

# 放射化学ニュース 第10号

---

# 放射化学ニュース

## 第10号

平成16年(2004年)9月25日

---

### 目次

#### 解説

ポジトロニウム形成過程についての最近の理解(伊藤泰男)..... 1

#### 歴史と教育

ビキニ事件50周年 - 静岡大学とのかかり合いを中心に - (長谷川罔彦) ..... 9

#### 施設だより

放射線医学総合研究所 静電加速器棟: PIXE分析装置(PASTA)(湯川雅枝) ..... 12

#### コラム

セビリア大学物理学部(スペイン)における環境放射能研究について(田上恵子)..... 18

メスbauer分光が見つけた火星の水(竹田満洲雄)..... 19

#### 研究集会だより

1. 第5回「環境放射能」研究会(宮本ユタカ) ..... 20

2. 第41回理工学における同位元素・放射線研究発表会(岡田往子)..... 20

3. 第11回国際放射線防護学会(田上恵子)..... 22

4. 第6回環境放射能・放射線夏の学校(福田紋子)..... 22

#### 情報プラザ

1. 第4回先端基礎研究国際シンポジウム(ASR2004) ..... 24

2. テクネチウムに関する国際シンポジウム - 科学と利用 - ..... 24

3 . Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '05 ( APSORC2005 ) .....	25
学位論文要録 .....	26
学術会議だより .....	30
学会だより	
1 . 学会のシンボルマークについて.....	32
2 . 学会賞及び奨励賞について.....	33
3 . 日本放射化学会第19回理事会議事要録 .....	33
4 . 日本放射化学会第20回理事会議事要録 .....	33
5 . 会員動向 (平成16年2月～平成16年7月) .....	34
6 . 日本放射化学会入会勧誘のお願い.....	35
7 . Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences (日本放射化学会誌) への投稿について .....	37
8 . Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences (日本放射化学会誌) 投稿の手引き .....	37
9 . 日本放射化学会会則.....	38
2004年日本放射化学会年会・第48回放射化学討論会プログラム .....	41



#### Anti-inhibitionのファンタジー

イオン化で叩き出されたお姫様 ( $e^-$ ) はお城に戻る (親イオンとの再結合) か、 $e^+$  と結婚する (Ps形成) かなどの選択肢があるが、悪いスキャベンジャに捕まりそうであわやと云うとき、良いスキャベンジャが現れて  $e^+$  との結婚を支援してくれる。

## 解説

## ポジトロニウム形成過程についての最近の理解

伊藤泰男（元東京大学原子力研究総合センター）

## 1. はじめに

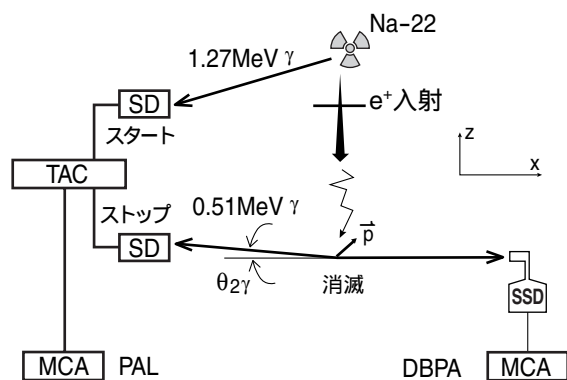
陽電子が電子一つと結合してポジトロニウム ( $\text{Ps}, e^+e^-$ ) というとびきり軽い“原子”が形成されることが知られてから、「ポジトロニウム化学」という名前の下でその反応性に着目する研究が行われた。そして、Psは水素原子と同じように、酸化反応、付加反応、スピン交換反応などを行うこと、反応速度はほとんどの場合拡散律速であることなどが確かめられていった。1970年代後半あたりからは研究の重心がPsの形成機構に移り、伴ってポジトロニウム化学という言葉は使われなくなって、今では“chemistry of positron and positronium”と長たらしく呼ばれている。陽電子もポジトロニウムもまだ多くの研究課題を持っていることの表現であろう。その中でも今、ポジトロニウムの形成機構を正しく知ることがとりわけ重要となっている。それは学問的な興味だけではなく、Psをナノメートルサイズの空

孔のプローブとして用いるという実用的な目的のためにも必要なのである。そこでここでは、Ps形成機構に関する問題について整理してみる。陽電子一般について記述する余裕はないので、一般的な解説書を[文献1~5]に引用しておく。

## 2. ポジトロニウムの概略

陽電子は通常高いエネルギーで物質に注入されるが、イオン化や励起を繰り返して1 ps程度の時間で熱エネルギー近くまで減速する。この際絶縁体中では部分的にPsを形成するが、いずれにしても、 $e^+$ またはPsの形で物質中を移動し、それらを捕捉するサイトがあれば捕捉されてそこで消滅する。

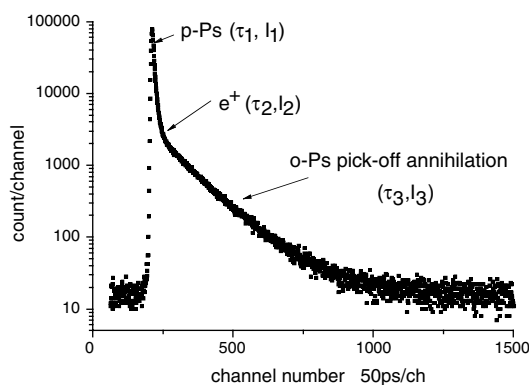
陽電子は、消滅相手となる電子が陽電子の位置にどれだけあるか（陽電子と電子の重なり密度）に比例した速さで消滅する。陽電子と電子の対が消滅すると2つ又は3つの線を出す



左

図1 陽電子の入射・移動・消滅と寿命測定 (PAL) とドップラー幅測定 (DBPA)

SD : シンチレーション検出器  
TAC : 時間波高変換器  
SSD : Ge半導体検出器  
MCA : 多重波高分析機器



右

陽電子スペクトルの例

寿命の短い順に  $p\text{-Ps}$ ,  $e^+$ ,  $o\text{-Ps}$  の消滅による3つの指数減衰関数が分解能曲線で畳み込まれている。それぞれの寿命  $\tau$ 、強度  $I$  (全体に対するその成分の割合、%) をデータ処理によって求める。化学でよく使われる系 (水、有機溶媒、高分子材料など) では  $o\text{-Ps}$  の寿命 ( $\tau_3$ ) は  $o\text{-Ps}$  が入り込んでいる空孔の大きさに依存して 1.5 ~ 4 ns 程度である。

消滅が圧倒的に多い。2光子消滅では、電子の静止質量  $m_e$  に等しいエネルギー ( $m_e c^2 = 0.511 \text{ MeV}$ ) を持った2つの線がほぼ180度反対方向に放出されるが、消滅する陽電子・電子対のエネルギーと運動量  $P$  が保存されることから、2つの線の放出角度は180度から僅かの角度 ( $\theta_{2\gamma}$ ) ずれ、消滅線のエネルギー  $E_\gamma$  も  $m_e c^2$  から僅かにずれる (図1参照)。 (1) 式は2光子角相関  $\theta_{2\gamma}$  が運動量の一分に比例することを表しており、(2) 式はドップラー効果による消滅線エネルギー  $m_e c^2$  のからのズレが運動量成分に比例することを表している。

$$P_z = m_e c \theta_{2\gamma} \quad (1)$$

$$E_\gamma = m_e c^2 + \frac{c}{2} P_x \quad (2)$$

絶縁材料に注入された  $e^+$  が電子と結合してポジトロニウムを作るとき、 $e^+$  と  $e^-$  のスピンの反平行 (スピン量子数  $S=0$ ) になって結合したパラポジトロニウム ( $p\text{-Ps}$ ) と平行 ( $S=1$ ) で結合したオルトポジトロニウム ( $o\text{-Ps}$ ) が1:3の割合で生成する。 $p\text{-Ps}$  は0.125 nsecの短い寿命で2光子消滅する。 $o\text{-Ps}$  自体の寿命は142 nsecと長くかつ3光子消滅するが、物質中では原子・分子と衝突を繰り返す間に分子内の電子と  $e^+$  が2光子消滅する。このような消滅の仕方は“pick-off消滅”と呼ばれているが、Psと周りの分子との衝突頻度が高いほど、即ち気体では圧力が高いほど、液体・固体では密度が大きいほど、 $o\text{-Ps}$  の寿命が短くなる。自由体積の無い極限的な状態は  $o\text{-Ps}$  が分子の中 (電子雲の中) に入り込んでしまった状態に相当し、寿命は0.5 nsecの程度になる。Psは不対電子を一つ持ったフリーラジカルなので、酸化、化合物形成、スピン交換など水素原子などでも知られているような化学反応をするが、それらの多くは拡散律速であるなど、反応性の基本なことについては1980年代までにはほぼ理解されている。

物質中のPsの挙動は、電子を伴っているため

に他の分子の中に入り込むことができない (斥力が働く) ことと、質量が極めて小さい ( $m = 2m_e$ ) ことで規定される。前者の性質によってPsは分子間の隙間を好み、規則的な結晶の中ではBloch波として動き、空孔型の欠陥があればそこに捕捉される。空孔として半径  $r$  高さ無限大の球形井戸型ポテンシャルを考えると、Psのゼロ点エネルギーは  $E_{\text{Ps}}^0 (\text{eV}) = 0.188/r (\text{nm})^2$  と表せるが、質量が小さいのでこれはとても大きい。 $r \leq 1 \text{ nm}$  の孔では  $r$  が1%程度異なるとゼロ点エネルギーの差は熱エネルギーよりも大きくなるので、Psはより大きな孔に行き易い (より大きな孔を探す)。場合によっては周囲の分子を動かして孔の大きさを広げてゼロ点エネルギーを小さくすることによって安定化することもある (孔を掘る)<sup>注1</sup>。

### 3. ポジトロニウム形成機構についての2つのモデル

絶縁物に注入された陽電子がPsを作ると (寿命の短い順に)  $p\text{-Ps}$ ,  $e^+$ ,  $o\text{-Ps}$  の3つの寿命成分が観測され<sup>注2</sup>、寿命の長い  $o\text{-Ps}$  成分の強度を  $I_3$ 、その寿命を  $\tau_3$  と呼んでいる (図1: PALのスペクトル例参照)。Psの生成機構については当初、(3) のように  $e^+$  が単純に分子から電子を引き抜いて結合すると考えるモデル (Oreモデル) があった。



Psの結合エネルギーは6.8 eVでMのイオン化エネルギー  $I_M$  よりも通常小さいから、これは閾エネルギー  $= I_M - 6.8 \text{ eV}$  の吸熱反応である。この閾エネルギー以上のエネルギーを持った  $e^+$  がPsを形成できるが、 $e^+$  エネルギーが大きすぎると、生成するPsに与えられる過剰エネルギー (3式Psの肩に付した\*印) が大きすぎると、次の衝突で媒質分子を励起・イオン化して壊れてしまう。従ってPs形成出来る  $e^+$  エネルギーは下記の領域のものに限られる。

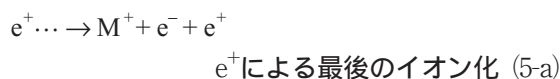
注1 液体中ではPsはこのようにして自ら掘ったポジトロニウムバブルと呼ばれる状態にあると考えられている。

注2  $o\text{-Ps}$  による寿命の長い成分が2つある場合もある。その場合、より寿命の短い方 (1 nsの程度) については帰属が明らかでないことが多く、残された課題となっている。

$$I_M - 6.8 \text{ eV} < E_{e^+} < I_M \text{ (または } I_{ex} \text{)} \quad (4)$$

このモデルは希ガス中のPs形成を定性的に説明できるが多くの多原子分子や凝集状態でのPs形成を説明できないので、生成したPs\*がホットアトム反応する可能性などを取り入れてモデルを改良する努力がされた。

1974年にMogensen およびByakovによって独立にスパーク反応モデルが提案された。陽電子のような荷電粒子が凝集状態の物質に入射すると、局部的にイオン化や励起の密度の高いところ(スパーク)を作りだしながら減速していく。1000 eV程度のエネルギーに達するとLET (Linear Energy Transfer) が急に大きくなって、イオン化が重なり合い、末端スパークは多くのイオン化が含まれた構造になる。陽電子はこのイオン化で生じた过剩電子の一つと結合してPsとなることができる。

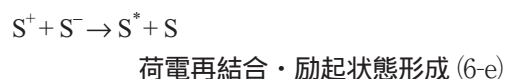
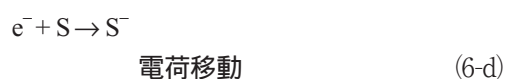
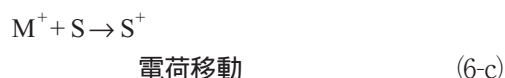
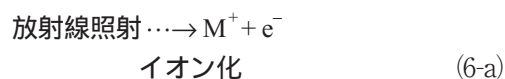


反応(3)はエピサーマル反応なので温度、相、化学構造のわずかの違いによって影響をうけることが少ないのに比べて、反応系(5)はほぼ熱化した $e^-$ と $e^+$ をPsの前駆体としているので、多くの物理化学的な影響を受けることを可能にする柔軟なモデルである。時間スケールは(3)が $10^{-13}$ s程度、(5)が $10^{-12}$ s程度なので、いずれにしてもこれらを直接見ることはできないが、(5)が起こっているならば放射線化学で起こっていることとの相似性がなくてはならない。実際そのような相似性が多くの研究によって示された。水溶液系で種々のイオンがPs形成を抑制する効果は水和電子との反応性と良い相関があること[文献6]は既に古典的な知見である。

#### 4. 電子捕捉剤の効果

既に古い論文であるが、この分野に新しく接する人のために、放射線発光(シンチレーション発

光)とPs形成に対する電子捕捉剤の効果を比較した例[7]を紹介しよう。放射線発光では、イオン化で出来た電子と親イオンの電荷がシンチレータ分子Sに移動した後に再結合して、シンチレータ分子の励起状態S\*が形成される。S\*は発光(または緩和)して放射線エネルギーを放出する。



Ps形成(反応系5)と放射線発光(反応系6)では前駆体が过剩電子であることが共通である。今電子捕捉剤RXを加えて过剩電子の量を減らしてやれば、Ps強度と発光強度は同じように減少するであろう。そのような相関があることが実験的に示されれば、スパークモデルが実証されたことになる。



測定系は図2に示すようにいずれも時間測定である。放射線発光測定ではCo-60を線源としてガンマ線を検出してstart信号とする。溶媒(シクロヘキサン)には一定量のシンチレータ分子PPOを加え、離して置いたPMでホトンの一つだけを捕まえて(single photon counting) stop信号とし、時間波高変換して計数をためると右図Aのような発光時間スペクトルを得る。電子捕捉剤を加えると発光が減少する様子も示してある。発光量は電子捕捉剤を加えると減少するが、電子捕捉剤ごとに反応性定数を決めてやると、電子捕捉剤濃度への依存性は放射線化学で良く知られている式(実線)に還元される。同じ系についてPs強度を

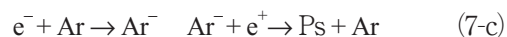
測定し、その電子捕捉剤濃度依存性をプロットすると4つのグループに分かれる(図2(2)のA~D)。第1のグループ(アルキルハロゲン化物)は放射線化学から予測される依存性(実線)にほぼ乗るもので、これが期待されたものである。第2のグループ(同じくアルキルハロゲン化物)は捕捉剤の効果が予測より大きい。これらの電子捕捉剤はハロゲン原子が沢山くっついていて反応性定数が大きいだけでなく、短時間に次のように解離し、生成した $X^-$ が更に $e^+$ を捕まえるのでPs形成を抑制する効果がより大きくなるものと考えられる。



第1、第2のグループともに電子捕捉剤の濃度が小さい領域では放射線化学から期待されたほどの効果はない。陽電子の最終スパーには多くの過剰電子があるため、少し電子を捕捉した程度では $e^+$ は別の $e^-$ を探すのに困らないためと説明したが、決着がついているわけではない。

第3のグループは予測よりもPs形成効果が著しく小さいものである。これは電子を捕捉している時間が短いものと考えられる。第4は逆にPsの形成を促進するもので、芳香族系の電子捕捉剤がこのグループに属する。これらは電子親和力が小さいので、 $e^+$ は捕捉された電子を受け取ることが

出来る。



Ps強度がこの捕捉剤を加える以前よりも増えるのは、親イオンに戻ってしまう筈だった $e^-$ も捕捉されて $e^+$ に受け渡されるためである。

## 5. Ps形成の共鳴モデル

このように電子捕捉剤にはPs形成を促進するものと抑制するものがある。私はこれを冗談に“良い”捕捉剤と“悪い”捕捉剤と呼んでいる。今一定量の $C_2H_5Br$ (悪い捕捉剤)を加えてPs強度を抑制しておき、良い捕捉剤(この場合はフッ素化ベンゼン $C_6F_xH_{6-x}$ ,  $x=1\sim6$ )を添加していくとPs強度が回復する(図3A)が、その回復が早いほど良い捕捉剤の反応性定数が大きいことになる。このように悪い捕捉剤でPs形成を抑制(inhibit)させておき、次に良い捕捉剤がPs形成を回復させることをanti-inhibitionと呼んでいる。このような実験によって電子捕捉剤の効果を相対的にではあるが精密に決定することができる。 $I_3$ が復帰する傾き $\Delta I_3/c$ ( $c$ は良い電子捕捉剤の濃度)を $C_6F_xH_{6-x}$ の全ての異性体についてプロットすると、 $I_p - E_X$ ( $I_p$ は $C_6F_xH_{6-x}$ のイオン化ポテンシャル、 $E_X$ は $C_6F_xH_{6-x}$ の励起状態のエネルギー、従っ

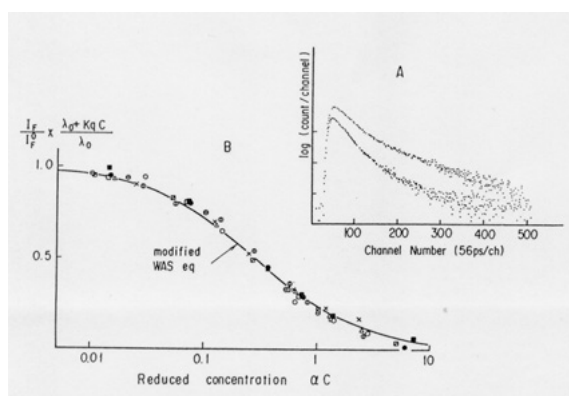
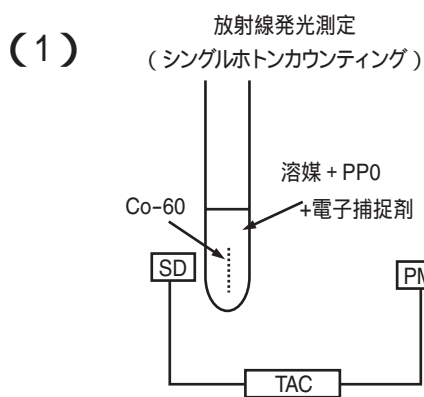


図2 (1) シングルホトンカウンティングによる放射線発光測定

(左) 測定概念図

(右A) 発光の時間プロファイル。電子捕捉剤を加えると発光強度が弱まることが示されている。

(右B) 発光強度(クエンチング補正)の電子捕捉剤濃度への依存性。濃度に反応性定数を乗じた reduced concentration でプロットすると全ての結果は放射線化学で良く知られている依存性(Warman-Asmus-Schuler式、実線)で表される。

(2)

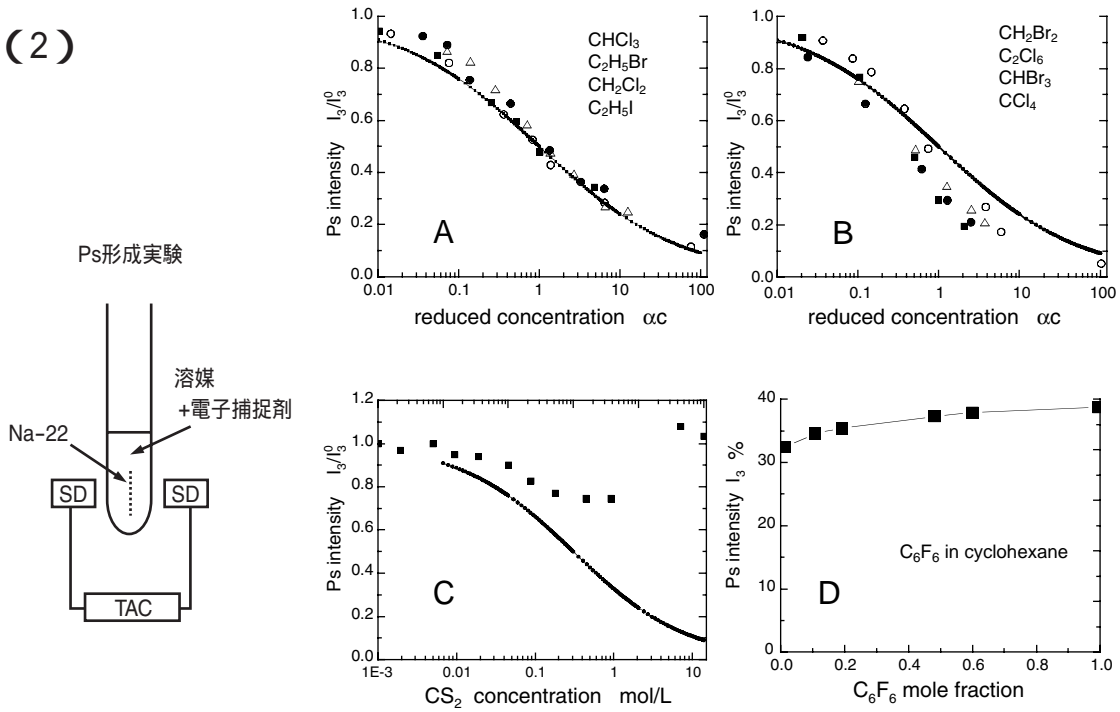


図2 (2) Ps形成実験

(左) 測定概念図

(右) Ps形成に対する電子捕捉剤効果 A: 放射線化学との相似性(実線)が顕著なグループ、B: 放射線化学から期待されるよりも高い効果を示すグループ、C: 顕著な効果を示さないグループ、D: Ps形成を促進するグループ

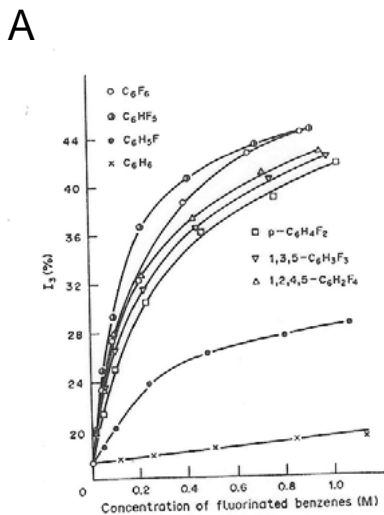


図3 (A) anti-inhibition 効果の例

シクロヘキサンに0.1 Mの $\text{C}_2\text{H}_5\text{Br}$ を加えてPs強度を押さえておき、これにフッ素化ベンゼン $\text{C}_6\text{F}_x\text{H}_{6-x}$ を添加するとPs強度が回復する。回復の傾きが大きいほど $\text{C}_6\text{F}_x\text{H}_{6-x}$ の反応性定数が高い。

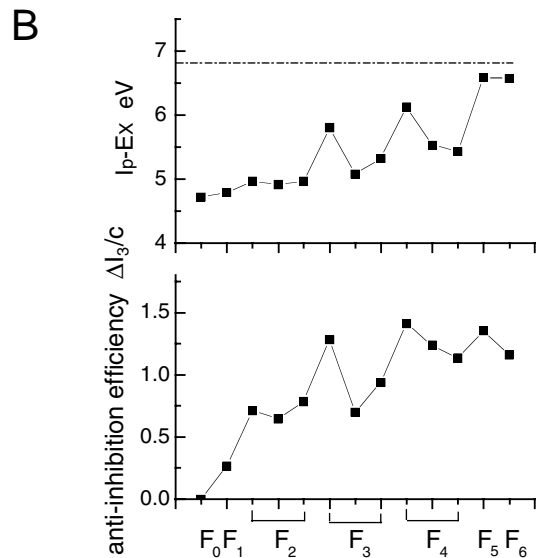


図3 (B) 全てのフッ素化ベンゼン( $\text{C}_6\text{F}_x\text{H}_{6-x}$ ,  $x=1 \sim 6$ )とその全ての異性体についてanti-inhibition実験から求めた反応性のプロット。フッ素化ベンゼンの励起状態から電子を引き抜いてイオン化させるのに必要なエネルギー $I_p - E_X$ と良い相関がある(本文参照)。



て  $I_p - E_X$  は励起状態から電子を引き剥がすのに必要なエネルギー) のプロットと同じ傾向を示しかつ  $I_p - E_X = 6.8 \text{ eV}$  のところで反応性定数が大きい。これは  $e^+$  が  $C_6F_xH_{6-x}$  の励起状態から電子を引き抜いて Ps を形成する過程を示唆する。



$I_p - E_X = 6.8 \text{ eV}$  で効率が良いことは、量子力学的なエネルギー共鳴条件がこの反応を支配していることを示している。このことから我々は“Ps 形成の共鳴モデル”を提案した [文献7]。そのエネルギー条件は次のように書き下せる。

$$E_{e^+} + E_{e^-} + I_{Ps} \geq E_{Ps} \quad (9)$$

$E_{e^+}$ ,  $E_{e^-}$  は  $e^+$ ,  $e^-$  のエネルギー、 $E_{Ps}$  は形成された Ps エネルギー、 $I_{Ps}$  は Ps の結合エネルギーである。前駆体  $e^+$ ,  $e^-$  のエネルギーと結合によって生じたエネルギーが Ps のエネルギーに使われることを表しており、両辺等しい条件で共鳴的な Ps 形成が起こる。高分子材料のようにいろいろな大きさの空孔が数多くある場合、この共鳴によって Ps が空孔の中に生成する過程が可能である。これは原理的にありそうなことではあるが、知見が少ないので良く認知されているとは云えない。別の在来的な考え方は、何らかの過程で先ず Ps が生成し、それが媒質中を動き回って何らかの過程によって空孔にトラップされるとするものであるが、過程の細部が分かっていない。

以上、過剰電子として伝導体にある  $e^-$ 、“良い”電子捕捉剤に捕捉されて負イオンとなった  $e^-$ 、励起状態にある電子などが  $e^+$  に引き抜かれて Ps となることができることを説明したが、捕捉電子 (trapped electron) も Ps の前駆体となること平出 [文献8] によって示された。説明のために図4に低密度ポリエチレン (LDPE) 中の Ps 強度 ( $I_3$ ) の温度依存性を示す。V字型をした依存性の低温側で  $I_3$  が大きい理由が長い間謎であったが、

試料をこの温度に急冷して測定するとこの  $I_3$  の増加が時間的に徐々に起こること、 $I_3$  が増加した状態に可視光をあてるとこの増加分が無くなることから、陽電子照射で叩き出された電子の一部が低温の媒体中にある捕捉サイトに捕捉され、時間と共に蓄積して陽電子によって引き抜かれるようになったものと説明される。低温固体で生じる捕捉

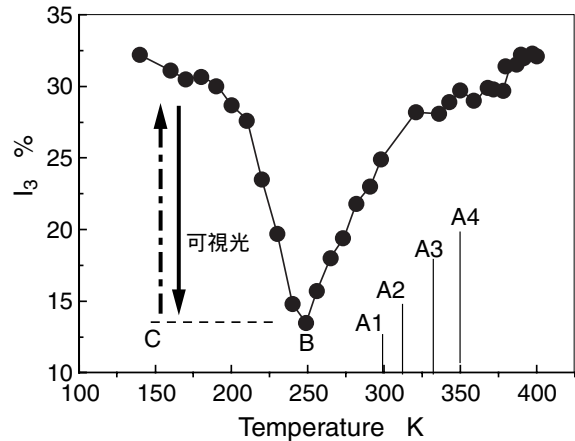


図4 低密度ポリエチレン (LDPE) 中の Ps 強度  $I_3$  の温度依存性

V字型依存性の低温側では、試料を急冷して陽電子寿命測定を続けると捕捉電子が次第に蓄積して  $I_3$  が時間とともに増加する (上向き鎖線矢印)。  $I_3$  が大きくなった状態に可視光照射すると捕捉電子はブリーチされてその効果が消滅する (下向き実線矢印)。

(A,B,Cの記号は図5と関連している)

電子が Ps の前駆体となる現象は多くの有機物で観測されている<sup>注3</sup>。

ここで、陽電子照射効果によって Ps 強度が減少することの方が先に知られていたことを付け加えておこう。これはポリプロピレンやポリエチレンなどについて室温で見られる。陽電子照射で生成したフリーラジカルなどが電子捕捉剤となって Ps 形成を抑制するものと推定されるが、フリーラジカル濃度との対応が定量的につかないことも多い。フリーラジカルに酸素が結合して出来た carbonyl 基が Ps 形成を抑制する、架橋が起こっ

<sup>注3</sup> 水やアルコールの液体中に出来る水和電子または溶媒和電子は  $e^+$  と結合して Ps になることができるか? という問題がある。液体アンモニアに Na 金属を溶かして溶媒和電子を生成させ、Ps 形成に与える影響を調べた古い実験では、溶媒和電子の影響は見られなかった。

てPsが入れる空孔の割合が減るなど、多くの可能性が提案されている。

#### 6. スパー反応によるPs形成過程の詳細

陽電子の最終スパーは $e^+$ のおよそ1000 eV程度の最後のエネルギーから出来た50個ほどのイオン化を含むであろうことは大ざっぱに推定されていた。最近Stepanovは理論的な考察によってスパー反応によるPs形成をさらに詳細に検討している[文献9]ので、簡単に紹介しよう。陽電子の最終スパーは3-4 nmの大きさであり、 $e^+$ は散乱されつつイオン化を行うので、50ほどのイオン対は串刺し状に並ぶのではなく、ランダムに球状に配置される<sup>注4</sup>。Stepanovはこれをblobと呼ぶことを提唱している。このblobは電氣的に中性であるために $e^+$ はそれと相互作用することなく、blobから離れて熱化していく。このように熱化した $e^+$ が拡散してblobに戻ってきた時、 $e^-$ の1つと弱く結合し、次いで媒体の振動励起にエネルギーを放出しつつ結合を強めて、どこかに空孔があればそこでゼロ点エネルギーが低くなるので局在化する。局在化の最初は $e^-$ が空孔にトラップされ、 $e^+$ はその周囲をRydberg状態のように回っているだろう...。Stepanovのシナリオは探偵小説のように面白い。しかし、ここでは熱化して動き回っている(quasi-freeな) $e^+$ 、 $e^-$ だけがPsに成ることが出来、epithermalな過程は無いとされているが、以下に述べるようにそれほど簡単ではない。

Ps形成過程を実験的に調べるには、先に述べた電子捕捉剤を加えるものの他に、電場を加えて、結合しようとしている正負の荷電対を引き離してやる方法もある。 $e^+$   $e^-$ 対の距離が離れているほど電場で引き離し易い<sup>注5</sup>。低密度ポリエチレンについての電場効果の結果例を図5に示す[文献12]。実験はいくつかの異なる温度で行って

るが、図4のV字の谷(B: 250 K)と低温側(C: 150 K)では電場効果がない。測定点BのPs形成には温度効果も電場効果もないことは、それがepithermalなPs形成過程であることを示唆している。一方、室温付近(A1 ~ A4)では電場効果がある。電場効果がある部分はthermalな過程である。この場合には距離 $r_0$ 離れた荷電対に電場 $E$ をかけた時の結合確率 $P$ を記述するOnsagerの式(10式)を使って距離 $r_0$ を見積もることが出来るのであるが、(10)式の $P=1$ を図5の縦軸のスケールとどのように合わせるべきか(B点の $I_3$ の値を含めるのか別のアンサンプルであるとして除外するのか)という問題がある。含めた場合(除外した場合) $r_0$ の値は室温で13(20) nm, 313 Kで11(15) nm, 333 Kで11(15) nm, 353 Kで9(10.5) nmとなる。いずれにしても温度が上がるほど $e^+$ と $e^-$ の距離が縮まるという結果になっている。これはこれで新しい問題を提起している。

$$P = 1 - \exp\left(-\frac{r_c}{r_0}\right)\left(1 + \frac{eEr_c}{2kT}\right); \quad r_c = \left(\frac{e^2}{\epsilon kT}\right) \quad (10)$$

スパー反応によるPs形成にthermalな過程とepithermalな過程があるという認識が最近生まれつつある。ポリエチレン中では $e^+$ はquasi-freeでそのmobilityが大きい、ポリカーボネートのように酸素を含む高分子中では $e^+$ は酸素に捕捉されているらしいことを最初に示したのは小林[文献13]であるが、最近CDB(coincidence Doppler broadening spectroscopy)で酸素が含まれると $e^+$ がそこに捕捉されることが実際に示されている(CDBを解説する余裕がないが、例えば[文献14])。このような場合にはthermalなPs形成は抑制されて、epithermalなPs形成だけが現れることになる。ShantarovichもthermalとepithermalのPs形成過程があること、ポリイミドの中の酸

<sup>注4</sup> このため $e^+$ とblobの位置関係は $e^+$ が入射した方向に対して等方になっている筈であるが、実際電場実験によって確かめられている[文献10]。ミュオンの場合は、入射した $\mu^+$ は最終的なスパーを作った後入射方向の下流で熱化する[文献11]のと異なっている。

<sup>注5</sup> 例えば100 kV/cmの電場を $= 0.023 \text{ V}/2.3 \text{ nm}$ のように換算すると電場効果の大ざっぱな描像が得られる。100 kV/cmの電場は、室温では $2.3/\epsilon \text{ nm}$ ( $\epsilon$ は静誘電率、非極性物質中では $\epsilon \sim 2$ )程度以上離れている $e^+e^-$ 対に対して温度揺らぎ(0.023 eV)と同じ程度の静電ポテンシャルを与えるので、この距離以上離れた荷電対について電場効果が現れる。より接近した $e^+e^-$ に対してはより高い電場でないと電場効果が期待できない。

素を含んだ基が thermal な Ps 形成過程を抑制するだろうことを議論している [文献15]。Quasi-free な  $e^+$ ,  $e^-$  を前駆体とする thermal な過程ではそれらの mobility が高いと Ps 強度が大きいだろうことが期待されるが、必ずしもそのような相関がない

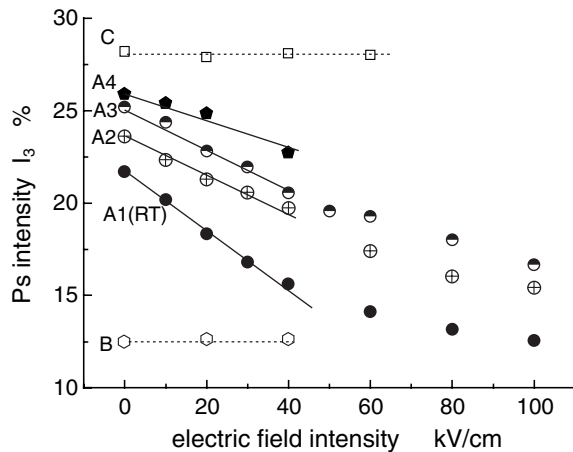


図5 低密度ポリエチレン(LDPE)中のPs強度 $I_3$ の異なる温度での電場効果  
記号 A1 ~ A4, B, C は図4で示す温度。電場の低いところの傾斜(実線)から $e^+$ と $e^-$ の距離を計算する(本文参照)。

[文献16] ことも、関連して引用しておこう。

## 7. おわりに

Oreモデルかスパーモデルかという二者択一的な問題設定は過去のものとなりつつある。Oreモデルの要点は(4)式で表される高いエネルギー領域で $e^+$ が電子引き抜きをすることにある。凝集状態でこれは起こらないというのは本当だろうか? スパーモデルの要点はイオン化で叩き出された $e^-$ との二次的な反応としてPs形成することにある。その範囲でも thermal な過程と epithermal な過程がありそうだが、この epithermal な過程は Ore モデルとどう違うのか? また $e^+$ 自らが作り出したスパー内の $e^-$ だけでなく、捕捉電子として低温で蓄積される $e^-$ もPsの前駆体となることが明らかとなったが、これはスパーモデルの延長線上にはあるがスパー内反応ではない。

このようにPs形成の機構についての理解はゆっくりとではあるが、着実に広がって進んでいる。

Psをナノメートル空孔のプロープとして用いる実用上の要求からも、Ps形成機構の理解がこれから加速されることを期待したい。

## 引用文献

- [1] 「素粒子の化学」 伊藤泰男、鍛冶東海、田畑米穂、吉原賢二共著、学会出版センター(1985).
- [2] “Positron and Positronium Chemistry” (Studies in Physical and Theoretical Chemistry Series), D. M. Schrader and Y. C. Jean, eds., Elsevier, (1988).
- [3] 「陽電子消滅法による材料評価の最近の進展」 までりあ 35, 91-173 (1996).
- [4] “Positron Spectroscopy of Solids” A. Dupasquier and A. P. Mills, Jr., eds., IOS Press (1995).
- [5] 「陽電子の利用」 伊藤泰男、RADIOISOTOPES 50, 13S-26S (2001).
- [6] Strassburg group (Abbe, Duplatre, ら) の一連の研究.
- [7] Zhicheng Zhang and Yasuo Ito, J. Chem. Phys. 93 (2), 1021-1029 (1990).
- [8] T. Hirade, Radiat. Phys. Chem. 58, 465 (2000); Materials Science Forum 445-446, 234 (2004).
- [9] S. V. Stepanov *et al.*, Radiat. Phys. Chem. 58, 403 (2000).
- [10] Y. Ito and T. Suzuki, Radiat. Phys. Chem. 68, 403 (2003).
- [11] 文献10に引用された文献を参照のこと.
- [12] Y. Ito and T. Suzuki, Radiat. Phys. Chem. 66, 343 (2003).
- [13] Y. Kobayashi *et al.*, Phys. Rev. B 58, 5384 (1998).
- [14] N. Djeroulov, T. Suzuki, *et al.*, Radiat. Phys. Chem. 68, 689 (2003).
- [15] V. P. Shantarovich, R. Suzuki, *et al.*, Radiat. Phys. Chem. 67, 15 (2003).
- [16] C. L. Wang, Y. Kobayashi, and K. Hirata, Radiat. Phys. Chem. 58, 451 (2000).

## 歴史と教育

### ビキニ事件50周年 —静岡大学とのかかり合いを中心に—

長谷川 園彦（静岡大学名誉教授）

静岡県焼津市は、静岡市の南東20キロメートルの静岡県中央部に位置する遠洋マグロ本拠地（1951年（昭和29年）当時の人口は約7万人足らず）の街である。その港を母港とする第五福龍丸が1951年3月14日に帰港し、乗組員が持ち帰った爆発の灰を分析した結果、新型の水爆とわかり一般市民を巻き込むこととなったこの事件は世界中に衝撃を与えた。焼津に帰港した乗組員23人は直ちに病院の検査の結果入院し治療を受けた。第五福龍丸が捕ってきた魚から放射能が検出され、放射能汚染された魚はただちに廃棄処分とされた。

第二次世界大戦後、1950年代では、アメリカ、ソ連、イギリスなどの国は核兵器開発のための核爆発実験を大気圏内で盛んに行っていた。アメリカは1946年からマーシャル諸島で実験を始め、ビキニ、エニウエトウク環礁などで計67回の核爆発実験を繰り返し行っていた。1951年3月1日早朝、焼津のマグロ漁船である第五福龍丸はビキニ環礁北東の公海上でアメリカの核実験に遭遇し、“放射能灰”が長時間にわたり船と乗組員の上に降りそそぎ、乗組員の体に異変が起きた。

これらの出来事がおきて今年の3月1日で50年が経過した。焼津では、原水爆の実験禁止を要望する決議、核兵器廃絶を願う焼津宣言、平和都市焼津宣言などがだされて、6月に被災50年特別展「第五福龍丸 - 平和の願い - 」が開催されている。ビキニ事件に関連した多くの催し、また多くの出版物が刊行されている。

さて、日本放射化学会事務局から、周り回って私にこのビキニ50周年の記事の執筆を「放射化学ニュース」に、とのご依頼があった。この企画は、まことに時宜に適したものである。当時この事件に携わった静岡大学のおもな関係者は、すでに故人となっており、また、現役の静岡大学関係者が執筆されるのが適当と思われたが、諸事情が

ら、あまり適当ではないが、あえて筆を執った次第である。もっとも私は、ビキニ事件には直接に関係しておらず、ただ周囲にいたのみである。そのようなことから、私の少ない見聞しかなく、標記の副題にあるようなことしか執筆することができないことを、あらかじめご容赦を頂きたい願うのである。

静岡大学における放射化学及び放射線利用の研究は、1951年に始まり、1954年1月に放射性同位元素研究会が設けられた。建物の一部にラジオアイソトープ実験室が設置され、共同利用に使用されていた。同年3月、第五福龍丸のビキニ環礁における船員の被災事件が発生し、その放射能汚染状況の調査研究を行うことになり、その研究範囲及び実験量が飛躍的に増大した。このビキニ事件を契機として、種々の分析的な手法を用いた核分裂生成物の系統的な分離などが行われた。また、環境放射能問題の分野でもフォールアウトの測定に成果をあげた。1954年は、ビキニ事件とともに重要なことは、わが国の原子力開発の国是が決まり、最初の原子力予算が国会を通過し、原子力時代の幕開けの年であった。引き続いて特殊法人日本原子力研究所が開設され、ビキニ事件をきっかけとして当時の科学技術庁の付属機関として放射線医学総合研究所が発足した。日本で最初の原子炉が完成し、運転を開始したのがビキニ事件の3年後であった。

一方、おもに静岡大学の文理学部を構成している物理、化学、生物及び地学教室では、放射化学・放射線化学の研究が進展し、必然的に設備人員の拡充が要望された。1956年度に放射化学研究施設の設置の議が起こり、文部省との折衝の末、1958年文理学部付属施設として発足した。その施設の第1部門（放射体化学及び核化学）の設置が認可され、教官3名、事務官1名であった。

1957年に第1回放射化学討論会が東京で開催さ

れ、第2回討論会（京都）に引き続いて第3回討論会が1959年に静岡大学で開催された。当時はビキニ事件のことは一段落したあとであったが、大学関係者の放射能に対する関心は高く大学あげでの騒ぎであった。また、報道関係席も設けられる状況であった。この討論会の出席者の中には、アメリカのローランド教授（1955年ノーベル化学賞受賞）の姿があり、初の来日であった。その後多くの日本人研究者が教授のもとに留学され、国際シンポジウムや日米セミナーと、日本の放射化学にとって極めて縁の深い存在となった。

1965年学部の改組に伴って理学部附属施設に改められ、その3年後の1968年に第2部門（同位体化学）が設置され、2部門に拡大された。

その後、静岡大学のキャンパスは、現在の場所に転移し、新しい研究施設で活動を続け、理学部のみならず全学の放射能利用研究活動の中心としての役割を果たしてきた。研究教育面では、化学科の学生の一部を卒業研究生として受け入れていた。講義の面では放射化学、同位体化学及び放射線化学を担当してきた。1976年度に大学院理学研究科修士課程が新設され、両部門は化学専攻の講座に属して講義及び研究指導を行ってきた。

静岡大学としては、2回目の放射化学討論会（第20回）が1976年に開催され、討論主題として環境放射能が盛り込まれた。

また、1994年（平成6年）には第38回放射化学討論会が静岡で開催された。この年は、くしくもビキニ事件から40周年の年であって、大学にとってもまことに意義深いものであった。討論会の前日には記念講演会を催した。

1996年度に理学研究科の改組によって理工学研究科が発足し、両部門は博士後期課程では物質科学専攻物質構造科学講座に、博士課程前期課程では化学専攻機能科学講座に属して、引き続き大学院の研究教育を担当している。この間多くの原

子力関連の研究者や技術者を育成し、また多くの教育関連の人材を社会に送り出してきた。

ビキニ事件直後の十数年間は、全国の理学部に放射化学講座あるいは放射線化学講座が新設され、工学部には原子力工学関連の講座が立ち上がった。その後しばらくして放射能・放射線関連の講座の改組、改廃、名称の変更などで、新設時の名称を維持しているところは数えるほどに減少した。この間、放射化学研究施設においても例外ではなかったが、改組・改廃だけは免れた。

2002年度には放射化学研究棟及び実験棟の全面改修が行われ、別の場所にあった2つのRI実験室の管理区域を統合し、使用核種数及び使用数量を増やして施設の建物を一体化して機能的なものとし、全館を管理区域とした新たな名称を放射科学実験棟とした。放射化学研究施設の教官研究室及び事務室などは実験棟とは別棟に移転し、教育研究の更なる発展充実をはかった。

昨今、大学の放射線教育が全国的に衰退し、将来的に放射線・原子力に関わる人材が不足する恐れが懸念されている。2004年から国立大学法人化に伴い、静岡大学としては放射化学研究施設が中心となって、全理学的な放射線教育を行うことによりエネルギー環境問題、放射線・原子力問題の分野における将来の人材の確保と育成のための教育をめざし、実施し始めている。

1986年、旧ソ連ウクライナ共和国で発生したチェルノブイリ原発事故、1999年、茨城県東海村で発生したJCO臨界事故等は技術的な欠如の問題の事故であってビキニ事件とは異質である。不幸なビキニ事件は、科学の世界のみならず国際的、社会的、政治的等いろいろな面で問題をもたらし、またさらに今後ももたらし続けるだろう。

本小稿の執筆にあたりご協力いただいた静岡大学放射化学研究施設長、菅沼英夫教授に厚くお礼申し上げる。



ビネコ事件の資料（静岡大学から財団法人第五福龍丸平和協会に永久貸与）

## 施設だより

## 放射線医学総合研究所 静電加速器棟：PIXE分析装置（PASTA）

湯川雅枝（放射線医学総合研究所）

## 1. はじめに

荷電粒子励起X線（Particle Induced X-ray Emission：PIXE）分析法は、静電加速器などから取り出される高エネルギー荷電粒子線（通常2～3 MeV程度の陽子線）を励起源とする、高感度微量元素分析法のひとつである。試料に照射すると、内核電子が原子外にはじき出され、エネルギー順位の高い軌道電子が空席を埋め、このエネルギー差に相当する特性X線を放出する。この特性X線のエネルギーは元素に固有のものであり、X線強度は元素量に比例するので、特性X線を測定することによって元素の定性定量を行うのがPIXE法の原理である。荷電粒子は、X線やガンマ線に比べて、原子の軌道電子を2から5桁励起しやすい。また陽子は、電子励起に比べて、ターゲット原子による制動輻射X線によるバックグラウンドが低くなる。さらに、Si(Li)半導体のようなX線検出器の特性上、水素、炭素、窒素、酸素に関する感度が非常に低くなるので、これらの元素を主成分とする生物試料にとって、中・重元素の検出を容易にする。生体試料を分析する場合の実効的な元素の検出限界はng（ナノグラム）レベルである。また、試料に荷電粒子を照射し、励起されたX線をスペクトル解析するだけでなく、溶解、分解などの化学処理を必要としない多元素同時・非破壊分析法でもある。

さらに、この方法のもっとも優れた特徴は、マイクロビームスキニングがおこなえることである。励起源である荷電粒子ビームを磁場によりミクロンオーダーに絞り、偏向コイルや平行版電極をつかって試料表面を走査すると、非常に微細な試料（例えば、一つの細胞）の元素マッピングができる。本稿では、放医研のPIXE分析装置を紹介するとともに、生体試料への応用例を示して、PIXE分析法の有用性と将来の可能性について述べることにする。

## 2. 放射線医学総合研究所のPIXE分析装置

加速器は、High Voltage Engineering Europe社製Model4117MC Tandetron（タンデム型ダイナミトロン、定格加速エネルギー 0.4～3.4 MeV ( $^1\text{H}^+$ )、最大定格ビーム電流  $5\ \mu\text{A}$  (3.4 MeV))で、イオン源は、ディオプラズマトロンを2基備え、陽子とヘリウムイオンの加速ができる。PIXE分析用のビームラインは、図-1に示すように、コンベンショナルPIXEライン、気中PIXEライン、マイクロビームスキニングPIXEラインの3本である。

コンベンショナルラインでは、直径2cm以下の試料を15個装着できるサンプルホルダーを備え、Si(Li)やCdZnTe X線検出器によって、Na ( $Z=11$ )からU ( $Z=92$ )の元素分析が可能である。図-2は、NIST (National Institute of Science and Technology, USA)の標準試料Oyster Tissueを分析した時のスペクトルである。20分間の照射により、10元素が検出されている。

マイクロビームスキニングPIXE分析システムは、Oxford Micro-beams社製Model OM2000で、陽子線のマイクロビーム化のための0.5mmのobject slit、2組のX-Y slits、1組のquadrupole triplet magnetsと、試料表面の陽子ビーム走査用のscanning coil、システムの運転管理とデータ処理用のソフトウェアで構成されている。プロトンビームのサイズは、 $1\ \mu\text{m}$ ～2mm角の可変で、最大ビーム電流は50pA、最大ビーム走査範囲は $2.5\text{mm} \times 2.5\text{mm}$ である。X線検出器はSi(Li)を用いている。これにより、試料表面上最大2mm角の部位で、空間分解能 $1\ \mu\text{m}$ の元素マップを多元素同時に作成することができる。図-3に照射チェンバーのレイアウトを示す。ビームサイズの調整やサンプル表面の状態の確認などに使用するマイクロスコープとビーム軸に対し45度の角度に配置したSi(Li)半導体検出器を備えてい

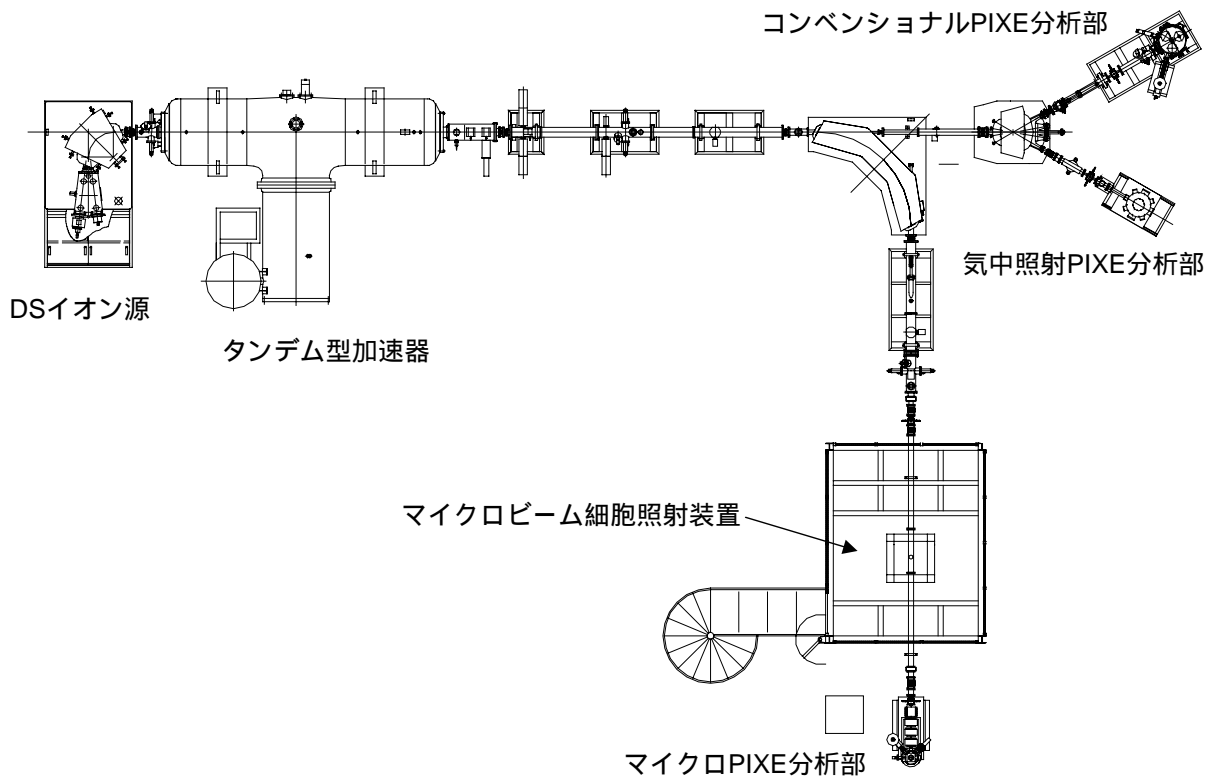


図1 放医研のPIXE分析装置 (PASTA)

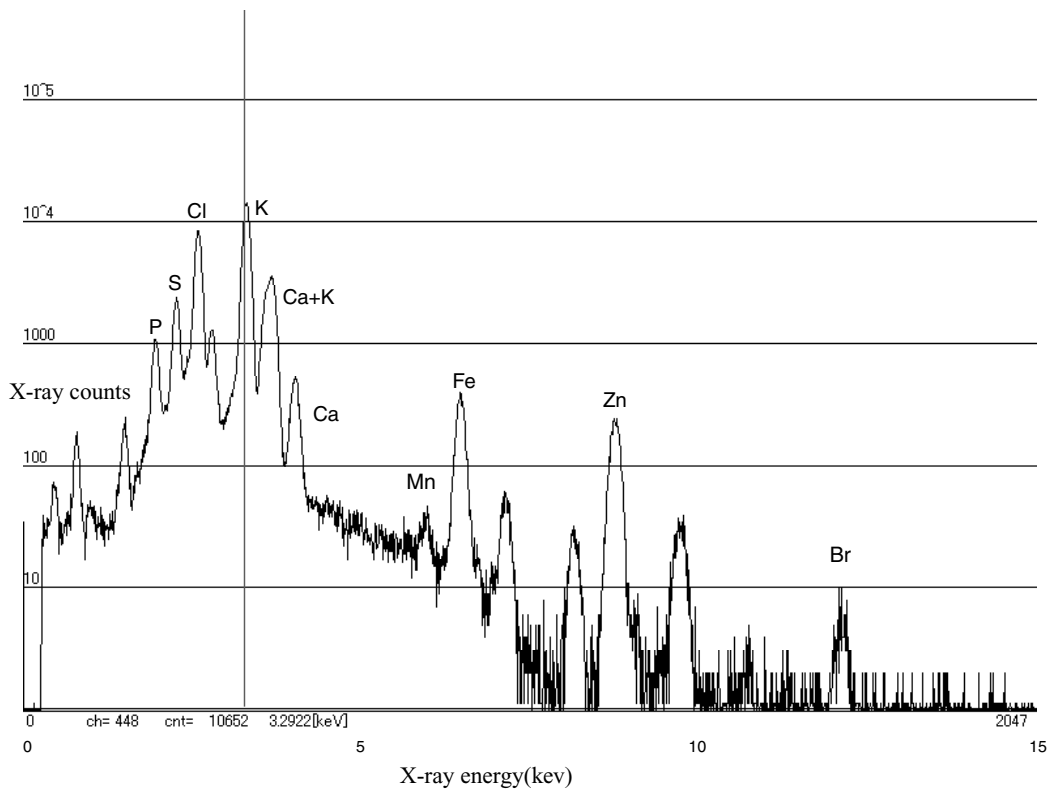


図2 NIST 標準試料Oyster TissueのPIXE スペクトル



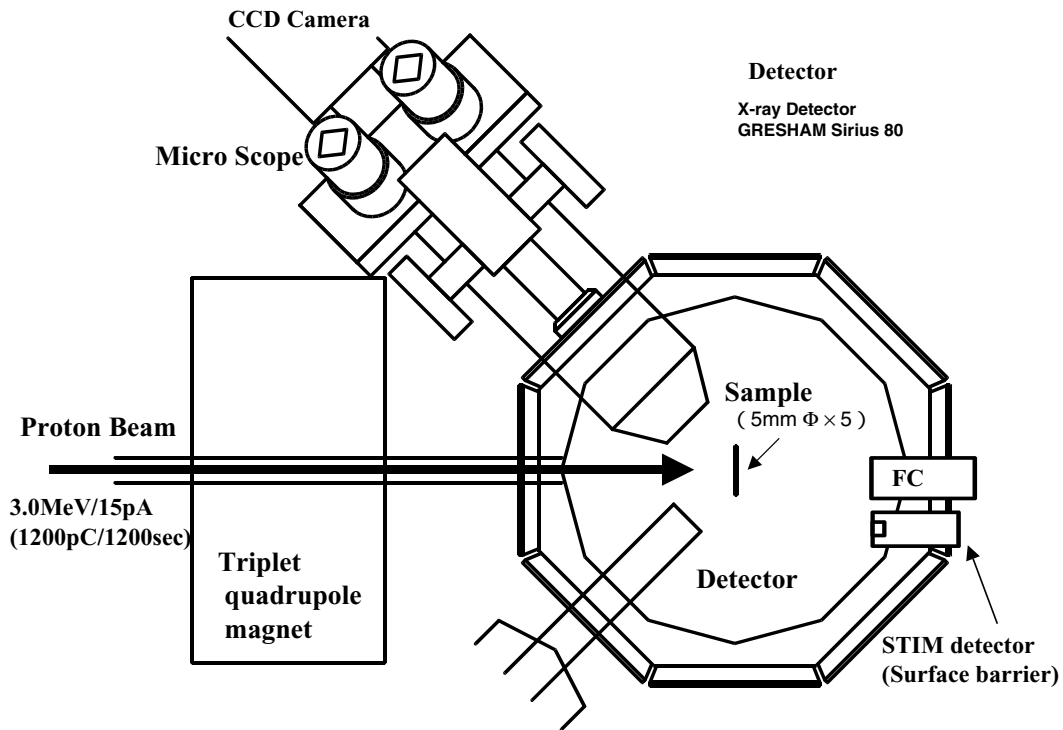


図3 マイクロビームスキャンニングPIXE装置の照射チェンバー

る。サンプルは、 $10 \times 24$  mm のアルミ板に空けられた 5mm の穴の中心に試料をバックリングフィルムで固定する。3軸マニピュレータの取り付けられたサンプルホルダーに、5枚同時に取り付けられるようになっている。さらに、Oxford Micro-beams社製のSTIM (Scanning Transmission Ion Microscopy) 装置が導入された。これは、プロトンが試料を通過する時に起こるエネルギーロスが試料の厚み及び密度に依存することを利用したもので、試料の厚み・密度を視覚画像として捕らえることができるようになった。これにより、PIXEの元素マップだけでは捕らえにくかった、比較的均一で薄い生物試料などのスキャンニング範囲がリアルタイムで確認できるようになった。例を後に示す。

通常、PIXE分析では、乾燥試料を真空チェンバー内で照射するが、液体や生の試料の照射を行うためには、大気圧での照射が必要であり、気中PIXEラインを構築した。このラインでは、プロトンビームを大気圧気体中へ取り出すので、チェンバーに収まらない大きさの試料の照射が可能であり、真空中照射よりも試料の損傷も少なく済むので、考古学的な試料への適用が可能となる。

将来は、液体クロマトグラフ装置のような化学形によって分離を行う機種と元素分析機であるPIXEとの結合を行い、HPLC - PIXEを実施したいと考えている。

この装置は、PIXE Analysis System at Tandem Accelerator Facilityの頭文字をとってPASTAと呼ばれており、平成16年4月より放医研の共用施設に指定され、一般の利用に供する体制が整えられつつある。共同研究を前提として、成果の公表をすることにより無料での提供が可能であり、月に1回分析サービスウィークを設けて種々の相談に応じている。放医研のホームページから、産学官連携・研究交流 施設・設備の共用 PASTAと入っていただければ情報が得られる。

### 3. 生体試料への応用例

#### 3.1 ストレス負荷メダカ中のメタルバランスシフト研究へのコンベンショナルPIXE分析の応用

メダカは、入手が容易で、飼育維持費も他の脊椎動物に比べて安い。狭い空間で室温飼育が可能であり、淡水でよい。これらのことから、環境モニタリング指標として有望な小動物の代表と考え

られる。放医研で系統維持している近交系ヒメダカを用いて、X線照射と塩水飼育というストレスをかけ、体内臓器中の元素濃度を測定し、ストレスによる必須微量元素の濃度バランス変化を観察した。取り出した臓器は、脳、眼、心臓、脾臓、肝臓、エラ、エラブタ、生殖器、胃腸管、尾ビレである。これらを凍結乾燥後、2.6 MeV陽子、ビームサイズ $1 \times 1$ mm、ビーム電流15nA、照射時間600秒の条件でPIXE分析した。各臓器は、大きい方の腸管や尾びれでも数mm、心臓や腎臓は0.5mmほどの小ささであり、PIXE分析によって多くの元素が同時分析可能であると言える。

図-4に、ストレスを負荷したメダカの臓器中Fe、Cu、Zn、Mn含有量を対照との比で示した。肝臓と脾臓では、ストレスをかけたメダカで濃度が高く、卵巣では低い傾向が見られた。また、胃腸管では、ストレスをかけたメダカで含有量が減るようであった<sup>1)</sup>。まだ予備的な実験段階であるが、PIXE法によりストレスによるメタルシフト検出の可能性が示されたので、今後実験を重ねる

とともに、重金属、有機塩素剤の負荷および複合影響についても研究を行いたい。

### 3.2 マイクロビームスキャンニングPIXE分析による元素マッピング

#### 3.2.1 クロッカスの雄しべ

植物の試料として、クロッカスの雄しべを対照とした例を示す。クロッカスの雄しべをプレパラート上で軽く押しつぶして乾燥したものをサンプルホルダーにのせて照射試料とした。ビームサイズは約 $1 \mu\text{m}$ 、スキャンニングエリアは $2.5\text{mm} \times 2.5\text{mm}$ である。雄しべの形がKマップによってはっきりと見られる(図-5)。小さな球は、一つ一つの花粉である。この花粉1個を拡大してマッピングしたものが図中右部に示してある。スキャンニングエリアは $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ で、6元素のマップによって花粉の形が描かれた。花粉の大きさは、約 $30 \mu\text{m}$ と推定される。この場合、花粉の表面だけを観察していることになるが、断面を出すことができれば、花粉内部の元素分布を見

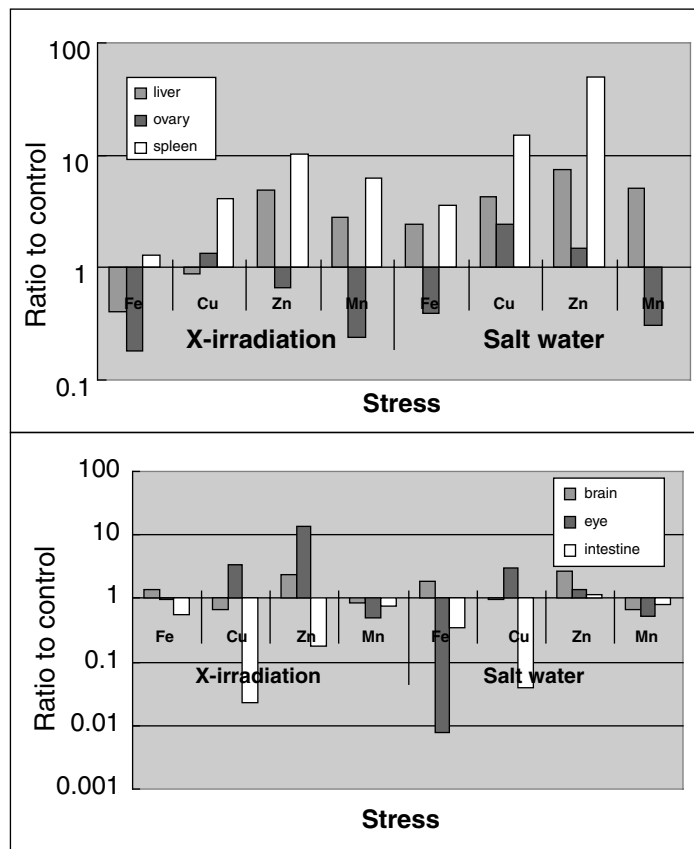


図4 ストレスを負荷によるメダカ臓器中Fe、Cu、Zn、Mn含有量の変化

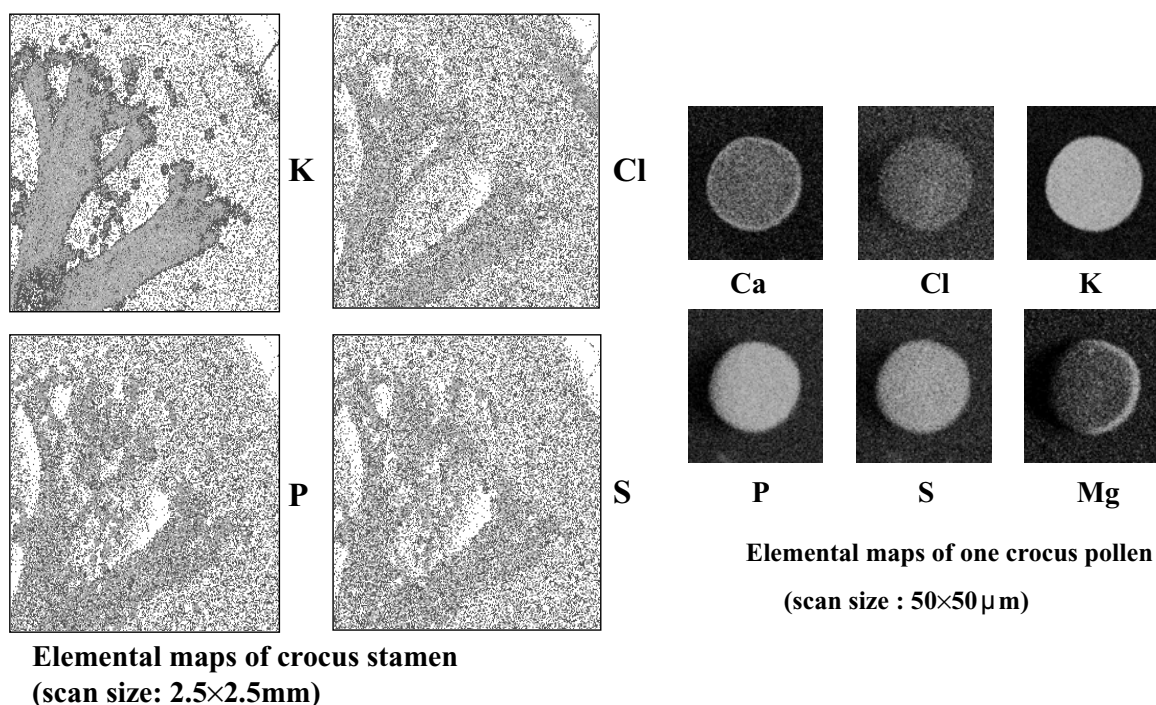


図5 クロッカスの雄しべ及び花粉の元素マッピング

ることができることになり、1個の細胞中での元素分布の観察が可能であることが示された<sup>2)</sup>。

### 3.2.2 メダカの眼球

図 - 6にメダカの眼球の凍結切片を用いて得られたSTIM画像とPIXEによるSおよびZnの分布図を示す。メダカ切片の組織画像が元素マップと同時に得られるので、元素の分布と組織図との重ね合わせがリアルタイムで行える。これにより、Sは水晶体に、Znは角膜上に多く分布していることが明らかとなった<sup>3)</sup>。

### 4. PIXE以外のマイクロビーム利用法

以上述べたように、放医研のマイクロビーム装置は、プロトンやヘリウム原子核(アルファ粒子)を数MeVに加速し、1µmオーダーのマイクロビームとすることができる。この性能を利用して、1個の細胞の狙い撃ちや、細胞中の細胞核やミトコンドリアなど微小器官だけを照射するマイクロビーム照射装置が設置された。これにより、By stander効果等、放射線の生物影響メカニズムが解明されることが期待される。また、マイクロビームによる表面走査の精密制御が可能なので、マイ

クロシナリーの分野でも利用が可能と思われる。

### 5. まとめ

近年、生体内微量元素の生理学的な役割が注目されている。水俣病、イタイタイ病に代表される重金属中毒や、皮膚障害に見られるZnの欠乏症のような、微量元素の健康影響解明や防護に始まった研究は、中毒症や欠乏症のメカニズム研究から、微量元素が生命活動で担っている役割、そして微量元素相互あるいは共存物質とのCombined effect 解明へと進んでいる。非常に微細な試料、例えば一個の細胞中での元素分布の把握が可能PIXE分析法はこれらの分野において、強力なツールとなることが期待される。

### 参考文献

- 1) Yukawa, M., Imaseki, H., Yukawa, O.: Micro-beam scanning PIXE in NIRS and the application tests to biological samples. International Journal of PIXE 10: 71-75, 2000.
- 2) Yukawa, M., Ishikawa, Y., Imaseki, H., Aoki, K.: Elemental Distribution in organs of Medaka, *Oryzias latipes*, burdened with X-ray irradiation.

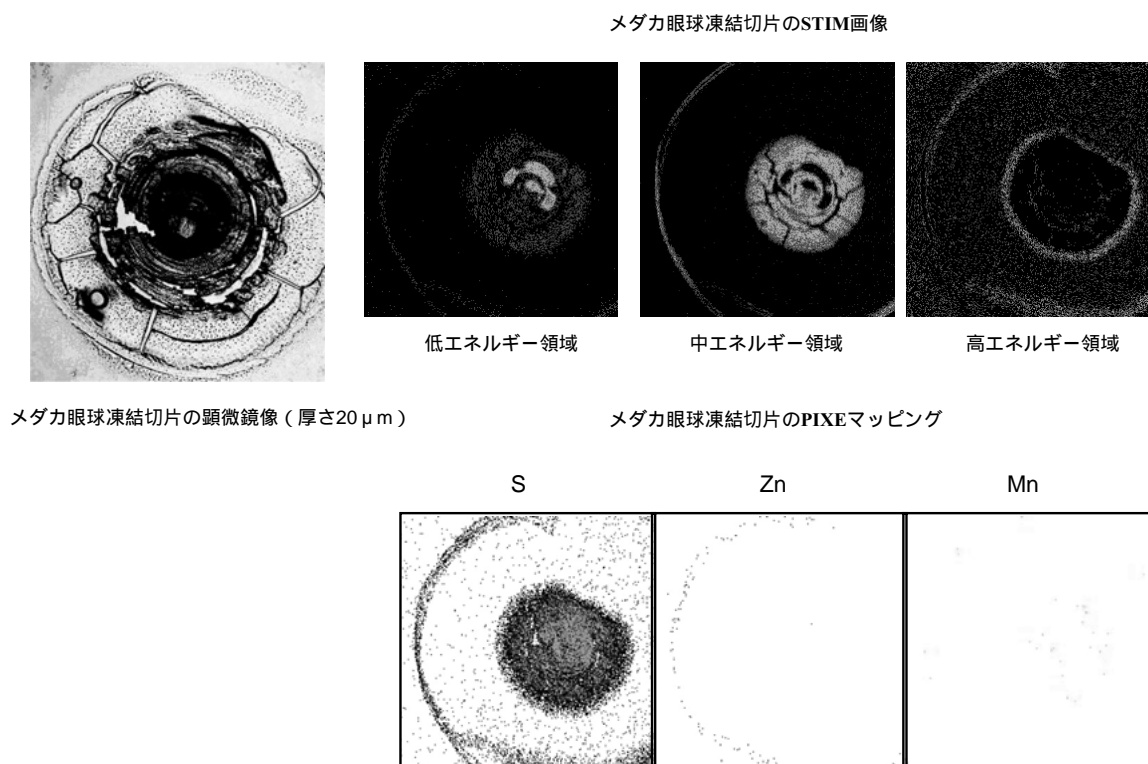


図6 メダカの眼球のSTIM画像とPIXEによる元素マッピング

tion and salty water, International Journal of PIXE, 10, 121-125, 2000

3) Yukawa, M., Ishikawa, Y., Imaseki, H., Aoki, K.: Elemental Distribution in organs of Medaka,

Oryzias latipes, burdened with X-ray irradiation and salty water (Part II), International Journal of PIXE, 11, 119-124, 2001.

## コラム

## セビリア大学物理学部(スペイン)における環境放射能研究について

田上恵子(放射線医学総合研究所)

5月にマドリッドで行われた第11回国際放射線防護学会に先立ち、スペイン南部の都市セビリアにM. García-León教授(学部長)とR. García-Tenorio教授を訪問した(写真-1)。García-León教授はセビリア大学で初めて環境放射能研究をスタートさせ、特に環境試料中のTc-99の測定を1980年代から行っている。現在はI-129の分析も行っているが、これについては後述する。また、García-Tenorio教授は特にスペクトロメトリの専門で、一般にNORM(Naturally Occurring Radioactive Material)として知られている試料、例えばリン酸肥製造工場近傍の河川堆積物やペンキに使用されるTiO<sub>2</sub>の原料であるillmeniteのU同位体分析なども行っている。

彼らの分析機器が一部新施設に移設されたということで、一緒に見学に行った。セビリア大学ではこれまで学内に分散して置かれていた共同利用可能な機器を一カ所に集めて、CITIUS(スペイン語でCentro de Investigación, Tecnología e Innovación. Universidad de Sevilla、英語でSeville University Central Service for Research and Innovation)という新施設をA. Ramirez教授をセンター長として今年3月に竣工したばかりであった。CITIUSは70%がEU出資であり、地域産業にも貢献するために、企業や個人ベースの分析依頼や共同研究も行い、それにより運営資金の15-20%をカバーすることを想定している。この施設には、生物学、化学、物理学などの関連分野からの機器納められ、放射能測定エリアもある。この施設は主に共同研究利用ということで、アンダルシア地

方の観測点からサンプリングされた環境試料中の全、全、H-3やRa測定などが行われる。また、最新型のICP-MS等も導入されており、測定対象を微量元素や長半減期核種に広げていくとのことである。

現在、両教授は、環境放射能研究を進めるにあたって強力な機器である加速器質量分析装置(AMS)の導入を進めている最中であった。今のところ彼らのI-129測定は国外のAMS施設で行っているのであるが、今後、恐らくは2年以内にAMSを大学から車で20分程度のところにある施設に導入し、そこで測定ができるようになるとのことである。AMSはC-14測定で力を発揮しているが、Pb-210やCs-137によるDatingの技術を持つ彼らにとっても、C-14が測れるとなると利用範囲が増えるのではないかととても期待しているようであった。これまでも彼らと共同研究を行ってきた我々としても、今後の発展を楽しみにしている。



左から R. García-Tenorio 教授、M. García-León 教授、内田滋夫博士(放医研)

## コラム

## メスバウアー分光が見つけた火星の水

竹田満洲雄（東邦大学理学部化学科）

2004年3月、NASAは火星探査機、Opportunityが着陸したMeridiani PlanumのEagle crater表面の岩石・土壌を $^{57}\text{Fe}$ メスバウアー分光により分析したところ、主に鉄の硫酸塩、Jarosite,  $\text{MFe}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$  ( $\text{M}=\text{K}, \text{Na}, \text{H}_3\text{O}$ )、ヘマタイト、 $-\text{Fe}_2\text{O}_3$ および玄武岩（橄欖石、輝石）が存在している事を発表した。ほぼ100m離れたより小さなFram craterと500-600m離れた大きなEndurance craterでもJarositeの存在が認められた。Jarositeの存在は火星のこの地域に水がかつて大量に存在したことを証拠立てるものであり大きな関心を集めた。

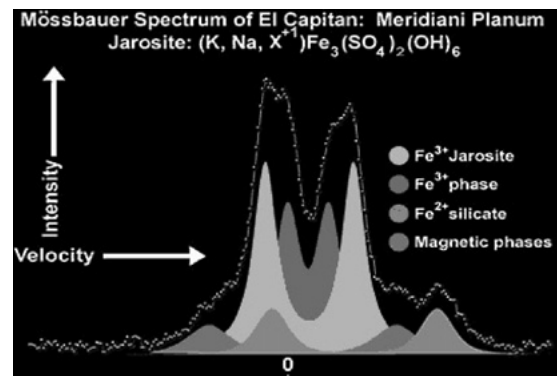
平原とEagle craterの大部分は5-6mmから1cmの直径の小球で覆われ、その主成分はヘマタイトであった。Meridianiの土壌は玄武岩質であり、Gusev craterと同じく橄欖石が主であった。

火星探査機、Spiritが着陸したGusev craterには

橄欖石-玄武岩が存在している。土壌と岩石中にはマグネタイトが存在し、橄欖石が主成分である。

これらの結果はヨハネス・ゲーテンベルグ大学（マインツ大学）のP. Gutlich教授のグループに属するG. Klingelhofer博士らによって開発・製造された2世代目のMiniaturized Mossbauer Spectrometer（MIMOS II）によって得られたものである。

Klingelhofer博士は10月28日の「日本放射化学学会年会」で招待講演をし、11月1日には「日本化学会メスバウアー分光研究会講演会」で講演を行う事になっている。後者の講演、「Mössbauer mineralogy of soils and rocks at Meridiani Planum and Gusev Crater on Mars and its implications on the history of water on Mars」は日本物理学会、日本鉱物学会、日本地球化学会、日本惑星協会など11学・協会によって協賛される。



## 研究集会だより

### 1. 第5回「環境放射能」研究会

#### 宮本ユタカ（日本原子力研究所）

今年で5回目を迎えた「環境放射能」研究会が平成16年3月2日から4日までの3日間、つくばの高エネルギー加速器研究機構で開催された。主催は高エネルギー加速器研究機構放射線科学センターと日本放射化学会 放射体・環境放射能分科会で、共催は日本原子力学会保健物理・環境科学部会に加えて日本放射線安全管理学会と日本放射線影響学会が新たに加わった。また、今回の研究会から代表世話人が近藤健次郎、三頭聡明両先生から、五十嵐康人、三浦太一両氏に交代し、世話人が新たに15名となった。参加人数は約160名、発表件数は70件（内、依頼講演が5件、ポスター発表が40件）と、参加人数並びに発表件数ともに前回とほぼ同じ数であった。学会開催ラッシュから外れているために参加しやすいのもその一因ではあるが、1会場での十分な発表時間や参加者からの活発な討論、掘り下げた議論が研究会の盛況につながっているのではないだろうか。

毎回、討論課題となるテーマを決めて開催しているこの研究会であるが、今回は「最先端の分析技術 - 環境放射能研究への応用とその可能性」であった。研究会案内のメールでご覧になった方も多だろうが、このような討論課題とした背景について述べられている文章を再度、引用しておく。『環境放射能研究では、すでに分析、測定技術は限界まで到達したかのように考えられています。分析化学 - 分析科学を眺めてみると、ナノテクなどの最先端技術が、さまざまな形態で、さまざまな応用法として取り入れられつつあります。こうした最先端技術は直接的にはないでしょうが、間接的に関連する分野での研究開発の波及効果を生む可能性が大きいと思われます。いわゆる放射能測定だけに拘泥せず、関連分野も含めて、最先端の分析技術で、環境放射能分野で何が可能

か追求し、あらためて「測る」ことの意義も追求してみようと考え「最先端の分析技術 - 環境放射能研究への応用とその可能性」を今回のテーマとしました。この観点から依頼された講演の話題は、X線吸収微細構造分析（XAFS）や希土類元素パターン（Masuda-Coryell プロット）、高速液体クロマトグラフィーや電気泳動と組み合わせた質量分析法、ガラスマイクロチップを使った分離・化学反応の集積化で、環境放射能研究の分野ではなじみが薄いけれども興味深い分析技術や解析手法について、分かりやすい総説や研究紹介がなされた。個人的には、ガラスマイクロチップを使った分離・化学反応の集積化は環境試料の極微量分析への応用が可能なのではないかとの感想を持った。

また、今年3月で筑波大学化学系を退官された関 李紀 教授に今までの研究活動などについて依頼講演をして頂いた。JCO事故時の環境放射能測定やCl-36の濃度分布など多岐にわたる研究成果を示しながら decay out してしまったものや、まだ残留しているものについてのお話しが尽き無かった。演題が「消え行くものから」となっていたためか参加者からは関先生が消えてもらっては困るとの声も上がっていた。

本研究会で発表された内容は例年通り、プロシーディングとしてKEKから発行される予定である。今後とも研究会が盛会であることを願ってやまない。

### 2. 第41回理工学における同位元素・放射線研究発表会

#### 岡田住子（武蔵工大 工学部 環境エネルギー工学科）

2004年7月7日（水）から9日（金）の連日の猛暑の中、「第41回理工学における同位元素・放射線研究発表会」が日本青年館（東京）で開催され

た。口頭発表143件(陽電子消滅26件、ライフサイエンス6件、放射線管理4件、地球科学8件、放射線測定機器・測定法17件、安定同位元素6件、製造・分離2件、分析8件、メスパワー効果15件、放射線効果26件、自然放射能17件、放射線教育3件、トレーサー利用5件)ポスター発表23件であった。その他に特別講演3件、パネル討論4主題が開催された。

本研究会へは久しぶりの参加だったため、例年との比較が出来ないが、特別講演 小佐古敏荘先生(東大・原総センター)「除外・免除・クリアランス」とパネル討論「学校における放射線教育の新しい展開」に参加した感想を若干触れたいと思う。

まず、小佐古敏荘先生の「除外・免除・クリアランス」の講演では、私たちの社会では大量消費・大量廃棄物の時代を一日も早く終わらせ、循環型社会形成の促進が強く求められているが、これは原子力産業も例外ではないと実感した。原子炉解体に伴う廃棄物で「無視しうる線量(10  $\mu$  Sv/y)」(クリアランスレベル)以下であれば、再利用でき、現在、そのための「クリアランス制度の整備」が求められている。「対象物の測定・判断」はまさに我々の範疇であるため真剣に取り組む必要性を痛感した。

また、パネル討論「学校における放射線教育の新しい展開」では、実際の学校教育で放射線教育がどのような位置にあるが、現状はどうか、5名の講師がそれぞれ発表と言う形で行われた。この問題が理数系の学力低下・放射線アレルギー・原子力諸問題・エネルギー問題・社会問題など大きく・広い問題を抱えていることを浮き彫りにされた討論会であった。今後是非このような討論の機会を作っていただき、現場の意見が反映されるような場としていただきたいという感想を持った。

その他、研究発表及びポスター発表でも各会場とも盛況であったように感じた。年齢層として若い層の参加が少ない印象を持った。

以下に特別講演及びパネル討論について講演者と演題を記載する。

#### 特別講演

- 小佐古敏荘(東大・原総センター)「除外・

免除・クリアランス」

- 永田 靖(京大・院医)「画像診断技術と放射線治療の進歩」
- 矢野安重(理研・和光研)「放射性同位元素ビームによる研究と理研RIビームファクトリー」

#### パネル討論

##### 分子イメージング パネル討論

- 間賀田泰寛(浜松医大・光量子医学研究センター)「マイクロPET」
- 入江俊章(放医研)「脳: PETによる脳内アセチルコリンエステラーゼ活性の機能測定」
- 吉田勝哉(旭中央病院・PETセンター)「循環器病の分子イメージング」
- 中村佳代子(慶応大・医)「癌」

##### 赤外自由電子レーザー(FEL)利用技術の発展

- 太田俊明(東大・院理)「放射光科学と赤外FEL科学」
- 池北雅彦(東京理大・理工)「赤外FELと生命科学」
- 粟津邦彦(阪大・院工)「中赤外自由電子レーザーのライフサイエンス分野への応用」
- 中井浩二(東京理大・総合研)「赤外FEL利用技術普及の道」

##### 理想的な放射線測定器を求めて

- 森 千鶴夫(愛知工大)「イメージング計測の立場などから」
- 片桐政樹(原研・東海)「J-PARCなどの立場から」
- 檜野良穂(産総研)「標準の立場から」
- 中村尚司(東北大名誉教授)「遮蔽、宇宙、保険物理の立場から」

##### 学校における放射線教育の新しい展開

- 江田 稔(青森大・院環境/元文科省)「新学習指導要領におけるエネルギー・環境・放射線教育について」
- 黒杭清治(元芝浦工大教授)「放射線」に対する教員の再教育は急務」
- 長谷川囿彦(静岡大名誉教授)「学校教員を対象としたエネルギー・環境・放射線セミナー実施の現状と課題」
- 渡部智博(立教新座中・高等学校教諭)「学校における放射線教育の実践とその在り方に



ついて」

- 大野新一（理論放射線研究所）「放射線をもっとわかり易くする方法について」

### 3. 第11回国際放射線防護学会(11<sup>th</sup> International Congress of the International Radiation Protection Association, IRPA-11)

田上恵子（放射線医学総合研究所）

2004年5月23日から28日にスペイン・マドリードのMadrid City Congress HallでIRPA-11が開催された。今回は“Widening the Radiation Protection World”をテーマとして、事前登録だけでも80カ国1330名以上となる大きな学会であった。前回2000年の大会が広島で開かれたこともあり、日本からは100名以上の参加があり、これはスペインからの参加者数について多かった。テーマは次の9つに分類されていた：Societal influences, Radiation effects, Radiological protection system and regulation, Radiation protection in the workplace, Protection against non-ionising radiation, Radiation protection of patients, Radiation protection of the public, Incidents and accidents, Dosimetry and instrumentation、である。会議の詳細については、<http://www.irpa11.com/>から閲覧することができる。

上記分類に沿った形でパラレル・セッションも4部屋に分かれて開かれたが、パネルセッション5つ（「低線量における放射線影響について何が解明されたのか?」、「21世紀に向けてのICRPの新勧告」、「電場および磁場とがん」、「放射線防護における自然放射能諸問題」、「放射線防護における社会的観点と公衆参加」）はパラレルで行われることなく大会場で行われた。それぞれ1時間半から2時間とられていたが、どれも熱心な討論が行われた。特にICRP新勧告では、Dr. R. Clark (ICRP)による紹介に引き続き、壇上で数人がコメントしていたが、放医研の藤元氏もパネラーとして登壇した。このセッションでは各国の情勢、研究者らの見解の違いなどもあり、会場からの質問が多く飛び交っていた。このIRPAの会議自体は、科学に基づいて研究者らが環境防護について討論しているのだが、とはいっても全体に政治色が強いので、一研究者としては理解に苦しむ場面

も多かったのが実感である。

ところで、環境放射能分野に関するセッションのなかで一つ取り上げておきたいのは、「環境の放射線防護」である。これについてはすでに日本原子力研究所の天野氏より報告（放射化学ニュース第9号22-23ページ参照）があったが、昨年10月に行われたストックホルムでの会議の流れを汲んだもので、さらに方針がはっきりしてきた。これまで放射線防護では人を防護していれば環境は守れるとしてきたが、実際にそうであるのか検証する必要があるのではないか?という考えが基本にある。そこで、生態系を対象とした放射線防護を考慮し、そのための枠組みを作ろうではないか、という動きである。つまり「標準人」があるように「標準生物」という考え方を取り入れ、一次レファレンス生物（例えば、アヒル、サケ、松、等）への影響に関するパラメータを埋める作業が開始されつつある。こうした動きが本当に科学として興味深いかどうかは別として、社会ニーズに対応することもまた必要なのではないかと考えさせられた。

なお、2008年10月にはアルゼンチンのブエノスアイレスでIRPA-12が開かれることが決定している。

### 4. 第6回環境放射能・放射線夏の学校

福田紋子（熊本大学自然科学研究科）

今年も「環境放射能・放射線夏の学校」が平成16年8月2日～4日の3日間にわたり開催されました。6回目となる今回は、小村和久先生（金沢大学）を校長とし第1・2回目の開催地でもある石川県で行われました。主催である金沢大学を始め、サイクル機構、環境科学技術研究所、産総研、原研、福井県原子力センター、放医研、京都大学、熊本大学、長崎大学、新潟大学、立教大学から約40名が石川県青少年総合研修センターに集まり、交流を深めました。

この学校の特徴のひとつに参加者全員に発表する機会が設けられていることがあります。ベテランの先生や研究員の方々の前で発表することは、私たち学生にとっては大変緊張するものですが、自分の研究について多くのアドバイスを頂ける貴重な機会となりました。みなさんの発表は多

岐にわたり、私にとっては初めて聞くこともあり大変興味深いものでした。ここではほんの一部ではありますが、話題提供されたものを紹介いたしますと、環境中物質移行モデルの構築とモデルシミュレーション、プルトニウムの迅速分析法の開発、海水中のレニウムの挙動、環境生物および生態系に対する放射線の影響に関する研究、食事摂取基準などのタイトルがありました。

また招待講演として長谷川孝徳先生（石川県立歴史博物館）による“金沢学 - 加賀百万石の政策 - ”が行われました。過去の政策と現在の政策を対比させながら話して下さったので大変わかりやすく、歴史を学ぶことの大切さを再認識することができました。

2日目の午後にはエクスカージョンとして尾小屋地下測定室見学が用意されており、小村先生の丁寧な説明の下、世界トップレベルの測定室を見ることができました。測定室が洞窟内にあること

にも驚きましたが、検出器の数やバックグラウンドの低さにも驚かされました。

この夏の学校に参加して教官、研究員、学生というそれぞれの立場で環境放射能・放射線に関わる人とお話しすることにより、大変刺激を受けたと同時にこれから研究を進める上での大きな励みとなりました。なお、次回の「第7回環境放射能・放射線夏の学校」は百島則幸先生（熊本大学）を校長として開催されることが決定しました。今年と同じように時期は8月上旬、熊本大学主催ではありますが、会場は交通の便を考えて福岡市になりそうです。来年も数多くの学生と研究者の皆さんにお集まりいただいて、さらに充実したものになることを期待しております。

最後になりましたが、主催である金沢大学 LLRL の方々のお陰で有意義な3日間を過ごせたことに感謝いたします。



情報プラザ

1. 第4回先端基礎研究国際シンポジウム (ASR 2004)

The Fourth International Symposium on Advanced Science Research

- Advances in Heavy Elements

Microbiology Research (ASR2004) -

主催 日本原子力研究所 先端基礎研究センター

共催 電力中央研究所、日本放射化学会、原子力学会バックエンド部会

会期 平成16年11月15日(月) 16日(火)  
(2日間)

会場 日本原子力研究所 東海研究所 先端基礎研究交流棟 大会議室

主な講演者

Dr. G. Choppin (米国、フロリダ州立大学)

Dr. A.J. Francis (米国、ブルックヘブン国立研究所)

朽山 修教授 (東北大学)

Dr. T. Beveridge (カナダ、ゲルフ大学教授)

Dr. K. Pedersen (スウェーデン、ゲーテボルグ大学教授)

Dr. J. Lloyd (英国、マンチェスター大学教授)

Dr. Y. Wang (米国、サンディア国立研究所、主任研究員)

会議内容

アクチノイドなど重元素と微生物との相互作用の微視的機構の実験的、理論的解明に関する最新の成果や今後の展望に関する発表を行う。プログラムは基調講演、一般講演及びポスター発表で構成される。トピックスとしては次の4項目を中心に取り上げる。

- (1) 微生物細胞膜への吸着及び化学状態変化
- (2) 生体膜構造とイオン透過機構
- (3) アクチノイド化学
- (4) 理論的解析

連絡先

Toshihiko OHNUKI, Symposium secretary

Research Group for Heavy Elements Microbiology,  
Advanced Science Research Center,  
Japan Atomic Energy Research Institute  
2 Shirakata, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan  
Phone : (81) 29 282 5361, Fax : (81) 29 282 5927  
e-mail : asr2004@popsvr.tokai.jaeri.go.jp

2. テクネチウムに関する国際シンポジウム  
- 科学と利用 -

International Symposium on Technetium  
- Science and Utilization - (IST-2005)

会期 平成17年(2005年)5月24日(火)~5月27日(金)

会場 核燃料サイクル開発機構大洗工学センター  
(大洗)

概要 本シンポジウムは、放射性元素であるテクネチウムをキーワードとして、種々の分野の第一線の研究者が集い、研究発表と議論を通じて学術情報交換を行う会議である。

テクネチウムは人工元素であるのにも関わらず、種々の学問分野が社会の課題と密接に関わりながら、その研究が進展している。たとえば、現在、Tc-99m(半減期6時間)は「放射性医薬」として世界的に最も多く利用されているラジオアイソトープであり、我が国においてもその使用量は群を抜いて多い。これは、種々の核医学診断に適用できるように多数のテクネチウム化合物が開発されてきたからで、その設計と合成にあたっては錯体化学や薬学の進展がその支えとなっている。一方、テクネチウムは「環境及びエネルギー」分野にも深く関わっている。過去の大気圏核実験により生成したTc-99(半減期21万年)が環境中に幅広く分布することになったが、近年におい

でもヨーロッパでは核燃料再処理施設からのTc-99の海洋放出が続いており、その環境中の動態及び生物への濃縮に関する研究の重要性が認識されている。また、原子炉の核燃料中には多量のTc-99が生成するが、その「再処理過程」における挙動の複雑さが知られており、この解決には高い放射線線量下におけるテクネチウムの水溶液化学、物理化学研究が不可欠である。さらに、多量のTc-99を含む「高レベル放射性廃棄物」は最終的に深地層に処分される計画であるが、処分後における「超長期的な環境中の移行研究」の重要性も認識されている。

以上のように、テクネチウムの研究は学際的な広がりを示すとともに、種々の学問分野が関わる境界領域にその特色があるため、分野間を越えた最前線の研究情報交換が重要である。本シンポジウムはこの基盤に立脚し、核化学、無機・分析化学、物理化学、錯体化学、環境科学、宇宙地球科学、放射性医薬、核燃料再処理、核廃棄物の分離と核変換など、幅広い分野をその対象とする。個々の分野の研究進展及びトピックスを基調講演としてそれぞれのセッションに配置し、テクネチウム科学研究の全体を見渡せるように工夫する。このような分野を越えた研究交流により、今後のテクネチウム科学

の発展に資することが本シンポジウムの目的である。

なお、本シンポジウムのプロシーディングスはJNRS誌の特別号に掲載する予定である。

(シンポジウムの詳細は

<http://technetium.chem.tohoku.ac.jp/>)

#### 連絡先

##### *T. Sekine*

Department of Chemistry, Graduate School of Science, Tohoku University, Sendai 980-8578, Japan

Tel: 81-22-217-6596 Fax: 81-22-217-6597

##### *M. Ozawa*

O-arai Engineering Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute, Ibaraki 311-1393, Japan

Tel: 81-29-267-6918 Fax: 81-29-267-5180

E-mail address of the symposium office:

[ist2005@technetium.chem.tohoku.ac.jp](mailto:ist2005@technetium.chem.tohoku.ac.jp)

### 3. Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '05 (APSORC2005)

会場 中国北京

会期 平成17年(2005年)10月17日~21日

<http://www.ihep.ac.cn/apsorc2005/>

.....

## 学位論文要録

.....

Equilibrium charge of heavy recoil atom in helium gas - The way to a new element discovery -

(ヘリウムガス中の重い反跳原子の平衡電荷  
- 新元素発見への道 - )

加治大哉 (理化学研究所 加速器基盤研究部  
ビーム分配技術開発室)



学位授与：新潟大学 (主査：橋本哲夫)  
平成 15 年 3 月 25 日

人類はこれまでに 100 を超える元素を発見してきているが、日本の研究グループ主導により発見がなされた元素は一つも存在しない。国内初の新元素発見を目的として、原子番号 113 番以上の新元素探索を行う計画が理化学研究所の重イオン線形加速器施設で進行している。新元素探索には気体充填型反跳分離装置 (GARIS) を用いるが、GARIS を適切に動作させるためには目的とする新元素に対するヘリウムガス中での平衡電荷を知る必要がある。これまでに、超アクチノイド元素領域における平衡電荷に関する実験データは存在せず、またアクチノイド元素から予測される系統性についても信頼に足るものが存在しなかった。そこで、Pb ( $Z=82$ ) から Ds ( $Z=110$ ) までの重元素に対するヘリウムガス中での平衡電荷を系統的に調べ、新元素探索のための GARIS の磁場設定条件について考察することを目的として研究を行った。

反跳原子の源として、ラザフォード散乱による標的の 0 度方向への反跳核 ( $^{169}\text{Tm}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{209}\text{Bi}$ ) および核反応による反応生成核 ( $^{193}\text{Bi}$ ,  $^{196}\text{Po}$ ,  $^{200}\text{At}$ ,  $^{204,203}\text{Fr}$ ,  $^{212}\text{Ac}$ ,  $^{234}\text{Bk}$ ,  $^{245}\text{Fm}$ ,  $^{254}\text{No}$ ,  $^{255}\text{Lr}$ ,  $^{265}\text{Hs}$ ) を用いて測定を行った。薄い標的を反跳によって飛び出した原子を GARIS により入射粒子やその他の

副反応生成物と分けて検出器系へと収集した。検出器系には、原子 1 個から核種を同定できるような信頼できる検出器システム (2 台の飛行時間検出器と位置感応型半導体検出器を組み合わせた検出器) を GARIS の焦点面に設置した。GARIS の磁場設定条件を変えながら、各々の反跳核に対してヘリウムガス中における平衡電荷を測定した。得られた平衡電荷は、Bohr モデルに基づいて反跳速度依存性の観点から議論し、(超)重元素探索のための経験式を導出した。

(超)重重元素領域に対するこの経験式の妥当性を示すために、 $^{208}\text{Pb}(^{64}\text{Ni}, n)^{271}\text{Ds}$  反応を用いて 110 番元素探索を行った。蒸発残留核のアルファ壊変エネルギー・壊変時間・反応断面積という全ての観点において、 $^{271}\text{Ds}$  を合成したという実験的証拠を得た。これにより、ヘリウムガス中における 110 番元素の平衡電荷を測定することに成功し、経験式の妥当性を示すことができた。また、この反応に対する励起関数も合わせて測定したが、ドイツの重イオン科学研究所 (GSI) によって先に報告された励起関数から約 4 MeV 高いエネルギー方向へのピークのシフトを確認した。このエネルギーの違いは、新元素探索の最適入射エネルギーを決める上で極めて重要な情報源となる。

代表的な発表論文

1. D. Kaji, K. Morita, K. Morimoto, Y. L. Zhao, A.

- Yoneda, T. Suda, A. Yoshida, H. Kudo, K. Katori, and I. Tanihata, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **255**, 77 (2003).
2. K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, E. Ideguchi, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, T. Suda, K. Sueki, I. Tanihata, H. Xu, A. V. Yeremin, A. Yoneda, A. Yoshida, Y.-L. Zhao, and T. Zheng, *Eur. Phys. J.* **A21**, (2004).
3. K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, E. Ideguchi, J. C. Peter, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, T. Suda, K. Sueki, I. Tanihata, H. Xu, A. V. Yeremin, A. Yoneda, A. Yoshida, Y.-L. Zhao, T. Zheng, S. Goto, and F. Tokanai, *J. Phys. Soc. Jap.* **73**, 1738 (2004).
4. K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, E. Ideguchi, J. C. Peter, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, T. Suda, K. Sueki, I. Tanihata, H. Xu, A. V. Yeremin, A. Yoneda, A. Yoshida, Y.-L. Zhao, T. Zheng, S. Goto, and F. Tokanai, *Nucl. Phys.* **A734**, 101 (2004).
5. K. Morimoto, K. Morita, D. Kaji, S. Goto, H. Haba, E. Ideguchi, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, J. C. Peter, T. Suda, K. Sueki, I. Tanihata, F. Tokanai, H. Xu, A. V. Yeremin, A. Yoneda, A. Yoshida, Y.-L. Zhao, and T. Zheng, *Nucl. Phys.* **A738**, 129 (2004).



中性子不足アクチノイド核種領域には、半減期が数分と予測されているにもかかわらず、未発見の核種や存在が確認されていても壊変特性データの不明確な核種が多数ある。この核種領域での核的特性研究が遅れている理由として、第一に、それら核種の位置する陽子ドリップライン近傍では、中性子の分離エネルギーが強くなるため、蒸発残留核が生成したとしても残存する確率が低い。第二に、これら核種の主要な壊変形式が電子捕獲壊変 (>90%) であると予想され、核種同定においては、電子捕獲壊変に伴う特性X線を検出する必要がある。そのためバックグラウンドとの競争から検出限界が高くなり、核種同定を困難なものにさせている。しかしながら、この核種領域での未知核種の探索とその壊変特性に関する研究は、陽子ドリップライン近傍の原子核の安定性や核構造、変形度などを理解する上で、重要な情報を与えてくれる。特に、この核種領域の壊変エネルギーは、重・超アクチノイド核種の原子核質量を直接的に精度良く決定することができる重要な物理量であり、その原子核質量値より重・超アクチノイド核種の安定性や生成過程、核構造への解明につながる。本研究は、中性子不足アクチノイド核種領域に位置するアメリシウム同位体 ( $^{233}\text{Am}$ 、 $^{234}\text{Am}$ 、 $^{235}\text{Am}$ 、 $^{236}\text{Am}$ ) に着目し、新核種探索ならびにアルファ壊変特性の解明を目的とした。

本研究は、日本原子力研究所タンデム加速器にあるガスジェット・オンライン同位体分離器 (JAERI-ISOL) を用いて行った。この研究の初段階では、装置の効率向上試験を行い、これまでのAm元素に対する全搬送分離効率を約10倍まで向上させることに成功した。この高効率化した同位体分離器を用いて、中性子不足アメリシウム同位

### Alpha-decay Properties of Neutron-deficient Americium Isotopes

(中性子不足アメリシウム同位体のアルファ壊変特性)

阪間 稔 (徳島大学医学部保健学科 放射線技術科学専攻 医用放射線科学講座)

学位授与：東京都立大学 (主査：海老原充)

平成16年2月19日

体の線測定を行ったところ、初めて新核種<sup>233</sup>Amの同定及び<sup>235</sup>Amの壊変の観測に成功し、さらに、これまで信頼性の低い<sup>234</sup>Amや<sup>236</sup>Am、<sup>229</sup>Np(<sup>233</sup>Amの娘核種)の壊変特性データに対して、より精度の優れた値を提供することができた。

本研究で得られた壊変特性データをもとに中性子不足アクチノイド核種領域の奇偶核と奇核に関する壊変部分半減期と壊変エネルギーとの関係を調べた。この関係から壊変に対する抑止因子の導出として、近傍の偶核の実験データ(抑止因子=1の主遷移データ)から内挿されるパラメータをAmとNpに適用させ、それらの比から抑止因子を導出した。その結果、<sup>233</sup>Am、<sup>235</sup>Am、<sup>236</sup>Am及び<sup>229</sup>Npの壊変は、主遷移であることを確認した。また、奇偶核のAmについて、壊変した後のNpのエネルギー準位が、中性子数の減少とともに基底準位に接近していることを系統的に確認した。これらをもとにAmのQ値及び原子核質量値を求め、理論計算値や系統的評価値との比較したところ、100~300 keV範囲内で実験値を再現していることを確認した。

#### 代表的な発表論文

1. M. Sakama, M. Asai, K. Tsukada, S. Ichikawa, I. Nishinaka, Y. Nagame, H. Haba, S. Goto, M. Shibata, K. Kawade, Y. Kojima, Y. Oura, M. Ebihara, and H. Nakahara,  $\alpha$ -decays of neutron-deficient americium isotopes, *Phys. Rev. C* 69, 014308 (2004).
2. M. Sakama, K. Tsukada, M. Asai, S. Ichikawa, H. Haba, S. Goto, Y. Oura, I. Nishinaka, Y. Nagame, M. Shibata, Y. Kojima, K. Kawade, M. Ebihara, and H. Nakahara, New isotope <sup>233</sup>Am, *Eur. Phys. J. A* 9, 303-305 (2000).
3. M. Sakama, K. Tsukada, M. Asai, S. Ichikawa, H. Haba, S. Goto, I. Nishinaka, Y. Nagame, Y. Oura, Y. Kojima, A. Osa, M. Shibata, K. Kawade, M. Ebihara, and H. Nakahara, Nuclear decay properties of the neutron-deficient actinides, *J. Nucl. Sci. Technol., Sup.* 3, 34-37 (2002).
4. M. Asai, M. Sakama, K. Tsukada, S. Ichikawa, H. Haba, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Goto, K.

Akiyama, A. Toyoshima, Y. Kojima, Y. Oura, H. Nakahara, M. Shibata, and K. Kawade, Decay studies of neutron-deficient Am, Cm, and Bk nuclei using an on-line isotope separator, *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 3, 187-190 (2002).

5. S. Ichikawa, K. Tsukada, M. Asai, H. Haba, M. Sakama, Y. Kojima, M. Shibata, Y. Nagame, Y. Oura, and K. Kawade, Performance of the multiple target He/PbI<sub>2</sub> aerosol jet system for mass separation of neutron-deficient actinide isotopes, *Nucl. Instr. and Meth. B* 187, 548-554 (2002).

#### Studies on the Isothermal Chromatography of Rutherfordium and its Homologues, Zirconium and Hafnium (ラザホージウムおよびその同族元素(ジルコニウム、ハフニウム)の等温クロマトグラフに関する研究)

佐藤(金子)哲也(日本原子力研究所 物質科学研究部加速器管理室)

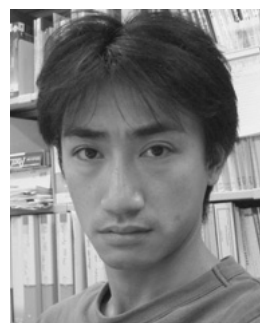
学位授与:新潟大学(主査:橋本哲夫)  
平成15年3月25日

104番元素ラザホージウム(Rf)は、周期表上では4族に配置されており、最初の超アクチノイド元素である。4族元素はそのハロゲン化物が昇華性をもつことが知られており、同族のZr, Hfの塩化物はマクロ量で非常によく似た性質を示すことがわかっている。周期表からの外挿によればRf塩化物はZr, Hf塩化物に比べてずっと揮発性が低いことが予想されている一方、相対論計算によれば、RfはZrやHfと同じか、より高い揮発性を持つことが予想されている。このようなRf塩化物の揮発性について、気相化学分離法のひとつである等温ガスクロマトグラフ法を用いて検討が行われ、これまでもいくつかの報告があるが、Zr, HfおよびRf塩化物の揮発性については、未だあいまいな点が多い。そこで、本研究では超アクチ

ノイド元素の気相化学実験に適用可能なオンライン等温ガスクロマトグラフ装置を開発し、さらに開発した装置を用いてRf塩化物の気相化学実験をおこなった。

超アクチノイド元素の化学分離のためには、高い効率と迅速性をもつ化学装置と、分離後の分析のために、化学分離された化学種を測定系へと輸送するための再搬送装置が必要となる。効率のよい化学反応を選択するために、超寿命のZrおよびHfトレーサーを用いて揮発性塩化物の最適な生成条件を求めた上で、加速器で生成した短寿命のZr同位体について本化学装置を適用した。トレーサー実験で求めた反応条件が、確かにオンライン実験にも適用でき、塩素化については80%の効率で、また再搬送については約25%の効率で化学分離を行うことができることがわかった。またその反応が十分迅速であることを確認することができた。さらにこの化学分離によって核反応の副生成物として生成される1族、2族および3族元素を非常に高い効率で除くことができることを確かめた。

次に、以上のように求めた4族塩化物実験のための最適条件で、Zr, HfおよびRfについて本装置を用いて検討を行った。この際、これら3元素を同時生成することで、その挙動を本研究で初めて直接比較することができた。等温カラム温度に対する相対収率の変化について比較をおこなったところ、すべて同様な挙動を示すことがわかった。



Zr, Hfはマクロ量でもその性質が非常によく似ており、今回の結果がそれに矛盾しないことから、Rf塩化物がZrやHf塩化物とよく似た傾向をもつことを確かめることができた。

本研究は主に原研タンデムにておこなった。ご指導いただきました新潟大の工藤久昭先生ならびに原研の永目諭一郎先生をはじめ皆様に感謝申し上げます。

#### 代表的な発表論文

1. Isothermal Gas Chromatography of Chlorides of Zr and Hf as Rf Homologs; T. Kaneko, S. Ono, S. Goto, H. Haba, M. Asai, K. Tsukada, Y. Nagame, H. Kudo, J. Radioanal. Nucl. Chem. 255 (2003) 381-384
2. Reaction of LaCl<sub>3</sub> with dipivaloylmethane in gas phase; T. Kaneko, K. Tamura, S. Kimura, H. Kudo, J. Radioanal. Nucl. Chem. 240 (1999) 53-57



## 学術会議だより

海老原 充（東京都立大学大学院理学研究科化学専攻）

### 1. 日本学術会議法の一部改正に伴う制度の変更等について

先の国会で「日本学術会議法の一部を改正する法律」衆参両院で満場一致で可決・成立し、平成16年4月14日に公布、一部が既に施行されている。この改正により、日本学術会議会員の推薦制度が変更され、「登録学術研究団体」制度も同日をもって廃止された。これまで、「登録学術研究団体」は自動的に「広報協力学術団体」として指定されていたが、「登録学術研究団体」制度の廃止後も、当面「広報協力学術団体」として学術会議と連携・協力することが要請されている。平成16年4月19～21日開催の第142回総会では日本学術会議法の一部を改正する法律の概要についての報告があった。以下にその改正の概要をまとめる。

#### (i) 会員制度の改革

##### (a) 会員選考方法の変更

登録学術研究団体を基礎とした推薦制から、日本学術会議が会員候補者（210人程度）を選考する方法に変更する。初回会員のみ、日本学術会議会員候補者選考委員会が選考する。

##### (b) 定年制の導入・再任の禁止

70歳定年制を導入し、任期を6年として再任を禁止する。

##### (c) 半数改選制の導入

3年ごとに半数の会員を改選する。

#### (ii) 内部組織の改革

##### (a) 部の大括り化

現行の7部制から、「人文科学」、「生命科学」、「理学及び工学」の3部制とする。

##### (b) 連携会員の新設

研連を廃止し、連携会員を新設する。連携会員は会員と連携して日本学術会議の職務の1部を行う。定年を75歳前後とする。（定員は決めないが、2300人程度）

##### (c) 幹事会の設置

総会主義を排除するために、運営審議会を幹事会に改組し、職務・権限の一部の委任を可能とする。

##### (d) 副会長の増員

会長の補佐機能を強化するために副会長1人を増員し、国際交流・協力に対応する。

##### (iii) 内閣府への移管

内閣総理大臣の下、総合科学技術会議と連携し、我が国の科学技術の推進に寄与することが求められる。総合科学技術会議はtop-down的に科学技術政策を形成するのに対し、日本学術会議は従来通り科学者の意見を幅広く集約し、いわばbottom-up的に政策提言することが期待される。

##### (iv) 施行日

平成17年10月1日を施行日とする。但し、初回会員の選考に係る部分は交付の日（平成16年4月14日）、内閣府への移管に係る部分は平成17年4月1日。今19期研連は、平成17年9月30日を持って終了する。

### 2. 化研連からのお知らせ

#### (i) 平成17年度科研費審査委員候補者の推薦

平成17年度からはこれまでの方式を改め、日本学術振興会は審査委員候補者の情報を広く収集し、蓄積したデータをもとに審査員を選定する方式を採用する。化研連は審査委員候補者の情報提供をおこなった。

#### (ii) 第3期科学技術基本計画への化研連からの提言

このことについて、提言を検討した。化研連としては、実験研究環境の整備の必要性と関連づけて、特に、基礎研究の重要性を提言すべきであるとの強い意見が出された。

#### (iii) 学術会議改革に関連して、研連では特に以下の点について議論した。

(a) 3部制における会員選出で、化学と生物の境界領域の連続性を如何にして保つか。

(b) 化研連の国際交流機能（対IUPAC）を今後

どう維持するか。IUPACへの会費支払い窓口としては化研連相当の組織は存続しても、活動は学協会にまかせることなろう。

(iv) IUPACの事務局を日本で引き受ける体制を急ぐ必要がある。



学会だより

1. 学会のシンボルマークについて

昨年の年会で学会のシンボルマークの募集と選定投票を致しました。その結果、とくに高得点を得たシンボルマークがなかったことより、最高得点を得たシンボルマークの作成者に再度学会の意向等を話し、その後たびたびの修正を経て、このたびの理事会でこのシンボルマークを定めました。

図は核、原子、放射線等を図案化しています。今後このマークに親しみを持って下さい。

作成者 神谷二郎（九州環境管理協会）

マーク



ロゴマーク展開

