ISSN 2434-1088
KURNS-EKR-17
PRINT ISSN **2434-6209**
PRINT KURNS-KR-**5**

京都大学複合原子力科学研究所
「第 57 回学術講演会報文集」

Proceedings of the 57th KURNS Scientific Meeting

開催日：令和 5 年 2 月 14 日、15 日
(February 14 & 15, 2023)

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

第 57 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 5 年 2 月 14 日(火)10:00 ～ 17:20
2 月 15 日(水)10:00 ～ 15:10
依頼講演 : 京都大学複合原子力科学研究所　大会議室
Zoom ウェビナー　ハイブリッド開催
一般講演 : Zoom ブレイクアウトルームによるオンライン開催
2 月 14 日(火)15：50～17：20
セッション A (15:50～16:20)
セッション B (16:20～16:50)
セッション C (16:50～17:20)

2 月 14日 (火) 10:00～17:20

開会の挨拶　　(10:00～10:10)　所長　中島　健

新人講演

N1) 10:10～10:50　　座長　田中　浩基

高放射線 CIGS 太陽電池技術を用いた自立駆動形放射線検出素子の１F 適応研究 ‥‥‥‥ 1

原子力基礎工学研究部門 (核変換システム工学研究分野)
奥野　泰希

新人講演

N2) 10:50～11:30　　座長　高宮 幸一

レーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成実験 ‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥‥ 4

粒子線基礎物性研究部門 (同位体利用化学研究分野)
稲垣 誠

トピック講演

T1) 11:30～12:10　　座長　髙田　卓志

世界初の臨床用 BNCT 治療計画システムの検証と
独立モンテカルロ線量計算システムとの比較 ‥‥‥‥‥‥‥‥ 6

粒子線腫瘍学研究センター (粒子線腫瘍学研究分野)
呼　尚徳

――――――――――― (休　　憩)　12:10～13:10 ―――――――――――

新人講演

N3) 13:10～13:50　　座長　日野 正裕

PHITS シミュレーションを用いた加速器熱中性子源開発と新型炉冷中性子源検討 7
粒子線基礎物性研究部門（中性子応用光学研究分野）
中村 吏一朗

新人講演

N4) 13:50～14:30　　座長　鈴木　実

伴侶動物への BNCT 適応に向けた生体の放射化による周囲環境への影響についての検討 10
粒子線腫瘍学研究センター（粒子線腫瘍学研究分野）
和田　悠佑

特別講演

S1) 14:30～15:30　　座長　鈴木　実

ホウ素中性子捕捉療法のための生物影響研究..... 12
原子力基礎工学研究部門（放射線管理学研究分野）
木梨　友子

―――――――― （休　　憩） 15:30～15:50 ――――――――

一般講演

2 月 14 日 15:50～17:20

セッション A (15:50～16:20)

No. 1) 新規抽出剤を用いた硝酸溶液からのユーロピウムとテルビウムの溶媒抽出特性 ····· 15
○池野将矢、加藤千図、福谷哲[1]、松村達郎[2]、藤井俊行
（阪大院工、京大複合研[1]、日本原子力研究開発機構[2]）
No. 2) 岩石標準試料中のガリウム濃度 ····· 16
○加藤千図、福谷哲[1]、藤井俊行（阪大院工、京大複合研[1]）
No. 3) X 線小角散乱法を用いた潤滑油添加剤分子の構造解析 ····· 17
○平山朋子，南保壮平，山下直輝，高嶋頼由[1]，佐藤信浩[2]，杉山正明[2]
（京大院工，出光興産[1]，京大複合研[2]）
No. 4) ガンマビーム誘起陽電子測定によるバルク金属中での照射欠陥と水素相互作用に関する研究 ····· 18
○荒木翔太[1]、平山翔太[1]、徐虬[2]、平義隆[3]、堀史説[1]
(阪公大院工[1]、京大複合研[2]、分子研[3])
No. 5) 超薄多層膜と中性子集光ミラー開発の現状 ····· 19
○日野正裕、吉永尚生、中村吏一朗、小田達郎[1]、細畠拓也[2]、竹田真宏[2]、山形豊[2]、

遠藤仁[3]　（京大、東大[1]、理研[2]、高エネ機構[3]）
No.6) BeO 光刺激ルミネセンス線量計を用いた BNCT 照射場中のγ線線量評価 ····· 20
○松林錦、高田卓志[1]、呼尚徳[1]、笹木彬礼、武川哲也[2]、菅啓大[2]、櫻井良憲[1]、田中浩基[1]
（京大院工、京大複合研[1]、住友重機械[2]）
No.7) 板状燃料要素内気液二相流ボイド率の予測研究 ····· 21
○沈秀中、山本俊弘、中島健、日引俊詞[1]　（京大複合研、香港城市大学[1]）
No.8) 原子炉、線形加速器、および放射光を用いた多元素メスバウアー分光の現状と
産業利用に向けた取組　····· 22
○北尾真司、小林康浩、黒葛真行、瀬戸誠、田嶋寛介[1]、山下拓之[1]、太田英寿[1]、
窪田卓見[2]、増田亮[3]　（京大複合研、京大理[1]、京大環境安全[2]、弘前大理工[3]）

セッションB（16:20～16:50）

No.1) オルトバナジン酸ナトリウム溶液中のバナジウムイオンの酸化還元挙動 ····· 23
○横山裕己、上原章寛[1] 、 和田直也、杉山廉樹、元谷拓真[2] 、 加藤千図、 藤井俊行
（阪大院工、量研[1] 、阪大工[2] ）
No.2) 新規抽出剤を用いた硝酸溶液からのアンチモンの溶媒抽出特性 ····· 24
○齋賀忠也、加藤千図、福谷哲[1]、松村達郎[2]、藤井俊行
（阪大院工、京大複合研[1]、日本原子力研究開発機構[2]）
No.3) 中性子位相イメージング法による金属積層造形物中の欠陥観察 ····· 25
関義親 、日野正裕 [1]、中村吏一郎[1]、 篠原武尚[2]、平山朋子[3]
（東北大 多元研 、京大複合研[1]、原子力 機構 J-PARC[2]、京大 院工[3]）
No.4) 腫瘍内環境応答因子をターゲットとした放射線増感効果の解析 ····· 26
○真田悠生、髙田卓志、田中浩基、櫻井良憲、渡邉翼 （京大複合研）
No.5) BNCT のためのイメージングプレートを用いた熱中性子束評価····· 27
○野尻摩依[1]、高田卓志[2]、櫻井良憲[2]、鈴木実[2]、田中浩基[2]
（京大院工[1]、京大複合研[2]）
No.6) 超高線量場における光ファイバーを介した線量モニタの開発 ····· 28
○黒澤俊介[1,2,3]、田中浩基[4]、高田卓志[4]、松倉大佑[2,5]、藤原千隼[2,5]、石澤倫[2]、山路晃広[1,2]、
小玉翔平[6]
（東北大 NICHe[1]、東北大金研[2]、阪大レーザー研[3]、京大複合研[4]、東北大工[5]、埼玉大理工[6]）
NO.7) ヒト水晶体内αA-クリスタリン中 Asp151 の迅速な異性化と、その影響 ····· 29
○菅河晴菜[1]、髙田匠 （京大複合研、京大院理[1]）
No.8) 中性子結晶解析による蛋白質水和構造の検討 ····· 30
○茶竹俊行、田中伊知朗[1]、日下勝弘[1]、角南智子[2]、藤原悟[2]
(京大複合研、茨城大[1]、量研機構[2])
No.9) 野生型大腸菌に対する放射線耐性進化大腸菌の遺伝子発現量の変化 ····· 31
○齊藤毅（京大複合研）

セッションC（16:50～17:20）

No.1）GSJ岩石標準試料中のガリウム同位体比 …… 32
○麻生陸也、加藤千図、福谷哲[1]、中田亮一[2]、永石一弥[3]、若木重行[2]、藤井俊行
（阪大院工、京大複合研[1]、JAMSTEC 高知[2]、マリン・ワーク・ジャパン[3]）
No.2）バナジウムの酸化還元反応に及ぼすマロン酸の影響 …… 33
○杉山廉樹、上原章寛[1]、和田直也、横山裕己、元谷拓真[2]、加藤千図、藤井俊行
（阪大院工、量研[1]、阪大工[2]）
No.3）化学交換法における同位体分別研究 …… 34
○硲隆太、義本孝明、Kumsut Pantiwa、Rittirong Anawat[4]、佐久間洋一[1]、藤井俊行[2]、福谷哲[3]、
芝原雄司[3]（大産大、東工大原子炉[1]、阪大工[2]、京大複合研[3]、阪大RCNP[4]）
No.4）Zr,Ce 酸化物固溶体の固相状態に基づく溶解挙動の解釈 …… 35
○佐藤侑太郎，小林大志，佐々木隆之，池田篤史[1]，松村大樹[1]，元川竜平[1]
（京大院工，JAEA[1]）
No.5）水素イオン照射と高温アニールで形成されるSi中のナノボイドの陽電子ビーム評価…… 36
○廣江真俊[1,2]、木野村淳[2]、宇田欽治[3]、鈴木耕拓[3]、堀利彦[4]、満汐孝治[4] 真鍋征也[4]、松本 哲郎[4]
（京大院工[1]、京大複合研[2]、若狭湾エネ研[3]、産総研[4]）
No.6）大気エアロゾル微小粒子の金属成分の粒径分布 …… 37
○伊藤憲男、溝畑朗(大阪公立大学)
No.7）ヒト水晶体内βB1-クリスタリン異常凝集体内部Asp異性化の増加 …… 38
○加賀澤悠太[1]、金仁求、髙田匠（京大複合研、京大院理[1]）
No.8）加速器BNCTにおける中性子強度変調照射法による線量分布形成の研究 …… 39
○笹木彬礼、呼尚徳[1,2]、高田卓志[1]、松林錦、櫻井良憲[1]、鈴木実[1]、田中浩基[1]
（京大院工、京大複合研[1]、大阪医科薬科大[2]）
No.9）トライボロジー現象解明に向けた中性子反射率測定による潤滑油／金属界面の
ナノ構造解析 …… 40
○山下直輝、平山朋子、日野正裕[1]（京大院工、京大複合研[1]）

2月15日(水) 10:00～15:10

トピック講演

T2）10:00～10:40　座長　伊藤　啓
過酷条件下における熱流動現象の中性子イメージング …… 41
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

プロジェクト研究成果講演

PJ1）10:40～11:20　座長　伊藤　啓
中性子イメージングプロジェクト …… 43
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）
齊藤 泰司

プロジェクト研究成果講演

PJ2）11:20～12:00　　座長　高田 卓志

BNCT に関する総合的線量評価システムの高度化 ····· 46
粒子線腫瘍学研究センター（粒子線医学物理学研究分野）
櫻井　良憲

（休　　憩）12:00～13:00

特別講演

S2）13:00～14:00　　座長　八島 浩

環境放射能をはじめとする環境科学の研究 ····· 51
原子力基礎工学研究部門（放射線管理学研究分野）
五十嵐 康人

特別講演

S3）14:00～15:00　　座長　三澤 毅

原子炉とともに ····· 54
原子力基礎工学研究部門（研究炉安全管理工学研究分野）
中島 健

閉会の挨拶（15:00～15:10）　所長　中島　健

(N1)高放射線 CIGS 太陽電池技術を用いた自立駆動形放射線検出素子の１F 適応研究

（京大複合研、JAXA[1]、AIST[2]、木更津高専[3]、理研[4]、QST[5]、東北大学[6]）
○奥野泰希、今泉充[1]、上川由紀子[2]、岡本保[3]、小林知洋[4]、牧野高紘[5]、笠田竜太[6]

１．はじめに：

本福島第一原子力発電所(1F)の原子炉格納容器(PCV)から燃料デブリを取り出し、1F の廃炉を効率的に進めるためには、PCV 内の放射線源および 線量率の分布を知り、適切な除染や放射線遮蔽措置を行って、作業者の安全性を確保するとともに、廃炉に使用する装置類の耐放射線性等の最適化をする必要がある。またデブリ移動に伴う不測の再臨界が生じる可能性も懸念されており、ガンマ線だけでなく、アルファ線や、中性子線の検出も重要視されている。これまで、東京電力ホールディングスや国際廃炉研究開発機構により、遠隔操作ロボット等を用いた PCV 内部調査が各号機に対して行われ、これらに搭載した放射線センサー等により、線量率分布の実測がなされてきた。PCV へのアクセスは長距離の移動、水環境、高レベル放射線環境のため主にロボットや、アクセスポートを用いて行われる。しかし、線量計には小型化・軽量化・省電力化が求められており、使用できる線量計には限りがあるため、放射線分布の情報は、時間的にも空間的にも断片的である[1]。
線量情報が取得できない主な要因として、炉内での電源供給の不足、アクセスできる形状や重量の制限、広い線量率範囲および、高線量環境下での損傷などが挙げられる。また、線量分布を把握することは、取り出し作業前の燃料デブリ位置や汚染箇所の把握だけでなく、取り出し作業中の構造物の移動やデブリの反応による線量分布の変化に伴う被ばく事故および運用中の装置の放射線障害を防止するために重要である。そのため、今後、20-30 年以上続く廃炉措置を安全に遂行するため、ロボットなどへ装着するリアルタイム線量測定だけでなく、長期間の定点観測型マッピング線量測定の需要が強く求められている。

太陽電池は、自立駆動する光電変換素子として知られている。太陽電池は、半導体で構成されるデバイスであるため、放射線が入射した場合も、放射線のエネルギーから電子正孔対を生成することで発電することが知られている。シリコン太陽電池の先行研究では、Co-60 ガンマ線の線量率に対して線形的に増加する電流が確認されており、放射線検出器として使用できる特性を有している。しかし、シリコン太陽電池は、放射線耐性が低く、PCV で想定される最も高い線量率 1 kGy/h の様な環境では、数時間で信号の劣化が生じることが予測されており[2]、放射線耐性の向上が課題である。人工衛星などに使用される宇宙用太陽電池では、バンアレン帯等の宇宙放射線から照射損傷に耐える必要があるため、シリコン太陽電池に変わる高い放射線耐性の太陽電池が開発されてきた。その中でも CIGS 太陽電池は、電子線においては、ほとんど劣化しない極めて高い放射線耐性を有している[3]。ガンマ線環境中での劣化の要因は、電子線から放出される 2 次電子が原子核へ衝突することによるはじき出しによって格子欠陥が生成することが要因であると考えられている。そのため、電子線照射環境でほとんど劣化しない CIGS 太陽電池は、ガンマ線環境中で長時間安定した動作が可能な放射線検出素子であることが期待される。

本研究では、PCV 内のリアルタイム・マッピング測定を目的として高放射線耐性の高放射線耐性を有する CIGS 太陽電池を利用した長期運用型のガンマ線観測システムの検出特性を解明する。

２．実験：

２．１　CIGS 太陽電池の作製：

図１に CIGS 太陽電池を用いたガンマ線センサの試作機を示す。CIGS 吸収層は，3 段階のプロセスで Mo バックコンタクト上に成長させた．ステージ I、II、および III の基板温度は、それぞれ 350、400、および 400℃に設定した。CIGS 吸収層上に CdS バッファ層を化学浴蒸着法により作製した。RF および DC スパッタリングにより、固有 ZnO（i-ZnO）層と n 型 ZnO : Al（n-ZnO）層をそれぞれ成膜した。i-ZnO 層と n-ZnO 層の厚さはそれぞれ約 0.06 μm と 0.35 μm であった。成膜した素子は、ガラスカッタにより 15 mm× 6mm に加工された。素子上に 10 mm × 5 mm にカットしたリバアルファを接着し、5%塩酸溶液にて端面の ZnO 層をエッチングした。作製された素子は、試作機用のセンサケースの中心電極に裏面電極、外電極に表面電極をそれぞれ銀ペーストと銅線を用いて２端子法にて接続された。また、アル

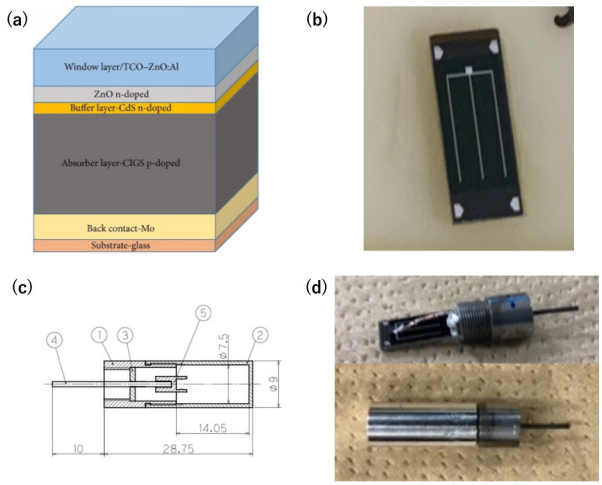


図１. CIGS 太陽電池を用いたガンマ線センサ試作機(a)CIGS 太陽電池の素子構造(b)作製した CIGS 太陽電池の外観(c)5 つの部品で構成されたセンサケースの設計(d)作製したセンサの外観

ゴン雰囲気グローブボックス内でシールドケース内に CIGS 素子は封入された。

・ガンマ線照射場における測定

ガンマ線照射実験は、QST 高崎量子応用研究所の食品照射棟の Co-60 ガンマ線源により行った。線量率は、センサを直線駆動ステージに設置することによりガンマ線源とセンサの距離を変えることで調整した。電流計測においては、ピコアンメータ(iDC13, 泰榮エンジニアリング社製)とセンサーを BNC 同軸ケーブルにより接続した測定体系を用いて、測定時間 0.2 s で測定を行った。測定中はシールド線をアースに接続した。

・電子線照射による劣化評価試験

ガンマ線照射実験は、QST 高崎量子応用研究所の電子加速器により行った。照射中の照射雰囲制御のために、窒素ガスに置換した気密ボックス中に試料を設置した。劣化測定は、太陽電池の測定方法に準拠した光電流電圧測定を行った。測定用光源は、AM0 スペクトル、かつ高強度 137 mW/cm^2 の 2 光源ソーラシミュレータを利用した。電流電圧測定では、素子を 4 端子法によりソースメジャーユニット(B2901A, Keysight 社製)に接続した。

3．結果：

図 2 に CIGS 太陽電池素子を用いたガンマ線センサ試作機の Co-60 ガンマ線環境中での電流挙動を示す。図 2(a)に示すように、照射開始と同時に電流が発生しており、ステージの移動に伴い電流量が変動している。これは、2500 秒までの時間では、線源に近づく方向に移動し、6 つの線量位置で静止して測定している。また、2500 秒以降の時間では、線源に遠ざかる方向に連続して移動する稼働条件で測定している。この静止中の信号および稼働中の信号を線量率に対してプロットした結果を図 2(b)に示す。この結果より、ステージは、約 1.67 mm/s で動作している環境にも関わらず、線量率に対してそれぞれ同様に増加しており、稼働時のノイズや過渡応答などは殆どないことがわかる。これは、1F 適応においてロボットアームなどに搭載された場合、ロボットの動きに追従して信号が 0.2 秒毎に取得できることを示唆しており、廃炉作業において経時的に変化する線量率を十分に測定できると考えられる。

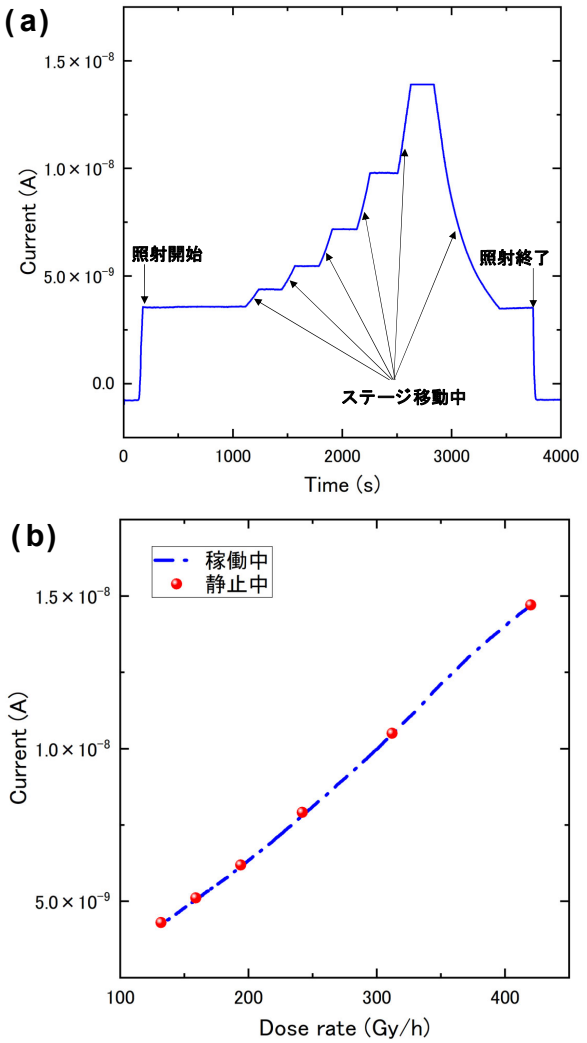


図 2. Co-60 照射中の CIGS 太陽電池素子の電流挙動 (a)時間応答性(b)線量率依存性

図 3 にセンサの測定中の電流ゆらぎについて解析を行った結果を示す。非照射中の電流ゆらぎは、約 4 pA の範囲であり、219 Gy/h 照射中のゆらぎも同様に約 4 pA であった。このことから照射中の電流ゆらぎは、非照射時のゆらぎに依存していることがわかる。つまり、非照射時のセンサのゆらぎを抑えることが線量率の分解能を向上させる要因であると考えられる。電位の揺れは、測定体系が晒される電磁波によるノイズ及び、電源系から流入するノイズ等

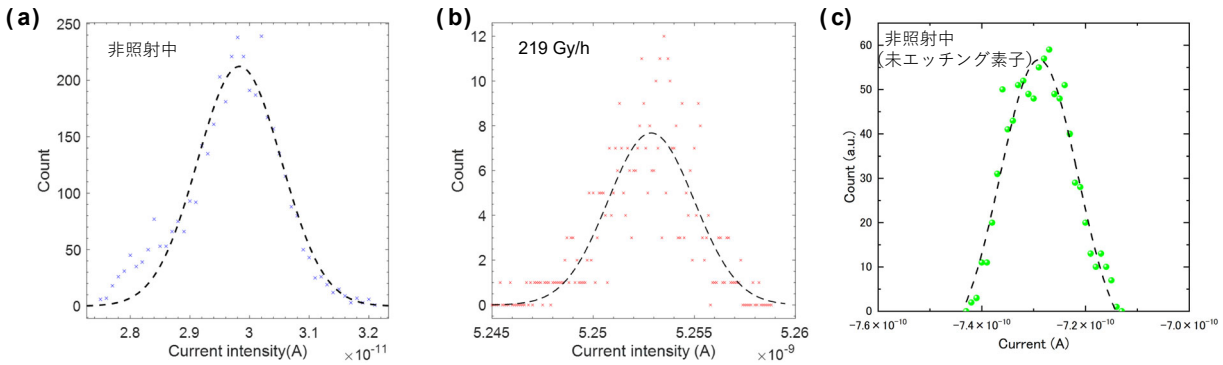


図 3. (a)非照射時、(b)Co-60(219 Gy/h)照射中、(c)未エッチングの CIGS 太陽電池素子の電流ゆらぎ

が考えられる。非照射時に発生する電流に関して

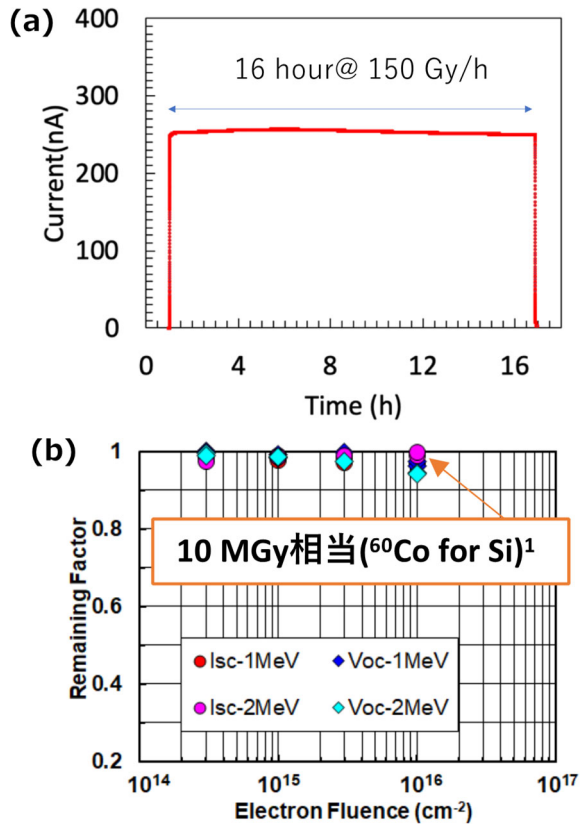


図 4. CIGS 太陽電池素子の電子線耐性

は、ピコアンメータから出力されるオフセット電圧が考えられる。いずれも数μV の電位が測定体系に印加されていることが要因であるため、素子の並列抵抗を向上させることで、ノイズによる電流ゆらぎが抑制できる。照射している素子では、およそ 40 MΩオーダであるため、体系中で印加されているμV に対して pA オーダの電流が出力される。一方、図 3(c)に示している未エッチング素子では 77 kΩと 3 桁程度低い並列抵抗の素子の非照射環境中でのノイズを測定した結果では、３桁程高いノイズ電流が観測されている。このことからも、素子の並列抵抗を向上させることが、分解能や線量測定下限値等の測定精度を改善する重要な要因であると考えられる。

図 4 に、CIGS 太陽電池の素子の(a)ガンマ線照射および(b)電子線照射における劣化挙動を示す。ガンマ線照射では、150Gy/h の線量率環境下で 16 時間の連続照射を行った。センサー信号の劣化はほとんどなく、照射中で信号差は 1%以下であった。電子線は、ガンマ線照射環境中での劣化の加速試験として利用した。シリコン太陽電池の先行研究にて 1 MGy 相当の Co-60 ガンマ線により放出される２次電子が与える照射損傷量は、1 MeV 電子線約 10^{16} cm^{-2} 照射時の量と同等であると計算されている。

CIGS 太陽電池は、電子線照射後に光電流電圧特性を取得し、その結果を解析することで短絡電流(I_{SC})および開放端電圧(V_{OC})の変化量を照射前の値を１として図 4(b)に示す。この結果より CIGS 太陽電池素子は、電子線に対してほとんど劣化していないことがわかる。そのため、1×10^{16} cm^{-2s} 照射時に劣化がほとんどない CIGS 太陽電池は、Co-60 環境下でも十分な耐性を示すと考えら得れる。１F の PCV では、最大 1 kGy/h 相当のガンマ線場が想定されており、10 MGy は１F で最も過酷な条件における 1 年程度の線量率に当たる。アイソトープに依存して放出されるガンマ線のエネルギーが異なるが、想定されるガンマ線は、Cs-137 が主な線源であるとするとガンマ線エネルギーが 661 keV 程度であることから、Co-60 (1 MeV 程度)相当で換算した場合、安全側に評価できる。そのため、CIGS 太陽電池素子を応用したガンマ線検出素子は、１F で長期間安定した動作が実現できると考えられる。

参考文献

[1]東京電力HP
(https://www.tepco.co.jp/decommission/progress/)
[2] N. Horiuchi, et al., Nucl. Instr. and Meth. A, (1997) *385*, 183–188.
[3] M. Yamaguchi, Sol. Energy Mater. Sol. Cells (2001) 68, 31–53.
[4] A. Akkerman, et al., *Radiat. Phys. Chem.* (2001) *62*, 301–310.

High-Radiation-Tolerant CIGS Solar Cell based Self-Power Driven Radiation Dosimeter for 1F
Yasuki Okuno,
okuno.yasuki.7e@kyoto-u.ac.jp

(N2) レーザーによる放射性核種内包フラーレンの生成実験

（京大複合研）○稲垣誠

１．はじめに：近年、放射性同位体（RI）は医学的診断や治療に広く用いられ、悪性腫瘍などの早期診断や治療に成果を上げている。RI を診断や治療に用いるにあたり、正常組織の被ばく低減などの観点から、体内で RI を運搬し患部に集積させる技術（ドラッグデリバリーシステム；DDS）が求められている。RI の DDS を実現するためには、RI を保持し、かつ患部に集積する機能を持つような分子が必要となる。

RI を保持する構造を持つ分子には様々なものがあるが、その一つにフラーレンがある。フラーレンはそのかご状構造内に金属原子などを内包できることが分かっており[1]、また、フラーレンはその外側を化学的に修飾することが可能である[2]。したがって、フラーレンを化学的に修飾し、患部に集積するような機能を持たせることができれば、フラーレンは DDS において RI を運搬する分子となり得ることが期待される。実際に、ヒドロキシ基で修飾したガドリニウム内包フラーレン（$Gd@C_{82}(OH)_n$）が従来の MRI 造影剤である Gd-DTPA よりも高い造影効果を示すことが知られているなど[3]、フラーレンの医療分野における応用研究が進んでいる。

そこで、本研究では、RI の DDS への応用に向けた基礎研究として、RI を内包したフラーレンの簡便な生成法の開発を目指すこととした。RI を内包したフラーレンの生成は既に報告されているが[4]、従来の方法は比較的大規模な装置を必要とし、RI による汚染を考えると取り扱いが難しい。RI 内包フラーレンを簡便に作成することができれば、RI 内包フラーレンを用いた研究の発展に寄与することが期待できるほか、従来とは異なる方法で RI 内包フラーレンが生成されれば、それ自体がフラーレンの化学において興味深いものとなる。

２－１．フラーレン生成実験：石英容器内のグラファイト粉末に連続波赤外線レーザーを照射することによりフラーレンの生成を試みる実験を行った。実験装置の概略図を図 1 に示す。バルブ付きの石英容器（図 2）にグラファイトを約 60 mg 入れ、容器内を真空に引いたのち、アルゴンガスで置換した（0.1 atm, 0.5 atm, 0.9 atm の 3 条件で実施）。その後、石英容器内の試料に対し、容器の外側からレーザーを照射した（図 3）。用いたレーザーは波長 1080 nm、出力 300 W の連続波ファイバーレーザーであり、照射 10 ms、休止 90 ms のサイクルで 22 分間照射した。レーザー照射後、容器内の試料に *o*-ジクロロベンゼン（*o*-DCB）を 1.5 mL 加え、超音波洗浄機にかけ可溶成分を抽出した。抽出した溶液および固形分をメンブレンフィルター（PTFE、孔径 0.50 μm）でろ過し、ろ液を高速液体クロマトグラフィー（HPLC、GL Sciences GL7700 series）により分析した。用いたカラムは COSMOSIL 5PBB、移動相は *o*-DCB、検出は UV 350 nm である。

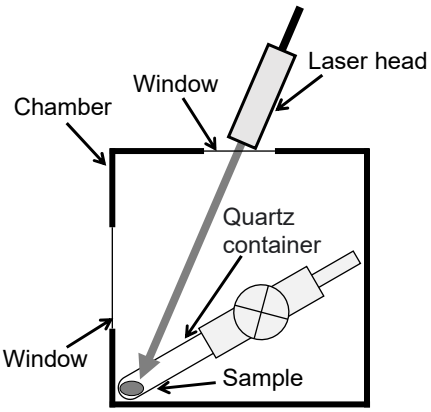


Fig. 1. Schematic view of the experimental setup.

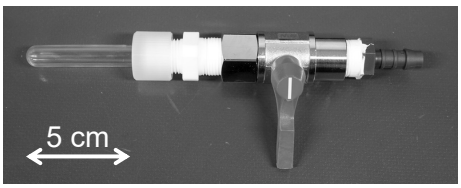


Fig. 2. Photo of the quartz container.

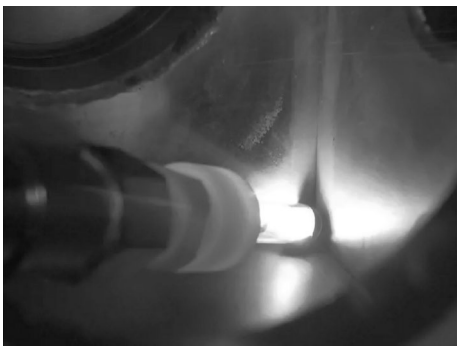


Fig. 3. Sample and quartz container during laser irradiation.

２－２．RI 内包フラーレン生成実験：グラファイトと CeO_2 の混合試料に連続波赤外線レーザーを照射し、RI を内包したフラーレンの生成を試みる実験を行った。上述のフラーレン生成実験と同じ装置を用い、石英容器にグラファイト約 30 mg 及び放射性 CeO_2（^{141}Ce 0.5 MBq/g）約 30 mg を入れ、容器内を真空に引いたのち、0.1 atm のアルゴンガスで置換した。試料に対するレーザー照射は、波長 1080 nm、出力 300 W の連続波ファイバーレーザーを用い、照射 10 ms、休止 40 ms のサイクルで 100 分間行った。レーザー照射後、容器内の試料に *o*-DCB を 1.5 mL 加え、超音波洗浄機にかけ可溶成分を抽出した。抽出した溶液および固形分をメンブレンフィルターで

ろ過し、Ge 半導体検出器を用いてろ液のガンマ線測定を行った。次いで、固形分の残ったメンブレンフィルターにピリジンを通して可溶成分を再抽出し、同様にろ液のガンマ線測定を行った。

３．結果と考察：フラーレン生成実験において、アルゴンガス 0.1 atm, 0.5 atm, 0.9 atm の 3 条件で得られた溶液の HPLC によるクロマトグラムを図 4 に示す。3 条件共に C_{60} フラーレンのピークが見られ、0.1 atm および 0.5 atm の条件において C_{70} フラーレンのピークが見られた。すなわち、今回の手法によってフラーレンを生成することに成功した。0.9 atm における C_{60} の生成量を 1 としたときの各条件における C_{60} の生成量を表 1 に示す。今回の 3 条件においては、圧力が低いほど C_{60} の生成量が大きく、0.1 atm における生成量が最も大きくなった。

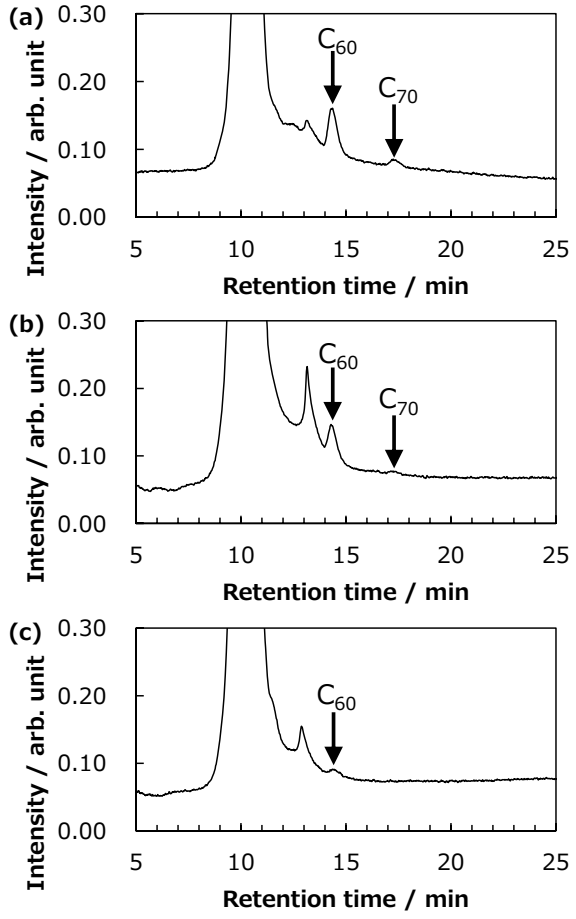


Fig. 4. HPLC chromatograms obtained from samples of Ar 0.1 atm (a), Ar 0.5 atm (b), and Ar 0.9 atm (c).

Table 1. Yield of C_{60} fullerenes in each condition.

Pressure of Ar / atm	0.1	0.5	0.9
Yields of C_{60} / arb. unit	9.7	5.9	1.0

RI 内包フラーレン生成実験において得られた *o*-DCB 溶液およびピリジン溶液の Ge 半導体検出器によるガンマ線スペクトルを図 5 に示す。*o*-DCB 溶液では ^{141}Ce に由来するガンマ線は観測されなかったが、ピリジン溶液では ^{141}Ce に由来するガンマ線が観測された。CeO_2 は *o*-DCB およびピリジンに不溶でありメンブレンフィルターを通過しないことから、この結果は、*o*-DCB に不溶でピリジンに可溶な ^{141}Ce を含む化合物が生成したことを示している。Ce が C_{82} フラーレンに内包された Ce@C_{82} は *o*-DCB 等の無極性有機溶媒に可溶である一方、Ce が C_{60} に内包された Ce@C_{60} はそれらの溶媒に不溶であり、ピリジン及びアニリンにのみ可溶であることが知られている[5]。このことから、本実験により生成しガンマ線測定により検出された化合物は ^{141}Ce@C_{60} であることが示唆される。今後、本化合物の同定を進めていく。

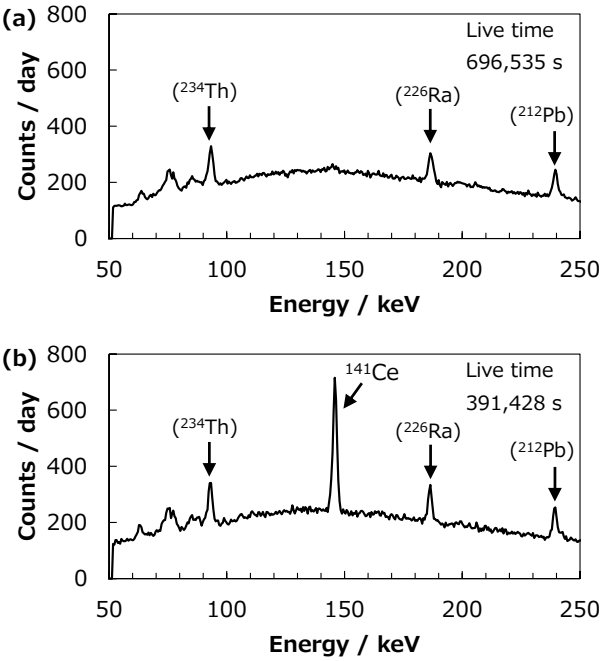


Fig. 5. Gamma ray spectrum of *o*-dichlorobenzene solution (a) and pyridine solution (b).

参考文献

[1] Y Chai *et al.*, J. Phys. Chem., **95** (1991) 7564–7568.
[2] T. Akasaka *et al.*, Nature, **374** (1995) 600–601.
[3] M. Mikawa *et al.*, Bioconjugate Chem., **12** (2001) 510–514.
[4] K. Akiyama *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci., **3** (2002) 151–154.
[5] Y. Kubozono *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **118** (1996) 6998–6999.

Experiments on the formation of radionuclide endohedral fullerenes by laser

Makoto Inagaki
inagaki.makoto.2r@kyoto-u.ac.jp

(T1) 世界初の臨床用 BNCT 治療計画システムの検証と独立モンテカルロ線量計算システムとの比較

（京大複合研）○呼尚徳

１．はじめに：BNCT 線量計算は、中性子の挙動を体内構成元素と合わせてシミュレーションする必要がある。BNCT は 2020 年 6 月から頭頸部癌に対して保険診療が開始された。そのため、医療機器と承認された治療計画装置が必要となった。BNCT 線量計算プログラム、Simulation Environment for Radiation Applications (SERA)は BNCT の線量計算に幅広く使用されているが、国内では医療機器と承認されていない。そこで、住友重機械工業は幾つかの研究機構との共同で BNCT 線量計算プログラム NeuCure™ ドーズエンジンを開発した。ユーザインターフェースはレイサーチ・ジャパンが販売している RayStation を用いており、これとの併用で治療計画システムを構成している。本研究の目的は NeuCure ドーズエンジンを臨床使用のための検証および実験的測定と独立したモンテカルロシミュレーションモデルとの比較である。

２．実験：水ファントム内の中性子とガンマ線の分布は、臨床に使用する予定のコリメータ径（10, 12, 15 cm）について、NeuCure ドーズエンジンでシミュレーション計算を行った。計算結果は金線と熱ルミネセンス線量計 (TLD) を用いて実測した熱中性子束とガンマ線線量率と比較を行った（図1）。
実測と加えて、既存のBNCT線量計算プログラム（SERA）およびPHITS version3.24を用いた独立したモンテカルロシミュレーションモデルと比較を行った。水ファントムと加えて、人体型ファントムを用いた脳のBNCTをシミュレーションした（図2）。表面から深さ4cmの模擬腫瘍や正常脳の平均線量を各々の計算プログラムで計算した結果を比較した。

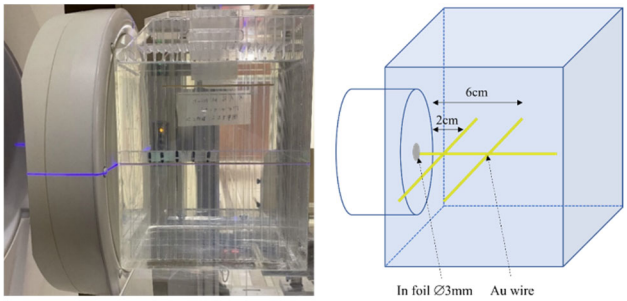


図 1.水ファントム内の TLD と金線の配置。高速中性子の測定のためインジウム箔をファントムの表面に設置した。

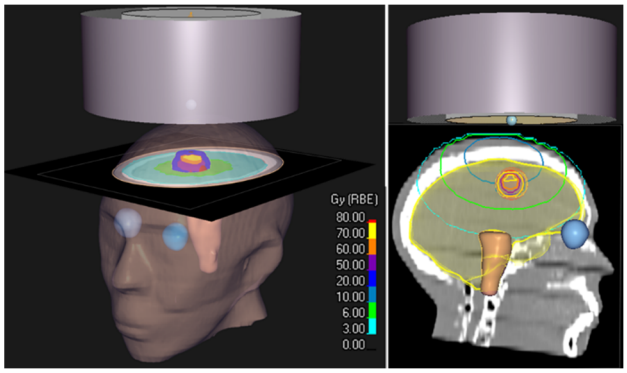


図 2.人体型ファントムの 3D 再構成画像。脳の BNCT 照射を想定した線量計算。

３．結果：全てのコリメータ径について、NeuCure ドーズエンジンで計算された水ファントム内の熱中性子束とガンマ線線量率は実測と良好に一致した（深さ10cmまでは2%以内）（図3）。SERAと独立計算モデルの脳BNCTシミュレーション結果も、良好に一致し、模擬腫瘍および正常脳の平均線量の差は3%以内であった。

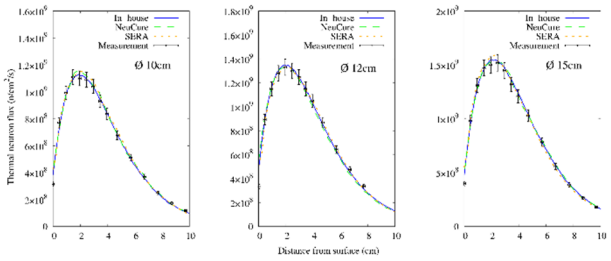


図 3.水ファントム内の中心軸深部分布の熱中性子束。

４．結論：NeuCure ドーズエンジンの計算結果を SERA または独立計算モンテカルロ計算システムと比較した。3 次元での中性子およびガンマ線の分布は良好に一致し、安全に臨床に使用できることを確認した。

参考文献

[1] N. Hu *et al.*, Radiation Oncology, 16:243 (2021)

Commissioning of the world's first clinical BNCT treatment planning system and validation against an independent Monte Carlo dose calculation system

Naonori Hu
ko.naonori.7z@kyoto-u.ac.jp

(N3)PHITS シミュレーションを用いた加速器熱中性子源開発と新型炉冷中性子源検討

（京大複合研 [1]、京大工学研究科 [2]、JAEA[3]）○中村吏一朗 [1], 日野正裕 [1], 田中浩基 [1], 栗山靖敏 [1], 岩下芳久[1], 杉山正明 [1], 佐藤信浩 [1], 安部豊 [2], 新居昌至 [3], 川端祐司 [1], 中島健 [1]

１．はじめに：京都大学研究用原子炉（KUR）は 1964 年の運転開始以来 50 年以上の歴史を経て、2026 年 5 月には停止する。西日本において KUR は共同利用を通して、原子力分野の研究開発・人材育成の中心的な役割を担ってきた。KUR の閉鎖が決定された一方で、「もんじゅサイトに設置する新たな試験研究炉の概念設計及び運営の在り方検討」が開始されている。現在、京都大学は幅広い利用を主担当としてその計画に参加してるが、新型炉の運転開始は 2030 年代と考えられ、その間は KUR での中性子利用研究は制限される。

本発表では、私がこちらに赴任して約２年の間、放射線輸送コード PHITS（Particle and Heavy Ion Transport code Simulation）**[1]**を利用し推進してきたサイクロトロン加速器熱中性子源の概念設計と福井炉における冷中性子源の検討について発表する。

２．ホウ素中性子捕捉療法に向けたサイクロトロン熱中性子源の概念設計

２．１ 背景

ホウ素中性子捕捉療法（BNCT）は ^{10}B の中性子捕獲反応によって放出される２つの荷電粒子（α 粒子, Li 粒子）を使った治療法である。これらの粒子の飛程は細胞サイズ (10 μm) 程度で、腫瘍細胞にホウ素を薬剤で集積させ、そこに熱中性子を照射することで線量が集中し腫瘍選択的な治療が望める。BNCT 治療効果はホウ素の集積度に強く依存するため、熱中性子を利用した薬剤基礎研究のための生物照射実験の継続が今後も重要だ。これまでに KUR では年に 50 件以上の BNCT 生物照射研究が実施されてきたが、その研究を 2026 年以降も持続することは難しく、KUR に替わる新たな熱中性子源の確保が必要である。

京大複合研では、世界初の BNCT 治療用加速器中性子源システム C-BENS (**Fig. 1.**) を用いた治験が 2019 年度に終了した。システムに組み込まれたサイクロトロン加速器 HM-30 は複合研に寄付され、医療行為以外にも利用できるようになった。HM-30 は 30 MeV 1 mA の陽子ビームを加速し、Be ターゲットへの照射で 10^{14} n/s の中性子が期待できるため、高強度の熱中性子を取り出せる可能性がある。しかしながら、C-BENS は治療用に熱外中性子照射に特化しており、熱中性子発生にはポートへモデレータ追加で必要だ。この場合、得られる熱中性子強度 (TNF) は頭打ちになり、ビームのコンタミ具合を示す単位熱中性子束量に対する速中性子線量比 (NDR/TNF) やガンマ線量比 (GDR/TNF) を推奨される 10^{-13} オーダーに抑えきれない **[2]**。したがって、BNCT 基礎研究を推進するためには新たなポートの設計が不可欠である。

本研究では TNF、NDR/TNF、GDR/TNF 等を PHITS を用いて計算し、BNCT 基礎研究に有用なサイクロトロン熱中性子源の概念設計を目指した。また、ポート周囲の遮蔽もシミュレーション上で設計し、提案するポートが現実的に設置可能かも検討した。

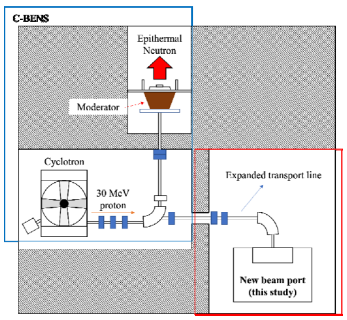


Fig. 1. Schematic of present cyclotron-based epithermal neutron source (C-BENS) system (blue line) and the new beam port (red line).

２．２ 原理・手法

２．２．１ PHITS シミュレーション(ver. 3.23) [1]

核反応断面積や核モデルに基づいて物質中における様々な放射線挙動をシミュレートする汎用放射線挙動解析モンテカルロ計算コードである。使用用途は放射線遮蔽設計、医学物理計算、加速器設計、宇宙線・地球惑星科学、工学、医学、理学の様々な分野で用いられる。

２．２．２ 中性子モデレーターと照射体系

Fig. 2. (left) に新しいターゲットステーションを示す。30 MeV、1 mA の陽子を Be 標的に照射し、最大 28 MeV の中性子が放出される。放出された高速中性子は鉛、重水で減速され熱中性子が生成される。タンク終わりの Bi はγ線遮蔽材である。**Fig. 2. (right)**に照射体系を示す。マウスを模擬して 3 列の円環を配置し、そのそれぞれが計算領域（Body, Leg）となる。鉛の厚みは事前計算から 300 mm と 400 mm を選択し、重水タンクの厚みを 0 ~ 600 mm を 200 mm 区切りで変化させ、TNF、NDR/TNF、GDR/TNF を各領域で算出した。

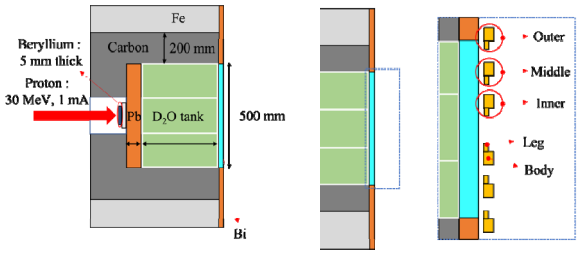


Fig. 2. Cross-sectional top view of the target station (left). Schematic of the beam mouth setup in the simulation(right).

２．２．２ 目標とするビーム値と照射場の質

モデレーターの最適化のため、以下のような目標を定めた。

1. 取り出されるビームの値に関しては、TNF とビームコンタミについて着目した。TNF は、短時間で効率よく実験を回せるように、1.0×10^{9} [n/cm^2/sec] の達成を目標とした。NDR/TNF と GDR/TNF については、KUR の重水照射設備と同等のビーム質にするため、10^{-13} オーダーに抑える。ここでは TNF の目標達成が優先事項である。

2. 提案した照射場の質を評価する為、ホウ素を分布させたマウスモデルの各 Body への全線量を各 Leg での TNF で割った比を算出した。ホウ素薬剤は腫瘍細胞と正常組織の両方に浸透する。ホウ素濃度は参考文献**[3]**より、Body（15.7 ppm）、Leg（15.1 ppm）とした。目標とする比は 0.66×10^{-8} よりも低い値である。

２．２．３ ターゲットステーションの遮蔽設計

高線量となるビームポート周りに遮蔽が必須である。長時間持続して運転するには 25 μSv/h 以下に線量を抑える必要がある**[4]**。また、設置場所であるイノベーションラボラトリーの耐床荷重量を考慮し、単位接触面積当たりの重さを 1 kg/cm^2 に抑えなければならない。遮蔽材には高速中性子低減する鉄と低速中性子を止めるホウ素モルタルを利用した。それぞれの厚みは PHITS で計算した中性子透過の遮蔽材厚み方向に対する深度線量率分布を参考にし、それぞれ **Fig. 3.**内のように設定している。図中で(i) ~ (iii) の赤いラインは線量率を計算する領域（500 mm × 500 mm）となっている。

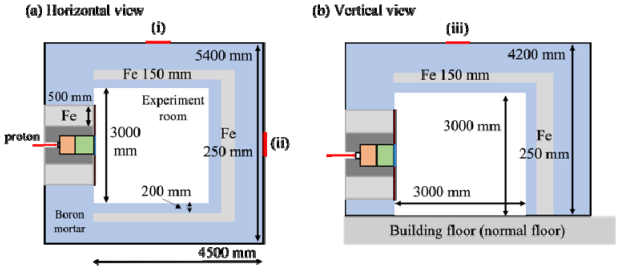


Fig. 3. The design of the new target station with biological shield in the horizontal (left) and vertical (right) planes with shield size. (i) ~ (iii) shows the evaluation points of the effective dose rate.

２．３ 結果・考察

PHITS での計算結果より、Pb 厚み両方のケースで 0 ~ 400 mm の厚みの重水であれば、TNF は 1.0×10^{9} [n/cm^2/s] に到達した。これらの中で重水は 400 mm の厚みであれば、NDR/TNF と GDR/TNF は 10^{-13} [Gy·cm^2]オーダーに収まった。最終的に Pb 400 mm / D_2O 400 mm の厚みに決定した。マウスモデルの前後に中性子量を調整する器具（マウスジグ）を配置した状態で、マウスの Leg 部分での TNF は最大で 2.84×10^{9} [n/cm^2/s]に到達し、NDR/TNF と GDR/TNF [Gy·cm^2] は 10^{-13} に収まり、目標とするビーム値を達成出来た。

Table 1 に照射場評価のための計算結果を、先行研究のシミュレーション結果**[2]**と実験でホウ素効果が確認された RA-6 炉の結果**[3]**と共に示す。本研究の結果はどちらの結果よりも低く、BNCT 基礎研究に対して有用な照射場と考えられた。

遮蔽計算では、線量率が **Fig. 4.**の３つの領域で 25 μSv/h を下回り、一番重くなるビームポート周辺の単位面積当たりの重さは 1 kg/cm^2 以下と算出された。以上より、提案した中性子源は現実的に建設が可能であると結論づけた。

Table 1. The ratio of the total dose on a body to TNF on a leg.

	Ratio (Total body dose / TNF on a leg) $\times 10^{-8}$		
	Outer	Middle	Inner
This study	0.18	0.23	0.24
Previous study **[2]**		0.66	
RA-6 **[3]**		1.25	

２．４ まとめ

PHITS コードを用いてサイクロトロン熱中性子場の概念設計を行なった。目標としていたビーム特性が出せる減速体系をシミュレーション上で提案し、そのビームポートが現実的に建設が可能であることを示した。

３．福井もんじゅサイト新型研究炉に向けた液体重水素冷中性子源の検討

３．１ 背景

物質の静的・動的構造解析や元素分析等をより高感度かつ精密に行うため、熱中性子を冷中性子へと冷却する冷中性子源(CNS)設備は、近年益々重要性が高まっている。研究用原子炉はもとより J-PARC MLF のような大規模加速器中性子源利用施設においても、冷中性子を大量に発生させる設備として冷中性子源(CNS)の設置は必須である。冷中性子強度を最大化するため、熱中性子強度の高い炉心近傍に CNS は設置される。炉心近傍は強烈な放射線場であるため、冷却材の放射線耐性の観点から液体水素(LH_2)や液体重水素(LD_2)が冷減速材として選択される。

現在、国内で稼働している研究炉の JRR-3 (20 MW) では、水筒型（回転楕円体）容器 LH_2 冷却材を使用しているが、LD_2 は熱中性子に対して中性子吸収断面積が低く、LH_2 よりも高い冷中性子強度が期待できる。近年では CNS 性能向上のため、オーストラリア ANSTO の OPAL では LD_2 冷却材の体積を 20 L から 24 L への増量を進めており、米国 NIST の NBSR では 30 リットル級の LD_2 冷却材の設置が進められている。世界の潮流を鑑みるに、新試験炉が将来世界と伍するためには LD_2 の設置検討は必須であると考

えられる。

CNS は中性子利用装置のために、高強度な冷中性子ビームを取り出すことが目的であり、LD_2 の体積を単純に大きくすれば性能は出るわけではない。冷却材容器の形状や容器の厚み、冷却材と燃料集合体の距離、冷却材を覗き込む角度といったことも重要なパラメーターとなる。JRR-3 の冷中性子源設備を参考に、PHITS コードを用いた炉心周辺の LD_2 冷却材配置の検討や冷中性子輸送に関する検討について報告する。

3．2 原理・手法

今回は JRR-3 の回転楕円形状の冷却容器を参考に検討を進めた。**Fig.4.**に参考とした体系を示す**[4]**。左図が冷却材の形状、右図が冷却材と燃料集合体の位置関係を示したものである。計算では冷却材に 100 %の OrthoD で構成された LD_2、または、100 %の ParaH で構成された LH_2 を設定した。**Fig.5.**に PHITS で構築した簡易シミュレーションモデルを示す。Duct 内左端から 100 cm おきに中性子強度の計数のためのタリー領域（10 cm × 10 cm）を配置している。冷中性子は 5 meV 以下の中性子に設定した。

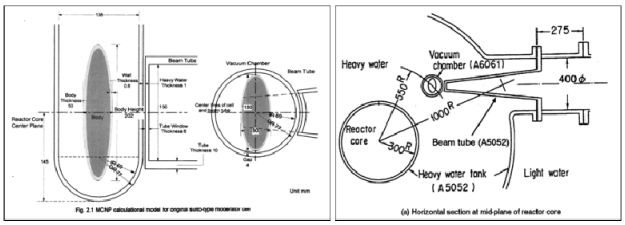


Fig. 4. The graph from the reference **[4]**.

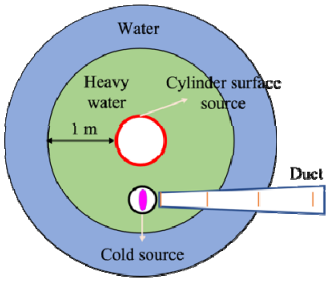


Fig. 5. The simplified model of a reactor source.

3．3 結果・考察

LD_2 冷却材の各 Duct 内位置での冷中性子強度を同様位置での LH_2 冷却材の冷中性子強度で割って比率を出した。比較した位置は 200 cm でこれは JRR-3 において冷中性子導管が始まる地点である。

まず、冷却材の中心位置を表面線源から 25 cm 位置**(Fig.4.**の右図と同仕様)に置いた体系での計算を実施した**(Fig. 6.)**。計算結果から導かれた比率は 1 を下回り、LH_2 冷却材の優位性が示された。これは ParaH の単位体積あたりの減速能が OrthoD を上回るため、JRR-3 と全く同じ仕様では LH_2 に優位な結果となった。

次に LD_2 冷却材の中心を表面線源から 10 cm の近い位置に配置した。25 cm 位置の ParaH 冷却材に対する比率は 1 つめのケースと比較して若干大きくなったものの 1 を下回った。これらの結果より、LH_2 と同じ形状・同じ体積では LD_2 の冷中性子強度の倍増が見込めないことが分かった。

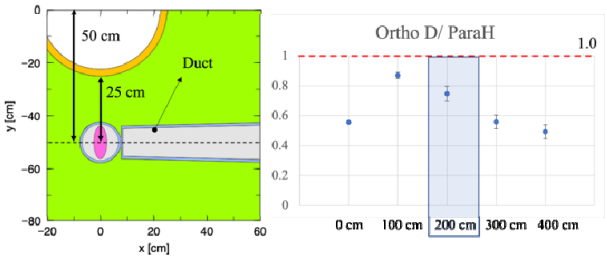


Fig. 6. The schematic of the simulation setup (left), and the calculated ratio of the cold neutron intensity (LD_2 to LH_2).

最後に、LD_2 冷却材容器の形状を直径 12.6 cm、縦長さ 20 cm の円柱形状にし、表面線源から 10 cm の位置に配置した。計算結果より、LD_2 冷却材での冷中性子強度は LH_2 冷却材の 1.5 倍となったが、今後冷却材を覆う容器を安全設計（冷却材の爆発などを考えて）の為に厚くする可能性があり、倍率としては不足している。また、円柱形状容器の体積は 2.5 ℓ であり、世界で運転されている LD_2 冷却材の体積（10 ℓ 以上）と比較すると小さい。以上より、OrthoD で構成された LD_2 で性能を出す為に容器サイズやその形状を新型炉に向けて設計する必要があることが分かった。

3．4 まとめ

JRR-3 の冷中性子源を模擬した簡易シミュレーションモデルを構築し、LD_2 と LH_2 の冷中性子強度を比較した。結果より、LD_2 を用いて現状の LH_2 冷却材の性能を超える為には新型炉に対応した容器設計を考える必要性があることが分かった。

4．おわりに

今回は 2 年間で関わってきたサイクロトロン熱中性子源の概念設計と新型研究炉の冷中性子源検討について報告した。これら二つの研究は共同研究者からの協力無しには推進することは出来なかった。協力してくださった皆様方に感謝の気持ちをここでお伝えし、おわりの言葉とする。

参考文献

[1] T. Sato *et al*, J. Nucl. Sci. Technol. 55(5-6) 684-690 (2018)
[2] H. Tanaka *et al*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 983 (2020) 164533.
[3] M. Dagrosa *et al*, Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. 69 (4) (2007) 1059–1066.
[4] H. Iwamoto *et al*, J. Phys. Conf. Ser. 1021(012049) (2018)
[5] JRR-3 高性能冷中性子源装置の検討 2002 JAERI-TECH

The development of an accelerator based thermal neutron field and a reactor based cold neutron source using PHITS code.

Riichiro Nakamura, Masahiro Hino, Hiroki Tanaka, Yasutoshi Kuriyama, Yoshihisa Iwashita, Masakai Sugiyama, Nobuhiro Sato, Yutaka Abe, Masaji Arai, Yuji Kawabata, Ken Nakajima
nakamura.riichiro.3s@kyoto-u.ac.jp

(N4)伴侶動物への BNCT 適応に向けた生体の放射化による周囲環境への影響についての検討

（京大複合研[1]、大阪公立大学[2]）○和田悠佑[1,2]、高田卓志[1]、鈴木実[1]

1．はじめに：近年、伴侶動物の悪性腫瘍に対して放射線治療を実施する施設は増加し、獣医学領域においても放射線治療への注目が高まっている。しかし、伴侶動物における放射線治療は治療の度に麻酔が必要であること、頻回の通院が必要であることが治療の実施に対して大きなハードルとなっている。また、腫瘍の診断時には進行していることが多いことや肉腫などの治療抵抗性の腫瘍も多く存在することから通常の放射線治療だけでは制御できず再増大する症例も多い。

一方、BNCT は照射回数が 1−2 回で放射線治療後の再発腫瘍も対象であるため伴侶動物に対する治療においても大変で有用であると考えられる。実際にこれまでにも少数例ではあるが犬・猫に対して BNCT を行った報告がいくつか報告され有用性が示唆されている。[1,2] また、ヒトでの BNCT の対象は中性子の線量分布から現時点では頭頚部や体表腫瘍に限られている。しかし、小型犬や猫に対して実施する際は肺腫瘍や膀胱腫瘍など全部位が適応となる可能性がある。そのため、伴侶動物への BNCT はヒトの治療モデルとしても期待できる。

しかし、実際に伴侶動物に対して BNCT を実施する際には放射化が問題となってくる。現状では伴侶動物に対して中性子を照射すると放射性廃棄物扱いになるため管理区域外に出すことができない。そのため、管理区域外に出すことに問題がないことを示す必要がある。これまでに獣医療に着目して BNCT 後の小動物の放射化および排泄物による周囲環境への影響について検討している報告はない。本研究は BNCT の伴侶動物への適応拡大に向け、放射化された動物およびそれらの排泄物からの放射能の経時的変化について検討する。

2．実験：F344 ラットの腹部に熱外中性子ビーム（9x108/cm2/s-1）を 45 分間照射した。その後ラットの誘導放射能核種の同定、ラット表面および表面から 30ｃｍの空間線量率の経時的変化、排泄された尿・便の放射能の経時的変化について評価した。誘導放射能の同定はゲルマニウム半導体検出器を用いて行った。ラットの表面ならびに表面からの30㎝での1㎝線量当量率はシンチレーション式サーベイメータ（TCS-1172 Hitachi,Ltd）を用いて測定した。（写真①）測定時間は照射後 10−30 分の間に 1 回、その後は照射後 1，3，7，11 時間、1 日、2 日、3 日であった。

照射後のラットはガラス製循環式代謝ケージ（メタボリカ、（株）スギヤマゲン）（写真②）で飼育し尿・便を採取した。

尿便中の放射能の測定は GM 式サーベイメータ（TGS-1146、hitachi,LTd）を用いて測定された。測定する尿は採取した尿から 0.5 cc、便はすり鉢ですりつぶし 0.1g について測定した。測定時間は照射後 1，2，3，8 日であった。また、2 日後に採取した尿の放射能の経時的変化については照射後 5 日,11,18,22 日で測定した。

写真①

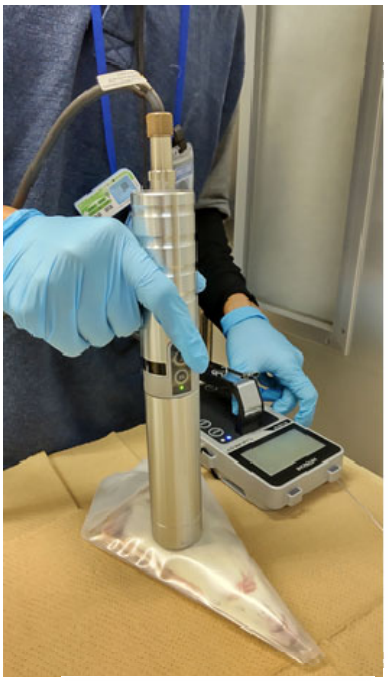
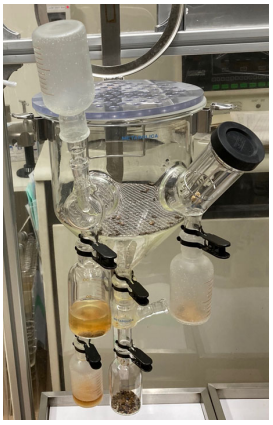


写真 ②



３．結果：結果は現在論文投稿中であるためグラフ・図を含めた結果に関しては講演にて発表致します。

４．結論：本研究より、BNCT を実施した後の放射化による犬や猫の体表の線量率は今回の結果で得られたラットの線量率と大きく変わらない可能性があり、飼い主への被曝については放射線防護上問題がないと考えらえる。しかし、照射後の体表から 30ｃｍ離れた線量率に関してはシミュレーションを含めた更なる検証が必要と考えられる。また糞尿の周囲環境に与える影響についても今回の実験の結果からは大きな影響を与えないだろうと考えられるが放射化によって生じる詳細な核種の調査のためには実際に犬・猫を用いた検証が必要であると考えられる。

参考文献

[1] A.E.Schwint *et al.*, Biology., **9**(2020) 327.
[2] V. Kanygin *et al.,* Biology.,**11** (2022) 138

Investigation of the effects on the ambient environment by activation of animals' bodies for the adaptation of BNCT to companion animals.

Yusuke Wada, Takushi Takata, Minoru Suzuki
y-wada@omu.ac.jp

(S1)ホウ素中性子捕捉療法のための生物影響研究

（京大複合研）○木梨友子

１．はじめに

京都大学複合原子力科学研究所研究炉(KUR)では原子炉中性子を重水で減速して得られる 10^{-3} から 10^{7}eV の中性子照射を用いてホウ素中性子捕捉療法（BNCT）が実施されてきた。2012 年に病院に併設可能な小型加速器中性子が完成しており、現在は加速器中性子 BNCT が全国の複数施設で実施されている。BNCT はホウ素-10 と中性子の核反応で生じる高 LET 放射線のアルファ粒子でガン細胞を破壊するため、X 線やガンマ線に比べて同じ照射線量で効率よくがん細胞に対して殺細胞効果をもたらすことができる。一方、放射線の生物影響については中性子の線質係数はエネルギーの強さによる 5 から 20 の連続値(2009 年 ICRP 勧告)が与えられていて、生物影響がエックス線やガンマ線に比べてはるかに強い。BNCT 普及のためには抗腫瘍効果とともに正常組織への有害事象の回避が重要となる。正常組織の有害事象の把握とその防護のために寄与できることを目指して以下のような多面的な研究を展開してきた。

２．リンパ球解析による全身被ばく線量の推定

放射線治療では腫瘍部位をターゲットした照射を行うため、BNCT においての全身の被ばく影響において、外部被ばく的観点からは不均等被ばくとなる。さらに、BNCT では細胞内・組織内のホウ素（B-10）の分布状況が不均一であることから生じる内部被ばく的観点からの不均等被ばく影響が生じてくる。BNCT ではこれらの不均等な外部被ばくおよび内部被ばく影響を総合して評価する必要がある。末梢血リンパ球は体内を一様に循環しているため、不均等な外部被ばくおよび内部被ばくの際にも平均化された全身の被ばく線量を求めることができる。

リンパ球の微小核（マイクロヌクレウス）解析法は放射線被ばく影響の評価方法として IAEA マニュアルに記載されている国際的に認められた被ばく線量評価方法である。治療前後のリンパ球のマイクロヌクレウス数の変化を解析することで、BNCT 治療をうけた患者 35 名の全身被ばく影響を推定した。全身被ばく影響の比較対象として、ライナックよるエックス線治療を受けた患者 20 名およびヨウ素 131 投与を受けた甲状腺がん患者 14 名の生物学的全身被ばく影響と BNCT 治療患者の被ばく影響を比較した（文献 1,2)。

表 1 に BNCT 治療患者、エックス線治療患者およびヨウ素 131 治療の甲状腺患者のマイクロヌクレウス数の結果を示す。BNCT 治療後は全症例で末梢血リンパ球のマイクロヌクレウス数は増加した。マイクロヌクレウスの増加数は平均値で BNCT 頭頸部腫瘍患者 23（1000 細胞あたり)、BNCT 脳腫瘍患者 33（1000 細胞あたり）であった。一方、エックス線治療患者のマイクロヌクレウスは平均値で 160（1000 細胞あたり）の増加、およびヨウ素 131 投与を受けた患者のマイクロヌクレウスは平均値で 105（1000 細胞あたり）の増加を認めた。

次に、放射線治療後のマイクロヌクレウス増加数をもとに全身被ばく線量を推定した。エックス線治療患者との比較から、BNCT 頭頸部腫瘍患者 0.24 Gy、BNCT 脳腫瘍患者 0.20 Gy であり、エックス線治療では 1.23 Gy であった。一方、ヨウ素 131 投与患者との比較では、BNCT 頭頸部腫瘍患者 0.16-0.29 Gy、BNCT 脳腫瘍患者 0.18-0.32 Gy であり、ヨウ素 131 投与では 0.25-0.45 Gy と推定された。

これらの結果より、BNCT は従来のエックス線治療による放射線治療、およびヨウ素 131 内服治療に比べて全身の生物学的被ばく影響は少ないことが確認された。

表１、BNCT 治療患者のリンパ球小核数の変化

	頭頸部 BNCT 患者	脳腫瘍 BNCT 患者	I-131 投与甲状腺癌患者	X 線治療癌患者
治療前の小核数*	62 ± 16	57 ± 14	91 ± 36	52 ± 19
治療後の小核数	86 ± 13	90 ± 13	196 ± 50	212 ± 29
小核（MN）増加率 治療後 MN 平均値/治療前 MN 平均値	1.4 倍	1.6 倍	2.2 倍	4.1 倍

＊小核数/CB 細胞 1000 個あたり

３．ラジカルスカベンジャーの防護効果

高 LET の放射線はＸ線やガンマ線のような低 LET 放射線に比べて殺細胞効果が大きいが一方で突然変異や形質転換などの遺伝子不安定性を引き起こす作用も強いことが従来からの研究で報告されている。BNCT おける照射野内に含まれる正常細胞の有害事象の研究は BNCT の長期予後を予測するために必要不可欠と考えられる。

ホウ素中性子捕捉反応では哺乳細胞の突然変異誘発がガンマ線に比べて約 4 から 6 倍と高く、ホウ素 10 濃度が上昇すると突然変異誘発が高くなることが分かった。細胞の突然変異は遺伝子の不安定性を引き起こし発がんにつながるとされる。この突然変異誘発にラジカルスカベンジャーが抑制的に働くことを証明した（文献 3)。表 2 に BNCT におけるラジカルスカベンジャーの防護効果を示す。Dimethyl sulfoxide (DMSO、化学式 (CH3)2SO)は細胞保存液

として用いられており、放射線照射で生じてくる短寿命ラジカル除去効果があるとされる。また、アスコルビン酸（別名：ビタミン C）は放射線照射で生じてくる長寿命ラジカル除去効果があるとされている。BNCT に用いている中性子の照射実験で、チャイニーズハムスター卵巣細胞(CHO-K1 細胞)の HPRT 遺伝子の突然変異発生頻度に対するラジカルスカベンジャーの防護効果はホウ素のない状態では、突然変異発生頻度についてはコントロールと比べて DMSO は 67%、アスコルビン酸は 33%と減少した。ホウ素 10 が 10ppm の存在下では、突然変異発生頻度は DMSO はコントロールと比べて 40%、アスコルビン酸は 20%であり、顕著な減少効果を認めた。これらの結果から長寿命ラジカルスカベンジャーにより BNCT による突然変異誘発の有害事象は効果的に減じることができると期待される。

表２、BNCT の中性子照射に誘発された CHO-K1 細胞 HPRT 遺伝子突然変異におけるラジカルスカベンジャーの防護効果

	B10 濃度 (ppm)	BNCT 中性子照射後 突然変異細胞数＊	BNCT +アスコルビン酸処理 突然変異細胞数	BNCT +DMSO 処理 突然変異細胞数
非照射群	^{10}B:0	0.4 ± 0.3	0.2 ± 0.2	0.2 ± 0.2
	^{10}B:10	0.4 ± 0.3	0.2 ± 0.2	0.2 ± 0.2
BNCT	^{10}B:0	6.0 ± 2.0	2.0 ± 1.0	4.0 ± 2.0
2G 照射	^{10}B:10	10.0 ± 4.0	2.0 ± 1.0	4.0 ± 2.0

＊突然変異細胞数/10 万個細胞

４．BNCT による DNA 損傷の特徴

電離放射線による細胞死の多くは DNA 二重鎖切断による。DNA 二重鎖切断の修復機構には Rad54、Rad51、Rad52 などが関与する相同組み換え(homologous recombination, HR)修復系と Ku70、Ku80、Rad52 などが関与する非相同組み換え(non-homologous end-joining, NHEJ)修復系の 2 種類の経路が存在する。HR 修復は相同配列を鋳型にした DNA 組み換えで
細胞周期の S,G2 期に起き、修復の精度が高いが修復頻度が低い。一方、NHEJ 修復は切断端同士の再結合で細胞周期に関係なく常に起きるため、ほとんどの DNA 二本鎖切断の修復をになう。高 LET 放射線では低 LET 放射線に比べて DNA 二本鎖切断の頻度が多いため NHEJ 修復の役割がより重要となる。

Ku80 の欠損により DNA 二本鎖切断の NHEJ 修復ができずに放射線に高感受性となったチャイニーズハムスター卵巣細胞(Xrs-5 細胞)の DNA 二本鎖切断の修復の特徴を把握することを目的に研究を行った(文献 4)。CHO-K1 細胞と Xrs-5 細胞の BNCT 中性子照射による殺細胞効果の違いを表３に示す。

表３、CHO-K1 細胞および Xrs-5 細胞における BNCT の中性子照射による殺細胞効果の比較

	CHO-K1 細胞		Xrs-５細胞	
	BPA 25ppm	Boric Acid 25ppm	BPA 25ppm	Boric Acid 25ppm
D10 Gy* BNCR	3.1 ± 0.2	2.9 ± 0.2	1.4 ± 0.1	1.1 ± 0.1
D10 Gy Gamma-ray	6.2 ± 0.3		2.0 ± 0.1	
RBE	2.0	2.1	1.8	1.4

*生存率が 10%となる線量（Gy）

ガンマ線照射では CHO-K1 細胞と Xrs-5 細胞の放射線感受性は Xrs-5 細胞が CHO 細胞に対して 3.1 倍感受性が高かった。中性子照射では Xrs-5 細胞は CHO-K1 細胞に対して BPA(boronophenylalanine、BNCT 時のホウ素薬剤)25ppm 存在下で 2.2 倍、ホウ酸 25ppm 存在下で 2.6 倍感受性が高い。また、RBE(生物学効果比：Relative biological effectiveness)は BPA 存在下で CHO-K1 細胞が 2.0 で Xrs-5 細胞が 1.8 であり、BNCT 時はガンマ線で高感受性であった Xrs-5 細胞と CHO-K1 細胞の放射線感受性の差が小さくなった。このことから、BNCT 治療は個人別の放射線感受性の差がエックス線治療よりも緩やかであることが示唆された。
さらに、CHO-K1 細胞と Xrs-5 細胞の BNCT 中性子照射による DNA 損傷・回復過程の違いを調べた。DNA 二重鎖切断に対する修復タンパク質 gammaH2AX や 53Bp1 などが同定され、蛍光抗体法を用いて顕微鏡下で細胞核内 gammaH2AX や 53Bp1 の集積部位（フォーカス）を経時的に観察し、フォーカス数の変化を解析することで放射線照射による DNA 二重鎖切断の修復の過程を調べることができる。CHO-K1 細胞と Xrs-5 細胞を用いて BNCT 中性子照射後の gammaH2AX フォーカス数の経時的変化を数えて中性子照射による DNA 二重鎖切断の修復の過程を調べた（図１）。

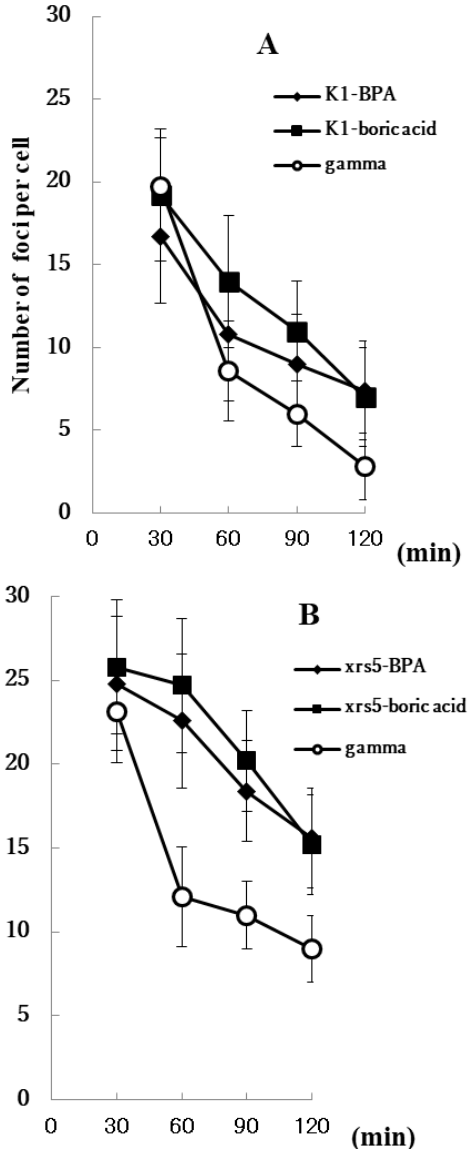


図１、中性子照射後の gammaH2AX フォーカス数の経時的変化　A; CHO-K1 細胞、B; Xrs-5 細胞

DNA 二重鎖切断部位の修復蛋白 gammaH2AX フォーカス数の減少は DNA 二重鎖切断が修復されたことを示している。両細胞ともにガンマ線に比べて中性子線照射時のほうがより修復が遅れていた。修復の遅延は NHEJ 修復ができない Xrs-5 細胞に顕著に認められた。

BNCT 治療患者の多くはすでにガンの標準治療として手術や放射線治療後に抗ガン剤を投与される症例がほとんどである。DNA アルキル化剤の抗ガン剤使用後は放射線と同様に NHEJ 修復能力が低下していると考えられる。NHEJ 修復ができない Xrs-5 細胞に修復の遅延が顕著であったことから、正常細胞の有害事象忌避のためには抗がん剤治療後直後や抗ガン剤併用の BNCT は避けるほうが望ましいと思われる。

５．研究成果のまとめ

BNCT 治療患者の血中リンパ球を用いた線量評価で、BNCT では全身被ばく線量が通常の X 線を用いた放射線治療に比べて５分の１程度となることを明らかにした。また、BNCT においてラジカルスカベンジャーが正常細胞について突然変異誘発作用に対して防護効果があることを証明した。さらに遺伝子発現型の異なる正常細胞を用いて中性子による DNA 損傷の特徴を明らかにした。

BNCT に関わる基礎的な研究を進めることで BNCT の治療効果向上に貢献することを目標として研究してきました。研究を進めるうえで多くの皆様に大変お世話になり感謝いたします。

参考文献

[1] Y. Kinashi, Y. Sakurai, S. Masunaga, M. Suzuki, K. Ono, J.Radiat.Res., 48, (2007) 197-204.

[2] 木梨友子，櫻井良憲，増永慎一郎，鈴木実，永田憲司，小野公二，日本放射線腫瘍学会誌 20, (2008) 23-28.

[3] Y. Kinashi, Y. Sakurai, S. Masunaga, M. Suzuki, K. Nagata, K. Ono, Appl.Radiat.and Isotopes 61, (2004) 929-932.

[4] Y. Kinashi, S. Takahashi, G. Kashino, R. Okayasu, S. Masunaga, M. Suzuki, K. Ono, Radiat. Oncol., 6, (2011) 10

Biology study for BNCT
Yuko Kinashi
kinashi.yuko.3r@.kyoto-u.ac.jp

(A-1)新規抽出剤を用いた硝酸溶液からのユーロピウムとテルビウムの溶媒抽出特性

（阪大院工、京大複合研[1]、日本原子力研究開発機構[2]）○池野将矢、加藤千図、福谷哲[1]、松村達郎[2]、藤井俊行

１. はじめに: 日本原子力研究開発機構(JAEA)では、原子力発電における使用済み燃料の分離変換技術の確立を目指しており、その一環として、新規抽出剤を用いてマイナーアクチノイド(MA)および希土類元素(REE)を抽出する手法が検討されている[1]。本研究では、MA と REE を一括回収する抽出剤として利用が検討されている *N,N,N′,N′*-tetradodecyldiglycolamide(TDdDGA)（図 1）を用いて、REE であるユーロピウム(Eu)とテルビウム(Tb)の抽出試験を実施した。また、蛍光分光法を用いて抽出錯体の構造変化が示唆できるため[2]、それを行うことで溶媒抽出特性を詳細に理解することを目的とした。

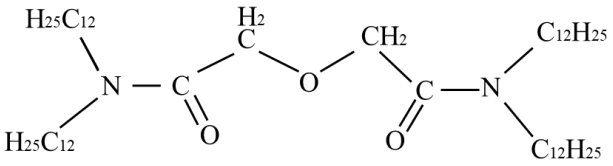


図 1　TDdDGA 構造式

２. 実験 : Eu もしくは Tb 1 ppm を含む 1.5 M 硝酸水溶液(水相)と TDdDGA 0.01～0.1 M を溶解したドデカン溶液(有機相)を混合し、抽出処理を行った後、遠心分離により相分離した。水相の Eu および Tb の濃度を誘導結合プラズマ四重極型質量分析計(ICP-QMS)を用いて測定し、分配比を求めた。分配比と抽出剤濃度の関係から、抽出反応式における抽出剤と被抽出元素との間の係数比を求めた。また、抽出後の有機相を採取し、有機相に形成された Eu - TDdDGA 錯体および Tb - TDdDGA 錯体の構造の抽出剤濃度に依存する変化を蛍光分光法を用いて調べた。

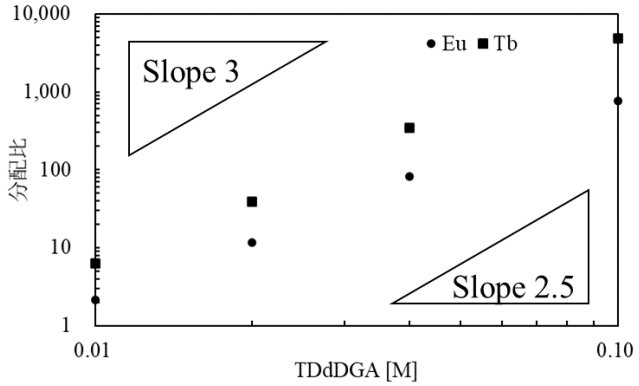


図 2 TDdDGA における Eu および Tb 分配比の抽出剤濃度依存性

３. 結果 : TDdDGA による Eu および Tb の抽出における分配比と抽出剤濃度との関係を図 2 に示す。両対数グラフ上の傾きが Eu では 2.5、Tb では 3 となった。この実験結果から、TDdDGA : Eu = 3 : 1、TDdDGA : Tb = 3 : 1 の錯体が形成されていることが示唆された。予想される抽出反応式は以下の通りである。

$Eu^{3+}+3NO_3^-+3TDdDGA \rightleftarrows Eu(NO_3)_3 \cdot 3TDdDGA$
$Tb^{3+}+3NO_3^-+3TDdDGA \rightleftarrows Tb(NO_3)_3 \cdot 3TDdDGA$

また、Tb - TDdDGA 錯体の各波長における蛍光強度を図 3 に示した。この結果から、今回の抽出剤濃度範囲内において、Eu 錯体の抽出剤濃度変化による錯体の構造の変化がないのに対して、Tb 錯体では抽出剤が高濃度の場合、錯体の構造が変化している可能性が示された。

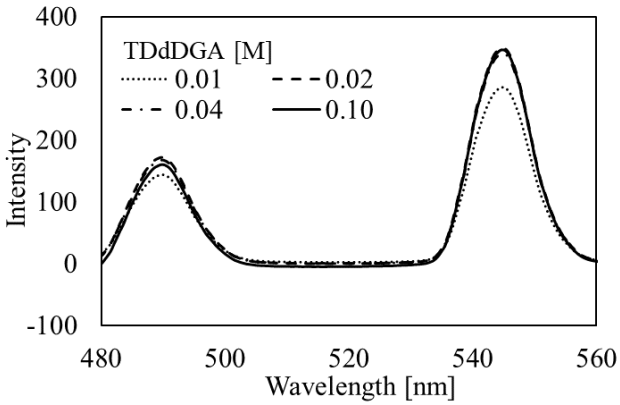


図 3 Tb - TDdDGA 錯体の蛍光スペクトル

参考文献

[1]日本原子力研究開発機構,"群分離及び MA 燃料製造/乾式再処理に関する技術開発の進捗状況",群分離・各玄関技術評価作業部会(2015)2-6.
[2] Richardson F. S., Chem. Rev., 82, (1982) 541-555

Solvent extraction characteristics of europium and terbium from nitric acid solutions using a novel extractant

Masaya Ikeno, Chizu Kato, Satoshi Fukutani, Tatsuro Matsumura, Toshiyuki Fujii,
ikeno@qc.see.eng.osaka-u.ac.jp

(A-2)岩石標準試料中のガリウム濃度

（阪大院工、京大複合研[1]）○加藤千図、福谷哲[1]、藤井俊行

１．はじめに：産業技術総合研究所地質調査総合センター(GSJ)が発行している岩石標準試料は、日本各地のさまざまな岩石種類を標準試料として制定し、公式な元素濃度値が発表されている[1]。この公式元素濃度値は地球化学の研究に用いられているが、全ての岩石標準試料中の元素濃度値が制定されておらず、今だ空白となっている元素濃度値の試料が多数ある。濃度が未制定の元素は地球化学的に微量元素が多く、これまではあまり必要性が高くなかった。しかし、近年分析装置の精度向上により、微量元素の高精度分析が可能となり、岩石標準試料の利用が高まっている。微量元素のうち、本研究ではガリウム(Ga)に着目する。ガリウムは地球の地殻中におよそ 18 ppm[2]存在し、50%凝縮温度は 968 K の揮発性元素である[3]。近年では地球岩石[4, 5]の他に隕石[6]や月試料[7]の分析が行われている。本研究では、Ga 濃度が未知の試料と公式値が発表されている試料中の Ga 濃度を測定した。

２．実験：本研究では、8 つの火成岩由来の岩石標準試料の JA-1a(安山岩)、JB-2a(玄武岩)、JB-3a(玄武岩)、JB-1b(玄武岩)、JF-1(長石)、JG-1(花崗閃緑岩)、JGb-1(はんれい岩)、JSy-1(閃長岩)を 0.1 g 秤量した。フッ酸と硝酸を加え、100℃のホットプレート上で 1 週間静置したのち、蒸発乾固し、塩酸を加え再度ホットプレート上で 3 日間静置し溶解した。試料を京都大学複合原子力科学研究所の誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-OES)を用いて Ga 濃度測定を行った。

３．結果と考察：試料中の Ga 濃度は以下のとおりであった。JA-1a: 27 ppm、JB-2a: 27 ppm、JB-3a: 32 ppm、JB-1b: 26 ppm、JF-1: 31 ppm、JG-1: 31 ppm、JGb-1: 32 ppm、JSy-1: 37 ppm。このうち、JA-1a、JB-2a、JB-3a、JB-1b は初めて Ga 濃度が測定された試料である。公式値が制定されている試料と本研究の結果を比較すると、全ての試料において本研究での Ga 濃度が高い結果が得られた。今後は ICP-MS など他の分析方法を用いた測定や複数回、独立したバッチを分析することでより精度が高い値を求めていく。

参考文献
[1] N. Imai *et al.*, Geostand. newsl., **19** (1995) 135-213.
[2] H. Palme and H. St. C. O'Neill, in *Treatise on Geochemistry*, edited by A. M. Davis (Elsevier Press, New York, 2003), Vol 2.
[3] K. Lodders, Astrophys. J., **591** (2003) 1220-1247.
[4] C. Kato *et al.* Chem. Geol. **448** (2017) 164-172.
[5] Y. Zhang *et al*., Geosci. Front. **12** (2021) 101137.
[6] C. Kato and F. Moynier, Earth Planet. Sci. Lett. **479** (2017) 330-339.
[7] C. Kato and F. Moynier, Sci, Adv. **3** (2017) e1700571.

Gallium concentrations in GSJ standard materials
Chizu Kato, Satoshi Fukutani, Toshiyuki Fujii
chizu@see.eng.osaka-u.ac.jp

(A-3)X 線小角散乱法を用いた潤滑油添加剤分子の構造解析

（京大院工，出光興産[1]，京大複合研[2]）○平山朋子，南保壮平，山下直輝，高嶋頼由[1]，
佐藤信浩[2]，杉山正明[2]

１．はじめに：摺動面の摩擦損失を低減するには低粘度な潤滑油を用いることが有効であるが，低粘度な潤滑油を用いると高温時に摺動面が境界潤滑状態に遷移しやすい．そのためエンジン油のように広い温度域で使用される潤滑油の場合，温度変化に伴う潤滑油の粘度変化が小さいことが望ましく，粘度指数向上剤(VII)と呼ばれる高分子が添加される．

基油中での VII の構造が潤滑油の粘度特性に影響するが，潤滑油の開発の際に VII の構造を一つ一つ解析することは困難である．さらに，実際に基油中での VII の構造を解析した研究は少なく，VII の基油への溶解性と基油中での構造との関係は不明瞭である．そこで本研究では複数の基油に VII を溶解して基油中での VII の構造を解析するとともに，VII の基油への溶解性を Hansen 溶解度パラメータで評価することで，VII の基油中での構造と基油への溶解性の関係を調査した．

２．実験：本研究では Comb PMA と呼ばれる VII 分子を対象として，基油中での構造と基油への溶解性の関係を調査することとした．溶媒には，トリ-n-デシルアミン，トリドデシルアミン，スクアラン，トルエン，テトラヒドロフランの 5 種を選定した．それぞれに Comb PMA を質量パーセント濃度で 2%となるように溶かし，各溶媒中の Comb PMA を SAXS 測定した．SAXS 測定には京都大学複合原子力科学研究所の Cu 線源 X 線小角散乱装置（NANOPIX, RIGAKU）を使用し，温度は 25℃とした．また，Comb PMA の溶媒への溶解性の評価には Hansen 溶解度パラメータ（HSP 値）を用いた．HSP 値は溶解度パラメータ（SP 値）を London 分散力項，双極子間力項，水素結合力項の 3 つに分割し，SP 値では考慮できない極性を考慮できるようにしたものである．

３．SAXS による構造解析：SAXS 測定によって得られた散乱プロファイルを Fig. 1 に示す．トリ-n-デシルアミン，トリドデシルアミン，スクアラン中の Comb PMA の散乱プロファイルが同傾向であり，トルエン，テトラヒドロフラン中ではそれとは異なっていた．Fig. 1 を解析することで，トリ-n-デシルアミン，トリドデシルアミン，スクアラン中では Comb PMA は収縮しており，トルエン，テトラヒドロフラン中では Comb PMA は広がっていることが分かった．

４．HSP 値を用いた溶解性評価：Comb PMA と各溶媒の HSP 距離を算出したところ，HSP 距離が短い方から，トルエン＜トリ-n-デシルアミン＜トリドデシルアミン＜スクアラン＜テトラヒドロフランの順になった．しかしながら，SAXS による構造解析ではトルエン中とテトラヒドロフラン中で Comb PMA は広がっており，溶解性の高い溶媒中で分子が広がり，溶解性の低い溶媒中で収縮するという一般的な関係が成立しなかった．この理由として，Comb PMA の主鎖と側鎖の溶媒への溶解性の違いが Comb PMA の溶媒中での構造に影響していることが考えられる．Comb PMA の HSP 値は，34 種類の溶媒に対する溶解試験により求めた．この方法では Comb PMA の主鎖と側鎖のどちらの溶解性が Comb PMA 自体の溶解性を決定づけているか判別できない．また，今回使用した Comb PMA は汎用的な PMA に比べて側鎖は長いが，主鎖は側鎖の 25 倍以上の長さがあるため，SAXS 測定による構造解析は主鎖の構造を主に反映した結果であると考えられる．

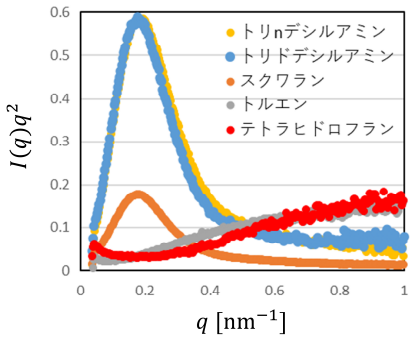


Fig.1 Kratky plots of Comb PMA in various oils

そこで，Comb PMA を主鎖と側鎖に分けてそれぞれの HSP 値を求めることにした．主鎖のモデルとしてポリメチルメタクリレートを，側鎖のモデルとしてポリエチレンを採用し，HSP 値はデータベースの値を用いた．その結果，Comb PMA は，それを添加する基油への溶解性の違いによって構造が以下のようになることが分かった．①主鎖の溶解性が低く，側鎖の溶解性が高い基油中では Comb PMA 分子は主鎖が収縮し，側鎖が広がっている．②主鎖と側鎖の溶解性がともに高い基油中では主鎖も側鎖も広がっている．③主鎖の溶解性が低くてもそれ以上に側鎖の溶解性が低い基油中では，側鎖が収縮することで主鎖の収縮が妨げられる．

加えて，各純溶媒および Comb PMA を加えた溶液の粘度指数を調べたところ，Comb PMA の主鎖が 25℃において収縮していた溶媒で顕著な粘度指数向上効果が見られた．

Structural Analysis of Additive in Lubricants by Means of Small Angle X-ray Scattering
Tomoko Hirayama, Sohei Nambo, Naoki Yamashita, Yoriyuki Takashima, Nobuhiro Sato, Masaaki Sugiyama
tomoko@me.kyoto-u.ac.jp

(A-4)ガンマビーム誘起陽電子測定によるバルク金属中での照射欠陥と水素相互作用に関する研究

（阪公大院工[1]、京大複合研[2]、分子研[3]） ○荒木翔太[1]、平山翔太[1]、徐虬[2]、平義隆[3]、堀史説[1]

1.はじめに:

構造材料はその強度において、応力や腐食など様々な環境負荷にさらされ特性が変化する。このような変化過程における材料中の原子レベルでの変化を非破壊で直接確認することは非常に困難なことから結果として生じた変化からその動的挙動についての推測が行われてきた。このような微視的欠陥発生とその変化過程を非破壊かつバルク状態のままで評価できる手法はこれまでなかった。近年開発された高エネルギーガンマ線誘起陽電子測定ではバルク材料に1.02MeV 以上のガンマ線を入射することで材料中に陽電子を生成しその消滅信号を検出することでバルクの非破壊陽電子消滅測定（GiPS）が可能となった。我々はこの手法を利用し、応力環境下での鉄中の空孔型欠陥と水素との相互作用の動的挙動についての知見を得るために、電子線で欠陥を導入した鉄を応力付加過程で GiPS その場測定を行った。

2.実験:

試料は厚さ 3mm の純鉄(99.99%)を JIS 規格の引張り試験片形状に加工し、内部の残留欠陥を取り除くため真空中 800℃で 2 時間の焼鈍を行った。これらの一部の試料に対し京都大学複合原子力研究所の電子線加速器(LINAC)により 8MeV の電子を 2×10^{18} /cm² まで照射し空孔を導入した。さらに、照射、未照射の各試料に水素導入のために 20mass%チオシアン酸アンモニウム水溶液に 45℃で 14 日間浸漬した。これらの試料に対し、分子科学研究所極端紫外光施設(UVSOR)の BL1U にて応力付加した状態で陽電子寿命その場測定を行った。この装置は直径 3 mm の 6.6 MeV ガンマビームを試料に直接入射することにより試料内で陽電子を対生成し寿命測定する。ビームライン上に応力負荷装置を配置し初期応力を付加後の応力緩和の時間経過を測定しながら同時に陽電子寿命測定を行った。応力は降伏応力 98MPa[1]以下の 88MPa を付加し、6 時間測定した。陽電子寿命は数 10 分ごとのセグメントでデータを分割し、PALSfit を用いて経時変化解析を行った。

3.結果

無負荷の純鉄および電子線照射鉄の陽電子消滅寿命はそれぞれ 109 ps と 127 ps であった。前者は鉄マトリクスの寿命と一致し、後者はさらに 2 成分解析で単空孔を示す 169ps の成分が 28%得られたことから、バルク全体の平均で数 10 at.ppm の照射による空孔導入が確認できた[2]。一方、電子線照射後に水素導入した試料は 2 成分解析で単空孔よりも低い値である 157 ps が 22%と示し、これは空孔内に水素が捕獲されたためと考えられる。

次に、応力付加直後の陽電子寿命を比較する。水素未導入と導入試料に降伏点の 90%の 88 MPa の応力をかけた直後、水素未導入試料は 2 成分解析で長寿命成分の 197 ps が 10%、水素注入試料は 202 ps が 13%を示した。この結果から降伏点以下の応力付加により空孔が発生しているが、水素を含む場合の方がわずかに空孔の成長が確認された。

図 1 に緩和後の変化を示す。応力は水素導入試料、空孔と水素導入試料の 3 試料共に応力緩和量が大きく異なっていた。水素のみ導入で緩和量が低下し、さらにこれに水素が加わることでより応力緩和が起こりにくくなっていた。陽電子寿命も応力変化と同様に平均値の変化が試料によって差が見られ、時間経過とともに純鉄、水素導入、水素と空孔導入試料の順に寿命値が高い値で変化する結果となった。陽電子寿命値が高いほど空孔型欠陥形成が促進されていると考えると、水素だけでなく空孔と水素を両方入れた方が高い寿命値を示しておりさらに多くの空孔が発生していると考えられる。このことは応力緩和のための転位が移動しにくいことと併せて考えると、水素捕獲した空孔が転位の移動を強く阻害し、その結果応力を緩和するために空孔が形成した可能性が考えられる。その後の緩和挙動についてはわずかに寿命値が低下する傾向にあるが、大きな変化は観察されなかった。

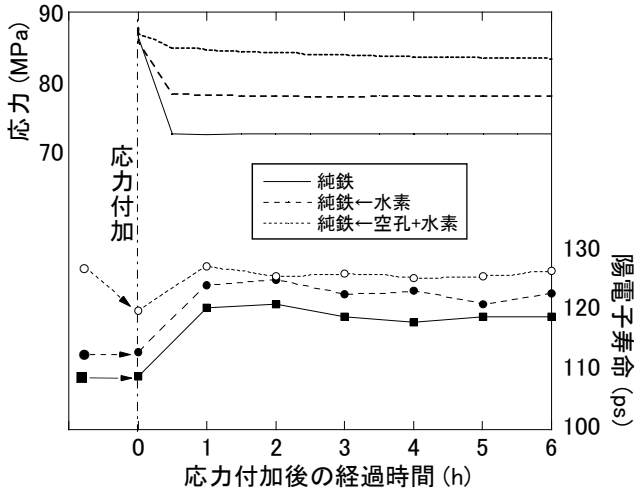


図 1. 応力と陽電子寿命の時間変化

4.参考文献

[1] S.Takaki,フジコー技法-tsukuru,25(2017)
[2]A.Vehanea, J.Yli-Kauppila,J.Nucl.Mater.114(1983)

Interaction between radiation induced defects and hydrogen in bulk metals by using Gamma beam induced Positron Spectroscopy

S.Araki, X.Qiu, Y.Taira and F.Hori
sbb01005@st.osakafu-u.ac.jp

(A-5)超薄多層膜と中性子集光ミラー開発の現状

（京大、東大[1]、理研[2]、高エネ機構[3]）○日野正裕、吉永尚生、中村吏一朗、小田達郎[1]、細畠拓也[2]、竹田真宏[2]、山形豊[2]、遠藤仁[3]

○はじめに

中性子ビーム利用は、生命・物質科学研究から高エネルギー物理研究、産業利用まで多岐にわたるが、その大多数は、熱中性子や冷中性子といった、低速中性子ビームの利用である。近年、J-PARC をはじめ米国の SNS やスェーデンのルンドで建設中の ESS 等、大規模なパルス中性子源施設が建設され、その利用が活況になっている。また理化学研究所の RANS 等、比較的小型の加速器による中性子源開発等の利用も進んでいる。一方、KUR は非常に優れた中性子源であるが、使用済み燃料の返還期限の問題から、2026 年 5 月で停止することが決まった。しかし福井県敦賀市の「もんじゅサイト」において、中性子ビーム利用を主目的とした熱出力 10MW 新試験研究炉の設置計画が KUR の後継も意識して進行している。ここで低速中性子を曲げ（反射）、より高い効率で試料まで導き、さらに偏極等の中性子スピンを制御するデバイスとして、多層膜中性子ミラーは非常に重要な位置を占めており、多層膜中性子ミラーをはじめとする中性子光学素子開発の高度化は、依然重要な開発課題となっている、

○より大きな反射角を持つ多層膜中性子ミラー

多層膜中性子ミラーは中性子のポテンシャルの大きく異なる 2 種類の物質の対層(周期 *d*)で構成される。*d* を少しずつ変えながら積層することで、波長分布を制御した中性子モノクロメータや、幅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、低速中性子ビーム輸送に必須なデバイスとなっている。なお中性子スピンのポテンシャルマッチングをした磁気多層膜は、片方のスピンのみを反射する偏極ミラーとして利用できる。

薄膜の反射率は散乱角の 4 乗に比例して減少するため、*d* が薄く反射率も高い多層膜中性子ミラーは平滑でかつ界面がシャープな各膜を有するだけではなく、莫大な層数も必要となる。京大複合研では、イオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)を用いて、*d* =2.9nm でワイドバンドかつ高反射率な多層膜中性子ミラーの開発に成功し、J-PARC MLF BL05（NOP）の超冷中性子発生用ドップラーシフタのキーデバイスとして利用されている。より薄くかつ限界を目指して、かつ今後のドップラーシフタの高度化も念頭に、*d* =2nm でワイドバンドかつ高反射率の多層膜ミラー開発に成功した。ここで重要な点は中性子導管等にも利用可能な大面積成膜の条件で成功した点である[1]。

Fig.1 に *d* を 2nm から 2.2nm までスーパーミラー的に変化させつつ全 1680 層の成膜をして、ワイドバンドで反射すること目指した多層膜中性子ミラーの反射率を示す。測定は日本原子力研究開発機構の JRR-3 の C3-1-2 ポート(MINE)の反射率計で行った。得られた中心の *d* は 2.03nm であり、約 1.5%の反射率が得られている。ここで理想的な反射率でも 8%程度であり、シリコン基板の粗さ 0.4nm 程度を考慮した場合の反射率とおおよそ一致しており、界面拡散や粗さの成長が抑えられていること。またこのミラーをスタックすることで 8%以上の反射率が得られた。さらに、層数が 5 倍の 8400 層の結果等と合わせて紹介する。

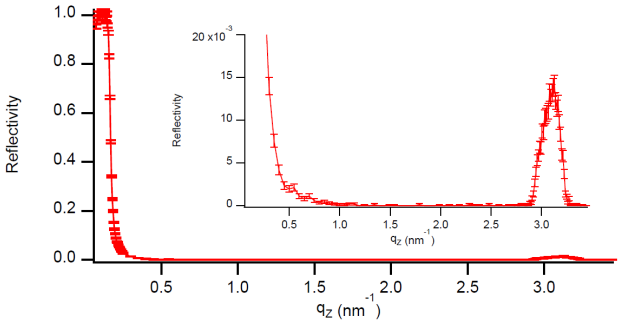


Fig.1:C3-1-2 MINE における *d*=2nm NiC/Ti 多層膜の反射率。挿入している図は縦軸の最大を 2%とした図

○金属基板による中性子集光ミラー開発

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 0.3nm 程度以下に抑える必要がある。この制約のため金属基板の使用が難しかったが、我々は無電解ニッケルメッキを用いることで、表面粗さ 0.1nm 程度まで実現、この問題を完全に解決した[2,3]。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り、劇的な製作期間短縮とコスト削減が可能となる。また耐放射線にも優れ、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、今までの低速中性子輸送を根本的に変えられる可能性がある。もんじゅサイト新試験研究炉での実用を目指して、こちらの開発状況の現状も報告する。

[1] M.Hino, et al., Nucl.Inst.Meth. A 529 (2004) 54
[2] T.Hosobata, et al., Optics Express, 27(2019)26807.
[3] N.L.Yamada, et al., J. Appl. Cryst. (2020) 53.

Development of very small *d*-spacing multilayers and neutron focusing supermirrors

Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Riichiro Nakamura, Hisao Yoshinaga, Takuya Hosobata,Masahiro Takeda, Yutaka Yamagata, Hitoshi Endo
hino@rri.kyoto-u.ac.jp

(A-6)BeO 光刺激ルミネセンス線量計を用いた BNCT 照射場中の γ 線線量評価

（京大院工、京大複合研[1]、住友重機械[2]）○松林錦、高田卓志[1]、呼尚徳[1]、笹木彬礼、武川哲也[2]、菅啓大[2]、櫻井良憲[1]、田中浩基[1]

１．はじめに：ホウ素中性子捕捉療法（BNCT）は、ホウ素化合物が集積した腫瘍組織に中性子を照射し、核反応により生じた荷電粒子により腫瘍細胞を選択的に破壊できる放射線治療である。BNCT における中性子照射場は中性子と γ 線が高強度に混在するため、治療効果や安全性の品質保証（QA）を目的として、水ファントム中の熱中性子束および γ 線線量を定期的に測定している。これまでの γ 線線量測定には、石英ガラスに BeO 粉末を封入した熱ルミネッセンス線量計（TLD）（Panasonic, UD-170LS）を使用してきたが、現在生産中止となり新たな手法の検討が急務である。本研究では、BeO セラミックの光刺激ルミネッセンス線量計（OSLD）に着目し、BNCT 照射場における OSLD の特性を評価した。本発表では、特性試験によって得られた OSLD の特性を TLD と比較し、線量値の線形性や熱中性子束による線量値への影響（熱中性子感度）について述べる。

２．方法：本研究で使用した OSLD は、myOSLchip（Freiberg Instruments, Germany）であり、4.65×4.65×0.5 mm^3 の BeO セラミックが ABS 樹脂ケースに挿入されたものである。本研究では、低線量(LD)と高線量(HD)に対応した 2 種類の素子を使用した。まず、OSLD から得られる読み値（OSL 値）と線量値を値付けするため、^{60}Co γ 線線源を用いて照射試験を行った。OSLD はビルドアップのために 5 mm 厚のテフロン板で周囲を囲み、線源から 150 cm 離した位置に設置した。γ 線の線量率は OSLD と同じ位置に設置した電離箱により測定し、照射時間を調整することで、150, 300, 450 mGy と照射線量を変化させて測定を行った。

BNCT 照射場は京都大学研究用原子炉の重水中性子照射設備(KUR-HWNIF)を使用し、ビーム上流側に設置された Cd 製シャッターの開口度を変化させることで、熱中性子束を変化させながら照射を行った[1]。ビーム中心軸上にテフロン板で囲んだ OSLD を設置し、開口度 200, 300, 600 mm において、γ 線線量を評価した。OSLD と同様な条件で照射した TLD は、熱中性子補正を行った線量(TLD cor.) と補正しなかった線量 (TLD not cor.) を評価した [2]。本研究では、各素子と同じ位置に金箔を設置し、放射化法により熱中性子フラックスを測定した。また、KUR-HWNIF の中性子強度変化による影響を除去するため、各素子で得られた γ 線線量を熱中性子フラックスで割ることで、比較を行った。

３．結果：^{60}Co 線源による実験結果を Fig. 1 に示す。横軸を照射線量、縦軸を OSL 値とした。LD も HD も照射線量に対して良い線形性を示し、TLD と同等な精度で γ 線線量評価できることが分かった。BNCT 照射場において、Cd 製シャッター開口度ごとの OSLD と TLD により得られた γ 線線量を Fig. 2 に示す。TLD not cor.と比較することで、OSLD が TLD よりも熱中性子感度が小さいことがわかる。また Fig. 2 の結果から、TLD cor.が熱中性子の寄与を除去した γ 線線量と仮定することで、OSLD の熱中性子感度を 3.6±0.9×10-14 Gy cm^2 と導出した。

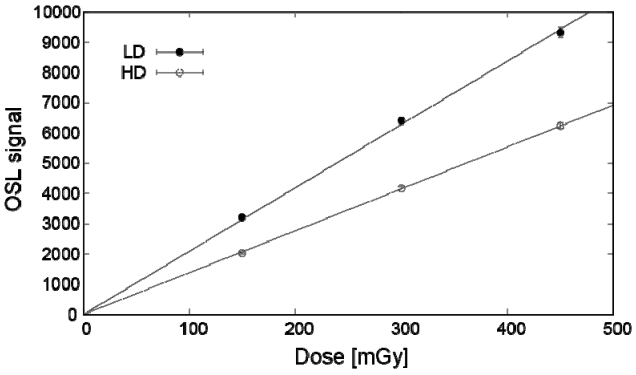


Fig. 1. The relationship between OSL signal and the γ-ray dose at ^{60}Co γ-ray source.

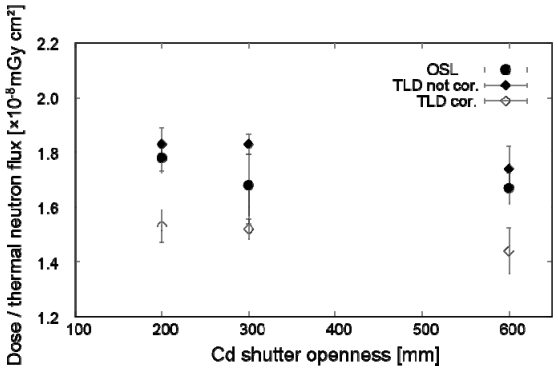


Fig. 2 The relationship between γ-ray dose and Cd shutter openness at KUR-HWNIF.

参考文献
[1] Y. Sakurai, T. Kobayashi, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 453 (3) (2000), 569–596.
[2] K. Yamamoto, H. Kumada, Y. Torii, T. Kishi, T. Yamamoto, A. Matsumura, Res. Dev. Neutron Capture Ther. 2002, 499-503.

Gamma dose evaluation method with BeO OSLD in BNCT

Nishiki Matsubayashi, Takushi Takata, Naonori Ko, Akihiro Sasaki, Tetsuya Mukawa, Keita Suga, Yoshinori Sakurai, Hiroki Tanaka.
matsubayashi.nishiki.24w@st.kyoto-u.ac.jp

(A-7)板状燃料要素内気液二相流ボイド率の予測研究

（京大複合研、香港城市大学[1]）○沈秀中、山本俊弘、中島健、日引俊詞[1]

１．はじめに：板状燃料要素を使用する研究用原子炉の炉心熱水力設計及び安全評価においては、狭間隙・高アスペクト比の垂直矩形流路内気液二相流のボイド率を含む流動特性の把握が重要である。ボイド率（$\langle\alpha\rangle$）予測では一般的に次の一次元ドリフトフラックスモデルが使われている。

$$\langle\alpha\rangle = \langle j_g\rangle / [C_0(\langle j_g\rangle + \langle j_f\rangle) + \langle\langle v_{gj}\rangle\rangle] \quad (1)$$

ここで、$\langle j_g\rangle$、$\langle j_f\rangle$、C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$はそれぞれ気相見掛け速度、液相見掛け速度、分布パラメーターとドリフト速度である。このモデルを完結するために、相・速度分布の不均一性を表すC_0と気液の局所スリップによる相間速度差を表す$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$の構成式を流路構造毎に開発する必要がある。既存垂直矩形流路用 C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$構成式は狭い流動範囲の実験データに基づいて作ったものであり、流動様式に依存する。本研究では既存垂直狭間隙矩形管上昇気液二相流内広範囲のボイド率実験データを収集し、全流動領域に適用可能な C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$構成式を開発・検証した。

２．ボイド率データベース：本研究で収集したボイド率データは垂直狭間隙矩形管(間隔 s=0.993~20mm)内で測定した断面平均ボイド率である[1]。そのデータの総数は1758点で､圧力範囲は0.100~4.24 MPaで、二相流速範囲は$\langle j_f\rangle$=0.00~4.73 m/s と$\langle j_g\rangle$=0.00535~15.9 m/s で、ボイド率範囲は 0.00707~0.853 である。

３．C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$構成式の開発と検証：$C_0$ と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$は上昇気液二相流を一次元的に扱った際に相分布と気液二相運動の不均一性により生じたものである。C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$構成式の開発には､気相密度($\rho_g$)と液相密度($\rho_f$)の比($\rho_g/\rho_f$)、狭間隙矩形管間隔($s$)と断面幅($w$)及び局所流動条件($\langle j_g\rangle$と$\langle j_f\rangle$)の効果を考慮する必要がある。<u>$\rho_g/\rho_f$効果</u>は、$\rho_g/\rho_f$=1 と 0 の極端な状況を考えてモデリングする。ρ_g/ρ_f=1 は熱力学的臨界状態で起こる沸騰気液二相流である。二相間の密度差と速度差が消失し、均一流になるので C_0=1 及び$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$=0 m/s。$\rho_g/\rho_f$=0 は二相密度差が非常に大きい二相流である。その場合、密度差駆動浮力から生じる二相流特徴が最大化し、相分布と二相運動の不均一も最大化するので、C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$はそれぞれの最大値 $C_{0\infty}$と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle_\infty$に達する。この効果は次の内挿式で表される。

$$C_0 = C_{0\infty}\,[1 - (\rho_g/\rho_g)^{A_1}] + (\rho_g/\rho_g)^{A_1} \quad (2)$$

$$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle = \langle\langle v_{gj}\rangle\rangle_\infty\,[1 - (\rho_g/\rho_g)^{B_1}] \quad (3)$$

ここで、A_1 と B_1 は実験データ決定の定数である。狭間隙矩形管の s と w が増加すると、水力等価直径、流れのレイノルズ数と乱流が増加するので、流れがよく混合され、より均一に分布される。従って、C_0 は s と w の増加と共に減少する。この<u>s と w の効果</u>は次式で表すことができる。

$$C_{0\infty} \propto 1 + 1/(A_2 s^* + A_3 w^*) \quad (4)$$

ここで、$s^*(= s/\sqrt{\frac{\sigma}{g(\rho_f-\rho_g)}})$と $w^*(= w/\sqrt{\frac{\sigma}{g(\rho_f-\rho_g)}})$はそれぞれ無次元流路間隔と断面幅で、$A_2$ と A_3 は実験データ決定の定数である。σ と g はそれぞれ表面張力と重力加速度である。一方、狭間隙矩形管の s と w が増加すると、気泡が大きく成長できるため$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$が増加する。この効果は次式で表示できる。

$$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle_\infty \propto \sqrt{g/(B_2/s + B_3/w)} \quad (5)$$

ここで、B_2 と B_3 は実験データ決定の定数である。<u>局所流動条件の効果</u>は、$\langle j_g\rangle$=0 m/s 又は$\langle j_f\rangle\approx\infty$ m/s の単相液相と$\langle j_g\rangle\approx\infty$ m/s の単相気相の両極端な状況を考えてモデリングする。単相液相と単相気相を全部均一流と見なせるので、単相液相と単相気相の C_0=1 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$=0m/s。この効果は次式で反映できる。

$$C_{0\infty} \propto 1 + \langle j_g^+\rangle^{A_4} / \left(A_5\langle j_g^+\rangle^{A_6} + A_7\langle j_f^+\rangle^{A_8}\right) \quad (6)$$

$$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle_\infty \propto \langle j_g^+\rangle^{B_4} / \left(B_5\langle j_g^+\rangle^{B_6} + B_7\langle j_f^+\rangle^{B_8}\right) \quad (7)$$

ここで、$\langle j_g^+\rangle\left(= \langle j_g\rangle/\left[\sigma g(\rho_f-\rho_g)/\rho_f^2\right]^{0.25}\right)$と$\langle j_f^+\rangle\left(= \langle j_f\rangle/\left[\sigma g(\rho_f-\rho_g)/\rho_f^2\right]^{0.25}\right)$はそれぞれ無次元気相と液相見掛け速度で、$A_4$ ~A_8 と B_4 ~B_8 は実験データ決定の定数である。単相気相流の C_0=1 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$=0 m/s を満たすために、$A_4$ <A_6 と B_4 <B_6 が要求される。

本研究で収集したボイド率実験データと以上のモデルの統合式で予測したボイド率の間の誤差を最小にするような最適化方法を使用して、以上の 16 定数(A_1 ~A_8 と B_1 ~B_8)を決定し、最終的に C_0 と$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle$構成式は次のように得られた。

$$C_0 = \left(1 + \frac{\langle j_g^+\rangle^{3.45}}{3.21\langle j_g^+\rangle^{3.52} + 0.0000514\langle j_f^+\rangle^{6.27}}\right)\left(1 + \frac{1}{0.179s^* + 5.76w^*}\right)\left[1 - \left(\rho_g/\rho_f\right)^{4.75}\right] + \left(\rho_g/\rho_f\right)^{4.75} \quad (8)$$

$$\langle\langle v_{gj}\rangle\rangle = \frac{\langle j_g^+\rangle^{4.30}}{1.97\langle j_g^+\rangle^{4.32} + 0.200\langle j_f^+\rangle^{3.04}}\sqrt{\frac{g}{\frac{0.101}{s} + \frac{0.778}{w}}}\left[1 - \left(\frac{\rho_g}{\rho_f}\right)^{1.59}\right] \quad (9)$$

以上の新モデルの予測ボイド率は Fig.1 のように実験データとよく一致している。全実験データに対して、新モデルの予測平均誤差は±13.1%である。

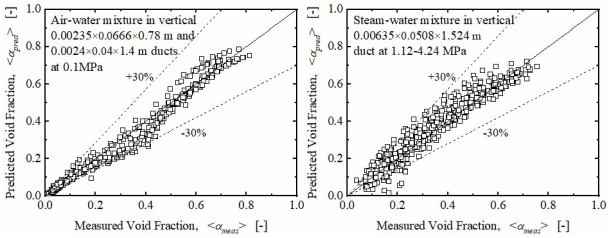


Fig.1 Experimental and predicted data comparison

４．結果：板状燃料要素内狭間隙矩形管用ドリフトフラックスモデルを新しく開発・検証した。

参考文献

[1] V. Chalgeri *et al.*, Int. J. Heat Mass Transfer, **132** (2019) 802-816.

Void fraction prediction for gas-liquid two-phase flow in plate-type fuel assembly

Xiuzhong Shen, Toshihiro Yamamoto, Ken Nakajima, Takashi Hibiki
shen.xiuzhong.5v@kyoto-u.ac.jp

(A-8)原子炉、線形加速器、および放射光を用いた多元素メスバウアー分光の現状と産業利用に向けた取組

（京大複合研、京大理[1]、京大環境安全[2]、弘前大理工[3]）○北尾真司、小林康浩、黒葛真行、瀬戸誠、田嶋寛介[1]、山下拓之[1]、太田英寿[1]、窪田卓見[2]、増田亮[3]

１．はじめに：

メスバウアー分光は、原子核準位のガンマ線共鳴吸収(メスバウアー効果)を用いた分光法で、特定の元素の電子状態を抽出できることから、さまざまな分野において分析手法として用いられている。メスバウアー効果を生じる原子核準位は、100 種類以上が知られているが、一般には、密封放射性線源が入手可能なごく一部の核種（^{57}Fe, ^{119}Sn, ^{151}Eu）に限られている。一方、本研究所では、研究炉(KUR)による中性子照射や電子線形加速器(LINAC)の利用により短寿命線源を生成して、多様な非密封放射性同位元素の取り扱いができることから、多元素のメスバウアー分光の確立に取り組んできた。しかしながら、KURの運転は2026年5月に停止することが決まっており、その後も共同研究の継続的な展開するための取組を進める必要がある。本発表においては、本研究所のメスバウアー分光の現状と取組について報告する。

２．KURを用いたメスバウアー分光核種の開発：

本研究所では KUR 照射による(n,γ) 反応を用いた線源の作成手法の確立に取組み、特に、^{125}Te、^{129}I、^{197}Au メスバウアー分光において、多くの共同利用を実施してきた。さらに、近年は、^{61}Ni、 ^{161}Dy、^{166}Er、^{169}Tm、^{170}Yb などのメスバウアー線源開発を行い、実用可能な核種を増加させてきた。線源開発においては、メスバウアースペクトルが単純なシングルラインになる化合物であることが要求されるが、スペクトルの線幅が狭く、無反跳分率(メスバウアー効果の生じる割合)の大きいものが望ましいため、適切な線源化合物を用意する必要がある。さらに吸収体についてもシングルラインを生じる化合物を用意しておく必要がある。これはメスバウアー線源がシングルラインであることを確認するために必要であるほか、線源を測定試料として用いる場合の吸収体として使用される。例えば、^{166}Er のメスバウアー分光については、$HoAl_2$線源では低温での線幅増大のため 40K 以下に冷却することができなかったが、$Ho_{0.4}Y_{0.6}H_2$を用いることで低温でも使用可能となった。これと同様の手法でシングルライン吸収体 ErH_2 を合成し、$Ho_{0.4}Y_{0.6}H_2$が低温でシングルライン線源として利用できることを実証した。このように、希土類化合物では、水素化物や、フッ化物、アルミニウム合金などがシングルライン線源・吸収体として利用できることが多いが、その合成手法は、他の希土類化合物合成への応用が可能である。従って、これらの線源開発の手法は、他のメスバウアー核種においても類似の化合物開発に生かすことができる。これをもとに、KUR 停止後にも実施可能な実験のための化合物合成手法に向けた開発を継続中である。

３．LINACを用いたメスバウアー分光核種の開発：

本研究所の LINAC は KUR 停止後も使用可能であるため、これを用いた線源開発にも取り組んできた。LINAC は、電子線を Pt ターゲットに照射して高エネルギーのガンマ線を発生させ、(γ,n)、(γ,p) などの反応を用いることで線源生成に利用可能である。現状では、^{61}Ni メスバウアー分光において実用実験が可能であり、共同利用を実施している。その他、KUR停止後に代替する手法としての線源作成も行っており、実用化に向けた開発を進めている。

４．放射光メスバウアー吸収分光法の開発：

メスバウアー線源として、放射性核種からのガンマ線を利用する代わりに、SPring-8 などの放射光施設のＸ線を用いた実験手法の開発を行い、すでに多くの研究を行ってきた。近年、^{57}Fe, ^{119}Sn の他、^{151}Eu, ^{161}Dy, ^{61}Ni, ^{174}Yb などの多くの核種の実験が実施されている。この手法においてもシングルピークの基準物質が必要であり、放射線源の実験で開発したシングルピーク吸収体を使用することができる。放射光施設の実験では放射線源の実験とは実験技術が異なるため、本研究室との共同研究として実施する課題も多く、本研究室が放射光施設のメスバウアー利用を推進するための一翼を担っており、多くの共同研究を展開している。

５．産業利用に向けた取組：

メスバウアー分光は素材開発や材料評価など、幅広い産業利用の分野において活用できるが、一般企業の利用実績は多くないのが現状である。KUR 停止後においても引き続き共同研究を維持し拡大することを念頭に利用者を拡大する必要があり、その一つの取組として、一般企業とのメスバウアー分光の共同研究拡大に向けた取組を進めてきた。昨年度に京都大学学内ファンド(SPIRITS 産官学共創型)において「多元素メスバウアー分光法の産業利用の推進」が採択されたこともあり、メスバウアー産業利用研究会の立上げ、京大テックフォーラムでの一般企業向け講演、関連分野を選定した企業向けアンケート送付によるニーズ調査の実施などの取組を実施した。このような取組を産業利用に向けた足掛かりとして、さらなる今後の活動を展開できると期待できる。

Present Status and Approach for Industrial Application of Various-Element Mössbauer Spectroscopy using KUR, LINAC and Synchrotron Radiation

Shinji Kitao, Yasuhiro Kobayashi, Masayuki Kurokuzu, Makoto Seto, Hiroyuki Tajima, Hiroyuki Yamashita, Hidetoshi Ota, Takumi Kubota, Ryo Masuda
kitao@rri.kyoto-u.ac.jp

(B-1)オルトバナジン酸ナトリウム溶液中のバナジウムイオンの酸化還元挙動

（阪大院工、量研[1]、阪大工[2]）○横山裕己、上原章寛[1]、和田直也、杉山廉樹、元谷拓真[2]、加藤千図、藤井俊行

１．はじめに：バナジウムレドックスフロー電池(VRFB)は、バナジウムの酸化還元反応を利用した蓄電池であり、次世代の電力貯蔵システムとして注目されている[1]。しかし、VRFB の反応体である 4 価と 5 価のバナジルイオンは電解液として用いられる硫酸に対して相反する溶解挙動を示し、電解液の安定性に課題がある[2]。そのため、本研究では 5 価のバナジウムが pH に依存して様々な溶存種を生成することに着目し、Na_3VO_4 溶液について、ラマン分光分析法とサイクリックボルタンメトリー(CV)、還元電解操作を行うことで、5 価のバナジウムの溶存種について調査した[3]。

２．実験：Na_3VO_4 をそれぞれ硫酸(pH = 2)と NaOH 溶液 (pH = 11, 14)を用いて試料を調製した。調製した試料に対してラマン分光分析を行い、溶液の電気化学的情報を CV で調査した。CV の作用電極はグラッシーカーボン(GC)電極、参照電極は Ag/AgCl 電極、対極は Pt ワイヤー電極を用いた。さらに、酸化還元反応生成物を確認するために作用電極にカーボンファイバー(CF)電極、参照電極に Ag/AgCl 電極、対極に Pt メッシュ電極を用いて定電流バルク電解を行った。

３．結果：バナジン酸溶液のラマンスペクトルと CV の結果、電解時の吸光度の変化を図 1～3 に示す。ラマンスペクトルから、硫酸と NaOH (pH = 11 と 14)ではそれぞれ VO_2^+ と HVO_4^{2-}、VO_4^{3-}が主に溶存していることが分かった[4, 5]。ボルタモグラムから、硫酸溶液と NaOH 溶液 (pH = 11 と 14)におけるバナジウムの酸化還元特性が得られた。また、硫酸の溶液中で 10 mA で還元電解した結果、4 価のバナジウムの生成に起因する 765.5 nm[6]における吸光度の増加が見られた。ボルタモグラムと定電流バルク電解の吸光度の測定の結果から、硫酸溶液は、VO_2^+が 4 価のバナジウムに還元され、再び 5 価に酸化されたと考えられる。また、NaOH (pH = 11)は、HVO_4^{2-}が 2 価のバナジウムに還元され、2 価から 3 価、3 価から 5 価と 2 段階で酸化されたと考えられる[7]。一方で、NaOH (pH = 14)は、VO_4^{3-}が 2 価のバナジウムに還元され、2 価から 3 価、3 価から 4 価、4 価から 5 価と 3 段階で酸化されたと考えられる。

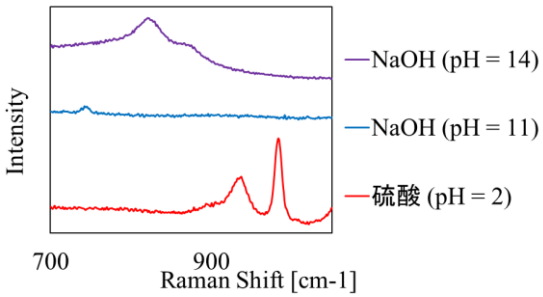


図 1. バナジン酸溶液のラマンスペクトル。[V] = 50 mM

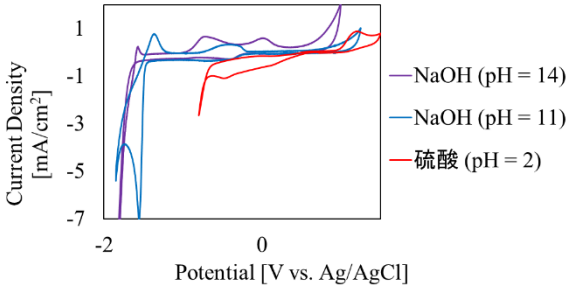


図 2. バナジン酸溶液のボルタモグラム。(掃引速度 50 mV/s、[V] = 5 mM)

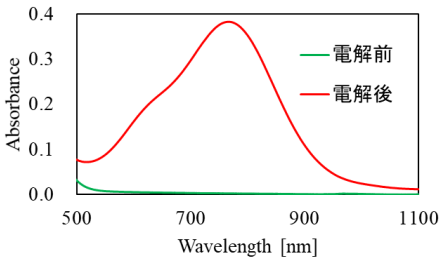


図 3. バナジン酸溶液の吸光度の変化

参考文献

[1] 重松 敏夫, SEI テクニカルレビュー, **179**, (2011) 7–16.
[2] L. Li *et al.*, Adv. Energy Mater., **1**, (2011) 394–400.
[3] J.-H. Huang *et al.*, Chem. Geol., **417**, (2015) 68–89.
[4] X. Wei *et al.*, Ionics, **26**, (2020) 3147–3159.
[5] W. P. Griffith and T. D. Wickins, J. Chem. Soc. A **0**, (1966) 1087–1090.
[6] X. Wu *et al.*, Electrochim. Acta **56**, (2011) 10197–10203.
[7] B. Lui *et al*, Adv. Mat. Res., **402**, (2012) 66–73.

Redox behavior of vanadium ions in sodium orthovanadate solutions

Yuki Yokoyama, Akihiro Uehara, Naoya Wada, Renki, Sugiyama, Takuma Mototani, Chizu Kato, Toshiyuki Fuji
yokoyama@qc.see.eng.osaka-u.ac.jp

(B-2) 新規抽出剤を用いた硝酸溶液からのアンチモンの溶媒抽出特性

（阪大院工、京大複合研[1]、日本原子力研究開発機構[2]）○齋賀忠也、加藤千図、福谷哲[1]、松村達郎[2]、藤井俊行

１．はじめに：日本の使用済み核燃料処理の問題に対して、溶媒抽出法を用いてマイナーアクチノイドを分離することを目標とした「SELECT プロセス」が開発、検討されている[1]。「SELECT プロセス」における核分裂生成物(FP)の抽出挙動は現在研究されているが、アンチモン 125(^{125}Sb)に関する研究例は極めて少ない。^{125}Sb は、全 FP 中では 0.9%を占め、γ線を放出する半減期 2.76 年であり、処理プロセスにおいて悪影響を及ぼす危険性がある。本研究では新規抽出剤として検討されている TDdDGA(*N,N,N′,N′*-tetradodecyldiglycolamide)による Sb の溶媒抽出特性を調べた。

２．実験：水相として Sb を溶解した硝酸溶液、有機相として TDdDGA を溶解したドデカンオクタノール 20vol%を調製した。硝酸濃度 1~5 M、TDdDGA 濃度 0.1 M（図 1）、硝酸濃度 3 M、TDdDGA 濃度 0.02, 0.05, 0.1, 0.2 M（図 2）、硝酸濃度 1~5 M、TDdDGA 濃度 0.1 M、硝酸リチウム 5 M（図 3）としてそれぞれ溶媒抽出実験を行った。等容量の両相を攪拌し、抽出平衡後の水相中の Sb 濃度と TDdDGA と結合し抽出された有機相の Sb 濃度を京都大学複合原子力科学研究所の誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES)で測定した。測定結果と以下の計算式から分配比を算出し、Sb の抽出挙動を評価した。

$$D = \frac{[Sb]_{有機相}}{[Sb]_{水相}}$$

３．結果：Sb の分配比の硝酸濃度依存性と抽出剤濃度依存性、$LiNO_3$ の共存系における分配比を図 1〜3 に示す。対数グラフ上での近似曲線の傾きから Sb:NO_3^-:TDdDGA=1:1:1 で錯体を形成することが予想され、Sb の主な抽出反応は以下の 2 つの反応であることが分かった[2]。

$$SbO^+ + NO_3^- + TDdDGA \rightleftarrows SbO(NO_3)\,TDdDGA$$
$$SbO_2^+ + NO_3^- + TDdDGA \rightleftarrows SbO_2(NO_3)\,TDdDGA$$

図 3 より、硝酸塩を溶解させることで抽出可能な錯体の成分濃度を増加させ、条件を調製することにより Sb の分配比は 0.25 まで上昇した。H^+濃度が低い場合と高い場合で、分配比の変化に違いがあり、Sb の溶存状態の違いが寄与していると考えられる。

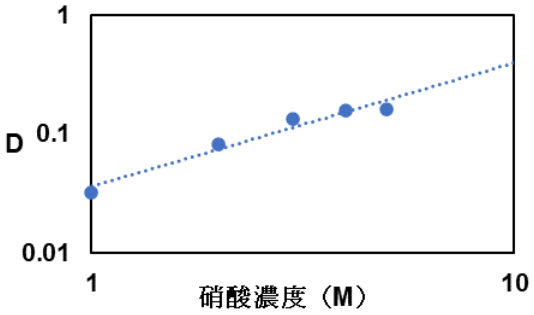


図1 TDdDGA を用いた Sb 分配比の硝酸濃度依存性

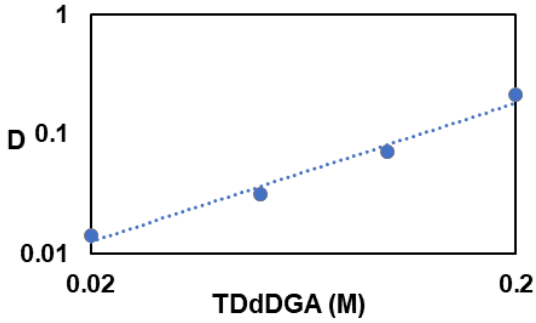


図2 TDdDGA を用いた Sb 分配比の抽出剤濃度依存性

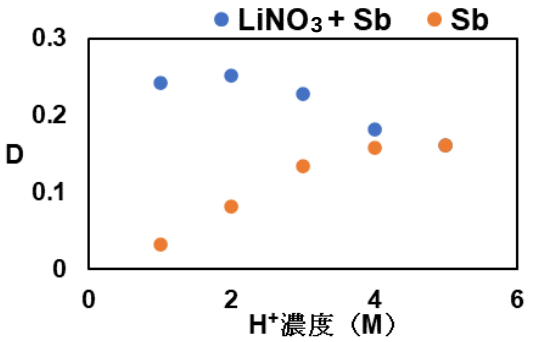


図3 TDdDGA を用いた硝酸塩共存下での Sb 分配比

参考文献
[1] 「放射性のゴミを分別する「SELECT プロセス」の開発に成功」 日本原子力研究開発機構 (2019)
[2] A. L. Pitman *et al.*, J. Electrochem. Soc, **104**, 10, (1957) 594–600

Characteristics of solvent extraction of antimony from nitric acid solutions using a new extractant
Chuya Saiga, Chizu Kato, Satoshi Fukutani, Tatsuro Matsumura, Toshiyuki Fujii
saiga@qc.see.eng.osaka-u.ac.jp

(B-3) 中性子位相イメージング法による金属積層造形物中の欠陥観察

（東北大多元研、京大複合研[1]、原子力機構 J-PARC[2]、京大院工[3]）○関義親、日野正裕[1]、中村吏一郎[1]、篠原武尚[2]、平山朋子[3]

１．はじめに：位相イメージング法は，通常の吸収コントラスト像では検出できない試料の微小な空間構造を波動の位相情報を抽出することによって，高感度に検出することができる。現在，中性子波による位相イメージング[1]で応用研究が広く行われているのは，もっぱら Talbot-Lau（タルボ・ロー）干渉計と呼ばれる光学系を利用する方法である。この干渉計では 3 枚の回折格子を組み合わせて空間的な強度分布（モアレ縞）を形成し，これを波面の基準とする。試料によって中性子波に引き起こされる吸収・屈折・散乱の効果を，それぞれモアレ縞の平均強度・位相・ビジビリティー（鮮明度）の変化として同時に検出できるという優れた特徴を持つ。特に，ビジビリティーコントラスト像からは，試料中の微小構造情報を得ることができ，注目を集めている。

本研究ではこの Talbot-Lau 型干渉計を用いた中性子位相イメージングシステムを京都大学複合原子力科学研究所研究用原子炉（KUR）CN-3 ポートに構築し，金属積層造形物中に生じている欠陥の観察を行った。

２．実験：CN-3 ポートでは，中性子導管を通じて取り出される波長 1.5-4 Å（ピーク波長 2 Å）の中性子ビームを利用することができる。Talbot-Lau 干渉計はビームに対する時間コヒーレンスの要求が高くないため，この波長領域全体の中性子がモアレ縞の形成に寄与するように干渉計設計を最適化した。また，回折格子干渉計としては比較的短い波長領域を中心波長とするため，吸収格子には吸収体としてガドリニウムを実効厚さ 20 μm 程度積層した。

この干渉計を用いて、積層造形法によって製作されたニッケル基合金インコネル 718 のロッド（直径 12 mm，長さ 70 mm）の中性子位相イメージングを行った。一般に金属積層造形では，造形物内部に数 μm オーダーの欠陥（空隙）が生じるために，後処理として熱間等方圧加圧（Hot Isostatic Pressing; HIP）処理が施される。この処理の効果を見るために，HIP 処理が行われた試料と行われていない試料それぞれについて測定を行い，そのコントラストを比較した。

３．結果：干渉計設計の最適化と十分なガドリニウム厚さを持つ吸収格子の開発により，試料が置かれていない状態で平均 55%の明瞭なモアレ縞を観測することができた。

Fig. 1 に HIP 処理が施された試料の場合の吸収・微分位相・ビジビリティーコントラスト像を示す。ビジビリティーコントラスト像は，試料によるモアレ縞ビジビリティーの減衰率の空間分布であるが，その減衰率は，$\Delta V = \exp[-\Sigma t(1-G(\xi))]$ と表される。ここで，Σ: 散乱の巨視的断面積，t: 試料厚さ，G：微小構造の空間自己相関関数，ξ: 相関長である。本測定時のセットアップにおける相関長は 4 μm に相当する。

Fig. 2 に HIP 処理あり/なし試料のビジビリティーコントラストのプロファイルを示す。HIP 処理の結果，ビジビリティーが回復していることがわかる。このことは，サイズ 4 μm 程度の微小構造が引き起こす小角散乱が減少したことに対応しており，同スケールの欠陥に対して HIP 処理が有効に作用していることを示唆している。

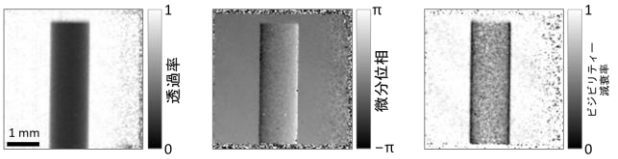


Fig. 1. Absorption-, differential-phase-, and visibility-contrast images of INCONEL 718 rod with HIP process.

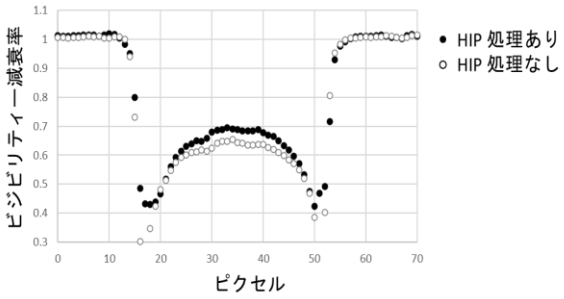


Fig. 2. Profile of visibility-contrast images of INCONEL 718 rods with and without HIP Process.

参考文献

[1] I.S. Anderson, R.L. McGreevy,and H.Z. Bilheux., “Neutron imaging and applications”, Springer Science+ Business Media (2009) Chapter 8.

Neutron phase imaging of INCONEL rods fabricated by additive manufacturing

Yoshichika Seki, Masahiro Hino, Riichiro Nakamura, Takenao Shinohara, Tomoko Hirayama
yseki@tohoku.ac.jp

(B-4)腫瘍内環境応答因子をターゲットとした放射線増感効果の解析

（京大複合研）○真田悠生、髙田卓志、田中浩基、櫻井良憲、渡邉翼

１．はじめに：固形腫瘍内には（低酸素環境や低栄養環境など）特徴的な微小環境が形成され、このような環境に適応したがん細胞は、抗がん剤や放射線に抵抗性を示す。治療抵抗性のがん細胞が存在すると、再発や転移につながると考えられており、このようながん細胞の治療感受性を高める方法の研究が多く行われている[1]。ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)はホウ素 10 と熱中性子の反応を利用したがん治療である。BNCT の治療効果には様々な要素が関係するが、その１つとして、いかに腫瘍細胞にホウ素 10 化合物を取りこませるか、が挙げられる。近年では、複数の細胞種において、低酸素環境が BNCT で用いるホウ素化合物 BPA の取り込みを低下させ、BNCT の効果を阻害することが報告された。本研究では、低酸素環境、および低酸素応答における主要な転写因子 HIF-1 が、BPA-BNCT の効果にどのように関係しているのかについて調べた[2-4]。

２．実験：ホウ素化合物 BPA の取り込みはアミノ酸トランスポーターである SLC7A5 などにより細胞内に取り込まれることが知られている。環境の違いによって SLC7A5 タンパク質量がどのように変動するかを直接調べるため、内在性 SLC7A5 遺伝子の exon 10 に直結するように 6xHis 配列を挿入したマウス腫瘍細胞（SCCVII 細胞）を作製し、anti-6xHis 抗体で検出できるようにした(Fig.1)。この細胞を通常酸素条件、低酸素条件下で培養し、SLC7A5 タンパク質の時間的な変動を解析した。

SCC VII、SCC VII Hif-1α欠損細胞を通常酸素条件、低酸素条件下で培養し、その後ホウ素化合物（BPA、BSH）で処理し、中性子照射を行った。生存率測定はコロニーアッセイ法により行った。

SCC VII、SCC VII Hif-1α欠損細胞を C3H/HeJJc1 マウスの肢に移植し、固形腫瘍を形成させた。この担がんマウスにホウ素化合物（BPA）を投与後、中性子照射を行った。照射後、マウスの腫瘍体積を経時観察を行った。

中性子照射には、KUR 重水設備（1MW、OO-0000F モード）を利用した。

３．結果：SCCVII 細胞は照射前に低酸素環境で培養していた場合、BPA 処理-中性子照射後の細胞生存率が上昇する（抵抗性となる）。一方、このような抵抗性の獲得は Hif-1α遺伝子が欠損している場合にはほとんど見られない。そこで、BPA 取り込みに関係する SLC7A5 タンパク質量が低酸素環境での培養によって変化しているかを調べた。

ウエスタンブロットによる解析により、低酸素環境下の SCCVII 細胞では SLC7A5 タンパク質量が低下することがわかった。さらに低酸素応答に関わる Hif1α遺伝子を欠損した腫瘍細胞では SLC7A5 タンパク質量の低下が起こりにくく、低酸素環境下における SLC7A5 発現量の変化が、Hif1α遺伝子の有無に関係しているらしいことがわかった。

また、BNCT の殺細胞効果には DNA 損傷のレベルが大きく関係していると考えられている。中性子照射直後の DNA 損傷レベルを、53BP1 フォーカスを指標に調べたところ、Hif1α遺伝子が欠損している場合、DNA 損傷が多く生じていることが明らかとなった。

また、SCC VII、SCC VII Hif-1α欠損細胞をマウスに移植し、この担がんマウスを用いて BPA-BNCT を行った。マウスの腫瘍体積を経時観察を行い、Hif-1α遺伝子の働きが欠損していると、BPA-BNCT の腫瘍抑制効果が高まることが示唆されている。

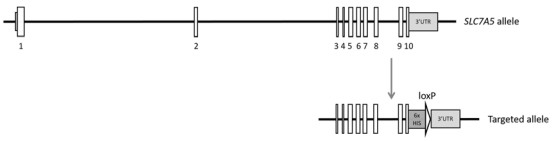


Fig. 1.　内在性 SLC7A5 遺伝子の末端部分に 6xHis 配列を挿入したマウス腫瘍細胞（SCCVII 細胞）。

参考文献

[1] S. Masunaga et al., Int. J. Rad. Biol. 92 (2016) 187–94.
[2] Z. Luo et al., Neuropharmacology. 89 (2015) 168–74.
[3] Y. Sanada et al., Int. J. Rad. Biol. 94 (2018) 88-96.
[4] Y. Sanada et al., Int. J. Rad. Biol. 97 (2021) 1441-49.

Attempts to enhance the anti-tumor effects of BNCT by targeting the tumor microenvironment

Yu Sanada, Takushi Takata, Hiroki Tanaka, Yoshinori Sakurai, Tsubasa Watanabe
sanada@rri.kyoto-u.ac.jp

(B-5)BNCT のためのイメージングプレートを用いた熱中性子束評価

（京大院工[1]、京大複合研[2]）○野尻摩依[1]、高田卓志[2]、櫻井良憲[2]、鈴木実[2]、田中浩基[2]

１．はじめに：BNCT における熱中性子束評価には、一般的に金の放射化法が用いられる。金の放射化法では、通常、γ線検出器を用いて、中性子を照射した後の放射化した金から放出される γ 線を計測する。しかし、時間経過に伴い放射能が減衰することから、γ線検出器を用いた測定は、広範囲かつ高精細な分布の取得を困難にする。そこで、演者らは、熱中性子束の評価手法として、イメージングプレート（Imaging Plate : IP）を用いた手法を提案する。

２．方法：照射実験及び測定の方法を述べる。ファントム内の中心軸上と横方向に、裸金線と Cd 被覆金線を設置し、京都大学研究用原子炉を中性子源として、熱外中性子をファントムに照射した [1]。照射後、放射化した金線を IP に曝露し、露光終了から一定時間経過した後に、読取装置を用いて画像データを取得した。金線に対して垂直方向 10 mm 幅の範囲を関心領域とし、金線から放出される β 線、γ 線に起因する輝尽発光量（Photo-Stimulated Luminescence : PSL）分布を処理した。露光後、5 mm もしくは 10 mm の幅で金線を切断し、通常の測定手法と同様に、NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて、金線から放出されるγ線を計測し、反応率を測定した。

測定後、PSL と反応率の関係に対する線形回帰により、その関係式を決定した。IP を用いた測定では、その式を用いて金線の反応率を導出した。そして、IP 及びγ線検出器をそれぞれ用いた測定において、金線の反応率から熱中性子束を決定した。

ここで、読取装置や IP には、多少なりとも感度の不均一性がある。そこで、レントゲン X 線装置を用いた均一な照射により、感度補正の検討も行った。その際、出来る限り均一に照射するために、装置から 2 m 離れた位置に IP を設置し、照射した。

３．結果：IP を用いて測定した PSL とγ線検出器を用いて測定した反応率の間では、比較的良い線形関係が見られた（Fig. 1）。しかし、回帰直線に対するばらつきも見られた。原因としては、測定の位置によって金線の IP への密着具合が異なり、輝度分布の広がり方が違うことが考えられる。また、裸金線と Cd 被覆金線における回帰直線の傾きの違いは、金線内部に届く中性子の割合と、β 線に対する金の自己遮蔽によるものであると考えられる。

また、IP を用いて 1 mm 間隔で測定した熱中性子束分布は、γ線検出器を用いて測定した分布と比較的良く一致した（Fig. 2）。しかし、γ線検出器を用いた測定で切断した金線の長さに合わせて、輝度を抽出した場合では、ファントム入射面側の一点においてのみ、過小評価が見られた。この過小評価は、IP に対する β 線のエネルギー付与が金線の端の外側にも広がっており、解析時に、画像上で金線があると視認できる位置から輝度を取得しているために、その輝度分布の広がりを考慮できていないことが原因であると考えられる。

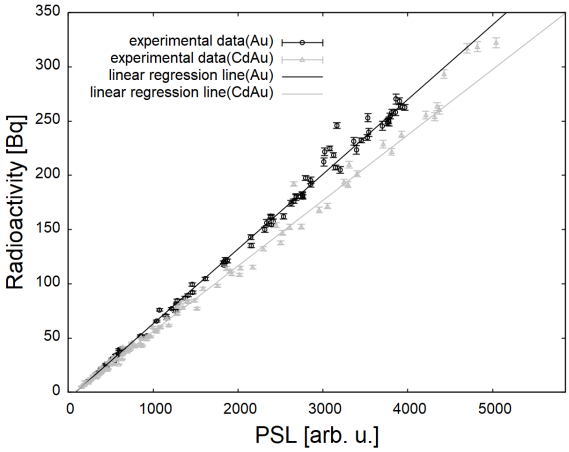


Fig. 1. Relationship between PSL and radioactivity.

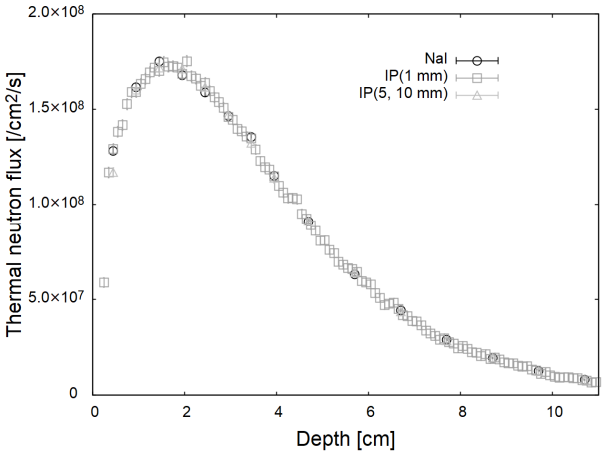


Fig. 2. Comparison of thermal neutron flux distributions obtained using NaI(Tl) scintillation detector and IP.

謝辞

IP の読取装置を使わせていただきました京都薬科大学の田中憲一教授に深く感謝いたします。

参考文献

[1] Sakurai Y, Kobayashi T: The medical-irradiation characteristics for neutron capture therapy at the Heavy Water Neutron Irradiation Facility of Kyoto University Research Reactor, Med. Phys. 29, 2328-2337, 2000.

Evaluation of thermal neutron flux using Imaging Plate for BNCT

Mai Nojiri, Takushi Takata, Yoshinori Sakurai, Minoru Suzuki, Hiroki Tanaka
nojiri.mai.32m@st.kyoto-u.ac.jp

(B-6)超高線量場における光ファイバーを介した線量モニタの開発

（東北大 NICHe[1]、東北大金研[2]、阪大レーザー研[3]、京大複合研[4]、東北大工[5]、埼玉大理工[6]）○黒澤俊介[1,2,3]、田中浩基[4]、高田卓志[4]、松倉大佑[2,5]、藤原千隼[2,5]、石澤倫[2]、山路晃広[1,2]、小玉翔平[6]

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赤色・近赤外発光（650 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_2HfI_6 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た。

２．実験： コバルト 60 ガンマ線照射装置にて、Cs_2HfI_6 および比較対象としての Cr 添加α-Al_2O_3（ルビー）へ、それぞれガンマ線を照射させて、その発光をコア径 600 μm、長さ 20 m の光ファイバー（フジクラ製、高 OH）で読み出し、CCD 分光器を使い電流モードで読み出した。なお、Cs_2HfI_6 は潮解性を有するため、適切なパッケージを行った。

３．結果： 図 1 には Cs_2HfI_6 およびルビーの CCD 分光器で読み出した発光スペクトルを示す。どちらも線量率に応じた発光強度を示していることが分かり、ルビーに比べて Cs_2HfI_6 の発光量（発光スペクトルの積分値）は約 10 倍程度になった。

この試験の後、長期安定性を見るため、10 時間以上ガンマ線を照射させて発光強度などを見たところ、10%程度の範囲で Cs_2HfI_6 の発光量に変化が無いことが分かった。また、数分以上の残光が無いことも確認できた。これらの結果から、開発した Cs_2HfI_6 が 1F での現場適用などに適した材料であることが分かった。

そこで現場での利用を念頭にした線量モニタの実証機を開発し、実際に現場適用まで行った。その過程では、複数回の実証試験、線量率校正のため複合研のコバルト 60 ガンマ線照射装置を利用することで、スムーズな現場適用が実現できた。

本講演では、材料開発、コバルト 60 ガンマ線照射装置を使った試験、および、現場適用までの流れなどについて紹介する。

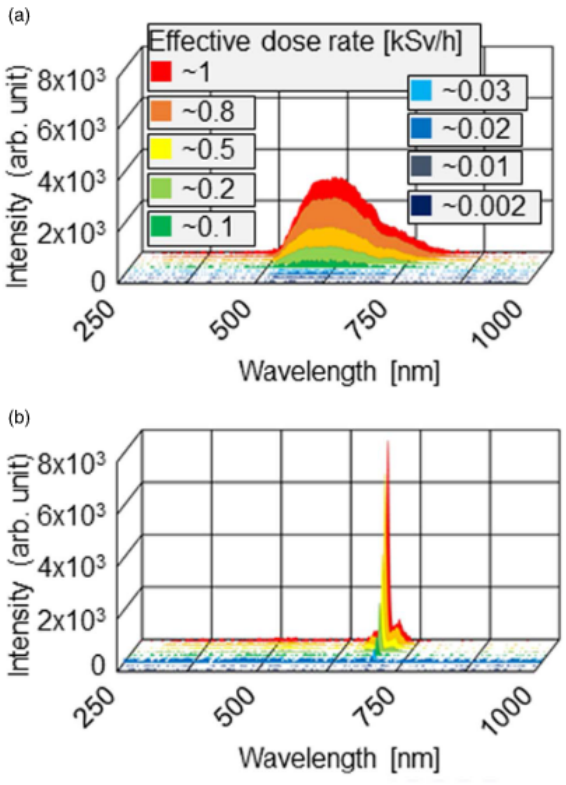


Fig. 1. Radioluminescence spectra for Cs_2HfI_6 (a) and Cr:α-Al_2O_3 (b) irradiated with gamma rays from a ^{60}Co source [1].

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

Development of High-Dose Rate Real-Time Monitors with an Optical Fiber
Shunsuke Kurosawa, Hiroki Tanaka, Takushi Takada, Daisuke Matsukura, Chihaya Fujiwara, Satoshi Ishizawa, Akihiro Yamaji, Shohei Kodama
kurosawa@imr.tohoku.ac.jp

(B-7) ヒト水晶体内 αA-クリスタリン中 Asp151 の迅速な異性化と、その影響

（京大複合研、京大院理[1]）○菅河晴菜[1]、髙田匠

１．はじめに：熱など内因的ストレスまたは紫外線など外因的ストレスに応じてヒト眼内水晶体を構成する蛋白質中では、内部アミノ酸残基の化学修飾が生じ、それらの蓄積が加齢性白内障を引き起こすと考えられている[1]。水晶体の主要構成蛋白質であるαA-クリスタリン(αA-Cry)中のアスパラギン酸残基(Asp:D)に関しては、時間経過に伴い部位特異的に 5 員環スクシンイミド中間体を経由し異性化する[2]。その因子は明らかになってはいない。この Asp 異性化に影響する因子をスクリーニングするためには、*In vitro* の温和な条件下で迅速に異性化反応が進行するモデル蛋白質が必須である。そこで、蛋白質中アスパラギン残基(Asn:N)の Asp への脱アミド化反応を介した Asp の異性化反応に着目した。通常、Asn の Asp への脱アミド化反応過程では、Asp 異性化よりも温和な条件下で Asp 異性化と同じ 5 員環イミド中間体が形成される。したがって、蛋白質中の異性化しやすい Asp 部位を Asn に置換することで、より容易に異性化 Asp を蓄積するモデル蛋白質を作製することができると考え、その作製に取り組んだ。加えて、Asp 異性化が実際に αA-Cry へと及ぼす影響を調査するべく、標的 Asp を他のアミノ酸に置換したものも用意して加熱実験に用い、熱安定性を野生型と比較することで、異性化修飾が蛋白質へと及ぼす影響を検討した。

２．実験：加齢に準じて顕著に異性化するヒト αA-Cry 中の Asp151 を標的とした。Asp151 を Asn へと置換したリコンビナントヒト αA-Cry D151N を大腸菌にて作製した。精製後の αA-Cry D151N を加温して Asn151 の脱アミド化を誘導し、その過程で生じる Asp 異性化率を通常(Wild type)の αA-Cry 中の Asp151 異性化率と比較した。異性化率の測定には藤井らが開発した質量分析装置を用いる手法を採用した[3][4]。また、同様にして、部位変異導入を行い αA-Cry 中の Asp151 を他のアミノ酸残基に置換し、それらの熱安定性変化を調査した。

３．結果：Fig. 1 に目的部位の脱アミド化を経由した異性化率の変化と野生型のものとの比較を示す。異性化率の比較より、Asn151 から脱アミドを介した Asp151 の異性化は Asp151 からの異性化よりも温和な条件下で迅速に進行することが示された。本モデル蛋白質を用いることで、異性化反応の促進因子や抑制因子をスクリーニングすることができる。また、ヒト αA-Cry 中の Asp151 は、加齢に伴い主として D-β-Asp へと異性化する。一方、今回作製した蛋白質を用いて異性化を誘導した場合、主として L-β-Asp が蓄積した。このことから、*vivo* には L-体の 5 員環イミド中間体を D-体へと誘導する特殊な機構もしくは、そのための補助的ストレスが存在する可能性が示された。また、加熱実験の結果より本部位における負電荷の重要性が示された。

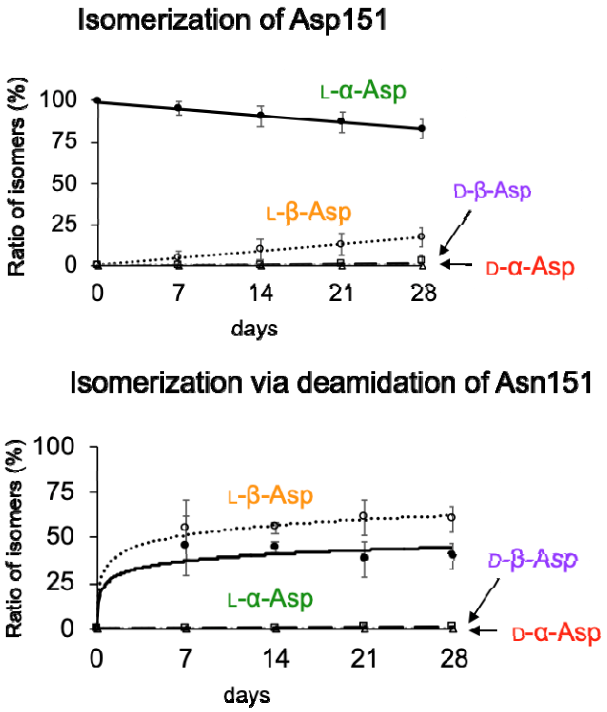


Fig. 1. Rapid deamidation and isomerization of Asn151 to L-β-Asp.

参考文献
[1] T. Takata *et al.*, Protein sci., **17** (2008) 1565-1575.
[2] N. Fujii *et al.*, BBA. Proteins Proteom., **1866** (2018) 840-847.
[3] N. Fujii *et al.*, J. Biol. Chem., **287** (2012) 39992-40002.
[4] H. Maeda *et al.*, Anal. Chem., **87** (2015) 561-568.

Rapid isomerization of Asp151 in αA-crystallin in human lens and its effect for heat stability
Haruna Sugawa, Takumi Takata
sugawa.haruna.65s@st.kyoto-u.ac.jp

(B-8) 中性子結晶解析による蛋白質水和構造の検討

（京大複合研、茨城大[1]、量研機構[2]）○茶竹俊行、田中伊知朗[1]、日下勝弘[1]、角南智子[2]、藤原悟[2]

１．はじめに：多くの蛋白質分子は細胞質に存在しており、その分子表面には特異な水分子が相互作用している。この現象は水和と呼ばれ、蛋白質の立体構造の形成と様々な機能の発現に必要不可欠である。水和は蛋白質にとどまらず、DNA や RNA などの核酸分子でも生じており、生体分子の水和は生物学研究における重要な課題の一つである。

中でも、水和に参加している水分子の立体構造 (水和構造) は構造生物学における長年の課題である。水和構造中の水分子は、従来の構造決定法である X 線結晶解析、核磁気共鳴分析、クライオ電子顕微鏡でも決定が難しく、比較的有利な X 線結晶解析でも高分解能解析が必須である。この高分解能解析は、分解能 1.0Å を基準としても全解析のうち 1%以下に限定される。しかも、高分解能解析でも水分子中の水素原子の決定は困難であり、水和構造中の水分子をすべて決定することは至難の業である。

これに対して中性子結晶解析は水素原子の検知能が X 線結晶解析と比べて高く、また軽水素と重水素の中性子散乱長 (b_H, b_D = −3.8, 6.7 fm) の違い (D/H コントラスト) を利用できるため、水和構造の解析に適した実験手法である。我々は、蛋白質中性子結晶解析用に、実空間 D/H コントラスト法を開発 [1]して水和構造の検討を試みている。本報告ではその現状について報告する。

２. 実験 : 鶏卵白リゾチーム (hen-egg white lysozyme) を用いて中性子結晶解析を行った。濃度グラディエント法で軽水溶媒結晶 (*h*-crystal) を作成して、蒸気拡散法で溶媒を重水に置換して重水溶媒結晶 (*d*-crystal) を作成した [2]。中性子回折実験はJ-PARC の生体分子茨城県生命物質構造解析装置 (iBIX) [3,4] を用いて行った。*d*, *h*-crystal それぞれ 5 日でデータ収集を行った。X 線回折実験は高エネルギー加速器研究機構の Photon FactoryBL5A で行った。文献[1]に詳述した方法で、実空間コントラストを利用した構造決定を行った [5]。データ測定と構造決定の統計値を表 1 に示す。

Table 1. Statistics of crystallographic analyses

	X-ray		Neutron	
Crystal data	$P4_32_12$, $a = b = 79.14$ Å, $c = 37.38$ Å, $\alpha = \beta = \gamma = 90°$			
Crystal	*d*-crystal	*h*-crystal	*d*-crystal	*h*-crystal
Beamline	BL5A PF		BL03 J-PARC	
d_{min} **(Å)**	1.42	1.43	1.80	1.80
R_{pim} **(%)**	1.5 (23.6)	1.7 (18.2)	7.1 (28.4)	7.62 (41.8)
Completeness (%)	100 (99.5)	100 (99.5)	97.9 (95.4)	97.0 (89.5)
d_{min} **for refine (Å)**	1.42	1.43	2.00	2.00
R_{work} / R_{merge} **(%)**	16.0 / 18.9	16.5 / 18.3	16.8 / 21.2	

３. 結果: まず、溶媒領域の D/H コントラスト図 (D/H contrast $2m|\boldsymbol{F}_o|–D|\boldsymbol{F}_c|$ Fourier map) 上で、蛋白質表面からの密度解析を行った (図 1)。*d*-crystal と *h*-crystal の密度分布は、van der Waals 表面から 3.5Å 付近まで有意な差があり、その結果 D/H コントラストでは 1.8Å 付近に極大のある密度の山が現れる。これは、構造決定で水分子が配置されなかった領域にも存在しており、D/H コントラストの密度が水和水に相当していることを強く示唆する。

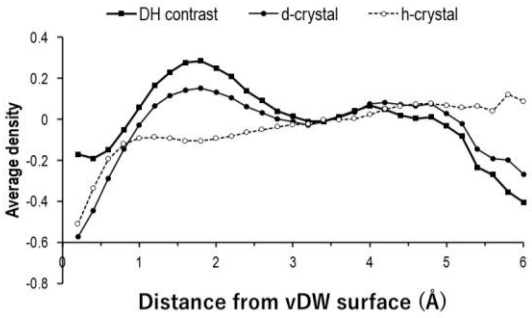


Figure 1. Density distribution from protein surface

そこで、D/H コントラスト密度に対して、D/H 原子の導入を行った。通常の構造決定では 2.5 σ を有意なピークの基準としたが、密度解析の知見からこれを 1.5 σ まで下げた。

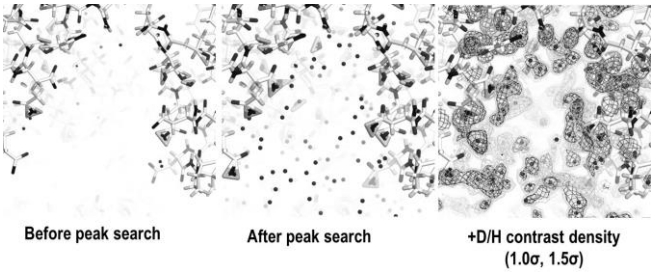


Figure 2. Peak search of densities in solvent region

この結果、ピークサーチを 6 回繰り返して、溶媒領域に 271 個の D/H コントラストピークを D/H 原子として導入出来た。今後、解析と検討を進める。

参考文献

[1] T. Chatake & S. Fujiwara, Acta Crystallogr., **D72** (2016) 71–82.

[2] I. Tanaka *et al.*, Method in Enzymol., **634** (2020) 101–123.

[3] I. Tanaka *et al.*, Acta Crystallogr. **D66** (2010) 1194–1197.

[4] K. Kusaka *et al.*, J. Synchrotron Rad. **20** (2013) 994–998.

[5] T. Chatake *et al.*, Acta Crystallogr., **D78** (2022) 770−778.

Neutron crystallographic approach to reveal hydration structure of protein

Toshiyuki Chatake, Ichiro Tanaka, Katsuhiro Kusaka, Tomoko Sunami, Satoru Fujiwara
chatake.toshiyuki.6x@kyoto-u.ac.jp

(B-9)野生型大腸菌に対する放射線耐性進化大腸菌の遺伝子発現量の変化

（京大複合研）○齊藤 毅

１．はじめに：自然界には様々な環境が存在し、生物はその多くの環境に適応できるよう多様な進化を遂げてきた。そして、我々の常識に基づくと生物の生存にとって大変過酷と考えられるような極限環境下においても生存可能な生物種が存在している。このような生物種の過酷な外環境への適応機構を解明することは生物進化の全体像を捉え、進化の多様性を考察する上で極めて重要な情報を提供することになると考えられる。それらの生物の中において、ある種の細菌は放射線に対して極めて高い抵抗性を有していることが知られている [1]。この放射線耐性細菌の放射線に対する卓越した耐性機構は、生物の環境適応機構を考察する上で大変興味深い研究対象といえる。この放射線耐性機構を解明するためには、外部ストレスに対する生体防御機構を分子レベルで解明することが必要である。しかし、自然界に存在する放射性耐性細菌は、その遺伝学的、生化学的特性に関する情報が不足しており、それら細菌を対象とした遺伝学的、生化学的研究には大きな困難が予想される。そこで本研究では、放射線に対し高い耐性を有する細菌・生物の基本的な放射線耐性・生体防御機構を明らかにすることを目的として、遺伝学的、生化学的特性の詳細が明らかとなっており取り扱いが容易なモデル生物である大腸菌を用い、γ線を選択圧とした適応進化実験により放射線耐性大腸菌を作出し、その性状を解析した。

２．実験：大腸菌を PBS に懸濁し、γ線を照射し、生存曲線を求め、1%生存線量を算出した。次に、算出された 1%生存線量のγ線で大腸菌を照射し、生存大腸菌を培養し、増殖した大腸菌の 1%生存線量を算出した。この選択操作を 20 回繰り返すという適応進化実験により放射線耐性大腸菌を作出した。γ線非照射野生型大腸菌、γ線非照射放射線耐性進化大腸菌、33%生存線量γ線照射野生型大腸菌、および 33%生存線量γ線照射放射線耐性進化大腸菌の遺伝子発現を RNA-Seq により網羅的に解析した。各細胞集団における遺伝子発現状態を比較し、Welch の *t* 検定および Benjamini-Hochberg 法による多重検定補正により有意に発現量が変動した遺伝子を同定した。本研究で比較した細胞集団および処理条件を Fig. 1 にまとめる。さらに、発現変動遺伝子に対する GO 解析により、それら遺伝子の機能に関する解析を行った。

３．結果：γ線を選択圧とした適応進化実験により野生型大腸菌と比較してγ線に対して 7.9 倍の耐性を有する放射線耐性大腸菌集団が得られた。大腸菌のγ線に対する耐性が選択回数の増加に伴って漸次的に上昇したことより、本適応進化には多くの遺伝的な変化が関与していることが示された。RNA-Seq 解析により、野生型大腸菌と進化大腸菌では遺伝子の発現状態が大きく異なっていることが明らかとなった。GO 解析により、γ線非照射野生型大腸菌と比較した時γ線非照射進化大腸菌で（Fig. 1 比較 1)、γ線非照射進化大腸菌と比較した時γ線照射進化大腸菌で（Fig. 1 比較 3)、γ線照射野生型大腸菌と比較した時γ線照射進化大腸菌で（Fig. 1 比較 4)、そしてγ線非照射野生型大腸菌と比較した時γ線照射進化大腸菌で（Fig. 1 比較 5）発現量が増加している遺伝子において、それぞれストレスに対する細胞回復、DNA 修復、生存、レスポンスに関与する遺伝子（以下、抗ストレス遺伝子とする）が有意にエンリッチしていることが明らかとなった。一方、γ線非照射野生型大腸菌と比較した時γ線照射野生型大腸菌で発現量が増加している遺伝子においては、抗ストレス遺伝子の有意なエンリッチメントは確認されなかった（Fig. 1 比較 2)。

これらの結果より、野生型大腸菌と比較した時の進化大腸菌における多数の抗ストレス遺伝子の構成的な発現量の増加、およびγ線照射による高効率の誘導が、進化大腸菌の高い放射線耐性に関与していることが明らかとなった。また、多数の抗ストレス遺伝子の発現量の増加は、生物の放射線耐性、生体防御活性を大きく向上させる可能性が高いことが示された。さらに、ストレスに対する生体防御機構の進化には、その初期段階において種々のそして多くの遺伝子の発現量の変動が大きく寄与している可能性が示唆された。

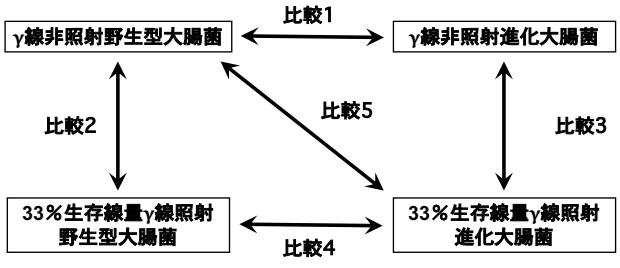


Fig. 1. Comparison of gene expression status.

参考文献

[1] T. Saito, Viva Origino, **30** (2007) 85–92.

Altered gene expression levels of evolved radioresistant *E. coli* relative to wild-type *E. coli*

Takeshi Saito
ta-saito@rri.kyoto-u.ac.jp

(C-1)GSJ 岩石標準試料中のガリウム同位体比

（阪大院工、京大複合研[1]、マリン・ワーク・ジャパン[2]、JAMSTEC　高知[3]）○麻生陸也、加藤千図、福谷哲[1]、中田亮一[3]、永石一弥[2]、若木重行[3]、藤井俊行

１．はじめに：ガリウム(Ga)は半導体や太陽電池に利用されている金属であり、アルミニウム(Al)や亜鉛(Zn)の製錬時の副産物である[1]。地球マントルに含まれる元素の 50%凝縮温度と存在度を比較した場合、Ga はマントル中において似た 50%凝縮温度をもつ他の金属元素より高濃度で存在している[2]。マントル中での岩石形成過程における鉱物の結晶化時には、同位体分別を起こす元素(Fe[3])や起こさない元素 (Li[4])が知られている。玄武岩形成過程における鉱物の結晶化時には Ga は同位体分別を起こさないが[5]、他の岩石種に関するデータは乏しい。そこで本研究では化学組成や形成過程が異なる岩石中の Ga の同位体分別について調べた。

２．実験：産業技術総合研究所地質調査総合センター(GSJ)の岩石標準試料である JF-1(長石) 、JG-1(花崗閃緑岩)、 JB-1b(玄武岩)、 JGb-1(斑糲岩)、JSy-1(閃長岩)を秤量しフッ酸と硝酸の混合溶液で溶解した。Ga を分離するために目的別に 3 段階に分けたカラムクロマトグラフィーを用いた[5]。1 段階目では試料中の Ga と Fe 以外の元素を分離し、2 段階目で Fe と Ga を分離した。3 段階目では質量分析でダブルチャージイオンが Ga に対して同重体干渉を生じさせる Ba を除去した。分離した Ga 濃度を京都大学複合原子力科学研究所の誘導結合プラズマ分析装置(ICP-MS)で測定した後に海洋研究開発機構高知コア研究所の多重検出器型 ICP 質量分析計(MC-ICP-MS)で Ga 同位体比を測定した。同位体比の評価には(1)式の δ^{71}Ga(‰)を使用した。

$$\delta^{71}Ga(‰) = \left(\frac{\left(\frac{^{71}Ga}{^{69}Ga}\right)_{sample}}{\left(\frac{^{71}Ga}{^{69}Ga}\right)_{standard}} - 1 \right) \times 10^3 \quad \cdots \quad (1)$$

３．結果：調整した 25 ppb Ga 標準溶液(Ga_{IPGP})の繰り返し測定(n=16)における測定精度は 2SD で 0.05‰であり、先行研究の Kato et al. (2017)と同等であった(図 1)。5 つの岩石試料中の同位体比は δ^{71}Ga(‰) = -0.03 ～ +0.08 であり、標準試料の繰り返し誤差を岩石試料への誤差として与えた際に Ga 濃度と Ga 同位体比に有意な相関がなかった(図 2)。これは Kato et al. (2017)と同じ傾向であった。

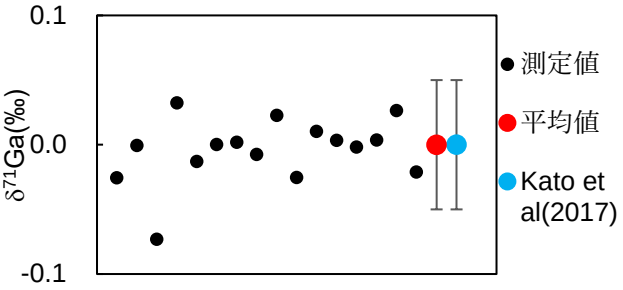


図 1　25ppb Ga_{IPGP} 標準溶液の同位体比

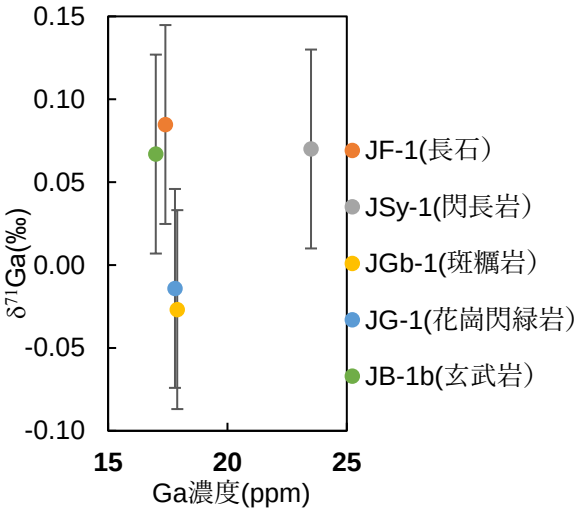


図 2　測定試料の同位体比。濃度は[6]を用いた。

参考文献
[1] Singh, V. K. *et al.*, Talanta, **55**, 4 (2001) 799-806.
[2] Lodders, K., Astrophys., **591** (2003) 1220-1247.
[3] Teng, F. Z. *et al.*, Science **320**, 5883 (2008) 1620-1622.
[4] Tomascak, P. B. Geochim., **63**, 6 (1999) 907–910.
[5] Kato *et al.*, Chem. Geol., **448** (2017) 164-172.
[6] Imai *et al.*, Geostand. Newsl., **19** (1995) 135-213.

Gallium isotope ratio of samples of GSJ standard rocks
Rikuya Aso, Chizu Kato, Satoshi Fukutani, Ryoichi Nakada, Kazuya Nagaishi, Shigeyuki Wakaki, Toshiyuki Fujii
aso@qc.see.eng.osaka-u.ac.jp

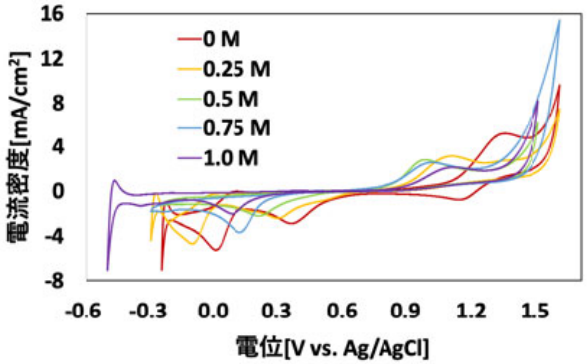
(C-2)バナジウムの酸化還元反応に及ぼすマロン酸の影響

（阪大院工、量研[1]、阪大工[2]）○杉山廉樹、上原章寛[1]、和田直也、横山裕己、元谷拓真[2]、加藤千図、藤井俊行

１．はじめに：近年、地球温暖化の進行を防ぐべく、太陽光や風力などの再生可能エネルギーによる発電方法が導入されつつある[1]。しかしこれらの発電方法は出力が天候に依存するため、電力供給の安定性に課題があり、大型で長寿命かつ低コストとなる蓄電池の活用が求められている[2]。バナジウムレドックスフロー電池(VRFB)はバナジウムの酸化還元を利用したレドックスフロー電池の一種であり、次世代の大規模電力貯蔵システムとして有力視されている[2]。現在主流である VRFB の電解液には硫酸バナジウムが用いられているが、溶存種の化学的な安定性に課題があり、電解液の安定化の試みや溶存状態の研究が続けられている[例 3, 4]。本研究では VRFB の電解質として検討されているジカルボン酸の一種であるマロン酸に着目し、電気化学的手法や分光学的手法を用いてマロン酸溶液中におけるバナジウムの溶存状態を調査した。

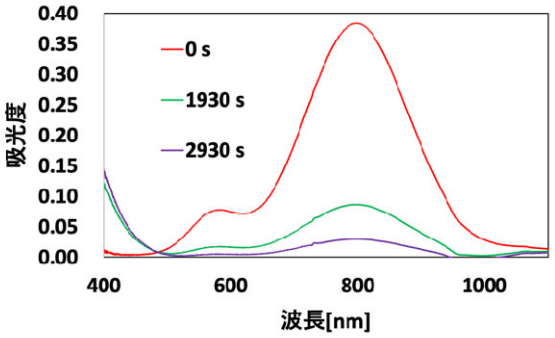
２．実験：硫酸バナジル四水和物、硫酸、マロン酸二ナトリウムを用いて溶液を調製し、バナジウムの電気化学的挙動をサイクリックボルタンメトリー(CV）で分析した。CV の作用電極として、白金(Pt)電極(直径 3.0 mm)、参照電極として、Ag/AgCl 電極、対極として、白金ワイヤーを用いた。また、定電流バルク電解を用いて、電解前後のバナジウムの溶存状態の変化を調査した。定電流バルク電解の作用電極として、白金メッシュ、参照電極として、Ag/AgCl 電極、対極として、白金メッシュを用いた。定電流 5 mA で 1930 秒間の酸化電解後に吸光分析を行い、バナジウムの溶存状態を確認した。その後さらに 1000 秒間の酸化電解を行い、合計 2930 秒間の酸化電解の後、再びバナジウムの溶存状態を確認した。

３．結果と考察：バナジウム溶液の CV 結果及び電解前後の吸光分光分析結果を図 1 及び図 2 に示す。マロン酸の添加により、酸化のピーク電位が卑な方向にシフトし、バナジウムの酸化還元反応の可逆性が高くなることが確認された(図 1)。吸光分光分析より、電解前に 800 nm 付近に吸光ピークがみられた(図 2)。これは 765 nm 付近にピークがあると報告されているバナジウム 4 価に起因する吸光帯[5]がマロン酸と錯体を形成し、800 nm 付近へとシフトしたものである。酸化電解後には、この 800 nm 付近の吸光度の減少が観測された。これは酸化電解により、4 価のバナジウムが酸化し、5 価のバナジウムが生成したためと考えられる。



H^+ : 0.5 M, V(Ⅳ) : 0.01 M, scan rate : 50 mV/s

図 1. バナジウム溶液のマロン酸濃度ごとの CV



H^+ : 0.5 M, V(Ⅳ) : 0.01 M, $CH_2(COONa)_2$: 0.5 M
電解条件 : 5 mA

図 2. 電解前後のバナジウムの吸光スペクトル

参考文献

[1] 経済産業省 資源エネルギー庁, 第 6 次エネルギー基本計画 (2022)
[2] 国立研究開発法人科学技術振興機構 低炭素社会戦略センター, 蓄電池システム(Vol.4) -レドックスフロー電池システムの構成解析とコスト評価-(2017)
[3] J Zhang, *et al.*, J. Appl. Electrochem, **41** (2011) 1215-1221.
[4] W Xianli, *et al.*, Ionics, **26** (2020) 3147-3159.
[5] N Roznyatovskaya, *et al.*, Batteries, **5**(1) (2019) 13.

Redox reaction of vanadium ions in the malonic acid system

Renki Sugiyama, Akihiro Uehara, Naoya Wada, Yuki Yokoyama, Takuma Mototani, Chizu Kato, Toshiyuki Fujii
sugiyama@qc.see.eng.osaka-u.ac.jp

(C-3) 化学交換法における同位体分別研究

(大産大、東工大原子炉[1]、阪大工[2]、京大複合研[3]、阪大 RCNP[4])○硲隆太、義本孝明、Kumsut Pantiwa, Rittirong Anawat[4]、佐久間洋一[1]、藤井俊行[2]、福谷哲[3]、芝原雄司[3]

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、カルシウムに関する水溶媒及び 12M 塩酸添加溶媒での 6 段目までの多段濃縮の分離係数(α)を報告する。

２．**実験：** $^{40}Ca^{2+}$(水相)✚$^{48}Ca^{2+}$L(有機相)⇔$^{48}Ca^{2+}$(水相)✚$^{40}Ca^{2+}$L(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(^{40}Ca)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（12M 塩酸添加）と、30%（重量比）濃度の塩化カルシウム水溶液を体積比 5 : 20mL（水相 : 有機相）で 1 分間攪拌を行った。液液抽出は、室温中、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 Ca 濃度、及び抽出後の水相中 Ca 濃度を、原子吸光光度計（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（図 1,2）[2]。

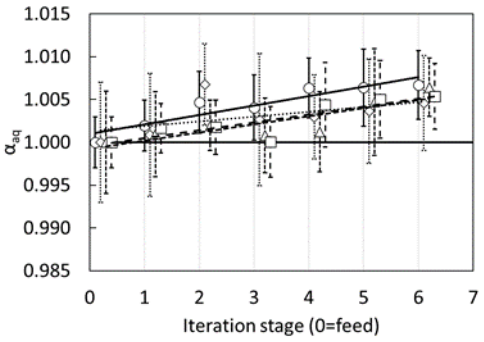


Fig 1. The separation factor (α) of Ca isotope over the iteration stage with 12M HCl acid solvent: Preliminary.
○ = $^{48}Ca/^{40}Ca$ (―), ◇ = $^{48}Ca/^{42}Ca$ (▪▪▪), △ = $^{48}Ca/^{43}Ca$ (▬▬▬), □ = $^{48}Ca/^{44}Ca$ (▬ ▬)

上記、液液抽出法を、抽出後の水相中 Ca に、新たな 20mL 有機溶媒(12M 塩酸添加有 : 図 1, 添加無し : 図 2）と攪拌し、この液液抽出プロセスを 6 回繰り返した。リアクションセル ICP-MS による同位体比測定は、東京工業大学先導原子力研究所の表面電離型質量分析計 TIMS(TRITON 及び MAT261)により、逆抽出後の溶質 Ca（軽元素(^{40}Ca)が有機相側に濃縮されるため、重元素（^{48}Ca）は減少方向）について同じ結果が得られ、整合性を確認した : 図 3[3]。(水相側の濃縮 Ca 同位体比は、ICP-MS での測定結果(図 1,2）のみで、TIMS では未測定で今後、測定予定。)

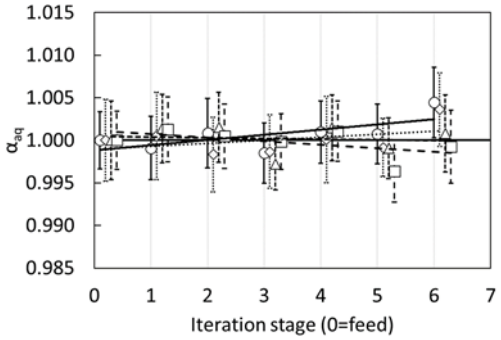


Fig 2. The separation factor (α) of Ca isotope over the iteration stage with aqueous solvent: Preliminary.
○ = $^{48}Ca/^{40}Ca$ (―), ◇ = $^{48}Ca/^{42}Ca$ (▪▪▪), △ = $^{48}Ca/^{43}Ca$ (▬▬▬), □ = $^{48}Ca/^{44}Ca$ (▬ ▬)

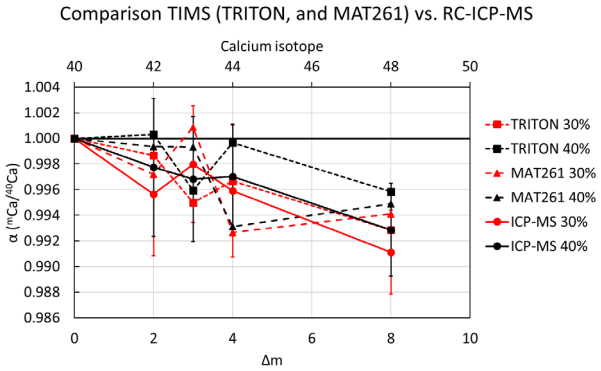


Fig 3. The calculated separation factor (α) per mass unit of the ICP-MS (Agilent 7900) and TIMS (TRITON and MAT261)

３．**結果：** 上記、分離係数は、1.007±0.004（12M 塩酸添加有）及び、1.004±0.004（添加無し）が得られ、10 倍 ^{48}Ca 濃縮を得るためには、各々、2112 段、3783 段の多段濃縮が必要で、固液抽出（クラウンエーテル樹脂）法[4]と比較し約 1.3～2.3 倍の結果が得られ、多段濃縮での、Ca 回収率（25.6% : 塩酸添加有, 50.4% : 添加無し）も考慮し、今後検討を行う。

参考文献

[1] R. Hazama et al., KURRI Progress Report 2020, 227.
[2] A. Rittirong *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. 2022, 2147, 012015.
[3] A. Rittirong, Doctor Thesis, OSU (2022).
[4] S. Umehara et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2015, 053C03

Study of Isotope Separation via Chemical Exchange Reaction
Ryuta Hazama, Takaaki Yoshimoto, Kumsut Pantiwa, Anawat Rittirong, Yoichi Sakuma, Toshiyuki Fujii, Satoshi Fukutani, Yuji Shibahara hazama@est.osaka-sandai.ac.jp

(C-4)Zr,Ce 酸化物固溶体の固相状態に基づく溶解挙動の解釈

（京大院工，JAEA[1]）○佐藤侑太郎，小林大志，佐々木隆之，池田篤史[1]，松村大樹[1]，元川竜平[1]

１．はじめに：福島第一原子力発電所事故で発生した燃料デブリの将来的な処理処分において、主成分の一つである$(Zr,U)O_2$ 固溶体の溶解挙動を把握することが重要な課題となっている。これまでの研究では、ZrO_2 や UO_2 の水溶液への溶解挙動が調べられ、溶解度の熱力学的な解釈が進められてきたが、これら酸化物から成る固溶体の混合物の溶解挙動は十分明らかにされていない。本研究では、$(Zr,U)O_2$ と類似した相図を示す $(Zr,Ce)O_2$[1]をアナログとして、$(Zr,Ce)O_2$ 固溶体の混合物を調製し、還元剤を含む酸性から中性 pH の水溶液に浸漬した。浸漬前後の固相を粉末 X 線回折（PXRD）および X 線吸収分光（XAS）により測定し、固相組成の変化を詳細に分析することで、$(Zr,Ce)O_2$ 固溶体の混合物の溶解挙動を解釈した。

２．実験：Zr(IV)および Ce(IV)母溶液を所定の比率（mol %）で混ぜ合わせ、PVA を加えて乾固した後、電気炉において 1000 ℃の大気雰囲気下で 4 時間加熱した。次に、作成した固相試料をイオン強度 $I = 0.5$ M ($NaClO_4$)、pH 0.8～8.0 の試料溶液に添加し、振とう器（25 ℃）で 1～3 か月振とうした。このとき、還元剤として $SnCl_2$（1 mM）を添加した試料溶液を併せて調製、振とうした。所定の期間、浸漬した後、固相を分離および乾燥し、浸漬前の固相試料と併せて粉末 X 線回折（PXRD）および X 線吸収分光法（XANES および EXAFS）を用いて測定した。

３．結果： Fig.1 に Zr/Ce モル比=7/3 で調製した固相の浸漬前後の PXRD パターンを示す。浸漬前の固相では、CeO_2(c)および ZrO_2(t)に相当する回折ピークが見られ、ZrO_2(m)に相当するピークは確認できなかった。$(Zr,Ce)O_2$ 固溶体の相図では、ZrO_2 の存在比 70%の場合、1000℃付近を境界として、高温側では cubic + tetragonal 相、低温側では cubic + monoclinic 相が生成するとされており[1]、高温側の相と一致する結果となった。浸漬後の PXRD パターンでは、還元剤ありの場合、28.5° 付近の CeO_2(c)のピークが分裂し、固相生成が変化している可能性が示唆された。一方、Ce の XANES および EXAFS スペクトルは、主成分分析の結果、2 つの構成成分（Component 1 および Component 2）から成ることが示された。抽出された 2 つのスペクトルは、いずれも CeO_2(c)や ZrO_2(t)のみのスペクトルとはわずかに異なる形状を示した。Fig.1 に示した PXRD のピーク位置が、CeO_2(c)や ZrO_2(t)のピーク位置からわずかにシフトしていたことを合わせて考えると、固相は CeO_2(c)および ZrO_2(t)の固溶体の混合物であると考えられた。PXRD のリートベルト解析結果と合わせると、Component 1 が $(Ce_x,Zr_{1-x})O_2$(c)、Component 2 が$(Zr_y,Ce_{1-y})O_2$(t)に相当すると考えられた。また、Ce の EXAFS スペクトルの主成分分析からは、還元剤ありの場合、Ce の主要な存在形態が Component 2：$(Zr_y,Ce_{1-y})O_2$(t)から Component 1：$(Ce_x,Zr_{1-x})O_2$(c)へと変化することが示された（Fig. 2）。

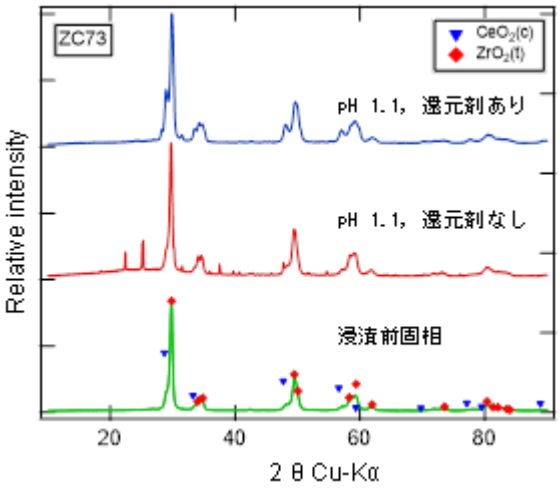


Fig. 1　Zr/Ce モル比=7/3 で調製した固相の浸漬前後の PXRD パターン

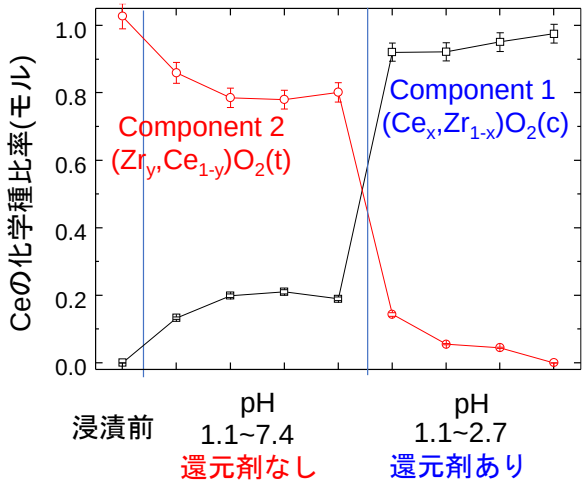


Fig.2 Zr/Ce モル比=7/3 で調製した固相の浸漬前後における Ce の化学種比率の変化（EXAFS）

参考文献.
[1] M. Yashima et al., J. Am. Ceram. Soc., 77, 1869 (1994).

Study on the solid phase and solubility of Zr,Ce oxide solid solutions
Yutaro Sato, Taishi Kobayashi, Takayuki Sasaki, Atsushi Ikeda-Ohno, Daiju Matsumura, Ryuhei Motokawa
sato.yutaro.43e@st.kyoto-u.ac.jp

(C-5)水素イオン照射と高温アニールで形成される Si 中のナノボイドの陽電子ビーム評価

(1 京大院工、2 京大複合研、 3 若狭湾エネ研、4 産総研)
○廣江真俊 1,2、木野村淳 2、宇田欽治 3、鈴木耕拓 3、堀利彦 4、満汐孝治 4、真鍋征也 4、松本哲郎 4

1．はじめに：シリコンに水素イオンを高フルエンスで照射し，アニールすると注入した水素イオンの飛程付近に，ナノメートルサイズのボイドが生成されることが報告されている．このナノボイドはシリコンに含まれる金属不純物を集めること(gettering)ができるため，半導体デバイス作成工程における不純物除去技術として研究されてきた。先行研究[1]では 1000 ℃未満の温度によるアニールで形成されたボイドで金属不純物をゲッタリングすることを目指していた。本研究の目的は、高純度シリコン層のエピ成長に対応したナノボイドによる酸素原子のゲッタリング効果を調査することである。エピ成長は通常 1000 ℃以上で行われるため、この温度域におけるナノボイドの安定性について報告する。

2．実験： 酸素濃度の異なる Cz 製法及び Fz 製法によるシリコンウエハから切り出したシリコン試料に対して 50keV で H_2^+を 1.5 × 10^{16} ions/cm^2 だけ照射した。その後、真空下で 900 から 1100 ℃の範囲で 1 時間のアニールを行った。未照射、照射のみ、照射とアニールの 3 種類の試料に対して、低速陽電子ビームを用いたドップラー拡がり測定と陽電子寿命測定を行った。また、一部の試料に対しラザフォード後方散乱チャネリング測定を行った。

3．結果：図 1 に Cz 試料に対するドップラー拡がり測定の結果を示す。照射のみ行なった試料の S パラメータが未照射のサンプルのそれと比べて表層付近で上昇しているためボイドが生成されていると考えられる。また、照射とアニールを行った試料においても表層付近（0～10 keV）で S パラメータが増加していることから何らかの空孔型欠陥が残っていることが確認できた。

図 2 に照射のみと照射後 1100℃アニールを行った Cz 試料に対して、予備実験として京大複合研で得た陽電子寿命スペクトルを示す。照射のみを行った試料と比べて、照射後 1100℃アニールを行った試料は、グラフの傾きが小さくなっており、長寿命成分が増えていることが確認できる。照射とアニールを行った試料では、0.2 ns 以下と、約 0.4 ns の 2 つの寿命成分が計測された。先行研究[2]によって明らかにされている欠陥のサイズとその欠陥の陽電子寿命の関係から、0.2 ns 以下の成分は欠陥のないバルク中での消滅による寿命成分、約 0.4 ns の成分 は空孔集合体の陽電子寿命に対応すると考えられる。また、照射のみを行った試料では、複空孔(V_2)による陽電子寿命(0.3 ns)に近い値の寿命成分が計測された。

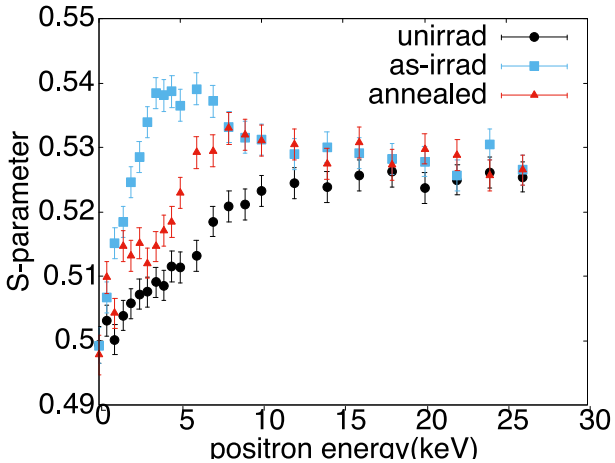


Fig. 1. Doppler-broadening S parameter for the as-implanted and annealed (1100 ºC) samples as a function of incident positron energy

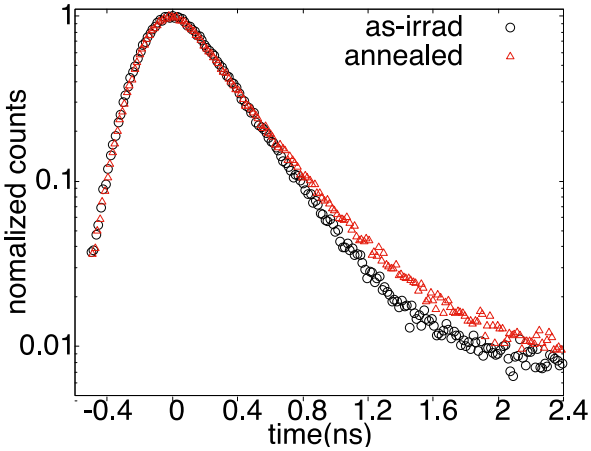


Fig. 2. The positron lifetime spectra of the as-implanted and the annealed (1100 ºC) samples for the positron energy of 6 keV

4. まとめ：低速陽電子ビームを利用したドップラー拡がり測定と陽電子寿命測定により、水素イオン照射と 900 から 1100 ℃でアニールしたシリコンを評価した。その結果、S パラメータの増加と空孔集合体に対応する寿命値が観測され、試料内に空孔型欠陥が存在していることが確かめられた。

参考文献

[1] A. Kinomura et al., Physics Procedia 35 (2012) 151.
[2] G. Amarendra et al., Phys. Rev. B 63 (2001) 224112.

Evaluation of nanovoids in Si irradiated with hydrogen ions and annealed at high temperature by positron beams

Masatoshi Hiroe, Atsushi Kinomura, Kinji Uda, Kohtaku Suzuki, Toshihiko Hori, Koji Michishio, Seiya Manabe, Tetsuro Matsumoto
hiroe.masatoshi.86f@st.kyoto-u.ac.jp

(C-6)大気エアロゾル微小粒子の金属成分の粒径分布

(大阪公立大学)伊藤憲男、溝畑朗

大気エアロゾルは、大気中に浮遊する粒子(粒径 10nm～100μ)で、地球上いたるところに存在する。太陽光の吸収と吸収を行うため、その存在は気象や温暖化現象に関わっている。我々は、大気を吸引して呼吸しているため、大気エアロゾルは気道や肺に沈着し、健康に影響している。そこで、我々は、特に金属成分について、その粒径分布を観測し、大気エアロゾルが健康に影響を与えているかを解析しデータを蓄積している。

大気エアロゾルの質量濃度の粒径分布を Fig.1 に示す。粗大粒子(粒径>2μm)と微小粒子(粒径<2μm)に分布を持つ二山分布をとる。粗大粒子は、土壌粒子、海塩粒子、摩擦や機械的破断で生じた粒子で、粒径が大きいために気道に沈着することがなく、健康影響はほとんどないとされている。一方、微小粒子は燃焼で発生する粒子、ガス成分から生成する粒子で、粒径が小さいために、気道、肺に沈着し、健康に影響を及ぼすとされている。

我々は、1995 年以降堺市で継続して大気エアロゾルを粒径別(Fig.1 で示した 9 粒径範囲)に捕集して、その金属成分を観測している。金属成分(Na,Al,K,Ca,V,Sc,Cr,Mn,Fe,Co,Zn,As,Mo,Sb,La,Sm,Ce,Th)は、中性子放射化分析法で分析を行った,。このうち、微小粒子にほとんどピークをもたない Al,Na,Ca を除いた金属成分について、その平均中心粒径と融点の散布図を Fig.2 に示す。中心粒経は、微小粒径範囲(粒径<2μm)でビークとなった粒径の約 70 試料の平均値である。ほとんどの元素が、その平均中心粒径が 0.4～0.6μm の範囲にあった。土壌成分の寄与が大きく、微小粒径範囲にはっきりしたピークをもたない、Sc,Fe,La,Th は、平均中心粒径が大きくなった。V と Mo は、融点が高く平均中心粒径が小さくなった。V は石油燃焼が発生源とされている[1]。Mo はステンレス鋼に使われているが、石油生成の触媒としても使用されており[2]、V,Mo ともに石油燃焼が発生源の可能性がある。Fig.2 全体の傾向は、融点が高いと平均中心粒径が小さくなる傾向を示している。平均中心粒径が 0.4～0.6μm にある K,Zn,Sb,Ce,Cr,As,Mn,Co のおもな発生源はごみ焼却施設、V,Mo は石油燃焼施設とした場合、発生源の違いを示している可能性がある。

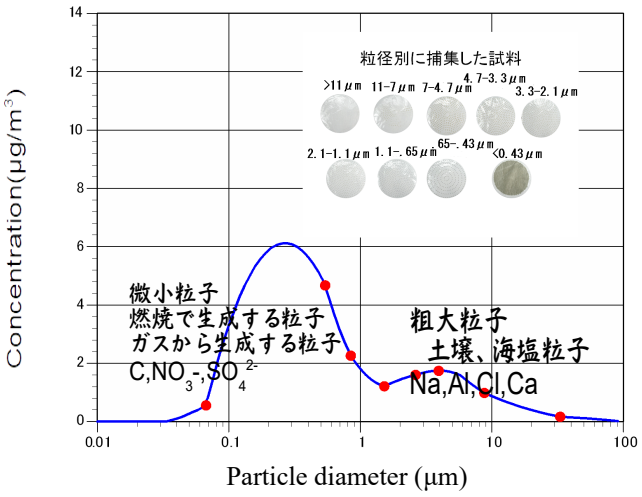


Fig.1 Size distribution of mass concentration in atmospheric aerosols

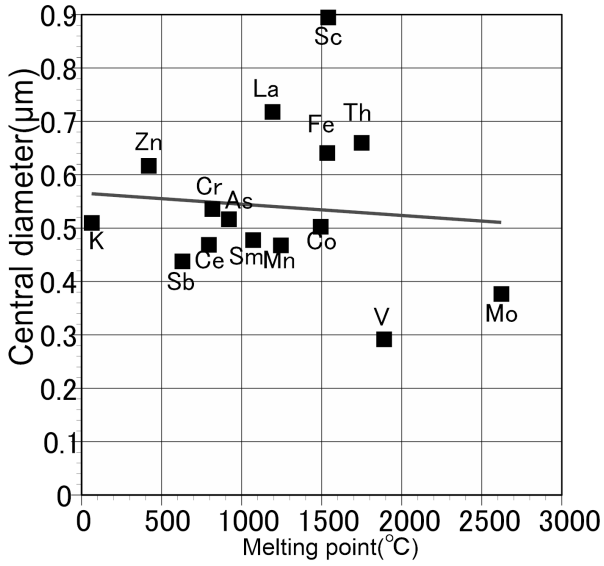


Fig.2 Scatter graph on melting point and the central diameter of the atmospheric aerosols observed at Sakai.

参考文献

[1] www.pnas.org./cgi/doi/10.1073/pnas.1715500144

[2]H.Shimada, Journal of the Japan Petroleum Institute,**59**,(2),46-58 (20169

Size distribution of metal elements of the atmospheric aerosols

Norio Ito, Akira Mizohata
c21983a@omu.ac.jp

(C-7) ヒト水晶体内 βB1-クリスタリン異常凝集体内部 Asp 異性化の増加

（京大複合研、京大院理[1]）○加賀澤悠太[1]、金仁求、髙田匠

１．はじめに：白内障は水晶体を構成する蛋白質の構造に変化が生じ→秩序のある蛋白質高次構造ネットワークが乱れ→異常凝集および会合体化が進み→蛋白質が不溶化して沈着することに起因する加齢性疾患である。とくに、ヒト眼内水晶体を構成する 3 種のクリスタリン蛋白質（α-, β-, γ-クリスタリン）が、内部アミノ酸残基の酸化や脱アミド化などの翻訳後修飾により異常凝集し、白内障の原因になると考えられている。従来、我々のグループでは α-クリスタリンファミリー蛋白質の内部 Asp 異性化に関しての解析を進めてきた。一方、分析の技術的困難により β-, γ-クリスタリン中の Asp 異性化に関しての解析は進行していない。これら困難は、水晶体内部の β-, γ-クリスタリンファミリーの存在量やファミリー間アミノ酸配列の類似性に起因する [1]。そこで、本研究では、分析前に水晶体画分をサイズ別に分離する手法を採用し、各クリスタリンファミリー蛋白質を分離後にそれぞれの内部 Asp 異性化の探索を行い、見出した Asp 部位の異性化率を比較した。

２．実験：各年代の加齢性白内障疾患患者水晶体の破砕物を遠心分離により可溶性画分と不溶性画分を分離した。可溶性画分をゲル濾過へと用いてサイズ別に分離し、それぞれ回収した。不溶性画分は変性剤にて完全溶解させた後、希釈操作と同時に酵素を加えて消化した。各サイズ βB1-クリスタリン内部 Asp 異性化率の分析には、藤井らによって開発された nano-scale 液体クロマトグラフィー連結型の質量分析装置（LC-MS）の Selected ion monitoring 法（SIM 法）を採用した[2]。それぞれ得られたピークに対しての Asp 異性体の帰属は、前田らによって報告された異性化 Asp 認識酵素を用いた手法により行なった[3]。得られたピーク強度をもとに定量的に異性化率を評価し、本手法で評価が困難であった部位の Asp 異性化率の測定には、四重極型質量分析装置の Multiple reaction monitoring（MRM 法）を採用した[4]。

３．結果：水晶体の可溶性画分（WS）を生理的条件下でゲルろ過クロマトグラフィーへと用いた結果を Fig. 1 に示す。枠で示した β-クリスタリン画分が含まれる会合体フラクション（HMW）を、それぞれ回収して分析した。その結果、βB1-クリスタリン中 212 番目の Asp、βB2-クリスタリン中 83 番目、92 番目、192 番目の各 Asp の異性化を同定することができた（Table. 1）。このうち βB1-クリスタリン中 212 番目の Asp に関しては、凝集体内部および不溶性画分中における Asp212 に関して異性化が加齢に応じて進行している結果が得られた。同様に、βB2-クリスタリン中に関しても加齢に応じた増加傾向が得られている。以上の結果より、βB1-クリスタリンや βB2-クリスタリン中 Asp の異性化が、それぞれの蛋白質の立体構造や分子間相互作用を変化させ、サイズの大きい異常凝集体の形成を引き起こす可能性が示された。

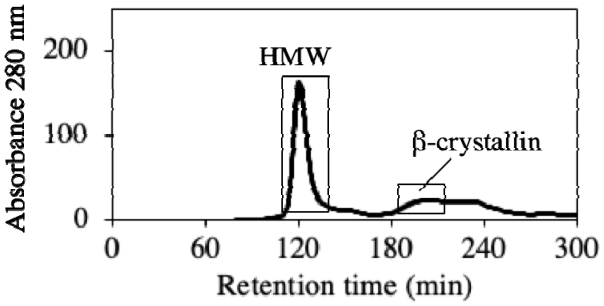


Fig. 1. Size exclusion chromatogram of aged lens water soluble fractions.

Asp	young	middle	aged
	βB1 in HMW		
Asp-212	0.02	0.04	0.06
	βB2 in HMW		
Asp-83	0.10	0.07	0.12
Asp-92	0.07	0.08	0.09
Asp-192	-	0.06	0.07

Table. 1. D/L ratio of the specific Asp in βB1- and βB2-crystallin.

参考文献
[1] T. Takata *et al.*, BBA. Proteins Proteom., **1866** (2018) 767-774.
[2] N. Fujii *et al.*, J. Biol. Chem., **287** (2012) 39992-40002.
[3] H. Maeda *et al.*, Anal. Chem., **87** (2015) 561-568.
[4] N. Fujii *et al.*, ACS Omega., **5** (2020) 27626-27632.

Increased Asp isomerization in abnormal βB1-crystallin aggregates in human aged lens
Yuta Kagasawa, Ingu Kim, Takumi Takata
kagasawa.yuta.46f@st.kyoto-u.ac.jp

(C-8)加速器 BNCT における中性子強度変調照射法による線量分布形成の研究

（京大院工、京大複合研[1]、大阪医科薬科大[2]）
○笹木彬礼、呼尚徳[1,2]、高田卓志[1]、松林錦、櫻井良憲[1]、鈴木実[1]、田中浩基[1]

１．はじめに：近年、BNCT のための中性子源は原子炉ベースから加速器ベースに移行した。加速器 BNCT が表在性腫瘍に適応するためには、最適な照射方法の開発が必要不可欠である。これまでの研究によって、直径 50 mm 程度の表在性腫瘍に対しては、ボーラスを用いて均一な線量分布を形成できることを明らかにした。さらに広範囲に拡がる直径 100 mm 程度の腫瘍の治療を目的として、コリメータ内に減速体(以下強度変調体)を設置し、意図的に形成した不均一な照射野を組み合わせて照射を行うことで、均一で強度の高い線量分布を形成する中性子強度変調照射法を提案した。本研究では、中性子強度変調照射法を様々な腫瘍に対して適用するために、自動で強度変調体と照射時間比を決定する手法を作成し、その評価を実施した。

２．方法：中性子源として関西 BNCT 共同医療センターの Neucure®を用いて、コリメータ径は 15 cm とした。強度変調体の変更回数を少なくするために、照射野の組み合わせ回数は 2 回とした。表在性腫瘍の治療を想定しているため、1 つめの照射野 A の強度変調体は 15 cm 直径で 2 cm 厚のポリエチレン(PE)円盤とした。二つ目の照射野 B で用いる強度変調体はフッ化リチウムとポリエチレンを組み合わせて作成した(LiF-PE)。照射野 B の強度変調体形状決定の概要を Fg.1 に示す。15 cm 直径の PE 円盤の中央 6 cm×6 cm に 1 cm メッシュで LiF-PE ブロックまたは PE ブロックを設定できるようにした。腫瘍形状に合わせて LiF-PE ブロックにより遮蔽することで、腫瘍辺縁部の熱中性子束が中央部と比較して高くなる分布を形成可能とした。これにより照射野 A と組み合わせることで均一な熱中性子束分布を照射し、腫瘍に均一で強度の高い線量分布を形成できる。合計 424 通りの遮蔽パターンを選択し、それぞれの線源データを作成した。各線源データを用いて、計算を実行し、照射野 A と照射時間比 1:2.1:3,1:4,1:5 で組み合わせたときの最小腫瘍線量を算出した。以上の過程を自動で実行する計算ツールを作成した。このとき、最小腫瘍線量が最も高いものを照射野 B の強度変調体形状および照射時間比とした。任意の腫瘍に対して、本手法により決定した強度変調体と照射時間比で中性子強度変調照射を実行した際の、照射時間比と最小腫瘍線量、線量分布の均一度 HI を評価し、作成した手法の有効性を検証した。
なお、線量分布の均一度 HI は以下の式で定義した。

$HI=(D_2-D_{98})/D_{50}$

D_2 、D_{50} 、D_{98} はそれぞれ腫瘍の体積 2%、50%、98%に照射される線量である。

３．結果：本研究で設定した腫瘍モデルと決定した照射野 B における強度変調体形状を Fig.2 に示す。頭頂に生じた直径 10 cm で厚み 1 cm の血管肉腫を想定している。まず、照射野 A のみで照射を行った場合、照射時間と最低腫瘍線量、HI はそれぞれ 67 分、21.0 G-eq、0.84 となった。一方で、決定した強度変調体形状と照射時間比 1:5 で中性子強度変調照射を実施した場合、照射時間と最低腫瘍線量、HI はそれぞれ 93 分、25.9 Gy-eq、0.54 となった。中性子強度変調照射法により、照射時間は長くなるが、最低腫瘍線量は 20%向上し、線量分布の均一度 HI は 36%改善した。

本研究では、表在性腫瘍を対象とした中性子強度変調照射法を実施するために、強度変調体形状と照射時間比を自動で決定する手法を開発した。設定した腫瘍モデルに対して、本手法を適用し、中性子強度変調照射法を実施した場合、最低腫瘍線量と線量分布の均一度が改善した。

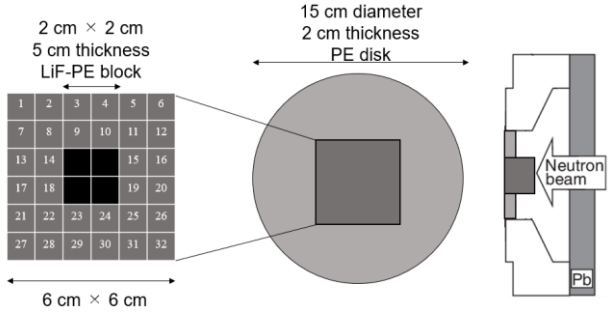


Fig.1 照射野 B における強度変調体形状決定の概要

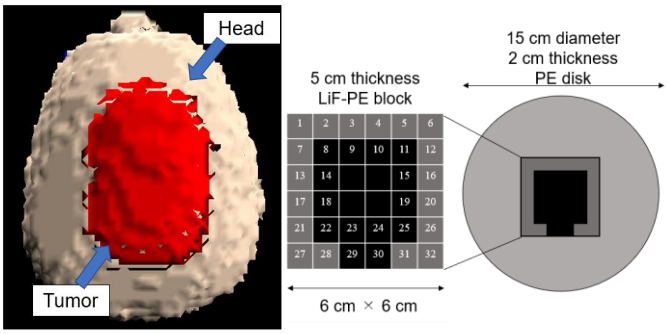


Fig.3 照射野 A と B を時間比 1:2 で組み合わせて照射したときの熱中性子フラックス分布

Study of dose distribution formation by neutron intensity-modulated irradiation method for accelerator-based BNCT
Akinori Sasaki, Naonori Hu,Takushi Takata, Nishiki Matsubayashi, Yoshinori Sakurai, Minoru Suzuki, Hiroki Tanaka
sasaki.akinori.22s@st.kyoto-u.ac.jp

(C-9)トライボロジー現象解明に向けた中性子反射率測定による潤滑油／金属界面のナノ構造解析

（京大院工，京大複合研[1]）○山下直輝，平山朋子，日野正裕[1]

１．はじめに：我々の研究グループは無灰型の潤滑添加剤であるエステル誘導体に注目し，そのトライボロジー特性の評価を行ってきた．この添加剤は，高速往復動型摩擦摩耗試験において常温環境下ではグリセリンモノオレートと同等の摩擦低減効果を持つことに加え，高温環境下でも ZDDP やリン酸エステルアミン塩と同等の摩耗抑制効果を発揮することが分かっている．

本研究では，エステル誘導体のエステルカルボニル基とアルキル基の間にオキシアルキレン（AO）基を導入することによって吸着性能を高めた添加剤に着目した．一般的に，潤滑油中の水分量が低い場合には添加剤の吸着性が低下することが知られている．そのため，本研究では低水分量の潤滑油を使用することによって，AO 基の有無による吸着性能の差について検証することとした．具体的には，中性子反射率測定と AFM での摩擦測定によって，吸着層の構造評価と摩擦特性を評価した．

２．試料：本研究では，先行研究で使用したあるエステル誘導体（以下 FM-0）に，オキシアルキレン基を導入した添加剤（以下 FM-1）を使用した．中性子反射率測定においては，これらの添加剤を重水素化ヘキサデカンに 0.1wt%の濃度で添加した．AFM での摩擦測定においても同様に用意し，各添加剤をポリ α オレフィン（50 cSt@40°C）に 0.1wt%の濃度で添加した．

３．中性子反射率法による吸着膜厚さ：スパッタ装置を利用して 50×50×10 mm のシリコンブロック表面に約 30 nm の厚さの鉄を成膜した基板を使用した．測定には J-PARC MLF 内の BL16 SOFIA を利用した．潤滑油を滴下して 30 分後に 25°C 環境下で測定したデータに対する解析結果を **Table 1** に示す．中性子反射率測定では，簡易的な膜構造モデルを仮定してフィッティング解析をする．そのため，実際に形成されている膜構造が複雑な場合には結果に多少の誤差が含まれることを許容する必要があるものの，FM-0, FM-1 が形成する吸着層の構造には大きな差は見られなかった．本研究で使用した添加剤と同一のアルキル鎖長を持つオレイン酸が一般的に 2 nm 程度の吸着層を形成することを考慮すると，極性基の種類が異なるものの，FM-0 および FM-1 が形成する膜厚はどちらも 3 nm 以上あり，単純な単層構造の吸着層ではない可能性が示唆された．

Table 1 Film structure formed by additives

	Thickness, nm	Film density, %
FM-0	3.0	47
FM-1	3.1	44

５．摩擦試験結果：各添加剤の摩擦・摩耗特性を評価するために，AFM（SPM-9700，島津製）を使用した摩擦試験を実施した．測定には，φ8μm のシリカ球を接着したカンチレバー（AIOAL-TL-B，Budget-Sensors 製）を使用した．以下に実験手順を示す．

(i) スパッタ装置で鉄を成膜したシリコンチップ上に各潤滑油を滴下して AFM に設置した後，チャンバー内を乾燥アルゴンで置換した．
(ii) 面圧約 400 MPa，速度 40 μm/s で走査して 2×2 μm 領域の画像（128 line/image）を 100 枚取得することによってこの領域を摺動した．

得られた結果の一例を **Fig. 2** に示す．特に FM-1 の摩擦係数に注目すると摩擦開始直後から小さい値を示しており，変動が小さいことがわかる．これより，導入した AO 基の効果によって鉄表面への吸着強度が増し，摩擦に対する安定性が増している可能性が示された．このように中性子反射率法と摩擦試験の組み合わせることによって，トライボロジー研究の進展に寄与し得る一例を示した．

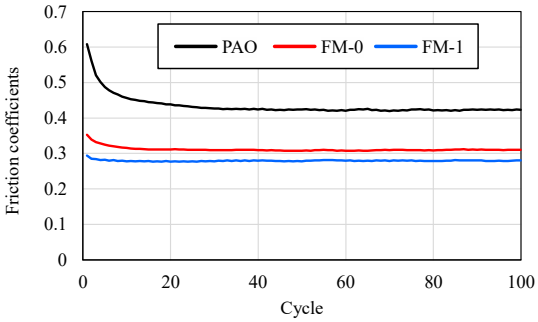


Fig. 2 Friction coefficients of interface with additives

Structural Analysis of Solid-Liquid Interface by Neutron Reflectometry for Tribology Study
Naoki Yamashita, Tomoko Hirayama, Masahiro Hino
naoki@me.kyoto-u.ac.jp

(T2)過酷条件下における熱流動現象の中性子イメージング

（京大複合研）○伊藤大介、大平直也、伊藤啓、齊藤泰司

１．はじめに：中性子イメージングはその透過性の高さから、さまざまな工業製品の非破壊検査に応用されている[1]。その中でも、金属配管や加熱炉の内部の可視化に有効であることから、熱流動現象の計測への応用例が多い。熱流動の計測においては、時空間的に変化する特性を調べる必要があり、著者らはこれまでに、高速度撮像のための中性子イメージングシステムの開発・改良および画像処理手法の検討を行ってきている[2]。今回はそれらを用いた応用例として、中性子イメージングでしか観察することができない過酷条件下における熱流動現象への適用として、以下の 2 つの実験について紹介する。

- 溶融ガラス内における金属粒子沈降
- 加熱充填層への再冠水

２．溶融ガラス内における金属粒子沈降：高レベル放射性廃棄物のガラス固化において、ガラス溶融炉の効率や安全性の向上のためには、溶融ガラス内の高融点金属粒子の挙動を明らかにする必要がある。しかしながら、溶融ガラスのような高温場の状況把握は非常に困難である。そのため、数値シミュレーションによる評価が多く行われているが、解析結果の検証のためのデータが不十分である。本研究では、高い透過性を有する中性子を利用したイメージング技術に着目した。そして、高温溶融ガラス内における熱流動現象の把握を行うことを目的とし、中性子イメージングによる金属粒子の沈降過程の可視化から溶融ガラスの粘性評価を行った。

実験装置の概略図を Fig.1 に示す。実験では、ガラスビーズをジルコニアるつぼに挿入し、SiC ヒータを搭載した加熱炉に設置した。本加熱炉の最高温度は 1500℃である。ガラスにはソーダ石灰ガラス（軟化点 730℃）を用いた。溶融ガラス内に沈降させる金属球にはタングステンカーバイト球を用い、炉の上部に設置した遠隔落下システムによって落下させた。球の直径は 10 mm である。中性子イメージング実験は KUR B-4 ポートにおいて実施した。Fig.2 に示す中性子イメージインテンシファイアと高速度カメラからなるシステムを用い、10 fps で中性子透過画像の撮影を行った。

Fig.3 に中性子イメージングによって得られた金属球沈降挙動を示す。1050 ℃まで加熱した溶融ガラス中を沈降する球の様子を観察することができる。また、得られた沈降速度は過去の文献で示されている溶融ガラスの粘性係数を用いてストークス則から計算した沈降速度と良好な一致を示す結果が得られた。

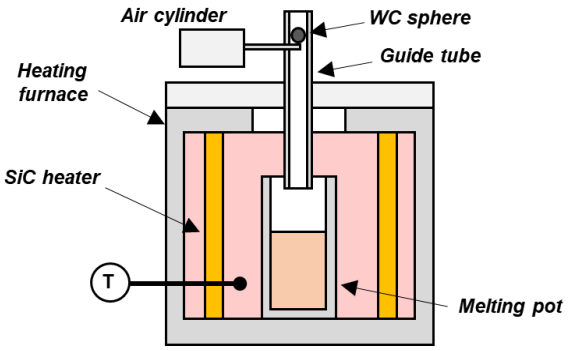


Fig. 1. Experimental setup for glass melting.

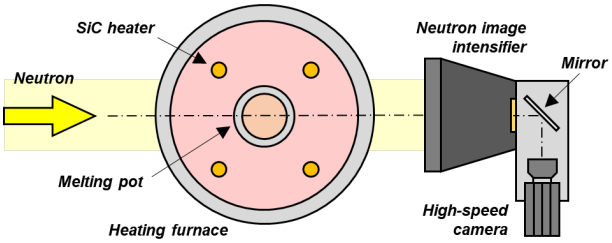


Fig. 2. Neutron imaging system for molten glass visualization.

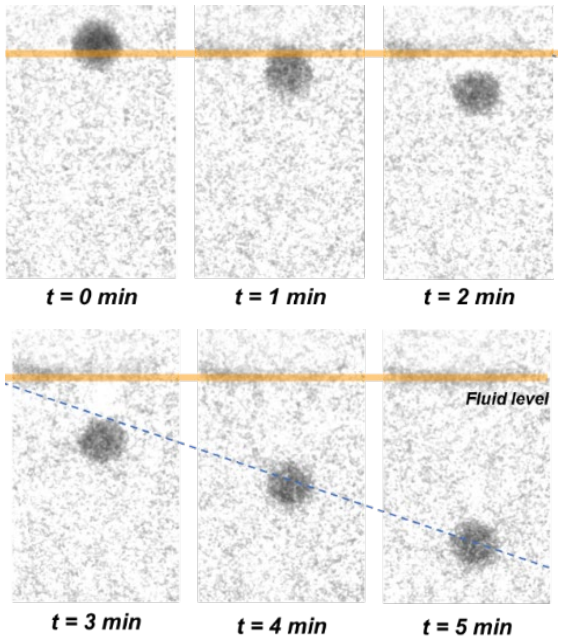


Fig. 3. Neutron transmission images of falling sphere in the molten glass at 1050 C

このように、中性子イメージングを用いることで 1000 ℃を超える流動計測が可能になった。今後、粒子のサイズや材質、ガラス材料の影響について調べ、溶融ガラス流動に関する基礎的な知見の蓄積を進めていく。

３．加熱充填層への再冠水：原子炉シビアアクシデントにおいて、炉心から溶け落ちた燃料デブリは、圧力容器内において十分に冷却がなされない場合、壁面を侵食し、格納容器へと流出することとなる。そのため、デブリの冷却特性は、原子炉安全性評価やシビアアクシデント解析において重要な要素の一つである。従来、燃料デブリを球充填層として摸擬し、その内部での流動構造を把握することで評価手法の高度化を図る研究が多く行われてきている。しかしながら、これまでの実験の多くは、常温条件での空気―水系二相流を対象としており、球充填層内における相変化特性についての知見は少ない。そこで、本研究では、模擬デブリ内沸騰二相流特性の評価を行うことを目的として、中性子イメージングによって球充填層内における再冠水挙動の可視化計測を行った。

実験ではセラミックスヒータによって加熱された球充填試験部に重水を流入させ、再冠水過程の可視化を行った。重水は軽水に比べて巨視的断面積が小さいため、比較的大きな試験部での中性子透過像の取得を可能にする。球充填試験部は、外径 21.7 mm、内径 18.7 mm のステンレス管に直径 5 mm のステンレス球をランダム充填させたものである。一定の温度に加熱した試験部に対して、下部からポンプによって重水を送り込み、液流入過程の中性子透過画像の取得を行った。流入する重水の流量は流量計によって計測し、それと同時にステンレス管外壁に取り付けた 5 本の熱電対によって冷却温度特性の測定も行った。

中性子イメージング実験は、JRR-3 熱中性子ラジオグラフィ装置（TNRF）で行った。実験装置を設置した TNRF 照射室内の写真を Fig.4 に示す。図の右側から中性子ビームが照射され、試験部を透過した中性子は暗箱に取り付けたシンチレータで可視光に変換され、暗箱内のカメラシステムで撮影される。今回用いたカメラシステムは、光イメージインテンシファイアと高速度カメラからなり、TNRF において最高 10,000 fps での高速度撮影を可能にする。本実験においては、撮影速度 250 fps、露光時間 1 ms とした。

Fig.5 に球充填層への再冠水挙動の可視化結果の一例を示す。本結果は、中性子透過像を注水前の画像で割った透過率画像である。約 560℃に加熱した試験部へ下部から重水を注入した。時間とともに下部から液が供給されていく様子が確認できる。また、8 秒後の画像では、下部からの液滴や蒸気が上部空隙に流れ、透過率の差から充填構造が確認できる。今後、本画像を解析し、模擬デブリ内における再冠水挙動の定量的な評価を進める。

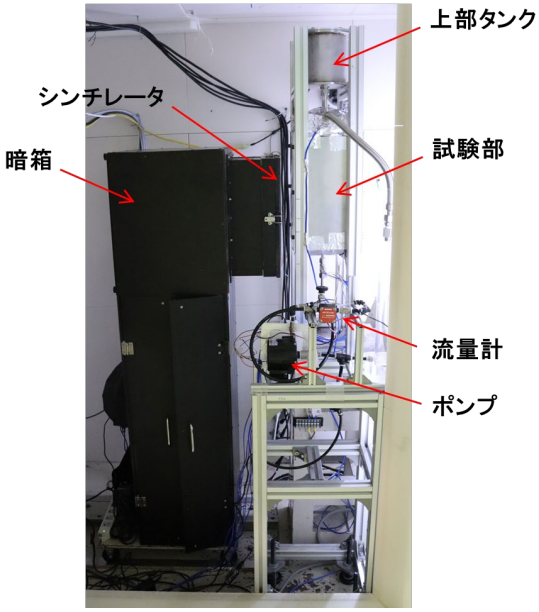


Fig. 4. Experimental setup and dark box for reflooding experiments in TNRF, JRR-3.

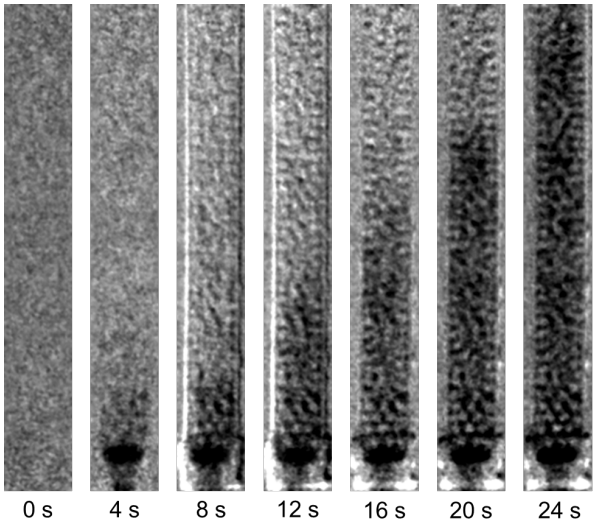


Fig. 5. Neutron transmission images of bottom re-flooding process in the packed bed of spheres.

４．おわりに：中性子イメージングは、本研究で実施した 1000℃を超える溶融ガラス内流動や再冠水のような高速に変化する過渡現象の可視化だけでなく、様々な条件下での現象把握に適用することが可能である。今後、撮像技術および解析技術の高度化によってより一層の応用が期待できる。

参考文献

[1] 中性子イメージングカタログ, 日本アイソトープ協会 (2018).
[2] D. Ito, Y. Saito, Mater.Res.Proc., **15**, (2020) 262-267.

Neutron imaging of thermal-hydraulic phenomena under severe conditions

Daisuke Ito, Naoya Odaira, Kei Ito, Yasushi Saito

Ito.daisuke.5a@kyoto-u.ac.jp

(PJ1) 中性子イメージングプロジェクト

（京大複合研）○齊藤泰司、伊藤大介、大平直也

１．はじめに：中性子イメージングは、X 線イメージングと相補的な特性をもち、特に水素含有物などの可視化・計測などに極めて有用な情報を与える。しかしながら、X 線と比較すると中性子線の強度は弱く、標準化も進んでいないのが現状である。そこで本プロジェクトでは、所内外の研究グループと協力し、中性子イメージングの標準化に資するデータの蓄積と、新たな応用分野への中性子イメージングの適用を目的としている。特に、本プロジェクトでは、定常中性子源を用いた中性子イメージングにおける基礎データの収集と応用について研究を行った。

２．昨年度の成果

２．１．中性子ラジオグラフィを用いた混相流ダイナミックス計測に関する研究：混相流における流動構造および動的挙動の高精度計測のために、高速度イメージングシステムおよび CT システムの構築を行った。Fig.1 は KUR の E-2 ポートに設置した CT システムの概略と、スリットおよび穴が空いたアルミニウム製サンプルの CT 再構成像を示す。図からわかるように、サンプル内の穴やスリットが明確に観察できることがわかる。現在、JRR-3 の熱中性子ラジオグラフィ設備（TNRF）で得られた CT 像と比較検討を行い、ノイズ特性について検討を行っている。

２．２．エネルギー機器運転時の液分布の可視化・計測と性能評価：PEFC における含水率と分極損失の関係性について中性子ラジオグラフィと電気化学インピーダンス分光法を用いて調べた[1]。Fig.2 は中性子ラジオグラフィによって得られた水分分布と水分量と電気伝導度の関係を示す。図から、わかるように流路形状と電流密度によって、電気伝導度と水分量の相関に相違があることがわかるが、その原因については現在考察中である。

２．３．超臨界水熱合成場の in situ 中性子ラジオグラフィ観察：超臨界水と常温水との混合特性[2]に関して、中性子を利用して可視化計測した。試験部はステンレス製の T ジャンクションで、上部から超臨界水を、右から常温水を供給する。Fig.3 では、超臨界水の流量を一定に保ち、常温水の流量を 12～36 g/min に変化させた場合の密度分布を示す。図から、常温水の流量増加とともに、密度が急激に変化する領域が上方へ移動しており、これにより超臨界水と常温水の混合状態が大きく変化していることがわかる。

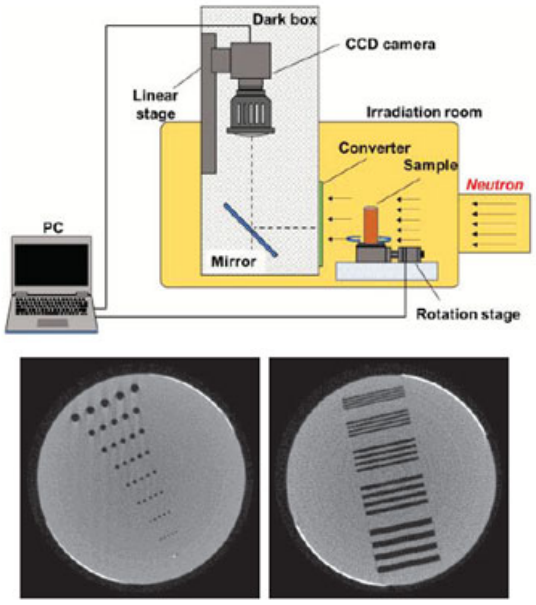


Fig. 1. Improved CT system at E-2 port and CT reconstruction results od aluminum plates with holes and slits

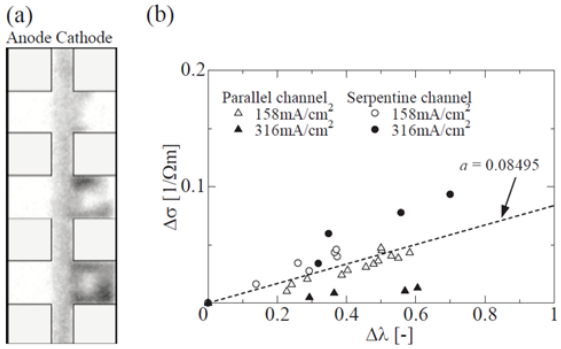


Fig. 2. Example of the experimental results; (a) Two-dimensional water distributions obtained by neutron radiography, (b)Relation between the change of the water contents in the PEM and the change of the ionic conductivity.

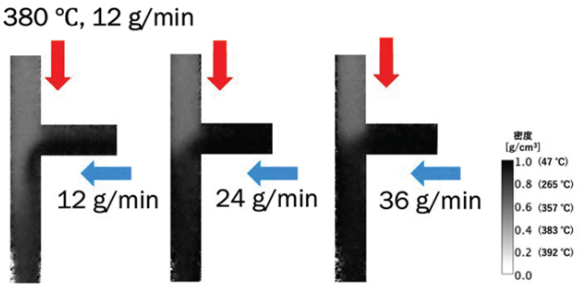


Fig. 3. Averaged water density in the flow channel. Heated water (reactant solution) and cooling water came from the top and the side, respectively.

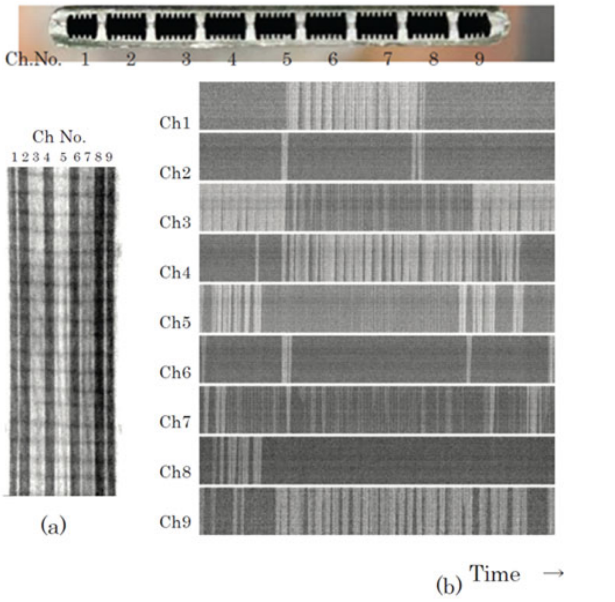


Fig. 4. Cross-section of microchannel and visualization image; (a) Time-average image, (b) Time strip image.

２．４．強制流動沸騰系内部のボイド率定量評価：中性子イメージングを用いて、単一プレートマイクロチャンネル熱交換器の熱流動特性の定量評価を行った。Fig.4 の上図は可視光による流路断面の外観を示し、Fig.4(a)は、時間平均のボイド率、Fig.4(b)は各チャンネルのボイド率の時間変化を示している。図から、チャンネルごとにボイド率の時間変化が異なり、不安定な流動が生じていることがわかる。

２．５．中性子ラジオグラフィによる着霜・除霜のメカニズム評価：中性子と X 線を組み合わせたイメージングによって、波状フィン型熱交換器への着霜の疑似 3 次元分布を計測し、空間分布の評価を行った[3]。Fig.5(a)は X 線画像、Fig.5(b)は中性子画像であり、それぞれの透過方向は直交しており、霜の 3 次元分布を疑似的に計測できていることがわかる。

２．６．植物の根の 3 次元イメージング：中性子を用いて根の中の水分移動を明らかにするとともに、培地の構造を X 線 CT によって調べた。Fig.6 は、X 線透過画像から CT 再構成によって得られた培地の水平断面図を示している。

２．７．高温加熱による鉄筋コンクリートの損傷におよぼすコンクリート中の水分の影響：鉄筋コンクリートが加熱された際の損傷特性を明らかにするために、コンクリート内の水分移動挙動を計測し、損傷との関連性を調べた[4]。Fig.7 は、コンクリートの初期含水率が加熱中の水分分布へ与える影響を調べたものである。図からわかるように、加熱面から離れると初期含水率の影響を受けているが、加熱面近傍では、初期含水率によらず、ほぼ同様な水分分布を示していることがわかる。

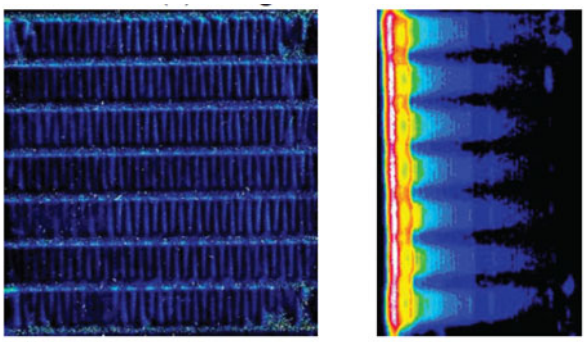


Fig. 5. Frost deposition distributions observed by X-ray (left) and Neutron (right) radiography at 1200 sec.

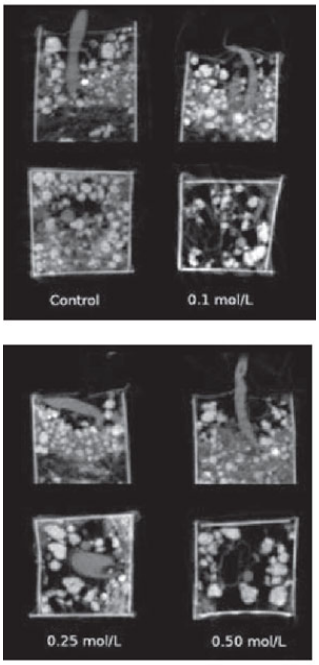


Fig. 6. X-ray CT image. The upper panel is longitudinal section, and the lower panel is a transverse section. The brighter the pixel, the higher the X-ray absorption at the location.

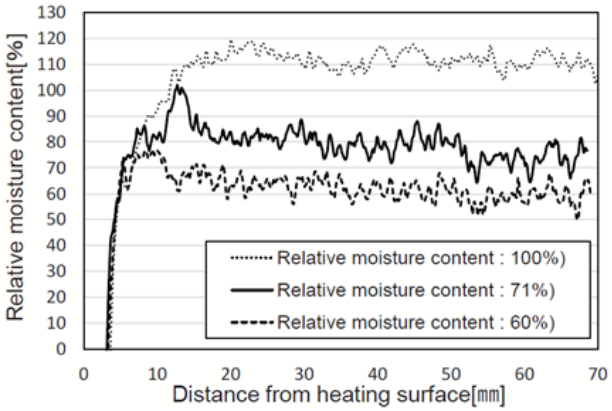


Fig. 7. The effect initial relative moisture content on the relative moisture distribution just before the spalling.

２．８．中性子ラジオグラフィによる NASICON 型固体電解質内のリチウムマイグレーション：リチウムイオン伝導体への通電時の中性子透過像からリチウムイオンの移動の可視化を行った。Fig.8 は中性子透過像の時間変化を示している。

２．９．複雑構造体内へ浸潤する液体の流動可視化：モーターコイルを模した構造物中を流れるオイルの流動を可視化計測した。Fig.9(a)は試験部の外観を示しており、この試験部の上方から、オイルを流下させた。Fig.9(b)は中性子透過像を示しており、試験部上のオイルの流動が明確にとらえられていることがわかる。

３．おわりに：本プロジェクトでは、中性子イメージングの標準化に資するデータの蓄積と、新たな分野への中性子イメージングの応用を目的とし、本報告では主に KUR において実施した実験結果の概略について報告した。加熱実験やオイルの観察など従来、中性子で行われていなかった応用例を示すとともに、X 線イメージングと中性子イメージングを併用して、さらに有用なデータが得られることを示した。

参考文献

[1] K. Mine, *et al.*, Proc. of ICOPE-2021, (2021), ICOPE-2021-0219.
[2] E. Shoji, *et al*., Chem. Engineer. Sci., **225**, (2020) 115816.
[3] R. Kuroda, *et al*. 2nd ACTS, (2021) ACTS-1314.
[4] 宮部あづさ, 他,アップグレード論文報告集,**21**, (2021) 413-418.

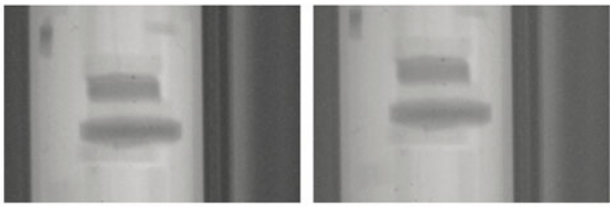


Fig. 8. Radiography images LiMn2O4/7Li-LATP/ LiMn2O4 symmetry cell after electrolyzed for 1 h (left) and 3 h (right).

Fig. 9. Stator coil structure and visualized coolant profile. (a)Snapshot, (b) Converted to cylindrical coordinate.

Project for Neutron Imaging
Yasushi Saito, Daisuke Ito, Naoya Odaira
saito.yasushi.8r@kyoto-u.ac.jp

(PJ2)BNCT に関する総合的線量評価システムの高度化

（京大複合研、九大院工[1]、名大院工[2]、産総研[3]、北大院医[4]、九大院医[5]、阪大院工[6]、広大院工[7]、京薬大基[8]、ＫＥＫ素核研[9]、都立大院人[10]、岡大学研院[11]、広国大保[12]、東北大未来研[13]、京大院理[14]、国がん中央[15]、名大医[16]、岡大ＮＴＲＣ[17]、広大原医研[18]、広大ＲＩＮＤ[19]）○櫻井良憲、渡辺賢一[1]、吉橋幸子[2]、増田明彦[3]、石川正純[4]、納冨昭弘[5]、村田勲[6]、遠藤暁[7]、田中憲一[8]、宇野彰二[9]、眞正浄光[10]、笈田将皇[11]、林慎一郎[12]、田中浩基、黒澤俊介[13]、谷森達、高田淳史[14]、中村哲志[15]、高田卓志、加茂前健[16]、道上宏之[17]、保田浩志[18]、黒木伸一郎[19]、井川和代[17]

１．はじめに：ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)は一般的な療法へと移行する時期にあるが、さらなる高度化・一般化のためには整備すべき課題が多々残されている。医学物理工学の観点では、線量評価の高度化がその一つであり、究極の目標は、照射場の特性評価、品質保証／品質管理、実際の患者への治療照射等の各フェーズにおいて、熱、熱外、高速中性子、γ線に加えてホウ素に由来する線量を弁別しながら、三次元かつリアルタイムで線量評価を簡便・低労力で行うシステムを構築することである。

この状況を踏まえ、プロジェクト「BNCT に関する総合的線量評価システムの構築」を提案し、2017～2019 年度に採択された。様々な線量評価手法を組み合わせた総合的線量評価システムの構築を目指すとともに、個々の線量評価手法の高度化を行ってきた。本プロジェクトでも、引き続き、総合的評価システムの完成を目指して、個々の線量評価手法およびシステム全体の高度化を推進している。

２．研究課題：本研究プロジェクトの各課題について概要を以下にまとめる。

2.1. 電離箱およびボナー球を用いた BNCT 用照射場特性評価手法の確立(代表：櫻井良憲)：加速器ベース BNCT 用照射場が増加する中、複数の照射場間で整合性の取れた特性評価を行い、治療時の付与線量の同等性・同質性を保証することが重要である。本課題では、熱、熱外、高速中性子、γ線に関する線量の分離評価のための多重電離箱システム(MICS)、および、中性子エネルギースペクトルの簡便な評価のための遠隔可変型ボナー球スペクトロメータ(RBS)の開発を行っている[1,2]。KUR 重水中性子照射設備(以降、重水設備)において、最適化シミュレーションに基づき試作した RBS の特性評価実験を行っている。

2.2. 熱外領域中性子エネルギースペクトルの測定法に関する研究(代表：渡辺賢一、吉橋幸子)：本課題は、光ファイバを利用した極小サイズの中性子検出器を用いた熱外中性子領域の中性子エネルギースペクトルの測定法に関する研究の一環である。小片 $LiCaAlF_6$ および $LiF\text{-}CaF_2$ シンチレータを中性子検出器として用いた光ファイバ検出器を開発し[3]、新たに提案している「水ファントム中の熱中性子束分布の情報から入射中性子のエネルギースペクトルを推定する方法」にこの光ファイバ検出器を適用することを検討している。KUR E3 中性子導管において光ファイバ検出器の熱中性子に対する感度評価実験を、KUR 重水設備においてエネルギースペクトル評価に関する実験を行っている。

2.3. 大強度中性子スペクトル測定装置の開発に関する研究(代表：増田明彦)：本課題は、大強度中性子照射場に対応した改良型ボナー球検出器の開発の一環である[4]。ボナー球スペクトロメータの減速材の一部に Li-6 濃縮フッ化リチウムを添加したポリエチレン等の中性子遮蔽材を導入し、中性子検出効率を適切に抑制することで、He-3 比例計数管によるパルス測定を可能とすることを試みている。KUR 重水設備において、大強度熱外中性子に対する実験的検証および信号処理方法の最適化検討を行っている。これまでに検討してきた Li-6/Li-7 ガラスシンチレータおよび電流モード動作光電子増倍管を用いたボナー球検出器との比較も行っている。

2.4. エネルギー領域弁別と長期運用のための SOF 検出器システムの改良(代表：石川正純)：本課題は、BNCT 中のリアルタイム熱中性子フルエンス測定のための光ファイバの先端にプラスチックシンチレータを取り付けた検出器(SOF 検出器)の開発研究の一環である[5]。これまで、SOF 検出器の長期安定性および広い測定ダイナミックレンジ(10^4～10^{10} $cm^{-2}s^{-1}$ の直線性)は確認されているが、年単位の長期安定性においては信号の低下が示唆されている。この信号低下の主な原因はプラスチック製光ファイバの劣化によるものと推測されている。KUR 傾斜照射孔においてファイバの劣化加速試験を、KUR 重水設備において SOF 検出器の信号波形測定、プローブ校正、水ファントムを用いた特性評価実験を行っている。

2.5. 自己放射化法を用いた BNCT 場の中性子測定方法の基礎研究(代表：納冨昭弘)：BNCT 用照射場の中性子線質評価を迅速に行うための手法の一つとして、ヨウ素含有シンチレータの自己放射化による中性子検出法が期待されている[6]。NaI や CsI 等のヨウ素含有シンチレータが中性子により放射化すると I-128(半減期 25 分)が生成される。I-128 から放出さ

れる β 線の定量により中性子束の情報を評価できる。この方法は、Au-198(半減期が 2.7 日)を用いた放射化法に比べて、短時間照射に対しては極めて感度が高いことが特徴である。また、検出器自身の放射化に基づくため放射化測定の際の試料を測定装置まで移動する手間がかからない。本課題では、KUR E3 中性子導管および KUR 重水設備においてヨウ素添加有機シンチレータの応答基礎特性評価実験を行い、有効性を確認した。

2.6. BNCT のための絶対中性子束強度測定検出器の開発(代表 : 村田勲) : 本課題は、放射化箔法を用いた中性子束絶対積分強度測定検出器に関する開発研究の一環である[7]。この検出器は 2 つの検出器で構成されている。1 つは、BNCT 治療で使われる熱外中性子に対し感度が一定になるように設計されており、絶対強度の簡便な測定が可能である。もう 1 つは、10keV を超える高速中性子の強度計測が目的である。これら BNCT 用熱外・高速中性子束絶対積分強度測定検出器の推定可能性を実証するために、KUR 重水設備において特性試験を行っている。

2.7. BNCT 医療照射場の中性子場の線量･線質評価と計測器の特性評価(代表 : 遠藤暁) : 本課題は、マイクロドシメトリ手法を用いた BNCT 医療照射場の線量・線質評価手法、および、薄型シリコン半導体センサを用いた中性子束リアルタイム計測手法に関する開発研究の一環である。マイクロドシメトリ手法については、組織等価ガス比例計数管(TEPC)を用いた手法を検討している[8]。薄型シリコン半導体センサについては、複数種類のフィルタと組み合わせることで、熱、高速中性子の分離計測が可能である。特に、このセンサの実現性、耐久性、中性子損傷の影響を確認するために、KUR 重水設備において特性評価実験を行っている。

2.8. Silicon-on-Insulator Microdosimeter を用いた BNCT 用照射場のマイクロドシメトリに関する研究(代表 : 櫻井良憲) : 上述のように、複数の BNCT 用照射場間で整合性の取れた特性評価を行い、治療時の付与線量の同等性・同質性を保証することが重要である。そこで、物理的線量と生物学的効果の橋渡しとして期待されるマイクロドシメトリを組み込むことを検討している。検出器としては、豪州 University of Wollongong のグループが開発している silicon-on-insulator microdosimeter (SIM)の利用を考えている。この特殊な検出器を用いたマイクロドシメトリにより、中性子の生物学的効果比(RBE)やホウ素化合物効果(CBE)の評価も期待できる。本課題では、シミュレーションを主体とした SIM の最適化検討、および、KUR 重水設備において基礎特性評価実験を行った[9]。

2.9. 受動型検出器を用いた BNCT 照射場ビーム成分ごとの 2 次元分布品質保証(代表 : 田中憲一) : BNCT の QA としては、照射場中の熱、熱外、高速中性子および γ 線の強度分布の担保が望まれる。そこで、イメージングプレート(IP)やゲル線量計などの受動型検出器を用い、これら四成分の二次元分布を分離評価する手法の開発に取り組んでいる[10]。特に IP については、そのプローブとなる BaFBr:Eu 輝尽蛍光体を作成し、生体等価な水素系材質に封入して二次元検出器を構成することで、平均 LET および線量に関する二次元分布評価手法の開発を目指している。本課題では、KUR 重水設備において、これらの手法に関する特性評価実験を行っている。

2.10. GEM 検出器を用いた BNCT 照射場における二次元中性子分布測定に関する研究(代表 : 宇野彰二) : BNCT 照射場において熱外中性子ビームの品質保証・管理を行うことは治療の高度化を行う上で重要である。従来の金の放射化法による測定・評価は、リアルタイムではないことと、点での評価であるため、迅速かつ二次元での評価が困難である。高エネルギー加速器研究機構では Gas Electron Multiplier (GEM)を用いた二次元中性子画像検出器を開発し、この検出器による中性子エネルギー分布、中性子入射二次元位置の測定・評価手法を確立してきた[11]。本課題では、GEM 検出器の BNCT への応用を目指して、KUR 重水設備において、熱外中性子ビームの二次元的測定の可能性について確認実験を行った。

2.11. 熱蛍光板とコンバータを併用した中性子フルエンス分布と γ 線分布測定に関する研究(代表 : 眞正浄光) : 本課題は Al_2O_3 セラミックス板および BeO セラミックス板を用いた BNCT のための中性子・γ 線分布イメージング手法に関する開発研究の一環である[12]。これまでの成果を踏まえ、熱中性子に対する高感度化のために Al_2O_3 セラミックス板と板状 Cd コンバータを併用する手法を提案し、熱・熱外中性子フルエンス分布測定への応用を検討している。また、BeO セラミックス板の γ 線線量分布測定への応用も検討している。KUR 重水設備において特性評価実験を行い、理論的解析を進めている。

2.12. 中性子線における人体等価型線量計の開発応用に関する研究(代表 : 笈田将皇) : 本課題では、radiochromic 物質およびゲル線量計を利用した BNCT 臨床応用技術の開発および線量計測システムの確立を目指している[13]。非荷電粒子線(主に X 線)・荷電粒子線(主に電子線、陽子線)を用いた放射線治療における線量測定および QA では、radiochromic 物質(主に film)が多用されている。Radiochromic 物質は放射線重合反応により線量に応じた濃度変化を生じる特性を有し、その変化を線量評価に利用する。ゲル線量計については、ホウ化物を添加したフリッケゲル線量計の利用を検討している。KUR 重水設備において radiochromic 物質に関する特性評価実験を行っている。

2.13. BNCT における吸収線量分布測定のためのポリマーゲル 3 次元線量計の開発と特性評価(代表：林慎一郎)：本課題は、BNCT における線量評価のための三次元ゲル線量計の開発研究の一環である[14]。ゲル線量計とは、放射線照射によって誘起される水溶液中での放射線化学反応を利用した化学線量計の一群である。溶媒として水(80‐90wt%)、反応物としてラジカル重合反応を生じるビニルモノマー(3-5wt%)や放射線感受性色素(1-100mM)、および、反応の空間分布を固定するためのゲル化剤(3-10wt%)を主成分とし，水等価(組織等価)な線量計である。照射後，生成した反応物の空間分布を核磁気共鳴画像化装置(MRI)や分光光度計(光学 CT)等で測定することにより吸収線量の三次元分布を直接的に得ることができる。新規に開発されたラジオクロミックゲル線量計の特性評価実験を、KUR 重水設備および Co-60 ガンマ線照射装置において行っている。

2.14. 二重ファントム法を用いた BNCT 用照射場線質評価手法の確立(代表：櫻井良憲)：様々な BNCT 用照射場が開発されているが、特に高速中性子に関する線質は照射場の個性の出る部分であり、より高度な評価が望まれる。そこで、材質の異なる二種類のファントムを用いる「二重ファントム法」を用いた照射場の線質評価手法の確立を目指している[15]。Li-6 は(n,α)反応により熱中性子をよく吸収し、二次 γ 線を発生しない。材質として ^{6}LiOH 水溶液や ^{6}LiF 混入ポリエチレンを用いることで、ファントム内の高速中性子束分布を変えることなく、熱中性子束を大きく減ずることができる。従って、普通の水ファントムと Li-6 混入ファントムを用いる実験を比較することで、照射場の線質、特に高速中性子に関する線質の評価が期待できる。本課題では、この手法を用いた線質評価手法の確立を目指している。KUR 重水設備において、本手法による生物学的効果評価に関する検証実験を行っている。

2.15. BNCT のためのリアルタイム線量評価システムに関する研究(代表：田中浩基)：加速器ベース BNCT 用照射場の開発が進む一方で、線量に関してはリアルタイムでの評価が行われていない現状にある。そこで、BNCT における即発 γ 線を用いたリアルタイム線量評価システムの要素技術の開発が行われている[16]。本課題では、BNCT 臨床に即した照射位置における中性子線および γ 線の情報を明らかにし、その線量場において遮蔽を含めた実現可能なリアルタイム線量評価システムの提案を目指す。熱中性子束の情報は LiCAF/ CLYC シンチレータと石英ファイバを組み合わせたシステムにより取得する。このシステムの校正および特性評価実験を KUR 重水設備および LINAC において行っている。また、シンチレータアレイ、コンプトンカメラ、半導体検出器等の即発 γ 線検出器の特性試験を KUR E3 中性子導管において行っている。

2.16. 新規シンチレータ材料の放射線耐性実験と BNCT での照射モニタ開発に向けた材料の検討(代表：黒澤俊介)：Ce 添加 $Gd_3(Al, Ga)_5O_{12}$ (GAGG)および Ce 添加$(La,Gd)_2Si_2O_7$ (La-GPS)等の新規シンチレータ結晶について、α 線や陽子線に対する放射線耐性は確認されてきたが、γ 線に対する放射線耐性は確認されていなかった[17]。本課題では、これらの結晶の γ 線に対する放射線耐性の調査を、Co-60 ガンマ線照射装置において行った。これらの結晶はエネルギー分解能が良いことから、BNCT におけるリアルタイム線量モニタへの応用が期待できる。本課題では、これらの新規シンチレータによる、B-10(n,α)反応由来の 478keV の即発 γ 線と 511keV の消滅 γ 線の分離評価の可能性に関する検証検討も、KUR 重水設備および E3 中性子導管において行った。

2.17. ホウ素即発ガンマ線イメージングによる生体内ホウ素薬剤濃度分布の定量的計測法の確立 (代表：谷森達、高田淳史)：本課題は、電子飛跡検出型コンプトンカメラ(ETCC)を用いた BNCT における生体内ホウ素薬剤濃度分布の定量的計測法に関する開発研究の一環である[18]。ETCC は、γ 線の到来方向を完全に決定し、光学原理に基づく定量性のあるイメージングが可能な技術であり、γ 線のエネルギーに関係なく、コンプトン散乱を完全に再構成し画像化することができ、コンプトン散乱のすべての物理量の計測が可能である。特に、計測された飛跡の dE/dx から荷電粒子や中性子雑音を完全に除去できることから、高線量場での画像化も期待できる。KUR 重水設備および E3 中性子導管において、ETCC の特性評価実験を行っている。並行して、E3 中性子導管において BPA を投与した担癌マウスを用いた実験も行っており、マウスから生じるホウ素即発ガンマ線の画像化に成功している。

2.18. BNCT 照射場の QA 及び QC のための基礎研究(代表：中村哲志)：国立がん研究センター中央病院ではリニアックを使用した病院設置型 BNCT 装置が設置され、2019 年 11 月に表層部の疾患に対する BNCT 治験が開始されている。このような状況のもと、病院設置型 BNCT 装置に適した QA/QC の確立を目指している。また、従来の原子炉ベース装置で行われている QA/QC との整合性も保つため、統一的な QA/QC プログラムも検討している。本課題では、KUR 重水設備において複数種の線量計に関する照射実験を行い、原子炉ベースおよび病院設置型 BNCT 装置について統一的な QA/QC 手法の構築の検討を行っている[19]。

2.19. 中性子照射による半導体デバイス機器の放射線損傷に関する研究(代表：田中浩基)：BNCT 照射場では、中性子モニタ、患者モニタカメラ、埋め込み型ペースメーカ等の半導体デバイスを有する電子機器が照射される可能性がある。特に、デバイス中に熱中性子に対して断面積が大きい核種が含まれてい

ると、入射した熱中性子との核反応で発生した荷電粒子によりノイズ電流が生じ、デバイスの誤動作の原因となることが懸念される[20]。本課題では、半導体デバイスへの中性子の影響を調べることを目的としている。半導体デバイスとして SRAM (Static Random Access Memory)を対象に、KUR 重水設備および E3 中性子導管ならびに Co-60 ガンマ線照射装置において、熱、熱外、高速中性子、γ線に対する特性評価および影響評価実験を行っている。

2.20. BNCT 用補償フィルターによる線量分布最適化に関する研究(代表 : 高田卓志) : 熱外中性子を用いた BNCT では、中性子の体内での熱化を利用して、熱中性子を深部まで到達させている。一方で、熱中性子束の体内でのビルドアップや減衰のため、浅部病巣に対する線量不足や、深部方向に分布した病変に対する大きな線量勾配が生じる場合があり、補償フィルタによる線量分布の改善が図られている。そこで、患者ごとに線量分布を最適化した BNCT を実現することを目指して、個々の患者の病変の位置と形状に合わせて補償フィルタを設計・作成する手法の開発を行っている。本課題では、KUR 重水設備において、設計・作成した補償フィルタを用いた線量分布測定実験を行い、この手法の検証を行っている[21]。

2.21. BNCT 照射場ビームに対する患者個別最適化に向けた基礎研究(代表 : 加茂前健) : BNCT において、従来のほぼ均一な中性子照射野では正常組織の耐用線量の制限から患部に十分な線量を付与できない場合がある。本課題では、3D プリンタで造形した補償フィルタあるいは専用設計したマルチリーフコリメータを用いて、中性子ビーム強度およびエネルギーを調整し、患者ごとに最適化した BNCT 照射野を形成する技術の確立を目的としている。最終的には、光子線治療分野の強度変調放射線治療のように、照射野内の中性子強度を最適変調し、腫瘍線量増加・正常組織線量低減を可能とする「強度変調 BNCT」の確立を目指している。シミュレーションを主体にフィルタおよびコリメータの材質および形状について最適化検討を行っている。この検討結果に基づいてフィルタおよびコリメータを試作し、KUR 重水設備において検証実験を行う予定である。

2.22. 即発ガンマ線分析を応用した生体内ホウ素薬物動態測定技術の検証(代表 : 道上宏之) : 様々な薬物送達システム(DDS)を利用したホウ素の運搬システムの開発が進んでいるが、その多くは腫瘍組織に到達する点に注目しており、到達前後の動態については言及していない。そこで、即発ガンマ線分析(PGA)を応用したホウ素薬物動態の測定技術の開発を進めている。検討している技術では、KUR E3 中性子導管等で得られるビーム状の熱中性子をコリメートし、生体の測定対称の表面にのみ照射する(X 座標、Y 座標の固定)。中性子照射により生ずるガンマ線は中性子ビームと垂直に配置した半導体検出器等で検出するが、γ線コリメータにより深さ方向のγ線の発生位置を絞り込む(Z 座標の固定)。連続的に測定することにより、測定対象部位の薬物動態測定を行う。本課題では、シミュレーションを主体にコリメータの最適化を行うとともに、KUR E3 中性子導管において実験的検証を行っている。

2.23. 放射線治療照射に伴う脳内三次元線量分布の精密な把握とその脳機能への影響評価(代表 : 保田浩志) : 原発性の深部脳腫瘍に対する BNCT の QA では、水ファントムと金線を用いた一次元的な深部方向中性子束分布の評価、また、電離箱および熱ルミネッセンス線量計(TLD)を用いた基準点における線量評価が行われている。治療照射時においては体表における線量評価のみが行われており、深部については治療計画によるシミュレーションに基づいている。脳内各部位への影響(ホルモン分泌異常や神経障害等)を評価することは行われておらず、他の治療法に代えて BNCT を採用することによる副作用の低減効果については明らかでない。本課題では、BNCT のさらなる品質向上のため、様々な放射線治療に使用できる三次元線量評価手法を開発し、その手法を利用して、脳内における三次元線量分布を正確に把握するとともに、脳内各部位の線量に基づき脳機能への影響を評価・解析する。線量評価手法として色素ゲル線量計を採用し、KUR 重水設備において特性評価実験を行っている[22]。

2.24. 中性子捕捉療法のための中性子 2 次元半導体センサの研究(代表 : 黒木伸一郎) : 本課題では、中性子ビームの形状等をリアルタイムで観察可能とする中性子二次元半導体センサを構築することを目的としている。空間分解能は 0.01 mm 以下、耐放射線性(トータルドーズ耐性)は 10 kGy を目標としている。検討している中性子二次元半導体センサは、シリコンカーバイド半導体によるダイオード構造とトランジスタ回路を組み合わせたものである。試作した中性子センサ・プロトタイプでは、500 μ m 角の中性子感応部を有し、この感応部に付随して同一半導体基板上にトランジスタ回路を集積している。KUR 重水設備および E3 中性子導管において、このセンサの原理検証実験を行う予定である。

2.25. 口腔領域三次元モデルにおける BNCT 線量評価の検討(代表 : 井川和代) : 呼吸、嚥下、咀嚼、構語、味覚などの重要な機能を有する口腔領域の治療において、機能温存と顔面形態維持に優れた放射線療法は重要な選択肢の一つである。2020 年 6 月より BNCT は頭頚部がんに対して保険診療が認められ、画期的な治療法として期待されている。口腔がんの放射線治療の副作用として粘膜炎は克服すべき課題の一つである。本課題では、上皮細胞に口腔粘膜線維芽細胞を組み込んだ口腔粘膜三次元モデルと口腔癌細胞と癌関連繊維芽細胞の口腔がん三次元モデルにおける線量解析、三次元培養の組織学的解析により

BNCT における粘膜炎の評価を行う。KUR 重水設備において三次元モデルを用いた細胞実験を行い、線量解析・組織学的解析を行っている。

2.26. 集学的治療としての BNCT 評価システムの構築(代表 : 井川和代) : BNCT においては再発の患者が多いことから、放射線治療後、化学療法後のホウ素の取り込み評価が重要である。本課題では、放射線耐性、抗がん剤耐性、ヒト舌由来扁平上皮癌(SAS)の細胞株を用いて担癌マウスを作成し、ホウ素取り込みと腫瘍縮小効果を評価する。KUR 重水設備において、照射前に摘出した腫瘍の薄切切片を貼り付けたプラスチック飛跡検出器(CR-39)を照射し、組織内ホウ素分布に関する解析を行っている。

2.27. 液体シンチレータを用いたホウ素中性子捕獲反応分布の光学的観測(代表:納冨昭弘):本課題では、ホウ素含有シンチレータに中性子を入射して、光学的な観測によりホウ素中性子捕獲反応の情報を直接的に得て、BNCT の品質保証に資することを目的としている[23]。ホウ素中性子捕獲反応の結果発生するアルファ粒子およびリチウム粒子のエネルギー付与に伴う発光を、CCD カメラで捉え、ホウ素濃度分布でも中性子束分布でも無く、「ホウ素線量分布」を光学的に観測するシステムの構築を目指す。KUR E3 中性子導管において、このシステムに関する発光特性の確認実験を行っている。

2.28. ガンマ線テレスコープシステムによるリアルタイムホウ素濃度分布評価手法の開発(代表 : 櫻井良憲) : BNCT における線量評価では腫瘍部および正常部のホウ素濃度を決定することが重要であり、線量評価の高度化にはホウ素濃度の空間分布をリアルタイムで評価できる手法が求められている。本課題では、ガンマ線テレスコープシステムによるリアルタイムホウ素濃度測定手法の開発を行っている[24]。KUR 重水設備に設置されているガンマ線テレスコープシステムを用いて、特性評価実験を行っている。

３．おわりに : 本プロジェクト「BNCT に関する総合的線量評価システムの高度化」は 2020～2022 年度に実施された。プロジェクト 1 年目である 2020 年度は、コロナ禍の影響により KUR の共同利用運転開始が遅れたため、ほとんどの研究課題の開始が遅れ、あまり成果が得られなかった。2 年目および 3 年目である 2021 年度および 2022 年度も、引き続き、コロナ禍の影響により、一部の研究課題が実施できず、十分な成果が得られていない状況である。

本プロジェクトの前身である「BNCT に関する総合的線量評価システムの構築(2017～2019 年度)」の期間も合わせた 6 年間で、BNCT 用加速器ベース照射場の開発は一層進み、それに応じて線量評価における新たな要求が生じている。最近では、生物学的効果、および、その前段階である化学的効果に関する線量評価への感心も高まっている。

今後も、個々の線量評価手法の高度化を進めるとともに、新たな手法も取り入れて、BNCT に関連する線量評価技術の開発を継続する。

参考文献

[1] T.Fujii *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **69** (2011) 1862-1865.
[2] S.Shiraishi *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **161** (2020) 109213.
[3] A.Ishikawa *et al.*, Sens. Mater. **32** (2020) 1489-1495.
[4] A.Masuda, *et al.*, KURNS Progress Report 2020 (2021) 68.
[5] M.Ishikawa *et al.*, Radiat. Oncol. **11** (2016) 105 (1-10).
[6] T.Ueki *et al.*, Radiat. Meas. **128** (2019) 106181.
[7] X.Guan *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., **53** (2016) 1112-1119.
[8] M.Takada *et al.*, Radiat. Meas. **137** (202) 106381.
[9] N.Hu *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **140** (2018) 109-114.
[10] K.Tanaka *et al.*, Ioniz. Radiat. **43** (2017), 3-7.
[11] S.Uno *et al.*, Phys. Procedia **37** (2012) 600 – 605.
[12] R.Oh *et al.*, Sens. Mater. **33** (2021) 2129-2135.
[13] T.Kamomae *et al.*, Phys. Med. **32** (2016) 1314-1320.
[14] S.Hayashi *et al.*, Radiat. Meas. **131** (2020) 106226.
[15] Y.Sakurai *et al.*, Med. Phys. **42** (2015) 6651-6657.
[16] K.Okazaki *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **992** (2021) 165026.
[17] S.Kurosawa *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A**784** (2015) 115- 118.
[18] T.Tanimori *et al.*, Astrophys. J. **810** (2015) 28(1-12).
[19] S.Nakamura *et al.*, KURNS Progress Report 2019 (2020) 55.
[20] T.Kato *et al.*, IEEE Trans. Nucl. Sci. **68** (2021) 1436-1444.
[21] T.Takata, *et al.*, KURNS Progress Report 2020 (2021) 83.
[22] J.E.Tano *et al.*, Radiat. Meas. **134** (2020) 106311.
[23] A.Nohtomi *et al.*, Radiol. Phys. Technol. **15** (2022) 37–44.
[24] Y. Sakurai *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **161** (2020) 109256.

Advancement of integrated system for dose estimation in BNCT

Yoshinori Sakurai, Kenichi Watanabe, Sachiko Yoshihashi, Akihiko Masuda, Masayori Ishikawa, Akihiro Nohtomi, Isao Murata, Satoru Endo, Kenichi Tanaka, Shoji Uno, Kiyomitsu Shinsho, Masataka Oita, Shinichiro Hayashi, Hiroki Tanaka, Shunsuke Kurosawa, Toru Tanimori, Atsushi Takada, Satoshi Nakamura, Takushi Takata, Takeshi Kamomae, Hiroyuki Michiue, Hiroshi Yasuda, Shinichiro Kuroki, Kazuyo Igawa

sakurai.yoshinori.8n@kyoto-u.ac.jp

(S2)環境放射能をはじめとする環境科学の研究

（京大複合研）○五十嵐　康人

１．はじめに

小児喘息もちで苦しい入院を送ったりしたこともあって，子供心に環境問題の解決がとても重要なことだと考え，環境研究にずっと興味をもっていました．そのため，大学では化学を専攻分野として選びました．その後ずっと放射性物質の環境動態研究が中心的なテーマではありましたが，１）筑波大学自然学類 4 年次―同大学院博士課程化学研究科（在籍計 6 年），放射線医学総合研究所 環境放射生態学研究部（同 4 年），２）気象研究所 地球化学研究部ならびに環境・応用気象研究部（同 28 年），３）茨城大学-筑波大学-京都大学複合原子力科学研究所（同 5 年）にて，極めて広範囲の環境研究に挑戦してきました．本稿では歩んできたその道の概観を記します．

２．人体や食品での放射性物質の動態研究と高感度分析法

1977 年のスリーマイル島事故で放射性物質の人体影響に興味を抱いたことから，放射化学の研究室に進み，内部被ばく影響が大きい長半減期のα線放出核種から研究を始めました．放射線防護的な観点から，放射化学分離手法など既存の分析法を改良し，Ra, Th, U, Pu 等α線放出核種の人体臓器中での濃度水準と分布を調べ，U と Pu については人体負荷量を得ました．すなわち人体での動態を把握し，さらに異なる体内分布の要因を検討しました．人体への経路としての食品および喫煙等による摂取量の把握にも努めました．

長半減期核種を対象としていたため，長時間測定を要する放射能分析の従来法に限界を感じていました．たまたま，放射線医学総合研究所で当時斬新で最も高感度で迅速な分析法（誘導結合プラズマ質量分析法；ICP-MS）に出会って感心したことから長半減期の核種分析に先駆的に応用し，世界的にも測定法の新潮流を作りました．その当時半導体メーカーがα線によるソフトエラー回避のため，Th, U の高感度分析手法を欲したことに ICP-MS 製造者が応えて開発を進めたのが幸いしたとも言えます．

３．大気中の放射性物質と関連物質の動態研究

もっとスケールの大きい研究がしたくなり，所属研究機関を変えました．そこで，気候変動，越境汚染等に係わるプロセス解明の観点から，一方では「業務」にさまざま配慮しつつ，他方，長期の変動を把握するために長期モニタリングを基軸に研究しました．科研費取得が制度的に認められた 2002 年以降，やっとボトムアップ的に研究計画を立案し，山岳観測や大気エアロゾル研究に携わるようになりました．

大気中の放射性物質の研究基礎は，大気圏核実験由来の ^{90}Sr, ^{137}Cs 等の毎月の降下量実態把握でした．大気圏核実験で成層圏に打ち上げられた成分が失われ，核実験も地下へ移行した結果，直接の発生源がありません．にもかかわらず，大気中の放射性物質の濃度はゆっくりとしか減少しない（人体への影響は無視できる水準です）ということから，別な発生源があると考えました．つまり，世界中の表土は極微量ですが，大気圏核実験の降下物で現在も汚染されています．そうした表土ダストの舞い上がりに伴い微量の ^{90}Sr, ^{137}Cs 汚染が大気に戻る「再浮遊」が続くことを解明しました．しかし表土の核種組成と濃度は気候条件で異なり，再浮遊には近傍成分と長距離輸送成分（大規模風送塵がキャリアとなった現象）があることが分かり，そうした研究への利用を着想しました．2000 年代には黄砂現象が頻発し我が国への影響が大きくなり，発生域の東への拡大が推定されましたが，モンゴルでの調査で得た核種組成や降水量の解析から，草原域の砂漠化を解明しました．

４．大気中の放射性希ガスに関する研究

^{85}Kr は核燃料再処理が主な発生源となる放射性希ガスで，商業再処理で 1990 年代，その大気中濃度は上昇していました．しかし，我が国での連続観測手法は未整備で，先進国ドイツの研究機関の協力を得て技術を導入，独自の思想や部品を用いた観測装置を開発しました．1999 年臨界事故では本法を Xe はじめ放射性希ガスの測定に応用し学術調査を主導，安全確認に貢献しました．本法は，原子力規制庁が主管する国の放射能調査でも活用されています．^{85}Kr 濃度季節変動は欧州からの長距離輸送に依ることを示し，CO_2 発生源変動解析にも寄与しました．

５．大気エアロゾルや大気化学に関する研究

酸性降下物の解析で，大気上層由来の宇宙線生成核種 ^{7}Be と地表由来の人為起源 SO_2 から生ずる硫酸塩との相関を見出し，それぞれ発生領域高度が全く異なるため気塊が混合する機序があるはずと推定しました．また，SO_2 は勝手には酸化しないため，反応相手の酸化剤－O_3 や OH ラジカルが必要です．かくして，自由対流圏過程の重要性を確認しました．どうしても上層大気=自由対流圏を観測しなければと考え，高所山岳地点での観測を始めました．富士山を「観測塔」として利用し，成層圏オゾンの自由対流圏への流入や前駆物質 SO_2 のアジア大陸からの長距離輸送等の解明を進め，大気中での硫酸生成に汚染空気の大規模な輸送と対流圏空気と成層圏空気の混合が係わることを実証しました．さらに，エアロゾル等大気微量物質の観測研究を進め，シベリア森林火災の煙など，夏季でも前線活動下では多様な物質が長距離輸送されること等を見出しました．また，上空の黄砂雲の地表への鉛直移流の関東山岳に

よるブロックを見出し，その気象学的要因（地表ローカル前線の形成）を考察しました．

この頃，所属研究機関の組織再編が計画実施され，五十嵐は部署を移動となりました．そこで，2000 年代後半には，ほぼ完全に大気エアロゾル観測研究に重点を移し，数値モデル（エアロゾル化学輸送モデル）高度化に貢献するため，透過型電子顕微鏡等を更新して BC（すす粒子）観測などを進め，エアロゾルの偏光解消度と粒径により，黄砂粒子，汚染性エアロゾル，海塩粒子，これらの混合物を分類する光学計数器開発等の研究にも寄与しました．

６．福島第一原発事故後の環境汚染に関する研究

2011 年の春に発生した事故は，福島・東北・関東を広範囲に汚染しましたが，五十嵐の研究内容も大幅に変えてしまいました．事故以降，大学有志連合の調査や新学術領域研究（放出された放射性核種の環境動態に関する学際的研究）の組織化に協力，計画研究班（大気プロセス）の班長を務めました．そのため，汚染状況，放射性エアロゾルの物理・化学特性と再浮遊過程の解明等に従事しました．特筆事項に，事故初期に放出された不溶性でシリカガラスが主材となった球状の Cs 微粒子（所謂セシウムボール；CsMPs と現状は呼称されます）の発見があります．環境・人体中での動態や影響は，核種の物理・化学性状で大きく異なると考えられ，放射性物質の環境動態研究に重要な寄与をしたと考えています．

その後，CsMPs は福島第一原発の廃炉措置や作業に関して大きな影響を与える可能性があることから，2018 年より「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）に課題応募，採択されたことから CsMPs の物性の研究（物理・化学特性や帯電特性）を推進，作業者の安全を担保するより簡便な検出法（誘導蛍光法），単離法などについて知見を深めました．

さらに，地表面土壌粒子に吸着した Cs が風によって粒子とともに大気へ再浮遊するフラックス推定のため，鉛直一次元モデルを構築しました．同モデルを領域数値モデルへ組み込み検証のため再現計算して，2013 年 1 年間の避難区域内（浪江）と区域外（つくば）での大気観測を用いて再浮遊の領域収支を定量的に評価しました．浪江では夏季に冬季に比し数～数十倍の Cs 濃度上昇があり，再浮遊係数 10^{-7} h^{-1} で森林生態系からの Cs 放出を仮定してはじめて，夏季 Cs 濃度上昇を説明できました．

上記の事実は，森林面積の多い地域では生態系の Cs 放出が夏季に活発ということを意味し，Cs は有機物由来の炭素と相関することを見出しました．土壌以外の再浮遊発生源があるとは新鮮な驚きでした．実際ゲノム DNA を直接抽出－16S rRNA を分析すると，正体は真菌類胞子など Cs を濃縮したバイオエアロゾルで，夏季に放出量が増大すると考えられ，その核心に迫りました．胞子は氷晶核や雲核になるため，注目しています．さらには降雨時には常識に反し大型の真菌類胞子が飛散して Cs の濃度が上昇することもわかり，胞子をはじめバイオエアロゾルの発生メカニズム解明にも寄与しました．

ほかにも，海外研究機関とのモデル研究，植物破片による Cs 再浮遊，福島第一原発事故で放出された ^{35}S の動態（大気中に放出された硫黄の動態を ^{35}S で追跡する）研究等で多くの論文出版に関わりました．

７．そのほかの大気や海洋の環境科学研究

上記に加え，^{222}Rn 壊変生成物 Bi，Pb の湿性沈着による線量率上昇に関する研究，近傍の風塵現象や降下物を用いた物質輸送と過去再現に関する研究（放射性核種，ダスト，酸性物質等），海洋の放射性核種の分析や動態，海洋大循環に関する研究にも寄与しました．さらに，JCO 臨界事故など小規模事故による大気の汚染，テクネチウム（Tc）の環境動態研究にも従事・寄与し，環境の安全や市民・国民の安全を担保すべく，環境動態研究を継続してきました．2022 年現在，厚生労働省からの受託にて，いわゆる「黒い雨」の降った領域を推定する調査研究にも従事していて，もう少し研究を続けるつもりです．

以上のような成果は下記にリストした参考文献などにまとめられています．最後に指導くださった先生方，共同研究者のみなさまや補助の方々，支援くださったみなさま方に深く深く感謝を致します．

参考文献－原著論文

[1]五十嵐康人ほか, Radioisotopes, **33**, 55-59, 1984.
[2]Igarashi, Y., et al. Health Phys, **49**, 707-712, 1985.
[3]Igarashi, Y., et al., J Radiat Res, **27**, 213-218, 1986.
[4]Igarashi, Y., et al., Radioisotopes, **36**, 563-567, 1987.
[5]Igarashi, Y., et al., Radioisotopes, **36**, 501-504, 1987.
[6]Igarashi, Y., et al., Radioisotopes, **36**, 433-439, 1987.
[7]Kim, C.K., et al., J Radioanal Nucl Ch, **136**, 353-362, 1989.
[8]Kim, C.K., et al., Radioisotopes, **38**, 151-152, 1989.
[9]Kim, C.K., et al., Radioisotopes, **38**, 153-154, 1989.
[10]Kim, C.K., et al., J Radioanal Nucl Ch Ar, **132**, 131-137, 1989.
[11]Igarashi, Y., et al., J Anal Atom Spectrom, **4**, 571-576, 1989.
[12]Igarashi, Y., et al., J Radioanal Nucl Ch Le, **135**, 157-164, 1989.
[13]Kawamura, H., et al., J Radioanal Nucl Ch, **138**, 103-109, 1990.
[14]Shiraishi, K., et al., J Nutr Sci Vitaminol, **36**, 81-86, 1990.
[15]Kawamura, H., et al., Health Phys, **61**, 615-622, 1991.
[16]Yamamoto, M., et al., Radiochim Acta, **55**, 163-166, 1991.
[17]Shiraishi, K., et al., J Anal Atom Spectrom, **6**, 335-338, 1991.
[18]Kim, C.K., et al., J Anal Atom Spectrom, **6**, 205-209, 1991.
[19]Igarashi, Y., et al., Radioisotopes, **40**, 226-233, 1991.
[20]Igarashi, Y., et al., Radioisotopes, **40**, 197-199, 1991.
[21]Shiraishi, K., et al., Health Phys, **63**, 187-191,1992.
[22]Igarashi, Y., et al., Anal Sci, **8**, 475-479, 1992.
[23]Shiraishi, K., et al., J Radioanal Nucl Ch, **185**, 157-165, 1994.
[24]Shiraishi, K., et al., Health Phys, **66**, 30-35, 1994.
[25]Dokiya. Y., et al., Water Air Soil Poll, **85**, 1967-1972, 1995.
[26]Takaku, Y., et al., Anal Sci, **11**, 823-827, 1995.
[27]Otsuji-Hatori, et al., J Environ Radioactiv, **31**, 143-155, 1996.
[28]Igarashi, Y., et al., J Environ Radioactiv, **31**, 157-169, 1996.
[29]Sekino, H., et al., Earozoru Kenkyu, **12**, 311-319, 1997.
[30]五十嵐康人ほか，Radioisotopes, **46**, 645-650, 1997.
[31]Tsutsumi, Y., et al., J Geophys Res, **103(D14)**, 16935-16951, 1998.
[32]宮尾孝ほか，海と空，**74**, 172-177, 1998.
[33]Miyao, T., et al., J Environ Radioactiv, **40**, 239–250, 1998.
[34]Igarashi, Y., et al., J Atmos Chem, **29**, 217-231, 1998.

[35]Igarashi, Y., et al., Appl Radiat Isot, **50**, 1063-1073, 1999.
[36]Igarashi, Y., et al., J Radioanal Nucl Ch, **239**, 539-542, 1999.
[37]Miyao, T, et al., Geophys Res Lett, **27**, 3731-3734, 2000.
[38]Igarashi, Y., et al., J Environ Radioactiv, **48**, 191-202, 2000.
[39]Komura, K., et al., J Environ Radioactiv, **50**, 3-14, 2000.
[40]Igarashi, Y., et al., J Environ Radioactiv, **50**, 107-118, 2000.
[41]Shiraishi, K., et al., Advanced ESR Appl, **16**, 9-14, 2000.
[42]Hirose, K., et al., J Radioanal Nucl Ch, **248**, 771-776, 2001.
[43]Hirose, K., et al., Radioactivity in the Environment, **1**, 251-266, 2001.
[44]Aoyama, M., et al., J Radioanal Nucl Ch, **248**, 785-787, 2001.
[45]Aoyama, M., et al., J Radioanal Nucl Ch, **248**, 789-793, 2001.
[46]Dokiya, Y., et al., Anal Sci, **17 Suppl.**, i809-i812, 2001.
[47]Igarashi, Y., et al., Water Air Soil Poll, **130**, 349-354, 2001.
[48]Hayashi, K., et al., Water Air Soil Poll, **130**, 1667-1672, 2001.
[49]Igarashi, Y., et al., J Environ Monitor, **3**, 688-696, 2001.
[50]Ianovski, D., et al., J Nucl Sci Technol, **39**, 1213-1218, 2002.
[51]Hirose, K., et al., J Radioanal Nucl Ch, **252**, 293-299, 2002.
[52]Hirose, K., et al., J Environ Monitor, **5**, 302-307, 2003.
[53]Lee, H. N., et al., Water Air Soil Poll, **3**, 231-243, 2003.
[54]Igarashi, Y., et al., J Radiat Res, **44**, 319-328, 2003.
[55]Naoe, H., et al., Atmos Environ, **37**, 3047-3055, 2003.
[56]Hirose, K., et al., Sci Total Environ, **332**, 243-252, 2004.
[57]Hirota, M., et al., J Radiat Res, **45**, 405-413, 2004.
[58]Kim, C.K., et al., Sci Total Environ, **318**, 197–209, 2004.
[59]Igarashi, Y., et al., J Geophys Res, **109** D17304, 2004.
[60]Hirose, K., et al., Japan, Atmos Environ, **38**, 6601-6608, 2004.
[61]Igarashi, Y., et al., Water Air Soil Poll, Focus, **5**, 51-69, 2005.
[62]Hirose, K., et al., J Radioanal Nucl Ch, **263**, 349-353, 2005.
[63]Lee, H.N., et al., Water Air Soil Poll, **169**, 137-166, 2006.
[64]Munakata, K., et al., J Nucl Sci Technol, **43**, 103-106, 2006.
[65]Yamamoto, M., et al., J Environ Radioactiv, **86**, 110-131, 2006.
[66]Aoyama, M., et al., J Environ Monitor, **8**, 431-438, 2006.
[67]Watanabe, K., et al., Atmos. Res., **82**, 652-662, 2006.
[68]Inoue, H. Y., et al., J Meteorol Soc Jpn, **84**, 959-968, 2006.
[69]Igarashi, Y., et al., Atmos Environ, **40**, 7018-7033, 2006.
[70]猪股弥生ほか，保健物理, **42(1)**, 63-70, 2007.
[71]Kaneyasu, H., et al., J Geophys Res, 112, D13214, 2007.
[72]船倉崇弘ほか，分析化学，**56(9)**，805-812, 2007.
[73]Hirose, K., et al., J Radioanal Nucl Ch, 273, 115-118, 2007.
[74]Inomata, Y., et al., Atmos Environ, **41**, 8043-8057, 2007.
[75]兼保直樹ほか，エアロゾル研究，**22(4)**，318-321, 2007.
[76]Hirose, K., et al., J Radioanal Nucl Ch, **276**, 795-798, 2008.
[77]Inomata, Y., et al., J Environ Monitor, **10**, 837-841, 2008.
[78]Hirose, K., et al., Appl. Radiat Isot, **66**, 1675-1678, 2008.
[79]Suzuki, I., et al., Atmos Environ, **42**, 8027–8035, 2008.
[80]猪股弥生ほか, Radioisotopes, **58**, 37-42, 2009.
[81]五十嵐康人ほか，天気, **56(7)**, 495-507, 2009.
[82]Igarashi, Y., et al., Atmos Environ. **43**, 2971-2980, 2009.
[83]Inomata, Y., et al., SOLA, **5**, 153-156, 2009.
[84]Inomata, Y., et al., Atmos Environ, **43**, 4503-4512, 2009.
[85]Kikawada, Y., et al., J Nucl Sci Technol, **46**, 1094-1098, 2009.
[86]Suzuki, I., et al., Atmos Environ, **44**, 858－866, 2010.
[87]Hirose, K., et al., J Environ Radioactiv, **10**, 1106–112, 2010.
[88]小林拓ほか，エアロゾル研究，**25**, 167-176, 2010.
[89]Zhang, Y., et al., Sci. Total Environ., **408**, 1139–1144, 2010.
[90]Inomata, Y., et al., Atmos Environ, **44**, 3856-3865, 2010.
[91]Takahashi, H., et al., Atmos Environ, **44**, 4638–4644, 2010.
[92]Yamamoto, Y., et al., Geochronometria, **37**, 9–12, 2010.
[93]Zheng, J., et al., Radiat Prot Dosm, **146**, 1–3, 307–310, 2011.
[94]Kato, H., et al., Water Air Soil Poll, **223**,159–167, 2011.
[95]Igarashi, Y., et al., Atmos Chem Phys, **11**, 7069-7080, 2011.
[96]Inomata, Y., et al., Atmos Environ, **45**, 4429-4441, 2011.
[97]Toyama, C., et al., J Environ Radioactiv, **113**, 116-122, 2012.
[98]Hirose, K., et al., J Environ Radioactiv, **108**, 24-28, 2012.
[99]Kikawada,Y., et al., Natural Science, **4 Sp Issue**, 936-942, 2012.
[100] Naoe, H., et al., Atmos Res, **118**, 170-179, 2012.
[101] Yamamoto, Y., et al., Geochronometria, **40,** 355-359, 2013.
[102] Adachi, K., et al., Sci Rep, **3**, 2554, 2013.
[103] Toyama, C., et al., Environ Sci Technol, **47**, 8383–8390, 2013.
[104] Yamashiki, Y., et al., Sci Rep, **4**, 3714, 2014.
[105] 梶野瑞王ほか, J Jpn Soc Atmos Environ, **49(2)**, 2014.
[106] Zaizen, Y., et al., Atmos Environ, **90**, 1-9, 2014.
[107] Abe, Y., et al., Anal Chem, **86**, 8521–8525, 2014.
[108] Adachi, K., et al., J Geophys Res-Atmos, **119**, 5386-5396, 2014.
[109] Kobayashi, H., et al., Atmos Environ, **97**, 486–492, 2014. 20
[110] Iwagami, S., et al., J Environ Radioactiv, **166**, 458-465, 2017.
[111] Igarashi, Y., et al., Prog Earth Planet Sci, **2:44**, 2015.
[112] Hirose, K., et al., J Environ Radioactiv, **166**, 97-103, 2017.
[113] Ishizuka M., et al., J Environ Radioactiv, **166**, 436-448, 2017.
[114] Satou, Y., et al., Anthropocene, **14**, 71-76, 2016.
[115] Kajino, M., et al., Atmos Chem Phys, **16**, 13149-13172, 2016.
[116] Adachi, K., et al., Japan, J Geophys Res-Atmos, **121(15)**, 9153–9164, 2016.
[117] 小野貴大ほか，分析化学, **66(4)**, 251-261, 2017.
[118] Kinase T., et al., Prog Earth Planet Sci, **5(1)**, 2018.
[119] Nakagawa, M., et al., Geochem. J., **52**, 163-172 2018.
[120] Kajino, M., et al., Geochem. J., **51**, 2018.
[121] Satou, Y., et al., Geochem. J., **52**, 2018.
[122] Danielache, S. O., et al., Geochem J, **53**, 103-118, 2019.
[123] Igarashi, Y., et al., Sci Rep, **9**, 1954, 2019.
[124] Ohtsuka, Y., et al., Sci Rep, **9**, 8105, 2019.
[125] Kajino, M., et al., J Geophys Res-Atmos, **124**, 1823-1845, 2019.
[126] Ching, J., et al., npj Clim Atmos Sci, **2**, 22, 2019.
[127] 小野﨑晴佳ほか，分析化学, **68(10)**, 757-768, 2019.
[128] Martin, P., et al., Sci Data, **7**, 282, 2020.
[129] Kajino, M., et al., GeoHealth, **4**, e2020GH000259, 2020.
[130] 南光太郎ほか，エアロゾル研究, **35(3)**, 208-218, 2020.
[131] Kita, K., et al., Sci Rep, **10**, 15330, 2020.
[132] Kajino, M., et al., Geosci Model Dev, **1**, 53, 2020.
[133] Kubota, T., et al., Atmos Environ, **243**, 117856, 2020.
[134] Kinase, T., et al., Sci Rep, **10**, 21627, 2020.
[135] Kajino, M., et al., J Geophys Res: Atmos, **126**, e2020JD033460, 2020.
[136] Abe, Y., et al., Prog Earth Planet Sci, **8**, 13, 2021.
[137] Kajino, M., et al., Sci Rep, **11**, 6550, 2021.
[138] Tang, P., et al., Prog Earth Planet Sci, **9**, 17, 2022.
[139] Kajino, M., et al., Atmos Chem Phys, **22**, 783–803, 2022.
[140] Ohno, T., et al., Sci Total Environ, **810**, 151292, 2022.
[141] Kawamura, K., et al., Atmosphere, **13(3)**, 413, 2022.
[142] Wang K.Y., et al., PLoS One **17(8)** e0272937, 2022.

参考文献－査読のある総説など

① Igarashi, Y., et al., Anal Sci, **6**, 157-164, 1990. 英文総説
② 五十嵐康人ほか，Radioisotopes, **40**, 42-52, 1991.
③ 田上恵子ほか，Radioisotopes, **43**, 623-634, 1994.
④ 五十嵐康人，エアロゾル研究，**17**，252-258, 2002.
⑤ Igarashi, Y., Jpn J Health Phys (保健物理), **44(3)**, 315-32, 2009. 英文総説
⑥ 五十嵐康人，エアロゾル研究，**24**, 90-96, 2009.
⑦ 五十嵐康人ほか，低温科学，**68**, 69-78, 2010.
⑧ 杉本伸夫ほか，エアロゾル研究，**29**，No.S1 特別号 s72-s81 90-96, 2014.
⑨ 北 和之ほか，大気環境学会誌，**49(6)**, A91-A92, 2014.
⑩ 鶴田治雄ほか，大気環境学会誌，**51(2)**, A11-A17, 2016.
⑪ Igarashi, Y. et al., J Environ Radioactiv, **205–206**, 101-118, 2019. 英文総説
⑫ 山澤弘実，五十嵐康人，Radioisotopes, **69**, 1-12, 2020.
⑬ 五十嵐康人，エアロゾル研究, **36(1)**, 5-18, 2021.

原子炉とともに

（京大複合研）○中島健

１．はじめに

2003 年に当時の原子炉実験所に助教授として着任してから 21 年、日本原子力研究所時代と合わせるとこれまで 41 年間にわたり、何らかの形で原子炉と関わってきました。その一部を振り返ってみます。

２．原子炉との出会い：1980 年

北大大学院修士 1 年の夏に、当時の京大原子炉実験所で行われた全国大学院生実験[1]に参加しました。大学では弱電離プラズマの計測をテーマとして研究をしており、原子炉（核分裂炉）に強い興味があったわけではなかったのですが、先輩からの「この実験はきついけれどもぜひ参加すべきだ」という言葉と、実際の原子炉に触れることが出来るのは、最初で最後かもしれないという思いもあり、参加してみることにしました。この実験は結構人気があり、北大からは 6 名しか参加できないということで、くじ引きが行われました。このくじに当たったことが、私の人生の転機だったのかもしれません。この院生実験は、全国の大学院で原子力を専攻している学生が熊取の地に集まり、臨界実験装置 KUCA を使って、炉物理に関する基礎を実験をとおして学ぶものです。私が参加した当時は、1 週間の実験コースが 2 回行われており、北大は確か、前期のグループに、東北大や大阪大、東海大とともに入っていたと思います。

それまで炉物理は講義で学んでいましたが、出来の悪い学生だったこともあり、あまり興味も持てませんでした。それでも、事前学習で臨界量や中性子束分布を求めたり、また、炉雑音実験（Feynman-α）の理論を学んだりしてみると、結構面白みも感じるようになっていました。そして、熊取での 1 週間。本当に先輩に言われたとおり、とてもハードな日々でしたが、非常に面白い貴重な体験となりました。実際の原子炉を用いて自分たちで実験・運転を行うという経験は、よく意味の分からなかった机上の理論の理解に大いに役立つとともに、原子炉実験（臨界実験）の面白さを感じた時間でした。また、住田先生（大阪大）、平川先生(東北大)、神田先生、代谷先生（京大）ら、後に多々お世話になる先生方との出会いの場でもありました。この原子炉実験所での院生実験の経験が、翌年の進路を選ぶ際に大きな影響を与えることとなりました。

３．東海村へ：1982 年～

NUCEF/TRACY 装置の設計

修士 2 年となり今後の進路を考える際に、研究テーマとしてきたプラズマ計測に関係する仕事も頭にはありましたが、前年に経験した臨界実験に関わる仕事（研究）をやってみたいという気持ちが強く、先生と相談した結果、日本原子力研究所（原研、現在の日本原子力研究開発機構 JAEA）東海研究所にお世話になることとなりました。

当時、原研では核燃料の臨界安全性に関する実験研究を行う新たな施設（後の NUCEF[2]）を建設する計画があり、その概念設計を行っていた臨界安全研究室の一員となりました。この施設には、溶液状の核燃料を用いて臨界実験行う装置（定常臨界実験装置 STACY）と臨界事故を模擬した実験を行う装置（過渡臨界実験装置 TRCY）という 2 基の原子炉が設置されるとともに、これら原子炉で使用する燃料を調整する施設や核燃料の再処理プロセス等での異常事象を研究する装置なども設置する計画でした。私は、そのうちの TRACY の設計を主に担当することとなり、途中で他のプロジェクトとの統合などもありましたが、設計開始から 13 年を経た 1995 年 12 月に TRCAY はやっと初臨界に至り、その後、種々の条件での超臨界実験を実施しました[3]。自分が設計段階から関わってきた原子炉が実際に動きだすまでの経験は何物にも代えがたいものでした。

TAC 臨界実験

NUCEF の設計・建設と並行して、臨界安全研究室では、軽水炉体系を模擬した臨界実験を行う軽水臨界実験装置 TCA[4]を使って、臨界安全性や軽水炉の核特性などの種々の実験を行っていました。当時は、炉雑音法による未臨界度測定技術の開発を進めていた名古屋大学の仁科研究室と共同研究を実施しており、毎年、夏期実習生を受け入れるとともに、夏休みの時期には TCA で一緒に 1-2 週間の実験を行うのが恒例でした。炉雑音を測定したいのに、電気的な雑音により、狙っていた信号が取れないなど、いろいろな問題の解決に向けて、皆で一緒に取り組んだことが思い出されます。また、TCA では、1990 年頃より高転換軽水炉の炉物理実験を開始しました。これは、高速炉開発がなかなか進まない中、核燃料の使用効率を向上させるため、稠密な格子により中性子スペクトルを硬くした原子炉をつくろうとする計画です。TCA では、すべてを稠密格子にすると臨界とならないため、稠密格子で構成したテスト領域の外周をドライバー領域で取り囲んだ 2 領域炉心での実験を行いました。このための設置変更手続きと、新たな燃料製造のための設工認、使用前検査を経て、やっと実験開始に至りました。この実験では、稠密になったことによるスペクトル変化を調べるために、新たに修正転換比という量を非破壊的に測定する手法の開発に取り組み、いろいろな人に助けてもらい、何とか測定できるようになりました[5]。後に、この手法を用いて、TCA の一連の燃料格子の修正転換比を測定[6]し、これらの成果がその後の学位取得につながりました。また、国内外の他の臨界装置でも同手法を用いた修正転換比の測定が行われ、その結果

は臨界実験のベンチマークデータとして利用されています。

このような時期に、原研同期の森さんが開発を進めていた連続エネルギーモンテカルロコード MVP がリリースされ、臨界実験体系を as build で解析できることになりました。この結果、臨界実験データを用いた核データのダイレクトな検証（ベンチマーク）が可能となり、炉物理（実験）と核データ（評価）の距離がとても近いものになったと思います。私もベンチマーク計算をとおして、核データ評価の活動にも参加するようになりました。その活動の一つに実効遅発中性子割合（β_{eff}）の評価があります。β_{eff}は、数値計算で求めた（dk/k 単位の）反応度を実験で求められる（$ 単位の）反応度に変換するためのスケールとなる量であり、この値が正しくないと、数値計算と実験との反応度価値に一定の偏差（バイアス）が生じてしまいます。この量は、核分裂 1 回当たりで発生する全中性子数のうちの遅発中性子の占める割合であり、核データとして、これまでにいくつかの測定が行われていましたが、結構なばらつきがあったのです。TCA で測定した反応度価値についても、数値計算の結果とは一定のバイアスがみられました。そこで、TCA の β_{eff} の再評価[7]を行い、他の実験データ等とも合わせて、炉物理側から見た適切と思われる遅発中性子割合を提唱しました。この活動は、シグマ専門員会の遅発中性子データ WG により行われ、その結果が、核データライブラリ JENDL の改定に反映されています。なお、当時は β_{eff} の計算を連続エネルギーで実施するツールが無く、多群化という近似が必要でしたが、後に京大の私の研究室に社会人入学した JAEA の長家さんが、この問題を解決してくれて、その成果により学位を取得しています。

JCO 臨界事故への対応

TRACY での臨界事故模擬実験が始まって 4 年を経過した 1999 年 9 月 30 日（木）の午前 10 時 35 分頃に東海村の核燃料加工施設 JCO において、臨界事故が発生しました[8]。この事故は、放射線被ばくにより 2 人の従業員が亡くなり、また周辺住民約 200 人が避難するという我が国初の原子力事故でした。当日昼過ぎに原研内に事故対策本部（後に、政府の現地事故対策本部となる）が設置され、私にも招集がかかりましたが、夕方になるまで現場での作業内容が把握できず、また臨界状態が続いているかもわからない状態でした。その後、被ばくした作業者からの電話による聞き取りや、JCO から送付された FAX（応援に駆け付けた核燃料サイクル機構の職員が記載したもの）により、事故発生時の状況が明らかとなり、また、中性子線量の測定も開始され、臨界が継続していることが明白になりました。得られた情報をもとに、臨界停止の手段を検討し、最終的に沈殿槽周囲の冷却ジャケット内の水抜きが有効であることを、当時同じ研究室であった山本研究員（現、複合研・准教授）の計算結果から判断しました。その結果が得られたころに、東京から内閣府の危機管理監、原子力安全委員会の住田委員長代理らが原研の対策本部に合流し、以後、ここが政府の現地対策本部となり、水抜きによる臨界停止措置を実施することが決定しました。翌日の早朝に全ての水抜きに成功し、約 20 時間継続した臨界が停止しました。

その後、事故による住民の被ばく評価や環境への影響、また事故の根本原因の究明等の様々な調査が行われ、私も TRACY での実験データや解析手法等をもとに事故事象の解明に当たりました。また、この事故は、原子力防災の枠組みが初めて使われた事故でしたが、残念ながら、その枠組みは十分なものではなく、新たに原子力災害特別措置法（原災法）が策定され、新しい枠組みの下で原子力防災に取り組むこととなりました。その一環として欧米における原子力防災（危機管理）の調査が内閣府危機管理室の主導で行われることとなり、私もそのメンバーとして、欧州と米国での調査に参加しました（2000 年 2-3 月）。防災や危機管理という、私がこれまでほとんど触れたことがなかった分野の調査でしたが、この調査により、欧米の危機管理に対する真剣な取り組みを知ることができたのは、大きな成果でした。この調査結果を踏まえて、日本においてもオフサイトセンターの設置や緊急時対応のロボット開発が行われるようになりました。

TRACY 実験では、直径 50cm の円筒タンクに、比較的高濃度の硝酸ウラニル水溶液を臨界量を超えて投入する実験を行っていたのですが、当時は、実際の臨界事故はこんな単純な方法では起こらないだろうと考えていました。しかし、JCO の臨界事故はまさに、TRACY で遠隔操作により、分厚い遮へい壁の中で実施していた実験を、JCO の作業員が手作業で再現していたようなものでした。彼らは臨界安全に関する教育を受けておらず、作業効率を上げるために、よかれと思ってやったことにより、自らの命を落としてしまったのです。臨界安全、特に臨界事故に関する研究を行っていた専門家として、そのような事態に至る前に何かやれることが無かったのかと、非常に残念で悔しい思いでした。

３．熊取町へ：2003 年～

2003 年 4 月、縁があり京大原子炉実験所（京大炉）の助教授として着任することになりました。それまでも、研究会等で京大炉へは何度か訪れたことはありましたが、いずれも会議のみであり、着任後の KUCA、KUR の見学は、20 年以上前の院生実験以来でした。

当時は、KUR の使用済燃料問題があり、一部では、KUR は廃炉になるという報道もありましたが、その後、KUR の燃料を低濃縮化し、運転を継続することが正式に決定しました。私は、KUR の原子炉主任技術者として、その後は研究炉部長として、この低濃縮化作業に取り組みました。この作業のとりまとめは安全管理本部長であった三島教授が行い、放射線管理部、放射性廃棄物処理部、核燃料管理室などの関係者とともに、原子炉施設の設置変更、設工認に対応しました。当時の KUR の設置申請では、水冷却

型試験研究炉の安全審査指針に部分的にしか対応していなかったため、安全設計に関する説明（添付書類 8）や事故対応に関する説明（添付書類 10）は全面的な変更が必要でした。また、事故評価では、使用する計算コードを原研より入手し、これらを用いて種々の事故条件での解析を実施しました。この解析作業では、三島研究室（当時）の沈助教に尽力してもらいました。この設置変更にかかる審査（安全審査）は、文部科学省と原子力安全委員会による 2 段階審査の形で行われ、最終的な承認を得るまでに約 2 年を要しました。その後、燃料製造や設備の一部改造のため設工認申請を行い、2008 年度末には、仏国の工場ですべての燃料の製造が完了しました。ただちに、日本へ向けての輸送を開始する予定であったところ、輸送航路上における海賊騒ぎの影響により、輸送直前となり仏国政府から輸送を許可しないという通告があり、輸送が停止してしまいます。その後、航路の見直し等を行い、輸送が再開できるまで、約 1 年を要しました（2010 年 3 月：燃料到着）。燃料到着後は、使用前検査、特性試験ともに順調に進み、2010 年 5 月末より実に 4 年ぶりの利用運転を再開できました[9]。再開までには、多くの関係者に協力をいただき、また、運転再開を待ち望んでいる多くの利用者には多大な不便を生じたことから、順調に運転を再開できたことは大きな喜びであり、肩の荷が下りた気がしました。新燃料を用いた炉心について、その設計から燃料製造、そして初臨界・特性試験という一連の経験は、多くの苦労がありましたが、とても貴重な体験となりました。また、これらを一緒に行った、特に若手の職員にとっては、その後の KUR の運転管理に大いに役立っているものと思います。これで、KUR はしばらく安定に運転できると思ったのですが、その翌年に東日本大震災が発生し、その後 KUR は再び長期の停止を強いられることとなります。

４．福島第一原発事故への対応：2011 年～

2011 年 3 月 11 日（金）に東日本大震災が発生。大地震とその後の津波により、東北沿岸部を中心に多大な被害が生じた。福島第一原子力発電所（1F）では全電源喪失により冷却機能を喪失し、炉心溶融に至った[10]。震災当日、私は東京出張中であり、神谷町のビルにて会議を行っていたのですが、その最中に大きなゆっくりとした揺れを何回も感じ、このまま隣のビルにぶつかるのではないかと思いました。その夜は、都内のカプセルホテルに泊まることとなり、小さなテレビで、津波により家や車が流されている様子を、まるで映画でも見ているような感じで眺めていました。すぐそこで、現実に起こっていることとは思えない映像でした。一方で、原子力発電所（原発）については、緊急停止ができたということで、その後は問題なく収まるものと勝手に考えていました。翌日に都内を移動中に、大学の事務室経由で、都内のテレビ局に原発の状況を解説してほしいという依頼があり、それまでほとんど情報に接することができないまま、テレビ局に到着したときに聞かされたのが、「原発が爆発した」という衝撃的な事実でした。そのようなわけで、まさに原発の安全神話が崩壊した瞬間からその後 1 月近く東京に滞在して、事故の進展を見聞きし、またそれを一般の人向けに説明することとなりました。大学では、学生相手に原子力の講義はしていましたが、個別の原発、特に事故を起こした初期のＢＷＲの詳細な構造等を理解しているわけではないため、あくまでも原理的な事象の説明しかできませんでした。しかし、その中でも当時の政府（官邸）、規制当局（保安院）、東京電力が事故の状況や今後に見通しに関して、それぞれの立場で発言していることには違和感を抱きました。JCO 臨界事故直後の欧米調査で、緊急時の情報発信は「ワンボイス」にすべきと繰り返し言われたことが実現できていませんでした。また、緊急時の現地指揮本部となるべきオフサイトセンターも機能しておらず、さらには、緊急時対応のために開発されたはずのロボットも、実際の事故時には役に立たないものでした。結局のところ、JCO 臨界事故の教訓を踏まえて取られた各種の対策が（すべてではないが）生かされていないことが判明しました。これは、JCO 臨界事故のような事象は例外的なことであり、自分たちはそんな事故は引き起こすはずがないという、安全神話に引きずられ、事故を自分事として考えることができなかった（考えたくなかった）ためだと思います。このことは、1F 事故以前の原子力防災訓練が予定どおりにトラブルなく終了できれば良しとしていた風潮にも表れています。上記の欧米調査において、危機管理で最も大切なことは何かとの問いに対して米国の危機管理官は、”Practice! Practice! Practice!”と答えていたのですが、それも生かされていなかったということです。原子力事故は起こさないようにすることが、まずは必要ですが、もしも起きてしまったときへの対応も日頃から準備をしておくことが必要だと改めて思いました。

1F 事故の教訓を踏まえ、新たな安全規制の枠組みとして原子力規制委員会が 2012 年に設置され、翌年には、原子力施設の審査にかかる新たな基準（新規制基準）が制定されました。大学等の研究施設も原子力規制委員会の所掌となり、当研究所の KUR 及び KUCA も新規制基準に適合していることの確認（審査）が必要となりました。通常は、発電炉（BWR）で発生した事故であれば、同型式の炉のみについて運転停止を求めて、他の炉は運転を継続しながら必要な対応を行うようなやり方になると思いますが、1F 事故はその影響があまりにも大きく、また、起因事象が想定を上回る地震・津波という外部事象だったこともあり、規制対象となる全ての施設が運転を停止して、審査を受けることとなりました。事故時のリスクが桁違いに小さい研究用原子炉の安全確認にも運転停止を求めることは、過剰な反応であると思いますが、事故当時の国民感情を踏まえるとやむを得ない対応であったかもしれません。このため、KUR,KUCA ともに、2014 年春をもって運転を停止

し、新規制基準への適合性審査が行われました。設置変更承認まで約 2 年間かかり、その後の保安規定変更や設工認・使用前検査等を経て、2017 年の夏にやっと利用運転開始となりました[11]。この 3 年間は、ほぼ毎週六本木の原子力規制庁へ通う日々が続きました。運転再開後も原子炉施設に対する規制はより一層厳しいものとなっており、大学といえども原子炉事業者としての適切な対応が求められています。人員と予算が減少している中で、現在も安全管理を担っている関係者の努力により、なんとか対応を行っているところです。

なお、KUR に関しては、燃料の低濃縮化を開始した 2006 年以降の 12 年間のうち、7 年間も停止していたこととなります。外的要因によるものとはいえ、BNCT 治療を希望する患者さんをはじめとして、多くの利用者にご迷惑をおかけしました。今更ではありますが、KUR の責任者としてお詫びいたします。

５．所長として：2021 年～

2021 年 4 月に所長に就任いたしました。今までは、誰か先を歩いている先輩の後を何とか追いかけていたのが、気が付くと列の先頭に立ち、皆を引っ張って行く立場となっていました。これまで、原子炉実験所（2.018 年に複合原子力科学研究所に改名）には、いろいろとお世話になってきたので、最後の 2 年間はその恩返しをする時間だと思いました。

この 2 年間での最大の出来事は、これまでこの研究所の柱として共同利用研究をけん引してきた KUR の 4 年後の停止を決定[12]したことです。果たして、私の代でそのような重要なことを決めてしまってよいのかという思いもありましたが、逆にここで決めなければ、後に続く人達への大きな負の遺産になりかねないと考えての判断でした。KUR を停止する議論の過程において、共同利用研究所として KUR 停止後の在り方についての議論が行われ、それをもとに今後の施設及び研究に関するロードマップが策定されました[13]。このロードマップに基づき、2022 年度より開始となった第 4 期中期目標・中期計画期間中の組織再編を伴う研究体制の整備計画を立案しており、その実現に向けて準備を進めています。また、2020 年度に文部科学省が公募した「もんじゅ」サイトにおける新試験研究炉の概念設計[14]に、日本原子力研究開発機構、福井大学とともに中核機関として参加し、KUR の経験を踏まえた研究炉利用の在り方を検討しています。現時点ではまだ運転開始時期は見通せていませんが、熊取の研究拠点と連携し、将来の西日本における中性子利用研究の拠点になるものと考えています。

一方、現在、国では、大学ファンドを活用した国際卓越研究大学制度の運用など、今後の大学の在り方に大きな影響を与える動きが進められています。京都大学として、この動きに適切に対応することで、当研究所を含む大学全体の研究力強化につながることを期待しています。

6．終わりに

この 41 年間、原子炉を用いた実験とそのための安全管理を行ってきました。京大では、助教授、教授という役職とは別に、安全管理のための、研究炉主任技術者、研究炉部長・臨界装置部長、中央管理室長・安全管理本部長という役割をいただきましたが、その後の所長職と合わせて、所内外の多くの方の協力を得ることにより、充分ではないかもしれませんが、またご迷惑もおかけしたことと思いますが、何とか務めを果たすことができました。そのほか、日本原子力学会での活動や各種の委員会活動等、様々な場においても、多くの皆様の力を借りながら、どうにか今日までやってきた次第です。このように、これまでの 41 年間は、周りにいる多くの方々の支えによって成り立ってきました。この場を借りて、これまで私を支えてくださった全ての皆様に感謝申し上げます。

参考文献

[1] 神田啓治(編), 京都大学臨界集合体実験装置大学院生実験テキスト, 京都大学原子炉実験所 (1980).
[2] NUCEF 実験計画検討グループ, JAERI-M94-066, 日本原子力研究所 (1994).
[3] 中島健他, JAERI-Data/Code 2002-005～007, (2002).
[4] 外池幸太郎, 日本原子力学会誌, Vol.52, No.12, p.51 (2010).
[5] 山根義宏, 日本原子力学会誌, Vol.52, No.9, p.57 (2010).
[5] K. Nakajima, et al., Nucl. Sci. Eng., 116, 138 (1994).
[6] K. Nakajima, et al., Nucl. Sci. Eng., 119, 175 (1995).
[7] K. Nakajima, J. Nucl. Sci. Technol., 38, 1120 (2001).
[8] 日本原子力学会 JCO 事故調査委員会, JCO 臨界事故その全貌の解明, 東海大学出版会 (2005).
[9] 中島健,アトムサイエンスくまとり, Vol.10 (2010).
[10] 日本原子力学会東京電力福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会, 最終報告書, 丸善出版社 (2014).
[11] 中島健,アトムサイエンスくまとり, Vol.19 (2017).
[12] 京都大学における研究用原子炉（KUR）等の今後の在り方について（京都大学ホームページ）
https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/news/2022-04-05-0
[13],[14] 令和 3 年度京都大学複合原子力科学研究所将来計画短期研究会報告書(2022).
https://www.rri.kyoto-u.ac.jp/wp-content/uploads/R3futureplan_report.pdf

---

Associating with Nuclear Reactors

Ken Nakajima
nakajima.ken.5m@kyoto-u.ac.jp

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はもちろん、一般の方々にお知らせすることが開催の趣旨です。第５７回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会は、令和５年２月１４日と１５日の２日間にわたって、新型コロナウイルスの感染対策を行いつつ対面とオンラインのハイブリッド開催とします。その内容は、

１）	新人講演	４件
２）	プロジェクト研究成果報告	２件
3)	トピック講演	２件
4)	特別講演	３件
5)	一般講演	２６件

です。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５年２月

学術公開チーム

田中浩基（チーム長）、福谷 哲、高橋俊晴、上林宏敏、寺田和司、
日野正裕、奥田 綾、渡邉 翼、白鳥篤樹、荻野晋也、鈴木倫代、
魚井健太、横田香織

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 5 年 2 月
住所　　大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目
　　TEL（072）451- 2300

掲載された論文等の出版権、複製権および公衆送信権は原則として京都大学複合原子力科学研究所に帰属する。
本誌は京都大学学術情報リポジトリに登録・公開するものとする。 https://repository.kulib.kyoto-u.ac.jp/dspace/