

ISSN 2434-1088

KURNS-EKR-21

PRINT ISSN 2434-6209

PRINT KURNS-KR-6

京都大学複合原子力科学研究所  
「第59回学術講演会報文集」

Proceedings of the 59<sup>th</sup> KURNS Scientific Meeting

開催日：令和7年1月30日、1月31日  
(January 30 and 31, 2025)

京都大学複合原子力科学研究所  
Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University

## 第 59 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会プログラム

開催日：令和7(2025)年1月30日(木) 10:30～1月31日(金)14:50

依頼講演：京都大学複合原子力科学研究所 事務棟大会議室（ハイブリッド開催）

一般講演：京都大学複合原子力科学研究所 図書棟会議室、事務棟小会議室

（ポスター発表 1月30日(木) 15:15～17:15）

### 1月30日(木) 10:30～17:15

開会の挨拶（10:30～10:40） 所長 黒崎 健

#### プロジェクト講演

PJ1) 10:40～11:20 座長 田中 浩基

アクチノイドの物性化学とその応用…………… 1

原子力基礎工学研究部門（アクチノイド物性化学研究分野）

山村 朝雄

PJ2) 11:20～12:00 座長 田中 浩基

原子炉照射医療用 RI 製造…………… 5

原子力基礎工学研究部門（アクチノイド物性化学研究分野）

山村 朝雄

（休 憩） 12:00～13:00

#### 新人講演

N1) 13:00～13:40 座長 梅田 悠平

材料中の水の観察に向けた中性子試料環境の開発…………… 8

粒子線基礎物性研究部門（中性子材料科学研究分野）

有馬 寛

#### プロジェクト講演

PJ3) 13:40～14:20 座長 寺田 和司

原子炉施設廃止措置に関する基礎的研究…………… 10

原子力基礎工学研究部門（研究炉安全管理工学研究分野）

堀 順一

## トピック講演

T1) 14:20~15:00 座長 高橋 俊晴

KURNS-LINACにおける超高線量率照射場の構築…………… 15

粒子線腫瘍学研究センター（粒子線医学物理学研究分野）

松林 錦

（休憩）15:00~15:15

## 一般講演

1 月 30 日（木）15:15 ~ 17:15

(P 1) アザクラウンエーテルを用いた化学交換法による亜鉛の同位体分別…………… 17

○赤松星哉、大津公亮、元谷拓真、中田馨介、岡田一輝、二瓶裕哉、角谷耕

太郎、玉井光貴（阪大院工）、福谷哲（京大複合研）、中田亮一（JAMSTEC

高知コア）、永石一弥（(株)マリン・ワーク・ジャパン）、若木重行（歴

博）、上原章寛（量研）、加藤千図（NRM）、藤井俊行（阪大院工）

(P 2) 広島原爆由来のウラン含有粒子の探索…………… 18

○高宮幸一、東江直樹、稲垣誠、沖雄一、福谷哲、八島浩、芝原雄司（京大

複合研）、足立友紀（(株)アトックス）、五十嵐康人（京大複合研）

(P 3) KURAMA-IIの開発と展開の現状…………… 19

○谷垣実（京大複合研）

(P 4) 合成高分子の分子状態オペランド計測と新機能創生…………… 20

○中村秀仁、池上麻衣子（京大複合研）、窪田卓見（京大環境安全保健機

構）、白川芳幸（早大）、北村尚（QST）

(P 5) メタン菌由来sHspの温度依存的オリゴマー解離に関する研究…………… 21

○養王田正文、黒川丹那、小川未真、仲若葉（農工大工）、守島健、井上倫

太郎、杉山正明（京大複合研）

(P 6) 黄砂飛来時の大気エアロゾル及びその組成元素の粒径分布…………… 22

○伊藤憲男（大阪公大研究推進）、吉永尚生（京大複合研）

(P 7) 高水素化DLC膜の空孔型欠陥の脱離による変化…………… 23

○神田一浩、丹羽大輔、三嶋友博、中西康次（兵庫県大高度研）、福室直樹

（兵庫県大工）、堀史説（大阪公大工）、藪内敦、木野村淳（京大複合研）

(P 8) 伴侶動物を治療対象としたBNCTによる放射化の影響評価…………… 24

○石川裕也、吉橋幸子、山崎淳（名大院工）、瓜谷章、岩崎遼太（帯畜大）

|  |    |
|--|----|
| (P 9) 反陽子カルシウム原子の精密X線分光のための薄膜標的の開発 .....                           | 25 |
| ○樋口嵩、日野正裕（京大複合研）、藤岡宏之（東京科学大）                                       |    |
| (P10) PVA-GTA-Iゲル線量計を用いたBNCT場の線量評価に向けた基礎的検討 .....                  | 26 |
| ○鈴木応輔、吉橋幸子、山崎淳、瓜谷章（名大院工）林慎一郎（広島国際大）、櫻井良憲（京大複合研）                    |    |
| (P11) イヌの難治性がんに対するBNCT効果の基礎的検討 .....                               | 27 |
| ○吉橋幸子、新美秋桜、土本一貴、河合統貴（名大院工）、岩崎遼太（帯畜大）、山崎淳、瓜谷章（名大院工）、櫻井良憲、鈴木実（京大複合研） |    |
| (P12) FeAl合金への電子照射により制御導入した空孔の多重水素捕獲 .....                         | 28 |
| ○堀史説、平山翔太、田嘉信（大阪公大工）、徐ギユウ、藪内敦、木野村淳（京大複合研）、大澤一人（九大応力研）、安永和史（若狭湾エネ研） |    |
| (P13) エキストラジオール型二原子酸素添加酵素-阻害剤複合体の結晶構造 .....                        | 29 |
| ○喜田昭子（京大複合研）、石田哲夫（甲子園大栄養）、田中裕之（滋賀短大）、堀池喜八郎（滋賀医大）、三木邦夫（京大院理）        |    |
| (P14) 血清アミロイドAのアミロイド線維形成機構の解明 .....                                | 30 |
| ○星野大、奥西泰之（京大院薬）、守島健、井上倫太郎、杉山正明（京大複合研）                              |    |
| (P15) シアノバクテリア概日時計における競合的なタンパク質複合体形成挙動 .....                       | 31 |
| ○守島健（京大複合研）、坂本璃月（京大院理）、杉山正明（京大複合研）                                 |    |
| (P16) Mo線源X線小角散乱装置の改良 .....  | 32 |
| ○大場洋次郎（豊技大）、井上倫太郎、守島健、杉山正明（京大複合研）                                  |    |
| (P17) 多重箔放射化法による重水中性子照射設備の中性子エネルギースペクトルの再評価 .....                  | 33 |
| ○Prateepkaew JAKKRIT、櫻井良憲（京大複合研）                                   |    |
| (P18) 中性子放射化分析を用いた遺跡出土の低火度焼成品の胎土分析 .....                           | 34 |
| ○冨井眞（大正大文）、高宮幸一、稲垣誠（京大複合研）、伊藤淳史（京大院文）、木立雅朗（立命館大文）、千葉豊、吉井秀夫（京大院文）   |    |
| (P19) Gd-チアカリックスアレーン錯体を架橋点とするナノゲル型NCT薬剤の創製 .....                   | 35 |
| 進藤なな帆、澤村瞭太、唐島田龍之介（東北大院環境）鈴木実（京大複合研）○壹岐伸彦                           |    |
| (P20) 共沈法で生じた4価アクチノイド水酸化物の固相状態に関する研究 .....                         | 36 |
| ○小林大志、好川祐樹（京大院工）、松村大樹、池田篤史（JAEA）、佐々木隆之（京大院工）                       |    |

- (P21) 煨焼したセメントからのユウロピウムの溶出…………… 37  
 ○二瓶佑哉、大津公亮、赤松星哉、元谷拓真、中田馨介、岡田一輝、矢延陸、後藤寛貴、(阪大院工)、松村達朗(JAEA)、福谷哲(京大複合研)、伊藤健吾(東大理学研)、加藤千囿(NRN)、藤井俊行(阪大院工)
- (P22) シアノバクテリアの概日振動の外部環境に対する挙動とシステム堅牢性の起源 …… 38  
 ○坂本璃月(京大院理)、守島健、清水将裕、井上倫太郎、杉山正明(京大複合研)
- (P23) 「もんじゅ」サイト新試験研究炉冷中性子源検討に向けて…………… 39  
 ○田北雄大、杵山瑞貴(京大院工)、日野正裕(京大複合研)、田崎誠司、安部豊(京大院工)、新居昌至(JAEA)
- (P24) 小型霊長類が採食する植物の樹液・樹脂のミネラル分析…………… 40  
 ○今井啓雄、石村有沙、早川卓志(京大ヒト行動進化研究センター)、Leonardo Melo(Universidade Federal Rural de Pernambuco)、Valdir Luna(Universidade Federal de Pernambuco)、Maria Adélia(Universidade Federal Rural de Pernambuco)、福島美智子(石巻専修大)
- (P25) 102番元素ノーベリウムの共沈実験に向けた2族元素のマロン酸沈殿及び共沈実験… 41  
 ○紺野未夢(阪大院理・理研)、金子政志、風間裕行、永田光知郎、中西諒平(阪大院理)、王瑞麟、板倉悠大、Khult Enni、柴本恭佑(阪大院理・理研)、菊池亮太(阪大院理)、益田遼太郎(阪大院理・理研)、高宮幸一、稲垣誠(京大複合研)、羽場宏光、南部明弘(理研)、笠松良崇(阪大院理・理研)
- (P26) スピン干渉を用いた中性子通過時間測定法…………… 42  
 ○藤谷龍澄(京大院工)、日野正裕、樋口嵩(京大複合研)
- (P27) 高速度中性子CTの実用性に関する検討…………… 43  
 ○大平直、伊藤大介、齊藤泰司(京大複合研)
- (P28) 超好熱性古細菌由来タンパク質の高温における構造研究…………… 44  
 ○小田隆(JAEA)、井上倫太郎、守島健、會澤直樹、奥田綾(京大複合研)、奥隆之(JAEA)、佐藤衛(CROSS)、杉山正明(京大複合研)
- (P29) BNCTの発展に向けたリアルタイム熱中性子検出器の開発…………… 45  
 ○松林錦、田中浩基(京大複合研)、黒澤俊介(東北大)、山路晃広(東北大金研)、櫻井良憲、高田卓志(京大複合研)
- (P30) モリブデンの動的同位体効果の研究…………… 46  
 ○岡田一輝(阪大院工)、中田亮一(海洋研究開発機構)、永石一弥(マリン・ワーク・ジャパン)、福谷哲(京大複合研)、上原章寛(量研)、加藤千囿、藤井俊行(阪大院工)

- (P31) ホウ素中性子捕捉反応を利用したイネの新品種開発 (仮称: ロノヒカリ) について ..... 47  
 ○木野内忠稔 (京大複合研)、服部能英(大阪公立大)、瀬上修平 (大阪環農水研)、大庭悠暉 (京大院農)、八島浩、五十嵐康人、藤川陽子 (京大複合研)、切畑光統(大阪公立大)
- (P32) 含水SiO<sub>2</sub>ガラスの高圧合成及びマルチスケールでの構造解析 ..... 48  
 ○高橋柊斗 (京大院工)、小野寺陽平 (物質・材料研究機構)、小木曾哲 (京大院人環)、井上倫太郎、杉山正明 (京大複合研)、清水健二、牛久保孝行、富岡尚敬 (JAMSTEC高知コア)、奥地拓生 (京大複合研)
- (P33) 化学交換法における同位体分別研究 ..... 49  
 ○裕隆太、義本孝明、Kumsut Pantiwa (大産大)、Rittirong Anawat (阪大RCNP)、佐久間洋一 (東京科学大ゼロエネ研)、藤井俊行(阪大院工)、福谷哲、芝原雄司(京大複合研)
- (P34) X線イメージングによるフィン付き流路内気液二相流動の計測 ..... 50  
 ○近藤柊人 (京大院エネ)、大平直也、伊藤大介、伊藤啓、齊藤泰司 (京大複合研)
- (P35) 102番元素ノーベリウムの化学研究に向けた二族元素のジチオリン酸/Srレジン系固液抽出実験 ..... 51  
 ○王瑞麟(阪大院理・理研)、渡邊瑛介 (理研・KEK)、紺野未夢、板倉悠大、フルト エニー、柴本恭佑 (阪大院理・理研)、高宮幸一 (京大複合研)、羽場宏光、重河優大、南部明弘、金山洋介 (KEK)、金子政志、風間裕行、永田光知郎 (阪大院理)、笠松良崇(阪大院理・理研)
- (P36) 重水設備の中性子場における高速中性子束絶対強度の測定 ..... 52  
 ○相良航平、麻野晴香、村田勲(阪大院工)、高田卓志 (京大複合研)
- (P37) He-3検出器を用いた飛行時間法によるKUANSターゲットからの高速中性子強度評価...53  
 ○杵山瑞貴、田崎誠司(京大院工)
- (P38) もんじゅサイト新試験研究炉における放射化分析・研究用RI製造関連装置の計画 ... 54  
 ○稲垣誠、高宮幸一 (京大複合研)、三浦勉 (産総研)、鷲山幸信 (福島県立医大)、秋山和彦 (都立大)、大澤崇人 (JAEA)、笠松良崇 (阪大院理)、白井直樹 (神奈川大)、土谷邦彦 (JAEA)、吉田剛 (KEK)、佐藤信浩 (京大複合研)
- (P39) 酵素によるプロテインライゲーションの実用化戦略 ..... 55  
 ○奥田綾、清水将裕、井上倫太郎、裏出令子、杉山正明 (京大複合研)

- (P40) マラリア原虫ヌクレオソームのX線小角散乱による構造解析 ..... 56  
 ○佐藤祥子、ダッシェマリコ（東大定量研）、守島健、井上倫太郎（京大複  
 合研）、村山勘吉、小笠原光雄、堀越直樹、滝沢由政（東大定量研）、杉山  
 正明（京大複合研）、胡桃坂仁志（東大定量研）
- (P41) 多層膜中性子集光ミラー開発と新試験研究炉における中性子ビーム光学系 ..... 57  
 ○日野正裕（京大複合研）、細島拓也、竹田真宏、山形豊（理研）、樋口  
 嵩、藤谷龍澄（京大複合研）、遠藤仁（KEK物構研）
- (P42) 複合研KUR炉を用いた中性子シンチレータの評価と開発 ..... 58  
 ○黒澤俊介（東北大）、田中浩基、高田卓志、松林錦（京大複合研）、浦野雄  
 介、藤原千隼、山路晃広（東北大）、小玉翔平（埼玉大理工）

## 1月31日(金) 10:00～14:50

### プロジェクト講演

- PJ4) 10:00～10:40 座長 櫻井 良憲  
 伴侶動物に対するBNCT適応拡大に向け基礎研究 ..... 59  
 粒子線腫瘍学研究センター（粒子線腫瘍学研究分野）  
 鈴木 実
- PJ5) 10:40～11:20 座長 櫻井 良憲  
 BNCTにおける正常組織研究 ..... 62  
 粒子線腫瘍学研究センター（粒子線腫瘍学研究分野）  
 鈴木 実

### トピック講演

- T2) 11:20～12:00 座長 大平 直也  
 中性子イメージングを用いた沸騰現象のダイナミクス計測 ..... 64  
 安全原子力システム研究センター（熱エネルギーシステム研究分野）  
 伊藤大介

(休憩) 15:00～15:15

## トピック講演

T3) 13:00～13:40 座長 高橋 佳之

KUCAの低濃縮化と今後の展望について.....67

原子力基礎工学研究部門（核変換システム工学研究分野）

三澤 毅

## 特別講演

S1) 13:40～14:40 座長 高宮 幸一

放射線施設とエアロゾル.....70

複合原子力科学安全管理プロジェクト（放射性同位体安全管理研究分野）

沖 雄一

閉会の挨拶（14:40～14:50） 所長 黒崎 健





## (PJ1) アクチノイドの物性化学と応用

(京大複合研、広島大<sup>1</sup>、東工大<sup>2</sup>、東北大金研<sup>3</sup>、阪大院理<sup>4</sup>、長岡技科大<sup>5</sup>、近大理工<sup>6</sup>、京大<sup>7</sup>、JAEA<sup>8</sup>)  
山村朝雄、芝原雄司、福谷哲、阿部穰里<sup>1</sup>、中瀬正彦<sup>2</sup>、白崎謙次<sup>3</sup>、石川直人<sup>4</sup>、鈴木達也<sup>5</sup>、野上雅伸<sup>6</sup>、窪田卓見<sup>7</sup>、芳賀芳範<sup>8</sup>、田端千紘<sup>8</sup>、矢板毅<sup>8</sup>、神戸振作<sup>8</sup>、小林徹<sup>8</sup>

1. はじめに：アクチノイドは内遷移元素として電子が充填される5f軌道の中間的な遮蔽により、特有の化学的・電子的物性を持つ。超伝導と強磁性の共存や、アルファ放射体核医薬などへの波及効果がある。しかし、一般の大学では規制のためアクチノイドの研究環境獲得が困難である。本課題ではアクチノイドの物性に着目し、化学、物性物理学、核医薬の研究者からなるグループを形成し、アクチノイド混合酸化物、アクチノイド錯体、ウラン金属間化合物の調製を通じて、上記の研究を進め、アクチノイドの物性化学と応用研究を進めることを目的とする。

このような物性化学研究には一定の物質が必要であり、トレーサー規模と異なるため研究環境が非常に限定される。複合研ホットラボはこのような研究の進展が期待される場所である。ただし、実験装置、環境は複合研ホットラボのみでは完結しないため、東北大学金属材料研究所の2施設、日本原子力研究開発機構・物質科学研究センター（SPRING-8 ビームライン BL22XU）などと相補的連携し、最大限の効果が得られるよう工夫して進めていく。

2. 研究成果の概要：

### 1) アクチノイド化合物の異常物性における結晶構造および電子構造の研究 (○芳賀芳範、山村朝雄、田端千紘、矢板毅)

[背景と目的] アクチノイド金属間化合物は、その特異な物性から長く研究されている。物性物理の観点では、電気伝導を担う電荷キャリアと磁気モーメントを担う電荷キャリア間の電子相関と局所的対称性が重要だ。本研究では、特徴的な対称性を持つトリウム化合物の電子構造を、量子振動実験とバンド構造計算で精密に決定した。ThRh<sub>6</sub>Ge<sub>4</sub> は六方晶 LiRh<sub>6</sub>P<sub>4</sub> 型構造を持ち、空間群 P-6m<sub>2</sub> に属し反転中心がない。さらに、CeRh<sub>6</sub>Ge<sub>4</sub> と等構造で、強磁性から重い電子系量子相転移を示す[1]。この化合物の電子構造解明は重要である。

[実験] 各元素の化学量論的混合物をアーク溶解して ThRh<sub>6</sub>Ge<sub>4</sub> を合成した。Czochralski-pulling 法で単結晶の育成に成功し、粉末と単結晶の電子顕微鏡分析および X 線回折で LiRh<sub>6</sub>P<sub>4</sub> 型構造を同定した。試料は電気抵抗率、比熱、磁化測定で評価され、量子振動は電界変調法で低温測定した。理論バンド構造計算は Elk ソフトウェアを使用した。

[結果] ThRh<sub>6</sub>Ge<sub>4</sub> の電子構造を量子振動測定で実験的に決定し、バンド構造計算で良好に説明された。この結果は、4 価アクチノイドサイトを持つ化合物の電子構造を定義するものであり、Ce<sub>3+</sub> から Ce<sub>4+</sub> への

相転移が想定される CeRh<sub>6</sub>Ge<sub>4</sub> の電子構造理解に寄与する。さらなる研究が進行中である[2]。

### 2) アクチノイド化合物に適応可能な相対論的多配置電子相関法の開発 (○阿部穰里、山村朝雄)

[背景と目的] アクチノイド化合物の特性理解は、工学と学術の両分野において重要である。特に、理論計算は実験とともに特性解明と検証研究に不可欠な役割を果たす。アクチノイドの理論研究では、相対論的效果と電子相関効果の正確な取り扱いが重要である。原子番号が大きいアクチノイドでは、相対論的效果が顕著であり、従来のスカラー相対論的処理やスピン軌道相互作用の補正では精度が不十分になる。これには 4 成分ディラックや厳密 2 成分 (X2C) 相対論的ハミルトニアン<sup>1</sup>の適用が必要である。また、アクチノイドの s、p、d、f 軌道すべてが価電子として機能するため、静的電子相関を考慮しなければならぬが、多参照電子相関理論はその複雑さが課題となる。

我々は、X2C ハミルトニアンを基に CASPT2/RASPT2 法用プログラムを開発し、CASCI/RASCI 多構造波動関数を用いることで、アクチノイド化合物の電子状態と物性を高精度に計算可能とした[1]。

[方法] X2C 相対論的ハミルトニアンによるハートリーフォック計算および分子軌道積分変換を、フリーソフトウェア DIRAC [2,3] を使用して実行。その結果、CASPT2/RASPT2 法を実装したプログラムを開発した。

[結果] CASPT2/RASPT2 プログラムの初期開発を完了。コードの GitHub 公開準備中である[4]。ベンチマーク計算による基底状態と励起状態の RASPT2 レベル計算で得られたポテンシャルエネルギー曲線 (図 1) は、過去の計算結果と一致した。U-O 結合長と励起エネルギーは最適化され、先行研究とも整合性を示した。今後の展望として、他のアクチノイド分子にもプログラムを適用し、電子状態の特性をさらに探索する予定。

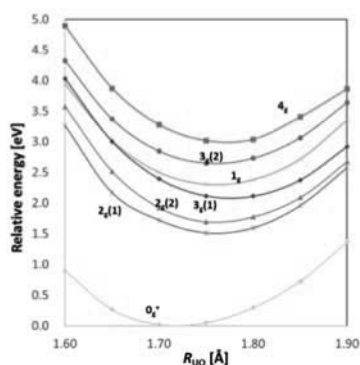


図 2-1  $UO_2^{2+}$  の基底状態および低エネルギー励起状態のポテンシャルエネルギー曲線

### 3) 新規フタロシアニン誘導体合成とその置換基修飾による軽アクチノイドイオン認識と諸物性との相関-4 (○中瀬正彦、山村朝雄、田端千紘)

[はじめに] アクチノイド化学の理解は、使用済み核燃料再処理、福島第一原子力発電所廃棄物処理、アクチニウム医薬品応用などにおいて重要である。特に Am や Cm などの重アクチノイド生成を目指す Th 燃料サイクルが注目されている。一方で、Th、Pa、U といった軽アクチノイドの特性解明が必須である。Th 燃料サイクルでは、使用済み Th 燃料から Th や核分裂副生成物を分離し U を得る必要がある。この分離を支援するため、プルトニウム・ウラン抽出法 (PUREX 法) に類似したトリウム・ウラン抽出法 (THOREX 法) が研究されてきた。THOREX では、 $UO_2^{2+}$  が  $Al(NO_3)_3$  とともにリン酸トリ-n-ブチル (TBP) で抽出される。近年、C, H, O, N から構成される CHON 原理に基づくモノアミドのような代替抽出剤が U/Th 分離に登場した。

[溶解性の予測] 溶媒抽出用の有機溶媒に対する錯体の溶解性を事前予測することで、実験の繰り返しを減らし、廃棄物削減が可能となる。我々は昨年からの構造に基づく溶解度予測モデルを構築してきた。今年度は他の化学パラメータを用いた回帰モデルをテストした。この試みは HSPiP ソフトウェアを活用した。HSPiP は、ハンセン溶解度パラメータ (HSP) を用いて化学物質の物理化学的特性を予測するもので、HSP は分散力、極性力、水素結合力の 3 要素で構成される [Hansen, 1960s]。HSP 値の比較により物質が溶媒に溶けるかを予測できる。HSP 値は通常、3 軸空間上の点として表され、溶媒が近い位置にあるほど溶解性が高いとされる。SMILES 表記を用いれば、HSP から溶解度予測が可能であり、このスキームをテスト中である。

[今後の計画] 今後は、U-Pc 複合体の溶解度予測モデルを厳密に検証し、関連文献からのデータを統合して特性の理解と予測能力の向上を目指す。また、モデルの精度向上を通じて、溶媒設計への応用を進める予定である。

### 4) 新奇ウラン(III)錯体の合成、精製 (○白崎謙次、山村朝雄)

[背景と目的] ウラン(III)は独特な  $5f^3$  の電子配置を持ち、他の酸化状態とは異なる性質を示すことが多い。特に、立体障害に強い BDI 配位子を使用することで、低配位ウラン錯体の合成が容易になる。2013 年に King らによりウラン(III)BDI 錯体が合成され [4-1]、2020 年には Boreen らにより単分子磁石 (SMM) 特性が観測された [4-2]。本研究では、BDI 配位子とその誘導体を用いてウラン(III)錯体の合成と特性評価を行い、その調製法を確立することを目的とする。

[実験] BDI カリウム塩の合成手順: Cleg の報告 [4-3] に基づき、Dean-Stark 装置を用いた脱水反応で BDI 配位子を合成。試薬と条件は以下の通り。アセチルアセトン (15ml)、2,6-ジイソプロピルアニリン (条件 1: 55ml、条件 2: 30ml) をトルエン (150ml) に溶解。触媒: p-トルエンスルホン酸 (1g)。凍結-ポンプ-融解法を 3 回実施後、還流 (条件 1: 48 時間、条件 2: 1.5 時間)。再結晶: 残留物を減圧蒸留し、ヘキサンで溶解 (30°C)。条件 1:  $-15^{\circ}C$  で 2 日間、条件 2: 2 週間静置後、化合物を回収。追加反応:  $KN(SiMe_3)_2$  (0.5mol/L トルエン溶液) を化学量論比で添加。

[結果] 生成物について ICP-AES および CHN 元素分析を行った。条件 1 に対して、 $C_{29}H_{41}N_2K$  (分子量: 391.375)、収率: 0.83g (47.7%) の結果を得た。条件 2 に対して、 $C_{17}H_{24}NOK$  (分子量: 298.29)、収率: 64.8% の結果を得た。



図 4-1 BDI およびその誘導体の調製に使用されるディーン・スタック装置

表 1 KBDI 塩の元素分析結果

|   | Calculated [%] | Obtained(Difference) [%] |
|---|----------------|--------------------------|
| C | 73.60          | 73.30(-0.30)             |
| H | 9.26           | 8.52(-0.74)              |
| N | 7.15           | 7.24(+0.09)              |
| K | 9.98           | 8.54(-1.44)              |

### 5) R デブリ NMR 解析のためのアクチノイド化合物の電子物性 (○神戸振作、山村朝雄、田端千紘、芳賀芳範)

[背景と目的]  $URu_2Si_2$  における「隠れた秩序」の理

解は、最近の研究で大きく進展している[5-1]。この現象は新たな自発的対称性の破れとして注目されており、隠れた秩序対称性が空間群の選択肢により絞り込まれてきた[5-2, 5-3]。秩序対称性が特定されれば、多極子秩序パラメータが自発的に決定される。本研究の目的は、精密な Ru-NQR 測定を通じて、隠れた秩序状態における Ru サイトの局所対称性を明らかにすることである。

[実験] Ru サイトの局所対称性を決定するため、一軸応力を加えない条件で[100]方向と[110]方向の Ru-NQR 測定を実施[5-4]。測定は 4.2K の隠れた秩序状態で行われ、ゼロ磁場条件下で  $^{101}\text{Ru}$  の NQR スペクトルを観測した。この方法により、一軸応力がない場合の Ru サイトの 4 回対称性を検証するとともに、以前提案された一部の秩序対称性を除外した。

[結果] 隠れた秩序状態で観測された  $^{101}\text{Ru}$  の NQR スペクトル (図 1) には分裂が見られないことは、内部磁場が現れていないことを示唆する。

$^{101}\text{Ru}$  ( $I=5/2$ ) では  $\nu_{1Q}$  ( $I=\pm 3/2 \Leftrightarrow I=\pm 1/2$ ) と  $\nu_{2Q}$  ( $I=\pm 5/2 \Leftrightarrow I=\pm 3/2$ ) の 2 つの NQR ピークが観測され、 $\nu_{2Q}/\nu_{1Q}$  の比は誤差範囲内で 2。これにより、Ru サイトの 4 回対称性が隠れた秩序状態でも保持されていることを確認した。

結論として、一軸応力なしでは、隠れた秩序状態における Ru サイトの 4 回対称性が支持され、いくつかの秩序対称性の可能性が除外された。

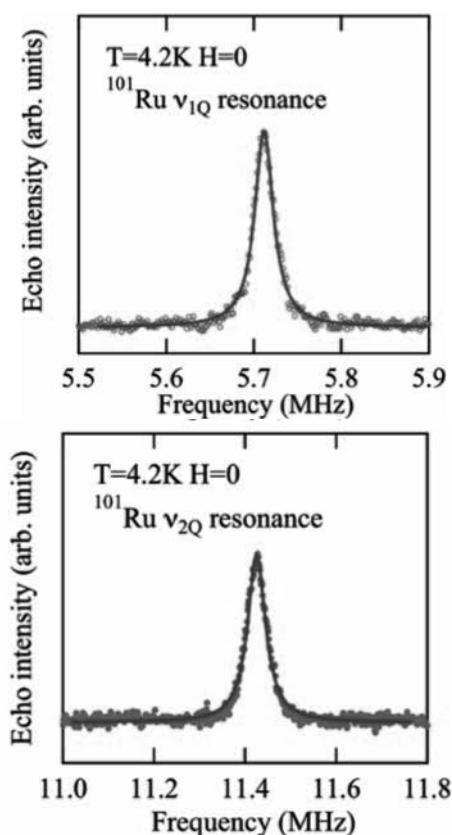


図 5-1  $^{101}\text{Ru}$  NQR spectra at 4.2 K under zero field. Two resonance spectra:  $\nu_{1Q}$  ( $I = \pm 3/2 \Leftrightarrow I = \pm 1/2$ ) and  $\nu_{2Q}$  ( $I = 5/2 \Leftrightarrow I = \pm 3/2$ ) have been observed.

## 6) アクチノイド 5 f 電子系と光励起有機 $\pi$ 電子系との間の新しい相互作用の探索 (○石川直人、山村朝雄)

[背景と目的] アクチノイドやランタノイドの金属錯体は、f 電子系の軌道角運動量成分に由来する高い磁気異方性を持つ。特に 5f 電子は 4f 電子よりコバレンシーが強い。また、フタロシアニン (Pc) やポルフィリンなどの環状  $\pi$  共役系では、光励起で生成される縮退  $\pi$ - $\pi^*$  励起状態が知られている。我々は HT-VH-MCD 分光法を用いて、希土類 Pc 錯体で f 電子系と配位子  $\pi$  共役系の磁気相互作用 (J-L 相互作用) を確認した[6-1, 6-2]。これらの相互作用は  $[\text{Pc}_2\text{Ln}]$  ( $\text{Ln}=\text{Tb}, \text{Dy}$ ) や  $[\text{PcLn}(\text{cyclen})]$  で観測されている[6-3, 6-4]。昨年、U(IV)と Th(IV)の単分子 Pc 錯体の光励起状態における磁気相互作用を調査し、今年サレンを第二配位子とする新たな Pc-ウラン錯体の合成を試みた。

[実験] まず、前駆体  $[\text{PcUCl}_3]\text{Li}(\text{THF})_4$  を合成した[6-5]。ジリチウムフタロシアニン、 $\text{UCl}_4$ 、脱水トリグライムを THF に溶解し、グローブボックス内で密閉加熱した。その後、冷却してヘキサンを加え、析出物を濾過して回収した。次に、サレン錯体を調製した。サレンを DMSO に溶解し、トリエチルアミンを加えた後、 $[\text{PcUCl}_3]\text{Li}(\text{THF})_4$  の DMSO 溶液を少量ずつ加え攪拌した。

[結果] サレン添加後、可視域吸収スペクトルのピークトップが短波長側にシフトした。サレンの吸収ピークが増加した段階で添加を中止した。得られた化合物は  $\lambda_{\text{max}} = 687\text{nm}$  に特徴的な Q バンドを示し、典型的な金属 Pc のスペクトルを確認した。

## 7) 核種製造のためのアクチノイドおよびその壊変生成物の抽出・分離に係る基礎データ収集 (○鈴木達也、山村朝雄、芝原雄司、福谷哲)

[背景と目的]  $^{225}\text{Ac}$  は核治療用  $\alpha$ -核種として注目されるが、自然界には存在せず人工生成が必要である。その生成には  $^{228}\text{Ra}(n,\gamma)$  反応で得られる  $^{229}\text{Th}$  が不可欠で、 $^{228}\text{Ra}$  はトリウム崩壊生成物から回収可能だ。

本研究では、希土類鉱石残渣や長期貯蔵された  $\text{ThO}_2$  を活用し、ジェネレータ構築方法を検討した。昨年度は  $\text{ThO}_4$  の熱化学変換による溶解法を調査し、本年度は Ra 抽出法として沈殿法を評価した。

[実験] 試料溶液には、 $\text{ThO}_2$  を  $\text{CCl}_3\text{CCl}_3$  または  $\text{CBr}_4$  で熱化学変換し、 $\text{HCl}$  または  $\text{HNO}_3$  で溶解した 4 種類を使用した。熱化学変換は、 $\text{ThO}_2$  (0.1g) とハロゲン化物 (1g) を  $300^\circ\text{C}$  で 12 時間加熱して行い、その後、30mL の濃塩酸または濃硝酸で溶解、脱イオン水 (20mL) で濾過した。沈殿操作では、溶液を  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  で中和し、1M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  (8mL) と 1M  $\text{MgCl}_2$  (2mL) を順次添加した。 $\text{MgCl}_2$  添加直後に白色沈殿が生成し、1 時間静置後にろ過した。ろ液の放射能

濃度は Gey 線スペクトロメータで測定し、 $^{228}\text{Ra}$  は  $^{228}\text{Ac}$  の測定値を基に評価、 $^{232}\text{Th}$  濃度は ICP-MS で測定した。

[今後の課題] トリウム化合物の溶解効率をさらに向上させ、 $^{228}\text{Ra}$  の選択的抽出法を最適化する必要がある。また、安定したターゲット材料の製造や中性子照射条件の確立、 $^{229}\text{Th}$  の分離精度向上が求められる。これらの改善により、ジェネレータの実用化が期待される。

### 8) アクチニルイオン配位性アミド化合物の錯形成挙動に関する研究 (○野上雅伸、山村朝雄)

[背景と目的] アクチニルイオンに選択性の高い化合物開発は重要であり、モノアミド化合物が有望視されている。我々はこれまで、①モノアミドとアクチニルイオンが形成する環の「キレート効果」、②モノアミド分子構造の適応性「柔軟性」の2点を考慮してきた。しかし、モノアミドを官能基とする樹脂では、化学構造と  $\text{UO}_2^{2+}$  (ウラニル) 種への吸着能に明確な相関は見られなかった[1]。また、昨年の研究で、 $\text{U(VI)}$  選択性の特性として  $\text{UO}_2^{2+}$  イオンが「平面型5配位錯体」を形成することを明らかにした[2]。これを基に新たな樹脂構造を提案した。

[実験] モノアミド化合物を溶媒とする場合、硝酸媒体での  $\text{UO}_2^{2+}$  イオンの典型的な配位様式は、2つのモノアミド分子のカルボニル酸素(2個)と硝酸イオンの酸素(4個)で6配位錯体を形成する(図1)[2]。従来のモノアミド専用樹脂では、空間的制約により6配位や5配位構造が形成困難な場合がある。これを解決するため、モノアミドとジアミド化合物を組み合わせた2官能基構造を提案した。ジアミド化合物は、アクチノイド(III)とランタノイド(III)、およびアクチノイド(IV)と(VI)の分離に有効である[3]。N,N,N',N'-テトラメチルマロノアミド(TMMA: 図2)を官能基とするジアミド樹脂の合成実績を活用し、同一樹脂内でモノアミドとジアミド構造を組み合わせた。

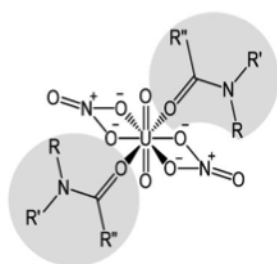


図 8-1 硝酸溶液中の  $\text{UO}_2^{2+}$  に対するモノアミド化合物の典型的な配位様式

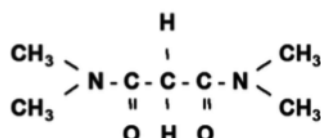


図 8-2 TMMA の化学構造

[期待される効果] この新構造により、アミド酸素が

$\text{U(VI)}$  と結合し、相互作用が向上すると期待される。同時に、アミド酸素とランタノイド(III)種の相互作用が抑制される可能性もある。具体的には、ジアミド基内のアミド酸素の1つが  $\text{U(VI)}$  と結合する場合が考えられる。この手法は従来のモノアミド樹脂の限界を克服し、選択性を高める有効な手段である。

### 9) 燃料デブリの経年変化に関する研究 (○小林徹、山村朝雄、窪田卓見、矢板毅)

報告書 未実施の理由(予定していた試料を準備することができなかったため)

#### 参考文献

- [1-1] H. Kotegawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 88, 093702 (2019)
- [1-2] Y. Haga et al., International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2023.
- [2-1] K. Anderson et al., J. Phys. Chem., 94 (1990): 5483-5488.
- [2-2] DIRAC, a relativistic ab initio electronic structure program, Release DIRAC22 (2022), written by H. J. Aa. Jensen et al.
- [2-3] T. Saue et al., J. Chem. Phys. 152 (2020) 204104.
- [2-4] The software will be downloadable from [https://github.com/RQC-HU/dirac\\_caspt2](https://github.com/RQC-HU/dirac_caspt2)
- [4-1] D.M. King et al., Angew. Chem. Int. Ed., 52 (2013) 4921-4924.
- [4-2] M.A. Boreen et al., Dalton Trans., 49 (2020) 7938- 79
- [4-3] W. Clegg et al., Inorg. Chem., 37 (1998) 2317-2319.
- [5-1] J. Mydosh et al., J. Phys.:Condens. Matter 32, 143002 (2020).
- [5-2] S. Kambe et al., Phys. Rev. B 97, 235142 (2018).
- [5-3] S. Kambe et al., JPS Conf. Proc. 30, 011035 (2020).
- [5-4] See experimental methods: K. Karube et al., J. Phys. Soc. Jpn. 83, 084706 (2014).
- [6-1] K. Kizaki, H. Ozawa, T. Kobayashi, R. Matsuoka, Y. Sakaguchi, A. Fuyuhiko, T. Fukuda, N. Ishikawa, Chem. Commun. 53 2017, 6168-6171.
- [6-2] T. Fukuda, H. Ozawa, Y. Sakaguchi, K. Kizaki, T. Kobayashi, A. Fuyuhiko, N. Ishikawa Chemistry A European Journal 23(64) 2017, 16357-16363
- [6-3] K. Kizaki, A. Santria, N. Ishikawa Inorg. Chem. 2021, 60(3), 2037-2044
- [6-4] K. Kizaki, A. Santria, N. Ishikawa Inorg. Chem. Front., 2023, 10, 915-925.
- [6-5] Wen Zhou, Declan McKearney, Daniel B. Leznoff, Chemistry a European Journal 26(51), 2020, 1027-1031
- [8-1] M. Nogami et al., KURNS Progress Report 2019 (2020) PR13-5.
- [8-2] M. Nogami et al., KURNS Progress Report 2022 (2023) PR7-8.
- [8-3] M. Nogami et al., KURNS Progress Report 2021 (2022) PR4-

## (PJ2) 原子炉照射医療用 RI 製造

(京大複合研、京大院医<sup>2</sup>、京大病院<sup>3</sup>、金沢大<sup>4</sup>、阪大<sup>5</sup>、福島県立医大<sup>6</sup>、JAEA<sup>7</sup>)

山村朝雄、奥村良、中本裕士<sup>2</sup>、志水陽一<sup>3</sup>、木村寛之<sup>4</sup>、小川数馬<sup>4</sup>、白崎謙次<sup>5</sup>、鷲山幸信<sup>6</sup>、田端千紘<sup>7</sup>

1. はじめに：<sup>225</sup>Acを用いた $\alpha$ 線放出核による核医薬が転移ガン治療で注目されているが、製造には原料や技術的困難があり国内生産が遅れている。一方、治療効果が小さいとされる $\beta$ 線放出核も、患者の状態によっては十分な効果を発揮する場合がある。近年のセラノスティクスでは、 $\gamma$ 線放出が診断にも活用される。我が国では核医薬研究が他国に比べ遅れており、原子炉利用による $\beta$ 線放出核種の製造に基づく基礎研究が必要である。この取り組みは、福井炉での RI 製造に向けた設計にも寄与する。

原子炉で製造可能な<sup>177</sup>Luなどを用いた転移性癌治療で顕著な成果が得られている。セラノスティクスでは付随する $\gamma$ 線を診断に使用できる。抽出クロマトグラフィーはYbと<sup>177</sup>Luの化学分離に広く用いられるが、LuとYbの類似性により大規模なカラムと溶出液が必要となる。

本研究では、KURでの<sup>177</sup>Lu製造に関する基礎研究を実施し、EphA2を標的としたラジオセラノスティクスプローブを開発した。EphA2は癌細胞で過剰発現し異常増殖を引き起こすため、ラジオセラノスティクスの重要なターゲットである。本研究では、分子プローブ理論を応用して臨床応用可能な薬剤の創製を目指す。

2022年度からの本プロジェクトにおける研究活動に基づいて文科省原子力システム研究開発事業「熱中性子炉を用いた医療用 RI (<sup>225</sup>Ac, <sup>177</sup>Lu) の製造と精製、及び前臨床研究」(2024-2026年度、代表者：阪大白崎謙次准教授)が採択された。研究組織はほぼ重なっており、本プロジェクトに含まれないメンバーは長岡技科大・鈴木達也教授(次回から参加)とJAEA・佐藤哲也主任研究員のみである。

原シスとともに今回および次の本プロジェクト採択研究において成果を出していく。

### 2. 研究成果の概要：

#### 1) <sup>177</sup>Lu 標識 RI 治療薬の安定供給・臨床利用に向けた研究 (○中本裕士、山村朝雄、志水陽一)

報告書「未実施理由(新型コロナウイルス感染症の影響により、<sup>177</sup>Lu研究の実施体制が整っていないため)

#### 2) 腫瘍を標的としたラジオセラノスティクス創薬と臨床応用 (○木村寛之、山村朝雄、白崎謙次、鷲山幸信)

[はじめに] セラノスティクスは、治療と診断を統合した新しい医療技術であり、中心的な役割を果たすのがセラノスティクスプローブである。当社開発の放射性セラノスティクスプローブは、標的認識、リンカー、キレート化の各ユニットを組み合わせた

「ユニットカップリング型分子プローブ」理論に基づき設計されている。この理論は抗体や蛋白質、大分子だけでなく、有機低分子化合物にも適用可能である。

本研究では、この理論を用いて臨床応用可能な薬剤を目指す。まずKURで<sup>177</sup>Lu製造の基礎研究を行い、次にEphA2を標的とした放射性診断薬プローブの開発を進めた。EphA2はがん細胞で過剰発現し、異常増殖を引き起こすため、重要なターゲットである。

#### [実験]

##### <sup>177</sup>Lu の製造

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とYb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を1MWで24時間、5MWで6時間それぞれ照射して<sup>177</sup>Luを製造した(図2-1)[2-1]。

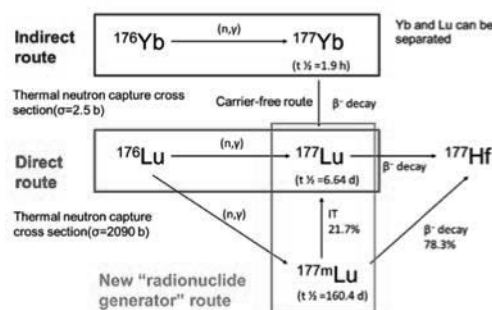


図 2-1 <sup>177</sup>Lu の原子炉生産の 2 つの異なる方法

#### 放射性医薬品プローブの開発

EphA<sub>2-57-1</sub>モノクローナル抗体を[<sup>111</sup>In]Inで標識し、EphA<sub>2</sub>のSPECT用イメージングトレーサーとして評価した。2022年度には直接法で製造した<sup>177</sup>Luを用い、NOTAを7~8個結合させた抗体で標識実験を行い、定量的な進行を確認した。しかし、NOTAの数が少ない場合、標識率は著しく低下した(図2-2)。

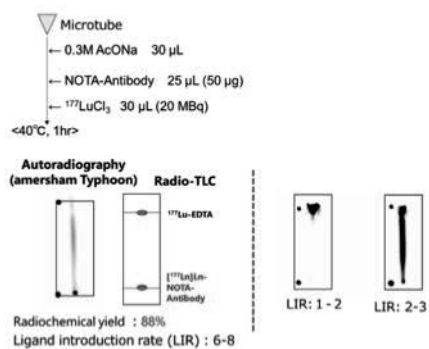


図 2-2 NOTA による直接法製造  $^{177}\text{Lu}$  標識

[結果] 間接法を用いて  $^{177}\text{Lu}$  製造を試み、照射後の分離および精製条件を最適化中である。また、 $^{177}\text{Lu}_2\text{O}_3$  をマウス尾静脈から投与し、SPECT イメージングに成功したことで、治療効果のモニタリングが可能であることを確認した (図 2-3)。

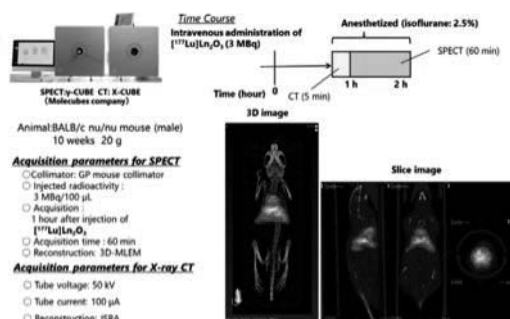


図 2-3 SPECT/CT イメージング :  $^{177}\text{Lu}_2\text{O}_3$

### 放射性診断薬プローブの評価

2023 年度、EphA2- $^{57}\text{Fe}$  を p-SCN-BnDTPA と結合させ、 $^{111}\text{In}$  を標識した。 $^{111}\text{In}$ -DTPA-EphA2- $^{57}\text{Fe}$  は、細胞結合、生体内分布、SPECT 研究で評価され、腫瘍組織への高濃度集積 (96 時間後で  $8.8 \pm 2.2\%$  注入用量/g) が観察された。SPECT でも腫瘍での集積を確認し、EphA2 に対するラジオセラノスティクスプローブとして有望であることが示された。

### 3) $^{44/47}\text{Sc}$ 標識 Radiotheranostics 用薬剤の開発 (志水陽一、中本裕士、山村朝雄)

報告書\_未実施理由 (新型コロナウイルス感染症の影響により、 $^{44/47}\text{Sc}$  の製造準備が整わなかったため)

### 4) 核医学治療用 $\beta^-$ 放射体 $^{177}\text{Lu}$ の原子炉製造および標識薬剤の開発 (鷲山幸信、小川数馬、山村朝雄、奥村良、田端千紘)

[背景と目的]

抽出クロマトグラフィーは、イッテルビウム (Yb) とルテチウム 177 ( $^{177}\text{Lu}$ ) の化学分離に広く利用されているが、Lu と Yb の化学的類似性により、グラム単位の Yb 分離には大きなカラムと多量の溶出液が必要である。このため、Yb と Lu の分離

プロセスの理解と、 $^{177}\text{Lu}$  分画の効率的な抽出が重要だ。CZT 検出器は小型で USB 電源対応のため、オンライン測定に適している。前回の研究では、天然 Yb ターゲットに放射線を照射して生成した  $^{169}\text{Yb}$  および  $^{177}\text{Lu}$  トレーサーを用いて CZT 検出器によるカラム分離を評価したが、 $^{177}\text{Lu}$  の  $^{238}\text{keV}$   $\gamma$  線が  $^{169}\text{Yb}$  の高エネルギー  $\gamma$  線に埋もれて同定できなかった。そこで本研究では、商業生産に使用される濃縮  $^{176}\text{Yb}$  を利用してオンラインモニタリングを評価した。

[実験]

測定には Kromek 社製 RadAngel CZT 検出器を用い、溶出プロファイル確認には Ge 検出器 (ORTEC) を使用した。濃縮  $^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$  (濃度 99.14%) を Isoflex 社から購入し、京都大学研究炉 (KURR) で 5MW 出力で 6 時間照射した。照射後の試料を溶解し 4M  $\text{HNO}_3$  溶液に調整した。この溶液をジャケット付きガラスカラム (11mm $\phi$ ×240mm) に添加し、LN<sub>2</sub>-Resin を用い、約 500mL の 1.5M  $\text{HNO}_3$  で Yb ターゲットと  $^{177}\text{Lu}$  を分離した。カラムからの溶出液は CZT 検出器でオンライン測定し、250 滴ごとに分取した溶出液を Ge 検出器でガンマ線分光分析し、CZT 検出器の結果と比較した。

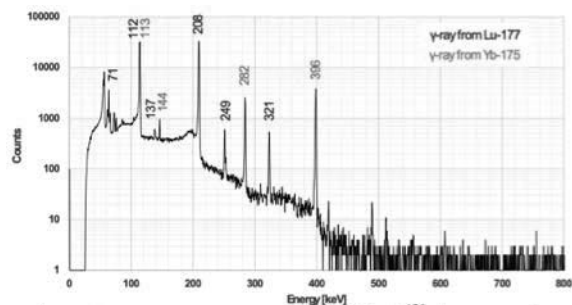


図 4-1 ゲルマニウム半導体検出器で測定された照射物の  $\gamma$  線スペクトル

[結果]

Ge 検出器による測定では、照射 5 日後の試料から高放射能の  $^{177}\text{Lu}$  と低放射能の  $^{175}\text{Yb}$  が確認された (図 1)。図 2 では、Ge 検出器と CZT 検出器による  $^{175}\text{Yb}$  (396keV) と  $^{177}\text{Lu}$  (208keV) の溶出曲線が示され、両者で同様の傾向を示した。CZT 検出器によるオンライン測定では、使用したカラムが  $^{175}\text{Yb}$  と  $^{177}\text{Lu}$  を十分に分離可能であることが確認された。

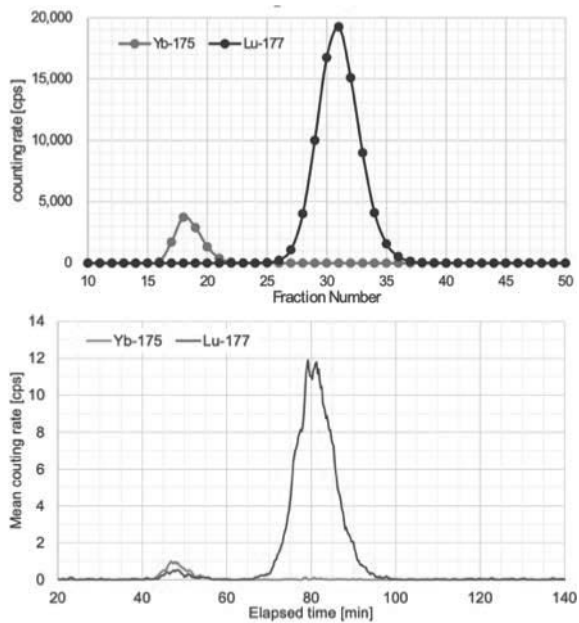


図 4-2 LN<sub>2</sub>樹脂を充填した内径 11mm×長さ 240mm のカラムを用いた抽出クロマトグラフィーの溶出プロファイルを、ゲルマニウム検出器（上）と CZT 検出器（下）で測定した。

[結論]

濃縮 <sup>176</sup>Yb ターゲットを用いた <sup>177</sup>Lu のカラム分離に CZT 検出器を利用し、γ 放射線のオンラインモニタリングを実施した。濃縮同位体の使用により、<sup>177</sup>Lu と <sup>175</sup>Yb の γ 線を区別可能となった。この成果は、高放射能 <sup>177</sup>Lu の精密な分離と回収に役立ち、ホットセル作業者の放射線被ばくを軽減する可能性がある。

参考文献

[2-1] Production of <sup>177</sup>Lu for Targeted Radionuclide Therapy: Available Options. Ashutosh Dash et al., Nucl Med Mol Imaging. 2015, 49, 85-107.



## (N1) 材料中の水の観察に向けた中性子試料環境の開発

(京大複合研) ○有馬 寛

1. はじめに：材料科学において高温、高压、応力などの特殊環境実験は新物質創成の場であり、その技術はその場観察実験を通しての機能発現プロセスの理解において重要である。中性子やX線をプローブとした構造解析の手法を用いることで、特殊環境における物質合成と量子ビームによるその場観察が実現する。

近年、機能性高分子の基礎科学および工業的研究において、高分子マトリックス中の水の挙動解明が注目を集めている。特に、高分子フィルムにおける水の吸着は、燃料電池用高分子電解質膜、コーティング材、センサー、接着剤など、多様な工業材料において重要な研究課題となっている。これらの材料の性能を向上させるには、マトリックスへの水の浸透と拡散の挙動を理解することが極めて重要である。

中性子散乱は、このような水分分布の研究に適した手法である。その理由は、(1) ナノメートルスケールでの構造評価が可能である；(2) 水素などの軽元素に高感度である；(3) 同位体を用いたコントラスト変調実験により、特定領域の選択的観察が可能であるという3点にある。例えば、溶媒として重水を使用することで、重水ドメインと周囲のポリマーマトリックスを区別することができる。あるいは溶媒中の水素と重水素の比率を調整することで、多成分系の材料中の特定のドメインの構造情報（環境構造）を取得することができる。このような背景のもと、世界の中性子散乱施設では、湿度を精密に制御する試料環境の開発が活発に進められている。湿度生成手段としては、飽和塩溶液法、ガスフロー方式、温浴水槽などが採用されており、各手法は到達湿度範囲、安定化時間、溶媒交換の容易さなどにそれぞれ特徴がある。

本発表では、従来の飽和塩溶液法や温浴水槽と比べて湿度応答が速い、ガスフローによる湿度試料環境の開発と利用例について報告する。

2. 中性子反射率用ガスフロー調湿環境の開発 [1]：異種材料界面の水の蓄積は、金属/樹脂接合材料やポリマー/無機フィラーナノコンポジットの高温高湿度下での劣化に関連している。水分蓄積は有機・無機物質間の界面相互作用を弱め、剥離の原因となる。界面の水領域は乾燥状態では見えないため、高湿度環境下での界面構造のその場観察が、過剰吸収や異種材料界面での水蓄積のメカニズム解明に極めて重要である。そのため、材料の界面構造を湿度環境下で時系列観察できる実験手法の開発が必要とされている。中性子反射率は、高分子フィルム、ナノコンポジット、金属/樹脂接合材料の界面に蓄積する水の評価に有用なツールである。これは、ナノメートルオーダーの深さ分解能と高い透過性を持つため

ある。

高分子材料の界面における水の蓄積や吸着は、通常1時間以内に完了する。このため、その場観察のためには試料チャンバー内の湿度を数分以内で変更できることが必要である。一方で、燃料電池用電解質膜のような機能性高分子のその場試験も課題となっている。典型的な電解質膜(Nafion)の平衡化には数十時間を要するため、85°C-85%RHのような高温高湿度条件下で数日間運転可能な試料環境が求められる。

そこで、5-85°Cの温度範囲で85%RHまでの湿度を制御可能な中性子反射率用ガスフロー式湿度制御システムを開発した。図1にJ-PARC物質・生命科学実験施設(MLF)BL17 SHARAKU反射率計における実験セットアップを示す。このカスタムメイドのシステムは、湿度発生装置(第一科学株式会社 HumiCruise)と、高温・高湿度条件下での長時間中性子実験用の試料チャンバーで構成される。システムの主な特徴はマスフローコントローラー(MFC)による各ラインのガス流量制御と静電容量式湿度/温度センサーによるモニタリング、温度制御された2mの調湿ガス輸送管、自動給水システムの“Top-Up”運転による安定した湿度発生である。温度と湿度の安定性は長時間の時間分解測定において重要な要素である。発生湿度の精度はMFCの精度(1%)に依存する。MFCの再現性は0.5%と高く、事前校正により不確かさを低減した。各機器はプログラマブルロジックコントローラー(PLC)により管理されており、リモート制御が可能で、温度湿度条件ごとの反射率プロファイルを自動で測定できる。

試料チャンバー内の湿度応答時間はチャンバー体積とガス流量で決定される。開発したチャンバーは、直径85mm、長さ210mmのSUS304製の二重円筒構造である(図2)。体積は $1.16 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ で、流量1 L/min

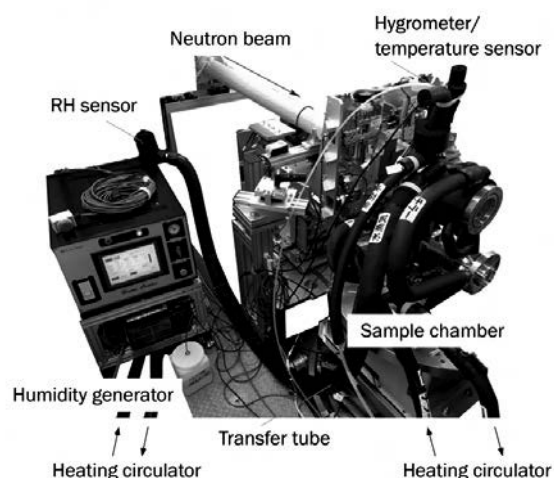


Fig. 1. Experimental setup of the gas-flow humidity control system at BL17 SHARAKU.

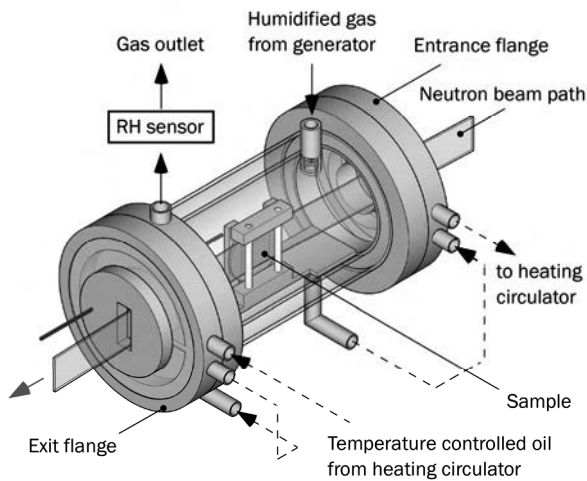


Fig. 2. Schematic view of the humidity sample chamber for in situ NR measure-

の乾燥ガスを導入した場合、約 5.4 分で 99% のガスが交換される。調湿ガスの場合には 30°C-80%RH、60°C-80%RH、85°C-80%RH でそれぞれ 1.1、1.4、2.4 L/min と高温高湿度で流量が増加するため、平衡到達時間はより短縮される。

3. ガス混合による調湿環境 [2]: 中性子散乱におけるコントラスト変調実験は、多成分からなる構造体の部分構造を区別する上で重要な役割を果たす。この手法では、中性子散乱特性の異なる 2 つの同位体、水素と重水素を利用して構造を識別する。この手法を応用して中性子散乱実験用の新しい湿度試料環境を開発した (図 4)。この湿度試料環境は、J-PARC MLF の TAIKAN (中性子小角散乱) と SHARAKU 用に設計した。本装置は二温度法に基づいて精密調湿ガス発生を行う。2 つの飽和槽と 4 つのガス流量制御を備える。各飽和槽温度およびガス流量を PLC によって制御することで、調湿ガス混合によるコントラ

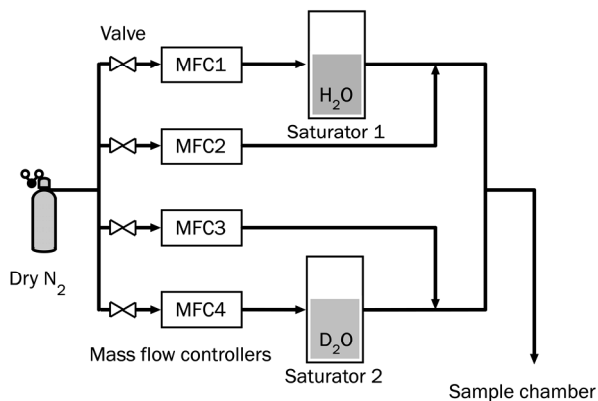


Fig. 3. Schematic view of the mixing gas humidity generator.

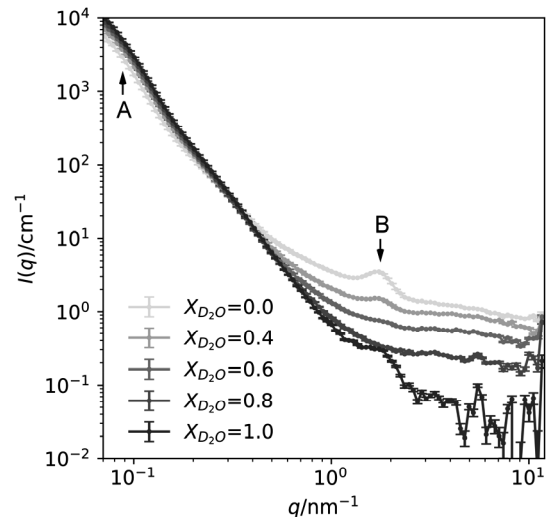


Fig. 4. SANS profiles of MEA under  $D_2O/H_2O$  vapor (80% RH, 80°C). (A) indicates low- $q$  power-law behavior showing carbon-ionomer scattering contrast, while (B) marks the ionomer peak.

スト変調測定 of 自動化および遠隔制御を実現した。図 4 に固体高分子型燃料電池 (PEFC) の膜電極接合体 (MEA) に対して小角中性子散乱 (SANS) 測定を実施した結果を示す。実験では、Pt と Pt-Ru 触媒層を Nafion 膜に接合した MEA を使い、80%RH、80°C の  $D_2O/H_2O$  調湿環境下で  $D_2O/H_2O$  比を系統的に変化させた。SANS プロファイルからは、アイオノマー-カーボン界面からの散乱 (低  $q$  領域) とアイオノマーピーク ( $q=1.5 \text{ nm}^{-1}$ ) という 2 つの特徴的な散乱パターンが観察された。これらの散乱強度は調湿ガスの  $D_2O/H_2O$  比に応じて変化し、MEA 内の水分分布に関する情報を得ることができた。また、従来 1 日かかっていた測定が 4 時間で完了し、コントラスト変調実験の効率が 5 倍以上向上した。この効率化は、ガス混合により、 $D_2O/H_2O$  比の変更に要する時間が大幅に短縮されたことによるものである。

4. 結言: 試料環境開発は、量子ビーム実験における新しい測定手法を提供し、その場観察による構造の解明や機能性発現の理解を通して物質研究の発展に貢献する。また、試料環境機器は中性子実験装置とユーザー需要をつなぐキーである。より先進的な機器の開発により学術研究を推進するとともに中性子ユーザーコミュニティの拡大を目指す。

#### 参考文献

- [1] H. Arima-Osonoi *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **91** (2020) 104103.
- [2] H. Arima-Osonoi *et al.*, J. Appl. Cryst. **56** (2023) 1802-1812.

## (PJ3) 原子炉施設廃止措置に関する基礎的研究

(京大複合研、近大<sup>1</sup>、JAEA<sup>2</sup>、電中研<sup>3</sup>)

○堀順一、佐野忠史<sup>1</sup>、高宮幸一、福谷哲、中村詔司<sup>2</sup>、名内泰志<sup>3</sup>、八島浩、高橋佳之、寺田和司、張俊、藤原靖幸、奥村良、吉永尚生、飯沼勇人、芝原雄司、遠藤駿典<sup>2</sup>、Rovira Gerard<sup>2</sup>、木村敦<sup>2</sup>、佐藤駿介<sup>3</sup>

1. はじめに：国内の原子力発電所の約 30%が廃止措置に移行しており、廃止措置は原子力の主要な事業の一つとなっている。廃止措置の計画及び実施において、安全性、信頼性、合理性、経済性を共に満たす標準的な手順、工法の確立は今後の原子力産業において重要な課題である。また、研究用原子炉(KUR)においても、廃止措置は喫緊の課題であり、廃止措置を安全且つ効率的に進めるためには、KUR の運転期間中に基盤データを系統的に取得しておく必要がある。

一方、廃止措置全般においては、クリアランスレベルにおける放射線量予測に資する核データの高度化、原子炉廃止措置で生じる様々な燃焼度の使用済燃料、福島第一原子力発電所で生じた燃料デブリ等の組成を把握し、適切に管理するための非破壊分析技術の開発が急務である。

そこで、廃止措置を近い将来に控えた KUR とその周辺設備、核燃料物質を使用できる電子線ライナックや KUCA 棟総合測定室の施設の特徴を最大限に生かし、各研究班が密接に連携しながら廃止措置に関する基礎的研究を展開する。

本プロジェクト研究では、原子炉施設の廃止措置を安全且つ効率的に実施するために必要な基盤データの整備及び測定技術の開発を行うことによって、今後の KUR の廃止措置作業に活用すると共に、福島第一原子力発電所で生じた燃料デブリの管理を含めた廃止措置全般の技術開発に資することを目的とする。

2. 研究成果の概要：本研究プロジェクトは上記の目的を達成するために 7 研究課題から構成されている。各研究課題の研究成果の概要を以下に示す。

2. 1. KUR 設備放射化量評価モデル構築のための中性子束分布測定 (代表：佐野忠史 (近畿大学))

KUR の廃止措置においては、発生する廃棄物の放射線量を評価することが重要である。特に、生体遮へい体、サブパイルルームや中性子管周辺の機器における放射化量を評価することが重要である。一般に、放射化量の評価は、サンプルを抽出し放射化量を測定することもある、主に数値計算 (決定論的モデルや確率論的モデル) に基づいて行われる。近年、計算機の性能が向上し、建物を含む施設全体の中性子束や、施設や設備に入射する中性子スペクトルを詳細に評価できるようになった。しかし、計算値と実測値では絶対値が数 10%以上の差異が生じることが多いのが現状である。そこで本プロジェクト研究では 2022 年度には、高速中性子を効率良く検出する

「EneRgY selective Neutron detector containment device for thermal Group neutron Interruption : ERYNGII」 [1] を用いて、KUR 生体遮へい体表面の中性子束を測定し ERYNGII の有効性を評価した。2023 年度には、炉心直下のサブパイルルーム内の中性子束を予測するための数値計算モデルを構築し、試計算を実施した。今年度は計算モデルを改良し本計算を実施した。計算は次の 2 段階で実施した。1) モンテカルロ計算コード MVP3 [2] と JENDL-5 [3] を用いて KUR の臨界計算を行い、KUR 炉心の中性子スペクトルを求めた。2) 得られた中性子スペクトルを入力として、PHITS2 version 3.31 [4] と JENDL-5 を用いて中性子輸送計算を実施した。計算結果を Fig. 1 及び Fig. 2 に示す。KUR の定格出力時の炉心部分の熱中性子束は約  $3.0 \times 10^{13}$  (n/cm<sup>2</sup>/sec)なので、Fig. 1 よりサブパイルルーム内の熱中性子束は約  $3.0 \times 10^5$  (n/cm<sup>2</sup>/sec)、Fig. 2 より B-1 孔近傍では約  $5.0 \times 10^9$  (n/cm<sup>2</sup>/sec)と評価された。本年度の研究では更にサブパイルルームの中性子束分布を測定する予定である。

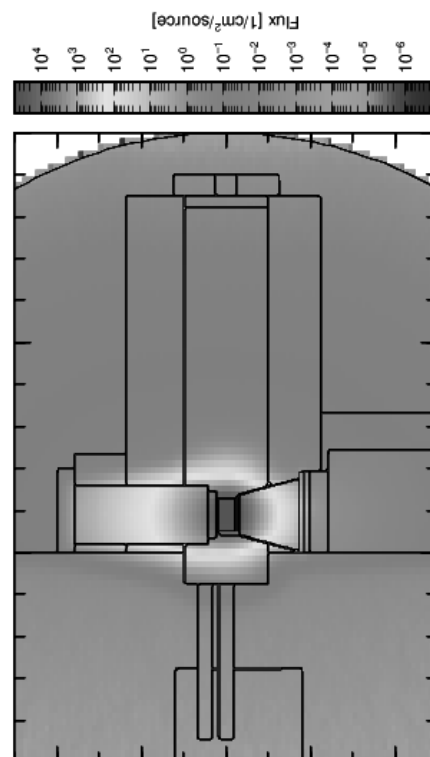


Fig. 1 KUR の熱中性子束分布計算値 (縦断面)

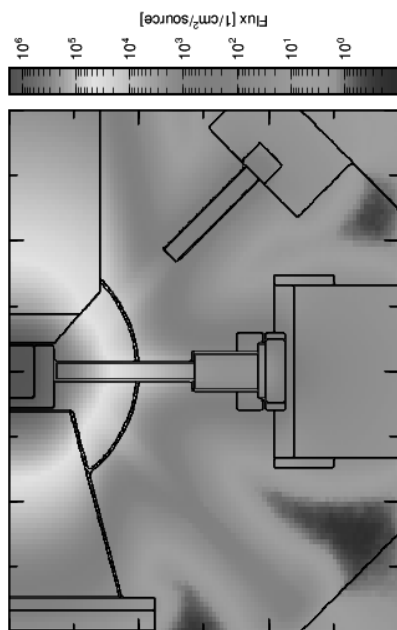


Fig. 2 B-1 孔近傍の熱中性子束分布 (水平面)

## 2. 2. 廃炉作業のための原子炉構造材の放射化量の測定 (代表: 高宮幸一 (京都大学))

廃炉作業においては様々な材料で構成された原子炉構造物を撤去する必要がある。商用炉と異なり研究炉の炉心タンク周辺には生体遮へいだけでなく実験孔、照射孔や実験設備が設置されており、これらの構造物は高い中性子線束によって長期間曝され、主に中性子捕獲反応によって生成した多種多量の長半減期の放射性物質が存在している。これらの構造物の撤去作業には特に安全上の注意が必要であるため、KUR に設置された構造材の一部について、存在する放射性物質の量を実測することを試みた。測定の対象として最も物量が大きくなる生体遮へいを検討したが、中性子の照射履歴が明確なコアサンプルなどは保管されておらず、過去に B-2 実験孔内に設置され照射履歴が明確な実験設備の一部を測定対象とすることとした。炉心から異なる距離に設置されていた複数の構造材に対して、Ge 半導体検出器を用いてガンマ線スペクトルの測定を行い、構造材中に存在する長半減期の放射性物質を定量した。以前 B-2 実験孔内で測定された中性子線量、およびモンテカルロ法によって見積もられた中性子線量から見積もられる放射化量との比較を行うことで、原子炉構造材の放射化量を見積もる方法について評価を行った。

## 2. 3. 廃止措置施設の汚染評価のための基礎的研究 (代表: 福谷哲 (京都大学))

1963年に建設されたRC造のKURスタックは2013年に解体された。本研究では、その解体されたRC造KURスタックのコアを使用し、内外表面の $\gamma$ 線スペクトルメトリによる $\gamma$ 放出核種の分析と放射化分析による元素分析を行った。スタックの表面をグラインダーで約1mm厚さ削り取り、その粉体サンプルをU8容器に入れ(サンプル重量11.6g、試料高さ5mm)、

Ge半導体検出器で $\gamma$ 線核種の測定を行い、解析ソフトであるガンマスタジオ(SEIKO EG&G社製)で核種の定量を行った。内側(排気体が通過する側)から得られた粉体サンプルの $\gamma$ 線スペクトルメトリによる測定時間とCs-137に該当する661.6keV位置の放射能濃度及び検出限界値との関係をFig. 3に示す。

スタック内側の粉体サンプルからはCs-137ほか天然由来と考えられる放射性核種以外の放射性核種は検出されなかった。また、Fig. 3より、検出限界値は測定時間が増加するとともに減少しており、検出下限値以下と考えられる核種の合理的な測定時間について検討を行っている。またスタック外側からは大気圏核実験由来と考えられるCs-137が検出された。中性子放射化分析(INAA)は、KUR施設のPn-2とPn-3を使用した。Pn-2を用いた実験では、BCR-176(都市ごみ焼却灰)とJB-2(玄武岩)を標準試料として、約100mgのコア試料を照射した。KURの5MWの熱出力で、サンプルは60分間照射した。約6日間と40日間の冷却後、Ge半導体検出器を用いて $\gamma$ 線スペクトルメトリを行った。塩素(Cl)の測定にはPn-3を用いた実験を行い、Cl-38を測定した。Clの標準試料にはLiCl溶液(1003mg-Li/L)を用いた。KURの1MWの熱出力で30秒間照射した。INAAによる主な測定結果はAs:  $8.38 \pm 1.7$ 、Ce:  $6.80 \pm 1.1$ 、Cr:  $5.56E+1 \pm 4.0$ 、Co:  $8.75 \pm 0.08$ 、Mn:  $7.17E+2 \pm 73$ 、Sb:  $5.69 \pm 0.2$ 、Zn:  $3.40E+2 \pm 4.8$ 、Cl:  $2.34E+2 \pm 110$ であった(単位はすべてmg/kg)。ヒ素(As)は半減期が短い核種であるため、放射性核種としての重要性は低いかもしれないが、元素としては毒性があるので注意が必要である。塩素については、Cl-38は安定核種Cl-37(存在量24.24%)からの中性子放射化によって作られ、(n,  $\gamma$ )断面積は0.433bである。Cl-38は半減期の短い核種であり、放射性廃棄物の処理や処分には重要ではないと考えられる。しかし、塩素にはもう一つ安定な核種Cl-35がある。Cl-35の存在量は75.76%、(n,  $\gamma$ )断面積は43.6bである。Cl-35から作られるCl-36は半減期が長く( $3 \times 10^5$ 年)、純ベータ放出核種であり検出や測定が難しい。Cl-38が中性子放射化によって検出されたので、Cl-36も同時に生成されていると考えられる。また、塩素はマイナスイオン状態をとり、土壤中で移動しやすいためとされており、注意が必要である。

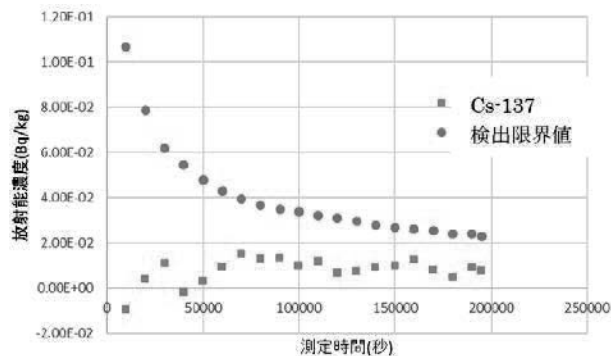


Fig. 3 Cs-137の放射能濃度および検出限界値と測定時間との関係

2. 4. 廃止措置における放射性廃棄物核種の核的特性に関する研究 (代表: 中村詔司 (日本原子力研究開発機構))

本研究は、廃止措置で問題になる放射性核種の放射能生成量を評価するのに資する中性子捕獲断面積の測定に関するものである。KUR の黒鉛設備圧気輸送管(TC-Pn)を用いれば、放射化法により熱中性子捕獲断面積を精度良く導出できることを実証[5,6]したことを受けて、廃止措置で問題になる核種を選定して、それらの熱中性子捕獲断面積を測定した。測定試料には、高純度の金属試料を用意し、中性子束をモニタするために、Au/Al 合金、Co 箔、Mo 箔などを、測定試料に干渉しないように配置して、照射を行った。照射では、Fig. 4 に示すように、熱中性子場を担保するために、ブランクのカプセルを 2 個移送した後に、試料入りのカプセルを送って照射した。

照射後、試料およびモニタを回収し、高純度 Ge 検出器を用いてガンマ線計測を行った。中性子束、及び試料の反応率を Westcott のコンベンション[7]に基づいて解析し、熱中性子捕獲断面積を導出した。

$^{45}\text{Sc}$ 、 $^{63}\text{Cu}$ 、 $^{64}\text{Zn}$ 、 $^{109}\text{Ag}$  及び  $^{113}\text{In}$  の測定では、5 核種の試料を一緒に 1MW 出力で 1 時間照射を行った。それぞれ、 $^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$  反応:  $27.08 \pm 0.28$  (b)、 $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$  反応:  $4.322 \pm 0.064$  (b)、 $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$  反応:  $0.725 \pm 0.010$  (b)、 $^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110\text{m}}\text{Ag}$  反応:  $3.751 \pm 0.045$  (b)、 $^{113}\text{In}(n,\gamma)^{114\text{m}}\text{In}$  反応:  $8.498 \pm 0.270$  (b) を導出することができた[8]。Sc と Zn の結果は、誤差の範囲で評価値を支持したが、一方、他の核種は評価値を若干修正する結果となった。これらの核種は、中性束モニタとしても使えることが分かった。

$^{58}\text{Fe}$  の測定では、5MW 出力にて 1 時間照射を行った。生成された  $^{59}\text{Fe}$  からのガンマ線を約 10 日間測定して統計を貯めることで、 $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$  反応に対して  $1.36 \pm 0.03$  (b) [9]の精度で導出することができた。核データライブラリに採録されているデータは、今回得られた結果と  $2\sigma$  の範囲で一致した。

$^{170}\text{Er}$  及び  $^{180}\text{Hf}$  の測定では、それぞれの試料を 1MW 出力で 1 時間ずつ中性子照射を行った。 $^{170}\text{Er}(n,\gamma)^{171}\text{Er}$  反応:  $8.19 \pm 0.35$  (b)、 $^{180}\text{Hf}(n,\gamma)^{181}\text{Hf}$  反応:  $13.57 \pm 0.14$  (b)を、また副産物として  $^{179}\text{Hf}(n,\gamma)^{180\text{m}}\text{Hf}$  反応:  $0.427 \pm 0.006$  (b)を得た[10]。本実験では、いくつかの過去の報告値と評価値が、今回の結果と実験誤差以上に食い違っていることを明らかにした。

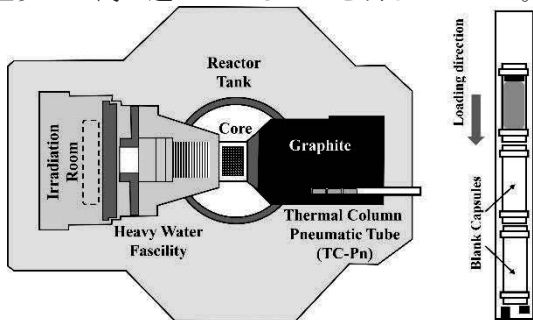


Fig. 4 TC-Pn 設備、及び照射カプセル

2. 5. 使用済核燃料の核物質特定に関する研究 (代表: 名内泰志 (電力中央研究所))

福島第一原子力発電所 1、2、3 号機の格納容器内には燃料デブリが蓄積している。この燃料デブリを回収し安全に保管することが、これらの炉心の廃止措置で求められる。このためには回収物の組成の把握が肝要である。燃料デブリは格納容器から搬出する際に容器に密封されるため、非破壊で組成を評価する技術が求められる。こうした技術の一つとして、中性子誘導核分裂における生成物(FP)の収率が  $^{235}\text{U}$  と  $^{239}\text{Pu}$  で異なることを利用し、短寿命 FP  $\gamma$  線測定で  $^{235}\text{U}$ : $^{239}\text{Pu}$  等の核分裂率比を求める遅発  $\gamma$  線分光が知られる。遅発  $\gamma$  線分光の精度は、FP 収率、崩壊  $\gamma$  線発生数のデータベースに依存する。このデータベースの妥当性確認用のデータを得るため、微分実験の手法の開発と測定を LINAC で実施した。

LINAC ではパルス的に白色中性子を生成し、それを 11~12m 離れた位置でサンプルに照射し、サンプルから放出される即発  $\gamma$  線を主に測定する。 $\gamma$  線を発生する反応を起こす中性子のエネルギーを特定するため、パルス周期は、熱中性子がサンプル位置で消失する時間より長く設定する。熱中性子が消失した時間からビーム周期までの時間の事象はパルスと同期しない Out of phase (OOP) 事象となる。この OOP 事象には、当該パルス以前のパルス中性子による核分裂で生じた FP の崩壊  $\gamma$  線が重畳して、かつ即発  $\gamma$  線とは分離して検出される。この測定手法 OOPS(Out of Phase event Spectroscopy)の確立を図った。

2022 年度は 93% $^{235}\text{U}$  濃縮度ウラン金属をアルミニウムに分散させた試料と、濃縮ホウ素試料を中性子で照射し、 $\gamma$  線を HPGc 検出器で測定し、中性子ビーム周期を 25、50 Hz として計数率と熱中性子束の減衰具合を確認した。この結果、熱中性子束の十分な減衰はパルス発生後 20 ms 程度で見られること、OOP 時間領域で計数率を増やすには周期 30 Hz 前後が最適であることを見出した。2023 年度は前記 30 Hz の条件で OOP 事象の  $\gamma$  線ピークスペクトルを取得した。このピークと、JENDL-FPY&FPD-2011 をもとにした瞬時照射・崩壊計算を比較した結果、Fig. 5 に示す  $\gamma$  線を特定した。OOPS は半減期 0.5 s から 3.0 h の FP からの  $\gamma$  線を一時に測定できる点で有用である。使用済燃料の遅発  $\gamma$  線分光にはエネルギー 3MeV 以上の  $\gamma$  線ピークの利用が望ましい。

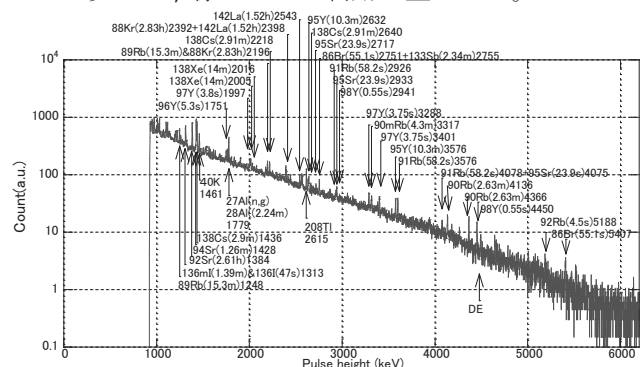


Fig. 5 OOPS 法で測定した短寿命 FP  $\gamma$  線スペクトル。

2. 6. 燃料デブリ非破壊測定のための中性子源の検討 (代表: 名内泰志 (電力中央研究所))

燃料デブリの非破壊測定による組成の把握のため、2.5 節の遅発  $\gamma$  線分光を含む、中性子照射  $\gamma$  線スペクトル測定 NIGS の開発にとりくんでいる。NIGS では 3~6 MeV の連続スペクトルとなる核分裂即発  $\gamma$  線と、4~10 MeV 強まで離散的に生じる中性子捕獲  $\gamma$  線に加え、2.5 節で述べた短寿命 FP  $\gamma$  線を測定する。NIGS では中性子源が肝要でありこの検討を行った。

CA 棟の総合測定室で保有する、慣性静電閉じ込め核融合(IEC)中性子源を用いた。Fig. 6 のように IEC 中性子源からの 2.45MeV 中性子で天然ウラン金属(U)とポリエチレン(PE)からなるスタックを照射し、そこから生じる  $^{235}\text{U}$  もしくは  $^{238}\text{U}$  からの核分裂即発  $\gamma$  線を厚さ 15cm のポリエチレン(PE)を透過させて BGO シンチレータで検出した。測定スペクトルを Fig. 7 に示す。3~4.5MeV の範囲で核分裂即発  $\gamma$  線を確認した。IEC 中性子源の壁材に鋼材が使われることから鉄、ニッケルの中性子捕獲  $\gamma$  線が見られたが、数は多くなく、また 3~6MeV の IEC 中性子源由来のバックグラウンド計数率が比較的平坦であることがわかった。したがって IEC 中性子源は燃料デブリへの NIGS の適用に有望である。

この実験では他の中性子源も試したが、Am-Be 中性子源では  $^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{mC}$  の脱励起  $\gamma$  線(4.437Me)の強度が強いこと、 $^{252}\text{Cf}$  中性子源では自発核分裂即発  $\gamma$  線が  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  核分裂  $\gamma$  線とスペクトルが相似であること等の短所を確認した。

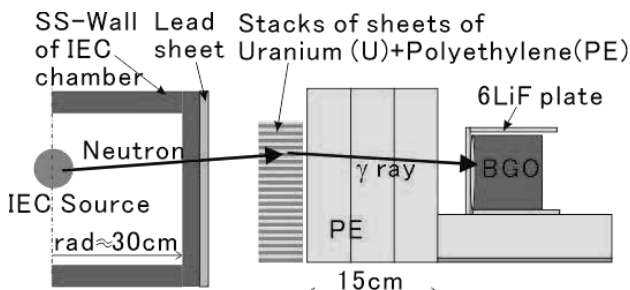


Fig. 6 IEC 中性子源による NIGS 測定体系。

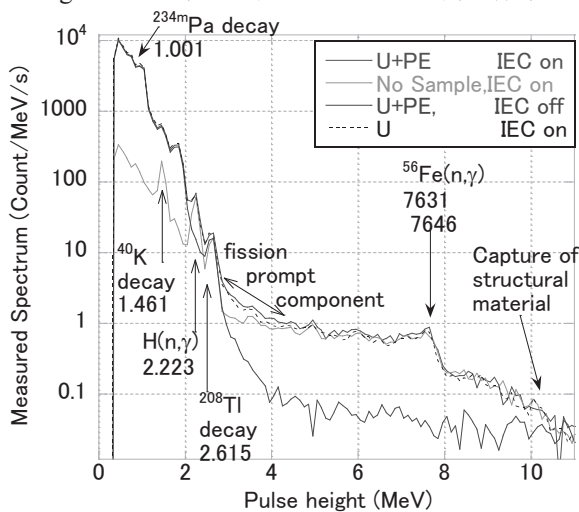


Fig. 7 IEC 中性子源を使って測定した核分裂即発  $\gamma$  線スペクトル。

2. 7. 燃料デブリの中性子共鳴吸収法を用いた非破壊分析法に関する研究 (代表: 堀順一 (京都大学))

福島第一原子力発電所 1、2、3 号機の格納容器内部に蓄積している燃料デブリを将来的に回収し安全に保管するにあたり、燃料デブリ中に含まれる核燃料物質等について核種毎の組成を非破壊で分析する技術が必要になる。試料中に含まれる核種の定量には、中性子共鳴濃度決定法(NRD: Neutron Resonance Densitometry)[11]という中性子共鳴吸収量の変化から核種濃度を決定する方法が注目されているが、燃料デブリのように核燃料物質以外にも中性子吸収体等の多くの核種が不純物として含まれる場合、透過中性子スペクトルの形状は複雑になり、組成を定量するためには詳細な共鳴解析が必要になる。本研究課題では、実用性の観点からなるべく簡便な方法で核種組成を定量するために、Self-indication 法という新たな手法[12]の適用を検討した。Self-indication 法とは、パルス中性子ビームを測定対象試料に照射し、試料を透過した中性子ビームを、純度の高い測定対象核種から成る indicator に照射して即発ガンマ線を測定することによって、特定核種の共鳴吸収量変化に対する感度を高めることができる手法である。

実験は電子線ライナックの 12m ビームラインを用いて行った。測定試料には天然ウラン板、濃縮度 93% のウランアルミニウム合金板 (以下、HU と呼ぶ) を組み合わせたものを用いた。Indicator には HU 板を採用し、indicator から放出される即発ガンマ線を 12 台の BGO 検出器から成る全吸収型ガンマ線検出器によって測定した。上流側に天然ウラン板を置いた場合と置かない場合の indicator からのガンマ線に対する TOF スペクトルの一例を Fig. 8 に示す。

HU を indicator として用いた場合、観測された共鳴の大部分は  $^{235}\text{U}$  の核分裂反応によるものであるが、6.67eV と 20.9eV の比較的断面積の大きな共鳴については  $^{238}\text{U}$  の中性子捕獲反応によるピークも観測されている。 $^{235}\text{U}$  の共鳴に対する計数率の減少は天然ウランに 0.7%含まれる  $^{235}\text{U}$  の含有量と関係している。一方、 $^{238}\text{U}$  の両共鳴の計数率の減少は天然ウラン中の  $^{238}\text{U}$  の含有量と関係している。天然ウランを試料とした場合、 $^{238}\text{U}$  の共鳴が  $^{235}\text{U}$  の共鳴に比べて中性子吸収割合が大きいことが示された。観測された共鳴吸収割合の違いは、試料中の  $^{235}\text{U}$  と  $^{238}\text{U}$  の含有量の違いによるものであることから、HU を indicator として用いた場合、 $^{235}\text{U}$  の濃度に加えて試料の同位体濃縮度に関する情報も同時に得られる可能性を示唆している。

共鳴吸収割合と含有量の相関性を示す計量曲線をあらかじめ作成することによって、試料中の核燃料物質の含有量を簡便に算出する手法を確立することができた。今後は、本手法を燃料デブリの定量に適用するために、不純物として中性子吸収体を混ぜた試料に対しての試験を行う予定である。

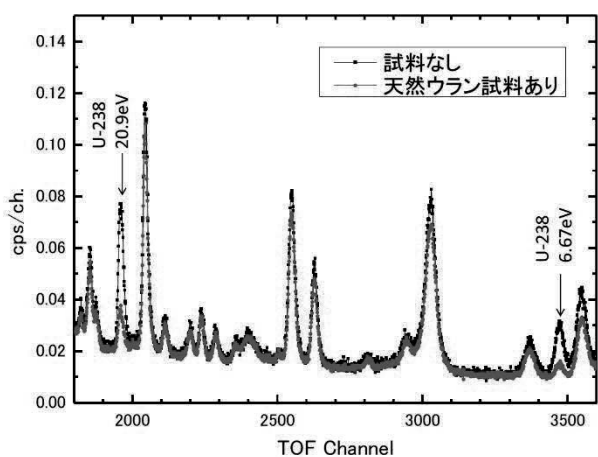


Fig. 8 ビーム上流に天然ウラン試料がある場合と無い場合の HU indicator からの即発ガンマ線に対する TOF スペクトルの比較

3. おわりに: 本プロジェクト研究は 2022~2024 年度の 3 年間にわたって実施した。KUR の廃止措置を進めるために重要なサブパイルルームや生体遮へいにおける中性子スペクトルについて計算による評価を行った。KUR 生体遮へい表面の中性子束を実測するのに ERYNGII と呼ばれる中性子検出器システムの有効性を実験的に評価した。廃炉作業のための原子炉構造材の放射化量の測定としては、過去に B-2 実験孔内に設置され照射履歴が明確な実験設備の一部を測定対象とすることとした。炉心から異なる距離に設置されていた複数の構造材に対して、Ge 半導体検出器を用いてガンマ線スペクトルの測定を行い、構造材中に存在する長半減期の放射性物質を定量した。さらに、解体された KUR スタックのコアを使用し、内外表面の $\gamma$ 線スペクトルメトリによる $\gamma$ 放出核種の分析と放射化分析による元素分析を行った。上記の 3 研究課題では、KUR の廃止措置を進めるにあたり有用なデータを取得することができた。

一方、廃止措置全般において問題となる放射性核種の放射能生成量を評価するのに重要な反応について、KUR の黒鉛設備圧気輸送管(TC-Pn)を用いて系統的に測定を行い、精度の高い熱中性子捕獲断面積を取得した。さらに、福島第一原子力発電所の燃料デ

ブリの組成分析を行うための手法を開発するための基礎研究を行った。分析法の一つとして遅発 $\gamma$ 線分光法が知られている。遅発 $\gamma$ 線分光の精度は、FP 収率、崩壊、 $\gamma$ 線発生数のデータベースに依存する。このデータベースの妥当性確認用のデータを得るため、微分実験の手法の開発と測定を LINAC で実施した。また、同手法を適用するために必要な中性子源の検討を、CA 棟の総合測定室で保有する、慣性静電閉じ込み核融合(IEC)中性子源を用いて行った。燃料デブリの組成分析法の一つとして中性子共鳴濃度決定法が知られている。本手法をより簡便に実施するために Self-indication 法という新たな手法を提案し、LINAC の中性子源を用いて試験を行った。高濃縮ウラン試料を indicator として用いれば、含有率 1%以下の微量の  $^{235}\text{U}$  に対しても検出可能であり、ウラン試料の同位体濃縮度に関する情報も同時に取得できる見通しを得た。

このように、KUR の廃止措置および廃止措置全般において必要なデータの取得、技術開発を予定通り実施することができた。プロジェクト研究としては今年度で終了となるが、個別の研究課題については今後も継続して進めていく予定である。

#### 参考文献

- [1] R. Kimura *et al.*, Proc. PHYSOR2022, Pittsburgh, USA, (2022): 2824.
- [2] Y. Nagaya *et al.*, JAEA-Data/Code 2016-018 (2017).
- [3] O. Iwamoto *et al.*, JNST. 2023; **60**(1):1-60.
- [4] T. Sato *et al.*, JNST. 2024; **61**: 127-135
- [5] S. Nakamura *et al.*, JNST. 2021; **58**(10): 1061.
- [6] S. Nakamura *et al.*, JNST. 2022; **59**(11): 1388.
- [7] C.H. Westcott *et al.* "Proc.2nd Int. Conf. Peaceful Use of Atomic Energy, Geneva", 1958; **16**: 70.
- [8] S. Nakamura *et al.* JNST. 2024; **61**(11): 1415
- [9] S. Nakamura *et al.* JNST. (Published online: 21 Nov. 2024.)
- [10] S. Nakamura *et al.* JNST. (Submitted)
- [11] H. Harada *et al.*, Nucl. Data Sheets, **118** (2014):502-504.
- [12] J. Hori *et al.*, EPJ Web of Conferences, **146** (2017): 09042.

# (T1) KURNS-LINAC における超高線量率照射場の構築

(京大複合研) ○松林錦、田中浩基、高橋俊晴、阿部尚也、渡邊翼

1. はじめに：放射線治療において、線量率が非常に高い照射は、超高線量率 (Ultra-High Dose Rate: UHDR) 照射と呼ばれ、腫瘍組織への高い治療効果を維持しつつ、正常組織に対する障害を抑えられる効果 (FLASH 効果) が確認されている。UHDR 照射による放射線治療は、従来の照射に比べて副反応を抑え、短期間で治療が行えることから近年注目を集めている。UHDR 照射に関する研究は、2014 年にマウス等を用いた非臨床試験により FLASH 効果を確認し、2019 年には世界で初めて人に対する照射が実施された[1, 2]。しかし FLASH 効果のメカニズムについては、正常組織の低酸素化、免疫修復など様々な理論が提唱されているが、詳細は未だ明らかとなっていない。今後 UHDR 照射による放射線治療が普及するためには、細胞・生物実験による FLASH 効果のメカニズム解明が必要不可欠である。

従来の放射線治療では、線量率が $\sim 0.1$  Gy/s であるのに対し、UHDR 照射では 40 $\sim$  Gy/s で照射を行う。UHDR 照射は 1959 年に Dewey らによる報告に遡る。その後、2014 年に Favaudon らによる電子線を用いた動物実験により、FLASH 効果に関する研究が活発となった。2018 年には、Vozenin らがミニブタの体表に 24 $\sim$ 34 Gy の電子線により、従来の照射 (83.3 mGy/s) と UHDR 照射 (300 Gy/s) を行った結果、従来の照射では皮膚の線維化が確認されたが、UHDR 照射ではほとんど皮膚に対する障害が無いことが確認された。近年では、陽子線や X 線による照射例も増加傾向にあるが、データ数はまだまだ不十分である。UHDR 照射において、線量率は、照射時間あたりの線量 (平均線量率) と 1 パルスあたりの線量率 (パルス線量率) で定義され、それぞれで FLASH 効果が観測された照射条件が提案されている。これまでの先行研究により、FLASH 効果が確実に観測された照射条件は、平均線量率が 100 Gy/s、パルス線量率が  $10^6$  Gy/s であり、これを満たす照射場は数少ない。Fig.1 に電子線における、従来の照射と比べた UHDR 照射の線量率を示す。

京都大学複合原子力科学研究所の電子線型加速器 (Kyoto University, Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science Linear Accelerator: KURNS-LINAC) は小型でありながら大電流の電子線を照射することができ、これまでに電子線、X 線、中性子線の発生装置として物理実験等に用いられてきた。本装置はエネルギーを 7 $\sim$ 30 MeV、パルス幅を 2 ns $\sim$ 5  $\mu$ s と変更することができる。本研究では、KURNS-LINAC を用いた電子線 UHDR 照射に着目し照射試験を行った。本発表では KURNS-LINAC における UHDR 照射場の諸特性と細胞・生物実験のために構築した照射方法について報告する。

2. 実験：KURNS-LINAC における UHDR 照射場の特性評価すなわち線量評価を行うためには、線量率依存性が極めて小さい線量計を選択しなければならない。本研究では、線量率依存性が小さいとされている、ラジオクロミックフィルム (Radio-Chromic Film) と蛍光ガラス線量計 (Radio-Photoluminescence Glass Dosimeter) を使用した。フィルムは、放射線照射により生じる濃淡度合いをスキャナで測定することで、二次元線量分布を取得することができる。フィルムは 10 $\sim$ 1000 Gy に対応した高線量用と 0.4 $\sim$ 60 Gy に対応した低線量用の二種類を使用した。あらかじめ濃淡度合いと照射線量を値付けするため、KURNS の  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線照射装置により校正試験を行った。ガラス線量計は、紫外線照射による発光を用いた線量計で、二次元分布を測定することはできないが、フィルムと絶対線量を比較するために使用した。

本研究では、KURNS-LINAC において、エネルギーを 8 MeV、パルス幅を 5  $\mu$ s と設定し、ビーム発射口からの距離を変化させながら、1 パルスごとの二次元線量分布を取得した。ビーム軸に駆動レールを設置し、ファントム表面に線量計を設置して照射を行った。ビーム発射口を 0 cm とし、10cm ごとに距離を移動し、各位置で二次元分布及びピーク線量を取得した。

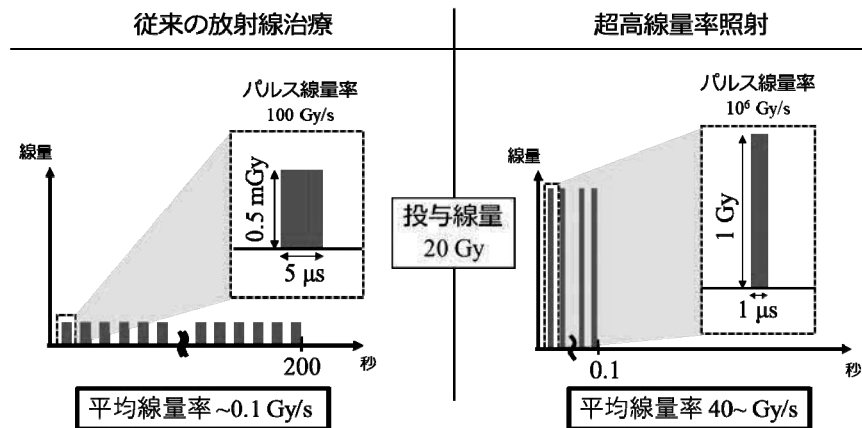


Fig. 1. 従来の放射線治療と超高線量率照射による線量率の違い



これまでの照射試験の結果、KURNS-LINAC は、FLASH 効果が確実に確認された照射条件を十分に満たすが、ビーム発射口付近で半値幅が約 5 mm という急峻な二次元分布を持つことが分かった。今後、細胞・生物実験を行うためには、効率良く一度に多数のサンプルを照射可能なシステムが求められる。そこで本研究では、高線量率を維持しつつ均一な線量分布を形成するよう、散乱フィルタの使用を検討した。一度の照射で 10 匹のマウスを均一に照射するためには、最低でも直径 6 cm 領域に均一な線量を照射する必要がある。散乱フィルタはファントムの表面に設置し、直径 10cm、厚さ 5 cm のコリメータ後方にマウスを設置することを想定する。散乱フィルタの形状は、平坦度[%]と平均線量[Gy]を指標として最適化計算を実施した。ここで平坦度とは直径 6 cm 領域内における最大線量と最小線量の差を表す。最適化は、モンテカルロシミュレーション PHITS を使用し、ビーム発射口で取得した二次元線量分布をソースとして計算を行った。最適化した散乱フィルタは 3D プリンタで製作し、フィルムによる二次元線量分布から平坦度と平均線量を測定した。また KURNS-LINAC では装置の立ち上げごとにビームのスポット位置が若干変動するため、発射口付近で大幅に散乱させるように、ステンレス板による散乱手法についても検討した。

3. 結果：KURNS-LINAC における照射試験の様子を Fig.2 に示す。ビーム発射口からの距離を変更するため、駆動レールにファントムを設置し、各位置においてファントム表面にフィルム及びガラス線量計を設置し、照射試験を行った。フィルムによる照射試験の結果、ピーク線量は最大で 750 Gy/pulse であり、ビーム発射口から離れるにつれて、線量が低下することが分かった。発射口から 7.2, 17.2, 27.2, 57.2 cm 位置では、それぞれ 580, 320, 160, 40 Gy/pulse であった。ガラス線量計では、17.2 cm より近い位置では、検出限界により線量を測定できなかったが、17.2 cm より離れた位置ではフィルムによる結果と一致した。以上から、KURNS-LINAC では、1 パルスあたり 750 Gy、すなわちパルス線量率が  $1.5 \times 10^8$  Gy/s であり、FLASH 効果が観測された照射条件を十分に

満たすことが分かった。

均一な線量分布を形成するため、散乱フィルタの最適化を行った。散乱フィルタは、前段と後段で半径と厚みが異なる円柱形状で、前段は半径 2 cm、厚さ 0.95 cm、後段は半径 3 cm、厚さ 0.55 cm の場合に、直径 6cm 領域において最も平坦度が高く、平均線量が 20.5 Gy であることが分かった。製作した散乱フィルタをファントム表面に設置し、コリメータ後方で二次元分布を取得した。その結果、平坦度が 7.9 %、平均線量が 29.2 Gy であり、PHITS で推定した線量よりも高い結果となった。これは、最適化計算に使用したソースと比較して、照射日のビーム強度が高かったことに起因する。以上の結果から、照射ごとのビーム強度の違いにより、計算で線量の絶対値まで再現することはできなかったが、散乱フィルタにより均一な線量分布を形成できることが分かった。

ビーム発射口にステンレス製の散乱フィルタを設置した場合、厚み 0.1、0.3 mm の時、平坦度はそれぞれ 4.3、2.8 %、平均線量はそれぞれ 9.4、4.9 Gy であった。ステンレスを使用することで、より均一な線量分布を形成することに成功した。平坦度が最も高いステンレス 0.3 mm の結果では、パルス線量率は FLASH 効果の照射条件を満たすが、総線量としては 10 Gy 以上の照射が求められる。そこで別日程において、60 Hz で 4 パルスを照射し 20.6 Gy となることを確認した (1 パルスでは 5.1 Gy)。この時、平均線量率は  $1.2 \times 10^3$  Gy であり、FLASH 効果の照射条件を満たすことが分かった。以上のことから、散乱フィルタの使用により均一な分布を形成し、照射位置やパルス数、周波数を変更することで、様々なパターンで UHDR 照射できることが示唆された。

4. 結論：KURNS-LINAC における電子線照射試験の結果、当装置は UHDR 照射場として有用であることが分かった。今後は、エネルギーやパルス幅を変更して測定を行う予定である。

#### 参考文献

- [1] V. Favaudon et al., Sci. Transl. Med. 6, 245(2014)
- [2] J. Bourhis et al., Radi. Onco. 139, p11-17(2019)

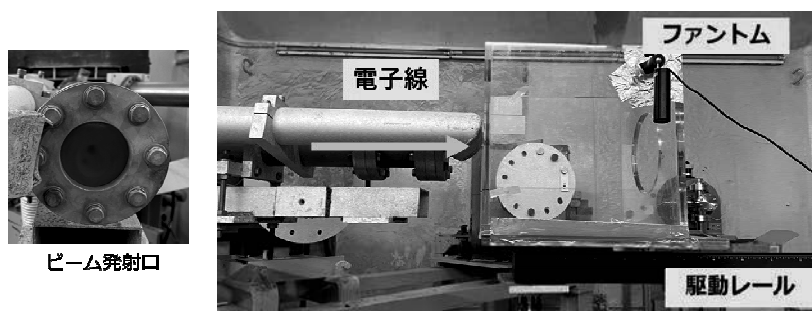


Fig. 2 KURNS-LINAC における照射試験の様子

## (P1) アザクラウンエーテルを用いた化学交換法における亜鉛の同位体分別

(阪大院工、京大複合研<sup>1</sup>、JAMSTEC 高知コア<sup>2</sup>、(株)マリン・ワーク・ジャパン<sup>3</sup>、歴博<sup>4</sup>、量研<sup>5</sup> NRM<sup>6</sup>)  
 ○赤松星哉、大津公亮、元谷拓真、中田馨介、岡田一輝、二瓶裕哉、角谷耕太郎、玉井光貴、福谷哲<sup>1</sup>、中田亮一<sup>2</sup>、永石一弥<sup>3</sup>、若木重行<sup>4</sup>、上原章寛<sup>5</sup>、加藤千図<sup>6</sup>、藤井俊行

1. はじめに：沸騰水型軽水炉では中性子照射により<sup>58</sup>Coと<sup>60</sup>Coが発生する。放射性コバルトは一次系統を構成する機器や配管の内表面のクロマイト酸化被膜中に取り込まれ、機器・配管の線量当量率が上昇する。線量当量率低減に有効な対策として亜鉛注入が挙げられている[1]。亜鉛イオンはコバルトイオンよりもクロマイト酸化被膜と高い親和性を持ち、優先的に酸化膜層中に取り込まれるため、コバルトイオンとの置換、或いは新たな取り組みを阻害可能である。しかし、亜鉛同位体中で最も存在度が高い<sup>64</sup>Zn(存在度49.2%)が中性子に照射されると、放射性同位体である<sup>65</sup>Znが生成され、放射線源が発生してしまう。これを解決するために、<sup>64</sup>Znの存在度が天然と比較して少ない減損亜鉛の需要が高まっている[1]。本研究では<sup>64</sup>Znの減損を目的とし、アザクラウンエーテル 1-Aza-15-Crown5-Ether (1A15C5) と 15-Crown5-Ether (15C5) (図1)による化学交換法のうち抽出クロマトグラフィーを用いた亜鉛の同位体分別を行った後、試料中のZn同位体比を調べ、濃縮度を評価した。

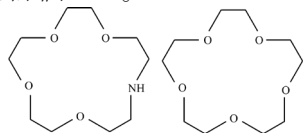


図1：1A15C5 および 15C5 の構造式

2. 実験：初めにHCl 0.1 M に調製し、ZnCl<sub>2</sub>を0.1 M になるように溶解した。次にエタノール 10 ml に対して1A15C5と15C5を0.01 M に調製した。その後、スチレンジビニルベンゼン 1.0 g を混合させ、真空状態で蒸発乾固させ樹脂を作製した。10 mm Φ × 120 mm のカラムに樹脂を詰め込み、0.1 M ZnCl<sub>2</sub> 溶液を10 ml 導入し、カラム下部から10滴ずつバイアル瓶に回収し、高周波誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-AES)を用いてZnの濃度測定を行った。その後、イオン交換クロマトグラフィーを用いて出発物質であるZnCl<sub>2</sub>溶液と抽出クロマトグラフィーを行った試料からZnを単離し、海洋研究開発機構高知コア研究所のマルチコレクター型誘導結合プラズマ質量分析計(MC-ICP-MS)でZn同位体比を測定した。同位体比の評価には式(1)のδ<sup>66</sup>Znを使用し、標準試料は出発物質であるZnCl<sub>2</sub>溶液 100 ppb を使用した。

$$\delta^{66}\text{Zn}[\text{‰}] = \left\{ \frac{\left( \frac{^{66}\text{Zn}}{^{64}\text{Zn}} \right)_{\text{sam}}}{\left( \frac{^{66}\text{Zn}}{^{64}\text{Zn}} \right)_{\text{std}}} - 1 \right\} \times 1000 \quad (1)$$

3. 結果：横軸にZnCl<sub>2</sub>溶液をバイアル瓶に回収した試料の体積、左縦軸に出発物質の濃度に対する回収した試料の濃度の割合、右縦軸に回収した試料のδ<sup>66</sup>Znをプロットしたグラフを図2に示す。ZnCl<sub>2</sub>を10 ml 滴下した結果、どちらのクラウンエーテルも滴下直後からZnが確認でき、滴下量の約20%付近で出発物質に対する割合が90%を超え、破過曲線を確認できた。これより抽出挙動においては1A15C5のNドナーによる相互作用はほぼないと考えられる。また同位体比については1A15C5は(-0.70 ± 0.03) ~ (1.33 ± 0.01) ‰、15C5は(-0.60 ± 0.04) ~ (0.27 ± 0.02) ‰の値を得た。ZnCl<sub>2</sub>がクラウンエーテルと結合するためには水分子を取り除く必要があるが、軽い同位体の方が重い同位体比べてZn-O間の振動エネルギーが小さいため、樹脂側に軽い同位体、回収溶液側に重い同位体が濃縮されたと考えられる[2]。またNドナーを含む1A15C5のほうが15C5よりも高い同位体比を得ていることからNドナーによってZnとクラウンエーテルとの結合力に差を生じさせていることが示唆された。

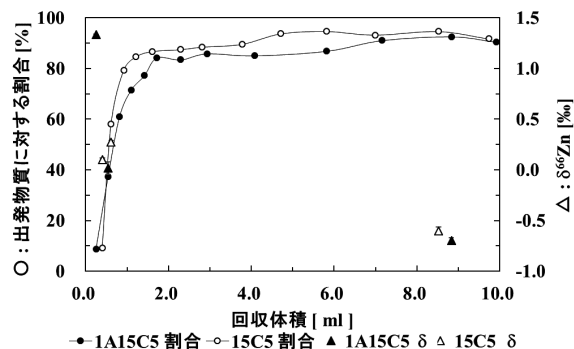


図2 回収体積 vs. 出発物質に対する割合、δ<sup>66</sup>Zn  
 参考文献

- [1] 永田暢秋ら、PWR プラントにおける線源低減のための亜鉛注入技術の適用について、保健物理 45 (2010), 57-64  
 [2] 大井隆夫、同位体の分離濃縮法、化学と教育 61 巻 3号 (2013), 128

Isotope fractionation of zinc using a chemical exchange method with Aza-Crown Ether

Seiya Akamatsu, Kousuke Otsu, Takuma Mototani, Keisuke Nakata, Kazuki Okada, Yuya Nihei, Koutarou Kakutani, Kouki Tamai, Satoshi Fukutani, Ryoichi Nakada, Kazuya Nagaiishi, Shigeyuki Wakaki, Akihiro Uehara, Chizu Kato, Toshiyuki Fujii  
 akamatsu1@qc.sec.eng.osaka-u.ac.jp

## (P2) 広島原爆由来のウラン含有粒子の探索

(京大複合研、(株)アトックス<sup>1</sup>) ○高宮幸一、東江直樹、稲垣 誠、沖 雄一、福谷 哲、八島 浩、芝原雄司、足立友紀<sup>1</sup>、五十嵐康人

### 1. はじめに

1945年に広島に投下された原子爆弾には平均濃縮度が約80%のウランが約64 kg 搭載されていた。爆弾の爆発ではこのうち約1 kgの<sup>235</sup>Uが核分裂反応を起こした。つまり多くのウランは核分裂を起こすことなく、原爆降下物として環境中を拡散し地表に沈着したと推測され、漆喰の壁に付着した「黒い雨」の痕跡中に原爆由来のウランが含まれていたとする報告<sup>[1]</sup>もある。また、広島周辺の土壌からウランを抽出しAMSによる同位体比分析を行うことで原爆由来のウランの存在を明確にすることも試みられた<sup>[2]</sup>。しかし、ウランを含んだ原爆降下物が環境中でどのように拡散したのかは未解明となっている。

われわれは核分裂を起こすことのなかったウランは高温の火球中でプラズマ化し、その後温度の低下とともに一部のウランは凝集し、最終的には粒子状の原爆降下物として拡散したのではないかと考えた。このようなプロセスを経て生成した粒子は、濃縮度が約80%であるウランを高濃度で含有した粒子となる。この粒子が水に不溶性であった場合には環境中に現存していると考えられ、天然に存在するウランを含有した粒子とは同位体比によって明確に識別して検出することができる。また、検出したウラン含有粒子の物理的、化学的性状を分析することにより粒子の生成プロセスに関する情報が得られ、火球中の温度の経時変化などを推測することが可能となる。最終的にはウラン以外の<sup>137</sup>Csなどの核分裂生成物を含んだ原爆降下物の物理的、化学的性状の推定も可能となり、広島原爆により生成した原爆降下物の地表での分布推定に寄与することができると考える。そこで広島「黒い雨」の降雨域内において土壌試料を採取し、原爆由来のウラン含有粒子を探索することを試みた。

### 2. 実験

ウラン含有粒子の探索には、広島周辺の「黒い雨」の降雨域内で採取した土壌を用いた。土壌の採取にはスクレーパープレートを用い、地表から30 cmの深度まで1cmごとに土壌を採取した。これらの土壌試料の一部を3.0 g/cm<sup>3</sup>に調整したSPT(ポリタングステン酸ナトリウム)重液を用いて重液分離を行い、土壌粒子のうち高比重の粒子を分離してPFAフィルタ上に捕集した。このフィルタを固体飛跡検出器(パリオトラック)の表面に密着させ、研究用原子炉KUR

の黒鉛設備圧気輸送管(TC-Pn)を用いて6分間の中性子照射( $3 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>)を行った。照射後の固体飛跡検出器を70°Cに加熱した7 Mの水酸化ナトリウム溶液に30分間浸漬してエッチングを行い、光学顕微鏡を用いて固体飛跡検出器の表面に核分裂片によって生成した飛跡を観察した。また、フィルタ上に捕集した高比重粒子のうちウランを高濃度で含有する粒子を特定するため、生成した飛跡の場所をもとにSEM/EDXを用いた粒子の探索を行った。

### 3. 結果

エッチング後の固体飛跡検出器には、核分裂片による飛跡が観察されたが、その中に多数の飛跡が放射状に存在し集合体(クラスター)を形成しているものが複数観測された。このような飛跡のクラスターはウランを高濃度で含有する粒子が存在することを示している。観測されたクラスターを形成する飛跡の数を計数したところ、ひとつの粒子から生成したと考えられる飛跡の数は、数百から数千個であることがわかった。ひとつのクラスターを形成する飛跡の数から1粒子中の<sup>235</sup>Uの量を見積もったところ $10^{11-12}$ 個に相当すると見積もられた。一方で、天然ウランが濃集した岩石粒子を想定し、1粒子あたりに生成する飛跡の数を見積もると数個となり、前述のようなクラスターが形成されることはないことがわかった。つまり、クラスターを形成した粒子は天然由来とは考えられず、広島原爆に搭載されていたウランを由来とする粒子であると推測される。

これらのウラン含有粒子をSEM/EDXを用いて特定し抽出することを試みたが、これまでに粒子を特定することはできていない。このことから、ウラン含有粒子の大きさが観察に用いたSEM/EDXの分解能での特定が困難である1 μm以下であるか、ウラン含有粒子がPFAフィルタの表面ではなく細孔の内部に捕捉されたと考えている。今後は高比重粒子の捕集に用いるフィルタの種類を変更することでウラン含有粒子をフィルタ表面に捕捉し、SEM/EDXによる粒子の特定と抽出を試み、詳細な性状分析を行いたいと考えている。

### 参考文献

- [1] Y. Fujikawa, et al., Health Physics **84** (2003) 155-162.
- [2] A. Sakaguchi, et al., Science of The Total Environment, **40** (2010) 5392-5398.

Search for uranium-containing particles originated from the Hiroshima Atomic Bomb

Koichi Takamiya, Naoki Toe, Makoto Inagaki, Yuichi Oki, Satoshi Fukutani, Hiroshi Yashima, Yuji Shibahara, Tomohiro Adachi, Yasuhito Igarashi  
takamiya.koichi.2u@kyoto-u.ac.jp

## (P3) KURAMA-II の開発と展開の現状

(京大複合研) ○谷垣 実

### 1. はじめに

東電福島第一事故に対応するために開発された GPS 連動型放射線自動計測システム KURAMA[1]の発展形である KURAMA-II[2]は、多彩な知見[3]と運用実績を有している。将来の原子力災害も見据えた KURAMA-II の研究開発の現状について紹介する。

### 2. KURAMA-II のあらまし

KURAMA-II は移動しながら位置情報とともに放射線に関する情報を測定するシステムである。浜松ホトニクス社の CsI(Tl) 検出器 C12137 シリーズと組み込み用 PC、GPS、LTE モジュールが搭載された完全自動計測のユニットで G(E)関数法により算出された線量率および波高スペクトルデータが GPS 情報でタグづけされ、クラウドに構築されたサーバへ送られる。サーバに送信されたデータはクラウド上で運用されるデータベースに保持され、さまざまなユーザ向けサービスが提供されるほか、クラウドに実装されたインターフェースを通じて国や自治体が運用する様々な放射線情報監視システムとの連携も可能である。

### 3. KURAMA-II の活用事例

車載型 KURAMA-II は 2011 年度以降東日本一帯における広域走行サーベイに活用されているほか、2014 年度より福島県内の路線バス等約 60 台による県内の生活圏の継続的な放射線モニタリングが行われている。これまでの活用で実証された高い信頼性と運用の柔軟性から、KURAMA-II の既存の固定・可搬モニタリングポストへの活用も進んでおり、過酷な環境下での安定した運用能力が確認されている[4]。

福島第一原発周辺の放射性物質で汚染された農地の回復のため、KURAMA-II ベースのシステムである KURAMA-X による土壌中の放射性物質密度測定技術を開発した[5]。現在、農林水産省委託事業（令和 5 年度より F-REI へ移管）として特定復興再生拠点等の高度な汚染が想定される地域への適用拡大の研究開発が進行中で、除染後圃場における放射性物質の面的・経時的な動態のデータが営農者に負担なく蓄積できることを実証し、特定復興再生拠点での営農再開に向けた社会実装の取り組みも進んでいる。

土壌中の放射性物質密度測定技術は原子力施設の廃止時の残留汚染等の確認への適用も期待されており、米国エネルギー省と共同で New York 州 West Valley での初期的な試験も開始した。

KURAMA-II の機動性や汎用性を高めるため、Sony のシングルボードコンピュータ Spresense ベ

ースの超小型 KURAMA-II の開発を進めており、令和 5 年度の国の原子力総合防災訓練ではドローンに搭載されて放射線モニタリングに利用された(図1)。

令和 6 年能登半島地震では能登半島北部のモニタリングポスト最大 18 局で通信不具合による欠測が発生した[6]。機動的に展開可能なメッシュ型 LPWA はこのような状況下での代替通信手段として活用が期待されており [7]、超小型 KURAMA-II と組み合わせた緊急時即応の活用法の検討や試験に原子力規制庁委託事業として取り組んでいる。



図 1 (左) 開発中の超小型 KURAMA-II。ボード上に GPS や LTE 通信機能も実装し、従来の KURAMA-II と同等の機能を有している。(右) ドローンに搭載されて総合防災訓練で活用される KURAMA-II。

この研究は原子力規制庁委託事業の各課題、農林水産省および F-REI 委託事業 (JPFR24060105)、所長裁量経費の成果を含みます。

### 参考文献

- [1] M. Tanigaki, R. Okumura, K. Takamiya et al., Nucl. Instr. Meth. **A726**(2013)162-168.
- [2] M. Tanigaki, R. Okumura, K. Takamiya et al., Nucl. Instr. Meth. **A781**(2015)57-64.
- [3] 原子力規制委員会 [https://www.nsr.go.jp/news\\_only/20171226\\_01.html](https://www.nsr.go.jp/news_only/20171226_01.html)
- [4] 青森県原子力センター, 青森県原子力センター所報 **17**(2022)39-48.
- [5] M. Tanigaki, Y. Inoue, S. Momota et al., Radiat. Prot. Dosim. **198**(2022)964-970.
- [6] 原子力規制庁, 令和 6 年能登半島地震における原子力施設等への影響および対応, 2024 年 1 月 10 日.
- [7] 谷垣実他, 日本原子力学会和文論文誌, **22**(2023)38-49.

## (P4) 合成高分子の分子状態オペランド計測と新機能創生

(京大複合研<sup>1</sup>、京大環安保<sup>2</sup>、早大<sup>3</sup>、量研<sup>4</sup>)

○中村秀仁<sup>1</sup>、池上麻衣子<sup>1</sup>、窪田卓見<sup>2</sup>、白川芳幸<sup>3</sup>、北村尚<sup>4</sup>

放射線計測分野では、従来の蛍光剤を添加したプラスチックシンチレーション物質から蛍光剤を必要としない合成高分子の研究に重点が移行してきた。これまで電離放射線計測では同物質の分子構造内の電子状態の遷移で表される標準梯子モデルから予測されるパルス形状の蛍光観測がその解釈として用いられてきた。しかし筆者らの研究によって、それらと異なる蛍光を相次いで観測し、環境レベルの電離放射線照射下で生じる現象であることを明らかにした[1, 2]。この物理現象の本質を理解するためには、さらに照射 ON/OFF による分子間結合強度と分子内電子分布の変容について詳細な実態解明が必要となる。そのため本研究では、電離放射線照射中の分子の運動状態を直接観測し、同合成高分子に新たな発光機序モデルを構築することを目的とした。

数種類の蛍光剤を添加した合成高分子はシンチレーション物質として放射線をセンシングする研究分野を一世紀以上に亘り牽引してきた。しかし、その波長変換のために課せられた『合成高分子で生じた光を吸収・再発光できる蛍光剤の添加』という制約は、使用できる蛍光剤の種類を事実上大きく限定した上、製造過程の複雑化をもたらし、結果として性能の改良に限界を生じさせて、半世紀に亘り新素材の創製を遠ざけてきた[3]。この長年の課題に対し、2010年に筆者は、蛍光剤を添加しなくともベース素材となる合成高分子を高純度化することで、電離放射線検出に適した発光特性を付与できることを示した[4]。その後、蛍光剤を添加せずとも放射線をセンシング可能な合成高分子が次々と明らかとなり、その中から特に汎用性が高いものが大面積・大容量化可能な新素材として頭角を現した。今日では、蛍光剤無添加型シンチレーション物質として基礎物理から医学まで幅広い分野で活用されるようになっている[5]。

一方、この考え方は、従来の蛍光剤添加型シンチレーション物質の新たなベース素材としても台頭し、選択可能な蛍光剤の種類幅が増した[6]。このように蛍光剤添加の有無の両面から性能改良の可能性が芽生えたことで、発光機序の早期解明が待ち望まれるようになった。しかし、放射線の『照射後』に生じる光（内部光）から『照射中』の合成高分子内電子状態を推測する従来の間接アプローチには限界があり、13年の月日を経ても発光機序は解明されていない。このような学術的背景から、波長変換デバイス

として合成高分子の実装は、未だ内部光活用の域に留まり、新領域を切り拓くまでには至っていない。

そこで本研究では、今一度、基礎学術研究に立ち返ることとした。契機は、発光機序を解明するため、各種分光光度計内で合成高分子に環境レベルの荷電粒子を照射していたところ、内部光起因では説明がつかない波長領域に光信号が存在することを相次ぎ発見したことにある[5, 6]。その原因解明に多角的に取り組んだところ、合成高分子を構成する分子のアボガドロ数に比べて無視できるほど少なく微弱な放射線が圧倒的多数である分子の運動状態に変化を及ぼし、固有の光学特性をスイッチングする兆候であるところまで突き止めた。この特性改変により、内部光活用の域を越える可能性は捉えたものの、新たな機能として樹立するには発生条件の観点からも不明瞭な点が多い。特に、この現象は照射停止と連動して消失するため、その本質を知るには、放射線の『照射中』に合成高分子の分子運動へダイレクトにアクセスする必要がある。

この現象の本質解決のため、令和6年度科学研究費挑戦的研究を基に、微弱な放射線を照射しながら分子内の電子状態をその場（オペランド）で直接観測する計測システムを開発するプロジェクト研究を開始した。本ポスター発表は、その進捗状況について報告するものである。

### 参考文献

- [1] H. Nakamura *et al.*, "Fluorescence pulses derived charged particles", *Physica Scripta* 96 125307 (2021)
- [2] H. Nakamura *et al.*, "Potential alpha particle detection with thin poly (ether sulfone) substrates", *Physica Scripta*, 97, 085303 (2022)
- [3] G.H.V.Bertrand *et al.*, "Current Status on Plastic Scintillators Modifications", *Chemistry-A European Journal* 20,15660(2014).
- [4] H. Nakamura *et al.*, "Radiation measurements with heat-proof polyethylene terephthalate bottles", *Proceedings of the Royal Society A.*, 466, 2847 (2010).
- [5] H. Nakamura *et al.*, "Evidence of deep-blue photon emission at high efficiency by common plastic", *Europhysics Letters*, 95, 22001 (2011).
- [6] H. Nakamura *et al.*, "Development of polystyrene-based scintillation materials and its mechanisms", *Applied Physics Letters*, 101, 261110 (2012).

## (P5) メタン菌由来 sHsp の温度依存的オリゴマー解離に関する研究

(農工大工、京大複合研<sup>1</sup>) ○養王田正文、黒川丹那、小川未真、仲若葉、守島健<sup>1</sup>、井上倫太郎<sup>1</sup>、杉山正明<sup>1</sup>

1. はじめに: Small heat shock protein (sHsp)は生物界に普遍的に存在する分子シャペロンである。保存性が高い  $\alpha$ -crystallin ドメイン、それを挟む保存性の低い N 末端ドメイン、C 末端ドメインを有する。sHsp は、それぞれの生物の至適生育温度付近では安定なオリゴマーとして存在する。高温などストレス下で 2 量体に解離し、変性したタンパク質を捉えて凝集を防ぐ[1]。しかし、sHsp の温度依存的なオリゴマー解離機構は解明されていない。古細菌であるメタン菌は多様な環境で生育する。至適温度が 85°C である超好熱性メタン菌 *Methanocaldococcus jannaschii* の sHsp(MJsHsp) [2]と至適温度が 38°C である常温性の *Methanococcus maripaludis* の sHsp (MMsHsp)は、高いアミノ酸相同性があるが、温度依存性が大きく異なる。本研究では MJsHsp と MMsHsp を比較し、変異体を解析することで、温度依存性を決定するアミノ酸を同定することを目的とした。

2. MJsHsp と MMsHsp のアミノ酸配列を図 1 に示す。MJsHsp と MMsHsp の遺伝子を合成した。また、最も大きく変異している N 末端ドメインおよび他の領域で異なるアミノ酸に着目し、それぞれを入れ替えた変異体の遺伝子を作成した。各遺伝子を pET23b に組み込み、大腸菌 BL21(DE3)で発現させた。組換え大腸菌を超音波で破碎し、得られた抽出液からイオン交換クロマトグラフィーおよびゲルろ過クロマトグラフィーを用いて野生型及び変異 sHsp を精製した。HPLC を用いたゲルろ過クロマトグラフィーでオリゴマー構造を解析した。常温と 50°C で解析することで、高温での解離を解析した。また、超遠心分析 (Analytical ultracentrifugation; AUC) による解析も行なった。

3. 結果: 最もアミノ酸配列が異なる N 末端ドメインを入れ替えても温度依存性は変わらなかった。様々な変異のうち、MJ\_Q36E/MM\_E43Q, MJ\_E118G/MM\_G125E 及び MJ\_N145D/MM\_D152N の 3 カ所の変異で温度依存性が僅かに変化した。さらに、これら 3 つを全て変異した変異体を解析したところ、MJsHsp 及び MMsHsp 共に温度依存性が変化した。さらに、キメラ体の解析により、MJsHsp の I35 から R93 の間のアミノ酸が温度依存性に関わることが分かった。その中で着目した変異

(MJ\_T89M、MM\_M96T) を加えて、4 か所を同時に変異させた変異体を解析したところ、MJsHsp は温度依存性が変化し、MMsHsp は大幅に変化した (Fig. 2)。MJsHsp の X 線結晶構造は解明されており、C 末端ドメインの IXI モチーフが隣接する 2 量体の  $\alpha$  crystallin ドメインの  $\beta$  ストランドの間に入り込むことで、球状の 24 量体を形成している。MMsHsp の構造は解明されていないが、超遠心分析で MJsHsp と同様に 24 量体を形成した。さらに、AlphaFold2 による構造予測でモノマーの構造がほぼ同じであった。そのため、MJsHsp の構造を基に、これらのアミノ酸と温度依存性の関係について考察した。Q36 は相互に隣接することから、E に変化すると静電的反発力で不安定化すると考えた。N145 は IXI の中央に位置し、E118 は 2 つの  $\beta$  ストランドの間に存在するため、これらの変異は、IXI と  $\beta$  ストランドの相互作用に影響を与えると考えた。T89 が存在する Loop 領域は 2 量体間の相互作用に関わる部位であり、オリゴマー形成に影響を与えると考えた。しかし、これだけではそれぞれの温度依存性の変化を説明することはできないので、さらに別の部位の変異体を作成してその効果を調べている。

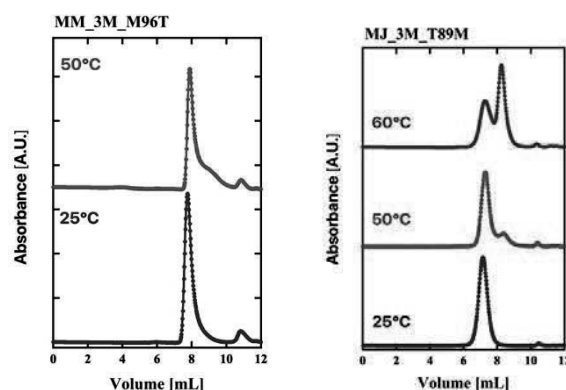


Fig. 2 SEC-HPLC によるオリゴマー構造解析

### 参考文献

- [1] M. Hirose *et al.*, J. Biol. Chem., **280** (2005) 32586-32593  
 [2] K.K. Kim *et al.*, Nature, **394** (1998) 595-599

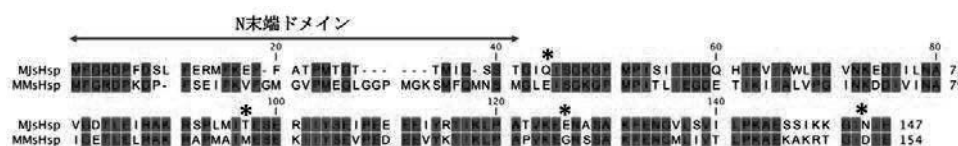


Fig. 1 Sequence Alignment of MJsHsp and MMsHsp

Study on the temperature dependent oligomer dissociation of sHsps from methanogens  
 Masafumi Yohda, Nina Kurokawa, Mima Ogawa, Wakaba Naka, Ken Morishima, Rintaro Inoue, Masaaki Sugiyama  
 Tokyo University of Agriculture and Technology, Kyoto University Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science  
 yohda@cc.tuat.ac.jp

## (P6) 黄砂飛来時の大気エアロゾル及びその組成元素の粒径分布

(大阪公立大学, 京大複合研<sup>1</sup>) ○伊藤憲男, 吉永尚生<sup>1</sup>

大気エアロゾルの粒径(必ずしも球形でないので空気動力学的に決まる直径)は数十ナノmから100 $\mu\text{m}$ におよびそれぞれの粒径範囲で組成が異なっている。この発表では、主に粗大粒子(粒径 $>2\mu\text{m}$ )に存在する土壌由来の粒子(土壌粒子)の主に黄砂飛来時の元素組成について述べていく(今回はAlとCaについて)。黄砂粒子は、中国大陸の砂漠地帯を発生源とし3月から5月にかけて日本に飛来する。2024年4月16日-23日に黄砂粒子が関西地方にも飛来し、我々も黄砂粒子を捕集できた。黄砂飛来時でなくとも、中国大陸を起源とする土壌粒子の影響を受けているが、黄砂飛来時以外には観測地点周辺の土壌粒子の影響を大きく受けていると考え、黄砂来時にAlとCaの濃度がどのように変化しその粒径分布の変化について述べていく。

今回観測した大気エアロゾル粒子は、大阪公立大学(大阪府堺市)で捕集された大気エアロゾルで、捕集期間1週間でアンダーサンプラーで粒径範囲を9範囲( $<0.43, 0.43-0.65, 0.65-1.1, 1.1-2.1, 2.1-3.3, 3.3-4.7, 4.7-7.0, 7.0-11, >11\mu\text{m}$ )に分け、ポリエチレンシート上に捕集された。2024年4/16-23に黄砂の飛来が確認でき、3/19-5/1の1週間平均の粗大粒子(PM-C)濃度変化はFig.1に示すとおりとなった。4/16-4/23のPM-Cの平均濃度は $60\mu\text{g}/\text{m}^3$ で他の期間の平均濃度( $14\mu\text{g}/\text{m}^3$ )の約5倍となった。

捕集した大気エアロゾルの元素組成は、中性子放射化分析法で行なった。土壌粒子の主成分であるAl, Ca

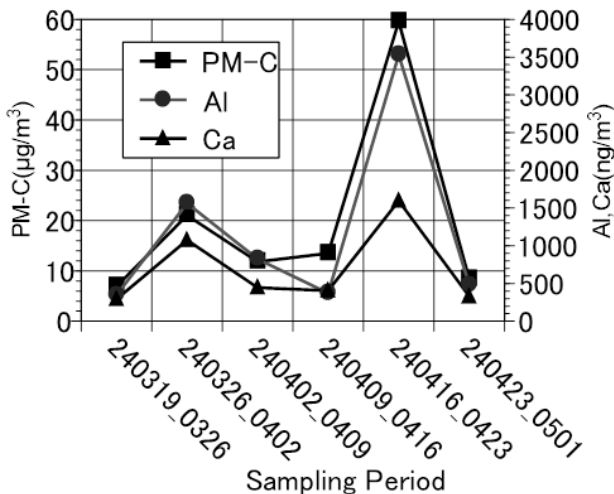


Fig.1 Concentration change in PM-C, Al, Ca in 2024 Apr.- 19-May 1

については、京都大学複合原子力科学研究所の原子炉で中性子照射を2分間行ない、生成した $^{28}\text{Al}$ と $^{49}\text{Ca}$ のガンマ線強度より濃度を算出した。この結果より得られたAlとCaの濃度変化もFig.1に示す。黄砂飛来中(4/16-23)のAlとCaの平均濃度は、それぞれ、 $3700\text{ng}/\text{m}^3$ と $1700\text{ng}/\text{m}^3$ となり、他の期間の平均濃度、 $790\text{ng}/\text{m}^3$ (Al),  $530\text{ng}/\text{m}^3$ (Ca), に比べて、4.7倍(Al), 3.2倍(Ca)の濃度上昇であった。黄砂飛来時のCaの濃度

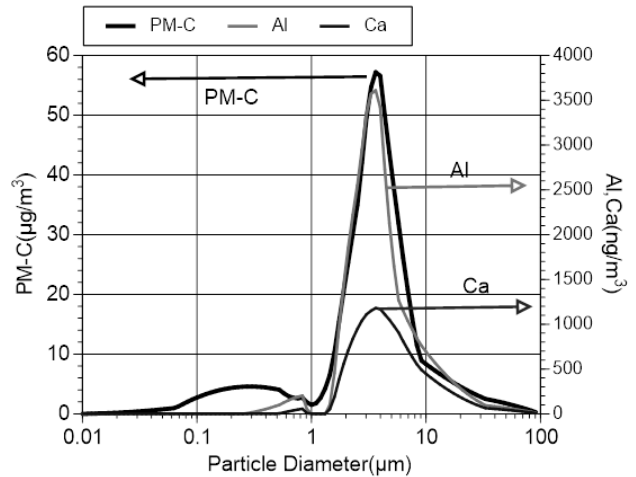


Fig.2 Concentration distribution on particle size for PM-C, Al, Ca

上昇は、PM-CとAlに比べて大きくなく、黄砂粒子でのCa濃度は、観測点付近の土壌粒子より低いと推定される。

PM-C, Al, Caの黄砂飛来時の濃度の粒径分布をFig.2に示す。この分布より得られる、平均粒径、標準偏差をTable1で示す。黄砂粒子飛来時には、平均粒径の低下とその標準偏差が低下しており、粒径の小さい粒径範囲が狭まった粒子が飛来していると推定できる。

Table 1 Mean diameter and standard deviation obtained from concentration distribution on particle size.

| Items | Mean diameter( $\mu\text{m}$ ) |               | Standard deviation of diameter( $\mu\text{m}$ ) |               |
|-------|--------------------------------|---------------|---|---------------|
|       | 4/16-23                        | Other periods | 4/16-23   | Other periods |
| PM-C  | 6.5                            | 8.9           | 5.1   | 7.4           |
| Al    | 5.8                            | 8.7           | 4.4   | 6.3           |
| Ca    | 7.0                            | 8.9           | 5.6   | 7.5           |

Concentration distribution on the particle size for Al, Ca in the Kosa particle

Norio Ito, Hisao Yoshinaga

c21983a@omu.ac.jp

## (P7) 高水素化 DLC 膜の脱離過程に伴う空孔型欠陥の変化

(兵庫県高度研、兵庫県大<sup>1</sup>、大阪公大工<sup>2</sup>、京大複合研<sup>3</sup>)

○神田一浩、丹羽大輔、三嶋友博、中西康次、福室直樹<sup>1</sup>、堀史説<sup>2</sup>、藪内敦<sup>3</sup>、木野村淳<sup>3</sup>

1. はじめに：水素含有率が40%を超える高水素化ダイヤモンドライクカーボン膜(H-DLC 膜)は、真空中でも低摩擦係数を保つという特性を持ち、宇宙空間や真空槽内などで固体潤滑剤としての利用が期待されている。宇宙空間で固体潤滑剤として使用する際、軟X線や大きな温度変化など大気中と異なる環境要因が存在する。これまでの我々の研究で、H-DLC 膜は軟X線の照射や温度上昇により、水素などの放出が起き、体積の減少、密度の増加、炭素原子の $sp^2/(sp^2+sp^3)$ 比の上昇が起きることがわかっている[1,2]。本研究では、軟X線照射と昇温による脱離過程でH-DLC 膜の構造変化の違いを調べるために、低速陽電子線を用いた陽電子消滅分光法(PAS)の測定を行って、H-DLC 膜中の自由体積の軟X線照射量依存性・昇温温度依存性を比較した。

2. 実験：H-DLC 膜は Plasma Enhanced CVD 法により Si 基板上に膜厚 400 nm で製膜した。水素含有率は 50 %である。H-DLC 膜の昇温は電気炉を用いて室温から 1100°Cまでの範囲で行った。軟X線の照射はニュースバルBL06において1000 eVまでの白色光を照射した。京大研究用原子炉(KUR)のB-1孔に設置された低速陽電子線装置を用いて、PASの測定を行った。原子炉で生成した陽電子を20 eVまで減速させ、照射チェンバー直前で最大30 keVまで加速して、試料に照射する。対消滅により発生した $\gamma$ 線をGe半導体検出器で観測した。ドップラー拡がり法と陽電子消滅寿命法の2種の測定を行った。

3. 結果：陽電子消滅により生成する $\gamma$ 線の運動量シフトを示すSパラメータと陽電子消滅寿命の軟X線照射量依存性と昇温温度依存性を図に示す。どちらの脱離においても、陽電子消滅寿命が増加しており、H-DLC 膜中の自由体積は増加する。すなわち、炭素の再結合が起きて膜全体の体積は減少するが、自由体積は増加していることから、密度の増加は水素が減少したことによると結論できる。昇温による脱離ではSパラメータが増加し、自由体積の増加を示しているが、軟X線照射では陽電子消滅寿命は軟X線照射量の増加に伴って増加するが、Sパラメータは減少する。これはH-DLC 膜中の自由体積周辺の内殻電子を含まない水素が脱離したことで炭素の内殻電子との対消滅が増えたためと考えられる。H-DLC 膜の昇温では、水素の脱離が起きる360°Cまでの温度領域で、陽電子消滅寿命とSパラメータは

ともに増加している。また、450°C以上では炭化水素の脱離によりSパラメータが大幅に増加している。このように昇温では炭素と水素が共に脱離するのに対し、軟X線照射では水素のみが脱離し、自由体積周りの元素が水素から炭素に変わったことなど化学環境の変化により、陽電子消滅寿命とSパラメータの依存性が異なると考えられる。

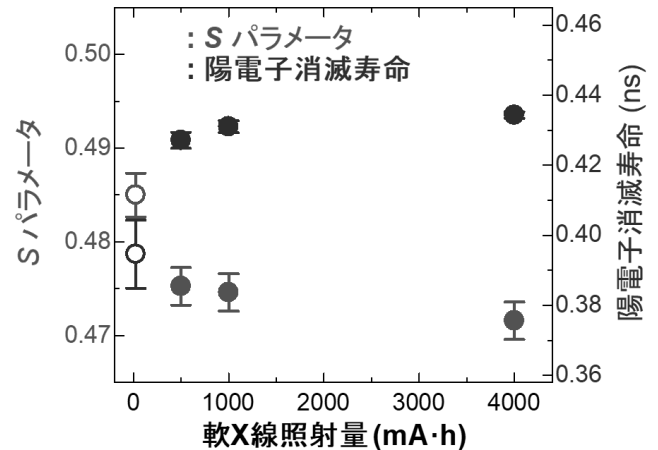


Fig. 1. Dependence of S-parameter and Positron annihilation lifetime on soft X-ray dose.

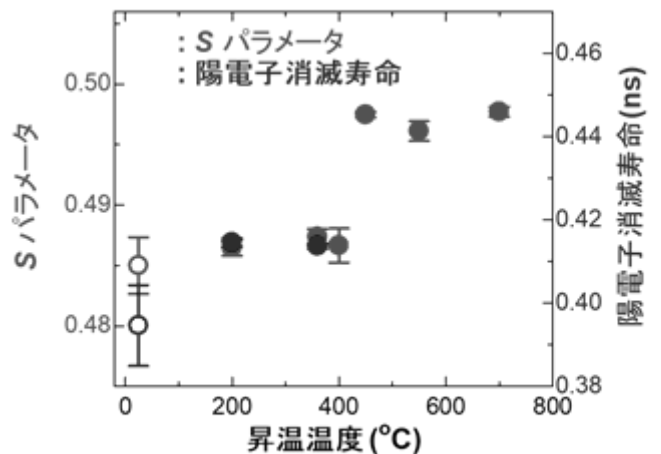


Fig. 2. Dependence of S-parameter and Positron annihilation lifetime on rising temperature.

### 参考文献

- [1] R. Imai, et. al., Diam. Rel. Mat., 44 (2018) 8.
- [2] 三嶋ら, 第 69 回応用物理春季, [23p-P05-3]

Desorption-induced changes in vacancy-type defects in highly hydrogenated DLC films

Kazuhiro Kanda, Daisuke Niwa, Tomohiro Mishima, Koji Nakanishi, Naoki Fukumuro, Fuminobu Hori, Atsushi Yabuuchi, and Atsushi Kinomura

Kanda@lasti.u-hyogo.ac.jp



## (P8) 伴侶動物を治療対象とした BNCT による放射化の影響評価

(名大院工、帯広畜産大学<sup>1</sup>) ○石川裕也、吉橋幸子、山崎淳、瓜谷章、岩崎遼太<sup>1</sup>

### 1. はじめに

犬の死亡要因として最も高い割合を占めるのは悪性腫瘍であり、その治療法としてはヒトと同様に外科治療、化学療法、放射線療法が実施されている。しかしながら、悪性黒色腫や肉腫などの特定の腫瘍は外科的摘出が困難であり、さらに放射線療法や化学療法に対して抵抗性を示す高悪性度の腫瘍も多く存在する。このような背景から、獣医学分野においてもホウ素中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy: BNCT) の適用が期待されている。一方で、犬など伴侶動物の BNCT を実施した時の等価線量限度や被曝評価指標など放射線影響は明確になっていない。そこで本研究では、今後の伴侶動物への BNCT 適用に向けて、犬の CT 画像に基づく詳細なモデルを構築し、頭部悪性腫瘍に対して中性子を照射した場合に、誘導される放射性核種について生成量と照射後の時間推移について定量的評価を行った。

### 2. 計算モデル

モンテカルロシミュレーションコードにより放射化量を評価するため、犬ファントムを作製した。まず PHITS に実装されている CT データ変換ツール CT2PHITS を用いて、ビーグル犬の CT データ (DICOM 形式) を PHITS 形式のボクセルデータに変換し、基本的な解剖学的構造を再現した。次に、CT 画像を基に脳腫瘍の 3D モデルを作製し、これを組み込むことで脳腫瘍犬ファントムを完成させた。そして、核種の生成・崩壊を計算するツール D-CHAIN を用いて放射化量を計算した。

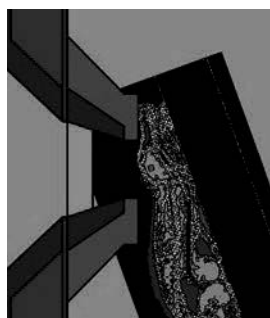


図 1 シミュレーションモデル

### 3. 計算条件

名古屋大学加速器中性子源 (NUANS) での治療を想定し、図 1 で示すように NUANS の中性子出射口に作製した犬ファントムを配置して、中性子照射によって生成された誘導放射性核種について、14 日後までの放射能の時間推移を評価した。中性子の照射時

間は 1 時間とし、中性子ビームは頭頂部方向から照射した。照射部から腫瘍中心位置までの距離は約 2cm に設定した。

### 4. 結果

図 2 と図 3 は照射後の主要な核種について、24 時間と 14 日間の放射能の時間推移をそれぞれ示す。照射終了直後においては Cl-38 が最も高い放射能を示したが、照射終了後 1 時間経過時点では Na-24 が最も支配的な核種となることが明らかとなった。Na-24 以外は照射から 3 時間経過、Na-24 は 2 日経過すると全て BSS の免除レベル以下となった。この結果は、治療後の放射線防護管理において重要な知見となる。

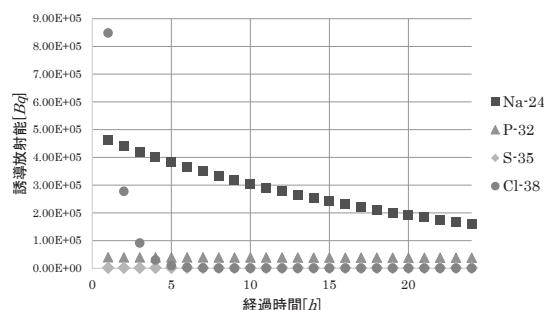


図 2 照射後 1 日以内の誘導放射能

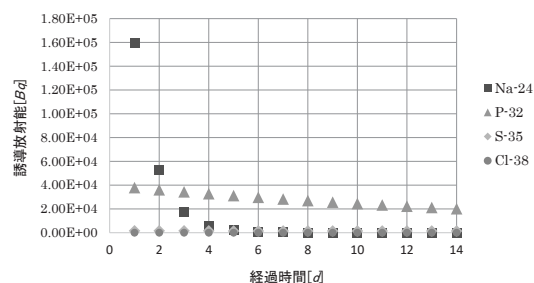


図 3 照射後 14 日以内の誘導放射能

### 5. まとめと今後の予定

本研究において、犬への BNCT の治療に伴う誘導放射性核種の特特定と定量化を行うことが出来た。今後は、退院後の飼い主への人体への影響について検討する。

### 参考文献

- [1] T. Sato, J. Nucl. Sci. Technol. 61, 127-135 (2024)
- [2] IAEA, "Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards", IAEA Safety Standards Series No. GSR Part 3, IAEA, Vienna

Assessment of the effects of activation by BNCT on the treatment of companion animals  
Yuya Ishikawa, Sachiko Yoshihashi, Atsushi Yamazaki, Akira Uritani, Ryota Iwasaki

ishikawa.yuya.u0@s.mail.nagoya-u.ac.jp

## (P9) 反陽子カルシウム原子の精密 X 線分光のための薄膜標的の開発

(京大複合研、東京科学大<sup>1</sup>) ○樋口嵩、日野正裕、藤岡宏之<sup>1</sup>

1. 研究背景：物質優勢宇宙の起源の解明は、今日の素粒子物理学の最大の命題のひとつである。物質優勢宇宙が存在する機構として、バリオン数保存を破る反応が必要であると考えられており、このような反応の候補のひとつとして探索されているのが、中性子・反中性子振動である。真空中を飛行した中性子が反中性子に変換し対消滅する事象を探索することで、 $\tau_{n\bar{n}} > 8.6 \times 10^7 \text{ s}$  の中性子・反中性子振動時間の下限値が定められている[1]。

近年、反中性子を反射させる鏡によってこのような実験探索の感度を飛躍的に向上させる提案がなされ、注目を集めているが、そのためには、反中性子-原子核の間のポテンシャルの情報が必要になる[2]。運動エネルギー数 MeV の高エネルギー反中性子は加速器を使って生成できるものの、物質にぶつかると対消滅してしまうため減速ができず、このポテンシャルの直接測定は極めて困難である。反中性子と同じく反核子である反陽子については、散乱実験をはじめとする系統的な実験データが存在するが、2 体相互作用に基づく理論が散乱実験データを完全には再現できないこと[3]や、反陽子データに基づくモデルと反中性子の対消滅断面積測定実験の結果の不一致の問題[4]などが指摘されており、中性子-反中性子実験のために用いるためには、反核子-原子核ポテンシャル理論のさらなる精緻化が必要である。このような文脈において、本研究では、反陽子原子の精密分光から反核子-原子核間のポテンシャルの問題にアプローチする。

陽子の反粒子である反陽子は、陽子と同じ質量をもつ負電荷の粒子であり、反陽子がクーロン力によって原子核に束縛された原子は反陽子原子と呼ばれる。そのボーア半径は、通常の原子のおよそ 1840 分の 1 で、反陽子原子のエネルギー準位には、原子核の大きさの効果、および反陽子・原子核間の強い相互作用の影響が現れる。反陽子原子は、低速反陽子が標的原子に捕獲されることで生成される。反陽子原子内の反陽子は、高励起状態に捕獲された後、特性 X 線を放出しながら段階的に脱励起し、最後には原子核と対消滅する。本研究では、この特性 X 線、特に強い相互作用の効果が最も強く現れる対消滅直前の特性 X 線を測定し、電磁相互作用のみを仮定した計算と比較することで、反陽子-原子核ポテンシャルの情報を抽出する。

2. 研究目的：本研究では、反陽子原子の特性 X 線の同位体シフトの高精度測定から、反陽子・原子核ポテンシャルのアイソスピン対称性を検証すること

を目指す。

低エネルギーにおける反陽子・原子核ポテンシャル  $V_{\text{opt}}$  は次のように表される[5]。

$$V_{\text{opt}}(r) = -\frac{2\pi}{\mu} \left( 1 + \frac{\mu}{M} \frac{A-1}{A} \right) [b_0 \rho(r) + b_1 \delta \rho(r)],$$

ここで、 $M$  は核子質量、 $\mu$  は反陽子-原子核系の換算質量である。 $\rho(r) = \rho_n(r) + \rho_p(r)$ ,  $\delta \rho(r) = \rho_n(r) - \rho_p(r)$  は  $\rho_n(r)$ ,  $\rho_p(r)$  を原子核中の中性子、および陽子の密度分布としたときの、それぞれ、密度分布の和と、中性子-陽子間の密度分布差を表す。 $b_0$ ,  $b_1$  はこれらのポテンシャル  $V_{\text{opt}}$  への寄与を表す核子あたり散乱長に相当し、それぞれ、アイソスカラー項、およびアイソベクター項と呼ばれる。 $V_{\text{opt}}$  にアイソスピン反転を施すと、 $b_1 \rightarrow -b_1$  から反中性子-原子核ポテンシャルが得られる。先行研究では、アイソベクター項は小さいと考えられ、 $b_1 = 0$  と仮定されていた。ただし、この際には、原子核の中性子分布の不定性が  $b_1$  の決定を妨げていた[6]。そこで、本研究では、理論・実験の両面から核子分布について研究が進んでいるカルシウム(Ca)原子核に着目し、その遷移 X 線の同位体シフト測定によって反陽子-原子核ポテンシャルの  $b_1$  の初めての決定を目指す。

このために、最新の核子分布の知見を用いるとともに、最先端の X 線検出器である超伝導転移端センサー(TES)を用いる。これによって、先行研究よりも 1-2 桁高い分解能で、反陽子 Ca 原子の対消滅直前の  $6h \rightarrow 5g$  遷移 (約 120 keV) を数 eV の精度で測定することを目指す。実験は、世界で唯一低速反陽子を供給する CERN の反陽子減速器施設内、ELENA (Extra Low ENergy Antiproton) リングにて行う[7]。

3. 反陽子 Ca 原子分光実験のための薄膜標的開発：本発表では、実験のために開発中の薄膜標的について報告する。厚さ数  $\mu\text{m}$  の Ca 蒸着層に約 10 nm の炭素層をスパッタすることで、剥離を防ぎ、かつ、エネルギー 100 keV の反陽子を効率的に停止させることができる。これにより、反陽子対消滅の二次粒子による背景事象を最小限に抑えることができる。

参考文献

- [1] M. Baldo-Ceolin *et al.*, *Z. Phys.* **63**, 409 (1994).
- [2] V.V. Nesvizhevsky *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 221802 (2019).
- [3] E. Friedman *et al.*, *Nucl. Phys. A* **943**, 101 (2015)
- [4] E. Friedman, *Nucl. Phys. A* **925**, 141 (2014).
- [5] C. Batty *et al.*, *Physics Reports* **287**, 385 (1997).
- [6] E. Friedman *et al.*, *Nucl. Phys. A* **761**, 283 (2005).
- [7] N. Paul *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 173001 (2021).

## (P10) PVA-GTA-I ゲル線量計を用いた BNCT 場の線量評価に向けた基礎的検討

(名大院工、広島国際大学<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>) ○鈴木応輔、吉橋幸子、山崎淳、瓜谷章、林慎一郎<sup>1</sup>、櫻井良憲<sup>2</sup>

### 1. はじめに：

近年の放射線治療法の発展に伴い、治療計画の更なる品質保証(QA)・品質管理(QC)が求められており、線量評価手法の一つとしてゲル線量計<sup>[1]</sup>が注目されている。そのひとつであるラジオクロミックゲル線量計は放射線との化学反応によって吸収線量に応じた呈色を示す化学線量計である。ゲル線量計の特有の利点として、水等価組成であるため、自身がファントムとして機能し、また反応分布を色調の変化として視覚的に理解できるため、患者の直感的理解を助けることが可能となる。

本研究は PVA-GTA-I ゲル線量計<sup>[2]</sup>をホウ素中性子捕捉療法(BNCT)における QA・QC の評価に使用することを目的とする。BNCT のための中性子照射場は中性子線とガンマ線の混在場であり、QA・QC の向上には、弁別し評価する必要がある。本発表では、京都大学研究炉 KUR において PVA-GTA-I ゲル線量計への中性子照射実験を行い、その熱中性子線・高速中性子線・ガンマ線に対する応答を評価した。

### 2. 実験：

#### 2-1. 試料

PVA-GTA-I ゲルは主成分の PVA (ポリビニルアルコール)、反応物として KI、還元剤として Fructose、架橋剤として GTA (グルタルアルデヒド)、架橋促進剤として GDL (グルコノデルタラクトン) を加えて作製する。さらに、本研究では熱中性子線に感度を持たせるために天然の B(OH)<sub>3</sub> を 100 mM 加えた。作製した試料は光路長 1 cm の光学セルに封入した。

#### 2-2. 照射

照射体系は、光学セルをビーム方向に 6 つ並べて置いた体系 A と、熱中性子成分を除去するため、熱中性子を吸収する LiF 入りテフロン板を体系 A の前に配置した体系 B を用意した。体系 A と B とともに、照射は KUR 重水照射設備を用い、照射時間は 60 分間とした。

#### 2-3. 測定

呈色の程度を吸光度により評価した。呈色したゲル線量計のピーク吸収波長 (486 nm) における吸光度を、紫外可視分光光度計を用いて測定した。

### 3. 結果と考察：

図 1 は体系 A と B において、深度方向の吸光度分布を示す。LiF 板を設置しない体系 B の場合の吸光度が高いことから、B(OH)<sub>3</sub> を添加した PVA-GTA-I ゲ

ル線量計は熱中性子線に感度を持つことがわかった。

図 2 は熱中性子線量・高速中性子線量・ガンマ線線量に対する PVA-GTA-I ゲル線量計の応答分布を示す。総線量を熱中性子線・高速中性子線・ガンマ線の和と仮定し、弁別を行った。熱中性子線に対する応答は図 1 から体系 A と体系 B の感度の差を用いた。ガンマ線に対する応答は、中性子照射の際に計測した BeO-TL の測定値から、別途実施した <sup>60</sup>Co 線源を用いたガンマ線校正実験の結果を用いて算出した。

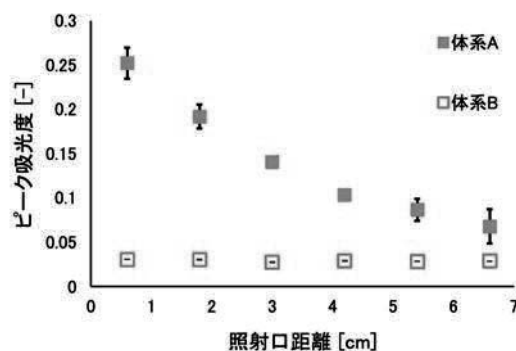


図 1. LiF 板有無による PVA-GTA-I ゲル線量計の応答及び深度方向分布

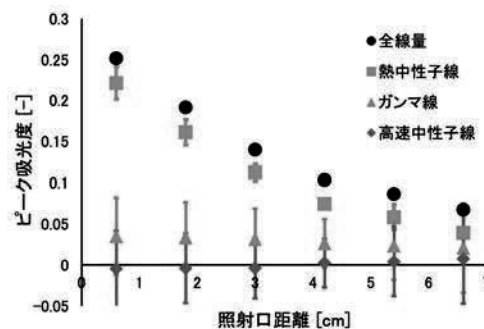


図 2. 熱中性子、ガンマ線、高速中性子線に対する PVA-GTA-I ゲル線量計の応答分布

### 4. まとめ：

作製した PVA-GTA-I ゲル線量計を用いて、BNCT 用中性子照射場のビーム方向分布を求めた。また、熱中性子線・高速中性子線・ガンマ線に相当する吸光度を実験値や校正実験の結果により求めた。以上から、PVA-GTA-I ゲル線量計が BNCT の線量分布評価及び線種弁別に使用できる可能性を示した。

### 参考文献

- [1] Y. De Deene, Gels, 2022, **8**, 599.
- [2] S. Hayashi, *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser., 2022, **2167**, 012014

## (P11) イヌの難治性がんに対する BNCT 効果の基礎的検討

(名大院工、帯広畜産大<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>) ○吉橋幸子、新美秋桜、土本一貴、河合統貴、岩崎遼太<sup>1</sup>、山崎淳、瓜谷章、櫻井良憲<sup>2</sup>、鈴木実<sup>2</sup>

### 1. はじめに：

獣医学の進歩により犬や猫などの伴侶動物の寿命が延び、それに伴い死因に占めるがんの割合が高くなっている。がん治療においては、ヒトと同様に外科治療が最も期待できる治療法であるが、手術が難しい場合は、放射線治療や抗がん剤を組み合わせた集学的治療も行われる。しかしながら、悪性黒色腫や肉腫など外科的摘出が難しく、かつ放射線や抗がん剤が効きにくい悪性度の高いがんも多くあり、新たな治療法が検討される中、ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) の適応にも注目が集まっている。

本研究は、イヌの難治性がんである悪性黒色腫に着目し、BNCT 有効性を検証するとともに DNA 損傷について評価した。

### 2. 実験：

#### 2. 1 照射試料：

細胞株は、イヌ由来原発性皮膚悪性黒色腫細胞 (C-MeC) とリンパ節転移口腔内黒色腫 (L-MeC) を用いた。それぞれ 10% ウシ胎児牛血清含有 RPMI1640 培地を用いて 37°C、5%CO<sub>2</sub> 濃度下で培養した。ホウ素薬剤は BPA を用いた。ホウ素濃度 25 ppm または 50 ppm を暴露し、中性子を照射した。中性子を照射した細胞は、RPMI 培地で 7 日間培養し、コロニー形成法を用いて細胞生存率を評価した。

#### 2. 2 照射実験：

中性子照射は、京都大学研究用原子炉 KUR の重水設備にて、1MW 混合モードで照射した。また、比較のため、名古屋大学加速器型中性子源 NUANS およびコバルト 60 照射室においても中性子およびガンマ線照射実験を実施した。

### 3. 結果：

図 1 は、C-MeC に対して BPA を添加した場合と添加しない場合の中性子フルエンスに対する細胞生存率を示す。同図より中性子フルエンスが  $1 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup> 以上で BPA 添加と添加しない場合とでは、明確に差が生じており、C-MeC に対して BNCT が有効的であることがわかる。

また図 2 は、吸収線量に対する KUR 実験、NUANS 実験およびガンマ線照射実験における細胞生存率を示す。同図から、同一吸収線量においてガンマ線照射よりも中性子照射の方が細胞生存率は低い結果が得られた。同様の結果は、L-MeC においても得られ

ており、さらに蛍光免疫染色にて DNA 損傷評価を行った結果、ガンマ線照射と比較して BNCT はより重篤な損傷が示された。

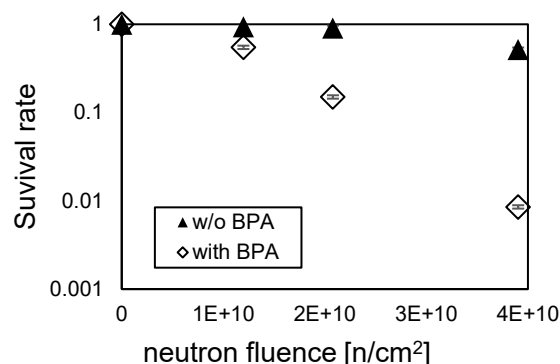


Fig. 1. Comparison of cell survival rate with and without boron for neutron irradiation.

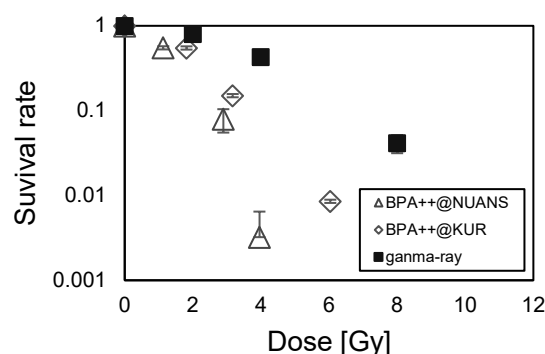


Fig. 2. Comparison of cell survival rate in the case of gamma and neutron irradiation.

### 4. まとめ

イヌ悪性黒色腫細胞に対して中性子照射実験を実施した結果、BNCT の有効性が示された。また重篤な DNA 損傷も引き起こすことが確かめられた。

## (P12) FeAl 合金への電子照射により制御導入した空孔の多重水素捕獲

(大阪公大工、京大複合研<sup>1</sup>、九大応力研<sup>2</sup>、若狭湾エネ研<sup>3</sup>)

○堀史説、平山翔太、田嘉信、徐ギユウ<sup>1</sup>、藪内敦<sup>1</sup>、木野村淳<sup>1</sup>、大澤一人<sup>2</sup>、安永和史<sup>3</sup>

1. 金属中の水素捕獲現象は、次世代のエネルギー源として期待される水素の幅広い利用に向けた研究に繋がる。B2 構造を有する Fe-Al 金属間化合物は高温構造材料として期待される材料である一方で[1]、第一原理計算から複数個の水素が単空孔に多重捕獲される可能性が示されており水素に対する強い相関を持つ材料である。しかし実際の合金を用いた B2 型 Fe-Al 金属間化合物中の空孔への水素捕獲現象による空孔内水素状態はほとんど解明されていない。我々の研究グループでは電子線照射によって B2 型 Fe-Al 金属間化合物中に導入された空孔に対して電気化学的に水素を注入することで水素が空孔に捕獲されることを確認してきた[2]。本研究では B2 型 Fe-Al 合金の空孔型欠陥に捕獲される水素の状態についての詳細解明を目的として電子線照射によって単空孔を制御して導入した後に電気化学的に水素を導入した試料の水素脱離挙動や陽電子を用いた評価を行った。

2. 実験：試料は高純度の鉄(4N)とアルミニウム(5N)をアーク溶解にて等比組成の Fe50at.%Al を合金化し、約 4 mm×4 mm×0.5 mm の板材に切り出した板材を真空中 996 K で 24 時間の熱処理後水中急冷により作製した。これらの試料に京大複合原子力研究所の LINAC にて 8 MeV の電子線を  $1 \times 10^{18} / \text{cm}^2$  まで室温照射した。照射試料に対して  $\text{NH}_4\text{SCN}$  水溶液  $1 \times 10^{-3} \text{ mol/L}$  中で電流密度 0.05 ~ 0.1 A/cm<sup>2</sup>、室温条件下で 16 時間から 160 時間の電解水素注入を行った。注入された水素の放出挙動を昇温脱離分析法(Thermal Desorption Spectroscopy; TDS)によって評価し、構造変化および水素の捕獲状態や侵入深さ等について X 線回折、陽電子消滅、弾性反跳粒子検出(Elastic Recoil Detection Analysis; ERDA)測定を行った。また、陽電子は原子炉陽電子ビーム装置を用いて 1~30 keV の低速陽電子によるドップラー測定および陽電子寿命測定を行った。

3. 結果：異なる水素注入時間の試料に対する低速陽電子ドップラー S パラメーターの深さ分布を Fig.1 示す。16 時間水素注入試料では表面近傍でわずかに S 値が減少した。これは空孔内に水素が捕獲されたことで空孔内の電子状態が変化したためと考えられる。さらに 80 時間注入では 10 keV の深さまで 16 時間注入と同程度に S 値が減少し、水素の拡散による

深部での空孔への捕獲確認できる。さらに 160 時間の水素注入では、水素の侵入深さに変化は見られない反面、表面付近の S 値が顕著に減少していることから、表面付近の空孔で水素原子の多重捕獲が起こった可能性が考えられる。また空孔に捕獲されている水素の最大侵入深さはおよそ 0.6  $\mu\text{m}$  程度である。この結果は、これまでの第一原理計算による単空孔への多重捕獲のエネルギー安定性の結果ともよく一致している。これまでの結果を考慮した空孔を内包する B2 型 Fe-Al 金属間化合物への水素捕獲挙動モデルは以下の通りである。水素注入によって試料表面から注入された水素は初期段階で順に空孔に捕獲され空孔に対し水素原子の捕獲が 1 対 1 ( $\text{V}_1\text{H}_1$ ) で飽和後に水素原子の過剰な捕獲 ( $\text{V}_1\text{H}_n$ ;  $n \geq 2$ ) が起こり始めることが示唆された。

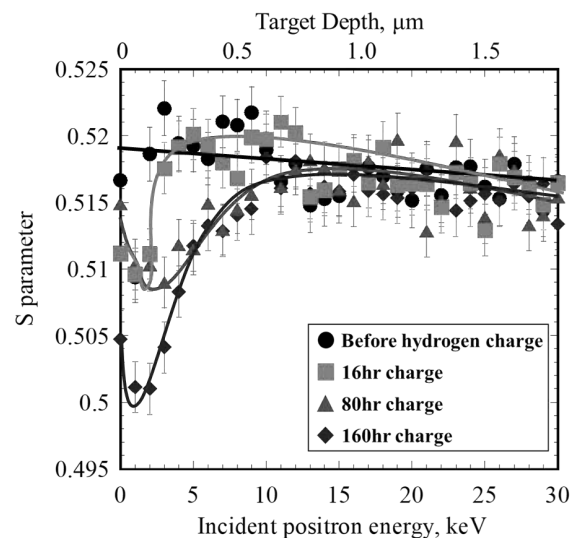


Fig. 1. Positron annihilation Doppler S-parameter distribution of hydrogen introduced Fe-Al alloys with electron irradiation.

### 参考文献

- [1] M. Kogachi and T. Haraguchi; Material Science and Engineering A230 (1997), 124-131
- [2] F. Hori, Y. Sumikura, K. Sugita, Y. Kaneno, K. Ohsawa, X. Qiu, M. Maekawa, A. Kawasuso and Y. Saito; JJAP Conf. Proc. 9 (2023) 011107.

Multiple hydrogen trapping in vacancies introduced by electron irradiation in FeAl alloys

Fuminobu Hori, Shouta Hirayama, Tian Jiaxin, Qiu Xu, Atsushi Yabuuchi, Atsushi Kinomura, Kazuhito Ohsawa, Kazufumi Yasunaga

horif@omu.ac.jp

## (P13) エキストラジオール型二原子酸素添加酵素- 阻害剤複合体の結晶構造

(京大複合研、甲子園大栄養<sup>1</sup>、滋賀短大<sup>2</sup>、滋賀医大<sup>3</sup>、京大院理<sup>4</sup>) ○喜田昭子、石田哲夫<sup>1</sup>、田中裕之<sup>2</sup>、堀池喜八郎<sup>3</sup>、三木邦夫<sup>4</sup>

1. はじめに：二原子酸素添加酵素は、分子状酸素を取り込み、二つの酸素を基質に結合させる反応を触媒する酵素の総称であり、カテコール環に分子状酸素を添加して、隣り合った2つの水酸基を結合する炭素間結合の隣の結合を開裂するエキストラジオール型酵素もその一つである。我々は以前、純粋なカテコールを基質とし、 $\alpha$ -ヒドロキシムコンセミアルデヒドを生成するエキストラジオール型二原子酸素添加酵素メタピロカテカーゼ(1)の構造解析を行った(2)。 *Pseudomonas putida* mt-2 由来のこの酵素は、ホモ4量体で、活性中心に2価鉄を持ち、10%アセトン存在下において活性を保持する。我々はアセトン結合型の本酵素の結晶構造から、2価鉄に2つのヒスチジン残基と1つのグルタミン酸残基が配位していること、更にアセトン分子が直接鉄イオンに結合していることを明らかにし、酵素反応について考察した。ここでは、本酵素と、その阻害剤である2-ヒドロキシピリジン N-オキシド(2-HPNO)の複合体の結晶構造について報告する。

2. 実験：メタピロカテカーゼ-2-HPNO 複合体の結晶は、アセトン非共存下で、酢酸ナトリウムを主たる結晶化試薬とした蒸気拡散法で得ることができた。この結晶を用いてシンクロトン放射光を用いて回折実験を行った。X線によるダメージを減らすために液体窒素温度での回折実験(クライオ実験)を行うことが一般的であるが、本結晶ではクライオ実験条件を見いだすことができなかったため、常温で回折実験を行った。柱状結晶であったため、X線を当てる場所を数回変えることができ、1個の結晶で反射強度データを得ることに成功した。プログラム HKL2000 (3)でデータ処理を行い、前述のアセトン結合型酵素の構造座標(PDBcode: 1MPY)(2)を用いた分子置換法で構造解析を行った。

3. 結果：メタピロカテカーゼ-2-HPNO 複合体結晶は空間群  $I4$  に属し、格子定数は  $a=307.5\text{\AA}$ 、 $c=59.7\text{\AA}$  であった。この結晶は、溶媒含有量が非常に高いことが判ったが、このことが溶媒を抗凍結剤に置換する必要があるクライオ実験を困難にしたと考えられる(図1)。

メタピロカテカーゼ-2-HPNO 複合体での鉄結合部位には、2-HPNO に相当する平面状の電子密度が観測された。(図2右)。アセトン結合型の構造(図

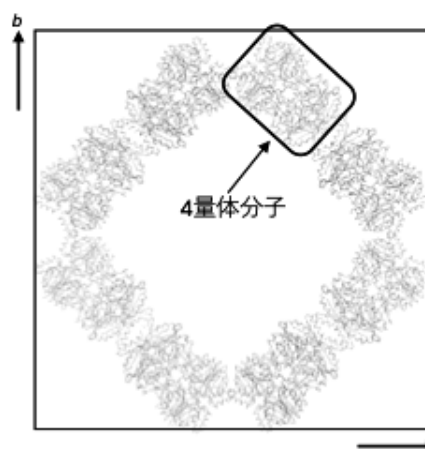


図1. メタピロカテカーゼ-2-HPNO の結晶内分子パッキング。c軸側から投影したものの、白い部分が溶媒領域を示す。

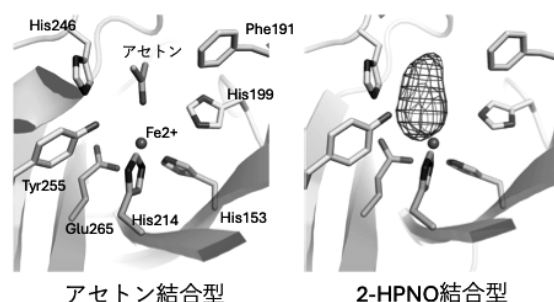


図2. メタピロカテカーゼの鉄結合部位。

アセトン結合型(左)と2-HPNO結合型(右)を示す。2-HPNO結合型では、阻害剤結合部位に平面状の電子密度(5 $\sigma$ で表記)が確認できる。

2左)と比較すると、アセトン分子が作る平面と2-HPNOに相当する電子密度の平面は、酵素分子に対してほぼ同じ配向であった。酸素原子を1個しか持たないアセトンが2-HPNOと同じ配向であることは、基質の配向を決定するのは、鉄イオンや配位触媒残基(His153, His214, Glu265)ではなく、活性部位ポケットを作るアミノ酸残基(Phe191, His199, Tyr255など)であることを示している。

### 参考文献

- [1] Kojima Y, et al., *J. Biol. Chem.* (1961) **236**, 2223.等
- [2] Kita A, et al., *Structure* (1999) **7**, 25.
- [3] Otwinowski Z, et al., *Methods Enzymol* (1997) **276**, 30.

## (P14) 血清アミロイドAのアミロイド線維形成機構の解明

(京大院薬、京大複合研<sup>1</sup>) ○星野大、奥西泰之、守島健<sup>1</sup>、井上倫太郎<sup>1</sup>、杉山正明<sup>1</sup>

1. はじめに：血清アミロイド A (Serum Amyloid protein A: SAA) は主に肝臓で産生される 104 残基からなるタンパク質である。同タンパク質はアポリポタンパク質の一種として、アポリポタンパク質 A (Apolipoprotein A-I; apoA-I) などとともに高密度リポタンパク質粒子 (High Density Lipoprotein; HDL) を構成しており [1]、血中における脂質の運搬などの役割を果たしている。正常時における血中濃度は非常に低い ( $\sim 10 \mu\text{g/mL}$ ) のに対し、炎症期において病原体の侵入や組織の壊死が生じることで約 100~1000 倍にまで上昇する。このような SAA の血清レベルの劇的な上昇は、アミロイド線維形成のリスクファクターとして考えられており、SAA によるアミロイド線維の形成・沈着が全身性アミロイドーシスの一種である AA アミロイドーシスの主要因であると報告されている [2]。

本研究では、SAA がアミロイド線維を形成する過程において、立体構造にどのような変化が生じているのかに焦点をあて、立体構造変化ならびに線維形成能の有無について解析を行なった。

2. 実験：SAA、apoA-I ともに大腸菌大量発現系を用いて作製した。His-tag によるアフィニティー精製ならびに逆相 HPLC を用いて発現タンパク質を精製した。得られたタンパク質について、CD により二次構造および熱力学的安定性を解析した。アミロイド線維形成はチオフラビン T の蛍光および透過型電子顕微鏡により確認した。

3. 結果：SAA の二次構造を CD スペクトルにより解析した。4°C において 222, 208 nm に極小値をもつ

典型的な  $\alpha$  ヘリックス構造由来のスペクトルが観測されたが、37°C では楕円率が大幅に減少することが明らかとなった (図 1 A)。222 nm における楕円率を指標として熱安定性を解析した結果、4°C における安定性は  $-14.1 \text{ kJ/mol}$  であり、熱力学的安定性が非常に低いタンパク質であることが示された (図 1 B)。

タンパク質の表面に露出した疎水的クラスターに結合し、蛍光を発する 8-Anilino-1-Naphthalene Sulfonic Acid (ANS) を添加することにより 480 nm 付近に極大値をもつ蛍光スペクトルが観測された。これにより、本来内部に埋もれているはずの疎水的アミノ酸残基が容易に表面に露出する揺らいだ構造であることが分かった。

アミロイド線維に特異的に結合し、蛍光を発するチオフラビン T を用いて、SAA の線維形成能の有無を調べた。その結果、4°C では 72 h 経過後も蛍光強度の増加は観測されなかったのに対し、37°C では速やかにアミロイド線維様構造を形成することが示された (図 1 C)。このことから、4°C において形成されている  $\alpha$  ヘリックス構造は非常に不安定なものであるにも関わらず、SAA の線維重合反応を抑制する障壁として機能することが明らかとなった。

### 参考文献

[1] Webb, N. R. *Curr. Atheroscler. Rep.* (2021) 23, 7.

[2] Westermark, T. G. et al. *Annu. Rev. Pathol.* (2015) 10, 321–44.

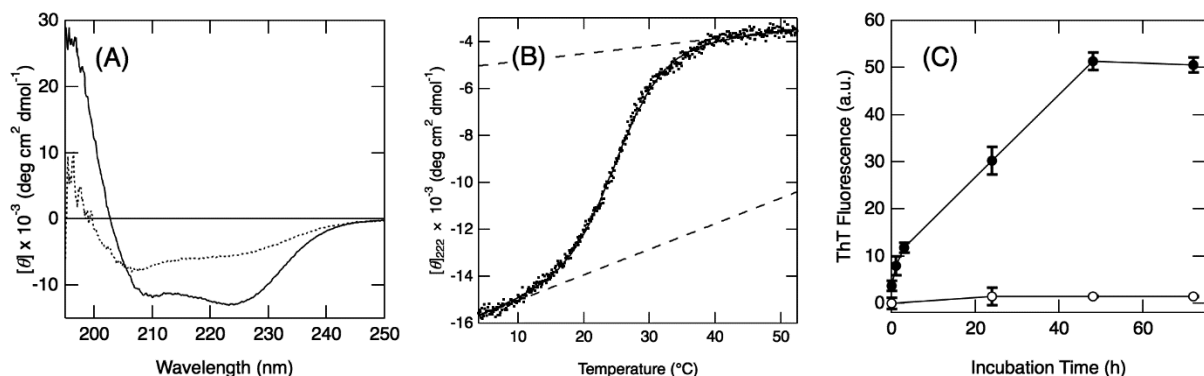


図 1 (A) 4°C (実線) および 37°C (点線) における SAA の CD スペクトル。(B) SAA の熱安定性。測定データを点で、二状態転移を仮定した理論曲線を実線で示す。(C) チオフラビン T により検出した 4°C (○) および 37°C (●) における SAA のアミロイド形成反応。

## (P15) シアノバクテリア概日時計における競合的なタンパク質複合体形成挙動

(京大複合研、京大院理<sup>1</sup>) ○守島健、坂本璃月<sup>1</sup>、杉山正明

### 1. はじめに：

シアノバクテリアの概日時計は 3 つの時計タンパク質 KaiA、KaiB、KaiC により構成される。このシステムの中核的役割を果たす KaiC の 2 箇所のアミノ酸残基 Ser431 (S) / Thr432 (T) は、S/T → S/pT → pS/pT → pS/T → S/T → (p : リン酸化) の順でリン酸化と脱リン酸化を繰り返し、概日リズムは KaiC のリン酸化度の振動として観測される[1]。ここで、KaiC のリン酸化は KaiA-KaiC 相互作用によって促進され、KaiB-KaiC 相互作用は KaiA の働きを阻害することで脱リン酸化を促す[2]。すなわち、KaiC に対する KaiA と KaiB の競合的な複合体形成が、KaiC のリン酸化度の振動を生み出す。したがって、この概日振動の発振機構を理解するためには KaiC の各リン酸化状態に応じた複合体形成の挙動を解明する必要がある。本研究では、4 種類のリン酸化状態 S/T, S/pT, pS/pT, pS/T をそれぞれ模倣した A/A, A/E, D/E, D/A 変異体 (A, D, E は Ala, Asp, Glu) を用いて、超遠心分析 (AUC) により溶液中の複合体分布解析を行った。

2. 結果：はじめに、KaiA+KaiC 及び KaiB+KaiC の各二者混合溶液での複合体形成挙動を調べた。KaiA+KaiC 混合溶液中では、いずれの KaiC 変異体でも A<sub>2</sub>C<sub>6</sub> 複合体が形成した (図 1)。複合体と遊離成分の存在比率から解離定数を算出したところ、A<sub>2</sub>C<sub>6</sub> 複合体形成能は A/A ≅ A/E > D/E ≅ D/A のリン酸化状態 (KaiC 変異体) 依存性であり、Ser431 のリン酸化状態が KaiA-KaiC 相互作用の強さを決定づけることが示唆された。一方、KaiB+KaiC 混合溶液中では、D/E 変異体のみが B<sub>6</sub>C<sub>6</sub> 複合体を形成し、その他の変異体では KaiB と KaiC の複合体を形成しなかった (図 2)。以上の結果より「KaiC は、低リン酸化状態 (A/A 及び A/E) で KaiA と相互作用することでリン酸化を促進し、高リン酸化状態 (D/E) に達すると KaiA との相互作用が弱まり、代わりに KaiB と相互作用することで脱リン酸化が促進される」ことが示唆された。

続いて、KaiA+KaiB+KaiC の三者混合溶液について超遠心分析を行ったところ、全ての KaiC 変異体で A<sub>2</sub>C<sub>6</sub> 複合体と A<sub>n</sub>B<sub>6</sub>C<sub>6</sub> 複合体が存在した (図 3)。A<sub>2</sub>C<sub>6</sub> 複合体の存在比率は、KaiA+KaiC 二者混合溶液の結果から予測された通り、A/A ≅ A/E > D/E ≅ D/A の順に高かった。一方、KaiB+KaiC 二者混合溶液での検討では B<sub>6</sub>C<sub>6</sub> 複合体を形成しなかった A/A, A/E, D/A 変異体でも A<sub>n</sub>B<sub>6</sub>C<sub>6</sub> 複合体が確認されたことは大変興味深い。さらに、溶液中に存在する全複合体の重量濃度分布を解析したところ、A<sub>2</sub>C<sub>6</sub> 複合体と A<sub>n</sub>B<sub>6</sub>C<sub>6</sub> 複合体の存在比率や、A<sub>n</sub>B<sub>6</sub>C<sub>6</sub> 複合体中の KaiA 会合

数  $n$  がリン酸化状態 (KaiC 変異体) に応じて変化するを見出した。

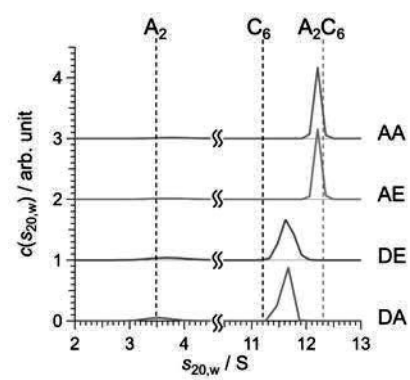


図 1. 各 KaiC リン酸化模倣体を用いた KaiA+KaiC 混合溶液 ([KaiA] : [KaiC] = 2.7 : 6.0) の AUC 測定結果。

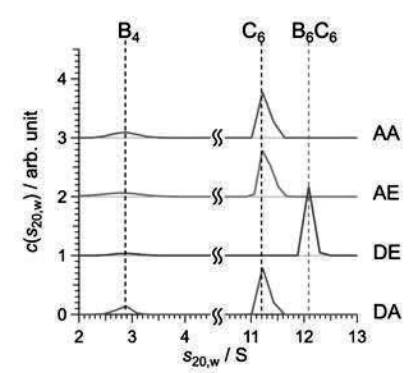


図 2. 各 KaiC リン酸化模倣体を用いた KaiB+KaiC 混合溶液 ([KaiB] : [KaiC] = 7.5 : 6.0) の AUC 測定結果。

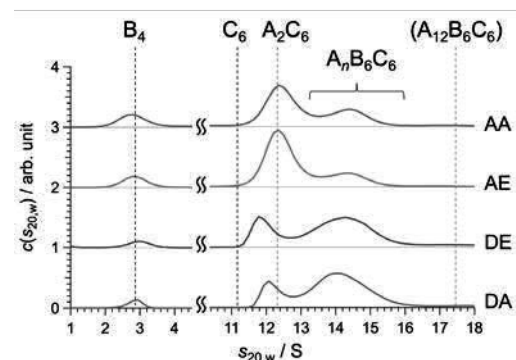


図 3. 各 KaiC リン酸化模倣体を用いた KaiA+KaiB+KaiC 混合溶液 ([KaiA] : [KaiB] : [KaiC] = 2.7:7.5 : 6.0) の AUC 測定結果。

### 参考文献

- [1] T. Nishiwaki, et al. *EMBO J.* **26**, 4029 (2007).
- [2] H. Iwasaki, et al. *PNAS.* **99**, 15788 (2002)



## (P16) Mo 線源 X 線小角散乱装置の改良

(豊橋技科大、京大複合研<sup>1</sup>) ○大場洋次郎、井上倫太郎<sup>1</sup>、守島健<sup>1</sup>、杉山正明<sup>1</sup>

1. はじめに：X 線小角散乱法 (SAXS) は、ナノ構造の解析に威力を発揮する実験手法であり、高分子科学や生命科学、材料科学など、広い分野で活用されている [1,2]。その中でも、金属材料や無機材料への適用においては、同じくナノ構造の解析手法として活用されている電子顕微鏡と比較して、圧倒的に大きな領域を一度に測定でき、定量的な情報を取得できることが SAXS の重要な特徴である。

一般に金属材料や無機材料では、比較的重い元素を含むものが多く、一般的に使用される Cu K $\alpha$ 線源の SAXS 装置 (Cu-SAXS) では測定が困難な場合がある。このような試料に対しては、より高エネルギーの Mo K $\alpha$ 線源の使用が有効である。本研究グループは、これまで鉄鋼材料や銅合金、超電導材料などの研究に Mo K $\alpha$ 線源を用いた SAXS (Mo-SAXS) を適用し、その有効性を示してきた [3,4]。これらの成果により、Mo-SAXS の利用が今後拡大することが期待される。

しかしながら、SAXS の利用分野全体を見ると、Mo K $\alpha$ 線源を必要とする材料分野は少数派である。このため、一般的な Cu-SAXS と比較して、Mo-SAXS では装置開発の進捗が遅く、適用範囲の制約となっている。そこで本研究グループは、Mo-SAXS の利用促進を図るため、Mo-SAXS の改良を行った。

2. 実験：Mo-SAXS は、京都大学複合原子力科学研究所に設置された共同利用の装置 (NANO-Viewer、リガク) を用いた。線源の出力は 1.2 kW (50 kV, 24 mA) である。検出器は Dectris の 2 次元検出器 PILATUS 100k である。一般的な Cu K $\alpha$ 線よりも高エネルギーの Mo K $\alpha$ 線を効率よく検出するため、センサー部を厚さ 1 mm の Si に換えたものを使用している。モノクロメータ直後から試料設置部を含め、検出器直前までの X 線パスは、大気と真空窓によるバックグラウンドの散乱を低減させるため、すべて真空となっている。

今回の改良では、まず、真空チャンバーの到達真空度を向上させるため、排気ラインを口径の大きな物に換装した。また、上流の X 線光学系で発生する寄生散乱を低減させるため Ta 単結晶ピンホールを導入し、従来の 3 ピンホール光学系を 2 ピンホール光学系と置き換えた。

3. 結果：真空排気ラインの換装により、排気開始

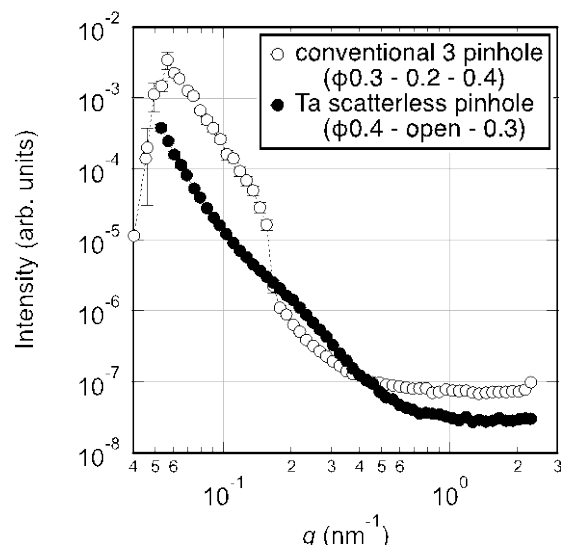


Fig. 1. Background scattering profiles. Open and filled symbols denote the profiles of a conventional 3-pin-hole system and a Ta 2-pin-hole system.

1 時間後の到達真空度が、約 100 Pa から 10 Pa に改善した。これにより、特に  $q > 0.15 \text{ nm}^{-1}$  の高  $q$  領域で、バックグラウンドの散乱強度が 1/4-1/6 程度に減少した。図 1 に、従来の 3 ピンホール光学系で測定したバックグラウンドと、検出器上で同等のビームサイズが得られるように設計した、Ta 単結晶を用いた 2 ピンホール光学系で得られたバックグラウンドの散乱プロファイルを示す。従来の 3 ピンホール光学系では、約  $0.15 \text{ nm}^{-1}$  よりも低  $q$  側で寄生散乱を除去できておらず、測定が困難であった。一方、Ta 単結晶を用いた 2 ピンホール光学系では、この領域の強度が約 8% にまで低下した。さらに、入射ビーム強度は 2.4 倍に増加した。以上の結果、Mo-SAXS の改良に成功した。

謝辞：本研究の一部は、JSPS 科研費 23H01733 の助成を受けたものである。

### 参考文献

- [1] Cy M. Jeffries *et al.*, Nat. Rev. Methods Primers, **1** (2021) 70.
- [2] S. Da Vela, D. I. Svergun, Curr. Res. Struct. Biol., **2** (2020) 164.
- [3] H. Miura *et al.*, Mater. Sci. Eng. A, **833** (2022) 142531.
- [4] 佐々木宏和 *et al.*, 銅と銅合金, **62** (2023) 85.

# (P17) 多重箔放射化法による重水中性子照射設備の中性子エネルギースペクトルの再評価

(京大院工、京大複合研<sup>1</sup>) ○Prateepkaew JAKKRIT、櫻井良憲<sup>1</sup>

1. はじめに：京都大学研究用原子炉（KUR）の重水熱中性子設備は、1974年5月からホウ素中性子捕捉療法（BNCT）の臨床研究に使用されてきた。1996年に設備の改修が行われた後、設備の名称は重水中性子照射設備（HWNIF）に変更され、多重放射化箔法を用いて中性子エネルギースペクトルが評価された[1]。2010年5月にKURは高濃縮燃料から低濃縮燃料へ移行したが、その後、KUR-HWNIFにおける中性子エネルギースペクトルは高精度で再評価されていなかった。そこで、多重放射化箔法を用いて、燃料濃縮度の変更後におけるKUR-HWNIFの中性子エネルギースペクトルを再評価した。

2. 方法：今回は、KURの5MW運転時に放射化箔を10時間照射し、中性子エネルギースペクトルを評価した[1]。現在のKURの運転パターンでは、1MW運転を47時間、5MW運転を6時間行うことが基本のサイクルとなっている。5MW運転中の照射時間が限られているため、今回はKURの1MW運転中に放射化箔を照射した。1MW運転は5MW運転と比較して、中性子フラックスが1/5と少ないため、前回の評価で使用した一部の放射化箔では、測定時のカウント数が少なくなる可能性がある。そのため、照射後の放射化箔で高純度ゲルマニウム検出器による測定が可能なカウント数を得るために、使用する放射化箔の種類や照射時間などを前回の測定結果を基に検討した。

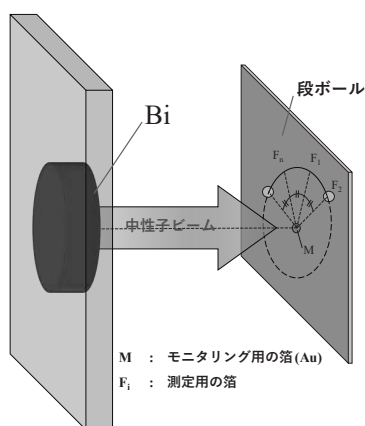


Fig. 1. Irradiation setup of multifoil near bismuth gamma-ray shielding surface at KUR-HWNIF.

図1は、段ボールに取り付けられた放射化箔の照射セットアップを示している。照射時間に応じて、2つの異なる放射化箔セットを使用した。照射中、

KURの制御棒調整などにより中性子束が変動する可能性があるため、中性子束モニタリング用のAu箔を中央に配置した。表1に、各放射化箔セットに使用した放射化箔の種類を示す。短時間照射セットは、熱外中性子領域（0.5 eV～10 keV）のスペクトル評価用である。KUR-HWNIFにおける熱外中性子束から、カウント率が高くなると想定し、照射時間は15分に設定した。一方、長時間照射セットは、高速中性子（10 keV以上）領域のスペクトル評価用であり、カウント率が低いため照射時間は15時間に設定した。

Table 1. Multifoil information in each irradiation.

| セット   | 放射化箔の週類                                   |
|-------|---|
| 短時間照射 | Au, Manganin(11.5%Mn-Cu), NaCl, Sc, Ta, W |
| 長時間照射 | Au, In, Al, Mg, Ti, Zr, Ni                |

3. 結果：図2は、多重放射化箔の測定結果からGRAVEL[2]アンフォールディングコードを用いて評価した中性子エネルギースペクトルである。熱外および高速中性子束は前回の測定に比べ、それぞれ約34%および19%増加していた。再評価された中性子エネルギースペクトルに基づき、評価位置での中性子吸収線量率を計算したところ、その値は以前の測定より17%低かったが、BNCTの生物学的照射の観点からは許容範囲内であった。

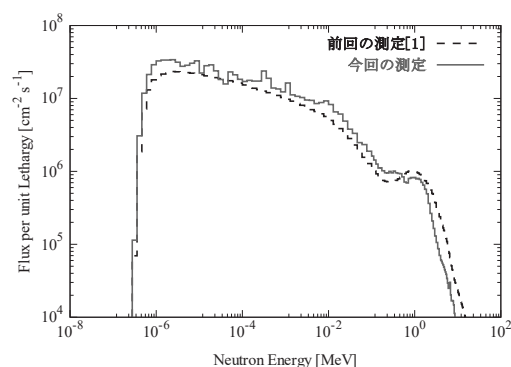


Fig. 2. Neutron energy spectrum evaluation result.

## 参考文献

- [1] Y. Sakurai *et al.*, Nucl. Instrum. Meth, A, **531** (2004) 585-595.  
 [2] M. Reginatto *et al.*, Nucl. Instrum. Meth, A, **476** (2002) 242-246.

## (P18) 中性子放射化分析を用いた遺跡出土の低火度焼成品の胎土分析

(大正大学、京大複合研<sup>1</sup>、京大院文<sup>2</sup>、立命大文<sup>3</sup>) ○富井眞、高宮幸一<sup>1</sup>、稲垣誠<sup>1</sup>、伊藤淳史<sup>2</sup>、木立雅朗<sup>3</sup>、千葉豊<sup>2</sup>、吉井秀夫<sup>2</sup>

1. はじめに：改正文化財保護法では、遺跡出土の埋蔵文化財等の考古資料も含め地域内の文化財の総合的な把握に向けて、「保存活用のための必要な措置」の一つとして文化財の「価値付け」を掲げる[1]。埋蔵文化財の中では、土器類は、古くから多面的に研究されており、20世紀には機器中性子放射化分析

(INAA)による胎土分析も実施されていたが、それは主に、産地限定的な高火度焼成の陶磁器の広域流通に着目し、地域間の社会経済的關係や広域経済活動という点で資料の価値付けに貢献していた。

その後、日本考古学界では、蛍光X線分析の汎用化に伴い、INAAによる胎土分析は事実上途絶えた。他方、中世・近世のカワラケや瓦など、地産地消的な低火度焼成の窯業生産品においては、圧倒的な出土量の方で生産体制や流通に関する詳細な検討は進まず、「価値付け」に至らぬまま自治体にて収蔵管理されている。しかし、多種元素を高精度で測定できる INAA を用いれば、地域内での生産・流通の様態というミクロ経済的な地域史理解のための客観的データを提供でき、さらに、各地で半ば死蔵状態の低火度焼成品の有効的活用にも導く可能性がある。

そこで本研究は、①INAA を用い、産業の地域化が進んだ中近世における在地的窯業生産の実態を解明する手掛かりを得ること、②遺跡出土土器類に対する INAA による胎土分析の方法を確立し、それを国内の研究用原子炉施設で継続的に実施する環境を構築すること、以上の2点を主目的として 2020 年から共同利用研究を進めている。

2. 実験：対象資料は、京大構内遺跡の発掘で幕末の土佐藩白川邸の堀から一括出土した、刻印を持つ瓦である。刻印は、押捺率がほぼ 100%で計 24 種を数え、大阪の瓦工場の屋号と思われる 1 種（「住瓦庄」）と判読不能 1 種を除く 22 種は、いずれも土佐藩内の地名と整合する屋号である[2]。土佐の 22 種の刻印瓦は、形状・寸法は画一的で製作技術にも違いは無い。INAA を試みたのは、5 種 34 個体で、刻印銘別では、「赤野銀」10 個体、「アキ兼」と「アキ文」7 個体、「片常」8 個体、「住瓦庄」2 個体である。

試料は、[Sterba 2018] の採取方法に従い[3]、断面 2mm 四方の特製アルミナ製ドリル針を特製アタッチメントを介して電動ドリルに装着して、瓦の破断面に挿入しながら粉末状で約 80mg を得た。採取には約 30 分/点を要した。試料は、半減期の長短に応じて Pn-2 と Pn-3 で照射するため、同一個体から採取したものを二分した。今回報告する短中寿命核

種用の Pn-3 の実験では、15 mg を用い 1MW・90 秒で照射し、Ge 検出器と波高分析器により照射直後・15 分後・40 分後・1 日後の 4 回測定した。なお、Pn-2 では 45mg に 5MW・1 時間で照射し、Ge 検出器と波高分析器により約 1 ヶ月後に測定している。

3. 結果と考察：34 個体 36 試料の全てで検出できた元素は、Al, Mg, Mn, K, Na, Sm, La で、Al を除く 6 種を見ると、Mn と Na の組成比による試料分布が刻印グループと整合した(図 1)。幕末土佐では、藩直轄事業の企画品生産でも粘土素材は一括管理でなく各工房で調達、という窯業の展開が見通せる。

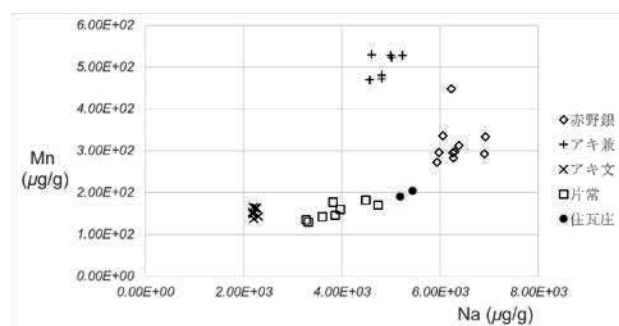


図 1. 刻印瓦の Mn-Na の組成比

4. おわりに：遺跡出土の考古資料は、大半が地域単位で管理され活用等に向けた権限も自治体に事実上ある。そうした地域の埋蔵文化財を INAA の適用により研究活用することで、上記のように、詳細な地域産業史のための実証的データを蓄積でき、地域文化財に新たな価値を創出し得る。文化財の調査では破壊分析は敬遠されがちだが、INAA は、文化財に対し、極微量の破壊にとどめつつ大きく新しい研究成果ももたらす。特に、類品が大量にある低火度焼成遺物への適用では、資料提供も受けやすく、各地で地域史の高精細化に貢献し得る。

### 参考文献

- [1]文化庁,文化財保護法改正の概要について, (2018) [www.bunka.go.jp/seisaku/bunkashingikai/bunkazai/kikaku/h30/01/pdf/r1407909\\_03.pdf](http://www.bunka.go.jp/seisaku/bunkashingikai/bunkazai/kikaku/h30/01/pdf/r1407909_03.pdf).
- [2]千葉ほか,京大構内遺跡年報 1992 年度, (1995) 65-125.
- [3] J. Sterba, *J. Radio. Nucl. Chem.*, 316 (2018) 753-759.

謝辞：本研究は、JSPS 科研費 21K18379 の助成を受けて実施した成果の一部である。

Detailed provenancial studies of excavated low-fired ceramics by INAA

Makoto Tomii, Koichi Takamiya, Makoto Inagaki, Atsushi Ito, Masaaki Kidachi, Yutaka Chiba, and Hideo Yoshii  
m\_tomii@mail.tais.ac.jp

## (P19) Gd-チアカリックスアレーン錯体を架橋点とするナノゲル型 NCT 薬剤の創製

(東北大院環境, 京大複合研<sup>1</sup>) 進藤なな帆, 澤村瞭太, 唐島田龍之介, 鈴木 実<sup>1</sup>, ○壹岐伸彦

1. はじめに: ランタニド(Ln)錯体は<sup>157</sup>Gdによる中性子捕捉療法(NCT)の薬剤の基体として注目されている[1]. しかし遊離のLnは毒性があるため, Ln錯体の生体応用には安定性が必要となる. 我々はチアカリックス[4]アレーン-*p*-テトラスルホン酸(TCAS)とLnから成る速度論的安定性が高いLn<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub>錯体(Fig. 1)の生体応用, 特になんかの診断や治療を検討してきた[2, 3]. しかし, Ln<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub>そのものでは腫瘍特異性を持たない. そこで, 10-200 nmの粒子が腫瘍に特異的に集積するEPR (Enhanced Permeability and Retention)効果[4]に着目した. 今回, -7の電荷を有するLn<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub>がカチオン性ポリマーであるポリエチレンイミン(PEI)を物理的に架橋してナノゲルを生成することを見だし, その細胞送達及びNCT効果を検討したので報告する.

2. 実験: PEIを精製水もしくは0.5 M NaCl溶液に溶解し, pHを7.0-7.1に調整した(PEI濃度: 0.1, 0.5, 1.0 g/L). Ln<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub> (Ln = Tb or Gd)溶液とPEI溶液を高速攪拌下(2200 rpm)で混合し, ナノゲルを得た. 得られたナノゲルについて, 粒径, 搭載効率(LE), 搭載容量(LC)を測定した. さらに, ナノゲルをヒト乳がん細胞MCF-7へ導入し, 蛍光像やNCT効果を調べた.

3. 結果: 0.1 g/L PEIでは凝集体が生成し, ナノゲルは生成しなかった. 一方0.5 g/L PEIを用いた場合粒径145.9 ± 13.5 nm, 1.0 g/L PEIの場合137.1 ± 7.6 nmとEPR効果を期待できるナノゲルを生成した. また電位はPEI 0.5 g/L以上で正の値となった. 次に同条件でLEとLCを測定した. LEはいずれの濃度においても30%を超え, LCも20wt%以上と高い値となった. さらにPEI溶液に加えるNaClの量を変え, 同様にナノゲルを合成した. PEI 0.5 g/Lにおいて, [NaCl] = 0, 0.1, 0.5 Mいずれの条件でも, EPR効果に適した粒径であることを確認した. またLEは40%を超え, LCはNaCl濃度の減少に伴い増加し, [NaCl] = 0 Mにおいて, 約45wt%となった. ナノゲルを含む培地中で24時間培養したMCF-7細胞にはTb<sup>III</sup>に由来する緑色の発光が見られ, ナノゲルが細胞内に取り込まれたことが示された(Fig. 2). さらに, ナノゲルによるGdの細胞導入量は13.9 ± 1.70 nmol/10<sup>6</sup> cellsとなり, <sup>157</sup>Gd濃度としては143 ppmとNCT効果には十分に大きな値である. 最後に熱中性子を照射した後の細胞が形成するコロニー数を調査したところ, ナノゲルのNCT効果がGd錯体と比べ最も大

きいことが示された(Fig. 3). 以上のことから, Gd<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub>搭載PEIナノゲルはNCTの薬剤として有望であることが示された. 今後は, 細胞内動態や*in vivo*でのNCT効果を調査する予定である.

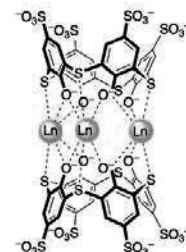


Fig. 1. Ln<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub>

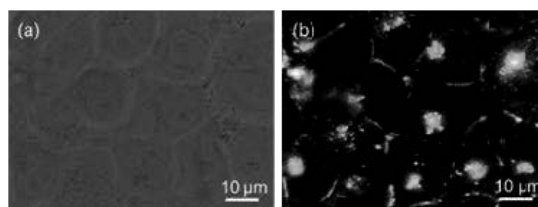


Fig. 2. Images of MCF-7 cells incubated in a medium containing Tb<sub>3</sub>TCAS<sub>2</sub>-PEI nanogels for 24 h. [Tb] = 25 µM in the medium. (a) Bright field, (b) luminescence images.

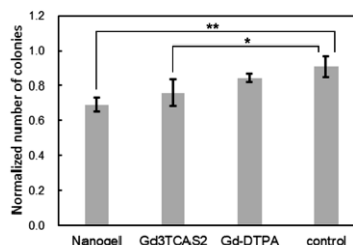


Fig. 3. Number of colonies of MCF-7 cells treated with Gd agents prior to the neutron irradiation normalized with that obtained with no irradiation. [Gd] = 12 µM. Thermal neutron fluence 6.3-7.0 × 10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>.

### 参考文献

- [1] S. L. Ho, *et al.*, ACS Omega, **7** (2022) 2533-2553.
- [2] N. Iki, *et al.*, Inorg. Chem., **55** (2016) 4000-4005.
- [3] K. Ohama, *et al.*, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **699** (2024) 134579.
- [4] H. Maeda, *et al.*, Adv. Drug Delivery Rev., **65** (2013) 71-79.

### Development of a Nanogel-Based Neutron Capture Therapy Agent Utilizing a Gadolinium-Thiacalixarene Complex as a Physical Crosslinker

Nanaho Shindo, Ryota Sawamura, Ryunosuke Karashimada, Minoru Suzuki, Nobuhiko Iki  
iki@tohoku.ac.jp

## (P20) 共沈法で生じた4価アクチノイド水酸化物の固相状態に関する研究

(京大工、JAEA<sup>1</sup>) ○小林大志、好川祐樹、松村大樹<sup>1</sup>、池田篤史<sup>1</sup>、佐々木隆之

1. はじめに：高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価では、放射性核種の処分環境下での長期的な移行挙動を予測する必要がある。Th や U などのアクチノイド核種は、還元的な処分環境下では4価金属イオンとして振る舞い、アモルファス水酸化物沈殿 ( $M(OH)_4(am)$ ) を形成し、その溶解度が移行挙動を支配する(溶解度制限固相)。また、長期に及ぶ安全評価の期間を考慮すると、 $M(OH)_4(am)$  は熱力学的により安定な結晶酸化物 ( $MO_2(cr)$ ) へと変遷し、見かけの溶解度が低下する可能性が報告されている[1]。これまでの研究では、核種毎に4価アクチノイドの溶解度を支配する  $M(OH)_4(am)$  の固相状態および  $MO_2(cr)$  への結晶化が調べられてきたが[2,3]、実際の処分環境では複数の4価アクチノイド核種が共存することが想定される。 $M(OH)_4(am)$  や  $MO_2(cr)$  の安定性が異なる複数の核種から成る共沈固相の場合、単一核種からなる固相と比べて、溶解度制限固相やその変遷が異なる可能性が考えられる。そこで、本研究では、4価アクチノイド (Th, U) およびその化学アナログとして Zr を含む試料溶液からアモルファス水酸化物の共沈固相を調製し、昇温条件下で熟成させた。粉末 X 線回折 (PXRD) および X 線吸収分光 (XAS) を用いて固相状態を調べ、溶解度の解釈を試みた。

2. 実験：実験では、4価 U および Zr のアモルファス水酸化物共沈固相 ( $(U,Zr)(OH)_4(am)$ ) および 4 価 Th および Zr のアモルファス水酸化物共沈固相 ( $(Th,Zr)(OH)_4(am)$ ) を調製した。 $(U,Zr)(OH)_4(am)$  の調製では、Ar 雰囲気グローブボックス内で電解還元により調製した4価 U 塩酸母溶液 ( $[U] = 0.1 M$ ) と Zr 塩酸母溶液 ( $[Zr] = 0.1 M$ ) を所定の Zr/U モル比で混合した。NaCl によりイオン強度 ( $I$ ) を  $I = 0.5$  とした後、0.5 M NaOH を添加して pH = 8 または 12 に調整した。また、還元剤として  $Na_2S_2O_4$  を 1 mM 添加した。 $(Th,Zr)(OH)_4(am)$  の調製では、Th 塩酸母溶液 ( $[Th] = 0.1 M$ ) および Zr 塩酸母溶液 ( $[Zr] = 0.1 M$ ) を所定のモル比で混合した後、NaOH により pH = 8 または 12 に調整した。

生成した共沈固相を含む試料溶液は、25 または 70 °C で 1 か月間、攪拌した後、pH を測定した。各試料溶液の上澄み液を限外ろ過 (10 kDa) し、ろ液に含まれる金属イオン (U, Th, Zr) 濃度を ICP-MS により定量した。また、共沈固相沈殿の一部をグローブボックス内で乾燥させ、粉末 X 線回折装置により回折パターンを測定した。さらに、 $(U,Zr)(OH)_4(am)$  については、共沈固相沈殿の一部を測定セルに充填し、SPring-8 の BL14B1 XAFS 装置を用いて、Zr の

K-edge および U の  $L_{III}$ -edge において X 線吸収スペクトルを取得した。

3. 結果：図1に pH = 12、70 °C で1ヶ月振とうさせた固相試料の PXRD パターンを示す。Zr のみ (TZX1) の場合は  $ZrO_2(monoclinic)$ 、Th のみ (TZ1X) の場合は  $ThO_2(cubic)$  に相当する回折ピークが見られた一方、Th と Zr の混合溶液から共沈させた試料 (TZ28~TZ82、TZ は Th と Zr の混合モル比を表す) では、TZ55 ( $[Th]/[Zr] = 5/5$ ) に近づくにつれてピークがブロードになる傾向が見られた。同様の傾向は4価 U および Zr の水酸化物を共沈させた試料の PXRD パターンでも見られた。一方、共沈固相の Th および Zr 溶解度は、pH が同じ場合、 $[Th]/[Zr]$  の減少に伴って低下することが分かった。固相粒子の大きさが十分小さい場合、粒子サイズ効果により粒子サイズに反比例して溶解度が上昇することが知られている[3]。そこで、PXRD や XAS の結果をもとに溶解度の粒子サイズ効果を考慮し、溶解度に及ぼす共沈の影響について考察した。

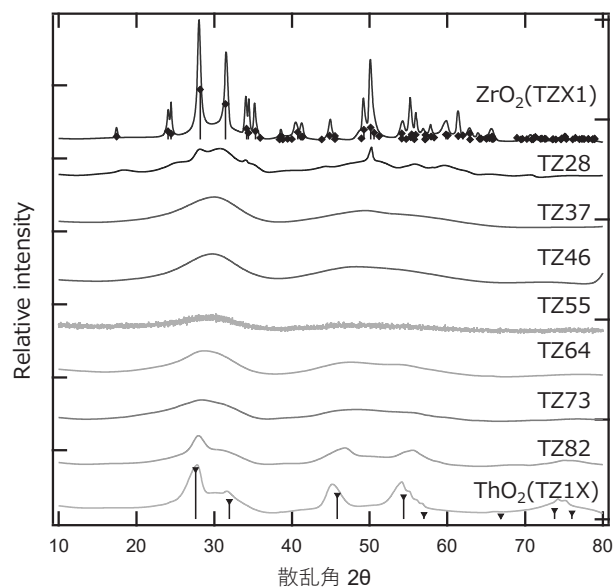


Fig. 1. PXRD patterns of the solid phases prepared at  $[Th]/[Zr]=0/10-10/0$  aged in sample solutions at pH = 12 and 70 °C for 1 month. X-ray source: Cu  $K\alpha$  ( $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$ ).

### 参考文献

- [1] T. Kobayashi et al., *Radiochim. Acta* 101 (2013) 645-651.
- [2] D. Rai et al., *Radiochim. Acta* 88 (2000) 297-306.
- [3] I. Grenthe et al., *Chemical Thermodynamics Vol. 14*, OECD-NEA (2020)

## (P21) 煨焼したセメントからのユウロピウムの溶出

(阪大院工、原子力機構<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>、東大理学研<sup>3</sup>、NRM<sup>4</sup>) ○二瓶佑哉、大津公亮、赤松星哉、元谷拓真、中田馨介、岡田一輝、矢延陸、後藤寛貴、松村達郎<sup>1</sup>、福谷哲<sup>2</sup>、伊藤健吾<sup>3</sup>、加藤千図<sup>4</sup>、藤井俊行

1.はじめに：2011年3月11日に発生した東日本大震災により、福島第一原発（1F）では水素爆発事故が発生し、放射性物質が大気中に放出された。現在、1Fの廃炉計画が進められているが、その過程において重要となるのは、燃料デブリの取り出しと、その周囲に堆積しているとされる汚泥[1]の処理である。また、1Fの炉内を冷却するために使用された水は、多核種除去設備（ALPS: Advanced Liquid Processing System）で処理されるが、その際にもスラリーと呼ばれる汚泥が生成される。本研究では、将来的に燃料デブリ取り出し後に必要となる汚泥処理の基礎研究を行った。具体的には、1Fの汚泥に含まれる可能性のあるランタノイド系核分裂生成物、特に超ウラン元素であるアメリシウム（Am）やキュリウム（Cm）と化学的性質が類似しているユウロピウム（Eu）に着目した。また、汚泥の主成分であると考えられるMCCI（Molten Core Concrete Interaction）反応生成物を模擬するために、セメントやSiO<sub>2</sub>を含む比較的低融点のホウケイ酸ガラスを用いて汚泥の模擬試料を作成した。その上で、溶媒抽出法を用いて、抽出剤であるTEHDGAにより金属イオンを水相から有機相に選択的に分離する実験を実施し、得られたデータから分配比を算出して抽出率を評価した。

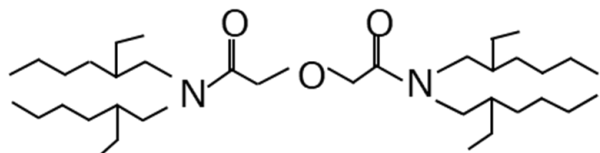


図1 TEHDGAの構造式

2.実験：初めにポルトランドセメント(11.3 g)とEu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0.112 g)の混合粉末に水(4 ml)を加えた試料をかき混ぜ、電気炉(900 °C・22h)で煨焼した。次に、煨焼した試料からサンプルを3つ(試料a: 0.17 g、試料b: 0.26 g、試料c: 0.32 g)分取し、HNO<sub>3</sub> (13.1 M・5 ml)とH<sub>2</sub>O(5 ml)の混合溶液に入れた。その後、ホットプレート(120 °C)で浸漬を行った。本実験ではEuの抽出量を定量的に分析するために溶媒抽出法における予備平衡と逆抽出の操作を追加して行った。予備平衡では有機相には抽出剤としてTEHDGAを溶かした有機溶媒(ドデカン: オクタノール = 4:1, 計7ml)、水相にはHNO<sub>3</sub>(3.3M・7ml)溶液を加えた。有機相と水相を20mlバイアル瓶に入れて攪拌し、遠心分離後有機相を5ml抽出し、正抽出を行った。正抽出の水相には浸漬実験で得た溶液をPTFEフィルタ

ーに通し2倍希釈し、HNO<sub>3</sub>(3.3M・5ml)に調製した溶液を20mlバイアル瓶に加え、攪拌を行い、2分間・2000rpmで遠心分離を行った。その後、有機相を3ml抽出して逆抽出を行った。逆抽出では水相にHNO<sub>3</sub>(0.1M・6ml)を20mlバイアル瓶に加えて正抽出と同様の条件で攪拌と遠心分離を行った。そして、得られた結果から分配比を以下の式で評価した。

3.結果：溶媒抽出による分配比の結果を図2に示す。全ての試料において分配比から抽出率を算出した結果、セメントから硝酸溶液に溶出したEuを95%以上抽出できることが分かった。実験結果より1fの汚泥の模擬試料を用いた実験によりEuの化学的挙動に関する知見を得ることができた。

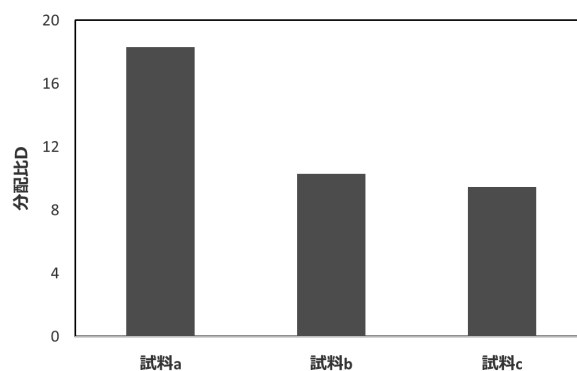


図2 Eu 分配比の結果

参考文献

- [1] 東京電力ホールディングス (2023). 1F 固体廃棄物に係る課題の検討状況について (分析・固化処理)
- [2] 田中元治 (1959). 溶媒抽出法

Leaching of europium from calcined cements

Yuya Nihei, Kousuke Otsu, Seiya Akamatsu, Takuma Mototani, Keisuke Nakata, Kazuki Okada, Riku Yanobe, Hiroki Goto, Tatsuro Matsumura, Satoshi Fukutani, Kengo Ito, Chizu Kato, Toshiyuki Fujii  
nihei@qc.see.eng.osaka-u.ac.jp

## (P22) シアノバクテリアの概日振動の外部環境に対する挙動とシステム堅牢性の起源

(京大院理、京大複合研<sup>1</sup>) ◦坂本璃月、守島健<sup>1</sup>、清水将裕<sup>1</sup>、井上倫太郎<sup>1</sup>、杉山正明<sup>1</sup>

1. はじめに：生物は1日の外部環境の変化に順応するための概日時計システムを有している。その中でシアノバクテリアの概日時計は、3種類のタンパク質 KaiA・KaiB・KaiC とアデノシン三リン酸 (ATP) から構成される単純なシステムとして知られている。KaiC は2箇所のリン酸化サイトを有し、そのリン酸化度が概日振動し、この周期内で KaiA・KaiB と解離会合を行う。形成される複合体の内、KaiA-KaiC (AC) 複合体がリン酸化、KaiB-KaiC (BC) 複合体及び KaiA-KaiB-KaiC (ABC) 複合体が脱リン酸化に寄与する。

一般的な酵素反応の速度は、系の濃度や温度に大きく影響を受ける。概日時計システムにおいても、リン酸化速度がミカエリス・メンテン型やアレニウス型の一般的な反応速度論に従うとすれば、濃度或いは温度変化が概日振動の周期等に影響を及ぼす可能性がある。一方、概日時計システムは正確な時間情報を保持するために外部環境の変化に対して堅牢性をもつことがわかっている。本研究では、この堅牢性の詳細を解明するために、リン酸化に寄与する KaiA の濃度と温度をパラメータとしてリン酸化度の測定を行い、概日振動への影響を網羅的に調べた。

2. 実験：KaiA、KaiB (0.36 mg/mL)、KaiC (1.80 mg/mL) と ATP (3 mM) の混合溶液から2時間毎にサンプルを分取した後に還元処理し、ドデシル硫酸ナトリウム-ポリアクリルアミド電気泳動 (SDS-PAGE) を行うことで、KaiC のリン酸化度を求めた。混合溶液は KaiA 濃度 0.05, 0.10, 0.25, 0.50, 1.00, 2.50 mg/mL で調製し、それぞれ 20, 25, 30, 35, 40°C で保持した。

3. 結果：図1は KaiA 濃度 0.50 mg/mL、温度 30°C における KaiC のリン酸化度の概日振動を示し、三角関数でフィッティングすることで振動中心と振動周期を求めた。図2及び図3は縦軸を KaiA 濃度、横軸を温度とし、振動中心と振動周期の濃淡図である。各測定点間の数値は線形近似で内挿した。KaiA 濃度と温度の上昇に伴い、振動中心は単調に上昇したのに対し、振動周期は変化が緩やかな領域 (KaiA 濃度約  $0.4 \pm 0.2$  mg/mL、温度約  $30 \pm 5^\circ\text{C}$  の領域) を有していた。つまり、KaiA 濃度と温度の変動に対しては KaiC の平均リン酸化度は連動するが、振動周期は堅牢性を有することが明らかとなった。リン酸化度の振動は、AC 複合体によるリン酸化反応と BC・ABC 複合体による脱リン酸化反応の競合により生じることを考慮すると、この堅牢性はシステム内の複合体

分布と関連していると考えられる。当日は、超遠心分析で得られた複合体分布と数理モデルも用いて、堅牢性の起源についての考察について発表する。

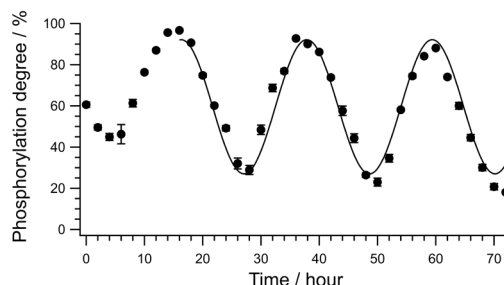


図1. KaiA 濃度 0.50 mg/mL、温度 30°C の KaiC のリン酸化度の時間変化。実線はフィッティング曲線。

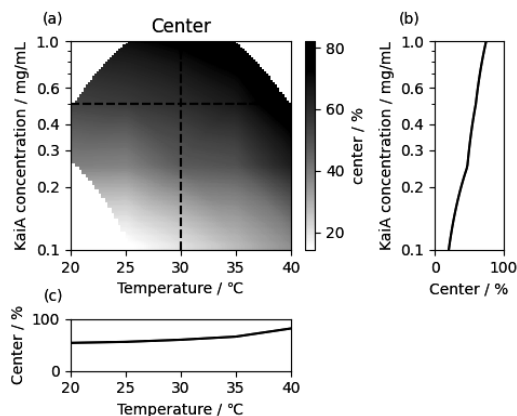


図2. (a) リン酸化度の振動中心値の KaiA 濃度および温度依存性。各測定点間は線形に内挿した。(b), (c) はそれぞれ(a)内に点線で示した温度 (30°C) と KaiA 濃度 (0.5 mg/mL) での振動中心値を示す。

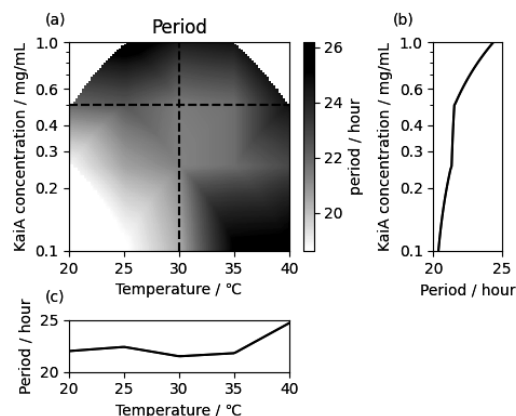


図3. (a) リン酸化度の振動周期の KaiA 濃度および温度依存性。各測定点間は線形に内挿した。(b), (c) はそれぞれ(a)内に点線で示した温度 (30°C) と KaiA 濃度 (0.5 mg/mL) での振動周期を示す。

## (P23) 「もんじゅ」サイト新試験研究炉冷中性子源検討に向けて

(京大院工、京大複合研<sup>1</sup>、JAEA<sup>2</sup>) ○田北雄大、杵山瑞貴、田崎誠司、安部豊、日野正裕<sup>1</sup>、新居昌至<sup>2</sup>

1. はじめに：福井県敦賀市で廃炉作業中の高速増殖原型炉「もんじゅ」の敷地に、中性子ビームの利用を主目的とした新しい試験研究炉を建設する計画が、日本原子力開発機構（JAEA）、京都大学、福井大学の協力のもと進められている。新試験研究炉は10MW程度の出力をもち、その性能を最大限に生かすために高性能な冷中性子源（CNS）、さらにそれを活用する中性子小角散乱装置、中性子イメージング装置、中性子回折装置、中性子反射率計等の装置の設置が計画されており、中性子研究の関西における新しい拠点となることが期待されている。

2. 研究炉に適した CNS：冷中性子ビームを飛躍的に増強するために CNS は設置する。冷中性子は運動エネルギーがおおよそ 5meV 以下の中性子であり、その波長は 0.4nm 以上である。熱中性子より長い波長を活かして生体高分子等の複雑な系の観察や、高コントラストな中性子ラジオグラフィなど、近年益々利用されている。

冷中性子を大量に得るためには、重水等の常温の減速材から冷中性子を取り出すだけでは強度が足りず、熱中性子をさらに冷やす CNS を用いる必要がある。CNS の減速材は、水素や重水素を多く含み、入射中性子が運動エネルギーを減速材に伝達したときに低温まで冷却される物質が必要である。現在、減速材として液体水素・重水素、固体や液体のメタンやメシチレン等が使われている。このうち液体水素・重水素は減速性能だけでなく、高放射線環境下での利用という点で優れている。また、軽水素より重水素の方が質量も大きく、散乱断面積も小さいが、吸収断面積が小さいため、パルス特性が不要な定常中性子源である研究用原子炉の CNS としては、重水素の方が減速材として優れていると考えられる[1,2]。

CNS の減速材の温度は 20K 程度と非常に低温であるが、分子構成時の核スピン状態 (ortho, para) によって、エネルギー準位が異なる。長時間冷却することでより低エネルギー準位に移行するとはいえ、注意が必要である。実際、J-PARC MLF JSNS 等の水素を使う CNS は、核スピン依存の断面積変化が大きいため、触媒を用いて核スピン状態をコントロールしている。ただし重水素の場合は水素ほど敏感でないため、核スピン制御は必須ではないが、重水素を減速材として使う場合、1桁以上大きな体積が必要となる。この点は、冷凍機の負荷だけでなく安全余裕を含め、工学的に課題が大きくなる。また CNS で発生した冷中性子を有効に取り出すことが重要であ

り、そのため CNS の形状、つまり液体重水素の量、容器形状の核的な最適化検討がまず必要になる。

3. 新試験研究炉の CNS 設計に向けて：冷中性子ビーム利用には、発生した冷中性子を適切に輸送し、各装置に運ぶことが重要である。そのビーム輸送には中性子導管が利用されるが、中性子導管入口方向に CNS で発生した冷中性子を有効に取り出せるように、リエントラント構造をとることが有効である (Fig. 1)。

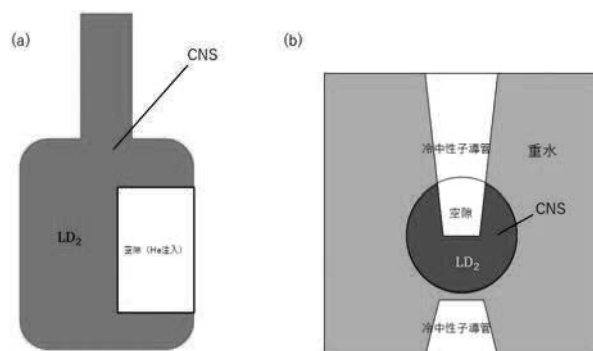


Fig.1 CNS 中のリエントラント構造を (a)横から見た図と (b)上から見た図

リエントラント構造の空隙サイズや、どのように配置するか等、アメリカ国立標準技術研究所 (NIST) 中性子研究センターの新たな原子炉 (NNR) やオーストラリアの新型研究炉である OPAL の予備分析結果を参考に、CNS 周辺の構造を検討中である[2, 3]。また JAEA 設計 G では、MCNPX で中性子束の計算をしているが、中性子ビーム利用設計の観点では、PHITS で行うことが望ましい。現在 MCNPX から PHITS に変換し JAEA 設計 G において行われた予備検討との、比較準備を進めている。

今後は PHITS を用いて CNS 周辺構造の検討を網羅的に、特に中性子輸送を考慮しつつリエントラント構造の形状等で新しい可能性を探っていき、新試験研究炉に向けた最適な CNS 設計に貢献したい。

### 参考文献

- [1] IAEA TECDOC 2025(2023), “Cold Neutron Sources: Practical Considerations and Modern Research”
- [2] Jeremy C. Cook et al., Pre-conceptual Design Activities of the NIST Neutron Source, NIST.TN.2284 (2024)
- [3] Shane J. Kennedy, Physica B 385-386 (2006) 949-954



## (P24) 小型霊長類が採食する植物の樹液・樹脂のミネラル分析

(京大ヒト行動進化研究センター、北海道大学<sup>1</sup>、Universidade Federal Rural de Pernambuco<sup>2</sup>、Universidade Federal de Pernambuco<sup>3</sup>、石巻専修大学<sup>4</sup>) ○今井啓雄、石村有沙、早川卓志<sup>1</sup>、Leonardo Melo<sup>2</sup>、Valdir Luna<sup>3</sup>、Maria Adélia<sup>2</sup>、福島美智子<sup>4</sup>

1. はじめに: 霊長類の食物は多様性に富んでいる。中でも、ブラジルに棲息する小型霊長類マーモセットは、樹脂・樹液 (gum) を主食とし、盲腸で発酵させて栄養を得ていると言われている。Gum は主に多糖類から構成されているが、ヒトが感じる甘味はほとんどなく、gum 嗜好性の原因は不明であった。

ブラジルの野生生息地で長期調査を行っている Melo らは、gum 以外に特に乾季にはサボテンの葉を食べることを見出した。サボテンの葉には Ca や K、P といった骨形成にかかわるミネラル類が多く含まれているため、双子を出産するなど多くの Ca を必要とするマーモセットには必要な成分であると考察している。実際、以前の行動実験の論文[1]では、マーモセットは Ca を含む溶液を好む傾向があることが示されている。本研究では、細胞外 Ca のセンサーである CaSR に注目し、その発現量や発現部位、受容体としての機能を検討した。特に、gum 中の Ca 濃度を比色法と中性子放射化分析法により定量し、CaSR の反応性と の比較や、マーモセットの嗜好性実験を行った。

2. 実験: gum sample は凍結乾燥後、粉末にした。比色法では、この試料を超純水に溶かし、QuantiChrom (BioAssaySystems 社) のフェノールスルホンフタレイン色素を用いた定量を実施した。遊離カルシウムと結合した吸光度 (OD612 nm) と検量線より、粉末中のカルシウム量を測定した。中性子放射化分析法では、粉末試料 0.3g をポリエチレンシートに封入し、KUR で 1.5 分間中性子照射、3 分間の冷却後に、Ca から生成した Ca-49 (半減期 8.7 分間) のガンマ線 (3084 keV) を 10 分間計測して Ca の定量を行った。

CaSR の機能解析は、HEK293T 細胞に発現させた受容体を様々な gum により刺激し、Ca 結合蛍光色素である Calcium5 (Molecular Device) によって細胞内カルシウム濃度を測定した[2]。

行動実験は gum や CaLa、CaCl<sub>2</sub> を用いた二瓶法により行い、Ca 濃度や CaSR の機能と比較検討した。

3. 結果: 図 1 に 2 つの方法により定量した gum 中の Ca 含有量を示す。樹種によって Ca 含有量が異なり、特に C,D の含有量は他に比べて低かった。観察結果によると、C,D はマーモセットがそれほど好まない樹種であることから、マーモセットが gum を選択する際、Ca を手がかりにしているのかもしれない。

い。Gum を溶解した水溶液を比色法で測定した値 (黒) に比べて、中性子放射化法で測定した値 (赤) の方が若干高いため、gum が完全に水溶液には溶解しない可能性、もしくは検量線が成立する濃度範囲の違いに起因していると考えられる。多糖類が腸内細菌により分解された盲腸において、はじめて Ca が受容可能な状態になるかもしれない。

CaSR の反応は、A=B>CTL>C>D の順になり、Ca 濃度と比例関係にあった。また、マーモセットの行動実験では、gum 中の Ca 濃度依存的に嗜好性が上昇した。以上の結果からマーモセットの gum 嗜好性は、CaSR を介した Ca を手がかりとしていることが強く示唆される。CaSR はヒトではコク味受容体である可能性[3]が報告されているため、他のミネラル類の分析結果も考慮しながら、マーモセットの gum 食と CaSR を介した嗜好性形成について議論したい。

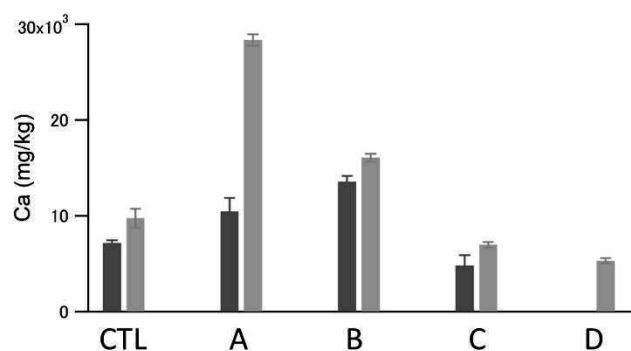


Fig. 1. Contents of Ca in the gum samples measured by the methods of chromimetric (red) and neutron activation analysis (black). CTL sample is Arabic gum, and natural gums from (A) Siniguena (*Spondias purpurea*) (B) Barauna (*Schinopsis brasiliensis*) (C) Algaroba (*Prosopsis juliflora*) (D) Ansico (*Anadenanthera macrocarpa*) are shown.

### 参考文献

- [1] M L Power et al. Ingestion of calcium solutions by common marmosets (*Callithrix jacchus*) *Am J Primatol* 47 (1999), 255-261
- [2] H. Imai et al. Functional diversity of bitter taste receptor TAS2R16 in primates. *Biology Letters* 8 (2012), 652-656.
- [3] Y. Maruyama, R. Yasuda, M. Kuroda, Y. Eto (2012) Kokumi Substances, Enhancers of Basic Tastes, Induce Responses in Calcium-Sensing Receptor Expressing Taste Cells. *PLoS ONE* 7, e3448

Analysis of minerals in the gum which consumed by small primates.

Hiroo Imai, Arisa Ishimura, Takashi Hayakawa, Leonardo Melo, Valdir Luna, Maria Adélia, Michiko Fukushima  
Imai.hiroo.5m@kyoto-u.ac.jp

## (P25) 102 番元素ノーベリウムの共沈実験に向けた 2 族元素のマロン酸沈殿及び共沈実験

(阪大院理<sup>1</sup>、阪大理<sup>2</sup>、京大複合研<sup>3</sup>、理研<sup>4</sup>)○紺野未夢<sup>1,4</sup>、金子政志<sup>1</sup>、風間裕行<sup>1</sup>、永田光知郎<sup>1</sup>、中西諒平<sup>1</sup>、王瑞麟<sup>1,4</sup>、板倉悠大<sup>1,4</sup>、Khult Enni<sup>1,4</sup>、柴本恭佑<sup>1,4</sup>、菊池亮太<sup>2</sup>、益田遼太郎<sup>1,4</sup>、高宮幸一<sup>3</sup>、稲垣誠<sup>3</sup>、羽場宏光<sup>4</sup>、南部明弘<sup>4</sup>、笠松良崇<sup>1,4</sup>

### 1. はじめに

原子番号 102 番のノーベリウム(No)は、アクチノイド元素である。他の f ブロック元素が水溶液中で安定に+3 価以上をとるのに対し、No は+2 価を最安定にとると報告されている[1]。過去の実験では No は 2 族元素に類似しているという性質が報告されており、中でも  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Sr}^{2+}$  に近い化学挙動をとると考えられている。このように No は他のアクチノイドとは異なる性質を示し、その化学的振る舞いを理解することは重元素の特性解明において重要である。これまでに我々は水溶液中における  $\text{No}^{2+}$  の錯形成挙動を理解するため、無機配位子を沈殿剤とした共沈法[2]に基づく研究を行い、キャリアとなる 2 族元素(Ca, Sr, Ba)との挙動の比較から、No の化学的性質を調べてきた。本研究では、配位子によるキレート効果や分子構造などが No の化学的挙動にもたらす影響をより詳細に調査するため、有機配位子であるマロン酸との反応に注目した。No の共沈実験に向けて、マロン酸による Ca, Sr, Ba の沈殿実験を行い、キャリア元素を決定した。キャリアに決定したマロン酸バリウムを用いて  $^{85}\text{Sr}$  の共沈実験を行った。観測された沈殿挙動及び沈殿物の分析並びに量子化学計算により、マロン酸との錯形成について考察を行った。

### 2. 実験

#### A) マクロ量の 2 族元素によるマロン酸沈殿実験

マロン酸(1.370 g)及びマロン酸二ナトリウム(3.973 g)を蒸留水(200 mL)にそれぞれ溶解することにより、pH=7 のマロン酸緩衝液を調製した。 $^{47}\text{Ca}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{133}\text{Ba}$  をそれぞれ 10  $\mu\text{L}$  含む金属塩化物溶液とマロン酸緩衝液を室温で混合し 5 分攪拌し、沈殿を生成した。吸引過後、ろ液及び捕集した沈殿物に含まれる  $^{47}\text{Ca}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{133}\text{Ba}$  を Ge 半導体検出器により定量し、沈殿収率を決定した。

#### B) マロン酸バリウムによる $^{47}\text{Ca}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ の共沈実験

キャリア元素として選定した Ba を用いて、 $^{47}\text{Ca}$ 、 $^{85}\text{Sr}$  の共沈実験を行い、沈殿挙動との比較を行った。

#### C) 計算化学による錯形成エネルギーの算出

ソフトウェアに ORCA[3]を用い、金属元素とマロン酸イオンの錯形成挙動について DFT 計算を行い、マロン酸と金属の一対一錯体が生成する際の反応ギブズエネルギーを算出した。

なお実験で使用した  $^{47}\text{Ca}$  は、KUR にて  $^{nat}\text{CaO}$  ターゲットに 5MW で 1 時間熱中性子照射を行うことで

製造した。

### 3. 結果

Ca 及び Sr の沈殿実験では、何れの場合もマロン酸との沈殿物の生成は確認されなかった。一方、Ba の沈殿試験では、良好な結晶性の沈殿物が得られた。また、沈殿生成の平衡時間を調べると、1 分以内に平衡に達していることが分かった。本結果に基づき、Ba を用いて沈殿挙動の Ba 濃度及びマロン酸緩衝液の濃度依存性を調査した結果、pH=7、Ba 溶液 200mM、マロン酸溶液 800 mM の条件で最も高い収率である約 100%で沈殿が得られた(図 1)。沈殿挙動と共沈挙動の比較を行うため、同様の条件で  $^{85}\text{Sr}$  のマロン酸バリウム共沈実験を行い、共沈収率を求め、Sr の共沈挙動とマクロ量のマロン酸 Sr 沈殿挙動と異なることが分かった。

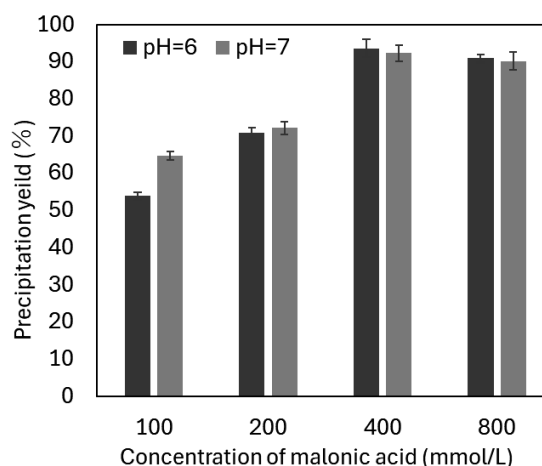


図 1. Ba とマロン酸緩衝液の沈殿収率

今後は、 $^{47}\text{Ca}$  を用いた共沈実験を行い 2 族元素の沈殿挙動と共沈挙動の比較を行い、No の加速器オンライン共沈実験に適した条件の検討を行っていく。

### 参考文献

- [1] R. J. Silva, *et al.*, *Inorg. Chem.* **13**, 2233 (1974).
- [2] Y. Kasamatsu, *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.* **118**, 105 (2016).
- [3] F. Neese. *Wiley Interdisciplinary Reviews*, 2(1), 73-78 (2012)

## (P26) スピン干渉を用いた中性子通過時間測定

(京大院工、京大複合研<sup>1</sup>) ○藤谷龍澄、日野正裕<sup>1</sup>、樋口嵩<sup>1</sup>

1. はじめに：本研究ではある区間を中性子が通過する時間を精密に測定する方法について検討した。一般的に中性子が一定区間を通過する時間の測定にはビームチョッパーまたはパルス中性子源から検出器に中性子が到達するまでの時間を測定する、飛行時間法が用いられるが、ビームチョッパーの開口幅、中性子源の減速材等による時間的な不確かさが存在する。Kruegerらは中性子による微細構造定数の決定を目的として中性子スピン干渉を用いた高精度中性子速度測定を行った[1]。ここでは中性子スピン干渉体系の中に振動磁場を発生させるコイルを設置し、中性子を二回通過させることで、中性子がコイル間を通過する時間とコイル間の距離から速度を測定した。我々は、この方法をヒントに、中性子スピン干渉による振動磁場測定の技術[2]を発展させて、中性子がコイル間を通過する時間の精密測定について検討した。そこで我々はまず、比較的低周波数で振動する磁場を用いた実験を行い、理論的予測と比較した。本発表ではその概要を示す。

2. 実験：実験は JRR-3/C3-1-2-2 ビームポート MINE2(Multilayer Interferometer and reflectometer for Neutron)にて行った。ここでは波長 8.8Å (中性子速度 450 m/s) の単色連続中性子が利用可能である。通過時間の測定を行う体系を Fig.1.に示す。リニアステージを操作して RF coil 2 を動かすことで、RF coil 1 と RF coil 2 の間の距離、コイル間距離を変えながら干渉パターンコントラストを測定した。

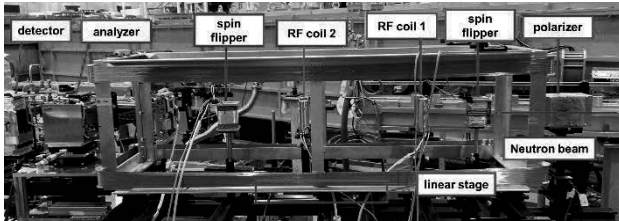


Fig. 1. Experimental setup for the measurement of the traversal time with a neutron spin interferometer

3. 理論モデル：まず理論的な考察を述べる。RF coil 1, 2 は同じ形状のコイルであり、同じ振動数 $f$ の振動磁場を印加する。初期状態でのコイル間距離は $l$ とする。この時、検出される中性子数は

$$N = \frac{N_0}{2} \left\{ 1 - J_0 \left( \frac{4|\mu_n|}{\hbar v} |b_0(k)| \cos \left( \pi f \Delta T + \frac{\phi}{2} \right) \right) \cos(\chi - \delta) \right\}$$

と表すことができる。 $N$ は検出される中性子数、 $N_0$ は

検出される中性子の最大数、 $\mu_n$ は中性子の磁気モーメント、 $v$ は中性子速度、 $|b(k)|$ は磁場形状のパワースペクトル、 $\Delta T$ は中性子がコイル間を通過する時間、 $\phi$ はコイル間の振動の位相差、 $\chi$ はスピントリッパー同士の振動の位相差、 $\delta$ はガイド磁場によってつく位相である。また、 $k = 2\pi f/v$ である。 $J_0(x)$ は0次のベッセル関数である。 $\Delta T$ を変化させる方法の一つとしてコイル間距離を変化させるというものがある。コイル間距離の変化を $\Delta l$ とすると、 $\Delta T = l/v + \Delta l/v$ で表され、 $\Delta l = v/f$ の周期でコントラストを変化させることができる。

4. 結果：Fig.2.にコイル間距離の変化 $\Delta l$ に対する干渉パターンコントラストを示す。Fig.2.は横軸にコイル間距離の変化 $\Delta l$ 、縦軸に干渉パターンコントラスト $J_0 \left( \frac{4|\mu_n|}{\hbar v} |b_0(k)| \cos \left( \pi f \Delta T + \frac{\phi}{2} \right) \right)$ を示している。RF coil 1, 2 は $f = 2.5\text{kHz}$ で動作させている。青色で示した線は理論値、オレンジ色の点は測定値であり、測定で得られた結果は理論での予想を良く再現した。本実験ではコイル間距離の変化 $\Delta l$ を操作することで、コイル間の中性子通過時間 $\Delta T$ を変化させ、理論モデルの妥当性を検証した。より高精度な中性子通過時間測定には、より高周波の振動磁場が必要になる。また、最適な測定対象の探索もしている。

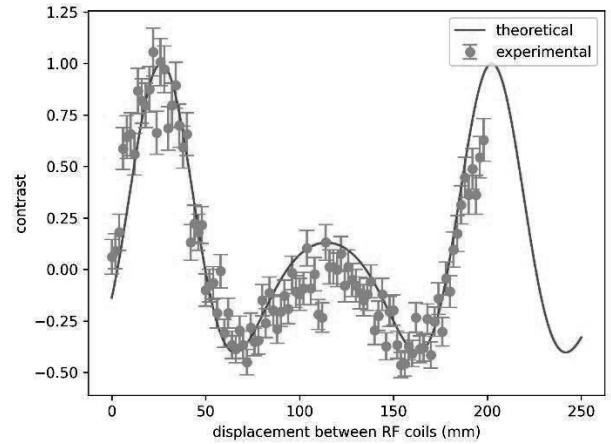


Fig. 2. The contrast of a spin interference pattern against the displacement between RF coils

参考文献

- [1] E Krüger *et al*, *Metrologia* **32**, 117 (1995)  
 [2] T. Suzuki, R. Fujitani *et al.*, *J. Phys. Soc. Japan* **93**, 091008(2024)

## (P27) 高速度中性子 CT の実用性に関する検討

(京大複合研) ○大平直也、伊藤大介、齊藤泰司

1. はじめに： CT (Computer Tomography) は、対象の 3 次元分布を見ることができ技術であり、医療分野で利用される X 線 CT をはじめ、様々な分野で活躍している技術である。中性子を用いた CT 技術も広く用いられており、今後も様々な分野で活躍が期待される。

一方で、中性子 CT の技術は X 線 CT の技術と比べて大きく後れを取っているのが現状である。特にスキャンスピードについては、X 線 CT に大きなアドバンテージがある。高い中性子束を有する JRR-3 TNRF を用いても中性子 CT のスキャンには最低でも 10~20 分程度が必要である。また、比較的長時間中性子を照射した直後は照射室内の放射能が高いため、冷却時間を設けて照射室を開ける必要がある。しかし、照射時間を短縮することができれば、試料および照射室が放射化しにくくなり冷却時間の短縮が可能であるため、実験時間の大幅な短縮が期待される。したがって、特に中性子 CT においてはスキャン時間の高速化が求められており、本研究では、高速度中性子撮影システムと回転ステージを組み合わせた高速度 CT スキャンシステムを用いて投影像の撮影を行い、その再構成画像について検討を行った。

2. 実験：高速度撮影システムは、Fig. 1 に示すようにシンチレータ、ミラー、イメージンシファイア、高速度カメラを組み合わせたものであり、中性子による透過像の高速度撮像ができるシステムである。CT スキャンに用いる回転ステージには SURUGA 製の KS-402 を用いた。このとき、回転ステージの制御には、LabVIEW を用いた独自ソフトを用いることで、回転制御の開始と高速度カメラの撮影開始の同期を取った。本実験では、アルミ製の CT 用インジケータ (厚さ 20 mm, 外形 100 mm 3 枚) を対象として CT スキャンを行った。

撮影時の画角は約 140 mm 四方 (1024 × 1024 pixels) で、250 fps の撮影速度で撮影し、回転ステージは 25 deg/s で回転させた。このとき、連続的に 360 度回転するのに要する時間は 14.4 秒であり、同時に 250 fps で撮影を行うと、360 度の投影像の総数は 3600 枚となり、ちょうど 0.1 度ずつ回転させた試料の透過像を得ることになる。試料は連続的に回転するため、得られる投影像は「0.1 度回転する間の平均画像」に相当するが、静止させて撮影した画像と同様に扱う。得られた投影像は Python の TIGRE モジュールを用いて再構成を行った。

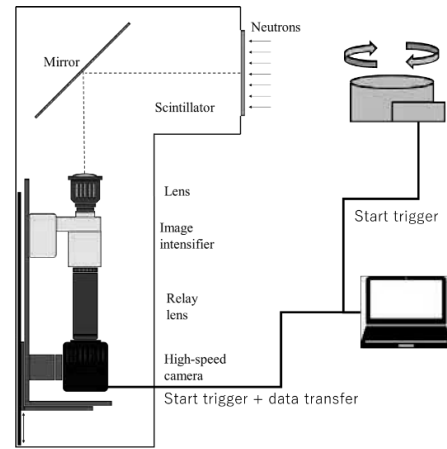


Fig. 1 Schematic of the high-speed CT projection imaging system

3. 結果：Fig.2 に得られた投影像の例、Fig. 3 に投影像をもとに再構成した 1 断面を示す。得られた再構成後の断面像を Fig.4 に示す。図の通り、試料であるアルミ円板の断面を良好に再構成できていることがわかるが、今回の実験では分解能が 1 mm 程度であると推測される。したがって、本実験で構築した CT スキャンシステムにより、CT 再構成が十分に可能であることは明らかになったが、分解能は低いと言わざるを得ない。今後は画像処理の最適化を行った上で、混相流現象の解明などに役立てたい。



Fig.2 Single projection image of the aluminum disc

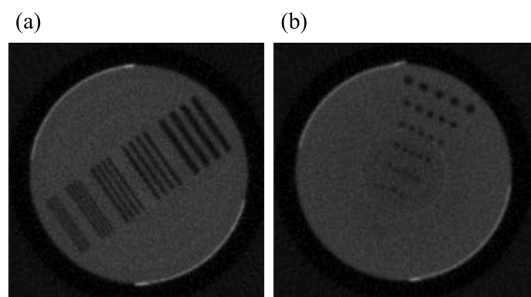


Fig.3 Reconstructed cross-sectional images of aluminum disc with slits (a) and holes (b).

## (P28) 超好熱性古細菌由来マルチドメインタンパク質の生理的温度での構造解析

(JAEA, 京大複合研<sup>1</sup>, CROSS<sup>2</sup>, 横浜市大<sup>3</sup>) ○小田隆、井上倫太郎<sup>1</sup>、守島健<sup>1</sup>、會澤直樹<sup>1</sup>、奥田綾<sup>1</sup>、奥隆之<sup>2</sup>、佐藤衛<sup>2,3</sup>、杉山正明<sup>1</sup>

1. はじめに：複数のドメインと天然変性領域から構成されるマルチドメインタンパク質は柔軟な構造を持ち、生物学的に重要な役割を果たす。しかし、その柔軟な構造により適用可能な測定手法は著しく限られるため、詳細な構造解析は極めて困難である。本研究では損傷 DNA の修復に関わるマルチドメインタンパク質 Hef を対象に、柔軟な構造を X 線/中性子小角散乱 (SAXS/SANS) データに基づくアンサンブル構造として解析することを試みた。Hef は超好熱性古細菌由来のタンパク質で N 末端側のヘリカーゼドメインと C 末端側のヌクレアーゼおよびその二つのドメインを繋ぐ天然変性領域からなる[1]。我々は天然変性領域のみのタンパク質は超好熱性古細菌の生理的温度(363 K)で室温よりもコンパクト化することを発見した。そこで、全長タンパク質がこの温度でどのような構造を有するか解明を目指した

2. 実験：SAXS では溶液中での分子全体の構造情報を反映する散乱パターンが得られる。しかし、Hef は 2 つのドメインと天然変性領域からなるため、アンサンブル構造をより正確に決定するためには SAXS データに加えて、相補的となる他の実験データが必要である。そこで、図 1(a)に示す、区分重水素化タンパク質を調製した。これはタンパク質の特定のドメインのみを重水素化し、残りの領域は軽水素体のタンパク質である。重水素化領域の重水素化率は 100%ではなく 75%とすることで、100%重水素溶媒中で不可視化されるため、軽水素体領域からの散乱のみを選択的に観測できる[2]。図 1(a)に示す通り、重水素化部位の異なる二種類の試料を調製した。SANS 測定前にサイズ排除 (SEC)カラムで精製後、重水素溶媒に置換した。SANS 測定は JRR-3 に設置されている SANS-U で行った。298 K での測定・解析は実施済みである。Hef は会合体を形成しやすいため、希薄水溶液(0.6 mg/ml)での測定を行った。長時間(3 日間)の測定であるため測定後に、凝集物、分解物の有無を分析超遠心で確認した。

3. 結果：図 1 (b)に SANS 測定で得られた散乱パターンを示す。低角領域に目立った立ち上がりはなく、一見、試料タンパク質の凝集はないと判断された。しかし、測定後の試料を分析超遠心した結果、Hef のアミノ酸配列からの計算分子量 約 9 万に対して、オリゴマー、および分解物とみられる複数の分子量ピークが観測された。試料調製では SEC カラムによる精製、重水素溶媒への透析、溶媒の重水濃度確認から最終的な SANS 測定完了までに 1 週間程度の時間

を要している。今後は、SEC-SANS を使用し、SEC カラムで会合体や分解物の除去と重水溶媒への交換を同時に行い、直後に SANS 測定することで、改善を試みる。

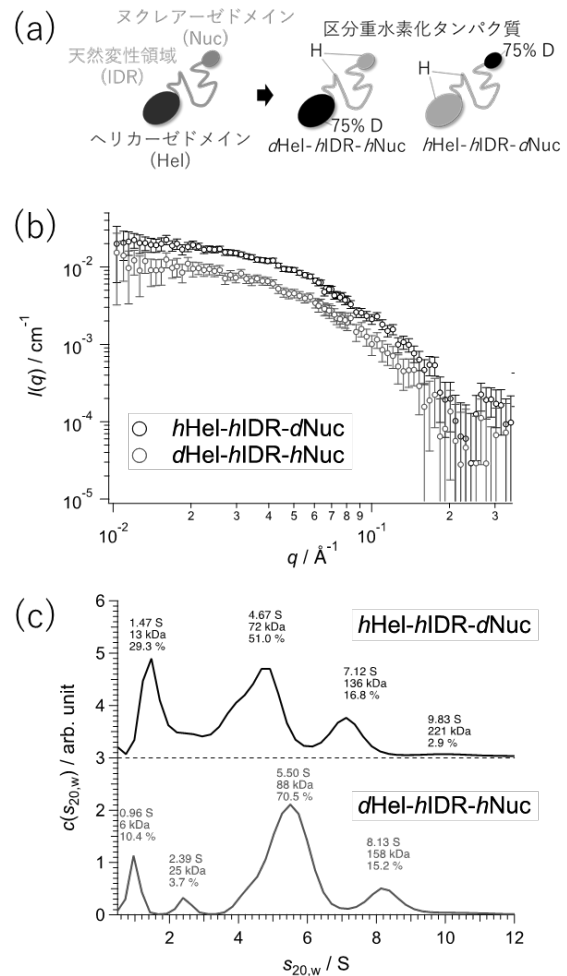


Fig 1. 区分重水素化タンパク質を用いた SANS 解析と SANS 測定後の試料の性状評価. (a) 区分重水素化タンパク質の模式図. (b) 363 K での SANS データ. (c) SANS 測定後の試料の分析超遠心.

### 参考文献

- [1] Ishino, S., et al., *J. Biol. Chem.* **289**, 21627-21639 (2014).
- [2] Sugiyama, M., et al. *J. Appl. Cryst.* **47**, 430-435 (2014)

## (P29) BNCT の発展に向けたリアルタイム熱中性子検出器の開発

(京大複合研、東北大<sup>1</sup>) ○松林錦、田中浩基、黒澤俊介<sup>1</sup>、山路晃広<sup>1</sup>、櫻井良憲、高田卓志

1. はじめに：ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) は、中性子とホウ素の核反応を用いた放射線治療で、腫瘍を選択的に破壊することができる。中性子源は、原子炉から加速器に移行しつつあり、2020年6月には病院併設可能な加速器 BNCT の保険診療も開始された。BNCT では治療前に、治療ビームの品質保証をする必要があり、これまでには研究用原子炉で行われてきた放射化法を用いて熱中性子束を測定してきた。しかし、放射化法はリアルタイムで情報を得ることができず、医療機関においては迅速かつ正確な測定が求められる。先行研究では、微小な  $\text{Eu}:\text{LiCaAlF}_6$  (LiCAF) シンチレータと石英ファイバーを組み合わせたリアルタイム熱中性子検出器の開発に成功している。しかし、中性子との核反応を用いた検出器では、入射中性子束と検出器から得られる計数率をあらかじめ対応させなければならない。加速器 BNCT の普及に伴い、測定器の正確性を確保するためには、国家計量標準の中性子照射場において校正試験を行うトレーサビリティを有する検出器の開発が求められる。しかし標準中性子場は BNCT 照射場と比較して、中性子強度が非常に低く、BNCT 照射場に対応した LiCAF シンチレータでは精度管理に必要な計数を得るまでに長い日数を要する。一方で、高感度な検出器では BNCT のような大強度な中性子場では、パルス同士が重なり合い、数え落としが生じてしまう。本研究では、BNCT 照射場と標準中性子場のどちらにも対応するため、LiCAF シンチレータよりも高い検出効率を有し、高速応答可能な熱中性子検出器の開発を目指す。

2. 方法：本研究では Li 含有量が多く、蛍光減衰時間が短い  $\text{LiBr}/\text{CeBr}_3$  と  $\text{Ce}:\text{LiBr}/\text{LaBr}_3$  を選択した。これら結晶を垂直ブリッジマン法にて育成し、石英ファイバー先端にマウントすることで熱中性子検出器を製作した。育成した結晶は潮解性（空気中の水分により水溶液となる性質）を有するため、外気との接触を防ぐよう光学セメントとガラス製の治具を用いて Fig.1 に示すようにパッケージを行った。製作した検出器は、重水中性子照射設備 (KUR-HWNIF) において、熱中性子束を変化させながら照射試験を行った。シンチレータからの光信号はファイバーを経由し、光電子増倍管と波高分析器を用いて、波高分布としてデータを取得した。また比較として  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線源においても同様な照射試験を実施し、中性子と  $\gamma$  線の弁別性能を評価した。

3. 結果：KUR-HWNIF における照射試験では、LiCAF シンチレータのように中性子によるピークを形成することはできなかった。しかし  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線源における照射試験結果と比較して、高いチャンネル領域に中性子による発光を確認し、その計数率は照射した中性子強度に応じて変化することが分かった。また熱中性子束に対する線形性を評価するため、中性子イベントの閾値を設定し、熱中性子束あたり中性子計数率を評価し、その結果を Fig.2 に示す。製作した検出器はそれぞれ熱中性子束に対して良い線形性を示し、検出効率は LiCAF シンチレータと同等かそれ以上であることが示唆された。しかし、本研究では複数回にわたり KUR-HWNIF において同様な照射試験を実施したが、時間が経過するごとに波高分布が変化することを確認した。

以上から、本研究で製作した検出器はこれまでよりも高検出効率及び高速応答であることが分かった。しかし現状では、長期安定的に使用することは困難であり、潮解を防ぐように最適なパッケージ手法の考案が必要不可欠である。

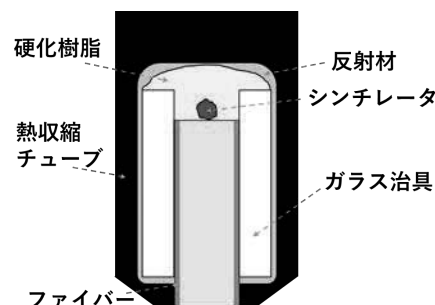


Fig.1 Schematic layout of the neutron detector

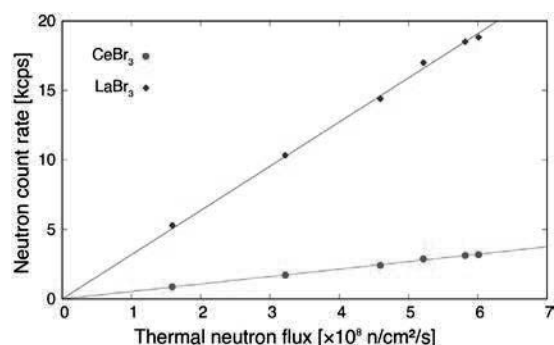


Fig.2 The count rates per thermal neutron flux

## (P30) モリブデンの動的同位体効果の研究

(阪大院工、JAMSTEC 高知コア<sup>1</sup>、(株)マリン・ワーク・ジャパン<sup>2</sup>、京大複合研<sup>3</sup>、量研<sup>4</sup>)  
 ○岡田一輝、中田亮一<sup>1</sup>、永石一弥<sup>2</sup>、福谷哲<sup>3</sup>、上原章寛<sup>4</sup>、加藤千図、藤井俊行

1. はじめに：現在、核医学検査において医療用 RI の使用量は年々増加している。その中でもテクネチウム製剤は核医学検査の中で最も利用されている放射性医薬品である。このテクネチウム製剤の原料である <sup>99</sup>Mo について、現在の日本はほぼ全量を海外からの輸入に頼っているため、供給が不安定となっている。[1]これに対して日本では <sup>99</sup>Mo の国産化が検討されている。本研究では <sup>99</sup>Mo の反応物質である <sup>98</sup>Mo 濃縮の高効率化を目的とし、電気泳動法を用いて動的同位体効果を調査した。また電気泳動後のモリブデンに対して中性子放射化分析を行い、<sup>99m</sup>Tc が生成されたことを確認した

2. 実験：初めに H<sub>2</sub>O 30ml にアガロース 0.09g と MoO<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> 1mg を溶解させ、電子レンジで加熱した後、放冷しアガロースゲルを作製した。アガロースゲルを電気泳動装置で 100V の電圧で 5 分間電気泳動させ、正極から 1cm 間隔でゲルを回収し、0.1M 硝酸に溶解させ、海洋研究開発機構高知コア研究所のマルチコレクター型誘導結合プラズマ質量分析計 (MC-ICP-MS) で Mo 同位体比を測定した。同位体比の評価には式(1)の δ<sup>n</sup>Mo を使用し、標準試料は出発物質である MoO<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> 溶液 300 ppb を使用した。

$$\delta^n Mo = \left( \frac{\left( \frac{{}^n Mo}{{}^{95} Mo} \right)_{sample}}{\left( \frac{{}^n Mo}{{}^{95} Mo} \right)_{standard}} - 1 \right) \times 10^3$$

n = 92, 96, 97, 98, 100

また電気泳動後のゲルに京都大学研究用原子炉にて中性子照射を行った。照射条件は次の図 1 で行った。

照射条件  
 熱中性子束Φ<sub>th</sub> : 2.3 × 10<sup>13</sup> n / cm<sup>2</sup> · sec  
 原子炉出力 : 1 MW 照射時間 : 15 分  
 取り扱いまでの時間 : 1 日

図 1 KUR での照射条件

3. 結果：横軸に回収したゲルの正極からの距離、左縦軸に回収した試料の δ<sup>n</sup>Mo (n=92,96,97,98,100) をプロットしたグラフを図 2 に示す。正極からの距離が 3 cm と 5 cm を比べると <sup>92</sup>Mo のような軽い同位体は 2.55‰濃縮され、<sup>100</sup>Mo のような重い同位体は 0.77‰減損されたといえる。つまり、電気泳動後では電極に近いモリブデンほど同位体分別を起こしていると考えられる。ここから負極に近いゲルでは移動速度の速い <sup>92</sup>Mo のような軽い同位

体が流入し、移動速度の遅い <sup>100</sup>Mo のような重い同位体は流入しづらいのではないかと考察される。

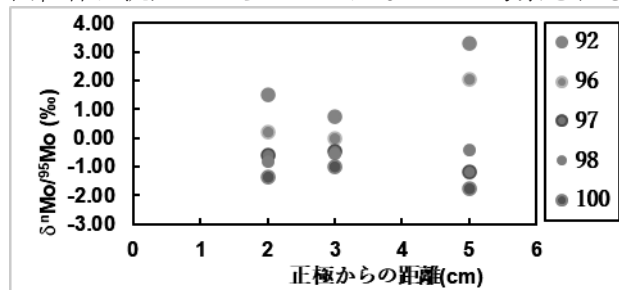


図 2 モリブデンの同位体比測定結果

次に中性子照射を行った結果を示す。横軸はエネルギー(keV)、縦軸はカウント数をプロットしたグラフを図 3 に示す。

<sup>99m</sup>Tc の放出するγ線は 140.51keV と知られており、[2]測定結果では 140.31keV でピークがみられた。ネット面積は 3.68(cps)であり、標準溶液に対して 23%多く <sup>99m</sup>Tc されており、同位体分別を起こしたモリブデンに対して中性子照射を行うことで実際に <sup>99m</sup>Tc が生成されることが確認された。

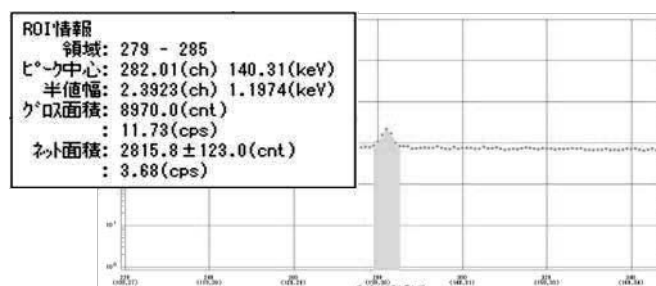


図 3 γ線スペクトル解析結果

### 参考文献

- [1]国立研究開発法人日本原子力研究開発機構”モリブデン 99/テクネチウム 99m 国内製造に向けた JAEA の進捗報告” 2023,2-17  
 [2]村上悠紀雄ら”放射線データブック”1982,109

### 謝辞

QST の小西輝昭様には実験系の議論についてご協力を賜りました。心より感謝申し上げます。

Study of dynamic isotope effects in molybdenum

Kazuki Okada, Ryoichi Nakada, Kazuya Nagaishi, Satoshi Fukutani, Akihiro Uehara, Chizu Kato, Toshiyuki Fujii  
 okada@qc.sec.eng.osaka-u.ac.jp

## (P31)ホウ素中性子捕捉反応を利用したイネの新品種開発（仮称：ロノヒカリ）について

（京大複合研、大阪公立大<sup>1</sup>、大阪環農水研<sup>2</sup>、京大院農<sup>3</sup>）○木野内忠稔、服部能英<sup>1</sup>、瀬上修平<sup>2</sup>、大庭悠暉<sup>3</sup>、八島浩、五十嵐康人、藤川陽子、切畑光統<sup>1</sup>

1. はじめに：持続可能な食糧生産システムの構築に最も有望な対策は、農作物の品種改良である。気候変動に対応できる新品種を開発することで、その収穫量の増加・安定化を図ることができるからだ。国内の例を見ると、地球温暖化の影響による水稻の高温障害の克服に向けて、新品種の開発が取り組まれている。しかしながら、交配による有用品種の出現率は極めて低いことから、人為的に効率良く新品種を作出する育種法が求められてきた。その現状として、近年ではゲノム編集技術の育種への応用が注目されてきたが、この方法では特定の遺伝子を標的にして変異導入することはできても（作出例：高GABA トマト、毒無しジャガイモなど）、予想を超える新品種を得ることができないため、ゲノムワイドに無作為な変異を導入する方法が見直されている。変異原に放射線や化学物質などを用いた品種改良が今も世界中で続けられており、赤い果肉を持つグレープフルーツ『スタールビー』は放射線（中性子）育種の成功例である。ただし、ガンマ線や高速中性子を用いた従来からの放射線育種法では、そのエネルギーの高さゆえに、DNA 以外の生体高分子や細胞内小器官にも損傷を与えることから、種子や胚組織の生存率や生理機能にも大きく影響し、開発の効率を悪化させる要因となっている。そこで我々は、ガン治療にも採用されているホウ素中性子捕捉（Boron Neutron Capture: BNC）反応を利用して、エネルギーの低い熱中性子の照射によって植物体への傷害を低減させた新規の育種法を開発することにした。これによって得られた稲の変異系統を『ロノヒカリ』と仮称し、その性質について検討中である。

2. 実験：ホウ素の安定同位体であるホウ素 10 を共有結合したフェニルアラニン（L-p-boronophenylalanine: BPA）もしくはホウ素 10 からなるホウ酸（B-10 ホウ酸）の水溶液にイネ栽培品種（日本晴もしくはヒノヒカリ）の種子を浸漬させ、24 時間後によく洗浄・乾燥してから、KUR 重水中性子照射設備で熱中性子を 90 分間照射した。冷却後、得られた種子は環農水研の圃場にて播種・栽培し、その形態的な特徴等から変異体を選別した。また、籾に吸収された BPA もしくは B-10 ホウ酸の動態は、籾の超薄切片を  $\alpha$  線の検出に用いられている固体飛跡検出プラスチック板：CR-39 に貼り付けてから KUR 黒鉛設備圧気輸送管にて熱中性子を 20 分照射し、BNC 反応によって発生した  $\alpha$  線のオートラジオグラフィックとして可視化することによって調べた。

### 3. 結果：



図 1. 日本晴（栽培種、左）と芒（のげ）が現れた変異体（右）：丸で囲った部分が芒であり、野生種ではその長さが数十センチにも及ぶ。

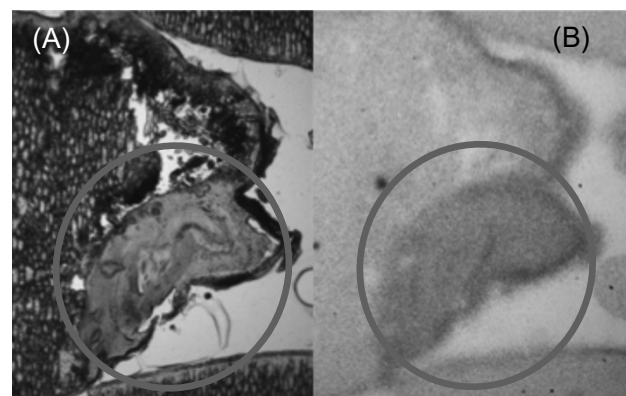


図 2. (A) イネ胚（丸で囲んだ部分）の明視野画像 (B) イネ胚に吸収されたBPAのラジオグラフィック（BPAの蓄積したところが周囲より濃く画像化されている）

図 1 で、丸で囲った部分は芒（のげ）と呼ばれるイネの野生種で見られる突起状の構造物で、コシヒカリなどの食用作物稲種では、こうした形態的特徴は失われている。芒の表面には鋸歯状の細かい棘があり、人の衣服や動物の毛にからまって種子の拡散を補助する役割があるものと考えられている。しかし、農業を行う上では収穫時の妨げになるとして、イネの栽培化の過程で選抜・除去された形質である。これ以外にも、アルビノ（色素形成不全変異体）や矮化（植物生理的には正常なまま、稈長（草丈）が低くなった変異体）など、複数の異なる変異体が得られており、これらの中から高温耐性品種を選別し、ゲノム解析・官能検査等を経て、品種登録を目指す。

Development of new rice variety using boron neutron capture reaction (tentative name: RONOHKARI)

Tadatoshi Kinouchi, Yoshihide Hattori, Shuhei Segami, Yuki Oba, Hiroshi Yashima, Yasuhito Igarashi, Yoko Fujikawa, Mitsunori Kiriata kinouchi.tadatoshi.4v@kyoto-u.ac.jp



## (P32) 含水 SiO<sub>2</sub> ガラスの高圧合成及びマルチスケールでの構造解析

(京大院工<sup>1</sup>、京大複合研<sup>2</sup>、物質・材料研究機構<sup>3</sup>、京大院人環<sup>4</sup>、JAMSTEC 高知コア<sup>5</sup>) ○高橋柊斗<sup>1</sup>、小野寺陽平<sup>3</sup>、小木曾哲<sup>4</sup>、井上倫太郎<sup>2</sup>、杉山正明<sup>2</sup>、清水健二<sup>5</sup>、牛久保孝行<sup>5</sup>、富岡尚敬<sup>5</sup>、奥地拓生<sup>2</sup>

1. はじめに：シリカ (SiO<sub>2</sub>) を主成分とするマグマは水を運搬する重要な役割を担っている。したがって、地球における水の循環を考える上で、マグマの類似体である含水 SiO<sub>2</sub> ガラスにおける水の存在環境を明らかにすることは非常に重要である。13 wt.% (31 mol%) と高濃度の重水 (D<sub>2</sub>O) を含む D<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub> ガラスについての先行研究により、含水 SiO<sub>2</sub> ガラスは無水 SiO<sub>2</sub> ガラスとは異なる回折や小角散乱のピークを示すことが報告されている[1]。しかしながら、含水 SiO<sub>2</sub> ガラスの合成条件と構造の関係については明らかになっていない。そこで本研究では、水の取り込まれ方に急激な変化が起こり[2]、かつ均質な含水 SiO<sub>2</sub> ガラスが得られると予想される比較的低濃度 1.7–7.7 wt.% (5–20 mol%) の含水組成におけるガラス構造の観測をマルチスケールで試みた。具体的には、温度と圧力を制御した高温高圧下での熔融急冷法により結晶化の見られない均質な含水 SiO<sub>2</sub> ガラスを合成し、合成試料に対して X 線回折及び小角散乱パターンの解析を行った。非晶質の構造変化の指標として、原子間距離を超えるスケールでの構造秩序 (中距離秩序) に由来すると考えられる First Sharp Diffraction Peak (FSDP) と呼ばれる、回折パターンの低  $Q$  領域 ( $Q \sim 1.5 \text{ \AA}^{-1}$ ) に出現する鋭い回折ピークの位置に注目する。ここで、 $Q$  とは散乱ベクトルの絶対値であり、非晶質の構造解析などで用いられる。

2. 実験：粒径 100  $\mu\text{m}$  以下の SiO<sub>2</sub> ガラス粉末と軽水 (H<sub>2</sub>O) または D<sub>2</sub>O の量比を制御して混合し、出発試料とした。出発試料を Pt カプセルに封入し、ピストンシリンダー型高圧発生装置を用いて温度 1300–1600 °C、圧力 0.5–1.0 GPa の条件で合成実験を行い、SiO<sub>2</sub> ガラス粉末が確実に熔融する条件を探索し実現した。さらに、加熱時間を 0.5–1 時間に留めることで、系の均質な混合を実現しつつ、Pt カプセルを通した軽水素の拡散による汚染をできる限り防いだ。得られた試料片に対して SPRing-8 BL04B2 での高エネルギー X 線回折実験を行い、精密な FSDP の位置を求めた。また、京大複合研の X 線小角散乱装置 NANO-Viewer にて、Mo-K $\alpha$  線による X 線小角散乱実験を行った。含水量の評価として、JAMSTEC の二次イオン質量分析装置 (SIMS) を用いた直径約 15  $\mu\text{m}$  の点分析により、含水量と試料の化学的均質性を確認した。さらに、熱重量-示差熱 (TG-DTA) 分析によって試料の平均的な含水量の測定も行った。

3. 結果：高エネルギー X 線回折実験の結果のうち

代表的なものを Fig. 1 に示す。これより、含水 SiO<sub>2</sub> ガラスの FSDP の位置が無水 SiO<sub>2</sub> ガラスに比べて、高  $Q$  ( $\text{\AA}^{-1}$ ) 側に移動していることが分かる。この結果は先行研究でも確認された[1]。また、TG-DTA 分析により算出された含水量と FSDP の移動量には、線形に近い関係が見られた。さらに圧力と FSDP の移動量に正の相関係数があった。また、H<sub>2</sub>O を 4.2 wt.% (13 mol%) 封入した試料について SIMS により複数の計測点で含水量を測定した結果、封入した含水量とほぼ調和的な値となった。したがって、回収試料内での大きな不均質は見られなかった。これより、他の合成条件より得られた試料に対しても Pt カプセル内での不均質はないと考えられる。発表では X 線小角散乱測定の結果も含め、マルチスケールでの含水 SiO<sub>2</sub> ガラスの構造について議論を行う。謝辞：本研究は、京都大学工学研究科 (既卒) の樽谷洋之介氏より一部の結果をご提供いただきました。また、京都大学複合原子力科学研究所の有馬寛先生にも実験のご協力をいただきました。深く感謝申し上げます。

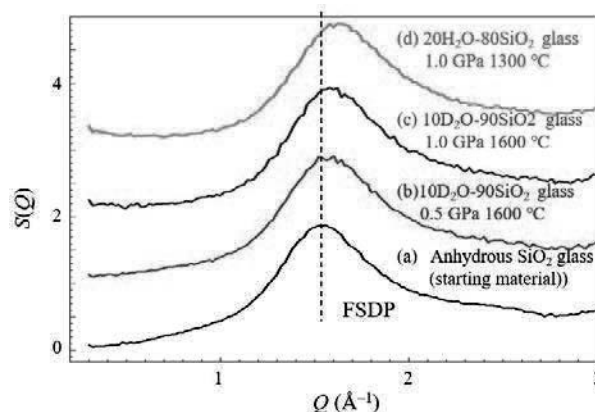


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of (a) anhydrous SiO<sub>2</sub> glass and hydrous SiO<sub>2</sub> glass synthesized under the following conditions: (b) 10 mol%D<sub>2</sub>O inclusion, 0.5 GPa, 1600 °C, 0.5 h heating (c) 10 mol%D<sub>2</sub>O inclusion, 1.0 GPa, 1600 °C, 0.5 h heating, (d) 20 mol%H<sub>2</sub>O inclusion, 1.0 GPa, 1600 °C, 0.5 h heating.

### 参考文献

- [1] Urakawa, S., *et al.*, *Minerals*, **10** (2020): 84.
- [2] Stolper, E., *Contrib. Mineral. Petrol.*, **81**(1982): 1–17.

## (P33) 化学交換法における同位体分別研究

(大産大、阪大 RCNP<sup>1</sup>、東京科学大ゼロエネ研<sup>2</sup>、阪大院工<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>)

○碓隆太、義本孝明、Kumsut Pantiwa, Rittirong Anawat<sup>1</sup>、佐久間洋一<sup>2</sup>、藤井俊行<sup>3</sup>、福谷哲<sup>4</sup>、芝原雄司<sup>4</sup>

1. はじめに：ストロンチウムの核種移行に伴う同位体分別研究として、同位体効果が見やすく取扱いも容易な同族元素のカルシウム及びリチウムを用いて、質量分析計により、大環状ポリエーテル（各種クラウンエーテル）等による液-液抽出・化学交換法に対する同位体分別効果の検証を行っている [1]。今回、リチウムに関する水溶媒での液液抽出の分離係数 ( $\epsilon$ ) の温度依存性(1/T)を報告する。

2. 実験： ${}^6\text{Li}^+$ (水相) $\rightleftharpoons$  ${}^7\text{Li}^+$ (有機相) $\rightleftharpoons$  ${}^6\text{Li}^+$ (水相) $\rightleftharpoons$  ${}^7\text{Li}^+$ (有機相): (L はクラウンエーテル)

上記、化学平衡により選択的に軽元素( ${}^6\text{Li}$ )がクラウンエーテル側に濃縮され、0.07M 濃度の DC18C6 クラウンクロロホルム有機溶媒と、30% (重量比) 濃度の塩化リチウム水溶液を体積比 20 : 200mL (水相 : 有機相) で 1 分間攪拌を行った。液液抽出は、 $-15^\circ\text{C}$  から  $45^\circ\text{C}$  まで変化させ、攪拌 1 分、静置 10 分で分離し、純水 10mL での有機相からの逆抽出後の溶質 Li 濃度、及び抽出後の水相中 Li 濃度を、原子吸光度計 (島津 AA-6800)、同位体比測定を大阪大学のリアクションセル ICP-MS (Agilent 7900) で測定を行った [1]。

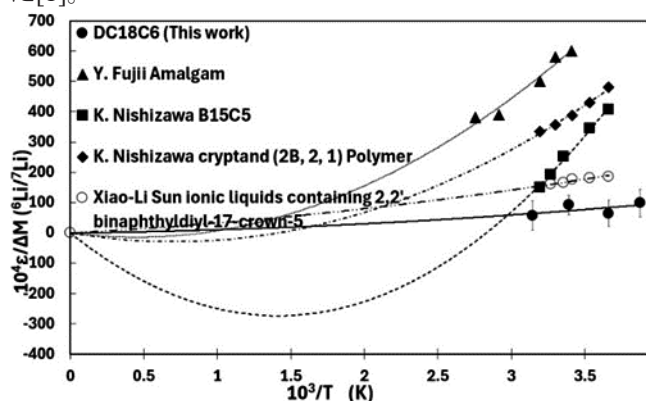


Fig 1. Separation coefficient ( $\epsilon$ ) of lithium based on the various extraction temperature ranging from  $-15^\circ\text{C}$  to  $45^\circ\text{C}$ , compared with the past research on amalgam, B15C5, cryptand, and ionic liquids [3,4,5,6].

$$\epsilon = \frac{a}{T^2} + \frac{b}{T}, \quad \ln \alpha = a \left( \frac{\Delta M}{MM'} \right) + b \delta(r^2) + \ln K_{hf}$$

上記、Bigeleisen の新理論 [2] (上式:  $a, b$  は各々、質量効果、フィールドシフト効果のスケール係数、 $T$  は絶対温度 (ケルビン)、 $M, M'$  は各々、重い、

軽い同位体、 $\delta\langle r^2 \rangle$  は核の平均自乗半径、 $\ln K_{hf}$  は核スピン由来の超微細分裂シフト) に基づき、分離係数 ( $\epsilon = \alpha - 1$ ) は、温度の二次多項式で表される。

| $1/T$ (K)<br>$\times 10^{-3}$ | $^\circ\text{C}$ | $\delta\langle r^2 \rangle$<br>( $\text{fm}^2$ ) | $\Delta M/$<br>$MM'$ | $\alpha(\text{org})$<br>$\pm \sigma$ | $\epsilon(\alpha(\text{org})$<br>$-1)$ |
|-------------------------------|------------------|--|----------------------|--------------------------------------|--|
| 3.876                         | -15              |  |                      | 0.990<br>$\pm 0.005$                 | 0.010                                  |
| 3.663                         | 0                | -0.731   | 0.0<br>238           | 0.994<br>$\pm 0.004$                 | 0.006                                  |
| 3.390                         | 22               |  |                      | 0.991<br>$\pm 0.003$                 | 0.009                                  |
| 3.145                         | 45               |  |                      | 0.994<br>$\pm 0.005$                 | 0.006                                  |

3. 結果: 質量効果に対するフィールドシフト効果、核スピン効果各々への寄与比は、 $-0.039$ 、 $-1.6 \times 10^{-7}$  ( $a, b$  のスケール係数は、各々  $4.6 \times 10^2$ 、 $0.58$ ) と得られ、これまでの西澤等による B15C5 [4]、クリプタンド [5]、藤井等によるリチウムアマルガム法 [3] や Sun 等による 17C5 [6] による結果と比較した (図 1)。

測定温度範囲が常温前後に限られ、外挿の程度がどうしても大きくなり、不定性が否めないが、これら従来の結果は全て  $0^\circ\text{C}$  以上のプラス側の温度依存のみであったが、今回、マイナス側 ( $-15^\circ\text{C}$ ) の温度依存を初めて測定した。軽元素においては、質量効果が大部分を占め、同位体が多岐にわたるカルシウムに関しても今後検証を行う。

これら、バッチ法での各種パラメーターの最適化の後、今後、大量濃縮に向けた多段化において、①大きな比界面積 ( $S/V$ ) による通常攪拌の数百倍の反応率 ② 短い拡散距離による反応時間 ( $T$ ) の高速化の二大特長を生かした、従来のいかなるバッチ処理では成し得なかった 0.3 秒の高速化を下に、積層化パイプアップ法による大量精製・多段化の検討を行う。

### 参考文献

- [1] A. Rittirong, Doctor Thesis, OSU (2022).
- [2] J. Bigeleisen, J. Am. Chem. Soc., 118, 3676 (1996). R. Hazama et al, arXiv 0710.3840
- [3] Y. Fujii et al, J. Nucl. Sci. Tec. 39, 413 (2002)
- [4] K. Nishizawa et al, J. Nucl. Sci. Tec. 21, 694 (1984).
- [5] K. Nishizawa et al, J. Nucl. Sci. Tec. 21, 133 (1984).
- [6] X. Sun et al, J. Nucl. Sci. Tec. 52, 332 (2015)

## (P34) X線イメージングによるフィン付き流路内気液二相流動の計測

(京大院エネ, 京大複合研<sup>1</sup>) ○近藤柊人, 大平直也<sup>1</sup>, 伊藤大介<sup>1</sup>, 伊藤啓<sup>1</sup>, 齊藤泰司<sup>1</sup>

1. はじめに: フィン付き流路内の流動は, これまで単相流を対象として様々な条件下で実験的に研究され, 圧力損失の実験式やモデルが提案されている. 奥中ら[1]は, 球充填層内の単相流, 二相流モデルである Ergun, Lipinski モデル[2,3]を用いて, フィン群を統一的に扱うモデルの構築に取り組み, 水平流に対して修正モデルの適用性を確認した. しかしながら, 現状ではフィン付き流路内の二相流動挙動に関する知見が不足しているため, 圧力損失のモデル化が十分ではない. 特に重力方向による二相流動様式や圧力損失への影響が大きいと考えられるため, 姿勢による二相流動挙動の違いを理解することが必要である. そこで, 本研究では, フィン型ヒートシンク内の気液二相流の流動を観察し, その特性を詳細に把握することを目的とする. 異なる流動姿勢, 異なるフィン配置を有するフィン付き流路に対して, X線イメージングを用いたボイド率計測とその詳細な評価を行った.

2. 実験: Fig. 1 にフィン付き流路試験部の概略図を示す. 試験部は流路幅 30 mm, 流路高さ 8 mm の矩形流路である. 本研究では, 水平流および垂直上昇流の両方を対象とし, 流路の姿勢による気液二相流動への影響を明らかにした.

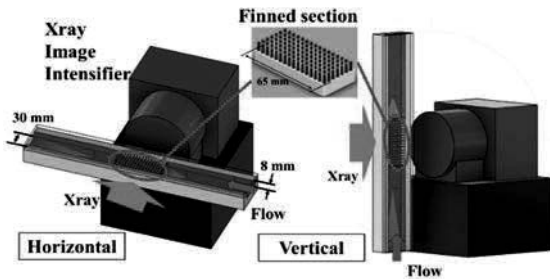


Fig. 1 Experimental apparatus

フィンには直径 2 mm の円柱ピンフィンであり, フィンピッチ 4 mm, フィン高さ 8 mm となっている. 基盤配置と千鳥配置 (基盤配置から流れに垂直な方向に 2 mm ずらした配置) の 2 種類のフィン付き流路を用いた. X線イメージングでは, X線イメージング用テンシファイア (E5877CS-P1K, TOSHIBA) と高速カメラを用いた撮像システムで流路底面と平行に, フィン部側面から撮影した. また, 流路底面と垂直な方向からフィン部を高速カメラで撮影した.

3. 結果: Fig. 2 に X線透過像から得られたフィン部の時間平均ボイド率分布を示す. 水平流(a)ではフィン部上下で平均ボイド率に差があるが, 垂直上昇流(b)ではフィン部全体でボイド率の偏りが少ないことが分かる. 次に X線透過像からフィン部後方 (Fig.

2 の実線で囲った部分) のボイド率を解析した. Fig. 3 にこの領域におけるボイド率の高さ方向分布を示す. 水平流では重力による気液の分離によりフィン上部におけるボイド率が高い. 一方, 垂直上昇流ではフィン高さ方向のボイド率の偏りが小さい. また, フィン配置に関して, 両姿勢とも基盤配置より千鳥配置の方がボイド率が高くなっている. これは, Fig.4 に示す高速度カメラによる可視化観察結果から分かるように, 正方形配置では, 気泡に与える抵抗が小さくボイド率は小さくなるが, 千鳥配置では, 気泡に与える抵抗が大きいため全体のボイド率が高くなると考えられる.

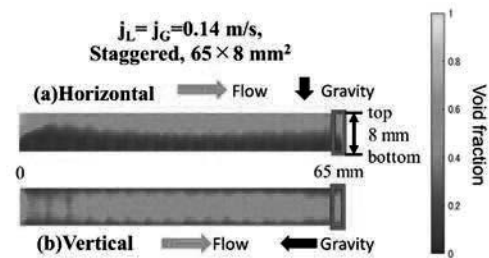


Fig. 2 Void fraction distributions obtained in horizontal and vertical flow with the staggered fin-array

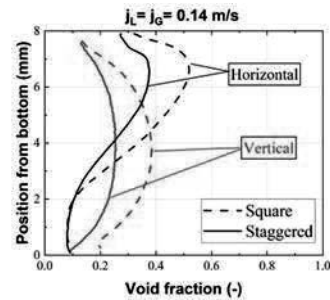


Fig. 3 Axial profiles of time-averaged void fraction for horizontal and vertical flows

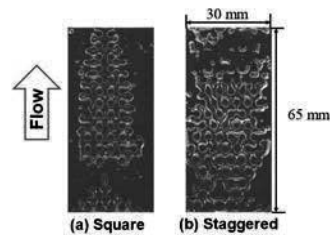


Fig. 4 Visualized images by high-speed camera (Horizontal,  $j_L = j_G = 0.14$  m/s,  $65 \times 30$  mm<sup>2</sup>)

### 参考文献

- [1] 奥中 勝利, 京都大学大学院エネルギー科学研究科, 修士論文 (2024)
- [2] Ergun, S., Chem. Eng. progress, Vol.48,89-94(1952).
- [3] Lipinski, R.J., U.S. NUREG/CR-2646, SAND82-0765 R7 (1982)

## (P35) 102 番元素ノーベリウム(No)の化学研究に向けた二族元素のジチオリン酸/Sr レジン系固液抽出実験

(阪大院理<sup>1</sup>、理研<sup>2</sup>、KEK<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>) ○王 瑞麟<sup>1,2</sup>、渡邊瑛介<sup>2,3</sup>、紺野未夢<sup>1,2</sup>、板倉悠大<sup>1,2</sup>、フルト エニー<sup>1,2</sup>、柴本恭佑<sup>1,2</sup>、高宮幸一<sup>4</sup>、羽場宏光<sup>2</sup>、重河優大<sup>2</sup>、南部明弘<sup>2</sup>、金山洋介<sup>2</sup>、金子政志<sup>1</sup>、風間裕行<sup>1</sup>、永田光知郎<sup>1</sup>、笠松良崇<sup>1,2</sup>

1. はじめに: 102 番元素ノーベリウム(No)はアクチノイドの後ろから 2 番目の元素であり、他の f ブロック元素と異なり、水溶液中では主に 2 価の陽イオンとして安定に存在し、過去のイオン交換実験では No は  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Sr}^{2+}$  と類似した化学挙動を取ることであり、化学的性質がアルカリ土類金属と似ている[1]。近年我々の研究グループで行った Sr レジンを用いた硝酸系オンライン抽出実験では、No のアルカリ土類金属より軟らかい酸であると類似した挙動が示唆され[2]、さらなる No の化学研究が求められている。本研究は No イオンの軟らかい酸としての性質を調べるために、Sr レジン(tBuCH18O6 含浸樹脂)を用いてアルカリ土類元素(Ca, Sr, Ba)の放射性トレーサーのジチオリン酸系の固液抽出を調べる基礎実験を行い、先行研究の硝酸系および塩酸系の二族元素の抽出選択性の傾向の変化に着目した。

2. 実験: 280 mg の CaO 粉末を  $\phi 8.00$  mm ガラス管に入れ、プラスチックで閉じ込めたものをターゲットとし、中性子(5MW)を 1 時間照射して、 $\text{natCa}(\text{nn}, \gamma)^{47}\text{Ca}$  反応により  $^{47}\text{Ca}$  ( $T_{1/2} = 4.53$  d) を製造した。イオン交換により不純物を除去し、以下の実験に使用した。

放射性トレーサー $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  を含むジチオリン酸溶液 0.5–1 mL ( $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  は無担体、 $^{47}\text{Ca}$  については 1 mg/mL 程度  $\text{natCa}$  が溶存) と、Sr レジン 50–200 mg とを接触させ、1–30 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。

3. 結果: Ba, Ca については、振とう時間 1 分で  $K_d$  値が一定になっており、抽出平衡に 1 分以内で到達していることが示唆された。図 1 に pH1.15 における  $K_d$  値のジチオリン酸濃度依存性を示す。Sr, Ba は共にジチオリン酸濃度が 40–320mM の間に上昇し、さらにジチオリン酸濃度を上げると、分配係数が一定になった。また、Ca が著しく低い分配係数を取ることが分かった。Ca<sup>2+</sup>のイオン直径がクラウンエーテル(18C6)の空孔サイズよりかなり小さいことより、包摂錯体の安定性が小さくなったことと、Ca<sup>2+</sup>の硬

い酸としての性質が配位子のより軟らかい塩基であるジチオリン酸と錯形成しにくいことに起因すると考えられる。図 2 に示すように、この結果は先行研究の硝酸系 Sr レジンのアルカリ土類金属抽出挙動と異なり、Ba と Sr の抽出挙動が逆になった。Ba の酸としての性質は Sr より軟らかいため、この結果は、配位子の軟らかさに由来すると考えられる。

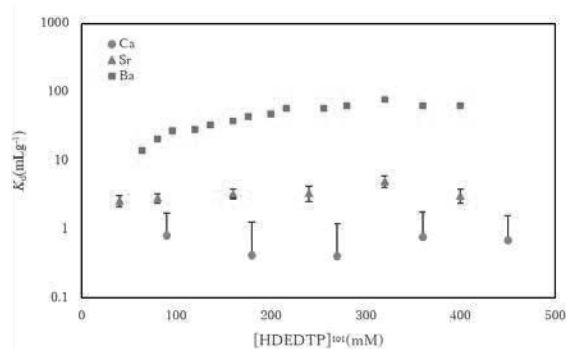


図 1 pH1.15 における  $K_d$  値のジチオリン酸濃度依存性

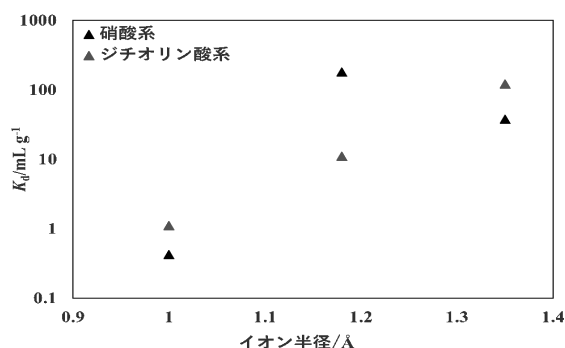


図 2 硝酸系およびジチオリン酸系における二族元素の抽出挙動変化

### 参考文献

- [1] R. Silva et al., *Inorg. Chem.* 13, 2233–2237 (1974).
- [2] 渡邊 瑛介, 大阪大学大学院理学研究科 博士論文(2022).

Solid-liquid extraction experiments of group 2 elements using dithiophosphoric acid with Sr resin system toward the chemical study on element 102, nobelium.

Ruilin Wang, Eisuke Watanabe, Miyu Konno, Yudai Itakura, Enni Khult, Kyosuke Shibamoto, Koichi Takamiya, Hiromitsu Haba, Yudai Shigekawa, Akihiro Nambu, Yousuke Kanayama, Masashi Kaneko, Hiroyuki Kazama, Kojiro Nagata, Yoshitaka Kasamatsu  
wangr22@chem.sci.osaka-u.ac.jp

## (P36) 重水設備の熱外中性子場における高速中性子束絶対強度の測定

(阪大院工、京大複合研<sup>1</sup>) ○相良航平、麻野晴香、村田勲、高田卓志<sup>1</sup>

1. はじめに：近年、患者に対する身体的な負荷が小さく、がんを選択的に破壊できるホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) の研究が進められている。BNCT は、がん細胞に蓄積されたホウ素と熱中性子の核反応を利用した放射線がん治療である。BNCT で使用される中性子源には、人体に有害な高速中性子が含まれており、その被曝量を推定するためには BNCT 用中性子源の高速中性子束強度を測定する必要がある。これまで中性子のエネルギースペクトルを測定するために様々な手法が試されているが、高精度な測定手法は確立されていない。そのため本研究では、箔放射化法を用いた高速中性子束強度の測定装置の開発を行った。また実際に BNCT 生体照射が行われている京都大学研究用原子炉 (KUR) の重水中性子照射設備にて測定装置の検証実験を行った。

2. 実験：測定装置は二つの検出器から構成されており、それぞれ適当な厚さの減速材や吸収材で放射化箔を覆うことによって生じる二つの検出器の反応の差から高速中性子のみを検出できる。どちらも放射箔として GaN 箔を用いている。便宜上、二つの検出器は設計材料の違いから PE 型と B<sub>4</sub>C 型と呼ぶ。それぞれの検出器を図 1 に示す。それぞれの検出器に検出器に中性子を照射すると GaN 箔で <sup>71</sup>Ga(n,γ)<sup>72</sup>Ga 反応が生じる。したがって生成した <sup>72</sup>Ga の放射能から検出器に入射した中性子束を測定できる。そこで、それぞれの検出器に対して中性子を照射するモンテカルロシミュレーションを行い、単位中性子フラックス当たりの <sup>72</sup>Ga 生成率のエネルギー分布を応答関数として算出した。それぞれの検出器の応答関数の差をとることで、高速中性子だけに感度を持つ応答関数ができる。二つの検出器の感度を組み合わせた測定装置の応答関数を図 2 に示す。使用したシミュレーションコードは MCNP5 である。開発した装置に対して、KUR の重水設備で性能の検証実験を行った。実験では図 1 に加えて、実験では 5MW で 10 分間の照射をそれぞれの検出器に行った。

3. 結果：図 3 に高速中性子束強度の測定結果を示す。高速中性子束強度の実験値 E は  $1.53 \times 10^8$  [n/s/cm<sup>2</sup>] であった。重水設備の中性子エネルギースペクトルの公称値から算出された高速中性子束強度を計算値 C とし、実験値 E との比をとると E/C は 2.96 であり、実験値 E は計算値 C に対して 196% 過大評価された。過大評価の原因はまだ明らかではないが、シミュレーションが正しくできていない可能性がある。実験値 E の算出にはシミュレーションで得られ

た感度の値を使用する。シミュレーションモデルは非常に簡易的であり、実験環境を完全再現していない。そのため実際の実験環境における検出器の感度はシミュレーションで得られた感度より大きくなっており、実験値 E が過大評価になったと考えられる。

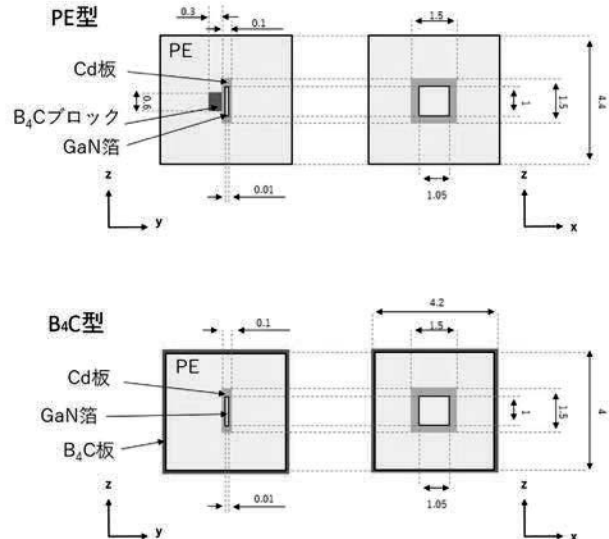


図 1. PE 型検出器と B<sub>4</sub>C 検出器の設計モデル

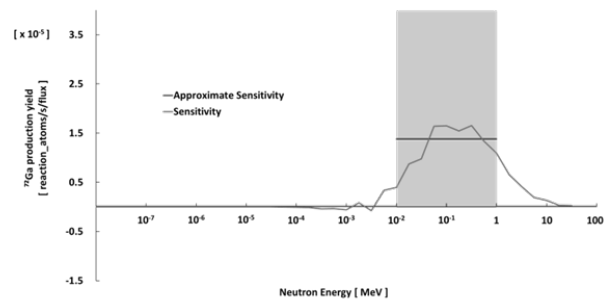


図 2. 応答関数

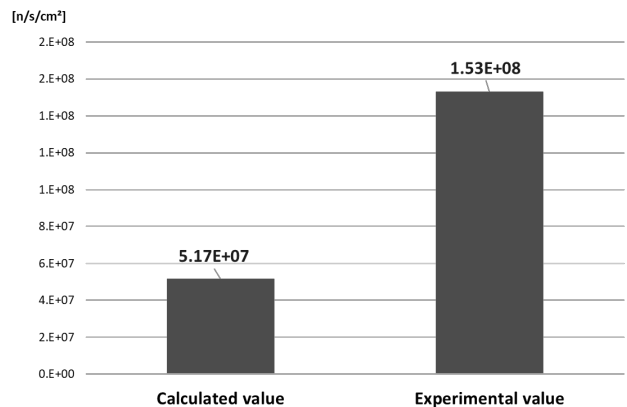


図 3. 高速中性子束強度

## (P37) He-3 検出器を用いた飛行時間法による KUANS ターゲットからの高速中性子強度評価

(京大院工) ○ 杵山瑞貴、田崎誠司

1. はじめに：高速中性子照射を利用した中性子線育種技術[1]は、高 LET である高速中性子を用いるため、 $\gamma$ 線や荷電粒子を用いる方法と比較して高い効率での育種が可能である。京都大学加速器小型中性子源(KUANS)では低エネルギーの中性子があまり混入しないため試料の放射化することが少ないことに加えて、ターゲットの極めて近くに試料を配置可能なために大型中性子源に匹敵する高速中性子強度を期待できる。したがって、植物の種や微生物などの試料への高速中性子の照射実験においては、簡便性や高速中性子強度の観点から小型中性子源が適しているといえる。

KUANS で発生する高速中性子の発生強度についていくつかの評価値が得られているが、それらの値は大きく異なっていた。本研究では、中性子の高速成分にも感度を持つ He-3 検出器に着目して高速中性子強度評価を行った。

2. 実験：実験配置の概略を Fig.1 に示す。減速材から出た中性子が Slit1 で縦 10mm 横 5mm に制限され、縦 5mm 横 10mm のスリットを持つ He-3 比例数管で計測される。検出器は x 方向に移動可能であり、最も高速成分の強い位置における高速中性子計数からターゲットで発生する中性子数を評価した。

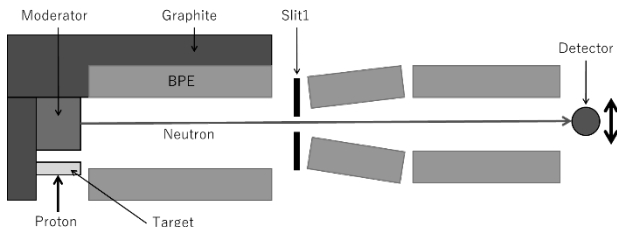


Fig.1. 実験配置の概略

3. 結果：Fig.2 に検出器スリット高さが 5mm の場合に検出器位置を移動させて得られた TOF スペクトルを示す。この実験の飛行距離から 33ch=330 $\mu$ s の飛行時間はほぼ 1eV に相当することを踏まえると、測定結果から検出器位置によって高速成分(0~33ch)と Maxwell 成分(46~200ch)の割合が異なることが確認できた。Fig.3 に示すように高速成分と Maxwell 成分について検出器位置による変化をそれぞれ比較したところ、高速成分は 20mm、Maxwell 成分は 40mm だけ移動したところで強度のピークが確認された。検出器位置での中性子の空間分布は減速材表面での分布に対応しており、このピーク位置の差は減速材表

面での 30mm に対応しており妥当なものであった。検出器位置 20mm での測定結果から、高速中性子の発生数として  $3.5 \times 10^8$  /s が得られた。検出器スリット高さを 1mm に変更して同様の測定を行ったところ、高速成分は検出器位置が 20mm の時に最大となり、高速中性子の発生数として  $7.2 \times 10^8$  /s が得られた。スリット高さが 5mm の時より発生数評価が大きい原因として、高速中性子計数時の He-3 検出器でのパイルアップが少なくなったためだと考えられる。これらの測定結果から、直線外挿をすることでスリット高さ 0mm 時の高速中性子の発生数が  $8.1 \times 10^8$  /s として得られた。 $^{115}\text{In}$  放射化法による KUANS の中性子強度評価[2]で得られている  $\sim 10^9$  /s と比較しても、本研究で得られた評価値は妥当な結果だといえる。

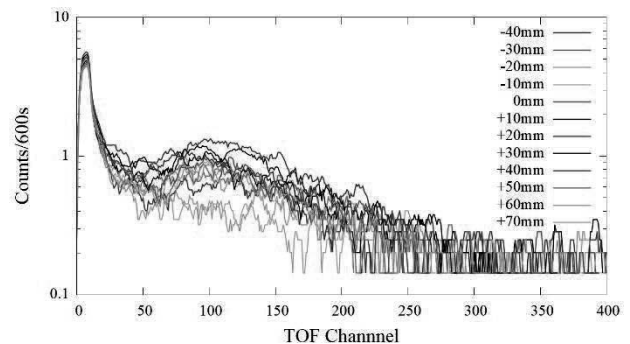


Fig.2. 検出器スリット高さが 5mm の場合における TOF スペクトル

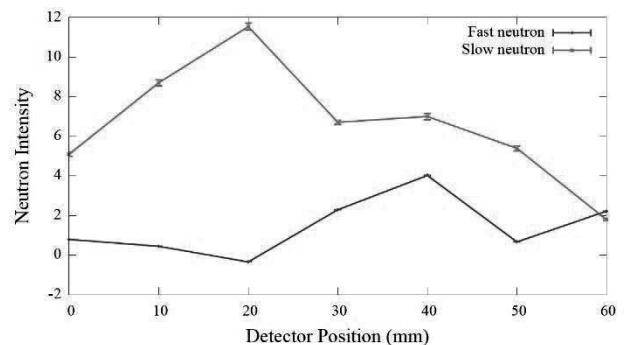


Fig.3. 検出器スリット高さが 5mm の場合における高速成分と Maxwell 成分の検出器位置による変化

### 参考文献

- [1] Quantum flowers & foods. <https://qff.jp/>
- [2] K.Mishima. private communication.

## (P38) もんじゅサイト新試験研究炉における 放射化分析・研究用 RI 製造関連装置の計画

(京大複合研、産総研<sup>1</sup>、福島県立医大<sup>2</sup>、都立大<sup>3</sup>、JAEA<sup>4</sup>、阪大院理<sup>5</sup>、神奈川大<sup>6</sup>、KEK<sup>7</sup>)

○稲垣誠、高宮幸一、三浦勉<sup>1</sup>、鷲山幸信<sup>2</sup>、秋山和彦<sup>3</sup>、大澤崇人<sup>4</sup>、笠松良崇<sup>5</sup>、白井直樹<sup>6</sup>、土谷邦彦<sup>4</sup>、吉田剛<sup>7</sup>、佐藤信浩

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

2. 検討内容：既存の類似施設を参考に、新試験研究炉におけるホットラボラトリについて検討を行った。ホットラボラトリの必要面積については、京都大学研究用原子炉(KUR)のホットラボラトリを参考にし、最低限必要な実験室及び管理用の設備の種類及び面積を検討した結果、約2千平方メートル程度が必要であると見積もった。現在の施設レイアウト案においてホットラボの占める範囲は23 m×34 m程度であるので、必要面積を確保するためにはホッ

トラボラトリを多層階化する必要がある。ホットラボラトリには、放射化分析やRI製造のための照射試料の研究炉への挿入と取り出しを行うための各照射ポート、照射物を取り扱うためのフードやグローブボックスを備えた実験室及び各種検出器を備えた測定室が必要となる。短寿命の核種を速やかに化学処理し、測定を行うような場合を考えると、照射ポート、実験室、測定室は安全かつ速やかに作業者が移動あるいは照射試料を移送できるよう配置する必要がある。基礎化学研究、検出器開発、少量核燃照射、トレーサー製造などの実験研究の需要もあり、それらに必要な設備を備える必要がある。また、ユーザーの休憩室や非放射線作業のための部屋などとして、非管理区域の部屋が必要である。これらをもとに、ホットラボラトリの配置案を作成した(Fig. 1)。

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

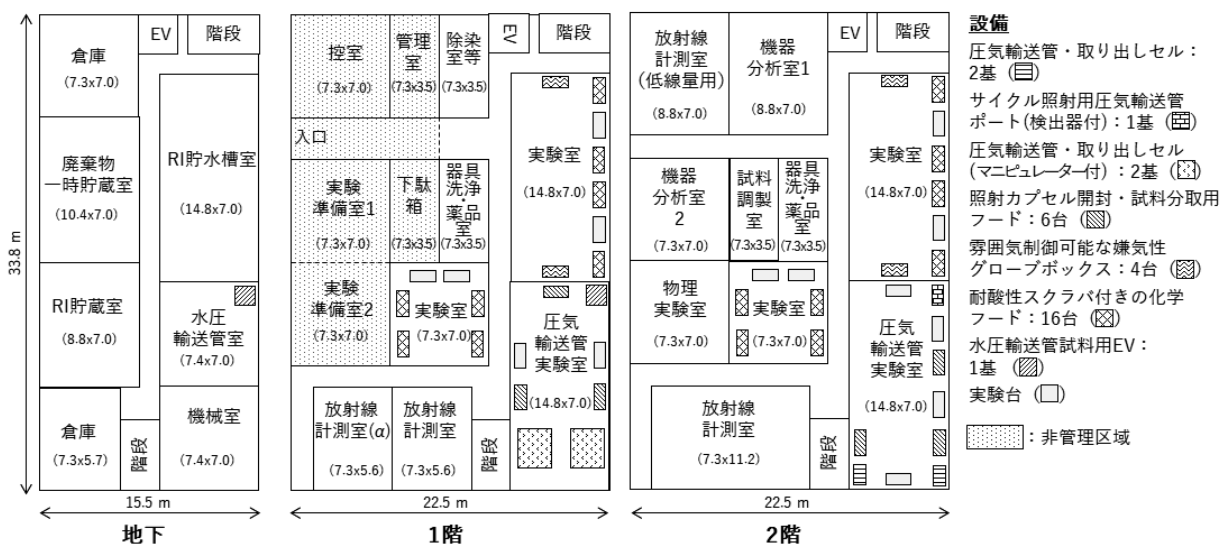


Fig. 1. Plan for the hot laboratory of the new research reactor.

Plan for equipment related to neutron activation analysis and radioisotope production in the new research reactor at Monju site  
Makoto Inagaki, Koichi Takamiya, Tsutomu Miura, Kohshin Washiyama, Kazuhiko Akiyama, Takahito Osawa, Yoshitaka Kasamatsu, Naoki Shirai, Kunihiko Tsuchiya, Go Yoshida, Nobuhiro Sato  
inagaki.makoto.2r@kyoto-u.ac.jp





## (P40) マラリア原虫ヌクレオソームの X 線小角散乱による構造解析

(東大定量研、京大複合研<sup>1</sup>) ○佐藤祥子、ダッシェ マリコ、守島健<sup>1</sup>、井上倫太郎<sup>1</sup>、村山勘吉、小笠原光雄、堀越直樹、滝沢由政、杉山正明<sup>1</sup>、胡桃坂仁志

1. はじめに：真核生物において、ゲノム DNA はタンパク質との複合体であるクロマチンを形成し、核内に収納されている。クロマチンは、様々な因子を介して構造変化することにより、遺伝子発現など核内における反応を制御する基盤的構造体である。クロマチンの基本単位であるヌクレオソームは、ヒストンタンパク質 H2A、H2B、H3、H4 各 2 分子ずつからなるヒストン八量体に二本鎖 DNA が 145-147 塩基対巻き付いた構造体である。ヒストンタンパク質は、DNA 複製時にゲノム DNA に取り込まれヌクレオソームを形成する「通常型」に加え、複製後に通常型と置き換わって局在する「バリエント」が存在する。バリエントはヌクレオソームのダイナミクスを変化させるクロマチン構造制御因子の一つであると考えられている。マラリア原虫は、毎年 2 億人が感染し重篤な症状をもたらす感染症であるマラリアを引き起こす。原虫ヒストンのアミノ酸配列は、ヒトヒストンとの保存性が低く、そのため、原虫ヌクレオソームは、ヒトとは異なる構造および性質を有することが明らかになってきた[1]。しかし、マラリア原虫ヌクレオソームの性状は明らかにされていない点が多く残されている。さらに、マラリア原虫では、真核生物に保存されたバリエントである H2A.Z、および原虫特異的なヒストンバリエントである H2B.Z を含むヌクレオソームが遺伝子発現制御領域に局在していることが報告されており、その機能は明らかにされていない[2]。そこで本研究では、マラリア原虫のクロマチン制御を明らかにすることを目的とし、これらのヌクレオソームの性状を解析した。本会では、分析超遠心法 (AUC) および X 線小角散乱法 (SAXS) を用いたヌクレオソームの溶液構造解析の結果を踏まえて発表を行う。

2. 実験：リコンビナントタンパク質として精製したヒストンタンパク質と、145 塩基対の DNA 断片を用いて、ヌクレオソームを試験管内で再構成し、分取用ポリアクリルアミド電気泳動装置を用いて精製した。マラリア原虫の通常型ヒストンからなるヌクレオソーム、マラリア原虫の H2A.Z と H2B.Z を含むヌクレオソーム、およびコントロールとして、ヒト通常型ヌクレオソームを調製した。これらを用い、AUC 測定と SAXS 測定を行った。装置は京大複合研に設置されているものを用いた。

3. 結果：調製したヌクレオソームサンプルの AUC 測定を行った。ピーク成分を検討すると、ヌクレオ

ソームのピークより低  $s$  値の領域にピーク成分は検出されなかったことから、解離成分はないと考えられた。また、高  $s$  値の領域に僅かにピーク成分が検出されたことから、ごく僅かな凝集成分を含むと考えられた。これらのサンプルを用い、SAXS 測定を行った。AUC 測定の結果を踏まえ、含まれている凝集成分を除去した散乱プロファイルと Guinier plot を作成した。Guinier plot から算出した  $R_g$  を比較すると、マラリア原虫の H2A.Z、H2B.Z を含むヌクレオソームは、マラリア原虫の通常型ヌクレオソームおよびヒト通常型ヌクレオソームと比べ  $R_g$  の値が大きかったことから、広がった形状をもつことが示唆された。このことから、マラリア原虫の H2A.Z、H2B.Z を含むヌクレオソームは、溶液中において、DNA 末端がヒストンから解離した、「開いた」ヌクレオソーム構造を形成しやすいと考えられる。模式図を Fig. 1 に示した。

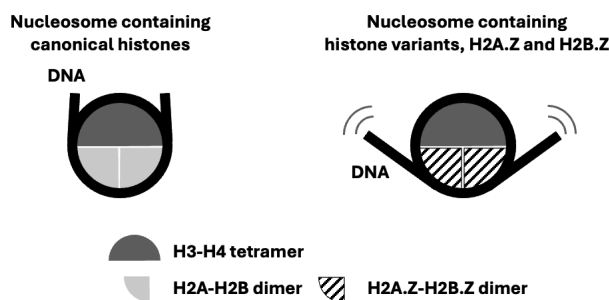


Fig. 1. Structure of the nucleosomes containing histones of malaria parasite

### 参考文献

- [1] S. Sato et al., “Nucleosome Structures Built from Highly Divergent Histones: Parasites and Giant DNA Viruses” *Epigenomes*, **6** (2022) 22.
- [2] M. Petter et al., “H2A.Z and H2B.Z double-variant nucleosomes define intergenic regions and dynamically occupy *var* gene promoters in the malaria parasite *Plasmodium falciparum*” *Mol. Microbiol.*, **86** (2013) 1167-1182.

## (P41) 多層膜中性子集光ミラー開発と新試験研究炉における中性子ビーム光学系

(京大、理研<sup>1</sup>、KEK<sup>2</sup>) ○日野正裕、細島拓也<sup>1</sup>、竹田真宏<sup>1</sup>、山形豊<sup>1</sup>、樋口嵩、藤谷龍澄、遠藤仁<sup>2</sup>

1. はじめに：中性子ビーム利用は、生命・物質科学研究から素粒子物理研究、産業利用等まで多岐にわたる。近年、J-PARC や米国 SNS に代表される加速器中性子源利用の発展は著しく、ヨーロッパにおける ESS も稼働が間近である。これらは瞬間的に高輝度なパルス中性子源であるが、時間平均中性子強度で考えると、J-PARC MLF の中性子源でも熱出力 20MW の研究用原子炉 JRR-3 と同程度となる。そのため、中性子イメージングや中性子小角散乱等、比較的幅広い波長分布やフレームオーバーラップが問題となる冷中性子ビーム利用をする場合、原子炉のような定常中性子源が適していることが多い。

2. もんじゅサイト新試験研究炉と冷中性子源：KUR は 2026 年 5 月頃に停止するが、KUR の後継も意識した福井県敦賀市「もんじゅサイト」に設置する新たな試験研究炉（以下 新試験研究炉）の建設計画が進んでいる[1,2]。熱出力 10MW の新試験研究炉は、JRR-3 に迫る熱中性子束を持ち、かつ冷中性子源の性能を高めることで、高輝度の冷中性子ビームを得て、世界に伍する中性子ビーム施設とすることが目標である。如何に CNS と連結させ[3]、効率的に必要な中性子ビームだけを輸送し、利用できるかが非常に重要になる。

3. 多層膜中性子ミラー：多層膜中性子ミラーはブラッグ反射を利用して、ビームの輸送、整形、偏極等、熱・冷中性子ビームの性能向上に必須なデバイスである。特に反射可能な反射角度の関係上、中性子波長が長くなるほどその性能は向上する。京大複合研のイオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)は、世界で初めて  $m=5$  中性子スーパーミラーを実現し、現在に至るまで常に最高レベルの多層膜中性子ミラーの成膜を行っている[4] ( $m=5$  とは Ni の全反射臨界角に対して 5 倍の入射角で全反射できる性能を表す指標である)。ここで多層膜中性子ミラーの膜厚を少しずつ変えながら積層することで広い波長範囲で全反射できるスーパーミラーとして使用できる。主に利用する中性子波長がナノメートル(nm)以下のレンジであるため、高性能なスーパーミラーの実現には、層間の拡散だけでなく、まず基板の表面粗さを 0.3 nm 程度以下に抑える必要がある。

4. 金属基板中性子スーパーミラー：表面粗さの厳しい制約のため金属基板の使用が難しかったが、理化学研究所との共同研究から、表面粗さ 0.2nm 以下を実現し、この問題を解決した。金属を母材するこ

とで、機械加工用の NC 加工機での製作が可能となる。耐放射線にも優れ、分割して組み合わせ、構造材、例えばミラー自体を真空チャンバーや遮蔽材としてもなど利用できる等、今後の中性子ビーム利用装置開発に大きな貢献ができることが期待される。現在は J-PARC MLF BL06(VIN ROSE)スピネコー分光器[5]の位相補正集光ミラーとして  $m=6$  の Ni/C/Ti スーパーミラー成膜の量産を目指している。



Fig.1 Photograph of three parts of ellipsoidal neutron supermirrors coated by the ion beam sputtering instrument (KUR-IBS) at KURNS.

Fig.1 に KUR-IBS セットされ、 $m=6$  の Ni/C/Ti スーパーミラーを成膜した回転楕円体 3 ピース及びモニター用シリコン基板の写真を示す。回転楕円体の形状は、長軸 1250mm、短軸 65.4mm であり、1 ピースの長さは 300mm で幅は 20 度分をカバーしている。現在、長さ 90cm、全周 360 度をカバーするための基板、全 54 ピースに向けて、LOT36 まで(1LOT は 3 ピースで構成)、性能を向上させながら完成しており、今年中に一通りは終了予定である。LOT36 のスーパーミラーの実効総層数は約 6000 であり、成膜にかかる時間は約 14 日程度であった。これは平面の成膜速度とほぼ同じであり、現状でも 6 ピース/月程度が成膜可能だが、基板の製作には 1 ピースで数ヶ月を費やした。メートル級の集光ミラーとはいえ、この製作速度では、次世代中性子源での大規模な利用は容易ではない。本講演では、今後本格化する新試験研究炉の中性子装置設計に十分活かせること、特にまず中性子源の上流光学系への適用を念頭に、多層膜中性子集光ミラー開発の現状と課題を議論する。

### 参考文献

- [1] <https://www.jaea.go.jp/04/nrr/jp/>
- [2] <https://labo.rri.kyoto-u.ac.jp/labnrr/>
- [3] 田北雄大他., 本学術講演会報文集.
- [4] M.Hino, et al., Nucl.Inst.Meth. A 529 (2004) 54.
- [5] M.Hino, et al., J.Nucl.Sci.Tech.54(2017),1223

## (P42) 複合研 KUR 炉を用いた中性子シンチレータの評価と開発

(東北大 NICHe<sup>1</sup>、東北大金研<sup>2</sup>、阪大レーザー研<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>、東北大工<sup>5</sup>、埼玉大理工<sup>6</sup>) ○黒澤俊介<sup>1,2,3</sup>、田中浩基<sup>4</sup>、高田卓志<sup>4</sup>、松林錦<sup>4</sup>、浦野雄介<sup>2,5</sup>、藤原千隼<sup>2,5</sup>、山路晃広<sup>1,2</sup>、小玉翔平<sup>6</sup>

1. はじめに：われわれは福島第一原子力発電所(1F)のような 1 Sv/h 程度以上の超高線量率場でも、線量率測定が可能なような、超高線量率場の線量率を測定するシステムを開発している。具体的には、シンチレータを用いて線量率に相関がある発光量に情報を変換させ、光ファイバーを介して光検出器で読み取る構成である。光ファイバーを用いる理由は、超高線量率場では、光検出器が放射線ノイズに起因して正常に動作しない恐れがあるためである。

ここでの開発要素はシンチレータの高感度化である。具体的には、高線量率の環境下では光ファイバー自身がチェレンコフ発光や欠陥によるシンチレーション発光による青色などで光るため、これを区別するための緑色・赤色・近赤外発光(550 nm 以上)を持つ材料の開発である。さらにできるだけ発光量を増やすことである。

そこでわれわれは、Cs<sub>2</sub>HfI<sub>6</sub>などの新規材料の開発[1,2,3]に着手して、これらの高線量率場での放射線応答を京都大学複合原子力科学研究所(複合研)のコバルト 60 ガンマ線照射装置で調査を進めてきた[4]。これまではガンマ線が中心であったが、中性子についてもその応答についての議論をする必要があり、E-3 および重水台車を用いた中性子場での赤色・近赤外発光シンチレータの中性子応答評価を行ったので、これについて報告する。

2. 実験：ガンマ線応答実験と同様のセットアップ、すなわち、シンチレータをコア径 600 μm、長さ 20 m の光ファイバー(フジクラ製、高 OH)につけて、このシンチレータ部分を重水台車内にに入れて中性子を照射させて読み出し、CCD 分光器を使い電流モードで読み出した(図 1)。

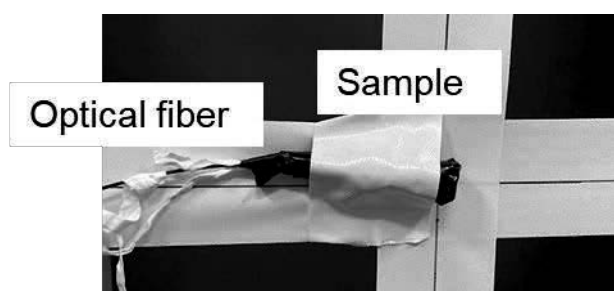


Fig. 1. Photograph of setup for the neutron irradiation.

使用したシンチレータは熱中性子に感度を持たせるように<sup>6</sup>Liを含むシンチレータ材料であり、これらは、東北大において垂直ブリッジマン法にて育成し、切断・研磨を行い、素子化して持ち込んだ。

3. 結果：図 2 の通り、当該シンチレータに中性子を照射させて、中性子励起と思われる発光スペクトルを取得することができた。発光波長のピークはおおむね 550 – 600 nm であり、目的としていた長波長発光シンチレータの開発に成功したことが分かった。

合わせて、中性子のフラックスと発光強度の関係性についても調査を行い、相関があることも確認できた。これらの事から、これらの結晶の中性子シンチレータおよび計数測定素子としての有用性を示すことができた。

現在、これらの材料、および、そのシンチレーション特性について詳しく解析して、論文にまとめている最中である。

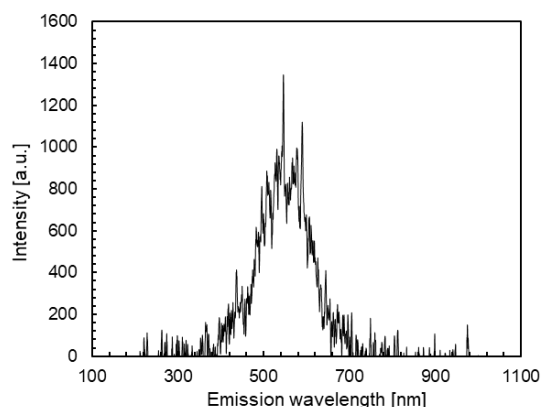


Fig. 2. Emission spectrum of the neutron scintillation sample excited by neutrons.

### 参考文献

- [1] S. Kodama, S. Kurosawa, *et al.*, Applied Physics Express, **13** (2020) 047002
- [2] S. Kodama, S. Kurosawa, *et al.*, Radiation Measurements, **124**, (2019) 54-58
- [3] S. Kodama, S. Kurosawa, *et al.*, Journal of Crystal Growth, Vol. 492, (2018) 1-5
- [4] 黒澤ら、第 57 回学術講演会報文 2023 年 1 月

Evaluation and development of novel neutron scintillators in KUR

Shunsuke Kurosawa, Hiroki Tanaka, Takushi Takada, Nishiki Matsubayashi, Yusuke Urano, Chihaya Fujiwara, Akihiro Yamaji, Shohei Kodama

kurosawa@imr.tohoku.ac.jp

## (PJ4) 伴侶動物に対する BNCT 適応拡大に向けた基礎研究

(京大複合研<sup>1</sup>、大阪公立大獣医<sup>2</sup>、帯広畜産大獣医<sup>3</sup>、大阪公立大工<sup>4</sup>、広島大工<sup>5</sup>、阪大院工<sup>6</sup>、名大院工<sup>7</sup>)  
○鈴木 実<sup>1</sup>、和田悠佑<sup>1,2</sup>、柳川将志<sup>3</sup>、岩崎遼太<sup>3</sup>、長崎 健<sup>4</sup>、河崎 陸<sup>5</sup>、日下祐江<sup>6</sup>、吉橋幸子<sup>7</sup>

1. はじめに：京都大学複合原子力科学研究所（以下、複合研）の研究用原子炉（Kyoto University Research Reactor、以下 KUR）を用いて、ホウ素中性子捕捉療法（Boron neutron capture therapy、以下 BNCT）の臨床研究は、2020 年度に終了となった。この終了は、2020 年 6 月に頭頸部癌に対する BNCT が保険診療として承認されたことを受けての措置である。約 590 例のがん患者に対して、BNCT が実施され、KUR で得られた様々な成果は、現在、加速器 BNCT 照射設備を有する、関西 BNCT 共同医療センター、南大阪 BNCT 研究センター、国立がん研究センターなどの医療機関に引き継がれ、大学の重要なミッションである、研究成果の社会実装を果たすことができた。

上記の臨床研究と並行して KUR を使用した BNCT 創薬研究をはじめ、毎年多くの基礎研究が実施されてきた。2021 年度からは、臨床研究で使用されてきた 5MW の照射枠が基礎研究に割り振られるようになり、多くの基礎研究成果が毎年論文として報告されている。本プロジェクトである「伴侶動物に対する BNCT 適応拡大に向けた基礎研究」は、プロジェクト研究として取り組んだのは、2022 年度が最初であるが、この取り組み自体は、報告者の前任の教授である小野公二先生が、大阪公立大学（当時は府立大学）の獣医学部の先生と共同研究契約（現在も続行中）の締結時まで遡り 10 年以上の研究テーマである。伴侶動物（イヌ、ネコ）に対する BNCT の適応拡大により得られる学術的、社会的インパクトについて以下にまとめる。

### 学術的インパクト

#### 1. 肺、肝臓の全臓器照射の放射線影響研究

肺、肝臓は呼吸、代謝、解毒、貯蔵といった生体機能を担う同一ユニットの複合体である。そのため、放射線治療の観点では、原発性肺がん、肝臓がんでその腫瘍に線量を集中させた場合、同一ユニットの一部の機能が失われるが、他の部位が肺機能、肝臓機能を維持することにより、致命的な有害事象をもたらすことなく放射線治療を完遂することが可能である。

一方、肺と肝臓は、一部ではなく臓器全体に放射線照射を受けると、20-30 Gy で致命的な有害事象を起こす臓器である。一般にがんを治療するための放射線の線量は 60 Gy 以上は必要であり、症状を抑える緩和的放射線照射としての全肝臓照射という治療法はあるが、根治を目的とする全肺照射、全肝臓照射という治療法は存在しない。

報告者は BNCT の腫瘍細胞選択放射線治療の特長を活かし、全肺照射 BNCT、全肝臓照射 BNCT の開発を目指し、基礎、臨床研究を実施してきた。肺

に関しては、肺が空気を多く悪性胸膜中皮腫に対しての BNCT の臨床研究は実施できたが、肝臓に関しては、人体最大サイズの臓器であり、肝臓の最深部まで治療に必要な中性子を到達させることは、長い治療時間、浅い部位への高線量投与などが大きな障壁となり、臨床研究への展開は現時点では困難であると考えている。肝腫瘍選択的に高く、かつ高濃度でホウ素薬剤を肝腫瘍に蓄積させる薬剤到達方法（DDS）、新規ホウ素薬剤の開発が必須である。

伴侶動物であるイヌ、ネコのサイズであれば、1 方向、2 方向からの中性子照射で、全肝、全肺に BNCT で治療に必要な中性子照射が可能であると考えられる。その点で、伴侶動物における BNCT では適応疾患がヒトと比較してより多いということが言える。学術的インパクトとしては、全肝臓、全肺に BNCT を実施し、長期にわたり、正常組織である肺、肝臓の影響を観察することが可能であるということである。得られた知見は、ヒトへの BNCT 臨床研究への基礎データとして重要であり、かつ正常臓器に対する放射線影響の観点からも大変重要である。

#### 2. BNCT 適応拡大、新規ホウ素薬剤の前臨床試験としての重要性

新規薬剤の薬事承認を得るためには、マウス、中型動物を使用する前臨床研究が必要である。この前臨床研究に関して、げっ歯類であるマウスへの移植腫瘍に対する結果を自然発生するヒト腫瘍へ外挿することの妥当性についての問題点が指摘されている。その問題についての、1 つの方策として自然発生した悪性腫瘍を有する伴侶動物を前臨床研究の対象とすることが提案されている。ヒトと比較してイヌ、ネコの伴侶動物の寿命が短いことから、生存率などのデータも早期に集めることができること、獣医学、ヒトを対象とする医学の異分野交流の観点、ヒト、動物、環境の健康を一体のものとして考える“**One Medicine**”の概念にも合致する研究方法として注目されている。将来、伴侶動物が承認申請の前臨床試験に採用される可能性を踏まえて、その準備として本プロジェクトは重要であると考えている。

#### 社会的インパクト

伴侶動物はその名前の通り、家族の一員となっており、その治療について飼い主の思いは大変大きなものである。伴侶動物の悪性腫瘍に対して、現在、ヒトの放射線治療と同じ放射線照射装置を使用して、腫瘍に線量を集中させる最先端の放射線照射技術である定位放射線治療、強度変調放射線治療が実施されている。

BNCT に関しても上述したように現在、加速器を

中性子源とした医療が承認医療として実地されていることから、飼い主の方にとって BNCT 治療に対する抵抗は小さいと考えられる。また、費用に関しても、通常の放射線治療が多数回で実施されるのに対し、BNCT は 1 回で治療が終了し、使用される薬剤もヒトの 1/10 から 1/5 となることから、BNCT が極めて高額な治療とはならない。

複合研には、現在、実際のヒトの臨床研究（治験）で使用された BNCT 加速器を所有している。また、共同研究を締結している大阪公立大学獣医学部とは、車で 15 分程度の近距離にある。診療行為として、複合研において加速器 BNCT での伴侶動物が実現すれば、世界初の事業（外国の研究用原子炉、加速器で伴侶動物に対する BNCT は報告あり）としての BNCT であり、関西空港に近接する複合研、立地する熊取町は、世界中の伴侶動物の飼い主の耳目を集めることになることは十分想定可能である。

しかし、日本国内において、伴侶動物に対して BNCT を実施することは法律上困難である。他人が所有している伴侶動物に対する殺傷行為が器物損壊罪で問われるように、動物は法律上「物」として扱われる。そのため BNCT においては、治療後の伴侶動物は照射を受けた段階で「放射化物」としての対応が必要となり、治療後、飼い主の元に戻すことはできなくなり、放射線管理区域内で、飼い主が面会するといった対応しか許可されないことになる。BNCT を時伴侶動物に実施するためには、獣医療法に BNCT が医療として書き込まれる必要がある。

この基礎研究として、本プロジェクト研究の開始年の前年 2021 年度の共同利用研究として、「伴侶動物への BNCT 適応に向けた生体への照射化による周囲環境への影響についての検討」という研究題目で、ラットを用いて、BNCT 後の照射動物の管理区域外への退出基準、排泄物である放射化した糞、尿の扱いなどについて検討を加えた（現在、論文作成中）。この研究では、BNCT 実施後 1-2 日管理区域内に伴侶動物を留め、その後は飼い主の方に戻しても放射線管理の観点から問題ないといった結論が得られた。

本プロジェクトは、今後、獣医療法の改正により BNCT を複合研の加速器 BNCT 照射装置を使用して実施する将来を見据えて、創薬研究、DDS 研究などの基礎研究が実施された。

## 2. 研究成果紹介

プロジェクト研究の研究課題ですでに論文で公表されている研究内容を以下に紹介する [1]。

- ・研究課題名  
「脳腫瘍に対する脳脊髄液を介したホウ素薬剤投与方法の有用性の検討」
- ・研究代表者：日下 祐江 大阪大学工学部
- ・発表論文

“Therapeutic Effect of Boron Neutron Capture Therapy on Boronophenylalanine Administration via Cerebrospinal Fluid Circulation in Glioma Rat Models.”

by Sachie Kusaka, Nikolaos Voulgaris, Kazuki Onishi, Junpei Ueda, Shigeyoshi Saito, Shingo Tamaki, Isao Murata, Takushi Takata and Minoru Suzuki  
*Cells* **2024**, *13*(19),1610

以下に引用した図は、オープンアクセスである上記論文の

URL: <https://www.mdpi.com/2-73-4409/13/19/1610>  
(2024/12/26 アクセス) から引用、転載した。

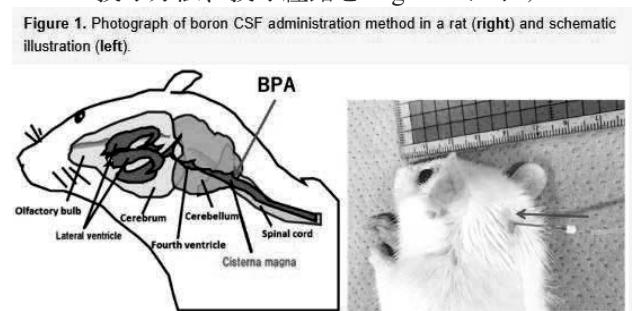
### 実験目的

ホウ素薬剤である Boronophenylalanine (BPA) は通常、静脈経路で全身に投与される。筆者らは、同所性に移植したラット脳腫瘍モデルを用いて、経静脈 (intravenous, IV) 投与の量と比較して少量の BPA を脳脊髄液 (Cerebrospinal fluid, CSF) に直接投与することにより、腫瘍へ治療十分な BPA が集積することを明らかにしている [2]。

本研究の目的は、ラット脳腫瘍モデルを BPA を CSF 投与と IV 投与群に分けて、BNCT を実施し、その治療効果を比較し、CSF 投与が悪性脳腫瘍に対する新しい BPA 投与方法として有用であるかを明らかにすることである。

### 実験方法

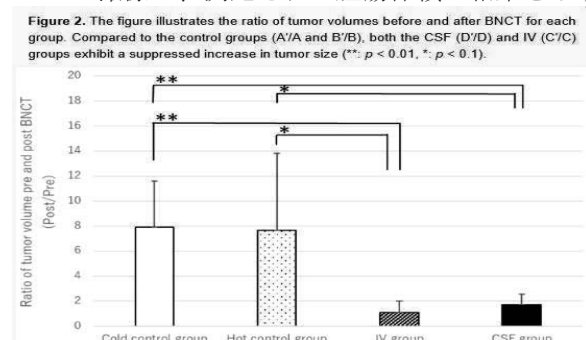
BPA の投与方法、投与経路を Figure 1. に示す



BPA の投与量は、IV 投与が 350 mg/kg を尾静脈から 1.5 時間で投与、CSF 投与が 16 mg/kg を 2 時間で投与した。中性子照射は頭部以外は <sup>6</sup>LiF で遮蔽し、重水照射設備で 5MW 運転時に 20 分間照射し、頭部に照射された平均の熱中性子量は  $3.8 \times 10^{12}$  neutrons/cm<sup>2</sup> であった。

### 結果

Figure 2 に、照射前、照射 1 週間後のラット頭部を MRI で撮像し、測定された腫瘍体積の結果を示す。



非照射群、中性子単独照射群と比較して、BNCT 群は IV 投与群、CSF 投与群ともに腫瘍サイズ増大が抑制されていた。

### 3：本プロジェクト研究の将来展望

本稿で紹介したホウ素薬剤の CSF 投与の有用性は、悪性脳腫瘍に対するヒトに対する BPA-BNCT への新しい DDS としての可能性を示唆するとともに伴侶動物の悪性脳腫瘍に対する BNCT における適用も期待できる。

1. の項で紹介したように、伴侶動物の悪性腫瘍を対象に、本プロジェクト研究の研究課題で展開されている、伴侶動物に対する BNCT の創薬研究、新規 DDS 研究を臨床研究として評価し、その結果をヒトへの臨床研究開始のための知見として応用することは、動物、ヒトの健康を一体として考える One Medicine の概念に合致する方向性である。今後も本プロジェクトで取り組まれてきた研究が進展していくことが期待される。

### 参考文献

- [1] S. Kusaka *et al.*, *Cells*, 13(19),1610 (2024)
- [2] S. Kusaka *et al.*, *Biology*, 11, 397. (2022)

## (PJ5) BNCT における正常組織研究

(京大複合研<sup>1</sup>、帯広畜産大獣医<sup>2</sup>、大阪医科薬科大<sup>3</sup>)  
○鈴木 実<sup>1</sup>、近藤夏子<sup>1</sup>、岩崎遼太<sup>2</sup>、有馬 純<sup>3</sup>

1. はじめに：ホウ素中性子捕捉療法 (Boron neutron capture therapy, 以下 BNCT) は、京都大学複合原子力科学研究所 (以下、複合研) の研究用原子炉 (Kyoto University Research Reactor, 以下 KUR) の中性子を使用して、基礎研究、臨床研究が実施されてきた。複合研においては、KUR を使用した臨床研究だけではなく、2020 年 6 月に頭頸部癌に対して治療が承認された加速器を使用した BNCT の臨床研究 (治験) が実施された。放射線治療に分類される BNCT の臨床研究のプロトコルが、他の放射線治療と決定的に異なる点は、処方線量の対象組織に腫瘍ではなく正常組織を設定することである。

BNCT 以外の放射線治療においては、処方線量はその「処方」の意味にあるように、腫瘍へ投与する放射線の線量を指す。通常は、60–80 Gy を腫瘍の治癒を目的として処方線量とする。一方 BNCT においては、処方線量は腫瘍に対する線量ではない。BNCT の線量の大部分を占める線量は、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  で表されるホウ素中性子捕獲反応からの $\alpha$ 粒子、反跳リチウム原子核からなる細胞 1 つ以下の距離を動いて停止する 2 つの重粒子線により付与される。現在、BNCT 治療時の腫瘍内の  $^{10}\text{B}$  濃度を実測する手法は確立していない。そのため、照射中の  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  の線量を計算することはできず、BNCT において処方線量を腫瘍線量とすることはできない。これまで実施されてきた KUR を使用した BNCT の臨床研究、現在、医療機関で実施されている加速器 BNCT においても処方線量の対象は正常組織への線量である。

BNCT の臨床現場で患者から採取できる唯一の正常組織は血液である。正常組織に対する  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  の X 線等価線量 (Gy-eq) は、 $^{10}\text{B}$  濃度を測定可能な血液への物理線量 (Gy) に、動物実験により X 線照射、中性子単独照射、BNCT 照射線量を比較して求めた係数を乗じて求めている。詳細な解説は省略するが、上記の係数は、使用するホウ素薬剤と対象とする正常組織の組み合わせで、それぞれ異なった値をとる。この係数はホウ素薬剤 (Boron Compound) が、複数の正常組織分画 (血管、実質細胞、間質組織など) からなる正常組織のどの分画に多く存在するのか、血管に着目した場合、血管内なのか、血管外なのか、細胞 1 つに着目すると細胞内なのか細胞外なのかなど、複数の要素から大きく値が異なる。この係数は、BNCT の線量評価では、Compound Biological Effective (CBE) factor と呼ばれる値である。

これまで動物実験で明らかにされている CBE factor は、薬事承認され加速器 BNCT で使用されているホウ素薬剤である Boronophenylalanine (BPA) と以前の臨床研究で使用された Borocaptate sodium (BSH) の値のみであり、皮膚、脳、口腔粘膜、肺、肝

臓などが動物実験でその値が報告されている。

現在、医療機関で頭頸部癌にのみ診療として加速器 BNCT が実施されている。他の悪性腫瘍に対して BNCT の適応を拡大するためには、その悪性腫瘍の治療時の照射範囲に含まれる正常組織の BNCT 影響を前臨床試験で明らかにされていけば、プロトコル作成の重要な知見となる。また、学術的視点からは、BNCT における  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  による線量が細胞 1 個以下の径の範囲にしか及ばないことから、正常細胞分画選択的にホウ素化合物を集積させることが可能となれば、正常組織における放射線障害発症の Key となる正常組織分画が明らかになる可能性があり、放射線生物学の研究ツールとして  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  照射が利用できる可能性がある。

## 2. 研究成果の紹介

### 2-1. 骨組織への BNCT 影響の検討

本研究は岩崎遼太先生の研究グループにより実施された研究成果であり、以下の論文として公表されている [1]。

・論文名

The effects of BPA-BNCT on normal bone: determination of the CBE value in mice.

・掲載ジャーナル

Journal of Radiation Research, Volume 64, Issue 5, September 2023, Pages 795–803

・著者

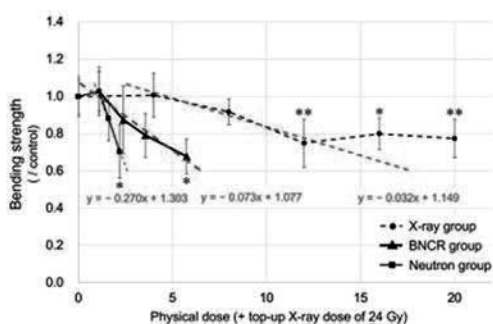
Ryota Iwasaki, Ryutaro Yoshikawa, Ryo Umeno<sup>1</sup>, Azusa Seki, Takehisa Matsukawa, Satoshi Takeno, Kazuhito Yokoyama, Takashi Mori, Minoru Suzuki and Koji Ono,

この研究は、骨に対する BPA の CBE 値をマウスを用いた動物実験で明らかにする目的で実施された。この研究は今後実施が計画されている悪性骨軟部腫瘍への加速器 BNCT の臨床研究プロトコル作成のための重要な成果となる。

以下の Fig.6 の図は、オープンアクセスである上記論文から引用した。

<https://academic.oup.com/jrr/article/64/5/795/7233667>

(26 December 2024 にアクセス)



**Fig. 6. Changes in bone strength in the tibia. The horizontal axis represents the physical dose (Gy) excluding the top-up dose, and the vertical axis represents the maximum load at fracture (N) obtained by the three-point bending test, which is corrected by the value of the Control group. The X-ray, Neutron and BNCR groups are shown as dashed, thin solid and thick solid lines, respectively ( $n = 6$ ). The regression lines in each group are shown as dashed line with their regression equations. Statistical comparison was performed between the Control group and each irradiation group using one-way ANOVAs with *post hoc* Dunnett's multiple comparison tests (\* $P < 0.05$ , \*\* $P < 0.01$ ).**

この図から、BPA の骨に対する BPA の CBE 値は 2.27 と評価された。

## 2-2. 直腸癌骨盤内再発モデルマウスを使用した BNCT の研究

本研究は、大阪医科薬科大学の消化器外科の有馬純先生のグループによって実施され下記の論文として公表されている[2]。

・論文名

Anti-tumor effect of boron neutron capture therapy in pelvic human colorectal cancer in a mouse model

・掲載ジャーナル

Biomedicine & Pharmacotherapy, Volume 154, 2022, 113632

・著者

Jun Arima, Kohei Taniguchi, Hiroki Hamamoto, Masashi Yamamoto, Yosuke Inomata, Tsubasa Watanabe, Hideki Kashiwagi, Shinji Kawabata, Kazuhisa Uchiyama, Minoru Suzuki, Sang-Woong Lee

BNCT においては、ホウ素薬剤が正常組織、臓器を構成する正常細胞分画のどの分画に選択的に集積するかが、有害事象に大きな影響を与える。本研究では、骨盤内同所性に直腸がん細胞を移植した直腸がん骨盤内再発モデルマウスを利用し、BNCT による生存期間延長が得られることを明らかにした。

本研究では、再発腫瘍周辺の正常組織である膀胱、子宮、直腸、筋肉の BNCT 影響を病理組織学的に検

討されており、照射 3 週間後の検討で、中性子単独照射と BNCT 照射群の比較で、これら正常組織で大きな差異はなかったと報告している。6 か月後以上の晩期有害事象の検討は今後必要であるが、骨盤内の正常臓器への BNCT 影響を検討した重要な研究である。

## 3: 本プロジェクト研究の将来展望

2020 年 6 月に頭頸部癌に対する加速器 BNCT が承認され、医療機関における BNCT 実施症例数は、KUR を使用した BNCT の症例蓄積スピードの数倍で積みあがり、KUR で 13 年間の実施症例約 200 例を 3 年足らずで越えている。現時点では、他の部位への加速器 BNCT の適応拡大の臨床研究はそれほど進展していないが、いずれ実施されることが期待される。また、新規ホウ素薬剤の創薬研究も現在、KUR を用いて精力的に進められている。新規ホウ素薬剤、対象となる周囲正常組織の組み合わせごとに CBE 値を動物実験で求めることは、加速器 BNCT の臨床展開のスピードを考えると現実的ではない可能性がある。正常組織へのホウ素薬剤の微視的分布を動物実験で明らかにし、その段階で照射影響を推定する AI を用いたプログラミング研究も進められていくであろう。

承認された BPA を使用した BNCT においては、臨床症例の有害事象と治療計画装置で得られる物理線量、将来の開発が期待されているイメージング装置の開発による照射中のホウ素濃度の解析により、放射線生物学的知見を得る Human Radiobiology 研究が進んでいくことが期待される。

上述したが、特定の正常細胞分画を認識するプローブを有するホウ素化合物を使用した放射線生物学研究は、BNCT 研究の学術的価値をより高めるものと期待される。本プロジェクト研究が今後発展していく研究方向として、一つの柱になることのために、多くの若い研究者が BNCT 研究に関わって欲しい。

## 参考文献

- [1] R. Iwasaki *et al.*, Journal of Radiation Research, Vol. 64, No. 5, 795–803 (2023)
- [2] J. Arima *et al.*, Biomedicine & Pharmacotherapy, Volume 154, 113632 (2022)



## (T2) 中性子イメージングを用いた沸騰現象のダイナミクス計測

(京大複合研) ○伊藤大介

### 1. はじめに

沸騰二相流は、原子炉における炉心や蒸気発生器の伝熱特性を決定する上で重要な現象である。炉心設計や安全評価のためには、沸騰二相流の流れ場の遷移や相分布を明らかにすることが不可欠である。一般に、炉心のような複雑な形状を有する流路は、円管に単純化され、流れの計測やモデル化が行われてきている。しかしながら、このような単純化された系においても、沸騰二相流現象の本質を明らかにすることは難しく、様々な研究者が解明に向けて取り組んでいる。特に、過渡現象を評価するためには、流れの時空間特性を理解する必要がある。従来、沸騰二相流計測に関する実験的研究は数多く行われてきた。最も多く行われている測定として、配管壁面に取り付けた熱電対による温度計測がある。それにより、沸騰二相流の伝熱特性を調べる研究が多く行われてきているが、配管内の流動構造を把握することは困難である。また、圧力や差圧計測によって流れ方向の流動遷移が調べられているが、一次元的な評価に限られている。さらには、加熱部の間に透明配管を設けて非加熱部での観察を行い、詳細な流動パターンを定義されている。しかしながら、直接加熱部の流れ構造を調べることはできていない。これらのように、沸騰二相流の時空間分布の詳細な計測は、高温条件下であるため困難となっている。著者らは、そのような時空間構造の把握のために高速度中性子イメージングの改良を進めてきている。本報では、加熱円管内の沸騰二相流のダイナミクスを明らかにするため、高速度撮像システムを用いた中性子透過イメージングを適用し、沸騰流動場の時空間特性を測定した結果について報告を行う。

### 2. 実験装置および方法

沸騰二相流可視化実験はKUR B-4 実験室において実施した。装置の概略図を Fig.1 に示す。装置は試験部、ポンプ、プレヒータ、流量制御システム、気液分離タンク、リザーバタンクからなる。試験部はステンレス鋼製の円管流路であり、内径は 10mm、加熱部長さが 300mm である。試験部には 2 つの矩形銅電極を取り付け、直流電源装置からの電流によって配管のジュール加熱を行う。B-4 での中性子イメージング実験においては、ビームサイズの制限によって、加熱試験部全体を一度に可視化することは難しい。そのため、手動ステージに試験部を固定して、鉛直方向への移動を可能にした。Fig.1 に示すように試験部を 5 分割し、5 つの位置での測定を行った。

試験流体はイオン交換水であり、実験の前に十分な脱気処理を行った。試験部へ流入する水の流量は、タービン流量計と電磁制御バルブを用いた PID 制御によって実験中一定に保った。また、プレヒータに

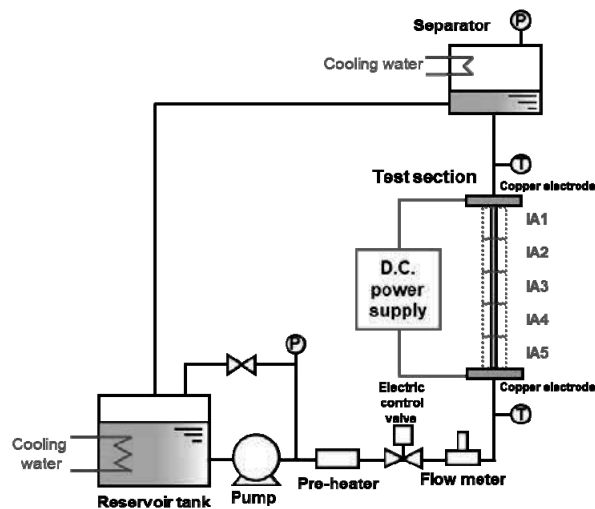


Fig. 1. Experimental apparatus.

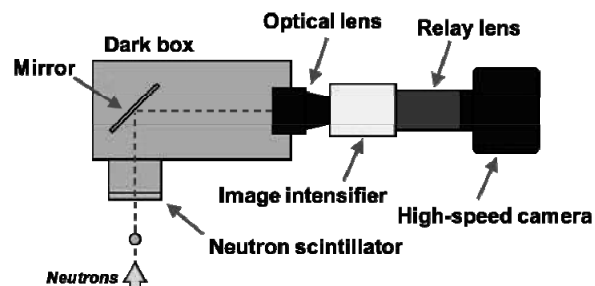


Fig. 2. High-speed neutron imaging system.

よって流入水の温度の制御を行った。試験部に流入した水は、直接通電加熱された管によって加熱され、沸騰二相流へと遷移する。その状態を中性子イメージングによって計測した。最終的に試験部を通過した水と蒸気は気液分離され、リザーバタンクへと戻る。実験においては、熱流束を  $290 \text{ kW/m}^2$ 、液温度を  $80^\circ\text{C}$  と一定とし、質量流束と測定位置を変化させて計測を行った。

B-4 ポートにおける中性子束は、 $8.5 \times 10^7 \text{ n/cm}^2\text{s}$ 、ビームサイズは、10 mm (幅) × 75 mm (高さ) である。本研究では、沸騰二相流のダイナミクスを可視化するため、高速度カメラと光イメージンテンシファイアを組み合わせた高速度中性子イメージングシステムを用いた。システムの概略図を Fig.2 に示す。試験部を透過した中性子は、コンバータ ( $^6\text{LiF/ZnS}$ , 200  $\mu\text{m}$  thickness, RC TRITEC) によって可視光へ変換される。その後、イメージンテンシファイアによって増幅され、高速度カメラで画像化される。本実験における撮影速度は 1,000 fps とし、その際のピクセル分解能は 16 pixel/mm である。

大電流を用いた金属管のジュール加熱においては、その近傍で電磁場の影響を大きく受ける。真空管を

有するイメージインテンシファイアは、その影響を大きく受け、その結果、画像のひずみや変形が発生する。そのため、各電流条件について、円形グリッドパターンを用いたキャリブレーションを行い、変形した画像の補正を行った。

管内のボイド率は、中性子透過画像から求めることができる。本研究では、 $\Sigma$ スケーリング法[1]を用い、取得した気液単相および二相混合相の画像輝度からボイド率を以下の式を用いて算出した。

$$\alpha = \ln \left( \frac{G_L - G_0}{G_{TP} - G_0} \right) / \ln \left( \frac{G_L - G_0}{G_G - G_0} \right) \quad (1)$$

$$G_0 = \frac{G_L - G_G \exp(-\Sigma_L \delta_L)}{1 - \exp(-\Sigma_L \delta_L)} \quad (2)$$

ここで、 $G$ ,  $\Sigma$ ,  $\delta$  はそれぞれ輝度値、巨視的断面積、厚さを示す。添え字の  $L$ ,  $G$ ,  $TP$  は、液相、気相、二相流を示す。

### 3. 実験結果

Fig.3 は、異なる質量流束における時間平均ボイド率の空間分布である。加熱試験部における 5 つの位置での計測結果を軸方向に並べた。結果より、流れ方向に流動が発達し、ボイド率分布が変化していることが分かる。低質量流束条件においては、単相流から沸騰開始点を経て、環状流への遷移が確認できる。また、質量流束を増加させることで、沸騰開始点位置が下流へ移動している。さらに、 $G = 400 \text{ kg/m}^2\text{s}$  の条件では、試験部内においてほぼ沸騰が起こっていないことが分かる。このように、中性子イメージングを用いることで、金属管内における沸騰二相流の流動様相の把握が可能である。

本実験においては、高速度イメージングシステムによって、1000fps での時間変化の測定を行った。沸騰二相流における時空間的な特性を調べるため、得られたボイド率時空間データから、断面平均ボイド率を算出し、時間方向および軸方向にプロットした結果を Fig.4 に示す。横軸は時間、縦軸はイメージング領域内における軸方向距離である。本結果は Fig.3(a)と同じ条件である。加熱部上流 (Fig.4(e)) では、ボイド率はほぼゼロであり、沸騰は起こっていない。その後、気泡の発生および蒸気泡の急激な成長が時空間分布より確認できる (Fig.4(d))。ここで、ボイド率の増加する点を分布より求めることで、沸騰開始点の推定が可能になる。Fig.4(a), (b)においては環状流に遷移しており、擾乱波の通過が縞模様として示されている。また、この縞の傾きを求めることで波の速度の算出が可能である。このように中性子イメージングによって得られた時空間分布を解析することで、沸騰二相流の流動パターンのダイナミクスの解明の可能性が示された。しかしながら、ノイズの影響によって、現状、定量的な評価は困難であり、イメージング手法の高度化を進めていく必要がある。

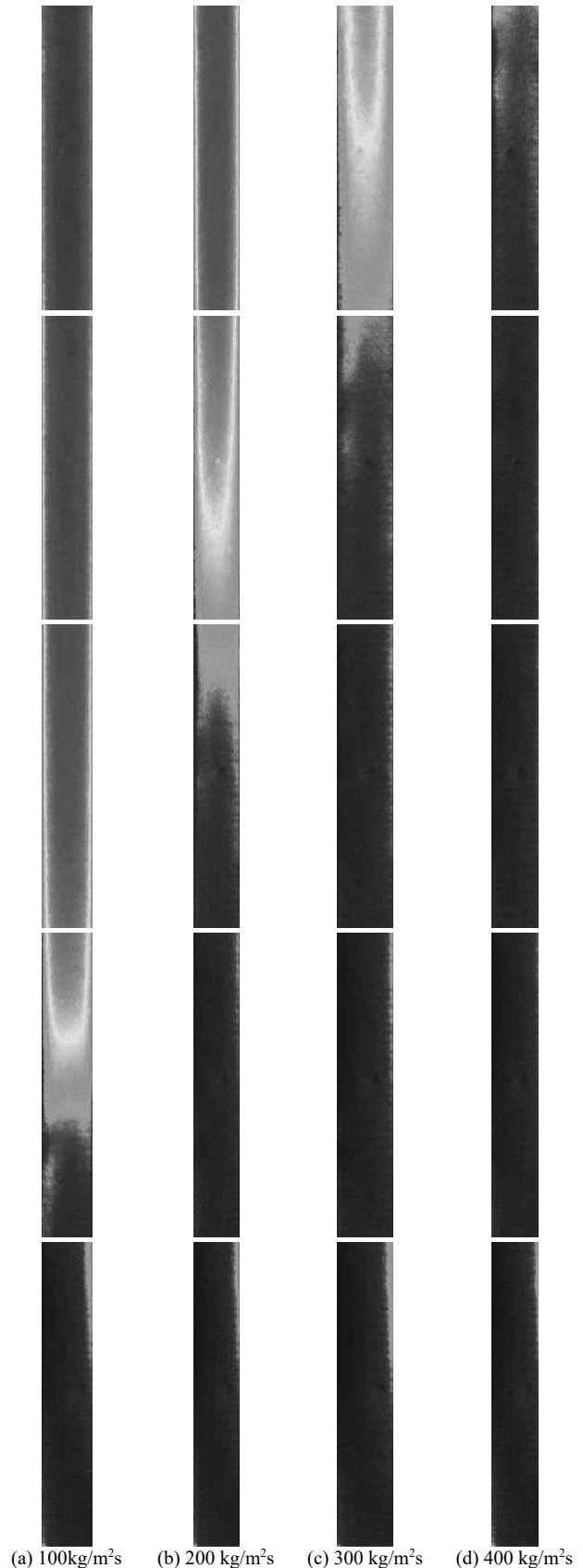


Fig. 3. Time-averaged void fraction distribution of the whole test section at different mass fluxes.

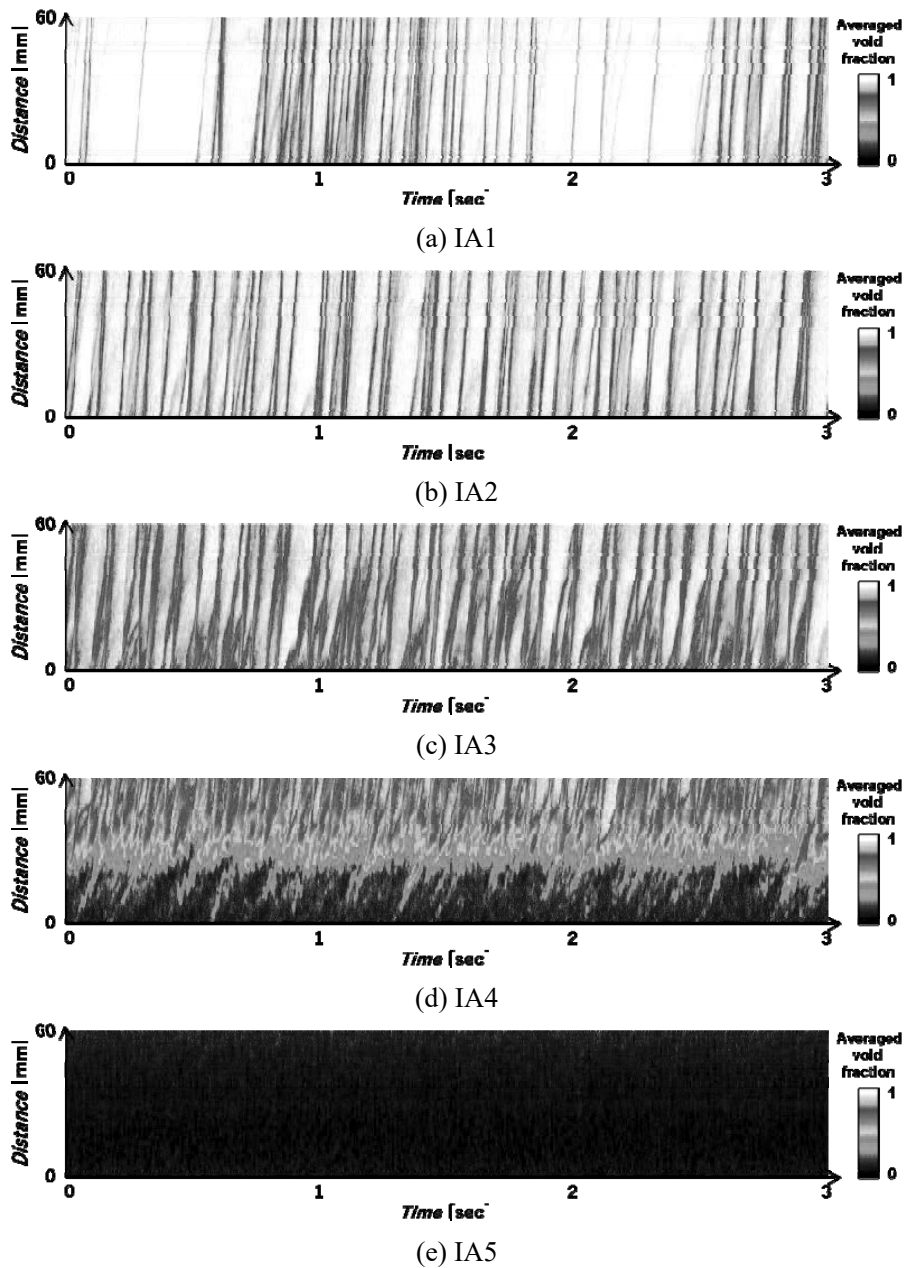


Fig. 4. Spatio-temporal distributions of the cross-sectional averaged void fraction at different axial locations ( $G=100\text{kg/m}^2\text{s}$ ).

#### 4. まとめ

管内沸騰二相流におけるボイド率分布の時空間特性を明らかにするために、高速度イメージングシステムを用いた中性子イメージングを適用し、時空間分布や流動パターンの定性的な評価が可能になった。現状、大電流通電加熱による管内沸騰二相流の可視化実験は、KUR B-4 のみで可能である。そのため、KUR の停止までに多くのデータの蓄積を行う必要がある。また、加熱管内沸騰現象の中性子イメージ

ングは将来的にも必要な研究であると考えられるため、新試験研究炉における中性子イメージング装置においても同様の実験が実施できるよう検討を進めていく。

#### 参考文献

- [1] K. Mishima, T. Hibiki, Nucl. Sci. Eng., **124**, (1996) 327-338.

## (T3) KUCA の低濃縮化と今後の展望について

(京大複合研) ○三澤 毅、宇根崎博信、北村康則、高橋佳之

1. はじめに：京都大学臨界実験装置(KUCA)は1974年より運転を開始した研究用原子炉(研究炉)として分類される最大出力100Wの臨界実験装置である。KUCAには固体減速材を用いた2つの固体減速炉心(A架台とB架台)、および軽水減速材を用いた軽水減速炉心(C架台)の計3つの炉心が1つの建屋内にあるという世界でも例のない複数架台方式を採用した装置で、運転開始以来、原子炉物理、新型炉の開発、放射線検出器開発などの基礎研究に用いられるとともに、全国の原子力専攻を有する大学の学部学生または大学院生、さらには国外の学生向けの学生実験を実施し原子力人材育成に大きく貢献してきた。

KUCAは初臨界以来、固体減速炉心、軽水減速炉心ともに高濃縮ウラン(HEU)を用いて運転を行ってきたが、世界的に進められている研究炉の燃料をHEU燃料から濃縮度が20%未満の低濃縮ウラン(LEU)燃料に変更する低濃縮化の流れに沿って10年以上前からLEUを使用するための準備を行ってきた。

2. 原子力規制委員会への申請：KUCAでLEU燃料を使用するための原子炉設置変更申請書は2019年に原子力規制委員会に申請した。2014年に申請を行った新規制基準対応のための原子炉設置変更は約1年8か月の審査で承認が得られたので、今回の燃料の変更のみの申請はそれより短い期間で承認を得られるものと考えていたが、申請書に記載する炉心(代表炉心)に対する要求等が非常に厳しくなるなど審査基準が前回とは大幅に変更されていたため承認まで約3年も掛かってしまった。その後約1年後に設工認申請が承認されて燃料の製造が開始され、現在使用前事業者検査等を進めている。

3. 固体減速炉心(A架台、B架台)：従来のHEU燃料は大きさが2インチ角で厚さ約1.6mmのウラン・アルミニウム合金(U-Al)の燃料板(燃料クーポンと呼ぶ)の表面を塗装したものであったが、LEU燃料とする場合にはU-Alのままでは $^{235}\text{U}$ の原子個数密度が低く、従来のKUCAの小型炉心では臨界とならないため別の種類の燃料が必要となった。

そこで近年研究炉で広く用いられてきたウランシリサイド( $\text{U}_3\text{Si}_2$ )燃料に代わる新しい燃料として開発が進められているウラン・モリブデン合金<sup>[1]</sup>(U-Mo)を用いた燃料を使用することとなった。U-Moはウラン金属にモリブデン金属を少量混ぜた合金で(KUCAで使用する燃料のモリブデン含有量は7%、U-7Moと呼ぶ)、単体での密度は約 $17.7\text{g}/\text{cm}^3$ と $\text{U}_3\text{Si}_2$ 燃料と比べてより高密度で、さらに $\text{U}_3\text{Si}_2$ と異なり再処理が比較的容易であるという特徴を持ち、これまでに照射試験等の実証試験によりその性能が

確認され、ようやく実際の原子炉で使用できる段階まで開発が進んでいた。KUCAはU-Mo燃料を用いて臨界となる世界初の原子炉となる予定であるためKUCAでの実験データは今後のU-Mo燃料開発のためにも重要となる。

KUCAでは濃縮度20%未満のU-7Mo粉末とアルミニウム(Al)粉末を混ぜたアルミニウム分散型燃料を使用することになったが、そのままの形状ではU-Al合金のような強度がなく使用できないため、Fig.1のようにU-7MoとAlの粉末を混合させて圧縮して固めたCore部分をAl製のボックスに入れて表面にAlカバーを載せて周囲をレーザー溶接により固定した形状の燃料クーポンとすることとした。そのため厚さは従来のHEU燃料と比べて約1.4倍となった。このような特殊な形状の燃料の製造は発注した燃料工場でも全く初めての経験であったため、この燃料クーポンを開発するために数年以上の期間を要した(Fig.2)。

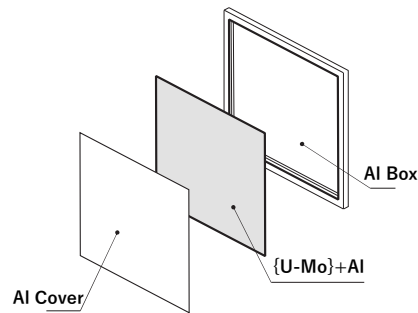


Fig. 1. LEU coupon type fuel used for solid moderated cores

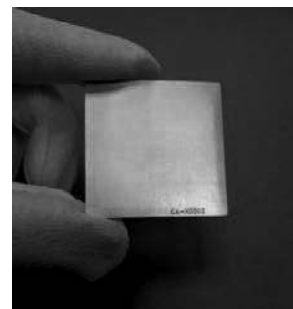


Fig. 2. LEU coupon type fuel

この燃料クーポンを従来通り減速材であるポリエチレン板(PE)等と組み合わせて燃料さや管に入れて燃料体を構成することになる。Fig.3にLU+2/8"PEの燃料セルからなる燃料体を用いた臨界炉心配置を示す。この燃料領域の高さは約40cmであり、この燃料領域高さの炉心では最も燃料体数が少ない配置のものである。

モンテカルロ計算コード MCNP<sup>[2]</sup>と拡散計算による SRAC-CITATION<sup>[3]</sup>の実効増倍率の計算結果を Table 1 に示す (炉心名称の L2 はセル形状、40 は燃料部高さが 40cm であることを示す)。HEU に比べて U 密度が約 10 倍高くなること、燃料クーポン形状が従来と異なり位置関係が複雑になること (Core 部が PE より小さく、Core 部の周囲に AI がある) などのため SRAC での計算精度は HEU の場合と比べて低くなることも予想されたが、この炉心についての MCNP の結果との差異は約 0.3% であり、これまで通り実験解析で決定論的手法を用いることは可能であると考えられる。

LEU 1 枚あたりの 1/8 インチ厚さの PE の枚数を变化させたときの中性子スペクトルを Fig. 4 に示す (E は HEU、L は LEU)。HEU から LEU へと変更されるため当初は中性子スペクトルがかなり硬くなることを予想していたが、燃料クーポンの形状が Core 部が AI ボックスに入ったものとなったため中性子スペクトルは予想ほどは硬くならないが、HEU と同様に幅広い中性子スペクトルの炉心を構成して実験ができると考えられる。

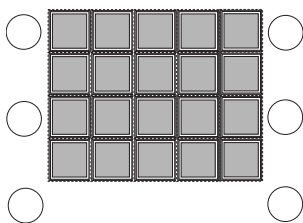


Fig. 3. Vertical core configuration of L2-40 core

Table 1. Calculated keff values of L2-40 core

| Code          | k <sub>eff</sub> |
|---------------|------------------|
| MCNP          | 0.9996 ± 0.0001  |
| SRAC-CITATION | 1.0027           |

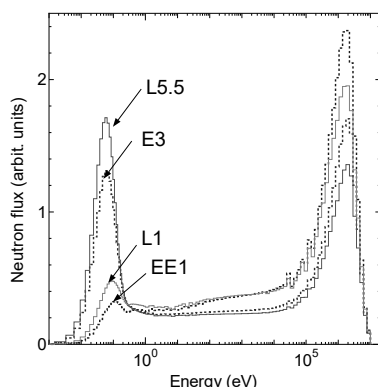


Fig. 4. Neutron spectrum of HEU and LEU solid-moderated cores

なお今回承認された設置変更申請ではトリウム燃

料を用いることができない、黒鉛減速材を使用することができない、炉心で使用する燃料体の燃料セルパターンは 1 種類のみでゾーン型炉心を組むことができない等の様々な制限が入ってしまったため、ある程度実験経験を積んだ後、再度設置変更申請を行ってこれらの制限を外してより幅広い実験を行うことができるようにしたいと考えている。

**4. 軽水減速炉心 (C 架台) :** 軽水減速炉心の燃料は従来の HEU 平板燃料と外寸、内部の燃料芯材部もほとんど同じ形状で、燃料芯材には KUR などの研究炉で広く使用実績がある  $U_3Si_2$ ・アルミニウム分散型燃料を用いるが、U 密度は KUR で使用しているより 5 割ほど高く JAEA の JRR-3 等で使用している燃料と同じである。燃料フレーム (Fig.5) は HEU 燃料で使用していたものを用い、燃料板ピッチが異なる C30、C35、C45、C60 炉心を構成することができる (数字は mm 単位の燃料板ピッチを 10 倍した値、C60 は C30 フレームを使用する)。

各炉心の中性子スペクトルを Fig.6 に示す。HEU から LEU に変更したことに伴い  $^{238}U$  量の増加などのため同じ燃料フレームを用いた場合には中性子スペクトルはかなり硬くなり、この 4 種類の燃料フレームを用いた炉心で従来の HEU 炉心と比べてより幅広い範囲の中性子スペクトルの炉心で実験を行うことが可能となる。設置変更申請書に記載された構成することができる炉心は以下の通りである。

C30、C35、C45、C60 の単一炉心 (4 列、5 列)

C45 (4 列、5 列)、C60 (4 列) の 2 分割炉心

炉心形状はできるだけ矩形となるようにする、2 分割炉心は分割面に対して対称にする、反射体に重水は使用できないなどの制限があるが、従来の HEU 単一炉心で行っていたような実験は問題なく実施できると考えている。2 分割炉心では燃料板枚数の制約から 2 種類の燃料フレームの利用に限っているが、1 次モード固有値間隔は約 1%  $\Delta k/k$  まで小さくすることができ、かなり結合の弱い炉心での実験を行うことも可能である

なお、固体減速炉心の場合と同様に今回承認された設置変更申請では重水が利用できないなどのこれまでは無かった制限が入ってしまったため、再度設置変更申請を行ってこれらの制限を外す必要があると考えている。

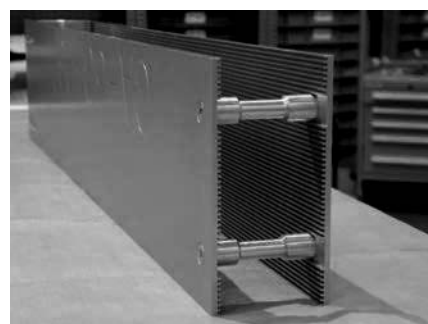


Fig. 5. Fuel frame for light water moderated core

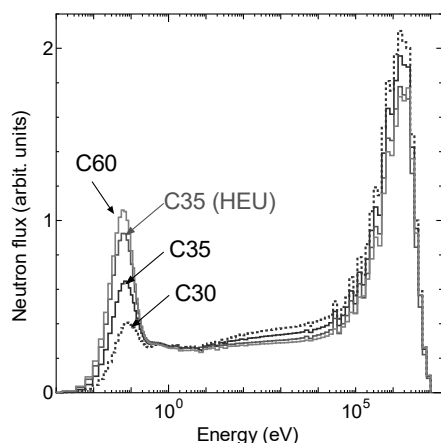


Fig. 6. Neutron spectrum of HEU and LEU light water moderated cores

5. 今後の予定：軽水減速炉心用の燃料板は2024年4月に燃料工場での使用前事業者検査が終了し、最少燃料枚数の炉心を構成することができるだけの一部の燃料板は2024年10月に燃料工場からKUCAに輸送されて現在は炉心の性能確認を行うための設工認の手続き準備を行っている。また固体減速炉心用の同じく最少燃料枚数の炉心を構成することができるだけの燃料クーポンについては2024年10月に燃料工場での使用前事業者検査が終了し2025年中にKUCAに輸送されて実験に供される予定である。燃料クーポンの製造にはまだ数年かかるため、最終的に全ての燃料クーポンがKUCAに納入される時期については未定であるが、使用できる燃料板枚数の範囲で共同利用実験、学生実験を再開する予定である。

KUCAで使用する燃料は濃縮度20%未満のLEUであり、これまで臨界実験装置ではあまり使用されていないため炉物理実験データが少ない燃料である。一方、近年商業用の小型次世代原子炉の燃料として

濃縮度が5~20%の新しい燃料を使用することが検討されている。これは高純度低濃縮ウラン (HALEU) と呼ばれており、この燃料開発のためにもKUCAでの様々な中性子スペクトルの炉心での基礎的な炉物理実験データは有用なものとなると考えられる。

また上述の通りKUCAはU-Moを用いた世界初の原子炉として運転を行うことが予定されており、このU-Mo炉心の炉物理実験データは今後の研究炉の次世代の燃料開発にも役立つと言える。

これまでKUCAは原子炉物理等の基礎研究に用いられるとともに、学生実験を通じて国内外の原子力人材育成に大きく貢献しており、燃料がHEUからLEUに変更になってもこれらの利用については従来通り進めて行くことになるが、2026年でKURが停止されて重要な中性子源施設が使えなくなってしまう状況の中でKUCAは低出力で中性子束はそれほど高くないものの中性子源としての活用も検討に値するのではないかと考える。例えば炉心内に中性子照射場を設けて圧気輸送管でサンプルを入れて照射を行うような使い方もできるかもしれない。

今後、このよう新しいな利用方法も含めて将来的なKUCAの活用を所内外の研究者の方々と議論してみたい。

#### 参考文献

- [1] "U-Mo Fuels Handbook", ANL-09/31, Argonne National Laboratory (2006).
- [2] D. B. Pelowitz *et al.*, "MCNP6 user's manual", LA-CP-13-00634, Los Alamos National Laboratory (2013).
- [3] K. Okumura *et al.*, "SRAC2006", JAEA-Data/Code 2007-004, Japan Atomic Energy Agency (2007).

## (S1) 放射線施設とエアロゾル

(京大複合研) 沖 雄一

1. はじめに： 私は、大学院では放射化学を専攻しホットアトム化学(核反応や壊変をした直後の高エネルギーの反跳原子がエネルギーを失う過程でどのような化学形になっていくのかを研究する化学)を研究していたが、その後、高エネルギー物理学研究所(KEK。現高エネルギー加速器研究機構)に就職した。そこでは放射化学の経験を生かして放射線安全に関する問題解決に取り組んだ。初めて経験した高エネルギー加速器内の環境は、正に気相のホットアトム化学の場であること、さらに空气中に生成する放射性核種はエアロゾル粒子の形態とも成り得ることを知った。この特別講演の機会に、現在の業務にも係る放射性エアロゾルの研究についてお話しする。

2. 高線量場の特徴： 放射線施設には $\gamma$ 線照射施設の照射室や、加速器室のように使用中は入室不能な高線量区域が存在する。これらの場所では、空气中に $\text{NO}_x$ や $\text{HNO}_3$ 、 $\text{O}_3$ などの酸化性ガスや高濃度のエアロゾル(放射線誘起エアロゾル)が発生する。さらに加速器室内の空气中には放射性核種が生成するので、これらは放射性ガスとなるか、上記の放射線誘起エアロゾル粒子に取り込まれて、放射性エアロゾル粒子を形成する。

私はこの放射性エアロゾル生成に興味を持ち、その性状(特にその粒径)の測定を行ってきた。特に粒径測定に着目してきた理由は、放射性エアロゾルの吸入による内部被ばく線量が粒径の関数であることと、粒径は施設の排気浄化設備の設計や運用方法に影響を与えるからである。さらに言えば、放射性核種の大気中への漏洩を伴う事故では、周囲に存在するエアロゾル粒子が核種の担体になって輸送に寄与する可能性があるため重要である。

3. 加速器室内のエアロゾル： 本所のFFAG加速器および電子ライナックにおいて、照射チェンバーを用いた空気照射の実験を行い、生成する放射性エアロゾル粒子の粒径測定を行った。FFAGでは地下の

加速器室外に設置した測定場所から、加速器のビームラインに設置した照射チェンバーに、エアロゾルを除去した空気を供給し、放射線誘起エアロゾルを発生させた後、照射された空気を測定場所に導き、発生したエアロゾル粒子の粒径測定等を行った(図1)。粒径測定には、nmから100nm程度までの粒径の微小粒子に適用できる拡散バッテリー法[1]を用いた。放射能測定にはイメージングプレートとGe検出器を用いた。

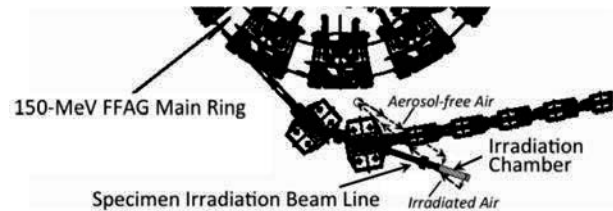


図1 FFAG加速器における空気照射実験

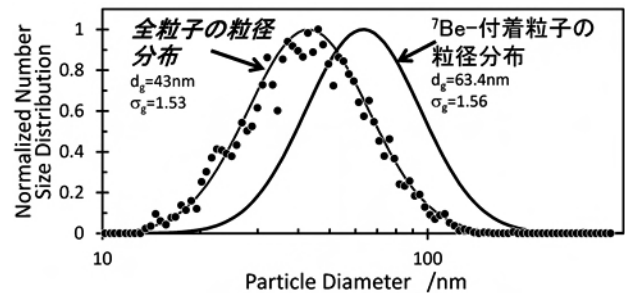


図2 陽子加速器内のエアロゾル粒子の粒径分布の例(文献[2]より作図)

加速器運転時に加速器室内で発生する全粒子の粒径は30~60nmとなったが、放射性核種を含む粒子の粒径は全粒子の粒径より大きくなった(図2)。これは、多くの放射性エアロゾル粒子は放射線場で生成した非放射性のエアロゾル粒子の表面に放射性核種が付着して生成することを示唆している。また数十nmという粒径は、粒径未知の際に仮定される5 $\mu\text{m}$ とはかなり異なっており、線量係数が数倍程度大きくなる可能性がある。

4. 加熱によるエアロゾル発生： 高エネルギー加速器施設においては、核破砕反応による放射化が起きる。その生成核種はSP(Spallation Product)というFPと似た名称で言われるように、原子核が破砕して多

種類の核種が生成する特徴がある。言い換えれば放射化物の中には放射化物の母材とは異なる元素の放射性核種が多数存在しているといえる。

このような放射化金属を加熱していくとどうなるであろうか？ 極端な例は、2013年に東海村の J-PARC で起きた金ターゲットの熔融事故であり、多種類の放射性核種が施設外に漏洩した。そこまで至らないまでも、日常的な業務においても金属放射化物を加熱する加工を行うことがあり、作業中に発生するエアロゾル(ヒューム)を作業者が吸入することが懸念される。大分以前の研究となるが私は放射化した金属を溶断した時に発生する放射性核種の飛散率と発生するエアロゾル粒子の粒径を測定した[3]。

この実験では、高エネルギー陽子加速器で放射化させた金属板(SUS304 など)を溶断(プラズマ切断など)し、発生する金属エアロゾル(ヒューム)を捕集して、飛散率とエアロゾル粒子の粒径分布を、母材の元素と生成していた複数の放射性核種の双方について測定した。溶断作業とサンプリングは専用のチェンバーで行い、粒径分析には低圧型カスケードインパクタを用いた。飛散率の結果の一部を図3に示す。

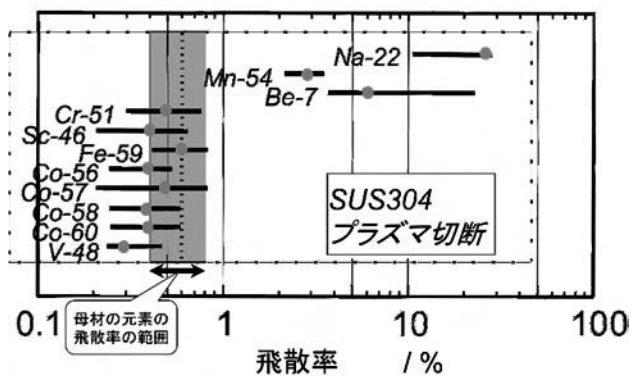


図3 ステンレス鋼のプラズマ切断時の飛散率([3]より)

飛散率の測定では<sup>22</sup>Naなど元素としての沸点が低い核種が母材の飛散率よりも顕著に高い傾向が観測された。換言すると、これらの核種はエアロゾル粒子に濃縮する。また、鉄やSUS中の<sup>46</sup>Scは、FeとScは融点、沸点などがほぼ同じであるにも拘わらず、母材と飛散挙動(粒径など)が大きく異なった。

こうした作業時の被ばく線量は一般に、外部被ばくに比較して吸入摂取による内部被ばくは無視しうる程小さいと言える。核種の飛散に関する知見は廃炉作業等においても有用と考えられる。

5. 炉施設におけるエアロゾル発生： 加速器施設におけるエアロゾルについて述べてきたが、炉施設はどうであろうか？ 原子炉には空気が高線量に曝される場所がない。しかしながら圧気輸送管は空気ではないが、圧送に用いるCO<sub>2</sub>が高線量に曝される環境であり、加速器内と類似している。そこで照射カプセルの返送時に放出されるCO<sub>2</sub>を捕集し、放出核種について粒径別に解析した[4]。濃度限度に対して問題ないレベルではあるが、FP核種を含む多種類の放射性核種(ガスおよびエアロゾル粒子)が放出されることがわかった。FP核種の由来は圧気輸送管の材質のAl中に含まれるUによるものと考えられる。

6. まとめ： 本稿では私の放射線安全に係る研究の一端をお話した。エアロゾルの生成機構は物理・化学的に興味があるテーマである。その解明は、何らかの事故時における環境中への放射性核種漏洩の挙動解明に資すると考えられる。今後、私の成しえなかったことを解明する研究者が現れることを切に期待している。

#### 参考文献

- [1] Y.S.Cheng and H.C.Yeh, "Theory of a screen-type diffusion battery", J. Aerosol Sci. 11(1980) 313-320.
- [2] Y.Oki et al., "Size measurement of radioactive aerosol particles in intense radiation fields using wire screens and imaging plates", J. Radiat. Prot. Res. 41(2016) 216-221.
- [3] Y.Oki et al., "Particle-size and fuming rate of radioactive aerosols generated during the heat cutting of activated metals", Appl. Radiat. Isot. 45(1994) 553-562.
- [4] Y.Oki et al., "Radioactive aerosol particles released from a pneumatic irradiation system in a nuclear research reactor", Proc. Radiochim. Acta 1(2011) 245-249.



## あ と が き

京都大学複合原子力科学研究所では、毎年 1 月下旬頃から 2 月上旬頃に、学術講演会を開催しています。主に複合原子力科学研究所における共同利用・共同研究成果の一部を所員、所外の共同利用研究者をはじめ、一般の方々にお知らせすることが開催の趣旨です。

第 59 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会は、令和 7 年 1 月 30 日と 1 月 31 日の 2 日間にわたって開催いたします。依頼講演はハイブリッド開催、一般講演はポスター発表による対面形式とします。その内容は、以下の通りです。

|    |              |      |
|----|--------------|------|
| 1) | 新人講演         | 1 件  |
| 2) | プロジェクト研究成果報告 | 5 件  |
| 3) | トピック講演       | 3 件  |
| 4) | 特別講演         | 1 件  |
| 5) | 一般講演         | 42 件 |

この報文集が、複合原子力科学研究所における研究活動の記録とともに、広報の一助となれば幸いです。

令和 7 年 1 月  
学術公開委員会  
委員長 田中浩基

KURNS REPORT OF  
INSTITUTE FOR INTEGRATED  
RADIATION AND NUCLEAR SCIENCE,  
KYOTO UNIVERSITY

発行所 京都大学複合原子力科学研究所

発行日 令和 7 年 1 月

住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西2 丁目

TEL (072) 451- 2300