanding the transfer mechanisms of Pu from soils to plants. We present the first investigation of the extractability of global fallout Pu from agricultural soils under natural conditions and its potential indication for Pu bioavailability.

【実験】 Soil samples (upland and paddy soils) were successively extracted with H<sub>2</sub>O followed by 1 M NH<sub>4</sub>OAc solution extraction to obtain the nominal water soluble and NH<sub>4</sub>OAc exchangeable fraction of Pu. The extractions were conducted with a soil to solution ratio of 1:10 (100 g soil vs. 1 L solution) by stirring for 1 h followed by standing overnight. The H<sub>2</sub>O extracted solution was separated by centrifugation and filtration (0.45  $\mu$ m), and the remaining solid residue was further extracted with 1 M NH<sub>4</sub>OAc solution followed by centrifugation and filtration (0.45  $\mu$ m). As soon as these extracted solutions (nominal water soluble fraction and NH<sub>4</sub>OAc exchangeable fraction) were obtained, 0.57 pg <sup>242</sup>Pu was separately added to these samples as yield tracer before further purification. After chemical separation and purification, <sup>239</sup>Pu was measured by SF-ICP-MS. The Pu concentrations in the original soil samples were separately determined with the method reported by Wang et al. (2017).

【結果·考察】On average, the nominal water soluble and exchangeable Pu fractions in sampled upland field soils were 0.07% and 0.02%, respectively, while those fractions in the rice paddy soils were 0.10% and 0.03%, respectively. Sequential extraction results indicated that the dominant sinks of Pu in both upland and paddy soils were the immobile organic matter fraction, Fe-Mn oxides and the residual fraction. Furthermore, both the water soluble and NH<sub>4</sub>OAc exchangeable Pu percentages showed a significant negative correlation with the exchangeable Ca<sup>2+</sup> concentration in the soils. Regarding the potential plant bioavailability of Pu, a significant correlation (r=0.55, p<0.05) was observed between the Pu concentration in rice and the water-soluble Pu concentration in the corresponding rice paddy soils, and that illustrated the water-soluble Pu fraction was likely to be available for rice plant uptake. In addition, this bioavailable fraction was further applied in evaluating the available transfer factor (ATF) of Pu by dividing the Pu concentration in rice with the bioavailable Pu concentration in the corresponding soil. The ATFs of Pu from soil to rice plant ranged from  $6.9 \times 10^{-3}$  to  $1.7 \times 10^{-1}$  and we compared them with the TF values reported in our previous study (Ni et al., 2019). Statistical analysis indicated the ATF data were less discrete compared with the conventional TF. Therefore, we consider the ATF to be more representative than the TF to illustrate the transfer ability of Pu from soil to rice plant.

参考文献: [1]Wang et al., Anal. Chem. 2017, 89, 2221–2226. [2] Ni et al., J. Environ. Radioact. 2019, 196, 22-28.

Extractability of Pu from agricultural soils and its indication of bioavailability NI Y., ZHENG, J., GUO Q., HUANG Z., TAGAMI K., UCHIDA S

### Ge 半導体検出器における<sup>110m</sup>Ag のサム効果補正の検討について 1P07 (日本分析センター)〇絵木 綱一郎 絵木 勝行 宮田 賢 新田 済 大田

(日本分析センター)○鈴木 颯一郎, 鈴木 勝行, 宮田 賢, 新田 済, 太田 裕 二

【緒言】日本分析センターでは毎年 IAEA が主催する技能試験に参加している。2020 年度の技能試験(IAEA-TEL-2020-04 ALMERA PT) では、面状の Aerosol Filter sample から<sup>110m</sup>Ag が検出された。<sup>110m</sup>Ag は多数の  $\gamma$ 線をカスケードに放出しサム効果を引き起こす。そこで、モンテカルロシミュレーション、Efficiency Transfer コード及びサムピーク法など多方面からの解析を行い、Aerosol Filter sample における<sup>110m</sup>Ag のサム効果の補正について検討を行った。本発表では検討方法や結果について報告する。

【検討方法】Aerosol Filter sampleをU4容器に詰め、試料を様々な条件で相対効率33%の同軸型p タイプHP-Ge検出器を用いて測定を行った。

1) サムピーク法 … γ線スペクトル上のサムピークの強度は核種の壊変形式、放射能、計数 効率に依存しているため、測定試料自身のスペクトルから放射能と計数効率を計算で求める ことが原理的に可能である<sup>1)</sup>。本検討ではこれまでに報告されているサムピーク法<sup>2),3)</sup>を用い てAerosol Filter sample中の<sup>110m</sup>Agの定量を行った。

2) モンテカルロシミュレーション(Geant4・EGS5)およびEfficiency Transferコード(EFFTRAN) を用いた補正 … Geant4,EGS5およびEFFTRANを用いてサンプルを検出器のエンドキャップ 上に密着して置いた場合のサム効果補正係数を算出し測定値を補正した。

【結果及び考察】図1は前述の検討に加え補正前の値およびIAEAによる添加値をまと めたものである。この結果から、各々の検討による算出値は添加値と不確かさの範 囲内で一致した。以上のことから、面線源を検出器直上で測定するという、サム効 果の影響が大きくなる条件に対しても、数値計算モデルによるサム効果補正が有効 であることが確認できた。

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

#### 【参考文献】

1) Blaauw, Menno. "The use of sources emitting coincident  $\gamma$ -rays for determination of absolute efficiency curves of highly efficient Ge detectors." Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A;(Netherlands) 332.3 (1993).

2) 山田崇裕,石津秀剛,高野直人,加算同時計数 効果を用いた Ge 検出器の計数効率関数決定法, 第 51 回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集, 50 (2014)

3) 日本アイソトープ協会理工学部会次世代スペ

クトル解析専門委員会,RADIOISOTOPES, 65, 267 - 285 (2016)



図 1 補正前の結果と各補正方法による濃 度、および IAEA による添加値(Target Value)

True coincidence summing correction for <sup>110m</sup>Ag in aerosol filter samples SUZUKI, S., SUZUKI, K., MIYATA, S., NITTA, W., OHTA, Y.,

#### 種々の走行モニタリングシステムによる比較測定

1P08

(日本分析センター)〇大槻孝之、杉山翠、田中博幸、太田裕二、磯貝啓介

原子力規制委員会が定めている原子力災害対策指針において、走行サーベイは緊急 時における空間放射線量率を測定するためのモニタリング手法の一つとして位置付け られている。走行サーベイは機動力を活かし、地点が固定されたモニタリングポスト のデータを補完する上で、航空機モニタリングと並び有効な手法であり、東京電力福 島第一原子力発電所事故後に実施されているモニタリングにおいては、種々の走行モ ニタリングシステムが開発され、原子力施設を監視するためのモニタリングを実施し ている地方自治体を中心に活用されている。また、取得したデータは住民に対する防 護措置(避難等)の実施の判断等に用いられることから、その測定結果の取扱いは非 常に重要である。

我々は原子力規制庁委託事業において、今後、国及び地方自治体が走行モニタリン グシステムを調達する際や使用する際の技術的な情報を取得することを目的として、 各メーカより市販され種々存在する走行モニタリングシステムについて、我が国の緊 急時モニタリングを含む環境放射線モニタリングの目的を達成するために必要な機能 を備えているか等を確認するための調査を実施した。

その調査の中で、走行モニタリングシステムの特性を把握するために、種々の走行 モニタリングシステムの比較測定を実施したので、本発表ではその成果について報告 する。

比較測定には、2019年度時点で自治体が導入していた3つの走行モニタリングシス テム(KURAMA-II、ラジプローブ、RAMPU)を使用した。それらの性能及び特性の違 いが空間放射線量率等の走行サーベイ結果に及ぼす影響を把握する事を目的として、 これらを同一車両内に並べて設置し、福島県内(帰還困難区域内を含む)、茨城県内及 び千葉県内における走行サーベイ(同時測定)を行い、測定結果を比較した。

各走行モニタリングシステムの測定結果は、空間放射線量率の変化傾向については 概ね同等であったものの、空間放射線量率の絶対値には若干の差が見られる場合があ った。これは、各走行モニタリングシステムに使用している検出器のエネルギー特性 等が影響していると考えられた。

車内に走行モニタリングシステムを設置する場合には、車体による y 線の遮へいを 考慮して車外における空間放射線量率に補正する必要があるが、別途評価した車内外 補正係数による補正を実施することで、各走行モニタリングシステムの結果が同程度 になることを確認した。

結論として、本調査において比較測定に使用した3つの走行モニタリングシステム は、緊急時モニタリングを実施するための要件を満たしていることを確認することが できた。

本発表は、原子力規制庁委託事業である令和元年度放射線安全規制戦略的推進事業 費(種々の走行モニタリングシステムに係る技術的仕様の調査)の成果の一部である。

Comparative measurements of ambient dose rate measured by various car-borne survey system OTSUKI, T., SUGIYAMA, M., TANAKA, H., OHTA, Y., ISOGAI, K.

# 自ミュオンによる非破壊イメージングに向けた 2 mm 厚 CdTe 半導体二1P09次元検出器の開発

(阪大 IRS<sup>1</sup>、Kavli IPMU<sup>2</sup>、東大理<sup>3</sup>、JAXA<sup>4</sup>)〇邱奕寰<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、武田伸一郎<sup>2</sup>、桂 川美穂<sup>2</sup>、南喬博<sup>3,2</sup>、長澤俊作<sup>3,2</sup>、高橋忠幸<sup>2</sup>、渡辺伸<sup>4</sup>

【緒言】近年、ミュオンビームを用いたミュオン特性 X 線測定による元素分析法の開発が進んでい る。この方法にイメージング検出器を適用することで、三次元的な元素分析が可能になると期待され る。本研究では、ミュオンによる非破壊元素イメージングの実現のために、エネルギースペクトルとイ メージを同時に測定できる CdTe 両面ストリップイメージング検出器(CdTe-DSD)の開発を行った。こ れまで 750 µm 厚の CdTe-DSD について報告があるが[1]、高いエネルギーのミュオン特性 X 線に 対して高い検出感度で測定するために、今回 2 mm 厚の CdTe-DSD を開発した。厚い CdTe 結晶 を使うと X 線の吸収効率が高くなるが、内部に生成した電荷キャリアが両側の電極までに移動する 途中での再結合の寄与が大きくなり、エネルギー分解能が低下する。そこで、本発表では開発した 2 mm 厚の CdTe-DSD に対して、検出器の性能を線源で評価し、エネルギーの再構成に新たなア ルゴリズムを導入したため、その開発状況について報告する。

【実験】本研究で開発した CdTe-DSD の写真を図1に示す。大きさ 32×32 mm<sup>2</sup> で 2 mm 厚の CdTe 半導体検出素子は右上に設置し、両面に電極が 128 本ずつついており、周りに 8 枚 ASIC は データの読み出しシステムとして使用した。我々は点線源の <sup>57</sup>Co、<sup>241</sup>Am、<sup>133</sup>Ba を利用して、2 mm 厚 の CdTe-DSD の各チャンネルの長時間の測定データを取得した。さらに、X 線テストチャートを用い て、イメージングを行うことで空間分解能も評価した。

【結果と考察】 図2に<sup>57</sup>Co で取ったエネルギースペクトルを示す。赤線と青線は陰極(Cathode)と陽 極(Anode)でのエネルギースペクトルである。陰極から得られたスペクトルでは、良好なエネルギー分 解能のピークが得られているのに対し、陽極では正孔の移動度が低く、再結合の影響が大きいた め、低エネルギー側に Tail 成分が存在している。我々は両側の信号の相関性を分析し、エネルギ ー情報を再構築する新たなアルゴリズムを開発した。再構成したエネルギースペクトルは黒線で示さ れており、122 keV のところにエネルギー分解能(FWHM)は 2.42 keV と評価した。 [1] 邱 奕寰 他、日本放射化学会第 64 回討論会(2020) 2B06



図1:開発した2mm CdTe-DSDの写真

図2:57Co線源によるエネルギースペクトル

Development of non-destructive image method using negative muon with 2mm CdTe Double-sided Strip Detector.

Chiu I., Ninomiya K., Takeda S., Katsuragawa M., Minami T., Nagasawa S., Takahashi T., Watanabe S.

#### 1P10 Self-Assembly of Nanosheet Supported Fe-MOFs Heterocrystal as Reusable Catalyst for Boosting Advanced Oxidation Performance via Radical and Nonradical Pathways

(Tokyo Metropolitan University <sup>1</sup>, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences <sup>2</sup>, Sheffield Hallam University)  $\circ$  Bofan Zhang<sup>1</sup>, Liang Zhang<sup>2</sup>, Kazuhiko Akiyama<sup>1</sup>, Paul A. Bingham<sup>3</sup>, Shiro Kubuki<sup>1</sup>

**[Introduction]** The heterogenous photo-Fenton reaction as an efficient advanced oxidation process (AOP) has been widely used in environmental purification applications<sup>[1]</sup>. Over the past decade, metal-organic frameworks (MOFs), three-dimensional porous crystals assembled from inorganic metal nodes and rigid multitopic organic links, have brought novelty to the field of porous materials toward wide applications. Moreover, Bismuth oxyhalide semiconductors, including BiOI, BiOBr and BiOCl, composing of  $[Bi_2O_2]$  layers and interleaved by double halogen slabs, been commonly used as photocatalysts. Herein, a possible modulation of band structure by fabricating a novel BiOX (X=I,Br,Cl)/MOF-Fe (BMFe) heterojunction could prove beneficial for utilizing more active centers and efficiently separating charge carries.

**[Experiment]** Synthesis of Fe-MOF catalysts, including MIL-53(Fe), MIL-101 and MIL-88 using a solvothermal method; synthesis of BiOI/MIL-88A(Fe), BiOI/MIL-101(Fe), BiOBr/MIL-53(Fe) and BiOCI/MIL-53(Fe) via a one-step coprecipitation method; XRD, FTIR, TEM, SEM, UV-vis diffusive reflectance spectra (DRS), <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectra and the total organic carbon (TOC) were measured for characterization of synthesized samples.

#### [Results and discussion]

X-ray diffraction of BiOI/MIL-53(Fe) matched well with the corresponding materials (BiOI and MIL-53(Fe)), indicating the successful synthesis of BiOI/Fe-MOFs composites. The photo-Fenton catalytic activity was firstly evaluated by decomposing methylene blue under visible light irradiation with addition of  $H_2O_2$ . The removal rate of carbamazepine over BMFe catalyst reached approximately 100% after 15 min. The degradation efficiency as significantly enhanced compared with pure BiOI and MIL-53(Fe). Through the direct



Z-scheme charge pathway, the photogenerated e<sup>-</sup> tend to migrate from the conduction band (CB) of Fe-MOF to the valence band (VB) of BiOI via a solid/solid heterointerface until in equilibrium. The spatially separated e<sup>-</sup> in the CB of BiOI and h<sup>+</sup> in the VB of MIL-53(Fe) can efficiently reduce  $O_2$  to  $O_2^-/HO_2O$  and oxidize  $H_2O$  to  $O_1$ , respectively, which is consistent with the radical scavenging results. The Z-type feature significantly enhances the carrier transfer efficiency and thus improves the removal rate of pollutants by BMFe catalyst.

[1] H. Zhang, et al., Applied Catalysis B: Environmental, 270 (2020).

#### **1P11** シッフ塩基を有するウラニル(Ⅵ) 三核錯体の合成と酸化還元 (IE+EPH 2E+bbl/9機構 PI た)○原材条約1 永田光知郎<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>阪大院理、<sup>2</sup>阪大放射線機構 RI セ)〇福村希翔<sup>1</sup>、永田光知郎<sup>2</sup>、 吉村崇<sup>2</sup>

【緒言】ウラニル(VI)は脱水縮合反応が容易に進行し、オキシド またはヒドロキシド架橋の多核錯体を形成することが知られて いる。この形のウラニル(VI)多核錯体は、水溶液中では pH の変 化によって様々な構造に変化するため、非常に複雑である。そこ で、ウラニル(VI)多核錯体の構造と反応性を詳細に調べるため に、多核錯体のいくつかのサイトを多座配位子でブロックした三 核錯体を合成し、その中央に位置するオキシドのプロトン付加-脱離反応の定量的評価とこの反応に伴う分子全体の構造変化を



図 1. MeSaxH<sub>2</sub>

特定した<sup>[1]</sup>。今回、酸化還元反応性を調べるために図1に示す<sup>Me</sup>SaxH<sub>2</sub>が脱プロトン化した <sup>Me</sup>Sax<sup>2</sup>-が配位したウラニル(VI)三核錯体を合成、構造を特定するとともに、その酸化還元挙動を調べた。

【実験】UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O に 1 等量の <sup>Me</sup>SaxH<sub>2</sub>、3 等 量の Et<sub>3</sub>N を加えて、ジクロロメタン/ヘキサンでレ イヤー再結晶することで(Et<sub>3</sub>NH)<sub>2</sub>[(UO<sub>2</sub>)<sub>3</sub>O(<sup>Me</sup>Sax)<sub>3</sub>] を得た。この化合物について、単結晶 X 線構造解 析、<sup>1</sup>HNMR、IR スペクトルを測定して同定した。

【結果と考察】得られた新規錯体の構造及びウラニ ル(VI)周囲の構造を図2及び3に示す。結晶中には 3 核ウラニル(VI)錯体と 2 つのトリエチルアンモニ ウムイオン及び溶媒分子が存在していた。3 核ウラ ニル(VI)錯体においては、3つのウラニル(VI)が3角 形を形成する形で位置している。MeSax<sup>2-</sup>はN原子と O 原子で一つのウラニル(VI)をキレートし、さらに MeSax<sup>2</sup>中のもう一つの O 原子が隣接するウラニル (VI)を架橋する構造をとっており、計3分子の MeSax<sup>2</sup>-が錯体中に存在している。錯体の中心にはオ キシドが位置し、3 つのウラニル(VI)を架橋した構 造をとっていた。U-(µ3-O)-Uの平均結合角は 116.4° であり、この値は、オキシドが sp<sup>2</sup> 混成軌道の角度 に近い値(sp<sup>2</sup>: 120°)をとっていることが分かった。 得られた錯体の酸化還元特性については、当日報告 する。



図 3. 新規錯体のウラニル周囲の 構造

[1] T. Yoshimura, M. Nakaguchi, K. Morimoto, *Inorg. Chem.* 56, 7, 4057-4064 (2017).

Synthesis and redox property of uranyl (VI) trinuclear complex with Schiff base ligand Fukumura. K, Nagata, K. Yoshimura, T.

#### V-48 トレーサーを用いた VRFB 用イオン交換膜透過試験(2) 1P12

(東北大学金属材料研究所)〇白崎 謙次

【緒言】再生可能エネルギーの普及に伴い過 剰電力の貯蔵媒体としての二次電池に高い関 心が寄せられている。バナジウム・レドック スフロー電池(VRFB、図1)[1]は電力貯蔵用 二次電池の有力候補として国内外にて広く研 究・実用化されている。VRFB は正極及び負 極の活物質に単一元素のバナジウムを用いる ため、隔膜を介したバナジウムイオンの膜透



図 1. VRFB の概略図

過による電流効率の低下、自己放電という課題を有する。近年、課題解決のためのイ オン交換膜研究が世界中で盛んに行われているが、両極同一元素であるため膜透過の 原因(拡散、電気泳動、電気浸透)解明に一般的な元素定量法(ICP-AESを用いた濃 度測定など)を適用することが困難である。これまでに我々は、放射性バナジウム<sup>48</sup>V を元素プローブとすることによりVRFBの膜透過を直接観察する手法を確立した[2]。 昨年は、4 つの酸化状態(V<sup>2+</sup>, V<sup>3+</sup>, VO<sup>2+</sup>, VO<sub>2</sub><sup>+</sup>)について、それぞれの拡散による膜透 過挙動を既知の手法(対極側に硫酸マグネシウムを用いる)により評価した。本研究 では、VRFB構成で陽イオン交換膜(Nafion 117)、陰イオン交換膜(Selemion APS)に おける各酸化状態のバナジウムイオンの拡散によ る膜透過を評価した。

【実験】東北大学電子光理学研究センターの直線 加速器を用いた制動  $\gamma$ 線照射により<sup>48</sup>Vを製造し、 LN レジンを用いたカラムクロマトグラフィーに よる精製を行った。精製後の<sup>48</sup>Vを含む硫酸バナ ジウム溶液を用い、VRFB における膜透過を Ge 半導体検出器による<sup>48</sup>Vの定量により評価した。 価数不安定性を配慮して、実験装置は窒素ガスを 流したグローブボックス内に設置した(図 2)。 【結果】 陽イオン交換膜(Nafion 117)における VO<sup>2+</sup>の膜透過を対極室側に V<sup>3+</sup>または V<sup>2+</sup>を配し て測定(図 3)することにより、VRFB の放電状 態正極活物質の膜透過が評価できた。同様に、 VO<sub>2</sub><sup>+</sup>、翻って V<sup>2+</sup>、V<sup>3+</sup>についても同様の実験を行 い、VRFB 構成での拡散による膜透過を考察した。

- E. Sum, M. Skjllas-Kazacos, J. Power Sources, 15 (1985) 179.
- [2] K. Shirasaki, T. Yamamura, J. Membr. Sci., 592 (2019) 117367.

VRFB membrane permeability tests using radiotracer  $^{48}$ V (2) SHIRASAKI, K.



図 2.膜透過測定の様子



#### **1P13** 単一微粒子質量分析計を用いたアルファ微粒子即時検知法の検討 (阪大放射線機構<sup>1</sup>、阪大リノ<sup>2</sup>、阪大院理<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>、阪大院工<sup>5</sup>、 大山青山大<sup>6</sup>) 〇豊嶋厚史<sup>1</sup>、古谷浩志<sup>2,3</sup>、寺本高啓<sup>1</sup>、永田光知郎<sup>1</sup>、

床井健運<sup>3</sup>、高宮幸一<sup>4</sup>、牟田浩明<sup>5</sup>、吉村崇<sup>1</sup>、豊田岐聡<sup>3</sup>、篠原厚<sup>1,6</sup>

【緒言】福島第一原発に残る燃料デブリはその状況や性状について不明な点が多く、慎 重に取出し作業を進める方針で準備が進められている。燃料デブリは小さく切断し、 専用容器に収納する事が想定されているが、切削の際にはα線放出核種を含む放射性 の微粒子(アルファ微粒子)が生じる事が懸念されている。我々はアルファ微粒子が 炉外環境に漏出し、作業者が内部被ばくする事を防ぐため、単一微粒子質量分析計

(ATOFMS)を用いたアルファ微粒子の即時検知法を検討している。本研究では、その実現性検証のために、ウランを含む模擬固体試料と模擬液体試料から模擬アルファ 微粒子を発生させ、ATOFMSを用いたオンライン検出実験を行った。

【実験】模擬燃料デブリ試料として、UO2顆粒および ZrO2粉末から熱処理や放電プラズ マ焼結法により U と Zr 比率の異なる 4 種類の U<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>O2 (x=0.1, 0.5, 0.84, 0.975) 試料を合成し、XRD 測定により結晶構造を評価した。また、模擬溶液試料として 3 種 の[UO2(CO3)3]<sup>4</sup>溶液を調製し、吸収スペクトルにより生成物を評価した。次に、アブレ ーションを行うための照射チェンバーを製作し、レーザー照射するための光学系を調 整した。また、液体試料から固体エアロゾルを製造するため、アトマイザーと拡散ド ライヤーを用いたエアロゾル生成装置を製作した。これらの装置を用いて模擬燃料デ ブリ試料ならびに模擬ウラン溶液試料から模擬微粒子を製造し、ATOFMS に連結して 微粒子のオンライン質量分析を行った。

【結果と考察】いずれの固体試料の質量スペクトルにおいても、同じ m/z に正イオンなら びに負イオンピークが観測された。正イオンには m/z 230-270 程度に UO<sub>2</sub>起源の U<sup>+</sup>、 UO<sup>+</sup>、UO<sub>2</sub><sup>+</sup>イオン種が、負イオンには UO<sup>-</sup>、UO<sub>2</sub><sup>-</sup>、UO<sub>3</sub><sup>-</sup>、UO<sub>4</sub><sup>-</sup>、U<sub>2</sub><sup>-</sup>、U<sub>2</sub>O<sup>-</sup>、U<sub>2</sub>O<sub>6</sub><sup>-</sup>、U<sub>2</sub>O<sub>7</sub><sup>-</sup>など が観測された。一方、液体試料では、正イオンには固体試料の場合とほぼ同じイオン 種が観測された。負イオンでは、U(H<sub>2</sub>O)<sup>-</sup>、UO<sub>2</sub>(H<sub>2</sub>O)<sup>-</sup>、UO<sub>2</sub>(OH)<sup>-</sup>、UO<sub>3</sub>(OH)<sup>-</sup>など、水分子 や OH が配位したイオン種が観測された。このように ATOFMS を用いて模擬微粒子中の ウランを検出することに成功した。観測されたウラン由来イベントから、現在の ATOFMS を用いた <sup>238</sup>U の検出下限を評価した結果、~10<sup>-10</sup> Bq/cm<sup>3</sup>である事がわかった。この値 は、アルファ微粒子で最も懸念される<sup>239</sup>Pu に対して~10<sup>-5</sup> Bq/cm<sup>3</sup>に相当する。核種を 識別可能な即時検知法としては十分低い値と考えられるが、より感度を増加できるよ う、現在さらなる検討を進めている。

【謝辞】本研究は、日本原子力研究開発機構廃炉国際共同研究センターが実施する「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」共通基盤型原子力研究プログラム (R1-R2 年度)の支援を受け実施しました。

# 特別講演 9月23日(木) 2S01

受賞講演 9月23日(木) 2S02

### 電子と原子核の相互作用に関連する3つの理論的研究

(広島大院先進理工,都立大院理)〇阿部穣里

【はじめに】重元素を含む分子や原子核近傍の電子状態においては、相対論効果が顕著 となり、相対論的量子力学の導入が必要となる。発表者はこれまで Dirac 法を用いた電 子状態理論計算のプログラム開発を行っており、それを応用して、重元素における同 位体分別(核体積効果)<sup>1,2,3</sup>や CP(電荷・パリティ)対称性破れを示す核のシッフモーメン トの理論的研究<sup>4</sup>を行ってきた。また最近非相対論ではあるが、<sup>7</sup>Be の電子捕獲壊変(EC 壊変)<sup>5</sup>について、放射壊変を早める分子の探査を理論計算から行った。本発表では電 子と原子核の相互作用に関連するこれら3つの研究に対し、最新の成果を報告する。

【同位体分別における核体積効果】重元素同位体の場合、化学平衡で生じた同位体分別 の主要な原因が、同位体間の原子核の大きさの差に起因した、同位体分子間の電子状 態の違いにあることが分かっている。発表者はこれまで、ウラン還元反応での同位体 分別係数の実験値が、有限核モデルを用いた相対論的な *ab initio* 計算によって再現可 能であることを報告してきた<sup>1,2</sup>。最近ではこの計算手法を、バクテリア酵素によるウ ラン還元反応の同位体分別に応用し、反応機構の解明を試みている<sup>3</sup>。

【核のシッフモーメント】CP 対称性破れは、現在の宇宙の粒子・反粒子の非対称性を説明 するために重要である。原子・分子を用いた CP 対称性破れを観測する実験は、半世紀 以上に渡って試みられている。有意な値は未だ得られていないが、実験精度は年々向 上し、新たな観測に期待が高まっている。閉殻系原子・分子で観測されうる CP 対称性 破れに、核のシッフモーメントがある。これは核子間の CP 対称性を破る相互作用によ って、原子核電荷の分布が球対称からずれることで生じるモーメントである。シッフ モーメントの決定には実験観測以外に、原子核や電子の波動関数から理論値を計算す る必要がある。発表者らは近年、電子状態に起因する理論値を求めるための、高精度 な相対論的電子相関プログラムを開発し、観測候補分子である TIF 分子に適応した<sup>4</sup>。

【電子捕獲(EC)壊変】EC 壊変では、核上の電子密度 $\rho(0)$ と壊変寿命に反比例の関係があるため、物理的・化学的変化によって壊変速度が制御可能になる。実験で報告されている <sup>7</sup>Be の EC 壊変においては、C<sub>60</sub>フラーレン内包中で、金属 Be よりも 1.5%寿命が短くなっていた。さらに短い寿命を持つ分子系がないか理論計算で探査したところ、通常の分子では Be の閉殻 2s 電子が化学結合によって他原子に流入し、 $\rho(0)$ が減少してしまうことがわかった。一方、結合を作りにくい希ガス結晶中に <sup>7</sup>Be をドープし、高圧下で格子定数を小さくすることで、 $\rho(0)$ が増加する可能性があることを提案した<sup>5</sup>。

- 1. M. Abe, T. Suzuki, Y. Fujii, and M. Hada, J. Chem. Phys. 128, 144309, 2008.
- 2. M. Abe, T. Suzuki, Y. Fujii, M. Hada, and K. Hirao, J. Chem. Phys. 129, 164309, 2008.
- 3. A. Sato, R. Bernier-Latmani, M. Hada, and M. Abe, Geochim. Cosmochim. Acta. 307, 212-227, 2021.
- 4. M. Abe, T. Tsutsui, J. Ekman, M. Hada, B. P. Das, Mol. Phys., 118 (23), e1767814, 2020.
- 5. A. Yoshida, M. Abe, and M. Hada, J Phys. Chem. A, 125 (29), 6356-6361 2021.

Three theoretical studies related to electron and nucleus interactions ABE, M.

### 中性子放射化分析法の高度化と宇宙地球化学研究への応用

(早稲田大教育)〇海老原充

【緒言】いまでこそ便利な中性子源や高エネルギー分解能ガンマ線測定装置が利用で き、ある程度汎用性ある元素分析法として利用されている中性子放射化分析 NAA で あるが、NAA の創始者として記憶される Hevesy の時代には想像を超える壁があった であろうことは想像に難くない。その後幾多の研究者・技術者の努力があり、すくな からぬ高度化が達成されたが、ゲルマニウム半導体ガンマ線検出器の普及と ko 標準化 法の開発により NAA の高度化が一段落したように思われる。その意味で、講演タイト ルの「高度化」は必ずしも適切な表現ではないことをお断りさせていただきたい。講 演者は上記の"真の"高度化の後は、NAA は分析法としての研究対象から、応用分野 での重要性を主張する(すべき)時代に入ったと認識している。とは言っても、講演 者自身、分析法としての NAA を主題とする論文を少なからず発表してきたのは事実で ある。ほとんどの論文が、NAA で得られたデータを利用して議論したい課題があり、 そのために行った研究をまとめたもので、正面切って NAA の高度化と言いかねるのは そこにある。付け加えれば、NAA のデータで議論したいのは地球化学、宇宙化学的課 題であり、そうした経緯を踏まえての演題であると理解していただければと思う。

【実験】講演者が長年、NAA を用いて研究を行ってきた最大の理由は分析結果が正確 である点につきる。その特徴は放射化学的分離操作を伴う放射化分析 RNAA で最大限 発揮されるので、そのための工夫はいくつか行ってきた。RNAAの特徴は定量分析の2 つの誤差要因である化学操作中での分析対象元素 (analyte) の損失 (マイナスの誤差 要因) と外部からの汚染 (プラスの誤差要因) の両方を回避できる点にある。そのため に、放射化した試料から analyte を分離する前に一定量の担体を加える。上記の誤差要 因を除くためには、核反応によって生じた放射性核種と担体中の安定核種が同位体平 衡になることが必須条件で、固体試料の RNAA ではアルカリ溶融を行うことで容易に 達成できる。化学分離操作は目的元素に応じてデザインする余地があり、この段階で 分析法の改良は可能であるが、これが分析法の高度化といえるかどうか。RNAA は化 学収率の測定で完結するが、機器中性子放射化分析 INAA として行う再放射化法の簡 便さは放射化学の経験のない分析者にとってはなかなか理解できないかもしれない。 【結果と展望】RNAA で定量対象とした主な元素(群)は希土類元素 (REE) とハロゲン 元素で、その他、K, In, Zr, Hf, Uの定量も行った。どれも宇宙・地球化学の議論を展開 するためであるが、その後、Inを含む揮発性元素とREE については ICP-MS に引き継 がれた。ハロゲン元素は大学院以来、現在まで付き合っている元素であるが、分析も 含めて奥が深く、当初の目的を遂げるには時間が足りそうもないのが残念なところで ある。世の中 NAA としては INAA が主流であるが、この INAA の高度化という点で、 最近非常に注目すべき成果が JAEA の藤暢輔さんのグループによって発表された。 J-PARC の物質・生命科学実験施設 MLF に設置された中性子核反応測定装置 ANNRI

を用いて、使用済み核燃料中の代表的難定量核種<sup>107</sup>Pdや<sup>99</sup>Tcを非破壊で定量する手法 が確立された。ある意味で RNAA とは対極に置かれるものであるが、高選択性、高感 度、高確度な手法である点で共通している。今後の応用展開に期待したい。

### Advancement of activation analysis and its application to geo- and cosmo-science researches EBIHARA, M.

### 一般講演

# 9月23日(木) 2K01-2K08

# 中性子放射化分析法による赤城大沼湖水中の安定 Cs と微量元素の定量 2K01 (都市大原研<sup>1</sup>, 群馬水試<sup>2</sup>)〇岡田往子<sup>1</sup>, 熊谷尚人<sup>1</sup>, 渡辺峻<sup>2</sup>, 鈴木究真<sup>2</sup>

【緒言】群馬県赤城山にある赤城大沼は,2011 年の福島第一原子力発電所の 事故により,放射性 Cs の汚染が確認された. 我々は 8 年前から調査を行っているが,湖水 や生息するワカサギの放射性 Cs 濃度の減少は非常に緩慢になっている. その原因を究明す るために,昨年は中性子放射化分析(INAA)で湖底堆積物や植物プランクトンを分析し,報 告した.本年は INAA で,湖水中の微量元素を分析し,これらの結果から,湖内の放射性 Cs の移行と微量元素との関連を導くことを目的とする.

【実験】2018 年と 2019 年に水深 0m, 8m, 15m でサンプルを採取した. 採取後すぐに, 0.45µm メンブランフィルターでろ過した溶存態試料と未処理のバルク試料の 2 種類とした. 約 500mL を凍結乾燥した 27 試料(乾燥試料約 1 mg~2 mg)と比較標準物質(JLK1-1, NIES8) は KUR Pn3(熱中性子束: 4.68 × 10<sup>12</sup> n cm<sup>-2</sup>)で 30 秒間照射し,約 5 分間の冷 却後,  $\gamma$  線測定を行った. また, Pn2(熱中性子束: 5.5× 10<sup>12</sup> n cm<sup>-2</sup>)で 1 時間照射し た後,7 日と 14 日間の冷却を行い,  $\gamma$  線測定を行った. 解析は,ガマスタジオ(SEIK0 EG &G Co)を用いて行った. 粒子態の分析値は,バルク試料の分析値から溶存態の分析値を差 し引いて求めた.

【結果】湖水バルク試料中で 17 元素 (Al, Mg, Mn, Na, Fe, V, Ca, K, Sc, Cr, Co, Zn, Rb, Sb, Cs, Ba, Ce) を定量した.

すべてのバルクと溶存態試料で Cs と Rb が検出された. Fig.1 は,湖 の水深 0, 8, 15m における粒子態と 溶存態中の安定 Cs の濃度を示す. Om 表層では季節に関係なく粒子態 に安定 Cs が一定量存在することが わかった. また,8 月期の 15m で溶 存態安定 Cs が支配的であった.2012 年からの湖水中の放射性 Cs 調査で, 水深 15m の深層で,夏になると溶存 態の放射性 Cs 濃度が上昇すること



Fig. 1 Stable cesium concentration in lake water of Lake Onuma

がわかっている. 今回, 湖水中の安定 Cs についても同様の結果が得られた. 赤城大沼では, 夏季に湖底内に水温躍層が形成され, 表水層と深水層に分かれる. 深水層では酸素欠乏現象 が起こる. 本研究では, 2018 年 8 月で 15m の Fe 濃度はバルクで 1.15mg/L, 溶存態で 0.768mg/L であった. これらの結果から, 夏場の深層水は還元状態にあることが示唆された. この還元状態は, 安定 Cs の増加にも関係していることが示唆された.

Determination of stable Cs and trace elements in lake water of Lake Akagi Onuma by neutron activation analysis

Okada, Y., Kumagai, N., Watanabe, S., Suzuki, K.

# 2K02k₀-IAEA ソフトウェアを用いた k₀標準化中性子放射化分析-評価と<br/>応用-

(都立大理)〇杉崎史都、大浦泰嗣

【緒言】機器中性子放射化分析法(INAA)では通常未知試料と同時に標準試料を照射 し、定量元素の生成放射能比から定量を行う比較法が用いられる。比較法は原理が簡 単で正確な定量値が得られる一方,定量したい元素の標準試料を同時に照射しなけれ ば検出できても定量できないという欠点がある。これに対しko標準化法は各元素のko 値と照射場と検出器の特性をあらかじめ決定することで,一元素の標準試料を同時に 照射するだけで,検出された全元素の定量を行うことができる。ko法の計算は一般的 にソフトウェアを用いるが、本研究は国際原子力機関(IAEA)から公表されているソ フトウェア"ko-IAEA"最新版(ver. 8.10)を使ってko法に必要な各種パラメータと試料 の濃度の決定を試みた。標準試料の分析を行いその定量値を検証するとともに、応用 として市販されている卵の卵殻と飲料のアルミ缶を元素分析した。

【実験】岩石標準試料、環境標準試料、生体標準試料,k<sub>0</sub>法用標準試料,粉末卵殻,ア ルミ片を京大原子炉 Pn-3 で 10~30 秒間、Pn-2 で 3~4 時間中性子照射し、放出される γ 線を高純度 Ge 半導体検出器にて測定した。照射場の特性は Au-Lu-Zr モニターを照射 し求めた。検出器の特性を多核種混合標準線源、<sup>152</sup>Eu 線源、<sup>157</sup>Cs 線源の測定により求 めた。 γ線スペクトル解析専用ソフトウェア"Hypermet-PC"で正味計数値を計算 し、"ko-IAEA"により定量を行った。また, "ko-IAEA"により正味計数値を求 め, "Hypermet-PC"による値と比較した。

【結果と考察】検出器と試料間の距離によって定量値が変動することが確認された。この ことから"ko-IAEA"で計算される各距離での計数効率に誤りがあると考えら

れ、"ko-IAEA"に入力する検出器 の寸法を変更し,再計算を試み た。岩石標準試料(JB-1a)の定 量値と推奨値の比を図1に示す が,他の標準試料でも同様に, ほとんどの元素が推奨値と± 10%以内で定量できた。卵殻の 分析では8元素(Na,Mg,Cl,K, Ca,Br,Sr,Ba)の定量値が得られ た。アルミ片の分析では21元素 (Mn,Cr,Fe,Cu,Zn,Ga,V,Zr,La, Ce,Co,U,Hf,W,Br,Sb,Sc,As, Th,Ta,Tb)の定量値が得られた。



 $k_0$ -standardization neutron activation analysis using the  $k_0$ -IAEA software –evaluation and application-SUGISAKI F., OURA Y.

#### JRR-3 即発ガンマ線分装置 (PGA) の現状

2K03

(原子力機構)〇大澤崇人、佐々木未来、松江秀明

【緒言】研究炉 JRR-3 が 10 年ぶりに再稼働し、2021 年 7 月 12 日から供用運転が開始さ れた。JRR-3 ビームホールに設置された即発ガンマ線分析装置(PGA)は元素分析装置 として優れた能力を有しており、停止期間中には多関節ロボットを導入して自動分析 が可能となっている。本発表では震災後の PGA の復旧、高度化、現在の稼働状況など について解説する。

【実験】JRR-3 は東日本大震災で被災し、即発ガンマ線分析装置(PGA)においてもビ ームストッパーが倒れるなど、かなりの被害

を受けた。震災後に光軸合わせなどの復旧作業を行ったが、機器の復旧は後回しとなっていた。JRR-3 が稼働停止となったことから、その期間を利用して PGA に多関節ロボットを導入し、自動分析システムを構築した。

本年度、JRR-3 がついに再稼働し、共用運転は7月12日から開始されることとなった。しかし10年ぶりの再稼働とあって、PGAの機器に様々な不具合があることも判明しつつある。装置内部は遮蔽体を撤去しないと確認できなかったこともあり、目に見えなかった数々の問題点が明らかになってきた。たとえば、中性子集光導管が地震で破壊されていることが判明した。その他にもシャッターの不具合、NIM モジュールの故障、Ge 検出器の不具合、導管移動用のモータードライバの故障、ヘリウムガス配管の不良など、枚挙に暇がないほど不具合が発生している。現在においても完全な状態とはとても言えないが、懸命の復旧作業によって供用運転において分析が可能な状態にまで至ることができた。

10年前と比較して、PGAのシステムには大きな変更がいくつか加えられている。1 つは自動分析システムであるが、このシステムには様々な機能が統合的に実装されて いる。各種機能のうちの一つが2台のHe-3検出器の計測値をLabVIEWで常時監視で きるシステムであり、これにより中性子ビームの状態をモニターできるようになった。 これを利用することで、測定手法に若干の修正を加えることとした。PGAの上流側に 設置されている3本中性子導管にはヘリウムガスを入れることができるようになって いるが、10年前まではガスを毎朝導入していた。今回、中性子ビームの状態を監視し ながら導管内にヘリウムガスを導入する実験を行った。その結果、朝にヘリウムガス を導入する方法では、24時間でヘリウムガスがかなり脱離してしまい、無視できない ほど中性子フラックスが低下することがわかった。しかし非常に微量(レギュレータ の読みで0.3 MPa/day)でもヘリウムガスを流し続けることで、高い中性子フラックス の状態を維持できることがわかった。そこでヘリウムガスを常時流す方法に変更した。

測定中には試料を入れるテフロンボックス内はヘリウムガスでパージされるが、ヘ リウム流量と中性子の関係もこれまでは明らかではなかった。そこでヘリウムガスの 流量をマスフローコントローラで制御しながら中性子フラックスの関係を測定したと ころ、ボックス内部の酸素濃度と中性子フラックスおよび中性子の散乱量の相関も明 らかとなった。

Current condition of prompt gamma-ray analysis (PGA) system at JRR-3. OSAWA T., SASAKI M., MATSUE H.

#### JRR-3 即発ガンマ線分析装置を用いた軽元素分析

(產総研物質計測<sup>1</sup>、原子力機構<sup>2</sup>、東大工<sup>3</sup>) 〇三浦勉<sup>1</sup>、松江秀明<sup>2</sup>、大澤崇人<sup>2</sup>、神野智史<sup>3</sup>

2K04

【緒言】原子核に中性子が捕獲される際、捕獲反応後 10-<sup>14</sup> 秒以内で γ 線が放出される。 この即発 γ 線を測定する分析法は中性子誘起即発 γ 線分析法 (neutron-induced prompt gamma-ray analysis; PGA) であり、固体試料中の水素、ほう素、けい素等の軽元素を非 破壊で定量できる優れた分析法である。本発表では、これまで JRR-3 に設置された PGA 装置で実施した難分解性試料であるセラミックス中のほう素<sup>1)</sup>、けい素<sup>2)</sup>測定の実績を 報告する。

【ほう素測定用試料】認証標準物質 BAM-S003 炭化けい素, NMIJ CRM 8004-a 窒化けい素を 分析試料とした。ほう素分析に 100 mg から 300 mg を用いた。ほう素標準液は電量中和滴 定で純度を確定した高純度ほう酸を、石英ビーカー中で、超純水製造装置で調製した超純 水([B]:<10 ng g<sup>-1</sup>)で溶解して調製した。ACROS Organics 製 ND4Cl(98+atom%D)を内部 標準物質として全試料に添加した。比較標準試料は和光純薬製金属けい素に ND4Cl、ほう 素標準液を段階的に添加して作成した。

【けい素測定用試料】認証標準物質 JCRM R 003 窒化けい素を分析試料とした。けい素分析には約 300 mg を用いた。けい素測定では、和光純薬製金属 Si を既知量添加する標準添加法を用いた。また内部標準物質として NMIJ Cd 標準液を全試料に添加した。

【測定】 膜厚 25 µm の FEP フィルムで溶封した試料をテフロン糸で試料台に固定し、JRR-3 熱中性子ビームポートに設置された PGA 装置によって He 雰囲気中で1 試料当たり 1000 秒から 6000 秒の間、即発  $\gamma$ 線を測定した。ほう素測定では中性子ビームを集束させ、熱中 性子束密度:  $5.7 \times 10^8$  n cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>で、けい素測定では熱中性子束密度:  $1.6 \times 10^8$  n cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>で 照射し、即発  $\gamma$ 線を測定した。ほう素の測定では B (478 keV) と内標準 Cl (1600 keV) の ピーク強度から、けい素測定においては Si (1273 keV、2092 keV、3539 keV) と内標準 Cd (559 keV)のピーク強度から、それぞれ検量線を作成しほう素、けい素を定量した。

【結果】ほう素定量値として BAM-S003: (63.3 ±3.0) mg/kg (*k*=2), NMIJ CRM 8004-a: (13.0 ±0.64) mg/kg (*k*=2) が得られた。BAM-S003 分析値は、複数試験所が参加した共同分析法 で決定された認証値(63±7) mg/kg (*k*=2)と非常に良く一致していた。また、JCRM R 003 の けい素測定値(59.59±1.4) % (*k*=2)も、10 試験所による重量分析値から決定された認証値 (59.55±0.55) % (*k*=2)と一致していた。難分解性試料であるセラミックス中のほう素、けい 素分析結果から、非破壊分析法としての PGA の有用性が実証できたと考えている。

【今後の計画】鉄鋼、非鉄金属業界で広く普及している水素分析装置(不活性ガス融解-熱伝導度検出)で測定が困難な亜鉛等の低融点金属中の水素分析には PGA が有効な可能性が高い。今後は PGA による高純度金属亜鉛に含まれる低濃度水素の分析能力の評価を進める。

1. T. Miura, H. Matsue, T. Kuroiwa, K. Chiba, J. Radioanal. Nucl. Chem., 278, 653-656, 2008.

2. T. Miura, H. Matsue, Nucl. Eng. Technol., 48, 299-303, 2016.

#### 塩素の土壌-土壌溶液間分配係数について

2K05

(量研機構<sup>1</sup>、原子力発電環境整備機構<sup>2</sup>)〇田上恵子<sup>1</sup>、澁谷早苗<sup>2</sup>、 浜本貴史<sup>2</sup>、石田圭輔<sup>2</sup>、内田滋夫<sup>1</sup>

【緒言】塩素-36 は溶液中において陰イオンで存在し、地殻中における易動性の高さから、塩素-36 (T<sub>1/2</sub>=3.01×10<sup>5</sup> y)は、放射性廃棄物処分に関わる線量評価上重要な核種となっている。塩素の土壌中の易動性を土壌-土壌溶液間分配係数(Kd=土壌固相中濃度[Bq/kg-dry]/土壌液相中濃度[Bq/L])で表すと、ゼロに近い値が国際的には示されているものの<sup>1,2)</sup>、一部の研究では有機物を多く含む土壌はKdが高くなると報告されている<sup>2)</sup>。日本の土壌については、ほとんどKdデータが取得されていないことから、どの程度のKdの範囲か不明であった。そこで本研究では、安定元素を用いてKdを取得して既存データと比較するとともに、土壌特性との関係について解析を行った。

【材料および方法】全国から収集した水田土壌 98 試料(風乾、<2mm に篩別)を用いた。20 mLポリプロピレン容器に土壌 1.0 gを分取し、超純水 10 mL を添加して 16 時間予備回転振とうを行った後、塩化物イオン標準液(富士フイルム和光純薬、1000 ppm)を 50 µL 添加した(3 反復)。なお土壌から CI が溶出することも考慮し、無添加のコントロール試料も作成した(2 反復)。これらの溶液をさらに 3 日間回転振とうして十分土壌と接触させた後、遠心分離(3000 rpm、10 分)で得た上澄み液を、孔径 0.22 µm のディスポフィルターでろ過した。ろ液中の CI を含む陰イオンおよび陽イオンはイオンクロマトグラフィー(DIONEX、ICS-1500)によりできるだけ速やかに定量し、電気伝導度と pH (HORIBA, LAQUA) はろ過直後に測定した。Kd は次式により求めた。

Kd= [{S - (C<sub>s</sub> - C<sub>c</sub>) × L<sub>s</sub>}/S<sub>s</sub>]/(C<sub>s</sub> - C<sub>c</sub>) ここで、C<sub>c</sub>:コントロール試料溶液の土壌溶液中塩素濃度(mg/L)、C<sub>s</sub>: 土壌に塩素をス パイクした試料の土壌溶液中塩素濃度(mg/L)、S<sub>s</sub>: スパイク試料の風乾土壌重(kg)、 L<sub>s</sub>: スパイク試料の超純水添加量(L)、S: スパイク量(mg) である。

【結果および考察】 添加した CI<sup>-</sup>量の設定は、吸 着等温線モデル適用範囲に収まり、コントロール 土壌溶液中に観測される程度である 5 mg/L とし た。今回、土壌からの溶出分を考慮して試験を行 ったところ、メカニズムは不明だが添加量よりも 過剰の CI<sup>-</sup>濃度が検出される試料があった。全 98 試料について、Kd の範囲は-0.7 から 1.4 L/kg であ った。20 試料が Kd がマイナスとなったが、それ 以外は既存データの範囲と同程度であった。総炭 素量との関係(図 1) から、有機物を多く含む土 壌でも Kd は高くない可能性が示された。



本研究は原子力発電環境整備機構と量研機構の 共同研究で行われた。

図1Kd-Clと土壌中総炭素量の関係

【引用文献】 1) IAEA, Technical Report Series No. 479, IAEA, Vienna (2010). 2) Sheppard, S.C., et al., *J. Environ. Radioactiv.* **89**, 115-137 (2006).

Soil-Soil Solution Distribution Coefficient of Chlorine in Paddy Soils TAGAMI, K., SHIBUTANI, S., HAMAMOTO, T., ISHIDA, K., UCHIDA, S.

#### 2K06 EXAFS による Ra の水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明

(JAEA<sup>1</sup>、東大<sup>2</sup>、阪大<sup>3</sup>)〇山口瑛子<sup>1,2</sup>,永田光知郎<sup>3</sup>,田中万也<sup>1</sup>,小林 恵太<sup>1</sup>,奥村雅彦<sup>1</sup>,小林徽<sup>1</sup>,下条晃司郎<sup>1</sup>,谷田肇<sup>1</sup>,関口哲弘<sup>1</sup>,金 田結依<sup>1</sup>,松田晶平<sup>1</sup>,横山啓一<sup>1</sup>,矢板毅<sup>1</sup>,吉村崇<sup>3</sup>,高橋嘉夫<sup>2</sup>

【諸言】放射性元素であるラジウム(Ra)については、ウラン鉱山周辺の環境汚染問題や放射性廃棄物処理問題だけでなく、自然由来のRaによる飲料水中の基準値超過の問題も近年報告されているため、環境挙動の解明が急務である。Raの環境挙動については、旧ウラン鉱山周辺のコア試料分析やオクロの天然原子炉周辺土壌における鉛の同位体比の分析等から、粘土鉱物への分配が示唆されている。一般に粘土鉱物への吸着反応では、イオンが水和したまま吸着する外圏錯体と脱水して吸着する内圏錯体のどちらを形成するか明らかにする必要がある。しかし、Raに安定同位体がないことやα壊変により希ガスのラドンを生成し内部被ばくの危険性を高めることなどの取り扱いの困難さから、Raへの分光法の適用が難しいため、物理化学的に基本的な情報である水和構造でさえも、分子レベルでの解明は行われていなかった。そこで本研究では、広域 X 線吸収微細構造法(EXAFS)を用い、Raの水和構造及び粘土鉱物への吸着構造の世界初となる分子レベルでの解明を目指した。

【手法】測定試料は、大阪大学にて精製された Ra 溶液を用い、溶液試料及び粘土鉱物吸着試料を許認可に則って作製した。粘土鉱物には、2:1型粘土鉱物であるバーミキュライトとモンモリロナイトの二種類を用い、EXAFS 測定は SPring-8の RI 実験棟に位置する BL22XUで実施した。水和構造については、アナログ元素であるバリウム (Ba) も含めて、Vienna Ab initio Simulation Package (VASP)を用いた第一原理分子動力学法によるシミュレーションを行った。吸着構造については、pH とイオン強度を系統的に変えた条件での吸着実験を実施し、分配係数の pH やイオン強度への依存性も調べた。

【結果・考察】水和した Ra における第一水和圏の酸素(0)の配位数及び Ra との距離(Ra-0)を、EXAFS と第一原理計算によりそれぞれ求めたところ、整合的な結果が得られた。得られた Ra-0の距離は、Ra の有効イオン半径よりも約1.4 Å 大きく、Ba などの同族元素と同様の結果となった。また、第一原理計算の結果から配位数のヒストグラムを計算したところ、Ra に配位している水分子は Ba よりも緩く配位していることが明らかになった。粘土鉱物への吸着構造について、EXAFS スペクトルの解析の結果、バーミキュライトについては内圏錯体を、モンモリロナイトについては外圏錯体を形成していることが分かった。この結果を確かめるため、Ra のバーミキュライトへの分配係数を異なる pH やイオン強度の条件下で調べたところ、分配係数における pH やイオン強度への依存性が比較的小さく、内圏錯体の形成が示唆され、EXAFS と整合的な結果 を得た。これらの結果は、環境中で Ra がバーミキュライトや風化黒雲母(バーミキュ ライトの前駆体)などの層状ケイ酸塩に固定されることを示唆している。

Investigation of hydration and adsorption structures on clay minerals of radium by EXAFS YAMAGUCHI A., NAGATA K., TANAKA K., KOBAYASHI K., OKUMURA M., KOBAYASHI T., SHIMOJO K., TANIDA H., SEKIGUCHI T., KANETA Y., MATSUDA S., YOKOYAMA K., YAITA T., YOSHIMURA T., TAKAHASHI Y.

### ケイ酸バリウム(BaSi₂0₅)を主成分とする Sr 吸着剤への Ba の 吸脱着特性

(愛知医大<sup>1</sup>、大阪産業大<sup>2</sup>、日立製作所<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>、慈恵医大アイ ソトープ<sup>5</sup>)〇小島貞男<sup>1</sup>、緒方良至<sup>1,2</sup>、加藤結花<sup>3</sup>、高宮幸一<sup>4</sup>、箕輪は るか<sup>5</sup>

【緒言】我々は、ケイ酸バリウム(BaSi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)を主成分とする Sr 吸着剤であるピュアセ ラム®MAq(日本化学工業社製)が海水中の放射性核種<sup>89</sup>Sr、<sup>90</sup>Sr の捕集剤として有用 であることを、明らかにしてきた。また、難溶性硫酸塩が本吸着剤への吸着挙動に大き く関与していること、天然の放射性元素である Ra は全量が、放射性 Pb の多くの部分が本 吸着剤に捕集されることを、明らかにしてきた。原子力災害時に本吸着剤を用いた分析を 行なうためは、Ba の硫酸塩が難溶性であることから、<sup>140</sup>Ba の影響を予め評価しておく必 要がある。本研究では、京都大学研究用原子炉(KUR)で中性子放射化した Ba の化合 物を放射性 Ba トレーサーとして利用し、本吸着剤への Ba の吸着特性を明らかにすること を目的とする。

【実験】KUR で 20 分間照射 (Pn-2) した 79.8 mg の BaCO<sub>3</sub> 試料を、照射 9 日後に 1 mL の 1 M HCl に溶解し,放射性 Ba トレーサー溶液を調製した。80 mL の人工海水 (0.01 M HCl 性) に放射性 Ba トレーサー溶液 50  $\mu$ L および吸着剤 32 mg を加え,2 時間振盪 した。また、80 mL のイオン交換水 (0.01 M HCl 性) に放射性 Ba トレーサー溶液 50  $\mu$ L、吸着剤 32 mg および 1.6 mL の 1.25 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を加え,2 時間振盪した。吸引ろ過に よりメンブレンフィルタ (0.45  $\mu$ m、47 mm $\phi$ ) 上に吸着剤を捕集し、乾燥後ポリ袋に封 入し、 $\gamma$ 線測定用試料とした。ろ液は U8 容器に移し、 $\gamma$ 線測定用試料としたメンブレンフィルタ上に放射性 Ba トレーサー溶液 100  $\mu$  L を滴下,乾燥させ面線源を作成した。 また U8 容器に 80 mL の 0.01 M HCl および放射性 Ba トレーサー溶液 150  $\mu$ L を加え体 積線源を作成した。Ge 半導体検出器の直上に測定試料を置き、フィルタ試料、面線源 については 600~1000 秒、ろ液試料、容積線源については 1800~3000 秒の測定時間で  $\gamma$ 線測定を行なった。

【結果および考察】面積線源および体積線源の測定では、半減期 11.5 日の<sup>131</sup>Ba の 496.3 keV(分岐比 48%)のγ線が最も顕著であった。それぞれの試料のピーク計数率の測定 値を表1にまとめた。ろ液中に残存する Ba 表1 各試料のピーク計数率および

は検出限界以下であった。また、吸着剤への 分配率96%が得られた。100%より小さな値と なった理由としては、吸着剤がフィルタ上に 捕集された状態と、放射性 Ba トレーサー溶液 をフィルタに吸収させた面線源による、幾何 学的条件の相違を反映している可能性があ

ろ液、吸着剤への Ba の分配率

測定試料	計数率/ s <sup>-1</sup>	分配率/%
体積線源	11.71 ±0.06	(100%)
ろ液(人工海水)	ND	<1%
ろ液(イオン交換水)	ND	<1%
面線源	24.0 ±0.2	(100%)
吸着剤(人工海水)	11.2 ±0.1	96%
吸着剤(イオン交換水)	11.5 ±0.1	96%

る。以上のことから、Ba が吸着剤に定量的に吸着されたと評価して良いと見なされる。し かしながら、本実験で行なった吸着実験では、試料溶液中の Ba 濃度が約 700 mg・L<sup>-1</sup>と海 水と比べて著しく高い値となっており、Ba が低濃度である天然海水と本吸着剤との吸着挙 動を反映していない可能性がある。市販の<sup>133</sup>Ba トレーサーを用いることで、Ba 濃度を天 然海水と同程度にした吸着実験を現在計画している。

Characterization of barium silicate-based adsorbent for Ba in seawater KOJIMA, S., OGATA, Y., KATO, Y., TAKAMIYA, K., MINOWA, H.

## ケイ酸バリウムを主成分とする Sr 吸着剤を用いた <sup>90</sup>Sr の測定 -子核種 <sup>90</sup>Y のチェレンコフ測定

(大阪産業大<sup>1</sup>、愛知医大医<sup>2</sup>、慈恵医大アイソトープ<sup>3</sup>、日立製作所<sup>4</sup>) ○緒方良至<sup>1,2</sup>、小島貞男<sup>2</sup>、箕輪はるか<sup>3</sup>、加藤結花<sup>4</sup>

【緒言】ケイ酸バリウム(BaSi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)を主成分とする Sr 吸着剤(商品名:ピュアセラム MAg®、日本化学工業・荏原製作所)は選択的に Sr を吸着する性質を有しており、我々 はその性質を利用した水溶液(海水、陸水)中の<sup>90</sup>Srの分離・定量法の開発を行なっ てきた。本吸着剤 100 mg で 1 mg 程度の Sr を吸着する能力がある。測定条件にもよる が、測定試料が100mgを超えると、吸着剤中でのβ線の自己吸収の影響で定量的な測 定が困難となる。そこで、<sup>90</sup>Y と平衡状態にある <sup>90</sup>Sr 水溶液に本吸着剤を加え <sup>90</sup>Sr を 吸着させ、水溶液中に分離した <sup>90</sup>Yを測定することを試みた。今回は、<sup>90</sup>Y をチェレン コフ法で測定した場合の計数効率、バックグラウンド、検出下限放射能を報告する。 【実験】硫酸イオン濃度 0.02 M の水溶液 40 mL に~20 Bq の 90Sr(同量の 90Y を含む)およ び 80,100,140mgの Sr 吸着剤を加え2時間撹拌し、Sr を吸着剤に吸着させた。吸引ろ 」過により Sr 吸着剤をメンブランフィルタ(孔径 40μm)上に捕集し、ろ液中に <sup>90</sup>Y を分離 した。ろ液の一部を液体シンチレーションカクテルと混合し、汎用の液体シンチレー ションカウンタ(LSC-7400、日立製作所)で測定し放射能濃度を評価した。ろ液の残 りを 20mL のプラスチックバイアルに入れ、LSC-7400 と低バックグラウンド液体シン チレーションカウンタ(LSC-LB7、日立製作所)を用いチェレンコフ測定モードで測 定した。

【結果と考察】<sup>90</sup>Yのチェレンコフ測定の計数効率は、LSC-7400で61±2%、LSC-LB7で 59±2%とほぼ同じ値であった。これは、過去の文献値とも一致した。以下の式で検出 下限濃度(*MDC*)を求めた。

$$n_{DL} = \frac{2}{t} + \sqrt{\frac{4}{t^2} + 8\frac{n_b}{t}}$$
(1)  
$$A_{DL} = \frac{n_{DL}}{60 \cdot \varepsilon \cdot Y}$$
(2)

$$MDC = A_{DL} \frac{1000}{V} \tag{3}$$

ここで、t は測定時間(分)、 $\varepsilon$ は計数効率、Yは化学収率、 $n_{DL}$  は検出下限計数率(cpm)、 $n_b$ はバックグラウンド計数率(BG、cpm)、 $A_{DL}$ は、検出下限放射能、V はサンプル容量(cm<sup>3</sup>) である。BG は、LSC-7400 および LSC-LB7 で、それぞれ 8.82 cpm、3.30 cpm であった。化 学収率を 90%、試料容量(初期容量)を 10 L、測定時間を 240 分とすると、MDC は、LSC-7400 および LSC-LB7 で、それぞれ 1.7 mBq L<sup>-1</sup>、1 mBq L<sup>-1</sup>でと評価された。この値から、 $^{90}$ Sr の濃度を推定することができる。劇物を使用することなく、極めて簡単な操作で  $^{90}$ Sr の測 定ができることが分かった。本吸着剤は、日本化学工業・荏原製作所から提供を受けた。 感謝の意を表する。

Estimation of <sup>90</sup>Sr activity with bariumsilicate-based adsorbent - application of Cerenkov measurement of progeny nuclide, <sup>90</sup>Y-OGATA Y., KOJIMA S., MINOWA H., KATO Y.

### ポスター発表

# 9月23日(木) 2P01-2P13

#### 低エネルギー励起核種 U-235m のハロゲン化物の半減期変化

**2P01** (1 阪大院理, 2 理研, 3 阪大放射線機構, 4 大阪青山大学) 〇澤村 慶 1, 笠松 良崇 1, 重河 優大 2, 篠原 厚 3,4

#### 【緒言】

放射性核種の壊変定数(半減期)は通常、外的環境の影響を受けずに一定である。し かし、U-235の第一励起状態である U-235m は 76.74 eV という低い励起エネルギーを持 ち、内部転換の際に原子核が外殻電子と相互作用するため、半減期が化学状態に依存 して変化することが報告されている[1,2]。我々は、U-235mの半減期と内部転換電子の エネルギースペクトルを様々な化学状態について測定し比較することで、U-235mの脱 励起機構を解明することを目指している。これまでに、複数の化学状態の U-235m につ いて、半減期と内部転換電子エネルギースペクトルを観測してきた。今回、新たに U-235m と Cl や Br などの様々なハロゲンガスを反応させ、化学状態を変化させること で、明確に半減期の変化を観測することに成功した。

#### 【実験】

Pu-239 のα壊変に伴って放出される U-235m を窒素ガス中にトラップし、負電圧を印加することで銅箔の表面に捕集した(Fig.1)。その後、銅箔を磁気ボトル型電子分光装置に導入した。銅箔表面のU-235m(ガス未反応試料)と、捕集したU-235mにハロゲン化水素溶液(HF, HCl, HBr, HI)をバブリングさせることで発生させたガスを反応させた試料について、内部転換電子の時間依存性を観測した。 測定されたデータに対して、一定のバックグラウンドを加えた単一の指数減衰関数をフィッティングすることで、各試料における半減期を求めた。



#### 【結果】

ガス未反応試料と、各ハロゲン化水素ガスを反応させた試料に対して半減期変化を明 確に観測することに成功した。HBr ガスを反応させた試料の半減期は、本研究が初め ての報告である。銅箔表面試料では、複数の半減期が観測されており、U の酸化数の 違いを表していると考えられる。U-235mは、U の酸化数が上がるにつれて半減期が長 くなる傾向が先行研究[1]によって示されている。各ハロゲン化水素ガス反応試料では、 HF, HCl, HBr 反応試料でそれぞれ 25.3 min, 26.1 min, 25.3 min という半減期が得られ、 HF および HBr ガスを反応させた場合、U-235m の半減期が短くなるという傾向が観測 された。この傾向は、U と各配位子の単純な電気陰性度の差に伴う電子の挙動による 説明が難しく、分子軌道計算の結果も含めて考える必要があり、U-235mの脱励起機構 の解明に向けて非常に有用なデータと考えられる。

[1] M.Neve de Mevergnies *et al*, Phys.Lett. **49B**, 428 (1974). [2] L. v. d. Wense *et al*, Natrue **533**, 47 (2016).

Half-life variation of halides of low-energy excited nuclide U-235m SAWAMURA, K., KASAMATSU, Y., SHIGEKAWA, Y., SHINOHARA, A.

#### **2P02** 第一原理分子動力学計算によるノーベリウムの水和構造の理論研究

(<sup>1</sup>阪大院理, <sup>2</sup>理研 R-CCS, <sup>3</sup>阪大放射線機構, <sup>4</sup>大阪青山大) ○渡邉瑛介<sup>1</sup>,笠松良崇<sup>1</sup>,中西諒平<sup>1</sup>,大高咲希<sup>1</sup>,中嶋隆人<sup>2</sup>, 篠原厚<sup>3,4</sup>

【緒言】102番元素ノーベリウム(No)は、水溶液中で+2価を安定にとる重アクチノイ ド元素である。Silvaらによるイオン交換実験では、アルカリ土類金属イオン Ca<sup>2+</sup>や Sr<sup>2+</sup> と類似した挙動を取ることから、No<sup>2+</sup>はこれらの中間のイオン半径を持つことが示唆 された。<sup>1</sup>一方で近年、我々のグループでは水酸化サマリウム共沈法を用いることによ りNoがNH<sub>3</sub>と錯イオンを形成するというdブロック元素に近い性質を見出しており<sup>2</sup>、 Noの化学的性質解明に向けてさらなる研究が求められている。単一原子レベルでしか 扱うことのできない No<sup>2+</sup>の水溶液中におけるダイナミクスを実験的に調べることは困 難を極めるが、計算化学シミュレーションを活用することで逐次錯形成反応における 化学種の構造やその安定性を網羅的に調べられる見込みがある。本研究では金属の水 溶液中の挙動を知る上で最も基本的な情報である水和構造に着目し、No<sup>2+</sup>-水分子クラ スターの第一原理分子動力学計算を行い、得られた水和構造をCa<sup>2+</sup>や Sr<sup>2+</sup>と比較した。

【分子モデリング・計算手法】Figure 1 のように、 $M^{2+}-24H_2O$ (M=Ca, Sr, No)クラスターモデルを初期構造として構築した。 B3LYP/Stuttgart-RSC(for M atom)/def2-SVP(for H, O atom)レベル の密度汎関数理論に基づく量子化学計算をすべての逐次構造 に対して行った。エネルギー最小化の後、NVT 一定のアンサン ブルで分子動力学シミュレーションを行った。時間ステップ は  $\Delta t$ =0.5 fs として、20000 ステップの計算を行った。ソフト ウェアは NTChem を用いた。



初期構造

【結果と考察】Ca, Sr, No すべてのシミュレーションにおいて全電子エネルギーが平衡に 到達するのに 2.5 ps 要したため、それ以降の 7.5 ps のトラジェクトリを解析した。得られ た Ca<sup>2+</sup>と Sr<sup>2+</sup>の水和構造パラメータは、先行する研究で得られた値とよく一致していた。

Figure 2 に、No<sup>2+</sup>-24H<sub>2</sub>Oの動径分布関数 g(r)ならびにそれを積分した配位数 n(r) を示す。No<sup>2+</sup>の第一水和圏の平均配位数 は 7.5、No-O 原子間の平均距離は 2.48Å と求まった。この水和距離は Ca<sup>2+</sup>と Sr<sup>2+</sup> との中間の値であり、水中のダイナミク スの観点からも No は二族元素と類似し た化学的性質を持つことが示唆された。 当日は、さらに水分子数を増加させた金 属-水分子クラスターのシミュレーショ ン結果や、水和錯体の電子状態について も発表する。



Figure 2. No<sup>2+</sup>-24H<sub>2</sub>O の動径分布関数

1. R. Silva et al., Inorg. Chem. 1974, 13, 2233.

2. 二宫秀美, 大阪大学大学院理学研究科修士論文(2019)

Ab initio molecular dynamics study on the hydration structure of element 102, No WATANABE, E., KASAMATSU, Y., NAKANISHI, R., OTAKA, S., NAKAJIMA, T., SHINOHARA, A.

### 2P03

Rf の共沈実験に向けた Zr, Hf, Th, Eu のシュウ酸, マロン酸沈殿実験 (阪大院理<sup>1</sup>、阪大放射線機構<sup>2</sup>、大阪青山大<sup>3</sup>) 〇中西諒平<sup>1</sup>、笠松良崇 1、渡邉瑛介1、大髙咲希1、篠原厚2.3

【緒言】 原子番号104番の超重元素であるラザホージウム(Rf)の化学研究としては、主 に無機配位子との錯形成が調べられてきた。本研究では、Rf とキレート錯体を形成す る可能性のある有機酸配位子シュウ酸,マロン酸に着目した。シュウ酸やマロン酸は、 4 族元素や擬同族元素の Th と錯体を形成し[1]、錯イオンや沈殿を形成することから、 Rfとも反応し錯体が形成されると考えられる。そして、Rf とシュウ酸塩やマロン酸塩 との共沈実験を行うことにより、Rf のイオン半径・電子軌道とキレート配位子の大き さ・形状の関係性を、配位のしやすさを通して議論することができると考えている。 今回は、Rf のシュウ酸, マロン酸との反応を調べる共沈実験に向けて、シュウ酸系で はシュウ酸トリウムを、Th が沈殿を生じないマロン酸系ではマロン酸ジルコニウムを それぞれキャリアとして Zr, Hf, Eu の共沈実験を行い、Rf 実験の実験条件を調べた。

【実験】 シュウ酸系では、湯浴中 80 ℃で Th 溶液とシュウ酸(0.001 M ~ 0.9 M)を反応 させ沈殿収率と平衡到達に要する時間を調べた。更に沈殿の α線スペクトルを測定し エネルギー分解能を調べた。<sup>88</sup>Zr, <sup>175</sup>Hf, <sup>152</sup>Eu に Th のキャリアを加えた溶液と、シュウ 酸水溶液(0.01 M ~ 0.9 M)を湯浴中で 60 秒間攪拌し沈殿の吸引ろ過後、トレーサーの y線測定により共沈収率を算出した。さらに、マクロ量のZr, Hf, Euを用いてシュウ酸 沈殿実験を行い、シュウ酸トリウム共沈との挙動の比較を行った。またマロン酸系で は、シュウ酸系同様に80℃の温度条件で、マロン酸ジルコニウム沈殿の平衡到達まで に要する時間を調べることにより、キャリアとして使用できる条件を調べた。

【結果・考察】 シュウ酸トリウム沈殿では、80 ℃以上の温度で 60 秒以内に平衡到達し ていることが分かった。α線分解能はおよそ 100 keV で、低エネルギー側に 500 keV の テーリングがあるが、<sup>261</sup>Rfの同定が可能である分解能であるということが分かった。 共沈実験のシュウ酸濃度依存性(図 1)とマクロ量沈殿の挙動は、Zr, Hf, Euのすべてに おいて概ね一致し、共沈挙動より沈殿挙動を議論することが可能であるということが 分かった。このとき、イオン半径のサイズの等しい Zr, Hf は同じ挙動を取り、よりイ オン半径の大きなEuはサイズが近いキャリアのThと同じ挙動をとった。シュウ酸は、

イオン半径の小さな M = Zr, Hf に 3 つ又 は 4 つ配位して、溶液中で[M(ox)<sub>3</sub>]<sup>2-</sup>, [M(ox)<sub>4</sub>]<sup>4-</sup>の状態で存在すると考えられる。 イオン半径の大きな Eu は沈殿している ことから相対論により d 軌道が拡大して いる Rf も共沈する可能性が示唆された。 またマロン酸ジルコニウム沈殿について も80℃以上の温度では、迅速に平衡到達 していることが分かり、キャリアとして 使用できる可能性が十分にあることが分 かった。



Precipitation experiment of Zr, Hf, Th and Eu with oxalic acid and malonic acid, towards the experiment of element 104, Rf.

NAKANISHI, R., KASAMATSU, Y., WATANABE, E., OTAKA, S., SHINOHARA, A.



図1: Zr, Hf, Euのシュウ酸トリウム共沈の共沈収率

# 福島事故で放出された放射性粒子の性状解析と微量放射性核種の分析 (阪大院理<sup>1</sup>、阪大放射線機構<sup>2</sup>、大阪青山大<sup>3</sup>、慈恵医大<sup>4</sup>)○村上 貴士<sup>1</sup>、 二宮 和彦<sup>2</sup>、五十嵐 淳哉<sup>1</sup>、吉村 崇<sup>2</sup>、篠原 厚<sup>2,3</sup>、箕輪 はるか<sup>4</sup>、

吉川 英樹 4

【緒言】原子力事故において、放射性核種は核燃料から揮発しエアロゾルの形態で放出されると考えられている。一方で東京電力福島第一原子力発電所事故では放射能を濃集した粒子状の汚染もあったことが知られている<sup>1</sup>。この放射性粒子は高濃度の放射性セシウムを含み、事故時に原子 炉内で生成したと考えられている。放射性粒子は水に溶けずに、放出時の状態を保持していると 考えられ、その分析により事故進展の知見を得ることが期待される。これまでの研究から、最低でも 二種類の粒子が存在しており<sup>2</sup>、いずれも SiO<sub>2</sub>を主成分としていることが分かっている。これまで、粒子の形や内部構造<sup>3</sup>、構成元素など、性状の多様性が議論されているが、分析に化学分離を必要 とする微量な放射性核種である Sr-90 など、Cs-137、Cs-134 以外の放射性核種に関する議論は少 ない。本研究では放射性粒子中の Sr-90 の分析を行うとともに、EDS 分析による安定元素の半定 量を通して、粒子生成過程について検討した。

【実験】2020年に福島県双葉町で採取した土壌試料から放射性粒子を分離した。これらの粒子についてγ線測定によって Cs-134、Cs-137放射能を、SEM-EDS分析によって形状、元素構成比を求めた。一部の粒子については、粒子を分解して Sr の化学分離を行い、Sr-90を定量した<sup>4</sup>。

【結果】本研究では 34 個の放射性粒子について分析を行った。粒子の SEM 像から、その形状は 多くが礫状であることが分かった。Cs-137 は粒子あたり 10~10000 Bq 含まれており、 Cs-134/Cs-137 放射能比の平均値は 0.93 であった。SEM 像から見積もった粒子の体積はほとんど が 10<sup>-1</sup>~10<sup>-3</sup> mm<sup>3</sup> であり、Cs-137 放射能との相関は得られなかった。Sr-90 の定量から、 Sr-90/Cs-137 放射能比が 10<sup>-4</sup> オーダーであり、粒子によるばらつきが少ないことが分かった。EDS 分析の結果、粒子はケイ素と酸素を多く含んでおり、ナトリウム、マグネシウム、アルミニウムといった 元素を主に含んでいることが分かった。EDS スペクトルから、母材であるケイ素に対する元素構成比 を求め、元素間の構成比の相関を調べたところ、カルシウムとナトリウム、亜鉛とアルミニウム、アルミ ニウムと鉄、亜鉛と鉄の 4 組の元素間で相関がみられた。一部の粒子には EDS 元素マッピング上 で鉄の濃集点を見出すことができた(図)。



図. 粒子の EDS 元素マッピング

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Itoh S. et. al., Soil Sci. and Plant Nutrition, **60**, 540-550 (2014).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> K. Adachi *et al.*, *Sci. Rep.*, **3**, 2554 (2013).

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> H. Miura et al., Sci. Rep., **10**, 11421 (2020).

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Z. Zhang et al., J. Nucl. Radiochem. Sci., 16, 15-21 (2016).

Properties and Sr-90 contents in radioactive particles released by Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident

Murakami A., Ninomiya K., Igarashi J., Yoshimura T., Shinohara A., Minowa H., Yoshikawa H.

### 2P05

### 大容量エアサンプラ(Snow White)を用いた大気浮遊じん中ヨウ素 129 濃度の経年変化

(公益財団法人 日本分析センター)○須藤百香・王暁水・飯田素代・日比野有希・宮田賢・岡山杏菜・太田智子・太田裕二・磯貝啓介

【緒言】大容量エアサンプラ(Snow White)を用いて、大気浮遊じん中の放射能核種を高感度 に測定することが可能となった。<sup>129</sup>Iは半減期が1,570万年と長いため、被ばく線量評価の観 点から、環境中での長期的な動きを把握することが注目されている。本研究では、2017~2020 年において Snow White により捕集した大気浮遊じん中の<sup>129</sup>I濃度と<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比の経年変 化を調査した。さらに、同一試料の<sup>134、137</sup>Csとの放射能比について考察した。

【実験】1. 試料採取:設置高度 1m、流量 680m<sup>3</sup>/h で大気を連続吸引し、ガラス繊維ろ紙(570×460 nm)上に大気浮遊じんを捕集した。捕集場所は、千葉市(日本分析センター構内)にて、捕集期間は2017年1月12日~2021年1月14日までとした。捕集後のろ紙試料を<sup>134,137</sup>Cs 及び<sup>129</sup>I 測定試料とした。2. <sup>134,137</sup>Cs の測定: ろ紙を専用プレス機で成型し、プラスチック測定容器に入れ、放射能測定法シリーズ 7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」に準じて、<sup>134,137</sup>Cs 濃度を測定した。 <u>3. <sup>129</sup>Iの分析</u>:測定済みろ紙は粉砕・均質化し、一部分を<sup>129</sup>I の分析試料とした。燃焼法により大気浮遊じん中に含まれる<sup>129</sup>I を TMAH 溶液に捕集後、捕集溶液から一部を分取して、ICP-MS(Agilent ICPMS7700X)により<sup>127</sup>Iを定量した。残りの溶液にヨウ素担体を加え、溶媒抽出法によりヨウ素を分離・精製した後、ヨウ化銀沈殿として回収した。沈殿物にニオブ粉末を加えて、JAEA 青森研究開発センター及び東京大学 MALT の AMS により<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 原子数比を測定し、<sup>129</sup>I 放射能濃度を算出した。また、分析工程の妥当性を確認するため、標準試料(NIST-1547)及びブランク試料を併せて分析した。

【結果・考察】2017~2020年における大気浮遊じん中の<sup>129</sup>I 濃度及び<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 原子数比の範囲は、 (0.27~8.6)×10<sup>-7</sup> mBq/m<sup>3</sup>及び (0.094~4.3)×10<sup>-8</sup> であり、3月頃に高く、3月~7月に減少 し、7月~10月にかけて増加する傾向が確認された。GARGER、飽本<sup>1,2)</sup>らは、12月~5月は, 冬の休耕地や畑等の裸地より、地表で蓄積した粒子状放射性物質の再浮遊に伴い、大気中の <sup>129</sup>I 濃度が上昇すると報告している。また、千葉や茨城県等で採取された花粉を分析した結果、 表層土壌と同レベルの<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 原子数比をもつ<sup>129</sup>I が含まれることが確認された。これより、3 月頃の<sup>129</sup>I の高値は、地表の粒子状放射性物質の再浮遊及び花粉の飛散に由来すると考えら れた。また、Hou ら<sup>3)</sup>は、海洋気温の上昇に伴い、大気中の<sup>129</sup>I 濃度の上昇を観測しており、 千葉市の月間平均気温(3月~7月、8月~11月)と<sup>129</sup>I 濃度には、それぞれ負の相関(R= -0.81、-0.62)が存在することが分かった。

同一試料における<sup>129</sup>Iと<sup>137</sup>Cs 濃度の相関(R=0.09)は確認されなかったが、月間合計降 雨量の上昇に伴い、<sup>129</sup>Iと<sup>137</sup>Cs の相関係数は高くなることから、<sup>129</sup>Iと<sup>137</sup>Cs 等放射性物質が 降雨と共に、地表に降下したと考えられた。なお、福島第一原発事故に伴う大気放出起源の <sup>129</sup>I/<sup>134</sup>Cs 放射能比は 2.1×10<sup>-6</sup>と報告されており<sup>4)</sup>、本研究で得られた<sup>129</sup>I/<sup>134</sup>Cs 放射能比の年間 平均値((2.3~4.9)×10<sup>-5</sup>)は約1桁程度が高かったため、今回観測された大気浮遊じん中<sup>129</sup>I の由来は福島第一原発事故によるものと核実験フォールアウト等が起源であると推測された。

参考文献:1)E. K. GARGER, J. Aerosol Sci., 75, 745–753,1994; 2) 飽本一裕 Jpn. J. Health Phys., 49(1), 17~28, 2014; 3) Hou, et al, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 15, 25139–25173, 2015; 4) T. P. GUILDERSON, et al, Biogeosciences, 11, 4839–4852, 2014.

Temporal variation of <sup>129</sup>I in atmospheric particles collected by Snow White within 2017-2020 Japan Chemical Analysis Center (JCAC) M. SUTO, XS, WANG, M. IIDA, Y. HIBINO, S. MIYATA, A. OKAYAMA, T. OHTA, Y. OHTA, K. ISOGAI

#### 海水中<sup>129</sup> の ICP-MS 分析に向けた固相抽出法の開発:銀イオン担持 2P06 樹脂を用いた干渉元素および共存陰イオンによる|吸着への影響

(日本原子力研究開発機構)

○青木譲,松枝誠,小荒井一真,寺島元基

【緒言】ICP-MS 法を用いて環境試料中<sup>129</sup>I を分析するには, Ar ガスに含まれる<sup>129</sup>Xe を O<sub>2</sub>と の反応(質量シフト)により分離する必要がある。しかし、O2との反応は新たな干渉イオン (<sup>97</sup>Mo<sup>16</sup>O<sub>2</sub>, <sup>113</sup>Cd<sup>16</sup>O, <sup>113</sup>In<sup>16</sup>O)を生成することから、その原因となる元素を予め分離する必 要がある。また、129Iを極低濃度で含む試料(例えば、海水:10-7 Bq/kg<sup>[1]</sup>)を ICP-MS 法(検出下 限値: 2.6×10<sup>-4</sup> Bq/kg<sup>[2]</sup>)を用いて分析する場合には,<sup>129</sup>Iを10<sup>3</sup>倍以上に濃縮する必要もある。 近年,<sup>129</sup>Iの分離・濃縮にAg<sup>+</sup>を有機ホスフィンスルフィドに担持した固相抽出樹脂(CLResin) の利用が検討されている<sup>[3]</sup>。しかし、CL Resinは、陰イオン性の干渉元素(例えば、Mo)を +分に分離できない可能性があるほか、共存する陰イオン(Cl, NO3等)との競合によって Iを定量的に濃縮回収できない可能性もある。本研究では、環境試料中の<sup>129</sup>Iの ICP-MS 分析 に用いる前処理法の開発に向けて、CL Resin への I 吸着における干渉元素および共存陰イオ ンによる影響を調査した。

【実験方法】CL Resin 50 mg を遠沈管へ測り取り, 陰イオン性の干渉元素を含む 5 mL 試験溶 液(I, Mo, Cd, In:1 μM, 硫酸:0.1, 1.0 M, Britton-Robinson 緩衝液(pH2 ~ 8):0.1 M)を加 え,振とう機にて 1000 rpm, 25℃ で 1 時間混合した。混合試料は,ろ過後(孔径<1 µm), 上澄み液を回収した。上澄み液は、超純水で 100 倍希釈し、ICP-MS (Perkin Elmer 製 NexION300X)を用いて各元素濃度を定量した。共存陰イオンによる I 吸着への影響は、上記 操作と同様に、様々な陰イオン濃度を有する試験溶液(I:1µM, NO3:1~1~104µM, CI:1~106 µM, 硫酸: 1.0 M) を用いて評価した。各元素の吸着率は, 吸着前後の濃度差から算出した。 濃縮実験は、2L試験溶液(0.40 µ M I, 1 M 硫酸)を、CL resin(500 mg)を充填した PEEK カラム(内径 4.0 mm, 長さ 50 mm)に通液させた。その後, 超純水 10 mL, 1% NaOH 水溶液 10 mL を通液しカラム内を洗浄した後,溶離液(0.35 M Na<sub>2</sub>S) 0.5 mL を計6回通液し, I を回 収した。I回収液は、超純水で5000倍希釈し、ICP-MSでI濃度を定量した。濃縮倍率は、元 の標準液量(2L)と全量回収に必要な溶離液量から算出した。

【結果と考察】0.1,1.0 M 硫酸条件下において,I は 96.9,97.9% 吸着されたが、pH 2~8 では、pH の上昇に伴い吸着率が 81.7 から 53.4%へ低下した。一方, Cd は pH 8 において 8.2%の吸着率を示 したが, Moや In は全ての pH 条件で吸着しなかった(右図)。ま た,NO3および Clが I に比べて高濃度で共存する条件において (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>/I=10<sup>4</sup>, Cl<sup>-</sup>/I=10<sup>6</sup>), Iは99.0%以上が吸着した。濃縮試験の 結果, Iは, その 99.6% が吸着し, 溶離液 1.5 mL によって 100%回 収されることが分かった。濃縮倍率は、1.3×10<sup>3</sup>倍と算出され、CL Resin により<sup>129</sup>Iを ICP-MS による海水分析の目標レベルである 図. pHにおけるI及び干渉元素の吸着率,% 103倍以上に濃縮することができた。



[1] T. Suzuki et al., Biogeosciences, 10, 3839, (2013).[2] G. Yang et al., Anal. Chim. Acta, 1008, 66, (2018).[3] J. Aoki et al., JAEA-Research, 2, (2021).

#### **2P07** 放射能測定法シリーズ No.7「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線ス ペクトロメトリー」の改訂

(日本分析センター1)〇宮田賢1、鈴木勝行1、太田裕二1

#### 【緒言】

ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリーは、環境試料中のγ線放出 核種を対象とした放射能分析の主要な手法として広く用いられてきた。γ線スペクト ロメトリーに関係した放射能測定法シリーズの1つである「ゲルマニウム半導体検出 器によるガンマ線スペクトロメトリー」(平成4年改訂)は主に平常時を対象としたγ 線スペクトル解析法を記載したものであるが、その後の測定機器および解析装置の性 能向上、解析手法の進歩等の状況に対応できるように2020年9月に改訂された。 改訂前のマニュアル(以下、「旧版」)は、解析プログラム開発者向けの内容を多く含

は前前のペニュアル(以下、「山版」)は、解析フロラフム開発者同じの内容を多くさ む構成であったが、改訂後のマニュアル(以下、「改訂版」)は環境放射能分析の実務 担当者を対象とし、平常時に実施される環境試料のγ線スペクトロメトリーの基本と なる原理・原則を記載した。改訂の方針として、実務担当者向けの内容とすること、 解析技術の進歩を取り入れること、現在一般的に使われている機器に対応した内容に すること、国際的な基準に沿った内容とすることが挙げられた。本発表では、改訂に 伴う主な変更点について説明する。

【主な追加・変更点】

・不確かさの評価

平常時の環境試料を取り扱うγ線スペクトロメトリーでは、分析結果に対する不確か さ要因として最も寄与が大きいのは放射線の計数に係る不確かさ(計数誤差)である。 旧版では不確かさの概念は導入されておらず計数誤差のみを扱っていたが、近年、機 器の校正から試料の測定、解析までの一連の工程における不確かさの評価が求められ ていることから、改訂版にはγ線スペクトロメトリーにおける不確かさの評価方法と 具体例が追加された。

・ISO11929による検出下限の評価方法の導入

検出下限値の評価方法は複数あるが、旧版に記載されていた Cooper 法に加え、国際規格である ISO11929 による評価方法の計算例が追加された。

・スペクトル例の充実化

スペクトルに検出されたピークから核種を同定することは、通常は解析プログラムを 利用して自動的に行われるが、核種を誤同定する可能性を排除出来ないため、特に複 雑なスペクトルでは使用者による確認も必要となる。改訂版には核種同定作業の一助 となるよう、多種の試料のスペクトル例が記載された。

・数値計算モデルによるピーク効率計算手法の導入

数値計算モデルを用いてピーク効率を求める手法や、ピーク効率を別ジオメトリでの ピーク効率に換算する手法が世界的に広く利用されている状況を踏まえ、数値計算モ デルを使用する際の注意点や妥当性確認の手法についての記載が追加された。

なお、本発表は、原子力規制庁委託事業である「平成 31 年度放射線対策委託費(放 射能測定法シリーズ改訂)事業」の成果の一部である。

#### 環境放射線モニタリングにおける精度管理

(日本分析センター)〇太田博、阿部剛、川村隆夫、今野裕太、豊岡慎介、 太田智子

【緒言】 東京電力福島第一原子力発電所事故後、放射能に関する分析データに対し、 信頼性の高いデータを提供することが求められている。全国規模の環境放射線モニタ リングとして原子力規制庁が実施している環境放射能水準調査があり、全国47都道府 県の分析機関を対象にISO/IEC17043に準じた相互比較分析も行っている。日本分析セ ンター(以下、「当センター」と示す。)は分析機関に分析比較試料(当センターが付与 値を確定した試料)を配布し、分析機関は分析比較試料を分析、測定する。分析機関の 分析、測定結果を付与値と比較し評価すると共に、評価結果が不満足であった場合、 原因を検討し改善点を提示している。

今回、2020年度に実施された相互比較分析のうち、前処理操作が適切に実施されているかを確認する海水及び海産生物試料について紹介する。

【内容】 当センターは分析機関に分析比較試料(当センターが付与値を確定した試料) を配布し、分析機関は分析比較試料を分析、測定する。分析機関の分析、測定結果を 付与値と比較し評価する。評価方法は En 数及び Z スコアで行った。

配布した試料を表1に示す。

2P08

表 1. 配布試料	
	海産生物

試料名	海水	海産生物(すり身)
形状	γ 線放出核種を添加した海水	γ線放出核種を添加したすり身
対象核種	Ce-139 Cs-137 Mn-54 Fe-59 Co-60	Ce-139 Cs-137 Mn-54 Co-60 K-40
対象工程	核種の補修操作	灰化処理の操作

【結果】Zスコアによる評価結果を表2に 示す。また、「満足」となった機関の割 合は、海水は70%以上、海産生物は80% 以上であった。

【結言】 評価結果より、相互比較分析 では精度の高い分析ができていた。なお、

表	2.評価結果	
1		

	機関の割合(%)の範囲		
試料	$ z  \leq 2.0$	2.0< z <2.0	$3.0 \leq  z $
	満足	疑わしい	不満足
海水	71~95	0~19	0~10
海産生物	81~90	0~14	5~14

不満足であった結果もそれぞれ原因を追究し、再分析、再解析等で満足となる評価が 得られ改善が認められた。

\*本研究は令和2年度原子力規制庁委託費(環境放射能水準調査)事業の成果の一部で ある。

Quality control in environmental radiation monitoring. OTA H., ABE G., KAWAMURA T., KONNO Y., TOYOOKA S., OTA T..

#### Fe ドープ酸化インジウムの局所場測定

(金大院自然<sup>1</sup>、金大理工<sup>2</sup>)〇内野葉月<sup>1</sup>、伊東泰佑<sup>1</sup>、佐藤渉<sup>1,2</sup>

【緒言】酸化インジウム (In<sub>2</sub>0<sub>3</sub>) は、2 つの In サイトを有する bixbyite 構造をとる n 型半導体であり、不純物を導入することで物性を制御する試みが盛んに行われている。 近年、In<sub>2</sub>0<sub>3</sub>に微量の Fe 原子をドープすることで結晶全体が磁性を持つ、いわゆる希薄 磁性半導体としての性質を示すことが確認され、スピントロニクスの分野における応 用が期待されているが、磁性発現のメカニズムに関しては未だ解明されていない。そ こで本研究では Fe をドープした In<sub>2</sub>0<sub>3</sub> (FIO) の希薄磁性発現の有無を調べることを目 的として、研究を行っている。手法として In 位置で局所場を <sup>111</sup>In (→<sup>111</sup>Cd) をプロー ブ核とする摂動角相関 (PAC) 法を、また Fe 位置での情報を得るために透過型メスバ ウアー分光法を採用した。

【実験】In<sub>2</sub>0<sub>3</sub>粉末を、原子数比でIn:Fe=98:2となるように粉末のヘマタイト(Fe<sub>2</sub>0<sub>3</sub>) と混合し、錠剤成型した。空気中773Kで12時間焼成した後、更に真空中773Kで1 時間焼成した。その試料に<sup>111</sup>In 溶液を滴下した後、再び真空中1,373Kで10時間焼 成した。In<sub>2</sub>0<sub>3</sub>と生成した試料に対して13Kから673Kまでの範囲でPAC測定を行っ

た。同様の手順で Fe をドープした試料において透 過型 <sup>57</sup>Fe メスバウアー分光測定を行った。

2P09

【結果と考察】Fig. 1 は未ドープの In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (undoped In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:UIO)、Fig. 2 は FIO における室温と 673 K の PAC スペクトルである。横軸は<sup>111</sup>Cd プローブの 原子核が摂動を受ける時間、縦軸は角相関の時間変 動である。UIO において室温では異方性が速く緩和 するスペクトルが得られたが、673 K では電場勾配 による顕著な静的摂動パターンが見られた。これは 高温の半導体ではキャリア密度が増加するため、EC 壊変の後遺効果による緩和が抑えられたためであ ると考えられる。一方、FIO では室温においても電 場勾配による静的摂動パターンが見られ、673 K で はわずかであるが振幅が増加した。UIO と異なり、 室温においても電場勾配による静的摂動パターン が見られた原因は、Feのドーピングのよるキャリア 密度の増加に帰することができる。673 K で緩和が 抑えられ、振幅が増加したのは、UIO と同様にキャ リア密度が増加したことによると考えられる。メス バウアー分光測定の結果についてはポスター発表 にて詳細に議論する。

Measurements of local fields in Fe-doped indium oxide H. UCHINO, T. ITO, W. SATO



### 2P10 核医学用アスタチン抽出に利用できるイオン液体の研究

(金沢大院自然<sup>1</sup>、量研東海<sup>2</sup>、福島医大先端セ<sup>3</sup>、理研仁科セ<sup>4</sup>、金沢大理工<sup>5</sup>)○永井雄太<sup>1</sup>、青井景都<sup>1</sup>、丸山峻平<sup>1</sup>、西中一朗<sup>2</sup>、鷲山幸信<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>4</sup>、横山明彦<sup>5</sup>)

【緒言】<sup>211</sup>At は a 線内用療法への応用が期待される核種の一つである。加速器を用いて a 線を照射された <sup>209</sup>Bi 標的から <sup>211</sup>At を分離する方法の一つとして、従来では有機溶 媒による溶媒抽出が用いられている。しかし、有機溶媒は安価で入手しやすいが、揮発 性や可燃性のため、環境汚染や危険物の取り扱いが懸念される。近年、グリーンケミス トリーの観点から有機溶媒に代わる溶媒として、イオン液体が注目されている。イオン液体は常温で液体であり難揮発性、難燃性であるため環境負荷や事故の危険が小さ い。また繰り返し使えるため、放射性廃棄物が有機溶媒を使用する場合よりも少なく なる。放射線耐性についての報告[1]もあるため、イオン液体は <sup>211</sup>At を抽出する溶媒として有望であると考えられる。しかし、イオン液体による <sup>211</sup>At を抽出する溶媒と して有望であると考えられる。しかし、イオン液体による <sup>211</sup>At を抽出する溶媒と して有望であると考えられる。しかし、イオン液体による <sup>211</sup>At を抽出する深媒と して有望であると考えられる。しかし、イオン液体による <sup>211</sup>At の抽出に関する研究は 文献[2]以外はほとんど報告されていない。そこで本研究では、<sup>211</sup>At 溶媒抽出に有望で あると報告されている HCl 系で[2]、イオン液体の種類による適性について検討した。 【実験】<sup>211</sup>At の製造法の一例を次に示す。加速器を用いて Bi 金属箔にa線を照射し <sup>209</sup>Bi(a, 2n)<sup>211</sup>At 反応で製造した。6M HNO3で照射済み Bi 標的を溶解した後、1M に 希釈した。HNO3溶液からドデカンに <sup>211</sup>At を抽出した後、0.1M, 1M, 3M HCl 溶液にさ らに抽出した。HCl 溶液から 5 種類のイオン液体[C<sub>8</sub>mim][PF<sub>6</sub>], [C<sub>8</sub>mim][BF<sub>4</sub>],

[C<sub>4,6,8</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N],に<sup>211</sup>At を抽出した後、0.1, 1, 3M NaOH 溶液に逆抽出した。抽出前後の HCl 溶液と逆抽出後の NaOH 溶液について<sup>211</sup>At の放射能を液体シンチレーション カウンターで測定した。HCl 溶液からイオン液体への<sup>211</sup>At の抽出率、イオン液体から NaOH 溶液への逆抽出率を求めた。また、抽出前後のドデカンを TLC 分析することで、HCl 溶液中の At 化学種を推測した。

【結果】図1にHCI溶液から5種類のイオン液体の イオン対の陽イオンを変化させた場合と陰イオン を変化させた場合の<sup>211</sup>Atの抽出率を示す。陽イオン を比較した場合、炭素鎖の大きい方が抽出率は大き くなった。陰イオンを比較した場合、疎水性の大き い方が抽出率は小さくなった。イオン液体の陽イオ ン、陰イオンの疎水性が水相中のAtイオンとのイ オン交換に影響を与えていると思われる。また、 [C<sub>8</sub>mim][Tf<sub>2</sub>N]は抽出、逆抽出ともに90%を超える値 であり、<sup>211</sup>At溶媒抽出に有望であると考えられる。

#### 【参考文献】

[1] L. Yuan, et al, J. Phys. Chem. B 2009, 113, 8948-8952 [2]川崎康平,金沢大学大学院自然科学研究科修士 論文(2020)



図1 塩酸濃度に対する At 抽出率

Research on ionic liquid extraction of astatine for a nuclear medical utilization NAGAI, Y., AOI, K., MARUYAMA, S., NISHINAKA, I., WASIYAMA, K., HABA, H., YOKOYAMA, A.

### 放射性廃棄物に含まれる Zr-93 の定量分析手法の開発 2P11 地山久口マレグニマグレジンを用いた 75 四美八離さ

■ – 抽出クロマトグラフィーレジンを用いた Zr 吸着分離法の検討-

(JAEA) 〇森井志織、蓬田匠、大内和希、北辻章浩

#### 【緒言】

長寿命放射性核種である Zr-93 (半減期約 150 万年) は高レベル放射性廃棄物 (HLW) 等の処分時の安全評価対象核種のひとつであり Zr-93 の正確な定量分析が必要不可欠 である。これまでにイオン交換カートリッジなどの吸着材を用いて Zr を化学分離し、 吸着剤から Zr を溶出後に溶液試料として ICP-MS で Zr 同位体を定量分析する手法が 報告されている<sup>[1]</sup>。本研究ではより簡便・迅速な分析手法の開発を目的に、Zr を選択 的に固相抽出し、Zr が吸着したレジンを固体状態のままレーザーでアブレーションし て ICP-MS により定量分析することを着想した。本発表ではレーザーアブレーション (LA)-ICP-MS で測定するための Zr の固体試料の作製法について報告する。

#### 【実験】

DGA (*N*, *N*, *N*', *N*'-tetra-n-octyldiglycolamide) レジンカートリッジ (Eichrom Technologies 社製) に Zr の他 13 元素を含む HLW 模擬溶液の約 100 倍希釈液を流し、 Zr をレジンに吸着させた。溶離液として 2 M 硝酸、4 M 硝酸を順にレジンに流し、Zr の同重体であり質量分析時に Zr 同位体測定の妨害となる Sr、Mo、Ru を溶離させた。溶出液の各フラクションに含まれる Zr 及びその同重体を ICP-MS で測定し、溶出率を 調べた。

#### 【結果、考察】

下図に示すように、溶離液として2M硝酸、4M硝酸を流した場合、Zrはレジンに 吸着し続けていることが明らかになった。Moは2M硝酸により99%以上が溶出した。 Ruは2M硝酸によってほとんど溶出し、その後に4M硝酸を流すことによってわずか に残留しているRuを溶出させることができ、99%以上が溶出した。Srは2M硝酸で



はほとんど溶出しないが、 4 M 硝酸を流すことによ り 99 %以上が溶出した。

この結果より、Zr の同 位体測定の妨害元素を溶 出させ、Zr を吸着させた レジンを固体試料として 簡便に作製できることが 明らかになった。今後は 本固体試料を LA-ICP-MS を用いた測定に適用する。



[1] 例えば Asai, S. et al., Talanta. 2018, 185, 98-105.

Development of a selective solid-phase extraction method for quantitation of Zr-93 in radioactive wastes MORII, S., YOMOGIDA, T., OUCHI, K., KITATSUJI, Y.
#### 顕微ラマン分光法と顕微X線分光法によるウラン微粒子の化学状 2P12 態分析

(JAEA<sup>1</sup>、東大院理<sup>2</sup>)○蓬田 匠<sup>1,2</sup>、北辻章浩<sup>-1</sup>、高橋嘉夫<sup>2</sup>、宮本ユタ 力 1

【緒言】福島第一原子力発電所の廃炉作業において、燃料デブリの主成分であるウラン (U)を含んだ微細な粒子の環境中への放出が懸念されている。U は化学種により水への 溶解性が大きく異なるため、U 微粒子の化学種を把握する必要がある。燃料の主成分 である二酸化ウラン(UO2)は、空気酸化によって表面の酸化が進行して不定比化合物 (UO2+x)となることが知られており、マイクロメートルサイズの微粒子では内部と表面 で化学種が異なる可能性がある。微粒子の内部構造は元の化合物を反映し、微粒子表 面の化学種は微粒子の溶解性などを議論する上で重要となる。本発表では、U 微粒子 表面と内部の化学状態を明らかにするために、物質への侵入深さの異なる X 線と可視 光を用いる分光法を組み合わせ、透過型顕微 X 線吸収分光法で微粒子内部、顕微ラマ ン分光分析法により微粒子表面の化学種を判別する手法を試験した。

【実験】約30年間空気雰囲気で保存された経年二酸化ウランをUO2+xのモデル化合物と して用いた。この微粒子をスパチュラにより分取し、エイコサン-ナノデカン混合溶液 を塗布したガラス状炭素基板上に担持して固着させることで、測定用試料を調製した。 ULIII端X線吸収分光測定は、大型放射光施設SPring-8 BL37XUにおいて行った。また、 ラマン分光測定には、顕微ラマン分光光度計(ラムダビジョン製 Micro-RAM)を用いた。 【結果と考察】5 µm 程度の UO<sub>2+x</sub> 粒子から得られた XANES スペクトルを Fig. 1 に示す。 ULIII端の XANES スペクトルのピークトップは、U(IV)とU(VI)の間に位置し、UO2よ りも酸化されていることがわかる。得られたスペクトルを線形結合フィッティングに より解析した結果、UO2が約 90%、U3O8 が約 10%の組成であった。一方、UO2+x 粒子 のラマンスペクトルを Fig. 2 に示す。ラマンスペクトルでは、832, 867cm<sup>-1</sup>の UO<sub>4</sub>・nH<sub>2</sub>O に帰属されるラマンピークが顕著に観測され、表面で内部と異なる化合物種が存在す ることが示唆された。したがって、顕微ラマン分光法と顕微 X 線分光法を組み合わせ ることで、UO<sub>2+x</sub>粒子の内部と表面に存在する酸化物種を判別することが可能になった。



1200

### 2P13 Rapid measurement of U, Np, and Pu in feces using ICP-MS/MS alpha spectrometry (QST) (量研機構) 〇楊国勝、金ウンジュ、鄭建、妹尾初穂、古渡意彦、栗原治

【緒言】 Internal contamination with alpha-particle emitting actinides, such as <sup>238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu, is likely to result in high internal exposure risk even if the intake amount is small. Apart from urinary bioassay, fecal bioassay has also been regarded as a reliable approach to estimate the radiation dose of internal exposure for people occupationally or incidentally exposed to radioactive contamination. By fecal bioassay, we could verify the solubility classification [slow (S), medium (M) or fast (F)] of a radiohazard source to select the proper biokinetic models for dose calculation. In addition, the daily fecal excretion amount of actinides is much higher than the daily urinary excretion amount. For monitoring the internal exposure level by fecal bioassay, it is critical to use simple analytical methods to obtain the valuable contamination level as soon as possible. Especially, in case of a large scaled radiological disaster with complicated radiohazard sources, a simple and low-cost standard method is critical to allow more related laboratories to be involved in the activities of triage of masscausalities. In the present study, we aimed to develop a rapid fecal bioassay for the measurement of U, Np, and Pu isotopes. Conventional alpha spectrometry was used for the analysis of short-lived <sup>238</sup>Pu ( $t_{1/2} = 87.74$  y) for dose estimation, the ICP-MS/MS was used to obtain the atom ratio of <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu for source identification.

【実験】 Synthetic fecal sample, equivalent to real fecal sample of one-day excretion, was ashed by microwave muffle furnace. The fecal ash was subject to acid digestion by opening and microwave digestions. After preconcentration with iron hydroxide co-precipitation and redissolution in 8M HNO<sub>3</sub>, the sample was separated for analyses with ICP-MS/MS and alpha spectrometry, respectively. For ICP-MS/MS analysis, automated purification system with 2 mL AG MP-1M resin (100-200 mesh, chloride form, Bio-Rad, Hercules, CA, USA) was used to separate and purify U, Np, and Pu isotopes. The sensitivities of ICP-MS/MS were improved and compared by introducing different reaction/collision gases, to allow us to measure these isotopes with low background signal intensities. For alpha spectrometry analysis, 2 mL TEVA and 2 mL DGA extraction resins (50-100 mesh, Eichrom Technologies, Inc, Lisle, IL, USA) and 4 mL Dowex<sup>TM</sup> 1X8 resin (100-200 mesh, Cl<sup>-</sup> form, Fujifilm Wako Pure Chemical Corporation, Osaka, Japan) were used to separate and purify Pu and U isotopes. Subsequently, Pu and U isotopes were measured by alpha spectrometer (Alpha Ensemble 8, ORTEC, Oak Ridge, TN, USA) with Si detectors having an active area of 450 mm<sup>2</sup> (AMETEK, Inc., Oak Ridge, TN, USA). In the future, fecal samples collected during the Oarai accident in Japan, occurred on June 6th, 2017, when five workers suffered internal radiation exposure due to inhalation of airborne Pu when inspecting nuclear fuel materials at a nuclear research facility of the Japan Atomic Energy Agency in Oarai, will be used for method validation.

# 一般講演

# 9月24日(金) 3K01-3K14

### 家庭ごみ焼却スラグ中に含まれる有価金属成分の分離 3K01

(都立大院理<sup>1</sup>、都立大理<sup>2</sup>、東北大 ELPH<sup>3</sup>)○齋藤涼太<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、 土田竜貴<sup>2</sup>、諏訪智也<sup>1</sup>、KahnIrfan<sup>1</sup>、菊永英寿<sup>3</sup>、久冨木志郎<sup>1</sup>

【緒言】 "家庭ごみ焼却スラグ"は可燃ごみの焼却灰を1200 °C以上の高温で溶融・固化 してできる人工砂である。このスラグには複数の有価金属が含まれており<sup>1</sup>、これらを 分離・回収することは資源リサイクルの視点から非常に重要である。昨年の討論会に おいて、我々はこのスラグから有価金属元素を分離・回収することを目的として、磁 石による成分選別操作とこの操作によって分離された分画(D-1)がCuを主成分として おり、Auなどの有価金属が濃縮されていることを報告した。スラグからの有価金属成 分を分離回収する本研究の目的を考慮するならば、このD-1から有価金属を分離・回収 するための湿式化学分離法を開発する必要がある。そこで本研究では、このD-1の無機 酸への溶解挙動を蛍光X線分析(XRF)と光量子放射化分析(PAA)によって定量的に調べ ると共に、D-1を大量に選別するための新たな分離法として、ふるいによる選別操作が 有効であるかを調査した。

【実験】 2019 年 4 月に多摩川清掃工場で採取された家庭ごみ焼却スラグ(Slag1904) に 対して磁石による成分選別操作を行うことで D-1 を得た。この D-1 を約 0.01 g 分取し て、東北大学電子光理学研究センター(ELPH)において最大エネルギー22 MeV の制動放 射線を 6 時間照射した。これにより得られた照射試料を酸(塩酸及び硝酸)に 1 週間から 2 週間浸出し、メンブレンフィルター(孔径 0.2 µm)により濾過を行った。ろ液と残さを それぞれ Ge 半導体検出器で γ 線を測定し、目的の元素について定量値を得た。また、 ふるいを使用して選別した分画についても同様の方法で試料作成と制動放射線の照射 を行い、組成を決定した。

### 【結果·考察】

塩酸による浸出では、Fe は溶解する一 方で主成分の Cu は残さ中に多く残るこ とが分かった。また、硝酸による浸出で はろ液に Cu を含む多くの主成分が含ま れていた。溶解前の D-1 に対するろ液及 び残さへの各金属元素の濃度比を移行度 として図1に示した。残さについては Sb, Sn が検出限界以下であり、Co の濃度は 溶解前と比べ大きく減少していた。一方、 ろ液では Au, Ag が検出限界以下であるこ とから、Cu などの主成分は無機酸へ溶解



図 1. D-1 の溶解挙動(塩酸による1週間 浸出処理後、硝酸による1週間浸出処理)

し、Au, Ag は残さ中に高濃度で存在することが明らかとなった。

ふるいによる選別で得られた粒径 500 μm 以上の分画は、D-1 と同様に有価金属が濃縮されている成分であることがわかった。

[1] K. Akiyama, et al., ELPH Annual Report, Tohoku University, 117-120(2017).

Variability in Composition and Separation of Valuable Metal Elements from Domestic Waste Slag SAITOU R., AKIYAMA K., TUCHIDA R., SUWA T., KHAN I., KIKUNAGA H., KUBUKI S.

### 3K02

# Instrumental photon activation analysis using single comparator method at different accelerators

(Graduate School of Sci., Tokyo Metropolitan Univ.) Md. Sultanur Reza, Yasuji Oura

### Introduction:

In activation analysis, a relative method is mainly used. A single comparator method is an alternative determination method, which is able to determine by using a single element comparator, but cross section ratios are needed. We determined ( $\gamma$ , n) reaction yield ratios for about 50 elements and have analyzed various standard reference samples and shell samples by instrumental photon activation analysis (IPAA) using a single comparator method at LINAC at ELPH, Tohoku University. We reported that our determination values by IPAA using single comparator method were generally good [1]. In neutron activation analysis, (n,  $\gamma$ ) reaction yield ratios determined at a reactor are not used at the other reactors because of difference of neutron energy spectra among reactors. However, in IPAA, which uses bremsstrahlung for an irradiation, it is suggested that ( $\gamma$ , n) reaction yield ratios determined at ELPH are able to be used at the other accelerators because an energy spectrum of bremsstrahlung is mainly depended on an atomic number of a convertor. So, we tried to analyze some standard reference samples by IPAA using single comparator method at LINAC at Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University (KURNS) and assessed their determination values. And then our determined yield ratios are confirmed to be usable for single comparator method at different accelerators. **Experimental:** 

Powder samples were wrapped in Al foil to be formed a disk (9 mm  $\phi$ ) shape. They were inserted into a quartz tube together with stainless steel foils as a monitor and then were irradiated in the air for 6 hours by bremsstrahlung with maximum energy of 33.3 MeV from an electron linac at KURNS. Pt converter (2 mmt x 2) was used for producing bremsstrahlung. After replacing Al foil, irradiated samples were measured by a Ge detector. For determining yield ratios used for the single comparator method, reagent samples were irradiated in water by bremsstrahlung produced at Pt convertor (1 mmt x 2) at ELPH [2].

### **Results and discussion:**

Nine kinds of standard samples including 4 JB-1a samples were irradiated at different places in the quartz tube. Flux variations in the quartz tube for irradiations at KURNS and ELPH were similar to each other. Determination values of 4 JB-1a samples for each element were consistent within RSD of 10 %. For JB-1a, most of the results obtained at KURNS and ELPH were different with reference values by less than  $\pm 10$  % shown in Fig.1. Results for other standard samples irradiated at two different accelerators were also generally consistent with reference values. Our yield ratios for single comparator method in IPAA determined at ELPH can be used at different accelerators.

**References:** 1. S. Reza & Y. Oura, SORC64 (2020). 2. Y. Oura et al., Annual report (2017).



Fig.1: Comparison of elemental concentrations in JB-1a inadiated at different accelerators. Weighted means of 4 JB-1a samples normalized with reference values are plotted

Instrumental Photon Activation Analysis using single comparator method at different accelerators REZA MD S., OURA Y.

# 3K03 J-PARC におけるミュオン特性 X 線による元素分析の微少試料適用 に向けた装置開発 (1)

(阪大IRS<sup>1</sup>、阪大院理<sup>2</sup>、理化学研究所<sup>3</sup>、Kavli IPMU<sup>4</sup>、ICU<sup>5</sup>、東大理<sup>6</sup>、KEK<sup>7</sup>、東 京藝大<sup>8</sup>、東北大理<sup>9</sup>、中部大<sup>10</sup>、JAEA<sup>11</sup>、大阪青山大学<sup>12</sup>、京大複合研<sup>13</sup>、豊田 中研<sup>14</sup>、JAXA<sup>15</sup>)〇邱奕寰<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、東俊行<sup>3</sup>、梶野芽都<sup>2</sup>、桂川美穂<sup>4</sup>、久保 謙哉<sup>5</sup>、南喬博<sup>6、4</sup>、三宅康博<sup>7</sup>、水本和美<sup>8</sup>、長澤俊作<sup>6、4</sup>、中村智樹<sup>9</sup>、岡田信二<sup>1</sup> <sup>0</sup>、大澤崇人<sup>11</sup>、下村浩一郎<sup>7</sup>、篠原厚<sup>1、2、12</sup>、高橋忠幸<sup>4</sup>、武田伸一郎<sup>4</sup>、竹下聡 史<sup>7</sup>、反保元伸<sup>7</sup>、谷口秋洋<sup>13</sup>、寺田健太郎<sup>2</sup>、梅垣いづみ<sup>14</sup>、和田大雅<sup>9</sup>、渡辺伸<sup>1</sup> <sup>5</sup>、吉田剛<sup>7</sup>

【緒言】 試料を破壊せずに、物質内部の元素を分析する手法は、考古資料や地球外物質など貴重

な試料を扱う分野において有用である。我々は高強度の負ミュオ ンビームを使った非破壊の元素分析法の開発を行ってきた。この 方法は、ミュオン原子から放射する高エネルギーのミュオン特性 X線を測定することで行う。既に様々な試料への適用がなされて いるが、これまでミリグラムオーダーの試料への適用例はない。本 研究グループでは、微少元素への適用に向けた分析装置の開 発を行った。さらに、実験データの妥当性を評価するため、 Geant4コードによるシミュレーション実験を行った。

【実験】ミュオン照射実験は J-PARC 加速器施設において、物 質・生命科学実験施設(MLF)内の D2 ビームラインにおいて行 った。まずはビームプロファイルの測定を行い、その情報をもとに 図1に全体像を示す実験セットアップを構築した。実験装置の評 価のために、大きさおよそ 6x8 mm<sup>2</sup>、重量は 120 mg の炭 素質コンドライト(Jbilet Wienselwan 隕石)を準備し、これに ミュオンの照射を行った。サンプルから放射されるミュオン 特性 X 線は、サンプルの周りに設置した 6 台の低エネル

【結果と考察】図2に得られたミュオン特性X線スペクト ルを示す。非常に低バックグラウンドの実験システムを構 築することができ、隕石を構成する主要な元素に由来す るピークが明瞭に観測された。シグナルのS/Nについて 評価したところ、これまで分析できなかった10mgの炭素 質コンドライトについても、炭素量を精度よく決定できると 見積もられた。講演ではこれらの詳細と、シミュレーション との整合性について報告する。



図1:2021 年4月に J-PARC で実 施した実験全体像。



図2: Jbilet Winselwan 隕石から得られたミュ オン特性 X 線スペクトル。Cu は実験システ ムに由来するバックグラウンドである。

Development of the experimental system for non-destructive element analysis with small sample using negative muon at the J-PARC.

Chiu I., Ninomiya K., Azuma T., Katsuragawa M., Kubo K., Minami T., Miyake Y., Nagasawa S., Nakamura T., Okada S., Osawa T., Shimomura K., Shinohara A., Takahashi T., Takeda S., Takeshita S., Tampo M., Taniguchi A., Terada K., Umegaki I., Wada T., Watanabe S., Yoshida G.

### 乾式蒸留分離におけるアスタチンの熱分離特性

(量研東海<sup>1</sup>、福島県立医科大学<sup>2</sup>)○西中一朗<sup>1</sup>、鷲山幸信<sup>2</sup>、橋本和幸<sup>1</sup>

### 【緒言】

3K04

近年、核医学分野においてα放射性 RI 標識薬剤による標的アイソトープ治療が新しい がん治療として注目されている。国内の多くの加速器施設で<sup>211</sup>At アスタチンが製造さ れ、核医学利用の研究が進められている。一般に<sup>211</sup>At は、核反応<sup>209</sup>Bi(<sup>4</sup>He,2n)<sup>211</sup>At で 合成した後、照射済み Bi ビスマス金属標的を 650℃以上で加熱・融解する、いわゆる 乾式蒸留によって、揮発性<sup>211</sup>At として分離精製される。その分離精製条件は、医学利 用目的では、収率を重視した経験的なものである。アスタチンの基礎科学的な理解は 十分でなく、<sup>211</sup>At の吸着温度などの熱分離特性は、ほとんど分かっていない。本研究 では、先行研究<sup>1),2)</sup>で見出した熱分離特性に基づいて、最適化した測定系(図)を用いて、 <sup>211</sup>At のガラス表面への吸着温度を高い精度で決定した<sup>3)</sup>。

#### 【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 <sup>4</sup>He ビーム (約 16 μA)をアルミ箔バッキング上に真空蒸着した約 3 mg/cm<sup>2</sup>厚の金属ビスマスに 12、60 分間、照射して、16、74 MBq の <sup>211</sup>At を製造した。バッキングとともに小巻に したビスマス標的を、窒素ガス置換したガラス管(長さ 750 mm、内径 4 mm、肉厚 1 mm)

に封入し、電気炉で250 ~750 ℃に加熱して、乾 式蒸留を行った。この時 の温度と放射能強度を 熱電対とガンマ線スペ クトロメーターで同時 測定した。



### 【結果及び考察】

加熱中における放射能の時間変化から、分離に必要な加熱時間は約80分であり、750 ℃ で揮発した<sup>211</sup>At は、内径4mmのガラス管中を約70mm/分の速度で移動することが分かった。先行研究<sup>2)</sup>では、試験管(長さ180mm、内径16mm、肉厚1mm)の中で、より低い温度650℃で、より早く6分で分離できた。本測定系での高い加熱温度と長い加熱時間の分離条件が、小巻にした標的の形状に起因することから、アルミ箔バッキング間の融解ビスマス金属中での<sup>211</sup>At の拡散が、乾式蒸留分離の律速であることが分かった。吸着した揮発性<sup>211</sup>At の放射能分布とガラス管の温度分布の相関から、吸着温度を42.2±2.5℃と高い精度で決定した。また60~30℃の狭い温度範囲(吸着ピークの半値幅)に吸着していることから、単一の化学種であることが分った。 講演では、先行研究、文献などとの比較から、化学種についても考察する。

### 【参考文献】

- 1) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 327(2021)869-875.
- 2) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 326(2020)743-751.
- 3) I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. (2021) DOI :10.1007/s10967-021-07879-6.

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

### エアロゾルを用いた At-211 乾式分離技術の開発

(東芝エネルギーシステムズ<sup>1</sup>、原子力機構先端研<sup>2</sup>、阪大 RCNP<sup>3</sup>、阪大 放射線機構<sup>4</sup>、大阪青山大<sup>5</sup>)○湯原勝<sup>1</sup>、宮本真哉<sup>1</sup>、和田怜志<sup>1</sup>、
 中居勇樹<sup>1</sup>、大森孝<sup>1</sup>、塚田和明<sup>2</sup>、浅井雅人<sup>2</sup>、福田光宏<sup>3</sup>、豊嶋厚史<sup>4</sup>、
 篠原厚<sup>4,5</sup>

【緒言】<sup>209</sup>Bi(a,2n)<sup>211</sup>At で生成する <sup>211</sup>At を分離回収する手法として乾式分離法の適用を 検討している。当該プロセスにエアロゾルを導入し、<sup>211</sup>At との複合体とすることで、フィ ルタ部で回収する手法の有効性を評価した。

【実験】日本原子力研究開発機構のタンデム加速器を用いて 28MeV に加速した <sup>4</sup>He<sup>2+</sup>イオ ンを Bi ターゲット(純度 4N、□10mm×t1mm)に照射して 100kBq オーダーの <sup>211</sup>At を生成 し、ガスジェット法[1]を参考とした分離試験に供した。図 1 に分離試験装置の概要を 示す。エアロゾル発生部では He ガス流速 83~276cm/min で KCl 粉末を 750℃に加熱しエ アロゾルを発生させた。なお試験対象には、He ガス流速 83cm/min、エアロゾル無しの条件 も加えた。<sup>211</sup>At 蒸発部にエアロゾル含有 He ガスを導入し、照射済みターゲットを 500℃で 20 分間加熱することで <sup>211</sup>At を蒸発させ、<sup>211</sup>At とエアロゾルを混合した。ガス中の固形分 をガラス繊維フィルタで捕集後、0.01M NaOH 水溶液で溶解した。溶液中の <sup>211</sup>At 濃度を Ge 半導体検出器で、K 濃度をイオンメータで測定し、<sup>211</sup>At 回収率(%)および単位時間当たりの エアロゾル捕集量(mg/hr)を評価した。

【結果・考察】図2にフィルタ部での 単位時間当たりのエアロゾル捕集量 に対する<sup>211</sup>At回収率を示す。エアロ ゾル導入による<sup>211</sup>At回収率向上を確 認した。また、単位時間当たりのエア ロゾル捕集量と<sup>211</sup>At回収率には正の 相関が見られた。エアロゾル導入量 が増加したことでエアロゾル密度が 上昇し、<sup>211</sup>Atとエアロゾルの衝突が 促進され、フィルタ捕集されやすい 形態となったためと考えられる。

3K05

【結言】<sup>211</sup>At 分離・回収プロセスに



エアロゾルを導入することが<sup>211</sup>At 回収率向上に有効であることを確認した。 【謝辞】本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構 産学共創プラットフォーム 共同研究推進プログラム(JST、OPERA、JPMJOP1721)の支援を受けて実施した。 本研究成果は日本原子力研究開発機構の施設供用制度により得られたものである。

【参考文献】[1] K.Rengan et al.(1993). Ultrafast Chemical Separations, Washington, D.C.: National Academy Press.

### 電解酸化反応を用いた分子標的薬への<sup>211</sup>At標識法の開発 3K06

(阪大院理<sup>1</sup>,阪大放射線機構<sup>2</sup>,阪大 RI セ<sup>3</sup>,阪大院医<sup>4</sup>,理研仁科セ<sup>5</sup>,大 阪青山大<sup>6</sup>)○中川創太<sup>1</sup>,角永悠一郎<sup>2</sup>,大江一弘<sup>2,4</sup>,神田晃充<sup>3</sup>,永田光知 郎<sup>2,3</sup>,寺本高啓<sup>2</sup>,床井健運<sup>1</sup>,羽場宏光<sup>5</sup>,王 洋<sup>5</sup>,笠松良崇<sup>1</sup>,吉村崇<sup>2,3</sup>, 豊嶋厚史<sup>2</sup>,篠原厚<sup>2,6</sup>

【緒言】<sup>211</sup>At(半減期 7.2 h)は α 線核医学治療法への利用が期待されている放射性元素 である。分子標的薬へ<sup>211</sup>Atを標識する方法は、人体に有害であるスズや水銀等との置 換反応が一般的であるが、実用化の際にはその安全性に懸念が残る。そこで本研究で は、電解酸化を応用した、酸化剤や金属置換基を含まないクリーンな<sup>211</sup>At 標識法の開 発を進めてきた。本発表では、ヨウ素を添加した条件において、<sup>211</sup>At の電解酸化なら びに電解標識を行ったため報告する。

【実験】<sup>209</sup>Bi(a,2n)<sup>211</sup>At 反応によって <sup>211</sup>At を製造し、これを乾式分離法によって分離し <sup>211</sup>At ストック水溶液を得た後、10 mM 塩酸溶液として調製した。電解にはフロー電解 カラム装置[1]を用いた。まずは上記の塩酸溶液に 0.9 M NaI を添加し銀/塩化銀(SSE) 参照電極に対して 1000 mV の印加電圧で酸化実験を行った。さらに標識対象として *N*-アセチル-L-チロシンを上記溶液に添加し、同様に電解酸化を行うことで標識を試みた。 溶出液を分取した後、CHCl<sub>3</sub> と CH<sub>3</sub>OH を等量混合した展開溶媒を用いて薄層クロマト グラフィー(TLC)を行い、イメージングプレートを用いて <sup>211</sup>At の分布を観測した。

【結果と考察】図1に電解前、酸化後、標識 後の<sup>211</sup>AtのTLC分布を示す。R<sub>f</sub>値はTLC 上の位置を示す値である。電解前には、R<sub>f</sub> 値 0.8 以降に 99%以上の<sup>211</sup>Atが存在した。 酸化後には、R<sub>f</sub>値 0.05 に 100%の<sup>211</sup>Atピー クが移動した。定量的に<sup>211</sup>Atが酸化された ことが分かる。標識後では R<sub>f</sub>値 0.5 と 0.75 にそれぞれ 8%と 57%の<sup>211</sup>Atピークが観測 された。ヨウ素を用いた対照実験の結果か ら、これらはそれぞれ N-アセチル-3-アスタ ト-L-チロシンと N-アセチル-3-ヨード-5-ア スタト-L-チロシンと考えられる。以上から、 本実験条件において、<sup>211</sup>Atの電解標識反応 に初めて成功した。

【参考文献】[1] Toyoshima *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **131**, 9180-9181 (2009).



図 1. (A)電解前、(B)酸化後ならびに (C)標識後の TLC での<sup>211</sup>At の分布

# 新規アルファ線ブラキセラピー開発に向けた At-211 標識金ナノ粒<br/>子の合成と機能評価

(阪大院理<sup>1</sup>、阪大院医<sup>2</sup>、阪大放科<sup>3</sup>、理研仁科<sup>4</sup>、大阪青山大<sup>5</sup>) o黄栩昊<sup>1</sup>、加藤弘樹<sup>2</sup>、角永悠一郎<sup>3</sup>、下山敦史<sup>1</sup>、樺山一哉<sup>1</sup>、 片山大輔<sup>2</sup>、大江一弘<sup>2</sup>、豊嶋厚史<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>4</sup>、王洋<sup>4</sup>、篠原厚<sup>3,5</sup>、 深瀬浩一<sup>1,3</sup>

【緒言】近年、体内からα線を照射し、がんを治療する、α線核医学治療法が注目されている。α線は、高いがん殺傷効果を有する。一方、飛程がヒト細胞数個分と短いため、 周囲の正常細胞や臓器への侵襲が少ない。我々は、α線放出核種アスタチン-211 (<sup>211</sup>At) を用いた。<sup>211</sup>At (半減期 7.2 時間)は、放射線源が比較的早く消失する。そのため、通 院による治療が可能であり、がん患者の生活の質 (QOL)の向上が期待できる。本研究 では、<sup>211</sup>At-金ナノ粒子を腫瘍へ直接投与し、治療を行う、小線源療法 (ブラキセラピ ー)について検討した (Fig.1)。本法は、高い放射線を腫瘍組織に集積できるため、効 率的ながん治療と正常組織への被ばくの軽減が期待できる。金ナノ粒子は、<sup>211</sup>At と共 有結合を形成するため、<sup>211</sup>At の甲状腺への集積を防ぐことが出来る。また金ナノ粒子 は、毒性が低く生体内でも安定なため、医薬品の材料として向いている。

【実験】単純構造である mPEG 修飾金ナノ粒子を担がんラット・マウスに投与した。 実験には、複数のサイズの金ナノ粒子を用い、抗腫瘍効果の最適化を行った。細胞内 在化を促進させる RGD ペプチドを修飾した金ナノ粒子を合成および、<sup>211</sup>At 標識化を行 った。その後、C6 (ラット脳腫瘍) および BxPC3 (ヒト膵がん)を用いた細胞毒性実験 により、細胞殺傷効果の評価を行った。

【結果、考察】 直径 5 nm 程度の<sup>211</sup>At-金ナノ粒子が、最も高い抗腫瘍効果を示した<sup>1)</sup>。 これは、5 nm が、腫瘍内で拡散するが、腫瘍外へは漏れ出さない、丁度良いサイズだ からである。RGD ペプチド修飾金ナノ粒子では、mPEG 修飾金ナノ粒子に比べ、顕著 な細胞内在化の促進が確認できた。これにより、がん細胞の DNA に対し、より至近距 離からα線を照射できるため、更なる抗腫瘍効果の向上が期待できる。



### Fig.1 Schematic research concept

References 1) Kato, H., Huang, X., Kadonaga, Y. et al. Intratumoral administration of astatine-211-labeled gold nanoparticle for alpha therapy. *J. Nanobiotechnol.***2021**, *19*, 223.

Synthesis and Evaluation of At-211 Labeled Gold Nanoparticles for Alpha Brachytherapy

Xuhao Huang, Hiroki Kato, Yuichiro Kadonaga, Atsushi Shimoyama, Kazuya Kabayama, Daisuke Katayama, Kazuhiro Ooe, Atsushi Toyoshima, Hiromitsu Haba, Yang Wang, Atsushi Shinohara, Koichi Fukase

### プロメチウムを含む二金属内包フラーレンの安定性

(都立大院理<sup>1</sup>、東北大電子光セ<sup>2</sup>)○諏訪智也<sup>1</sup>、秋山和彦<sup>1</sup>、菊永英寿<sup>2</sup>、 久冨木志郎<sup>1</sup>

【緒言】近年、M<sub>2</sub>@C<sub>80</sub>型のフラーレンに関して、内包金属が La の様な軽ランタノイドでは大 気下で安定に存在するが、原子番号の増加とともに不安定となる事が知られている。一方で、 不安定とされる Gd 以降の重ランタノイド M<sub>2</sub>@C<sub>80</sub>型フラーレンではアニオンを形成するこ とで大気下でも安定になることが報告されている<sup>[1]</sup>。周期表上で Nd と Gd に挟まれた 3 元素 のうち、非常に還元的な雰囲気であるフラーレン内部で+2 価の酸化状態を取る Sm、Eu を除 くと、プロメチウム(Pm)は M<sub>2</sub>@C<sub>80</sub>型フラーレンの安定性について議論をする上で重要な元 素であると言える。

これまで、Pm内包二金属フラーレンが軽ランタノイドの様に大気下で安定であるとの想定の下、実験を行ったが、その存在は確認出来なかった。そこで本研究はフラーレンを化学的に還元することによって抽出するトリエチルアミン(TEA)/アセトン混合溶媒抽出法<sup>[2]</sup>を用いてPm内包二金属フラーレンの抽出を試みた。本抽出法を採用するにあたって、酸素等に暴露されることによって生じたアニオン種が酸化されることを避けるため一連の操作を嫌気下で行うための手法を開発した。抽出物についてはイオンペアクロマトグラフィー(IPC)を用いて同定を試み、Pm内包二金属フラーレンの安定性について検討した。

【実験】約1gのSm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を東北大学電子光理学研究センターにおいて55.5 MeVの制動放射線を6時間照射し、<sup>143</sup>Pmを製造した。十分に冷却した照射試料から化学分離<sup>[3]</sup>によって精製したPmに比較標準として<sup>139</sup>CeトレーサーとキャリアとしてLaを混合して、多孔質炭素棒に含浸させた。RIフラーレン合成用チェンバーにてHe雰囲気下、50 kPaでアーク放電(直流 50 A)を行った。得られた煤をCS<sub>2</sub>で回収し、嫌気下でTEA/アセトン混合溶媒(TEA:アセトン=1:3)に置換し6時間還流抽出を行った。この溶液をメンブレンフィルターでろ過して得られたTEA/アセトン溶液について、テトラブチルアンモニウムへキサフルオロリン酸のアセトン溶液を移動相としたIPCに展開した。また、Laのみを含浸した多孔質炭素棒を用いて上記と同様の条件でフラーレンを合成し、同様の操作で分取したコールド試料の質量分析を行い、溶出成分を確認した。

【結果】IPC の結果を図に示した。赤及び青の 実線はそれぞれ<sup>143</sup>Pm と<sup>139</sup>Ce のラジオクロマ トグラムであり、橙及び緑の実線はそれぞれ RI 試料とコールド試料の UV 吸収をモニタし たクロマトグラムである。図の黒丸で示した部 分について質量分析を行ったところ、La<sub>2</sub>C<sub>80</sub>の 質量数と一致するピークが確認された。図中の

3K08



図. イオンペアクロマトグラム

ラジオクロマトグラムでは同じ保持時間に<sup>139</sup>Ceと

<sup>143</sup>Pmの放射能が確認されていることからLaCeC<sub>80</sub>とLaPmC<sub>80</sub>の存在が示唆された。本発表ではGdをキャリアとした実験についても報告する予定である。

[1] A. Velloth *et al.*, *J. Phys. Chem. C.*, **121**, 18169 (2017).
[2] T. Kodama *et al.*, *Chem. Lett.*, **34**, 464 (2005).
[3] K. Akiyama *et al.*, *ELPH Annual Rep.* p.112 (2015).

Stability of Dimetallofullerene Encapsulating Promethium SUWA, T., AKIYAMA, K., KIKUNAGA, H., KUBUKI, S.

### アクチニド分析のための熱化学変換による U0₂-Zr0₂ を含む物質の 3K09 溶解法

(長岡技科大<sup>1</sup>、東北大<sup>2</sup>)〇麻 卓然<sup>1</sup>、本間 佳哉<sup>2</sup>、 小無 健司<sup>2</sup>、鈴 木 克弥<sup>2</sup>、鈴木 達也<sup>1</sup>

【緒言】福島原子力発電所の事故で発生した燃料デブリに含まれるアクチニドや核分 裂生成物の精確な分析を行うためには、燃料デブリの溶解が必要である。我々は、不 溶解性の燃料デブリを可溶性物質に化学変換することを提案してる。

【実験】本研究では、UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>を含む模擬デブリを酸化と還元を繰り返し脆化させた後、 粉体化したものを用いて CCl<sub>4</sub>との熱化学反応による塩素化を行った後、塩酸および硝 酸への溶解挙動を研究した。また、溶け残った残渣を SEM-EDX によって分析した。 模擬デブリは、日本核燃料開発株式会社(NFD)によってアンモニア共沈と焼結によって 調製されたものを用いた。模擬デブリは、酸化されてウランが U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>の状態になってい るものと還元により UO<sub>2</sub>の状態になっているものを用いて比較している。塩素化は Swagelok で作成した容器中で 400℃,12 時間加熱した。溶解試験は、濃塩酸(30%) お よび濃硝酸(60%) で行い、重量変化から、酸化模擬デブリ粉末を化学変換させたも のの溶解率はそれぞれ 97.54%と 87.80%であり、還元模擬デブリ粉末を化学転換させ たものの溶解率は 92.39%と 88.00%であった。また、SEM-EDX で、残渣を確認したと ころ主に Zr によるものであることを確認した。

以上から、熱化学的変換溶解法の実現可能性が確認された。

この研究は、日本原子力研究開発機構 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進 事業「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の成果の一部を含む。



図 残渣の SEM 写真 還元粉末の塩素化生成物の残渣(濃塩酸)

Dissolution Method of Substances containing UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> by Thermochemical Conversion for Actinide Analysis MA Z,HONMA K,KONANSHI K,SUZUKI K,SUZUKI T

### 3K10 MC-ICP-MS 用いた極微量ウラン・プルトニウム同位体比測定における 分子イオンによる妨害の定量的評価 (日本原子力研究開発機構)〇富田純平、富田涼平、鈴木大輔、安田健一

郎、宮本ユタカ

【緒言】保障措置環境試料や地球化学試料の分析では、極微量のウラン(U)やプルト ニウム(Pu)を測定する。主要核種に対して存在度の低いU(<sup>233</sup>U、<sup>234</sup>U、<sup>236</sup>U)の同 位体比や Pu同位体比は、核燃料物質の起源や履歴に関する情報を有するため、これら 同位体比を正確に測定することは重要である。ICP-MSによる測定では、測定試料中に 不純物元素が多量に存在すると、それらがアルゴンや酸素と結合して測定目的の同位 体と同質量の分子イオンを形成し,正確な同位体比測定を妨害する。例えば、U同位 体比測定の場合、<sup>233</sup>U、<sup>234</sup>U、<sup>236</sup>Uに対してそれぞれ<sup>193</sup>Ir<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>、<sup>186</sup>W<sup>16</sup>O<sub>3</sub><sup>+</sup>、<sup>196</sup>Pt<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>、 Pu同位体比測定では<sup>239</sup>Pu、<sup>241</sup>Pu、<sup>244</sup>Puに対してそれぞれ<sup>208</sup>Pb<sup>14</sup>N<sup>16</sup>O<sup>1</sup>H<sup>+</sup>、<sup>209</sup>Bi<sup>16</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup>、 <sup>204</sup>Pb<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>等が考えられる。妨害元素に起因する分子イオンの形成比、それらが同位体 比測定に与える影響を定量的に把握することは、試料の再精製の検討等,正確な同位 体比測定には不可欠である。そこで,正確な保障措置環境試料分析を目的として、本 研究では、マルチコレクター型 ICP-MS(MC-ICP-MS)による正確な極微量 U及び Pu 同位体比測定に影響を及ぼす分子イオンの同定及びその影響の定量的評価を行った。

【実験】同位体比測定には、Thermo Fisher Scientific 社製 MC-ICP-MS (Neptune XT) を 用いた。装置への試料導入には、Elemental Scientific 社製脱溶媒装置 (APEX Ω) を用 いた。本装置の測定感度は、1 ppb の天然 U 溶液で 1 V (イオン検出器の信号強度に換 算すると 6.25x10<sup>7</sup> cps 相当) 程度である。U 及び Pu 同位体比測定を妨害する元素を同 定には、W、Re、Ir、Pt、Au、Tl、Pb 及び Bi の単元素標準溶液 (0.4 ppb) を用いた。 これらの標準溶液を MC-ICP-MS に導入し、マルチイオンカウンティングによりそれぞ れの質量のシグナル強度を測定した。

3000

2500

【結果】U同位体については、質量数 233 で Ir、質 量数 234、235 及び 236 で Pt による顕著なスペクト ル干渉が確認された(図 1a)。これらは、主に<sup>193</sup>Ir<sup>40</sup>Ar、 <sup>194</sup>Pt<sup>40</sup>Ar、<sup>195</sup>Pt<sup>40</sup>Ar 及び <sup>196</sup>Pt<sup>40</sup>Ar によると考えられる。 仮に 1 ppb の天然 U (IRMM184、<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U: 5.31x10<sup>-5</sup>) を含む溶液中に Pt が 0.4 ppb 含まれているとすると、 分子イオンの妨害により約 2 倍高い <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 値にな ると概算される。一方、Pu 同位体については、質量 数 244 で Pb (<sup>204</sup>Pb<sup>40</sup>Ar) によるスペクトル干渉が確 認されたが、その他の元素に由来する明瞭な干渉は 確認されなかった (図 1b)。今後、得られた結果を 踏まえ、スワイプや粒子試料の化学分離法について 検討していく。

(cps) 2000 1500 正味の計数率 1000 0 w 500 O Re 0 • Ir -500 🔺 Pt 233 234 235 236 質量数 ∆ Au тι (b) Pu同位体 5 D Pb 📕 Bi 4 (cps) c ps 正味の計数率 0 1 -1 241 242 244 239 240 質量数 単元素標準溶液を測定した時の各質量 図1

数における正味の計数率(cps)

▲

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

Quantitative assessment of polyatomic interferences for the measurement of uranium and plutonium isotope ratios at ultra-trace level using MC-ICP-MS

TOMITA J., TOMITA, R, SUZUKI D., YASUDA K., MIYAMOTO Y.

### 高水素化物生成比を示すウラン粒子の全損分析と同位体比変化

(原子力機構<sup>1</sup>)○富田涼平<sup>1</sup>、富田純平<sup>1</sup>、蓬田匠<sup>1</sup>、鈴木大輔<sup>1</sup>、 安田健一郎<sup>1</sup>、江坂文孝<sup>1</sup>、宮本ユタカ<sup>1</sup>

【緒言】 二次イオン質量分析(SIMS)による粒子分析は、試料台上のウラン粒子の特定および、おおよその同位体組成が得られる粒子自動測定(APM)と、特定した粒子1個の同位体比を正確かつ精度良く測定する精密分析に分けられる。APM は連続した測定で広範囲の情報を網羅できるが、個々の領域に対する測定時間が短いため、測定結果は粒子表面による影響を受けやすい。粒子表面は水分など環境による変質の影響を受けて水素化物生成量が多くなる傾向があり、<sup>236</sup>Uと供に<sup>235</sup>U<sup>1</sup>H が検出されて、<sup>236</sup>U の存在率が見かけ上高くなる問題が顕著である。そこで、粒子表面で高い水素化物生成比を示す標準ウラン粒子を用いて、粒子が完全に消耗するまで精密分析(全損分析)を実施し、表面から内部に至る同位体比変化を観察した。この結果を基に、同位体比へ影響を与える表面の変質部が粒子全体に対して占める割合を定量的に求めた。また、APMにおいても表面の影響を軽減した結果を得るために、測定条件や電子顕微鏡観察下で粒子を分離する手法について検討した。

【実験および結果】 粒子表面の水素化物生成比が高い標準ウラン粒子に対して精密分析の測定条件で全損分析を行った。全損分析は粒子を10×10 µm<sup>2</sup>の範囲に収め、150 nAの酸素イオンビームを照射して行った。粒径4 µmの粒子に対する全損分析時の同位体比の変化が図1である。表面の水素化物生成の影響による同位体比変化はビーム照射開始から約180秒まで観察され、<sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U 比の値は180秒間で水素化物生成量の低下に伴って55%低下した。測定開始180秒後から約5000秒までは安定した同位体比測定が可能であった。粒子



図 1:標準ウラン粒子の全損分析と同位体比変化

の全損後にビーム照射範囲を 50×50 µm<sup>2</sup>に拡大すると 10×10 µm<sup>2</sup>の範囲の外側を縁取 るようにビーム照射によって粒子から拡散したウランのシグナルが確認できたため、 これも消耗させて二次イオンの総量に含めた。ビームの総照射時間は約 21000 秒(5.8 時間)であった。同位体比変化が見られる部分は 5.8 時間で検出された二次イオン総量 の 3.1%であった。粒子表面に相当する 3.1%を事前に消耗させることで APM においても 表面の影響を軽減することが可能であると考えられるが、従来の APM では得られる二 次イオン強度が低く、これを満足させるような測定条件を設定するのは困難であった。 一方、ウラン粒子を電子顕微鏡観察下で分離し、150 µm 間隔で再配置するとビーム照 射範囲を従来法より狭めることができるため、粒子の消耗速度を上げて二次イオンを 精密分析に近い強度で得るような測定条件を設定できた。これにより、事前に表面部 分を消耗させることで粒子表面の影響を軽減した APMを実施することが可能であった。

本発表には、原子力規制庁から委託を受けて実施した「保障措置環境分析調査」の成果の一部が含まれる。 Total evaporation for uranium particles generating much uranium hydride formation and isotopic ratio change

Tomita, R., Tomita, J., Yomogida, T., Suzuki, D. Yasuda, K. Esaka, F., Miyamoto, Y.

### 放射線発生装置廃止のための放射化測定評価マニュアル 3K12

(高エネ研<sup>1</sup>)〇松村宏<sup>1</sup>,桝本和義<sup>1</sup>,吉田剛<sup>1</sup>,豊田晃弘<sup>1</sup>,中村一<sup>1</sup>, 三浦太一<sup>1</sup>

### 【緒言】

放射性同位元素等規制法下で加速器施設の廃止措置を行う際に,クリアランス制度 を取り入れることは,数多くの事業所において難しい状況にある。そこで,我々は 2017 年度からの 4 か年において,原子力規制委員会原子力規制庁の放射線安全規制研究戦 略的推進事業において,「加速器施設の廃止措置に係わる放射化物の測定,評価の手法 の確立」に取り組んだ。ここでは、クリアランスレベルを参考にしつつ,加速器施設 の廃止措置を行う方法を検討し、得られた成果について、国内の多くの専門家で構成 された研究検討委員会及び原子力規制庁と共に取りまとめを行った。これを「放射線 発生装置廃止のための放射化測定評価マニュアル 一静電加速器施設,放射光実験施 設、陽子線治療施設,重粒子線治療施設,陽電子断層撮影(PET)核種製造用サイクロト ロン施設-」としてマニュアルの形でまとめた。本発表ではその要点を解説する。

### 【マニュアルの内容】

図1に「放射線発生装置廃止のための放 射化測定評価マニュアル」の内容を示す。 本マニュアルのメインは,調査により加速 器施設の放射化区分を示した第2章と放射 化量の測定と放射化の有無の判定の方法を 示した第3章である。

第2章では、これまで放射化について国か らの判断が示されていない加速器である、静 電加速器、放射光専用加速器、粒子線治療用 加速器について、放射化していないと判断さ れる領域を明確にし、廃止措置計画の立案に 役立つようにした。廃止措置に伴う作業量や コストを大幅に減らす効果がある。

第3章では、PET 核種製造用のサイクロト ロンの廃止措置を念頭に置き、コンクリート 構造物や加速器金属の放射化量を測定する方 法や放射化の有無を判定する方法を考案した。 特に,放射化の有無の判定では、「IFB

(Indistinguishable From Background, バック グラウンドと区別できない)」を一般物として 取り扱いできるようにするとした。これは, 米国で採用されている方法を参考にし,今後, 日本の廃止措置時に放射化物を適切に取り扱 うための手順の標準となるであろう。

#### **第1章 はじめに** 1.1 本書の目的

1.1 本書の目的 1.2 本書の構成

### 第2章 放射線発生装置の放射化区分のた めの測定と結果

- 2.1 放射化の観点による、放射線発生装置及び 建屋の区分
- 2.2 放射線発生装置の使用に伴う放射化要因
- 2.3 放射化/非放射化の区分を明らかにする ための調査項目
- 2.4 放射化量推定のための測定手法
- 2.5 放射化量推定計算手法
- 2.6 加速器の種類による施設評価結果

#### 第3章 廃止措置時の測定と評価手法

- 3.1 用語の定義
- 3.2 コンクリート構造物の放射化評価
- 3.3 サイクロトロンの金属の測定と評価手法

#### 第4章 海外の状況

- 4.1 加速器施設のクリアランス実施例
- 4.2 加速器施設に関する廃止措置検討状況

#### 第5章 RI規制法下でのクリアランス制度へ の取り組みに対する課題

- 5.1 放射線発生装置の現状とクリアランス制 度の運用
- 5.2 小規模事業所におけるクリアランスの進め方
- 5.3 放射化物の取扱に対する課題

図1 「放射線発生装置廃止のための 放射化測定評価マニュアル」の内容

Manual of Measurement and Evaluation of Activation for Decommissioning of Accelerator Facilities MATSUMURA H., MASUMOTO K., YOSHIDA G., TOYODA A., NAKAMURA H., MIURA T.

# 可搬型 γ 線イメージング装置 GeGI5 による加速器放射化評価の可能性

(KEK<sup>1</sup>、筑波大<sup>2</sup>)○吉田剛<sup>1</sup>、松村宏<sup>1</sup>、中村一<sup>1</sup>、豊田晃弘<sup>1</sup>、三浦太一 <sup>1</sup>、桝本和義<sup>1</sup>、笹公和<sup>2</sup>、森口哲朗<sup>2</sup>、松村万寿美<sup>2</sup>

【緒言】加速器の放射化は作業員の被ばくや、放射性廃棄物発生の観点から問題視され ているが、その評価は人手によるサーベイメータでのスキャニングに頼る他なく、非 効率かつ被ばくリスクが大きい。可搬型γ線イメージング装置は、線源からのγ線を 可視化する革命的なツールであり、我々は当該技術の加速器放射化評価への応用につ いて検討を続けてきた。福島原発事故以降に急速に発展し、非常に多くの機種が実用 化されてきた中、加速器放射化において、放射化部位、残存核種、放射能を評価する ためには何が必要なのか? 本発表では、我々が過去に行った多くのテスト実験より、 最も優秀と判定した市販機種を用いた実地試験結果および、一連の評価で明らかとな った加速器放射化評価に要求される性能について報告する。

【装置】現在実用化されている可搬型 y 線イメージング装置は、主に「ピンホール」、「マ

スク」、「コンプトン」の3つの計測方式を採用している。 今回、我々が評価に用いたのは、コンプトン方式を採用 した PHDS 製 GeGI5 という機種である(図1)。また、 検出部についても NaI 等の各種無機シンチレーターを用 いた機種から、CdTe や Ge などの半導体結晶を用いたも のまで、多種多様である。GeGI5 は直径 90mm 厚み 11mm の比較的大きな Ge 単結晶を搭載している。これまでに 実施した様々な仕様の市販機種を用いた評価結果より、 加速器の放射化評価には結晶厚が最重要であることが 示されている。



図 1. GeGI5 外観

【評価内容・結果】ベンチマークとしての較正用標準線源を用いた撮影および、実際の 加速器施設での評価を行った。例として、筑波大学タンデム加速器施設内ビームライ

ンの放射化したベローズ(表面線量率3.5µSv/h、核種は 56Coが主体)を撮影した結果について説明する。図2に、 40cmの距離から撮影した時の線源可視化結果の経時変 化を示す。コンプトン方式の特徴として、y線のエネル ギーと散乱角、そして線源との距離より逆算した円錐 (コーン)を可視光画像に投影し、最も重なりの強い部 位を線源位置として特定する。凡そ30分で放射化部位 への重なりが強く現れることがわかった。距離を変えて 同様の測定を行ったところ、収束に要する時間は、距離 の2乗に反比例することが示され、線量率と装置に記録 される統計量を用いて標準化できることがわかった。



図 2. 放射化ベローズ撮影時 線源可視化結果の経時変化

# 3K14 スペクトル定量法の液体シンチレーションスペクトルへの適用性 (日本分析セ<sup>1</sup>、新潟大<sup>2</sup>、JAEA<sup>3</sup>, IRID<sup>4</sup>)○大島真澄<sup>1</sup>, 後藤 淳<sup>2</sup>, 篠原宏文<sup>1</sup>, 瀬戸博文<sup>1</sup>, 伴場 滋<sup>1</sup>、古瀬 貴広<sup>3,4</sup>

【緒言】液体シンチレーションカウンタ(LSC)は、放射性核種を含む溶液試料と液体 シンチレータを混合溶解することによって、効率よく低エネルギー放射線を測定する ことができるため、低エネルギーβ線、X線の定量に適している。分解能は半導体検 出器などと比べ劣るが、スペクトル全体を用いるスペクトル定量法(SDM法)[1,2]解 析には適している。その定量性検証の結果を報告する。

【実験と解析】実験は、㈱化研[3]への外注により、H-3、Co-60、Sr-90 および Cs-137 の 各々1300、6773、3088、3055 Bqの標準溶液の LSC 測定を行った。測定はパーキンエ ルマー社製 Tri-Carb 3110TR 型液体シンチレーションカウンタを使用した。

LSC は、試料の化学組成によってクエンチングを生じるので、まずクエンチング補正 を行った。SDM 法解析ソフトは、以前ガンマ線解析用に開発したもの[1]を使用した。 SDM 法の定量精度評価を行うため、以上の標準溶液スペクトルから、Cs-137 の 3000 Bq の存在下で、他の3 核種の濃度が全て 3000、1000、300、100, 30 Bq である混合スペ クトルを合成し、SDM 解析を行った。



図1 H-3、Co-60、Sr-90 および Cs-137 の LSC スペクトル 図2 濃度調整値に対する SDM 定量値の再現比

【結果と結論】図1に、例として、4 核種すべてが 3000 Bq の強度で、60 分測定した ことに相当するスペクトルを示す。図2に各濃度に対する定量の再現比を載せる。SDM 解析による主成分 Cs-137 の 3000 Bq の存在下で、他の3 核種の濃度比が 100-10%で、 定量精度が約7%以下、濃度比が3%、1%の時でも、精度は各々20、30%以下になる という結果が得られた。このことは、複数の核種が混在しても、SDM 法は、一定の精 度で、各々を同時に定量できることを示している。

参考文献

[1] 日本原子力学会 2020 年春の年会 2N-02, 2020 年 3 月 16-18 日 予稿のみ

[2] 日本原子力学会 2021 年春の年会 2D-14, 2021 年 3月 17-19 日 オンライン

[3] HTTP://www.kakenlabo.co.jp/index.html

本件は、平成 30 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究 開発)」に係る補助事業および JAEA 英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 JPJA20P20333366 の 助成を受けたものです。

Application of spectral determination method to liquid scintillation spectra

OMasumi Oshima<sup>1</sup>, Jun Goto<sup>2</sup>, Hirofumi Shinohara<sup>1</sup>, Hirofumi Seto<sup>1</sup>, Shigeru Bamba<sup>1</sup>, and Takahiro Furuse<sup>3,4</sup>

# ポスター発表

# 9月24日(金) 3P01-3P12

### アスタチン化合物の分光・可視化にむけた新規手法の提案 3P01

(阪大放射線機構<sup>1</sup>、阪大医<sup>2</sup>、理研仁科セ<sup>3</sup>)

○寺本高啓<sup>1</sup>、大江一弘<sup>2</sup>、王 洋<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>3</sup>、豊嶋厚史<sup>1</sup>

【緒言】アスタチン(<sup>211</sup>At)はアルファ線核医学治療で使用される核種の候補として注 目されている。これまでのところ、アスタチン原子について、波長可変ナノ秒レーザ ーを用いた多光子イオン化による電子励起状態の観察およびイオン化ポテンシャル、 電子親和力の決定が報告されている。しかしながら、<sup>211</sup>Atを含む化合物についての物 理化学的な知見に関する報告例は一切ない。

核医学治療において、薬剤投与による体内分布を評価するため、X 線、 γ線を検出 しイメージングが行われている。この高エネルギーの光子に対しては、結像光学系の 構築が困難であるため放射される光を直接撮像するだけに限られる。そのためイメー ジ画像を撮像するため画像素子を複数用意する必要がある。

本研究では、<sup>211</sup>At 化合物の分光に向けた取り組みを紹介する。原子分子分光学で活用されている covariance 法の導入について紹介する。また可視化については、単一検出器とマスクパターンから画像再構築を行なう single pixel imaging 法を<sup>211</sup>At のイメージングに導入を試みたので報告する。

【実験】<sup>209</sup>Bi(α,2n)反応により生成した <sup>211</sup>At を含む金属 Bi をアルミニウム支持板とと もに電気炉で 850℃まで加熱蒸発する乾式分離法により単離した。単離された <sup>211</sup>At を 蒸留水で抽出し、マイクロバイアルにて採取した。本研究で使用した <sup>211</sup>At の量は、実 験開始時において 100μL 水溶液あたり 1MBq(10<sup>10</sup>原子)ほどであった。

#### 1. <sup>211</sup>At $\mathcal{O}$ covariance mapping

<sup>211</sup>At の崩壊過程に伴う X 線および γ 線の放出を Ge 半導体検出器(BE2020 Camberra) および MCA(MCA-7a Seiko EG&G)で計測した。積算時間を 2 s とし、連続で 16,000 点 の γ 線スペクトルを得た。得られたデータから Covariance mapping を作成した。 680keV 付近に <sup>211</sup>At の電子捕縛に伴う γ 線の放出が確認できた。共相関係数が 0.001 と 小さいが <sup>211</sup>At の放出する 2 つの γ 線で相関があるのがわかった。

### 2. <sup>211</sup>At $\mathcal{O}$ single pixel imaging

CdZnTe半導体検出器(GR1,Kromeck)の前面に、真鍮のマスクを用意した。真鍮マ スクの厚みは1cmでありγ線を完全に遮蔽することができる。マスクパターンは3×3 の格子状になっており、ピンの抜き差しによりマスクパターンの生成を行なう。検出 器から10cm離れた位置(右下)に<sup>211</sup>At水溶液が入ったバイアルを置き、それぞれの マスクパターンに対するγ線のカウントレートを計測した。カウントレートとマスク パターンから画像の再構築を行なった。3×3の格子状の右下に高い信号強度があるの が確認できた。これは、<sup>211</sup>At水溶液が入ったバイアルの位置に該当しており、原理検 証実験として妥当な結果を得ることができたと考えられる。

### Mn-52の製造と半減期測定 3P02

(東北大ELPH<sup>1</sup>、東北大金研<sup>2</sup>、東北大CYRIC<sup>3</sup>)
 (東永英寿<sup>1</sup>、白崎謙次<sup>2</sup>、池田隼人<sup>1,3</sup>)

【緒言】

マンガンは多様な酸化数を取り,様々な錯形成をする遷移金属元素である。動植物 の必須微量栄養素でありながら,神経毒性など生体に対して特異な影響を持つことも 知られており,これらの挙動を知ることは生体にとって重要な情報となる。

マンガン同位体のうち Mn-52g(半減期 5.6 d)は約 29%がβ<sup>+</sup>壊変を通して壊変するため PET 核種として使われつつある核種である[1]。また,71%が電子捕獲過程を通して 壊変するため,クロム同位体と同様に化学状態により半減期が変化する可能性がある。

本研究では、これらの研究を進めるための Mn-52g トレーサーの製造法を開発する。 製造反応は <sup>nat</sup>V( $\alpha$ ,X)<sup>52g</sup>Mn, <sup>nat</sup>Cr(d,X)<sup>52g</sup>Mn, <sup>nat</sup>Fe( $\gamma$ ,X)<sup>52g</sup>Mn を選択し、励起関数測定と Mn トレーサー精製法について検討しているが、ここでは <sup>nat</sup>V( $\alpha$ ,X)<sup>52g</sup>Mn の励起関数の 結果を報告する。

[実験]

励起関数測定はスタックフォイル法で行った。厚さ 10 μm, 純度 99.5%のバナジウム 箔と, フラックスモニタ用の厚さ 5-20 μm, 純度 99.9%の銅箔を重ねて照射ターゲット とした。照射は東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターの AVF サイク ロトロンで行った。約 50 MeV に加速したα粒子を照射ターゲットに 50-100 pnA で 30 分程度照射した後, 各フォイルに対して高純度 Ge 半導体検出器を用いたγスペクトロ メトリーを行った。αビーム量やエネルギーは<sup>nat</sup>Cu(α,X)<sup>66,67</sup>Ga反応を用いて補正して, V 箔の測定結果から励起関数を求めた。

[結果]

暫定的な結果ではあるが得ら れた<sup>nat</sup>V( $\alpha$ ,X)<sup>52g</sup>Mnの励起関数 を図1に示す。これまで得られ ている励起関数の文献値は最大 2倍程度ばらついているが,今回 得られた値はV.N.Levkovskiら の値とよく一致していた。発表 では詳細な解析結果や他の核反 応の結果も合わせて報告する。



図 1. <sup>nat</sup>V(α,X)<sup>52g</sup>Mn の励起関数(文献値は[2]より取得)

#### References

[1] G. J. Topping et al., Med. Phys. 40 (2013) 042502.

[2] EXFOR (Database Version of 2021-06-28), https://www.nndc.bnl.gov/exfor/

Production of Mn-52 and its half-life measurement KIKUNAGA, H., SHIRASAKI, K., IKEDA H.

# Th-229m の壊変特性の解明に向けた高周波イオン収集・質量分離 3P03 装置の開発

(理研仁科セ<sup>1</sup>、阪大院理<sup>2</sup>、理研香取研<sup>3</sup>、JST さきがけ<sup>4</sup>、KEK 和光原 子核科学セ<sup>5</sup>)<sup>o</sup>重河優大<sup>1</sup>、床井健運<sup>2</sup>、山口敦史<sup>3,4</sup>、Wang Yang<sup>1</sup>、Yin Xiaojie<sup>1</sup>、南部明弘<sup>1</sup>、佐藤望<sup>1</sup>、和田道治<sup>5</sup>、羽場宏光<sup>1</sup>

【緒言】<sup>229</sup>Thの第一励起準位(<sup>229m</sup>Th)は、8.3 eV 程度[1]という極端に低い励起エネル ギーを持つ。そのため、化学状態に依存して<sup>229m</sup>Thの壊変過程(内部転換、電子架橋 遷移、γ線放出)が変化すると考えられている。しかし、<sup>229m</sup>Thの電子架橋遷移とγ線 放出過程は未だに観測されていない。我々は、<sup>229m</sup>Th イオンをイオントラップ中に捕 捉し、低圧のガスと化学反応させることで、<sup>229m</sup>Th の化学状態を自在に制御し電子架 橋遷移を観測することを目指している。また、<sup>229</sup>Pa イオンをフッ化物結晶に打ち込み アニールすることで、<sup>229</sup>Pa から EC 壊変によって生成された<sup>229m</sup>Th の内部転換を抑制 し、γ線放出を観測することを目指している。本研究では、<sup>233</sup>U線源から飛び出してく る<sup>229m</sup>Th イオンやレーザーアブレーションにより生成された<sup>229</sup>Pa イオンを高効率で収 集するために、小型の高周波イオン収集装置を開発した。さらに、測定の妨害となる 不純物を除去するために質量分離装置を接続し、装置の性能評価を実施した。

【実験】図 1 に示すイオン収集・質量分離装置を開発した。He ガスセル中で生成されたイオンは、He との衝突で減速し、DC 電圧勾配によって RF カーペットまで運ばれる。その後、イオンは高周波電圧によってカーペットの中心孔(直径 0.32 mm)まで運ばれ、四重極イオンガイドによって高真空中に運ばれる。そして、四重極質量分離器により特定の質量電荷比を持ったイオンのみがチャンネルトロン検出器まで運搬される。イオンの引き出し効率や質量分解能を評価するため、<sup>224</sup>Ra 線源をガスセル内に設置し、α 壊変の反跳によって飛び出してくる <sup>220</sup>Rn イオンやその娘核を引き出す実験を実施した。その際、He 圧力(5–15 mbar)、DC・RF 電圧の大きさ、He ガスの精製の有無などの条件を変えて測定した。



分離装置

【結果】 <sup>220</sup>Rn<sup>+</sup>や <sup>216</sup>Po<sup>+</sup>を半値幅 1 u 程度の質量分解能で明確に検出できた。DC・RF 電圧を最適値に設定することで、15–20%の効率で <sup>220</sup>Rn<sup>+</sup>を引き出せることが分かった。 また、He ガスの精製により、<sup>216</sup>Po<sup>2+</sup>等の多価イオンを引き出せることが分かった。従 って、本装置を用いることで、複数の価数の <sup>229</sup>mTh や <sup>229</sup>Pa のイオンを高効率かつ十分 な質量分解能で引き出し、<sup>229m</sup>Th の壊変過程に関する実験を実施できると期待される。 [1] B. Seiferle *et al.*, Nature 573, **243** (2019).

### 3P04

北海道道東海域における<sup>134</sup>Csの空間分布と経年変動(2018-2021)

(金沢大<sup>1</sup>、水産機構・資源研<sup>2</sup>) ○真下海成<sup>1</sup>、竹原亮成<sup>1</sup>、井上睦夫<sup>1</sup>、亀山紘旭<sup>1</sup>、 谷内由貴子<sup>2</sup>、黒田寛<sup>2</sup>、帰山秀樹<sup>2</sup>、三木志津帆<sup>2</sup>、長尾誠也<sup>1</sup>

【はじめに】北海道道東海域では生物生産性が非常に高く、世界でも有数の漁場が形成される。そのため、本海域の海水循環を明らかにすることは重要である。<sup>134</sup>Cs は 2011 年 3 月の福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故により海洋環境中に放出された人工放射性核種であり、溶存性であることから海水とともに 循環する。短半減期 (2.06 年) ゆえに、現在海水中で検出されるものはすべて FDNPP 事故由来であり、 供給時期も明らか (2011 年 3 月) なことから、海水循環の化学的トレーサーとして非常に有効である。本 研究では 2018–2021 年の道東沖を中心とした北海道近海における <sup>134</sup>Cs 濃度を測定、その空間分布より 道東海域の水塊構造を議論した。

【実験】 2018-2021 年に北海道近海で海水試料を~60-100L 採取した。リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 沈殿により Cs を回収した。すべての AMP/Cs 試料は石川県の尾小屋地下測定室に設置されたゲルマニウム半導体検出器を用いた、極低バックグラウンド γ 線測定を利用し、<sup>134</sup>Cs 濃度を測定した。

【結果と考察】2018-2019 年の道東海域 親潮流域に影響を与える宗谷暖流 (SWC)、東樺太海流 (ESC) および東カ ムチャッカ海流 (EKC) の<sup>134</sup>Cs 濃度の 平均値は、それぞれ 0.7 mBq/L、0.2 mBq/L、および 1.3 mBq/L であった。道 東海域における表層海水試料中の<sup>134</sup>Cs 濃度は、宗谷暖流、東樺太海流より高い 値を示した (図 1)。

この原因として、<sup>134</sup>Cs が東カムチャッカ 海流経由で亜寒帯循環により道東海域に 再流入したことがあげられた。さらに、 親潮流域の<sup>134</sup>Cs 濃度は 2018 年から 2021



図1 道東海域表層海水における<sup>134</sup>Cs濃度

年にかけて、わずかながら有意な増加傾向にあることも明らかになりつつある。2018年以降、宗谷 暖流のもととなる対馬暖流には上昇の傾向はみられていないことから、東カムチャッカ海流における<sup>134</sup>Cs 濃度の上昇が推測される。本年会では、2011年を基準としたタイムスケールを含む亜寒帯海水循環 を議論する。

【謝辞】本研究の一部は、「日本周辺海域における低レベル放射性セシウム等の汚染物質の分布調査 および循環の解析」の一環として行われた。海水試料採取にご協力いただいた、蒼鷹丸、北光丸の船長、 乗組員、および同乗研究者の皆様に感謝いたします。

Spatial variations of <sup>134</sup>Cs concentrations off eastern Hokkaido (2018–2021) MASHITA, K., TAKEHARA, R., INOUE, M., KAMEYAMA, H., TANIUCHI, Y., KURODA, H., KAERIYAMA, H., MIKI, S., NAGAO, S.

# 3P05 <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比の空間分布からみた日本海の粒子吸着性成分の挙動

(金沢大<sup>1</sup>、海洋財団<sup>2</sup>、水産機構・資源研<sup>3</sup>)○亀山紘旭<sup>1</sup>、井上睦夫<sup>1</sup>、 諸角季生<sup>1</sup>、城谷勇陛<sup>1</sup>、花木祥太朗<sup>1</sup>、古澤佑一<sup>1</sup>、小藤久毅<sup>2</sup>、森田貴 己<sup>3</sup>、三木志津帆<sup>3</sup>、長尾誠也<sup>1</sup>

### 【序論】

<sup>228</sup>Th (半減期 1.91 年) は海洋環境において粒子吸着性であり、一部は粒子とともに海 水から除去される。それゆえ、溶存性である親核種 <sup>228</sup>Ra との放射能比、すなわち <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比は、粒子さらには粒子吸着性成分の挙動を探る重要な指標となる。 日本海においては、対馬暖流下における粒子除去に興味がもたれる。本研究では、 <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比の空間分布をもとに、日本海における粒子除去過程を議論する。

### 【試料・実験】

2012-2020 年 7-8 月に日本海で海水~20 L を 採取した (図.1)。表層採水はバケツ、鉛直海 水採取は CTD センサー-ニスキン採水ボト ルを使用し、水深 0-350 m で採水した。未 ろ過海水に BaSO4 および Fe(OH)3 共沈法を 適用、ラジウム、トリウム同位体を分離し た。石川県小松市の尾小屋地下測定室に設 置したゲルマニウム検出器を利用した低バッ クグラウンドガンマ線測定法により、<sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra, <sup>228</sup>Th 放射能濃度を測定した。



### 【結果・考察】

日本海表層 (< 50 m) では、<sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比は、

<0.15 と低い値を示した。盛んな粒子除去を反映する。水深 50-350 m においては、対 馬海盆〜大和海盆域では、<sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比が、0.1-0.25 と大きな変動はみられなか った。両海域における粒子吸着性成分の挙動および粒子除去メカニズムに、顕著な違 いはないことが推測された。一方で、対馬海盆・大和海盆域に比べ、日本海盆域にお いて 0.15-0.6 と高く変動幅の大きい <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比がみられた。ラジウム (<sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra) 濃度、塩分などと照らし合わせ、日本海盆域の <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra 放射能比は、リマン 海流など他の水塊の寄与、およびその混合比の差を反映していることが考えられた。

**謝辞**:本研究の一部は、「日本周辺における低レベル放射性セシウム等の汚染物質の分 布調査および循環の解析」の一環として行われました。海水採取にご協力いただいた、 蒼鷹丸の同乗研究者、船長および乗組員の皆様に感謝いたします。

Spatial distributions of <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra activity ratio in the Japan Sea and the implications for transport of reactive materials KAMEYAMA, H., INOUE, M., MOROKADO, T., SHIROTANI, Y., HANAKI, S., FURUSAWA, Y.,

KAMEYAMA, H., INOUE, M., MOROKADO, T., SHIROTANI, Y., HANAKI, S., FURUSAWA, Y., KOFUJI, H., MORITA, T., MIKI, S., NAGAO, S.

### 3P06

DGA resin を用いた Y 分離による骨中 <sup>90</sup>Sr 分析方法の開発

(1日本原子力研究開発機構、2福島大)

o小荒井一真1、松枝誠1,2、青木譲1,2、藤原健壮1、寺島元基1

【緒言】<sup>90</sup>Sr の放射能分析では、正確な測定のために $\beta$ 線の自己吸収の原因となる試料のマト リックス成分や他の $\beta$ 線放出核種の化学分離が必要となる。骨や海水魚などのマトリックス の多い試料を対象とする場合、Sr と同族で 2 価イオンとなる Ca などが試料中に大量に含ま れるため、<sup>90</sup>Sr を精製する化学分離手法は Ca の分離が不十分なことがある。一方、<sup>90</sup>Sr の娘 核種である <sup>90</sup>Y を試料から直接分離する手法は 3 価の Y と 2 価の Ca、Sr などを容易に分離で きるため、骨中 <sup>90</sup>Y を簡便に精製できる前処理手法になる可能性がある。Y に高い選択性を 持つ固相抽出樹脂 DGA resin は簡便に <sup>90</sup>Y を精製できるが [1]、Ca を大量に含む骨の <sup>90</sup>Sr 分 析に適用された例はない。そこで本研究では DGA resin での化学分離により <sup>90</sup>Y 測定の妨害 核種となる元素 (Cs、Pb、Bi、Th、U)、骨のマトリックス元素 (Na、Mg、K、Sr、Ba) が分 離できるか調査し、骨標準物質の <sup>90</sup>Sr が定量できるか検討した。

【測定試料と実験方法】固相抽出試験用の水溶液(1µg mL<sup>-1</sup>Y、Cs、Pb、Bi、Th、U、8M 硝酸)は、混合元素標準液XSTC-13(10µg mL<sup>-1</sup>のY、Cs、Pb、Bi、Th、Uを含む)と8 M 硝酸)は、混合元素標準液XSTC-13(10µg mL<sup>-1</sup>のY、Cs、Pb、Bi、Th、Uを含む)と8 M 硝酸を用いて調製した。この水溶液10 mL を DGA resin(2 mL カートリッジ)に通液し、その後10 mLの8 M 硝酸、10 mLの8 M 塩酸、20 mLの3 M 硝酸と0.3 M フッ酸の混合物、20 mL の0.02 M 硝酸を連続して洗浄した。最後に20 mLの0.1 M 塩酸によりYを溶出した。<sup>90</sup>Sr 測定用の標準物質として、NIST-SRM 4356(ヒト骨)とJSAC0785(魚骨)を2週間以上静置してから用いた。1 g のヒト骨と2.5 g もしくは10 g の魚骨は酸分解により溶液化した。溶解液は8 M 硝酸相当になるように調整し100 µg 相当のY キャリアーを添加した。この溶液をDGA resinに通液し、上記の分離工程同様にカラムを洗浄し、最後に20 mL の0.1 M 塩酸によりY を溶出した。溶出液には1 mg の Fe<sup>3+</sup>相当を加え、数 mL の濃アンモニア水によりY を水酸化鉄と共沈後、ろ過により沈殿を捕集した。この沈殿を $\beta$ 線測定(6時間測定)に用いた。カラム溶出液中の元素分析は ICP-MS により行った。

【結果と考察】測定妨害核種となり得る元素のうち Th 以外は各洗浄工程で除去できたが、 1.6%の Th は Y と同時に回収された。ヒト骨の <sup>228</sup> Th 濃度の認証値は 7.2 Bq kg<sup>-1</sup> であることか ら、上記の回収率であれば 10 Bq kg<sup>-1</sup>程度の <sup>90</sup>Sr への干渉は無視できると考えられる。また、 ヒト骨(1g)と魚骨(2.5g)中のマトリックス元素のほぼ全てが 8M 硝酸の通液により分離 でき、特に Ca は 99.9%除去できた。DGA resin による化学分離法を骨標準物質の <sup>90</sup>Sr の分析 に適用したところ、1-10g の骨試料について 75%以上の Y 回収率が得られ、この際の <sup>90</sup>Sr の 測定値は、認証値と誤差の範囲で一致することを確認した。これの結果は、DGA resin による Y 分離手法が、骨中 <sup>90</sup>Sr の分析に適用可能であることを示している。

-	骨標準物質	試料量	Y回収率 /%	測定值 / Bq kg <sup>-1</sup>	認証值 / Bq kg <sup>-1</sup>
-	NIST-SRM 4356	1.0 g	92.5	44.6±1.3	42.6 (36.4-49.5)*
	ICAC 0795	2.5 g	75.7	12.7±0.9	115101**
	JSAC 0/85	10 g	86.2	13.1±0.4	- 11.3±2.1**

表. DGA resin での骨標準物質の<sup>90</sup>Sr 測定結果

\*認証値(2.5-97.5 %信頼区間) \*\*認証値±標準偏差

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

Development of analysis method for <sup>90</sup>Sr in bones using Y separation with DGA resin KOARAI, K., MATSUEDA, M., AOKI, J., FUJIWARA, K., TERASHIMA, M.

# モニタリングポストの in-situ 校正による空間放射線量率測定の品 3P07 賃保証

(日本分析センター)〇杉山翠、石川清正、田中博幸、新田済、岸本武士

【モニタリングポストの in-situ 校正の必要性】

モニタリングポストによる空間放射線量率の測定は、平常時においては、原子力施 設周辺における周辺住民等の被ばく線量の推定及び評価、国内外の原子力施設からの 予期しない放射性物質又は放射線の放出の早期検出及び周辺環境への影響評価に用い られ、緊急時においては、OIL(Operational Intervention Level)に基づく防護措置(住 民の避難等)の実施の判断材料の提供等に用いられており、その測定値の信頼性を担 保することが重要である。

現状、モニタリングポストは製造メーカによる点検が定期的に実施され、機器調整 が行われているものの、「平常時モニタリングについて」(原子力災害対策指針補足参 考資料、平成30年4月4日)には、品質保証として、代表的に選んだモニタリングポ ストに対して校正を実施することが重要であると記載されている。

モニタリングポストは設置場所に固定して使用されているため、設置場所における 現地校正(in-situ 校正)が必要であり、日本分析センターは、モニタリングポストを in-situ 校正できる校正機関として、JCSS(Japan Calibration Service System)の登録を取 得している国内で唯一の機関である。

【in-situ 校正方法及びトレーサビリティ体系】

JCSS 校正のためのトレーサビリティ体系図を示す。

国家標準とトレーサブルなワーキングス タンダードである電離箱線量計を用いた in-situ 校正を実施している。モニタリング ポスト及びワーキングスタンダードの両方 に対して、Cs-137線源による約1 µGy/h 程 度の照射を行い、その結果を比較すること により校正を実施している。in-situ 校正の 拡張不確かさ(k=2)は7%程度である。



【これまでの in-situ 校正実績】

全国 47 都道府県に約 300 台設置されている環境放射能水準調査用のモニタリングポスト(NaI(Tl)シンチレーション検出器)について、2016 年度から in-situ 校正を実施しており、2020 年度までに 33 台(33 自治体)の校正を実施した。校正定数は 0.97~1.07の範囲であり、国内における空間放射線量率の測定が適切に実施されていることを確認した。

なお、2020年度からは、全国の原子力施設監視用のモニタリングポスト(NaI(Tl)シンチレーション検出器及び電離箱検出器)も対象として in-situ 校正を実施している。

本発表は、原子力規制庁委託事業である環境放射能水準調査の成果の一部である。

Quality assurance by in-situ calibration for air dosemeters installed at monitoring stations SUGIYAMA, M., ISHIKAWA, K., TANAKA, H., NITTA, W., KISHIMOTO, T.

### 海域モニタリングの質の保証

3P08

(日本分析センター)〇佐野友一、佐久間亜美、太田智子

【緒言】2021年4月に開催された廃炉・汚染水・処理水対策関係閣僚等会議において、 「東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所における多核種除去設備 等処理水の処分に関する基本方針」が示され、福島第一原子力発電所による事故以降、 継続的に発生し続けている ALPS 処理水の海洋放出が決定された。この決定を受け、 今後、海域モニタリングが強化・拡充されることになるが、同時に、海域モニタリン グにおける分析値の質の保証の重要性が益々高まっていくものと考えられる。

IAEAは、平常時及び緊急時モニタリングにおいて、迅速かつ信頼性が高い分析を行うことができる研究機関の世界的なネットワークとして、1995年に ALMERA

(Analytical Laboratories for the Measurement of Environmental Radioactivity)を設立した。 ALMERA には 2021 年 6 月時点で 90 カ国 194 機関が登録されており、日本分析センタ ー (以下、「当センター」と示す。)は 2008 年から参画している。ALMERA の主な活 動として、技能試験 (Proficiency Test)、分析法の開発、標準試料の開発、ワークショ ップ・研修の実施等があり、また、年に 1 回年次会議を開催し、情報交換が活発に行 われている。

当センターが外部精度管理として参加している IAEA が主催する技能試験の中に、 海域モニタリングを実施する研究機関をサポートすることを目的とした IAEA-RML-PT がある。海水試料中のH-3、Sr-90、Cs-137等の核種を分析するプログラ ムが実施されており、当センターは 2014 年から継続的に参加している。今回、2020 年に実施された IAEA-RML-2020-01 PROFICIENCY TEST の結果と共に、過去の結果を まとめたものを紹介する。

【内容】 2020 年の本技能試験では、地中海の海水 5L に H-3、Sr-90、Cs-134、Cs-137 及 び未知のガンマ線放出核種が添加されたものが提供された。分析期間は約 3 ヵ月で、分析 方法は、各機関が適切な方法を選択しなければならない。図 1 にトリチウムの報告結果を 示す。当センターでは、全ての核種について「満足」な結果であった。



本研究は原子力規制庁委託費(環境放射能水準調査)事業の成果の一部である。

### 3P09 <sup>111</sup>Cd (←<sup>111</sup>mCd) 及び<sup>111</sup>Cd (←<sup>111</sup>In) プローブを用いた摂動角相関法に よる Cd<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>0<sub>4</sub>中の超微細場測定 (金沢大院自然<sup>-1</sup>、金沢大理工<sup>-2</sup>、京大複合研<sup>-3</sup>)○藤井光樹<sup>-1</sup>、小中將彰<sup>-2</sup>、 伊東泰佑<sup>-1</sup>、大久保嘉高<sup>-3</sup>、佐藤渉<sup>-1,2</sup>

【緒言】スピネル化合物は構成元素の種類や占有サイトにより電気的、磁気的特性が変化する物質で、機能性材料としての応用に向けて、それらの基礎物性を調べることが大変重要である。先行研究において逆スピネルである  $Fe_3O_4$ に不純物として導入された摂動角相関(PAC)法の <sup>111m</sup>Cd プローブ核は A サイトを占有し、超微細磁場による静的な摂動パターンが観測された[1]。一方で正スピネルである CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の超微細場を同法で測定したところ、同じく A サイトを占有する <sup>111m</sup>Cd プローブ核の核スピン緩和現象が観測された[2]。さらにこの緩和現象の手がかりを得る為、<sup>111</sup>Cd( $\leftarrow^{111}$ In)プローブを用いて CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> と  $Fe_3O_4$ の中間的な組成を持つ Cd<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O<sub>4</sub>のスペクトルの濃度依存性を調べた結果、<sup>111</sup>In プローブが A サイトの占有割合が大きくなる試料(x=0.25, 0.5)では、温度上昇により先行研究[2]と類似する核スピン緩和現象が観測され、A サイトのプローブで顕著に観測される現象であることが示唆された[3]。そこで本研究では、Cd<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O<sub>4</sub>を対象に <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow^{111}$ Cd)及び <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow^{111}$ In)プローブを用いた PAC 測定によりスペクトルの Cd 濃度依存性並びにプローブ依存性を調べた。

【実験】Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および CdO 粉末を混合し、錠剤成型後、真空中 1373 K で 45 分間 焼成して Cd<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O<sub>4</sub> 試料を作成し、<sup>111</sup>In プローブを試料に滴下し、真空中 1373 K で 3 時間熱拡散を行い PAC 測定を行った。また、京大原子炉にて<sup>110</sup>Cd の純度を 96.5%に 同位体濃縮した CdO 粉末に中性子照射して <sup>111m</sup>Cd を生成した。この酸化物と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および CdO 粉末を混合し、錠剤成型後、真空中 1373 K で 45 分間焼成して Cd<sub>x</sub>Fe<sub>3-x</sub>O<sub>4</sub> 試料を作成し、<sup>111m</sup>Cd プローブの PAC 測定を行った。

【結果】Fig.1 は 773 K での <sup>111m</sup>Cd を用いた Cd<sub>0.25</sub>Fe<sub>2.75</sub>O<sub>4</sub>の PAC スペクトルである。本研究に おいてこの試料の磁気転移温度(*T*<sub>c</sub>)は 753 K であ ることが分かり(Fig.2)、磁気が消失している 773 K での核スピン緩和現象を示唆する指数関数的な減 衰は、プローブ核と電場勾配との相互作用に起因 することを示唆している。また、*x*=0.25 以外の Cd 濃度の試料でも磁気転移温度以上で同様な結果が 観測された。<sup>111m</sup>Cd プローブが A サイトを占有する ことを勘案すると、これらの現象は A サイトの電場 勾配による摂動に帰することができる。

[1] W. Sato et al., J. Appl. Phys. 120, 145104 (2016).

[2] W. Sato *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **316**, 1289 (2018).

[3] 小中將彰 金沢大学物質化学類卒業研究 (2020)

Measurements of local fields in  $Cd_xFe_{3-x}O_4$  by means of PAC spectroscopy with the <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111</sup>mCd) and <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111</sup>In) probes

FUJII, M., KONAKA, M., ITO, T., OHKUBO, Y., SATO, W.



ラーモア周波数の温度依存性

### 加速器中性子によるがん治療用 Sc-47 の製造に関する研究

(原子力機構<sup>1</sup>、量研機構<sup>2</sup>、千代田テクノル<sup>3</sup>)○塚田和明<sup>1,2</sup>、橋本和 幸<sup>2</sup>、橋本慎太郎<sup>1</sup>、浅井雅人<sup>1</sup>、初川雄一<sup>2</sup>、佐伯秀也<sup>2,3</sup>、川端方子<sup>2,3</sup>、 太田朗生<sup>2,3</sup>、本村新<sup>2,3</sup>

【はじめに】 <sup>47</sup>Sc(半減期 3.35 日)は、がん治療に適した β線(平均エネルギー 162 keV) と画像化に適した γ線(159 keV)を同時に放出するため、その臨床応用が期待されて いる。そのため、原子炉熱中性子及び加速器による荷電粒子等を用いた製造手法の研 究が行われてきたが、臨床応用に必要な品質を確保できていない等の問題がある。近 年、我々は、医療用 RI 合成に加速器で発生させる高速中性子(加速器中性子)を用い た製造法を提唱してきた[1]。昨年の年会では、主に、ターゲット物質である Ti からの <sup>47</sup>Sc 分離手法研究について報告したが[2]、今回は、生成量と副生成物に関する入射す る重陽子のエネルギー依存性並びに副生成物等の評価を中心に報告する。

【実験】原子力機構タンデム加速器施設および東北大学サイクロトロンにおいて、重陽 子ビーム (15~40 MeV,約1  $\mu$ A)をBe標的 (22 mm $\phi$ × 10 mmt) に照射して得られ る高速中性子を、濃縮<sup>47</sup>Ti酸化物 (95.70±0.30%濃縮,約35 mg)に約1時間照射し<sup>47</sup>Sc を合成した。高速中性子はビーム前方に放出されるため、照射試料はBe標的から9 mm 前方の空気中に設置した。照射終了後、Ge半導体検出器を用いて照射試料のγ線測定 を行い、<sup>47</sup>Sc 並びに副生成物の生成量を入射重陽子エネルギーごとに評価した。

【結果・考察】主に<sup>47</sup>Ti(n, *p*)反応で得られる<sup>47</sup>Sc に加えて他の Sc 同位体など副生成物を確認し た。図に本実験で得られた、入射重陽子エネル ギーに対する生成核種の放射能(1gの試料に1 µAで1時間照射した照射終了時の生成量)を 示す。Be標的から発生する中性子の最大エネル ギーは入射重陽子のエネルギーに依存するため、 図のようにその生成量が大きく変化する。主に (n, *p*)反応で生成する<sup>47</sup>Sc及び<sup>46,48</sup>Scは25 MeV の重陽子でほぼ最大化されるが、<sup>44m</sup>Scなど更に 多核子を放出する反応による生成物は、25 MeV では生成が抑えられ、<sup>47</sup>Sc の放射能純度を高め るためには、25 MeV の重陽子照射が最適である ことがわかった。また、半減期が長い<sup>46</sup>Sc の 影響を抑えるためには濃縮試料の利用が必須

3P10





である事も明白である。報告では、本成果に加えて分離手法開発の現状についても報告する予定である。なお、本成果は科研費基盤研究(19K08163 及び 21H03742)及び 短寿命 RI 供給プラットフォームの助成を受けたものである。

【参考文献】 [1] Nagai et al., J. Phys. Soc. Jpn, 82, 064201 (2013). [2] 橋本ら、2020 日本放射化学会年会、P32 (2020).

Production of Sc-47 for cancer therapy using accelerator neutrons TSUKADA K., HASHIMOTO, K., HASHIMOTO, S., ASAI, M., HASTSUKAWA, Y. SAEKI, H., KAWABATA, M., OHTA, A., MOTOMURA, A.

### 3P11 HPLC 分析によるランタノイド内包フラーレン(Ln<sup>3+</sup>@C<sub>82</sub><sup>3-</sup>)の電 子状態に関する研究 (都立大院理<sup>1</sup>,理研仁科セ<sup>2</sup>,京大複合研<sup>3</sup>) 〇西村 峻<sup>1</sup>,雨倉 啓<sup>1</sup>,

秋山 和彦<sup>1,2</sup>, 羽場 宏光<sup>2</sup>, 高宮 幸一<sup>3</sup>, 久冨木 志郎<sup>1</sup>

【緒言】金属内包フラーレン(EMF)はフラーレンに金属原子を内包した構造を持つ包 接化合物である。ランタノイド元素(Ln)を内包したフラーレン(Ln@Cs2)はLnからCs2 ケージへ2ないし3つの電子が移動しており、電子状態は電荷移動数を大きく反映す る。一方、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)などにおける多段吸脱着平衡反応で は固定相と直接相互作用するCs2ケージ上の電荷移動数が等しくても、内包Ln原子が 変わると保持時間に微小な差が現れる。このような化学平衡に現れるEMFの電子状態 の差が、内包Lnのどのような性質に由来するか興味が持たれる。先行研究では、多元 素同時分析が可能なラジオクロマトグラフィー法を用いてLaからHoまでのLn原子を 内包したLn@Cs2の精密な保持時間が決定され<sup>[1]</sup>、4f軌道の不対電子数の差が電子状態へ 影響を与える可能性が示唆された<sup>[2]</sup>。本研究ではさらに詳細に電子状態に関する知見を 得ることを目的としてHPLC保持時間の温度依存性について炭素数の異なる空フラー レンを用いて調べ、熱力学的分析を行うことで分離機構の詳細を明らかにすると共に La@Cs2 等の金属フラーレンの挙動を調べた。

【実験】あらかじめ分離した高次フラーレン(炭素数:76,78,84,86)を用いて HPLC 展

開(カラム: Buckyprep、溶離液:トルエン、流速: 3.2 ml·min<sup>-1</sup>、温度範囲:  $20^{\circ}$ ~- $50^{\circ}$ )し、測定し た温度における各フラーレンの保持時間を決定し た。また、単離した Ln@C<sub>82</sub>を京都大学複合原子力 科学研究所 KUR Pn2 孔にて放射化し、HPLC 展開(温 度:- $15^{\circ}$ 、冷媒:エタノール)を行った。この溶出 成分を1分毎に分画し、試料から放出される  $\gamma$ 線を Ge 半導体検出器で測定し、得られたラジオクロマト グラムから Ln<sup>3+</sup>@C<sub>82</sub><sup>3-</sup>の保持時間を決定した。



【結果】高次フラーレンと La@C<sub>82</sub>を用いた保持時 図:フラーレンの van't Hoff プロット 間の温度依存性を図に示した。HPLC 保持時間はクロマトグラフィーにおける吸脱着平 衡定数と相関があることから van't Hoff 式に従い 1/T に対して直線的に変化すると予 想されたが、図に示した通り、-20℃と-30℃の間で傾きに明確な変化があることがわか った。固定相の DSC 測定の結果、これらの傾きの変化は固定相の相転移に由来するも のであることが示唆された。また、La@C<sub>82</sub>の保持時間は約 95 分と室温に比べて非常 に遅くなることがわかった。測定した 2 点を図に示したが、高次フラーレンに比べ傾 きが小さい可能性が示唆された。

[1] 秋山和彦他、2009日本放射化学会年会・第53回放射化学討論会 1P28(2009).

[2] 雨倉啓他、2019 日本放射化学会年会・第 63 回放射化学討論会 3B09(2019)

Study on the electronic state of lanthanide endohedral metallofullerenes by HPLC analysis. NISHIMURA, S., AMEKURA, K., AKIYAMA, K., HABA, H., TAKAMIYA, K., KUBUKI, S.

### 3P12 質量分析法を用いた岩石中<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 放射能比の 京集度用 声測 完計の 確立

### ●┃∠ 高精度迅速測定法の確立

(関西学院大院理工)〇栗林千佳、谷水雅治

放射性核種であるウランは地球表層中に微量に存在しており、大気核実験や原子力 発電関連施設での事故などによって人為的にも環境中へと付加されている。天然およ び人為起源に由来するこれらウランの物質循環の把握には、ウランの同位体比が重要 な指標となっている。ウラン-234を用いた同位体比(<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 比)は、<sup>234</sup>Uと<sup>238</sup>Uの 放射平衡への到達度の関係を利用した岩石の年代測定への利用が主流であるが、地下 水年代や帯水層の母岩の種類に依存して放射非平衡の程度(放射能比)が異なること を利用した水文学的トレーサーとしての応用が試みられている。このトレーサーとし ての応用においては、わずかな放射能比の変動を把握する必要があるため、<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 比の分析精度が重要となる。従来、<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 比は精度数%の放射線計測による測定が主 流であったが、2000年以降の質量分析法の発展に伴い、微量なウラン量での高精度か つ迅速な同位体分析法が提案されている。

本研究では、天然試料を対象とした質量分析法による<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 比の分析精度および 繰り返し再現性を確認するため、ペルム紀~白亜紀の各時代に属する複数の石灰岩を 試料とし、二重収束多重検出型 ICPMS を用いて<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 同位体分析を行った。さらに、 数百万年以上前に形成した二次的変質のない石灰岩は放射平衡(放射能比=1)に達し ていると予想されることから、天然のウラン同位体組成(<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U=0.00005499、 <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U=0.00725)との値の比較も行った。石灰岩試料は鉄水酸化物共沈法および陰 イオン交換カラムを用いて試料中の主要溶存イオンを除去した後、ウランを含む溶液 を回収し分析を行った。

分析の結果、数グラムの石灰岩試料に含まれる約2ngのウランでの<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U比測定 において、約0.2%の高い分析精度(2o)と再現性が得られたことから、質量分析法を 用いて天然試料の放射能比を正確に把握するために十分な分析精度が得られることが 確認された。また、分析した石灰岩は天然のウラン同位体組成とほぼ同様の組成を示 し、放射平衡に近い状態であることが確認された。この石灰岩から得たウランを含む 溶液を同位体分析用の標準試料として環境学的試料の放射能比を相対的に算出するこ とで、地下水流動の把握などへの応用を念頭に、放射非平衡を示す天然試料の<sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U 放射能比分析を検討している。

Precise and rapid 234U/238U analysis of rock samples by mass spectrometry KURIBAYASHI, C., TANIMIZU, M.

**English Abstracts** 

1K01 Time-series variations of <sup>129</sup>I activity concentrations and <sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs activity ratios for SPM samples collected in eastern Japan just after the FD1NPP accident EBIHARA, M.<sup>1</sup>, SHIRAI, N.<sup>2</sup>, OURA, Y.<sup>2</sup>,

TSURUTA, H.<sup>3</sup>, MATSUZAKI, H.<sup>4</sup>, MORIGUCHI, Y.<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>Waseda Univ., <sup>2</sup>Tokyo Metropolitan Univ., <sup>3</sup>RESTEC, <sup>4</sup>Univ. Tokyo, <sup>5</sup>NIES)

We have determined hourly atmospheric concentrations of <sup>129</sup>I in aerosol dispersed into the atmospheric environment just after the nuclear accident at FD1NPP on March 11, 2011 by measuring the quantity of <sup>129</sup>I in suspended particulate matter (SPM) collected on filter tapes at 41 SPM monitoring stations in Fukushima and other prefectures in eastern Japan including the metropolitan area. Out of 920 hourly collected SPM samples, 500 were judged to be trustworthy for scientific discussion by critical scrutinization. Based on those data, especially the data for the four SPM monitoring sites close to FD1NPP (Futaba, Naraha, Haramachi and Nihonmatsu), time-series variations of the atmospheric concentration of <sup>129</sup>I as well as <sup>137</sup>Cs was observed to be continuously and sometimes explosively dispersed in aerosol into the environment as radioactive polluted air masses (plumes) from FD1NPP. The highest activity concentration of <sup>129</sup>I as well as <sup>137</sup>Cs was observed in the SPM samples collected at the Futaba SPM station at 14:00-15:00 on March 12 after the vent operation of Unit 1. Systematically high <sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs activity ratios were observed at Futaba and Haramachi from March 12 to 14, suggesting that masses

released from FD1NPP during the first few days after the nuclear accident had been relatively enriched in radioiodine.

### 1K02 Vertical distribution of radiocesium concentration in beach sand from Fukushima Prefecture, Japan

NAGAO, S.<sup>1</sup>, PUTRA, D. I. P.<sup>1</sup>, MINAMI, T. <sup>1</sup>, FUJIU, M.<sup>1</sup>, TOMIHARA, S<sup>2</sup>., OCHIAI, S.<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Fukushima Marine Science Museum)

Beach area of Fukushima Prefecture is possible source of radiocesium from land to ocean after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident on March 11, 2011. Because contaminated seawater moved from the FDNPP to coastal area of Fukushima Prefecture. Therefore, beach sand analysis is needed to identify the release of radiocesium from beach sand. The beach research has been performing at Yotsukura Beach, which is located about 40 km south from the FDNPP. The beach sand samples were collected at nine sites on 9-10 July 2019. The samples taken by a stainless steel tube cut into 5 cm thickness and determined radioactivity of Cs-134 and Cs-137 by using Ge detector. The maximum concentration of radiocesium in each core sample ranged from 22.9 Bq/kg to 5745 Bq/kg. We also determined the relief of beach sand surface by unmanned aerial vehicle (UAV, drone). In this presentation, we report the vertical profiles of radiocesium and discuss with maximum concentration of radiocesium in sand layer based on elevation estimated from the UAV observation data.

1K03 Dissolution properties of radiocesium-bearing microparticles (CsMPs) released by the Fukushima nuclear accident

OKUMURA, T.<sup>1</sup>, YAMAGUCHI, N.<sup>2</sup>, MIKOUCHI, T.<sup>1</sup>, KOGURE, T.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Univ. Tokyo, <sup>2</sup>NARO)

Radiocesium-bearing microparticles (CsMPs), which are spherical silicate glass of a few microns, were released into the environment by the Fukushima nuclear accident This study investigated the dissolution properties of CsMPs in various solutions in order to understand the environmental dynamics of CsMPs. First, contaminated non-woven fabric cloth was immersed in 0.1 M hydrochloric acid at 90 °C for 24 h, resulting that radiocesium sorbed by other materials than CsMPs was removed from the cloth because the dissolution rate of CsMPs is slower than other radioactive materials such as radiocesium-sorbing minerals in acidic solutions. Next, the cloth was immersed in various solutions at 60 °C, and the dissolution rates of CsMPs were estimated by periodically measuring the radioactivity of eluted <sup>137</sup>Cs. In the case of the solutions without Na<sup>+</sup> (hydrochloric acid, pure water, Tris-HCl buffer), the dissolution rates were similar regardless of their pH. However, the dissolution rates became faster in the solutions with higher pH when Na<sup>+</sup> is present (citrate buffer, Ringer's solution, seawater, carbonate buffer). Such dissolution characteristics are comparable to those of silica glass, and catalytic effects of alkali ions such as Na<sup>+</sup> may accelerate the dissolution of silicate glass

composing CsMPs.

### 1K04 A study of the shape of radioactive particles derived from Fukushima Daiichi Reactor Unit 1

MINOWA, H., YOSHIKAWA, H.

(Jikei Univ.)

Radioactive particles were separated from the sample collected northwest direction of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant within 3 km area. The type B particles with about 0.96 as <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs ratio at the accident were studied about the shape observed with a microscope. About 40 particles are classified according to their shape into the following four types; 1. Spherical, 2. Rounded, 3. Angular, 4. Fibrous. It is considered that this shape classification No. 1 was exposed to the highest temperature and No. 4 was exposed to a relatively low temperature. It is estimated that the glass wool (rock wool) used as a heat insulating material was the source of silicon of the type B particles derived from Unit 1, and that the type B particles were formed by a hydrogen explosion. We also conducted heating experiments on fibrous radioactive particles and glass wool to estimate the formation process.

### 1K05 Laser generation of radiocesiumbearing microparticles derived from the Fukushima nuclear accident

INAGAKI, M., SEKIMOTO, S., TAKAMIYA, K., OKI, Y., OHTSUKI, T. (KURNS)

Water-insoluble microparticles called radiocesium-bearing microparticles (CsMPs) are known to be one of the forms of radioactive materials released by the accident at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. In this study, CsMPs were generated in the laboratory to clarify the formation process. The composition of Type A-CsMPs reported in a previous study was used as a reference to produce a glass that reproduces Type A-CsMPs. Raw materials of 59.7SiO<sub>2</sub> -10.6Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> - 9.8ZnO - 8.7NaCl - 6.9Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> -3.0SnO<sub>2</sub> - 0.8K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> - 0.7Rb<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> (wt%) were placed in an alumina crucible and heated to 1250 °C in an electric furnace to produce glass. The crucible containing the glass was placed in a chamber and irradiated with an infrared laser, and the fume containing fine particles generated by the heating was collected by an impactor. As a result of analyzing the collected particles, it was found that spherical particles with a diameter of several micrometers, similar to actual Type A-CsMPs, were successfully generated. One hypothesis for the formation process of Type A-CsMPs is that the SiO2-rich materials were heated rapidly by contact with the high-temperature molten fuel, resulting in the formation of fumes and the formation of CsMPs.

# **1K06** Elution suppression capability of radioactive Cs and durability of soil-mixed geopolymer solidified by mixing municipal solid waste incineration fly ash and soil SAITO, R.<sup>1</sup>, OGAWA, N.<sup>2</sup>, KOIKE, Y.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ., <sup>2</sup>Sch. of Sci. and Tech., Meiji Univ.)

Radioactive cesium in municipal solid waste incineration fly ash exists in a water-soluble compound and may easily elutes by contact with environmental water such as rainwater after landfill disposal. Geopolymer solidification treatment is known as a detoxification method for incinerated fly ash. To suppress the elution of radioactive cesium into the environment, soil-mixed geopolymer was solidified by mixing municipal solid waste incineration fly ash and readily available volcanic soil. Some soils are confirmed to have the ability to adsorb radioactive cesium. Soil-mixed geopolymer can be expected to have a synergistic elution suppression effect. Akadama soil was used as active filler for soil-mixed geopolymer solidification. Elution suppression capability was evaluated by the Japanese leaching test of No. 13 test and tank leaching test, which is a long-term test. Akadama soil-mixed geopolymer was confirmed to have a high elution suppression effect in two types of leaching tests. The uniaxial compressive strength of Akadama soil-mixed geopolymer was 0.68 MPa, which was below the landfill standard value. In addition, UV deterioration test and durability test against acid were performed on soil-mixed geopolymer.

## 1K07 Time-variation of local magnetic ordering in Cd<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub>

ITO, T.<sup>1</sup>, KONAKA, M.<sup>2</sup>, FUJI, M.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ.)

Spinel oxides exhibit various physical properties depending on the constituent metal elements and on their residence positions: the tetrahedral A site and octahedral B site. Especially, electric conductivity and magnetic property of spinel oxides have been extensively studied for practical application. In our recent study, hyperfine fields in CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> were measured by means of perturbed angular correlation spectroscopy with the  $^{111}Cd(\leftarrow^{111m}Cd)$  probes and obtained a result implying nuclear relaxation of the <sup>111</sup>Cd probe. In order to provide insight into the phenomenon, we measured the hyperfine fields at Fe nuclei in Cd<sub>0.75</sub>Fe<sub>2.25</sub>O<sub>4</sub> having a similar structure to normal spinel CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> by means <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectroscopy. As a result, it was found that the local magnetic fields gradually change day by day within a three-day measurement time. This phenomenon seems to be due to the aging phenomenon of spin glass, where magnetization gradually increases with the growth of magnetic domain. In the presentation, time variation of the local magnetic ordering is discussed based on temperature dependent Mössbauer spectra.

## 1K08 Thermal stability of local structure at <sup>111</sup>Cd doped in SrTiO<sub>3</sub>

KOMATSUDA, S.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>2</sup>, OHKUBO, Y<sup>3</sup>.

(<sup>1</sup>Inst. Hum. Soc. Sci., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>KURNS)

Strontium titanate (SrTiO<sub>3</sub>) doped with trivant ions as impurity exhibits a wide variety of electric properties. For a practical use of SrTiO<sub>3</sub> as a conduction-controlling device, it is of great importance to study the lattice site location of doped impurities and their surroundings. From this point of view, we have applied the the time-differential perturbed angular correlation method (TDPAC) method to a study of the local structures at the In<sup>3+</sup> site in SrTiO<sub>3</sub> at various We obtained the following temperatures. results from the TDPAC measurements that the electric field gradient (EFG) shows a zero for one component, while the remaining two components shows two well-defined EFG values. On the basis of the cubic structure of SrTiO<sub>3</sub>, the unperturbed component might be caused by the occupation of the <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111</sup>In) probes at the defect-free substitutional Sr or Ti sites in SrTiO<sub>3</sub>. The remaining two non-zero frequencies imply that defects were associated with <sup>111</sup>In probes at the site of Sr and Ti. For more information on the microstructure of doped SrTiO<sub>3</sub>. we performed TDPAC measurementnts for SrTiO<sub>3</sub> with а  $^{111}Cd(\leftarrow^{111m}Cd)$  probe at various temperatres. In the session, the lattice site location of doped impurities surroundings and their are discussed based on the temperature dependence of the EFGs at the probes.

### 1K09 Discussion of Spin transition caused by gamma-ray irradiation on Fe(3,4-lutidine)<sub>2</sub>[Ag(CN)<sub>2</sub>]<sub>2</sub> KITASE, K., TAZAWA, T.

### (Toho Univ.)

Hofmann-type complex is a coordination polymer with a center metal ion such as Fe, Ni or Cd, bridging ligand that is liner dicyanide complex or square planer tetracyanide complex, and pyridine-type ligands. The spincrossover (SCO) phenomenon is a reversible transition between high-spin (HS) and lowspin (LS) state. <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectroscopy is a useful tool for investigations in Fe-based SCO phenomenon due to dependence of valences, spin states, and environments of Fe site. In this research, we synthesized a Hofmann-type complex Fe(3,4- $|utidine\rangle_2[Ag(CN)_2]_2.$ This complex is synthesized by direct method using Mohr's salt,  $K[Ag(CN)_2]$  and ligand. The magnetic measurement shows two-step spin transition in this complex. The single crystal data shows this complex belongs to the Hofmann-type double-layer structure. Ag — Ag interaction exists. However, Slight diffraction peaks belong to different lattice appeared by long time X-ray irradiation. 57Fe Mössbauer spectroscopy of this complex at room temperature reveals that not only typical HS state are existed at this temperature due to not completely symmetrical spectrum. That result could be explained by phase transition induced by X-ray or gamma-ray.

### 1K10 Photocatalytic degradation of organic dyes and phenol by Iron-silicate Glass under visible light irradiation

KHAN, I.<sup>1</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, KUBUKI, S.<sup>1</sup>, KUZMANN, E.<sup>2</sup>, HOMONNAY, Z.<sup>2</sup>, SINKO, K.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>Eötvös Loránd Univ.)

The aim of this work is the development of an effective treatment of wastewater polluted with organic compounds by green chemical techniques. Glasses and ceramics with photocatalytic properties could be applied for the decomposition of organic materials in contaminated wastewater. Hematite ( $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) is a suitable material, due to its photocatalytic

properties and low bandgap energy. In this study, we report the relationship between structure and photocatalytic

ability of simple iron-silicate glass. The results showed that the catalyst containing 20% of iron had good catalytic property for the degradation of both types of organic contaminants with superior stability for the degradation of methylene blue dye even after six recycles. The highest degradation rate constant of 62×10<sup>-3</sup> min<sup>-1</sup> was observed for Methvlene Blue Moreover. dye. the degradation of phenol was not affected by the pH, which means no need to adjust or re-adjust pH. It is concluded that precipitation of α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the SiO<sub>2</sub> matrix is essential for enhancing the visible light photocatalytic activity with good recyclability.

### 1K11 In-beam Mössbauer spectroscopy of <sup>57</sup>Mn implanted into LiAlH<sub>4</sub>

SATO, Y.<sup>1</sup>, YAMADA, Y.<sup>1</sup>, KOBAYASHI, Y.<sup>2</sup>, KUBO, K.<sup>3</sup>, MIHARA, M.<sup>4</sup>, SATO, W.<sup>5</sup>, MIYAZAKI, J.<sup>6</sup>, NAGATOMO, T.<sup>7</sup>, ANDO, T.<sup>2</sup>, TAKAHAMA, N.<sup>2</sup>, SOME, K.<sup>2</sup>, SATO, M.<sup>2</sup>, SATO, S.<sup>8</sup>, KITAGAWA, A.<sup>8</sup> (<sup>1</sup>Tokyo Tokyo Univ. of Science, <sup>2</sup>Univ. of Electro-Communications, <sup>3</sup>International Christian Univ., <sup>4</sup>Osaka Univ., <sup>5</sup>Kanazawa Univ.. <sup>6</sup>Tokyo Denki Univ., <sup>7</sup>RIKEN. <sup>8</sup>National Institute of Radiological Sciences) In-beam Mössbauer spectroscopy of solids implanted with <sup>57</sup>Mn, which decays to <sup>57</sup>Fe with a half-life of 1.45 min, enables atomicscale investigations of the physical, chemical, and magnetic properties of extremely dilute collections of Fe atoms in solids in which iron is insoluble. Lithium aluminum hydride
(LiAlH<sub>4</sub>), is possible application as a hydrogen storage material has also been pointed out, consists of  $AlH_4^-$  anions spaced by Li<sup>+</sup> counter ions; the H atoms tetrahedrally coordinate to the Al atom to form  $AlH_4^-$ . In this study, in-beam Mössbauer spectra of <sup>57</sup>Mn implanted into LiAlH<sub>4</sub> were measured to investigate the chemical form of Fe atoms trapped in the LiAlH<sub>4</sub> lattice.

The experiment was performed using the heavy ion synchrotron accelerator facility (HIMAC) at National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST). The <sup>57</sup>Mn nuclei were produced by a projectile fragmentation reaction of the primary beam of <sup>58</sup>Fe ions and a target of <sup>9</sup>Be. A parallel-plate avalanche counter (PPAC) was employed as a detector, and high-quality spectra were obtained by the anti-coincidence method.

In-beam Mössbauer spectra of <sup>57</sup>Mn implanted into LiAlH<sub>4</sub> were measured at different temperatures between 17 and 300 K. The Mössbauer spectrum measured at 17 K showed two sets of doublets, which were confirmed by DFT calculations, and assigned to <sup>57</sup>Fe atoms at substitutional sites at Al<sup>3+</sup> and Li<sup>+</sup> sites. The Debye temperatures  $\theta_M$  for the <sup>57</sup>Fe atoms at Al<sup>3+</sup>-substituted and Li<sup>+</sup>substituted sites were estimated to be 194 K and 117 K, respectively.

### 1K12 Chemical states of Fe atoms in solid hydrogen

SATO, M.<sup>1</sup>, KOBAYASHI, Y.<sup>1</sup>, YAMADA, Y.<sup>2</sup>, KUBO, M. K.<sup>3</sup>, MIHARA, M.<sup>4</sup>, SATO, W.<sup>5</sup>, NAGATOMO, T.<sup>6</sup>, OKAZAWA, A.<sup>7</sup>,

KIJI, M.<sup>1</sup>, HAMANO, K.<sup>1</sup>, SATO, S.<sup>8</sup>, KITAGAWA, A.<sup>8</sup>

(<sup>1</sup>Univ. Electro-Commun., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Sci.,
<sup>3</sup>ICU, <sup>4</sup>Osaka Univ., <sup>5</sup>Kanazawa Univ.,
<sup>6</sup>RIKEN, <sup>7</sup>Nihon Univ., <sup>8</sup>QST HIMAC)

It is essential to know the chemistry between hydrogen, which are attracting attention as the next generation energy source, and hydrogen storage materials. The inexpensive and abundant metals such as iron are expected to be applied as storage materials, but there have not been many reports on iron hydrides. In this study, we measured the in-beam Mössbauer spectra of <sup>57</sup>Fe produced by β-decay after implantation of a short-lived unstable nucleus <sup>57</sup>Mn ( $T_{1/2} = 89$  s) into a solid hydrogen matrix. From the obtained Mössbauer parameters and DFT calculations, we discussed on the electronic states of Fe atoms and their coordination environments.

The experiment was carried out at the secondary beamline in QST HIMAC. The target cell for solid hydrogen was fixed to the cold head of the cryostat and cooled down to 7 K, and then high purity hydrogen was introduced into the target cell after precooling with liq. N<sub>2</sub>. <sup>57</sup>Mn nuclei were produced by the projectile fragmentation reaction between the <sup>58</sup>Fe beam and the Be target. 57Mn was implanted directly into the solid hydrogen by passing through a degrader with an appropriate thickness.

The in-beam Mössbauer spectrum obtained at 7 K could be analyzed three components of S1 ( $\delta = -0.66$  mm/s), D1 ( $\delta = -1.29$  mm/s,  $\Delta E_Q = 2.59$  mm/s), and D2 ( $\delta = -0.53$  mm/s,  $\Delta E_Q$ 

= 2.43 mm/s). The chemical species of each component could be assigned to  $[Fe(H_2)_2]^+$ ,  $[HFeH]^+$ , and  $[Fe(H_2)_6]^{3+}$ , with the results of DFT calculations. The formation mechanisms of them will be discussed.

### 1K13 Isomer spectroscopy using actinide targets

SUGIYAMA, K.<sup>1</sup>, GO, S.<sup>1</sup>, TOMIMATSU, T.<sup>1</sup>, KAI, T.<sup>1</sup>, NAGAE, D.<sup>1</sup>, ISHIBASHI, Y.<sup>1</sup>, S.<sup>1</sup>, Υ.<sup>1</sup>, MATSUNAGA, NAGATA. NISHIBATA, H.<sup>1</sup>, WASHIYAMA, K.<sup>1</sup>, SAKAGUCHI, S.<sup>1</sup>, MORITA, K.<sup>1</sup>, ORLANDI, R.<sup>2</sup>, NISHIO, K.<sup>2</sup>, MAKII, H.<sup>2</sup>, HIROSE, K.<sup>2</sup>, ITO,Y.<sup>2</sup>, SUZAKI, F.<sup>2</sup>, SATO, T. K.<sup>2</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, ASAI, M.<sup>1,2</sup>, SHIZUMA, T.<sup>3</sup>, IDEGUCHI, E.<sup>4</sup>, PHAM, T. T.<sup>4</sup>, NIWASE, T.<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>Kyushu Univ., <sup>2</sup>ASRC, JAEA, <sup>3</sup>QST, <sup>3</sup>RCNP, Osaka Univ., <sup>5</sup>KEK)

The island of stability in superheavy nuclei, predicted by possible spherical magic numbers in heavy mass nuclei, has been an unexplored region for nuclear physics. Its properties could be studied with the nuclear structure of actinide nuclei since part of single-particle orbitals appearing in the island of stability could appear in excited states of actinides, which have large quadrupole deformations.

In this study, isomer spectroscopy on actinide targets was conducted with multi-nucleon transfer reactions at the JAEA-Tokai tandem accelerator facility. The isomer-scope method with the reaction of <sup>18</sup>O + <sup>248</sup>Cm was adopted. A tungsten shield was placed between the target and  $\gamma$ -ray detectors to measure only  $\gamma$  rays from isomers scattered out of the target. Nucleon-transfer channels were determined

by identifying projectile-like fragments using the array of  $\Delta E$ -E silicon detectors. Deexcitation  $\gamma$ -rays were measured by Ge and LaBr detectors. Experimental details and isomeric states observed will be presented.

#### 1K14 Investigation of alpha-decaycorrelated mass measurement using an α-TOF detector equipped MRTOF-MS system.

NIWASE, T.<sup>1,2,3</sup>, WADA, M.<sup>1</sup>, SCHURY, P.<sup>1</sup>, BRIONNET, P.<sup>2</sup>, CHEN, S.<sup>4</sup>, HASHIMOTO, T.<sup>5</sup>, HABA, H.<sup>2</sup>, HIRAYAMA, Y.<sup>1</sup>, HOU, D. S.<sup>6,7,8</sup>, IIMURA, S.<sup>9,2,1</sup>, ISHIYAMA, H.<sup>2</sup>, ISHIZAWA, S.<sup>10,2</sup>, ITO, Y.<sup>11</sup>, KAJI, D.<sup>2</sup>, KIMURA, S.<sup>2</sup>, LIU, J. J.<sup>4</sup>, MIYATAKE, H.<sup>1</sup>, MOON, J. Y.<sup>5</sup>, MORIMOTO, K.<sup>2</sup>, MORITA, K.<sup>3,2,12</sup>, NAGAE, D.<sup>12,1</sup>, ROSENBUSCH, M.<sup>2</sup>, TAKAMINE, A.<sup>2</sup>, TANAKA, T.<sup>13</sup>, WATANABE, Y, X.<sup>1</sup>, WOLLNIK, H.<sup>14</sup>, XIAN, W.<sup>4</sup>, YAN, S. X.<sup>15</sup>

(<sup>1</sup>KEK, WNSC, <sup>2</sup>RIKEN, Nishina Center., <sup>3</sup>Kyushu Univ., <sup>4</sup>HongKong Univ., <sup>5</sup>IBS., <sup>6</sup>IMP., <sup>7</sup> University of Chinese Academy of Science., <sup>8</sup>Lanzhou Univ., <sup>9</sup>Osaka Univ., <sup>10</sup>Yamagata Univ., <sup>11</sup>JAEA, <sup>12</sup>RCSHE, Kyushu Univ., <sup>13</sup>ANU., <sup>14</sup>NMSU, <sup>15</sup>Jinan Univ.)

The atomic masses of the isotopes  $^{206,207}$ Ra have been measured via decay-correlated mass spectroscopy using a multi-reflection time-of-flight mass spectrograph equipped with an  $\alpha$ -TOF detector.

The Ra isotopes were produced as fusionevaporation products in the  ${}^{51}V+{}^{159}Tb$  reaction system. The  $\alpha$ -TOF detector provides for high-accuracy mass measurements by correlating time-of-flight signals with subsequent  $\alpha$ -decay events. The masses of  ${}^{207g}Ra$  and  ${}^{207m}Ra$  were directly measured using a multi-reflection time-of-flight mass spectrograph equipped with an  $\alpha$ -TOF detector. A mass excess of ME = 3538(15)keV/c<sup>2</sup> and an excitation energy of  $E_{ex} = 552(42)$  keV were determined. The  $\alpha$ -decay branching ratio was directly determined from the counting of decay-correlated time-offlight signals. The reduced alpha width of  $^{207m}$ Ra was also calculated from the branching ratio and partial half-life. The spin-parity of  $^{207m}$ Ra was confirmed to be  $J^{\pi} = 13/2^{-}$  from decay correlated mass measurement results.

#### 1K15 Development of an EBGP (Electron Beam Generated Plasma) ion source for superheavy element ion-beam generation

AOKI, R.<sup>1,2</sup>, SATO, T. K.<sup>1,2</sup>, OTANI, R.<sup>2,3</sup>, UTIBABA, Y.<sup>2,4</sup>, ITO, Y.<sup>2</sup>, ASAI, M.<sup>2</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, NAGAME, Y.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Sci. and Eng., Ibaraki Univ., <sup>2</sup>ASRC, JAEA, <sup>3</sup>Graduate School of Health Sci, Tokushima Univ., <sup>4</sup>College of Sci, Ibaraki Univ.)

We have developed a new ion source based an Electron Beam Generated Plasma (EBGP) method, in order to apply single atom/molecule ion-beams of superheavy elements to their physical and chemical studies. In EBGP, the ionization of atoms/molecules with a relatively higher ionization energy can be expected.

This ion source has a cylindrical tube with a grid structure as an anode electrode. The inside of the anode electrode works as an ionization chamber. The anode is covered with a cathode electrode which is surrounded by two filaments. Thermal electrons produced on an inside surface of the cathode are accelerated into the anode via its grid. A bombardment of the accelerated electrons can ionize nuclear reaction products transported by a gas jet system.

The stable operating conditions of the ion source have been investigated. We confirmed that the ion source was operated stably with up to 0.2 A of the Anode current, and in the range from 50 V to 100 V of acceleration voltage for ionization electron. The optimal ionization conditions and the performance of the ion source will be given at the presentation.

#### 1K16 Isothermal gas chromatographic behavior of oxychlorides of group-6 elements for volatility study of seaborgium (Sg, element 106)

OTANI, R.<sup>1,2</sup>, SATO, T. K.<sup>2,3</sup>, AOKI, R.<sup>2,3</sup>, ASAI, M.<sup>2</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, ITO, Y.<sup>2</sup>, UCHIBABA, Y.<sup>2,3</sup>, SAKAMA, M.<sup>1</sup>, GOTO, S.<sup>4</sup>, KUZUMI, K.<sup>4</sup>, TAKAMURA, R.<sup>4</sup>, NISHIO, K.<sup>2</sup>, MAKII, H.<sup>2</sup>, ORLANDI, R.<sup>2</sup>, NAGAME, Y.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Tokushima Univ., <sup>2</sup>JAEA, <sup>3</sup>Ibaraki Univ., <sup>4</sup>Niigata Univ.,)

The chemical properties of transactinide elements might differ from those expected from lighter homologs due to strong relativistic effects. In order to understand how relativistic effects play a role in their chemical properties, we focused on the volatility of compounds of seaborgium (Sg, element 106), the transactinide element in group-6 of the Periodic Table. In this work, we have conducted isothermal gas chromatography experiments of oxychlorides of lighter homologs, Mo and W, as a model experiment of Sg.

To determine the optimal condition for on-line experiments of Sg, we performed model experiments with short-lived <sup>104</sup>Mo ( $T_{1/2} = 60$ s) originating from a <sup>252</sup>Cf fission source and <sup>173</sup>W ( $T_{1/2} = 7.6$  min) synthesized using the JAEA tandem accelerator under various experimental conditions. In the case of using N<sub>2</sub>(80%) + O<sub>2</sub>(20%)/SOCl<sub>2</sub> as a reaction gas, we found that the behavior of <sup>104</sup>Mo is different at the reaction temperatures of 1000°C and 800/600°C, suggesting the formation of different oxychlorides. For <sup>173</sup>W, however, similar behavior was observed regardless of the studied reaction temperatures.

#### **1P01** Adsorption behavior of Nb and Ta on TOMA-supported resin in hydrofluoric acid

TSUNODA, H., GOTO, S.

(Grad. Sch. of Sci. and Tech., Niigata Univ.) In the study of the chemistry of superheavy elements, liquid-phase chemical experiments by ion exchange and solvent extraction have been performed for Rf and Db. However, experiments on the fluoride complexes of Db have often yielded results under only one condition and the relationship with the homologues Nb and Ta is inconsistent. Although solid-phase extraction using Aliquat 336-supported resin has been vigorously studied, the chemical forms of Nb and Ta have not yet been interpreted definitively. In this trioctylmethylammonium chloride study, (TOMA-Cl), the main component of Aliquat 336, was used as an extractant to simplify the system, and we have tried to determine the chemical form of the fluoride complexes of Nb and Ta from the detailed adsorption behavior of the complexes on the TOMAsupported resin.

The Cl<sup>-</sup> in the aqueous phase was quantified by replacing the Cl in the TOMA-supported resin with ClO<sub>4</sub><sup>-</sup> or NO<sub>3</sub><sup>-</sup> to determine the amount of exchange groups that function to exchange with anions in the aqueous phase. After shaking the resin and the solution of various concentration of ClO<sub>4</sub><sup>-</sup> or NO<sub>3</sub><sup>-</sup> at 25 °C and 1500 rpm and centrifuging to separate the aqueous phase and the resin, chlorine in 200  $\mu$ L of the aqueous phase was measured by the mercury (II) thiocyanate method. As a result, the total amount of Cl involved in the extraction was found to be about 70 % of the loading amount.

In the symposium, the results of extraction experiments using Nb and Ta tracers will be discussed.

#### 1P02 Formation and volatility analysis of AtI for dissociation energy measurement of halogen bonds formed by At

TOKOI, K.<sup>1</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>1</sup>, KADONAGA,Y.<sup>1</sup>, TERAMOTO, T.<sup>1</sup>, NAKAGAWA, S.<sup>1</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>2</sup>, WANG, Y.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A,<sup>1,3</sup>.

(<sup>1</sup>Osaka Univ., <sup>2</sup>RIKEN., <sup>3</sup>Osaka Aoyama Univ.)

One of the interesting properties of the halogen elements is the halogen bond which is a highly directional interaction between the halogen atom and a Lewis base. Although At is expected to form the strongest halogen bond among the halogen elements, theoretical calculations suggest that its strength decreases due to relativistic effects. The purpose of this study is to measure the dissociation energy of halogen bonds between AtI and Lewis bases by pyrolysis in a gas phase. In the pyrolysis experiment, AtI is first produced in solution and is then vaporized and pyrolyzed in a gas phase. In this work, we examined the formation of AtI in solution and its volatility to search for the conditions to prepare gaseous AtI. Distilled water solution containing <sup>211</sup>At after dry distillation separation from a Bi target was mixed with 0.1 M HClO<sub>4</sub> and then NaI was added to adjust the iodide ion concentration in a range of  $10^{-5}$  to  $10^{-1}$  M. Formation of AtI in the solution was analyzed by HPLC. In the volatilization experiment, AtI samples were heated in a dry bath at a higher temperature for a fixed time, and the volatilized ratio was evaluated. Results will be presented in the symposium.

#### **1P03** Solid-liquid extraction of Ca, Sr, Ba, Ra using crown ether towards the study of element 102, No

WATANABE, E.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, NAKANISHI, R.<sup>1</sup>, OTAKA, S.<sup>1</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A.<sup>3,4</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup> KURNS, Kyoto Univ., <sup>3</sup>IRS, Osaka Univ., <sup>4</sup>Osaka Aoyama Univ.)

Nobelium ( $_{102}$ No) belongs to an actinide series. It is reported that the stable oxidation state of No in aqueous solution is +2, although those of other heavy actinide elements are all +3. Our group has investigated coprecipitation of No with the samarium hydroxide, and it was found that No has different properties from the group 2 elements. In this study, we focused on solid-liquid extraction with Sr resin as a new system for the chemical study of No.

Solid-liquid extraction of Ca, Sr, Ba, Ra in HNO<sub>3</sub> or HCl were performed by batch method to search the rapid reaction system and to obtain the comparison data for the chemical study of No. As a result, the extraction equilibrium with Sr resin was achieved by 1 minute of shaking, and it is indicated that this reaction system would be applicable for the short-lived <sup>255</sup>No ( $T_{1/2} = 3.52$  m) experiment.

In the presentation, we will also report on the estimation of extracted species based on mass spectrometry and quantum chemical calculations on the electronic states of extracted species.

**1P04 Determination of <sup>236</sup>U in a Th target irradiated with Li ions by ICP mass spectrometry** NAGAI, A.<sup>1</sup>, TERANISHI, K.<sup>1</sup>, SAKAGUCHI, A.<sup>2</sup>, NAKAJIMA, A.<sup>2</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>, YOKOKITA, T.<sup>3</sup>, NANBU, A.<sup>3</sup>, YOKOYAMA, A.<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Kanazawa University, <sup>2</sup>University of

Tsukuba, <sup>3</sup>RIKEN)

Neptunium-237 ( $t_{1/2} = 2.1 \times 10^6$  y) released from nuclear facilities to the environment is an important target nuclide for environmental contamination of radioactivity. The nuclide is expected to be analyzed by accelerator mass spectrometry although a spike material of neptunium for the measurement is not available, thus far. We proposed the production of neptunium-236 ( $t_{1/2}=1.5 \times 10^5$ y) in a Th + Li reaction as a candidate of the material. However, the material prepared from the irradiated target may be contaminated with long-lived isobars of <sup>236</sup>Pu and <sup>236</sup>U, which are the decay products from <sup>236m</sup>Np, a byproduct in the reaction. In addition, <sup>235</sup>U contained in Th as an impurity, may absorb neutrons and produce <sup>236</sup>U as well. In this study, we aimed to determine U isotopes contained originally in the Th target as well as those produced in the nuclear reaction by HR-ICP-MS. And also, the amount of <sup>236</sup>U produced in the reaction can be estimated by measuring a neutron flux during irradiation by using a monitoring foil of Au. We performed an irradiation of a <sup>232</sup>Th target with 43 MeV 7Li ions at the RIKEN AVF cyclotron while Au metal foils and electrodeposited U samples were placed at the end of the beam course for a neutron monitor and a reference, respectively. It was confirmed that <sup>236</sup>U was produced in the electrodeposited U samples. The production of <sup>236</sup>U agrees with the estimation from thermal neutron flux by the monitor within an uncertainty of the data.

#### **1P05** Nation-wide survey of Tritium Concentration in Monthly Fallout IIDA, M., OTSUKI, T., YOSHIDA, M.,

NITTA, W., KISHIMOTO, T., ISOGAI, K. (Japan Chemical Analysis Center)

Japan Chemical Analysis Center is carried out nation-wide survey for tritium by the sampling of monthly rainwater in Mutsu City, Fukushima City, Chiba City and Kyoto City. The monthly rainwater was collected using sampling equipment installed at four locations. Tritium in the monthly rainwater samples was distilled and enriched by the electrolysis for the accurate determination. After enrichment of Tritium, distilled samples were mixed with scintillator followed by measurement with Liquid Scintillation Counter (ALOKA LSC). From the results, the tritium radioactivity concentration was tended to be higher in early spring at all points. Tritium is a natural radionuclide occurring by the reaction between air component and cosmic rays same as Be-7, so that we confirmed the relationship of both nuclides in the rainwater collected in Chiba. The correlation coefficient of monthly deposition of both nuclides in Chiba was 0.84 (n=70).

# 1P06 Extractability of Pu from agricultural soils and its indication of bioavailability

NI, Y.<sup>1,2</sup>, ZHENG, J.<sup>1</sup>, GUO, Q.<sup>3</sup>, HUANG, Z.<sup>2</sup>, TAGAMI, K.<sup>1</sup>, UCHIDA, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>QST, <sup>2</sup>Inst. Nucl. Phys. Chem., China, <sup>3</sup>Peking Univ.)

We present the first investigation of the extractability of global fallout Pu from agricultural soils and its potential indication for Pu bioavailability. On average, the nominal water soluble and exchangeable Pu fractions in upland soils were 0.07% and 0.02%, respectively, while those fractions in the rice paddy soils were 0.10% and 0.03%, respectively. Sequential extraction results indicated that the dominant sinks of Pu in both upland and paddy soils were the immobile organic matter fraction, Fe-Mn oxides and the residual fraction. Both the water soluble and NH<sub>4</sub>OAc exchangeable Pu percentages showed a significant negative correlation with

the exchangeable Ca<sup>2+</sup> concentration in the soils. Regarding the potential plant bioavailability of Pu, a significant correlation (r=0.55, p<0.05) was observed between the Pu concentration in rice and the water-soluble Pu concentration in the corresponding rice paddy soils, and that illustrated the water-soluble Pu fraction was likely to be available for rice plant uptake. This bioavailable fraction was further applied in evaluating the available transfer factor (ATF) of Pu by dividing the Pu concentration in rice with the bioavailable Pu concentration in the soil. We consider the ATF to be more representative to illustrate the transfer ability of Pu from soil to rice plant.

# 1P07 True coincidence summing correction for <sup>110m</sup>Ag in aerosol filter samples

SUZUKI, S., SUZUKI, K., MIYATA, S., NITTA, W., OHTA, Y.

(Japan Chemical Analysis Center)

Japan Chemical Analysis Center (JCAC) has been participating in the proficiency tests (PT) held by IAEA every year. In IAEA-TEL-2020-04 ALMETA PT, we detected <sup>110m</sup>Ag in a surface aerosol filter sample. <sup>110m</sup>Ag is a cascade gamma emitting nuclide which causes true coincidence summing. We measured the disk-shaped sample next to the top of a Ge detector to maximize the efficiency, however this also maximize the coincidence summing In this study, we applied true effect. coincidence summing correction for <sup>110m</sup>Ag by using the following methods: Monte Carlo simulation (Geant4, EGS5), efficiency transfer code (EFFTRAN) and sum-peak method. The obtained 110mAg values corrected by these methods agreed within the uncertainty of the target value. We have confirmed that the coincidence summing correction by numerical models are effective even under such severe condition, a thin disk source directly placed on the top a Ge detector.

## 1P08 Comparative measurements of ambient dose rate measured by various carborne survey system

OTSUKI, T., SUGIYAMA, M., TANAKA, H., OHTA, Y., ISOGAI, K.

(Japan Chemical Analysis Center)

The car-borne survey is categorized by Nuclear Regulation Authority as one of the effective monitoring methods to measure ambient dose rate in emergency situations at nuclear facilities. To grasp instrumental characteristics of car-borne survey systems, we investigated various commercially available car-borne survey systems. In this study, comparative measurements were performed by using three car-borne survey systems (KURAMA-II, Radiprobe and RAMPU) in the several areas in Japan (Fukushima prefecture, Ibaraki Prefecture and Chiba Prefecture). Although slight differences due to energy response were found in the dose rates obtained by the car-borne survey systems, observed variation patterns in dose rates were almost identical. In conclusion, we confirmed that the three car-borne survey systems (KURAMA-II, Radiprobe and RAMPU) used for the comparative measurement in this study meet the requirements of the monitoring methods in emergency situations at nuclear facilities

**1P09** Development of non-destructive image method using negative muon with **2mm CdTe Double-sided Strip Detector** CHIU, I.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>1</sup>, TAKEDA, S.<sup>2</sup>,

KATSURAGAWA, M.<sup>2</sup>, MINAMI, T.<sup>3,2</sup>, NAGASAWA, S.<sup>3,2</sup>, TAKAHASHI, T.<sup>3</sup>, WATANABE, S.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Univ. IRS, <sup>2</sup>Kavli IPMU, <sup>3</sup>Dept. of Phys. The Univ. of Tokyo, <sup>4</sup>JAXA)

The elemental analysis methods by muon characteristic X-ray measurement using muon beams has been developed in recent years. By applying this method with an imaging detector, the three-dimensional elemental analysis will be possible. Therefore, we have developed an imaging detector, CdTe double-sided strip imaging detector (CdTe-DSD). The CdTe-DSD with a thickness of 2 mm presents a high detection sensitivity for high-energy muon characteristic X-rays. When the photons deposit their energy in the CdTe sensor, the number of charge carriers (electron-hole pair) are generated and collected by the electrode on both sides of the CdTe-DSD. However, the number of charge carriers is trapped during transport process. This phenomenon degrades energy resolution. Due to this charge transport properties, the energy spectrum observed by the CdTe-DSD shows the tail component in low energy region side. In this presentation, we report the performance of 2mm CdTe-DSD using radioactive source <sup>57</sup>Co. To improve the energy reconstruction, a new algorithm will be introduced. This new algorithm used to reconstruct the energy spectrum of incident photon has been developed based on the energy information and energy correlation between cathode and anode sides. As the result, the energy resolution (FWHM) for the 2mm CdTe-DSD at 122keV is 2.42 keV.

1P10 Self-Assembly of Nanosheet Supported Fe-MOFs Heterocrystal as Reusable Catalyst for Boosting Advanced Oxidation Performance via Radical and Nonradical Pathways

ZHANG, B.<sup>1</sup>, ZHANG, L.<sup>2</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, BINGHAM, P. A.<sup>3</sup>, KUBUKI, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan University., <sup>2</sup>Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences., <sup>3</sup>Sheffield Hallam University)

Heterojunction catalysts have drawn mounting interest for the visible light-driven Fenton reaction, and bring tremendous opportunities for environmental remediation. BiOI/MIL-53(Fe) Z-scheme Herein, а heterojunction BMFe) (named was synthesized for the first time via a facile strategy. Compared with pristine BiOI and MIL-53(Fe) catalysts, the 2D/3Dheterojunction catalyst manifested remarkable catalytic performance toward degradation of phenol, bisphenol A, methylene blue and carbamazepine, which is attributed mainly to the interfacial integration and efficient charge separation. By virtue of coupling at the interface, as confirmed by XPS, <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectroscopy and DFT calculations, the BMFe catalyst promoted the transfer of electron-hole pairs via Z-scheme and improved the chemical activation of hydrogen peroxide. The subsequent holes, free radicals and nonradical can effectively

and continuously decompose pollutants, achieving a positive synergistic effect between photocatalysis Fenton reactions. and Simultaneously, designed the specially BiOX(X=Br, Cl)/MIL-53(Fe) and BiOI/Fe-MOFs(MIL-101, MIL-88) heterojunctions also exhibited advanced oxidative capacity for organic pollutants. The integration of Febased metal organic frameworks with bismuth oxyhalide semiconductors provides a new perspective on developing heterojunction catalyst for environmental remediation.

# **1P11** Synthesis and redox property of uranyl (VI) trinuclear complex with Schiff base ligand

FUKUMURA, K.<sup>1</sup>, NAGATA, K.<sup>2</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>RI center, Institute for Radiation Sciences, Osaka Univ.)

In the present study, we newly synthesized a new trinuclear uranyl(VI) complex with tridentate Schiff base ligands and investigated redox property of the complex. The new complex was synthesized by the reaction of  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H2O$ , Schiff base ligand, and triethylamine. The complex was identified by single crystal X-ray analysis, <sup>1</sup>H NMR and IR spectra. In the complex, uranyl(VI) locate in a triangle conformation, The ligand chelates each uranyl(VI) atom and bridges neighboring an uranyl atom. The oxido atom exists at center of the complex and bridges three uranyl(VI) atoms. The average U-(µ<sub>3</sub>-O)-U bond angle is 116°, which is close to that of the sp<sup>2</sup> hybridized oxide. The redox property

of the obtained complex will be reported on the annual meeting.

#### **1P12** VRFB membrane permeability tests using radiotracer <sup>48</sup>V (2) SHIRASAKI, K.

#### (IMR, Tohoku Univ.)

Vanadium redox-flow battery (VRFB) draws attention for the energy storage system, which is particularly useful for conjunction with renewable energy sources. In VRFB, only vanadium ion as active substance is presented in both positive  $(VO^{2+}/VO_{2}^{+})$  and negative  $(V^{3+}/V^{2+})$  electrolytes [1]. This constitution makes it convenient to recover battery capacity to initial state by adjusting the concentration and valence of vanadium ions between positive and negative electrolytes, and makes it difficult to directly evaluate vanadium ions crossover of the membrane, simultaneously. Recent year, we developed an evaluation method of the crossover of vanadium ions through the membrane using radiotracer <sup>48</sup>V [2]. The method has a potential for understanding nature of the membrane both in a self-discharge and coulombic efficiency during charge-discharge processes of the VRFB.

In last year, four vanadium ions  $(VO^{2+}, VO_2^+, V^{3+}, V^{2+})$  were used for evaluation of concentration-gradient permeability in conventional set-up (counter parts were all Mg<sup>2+</sup> solutions). Here, we investigate the behavior of crossover of vanadium ions in the VRFB set-up.

[1] E. Sum, M. Skyllas-Kazacos, J. Power Sources, 15 (1985) 179-190. [2] K. Shirasaki, T. Yamamura, J. Membr. Sci., 592 (2019) 117367.

#### 1P13 Feasibility Study on Real-Time Monitoring of Tiny Particles Containing Alpha-Emitters Using Aerosol Time-Of-Flight Mass Spectrometer (ATOFMS)

TOYOSHIMA, A.<sup>1</sup>, FURUTANI, H.<sup>1</sup>, TERAMOTO, T.<sup>1</sup>, NAGATA, K.<sup>1</sup>, TOKOI, K.<sup>1</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>2</sup>, MUTA, H.<sup>1</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>1</sup>, TOYODA, M.<sup>1</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Univ., <sup>2</sup>Kyoto Univ., <sup>3</sup>Osaka Aoyama Univ.)

The fuel debris in the reactors of Fukushima Daijchi Nuclear Power Plant is still unknown about its properties and surrounding environments. Although the debris is planned to be cut and took in a container, it is concerned that tiny particles containing alphaemitters such as <sup>239</sup>Pu are generated in the cutting process and are dispersed to outside of the reactors. For the on-line monitoring of the tiny particles using an Aerosol Time-Of-Flight Mass-Spectrometer (ATOFMS) to prevent the particles from leaking, in this study, we carried out feasibility tests of the ATOFMS. In experiments, we prepared solid and liquid samples containing <sup>238</sup>U as model materials of debris. To produce tiny model particles containing <sup>238</sup>U from the materials, we fabricated apparatuses for laser ablation and solid aerosol generation. The mass spectrometry of the model particles was carried out by connecting ATOFMS to the apparatuses. As a result, various positive and negative ion peaks originated from <sup>238</sup>U in

both the solid and liquid samples were successfully observed using ATOFMS. Details of the results will be presented in the symposium. This study was supported by Nuclear Energy Science & Technology and Human Resoruce Development Project in FYs 2019-2020.

# **2S01** Three theoretical studies related to electron and nucleus interactions ABE, M.

(Hiroshima Univ., Tokyo Metropolitan Univ.) Relativistic effects are significant in molecules containing heavy elements or in the electronic properties in the vicinity of a nucleus. Relativistic quantum mechanics should be introduced to such systems, and the author and co-workers have developed relativistic computational programs based on the Dirac equation. We applied our programs to discuss isotope fractionations of heavy elements, which is mainly caused by the difference of the electronic energies due to the nuclear volume difference between isotopes. We also applied them to the calculations of the electronic factor of the nuclear Schiff moment, which is an important indicator of Charge-Parity symmetry breaking. In addition, though it is a non-relativistic study, we investigated the electron capture (EC) decay of <sup>7</sup>Be to find new systems with a large electron density at the nucleus, which leads to a faster EC decay. In my presentation, I will report the latest results of these three studies, all of which are related to electron-nucleus interactions.

2K01 Determination of stable Cs and trace elements in lake water of Lake Akagi Onuma by neutron activation analysis

OKADA, Y., KUMAGAI, N., WATANABE, S., SUZUKI, K.

(<sup>1</sup>Tokyo City Univ., <sup>2</sup>Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station)

In this study, stable cesium and trace elements in lake water samples (depths of 0 m, 8 m, and 15 m) were analyzed by neutron activation analysis.

The lake water samples were either untreated (bulk samples) or filtered through a 0.45 µm filter (soluble form). Freeze-dried samples (about 1 mg to 2 mg dry weight) and standard samples (JLk1) were irradiated useing Pn3 and Pn2 at KUR. The analytical values for the particle form were obtained by subtracting the value for the soluble form from the analytical value for the bulk sample. As a result, stable Cs and Rb were detected in all samples. The concentration of stable Cs in the bulk samples varied from 0.1  $\mu$ g/L to 0.4  $\mu$ g/L at water depths of 0, 8, and 15 m. It was found that the sur-face layer at 0 m contained more cesium in the particle form than in the soluble form, regardless of the season. At a depth of 15 m in August 2018, the particle form of Cs was 0.05  $\mu$ g/L compared to 0.3  $\mu$ g/L for soluble Cs.

# 2K02k0-standardizationneutronactivation analysis using k0-IAEA software- evaluation and application -SUGISAKI, F., OURA, Y.

(Tokyo Metropolitan Univ.)

In the  $k_0$ -NAA method, all detected elements can be determined by simultaneous irradiation of a reference sample of one element. However,  $k_0$  value of each element and calibration of characteristics of an irradiation facility and an efficiency of a detector are required in advance. Since a dedicated software is usually used to calculate elemental concentrations in k<sub>0</sub>-INAA, we have chosen a freeware "k<sub>0</sub>-IAEA" developed by IAEA. Accuracy of k<sub>0</sub>-INAA method using k<sub>0</sub>-IAEA software was evaluated by analysis of several standard samples, and this method was applied to analyze shells of eggs and aluminum cans of beverages. These samples were irradiated in KUR for 10 - 30 seconds and 3 - 4 hour. The characteristics of the irradiation facilities were determined by irradiating Au-Lu-Zr monitor and detectors were calibrated by measuring <sup>152</sup>Eu, <sup>157</sup>Cs and mixed radionuclide standard point sources. As a result, determination values were found to depend on distance between a detector and a sample. After inputted values of the detector dimensions were tuned, determination values were generally consisted with certified values within  $\pm 10$  %.

#### 2K03 Current status of prompt gamma ray analysis system (PGA) installed in JRR-3

OSAWA, T., SASAKI, M., MATSUE H.

(Japan Atomic Energy Agency)

The research reactor JRR-3 was restarted for the first time in 10 years, and was put into service on July 12, 2021. The prompt gamma ray analysis system (PGA) installed in the JRR-3 has excellent capabilities as an elemental analyzer, and a revolute joint robot is introduced during the outage period to enable automatic measurement. In this presentation, we will explain the restoration, sophistication, and current operating status of PGA after the earthquake.

JRR-3 was damaged by the Great East Japan Earthquake, and the beam stopper of PGA collapsed, causing considerable damage. After the earthquake, optical axis alignment was performed, but restoration of equipment was postponed. Since JRR-3 was shut down, we introduced an industrial robot to the PGA and built an automatic analysis system during that period.

This year, JRR-3 has finally restarted. However, with the restart for the first time in 10 years, it is becoming clear that PGA equipment has various failures. Since the inside of the device could not be confirmed without removing the shield, a number of invisible problems became apparent. For example, a neutron mirror was found to have been destroyed by the earthquake. In addition, there are many other problems such as shutter failure, NIM module failure, Ge detector failure, motor driver failure, and helium gas piping failure. Although it is still not in perfect condition, hard recovery work has made it possible to measure samples.

Compared to 10 years ago, the PGA system has undergone some major changes. One is an automatic analysis system, which has various functions implemented in an integrated manner. One of the various functions is a system that can constantly record the signal from two He-3 detectors with LabVIEW, which makes it possible to monitor the state of the neutron beam. By using this, we decided some modifications to to make the measurement method. It was found that a high neutron flux state can be maintained by continuing to flow helium gas even in a very small amount. During the measurement, the inside of the Teflon sample box is purged with helium gas, but the relationship between the helium flow rate and neutron flux has not been clarified so far. Therefore, when the relationship between the neutron flux was measured while controlling the flow rate of helium gas with a mass flow controller, the correlation between the oxygen concentration inside the box and the rates of neutron flux and neutron scattering was also clarified.

# **2K04** Light elements analysis by prompt gamma ray analysis system at JRR-3 MIURA, T.<sup>1</sup>, MATSUE H.<sup>2</sup>, OSAWA T.<sup>2</sup>,

JINNO S.<sup>3</sup>

#### (<sup>1</sup>NMIJ, AIST, <sup>2</sup>JAEA, <sup>3</sup>Univ. Tokyo)

When a neutron is captured by an atomic nucleus,  $\gamma$ -rays are emitted within  $10^{-14}$  seconds after the neutron capture reaction. The neutron-induced prompt gamma-ray analysis (PGA) is an excellent method for non-destructive determination of light elements such as hydrogen, boron, and silicon in solid samples. In this time, we will report the analytical results of boron and silicon measurements in certified reference materials of silicon carbide and silicon nitride ceramics performed by the PGA system installed in JRR-3.

#### 2S02 Advancement of activation analysis and its application to geo- and cosmoscience researches

EBIHARA, M.

(Waseda Univ.)

It is well acknowledged that neutron activation analysis (NAA) was first attempted by G. Hevesy and H. Levi in 1936, who determined dysprosium contents in yttrium samples using neutrons generated by means of Ra coupled with Be. Since then, many innovations including neutron sources and radiation counting have improved NAA. With the dissemination of germanium semiconductor detectors and the development of a K<sub>0</sub> standardization method in 1970s, NAA appears to have been established as a competitive method in analytical chemistry. After this stage, NAA greatly yielded many scientific contributions. Good examples can be seen in geo- and cosmo-sciences. NAA presented reliable data for many elements in extraterrestrial materials represented by meteorites. Lunar samples returned by Apollo and Luna missions were extensively analyzed by NAA. Especially, radiochemical NAA (RNAA) presented high quality data for trace and ultra-trace elements in meteorites, which then yielded an outstanding publication of solar system abundances of the elements in 1982. Recently, a noteworthy outcome was achieved by a research group led by Dr. Toh of JAEA, who established an analytical scheme for nondestructive quantification of difficultto-measure nuclides <sup>107</sup>Pd and <sup>99</sup>Tc in used nuclear fuels. This method is basically instrument-oriented and, therefore, can be

categorized into INAA, but is akin to RNAA in the light of high element-selectivity, high analytical sensitivity and high accuracy of the data. It is envisioned that this method will be making fruitful contributions to many sciences including cosmochemistry.

#### 2K05 Soil-Soil Solution Distribution Coefficient of Chlorine in Paddy Soil

TAGAMI, K.<sup>1</sup>, SHIBUTANI, S.<sup>2</sup>, HAMAMOTO, T.<sup>2</sup>, ISHIDA, K.<sup>2</sup>, UCHIDA, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Natl. Inst. Quantum Radiol. Sci. Technol., <sup>2</sup>Nuclear Waste Management Organization of Japan)

Chlorine-36 is a beta-emitting radionuclide with a relatively long physical half-life of  $3.01 \times 10^5$  y. In aqueous solution, chlorine forms Cl<sup>-</sup> thus it does not sorb to geological materials and soils. Due to this chemical characteristics, <sup>36</sup>Cl is classified as one of the important radionuclides in dose assessment for high level radioactive waste disposal. Although very low soil-soil solution distribution coefficient (Kd, L/kg) values were reported, not many Kd-Cl data were available in Japanese soils. Therefore, we carried out a batch experiment to obtain Kd-Cl values in 98 paddy field soils collected throughout Japan. Stable Cl<sup>-</sup> (ca. 5 ppm in soil solutions) was added to soil: solution = 1 g : 10 mL and kept shaking for 3 days. After the period, by subtracting Cl<sup>-</sup> contents from original soil using non-Cl<sup>-</sup> added soil solution, we obtained Kd-Cl values. For 20 samples, more Cl<sup>-</sup> was detected than added, which caused Kd values minus, but it means that Cl did not sorb onto

the soil solid phase. The Kd-Cl ranged from -0.7 - 1.4 L/kg. Although Kd-Cl value was expected to be high in organic soil compared to that in mineral soil; however, no correlation was found between Kd-Cl values and total carbon concentrations in the soils.

## 2K06 Investigation of hydration and adsorption structures on clay minerals of radium by EXAFS

A.<sup>1,2</sup>, K.<sup>3</sup>, YAMAGUCHI NAGATA K.<sup>1</sup>, K.<sup>1</sup>, TANAKA **KOBAYASHI** M.<sup>1</sup>, T.<sup>1</sup>, OKUMURA **KOBAYASHI** SHIMOJO K.<sup>1</sup>, TANIDA H.<sup>1</sup>, SEKIGUCHI T.<sup>1</sup>, KANETA Y.<sup>1</sup>, MATSUDA S.<sup>1</sup>, YOKOYAMA K.<sup>1</sup>, YAITA T.<sup>1</sup>, YOSHIMURA T.<sup>3</sup>, TAKAHASHI Y.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>The Univ. Tokyo, <sup>3</sup>Osaka Univ.)

Radium (Ra) is an important radioactive element in terms of environmental pollution problem around uranium mine and disposal problem of radioactive waste, meaning that its environmental behavior should be urgently investigated. However, even the hydration structure of Ra has not been investigated at the molecule level because Ra has no stable isotope and decays to radon. The purpose in this study is to investigate the hydration and adsorption structures of Ra on clay minerals by using extended X-ray absorption fine structure (EXAFS).

EXAFS spectra were collected in SPring-8. The hydration structure was also investigated by first principle molecular dynamics. In addition, adsorption experiments with various pH and ionic strength were also conducted.

The coordination number and distance

between Ra and oxygen in the first hydration shell obtained by EXAFS were similar to those by the simulation. The EXAFS results suggested that Ra forms inner-sphere complexes on vermiculite. The distribution coefficient of Ra on vermiculite had small dependence on pH and ionic strength, suggesting the formation of inner-sphere complexes. These results suggest that environmental behavior of Ra is controlled by fixation on vermiculite and other phyllosilicates.

# **2K07** Characterization of barium silicate-based adsorbent for Ba in seawater KOJIMA, S.<sup>1</sup>, OGATA, Y.<sup>1,2</sup>, KATO, Y.<sup>3</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>4</sup>, MINOWA, H.<sup>5</sup>

(<sup>1</sup>Aichi Medical Univ., <sup>2</sup>Osaka Sangyo Univ., <sup>3</sup>Hitachi Ltd., <sup>4</sup>Kyoto Univ., <sup>5</sup>The Jikei Univ.) BaSi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-based adsorbent has been found very useful for collection of trace radioisotopes of Sr in sea water. Because Sr is not adsorbed on the adsorbent without sulfate ion in water, the adsorption of Sr is responsible for production of insoluble SrSO<sub>4</sub>. The adsorbent is considered to collect effectively Ba, Ra and Pb because their sulfates are insoluble in water. We have revealed that the adsorbent collects the most of Ra and about 86% of radiogenic Pb in sea water. Because <sup>140</sup>Ba is one of important radionuclides at a nuclear accident, it is necessary to investigate characterization of the adsorbent for Ba in sea water. In this study, radionuclides of Ba were produced by neutron irradiation at KUR, those nuclides were used as the tracer of Ba in sea water. Experimental results of Ba have obtained to be

similar to those of Sr and Ra.

2K08 Estimation of <sup>90</sup>Sr activity with barium silicate-based adsorbent application of Cerenkov measurement of progeny nuclide, <sup>90</sup>Y-

OGATA Y.<sup>1,2</sup>, KOJIMA S.<sup>2</sup>, MINOWA H.<sup>3</sup>, KATO Y.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Sangyo Univ.,<sup>2</sup>Aichi Medical Univ., <sup>3</sup>The Jikei University School of Medicine, <sup>4</sup>Hitachi, Ltd.)

Barium silicate-based Sr adsorbent, Pureceram MAq (Nippon Chemical Industrial Co. Ltd.) can selectively adsorb Sr. However, because the Sr adsorb capacity is not so large, it cannot be applied to large amount of Sr. Therefore, <sup>90</sup>Y, the progeny nuclide of <sup>90</sup>Sr, was separated and measured. In this study, 90Y was tried to be estimated by Cerenkov measurement. About 20 Bq of 90Sr solution including the same amount of 90Y was loaded on the Sr adsorbent. 90Sr was absorbed on the adsorbent, and 90Y was separated into solution. The <sup>90</sup>Y concentration was determined with a part of the solution by the liquid scintillation counting method. The counting efficiency of <sup>90</sup>Y was estimated with the residual solution by the Cerenkov measurement. The Cerenkov measurement was performed with a general type liquid scintillation counter (LSC-7400, Hitachi, Ltd.) and a low background liquid scintillation counter (LSC-LB7, Hitachi, Ltd.). The same counting efficiency was obtained to be 60% for both of the counters. When the volume of the sample is 10 L and the measurement time is 4 hours, the minimum detectable concentration (MDC) is estimated

as 1.7 mBq L<sup>-1</sup> and 1 mBq L<sup>-1</sup> for LSC-7400 and LSC-LB7, respectively. This method is useful because of quite simple and no use of deleterious substance.

#### **2P01** Half-life variation of halides of lowenergy excited nuclide U-235m(JNRS) SAWAMURA, K.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, SHIGEKAWA, Y.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A.<sup>3,4</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of science, Osaka University, <sup>2</sup>RIKEN, <sup>3</sup>Institute for radiation sciences, Osaka University, <sup>4</sup>Osaka Aoyama University)

As U-235m have extremely low excitation energy (76.74 eV), the nucleus interacts with outer-shell electron in the internal conversion (IC) process. Therefore, the half-life of U-235m is reported to vary depending on its chemical environments. We are aiming to elucidate the de-excitation process of U-235m by measuring the IC electron energy spectra in addition to the half-lives for various chemical environments. In this study, U-235m ions recoiled from Pu-239 were trapped in nitrogen gas and collected on the copper foil surface to which a negative voltage was applied. The half-life was determined by counting the IC electrons from the trapped U-235m and those reacted with various halogen gases such as HF, HCl, HBr and HI. Half-lives for samples without gas reaction widely spread  $26 \sim 27$ min. This is thought to be because U takes various oxidation numbers in the samples. The half-lives of U-235m reacted with HF, HCl, and HBr were determined to be 25.3 min, 26.1 min, and 25.3 min, respectively. This is the first report on the half-life of U-235m

reacted with HBr. The order of the half-lives is not in trend of electronegativity and influence of molecular orbital needs to be considered.

#### 2P02 Ab initio molecular dynamics study on the hydration structure of element 102, No

WATANABE, E.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, NAKANISHI, R.<sup>1</sup>, OTAKA, S.<sup>1</sup>, NAKAJIMA, T.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A.<sup>3,4</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>R-CCS, RIKEN, <sup>3</sup>IRS, Osaka Univ., <sup>4</sup>Osaka Aoyama Univ.)

Nobelium ( $_{102}$ No) belongs to an actinide series. It is reported that the stable oxidation state of No is +2 although those of other heavy actinide elements are all +3. The chemical behavior of No in HCl was reported to be similar to that of Group 2 elements (Ca and Sr), and further studies are required to elucidate the chemical properties of No.

In this study, we focused on the hydration structure of No<sup>2+</sup>. Since it is difficult to investigate the hydration structure of No by spectroscopic methods, the molecular simulation was adopted. We calculated No<sup>2+</sup>-24H<sub>2</sub>O model by ab initio molecular dynamics and compared its result with that of Ca<sup>2+</sup> and Sr<sup>2+</sup>. The quantum chemical calculations in the simulations were performed at the B3LYP /Stuttgart-RSC(for metal atom)/def2-SVP(for O, H atom) level, and molecular dynamics was calculated during 20,000 steps with  $\Delta t=0.5 \mathrm{fs}$ 

The obtained hydration structures of  $Ca^{2+}$  and  $Sr^{2+}$  were in good agreement with the results of experimental studies. The simulation results show that  $No^{2+}$  has an average

coordination number of 7.5 in the first hydration sphere with 2.48 Å between No and O atoms. Previous studies have suggested that the ionic radius of No<sup>2+</sup> is intermediate between Ca<sup>2+</sup> and Sr<sup>2+</sup>. In the present study, the hydration structure of No<sup>2+</sup> is also suggested to be intermediate between Ca<sup>2+</sup> and Sr<sup>2+</sup>. We will also report the simulation results with more hydrated water and the electronic states of hydrated complexes.

#### 2P03 Precipitation experiment of Zr, Hf, Th and Eu with oxalic acid and malonic acid, towards the experiment of element 104, Rf.

NAKANISHI, R.<sup>1</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, WATANABE, E.<sup>1</sup>, OTAKA, S.<sup>1</sup>, SHINOHARA, A.<sup>2,3</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>IRS, Osaka Univ., <sup>3</sup>Osaka Aoyama univ.)

The chemistry of Rutherfordium (104Rf) has been studied mainly through complexation properties with inorganic ligands. In this study, we focused on the organic acid ligands: oxalic acid and malonic acid, which have the potential to form chelate complexes with Rf. To determine the experimental conditions for coprecipitation experiments of Rf with oxalic acid and malonic acid, we investigated coprecipitation behaviors of Zr, Hf and Eu using thorium oxalate as a carrier in the oxalic acid system and zirconium malonate as a carrier in the malonic acid system.

First, the precipitation behaviors of thorium oxalate and zirconium malonate were investigated. As a result, in the case of thorium oxalate, the reactions were reached the equilibrium state within 60 s at temperatures above 80 °C. The resolution of  $\alpha$  peaks was ~100 keV which is considered to be sufficient to discriminate <sup>261</sup>Rf. The concentration dependence of oxalic acid in coprecipitation behavior and macroscopic precipitation behavior were generally consistent with each other for Zr, Hf, and Eu, indicating that it is possible to discuss the precipitation properties from the coprecipitation behavior. In the case of zirconium malonate, it was also confirmed that the precipitation yields were ~100 % and the reactions reached equilibrium within 1-2 min at temperatures above 80°C, indicating that Zr can be used as a carrier in malonate coprecipitation.

#### 2P04 Properties and Sr-90 contents in radioactive particles released by Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident

MURAKAMI, A.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>2</sup>, IGARASHI, J.<sup>1</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>2</sup>, SHINOHARA, A.<sup>2,3</sup>, MINOWA, H.<sup>4</sup>, YOSHIKAWA, H.<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. of Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>Institute for Radiation Sciences, Osaka Univ., <sup>3</sup>Osaka Aoyama Univ., <sup>4</sup>The Jikei Univ. Sch. of Medicine)

[ Introduction ] By Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, radioactive Csbearing particles were released. The properties of the particles are considered to reflect the conditions in the reactor, and it's expected that their analysis provides us detailed knowledge of the accident.

In this work, we investigated the formation process of the particles through quantification of Cs-137,134 and Sr-90 and semiquantification of stable elements by EDS.

[Experiments] Particles were separated from soil and subjected to  $\gamma$ -ray measurement and SEM-EDS analysis.Sr-90 was quantified in some particles by liquid scintillation counter. [Results] The particles contained Cs-137 in the range of 10~10000 Bq. The Sr-90/Cs-137 activity ratio is on the order of 10-4, with little difference among particles. The particles are rich in silicon and oxygen, and mainly contain sodium, magnesium, and aluminum. When the mass ratio of the elements contained in the particles to the major material (silicon) is calculated, there is a correlation between the Ca-Na and Zn-Al-Fe combinations. Ironconcentrated spots are also found in some particles.

# 2P05 Temporal variation of <sup>129</sup>I in atmospheric particles collected by Snow White within 2017-2020

SUTO, M., WANG, XS., IIDA, M., HIBINO, Y., MIYATA, S., OKAYAMA, A., OHTA, T., OHTA, Y., ISOGAI, K.

(Japan Chemical Analysis Center)

Utilization of Snow White, known as a highvolume air sampler, is profitable for measurement of various nuclide radioactive substances with high sensitivity. In this study, we investigated the temporal variation of <sup>129</sup>I in atmospheric particles collected by Snow White, located in Japan Chemical Analysis Center (Chiba City, Japan), within 2017-2020. <sup>129</sup>I concentration of atmospheric particles was calculated using <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I measured by AMS and <sup>127</sup>I measured by ICP-MS. Furthermore, correlation between the <sup>129</sup>I and <sup>134, 137</sup>Cs from the same sample were also discussed, simultaneously. As the results, the <sup>129</sup>I concentration and isotopic ratio of <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I in atmospheric particles collected from 2017 to 2020 were  $(0.27 \sim 8.6) \times 10^{-7} \,\mathrm{mBg/m^3}$  and  $(0.094 \sim 4.3)$  $\times$  10<sup>-8</sup>, respectively. Both of the <sup>129</sup>I and <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I presented a seasonal variation as follows, 1) higher in March, 2) decreased from March to July, and 3) increased from July to October during all of observation. According to the AMS analysis of pollen collected from Chiba prefecture et al., the reason for the higher <sup>129</sup>I concentration in March was considered as the resuspension of radioactive particulate on the surface of ground, and the dispersal of pollen. On the other hand, meteorological parameters such as temperature played an important role for the fluctuation of <sup>129</sup>I, because it showed a negative correlation with <sup>129</sup>I. The correlation coefficients monthly between average temperature and <sup>129</sup>I were -0.81 from March to July, and -0.62 from August to November, respectively. In addition, <sup>129</sup>I/<sup>134</sup>Cs results shown that the source of <sup>129</sup>I observed in this work was speculated as not only from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, but also from other fallout.

AOKI, J., MATSUEDA, M., KOARAI, K., TERASHIMA, M.

(Japan Atomic Energy Agency)

The analysis of <sup>129</sup>I in environmental samples with ICP-MS requires the removal of <sup>129</sup>Xe contained in Ar gas by reaction with  $O_2$  in a reaction cell of ICP-MS. However, Mo produces <sup>97</sup>Mo<sup>16</sup>O<sub>2</sub>, which is polyatomic interfering ion of <sup>129</sup>I measurement, under the oxygen reaction condition. Therefore, it needs to be separated prior to the ICP-MS 129**T** measurement. Samples with low concentrations (e.g., seawater) should be concentrated for analysis. Recently, silver ionsupported resin (CL Resin) has been developed for the separation and concentration of <sup>129</sup>I. In this study, CL Resin was used for the removal of Mo and coexisting anions in seawater on I sorption and preconcentration of I. The CL Resin adsorbed 97.9% of I under 1.0 M sulfuric acid loading condition, but interfering elements were removed from the CL Resin. The CL Resin also adsorbed over 99.0% of I even NO3<sup>-</sup> and Cl<sup>-</sup> coexist in high concentration. The concentration ratio of <sup>129</sup>I was calculated as  $1.3 \times 10^3$ . It is enough to determine <sup>129</sup>I in seawater with the ICP-MS. The pretreatment method is expected to apply for ICP-MS analysis of <sup>129</sup>I in seawater.

#### 2P07 Revision of radioactivity measurement method series No.7 "Gamma-ray Spectrometry using Germanium Detector"

MIYATA, S.<sup>1</sup>, SUZUKI, K.<sup>1</sup>, OHTA, Y.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Japan Chemical Analysis Center)

Gamma-ray spectrometry using germanium semiconductor detector has been widely used as a major method for radioactivity analysis of gamma-ray emitting nuclides in environmental samples. One of the series of radioactivity measurement methods related to

<sup>2</sup>P06 Development of solid-phase extraction technique for ICP-MS analysis of Iodine-129 in sea water:Effects of interfering elements and coexisting anions on sorption of I to silver ion-supported resin.

the manual gamma-ray spectroscopy, "Gamma-ray spectroscopy with germanium semiconductor detector" was revised in September 2020 so that it can respond to the situation such as the subsequent performance improvement of measuring instruments and the progress of analysis methods. The previous revision of the manual was structured to include a lot of content for developers of analysis program, but the revised manual is intended for practitioners of environmental radioactivity analysis, and described the basic principles of gamma-ray spectrometry of environmental samples that is carried out in normal situation. The revision policy is to make the content for practitioners, to incorporate advances in analytical technology such as numerical calculation of detection efficiency to make the content compatible with the equipment currently in use, and to make the content in line with international standards. In this presentation, we will explain the changes and additions that accompany the revision.

## 2P08 Quality control in environmental radiation monitoring

OTA, H., ABE, G., KAWAMURA, T., KONNO, Y., TOYOOKA, S., OTA, T.

(Japan Chemical Analysis Center)

After the accident at TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, it is necessary to provide highly reliable data as analytical data on radioactivity. As a nationwide environmental radiation monitoring, the Nuclear Regulatory Agency has been conducting an environmental radioactivity level survey, and we are also conducting an intercomparison analysis based on ISO / IEC 17043 for analysis organizations in 47 prefectures nationwide.

In this intercomparison program, Japan Chemical Analysis Center (JCAC) provides analytical comparison samples (samples whose allocation values have been determined by JCAC) to analytical institutions, and the analytical institutions analyze and measure the analytical comparison samples. The evaluation method is based on En numbers and Z score. The analysis / measurement results of the analysis institution are compared / evaluated with the assigned values, and if the evaluation results are insufficient, the cause is investigated and points for improvement are presented. Here, we will introduce seawater and marine products that confirm whether pretreatment is properly performed in the intercomparative analysis conducted in 2020. From the evaluation results, the intercomparison analysis was able to perform highly accurate analysis. The causes of the dissatisfied results were also investigated, and reanalysis, reanalysis, etc. gave satisfactory evaluations, and improvement was observed.

#### 2P09 Measurements of local fields in Fedoped indium oxide

UCINO, H.<sup>1</sup>, ITO, T.<sup>1</sup>, SATO, W.<sup>1, 2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ., <sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ.)

Indium oxide  $(In_2O_3)$  is an n-type semiconductor that has a bixbyite structure with two In sites, and there have been many attempts to control its physical properties by introducing impurities. In recent years, it has been reported that In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> exhibits a property as a dilute magnetic semiconductor when doped with a small amount of Fe atoms, and is expected to be applied to spintronic devices. However, the mechanism of magnetism has not yet been elucidated. Therefore, the aim of this study is to investigate the occurrence of dilute magnetism in Fe-doped In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (FIO). For that purpose, perturbation angular correlation (PAC) spectroscopy and transmission Mössbauer spectroscopy were employed to probe into local sites in FIO. The obtained PAC spectra suggest that the carrier density may have been elevated in the semiconductor at high temperature. It was also implied that the introduction of Fe into the sample increases the carrier density. The results of Mössbauer spectroscopy will also be discussed in the poster presentation.

**2P10** Research on ionic liquid extraction of astatine for a nuclear medical utilization NAGAI, Y.<sup>1</sup>, AOI, K.<sup>1</sup>, MARUYAMA, S.<sup>1</sup>, NISHINAKA, I.<sup>2</sup>, WASHIYAMA, K.<sup>3</sup>, HABA, H.<sup>4</sup>, YOKOYAMA, A.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Kanazawa Univ., <sup>2</sup>QST, <sup>3</sup>Fukushima Medical Univ., <sup>4</sup>RIKEN)

Astatine-211 is a prospective candidate to utilize in targeted alpha therapy. Solvent extraction with organic solvents has been used as one of the methods to separate 211 At from solution of an irradiated target. Recently, ionic liquids have been attracting attention as an alternative solvent to organic solvents from the viewpoint of green chemistry. However, few studies on the extraction of 211 At by ionic liquids have been reported, yet. In this study, we investigated the suitability of different types of ionic liquids for the extraction of 211 At especially in the HCl system. Both the extraction rate of 211 At from HCl to ionic liquid and the reverse extraction rate from ionic liquid to NaOH were determined experimentally in the study. Besides, TLC analysis of dodecane solutions before and after extraction were performed to estimate the At chemical species in HCl. The results suggest that the hydrophobicity of the cations and anions of the ionic liquid affects the ion exchange with At ions in the aqueous phase. The extraction rates for [C8mim][Tf2N] were above 90% for both extraction and back-extraction. Therefore, extraction system with ionic liquid is concluded to be promising for the 211 At solvent extraction in medical use.

#### 2P11 Development of a selective solidphase extraction method for quantitation of Zr-93 in radioactive wastes

MORII, S., YOMOGIDA, T., OUCHI, K., KITATSUJI, Y.

#### (JAEA)

Zr-93 is one of the long-lived fission products in radioactive wastes. To ensure the long-term safety on the disposed of radioactive wastes, estimating the risks associated with radiation from Zr-93 is essential. In previous studies, determination methods of Zr-isotopes in liquid sample using ICP-MS were developed. However, those methods were complicated and time consuming. To conquer this problem, we are developing a new method that determining Zr-isotopes in solid sample using laser ablation (LA)-ICP-MS.

Sr, Mo, Ru, and Zr are isobars, so Sr, Mo, and Ru interfere the quantitative of Zr by ICP-MS. Then, those elements are required to separate from Zr. DGA (*N*, *N*, *N'*, *N'*-tetra-noctyldiglycolamide) resin was used to separate Zr from simulated high-level radioactive wastes (HLW) solution. Simulated HLW solution was loaded onto the DGA resin cartridge. 2 M and 4 M nitric acid were loaded onto the resin and interference elements were eluted from the resin. On the other hand, more than 99 % of Zr was retained on the resin. Thus, this method enables preparing solid Zr sample for determination of Zr-93 and it's isotopes.

#### 2P12 Speciation of uranium particles in micrometer sized by micro-Raman spectroscopy and transmission X-ray microscope YOMOGIDA, T.<sup>1,2</sup>, KITATSUJI, Y.<sup>1</sup>

TAKAHASHI, Y.<sup>1</sup>, MIYAMOTO, Y.<sup>1</sup>

#### (<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>Tokyo Univ)

In the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, there is a concern about the release of fine particles containing uranium (U) into the environment. Since the solubility of U in water varies greatly depending on its chemical species, it is necessary to understand the chemical species of micrometer-sized U particles. Uranium dioxide (UO<sub>2</sub>), which is the main component of the nuclear fuel, is oxidized on the surface by air to form a non-stoichiometric compound  $(UO_{2+X})$ . The chemical species might differ between the bulk and surface of the fine particles. In this study, the chemical species of the uranium microparticles was determined by transmission X-ray microscope. The chemical species of the surface of the microparticles determined by micro-Raman were spectroscopy. The composition of UO<sub>2</sub> and  $U_3O_8$  in a  $UO_{2+X}$  particle was found to be about 90% and 10% by transmission X-ray microscope measurements.  $UO_2$  and  $UO_4$ . nH<sub>2</sub>O were observed in the surface of the  $UO_{2+X}$ particles by micro-Raman spectroscopy. This result enables us to discriminate the oxide species present in the bulk and the surface of uranium particles.

#### 2P13 Rapid measurement of U, Np, and Pu in feces using ICP-MS/MS and alpha spectrometry

YANG, G., KIM, E., ZHENG, J., SENO, H., KOWATARI, M., KURIHARA, O.

(National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology)

Internal contamination with alpha-particle emitting actinides, such as <sup>238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu, is likely to result in high internal exposure risk even if the intake amount is small. To provide valuable information apart from urinary bioassay for internal dose estimation, we developed a simple and rapid method for fecal bioassay to determine ultratrace U, <sup>237</sup>Np, and Pu isotopes in synthetic feces ICP-MS/MS using and alpha spectrometry, respectively. After rapid ashing by microwave muffle furnace and acid digestion by opening and microwave

digestions, the sample was separated for analyses by ICP-MS/MS and alpha spectrometry, respectively. Conventional alpha spectrometry was used for the analysis of short-lived  ${}^{238}$ Pu (t<sub>1/2</sub> = 87.74 y) for dose estimation, the ICP-MS/MS was used to obtain the atom ratio of <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu for source identification. The sensitivities of ICP-MS/MS were improved and compared by introducing different reaction/collision gases to allow us to measure these isotopes with low background signal intensities.

#### 3K01 Variability in Composition and Separation of Valuable Metal Elements from Domestic Waste Slag

SAITOU, R.<sup>1</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, TUCHIDA, R.<sup>2</sup>, SUWA T.<sup>1</sup>, KHAN, I.<sup>1</sup>, KIKUNAGA, H.<sup>3</sup>, KUBUKI, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. School Sci., Tokyo Metropolitan Univ.,
<sup>2</sup>Dept. of Chem., Tokyo Metropolitan Univ.,
<sup>3</sup>ELPH, Tohoku Univ.)

Domestic waste slag is a kind of artificial sand produced by the melting of the incineration ash from the combustible waste. These slags contain several kinds of valuable metal elements and are important materials from the view point of resource recycling. In our previous work, we reported the new separation method by magnets and the separated fraction(D-1) is consist of Cu, Fe and some valuable elements with the higher concentrations than the original slags. In this work, we will report the leaching behavior of fraction(D-1) in inorganic acid determined by XRF and PAA, and the discussion about the possibility of component separation by a sieve as more simple separation method.

Fractions(D-1) were obtained by the magnet separation of Domestic waste slag at the Tamagawa Incineration Plant. These samples were irradiated with 22 MeV bremsstrahlung for 6 hours in ELPH at Tohoku University. The samples were leached in inorganic acids (HCl and HNO<sub>3</sub>) from 1 week to 2 weeks and passed through a membrane filter. Gamma rays emitted from filtrate and residue samples were determined by a Ge detector.

As results, Cu and Fe were leached in inorganic acids, Ag and Au were concentrated in the residue.

#### **3K02** Instrumental photon activation analysis using single comparator method at different accelerators REZA, S., OURA, Y.

(Tokyo Metropolitan Univ.)

In Instrumental Photon Activation Analysis (IPAA), we have been developing single comparator method using  $(\gamma, n)$  reaction yield ratios determined at ELPH, Tohoku university. We have analyzed different standard samples by single comparator method and confirmed that determination values are generally good. In INAA  $(n,\gamma)$  yield ratios are varies reactor by reactor because of difference in neutron energy spectrum. For this reason k<sub>0</sub>-method was developed for usage at different reactors. But in IPAA such issue is assumed to be very little because energy distribution of bremsstrahlung mainly depends on atomic number of the converter. So we guessed that our determined yield ratios could be used at different accelerators and we performed IPAA using an accelerator at KURNS for different

standard samples. The accelerator at KURNS produce bremsstrahlung through Pt converter (2 mmt x 2), in which samples were irradiated in the air. At ELPH samples were irradiated in water by bremsstrahlung produced through Pt converter (1 mmt x 2). Most of determination values at KURNS were found to be consistent with certified or reference values within  $\pm 10\%$ . We confirmed that our determined yield ratios for single comparator method are usable at different accelerators.

# **3K03** Development of the experimental system for non-destructive element analysis with small sample using negative muon at the J-PARC.

CHIU, I.<sup>1</sup>, NINOMIYA, K.<sup>1</sup>, AZUMA, T.<sup>2</sup>, KATSURAGAWA, M.<sup>3</sup>, KUBO, K.<sup>4</sup>, MINAMI, T.<sup>5,3</sup>, MIYAKE, Y.<sup>6</sup>, NAGASAWA, S.<sup>5,3</sup>, NAKAMURA, T.<sup>7</sup>, OKADA, S.<sup>8</sup>, OSAWA, T.<sup>9</sup>, SHIMOMURA, K.<sup>6</sup>, SHINOHARA, A.<sup>11</sup>, TAKAHASHI, T.<sup>3</sup>, TAKEDA, S.<sup>3</sup>, TAKESHITA, S.<sup>6</sup>, TAMPO, M.<sup>6</sup>, TANIGUCHI, A.<sup>10</sup>, TERADA, K.<sup>11</sup>, UMEGAKI, I.<sup>12</sup>, WADA, T.<sup>7</sup>, WATANABE, S.<sup>14</sup>, YOSHIDA, G.<sup>6</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Univ. IRS, <sup>2</sup>RIKEN, <sup>3</sup>Kavli IPMU, <sup>4</sup>ICU, <sup>5</sup>Dept. of Phys. The Univ. of Tokyo, <sup>6</sup>KEK, <sup>7</sup>Tohoku Univ., <sup>8</sup>Chubu Univ., <sup>9</sup>JAEA, <sup>10</sup>KURNS, <sup>11</sup>Osaka Univ., <sup>12</sup>Toyota Central R&D Labs., Inc., <sup>13</sup>JAXA)

The element analysis method without destroying the sample is useful in the various field. The non-destructive elemental analysis method has been developed using highintensity negative muon beams for some valuable samples such as archaeological materials and extraterrestrial materials. This method is performed by measuring highenergy muon characteristic X-rays, which are emitted when the muon the transition to ground state of muon atomic orbitals. In order to apply this method to the milligram samples, our group has developed a novel experimental installation. Muon irradiation experiments were conducted at the D2 beamline of the Materials and Life Science Experiment Facility (MLF) at the Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC). The meteorite (Jbilet Wienselwan) with the size of 6x8 mm<sup>2</sup> and weighing 120 mg was prepared and irradiated with muons. Muon characteristic X-rays were measured by six low-energy Ge detectors installed around the sample. Based on result of this experiment, a very low background from experimental system was confirmed, and the peaks from meteorite were clearly observed. Furthermore, a simulation experiment was implemented using Geant4 code to verify the experimental data. The element contribution of samples could be accurately determined with this experimental system.

### **3K04** Thermal separation characteristics of astatine in dry distillation

NISHINAKA, I.<sup>1</sup>, WASHIIAMA K.<sup>2</sup>, HASHIMOTO, K.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>QST-Tokai, <sup>2</sup>Fukushima Medical University)

The  $\alpha$ -emitting radionuclide, <sup>211</sup>At, is a prospective candidate for use in targeted alpha therapy. In general, dry distillation has been used for the isolation of astatine from irradiated bismuth targets based on its volatile characteristics. However, even with such an empirical isolation technique, the adsorption temperature ( $T_{ads}$ ), which is one of the fundamental chemical properties, remains unknown.

In this study, the  $T_{ads}$  of volatile astatine <sup>211</sup>At species was studied using the radionuclide produced via the <sup>209</sup>Bi(<sup>4</sup>He,2n)<sup>211</sup>At nuclear reaction. Volatile astatine was separated from the irradiated bismuth via dry distillation in a glass tube (inner diameter: 4 mm, length: 750 mm) filled with nitrogen. The  $T_{ads}$  of the volatile astatine species on a glass surface was precisely determined to be 42.2 ± 2.5 °C via the simultaneous of measurement the temperatures and the astatine radioactivity across the length of the glass tube with thermocouples and g-ray spectrometers, respectively. The adsorption was observed in a narrow temperature range of 60-30 °C, indicating that the single volatile chemical species could be formed and adsorbed on the glass.

The obtained results are discussed in terms of the assumed chemical species and astatine amounts by comparing with the adsorption temperature values in previous studies.

# **3K05** Development of astatine-211 dry recovery process by evaporation with aerosol

YUHARA, M.<sup>1</sup>, MIYAMOTO, S.<sup>1</sup>, WADA, S.<sup>1</sup>, NAKAI, Y.<sup>1</sup>, OMORI, T.<sup>1</sup>, TSUKADA, K.<sup>2</sup>, ASAI, M.<sup>2</sup>, FUKUDA, M.<sup>3</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>4</sup>, SHINOHARA, A.<sup>4,5</sup>

(<sup>1</sup>Toshiba Energy Systems & Solutions Corp., <sup>2</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>3</sup>RCNP, Osaka Univ., <sup>4</sup>IRS, Osaka Univ., <sup>5</sup>Osaka Aoyama Univ.)

Astatine-211(<sup>211</sup>At) is one of the suitable

nuclides for targeted  $\alpha$ -therapy. In previous studies, <sup>211</sup>At is often produced by <sup>209</sup>Bi( $\alpha$ ,2n)<sup>211</sup>At reaction and recovered from irradiated Bi target by dry-distillation method. Future mass production will require a simpler and more versatile 211At recovery system. In this work, to improve <sup>211</sup>At recovery yield, we tried dry recovery process by evaporation with aerosol.

Bismuth targets were irradiated with <sup>4</sup>He<sup>2+</sup> beam by the JAEA tandem accelerator. The generation of 100 kBq order <sup>211</sup>At was confirmed. Aerosols were generated by heating KCl reagents with an electric furnace. The irradiated target was set in the other electric furnace and heated to evaporate <sup>211</sup>At. Helium carrier gas containing aerosols was introduced into the <sup>211</sup>At evaporation section, and <sup>211</sup>At was mixed with aerosols. The aerosols in the carrier gas was collected with a glass fiber filter and then dissolved in diluted NaOH solution. Astatine-211 concentration in the solution was measured with a Ge semiconductor detector, and K concentration was measured with an ion meter. Astatine-211 recovery yield (%) and aerosol collection rate (mg / hr) were evaluated.

A positive correlation was found between <sup>211</sup>At recovery yield and aerosol collection rate. It is considered that the increasing amount of aerosols promoted the collision between <sup>211</sup>At and aerosols, and facilitated filter collection.

# **3K06** Development of <sup>211</sup>At labeling method for molecular-targeted drugs using electrolytic oxidation reaction.

NAKAGAWA, S.<sup>1</sup>, KADONAGA, Y.<sup>1</sup>, OOE

K.<sup>1</sup>, KANDA, A.<sup>1</sup>, NAGATA, K.<sup>1</sup>, TERAMOTO, T.<sup>1</sup>, TOKOI, K.<sup>1</sup>, HABA, H.<sup>2</sup>, WANG, Y.<sup>2</sup>, KASAMATSU, Y.<sup>1</sup>, YOSHIMURA, T.<sup>1</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>1</sup>, SHINOHARA, A.<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>Osaka Univ., <sup>2</sup>RIKEN, <sup>3</sup>Osaka Aoyama Univ.)

<sup>211</sup>At is one of the promising candidates for targeted  $\alpha$  therapy. Although various methods are reported for labeling molecular targeted drugs with <sup>211</sup>At, commonly used substitution reactions by <sup>211</sup>At for harmful organometals containing such as tin and mercury are fairly problematic in clinical use. Therefore, we aim at developing a novel method for labeling <sup>211</sup>At by electrolytic oxidation that needs neither oxidants nor organometals. Because oxidation of <sup>211</sup>At is necessary to proceed the electrolytic labeling, we first studied electrolytic oxidation of astatine. Then, electrolytic labeling of <sup>211</sup>At was investigated. In the experiments, we used a flow electrolytic column apparatus. <sup>211</sup>At species were analyzed by Thin Layer Chromatography (TLC) before and after electrolysis. Radiation from <sup>211</sup>At on TLC plates were measured using an imaging plate. As a result, quantitative oxidation of <sup>211</sup>At was observed, which was confirmed based on different positions of <sup>211</sup>At spots on TLC before and after electrolysis. Then, in the labeling reaction, it was found that 65% of eluted <sup>211</sup>At was observed at the positions expected from those of the analog compounds labeled by iodine. This demonstrates that we succeeded in labeling molecular targeted drug with <sup>211</sup>At by electrolytic oxidation for the first

time.

#### 3K07 Synthesisand Evaluation of At-211 Labeled Gold Nanoparticles for Alpha Brachytherapy

HUANG, X.<sup>1</sup>, KATO, H.<sup>2</sup>, KADONAGA, Y.<sup>3</sup>, SHIMOYAMA, A.<sup>1</sup>, KABAYAMA, K.<sup>1</sup>, KATAYAMA, D.<sup>2</sup>, OOE, K.<sup>2</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>3</sup>, HABA, H.<sup>4</sup>, WANG, Y.<sup>4</sup>, SHINOHARA, A.<sup>3,5</sup>, FUKASE, K.<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Science, Osaka Univ.,<sup>2</sup>Graduate School of Medicine, Osaka Univ., <sup>3</sup>Institute for Radiation Sciences, Osaka Univ., <sup>4</sup>NishinaCenter for Accelerator-Based Science RIKEN, <sup>5</sup>Osaka Aoyama Univ.)

Much attention has been drawn to the  $\alpha$ emission radiotherapy due to its potential cancer therapeutic efficacy. Astatine-211 (<sup>211</sup>At), with a comparatively short half-life of 7.2h, can emit alpha particles within a few cell diameters with high energy, which can damage cancer cells in a relatively high biological effectiveness. In this study, we investigated a novel alpha brachytherapy by local injection of <sup>211</sup>At labeled gold nanoparticles (AuNP) in order to accumulate high level of radiation in the tumor and reduce the exposure of normal tissue.

First, we synthesized different sizes of mPEG-SH modified AuNP and performed astatination. Anti-tumor effect of the <sup>211</sup>At labeled AuNP-S-mPEG were evaluated and it revealed that the 5 nm sample has the most significant anti-tumor effect. Furthermore, we synthesized 5 nm of RGD peptide modified AuNP and performed astatination, cell internalization of AuNP-RGD was confirmed and the cytotoxicity of <sup>211</sup>At labeled AuNP-RGD was evaluated in cancer cell line. Significant internalization of AuNP-S-mPEG observed, while was not the RGD modification promoted the internalization. In cytotoxicity experiments, the RGD modified AuNP, which has the higher internalization ability, showed the higher cytotoxicity. The results may help to optimize the design of functional AuNPs, which are suitable for alpha brachytherapy.

### **3K08** Stability of Dimetallofullerene Encapsulating Promethium

SUWA, T.<sup>1</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1</sup>, KIKUNAGA, H.<sup>2</sup>, KUBUKI, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. School Sci., Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup>ELPH, Tohoku Univ.)

Recently, it has been reported that the stability of dimetallofullerenes (di-EMF) with two lanthanide atoms decreases with the increase in the atomic number of encapsulated lanthanides, and also reported that the di-EMFs with heavy lanthanides are stabilized by the reduction of di-EMFs. In our previous work, we could not have observed any promethium di-EMF species under the atmospheric condition. In this work, we will report the development of new method for metallofullerene extraction /separation under anaerobic condition.

Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pellet was irradiated with 55.5 MeV bremsstrahlung radiation for 6 hours. Produced Pm was separated from this Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by the chemical separation. The Pm tracer mixed with <sup>139</sup>Ce radiotracer and La carrier were adsorbed on a porous carbon rod and sintered as a cathode of arc-discharge. The soot containing Pm di-EMFs produced by arcdischarge method were refluxed under anaerobic condition. An ion pair chromatography was employed for the separation of each fullerene. To confirm the elution peak components, the cold fullerene samples were separated and then the collected samples were measured by MALDI TOF/MS. The radioactivity of <sup>143</sup>Pm and <sup>139</sup>Ce was observed at retention time which seems to be that of di-EMF. These results indicated the stabilization of LaPm@C<sub>80</sub> and LaCe@C<sub>80</sub> species by the reduction.

#### **3K09** Dissolution Method of Substances containing UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> by Thermochemical Conversion for Actinide Analysis

MA, Z.<sup>1</sup>, HONMA, K.<sup>2</sup>, KONANSHI, K.<sup>2</sup>, SUZUKI, K.<sup>2</sup>, SUZUKI, T.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Nagaoka University of Technology,<sup>2</sup>Tohoku Univ.)

The dissolution of nuclear fuel debris generated from Fukushima nuclear power plant accident is necessary for the accurate and precise analyses of actinides and fission products. We have proposed the chemical conversion of insoluble nuclear fuel debris into soluble substances by thermochemical reaction.

In the present work, the chlorination and dissolution behavior in hydrochloric acid and Nitric acid of simulated nuclear debris including  $UO_2$ -Zr $O_2$  by themochemical reaction with reagent CCl<sub>4</sub> were studied, and the converted undissolved residue were analyzed by SEM-EDX.

The simulated debris pellets were prepared by NFD company through ammonia coprecipitation and then sintering. Before the chlorination experiment, the pellets was powdered, which was oxidized and reduced in oxygen and hydrogen successively based on the oxidized and volatilized method, which successfully made the pellet simply powdered. After the powder was oxidized and reduced respectively, the heating chlorination experiments were carried out in the Swagelok containers.

After heating at 400°C for 12 hours, the dissolution rate of reduced simulated debris powder in concentrated hydrochloric acid (30%) and concentrated nitric acid (60%) were 92.39% and 88.00%: After oxidation, the dissolution rates of simulated debris powder were 97.54% and 87.80%, which were obtained from the mass of filter residue after pressurized filtration. In the next step, ICP-MS will be used to further check the uranium concentration in the filtrate.

This work was partially supported by the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (through concentrating wisdom) from the Japan Atomic Energy Agency / Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science.

3K10 Quantitative assessment of polyatomic interferences for the measurement of uranium and plutonium isotope ratios at ultra-trace level using MC-ICP-MS

TOMITA, J., TOMITA, R, SUZUKI, D., YASUDA, K., MIYAMOTO, Y. (Japan Atomic Energy Agency)

Accurate determination of uranium and Pu isotopes ratios for safeguard environmental and geochemical samples is important because they have information on their origin. Formation of polyatomic interferences made of an atom of heavy element and atoms in plasma such as argon and oxygen is known to create problems for their measurements using ICP-MS. In this study, quantitative assessment of polyatomic interferences for the measurement of U and Pu isotope ratios at ultra-trace level using MC-ICP-MS was conducted. For U isotopes, significant polyatomic interferences caused by <sup>193</sup>Ir<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>, <sup>194</sup>Pt<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup> and <sup>196</sup>Pt<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup> were observed at the mass of 233, 234 and 236, respectively. When 1 ppb of natural uranium solution (IRMM184) containing 0.4 ppb of Pt was measured, <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U isotope ratio was roughly estimated to be two-fold higher than certified value due to the interference. For Pu isotopes, small interference from Pb  $(^{204}Pb^{40}Ar^{+})$ was observed at the mass of 244 while other obvious interferences were not found.

3K11 Total evaporation for uranium particles generating much uranium hydride formation and isotopic ratio change

TOMITA, R., TOMITA, J., YOMOGIDA, T., SUZUKI, D. YASUDA, K. ESAKA, F., MIYAMOTO, Y.

#### (JAEA)

Secondary ion mass spectrometry (SIMS) analysis of uranium particles for safeguards purpose consists of Automated Particle Measurement (APM) and Microprobe analysis. APM for safeguards sample includes 2400 measurements, each field is analyzed for short time. So, if a sample have particles which generate too much uranium hydride formation on their surface, the APM result, especially <sup>236</sup>U abundance, is affected by uranium hydride formation. It causes inaccurate APM result. To investigate what percentage of the entire particle the particle surface causing ratio change account for, total evaporation measurement was implemented for standard uranium particle generating much uranium hydride formation on their surface and uranium isotopic ratio change during the total evaporation measurement was observed. Total evaporation experiment for the particle grain-sized 4 µm indicated that <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U decreased by 55% and kept changing for 180 s. The number of secondary ions originated from particle surface accounted for 3.1 % of all of number of ions sputtered from the entire particle. These results indicated it is difficult to remove the hydride effect from particle surface by only APM conditions. On the other hand, APM combined with the method manipulating particles under scanning electron microscope can obtained APM data without hydride effect because it is able to get more higher secondary ion counts using almost same conditions, primary beam intensity, measurement time and raster size, of microprobe mode.

3K12 Manual of Measurement and Evaluation of Activation for Decommissioning of Accelerator Facilities MATSUMURA, H.<sup>1</sup>, MASUMOTO, K.<sup>1</sup>, YOSHIDA, G.<sup>1</sup>, TOYODA, A.<sup>1</sup>, NAKAMURA, H.<sup>1</sup>, MIURA, T.<sup>1</sup>

## (<sup>1</sup>High Energy Accelerator Research Organization (KEK))

It is difficult for most facilities to adopt the clearance in the decommissioning of accelerator facilities under the Radioisotope Regulation Law. Therefore, we studied for "Establishment of the measurement and evaluation methods of activated materials for decommissioning of accelerator facilities" in the project for Radiation Safety Research Promotion Fund under the contract of the Nuclear Regulation Authority for four years since FY2017. In this project, we studied the decommissioning method of accelerator facilities with considering the clearance level with the research committee and the Nuclear Regulation Authority of Japan. The results were summarized in a paper as" Manual for measurement and evaluation of activation for decommissioning of accelerator facilities; Electrostatic accelerator facilities. synchrotron radiation experimental facilities, proton therapy facilities, heavy particle therapy facilities, and cyclotron facilities for radioisotope production for positron emission tomography (PET)." In this presentation, the essentials of the manual will be explained.

## 3K13 Feasibility for evaluation of accelerator activation with the portable $\gamma$ -ray imager GeGI5

YOSHIDA, G.<sup>1</sup>, MATSUMURA, H.<sup>1</sup>, NAKAMURA, H.<sup>1</sup>, TOYODA, A.<sup>1</sup>, MIURA, T.<sup>1</sup>, MASUMOTO, K.<sup>1</sup>, SASA, K.<sup>2</sup>,

#### MORIGUCHI, T.<sup>2</sup>, MATSUMURA, M.<sup>2</sup> (<sup>1</sup>KEK, <sup>2</sup>University of Tsukuba)

Accelerator activation is a serious problem in terms of radiation exposure of workers and waste management of radioactive materials. The portable  $\gamma$ -ray imaging device (imager), which has been rapidly developed since the Fukushima nuclear accident, can be supposed to be a breakthrough to visualize the  $\gamma$ -rays from the radiation source, and we have been tackling the application of this novel technology to evaluation of accelerator activation. Although, there have been a variety of commercial y-ray imagers with different measurement methods and detector crystals, no models have been clarified the requirements for applying to evaluation of accelerator activation; determination of activation sites, residual nuclides, and their activity. We had conducted benchmark tests with various commercial devices at assuming an actual accelerator activation, and found the best candidate; GeGI5 manufactured by PHDS Co., US-TN. Currently, we are investigating the requirements for evaluation of accelerator activation with the GeGI5, at accelerator facilities in Japan. In this presentation, we will report the results of preevaluation for selection the best candidate, and series of actual field tests in the accelerator facilities in Japan, by using the GeGI5.

# 3K14 Application of spectral determination method to liquid scintillation spectra

OSHIMA, M.<sup>1</sup>, GOTO, J.<sup>2</sup>, SHINOHARA, H.<sup>1</sup>, SETO, H.<sup>1</sup>, BAMBA, S.<sup>1</sup>, FURUSE, T.<sup>3,4</sup>

#### (<sup>1</sup>JCAC., <sup>2</sup>Niigata Univ., <sup>3</sup>JAEA, <sup>4</sup>IRID)

Liquid Scintillation Counter (LSC) is widely used for the determination of radioactivity. A solved sample including radioactivity is mixed with liquid scintillator so that the emitted radiations ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  and X rays) are effectively absorbed in the material. While the energy resolution is not as good as solid-state detectors, it is expected to be suitable for the analysis of Spectral Determination Method (SDM) which deals with the whole spectral shape.

LSC measurements were performed for H-3, Co-60, Sr-90, and Cs-137 samples, by utilizing an LSC apparatus of Tri-Carb 3110TR supplied by Parkin Elmer, Inc. After quenching correction, we obtained standard spectra for the four samples. From the spectra, we synthesized examination spectra of various concentrations with a common dominant Cs-137 activity of 3,000 Bq.

The SDM analysis is performed to give consistent determination values for the samples, and the accuracies are within 7 % for the concentrations of 100, 33, and 10 % relative to the Cs-137 activity; they are within 20 and 30 % for the concentrations of 3 and 1 %, respectively. We have concluded that the SDM can be applied to the analysis of LSC spectra with mixed radioactivity.

## **3P01** Proposal of new methods for spectroscopy and visualization of astatine compounds

TERAMOTO, T.<sup>1</sup>, OOE, K.<sup>2</sup>, WANG, Y.<sup>3</sup>, HABA, H.<sup>3</sup>, TOYOSHIMA, A.<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>IRS, Osaka Univ., <sup>2</sup>Grad.Med. Osaka Univ.,

#### <sup>3</sup>RIKEN)

<sup>211</sup>At is expected to be a candidate material of the targeted alpha therapy. So far, by multiphoton ionization with tunable nanosecond lasers, the electronic excited states of At atom were observed and the ionization potential and electron affinity of At were determined. However, there are no reports on physiochemical properties of At compounds.

In nuclear medicine treatment, X-rays and  $\gamma$ rays are detected and imaged in order to evaluate the distribution of At in the body. For these high-energy photons, because it is difficult to focus the light with conventional optics, only the emitted light is directly imaged. Therefore, a lot of imaging elements are needed in the imaging devices.

In this study, we will show our current status toward spectroscopy and visualization of <sup>211</sup>At compounds. The covariance mapping method and a single pixel imaging method are introduced for the spectroscopy and visualization of At compounds, respectively,

#### **3P02** Production of Mn-52 and its halflife measurement

KIKUNAGA, H.<sup>1</sup>, SHIRASAKI, K.<sup>2</sup>, IKEDA H.<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>ELPH, Tohoku Univ., <sup>2</sup>IMR, Tohoku Univ., <sup>3</sup>CYRIC, Tohoku Univ.)

Manganese is a transition metal element that takes a wide range of oxidation numbers and forms a variety of complexes. Manganese is an essential micronutrient for plants and animals, but it also has specific effects on living organisms, such as neurotoxicity. It is important to know the behavior of these elements for their biological applications. Mn-52g (half-life 5.6 d), of which about 29% is decayed through + decay, is a nuclide that is being used as a PET nuclide. In this study, we develop a production method for Mn-52g tracer. We have selected natV(,X)52gMn, natCr(d,X)52gMn, and natFe(,X)52gMn for the production reactions. The excitation function measurements of these reactions and the Mn tracer purification method are investigated. In this presentation, we report the results of excitation functions of natV(,X)52gMn.

#### **3P03** Development of an RF ioncollection and mass-separation apparatus toward elucidation of the decay properties of Th-229m

SHIGEKAWA, Y.<sup>1</sup>, TOKOI, K.<sup>2</sup>, YAMAGUCHI, A.<sup>1</sup>, WANG, Y.<sup>1</sup>, YIN, X.<sup>1</sup>, NAMBU, A.<sup>1</sup>, SATO, N.<sup>1</sup>, WADA, M.<sup>3</sup>, HABA, H.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>RIKEN, <sup>2</sup>Osaka Univ., <sup>3</sup>KEK)

The first nuclear excited state of <sup>229</sup>Th, <sup>229m</sup>Th, has an excitation energy of ~8.3 eV, which may allow the variation of decay modes (internal conversion, electron-bridge transition, gamma-ray emission) depending on chemical environments. In order to directly observe the electron-bridge transition and gamma-ray emission of <sup>229m</sup>Th, we aim to control the chemical forms of <sup>229m</sup>Th by reacting <sup>229m</sup>Th ions with gases in an ion trap, and to implant <sup>229</sup>Pa ions into fluoride crystals for prohibiting the internal conversion process of <sup>229m</sup>Th. In this study, we developed an RF ion-collection and mass-separation apparatus for extracting purified <sup>229m</sup>Th and <sup>229</sup>Pa ions with high efficiency. The constructed apparatus includes a He gas cell, where produced ions are decelerated and transported to an RF carpet with a DC electric field gradient. Then the ions are transported to the central hole of the carpet with the RF-surfing technique, and subsequently to a high vacuum through a quadrupole ion guide. Using a quadrupole mass filter, the ions with specific mass-to-charge ratio are transported to a channeltron detector. To evaluate the extraction efficiency and mass resolution, we extracted <sup>220</sup>Rn and its daughter ions recoiling out of a <sup>224</sup>Ra source under various conditions. We clearly observed the mass peaks of <sup>220</sup>Rn<sup>+</sup> and <sup>216</sup>Po<sup>+</sup> with a full width at half maximum of ~1 u. The maximum extraction efficiency of <sup>220</sup>Rn<sup>+</sup> was evaluated to be 15–20%. Hence, it is expected that purified <sup>229m</sup>Th and <sup>229</sup>Pa ions can be extracted with high efficiency and used for studying the decay properties of <sup>229m</sup>Th.

#### 3P04 Spatial variations of <sup>134</sup>Cs concentrations off eastern Hokkaido (2018–2021)

MASHITA, K.<sup>1</sup>, TAKEHARA, R.<sup>1</sup>, INOUE, M.<sup>1</sup>, KAMEYAMA, H.<sup>1</sup>, TANIUCHI, Y.<sup>2</sup>, KURODA, H.<sup>2</sup>, KAERIYAMA, H.<sup>2</sup>, MIKI, S.<sup>2</sup>, NAGAO, S.<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Kanazawa Univ., <sup>2</sup>National Research

Institute of Fisheries Science) Contrarily to the inhomogeneous distributions

of <sup>137</sup>Cs, <sup>134</sup>Cs detected in seawaters in this

study is believed to be entirely derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, considering its short halflife. Thus, the <sup>134</sup>Cs distribution has become a useful chemical tracer of water circulations, including global circulations since the FDNPP accident before its radioactive decay. The lateral distributions of <sup>134</sup>Cs concentrations in surface seawaters in major ocean current systems off the southeastern Hokkaido were  $^{134}Cs$ 2018-2021. The examined in concentrations on the date of the FDNPP accident in the Soya Warm Current (SWC) (mean, 0.67 mBq/L), East Sakhalin Current (ESC) (0.23 mBq/L), and East Kamchatka Current (EKC) (1.3 mBq/L) (data in 2018-2019) predominantly reflect the difference of contribution of **FDNPP-derived** the radiocesium contaminated waters, owing to basin-scale current circulations after the FDNPP accident. The local distribution of the <sup>134</sup>Cs concentrations in the Oyashio Current area off the southeastern coast of Hokkaido (0.4-0.8 mBq/L) were predominantly ascribed to the mixing of the SWC, ESC, and EKC. In this poster presentation, we discuss water circulation patterns in this area including the time-scale after the FDNPP accident, using data in 2018-2021.

# **3P05** Spatial distributions of <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra activity ratio in the Japan Sea and the implications for transport of reactive materials

KAMEYAMA, H.<sup>1</sup>, INOUE, M.<sup>1</sup>, MOROKADO, T.<sup>1</sup>, SHIROTANI, Y.<sup>1</sup>, HANAKI, S.<sup>1</sup>, FURUSAWA, Y.<sup>1</sup>, KOFUJI, H.<sup>2</sup>, MORITA, T.<sup>3</sup>, MIKI, S.<sup>3</sup>, NAGAO, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Kanazawa University, <sup>2</sup>Japan Marine Science Foundation, <sup>3</sup>National Research Institute of Fisheries Science)

Reactive (particle-reactive) radionuclides (e.g., thorium isotopes) in the seawater have been utilized to estimate the scavenging from seawater. To study the migration patterns of reactive materials under dynamic the Tsushima Warm Current (TWC) circulations, fine-resolution spatial and seasonal variations in the <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra activity ratios were examined in seawater samples from the Sea of Japan and East China Sea (ECS) in 2012-2020. The <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra ratios in surface waters with reduced scavenging effect partially maintained the seasonal change in the mixing ratio of the ECS continental shelf side water. The wider variations in the <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra ratios at the surface also exhibited inhomogeneous scavenging in offshore areas. In contrast, the <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra ratios gradually increased from the surface to TWC core layers (depths of 0-350 m). While the variations in the <sup>228</sup>Th/<sup>228</sup>Ra ratios were vertically small in the TWC area (0.1-0.3), those in the northeastern Sea of Japan showed higher values with a wider variation (0.2-0.6). Combined with the salinity, this difference indicates the admixture of subarctic currents with lowsalinity and reduced particle flux.

**3P06** Development of analysis method for <sup>90</sup>Sr in bones using Y separation with DGA resin.

KOARAI, K.<sup>1</sup>, MATSUEDA, M.<sup>1,2</sup>, AOKI, J.<sup>1,</sup> <sup>2</sup>, FUJIWARA, K.<sup>1</sup>, TERASHIMA, M.<sup>1</sup> (<sup>1</sup>JAEA, <sup>2</sup>Fukushima University)

Chemical separation of interference nuclides and matrix of samples is required to accurate measurement of <sup>90</sup>Sr in bone samples. Direct separation of <sup>90</sup>Y, which is daughter nuclide of <sup>90</sup>Sr, from bones seems to be a simplified method because the separation of trivalent Y from the sample can easily remove divalent Ca or Sr. We investigated removal of the elements that including interference nuclides of <sup>90</sup>Y measurement (Cs, Pb, Bi, Th, and U) and matrix elements of bones (Na, Mg, K, Sr, Ba) by a DGA resin. Cs, Pb, Bi, and U were removed from the DGA resin column by successive rinsing processes. Although Th was slightly recovered (1.6%) with Y, interference from Th to 90Y measurement can be ignored due to low radioactivity of Th in bones. Matrix elements of bones, including large amount of Ca, were removed over 99.9% by the rinsing processes.<sup>90</sup>Sr in the NIST reference bone material can be determined by <sup>90</sup>Y measurement after chemical separation with the DGA resin. The Y separation with the DGA resin is adequate to <sup>90</sup>Sr analysis of bone samples.

## **3P07** Quality assurance by in-situ calibration for air dosemeters installed at monitoring stations

SUGIYAMA, M., ISHIKAWA, K., TANAKA,

#### H., NITTA, W., KISHIMOTO, T.

(Japan Chemical Analysis Center)

About 300 air dosemeters (NaI (Tl) scintillation detectors) are installed at the monitoring stations in 47 prefectures to survey air dose rate. In-situ calibration is a useful method to guarantee the measurement quality of the dosemeters since they are fixed to the stations and difficult to transport. Japan Chemical Analysis Center is the only institution in Japan that can provide in-situ calibration based on JCSS (Japan Calibration Service System).

In-situ calibration of air dosemeters has been carried out using the ionization chamber dosemeter as a working standard that is traceable to the national standard. Both air dosemeters and the working standard are irradiated at about 1  $\mu$ Gy/h by Cs-137 point source, and the calibration is performed by comparing the results.

We had been in-situ calibrated 33 air dosemeters installed at prefectures' monitoring stations from 2016 to 2020. Those ratio and working standard was in the range of 0.97 to 1.07. From the results of in-situ calibration, it was confirmed that air dosemeters installed at prefectures were adjusted appropriately. Since 2020, we have been expanding the scope of in-situ calibration to air dosemeters for monitoring nuclear facilities nationwide.

**3P08** Guaranteeing the quality of ocean monitoring SANO, Y., SAKUMA, T., OTA, T.

(Japan Chemical Analysis Center)

The government of Japan has decided that ALPS treated water stored in Fukushima NPP is to be discharged to the ocean. This action should be accompanied by the enhanced ocean monitoring for environmental radioactivity as well as the quality assurance of analytical process performed in the monitoring program. Intercomparison between IAEA and the laboratories which will participate in the upcoming monitoring program is expected to be an significant part of QA.

IAEA established ALMERA (Analytical for the Measurement Laboratories of Environmental Radioactivity) in 1995 as a global network of laboratories capable of performing rapid and reliable analysis in normal and emergency monitoring. As of June 2021, 194 laboratories in 90 countries have been registered in ALMERA, and Japan Chemical Analysis Center has been participating since 2008. Among the proficiency tests sponsored by IAEA is the IAEA-RML-PT, which aims to support laboratories that analyze nuclides such as H-3, Sr-90, and Cs-137 in seawater samples. This time, we will introduce the results of the IAEA-RML-2020-01 PROFICIENCY TEST conducted in 2020, as well as a summary of past results.

**3P09** Measurements of local fields in  $Cd_xFe_{3-x}O_4$  by means of PAC spectroscopy with the <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111m</sup>Cd) and <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111</sup>In) probes

FUJII, M.<sup>1</sup>, KONAKA, M.<sup>2</sup>, ITO, T.<sup>1</sup>, OHKUBO, Y.<sup>3</sup>, SATO, W.<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Grad. Sch. Nat. Sci. Tech., Kanazawa Univ.,

<sup>2</sup>Inst. Sci. Eng., Kanazawa Univ., <sup>3</sup>Inst. Integ. Radiat. Nucl. Sci., Kyoto Univ.)

In our previous study, it was found that <sup>111m</sup>Cd probes of the perturbed angular correlation (PAC) method introduced into an inverse spinel Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> occupy the A site, exhibiting a static perturbation pattern due to magnetic hyperfine interaction. On the other hand, the <sup>111m</sup>Cd probe in a normal spinel CdFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> showed a nuclear spin relaxation. In order to provide insight into the unexpected phenomenon, in this study, we investigated the Cd concentration dependences of PAC spectra for  $Cd_xFe_{3-x}O_4$ , using the <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111m</sup>Cd) and <sup>111</sup>Cd( $\leftarrow$ <sup>111</sup>In) probes. We found from the PAC spectra that the magnetic transition temperature ( $T_{\rm C}$ ) of Cd<sub>0.25</sub>Fe<sub>2.75</sub>O<sub>4</sub> is 753 K. From this observation, it was suggested that the nuclear spin relaxation observed at 773  $K(>T_C)$  is ascribable to the nuclear quadrupole interaction with the electric field gradient. Similar results were also observed above the magnetic transition temperature for samples with Cd concentrations other than x=0.25. Considering that the <sup>111m</sup>Cd probe occupies the A site, these phenomena can be attributed to perturbations by the electric field gradient at the A site. These results demonstrate that the nuclear spin relaxation is characteristic of the probe in the A site of the Cd ferrites.

3P10	Production	of	<sup>47</sup> Sc	for	cancer
therapy	by accelerato	or ne	eutror	IS	

TSUKADA K.	<sup>1,2</sup> , HAS	SHIMOTO,	K.²,
HASHIMOTO,	S. <sup>1</sup> ,	ASAI,	M. <sup>1</sup> ,
HASTSUKAWA,	Y <sup>2</sup> .	SAEKI,	H. <sup>2,3</sup> ,
KAWABATA,	M. <sup>2,3</sup> ,	OHTA,	A. <sup>2,3</sup> ,

#### MOTOMURA, A.<sup>2,3</sup>

(Japan Atomic Energy Agency<sup>1</sup>, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology<sup>2</sup>, Chiyoda Technol Corporation<sup>3</sup>)

Scandium-47 is an attractive radionuclide for cancer therapy, because of emissions of medium energy beta particle (a mean energy of 162 keV) and gamma rays (159 keV) suitable for imaging, and its appropriate half-life (3.35 days). In this study, we have investigated the production of <sup>47</sup>Sc by the <sup>47</sup>Ti(n,p)<sup>47</sup>Sc reaction using fast neutrons from <sup>nat</sup>Be(d,n) reaction at the JAEA tandem accelerator and the CYRIC of Tohoku university. In this presentation, the production activities of <sup>47</sup>Sc and the impurities with 15-40 MeV deuterons will be reported, and we will evaluate the suitable deuteron energy for the production of <sup>47</sup>Sc.

# **3P11** Study on the electronic state of lanthanide endohedral metallofullerenes by HPLC analysis

NISHIMURA, S.<sup>1</sup>, AMEKURA, K.<sup>1</sup>, AKIYAMA, K.<sup>1, 2</sup>, HABA, H.<sup>2</sup>, TAKAMIYA, K.<sup>3</sup>, KUBUKI, S.<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Grad. School Sci., Tokyo Metropolitan Univ., <sup>2</sup> RIKEN, Nishina center., <sup>3</sup>KURNS)

In general, the electronic state of metallofullerenes depend on the number of carbon atom forming fullerene cage and of transferred charge electrons from encapsulated metal atoms so that HPLC retention time of these metallofullerenes such as Ln@C<sub>82</sub> with same charge transferred electrons are almost same as each other.

However, the results of precise HPLC analysis by radio chromatography show the small differences in HPLC retention time between each  $Ln@C_{82}$ . Recently, we reported the precise HPLC retention time for  $Ln^{3+}@C_{82}^{3-}$ (from La to Ho) and the possibility of the difference in the number of unpaired electrons in the 4f orbitals affected on the electronic state. In this study, we tried to obtain more detailed knowledge of electronic states by conducting thermodynamic analysis of HPLC analysis.

The HPLC retention time of higher fullerenes (carbon number: 76, 78, 84, 86) were developed on a Buckyprep column as a function of temperature. The differences in the slope caused by the phase transition of the stationary phase was clearly observed between -20 °C and -30 °C from Van't Hoff plots of obtained HPLC retention time. In addition, the HPLC retention time of La@C<sub>82</sub> at -15 °C is found to be larger than that observed at room temperature.

#### **3P12** Precise and rapid <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U analysis of rock samples by mass spectrometry KURIBAYASHI, C., TANIMIZU, M.

(Kwansei Gakuin Univ.)

Uranium is one of trace elements distributed in the Earth's surface, and also released into the environment through the nuclear fuel cycle. Their origin and residence time are assessed from U isotopic ratios. <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U isotopic ratios are often used for radiometric dating, but they are also applied as a tracer in geochemical research. With a recent development of mass spectrometry, <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U ratios are precisely and rapidly determined by isotope analysis compared to the conventional alpha spectrometry. In this study, isotopic variation of 234U/238U ratios was analyzed from Permian to Cretaceous limestones by MC-ICPMS to evaluate degrees of the secular equilibrium condition. Limestones in closed system for over million years were estimated to be in the secular equilibrium condition. <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U isotope ratios were determined after the chemical purification through Fecoprecipitation and anion exchange chromatography. As the result, a precision of about 0.2 % was obtained with approximately 2 ng U. Moreover, <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U ratios of the analyzed limestones showed the almost secular equilibrium condition, and they can be used as a working isotope reference for geochemical studies.

### 発表者索引
### A

ABE, G	2P08
ABE, M	
AKIYAMA, K 1K10, 1P10,	3K01, 3K08,
3P11	
AMEKURA, K	3P11
ANDO, T	1K11
AOI, K	2P10
AOKI, J	<u>2P06</u> , 3P06
AOKI, R	. <u>1K15</u> , 1K16
ASAI, M 1K13, 1K15, 1K16	5, 3K05, 3P10
AZUMA, T	3K03

### B

BAMBA, S	3K14
BINGHAM, P. A	1P10
BRIONNET, P	1K14

### С

CHEN, S		1K14
CHIU, I	<u>1P09</u> ,	<u>3K03</u>

### E

EBIHARA, M	<u>1K01, 2S02</u>
ESAKA, F	3K11

### F

FUJII, M	1K07, <u>3P09</u>
FUJIU, M.	1K02
FUJIWARA, K.	3P06
FUKASE, K	3K07
FUKUDA, M.	3K05
FUKUMURA, K	<u>1P11</u>
FURUSAWA, Y.	3P05
FURUSE, T	3K14

FURUTANI, H 1P1
-----------------

### G

GO, S	1K13
GOTO, J	3K14
GOTO, S	1K16, 1P01
GUO, Q	

### H

HABA, H 1K14, 1P02, 1P04	, 2P10, 3K06,
3K07, 3P01, 3P03, 3P11	
НАМАМОТО, Т	2K05
HAMANO, K	1K12
HANAKI, S	3P05
HASHIMOTO, K	3K04, 3P10
HASHIMOTO, S	3P10
HASHIMOTO, T	1K14
HATSUKAWA, Y	3P10
HIBINO, Y	2P05
HIRAYAMA, Y	1K14
HIROSE, K	1K13
HOMONNAY, Z	1K10
HONMA, K	3K09
HOU, D. S	1K14
HUANG, X	<u>3K07</u>
HUANG, Z	1P06

### Ι

IDEGUCHI, E	1K13
IGARASHI, J	
IIDA, M	<u>1P05</u> , 2P05
IIMURA, S	1K14
IKEDA, H	
INAGAKI, M	<u>1K05</u>
INOUE, M	

ISHIBASHI, Y	1K13
ISHIDA, K	2K05
ISHIKAWA, K	
ISHIYAMA, H	1K14
ISHIZAWA, S	1K14
ISOGAI, K	1P05, 1P08, 2P05
ITO, T	<u>1K07</u> , 2P09, 3P09
ITO, Y 1	K13, 1K14, 1K15, 1K16

### J

JINNO, S.		2K04
-----------	--	------

### K

KABAYAMA, K	3K07
KADONAGA, Y	1P02, 3K06, 3K07
KAERIYAMA, H	3P04
KAI, T	1K13
KAJI, D.	1K14
KAMEYAMA, H	
KANDA, A	3K06
KANETA, Y	2K06
KASAMATSU, Y	1P02, 1P03, 2P01,
2P02, 2P03, 3K06	
KATAYAMA, D	3K07
КАТО, Н	3K07
KATO, Y	2K07, 2K08
KATSURAGAWA, M.	1P09, 3K03
KAWABATA, M	
KAWAMURA, T	2P08
KHAN, I	<u>1K10</u> , 3K01
KIJI, M.	1K12
KIKUNAGA, H	3K01, 3K08, <u>3P02</u>
KIM, E	
KIMURA, S	1K14
KISHIMOTO, T	1P05, 3P07
KITAGAWA, A	1K11, 1K12

KITASE, K	<u>1K09</u>
KITATSUJI, Y	2P11, 2P12
KOARAI, K.	2P06, <u>3P06</u>
KOBAYASHI, K	2K06
KOBAYASHI, T	2K06
KOBAYASHI, Y	1K11, <u>1K12</u>
KOFUJI, H	3P05
KOGURE, T	1K03
KOIKE, Y	1K06
KOJIMA, S	
KOMATSUDA, S	<u>1K08</u>
KONAKA, M	1K07, 3P09
KONANSHI, K	3K09
KONNO, Y	
KOWATARI, M	
KUBO, K	1K11, 1K12, 3K03
KUBUKI, S 1K10,	1P10, 3K01, 3K08,
3P11	
KUMAGAI, N	2K01
KURIBAYASHI, C	<u>3P12</u>
KURIHARA, O	
KURODA, H	3P04
KUZMANN, E	1K10
KUZUMI, K	1K16

### L

### М

MA, Z	<u>3K09</u>
MAKII, H	1K13, 1K16
MARUYAMA, S	2P10
MASHITA, K	<u>3P04</u>
MASUMOTO, K	3K12, 3K13
MATSUDA, S	2K06
MATSUE, H	2K03, 2K04

MATSUEDA, M 2P06, 3P0	96
MATSUMURA, H <u>3K12</u> , 3K	13
MATSUMURA, M 3K	13
MATSUNAGA, S 1K	13
MATSUZAKI, H 1Ke	01
MIHARA, M 1K11, 1K	12
MIKI, S 3P04, 3P	05
MIKOUCHI, T 1K0	03
MINAMI, T. (Kanazawa Univ.) 1K0	02
MINAMI, T. (Univ. Tokyo) 1P09, 3K0	03
MINOWA, H <u>1K04</u> , 2K07, 2K08, 2P0	04
MIURA, T. (NMIJ, AIST) <u>2K0</u>	04
MIURA, T. (KEK) 3K12, 3K	13
MIYAKE, Y 3K0	03
MIYAMOTO, S 3K0	05
МІҰАМОТО, Ү 2Р12, 3К10, 3К	11
MIYATA, S 1P07, 2P05, <u>2P0</u>	07
MIYATAKE, H 1K	14
MIYAZAKI, J 1K	11
MOON, J. Y 1K	14
MORIGUCHI, T 3K	13
MORIGUCHI, Y 1K0	)1
MORII, S	11
MORIMOTO, K 1K1	4
MORITA, K 1K13, 1K	14
MORITA, T 3P0	05
MOROKADO, T 3P0	05
MOTOMURA, A 3P	10
MURAKAMI, A <u>2P</u>	04
MUTA, H 1P	13

NAGAO, S	<u>1K02</u> , 3P04, 3P05
NAGASAWA, S	1P09, 3K03
NAGATA, K 1P11	, 1P13, 2K06, 3K06
NAGATA, Y	1K13
NAGATOMO, T	1K11, 1K12
NAKAGAWA, S	1P02, <u>3K06</u>
NAKAI, Y	3K05
NAKAJIMA, A	1P04
NAKAJIMA, T	
NAKAMURA, H	3K12, 3K13
NAKAMURA, T	3K03
NAKANISHI, R	1P03, 2P02, <u>2P03</u>
NAMBU, A	1P04, 3P03
NI, Y	<u>1P06</u>
NINOMIYA, K	1P09, 2P04, 3K03
NISHIBATA, H	1K13
NISHIMURA, S	<u>3P11</u>
NISHINAKA, I	2P10, <u>3K04</u>
NISHIO, K	1K13, 1K16
NITTA, W	1P05, 1P07, 3P07
NIWASE, T	1K13, <u>1K14</u>

### 

OCHIAI, S	1K02
OGATA, Y	2K07, <u>2K08</u>
OGAWA, N	1K06
OHKUBO, Y	1K08, 3P09
OHTA, A	3P10
ОНТА, Т	2P05
OHTA, Y 1P07	, 1P08, 2P05, 2P07
OHTSUKI, T. (KURNS)	1K05
OKADA, S	3K03
OKADA, Y	
OKAYAMA, A	2P05
OKAZAWA, A	1K12
OKI, Y	1K05

### N

NAGAE, D	1K13, 1K14
NAGAI, A	<u>1P04</u>
NAGAI, Y	<u>2P10</u>
NAGAME, Y	1K15, 1K16

OKUMURA, M	
OKUMURA, T	<u>1K03</u>
OMORI, T	3K05
OOE, K	1P02, 3K06, 3K07, 3P01
ORLANDI, R	1K13, 1K16
OSAWA, T	
OSHIMA, M	<u>3K14</u>
ОТА, Н	
OTA, T	
OTAKA, S	1P03, 2P02, 2P03
OTANI, R	1K15, <u>1K16</u>
OTSUKI, T. (JCAC	)1P05, <u>1P08</u>
OUCHI, K	2P11
OURA, Y	1K01, 2K02, 3K02

### Р

РНАМ, Т. Т	1K13
PUTRA, D. I. P	1K02

### R

REZA, S	<u>3K02</u>
ROSENBUSCH, M	1K14

### S

SAEKI, H	3P10
SAITO, R. (Meiji Univ.)	<u>1K06</u>
SAITOU, R. (TMU)	<u>3K01</u>
SAKAGUCHI, A	1P04
SAKAGUCHI, S	1K13
SAKAMA, M	1K16
SAKUMA, T	3P08
SANO, Y	<u>3P08</u>
SASA, K.	3K13
SASAKI, M	2K03
SATO, M	1K11, 1K12
SATO, N	3P03

SATO, S	1K11, 1K12
SATO, T. K 1K	13, 1K15, 1K16
SATO, W 1K07, 1K08, 1K	11, 1K12, 2P09,
3P09	
SATO, Y	<u>1K11</u>
SAWAMURA, K	<u>2P01</u>
SCHURY, P	1K14
SEKIGUCHI, T	2K06
SEKIMOTO, S	1K05
SENO, H	2P13
SETO, H	3K14
SHIBUTANI, S	2K05
SHIGEKAWA, Y	2P01, <u>3P03</u>
SHIMOJO, K	2K06
SHIMOMURA, K	3K03
SHIMOYAMA, A	3K07
SHINOHARA, A 1P02,	1P03, 1P13,
2P01, 2P02, 2P03, 2P04,	3K03, 3K05,
3K06, 3K07	
SHINOHARA, H	3K14
SHIRAI, N	1K01
SHIRASAKI, K	<u>1P12</u> , 3P02
SHIROTANI, Y	3P05
SHIZUMA, T	1K13
SINKO, K.	1K10
SOME, K	1K11
SUGISAKI, F	
SUGIYAMA, K	<u>1K13</u>
SUGIYAMA, M	1P08, <u>3P07</u>
SUTO, M	<u>2P05</u>
SUWA, T	
SUZAKI, F	3K01, <u>3K08</u>
	3K01, <u>3K08</u> 1K13
SUZUKI, D	3K01, <u>3K08</u> 1K13 3K10, 3K11
SUZUKI, D SUZUKI, K. (JCAC)	3K01, <u>3K08</u> 1K13 3K10, 3K11 1P07, 2P07
SUZUKI, D SUZUKI, K. (JCAC) SUZUKI, K. (GPFES)	3K01, <u>3K08</u> 1K13 3K10, 3K11 1P07, 2P07 2K01
SUZUKI, D SUZUKI, K. (JCAC) SUZUKI, K. (GPFES) SUZUKI, K. (Tohoku Univ.)	3K01, <u>3K08</u> 1K13 3K10, 3K11 1P07, 2P07 2K01 3K09

SUZUKI, S	. <u>1P07</u>
SUZUKI, T	3K09

### T

TAGAMI, K	1P06, <u>2K05</u>
TAKAHAMA, N	1K11
TAKAHASHI, T	1P09, 3K03
TAKAHASHI, Y	2K06, 2P12
TAKAMINE, A	1K14
TAKAMIYA, K 1K(	05, 1P03, 1P13, 2K07,
3P11	
TAKAMURA, R	1K16
TAKEDA, S	1P09, 3K03
TAKEHARA, R	3P04
TAKESHITA, S	3K03
ТАМРО, М	3K03
TANAKA, K	2K06
TANAKA, H	1P08, 3P07
TANAKA, T	1K14
TANIDA, H	
TANIGUCHI, A	3K03
TANIMIZU, M	3P12
TANIUCHI, Y	3P04
TAZAWA, T	1K09
TERADA, K	3K03
TERAMOTO, T 1P	02, 1P13, 3K06, <u>3P01</u>
TERANISHI, K	1P04
TERASHIMA, M	
TOKOI, K <u>1P</u>	<u>02</u> , 1P13, 3K06, 3P03
TOMIHARA, S	1K02
TOMIMATSU, T	1K13
TOMITA, J	<u>3K10</u> , 3K11
TOMITA, R	3K10, <u>3K11</u>
TOYODA, A	3K12, 3K13
TOYODA, M	1P13
TOYOOKA, S	

TOYOSHIMA, A	1P02,	<u>1P13</u> ,	3K05,
3K06, 3K07, 3P01			
TSUKADA, K 1K13	3, 1K15	, 1K16,	3K05,
<u>3P10</u>			
TSUNODA, H	•••••	•••••	<u>1P01</u>
TSURUTA, H			. 1K01
TUCHIDA, R			. 3K01

### U

UCHIBABA, Y	1K15, 1K16
UCHIDA, S	1P06, 2K05
UCHINO, H	
UMEGAKI, I	3K03

### W

WADA, M	1K14, 3P03
WADA, S	3K05
WADA, T	3K03
WANG, XS	
WANG, Y 1P02, 3K06	, 3K07, 3P01, 3P03
WASHIYAMA, K	1K13, 2P10, 3K04
WATANABE, E	. <u>1P03</u> , <u>2P02</u> , 2P03
WATANABE, S. (GPFES)	2K01
WATANABE, S. (JAXA) .	1P09, 3K03
WATANABE, Y, X	1K14
WOLLNIK, H	1K14

### X

```
XIAN, W. ..... 1K14
```

### Y

YAITA, T	2K06
YAMADA, Y	1K11, 1K12
YAMAGUCHI, A. (JAEA)	<u>2K06</u>
YAMAGUCHI, A. (RIKEN)	3P03
YAMAGUCHI, N	1K03

YAN, S. X		•••••	1K14
YANG, G			<u>2P13</u>
YASUDA, K		3K1(	), 3K11
YIN, X			3P03
YOKOKITA, T			1P04
YOKOYAMA, K			2K06
YOKOYAMA, A		1P04	4, 2P10
YOMOGIDA, T	2P	11, <u>2P12</u>	<u>2</u> , 3K11
YOSHIDA, G	3K(	)3, 3K12	2, <u>3K13</u>
YOSHIDA, M			1P05
YOSHIKAWA, H	•••••	1K04	4, 2P04
YOSHIMURA, T	1P02,	1P11,	1P13,
2K06, 2P04, 3K06			
YUHARA, M			<u>3K05</u>

### Ζ

ZHANG, B	<u>1P10</u>
ZHANG, L	1P10
ZHENG, J	1P06, 2P13

本討論会の開催にあたりましては、以下の企業、団体から ご協力をいただきました、厚く感謝申し上げます。

#### 協賛

株式会社アトックス 株式会社アールデック 株式会社池田理化 有限会社ウッドベル 株式会社大阪真空機器製作所 株式会社カイズワークス 金属技研株式会社 住友重機械工業株式会社 大栄無線電機株式会社 東京ニュークリア・サービス株式会社 株式会社千代田テクノル 株式会社テクノエーピー 株式会社トミー精工 伯東株式会社 浜松ホトニクス株式会社 ハヤシレピック株式会社 ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ 株式会社 ヤトロ電子株式会社

#### 賛助会員

クリアパルス株式会社 株式会社千代田テクノル 東京ニュークリア・サービス株式会社 東京パワーテクノロジー株式会社 長瀬ランダウア株式会社 に木工芸株式会社 株式会社日本環境調査研究所 富士電機株式会社 ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ 株式会社 公益財団法人原子力安全技術センター 公益社団法人日本アイソトープ協会 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 公益財団法人日本分析センター 公益財団法人放射線影響協会 一般財団法人放射線利用振興協会 九州電力株式会社 中国電力株式会社 東京電力ホールディングス株式会社 北海道電力株式会社



厳しい環境変化に即応じ、絶えず変革し、 新しい路を切り拓いて行く、 発展し続ける企業を目指します。

Water O-18

## http://www.atox-isotope.jp/







【お問い合わせ】 株式会社アトックス 東京営業所

> 〒277-0861 千葉県柏市高田1408 TEL:04-7141-1321 FAX:04-7141-1323

> > 株式会社 アトックス





## 池田理化は「理化学機器の総合商社」としてこれからも、先端科学の研究を支え続けます



https://www.ikedarika.co.jp/



本 社 〒101-0044 東京都千代田区鍛冶町1-8-6 神田KSビル TEL:03-5256-1811 FAX:03-5256-1818

八王子支店	TEL:042-642-0570	大 阪 支 店	TEL:06-6136-1255
小金井支店	TEL:0422-39-5441	岩 国 支 店	TEL:0827-21-6701
鶴 見 支 店	TEL:045-501-5881	千 葉 支 店	TEL:043-290-4055
横浜支店藤沢支店店	TEL:045-983-0491	つくば支店	TEL:029-836-6611
	TEL:0466-54-0300	埼玉支店	TEL:049-245-7831
	TEL:0463-37-4711	宇都宮支店	TEL:028-610-3722
三	TEL:052-975-0975 TEL:054-644-5551 TEL:052-249-8350	机幌支店	TEL:011-208-2822



加速器用ビーム診断機器メーカーとして、豊富な経験と実績をもとに様々なニーズにお応えします。

### 重イオン加速器用各種ビーム診断機器

### ■ビームプロファイルモニター



	型式	WPM-152-40-136	
	駆動方式	ニューマチック駆動(エアーシリンダー)	
用Q 番h 立Q	真空シール	溶接ベローズ(寿命50,000回)	
向に 実力 ロト	ストローク量	73mm	
	取付フランジ	CF152	
重场如	検知ビーム径	$\phi$ 40mm	
电型叩	電極	タングステンリボン(3mm×0.3t)	

■ファラデーカップ



	型式	WFC-152-40-136
	駆動方式	ニューマチック駆動(エアーシリンダー)
<b>⋿</b> ∇ 番Һ 立/	真空シール	溶接ベローズ(寿命100,000回)
向に当り口り	ストローク量	65mm
	取付フランジ	CF152
	検知ビーム径	$\phi$ 40mm
梌出部	材質	無酸素銅
에비젓다	冷却方式	水冷(間接冷却)
		サプレッサー電極付

■2軸ビームスリット



	型式	WSL-152-40-136
	駆動方式	ステッピングモーター
用Q 重h 立Q	真空シール	溶接ベローズ(寿命10,000回)
同안 크게 다	ストローク量	20√2(28.28mm×2軸)
取付フランジ		CF152
	検知ビーム径	$\phi$ 40mm
フリット部	材質	無酸素銅
冷却方式		水冷(直接冷却)
		電流検出機構有

**有限会社 ウッドベル** 埼玉県富士見市渡戸1-1-62 TEL 049(268)7061 FAX 049(252)9041 E-Mail:<u>mail@vacwoodbell.jp</u>





当社製品案内

### ENGLISH PAGE

TEL. 042-568-0866 〒190-1222 東京都西多摩郡瑞穂町 箱根ヶ崎東松原9-18



トップページ

株式会社カイズワークスは、理学計測器及び周辺機器の設計・製造・開発を行う会社です。

会社概要

製品一覧

アクセス

採用情報

お問い合わせ

株式会社カイズワークス

〒190-1222 東京都西多摩郡瑞穂町

箱根ヶ崎東松原9-18 TEL 042-568-0866 FAX 042-568-0867

新製品情報 <b>新製品</b> & バージョンアップ情報	N I M規格製品 が射線測定標準規格TID- 20893に準拠した モジュール	CAMAC規格製品 していたのでは、 していたのでは、 していたので、 していたいでいで、 していたいでいでいで、 していたいで、 していたいで、 していたいで、
VME規格製品	高電圧関連製品	19インチラック関連製品
MWDC関連製品 マルチワイヤー ドリフトチェンバー等	同軸ケーブル・Jネクタ関連製品	その他製品 で す で す で す で ・ 見 格 以 外 製品



## Accelerate for the **Future**

Proton Therapy System 陽子線治療システム

器製造販売承認番号:21300BZZ00130000



230 MeV サイクロトロン



ラインスキャニング法



相澤病院陽子線治療センター様



PET Radio-Tracer Production System PET薬剤製造システム



CYPRIS HM-12Sサイクロトロン



FDG合成装置(F300) 



### **Other Accelerators for various use**



CYPRIS HM-30サイクロトロン



CYPRIS MP-30サイクロトロン



重粒子線治療用DTL+RFQライナック

## Sumitomo Heavy Industries, Ltd.

住友重機械工業株式会社 産業機器事業部 東京都品川区大崎2-1-1 ThinkPark Tower (TEL: 03-6737-2566) (本社) (関西支社) 大阪市北区中之島2-3-33 (TEL 06-7635-3629)







**CR-110**シリーズは、チャージ・センシティブ(電荷感応型)プリアンプ(CSP) 1チャンネル分の回路を収めた 8ピンSIPパッケージです。

半導体検出器(CdTe、CZT等)、PINフォトダイオード、アバランシェ・フォト ダイオード(APD)、ガス封入型の各種検出器など、様々な種類の放射線検 出器で使用できるように設計されています。

**CR-110**シリーズには、**CR-110~CR-113**の4種類の**CSP**があります。 ゲインの違いによって、4種類に分かれています。

	.= 0 0	0 10			
型番	CR-110	CR-111	CR-112	CR-113	単位
笨価辦辛雪荷(FNC) PMS <sup>*1</sup>	200	600	7000	18000	e-
守恤稚自 电彻 (ENC) KMS	0.03 0.1 1.1 3 fC	fC			
等価雑音(Si)	1.7	5		-	keV(半值幅)
等価雑音(CdZnTe)	2.4	7	I	-	keV(半值幅)
等価雑音勾配	3.8	3.8	30	30	e <sup>-</sup> (RMS)/pF
ゲイン	1400	130	13	1.3	mV/pC
ゲイン パルフロ Lin時間 (4.) *2	<b>1400</b> 3	<b>130</b> 2	<b>13</b> 3	<b>1.3</b>	mV/pC ns
ゲイン パルス立上り時間 (tr) *2	1400 3 0.17Cd+3	130 2 0.05Cd+2	13 3 0.13Cd+3	1.3 1 0.09Cd+1	mV/pC ns ns
<b>ゲイン</b> パルス立上り時間(tr) <sup>*2</sup> 減衰時定数	<b>1400</b> 3 <b>0.17</b> Cd+3 140	<b>130</b> 2 <b>0.05</b> Cd + 2 150	<b>13</b> 3 <b>0.13</b> Cd + 3 50	1.3 1 0.09Cd+1 50	mV/pC ns ns μs
<ul> <li>ゲイン</li> <li>パルス立上り時間(tr)*2</li> <li>減衰時定数</li> <li>非飽和出力振幅</li> </ul>	<b>1400</b> 3 <b>0.17</b> Cd + <b>3</b> 140	130 2 0.05Cd+2 150 −3 ~	13 3 0.13Cd+3 50 +3	1.3 1 0.09Cd+1 50	mV/pC ns ns μs V
<b>ゲイン</b> パルス立上り時間(tr)*2 減衰時定数 非飽和出力振幅	$     \begin{array}{r}       1400 \\       3 \\       0.17Cd+3 \\       140 \\       1.3 \times 10^7     \end{array} $	$   \begin{array}{r}     130 \\     2 \\     0.05Cd + 2 \\     150 \\     -3 \sim \\     1.3 \times 10^8   \end{array} $	$     \begin{array}{r}       13 \\       3 \\       0.13Cd + 3 \\       50 \\       7 + 3 \\       1.3 \times 10^9     \end{array} $	$     \begin{array}{r}       1.3 \\       1 \\       0.09Cd+1 \\       50 \\       1.3 \times 10^{10}     \end{array} $	mV/pC           ns           μs           V           e <sup>-</sup>

\*1 入力を接続せずに、シェービング時間がlµsのガウシアン・ シェービングアンプを接続して測定した値です。

入力に検出器を接続した場合は、検出器の静電容量、漏れ 電流、誘電損失によるノイズが、左表の値に加算されます。

<sup>2</sup> パルス立上り時間(=最大値の90%に達するまでの時間) は、入力容量と比例関係にあります。

実際の状況下での立上り時間は、以下の計算式で求めます。  $tr = \alpha \cdot Cd + \beta[ns]$ 

左表では、入力容量に加算されるα・Cd=0と仮定した値を、 パルス立上9時間としています。

なお、trは**パルス立上り時間** [ns]、Cd は接続された検出器の 静電容量 [pF] です。



### **CR-200**-50ns ~ **CR-200**-8µs ガウシアン・シェーピングアンプ



CR-200シリーズはガウシアン・シェーピング アンプで、チャージ・センシティブ(電荷有感型)プリアンプから入力されるテールパルス 信号を読み取ります。ステップ状の入力パル スを、ガウス関数のような形状にシェーピング (整形)して出力します。

**テールパルス**から**ガウス関数**への変換だけ でなく、信号に含まれるノイズをフィルタリング することも目的の一つです。



刑委	シェーピング	出力パルス幅
空笛	時間	(半値幅)
CR-200-50ns	50 ns	120 ns
CR-200-100ns	100 ns	240 ns
CR-200-250ns	250 ns	590 ns
CR-200-500ns	500 ns	1.2 μs
CR-200-1µs	1 μs	2.4 μs
CR-200-2µs	2 µs	4.7 μs
CR-200-4µs	4 μs	9.4 μs
CR-200-8µs	8 µs	19.0 µs

#### cremat detection electronics

#### CR-210 ベースライン・レストアラ



CR-210はベースライン・レストアラ(回復回路) で、ベースラインのシフトを補正します。 AC結合のパルス増幅器では、ベースラインの シフトによって波高スペクトルの分解能が低下 する可能性があります。

カウントレートが高い場合には、ベースラインの 低下や、接地電位に対する波高スペクトルの 低下が発生するため、補正が必要です。 CR-150 評価ボード (CR-110~CR-113用)



CR-160 評価ボード (CR-200, CR-210 用)

(CR-110~CR-113用)

CR-150-BOX ハウジング

CR-160-BOX ハウジング (CR-200. CR-210 用)





///FR5T ComTec GmbH

MCA4A 4 入力 マルチチャンネル・アナライザ







〒101-0021 東京都千代田区外神田 3-10-10 白銀ビル 3F TEL 03-3255-0931 FAX 03-3255-9869 http://www.daiei-dmd.co.jp/ Email: sales@daiei-dmd.co.jp





放射線は危険な性質を持っている反面、

有効に利用すれば人類に大きなメリットを与えてくれる無限の可能性をそなえています。

千代田テクノルは、医療・原子力・産業・放射線測定などの各分野において、

放射線を安全に有効利用するための機器やサービスをトータルに提供。

放射線の「利用」と「防護」の双方において、お客様のあらゆるニーズにきめ細かく対応しています。



U R L: http://www.c-technol.co.jp e-mail: ctc-master@c-technol.co.jp

> 千代田テクノル 検索 158

JQA-QM8513 Tokyo · Osaka Kashiwazaki Kariwa

### 計測機器はテクノエーピーにお任せください。

**Techno**AP

高度な技術と豊富な知識でこれまでにない、高計数・高分解能での計測を実現!







PFEIFFER VACUUM

## <sup>™</sup> ファイファーバキューム製 スクロールポンプ(HiScrollシリーズ)



✓静音性(<48dB)</li>
 ✓真空計内部搭載モデルあり
 ✓マルチボルテージ仕様

 (100V~240V)
 ✓耐久性の強いベアリング使用
 ✓お客様にてチップシール交換容易
 (用途によるが2.5年に一度を推奨。)

## デモ機貸し出し可能!!

### 基本スペック表

	HiScrol6	HiScroll12	HiScroll18
吸気口	NW25	NW25	NW25
排気口	NW25	NW25	NW25
排気速度	6.1 m³/h	12.1 m³/h	18.1 m³/h
到達圧力	2 Pa	0.9 Pa	0.7 Pa
リークレート	5 • 10⁻ <sup>7</sup> Pa m³/h	5 · 10⁻ <sup>7</sup> Pa m³/h	5 • 10⁻ <sup>7</sup> Pa m³/h
冷却方法	空冷	空冷	空冷
通常騒音レベル	48 dB(A)	47 dB(A)	47 dB(A)
重量	19 kg	24 kg	23 kg

※価格は担当営業までご相談ください。



光電子増倍管シリーズ

# 高エネルギー用高感度光検出器

浜松ホトニクスは微弱光計測・放射線計測向けの光電子増倍管や MPPC (SiPM) などさまざまな光センサをラインアップしています。

### 浜松ホトニクス株式会社

WEB SITE www.hamamatsu.com 電子管営業推進部 〒438-0193 静岡県磐田市下神増314-5 TEL (0539) 62-5245 FAX (0539) 62-2205

仙台営業所 TEL (022) 267-0121 中部営業所 TEL (053) 459-1112

筑波営業所 TEL (029) 848-5080 大阪営業所 TEL (06) 6271-0441 161

本製品の詳しい情報は、 Web サイトでご覧いただ けます。



東京営業所 TEL (03) 3436-0491 西日本営業所 TEL (092) 482-0390



## ケーブルアセンブリのご用命は HR HAYASHI-REPICまで

国内工場でアセンブリを行うため、短納期を実現します。 小ロット、1本からのご注文の対応も可能です。

長年にわたり、同軸ケーブル&コネクタのアセンブリの取引実績をもつ弊社では、あらゆる アセンブリを、国内ならではの短納期で実現。試作品などの小ロットオーダーにも対応可能です。 またご要望がある場合は、弊社担当者が用途に最適なケーブル&コネクタの選定・設計から、 ご相談に応じます。 ※納品までの日程は仕様・製品により異なります。

### 低損失高周波ケーブルアセンブリ

●インピーダンス: 50Ω
 ●周波数:~26.5GHz
 ●対応コネクタ: N·SMA·3.5mm



### セミリジッド・セミフレキシブルケーブルアセンブリ

●インピーダンス:50Ω
 ●周波数:~40GHz
 ●対応コネクタ:N・SMA・3.5mm・K(2.92mm)





## ミリオンテクノロジーズ・キャンベラの 放射線計測システム

研究、防衛、原子力発電所など、放射化学の分野に高い技術力で貢献します



Intelligent Cryo-Cycle<sup>™</sup> (iCC): インテリジェント・クライオサイクル



Cryo-Pulse<sup>®</sup> 5 plus (クライオパルス 5 プラス): 電気冷却式 クライオスタット



ゲルマニウム半導体検出器



DSA-LX<sup>™</sup> : デジタルシグナルアナライザ



Aegis™: 可搬型 HPGe スペクトロメータ



SPIR-Ace<sup>™</sup>(GenieXport<sup>™</sup>): Genie 対応核種同定サーベイメータ



シリーズ 6LB: 低バックグラウンド $\alpha/\beta$ 自動計測システム



LB4200 型: 多チャンネル低バックグラウンド α / β 計測システム

163



ISOCS<sup>™</sup> : ガンマ線分析システム

Copyright © 2021 Mirion Technologies, Inc. or its affiliates. All rights reserved. Mirion, the Mirion logo, and other trade names of Mirion products listed herein are registered trademarks or trademarks of Mirion Technologies, Inc. or its affiliates in the United States and other countries. Third party trademarks mentioned are the property of their respective owners.

TEL 03-5835-5402(東京本社) TEL 06-4806-5662(大阪営業所) E-mail jp-sales@mirion.com

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ(株)

URL www.mirion.com/jp



### ヤトロ電子は 対応力に自信があります。

研究分野の最前線にいらっしゃる皆さまから 長きにわたりご支持をいただいております。

	パソコン・サーバー	ネットワーク機器	PC周辺機器	ソフトウェア	PCパーツ
	一般家電	計測器	電子部品	エ具	研究関連
ヤトロ電子の 取扱商品	什器	事務用品	海外限定商品	WEB限定商品	各種工事
	修理	データ復旧	中古品	入札案件	その他



営業担当2名体制

外勤営業・内勤営業の2名体制でご担当いたし ます。いつでも連絡がとれて回答が早いです。



急ぎの案件、年度末も効率的 長年、教育・研究機関のお客さまとお取引をして いるため急ぎの案件や年度末も熟知しております。 複雑な書類もお任せください。

ヤトロ電子の特長



お客さま目線

お客さまの立場になって柔軟に対応いたします。 売りたいモノを提案するのではなく、お客さまが 必要なモノをお届けいたします。



専属チームでのサポート 新人からベテランまで1つのチームになって 情報を共有。担当だけではなくチームで対応 いたします。



幅広い仕入れ・強い仕入れ 取扱商品が多数あり、WEB購入、海外からの 輸入もお任せください。広いだけではなく強い 仕入力を持っています。



付き合いの長いお客さまが多い お取引したお客さまからはリピート率が高く、 長年お付き合いさせていただいてます。また、 異動してもお取引いただいてます。



〒300-3257 茨城県つくば市筑穂1-11-8 TEL:029-864-4484 FAX:029-864-4485 164 東京営業所

〒120-0034 東京都足立区千住1-11-2 北千住Vビルディング8F TEL:03-3879-3355 FAX:03-3879-3356

東北営業所 〒984-0075 宮城県仙台市若林区清水小路6-1 仙台ファーストビル4F TEL:022-796-3255 FAX:022-796-3256







# 日本放射化学会第 65 回討論会(2021) 講演要旨集 編集・発行 : 日本放射化学会第 65 回討論会(2021) 実行委員会 (共同実行委員長:大浦泰嗣、羽場宏光) 事務局 : 東京都立大学理学部化学科内 〒192-0397 東京都八王子市南大沢 1-1 理化学研究所仁科加速器科学研究センター核化学研究チーム内 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1 発行日 : 2021 年 9 月 ※許諾・許可なしに本講演要旨集の全部もしくは一部の 転載,翻訳,複写,その他の複製を禁じます. ② 2021 日本放射化学会