放射化学ニュース

第26号

解説

従来よりも短い¹⁴⁶Sm半減期の測定結果と¹⁴⁶Sm-¹⁴²Ndを用いた太陽系年 代に及ぼす影響/陽子過剰原子核で観測された様式の核分裂/TiCl₄ルイス酸 による金属内包フラーレンの迅速分離法

特集

福島問題 福島の果樹、この1年/原子力機構の環境修復の取り組みに参加 して/環境放射線分布測定用ガンマカメラの開発



NRS 日本放射化学会

The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences

放射化学ニュース

第 26 号

平成 24 年(2012 年)10 月 22 日

目次

解説

1.	. 従来よりも短い ¹⁴⁶ Sm 半減期の測定結果と ¹⁴⁶ Sm- ¹⁴² Nd を用いた	
	太陽系年代に及ぼす影響(木下哲一・中西 孝・横山明彦)	1
2.	陽子過剰原子核で観測された様式の核分裂(西尾勝久)	9
3.	TiCl ₄ ルイス酸による金属内包フラーレンの迅速分離法(秋山和彦)	17
特集	Ę	
袹	ā島問題	
1.	- 福島の果樹、この1年(佐藤 守)	21
2.	原子力機構の環境修復の取り組みに参加して(吉川英樹)	32
3.	環境放射線分布測定用ガンマカメラの開発(田所孝広)	36
学位	z論文要録	
力	□速器施設において生成する放射性エアロゾルの生成機構と挙動(長田直之)	43
トヒ	ピックス	
I	AEA Japan Proficiency Test(大浦泰嗣)	45
追悼	文	
1.	ローランド先生を偲んで(富永 健)	47
2.	Attila Vértes 先生を偲んで	50
施設	とだより	
1.	理研 RI ビームファクトリーの被害状況と震災対応(羽場宏光)	52
2.	東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターの被災状況と現状(涌井崇志)	56

学会だより	63
研究集会だより 国内	
第 51 回 核化学夏の学校(箕輪はるか)	65
海外	
1. ICRS-12 に参加して(関本 俊)	68
2. IRPA-13 に参加して (関本 俊)	70
3. MARC-IX に参加して(大槻 勤)	73
4. NRC-8 に参加して(二宮和彦)	75
情報プラザ (国際国内会議)	76
APSORC 準備状況 (永目諭一郎)	77

賛助会員リスト 広告

表紙の説明 -

放射能汚染初年度のリンゴ"ふじ"の生育期における果実中の放射性 Cs の挙動を検証した。果実中 Cs 濃度は幼果では 高濃度を示したが、以後完熟期まで経時的減衰傾向を示した。果実当たり Cs 含有量は着色開始期までは果実肥大に伴っ て高まったが、着色開始後の成熟期では果実肥大に係わらず一定量で推移した。このことから、リンゴ"ふじ"では成熟 期の放射性 Cs の果実への移行は限定的と推察された。これは、10 月以降の果樹では、貯蔵養分蓄積期に入るため、放射 性 Cs も主として枝などの貯蔵器官へ移行したためと推察される。

■解説

従来よりも短い¹⁴⁶Sm 半減期の測定結果と¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd を用いた 太陽系年代に及ぼす影響 木下 哲一 (清水建設 (株) 技術研究所) 中西 孝 (金沢大学学際科学実験センター) 横山 明彦 (金沢大学理工研究域)

1. はじめに

サマリウム-146は、元素の成り立ちにおいて 中性子捕獲では作られないp核の一つで、その 半減期が太陽系形成や惑星の分化における "時 計"として利用されている。¹⁴⁶Sm はその寿命 ゆえ、現在の太陽系には存在しないが、¹⁴²Nd 同位体存在量とSm存在量の相関関係が隕石中 に発見され、消滅核種の¹⁴⁶Sm が過去に存在し ていた証拠となっている。Sm と Nd はわずかに 岩石との相性が異なり、岩石の溶解や固化によ り分化が起こる。¹⁴⁶Sm が存在していた間に分 化が起こると、¹⁴⁶Sm は¹⁴²Nd に壊変するのでネ オジムに同位体異常が見られる。ネオジムの同 位体異常は地球や月の岩石、様々な隕石などの 中に見つかっている。同位体異常の測定により これらの固化年代が得られ、現在までに多数の 研究が行われている。

¹⁴⁶Smの半減期はこれまで1953年から 1987年の間に4回の測定が行われ、現在では Friedman et al. と Meissner et al. による 103±5 My が採用されている。しかしながら、¹⁴⁶Smの 半減期は~50 My、74±15 My、103±5 Myと 変遷してきており、過去の半減期の経緯が及ぼ す¹⁴²Nd-¹⁴⁶Sm 年代への影響ははかり知れない。 一般的に長寿命核の半減期 T_{1/2} は、放射能 A と 原子数 Nの関係 $A = \lambda N = \ln 2/T_{1/2} \times N$ (λ は壊変 定数)より計算を行う。実際は放射能と原子数 の絶対値の測定には標準試料が必要で、核種に よっては入手困難な場合もある。¹⁴⁶Smの場合 は¹⁴⁷Sm が¹⁴⁶Sm と同様にα壊変する天然放射 性長寿命核種なので、¹⁴⁷Smと比較することで $A_{146}/A_{147} = \lambda_{146}/\lambda_{147} \times N_{146}/N_{147}$ に基づいて、放射 能比 A₁₄₆/A₁₄₇ と原子数比 N₁₄₆/N₁₄₇ の測定を行

えば、¹⁴⁶Smの半減期が¹⁴⁷Smの半減期と相対 的に算出可能になる。しかしながら、放射能の 測定に関してはそれほど困難なことはないが、 原子数を質量分析により測定すると同重体の干 渉を受ける。我々のグループはα線測定によ る¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 放射能比と加速器質量分析によ る原子数比の測定を行い、¹⁴⁶Sm 半減期が現在 採用されている値よりも34%短い値を決定し、 Science 誌に投稿して 2012 年 3 月 30 日号に掲 載された。半減期が短くなることは、年代学上 の物差しの長さが変わることを意味し、新たな 地球・月・火星の¹⁴²Nd-¹⁴⁶Sm 年代を与える結果 となったのでそれについて紹介する。また、こ の研究は¹⁴⁶Smの製造と放射能測定は日本、加 速器質量分析(AMS)はアメリカ、解析はイス ラエルで行われたが、¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 原子数比を AMS で測定することになった経緯、本稿著者 の一人(木下)が実験と解析であちこちに飛び 回っていたことについても紹介する [1~7]。

2.¹⁴⁶Sm 原子核の製造から放射能測定

¹⁴⁶Smの半減期測定を行うに先立ち、以下の 施設にて制動放射線、高速中性子、プロトンビ ームをそれぞれ¹⁴⁷Sm 濃縮同位体ターゲットに 照射し、3つの核反応を用いて製造を行った。 1.¹⁴⁷Sm (y,n)¹⁴⁶Sm 反応

- 東北大核理研電子ライナック
- ¹⁴⁷Sm (n,2n) ¹⁴⁶Sm 反応 原研大洗 材料試験炉 JMTR
- ¹⁴⁷Sm (p,2nε)
 ¹⁴⁶Sm 反応 阪大 RCNP AVF サイクロトロン それぞれの照射を行うにあたり東北大核理
- 研・大槻氏、東北大金属材料研・三頭氏、阪大

院理・高橋氏にお世話になった。制動放射線の 照射では (γ ,n)反応に競合して (γ ,p)反応で ¹⁴⁶Pm が生成する。中性子照射ではターゲット に ¹⁴⁷Sm の濃縮同位体を使っていると雖も、微 量に含まれる他の同位体への中性子捕獲により おびただしい量の¹⁵⁴Euや¹⁵⁵Euなどが生成する。 これらは β 放射性核種であるが、 α 線測定に おいてバックグラウンドとなるので、化学的に Sm の精製を行った。また、(p,2n ϵ)反応ではプ ロトン照射により生成する¹⁴⁶Euを照射後に分 離し、¹⁴⁶Sm への壊変を待つことで¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 比を他の2つの核反応よりも大きくすることが 可能である。

これらの手法で製造した¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 混合試料 より 20-100 μ g 相当の Sm を取り分け、アンモニ ア水を加えて Sm (OH)₃として沈殿させ、メン ブランフィルター上にろ過することにより、薄 膜線源を調製した(Kikunaga *et al.*, 2010)。この 薄膜線源をシリコン半導体検出器を用いて α 線 測定を行い、図1に示した¹⁴⁶Sm と¹⁴⁷Sm のピー ク面積より¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 放射能比が得られた。

3. 質量分析-TIMS から AMS へ

¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 放射能比の測定を行った薄膜試 料を塩酸に溶解し、タングステンのダブルフィ ラメントにマウントし、旧東大海洋研の表面電 離型質量分析計(TIMS)を用いて¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 原子数比の測定を行った。しかしながら、Nd が検出された。フィラメントに流す電流を増や して Nd のイオン化の抑制、超高純度試薬と Ln レジンを使って Nd 除去の化学分離など、Nd の干渉を抑えるためにあらゆる手段を試した が、何をどうやってもやはり Nd が検出された。 146/147 原子数比をとりあえず測定し、146Sm半 減期1.4 Gyの上限値は得たが、この半減期では 現在の太陽系の年齢 4.5 Gv では消滅せず天然に 存在する核種となり、矛盾が生じる。TIMS に よる測定はこれで断念せざるを得ず、関係者は 共に落胆した。

そんな中、かつて Pu-244 の AMS で共同研究 を行ったことのあるイスラエル・ヘブライ大学 の Paul 教授に¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 比の AMS による測 定を打診した。一般的に AMS はタンデム型静



図1 ¹⁴⁷Sm (γ,n) ¹⁴⁶Sm、¹⁴⁷Sm (n,2n) ¹⁴⁶Sm、¹⁴⁷Sm (p,2nε) ¹⁴⁶Sm 反応で製造した ¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 試 料の α スペクトル

電加速器を利用し、負イオンの形成、加速、多価の正イオンに荷電変換、再加速、分光のステ ップを踏み、目的としないイオンは磁場や電場 で分離する。Csスパッタにより単原子の負イ オンが作られない場合は、フッ化物や水素化 物、酸化物などの分子イオンを利用する。Sm

の場合は負イオンを作れないことはないが、そ の強度は弱い。仮に加速できたとしても、原子 番号が大きくなるにつれて同重イオンとの阻止 能の差が相対的に小さくなるので、静電加速器 ではエネルギーが足らず分光が困難になる。こ れらの打開策として検討されたのが、アメリ カ・アルゴンヌ国立研究所にて ECR (Electron Cyclotron Resonance) イオン源、超伝導ライ ナック (ATLAS)、ガス充填電磁石 (GFM)、 位置検出器(PGAC)、電離箱(IC)を使った AMS である。アルゴンヌで加速器実験を行う 場合でも、1回の実験を行うごとに課題申請に 採択されなければならない。宇宙科学と元素合 成の観点での背景と研究の意義、大まかな実験 手法、コンピューターシミュレーションを用い た¹⁴⁶Ndと¹⁴⁶Smの分離の見積もり、得られた 半減期で何を考えようとしているのかを記述 し、課題申請を行った。関係者の協力の甲斐あ って複数回課題採択され、2007年から5カ年計 画で実験がスタートした。

4. 加速器質量分析 – 測定とひとときの休憩

加速器質量分析ではいかなるイオン源を利用 する場合でも、ビームを強く出すために、イオ ン化に適した化学状態に試料調製を行わなけれ ばならない。本研究では ECR イオン源を利用 するので、金属状態に還元した Sm をイオン源 に装填した。

¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 原子数比の測定においては、加 速器の立ち上げからすべてを我々のグループ で計画する。ECR イオン源を用いて得られる Sm の電荷分布は図2に示すように 20-30 価の 生成率が高い。AMS において目的イオンは加 速器の調整に十分な強度がないために、磁場内



図2 ECR イオン源で生成される¹⁵²Sm^{q+}の電荷分布

で同じ軌道半径のある代替ビーム(パイロット ビーム)を使って加速器の調整を行う。本試料 の測定でパイロットビームに使う元素がイオン 源内にメモリー効果として残っていたとしても GFM で軌道が大きく異なるので、Sm よりもで きる限り原子番号が離れた気体の元素を利用す ることが好ましい。本研究で用いたイオンを表 1にまとめた。22価のイオンである¹⁴⁶Sm²²⁺に は⁸⁰Kr¹²⁺がパイロットビームとして利用可能で あり、⁸⁰Kr¹²⁺を使った加速器の立ち上げから始 まった。ビームラインを図3に示す。引き出さ れたイオンはマグネットにより目的とする質量 電荷比 m/q を持つイオンが選別され、プリバン チャーとバンチャーでバンチ圧縮された後に超 伝導ライナックにより22価のイオンは1 GeV にまで加速される。

一方、¹⁴⁶Sm-AMS では¹⁴⁶Sm/Sm 比が既知の 標準試料が入手不可能である。例えば³⁶Cl-AMS では³⁶Cl/³⁵Cl 比が既知の標準が販売されてお り、³⁶Cl 計数率 /³⁵Cl 電流値比を標準と比較する ことで試料中の目的核種の割合を測定するが、

表1¹⁴⁶Sm-AMS で利用したイオン一覧

イオン	利用目的
$^{80}{ m Kr^{12+}}$	¹⁴⁶ Sm ²²⁺ のパイロットビーム(加速器調整用)
$^{146}Sm^{22+}$	¹⁴⁶ Sm ^{22+/147} Sm ²²⁺ 比測定の目的イオン
$^{146}Nd^{22+}$	¹⁴⁶ Sm ²²⁺ の同重イオン
$^{147}Sm^{22+}$	¹⁴⁶ Sm ^{22+/147} Sm ²²⁺ 比測定の目的イオン
$^{152}Sm^{23+}$	¹⁴⁶ Sm ²²⁺ のパイロットビーム(¹⁴⁶ Sm ^{22+/147} Sm ²²⁺ 輸送効率測定用)





¹⁴⁶Sm-AMS の場合は標準との相対比較が不可能 である(Sasa et al., 2010)。また目的イオンを 磁場で選別しているので、同じm/qを持つイオ ンしか加速されない。また加速器は 80 Kr¹²⁺で 調整されているのでm/qが 80 Kr¹²⁺から大きく 離れるとライナックでのビームの通りが悪くな る。本研究では、 146 Sm²²⁺、 147 Sm²²⁺、 152 Sm²³⁺ を順次切り替え、ビームラインの様々な場所で ¹⁴⁷Sm²²⁺/¹⁵²Sm²³⁺比に変化がないことを確認し た上で、 146 Sm²²⁺をPGAC-IC でイオンカウンテ ィング、 147 Sm²²⁺はファラデーカップで測定を 行った。

特に¹⁴⁶Sm²²⁺の測定については同重体の¹⁴⁶Nd との分離が重要な鍵となる。¹⁴⁶Sm²²⁺と¹⁴⁶Nd²²⁺ の分光はGFMを用いて行った。GFM中では、 荷電粒子がガス中を通過するとイオンはガスと の衝突により一定の平均電荷を取り、阻止能に 従って減速しながら、磁場で軌道が曲げられる (図 4)。そして最終的にPGAC で位置の測定、 その後方のIC で dE/dx 測定を行い、¹⁴⁶Sm と ¹⁴⁶Nd の分光を行った(図 5)。¹⁴⁶Sm と¹⁴⁶Nd は 原子番号が2つ離れていることが幸いし、際ど い分光が成功したのだろう。先に述べた GFM 手前のファラデーカップによる¹⁴⁷Sm²²⁺の測定 とGFM 後方の PGAC-IC による¹⁴⁶Sm²²⁺の測定 から¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 原子数比が得られた(Kinoshita et al., 2007; Kinoshita et al., 2008; Kinoshita et al., (in press))。

その結果、放射能比とこれまで採用され た半減期から予想される¹⁴⁶Sm/¹⁴⁷Sm 原子数 比よりも測定値が 30% ほど小さくなった。 ¹⁵²Sm²³⁺/¹⁴⁷Sm²²⁺比よりビームの輸送効率を比 べても致命的な問題は見られなかった。ファラ デーカップの位置にSi検出器を置いてエネル ギー測定による¹⁴⁷Sm²²⁺ビームに含まれる不純



図4 ガス充填電磁石 (GFM)の模式図



図5 (n,2n) 反応で製造した¹⁴⁶Sm 試料の検出位置 -dE₃ スペクトル(上)と未照射の¹⁴⁶Sm を含ま ない天然 Sm 未照射試料(下)

物と¹⁴⁶Sm²²⁺/¹⁴⁶Nd²²⁺のフラットトップのチェ ック、測定器のデットタイム、GFMの入り口 から検出器までの輸送効率のチェックを行って も、何一つ問題は見られなかった。¹⁴⁷Sm²²⁺を RFスイーパーで定量的にビーム量を落として、 ¹⁴⁶Sm²²⁺と同様に PGAC-IC でイオンカウンティ ングを行っても、同じ結果が得られた。

アルゴンヌでの AMS は1週間の試料調製と 7-10日間のビームタイムで計3週間弱の実験で、 ビームタイム中はシフトを組んで24時間体制で 対応するが、実際は、予定通りに順調に進んだ ことがなく、前の週の実験中の火事によるビー ムタイムの短縮、加速器の表面汚染による停止 と液体へリウムの不足によるオーバーヒート、 ECR イオン源への Sm サンプルの挿入位置が深

すぎて試料がメルトダウンなど、いつ測定が強 制終了することになってもおかしくないトラブ ルばかりであった。また、初めて¹⁴⁶Smの検出 に成功した瞬間は、著者を含め測定室内のすべ ての研究者が大騒ぎし、今となるとまるで新粒 子を発見したかのような光景だった。アメリカ・ アルゴンヌ国立研究所、アメリカ・ノートルダ ム大学、イスラエル・ヘブライ大学などからの 約20名の協力者とAMSを行ったが、協力者の すべては ICR イオン源と加速器の開発者、およ び原子核物理の研究者で、化学に知見のある人 は誰一人としていない。その一方で、アメリカ で AMS を行っているにも関わらず、アメリカ 人は少ない。実験中はヘブライ語、ドイツ語、 スペイン語、中国語とあらゆる言語が飛び交っ ている。はじめの2回だけは日本人がいたが、 基本的に日本人は著者の木下一人。会話のスト レスはなくなりつつあったが、はじめはゆっく りと話してもらっても聞き返しても理解できな かった。これまで習ってきた英語、日本人の乱 れた発音、輪読して和訳するだけの研究室ゼミ、 自分の会話力の低さ、すべてを恨んだ。また、 北京大学と書かれた T シャツを着ていると中国 語で話しかけられ、「ニーハオ」しか理解できな った。ビームタイム直前の週末はシカゴで日本 料理を食べることもあった。前菜としてわさび を食べながらビールを飲む、味噌汁はレンゲで 飲む、味は日本と同じであったがカルチャーシ ョックも受けた。

無事すべての実験が終わった後も、測定デー タはアルゴンヌ、AMS実験ノートはイスラエ ル、放射能測定のデータは日本とあちこちにデ ータが分散している。メールでのやりとりで解 析をしていたが、時間がかかりラチがあかな い。データの見直しと論文の方向性を議論する ためにイスラエル・ヘブライ大学にも10日間ほ ど滞在した。¹⁴⁶Smの半減期は年代測定にも使 われているので、値が変わることは物差しの長 さが変わることに匹敵し、年代学への影響が大 きい。すべてのデータの再チェックを行ったが やはり結果は同じで、我々は¹⁴⁶Smの半減期は 現在使われている値よりも34%短い値の68±7 Myと結論づけ、誤差はそれぞれの測定より得 られる標準偏差によった(図6)(Kinoshita et al., 2012)。

5. 新たな¹⁴⁶Sm 半減期と¹⁴²Nd-¹⁴⁶Sm 年代

¹⁴⁶Smの半減期が103±5 Myから68±7 My になると、太陽系誕生時(4.567 Ga)の¹⁴⁶Sm 存在量が変わり、それと共に¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd年代 も考え直さなければならない。¹⁴⁷Sm-¹⁴³Nd年代 と¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd年代が同一試料より得られ、信 頼性の高いデータが、Boyetらにより選ばれて いる。個々の試料の¹⁴⁷Sm-¹⁴³Nd年代を横軸に、 ¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm比を縦軸にプロットし、 $y=a \times e^{\lambda t}$ でフィッティングすることにより、図7に示す ¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm比の時間変化が得られる。太陽系誕 生は4.567 Gaであり、このときの¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm 比は2 σ の誤差を含めると0.0094 ⁺⁰⁰⁰¹⁸ られる。その一方で、図7においてこれらのデ ータと半減期を仮定した関数(点線・破線、実 線で示した)との一致は地球化学的手法によ る¹⁴⁶Sm 半減期の妥当性の検証となる。しか し¹⁴⁶Sm の半減期を 68 My と 103 My とした場 合は共に許容範囲内で一致しているように見ら れ、この検証で明確な良否の鮮明な判断はでき ない。

その一方で、¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd 年代では凝縮が始ま った太陽系誕生(4.567 Ga)から目的物が固化 するまでの時間を見積もることができ、惑星誕 生の年代がその一例である。¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd 年代は ¹⁴⁶Sm の寿命 τ を用いて、以下の式により見積 もることができる。

$$\left(\frac{{}^{146}\text{Sm}}{{}^{144}\text{Sm}}\right)_0 = \left(\frac{{}^{146}\text{Sm}}{{}^{144}\text{Sm}}\right)_{\text{ISM}} \exp(-\Delta/\tau)$$

星間物質 (ISM) 中の ¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm 比が時間 Λ の 間に減衰することにより分化後の (¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm)₀ が得られ、 Λ は ¹⁴⁶Sm の半減期に依存する。こ れまで地球と月の岩石と火星由来の隕石より ¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd 年代が知られている。地球、月、火



図6 個々の試料における¹⁴⁶Sm^{/147}Sm 原子数比および対応する半減期の値。いずれも従来の半減期の場合に対 する相対値で示した。(γ,n)、(n,2n) -¹⁴⁷Sm charge、(p,2nε) は¹⁴⁶Sm²²⁺ と¹⁴⁷Sm²²⁺ はそれぞれ PGAC-IC とファラデーカップで測定し、(n,2n) -¹⁴⁷Sm counts は¹⁴⁶Sm²²⁺ と¹⁴⁷Sm²²⁺ は共に PGAC-IC で測定した。 なお PGAC-IC での¹⁴⁷Sm²²⁺ の測定にあたり、RF スイーパーを用いて¹⁴⁷Sm²²⁺ ビームを定量的に落とした。

天体	太陽系形成からの時間(My) (T ₁₄₆ =103 My)	太陽系形成からの時間(My) (T ₁₄₆ =68 My)
地球	≤30	変化なし
	170	120
	287^{+81}_{-53}	205^{+54}_{-35}
月	242±22	170±15
	250^{+38}_{-30}	170_{-20}^{+25}
火星	8-25	~4
	~110	~90

表 2¹⁴⁶Sm の半減期 103 My で見積もられた¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd 年代と 68 My で再計算した年代

星の年代に関して¹⁴⁶Smの半減期を103 Myとした場合と、本研究により得られた68 Myで再計算した年代を表2にまとめた。¹⁴⁶Smの半減期に68 Myを用いて175⁺²⁵-20 Maが得られている試料については、Pb-Pb法により208.8±2.4

Ma、¹⁴⁷Sm-¹⁴³Nd 法により 201 ± 11 Ma が得られ ている。¹⁴⁶Sm の半減期に 103 My を用いると Pb-Pb 年代と¹⁴⁷Sm-¹⁴³Nd 年代と誤差内で一致し なかったものが、68 My を用いると誤差内で一 致するようになり、¹⁴⁶Sm の半減期も真の値に



図7 いくつかの隕石試料について、¹⁴⁷Sm-¹⁴³Nd 年代に対して得られている¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm 比(プロット)と、 ¹⁴⁶Sm の半減期を仮定したときの計算値。(実線:68 My、破線・点線:103 My)。太陽系誕生時の ¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm 初期値が垂直な太破線との交点から読み取れる。

近づいたものと考えられる。その一方で、ほと んどの年代のデータについて¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd 年代が 数千万年のずれが生じ、惑星進化の歴史を再構 築しなければならない非常にインパクトのある 成果になった。

6. おわりに

この研究は化学分離分析、天体核物理、原子 核物理、宇宙・地球化学、加速器物理における 多岐にわたる知見がなければ完成しなかった国 際共同研究である。日本国内の施設でも RI 製 造と放射能測定は可能であるが、ECR イオン 源、重イオンを1GeVにまで加速できる加速器、 GFM、PGACとICが備わった加速器施設は世 界でアルゴンヌ国立研究所の ATLAS と GSI の UNILAC しか考えられない。日本は世界的にも 加速器や ICP-MS などの測定機器に恵まれてお り、特に、放射化学は加速器施設や測定器を一 段と利用しやすい環境にいる。アルゴンヌの実 験では、測定の制御には Root というシステムを 使い、C++ で記述された自作のプログラムで制 御するので、実験のみならず測定系統の制御に 関しても研究者の助けが必要であった。これら を利用する分野を越えたつながりがあったから こそ完成した研究で、約 40 名の¹⁴⁶Sm 実験関係 者には深く謝意を示したい。2011年3月の東日 本大震災と福島原発事故により、放射性同位体 については暗い話題ばかりであるが、この話題 が幾分かの明るい兆しになることを願っている。

代表的な関連論文

- Kikunaga, Y. Kasamatsu, K. Takamiya, T. Ohtsuki, H. Yuki, A. Yokoyama, T. Nakanishi, T. Mitsugashira, App. Rad. Isot. 67, 539 (2009).
- [2] Kinoshita, T. Hashimoto, T. Nakanishi, A. Yokoyama, H. Amakawa, T. Mitsugashira,

T. Ohtsuki, N. Takahashi, I. Ahmad, J. P. Greene, D. J. Henderson, C. L. Jiang, M. Notani, R. C. Pardo, N. Patel, K. E. Rehm, R. Scott, R. Vondrasek, L Jisonna, P. Collon, D. Robertson, C. Schmitt, X. D. Tang, Y. Kashiv, M. Paul, J. Nucl. Radiochem. Sci. 8, 109 (2007).

- [3] Kinoshita, T. Hashimoto, T. Nakanishi, A. Yokoyama, H. Amakawa, T. Mitsugashira, T. Ohtsuki, N. Takahashi, I. Ahmad, J. P. Greene, D. J. Henderson, C. L. Jiang, M. Notani, R. C. Pardo, N. Patel, K. E. Rehm, R. Scott, R. Vondrasek, L. Jisonna, P. Collon, D. Robertson, C. Schmitt, X. D. Tang, Y. Kashiv, H. Nassar, M. Paul, J. Phys. G 35, 014033 (2008).
- [4] Kinoshita, M. Paul, Y. Kashiv, P. Collon, C. M. Deibel, B. DiGiovine, J. P. Greene, D. J. Henderson, C. L. Jiang, S. T. Marley, T. Nakanishi, R. C. Pardo, K. E. Rehm. D. Robertson, R. Scott, X. D. Tang, R. Vondrasek, A. Yokoyama, Science 335, 1614 (2012).
- [5] Kinoshita, M. Paul, M. Alcorta, M. Bowers, P. Collon, C.M. Deibel, B. DiGiovine, S. Goriely, J.P. Greene, D.J. Henderson, C.L. Jiang, Y. Kashiv, B.P. Kay, H.Y. Lee, S.T. Marley, T. Nakanishi, R.C. Pardo, N. Patel, K.E. Rehm, D. Robertson, R. Scott, C. Schmitt, X.D. Tang, C. Ugalde, R. Vondrasek, Nucl. Instrum. Meth. B (in press)
- [6] Sasa, T. Takahashi, Y. Tosaki, Y. Matsushi,
- [7] Sueki, M. Tamari, T. Amano, T. Oki, S. Mihara, Y. Yamato, Y. Nagashima, K. Bessho, N. Kinoshita, H. Matsumura, Nucl. Instrum. Meth. B 268, 871 (2010).

解説

陽子過剰原子核で観測された様式の核分裂

西尾勝久(日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター・ 重原子核反応フロンティア研究グループ)

1. はじめに

Hahn と Strassmann によって核分裂が発見さ れて以来 [1]、70年以上にわたってこのエキゾ チックな原子核の崩壊過程が調べられてきた。 理論では、発見されてすぐに Bhor と Wheeler が液滴モデルで原子核の核分裂を記述し[2]、 Meitner と Frisch は質量の差から大きなエネル ギーが解放されることを予測した[3]。また、 Strutinsky は [4]、原子核を構成する中性子と 陽子のエネルギー準位構造に由来する結合エネ ルギーの補正を提案し、この結果、核分裂障壁 は2重の構造を示すことを示唆した。これは、 原子核の形状異性体 [5] や、しきい値より低い エネルギー領域に現れる核分裂断面積の共鳴構 造[6]を説明するなど、画期的な概念であった。 また、変形した原子核における核子の微視的な 構造を理解するために、核分裂の観測が有用で あることを示している。

アクチノイド原子核の核分裂を考えると、原 子核を構成する中性子の数が比較的多いことか ら、生成される核分裂片は中性子過剰な原子核 であり、このため、例えば2重魔法数核¹³²Sn の近傍核が生成される。¹³²Snの閉殻性は、核 分裂のしかたに大きく影響を与えていることは 数々の実験事実から明らかになっている。液滴 モデルでは、サドル点が質量対称な形状位置に 存在することから、質量対称に核分裂すると予 測するが、実際には非対称に核分裂する。説明 の一つとして、閉殻性の強い核分裂片を優先的 に生成するように分裂の仕方が決まる、という モデルがある。実際のアクチノイド原子核の核 分裂では、核分裂収率のピークは132からずれ ているが、これは相手の原子核の結合エネルギ ーと、切断直後にとりうる原子核の変形度を考 慮することでほぼ説明できる。いずれにしろ、 切断点でのエネルギー極小値を計算すれば、質 量非対称度がほぼ予測でき、これには核分裂片 の殻補正エネルギーが影響している、というの が主たる考え方である。

生成される原子核の閉殻性が核分裂の仕方に 影響を与える、という考え方はすべての原子核 に適用できるか?これを調べるためには、¹³²Sn が関与せず、これと異なる閉殻の原子核が関与 する核分裂を調べるのが手である。その結果を 紹介するのが本解説の目的である。

我々は、¹³²Sn が関与しない核分裂として、陽 子数が過剰(=中性子数が欠損)な原子核であ る水銀180(¹⁸⁰Hg)に着目した。この原子核の 陽子数 Z と N の比は、Z/N = 80/100 =0.800 で あり、存在比の多い水銀の安定同位体に比べて 約20個も中性子が少ない。陽子数が過剰なこ とは 238 Uの Z/N = 92/146=0.630 と比べると明 らかである。ここで、¹⁸⁰Hgと²³⁸Uの核分裂で 生成される核分裂片の領域を図1に示す。これ は、原子核の殻補正エネルギーを示したもので ある。¹⁸⁰Hgや²³⁸Uが核分裂すると、これら原 子核と原点を結ぶ破線に近い領域の核分裂片が 生成される。²³⁸Uの核分裂片では、¹³²Sn に接近 した原子核があり、おもに楕円で示す領域の収 率が多い。¹⁸⁰Hgでは、¹³²Snは関与せず、むし ろ中性子閉殻である⁹⁰Zr(Z=40.N=50)が重要 になると考えられる。この場合、⁹⁰Zr + ⁹⁰Zr の ように質量対称な収率の分布になる、と考える のがふつうである。簡単な計算を行ったのが図 2である。これは、2つの接触した原子核が持 つエネルギーを、質量非対称度に対してプロッ トしたもので、¹⁸⁰Hg、²³⁸U、²⁵⁸Fm について示 してある。破線は液滴モデルによるもの、実線 は核分裂片の殻補正エネルギーを施した結果で ある。核分裂を考える際には、BG (BusinaroGallone) ポイント(液滴モデルのエネルギー 最大値)より質量対称側にあり、エネルギーの 極小値が望まれる分裂の仕方である。²³⁸Uでは 非対称に分裂することはこの簡単な計算からも 推測できる。²⁵⁸Fmは、質量対称な場所に深い エネルギー極小値を示しているが、実際に実験 でもこの原子核はシャープな質量対称核分裂を 示すことがわかっている。¹⁸⁰Hgは、⁹⁰Zr+⁹⁰Zr のように質量対称に分裂すると期待できる。実 際に実験をする前は、¹⁸⁰Hgはこのように質量 対称に分裂するだろうと、ほとんどの実験参加 者は考えていた。この場合、これまでの核分裂 の概念を広く適用できることが示されるはずで あった。どの程度シャープな分布が現れるか、 も関心事であった。



図1 原子核の殻補正エネルギー

陽子過剰原子核の低励起状態からの核分裂を 観測するまでには、我々は1つの大きなブレー クスルーを踏んでいた。それは、陽子過剰な鉛 領域原子核において β^+ /EC崩壊遅延核分裂の決 定的な証拠をつかんだことである。図3に示す ように、¹⁸⁰Tlが β^+ /ECすると、励起状態の娘 核¹⁸⁰Hgが生成される。この場合のQ値(Q_{EC}) は10.4MeVであり、この値は¹⁸⁰Hgがとりうる 最大の励起エネルギーである。一方、¹⁸⁰Hgの 核分裂障壁の高さは9.81MeVである。したが って、高い状態に励起された場合、核分裂障壁 を超えるかトンネリングによって核分裂が起こ りうる。これを利用すれば、低励起状態からの ¹⁸⁰Hgの核分裂特性を測定できると考えた。 β^+ /



EC 崩壊遅延核分裂は、アクチノイド原子核に おいて 10 核種ほど知られている。図4に観測 された核種を示す。この図は、 β^+ /EC 崩壊した 数に対し、いくつの核分裂が観測されるかを確 率 (P_{ECDF}) で示したものである。ただし、 Q_{EC} と B_f との差を横軸にとってある。Q 値が B_f と





図4 β⁺/EC 崩壊遅延核分裂の原理

等しい場合であっても P_{ECDF} は 1.0×10^4 (0.01%) の割合でしか起こらない、極めて稀なイベント である。 Q_{EC} に対して B_f が1MeV 低くなると、 β^+/EC 崩壊遅延核分裂を観測する確率はひと桁 小さくなる。

陽子過剰鉛領域原子核における β⁺/EC 崩壊 遅延核分裂の発見

2004 年から、筆者らはドイツ・ダルムシュタ ットにある重イオン研究所(GSI)の超重元素 合成研究グループ(SHIP グループ)と協力し てきた。これは、2004 年 11 月から 1 年間、筆 者が原子力留学する機会を得たことから始ま る。当時、GSI は²³⁸Uを標的とする反応で元素 合成を開始しており、⁴⁸Ca + ²³⁸U が当時の目標 であった。これを機に、筆者らは³⁰Si,³⁴S + ²³⁸U による合成実験を進めており、留学の後も準備 と実験のため GSI で過ごすことがあった。

そのころ、当時、ルーバン・カトリック大 学の Andreyev らは、陽子過剰な鉛領域原子核

の構造研究をしており、超元素合成で使うのと 同じセットアップ、すなわち SHIP と呼ばれる 反跳生成核分離装置を使った実験を行うために GSI に来所していた。Andrevev らは、蒸発残留 核として陽子過剰な鉛原子核を合成し、これら の α 崩壊・γ 崩壊を観測することで異なる変形 形状に現れる準安定状態を調べるなどの研究を 行っていた。核図表を見てもわかるように、こ の領域の原子核の基底状態からの崩壊チャンネ ルは、 β^+ /EC 崩壊、と α 崩壊が主である。2007 年当時、Andreyevらは⁵⁶Fe + ¹⁴¹Pr の核融合・ 蒸発反応で¹⁹⁴At(3n 蒸発チャンネル)を合成 していた。スロバキア出身の共同研究者がデー タ解析をしていたところ、わずかであるが大き なパルスが観測された。その頻度は、86,000の α崩壊事象を観測した中で66個程度であった。 GSIのUNILAC加速器からのビーム構造は、 5msのBeam-ONと15msのBeam-OFFが繰 り返されるバンチ構造を有している。これら大 きなパルス波高信号は、Bean-OFF でも観測さ れたことから、ビームを起源とするバックグラ ンド散乱粒子ではなく、原子核崩壊が関与した ことは明らかであった。しかし、この領域の原 子核が自発核分裂することはない。疑問を問わ れた筆者は、すぐに答えを思いついた。これこ そ β⁺/EC 崩壊遅延核分裂であり、陽子過剰な鉛 領域の原子核としては決定的な証拠となるもの で、重要な発見であると伝えた。すぐに答えら れたのは、この時、候補となりうる核種を簡単 な計算から導いていたためである。質問を受け てすぐ、自分のノートパソコンから打ち出した 絵が図5である(このファイルがセーブされた のは2004年1月27日となっている。)この図は、 β^+ /EC 崩壊のQ値と、娘核の核分裂障壁の高さ を比べたものである。Q 値のギザギザの構造は、 偶奇効果によるものである。奇 - 奇核の値が大 きいため、®+/EC 崩壊遅延核分裂を観測するチ ャンスは大きい。実際に、アクチノイド原子核 で観測されている EC 崩壊遅延核分裂は奇 - 奇 核に限られる。図5の点線は液滴モデルによる 核分裂障壁の高さ(B_f)を表し、破線と一転鎖 線は、基底状態での殻補正エネルギーを補正し て得られる核分裂障壁の高さである。Q 値と B_f が近いと β^+ /EC 崩壊遅延核分裂が観測できるため、¹⁸⁰Tl、^{186,188}Bi, ^{194,196}At, ^{200,202}Fr, ²⁰⁸Ac が候補 と考えていた。SHIP で生成された核種 ¹⁹⁶At は、 このうちの一つであった。また、この領域にお ける β^+ /EC 崩壊遅延核分裂について、2004 年 6 月 15 ~ 17 日に理研で行われた RIBF 研究会に おいて「不安定重元素の核分裂」とするタイト ルで発表していた。偶然の発見に出くわしたこ とは、いまでも印象に残っている。なお、現在 まで我々は、上にあげた同位体のうち ²⁰⁸Ac を 除くすべての核種の β^+ /EC 崩壊遅延核分裂事象 を確認している。



図5 β^+ /EC 崩壊のQ値と、核分裂障壁の高さの関係

なお、この領域で β^+ /EC崩壊遅延核分裂を 最初に実験的に指摘したのはLazarevである [7]。ここでは、¹⁸⁰Tlの β^+ /EC崩壊につづく核 分裂の割合が報告されたが、飛跡検出器が使わ れたために核分裂イベントの同定に不確かさが ある。一方、本研究はシリコン検出器を用い、 パルス信号として運動エネルギーをとらえた 点で信頼性が高い。また、Lazarevが指摘した 核種そのものも実験上は、不確かさがある。こ れに対し、SHIP における蒸発残留核の励起関 数の測定や、後に説明する欧州原子核研究機構 (CERN)の不安定核実験施設(ISOLDE)での 実験は、対象とする核種の同定を決定的なもの とした。

SHIP における β^+ /EC 崩壊遅延核分裂の発見 は、先に述べたとおり、陽子過剰原子核の核分 裂、すなわち新しい領域の核分裂の開拓につな がった。幸運であったのは、この SHIP の実験 責任者であった Andreyev がルーバン・カトリ ック大学の Visiting Professor であったこと、 ルーバン・カトリック大学原子核研究所(IKS) は、CERN – ISOLDE と長く研究協力を行って おり、協力体制がすでに整っていた点にある。 このことから、¹⁸⁰Tl ビームを引き出し、実際に 2つの核分裂片を同時計測して質量数分布を決 定するプログラムがスムースに進んだ。実際の ISOLDE での測定は 2008 年からスタートした。

3. CERN-ISOLDE における¹⁸⁰Hgの核分裂実験

ISOLDE では、1.4GeV の陽子を²³⁸U や²³²Th のカーバイド標的に照射し(50g/cm²)、スパレ ーション、フラグメンテーション、核分裂など で 60 元素 600 核種におよぶ原子核を生成し、特 定の同位体を引き出して原子核や物性研究に利 用している。施設の概要を図6に示す。図の GSP Target と HRS Target と示したように、2 つのターゲットラインを設けてある。ターゲッ トは、イオン源を兼ねたものであり、ここから + 1 価のイオンを最大 60kV の電圧で引きだし、 それぞれ General Purpose Separator (GPS) と High Resolution Separator (HRS) と呼ばれる磁 場質量分離(ISOL)を通じて特定の質量の原子 核を引き出す。特に、元素を同定するため、レ ーザーをイオン源に入射し、特定の元素だけを イオン化することで同位体分離を成功させてい る。

¹⁸⁰Tlのβ⁺/EC崩壊遅延核分裂の実験は、図6 に示したコースで行った。セットアップの模式 図を図7に示す。¹⁸⁰Tlビームは、ビームライン 下流の実験装置に毎秒150個の割合で運ばれて きた[8]。これらを20µg/cm²のカーボン箔で



図6 CERN-ISOLDE の見取り図

止めた。¹⁸⁰Tlの α 崩壊や、 β^+ /EC崩壊遅延核分 裂で生成される核分裂片をシリコン検出器(厚 さ 300 μ g/cm²)で検出し、エネルギー分析を行 った。ビーム入射側のシリコン検出器として、 穴あき型を使用した。2つの核分裂片を検出し、 それぞれの運動エネルギーを決定することで、 運動学的に質量分割を決定した。カーボン箔は、 回転円盤の周囲上に設置しており、特定の時間 間隔で回転させて計測した。また、図7に示す ように、真空容器の外側には MINIBALL と呼 ばれるセグメント化された Ge 検出器を設置し、 核分裂に伴って放出される X 線や y 線を測定し た。

図8(上)のスペクトルは、 α 粒子のエネル ギースペクトルを示す。これを見ると、¹⁸⁰Tl 自身の α 崩壊や娘核¹⁷⁶Auが観測されている。 ¹⁸⁰Tl は、94%が β^+ /EC 崩壊することがわかっ たが、実際にこの娘核¹⁸⁰Hg や孫核¹⁷⁶Pt の α 崩壊 壊が観測されている。図では¹⁸⁰Tl の α 崩壊を 1.4×10⁶ 観測した。レーザーを OFF にするとこ 計測される α 粒子の頻度はファクター 70 で小 さくなった。また、¹⁸⁰Hg は、直接飛んでこない。 これは、表面イオン化が起こりえないこと、レ ーザーが Tl だけを励起するように設定したため である。詳細は省略するが、高純度のビームを 得ることで原子核の崩壊様式を高い精度で決定 することができる。¹⁸⁰Tlの半減期も1.09(1)sと より高い精度の値を得た。

図8(下)のスペクトルは、コインシデンス した2つの核分裂片の運動エネルギーをプロッ トしたものである。346個のコインシデンスイ ベントを得た。シングルスとしてのイベント数 は1,111であった。

核分裂片を検出した事象において、75%が後 方の Ge 検出器にγ線信号を与えた。また、Hg の K x線と核分裂片のコインシデンスに成功し



図7 イトカワ微粒子 RA-QD02-0049 を含むいくつか の地球外物質と地球物質中の鉄とスカンジウム の含有値の比較



図8 (上) アルファ線スペクトル、(下) 2つの核分 裂片のエネルギー相関

た。これは、¹⁸⁰Tlの β^+ /EC崩壊遅延核分裂の 証拠となる。ちなみに、アクチノイド原子核の EC崩壊遅延核分裂において、このような x線 と核分裂片とのコインシデンスが確認されてい るものは、²²⁸Npだけである。図8を見ると、運 動エネルギーが大・小に分かれた領域にイベン トが集中している。ここから¹⁸⁰Hgが質量非対 称に分裂することが分かる。¹⁸⁰Tlの β^+ /EC崩 壊イベントと、核分裂したものの数から P_{ECDF} を決定し、3.6 (7) × 10³%を得た。Lazarev は、 3×10^{5 ± 1}% とかなり小さい値を報告しているが [5]、実験の不確定さに問題があったと考えられ る。

運動学的に核分裂片の質量数と全運動エネル ギーを決定し、その分布を示したのが図9であ る。図から、¹⁸⁰Hgは質量数100(1)と80(1) に非対称に分裂する収率が多かった。核分裂 片のZ/N比が¹⁸⁰Hgの値と等しいと考えれば、 ⁸⁰Krと¹⁰⁰Ruが最も生成されたことになる。当 初考えたような⁹⁰Zr + ⁹⁰Zrに分かれる核分裂 は重要ではなかった。核分裂片の閉殻性が質量 分割に影響を与えないことから、従来のアクチ ノイド原子核と異なる新しい様式の核分裂とな った。この結果は、"New Type of Asymmetric Fission in Proton-rich Nuclei"というタイトル で論文にまとめた [8]。



 図 9 ¹⁸⁰Hgの核分裂片質量数と全運動エネルギーに 対するイベント数

全運動エネルギー (*TKE*)の平均値は 134.6 (7) MeV であった。¹⁸⁰Hgの核分裂で ⁸⁰Kr と ¹⁰⁰Ru に分かれた場合に解放されるエネルギーは 157.8MeV である。全運動エネルギーとの間に 現れる差の 23.2MeV は、核分裂した直後の 2つ の核分裂片の変形エネルギーに相当する。この エネルギーは、核分裂片が加速して離れた後に は、核分裂片の励起エネルギーとなる。核分裂 片の脱励起過程の最終段階において γ 線が放出 されることを考えると、核分裂に伴って放出さ れる即発中性子の数は高々 1 つであると考えら れる。これは、例えば n + ²³⁵U の核分裂の平均 即発中性子数 $v_{tot} = 2.43$ 個と比べるとかなり少 ない。

¹⁸⁰Hgの核分裂過程を、ポテンシャルエネルギー曲面から考察した。図10に結果を示す。これは、5つのパラメータを用いて原子核の形状を表して計算したものである[9]。図は、ポテンシャルエネルギーを原子核の質量非対称度と伸びの関数として示している。原子核が伸びた領域において、⁹⁰Zr原子核の閉殻性による深いエネルギーの谷が現れている。しかし、質量対称度を維持して変形しようとしても、高いポテンシャルが立っている。一方、サドル点は、質量非対称な場所 $A_L / A_H = 72/108$ に位置している(障壁の高さ=9.81 MeV)。 β^+ /EC 崩壊に伴っ

て与えられる最大の励起エネルギー 10.44MeV を考えると、質量非対称なサドルを通過しての み変形が進むと考えられる。その後、原子核の 質量非対称度が保持されたまま変形が進み、質 量対称な谷に落ち込むことなく原子核は切断す ると考えられる。図 10 から読める¹⁸⁰Hg 原子核 の特徴は、サドル点では質量非対称に、大きく 伸びた形状では質量対称にエネルギーの極小値 が現れていることである。これに対し、通常の アクチノイド原子核では、サドル点でも伸びた 先でも、エネルギー極小値は同じ質量非対称の 位置に現れる。



図 10 ¹⁸⁰Hg のポテンシャルエネルギー構造

5. まとめと今後の展開

¹⁸⁰Hgの低励起核分裂は質量非対称な核分裂 を示し、アクチノイド原子核の核分裂から得ら れる描像と異なる様式の核分裂と言える。¹⁸⁰Hg では、サドル点で質量非対称度が決まることが わかった。現在、²⁰²Frのβ⁺/EC崩壊遅延核分 裂(²⁰²Rnの核分裂)のプレリミナリーなデータ を取得しており、質量対称に近い分布を示して いる。この場合、¹⁰¹Tc が最も多く生成される核 種となる。¹⁸⁰Hgの結果と合わせると、陽子過 剰原子核でも特定の領域にだけ質量非対称な分 布を示す島(半島)が現れることが分かった。

一方、原子力機構・タンデム加速器施設で は、重イオン核融合反応によって高励起状態の 複合核を生成し、これらの核分裂を系統的に 測定するプログラムを進めている。励起エネル ギーがある程度高くなるので、殻効果が薄れる 点は避けられない。一方、ビーム種と標的原子 核の組み合わせにより、例えば多くの Hg 同位

体の核分裂を系統的に調べることができる。ま た、¹⁸⁰Hg^{*}の複合核を生成する場合であっても、 ³⁶Ar+¹⁴⁴Sm や ⁹⁰Zr+⁹⁰Zr など、様々な組み合わ せで生成が可能である。衝突エネルギーを調整 すれば複合核の励起エネルギーを揃えることが できるが、これら反応の違いは、原子核の回転 エネルギーの違いとなって現れる。そこで、回 転が陽子過剰原子核に与える影響を調べること ができる。³⁶Ar+¹⁴⁴Sm 等で得た興味深いデータ として、複合核の励起エネルギーが40MeVか ら 66MeV に増加しても、核分裂の質量非対称 度に変化はなかった。これも、通常のアクチノ イド原子核の核分裂と異なる。アクチノイド原 子核では、励起エネルギーを増大させると、質 量非対称から対称核分裂に遷移していくことが 分かっている。

¹⁸⁰Hgの実験研究成果は、多くの理論研究者 の興味を引くこととなり、さらなる理論検討が 進んでいる [10,11,12]。

今後の興味ある実験として、例えば核分裂片 から放出される即発中性子の数、3体核分裂と してのα粒子の放出などが挙げられる。個々の 核分裂片から放出される平均の中性子数は、分 離した直後の核分裂片の変形度を表しており、 大小核分裂片(⁸⁰Kr, ¹⁰⁰Ru)のどちらが変形し ているか、といった情報が得られる。3体核分 裂では、大きく伸びたネックの部分でα粒子が 形成される必要がある。通常のアクチノイド原 子核に比べ、陽子過剰核はこのα粒子を形成す る確率が高いと考えられ、3体核分裂の起こる 確率が大きくなると推測している。

参考文献

- [1] O. Hahn and F. Strassmann, Naturwissenschaften **27 1**, 11 (1939).
- [2] N. Bohr and J. A. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426 (1939).
- [3] L. Meitner and O. R. Frisch, Nature (London) 143, 239 (1939).
- [4] V.M. Strutinsky, Nucl. Phys. A95, 420, (1967).
- [5] S.M. Polikanov *et al.*, Zh. Eksp. Theor. Fiz.,
 42, 1464 (1962).

- [6] S. Bjornholm and J.E. Lynn, Rev. Mod. Phys. 52, 725 (1980).
- [7] Yu.A. Lazarev *et al.*, Europhys. Lett. 4, 893 (1987).
- [8] A.N. Andreyev, J. Elseviers, M. Huyse, P. Van Duppen, S. Antalic, A. Barzakh, N. Bree, T. E. Cocolios, V. F. Comas, J. Diriken, D. Fedorov, V. Fedosseev, S. Franchoo, J. A. Heredia, O. Ivanov, U. Koester, B.A. Marsh, K. Nishio, R. D. Page, N. Patronis, M. Seliverstov, I. Tsekhanovich, P. Van den Bergh, J. Van De Walle, M. Venhart, S. Vermote, M.

Veselsky, C. Wagemans, T. Ichikawa, A. Iwamoto, P. Moeller, and A. J. Sierk, Phys. Rev. Lett., **105**, 252502 (2010).

- [9] P. Moller *et al.*, Nature (London) , **409** , 785 (2001).
- [10] P. Moller, J. Randrup, and A. J. Sierk, Phys. Rev. C, 85, 024306 (2012).
- [11] M. Warda, A. Staszczak, and W. Nazarewicz, Phys. Rev. C, 86, 024601 (2012).
- [12] T. Ichikawa, A. Iwamoto, P. Moller, A.J. Sirk, arXiv:1203.2011v1

解説

TiCl4 ルイス酸による金属内包フラーレンの迅速分離法

秋山和彦 (首都大学東京)

1. はじめに

金属内包フラーレン (Endohedral Metallofullerene: EMF) は炭素原子の五員環及び六員 環からなるケージ構造の内部に金属原子または クラスター等を内包した非常に興味深い構造を 持った分子である。金属内包フラーレンの最も 注目すべき性質の一つは内包金属原子からフラ ーレンケージへの電荷移動(チャージトランス ファー)であろう。この性質によって金属内包 フラーレンのバンドギャップは空フラーレンに 比べて大きく減少され、この様な興味深い特性 を利用して新規な分子スイッチングデバイスと しての応用が期待されている。しかしながら、 現在まで金属内包フラーレンの応用研究は完全 になされてきたとは言えない。この理由の一つ は、金属内包フラーレンの生成量が非常に少な く、また分離・精製に非常に時間のかかる多段 階の高速液体クロマトグラフィー (HPLC) を 用いる必要があるところにある。金属内包フラ ーレンの合成は一般的にアーク放電法を用いて 行われる [1]。アーク放電法ではグラファイト の陰極と金属酸化物を混合した炭素電極を陽極 とし、金属内包フラーレンを含むススを精製す る。このスス中にはC60等のフラーレン成分は 約10%しか含まれておらず、さらにこの有機溶 媒で抽出されたフラーレン成分のうち1-10% 程 度しか金属内包フラーレンは存在していない。 すなわち、有機溶媒に抽出された大部分のC₆₀ やC₇₀等の空フラーレンから金属内包フラーレ ンを分離・精製する事となるため、この作業は 相当骨の折れるものとなる。この様な理由から、 数 mg 程度の精製された金属内包フラーレンし か得ることができず、過去20年に渡って金属内 包フラーレンの研究は構造研究や電子 / 磁気特 性研究などの基礎的なものしか行われてこず、 水溶性 Gd@C₈₂の MRI 造影剤など [2] 金属内 包フラーレンを用いた実際の応用や商品化を阻 害してきた。

この様な困難を克服するため、金属内包フラ ーレンの分離・精製に関するいくつかの異なる 技術が提案されてきた。これらの技術の中で最 も有用なものの一つは金属内包フラーレンの酸 化還元特性を組み合わせたものである。筑波大 の赤阪らは金属内包フラーレンの抽出溶媒とし て N.N- ジメチルホルムアミド(DMF)を用い て選択的に金属内包フラーレンを抽出、続けて 1段階のHPLC分離でこれを精製する方法を報 告している [3]。この手法では、金属内包フラ ーレンは DMF による抽出過程において還元さ れ、ジクロロ酢酸による化学的酸化を施して他 の空フラーレンから分離を行い、最終的に1段 階の HPLC 分離により精製している。また近年、 Raebiger と Bolsker らは AlCl₃のような強力な 酸化剤を用いて効果的に Gd 金属内包フラーレ ンの分離が出来ることを報告している[4]。さ らに、Stevenson らは Sc₃N 等の金属窒化物を 内包したフラーレン (Metal Nitrate Fullerene: $MNF) や Sc_4O_2 などの金属酸素クラスターを$ 内包したフラーレン (Oxometallic fullerene: OMF) について無水 AlCl₃ などのルイス酸に よって選択的に酸化され、金属内包フラーレン -AlCl₃ 錯体を形成する事を報告している [5]。 この手法では形成した錯体を水で洗浄する事で 加水分解による AlCl₃ 除去をおこない、その後 MNF や OMF を 1 段階の HPLC 展開によって 分離するものである。この Sc_3N や Sc_4O_2 を内 包した金属内包フラーレンはその多くが C₆₀と 同様の非常に高い対称性を持った Ih 対称の C80 ケージを持つ。このため、 $Sc_3N@C_{80}$ や $Sc_4O_2@$ C₈₀は従来型の Mm@C_{2n} (m ≥ 1, 2n ≥ 72) や $M_m C_2 @ C_{2n}$ (m ≥ 2 , 2n ≥ 72) に比べ非常に大 きな HOMO-LUMO ギャップを持つことから反

応性が異なる可能性があり、従来型の金属内包 フラーレンに対して同様の分離法が適用できる かどうかは明らかとなってはいなかった。

我々は、¹⁴⁰Laをトレーサとして AlCl₃等の金 属ハライドを用いた金属内包フラーレンの分離 について定量的に調べ、新たにルイス酸として 作用する金属ハライド:TiCl₄が非常に効率的に 金属内包フラーレンを分離する事を見出した。

2. 分離操作

ここで、我々が実際に行った分離操作を説明 する前に、一般的に用いられる金属内包フラー レンの合成・分離方法について述べる。金属内 包フラーレンの合成は一般的にアーク放電法が 用いられる。アーク放電法では陰極にグラファ イト、陽極には金属や金属酸化物を練りこんだ 炭素棒を用い、これらを He 雰囲気下のチェン バー内で正対させ直流電流を通ずる事で陰極か ら放出された電子が陽極を衝撃し、この表面を 気化させる。ここで気化した炭素原子や金属原 子は He によって冷却され凝集してゆき不定形 の炭素やグラファイト等が形成されいわゆるス スとしてチェンバーの壁面に付着する。フラー レンや金属内包フラーレンはこのスス中に含ま れており、これを回収し、1,2,4-トリクロロベ ンゼン (TCB) や二硫化炭素 (CS₂) といった 有機溶媒を用いて抽出する。この有機溶媒に 抽出されたフラーレン成分(フラーレン粗抽出 物) 中に C₆₀ がおよそ 80 ~ 90%、C₇₀ が約5~ 10%、その他炭素数76以上の高次フラーレン及 び金属内包フラーレンが1~10%程度含まれて いる。このフラーレン粗抽出物から金属内包フ ラーレンだけを取り出す作業には多段階のクロ マトグラフィーが用いられる。この多段階クロ マトグラフィーでは、一般的にフラーレン分取 用のパックドカラム(固定相)として市販され ている 5PBB (pentabromobenzyl 系固定相) や Buckyprep(pyrenyl系固定相)が用いられる。 さらに分離が必要な場合には Buckyclutcher (nitrobenzyl 系固定相:現在入手不可) や Buckyprep-M (phenothiazine 系固定相)を用 いて精製する。これらパックドカラムのサイズ は最大のもので 20 ømm × 250 mm であり、金 属内包フラーレン100 mg を得るために要する 時間をざっと計算すると約1200時間を要する 事になる。著者が学生のころは金属内包フラー レンの1つであるLa@C₈₂の試薬価格は45万円 /1mgで納期半年という恐ろしく高価な試薬で あったが、現在もそれほど価格は下がっておら ず、ダイヤモンドの価格が1カラット(0.2 g) 10万円から100万円(高価なダイヤモンドで5 万円/mg)とすると金属内包フラーレンがどれ だけ高価なものであるか分かる。

話を元に戻す。著者らはランタン(La)を金 属:炭素 =1:150 の原子数比で混合させた炭素棒 を陽極とし、He 雰囲気、圧力 500 Torr、直流電 流 50 A の条件でアーク放電を行い、金属内包フ ラーレンを含むススを合成した。このススより 1.2.4-トリクロロベンゼンを用い8時間還流を行 い、フラーレン成分の抽出を行った。この抽出 溶液からメンブレンフィルターを用いて不溶成 分を除去し、溶液を乾固したものをフラーレン 粗抽出物とし、この一部を分取して熱中性子照 射用の試料とした。この試料を日本原子力研究 開発機構の JRR-3M 水力照射設備 HR-1 孔(flux: 9.6×10¹³ n/cm²·sec) 及び気送管照射設備 PN-1 (flux: 5.2×10¹³ n/cm²·sec) において熱中性子照 射をそれぞれ6時間及び20分間行い、試料を 放射化した。放射化した試料は開封後、すみや かに CS₂ に溶解し、メンブレンフィルターで熱 中性子照射中に生じた不溶成分を除去した。こ の試料を乾固し、二硫化炭素 (CS₂)、1.2.4-トリ クロロベンゼン (TCB)、o-キシレン、トルエ ンなどのフラーレンの良溶媒に溶解した未照射 のフラーレン粗抽出物と混合した。これらの溶 液に金属ハライドとして、AlF₃、AlCl₃、AlBr₃、 FeCl₃、TiCl₄、SnCl₄をそれぞれ数mg(TiCl₄及 び SnCl₄ は液体であるため、数滴)加え、撹拌 した。これらの溶液はScheme1に示された通り、 メンブレンフィルター(孔径 0.25 µm)により濾 過を行い、残渣を水及びアセトンで洗浄後、CS。 を用いて再溶解させた。この CS2 に再溶解させ た試料、金属ハライドを加える前の試料、メン ブレンフィルター上の各放射能をそれぞれ Ge 半 導体検出器で測定し、各溶媒系での金属ハライ ドによる金属内包フラーレンの抽出率の違いを

調べた。



Scheme 1. 金属内包フラーレン分離のスキーム

各種金属ハライドとの反応性及び最適な反応 時間

図 1. は CS_2 を溶媒とした、各金属ハライド による金属内包フラーレンの抽出率を示してい る。図中黒で示したものは CS_2 に再溶解させた 試料中の放射能(EMFs Solution)を、灰色で



図1 各金属ハライドと金属内包フラーレンの反応 性:黒で示したものは CS₂ に再溶解させた試料 中の放射能(EMFs Solution)を、灰色で示し たものは沈殿として分離されずにろ液中に確認 された放射能(Filtrate)を、白で示したもの は再溶解に用いた CS₂ にて回収されず不溶な成 分となっているもの(Insoluble)をそれぞれ示 している。 示したものは沈殿として分離されずにろ液中に 確認された放射能(Filtrate)を示している。図 中で Insoluble (白) としたものは再溶解に用 いた CS₂ にて回収されず不溶な成分となってい るものを示している。ここで注目すべきは、1) Bolskar らが用いた AlCl₃を用いた場合、金属 内包フラーレンの分離効率は最大で 60% 程度に とどまり、残りの約 40% は Insoluble となって いる事、また、2) AlF₃を用いた場合には金属 内包フラーレンは全く分離されず、ほぼ全量が ろ液中に存在しており、これに対して3)TiCl₄ やSnCl₄ではほぼ全量が沈殿物として中空の フラーレンと分離されているという事である。 Bolskar らは金属内包フラーレンの抽出率など に関しては報告しておらず、未回収となる金属 内包フラーレンがおよそ半数近くにも上る事は 今回金属内包フラーレンの追跡に放射能を用い ることで初めて明らかとなった事実である。ま た、AlF₃は今回用いた金属ハライドのうち唯 一、酸化剤(ルイス酸)としての能力を持ち合 わせていない物質である。このことは金属ハラ イドを用いた金属内包フラーレンの分離にはル イス酸としての性質が重要であることを示して おり、中でも TiCl₄や SnCl₄といった液体状の ルイス酸は溶液中で均一に分散するため、金属 内包フラーレンとの相互作用が効果的になされ ている事が示唆される。

この最も分離効率の良い TiCl₄ について、各 溶媒系で反応(stirring)時間を変化させた場合 の抽出率の違いを図2に示した。CS₂を溶媒と して、反応時間を1 min、5 min、10 min、100 min、24 hと変化させたところ、反応時間の増 加に伴い、insoluble 成分が増加している。この 傾向は TCB を溶媒として用いた場合にも確認 でき、TiCl₄を用いた金属内包フラーレンの分 離では反応時間を長く取るほど不利に働くこと が分かる。また、o-xylene や toluene といった フラーレンの良溶媒についても1 minの反応時 間で定量的に金属内包フラーレンを分離できる ことが分かった。

4. 空フラーレンの除去率

次に、C₆₀、C₇₀ など中空のフラーレンが TiCl₄



図2 各溶媒系での反応時間に対する抽出率の変化:
 反応時間を1 min、5 min、10 min、100 min、24 h と変化させたところ、反応時間の増加に伴い、insoluble成分が増加しており、TiCl4 を用いた金属内包フラーレンの分離では反応時間を長く取るほど不利に働くことが分かる。



図3 TiCl4による空フラーレンの除去効果:分離前
 a)及び分離後b)のHPLCクロマトグラムからC60やC70は多少残存するものの非常に効果的に空のフラーレンを除去できている事が分かる。TiCl4による分離条件は溶媒としてCS2を用い反応時間は1 minとした。HPLCの展開条件は展開溶媒:トルエン、流速3.2 mL/min、カラムサイズ:10 φmm×250 mm であった。

を用いることによりどれだけ除去されているの かを確認するため、分離後の試料を展開溶媒と してトルエンを用いて Buckyprep カラムに展開 した。(図3参照) 分離後(図3b)のクロマト グラムを見ると、分離前(図3a)に比べ試料中 の大半を占める C₆₀ や C₇₀ は若干残るもののそ の他の高次フラーレンはほぼ取り除かれている ことが分かる。また、分離前後の La@C₈₂ につ いて溶出ピーク強度を比較すると、その強度は 全くと言っていいほど変わっていない事が分か る。これは放射能の測定から得られた金属内包 フラーレンの抽出率の結果とも非常に良く一致 しており、TiCl₄等のルイス酸が中空のフラー レンと金属内包フラーレンとの分離に非常に有 効であることを示すものである。先に述べたと おり、多段階の HPLC 分離においてはカラムへ の導入量が限られているため分離を目的とする 金属内包フラーレンの量が増加するほど、その 分離コストは多段階 HPLC 分離に比べ指数関数 的に減少する事が見込まれる。従って、この手 法は工業的に金属内包フラーレンを分離する手 段として非常に有効であると言える。

5. 結論

本研究では金属内包フラーレンの分離効率を 上げるため、ルイス酸として作用する金属ハラ イドを用いて金属内包フラーレンの分離効率を 調べた。TiCl₄やSnCl₄等の液体のルイス酸を用 いた場合、短時間でかつ効率的に金属内包フラ ーレンの分離を行う事が可能であることが明ら かとなり、また、フラーレンの良溶媒とされる TCB、CS₂、o-xylene、toluene等の溶媒でも効 果的に分離を行えることが示された。

References

- W. Krätschmer, L. D. Lamb, K. Fostiropoulos, D. R. Huffman, *NATURE*, **347**, 1990, 354.
- [2] M. Mikawa, H. Kato, M. Okumura, M. Narazaki, Y. Kanazawa, N. Miwa, H. Shinohara, *Bioconjugate Chem.* 2001, 12, 510-514.
- [3] T. Tsuchiya, T. Wakahara, Y. Lian, Y. Maeda, T. Akasaka, T. Kato, N. Mizorogi, S. Nagase, *J. Phys. Chem. B* 110, 22517-22520 (2006).
- [4] J. W. Raebiger, R. D. Bolsker, J. Phys. Chem. C 112, 6605-6612 (2008).
- [5] S. Stevenson, M. A. Mackey, J. E. Picken, M. A. Stuart, B. S. Confait, J. P. Phillips, *Inorg. Chem.* 48, 11685-11690 (2009).

= 特集(福島問題)

福島の果樹、この1年-原発事故初年の放射能汚染対策試験から-

佐藤 守(福島県農業総合センター果樹研究所)

事故発生から対策試験開始まで

2011年3月11日の大地震発生時には、私は、 ほ場にてモモの剪定をしていました。地震によ り、水やガソリンなどのインフラに支障がでて、 降雨が予想される3月15日は剪定作業ができな いことから休暇をとりました。通勤によるガソ リンの消耗を避けるためでした。翌日、出勤し 予定通り剪定作業で1日を過ごしました。

福島第1原発の爆発事故により福島市も放射 性物質の汚染を受けた恐れがあることをその日 知りました。それから数日後に果樹に対する放 射能汚染の影響について検討するよう指示を受 けました。手掛かりは農研機構・果樹研究所 より送られた IAEA の報告書 2 編(Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments および Modelling the transfer of radionuclides to fruit) と農研機構・ 果樹研究所内の検討資料のみでした。その後、 国内では果樹の放射能汚染についてはほとんど 研究されていないことも知りました。取り急ぎ IAEA の報告書に基づき、果樹の放射能対策検 討資料を作成し、所内で検討会を3回にわたっ て開催しました。

IAEA の報告書では原発事故により放出され た放射性核種の中で農作物に対する主たる汚染 物質はセシウム(以下 Cs)とストロンチウム (同、Sr)であり、これらの放射性核種は葉と土 壌から植物体内への移行することが記載されて いました。今回の事故が発生した3月12日~ 15日の時期はウメを除けば落葉果樹は発芽前で あり、葉は展葉していなかったことから、土壌 からの放射性 Cs の移行抑制が検討の主眼とな りました。IAEA の報告書に基づき作成した最 初の検討資料の内容は以下の通りでした。

- ¹³⁷Csの土壌から植物への移行に関連する パラメーターの定義
- 分配係数(Kd): 土壌中の固相中のCsと液相 中のCsの濃度比(L/kg)
- •移行係数の定義は複数ある。
- Fv: 土壌中 Cs と植物へ移動した Cs の濃度 比(乾燥重ベース)
- TF (the soil to plant transfer factor): 土壌中 から可食部または植物へ移動した Cs の濃度比 (果実は生重ベース、土壌は乾物重ベース)
- Tag(凝集移行係数):感染土壌面積当たりの可食部へ移動したCsの濃度比(乾燥重ベース)、森林およびキイチゴ類で使用
- Fr:加工、貯蔵後の果実のCs濃度と生の果
 実のCs濃度の比
- Bp: 土壌液相中Csと植物へ移動したCsの 濃度比(L/kg)
- 移行係数と土壌の分配係数および土壌液相から植物への移行係数の間で以下の関係が成立する。Fv= Bp/ Kd

2. 土壌中 Cs の動態に関する知見

- Csの土壌および植物体中の移動特性はKと 近似(相同的)している。
- Cs は土壌中では K、Ca、Na、NH₄ 等の交換 性カチオンと競合的関係にある。
- Cs はモンモリナイトやベントナイトなどの 粘土鉱物に吸着される。吸着された Cs は植 物に吸収されにくい。Cs はベントナイトとは Na より吸着されやすいが K、Ca とは競合し、 その挙動は平衡定数に依存する。
- フォールアウト(放射性沈降物)したCsの
 垂直方向の移動は時間に依存し、初年は1cm
 以下、5年で5cm以下である。
- ・ミミズの活動はCsの土壌吸収・沈積に影響 する。

- Kd 値が大きいほど Fv 値は小さくなる(植 物への Cs 移行は抑制される)。
- Kd値は土壌の鉱物と有機物の構成比の影響 を受ける。粘土鉱物の高い土壌では高く、有 機物の多い土壌では低い。
- Kd 値は年数の経過とともに風化と土壌での 固定が進行するため高くなる。
- ベントナイトなど特定の土壌鉱物の Kd 値は pH の影響を受け、アルカリ側で固相中 Cs が 高くなる。
- Kd 値は粘土で高く、砂土、有機物で低い。

3. 土壌から植物への移行に影響する要因と知見

- TF 値算出の土壌の深さとして、牧草は 10cm を標準としているが、果樹を含む他の作物は 20cm が標準。
- Csの植物への移行は根の分布、品種、施肥、 灌水、土壌管理、土壌粒子の大きさ、粘土鉱 物の種類、有機物組成等の影響を受ける。
- ・菌根はCsの植物体吸収を促進する。
- ・ピートモスの多い土壌や栄養分の乏しい湿地 で植物体へのCsの移行が多い。
- ・置換性カリウムの少ない石灰質土壌でCsの 移行が高い。
- 植物に移行する放射性核種は土壌液相に溶解している形態のものであり、酸化物、炭酸化 合物は溶解度が極めて低く、植物には吸収されない。
- TF 値は同一植物でも放射性核種の化学的特 性、植物吸収の代謝生化学的作用の差異、解 毒作用、土壌中の水分動態、根圏土壌中にお ける可吸態イオン濃度、土壌中の根の分布状 態、植物の栄養生長期間の影響を受ける。
- 一般的に放射能核種の濃度は茎や葉で高く繁 殖器官では少ない。
- ・果樹のセシウムの年間収支では落葉や果実の 収穫による減少は少なく、大半は再転流し、 木部に蓄積される。また木部に貯蔵されたCs は翌年の新成長部にほとんど移行しない。
- ・農業生態系では果樹の種類を問わず汚染から 4年で取り込まれたCsは半減する(Csの果 樹の生物学的半減期は4年である)。
- •チェルノブイリ事故(1986年4月26日)に

おいてアンズでは 1987 から 1988 年の間で新 生器官の Cs 濃度が 3 分の 1 までに減少が認 められた。しかし自然の生態系では泥炭(ピー トモス) 土壌を好むホロムイイチゴの果実中 の Cs 濃度は逆にフォールアウト翌年で高まっ た。

- チェリノブイリ事故による汚染調査によると、 リンゴ、モモ、サクランボ、スモモでは長期 的には土壌からのCsの吸収は無視してよく、 汚染から2、3年は貯蔵性Csの再利用が多かっ た。
- ブドウやオレンジでは果実がCsのシンクと なるが、オリーブとスモモではシンクとなら ない。
- ・野生果実の移行データは(生育環境要因による)ばらつきが大きいので適用に当たっては 注意が必要。
- •果実は核種選択性がある。果実へはCsがSr より優先して葉から転流する。
- 果実への Cs の移行は果実の直接汚染または 葉からの転流によるものである。
- ・<u>1年性植物では、激しい汚染があった場合は、</u>
 <u>土壌を経由して翌年の汚染が認められるが、</u>
 <u>永年性植物の果樹の場合は、ほとんど認めら</u>
 れない。特にCsの場合は可能性が低い。
- 汚染翌年の果実への汚染は植物と土壌に貯蔵 された放射性核種間のメカニズムに依存する。 これは時間による比較的重要な転換である。 土壌と樹体間の放射性核種の平衡が維持され る。
- ブドウでの試験でも汚染翌年の果実へのCs
 移行は極めて少ない。
- •ココナッツでは土壌から汚染された Cs は塩 化カリウム施肥により果実の TF 値は低下し た。
- ・葉から汚染されたブドウの Cs は塩化カリウムを土壌に施肥しても Cs を放出する効果はなかった。
- セシウムは汚染後24時間以内に吸収される。
 Srも同様である。吸収期間の延長はSrの方が少ない。

- 4. 果実への Cs 移行特性
- •汚染土壌からの Cs は直接果実へ移行することはなく、葉からの転流による。
- ・土壌から吸収された Cs は茎と葉に移行する。
- ・茎と葉への移行は果実成長期に活発となる。
 果実中のCsは成熟期から高まる。

果樹研究所内の検討会でまとめられた当面の 方針としては、現地での定点調査を行うこと、 果樹の吸収根の分布域は表層 15cm 以下であり 放射性 Cs は表層に沈積しているので耕起はし ないこと、樹園地土壌は草生栽培によりカリウ ム過剰となっているのでカリウム肥料の施肥は ひかえることの3点でした。これは、水田およ び蔬菜等の畑作で出された方針とは逆の方向で した。

果樹研究所の放射能汚染対策試験は、所内お よび現地ほ場の土壌と樹園地内外の環境放射能 の測定、果実および葉中放射性 Cs の経時的推 移の検証、そして土壌からの吸収を抑制する技 術対策の検証を柱として開始されました。その 後、調査が進む中で、樹皮上の汚染が明らかに なり、その汚染実態調査および樹皮の除染技術 の開発や作業時の外部被曝の実態調査が追加さ れました。ここでは、汚染初年度に得られた試 験研究成果の中から果樹特有と考えられる知見 を中心に紹介します。

樹園地における土壌汚染の実態解明 1. 土壌中放射性物質の垂直分布

(1) 調査目的および方法

4/15 ~ 5/25(フォールアウト後 31 ~ 71 日) から 10/25(同 225 日)の期間の樹園地におけ る土壌中放射性核種の表層下 30cm までの放射 性核種濃度の垂直分布とその経時的推移を検証 しました。調査ほ場は、果樹研究所内、リンゴ「紅 玉」(採取日:4/15、5/25、10/25、以下同)、「三 島ふじ」、モモ「あかつき」、ナシ「幸水」(4/26、 10/25)ほ場および桑折町モモ園(5/11、10/26、 砂質埴壌土)および福島市リンゴ園(5/11、 10/26、重埴土)としました。所内調査ほ場の土 性は、「三島ふじ」が花崗岩系砂質土、他は褐色 森林土・埴壌土です。また、10/25 は信夫山ユ ズ園(凝灰岩系シルト質壌土)を加えました。 (2) 結果

フォールアウト 31 ~ 70 日間の放射性核種の 土壌中垂直分布の経時的推移では¹³¹I は時間と ともに減少し、フォールアウトから 71 日が経過 した 5/25 でほぼ消失しました。放射性 Cs は通 常の土壌ではフォールアウト後 225 日が経過し た 10/25 でも砂質壌土~重埴土では表層 0 ~ 3 cmに 90%以上が沈積していましたが、せん定枝 チップを経年施用した埴壌土および花崗岩系砂 質土では 30cm までの放射性 Cs のうち表層 0 ~ 3 cmに留まっている割合は 80%以下でした。な お、10/26 の信夫山の凝灰岩系シルト質壌土の 表層 3 cmの沈積率は 56%に留まり、40%以上が 深さ 3 ~ 18cm まで沈降していました。



図1 土壌中放射性核種濃度の垂直分布(4/15) (果樹研「紅玉」ほ場: 埴壌土)



図2 土壌中放射性核種濃度の垂直分布 (4/26) (果樹研「あかつき」ほ場: 埴壌土)



2. 土壌中放射性物質の水平分布

(1) 調査目的および方法 果樹研究所内ほ場7か所および福島市・伊達



図7 10/26の¹³⁷Csの垂直分布 (信夫山・凝灰岩系シルト質壌土)

市・桑折町の樹園地9カ所の樹園地において、 4/26と10/25に1ほ場当たり5か所の深さ5cm までの土壌を採取混合し、時系列間差を比較し ました。下草は地際まで刈り込み除去しました。 また6/16に所内「あかつき」ほ場(面積6a) の12樹から、1樹当り4か所を採取混合、9/30 に所内「三島ふじ」ほ場(面積3a)の16樹か ら1樹につき、幹から同一の距離2か所を採取 混合し樹間差を検証しました。10/26に採取し た土壌の分析値は10/25に減衰補正しました。 (2)結果

4/26 の果樹研究所内の7 ほ場(面積 5ha)の 放射性 Cs 濃度は 6.4 ~ 14.0kBq/kg で 2 倍程度 のバラツキが認められました。またフォールア ウト後 225 日間の減衰率は所内7 か所平均で 96%に留まりました。これに対し、現地ほ場の 減衰率は65%で所内と比較して大きな減衰率を 示しました。物理的半減期から試算した10/25 までの放射性Csの減衰率は85%でした。所内 と現地の減衰率が大きく異なった要因としては 管理密度が推定されますが、今後、更に検証が 必要と考えられます。

「あかつき」ほ場の樹単位の放射性 Cs 濃度は 2.6 ~ 11.1kBq/kg で4倍程度のバラツキが認め られました。同様に、「三島ふじ」ほ場の放射性 Cs 濃度は 2.3 ~ 11.2kBq/kg で5倍程度のバラ ツキが認められました。

以上から、樹園地内の土壌中放射性 Cs 濃度 の水平分布は、ほ場および樹によるばらつきが 大きいことから土壌中放射性物質濃度の分析値 のみでの樹園地の汚染実態の判定は限界がある もの考えられました。

サーベーメーターによる測定により樹園地内 のホットスポットを検出し、汚染マップを作成 することが実用的ではないかと考えられますが、 この測定方法では効率性に欠けることから、今 後、樹園地内の除染を進める上で、新たな面的 測定方法の開発が望まれます。

3. 土壌表面 1cm の放射線量の経時的推移

(1) 調査目的および方法

樹園地の汚染状況を把握する方法としては

表1 土壌表層 5cm 放射性 Cs の時系列比較

	¹³⁴⁺¹³⁷ Cs 濃度(kBq/kgDW)			
調査ほ場	4/26	10/25	比	
	(A)	(B)	(B/A)	
所内ブドウ	6.4	6.5	1.02	
所内梨(幸水)	9.9	8.2	0.82	
所内桜桃	7.8	10.5	1.36	
所内桃(はつひめ)	6.4	7.2	1.13	
所内桃(あかつき)	14.0	7.8	0.55	
所内りんご(三島ふじ)	6.9	5.9	0.86	
所内りんご(紅玉)	7.7	7.2	0.94	
福島市湯野(日川白鳳)	3.2	1.3	0.40	
桑折町(はつひめ)	10.2	4.3	0.42	
伊達市柱沢(蜂屋)	18.9	14.0	0.74	
福島市宮代(ふじ)	9.1	6.4	0.70	
福島市北沢又(紅さやか)	20.9	11.1	0.53	
福島市笹木野(幸水)	2.7	3.3	1.21	
福島市渡利(ふじ)	23.5	13.2	0.56	
所内平均	8.4	7.6	0.96	
現地平均	12.7	7.7	0.65	
平均	10.5	7.6	0.80	



図8 土壌中(5cm)放射性核種濃度の水平分布 (樹間:あかつき)



図 9 土壌中(5cm) 放射性核種濃度の水平分布 (樹間:三島ふじ)

NaI サーベーメーターによる測定が一般的です。 そこで土壌表面の放射線量の経時的推移を検証 するため、果樹研究所内の6 ほ場で 4/11 から定 期的に測定された 1cm 高の放射線量の各ほ場の データを併せて平滑化スプライン法により減衰 曲線を求めました。また 4/15 から 5/25 までの 現地(桑折および渡利)での調査を含めた¹³⁴Cs、 ¹³⁷Cs および¹³¹I の垂直分布データにより土壌表 層の放射性核種の経時的推移を検証しました。 (2) 結果

地表から 1cm 高の放射線量は調査開始から 5/25 までの 44 日間で約 30%低下しました。土 壌表面 1cm の放射線量と5 月下旬までの土壌中 表層 3 cmまたは5 cmの¹³¹L/¹³⁷Cs 濃度比の減衰消 長は近似した推移を示しました。回帰分析の結 果、放射線量と¹³¹L/¹³⁷Cs 濃度比の減衰消長と の間で高度に有意な相関が認められ、この期間 の放射線量の急激な減衰は¹³¹Lの低下(3/15の 1/512) によることが検証されました。このこと から未耕起の樹園地では、土壌表面の放射線量 の測定により土壌表層の放射性物質の動態が推 定可能と考えられました。なお、¹³¹Iが消失し た 5/25 日以降の 200 日間では約 20%低下しま した。



図10 土壌表面(1cm)の空間線量の経時的推移

土壌	3/15起算	ほ場	¹³¹ I/ ¹³⁷ Cs	減衰比
採取日	日数		比	
4/15	31	紅玉	0.84	1
4/26	42	三島ふじ	0.4	
		あかつき	0.51	
		平均	0.46	0.55
5/11	57	桑折	0.11	
		渡利	0.03	
		平均	0.07	0.08
5/25	71	紅玉	0.03	0.03

表2 土壌表層3cmまたは5cmの¹³¹I/¹³⁷Cs比

表3 土壌表面 1cm 高の放射線量

放射線	3/15起算	放射線量	5月29日	減衰比
測定日	日数	(μ S/h)	との差	
4/15	31	3.7	1.21	1
4/26	42	3.08	0.59	0.49
5/11	57	2.58	0.09	0.07
5/25	71	2.5	0.009	0.007
5/29	75	2.49	0	

注:減衰曲線より算出



4. 樹園地内外の空間線量と地表面線量の関係

(1) 調査目的および方法

果樹園における作業者の外部被ばく状況を把 握するため果樹研究所内8ほ場および現地9ほ 場において4/11から対象果樹の収穫時まで定期 的に、樹園地の地表面1cm高と地上部1mの放 射線空間線量および園外1mの空間線量を測定 しました。測定か所数は、地表面は1ほ場当た り5か所、園内空間線量は樹園地の中央部1か 所、園外は園の入り口1か所としました。また、 5/11から5回の測定値を平均し樹園地内外の空 間放射線量を比較した。併せて地表面線量と樹 園地内空間線量との相関関係を検証しました。 (2)結果

樹園地の放射線量は土壌表面>園内(地上 lm)>園外(地上lm)の順に高くなりました。 樹園地の地上lmの空気中放射線量は、いずれ の樹園地も園内の方が舗装道路、草地などの園 外より4~54%高く、樹園地内外比は対数正規



図12 樹園地内外の空間放射線量の比較



図13 地表面放射線量と樹園地内空間線量間の相関 関係

分布に適合しました。樹園地内の地上部 lm の 放射線空間線量は地表から高さ lcm の放射線量 と高い相関が認められ、樹園地内 lm の空間線 量は地表面の約 85%まで減衰しました。

樹園地における樹皮汚染の実態解明

1. 樹皮表面の部位別放射線量の測定

(1) 調査目的および方法

フォールアウトによる樹皮上の汚染状況を検 証するため、5/10に、モモ6樹およびオウトウ、 ナシ、リンゴ、ブドウ各3樹の主枝分岐部から 30cmの部位の円周方向で上部(天空側)、側部、 下部に区分し各部位の表面から1cmの放射線量 をGMサーベーメーター(TGS136)で測定し ました。併せて各ほ場の1mの空間線量を測定 し、樹皮の測定値から引いた値を樹皮表面の放 射線計数率としました。ブドウ「あづましずく」 「ふくしずく」「高尾」の主枝上部15~20cm長 を剥皮し、剥皮前後の放射線量をGMサーベー メーターで測定しました。

(2) 結果

モモ、オウトウ、リンゴ、ナシ、ブドウの主 幹や主枝などの骨格枝および1、2年生枝に放 射性核種が沈積していることが確認されました。 骨格枝の沈積量は円周方向で上部(天空側)で 地面側に比べ明らかに高い放射線量が計測され ました。



2. ブドウおよびナシの粗皮削りおよび粗皮剥 ぎによる放射性 Cs 除去効果の検証

(1) 調査目的および方法

5/25 にブドウ「あづましずく」およびナシ「幸水」の主枝上の3カ所について、円周方向で上部(天空側)、側部、下部に区分し剥皮処理をし、放射線量をGMサーベーメーターで測定しました。また、剥皮した各部位の樹皮中の放射性核種濃度を測定しました。

(2) 結果

ナシおよびブドウで粗皮剥皮処理をしたとこ

表4 ブドウ「あづましずく」の剥皮粗皮の放射線 計数率と Cs 濃度

	はく皮前			はく皮後		
部位	GM 値	GM 値		GM 値		
	(kcpm)		(kBq/kg)	(kcpm)		
上部	3.4	С	48.7	0.5	b	
側部	1.0	b	26.4	0.0	а	
下部	0.4	а	6.2	0.1	а	
分散分析	396.2			10.6		
分散比	***			*		
注,测宁口(十亚式 02 年 5 日 05 日						

注:測定日は平成 23 年 5 月 25 日

表5 ナシ「幸水」の剥皮粗皮の放射線計数率と Cs 濃度

±7/-5	はく皮前		○□遭庄	はく皮後	
미인꼬	Givije		US版皮	Givije	
	(kcpm)		(kBq/kg)	(kcpm)	
上部	4.2	с	26.1	0.6	с
側部	1.3	b	7.4	0.2	b
下部	0.1	а	1.2	0.0	а
分散分析	75.5			337.8	
分散比	***			***	

注:測定日は平成23年5月25日



図 15 主枝表面の部位別(円周方向) 放射性 Cs 濃度(5/25 採取)

ろ、GM サーベーメーター測定値は剝皮前に比 べて有意に低下し、粗皮剥ぎ、粗皮削りにより 樹体表面の放射性物質が効果的に除去できるこ とが実証されました。なお、主枝上部の沈積量 はブドウで 48.7 kBq/kg、ナシで 26.1kBq/kg で した。

モモの主枝および側枝の皮部の放射性 Cs 濃 度の測定

(1) 調査目的および方法

樹皮上の放射性 Cs の内部への移行を検証す るため、6/16 に 18 年生「あかつき」の主枝お よび 12 年生「78-12」の主枝および側枝(2、3 年生枝)の形成層で剝皮し、表皮とその内側の 内皮(周皮および靱皮)に分けて放射性 Cs 濃 度を測定しました。



図 16 モモ主枝および側枝表面の放射性 Cs 濃度 (6/16 採取)

(2) 結果

表皮に7~14万 Bq/kgFW を超える放射性 Csが沈積し、内皮でもその100分の1 程度の放 射性 Cs が検出されました。なお、表皮を剥い だ緑色の周皮部には靱皮内部へ通ずる皮目が多 数、分布していました。

土壌表面および樹皮表面の放射線量の経時的推 移の比較

(1) 調査目的および方法

樹園地における土壌表面および樹皮表面の放 射線量の経時的推移を比較するため、果樹研究 所内の土壌表面線量および樹皮表面線量を経時 的に測定し、土壌表面は5/9、樹皮表面は5/10 の測定値を100として以後の測定値の比率を算 出しました。土壌表面線量は「あかつき」「幸水」 「紅玉」ほ場5か所の土壌表面1cmの放射線量 の測定データ、樹皮表面線量は「あかつき」他 5品種、「幸水」「ふじ」の主枝分岐部から30cm の天空側の樹皮表面1cmの放射線量の測定デー タを供試しました。

(2) 結果

土壌表面の放射線量は5/9から175日の期間 で約70%程度までに減衰しました。樹皮表面の 放射線量は5/10から176日の期間で45~50% までに減衰しましたが、棚栽培のナシ「幸水」 ではモモ、リンゴと比較して減衰率はやや劣り ました。またモモ、リンゴの減衰傾向は2つの パターンに分かれる傾向を示し、フォールアウ ト後約120日までは急激に減衰し、以後は緩慢



図17 土壌表面および樹皮表面の放射線量の経時的 推移(モモ)



図18 土壌表面および樹皮表面の放射線量の経時的 推移(ナシ)

な減衰傾向を示しました。これは生態学的半減 期として報告されている減衰パターンに類似し ていました。このことから、土壌と比較して樹 皮上の放射性 Cs の動態は樹皮周辺の環境の影 響を受け拡散しやすいものと推察されました。

落葉果樹の葉および果実内放射性 Cs の経時的 推移

(1) 調査目的および方法

落葉果樹の葉および果実への放射性 Cs の移 行動態を検証するため、果樹研究所内のモモ、 ブドウ、ナシ、リンゴおよび伊達市のカキにつ いて葉および果実を定期的に採取し、放射性 Cs 濃度を測定しました。ここで、成葉は、ブドウ は第4、5節、ナシでは不定芽新梢中央葉および 最大果叢葉、他は側枝先端新梢中央部の葉を採 取しました。

(2) 結果

果実中放射性 Cs 濃度はモモ、ナシ、リンゴ では満開後40日以内(6/1)の幼果期で高く、 成熟果の5~7倍の高濃度でした。しかし、満 開後50日頃には幼果期の少なくとも3分の1以 下まで激減しました。これに対し、成熟期の濃 度の低下は緩やかでした。果実当たりの放射性 Cs 含量はブドウ、ナシ、リンゴ、カキでは果実 肥大に係わらず完熟期の30日前からほぼ一定量 で推移しましたが、モモでは完熟期まで果実肥 大とともに増加しました。葉中放射性 Cs 濃度は、 モモ、ナシ、リンゴでは果実同様、幼葉で高濃 度を示しました。ブドウでは発芽後29日から増 加し、ベレゾーン期直前(7/12)で最高値を示 しました。同様に、カキでも着色開始期前の成 葉(8/23)で高濃度を示しました。成熟期では いずれの樹種も減衰傾向を示しましたが、伊達 市のカキでは他の樹種に比較し、成熟期の葉中 放射性 Cs 濃度は高濃度でした。また、生育期 間の長いリンゴ、カキでは果実肥大期から成熟



図 21 成熟期の Cs 濃度の葉 / 果実比の比較

期まで一定濃度で推移しました。成熟期の放射 性 Cs 濃度の葉 / 果実比はナシ「幸水」以外は 3~6の範囲でした。なお、「幸水」も含め有意 な樹種間差は認められませんでした。また、「幸 水」では不定芽新梢葉と最大果叢葉の放射性 Cs 濃度は2~3倍の差が認められました。

樹齢の異なるモモにおける果実中放射性 Cs 濃 度の比較

(1) 調査目的および方法

フォールアウト後、数カ月の調査から果樹で は土壌よりも樹皮上に沈積した放射性 Cs の影 響が高い可能性が疑われました。樹皮上の沈積 量と関連性が高い樹容積は樹齢に依存します。 そこで果樹研究所内モモ 12 年生および 18 年生 「あかつき」、6 年生および 18 年生「ゆうぞら」 各 3 樹を供試し、樹齢の異なるモモにおける果 実中放射性 Cs 濃度を比較し、果実への放射性 Cs 移行に対する樹齢の影響を検証しました。 (2) 結果

果実中放射性Cs濃度は「あかつき」「ゆうぞら」 ともに樹齢の進んだ樹で有意に高くなりました。 特に樹齢差の大きい「ゆうぞら」で濃度差が大 きくなりました。このことからモモの果実中放 射性Cs濃度は樹皮上の放射性Csの沈積量の影 響が高いものと推察されました。



図 22 樹齢を異にするモモの果実中 Cs 濃度比較

リンゴ、モモ、カキの樹体解体調査およびモモ の促成栽培による果実への放射性 Cs の移行源 の検証

フォールアウト初年度の調査から果樹では土

壌からの放射性 Cs の吸収移行は無い可能性が 高いと推察されましたが、これを検証するため にリンゴ、モモ、カキの解体調査をしました。 モモは東京大学、カキは学習院大学との共同研 究として実施しました。その結果、いずれの樹 種においても根部への放射性 Cs の分配率は3% 以下でした。果樹では、根から放射性 Cs が吸 収された場合の根部の分配率は30%程度となり ますので、根からの吸収は無かったことが明ら かになりました。なお、根で測定された放射性 Cs は秋根の伸長に伴う貯蔵性 Cs によるもと考 えております。

更に、東京大学との共同研究として果樹研究 所の3倍程度の土壌汚染が認められた伊達市モ モ園で育成された4年生「あかつき」を非汚染 土壌に移植後、促成栽培を行い解体調査をしま した。その結果、新生組織への分配率は3%以 下にとどまりました。この試験においては新生 組織の放射性Csは全て貯蔵性Csの再転流によ るものと解釈できます。このことからフォール アウト2年目の果実中放射性Cs濃度は2次汚 染および土壌からの吸収移行がなければ大きく 減衰するものと推察されました。



図 23 リンゴの部位別放射性 Cs 濃度と分配率

2012 年産果実中放射性 Cs の経年減衰効果

汚染2年目の2012年産のウメ、オウトウの 成熟果における¹³⁷Cs濃度は2011年と比較して 1/3~1/8まで減衰しました。またモモ「あか つき」についても1/3~1/5までに減衰する見 通しとなっており、本年のモモ以降の落葉果樹 の放射性Cs濃度はNDに近いレベルまで低下



図 24 ウメ果実中¹³⁷Cs 濃度の年次比較

する可能性が高いと思料しているところです。

最後に

果樹研究所での放射能汚染対策試験は、東北 大学電子光理学研究センター、学習院大学、東 京大学および福島大学による継続的な御指導の もとに実施されました。この紙面をお借りして、 多大なる御支援をいただきました各大学の方々 に感謝を申し上げます。 - 特集(福島問題)

原子力機構の環境修復の取り組みに参加して

吉川英樹(日本原子力研究開発機構)

平成23年の3月21日の春分の日明けに連絡 が入った。職員数名が福島県庁に出張し、住民 への電話相談窓口の応援をするという内容で あった。平成23年3月11日の東日本大震災に 伴い東京電力(株)福島第一原子力発電所(以 下「第一発電所」と記す)において、¹³¹I、¹³⁷Cs 等の放射性物質が環境中へ放出されたことに対 する住民の不安に答える目的である。(独)日本 原子力研究開発機構(以下「原子力機構」と記 す) では、災害対策基本法および原子力災害対 策特別措置法に基づき、事故対策本部(本部長: 理事長)が設置され、国を初め地方自治体等に 職員を専門家として派遣し、モニタリング車等 の設備を提供した。その後も、福島県、文部科 学省、内閣府等の活動に関連し、健康相談窓口 の設置、学校の放射線計測、除染モデル事業の 実施など、平成23年度で約4万人以上の職員が 動員された。現在は福島市内に福島環境安全セ ンターを設置し、筆者も一部業務を兼務担当し ている。原子力機構は、原子力研究の中核的機 関として、環境放射線の測定と放射線防護の観 点から、原子力対策本部等の国の関係部署と一 体化した業務を進めてきた。福島県のみならず、 関東地区など、各自治体からの要請をうけ、放 射線測定と環境修復の実務、除染計画作成等へ の提言、各町内会や教育機関における説明会へ の講師としての参加など、種々の役割を実施し ている。本稿では筆者の体験談を交え原子力機 構の環境修復活動についての一部を紹介する。

1. 空間線量率測定と電話相談

事故発生直後から環境モニタリングが実施さ れた。住民への放射線防護の観点から、日々 の空間線量率を測定し、数値を更新するとと もに地域の土壌中の放射性物質濃度について計 測し、マップを作成して関係機関に情報を伝え るためである。全国の事業所から駆けつけた職 員は杉妻会館という結婚式場を本部として、夜 は広間に一人一畳のスペースに雑魚寝し、朝の ミーティングの終了とともに福島県内各地に散 らばってゆく。十数名の班が交代時期をずら せ4日間滞在する。測定チームや医療支援班だ けではなく、震災後で物資補給のままならない 中、食事から必要な機材まで調達をする支援要 員など、50名近くは駐在していた。当初はトイ レ、シャワーが不自由であり、昼食は持ち込ん



杉妻会館の雑魚寝の様子



電話相談の様子

机上のパソコンで質問に関連した記事や情報の 検索、最新の線量データを調べる。 だパンとカップめんであったが、筆者の行った 頃にはカレーライスが食べられるようになって いた。

筆者は12時間交代勤務で1週間滞在し県職員 や他機関からの応援者とともに、住民からの放 射線に関する電話相談に従事した。内容は質問、 要望、怒り、激励等で、呼び出し音が途切れる ことはほとんどなかった。深夜、明け方に関係 なく受話器を置くと2秒で次の人に繋がる。そ れでも、住民の方を長時間お待たせしていたよ うでお叱りを受ける。洗濯物を乾してよいかと か、自作の野菜を食べてよいか等、生活に関す る質問をはじめ「健康相談窓口」というものの あらゆる分野の問い合わせに対応した。

2. 教育現場の環境修復

昨年の5月に、子供の生活環境の被ばく線量 が問題となり、多くの時間をすごす教育環境の 環境修復が求められた。筆者は5月上旬の福島 県庁での健康相談の際、昼休みに県庁前の小学 校を通ったときの静かさには複雑な思いがし た。桜も満開なのに、誰も校庭で遊んでいない のである。同世代の子供を持つ親として、外で 遊ばせられない環境は早急に改善すべきテーマ に感じた。ちょうど、文部科学省から原子力機 構に福島県内の学校・幼稚園の校庭・園庭を対 象とした実地調査を行うよう指示され、福島大 学の協力のもと、福島市内の福島大学附属中学 校および幼稚園を対象にした実地調査と、環境 修復効果を調べた活動に参加した。炎天下の中、 少し風のある日だった。周囲からの汚染土壌の 巻き込みを注意しながら、50cm四方の範囲を 50 cmまで掘削し表面土壌の線量率変化を求め た。表面で 2.0µSv/h であった線量が、5cm で 0.4µSv/h、21 cmで0.1µSv/hに低減した。こ のことから、約5cm 程度の表層土の剥離を行え ば土壌の表面線量率が大幅に低減可能であるこ とがわかった。さらに、そこで下層土と交換す る試験(天地返しと言う)を実施し1/10の線量 率低減を実証した。環境修復としては学校側の 判断で、表層土を削除し新たに客土する方法が 最終的に採用された。



校庭における浸透深さ調査



校庭のモニタリング箇所の一部

幼稚園、中学校内で数百箇所の測定点があり、 当時は20名で2日間かかっていたが、現在では GPSの利用で数人で2日間で終了できるように 改善されている。

	總豐寧(uSy/h)					減少割合	
	対策後			対策前		(%)	
中学校グラウンド							
100 cm	0.15	±	0.07	2.5	±	0.3	94
50 cm	0,16	.±.	0.06	2.9	±.	0.3	94
1 cm	0.16	±	0.06	3.1	±	0.5	95
╕᠆ᢣ							
100 cm	0.11	±	0.05	2.4	±	0.2	95
50 cm	0.11	±	0.06	2.7	±	0.2	96
1 cm	0.12	±	0.07	3.0	±	0.3	96
中学校全体	0.15	±	0.07				
幼稚園グラウンド							
100 cm	0.21	±	0.06	1.9	±	0.2	89
50 cm	0.22	±	0.08	2.8	±	0.2	92
1 om	0.19	±	0.09	3.1	±	0.4	94
幼稚園全体	0.20	±	0.08				

空間線量率は約 1/10 ~ 1/20 と大幅に減少。 (中学校グラウンド(1 m)の平均 2.5→0.15µSv/h、 幼稚園の園庭(50cm)の平均 2.8→0.22µSv/h)
3. 除染技術等調查事業

内閣府から受託し原子力機構が直接の事業と して実施した活動として除染技術等調査事業を 行った。南相馬市の森林に囲まれたレクリエー ション施設と、伊達市の特定避難勧奨地点を含 む居住地区内の環境修復活動を行った。先の教 育現場の環境修復経験を基に、修復対象を広範 囲に広げた事業であった。南相馬市では、バン ガローでの宿泊者の被ばくを想定し、周辺森林 の除染効果を確認すべく、除草、落ち葉かき、 枝打ち、腐葉土層(リター層)など段階的な除 去、また、10m~30m奥に向かい除去効果の 実験的データ等を取得した。10 m奥部までの除 去で空間線量率が40%程度低下したが、それ以 上除去を進めても森林外縁部において測定され る空間線量率はほとんど低下しなかった。地形 や木々の高さによるが、森林近隣の生活圏の線 量率を下げるうえで、除草と落葉除去とリター 層の除去の効果が確認できた。



腐葉土層(リター層)など段階的な除去

斜面の除草効果においては、土木の専門家の 意見を聞きつつ、大雨による倒壊防止等の斜面 の保護を考えながら進めるので、思うように除 去が出来ない箇所があることも分かった。一方、 伊達市では、家屋の屋根、雨どい、庭、畑、果 樹園、道路など多様な対象について種々の除染 方法の検証を行った。本事業の実施時期は、夏 に始まったが想定より遅れ年を越した。地元説 明や仮置き場の設置がスケジュール通りに進ま ず、担当者は苦労していたが、本格的環境修復 の時期としては落葉の終わった頃で活動しやす い環境であったと筆者は思っている。いずれの 場所も夏は炎天下の上、親指大のスズメバチや マムシが出現し、冬は凍土となりスコップも入 らない状況となるので作業員の被ばくだけでな く作業安全の確保も重要であると感じた。なお、 これらの成果は環境省の「除染環境ガイドライ ン」に反映されている。



野田総理大臣の伊達市の現場ご視察

4. 他の原子力機構の主な活動

筆者は参加しなかったが、原子力機構の線量 測定については事故後、梅雨が本格化する前 の集計として、多くの大学・研究機関ととも に、第一発電所から概ね 100km 圏内の約 2000 箇所の土壌採取と空間線量率の測定、京大の KURAMA システムを用いた主要道路の車両に よるサーベイを実施した。その結果は昨年8月 に「線量測定マップ」「放射性セシウムの土壌濃 度マップ」として文部科学省から公表されている。 (http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/teirei/ siryo2011/siryo35/siryo2-1.pdf#search='線量測 定マップ')

(http://radioactivity.mext.go.jp/ja/conten ts/6000/5043/24/11555_0830.pdf#search=' 放射 性セシウムの土壌濃度マップ')

また、原子力機構は文部科学省が主体となった 航空機モニタリングによる空間線量率測定調査 として広域環境モニタリングを実施した。大型 Naly 線検出器を搭載したヘリコプター等により 高度150~300mでの測定値から地表から1メー トル高さおよび表面での空間線量率濃度を求め た。

原子力機構が参加・実施している活動の一部 を紹介する。詳細は、ホームページを参照。 (http://www.jaea.go.jp/fukushima/index.html)

- ・原子力機構の取り組みの経緯(H23・24年度)
 - -3.11 「原子力機構対策本部」設置。指定公 共機関として緊急事態への支援活動 (環境モニタリング等開始)
 - -5.6 「福島支援本部」設置。福島市内で校 庭・園庭の放射線低減対策効果の実証 開始
 - -6.6 放射性核種分布の詳細調査開始
 - -6.30 福島事務所開設
 - -7.11 福島県民を対象に内部被ばく調査開始
 - -8.5 除染実証事業開始(伊達市、南相馬市)
 - -8.31 福島環境支援事務所等設置
 - -9.30 避難区域等での除染モデル実証事業開始
 - -11.21 福島環境安全センターに組織変更
 - -H24.3.28 高専機構・福島高専と連携協力協定 等締結
- ・災害対策基本法、原子力災害対策特別措置法
 等に基づく対応
 - -環境放射線測定・放射能分析、身体サーベイ
 - -文部科学省、原子力安全委員会、自治体への 専門家等派遣
- -健康相談電話窓口
- -政府・東電統合対策室特別プロジェクトチーム -住民の一時帰宅のための安全管理者派遣
- -学校の放射線測定・プール水分析
- -東電従業員、福島県民の全身放射線測定
- -遠隔操作ロボット、支援車等の提供
- ・環境修復に向けた取組
 - -除染技術実証試験の実施
 - 企業等から除染活動に活用できる技術を募集

し、その効果、経済性等を確認・評価した。 -除染モデル実証事業

警戒区域、計画的避難区域等に指定されて いる12市町村(実施は11市町村だった)に おいて民家、道路、農地などの広域の環境 修復作業を実施した。除染結果の評価をは じめ、費用や人員数、所要時間、作業員被 ばく線量などの労働環境評価も合わせ実施 した。

-コミュニケーション活動

福島県内の児童保護者、教職員を対象に 「放射線に関するご質問に答える会」を開 催した。参加者が日頃、放射線について 疑問に思っていること(基礎的情報や被ば く低減方法、線量測定など)について専門 の職員が直接回答している。また、福島県 からの要請により、ホールボディカウンタ による県民の内部被ばく測定を実施中で、 平成24年8月末までに約2万5千人が測定し た。

5. おわりに

最後に原子力機構の今後の取組みについて紹 介する。福島環境安全センターでは、今後も国 および自治体と連携し、本格除染への計画策定 から現場での技術指導も含めた専門家派遣、各 種講演会への講師派遣など継続する予定であ る。また、居住地、森林、河川などにおけるCs 濃度・化学形態の分析、航空機モニタリングな どによる線量測定などのデータをもとに、Csの 環境中分布、移動形態について将来予測を目指 した研究開発を進める。原子力機構内関連箇所 と連携し、例えばSpring-8等の最新の分析手法 を用いた分析、分子動力学法による解析を通じ たCsの収着機構を研究する。

謝辞:本稿作成に当たり福島環境安全センター 小林純一参事、中山真一副センター長にご協力 頂きましたので感謝いたします。 = 特集(福島問題)

環境放射線分布測定用ガンマカメラの開発 ー福島第一原子力発電所内外での適用-田所孝広(日立研究所 原子カシステム部)

1. はじめに

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災により、福 島第一原子力発電所において全電力喪失から炉 心露出、炉心溶融、RPV 損傷、さらには PCV 損傷となり、原子炉建屋の水素爆発に至った。 これに伴い放射性のセシウム、ヨウ素等が大量 に環境中に放出され、発電所内外に高濃度の汚 染が発生した。発電所内の復旧作業においては、 作業者の被曝低減のための除染が必須であり、 発電所から 20km 圏内の立入制限区域において も、住民の早期帰還のための除染が必要である。 除染作業は、汚染場所の特定、洗浄・取除きや 掘出し等による汚染物質の除去、除染状況・効 果の確認により行われている。除染作業中の被 曝低減、及び、作業により発生する汚染物低減 のためにも、汚染場所の特定、除染状況・効果 の確認を効率的に行う必要がある。そのため、 短時間に広範囲のガンマ線強度分布を測定可能 な装置(ガンマカメラ)が必要とされており、 海外メーカ及び東芝から数種類の装置が製品化 されている「1~4」。日立では医療用ガンマカ メラの技術を応用した核種分析が可能な装置を 開発し、福島第一原子力発電所内外での適用を 進めている。

2. 環境放射線分布測定用ガンマカメラ 2.1 ガンマカメラの構成及び仕様

開発したガンマカメラの構成を図1に、仕様 を表1に示す。検出器部分には、医療用に開発 したCdTe半導体素子を用いた16×16ピクセル の検出器モジュールを適用した。CdTe半導体 素子は、バンドギャップが1.4eVと高いことか ら室温での測定が可能であり、素子の微細化が 容易であることから高位置分解能の測定が可能 である。また、密度が5.85g/cm³、実効原子番 号が50と高いことから、高感度での測定が可能 である。

測定領域を光学カメラで同時に撮像し、ガン マカメラの測定結果と重ね合わせて表示するこ とで、16×16 画素のガンマ線強度分布を可視化 している。また、装置内蔵のレーザ距離計で検 出器と測定位置間の距離を計測することで、測 定対象を点線源と仮定した場合の線量率の評価 が可能である。各画素毎のエネルギースペクト ルも収集しており、核種分析も可能である。可 搬性を考慮し小型軽量化を図っているが、周囲 のガンマ線バックグラウンド環境に応じて、簡 易に遮蔽が追加可能な構造としている。データ 転送は USB を用いており、PC でのデータ処理 後の結果を、1秒毎に画像表示可能である。ガ ンマカメラケースは、前方、後方及び上部が開 く構造となっており、コリメータ交換や遮蔽の 追加が容易である。測定時はカメラを三脚上に 固定し、カメラをバッテリーと制御用 PC にそ れぞれ接続する。バッテリーは、軽量化を優先 して電池ボックスとしているが、充電池タイプ の二次電池も接続可能である。



図1 ガンマカメラの構成図

光学カメラ	640×480画素、視野角50°
レーザ距離計	測定距離0.05~約50m、精度±1.5mm
ピンホールコリメータ	タングステン製:ピンホール径�0mm、2mm、4mm
遮蔽体	鉛製:標準厚2cm、追加遮蔽厚2cm
制御用PC	Windows7, タッチパネル方式
電池ボックス	16.5V,15W(単1電池11本使用)
重量	15.9kg(追加遮蔽時約45kg)
大きさ	幅24cm×奥行34cm×高さ34.5cm
データ転送方式	USB2.0
性能	
位置分解能	0.4m(5m先、φ2mmコリメータ使用時)
測定可能エネルギー範囲	350~1500keV(核種分析可能)

表1 ガンマカメラ仕様

2.2 基礎性能評価試験

2.2.1 エネルギー分解能

汚染核種に応じた適切な除染を実施するため に、核種の情報は重要である。核種同定は、ガ ンマ線エネルギースペクトルを測定し、核種毎 に異なる全吸収ピークのエネルギーを同定する ことで実施する。開発したガンマカメラは、核 種分析が可能なことが大きな特徴である。核種 同定の精度は、エネルギー分解能の精度に依存 する。ピンホールコリメータを取り外した状態 で、コリメータの焦点位置にCs-137及びCo-60 の点線源を設置し、そのエネルギースペクトル を測定することで、エネルギー分解能を測定し た。図2にエネルギースペクトルの測定結果を 示す。Cs-137の662keVの全エネルギー吸収ピー クの半値幅は2.3%、Co-60の1332keVの半値幅



図2 エネルギースペクトル

は1.5%であり、今回の原子力発電所の事故に より多量に環境中に放出されたI-131、Cs-134、 Cs-137に加えて、Mn-54、Co-60等の金属の放 射化により生成する核種、及び、K-40等の自然 界に天然に存在する核種の同定が可能である。

2.2.2 空間分解能

ガンマカメラは、ガンマ線強度分布の測定領 域を光学カメラで同時に撮像し、両方の測定結 果を重ね合わせることでガンマ線強度分布を可 視化している。表示密封線源(Cs-137:370MBq) を用いて、光学カメラの画像とガンマカメラの 画像を重ね合せた画像を図3に示す。線源とガ ンマカメラ間距離は5mである。光学カメラの 画像とガンマカメラの画像における線源位置が 良く一致しており、線源の空間上の位置が一目 でわかるようになっている。

ガンマ線強度分布を測定する上で、空間分解 能は重要である。図4に、空間分解の測定結果 を示す。ガンマカメラの画素中心とコリメータ 穴の中心を結ぶ延長線上5mの位置に、ガンマ 線源を設置した時のガンマカメラの各画素のカ ウント数を測定し、画素番号に対するカウン トを示すグラフのピークの半値幅を空間分解能 とした。半値幅は1.6 画素となっており、ガン マカメラから5mの位置における空間分解能は 0.4m である。



図3 光学カメラ画像とガンマカメラ画像の重ね合せ画像



図4 ガンマカメラの各画素におけるカウント数の測定結果

2.2.3 均一性

ピンホールコリメータを使用した場合、視野 内での感度が変わる可能性がある。線源を移動 させ、視野内9点での感度の測定結果を図5に 示す。視野内9点での感度は±5%以内であり、 ほぼ均一となっている。

ガンマカメラの測定環境は高温になる可能性 があるため、高温での動作確認が必要である。 装置を恒温槽に設置し、線源には Cs-137 を用い、 検出器部分の温度を変えてエネルギー分解能を 測定することで動作確認をしている。結果を図 6に示す。検出器温度が 40℃を超えても、エネ ルギー分解能がほとんど劣化することなく 2.5% 以内であり、通常の温度環境下では動作に問題 が無い。



視野内9点で測定



格納容器

原子炉建屋1階

図7 ガンマカメラの測定場所及び方向

格納容器の貫通口

(電気配線、配管用)

ガンマカメラ

測定方向

- ガンマカメラ

設置位置





圧力容器



3. 福島第一原子力発電所内外での適用例

3.1 発電所内での適用例

ガンマカメラの高線量場での適用評価のため に、福島第一原子力発電所の原子炉建屋内1階 において測定を実施した。ガンマカメラ設置位 置の雰囲気線量率は、7mSv/h程度である。測 定場所及び方向を図7に、測定結果を図8に示 す。格納容器の貫通口(ペネ)がホットスポッ トとなっていることが明確に測定できており、 高線量場においてもガンマ線強度分布が測定可 能であることを示している。

図9に、福島第一原子力発電所の原子炉建屋 内1階の他の設置場所における測定結果を示す。

図9には、ホットスポット部分のエネルギー スペクトルも示している。貫通口先端部分に線 量が集積している場合は、散乱成分に対する ピーク成分が大きくなると考えられ、ピーク計



格納容器 貫通口

図8 ガンマカメラでの測定結果

数値をコンプトン計数値で除した値が大きくな ると考えられる。また、貫通口の内部(従って、 格納容器内部)に線量が集積している場合は、 散乱成分に対するピーク成分が小さくなると考 えられ、ピーク計数値をコンプトン計数値で除



図9 他の設置場所でのガンマカメラでの測定結果

した値が小さくなると考えられる。上図の貫通 口は、格納容器側が塞いであることから、格納 容器内部に線源があると考えられ、下図の貫通 口は、格納容器外部側が塞いであることから貫 通口先端部分に線源が集積していると考えられ る。上図のピーク計数値をコンプトン計数値で 除した値は、下図と比較して小さい値になって おり、ピーク計数値をコンプトン計数値で除し た値で、線源位置を推定できる可能性を示して いる。

3.2 発電所外での適用例

発電所外の線量率が低い一般環境において は、一般的に測定時間を長く要する。日立のガ ンマカメラは、コリメータの大口径化、エネル ギー測定範囲のワイドレンジ化、及び、統計ノ イズフィルタリング技術の適用等により、測定 時間の短縮を図っている。その結果、1mSv/年 (0.23µSv/h)の設置環境下で、2µSv/h 程度の線 量集積範囲を30分程度で測定可能となってい る。また、さらなる測定時間短縮のための高感 度化も推進中である。図10に、茨城県北部の一 般環境の測定場所及び測定方向を、表2にサー ベイメータでの測定値を示す。サーベイメータ での測定値から、木の根元部分に線量集積があ ることはわかるが、その範囲の調査には時間を 要する。ガンマカメラによって、その集積範囲 の可視化ができている。



図10 一般環境の測定場所及び測定方向

	地表からの高さ		
」 场 所 	10cm	50cm	100cm
木の根元	1.92	0.85	0.58
アスファルト	0.21	0.19	0.19
ガンマカメラの設置位置	0.36	0.29	0.27

表2 サーベイメータでの測定値

線量率 [µSv/h]

図11に除染前後でのガンマカメラでの測定結 果を示す。除染は、線量集積範囲の土壌を深さ 5cm除去することで実施した。線量集積範囲に おける除染前後の計数率の比(除染係数)は1.96 であり、ガンマカメラでの測定により除染効果 の確認が可能である。





図11 除染前と除染後の測定結果

4. 車搭載型ガンマカメラ

作業者が入域困難な高線量場における測定に は、ガンマカメラを車に搭載し、遠隔操作によ る測定が必要である。図12に開発を進めている 車搭載型ガンマカメラを示す。原子炉建屋内は、 電波が届く範囲が限られている。そこで、ガン マカメラを搭載した調査機と中継器の2台のロ ボットを使用し、調査機と中継機の間を無線通 信し、中継機と制御・データ収集解析用 PC と



図12 車搭載型ガンマカメラ

の間を有線通信することで遠隔操作を実現して いる。また、ガンマカメラのコリメータ前面に シャッター機構を設け、シャッターの有無によ る測定結果の差分を取ることで、S/Nの高い測 定を実現している。既に、福島第一原子力発電 所の1号機から3号機までの測定に適用してお り、雰囲気線量率80mSv/hと非常に高い線量 場におけるガンマ線強度分布を測定している。 また、さらなる高線量場(~300mSv/h)での 測定可能とするための開発を進めている。

5. まとめ

除染作業中の被曝低減、及び、作業により発 生する汚染物低減のために、短時間で広範囲 のガンマ線強度分布を測定可能なガンマカメ ラを開発した。開発したガンマカメラは、数 10mSv/hの高線量場、及び、1µSv/h以下の低 線量場においてもガンマ線強度分布の測定が可 能であり、福島第一原子力発電所内外での適用 を進めている。

今後は、より高線量場で測定可能な装置とす ること、及び、より高感度化を図ることで低線 量場における測定時間をさらに短縮すること で、福島復旧・復興に貢献していく予定である。

参考文献

- [1] Cartgam ホームページ http://www. canberra.com/jp/products/wm_cart.asp
- [2] Gammacam ホームページ http:// gammacamnow.com/index.html
- [3] Radcam ホームページ http://www.rmdinc. com/products/p004.html
- [4] 東芝ガンマカメラ http://www.toshiba. co.jp/csr/jp/highlight/2011/revival04.htm

学位論文要録

Behavior and formation mechanism of radioactive aerosol in accelerator facilities (加速器施設において生成する放射性エ アロゾルの生成機構と挙動)

- 長田直之 (東北大学大学院工学研究科 量子エ ネルギー工学専攻 生活環境早期復旧 技術研究センター)
- 学位授与:博士(工学) 京都大学大学院工学研 究科 物質エネルギー化学専攻
- 主 查:柴田 誠一 平成 24 年 5 月 23 日

加速器室内では運転中に放出される高エネル ギー放射線により空気中で核反応が起こり、放 射性核種が生成している。また同時に化学反応 が起こり、エアロゾルが生成しその一部は放射 性核種を取り込み放射性エアロゾルとなってい る。運転後に作業者が入室する際、放射性エア ロゾルを吸入すると内部被曝を引き起こす可能 性がある。放射性エアロゾルの個数濃度や粒径 分布から呼吸器へ付着する量を見積もることが 出来、それらは内部被曝・放射線防護のため重 要な情報である。本研究では放射性エアロゾル の性状の見積もりの基礎資料となる、加速器室 内で生成する放射性エアロゾルの生成機構・成 長過程の解明を目的とした。

本研究で利用した京都大学原子炉実験所電子 線型加速器施設内で生成する放射性エアロゾル 粒子に含まれる放射性核種は、主に¹³Nであっ た。加速器由来放射性¹³Nエアロゾル粒子は、 これまで放射性エアロゾル粒子の粒径分布測定 に広く用いられてきた拡散バッテリー法など により粒径分布測定が試みられてきたが、粒径 分布は得られていなかった。このため、まず放 射性¹³N エアロゾル粒子に適した測定法を検討 した。本研究では従来法では測定が困難な原因 を、放射性エアロゾル粒子と同時に生成する放 射性ガスによる妨害と明らかにし、その影響の 程度と除去方法を検討し、改善した測定方法で 得られた結果の妥当性を示した。また照射時間 の経過による粒径分布の変化を捉えるために、 少量の試料かつ短時間で測定が可能な Graded Screen Array 法を新たに適用し従来方法の約 10 分の1 の時間で測定を行い、従来方法と同様 の結果が得られることを示した。

改善した測定法を用い、エアロゾルを含まな い清浄空気を電子線照射し生成した放射性¹³N エアロゾル粒子の粒径分布を測定し、その生成 機構を検討した結果を示した。測定した、放射 性エアロゾル粒子とエアロゾル粒子全体の粒径 分布の関係から、数十ナノメートル程度以下の 粒径範囲では生成した粒子に放射性¹³Nを含む 放射線化学反応生成物(主に硝酸と考えられる) が凝縮によって取り込まれ、放射性エアロゾル 粒子となることを初めて示した。空気中にエア ロゾル粒子が既に存在する場合は、既存のエア ロゾル粒子表面に放射性核種が拡散運動によっ て付着し放射性エアロゾル粒子が生成すると考 えられる。また、粒子生成の最初期にはイオン 核生成により凝縮が起こり粒子を生成し、その イオンの電荷は核反応の結果生成した放射性核 種やそれらから放出される放射線由来であるこ とを示した。そのエアロゾル粒子生成に重要な 役割を果たすと考えられる、放射線化学反応に よって生成する硝酸量を測定した。

放射性エアロゾル粒子の粒径分布と深い関係 を持つ非放射性エアロゾル粒子の粒径分布測定 を行い、その生成機構を検討した。⁶⁰Coガンマ 線照射装置と陽子サイクロトロンにより空気を 照射し、生成した粒子の粒径分布測定を行った。 どちらの照射においても空気に付与するエネル ギーと粒径には関係があり、付与エネルギーの 増加に伴い粒径も増大した。数十分程度の短時 間では、粒子の主な成長過程は粒子同士の衝突 によるものではなく、気相中の放射線化学反応 生成物の粒子上への凝縮によるものと示した。 生成した粒子の安定度についても測定を行い、 照射空気中の水分が粒子の安定に関係すること を示した。水分の存在は粒子の安定に寄与する が、ある程度以上の水分はイオン核生成機構に よる粒子の生成を妨げるために照射して生成す る個数濃度はむしろ減少することと示した。

これら加速器で生成する放射性エアロゾル粒 子の粒径分布の変化をモンテカルロシミュレー ションによって模擬し、上記の測定結果とあわ せて生成機構の検討を行い、また含まれる核種 の半減期の粒径分布への影響についても示して いる。放射性エアロゾル粒子の生成機構を、粒 子上への放射性核種の拡散運動による付着、放 射性核種を含む放射線化学反応生成物の粒子へ の凝縮、放射性核種をイオン核とする粒子生成 と3通り仮定し、それぞれ放射性エアロゾルと 同時に存在する非放射性エアロゾルについて粒 子を成長させて粒径分布を計算し放射性核種の 半減期との関係を示した。拡散運動による付着 と粒子への凝縮を仮定した生成機構では、これ まで知られているのと同様の粒径分布が見られ 半減期の違いによる影響はなかった。放射性核 種がイオン核となり粒子生成を起こすとした仮 定では半減期が長い核種を含む放射性エアロゾ ル粒子では大粒径の粒子が存在し、短半減期核 種では小粒径の粒子の存在のみが計算によって 示された。短半減期核種では、粒子が成長する 間にその核種は壊変して放射性エアロゾルでは 無くなるためであると考えられる。この結果は、

フェルミ国立加速器研究所の120GeVシンクロ トロンで初めて得られた多くの核種を含む加速 器放射性エアロゾルの測定結果と一致してお り、その生成機構を説明できた。

以上の結果をまとめ、放射性¹³N エアロゾル の生成機構およびその成長過程について明らか にすることができた。今後、その他の核種を含 む放射性エアロゾルの生成機構に拡張し、放射 線施設で生成するエアロゾルにとどまらず、自 然環境中で生成するエアロゾルの生成機構の解 明についての基礎的資料となることが期待でき る。

代表的な関連論文

- [1] <u>N. Osada</u>, Y. Oki, H. Kanda, K. Yamasaki and S. Shibata, Application of a graded screen array for size measurements of radioactive aerosols in accelerator rooms, Proc. Radiochim. Acta 1, 2011, 251 – 255
- [2] <u>N. Osada</u>, Y. Oki, K. Yamasaki and S. Shibata, Influence of Radioactive Gas on Particle Size Measurement of Radioactive Aerosol with Diffusion Battery Method, Prog. Nucl. Sci. Technol. 1, 2011, 483 486
- [3] S. Yokoyama, K. Yamasaki, Y. Oki and <u>N. Osada</u>, Time Variation of Particle Size Distribution of Aerosols Generated at Accelerator Facilities, Jpn. J. Health Phys. 43 (4), 2008, 333 – 340
- [4] <u>N. Osada</u>, Y. Oki, K. Yamasaki and S. Shibata, Application of Aerosol Formation to Radiation Dosimetry in High-Dose Radiation Fields, Prog. Nucl. Sci. Technol. (in press)

■ トピックス

IAEA Japan Proficiency Test

大浦泰嗣(首都大学東京)

福島第一原発事故により環境中に放出された 放射性核種の非破壊ガンマ線測定が国、大学、 民間企業、市民団体など様々な機関で行なわれ ている。これらの定量値の信頼性を確保するた めには、含有量既知である標準物質の分析が欠 かせない。しかし、当初、国内には環境中の放 射性核種定量のための標準物質がなかった。(現 在では、土壌 [JSAC 0471, JSAC 0472, JSAC 0473]と玄米 [CRM 7541-a] の認証標準物質 が頒布されている。)そこで筑波大学の恩田裕 一教授が国際原子力機関(IAEA)と交渉し、 IAEA より標準物質を提供してもらい、日本限 定での放射性核種測定技能試験(The IAEA-TEL-2011-08 National Japanese proficiency test on the determination of radionuclides in soil, grass, water and air filters) が行なわれること となった。

この技能試験(PT)には、筆者も含め、大学、 国立研究所、民間企業など21機関が参加した。 配布された試料は、水、土壌、草、ならびにエア フィルタの計10試料で、表1に示すα放射体も 含む放射性核種が含まれている。土壌と草は、チェ ルノブイリ事故により汚染した環境試料から調製 されており、水とエアフィルタは既知量の放射性 核種を添加した人工試料であった。各機関の分 析結果は、4月までにIAEAに報告され、5月下 旬には各参加機関にそれぞれの評価結果が届いて いるようである。10月にIAEAの担当者が来日 し、報告会と技術指導が行なわれる予定となって いる。このPTの詳細については、http://fmwse. suiritsukuba.ac.jp/JapanPT.html をご覧くださ い。

ここで、筆者の分析について簡単に紹介したい と思う。水、土壌、草はU-8容器に分取し、エアフィ ルタは受け取った状態のままγ線を測定した。 Ge 検出器の計数効率曲線作成のための標準線源

には、日本アイソトープ協会製のU-8型9核種混 合アルミナ線源 [MX033U8PP] と¹³⁴Cs+¹³⁷Cs ア ルミナ線源 [MX035U8PP] をもちいた。また、 9核種混合標準溶液 [Ecker&Ziegler 社製 7900] をもちいて U-8 型の溶液標準線源を調製し、水溶 液とアルミナでの計数効率を比較したところ、誤 差内で一致した。そこで実際の定量にはすべてア ルミナ線源から求めた計数効率を使用することと した。フィルタ用の標準線源は、同サイズの石 英フィルタに既知量の標準溶液 [7900] を滴下・ 乾燥して作成した。この機会に院生時代に N88basic で作成した計数効率曲線(二次式+一次式) をフィットするソフトを EXCEL の VBA によう やく移植した(筆者の HP からダウンロードでき ます)。ガンマ線測定でのサム効果は教科書の知 識だけで、これまで実際に考慮したことはなかっ た。今回、60Co と ⁸⁸Y よる計数効率は、サム効果 によって明らかに低くなっていることがわかった ので、¹⁰⁹Cdの88keVから⁵⁴Mnの835keVまで の計数値から計数効率曲線を作成した。標準線源 に含まれる核種の定量には、その計数効率をその まま用いた。

まず、練習として土壌標準試料 IAEA-444 の定 量をおこなった。この標準試料は、恩田教授によ り提供され、参加機関で回覧して使用された。こ の IAEA-444 の定量では、59 keV ガンマ線を利 用する²⁴¹Am の定量値が全く合わなかった。88 keV から 59keV への外挿により得た計数効率が 正しくなかったと判断した。そこで、水試料の ²⁴¹Am の定量は、IAEA-444 から求めた計数効率 を使用することにした。

PT 用の試料は、できる限り複数の検出器で定量した。エアフィルタの¹³⁴Csの定量では、#10 試料を使って、検出器上に置いての測定と15cm ほど離しての再測定を行い、サム効果の補正係数 を得て、残り2枚の定量に適用した。複数の検出 器における定量値が一致することを確認した後、 IAEAに結果を報告した。我々の定量値の評価は、 ²⁴¹Amを除いて満足のいくものであった。低エネ ルギーのγ線の測定には注意を要する事を再認識 したしだいである。

本 PT 実施にご尽力され、また、参加する機会 を与えていただいた恩田教授に感謝致します。

表 試料と核種

水 500g 4 種類(01,02,03) ³ H, ⁶⁰ Co, ¹³³ Ba, ¹³⁴ Cs, ¹³⁷ Cs, ¹⁵² Eu、 ²⁴¹ Am
土 150g 1種類 (04) ⁴⁰ K, ¹³⁷ Cs, ²³⁴ U, ²³⁸ U, ²³⁸ Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
草 250g 3種類(05,06,07)

之 137 Cs

エアフィルター 34mmø3 種類(08,09,10) ⁵⁷Co, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁵²Eu, ²⁴¹Am



゠追悼文 :

ローランド先生を偲んで

富永 健(東京大学名誉教授)

本会外国人特別会員で米国カリフォルニア 大学教授のシャーウッド・ローランド氏(F. Sherwood Rowland、友人からは Sherry と呼ば れていた)は、2012年3月10日パーキンソン 病の合併症のため、カリフォルニア州コロナ デルマーの自宅で84年の生涯を閉じた。

氏は、これまで度々招かれて来日し、とくに 放射化学者とは戦後早くから交流があり、わが 国の放射化学の発展にも寄与するところが大き かった。その後、クロロフルオロカーボン(CFC, 日本ではフロンともいう)による成層圏のオゾ ン層破壊の発見によって、1995年ノーベル化学 賞に輝いた(日本化学会の名誉会員でもある)。 大気の地球環境問題のパイオニアというべき氏 の突然の訃報は、世界的に大きな損失であるば かりでなく、放射化学・大気化学の両面で長年 緊密な協力・交流を続けて来た筆者らにとって も痛恨の極みである。ここでは、日本の放射化 学とのかかわりを中心に氏の足跡を偲びたい。

ローランド氏は、1927年6月28日米国オハ イオ州デラウェアの生まれで、オハイオウェス リアン大学を卒業後シカゴ大学のW.F.Libby 教授(後に炭素14年代決定法の発見で1960年 ノーベル化学賞受賞)に師事し、放射性臭素の 有機ホットアトム反応の研究で1952年Ph.Dの 学位を得た。そして、プリンストン大学、カン ザス大学を経て1964年新設のカリフォルニア大 学アーバイン校(UCI: University of California, Irvine)の化学科主任教授となり、以来今日ま で中心的な存在であり続けた。

カンザス大学でトリチウムによる水素置換な どのホットアトム化学反応の研究を始めたこ ろ、氏のグループに神原富尚博士(静岡大学) が加わったのが日本とのかかわりのきっかけで ある。まもなく、1959年静岡で開催された第3 回放射化学討論会で特別講演の予定であった G.



von Hevesy 教授が急病のため、代役としてロー ランド氏が初めて来日することになった(氏 は 1980 年弘前での第 24 回放射化学討論会でも 特別講演を行っている)。当時は、海外の著名 な学者の来日はまだ稀で、討論会の後、氏は招 かれて各地の核・放射化学研究室を訪れてリー ダーや若い研究者達に接する機会を得た。東大 の斎藤信房教授門下の大学院生(修士2年)で あった筆者も錯体のホットアトム反応について の研究をセミナーで披露したが、この出会いが 半世紀を超える氏とのつきあいの始まりになる とは予想もしなかった。木村健二郎名誉教授の 招きで訪れた日本原子力研究所では、氏は後に ウィーンの IAEA で再会することとなる原礼之 助博士にも会い、その後梅澤弘一博士、立川圓 造博士をはじめ原研からカンザス大学や UCI の ローランド研究室に次々に留学する流れが続い た。

東大からは、1967 ~ 68 年筆者がまだ建設途 上の UCI のローランド研究室に博士研究員と して1年半ほど滞在した。当時すでに、氏はト リチウムなどのホットアトム化学を中心に核 放射化学分野で活躍する物理化学者として著 名であり、反応メカニズムなどをめぐって R. Wolfgang エール大学教授と学会でいつも激し い論争を展開していた。その後、巻出義紘博士、 佐藤春雄博士をはじめ4名が留学しているが、 1970 年代後半以降はローランド研究室では放射 化学よりも大気化学の研究が主流になっていっ た。こうして、静岡大、原研、東大、京大など から氏のグループに参加した研究者は十数名に のぼり、これらの分野での交流・協力に貢献し た。

一方、このような個人的レベルでの協力に止 まらずホットアトム化学をはじめ核放射化学全 般にわたる組織的な研究協力の推進という意味 では、1973年大磯で開催された第1回の日米セ ミナー「放射化学的手法およびその応用におけ る最近の進歩」(NSF・日本学術振興会主催)の 役割が大きい。このセミナーの日米の代表者は 木村健二郎名誉教授とローランド教授であり、 核放射化学と応用分野を代表する研究者達が合 宿して重要な課題について熱心な討議を行なっ たもので、日米間の相互理解とその後の協力・ 交流の土台づくりに役立った。米国側の参加者 にはG. R. Choppin, R. H. Herber, A. P. Wolf, H. E. Suess らが含まれていた。このセミナーから 9年後(1982年)には、第2回の日米セミナー「放 射化学的手法のライフサイエンスにおける応用 の最近の進歩」が筆者とローランド教授らを代 表者として UCI で開催されている。

世界のホットアトム化学研究がピークに達した 1970 年頃には新たな展開が必要となって、 ローランド教授も化学者の取組むべき新たな課 題を求めて周辺分野にも関心を向けつつあった (師の Libby 教授からは、いつも「何か新しい こと」に挑戦するように教えられていた)。そし て、大西洋上の大気中に極微量の人工物質 CFC を検出したという J. E. Lovelock の報告が、ロー ランド教授に大気化学への第一歩を踏み出させ た。スプレーの噴射ガスとして大量に大気中に 放出され、かつ化学的に極めて安定なこの物質 は最後にどうなるのか? 1973 年に氏のグルー プに新たに加わった博士研究員 Mario J. Molina

とともに大気中での CFC の挙動や寿命の研究に 着手した(筆者はこの話を日米セミナーのコー ヒーブレイクに氏から聞いた記憶がある)。まも なく、CFC が対流圏ではほとんど分解せずに蓄 積し、やがて成層圏に上昇すると強い紫外線に よって初めて分解され、塩素原子が放出される との結論に達した。そして、塩素原子は成層圏 オゾン層で連鎖反応により多数のオゾン分子を 分解する結果、数十年後にはオゾンの1割近く が失われると予測した。この仮説が1974年に 発表されると大きな反響をよんだが、氏にとっ ては主に業界からの強い反発や懐疑的な化学者 たちからの批判という逆風の中にあってその正 当性を実証する長い苦難の日々の始まりであっ た。しかし、大気の観測・分析や実験室での研 究によって仮説の正しさは次第に証明されてゆ き、さらに 1980 年代に入って南極オゾンホール の出現や北半球でのオゾン減少傾向などの決定 的な証拠が明らかとなって世界はオゾン層保護 のためにフロン規制の画期的な取組み(ウィー ン条約・モントリオール議定書)に踏み出すこ ととなったのである。今日では、オゾン層保護 はこれまでの地球環境問題の中で唯一の成功例 とも云われているが、これは発見の当初から全 体像を的確に見通した氏の優れた科学者として の洞察力と科学者の社会的責任に対する強い信 念と勇気の賜物と云っても過言ではあるまい。 氏はまた科学者として極めて公正にふるまい、 逆風の中でも決して問題を誇張したり、マスコ ミを都合よく利用したりすることはなかった。 このような思慮深さと倫理観に、社会的影響の 大きい問題にかかわる科学者達は範をとるべき であろう。

1995年氏らに贈られたノーベル化学賞の授賞 理由は、「オゾン層の消長を支配するメカニズ ムを明らかにし、人類を地球環境問題の破局的 な結末から救うことに貢献した」ことで、自然 科学の賞にはやや異例の社会的貢献が評価され ているが、氏にとってはむしろ本望であったか も知れない。また氏が手にした多くの栄誉の中 でも特に縁の深い日本から贈られた日本国際賞 (1989年)は感慨深いものであったようである。 その後の氏は、大気化学の巨星として学界の 信望を集める一方、NASのForeign Secretary (米国科学アカデミーの国際部長)として環境問 題ばかりでなく各国が直面するさまざまな課題 に対応する国際的な取組みの推進にも活躍して いた。

若い頃にはセミプロの野球チームでプレー したこともある氏は、2メートル近い堂々たる 体躯と平生は厳しい風貌ややや辛口の応待か ら、気難しい人と思われやすいが、実は細やか な気配りも豊かで温かな人柄であった。スポー ツ好きであったが、またメトロポリタンオペラ の後援会に名を連ねる大のオペラファンでも あった。一年の半ば以上を旅に過すほど超多忙 であった氏も、最近は健康がすぐれない様子 で気がかりであったが、去る3月12日深夜の ニュースで以前東大で氏の来訪を受けた際の 古い映像とともに突然訃報が伝えられ愕然と した。逆風下の苦難の時期に氏を最も支えて きた Joan 夫人は、筆者の哀悼の電話に対して "It is the passage of time, Ken"と静かに答え た。遺骨は氏の遺志により自宅を望む太平洋に 散骨された。半世紀近くにわたって筆者の敬愛 する mentor であり、良き友人であった Sherry Rowland の冥福を心から祈りつつこの追悼文を 捧げる。

= 追悼文

Attila Vértes 先生を偲んで

by Ernö Kuzmann (竹田満州雄先生よりご紹介)

Springer 社の web ページに掲載 (Springer 社より転載許可)

Attila Vértes (1934-2011), famous Hungarian nuclear chemist and educator dies

Attila Vértes, renowned radiochemist, member of the Hungarian Academy of Sciences, distinguished professor of the Eötvös Loránd University, Budapest, author of over 500 original scientific papers, editor of numerous science monographs, outstanding science organizer, everyone's Attila died on 31 December, 2011.

Born in Türje, Hungary, 1934 Attila Vértes received his M.S. degree in chemistry at the Technical University Budapest in 1958. He earned his second M.S. degree in Economy in 1962 from the University of Economics, Budapest. Having had joined the Department of Radiochemistry of the Lomonosov (Moscow State) University, he was awarded the Candidate of Sciences (PhD) degree by the Soviet Academy of Sciences in 1965. He received the Doctor of Science degree of the Hungarian Academy of Sciences in 1973 for his thesis entitled "Mössbauer studies of the chemical structures of solutions". Attila Vértes became a Corresponding, then an Ordinary Member of the Hungarian Academy of Sciences in 1993 and 1998 for his inaugural addresses on positronium chemistry and Mössbauer spectroscopy f coordination compounds, respectively. In 1974, he became professor in chemistry at Eötvös Loránd University, Budapest. He headed the Department of Nuclear Chemistry of Eötvös Loránd University, Budapest from 1983, and the Research Group of Nuclear Methods in Structural Chemistry of the Academy from 1996 until his retirement in 2004. He continued his teaching and research activities as Professor Emeritus at the same university.

He had been a visiting scientist at the University of Newcastle, a Humboldt Fellow at the Technical University Munich (Germany) as well as a guest professor at Lehigh University, Bethlehem (USA), Tokyo University (Japan) and at Johannes Gutenberg University, Mainz (Germany).

Since the very beginning of his career, Professor Vértes was much interested in the interaction of nuclear radiation with matter, focusing his activities on Mössbauer spectroscopy and positron annihilation spectroscopy. In Mössbauer spectroscopy, he substantially contributed to obtain significant experimental data and to elucidate hyperfine interactions of iron, tin and europium in alloys, composite materials, biomolecules, inorganic salts, organometallic and coordination compounds, as well as high-temperature superconductors. Remarkable are his contributions to the understanding of the complex formation and equilibria in aqueous and non-aqueous solutions.

He was great in disseminating excellent scientific ideas. Besides being an outstanding scientist, Attila Vértes was an outstanding organizer. He established a large number of scientific collaborations.

His significance and position in the scientific community was recognized by the Hungarian Academy of Sciences by his becoming chair of the Division of Radiochemistry (1993– 2002), and that of numerous domestic and international conferences. From 1980 to 1988, he was a member of IBAME, the International Board on the Applications of the Mössbauer Effect and held editorial spots on some of the international journals in the field.

He received the title of Honorary Doctor of Glasgow Caledonian University (U.K.) in 1996. He was awarded the

Széchenyi Prize in 2001 and the George Hevesy Medal Award in 2004.

Professor Vértes co-authored more than 500 scientific papers in international journals on topics of nuclear and radiochemistry, radiation chemistry and physics, chemical physics, inorganic chemistry, solid-state chemistry and physics, electroanalytical and materials chemistry. He also made over 280 presentations at international conferences. As a member of the Mössbauer Century Club, he had the distinct honor of having the highest number of publications (503) amongst the Mössbauer spectroscopists. He is author and editor-in-chief of 10 monographs and textbooks in the field of nuclear and radiochemistry, including the voluminous Handbook of Nuclear Chemistry (Springer, 2003 and 2011) . His valuable Textbook on Nuclear and Radiochemistry (Elsevier, The Netherlands, 1987) is used

extensively in university courses.

Professor Vértes was a great educator and established a school in nuclear chemistry. He consistently promoted young scientists, starting their career by creating appropriate positions and funds and by helping them to attend schools, courses. Professor Vértes was a demanding but inspiring teacher. Many chemists and physicists considered him not only a valued colleague but also a dear friend and a mentor. His students and followers have spread all over the globe.

He had an open and charming personality free from formalities. Professor Vértes was addressed or mentioned by his first name Attila not only by his friends but by all colleagues and acquaintances around the entire world. Attila was an exceptionally warm and unpretentious person, with old-world grace and a good sense of humor. He was a loving husband to his wife Irén, a father to his sons Attila and Csaba, and a proud grandfather of Csaba Jr.

Dear Attila, your warm character and sincere attitude shall never be forgotten.

Ernö Kuzmann

Attila Vertes had friendships with Professors Hirotoshi Sano, Yoshimasa Takashima, late Eiji Fujita, late Yuuji Nakamura, Yonezo Maeda, Tetsuro Nishida, Kiyoshi Nomura and me.

Masuo Takeda

= 施設だより

理研 RI ビームファクトリーの被害状況と震災対応

羽場宏光(理化学研究所仁科加速器研究センター)

1. はじめに

埼玉県和光市にある理化学研究所 RI ビーム ファクトリー (RIBF) は、重イオンリニアック (RIKEN Linear ACcelerator, RILAC) とサイ クロトロン5基(K70 AVF Cyclotron、AVF; K540 RIKEN Ring Cyclotron, RRC ; K570 fixed frequency Ring Cyclotron, fRC ; K980 Intermediate stage Ring Cyclotron, IRC; K2500 Superconducting Ring Cyclotron, SRC) から構成される重イオン加速器施設である。本 施設では、RILAC と AVF を RRC の入射器と し、RRC + fRC + IRC + SRC と連結して、へ リウムなどの軽いイオンで核子当たり 400 MeV (400 MeV nucl.⁻¹)、ウランなどの重いイオンで 345 MeV nucl.⁻¹まで加速することができる。こ の高エネルギー重イオンを標的原子核に衝突さ せて生じる入射核破砕反応生成核を、BigRIPS (Big RIKEN Projectile fragment Separator) に よって分離し、Uまでの全元素領域にわたって

RI ビームを世界最大強度で発生させることがで きる。また、RRC、AVF、RRCからは、それ ぞれ最大135、14.5、6 MeV nucl.⁻¹の重イオン ビームを取り出すことができる(加速可能なイ オン種、エネルギーや強度の詳細は、ウェブサ イト[1]を参照)。RIBFは、2006年から稼働 を開始し、原子核、核・放射化学、放射線生物学、 核医学など、様々な分野における研究が行われ ている。本稿では、2011年3月11日に発生し た東北地方太平洋沖地震による RIBF の被害状 況と理研仁科加速器研究センター(仁科センタ ー)の震災対応について報告する。

2. 被害状況と復旧

東北地方太平洋沖地震において、和光市の 震度は5弱であった。RIBFの主な地震被害 は、リニアック棟と仁科記念棟の加速器ビーム ラインの破損であった。図1に破損した真空 ダクトの写真を示す。仁科センターでは、全



図1 リニアック棟(a)と仁科記念棟(b)の加速器ビームラインの破損の様子。理研仁科加速器研究センター 加速器基盤研究部上垣外修一氏提供。

カで RIBF の復旧作業を行い、地震から僅か 約3週間でまず RILAC を稼働させた。それ から約2ヶ月間で、全ての加速器と BigRIPS、 ZDS (Zero Degree Spectrometer)、SHARAQ (Spectroscopy with High-resolution Analyzer and RadioActive Quantum beams) などの大型 基幹実験設備を稼働させた。半年後の7月15日 には、国内外の RIBF ユーザーに 2011 年度後期 ビームタイムの募集を開始した。

3. 震災対応

東北地方太平洋沖地震から4日後、3月15日 午前4時、理研和光研究所のモニタリングポストの実効線量率が、通常の0.03 μSv h⁻¹ から上 昇を開始し、午前10時に最大値1.15 μSv h⁻¹を 記録した。この異常な事態に、筆者らは、まず 駐車していた自動車の窓ガラスをスミアし、ゲ ルマニウム検出器を用いてγ線を測定してみた。図2に、そのγ線スペクトルを示す。福島 第一原子力発電所の事故起源と推測される¹³¹I、 ¹³²gI、¹³³gI、¹³¹mTe、¹³²Te、¹³⁴gCs、¹³⁶gCs、¹³⁷Cs などが明確に同定されている。筆者らは、定量 的なデータを得るため、急いで仁科記念棟の2 階テラスにローボリュームエアサンプラーを設 置し、2011 年 3 月 15 日 から 2012 年 3 月 16 日 までの1 年間、継続して大気中放射能濃度を計 測した。ここでは、¹⁴⁰La、¹⁴⁰Ba、¹³⁷Cs、^{136g}Cs、 ^{134g}Cs、^{133g}I、^{132g}I、¹³²Te、¹³¹I、^{131m}Te、^{131g}Te、 ^{129m}Te、^{129g}Te、^{110m}Ag、^{99m}Tc、⁹⁹Mo、^{95g}Nb な どの核種が同定された。理研和光研究所におけ る大気中放射能濃度の計測結果は、実効線量率 と降雨量データとともに、日本放射化学会ウェ ブサイト「緊急時環境放射能モニタリングデー タ」などで公開している [2]。

筆者らは、平成23年度科学技術戦略推進費・ 重要政策課題への機動的対応の推進及び総合科 学技術会議における政策立案のための調査・放 射性物質による環境影響への対策基盤の確立 「放射性物質の分布状況等に関する調査研究」 において、日本原子力研究開発機構(原子力機 構)の委託を受け、土壤汚染マップ作成に向け た土壌試料の放射線分析を行った。仁科センタ



図 2 2011 年 3 月 15 日 14 時 30 分、理研和光研究所(35°46'44'N、139°36'54'E) にて採取された 屋外スミア試料(1.75 m2)のy線スペクトル。試料採取後 13 分から 7207 秒間測定。

ー職員 30 名の協力を得て、294 の土壌試料をゲ ルマニウム検出器を用いて測定し、¹³¹I、¹³⁷Cs、 ¹³⁴Cs、^{110m}Ag、^{129m}Teの5核種の放射能を決定、 東京大学原子核科学研究センターにデータを提 出した。この計測結果は、他の20機関による測 定データと合わせて、文部科学省より8月30日 (¹³⁴Cs、¹³⁷Cs)、9月21日(¹³¹I)、10月31日(^{129m}Te、 ^{110m}Ag) に公表された[3]。また、同推進費 「農地土壌等における放射性物質除去技術の開 発」において、水産総合研究センター、筑波大 学、慶應義塾大学との共同研究「太陽光レーザ ーを用いた藻類成長プラントの開発」に協力し た。筆者らは、ストロンチウムのトレーサー実 験に有用な⁸⁵Sr を AVF サイクロトロンを用い て⁸⁵Rb(*p*,*n*)⁸⁵Sr 反応によって製造し、化学精 製、ゲルマニウム検出器と ICP-MS を用いた製 品検定を行った後、筑波大学に供給した。本プ ロジェクトでは、放射性物質除去に適した藻類 の選定、大量培養技術の開発、太陽光を用いた 藻類成長プラントの開発などが行われた[4]。

仁科センターの多数の職員が、被災地住民 のスクリーニングや土壌試料採取のために東北 地方に向かった。さらに、環境放射能測定や放 射線検出技術の開発なども行われた。これら の取り組みは、仁科センターの年報「RIKEN Accelerator Progress Report」の福島セクショ

表1 RIKEN Accelerator Progress Report Vol. 48に掲載予定の福島第一原子力発電所事故関連の論文。

Author	Title of the paper
N. Aoi et al.	Radiation screening of evacuated people in Fukushima
H. Haba <i>et al</i> .	Measurement of radioactivity concentrations of airborne radionuclides in Wako after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident
Y. Kobayashi <i>et al</i> .	Measurement of ¹³⁷ Cs and ⁹⁰ Sr in a surface soil sample obtained from Namie, Fukushima
H. Matsumura <i>et al</i> .	Diffusion of radioactive materials from Fukushima Daiichi nuclear power plant detected by gamma-ray measurements on expressways
S. Moriya and H. Otsu	Gamma ray spectroscopic analysis of underwater environmental samples of nearby ocean from Fukushima Daiichi nuclear power plant
H. Mukai <i>et al</i> .	Gamma-ray dose resulting from the accident at Fukushima Daiichi nuclear power plant, as measured by the radiation monitoring posts in Wako campus
H. Otsu <i>et al</i> .	Environmental radioactivity at Wako from Fukushima Daiichi nuclear power plant
H. Otsu <i>et al</i> .	Radioactive Xe arriving in and passing through Wako area
F. Sakuma <i>et al.</i>	Measurement of β -ray emitting isotopes from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident
S. Shimoura	Analysis of gamma-ray emitters in soils for obtaining maps of deposited radioactive substances around Fukushima Daiichi nuclear power plant
A. Taketani et al.	Development of pulse height analyzer for education about radiation
M. Wada	Alternative method to evaluate internal dose using simple γ -ray spectrometer
M. Wada	NaI scintillation detectors for quantitative measurement of radioactive cesium in milk, blood urine, and soil
M. Wada <i>et al</i> .	Pilot survey of feral cattle in the vicinity of Fukushima Daiichi nuclear power plant
M. Wada and H. Haba	Simple screening method for radioactively contaminated food using ashing method with Geiger-Müller counter

ンに纏められ、近々出版される予定である[5]。 表1に、論文の題目を示す。その他の仁科セン ターの震災対応として、被災した原子力機構タ ンデム加速器の実験課題「中性子魔法数126を 有するアクチノイド原子核の合成」を RIBF で 受け入れ、2011年10月2日~8日、RILACを 用いて行った[6]。

4. おわりに

理研 RIBF の震災被害は、前号で報告があっ た他の東日本の加速器施設(J-PARC [7]、筑波 大学タンデム加速器施設 [8]、原子力機構タン デム加速器 [9]、東北大学電子光理学研究セン ター [10])に比べて非常に小さな被害状況であ った。RIBF の施設利用は、地震から半年後の 2011 年9月より再開されているが、昨今の電力 事情は、大型加速器施設である RIBF にとって 重大な問題である。

RIBFでは、共用促進・産業連携部が窓口と なり、ユーザーによる施設共用の効率的な運営 と適切な支援、国内外研究機関との研究協力の 推進やユーザーの開拓を進めている。放射化学 分野から、RIBFを利用したユニークな研究課 題が次々生まれることを期待したい。RIBFの 利用方法については、ウェブページ [1] を参照 いただきたい。

参考文献

- [1] 理化学研究所仁科加速器研究センター RI ビームファクトリーウェブサイト (http:// www.nishina.riken.jp/RIBF/accelerator/ overview.html).
- [2] 日本放射化学会ウェブサイト (http:// www.radiochem.org/kinkyu/index.html)。
 H. Haba, J. Kanaya, H. Mukai, T. Kambara, and M. Kase, Geochem. J. 46, 271 (2012).
- [3] 文部科学省ウェブサイト (http:// radioactivity.mext.go.jp/old/ja/distribution_ map_around_FukushimaNPP/).
- [4] 読売新聞、2012年4月3日。朝日新聞、 2012年4月26日。
- [5] Fukushima Section, RIKEN Accel. Prog. Rep. 45 (in press). RIKEN Accelerator Progress Report ウェブサイト (http:// www.nishina.riken.jp/researcher/APR/ archive.html).
- [6] Y. Wakabayashi et al., RIKEN Accel. Prog. Rep. 45 (in press).
- [7] 二宮和彦、三浦太一、放射化学ニュース 25,47 (2012)。
- [8] 笹 公和、放射化学ニュース 25, 50 (2012).
- [9] 長 明彦、放射化学ニュース 25,55 (2012).
- [10] 菊永英寿、放射化学ニュース 25,58 (2012).

= 施設だより =

東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターの被災状況と現状

涌井崇志(東北大学 サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター)

1. はじめに

東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトー プセンター (CYRIC) は、930 型サイクロトロ ン (K=110 MeV) と、小型のHM12型サイク ロトロンを有する学内共同利用施設である。930 型サイクロトロンでは、陽子や重陽子と、ヘリ ウムからアルゴンまでの重イオンが加速され、5 つのターゲット室に設置された合計9本のビー ムライン(図1)に供給されている。これらの ビームは、理工学からライフサイエンスにわた る広い分野において、研究や教育、民間企業の 開発研究など多目的に利用されている。一方、 HM12型サイクロトロンは、陽電子断層撮影 (PET) 用のポジトロン放出核種製造専用であ り、12 MeV の陽子と6 MeV の重陽子が加速さ れている。HM12型サイクロトロンに付設され ている短寿命 RI 製造装置で生成された PET 核 種は、PET 用薬剤の開発研究や PET 装置を用 いた臨床研究に利用されている。

2011年3月11日に発生した東日本大震災に おいて、CYRICが位置する仙台市青葉区では震 度6弱の強い揺れに見舞われた。幸いにも人的 な被害は無かったが、加速器施設やPET診断 装置、放射線管理システムなどが被害を受けた。 本稿では、加速器施設を中心に、CYRICの被害 状況や復旧作業の現状、そして共同利用再開の 見通しについて紹介する。

2. 震災後の対応

地震発生時、930型サイクロトロンはメイン コイルを通電しての電流安定度試験を実施して いた。一方、HM12型サイクロトロンは平成22 年度の共同利用をすでに終了しており、停止中 であった。また、これらの他に ECR イオン源 単独での試験運転を実施していた。加速器オペ レータなどの試験運転要員は、全て制御室に居



図1 加速器施設の概略図

た。地震の揺れが強くなってきた段階で、制御 室の全員が制御机の下にもぐり、落下物に備え た。揺れが長く続く間に停電した。揺れが収まっ てから緊急時対応マニュアルに従って指定の避 難場所に集合した。加速器施設が置かれている サイクロトロン実験棟は耐震補強を中心とした 改修工事が2009年に行われており、建屋に大き な被害が無く、また、居室や管理区域について も棚固定等の耐震対策や避難路の幅の確保が徹 底されており、スムーズに避難することができ た。避難場所では、大きな余震が断続的に続く 中、研究部ごとに点呼を取り、当日 CYRIC に 居た全員の無事を確認した。その後、放射線管 理の担当者は、放射性物質の漏えいにつながる 建屋被害の確認のために、また、加速器グルー プは、火災等の二次災害を予防する措置を取る ために管理区域内に入域した。作業を短時間で 終えるために、分電盤の遮断器などはそのまま

とした。作業終了後、作業者の点呼を取り、施 設全体を施錠・閉鎖し、解散した。

週が明けた3月14日には、施設部による建 屋の状況調査が行われ、問題の無いことが確認 された後に建屋への立ち入りが可能となった。 そこで懐中電灯を片手に施設の被災状況の確認 や、施設の受変電設備の主遮断器の開放などを 実施した。受変電設備への特高の受電は、翌15 日であった。施設内の復電作業では、まず各分 電盤で遮断器を一旦開放し、その後系統ごとに 絶縁試験を実施しながら慎重に復電することと した。この段階で CYRIC 内に大学の「福島第 一原子力発電所事故対策本部」が設置されるこ ととなり、事務機能の回復と合わせてサイクロ トロン実験棟の非管理区域を優先して復電作業 を行った。続いて CYRIC 周辺の空間線量デー タを自動取得するために、放射線モニタリング システムを復電した。しかし、測定データの処 理を行う主装置がラックから落下しており、再 起動ができなかった。さらに各検出器からの信 号も正常に送信されておらず、システムとして ほぼ全損という状況であった。

3月16日の時点でも断水が続いていたが、受 水槽内に水が残っていたため、出勤者がトイレ を使えるよう、受水槽のポンプを復旧した。水 道の復旧は翌3月17日であった。この頃はまだ、 公共交通機関がマヒし、ガソリンも極めて入手 困難であったため、地震発生以降3月23日まで は、出勤可能な職員を除いて原則自宅待機とし ていた。自宅待機中の3月22日には災害報告書 を提出するよう連絡があり、目視点検の結果を まとめて提出した。

各機器の動作試験などの本格的な被害状況調 査は、通勤事情が改善し、生活も落ち着きを取 戻し始めた4月に入ってから開始した。また、 被害状況調査や復旧工事の間には、大学総長や 文部科学大臣をはじめとする文科省関係者、国 会議員の視察が行われた。

施設の被災状況

930型サイクロトロンは、重さが250トンあ り、太さ1.7×0.8 m、高さ4 m の2本の鉄筋コ ンクリート製の支柱で支えられている。この支 柱上部には梁が渡されており、横揺れを抑制す る構造となっている。今回の地震では、この梁 よりも上部が損傷した(図2)。この損傷により サイクロトロンが5 mm 程度傾いた状態となっ た。サイクロトロン本体では、加速箱を位置決 め・固定するプレートの溶接部分に大きな亀裂 が生じ、位置決めピンも変形、また固定ブラケッ トが破損した。また、メインコイルの一部で焦 げ跡が見つかった。RF 共振器では、レールの 固定部品が破損し、共振器後部の外筒台車の車 軸が偏芯した。RF アンプの内部でもアンプの 固定ビスが抜けて散乱したほか、コンデンサー 取り付け部が変形し、破断寸前の状態となった。 本体周辺では、図3に示すように、床に固定さ れている機器と本体との間で主な被害が生じ た。

ビーム輸送系では、7か所でビームダクトの 外れが見られたほか、これによる大気流入で一 部の真空ポンプが破損した。また、主として四 重極電磁石や偏向電磁石に±1 mm 程度の位置 のずれが生じ、レベルも1 mm 程度の沈み込み が確認された。電磁石では、ビームダクトの接 続用クランプがコイルに当たり破損しているも のや、落下物が当たりコイルが部分的に破損し ているものがあった。電磁石の電源は、一部が ラックごと傾倒し破損した。電磁石室(図1) では、送風用ダクトの吊下支柱が脱落し、ダク トが落下したが、天井クレーンの桁に乗り、ビー ムコース上への落下は免れた。

各実験室では機器の搬出入用の遮蔽扉の被害 が大きかった。全ての遮蔽扉はターゲット室の



図2 サイクロトロン本体の支柱



ブラー引換装置支持台 RFショート板用レール 出射系ビームダクト 出射ライン真空構支持ポルト 図3 930 サイクロトロン本体とその周辺の被害

開口部にたいして垂直に出し入れするタイプの もので、開口部の壁と扉の間には5 mm 程度の 隙間しかない。また重さは場所にもよるが、10 ~20トンである。遮蔽扉のうち、特に図1に示 した⑧(第2ターゲット室)と⑩(第1ターゲッ ト室)は、地震発生時に開けられていたため、 扉に対して横方向に揺さぶられ、駆動部分が耐 えられずに大破し、扉本体が台車から外れて床 に落ちた状態となった。これらの扉はターゲッ ト室入り口の開口部をふさいだ状態になってお り、入室路は狭い階段通路だけで、復旧工事用 の大型機材を搬入できない状況となった。屋外







図5 PET 関連の被害。ホットセルの排気ダクト(左上)。ドーズキャリブレータ(右上)。 オートガンマ装置(左下)。落下物が散乱した測定室(右下)。

へ通じる①~⑤と⑦の遮蔽扉では、レールの基 礎が特に南側に向かって傾斜しており、扉を閉 め切ることができない状態になった。これらの 遮蔽扉ではレールの水平を調整し直す必要が生 じた。さらにほとんどの遮蔽扉は駆動方向にた いして横にずれが生じ、開口部の壁と擦れる状 態となった。特に⑪の遮蔽扉では、本震から数 日後の開閉試験の際に、開けることは出来たも のの、開口部の壁に当たり閉められない状態と なった。この扉は4月7日の最大余震でずれが 戻り、閉められるようになった。

HM12型サイクロトロンは、ヨークが縦置き となっており、全体がレールに乗せられている。 今回の震災では、地震の揺れに伴って、ヨーク 全体がレール上を揺さぶられ、ヨークを固定し ているロックピンとその取り付け部分が破損し た。これによりヨーク全体がレール上を動き、 冷却水配管は変形して抜け、配管固定用のサ ポートが破断した。配管・配線用のケーブルベ アも破損した。その他、¹⁸F用の水供給装置が 架台から脱落し、駆動系や電磁弁が破損した。

PET 用の薬剤合成装置関連では、ホットセル の排気ダクト(樹脂製)に大きな亀裂が生じ(図 5左上)、余震のたびに成長した。ホットセルの 内部では、オイルバスからオイルが溢れ出して いたほか、鉛の遮蔽ブロックも一部が崩れてい た。また、停電により冷蔵庫や冷凍庫に保存し ていた合成サンプルや合成試薬の一部が使用不 能となった。試薬類については、棚が倒れるこ ともなく、また、棚には落下防止のガードが付 いているため、試薬瓶の飛び出しや落下等の被 害は皆無であった。

PET 診断装置については、従来からの PET 装置に加えて、最近、PET/CT 装置が導入され た。これらのうち、PET 装置では揺れによりガ ントリーとキャビネットとの間に 50 cm のずれ が生じたものの、被害は見られなかった。一方、 PET/CT 装置では、2本の光電子増倍管で割れ や動作不良が見つかった。周辺機器では、PET 薬剤の放射能を測定するドーズキャリブレータ の落下(図5右上)と転倒により各1台ずつが 破損し、放射性水合成・投与装置で動作不良が 確認された。また、オートガンマ装置(図5左下) などが落下した。

4. 施設の復旧作業と今後の予定

復旧計画を立案するにあたって最も心配だっ たのは、930型サイクロトロンの支柱の強度で あった。強度に問題がある場合、修繕方法によっ ては930型サイクロトロンを全て解体し、一度 撤去する可能性が考えられたためである。本体 室内の床面は建屋の構造上、耐荷重が低く、解 体したヨークなどの重量物を置くことができな い。一方で、本体室外への遮蔽扉は開口部に十 分な大きさが無く、そのままでは搬出も出来な い。930型サイクロトロンを解体・撤去となると、 930型サイクロトロンを搬入した際に利用した 搬入口を再び開ける必要が生じる。この搬入口 は現在、厚さ5mのコンクリートで埋められて おり、これを開放する場合には放射線管理区域 の一時的な変更も伴う。そこで復旧工事に先立 ち、支柱強度の調査を行った。その結果、支柱 の強度に問題は無く、支柱の修繕工事でも930 型サイクロトロンを現状以上に大きく持ち上げ る必要が無いことが判明した。

支柱の修繕工事に先立ち、2011年6月下旬 から本体室内の入出射系ビームラインやイオン 源、関連機器の撤去作業を開始した。これらを 撤去し、支柱周辺にスペースを確保した段階で、 200トンのジャッキ4台を使った山留を設置し、 支柱に荷重がかからない程度に930型サイクロ トロン本体を持ち上げた。その状態で、支柱上 部の破損部分を囲うように鉄板を巻き、支柱と 鉄板の間にグラウトを注入し、固定した。十分 に乾燥・固化させた後に、930型サイクロトロ ンの荷重を支柱にかけたところ、支柱の最上部 に設置されている基板がたわんで両端部が持ち 上がり、支柱との間に隙間が生じた。このたわ みの程度は、上ヨークの上げ下げのたびに変化 し、その影響で930型サイクロトロン本体の水 平レベルが変わってしまう状態となった。この たわみを無くすために、930型サイクロトロン 本体の荷重を抜いた状態で、支柱の基板周辺部 に20 cm 程度の間隔で5 mm 程度の穴を開け、 エポキシ樹脂を注入して基板と支柱を接着・固 定する対策を取った。この対策により、基板の たわみ具合が変化しなくなり、水平レベルも変 化しないことが確認された。また、支柱の修繕 作業と並行して、プラー引抜装置固定部のモル タルや、デフレクタ取り付け部の床面などを補 修した。

支柱の修繕作業と並行して、遮蔽扉の復旧工 事を優先的に進めることにした。震災以来、多 くの遮蔽扉で開閉に難があり、復旧作業用の機 材搬入に支障があったためである。遮蔽扉の修 繕工事は、2011年7月下旬に着手した。被害の 大きかった扉⑧と⑩(図1)の修繕方法につい ては、前述のように大型機材の搬入が不可能で あったうえに室内のクレーンは2.8 トンの能力 しかなかったことから、現場で解体・撤去し、 新規に製作する案が提示された。しかしこの方 法では、管理区域内から大量の廃棄物が生じる ほか、相当な量の粉塵が発生する懸念があった ため、現場でなんとか持ち上げ、大破した駆動 部分を入れ換えたうえで、位置を調整する方法 を試みた。遮蔽扉を持ち上げる際には、チェー ンブロックやジャッキを駆使し、時にはクレー ンの桁も利用した。最終的にはこの方法が成功 し、扉の位置も1 mm 単位で調整された。室 外へ通じる遮蔽扉は全て、レールの水平を調整 し直す必要があった。工事の際には、遮蔽扉を レール上に残したまま作業ができるように、実 験室開口部と屋外側に分ける工程とした。工事 は、レールが埋められているコンクリートの一 部を斫り、レールを一度取り外し、ベースプレー トの高さを調整して水平を出し、再度レールを 敷設してからコンクリートを打設する手順で実 施した。開口部は放射線管理区域であるため、 粉塵の飛散防止措置を講じたり、廃棄物の汚染 検査体制を確立したりするなど、慎重に作業を

進めた。全ての遮蔽扉の修繕が完了したのは、 2011 年 11 月であった。

930型サイクロトロンは、支柱の修繕工事終 了後、サイクロトロン本体の水平を仮に出し、 RF 共振器やデフレクタ、メインプローブなど の周辺機器を慎重に取り外した。本番の芯出し・ 水平出しの作業は、上ヨークを上架して実施す る必要があるため、サイクロトロン本体に二つ の地震対策を施した。一つは、サイクロトロン 本体の横ぶれを抑制する 50 トンジャッキであ る。このジャッキをサイクロトロン本体と本体 室床との間6か所に入れて突っ張ることで、サ イクロトロン本体が建屋と一緒に揺れるように し、支柱への負担を減らしている。このジャッ キは、サイクロトロン本体の芯出し調整にも使 用された。二つ目は、上ヨーク上架時に、ヨー クの落下を防止するブラケットである。上ヨー ク上架時に上下のヨークをブラケットで固定す ることで、上ヨークの横ぶれを抑制している。 このブラケットもジャッキと同様に6か所に設 けられた。サイクロトロン本体の位置や高さ、 水平の調整は、加速箱を取り出して行った。目 標精度はそれぞれ 0.2 mm とし、ほぼその範囲 で調整された。その後、アース板とポールとの 間の低真空領域の真空漏れ調査と補修を行い、 加速箱の再設置と芯出しを行った。次に、撤去 していた RF 共振器やデフレクタなど周辺機器 の再組上げを実施した。この作業の間に、プラー 電極のゆがみやディー電極先端のキズ、デフレ クタ駆動系の動作不良などの不具合が新たに判 明している。全体の組み上げが進み、圧空を利 用して冷却水配管の漏れを調査したところ、グ ラディエント・コレクターやマグネチックチャ ンネルと呼ばれるサイクロトロン本体の真空内 に置かれているビーム調整機器や、バルブスタ ンド、各コイルで漏れが次々と見つかり、最終 的には 500 か所近くにおよんだ。当初の目標で は、2012年3月中にはサイクロトロン本体単 独での加速試験を実施する計画であったが、漏 れ箇所の特定や部品調達、交換作業に相当な時 間を要することとなった。漏れの直接的な原因 は、配管の微妙な変形や配管継手に使われてい る〇リングの硬化であり、地震の大きな揺れが 長く続いたことで、漏れにつながったと思われ る。漏れの補修の後、真空試験やコイルへの通 電試験、駆動系の動作試験を順次実施した。こ の間にもクライオポンプに新たに不具合が見つ かったほか、RF 共振器内で機器の干渉があり、 内筒にキズが付くといった事例があった。これ らの不具合に対応した後、インフレクタやデフ レクタへの高圧印加や RF の試験、そして枯ら し運転を行った。そして、2012 年7月2日よ り、930 型サイクロトロン本体単独でのビーム 加速試験を開始した。この加速試験では、高電 圧系や RF の電圧設定が低めとなるビームエネ ルギー 30 MeV の陽子ビームで実施した。翌7 月3日の20時25分に震災以降初めてのビーム 加速と取り出しに成功した。

ビーム輸送系では、前述のように、アライメ ントのずれや建屋そのものの水平レベルにずれ が生じており、全てのビームラインについて調 整し直しが必要であった。そのため、各室で床 面にビーム軸をケガキ直す作業や、ベンチマー クの再設置を行うことになった。これらの作 業のために、ビームダクトや電磁石と、それら に付設されている冷却水や圧空の配管、ケーブ ル類を一旦全て撤去することにした。撤去作業 に際しては、各電磁石の絶縁等の健全性を確認 した。その結果、分析電磁石の一部で絶縁不良 が発見された。930型サイクロトロンの位置が 決まるまでの間に、絶縁不良箇所を補修したほ か、当初から破損が判明していたビームダクト の製作と電磁石の補修作業も行った。930型サ イクロトロンの位置や水平レベルが確定した段 階で、入出射系ビームラインから測量を開始し、 完了したところからビームラインを再設置し た。そして、冷却水や圧空の配管、ケーブル類 の再構築を進め、ゲートバルブで仕切れる一定 の範囲ごとに真空試験と信号系統の確認作業を 順次行った。2012年8月下旬の段階では、一部 のビームラインで真空度が震災前の真空度に到 達しない箇所があるものの、ビームラインの再 設置作業自体はほぼ終了している。今後は、震 災で破損し更新となった電源の制御系を組み上 げ、9月末までをめどに全てのコイルの通電試 験を完了する予定である。そして、10月初めか らビーム輸送試験を開始し、10月下旬には930 型サイクロトロンの共同利用を再開できるよ う、準備を進めていく予定である。

HM12型サイクロトロンの復旧工事は、遮蔽 扉の修繕が完了した後に開始した。当初から破 損が判明していた部品については、現場での復 旧工事までの間に修理や代替品の製作を終えて おり、これらの修理・交換後に稼働試験が可能 となった。しかし、HM12型サイクロトロンが 設置されている第1ターゲット室には930型サ イクロトロンからのビームラインもあり、この 時点では本体室(図1)との間に設置されてい る遮蔽用のロータリーシャッターが一時撤去さ れていたため、第1ターゲット室単独での放管 条件を満たせていなかった。そこで加速試験 は、他の復旧作業が行われていない夜間に、各 室全てを閉鎖して実施した。この試験では加速 が可能であることだけを確認し、ビーム量など は追求しなかった。本格的な加速試験は、ロー タリーシャッターの設置後に実施した。この段 階で、補正コイルの絶縁不良やビーム電流読み 出し回路の不具合が新たに見つかった。補正コ イルの絶縁不良は、ヨークの外側で生じており、 容易に補修できたのは幸いであった。また、ビー ム電流の読み出し回路は予備のポートを使う ことで解決した。2012年5月下旬に PET 用の 薬剤合成試験のためにビーム供給を開始した。 HM12型サイクロトロンを用いた共同利用の再 開は10月上旬を予定している。

PET 用の薬剤合成装置は、前述のようにホッ

トセル内でオイルが溢れだしていたため、合成 装置を全て一旦取り出して清掃するとともに、 不具合箇所の修理を行い、再組上げを行った。 HM12型サイクロトロンの復旧作業が終わった 2012年5月より薬剤合成試験を開始し、調整 した結果、現状では問題なく動作することが確 認されている。一方、PET装置の復旧作業は 2011年7月までに終了しており、2011年8月 から市販のFDGを購入して調整を進め、9月 下旬より市販薬を用いた臨床検査を再開してい る。臨床検査は月に1回程度の頻度で実施され、 2012年7月まで続けられた。HM12型サイクロ トロンの共同利用が再開する10月より本格的な 臨床検査を再開する予定である。

5. おわりに

以上のように、930型サイクロトロン、HM12 型サイクロトロンともに2012年10月より共同 利用を再開できる見込みとなりました。共同利 用の停止期間中は利用者の皆様にはご迷惑をお かけしましたことをお詫びします。また、復旧 作業中に頂きました多大なご支援と励ましに深 く感謝いたします。特に震災の直後にはCYRIC 物理系のメンバーが大阪大学核物理研究セン ターにお世話になりましたことを記しつつ、感 謝申し上げます。最後に、今回の東日本大震災 で避難生活を余儀なくされている多数の方々に お見舞い申し上げるとともに、亡くなられた 方々のご冥福をお祈りします。

学会だより

日本放射化学会第56回理事会[2011学会 年度第2回理事会]議事要録

日時:2012年2月28日(火) 13:30~17:25

- **場所**:高エネルギー加速器研究機構 4号館127 号室
- 出席者:[会長] 永目、[副会長] 篠原(厚)、沖、 [理事] 百島、村松(久)、永井、大槻、 横山、田上、野村、桝本、渡邉、[監事] 村松(康)
- **欠席者**:[理事] 海老原、深澤、[監事] 篠原(伸)

報告

- 事務局より個人会員について、会員数(前 回理事会から増減なし)と、会費納入状況 の報告があり、了承された。賛助会員の新 規獲得、口数の増加について意見交換を行っ た。事務局より2011学会年度の会計中間報 告があり、了承された。
- 渡邉理事より以下のネット委員会報告があり了承された。前回理事会以降のメーリングリストへのメール配信数、学会 HPの更新状況、また、メーリングリスト中のメールアドレスの修正を行ったことが報告された。
- 3. 大槻理事より編集委員会報告として、JNRS 誌の投稿数が減少しており定期発刊が困難 な状況にあることが説明され、意見交換を 行った。また、J-Stage での JNRS 誌の公開 状況について報告があり、了承された。放 射化学ニュース 25 号の目次と刊行予定につ いて報告があり了承された。

審議

- 1. 2012 年学会賞および奨励賞候補者の募集結果 が学会賞事務局より報告され、了承された。
- 2. 学会賞選考委員を選出した。
- 3. 前回理事会において本年から会長選挙を実

施する方向で準備を行うこととなり、事務 局において、必要な規定の制定と、関連す る内規等の改正の案を作成して本理事会で 審議することとなっていた。会長選挙の実施 方法と、選挙関連の規定・内規の改正等に ついて、事務局の原案に基づき、審議を行っ た。審議の結果今回は、会長についても現 行の理事・監事選挙と同様に、推薦委員会 が候補者を推薦し、その候補者を会員の選 挙により承認する方式とすることとなった。 また副会長については、理事当選者の中か ら会長当選者が選ぶこととなった。この方 針に基づき、事務局が早急に規定・内規の 改正案を作成することとなった。

- 役員候補者を理事会に推薦する役員等推薦 委員会の人選について審議し、会長選挙の 制度改正と並行して、早急に会長の下で人 選をすすめることとなった。
- 5. 実施することとなっている JNRS 誌の今後の あり方などを尋ねるアンケートの内容につ いて審議を行った。事務局の方で早急に実 施することとなった。
- 6. 2011 学会年度より、事務局業務の一部(会費請求、会員管理など)を外部業者に委託することが決定している。事務局より委託業者としてアカデミック・スクエア株式会社(京都市伏見区)を選定したい旨提案があった。委託費用の見積書等資料を審議の後、本件は了承された。

2. 会員動向(平成24年3月~平成24年8月)

新規入会(正会員)

氏 名	所 属
宮澤 恵美	株式会社 環境技術センター
菅原誠之郎	株式会社 理研分析センター

新規入会(学生会員)

氏名	所属
吉田 剛	大阪大学大学院 理学研究科 化学専攻
柿谷 俊輔	同上
田村 信行	新潟大学 理学部 化学科
津藤 翔平	同上
後藤 尚也	同上
田中 彰	同上
小山 巧	同上
北崎 隆悟	同上
谷津由香里	同上
押見 吉成	同上

所属変更(個人会員)

氏 名	所 属
二宮 和彦	大阪大学大学院 理学研究科
齊藤 敬	尚絅学院大学 総合人間科学部
	生活環境学科
佐藤 望	日本原子力研究開発機構 原子
	力基礎工学研究部門
	東北大学大学院 工学研究科 量
長田 直之	子エネルギー工学専攻 生活環
	境早期復旧技術研究センター
池田 隼人	大阪大学大学院 医学系研究科
中山 真一	日本原子力研究開発機構 福島
	技術本部福島環境安全センター

退会(個人会員)

氏	名	氏 名
中井	美希	柴田 徳思
武田	勇樹	田部井健
飯沼	恒一	都築 達朗
南	大地	起 孝志
安部	静子	李 致圭
森田	泰治	佐藤 兼章
滑川	卓志	大橋 國雄

3. その他

・昨年の総会において、会員管理や会費納付事務などを外部委託することが承認されました。事務局では業者の選定を終了し(委託先:アカデミック・スクエア株式会社)、事務は本年の会費納付から新体制に順次移行致します。業務委託に伴い、現在、持ち回りで大学等の機関に設置している事務局はなくなります。事務の窓口等が変わりますが、順次メーリングリストでご案内致します。

従来、年会費の請求は6月頃に、次学会年度(9 月開始)分について行っておりましたが、今 年から会計上の煩雑さをさけるため、新年度 になってから(9月以降に)行うことに変更 されました。

- 所属の変更、学生会員の退会等の情報は必ず 事務局までお知らせ下さい。
- ・会員への連絡はメーリングリストに配信する ことを基本としておりますので、メールアド レスの登録をお願いします。また一部の方は、 アドレスの変更が事務局に連絡されていない ため不達となっています。アドレスを登録し ているにも関わらず、情報が届かない会員が おられましたら事務局に必ずご連絡願いま す。



国内

*

*

*

*

*

*

第51回 核化学夏の学校

箕輪はるか(慈恵医大・アイソトープ)

2012 年 8 月 30 日より、仙台・秋保温泉で核 化学夏の学校が開催された。秋保温泉は仙台駅 から車で30分ほどの郊外に位置する、静かな山 間の温泉地である。会場は温泉リゾートホテル で、講義よりむしろ結婚披露パーティにふさわ しいシャンデリアの素敵な宴会場での夏の学校 が始まった。

初日は原子核物理の講義、萩野浩一氏(東北 大学)による「学生のための原子核物理学入門: 原子核の殻構造と変形」があった。基礎から最 新の研究成果まで盛り込まれた聞き応えのある 内容であり、原子核が洋ナシやバナナの形に変 形する話など実に興味深かった。同一質量数で 安定核種が複数あるのはなぜか、という話は目 から鱗であった。夕食の後、再び集まりそれぞ れ自己紹介や近況報告があった。夏の学校で のこのような情報交換は毎回恒例らしく、しば らく御顔を拝見していない先生方の近況も伺う ことができた。参加者には、修士課程の試験を 終え合格発表を待っているという学生が多かっ た。開催日は彼らの参加しやすい時期を考慮し て決められたのだろう。

さて、翌日は朝から福島原発事故関連の講義 があった。「ガンマカメラによる原発内の放射能 汚染度の測定」田所孝広氏(日立製作所)では、 ガンマカメラ装置――ガンマ線を測定し、核種 と強度の分布をリアルタイムで可視化する装置 ――について、福島第一原子力発電所の1・2・ 3号機で実際に使用された測定結果も含めて示

していただいた。必要に迫られて機器を開発し それがすぐに使用されるという、研究と実用が 隣り合わせの現場の雰囲気を伺い知ることがで きた。聴衆の中には、将来、関連分野に進む学 生もいることだろう。大学での研究という狭い 枠にとらわれず、核化学の知識・経験が技術の 分野でどのように役立っているのかを知る良い 機会であったと思う。

次の講義、「福島の果樹:福島第一原発事故か ら1年を経て」佐藤守氏(福島果樹研究所)では、 今、福島で放射性物質対策に取り組んでいらっ しゃる様子をお話しいただいた。汚染された樹 園地での果樹の詳細な実態調査から、放射性セ シウムが根や葉からだけでなく樹皮からも吸収 され実へ転流されるというこれまでにない知見 を得たこと、また、樹皮の剥ぎ取りや洗浄を行 い、今年のモモ果実中のセシウム濃度は低下し ていることなどが示された。移行メカニズムを 解明しつつ、少しでもセシウム濃度の低い果実 を作ろうとする試みは、これからもまだ長い期 間続けてゆく必要があるだろう。放射性物質に よる汚染は深刻な事態ではあったが、決してあ きらめることなく、地道に粘り強い努力を続け ている様子に深い感銘を受けた。

次は、臼田重和氏(東北大学)による「福島 第一原発事故―再臨界は起きたか、再臨界を監 視できるか」と題して、原子炉における核分裂 によって発生するキセノンの量と、それによっ て再臨界を監視する手法について講義があっ た。福島第一原発での放出量の見積もり、燃料 の燃焼温度の推定など、事故の詳細が徐々に明 らかになっていく様子は、核化学の知識を基に 計算を駆使した研究の醍醐味であると感じた。

昼食後、および三日目の午前は、参加者より 話題提供があり、活発な意見交換がなされた。 文末に話題提供の題名と演者を記した。二日目



写真1 講義風景1

の午後にはエクスカーションがあり、車数台に 分乗してニッカウヰスキー蒸留所「宮城峡」へ の見学ツアーに参加した。さわやかな天候に恵 まれ澄んだ空気の中、レンガ造りの趣ある工場 の蒸留装置や熟成樽などウヰスキーの製造工程 を興味深く見学した。試飲コーナーお土産コー ナーもあり、「宮城峡」限定の原酒などを多くの 参加者が楽しんだ。またその後、秋保大滝まで 足をのばし、自然の中でリフレッシュすること ができた。その時間には宿舎に隣接するスポー ツパークで汗を流した参加者もいたそうであ る。各自思い思いに仙台の夏の終わりを楽しん だことだろう。夕食は自由討論・班会議とされ ていたが、おおいに食べ飲み話し楽しい時間を 過ごした。夕食が終わった後も別の部屋で二次 会、三次会と、その余韻は続いたようであった。 最終日には、篠塚勉氏(東北大学)による最



写真2 講義風景2

終講義「ベクレル博士から福島第一まで」があ り、東北大学サイクロトロン設置のエピソード から、福島原発事故の対応として三春町ととも に行った「実生プロジェクト」の話まで、ラジ オアイソトープセンターの歴史とともに振り 返っていただいた。

内容の濃い講義・話題提供、エクスカーショ ン・夜の部と盛りだくさんなプログラムを、緑 豊かで清涼な地で、おいしい料理とお酒と共に 楽しむことができたのは幸せであった。魅力あ る企画を御準備・御世話いただいたスタッフの 皆様にお礼申し上げたい。

話題提供(敬称略):

「貝類に含まれる放射性核種」小島貞男(愛知医 大)「放射能を使った金属内包フラーレン研究: 金属内包フラーレンの迅速分離法」秋山和彦(首



写真3 ニッカウヰスキー宮城峡蒸留所・ ゲストホール



写真4 ニッカウヰスキー宮城峡蒸留所・ ゲストホール

都大学東京)「核医学に有用な放射性核種の製造 技術」池田隼人(大阪大学)「科研費新学術領域 (放射化学の仕事紹介)」篠原厚(大阪大学)「重 元素研究:オスロ滞在記」大江一弘(原子力機構) 「砂浜に沈み込んだセシウムの存在状態」佐藤志 彦(筑波大学)「放射能泉について」堀内公子(慈 恵医大)「放射能標準体積線源の標準値の測定」 浅井雅人(原子力機構)「福島第一原子力発電所 から放出された放射性核種」工藤久昭(新潟大 学)



写真5 二日目夜·集合写真

海外

ICRS-12 に参加して

関本 俊 (京都大学原子炉実験所)

ICRS-12 (12th International Conference on Radiation Shielding「第12回放射線遮蔽国際 会議」)が、2012年9月2-7日に、奈良市の奈 良県新公会堂において開催された。この会議 は、1958年に英国のケンブリッジで第1回が 行われて以来、ヨーロッパ、アメリカ、日本で 継続して行われている歴史ある会議であり、今 回は、RPSD-2012(17th Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division of ANS「第17回米国原子力学会放射線防護遮蔽 部会会合」)も同時に開催された。約400名の参 加者があったこの会議のトピックスは、放射線 管理やその安全評価、放射線計測やその遮蔽設 計から放射線治療など、放射線遮蔽に関する研 究全般及び、福島の原発事故に関連した研究で あり、会議の公式ホームページ (http://www. icrs12.org/) より、トピックス、プログラム、 発表要旨等の閲覧が可能である。筆者は近年、 "Radiation"と名の付く国際会議にいくつか出 席した(ISORD-5, ISORD-6*, IRPA-13**)が、今 回の会議も含めて、参加者の中には同様の顔ぶ れを見ることができ、日本人、外国人問わず、 新たな顔馴染みが出来たことは収穫である。

(*ISORD: International Symposium On Radiation Safety and Detection Technology, **IRPA: International Congress of the International Radiation Protection Association)

また東日本大震災以降、この分野の会議には "Fukushima" Session なるものが必ず存在し、 それも比較的大きなトピックとして扱われてい るが、一方、震災以前に取り組まれていたと思 われる、放射線遮蔽等に関する従来の研究は、 どこへ消えてしまったのだろうか?と考えてし まうこともまた事実である。ICRS-12の福島セッ ションにおける、おそらく目玉の一つとして、 田中俊一氏による Plenary lecture "OUTLINE OF THE ACCIDENT AT FUKUSHIMA DAI-ICHI NUCLEAR POWER STATION -ISSUES ON RADIATION SHIELDING & PROTECTION-"が予定されていたが、結局、 中島宏氏 (JAEA) による代替講演になってい たことは仕方のないことであろうか。

ところで、従来の放射線遮蔽等に関する研 究の一つに、米国フェルミ国立加速器研究所 (FNAL) で行われている JASMIN (Japanese-American Study of Muon Interaction and Neutron detection) プロジェクト (研究代表者: 中島宏氏 (JAEA)) がある。本プロジェクトは、 FNAL, JAEA, KEK, 京都大学、九州大学、清水 建設のグループによるコラボレーションの下で 進められ、これまでに原子力学会や放射化学会 等の国内の会議や、ICRS-11, ISORD-5, ND2010, ISORD-6, IRPA-13 等の国際会議、その他学術論 文として、多くの成果を発信してきた。中島代 表の下で進められてきた JASMIN プロジェクト は 2011 年度で一旦終了し、今回の ICRS-12 で は、そのまとめの講演があった。筆者もこのプ ロジェクトの一員であるため、多少手前味噌で はあるが、ここで、それらの講演の紹介をしたい。 · RESEARCH ACTIVITIES ON JASMIN: JAPANESE AND AMERICAN STUDY OF MUON INTERACTION AND NEUTRON DETECTION (招待講演 · JAEA · 中島宏氏)

・MEASUREMENT AND ANALYSIS OF NEUTRON AND PHOTON DOSE RATE IN CONCRETE SHIELD OF 120-GEV PROTON ACCELERATOR FACILITY (清水建設・大石 晃嗣氏)

・SYSTEMATICS OF THICK TARGET NEUTRON YIELD FOR REACTIONS OF HUNDRED GeV PROTON ON TARGET (招 待講演・KEK・佐波俊哉氏)

・ACTIVATION DETECTOR MEASUREMENTS AT THE HADRON ABSORBER OF THE NUMI NEUTRINO BEAM LINE AT FERMILAB (JAEA・松田規宏氏)

• RADIONUCLIDES IN THE COOLING-WATER SYSTEMS FOR THE NUMI BEAMLINE AND THE ANTI-PROTON PRODUCTION TARGET STATION AT FERMILAB (KEK・松村宏氏)

・ACTIVITY COMPARISON AMONG FLUORESCENT LAMPS AND LED LIGHT TUBES EXPOSED TO SECONDARY PARTICLES IN THE ACCELERATOR FACILITIES (KEK・豊田晃弘氏)

・MEASUREMENTS AND CALCULATIONS OF RADIONUCLIDE ACTIVITY LEVELS PRODUCED IN 120-GEV PROTON INDUCED SPALLATION REACTIONS (京大炉・八島浩氏) ・CHEMICAL FORMS OF SULFUR, CHLORINE, AND BROMINE RADIO-NUCLIDES PRODUCED IN AIR AT THE FERMILAB 120-GEV ANTI-PROTON TARGET STATION (京大炉・筆者)

上記の成果の一部は、プロシーディングスとし て Progress in Nuclear Science and Technology 誌に出版される。

また JASMIN プロジェクトは、現在も継続し

ており、2013 年度からは KEK の松村宏氏を代 表として、新たな研究が行われる。今後もこれ らの会議での成果の発表が期待される。

本国際会議の口頭発表は、奈良県新公会堂内 の4会場で並行して行われたのだが、そのうち の1会場は、能舞台であり、登壇者は能舞台の 上で講演するという大変にユニークなもので あった(写真参照)。またバンケットでは、は じめに大会委員長の中村尚司 東北大学名誉教 授より、本会議の運営に携わったスタッフの紹 介があり、労いの言葉が述べられた。余興と して、CERNのRadiation Protection Groupの Christian Theis博士により、「ハンガリー狂詩 曲第二番(リスト)」と「エリーゼのために」の ピアノ演奏が行われ、最後は、そのピアノ伴奏 による、中村 大会委員長の「ローレライ」独唱 で締めくくられた。

次回の ICRS-13 は、2016 年にフランスで開催 される予定である。



写真 能舞台の様子(近畿大学 芳原新也氏より提供)
IRPA-13 に参加して

関本 俊(京都大学原子炉実験所)

RPA-13 (13th International Congress of the International Radiation Protection Association 「国際放射線防護学会」)が、2012 年 5 月 13-18 日に、英国、スコットランドのグラスゴーおい て開催された。74 カ国から約 1500 名もの参加 者及び 200 社もの協賛を得たこの巨大な国際会 議は、12 のトピックスに分かれて講演(口頭・ポスター)が行われ、会議後の報告によると、過去最大の規模で行われたようである。以下に 12 のトピックスを記す。

- 1. Biological and Health Effects of Ionising Radiation
- 2. Measurements and Dosimetry
- 3. Radiation Protection System Development and Implementation
- 4. Stakeholder Engagement and Involvement
- 5. Non-Ionising Radiation
- 6. Planned Exposure Situations: Industry and Research
- 7. Planned Exposure Situations: Medicine
- 8. Planned Exposure Situations: Radioactive Waste Management
- 9. Emergency Exposure Situations
- 10. Existing Exposure Situations
- 11. Protection of the Environment
- 12. Fukushima

放射線防護に関するエンジニアリングからサ イエンスすべてが対象となっているので、ただ でさえ非常に幅広い分野をカバーした会議が、 "Fukushima"をもトピックスの一つにすれば、 参加者が増え、規模がより大きくなったこと は、容易に想像できる。日本からも原子力機構、 放医研、東京大学のグループなど多くの参加者 があり、福島の事故関連で多くのメディアや新 聞で名前の挙がった、小佐古敏荘東京大学教授 や高田純札幌医科大学教授の姿も見られた。筆 者の所属する京大原子炉からは、谷垣実氏によ る "Development of KURAMA and the Carborne Survey in Fukushima"、福谷哲氏による "Sorption Characteristics of Radionuclides in Environmental Aqueous Systems for Sorbents" 及び筆者による "Measurement of Radio-nuclides in Radioactive Aerosols Produced in a 120-GeV Proton Target Station"の3件の講演があった。 会議の詳細な様子は、公益財団法人 放射線影 響協会が発行する「放影協ニュース」のNo. 72 (2012年7月号)のp. 10-に記されている(http:// www.rea.or.jp/kikaku/rea_news/news/2012_72. pdf でも閲覧可)。従ってここでは、エクスカー ションの様子 (公式のもの、自主的なもの)や、 筆者がグラスゴーにたどり着くまでに立ち寄っ たマンチェスターの様子などを、小旅行記とし て記しておく。

"GLENGOYNE"ウィスキー蒸留所見学(会 議の公式エクスカーションの一つ)

この巨大な国際会議においては、もちろん魅 力的なエクスカーションも数多く存在する。そ れらは当然、セッションと並行して行われるた め、自分の発表のスケジュールや興味のある セッションと重なってしまっては参加できな い。今回は、筆者にとって最も魅力的であった、 「スコットランドにあるウィスキーの蒸留所を 見学する」というツアーに、発表前日ではあっ たが、運良く参加することが出来た。

グラスゴーの中心部から車で約1時間

程度のところにある "GLENGOYNE" 蒸留所 では、まず試飲→蒸留所 そのもの及びその歴史の 説明→製造工場の見学→ お土産購入というオーソ ドックスなツアーが組ま れており、それぞれに楽 しむことが出来た。自分 用のお土産に購入した ウィスキー(驚くほど美味) の写真を以下に示す。ス コットランドには素晴らし いウィスキーが多く存在す ることは有名であり、そ の中でも様々な種類のも



のを味わってきた自負があったが、今回尋ねた "GLENGOYNE"という銘柄を筆者は知らなかっ た。このエクスカーションの当初の目的は、ウィ スキーの本場で蒸留所の見学を愉しむ、という ことであったが、この"GLENGOYNE"という 素晴らしい銘柄に出会えたことが最大の収穫で あったと思う。

2. "Hampden Park" 見学(自主的なエクスカー ション)

筆者の発表が無事!? 終わり、一息ついたので、 グラスゴーで行ってみたかった場所の一つに行 くことにした。それが"Hampden Park"である。 ここは、サッカースコットランド代表のホーム スタジアムであり、2002年5月に行われた、欧 州チャンピオンズリーグ決勝(レアルマドリー ド対バイヤーレバークーゼン)の舞台にもなっ た、欧州のサッカー界において、由緒正しいス タジアムの一つである。IRPA-13 学会会場か ら、公共交通機関を使って30分もかからずに 到着できた Hampden Park では、平日であった にも関わらず、幸運にもスタジアムツアーに参 加することが出来た。そのツアー中に撮った写 真を以下に示す。たった5名のツアー参加者に 対して、1時間強、選手控室からピッチ、試合 中、監督や選手が座るベンチにいたるまでスタ ジアム中を、英語圏外の筆者に対しても分かり やすい英語で、丁寧に説明してもらった。また Hampden park には、歴代スコットランドを代 表する選手、監督にまつわる品々(トロフィー、 ユニホームなど)が収集された博物館も併設さ れており、こちらも英国サッカー愛好家には大 変に楽しめるものであった。帰りに博物館内の グッズショップにて、余計に出費してしまった ことは言うまでも無い。

尚、筆者が訪問した約二カ月後に、ロンドン オリンピックのサッカーの初戦で、U-23日本代 表が優勝候補と目されていたU-23スペイン代表 を破ったのは、この Hampden Park での出来事 である。この後、U-23日本代表の快進撃は続い たが、最後になって、あろうことか韓国に敗れ、 メダルを逃す結果になってしまったことは、残 念でならない。



3. マンチェスター経由でグラスゴーへ("Old Trafford"見学)

今回、グラスゴーへの旅路は、マンチェスター を経由することにした。理由は二つ。一つは関 空とマンチェスターの往復の航空券が、グラス ゴー往復と比べ、大変リーズナブルであったこ と。(マンチェスターからグラスゴーは電車で3 時間の距離である。)もう一つは、筆者の職場 の同僚である(同じ部屋でもある)上原章寛氏 が、この四月からマンチェスター大学に留学し ており、彼のところを表敬訪問するという目的 があったことである。そして、彼に会う前にマ



ンチェスター市内を散策がてら、少し足を延ば した先が "Old Trafford" またの名を "Theatre of dreams"、言わずと知れた英国の名門サッカー チーム、マンチェスターユナイテッドのホーム スタジアムである。さすが世界中にファンを持 つ人気チームだけあって、スタジアムツアーは、 ひっきりなしに行われていた(ちなみに、土曜 日は10分ごとに、約20名のグループのツアー が次々と行われていた)。当然のことながら、 筆者も迷うことなくそれに参加し、その際撮っ た写真の一部を以下に示す。このスタジアムツ アーは、近年マンチェスターで行われる学術的 な国際会議においても、エクスカーションに盛 り込まれることが多いらしく、サッカーに興味 は無くとも、ツアーにだけは参加し、それなり に楽しまれた方もいるかもしれない。しかし、 サッカーファンにとってのこのツアーは、普段 テレビを通じてのみ見る Old Trafford を、マ ンチェスターユナイテッドの選手や監督と同じ

目線で見ることが出来るという点において、ツ アーを楽しむ以上に、非常に貴重な体験になる と思う。筆者が Old Trafford を訪れてからほど なくして、日本代表の香川真司選手のマンチェ スターユナイテッドへの入団が決まった。8/25 にはこの Old Trafford で公式リーグ戦初得点も 決めた。今後、香川選手のこのチーム、このス タジアムでの活躍を祈るばかりである。そして 個人的には、もし機会があれば、Old Trafford に再訪し、試合を見てみたいものである。

4. おわりに

上記は、IRPA-13 に参加した結果、そのつ いでにウィスキーの蒸留所やサッカーのスタジ アムを訪問した話を記したものである。次回の IRPA-14 は、ケープタウン(南アフリカ)での 開催が決定しており、その次の IRPA-15 は、韓 国での開催が予定されている。

MARC-IX に参加して

大槻 勤 (東北大学電子光理学研究センター)

MARC IX は 2012 年 3 月 25 日~ 30 日の日 程でハワイ島の Sheraton Keauhou Bay, Kailua-Kona で 行 わ れ た。 初 日 は registration の 後、まず Morning & Afternoon workshop で、 Radioanalytical chemistryの分野における最近 の Topics や測定技術の session があり、また これらにひきつづき、Hevesy Medal Award Ceremony 及び Reception が行われた。ちなみ に Hevesy Award の受賞者はロシア科学アカ デミーの Prof. Boris F. Myasoedov で、受賞講 演では、ロシアにおけるこれまでの核燃料再処 理技術開発及び今後の進展についての話があっ た。2日目からは通常通り Plenary session と一 般講演が始まった。Plenary session では、近年 この分野の国際会議において、その存在感が非 常に大きくなってきた核鑑識技術や、核燃料サ イクルにおける分離技術など、様々な分野の代 表的な研究が報告された。また parallel session となった午後の一般講演は、核鑑識技術のハイ ライトと放射化分析の講演から始まった。以 下にそれぞれの session を示すが、すべての session の要所を聞くことは、とても重労働で あった。

- Session 1: Plenary Session.
- Session 2: Nuclear Forensics Highlights.
- Session 3: Instrumental, Pre-Concentration, Radiochemical, and Speciation Activation Analysis.
- Session 4: Applications of Radioanalytical Chemistry and Neutron
- Session 5: Activation Analysis for Nuclear Medicine and Biological Systems.
- Session 6: Application of Nuclear Techniques to National Security and Treaty Monitoring
- Session 7: Instrumentation and Software for Nuclear Spectrometry.
- Session 8: Fuel cycle and advances in separations.

Session 9: Fukushima Special Session

Session 10:Ultra-sensitive Mass Spectrometric and Other Methods Applied to Environmental Problems.

Session 11:Nuclear Forensics.

- Session 12:Advances in Actinide Analytical and Radionuclear Chemistry.
- Session 13:Speciation Studies on Radionuclides in the Environment.
- Session 14: Quality Assurance Topics in Radioanalytical Chemistry
- Session 15:Separation Chemistry and Target Preparation for Nuclear Chemistry Experiments.
- Session 16:Actinide, Lanthanide, and Fission Product Separations
- Session 17 \sim 19: Environmental Radioactivity and Reference Materials for Nuclear Mass Spectrometry.
- Session 20:Novel Neutron Detectors, Neutron Beam Techniques, and Their Applications
- Session 21:Actinide Mass Spectrometry Techniques and Applications. Measurements and Systems for.
- Session22: Radiation Detection in Nonproliferation and Homeland Security Application.

これらを見ると、特に核鑑識と環境の取り組 みに関する発表が多かったように思う。日本人 の講演では Activation Analysis の分野で石巻 専修大学のグループより銀の定量分析に関する 発表が、首都大学東京のグループより希土類元 素の定量分析に関する発表が行われていた。ま た、福島第一原子力発電所事故に関する特別 セッションが設けられ、東大の中西氏の招待講 演を含む欧米アジア各国の研究報告が行われ た。いずれの発表においても事故の経緯が詳細 に把握されており、早期から分析に取り組んで いることが分かった。また、地球規模での放射 性物質の汚染が懸念され、事実を深く再認識す るとともに、環境データの早期調査や今後の推 移が重要であると感じた。今回の会議では会議 のテーマである Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry (MARC) が示すよ

うに radionuclides のその他の分野への利用応 用が多く取り上げられ、最近の Radioanalytical Chemistry の国際会議の変化が見てとれる。

また Poster session では、University of Texas のグループによる放射化分析を用いた発表 が目立った。それ以外では、Texas A&M Universityのグループによる遺跡の出土品の放 射化分析の結果をその鉱物分析結果と比べたも のや、University of Norte Dame のグループに よる"Trinitite"の分析結果に関する poster、 またイギリスのグループよる LaBr₃ 検出器に関 する発表(これは八王子で行われた MTAA-12 でも同様の poster があり、その時からの進展の 様子を示していたものと考えられる)及び、タ イのグループによる、カスケードインパクター と CR-39 検出器を組み合わせて用いた環境中の ラドン、トロンの研究など、興味深いものも見 られた。

小生は会議期間中K大学のS氏の推薦も あり、会議の会場となったホテル "Sheraton Keauhou"のすぐ近くのコンドミニアムを借り て、自炊もしつつ過ごしたが、非常に優雅に会 議期間を過ごすことができた。またレンタカー を使って、快適にドライブを楽しんだが、パワー ウィンドウの付いていない安い車を借りたばか りに、車中に鍵をいれたままドアをロックして しまうという、現代日本では考えられないヘマ もした(助手席にいた暑がりのS氏が偶然にも 少し窓を開けていたため、事無きを得た)。その ようなハプニングにも見舞われたが、三年後に また行われるであろう10回目の会議には再び参 加をしたいと思っている。以下の写真は、福島 セッションの様子と、それを少し遠くから見守 るカメハメハ大王である。



NRC-8 に参加して

二宮和彦(大阪大学大学院理学研究科)

4年毎にヨーロッパで開催される核・放射 化学の国際会議NRC8 (8th International Conference on Nuclear and Radiochemistry) が、2012年9月16日から21日の日程で、イタ リアのコモ (Como)で開催された。

講演数は245件で、その内訳は招待講演が70 件、口頭発表が42件、残りがポスター発表であっ た。発表は2つのポスターセッションの他、口 頭発表は全部で13セッション組まれていた。討 論内容は放射化学に関連する広い分野であり、 その内訳は核医学(口頭発表2セッション、以 下同様数字のみ)、超重元素化学(1)、RI 製造(2)、 RI利用(1)、原子核プローブ(1)、原子力(2)、 放射化分析(1)、教育(1)、環境放射能(2)で あった。まず感じたことはヨーロッパにおける 核医学分野の研究の盛り上がりであった。今回 が初めて試みということではあったが、核医学 のセッションが2つ組まれており、さらにRI 製造や RI 利用のセッションでも核医学と関連 の深い内容の発表が多くあった。内容としては 国内でも研究が進んでいる^{99m}Tcの製造に関す る発表もあったが、それに加えて⁴⁴Sc や ⁶⁸Ga を 始めとする他の核医学用放射性核種の製造や、

これらを体内に入れるためのキレート 錯体の合成法の報告もあり、核医学分 野全体の研究が急速に進みつつある印 象を受けた。その他のトピックスとし ては、TASCAによる超重元素 Z=112, Z=114の気相化学実験の報告や、即発 ガンマ線による分析(PGA)に関連す る報告も多くあった。

この他には2つの特別セッション があり、オープニングとして「イタ リアにおける18-19世紀の化学」と題 して、電池の発明で有名なボルタ教 授に焦点をあてたレクチャーがあっ た。筆者は恥ずかしながらこの時まで 知らなかったが、ボルタ教授は開催地 のコモ出身で、さらに教鞭もとってい たそうである。もう1つの特別セッションは RadiochimicaActa 誌 50 周年を記念したもので、 出版社の担当者を交えての簡単な式典が開催さ れた。

参加者は事前登録者だけで227名とのことで あった。やはりヨーロッパ各国からの参加者が 多かったものの、アジア、北米、南米と世界中 からも参加者が集まった。なお日本からの参加 者は20名弱でありヨーロッパ圏外では最大の参 加者数であったのではないかと思う。

コモはヨーロッパでも有名な保養地であり、 筆者もリゾート気分に浸りたいところであった が、会場では連日活発な議論により時間超過の 連続で休憩時間も短く、さらに興味深い研究発 表も多くあったことからそんな気分は吹き飛ん でしまった。ちなみに昼食休憩でも準備されて いた昼食も立派だったので、とても1時間では 食べ終わらずこれも時間超過の原因になった。 せっかくイタリアで開催なのだから、昼食休憩 をのんびり2時間の習慣ぐらいはプログラムに 取り入れてほしいと思った次第である。20日 の夕方はエクスカーションでコモ湖遊覧の船旅 があり、コモ湖と湖畔に並んだ美しい別荘やホ テルの風景をゆっくりと楽しむことができた。 なお最後のクロージングセッションで次回の NRC-9は2016年、フィンランドのヘルシンキ で開催される予定であることがアナウンスされた。



会場の様子。会場はさほど大きくはなかったが、席は常にほと んど埋まっていた。

情報プラザ(国際国内会議)

- 1. LACAME2012 XIII Latin American Conference on the Applications of the Mossbauer Effect (LACAME2012)
- 会期 Nov. 11-16, 2012
- 会 場 Medellin, Colombia
- 会議ホームページ Web: http://www.udea.edu. co/lacame2012
- 2. ANUP2013 International Conference on Asian Nuclear Prospects

会期 Oct. 16-19, 2012 会場 Baijin, China 会議ホームページ http://www.anup2012.org

3. 5th International Conference on Fission and Properties of Neutron-Rich Nuclei (ICFN5)

- 会期 November 4 November 10, 2012,
- 会 場 Sundial Beach Resort, Sanibel Island, Florida

会議ホームページ

http://proton.phy.vanderbilt.edu/

4. FR13

International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles

- 会期 Mar. 4-7, 2013
- 会 場 Paris, France
- 会議ホームページ http://www.sfen.fr/FR13

5. APSORC-13

The fifth international conference in the series of Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC-13)

- 会期 Sept. 22-27, 2013
- 会 場 Kanazawa, Japan
- 会議ホームページ

http://www.radiochem.org/apsorc13/

6. Global2013

- 会期 Sept. 29-Oct. 3, 2013
- 会 場 SaltLakeCity, USA
- 会議ホームページ http://www.global13.org



5th Asia-Pacific Symposium On Radiochemistry '13



5th Asia-Pacific Symposium On Radiochemistry '13 September 22nd (Sun)- 27th (Fri)

Kanazawa, Japan

Scope of the Symposium

The fifth international symposium in the series of Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13) will be held from 22 to 27 September 2013 at Kanazawa, Japan. The first symposium was held in Kumamoto, Japan (1997), and subsequently in Fukuoka, Japan (2001), Beijing, China (2005), and Napa Valley, USA (2009).

The symposium is dedicated to providing platform for discussion and information exchange for current and emerging research in all fields of nuclear and radiochemistry and related disciplines and technologies.

A special session on the Fukushima issues caused by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in March, 2011 will be also organized. The APSORC 13 will be co-organized by The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences and Kanazawa University.

Scientific topics

The scientific topics to be covered at the symposium include: 1.Fukushima issues 2.Education in nuclear and radiochemistry 3.Nuclear forensics 4.Nuclear energy chemistry 5.Nuclear energy chemistry 5.Nuclear enemistry 6.Actinide chemistry 7.Environmental radiochemistry 8.Radiopharmaceutical chemistry, Nuclear medicine 9.Nuclear probes for material sciences 10.Activation analysis 11.Application of nuclear and

radiochemical techniques

Symposium chairs

Yuichiro Nagame, Japan Atomic Energy Agency Masayoshi Yamamoto, Kanazawa University

Scientific secretaries Masayuki Watanabe, Japan Atomic Energy Agency Akihiko Yokoyama, Kanazawa University

E-mail: apsorc13info@radiochem.org

Proceedings

The symposium proceedings will be published in J. Radioanal. Nucl. Chem.

Venue

The symposium will be held at Kanazawa Bunka Hall in Kanazawa, Japan from 22-27 September 2013. More information will be updated later.

Conference fee

The conference fee will be approximately 50,000 JPY. A final figure will be announced later.

Accommodation

Accommodation information will be provided together with the 2nd Circular in October 2012.

Important dates

First circular: 30 June 2012 Second circular with call for abstract:s October 2012 Deadline for abstract submission: March 2013 Notification of speakers: June 2013 Final program: July 2013 Deadline for paper submission: September 2013 Symposium: 22-27 September 2013



賛助会員

日立アロカメディカル株式会社 キャンベラジャパン株式会社 クリアパルス株式会社 サンゴバン株式会社 セイコー・イージーアンドジー株式会社 大栄無線電機株式会社 株式会社千代田テクノル 東京ニュークリア・サービス株式会社 東北ニュークリア株式会社 長瀬ランダウア株式会社 株式会社日本環境調査研究所 富士電機株式会社 諸士フイルム RI ファーマ株式会社

株式会社アトックス

公益財団法人 原子力安全技術センター 新潟県放射線監視センター 独立行政法人 日本原子力研究開発機構 財団法人 日本分析センター 公益財団法人 放射線影響協会 財団法人 放射線利用振興協会

北海道電力株式会社 東北電力株式会社 中部電力株式会社 北陸電力株式会社 中国電力株式会社

九州電力株式会社





















URLhttp://www.detectors.saint-gobain.com/お問合せyasuo.watanabe@saint-gobain.com(担当 渡辺)















FUJIFILM

診断そして、治療へ。

やがて、笑顔につながる核医学。

生命の世紀とも言われる、21世紀。ライフサイエンスの医学への発展、 QOL を重視した医療に対する期待は、ますます大きくなっています。 早期診断。身体に負担の少ない治療。

核医学診療はより大きな役割を担っていくと、私たちは確信しています。 富士フイルム RI ファーマは、核医学診療には欠かせない、 放射性医薬品のエキスパートとして、医療の発展に寄与してまいりました。 今後も、この分野をより積極的に推し進めるとともに、 グループの総力を結集し、医療と健康に貢献してまいります。

Quality of Smile







学位論文要録執筆候補者の推薦について

「学位論文要録」欄では、最近2年間の範囲で博士の学位を授与された会員の方々の学位論文内容を抄録の形で掲載 致しております。現代の放射化学およびその関連領域における進歩についての情報を読者の方々に提供することが主な 目的であります。しかし、編集委員会が広範な領域で活躍されている執筆候補者につきまして、遺漏なく情報を得る ことは困難であります。このため、会員の皆様に同欄の執筆候補者(学位取得者)を推薦いただきたく存じます。自薦・ 他薦は問いません。詳しくは編集委員会にご照会下さい。

$\stackrel{\wedge}{\simeq} \stackrel{\wedge}{\simeq} \stackrel{\wedge}{\simeq}$

「会員の声」欄へのご寄稿のお願い

本誌では、学会や学会出版物に関する会員の皆様の意見を掲載するために、「会員の声」欄を設けております。1000 字以内(形式自由)におまとめいただき、編集委員会または学会事務局にお送り下さい。掲載の可否につきましては当 方にご一任下さい。

* * *

会員の異動に伴う連絡のお願い

会員の移動に伴い、所属、連絡先等に変更が生じた場合には、会員担当 高宮 幸一(〒590-0494 大阪府泉南郡 熊取町朝代西2丁目1010番地 京都大学原子炉実験所原子力基礎工学研究部門同位体製造管理工学研究分野(柴田 研究室)内 日本放射化学会事務局、FAX:072-451-2632、E-mail:takamiya@rri.kyoto-u.ac.jp)にご連絡下さい。

放射化学ニュース

第 26 号

平成 24 年 (2012 年) 10 月 22 日発行

編集

日本放射化学会編集委員会(放射化学ニュース担当) 委員長:大槻 勤 委 員:中島 覚、佐々木隆之、箕輪はるか、濱島靖典、大矢恭久、安田健一郎 連絡先:〒982-0826 仙台市太白区三神峯 1-2-1 東北大学電子光理学研究センター E-mail: ohtsuki@LNS.tohoku.ac.jp

発行

日本放射化学会

事務局長:沖 雄一 Web:http://www.radiochem.org/または、http://wwwsoc.nii.ac.jp/jnrs/ 事務局 所在地:〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目1010 番地 京都大学原子炉実験所原子力基礎工学研究部門同位体製造管理工学 研究分野(柴田研究室)内 E-mail:jnrs.office2008@radiochem.org

印刷

松枝印刷株式会社 〒303-0034 茨城県常総市水海道天満町 2438

本誌掲載記事の著作権は日本放射化学会に帰属します。