

ISSN 2434-1088

KURNS-EKR-23

京都大学複合原子力科学研究所
「第 60 回学術講演会報文集」

Proceedings of the 60th KURNS Scientific Meeting

開催日：令和 8 年 1 月 29 日、30 日
(January 29 & 30, 2026)

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

第 60 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 8 年 1 月 29 日（木）09:55～1 月 30 日（金）15:25

依頼講演会場：京都大学 複合原子力科学研究所 事務棟 大会議室（ハイブリッド開催）

一般講演会場：京都大学 複合原子力科学研究所 図書棟 会議室
（令和 8 年 1 月 29 日（木）14:55～16:55）

1 月 29（木）9:55～16:55

9:55～10:00 所長 黒崎 健 （開会の挨拶）

プロジェクト講演

(PJ1) 10:00～10:40 座長 伊藤 啓

中性子イメージングの高度化と応用…………… 1
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

トピック講演

(T1) 10:40～11:20 座長 齊藤 泰司

流体研究の奥深さ～渦流れのモデル化を例として…………… 4
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 啓

新人講演

(N1) 11:20～12:00 座長 佐藤 信浩

中性子を用いた量子磁性研究…………… 7
新試験研究炉産学共同研究部門
南部 雄亮

（休憩） 12:00～13:00

プロジェクト講演

(PJ2) 13:00～13:40 座長 高田 卓志

BNCTに関する生物学的・化学的線量の三次元分布評価…………… 9
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

特別講演

(S1) 13:40～14:40 座長 北村 康則

臨界集合体とのつきあい…………… 13
原子力基礎工学研究部門（核変換システム工学研究分野）
三澤 毅

一般講演

1月29日 14:55 ~ 16:55

- (P 1) ITER 計測機器の中性子照射実験…………… 16
(量研那珂研¹、京大複合研²) ○北澤真一¹、石川正男¹、今澤良太¹、谷塚英一¹、牛木知彦¹、野尻訓平¹、河野繁宏¹、鳥本和弘¹、根本佳輝¹、泰中俊介¹、菊池貴智¹、横塚友啓¹、吉野泰史²、奥村良²、高宮幸一²
- (P 2) 有機無機ハイブリッドペロブスカイトセンサーの HWNIF での中性子計測 …… 17
(理研光量子¹、東北大²、京大複合研³) ○奥野泰希^{1,2}、田中浩基³、高田卓志³、松林錦³、日高峻助³
- (P 3) 中性子照射による放射化金錯体の構造安定性の検証 …… 18
(阪大院理¹、阪大放射線機構²、早大理工院³、京大複合研⁴) ○梶山和希¹、村上昌史²、水飼秋菜¹、白神宜史²、角永悠一郎²、越川七星³、高宮幸一⁴、片岡淳³、豊嶋厚史²)
- (P 4) 中性子放射化による金ナノ粒子の in vivo イメージング…………… 19
(早大理工¹、阪大放射線機構²、京大複合研³) ○越川七星¹、菊池優花¹、片岡淳¹、角永悠一郎²、豊嶋厚史²、村上昌史²、加藤弘樹²、大江一弘²、高宮幸一³
- (P 5) 中性子と X 線の相補的アプローチによる化石イメージング …… 20
(京大複合研¹、原子力機構²、北大³、福井県立大⁴) ○伊藤大介¹、大平直也¹、齊藤泰司¹、原山勲²、栗田圭輔²、篠原武尚²、鬼柳善明³、河部壮一郎⁴
- (P 6) 低酸素ストレス応答を制御する Mint3 : FIH-1 相互作用の解析 …… 21
(京大薬¹、京大複合研²) ○星野大¹、守島健²、清水将裕²、井上倫太郎²、杉山正明²
- (P 7) フランシウムの化学研究に向けたフェロシアン化物塩による一族元素の吸着挙動研究 …… 22
(京大複合研¹、京大院工²、阪大院理³) ○中田拓希^{1,2}、笠松良崇³、高宮幸一¹、稲垣誠¹
- (P 8) Effect of Borehole Spatial Position on the Gas Concentration Field in a Goaf Area …… 23
(Anhui University of Science and Technology¹, Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University²) ○Haifeng Ma^{1,2}, Xianzong Shen², Wenwang Yang^{1,2}
- (P 9) 核分裂性物質を含んだ核爆発降下物粒子の探索…………… 24
(京大複合研¹、京大工²) ○高宮幸一¹、長田直之¹、池上麻衣子²、五十嵐康人¹
- (P10) 時計タンパク質複合体の溶液中での解離会合動態…………… 25
(京大複合研) ○守島健、井上倫太郎、杉山正明
- (P11) 堺市で観測した大気エアロゾルの組成元素濃度の粒径分布…………… 26
(大阪公立大¹、京大複合研²) ○伊藤憲男¹、吉永尚生²
- (P12) 新規セラミクス素材の中性子線遮へい能の評価…………… 27
(岡大自然セ¹、京大複合研²) ○寺東宏明¹、磯辺みどり¹、長田直之²、櫻井良憲²

(P13) 超重元素研究に向けた気相・液相化学的アプローチ	28
(京大複合研) ○佐藤哲也	
(P14) 102 番元素ノーベリウムの化学的性質解明に向けた 2 族元素のシュウ酸ユウロピウム 共沈実験	29
(阪大院理 ¹ 、理研仁科セ ² 、京大複合研 ³) ○菊池亮太 ^{1,2} 、王瑞麟 ^{1,2} 、板倉悠大 ^{1,2} 、金子 政志 ^{1,2} 、風間裕行 ^{1,2} 、中西諒平 ¹ 、紺野未夢 ¹ 、Khult Enni ^{1,2} 、柴本恭佑 ^{1,2} 、森健太 ^{1,2} 、河本 和士 ¹ 、岸本遼馬 ¹ 、高宮幸一 ³ 、稲垣誠 ³ 、羽場宏光 ² 、南部明弘 ² 、笠松良崇 ^{1,2}	
(P15) 中性子・X線小角散乱を用いた Kai 概日時計の位相同期現象の観測	30
(京大院理 ¹ 、京大複合研 ²) ○鹿角友輝 ¹ 、守島健 ² 、清水将裕 ² 、井上倫太郎 ² 、杉山 正明 ²	
(P16) BNCT での治療信頼性を高めるリアルタイムモニタの開発と廃炉への応用	31
(東大院工 ¹ 、東北大ニュートリノ ² 、東北大院工 ³ 、京大複合研 ⁴) ○黒澤 俊介 ^{1,2} 、浦 野 雄介 ³ 、藤原 千隼 ³ 、山路 晃広 ² 、高田 卓志 ⁴ 、松林 錦 ⁴ 、田中 浩基 ⁴	
(P17) ヒト舌癌由来細胞株 SAS 移植マウスモデルにおけるフェニルアラニン制限による BNCT 抗腫瘍効果改善の検証	32
(藤田医大 ¹ 、京都府立医大 ² 、京大複合研 ²) ○玉利勇樹 ¹ 、佐波理恵 ² 、鈴木実 ³ 、山 崎秀哉 ²	
(P18) Zr-Ce 水酸化物共沈固相の溶解度に関する研究	33
(京大院工 ¹ 、JAEA ²) ○原田尚紀 ¹ 、小林大志 ¹ 、松村大樹 ² 、池田篤史 ² 、佐々木隆之 ¹	
(P19) 多層膜中性子集光ミラー開発と新試験研究炉における中性子ビーム光学系 II	34
(京大複合研 ¹ 、理研 ² 、KEK ³) ○日野正裕 ¹ 、細島拓也 ² 、竹田真宏 ² 、山形豊 ² 、藤谷 龍澄 ¹ 、遠藤仁 ³	
(P20) ホウ素含有シンチレータの開発	35
(京大複合研 ¹ 、理研 ²) ○大平直也 ¹ 、奥野泰希 ²	
(P21) 新規ヒ素凝集性タンパク質 GatB のヒ素特異的な凝集プロセスの解明	36
(千葉大院・工・共生 ¹ 、東京科学大・研究院・細胞センター ² 、千葉大院・薬 ³ 、京大・ 複合研 ⁴ 、千葉大院・理 ⁵ 、神奈川工大・基礎・教養教育セ ⁶ 、千葉大・国際高等研究基 幹 ⁷) ○河合 (野間) 繁子 ¹ 、後藤千穂 ¹ 、大塚康児 ¹ 、丹羽達也 ² 、田中佑樹 ³ 、齋藤卓穂 ⁴ 、 須田奈月 ¹ 、守島健 ⁴ 、清水将裕 ⁴ 、伊藤敦之 ⁵ 、小笠原諭 ⁵ 、村田武士 ⁵ 、杉山正明 ⁴ 、 神谷克政 ⁶ 、矢貝史樹 ^{1,7} 、小椋康光 ³ 、田口英樹 ²	
(P22) 細菌/真核生物のデホスホ CoA キナーゼと相同性をもつ超好熱性アーキア由来タンパク 質の X 線結晶解析	37
(京大複合研 ¹ 、京大院工 ² 、NIH ³ 、京大院理 ⁴) ○喜田昭子 ¹ 、石田侑那 ² 、下坂天洋 ² 、 道盛裕太 ² 、Kira Makarova ³ 、Eugene Koonin ³ 、跡見晴幸 ² 、三木邦夫 ⁴	
(P23) 分子動力学計算と多層パーセプトロンを用いた小角散乱プロファイル解析	38
(京大複合研 ¹) ○清水将裕 ¹	

- (P24) モンテカルロ法による中性子輸送問題に対する摂動計算の高速化に関する研究 …… 39
 (京大院工¹、京大複合研²) ○王一名¹、山本俊弘²
- (P25) 人と動物実験のギャップを橋渡しする卵殻膜研究
 — ³H ラベル体内動態解析と IBD モデルによる腸内細菌バランス改善機序の解明 — …… 40
 (帝京大先端総合研究機構¹、農工大院工²、帝京大医療技術³、東大アイソトープ⁴、
 京大複合研⁵、東北大院医皮膚⁶、東大医皮膚⁷、東大院医疾患生命⁸、(株)アルマー
 ド⁹) ○清水美穂¹、菅井航²、藤田恵理³、跡見綾²、野川憲夫⁴、高宮幸一⁵、吉永尚生⁵、
 浅野善英⁶、山下尚志⁷、榎本敦⁸、長谷部由紀夫⁹、渡邊敏行²、跡見順子¹
- (P26) Development and numerical simulation of a segmented Soller Collimator for Neutron Imaging …… 41
 (京大院工¹、京大複合研²、阪大 RCNP³、東北大多元研⁴) ○Yunhao Gu¹、日野正裕²、
 樋口嵩^{2,3}、關義親⁴、藤谷龍澄^{1,2}
- (P27) 「もんじゅ」サイト新試験研究炉の実験装置検討 …… 42
 (京大複合研) ○佐藤信浩、稲垣誠、伊藤大介、南部雄亮、川端祐司、高宮幸一、日野
 正裕、杉山正明
- (P28) SAXS/SANS を用いたアコヤガイ貝殻タンパク質 nacrein の構造解析 …… 43
 (東大院農¹、京大複合研²) ○浪川勇人¹、守島健²、井上倫太郎²、杉山正明²、鈴木道生¹
- (P29) X線小角散乱および分析超遠心による植物 R-SNARE タンパク質の構造ダイナミクス解析 …… 44
 (名市大院薬¹、ExCELLS²、京大複合研³) ○矢木宏和^{1,2}、浅井駿佑¹、矢木真穂^{1,2}、
 守島健³、井上倫太郎³、杉山正明³、加藤晃一^{1,2}
- (P30) KUR CN-3 ポートにおける金属積層造形物評価手法の開発 …… 45
 (東北大多元研¹、京大院工²、理研 RAP³、京大複合研⁴) ○關義親¹、神戸優輝²、河
 野大輔²、細島拓也³、日野正裕⁴
- (P31) もんじゅサイト新試験研究炉における中性子照射施設及び中性子放射化分析関連装置の計画 …… 46
 (京大複合研¹、産総研²、福島県立医大³、都立大⁴、原子力機構⁵、大阪大⁶、神奈川
 大⁷、高エネ機構⁸) ○稲垣誠¹、高宮幸一¹、三浦勉²、鷲山幸信³、秋山和彦⁴、大澤崇
 人⁵、笠松良崇⁶、白井直樹⁷、土谷邦彦⁵、吉田剛⁸、佐藤信浩¹
- (P32) 腫瘍内増殖性/非増殖性細胞の評価法の研究 …… 47
 (京大複合研) ○真田悠生、高田卓志、櫻井良憲、田中浩基、天満敬
- (P33) 超冷中性子による中性子-反中性子振動の探索 …… 48
 (京大複合研¹、阪大核物理研究センター²、東京科学大学³) ○樋口嵩^{1,2}、藤岡宏之³
- (P34) LaBr₃ 検出器を用いたサブナノ秒の核励起準位の寿命測定 …… 49
 (名大院工¹、名大アイソトープ²、京大複合研³) ○奥田結衣¹、柴田理尋²、谷口秋洋³
- (P35) Numerical Simulation and AI-Driven Prediction of Thermodynamic Performance in Curved
 Channel Printed Circuit Heat Exchangers …… 50
 (Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University¹, College of Nuclear
 Science and Technology, Harbin Engineering University²) ○Feiran Wang^{1,2}, Yasushi Saito¹,
 Daisuke Ito¹, Naoya Odaira¹, Sichao Tan², Jiming Wen²

- (P36) KUR 照射による線源生成メスバウアー分光の現状 51
 (京大複合研¹、弘前大理工¹) ○北尾真司¹、増田亮²、小林康浩¹、山下拓之¹、瀬戸誠¹
- (P37) 中性子スピン位相連続変調を用いた非弾性散乱測定に向けた検討 52
 (京大院工¹、京大複合研²) ○藤谷龍澄^{1,2}、日野正裕²、樋口嵩²
- (P38) MRI 誘導中性子捕捉療法を志向した Gd-チアカリックスアレーン錯体搭載ナノ薬剤の創製 53
 (東北大院環境¹、量研機構量医研²、京大複合研³) 早川 崇¹、澤村瞭太¹、唐島田龍之介¹、高山²、尾澤芳和²、長田健介²、青木伊知男²、鈴木 実³、○壹岐伸彦¹
- (P39) 化学交換法における同位体分別研究 54
 (大産大¹、阪大 RCNP²、東京科学大ゼロエネ研³、阪大院工⁴、京大複合研⁵) ○碓隆太¹、義本孝明¹、Kumsut Pantiwa¹、Rittirong Anawat²、岸本忠史²、佐久間洋一³、藤井俊行⁴、福谷哲⁵、芝原雄司⁵
- (P40) ヒト iPS 細胞由来心筋細胞を用いた ATP 合成酵素の自己組織化解明 55
 (京大複合研¹、京大 iPS 細胞研究所²、筑波大計算科学研究センター³、阪大・蛋白研⁴) ○慈幸千真理¹、舟越俊介²、谷一寿³、栗栖源嗣⁴、吉田善紀²
- (P41) 中性子ラジオグラフィによる固体電解質中のリチウムイオンの移動の可視化 56
 (京大院エネ科¹、京大複合研²) ○高井茂臣¹、江坂裕貴¹、高木穂乃香¹、藪塚武史¹、太平直也²、伊藤大介²、齊藤泰司²

1 月 30 日 (金) 10:00 ~ 15:25

プロジェクト講演

- (PJ3) 10:00 ~ 10:40 座長 鈴木 実
 加速器 BNCT での適応を目指した放射線検出器の高度化 57
 粒子線腫瘍学研究センター (粒子線医学物理学研究分野)
 田中 浩基

新人講演

- (N2) 10:40 ~ 11:20 座長 鈴木 実
 生体機能分析とセラノスティクスのための分子イメージング研究 60
 放射線生命科学研究所 (粒子線生物学研究分野)
 天満 敬
- (N3) 11:20 ~ 12:00 座長 北尾 真司
 核共鳴前方散乱によるガンマ線制御法の開発 63
 複合原子力科学創成研究プロジェクト
 山下 拓之

(休 憩) 12:00 ~ 13:00

新人講演

(N 4) 13:00 ~ 13:40 座長 藤川 陽子

Fe²⁺依存的な酸化的膜傷害における放射線影響ならびに「環境動態学（農学部）」講義デザイン…… 66
原子力基礎工学研究部門（放射線管理学研究分野）
加藤 信哉

トピック講演

(T 2) 13:40 ~ 14:20 座長 堀 順一

気液二相流における流動特性と相間輸送機構の解明およびモデリング……………67
原子力基礎工学研究部門（研究炉安全管理工学研究分野）
沈 秀中

特別講演

(S 2) 14:20 ~ 15:20 座長 八島 浩

水・土壌・底泥環境中の汚濁物質の動態調査と環境修復技術の研究…………… 70
原子力基礎工学研究部門（放射線管理学研究分野）
藤川 陽子

15:20 ~ 15:25 所長 黒崎 健 （閉会の挨拶）

(PJ1) 中性子イメージングの高度化と応用

(京大複合研) ○齊藤泰司

1. はじめに: 中性子イメージングユニットでは、パルス中性子源 (J-PARC、HUNS、KURRI-LINAC) および定常中性子源 (KUR、JRR-3) を用いたイメージング技術の高度化と応用を行うことを目的とし、活動を行っている。

パルス中性子源を用いたイメージングでは、ブラッグエッジイメージング、磁気イメージングなどの実現により、飛躍的に応用範囲を広げてきたが、撮像技術と解析技術の向上によって、さらに応用範囲の拡大が期待できる。定常中性子源を用いたイメージングも同様に、高精度 CT 撮像技術と動画撮像技術、画像処理技術の向上によって、同様の効果を期待できる。これらの技術開発は小型中性子源を用いた場合にも同様な効果をもたらし、強度の低い中性子ビーム・計測時間であっても、良質な計測結果を得られる可能性があり、国内の小型中性子源の利用効率的な利用も期待できる。

パルス中性子を用いたイメージングからも明らかのように、中性子イメージングは中性子の波長によって測定可能範囲が大きく変わる。現在、量子科学技術研究開発機構 (QST) で開発中の A-FNS では、14 MeV の中性子を大量に発生させることができる。このような高速中性子は、透過力は大きいですが、イメージング応用を考えた場合は、冷/熱中性子と比較して、コントラストが低くなる可能性が多い。さらに、厚みのあるサンプルの場合には、入射中性子スペクトルと透過スペクトルが大きく変わる可能性があり、単純な解析では定量化ができない。このため、KUR と QST は、PHITS をもちいた解析と J-PARC を用いた透過実験を行っている。冷/熱中性子でも同様なスペクトルシフトは起こっており、特にサンプルが水素含有物で厚みのあるような場合はスペクトルの解析も重要である。さらに、2026 年 4 月をもって KUR の運転が停止するため、上記に挙げた中性子源に加え、海外の中性子源も含めたイメージング技術の高度化と応用を行うことを検討している。

したがって、本ユニットでは、実在する中性子源を用いたイメージング実験や数値シミュレーションで撮像/解析技術の開発を進めるとともに、現在 A-FNS の開発に取り組んでいる QST や HANARO を有する Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI) など海外研究機関を含めた連携を進める。本報告では、最近の主な実施内容について紹介する。

2. ブラッグエッジイメージングの新展開: 加速器駆動システム (ADS) による放射性廃棄物の核変換技術において、ターゲットおよび冷却材として用いられる鉛ビスマス (LBE) の挙動把握は極めて重要である。特に、LBE の融解・凝固メカニズムを利用するフリーズシールバルブの安全な運用のためには、

その相変化特性を詳細に理解する必要がある。著者らはこれまで、J-PARC の RADEN において nGEM や μ NID などの 2 次元計数型検出器を用いたブラッグエッジ計測を実施し、LBE の固液界面を特定する研究を行ってきたが、鮮明な画像を得るためには比較的、長時間 (5 分~30 分) の測定を要するという課題があった。そこで今回は、イメージンテンシファイア (I.I.) のゲート機能を活用した水と氷の識別などに用いられる中性子イメージング技術[1]を応用し、LBE の凝固挙動をより短時間で可視化することを目的とした。

実験は J-PARC MLF の BL22 RADEN にて実施した。実験風景を図 1 に示す。厚さ 10 mm の矩形容器に LBE を封入し、ヒーターと冷却ブロックを用いて融解・凝固を制御できる試験部を構築した。この試験部は、設置角度を変更でき、対流の影響も調査することが可能な設計となっている。撮像には I.I. と CCD カメラを組み合わせたシステムを使用し、I.I. のゲートのタイミングを調整して、任意の波長範囲における中性子透過画像を取得した。その結果、LBE の最も顕著なブラッグエッジである $\beta(101)$ に対応する波長範囲の計測結果から、凝固プロセスの可視化に成功した。

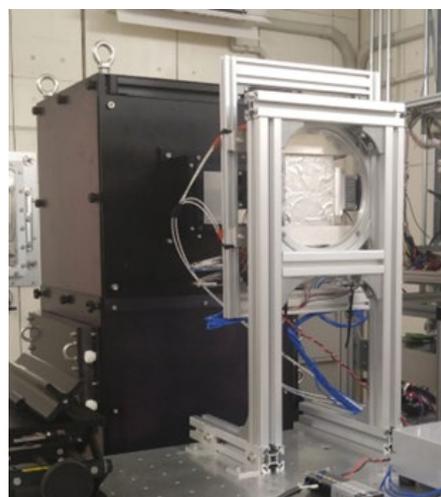


Fig. 1. Test section and imaging system.

設置角度を変更した際の固液相の分布を図 2 に示す。これらは冷却開始から 15 分後の結果である。これらの図に示すように、二つの輝度が明るい部分が固相、暗い部分が液相に対応しており、容器内に固液界面が形成されていることがわかる。得られた画像は単一フレーム (露光時間 12~13 秒) であるため統計的なノイズを含んではいるものの、凝固の過程を短時間で可視化計測ができることがわかる。図 2 (a) は、水平設置時における凝固の様子であり、対流の影響によって下部に比べて上部の固相領域が小さ

いことがわかる。さらに、試験部の傾斜角度を 15°、30°、45°、60°に変化させた測定結果を図 2 (b)~(e)に示す。図からわかるように、角度の変化に伴って、上部と下部の凝固層の大きさの違いは小さくなり、60°程度まで容器を傾けると、対流の影響が小さくなり、両壁面の固相領域の大きさは同程度になっている様子が確認できる。このように I.I.を用いた固液イメージングによって短時間で固液界面の観察が可能であり、対流が凝固プロセスに与える影響をより詳細に評価できることを示せた。

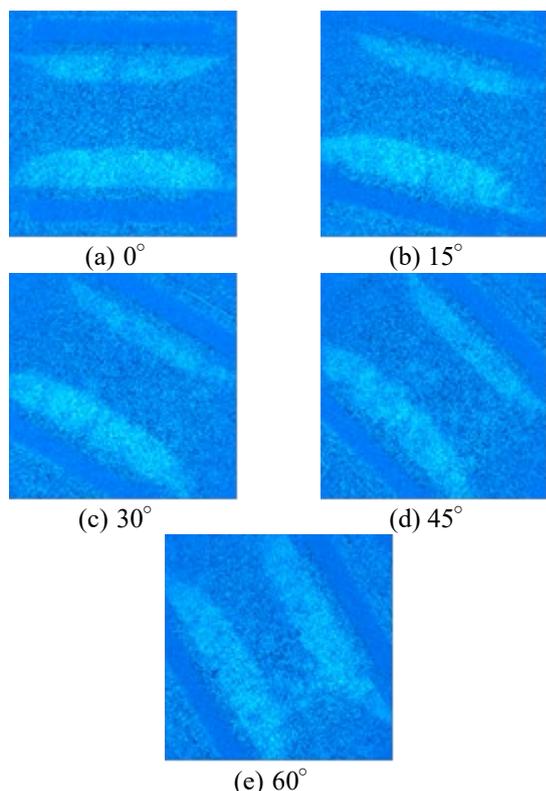


Fig. 2. Bragg edge images of solid-liquid phase distribution.

3. 高速中性子イメージングに向けた取り組み：QST では核融合中性子源 A-FNS の開発が進められている。A-FNS は d-Li 反応による MeV オーダー中性子を用いた核融合材料の照射実験を主な目的としているが、これに加えて多目的利用も視野に入れた検討が進められている。高速中性子を用いた中性子イメージングは熱中性子を大幅に上回る透過力をもつことから、熱中性子や X 線では可視化しにくい大きな工業製品の非破壊検査等に役立つと考えられる。しかしながら、熱中性子イメージングなどと比べると研究例や実施例が非常に限られているため、その実現可能性や定量化手法について十分に検討する必要がある。本研究では、重粒子輸送計算コード PHITS によるシミュレーションと J-PARC で行った高速中性子イメージングの実験を行い、高速中性子イメージングの性質と実現可能性について多角的に検討した。

本研究における実験は J-PARC MLF BL22 RADEN

で実施した。図 3 に実験で使用した中性子イメージングの装置図を示す。本実験では一般的な熱中性子イメージングの体系とほぼ同様のシステムを用いた。熱中性子イメージングでは一般的に濃縮フッ化リチウムシンチレータ (${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}$) を用いるが、高速中性子では、反跳陽子をもちいた計測法が採用されることが多く、ポリプロピレン (PP) と蛍光体である硫化亜鉛 (ZnS) を用いた。また、比較をしやすいするため、 ${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}$ シンチレータ ($t=100\ \mu\text{m}$) と PP/ZnS シンチレータ ($t=2.5\ \text{mm}$) を並べ、それぞれのシンチレータによる中性子透過像を同時に撮像できるようなシステムを用いた。MLF では白色中性子を利用した実験が可能ではあるが、熱中性子成分も多く含む。このため、カドミウムフィルターで約 0.5 eV 未満の中性子を除去し、さらに鉛フィルターでガンマ線の影響を低減した。本実験では、工業的によく使われる材料として炭素鋼 (SS400)、純銅 (C1020)、アルミ合金 (A5052) に加えて、アクリルの計 4 種類の試料を用意し、試料厚さを 5cm まで変えて透過像の撮像を行った。さらにアルミ製の容器に軽水を入れて厚さ 5.6 cm までの軽水の透過像も撮影した。

図 4 に ${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}$ シンチレータ (図中左)、PP/ZnS シンチレータ (図中右) で撮影した純銅の角ブロック (厚さ $t=3\ \text{cm}$) の透過率画像の例を示す。PP/ZnS シンチレータで撮影すると透過率は約 0.5 だが、 ${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}$ で撮影すると透過率が 0.2 未満と非常に低い。非破壊検査ができる透過率の下限を 0.2 とすると、PP/ZnS シンチレータを用いた高速中性子イメージングでは、5 cm の厚みをもつ鉄や銅も非破壊検査ができることになる。しかしながら、PP/ZnS シンチレータで撮影した画像は全体的にぼやけた画像になっており、シンチレータの厚みの影響と考えられる。また、PP/ZnS シンチレータを用いた撮影では、S/N (信号-ノイズ) 比が比較的低い画像になることも明らかになった。

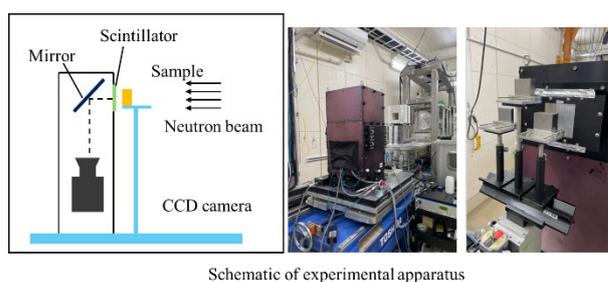


Fig. 3. Schematic of neutron imaging system at RADEN

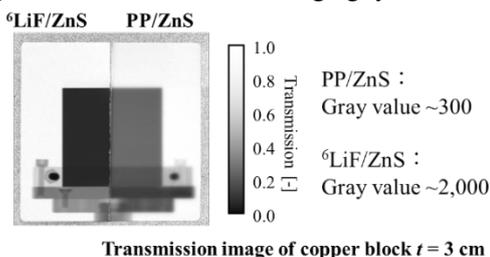


Fig. 4. Transmission image of copper block ($t=3\ \text{cm}$)

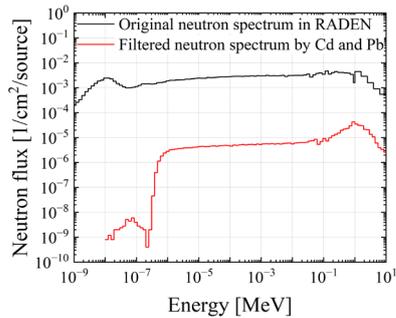


Fig. 5. Filtered neutron energy spectrum estimated for the present experiment

実験と並行して、実験と類似の体系を PHITS 上で構築し、中性子の輸送挙動を数値シミュレーションで解析した。この結果から、それぞれのシンチレータがどの程度のエネルギーをもつ中性子と反応・発光して透過像を形成するか検討した。図 5 に PHITS によるシミュレーションで得られた RADEN の中性子スペクトルと実験時のカドミウムフィルターと鉛フィルターを考慮した場合の中性子スペクトルを示す。図 5 に示すように、カドミウムフィルターと鉛フィルターの使用により、実験体系における入射中性子スペクトルは 1 MeV 付近にピークをもつ中性子ビームであると推定される。図 6 に示すように、PP/ZnS シンチレータに吸収されたエネルギーは 1 MeV 付近の中性子に起因すると思われる一方で、 ${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}$ シンチレータでは 0.5 eV – 1 keV 程度の広いエネルギーの中性子と反応すると考えられる。このため、 ${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}$ シンチレータは試料内で散乱し、減速した中性子の影響を大きく受ける一方で、PP/ZnS シンチレータは物質内散乱の影響を受けにくいと考えられる。これは、試料の厚さが大きい場合の非破壊検査などには大きな利点であるといえる。

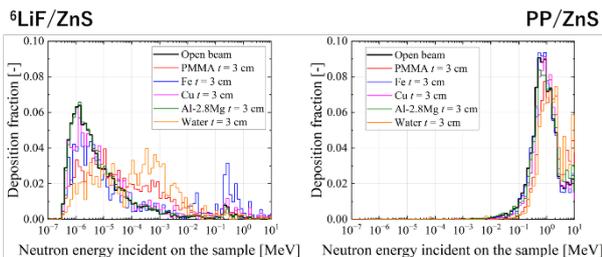


Fig. 6. Estimated deposition energy on the scintillators with neutron energy incident on samples

4. 小型中性子源でのイメージング：日本では、研究・産業応用を目的とした小型加速器中性子源の開発が活発に進められている。青森県量子科学センター (QSC) においても、サイクロトロンを用いた量子

ビーム研究を実施しており、その研究の一環として中性子イメージング装置である NRT 装置を運用している。NRT 装置は、金属ベリリウムターゲットに陽子ビームを照射して発生する中性子を利用しており、従来はイメージングプレート (IP) やフィルムを用いた静的な撮像が主に行われてきた。しかしながら、今後の利用拡大と研究の高度化を図るためには、撮像データの取り扱いが簡便な高感度なカメラシステムの導入が不可欠である。現在、我々は中性子イメージング技術をさらに発展させるため、カメラシステムの導入に向けた研究を積極的に進めている。具体的には、高感度シンチレータと冷却型 CMOS カメラを組み合わせたシステムの開発・評価を行い、小型中性子源の特性に最適化された撮像条件の確立を目指している。図 7 にカメラシステムによって得られた中性子透過画像の一例を示す。おもちゃのミニカーを撮像した結果であり、60 秒の露光時間で細部の観察が可能になった。



Fig. 7. Typical imaging result using camera system at NRT, QSC.

一方、材料内部の 3 次元的な構造を調べる中性子 CT (コンピュータ断層撮影) 撮像への強い要望が存在しているが、加速器の運用時間の制限のため、長時間の撮像が必要な CT スキャンの実施は、現時点では困難であった。この課題を克服するため、今後、カメラシステムのさらなる高度化や高度な画像処理技術の導入が求められる。これらは、単に撮像時間を短縮するだけでなく、加速器の運用時間の制約を実質的に解消し、中性子 CT の適用範囲と実用性を飛躍的に拡大するための、小型中性子源施設における最重要戦略となり得る。

参考文献

- [1] K. Isegawa et al., Nucl. Instrum Methods Phys. Res. A 1040 (2022) 167260.

(T1) 流体研究の奥深さ ～渦流れのモデル化を例として～

(京大複合研) ○伊藤 啓

1. はじめに：日本機械学会動力エネルギーシステム部門の 30 周年記念企画として、2021 年 1 月に「Fundamentals of Thermal and Nuclear Power Generation (JSME Series in Thermal and Nuclear Power Generation)」(ISBN-10: 0128207337, Amazon で 28,500 円^[1]) が出版された。その一部として、「Fundamentals of fluid dynamics of single-phase flow」の項を執筆したことに対して、2024 年 11 月に動力エネルギーシステム部門貢献表彰「Fundamentals of Thermal and Nuclear Power Generation 出版を通じての技術継承活動」を頂き、受賞記念講演として本講演の依頼を受けた。ただし、上記の執筆内容は、流体の基礎方程式（連続の式、ナビエ・ストークス方程式、エネルギー保存式）、流体粘性と圧縮性、層流と乱流、などについて教科書的な内容を述べたものであり、学術講演会で話す内容としては適切ではないと考えられるため、本原稿（講演）では、流体研究の難しさについて簡潔に記した上で、著者が実施している渦流れの研究について概要を述べる。

2. 流体研究の難しさ（非線形性）：流体の運動は、以下に示すナビエ・ストークス方程式（運動量保存式）によって記述される。簡単のため、ここでは単相流体の 1 次元座標系 (x 方向) における式を示すが、現実では一般的に 3 次元座標系における式、場合によっては多相の式、で記述される。

$$\rho \frac{\partial u}{\partial t} + \rho u \frac{\partial u}{\partial x} = -\frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_x}{\partial x} + F_x \quad (1)$$

ただし、 ρ は流体密度、 u は (x 方向) 流速、 p は圧力、 σ_x は (x 方向) 応力、 F_x は (x 方向) 外力である。ナビエ・ストークス方程式は、見た目は比較的シンプルであり、取り扱いも容易であるように感じられるが、実は数学的に非常に難しい特性を有することが知られている。実際、クレイ数学研究所は 2000 年に、現代数学における 7 つの最重要未解決問題を選定し、「ミレニアム懸賞問題」^[2]としてそれぞれ 100 万ドルの賞金をかけたが、有名な「リーマン予想」と並び、ナビエ・ストークス方程式に関する問題もその一つとして選ばれている。この問題の核心は、次元空間におけるナビエ・ストークス方程式の滑らかな解（スムーズ解）の「存在と一意性」、あるいはその「非存在」を数学的に証明することにある。すなわち、与えられた初期条件と外力に対して、常に滑らかで（微分可能な）解が存在し、その解が一意である（ただ一つに定まる）こと、もしくは、特定の初期条件や外力のもとで、解が時間経過とともに発散したり（特異点が発生）、滑らかな解が存在しなかったりすることを証明する必要がある。この

問題は未解決であり、ナビエ・ストークス方程式は空気や水の流れを予測するために広く使用されており、工学的には非常に重要な方程式であるにも関わらず、数学的には解の振る舞いの完全な理論的理解は得られていない。ナビエ・ストークス方程式の数学的困難さは 1 式の右辺第 2 項、いわゆる対流項、の非線形性に起因している。この項は、流速の空間微分と流速の積として記述されており、シンプルな見た目とは裏腹に非常に強い非線形性を有することが知られている。この非線形項のため、仮に 1 式を満足する流速の関数形（解）が得られたとしても、その解を実数倍したもの、もしくは、複数の解を線形結合したものは一般的に 1 式を満足しない。この特性が、ナビエ・ストークス方程式の解の探索を極めて困難にしており、原子力分野において用いられる他の有名な基礎方程式、例えば、原子炉核計算の中性子輸送方程式や量子力学のシュレーディンガー方程式、は基本的に線形の方程式であり、物理的な取り扱いはともかく数学的な扱いは遥かに簡単であると言える。ナビエ・ストークス方程式の対流項の非線形性に起因する重要な現象の 1 つとして、乱流の発生・成長が挙げられる。比較的遅い流れにおいては粘性による安定化作用（1 式の右辺第 2 項）が強く対流項の影響が相対的に小さくなるため、流体の運動は対流項を無視した線形（偏微分）方程式で記載でき、良く知られたハーゲン・ポワズイユ流れなどの層流流れ場の式が得られる。しかし、流速の増加とともに対流項の影響が無視できなくなり、流れの安定性が低下するため、流れ場中の微小擾乱が時間とともに発達するようになり、最終的に乱流、大小様々な渦流れによって形成される乱れた流れ場、が形成される。実際の工学機器における流れ場のほとんどは乱流であると考えられるが、上記の通り、乱流の発生に関しては未だ解明されておらず、現在でも多くの基礎的研究が行われている。このため、ナビエ・ストークス方程式の解の存在と一意性に関するミレニアム懸賞問題の解決は、乱流の機構解明の観点からも期待されている。

3. 渦流れに関する研究：前章では、流体研究において渦流れの理解が非常に重要であることを述べた。これは、乱流中の小スケール渦に限らず、より大きなスケールの渦においても同様である。ここでは、流れ場中に形成される大スケール渦に基づく現象として、液中渦キャビテーション現象およびガス巻込み現象に関する研究について紹介する。

渦流れのモデル化においては、しばしば、渦の中心軸を流れの対称軸とし、軸対称のナビエ・ストークス方程式に基づく検討が行われる。このとき、渦軸方向の流れ（流速分布）を非常に単純化すること

により、以下の Burges 渦モデル^[3]が得られることが知られている。

$$u_r(r) = -\frac{1}{2}\alpha r \quad (2)$$

$$u_\theta(r) = \frac{\Gamma_\infty}{2\pi r} \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2}\right) \right\} \quad (3)$$

$$u_z(z) = \alpha(z - z_0) \quad (4)$$

ただし、 r は半径方向座標（原点は渦中心）、 u_r 、 u_θ 、 u_z はそれぞれ、半径方向、周方向（回転方向）、（渦中心）軸方向の流速、 α は軸方向速度勾配、 Γ_∞ は渦の循環、 r_0 は渦の特性半径、 z_0 は基準位置（自由界面渦の場合は界面高さ）である。式3は、周方向流速の半径方向分布、式4は軸方向流速の軸方向分布を表しており、図1中に点線で示すような分布となる。Burgesモデルでは、軸方向流速は半径方向に一定であると仮定するが、実際に自由界面渦の実験計測結果（図中のプロット）と比較すると、図中に示すように軸方向流速が非常に小さい値となり、その結果として周方向流速についても実験計測値と大きく乖離する計算結果となる。なお、実験計測値において、周方向流速は渦中心近傍で極大値を有する分布となっているが、式2で示されるように半径方向流速が渦中心方向を向いているため、角運動量保存則によって中心に近づくにつれて回転流速が急激に増加するためである。これは、フィギュアスケートにおいてジャンプの際に腕を折りたたむことにより、急激に回転速度が増加することと類似の現象である（図2）。すなわち、フィギュアスケートにおいては、回転中心から遠い位置でゆっくり回転していたもの（腕）がジャンプの際に回転中心に近づくことによって回転速度が急激に増加し、3回転、4回転といった高速回転が可能となる。図1において、渦中心の極近傍では粘性拡散の影響が大きくなり、周方向流速は渦中心においてゼロとなる。

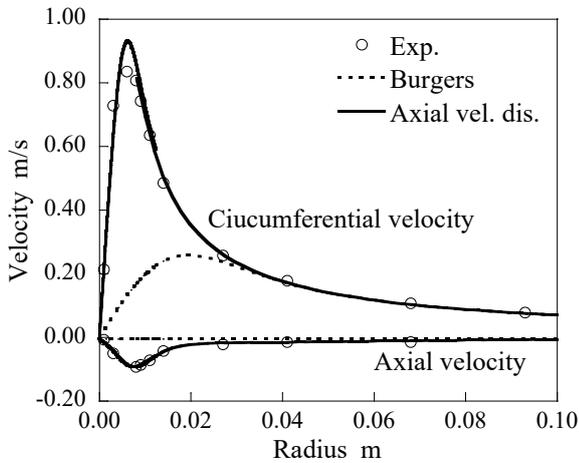


Fig. 1 Circumferential and axial velocity distributions of the experimental data (open circles), the Burgers model (dotted lines) and the improved model (solid lines).



Fig. 2 Angular momentum conservation in jump of figure skating^[4].

Burges 渦は比較的簡単な渦流速モデルとして様々な渦流れのモデル化に用いられているが、軸方向流速が半径方向に変化しないという仮定を用いているため、図1に示すように実験値との乖離は大きい。そのため、軸方向流速のモデルを高度化することにより、実験計測結果の再現性を向上できると考えられる。ここでは、以下の式を用いて軸方向流速（の半径方向分布）をモデル化する^[5]。

$$u_z(r, z) = \sum_{k=1}^n \frac{\gamma_k \beta_k^{\xi_k+1} (\xi_k + 1) r^{\xi_k-1}}{(r^{\xi_k+1} + \beta_k^{\xi_k+1})^2} (z - z_0) \quad (5)$$

ただし、本式は n 項の和からなっており、各項 ($k=1, \dots, n$) において、 β_k は渦中心領域の大きさ（半径）を決定するパラメーター、 γ_k は境界条件から決まるパラメーター、 ξ_k は流速分布関数の形状を決めるパラメーターである。また、渦中心において軸方向流速が0となるため、 $\xi_k > 1$ である。式5をナビエ・ストークス方程式に代入すると、周方向流速分布が以下の式のように得られる。

$$u_\theta(r) = \frac{\Gamma_\infty}{2\pi r} - \frac{1}{r} \int_r^\infty r \omega_z dr \quad (6)$$

ただし、軸方向の渦度 ω_z は以下の式で与えられる。

$$\omega_z(r) = C \prod_{k=1}^n \left(r^{\xi_k+1} + \beta_k^{\xi_k+1} \right)^{-\frac{\gamma_k}{(\xi_k+1)\nu}} \quad (7)$$

ここで、積分定数 C は Γ_∞ によって決定される。図1中の実線で示される通り、式5を用いることで実験計測値の軸方向流速分布を再現することができ、その結果として、周方向流速分布についてもモデル計算結果と実験計測値は良く一致している。

渦流れの発達に伴って渦中心の圧力が低下し、渦中心圧力が流体の蒸気圧以下になると、液相から気相への相変化（キャビテーション）を誘起する可能性がある。流れ場中における液中渦キャビテーションの発生・発達を評価するためには非定常挙動を取り扱える渦モデルが必要であるが、そのような非定常渦モデルは限られている。ここでは、非定常軸対称ナビエ・ストークス方程式に基づき、非定常渦モ

デルを考える^[6]。その際、キャビテーション領域（渦中心の気相領域）の半径 R が渦の特性半径 r_0 よりも十分に小さいという仮定を用いると、周方向流速の時間変化に関して以下の式が得られる。

$$\omega_z(r,t) = \frac{1}{1+t'_c \exp\left(-\frac{t}{Re}\right)} \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{1}{1+t'_c \exp\left(-\frac{t}{Re}\right)} \frac{r^2 - R^2}{4}\right) \quad (8)$$

ただし、 $Re = \Gamma_\infty / (2\pi\nu)$ は、循環に基づくレイノルズ数、 t_c を初期条件によって決まる定数として、 $t'_c = t_c / Re - 1$ である。式(8)を用いることにより、周方向速度分布が以下のように導かれる。

$$u_\theta(r,t) = \frac{1}{r} \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{1}{1+t'_c \exp\left(-\frac{t}{Re}\right)} \frac{r^2 - R^2}{4}\right) \right\} + \beta \frac{R^2}{r} \quad (9)$$

ただし、 β は気相領域における平均の周方向速度勾配であり、気液界面 ($r = R$) における速度の連続性を保つように決定する。これらの式において、(無次元化した) 見掛けの特性半径は、以下の式で与えられる。

$$r_s = \sqrt{1+t'_c \exp\left(-\frac{t}{Re}\right)} \quad (10)$$

また、キャビテーション領域半径 R は、気液界面位置における圧力が以下の条件を満たすように決定する。

$$p(R) = p_v - \frac{\sigma}{\rho V^2 L} \frac{1}{R} = p_v - \frac{We^{-1}}{R} \quad (11)$$

上記の非定常液中渦キャビテーションモデルを用いて渦流れの成長挙動を計算した結果を図3に示す。初期状態において周方向流速がゼロの状態から、時間とともに渦流れが発達し、最終的に Burgers 渦モデル（下降流速勾配を調整したモデル）とほぼ一致する結果に収束している。ただし、図4に示す通り、渦中心領域においてはキャビテーション（相変化）が発生しており、渦の発達に伴ってキャビテーション半径が増加していることが分かる。

4. おわりに：流体研究の難しさ（非線形性）について紹介するとともに、研究の一例として、渦流れのモデル化について述べた。今後、さらに様々な研究を進めることにより、流体の非線形性に起因する複雑現象の解明に資することが期待される。

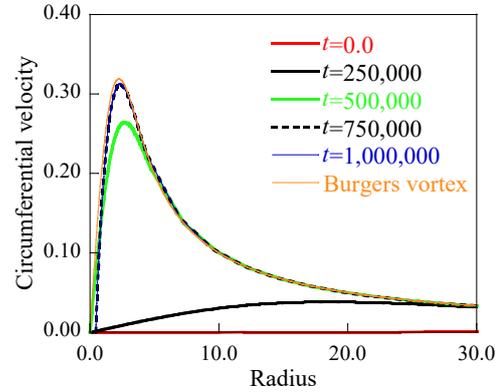


Fig. 3 Development of Circumferential velocity.

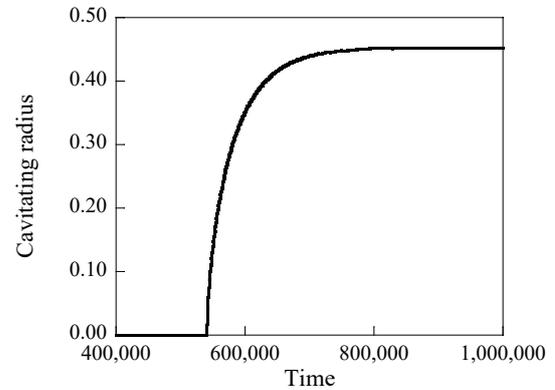


Fig. 4 Cavitation behavior.

参考文献

- [1] <https://www.amazon.co.jp/Fundamentals-Thermal-Nuclear-Power-Generation/dp/0128207337>
- [2] The Millennium Prize Problems - Clay Mathematics Institute
- [3] Burgers, J. M., A mathematical model illustrating the theory of turbulence, Advance in applied mechanics (edited by Mises, R. and Karman, T.), Academic Press ING., New York (1948).
- [4] <https://www.tdk.com/ja/tech-mag/sportstech/005>
- [5] 伊藤 啓, 江連 俊樹, 大島 宏之, 適切な渦中心軸方向流速の分布を有する渦モデルの開発と検証, 日本機械学会論文集, Vol. 80, No. 818 (2014).
- [6] 伊藤 啓, 江連 俊樹, 大野 修司, 上出 英樹, 非定常液中渦キャビテーションモデルの検討, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 801, pp. 838-847 (2013).

(N1) 中性子を用いた量子磁性研究

(京大複合研) ○南部雄亮

1. はじめに：

中性子散乱は、物質中の構造と励起を直接的に観測できる、物性物理学における最も強力な微視的測定手段の一つである。その特徴は中性子の固有の性質に由来する。質量 $m_n = 1.0087u$ を持つ中性子は電氣的に中性であるため高い透過力を示し、バルク内部の情報を提供する。また、中性子はスピン $\hbar/2$ を持ち、核力による核散乱過程に加えて、不対電子の磁気モーメントとの双極子相互作用を通して磁気散乱を生じる。この磁気散乱を介して、磁気構造やスピンドायナミクスに関する情報を得ることができる。

さらに、中性子散乱で使用される典型的な波長(数 Å)は原子間距離と同程度であり、X線・電子線回折と同様に結晶構造や磁気構造の回折を与える。1 Å程度の波長を持つX線が典型的に10 keV程度のエネルギーを持つのに対し、中性子のエネルギーは数10 meVと低く、固体中のフォノン・マグノンの典型的なスケールと一致する。このため中性子散乱は静的構造だけでなく、磁気励起を含む動的挙動までを包括的に捉えることができる。運動量 (Q) とエネルギー (E) に分解された情報によって物質内部のミクロな自由度にアクセスする上で、中性子散乱は他の手法では得難い決定的な情報を定量的に提供する。

本講演では、筆者がこれまで行ってきた物性研究のうち、特に量子磁性に焦点を当て、回折による構造解析と偏極中性子を用いた分光測定に大別して紹介する。

2. 磁気構造解析：

物性研究において物質の構造の同定が必要不可欠であるように、磁性研究においてもその磁気構造の決定は研究の第一義として重要である。磁気構造の種類は、大きく長距離秩序と短距離相関の二つに分けられる。長距離磁気秩序が生じる場合、磁性元素が単一サイトを占有するなど結晶構造が単純な場合はほぼ自明であるが、単位格子内に複数の磁性元素が存在するなど磁気構造が複雑になり得る場合は群論的解析が強力な道具となる。

群論に基づく磁気構造解析には、(i) 既約(複)表現 (irreducible (co)representation) 解析 と、(ii) 磁気空間群 (magnetic space group) 解析の二つのアプローチがある。前者は与えられた伝搬ベクトルに対する表現分解を通して対称性許容なスピン配置を分類する手法であり、後者は Shubnikov 群の枠組みを用いて空間群と時間反転対称性の組を直接的に扱える点に特徴がある。実際の研究においては、これらを併用しながら相転移に伴う磁気秩序の種類、スピン配置の選択則、異方性の起源などを議論していく。本講演では、既約表現論での解析例 [1, 2] を示し、磁気空間群解析との併用 [3] についても紹介する。

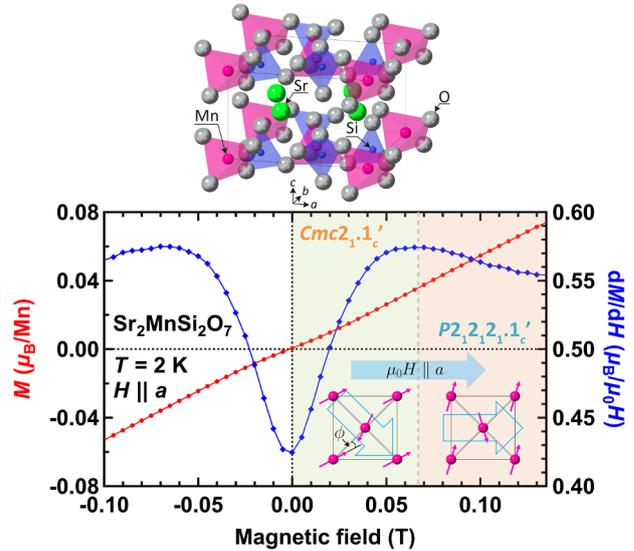


Fig. 1. Crystal structure of $\text{Sr}_2\text{MnSi}_2\text{O}_7$ and its magnetisation process, showing a field-induced change in the magnetic structures with the corresponding magnetic space group identified [4].

また、Fig. 1 に示す磁場誘起の磁気構造変化について、国際結晶学連合の依頼によってまとめた二つの解析スキーム [4] と最近の提案様式に沿った磁気空間群の表記法について述べる。

他方、磁気相関が短距離に留まる場合は磁気散漫散乱が観測されることが特徴となる。その解析には通常の Rietveld 解析が適用できず、磁気構造と関連のモデルを構築して解析を行う [5, 6]。

3. 偏極中性子分光：

中性子スピンを制御する偏極中性子散乱は、磁気構造およびスピンドાયナミクスの”方向”と”符号”に関する情報を抽出できる点で特に重要である。まず、スピンフリップ・ノンスピンフリップ散乱過程に付随する核散乱と磁気散乱を包括的に記述する基本的な散乱表式を整理し、そこに現れるカイラル項 (chiral term) の物理的意味を解説する。

中性子磁気散乱では散乱ベクトル (Q) 方向に垂直な面に射影された磁気モーメントを検出するが、カイラル項はその面でのベクトル積に比例する成分であり、スピン配列・磁気励起固有モードの「左右性 (handedness)」に対応する。 Q 方向に向けた P_x 偏極中性子はこの虚部を実験的に抽出できる数少ない手段であり、静的構造のスピン螺旋や非共線性の符号、さらには磁気励起分散ごとの極性まで捉えることができる。

本講演では、まず静的構造のスピン配列に P_x 偏極中性子を適用した例 [7, 8] を紹介する。また、スピン配列のカイラリティを電流・磁場などの外場によ

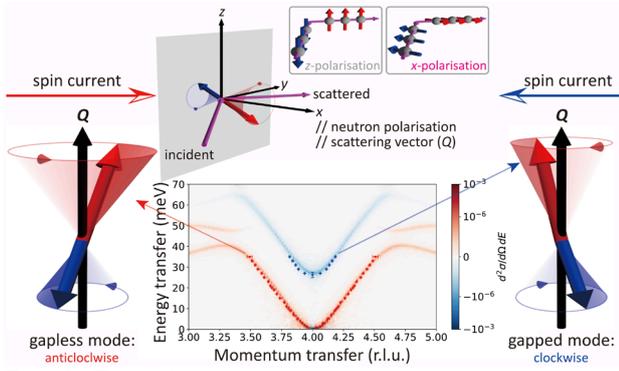


Fig. 2. Example of measuring magnon polarisation in YIG [9], using an orthogonal neutron-polarisation geometry that compares conventional P_z polarisation with P_x polarisation.

って制御することに成功した最近の研究成果についても触れる。

次に、偏極中性子を分光させた例としてマグノン（磁気励起を量子化したもの）極性の直接観測 [9] を取り上げる。フェリ磁性体 YIG ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) では、スピン歳差運動の回転方向に応じて磁気励起分散ごとに異なる符号のカイラル項が現れる。 P_x 偏極中性子によりその左右性を直接的に観測することに成功した (Fig. 2)。これにより、室温近傍のスピン流信号の減衰が高エネルギー磁気励起モードの熱活性化に起因することを示し、巨視的電圧に変換されたスピン流信号の温度依存性をマイクロな磁気励起分散上の競合として解釈できる道を開いた。つまり、マグノンスピントロニクスで重要な“マグノンの符号自由度”が初めて明確に捉えられた。

さらに希土類 $4f$ 電子を有する $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ についてもマグノン極性測定を進めた [10]。中性子散乱によりギャップをもつ二つの主要磁気励起分散が明らかになり、これらは線形スピン波計算でよく再現された。さらに偏極中性子散乱の結果、それぞれの分散は符号の異なる偏極をもち、磁気補償温度を挟んでマグノン極性の符号が反転することを確認した。これらの分散と極性の温度変化が、スピン流信号で観測される符号反転や低温での急激な減衰を説明する鍵であることを明らかにし、磁気励起とマグノン極性情報があればスピン流信号の温度依存性が予測可能であることが言える。これらのマグノン極性測定の結果は中性子による (\mathbf{Q}, E) 分解の有用性と、熱活性化された全磁気励起分散の極性がスピン流に寄与することを初めて実験的に確認したことを示すものである。

最後に、非偏極・偏極中性子を用いた多様な中性子散乱手法と他手法との組み合わせによるスピン揺らぎ時間の定量 [11] について紹介する。スピンの空間相関情報については前述のように回折測定が用いられるが、これまで時間情報に特化した研究はほとんどなされてこなかった。我々は磁気秩序を示さな

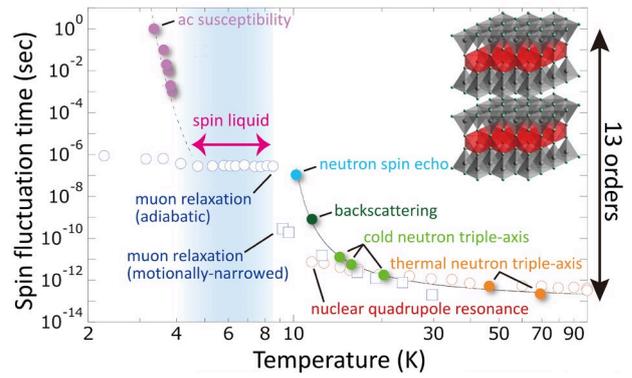


Fig. 3. Temperature dependence of quantitatively determined spin-fluctuation time spanning 13 orders of magnitude [11].

い三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 について、種々の中性子散乱手法とミュオン、交流磁化率測定を組み合わせ、13桁に渡るスピン揺らぎ時間の解明に成功し、スピンの 10^{-6} 秒程度で揺らぐスピン液体状態を発見した (Fig. 3) [11]。これは、揺らぎ時間の定量情報を伴うスピン液体状態の初の確認である。また、この物質では整数・半整数スピンサイズに依存する低温磁性 [12] や高次のスピン自由度の存在 [13] が示唆されている。最近では、 P_z 偏極中性子を適用し、カイラリティに起因するトポロジカル転移を観測した。

2. 結語：

本講演では、中性子散乱が提供する多面的な情報のうち、特に磁気構造解析と偏極中性子分光によるカイラリティ・マグノン極性の観測に焦点を当てる。静的構造からダイナミクスまで、スピンの配置とその符号自由度を包括的に捉える点で、中性子散乱は今後の量子磁性研究およびスピントロニクス・マグノニクス設計において決定的な役割を果たすことが期待される。

参考文献

- [1] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 037201.
- [2] H. Takahashi *et al.*, Nat. Mat. **14** (2015) 1008-1012.
- [3] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. B **85** (2012) 064413.
- [4] Y. Nambu *et al.*, Acta Cryst. B **80** (2024) 393-400.
- [5] S. Nakatsuji *et al.*, Science **309** (2005) 1697-1700.
- [6] C. Stock *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 037402.
- [7] M. Kinoshita *et al.*, Phys. Rev. Lett. **117** (2016) 047201.
- [8] Y. Kimoto *et al.*, Phys. Rev. Lett. **134** (2025) 056702.
- [9] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **125** (2020) 027201.
- [10] Y. Kawamoto *et al.*, Appl. Phys. Lett. **124** (2024) 132406.
- [11] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **115** (2015) 127202.
- [12] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 207204.
- [13] M. E. Valentine *et al.*, Phys. Rev. Lett. **125** (2020) 197201.

(PJ2) BNCT に関する生物学的・化学的線量の三次元分布評価

(京大複合研¹、岡大NTRC²、名大院工³、京大院理⁴、広国大保⁵、京薬大基⁶、岡大学研院⁷、国がん中央⁸、理研⁹、阪大院工¹⁰) ○櫻井良憲¹、近藤夏子¹、井川和代²、吉橋幸子³、高田淳史⁴、道上宏之²、林慎一郎⁵、田中憲一⁶、笈田将皇⁷、中村哲志⁸、高田卓志¹、前山拓哉⁹、村田勲¹⁰

1. はじめに：加速器システムによるホウ素中性子捕捉療法(BNCT)の保険診療が2020年に始まったが、BNCTのさらなる発展には中性子に関する生物効果評価の高度化が重要である。BNCT用照射場では、ある特定のエネルギーの中性子のみを単色で取り出すことは困難であり、熱、熱外、高速中性子等、さまざまなエネルギー領域の中性子が混在している。また、ガンマ線も混在している。さらに、中性子のエネルギーや生体内で起こる核反応により発生する二次荷電粒子の種類やエネルギーが異なる。

BNCTに関する生物効果評価は国内外の多数のグループで行われているが、特に中性子に関する生物効果評価の困難さから、各グループ間で整合性の取れた評価ができていない状況である。この状況を踏まえ、本プロジェクトでは整合性の取れた生物効果評価手法の構築を目指している。

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. 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[1]。⁶Liは(n,α)反応により熱中性子をよく吸収し、二次ガンマ線を発生しない。材質として⁶LiF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、普通のポリエチレンファントムと⁶LiF混入ポリエチレン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、「二重ファントム法」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を用いた(1)照射場の線質評価、および、(2)混在高速中性子の生物学的効果評価、を行っている。

2.2. 3D共培養を用いた脳神経系組織に対するBNCTの生物効果(代表：近藤夏子)：従来の脳腫瘍BNCTに関するin vitro評価では、単一の腫瘍細胞のみの二次元(2D)培養モデルを用いてきている。実際の組織は単一細胞ではなく、多種の細胞が空間的に混在するため、生物効果を評価するには十分ではない。またin vivo評価では、小動物(マウスおよびラット)を用いてきている。しかしながら、実際のヒトとは

サイズが大きく異なるため空間線量分布には大きなギャップがある。

本課題では、腫瘍細胞と正常細胞との三次元(3D)共培養モデルを用いて、より現実に近い照射体系を構築し、生物効果を評価することを目的としている。KUR重水設備において、主に、脳腫瘍細胞および消化器系腫瘍細胞を対象に評価を行っている[2]。

2.3. 三次元口腔がんモデルを用いたBNCT評価システムの構築(代表：井川和代)：がん治療においては、腫瘍に対する治療効果があることと、腫瘍周辺の正常組織に対する影響がないことが重要である。しかしながら、新規放射線治療におけるヒトの正常組織に対する影響の評価法には確定したものがいない状況である。そこで、3D口腔がんモデルを用いて、腫瘍と腫瘍周囲の正常部位に対するBNCTに関する影響評価システムの構築を目指している[3]。

口腔癌と正常口腔粘膜それぞれの3Dモデルを組み合わせた頭頸部癌の3D複合インビトロモデルを構築し、このモデルを用いてヒト臨床を想定したBNCTの照射線量、照射条件、プロトコルを作成する。BNCTがモデルに与える生物学的影響に関する基礎データの収集を行い、BNCTに必要な生物学的効果比(RBE)、薬剤生物学的効果比(CBE)を算出し、放射線評価に必要なパラメータを探索しながら、3D複合インビトロモデルを用いた本システムの改良を進め、革新的なBNCT評価システムの開発に挑戦する。本課題では、KUR重水設備において、口腔扁平上皮癌(HSC-4)と口腔粘膜線維芽細胞(NOFs)、HSC-4とがん関連線維芽細胞(CAFs)、角化細胞(OKT)とNOFsを用いた口腔3DモデルについてBNCT影響評価を行っている。

2.4. BNCT症例拡大を目指した血液がん細胞へのBNCT効果の検証と線量評価(代表：吉橋幸子)：本課題の代表者らは、自家造血幹細胞移植において体外でBNCTを行うことにより移植片(グラフト)に残されたがん細胞を取り除くという新しい治療手法(Ex-vivo BNCT)を検討している。この手法は、自家造血幹細胞移植が認められていない白血病治療などへの展開が期待される。

骨髄細胞は放射線感受性が高いことから、正常な造血幹細胞に影響を与えずにがん細胞のみの選択的除去を実現する必要がある。そのため、ホウ素取り込み量やBNCT効果の検証だけでなく、BNCTに関する線量(ホウ素線量、窒素線量、水素線量、ガンマ線量)を把握する必要がある。本課題では、PIV-GTA-Iゲル線量計の添加物(ホウ酸など)を調整することで、

熱中性子、高速中性子、ガンマ線の線量弁別を行い、KUR 重水設備において、グラフトバック中の線量分布を三次元的に可視化することを試みている[4]。

2.5. 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：高田淳史)：電子飛跡検出型コンプトンカメラ(ETCC)は、ガンマ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、ガンマ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。

本課題は、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である。特に、解剖や ^{18}F -BPA に頼らない生体内ホウ素薬剤分布計測法、および、中性子照射中のホウ素薬剤集積度のモニタリング法の確立を目指している。前者については、KUR 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を行い、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。後者については、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[5]。

2.6. 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、ガンマ線コリメータにより深さ方向のガンマ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検討を行うとともに、KUR E3 中性子導管において実験的検証を行っている。

2.7. BNCT における吸収線量分布測定のための 3 次元ゲル線量計の開発と特性評価(代表：林慎一郎)：3 次元ゲル線量計は、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。その主成分は、溶媒として水(80-99 wt%)、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

(1-10 wt%)から成り、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)や分光光度計や光学 CT 等で測定することにより吸収線量の 3 次元分布を直接求めることが可能である。これまで 3 次元ゲル線量計は主にエックス線治療や陽子線・炭素線治療における 3 次元吸収線量分布を評価するために開発・応用がなされてきている。

本課題では、新規に開発されたラジオクロミックゲル線量計の BNCT における吸収線量分布計測への適用を試みた。KUR 重水設備等を用いて、中性子およびガンマ線・エックス線に対し、そのエネルギースペクトルや線量(率)等に対する基礎特性、および熱中性子捕捉核(^6Li , ^{10}B 等)を含む増感剤や組成の影響を調べ、QC/QA ツールとして臨床応用への可能性を確認した。また、自作した 3 次元光学 CT 装置を用いた 3 次元空間分布評価も実施している[6]。

2.8. 色素ゲル線量計を用いた BNCT に関する三次元線量分布評価手法の確立(代表：櫻井良憲)：本課題の代表者らは、BNCT に関する生物学的線量評価の高度化の一環として、生物学的効果の前段階である化学的効果に着目し、化学線量計、特にゲル線量計を用いた評価手法の確立を目指している。ゲル線量計は、生体組織に近い物質で構成されており、任意の形状に形成できる。人体を模擬したファントムをゲル線量計で作成することにより、3D 線量分布評価が可能となる。様々な種類のゲル線量計があるが、光学 CT 装置で読み取り可能な「色素ゲル線量計」に着目している。

本課題では、複数種類の色素ゲル線量計を用いた BNCT に関する 3D 線量分布評価手法の確立を目的としている。ゲル線量計に用いる色素として、発色特性の異なる 3 種類の色素、ロイコマラカイトグリーン(LMG)、ロイコクリスタルヴァイオレット(LCV)、ゲニピン、の利用を考えている。発色特性の組み合わせ、および、熱中性子、高速中性子、ガンマ線、各線質に対する感度をゲルの組成の変更により増減することで、色素ゲル線量計による線質弁別評価が期待される。熱中性子に対する増感のために LMG ゲルにホウ酸を加えることを検討している。また、高速中性子に対する減感のためにゲニピンゲルを軽水の代わりに重水を用いて作成することを検討している。KUR 重水設備等を用いて、作成したゲル線量計の、熱、熱外、高速中性子、ガンマ線に対する応答特性を評価し、ゲル線量計の組成および組み合わせの最適化を行っている[7,8]。

2.9. 受動型検出器を用いた BNCT 照射場ビーム成分ごとの 3 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、高速中性子およびガンマ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)やポリマーゲル線量計などの受動型検出器を用い、これら 4 つの放射線成分の分布を測定する手法の開発に取り組んでいる。

本課題では、IP に関して、放射線検出のプロープとなる 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 2D 置検出器を構成する。この蛍光体は、入射粒子の線エネルギー付与(LET)に応じて、励起光波長特性、すなわち、励起光波長に依存した発光量特性が異なるという性質を事前測定で見出している。この BaFBr:Eu 輝尽蛍光体を用いた、照射場の平均 LET の 2D 分布と、線量の 2D 分布の両方を評価できる手法の開発を目指している。基礎検討として、KUR 重水設備において、励起波長特性と線量(照射時間)依存性の取得を行っている[9]。

2.10. 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)：BNCT は、現在臨床応用が急拡大しており、放射線管理や患者処方線量に関する正確な線量評価において実務的課題が多い状況である。非荷電粒子線(主にエックス線)・荷電粒子線(主に電子線、陽子線)を用いた放射線治療の線量測定および品質管理で用いられるラジオクロミック物質(主にフィルム)およびゲル物質は、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、その変化を利用した線量評価が行われる。しかしながら、ラジオクロミック物質の中性子線源および中性子吸収剤(主にホウ素化合物)との併用時に対する基礎特性や臨床応用での線量評価体系は未だ明らかにされていない。

本課題では、ラジオクロミック物質に加え、ホウ素化合物を加えたフリッケルゲル等の中性子線への臨床応用技術や解析手法の開発ならびに線量計測システムの確立を目指し、中性子吸収剤等との併用による照射技術の最適化と MRI 装置を用いた新たな 3D 線量評価システムを体系化することを目的としている。コバルト 60 ガンマ線源および KUR 重水設備を用いて、ラジオクロミック物質およびホウ化物線量計に対する中性子線の感度特性を確認している[10]。

2.11. 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、表層部の疾患等に対する BNCT 臨床が開始されている。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。BNCT においては、腫瘍に対する線量は中性子照射量とホウ素の集積量に依存する。そのため、腫瘍に対して BNCT で利用される熱および熱外中性子の照射の位置と量を精度よく評価することが重要である。また、治療の実施を考慮すると、QA/QC の簡便化や作業効率なども視野に入れる必要がある。

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[11]。

2.12. 多色エネルギーCT を用いた三次元水分含有量分布を反映した線量計算手法の確立(代表：高田卓志)：BNCT の線量計算にはモンテカルロ法が一般的に採用されており、密度や元素組成といった体内の各組織に対応する物質情報を指定することで、中性子・ガンマ線の輸送計算が行われる。従来、物質情報として ICRU 等の文献に記載された値が固定値として指定されている。しかしながら、この方法では、患者間の差異や、例えば白質と灰白質における水分含有量の違い等、物質情報の詳細を線量計算に反映することはできない。

本課題では、多色 X 線 CT で取得されるデータを用いることで、物質密度および水分含有量の定量評価を行い、線量計算における物質情報に反映する手法の確立を目指している。X 線 CT の管電圧による減弱係数の差を利用することで、水分と脂肪、水分と骨組織のように 2 種類の物質の含有率分布を取得することが可能であることが知られている。これを利用して、体内の水分含有率分布、もしくは脂肪含有率分布を取得し、BNCT の線量計算に活用するフレームワークを構築する。全身用 X 線 CT 診断装置を用いて物質情報の定量精度を検証し、線量計算への影響を評価している。さらに、水分と脂肪の 2 成分とみなせるファントムを組成を変えて作成し、CT による計測と合わせて、KUR 重水設備等の BNCT 用中性子照射場における線量計測を行うことで、総合的な検証を行っている[12]。

2.13. 中性子線に対する LET 非依存蛍光ゲル線量計の線量応答特性の評価(代表：前山拓哉)：ゲル線量計は吸収線量に応じて進行する化学反応の量を定量することで、線量評価を行うことができる線量計であり、ゲル中で生じた反応生成物は位置分解能を有するため、放射線の方向にその感度が依存せず実 3D 線量分布を評価できる。また、主成分が水であるため、放射線治療計画の検証ツールとしての利用が検討されている。本課題の代表者は、ナノサイズのクレイをゲル化剤として使い、放射線誘起の反応メカニズムを変化させることで、その線量応答が LET に依存しない特性を付与できることを明らかにし、重粒子線治療や近年進められているマルチイオン照射等への応用が期待されている蛍光ゲル線量計について報告している。

BNCT においてもその LET 非依存の感度特性が有効であることが考えられるものの、これまでに中性子線に対する基礎特性の評価が行われていない。一般に高 LET 放射線に含まれる中性子線に対して化学反応が荷電粒子線と同様に進行するのか、弾性散乱や核反応の寄与が多くなる中性子線と荷電粒子線との化学反応メカニズムの相違と類似する部分は何か、これらの確認する必要がある。本課題では、LET 非依存の蛍光ゲル線量計の中性子線に対する特性を評価し、BNCT における線量分布評価への応用を検討する。KUR 重水設備において、蛍光ゲル線量計、熱

中性子に対する増感のためにホウ素を添加した線量計に対して、熱、熱外、高速中性子、ガンマ線に対する応答特性評価を行っている。

2.14. BNCTにおける照射計画最適化のための線量評価ファントム実験(代表:村田勲):BNCTはその効果および腫瘍細胞選択性によりさらなる発展が期待されている治療法である。特に手術が難しい膵臓がんや肝がんについて、BNCTによる治療が見込まれる。しかしながら、現状では体内による中性子の減衰により、深部まで中性子が到達しないことが課題である。また、現状のBNCTの治療計画では医学物理士が照射位置を複数回提案してシミュレーションを行い、治療位置を確定するため、個人に依存する。

本課題では、BNCTの治療効果を最大化し、深部がんにおける治療を達成するために、中性子ビームの検討および照射計画(プロトコール)の最適化アルゴリズムの開発を行う。KUR 重水設備において、金箔・ガラス線量計を直線上に埋め込んだ球体ファントム内の中性子・ガンマ線の深さ分布測定等を行っている。

3. おわりに:加速器BNCTシステムの完成によりBNCTの一般的な療法への移行が進んでいるが、さらなる高度化のためには整備すべき課題が残されている。線量評価の高度化はその一つである。このような状況を踏まえ、「BNCTに関する総合的線量評価システムの構築(2017~2019年度)」、「BNCTに関する総合的評価システムの高度化(2020~2022年度)」をプロジェクト課題として提案し採択されてきた。これら二つの前身プロジェクトの成果を基に、生物学的効果、および、その前段階である化学的効果に重点を置いて、三次元的な線量分布評価の高度化を目指すことが、本プロジェクト「BNCTに関する生物学的・化学的線量の三次元分布評価(2023~2025年度)」の目的である。

上述のように、BNCTに関する生物効果評価は困難であり、国内外のBNCTに関する研究グループ間で整合性の取れた評価ができていない現状にある。

BNCT 臨床における線量評価の改善において、本プロジェクトは必要かつ重要な位置付けであると考えている。本プロジェクトはKURの利用運転とともに終了となるが、新たに追加された課題13と14を除いて、いずれの課題もおおむね順調に進捗している。特に、「生物学的線量評価」に関する課題1,2,3,4,ならびに、「化学的線量評価」に関する課題4,7,8については、大きな成果が得られつつある。

二つの前身プロジェクトの期間も合わせた9年間で、BNCT用加速器ベース照射場の開発は一層進み、それに伴って線量評価における新たな要求が生じてきている。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。KURに代わる中性子照射場等を利用して、BNCTに関連する生物学的・化学的線量評価に関する研究が継続されることを期待する。

参考文献

- [1] Y. Sakurai, *et al.*, KURNS Progress Report 2024 (2025) 48.
- [2] N. Kondo, *et al.*, KURNS Progress Report 2024 (2025) 49.
- [3] K. Igawa, *et al.*, Bio. Tech. 12 (2023) 35.
- [4] S. Yoshihashi, *et al.*, KURNS Progress Report 2024 (2025) 51.
- [5] T. Mizumoto, *et al.*, Sci. Rep. 15 (2025) 29310.
- [6] S. Hayashi, *et al.*, Appl. Radiat. Isot. 225 (2025) 112008.
- [7] R. Narita, *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. 2799 (2024) 012009.
- [8] R. Narita, *et al.*, Appl. Radiat. Isot. 225 (2025) 112007.
- [9] K. Tanaka *et al.*, KURNS Progress Report 2024 (2025) 55.
- [10] M. Oita *et al.*, KURNS Progress Report 2023 (2024) 72.
- [11] S. Nakamura *et al.*, KURNS Progress Report 2023 (2024) 73.
- [12] T. Takata, *et al.*, KURNS Progress Report 2024 (2025) 56.

(S1) 臨界集合体とのつきあい

(京大複合研) ○三澤 毅

1. はじめに：研究用原子炉の一つである臨界集合体実験装置とは40年以上のおつきあいとなった。ここで述べるKUCAは京都大学臨界集合体実験装置のことであるが、国に申請している名前は臨界実験装置、京大で使っている名前は臨界集合体実験装置または臨界集合体とちょっとややこしい。複数の呼び方をとする理由はよく判らないが、とりあえず個人的に一番馴染みのある臨界集合体 (Critical Assembly) と呼んでおく。KUCAの入り口には1974年の建設当時の岡村所長が書かれた「智と熱 ここに集まって臨界集合体となる」との碑が掲げられているが、集合体という名前を際立たせる素晴らしい一文であり、まさに当時の関係者の原子炉物理 (以下、炉物理) の基礎実験を行いたいという熱意の元に設置された装置であることを示している。なおKUCA設置目的としては当時検討されていたKURの2号炉(KUHFR、出力30MW)の基礎実験を行うという面も重要であった。

改めて臨界集合体とは何かと問われると、使う人が安全上の制限がある中で自由に組み立てることができる原子炉ということになる。原子炉の構成、制御棒、挿入物などを変化させることにより原子炉の特性が変わるが、その特性を測定する、その測定するための理論や手法を考える、またその状況を解析で補いながら確認することが臨界集合体の利用目的といえる。米国の炉物理研究者の方がKUCAのことを冗談っぽく”Toy”という言い方をされていたことがあったが、まさにそうかもしれない。

2. KUCAとの出会い：京大原子核工学科の3回生の頃はなんとなく当時興味があった再処理関係の研究室にいろいろかと思っていたが、ラマーシュの「原子炉の初等理論」の教科書を用いた小林啓祐先生の原子炉物理の講義がとても面白くなり4回生から小林先生の研究室に進むこととした。4月になって研究室の教授をされておられた西原宏先生 (KUCAの設置にご尽力された先生) の車に乗せてもらい京都から原子炉実験所に連れてきて頂いたのが最初の熊取訪問だった。そのときはLINACでのゼミに参加するためだったが、終わってから少しだけKUCAを見学し初めて見る臨界集合体に感動した記憶がある。その後、6月に学生実験で1週間KUCAに滞在して臨界集合体を用いた炉物理実験に参加し、講義とは全く異なる炉物理の世界を体験することができ、その時点で大学院の研究室は熊取にしてKUCAの炉物理実験をテーマにしようと思った。

3. KUCAでの実験：大学院では神田啓治先生の研究室に配属となり、KUCAのスタッフの方々、特に代谷誠治先生にお世話になりながらKUCAを利用する

ようになった。大学院に入って最初の頃はとにかくKUCAで行われる他大学の共同利用実験の手伝い要員としてほとんど参加し北大、東北大、名大、九大などの実験を通して炉物理というものを少しずつ理解することができるようになった。また夜はその大学の教員、院生の方々と飲んで交流を深めることができたのも良い経験となった。修士のときにはB架台で熔融塩炉を念頭に置いた反応度測定を行う実験と解析を行い、KUHF (2分割炉心) の模擬実験にも参加した。博士課程になってからはC架台での2分割炉心を対象としたテーマとなり、その中で未臨界度測定のために中性子炉雑音解析というものにも取り組むことになった。夜中に一人でひたすら金線を切って重量や放射化量を測定したり、大型計算機の端末に向かって実験解析を行いながら膨大な炉雑音測定データと格闘するような日々をCA棟で過ごした。

大学院修了後は「原子炉の初等理論」を翻訳された名古屋大学の仁科浩二郎先生の研究室にお世話になることになり、それまでの実験中心からは少し離れて炉物理に接するようになったが、それでも仁科先生、山根義宏先生、そして研究室の学生と一緒に年に数回以上KUCAの共同利用実験に参加してきた。当時、関心があったテーマとして大型炉の安定性に関するものがあり、そのために3次元高次モード解析コードを開発した。モード解析にはいくつかの手法があるが、それを組み合わせて非常に高次のモードまで解析できるようになり、KUCAでの2分割炉心を用いた実験で炉心安定性の評価に用いたり、高次モードを考慮した炉雑音測定をKUCAで行ってきた。KUCAは小型の炉心であるため大型炉の模擬実験を行うことはできないが、結合の弱い2分割炉心 (2つの炉心の間隔がある程度離れていて、片側の炉心からもう一方の炉心への中性子の流れ込みが少ない体系) を構築することにより外乱に対する炉心安定性などの大型炉特有の特性を実験的に模擬することができる。KUCAは2分割炉心であるKUHF設計のための実験を行うことも設置目的の1つであったため2分割炉心を容易に構成することができるように設計されており、後になって別の研究目的でこの構造が役立つようになったといえる。高次モード解析については、その後未臨界度測定に高次のモードを含めることに取り組んだり、さらには福島1Fの燃料デブリの未臨界度測定にも応用するなど高次モード解析は現れたり消えたりしながらつきあってきた重要な解析手法となった。

名古屋大学に8年間在籍した後に原子炉実験所の代谷先生の研究室の所属となり、当時は所内利用という形でKUCAを利用してきた。2分割炉や炉雑音解析は引き続き重要な研究テーマとあったが、中性

子やガンマ線測定を利用した研究も行うようになった。宇治の京大エネルギー理工学研究所の吉川潔先生、増田開先生との対人地雷探査に関する共同研究では吉川先生らが開発された D-D 中性子発生装置と我々の新しいガンマ線測定装置を組み合わせた実験を行い、その後は D-D 中性子発生装置と中性子検出器を用いてコンテナ等に隠匿された核物質を検出する研究に発展した。その実証のために KUCA の非常に未臨界度が深い炉心と D-T 中性子を発生させるためのコッククロフト型加速器を組み合わせて炉雑音測定法を用いた実験を行った。臨界集合体とパルス状の中性子を発生させるための加速器を組み合わせは未臨界実験を行うための基本的な装置といえるが、KUCA でも附設の D-T 加速器が手作りの修復を繰り返しながら 30 年以上の期間維持されていたことは研究のために非常に重要であった。現在は故障で修理不能のため利用できないが、今後の KUCA での未臨界体系での炉物理実験のためには同様の附設の加速器（例えばパルスチューブ型加速器）が復活して欲しいと切に願っている。

2011 年の福島事故以降、1F の燃料デブリ取り出し時の未臨界監視のための未臨界度測定実験を廃炉研究開発機構 IRID、東芝、三菱、日立との共同研究として行ってきた。これまで KUCA で行ってきた反応度測定や炉雑音測定の経験が新たな視点から生かされたと言えるが、自由な炉心を組むことができ、様々な実験装置を設置することができる臨界集合体の特徴があるからこそ実施することができた実験であった。今後、KUCA を炉物理研究のためにどのように活用していくことになるかは未知数かもしれないが、実験の自由度を維持して様々な研究のニーズに対応できるようにしていくことは臨界集合体にとって最も重要なことであると考えている。

4. KUCA での学生実験：1997 年に熊取に来てから KUCA での学部・大学院生に対する実験（全国大学院生実験）に関わるようになった。1975 年にこの学生実験が開始されて以来、臨界近接実験、制御棒校正実験（反応度測定実験）、中性子束測定実験、運転実習はずっと行われてきて現在に至っているが、その間にも実験の進め方については試行錯誤で変更（改良？改悪？）してきた。例えば中性子束測定は伝統的に金線を用いた放射化法による測定を行っていたが、ある時期に光ファイバー検出器を用いた測定手法に変えてみた。放射化量の測定のような手間の掛かることをせずにほぼリアルタイムで、しかも放射化法より低出力で中性子束分布を測定できるという最新の画期的な手法であったが、数年続けてみて学生の中性子束分布に対する理解が深まらないような感じがするという反省から結局元の金線による放射化法に戻したことがあった。学生実験は研究とは違い精度や利便性を求めるものではなく時間や手間が掛かっても原理を理解して手を動かすような手法のほうが適していると感じた実例である。また他の実験についても実験時間を短縮するための手順の

変更、運転実習の方法の変更、起動前点検のやり方の変更など他大学の先生とも相談しつつ、どのような実験方法にすれば学生に無駄な手間を掛けないようにしながら炉物理を理解してもらえるかを悩みながら進めてきた。

また学生実験に新しい実験項目を取り入れることも何度もトライしてきた。温度係数測定（電気ヒータで水温を上げる）、ボイド反応度測定（空気ポンプで水中に泡を発生させる）、炉雑音測定（Feynman- α 法）、未臨界度測定（中性子源増倍法や炉雑音測定法）、計算コードによる炉心解析（拡散計算コードの配布）なども学生実験に含めるようにしたことがあった。また新規制基準対応や高濃縮ウラン燃料返還で KUCA の運転ができない間には、未臨界体系での指数実験を実施した。指数実験は臨界集合体が使えようになる前の未臨界集合体（国内の多くの大学が所有していた）での実験手法という歴史的に見ても過去のものであるが、苦肉の策として KUCA 建屋内で行うことができるように実験装置を整備した。新しい実験項目についてはいろいろと頑張ってきたもののなかなか定着しなかった。最近の学生実験はできるだけ最低限の基本的な実験内容のみを行うような風潮になってきて新しい実験項目を増やすことで学生に体験してもらうことに消極的な雰囲気になってきているような気がする。1980 年代に実験に参加したときのように実験レポートを全員で徹夜して仕上げるといった時代ではなくなっていることは仕方がない。限られた実験時間の中で項目を増やすことは難しく、また対応する教員の負担を増やさないためにも新しい実験項目を追加しないことはやむを得ないことかもしれない。少し寂しい感じもするが、同じ実験であっても進め方の改良の余地はあると思っており、常に同じことを同じ手法で実施するのではなく今後も試行錯誤で学生実験を進めていくことを望んでいる。

これまで海外のいくつかの研究炉での学生実験も見学してきたが、やはり KUCA は炉物理の学生教育のための非常に優れた世界一の装置であると感じている。これは燃料を直接触れることができ原子炉の構造を間近に見ることができるためという KUCA の優れたハードが重要であることはもちろんであるが、これまで 40 年以上の間にこの実験に参加して来られた各大学の先生方、そして複合研の職員が熱意をもって教育のための実験方法というソフトを整備してきたからこそと思っている。

5. 規制対応：原子炉という施設を持っているからには規制対応は避けて通ることはできない。学生のときや名大から共同利用実験で KUCA を利用していた頃は規制対応というものを全く知らずにいたが、原子炉実験所の職員となってからは規制対応のために非常に多くの時間を費やすことになってしまった。最初の規制対応は 1998 年の KUR の使用済燃料輸送容器の使用承認申請だった。当時は熊取に来たばかりで規制対応など全く経験が無かったのに当時の教

授から「数回、科技庁に行って説明すれば大丈夫だよ」などと軽く言われてこの業務に携わるようになった。しかし結局のところその1年間で科技庁に25回行き容器製造業者の方に手伝ってもらいながらほとんど1人で科技庁対応し、また容器製作の工場検査のために室蘭、名古屋など国内の4箇所の工場に計20日以上行くことになってしまった。教授の言葉にうまく乗せられてしまい規制対応と検査の大変さを身をもって経験する1年となったが、その対応でそれ以降の規制対応の度胸が身についたことは間違いない。その後、KUCA設置変更申請としては2007年のKUCAとFFAGの結合運転のための申請、2014年の福島事故後の新規規制基準対応、2018年の低濃縮燃料の導入などに関わってきたが、設置申請後の設工認と使用前検査を含めてどれも一筋縄では済まない内容ばかりだった。資料の作成や検査官との対応や検査準備については非常に辛い思いをし続けたという記憶だけが残っている。

先にも述べた通りKUCAという原子炉を持っている限りは規制対応を行い続けなくては行けない。これまで科技庁、文科省原子力規制室と対応してきて、2012年の原子力規制委員会の発足以降は原子力規制庁と対応するようになって現在に至っている。今思うと2014年~2017年の新規規制基準対応当時、審査のための技術基準はあったものの規制庁の研究炉に対する審査方法がまだ十分定まっておらず、我々事業者側と規制庁役人との間でどのようにしたら安全を確保できるかの議論を深めながら審査が行われていたように感じる。ほぼ毎週規制庁に通い、熊取に戻ってからは資料を作成するような過酷な日々が続くとにかく大変な業務であったが、どうやったら安全を合理的に確保でき、その後の維持管理の負担を少なくし、さらに実験に対する制約でできるだけ掛けないようにするかということのを頭を絞って考えていたように思う。

しかしその後様々な技術基準等の条文に対する規制庁の対応方法が練られてきて、現在ではその条文を一語一句なぞる審査が中心になってきてしまっている。安全を確保するために条文があり、条文を守りさえすれば安全は確保できるという考え方に基づく審査はある意味オープンで分かり易い審査方法であるかもしれないが、審査者側にとって最も重要なキーワードであるはずの安全とは何か、どうすれば安全を確保できるかということを考えることが少なくなってきたような気がしている。安全はすべてをガチガチに規制することで達成できるものではないというのはこれまでの規制対応の経験で学んできたことでありメリハリのある規制であるべきと考

えるが、それを我々事業者側から言い出すことは難しいので、当面は現状の規制対応を続けるしかない。一方でこのように近年安全に関する審査側の意識の変化が好ましくない方向になっていることとは別に残念ながら事業者側にもその傾向が忍び寄っているような気がする。これは規制対応が書類仕事ばかりになっていることが一番の原因であると思っているが、それをどのように改善していくかの妙案はない。よく安全文化の醸成というようなキーワードが使われるが、どうやったら本当の意味での醸成ができるのかの適切な回答を思いつかない。審査側と事業者側の意識が今後どうようになっていくかについて現時点では心配でしかない。

6. おわりに : 4回生のときに初めてKUCAという臨界集合体に出会い、それから40年以上おつきあいしてきたことになる。その間に実験装置としての面白さと有用性、教育のための装置として役割とその重要性、そして規制対応を含めた維持管理の難しさを感じてきた。今後日本でこのような臨界集合体が再び建設されるかどうかは全く判らないが、維持管理の難しさのことを考えると残念ながらその可能性は限りなく小さいと思う。そのためにも次の世代の方々にはKUCAを今後もしっかりと維持して研究や教育に役立ていって欲しいと切に願う。

これまでお世話になった研究所の皆様、特に臨界装置部の皆様、またKUCA関係でお世話になりました所外の先生方には深く感謝申し上げます。なんとかこれまでKUCAを利用し大きなトラブルもなく維持管理をすることができたのは所内、所外で支えて下さった皆様のおかげとっております。

どうも有り難うございました。

(P1) ITER 計測機器の中性子照射実験

(量研那珂研¹、京大複合研²) ○北澤真一¹、石川正男¹、今澤良太¹、谷塚英一¹、牛木知彦¹、野尻訓平¹、河野繁宏¹、鳥本和弘¹、根本佳輝¹、泰中俊介¹、菊池貴智¹、横塚友啓¹、吉野泰史²、奥村良²、高宮幸一²

1. はじめに：量研 ITER プロジェクト部では、マイクロフィッションチェンバー(MFC)、ポロイダル偏光計(PoPola)、周辺トムソン散乱計測(ETS)、ダイバータ不純物モニター(DIM)、ダイバータ赤外線サーモグラフィ(IRT_h)の5つの ITER 用計測装置の開発を進めている。開発においては、各計測機器の耐放射線性[1]、特に耐中性子線性の検証を行うことが重要な課題となっている。本研究の目的は、研究用原子炉 KUR から発生する高い中性子フラックスを利用することにより、ITER の 20 年間に渡る運転期間中に ITER 真空容器外に設置する計測機器が受けるフルエンスと同程度の中性子線を照射した後も計測機器の性能維持などの機器の健全性を維持できるかを明らかにすることである。本研究では、2019 年度より実験課題として、上記計測装置のうち中性子の影響が大きな部品等に中性子を照射し、その信頼性の評価を行っている。本報告では、研究の進展等に関して報告する。

2. 実験：中性子照射は、KUR の圧気輸送管、傾斜照射孔、中性子光学・検出器評価ポート (CN-3) を用いて行った。

3. 結果：MFC では CN-3 を用いて、MFC プリアンプに対して低速中性子 (中性子エネルギー < 80meV) による中性子照射試験を実施した[2]。ITER の全運転期間中にプリアンが被曝すると予想される中性子フルエンス $1.1 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2$ の約 2 倍に相当する $2.09 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2$ の照射を行い、プリアンプの入出力信号を記録して、パルスゲインと MSV ゲインの変化を確認した。パルスゲインの照射期間中の変化幅は $\pm 1\%$ 以下 ($-0.8\% \sim +0.9\%$)、MSV ゲインの変化幅は $\pm 2\%$ 以下 ($-1.24\% \sim +1.94\%$) であった。本試験により ITER 運転期間中にプリアンが中性子によって照射されることによる測定値の変化はほとんどないことが確認できた。

PoPola では傾斜照射孔を用いて、測定用レーザーの光軸位置を調整するために使用するピエゾアクチュエータ (ニューポート社 PZA 12) の中性子照射を実施した。 $9.6 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ で、ITER で想定されている $3.5 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2$ を照射した後に、ストローク長・推進力・動作分解能を測定し、ITER 実機で十分使用可能であると判断できる結果が得られた。[3]

ETS では傾斜照射孔を用いて、光学素子に対する照射を行った[4]。ETS 用の光ファイバーは、 $9 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2$ の高速中性子と $8 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2$ の熱中性子照射を行い、照射前後での 743 nm に大きな劣化がないことを確認した。また、集光光学系の色収差補正用の耐放射線性レンズ材料 3 種類 (ショット社 BK7G18、

LF5G19、SF6G05) に中性子を照射し、照射前後の透過率を測定し、SF6G05 については、波長 600 nm 以上ではほぼ透過率を維持していることが分かった。市販のワイヤーグリッドポラライザーに中性子を照射し、透過率及び消光比を測定し、ソーラボ社製 WP25L-UB が中性子照射後も性能を維持していることが分かった。

DIM では、真空窓や分光器に使用するガラス材料 5 種類 (ニコン社合成石英 NIFS-A 及び NIFS-V、ニコン社 i 線用光学ガラス 4786 及び 7054、分光計器社 CaF₂) に対し、合成石英は圧気輸送管で $3.3 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$ まで、他 3 種類を傾斜照射孔で $3.0 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2$ まで照射した。その後各試料の波長範囲 200-900 nm の分光透過率を測定し、合成石英 2 種類及び CaF₂ のみ、ITER の放射線環境下でも使用可能であることを確認した。また、ETS や IRT_h との共通機器として、シャッター用の圧力計の照射実験を傾斜照射孔で行った。先行した 300kGy ガンマ線照射で機能を失わなかった K-P8AP (Hottinger Brüel & Kjær 社) に対して、 $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2$ まで中性子照射を実施し、機能が失わないことを確認した。

IRT_h では光軸調整のために用いるステアリングミラーに搭載するファイバー光学エンコーダ及び超音波モーターに対して、実機で想定されるのと同程度の $2.17 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2$ 1 MeV Si 等価中性子フルエンスの中性子照射を実施した[5]。ファイバー光学エンコーダについては照射による性能劣化は全く確認されなかった。また、超音波モーターについては中性子照射を通して、特に 0.6-1.2 N·m の高トルクの運転領域においてトルク・回転数の劣化が確認されたが、IRT_h が仕様を想定する 0.3 N·m、80-120 rpm の領域においての性能劣化は限定的であり、ITER 実機で十分使用可能であると判断できる結果が得られた。

4. まとめ：これまでの研究成果は、ITER 用計測装置に必要な中性子耐性の担保に資し、一部の機器の実機の製作も開始した。しかし、未だに中性子の耐性評価が未了の機器があり、今後の研究で問題の解決を図って行く。

参考文献

- [1] S. Kitazawa *et al.*, Plasma Fusion Res., 18 (2023) 2405014.
- [2] M. Ishikawa *et al.*, Fusion Eng. Des. 109-111 (2016) 1399-1403.
- [3] R. Imazawa *et al.*, Fusion Eng. Des. 192 (2023) 113607.
- [4] E. Yatsuka *et al.*, Fusion Eng. Des., 136 (2018)1068-1072.
- [5] T. Ushiki *et al.*, J. Nucl. Mater., 595(2024) 155047K.

Neutron irradiation experiment for ITER diagnostic systems in JADA

Sin-iti Kitazawa, Masao Ishikawa, Ryota Imazawa, Eiichi Yatsuka, Tomohiko Ushiki, Kunpei Nojiri, Shigehiro Kono, Kazuhiro Totimoto, Nemoto Yoshiki, Shunsuke Tainaka, Takanori Kikuchi, Yasufumi Yoshino, Ryou Okumura, Koichi Takamiya
kitazawa.siniti@qst.go.jp

(P2) 有機無機ハイブリッドペロブスカイトセンサーの HWNIF での中性子計測

(理研光量子¹、東北大²、京大複合研³) ○奥野泰希^{1,2}、田中浩基³、高田卓志³、松林錦³、日高峻助³

1. はじめに：

有機無機ペロブスカイト半導体(HOIP)は、その優れた放射線耐性から高放射線環境中におけるデバイス応用に非常に有用である。太陽電池を代表するように、スピコートを用いた薄膜デバイス作成が容易であり、ホウ素変換膜と組み合わせることで中性子検出が可能である[1]。

ホウ素中性子捕獲療法(BNCT)では、 10^{13} cm^{-2} の中性子場による照射を行い、その中性子照射精度は5%の誤差へ抑える必要がある。特に、検出器への中性子損傷および、応答特性変化の影響などは、計測精度を大きく損なうため、大きな課題である。

そのため、本研究では、KUR 重水ラインを用いた高フラックスな熱中性子を HOIP センサーへ照射することにより、その BNCT 応用時の計測の安定性について解明する。

2. 実験：

重水中性子照射設備 (Heavy Water Neutron Irradiation Facility (HWNIF)) を用いて HOIP センサーを設置した。HOIP センサーは、10m の BNC ケーブルによりソース・メジャー・ユニット (Keysight, B2912A) に接続し、照射中の電流を計測した。重水ラインでは、表 1 に示すようにスペクトルシフタ (SS) 用重水水槽 1 (SS1)、2 (SS2)、および 3 (SS3) の開閉操作により中性子照射条件を変更した。中性子束については、参考文献[2]を用いて評価した。

Table 1. Irradiation conditions

条件	SS1	SS2	SS3
A	Close	Close	Close
B	Open	Close	Close
C	Open	Open	Close
D	Open	Open	Open

3. 結果：

Fig.1 に、HOIP センサーの中性子照射中における電流挙動の変化を示す。重水シャットオープン後、照射条件 A になる。その後、徐々に SS を開放することで、B、C および、D 条件では中性子束が増加する。SS の開放に伴い、顕著に HOIP センサーの電流信号が増加することが確認された。また、D 条件で、1 時間の連続照射を実施し、BNCT 治療を想定した安定性を観察した。この結果、BNCT 条件における顕著な劣化傾向は観察することができず、HOIP センサーは良い安定性を有していることが明らかになった。また Fig.2 に、それぞれの照射条件での中性

子フラックスを関数とした電流特性を示す。この結

果より BNCT 中性子場でのセンサ特性の優れた線形性が確認できた。

これらの結果は、HOIP センサーが BNCT 中性子場において、中性子束の観察を可能であることを裏付けており、BNCT 治療用の中性子照射量を監視するモニタリングセンサとしての有用性を示すものである。

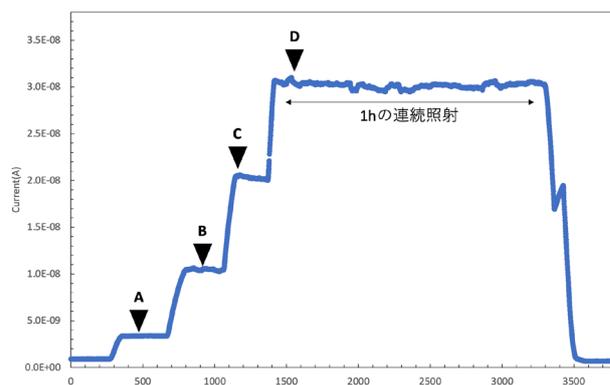


Fig.1. Current Signal Behavior of HOIP Sensors on the Heavy Water Line

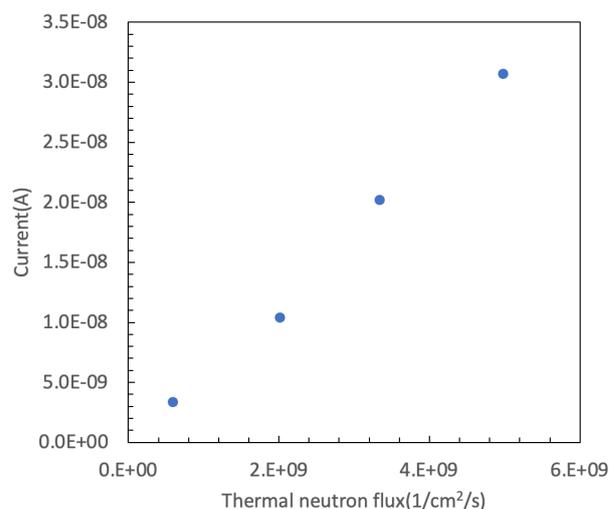


Fig.2. Current Signal Dependence of Thermal Neutron Flux in HOIP Sensors

参考文献

- [1] Y. Okuno, et al., ACS Appl. Electron. Mater. **4**, 3411–3420 (2022).
 [2] Y. Sakurai, and T. Kobayashi, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A., **531**, 585–595 (2004).

(P3) 中性子照射による放射化金錯体の構造安定性の検証

(阪大院理¹、阪大放射線機構²、早大理工院³、京大複合研⁴) ○梶山和希¹、村上昌史²、水飼秋菜¹、白神宜史²、角永悠一郎²、越川七星³、高宮幸一⁴、片岡淳³、豊嶋厚史²)

1. はじめに：

放射化標識法は化合物を中性子照射により直接 RI 標識できる手法であり、短寿命核種の利用において時間的制約を回避できる点で有用である。一方、照射時の即発 γ 線放出に伴う反跳エネルギー (~70 eV) は化学結合エネルギー (~数 eV) を大幅に上回るため、分子構造の破壊が懸念される。本研究では、分子サイズや分子間相互作用の異なる金錯体 Auranofin、クロロ(トリメチルホスフィン)金(I) (AuClPMe₃)、1,3-ビス(2,6-ジイソプロピルフェニル)イミダゾール-2-イリデン)塩化金(I) (AuCl*i*Pr) を対象とし、中性子放射化が分子構造安定性に与える影響を定量的に評価した。

2. 実験：

各金錯体 0.5 mg を石英管に真空封入して固体のまま中性子照射 (3×10^{13} n/cm²·s, 10 min) を行った。照射後の試料はアセトニトリルで回収した。構造保持の評価には HPLC を用い、UV 検出による保持時間と照らし合わせることで NaI 検出器での ¹⁹⁸Au 化学種の保持時間を同定した。さらに UV 検出では、未照射試料と吸光量を比較することで金錯体が熱分解等、通常の化学分解を起こしていないかを確認した。

3. 結果：

Fig. 1 に NaI 検出および UV 検出の HPLC クロマトグラムを示す。NaI 検出による構造保持率は、Auranofin 77%、AuClPMe₃ 78%、AuCl*i*Pr 15%であった。UV 検出により、各錯体で熱分解など通常の化学分解は生じていないことが確認された。このため、構造破壊は反跳エネルギーによる結合切断に起因すると考えられる。

Auranofin および AuClPMe₃ で高い保持率が得られた理由として、結晶中での -S-glu 間の水素結合や Au...Au 相互作用などにより、反跳エネルギーを結晶全体で吸収できる点が考えられる。一方、AuCl*i*Pr は分子間相互作用が乏しく、反跳エネルギーが局在化し結合の切断が進行したと考えられる。

今後は AuCl*i*Pr に類似する構造の金錯体の照射実験や結晶構造解析、分子動力学計算による反跳エネルギーの分散シミュレーションを進め、反跳による分子構造破壊メカニズムをより詳細に解明する予定である。

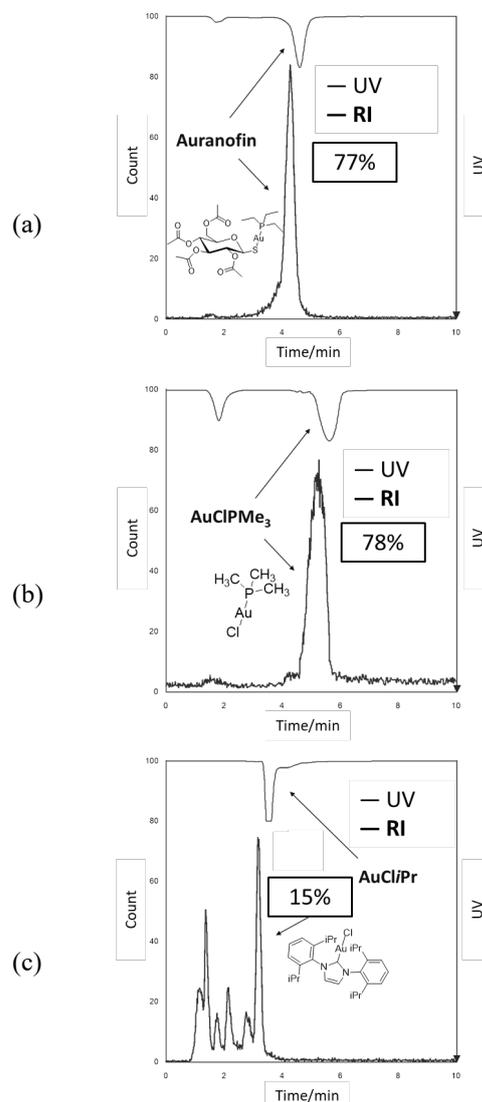


Fig. 1. HPLC chromatograms measured with NaI and UV detectors for (a) Auranofin, (b) AuClPMe₃, and (c) AuCl*i*Pr. The UV data is shown in an inverted format for easy comparison of retention times.

参考文献

- [1] M. Hattori *et al.*, Chem. Pharm. Bull., 41 (1993) 1261–1264.
- [2] Z. Ma *et al.*, Acta Cryst. E, 80 (2024) 175–178.
- [3] S.K. Goetzfried *et al.*, Inorg. Chem., 59 (2020) 15312–15323.

(P4) 中性子放射化による金ナノ粒子の in vivo イメージング

(早大理工¹、阪大放射線機構²、京大複合研³) ○越川七星¹、菊池優花¹、片岡淳¹、角永悠一郎²、豊嶋厚史²、村上昌史²、加藤弘樹²、大江一弘²、高宮幸一³

1. はじめに

効果的かつ副作用の小さいがん治療の実現に向け、治療薬を腫瘍へ届ける『薬物送達システム』が注目されている。中でも金ナノ粒子 (AuNPs) は腫瘍に集積することや、表面修飾・粒径制御がしやすいことから、薬剤キャリアとして有望視されている。薬物送達の成否を評価するには、AuNPs の体内分布を可視化する技術が不可欠である。AuNPs に蛍光色素などのトレーサーを付加する方法や、AuNPs を CT (computed tomography) 用の造影剤とする方法が提案されているが、体内でトレーサーがナノ粒子から分離する可能性があることや、高濃度を要することが課題である。そこで私たちは、AuNPs 自体を高感度に可視化する手法として、AuNPs を中性子放射化する『放射化イメージング』を提案・実証している [1]。金の安定同位体 ^{197}Au は、中性子捕獲によって ^{198}Au (半減期 2.7 日) となり、エネルギー 412 keV の核ガンマ線を放出する。本発表では、 ^{198}Au からのガンマ線による AuNPs の in vivo イメージング、および、高解像度化に向けた装置開発について報告する。

2. AuNPs の in vivo イメージング

京都大学研究用原子炉 (KUR) での中性子照射により、放射化金ナノ粒子 [^{198}Au]AuNPs を合成し、次世代のアルファ線放出治療薬である ^{211}At を標識した。 ^{211}At は 79 keV の X 線を放出するが、半減期が 7.2 時間と短く、 ^{211}At 標識 AuNPs の長期動態は不明であったほか、体内で ^{211}At と AuNPs が分離している懸念があった。そこで本研究では、 ^{211}At 標識放射化金ナノ粒子 (^{211}At -[^{198}Au]AuNPs) を腫瘍付きマウスに尾静脈投与し、 ^{198}Au からのガンマ線を利用した ^{211}At と AuNPs の同時可視化、および投与 2 日後までの長期動態追跡を実施した。イメージング装置としては、数十 keV から約 1 MeV までの広帯域 X 線・ガンマ線を一台で撮像可能な Hybrid Compton camera (HCC) を用いた [2]。HCC は、コンプトンカメラの散乱体にピンホールを穿った構造で、低エネルギーの X 線・ガンマ線はピンホールカメラ、高エネルギーのガンマ線はコンプトンカメラの原理で撮像できる。

^{211}At -[^{198}Au]AuNPs のイメージング結果を図 1 に示す [3]。上段が ^{211}At 、下段が [^{198}Au]AuNPs の分布であり、左列が投与当日、右列が投与 2 日後の撮像結果である。投与 2 日後は、減衰により ^{211}At によるイメージングが困難である一方、[^{198}Au]AuNPs からのガンマ線により腫瘍と肝臓への集積が確認できた。

3. 高解像度 AuNPs 可視化に向けた新規装置開発

2 章で用いたコンプトンカメラは広帯域撮像が可

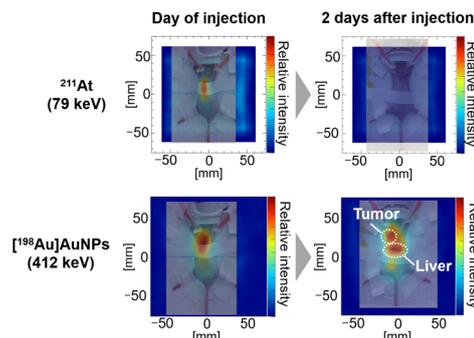


Fig. 1. In vivo images of ^{211}At -[^{198}Au]AuNPs in a mouse acquired with the HCC [3].

能だが、細かい集積を分離するには空間分解能が不十分であった。高分解能イメージングにはコリメータを用いた Single-photon emission computed tomography (SPECT) が有効だが、412 keV のような高エネルギーに対してはコリメータ壁を厚くする必要があり、感度が低下する。そこで私たちは、コリメータの各孔を砂時計型に開口した High-contrast SPECT (HC-SPECT) を開発した [4]。図 2 (a) に示すように、砂時計型の孔によって、壁厚を維持しながら開口部を広げ、高エネルギーでの感度と分解能を両立できる。従来の平行ホール SPECT と HC-SPECT それぞれによって、ファントム (直径 3 mm × 3, 間隔 10 mm) に注入した ^{198}Au (70 kBq/孔) を一時間撮像した結果を図 2 (b) に示す。平行ホール SPECT と比べ、HC-SPECT ではより高いコントラストが得られた。

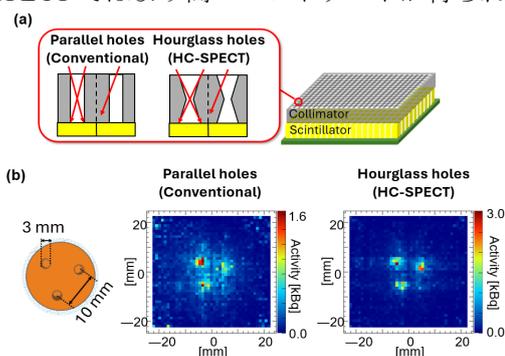


Fig. 2. (a) Concept of the HC-SPECT. (b) Images of ^{198}Au acquired with parallel-hole SPECT and HC-SPECT [4].

参考文献

- [1] N. Koshikawa *et al.*, Appl. Phys. Lett., 121 (2022), 193701.
- [2] A. Omata *et al.*, Sci. Rep., 12 (2022), 2546.
- [3] N. Koshikawa *et al.*, Appl. Phys. Lett., 126 (2025), 103702.
- [4] N. Koshikawa *et al.*, JINST, 20 (2025), C07057.

(P5) 中性子と X 線の相補的アプローチによる化石イメージング

(京大複合研¹、原子力機構²、北大³、福井県立大⁴) ○伊藤大介¹、大平直也¹、齊藤泰司¹、原山勲²、栗田圭輔²、篠原武尚²、鬼柳善明³、河部壮一郎⁴

1. はじめに：中性子イメージングは、物質の内部構造を非破壊で可視化できる強力な分析手法であり、工業製品のみならず、歴史的な文化遺産などの試料の調査にも応用されている。化石研究において、標本内部の形態情報を把握することは、生物の生態的特徴や保存過程を推定する上で極めて重要である。また、考古資料の保存状態や製作技法の解明にも有効である。一方、X 線イメージングはすでに広く利用されており、密度や原子番号の違いに基づく高いコントラストが得られるものの、軽元素を多く含む物質や金属被覆試料の内部構造観察には限界がある。これに対し、中性子は物質との相互作用が原子番号に依存せず、特に軽元素や金属とのコントラストが顕著であることが特徴である[1]。

本研究では、中性子イメージングと X 線イメージングを組み合わせた相補的アプローチにより、従来の単一手法では明らかにできなかった化石内部構造の新たな知見を得ることを目的とした。

2. 実験：本研究では、恐竜の歯および骨の化石、ならびに貝の化石を対象としてイメージング実験を実施した。中性子イメージングは、京都大学研究用原子炉 (KUR) の B-4 ポートにおいて熱中性子を用い、また日本原子力研究開発機構 (JAEA) JRR-3 の CNRF ビームラインにおいて冷中性子を用いて行った。さらに、KUR B-4 ポートには X 線イメージングシステムが併設されており、X 線発生装置 (管電圧 120 kV) を用いた透過像撮影および X 線 CT 撮影も

併せて実施した。これらにより、同一試料に対して中性子および X 線のイメージング結果を直接比較することが可能となった。

3. 結果：図 1 に、福井県勝山市の手取層群北谷層 (下部白亜系) から産出した二枚貝化石の中性子および X 線イメージング結果を示す。透過画像において、X 線は全体的に均一な減衰を示す一方、中性子では空間的に異なる透過率分布が得られた。また、熱中性子と冷中性子の比較からも、エネルギー依存的な透過性の差異が確認された。CT 再構成画像では、二枚貝殻が X 線を強く減衰させるのに対し、中性子に対しては高い透過性を示した。一方、内部の包有物ではその逆の傾向が観察され、構成物質の違いが明瞭に識別された。

これらの結果から、中性子と X 線の透過特性の違いを活用することで、形態情報 (幾何構造) と物質情報 (組成・密度) を相補的に評価できることが示された。この手法は、化石や文化財など異種材料からなる複合試料の解析において極めて有用であり、今後の古生物学および考古学研究に新たな知見をもたらす可能性を秘めている。

参考文献

[1] 伊藤大介, 中性子 CT の原理と応用—X 線では見えない世界を可視化する, 文化資源が秘めた歴史物語—先端分析技術で鮮やかに読み解く (2025)

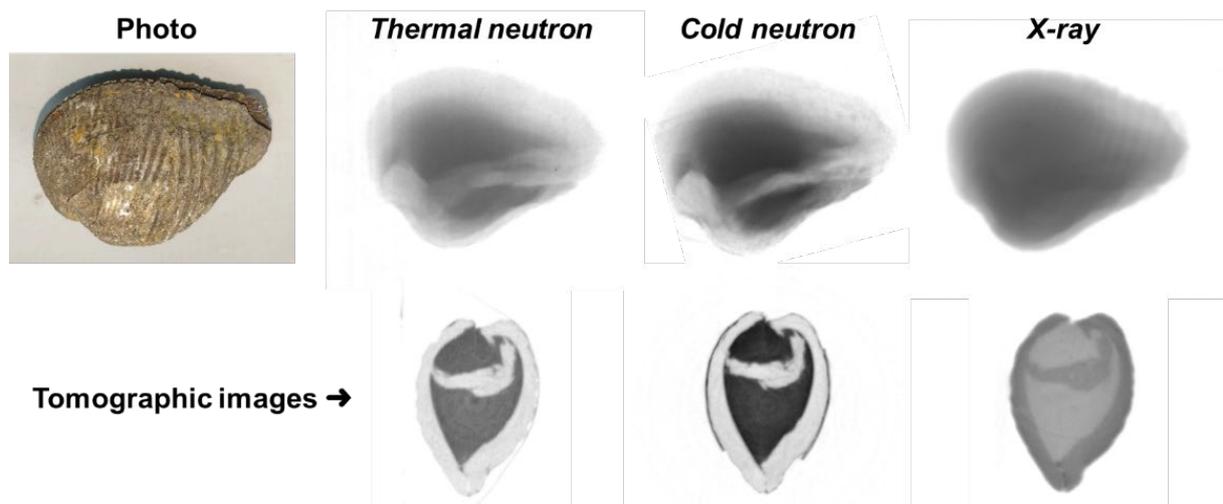


Fig. 1. Comparison of transmission and tomographic images between neutron and X-ray imaging.

(P6) 低酸素ストレス応答を制御する Mint3:FIH-1 相互作用の解析

(京大院薬¹、京大複合研²) ○星野 大¹、守島 健²、清水 将裕²、井上 倫太郎²、杉山 正明²

1. はじめに：好気性生物の細胞は通常は酸化的リン酸化によって多量の ATP を産生するが、低酸素状態では解糖系が ATP 産生の主流となる。一方、がん細胞では通常酸素条件下でも解糖系がエネルギー産生の主経路として用いられており、このことは「ワールブルグ効果」として古くより知られている[1]。Hypoxia inducible factor-1 (HIF-1) は解糖系や血管新生を亢進する低酸素応答に関わる転写因子であるが、酸素存在下においては factor inhibiting HIF-1 (FIH-1) により厳密に抑制されている[2]。「ワールブルグ効果」を説明する因子として、マクロファージにて Munc18-1-interacting protein 3 (Mint3) が発見され、FIH-1 と結合しその阻害能を妨げることで HIF-1 の転写活性を促進することが示された[3]。しかしながら Mint3 と FIH-1 との相互作用についての詳細は不明である。本研究では、Mint3 と FIH-1 の分子認識機構を明らかにすることを目的として、NMR を用いた解析を行った。生化学的研究から Mint3 の N 末端 214 残基が FIH-1 との結合に関与することが示されているため、本研究では Mint3(1-214) (以下 Mint3NT) のフラグメントを用いて解析した。

2. 実験：C 末端に His タグを付加した Mint3NT および FIH-1 を大腸菌発現系により発現させた後、His タグアフィニティーカラムによってそれぞれ精製した。15N 標識タンパク質は 15N-NH₄Cl 含有 M9 最小培地を用いて調製した。4°C または 25°C、140 mM NaCl, 10 mM NaPi (pH 7.3), 5% D₂O において、15N 標識 Mint3NT に対して様々な濃度の非標識 FIH-1 を添加したものについて二次元 NMR スペクトルを測定した。

3. 結果：図 1 に Mint3NT の 1H-15N 相関スペクトルを赤色で示す。観測されたピークは 1H の共鳴周波数において 7.5~8.5 ppm の領域に局在していた。このことより、Mint3NT は水素結合により安定化された二次構造をもたず、水溶液中で特定の構造をとらない「天然変性タンパク質」であることが明らかとなった。

次に、15N 標識 Mint3NT に対して 2 当量の非標識 FIH-1 を添加することで、スペクトルがどのように変化するかを調べた。その結果、FIH-1 の有無により Mint3NT のピーク位置は変化せず、ピーク強度のみ

が減弱した。次に、ピーク強度比を残基番号順にプロットすると Mint3NT の 50-150 の領域において FIH-1 の濃度依存的にピークが減弱することが分かった。部位特異的のアミノ酸変異実験から Mint3 の(78-88), (101-110) が相互作用に重要な領域だと示唆されている。この領域で顕著に運動性が低下し、それに追従して周辺の領域もピークがブロードニングしたと推察される。

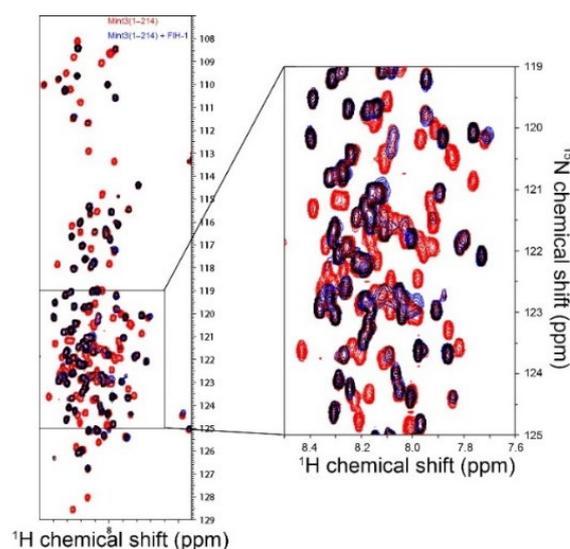


図 1 15N-Mint3 の 1H-15N HSQC スペクトル。15N-Mint3 単独でのスペクトルを赤で、2 当量の非標識 FIH-1 共存下におけるスペクトルを青で示す。FIH-1 の添加により強度が減弱したピークは赤く、強度が変化しなかったピークは黒で表示される。

参考文献

[1] T. Ten, S. Nagatoishi, R. Maeda, M. Hoshino, Y. Nakayama, M. Seiki, T. Sakamoto & K. Tsumoto (2020) Structural and thermodynamical insights into the binding and inhibition of FIH-1 by the N-terminal disordered region of Mint3. *J. Biol. Chem.* 297, 101304.

(P7) フランシウムの化学研究に向けたフェロシアン化物塩による一族元素の吸着挙動研究

(京大複合研¹、京大院工²、阪大院理³) ○中田拓希^{1,2}、笠松良崇³、高宮幸一¹、稲垣誠¹

1. はじめに：Na や K, Rb, Cs といった 1 族元素は原子番号の増加に伴い、イオン化ポテンシャルや電子親和力が減少することが知られている。一方で核電荷が大きく、重い 1 族元素である元素番号 87 のフランシウム(Fr)や 119 番元素においては、相対論効果の影響によって軽い元素から予想されるものとは異なる性質を示すことが理論計算によって予想されている^{[1]~[3]}。一方で Fr は安定な同位体を持たず、短寿命の同位体しか存在しないため、化学的性質及び相対論効果の影響に関する実験的研究には他の 1 族元素と比較して多くの実験的制約が存在する。そこで本研究では Fr における相対論効果の影響を調査するため、同族元素を用いて Fr の化学研究に向けた実験手法の確立を目指した。

本研究ではフェロシアン化物イオン([Fe(CN)₆]⁴⁻)と金属イオンからなるフェロシアン化物塩の一価カチオンの吸着特性を利用し、1 族元素の系統的な性質理解を目指した。フェロシアン化物塩は溶液中の Cs⁺を選択的に吸着することが知られており^[4]、様々な研究報告がなされている。本研究ではフェロシアン化物塩、K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ への Cs⁺及び Rb⁺の吸着挙動を調査することで、Fr⁺を用いた同様の実験における適用の可否を判断した。

2. 実験：先行研究^[5]での K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂生成手法を参考に、0.15 M に調製した ZnCl₂ の塩酸溶液と 0.10 M に調整した K₄Fe(CN)₆ 溶液を等量混合し、K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ を生成した。得られた結晶は吸引ろ過によって回収し、1 M の KCl 溶液で結晶中の K⁺を置換した後に 60 °C の恒温槽で一晩乾燥させた。K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ と ¹³⁷Cs⁺または ⁸⁶Rb⁺を含む溶液を試験管内で混合し、機械的に振盪することによって結晶への吸着反応を促した。振盪後は固体成分と液体成分を吸引ろ過によって分離し、これらの試料中に含まれる放射性核種から放出される γ 線をゲルマニウム半導体検出器で測定し、Cs⁺及び Rb⁺の存在量を見積もった。なお実験に使用した ⁸⁶Rb は KUR にて ^{nat}Rb₂CO₃ に中性子照射を行うことによって製造した。

3. 結果：K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ への振盪時間毎の Cs⁺及び Rb⁺の吸着率を測定し、吸着反応が平衡に達するまでに必要な時間を見積もった。Cs⁺及び Rb⁺の吸着量の上限を超えないと考えられる濃度範囲で実験を行い、図 1 の結果が得られた。Cs⁺及び Rb⁺の吸着反応は短時間で平衡に達しており、半減期が数分から数十分程度の Fr の同位体においても本実験系が適用可能であることが示唆された。

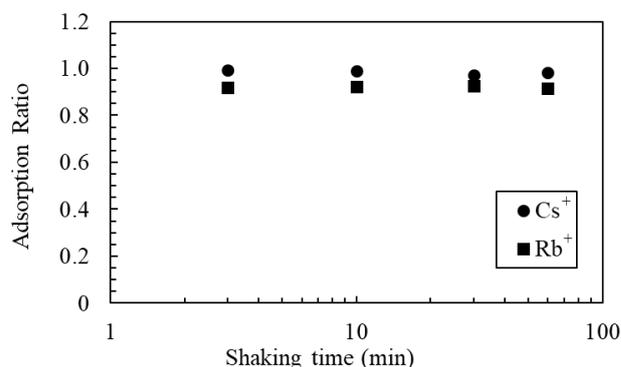


Fig. 1. Relationship between the shaking time and adsorption ratios of each monovalent cation onto K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂.

Langmuir の吸着等温式を適用して K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ における単位質量当たりの最大吸着量を算出する実験を行い、溶液中のイオン濃度を横軸、溶液中と結晶中のイオン濃度の比(C_{eq}/Q_{eq})を縦軸に取って図 2 の結果を得た。一次関数でフィッティングして得られた近似直線の傾きから Cs⁺及び Rb⁺の最大吸着量を算出すると、共に K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ の単位質量当たりの K⁺量に一致する結果となった。この吸着反応は K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ 中の K⁺とのイオン交換によって発生していることが知られており^[5]、K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ 中のすべての K⁺が吸着反応に関与できることが実験結果から明らかとなった。この結果を基に K₂Zn₃[Fe(CN)₆]₂ 中の K⁺とのイオン交換反応の挙動を比較し、反応の標準ギブズエネルギー等の算出を行った。

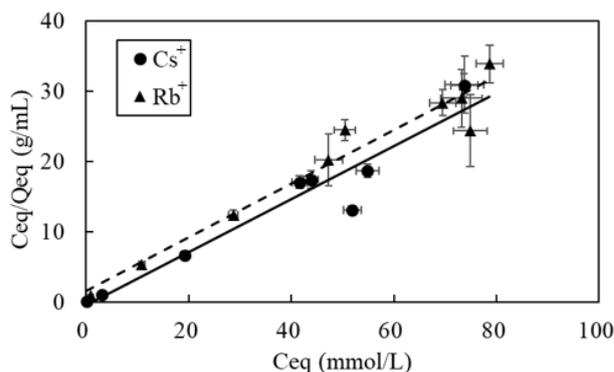


Fig. 2. Langmuir isotherm of Cs⁺ and Rb⁺.

参考文献

- [1] V. Pershina et al., *Chem. Phys.* **395**, 87 (2012)
- [2] A. Borschevsky et al., *J. Chem. Phys.* **138**, 124302 (2013).
- [3] Tupitsyn, I.I et al., *Opt. Spectrosc.* **129**, 1038–1044 (2021).
- [4] A. Nilchi et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **258**, 457–462 (2003).
- [5] H. Mimura et al., *J Nucl Sci Technol*, **34**, 5, 484-489 (1997).

(P8) Effect of Borehole Spatial Position on the Gas Concentration Field in a Goaf Area

(Anhui University of Science and Technology¹, Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University²) ○Haifeng Ma^{1,2}, Xiuzhong Shen², Wenwang Yang^{1,2}

1. Introduction

Coal seam gas (mainly composed of methane) was a major safety hazard in coal mining, and its flammable and explosive characteristics were prone to cause mine accidents. As the mining depth increases, the gas emission volume also increased. Traditional ventilation techniques were difficult to effectively dilute the gas concentration, and it was necessary to control the source through extraction technology. Gas drainage was one of the effective means to reduce the gas content in coal seams. Research showed that gas drainage could significantly reduce gas accidents in coal mines[1-3].

2. Theory of coal seam gas flow

(1) Linear gas flow theory

Assuming that the coal seam is a quasi-continuous and uniform medium, it is believed that Darcy's law is applicable to describing the flow of gas in the coal seam, and a linear gas flow theory is proposed.

$$q = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{dp}{dx} = -\lambda \frac{dp}{dx}$$

(2) Gas diffusion theory

Fick's diffusion law can be used to describe the outflow of gas from coal dust, and this flow can be characterized by Fick's equation.

$$J = -D \frac{\partial c}{\partial x}$$

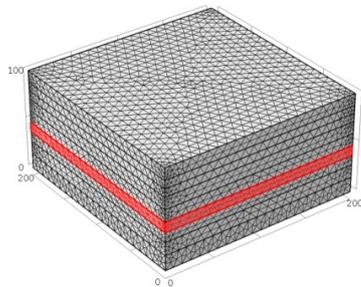


Fig. 1 Numerical simulation model

Based on the 11-2 coal seam in Huainan Mining area, Anhui Province, China, a three-dimensional numerical simulation model in Figure 1 was established by using the finite element software COMSOL Multiphysics to study the evolution law of gas concentration in goaf areas under different spatial positions of surface gas drainage holes, that is, different spacings.

3. Results and discussion

Figures 2, Under the influence of the first ground vertical borehole extraction, the gas concentration in the upper part of the entire goaf area decreased significantly and was generally lower than that in the middle and lower parts. The extreme value of low gas concentration in the goaf occurred near the lower corner (about 0.04%). Meanwhile, due to continuous extraction, a certain range of low gas concentration area (about 1%) was formed

near the borehole. The lower corner of the cutting hole is relatively far from the extraction borehole and is minimally affected by extraction. Gas accumulates and a high gas concentration extreme value (about 3.4%) occurs.

Compared with the gas concentration in the goaf when advancing 195 meters, the gas concentration near the corner of the working face further increased, and a high gas concentration extreme value (about 3.08%) occurred. The overall trend of gas concentration distribution in other areas of the goaf shows no significant change. The area of high gas concentration near the corner of the working face has further expanded and is relatively close to the working face. To prevent the occurrence of the above situation, a gas drainage borehole should be set 200 meters before the working face advances. Based on the above analysis, the drainage borehole is preferably set 195 meters away from the gate.

According to the evolution law of gas occurrence in the goaf, the first surface extraction borehole should be set within 30 meters from the gate, and the reasonable intervals of the extraction boreholes should be around 50 to 60 meters.

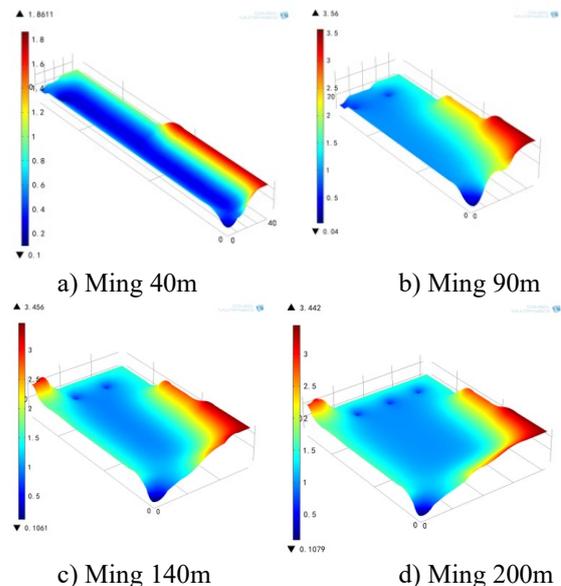


Fig. 2 Evolution law of gas occurrence in the goaf

References

- [1] Qin, Xinglin, et al. Experimental Study on Gas Flow Characteristics in Coal under Different Mining-Induced Stress Paths. ACS Omega (2025).
- [2] Lu, Cunyang, et al. An evaluation model of distribution uniformity of sector directional boreholes: Application in coalbed gas extraction. Measurement Pt.B(2025).
- [3] Yue, Jiwei, et al. Dynamic response characteristics of water-gas-coal in freezing process of gas-bearing coal under water infiltration condition. 36.4(2024).

(P9) 核分裂性物質を含んだ核爆発降下物粒子の探索

(京大複合研¹、京大工²) ○高宮幸一¹、長田直之¹、池上麻衣子²、五十嵐康人¹

1. はじめに：2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故で環境中に放出された放射性物質の中には、放射性セシウムを高濃度で含有する粒子状物質が存在した^[1]。これらの粒子の化学組成や内部構造は、粒子が生成した際の環境に依存する。したがって、これらの粒子に対する様々な性状分析の結果から、その生成過程が推測され、事故を起こした原子炉内の状況を推定することができる^[2]。また、過去に世界中で行われた核実験の降下物中にも放射性物質を含んだ粒子が見つかり、加速器質量分析等による様々な分析が試みられている^[3]。

我々は広島に投下された原子爆弾の炸裂においても同様の粒子が生成したのではないかと考え、広島で採取した土壌試料から、原子爆弾の原料として用いられた濃縮ウランを含んだ粒子を抽出することを試みた。これらの粒子の抽出には、重液分離法とKURを用いたフィッシュトラック法とを組み合わせた手法を用いた。その結果、いわゆる「黒い雨」が降ったとされる地点で採取された土壌試料中に、ウランを高濃度で含んでいると推測される粒子が多数存在することを示した。しかし、それらの粒子の大きさは数 μm 未満であると推定され、SEM/EDX等を用いた粒子の識別には至っていない^{[4][5]}。そのため、土壌試料等の環境試料から原子爆弾由来の粒子を抽出、識別するためには、それらの粒子がもつ特徴的な性状を利用した抽出方法を開発する必要があると考えた。そこで、核実験によっても原子爆弾由来の粒子と似た性状の粒子が生成したと考え、核実験による降下物試料からの同様の粒子を抽出して性状分析を行い、核爆発に由来し核分裂性物質を高濃度で含有する粒子を抽出する際の新たな指標となる特徴的な性状を見いだすことを試みた。

2. 実験：分析に用いた試料は、マーシャル諸島のビキニ環礁で行われたブラボー核実験に由来する放射性降下物であり、この核爆発によって被ばくした第五福竜丸の船上に設置されていたドラム缶から採取された粒子状の試料である。まずイメージングプレート上に薬包紙を置き、そこに試料を散布して24時間露光することで、試料全体での放射能分布を調べた。その後、試料の大部分を試料容器に回収し、薬包紙の表面に残った比較的粒径の小さな粒子をパラフィルム表面に付着させることで回収した。このパラフィルム上の粒子に固体飛跡検出器(BARYOTRAK)を密着させ、KURの黒鉛圧気輸送管照射設備(TC-Pn)にて中性子照射を行った。照射後、検出器を70°Cに加熱した8M NaOH溶液に1時間浸漬してエッチングし、検出器表面に生成する飛

跡を光学顕微鏡で観察した。

3. 結果：イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィ画像から、粒子の大きさと放射能強度には相関関係がなかったため、試料中の放射性降下物は均質ではないことがわかった。フィッシュトラック分析では、Fig. 1に示すように多数の飛跡が放射状に存在するクラスターが検出された。このような飛跡のクラスターは広島で採取された土壌試料の分析においても検出され、KURによる中性子照射線量から1粒子中に存在する²³⁵Uの原子核数を見積もった結果から、原子爆弾の材料である²³⁵Uを高濃度で含んだ粒子が存在すると結論した^{[4][5]}。本研究でも同様の飛跡のクラスターが検出されたことから、第五福竜丸の降下物試料中にも²³⁵Uや²³⁹Pu等の核分裂性物質を高濃度で含有する粒子が存在することが示唆された。検出された飛跡のクラスターの形状から、粒子の大きさは広島の土壌試料中の粒子と同様に数 μm より小さいと推定した。しかし、これらの飛跡を形成した粒子の存在を、SEM/EDXを用いて識別することを試みたが、現時点では識別に至っていない。

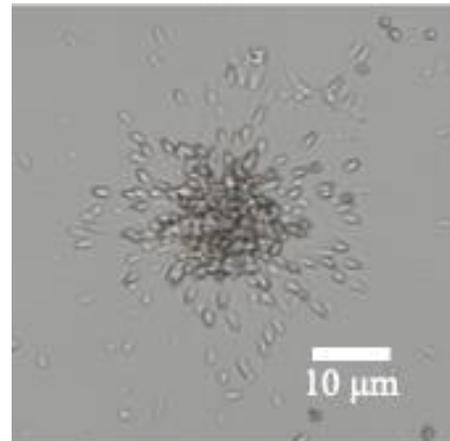


Fig. 1. The cluster of fission tracks observed for the fallout particles collected on the Daigo Fukuryu Maru.

参考文献

- [1] K. Adachi et al., Scientific Reports, 3 (2013) 2554.
- [2] Y. Satou et al., Geochemical Journal, 52 (2018) 137.
- [3] M. P. Johansen et al., Science of The Total Environment, 842, (2022), 156755.
- [4] K. Takamiya et al., KURNS Progress Report 2022 (2023) 134.
- [5] K. Takamiya et al., KURNS Progress Report 2023 (2024) 163.

(P10) 時計タンパク質複合体の溶液中での解離会合動態

(京大複合研) ○守島健、井上倫太郎、杉山正明

1. はじめに:

シアノバクテリアは KaiA、KaiB、KaiC の 3 種類のタンパク質から構成される最小限の系によって、転写翻訳フィードバックループに依存しない概日時計 (Kai システム) をもつ。この Kai システムは ATP 存在下の試験管内で概日振動が再現可能であり、自己持続性、温度補償性、同調能などの概日時計として必須な特性を備えるため、概日時計の基本原理を探る格好のモデル系といえる。

Kai システムの概日振動は、KaiC の Ser431 (S) 及び Thr432(T) 残基のリン酸化サイクル S/T → S/pT → pS/pT → pS/T → S/T → ... (p: phosphorylated) に起因したリン酸化度の振動として観測される。このリン酸化度振動は、KaiC に対する KaiA 及び KaiB の相互作用によって駆動される。つまり、低リン酸化状態の KaiC には KaiA が相互作用することでリン酸化が促進され、高リン酸化状態の KaiC には KaiB が結合して KaiA のリン酸化活性を阻害することで、脱リン酸化される。したがって、KaiC のリン酸化リズムを支える根本的な要因は、Kai タンパク質間の相互作用に基づく KaiA-KaiC (AC), KaiB-KaiC (BC), KaiA-KaiB-KaiC (ABC) 複合体の解離・会合挙動にある。そこで本研究では、概日振動に伴って形成されるこれらの複合体について、リン酸化状態や Kai タンパク質の濃度比に依存した結合比率、結合親和性、解離・会合速度といった相互作用パラメータや解離会合動態を系統的・定量的に解明することを目的とした。本発表では特に、ABC 複合体についての解離会合挙動について報告する。

2. 実験:

KaiA と B₆C₆ の混合溶液に対する AUC 及び SAXS 測定を行い、ABC 複合体の解離会合挙動を調べた。

Kai タンパク質系についてこれまでに用いられてきた多くの物理化学的測定手法では蛍光/スピン等のプローブ、濃度変調、表面固定化、非溶液条件といった化学的・物理的摂動が避けられず、解離会合動態に少なからず影響を及ぼす可能性がある。そこで本研究では、溶液中での解離会合への影響が極めて少ない超遠心分析 (AUC) と X 線小角散乱 (SAXS) を用いて、溶液中での解離会合特性の定量的な解析を行った。

3. 結果:

一定濃度 (1.0 mg/mL) の B₆C₆ に対する様々な KaiA 濃度の混合溶液 (混合モル比 [KaiA] : [B₆C₆] = z : 1) について、AUC 測定を行った (Fig. 1)。KaiA の混合比率の増加とともに、メインピークの沈降係数 $s_{20,w}$

は B₆C₆ に相当する 12.3 S から高 $s_{20,w}$ 側に連続的にシフトし、z = 24 で $s_{20,w} = 17.4$ S (A₁₂B₆C₆ 相当) に達した。このことから、溶液中ではよく知られた結合比である A₁₂B₆C₆ のみが安定な ABC 複合体ではなく、混合比率に応じた KaiA 会合数 n (0 ≤ n ≤ 12) の A_nB₆C₆ が形成することが示唆された。沈降係数から換算される分子量より、 $s_{20,w}$ と KaiA 会合数 n の関係を明らかにし、混合比率 z との関係を Fig. 2 のようにプロットした。KaiA の混合比率 z ≤ 8 では n = z が成立しているため加えた KaiA は全て B₆C₆ と結合している。一方、z > 8 の混合比では n < z となったことから、KaiA に対する親和性は n の小さな A_nB₆C₆ ほど強いことが示唆された。

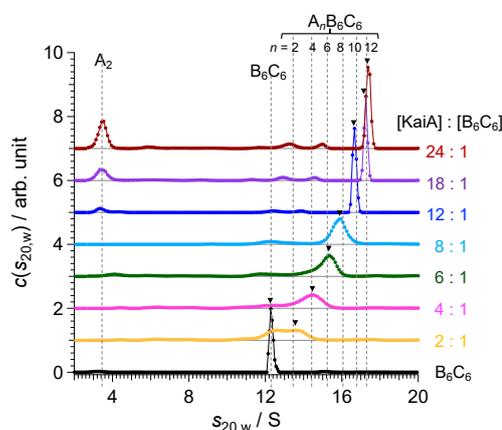


Fig. 1. AUC results for KaiA+B₆C₆ solutions with various mixing ratios. The concentration of B₆C₆ was fixed at 1.0 mg/mL.

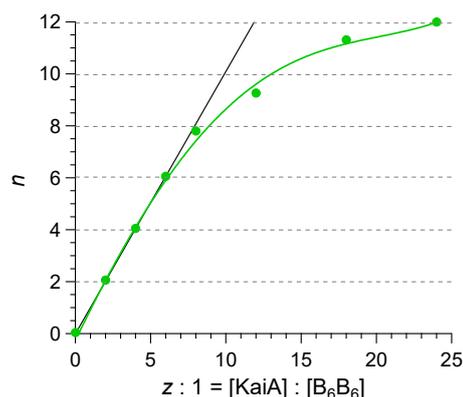


Fig. 2. Relationship between mixing ratio z and association number n of KaiA in A_nB₆C₆. Solid curve is the fitting line with polynomial function for eye-guide. Solid line represents n = z.

(P11) 堺市で観測した大気エアロゾルの元素組成の粒径分布

(大阪公立大¹, 京大複合研²) ○伊藤憲男¹, 吉永尚生²

堺市で捕集した(1997-2024年)大気エアロゾルに含まれる元素成分

(Na, Al, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Zn, As, Br, Rb, Mo, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Hf, W, Th)について中性子放射化分析法により分析を行い粒径分布を得た。大気エアロゾル粒子は、アンダーセンサンプラーにより9粒径範囲(<0.43, 0.43~0.65, 0.65~1.1, 1.1~2.1, 2.1~3.3, 3.3~4.7, 4.7~7.0, 7.0~11, >11 μm)に分けて捕集された。捕集期間は1週間で、一部の試料について元素成分の分析を行った。分析は、京都大学原子炉実験所の中性子照射設備(PN2, PN3)で中性子照射を行い、その試料をGe半導体検出器によりガンマ線エネルギースペクトルを測定することにより行なった。

目的 本研究では堺市での大気エアロゾルの金属成分に以下項目について検証する。

- ① 各季節での粒径分布と濃度レベル
- ② 粗大粒子に主に存在する元素と微小粒子に主に存在する元素の分類
- ③ 健康に影響があると予測される元素の推定と危険度

大気エアロゾルについて

大気エアロゾルは、大気に浮遊している粒径が0.001~100 μm の粒子で、自然に生成されるものと人為的に生成されるものがある。その粒径分布は、図(Fig.1)のとおり粗大粒子と微小粒子の二山となる。粗大粒子は主に土壌粒子と海塩粒子の影響を受けている。微小粒子は、燃焼やガスから生成されたもの影響を主に受けている。その主な成分は、元素状炭素と有機炭素からなる炭素成分と

イオン成分である。金属成分は主成分でないが、発生源の指標となる。

結果

主に粗大粒子に存在する元素、粗大、微小粒子に存在する元素、主に微小粒子に存在する元素に分けて、それぞれ粒径分布を示す。微小粒子に存在する元素は、Vを除いて減少傾向をしめした。

主に粗大粒子に存在する元素(Fig.2)は、Na, Al, Ca, Ti, Sc, Fe, Co, La, Ce, Smであった。Naは、海塩粒子と土壌粒子の影響を受けているが、他は土壌粒子の影響である。

粗大、微小粒子に存在する元素(Fig.3)は、Cl, Mn, K, Cr, Zn, As, Rb, Mo, Sb, Baであった。粗大粒子に存在する元素は、土壌由来のものと考えられる。

主に微小粒子に存在する元素(Fig.4)は、V, Br, Csであった。それぞれ発生源が異なっている。Vは石油燃焼、Brは焼却施設から発生したガスが粒子化したもの、Csは焼却施設から排出された粒子とされている

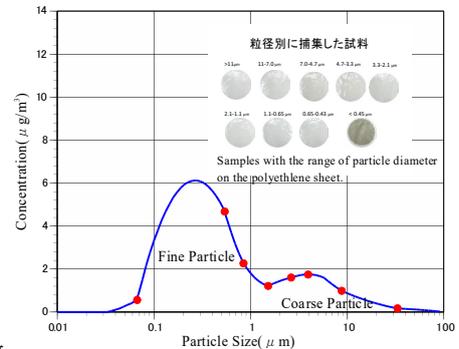


Fig.1 Example of size distribution of atmospheric aerosols.

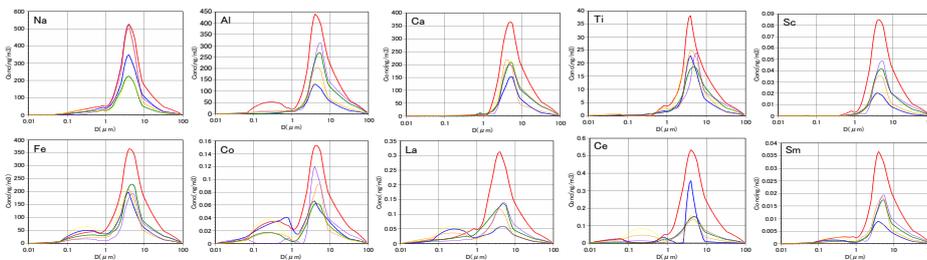


Fig2. Size distribution of the elements mainly found in the coarse particles.

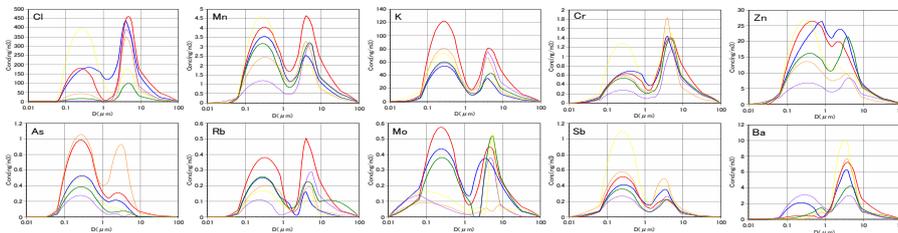


Fig3. Size distribution of the elements found in the coarse and fine particles.

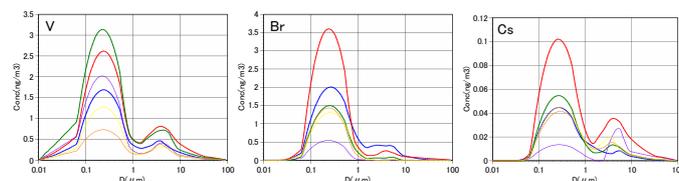


Fig4. Size distribution of the elements mainly found in the fine particles.

Size distribution of elements in the atmospheric aerosols observed at Skai, Osaka.

Norio Ito, Hiso Yosinaga
c21983a@omu.ac.jp

(P12) 新規セラミクス素材の中性子線遮へい能の評価

(岡大自然セ¹、京大複合研²) ○寺東宏明¹、磯辺みどり¹、長田直之²、櫻井良憲²

1. はじめに：電離放射線や放射性同位元素の取扱では、不必要な被ばくを最小限に抑えることが肝要である。その手段の一つに遮へいがある。γ線や X 線の遮へいに広く用いられる鉛は、その毒性から、安全な代替遮へい材が求められている [1]。岡山県の地元企業である三石耐火煉瓦株式会社が開発した新規な酸化鉄セラミクス RASHIX[®]は、その候補の一つである [2]。岡山大学は、地元企業の研究開発支援を社会貢献の柱としており、私たちは、この素材の遮へい能についてγ線を用いた評価を行った [3]。その研究の延長線として、他の線種に対する検討を行うため、京都大学複合原子力科学研究所の研究炉を使った中性子線に対する遮へい能の評価を行ったので、ここに報告する。

2. 実験：セラミクス成形体は鉄(III)酸化物(Fe₂O₃)を重量比 99%含む粉末を、鉄製金型内で 3 MPa/cm²の圧力で圧縮し、これを 1,320°Cで焼結、室温で 10 日間冷却して作成する。遮へい能評価には、厚さ 1 cm、縦 10 cm、横 10 cm の平板に成形したセラミクス試験片を準備するとともに、比較対象のため、鉄、鉛で作成した同サイズの試験片を用意した。試験片を 1 枚から 10 枚まで重ねていくことにより、重水中性子線照射装置の搬送システムを用いて遮へい能を評価した [4]。中性子線は、即発γ線の発生や放射化を誘導することから、これらについても評価を行った。即発γ線および放射化の実験に用いた試験片は、セラミクス、鉄、鉛を材料に、厚さ 1 cm、縦 2 cm、横 2 cm のものをそれぞれ作成した。即発γ線誘導評価は、中性子線ガイド管に設置した即発γ線分析システムを用いて行った。放射化実験は、レーンシステムを用いて照射を行い、Ge 半導体検出器によって分析した。線量評価は Au-197 と中性子の反応により、Au-198 とγ線が生成することを用いた。

3. 結果：セラミクスの熱中性子に対する遮へい能は、以下の通りであった。

全放射能に対する遮へい能

Iron > Ceramics > Lead

熱中性子に対する遮へい能

Iron > Ceramics = Lead

以前報告したγ線に対する遮へい能は、鉛、鉄、セラミクスの順であったことから [3]、それとは異なる結果となった。このことは、セラミクスが鉛に比べて優れた中性子遮へい能力を示すものの、鉄には劣ることを示している。次に、即発γ線の誘導能はセラミクスと鉄でほぼ同等であり、両者の即発γ線発生量は鉛よりも 1 桁以上高かった (Fig. 1)。これは主に鉄の (n, γ) 反応に起因すると考えられる。

放射化に関して、セラミクスの誘導放射能は鉄の 1/20、鉛の 3.3×10³ 倍であった。これは主に鉄由来の Mn-56 の生成に起因すると考えられる。以上の結果から、この新規セラミクスは一定の中性子遮へい効果を示すものの、即時γ線発生や放射化に関する課題があり、中性子の遮へいに用いる際は、何らかの追加措置が必要であることを示している。

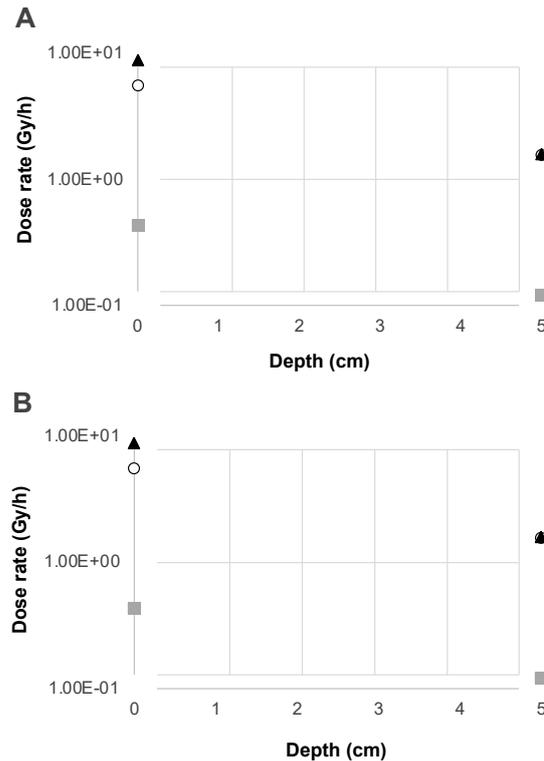


Fig. 1 Generation of prompt gamma-rays. A) Whole radiation, B) epithermal neutrons. Closed triangle: Iron, open circle: ceramics, gray rectangle: lead.

参考文献

- [1] Environmental Health Criteria 85, Lead-Environmental Aspects: World Health Organization (1989).
- [2] H. Mori *et al.*, *Ceramics* **3** (2020) 258-264.
- [3] M. Isobe *et al.*, *Radiat. Safety Management*, **22** (2023) 1-6.
- [4] S. Sakurai, T. Kobayashi, *Nucl. Instr. Meth. A* **453** (2000) 569-596.

(P13) 超重元素研究に向けた気相・液相化学的アプローチ

(京大複合研¹) ○佐藤哲也¹

1. はじめに：元素周期表において、原子番号が 100 を超えるような重い元素領域にある元素（超重元素）では、その大きな中心電荷に起因して、化学的性質が周期律に従わない可能性があることが指摘されている[1]。これまでに 103 番元素ローレンシウムの原子構造が周期表の予想に従わないことが実験的に示されており[2]、周期表全体の理解という点で興味深い。現在、106 番元素シーボーギウム(Sg)といった超アクチノイド元素の化学的性質を明らかにするために、気相化学的あるいは液相化学的手法を用いた装置開発および同族元素による基礎実験を進めている。

2. 実験：気相化学的手法においては、等温ガスクロマトグラフ法を採用した。反応室、等温カラムおよびクラスタリング部から構成される等温ガスクロマトグラフ装置を製作し、短寿命同位体を供給する Cf-252 核分裂槽に直結した。反応室からクラスタリング槽にかけては石英製で一体となっており、電気管状炉を用いて反応部および等温カラム温度をそれぞれ 1050~500°C、550~100°C の範囲で設定できる。Sg 同族元素であるモリブデンの短寿命核種 $^{104-106}\text{Mo}$ をモデル実験に用いた。核分裂槽内で生成された $^{104-106}\text{Mo}$ を含む核分裂核種は、 N_2 キャリアガスによって核分裂槽より反応室に運ばれる。高温に保たれた反応室には塩化チオニル(SOCl_2)蒸気で飽和した N_2/O_2 ガスが塩素化剤として導入されている。塩素化剤との反応によって生成した揮発性分子は、そのままキャリアガス流によって一定温度に保たれた等温カラムへと導入される。これらはその揮発性と等温カラム温度に応じた効率でカラム末端に溶出され、 He/KCl ガスジェット搬送法によって捕集サイトに運ばれたのち、放射能測定によって収率が決定される。本装置を用いて、カラム温度に対する $^{104-106}\text{Mo}$ 収量の変化から、石英表面に対する目的分子の吸着エンタルピーを求める。

他方、新たな溶液化学的アプローチとして、短寿

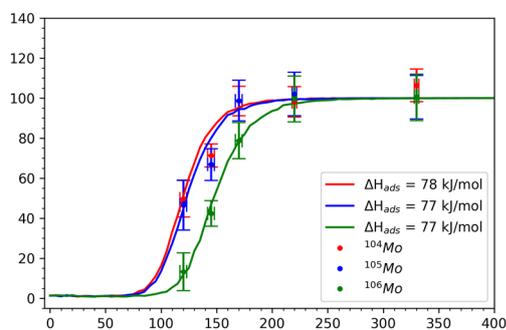


図 1. $^{104-106}\text{Mo}$ 揮発性酸化塩化物のカラム温度-収率曲線

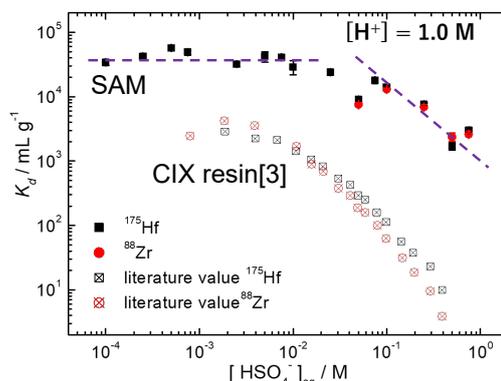


図 2. ^{88}Zr , ^{175}Hf の陽イオン交換樹脂およびモデル SAM 表面に対する吸着挙動

命核種を対象にフロー化学分離・検出を可能とする新しい α 線検出器の開発を進めている。本検出器は、目的の官能基をもつ炭化水素鎖を検出器表面上に結合させて任意の機能性をもたせたもので、水溶液中に含まれる目的核種を選択的に表面に結合させることで、直接 α 線検出を行うことができる。本検出器用表面開発のため、ガラス片上に、ニッケル・金をスパッタ蒸着し、陽イオン交換基であるスルホン酸基をもつ機能性チオール ($\text{HS}-(\text{CH}_2)_{11}-\text{SO}_3\text{Na}$ (ProChimia Surfaces, sp. zo.O)) をチオール結合させて自己組織化単分子膜(SAM)を形成した。本モデル表面の機能性を確認するため、104 番元素ラザホージウムの模擬として、同族元素 Zr, Hf の短寿命核種 ^{88}Zr および ^{175}Hf を用いて、 $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4$ 溶液中におけるモデル SAM 表面への吸着挙動を調べた。

3. 結果：図 1 に本等温ガスクロマトグラフ装置を用いて得られたカラム温度-収量曲線を示す。それぞれの核種について 100~150°C 周辺から立ち上がり、200°C 以上で一定となる挙動が観察された。カラム表面に対する単純吸脱着モデルを用いたモンテカルロシミュレーションにより、これらの揮発性分子が約 77 kJ/mol の吸着エンタルピーを持つことが推測された。この値はマクロ量からの推定値とよく一致することから、観測された揮発性化合物は MoO_2Cl_2 であると類推できる。

また、作成した SAM 表面への $\text{HNO}_3/\text{HSO}_4$ 系における Zr, Hf の吸着挙動を図 2 に示す。 HSO_4^- 濃度変化に対する挙動は、陽イオン交換樹脂のものと類似しており、作成した表面が陽イオン交換能をもつことが確かめられた。

[1] P. Pyykko, Chem. Rev. **88** (1988) 563-594.

[2] T. K. Sato et al., Nature **520** (2015) 209-211.

[3] Z. J. Li et al. Radiochim. Acta **100** (2012) 157-164.

(P14) 102番元素ノーベリウムの化学的性質解明に向けた 2族元素のシュウ酸ユウロピウム共沈実験

(阪大院理¹、理研仁科セ²、京大複合研³) ○菊池亮太^{1,2}、王瑞麟^{1,2}、板倉悠大^{1,2}、金子政志^{1,2}、風間裕行^{1,2}、中西諒平¹、紺野未夢¹、Khult Enni^{1,2}、柴本恭佑^{1,2}、森健太^{1,2}、河本和士¹、岸本遼馬¹、高宮幸一³、稲垣誠³、羽場宏光²、南部明弘²、笠松良崇^{1,2}

1. はじめに：

原子番号 102 番のノーベリウム(No)は、アクチノイドに属する元素である。他の f ブロック元素が水溶液中で安定に+3 価以上をとるのに対し、No は+2 価を最安定にとり[1]、2 族元素である Ca²⁺、Sr²⁺に近い化学挙動を示すことが報告されている。これまでに我々は水溶液中における No²⁺の錯形成挙動を明らかにするため、水酸化物や硫酸塩などの無機配位子による共沈実験を中心として行ってきた。そこで、配位子によるキレート効果や分子構造などが No の化学的挙動にもたらす影響をより詳細に調査するため、有機配位子を用いた No²⁺共沈実験[2]を展開し、シュウ酸カルシウム共沈法により No²⁺と Ca²⁺の類似性を示唆した。本研究では、No²⁺と Ca²⁺、Sr²⁺の化学的性質を直接比較するため、キャリアにユウロピウム(Eu³⁺)を用いたシュウ酸ユウロピウム共沈実験に注目し、No²⁺の共沈実験に適した条件を探索するため、シュウ酸ユウロピウム沈殿実験と、⁸⁵Sr、⁴⁷Ca のシュウ酸ユウロピウム共沈実験を行った。

2. 実験：

A)マクロ量のシュウ酸ユウロピウム沈殿実験

シュウ酸及び硝酸ユウロピウムをそれぞれ蒸留水に溶解し、硝酸及び水酸化ナトリウム水溶液で pH を 1-4 に調整しながら 4-200 mM シュウ酸溶液及び 2 mM 硝酸ユウロピウム溶液を調製した。調製した各溶液 5 mL と ¹⁵²Eu トレーサー溶液 10 µL を室温で混合し 3 分攪拌により沈殿を生成した。吸引ろ過後、ろ液及び捕集した沈殿物に含まれる ¹⁵²Eu を Ge 半導体検出器により定量し、沈殿収率を決定した。

B)シュウ酸ユウロピウムによる ⁴⁷Ca、⁸⁵Sr 共沈実験

A)で調整したシュウ酸溶液及び硝酸ユウロピウム溶液 5 mL と ⁴⁷Ca、⁸⁵Sr トレーサー溶液 10 µL を室温で混合及び 3 分攪拌し、沈殿を生成した。

A)及び B)における沈殿を吸引ろ過し、ろ液及び沈殿物中の ⁴⁷Ca、⁸⁵Sr、¹⁵²Eu の計数率(cps)を Ge 半導体検出器により定量し、下記の式により収率を算出した。また、収率計算のため、実験に用いたトレーサー溶液をろ紙にしみこませて密閉し標準試料を作成した。

$$\text{沈殿収率 (\%)} = (A_{\text{ppt}}/A_{\text{std}}) \times 100$$

(A_{ppt}: 沈殿の計数率、A_{std}: 標準試料の計数率)

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

によって、⁸⁵Sr は理化学研究所仁科加速器研究センターで ⁸⁵Rb(d, 2n)⁸⁵Sr 核反応によって製造した。

3. 結果：

シュウ酸ユウロピウム沈殿実験では、pH=1.5 ではシュウ酸濃度 2 mM で沈殿収率 92.7±4.7%であり、pH=1.5 ではシュウ酸濃度 2 mM 以上で Eu が定量的に沈殿することを確認した。

Eu の沈殿収率が 100 %となった条件で ⁴⁷Ca、⁸⁵Sr の共沈実験を行った結果を表 1 に示す。

表 1, pH=1.5 での Ca と Sr の共沈収率

シュウ酸濃度 /mM	共沈収率 (%)	
	Ca	Sr
2	1.2±0.1	10.9±0.6
5	-	35.3±1.2
10	8.7±0.8	68.4±2.1
25	18.9±0.9	-
50	45.9±2.1	90.1±3.1
100	64.8±3.0	75.0±2.7

結果として、Ca と Sr の共沈収率は、シュウ酸濃度に依存して増加する傾向が見られた。このようなシュウ酸濃度に依存した共沈収率の増加は、錯形成を伴う共沈機構を示唆していると考えられる。また、Sr の共沈収率はシュウ酸濃度 100 mM の条件で低下した。これは、過剰なシュウ酸の存在により Sr が溶液中で可溶性の多配位錯体を形成し、沈殿相に取り込まれにくくなったためと考えられる。一方、Ca についてはトレーサー溶液中にマクロ量の Ca が存在しており、共沈に影響するほど可溶性錯体が増えるにはより高いシュウ酸濃度が必要となるため、本実験条件の範囲では共沈収率の低下が見られないと考えられる。今後は、No²⁺共沈実験に向けた溶液及び装置条件の最適化を行っていくとともに、pH やシュウ酸濃度だけでなく、イオン強度や過飽和度などの溶液条件を変化させた共沈実験、沈殿物の元素分析・粉末 X 線回折・第一原理計算を用いた解析により、固液分配挙動や沈殿中の共沈元素の形態についても理解を深めていく予定である。

参考文献

- [1] R. J. Silva, *et al.*, *Inorg. Chem.* **13**, 2233 (1974).
[2] 中西諒平, 大阪大学理学研究科化学専攻
修士論文 (2022)

Experiments on Co-Precipitation of Oxalate Europium with Group 2 Elements Toward Elucidating the Chemical Properties of Element 102, Nobelium

Ryota Kikuchi, Ruilin Wang, Yuta Itakura, Masashi Kaneko, Hiroyuki Kazama, Ryohei Nakanishi, Ruilin Wang, Yuta Itakura, Miu Konno, Khult Enni, Kyosuke Shibamoto, Kenta Mori, Kazushi Kawamoto, Ryoma Kishimoto, Koichi Takamiya, Makoto Inagaki, Hiromitsu Haba, Akihiro Nanbu, Yoshitaka Kasamatsu
kikuchir24@chem.sci.osaka-u.ac.jp

(P15) 中性子・X線小角散乱を用いた Kai 概日時計の位相同期現象の観測

(京大院理¹、京大複合研²) ○鹿角友輝¹、守島健²、清水将裕²、井上倫太郎²、杉山正明²

1. 背景 :

シアノバクテリアの概日時計は三つの時計タンパク質 KaiA、KaiB、KaiC とアデノシン三リン酸で構成される。このシステムを中心タンパク質である KaiC はリン酸化と脱リン酸化のサイクルを繰り返し、その結果として溶液中の全 KaiC の平均リン酸化度が 24 時間周期で振動する。ここで、KaiC のリン酸化サイクルは時計タンパク質間の解離会合によってもたらされる。すなわち、KaiA-KaiC

(AC) 複合体が形成することでリン酸化が促進され、KaiA-KaiB-KaiC (ABC) 複合体が形成されることで、脱リン酸化が促進される。したがって、AC 複合体と ABC 複合体の溶液中での存在比率もまた 24 時間で概日振動する[1]。

この概日振動は温度や濃度等の外部環境が変化した場合にも 24 時間の周期が維持される特徴をもつ。これは一日のうちに变化する外部環境に適応しながら生きる生物にとって必須の性質である。ここで、外部環境を変化させた場合には KaiC のリン酸化反応速度や解離会合動態が影響を受ける可能性があるが、それにもかかわらず振動周期が維持される堅牢性のメカニズムは解明されていない。

本研究ではこのメカニズムの一端を理解するため、外部環境変化を受けた例として、KaiC のリン酸化状態及び複合体状態が異なる二つの振動系を混合した際のリン酸化度と複合体分布の変化を観測することを目的とした。

2. 実験 :

KaiA, KaiB, KaiC をモル比 3:6:6 (0.50 mg/mL, 0.36 mg/mL, 1.8 mg/mL) で 12 時間ずらして混合し、振動位相の 12 時間異なる二つの振動系 (Osc. 1 と Osc. 2; いずれも温度 30°C) を調整した。Osc. 1 の振動開始から 24 時間の時点で Osc. 1 と Osc. 2 を混合し (=Mix)、その後のリン酸化度と中性子・X 線小角散乱 (SANS / SAXS) の原点散乱強度 $I(0)$ の時間変化を測定した。特に SANS 測定ではリン酸化の促進に関与する KaiA の解離会合動態に注目するために、100% 重水素化 KaiA と軽水素体 KaiB、KaiC を 42%D₂O 中で調製した試料によって KaiA のみを散乱的に可視化したコントラストマッチング同調法 (CM) を適用した。

リン酸化度の測定には既報[1]と同様の SDS-PAGE 法を用いた。SAXS 及び SANS 測定は Cu 線源型 NANOPIX (RIGAKU) 及び東京大学物性研究所が管理する SANS-U (JRR-3) を用いてそれぞれ実施した。

3. 結果 :

Fig. 1 には、Osc. 1 (赤丸)、Osc. 2 (緑丸) 及び Mix (黄丸) のリン酸化度、SAXS 及び SANS の $I(0)$ ($I(0)_{\text{SAXS}}$ 及び $I(0)_{\text{SANS}}$) の時間変化を示す。混合直後 ($t = 24$ h) に注目すると、リン酸化度及び $I(0)_{\text{SAXS}}$ 及び $I(0)_{\text{SANS}}$ の全てで、Mix では Osc. 1 と Osc. 2 の概ね平均値をとった。このことから、Osc. 1 と Osc. 2 の混合前のリン酸化状態及び複合体分布が、混合直後に直ちに变化することはなく、概ね保持されていると推測される。一方、大変興味深いことに、混合から約 4 時間経過すると ($t \geq 28$ h)、リン酸化度及び $I(0)_{\text{SAXS}}$ 及び $I(0)_{\text{SANS}}$ の全てにおいて、Mix は Osc. 1 に引き込まれる形で振動を開始した。当日は、超遠心分析の先行研究結果[2]を参照して、混合 ($t = 24$ h) から Osc. 1 と同期した振動が形成されるまでの約 4 時間の間に、複合体分布がどのように変化したかを解析した結果について発表する。

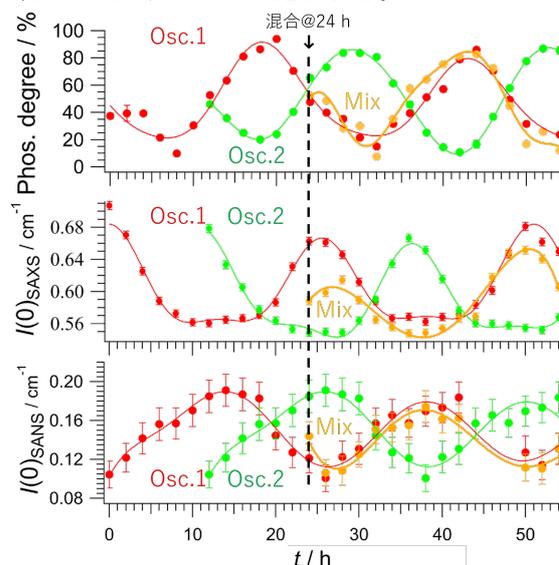


Fig. 1. Osc. 1, Osc. 2, Mix に対する (a) リン酸化度、(b) SAXS の $I(0)$ 、(c) SANS の $I(0)$ をそれぞれ赤丸、緑丸、黄丸で示す。実線は多項式フィッティングで得られた実験値の近似曲線を示す。

参考文献

- [1] M. Sugiyama. *et al. bioRxiv*, -doi:10.1101/2022.08.26.505376 (2022).
- [2] 坂本璃月, 京都大学大学院理学研究科修士論文 (2025).

(P16) BNCT での治療信頼性を高めるリアルタイムモニタの開発と廃炉への応用

(東大院工¹、東北大ニュートリノ²、東北大院工³、京大複合研⁴) ○黒澤 俊介^{1,2}、浦野 雄介³、藤原 千隼³、山路 晃広²、高田 卓志⁴、松林 錦⁴、田中 浩基⁴

1. はじめに: ホウ素中性子捕捉療法(BNCT) の治療効果をリアルタイムに評価して、治療の信頼性の向上を目指した研究について取りくんでいる。BNCT 治療時には中性子とホウ素(¹⁰B)との原子核反応の結果として 478 keV のガンマ線が発生するため、このガンマ線を撮像する検出器が多く提案されている。しかしながら、その多くは、コリメータを用いる方法であり[1-3]、このコリメータが散乱源になり、ガンマ線感度を落としている。さらには、コリメータと中性子との相互作用によってガンマ線などのノイズを生み出している。また、コンプトンカメラはコリメータを使わないが、サイズが大型である点などが指摘されている。

そこで、われわれは、これまで京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 や原子炉などでのテスト経験があり、福島第一原子力発電所へ応用されている光ファイバー型線量計の可能性について、調査を行った。

2. 実験: 光ファイバーに、われわれが開発した④次元ペロブスカイト型ハライド結晶である Cs₃Cu₂I₅ をベースとした新しいシンチレータを接続したものを 4 セット作成した。そして、例えば、図 1 のように、E-3 導波管にて、中性子をホウ酸サンプルに照射させて、そこからの 478 keV ガンマ線を取得した。本シンチレータは高い発光量を有し、潮解性もほぼ無視でき、光ファイバー読み出しのような光の集光効率が低い条件下では有利な材料である。

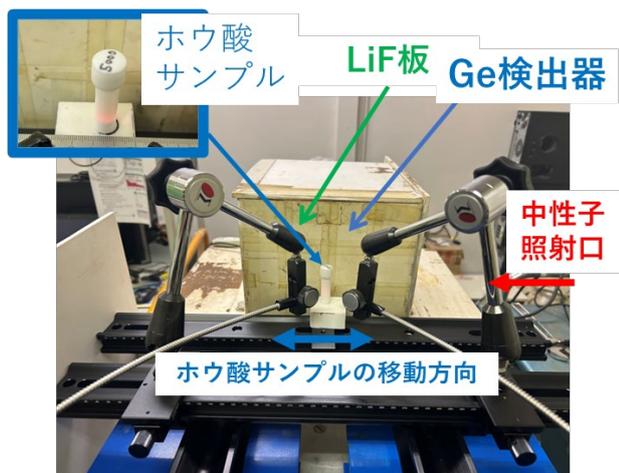


Fig. 1. Schematic view of the setup for 478-keV gamma-ray detection with optical fiber-type detectors.

また、画像再構成は重心演算法をベースとした方法にて、行った。当該方法では実際の現場では高い計数率のため、ガンマ線 1 光子ごとの計測 (シングル・フォトン・カウンティング法) は難しいと判断しており、既存のガンマ線撮像方法とは異なり、エネルギー分別を基本的に行わない電流モードでの計測を試みた。

本実験では、478 keV 以外のガンマ線の影響がどの程度あるのかについても議論した。

3. 結果: 現在、論文にまとめている最中のため、詳しいデータ、図などについては公表を避けるが、478 keV のガンマ線による撮像に成功した。今回の実験では、実際の治療現場よりも熱中性子束が 3 桁以下の E-3 導波管であったため、シングル・フォトン・カウンティング法が適用できた。そこで、エネルギー分別を行った場合と、エネルギースペクトルのすべてのイベントを用いて疑似的に電流モードにして撮像した時で、その差がないことが確認できた。併せて、電流モードのセットアップにおいても撮像を行い、その図がエネルギー分別したときの図と対応することを確認した。

他のエネルギーを持つガンマ線について、図 1 にあるように、ホウ酸サンプルの近接に置いた Ge 検出器で見たところ、2.2 MeV や 511 keV のガンマ線も見られるものの、478 keV が支配的であった。2.2 MeV については、シンチレータの結晶サイズが数 mm であることからほぼ感度がないと考えている。

今回の実験では、中性子束が少なく、511 keV などのガンマ線を発生させる要因となる酸素 (水など) の存在量や、ビーム源にあるすでに放射化している環境なども無いため、ノイズの評価を今後は行ってゆく必要がある。

参考文献

- [1] I. Murata et al., "Development of a thick CdTe detector for BNCT-SPECT", Applied Radiation and Isotopes, 69(12), 1706-1709, (2011)
- [2] K. Okazaki et al., "Evaluation of the energy resolution of a prompt gamma-ray imaging detector using LaBr₃(Ce) scintillator and 8×8 array MPPC for an animal study of BNCT", Applied Radiation and Isotopes, 163, 109214, (2020)
- [3] T. Ferri et al., "A Collimator Study Towards BNCT-SPECT Systems for Dose Monitoring", 2022 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC)

(P17) ヒト舌癌由来細胞株 SAS 移植マウスモデルにおけるフェニルアラニン制限による BNCT 抗腫瘍効果改善の検証

(藤田医大¹、京都府立医大²、京大複合研³) ○玉利勇樹¹、佐波理恵²、鈴木実³、山崎秀哉²

1. はじめに：ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) はホウ素薬剤を腫瘍選択的に取り込ませ、中性子とホウ素の核反応により腫瘍を治療する方法である。現在、ホウ素薬剤として使用されている L-Boronophenylalanine (L-BPA) はフェニルアラニンのホウ素化同位体であり、腫瘍の活発なアミノ酸代謝を利用して取り込ませている。L-BPA の腫瘍内への取込みを増加させる方法としてアミノ酸の事前投与が有用であるということが報告されている[1-3]。しかし、アミノ酸制限による L-BPA の取込促進研究は今までにない。そこで我々は腫瘍細胞内への L-BPA 取込が最大となる生理条件を選定、誘起することを目的に、L-フェニルアラニン (Phe) 制限条件下での腫瘍の細胞応答を精査してきた。本研究ではヒト舌癌由来細胞株 SAS を移植したマウスに対し、フェニルアラニン制限を行い L-BPA 取込促進及び BNCT の抗腫瘍効果が改善されるのかについて検証を行った。

2. 実験：ヌードマウス (Balb/cAJcl-nu/nu、5 週齢雌) の大腿部皮下にヒト舌癌由来細胞株 SAS を移植し、フェニルアラニン不含飼料 1~7 日与えた。L-BPA 投与から 30 分、1 時間、2 時間、3 時間後に腫瘍、血液、脳、舌、腎臓、肝臓、肺、筋肉、皮膚、小腸を採取し、濃硝酸を用いて灰化を行った。灰化後、ICP-AES でホウ素濃度の測定を行った。

さらに SAS 移植マウスに対して 24 時間のフェニルアラニン制限を行い、L-BPA を投与後 2 時間後に中性子照射を行った。中性子照射後 1 か月程度腫瘍径と体重の測定を行った。熱中性子フルエンスは 5MW、4 分照射時で $1.55 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 、6 分照射時で $1.95 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ となった。中性子のみ照射群を中性子照射群、フェニルアラニン制限をせずに L-BPA を投与し中性子を照射した群を Phe (+)_BPA 投与群、フェニルアラニンを制限し L-BPA を投与して中性子照射を行った群を Phe (-)_BPA 投与群とする。

3. 結果：図 1 に腫瘍と血液中のホウ素濃度測定結果の比を示す。フェニルアラニン制限後 1~3 日で腫瘍内のホウ素濃度が増加した。他の臓器のホウ素濃度に関してはフェニルアラニン制限による大きな変化はなかった。4 日以上フェニルアラニン制限ではマウス同士での傷害が見られ、ホウ素濃度もばらつきが増加したため短時間で行う必要がある。中性子照射を行った結果、非照射群と中性子照射群では大きな差はなかった。Phe(+)_BPA 投与群では非照射

群や中性子照射群と比較して大きく減少した。さらに、Phe(-)_BPA 投与群では Phe(+)_BPA 投与群と比較して腫瘍の縮小が観察された。また、熱中性子フルエンス増加に伴う抗腫瘍効果の改善も確認された。マウスの体重には大きな変化はなかった。

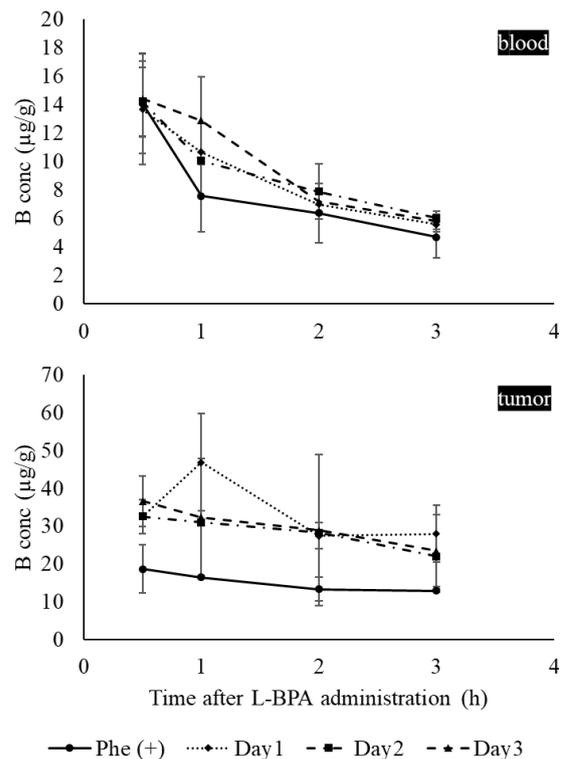


Fig. 1. L-BPA accumulation in various tissues of tumor-bearing mice following phenylalanine restriction. The upper graph shows L-BPA accumulation in the blood, while the lower graph shows L-BPA accumulation within the tumor.

参考文献

- [1] M. Papaspyrou *et al.*, *Cancer Res.*, **24** (1994) 6311-6314.
- [2] S. Capuani *et al.*, *Magn. Reson. Imaging*, **26** (1969) 987-993.
- [3] E. Balcer *et al.*, *Molecules*, **28** (2023).

Verification of enhanced BNCT antitumor effect through phenylalanine restriction in tumor-bearing mice.

Yuki Tamari, Rie Saba, Minoru Suzuki, Hideya Yamazaki
yuki.tamari@fujita-hu.ac.jp

(P18) Zr-Ce 水酸化物共沈固相の溶解度に関する研究

(京大工¹, JAEA²) ○ 原田尚紀¹, 小林大志¹, 松村大樹², 池田篤史², 佐々木隆之¹

1. はじめに：高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全評価では、対象元素ごとに溶解度制限固相が設定されており、4 価金属イオンとして振る舞う元素では、それぞれの水酸化物が溶解度制限固相とされている[1]。しかし、実処分環境では、ガラス固化体から溶出した様々な元素が地下水に共存するため、4 価金属イオンが水酸化物として沈殿する際に、異なる元素との共沈固相を生成する可能性がある。

各元素からなる個別の水酸化物固相の溶解度については多くの報告例があるが、複数の元素を含む共沈固相の溶解度や固相の状態はあまりわかっていない。核分裂生成物としてのランタノイドの放射性核種の多くは半減期が短いため、ガラス固化体中の放射能インベントリは高くないが、壊変後の安定核種としてガラス固化体に含まれる。そこで、本研究では、ランタノイドであるセリウムと 4 価アクチノイドのアナログであるジルコニウムから成る水酸化物共沈固相の固相状態および溶解度に注目する。それぞれ母溶液を所定のモル比で混合し、異なる温度条件、pH 条件において水酸化物の共沈固相を生成させる。共沈固相の構造を X 線回折および X 線吸収分光法を用いて調べるとともに、セリウムおよびジルコニウムの溶解度を測定する。

2. 実験：実験では 3 価 Ce および 4 価 Zr の水酸化物共沈固相を調製した。まず、3 価 Ce 塩酸母溶液([Ce] = 0.6 M)と Zr 塩酸母溶液([Zr] = 0.6 M)を所定のモル比で混合した。NaClO₄によりイオン強度(I)を I = 0.1 とした後、8 M NaOH を添加して pH = 8 または pH = 12 に調整し、水酸化物として沈殿させた。

生成した共沈固相を含む試料溶液を 25 または 70 °C で 1 か月間熟成させた後に pH および Eh を測定した。共沈固相の一部を懸濁状態のまま分取し、SPring-8 の BL14B1 において Zr および Ce の K-edge における X 線吸収スペクトルを透過法により測定した。また、共沈固相沈殿の一部を遠心沈降により分離、真空乾燥させた後、粉末 X 線回折装置 (MiniFlex600, RIGAKU) により、回折パターンを測定した。

溶解度実験では、各試料溶液の上澄み液を捨て、残った沈殿を超純水で洗浄した後、pH およびイオン強度を調整した試料溶液に固相として加えた。25 °C で所定の期間、試料溶液を静置した後、上澄み液を限外ろ過 (10 kDa) し、ろ液に含まれる金属イオン (Zr, Ce) 濃度を ICP-MS (Elan DRC II, PerkinElmer) により測定した。

3. 結果：図 1 に pH = 8, 12 および 25 °C, 70 °C で 1 か月熟成させた共沈固相試料の XRD パターンを示す。ZC10(Zr のみ)の場合、pH = 12, 70 °C を除いて顕著な回折ピークは見られず、固相はアモルファスであることが分かった。一方、pH = 12, 70 °C では、ZrO₂(monoclinic)および ZrO₂(tetragonal)に相当するピークが見られた。ZC01(Ce のみ)の場合、試料調製には 3 価 Ce の母溶液を用いたが、Ce₂O₃や Ce(OH)₃の回折ピークは見られず、CeO₂(cubic)のみが観察された。試料溶液の pH および Eh の値を Ce のプルベダイアグラムと比較すると、CeO₂が支配的な条件下であったことから、Ce(III)は Ce(IV)に酸化されたと考えられた。次に、Zr-Ce 共沈固相 (ZC37, ZC55, ZC73) の回折パターンを見ると、CeO₂(cubic)および ZrO₂(tetragonal)に相当するピークが見られた。いずれのピークも固相を熟成させる際の温度が高い方が鋭くなったことから、結晶化に温度依存性があることが分かった。また、ZrO₂(tetragonal)は pH が高い方がピークが鋭く、結晶化が進行したのに対して、CeO₂(cubic)は pH が低い方が結晶化が進行したことが分かった。

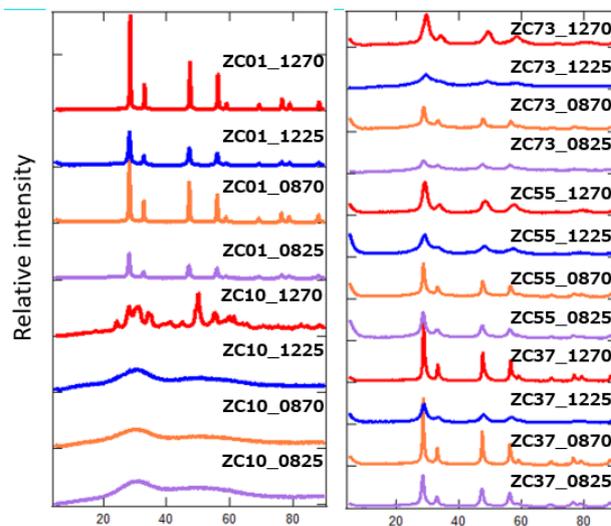


図 1 Zr-Ce 水酸化物共沈固相の X 線回折パターン

参考文献

[1] 原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告: わが国における安全な地層処分の実現—適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築—, 2021

(P19) 多層膜中性子集光ミラー開発と新試験研究炉における中性子ビーム光学系 II

(京大複合研¹、理研²、KEK³) ○日野正裕¹、細島拓也²、竹田真宏²、山形豊²、藤谷龍澄¹、遠藤仁³

1. はじめに: KURは2026年4月23日の運転で停止するが、KURの後継も意識した福井県敦賀市「もんじゅサイト」に設置する新たな試験研究炉(以下新試験研究炉)の建設計画が進んでいる[1,2]。熱出力10MWの新試験研究炉は、燃料要素数をコンパクトにすることで、熱出力20MWのJRR-3に迫る熱中性子束が期待されている。また液体重水素を減速材として冷中性子源の性能を高めることで、高輝度の冷中性子ビームを得て、世界に伍する中性子ビーム施設とすることを目指しており、複合研を中心にそれぞれの装置タスクフォース(TF)が検討を行っている[2]。今後、中性子ビーム利用装置を効果的に配置するためにも、必要な中性子ビームだけを高効率で輸送することが益々重要な課題となっている。

2. 多層膜中性子ミラー: 多層膜中性子ミラーはブラッグ反射を利用して、ビームの輸送、整形、偏極等、熱・冷中性子ビームの性能向上に必須なデバイスである。特に中性子波長が長くなるほどその性能は向上する。京大複合研のイオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)は、世界で初めて $m=5$ 中性子スーパーミラーを実現し、現在に至るまで常に最高レベルの多層膜中性子ミラーの成膜を行っている[3]。 $m=5$ とはニッケル(Ni)の全反射臨界角に対して5倍の入射角で全反射できる性能を表す指標であり、波長1nmの中性子のNiによる全反射臨界角は約 1° である。全反射臨界角は波長に比例するため、波長0.2nmの熱中性子を用いた場合、 $m=5$ のスーパーミラーでも全反射臨界角は約 1° である。主に利用する中性子波長がナノメートル(nm)以下であるため、高性能なスーパーミラーの実現には、層間の拡散だけでなく、まず基板の表面粗さを0.3nm程度以下に抑える必要がある。

3. 金属基板中性子スーパーミラー: 表面粗さの厳しい制約のため金属基板の使用が従来困難であったが、無電解ニッケル燐メッキを用いることで表面粗さ0.2nm以下を実現し、この問題を解決した。金属を母材することで、耐放射線にも優れ、分割して組み合わせ、構造材、例えばミラー自体を真空チャンバーや遮蔽材としてもなど利用できる等、今後の中性子ビーム利用装置はもちろん中性子源近傍の利用が期待できる。我々はJ-PARC MLF BL06(VIN ROSE)スピネコー分光器[4]の位相補正集光ミラーとして世界で初めて大型かつ高臨界角の回転楕円体スーパーミラーを組み上げた。この回転楕円体の形状は、長軸1250mm、短軸65.4mmであり、1ピースの長さは300mmで幅は20度分をカバーする。Fig.1はこの

ミラーピースを54個分組み込んで長さ90cm、全周360度をカバーする $m=6$ のNi/Ti回転楕円体スーパーミラーをJ-PARC MLF BL06 NRSEビームラインに設置し、調整を開始した写真である。



Fig.1 Photograph of a full circumference, ellipsoidal neutron supermirror made of 54 mirror pieces.

4. 新試験研究炉における中性子ビーム光学系: 現在、中性子ガイドホールに設置予定の中性子ビーム利用装置は、将来を見越した利用の方向性を主に検討しており、装置それ自体の詳細設計はまだ先になる。ただし、原子炉の設計は進んでおり、設置許可申請書に記載する項目に関しては設計を詰めておく必要がある。CNSとガイドホール上流光学系はこれに該当する。液体重水素のCNSは、その大きな体積から、リエントラント構造と呼ばれる大きな凹みを作り、効果的に冷中性子を取り出す。ビーム強度の観点から、ガイドホールの各ビーム利用装置はその凹み部分を出来るだけ大きく見込むことが望ましい。またビーム装置ごとに必要な線質(波長、波長分布、ビーム発散角、ビームサイズ等)が異なるため、装置ごとにビー最適化した中性子導管が必要である。また導管のビーム呼び口径は共通化し、出来るだけ大きくする必要はある。実際、ドイツのミュンヘン工科大学に設置されている熱出力20MWの研究炉であるFRM-IIでは、CNSを見込むSR-1プラグの最大直径は1.5m、最大角度 17.5° で、ガイド管は6本設置されている[5]。講演者は、FRM-IIの水平実験孔挿入物等の図面を入手し、中性子輸送制御TFを含め関係者と共有して検討を進めている。本講演では、今後本格化する新試験研究炉の中性子装置設計を念頭に、中性子源の上流光学系の考え方、多層膜中性子集光ミラー開発の現状と課題を議論する。

参考文献

- [1] <https://www.jaea.go.jp/04/nrr/jp/>
- [2] <https://labo.rri.kyoto-u.ac.jp/labnrr/>
- [3] M.Hino, et al., Nucl.Inst.Meth. A 529 (2004) 54.
- [4] M.Hino, et al., J.Nucl.Sci.Tech.54(2017),1223.
- [5] H.Aschauer, et al., Physica B 283(2000)323.

(P20) ホウ素含有シンチレータの開発

(京大複合研¹、理研²) ○大平直也¹、奥野泰希²

1. はじめに：これまで、中性子イメージングで主に⁶LiF/ZnS シンチレータを使ったカメラシステムが用いられてきた。¹⁰B は⁶Li と比較して4倍程度の熱中性子吸収断面積を持っており、生成される粒子の飛程も比較的短いため、既存のシンチレータに代わる高輝度かつ高分解能のシンチレータになり得ると期待される[1]。一方で、ホウ素含有シンチレータの開発例は多くなく、シンチレータに適した蛍光体の配合率や構成、粒子径などは十分明らかでない。そこで本研究では、最近ホウ素ナノ粒子の塗布に成功した奥野らとともに、ホウ素含有イメージング用シンチレータの開発を目的に研究を行う。

2. 実験：30 mm × 30 mm 厚さ2 mm のアルミ基板上に、シンチレータとなる粉末を静電塗布で塗布し、これを試料とした。塗布した粉末には⁶LiF、BN などの中性子吸収体と蛍光体を体積比1:1で混合したものを使用した。各シンチレータの厚さはおよそ25 μm で統一した。作製した試料を Table 1 に示す。作製した各試料は KUR B-4 ポートで中性子イメージング実験を行い、減衰率、発光強度を計測した。さらに、各試料の発光挙動を比較するため、顕微鏡とカメラシステムを用いた観察も行った。各実験体系を Fig. 1 に示す。

Table 1 Sample list

Sample name	Neutron absorbing material	Phosphor
LF-1	⁶ LiF	ZnS:Cu,Al
LF-2	⁶ LiF	ZnS:Ag
BN-1	BN	ZnS:Cu,Al
BN-2	BN	ZnS:Ag
BN-3	BN	ZnO:Zn
10B-1	¹⁰ B	ZnS:Cu,Al
10B-2	¹⁰ B	ZnS:Ag
10B-3	¹⁰ B	ZnO:Zn
BO-1	B ₂ O ₃	ZnO:Zn

3. 実験結果：作製した各シンチレータの減衰率を比較すると、⁶LiF/ZnS シンチレータ(LF-1, 2)では2%程度に対して BN シンチレータ(BN-1, 2, 3)の減衰率は1%程度であった。¹⁰B シンチレータ(10B-1, 2, 3)では減衰率が23%と突出して高く、比較的多く中性子を吸収することが確認できた。一方で、B₂O₃ シンチレータ(BO-1)では減衰が見られなかったため、課題点を検討する必要がある。

次に発光強度の比較をした。表2に示すように、カメラシステムで撮影したため、発光強度は画像輝度の相対値でのみ評価を行った。発光強度も輝度に

応じたものと期待される。LF-1の画像輝度を1とすると、BN-1,2はそれぞれ23%の輝度、10B-1でも同等であった。特に¹⁰B含有シンチレータは中性子の吸収も多く、BNシンチレータより明るく発光すると期待したが、予想より発光しない結果となった。¹⁰Bが黒色であることも影響していると考えられる。

Fig. 2に顕微鏡を使った発光挙動の観察結果を示す。露光時間を1/1000 sに設定し、高速度カメラで撮影することで明瞭に発光点を観察することができ、各シンチレータの特徴を定性的に示すことができた。今後、より詳細な解析を行う予定である。

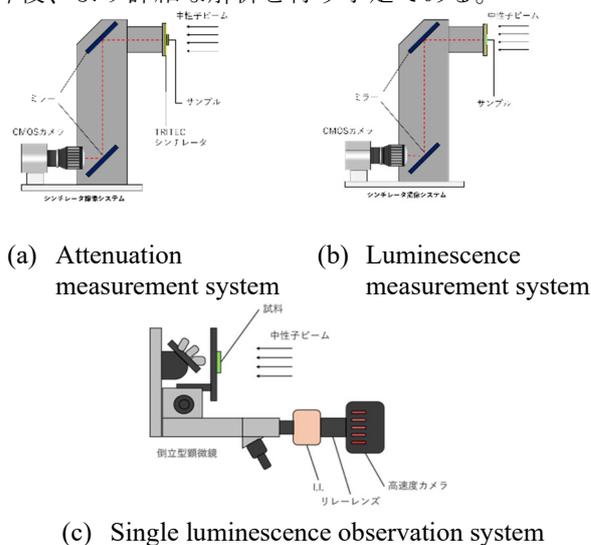


Fig. 1 Experimental apparatus for each measurement

Table 2 Experimental results of attenuation and luminescence intensity

Sample name	Attenuation [-]	Brightness[-]
LF-1	0.017	1.0 (set as 1.0)
LF-2	0.019	1.0
BN-1	0.012	0.23
BN-2	0.012	0.23
BN-3	0.011	0.07
10B-1	0.208	0.26
10B-2	0.164	0.14
10B-3	0.172	0.04
BO-1	-	0.0

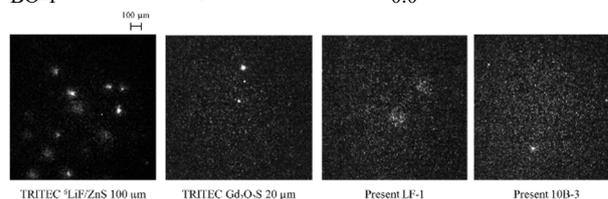


Fig. 2 Luminescence observation results

参考文献

[1] . Chirazzi, *et al.*, J. Imaging, **6(11)**, 124 (2020)

(P21) 新規ヒ素凝集性タンパク質 GatB のヒ素特異的な凝集プロセスの解明

(千葉大院・工・共生¹, 東京科学大・研究院・細胞センター², 千葉大院・薬³, 京大・複合研⁴, 千葉大院・理⁵, 神奈川工大・基礎・教養教育セ⁶, 千葉大・国際高等研究基幹⁷) ○河合(野間) 繁子¹, 後藤千穂¹, 大塚康児¹, 丹羽達也², 田中佑樹³, 齋藤卓穂¹, 須田奈月¹, 守島健⁴, 清水将裕⁴, 伊藤敦之⁵, 小笠原諭⁵, 村田武士⁵, 杉山正明⁴, 神谷克政⁶, 矢貝史樹^{1,7}, 小椋康光³, 田口英樹²

1. はじめに:

三価のヒ素(以下ヒ素)は強い毒性を持ち、その一因として、タンパク質中のチオール基と結合し凝集させることが知られている[1]。しかし、凝集するタンパク質の特性や凝集機構については未解明な点が多い(Fig.1)。ヒ素によるタンパク質凝集は、生体毒性や疾患との関連といった負の側面が注目されてきた一方で、我々はこれまでに、タンパク質凝集の機能スイッチとしての可能性を見出してきた[2]。この知見をさらに発展させ、ヒ素によって凝集するタンパク質群の特徴を体系的に理解することを目的として、我々は、モデル生物である大腸菌の全4000種のタンパク質を対象に、LC-MS/MSを用いた網羅的解析を行った。その結果、ヒ素により凝集化する23種類の候補タンパク質を同定した。これらの候補タンパク質について精製系を構築し、個別にヒ素凝集性を評価した結果、8種のタンパク質をヒ素凝集性タンパク質として同定した。本研究では、その中で最も顕著なヒ素凝集性を示したタンパク質 GatB に着目し、物理化学的解析を通して、ヒ素特異的な凝集プロセスの分子機構を解明することを目的とした。

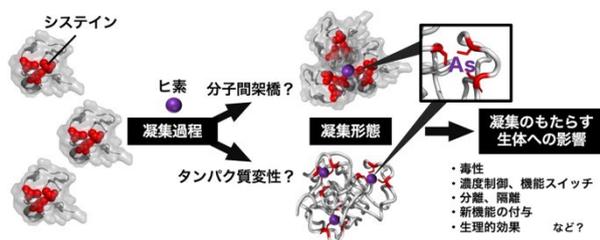


Fig. 1 本研究の狙い

2. 方法

GatB のヒ素結合部位を特定するため、活性部位となるシステイン残基(C9)をセリン、スレオニン、ヒスチジンに置換した変異体(C9S, C9T, C9H)を作製した。各変異体と野生型 GatB を Ni-NTA セファロースで精製したのちに、ヒ素濃度 62.5 ppm となるように亜ヒ酸を添加し、室温で 24 時間反応させた。その後、SDS-PAGE および ICP-MS により沈殿画分を解析し、凝集挙動とヒ素結合量を評価した。また、DLS (動的光散乱)、AUC (分析超遠心)、および SAXS (小角 X 線散乱) を用いて、ヒ素結合に伴う分子会合サイズの経時変化を解析した。さらに、ヒ素の結合によって単量体構造に生じる変化を MD シミュレーションにより予測した。

3. 結果

GatB のヒ素による凝集挙動とヒ素結合量を SDS-PAGE と ICP-MS で評価した結果、沈殿画分中のタンパク質及びヒ素の量が共に増加することから、ヒ素は GatB と共に凝集体に取り込まれていることが示唆された。変異体は野生型に比べて沈殿画分におけるタンパク質およびヒ素量が著しく低下していることから、C9 がヒ素依存的な凝集形成に関与していると考えられた。また、DLS、AUC、および SAXS による分子会合サイズの経時変化計測から、GatB はヒ素結合により単量体からオリゴマーを経て巨大凝集体へと段階的に凝集することが明らかとなった(Fig. 2)。さらに、MD シミュレーションの結果から、ヒ素が GatB の C9 と C39 を架橋するように結合し、その結果、疎水性残基の表面露出面積が増加することが予測された。これらのことから、ヒ素結合によって疎水性相互作用を誘発し、GatB の凝集を引き起こしていると考察される。

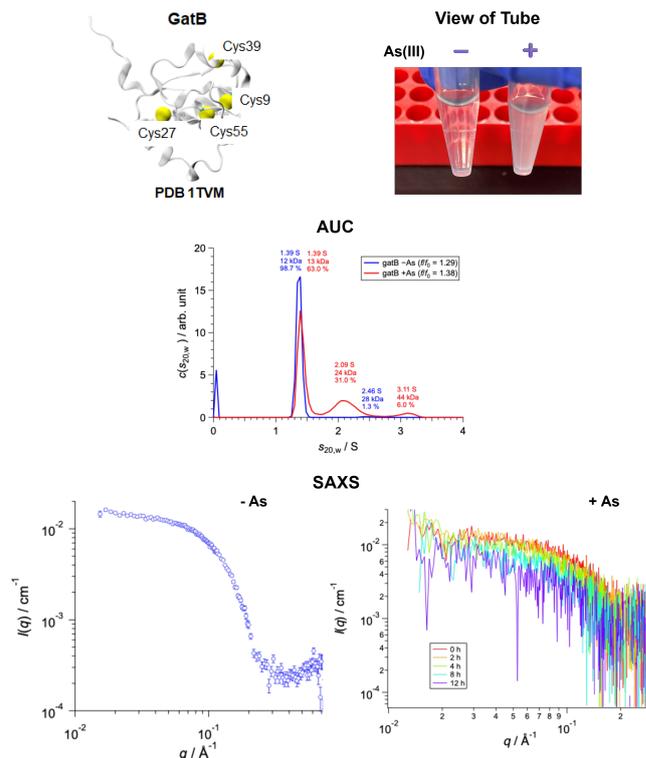


Fig. 2. GatB のヒ素凝集特性の多角的評価

参考文献

- [1] T. Jacobson, et al., J. Cell Sci., 125 (2012)
[2] Rina Ayuba, et al., J. Biosci. Bioeng., 133(4) (2022)

Elucidation of the As(III)-specific aggregation process of the novel As(III)-aggregating protein GatB

Shigeko Kawai-Noma, Chiho Goto, Koji Ootsuka, Tatsuya Niwa, Yu-ki Tanaka, Takuho Saito, Natsuki Suda, Ken Morishima, Masahiro Shimizu, Atsuyuki Ito, Satoshi Ogasawara, Takeshi Murata, Masaaki Sugiyama, Katsumasa Kamiya, Shiki Yagai, Yasumitsu Ogura, Hideki Taguchi
kawai-noma@chiba-u.jp

(P22) 細菌/真核生物のデホスホ CoA キナーゼと相同性をもつ 超好熱性アーキア由来タンパク質のX線結晶解析

(京大複合研¹、京大院工²、NIH³、京大院理⁴) ○喜田昭子¹、石田侑那²、下坂天洋²、道盛裕太²、Kira Makarova³、Eugene Koonin³、跡見晴幸²、三木邦夫⁴

1. はじめに：補酵素 A (CoA)は、すべての生物にその生合成経路が存在し、その様々な誘導体が TCA 回路を始めとする多種の生体内代謝に関わる、重要な物質である。真核生物や細菌では、2-オキソイソ吉草酸を出発物質として、8 種類の酵素による 8 段階の酵素反応を経て CoA が生合成されることが明らかになっており、各酵素の結晶構造解析も行われているなど研究が進められてきた[1]。一方、アーキアにおいてはその経路内で、真核生物や細菌とは違ういくつかの新規酵素や、これまで見られなかった新たな性質を利用していることが跡見らにより明らかになった[2]。その新規酵素の一つとして、生合成経路の最終反応を司る酵素、デホスホ CoA キナーゼがある。超好熱性アーキア *T. kodakarensis* においては、真核生物や細菌の同酵素と若干のアミノ酸配列相同性をもつ TK1334 タンパク質または TK2192 タンパク質がその機能を担うと考えられてきたが、それらはその機能を持たず、代わりに全く相同性をもたない TK1697 タンパク質がデホスホ CoA キナーゼであることが明らかになった[3]。TK1697 タンパク質の相同タンパク質はアーキア内では高く保存されているため、多くのアーキアではこの酵素が生合成経路の最終反応を司ることが考えられた。我々は *T. kodakarensis* のデホスホ CoA キナーゼの構造を初めて明らかにした[4]。一方で、TK1334、TK2192 各タンパク質の構造については明らかになっていない。なぜこれらのタンパク質がデホスホ CoA キナーゼの機能を持たないのかを明らかにするために、我々は TK1334、TK2192 タンパク質の構造生物学的研究に着手した。ここでは、TK1334 タンパク質の結晶構造解析について報告する。

2. 実験：TK1334 は、アミノ酸残機数 185、分子量約 21,000Da のタンパク質である。アミノ酸配列相同性検索からは *sulfolobus solfataricus* 由来タンパク質である adenylate kinase-related protein (PDBcode 3h0k または 3lw7 (3h0k - AMP 複合体))との相同性が最も高いと示された。TK1334 タンパク質の結晶化条件スクリーニングは、約 10 mg/mL に濃縮した試料を用い、蒸気拡散法で行った。その結果、ポリエチレングリコールを主とした結晶化試薬を使った条件で、常温において 1 週間程度で結晶を得ることに成功した。結晶回折実験はシンクロトロン放射光を用いて行い、構造解析は、3h0k.pdb 座標をモデルとして用いた分子置換法で行った。また、TK1334 タンパク質結晶(以

下、TK1334 結晶)を ATP と Mg を含む溶液(共に 10mM)にソーキングした結晶(TK1334ATPMg 結晶)を調製し、その回折実験も行った。TK1334 結晶は 2.15Å 分解能、TK1334ATPMg 結晶は 2.8Å 分解能の回折データを得て、構造解析に成功した。

3. 結果：TK1334 結晶は、空間群 $P2_1$ 、格子定数は $a=57.9\text{\AA}$, $b=89.4\text{\AA}$, $c=72.0\text{\AA}$, $\beta=90.3^\circ$ で、結晶の非対称単位内に 4 分子含まれていた。また、同結晶をソーキングして調製した TK1334ATPMg 結晶は空間群 $P2_122_1$ 、格子定数は $a=57.9\text{\AA}$, $b=69.2\text{\AA}$, $c=88.8\text{\AA}$ であった。空間群が変化は、ATP と Mg の結合の影響であると考えられた。図 1 に TK1334 と TK1334ATPMg の各結晶の全体構造を示す。

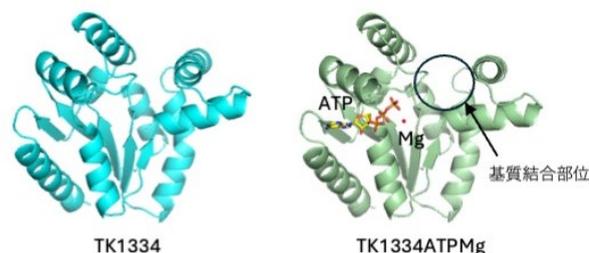


図1. 各分子の結晶構造

TK1334 は 3h0k.pdb や、真核生物や細菌由来のデホスホ CoA キナーゼと同じ、nucleotide monophosphate kinase (NMPK) motif をとっていた。ATP の結合様式も NMPK family のタンパク質と同様であった。TK1334ATPMg では、基質結合部位と考えられるポケットが、その周辺構造が動くことで若干広がっていた。TK1334ATPMg 結晶の空間群の変化は、この構造変化に起因すると考えられる。

参考文献

- [1] Genschel U, *Mol. Biol. Evol.* (2004) **21**, 1242 他多数.
- [2] Yokooji Y, *et al.*, *J. Biol. Chem.* (2009) **284**, 28137 等.
- [3] Shimosaka T, *et al.*, *mBio.* (2019) **10**:e01146-19.
- [4] Kita A, *et al.*, *PROTEINS* (2024) **92**, 768.

(P23) 分子動力学計算と多層パーセプトロンを用いた小角散乱プロファイル解析

(京大複合研¹) ○清水将裕¹

1. はじめに：クライオ電子顕微鏡解析等の実験技術の発達や、生体分子構造モデリング AI である Alphafold の出現により、構造生命科学は飛躍的な進展を遂げた。このような状況下において、未解決の多くの問題は生体分子の分子運動の中にあると考えられている。分子運動を解析する手段としては、電子顕微鏡や原子間力顕微鏡のような分子構造の直接観察法以外にも、核磁気共鳴法、蛍光共鳴エネルギー移動法、小角散乱法等、分子運動の情報を含まうる実験手法による間接的な計測手法も存在する。後者の場合、間接的に測定した分子運動情報から運動の詳細をどれくらい復元できるか？という点を把握することが有用である。具体的には、Q1. 計測データに基づき平衡状態における生体分子の自由エネルギー地形を決定できるか。Q2. 決定できるとしたら、どの程度高い解像度で決定できるのか。という2つの問いへの答えを把握しておくことが好ましい。そこで本研究では、小角散乱プロファイルから動的な生体分子の自由エネルギー地形を復元可能かどうかの検討を行った。学習の程度に応じてモデリング精度が容易に調整可能である点に注目し、多層パーセプトロンを用いた解析テストを実施した。

2. 実験：検討に用いるデータは、シミュレーションソフトウェア CafeMol [1]を利用した粗視化分子動力学シミュレーションによって生成した。得られたスナップショットは BBQ [2], Scwrl4[3]を用いて原子モデルへと変換した。分子構造モデルに対応する X 線小角散乱プロファイルの計算には、Pepsi-SAXS を利用した[4]。得られた分子構造と散乱プロファイルのペアの集合から訓練データとテストデータを用意し、X 線小角散乱プロファイルを入力することで、それに対応する自由エネルギー地形を出力する多層パーセプトロンを作成した。構造がそれぞれ異なる4種類のタンパク質 (MDP1, CCS, HIP3, DnaA) を検討対象として、それぞれのタンパク質ごとに多層パーセプトロンを学習させた。

3. 結果：テストデータとして用意した分子構造集団の小角散乱プロファイルを、作成した多層パーセプトロンに入力し、出力された分子構造集団ともとの分子構造集団の比較を行った。また、出力された分子構造集団の散乱プロファイルを計算し、入力に用いた散乱プロファイルとの比較を行った。その結果、散乱プロファイル比較では、入力散乱プロファイルと出力構造集団の散乱プロファイルは良い一致を示した。具体的には、二つの散乱プロファイルのターで $^{85}\text{Rb}(d, 2n)^{85}\text{Sr}$ 核反応によって製造した。

一致度である χ^2 値を計算したところ、テストに用いたプロファイルのほとんどで 3.0 を下回り、特に大部分で 1.0 を下回った。その一方で、分子構造集団の合致はそれほど良くなかった。解析に用いたタンパク質ごとに、構造を概観するためのパラメータを定義し、その出現確率のヒストグラムを比較したところ、合致しているとは言い難い結果となった。言い換えれば、今回作成した多層パーセプトロンでは、入力した散乱プロファイルに対して χ^2 値が 3.0 未満となるような散乱プロファイルをもつ分子構造集団を出力可能であった。しかし、その出力構造集団は入力散乱プロファイルを生成した構造集団とはかなり異なっていた。多層パーセプトロンの改良としては、入力の散乱プロファイルに対しての χ^2 値が極めて小さいような散乱プロファイルに対応する構造集団を出力するという方向性がありうる。しかし、実験データに潜在的な誤差を考慮すると、この方向性の多層パーセプトロンの改良は、単に実験誤差を無視する結果となりかねない。残念ながら、実験データに含まれる系統誤差および統計誤差を考慮すれば、小角散乱プロファイル単独から動的な生体分子の自由エネルギー地形を厳密に決定することは困難であることを示唆している。測定対象分子の柔軟さが小さいほど、自由エネルギー地形の復元可能性が高まることも示唆されたため、小角散乱測定に当たっては測定対象の選定が重要であるといえる。

参考文献

- [1] H. Kenzaki *et al.*, *J. Chem. Theory Comput.*, **7** (2011) 1979-1989.
- [2] D. Gront *et al.*, *J. Comput. Chem.*, **28** (2007), 1593-1597.
- [3] G.G. Krivov *et al.*, *Proteins: Struct., Funct., Genet.* **77** (2009), 778-795.
- [4] S. Grudinin *et al.*, *Acta Crystallogr. D Struct. Biol.* **73** (2017), 449-464.

(P24) モンテカルロ法による中性子輸送問題に対する摂動計算の高速化に関する研究

(京大院工¹、京大複合研²) ○王一名¹、山本俊弘²

1. はじめに：モンテカルロ法による輸送計算は、原子力発電の安全かつ効率的な運転を実現するため、核設計として有効な手法である。核反応に伴う媒質の変化、温度変動などは、核特性に影響を及ぼし、これらの影響の高精度かつ高効率的な評価には、摂動計算が有力な方法である。本研究では、実効増倍率の微小な変動を評価するため、モンテカルロ法による実効増倍率の感度の摂動計算を四つの方法で行った。

2. 研究内容：感度係数の対象とするパラメータは均質化されたウラン燃料棒の軽水減速格子配列中に配置された微小プルトニウム水溶液の核分裂断面積とした。エネルギー群は3群とし、そのうち1群断面積による感度を求めた。概略を Fig. 1 に示す。この系に対して、摂動源法(PSM)、相関サンプリング法(CS)、微分演算子サンプリング法(DOS)、反復核分裂確率法(IFP)で実行した。更に摂動源法については、(i) 摂動系で生成された摂動核分裂源を非摂動系の核分裂源と統合する手法[1]及び、(ii) 計算効率を向上させるための擬似散乱手法[2, 3]を適用し、それぞれについての最適パラメータを探索した。

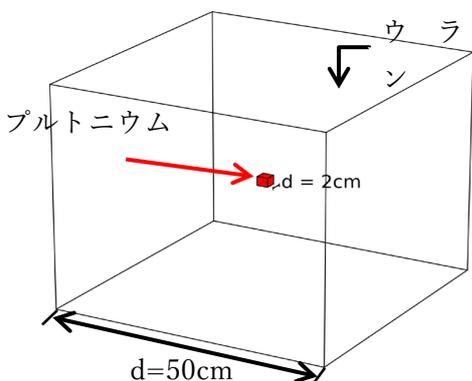


Fig. 1. Light-water-moderated of UO₂ fuel rod array.

3. 結果：四つの摂動計算法の結果及と計算効率を評価する指標(figure-of-merit, FOM=1/(σ²T))を Table 1 に示す。摂動源法は、他の摂動計算法よりも2桁以上の優れた性能を有する。摂動源法について、(i) Fig.2 には、三次元メッシュ法による均一とする核分裂源分布を対象として、異なるメッシュ分割数に対する一回の最近傍探索における理論上探索対象となる核分裂源数と、二種類のメッシュ法による最近傍探索の計算時間を示す。(ii) 擬似散乱により摂動核分裂源をより多くに発生させることで(全断面積 Σ_t^{*}=C·Σ_t)、最近傍の核分裂源までの距離を短縮する手法では、源摂動を考慮しないときの精度を向上で

きる一方で、計算時間は増加する。この手法について、擬似散乱増倍率 C と源摂動を考慮しないときの感度係数の分散の関係を Fig.3 に示す。更に、この分散の C の依存性をフィッティングし、C 倍に増加した擬似散乱に要する計算時間を分離したときの FOM が最大となる C を求めた。

Table 1. Comparison of k-eigenvalue sensitivities.

	$\partial k_{eff}/\partial a$	time(s)	FOM
PSM	$1.0924 \times 10^{-2} \pm 7.1 \times 10^{-6}$	2.1006×10^4	9.4263×10^5
CS	$1.0617 \times 10^{-2} \pm 2.1 \times 10^{-4}$	4.2427×10^3	5.1408×10^3
DOS	$1.0678 \times 10^{-2} \pm 9.8 \times 10^{-5}$	1.8968×10^4	5.4805×10^3
IFP	$1.1244 \times 10^{-2} \pm 3.3 \times 10^{-4}$	9.8392×10^3	9.3712×10^2

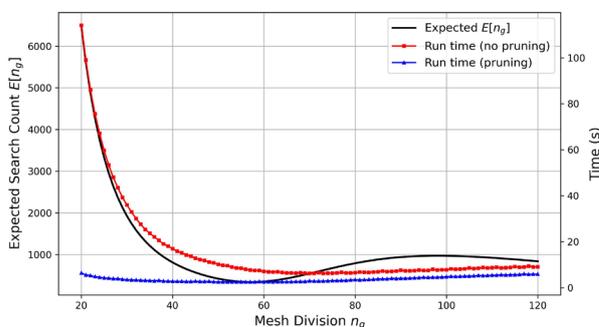


Fig. 2. Expected search count per nearest-neighbor search and run time (with/without pruning) as a function of mesh division n_g for a uniform 3-D mesh.

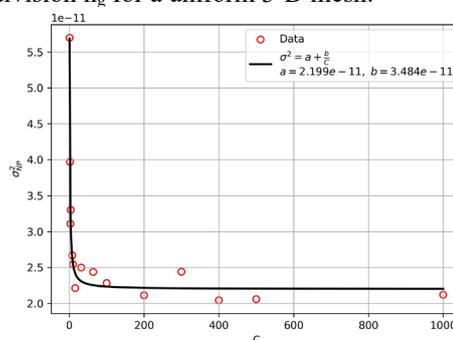


Fig. 3. Variance of k-eigenvalue sensitivities without fission source perturbation as a function of C.

参考文献

- [1] T. Yamamoto *et al.*, J. Nucl. Sci. Tec., **58**(2021) 886–898.
- [2] Sakamoto H *et al.*, J. Comput. Phys., **345**(2017) 245–259.
- [3] Yamamoto T *et al.*, Prog. Nucl. Eng., **132**(2021):10361

(P25) 人と動物実験のギャップを橋渡しする卵殻膜研究

— ³H ラベル体内動態解析と IBD モデルによる腸内細菌バランス改善機序の解明 —

(帝京大先端総合研究機構¹、農工大院工²、帝京大医療技術³、東大アイソトープ⁴、京大複合研⁵、東北大院医皮膚⁶、東大医皮膚⁷、東大院疾患生命⁸、(株)アルマード⁹) ○清水 美穂¹、菅井 航²、藤田 恵理³、跡見 綾²、野川 憲夫⁴、高宮 幸一⁵、吉永 尚生⁵、浅野 善英⁶、山下 尚志⁷、榎本 敦⁸、長谷部 由紀夫⁹、渡邊 敏行²、跡見 順子¹

1. はじめに：炎症性腸疾患 (IBD) は慢性的な炎症により腸管の線維化・狭窄を引き起こし、生活の質を著しく損なう。腸管線維症は ECM の過剰蓄積と組織硬化を特徴とし、進行後は外科的切除以外に根本治療が乏しい。一方、ECM は幹細胞ニッチや上皮再生能を規定する力学的因子であり、線維化を可逆的な動的リモデリング過程として制御するという概念が注目されている。鶏卵殻膜 (ESM) は伝統的創傷治癒素材で、繊維状タンパク質を中心とした天然複合体である。最近、ESM および主要成分リゾチーム (LYZ) (図 1) はデコリン分泌促進や TGF-β 抑制を介して肺線維症を改善するなど、内因性抗線維化因子として機能することを示した[1, 2]。

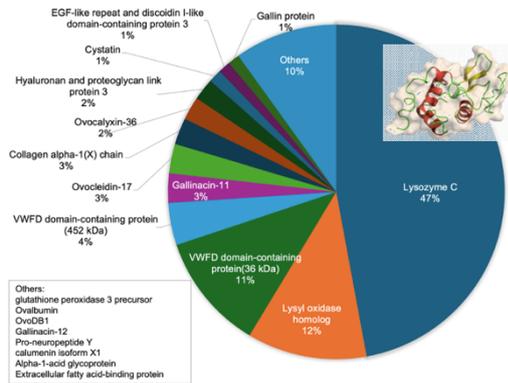


Figure 1. Major Protein Components of ESM [1].

また、ESM 摂取が大腸炎や肝線維症を軽減する報告もあるが、生体内動態や腸内環境への作用機序 (腸内細菌叢、ECM リモデリング、幹細胞ニッチ) には未解明点が多い。本研究では、核反応 [⁶Li(n, α)³H] を用いた ³H 標識 ESM [3] により、経口投与後の体内動態を定量化し、ESM が腸管および全身にどの程度到達し得るかを明らかにすること、また、疾患モデルを用いて腸管線維症と腸内環境に対する ESM の包括的作用を解析し、ECM リモデリングと腸内細菌叢調節を介した新たな予防・治療戦略の基盤構築を目指した。

2. 実験： ESM 粉末を炭酸リチウムとともに石英管に封入し、中性子照射により ⁶Li(n, α)³H 反応で ³H を導入した。³H-ESM をゼリーに混和して経口投与し、0.5~72 時間後に血液・主要臓器・便を採取した。液体シンチレーション法で ³H 量を測定し、組織分布を算出した。統計解析は ANOVA および必要な多重比較を用いた。

3. 結果：図 2 にトリチウム標識卵殻膜 (³H-ESM) をマウスに単回経口摂取させた薬物動態を示す。³H-ESM を経口投与したところ、血中放射能は投与 5 時間後にピークに達し、その後漸減した。消化管では、十二指腸および小腸で投与 2 時間後に早期ピークが認められ、続いて大腸、肝臓、腎臓、肺、皮膚へと広範に分布した。直腸便中の放射能は未消化成分の排泄を反映するとともに、腸管腔内に滞留する ESM 由来成分の存在を示したが、比較的速やかに排泄された。図 3 は本研究 [1] の全体像を示す。

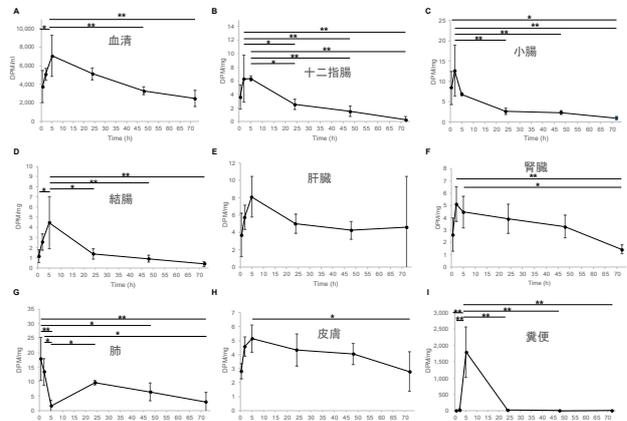


Figure 2. Tissue distribution of tritium-labeled eggshell membrane components following oral administration in mice[2].

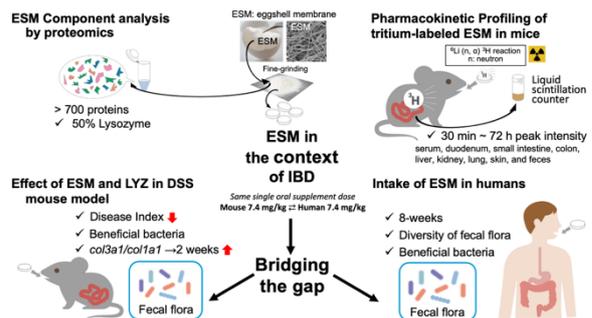


Figure 3. Summary of the total study [1].

参考文献

[1] M. Shimizu, et al.: Int J Mol Sci, 26 (2025).
 [2] Ohto-Fujita, et al. Biochem Biophys Rep, 39, 101806 (2024).
 [3] E. Ohto-Fujita, et al. Journal of Fiber Science and Technology, 77, 182-187 (2021).

(P26) Development and numerical simulation of a segmented Soller Collimator for Neutron Imaging

(京大院工¹、京大複合研²、阪大 RCNP³、東北大多元研⁴) ○Yunhao Gu¹、日野正裕²、樋口嵩^{2,3}、關義親⁴、藤谷龍澄^{1,2}

1. Introduction

Neutron imaging is a powerful non-destructive testing technique that generates images by visualizing the neutron attenuation distribution within a sample, thereby revealing its internal structures or dynamic processes. In neutron imaging systems, a collimator is positioned between the neutron source and the sample. It serves as a key component to limit the divergence angle of the neutron beam and improve instrument resolution. However, to achieve high spatial resolution images, conventional collimator designs typically require a longer or narrower flight path to restrict beam divergence. This results in a decrease in neutron intensity, which increases measurement time and reduces the Signal-to-Noise Ratio of the image [1].

To optimize the balance between beam collimation and neutron intensity, this study introduces a segmented structure design based on the Soller collimator [2]. By arranging multiple short collimator units in an aligned array, the effective length of the absorbing blades can be reduced. This collimation system achieves higher neutron transmission intensity while maintaining an appropriate collimation angle (with a divergence range of 1 mrad to 10 mrad), thereby demonstrating strong practical potential for neutron imaging and related applications.

2. Simulation

A segmented Soller collimator system with a total length of 1.45 m was simulated using McStas. The collimator units consisted of silicon (Si) substrate (724.5 μm thick) and gadolinium (Gd) absorbers (0.5 μm thick). By varying the number of segments and the length of the segments, we calculated neutron transmission and beam divergence for the different configurations. Table 1 indicates that transmission varies inversely with effective length, and that fewer, longer segments optimize collimation for a given length. Balancing these factors, a two-segment design with a segment length of 0.16 m was selected.

Configuration	Divergence (mrad)	Transmission (%)
0.12m 3seg	9.26 ± 0.325	44.96 ± 1.81
0.12m 4seg	6.41 ± 0.590	41.32 ± 1.71
0.12m 5seg	2.24 ± 0.180	37.84 ± 1.62
0.16m 6seg	1.72 ± 0.050	35.45 ± 1.55
0.16m 2seg	7.92 ± 0.080	45.60 ± 1.82
0.16m 3seg	5.44 ± 0.280	40.26 ± 1.68
0.16m 4seg	2.12 ± 0.103	35.81 ± 1.56
0.16m 5seg	1.57 ± 0.067	33.27 ± 1.49
continue type	1.00 ± 0.024	27.39 ± 1.32

Table. 1. Beam Divergence and Transmission of Different Configurations.

3. Neutron Experiment

The segmented Soller collimator system was tested at the C3-1-2 (MINE1) port of JRR-3. The MINE1 beam provides a white neutron beam with a peak wavelength of about 0.8nm. The setup, shown in Figure 1, consisted of two 0.16 m long collimator units, each with a calculated collimation angle of 4.77 mrad and 46.86% transmission. The units were aligned parallel to the beam by scanning their positions to maximize intensity at the ^3He detector. Beam divergence was measured by analyzing the edge blurring of a 3 mm Cd slit. By plotting the FWHM of the blur against the sample-to-detector distance (Figure 2), the divergence angle was calculated from the linear slope. The experimental results show good agreement with the simulations. Comparisons of divergence with and without the collimator confirmed its effectiveness for neutron imaging. To further improve neutron flux and shorten image acquisition time, future research will focus on incorporating mirror structures.

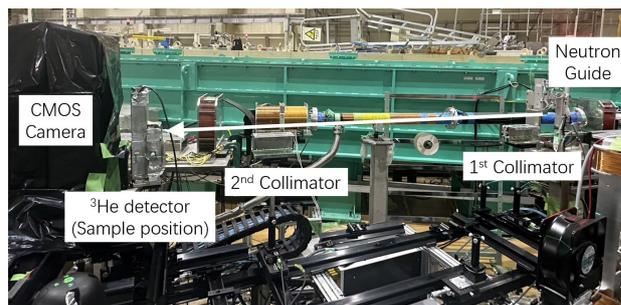


Fig. 1. Experimental setup for neutron imaging.

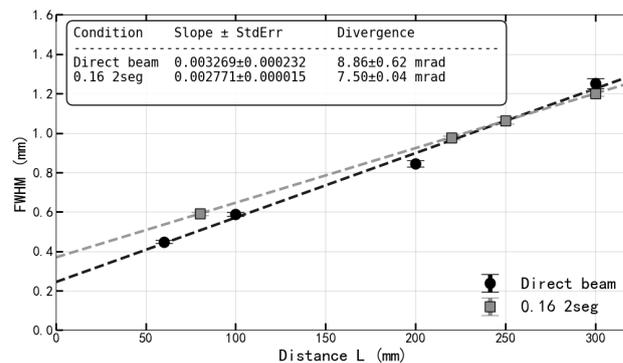


Fig. 2. Linear fitting of FWHM as a function of sample-to-detector distance.

Reference

- [1] L. D. Cussen, Nucl. Instr. and Meth. A, 414 (1998) 365-371.
 [2] W. Soller, Phys. Rev., 24 (1924) 158.

(P27) 「もんじゅ」サイト新試験研究炉の実験装置検討

(京大複合研) ○佐藤信浩、稲垣誠、伊藤大介、南部雄亮、川端祐司、高宮幸一、日野正裕、杉山正明

1. はじめに

福井県敦賀市の「もんじゅ」サイトに建設が計画されている新試験研究炉については、京都大学複合原子力科学研究所が中心となって実験装置や運営体制の検討を進めており、学術研究・産業利用・人材育成・地域振興に資する施設の実現に向けて議論を重ねている。新試験研究炉は中性子ビーム利用を主目的とする中出力炉(熱出力 10 MW 未満)として位置付けられているが、中性子照射利用を含む多目的利用を視野に入れ、汎用性と先端性を両立した実験装置群の整備を目指している。同時に、稼働開始までに人材育成や技術継承を進めるため、関連コミュニティからの意見を取り入れつつ、最新の科学技術動向を踏まえた継続的取り組みを進めている。本発表では、令和 7 年度時点における実験装置検討の進捗状況について報告する。

2. タスクフォースによる実験装置検討

実験装置の検討に関しては、新試験研究炉での設置が想定される各実験装置について、令和 6 年度より各分野の専門家の協力のもと装置検討タスクフォースを設置し装置提案に向けた本格的な検討を開始した(Table 1)。汎用性や利用ニーズの観点から 5 つの装置を優先的に検討することとした。また、炉設計と密接に関連する炉周辺装置についても先行して

検討を開始している。一方、令和 7 年度からは新たに、高分解能装置、中性子単結晶回折、メスバウアー分光、中性子ビーム輸送・制御の 4 つの TF を追加して、さらに多様な装置の検討を実施している。

3. 既存施設を用いた研究開発

新試験研究炉の完成には長期間を要するため、稼働開始までの間に中性子利用に関する技術を着実に継承し、科学技術や社会情勢の変化に迅速に対応することが重要である。そのため、令和 7 年度より各タスクフォースにおいて既存の中性子施設を活用した技術開発・装置開発に着手した。現在進行中の主な開発課題については Table 1 に示す。

4. さいごに

今後は、実験装置の仕様策定を進めるだけでなく、学術および産業分野の動向を踏まえたコミュニティの発展にも寄与する必要がある。KUR や JRR-3 などの既存中性子施設を活用したモックアップ・プロトタイプ開発や解析高度化を継続的に推進し、その成果を新試験研究炉の装置設計・運用へと反映させていく。また、人材育成や新規利用分野の開拓に向け、多方面からの意見や要望を取り入れながら、継続的にプロジェクトを推進していく。

Table 1 実験装置検討のためのタスクフォース (TF) と開発課題

TF 名	種別	R7 年度開発課題
中性子小角散乱	優先装置	動的計測を実現する中性子検出器制御システムの開発 国産低メンテナンスコストの速度選別機開発に向けた調査と設計
中性子イメージング	優先装置	中性子イメージング技術の高度化
中性子粉末回折	優先装置	中性子の環境理工学応用のための高温高圧水反応計測システム開発
中性子反射率	優先装置	中性子反射率装置に関わる技術開発、調査
中性子放射化分析・RI 製造	優先装置、 炉周辺装置	中性子放射化分析法の利用拡大に向けた自動化システムの開発
陽電子ビーム	炉周辺装置	原子炉ベース低速陽電子ビームの高強度化に関する研究
材料照射	炉周辺装置	新試験研究炉での照射実験の利用促進を目的としたシンプルで効率的な照射キャプセルの開発
生物照射	炉周辺装置	生物照射装置のための新しい生物照射技術の開発
素粒子原子核	炉周辺装置	原子炉超冷中性子源のための基礎要素開発
三軸分光	炉周辺装置	高効率非弾性散乱装置の検討および予備開発
高分解能装置	R7 年度開始	冷中性子源を活用した高エネルギー分解能装置の検討
中性子単結晶回折	R7 年度開始	中性子単結晶回折装置設置に向けた測定技術、解析手法の研究・開発
メスバウアー分光	R7 年度開始	新研究試験炉に向けたメスバウアー分光システムの高度化研究
中性子ビーム輸送制御	R7 年度開始	低速中性子ビーム輸送の高度化に向けた基盤整備 I

Neutron instruments study for the new research reactor at the “Monju” site

Nobuhiro Sato, Makoto Inagaki, Daisuke Ito, Yusuke Nambu, Yuji Kawabata, Koichi Takamiya, Masahiro Hino, Masaaki Sugiyama
sato.nobuhiro.5u@kyoto-u.ac.jp

(P28) SAXS/SANS を用いたアコヤガイ貝殻タンパク質 nacrein の構造解析

(東大院農¹、京大複合研²) ○浪川勇人¹、守島健²、井上倫太郎²、杉山正明²、鈴木道生¹

1. はじめに：生物は特定の立体構造をとらない天然変性領域 (Intrinsically Disordered Region: IDR) を有するタンパク質を利用して、特定の機能を発現することがある。その動的な構造アンサンブルを理解することが生命現象の解明に不可欠であるが、X線結晶構造解析やクライオ電子顕微鏡法といった手法では、IDRの構造解析を行うことができない。X線小角散乱法 (SAXS) や中性子線小角散乱法 (SANS) は分子の形状や構造の広がりや溶液中で直接解析できる手法であり、IDRを持つタンパク質の構造解析において強力な手法となる。本研究では、真珠養殖に用いられ、バイオミネラリゼーション研究のモデル生物でもあるアコヤガイの貝殻に含まれるタンパク質 nacrein に着目した。アコヤガイは炭酸カルシウム (CaCO₃) の貝殻を持つ生物であり、nacrein は CaCO₃ と相互作用して溶液中のランダムな CaCO₃ 結晶の析出 (均一核生成) を阻害し、特定の場所で純度の高い CaCO₃ を沈着させる活性を有することを見出してきた。nacrein は構造を持つ炭酸脱水酵素ドメインと、Gly-Xaa-Asn の繰り返し配列を持ち、IDRである GXN ドメインから構成されるマルチドメインタンパク質である。貝殻形成における nacrein の役割の詳細を理解するために、立体構造が未解明な GXN ドメインの構造的特徴を明らかにすることが不可欠である。そこで、nacrein の SAXS および SANS 測定を通じて、溶液状態での nacrein の構造情報を得ることを本研究の目的とした。

2. 実験：天然物の貝殻から nacrein を抽出・精製した。SAXS 測定前にサイズ排除クロマトグラフィーにより nacrein を精製し、1.24 mg/mL のサンプルを得た。さらに、この nacrein に CaCO₃ を加えることで、1.22 mg/mL nacrein, 14 mM CaCO₃ 溶液を調製した。SAXS 測定には複合研に設置されている Cu 線源 X 線小角散乱装置 NANOPIX を用いた。また、サイズ排除クロマトグラフィーにより nacrein の溶媒が 0% D₂O と 100% D₂O の 2 サンプルを調製し、Institut Laue-Langevin の D22 にて SANS 測定を行った。

3. 結果：はじめに、nacrein の溶液中での全体構造を SAXS 測定により評価した (図 1)。得られた散乱プロファイルに対して Kratky 解析を行ったところ、構造化されたドメインと天然変性領域 (IDR) を併せ持つタンパク質に典型的な散乱挙動が確認された。この結果は、nacrein が構造を持つ炭酸脱水酵素ドメインと柔軟な GXN ドメインという、二つの独立した領域から構成されていることを示唆して

いる。さらに、二体間距離分布関数 $P(r)$ を算出したところ、最大粒子径 (D_{\max}) は 93 Å に達することが明らかになった。この値は nacrein のアミノ酸組成から予測されるコンパクトな球状構造の場合に比べて大きく、分子が溶液中で非常に伸びた構造をとっていることを示している。

CaCO₃ との相互作用に伴う nacrein の構造変化を解析したところ、CaCO₃ の有無で SAXS プロファイルに有意な変化は見られなかった。このことは、nacrein が自身の高次構造を大きく変化させることなく CaCO₃ と相互作用することを示している。次に、SANS 測定を行ったところ、軽水 (H₂O) 中と 100% 重水 (D₂O) 中で異なる散乱プロファイルが得られた (図 2)。さらに、Guinier 解析により得られる R_g は軽水中が 21.5 Å であったのに対して、重水中は 26.1 Å であった。これは GXN ドメインを主に構成する Gly, Asn, Asp の散乱長密度が軽水中と重水中で大きく異なるためであり、炭酸脱水酵素ドメインと GXN ドメインが空間的に離れた場所に存在するために SANS スペクトルが異なると考えられる。同じタンパク質でも線源や溶媒の D₂O 比率によって異なるスペクトルが得られることは、MD 計算などによって得られる IDR の構造アンサンブルの精緻化に応用できる可能性があり、従来の SAXS プロファイルだけではの精緻化よりもより溶液構造に近い構造アンサンブルの取得に繋がる可能性が高い。今後は、MD 計算と SAXS/SANS を組み合わせ、nacrein が溶液中で取りうる妥当な構造アンサンブルの探索を進めていきたい。

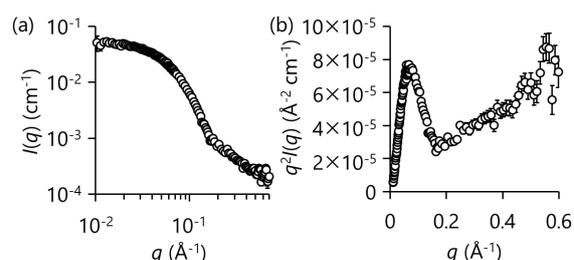


図 1. (a) SAXS プロファイル (b) Kratky プロット

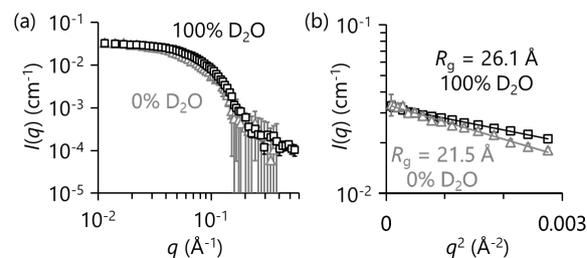


図 2. (a) SANS プロファイル (b) Guinier プロット

(P29) X線小角散乱および分析超遠心による植物R-SNAREタンパク質の構造ダイナミクス解析

(名市大院薬¹、ExCELLS²、京大複合研³) ○矢木宏和^{1,2}、浅井駿佑¹、矢木真穂^{1,2}、守島 健³、井上倫太郎³、杉山正明³、加藤晃一^{1,2}

はじめに：

VAMP721 (vesicle-associated membrane protein 721) は植物特異的な R-SNARE タンパク質で、細胞膜への小胞輸送に重要な役割を担い、極性分泌や細胞伸長に必須の膜融合を媒介する。AlphaFold に基づく構造モデリングでは、VAMP721 が「Close」コンフォメーション、すなわち SNARE モチーフが N 末端の Longin ドメインに折り返して結合する自己阻害状態を形成していた (Fig.1A)。これに対し、クラスリンアダプター PICALM との複合体を想定したドッキングモデルでは、SNARE モチーフが伸長して相互作用にアクセス可能な「Open」コンフォメーションが示唆され (Fig.1B)、立体配座依存的にタンパク質間相互作用を制御する機構の可能性が示された。そこで本研究では、小角 X 線散乱 (SAXS) と分析超遠心 (AUC) を用い、VAMP721 の溶液中でのオリゴマー状態および立体配座の状態を明らかにすることを試みた。SAXS と AUC による相補的な物理化学的手法により、生理的条件下での全体形状、会合状態、配座ダイナミクスを評価し、溶液中で主として閉・開・中間のいずれのコンフォメーションを形成するかを検討した。

2. 実験：

組換え VAMP721 を大腸菌で発現し、GST アフィニティークロマトグラフィーで精製した。タンパク質は 20 mM Tris-HCl (pH 8.0)、150 mM NaCl を含む緩衝液に溶解した。SAXS 測定は 25 °C、KURNS 設置の Rigaku 製 NANOPIX を用い、 q 範囲 0.010–0.70 \AA^{-1} 、試料–検出器距離 1333 mm と 300 mm の二条件で行った。非特異的凝集の影響を最小化するため、AUC と SAXS を統合したデータ削減手法 (AUC-SAXS 法) を適用した。AUC は Beckman Coulter ProteomeLab XL-I を用い、60,000 rpm、25 °C で実施した。

3. 結果：

Fig. 1B に組換え VAMP721 の実験 SAXS プロファイルを示す。得られた散乱曲線を、AlphaFold が予測した Close 状態モデルおよび PICALM とのドッキングシミュレーションで得られた Open 状態モデルから計算した理論プロファイルと比較した。フィ

ッティング解析の結果、VAMP721 は溶液中で Open 状態約 57%、Close 状態約 43% からなる動的平衡として存在することが示された。相互作用結合相手の不在下でも両配座をサンプリングするこの挙動は、VAMP721 が小胞輸送における制御機構の基盤となる配座の可塑性を有することを示唆する。

また、VAMP721 は、Longin ドメインへのリン酸化によって、相互作用分子との結合が制御されていることが知られている。こうしたことから本リン酸化は、VAMP721 の Open-Close の動的平衡に影響することも想定されるため、同手法を利用した解析結果も合わせて報告したい。

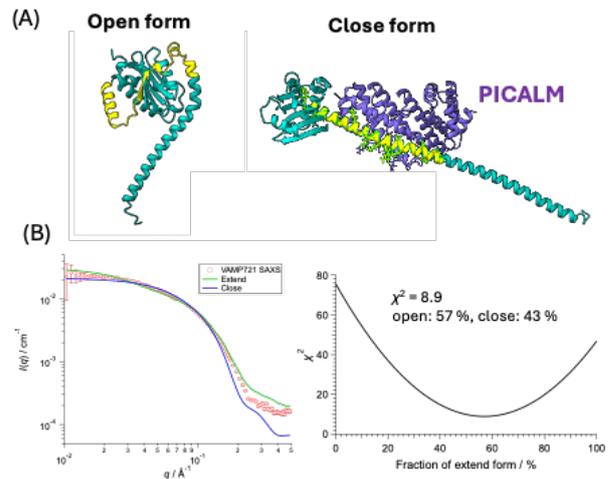


Fig. 1. Solution structure of VAMP721 compared with predicted structural models.

(A) Predicted “closed” and “open” conformation of VAMP721 generated by AlphaFold. (B) Experimental SAXS profile of recombinant VAMP721 (black dots) compared with theoretical scattering curves calculated from the closed (blue) and open (red) models. The experimental data show better agreement with a possible mixture of conformational states in solution.

(P30) KUR CN-3 ポートにおける金属積層造形物評価手法の開発

(東北大多元研¹, 京大院工², 理研 RAP³, 京大複合研⁴)

○關義親¹, 神戸優輝², 河野大輔², 細島拓也³, 日野正裕⁴

1. はじめに：位相イメージング法は、従来の吸収イメージングでは検出が困難な試料内部の微弱な空間構造を、波の位相情報に基づいて高感度に可視化できる。現在、中性子線による位相イメージングの応用研究は、Talbot-Lau (タルボット・ラウ) 干渉計 [1] と呼ばれる光学系を用いる手法が主流となっている。この 3 枚の回折格子から構成される干渉計は、白色ビームに対しても適用可能であり、結晶を用いた光学系と比較してアラインメントが容易であり外部擾乱に対しても堅牢性が高いなどの優れた特性を有する。位相格子と吸収格子を組み合わせることで空間的な強度変調、すなわちモアレ縞を形成し、これを中性子波面の参照情報として用いる。試料によって生じる中性子の吸収・屈折・小角散乱の影響を、モアレ縞の平均強度・位相・ビジビリティー (縞の鮮明度) の変化として同時に取得することが可能である。このうち、ビジビリティーコントラスト像 (散乱像) は、光学系の空間分解能以下の微小構造に関する情報を大視野で捉えられるため注目されている。

われわれは中性子位相イメージングを用いた金属積層造形物の非破壊での欠陥評価手法の開発を進めている。金属積層造形では、レーザーや電子ビームを用いて金属粉末を溶融・凝固させ、層状構造を積み上げながら立体形状を形成する。その造形過程において、内部に数 μm ~ 数十 μm 程度の欠陥 (空隙) が発生しやすく、これらの空隙は造形物の強度低下を引き起こす要因となる。

2. 実験：実際の造形においては、材料粉末・装置ごとに最適な造形条件を探索するため、いくつかの造形パラメーターを変化させながら単純形状を試作し、その表面粗さ、密度、組織などを評価することがよく行われる。本研究では、レーザー出力と走査速度を造形パラメーターとして、粉末床溶融法によって SUS316L 製の立方体標準試料 (1 cm^3) を製作し、中性子位相イメージングによる観察を行った。測定は京都大学複合原子力科学研究所研究用原子炉 (KUR) CN-3 ポートにおいて実施した。本ポートにはその波長スペクトルに最適化した Talbot-Lau 干渉計イメージングシステム (設計波長 2.7 \AA) が常設されている [3]。

3. 結果：図 1 に取得された試料の吸収像と散乱像の一例を示す (右下の試料はコントラスト校正用のアルミ合金ブロックである)。微小空隙による透過率の差異は小さいため、明らかに造形不良である試料

3 を除いて、試料間のコントラスト差は弱く、試料内の分布もほぼ一様であった。一方、散乱像では試料間に明瞭な差異が生じた。ビジビリティー減衰因子が低い部分ほど、空隙率が高く、小角散乱強度が大きいことを示している。試料 2, 3, 6 は、標準条件 (試料 5) よりもレーザーエネルギー密度が不足しており、融合不良による欠陥が形成されていると考えられる。また、試料 7 は高エネルギー密度条件のため、粉末溶融が不安定になり、密度むらが生じている。各試料はイメージング後に断面の光学顕微鏡による観察も行い、空隙分布に対応関係があることも確認された。

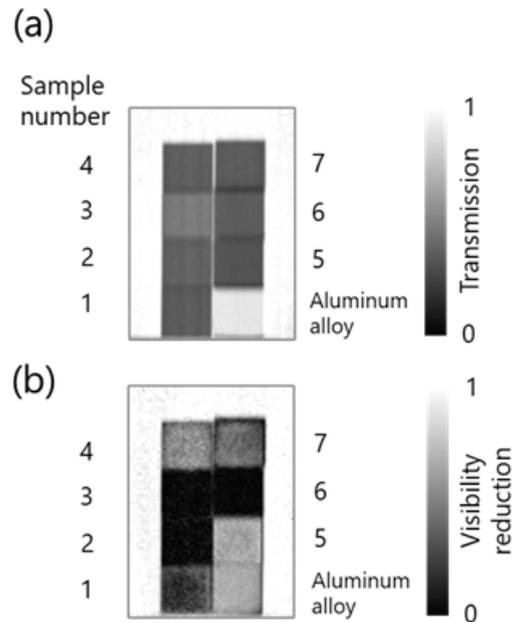


Fig. 1. (a) Absorption and (b) scattering images of SUS 316L blocks fabricated by the laser powder bed fusion process.

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.
- [2] Y. Seki *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 94, 103701 (2023).

(P31) もんじゅサイト新試験研究炉における 中性子照射施設及び中性子放射化分析関連装置の計画

(京大複合研¹、産総研²、福島県立医大³、都立大⁴、原子力機構⁵、大阪大⁶、神奈川大⁷、高エネ機構⁸)
○稲垣誠¹、高宮幸一¹、三浦勉²、鷲山幸信³、秋山和彦⁴、大澤崇人⁵、笠松良崇⁶、白井直樹⁷、土谷邦彦⁵、
吉田剛⁸、佐藤信浩¹

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

2. 検討内容：新試験研究炉における中性子放射化分析および研究用RI製造に関連する実験装置について検討した。照射装置として、気送照射装置、水力照射装置、吊り下げ式照射装置の3種類を検討した。気送照射装置は、炉心からの距離を変えることで中性子束に変化を持たせ、高強度・中強度・低強度のものをそれぞれ2台ずつ、計6台を計画した。低強度の装置のうち1台は自動的な繰り返し照射が可能な装置とする。高強度または中強度の装置のうち1台は、熱中性子の遮蔽機能を備えた速中性子の照射に適した装置とすることを計画している。水力照射装置は、医療用・産業用のRI製造等に3基程度が専有されると想定し、研究用として2台を確保し、合計5台が必要となると見積もった。吊り下げ式照射装置は、比較的大きな試料を原子炉上部から吊り下げて照射する装置であり、1台を計画している。この装置は、京都大学研究用原子炉(KUR)の傾斜照射装置に類似した装置である。

新試験研究炉のホットラボラトリについて、既存の類似施設を参考に検討を行った。KURのホットラボラトリを参考に、最低限必要な実験室・管理施設の種類と面積に基づき、ホットラボラトリの必要床面積は約2,000平方メートルと見積もった。現在の新試験研究炉施設配置計画におけるホットラボラトリの占有面積を考えると、必要床面積を確保するためにはホットラボラトリを多層階化する必要がある。ホットラボラトリには、放射化分析やRI製造のために試料を原子炉に出し入れするための照射ポート、照射済み物質を取り扱うためのフードやグローブボックスを備えた実験室、各種検出器を備えた測定室が必要である。短寿命核種を含む試料を迅速に化学処理し放射線測定をする場合を考慮すると、照射ポート・化学実験室・測定室は、利用者が照射済み試料を安全かつ迅速に移動・搬送できるように配置する必要がある。また、基礎科学研究、検出器開発、少量の核燃料物質の照射、トレーサー製造など、幅広い実験研究の需要があり、これらの研究を行うために必要な設備を整備する必要がある。さらに、利用者の休憩場所や非放射線作業のための作業スペースとして、非放射線管理区域の部屋も必要となる。

また、新試験研究炉における中性子放射化分析の利用者の拡大を目指し、照射・測定・分析の自動化・省力化について検討した。新試験研究炉においては、 k_0 -NAA法を用いた分析の実施、自動照射システム、オートサンプルチェンジャーを備えた自動測定システムを導入し、包括的な自動化・遠隔制御システムを備えることを計画している。

参考文献

[1] 第6回 原子力関係閣僚会議 議事概要, 内閣官房, https://www.cas.go.jp/jp/seisaku/genshiryoku_kakuryo_kai6/gijigaiyou.pdf, 2016-12-21.

(P32) 腫瘍内増殖性/非増殖性細胞の評価法の研究

(京大複合研) ○真田 悠生、高田 卓志、櫻井 良憲、田中 浩基、天満 敬

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、がん細胞の形質に大きく影響している。がん細胞の増殖性も腫瘍組織内で不均一であり、特に増殖性の低いがん細胞が放射線抵抗性を示すことが知られている。このようながん細胞の存在は、再発や転移の原因の1つと考えられており、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進められている[1, 2]。組織内の細胞の増殖性を区別する方法として、ヌクレオチド類似体を用いたものが挙げられる[3]。これは、増殖細胞が DNA 複製時にヌクレオチド類似体を取り込む性質を利用しており、ヌクレオチド類似体と結合する抗体によって、個々の細胞の増殖性を区別することを可能にする。細胞の増殖性を調べる際によく用いられている方法ではあるが、DNA に取り込ませたヌクレオチド類似体の量は、細胞分裂毎に減少していくため、長期的な評価には向かないという欠点がある。そこで、本研究では、Cre-loxP システムを利用し、ゲノム DNA の不可逆的な反応を起こすことによって、長期的な評価を可能にする実験的手法を確立することにした。

2. 実験：細胞の増殖能の影響を長期的に観察できるようにするため、細胞周期関連遺伝子に Cre を融合させた SCCVII 細胞を作製した。樹立した SCCVII 細胞を(ウェルの径の異なる)6, 12, 24 well plate にそれぞれ同数播種し、細胞数の変化を調べた。また、12 well plate に細胞数を希釈しながら播種し、その希釈率に応じて tamoxifen 誘導体(4OHT)を処理した。また、樹立した細胞を C3H マウスの肢に移植し、固形腫瘍を形成させた。事前に tamoxifen を投与することで、増殖細胞でのゲノム DNA 配列の組換え反応を誘導しておき、その後、ガンマ線照射、または中性子照射を行い、照射後にマウスの腫瘍体積を経時観察した。中性子照射は、KUR 重水設備(00-0000F モード)を利用した。

3. 結果：培養細胞実験によって長期的な評価が可能かどうかの検証を行った。まず、細胞を異なる培養環境下におくことで増殖頻度を変化させた。それぞれの条件で、tamoxifen 誘導体(4OHT)を処理し、ゲノム DNA の変化について調べたところ、増殖性が高いほど、ゲノム DNA の組換え効率が高くなることが確認された(図1)。

次に、この tamoxifen 誘導体を処理後の細胞群を4週間継続培養し、細胞群の分布(組換えが起きた細胞、起きていない細胞の割合)が変化しないことを確認した。ゲノム DNA の変化そのものは競合培養時にも増殖能力に大きく影響しないことを示唆している。マウスの下肢に腫瘍細胞を移植したモデルでは、tamoxifen 投与の有無は、照射後の腫瘍組織の再増殖の速度には大きく影響しないことも確認された。再増殖後の腫瘍組織からゲノム DNA を精製し、PCR によってゲノム DNA の変化を解析することで、照射前と再増殖した細胞分布の違いを組織レベルで比較検討することも可能と考えられる。

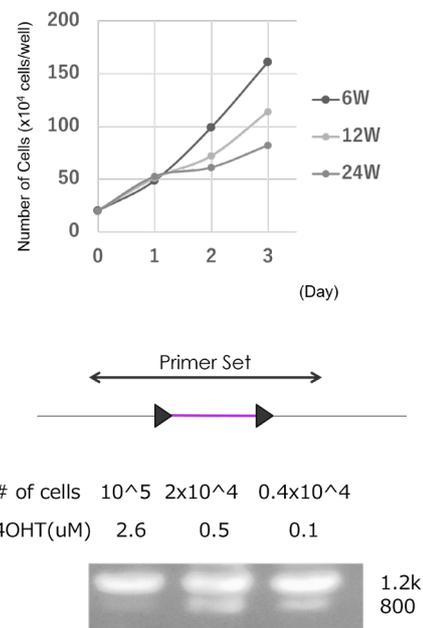


Fig. 1. 増殖速度の違いによるゲノム DNA 組換え効率への影響。細胞密度の違いにより、増殖速度が異なり(上図)、細胞増殖がほぼ起こらない条件では、組換え反応がほとんど進行しない(下図)。

参考文献

- [1] Y. Sanada et al., Int. J. Rad. Biol. 94 (2018) 88-96.
- [2] Y. Sanada et al., Int. J. Rad. Biol. 97 (2021) 1441-49.
- [3] S. Masunaga et al., Int. J. Rad. Biol. 92 (2016) 187-94.

(P33) 超冷中性子による中性子-反中性子振動の探索

(京大複合研¹, 阪大核物理研究センター², 東京科学大学³) ○樋口 嵩^{1,2} 藤岡宏之³

1. 研究背景

中性子-反中性子振動はバリオン数を保存しない反応であり、その探索は宇宙における物質優勢の解明および標準模型を超えた理論の検証において重要な意義をもつ[1]。これまでに、自由中性子に対しては 8.6×10^7 秒、原子核に束縛された中性子に対しては 4.6×10^8 秒という振動時間の下限値が得られている。自由中性子を用いた実験では、真空中を飛行するビーム中性子が反中性子へ変換する現象を、炭素薄膜での対消滅によって探索した[2]。一方、束縛中性子における下限値は、Super-Kamiokandeによる ^{16}O 原子核中の中性子崩壊探索から得られている[3]。さらなる探索感度の向上に向けて、European Spallation Source、Deep Underground Neutrino Experiment、Hyper-Kamiokandeなどでの実験が計画されている[4,5]。

一方、古くから提案されてきたものの、まだ実現されていない第3の方法として、超冷中性子(Ultracold Neutrons, UCN)を用いた探索法がある[6,7]。UCNは物質容器内に数百秒にわたり蓄積可能であるため、ビームを用いた実験よりも3桁長い観測時間を実現できる。しかし、使用可能なUCN数の制限から、現実的な実験は困難であった。近年、スーパーサーマル法と呼ばれる媒質中での中性子の非弾性散乱を利用したUCN生成法により、従来よりも数桁高いUCN密度が実現され、UCNを用いた基礎物理実験が大きく進展してきた[8,-12]。「もんじゅ」サイトにおける新試験研究炉でも、スーパーサーマル法を用いた原子炉UCN源が提案されている。このような背景のもと、UCN蓄積による中性子-反中性子振動探索を改めて検討した。

2. 反中性子-原子核ポテンシャルの中性子-反中性子振動探索への影響

蓄積UCNを用いた実験では、容器壁でのUCN反射の取り扱いが不可欠である。本研究では、単純化した1次元ポテンシャル問題を設定し、中性子・反中性子の重ね合わせ状態からなる波動関数を解くことにより、反中性子の物質における反射率、および反射によって生じる中性子・反中性子成分の位相シフトが探索感度に与える影響を調べた。その結果、実験感度は位相シフトよりも反中性子の反射率に大きく依存することがわかった[13]。したがって、反中性子の反射率が高い物質を蓄積容器に用いることが重要である。

3. 反中性子-原子核散乱長決定のための反中性子ビームラインの提案

反中性子-原子核ポテンシャルを求めるためには、反中性子-原子核散乱長が必要となる。これまで反中性子-原子核散乱長は、原子核に反陽子が束縛された反陽子原子のX線分光結果に基づく反陽子-原子核光学ポテンシャルモデルから導出されてきた。我々は、このモデルをさらに精緻化するため、特に反中性子-原子核散乱長の決定において重要なアイソベクター項の測定を目的とした反陽子原子X線分光実験を提案している[14]。

さらに、反中性子-原子核散乱長の直接測定を目的として、低エネルギー反中性子ビームラインを提案している。本提案では、逆ローレンツ・ブーストを利用し、CERNの既存の反陽子減速器から得られるビームを用いることで、低エネルギー散乱実験に適した運動エネルギー約40 keVの反中性子ビームが実現可能であることを示した[15]。このビームライン提案は、CERNへのLetter of Intentとして提出した[16]。

参考文献

- [1] D. G. Phillips et al., Phys. Rep., 612, 1–45 (2016).
- [2] M. Baldo-Ceolin et al., Z. Phys. C, 63, 409–416 (1994).
- [3] Abe et al. [Super-Kamiokande Collaboration], Phys. Rev. D, 103, 012008 (2021).
- [4] A. Addazi et al., J. Phys. G, 48, 070501 (2021).
- [5] B. Abi et al. [DUNE Collaboration], Eur. Phys. J. C, 81, 322 (2021).
- [6] K. G. Chetyrkin, M. V. Kazarnovsky, V. A. Kuzmin, and M. E. Shaposhnikov, Phys. Lett. B, 99, 358–360 (1981).
- [7] H. Yoshiki and R. Golub, Nucl. Phys. A, 536, 648–668 (1992).
- [8] Y. Masuda et al., Phys. Rev. Lett., 108, 134801 (2012).
- [9] T. M. Ito et al., Phys. Rev. C, 97, 012501 (2018).
- [10] G. Bison et al., Eur. Phys. J. A, 56, 33 (2020).
- [11] S. Degenkolb et al, arXiv:2504.13030.
- [12] B. Algori et al. [TUCAN Collaboration], arXiv:2509.02916
- [13] H. Fujioka and T. Higuchi, arXiv:2508.17725
- [14] T. Higuchi and H. Fujioka, Proceedings of Science 480 (EXA-LEAP2024), 049 (2025).
- [15] A. Filippi, H. Fujioka, T. Higuchi, L. Venturelli, arXiv : 2503.06972
- [16] C. Amsler, D. Calvo, A. Feliciello, A. Filippi, H. Fujioka, T. Higuchi, L. Venturelli, CERN-SPSC-2025-010 (2025).

(P34) LaBr₃ 検出器を用いたサブナノ秒の核励起準位の寿命測定

(名大院工¹、名大アイソトープ²、京大複合研³) ○奥田結衣¹、柴田理尋²、谷口秋洋³

1. はじめに： 数日以上 β 半減期の RI は医療や理学研究で広く利用されているが、長年にわたり核データの精度が見直されてこなかった核種も多い。それらの娘核の励起準位のサブナノ秒の半減期の中には、当時の測定器の性能では測定精度に限界があり、大きな誤差や誤差を超えたらつきが見られる。本研究では、高い時間分解能とエネルギー分解能を併せ持つ LaBr₃ 検出器を用いて、 β - γ 及び γ - γ 遅延同時計数法により励起準位の半減期を再測定する。報告値にばらつきがあり最近まで LaBr₃ 検出器での測定値がなかった ¹⁷⁷Hf をはじめ、数十年前の測定データしかない ⁷⁵As、¹⁴¹Pr、¹⁰³Rh について高精度で信頼性の高いデータの決定を目的とした。

2. 実験： 目的核種 ¹⁷⁷Lu ($T_{1/2}=6.6$ d)、⁷⁵Se ($T_{1/2}=119.8$ d)、¹⁴¹Ce ($T_{1/2}=32.5$ d)、¹⁰³Ru ($T_{1/2}=39.2$ d) は、京都大学複合研の研究用原子炉(出力 1 MW、中性子束密度 1.6×10^{13} n/cm²/s) を用いて熱中性子の(n, γ)反応により作製した。測定時の放射能強度は 5 kBq 以下とした。励起準位は、Table 1 に示すように 2 つのプラスチックシンチレータ ① 50 mm ϕ × 20 mmL (EJ-200) と ② 30 × 30 mm² × 1 mmL (Pilot-U)、2 台の LaBr₃ 検出器(A と B 共に 38 mm ϕ × 38 mmL) を用いて β - γ および γ - γ 遅延同時計数測定を行った。時間分解能と性能確認のために ¹³⁴Cs と ¹⁵²Eu を測定した。時間分解能は 200 keV の γ 線に対して、A は ~0.6 ns、B は ~1 ns であった。目的とする核の励起準位は Table 1 に示す組み合わせで測定した。

Table 1 Measured level of nuclide, detector and evaluation

Nuclide	Level (keV)	Detector	Evaluation (ns)
¹⁷⁷ Hf	113	plastic①,② LaBr ₃ :B	LaBr ₃ :A 0.541(14) [1]
	321	plastic②	LaBr ₃ :A 0.665(16) [1]
⁷⁵ As	199	LaBr ₃ :A	LaBr ₃ :B 0.885(30) [2]
¹⁴¹ Pr	145	plastic②	LaBr ₃ :A 1.85(3) [3]
¹⁰³ Rh	93	LaBr ₃ :B	LaBr ₃ :A 1.11(3) [4]

3. 結果： ¹⁷⁷Hf の 113 keV の準位は、 $\gamma_{208}-\gamma_{113}$ の時間分布曲線(Fig.1)の slope から 0.550(5) ns となり、評価値 0.541(14) ns [1] を支持する結果となった(Fig.2)。最新の測定器を使うことで、精度および信頼度も向上したと考えられる。一方、321 keV の準位については、クローバー検出器と LaBr₃ 検出器を組合わせた ^{177m}Lu ($T_{1/2}=160.4$ d) の壊変による Knafla らの最新の測定結果は 0.792(17) ns [5] であり、評価値 [1] より長い値である。厚さ 1 mm と 20 mm のプラスチックシンチレータを用いた β ①- γ_{208} 、 β ②- γ_{208} 測定から、暫定的

ではあるがいずれも評価値 [1] より長い結果を得た。今後、詳細に解析する。

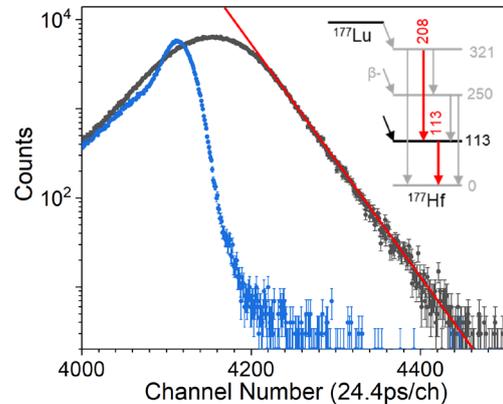


Fig.1 Time distribution curve of the level at 113 keV of ¹⁷⁷Hf and the prompt curve.

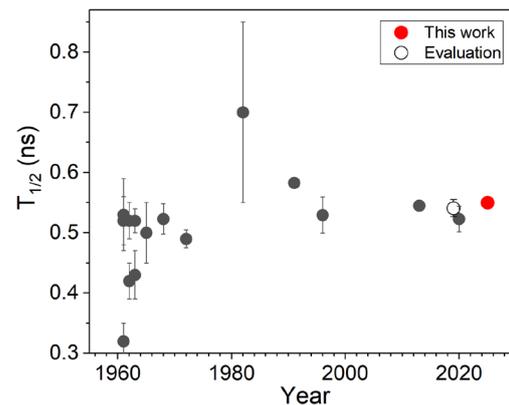


Fig.2 The results for the half-life of the level at 113 keV of ¹⁷⁷Hf.

⁷⁵As の 199 keV の準位と ¹⁴¹Pr の 145 keV の準位は、それぞれ β ②- γ_{199} と β ②- γ_{145} で、 γ 線ピークによる測定を初めて行い、評価値を支持する結果を得た。現在、詳細な解析を継続中である。

参考文献

- [1] F. G. Kondev, Nucl. Data Sheets **159**(2019) 1-412.
- [2] A. Negret, B. Singh, Nucl. Data Sheets **114**(2013) 841-1040.
- [3] N. Nica, Nucl. Data Sheets **187**(2023) 1-354.
- [4] D. De Frenne, Nucl. Data Sheets **110**(2009) 2081-2256.
- [5] L. Knafla *et al.*, Phys. Rev. C **102**(2020) 054322-1-13.

(P35) Numerical Simulation and AI-Driven Prediction of Thermodynamic Performance in Curved Channel Printed Circuit Heat Exchangers

(Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University¹
 College of Nuclear Science and Technology, Harbin Engineering University²)

○Feiran Wang^{1,2}, Yasushi Saito¹, Daisuke Ito¹, Naoya Odaira¹, Sichao Tan², Jiming Wen²

1. Background and Application

Printed Circuit Heat Exchangers (PCHEs) exhibit significant potential in advanced energy systems owing to their compact configuration and high thermal efficiency [1]. Curved channel PCHEs introduce geometric perturbations that strengthen heat transfer between working fluids, underscoring the importance of structural optimization.

Moreover, artificial intelligence can alleviate the high computational cost associated with numerical simulations, enabling rapid and efficient prediction of flow and heat-transfer characteristics in CCPE.

2. Physical Model and Neural Network Structure

Fig. 1 illustrates the two CCPE physical models: the serrated type and the zigzag type. The channel flow cross-section is rectangular. The working fluid on the high-temperature side is LBE, while the low-temperature side employs RP-3. The hot and cold fluid flow in opposite directions along the vertical axis. The numerical model is validated against existing experimental data [2], and the operating conditions are established based on recommended values reported in the literature [3] [4].

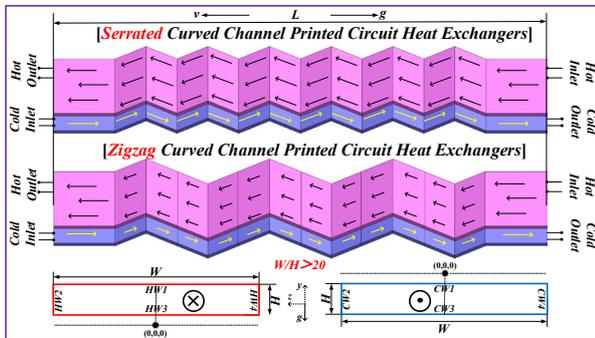


Fig. 1 Physical Model of Serrated and Zigzag CCPE

The multilayer perceptron (MLP), convolutional neural network (CNN) and capsule neural network (CapsNets) are introduced to intelligently predict the thermodynamic parameters of the LBE under varying channel types, structural configurations, and boundary conditions. The flowchart of the neural network is presented in Fig. 2.

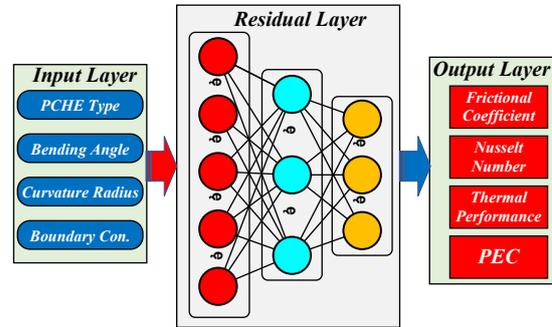


Fig. 2 Structural Diagram of the Neural Network

3. Results and Analysis

The prediction results for the dimensionless thermal-hydraulic parameters are shown in Fig. 3. For the MLP model, the MAE, MSE and R^2 values are 0.067, 0.027 and 0.984, for the CNN model, these values are 0.051, 0.009 and 0.995, while for the CapsNets model, these values are 0.207, 0.134 and 0.952.

The residual distribution Histogram and Kernel 8Density Estimation of CapsNets is shown in Fig. 4.

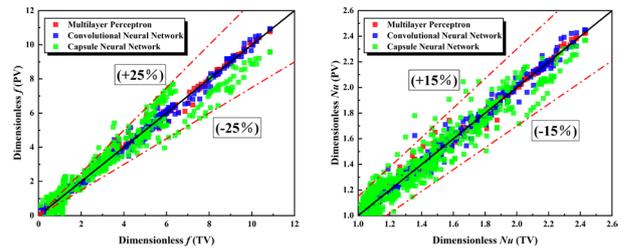


Fig. 3 Comparison about Real Value and Predicted value of f^* and Nu^* (MLP vs CNN vs CapsNets)

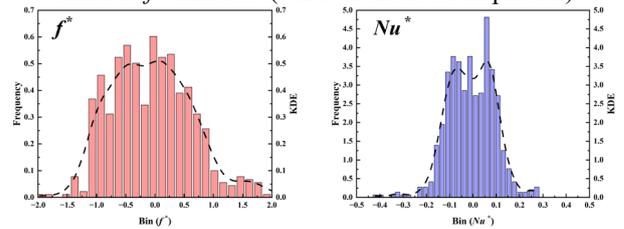


Fig. 4 Residual Distribution and KDE of CapsNets

Reference

- [1] Huang C *et al.* Appl. Therm. Eng., 2019, 153: 190-205.
- [2] Wang F, *et al.* Int. J. Therm. Sci., 2026, 219: 110189.
- [3] Liu P *et al.* Energy, 2023, 267: 126626.
- [4] Zhang X *et al.* Front. Energy Res., 2024, 12: 1350144.

(P36) KUR 照射による線源生成メスバウアー分光の現状

(京大複合研¹、弘前大理工²) ○北尾真司¹、増田亮²、小林康浩¹、山下拓之¹、瀬戸誠¹

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(KURNS-LINAC)の利用により短寿命線源の生成が可能であり、多様な非密封放射性核種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、これまで取り組んできた KUR 照射によるメスバウアー分光の現状を報告し、KUR 停止後の継続の可能性についての検討状況を報告する(Table 1)。

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を確立し、長期にわたって ^{125}Te 、 ^{129}I 、 ^{197}Au などのメスバウアー分光において共同利用を実施してきた。さらに、近年は、 ^{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ることで共同利用も実施している。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。例えば、 ^{166}Er のメスバウアー分光については、これ

まで HoAl_2 線源を用いた共同利用を行っていたが[1]、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。これに代わって水素化物である $\text{Ho}_{0.4}\text{Y}_{0.6}\text{H}_2$ は低温でも線幅が増大しないため、これを合成して線源に使用することで低温測定が可能となる。これまでに、水素ガスを使用せず TiH_2 を用いて安全に水素化物を合成する手法を開発し、 $\text{Ho}_{0.4}\text{Y}_{0.6}\text{H}_2$ を合成するとともに、低温で線幅が増大しない吸収体である ErH_2 も合成し、 $\text{Ho}_{0.4}\text{Y}_{0.6}\text{H}_2$ が低温でシングルライン線源として利用できることの実証に成功している[2]。 ^{161}Dy 線源においても、Gd 粉末を用いることで簡便に線源として使用できることを実証してきた。これらの核種においては、共同利用を実施し積極的に活用されている。

3. KUR 停止後の取り組み

KUR 停止後においては比較的線源寿命の長い核種 (^{161}Dy , ^{166}Er , ^{197}Au など)においては日本原子力研究開発機構の JRR-3 で照射した線源を移送して測定する方法を検討中であり、KUR 停止後もメスバウアー分光の実施を計画している。ただし JRR-3 では一度使用した線源を再照射することが難しいため、同位体富化しない線源を準備する必要がある。KUR 停止後は一部の核種は当面は実施が難しくなることが予想されるが、KURNS-LINAC で線源を作成する手法や SPring-8 などの放射光メスバウアー吸収分光法などの相補的な手段も併せて、多様な核種のメスバウアー分光の実用化を継続的に推進していく予定である。

参考文献

- [1] S. Nakamura, H. Yokota, S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Saito, R. Masuda, M. Seto, *Hyperfine Interact.* **240**(2019) 75.
 [2] S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Kurokuzu, T. Kubota, M. Seto, *Hyperfine Interact.* **244**(2023) 10.

Mössbauer isotope	Energy (keV)	Half life (ns)	Source isotope	Source half life	Typical source material	Availability after KUR shutdown
^{125}Te	35.5	1.48	$^{125\text{m}}\text{Te}$	57.4d	$\text{Mg}_3^{124}\text{TeO}_6$	(2)
^{129}I	27.8	16.8	^{129}Te	69.6m	$^{66}\text{Zn}^{128}\text{Te}$	(3)
			$^{129\text{m}}\text{Te}$	33.6d	$\text{Mg}_3^{128}\text{TeO}_6$	(2)
^{161}Dy	25.7	29.1	^{161}Tb (*)	6.88d	$\text{Gd}_{0.5}\text{Dy}_{0.5}\text{F}_3$, Gd powder	(1)
^{166}Er	80.6	1.82	^{166}Ho	26.8h	$\text{Ho}_{0.4}\text{Y}_{0.6}\text{H}_2$	(1)
^{169}Tm	8.41	4.08	^{169}Er	9.4d	Er-Al alloy	(1)
^{170}Yb	84.3	1.61	^{170}Tm	128.6d	Tm-Al alloy	(1)
^{180}Hf	93.3	1.5	$^{180\text{m}}\text{Hf}$	5.5h	HfC	(3)
^{197}Au	77.4	1.91	^{197}Pt	19.9h	^{196}Pt	(2)

Table 1. Attempted Mössbauer isotopes with sources obtained by irradiation at KUR
 (*) ^{161}Tb is obtained by β -decay of ^{161}Gd .

Availability after KUR shutdown: (1) source possibly available by irradiation at JRR-3 (2) necessary to develop source material without isotope enrichment (3) difficult at present

(P37) 中性子スピン位相連続変調を用いた非弾性散乱測定に向けた検討

(京大院工¹、京大複合研²) ○藤谷龍澄^{1,2}、日野正裕²、樋口嵩²

1. はじめに：中性子非弾性散乱測定では試料に照射する中性子の速度と試料で散乱された中性子の速度を測定することで、試料で散乱された時に発生する中性子の速度変化を評価する。特に白色入射中性子速度を飛行時間法で、散乱中性子速度を結晶アナライザ等で決定するものは逆転配置型非弾性散乱分光器 (BS) と呼ばれ、動的構造因子を測定する手法として最も高エネルギー分解能を誇るが測定可能なエネルギー領域が狭い。我々は krueger らの手法[1]を参考に、中性子のスピン歳差を用いて中性子の速度、速度分散を測定するスピン位相連続変調 (SPCM) を提案する。BS における結晶アナライザの代わりに本手法を利用することで、高エネルギー分解能かつエネルギー領域の拡大可能性を検討している。

SPCM では中性子のスピン方向を測定できる中性子スピン干渉体系内に、スピン位相に正弦関数的な変調をもたらす振動磁場コイルを二つ設置する。特定の振動磁場位相下ではちょうど変調は打ち消され、中性子強度ピークが得られる。この位相は中性子が振動磁場間を通過する時間によって変化するため、ここから中性子速度を評価できる。さらに、中性子ビームに速度分散がある場合、中性子強度ピークが得られる条件下でも、変調を完全に打ち消すことができず、完全単色の場合に比べて強度が小さい中性子強度ピークを得る。ここから中性子速度分散を評価することもできる。本発表では JRR-3 C3-1-2 (MINE2) で行った実験の結果を用いて、非弾性散乱分光器への可能性について議論する。

2. 実験：JRR-3 C3-1-2 (MINE2) では波長 8.8 Å (速度 450m/s) の単色連続中性子が利用可能である。スピン位相連続変調を行う体系を Fig. 1 に示す。中性子スピン干渉体系の中に振動磁場を発生させる RF coil が 2 つ設置されている。RF coil はそれぞれ同じ形状であり、同じ周波数の振動が印加される。RF coil2 はリニアステージの上にマウントされており、振動磁場間の距離を変化させることができる。また、RF coil はそれぞれ音響アンプに接続されており、印加する振動磁場の位相を変化させながら中性子数を測定した。

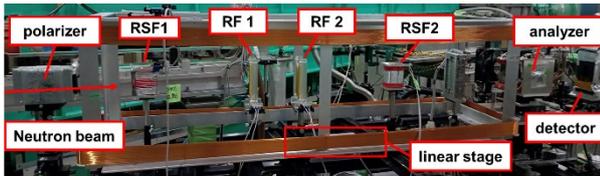


Fig. 1. Experimental setup for spin phase continuous modulation

3. 定式化：スピン位相連続変調の定式化について

述べる。RF coil が発生させる振動磁場の周波数を f 、位相差を ϕ 、振動磁場間の距離を l とする。この時、検出される中性子数は

$$N = \frac{N_0}{2} \left\{ 1 + J_0 \left(\frac{4|\mu_n|}{\hbar v} |b(k)| \cos \left(\frac{\pi f}{v} l + \frac{\phi}{2} \right) \right) \right\}$$

と表すことができる。 N は検出される中性子数、 N_0 は中性子の最大数、 μ_n は中性子の磁気モーメント、 v は中性子速度、 $|b(k)|$ は磁場形状のパワースペクトルである。 ϕ をスキャンしながら中性子数を測定すると、中性子数の周期的な変化がみられるが $\pi f l / v = \phi / 2$ を満たすとき、中性子数は最大となる。

以上は中性子が完全に単色な場合であるが、中性子速度には分布 $g(v)$ があり、速度分散が存在する場合、得られる中性子数は

$$N = \frac{N_0}{2} \left\{ 1 + \int g(v') J_0 \left(\frac{4|\mu_n|}{\hbar v'} |b(k)| \cos \left(\frac{\pi f}{v'} l + \frac{\phi}{2} \right) \right) dv' \right\}$$

となる。この状況下では中性子数のピークが位相 ϕ の方向に“なまされる”ため中性子数が減衰したピークが現れる。特に、振動数 f や振動磁場間の距離 l が大きい場合は大きく影響を受ける。

4. 結果

Fig. 2 に振動磁場間の位相差 ϕ に対する中性子数 N を取った、スピン位相連続変調シグナルを示す。両者とも振動数は $f = 10\text{kHz}$ であり振動磁場間の距離は $l = 80\text{mm}$ 、 130mm である。この時 (a)、(b) 間ではピークの位置が変化しているがここから中性子速度は波長に換算して $\lambda = 0.86662 \pm 0.00089\text{nm}$ 、またピークのつぶれ具合から速度分散は波長に換算して $\Delta\lambda/\lambda = 2.40 \pm 0.45\%$ と得られた。中性子速度や分散に対する感度は振動数 f と振動磁場間距離 l に依存して向上でき、10 倍以上感度向上させることも可能と考えられる。この性質を利用して、速度分散に高感度な非弾性散乱分光器としての確立を目指している。

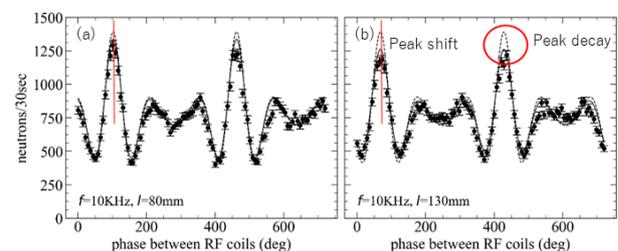


Fig. 2. Spin phase continuous modulation signal obtained on JRR-3 C3-1-2

参考文献

[1] E Krüger *et al*, *Metrologia* **32**, 117 (1995)

(P38) MRI 誘導中性子捕捉療法を志向した Gd-チアカリックスアレーン錯体搭載ナノ薬剤の創製

(東北大院環境¹, 量研機構量医研², 京大複合研³) 早川 崇¹, 澤村瞭太¹, 唐島田龍之介¹, 高山², 尾澤芳和², 長田健介², 青木伊知男², 鈴木 実³, 〇壹岐伸彦¹

1. はじめに: ランタニド(Ln)錯体は¹⁵⁷Gdによる中性子捕捉療法(NCT)の薬剤の基体として注目されている[1]. しかし遊離の Ln は毒性があるため, Ln 錯体の生体応用には安定性が重要となる. 我々はチアカリックス[4]アレーン-*p*-テトラスルホン酸(TCAS)と Ln から成る速度論的安定性が高い Ln₃TCAS₂ 錯体 (Fig. 1)の生体応用, 特にながの診断や治療を検討してきた[2, 3]. しかし, Ln₃TCAS₂ そのものは腫瘍特異性を持たない. そこで, 10-200 nm の粒子が腫瘍に特異的に集積する EPR (Enhanced Permeability and Retention)効果[4]に着目した. 最近, ポリエチレングリコール(PEG)とポリリジン(PLL)からなるブロックコポリマーPEG-*b*-PLL が, siRNA と静電相互作用して径が 45 nm のコアシェル型ミセルを形成し, がんの遺伝子治療のナノメディシンとなることが示された[5]. そこで今回, -7 の電荷を有する Gd₃TCAS₂ と PEG-*b*-PLL からなるナノゲルミセル(NGM)を形成させ, その細胞送達及び NCT 効果を検討したので報告する.

2. 実験: PEG-*b*-PLL を HEPES 水溶液に溶解し, Gd₃TCAS₂ 水溶液を加え, ボルテックス攪拌した. 冷蔵庫で静置後グルタルアルデヒド(GA)を添加し, アミノ基を架橋した. グリシンで過剰 GA を不活性化し, 限外濾過により NGM を回収した. 得られた NGM について, 粒径, 搭載効率(LE), 搭載容量(LC)を測定した. さらに, マウス結腸がん細胞 Colon-26 へ導入し, 導入率や NCT 効果を調べた.

3. 結果: Gd₃TCAS₂/PEG-*b*-PLL/GA の混合比を検討したが広い範囲で NGM を形成した. 典型的なデータとして粒径 75.8 nm, ζ 電位 1.80 mV, LE 75.9%, LC 9.5%を得ている[6]. Tb₃TCAS₂ を使用した NGM 存在下で Colon-26 を培養したところ, 細胞内から Tb^{III}由来の緑色発光が見られ(Fig. 2), NGM の細胞への取り込みを確認できた. [Gd]_T = 50 μM としたナノミセル存在下で Colon-26 細胞を 24 時間培養したところ, 細胞導入量は 3.75 nmol/10⁶ cells となった. [Gd]_T = 3.1–100 μM の NGM 存在下で細胞生存率を調べたが, 明確な毒性は見られなかった. [Gd]_T = 12 μM のナノミセル存在下 Colon-26 を培養後, 中性子を照射したところ, control 群に比べ生存率は明確に低下し, NCT 効果が見られた(Fig. 3). 現在, Colon-26 担がんマウスを用い, Gd₃TCAS₂-PEG-*b*-PLL ナノミセルの動態

を調査している. その後, *in vivo* での NCT 実験を行う計画である.

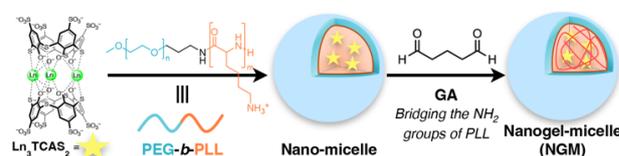


Fig. 1. Schematic diagram showing fabrication of Ln₃TCAS₂-PEG-*b*-PLL nanogel micelle (NGM)

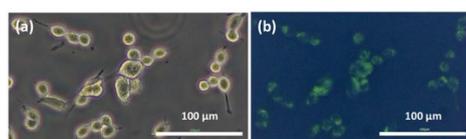


Fig. 2. Micrographs of colon-26 cells cultured in medium containing Tb₃TCAS₂-PEG-*b*-PLL NGM for 24 h. [Tb]_T = 25 μM. (a) Bright field; (b) luminescence image ($\lambda_{\text{ex}} = 330\text{--}385 \text{ nm}$).

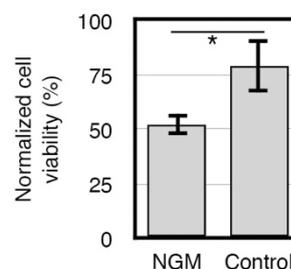


Fig. 3. Normalized viability of colon-26 cells loaded with NGM or PBS (control) following neutron irradiation. Fluence range: 3.6–14×10¹¹ cm⁻². [Gd]_T = 12 μM for NGM. **p* < 0.05.

参考文献

- [1] S. L. Ho, *et al.*, ACS Omega, **7** (2022) 2533-2553.
- [2] N. Iki, *et al.*, Inorg. Chem., **55** (2016) 4000-4005.
- [3] K. Ohama, *et al.*, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, **699** (2024) 134579.
- [4] H. Maeda, *et al.*, Adv. Drug Delivery Rev., **65** (2013) 71-79
- [5] R. J. Christie, *et al.*, ACS NANO, **6** (2012) 5174-5189.
- [6] 早川ら, 日本分析化学会第 74 年会(2025).

(P39) 化学交換法における同位体分別研究

(大産大¹、阪大 RCNP²、東京科学大ゼロエネ研³、阪大院工⁴、京大複合研⁵)○裕隆太¹、義本孝明¹、Kumsut Pantiwa¹、Rittirong Anawat²、岸本忠史²、佐久間洋一³、藤井俊行⁴、福谷哲⁵、芝原雄司⁵

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、B15C5 を用いたリチウムに関する水溶媒及び 12M 塩酸添加溶媒での 8 段階までの液液抽出多段階分離の結果を報告する。

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

上記、化学平衡により選択的に軽元素(${}^6\text{Li}$)がクラウンエーテル側に濃縮され、0.07M 濃度の B15C5 クラウンクロロホルム有機溶媒と、30% (重量比) 濃度の塩化リチウム水溶液を体積比 5mL : 100mL (水相 : 有機相) で 1 分間攪拌を行った。液液抽出は、室温 (22°C) 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 Li 濃度、及び抽出後の水相中 Li 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クールプラズマ ICP-MS (Agilent 7900) [2] で測定を行った (図 1 : 現在、TIMS による測定との整合性検証中である [3])。

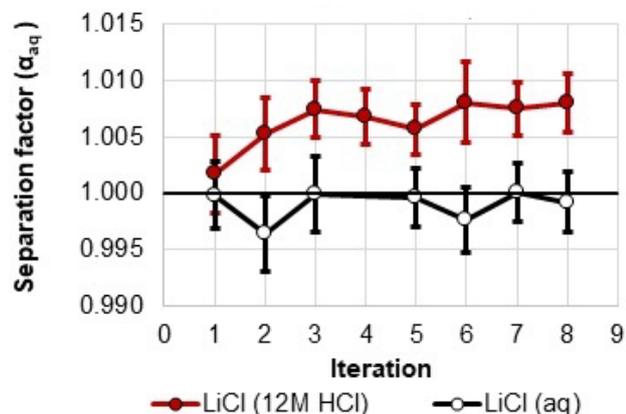


Fig 1. Separation factor (α) of lithium isotope in the aqueous phase with (filled) and without 12M HCl (open). [5]. ($\alpha = ([{}^6\text{Li}]/[{}^7\text{Li}])_{\text{org}} / ([{}^6\text{Li}]/[{}^7\text{Li}])_{\text{aq}}$).

3. 結果 :

今回、リチウムイオン直径 (Å) により近い孔径をもつクラウンエーテル(B15C5)を用い (表 1) [4]、従来の西澤等による種々のリチウム塩での同様な B15C5[6]による結果との比較を行い、これまでのカルシウムに用いていた DC18C6 での結果[1,7]との比較も行った (表 2)。

西澤との比較では、有機溶媒中のクラウンエーテル濃度を約 1/3 にすることにより、分離係数を維持したまま、分配係数の 3 桁 (約 4 千倍) 向上に成功し、一方、DC18C6 との比較では、分離係数は約 1/4 に低下した一方、分配係数は約 7 倍向上となり、今後、最適条件の詳細な検討を行う。

Crown ether / Ion	Cavity size / ion diameter (Å)
12-Crown-4	~ 1.2
14-Crown-4	1.2 ~ 1.5
15-Crown-5	1.7 ~ 2.2
18-Crown-6	2.6 ~ 3.2
Li ⁺	1.20
Ca ²⁺	1.98

Table 1. Ion diameter (Å) and its complex formation with crown-ether which cavity size (Å) [4].

Ref.	Chemical species	Distribution Coefficient (D)	Single stage separation factor	Temperature (°C)	Initial concentration of B15C5 (M)
[5]	LiCl	6.0×10^{-2}	1.002 ± 0.002	22 ± 0.5	0.07
[6]	LiCl	1.62×10^{-5}	1.002 ± 0.002	25	0.186
[6]	LiI	1.58×10^{-3}	1.026 ± 0.002	25	0.186
[6]	LiSCN	5.40×10^{-3}	1.032 ± 0.002	25	0.186
[1]	LiCl	8.6×10^{-3}	1.009 ± 0.003	22	0.07*
[7]					

Table 2. Distribution coefficients of lithium salts and separation factors with benzo-15-crown-5. *It is noted that this result was obtained by DC18C6 for comparison.

参考文献

- [1] A. Rittirong, Doctor Thesis, OSU (2022).
- [2] Y. Shikamori, in private communication.
- [3] A. Ishikawa and M. Nomura, in private communication
- [4] Y. Fujii and M. Nomura, in private communication.
- [5] P. Kumsut, to be published in J. Phys:Conf Series (SPLG2023).
- [6] K. Nishizawa et al, J. Nucl. Sci. Tec.21,694(1984); K. Nishizawa et al, J. Nucl. Sci. Tec.21,133(1984).
- [7] R. Hazama et al., KURNS Progress Report 2020, 227.

(P40) ヒト iPS 細胞由来心筋細胞を用いた ATP 合成酵素の自己組織化の解明

(京大複合研¹、京大 iPS 細胞研究所²、筑波大計算科学研究センター³、阪大・蛋白研⁴)
○慈幸千真理¹、舟越俊介²、谷一寿³、栗栖源嗣⁴、吉田善紀²

1. はじめに：生体膜に埋め込まれたエネルギー変換装置である ATP 合成酵素が形成する自己組織化（高次集合体の形成）は、ミトコンドリアの生体エネルギー学に直接的な影響を及ぼすことがわかってきた[1]。しかし、この自己組織化構造の詳細な成り立ちや機能については、まだ多くの謎に包まれている。ATP 合成酵素は、回転を伴うダイナミックな構造変化により、生命活動に必要な ATP の 90%以上を産生する酵素である。また本酵素は、体内の ATP が過剰になると分解も行うことから ATPase と呼ばれることもある。本酵素は、ATP の産生および分解という機能的な役割だけでなく、ミトコンドリア内膜の形成に不可欠な構造蛋白質としての役割も担っている[2]。さらに本酵素は、高次集合体を形成できなくなった状態の細胞において、細胞死を誘導する中心的な役割を担うことが近年わかってきた[3]。よって、本研究は、本酵素がどのように自己組織化するのか、またその制御機構が生命の維持、修復、恒常性にどのように役立っているかを解明することを目指す。したがって、本酵素が自己組織化して形成する高次集合体（オリゴマー）の形態と詳細な構造を決定し、その機能メカニズムを解明することが本研究の第一目標である。クライオ電子顕微鏡技術の発展により、細菌における *in situ* 構造解析が可能となった。一方で、哺乳動物のミトコンドリアは細菌に比べて機能が格段に複雑であるため、その内部におけるタンパク質の詳細な構造は、未だ十分に解明されていないのが現状である。

2. 実験：哺乳動物 ATP 合成酵素の機能を構造的に理解するためには、本酵素を精製し、構造解析をする必要がある。本酵素は発見から 60 年が経過しているが、回転を伴う極めて複雑な構造を有するため、酵素の完全体を精製する方法は未だ確立されていない。インタクトな本酵素の精製を目指した結果、我々は世界で初めてその精製に成功し、生体内で機能する ATP 合成酵素を研究ツールとして確立した[4]。

3. 結果：本酵素はオリゴマーを形成することで機能することから、インタクトな状態での本酵素の精製とは、オリゴマーとしての精製を意味する。これまで報告されていたクリステ膜を湾曲させる V 字型ダイマーが紐状に連なったオリゴマーだけでなく、紐状ではない脂質を多く含んだ環状オリゴマーの精製にも成功した。この環

状オリゴマーにはペンタマー（五量体）やヘキサマー（六量体）が含まれる。これは、紐状オリゴマーがダイマー 2 個から成るテトラマー（四量体）を機能的な最小単位とするという既知の規則性とは異なる、新規の集合様式である。また創薬研究のために、収量の課題を解決しながら、ヒト由来本酵素を利用できるように取り組んでいる。

（ヒト由来浮遊培養細胞（例 HEK293）を用いてすでに試みたが、ワールブルグ効果により ATP 合成酵素の発現量自体が低いことが課題となった。

例えば牛心臓 600g から 50mg 以上の本酵素を精製できるのに対し、HEK293 細胞 200g の精製からはわずか 0.1mg しか得られなかった。）よって、京都大学 iPS 細胞研究所（CiRA）吉田善紀先生・舟越俊介先生との共同研究により、ヒト iPS 心筋細胞を用いてミトコンドリア ATP 合成酵素を精製する。分化早期のヒト心筋細胞における ATP 合成酵素は、ダイマーを形成するものの、自己組織化が不完全な状態にあることが我々の研究によりわかった(Fig.1)

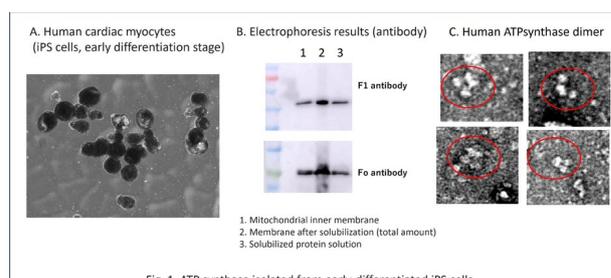


Fig. 1. ATP synthase isolated from early-differentiated iPS cells
A. Human cardiomyocytes
B. Western blotting detection using anti-F1 and anti-Fo antibodies
C. Negative staining of human ATP synthase dimers

本酵素のオリゴマー精製にあたっては、細胞の成熟に伴いミトコンドリア量と ATP 合成酵素の発現が生後レベルの心筋まで増加するという知見を活用する。実際の成熟した心臓の細胞により近い状態にすることが課題ではあるが、ヒト iPS 心筋細胞の分化・成熟過程を用いる本アプローチは、ATP 合成酵素の自己組織化という生命原理の解明と、創薬基盤の構築という二つの目標を同時に達成可能にする、合理的かつ強力な戦略である。

参考文献

- [1] S. Cogliati, *et al.*, Trends Biochem. Sci., **41**(3) (2016) 261-273.
- [2] KM. Davies *et al.*, PNAS, **109**(34) (2012) 13602-13607.
- [3] P. Bernardi *et al.*, FEBS, **289**(22) (2022) 7051-7074.
- [4] C. Jiko *et al.*, **300**(2) (2024) J. Biol.Chem.,10563.

(P41) 中性子ラジオグラフィによる固体電解質中のリチウムイオンの移動の可視化

(京大院エネ科¹、京大複合研²) ○高井茂臣¹、江坂裕貴¹、高木穂乃香¹、薮塚武史¹、大平直也²、伊藤大介²、齊藤泰司²

1. はじめに：リチウムイオン伝導体は全固体電池用固体電解質として用いられることから現在盛んに研究が行われている。電池反応の動作時には固体電解質中をリチウムイオンがアノード側からカソード側に移動するが、リチウムの移動をダイレクトにとらえる手法は限られる。我々は安定同位体⁶Liと⁷Liの中性子減衰係数の大きな違いを利用して、⁶Liをトレーサーとして⁷Liからなる固体電解質中を拡散させた試料の同位体プロファイルを中性子ラジオグラフィにより求め、トレーサー拡散係数を導出してきた[1,2]。京大複合研では、⁶Liを含む電極材料と⁷Liからなる電解質材料を組み合わせ、通電することによりイオンの移動を可視化する試みを行ってきた。本講演会ではLAGP ((Li_{1.5}Al_{0.5}Ge_{1.5}(PO₄)₃)を固体電解質に、LMO (LiMn₂O₄)を電極材料に用いて直流通電を行った結果について述べる。

2. 実験：固体電解質の⁷LAGPは⁷LiOH、 γ -Al₂O₃、GeO₂、およびNH₄H₂PO₄を出発物質として、また電極材料の⁶LMOは⁶LiCO₃およびMnO₂を出発物質として通常の固相反応法により合成した。LAGPは焼結体をそのまま、LMOはスラリー状にして集電体(アノード: Al, カソード: Cu)に塗布した。図1の模式図に示すように、LAGPとLMOをリチウムイオン伝導性高分子を介してサンドイッチ状に重ね、140℃に加熱して外部から電解実験を行った。

ラジオグラフィ実験は京大複合研研究炉のB4ガイドホールで行い、透過中性子像はコンバータを介してCMOSカメラで記録した。通電前後の像を比較することにより、アノード側から移動する⁶Liの挙動を調べた。

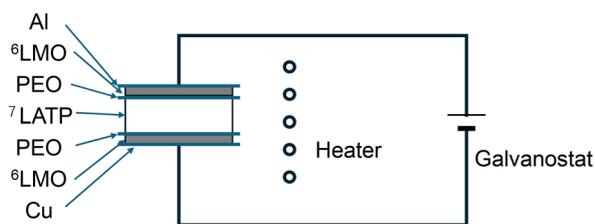


Fig. 1 Configuration of symmetrical test cells for neutron radiography measurements.

3. 結果：通電前後のラジオグラフィ像を図2(a)および(b)にそれぞれ示す。試料のない部分では像が明るく、⁶Liの多い電極部分では像が暗くなっていることから⁶Liが主に中性子を吸収していることがわかる。図3(a)は試料の厚さ方向で測定した通電前後の

中性子透過強度プロファイルである。電極材料の総に対して通電量が少いため、両者はほとんど同様の中性子透過強度プロファイルを示した。そこで透過強度プロファイルの割り算を行ったところ、図3(b)のようなプロファイルが得られた。とくにアノード界面で大きな差が観測されることから、⁶Liがアノードから固体電解質中に移動すると言える。以上のことから対称モデルセルに通電を行ったときのリチウムイオンの動きを、中性子ラジオグラフィにより検出できた。

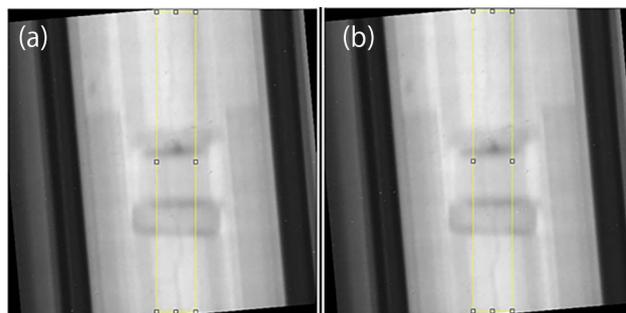


Fig. 2 NR images of test cell consisting of ⁷Li-LAGP. (a) before and (b) after the electrolysis.

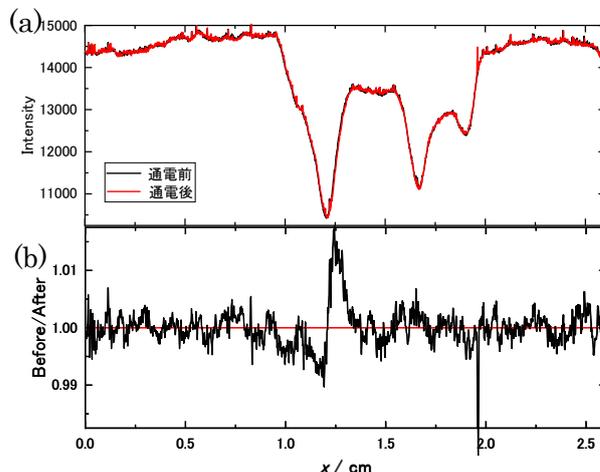


Fig. 3 (a) Neutron intensity profiles for the test cell before and after the electrolysis. (b) Division intensities of the cell.

[1] S. Takai et al., *Solid State Ionics*, 256 (2014) 93.

[2] H. Takagi et al., *Solid State Ionics*, 417 (2024) 116716.

(PJ3) 加速器 BNCT での適応を目指した放射線検出器の高度化

(京大複合研¹、東京都立大²、阪大院工³、近大原研⁴、名大院工⁵、北大院保健⁶、広大半導体技術研⁷、東大院工⁸、産総研⁹) ○田中浩基¹、眞正浄光²、村田勲³、納富昭弘⁴、吉橋幸子⁵、石川正純⁶、黒木伸一郎⁷、黒澤俊介⁸、増田明彦⁹、高田卓志¹、呼尚徳¹、松林錦¹、櫻井良憲¹

1. 背景と目的

近年、加速器中性子源を用いたホウ素中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy: BNCT) は、保険診療下での臨床利用が開始され、国内外の医療機関において臨床症例数の大幅な増加が見込まれている。加速器 BNCT では、原子炉 BNCT と同様に、中性子と γ 線が混在する複雑な照射場が形成されるため、治療の安全性と有効性を担保するためには、照射前後における線量評価および照射場特性評価が不可欠である。

現在、熱中性子フルエンスや γ 線線量の評価には、金箔放射化法や熱蛍光線量計 (TLD) など、原子炉 BNCT 時代に確立された測定手法が広く用いられている。しかし、これらの手法は測定・解析手順が煩雑であること、リアルタイム性に乏しいこと、さらに一部の線量計については将来的な安定供給が不透明であるといった課題を有している。そのため、医療現場からは、より簡便で迅速かつ高精度な放射線計測技術の確立が強く求められている。

本プロジェクトでは、加速器 BNCT の実運用を見据え、熱中性子・熱外中性子・高速中性子および γ 線を対象とした放射線検出器・線量計測技術の高度化を目的とし、実時間計測、空間分布計測、エネルギースペクトル評価、さらにはホウ素濃度のオンライン推定に至るまで、包括的な放射線計測基盤の構築を目指した研究開発を実施した。

2. 研究全体の構成と特徴

本プロジェクトは、加速器 BNCT 照射場における品質保証 (QA)・品質管理 (QC) および治療線量評価への応用を念頭に置き、これらの課題に対応するため、熱蛍光線量計、光刺激ルミネッセンス線量計、シンチレータ検出器、半導体検出器、ボナー球検出器、TEPC (組織等価比例計数管)、固体飛跡検出器、即発 γ 線テレスコープシステムなど、多様な検出原理に基づく計測手法を統合的に検討した。それぞれの手法の特性を考慮して、以下の4つに分類した。

- ・熱中性子・ γ 線計測技術の高度化
- ・中性子スペクトルおよび線質評価
- ・実時間計測技術と新規検出器開発
- ・ホウ素濃度のリアルタイム推定

3. 熱中性子・ γ 線計測技術の高度化

3.1 熱蛍光線量計とコンバータを用いた中性子・ γ 線分布計測

熱蛍光線量計と中性子コンバータを組み合わせる

ことにより、BNCT 照射場における中性子および γ 線の空間分布を分離して評価する手法を検討した。Cr 添加 Al_2O_3 セラミック板および BeO セラミック板 [1]を用い、Cd 板やポリエチレンコンバータを併用することで、熱中性子、 γ 線、さらに高速中性子成分の選択的評価の可能性を示した。

3.2 光刺激ルミネッセンス線量計 (OSLD) の BNCT 適用性評価

従来使用されてきた石英ガラス封入型粉末 BeO-TLD の代替として、 $Al_2O_3:C$ を用いた OSLD に着目し、BNCT 照射場における熱中性子感度評価を実施した。KUR 重水中性子照射設備を用いた実験により、広い熱中性子フルエンス範囲を有する照射場特性を明らかにし、OSLD の適用可能性を検討した。

4. 中性子スペクトルおよび線質評価

4.1 ボナー球による中性子エネルギースペクトル評価

高強度 BNCT 照射場に適用可能な小型リチウムガラスシンチレータを用いたボナー球スペクトロメータを開発し、KUR において実証試験を行った。図 1 にボナー球の直径と得られたカウント数を示す。従来よりも薄い減速材を含む球体系を導入することで、低エネルギー領域に対する感度向上を図り、加速器 BNCT への適用可能性を示した。

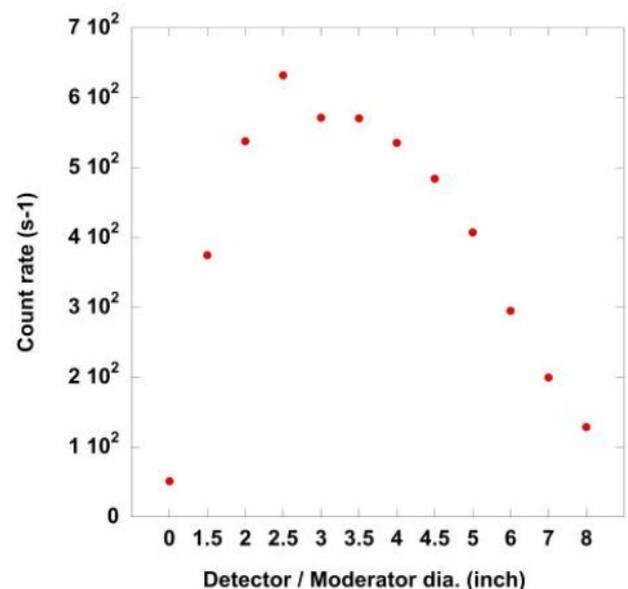


Fig.1 Detector counts for each Bonner sphere.

4.2 CHARMS による中性子スペクトル測定

液体減速材を多層構造で用い、照射室外から遠隔

操作可能な図 2 に示す新型スペクトロメータ CHARMS を開発した[2,3]。実験結果はモンテカルロ計算と良好に一致し、短時間かつ高い再現性での中性子スペクトル評価が可能であることを実証した。

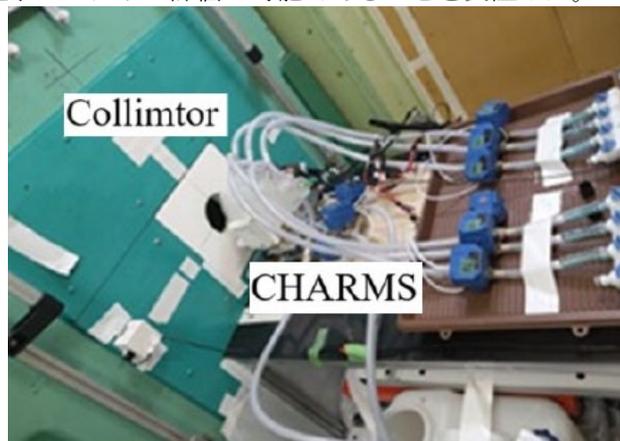


Fig.2 Experimental setup of CHARMS.

4.3 水ファントム中の熱中性子分布による中性子エネルギースペクトル推定方法

20cm 角の水ファントム中に入射した際の熱中性子分布を用いて、MLEM (Maximum Likelihood Expectation Maximization)による入射中性子エネルギースペクトルの推定方法の開発を実施した。熱中性子分布は微小シンチレータと光ファイバーによる SOF 検出器[4]をスキャンすることで取得した。本手法による中性子エネルギースペクトル推定法の有用性を確認することができた。

4.4 マイクロドシメトリによる線質評価

TEPC を用いた線質評価により、線エネルギー付与分布を取得し、PHITS 計算との比較を行った。線エネルギー付与分布から、BNCT 照射場における生物学的影響評価手法の高度化を図った。

4.5 絶対中性子束強度測定検出器の開発

BNCT の中性子ビームの特徴を示すパラメータとして、高速中性子束の絶対値を評価する必要がある。高速中性子領域の応答がフラットになるように、減速体系を最適化した。中央に GaN 箔を設置し、その周りに Cd、ポリエチレン、B₄C を設置し、KUR 重水照射設備の熱外中性子ビームを照射した。シミュレーション結果と比較し、測定手法の妥当性を確認した。

4.5 固体飛跡検出器によるエネルギー弁別測定

固体飛跡検出器と中性子コンバータを組み合わせることで、中性子エネルギー情報を測定する手法の開発を進めている。固体飛跡検出器のピットの大きさを精密に観測するために共焦点レーザー顕微鏡を導入した。ピットの大きさを精度良く測定することを確認し、中性子エネルギー情報を得るための指針を得た。

5. 実時間計測技術と新規検出器開発

5.1 熱中性子リアルタイム検出器

LiBr/CeBr₃, Ce:LiBr/LaBr₃ 共晶体、LiCAF やリチウムガラスシンチレータと光ファイバーを組み合わせた熱中性子リアルタイム検出器を開発し、KUR 重水中中性子照射設備のカドミシャッターを変化させることで熱中性子束とカウントレートの変化を測定した。図 3 に典型的な例として LiBr/CeBr₃, Ce:LiBr/LaBr₃ 共晶体の結果を示す。

また、水ファントム中での安定した熱中性子フルエンス計測を実証した。QA/QC 用途として、金箔放射化法に代わる迅速測定手法としての有効性が示された。

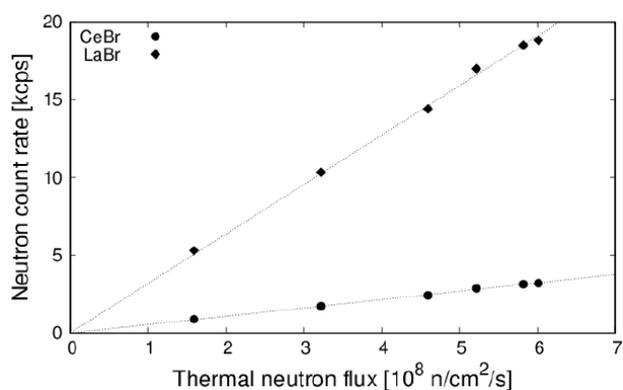


Fig.3 Count rates of LiBr/CeBr₃, Ce:LiBr/LaBr₃ eutectics.

5.2 新規シンチレーション材料による即発γ線計測

Tl 添加 Cs₃Cu₂I₅ (Tl:CCI) などの高発光量・低吸湿性シンチレータを用いた線量率モニタを開発し、¹⁰B(n,α)⁷Li 反応に由来する 478 keV 即発γ線の検出に成功した。ホウ素濃度に対する感度を評価し、臨床応用に向けた改良指針を得た。

5.3 半導体・イメージング型検出器

4H-SiC CMOS イメージセンサと¹⁰B 変換層を組み合わせた中性子イメージセンサの設計・試作を進め、回路シミュレーションによりリアルタイム応答の可能性を示した。将来的なビームプロファイル計測への応用が期待される。

5.4 ホウ素添加液体シンチレータによる中性子測定

4 種類の液体シンチレータ Insta-Fluor Plus, Insta-Gel Plus, Ultima Gold XR and Ultima Gold F: Perkin Elmer に 1wt% の天然ホウ素を添加したサンプルを調整した。照射サンプルは暗箱に設置し、E3 導管室において熱中性子束を照射し、CMOS カメラ (Bitran, CS-67M) を用いて発光量を測定した。図 4 に示すように発光量と積算照射時間は良い線形性を示した。また、液体シンチレータの種類によって発光量の違いを観測したが、熱中性子フルエンス測定に有用であることを示した。

6. ホウ素濃度のリアルタイム推定

即発 γ 線テレスコープシステムを用い、ファントム中の腫瘍模擬領域と正常領域のホウ素濃度差を実時間で識別する実証実験を行った。478 keV γ 線の計数率から、数十秒オーダーでのホウ素濃度推定が可能であることを示し、治療中モニタリング技術としての有用性を明らかにした。

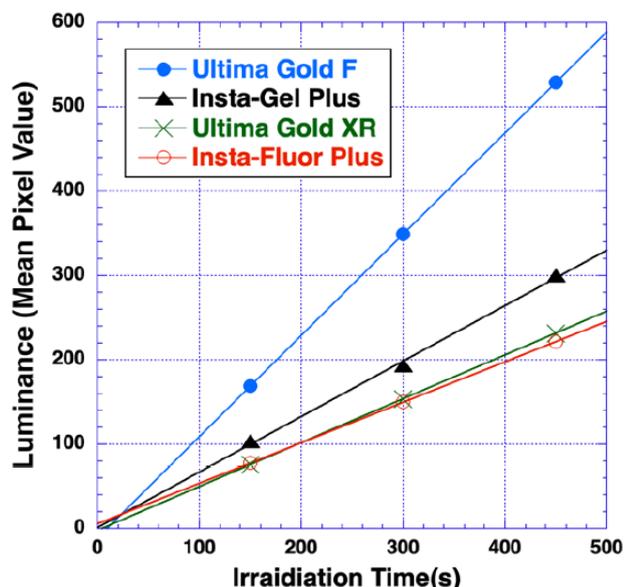


Fig.4 The relationship between irradiation time and luminance for each liquid scintillator.

8. 研究成果の統合的評価

本プロジェクトの成果は、大きく以下の三点に集約される。

第一に、実時間計測技術の確立である。LiCAF やリチウムガラスを用いた熱中性子検出器、SOF 検出器の改良、新規シンチレーション材料による γ 線線量率モニタなどにより、従来の放射化法に依存しない迅速な QA/QC が可能となった。これにより、臨床現場における測定負担の大幅な軽減が期待される。

第二に、中性子スペクトルおよび線質評価手法の高度化である。ポナー球スペクトロメータ、CHARMS、TEPC、GaN ベース検出器、固体飛跡検出器といった多様な検出器を用いることで、BNCT 照射場のエネルギースペクトルおよび線質を多角的に評価できる体制が構築された。

第三に、治療効果に直結する情報の可視化である。

即発 γ 線テレスコープやホウ素添加液体シンチレータを用いた研究により、ホウ素濃度やその空間分布をオンラインで推定する技術が実証され、BNCT 治療中のモニタリングやフィードバック制御への応用可能性が示された。

7. 総合的考察と今後の展望

本プロジェクトにより、加速器 BNCT 照射場に特有の「高強度・混合放射線場」という条件下において、従来手法では困難であったリアルタイム性、空間分布、線質評価を兼ね備えた放射線計測技術が体系的に整備された。特に、熱中性子・ γ 線の分離測定、高速中性子の寄与評価、即発 γ 線を用いたホウ素濃度推定といった BNCT 特有の課題に対し、複数の独立した測定アプローチが相補的に成立することを確認することができた。

今後は、加速器 BNCT 実機照射場における横断的検証を進め、検出器間の相互比較・校正体系の確立、長期安定性評価、臨床 QA/QC プロトコルへの組み込みを進めることで、実運用への展開を図る。また、得られた線量・線質情報を治療計画システムや生物学的効果モデルと連携させることにより、BNCT 治療の定量性・再現性のさらなる向上が期待される。

本プロジェクトで開発された放射線検出器・計測技術は、BNCT にとどまらず、他の中性子利用研究や放射線医療分野への波及効果も大きい。例えば、中性子スペクトル評価技術は、中性子遮蔽材評価や放射線防護研究に応用可能であり、半導体検出器やイメージング技術は、高線量環境下での耐放射線デバイス開発にも貢献する。

参考文献

- [1] K. Shinsho *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **62** (2023) 010502.
- [2] J. Prateepkaew, *et al.*, Nucl. Instr. Meth. A **1059** (2024) 168948.
- [3] J. Prateepkaew, *et al.*, Appl. Radiat. Isot. **219** (2025) 111717.
- [4] M. Ishikawa *et al.*, Nucl. Instr. Meth., A **551** (2005) 448-457.

(N2) 生体機能分析とセラノスティクスのための分子イメージング研究

(京大複合研) ○天満 敬

1. はじめに：生体内機能分子の発現や活性を非侵襲的かつ四次元的に可視化し解析することを可能とする分子イメージング法は、疾患のメカニズム解明や、効率的な診断・治療の一体化を目指す医療概念あるいは方法論であるセラノスティクス Theranostics (治療 (Therapeutics) と診断 (Diagnostics) から成る造語) の実現のための有効な手法として注目されている。中でも放射性同位元素 (Radioisotope, RI) で標識した分子プローブを用いるポジトロン断層撮像法 (Positron Emission Tomography, PET) や単光子断層撮像法 (Single Photon Emission Computed Tomography, SPECT) などの核医学分子イメージング法は、薬理作用を表さないトレーサ量の投与物質でも体外から RI の集積動態を画像化可能な高い検出感度を持ち、また、放射線のもつ高い生体透過性のため小動物から臨床まで同じ分子プローブを使用できることから、基礎から臨床への橋渡しが容易に実現可能な優れた特徴を有している。実際に安全性試験・被ばく線量評価・GLP 合成試験等をくぐりぬけ画像診断上の有効性が認められ、通常の臨床診療に供される段階に至った RI 標識プローブは放射性医薬品と呼ばれることとなる。一方、分子イメージング法の中でも、生体透過性の高い近赤外光領域の蛍光を用いる蛍光イメージング法では小動物個体レベルでの生体イメージングが十分に可能であり、分子プローブに生体内機能分子との相互作用をトリガーとする蛍光スイッチング機能を付加することができれば、核医学イメージングではなし得ない多様な機能解析を可能とする。

発表者らはこれまでに、がんや動脈硬化等を対象疾患とし、それらの性状解析や質的診断に有効性が期待される分子プローブの開発研究を行ってきた。具体的には、細胞外基質分解酵素等の細胞膜上・細胞外発現タンパク質、細胞膜上受容体・トランスポーター、細胞内リン酸化酵素・脂肪酸輸送タンパク質・ミトコンドリア膜電位等をイメージング標的として選択し、プローブ母核には抗体、低分子化抗体、結合型ペプチド、基質ペプチド、低分子化合物、あるいはミセル等のナノキャリアを用いて、標的への結合あるいは相互作用を経た局所的捕捉あるいはプローブ活性化を狙った分子プローブ開発を展開してきた。本講演ではこれらの研究成果の一部を紹介し、今後の分子イメージング研究の展開について議論を深めたい。

2. ^{15}O 標識ガスを用いた生体機能分析研究：脳梗塞などの脳循環疾患の病態は、脳血流量 (Cerebral Blood Flow, CBF)、脳酸素摂取率 (Oxygen Extraction Fraction, OEF)、脳酸素代謝率 (Cerebral Metabolic Rate for Oxygen, CMRO_2) などの脳循環代謝パラメータの変

化と密接に関連するため、 $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ ガスを用いた PET 法による OEF、 CMRO_2 定量測定法は臨床上極めて有用である。しかし、本法は実施準備に時間を要するため急性期病態に適用することは難しく、急性期病態の解析のためには動物を用いた基礎検討の必要性が認識されてきた。一方で、2000 年代初頭までラットなどの小動物への $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ ガス吸入法の適用は手技上困難であり、PET による小動物での OEF、 CMRO_2 測定は行われていなかった。そこで発表者らは静脈内投与型 $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ 剤 (injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$) の開発と、それを用いた小動物での OEF、 CMRO_2 定量測定法の構築に取り組み、脳卒中発症後急性期の脳循環代謝機能の障害を明らかにすることを計画した。

Injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ の開発にあたり、効率的なガス交換の実現が可能な人工肺に着目した。すなわち、小動物用小型人工肺と血液リザーバをシリコンチューブを用いて輪状に繋いで閉鎖系とし、この系内に蠕動ポンプを用いて血液を循環させるとともに人工肺部にサイクロトロンにより合成した $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ ガスを導入することで、PET イメージングに必要な放射能を有する injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ ($^{15}\text{O}\text{-O}_2$ 含有血液) を得た。正常ラットにラット血液を用いて調製した injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ を静脈内投与し頭部の PET 撮像を行うと同時に大腿動脈採血を行い、動脈血中の時間放射能曲線を得た。動脈血中代謝物や PET/採血の時間差を補正した上で、血液と脳組織の 2 コンパートメントモデルによる解析法を構築し、全脳 OEF、 CMRO_2 の定量を行ったところ、外科的手法により求めた値と一致し、injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ PET 法の有効性が示された[1, 2]。次に、脳循環疾患モデルに本法を適用することとし、栓子法により右中大脳動脈永久閉塞 (Middle Cerebral Artery Occlusion, MCAO) モデルラットを作製し PET 撮像実験を行った。その結果、閉塞半球である右脳は、閉塞早期 (1 時間後) において CBF 低下と代償的 OEF 上昇を示し CMRO_2 低下は軽度であったが、閉塞後期 (24 時間後) においては有意な CBF 低下を示すとともに代償的 OEF 上昇は消失し CMRO_2 は有意に低下した。対側半球である左脳の CMRO_2 は閉塞早期、後期で変化せず、外科的手法により求めた正常値と同等であった。以上より、injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ PET 法が脳循環障害下でのラット脳局所酸素代謝のインビボ定量化に有効であることを示した[3]。続いて、疫学的に脳卒中と関連が強く、脳卒中罹患率・死亡率との間に正の相関が知られる高血圧に注目し、脳卒中発症後急性期の脳循環代謝機能障害に及ぼす高血圧の影響を調べるため、ヒト本態性高血圧モデル動物である自然発症高血圧ラット (Spontaneously Hypertensive Rats, SHR) を用い injectable $^{15}\text{O}\text{-O}_2$ PET 実験を行った。その結果、脳卒中発症後急性期 (MCA 閉塞 1 時間後) の脳循環代謝

機能障害が高血圧により増悪し、高血圧が脳卒中の発症だけでなく発症後の脳循環代謝機能障害の進行にも影響を及ぼすことを明らかとした[4]。Injectable $^{15}\text{O-O}_2$ PET 法は小動物の脳循環代謝研究に有効であったことから、本法は評価部位によらず従来の $^{15}\text{O-O}_2$ ガス PET 法を置換可能ではないかと考えた。そこで、従来の $^{15}\text{O-O}_2$ ガスでは困難であった心筋 OEF の定量評価への injectable $^{15}\text{O-O}_2$ PET 法の適用を試み、大腿動静脈シャントへの持続的投与方法によって心筋 OEF を定量可能であることを、ミニプタを用いた PET 実験により明らかとした[5]。2010 年前後に小動物用 PET 装置の格段の性能向上が認められたことから、これを踏まえて 2000 年代初頭では不可能であった $^{15}\text{O-O}_2$ ガス吸入法の小動物への適用に挑み、独自の半密閉小動物ホルダーの作製を経て無侵襲的自発吸入 $^{15}\text{O-O}_2$ ガス PET 法をマウスで初めて実証し、脳血管性認知症マウス（両側総頸動脈狭窄マウス）の 28 日間に亘る経時的な脳循環代謝変化を明らかとした[6]。

3. マトリクスメタロプロテアーゼ (MMP) を標的としたプローブ開発研究：発表者らはこれまでに、特にがんや動脈硬化を対象疾患とし、医薬品化学および薬物送達学研究に基づいて、疾患と密接に関わる生体分子を標的とする各種分子プローブの開発研究を行ってきた。プローブ設計基盤には、分子プローブを標的認識ユニット、シグナルユニット、リンカーユニットの 3 ユニットの複合体と見做す『機能ユニットカップリング型多機能分子プローブ』という概念を導入し、標的認識ユニットとして新たに開発した単クローン抗体・低分子化抗体・ペプチドを用いることで、がんの悪性化に密接に関わる膜型 MMP (MT1-MMP) の発現を画像化し得る世界初の SPECT 用プローブの開発に成功した[7-10]。さらに、体内動態の異なる標的認識ユニットとシグナルユニットを段階的投与により生体内で結合させるプレターゲティング法により、放射能のがん集積性を制御し明瞭ながんイメージングを実現した[11]。Gd 錯体導入 dendrimer をシグナルユニットとして用いることでがん組織の MRI イメージングにも成功した[12]。また発表者らは、がんの悪性度評価のためには酵素の発現だけでなく活性を反映する分子プローブ開発が重要と考え、MMP 基質ペプチドを母核として、RI 結合ドメイン、細胞膜保定ドメイン、阻害ドメインを組み合わせる『MMP 活性依存的捕捉型分子プローブ』という新たな分子設計概念を考案し、MMP-2 活性を反映するペプチドプローブの開発に成功した[13]。本設計概念を踏まえ、分子構造内に B-F 結合を有する蛍光色素 BODIPY の ^{18}F 標識体を活用し、がんにおける MT1-MMP 活性を核医学/蛍光イメージングどちらでも画像化できるデュアルファンクショナルプローブの開発に成功した[14]。

生体透過性の高い近赤外光領域の蛍光を用いる蛍光イメージング法は、基礎研究用途だけでなく、その安全性・簡便さ故に、がん摘出手術時における微

小転移浸潤巣検出などの臨床診断用途でも広く使用される。発表者らは、標的分子との相互作用や存在する微小環境の変化により蛍光色素の蛍光特性をオフオン制御できると考え、MT1-MMP やヒト上皮成長因子受容体 2 (HER2) を標的としたスイッチング型近赤外蛍光プローブの開発に取り組んできた。具体的には、高い光安定性を有する近赤外蛍光物質をコア-シェル型ミセルに高濃度内包すると、ミセル崩壊を駆動力としたスイッチング型蛍光プローブとなることを見出した[15]。さらにミセル表面を抗体等の標的認識ユニットで修飾することで MT1-MMP や HER2 との特異的相互作用とそれに伴う細胞内在化をトリガーとした蛍光上昇を実現し、がん組織の蛍光イメージングに成功した[16-18]。

4. L 型アミノ酸トランスポーター 1 (LAT1) を標的としたプローブ開発研究：ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) は ^{10}B と熱中性子線との $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応により生じる高 LET 放射線によりがん細胞を殺傷する治療法であり、がん細胞選択的に高用量の ^{10}B 送達が必要である。BNCT 用薬剤として現在唯一薬価収載されている 4- ^{10}B borono-L-phenylalanine (BPA) は水に難溶のため、可溶化剤を添加してなお大量の輸液量を要し、腎排泄時には結晶化し血尿を誘発し得る。BPA は LAT1 を介してがん細胞内に高集積するが、LAT2 にも認識されるため、中性子照射視野内に含まれる粘膜等正常組織への時に致命的な副作用を惹起し得る。発表者らはこれらの問題点を解決する次世代の BNCT 用創薬研究に取り組んだ。

一般的な水溶性改善策である親水基導入や複素環置換では低分子化合物である BPA の優れた生物学的活性が毀損される可能性が高いと考え、発表者らは BPA 構造の対称性が難溶性に寄与している可能性に着目し、BPA 中ベンゼン環の対称性を崩し分子間相互作用を減弱できれば水溶性向上が達成できるのではないかと考えた。実際、BPA のメタ位異性体 3BPA を合成し調べたところ、所期の通り 3BPA は BPA の 100 倍以上高い水溶性を示しながら、BPA と同等の LAT1 認識性とがん集積性を示した[19]。高水溶性の 3BPA は、可溶化剤不要かつ少量の輸液量で投与可能であるため、BPA の副作用を抑え、BPA の上位互換として極めて有望な BNCT 用薬剤候補と認められる。次に発表者らは BPA の正常組織集積を抑制するため、3BPA の α 位炭素にメチル基を導入した $\alpha\text{Me-3BPA}$ を設計・合成した。その結果、 $\alpha\text{Me-3BPA}$ は LAT1 親和性を保ったまま LAT2 親和性を有意に抑制し、LAT2 介在性の正常組織集積を大幅に低減したことで、腫瘍集積性を保ったまま腫瘍対筋肉比を BPA の 5.5 倍向上させることに成功した。BNCT では ^{10}B の集積量と分布が治療効果に直結するため、それらの正確な事前予測が出来れば臨床上有用である。現在、 ^{18}F FBPA PET により BPA BNCT の事前診断が試みられているが、BPA と FBPA との化学構造の差異は LAT1/LAT2 認識性の差異の原因となり、有効なセラノスティクスペアとはなり得ていない。そこで発表

者らは、分子構造中に B と F を併せもつ薬剤であれば、PET 診断時には $^{11}\text{B}/^{18}\text{F}$ 、BNCT 治療時には $^{10}\text{B}/^{19}\text{F}$ の同位体セットを用いることで、同一の生物学的特性を示す薬剤ペアによる真に有効な PET 診断・BNCT 治療の実現が可能と考えた。具体的には $\alpha\text{Me-3BPA}$ に F 原子を導入した F- $\alpha\text{Me-3BPA}$ 誘導体を複数設計・合成して検討した結果、BPA や $\alpha\text{Me-3BPA}$ と同等の腫瘍集積能を保ったまま、腫瘍対筋肉比を BPA の 8.8 倍、 $\alpha\text{Me-3BPA}$ の 1.6 倍向上した 5F- $\alpha\text{Me-3BPA}$ の開発に成功した[20]。実際に $^{11}\text{B}/^{18}\text{F}$ ペアを用いた 5- ^{18}F F- $\alpha\text{Me-3BPA}$ の放射合成にも成功し、LAT1 発現量の異なる 2 種のがん細胞を移植したモデルマウスにおいて LAT1 高発現腫瘍のみを明瞭に PET 画像化する結果を得た[21]。現在、5- ^{18}F F- $\alpha\text{Me-3BPA}$ /5F- $\alpha\text{Me-3}^{10}\text{B}$ BPA の更なる詳細な有効性評価を進めている。5- ^{18}F F- $\alpha\text{Me-3BPA}$ は LAT1 標的 PET 用プローブとしても既存の ^{18}F FBPA よりも 5 倍以上高い腫瘍選択性を示したことから、5F- $\alpha\text{Me-3}^{10}\text{B}$ BPA との PET/BNCT セラノスティクスペアとしての利用のみならず、LAT1 標的治療薬の創薬研究、コンパニオン診断、治療効果評価など多くの活用法が期待される。

参考文献

- [1] Temma T *et al.* Nucl Med Biol. **31**(2004)811-4.
- [2] Magata Y *et al.* J Cereb Blood Flow Metab. **23**(2003)671-6.
- [3] Temma T *et al.* J Cereb Blood Flow Metab. **26**(2006)1577-83.
- [4] Temma T *et al.* Brain Res. **1212**(2008)18-24.
- [5] Temma T *et al.* Eur J Nucl Med Mol Imaging. **37**(2010)377-85.
- [6] Temma T *et al.* J Cereb Blood Flow Metab. **37**(2017)3334-43.
- [7] Kondo N *et al.* Biol Pharm Bull. **38**(2015)1375-82.
- [8] Kondo N *et al.* Cancer Sci. **104**(2013)495-501.
- [9] Kuge Y *et al.* Eur J Nucl Med Mol Imaging. **37**(2010)2093-104.
- [10] Temma T *et al.* Biol Pharm Bull. **32**(2009)1272-7.
- [11] Sano K *et al.* Biol Pharm Bull. **33**(2010)1589-95.
- [12] Sano K *et al.* Mol Imaging Biol. **13**(2011)1196-203.
- [13] Temma T *et al.* PLoS One. **9**(2014)e102180.
- [14] Kondo N *et al.* J Control Release. **220**(2015)476-83.
- [15] Shimizu Y *et al.* J Fluoresc. **22**(2012)719-27.
- [16] Shimizu Y *et al.* Nanomedicine. **10**(2014)187-95.
- [17] Shimizu Y *et al.* Cancer Sci. **105**(2014)1056-62.
- [18] Shimizu Y *et al.* Cancer Sci. **102**(2011)1897-903.
- [19] Kondo N *et al.* Pharmaceuticals. **14**(2022)1106.
- [20] Hirano F *et al.* Bioorg Chem. **142**(2024)106940.
- [21] Kondo N *et al.* Eur J Nucl Med Mol Imaging. (2025).

(N3) 核共鳴前方散乱によるガンマ線制御法の開発

(京大複合研) ○山下拓之

1. はじめに

メスbauer効果として知られる無反跳核共鳴散乱現象は物質中にある原子核周囲の電子状態や磁気特性を調べる手法(メスbauer分光)として広く利用されている。その一方で、放射光施設の高度化やX線自由電子レーザーの発展とともに近年目覚ましく進展している、数〜数100 keVのX線やガンマ線領域の量子光学的な研究にも利用されている[1]。量子計算や量子通信などの量子応用技術に関する研究は、主に可視光やマイクロ波領域で発展しているが、よりエネルギーが高いX線・ガンマ線光子は量子応用において様々な利点がある。例えば、透過力が強いことからより多くの共鳴核と作用可能なこと、検出効率の高い検出器が存在すること、波長が短いことに起因して数nmまで集光可能なことなどである。X線量子光学は大変魅力的な分野であるが、その加工と制御に大きな課題が残っている。一方で入射ガンマ線と同方向に核共鳴体から散乱されるガンマ線(核共鳴前方散乱[2])を利用すれば、その時間構造などを比較的容易に制御可能である。

本発表では、10 MHz程度の周波数で振動する核共鳴吸収体を利用した、ガンマ線の時間領域スペクトル制御法とその実験結果について報告する。

2. 振動する核共鳴吸収体を利用したガンマ線波形制御法

メスbauer分光では放射性同位体(RI)線源(または測定試料)に数10 mm/s程度のドップラー速度を与えてガンマ線のエネルギーを変調させるが、一定周波数で振動させた場合、振動系におけるガンマ線のエネルギースペクトルは、同じくドップラー効果に起因してその周波数だけ離散的なスペクトル成分を有するものへと変調する。また、振動系における各スペクトル成分の強度比は振動振幅によって決定される。このような高周波振動によるガンマ線のエネルギー変調は、水晶振動子やポリフッ化ビニリデン(PVDF)フィルムといった圧電素子に固定された試料のメスbauer分光によって確認することができる[3,4]。また、この核共鳴吸収体の高周波振動を利用することで、ガンマ線の時間領域スペクトルの制御が可能である[5]。周波数変調したガンマ線の時間領域スペクトルは実験系から見たものと同じである。しかし、核共鳴吸収体の共鳴エネルギーがスペクトル成分の一つと一致している場合、吸収体を透過する過程でその振幅や位相が入射時と比べて変化し、その結果、透過したガンマ線の時間波形は実験系においても変化する。特に、周波数変調した

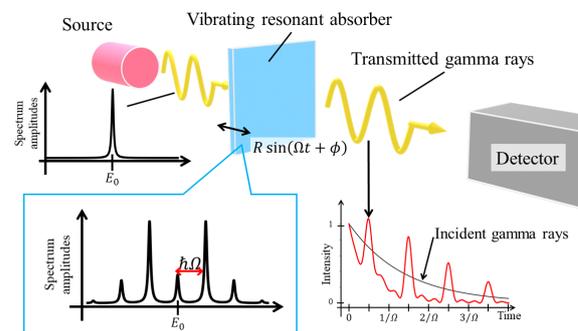


Fig. 1. Schematic drawing of a controlling method of gamma rays by transmitting through the vibrating resonant absorber.

ガンマ線の第1次高調波が極大となる振幅で吸収体が振動しており、共鳴エネルギーがその成分に合っているとき、透過ガンマ線の時間波形は振動周期と同じ周期の連続パルス波となる(Fig. 1)。以下に高周波振動する核共鳴吸収体を使用した、 ^{57}Fe 核から放出される14.4 keVガンマ線の時間波形制御実験について紹介する。

^{57}Fe 核が放出する14.4 keVガンマ線の時間領域スペクトルの取得には、RI線源を使用した実験の場合、 ^{57}Co 放射性同位体のカスケード崩壊を利用する。 ^{57}Co 核は電子捕獲によって ^{57}Fe 核の第二励起状態へ崩壊する。その ^{57}Fe 核は122 keVガンマ線を放出して第一励起状態へ崩壊し、さらに14.4 keVガンマ線を放出して基底状態へと崩壊していく。したがって、14.4 keVガンマ線と122 keVガンマ線の検出時刻の時間差を測定するコインシデンス測定によって、14.4 keVガンマ線の時間波形を取得することができる。振動する核共鳴吸収体を透過したガンマ線の時間波形を測定する場合は、その波形が振動位相と相関を持つため、122 keVガンマ線が特定の振動位相のタイミングで検出されたときのデータのみを記録するような測定システムが必要となる。そこで検出器からの信号と振動位相の情報をすべて記録し、実験後に解析可能な測定システム(Fig. 2)を開発し、振動する核共鳴吸収体を透過したガンマ線波形の測定実験を行った[6]。 ^{57}Co 線源はメスbauer分光実験に使用されるトランスデューサに取り付けられ、核共鳴吸収体の共鳴エネルギーをシフトさせるために、一定のドップラー速度が与えられている。 BaF_2 シンチレーションカウンターを用いて122 keVを検出し、その信号をConstant Fraction Discriminator(CFD)を介してMulti-channel scaler(MCS, FAST ComTec社製)へ入力する。このMCSは100 psの時間分解能を有し、入力された信号を時系列順に並べ

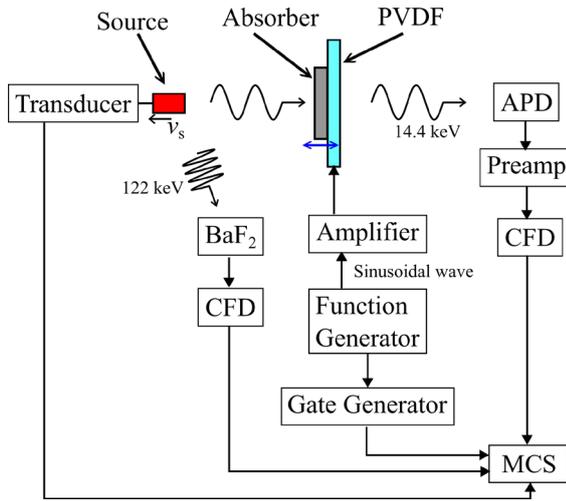


Fig. 2. Experimental setup for obtaining the 14.4 keV gamma-ray waveform transmitted through the vibrating nuclear resonant absorber [6].

たデータを出力可能である。シングルラインの ^{57}Fe 核を含む核共鳴吸収体として厚さ $20\ \mu\text{m}$ のステンレス (SUS304) 箔を使用し、PVDF フィルム (厚み $28\ \mu\text{m}$) へ接着した。周波数 $15\ \text{MHz}$ 、振幅 $10\ \text{V}_{\text{peak-to-peak}}$ (V_{pp}) の正弦波を PVDF フィルムへ入力してステンレス箔を振動させる。Fig. 3(a), (b) はそれぞれステンレス箔中の ^{57}Fe と周波数 $15\ \text{MHz}$ で振動している場合の ^{57}Fe メスバウアースペクトルである。振動によってシングルラインだった吸収スペクトルが等間隔で並ぶものへと変化している。これは振動するステンレス箔中の ^{57}Fe 核から見た入射ガンマ線が周波数変調したことによるものである。試料内部の ^{57}Fe 核の振動振幅が正規分布に従うと仮定した場合、吸収スペクトル (Fig. 3(b)) から推定した振動振幅は平均 $29\ \text{pm}$ 、標準偏差 $9\ \text{pm}$ であった[6]。核共鳴吸収体の $0\ \text{rad}$ のタイミング信号は Function Generator から出力される基準信号をもとにゲート信号を作成し、MCS へ入力する。核共鳴吸収体を透過した $14.4\ \text{keV}$ ガンマ線はアバランシェフォトダイオード (APD) によって検出される。MCS にすべての信号を入力し、MCS から出力される $122\ \text{keV}$ と $14.4\ \text{keV}$ ガンマ線の検出信号、振動位相の情報、そして RI 線源の速度情報を含む時系列データを実験後に解析することで、特定の条件下における $14.4\ \text{keV}$ ガンマ線時間波形が得られる。

3. 結果

RI 線源の速度が $-1.5\ \text{mm/s}$ の時、すなわち核共鳴吸収体の共鳴エネルギーが第 1 次高調波と一致している時 (Fig. 3(b)) の、吸収体を透過した $14.4\ \text{keV}$ ガンマ線時間領域スペクトルの実験結果を Fig. 4 に示す。横軸は BaF_2 シンチレーションカウンター信号の到達時刻を基準時刻としたときの APD 信号の到

達時刻、縦軸は時刻 0 における吸収体の振動位相、カラースケールは APD 信号のカウント数 ($14.4\ \text{keV}$ ガンマ線強度) をそれぞれ表す。ガンマ線強度が $15\ \text{MHz}$ の周波数で増減する様子が確認できる。また、周期的なガンマ線パルス波が振動位相とともにシフトしている様子も確認できる。RI 線源と振動する核共鳴吸収体を利用してガンマ線連続パルス波の生成に成功した。また、実験データをすべて記録し実験後に解析する手法を適用したことで、パルスのタイミングと吸収体の振動位相との間に相関があることを実証した。

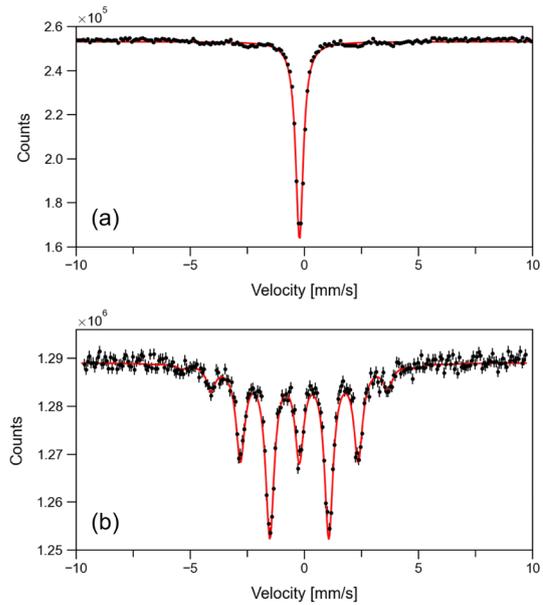


Fig. 3. The Mössbauer spectra of ^{57}Fe in the stainless-steel foil. (a) The applied voltage to the PVDF film was $0\ \text{V}$. (b) The sinusoidal wave with $10\ \text{V}_{\text{pp}}$ voltage and $15\ \text{MHz}$ frequency was applied to the PVDF film [6].

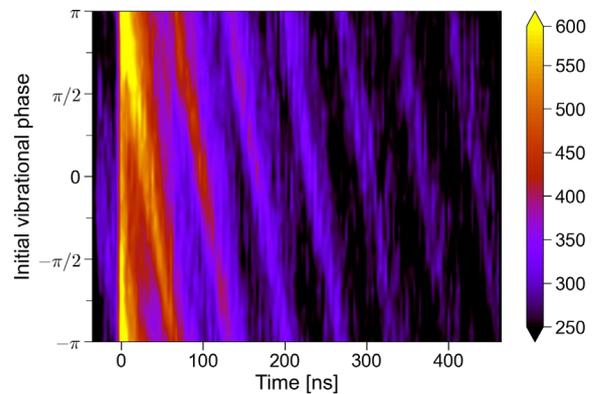


Fig. 4. Histogram of the measured $14.4\ \text{keV}$ gamma-ray waveform [7].

4. 結言

核共鳴吸収体の振動を利用したガンマ線制御法は、時間量子ビット[8,9]や量子メモリー[10]に関連した研究に適用可能であり、さらに ^{57}Fe 以外の核種の実験や超微細磁場の高速スイッチングによるガンマ線の偏光制御法[11]と組み合わせることが可能など、非常に拡張性の高い手法である。これらの将来的な研究においては、より高度な測定条件を要することが予想されるが、本研究で開発した測定手法はそのような実験を効率よく実行可能であり、また、放射光施設やX線自由電子レーザーを利用した実験にも利用できることから、X線量子光学を加速度的に発展させていくことが期待される。

参考文献

- [1] B. W. Adams *et al.*, *J. Mod. Opt.*, **60** (2013) 2.
- [2] G. V. Smirnov, *Hyp. Interact.* **123/124** (1999) 31.
- [3] S. L. Ruby *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **5** (1960) 5.
- [4] R. N. Shakhmuratov *et al.*, *Phys. Rev. B* **95** (2017) 245429.
- [5] F. Vagizov *et al.*, *Nature* **508** (2014) 80–83.
- [6] H. Yamashita *et al.*, *Interactions* **245** (2024) 366.
- [7] H. Yamashita, Ph.D. Thesis, Kyoto Univ. (2025).
- [8] J. Brendel *et al.*, *Phys Rev Lett.* **82** (1999) 2594.
- [9] I. Marcikic *et al.*, *Phys. Rev. A* **66** (2002) 062308.
- [10] A. I. Lvovsky *et al.*, *Nature Photon* **3** (2009) 706–714.
- [11] Yu. V. Shvyd'ko *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 3232.

(N4) Fe²⁺依存的な酸化膜傷害における放射線影響ならびに 「環境動態学 (農学部)」講義デザイン

(京大複合研) ○加藤信哉

1. 放射線の生物影響に関する基礎研究

1) はじめに

フェルトーシスは鉄依存的な膜脂質過酸化によって起こる細胞死であり、二価鉄 (Fe²⁺) と活性酸素種が主要な役割をになう^[1]。エックス線が水に照射されると放射線分解が起こり、フリーラジカルを生じるが、フェルトーシスとの関係は十分に解明されていない。本研究では、エックス線照射下におけるヒト線維芽細胞 OUMS-36T-1 に対する二価鉄 (Fe²⁺) の膜傷害作用を調べた。線維芽細胞の働きとして、放射線によって組織傷害を受けた場合に、線維芽細胞がコラーゲンやエラスチンなど細胞増殖の足場となるものを分泌し、修復を助けることがあげられる。続いて、膜脂質過酸化における二価鉄 (Fe²⁺) とエックス線の相乗効果について明らかにするため、不飽和脂質からなる DOPC/DOPS (8:2 mol/mol) リポソームをモデルとして用いた。

2) 実験方法

ヒト線維芽細胞 OUMS-36T-1 を 96 ウェルプレートに播種後、24 時間培養し二価鉄 (Fe²⁺) または三価鉄 (Fe³⁺) を添加した。30 分後にエックス線 4 Gy を照射し、3 日間培養した後、WST-8 法により細胞増殖度を評価した。さらに、40 μM 二価鉄 (Fe²⁺) 添加条件下で、細胞内活性酸素、膜脂質過酸化、乳酸デヒドロゲナーゼ (LDH) の細胞外漏出を測定した。また鉄キレート剤 (クエン酸) や抗酸化物質 (GSH) を添加した条件でも評価した。膜脂質過酸化は、細胞実験と同様の条件で DOPC/DOPS リポソームを用いて測定した。また、二価鉄 (Fe²⁺) の酸化状態について Nitroso-PSAP 法で測定した。

3) 結果および考察

二価鉄 (Fe²⁺) の濃度が 10 μM までは細胞増殖が促進されたが、それ以上では増殖が抑制され、エックス線照射下では二価鉄 (Fe²⁺) 濃度依存的に細胞増殖が低下した。三価鉄 (Fe³⁺) では顕著な影響は観察されなかった。40 μM 二価鉄 (Fe²⁺) 条件下でエックス線を照射すると、細胞内活性酸素および膜脂質過酸化の増加に加え、LDH の細胞外漏出も認められ、二価鉄 (Fe²⁺) とエックス線の相乗的作用による膜傷害が示唆された。クエン酸および GSH の添加により、活性酸素および膜脂質過酸化は抑制された。DOPC/DOPS リポソーム系でも、二価鉄 (Fe²⁺) により膜脂質過酸化が生じ、エックス線照射で増強された。Nitroso-PSAP 法により、リポソーム存在下

では、エックス線照射により二価鉄 (Fe²⁺) の酸化が促進されることが示された。

本研究の結果は、膜脂質の負電荷に引き寄せられた二価鉄 (Fe²⁺) が、膜脂質の過酸化を促して細胞増殖を阻害すること、さらにエックス線がこの二価鉄 (Fe²⁺) に依存的な膜障害を増大させることを示している。放射線による組織傷害から回復において、線維芽細胞が重要な役割を担っていることも考えあわせると、本研究は、二価鉄 (Fe²⁺) が細胞膜の近傍に存在する場合における放射線の生物学的影響の一端を示唆している。

2. 「環境動態学 (農学部)」講義デザイン-マイルド・アクティブラーニングによる教室の活性化

本講演では「環境動態学 (農学部)」講義において実施しているマイルド・アクティブラーニング型の授業デザイン^[2]について紹介する。環境動態学は、物質循環・生態系機能・環境評価など多様な内容を扱うものである。本取組では、学生への負荷を適切に調整しながら、知的活性化を促すことを目的として、全体 (90 分) を 3 部構成とし、軽度の参加型学習を組み合わせている。

第 1 部「Basic な話」では、テキストに沿った基礎知識を整理し、後続の学習に必要な共通理解を形成する。第 2 部「最近のトピックス」では、講義内容に関連した科学技術政策に関連する動向や、最近注目されたニュースなどを取り上げる。これによって、講義内容の現在地点を示し、学生の関心喚起と学問領域の位置づけ理解をはかる。第 3 部「文献購読と 10-min Discussion」では、文献購読を行った後に、3~5 人のグループに分かれて 10 分程度のディスカッションを行う。これにより学生が自ら考え、相互に意見をかわし、ひとつのアウトプットをつくる機会を提供する。

本講義デザインは、専門知識に関する基礎の習得とともに、最近の動向を踏まえて、未来に目を向ける思考を促すものである。時間効率 (Time Performance) を重視する最近では、受動型講義 90 分を集中することは必ずしも容易ではないが、この風潮を見過ごすことなく、「活性化された教室」を工夫して準備し構築することは大切であると考えられる。

参考文献

- [1] S.J. Dixon, *Cell*, **149**(5) (2012) 1060-1072.
- [2] 加藤信哉, 三重大学高等教育研究, **30** (2024) 107-108.

(T2) 気液二相流における流動特性と相間輸送機構の解明およびモデリング

(京大複合研¹、香港城市大学²、原子力機構³) ○沈秀中¹、日引俊詞²、孫昊旻³

1. 緒言

気液二相流技術は、高効率な熱・物質輸送システムの構築において基盤となる要素であり、原子炉や熱交換器、パイプラインなど多岐にわたる産業分野で活用されている。これらの解析には高精度な数値解析が求められ、とくに二流体モデルに基づく手法が主流となっている。二流体モデルは、気相、液相に対して独立に質量、運動量、エネルギー保存則を定式化してボイド率や二相速度のような二相流パラメータを計算するが、その予測精度の高度化には精緻な界面輸送項のモデル化が必要である。界面輸送項は、質量、運動量、エネルギー駆動力と界面積濃度 (= 全界面積 / 検査体積, IAC) の積によって与えられることから界面積濃度の高精度な予測手法の開発が気液二相流数値解析技術の精緻化の鍵となってきた。本研究では、局所ボイド率、界面積濃度、気相速度、気泡径の計測が可能な4センサ・プローブの計測手法を開発した。その手法を工業規模の大口径管やロッドバンドル内気液二相流に適用し、二相流パラメータに関するデータベースの構築を行った。さらに高性能研究用原子炉やスポレーション加速器ターゲット流路に関連した狭隘流路内の二相流挙動把握の一環として先進画像処理法を適用し、二相流パラメータのデータベース構築を行った。これらの実験データベースを基に機構論的に気液二相流の界面積濃度をモデル化し構成方程式を開発した。

2. 実験及び計測技術

2. 1 4センサ・プローブの計測技術の開発

4センサ・プローブは図1のデザインの例に示すように前方センサ0と後方センサ1、2、3により構成される。前方センサ0の先端先から後方 k 番目センサの先端までの距離ベクトル \mathbf{s}_{0k} ($k=1, 2, 3$)は、次式で与えられる。

$$\mathbf{s}_{0k} = |\mathbf{s}_{0k}|(\cos\eta_{x0k}\mathbf{i} + \cos\eta_{y0k}\mathbf{j} + \cos\eta_{z0k}\mathbf{k}) = |\mathbf{s}_{0k}|\mathbf{n}_{0k}, k=1, 2, 3. \quad (1)$$

ここで、 \mathbf{i} 、 \mathbf{j} 、 \mathbf{k} 、 \mathbf{n}_{0k} ($k=1, 2, 3$)はそれぞれ x 軸、 y 軸、 z 軸、 \mathbf{s}_{0k} の単位ベクトルであり、 η_{x0k} 、 η_{y0k} 、 η_{z0k} はそれぞれ \mathbf{s}_{0k} が x 、 y 、 z 軸となす角度である。各センサが気液二相の屈折率の差又は電気抵抗の差を利用して気相と液相とを検出する。 l 番目界面 (即ち h 番目気泡の $2h$ 又は $2h+1$ 番目界面) が4本センサの k ($k=0, 1, 2, 3$)番目センサの先端を通過する際には、その通過時刻 $t_{k,l}$ を検出できる。それらの通過時刻から、 l 番目界面が前方センサ0から後方 k 番目センサまでの移動時間 $\delta t_{0k,l}$ ($k=1, 2, 3$)と k 番目センサが h 番目気泡に滞在する時間 $\delta t_{k,h}$ ($k=0, 1, 2, 3$)が得られる。

$$\delta t_{0k,l} = t_{k,l} - t_{0,l}, k=1, 2, 3, \quad (2)$$

$$\delta t_{k,h} = t_{k,2h+1} - t_{k,2h}, k=0, 1, 2, 3. \quad (3)$$

従来の4センサ・プローブ計測法では、プローブを通過する界面を平面と仮定しており、気泡が小さい場合には、界面の曲率により計測誤差が大きくなる問題点がある。本研究は小気泡も計測できるように気液界面形状を平面ではなく、連続した、変形しない曲面 (球面) で捉える方法を導入した。これにより時間 Ω 内計測した N_b 個気泡のIAC(a_i)、第 h 番目気泡の速度ベクトル($\mathbf{V}_{b,h}$)及び第 h 番目気泡の直径(D_h)の計測方法を次のように導出した^{1,2)}。

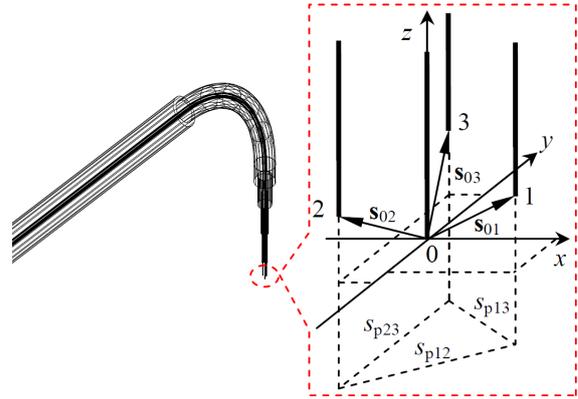


Fig. 1. A typical optical four-sensor probe.

$$a_i = \frac{1}{\Omega} \sum_{h=1}^{N_b} \left\{ \frac{(A_{01,h})^2 + (A_{02,h})^2 + (A_{03,h})^2}{|A_0|} \right. \\ \left. + \frac{\sqrt{(B_{01,2h})^2 + (B_{02,2h})^2 + (B_{03,2h})^2}}{|A_{01,h}B_{01,2h} + A_{02,h}B_{02,2h} + A_{03,h}B_{03,2h}|} \right. \\ \left. + \frac{\sqrt{(B_{01,2h+1})^2 + (B_{02,2h+1})^2 + (B_{03,2h+1})^2}}{|A_{01,h}B_{01,2h+1} + A_{02,h}B_{02,2h+1} + A_{03,h}B_{03,2h+1}|} \right\} \quad (4)$$

$$\mathbf{V}_{b,h} = \frac{|A_0|(A_{01,h}\mathbf{i} + A_{02,h}\mathbf{j} + A_{03,h}\mathbf{k})}{(A_{01,h})^2 + (A_{02,h})^2 + (A_{03,h})^2}. \quad (5)$$

$$D_h = \frac{\sqrt{(B_{01,l})^2 + (B_{02,l})^2 + (B_{03,l})^2}}{|A_0|}, l=2h, 2h+1. \quad (6)$$

ここで、 A_0 、 $A_{0k,h}$ ($k=1, 2, 3$)、 $B_{0k,l}$ ($k=1, 2, 3$)は距離ベクトル \mathbf{s}_{0k} ($k=1, 2, 3$)、界面移動時間 $\delta t_{0k,l}$ ($k=1, 2, 3$)と気泡滞在時間 $\delta t_{0k,h}$ ($k=1, 2, 3$)で算出する行列式である。

新しく開発した計測法の実用性を検証するために、光学4センサ・プローブを用いて内径 $D (=0.2 \text{ m})$ の垂直大口径管 (セクション2.2参照のこと) 内気液二相流の計測実験を行った。高さ $z/D=82.8$ (z : 入口からの軸方向距離) で測定したボイド率(α)、IAC(a_i)、気泡径(D_b)及び3次元気泡速度成分(V_{bx} 、 V_{by} 、 V_{bz})の平均結果を他の測定方法と比較した結果、新しく開発した4センサ・プローブ法は多次元気液二相流の局所測定が可能であることが示された。

2. 2 大口径管内気液二相流実験

垂直大口径管内の気液二相流は、地下エネルギー

貯蔵、CO₂回収・貯留、シェール資源開発、原子力発電などにおいて重要な役割を担っている。本研究では、界面積濃度輸送特性を明らかにするため、光学式4センサ・プローブを用い、内径 $D=0.2$ m、高さ 26 m の垂直大口径管内上昇二相流を対象に局所計測を実施した。 $z/D=41.5, 82.8, 113$ の3断面で $r/R=0\sim 0.95$ の11位置における測定から、IAC データベースを構築した³⁾。ここで、 z, r, R は、それぞれ入口からの軸方向距離、管中心からの半径距離、管の半径である。気泡抗力係数の違いに基いて測定した全気泡を一群(球状/変形の気泡)と二群(キャップ/スラグ状の大気泡)に分類し、それらの代表的な IAC(a_i)の結果を図2に示す。本実験では、液相見かけ流速($\langle j_g \rangle$)とボイド率は、それぞれ $0.0505\text{m/s}\sim 0.312\text{m/s}$ 、 $1.98\%\sim 32.6\%$ である。この流動様式は気泡流、キャップ気泡流、及びその遷移領域である。

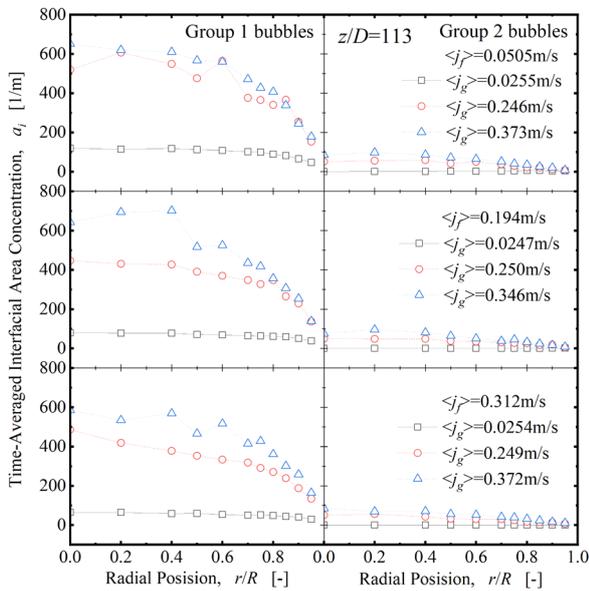


Fig. 2. Measured radial profiles of group-1 and 2 IACs in the vertical $\phi 0.2\text{m}$ pipe at axial position $z/D=113$.

2. 3 ロッドバンドル内気液二相流実験

ロッドバンドル構造は、加熱ロッドからの熱除去性能に優れていることから、軽水炉炉心で広く採用されている。本研究では、独自に開発した光学4センサ・プローブを用いて、 6×6 垂直なロッドバンドル流路(ロッド径 10mm、ピッチ 16.7mm、正方形チャンネルボックス辺長($2a$)100mm、水力直径(D_h)18.7mm)内上昇気液二相流に対して、16 流動条件に対して $z/D_h=149$ の位置で断面の 1/8 三角形領域を測定し、局所パラメータ(ボイド率、IAC、気泡直径、及び気泡速度ベクトル)のデータベースを構築した⁴⁾。測定した局所 IAC(a_{ic} :サブチャンネル中心点の値、 a_{ie} :サブチャンネルエッジ点の値)の断面分布データの一部を図3(座標原点($x=0, y=0$):測定断面の中心点)に示す。図3では、コアピーキングと壁ピーキングの分布形状が観察でき、分布パターンは、 $\langle j_g \rangle$ の増加と気相見かけ流速($\langle j_g \rangle$)の減少に伴って、コアピーキング形状から壁ピーキング形状に変化する傾向が

あることが明らかとなった。

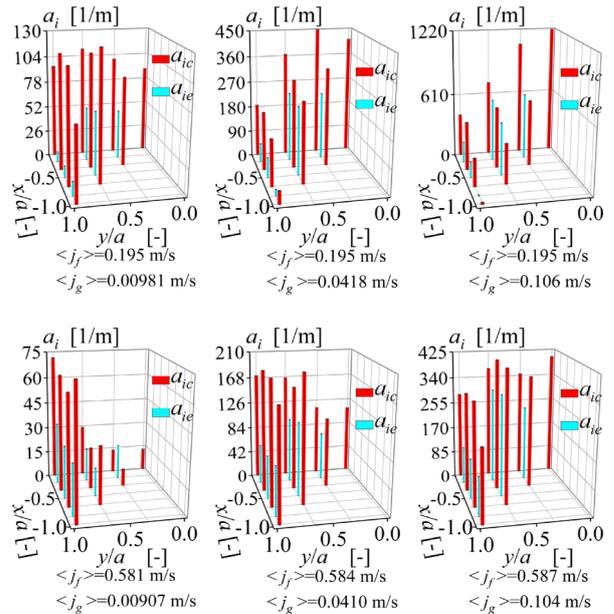


Fig. 3. Measured radial IAC profiles in a vertical rod bundle at axial position $z/D_h=149$.

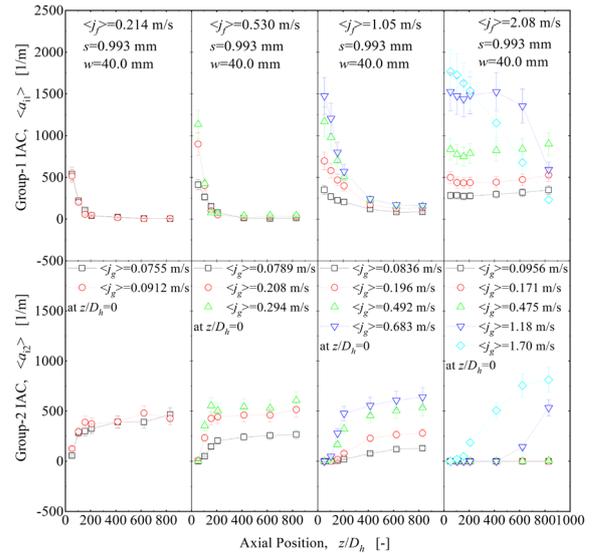


Fig. 4 Measured axial developments of group-1 and 2 IACs in the narrow duct

2. 4 狭隘流路内気液二相流実験

高性能研究用原子炉やスプレー加速器ターゲット流路に関連した狭隘流路内の二相流挙動を把握するため、本実験では、隙間(s)0.993 mm、幅(w)40.0 mm、高さ 2 m の狭隘流路(水力直径 $D_h: 1.94$ mm)内垂直上昇気液二相流に対して高速カメラと先進画像処理法を使用し、上昇方向の7箇所($z/D_h=52, 104, 155, 207, 415, 622, 829$)での計測を行い、気泡を二群に分類し、それぞれの群の局所パラメータ(ボイド率、IAC、気泡径と気相速度)のデータベースを構築した⁵⁾。実験は14の流動条件下で実施し、 $\langle j_g \rangle$ と $\langle j_g \rangle$ はそれぞれ 0.214m/s から 2.08m/s 、 0.0755m/s から 1.70m/s までである。観察された流動様式は、気泡流、キャップ気泡流、及びスラグ流である。測定

されたボイド率は 3.92 % から 42.6 % の範囲である。その中の二群気泡 IAC(a_{i1} と a_{i2})の結果を図 4 に示す。低 $\langle j \rangle$ 流動条件での流動様式遷移を伴い、顕著な気泡の合体が生じ、一群と二群気泡のそれぞれの急激な軸方向減少と増加が観察された。高 $\langle j \rangle$ 流動条件での流動様式遷移時は、緩やかな軸方向の二群気泡の変化が観察された。

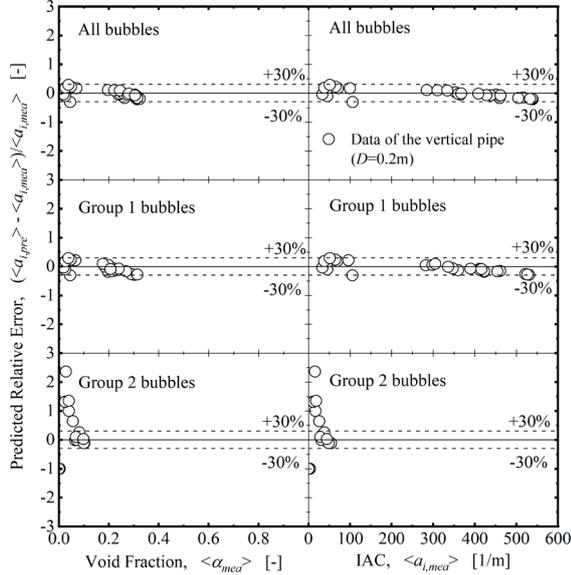


Fig. 5. Evaluation of the present newly developed IAC correlation with the experimental data of the $\phi 0.2$ m pipe.

3. 界面積濃度予測構成方程式の開発

3.1 大口径管の界面積濃度構成方程式

本研究では、大口径管内多次元気液二相流の気泡に対して二群気泡の分類を採用し、界面積濃度構成方程式を開発した⁶⁾。一群気泡のボイド率 $\langle \alpha \rangle$ は、気液二相流の実験データ解析により次の全気泡のボイド率 $\langle \alpha \rangle$ で表示する構成式を開発した。

$$\langle \alpha_1 \rangle = \begin{cases} \langle \alpha \rangle & \langle \alpha \rangle \leq 0.15 \\ 0.417 \langle \alpha \rangle + 0.0875 & 0.15 < \langle \alpha \rangle \leq 0.51 \\ 0.3 & \langle \alpha \rangle > 0.51 \end{cases} \quad (7)$$

二群気泡のボイド率 $\langle \alpha_2 \rangle$ は $\langle \alpha \rangle - \langle \alpha_1 \rangle$ で得られる。一群気泡の個数密度方程式と界面積濃度輸送方程式の特性解析、ならびに二群気泡の大口径管ドリフト速度の変換を通じて、それぞれの気泡の IAC($\langle a_{i1} \rangle$ と $\langle a_{i2} \rangle$)をボイド率、ラプラス長さ(L_0)とエネルギー消散率(ε_1 と ε_2)で表す式を導出した。

$$\langle a_{i1} \rangle = 3.37 \times \langle \alpha_1 \rangle \varepsilon_1^{0.0279} / (L_0^{0.889} v_f^{0.0836}). \quad (8)$$

$$\langle a_{i2} \rangle = 1659 \langle \alpha_2 \rangle^{0.796} (1 - \langle \alpha_2 \rangle)^3 \frac{L_0^{0.525} \varepsilon_2^{0.131}}{v_f^{0.394}} \left(\frac{\rho_g}{\rho_f} \right)^{0.314} \left[\frac{\sigma}{g(\rho_f - \rho_g)} \right]^{-0.5} N_{\mu f}^{1.124}. \quad (9)$$

ここで、 v_f 、 ρ_g 、 ρ_f 、 $N_{\mu f}$ 、 σ 、 g はそれぞれ液相動粘性係数、気相密度、液相密度、粘性数、表面張力、重力加速度である。得られた IAC 構成式は図 5 のように $\phi 0.2$ m 管の実験データによりその有効性を確認した。

3.2 狭隘流路内二相流界面積濃度輸送方程式

本研究では、隙間(s)の狭隘矩形流路内二相流に対

して扁平気泡の特性を利用して粒子密度輸送方程式から次の界面積濃度輸送方程式(IATE)を導出した⁷⁾。

$$\frac{\partial a_i}{\partial t} + \nabla \cdot (a_i \mathbf{v}_g) = \Delta a_i \left[\frac{\partial \alpha}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha \mathbf{v}_g) \right] + \Delta A_i (R_B - R_C) \quad (10)$$

ここで、 t 、 \mathbf{v}_g 、 Δa_i 、 ΔA_i 、 R_B 、 R_C はそれぞれ時間、気相速度、ボイド率変化による IAC 変化、単位体積と単位時間ステップにおける気泡数変化による IAC 変化、気泡分裂(液相乱流渦と気泡の衝突)による気泡数の変化率、気泡合体(気泡間ランダム衝突)による気泡数変化率である。 Δa_i と ΔA_i は次の式で表される。

$$\Delta a_i = 4 \times$$

$$\frac{(3\pi^2 - 16) \sqrt{\frac{32}{3\pi^2} \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{2}{s} \right) \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{6}{s} \right) + \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{4}{s} \right)^2} + (3\pi^2 - 32) \frac{a_i}{\alpha} \frac{12(\pi^2 - 8)}{s}}{(3\pi^2 - 32) s \left\{ \sqrt{\frac{32}{3\pi^2} \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{2}{s} \right) \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{6}{s} \right) + \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{4}{s} \right)^2} + \frac{a_i}{\alpha} \frac{4}{s} \right\}}$$

$$\Delta A_i = \frac{2\pi s^2 \sqrt{\frac{32}{3\pi^2} \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{2}{s} \right) \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{6}{s} \right) + \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{4}{s} \right)^2}}{3 \left\{ \sqrt{\frac{32}{3\pi^2} \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{2}{s} \right) \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{6}{s} \right) + \left(\frac{a_i}{\alpha} \frac{4}{s} \right)^2} + \frac{a_i}{\alpha} \frac{4}{s} \right\}}$$

R_B と R_C も、ボイド率・IAC・隙間 s で表した解析式を導いた。本研究で得られた狭隘矩形流路内の気液二相流実験データを用いて、IATE ならびに気泡合体・分裂モデルの検証を行い、その有効性を確認した。モデル予測の検証結果の一部を図 6 に示す。

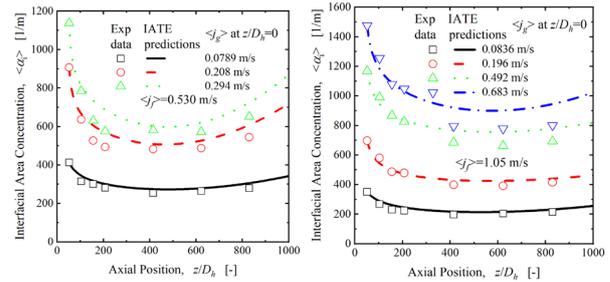


Fig. 6 Comparison of interfacial area concentration transport model predictions with measurements.

4. 結言

本研究では 4 センサ・プローブを開発し、大口径管およびロッドバンドル内の気液二相流データベースを構築した。さらに、画像処理手法を用いて狭隘流路内二相流のデータベースを整備した。これらのデータに基づき、気液二相流の流動特性を解明するとともに、界面積濃度の構成方程式を提案した。

参考文献

- [1] 沈秀中, 特許第 5916509 号, 2016 年 4 月 15 日.
- [2] X. Shen, H. Nakamura, Int. J. Multiphase Flow, **60** (2014) 11-29.
- [3] X. Shen *et al.*, Int. J. Heat Fluid Flow, **34** (2012) 70-84.
- [4] X. Han *et al.*, Int. J. Heat Mass Transf., **144** (2019) 118696.
- [5] X. Shen, T. Hibiki, Int. J. Heat Mass Transf., **191** (2022), 122832.
- [6] X. Shen, T. Hibiki, Int. J. Heat Fluid Flow, **54** (2015) 107-118.
- [7] X. Shen, T. Hibiki, Int. J. Heat Fluid Flow, **44** (2013) 312-326.

(S2) 水・土壌・底泥環境中の汚濁物質の動態調査と環境修復技術の研究

(京大複合研) ○藤川陽子

1. はじめに

小職は京都大学工学部衛生工学科（現・地球工学科）および同修士課程（現・都市環境工学専攻）を修了後、原子炉実験所（当時）・放射線管理研究部門に助手として配属された。その後、バックエンド工学研究部門、原子力基礎工学研究部門・放射能環境動態工学分野を経て、現在、原子力基礎工学研究部門・放射線管理工学研究分野に所属している。もともとの専門は、土木環境工学（科研費の小分類名でもある）と称するのが適切だと思うが、修士を終えてから配属された放射線管理研究部門では、いわゆる保健物理学（Health Physics）の教育を受けた。具体的には放射線管理の当番業務全般をこなしたことで、当時は分野で ICRP 勧告を読むゼミが開催されてそのころまでに出版された主要な勧告をすべて読んだ。ここではその間の研究の経緯をまとめる。

2. 放射性廃棄物の最終処分の安全評価と地水圏における放射性核種の移行挙動

(1) 高レベル放射性廃棄物最終処分の安全評価

原子力の利用は、原子力の開発・利用過程から発生する放射性廃棄物の処分事業抜きには完結しない。そして、廃棄物処分事業を実施するには、短期・長期の環境安全性確保が最重要課題である。

小職は、当初主に高レベル放射性廃棄物(High Level Waste, 以下 HLW)の安全評価に係る研究を行った。特に、廃棄体から放射性核種が地圏環境（いわゆる天然バリア）中に移行した後の核種移行と処分の安全性について、放射性物質をトレーサとする実験的研究ならびに数学モデル構築と数値シミュレーションによる計算研究の両面での追究を行った。

HLW に含まれる様々な放射性核種のうち、長半減期のセシウム、セレン、ヨウ素ならびに早期に処分システムが崩壊すると問題になるストロンチウム、コバルトおよびマンガンに焦点を絞った

各種の地質媒体（岩石）による核種移行抑制の発現機構と支配要因を明らかにすることをめざし、多数の室内吸着試験ならびに抽出試験を行った。その結果、(1)岩石への核種のみかけの収着速度と岩石内微小孔隙への拡散係数との間には、相関関係が成立すること、(2)岩石への核種の収着機構が時間と共に変化するエイジング（加齢）効果のあること、(3)セレン・ヨウ素は岩石・砂質土との相互作用によりその地下水中存在形態が動的に変化すること、(4)地下水中の主要アニオンや温度が、セシウム等のカチオン形放射性核種の岩石等への収着を大きく左右すること、等を明らかにした。例として(3)にかかわる実験結果の一部を図1に示す。様々な岩石・鉱物に接触する溶液中の Se の存在形態分離は薄層クロマトグラフィで行い、Ge 半導体検出器で測定した。

HLW 処分の安全評価に使うパラメータをえるため

には、室内実験や現場試験結果を特定のモデルに基づいて定量的に解釈し、実現象に適合するパラメータを導出する必要がある。そのため、地層中の核種移行モデルの構築と、数学的解析ならびに有限要素法による数値解の開発を行い、これを実験データの解析に適用してモデルの有効性を証明するとともに、核種移行パラメータを算出した。割れ目のある岩石コアへのトレーサ試験結果を数学モデルでフィッティングした例を図2に示す。

さらに、室内実験で得た知見を反映させた安全評価モデルを開発、仮想的な放射性廃棄物地層処分場の評価に適用した。その結果、地層バリアの性能が、従来言われてきた核種の収着係数のみならず、微小孔隙内拡散係数にも大きく依存することを示した。

なお、小職がこの研究を開始した当時は、HLW の最終処分に関する法律もまだ制定されておらず、パイオニア的研究であったため、大阪ニュークリアサイエンス協会賞（第12回 平成9年度・基礎研究部門）を頂いた。

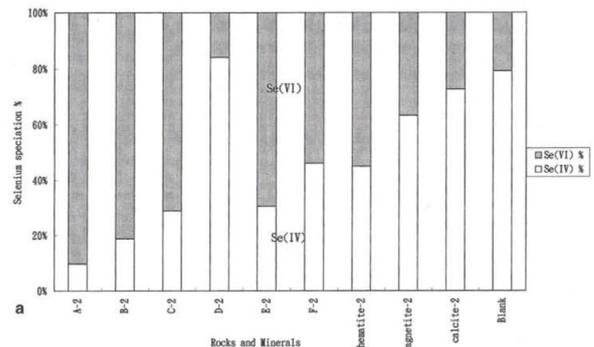


図1 岩石鉱物と接触する液中の放射性 Se の存在形態

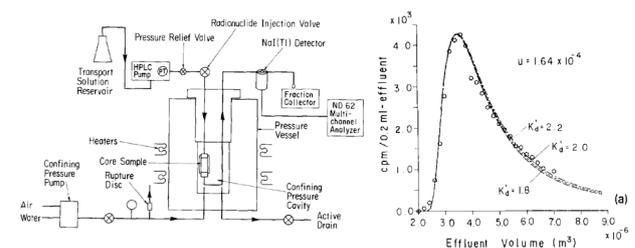


図2 岩石コアからの放射性 Cs の破過曲線フィッティングの例

(2) 廃棄物埋立処分場主変の地下水流動計算

山間部に設置された管理型および安定型埋立地を含むサイトにおいて、地下水の流動と水質形成機構を明らかにし、地下水排除工が地下水流動や水質に与える影響を検討する研究を行った。地下水水位や水質の通年調査、MODFLOW6 を用いた地下水流動シミュレーション、水質データの時空間的変動と相関解析を実施した結果、サイト内の地下水水質は自然の水質形成機構の影響を受けているものの、集排

水管からの地下水は、自然由来のみならず人為的な影響を受けている可能性が判った。地下水流動シミュレーションの結果、安定型埋立地を通過した地下水の一部が集排水管へ流入(図3)、異なる水質を生じさせた可能性があることが判明した。

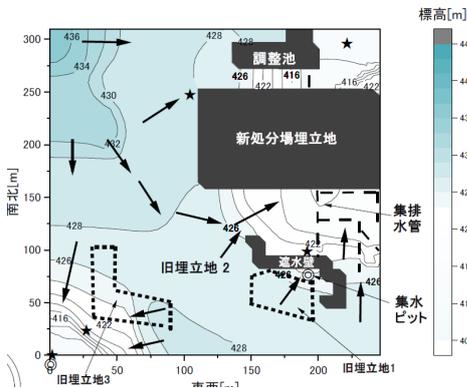


図3 埋立地周辺地下水流動シミュレーション結果

(3)埋立処分場の浸出水の調査

福島第一原発事故後の放射性セシウムを含む廃棄物焼却灰埋立処分場の安全性にかかわり、統計学と機械学習を用いて埋立地の浸出水と放流水の水質データを分析し、放射性セシウムの挙動を明らかにすることを目的とした。7つの処分場について毎月の採水を最長7年行い放射性セシウム以外にも多項目の分析を浸出水・放流水で行った結果を、混合ディリクレ多項分布(DMM)を用いた教師なしのクラスタリング法で析した結果を図4に示す。本法が似た特性の処分場の同定及び外れ値の抽出に有効なことが判明した。

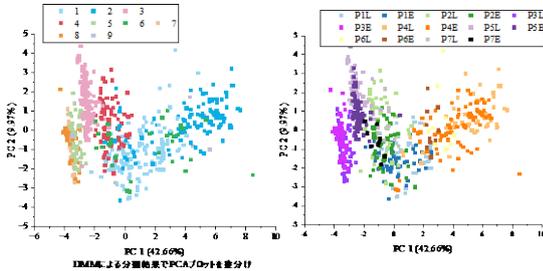


図4 主成分分析プロットをDMMによる分類結果(左)と試料の起源(右)で塗分け

(4)ウクライナのChernobyl原発周辺地下水調査

Chernobyl 原発周辺の避難区域(CEZ)では 事故後の降下物等による ^{137}Cs , ^{90}Sr の土壤汚染が深刻で、 ^{90}Sr のみならず土壤中で移動性が低いとされる ^{137}Cs も同地の地下水中に広く検出されている。CEZ の溶存態 ^{137}Cs 濃度は数十~400mBq/L で、福島第一原発事故後の福島県南相馬市で観測された濃度(約10mBq/L以下)よりも1桁以上高い。さらに我々の調査で CEZ の地下水中の懸濁物質にも ^{137}Cs が分配していることが判った。また、このような懸濁物の存在が CEZ の監視機関 EcoCenter による地下水分析結果に影響を与えている可能性が明らかになった。同地の観測井の水の ^{137}Cs 濃度のトレンド(1985年に減衰補正、カルマンフィルターで処理)を図5に示す。暖かい時期に濃度ピークが出

る傾向があるが、2024年冬の調査から水中の懸濁物濃度がその時期に増える可能性があることの影響という推定が可能である。

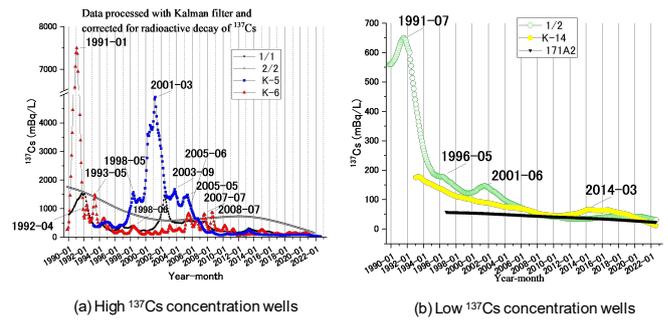


図5 CEZのいくつかの観測井の水の ^{137}Cs 濃度のトレンド

3. 環境調査の研究

(1)水俣湾から八代海への水銀の拡散

水俣湾を中心に発生した有機メチル水銀中毒(水俣病)に係る研究で、小職らは長崎大の協力を得て水俣湾の水銀汚染汚泥浚渫後の水銀の海洋底拡散についてエクマンバージ採泥器ならびに堆積物コアの採取により調査を行った。堆積物コアの採取と層別別のPb-210年代測定、ならびに各層位の水銀濃度測定により、排水口から3.9km離れた地点での水銀汚泥が到達・堆積開始まで約30年かかることが示唆された(図6)。水銀分析は酸分解した試料に対し当研究所において同位体希釈-水素化物発生-ICP-MS法で行った。

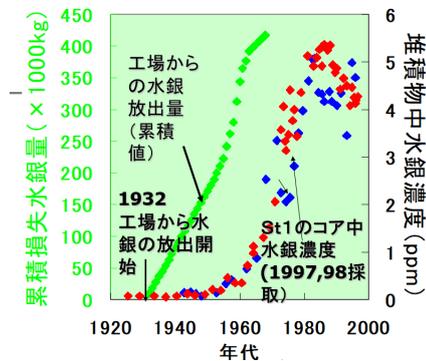


図6 排水口から3.9kmでの海洋堆積物コア

(2)広島原爆の黒い雨にふくまれるU-235の追跡

広島原爆の黒い雨に含まれるウラン同位体比と金属元素の分析結果から、最終的に黒い雨の雨域を解明することを目指した研究である。広島の家屋の壁から(原爆資料館所蔵)雨の部分を採用し ^{137}Cs , $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比、各種重金属を分析した。雨成分の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は0.00741~0.00779で自然界のウランの比率(0.00725~0.00726)より高く、 ^{235}U は広島原爆由来の降下物の指標となりうる事が判った。ただし日涉園の池の堆積物調査からは有意に高い $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は見出されなかった。ウラン分析は酸分解した試料に対し当研究所において固相抽出後濃縮、マイクロフローネブライザ(MFN)-ICP-MSにて実施した。マスマイアスはウラン同位体標準試料の測定で補正した。

(3)Pu 同位体の環境中分布の研究

$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比がグローバルフォールアウトと長崎原爆の降下物とでは異なることを利用し、各種の環境試料の Pu 分析を行った。例えば長崎の西山土壌における放射性プルトニウムの腐植物質との強い結合を見出した。この結果は同地の土壌で Pu が約 4m 程度地下に移行している一方、 ^{137}Cs は 0.4m 程度しか移行していないことと関連している可能性がある。Pu 分析は酸分解した試料に対し当研究所においてイオン交換分離後濃縮、MFN-ICP-MS にて実施した。マスマイアスは Pu 同位体標準試料の測定で補正した。

(4)核融合研究所周辺地区における自然放射線調査土岐地区における空間ガンマ放射線の変動の要因を明らかにするため、可搬型 Ge 半導体検出器および NaI(Tl)を使用した *in-situ* ガンマ線スペクトル測定、採取した土壌試料の低バックグラウンドガンマ線分光分析、溶解または酸分解処理した土壌試料中の U, Th の ICP-MS 測定を実施した。その結果、自然土壌の放射性核種含有量と外部放射線レベルはおおむね一致した。ただし土壌中の放射性核種の不均一な分布や土地の地形、人工建築物や園芸土の存在が空間ガンマ線に影響した。

4. 環境浄化の研究

(1)鉄バクテリア法による地下水浄化

アジアの大河流域では地下水のヒ素汚染が深刻で例えばベトナムでは管井戸の約 43%が WHO 基準を超える砒素濃度である。この地下水砒素汚染に対処できる技術として鉄バクテリアを利用して下水中飲用障害成分である鉄・マンガン・アンモニア・砒素を同時に除去する技術を日本国内でのパイロット試験に基づいて開発してきた。試験では電気化学分析法（ボルタンメトリ法）によるオンライン砒素濃度分析を活用した。特に地下水中の砒素の主要形態である砒酸、亜砒酸のうち亜砒酸は毒性が高いうえに解離していない中性分子になりやすく一般的な水処理で除去しにくい問題がある。小職らは Spring8 での連続通水条件下の XAFS 測定を行い、鉄バクテリア法でできる水酸化鉄が亜砒酸を亜砒酸のまま吸着できることを確認した。三井物産環境基金の援助を受け本研究に基づくろ過装置をベトナム農村水道施設として設置した（図 7）。

さらに、ベトナム現地の地下水には高濃度アンモニアという別の問題があったことから、近年新たに開発適用の始まった嫌氣的アンモニア酸化法（anammox 法）適用を模索した。Anammox 菌の種汚泥の培養から開始し、ベトナム現地水道で平均約 38% の除去率を維持、処理水質が現地の水道水質基準を満足することを確認した。16S rRNA による菌叢解析の結果、現地の地下水にも anammox 菌が存在してこの菌が処理装置の性能維持に貢献していることも判明した。



図 7 鉄バクテリア法に基づくベトナム農村水道施設

(2)土壌浸透法による汚水浄化

土壌細孔への溶質拡散現象を利用し、廃棄物材料を造粒加工した土壌浸透ろ材を作成、腐植質有機物とリン酸を除去する水処理系を構築した。室内試験を経て広島県のダム湖の水の浄化のパイロット試験を行った。本技術は国交省の実施設に採用された

(3)PFOS 分解除去の研究

ペルフルオロアルキル化合物の 1 種である PFOS の水溶液中での電気分解に関する研究を行った。分解は成立するが分解生成物が不明であったため LC-MS/MS, LC-TOF/MS, IC-MS/MS 分析等を行ったが産物同定に至らなかった。分解産物の存在する phase 同定のため PIGE 法による全フッ素分析を行った結果、産物は水相に存在すること等が判った。

(4)家畜排せつ物中のエストロゲンの分解

家畜排泄物のメタン発酵消化液を肥料として利用する取り組みに係り、し尿由来のエストロゲンの農地環境での分解速度を様々な方法で検討した。

(5)福島第一原発事故の指定廃棄物除染と減容

福島第一原発事故後の放射性セシウム汚染問題に対応するため、指定廃棄物の抽出液に対してフェロシアン化物共沈法を用いたセシウムの選択的除去を行い、指定廃棄物を大幅に減容して濃縮された放射性セシウムを含むごく少量の廃棄物にする技術を開発した。関西で発生した焼却灰抽出液で室内実験を行って技術の確立を目指した。特に共沈時の pH、フェロシアン化物濃度、フェロシアン化物投入量、試料マトリクスの影響を検討した。Cs 除去率は安定同位体の Cs 添加もしくは Cs-137 トレーサ添加下で評価した。並行して、指定廃棄物発生現地で七次におたる現地試験も実施し、原液中のリン酸の除去が重要なことが判明した。現地試験では小職らの研究してきたボルタンメトリ法による金属分析と可搬型 Ge 検出器による放射能分析が活躍した。

5. まとめ

本研究所に所属して行ってきた研究についてここで概括した。参考文献は煩雑になるため示さなかったが今後 Web などへの入力を進めて簡単に参照できるようにする所存である。研究を進めるにあたり内外の共同研究者の先生や大学院生の皆様にお世話になりました。科学研究費補助金や各種財団の援助もいただきました。ここに記して感謝します。

あ と が き

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

第 60 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会は、令和 8 年 1 月 29 日と 1 月 30 日の 2 日間にわたって開催いたします。依頼講演はハイブリッド開催、一般講演はポスター発表による対面形式とします。その内容は、以下の通りです。

1)	新人講演	4 件
2)	プロジェクト研究成果報告	3 件
3)	トピック講演	2 件
4)	特別講演	2 件
5)	一般講演	41 件

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

令和 8 年 1 月
学術公開委員会
委員長 高田 匠

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 8 年 1 月
住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目
TEL (072) 451-2300