

放射化学

第35号

解説

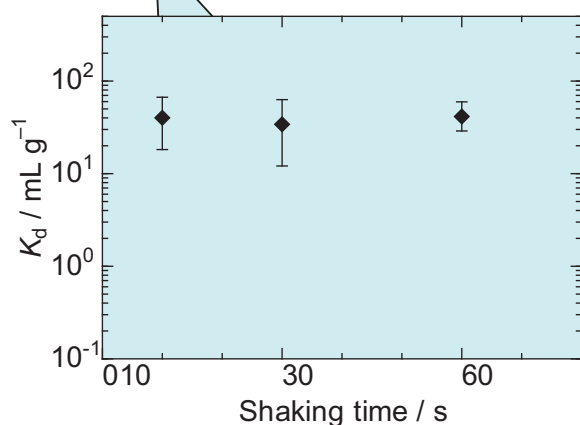
104番元素Rfの抽出平衡の観測

特集

2016年度学会賞

2016日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介

| | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|---|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 | 12 | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 | 18 | |
| 1 | H | | | | | | | | | | | | | | | | He | |
| 2 | Li | Be | | | | | | | | | | B | C | N | O | F | Ne | |
| 3 | Na | Mg | | | | | | | | | | Al | Si | P | S | Cl | Ar | |
| 4 | K | Ca | Sc | Ti | V | Cr | Mn | Fe | Co | Ni | Cu | Zn | Ga | Ge | As | Se | Br | Kr |
| 5 | Rb | Sr | Y | Zr | Nb | Mo | Tc | Ru | Rh | Pd | Ag | Cd | In | Sn | Sb | Te | I | Xe |
| 6 | Cs | Ba | Ln | Hf | Ta | W | Re | Os | Ir | Pt | Au | Hg | Tl | Pb | Bi | Po | At | Rn |
| 7 | Fr | Ra | An | Rf | Db | Sg | Bh | Hs | Mt | Ds | Rg | Cn | Nh | Fl | Mc | Lv | Ts | Og |



日本放射化学会

The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences

放射化学

第 35 号

平成 29 年 (2017 年) 3 月 29 日

目次

| | |
|---|----|
| 会長に再任して (中西友子) | 1 |
| 解説 | |
| 104 番元素 Rf の抽出平衡の観測 (笠松良崇・横北卓也) | 2 |
| 特集 2016 年度学会賞 | |
| 日本放射化学会賞 学会賞「極微量 α 放射性核種の測定法開発 および地球化学研究への応用 (山本政儀) | 9 |
| 日本放射化学会賞 奨励賞「超重元素ラザホージウムの溶液化学研究 - 共沈実験手法と抽出平衡観測手法の開発 - (笠松良崇) | 29 |
| 日本放射化学会賞 奨励賞「メスbauer分光パラメータと密度汎関数法を用いた d, f ブロック錯体の結合状態研究 (金子政志) | 34 |
| 日本放射化学会賞 奨励賞「負ミューオンを用いた非破壊三次元元素分析法の開発 (二宮和彦) | 40 |
| 特集 2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介 | |
| ケイ酸塩鉱物中トリウムおよびラジウムの同位体の存在形態 (塩原良建ほか) | 46 |
| 軽元素化合物へのミューオン捕獲によるミューオン原子形成過程の理解に向けた研究 (吉田 剛) | 49 |
| 樹脂担持有機スズ試薬を用いた ^{211}At 分離/標識の試み (神田晃充ほか) | 52 |
| Rf 同族元素 Zr, Hf の塩化物に対する等温ガスクロマトグラフィ (白井香里ほか) | 54 |
| $^{70}\text{Zn}(d,\alpha n)^{67}\text{Cu}$ 反応による頒布用精製 ^{67}Cu の製造 (矢納慎也ほか) | 56 |
| インビーム・メスbauer分光法を用いた ^{57}Fe 原子の化学状態の分析 (鈴木聖人) | 59 |
| メスbauer分光法によるコンドライト隕石中の鉄含有鉱物組成の研究 (中川真結ほか) | 62 |
| 歴史と教育 | |
| 広い教育分野における $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用いる諸実験の活用 - ラジオアイソトープの新利用 - (野崎正ほか) | 64 |

ニュース

- 113, 115, 117, 118 番元素の名称・元素記号が正式決定 (加治大哉) 82

会議報告

- 核化学夏の学校 (阪間 稔) 84
9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC 9) (小森有希子) 87
2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会 実施報告 (工藤久昭) 89
2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会 若手の会 (佐藤大輔) 95
大阪大学 医・理・核物連携
「新規医療イノベーションのためのシンポジウム 2016」(篠原 厚) 97
京都大学原子炉実験所専門研究会「京大炉 (KUR) を用いた
放射化分析の成果と今後の展望 -2-」(木下哲一) 99

時過ぎて

- 森川尚威先生を偲んで (野川憲夫) 101
森山裕丈先生を偲んで (佐々木隆之) 104

- 情報プラザ (国際国内会議) 106

- 学会だより 107

- 「放射化学」規定など 113

- 「放射化学」論文編集委員会規定
「放射化学」発行規定
「放射化学」論文投稿規則
「放射化学」論文投稿の手引き
学位論文要録執筆候補者の推薦について
「会員の声」欄へのご寄稿のお願い
会員の異動に伴う連絡のお願い

賛助会員リスト

広告

表紙の説明

104 番元素ラザホージウム (Rf) の固液抽出挙動の振とう時間依存性。塩酸濃度：7.9 M, Aliquat 336 樹脂重量%：28 wt%。超重元素に対して抽出反応の平衡到達を確認し、分配係数を取得することに成功。

会長に再任して

中西友子



2016年9月より、日本放射化学会の会長に再任いたしました。会長としての責任の重さを改めて痛感すると共に、また新たな気持ちで本学会の発展のために微力を尽くして参りたいと思っております。

会長に就任した2年前の就任挨拶において、私は日本放射化学会を将来に向けていかに活性のあるものにしていくかが課せられた一番の課題であり、そのための手段として、広報活動の充実化が一つの重要な課題であると申し上げました。この広報活動につきましては、従来からのホームページの刷新のみならず、1957年からの放射化学討論会発表要旨が全てホームページ内で閲覧可能とすることができました。また、2015年5月に従来の「放射化学ニュース」から「放射化学メールニュース」に変更し、毎回、数項目から成るニュースが2か月ごとにメールで配信されるようになり、すでに10回目の配信となりました。酒井広報委員長、桧山委員を始め、広報に携わっておられる方々には深く感謝申し上げます。

1957年の第一回放射化学討論会の要旨をネットで見ますと、手書きの要旨ですが、かつての優

れた放射化学者の発表を直に閲覧することができ、その研究レベルの高さに驚きます。そして、それらの研究を受け継いだ研究者が、その後の日本の放射化学の研究を支えてきているという系譜をよく知ることができます。1957年当時は、特に1954年のビキニ環礁における水爆実験の汚染後ということもあり、2011年の東京電力福島第一原発事故後とやや類似した状況で研究が展開されました。木村健二郎先生の著書「遠き峯々、木村健二郎とその時代」には、ビキニ事件後、放射化学分野が大きな転換を受けたことが詳細に書かれています。今回の福島における事故も不幸な出来事ではありましたが、この問題を契機に、環境放射能研究がさらに深化していくものと考えられます。そして、そのような状況の中で、現在の放射化学者がさらに次の世代の研究者をきちんと育てていくことが、これからの放射化学会の大切な役割のひとつだと思っております。

終わりに、私事になりますが、昨年4月に期せずして、Hevesy賞を受賞することができました。これも日本の放射化学分野の高い研究活動に支えられたものだと思っております。このことが日本の放射化学の発展に少しでも貢献することができれば光栄であり、この場を借りて感謝申し上げます。

解 説

104 番元素 Rf の抽出平衡の観測

笠松良崇*、横北卓也
(大阪大学 大学院理学研究科)

大阪府豊中市待兼山町 1 - 1

はじめに

2016 年の 11 月 30 日、理化学研究所の森田浩介先生を代表とする実験グループ（筆者も一員に入れていただいているが）により発見された新元素 113 番元素に対してニホニウム (Nh) という名前が認められたというニュースは記憶に新しい。周期表に新しい元素名を刻むという非常に大きな研究成果である。理化学研究所では、このような新元素、新核種合成の研究と並行して、以前からこれら新元素である超重元素の化学的性質を調べる研究も進めてきた。この超重元素の化学研究は、まさに放射化学における大きな研究分野の一つであり、放射化学者にとってよりなじみの深い研究課題といえる。今回は、我々大阪大学と理化学研究所の共同研究として新しい溶液化学実験に成功し、その成果を報告することができたので、その論文について解説させていただく。^{1,2}

理化学研究所における大強度の線形加速器とそれに直結した質量分離装置、大強度のサイクロトロン加速器などは、元素合成研究においてのみではなく、生成率の低い超重元素の化学研究においても非常に強力なツールであるといえる。さらに、羽場宏光（現）チームリーダーが中心となり、これら加速器だけでなく、核反応生成物のガスジェット搬送システムや化学研究用 ²⁴⁸Cm ターゲットの作成、溶液化学分離後の試料の自動迅速 α 線測定装置の開発等、超重元素化学実験を行うための準備や環境作りが進められてきた。³ そのような環境下で、実際に Ch. E. Düllmann 教授を中心としたグループによる 106 番元素シーボーギウム (Sg) のガス系の化学研究成果などが報告さ

れるに至っている。⁴ 溶液系の化学研究においては、多くの日本の研究グループによりテスト実験が勢力的に実施されてきた。そのような中で、我々大阪大学だけでなく、新潟大学、金沢大学が中心となった研究グループによって実際に 104 番元素ラザホージウム (Rf) や 105 番元素ドブニウム (Db) が合成され、その化学研究が進められている。今後様々な成果報告とさらに新しい化学研究が理化学研究所にて精力的に遂行されていくであろうことは想像に難くない。今回、我々は理化学研究所で実施した溶液化学研究の最初の成果報告として、Rf の固液抽出において抽出挙動の時間依存性を観測し、初めて抽出反応の平衡到達の確認に成功したことを論文誌に報告した。^{1,2} 通常の化学においては平衡下の分配挙動を観測し、錯形成などを定量的に議論することは当然のことであるが、短寿命の超重元素においてはその観測が困難であった。本研究では、その課題に取り組み、化学的性質を調べるために重要と考えられる確かな値として分配係数を導出することに成功した。本成果は、今後さらに多様な化学反応系のデータを得るための手法開発としても重要であると考えている。

研究背景

原子番号 104 番以降の超重元素は加速器によってのみ製造可能な人工の放射性元素であり、その生成率は多いもので 1 分間に数原子、生成される原子の半減期は長いものでも 1 分程度であり、一度の実験で取り扱える原子数は 1 原子レベルとなる。このため、超重元素の化学的性質を調べるた

* Corresponding author, e-mail: kasa@chem.sci.osaka-u.ac.jp

めには1原子を対象とした実験を迅速に行う必要がある(単一原子化学)。超重元素の溶液化学実験では通常、加速器によって製造した生成物をKClエアロゾルを含むHeガス気流に乗せることにより化学実験室まで迅速に搬送し(He/KClガスジェット搬送システム)、溶液化、2相間分配法による化学分離(イオン交換や溶媒抽出など)、 α 線測定試料の作成、 α 線測定という一連の操作を繰り返すことにより行われている(加速器オンライン実験)。このようにして観測された超重元素の化学挙動と同族元素の挙動とを比較することにより超重元素の化学的性質が議論される。

これまでの超重元素の溶液化学の研究は、主にマイクロカラムを用いたクロマトグラフィー装置を用いてRfとDb、Sgを対象として行われてきた。特にRfのフッ化物錯形成については、同族元素のジルコニウム(Zr)とハフニウム(Hf)に比べて明らかに錯形成が弱く、擬似同族元素のトリウム(Th)より強いという興味深い結果が報告されている。⁵しかし、フッ化物錯体以外の研究では、同族元素に対してさえ加速器オンライン実験では化学平衡到達下の結果の取得が困難であった。特にH₂SO₄/HNO₃系の陽イオン交換の研究ではHfはオンラインカラム実験の結果と化学平衡到達下の結果が一致していたが、Zrではこれらの結果が一致しておらず、同族元素間で分配反応が化学平衡に到達するまでの時間が異なるという様子が報告されている。⁶この結果から、超重元素に対して直接化学平衡到達を調べることが錯形成を議論するために必要であるだけでなく、時間依存性を調べ、同族元素間で比較すること自体も非常に興味深い研究課題であることがわかる。これまで超重元素の化学実験において化学平衡到達下の結果が得られない原因として、マイクロカラム装置では樹脂と溶液の接触時間が短いことが考えられ、より長い接触時間を持つ実験装置が必要であった。本研究グループは、これまでに超重元素の抽出挙動の時間依存性を直接観測し、化学平衡の到達を確認するための新しい固液抽出(イオン交換)装置(AMBER)の開発を行った。⁷実際に、ZrとHfに対して加速器オンラインでの抽出実験を実施し、平衡到達する様子を確認し、分配係数(K_d)を得ることに成功した。本研究では、この装

置を用いた実験手法をRfに適用し、その抽出挙動を調べることに成功した。実験系としてはフッ化物錯体と同じハロゲン化物錯体で系統的な研究を行うために、HCl系の抽出を選定した。抽出剤はRfの半減期(68 s)を考慮し、化学反応が速いといわれている陰イオンのイオン対抽出剤である第4級アンモニウム塩のAliquat 336を採用した。

Rf実験に向けた同族元素を用いた基礎研究

Rfの実験条件の決定と比較データ取得のためにZrとHf、Thを用いて28 wt% Aliquat 336樹脂による6.5–11.3 M HClからの固液抽出を行った。実験手法は、文献7と同様で、⁸⁸Zr ($t_{1/2} = 83.4$ d)、¹⁷⁵Hf ($t_{1/2} = 70$ d)と²³⁴Th ($t_{1/2} = 24.1$ d)の放射性トレーサーを用いて一般的なバッチ法で行った。樹脂相と溶液相の元素濃度比を分配係数、 K_d (mL/g)として、以下の式で表すこととする。

$$K_d = A_r \cdot V / A_s \cdot w$$

A_r 、 A_s はそれぞれ樹脂相、溶液相中の放射能強度、 V は溶液の体積、 w は樹脂の重さを示す。

Fig. 1に K_d 値の振とう時間依存性を調べた結果を示す。すべての元素で振とう時間によらず K_d 値がほぼ一定であることからこれらの元素の抽出反応は振とう時間10秒で化学平衡に到達していると考えられ、今回の化学反応系はRf実験に適用可能な十分速い系であることがわかった。Fig. 2にこれらの元素の K_d 値のHCl濃度依存性を調べた結果を示す。ZrとHfはHCl濃度の上昇に伴い K_d 値が大きくなっており、Cl⁻と結合して陰イオン錯体が形成されている様子が示された。Thはほとんど抽出されず、調べた全てのHCl濃度領域で K_d 値が低いまま一定であり、ThはCl⁻と陰イオン錯体を形成せず、陽イオンまたは中性錯体として存在していることがわかった。これらの挙動は陰イオン抽出剤を用いて調べられてきた過去の実験結果と矛盾しない結果であった。⁷今回の研究からRfとの比較のための同族元素の抽出挙動を調べることができ、Rfの実験条件としては28 wt% Aliquat 336樹脂に対して8 M以上のHClが適していることがわかった。

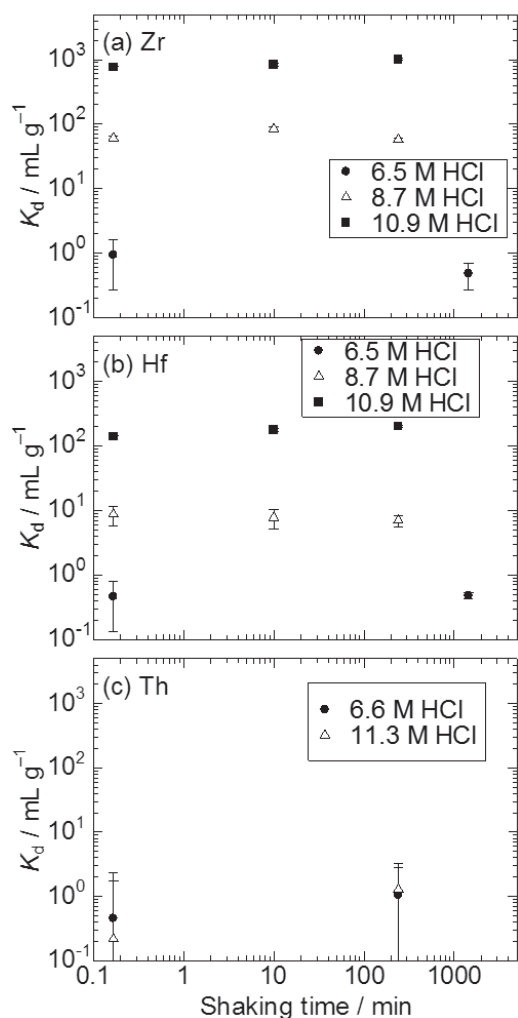


Fig. 1 28 wt% Aliquat 336 樹脂による HCl からの (a) Zr, (b) Hf, (c) Th の固液抽出時における K_d 値の振とう時間依存性

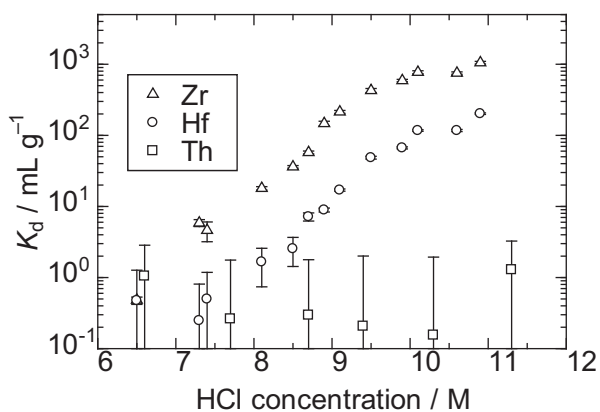


Fig. 2 28 wt% Aliquat 336 樹脂による HCl からの Zr, Hf, Th の固液抽出時における K_d 値の HCl 濃度依存性

バッチ型固液抽出装置を用いた Zr と Hf の加速器オンライン実験

加速器オンライン実験用のバッチ型固液抽出装置 AMBER を用いた Zr と Hf の抽出実験を行った。この装置の概要図を Fig. 3 に、写真を Fig. 4 に示す。この装置はバッチ的手法を適用することにより振とう時間を変えることで時間依存性が取得でき、テフロン製のフィルターと空圧により溶液のみを溶出させることで、迅速に固液の 2 相分離を行うことができる。また、自動制御により同じ条件下での繰り返し実験が可能である。実験操作は Rf の実験と同様であるため、Rf の実験項で説明する。

まず、加速器オンライン実験の前にその実験条件を決定するために AMBER を用いてオフラインの抽出実験を行い、Aliquat 336 樹脂に吸着した Zr と Hf の逆抽出条件と同じ樹脂の連続使用回数の評価を行った。28 wt% Aliquat 336 樹脂からの Zr と Hf の逆抽出は 4 M HCl (5 s 振とう) で 3 回樹脂を洗うことで達成できることがわかった。また、この逆抽出条件であれば同じ樹脂を少なくとも 100 回使用しても K_d 値が低下しないこ

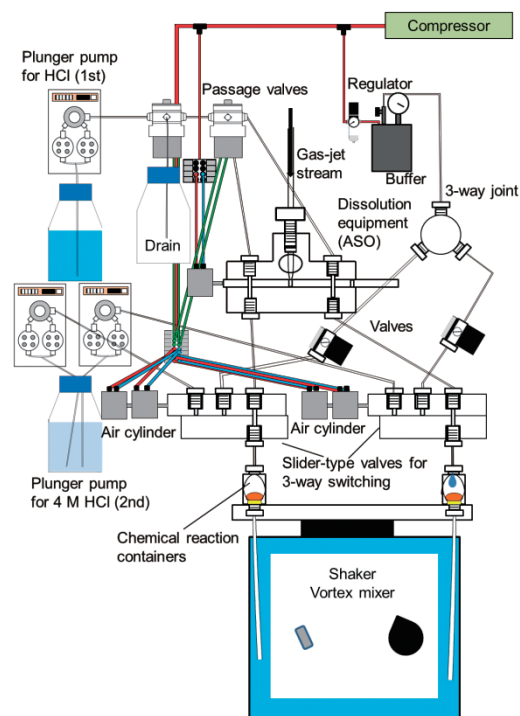


Fig. 3 バッチ型固液抽出装置 (AMBER) の概略図

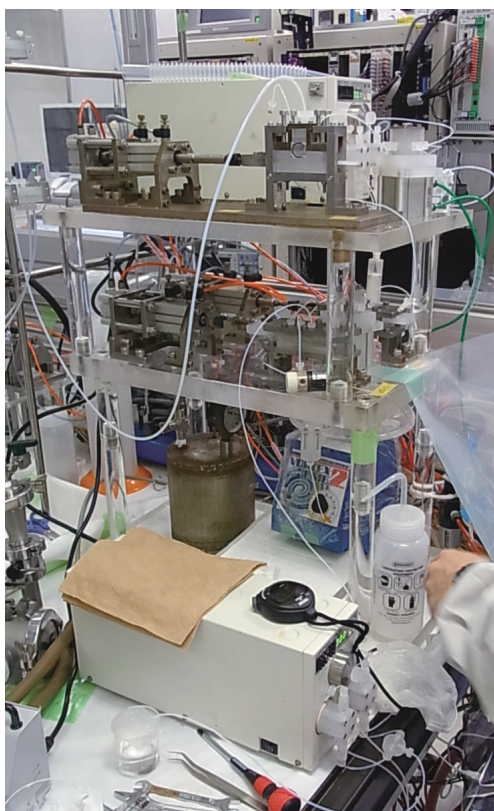


Fig. 4 バッチ型固液抽出装置 (AMBER) の写真

とを観測し、連続で同じ樹脂を 100 回使用できることがわかった。以前の AMBER の開発研究⁷では、抽出剤として Triisooctylamine (TIOA) を用いていた。しかし、TIOA は連続使用において、樹脂に吸着した Zr や Hf を HCl では少ない液量で全量流し出すことができず、HNO₃ などを必要があったが、この場合、樹脂の連続使用と共に得られる K_d 値が減少していくという問題があった。この実験結果から今回の Rf 実験では抽出剤を Aliquat 336 に変更することとした。

その後、加速器を用いて製造した短寿命の ^{89m}gZr ($t_{1/2} = 4.18$ min, 78.4 h) と ¹⁷³Hf ($t_{1/2} = 23.6$ h) に対して Aliquat 336/HCl 系の固液抽出を AMBER を用いた加速器オンライン実験により行った。 K_d 値の振とう時間依存性を調べた結果、迅速な固液分離を実現したオンライン実験でも振とう時間 10 秒で抽出反応が化学平衡に到達していることがわかった。また、 K_d 値の HCl 濃度依存性を調べ、 K_d 値の特に低い 8.2 M HCl 条件の Hf の値以外はオフライン実験で調べた K_d 値を正しく得ることができることを確認することができ

た。本研究により、Rf の加速器オンライン実験の実験条件を決定し、実験手法を確立することができた。

Rf の加速器オンライン実験

基礎実験で決定した Rf の実験条件下で Rf の加速器オンライン抽出実験を行った。理化学研究所の K70 AVF サイクロトロンを利用し、²⁴⁸Cm と ^{nat}Gd の混合ターゲット (厚さはそれぞれ 685、70 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) を用いることで、²⁶¹Rf ($t_{1/2} = 68$ s) と ¹⁶⁹Hf ($t_{1/2} = 3.24$ min) を同時に合成した。¹⁸O ビームは約 95 MeV でターゲットに入射させ、その平均ビーム強度は 800 pnA であった。照射中は C03 照射室から AVF ホットラボにかけて引いた He/KCl ガスジェットラインによって生成物を迅速搬送し続けた。KCl 温度は 640°C、ガス流速は 2.5 L/min で照射チャンバ内の圧力は約 130 kPa であった。生成物は AMBER の溶液化部の捕集サイトに 10 秒振とうの時は 133 秒間、30 秒振とうの時は 128 秒間、60 秒振とうの時は 143 秒間吹き付けられ、その後 HCl (0.25 mL) を流すことによって溶液化された。溶液化された溶液はそのままバルブを経て Aliquat 336 樹脂が入ったダイフロン製の反応容器に導入された。この時、ポンプの動作開始直後は流速が安定しないため、数秒前もって動作開始し、不要な溶液はバルブ操作で廃液入れに排出しておいた。反応容器内に溶液試料導入後は、室温 (26–27°C) で一定時間振とう器 (VORTEX-GENIE2) にて振とうし、固液抽出を行った。抽出後は、反応容器内に圧縮空気 (0.10–0.15 MPa) を入れて圧力をかけることで、反応容器下部のテフロンフィルターを通して容器内の溶液だけを容器外へ排出し、これを理化学研究所の自動迅速 α 線検出装置 (Fig. 5) に設置された蒸発乾固用の回転テーブル上の Ta 皿で受けた。固液分離には 10 秒を要した。Ta 皿内の溶液試料は、溶出中も 300°C の He ガスを吹き付ける (1.3 L/min) ことで迅速な蒸発乾固を補佐し、溶出が完了すると回転テーブルを動かし、Ta 皿をハロゲンヒータの真下に導くことで蒸発乾固を行った (この時は 600°C、0.7 L/min の He ガスを吹き付けた)。乾固後は、さらに回転テーブルを動かし、上記の自動 α 線検出装置のロボットア



Fig. 5 理化学研究所における自動迅速 α 線測定装置の写真

ムによって迅速に α 線測定チェンバー内に入れられ、すぐに測定が開始された。チェンバーの開け閉めから高圧電源の印加、その測定開始、終了シグナルのデータ収集系(A3200)への送信等全て自動で行った。 α 線測定チェンバーは8台を順に用いた。 α 線測定は、通常800秒程度行い、測定後の試料はGe検出器にて γ 線測定を行い、Hfの挙動を調べた。Hfの計数率から、溶液化効率などをチェックし、実験途中の装置化部の洗浄やOリングの交換などを実施しつつ、実験を進めた。樹脂に吸着した化学種は、4 M HClで3回洗浄することで流し出し、さらに抽出に用いている濃度のHCl溶液で一度洗う(2 s)ことで次の抽出実験の準備を行った。反応容器はAMBERに2つ設置し、これら樹脂の洗浄等の操作の間は、別の反応容器を用いてRfの抽出を行うことで、合成したRfを無駄にすることなく抽出実験を繰り返し行った。また、反応容器に樹脂を入れずに同様の操作を行い、溶液化したRf試料の標準放射能の測定も行った。固液抽出は、7.9 M HClでは10、30、60秒振とう条件で、9.0 M HClでは10

秒振とうのみで行い、樹脂なしでの標準実験は、7.9 M HClで10秒振とう、9.0 M HClで10秒と30秒振とうで行った。

総計で379回の抽出実験を行い、 ^{261}Rf と ^{257}No ($t_{1/2} = 24.5$ s)の α 線エネルギー領域に合計で132個の α 線(23個の ^{261}Rf - ^{257}No の時間相関イベントを含む)を検出した。得られた α 線のスペクトルの例をFig. 6に示す。 ^{261}Rf と ^{257}No の関心領域のエネルギー幅は、実験中に観測された ^{254}Fm の α 線スペクトルの分解能とスペクトル形状、妨害となる α 線のエネルギーを考慮して、7.91–8.43 MeVに決定した。このエネルギー領域のバックグラウンドは1検出器あたり 9.16×10^{-5} counts/sと低い値であった。時間相関イベントと総 α 線の個数との比は、数が少ないため大き

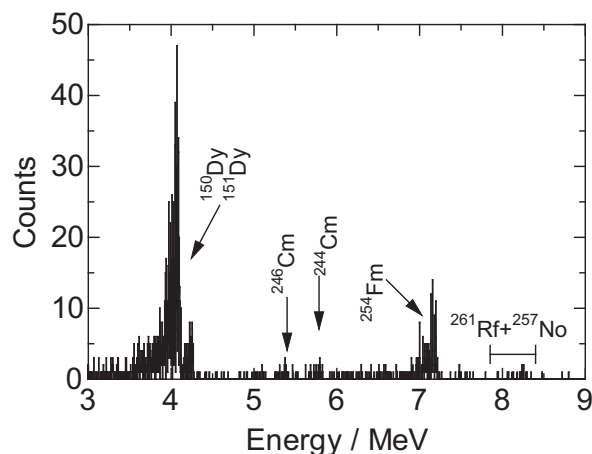


Fig. 6 標準実験37回で得られた α 線スペクトル図

な誤差を持つことになるが、両核種の半減期と実験条件から見積もられる値と比較して大きく異なることはなかった。 ^{261}Rf の核反応断面積は、樹脂を使わない標準実験の結果から、ガスジェット搬送効率を50%と仮定して導出すると約9 nbとなり、文献値13 nb⁸に近い値であることが分かった。また、 ^{261}Rf の半減期を導出すると 62 ± 6 sとなり、これも文献値68 s⁹と一致した。以上のことから本実験で間違いなく ^{261}Rf の合成に成功していることが確認できた。そこで、樹脂相と溶液相における α 線計数から ^{261}Rf の分配係数を導出した。その誤差は、非対称のポアソン分布から68%の信頼度で見積もった。¹⁰ 以上の見積もりに

において、 ^{261}Rf と ^{257}No はそれぞれの半減期を基に通常の減衰、成長を考慮し、文献 11 の結果から ^{257}No は樹脂に吸着しない挙動を取ることにした。

Fig. 7 に 28 wt% Aliquat 336 樹脂による 7.9 M HCl からの Rf の固液抽出の K_d 値の振とう時間依存性を示す。 K_d 値は振とう時間によらずおおよそ一定であり、Rf の抽出反応も同族元素の Zr と Hf と同様に、振とう時間 10 秒で迅速に化学平衡に到達していることがわかった。これは初めて超重元素の分配挙動の時間依存性を調べ、化学平衡の確認を行ったものである。また、Fig. 8 に 28 wt% Aliquat 336 樹脂による HCl からの Rf の固液抽出を行ったときの K_d 値の HCl 濃度依存性を Zr、Hf、Th の結果と共に示す。9.0 M HCl の Rf の K_d 値は 7.9 M HCl のものに比べて大きく、Rf

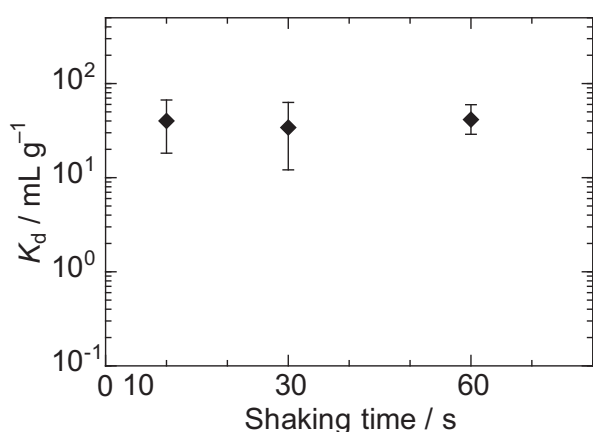


Fig. 7 28 wt% Aliquat 336 樹脂による 7.9 M HCl からの Rf の固液抽出における K_d 値の振とう時間依存性

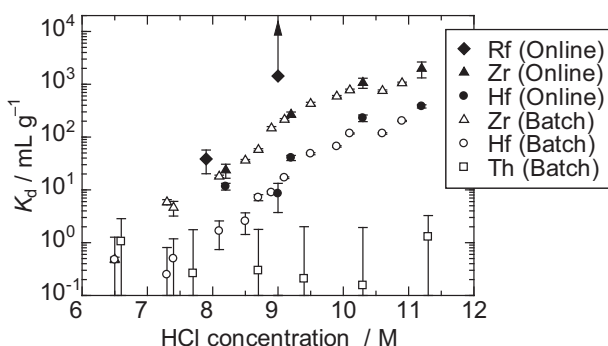


Fig. 8 28 wt% Aliquat 336 樹脂による HCl からの Rf, Zr, Hf, Th の固液抽出における K_d 値の HCl 濃度依存性

は Cl^- と陰イオン錯体を形成することが示唆された。また、9.0 M HCl における K_d 値は同族元素の Zr と Hf に比べて明らかに大きくなることがわかった。このような Rf と同族元素との明確な違いが HCl 系で観測されたのは初めてのことであり、本研究にて化学平衡到達下の K_d 値を得ることによって観測することができたと考えられる。Rf が Zr と Hf と同様に $[\text{MCl}_6]^{2-}$ として存在しているとした場合の理論計算では、 K_d 値は $\text{Zr} > \text{Hf} > \text{Rf}$ の順になると報告されている。¹² この計算値の順序はイオン半径の順序と一致しているが、今回の実験により得られた K_d 値の順序はこれらとは異なっていた。このため、Rf は Zr と Hf とは異なった塩化物錯体を形成する可能性が考えられる。Rf の塩化物錯形成をより深く理解するためには、理論と実験の両面からさらに多様な HCl 系での Rf の研究が必要であると考えられる。

まとめ

Rf 実験に向けて同族元素の Zr、Hf と擬似同族元素の Th を用いて Aliquat 336/HCl 系の固液抽出を行い、この化学反応系は Rf 実験に適用可能な十分速い化学反応系であることが分かった。また、これまでに開発した加速器オンライン実験用の抽出挙動の振とう時間依存性を調べるためのバッチ型固液抽出装置を用いて Zr と Hf の加速器オンライン実験を行い、Rf の加速器オンライン実験の実験条件を決定した。そして、決定した Rf の実験条件で Rf の加速器オンライン実験を行った。本研究で、超重元素に対して初めて化学反応の時間依存性を調べ、HCl 系での Rf の抽出反応の化学平衡到達を確認し、化学平衡到達下の K_d 値を取得することができた。この結果、Rf の塩化物錯形成が同族元素と異なっていることが示唆された。

以上に述べたように、本研究ではバッチ型固液抽出装置を用いた超重元素に対する新しい実験手法を確立し、実際に Rf の塩化物錯体の研究を行うことに成功した。今後、AMBER を用いた本研究手法により様々な化学反応系 (HCl、HBr、 HNO_3 、 H_2SO_4 など) で化学平衡到達下の Rf の分配挙動が調べられると期待される。また、Db の化学実験は、現時点では 1 条件の K_d 値を取得す

るのに1日やそれ以上の時間がかかるという厳しい状況であるが、実験時間の短縮や加速器技術の進化などにより、今後その生成率が上がることで、AMBERを用いた実験の実現性が増すことも期待される。様々な超重元素の様々な化学反応系での性質を調べることが、相対論効果を強く受ける超重元素の化学的性質を理解することにつながると期待している。

引用文献

- (1) T. Yokokita, Y. Kasamatsu, A. Kino, H. Haba, Y. Shigekawa, Y. Yasuda, K. Nakamura, K. Toyomura, Y. Komori, M. Murakami, T. Yoshimura, N. Takahashi, K. Morita, and A. Shinohara, *Dalton Trans.* **45**, 18827 (2016).
- (2) プレスリリース <http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2017/201701252>
- (3) 羽場宏光、*Isotope News* **702**, 2 (2012).
- (4) J. Even, A. Yakushev, Ch. E. Düllmann, H. Haba, M. Asai, T. K. Sato, H. Brand, A. Di Nitto, R. Eichler, F. L. Fan, W. Hartmann, M. Huang, E. Jäger, D. Kaji, J. Kanaya, Y. Kaneya, J. Khuyagbaatar, B. Kindler, J. V. Kratz, J. Krier, Y. Kudou, N. Kurz, B. Lommel, S. Miyashita, K. Morimoto, K. Morita, M. Murakami, Y. Nagame, H. Nitsche, K. Ooe, Z. Qin, M. Schädel, J. Steiner, T. Sumita, M. Takeyama, K. Tanaka, A. Toyoshima, K. Tsukada, A. Türler, I. Usoltsev, Y. Wakabayashi, Y. Wang, N. Wiehl, and S. Yamaki, *Science* **345**, 1491 (2014).
- (5) Y. Ishii, A. Toyoshima, K. Tsukada, M. Asai, Z. Li, Y. Nagame, S. Miyashita, T. Mori, H. Sugauma, H. Haba, M. Sakamaki, S. Goto, H. Kudo, K. Akiyama, Y. Oura, A. Shinohara, M. Schädel, V. Pershina, and J. V. Kratz, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **84**, 903 (2011).
- (6) Z. Li, A. Toyoshima, M. Asai, K. Tsukada, T. K. Sato, N. Sato, T. Kikuchi, Y. Nagame, M. Schädel, V. Pershina, H. Liang, Y. Kasamatsu, Y. Komori, K. Ooe, A. Shinohara, S. Goto, H. Murayama, M. Murakami, H. Kudo, H. Haba, Y. Takeda, M. Nishikawa, A. Yokoyama, S. Ikarashi, K. Sueki, K. Akiyama, and J. V. Kratz, *Radiochim. Acta* **100**, 157 (2012).
- (7) Y. Kasamatsu, A. Kino, T. Yokokita, K. Nakamura, Y. Komori, K. Toyomura, T. Yoshimura, H. Haba, J. Kanaya, M. Huang, Y. Kudou, N. Takahashi, and A. Shinohara, *Radiochim. Acta* **103**, 513 (2016).
- (8) Y. Nagame, *J. Nucl. Radiochem. Sci.* **6**, A21 (2005).
- (9) Ch. E. Düllmann and A. Türler, *Phys. Rev. C*, **77**, 064320 (2008).
- (10) W. Brüche, *Radiochim. Acta* **91**, 71 (2003).
- (11) R. J. Silva, W. J. McDowell, O. L. Keller, and J. R. Tarrant, *Inorg. Chem.* **13**, 2233 (1974).
- (12) V. Pershina, D. Trubert, C. Le Naour, and J. V. Kratz, *Radiochim. Acta* **90**, 869 (2002).

特集 2016年度学会賞

学会賞

山本政儀（金沢大学名誉教授）

受賞題目：極微量 α 放射性核種の測定法開発および地球化学研究への応用

<授賞理由>

地球表層には、さまざまな天然および人工放射性核種が存在している。特に、中長半減期のアクチニド α 放射体は、放射線防護の観点のみならず地球化学研究のツールとしても重要であることから、人体及び環境中における濃度分布や同位体組成を定性的に定量する必要がある。しかし正確で精密な測定・定量には、環境試料や人体を含む生物試料のマトリクス中から極めて微量な目的核種を濃縮・精製することが必須であり、かつ妨害核種の影響を受けない測定法が必要となる。山本政儀博士は、長年環境放射能研究に携わり、上記の試料等を対象に、それまで測定不可能であった極めて微量な放射性核種を正確に測定・定量する方法を確立し、それを応用した先駆的な研究を行い、その成果は100編を超える原著論文として発表されている。それらの成果を簡単にまとめると以下ようになる。

- (i) 様々な形態の試料に対する極微量放射能測定法（特に α 放射体）を開発し、その応用を極めて多岐に渡る試料に適用した。
- (ii) 環境中のアクチニドの挙動に関する研究として、グローバルフォールアウト中のプルトニウム同位体比の分析、セラフィールド核燃料再処理工場近傍のアイリッシュ海、チェルノブイリや福島原発事故、広島・長崎原爆、JCO臨界事故、旧ソ連セミパラチンスク核実験場等の世界の核汚染地域の実態解明などを精力的に進めた。
- (iii) 安定・放射性同位体を利用した地球・環境化学研究として、(a) 降雨中の宇宙線生成核種 ^7Be とウラン系列子孫核種の過剰 ^{210}Pb を継続して観測し日本海上空の大気循環や環日本海域の物質輸送を調べた研究や、(b) ウラン・トリウム及びその系列核種、並びに ^{22}Na 等

の環境に存在する極微量の放射性核種を使用した海水、陸水循環研究や古気候研究、などを精力的に進めてきた。また、 ^{236}U が世界的規模で散逸していることを発見した後は、当該核種の化学的特性に着目し、海洋深層水の循環トレーサとして利用できる可能性を提唱した。

これらの研究は、いずれもユニークな着想と綿密かつ精力的な放射化学的分析に支えられたものであり、放射化学の発展に対する貢献には計り知れないものがある。また(ii)に関しては、カザフスタン共和国において研究のみならず技術提供も行い、2003年にはカザフスタン共和国（公衆衛生・教育・スポーツ省）から「カザフスタン共和国への保健システムへの貢献」として特別賞を受賞している。

山本博士は長年にわたり、日本放射化学会会員として討論会・学会年会およびその他関連研究会において筆頭著者や指導学生・共同研究者の共著者として数多くの発表を行ってきた。第37回討論会、2005年学会年会の金沢大会では実行委員として学会開催に尽力するとともに、2013年には日本放射化学会が金沢で主催したAPSORC2013の共同議長を務め、会議を成功させることで日本放射化学会へ大きく貢献した。さらに、人材育成や社会貢献の面からも幅広い活動を進めており、長年、金沢大学のみならず全国の大学や中学・高校で放射化学教育、特に環境放射化学についての講義を行ってきた。教育機関の他、地元住民の小さな集会から全国規模の市民講演会での講演・講義など場所や規模を問わず、そして新聞、ラジオ及びテレビ等の取材などを通じても放射能・放射線について情報発信を精力的に続けてきた。特に、福島第一原子力発電所事故直後は月に数回のボランティア講演を行い、現在も年に

数回の講演活動を続けている。また、放射化学・原子力に関する専門家として、国や地方自治体、研究機関等の各種委員会において数多くの委員を歴任してきた。

このように、山本政儀博士は、これまで長年に渡り極めて多岐に渡る優れた研究を多数生み出し、この分野の研究者を多数育成・輩出すると共に、放射化学・原子力に関する社会貢献を継続して行ってきており、その業績は日本放射化学会賞学会賞を授与するに相応しいものであると高く評価するに至った。

(日本放射化学会学会賞選考委員会)

<受賞者の紹介>

この度、山本政儀金沢大学名誉教授が「極微量 α 放射性核種の測定法開発および地球化学研究への応用」という受賞題目で日本放射化学会賞を受付けられました。先生の近くで研究していたものとしては大変喜ばしく受賞の知らせをお聞きました。本稿では、そのような関係者が山本先生の受賞を記念して先生の人となりを紹介します。

山本先生は、京都学派と呼ばれる哲学の潮流を創った西田幾多郎を生んだ石川県宇ノ気町のお生まれで、昭和48年3月金沢大学理学部化学科を卒業後、昭和48年4月福井県衛生研究所(放射能課)に採用され、その後昭和53年4月北陸大学薬学部放射薬品化学教室・助手に採用されました。昭和61年3月筑波大学で理学博士の学位を取得後、同年7月に金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設・助手に転任、平成7年7月金沢大学自然計測応用研究センター・低レベル放射能実験施設・助教授に昇任、平成15年10月同センター・教授に昇任、その後改組した金沢大学環日本海域環境研究センター・低レベル放射能実験施設の施設長を務められ、平成27年3月31日定年により退職されましたが、今でも特任教授として大学で仕事をされています。平成3年10月～平成4年5月までドイツ・ミュンヘンにあるGSF国立環境科学研究センターに留学されたほか、平成6年から平成13年までの毎年、科学研究費補助金の代表・分担者として計20数回にわたり、カザフスタンにある旧ソ連核実験場セミパラチンスクを訪れ、周辺環境放射能汚染と住民の被曝

線量評価研究にも取り組まれました。

山本先生のご研究は、主に地球表層にあるさまざまな天然および人工放射性核種についてのもので、放射線防護の観点や地球化学研究に関連して中長半減期のアクチニド α 放射体に特に注目されました。人体及び環境中における濃度分布や同位体組成を正確で精密に測定・定量するためには、環境試料や人体を含む生物試料のマトリックス中から極めて微量な目的核種を濃縮・精製することが必須であり、かつ妨害核種の影響を受けない測定法が必要となります。山本先生は長年、環境放射能研究に携わり、このような試料等を対象にそれまで測定不可能であった極めて微量な放射性核種を正確に測定・定量する方法を確立し、それを応用した先駆的な研究を行ってきました。また、研究のみならず教育や行政にも率先して携われ、日本放射化学会ひいては世界の放射化学分野発展に貢献されました。詳しい研究の内容は本号に掲載されるご自身の解説に譲りまして、ここでは先生の周辺にいたものが実見したエピソードを以下に綴らせていただきます。

1. 「ご自身の活動」について

- ・山本先生と言えば、手についた酸を拭くため穴が空いてしまった白衣を着て、低レベル実験施設の3階実験室で、とにかくよく実験をされていたが、同時に論文執筆などのデスクワークもこなし、そのバランスがどちらかに偏ることが無かった。
- ・科研費などの外部資金も切らせたことがなく、「国税を使っただけの研究なのだから、必ず論文にしないといけない」が口癖で、現にそのようにされていた。
- ・門徒総代をされるお寺の行事や地区会長としての地域行事以外は、他研究室(分析化学講座)の先生に「少しは休みなさい」と何度も注意されたほど、曜日を問わず研究室に日参された。
- ・山本先生は、実験ノートを非常にきれいに作成されるのだが、実は書かれる文字がかわいい「まるもじ」であるのは、山本研究室修了生皆知る最大の秘密である。

2. 「学生指導」について

- ・ 総じて山本先生の学生指導は、厳しかったと思
い返す修了生がほとんど。基本的には、学生の
自主性を重んじる教育方針である。つまり、サ
ンプリングを始めとして、実験計画、関係各所
への連絡、日程調整に至るまで全て学生に任せ
られた。このことは、学生自身にとって当時は
負担に感じることも多々あるのだが、その経験
は必ず役に立っていることを、後々感じる。
- ・ 一方で、サンプリングでも実験でも、ご自身の
興味あるいは好奇心から、学生の結果が待てな
いときにはご自分の手で着手してしまうことも。
- ・ 実験結果に対する議論では、学生相手でも容赦
がなく、論文にまとめる際に意見の相違がある
場合には本気の口論となり、学生としても反論
したいところだが、追試実験や勉強し直したり
すると、先生の意見が正しいようなことがほと
んどであった。
- ・ このような議論は時と場所を選ばず行われる
が、山本研究室の学生は、とにかくよく実験を
するので、この手の議論はしばしば実験室でさ
れる。偶にご自身が車を運転中に議論が始ま
ると、ナビを完全に無視し、高速道路では目的
の出口を通過するなどの弊害もある。
- ・ 実験室では、教育的配慮から色々な質問をされ
るが、その質問への返答で褒められることはま
ずがない。これは、学生が書く論文原稿やプレゼ
ン資料にも当てはまるが、基本的に「0点」か
らスタートし、先生との熱い議論と考察を経て、
全てが論文などの形を取って、世に出て行く。
- ・ 実験室では、研究以外の話題でも話しかけられ、
ご自身の経験を通じて人生訓・研究哲学をよく
教示していただいた。そのごく一部を紹介する
と、ご自身の家督についての悩みに始まり、北
陸大学に赴任する際に「学部卒の自分が研究者
としてやっていけるのか」と悩んだこと、当時
の上司の先生に「君の哲学は何だね?」と言わ
れ続けて半年間悩んだこと、琵琶湖研究所の K
先生に言われた研究の3要素「斬新なアイディ
ア」・「新しいものを作る」・「他人よりも多く測
る」のどれを選択して研究を進めるかなど、多
岐にわたる。これらの話題は、修了生が研究等
で悩んだ際に思い出されるとともに、役だった

り、救われたりすることが多い。

- ・ 修了生で研究所等に就職した者は、「山本の代
名詞」であるプルトニウムの何らかの研究に携
わることになることが多く、そこで立ち上げる
環境（ラボ）や使用器具などは、（我々修了生
が勝手に呼んでいる）山本仕様のものが自然と
導入され、測定機器類などが低レベル実験施設
のものとは異なる場合でも、分析操作やそのコ
ンセプトは、コンベンショナルなものとして受
け継がれている。

3. 「パーソナリティー」について

- ・ 非常にまめな方で、新聞やラジオで見聞きし
た格言や知識を、かつてはノートに、現在は
Word でまとめている。福島原発事故以降は、
気になるニュースや記事も毎日 Word につけて
いる。
- ・ 読書家であり、Amazon ワンクリックを覚えた
直後など、大変な勢いで書物が研究室に届けら
れたことも。研究関連のみならず、様々な分野
の書物に目を通されるが、歴史、宗教、文学に
は特に興味をお持ちで、その知識は学生にも（時
として相手の如何を問わず）喧伝される。
- ・ 誰とでもフランクな先生の交友関係は広く、国
内外に留まらず、研究以外の分野の方にも顔が
広い。これは先生の研究が多岐にわたっている
ことにも裏付けられる。学長や他の先生方には
ため口にも近い口調で話されるが、一方で学生
や PD には敬語で話すことが多い。
- ・ 先生については、お酒とたばこは切っても切り
離せない。特にお酒の席では、お話しが止まら
ない。その時の話題は、「近況報告－本日の料
理と酒についての感想－研究の状況－先生が注
目する研究についての議論・考察－（研究）哲
学－人生論」とほぼコースが決まっており、た
ばこの灰が降り積もるのも気にされずに、熱弁
される。学生の中にはツライ思いをした学生も
居たようだが、大半の修了生は、現在でも良好
な（？）関係を保っている。因みに、このよう
な席では、机いっぱい料理がないといささか
不満をこぼされる。
- ・ 先生は、マッキントッシュ（Mac）派であるが、
システム異常を知らせる「Sad Mac」がでた折

りには、「変なマークが出ておるぞ～」とご自分の部屋から学生部屋に電話、もしくは学生部屋に相談にこられ、どうしようもない状況に相談された方も困り果てる。一部の学生には、卒業（修了）後にも「Macが立ち上がらないんだけど、どうしたらいいんか～？」との連絡があるらしい。

以上から、山本先生の人となりの一端を感じていただければ、執筆者一同幸甚に存じます。

(横山明彦、坂口 綾、及川真司、大塚良仁、富田純平)

<学会賞受賞者による研究紹介>



極微量 α 放射性核種の測定法開発および地球化学研究への応用

山本政儀
(金沢大学名誉教授)

Development of Methods to Measure Trace Amounts of α -Emitting Radionuclides and its Application to Environmental and Geochemical Researches

Masayoshi Yamamoto
Professor Emeritus, Kanazawa University

Abstract

For more than 40 years, I have investigated in the broad direction of scientific researches related to the development of low-level radioactivity measurement, the environmental radioactivity and radiation effect to human, and their applications as tracers to earth and environmental sciences, including chronology.

In this article, I present some topics of my works as follows: 1) development of methods to measure trace amounts of α -emitting radionuclides which need radiochemical separation and purification, especially environmental transuranic nuclides, 2) studies on the worldwide radioactive contamination fields such as Hiroshima and Nagasaki atomic bombs, Lucky Dragon incident in Bikini Atoll, Semipalatinsk nuclear test site, Irish Sea (UK) contaminated by radioactive wastewater from the Sellafield nuclear fuel reprocessing plant, JCO criticality accident, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and so on, and 3) studies on their applications to earth and environmental sciences for better understanding various processes occurring in the environment.

1. Introduction

As a student of the Department of Chemistry in the Faculty of Science at Kanazawa University (1972/1973), I majored in radiochemistry, which was taught by Professor Masanobu Sakanoue. After that, I conducted monitoring and researches on environmental radioactivity around nuclear power plants (formerly the Fukui Prefectural Institute of Public Health, now Fukui Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science). Then, I researched radiopharmaceuticals and environmental radioactivity in the Department of Radiopharmacy under the Faculty of Pharmaceutical Sciences at Hokuriku University. In July 1986, immediately after the Chernobyl nuclear disaster, I was transferred to the Low Level Radioactivity Laboratory in the Faculty of Science of Kanazawa University.

When I looked back, more than 40 years had passed, but it felt like a blink of the eye. Luckily, throughout my career I have always been with radioactivity and radiation researches, and seen the progress. In addition to naturally occurring radioactive α -emitting elements such as uranium (U), thorium (Th), radium (Ra), radon (Rn), and polonium (Po), (1) I engaged in establishing methods to analyze and measure artificially produced α -emitting radioactive elements, especially plutonium (Pu) and other radionuclides of transuranium elements. (2) I conducted researches on the state of radioactive contamination and the behaviors of contaminants in Hiroshima and Nagasaki (1945), the Lucky Dragon Incident in Bikini Atoll (1954), and the Irish Sea, which was heavily contaminated by highly concentrated radioactive wastewater from the Sellafield Nuclear Fuel Reprocessing Plant in the UK. Furthermore, I investigated environmental radioactivity and the impact of radiation on the residents near the Semipalatinsk Nuclear Test Site in the former Soviet Union and its environs in Kazakhstan, Central Asia, the JCO Criticality accident (1999) in Japan, and

the Fukushima Dai-ichi nuclear disaster (2011). (3) I have been also involved in environmental chemistry and geochemistry researches using naturally occurring and artificially produced radionuclides as ideal tracer (marker) in understanding dynamics in the environment, including radiometric-dating methods [1].

In this article, I highlight some of my most significant achievements involving the development of low-level measurements of trace amounts of α -emitting radionuclides, environmental radioactivity and radiation dose researches, and applied researches in the fields of geochemistry and environmental chemistry.

2. Development of Low-level Measurements of Trace Amounts of Radionuclides, Especially α -Emitting Radionuclides

It used to be difficult to measure trace amounts of α -emitting nuclides in environmental and biological samples. However, after developing a highly precise quantification method by selecting the appropriate tracers and applying chemical separation techniques as well as α -particle spectrometry (or inductively coupled plasma mass spectrometry [ICP-MS]), I conducted researches on the concentration distribution of these nuclides, elucidated their behaviors, and estimated their radiation doses.

Additionally, analysis of refractory plutonium oxides used to be quite troublesome, but my introduction of a new fusion method with ammonium hydrogen sulfate enabled a fast analysis of such oxides [2]. I also established an extraction and separation method of plutonium and americium (Am) under strongly acidic conditions using new solvent extractants, DBDECP and/or DBDECMP [3]. By measuring the ratio of Lx/ α particle, I together with Associate Professor Kazuhisa Komura determined the isotopic ratio of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ [4]. Prior to our efforts, this ratio was determined with thermal ionization mass spectrometry (TIMS).

Neptunium-237 was present in a minute amount in the environment, it was, however, difficult to detect. I successfully developed a method to radiochemically separate and refine neptunium from a large amount of samples (50-100 g of soil) using ^{239}Np (a descendant nuclide of ^{243}Am) as a tracer for yield correction and precisely quantified ^{237}Np with α -particle spectrometry and at a later date ICP-MS [5-7]. Moreover, I established a method to simultaneously quantify ^{239}Np and ^{237}Np using ^{235}Np as a tracer (by measuring low-energy γ rays by silicon semiconductor detectors) [8]. These methods were the first to successfully elucidate the concentration distribution of the global fallout of ^{237}Np and the radioactivity ratio of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ in the environment [10-12]. Prior to my method, the only environmental data on ^{237}Np was that from the contaminated zone around the Sellafield Nuclear Fuel Reprocessing Plant.

Moreover, I pioneered a method for sequential analysis of trace amounts of neptunium, plutonium, and americium (curium) in the same sample [13,14]. Upon considering the radiochemical purity and α -particle energy, I chose the appropriate tracers and combined neptunium analysis with a method for plutonium and americium (curium) analysis.

Because the high background noise with γ -ray spectrometry makes it very challenging to measure the isotopes of radium in an extremely low concentration, I employed α -particle spectrometry to develop a method to measure radium isotopes in an extremely low concentration in environmental and biological samples [15]. I adopted a revolutionary approach where ^{225}Ra (β decay, a daughter nuclide of ^{229}Th) was used as a tracer for yield correction. After radiochemical separation and purification with CyDTA, α -particles emitted by descendant nuclides (^{217}At , etc.) derived from electrodeposited ^{225}Ra over a platinum plate were used to determine the yield. This method allowed isotopes of radium (^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra and $^{228}\text{Ra} \rightarrow ^{228}\text{Th}$) in an extremely low

concentration to be quantified. The method has been used to collect basic data relevant to reducing the concentration of aqueous radium in the water tank of the neutrino detection with Cherenkov detector in KAMIOKANDE-II [16] and has been applied to a few grams of human bone [17,18] and tooth samples [19], contributing to radiation dose estimation research.

3. Environmental Radioactivity and Radiation Effect Researches

3.1. Radioactivity Issues of *Black Rain* from the Hiroshima Atomic Bombing

As a university student, I investigated a method to analyze and quantify ^{227}Ac ($T_{1/2} = 21.7$ y, β^- & α , 1.2 %) in the actinium series. After graduating in March 1973, I researched the activity level, distribution, and migratory behaviors of Pu and ^{241}Am isotopes in soil and seafloor sediment samples [20-23]. I first encountered close-in fallout samples from the Hiroshima and Nagasaki atomic bombings in around 1980. I had an opportunity to chemically separate Pu and measured them with α -particle spectrometry. For the Hiroshima samples, I measured the Pu concentration and the isotopic ratios of Pu (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , and ^{241}Pu) in soils [24-26]. The isotopic ratios showed no substantial difference from those of global fallout. However, I detected highly concentrated $^{239,240}\text{Pu}$ in the sample from the Nishiyama district of Nagasaki (2,500-5,000 Bq/kg in three samples taken from 10-cm deep soil). Furthermore, I confirmed that the radioactivity ratio of $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ was low (around 0.055). With a novel method simultaneously using the above-mentioned Lx/ α particle measurement, I found that the isotopic ratio of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in the Nagasaki atomic bomb was around 0.042 [26]. The result indicated that the material in the atomic bomb contained about 95 % ^{239}Pu .

About another 20 years transpired before I had an opportunity to be involved in researches related

to radioactivity in Hiroshima or Nagasaki again. Although it has long been considered a problem, since about 10 years ago, social concern has been directed toward the exposure to radioactive substances contained in *black rain*, which had fallen immediately after the atomic bombings in Hiroshima and Nagasaki. Consequently, *black rain* became an imminent research target. Research on *black rainfall* needed to provide the following information: total precipitation over time, the area affected, amount of radioactive fallout, and associated radiation dose. Although 71 years have passed since the atomic bombings, questions about the essential nature of close-in fallout of the Hiroshima atomic bomb have yet to be answered. Furthermore, the estimated radiation dose caused by *black rain* has not been established. Radiation doses due to neutrons and gamma rays emitted directly in the atomic explosion are estimated today by a radiation dose assessment system called Dose System 2002 (DS02). The system, however, does not take into account *black rain* because it considered that the contribution of the fallout associated with *black rain* was negligible.

In 1976 and 1978, the Ministry of Health and Welfare led research in Hiroshima to determine the residual radioactivity from soil samples, which were carefully collected in locations along 16 different directions within 30 km from the hypocenter of the atomic explosion. The measurements primarily targeted ^{137}Cs , a nuclide of nuclear fission products with a long half-life ($T_{1/2} = 30.17$ y). Initially, the great amount of global fallout caused by atmospheric nuclear weapons tests conducted by the United States and Soviet Union from the 1950 to the early 1960s made it extremely difficult to determine the trace of close-in fallout from ^{137}Cs derived from the Hiroshima atomic bombing. Therefore, emphasis was placed on samples that preserved close-in fallout in those days without being affected by global fallout.

Through cooperation of citizens, houses that were built immediately after the atomic bombing

(one to four years afterwards) and were scheduled to be scrapped shortly were identified. Such houses were primarily north and northwest from the hypocenter of the explosion. We considered soils under the floor of these houses most suitable for our analysis. The measurement of ^{137}Cs was conducted in collaboration with a group led by Professor Hoshi of Hiroshima University. We measured the concentration and accumulation of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ (also the isotopic ratio of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ for four sites) using 100 g soil samples collected under the floor of houses at 20 sites. For each house, about 3–5 sites were selected, and a 30-cm deep soil core sample was collected [27-30].

The production of plutonium may be ignored if we take into account the fact that the atomic bomb of Hiroshima was made from ^{235}U . Thus, detection of any amount of plutonium in the soil under the floor suggests a great possibility of contamination by global fallout. Hence, plutonium was used as an indicator of contamination due to global fallout.

Because detecting ^{137}Cs with non-destructive measurement techniques was difficult, the sample (~100 g) was separated chemically and a low-background germanium detector at the Ogoya Underground Laboratory was used for the measurement. For all measurement sites, their ^{137}Cs were detected in the range of a few to a few hundred Bq/m^2 (mostly 10 to 50 Bq/m^2), while $^{239,240}\text{Pu}$ were detected in the range of 0.1 to 24 Bq/m^2 (mostly no more than 1 Bq/m^2). The isotopic ratio of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in the samples taken from four sites was between 0.13 and 0.19. The ratio in the global fallout is 0.18 [30]. The detected $^{239,240}\text{Pu}$ and the isotopic ratio of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in the measurement strongly suggested that the under-floor soils were more or less contaminated by global fallout over the years.

Under some assumptions, we estimated the amount of ^{137}Cs close-in fallout, restricting measurements to the area where the samples were collected. The calculated ^{137}Cs close-in fallout was around 50 to 100 Bq/m^2 . Future studies must take

into account the information concerning how the under-floor soils of sampling sites were prepared or leveled before or upon the construction of houses as well as possible soil erosion by typhoons immediately after the atomic bombings (Makurazaki typhoon in September 1945) and large-scale floods. In the meantime, the Koi and Takasu districts, where the amount of fallout was believed to be large, must also be surveyed and studied.

During this research, we began to suspect that ^{236}U ($T_{1/2} = 2.34 \times 10^7$ y, α) was a product of a nuclear reaction of ^{235}U (n, γ) because the Hiroshima atomic bomb was a ^{235}U bomb. Hence, in collaboration with Professor Masaharu Hoshi and Assistant Professor Sakaguchi of Hiroshima University, we tried to measure this nuclide using a tandem accelerator mass spectrometer (AMS) at the University of Vienna (the Vienna Environmental Research Accelerator [VERA]) [20]. Uranium-236 was detected in a minute amount, but the ratio of $^{236}\text{U}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ were, respectively, within the global fallout ranges [31]. The results did not provide any additional information on the situation of close-in fallout. Despite the inconclusive results, this research renewed my excitement for chemical separation of plutonium from a great amount of samples and extremely low-level radioactivity measurements. My passion for measuring ^{236}U by the AMS was rekindled. It should be noted that nuclide ^{236}U is attracting attention today as an oceanic circulation tracer.

3.2. Lucky Dragon Incident in Bikini Atoll – Nuclides of Transuranium Elements in *Death Ash*

On July 16, 1945, the United States conducted the first atomic bomb test in Alamogordo, New Mexico. Less than a month later, the tragedies of the atomic bombings in Hiroshima and Nagasaki occurred. The United States conducted the first test of a 10.4 Mt thermonuclear weapon (hydrogen

bomb) called “Mike” on Eniwetok Atoll in the Marshall Islands on October 31, 1952. Less than a year later on August 12, 1953 the former Soviet Union conducted its first thermonuclear weapon test at the Semipalatinsk Nuclear Test Site. (The site is located in the Republic of Kazakhstan today.)

As the arms race escalated, the United States began conducting a series of second thermonuclear weapon tests (Operation Castle), which was on a larger scale. The first test in this series was an explosion of a 15 Mt hydrogen bomb, commonly referred to as “Bravo”, on March 1, 1954 (February 28 in the United States) on Bikini Atoll. At the time of the blast, more than 900 Japanese tuna fishing boats were operating in this area of the ocean. The *Daigo Fukuryu Maru*, or Lucky Dragon No. 5, was in waters about 160 km east of Bikini Atoll. Although she was about 30 km outside the danger zone, 23 of the Lucky Dragon crewmembers were affected by this test. Today, this incident is known as the *Lucky Dragon incident*.

Kanazawa University was also associated with the Lucky Dragon incident. Professor Toshiyasu Kiba *et al.* of the Department of Chemistry in the Faculty of Science at Kanazawa University attempted to measure the radioactivity of the tuna fish shipped out to the *Ohmicho Ichiba* (Ohmicho Market) in Kanazawa. A remarkable point in the radioactivity measurement by Japanese scientists at that time was the detection of ^{237}U ($T_{1/2} = 6.75$ d, β), a product of nuclear reaction of ^{238}U (n, 2n), in the nuclear fallout. The radioactive intensity of ^{237}U accounted for 20 % of the total intensity. This research helped elucidate the composition of the nuclear explosive (fission-fusion-fission bomb, being frequently called 3F Bomb). It was reported that, since ^{237}U has a short half-life, the scientists had tried to detect its decay product ^{237}Np ($T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ y, α), but their effort ended in failure because the radioactivity of ^{237}Np had been too weak to be quantified.

At the same time as the opening of the Daigo Fukuryu Maru Exhibition Hall on June 10, 1976, the Low Level Radioactivity Laboratory was founded as part of the Faculty of Science at Kanazawa University. Around April 1979, which was 25 years after the incident, Professor Masanobu Sakanoue and Associate Professor Kazuhisa Komura visited the Exhibition Hall to conduct in-situ measurements of the samples in the hall using germanium detectors. The measurement detected ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{155}Eu , and ^{241}Am . A small amount of heavily contaminated windmill palm (used as a marker of the floater of the haenawa, or longline, fishing method of the fishing boat), which was probably sampled for research, was stored in our laboratory.

Since I had developed a method to analyze and measure ^{237}Np in environmental samples earlier than others in Japan, I became interested in the radioactivity of ^{237}Np detected in the sample and its relative radioactivity level compared to other radionuclides. So, I tried to measure ^{237}Np as well as other nuclides of transuranium elements in this sample (around 0.4 g in dry mass). This was around 1995. The first measurement made by a γ -ray spectrometer confirmed that the sample was indeed contaminated by nuclear *death ash*, which included ^{137}Cs and ^{60}Co . Later, I became the first to successfully detect ^{237}Np (0.0115 ± 0.0008 Bq/g-dry) derived from the Bikini Atoll nuclear test in a chemical separation and α -particle measurement [32]. The radioactivity of ^{237}U at the time estimated from ^{237}Np adhered on the leaves of the windmill palm was 1.3×10^6 Bq/g-dry.

Based on this estimate, the total radioactivity of the *death ash* itself was further estimated. The calculation was as follows: $10^6/0.2$ (the literature value of how much the radioactivity due to ^{237}U accounts for the total radioactivity)/ $0.01-0.001$ (our assumed fraction of the *death ash* in the dry mass of the windmill palm sample) = $5 \times 10^9 - 5 \times 10^{10}$ Bq/g of the *death ash*. The calculated value falls in the range of very intense radioactivity. The most

interesting finding was that the radioactivity ratio of $^{237}\text{U}/^{239,240}\text{Pu}$ estimated by Professor Kenjiro Kimura of The University of Tokyo, $(5.0 \pm 3.5) \times 10^4$ as of March 26, 1954, agreed fairly well with the one estimated from my measurement (1.7×10^4 after a correction as of March 26, 1954); the value was within the measurement error.

I guess that scientists in those days, probably while being exposed to relatively high radiation from the highly radioactive samples (as estimated above) had analyzed and measured samples using Geiger-Müller counter, perhaps without sleep. Plutonium was measured by observing the trajectories of α particles from plutonium on the nuclear emulsion plates under a microscope after a number of chemical separation processes. This fact renews my respect and admiration for the measuring capabilities, especially the analytic capability, of scientists in those days.

I really wanted to take what our predecessors did in the Lucky Dragon incident to heart, improve my analytical techniques, and follow in their footsteps. Today's progress in the analytical and measurement methods is amazing. Nowadays, it is relatively easier to measure radioactivity [33].

3.3. The Irish Sea, the UK – Sellafield Nuclear Fuel Reprocessing Plant: Distribution and Behaviors of Nuclides of Transuranium Elements in Coastal Sediments

Since about 1990, in collaboration with Dr. D. J. Assinder of the University of Wales in UK, I have conducted research in the Irish Sea, which has been heavily contaminated by highly concentrated radioactive wastewater from the Sellafield Nuclear Fuel Reprocessing Plant. Our research has focused on the sediments (core samples) of the coastal sea surrounding the reprocessing plant. The objectives of our research have been to measure the state of contamination, distribution, and accumulation of nuclides of transuranium elements, especially ^{237}Np , by analyzing the sediments, and to elucidate the migratory

behaviors of these elements to the sediments.

The coastal area is the most active site of material exchanges (formation and consumption) and cycles. Viewed from a chemistry perspective, the area is a site for not only the dispersion of materials but also for the insolubilization, precipitation, and resolubilization of dissolved materials. From a biology perspective, the metabolism of materials is active and concentrated in this area. Research on the behaviors of nuclides of transuranium elements, many of which are biologically hazardous α -emitters and have long lives, in the coastal area provides only a transitional view of the process because the process has only been observed for approximately 60 years of contamination.

Farsighted persistent research is necessary, but generally normal coastal environments are not ideal for such research because their levels of contamination are too low to be detected. The Irish Sea in the UK is the most ideal field for studying the state and migratory behaviors of these kinds of transuranium elements. The sediments in the coastal areas are contaminated with few thousand times higher concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ than the coastal areas in Japan, where the surface sediments are contaminated by only a few Bq/kg concentration of $^{239,240}\text{Pu}$. Most of the nuclear facilities in Japan are located in the coastal areas. If we consider this fact, a systematic qualitative as well as quantitative understanding of the overall picture of the actual state of the abovementioned processes is important, not only from an environmental radioactivity research point of view but also from a geochemistry research point of view.

The Sellafield nuclear facilities are a huge nuclear power center spread across Cumbria in North West England, which includes nuclear fuel processing facilities, reactors, fuel reprocessing plants, and storage spaces for nuclear fuel and wastes. After World War II, the first reprocessing plant was commissioned to produce weapons-

grade plutonium in 1952, and the second one began operations in 1964. Only one other plant, the La Hague plant in France, is comparable to the Sellafield facilities in terms of scale and operational record. Since 1952 Sellafield has released low level radioactive wastewater into the Irish Sea about 2 km offshore from the coast. The release has been no more than the target level of annual release.

The level of the annual release peaked in the 1970s but was drastically reduced in the 1980s due to various mitigation measures. The cumulative amounts of released ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, and ^{241}Am until 1990 were 3×10^4 (atmospheric nuclear weapons tests: 1.3×10^6), 7×10^2 (1.3×10^4), and 9×10^2 (3×10^3) TBq, respectively. Most of the plutonium, americium, and curium were released in particulate forms composed of flocs of which the main constituent is iron (III) hydroxide $\text{Fe}(\text{OH})_3$, whereas neptunium, most likely neptunium (V), was released in a mixed form of dissolved and undissolved states with slightly more in the dissolved state. The released species contained hot particles that emitted α -particles. However, it was reported that once these hot particles were released into the environment, they would become soluble in a few months.

By measuring the concentration of ^{237}Np , $^{238,239,240,241}\text{Pu}$, $^{241,242\text{m}}\text{Am}$, $^{242,243,244}\text{Cm}$ and ^{99}Tc and their isotopic ratios in the sediments sampled over a broad area on the coasts and river mouth of the Irish Sea [34-42], I estimated the amount of release from the nuclear power plants and elucidated the migratory behaviors of radionuclides in the coastal area such as the behaviors in the intertidal zones and the mobility of nuclides ($\text{Tc} > \text{Cs} > \text{Np} > \text{Am} \approx \text{Pu}$). Additionally, I elucidated the presence of $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2} = 141$ y, IT) and the released amount [39]. There are two possible migration mechanisms for the diffusion and migration of radionuclides released into the Irish Sea to the coastal area: diffusion in a dissolved state by ocean currents and dispersion in a particulate state from highly concentrated

contaminated sediments near the water outlet. Using the simple model of Mackenzie et al. to express the transport mechanism in a particulate state (dependent on the supply from the reprocessing plant, accumulation in the sediments near the outlet, decay, dispersion of particles, and resolubilization), I calculated a model of the sediment cores measured in this research. The result indicated that the computation model reproduced the measured depth profile well.

The amount of released radioactive substances decreased by more than two orders of magnitude in the 1980s. In conjunction with this decrease, the internal radiation dose for human bodies was initially expected to decrease by more than two orders of magnitude. In reality, it actually decreased only by an order of magnitude. Thus, the observations in the Irish Sea provide a warning that once long-life radionuclides contaminate coastal and intertidal areas, their impact is long lasting [42].

Currently there are uncertainties about the released amount of transuranium elements from the Fukushima Dai-ichi nuclear disaster into the coastal areas. However, the amount to date is below a negligible level. Current surveys and researches have primarily focused on the behavior and movement of radioactive cesium.

3.4. Environmental Radioactivity Issues around the Semipalatinsk Nuclear Test Site in the Former Soviet Union and Radiation Dose of Local Residents

Research on the effects of radiation on the human body has been based on a cohort of a few hundred thousand people affected by a high radiation dose at a high dose rate due to the atomic bombings in Hiroshima and Nagasaki, where the impact on carcinogenicity, life expectancy of the cohort, etc., have been surveyed. International Commission on Radiological Protection (ICRP) has approved the effects. However, many common radiation exposure cases are by low radiation

doses at low dose rates over a prolonged time; hence, applying the risk from radiation exposure over an instantaneous time of an atomic bomb explosion to low-dose/low-dose-rate radiation exposure has been questioned. Therefore, to provide realistic solutions to this difficult problem, it is essential to conduct surveys and research on cases of a large group of subjects who have been exposed to low radiation doses at low dose rates over an extended period.

At the Semipalatinsk Nuclear Test Site of the former Soviet Union, a number of nuclear tests, including 26 aboveground, 86 atmospheric and 346 underground, were conducted from 1949 to 1989, without notifying the surrounding residents of the radiation risk from atomic bomb in the early years, which allegedly forced a few hundred thousand people to be exposed to different doses of radiation from low doses (at a low dose rates) to high doses. Globally, aboveground and atmospheric nuclear tests were conducted in a number of locations, including Nevada in the United States, but in very few cases were the test sites surrounded by many local residents. Moreover, very few groups of people had been exposed to radiation in a wide range of low dose rates for a prolonged period. Hence, the group of residents in Semipalatinsk is considered the most suitable group of subjects.

In 1994, I first went to Semipalatinsk as a person in scientific research fund of the "Kazakhstan's Economic Recovery and Environmental Problems" research group of Professor Tsuneo Tsukatani of Kyoto University. Since then, I have engaged in research to provide solutions to the aforementioned problems in collaboration with the Professor Masaharu Hoshi research group of the Research Institute for Radiation Biology and Medicine at Hiroshima University and researchers, B. I. Gusev, K. N. Apsalikov, *et al.*, of the Institute of Radiation Safety and Ecology in Semipalatinsk, Kazakhstan.

The characteristic of the radiation exposure suffered by the residents around Semipalatinsk

is not direct exposure to γ rays and neutrons, but exposure to radioactive fallout from radioactive clouds dispersed in the atmosphere, which had fallen over a 200–300 km range and influenced people's health. By this radiation exposure, the residents in the environs reportedly suffered 30 to 250 cSv of external radiation (cumulative dose from 1949 to 1992) as well as a great amount of internal radiation from 40 to 300 cSv. However, these external and internal radiation doses were those that scientists in the former Soviet Union and Kazakhstan had estimated primarily using mathematical models. Therefore, the validity of the models, including the estimated doses, has long been a subject of debate.

We tried to determine the detailed state of radioactively contaminated soils (detectable nuclides today are ^{137}Cs , ^{90}Sr , and the isotopes of plutonium) inside and outside the communities where the residents used to live at the time of the nuclear tests to estimate the radiation dose from the amount of ^{137}Cs deposition. In addition, we also conducted ^{129}I measurements in soil, $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}U measurements including their $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios in human tissues, and U isotope measurements in drinking water. Furthermore, to evaluate dose as exactly as possible, thermoluminescent dosimetry (TLD) of building bricks was also carried out together with measurements of the electron spin resonance (ESR) for the teeth of those exposed to radiation (Hoshi research group of Hiroshima University) [43-59].

I have made more than 20 trips to Semipalatinsk and visited many regions, including local communities scattered around the test site, to collect mostly soil (and drinking water) samples. I brought those samples back to Japan to primarily analyze them for ^{137}Cs and the isotopes of plutonium. A total of more than one ton of soil samples was brought back to Japan at a rate of 50–100 kg per trip. To elucidate the state of contamination, we researched a broad range of

regions.

Initially, we thought that the ground around the test site was contaminated by highly concentrated ^{137}Cs . However, our research revealed that contamination by ^{137}Cs in the communities near the test site was in the range of a few thousand to a few tens of thousands Bq/m^2 , which was unexpectedly low, whereas contamination by plutonium, a material used in atomic bombs, was relatively high (a few thousand Bq/m^2). Our research also demonstrated that most of the plutonium in the soils near the test site existed as part of aggregates (soils, etc.) and was abundant as hot particles.

Then, we focused our researches on the village of Dolon (110 km northwest of the test site), which was most seriously affected by the first test in August 1948. We implemented a detailed survey, being focused on the position and width of the area where the radioactive cloud passed [58]. To estimate the external radiation dose, in collaborative research with Assistant Professor T. Imanaka of Kyoto University, we used a simple model that considered the amount of ^{137}Cs fallout at the time of the test (10,000-20,000 Bq/m^2) as well as the other nuclides of nuclear fission products (the fractionation of fission products was considered) inferred from the distribution of ^{137}Cs fallout today. The estimated dose was around 500 mGy (absorbed dose; the medical effects of radiation not taken into account) [59]. This value was almost the same as the one estimated from the building blocks (by TLD) and the teeth samples (by ESR), suggesting that the accumulation of residual ^{137}Cs can provide a valid estimation of the external radiation dose. This kind of approach has been applied to other villages: Sarzhal (110 km southeast from the hypocenter), Karaul (200 km from the hypocenter), the village of Kaynar (140 km southwest from the hypocenter), to primarily estimate the external radiation dose.

I really find it rather difficult to estimate the appropriate radiation dose, as the estimate must

include the internal radiation dose. A lesson that I learned from the Fukushima nuclear disaster is that conducting a survey of the individual radiation (both external and internal) dose for as many residents as possible from the early stage of the post-disaster period with routine follow-up medical exams is crucial and must be given priority. The ultimate judgment of the risk of low radiation dose against humans may have to resort to epidemiological data collected through this kind of unglamorous survey and research.

3.5. JCO Criticality Accident at Tokai-mura, Japan

A criticality accident occurred on September 30, 1999 at the uranium conversion facility of the JCO Company Ltd. in Tokai-mura, Japan. A collaborating science investigation team was organized in two groups: the first to carry out research on the environmental impact (the environmental research group) and the second to assess the radiation effects on residents (the biological research group) [60]. I engaged in the evaluation of neutron-induced radionuclides and fast neutron fluxes leaked from the accident building to the outside. The former focused on nuclides such as ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn and ^{140}La , all of which are produced by (n, γ) [61]. Furthermore, in order to confirm whether uranium which was handled was released by the accident or not, U isotopes ($^{234,235,238}\text{U}$) were measured in soil around the criticality accident building by α -particle spectrometry and ICP-MS [62]. For estimating the fast neutron flux, ^{54}Mn by $^{54}\text{Fe}(n, p)$ reaction [63] and ^{32}P by $^{35}\text{Cl}(n, \alpha)$ reaction were successfully measured [64].

3.6. Fukushima Dai-ichi Nuclear Disaster:

Release of Nuclides of the Disaster-derived Transuranium Elements

On March 11, 2011, huge amounts of radioactive substances were released from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant of Tokyo Electric Power Company (TEPCO),

which was affected by a massive earthquake (magnitude 9.0) that occurred off the Pacific coast of Tohoku and subsequent tsunamis (The 2011 Tohoku earthquake, also known as the Great East Japan Earthquake). These events resulted in an unprecedented catastrophic disaster where a massive earthquake disaster and a nuclear radiation accident were combined to synergize the damage. The vast amount of survey and research data have elucidated an outline of the accident, the amount of radionuclides released into the environment, especially radioactive iodine (^{131}I) and radioactive cesium (^{134}Cs , ^{137}Cs), their behaviors, the situations of environmental contamination, radiation dose, etc. [65].

In the early stage of the post-accident period, very little information was available on the nuclides of transuranium elements such as plutonium and ^{90}Sr , which are important to estimate the impact of radiation damage. This was because these nuclides are α - and β -emitters, which are difficult to measure directly. Common nuclear reactors using uranium fuel produce plutonium. Among the affected reactors in this disaster, the Unit 3 reactor used MOX fuel, which contained plutonium as part of its fuel. Hence, local residents immediately raised grave concerns over the release of highly toxic plutonium into the environment.

Initially after the accident, TEPCO reported the detection of about 100 times higher radioactivity ratio of $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (around 2) than that of global fallout (about 0.03) in the samples taken at several sites within the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant, suggesting the release of trace amount of plutonium derived from the accident, of which the level of $^{239,240}\text{Pu}$ was fairly low. In April 2011, the concentration of plutonium and its isotopic ratio were measured in soils sampled at the side of a road connecting Iwaki City to Fukushima City outside the 20-km zone from the Fukushima Nuclear Power Plant (Hoshi group of Hiroshima University) and in Iitate Village

(Imanaka group of Kyoto University). In May 2011, the same techniques were used to measure soils sampled in Okuma Town near the nuclear power plant (Koike group of Tohoku University). Most samples contained $^{239,240}\text{Pu}$, but only in low levels. Furthermore, the above-mentioned $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ratio was around 0.03. The results could not provide a definitive proof of the existence of plutonium derived from the nuclear power plant [66]. Zhen et al. of the National Institute of Radiological Sciences (NIRS) reported that the $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ratios in several soil and fallen leaf samples were in excess of 100 (the current ratio is around 1.2 in global fallout), verifying the spreading of plutonium derived from the nuclear power plant into the environment.

When uranium fuel is burned in a nuclear reactor, nuclear reactions between uranium in the fuel and neutrons produce various isotopes of plutonium. Furthermore, nuclear reactions between newly produced plutonium and neutrons produce various isotopes of plutonium; the higher the burn-up of nuclear fuel, the greater the presence of isotopes against ^{239}Pu . Hence, to detect or identify the presence of plutonium derived from a nuclear power plant, it is essential to examine the isotopic ratio of plutonium as well as concentration of plutonium. Moreover, nuclear power plants also produce elements with a greater atomic number than plutonium, such as americium (^{241}Am) and curium (^{242}Cm , ^{243}Cm , and ^{244}Cm). In high burn-up fuel, ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162 \text{ d}$, α) contributes most toward the intensity of all the α -particles emitted by the nuclides of transuranium elements in the early stage. If plutonium derived from a nuclear power plant is indeed released, ^{242}Cm with a greater radioactivity than plutonium is likely to be found along with ^{243}Cm and ^{244}Cm .

Based on this assumption, we tried to detect these nuclides. Soil samples taken by standard core samplers had a small cross section, making them unsuited for detection. Instead we focused roadside dust samples including soils and so on.

These samples, which we called *black substances* since they look black, were contaminated with highly concentrated ^{134}Cs and ^{137}Cs . It was speculated that they had become highly concentrated by the accumulation of radionuclides released from the nuclear power plant, which had initially fallen on the asphalt surfaces of roads or spaces but was then carried away by wind and rain to the roadsides. We considered these to be ideal samples for measuring the isotopic ratio.

With special permission for entry from local municipalities near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (Minamisoma City, Namie Town, Futaba Town, Okuma Town, and other municipalities located south of the power plant), we collected *black substances*, fallen leaves, and soil core samples to estimate the amount of nuclear fallout at approximately 150 sites in these municipalities from September to November in 2012. In many spots near the nuclear power plant, the reading of Aloka dosimeters went off the scale ($> 30 \mu\text{Sv/h}$ at 1 m above the ground). Except for the soil cores, all the collected samples (i.e., black substances and fallen leaves) were contaminated with highly concentrated radioactive cesium (a few million to a few tens of million Bq/kg). Only ^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$ were detected in the soil core samples. In contrast, ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm and $^{243,244}\text{Cm}$ were easily detected in the *black substances* and fallen leaves samples. Each sample of 40-70 g was used to analyze. We also measured ^{236}U using AMS [67-70]. These data allowed us to estimate not only the accumulation of $^{239,240}\text{Pu}$ derived from the nuclear power plant but also reliable ratios of radioactivity among these nuclides.

The accumulation of the nuclear plant-derived $^{239,240}\text{Pu}$ estimated from the soil core samples ranged from nearly 0 Bq/m² to 2.8 Bq/m² with an average of $0.20 \pm 0.37 \text{ Bq/m}^2$, which is a very small quantity. The $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio was on the order of 10^{-7} . The ratio of nuclides in our measured samples were compared with the ratio

of nuclides in a reactor core inventory estimated by Nishihara *et al.* of the Japan Atomic Energy Agency. These two ratios agreed fairly well, except for $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$. This result seemingly suggested that plutonium, americium, and curium, including uranium (^{236}U), were likely to be released, mostly without being separated, as particulate carry-over together with steam. I think that these data are quite valuable for estimating the burn-up of a nuclear reactor and the extent of fuel damage in a nuclear meltdown or melt-through as well as to compare and examine diffusion and falling behaviors of refractory elements (Pu, etc.) and volatile elements (Cs, etc.).

3.7. Research related to the Estimation of Internal Radiation Dose

Along with the above environmental radioactivity researches, I have also engaged in plenty of researches on the estimation of internal radiation doses. I have measured 1) ^{226}Ra in bones and teeth [18-19], 2) ^{210}Pb and ^{210}Po in human tissues [71], hairs [72], daily diet [73,74], marine organisms [75], etc., 3) $^{239,240}\text{Pu}$ in human organs [76] and U and Th in diet [77,78]. Abroad, I have measured 4) uranium isotopes in underwater and drinking water in villages around the Semipalatinsk Nuclear Test Site in Kazakhstan [80] and plutonium ($^{239,240}\text{Pu}$, and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio) and uranium isotopes in human tissues of residents there [57].

4. Applied Research for Geochemistry and Environmental Chemistry

Taking advantage of my broad knowledge and data about the development of methods to measure trace amount of radionuclides as well as the distribution and composition of isotopes, I have also conducted applied researches in the fields of geochemistry and environmental chemistry. In my more than 20-year research project with monthly measurements until 2013 on the cross-border transport mechanism of contaminants

from continental Asia, I obtained systematic data of ^{210}Pb and ^7Be in fallout (sometimes including atmospheric aerosol). I compiled the transport and elimination mechanisms of these contaminants. My observations on the fluctuation of the amount of these contaminants generally agree with the long-term cycles of El Nino and La Nina. The paper about this accomplishment was received as one exemplifying the importance of a long-term dataset and is distinguished as a frequently cited paper in the *J. Environ. Radioactivity* [81,82]. Also, the deposition of cosmogenic radionuclide ^{35}S and sulfate in a heavy-snowfall area facing the Sea of Japan Sea [83] was studied, together with the transport of carbon-bearing dusts from Iraq to Japan during Iraq's War [84]. Furthermore, I have vigorously promoted radiometric dating using uranium, thorium, and nuclides of their series, α recoil research related to uranium in underground water, research on lake water circulation (Lake Biwa, etc.) using radionuclides of ^{210}Pb and ^{210}Po [85] as well as ^{22}Na [86,87], etc., and paleoclimatology (using very long core sediments in Lake Baikal in Russia and Lake Khuvsgul in Mongolia [88-91]). Plutonium concentration and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio in liver from Squid collected in the coastal areas of Japan was successfully measured as indicator for evaluating the contamination of Pu in the marine environment [92]. In collaboration with Associate Professor A. Sakaguchi of the Hiroshima University, we also measured ^{236}U using the accelerator mass spectrometer (AMS) in the Vienna Environmental Research Accelerator (VERA) at the University of Vienna, Austria, and estimated the amount of global fallout (about 900 kg) for the first time [93]. After that, we applied this AMS measurement method to the Hiroshima atomic bomb [94]. Moreover, we have focused on the chemical properties of uranium, and proposed the idea of using ^{236}U as a possible oceanic tracer to track the circulation of deep ocean water instead of ^{137}Cs . The surface concentrations and depth profiles of

^{236}U in the Japan Sea have been measured for this purpose [95,96]. This idea of using ^{236}U as a new oceanic circulation tracer was groundbreaking, and now ^{236}U is an important tracer nuclide in oceanography. In Japan, Associate Professor A. Sakaguchi of the Tsukuba University has been promoting research on this tracer application.

I am also interested in radioactive springs among mineral hot springs, especially the origin of highly radioactive ^{226}Ra spring water. It is known that highly radioactive ^{226}Ra , which exceeds 100 Bq/kg, is found in far more concentrated saline water than seawater, such as salt water in oil fields of some countries. In some areas, a positive correlation has been observed between the concentrations of ^{226}Ra and salt. To answer the question of why ^{226}Ra is found in a high concentration in some spring water, many studies were conducted in terms of dissolution of rock, α recoil, salt concentration-dependent radium ion exchange, adsorption and desorption reactions, etc., but the answers that the studies tried to provide had many uncertainties. Consequently, together with Dr. J. Tomita of my student (now, Japan Atomic Energy Agency), we changed my focus to hot saline underground water (most is used for hot springs) taken from drilling wells deeper than 1000 m created with advancing drilling technologies in coastal areas and sedimentary basins. We demonstrated the ubiquitousness of radioactive springs with a high ^{226}Ra content (> 1 Bq/kg) in coastal areas and sedimentary basins. In conjunction with this research, I measured the isotopes of uranium, thorium, and radium in the core samples taken from boring wells for hot springs and showed a plausible mechanism for creating hot springs with a high ^{226}Ra content. The mechanism is as follows. Radium, which is produced by the α -recoil from thorium primarily in the surface layer of rocks (coating layer), is retained in the water layers. This process is facilitated by a saline environment derived from fossil salt water contained in deep

strata (the salinity dependence of adsorption and desorption of radium was verified experimentally). There are a number of issues that have yet to be examined, but it is significant that our research showed one possible mechanism for creating the so-called highly radioactive springs [97-102].

Other than radium researches, disequilibrium with ^{238}U and ^{234}U was carried out using hot spring water at the Tatsunokuchi-spa, Ishikawa, Japan, in which the highest value of ca.50 was observed among the spring waters of more than 150 surveyed until now [103].

5. Acknowledgement

It is truly an honor to receive the 2016 Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences Award. I am deeply indebted to my mentors, Masanobu Sakanoue and Kazuhisa Komura, professors emeritus of Kanazawa University. Although both are deceased, I am grateful for their friendship and guidance early in my career. Also, I would like to thank Professor Kaoru Ueno of the LLRL, and Professors Emeritus Kou Sakamoto and Takashi Nakanishi of the Radiochemistry Course of Department of Chemistry in the Faculty of Science at Kanazawa University, who have been an invaluable source of inspiration and advice since my undergraduate days. I believe that this award is a result of everyone's efforts at the Low Level Radioactivity Laboratory (LLRL). I am delighted to be a part of such a wonderful team. I truly appreciate all the support and guidance extended to me by many researchers. This award is also a result of the support of many professors, researchers, predecessors, and students who have collaborated in the research. I appreciate the time I spent with each and every one. I wholeheartedly thank everyone involved, and look forward to the prosperous future of the Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences.

References

- [1] M. Yamamoto, JNRS, 32, 42-54 (2015) (In Japanese).
- [2] M. Yamamoto, J. Radioanal. Nucl. Chem., 90, 401-408 (1985).
- [3] M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, Radiochim. Acta, 29, 205-208 (1981).
- [4] K. Komura, M. Sakanoue, M. Yamamoto, Health Phys., 46, 1213-1219 (1984).
- [5] M. Yamamoto, K. Chatani, K. Komura, K. Ueno, Radiochim. Acta, 47, 63-68 (1989).
- [6] C. K. Kim, Y. Takaku, M. Yamamoto, H. Kawamura, K. Shiraishi, J. Radioanal. Nucl. Chem., 132, 131-137 (1989).
- [7] Y. Igarashi, C. K. Kim, Y. Takaku, K. Shiraishi, M. Yamamoto, Anal. Sci., 6, 157-164 (1990).
- [8] G. Rosner, R. Winkler, M. Yamamoto, J. Radioanal. Nucl. Chem., 173, 273-281 (1993).
- [9] M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Chatani, S. Igarashi, K. Komura, Radiochim. Acta, 51, 85-95 (1990).
- [10] M. Yamamoto, H. Kofuji, A. Tsumura, S. Yamazaki, K. Yuita, K. Ueno, Radiochim. Acta, 64, 217-227 (1994).
- [11] K. Bunzl, H. Kofuji, W. Shimmack, A. Tsumura, K. Ueno, M. Yamamoto, Health Phys., 68, 89-93 (1995).
- [12] M. Yamamoto, S. Igarashi, K. Chatani, K. Komura, K. Ueno, J. Radioanal. Nucl. Chem., 138, 145-152 (1990).
- [13] M. Yamamoto, K. Komura, J. Radioanal. Nucl. Chem., 147, 165-176 (1991).
- [14] M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Chatani, S. Igarashi, K. Komura, Radiochim. Acta, 51, 85-95 (1990).
- [15] M. Yamamoto, K. Komura, K. Ueno, Radiochim. Acta, 46, 137-42 (1989).
- [16] M. Yamamoto, M. Sakanoue, K. Komura, K. Ueno, JHPS, 24, 321-329 (1989) (In Japanese).
- [17] M. Yamamoto, H. Kawamura, Y. Igarashi, K. Shiraishi, K. Ueno, Radiochim. Acta, 55, 163-166 (1991).
- [18] H. Kawamura, M. Yamamoto, Y. Igarashi, K. Shiraishi, K. Ueno, Health Phys., 61, 615-622 (1991).
- [19] M. Yamamoto, M. Hinoide, Y. Ohkubo, K. Ueno, Health Phys., 67, 535-540 (1994).
- [20] M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, Americium and Curium Chemistry and Technology (D. Reidel Pub. Company, US), pp. 275-292 (1985).
- [21] M. Yamamoto, Doctor Thesis of Tsukuba University, pp.1-175 (1986).
- [22] M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, J. Radiat. Res., 24, 237-249 (1983).
- [23] M. Yamamoto, K. Ueno, H. Amano, JAERI-Memo 09-063, pp.1-80 (1997). (In Japanese)
- [24] M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, J. Radiat. Res., 24, 250-258 (1983).
- [25] M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, J. Radiat. Res., 26, 211-223 (1985).
- [26] M. Yamamoto, K. Komura, M. Sakanoue, J. Radiat. Res., 24, 250-258 (1983).
- [27] M. Yamamoto, K. Kawai, K. Zhumadilov, S. Endo, A. Sakaguchi, M. Hoshi, T. Imanaka, M. Aoyama, Study report on radioactive fallout with black rain due to the Hiroshima atomic bomb, May 2010, p.79-88 (In Japanese).
- [28] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, K. Zhumadilov, M. Hoshi, S. Endo, T. Imanaka, Y. Miyamoto, IPSHU English Research Report Series No. 28, Institute for Peace Science, Hiroshima University, p.37-44 (2012).
- [29] A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, F. Quinto, K. Mino, J. Tomita, M. Hoshi, N. Whitehead, M. Yamamoto, Sci. Tot. Environ., 407, 4238-4242 (2009).
- [30] M. Yamamoto, M. Hoshi, K. Zhumadilov, S. Endo, A. Sakaguchi, T. Imanaka, Y. Miyamoto, Revist: The Hiroshima A-bomb with a Database, Volume 2 Hiroshima City 2013, ISBN 978-4-9905935-1-3, 35-43 (2013).

- [31] A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, T. Imanaka, M. Hoshi, S. Endo, K. Zhumadilov, M. Yamamoto, *Sci. Total Environment*, 408, 5392-5398 (2010).
- [32] M. Yamamoto, T. Ishiguro, K. Tazaki, K. Komura, K. Ueno, *Health Phys.*, 70, 744-748 (1996).
- [33] M. Yamamoto, IPSHU Research Report Series, Hiroshima University, ISSN 1342-5965, No.41, 39-54 (2009). (In Japanese)
- [34] M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Komura, K. Ueno, D. J. Assinder, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 154, 299-307 (1991).
- [35] D. J. Assinder, M. Yamamoto, R. Seki, Y. Takaku, Y. Yamauchi, *J. Environ. Radioactivity*, 14, 135-154 (1991).
- [36] D. J. Assinder, M. Yamamoto, C. K. Kim, R. Seki, Y. Takaku, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 170, 333-346 (1993).
- [37] J. Kuwabara, M. Yamamoto, H. Nagai, K. Komura, K. Ueno, D. J. Assinder, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 197, 369-385 (1995).
- [38] J. Kuwabara, M. Yamamoto, D. J. Assinder, K. Komura, K. Ueno, *Radiochim. Acta*, 73, 73-81 (1996).
- [39] M. Yamamoto, J. Kuwabara, D. J. Assinder, *Radiochim. Acta*, 83, 121-126 (1998).
- [40] J. Kuwabara, M. Yamamoto, S. Oikawa, K. Komura, D. J. Assinder, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 240, 593-601 (1999).
- [41] M. Yamamoto, A. Syarbaini, H. Kofuji, A. Tsumura, K. Komura, K. Ueno, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 197, 185-194 (1995).
- [42] M. Yamamoto, *The Society of Sea Water Science, Japan*, 57, 192-204 (2003). (In Japanese).
- [43] M. Yamamoto, A. Tsumura, Y. Katayama, T. Tsukatani, *Radiochim. Acta*, 72, 209-215 (1996).
- [44] M. Yamamoto, T. Tsukatani, Y. Katayama, *Health Phys.*, 71, 142-148 (1996).
- [45] J. Takada, M. Hoshi, A. Endo, M. Yamamoto, T. Nagatomo, G. I. Gusev, *Health Phys.*, 73, 524-527 (1997).
- [46] M. Yamamoto, A. Tsumura, T. Tsukatani, *Radiochim. Acta*, 81, 81-87 (1998).
- [47] M. Yamamoto, M. Hoshi, J. Takada, A. Kh. Sekerbaev, B. I. Gusev, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 242, 63-74 (1999).
- [48] M. Yamamoto, M. Hoshi, J. Takada, T. Tsukatani, S. Oikawa, I. Yoshikawa, T. Takatsuji, A. Kh. Sakerbaev, B. I. Gusev, *Plutonium in the Environment* (A. Kudo, Ed.), Elsevier Science Ltd., pp. 375-399 (2001).
- [49] M. Yamamoto, M. Hoshi, J. Takada, S. Oikawa, I. Yoshikawa, T. Takatsuji, A. Kh. Sekerbaev, B. I. Gusev, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 252 (2), 373-394 (2002).
- [50] A. Sakaguchi, M. Yamamoto, M. Hoshi, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 260 (3), 543-555 (2004).
- [51] M. Yamamoto, M. Hoshi, J. Takada, A. Sakaguchi, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261(1), 19-36 (2004).
- [52] M. Yamamoto, M. Hoshi, J. Takada, A. Sakaguchi, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261(3), 523-545 (2004).
- [53] M. Hoshi, M. Yamamoto, J. Takada, A. Sakaguchi, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, *Indian J. Rad. Res.*, 1(1), 1-20 (2004).
- [54] A. Sakaguchi, M. Yamamoto, M. Hoshi, T. Imanaka, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, *J. Radiat. Res.*, 47, Suppl., 101-116 (2006).
- [55] M. Yamamoto, M. Hoshi, A. Sakaguchi, K. Shinohara, K., Kurihara, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, *J. Radiat. Res.*, 47, Suppl., 85-94 (2006).
- [56] S. Endo, J. Tomita, K. Tanaka, M. Yamamoto, S. Fukutani, T. Imanaka, A. Sakaguchi, H. Amano, H. Kawamura, H. Kawamura, K. N. Apsalikhov, B. I. Gusev, Neil E. Whitehead, S. Shinkarev, *Radiat. Environ. Biophys.*, 47, 359-

- 365 (2008).
- [57] M. Yamamoto, S. Oikawa, A. Sakaguchi, J. Tomita, M. Hoshi, K. N. Apsalikov, *Health Phys.*, 95, 291-299 (2008).
- [58] M. Yamamoto, J. Tomita, A. Sakaguchi, T. Imanaka, S. Fukutani, S. Endo, K. Tanaka, M. Hoshi, B. I. Gusev, K. N. Apsalikov, *Health Phys.*, 94, 328-337 (2008).
- [59] T. Imanaka, M. Yamamoto, K. Kenta, A. Sakaguchi, M. Hoshi, N. Chaizhunusova, K. Apsalikov, *Radiat. Environment. Biophys.*, 49, 673-684 (2010).
- [60] K. Komura, M. Yamamoto, et al., *J. Environ. Radioactivity*, 50, 3-14 (2000).
- [61] Y. Murata, T. Muroyama, H. Kofuji, M. Yamamoto, K. Komura, *J. Environ. Radioactivity*, 50, 69-76 (2000).
- [62] M. Yamamoto, Y. Kawabata, Y. Murata, K. Komura, *Health Phys.*, 83 (2), 197-203 (2002).
- [63] Y. Murata, T. Muroyama, T. Imanaka, M. Yamamoto, K. Komura, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 255 (2), 359-364 (2003).
- [64] H. Kofuji, K. Komura, Y. Yamada, M. Yamamoto, *J. Environ. Radioactivity*, 50, 49-54 (2000).
- [65] M. Yamamoto, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303, 1227-1231 (2015).
- [66] M. Yamamoto, T. Takada, S. Nagao, T. Koike, K. Shimada, M. Hoshi, K. Zhumadilov, T. Shima, M. Fukuoka, T. Imanaka, S. Endo, A. Sakaguchi, S. Kimura, *Chikyukagaku*, 46, 341-353 (2012) (In Japanese).
- [67] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai, T. Takada, K. Hamataka, T. Murakami, S. Nagao, *J. Environ. Radioactivity*, 132, 31-46 (2014).
- [68] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai, T. Imanaka, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 300 (3), 1045-1052 (2014).
- [69] A. Sakaguchi, P. Steier, Y. Takahashi, M. Yamamoto, *Environ. Sci. Technol.*, 78 (7), 3691-3697 (2014).
- [70] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, *Chikyukagaku*, 49, 173-184 (2015). (In Japanese)
- [71] Y. Takizawa, L. Zhao, M. Yamamoto, T. Abe, K. Ueno, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 138, 145-152 (1990).
- [72] M. Yamamoto, Y. Yamauchi, H. Kawamura, K. Komura, K. Ueno, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 57, 37-45 (1992).
- [73] M. Yamamoto, *Hoshasen Kagaku, NIRS*, 36, 309-313 (1993) (In Japanese).
- [74] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, T. Imanaka, K. Shiraishi, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 279 (No.1), 93-103 (2009).
- [75] M. Yamamoto, T. Abe, J. Kuwabara, K. Komura, K. Ueno, Y. Takizawa, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 179, 81-90 (1994).
- [76] Y. Takizawa, T. Abe, M. Yamamoto, R. Yuan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 156, 175-182 (1991).
- [77] M. Yamamoto, K. Shiraishi, K. Komura, K. Ueno, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 185, 180-185 (1994).
- [78] K. Shiraishi, T. Tagami, Y. Muramatsu, M. Yamamoto, *Health Phys.*, 78, 28-36 (2000).
- [79] K. Shiraishi, M. Yamamoto, *Health Phys.*, 71, 700-704 (1996).
- [80] M. Yamamoto, J. Tomita, A. Sakaguchi, Y. Ohtsuka, M. Hoshi, K. N. Apsalikov, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 284, 309-314 (2010).
- [81] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, K. Sasaki, K. Hirose, Y. Igarashi, C. K. Kim, *J. Environ. Radioactivity*, 86, 110-131 (2006).
- [82] K. Hirose, Y. Kikawada, T. Doi, C. C. Su, M. Yamamoto, *J. Environ. Radioactivity*, 102, 514-519 (2011).
- [83] M. Yamamoto, A. Sakaguchi, M. Funatsu, H. Kofuji, H. Tokuyama, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 268, 569-577 (2006).
- [84] K. Tazaki, R. Wakimoto, Y. Minami, M. Yamamoto, K. Miyamoto, et al., *Atmospheric Environment*, 38, 2091-2109 (2004).
- [85] Y. Ohtsuka, M. Yamamoto, H. Kofuji, K. Yokota, K. Komura, *Chikyukagaku*, 35,

- 85-106 (2001). (In Japanese)
- [86] A. Sakaguchi, M. Yamamoto, Y. Ohtsuka, K. Sasaki, Y. Yokota, K. Komura, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 258, 250-258 (2003).
- [87] A. Sakaguchi, Y. Ohtsuka, K. Yokota, K. Sasaki, K. Komura, M. Yamamoto, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 231, 307-316 (2005).
- [88] A. Sakaguchi, M. Yamamoto, K. Sasaki, K. Kashiwaya, *J. Paleolimnol.*, 35, 1-12 (2006).
- [89] A. Sakaguchi, M. Yamamoto, J. Tomita, K. Mino, K. Sasaki, K. Kashiwaya, T. Kawai, *Quaternary International*, 205, 65-73 (2009).
- [90] K. Kashiwaya, S. Ochiai, G. Sumino, T. Tsukamoto, A. Szyniszewska, M. Yamamoto, A. Sakaguchi, N. Hasebe, H. Sakai, T. Watanabe, T. Kawai, *Quaternary International*, 219, 178-187 (2010).
- [91] A. Orkhonselenge, S. K. Krivonogov, K. Mino, K. Kashiwaya, I. Y. Safonova, M. Yamamoto, K. Kashima, T. Nakamura, J. K. Kim, *Quaternary International*, 290-291, 95-109 (2013).
- [92] S. Oikawa, M. Yamamoto, *J. Environ. Radioactivity*, 93, 170-180 (2007).
- [93] A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, F. Quinto, K. Mino, J. Tomita, M. Hoshi, N. Whitehead, M. Yamamoto, *Sci. Tot. Environ.*, 407, 4238-4242 (2009).
- [94] A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, T. Imanaka, M. Hoshi, S. Endo, K. Zhumadilov, M. Yamamoto, *Sci. Total Environment*, 408, 5392-5398 (2010).
- [95] A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Nakakuki, M. Yamamoto, *Earth and Planetary Sci. Lett.*, 333-334, 165-170 (2012).
- [96] A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, M. Yamamoto, S. Sakata, J. Tomita, Y. Takahashi, *Bunsekikagaku*, 62, 1001-1012 (2013).
- [97] J. Tomita, H. Satake, K. Sasaki, A. Sakaguchi, M. Inoue, Y. Hamajima, M. Yamamoto, *J. Hot. Spring. Sci.*, 58(4), 241-255 (2009)
- [98] J. Tomita, H. Satake, T. Fukuyama, K. Sasaki, A. Sakaguchi, M. Yamamoto, *J. Environ. Radioactivity*, 101, 201-210 (2010).
- [99] J. Tomita, T. Takada, S. Tamamura, J. Zhang, Y. Takabatake, F. Akita, S. Nagao, M. Yamamoto, *J. Hot. Spring. Sci.*, 64, 146-164(2014).
- [100] J. Tomita, J. Zhang, M. Yamamoto, *J. Environ. Radioactivity*, 137, 204-212 (2014).
- [101] S. Tamamura, T. Takada, J. Tomita, S. Nagao, K. Fukushi, M. Yamamoto, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 299, 569-575 (2014).
- [102] M. Yamamoto, J. Tomita, *J. Hot. Spring. Sci.*, 64 (4), 388-401(2015).
- [103] M. Yamamoto, T. Sato, K. Sasaki, K. Hama, T. Nakamura, K. Komura, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 255 (2), 369-373 (2003).
- [Associated other peer-reviewed papers, about 120, and review and reported papers: about 60]

特集 2016年度学会賞

奨励賞

笠松良崇（大阪大学大学院理学研究科）

受賞題目：超重元素ラザホージウムの溶液化学研究

－共沈実験手法と抽出平衡観測手法の開発－

<授賞理由>

笠松博士は、未だに化学的性質の多くが解明されていない超重元素を対象とした化学研究の分野において、「サマリウム共沈法」と「抽出挙動の反応時間依存性の観測」という2種類の新しい方法論を確立し、104番元素ラザホージウムの化学的性質を調べるための基礎的研究を行った。また105番元素ドブニウムの化学的性質を調べる研究についても成果を挙げている。

このうちサマリウム共沈法では、ラザホージウムの水酸化サマリウムとの共沈挙動を観測することで、その水酸化物錯体の形成を調べる端緒を開いた。これまでの超重元素の溶液化学研究では、そのほとんどがイオン交換や抽出などの2相関分配に基づく手法に限られているが、これは単一原子（イオン）化学がもたらす制約によるものである。そのような中で、笠松博士は、共沈現象という単一原子化学ではあり得ない沈澱現象を調べるといふ独自の発想による新しい実験手法を提案し、新規性の高い研究を行った。

また、これまでの超重元素のイオン交換や溶媒抽出などの溶液化学実験では、その寿命の短さと生成率の低さから、超重元素自身の化学平衡の到達を確認することは出来ていなかった。この点についても、笠松博士は4族元素に対して速い抽出反応系を探すための基礎研究と抽出における分配挙動の時間依存性を観測できる装置の開発を並行して進め、固液抽出挙動の時間依存性を調べる手法を確立した。

このように、笠松博士は、超重元素化学の発展を阻んでいる高い壁の内の重要な二つ、すなわち2相関分配法にとらわれない多様な化学量観測や化学平衡の下での化学量観測の両方に独自のアイデアで挑戦し、基礎研究から装置開発、超重元素

実験に至る研究を主導的に進めてきた。また笠松博士は、このような重要な研究成果を挙げると共に、大学院生の指導、予算やチームタイムの獲得などにも大きく貢献している。

このように、笠松博士は、超重元素の化学という放射化学の最先端の研究分野において顕著な成果を挙げ、将来の発展が大いに期待される若手研究者である。そのため日本放射化学会は、笠松良崇博士に日本放射化学会賞奨励賞を授与すべきと判断した。

（日本放射化学会学会賞選考委員会）

<受賞者の紹介>

笠松良崇君は、現在、私の研究室のスタッフで講師を務めてもらっています。今回の奨励賞の受賞に当たって受賞者の紹介をするように仰せつかりましたが、研究内容は本人が紹介するはずですので、本稿ではもう少し広いスタンスで、人となりも交え笠松君の教育研究活動を紹介し、奨励賞受賞者として、そして日本の放射化学を担う若手研究者として、期待することを述べたく思います。

笠松君は、私が大阪大学に着任当初から居た学生（研究室の2期生）で、4年生の時から彼の学位論文（2006年）になる超低エネルギー励起核である $^{229\text{m}}\text{Th}$ に関する研究をしていました。この研究は阪大の放射化学研究室の初代教授である音在清輝先生のNEET（電子遷移による核励起）から続く、原子核と軌道電子の相互作用の高次過程に関するもので、化学と原子核に係わる興味深い対象であるばかりでなく、基礎研究としても深遠なものがあります。NEETの発展形として、私は研究室のテーマとして考えていましたが、ちょうど三頭先生の強いお誘いがあり、永遠と続く共同研究が始まりました。その際ちょうど学生

であった笠松君が填って（填められて）しまい、栄誉ある三頭先生の愛弟子の一人となりました。非常な努力に反してポジティブな結果の出ない NEET と同じく苦しい研究ですが、その分、研究者として鍛えられる良いテーマと思っています。その経験は、現在も学生の指導や自らの研究を進める上で生きています。今回受賞対象となった超重元素の化学研究は、彼が JAEA の博士研究員（2006-2009 年）として永目さんの研究グループのメンバーとなった際に始めたテーマで、現在も研究室の超重元素チームを率いて精力的に進めています。

超重元素化学についての当研究室のスタンスは、化学的議論が可能にしっかりしたデータを出すこと（第 2 世代化学の展開）ですが、当初はかなり当該分野自体が方法論的に行き詰まった感じがありました。単一原子対応の全く新しい概念や発想の手法開発が必要との考えから、なかなか難しい方法論開発を歴代の学生に要請してきました。笠松君の研究はまさにそれに答えてくれたものです。超重元素化学の発展を阻んでいる高い壁の内の重要な二つ、すなわち 2 相関分配法に囚われない多様な化学量観測、および化学平衡の元での化学量観測の両方に独自のアイデアで挑戦し、基礎研究から装置開発、超重元素実験に至る全てを主導的に進めてくれました。具体的には、「サマリウム共沈法」と「抽出挙動の反応時間依存性の観測」という 2 種類の新しい方法論を確立しました。さらにその実験手法により、最近、104 番

元素ラザホージウムの化学的性質を新たに調べることに成功しています。今後、超重元素化学に新しい局面を開いて行くと期待しています。

このような新しい方法論の開発には、しっかりと論理的検討と粘り強さが必要で、それを認めてもらうにも多大な努力が必要です。前半で触れた ^{229m}Th の研究での経験が、その困難を乗り越えるのに役立ったのではないかと思います。また、2010 年から研究室のスタッフとして活躍してもらっていますが、学生の研究指導にも熱心で、彼が主導する新規核壊変と超重元素の両分野で、学生と共に新しい展開を始めています。今回の奨励賞の受賞は、笠松君にとって、これまでの努力が報われ、今後の研究に自信を与えるものであり、同時に、我々の放射化学分野の将来に少し責任を感じてもらい良い機会となったと思っています。ニホニウムで世間が沸いている、そして第 7 周期の元素が全て出揃ったこの時に、単一原子化学の本当の科学的な化学研究に大きく踏み出すべきです。第 7 周期の化学は放射化学が中心になれば出来ない化学であり、それを進める責任もあると思います。そしてその責任は、もはや、笠松君を含め、この分野で奨励賞に輝いた多くの若手の皆さんにあると思っています。研究でもっと騒ぐことを期待しています。最後になりますが、放射化学会の執行部と審査に関係された皆さまのご尽力とご見識に敬意を表します。

（篠原 厚）

＜奨励賞受賞者による研究紹介＞



ラザホージウムの溶液化学
研究のための新しい分析法
の開発 —共沈法と抽出平
衡観測法—

笠松良崇
(大阪大学大学院理学研究科)

日本における初めての新元素合成として、理化学研究所の森田浩介先生らのグループによる 113 番元素の発見が認められたというニュースが、2015 年の 12 月に日本中を駆け巡った。このように、原子番号の大きな重元素は、人類が発見してから比較的日が浅く、新元素とも呼ばれる。特に原子番号が 104 番以上となる超アクチノイド元素のことを超重元素と呼び、研究するには 1 原子を対象としなければならない。寿命も約 1 分以下と短いために、特にその化学的性質を調べるには大きな困難を伴う。加速器を用いた重イオン核融合反応で生成した生成物をオンラインで実験室へ搬送しつつ、実験室では 1 原子を対象とした化学分析手法を用いた迅速な分析を多数回繰り返して、その挙動を観測しなければならない。さらに、検出には α 線測定が必要で、そのための試料調製も迅速に行う必要がある。本研究では、これら未だに化学的性質の多くが解明されていない超重元素を対象とした化学研究の分野において、「サマリウム共沈法」と「抽出平衡観測法」という 2 種類の新しい方法論を確立した。さらにその実験手法により、104 番元素ラザホージウムの化学的性質を新たに調べることに成功した。

サマリウム共沈法

サマリウム共沈法では、ラザホージウムの水酸化サマリウムとの共沈挙動を観測することで、これまで沈殿に関する化学的性質がほとんど調べられなかった例のなかった超重元素に対して、水酸化物沈殿に関する挙動を調べることに成功し、その水酸化物錯体の形成を調べることができた。この方法は、サマリウムとの共沈挙動にトレーサー量の様々な元素の化学的性質が反映されることを

マルチトレーサーを用いた基礎実験により検証し、超重元素への適用性を調べた上で、加速器オンライン実験のための装置開発を行い、確立することができた超重元素に対する新化学実験法である。マルチトレーサーを用いた実験では、1 族元素から 16 族元素に至るまで幅広く 35 種類の元素をトレーサーとして一度の実験に用いることができ、様々な性質を持つ元素のサマリウム共沈挙動を調べることができた。結果として、それぞれの元素がキャリアであるサマリウムの挙動とは独立にそれぞれの元素の水酸化物沈殿、アンミン錯体形成挙動を示すことがわかり、また反応もほとんどの条件下で多くの元素が 10 秒の振とうで平衡に達することがわかった。つまり、挙動の分かっていないトレーサー量の元素に適用してもその水酸化物並びにアンミン錯体の形成挙動を迅速に調べることができることが示されたといえる [1]。その後、ラザホージウムの同族元素であるジルコニウム、ハフニウムと擬同族元素であるトリウムのトレーサーを用いた基礎実験により、より詳細に共沈挙動を調べた。Fig. 1 に示すように、結果として、アンモニア水中では全ての元素において全量が沈殿したまま溶解せず、水酸化ナトリウム溶液中では、ジルコニウムとハフニウムは水酸化物イオン濃度が高くなるにしたがい、共沈収率が 100% から低下していき、トリウムは 11 M の水酸化ナトリウム溶液中でもほぼ 100% のままで収率が低下することはなかった。これらの結果は、実際のマクロ量のこれらの元素の挙動として知られている溶解度積の大きさと定性的に整合性があり、各元素の化学的性質を反映した結果が得られ

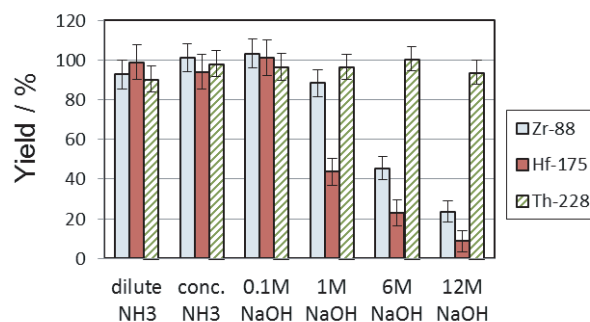


Fig. 1. Coprecipitation yields of Zr, Hf, and Th with 10-s stirring for the basic solutions added.

ていることが確認できた。さらに、オンライン実験用の装置開発及びその性能テストを実際にジルコニウムとハフニウムの核反応生成物を用いて実施し、オンライン実験においても基礎実験で得たものと同じデータが得られることを確認した。これらの結果からラザホージウムの実験条件を決定し、ラザホージウムのための実験手法として確立した [2]。ラザホージウムを用いた実験も理化学研究所にて実施し、結果として、ラザホージウムのサマリウム共沈挙動は、同族元素のジルコニウムやハフニウムとは異なり、擬同族元素であるトリウムに近いことを明らかにした。

これまでの超重元素の溶液化学研究は、そのほとんどがイオン交換や抽出といった2相分配に基づく手法に限られていたが、本研究では共沈現象を利用することで決して単一原子化学ではあり得ない沈澱現象を調べるといった新しい実験手法を提案し、実際にラザホージウムで実現することができた。また、本研究手法は水酸化物イオン以外の配位子との錯形成反応や、他の超重元素へも対象を拡げて系統的に研究を展開することも期待できる。

抽出平衡観測法

これまでの超重元素のイオン交換や溶媒抽出などの溶液化学実験では、その寿命の短さと生成率の低さから超重元素自身の化学平衡の到達を直接観測することはできていなかった。例えば、錯形成を議論するためには、2相分配における分配比や分配係数は、一般の化学実験では平衡下にある値を求めるが、短寿命の単一原子（イオン）を取り扱う超重元素においては困難であった。フッ化物錯形成に関しては、同族元素に対して非常に速い化学反応の様子が観測され、実際にラザホージウムに対しても非常に良い直線性を示すデータなどが得られてきたが、それ以外の化学反応系では寿命内の平衡到達の実現は非常に大きな課題であった。特に、同族元素間で平衡到達時間が明らかに異なるような化学反応系もあり、溶液化学では実際に超重元素の平衡到達の様子を観測することで確実に平衡下にある分配挙動を調べる手法を開発する必要があった。本研究では、基礎研究として超重元素の同族元素のトレーサーを用いた抽

出実験を行い、それと並行して抽出における分配挙動の時間依存性を観測できる装置の開発を進めてきた [3-6]。基礎研究では、特に4族元素の塩酸系からの陰イオン錯体の固液抽出実験において、非常に反応の速い抽出系としてTIOA/HClなどの反応系を見つけ、実際に塩化物錯形成の様子を調べることができるとも確認した。装置開発においては、バッチ法をオンライン実験に適用した自動装置を開発した。手法としては古いのが、抽出挙動の時間依存性を観測するには適しており、超重元素に対しては新しく時間依存性を観測できる装置といえる。概念図をFig. 2に示す。反応セル内で樹脂と水溶液を一定時間振とうし、その後空圧によって溶液のみをフィルターを通して排出するという機構により、迅速な固液分離を実現した。実際に、ジルコニウムとハフニウムを核反応にて製造、ガスジェット搬送して、ラザホージウムを模擬したオンライン実験を実施し、抽出挙動を確認することで実験手法として確立し、ラザホージウムのための実験条件を決定した [3]。これは超重元素に対して初の平衡到達の確認につながる重要な成果と考えられる。また、この実験装置は、今後、超重元素の錯形成を様々な配位子に対して調べていくことにも繋がり、非常に大きな発展性が期待される。

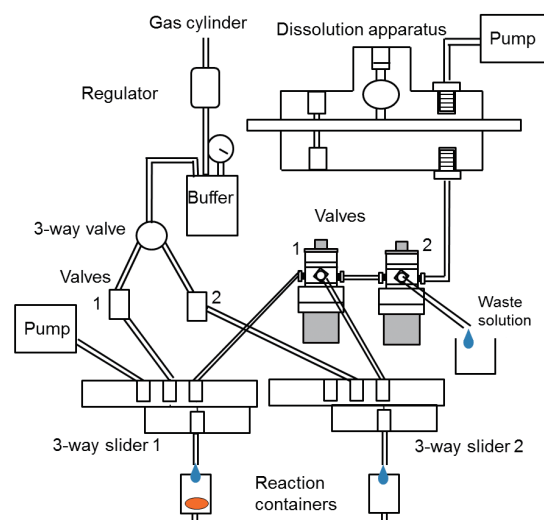


Fig. 2. Schematic diagram of the automated batch-type solid-liquid extraction apparatus for repetitive experiment of transactinides.

引用文献

- (1) Y. Kasamatsu, T. Yokokita, K. Toyomura, Y. Shigekawa, H. Haba, J. Kanaya, M. Huang, Y. Ezaki, T. Yoshimura, K. Morita, A. Shinohara, *Appl. Radiat. Isot.* **118**, 105 (2016).
- (2) Y. Kasamatsu, K. Toyomura, N. Shiohara, T. Yokokita, Y. Komori, A. Kino, T. Yoshimura, N. Takahashi, H. Haba, Y. Kudou, H. Kikunaga, T. Mitsugashira, T. Ohtsuki, K. Takamiya, and A. Shinohara, *J. Nucl. Radiochem. Sci.* **14**, 7 (2014).
- (3) Y. Kasamatsu, A. Kino, T. Yokokita, K. Nakamura, Y. Komori, K. Toyomura, T. Yoshimura, H. Haba, J. Kanaya, M. Huang, Y. Kudou, N. Takahashi, and A. Shinohara, *Radiochim. Acta* **103**, 513 (2015).
- (4) A. Kino, Y. Kasamatsu,* T. Yokokita, T. Yoshimura, Y. Komori, Y. Kikutani, N. Takahashi, and A. Shinohara, *Solvent Extr. Res. Dev. Jpn.* **22**, 127 (2015).
- (5) Y. Kasamatsu, Y. Kikutani, A. Kino, Y. Komori, T. Yokokita, T. Yoshimura, N. Takahashi, and A. Shinohara, *Radiochim. Acta* **101**, 515 (2013).
- (6) T. Yokokita, Y. Kasamatsu, T. Yoshimura, N. Takahashi, and A. Shinohara, *Solvent Extr. Ion Exch.* **33**, 472 (2015).

特集 2016年度学会賞

奨励賞

金子政志（日本原子力研究開発機構）

受賞題目：メスバウアー分光パラメータと密度汎関数法を用いた
d, f ブロック錯体の結合状態研究

<授賞理由>

金子博士は、メスバウアー分光によって得られるパラメータを用い、d, f ブロック錯体の電子状態に対する密度汎関数法（DFT）の妥当性を評価するとともに、得られた分子軌道を用いた結合状態の議論を展開した。このような研究の例として、主に以下の2つが挙げられる。

(1) 鉄二価正八面体錯体は、高スピン（HS; $t_{2g}^4 e_g^2$ ）と低スピン（LS; t_{2g}^6 ）の二つの基底状態を取り、熱によるスピントロクロソーパー（SCO）現象が起こるか否か（SCO-on/off）は、低温状態でのスピン状態の安定性を比較することで評価できる。金子博士は、Fe 単核の配位環境に着目し、SCO-on 系では Fe 原子を挟んだ二つのピリジンがプロペラ型に向かい合っているのに対し、SCO-off 系では、歪んだプロペラ型及びパラレルに向かい合っていることを見出すと共に、Hartree-Fock 交換エネルギーを 10 % 含む TPSSh 汎関数が実験挙動を最もよく再現することを示した。また、SCO-on/off 挙動の起源として、配位子場分裂（ Δ_0 ）の大きさとスピン状態の相対的な安定性の相関を見出した。この結果は、DFT を用いて、配位子場分裂から SCO-on/off 挙動を Δ_0 と関連付けた初の例である。

(2) マイナーアクチノイド（MA = Am, Cm など）は、高レベル放射性廃棄物中に含まれ、 α 核種であり長半減期を持つため、選択的に分離される必要がある。金子博士は、MA/Ln 分離挙動のドナー元素依存性を分子レベルで解明することを目的とし、 ^{151}Eu , ^{237}Np メスバウアー異性体シフトを用いた相対論 DFT のベンチマーク研究を行い、Hartree-Fock 交換エネルギーを 53 % 含む B2PLYP 汎関数が、メスバウアー異性体シフトを最もよく再現した。この計算理論を用いて、Am/

Eu に対する S, N, O ドナー錯形成による安定化エネルギーを比較した結果、Eu-4f 軌道はドナーによらず非結合的であり、Am-5f 軌道は S, N ドナー原子と結合的、O ドナー原子と反結合的となり、f 軌道とドナー原子の結合性の違いが Am/Eu 選択性を決定していることを初めて明らかにした。このことは、Am と Eu を分離する手法を開発する上でも重要な寄与をすると期待される。

これらの研究は、(i) 鉄二価集積型錯体の SCO-on/off 挙動を d 軌道由来の配位子場分裂の大きさによって関連付け集積型錯体を単核錯体へとモデル化することによって SCO スwitching を再現した点、(ii) 分子軌道中の f 軌道とドナー原子との重なり密度を比較することによって結合状態を比較し、結合特性を評価するためにメスバウアー異性体シフト実験値を用いて DFT 計算のベンチマーク研究を行った点などが独創的で、メスバウアー分光法を用いた錯体化学研究や、f ブロック化合物の電子状態に基づく化学結合状態の評価などの分野の発展に大きく貢献するものである。

以上のように、金子博士は、計算科学とメスバウアー分光法の融合を進め、今後の発展性の高い研究を行っており、将来の発展が大いに期待される研究者である。そのため、日本放射化学会は、金子政志博士に日本放射化学会賞奨励賞を授与すべきと判断した。

（日本放射化学会学会賞選考委員会）

<受賞者の紹介>

研究紹介は受賞者自身が執筆するので、私はここでは金子政志氏の人となりを紹介いたします。金子氏が卒業研究生として私どもの研究室に入ってきたのは 2010 年です。研究室に配属されるまでは音楽のプロを目指していたようですが、きっぱり

とけじめをつけて研究活動に入りました。

金子氏の卒業研究は、集積型鉄錯体のスピントロスオーバー (SCO) 挙動についての実験研究でした。混晶実験を大変丁寧にいき、卒論発表も無事済ませました。その内容をまとめて日本化学会春季年会で発表する予定でしたが、2011年3月11日に東日本大震災が起きたので、「学会は中止になったが発表したことにする」という措置が取られました。そのような雰囲気の中で、博士課程前期に進学しました。私たちのグループでは実験研究を中心に進めてきましたが、金子氏は実験結果の理解には計算化学的な研究が重要であると判断し、計算化学の勉強をいち早く始めました。計算については、自分で本を読んで勉強して進め、最初は、DV- $X\alpha$ から始めました。京都大学原子炉実験所の専門研究会で彼の成果を私が発表したときに、山田康洋東京理科大学教授にプログラム ORCA を紹介いただきました。その研究会から帰る途中に ORCA について金子君に連絡しましたが、すぐに彼はそれをダウンロードし、英文の説明書を見ながらすぐに使用を開始しました。その後も山田先生には学会発表などの折に貴重なコメントをいただきました。

私自身面白い現象に興味があり、実験中に自分が出会った現象に夢中になる傾向がありますが、それと同時に少しずつ配位子を変えて、一つ一つ金属を変えて、あるいは少しずつ置換基を変えて議論することの重要性もよくわかっているつもりです。金子氏が、計算化学を開始した時も、一つの計算ですべてのことが説明できることを期待する私自身もいましたが、彼はたいへん慎重でした。計算結果の妥当性を示すためにベンチマーク研究が大変重要になります。彼は DFT 計算の際、Hartree-Fock 交換の混合比が異なる汎関数を用いて計算を行い、どの汎関数を実験結果である SCO-on/off 挙動をもっともよく再現するかを確認しました。SCO が生じる系のポテンシャルカーブはよくみかけるのに対し、SCO を起こさない系についてはこれまで見たことがなかったのですが、そのポテンシャルカーブを示したことは驚きでした。大学教員として、学生と研究を進めた小さな発見は楽しいことですが、SCO 挙動に重要な分子間相互作用の本質に迫ることができた

ことは大変楽しかったですし、DFT 計算で田辺・菅野ダイアグラムにたどり着けたのも楽しい思い出です。

金子氏が博士課程後期に進学してすぐに、私たちのグループは宮下直特任助教を迎えました。研究グループのなかで議論するうちに、ランタノイドとアクチノイドの分離に興味も持ちました。彼はこれに対しても計算化学的にアプローチするために、まずベンチマーク研究を行いました。この場合も、Hartree-Fock 交換の混合比が異なる汎関数を用いて計算を行い、また相対論の効果も考慮し、どの計算法が妥当であるかを評価しました。その指標となったのが、 ^{151}Eu と ^{237}Np のメスバウアー分光法の異性体シフト値でした。ランタノイドを選択的に抽出するには O 配位子がよく、マイナーアクチノイドを選択的に抽出するには N 配位子や、S 配位子が良いことは分かっていたことですが、このようなベンチマーク研究を行った後に、彼は DFT 計算により金属と配位子の結合性でうまく説明しました。

ベンチマーク研究を進めているうちにメスバウアー分光法の異性体シフト値と計算で求まる核位置での電子密度の間の相関関係の傾きに着目するようになりました。これはメスバウアー励起の際の $\Delta R/R$ を反映します。このような研究から ^{99}Ru や ^{189}Os の $\Delta R/R$ に関する研究を現在進めております。この場合も計算結果の妥当性を如何に示すかが重要となりますが、問題点を一つ一つクリアしていっています。

上に記した彼の活躍は、学内外でも知られるようになり、計算化学の初心者だけでなく専門家さえも計算に関して彼に相談するようになりました。そして上記の成果は、放射化学や錯体化学にとって大変意義のある研究であると判断し、大学院の指導教員が修了後すぐに放射化学会奨励賞に推薦するのは適切ではないかもわからなかったですが、あえて推薦しました。

研究室においては、我々のグループのリーダーとして、学生を引っ張ってくれました。通常の実験室のセミナー以外にも、自主的にセミナーを開催してくれました。研究室の他のメンバーにも DFT 計算の指導もしてくれ、自身の実験データを DFT 計算により評価するようになりました。

たまに学生たちで麻雀をやって親睦を深めてくれました。彼は学長賞をはじめ学内外でいろいろな賞を受賞しました。そのおかげで、ほかのメンバーも受賞を目指して日々努力してくれ、その結果として各自のパフォーマンスが上がってきたと感じております。周りに全く素晴らしい影響を与えてくれました。

最初に音楽のプロへの道はあきらめたと書きましたが、クローチアでの学会やメスバウアー分光研究会での懇親会などでピアノを披露して皆を楽しませています。

(中島 覚)

＜奨励賞受賞者による研究紹介＞



メスバウアー分光パラメータと密度汎関数法を用いたd,fブロック錯体の結合状態研究

金子政志（日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究センター）

放射化学的手法であるメスバウアー分光によって得られるパラメータは、原子・分子中の電子状態を詳細に反映する。鉄二価イオンは6個のd電子を価電子として持ち、正八面体場において高スピン状態（HS; $t_{2g}^4 e_g^2$ ）と低スピン状態（LS; t_{2g}^6 ）の二つのスピン状態を取りうる。 ^{57}Fe のメスバウアー分光測定によって、鉄のスピン状態を見分けることができる。そのため、メスバウアー分光は二つのスピン状態が熱や光などの外場に応答して変化する現象であるスピנקロスオーバー（SCO）現象の解析に非常に有用である。

また、メスバウアー異性体シフト(δ)は原子核と核外電子との単極子相互作用によって変化し、原子核位置での電子密度(ρ_0)に比例する。 ρ_0 値は価電子が化学結合による電子密度の変化によって1sなどのコア電子に与える遮蔽の大きさを反映して増減する[1]。つまり、 δ 値は錯体中の配位結合の強さを定量的に表す指標であり、d,fブロック元素の結合状態を明らかにする有用な手掛かりとなる。

本研究では、密度汎関数法（Density Functional Theory; DFT）を用いて、鉄二価集積型錯体のSCOスイッチング現象とランタノイド・アクチノイドの分離メカニズムの二つの事象に対してアプローチする。メスバウアー分光とDFT計算を組み合わせることによって、一見独立しているように見える二つの事象が、どちらも金属と配位子との結合状態の違いが鍵となっていることを明らかにした。

Fe(NCS)₂(pyridine)₄ 単核ユニットを持つ鉄二価集積型錯体のSCO-on/offスイッチング [2-4]

軸位にNCSが配位し、4,4'-ビピリジン型配位

子で架橋した鉄二価集積型錯体は、単核ユニットとして $trans\text{-}[\text{Fe}(\text{NCS})_2(\text{pyridine})_4]$ の正八面体型配位球を有する。それらの SCO 挙動は、集積した構造の違いやゲスト分子の吸脱着によって敏感に変化する。単結晶構造を観測すると、SCO 現象が起こるか起こらないかで鉄周りのピリジンの配置が異なり、SCO を示すもの (SCO-on) は鉄原子を挟んで二つピリジンがプロペラ型に向かい合うのに対し、SCO を示さないもの (SCO-off) は歪んだプロペラ型もしくは平行に向かい合うことが分かった。SCO-on と SCO-off のスイッチングと、鉄周りの局所的な環境の相関に着目し、単核錯体 $trans\text{-}[\text{Fe}(\text{NCS})_2(\text{pyridine})_4]$ を周期構造から切り取ってモデル化した。

SCO-on/off 挙動を正しく評価するために、SCO-on 型モデル、SCO-off 型モデルについてそれぞれの HS 状態と LS 状態のエネルギーを比較した。その結果、SCO-on 型モデルは SCO-off 型モデルよりも SCO を起こしやすく、実験の傾向と一致した。いくつかの異なる汎関数で比較した結果、SCO-on/off 挙動の再現性は用いる汎関数によって異なり、Hartree-Fock 交換項を 10% 含む TPSSh 汎関数が、SCO-on/off 挙動をよく再現した。

TPSSh 汎関数を用いて、SCO-on/off 型モデルの配位子場分裂 (Δ_0) を求めた。その結果、HS 状態と LS 状態のエネルギー差 $\Delta E_0 (= E_0^{\text{HS}} - E_0^{\text{LS}})$ と一次の相関が得られた。Fig. 1 に Tanabe-Sugano ダイアグラムとして示した。この結果は、SCO スwitching 挙動が配位子場によって制御できることを DFT によって示した初めての例で

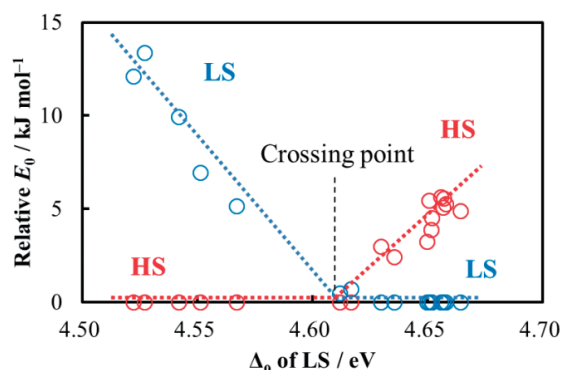


Fig. 1 Correlation between relative E_0 and ligand field splitting (Δ_0).

ある。今後は、配位子場分裂を大きくする配位子の設計し、課題となっているスピン転移温度の上昇を目指した展開が期待される。

マイナーアクチノイドとランタノイドの抽出分離メカニズム [5-8]

高レベル放射性廃液の分離変換技術の一環として、マイナーアクチノイド (MA = Am, Cm) とランタノイド (Ln) の分離は重要なプロセスである。MA と Ln は、溶液中において三価であり配位幾何学や安定性が類似するため、それらを選択的に分離するのが困難である。溶媒抽出法によって様々な抽出剤が検討された結果、S, N をドナーとして持つソフトドナーは MA を分離し、O をドナーとして持つハードドナーは Ln を分離する傾向が示された。この選択性は、MA/Ln とドナー原子との共有結合性が起源であることが示唆されてきたが、詳しくは理解されていない。

この分離メカニズムを DFT 計算によって解明することを目的として、f ブロック元素の結合状態を再現可能な DFT 手法を検討した。Eu, Np のそれぞれ 10 錯体について、 ^{151}Eu , ^{237}Np の δ 実験値を参照し、 ρ_0 計算値とのプロットの線形性を比較することで妥当性を評価した。その結果、Hartree-Fock 交換項を 53% 含む B2PLYP 汎関数が実験値をよく再現した。

価電子として同じ f⁶ 電子を持つ Eu^{3+} と Am^{3+} の選択性に着目し、S ドナーとしてジチオホスフィン酸、O ドナーとしてホスフィン酸による錯形成反応をモデル化した。B2PLYP 汎関数による計算の結果、S ドナーは Eu より Am と好んで錯形成し、O ドナーは Am より Eu と安定な錯体を形成し、実験の選択性を再現した。S, O ドナー錯体中の配位結合を調べるために電子密度解析を行い、Eu/Am の S/O ドナー錯体中の共有結合ダイアグラムを示した (Fig. 2)。Eu (4f)-S ドナー、Eu (4f)-O ドナー、Am (5f)-S ドナーは結合的な重なりを持ち、Am (5f)-O ドナーは反結合的な重なりを持つことが分かった。この結果、f 電子の共有結合への寄与の違いが Am/Eu 分離メカニズムの起源であることが示唆された。今後は、化学結合評価に基づいた新規 MA 分離剤を理論設計することで、MA/Ln 分離プロセスの開発に貢献し

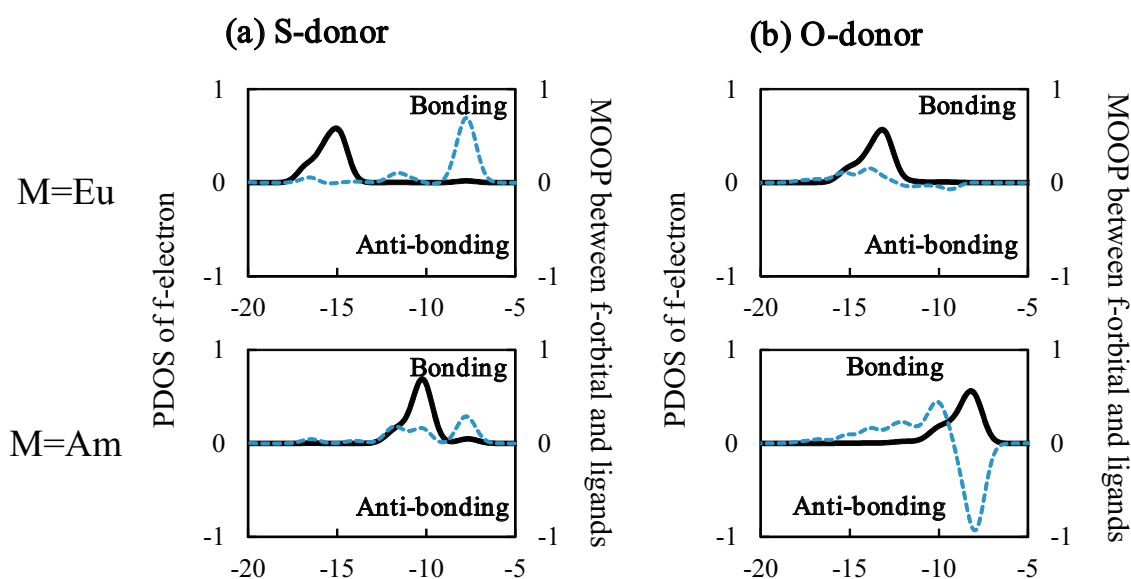


Fig. 2 Bond overlap population diagram for Am/Eu complexes of S-donor (a) and O-donor (b), where solid and broken lines describe partial density of states (PDOS) and molecular orbital overlap population (MOOP) curves, respectively.

ていくつもりである。

まとめ

メスバウアー分光と DFT 計算を組み合わせることによる d,f ブロック化学研究について紹介した。これらの研究を行うにあたって多大なご指導・ご協力いただいた広島大学の中島覚教授、宮下直特任助教、放射線反応化学研究グループの皆様、日本原子力研究開発機構の渡邊雅之グループリーダー、放射化学研究グループの皆様には、深く感謝を申し上げます。最後に、日本放射化学会賞選考委員会の皆様、「放射化学」および「JNRS」編集委員会の皆様には、このような素晴らしい賞や研究紹介・論文投稿の機会を与えてくださり、深く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) P. Güttlich, R. Link, A. Trautwein, Mössbauer Spectroscopy and Transition Metal Chemistry, ISBN 978-3-662-12547-2, chap. 3, pp. 15-20, 1978.
- 2) M. Kaneko, S. Tokinobu, S. Nakashima, Density Functional Study on Spin-crossover

Phenomena of Assembled Complexes, $[\text{Fe}(\text{NCX})_2(\text{bpa})_2]_n$ (X = S, Se, and BH_3 ; bpa: 1,2-bis(4-pyridyl) ethane), Chem. Lett., 42, 1432-1434, 2013.

- 3) M. Kaneko, S. Nakashima, Computational Study on Thermal Spin-Crossover Behavior for Coordination Polymers Possessing $\text{trans-Fe}(\text{NCS})_2(\text{pyridine})_4$ Unit, Bull. Chem. Soc. Jpn., 88, 1164-1170, 2015.
- 4) S. Nakashima, M. Kaneko, A Spin-Crossover Phenomenon Depending on the Environment around an Iron Atom for the Assembled Coordination Polymers, Advances in Chemistry Research Volume 36, accepted.
- 5) M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, Benchmark Study of the Mössbauer Isomer Shifts of Eu and Np Complexes by Relativistic DFT Calculations for Understanding the Bonding Nature of f-Block Compounds, Dalton Trans., 44, 8080-8088, 2015.
- 6) M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, Bonding Study on the Chemical Separation of Am(III) from Eu(III) by S-, N- and O-Donor Ligands by Means of All-Electron ZORA-DFT

- Calculation, *Inorg. Chem.*, 54, 7103-7109, 2015.
- 7) M. Kaneko, S. Miyashita, S. Nakashima, Computational Study on Mössbauer Isomer Shifts of Some Organic-Neptunium (IV) Complexes, *Croat. Chem. Acta*, 88, 347-353, 2016.
- 8) M. Kaneko, M. Watanabe, T. Matsumura, The Separation Mechanism of Am(III) from Eu(III) by Diglycolamide and Nitrilotriacetamide Extraction Reagents Using DFT Calculations, *Dalton Trans.*, 45, 17530-17537, 2016.

特集 2016 年度学会賞

奨励賞

二宮和彦（大阪大学大学院理学研究科）

受賞題目：負ミュオンを用いた非破壊三次元元素分析法の開発

<授賞理由>

二宮博士は、素粒子であるミュオンを用いた新しいタイプの元素分析法について、必要なビームの開発、分析法としての評価（検出限界など）、実際の試料分析といった一連の研究をリードし大きな成果をあげた。

負ミュオンは、電子と同じ電荷と電子の 200 倍の質量をもつ素粒子で、物質中で停止するとミュオン原子と呼ばれる電子の一つが負ミュオンに置き換わった系を形成し、負ミュオンの脱励起によるミュオン特性 X 線を放出する。このミュオン特性 X 線を用いた元素分析は、XRF や PIXE などとは異なり、軽元素に対しても高エネルギーのミュオン特性 X 線が利用可能であり、またミュオン X 線の透過力が高いために表面に限らない分析手法である。そのためこの手法では、非破壊、三次元的、多元素同時定量分析が可能などの他の手法には無い大きな特徴を持つと認識されているが、元素分析法としての定量性の確立や本法の最大の利点である位置選択性についての議論はこれまで不十分であった。二宮博士は、KEK をはじめとする研究グループの一員として、J-PARC（茨城県那珂郡東海村）のミュオン実験施設（MLF/MUSE）において、ビーム利用の様々な開発研究に関わり、ミュオン原子の形成過程に関する基礎研究を進めると共に、負ミュオンによる元素分析研究の実現性について詳細に検討し、ミュオン特性 X 線測定による元素分析法を確立した。またそれをベースに、考古学試料に対するミュオン特性 X 線の測定実験、定量的な元素分析法の開発、三次元的な元素分析法の確立、負ミュオンと原子核の反応後のガンマ線の計測、などの重要な研究を行った。さらにその応用研究として、地球に帰還する地球外試料のリターン計画（はやぶさ 2）における初期分析としての可能性の検討や、リチウムイオンバッテリーの分析への本法の適用など

にも貢献している。

以上のように、二宮博士の研究成果は新規性、独創性に優れ、世界レベルでも先駆的な研究であり高い評価を受けている。これらから、二宮博士は、将来の発展が大いに期待される研究者であると評価でき、日本放射化学会は、二宮和彦博士に日本放射化学会賞奨励賞を授与するべきと判断した。

（日本放射化学会学会賞選考委員会）

<受賞者の紹介>

「むかし男ありけり。エフェメラル微塵とてパイオンをめづ」

二宮和彦さんは、儚くも 26 ns という寿命でこの世の生をまっとうする中間子パイオンを、種々の気体に送り込むことによってパイオン原子を形成させ、気体分子から X 線やオーグジュ電子を放出させるという研究を大学院修士時代にされました。これは二宮さんの師である篠原厚教授の学生時代からの研究の敷衍であり、電子より重く陽子より軽い粒子が、原子や分子に捉えられるパイオン原子の形成過程とその後の挙動における化学効果を X 線や電子の測定によって明らかにするものでした。この研究のために、今世紀の初頭に街並みも途絶えるつくば市の北のはずれの KEK に学生一人派遣され、陽子シンクロトロン（PS）を使ってパイオンを作り、短くとも 1 週間は続くビームタイムで毎日 24 時間、数億個のパイオンが 26 ns というつかの間を生き証を記録し続けたと言います。昼夜を分かたぬ長きにわたる実験。KEK の誇る食堂・レストランでは Kazuhiko “Gourmand” Ninomiya の五感を飽和させることはできず、氏自ら足と舌で作成した North Tsukuba Gourmet List は、電子データとして KEK ユーザーの PC には必ず保管されていると言います。

「パイオンもミュオンもひとへに核のまえの負電荷に同じ」

やがてPSが停止するころには同じKEKのミュオン施設(KEK-MSL)を使い始められ、博士課程ではパイオンの壊変生成物であるミュオンからできるミュオン原子にも研究を拡張されました。この戦略転換時に縄張りに取り込まれた外出食事用運転手がこの駄文を認めています。パイオンより2ケタ長い $2.2\mu\text{s}$ の寿命を持つミュオンは電子の仲間であり、電子と陽子の間の質量をもちます。核のまわりに電子より重い負電荷の粒子が軌道運動するエキゾチック原子であるミュオン原子を作るわけです。ミュオンのビームタイムは、ユーザーの数が多くてビームタイムは通常3、4日と短いものでしたが、ビームタイムの時にはるばる大阪から加勢に来る助教の先生や後輩の学生たちと「腹16分目」まで過飽和状態とすることを常とされ、Tsukuba Big Meal MapがNorth Tsukuba Gourmet Listの続編として作成されました。そのKEK-MSLも2006年にビームが停止しました。二宮さんは無事博士号を取得され、学生生活とつくばでのパイオン、ミュオン実験は終わりとなりました。

「白妙の衣干すてふ万博記念公園駅」

博士号取得後には大阪大学で1年間ポストドクを勤められました。二宮さんが四季を問わず明るい色の服をお召しなのは、みなさまお気づきかもしれません。放射線実験に不可欠の鉛の色を避けているのでしょうか。ポストドク時代は大阪大学の豊中キャンパスと吹田キャンパスを頻りに往復されていたようで、途中のモノレールの乗り換え駅である万博記念公園駅では、なにやら論文(詰将棋の本という証言もある)を読みながら時間をやりすごしているベージュのパンツをはいたひよろ長い男の目撃談が多数あります。

「ゲルマの三つ四つ二つなど群れゐるもいとをかし」

原研先端研のポストドクになられたのは、ちょうどJ-PACミュオン施設(MUSE)のビームが出はじめた頃で、二宮さんは学生時代のテーマである

ミュオン原子の研究をされるとともに、ミュオンX線による元素分析を本格的に開始されました。ゲルマニウム検出器をいくつも配置してミュオンX線を測定します。重要なのは遮蔽で、普通の鉛ブロックはもちろん鉛の板やシート、スズ板などをセットするために、狭い場所に手を伸ばしたり脚立をのぼったり、まげたりはさみで切ったり、細かい遮蔽が二宮さんの得意技で頭と体力を使います。もちろんビームタイムが始まる前に体力を消尽してしまわないようにするのがビーム実験の成功の秘訣です。二宮さんは茨城県東海村でのポストドクの3年間は真砂寮という独身寮の一室を構とし、明るい銀色の車を手にいれ、当然のようにTokai Gourmet Listのデータ収集に情熱を傾けられました。定休日や営業時間、味はもちろんのこと、実験室からの所要時間や料理が出てくるまでの時間までをデータとし、総合得点を付されたりリストはMUSEの閲覧回数最多のファイルとなっています。

「ふるさとのなまり懐かし空港の人混みをぬけそばを食べに行く」

大阪大学にもどられてからは、教育も仕事となり学生実験にも多くの時間を使いながら活発に研究を続けられています。研究テーマも多数にわたり、環境放射能研究では2016年の土壌調査の中心人物にもなっています。もちろん東海村での実験もテーマも継続しつつ新たな領域にも踏み出されようとしているところです。学会や実験研究で海外に出かけられる機会も増え、Gourmet Listのエントリーはとどまるどころを知りません。東海村では、天ぷらを電子レンジで温める店に対して余裕をもって最低点をつけていた二宮さんも、国外では点数のつけようがない料理しか出てこない場所もあるらしく、帰国したらまずそばを食べるのが楽しみだとのことでした。

「研究室は人で選べと先輩に言われました。だからこの研究室を選びました。」

昨年たまたま知り合った、ある大学のある学部のある学科のある研究室の4回生の言葉

(渺子)

＜奨励賞受賞者による研究紹介＞



負ミュオンを用いた非破壊 三次元元素分析法の開発

二宮和彦
(大阪大学大学院理学研究科)

ミュオンを用いた元素分析法

ミュオンは素粒子の一つであり、電子の200倍の質量を持ち2.2 μ 秒の寿命を持っている。その利用のほとんどは、大型の加速器を用いて人工的に生成したビームを利用することになるが、ミュオンは比較的低エネルギーで作れる素粒子であることから、様々な利用研究がされている。

本論文では、負電荷を持った負ミュオン（以下、単にミュオン）に着目する。ミュオンは物質中では質量の大きな電子として振る舞い、原子核のクーロン場に捕らわれることでミュオンが原子軌道を作り、ミュオン原子と呼ばれる系を形成する。ミュオン原子の形成過程について、その詳細は完全には理解されていないが、ミュオンは捕獲当初は非常に高い励起準位に存在することがわかっており、すぐさまミュオン1s軌道へと脱励起していく。この過程で、電子の200倍のエネルギーを持ったミュオン特性X線が放出される。このような高エネルギーの光子は、容易に物質を透過することができるので、物質内部の情報をミュオン特性X線の測定から知ることが可能である。すなわち、ミュオン特性X線測定による元素分析が可能である。

ミュオン特性X線は、すでに述べたように非常に高エネルギーであり、例えば酸素のような軽元素であってもKX線のエネルギーは100 keVを超えており、30 keV程度のLX線ですら試料を透過し、空気中に設置したゲルマニウム半導体検出器などで容易に検出できる。一つのミュオン捕獲事象に対して複数の特性X線がカスケード的に放出されるため、元素分析法の感度は原理的に高い。各原子でのミュオン特性X線の放出確率、すなわち各原子へのミュオンの捕獲確率の違

いは原子の数に直すとせいぜい10倍しか変わらず、水素やヘリウムの分析は実験的には難しいところがあるものの、あらゆる元素に対して感度があり多元素同時分析が可能である。またミュオンは荷電粒子であり、通常のミュオン利用の実験施設では、ミュオンビームの輸送システムにより容易に運動エネルギーの選別が可能である。そしてミュオンは物質への入射エネルギーによりその停止深さを制御することができるため、物質深部の分析、また適当なビームコリメーターを準備することで、原理的に三次元的な非破壊元素分析が可能である。ミュオンビームのコストの問題はあるものの、このような特性をすべて兼ね揃えた元素分析法はこれまでに他に無く、非常にユニークなものである。ミュオンを元素分析に利用するという考えは、40年以上前にはすでに指摘されていたものの[1,2]、これまでいくつかの定性的な分析がデモンストレーションとして行われていたのみで、実際的な元素分析法としての研究は行われていなかった[3,4]。しかしながらJ-PARC（茨城県東海村）に代表される大強度のミュオン利用施設の稼働は、これまでできなかったミュオン利用研究を可能にした。

本論文では、筆者が中心となって推進してきたミュオンによる非破壊元素分析法の開発について、その概要を述べる。具体的には、本手法による分析の定量性について青銅貨を試料とした実験の結果について、そして青銅鏡を試料に用いた検出限界についての議論について、最後に小判を用いた非破壊深度分布測定について、それぞれの結果を紹介する。本論文の実験結果は、大強度陽子加速器施設（J-PARC、茨城県東海村）およびラザフォードアップルトン研究所（RAL、英国）のミュオン施設で得られたものである。

青銅貨を用いた定量分析の実証

古代中国の青銅貨（半両：紀元前3世紀、秦代）を用いて、ミュオン特性X線測定による定量分析を実施した[5]。J-PARCミュオン施設のD2ビームエリアにて、およそ4MeVのエネルギー（運動量で30 MeV/c）のミュオンビームを空気中に取り出し、青銅貨に照射した。ミュオンが青銅貨に停止し、ミュオン原子を形成し結果として放出

されるミュオン特性X線を、ゲルマニウム半導体検出器により測定した。実験の様子を Fig. 1 に示す。ビームライン窓の存在や、空気存在から、ミュオンは青銅貨の表面 $260\ \mu\text{m}$ の深さを中心として、その 10% 程度の深さの領域に停止すると考えられる。

得られたミュオン特性X線のスペクトルを Fig. 2 に示す。青銅貨を構成する銅、スズ、鉛に由来するミュオン特性X線のピークが明瞭に観測されている。またこの結果より、空気中の酸素や窒素由来のピークが見えていたものの、他の元素に由来するピークは観察されず、青銅貨は銅、スズ、鉛からなる合金であることがわかった。同様の照射実験を成分が既知の青銅試料に対しても行い、ミュオン特性X線の強度とその成分比の関係を求めることで検量線を作成したところ、Fig. 3 に示すような結果が得られた。検量線から得られたミュオン特性X線の強度と元素成分の比の傾きはおよそ 0.7 程度であり、このことは元素によ

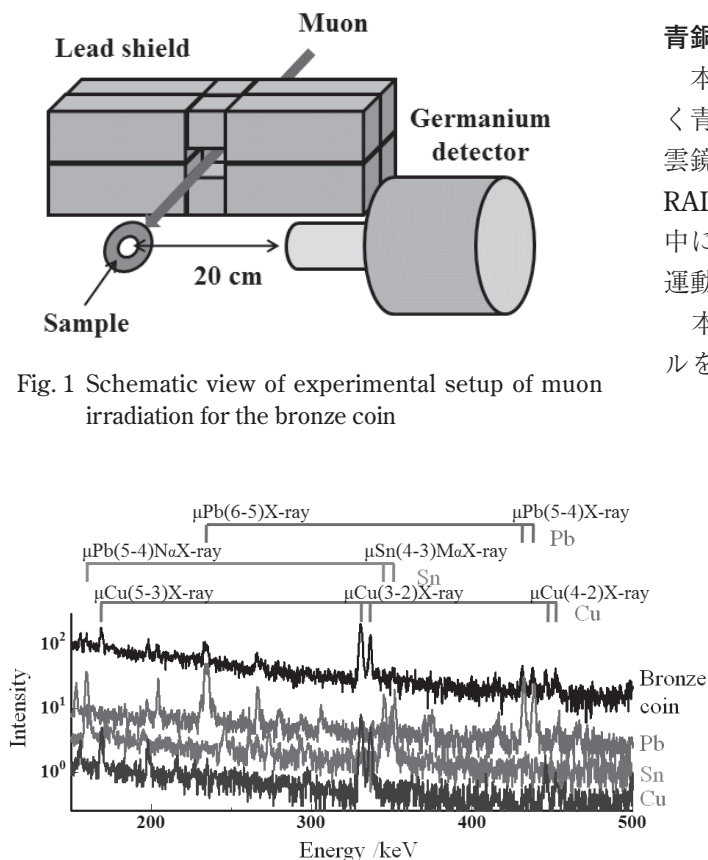


Fig. 1 Schematic view of experimental setup of muon irradiation for the bronze coin

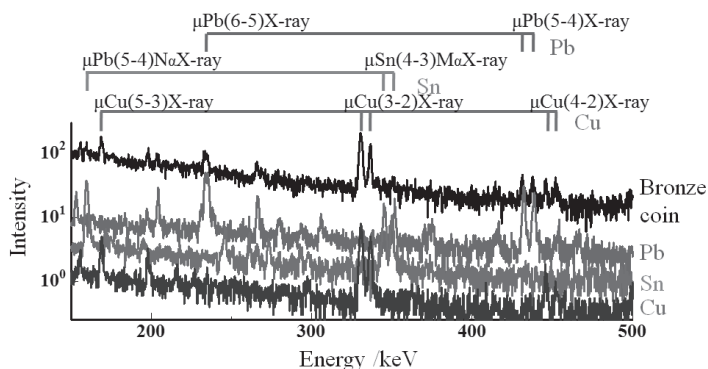


Fig. 2 Muonic X-ray spectrum for the bronze coin together with those of constituent elements

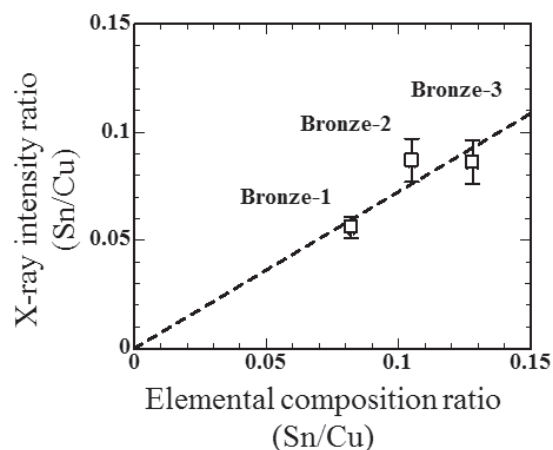


Fig. 3 Relation between elemental composition ratio and muonic X-ray intensity ratio for standard bronze

て分析の感度がほとんど変わっていないことを意味している。この関係を用いることで今回分析した青銅貨の元素組成として、Cu : $69.8 \pm 2.6\%$, Sn : $10.0 \pm 1.7\%$, Pb : $20.3 \pm 2.2\%$ (すべて wt% での分析値) が得られた。

青銅鏡を用いた検出限界の検討

本手法による検出限界を検討するために、同じく青銅ではあるがより鉛の量が少ない青銅鏡（星雲鏡：前漢）に対するミュオン照射実験を、英国 RAL にて実施した [6]。本実験でも同様に空气中に試料を設置し、 $22\ \text{MeV}/c$ という比較的低い運動量のミュオンを取り出し照射を行った。

本実験で得られたミュオン特性X線スペクトルを Fig. 4 に示す。この実験においても同様に

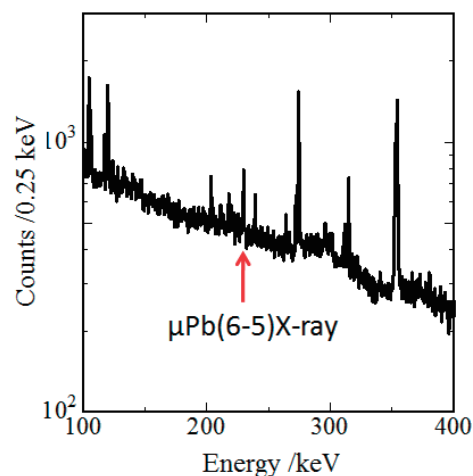


Fig. 4 Muonic X-ray spectrum of $\mu\text{Pb}(6-5)$ X-ray region for the bronze mirror

青銅の標準試料に対するミュオン照射実験を行い、検量線を作成することで青銅鏡の元素組成を $\text{Cu} : 73.0 \pm 2.1 \%$, $\text{Sn} : 22.3 \pm 1.9 \%$, $\text{Pb} : 4.7 \pm 0.5 \%$ と決定した。この分析値は、蛍光X線による分析値ともよく整合した。本実験ではミュオンの照射を 100000 秒実施したが、最も含有量の少ない鉛について、得られたミュオン特性X線で最も強度の強いものは $\mu\text{Pb}(6-5)$ のX線（ミュオン鉛原子において、ミュオンが主量子数6から5に遷移するとき放出するX線、すなわち $O\alpha$ X線）であり、そのシグナルとノイズの比から、検出限界として 0.8 wt% が得られた。

小判を用いた非破壊三次元的元素分析の実証

ミュオンを用いた位置分解能のある非破壊分析が可能であることを実証するために、小判（天保小判：19世紀）に対するミュオン照射実験を行った [7]。小判は時代によってその金の含有量が異なり、天保小判の金の含有量は 57% 程度で、残りは銀の合金である。どの時代の小判も見事な金光沢を持っているが、これは小判表面わずか数 μm の領域について、金の含有量を化学的な処理により増やすことにより達成されている [8]。本研究では、このような金の含有量の変化をミュオンの入射エネルギーを変化させ、分析する深さを制御することで非破壊で明らかにした。

実験は J-PARC ミュオン施設の D2 ビームエリアにて実施した。本研究においては、0.2 MeV から 1 MeV という低いエネルギーのミュオン（運動量換算で 6.4 MeV/c から 15.2 MeV/c）を利用した。これらのエネルギーのミュオンの金の中での飛程は 3 μm から 30 μm に対応しており、ビームライン窓や空気中で停止してしまうため、照射は試料をビームラインに直結した真空チャンバーに設置して行った。このような低エネルギーのミュオンを利用した研究はこれ以前にはなく、著者らが J-PARC ミュオン施設において、これらのビームの取出しについての研究開発を行って初めて可能となった実験である。

Fig. 5 に運動エネルギー 0.2 MeV および 1 MeV の条件での照射実験で得られたミュオン特性X線スペクトルを示す。今回は金由来のミュオン特性X線として $\mu\text{Au}(5-4)$ に、銀由来のものとして

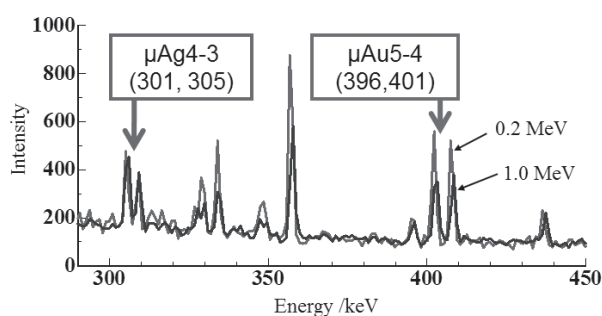


Fig. 5 Muonic X-ray spectra for the Tempo-koban with muon incident energies of 0.2 and 1.0 MeV

$\mu\text{Ag}(4-3)$ に注目した。これらのミュオン特性X線の強度比を取ったところ、入射エネルギーが低い条件では金のミュオン特性X線の強度が高く、入射エネルギーが高くなるにつれて銀に対する強度比が減少し、さらに深部ではその強度比が一定となった。これは小判の深さによって金の含有量が変化していることを示している。

定量的な元素分析を行うために、青銅の実験と同様に金と銀からなる標準合金試料に対してもミュオンの照射実験を行い、Fig. 6 に示すようなミュオン停止位置での小判の金の含有率を求めた。本手法により得られた金の含有率の深度変化は、破壊分析による分析値と整合し、ミュオン特性X線に夜深さ分解能のある非破壊の元素分析が可能であることを実証した。

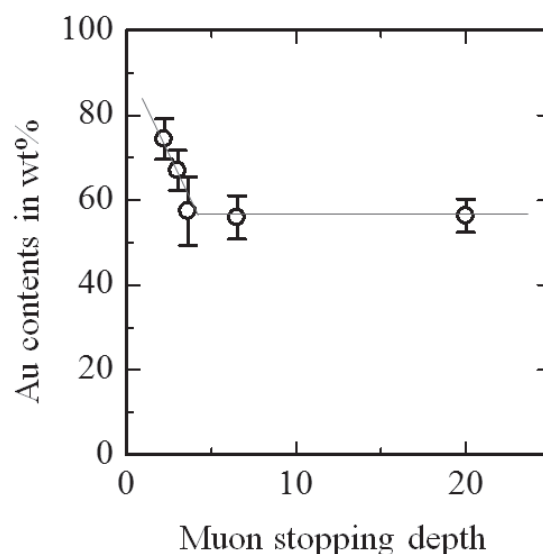


Fig. 6 Depth profiling of Au contents of the Tempo-koban

ミュオンによる元素分析法の展開

本論文で紹介したミュオンによる元素分析法は、すでに述べたように非破壊である深部の元素組成を調べることができる、非常にユニークな特徴を持っている。このような特徴を生かす分析対象としては貴重な資料を取り扱う考古学分野以外にも様々なものが考えられる。現在すでに地球に帰還する地球外試料のリターン計画（はやぶさ2）における初期分析の候補の一つとして挙がっており、本手法の適用可能性の検討が進んでいる [9]。またカバーに包まれた動作中のリチウムイオンバッテリーの、リチウム原子の状態を分析についても研究が進んでいる。

ミュオンを利用可能な実験施設は世界的にも限られており、さらにミュオンを用いた元素の研究は、近年はあまり行われていなかったが、J-PARC だけでなく、RAL や PSI（スイス）のミュオン施設においても新たな実験計画が立ち上がっている。また日本国内では、大阪大学核物理研究センターにて新しいビームラインが設置（RCNP-MuSIC）され、様々な研究が計画されている。素粒子であるミュオンを用いた分析研究が、放射化学だけでなく様々な研究分野で利用され、展開していくことを期待したい。

謝辞

これらの研究は、大阪大学大学院理学研究科、日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター、J-PARC センターミュオンセクション、国際基督教大学、国立歴史民族博物館等、多くの機関の方々にご協力頂き、研究を実施して成果を挙げてきたものです。本研究に関わった共同研究者の皆様に深く感謝いたします。

引用文献

- [1] H. Daniel, *Nuclear-Medizin* 4 (1969) 311
- [2] Rosen, L. *Science* 173 (1971) 490
- [3] H. Daniel, F. J. Hartmann, E. Köhler, *Fresenius Z. Anal. Chem.* 321, 65 (1985)
- [4] M. K. Kubo, H. Moriyama, Y. Tsuruoka, S. Sakamoto, E. Eoseto, T. Saito, K. Nishiyama, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 278 (2008) 777
- [5] K. Ninomiya, T. Nagatomo, K. Kubo, T. U. Ito, W. Higemoto, M. Kita, A. Shinohara, P. Strasser, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Saito, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 85 (2012) 228.
- [6] K. Ninomiya, M. K. Kubo, P. Strasser, T. Nagatomo, Y. Kobayashi, K. Ishida, W. Higemoto, N. Kawamura, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Suzuki, A. Shinohara, T. Saito, *JPS Conf. Proc.*, 8(2015)033005
- [7] K. Ninomiya, M. K. Kubo, T. Nagatomo, W. Higemoto, T. U. Ito, N. Kawamura, P. Strasser, K. Shimomura, Y. Miyake, T. Suzuki, Y. Kobayashi, S. Sakamoto, A. Shinohara, T. Saito, *Anal. Chem.* 87 (2015) 4597
- [8] 上田道男, 日本銀行金融研究所「金融研究」第12巻, 第2号, p103 (平成5年)
- [9] K. Terada, K. Ninomiya, T. Osawa, S. Tachibana, Y. Miyake, M. K. Kubo, N. Kawamura, W. Higemoto, A. Tsuchiyama, M. Ebihara, M. Uesugi, *Sci. Rep.* 4 (2014) 5072

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

ケイ酸塩鉱物中トリウムおよびラジウムの同位体の存在形態

塩原良建¹、栗原雄一²、中村利廣³、小池裕也³

(1 明治大学大学院理工学研究科、2 明治大学研究・知財戦略機構、3 明治大学理工学部)



環境水中には極微量の Ra 同位体が存在しており、その起源は帯水層の岩石である¹。岩石が地下水や河水等の環境水に接触すると、「化学的溶出」と「反跳による直接溶出」の二通り

の様式で含有している放射性核種が液相へと溶出すると考えられてきた (Fig. 1)。化学的溶出は、環境水中に存在する HCO_3^- 、 SO_4^{2-} や Cl^- 等の陰イオンと岩石 (固相) 表面の放射性核種とが反応することで、液相へ溶出する¹。この際、液相へ溶出された放射性同位体間の放射能比は、同位体の溶出挙動に差がないため岩石中の放射能比と同程度の値となる。直接溶出は、親核種の α 壊変に伴い起こる反跳作用 (α 反跳) により子孫核種が岩石内から液相へ直接放出されるものである²。

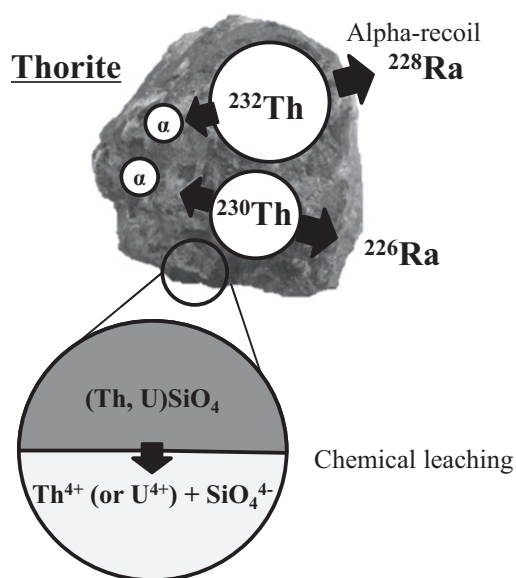


Fig. 1 Schematic diagram of two leaching processes of radioactive nuclides from thorite.

様々な放射性鉱物を用いた溶出実験より、環境水中で観測される放射能比の異常は固相中の放射性核種の存在状態 (壊変履歴) もその要因の一つであると考えられている³⁻¹⁰。

ところが、Th より U を多く含むユークセン石 (euxenite, 酸化鉱物) に対する溶出実験⁹では、溶出液中の $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ および $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ が U より Th を多く含むモナズ石 (monazite, リン酸塩鉱物) の結果⁸ と異なる傾向を示した。現在、検討済みの鉱物と鉱物種が異なるイットリア石 (yttrilite, ソロケイ酸塩鉱物 ($\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$)) およびトール石 (thorite, ネソケイ酸塩鉱物 (ThSiO_4)) に対して溶出実験を行っており、様々な鉱物種の溶出データの蓄積を目指している。

溶出データの蓄積により鉱物種や性状による溶出挙動を明確にすることは、自然界での岩石から水域への放射性核種の動態を明らかにする「鍵」であると考えている。そこで、鉱物中放射性核種の更なる溶出挙動解析のために、化学的存在状態を把握できる逐次抽出法による分析に研究を展開した。逐次抽出法は欧州共同体標準局 (the Community Bureau of Reference: BCR) によって標準化が進められており¹¹、主に土壌や堆積物に適用されている。BCR 法では可溶性イオン交換性陽イオン、酸化物および硫化物を段階的に抽出でき、最終的に不溶性の残渣としてケイ酸塩を得る。この逐次抽出法を鉱物に適用して存在形態を分析し、溶出実験と合わせて放射性核種の溶出挙動解析を行った。

鉱物試料は U を多く含むイットリア石および Th を多く含むトール石の粉末を用いた。各試料は 1.3 g をテフロンビーカーに入れ、0.11 M 酢酸 40 mL を加えた。マグネチックスターラーを用いて、 22 ± 5 °C で 16 時間攪拌後、遠心分離を回転数 4000 rpm で 20 分間行い、上澄み液を回収し

た (Step 1)。残渣は純水で洗浄した後、再度テフロンビーカーに移し、0.5 M 塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液 40 mL を加えて Step 1 と同条件で抽出した (Step 2)。イットリア石に関しては、Step 2 の後の残渣に対して過酸化水素および酢酸アンモニウムを用いて抽出を行った。残渣は純水で洗浄後、一部を耐圧容器に入れて過酸化水素水 10 mL を加えて室温で 1 時間、約 85 °C の水浴で 1 時間反応させた。抽出液は加熱し、減容させた後に残りの残渣を加えて同一条件で過酸化水素と反応させた。反応後、再度減容して 1 M 酢酸アンモニウム溶液 50 mL を加えて Step 1 の条件で抽出した (Step 3)。Step 1 ではイオン交換性陽イオン、Step 2 では酸化物態、Step 3 では硫化物態、残渣はケイ酸塩態として鉱物中の元素を回収できると考えられている¹²。各溶液は 30 mL 分取し、純水および 2 M NaOH を合わせてグルコマンナン (清水化学製、プロポール® A) に添加して、エポキシ系樹脂 (アラルダイト®) で内壁をコーティングしたブリキ製コンテナ (70 mmφ, 16 mmH) に充填し密封した。抽出残渣はブリキ製コンテナ (34 mmφ) の底面と蓋の内面に間に密に詰め、同様に密封した。各線源は ^{224}Ra が ^{212}Pb と放射平衡となる二日間および ^{226}Ra が ^{214}Pb と放射平衡に達する二週間以上待ち、 γ 線測定を行った。

各段階で抽出されたイットリア石およびトール石中の Ra 同位体の存在割合を Fig. 2 に示す。Th 系列核種では、両鉱物ともに ^{228}Ra より ^{224}Ra の方が多く可溶性形態で存在していた。この結果は酸溶出実験により得られた、「溶出挙動が壊変履歴に起因する」⁸⁻¹⁰ という考え方と矛盾しない。一方、異なる系列の核種を比較すると、イットリア石中では、不溶性の形態での ^{226}Ra (U 系列) が ^{228}Ra (Th 系列) より多く存在していたのに対し、トール石では逆の傾向を示した。この系列の異なる核種に関する抽出実験の結果は、壊変履歴の考え方では説明できないユークセン石の結果⁹ と同様の傾向である。逐次抽出の結果から、放射性鉱物中の U および Th の含有量により、その系列核種の存在形態が異なる可能性が示唆された。

様々な鉱物種の放射性鉱物に酸溶出実験と逐次抽出法による存在形態分析を実施することで溶出挙動を明らかにし、地球科学的知見を得ることが今後の目標である。

謝辞

本研究の遂行にあたり、明治大学研究・知財戦略機構の岩鼻雄基博士、萩原健太博士、核物質管理センター東海保障措置センターの永井幸太博士のご指導およびご協力に対して心から御礼申し上げます。

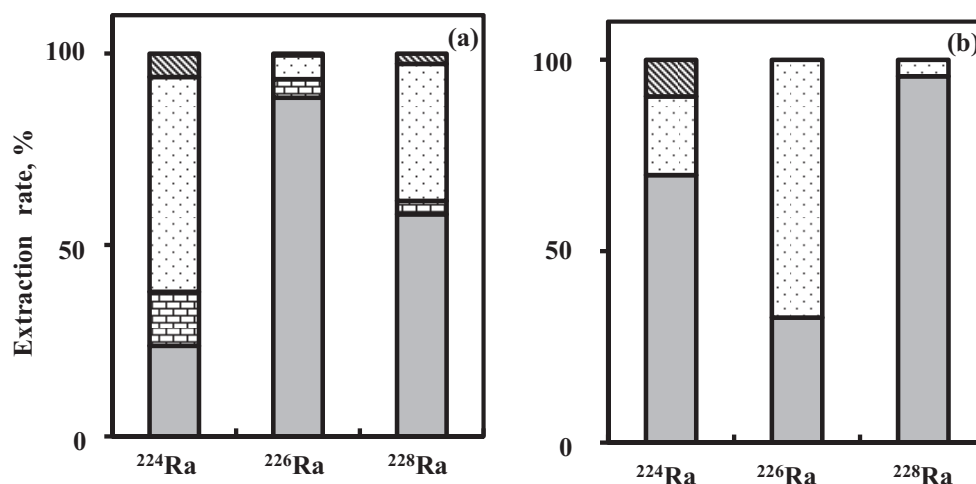


Fig. 2 Activity distributions of ^{224}Ra , ^{226}Ra , and ^{228}Ra in the extracted fraction with the BCR scheme from yttrilite (a) and thorite (b).

▨ : ion exchanger (Step 1), ▤ : oxide (Step 2), ■ : sulfide (Step 3), □ : silicate (Residue)

引用文献

- (1) P. Martin and R. A. Akber, *J. Environ. Radioact.*, **46**, 271 (1999).
- (2) K. Kigoshi, *Sci.*, **173**, 47 (1971).
- (3) M. Sakanoue and K. Komura, *Nature*, **233**, 80 (1971).
- (4) A. Kobashi, J. Sato and N. Saito, *Radiochim. Acta*, **26**, 107 (1979).
- (5) A. Kobashi and T. Tominaga, *Radiochim. Acta*, **30**, 205 (1982).
- (6) Z. Z. Sheng and P. K. Kuroda, *Radiochim. Acta*, **37**, 93 (1984).
- (7) Z. Z. Sheng, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **134**, 293 (1989).
- (8) K. Nagai, E. Hashimoto and J. Sato, *Radioisotopes*, **55**, 567 (2006).
- (9) K. Nagai, Y. Kurihara and J. Sato, *Radioisotopes*, **56**, 719 (2007).
- (10) K. Nagai, M. Takahashi and J. Sato, *Radioisotopes*, **56**, 811 (2007).
- (11) J. Hlavay, T. Prohaska, M. Weisz, W. W. Wenzel and G. J. Stinger, *Pure Appl. Chem.*, **76**, 415 (2004).
- (12) G. Rauret, J. F. López-Sánchez, A. Sahuquillo, R. Rubio, C. Davidson, A. Ure and Ph. Quevauviller, *J. Environ. Monit.*, **1**, 57 (1999).

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

軽元素化合物へのミュオン捕獲によるミュオン原子形成過程の理解に向けた研究

吉田 剛 (大阪大学大学院理学研究科化学専攻)



私は、周期表の第2、第3周期に属するC, O, F, Sといった軽元素から成る化合物に負ミュオンを捕獲させ、ミュオン原子形成過程におけるミュオン-電子の相互作用、形成後のミュオン原子の価数について調べています。

ミュオンは電子と同じレプトンに属し、正または負の電荷、電子の200倍の質量を持つ素粒子で、国内では、J-PARCに代表される大型加速器施設で利用できます[1]。負電荷のミュオン(ミュオン)は、物質中で原子核の正電荷に捕獲され、固有の軌道を持つミュオン原子を形成します。重たいミュオンの質量ゆえ、その軌道半径は非常に小さいにもかかわらず、原子によるミュオンの捕獲過程は軌道電子の影響を受けます。特に面白い現象として、分子にミュオンが捕獲された時、ミュオンが同じ原子に捕獲されても、分子構造によって形成過程が大きく変わることが知られています。しかしながら、ミュオン形成初期過程において、ミュオンがどの電子とどのように相互作用をするのかということについては、未だ明らかになっておりません。この理由について、実験的観点からは、次の2つが挙げられます。1) これまで多く報告されてきた高密度試料(固体、液体、高圧気体)におけるミュオン捕獲実験では、他の分子との衝突に伴う電子再充填過程がミュオン原子形成過程と競合するため、ミュオンと軌道電子の相互作用を正確に見積もることができなかった。2) ミュオンが原子に捕獲されると、高い励起状態の軌道へ入り、その後、電子放出(オージェ電子)、光子放出(ミュオン特性X線)というプロセスを経て1s軌道へと到達する(Fig. 1に模式図を示す)が、実際に観測できているのは、ほぼミュオン特性X線のみである。オージェ電子は僅かに観測

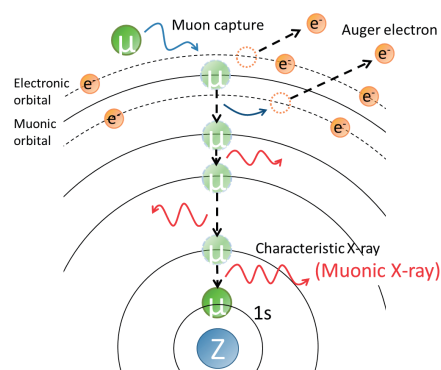


Fig. 1 Schematic view of muonic atom formation process

例があるものの[2]、形成後のミュオン原子正イオンは観測された例がなく、どのような価数(電荷)であるのかなど、その詳細についてはよくわかっていない。

これらの背景より、私は、ミュオン原子形成過程における電子との相互作用を明らかにするために、次の2つのアプローチを採用しました。1) 電子再充填を無視できる低圧気体分子試料へミュオンを照射し、ミュオン特性X線を測定、過去の報告例をもとに相互作用した電子の種類と数を見積もる。2) 形成後のミュオン原子イオン観測手法の開発を目指し、その第一歩として、TOF型質量分析計の原理を用いたミュオン原子イオンの価数(電荷)を調べるシステムを開発する。上記2つの研究課題について、その概要と成果、将来展望を簡単にご説明します。

【低圧気体でのミュオン捕獲実験】

電子構造の単純な軽元素から成る分子(CO, CO₂, COS, CS₂)に着目し、茨城県東海村のJ-PARC物質生命科学実験施設ミュオン実験施設(MUSE)にて、これらの試料へのミュオン照射を1気圧以下の低圧条件で行いました。このように希薄な試料にミュオンを停止させる試みは、こ

れまでにほとんどなく、共同研究者とともに開発した J-PARC の大強度かつ低エネルギーのミュオンビームによって実現することができました。試料から放出されるミュオン特性 X 線はゲルマニウム半導体検出器を用いてリストモードで測定しました。実験で得られたミュオン特性 X 線スペクトルの 1 例を Fig. 2 に示します。

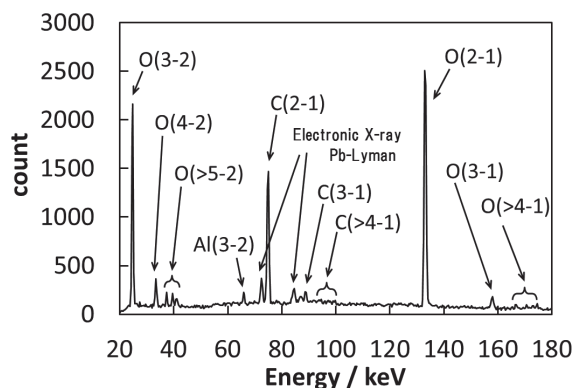


Fig. 2 Muonic X-ray spectra of CO_2 sample. C(2-1) means the muonic X-ray series at muon transition from principal quantum number two to one on muonic carbon atom ($K\alpha$ X-ray).

ミュオン特性 X 線スペクトルからは、分子を構成する各原子へのミュオン捕獲率、ミュオン捕獲初期の量子状態（主量子数、角運動量子数等）を導出し、CO の C 原子へ捕獲されたミュオンは、O 原子との相対的な捕獲数が CO_2 や COS に比べ 3 割以上も大きく ($A(\text{C}/\text{O}) = \text{CO}: 0.753 \pm 0.021$, $\text{CO}_2: 0.549 \pm 0.023$, $\text{COS}: 0.500 \pm 0.018$) [3]、また、カスケードシミュレーション [4] により、捕獲初期に CO_2 や COS よりも大きな角運動量子数

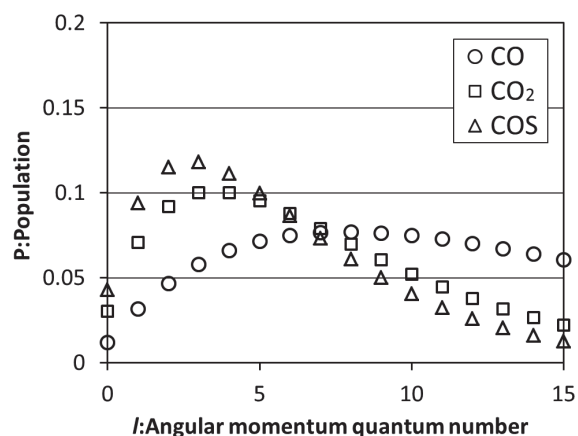


Fig. 3 Angular momentum quantum number distribution of muon captured by carbon atom at $n=16$

分布をしていることがわかりました (Fig. 3)。この結果に対して、LMM モデル [5] 等のミュオン捕獲時の電子との相互作用を予想するモデルを活用し、ミュオン捕獲に CO の C 原子上の非共有電子対が大きく影響する可能性があることを示しました。

【ミュオン原子形成後の電荷選別システムの開発】

ミュオン原子はその形成過程でミュオンのオーグジュ過程により電子を失い多価の正イオンとなり、その後クーロン爆発により元の分子の構造を失うことが知られています。それゆえ、固体薄膜へミュオンを照射すると、照射側と反対側の表面近傍で生成したミュオン原子は、多価イオンとして飛び出してくる考えられます。私は、観測対象としてフッ素原子に着目し、PTFE 薄膜より生成するミュオンフッ素イオンを、二段階加速式

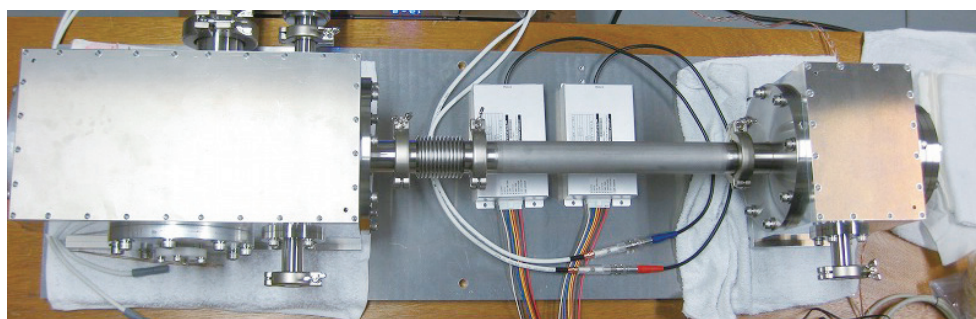


Fig. 4 Overview of muonic atom beam extraction system, it consists of vacuum chambers, high voltage power supplies and electrodes for muonic atom extraction and acceleration, and micro channel plate detector

TOF型質量分析計 [6] の原理を用いて静電場で加速、ビームとして取り出す装置を開発しました (Fig. 4)。

形成後のミュオンフッ素原子の価数は、 m/z としてTOFスペクトルに現れます。開発した装置の性能評価と最適化はレーザーアブレーションにより行い、ミュオンの質量 0.1 u を識別するのに必要な分解能 $R=191$ を上回る性能を有していることを確かめました。また、J-PARCにて、ミュオンビームを用いた評価も行い、ミュオンビームに付随するノイズを静電場によるビーム偏向機構により大幅に減らすことに成功しました。

この研究は、ようやく第一歩を踏み出したばかりですが、ミュオン原子ビームが完成した暁には、形成後の価数分布測定にとどまらず、ミュオン原子と Z-1 原子の類似性に関する研究 (ミュオン原子による化学反応)、ミュオン原子をプローブとして用いる応用研究など、多種多様な研究への展開が期待されます。

【今後の展望】

今回私が紹介した2つの研究課題は、ミュオン

原子がどのように形成し、形成後にどのような性質を持っているのかという、ミュオン原子形成の一連の流れを理解することを目指しています。将来的には、原子や電子の衝突過程など周辺分野の知見も取り入れつつ、より広い視野からミュオン原子形成過程をとらえる議論が展開できればと考えております。

引用文献

- (1) R. Kadono and Y. Miyake, Rep. Prog. Phys. **75**, 026302 (2012).
- (2) R. Callies *et al.*, Phys. Lett. A **91**, 441 (1982).
- (3) G. Yoshida *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. **303**, 1277 (2015).
- (4) V. R. Akylas and P. Vogel, Comput. Phys. Commun. **15**, 291 (1978).
- (5) N. Imanishi *et al.*, Phys. Rev. A **35**, 2044 (1987).
- (6) W.C. Wiley, and I.H. McLaren, Rev. Sci. Instrum. **26**, 1150 (1955).

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

樹脂担持有機スズ試薬を用いた ^{211}At 分離 / 標識の試み神田晃充^a、豊嶋厚史^{a,b}、池田卓海^c、吉村崇^d、篠原厚^a

a) 阪大院理, b) 原子力機構先端セ, c) 阪大理, d) 阪大 RI セ



近年、がんによる α 線放出核種を集積させ、放出される α 線によってがん細胞を効率的に破壊する α 線内用療法への期待が高まっています。 α 線は短い飛程、高い LET (線エネルギー付与) をもつため、正常な組織を傷つけず、がん細胞のみに大きなダメージを与えることができます。現在、 α 線内用療法に適した核種の 1 つとして、 ^{211}At が注目を浴びています。 ^{211}At は、半減期が 7.2 時間と短く、高エネルギーの γ 線をほとんど放出しないため、患者が管理区域にとどまらなければならない時間が短くなること、そして核燃料から作られる ^{225}Ac や ^{223}Ra とは異なり、加速器による大量製造ができることが利点として挙げられます。

^{211}At 標識製剤は、一般に、加速器を用いた同位体製造、化学操作による分離精製、そしてがん集積する抗体のような有機分子への標識、という流れで合成されます。その標識法には、Fig. 1 に示した二官能性試薬を At で一旦標識し、その後抗体と反応させる手法や At 置換活性基を結合した抗体を直接 At と反応させる手法などがあります。医療応用においては大量の放射性同位体を扱うため、どちらの方法を採用したとしても一連

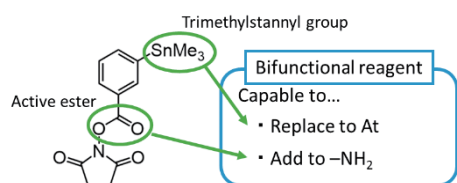


Fig. 1. An example of a molecule used for the ^{211}At labeling.
(N-succinimidyl 3-(trimethylstannyl) benzoate)

の製造過程は自動化される必要があります。

本研究では、 ^{211}At 標識に用いられる分子を樹脂上に担持し、樹脂を介して抗体等を標識する新規な手法の開発を目的としました。これによって、1) At と Bi の有機物への結合性の違いにより、 At の標識と同時に Bi との分離ができる、2) 樹脂をカラムに充填する事により、自動化が容易となる、3) At 溶液と抗体溶液を別々に使用するため、液性選択の幅が広がる、といった利点が期待されます。

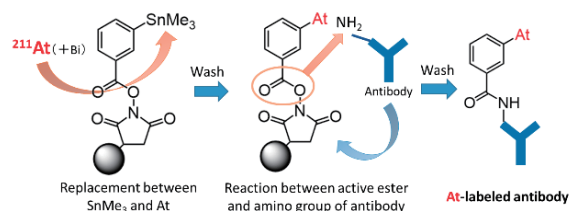


Fig. 2 Separation and labeling scheme using a resin.

まず、実験に用いる樹脂の検討を行いました。数種類の樹脂を用いて At の樹脂への吸着による損失を観測したところ、ポリスチレン樹脂に比べシリカ樹脂のほうが At の吸着が少ないことがわかりました。次に、得られたシリカ樹脂を原料として標識用樹脂を合成し、この樹脂上の $-\text{SnMe}_3$ 基と ^{211}At の置換反応により樹脂を標識したのち、抗体の代替物質として、アミノ酸であるリシン残基に相当する n -ブチルアミンへ ^{211}At を樹脂から切り出すことで標識を行いました。最後に、得られた最終生成物を HPLC により分析しました。また、比較のため、同様の実験を同族元素の ^{125}I を用いて行いました。(Fig. 3)

Fig. 4(a) (b) に、実験で得られた ^{211}At と ^{125}I の標識反応溶液の UV/ラジオクロマトグラムを示します。また Fig. 4(c) にはヨウ素の標準試料として目的物質を用いて測定したクロマトグラムを

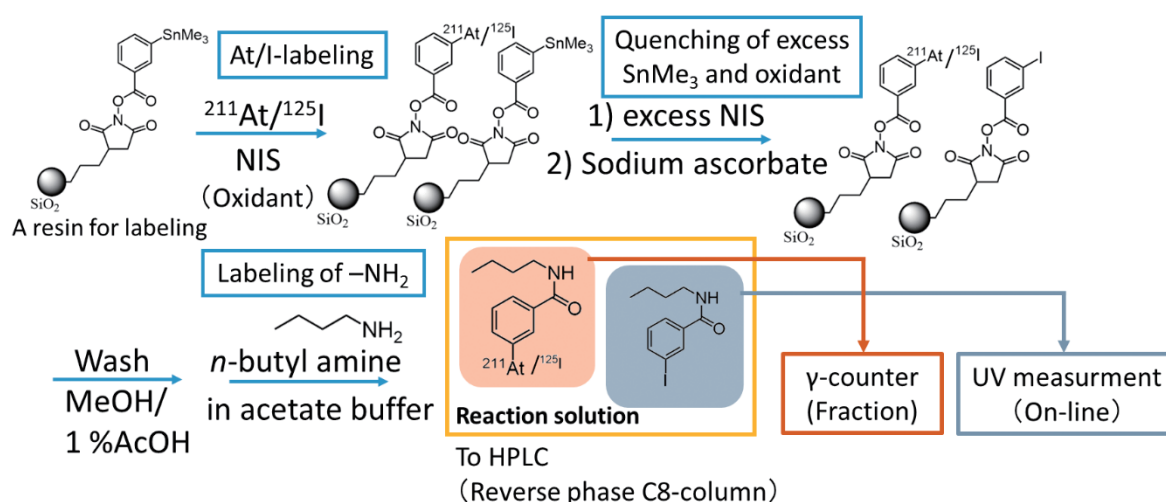


Fig. 3 Experimental scheme for labeling with ^{211}At and ^{125}I using the synthesized resin.

示しています。

Fig. 4(b)には、ヨウ素標準試料と同様に約4分

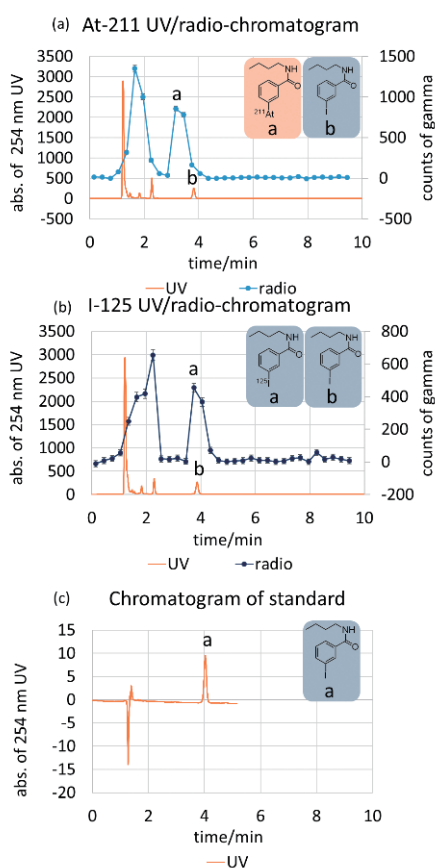


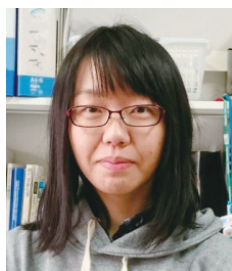
Fig.4 Chromatograms and assigned structures of the obtained products of (a) ^{211}At , (b) ^{125}I and (c) cold I standard of the aimed product.

の溶出位置に ^{125}I のピークが観測されています。これは ^{125}I の標識により目的標識物質が合成された事を示しています。また、Fig. 4(a)を見ると、 ^{125}I のピーク位置に近い約3.5分の位置に ^{211}At のピークが観測されており、Atの目的標識物質が合成された事がわかります。こAtとIのピークのずれは、おそらく分極の違いに起因すると思われます。また、現在では洗浄効率を上げるなどの手順の改良を行い、Atの初期量から求めた収率は45%、最終溶液中の目的標識物質の放射化学純度は84%に達しています。今後の抗体等の標識では、親水性のタンパク質が目的物となるので、より収率が向上すると期待されます。

最後に、本研究では樹脂を介したAt抗体標識ならびに分離に向けた新規手法の開発を行い、新しく調製した樹脂を用いて ^{211}At の低分子化合物の標識に初めて成功しました。このような樹脂上でAtを保持したのち、樹脂から抗体などへAtを標識するという手法はこれまで試みられておらず、この新手法の応用により、自動化が容易になると期待が持たれます。今後、さらなる収率改善についての検討やタンパク質の標識テスト、Biとの分離テストなどの基礎検討を行い、カラムを用いたフロー式自動化を試みる事を予定しています。

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

Rf 同族元素 Zr, Hf の塩化物に対する等温ガスクロマトグラフィ

白井香里^a、押見吉成^a、後藤真一^a、大江一弘^a、工藤久昭^b^a新潟大学大学院自然科学研究科、^b新潟大学理学部

私たちが研究の対象としている超重元素とは、原子番号 104 番以上の元素のことで、加速器を用いて人工的に合成される。超重元素は短寿命でありその生成断面積は非常に小さく、これまでに様々な研究が行われてきたが、その化学的性質は未だにほとんどわかっていない。当研究室では、最初の超重元素である Rf の化学的性質を解明するためにその同族元素 Zr, Hf を用いた基礎研究を行っている。これまで行われてきた Rf を含む 4 族元素塩化物の気相化学研究では、得られた吸着エンタルピーが Zr, Hf でも報告ごとにばらついており、Rf 塩化物の揮発性の議論は困難な状況にある [1]。そこで、当研究室では、Zr および Hf 塩化物について、オフライン実験により詳細な等温ガスクロマトグラフィ挙動の調査を行ってきた。本研究は、マクロ量 (約 10^{18} 分子) とトレーサ量 (約 10^9 分子) の Zr, Hf 塩化物に対して等温カラム通過挙動を調査し、マクロ量における揮発性と吸着相互作用の強さとの関係を確認することと、トレーサ量での吸着エンタルピーを

求めることを目的とした。

実験は以下の手順で行った。 ^{88}Zr ($t_{1/2}=83.4$ d) および ^{175}Hf ($t_{1/2}=70$ d) トレーサを含む塩酸溶液を反応部に設置したカーボンフィルターに付着させ 650°C で空気とともに加熱して一旦酸化物を生成した。つぎに、四塩化炭素を飽和した He ガスを流し 600°C で四塩化物を生成し、揮発した四塩化物を 75°C の塩化物捕集部に捕集した。約 90 分後、四塩化炭素の供給を断ち、塩化物捕集部を四塩化物の揮発温度以上に加熱して、これらを等温部へと導入した。あらかじめ所定の温度にしておいた等温部カラム (内径 4.0 mm、長さ 30 cm) を通過した四塩化物を水冷捕集部にて捕集し、一定時間ごとに放射能を Ge 半導体検出器で測定して累積収率を得た。

超重元素の等温ガスクロマトグラフ実験では多くの場合モンテカルロシミュレーションによって吸着エンタルピーを導出している [2]。しかし、この方法で求めた吸着エンタルピーは装置パラメータ等の正確に見積もることが困難な量が含まれており、必ずしも正確とは言えない。そこで、本研究では装置パラメータ等に依存しない吸着エンタルピーの導出法を考案した。

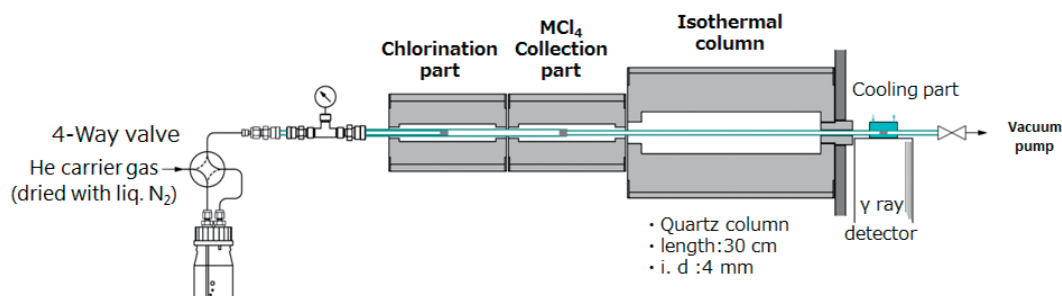


Fig. 1. Schematic diagram of experimental set-up for off-line isothermal gas-chromatography of ZrCl_4 and HfCl_4 .

Zvára による揮発性化学種のカラム通過モデル [2] では、等温部温度 T_{iso} における平均保持時間は次式で表される。

$$\langle t_r(T_{\text{iso}}) \rangle = \frac{LrT_0P}{Q_0P_0} \cdot \sqrt{\frac{2\pi R}{M}} \cdot \tau_0 \cdot \frac{1}{\sqrt{T_{\text{iso}}}} \cdot \exp\left(\frac{\Delta_{\text{ads}}H}{RT_{\text{iso}}}\right)$$

L, r : Length and inner radius of column, T_0, P_0 : Reference temperature and pressure, Q_0 : Flow rate at T_0 and P_0

M : Molecular weight, τ_0 : Period of oscillation at the column surface of the adsorbed molecule

この式を変形すると $\ln\{\langle t_r(T_{\text{iso}}) \rangle \sqrt{T_{\text{iso}}}\}$ が $1/T_{\text{iso}}$ の一次関数となり、傾きから吸着エンタルピーが得られ、装置パラメータ等は切片としてまとめられる。Fig. 2 にマクロ量における ZrCl_4 と HfCl_4 に対する解析結果、Fig. 3 にトレーサ量における解析結果を示す。

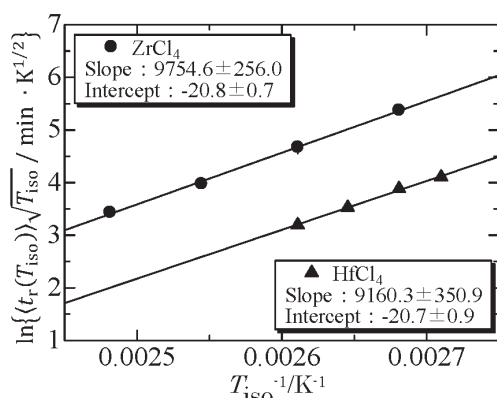


Fig. 2 Analysis results of the adsorption enthalpy of ZrCl_4 and HfCl_4 at macro-scale.

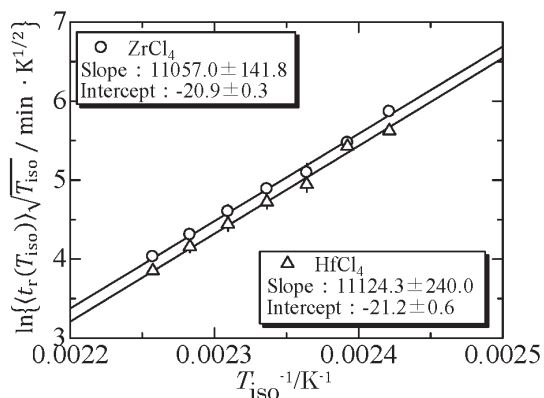


Fig. 3 Analysis results of the adsorption enthalpy of ZrCl_4 and HfCl_4 at tracer-scale.

当初の予想通りよい直線関係が得られ、その傾きから装置パラメータ等に依存しない吸着エンタルピーとしてマクロ量では ZrCl_4 : -81.1 ± 2.1 kJ mol^{-1} , HfCl_4 : -76.2 ± 2.9 kJ mol^{-1} 、トレーサ量では ZrCl_4 : -91.9 ± 1.2 kJ mol^{-1} , HfCl_4 : -92.5 ± 2.0 kJ mol^{-1} を得ることができた。これらの大小関係を見ていくと、マクロ量では $|\Delta_{\text{ads}}H(\text{Hf,macro})| < |\Delta_{\text{ads}}H(\text{Zr,macro})|$ となりマクロ量での揮発性の序列 [3] と矛盾しない結果が得られた。トレーサ量では $|\Delta_{\text{ads}}H(\text{Hf,tracer})| \approx |\Delta_{\text{ads}}H(\text{Zr,tracer})|$ となり、マクロ量での結果と異なっていた。また、マクロ量とトレーサ量とで比較すると、 $|\Delta_{\text{ads}}H(\text{macro})| < |\Delta_{\text{ads}}H(\text{tracer})|$ であり、トレーサ量ではマクロ量の時よりも吸着相互作用が強いことが分かった。マクロ量ではカラムを通過する際のカラムバンドにおいて四塩化物の多層吸着が起こるため、四塩化物同士の相互作用がカラム通過挙動に反映しているのに対し、トレーサ量ではカラム表面と直接相互作用してカラム内を通過していると考えられる。したがって、カラム表面との相互作用は四塩化物同士の相互作用よりも強く、 ZrCl_4 と HfCl_4 とでほとんど変わらないと考えられる。

今後は、カラム表面を塩素化するなどして、表面の状態の変化がカラム通過挙動にどのように影響するかの調査を行う予定である。

引用文献

- (1) A. Türlér *et al.*, *Chem. Rev.* **113**, 1237 (2013).
- (2) I. Zvára, *Radiochim. Acta* **38**, 95 (1985).
- (3) R. P. Tangri *et al.*, *Thermochim. Acta* **244**, 249 (1994).

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

$^{70}\text{Zn}(d,\alpha n)^{67}\text{Cu}$ 反応による頒布用精製 ^{67}Cu の製造

矢納慎也、羽場宏光、柴田誠一、小森有希子、高橋和也、佐藤望、渡邊慶子
(理化学研究所 仁科加速器研究センター)

脇谷雄一郎、山田崇裕、松本幹雄 (日本アイソトープ協会)



1. はじめに

^{67}Cu は核医学利用に適切な半減期 ($T_{1/2} = 61.83 \text{ h}$) を持ち、抗腫瘍効果が高い β^- 線 (分岐比 $b_{\beta} = 100\%$ 、エネルギー $E_{\beta} = 168, 377, 468, 562 \text{ keV}$) を放出するため、RI 内用療法への応用が期待されている¹⁾。さらに、 ^{67}Cu の β^- 壊変に伴い、 185 keV の γ 線 (放出率 $I_{\gamma} = 48.7\%$) が放出される。この γ 線のエネルギーは、診断用核医学核種 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ から放出される γ 線 ($E_{\gamma} = 141 \text{ keV}$) と同程度で、 ^{67}Cu は SPECT を用いた核医学診断にも利用が期待されている²⁾。 ^{67}Cu を放射性医薬品として腫瘍細胞近傍まで運搬することが出来れば、腫瘍の治療と診断を同時に実施することが可能となる。このような概念は theragnostic (therapy + diagnosis) と呼ばれる。 ^{67}Cu は海外で製造・供給が実施されているが、我が国においては容易に入手できる RI ではない。そこで我々は、理研 RI ビームファクトリーで製造した ^{67}Cu を日本アイソトープ協会などを通じて頒布する計画である。現在もっとも主流な ^{67}Cu の製造方法は、 $^{68}\text{Zn}(p,2p)^{67}\text{Cu}$ 反応³⁾ を用いるものである。しかし、高エネルギーの陽子加速器が必要であり、製造された ^{67}Cu の放射性核種純度は、副反応生成物 ^{64}Cu ($T_{1/2} = 12.70 \text{ h}$) と ^{61}Cu ($T_{1/2} = 3.333 \text{ h}$) のために低い。近年、放射性核種純度が高い ^{67}Cu を製造する方法として、 $^{70}\text{Zn}(p,\alpha)^{67}\text{Cu}$ ⁴⁾、 $^{70}\text{Zn}(d,\alpha n)^{67}\text{Cu}$ 反応⁵⁾ や、加速器中性子を用いた $^{68}\text{Zn}(n,pn)^{67}\text{Cu}$ 反応⁶⁾ などが検討されている。本研究では、 $^{70}\text{Zn}(d,\alpha n)^{67}\text{Cu}$ 反応に着目し、理研 AVF サイクロトロンを用いて ^{67}Cu の製造法を検討した。

2. 実験

標的には、 ^{70}Zn の同位体濃縮度が 96.87% の酸化亜鉛の粉末を、直径 10 mm 、厚さ 340 mg cm^{-2} のペレットに加圧成型して用いた。図 1 に示したように、 ^{70}ZnO 標的を Ta のビームストッパー上に置き、厚さ $10 \mu\text{m}$ の高純度 Al 箔で覆い、照射装置に取り付けた。本研究では、 24 MeV 重陽子ビームを $4.0 \mu\text{A}$ で 10 時間照射し、 ^{67}Cu の試験製造を行った。照射中、標的を循環水 (1.5 L min^{-1}) と循環ヘリウム (30 L min^{-1}) により冷却した。さらに電磁石を用いてビームスポットを標的上で直径約 3 mm 、 2 Hz で回転させ、標的の発熱を分散させた。照射終了後、Eichrom Cu resin と Dowex 1X8 陰イオン交換樹脂を用いた 2 段階のカラムクロマトグラフィー⁷⁾ によって ^{67}Cu を精製した。得られた精製 ^{67}Cu は、抗体標識実験に用いるため、約 $300 \mu\text{L}$ の 0.1 M 酢酸溶液に調製した。本研究では、ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによって、生成放射能と放射性核種純度を求めた。さらに ICP-MS

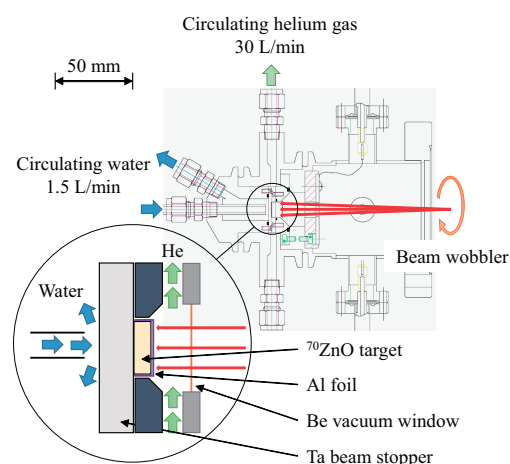


図 1 ^{67}Cu 製造装置の概略図

を用いた化学不純物の分析を行い、精製 ^{67}Cu の比放射能と化学的不純物濃度を求めた。

次に ^{67}Cu 製造量の増大を目的とし、天然同位体組成の金属亜鉛 ($^{\text{nat}}\text{Zn}$) を用いた照射試験を行った。500 mg の $^{\text{nat}}\text{Zn}$ を塩酸で溶解後、10 mL の 0.1 M HCl 溶液に調製した。これを電着液として、500 mA cm^{-2} の条件で Ta ビームストッパー上に 30 分間電着を行い、271 mg cm^{-2} の $^{\text{nat}}\text{Zn}$ 金属標的を作成した。前述の照射装置を用いて、24 MeV 重陽子ビームを 10 μA のビーム強度で 20 分間照射し、 $^{\text{nat}}\text{Zn}(d,xn)$ ^{67}Ga 反応によって生成する ^{67}Ga の放射能を γ 線スペクトロメトリーにより定量した。これを既報⁹⁾ の反応断面積を参考として算出した ^{67}Ga の放射能と比較することで、大強度ビームによる ^{67}Cu の定量的製造を考察した。

3. 結果と考察

^{70}ZnO ペレットの照射実験では、照射終了時点換算で 135 MBq の精製 ^{67}Cu を製造することができた。図 2 にゲルマニウム半導体検出器を用いた精製 ^{67}Cu の γ 線スペクトルを示す。同定された ^{67}Cu 以外の放射性核種は、 ^{61}Cu と ^{64}Cu のみであり、 $^{61}\text{Cu} : ^{64}\text{Cu} : ^{67}\text{Cu}$ の放射能比は照射終了時点で $2.2 \times 10^{-3} : 1.2 \times 10^{-2} : 1$ であった。 ^{67}Cu の半減期は ^{61}Cu 、 ^{64}Cu よりも長いので、時間とともに放射性核種純度は増大する。利用者へ照射終了後 60 時間で供給する場合、放射性核種純度は 99.9% 以上となる。また、ICP-MS による化学不純物の定量を行ったところ、1 ppm を超える濃度で検出され

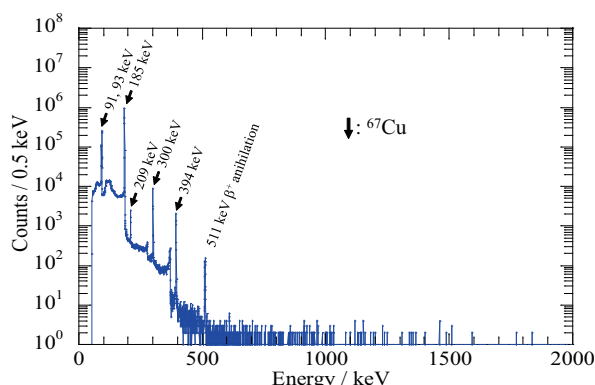


図 2 精製 ^{67}Cu の γ 線スペクトル。照射後 35 時間 44 分から 5000 秒間測定。

た原子番号 20 以上の元素は、Cu (2.1 ppm) と Br (1.0 ppm) のみであった。この結果をもとにして得られた ^{67}Cu の比放射能は、照射終了時点で 220 MBq μg^{-1} であった。精製 ^{67}Cu を用いた抗体標識実験の結果については、論文投稿中である⁸⁾。

天然同位体組成の金属 Zn 標的を用いた照射実験では、照射終了時換算で 47 ± 1 MBq の ^{67}Ga が製造された。既報⁹⁾ の反応断面積を用いて算出した ^{67}Ga 放射能は 47 ± 5 MBq であり、実験値とよく一致している。これにより、 ^{70}Zn 金属標的を用いれば、24 MeV、10 μA の重陽子ビーム照射により定量的に ^{67}Cu を製造できると考えられる。

本研究で得た ^{67}Cu の生成放射能、比放射能、放射性核種純度を、Brookhaven Linac Isotope Producer (BLIP) で $^{68}\text{Zn}(p,2p)$ ^{67}Cu 反応を用いて製造した場合¹⁰⁾ と比較した。BLIP では、200

表 1 理研 RIBF および BLIP における ^{67}Cu 製造能力の比較

| | ビーム | 照射時間 | ^{67}Cu 放射能 (照射終了時) | 比放射能 (照射終了時) | 放射性核種純度 (照射後 60 時間) |
|-------------|-----------------------------------|------|---------------------------------|------------------------------------|------------------------|
| RIBF 実験値 | 24MeV 重陽子 4.0 μA | 10h | 135MBq | 220MBq μg^{-1} | 99.9%以上 |
| RIBF 目標値 | 24MeV 重陽子 10 μA | 5.5d | 2.7GBq | 4.4GBq μg^{-1} | 99.9%以上 |
| RLIP 実験値 | 200MeV 陽子 43 μA | 5-6d | 10GBq | 210MBq μg^{-1} (平均値) | 約 67% |

MeV のプロトンビームを $43 \mu\text{A}$ で 5～6 日間照射することで、照射終了時点換算で、比放射能 $210 \text{ MBq } \mu\text{g}^{-1}$ の ^{67}Cu を 10 GBq 製造している。また照射終了時における $^{61}\text{Cu} : ^{64}\text{Cu} : ^{67}\text{Cu}$ の放射能比は、 $10.6 : 6.7 : 1$ であり、照射終了後 60 時間における放射性核種純度は約 67% である。我々の今回の製造結果 (RIBF 実験値)、将来 ^{70}Zn 金属標的を用いた場合の計算値 (RIBF 目標値)、BLIP での製造実績 (BLIP 実験値) を表 1 にまとめた。RIBF 目標値は、BLIP の $^{68}\text{Zn}(p,2p)^{67}\text{Cu}$ 反応の 4 分の 1 程度であるが、放射性核種純度、比放射能については BLIP よりも高い ^{67}Cu を製造できると考えられる。

4. まとめ

本研究によって、 $^{70}\text{Zn}(d,\alpha n)^{67}\text{Cu}$ 反応を用いて放射性核種純度、比放射能が高い精製 ^{67}Cu を供給できることがわかった。今後、輸送体の梱包方法や頒布価格等を決定し、日本アイソトープ協会から頒布する計画である。また、生成量の増大を目指し、現在、ビーム強度の増大と被ばく低減化のための自動化学分離装置の開発を進めている。

参考文献

- 1) I. Novak-Hofer et al., *Eur. J. Nucl. Med.* **29** (6), 821 (2002).
- 2) O. D. M. Hughes et al., *J. Clin. Oncol.* **18**(2), 363 (2000).
- 3) S. M. Qaim, F. Tarkanyi, R. Capote (Eds.): *Nuclear data for the production of therapeutic radionuclides*, IAEA Technical Reports Series **473**, 176 (2011).
- 4) S. Kastleiner et al., *Radiochim. Acta* **84**, 107 (1999).
- 5) J. Kozempel et al., *Radiochim. Acta* **100**, 419 (2012).
- 6) T. Kin et al., *J. Phys. Soc. Jpn* **82**, 034201 (2013).
- 7) S. Yano et al., *RIKEN Accel. Prog. Rep.* **49** (in press).
- 8) K. Fujiki et al. (private communication).
- 9) F. Tarkanyi et al., *Nucl. Instrum. Meth B* **217**, 531 (2004).
- 10) *Cyclotron produced radionuclides: physical characteristics and production Methods*, IAEA Technical Reports Series **468**, 100 (2009).

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

インビーム・メスbauer分光法を用いた ^{57}Fe 原子の化学状態の分析

鈴木聖人¹、谷川祥太郎¹、佐藤祐貴子¹、小林義男^{1,2}、山田康洋³、久保謙哉⁴、
三原基嗣⁵、長友傑²、佐藤渉⁶、宮崎淳⁷、佐藤眞二⁸、北川敦志⁸
(電通大院¹、理研²、東理大理³、ICU⁴、阪大理⁵、金沢大理工⁶、
北陸大薬⁷、量研機構放医研⁸)

化学分析手法の中で核外軌道電子の密度と対称性・酸化状態を高精度に観測できる手法としてメスbauer分光法が存在する。一般的にメスbauer分光法は長寿命の γ 線源を用い、ドップラーエネルギーの加減による γ 線の透過率または散乱率の変化を測定してスペクトルを得る。最も多く研究されている ^{57}Fe のメスbauer実験では ^{57}Co (半減期 270 日)の電子捕獲壊変 (electron capture decay) で放出される 14.4 keV の γ 線による共鳴吸収スペクトルを観測している。対照的に ^{57}Mn の β^- 壊変を利用する例はその半減期の短さ(半減期 85 秒)が原因となって非常に少ない (Fig. 1)。しかしながら ^{57}Mn の β^- 壊変を利用するとオージェ効果による ^{57}Fe 周囲への影響が ^{57}Co の EC 壊変に比べ少なく、化学的環境の乱れを起こすことがないため、より正確な測定が可能となる。そこで申請者の所属する研究グループでは重イオン加速器を用いてプローブ核となる γ 線放出体 ^{57}Mn を固体試料中に直接生成し、その放

出体からの γ 線共鳴吸収を測定することによって試料の電子密度、配位環境といった化学状態を調査する手法「インビーム・メスbauer分光法」の開発を行ってきた¹。この手法はオージェ効果の寄与の少なさと合わせ試料中に生成するプローブが原子数 10^{10} - 10^{13} ほどで十分であることからプローブ核の相互作用を無視し、完全に孤立した原子の情報を得ることが可能となる。また、多くの情報を高精度で得ることが可能なメスbauer分光法であるが、メスbauerプローブ元素が固溶しない試料では測定を行うことが不可能となるため、実験対象が限られるという問題がある。本手法は加速器を用いてメスbauerプローブ元素を試料に打ち込むことで、全ての凝縮系におけるプローブとの反応をオンラインで観測することを可能としている。

最近の実験は放射線医学総合研究所の重イオン加速器 HIMAC で行っている。核子あたり 500 MeV に加速した一次ビーム ^{58}Fe を Be 標的に照射し、入射核破砕反応で生成した ^{57}Mn を分離、最適化後、試料に直接注入する。試料から放出されるメスbauer γ 線の検出において比例計数管やシンチレーション検出器などのメスbauer分光法で一般的に使われる γ 線検出器をインビーム・メスbauer分光法に用いた場合、ビーム由来の高エネルギー放射線によるバックグラウンドが桁違いに高くなってしまふ。そこで我々は平行平板電子なだれ型カウンター (PPAC) を自作している。PPAC (Fig. 2) は試料から放出される γ 線を ^{57}Fe -SUS で無反跳共鳴吸収し、励起した ^{57}Fe から γ 線と共に放出される内部転換電子を C_3H_8 ガスで増幅させグラフィック電極で感知する。そのため、 ^{57}Fe 励起核からのメスbauer

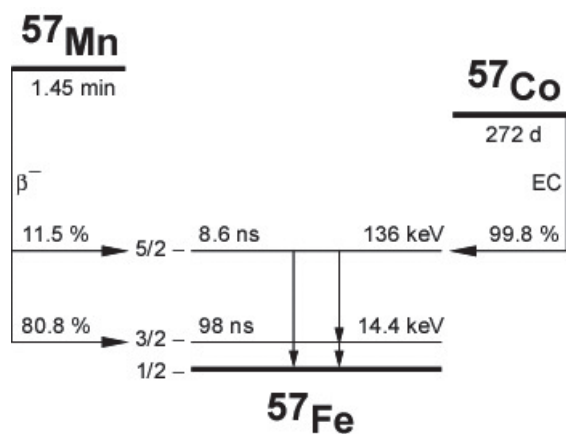


Fig. 1 Simplified decay scheme of ^{57}Fe

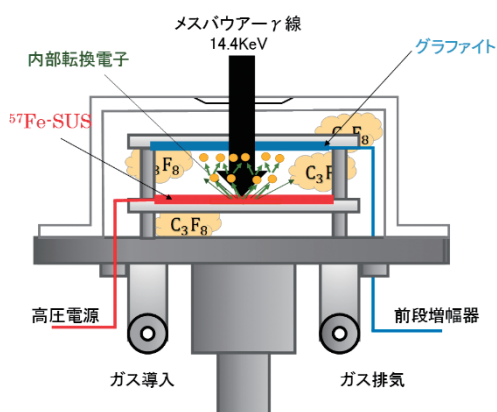


Fig. 2 Schematic of Parallel Plate Avalanche Counter (PPAC)

アー γ 線のみ高感度な検出器となり、加速器を用いたインビーム・メスバウアー分光法には必須となっている。しかし、エネルギー分解能が乏しく、正味の内部転換電子と検出器に直接入る β 線や高エネルギー γ 線由来の光電子との分別ができない。そこで ^{57}Mn から放出される β 線とメスバウアー γ 線の β - γ 反同時係数測定を開発した²。PPACと測定試料の間にプラスチックシンチレーション検出器を置き、メスバウアー γ 線と β 線の反同時計測で β 線由来の信号を除去。これにより、シグナル・ノイズ比(S/N比)を大幅に向上させている。本手法は加えてスペクトルの時間分解をも可能にしている。試料を中心として4方向を囲うようにプラスチックシンチレーション検出器を配置し、 β 線が観測された時間を $t=0$ のスタート信号として、その後PPACで検出された γ 線を観測した時間で時間分解を行っている。これにより数十nsecごとに時間を分割し、ある時間での核プローブの位置や、どのように移動していくのかといったプロセスを見ることができる。

これまで我々は MgO^3 、 NaF^3 、 $\text{LiH}^{4,5}$ を始めとした種々のインビーム・メスバウアースペクトルを得ることに成功しており、低温ガスマトリックスのインビーム・メスバウアースペクトルの観測も行っている。ガスマトリックス試料はマトリックス単離法を用いて作製している。マトリックス単離法によって作製されたガスマトリックスは化学的に安定し、分子間相互作用が小さいことで気体の状態に近く希薄系となり、分子一個の化

学状態を観測する有用な方法となる。この手法により酸素ガスマトリックス⁶やメタンガスマトリックス⁷でエキゾチックなFe化学種の生成と観測に成功している。直近ではエチレン/Arガスマトリックスのインビーム・メスバウアー実験を行っている。その際のスペクトルをFig. 3に示す。試料はパルスチューブ冷凍機で17 Kに保持した基板の上に $\text{C}_2\text{H}_4/\text{Ar}$ ガス(混合比 $\text{C}_2\text{H}_4:\text{Ar} = 3:7$)を約38時間導入して作製した。スペクトルは、Yamadaらによるマトリックス単離実験の結果⁸を参考に1成分のsingletと3成分のdoubletで解析した。成分AとBは、これまでの結果から、それぞれ励起状態の $\text{Fe}^+(\text{d}^7)$ および基底状態の $\text{Fe}^+(\text{d}^6\text{s}^1)$ と帰属した。残りの成分C,Dについて、Feの化学種とその電子状態についてORCAを用いてDFT構造最適化計算を実行した。その結果、Fe原子に C_2H_4 分子が1配位した新奇化学種(Fig. 4)が構造候補となることが示唆された(Fig. 4)。今後のインビーム・メスバウアー実験において、試料の $\text{C}_2\text{H}_4/\text{Ar}$ の比と温度を変化させることで

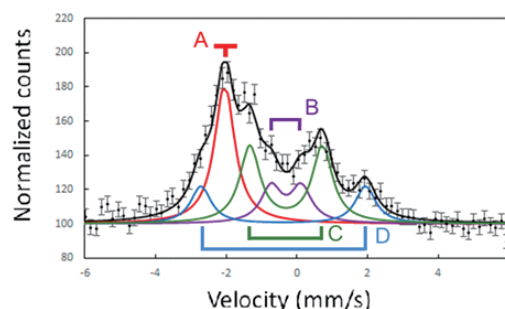


Fig. 3 Mössbauer emission spectra of ^{57}Fe ($\leftarrow ^{57}\text{Mn}$) in a C_2H_4 and Ar matrix ($\text{C}_2\text{H}_4:\text{Ar} = 3:7$) measured at 17K. The isomer shift is given relative to Fe metal at room temperature.

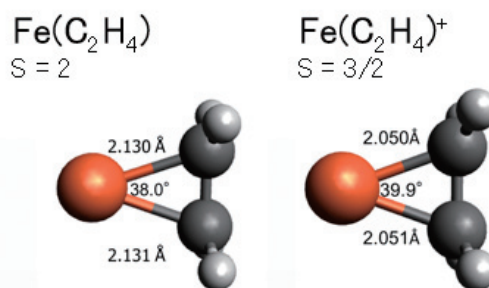


Fig. 4 Optimized structure of (C) $\text{Fe}(\text{C}_2\text{H}_4)$ (D) $\text{Fe}(\text{C}_2\text{H}_4)^+$

更なる詳細な解析を行う予定となっている。

最後に、本実験を行うにあたって多大な研究協力をしてくださる共同研究者の山田康洋氏（東理大理）、久保謙哉氏（ICU）、三原基嗣氏（阪大理）、長友傑氏（理研）、佐藤渉氏（金沢大理工）、宮崎淳氏（北陸大薬）、佐藤眞二氏（量研機構放医研）、北川敦志氏（量研機構放医研）、並びに量研機構放医研 HIMAC 関係者、指導教官の小林義男先生を始め電通大の谷川祥太郎氏、佐藤祐貴子氏、実験に参加していただいた後輩に心より感謝いたします。

参考文献

- [1] V. K. Sharma, et al., Wiley (USA), (2013).
- [2] T. Nagatomo et al., NIM B, **269**, 455 (2009).
- [3] M. K. Kubo et al., Rev. Sci. Instrum, **85**, 02C310 (2016).
- [4] Y. Sato et al., Hyp. Int, **237**, 74 (2016).
- [5] J. Miyazaki et al., J. Radioanal. Nucl. Chem, **303**, 679 (2015).
- [6] Y. Kobayashi et al., Proc. ICAME 2005, 357 (2006).
- [7] S. Tanigawa et al., Hyp. Int, **237** 72 (2016).
- [8] Y. Yamada et al., J. Radioanal. Nucl. Chem, **255**, 3, 419 (2003).

特集 (2016 日本放射化学会年会 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

メスバウアー分光法によるコンドライト隕石中の鉄含有鉱物組成の研究

中川真結¹、加納康大¹、佐藤渉^{1, 2}、海老原充³金沢大院自然¹、金沢大理工²、首都大院理工³

コンドライト隕石は太陽系生成時の母天体の状態を保存しており、この隕石を構成する主成分元素のひとつである鉄は、母天体の生成過程に応じて様々な鉱物形をとる。そのためコンド

ライト隕石中の鉄含有鉱物の研究は、母天体を取り巻く環境を知る上で大変重要である。本研究では⁵⁷Feメスバウアー分光法を用いて、鉱物組成の異なる様々なコンドライト隕石中の鉄の状態解析を行った。⁵⁷Feメスバウアー分光法は鉄の電子状態に関して高感度な測定が可能であり、固体試料を非破壊で測定できるという利点がある。この利点を活かし、コンドライト隕石中の鉱物組成を非破壊で同定するための新たな化学的分類法の確立を目指した。コンドライト隕石の化学的分類は、母天体形成時の酸化還元状態を反映していると言われている。この分類は一般的に元素分析などを用いて行われるが、メスバウアー分光法のみを用いて行うことができれば、貴重な隕石の組成を損なうことなく分類を行えるため、非常に有意義であると言える。

本研究で測定を行ったコンドライト隕石の一覧をTable 1に示した。粉末状にした各隕石試料100～200 mgについて透過型⁵⁷Feメスバウアー分光法により室温及び6 Kで測定した。線源はRhマトリックス中に分散させた⁵⁷Co($T_{1/2} = 272$ 日)を使用し、得られたス

Table 1. Names and types of the chondrite meteorites investigated.

| Name | Type |
|------------|--------|
| Y981490 | L3 |
| Saratov | L4 |
| MIL07710 | L4 |
| ALH76009 | L6 |
| Y790272 | H4 |
| Allende | CV3 |
| 1MIL091010 | CV3 |
| Murchison | CM2 |
| PCA91002 | R3.8-6 |

ペクトルは α Feの室温スペクトルにより較正を行った。

例として炭素質コンドライトCMに分類されるMurchisonの6 KにおけるメスバウアースペクトルをFig.1に示す。室温におけるスペクトルには7つのdoublet成分が存在していることが分かった。メスバウアーパラメータより含有鉱物はOlivine(2成分)、Cronstedtite(3成分)、Tschermakite(1成分)であると考えられ、これに加えて鉱物が同定できない Fe^{3+} の成分も14.8(7)%観測された。スペクトル強度の増加や磁気転移により新たな成分が観測される可能性を考え、6 Kでの低温測定も行ったところ、内部磁場 $B_{hf} = 28.8(7)$ Tのsextet成分を5.3(8)%の強度で観測した。アイソマーシフト($\delta = 0.58(5)$ mm/s)の値から、これは Fe^{3+} の成分であると考えられるが、一般的にコンドライト隕石に含まれる酸化鉱物とは内部磁場の値が異なるため、6 Kで磁性を持つその他の酸化鉱物に由来する成分であると考えられる。

更に本研究で行った9つのコンドライト隕石のメスバウアー分光測定結果と、既報のメスバウアー分光研究による文献値(例えば[2][3])をもとに、新たなコンドライト隕石の化学的分類法

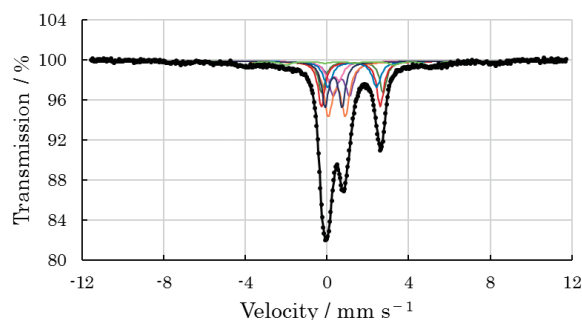


Fig. 1. Mössbauer spectrum obtained for a CM chondrite Murchison at 6 K.

を提案する。スペクトルの解析によって得られた各鉱物中のFeの原子数比を、横軸に「酸化的鉱物」と呼ばれる Olivine などのケイ酸塩鉱物と Fe^{3+} を含む酸化鉱物の合計、縦軸に「還元的鉱物」と呼ばれる Troilite などの硫化鉄鉱物と FeNi などの金属鉱物の合計についてプロットし、鉱物組成の相関を調べた (Fig. 2)。概ねコンドライト隕石の種類毎に分別されており、化学的分類の可能性を示唆する結果が得られた。しかし炭素質コンドライトについてはばらつきが大きく、他のタイプとの区別が困難であることが分かる。そこで鉱物の組み合わせを変え、Olivine と Pyroxene について同様の相関を調べたところ、普通コンドライト (H、L、LL) とその他のコンドライトを明確に判別できることが分かった。さらに普通コンドライト以外のものについて、FeNi (カマサイト or テーナイト) と FeS の相関を調べることで、エンスタタイトコンドライトと、炭素質コンドライトまたは R コンドライトを判別することができた。

本研究ではメスバウアー分光法を用いてコンドライト隕石の化学的分類を非破壊で行う手法を提案することができた。今後は普通コンドライト隕石の詳細な分類法について更に検討する予定である。

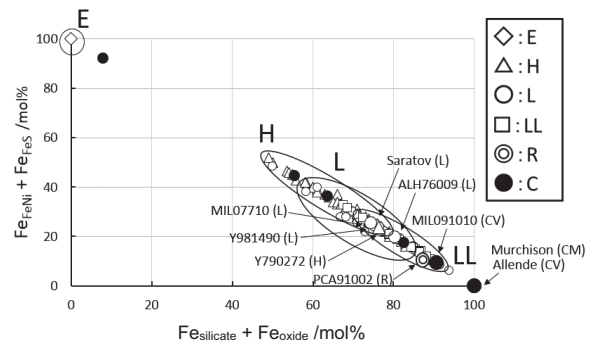


Fig. 2. Correlation of iron fractions in minerals in chondrites. Those for silicates and oxides are plotted on the abscissa and FeNi and FeS on the ordinate.

参考文献

- [1] R. B. Scorzelli *et al.* *Hyperfine Interaction* **83**, 473-477 (1994).
- [2] P. Munayco *et al.* *Earth Moon Planets* **110**, 1-9 (2013).
- [3] M. I. Oshtrakh *et al.* *Hyperfine Interactions* **177**, 73-79 (2007).

歴史と教育

広い教育分野における $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用いる諸実験の活用

——ラジオアイソトープの新利用——

野崎 正^a、永津弘太郎^b、葉袋佳孝^c、佐々木徹^d

a: 北里大学理学部物理学科

b: 量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所 標識薬剤開発部

c: 武蔵大学根津科学研究所

d: 北里大学医療衛生学部

I. ラジオアイソトープ (RI) を教育実験に活用し、一石三鳥を目指そう

1-1. 目標

筆者らは現在つぎの三目標 (三鳥) を目指して、 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用具として活用する約 20 種の教育実験題目に対するマニュアルを作成中である:

- (1) 長期の大目標として、庶民の科学に対する関心と知的水準の向上;
- (2) 数年以内に成果が見え始めるとも期待できる、原発の可否における原子力安全神話と放射線アレルギーとの宗教的ともいえる抗争の科学的思考・討論による置換;
- (3) 放射化学や関連分野の活性化や後継者の育成への貢献。

更に、実験教育の参加者にとっては、実験用具に関する知見の方が実験の目的や結果よりも強く記憶に残る場合も少なくない。すなわち、上記の実験の広い教育分野における普及は、先ず RI や放射線に関する知識の普及となる。

現在筆者等が作成しているマニュアルは、実験への参加者を直接の対象とするのではなく、教育実験の担当者 (多くの場合高校教諭のような、実験テーマの選択と監督の責任者) を最も重要な対象と考え、難易性では理科系の学生や理科に何らかの関係がある職務に従事する社会人に適合するようにしたいと考えている。多くの実験項目について、習得目標や簡単な問題が付記してある。このマニュアルに加えて、(1) 理科の基礎知識はあるが放射線や RI の知見は乏しい (例えば“ゆとり教育時代”に学生時代を過ごした) 方々にとっ

て不可欠な RI に関する予備知識と、(2) 実験で会得した知見をより広範な、より身についたものにするために、関連現象の総括的解説や演習問題とを付加して、“ $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用いる教育実験のガイドブック”とでも題した小冊子として纏める計画である。

我が国は江戸時代から、ピンチに追い込まれた藩の財政再興の過程にも教育の重視策が取り上げられ、町人の子供たちも寺子屋に憧れていたという。更に、明治の義務教育制度は、庶民の知的レベルの向上に大いに成功した。平成の世でも、当面の実利教育より、国家百年の計、人類千年の計のための基礎教育がもっと尊ばれるべきではなからうか。また、安全、簡便、安価な教育用ジェネレーターの外国、特に発展途上国への提供も大いに有意義と考えられる。これらの国で原発所有の是非を論ずる場合などを通じて、市井の民の RI 関連の関心や知識が各国や世界の未来に大きく影響する可能性もあるのではなからうか。

1-2. 放射化学の現状

今世紀の先進国では、放射化学の研究室は教授の定年とともに消滅するケースが多く、また、常時満席の RI 実験室を見出すのは困難であろう。敗戦後の日本の放射化学は、欧米コンプレクスにとられて自らの発想を基に新規の研究を推進する気迫に欠けた傾向もあり、それが現在のじり貧に対する無為無策へと引き継がれているのではなからうか。

さらに、どんな分野でも、一つのテーマを成し遂げただけでは、名誉ある失業者達の古巣となりかねない。固体電子工学は前世紀の花形産業で、

先ず半導体材質中の極微量不純物の分析と制御が必須となり、放射化分析はタイムリーにこのニーズに応えた。例えば、半導体ケイ素中の ppb レベルの炭素、窒素、酸素の定量には荷電粒子放射化分析が最適の手段で、感度は劣るが X 線吸収分析も校正曲線があれば広く利用できる。¹⁾ そこで我が国が発案して、国際的な持ち回り放射化分析を行って酸素と炭素に対するこの校正曲線を作成した。だがその頃から、放射化分析のこの分野における活用度は低下に向かった。

放射化学関係者から見た我が国のもう一つの現実とは、“原子炉の安全神話派（原子力推進派）”と“放射線アレルギー派（医療以外の放射線・RI の利用や原子力発電は全て有害で禁止すべきとする派）”の科学を放り出したいがみ合いである。また、正直に言うと、敗戦後の貧乏な時期に、RI や放射線関連の研究費は“原子力予算”と称して別枠からいただくルートがあり、熱心な研究者には大いにプラスになると同時に、学術的評価よりは政財界の人脈により不可解な大金が流れて、無駄使いや関連分野の墮落を招き、それが現在の放射化学の苦境を招いた一要因であるとも考えられる。放射化学会としても、これ等の現状から脱却するためには、現状の苦境を十分に認識して自らの頭を絞り肉体労働にも励む意欲を持つ会員が過半数を保っていることが必要ではなかろうか。

1-3. ジリ貧を脱出し Renaissance をもたらすには？

幸いにも RI は次のような諸特性を有し、自然現象だけではなく社会現象の教育にも有効なユニークな実験材料として活用できる筈である：(1) 状態や環境に影響されず固有の速度で指数関数壊変をする；(2) 高感度・非破壊・連続的に定量や位置分布の測定が可能である；(3) 同位体と同じく挙動する、等。そこで、学生・生徒をはじめ国民の広い層の関心と呼ぶような、RI を利用する多種の教育実験指導書を作成して、その利用を推進すれば、冒頭に掲げた一石三鳥も可能と考えられる。実習で得た体験は一般に講義や読書で得た知識と比べて身につけ易く風化しにくい。そして、若い方々に対し、その分野への関心を誘い、関心は無意識のうちに放送などから入ってくる情報を吸収して興味へと発展し、この分野をライフワー

クに選んで情熱を捧げ、退職後も愛着を感じながら見守る、といった美しい人生行路をも用意したいものである。現在の日本では一回でも放射線・RI・原子力関連の実習教育を受けるのは、関連する専門コースの学生・生徒以外では、恵まれた大学の理科系学生ですら限られた割合に過ぎないようだ。放射化学に Renaissance をもたらすには、多くの関連者が各自の立場から RI・放射線・核反応など関連部門の特性を活用する新分野を考え出して提案する熱意を持つことが、必須条件ではなかろうか。

1-4. $^{86}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーター教育利用における有効性

広い層の人達を対象とした教育実習に用いる RI の供給源にはジェネレーターが断然優れている。すなわち、相対的に半減期の長い親核種から短い娘核種をミルクして用いるのだから、加速器やサイクロトロンのような RI 製造装置のないところでも、随時ミルクして短寿命の娘核種を無担体状態に得ることができる。また、ミルクを繰り返せば、溶離される不純物は始めに溶出されてしまい、その後得られる娘核種は大変優れた純度となる。Table 1 に教育利用に適したジェネレーターを示す。これからも解るようにジェネレーターの中で $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ の核種対が特に優れていると考えられる。すなわち、(1) 親核種も娘核種も半減期が適当で、(2) Table 2 から解るが、親核種は EC 壊変に伴う特性 X 線と Auger 電子だけしか放出しないので、Base Line

Table 1. Generators useful in education

| Parent/Daughter (Half-life) | Parent/Daughter (Half-life) | Parent/Daughter (Half-life) |
|--|--|---|
| $^{42}\text{Ar}/^{42}\text{K}$ (33y, 12.4h) | $^{87}\text{Y}/^{87\text{m}}\text{Sr}$ (79.8h, 2.82h) | $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ (30.2y, 2.55m) |
| $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ (60y, 3.97h) | $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (28.9y, 64.0h) | $^{140}\text{Ba}/^{140}\text{La}$ (12.8d, 40.3h) |
| $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ (271d, 67.7m) | $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ (66.0h, 6.01h) | $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ (69.8d, 17.0h) |
| $^{72}\text{Se}/^{72}\text{As}$ (8.4d, 26.0h) | $^{113}\text{Sn}/^{113\text{m}}\text{In}$ (115d, 99.5m) | $^{194}\text{Os}/^{194}\text{Ir}$ (6.0y, 19.3h) |

Normal font: Neutron Deficient Nuclides (β^+ , EC)

Italic Font: Neutron Excess Nuclides (β^-)

Table 2. Decay properties of ^{68}Ge , ^{68}Ga and ^{67}Ga

| | ^{68}Ge | ^{68}Ga | ^{67}Ga |
|---------------------------------------|------------------|------------------------|-----------------------------------|
| Half-life | 271 d | 67.7 m | 3.26 d |
| Decay Mode | EC | β^+ (90), EC(10) | EC |
| β -Ray (energy/MeV and percent) | | 1.90(90) | |
| γ Ray(energy/MeV and percent) | none | 1.077(3) | 0.093 (38), 0.185 (24), 0.300(19) |

を 25 keV 程度に設定した γ 線測定器では全く感知されない、(3) ミルキングで得た娘核種（無担体 ^{68}Ga ）はガリウムの種々のトレーサー実験に使用できる、(4) 小型化したジェネレーター自身を線源として、0.51 MeV の γ 線の吸収実験や陽電子放出体の同時計数測定を用いる種々の実験が可能、(5) 放射線障害防止法の規制対象となる親核種の最低放射能強度（下限数量）は 100 kBq で、これだけあれば多種の実験テーマは数組が同時に実行可能である。なお、 $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 分離用に我々が自作して用いている酸化スズ(IV)のジェネレーターカラムでは、 ^{68}Ga は 1 M 塩酸 0.3 mL 中に効率よく溶出される。

^{68}Ge はサイクロトロンで加速した陽子をガリウムに照射することで製造され、一般には塩化ゲルマニウム ($^{68}\text{GeCl}_4$) として蒸留または四塩化炭素抽出により分離され、塩酸溶液として市販されている。日本でも量子科学技術研究開発機構・放射線医学総合研究所で炭化ケイ素製のターゲットホルダー中に保持した金属ガリウム（融点 30 °C）を、サイクロトロンで 30 MeV 程度に加速して下方に曲げた陽子ビームで照射して製造されている。照射したガリウムターゲット中に生成している ^{68}Ge は、過酸化水素を含む塩酸中に難揮発性 ^{68}Ge の状態に溶解抽出することができる。これを自製の酸化スズカラムに加えてから、1 M 塩酸を流せば、 ^{68}Ge はカラム中に吸着されて留まり ^{68}Ga は洗い流されて、ジェネレーターが出来上がる。

Figs. 1 と 2 は手作り品の写真である。カラムには 1 mL の使い捨てプラスチック注射筒を用いている。大型の $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーター ($10^8 \sim 10^9$ Bq 程度) は陽電子核医学 (PET) 用の診断薬



Fig. 1 Manufactured generator assembly with its parts. From bottom to up: adsorbent SnO_2 powder (before HNO_3 treatment); generator connected with eluent syringe; and porous plastic diskette and short end of plastic tube (See text for more detail).

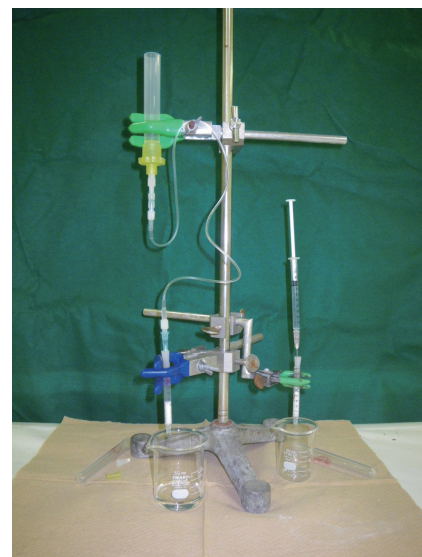


Fig. 2 Milking by ordinal procedure (right) and column washing by imitation of intravenous drip (left).

剤生産用や装置校正線源として市販されている。だが、われわれが用いる小型ジェネレーターでは、ジェネレーターカラム用に選択した酸化スズ(IV)の適切な作製法の開発から始める必要があった。大型ジェネレーターは放射能が1/10以下に減衰すれば一般に使用されなくなる。放射化学の技術を駆使してそこに残存する ^{68}Ge を再利用すれば、われわれの提案する教育利用には有り余る筈である。

II. $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用いた教育実験

2-1. 各実験の題目、教育目標、マニュアル作成の進捗状況

我々は十数種類の実験課題を取り上げてテスト実験を続けた結果、約10種類の題目についてはマニュアルがほぼ出来上った。Table 3に、実験題目、教育目標、ならびにマニュアル作成の進捗状況を示す。

Table 3. Title, aim and present stage of manual preparation for each experiment.

| Title | Aim | Present stage* |
|---|---|----------------------|
| A. Manufacture and properties of generator | | |
| 1. Manufacture of $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ generator. | Self-manufacture of tool for experiment | End |
| 2. Milking and half-life measurement of ^{68}Ga | Relation among exponential, real number and logarithm | End |
| 3. Growth of ^{68}Ga in generator after milking | Intimacy with differential equation | End |
| 4. Milking yield and breakthrough of ^{68}Ge | Properties of generator | End |
| B. Experiments by ^{68}Ga | | |
| 1. Adsorption, coprecipitation and solvent extraction | Behavior of ultra-low concentration and ultra-minute amount materials | Near end |
| | Entropy of mixing and the second law of thermodynamics | |
| 2. Ion exchange and chromatography | Chemical separation and analytical chemistry | Near end |
| 3. Isotope exchange | Intermolecular atomic exchange without chemical change | Midway |
| 4. Chelate chemistry, and synthesis of Positron radiopharmaceuticals | Radiopharmaceutical chemistry | Before starting |
| 5. Uptake by plants | Nondestructive, continuous measurement of RI taken up by plants | Midway |
| 6. Contamination and decontamination, and Leak hunting | Advantageous utilization of short-lived RI | Midway |
| C. Measurement and use of annihilation radiation | | |
| 1. Absorption by various substances | Absorption mechanism of γ -ray | End |
| 2. Dependence of coincidence counting efficiency on geometrical arrangement | Principle and utilization of coincidence counting | End |
| 3. Low background counting of β^+ emitters | Non-artificial RI and radiations | Near end |
| 4. Principle of PET and image reconstruction | Nuclear medicine | Some new idea needed |

* Present stage of test experiments for manual preparation.

2-2. 教育実験参加者の分類と、各分類に相当と思われる実験項目の例

各々の参加者に適した実験項目は、割り当てられた時間や参加者の立場や目標などにより当然異なる。一応、参加者を次のAからDの4種のカテゴリーに分類し、Table 3の中から各々に適していると思われる実験項目番号を選んで列挙してみた。カッコ内の実験題目は時間に余裕がある場合や、責任者達が実験を行って参加者は手伝ったり見学する場合に適していると思われる。

- A. 高校生，非理科系社会人と大学生：A-2, C-1 (A-1, A-3, A-4, B-1, B-2, B-3, B-5, B-6)
- B. エリートの経済・政治系の社会人と大学生：A-2, A-3, C-1 (B-1の一部, B-5, C-2)
- C. 理科系の大学生と社会人：A-2, A-3の他、受講者の要望に叶う選択体制をとる。
- D. 中学生と理科に縁遠かった社会人：A-2, A-3, C-1 (B-1の一部, B-5)

前述の教育実験のガイドブックが出版された暁には、教育実験の担当者の方には先ずガイドブックの“[I] 必要な予備知識”に目を通していただき、次に、各々の実習の時間に先だって、“[II] 各実験題目の概説とマニュアル”の中から適切な題目を選択し、自ら（あるいは理科クラブの生徒達とともに）予備実験を行っていただきたい。そして、実験参加予定者に適した表現でマニュアルを書き直して配布していただきたい。その時の配布文書は一般的なガイドブック中のものよりもかなり簡略化・平易化され得ると期待される。また、実験終了後の参加者に余裕が感じられるならば、“[III] 関連現象の解説と演習問題”の記述の中から、「一の体験から十の知識を手繰り寄せる」のに適した題目を選んで活用していただきたい。

3. $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターを用いる教育実験— 若干の実験マニュアルと補足説明

利用度が高いか特色があると思われる4項目の実験マニュアルはほぼ全文をここに転載し、他の題目に対しては要点のみを概説するに留める。

3-A. ジェネレーターの作製と ^{68}Ga のミルキング・壊変・生成

ジェネレーターの作製には、カラム充填剤用の

酸化スズ (SnO_2) の合成には放置乾燥を含めると長時間を要するので、クラブ活動など以外では、当方から配布される既製品を用いることにする。なお、この酸化スズの合成には、遠心分離装置と篩のセットがあれば、若干の経験以外には特別の技能は必要としない。既にこの合成法を含む研究は複数回の口頭発表をしてきたが、合成の詳細や注意点については必要ならば筆者らに御相談いただきたい。

3-A-1. ジェネレーターの作成

Figs. 1と2にあるように、このジェネレーターはたんに上記の酸化スズを充填剤とした小型のカラムクロマトグラフィー用セットである。数人一組で一個のジェネレーターを作製する。必要な物品は：

- (a) カラム外壁 --- 1 mLのプラスチック使い捨て注射器
- (b) 充填剤の保持部品 --- 充填剤保持用の多孔質プラスチック板と外径が上記注射器の内径と一致する塩ビ管 (Fig. 1)
- (c) カラムの上下の栓 --- 上側は小さなゴム栓；下側は注射筒出口用プラスチック栓
- (d) 充填剤 --- 0.3 Mの硝酸中で加熱処理後、放置してある酸化スズ (Fig. 1)
- (e) 溶離液注入用具 --- 上記と同じ注射器で、注射筒の内壁にフィットする小型ゴム栓つき注射針が装着済み (Figs 1, 2)
- (f) 点滴式に溶離液を流すセット --- 溶離液溜とコック付きゴム管 (Fig. 2)

(g) 溶離液 — 1 M塩酸

(3-A-1-1) カラムの作製

1 mLのプラスチック使い捨て注射器の上部(0.7~0.8 mLの位置で)を切って除く。充填剤保持用小孔つきプラスチック板からコルクボーラーにより上の注射筒の内径に一致する大きさの円盤をくり抜き (Fig.1) (少し大きな円盤からサンドペーパーで削り込む方がよい)、注射筒内の最下部へ押し付ける。太さがぴったり合う塩ビゴム管(規格品あり)を約3 mmだけ切り取り、これを注射筒に押し込んでプラスチック円板を固定する。

(3-A-1-2) カラムの充填

カラム充填剤の酸化スズは小型バイアル中で希硝酸に浸してある状態で配布されるから、先ず、小型バイアルに移し軽く振ってから放置し傾注法により懸濁している微粒子とともに大部分の硝酸を流し去る。次に、少量の1 Mの塩酸を加えて軽く振り混ぜ、殆どの粒子が沈殿するのを待って、液の大部分を懸濁微粒子とともに除く。この操作を3~5回繰り返す(超微細粒子が残っていると、そこに吸着されていた ^{68}Ge がミルクングの際に ^{68}Ga とともに溶出され、 ^{68}Ge のBreakthroughとして計数される)。

こうして得た酸化スズ粒子を塩酸とともに少量ずつ駒込ピペットに吸い取って注射筒中の円板上に注ぎ込む。0.4~0.5 mLの目盛まで充填剤で満たし、自然落下により塩酸が流出し終わるのを待つ。流出が極めて遅い時は、この注射筒に溶離液注入用注射器を気密状態に接続し、注意しながら空気圧を加えて液を穏やかに流し出す。さらに30~50 mLの溶離液でゆっくり洗浄して、酸化スズ粒子の表面に付着していた超微細粉を成るべく完全に洗い流す。一般にカラムに洗液や溶離液を流す時には、注入用注射器に先ず0.1 mL程の空気を入れてから液を吸い取り、その数滴をカラムに注いでから、注入用の注射針につけてある小型ゴム栓により両注射筒を気密に接続する。それから液をゆっくりと押し込み、さらに液面が吸着剤の上面に達するまで空気を注意深く押し入れる。遅い定常速度で流すには、点滴式セット(Fig. 2)の利用が望ましい。

(3-A-1-3) ^{68}Ge の吸着： $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターの出来上がり

このカラムに $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ 溶液を加える。一般にこの溶液は少量で、マイクロピペットにより採取することが多いが、液性が不明の場合は1M塩酸0.5 mL程度を加えて用いてもよい。上記と同様に自然落下または空気圧により過剰の液を流し、更にカラムに5~10 mLの1 M塩酸をゆっくりと流して洗浄すれば、 ^{68}Ge のみがカラムの上部に吸着されて、ジェネレーターの出来上がりである。この場合、 ^{68}Ga は全量がカラムから洗い流される。だが翌日にカラム中で ^{68}Ge の壊変により生じた ^{68}Ga が集積してきたときに、このジェネレーターカラムに0.5 mL程度の溶離液を

ゆっくり(30秒程度かけて)流せば、 ^{68}Ge は充填剤の上部に吸着されたまま留まり、存在していた ^{68}Ga も可なりカラム中に残存する。すなわち、すでに使用しているジェネレーターの内部で ^{68}Ge の壊変により生じた ^{68}Ga の場合、溶離収率はカラムの状態にも依存するが70%程度の場合が多く、残存部分は溶離液を流し続けても減少しない。このように、原子核の壊変に伴い化学変化が誘起されるのは珍しくなく、Hot atom effectやHot atom chemistryなどの用語もある。

3-A-2. ^{68}Ga のミルクングと半減期測定

前回のミルクングから4時間以上経過した $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターから ^{68}Ga をミルクングし、その壊変を測定し、半減期を求める。さらに、 ^{68}Ga の壊変速度は一般の化学反応速度のように温度に依存するかどうかを調べてみるのも容易である(実験法の記述は省略する)。数組が同時に実験することができる。各組に必要な放射能強度は5 kBqの ^{68}Ge が放射平衡に達しているジェネレーターから得られる ^{68}Ga で十分である。測定に用いる容器で ^{68}Ga の溶離液を捕集するのが便利であるが、用いる測定器により適した捕集容器も一般に異なる。

装置：放射線測定器

器具：溶離液用注射器；溶離液捕集容器。

(3-A-2-1) ミルクング、放射能測定用試料の作製

溶離液を加えるための注射器に、先ず空気を約0.1 mL入れ、次に1 M塩酸を0.5 mL吸い込む。この注射器を上記のようにジェネレーターに接続し、20~30秒かけて ^{68}Ga を溶出させる(ミルクングする)。

放射能測定に井戸型シンチレーターを用いる時は、 ^{68}Ga の溶出液は試験管に捕集し、井戸は一般に上方を向いているので、そこへ試験管をそのまま入れて消滅放射線を測定する。他の検出器を用いる時は、測定試料は一般にその下方に置くので、 ^{68}Ga の溶出液は市販の小型放射能測定用試料皿に捕集し、放出される1.9 MeVの β^+ の一部が遠方へ飛び去るのを防ぐため、試料皿の上に3 mm厚のアルミニウム板、または1 mm厚の鉄または銅板等をかぶせて、全ての β^+ を消滅放射線に変換させて測定する。

単チャンネルの波高分析器付きのシンチレーションカウンターだけについて、測定条件の設定法を簡単に述べる。設定対象は多くの場合、測定器の電子回路格納箱に次のように英語名で標示されている：(1)High Voltage；(2)Course Gain；(3)Fine Gain；(4)Lower Level と Upper Level または E と ΔE 。ここで、(1)は光電子増倍管の印加電圧で、(2)と(3)は比例増幅装置の増幅度を示し、これら三者に依存して、シンチレーター中で失われた γ 線のエネルギーに対する最終増幅後の Pulse 電圧の大きさが定まる。(4)は単チャンネル波高分析器で選別・計数する Pulse 電圧の大きさの範囲が Upper Level と Lower Level の間か、または E と $E + \Delta E$ の間にあることを示している。これ等の適切な設定は、扱っている γ 線のエネルギー等にも依存するが、先ず E と ΔE とを適当（例えば $E=300$, $E=150$ ）に定め、(2)と(3)の値を少しずつ変化させて計数率が極大になるように設定する。その他に、測定時間設定機能が付いている測定器も多い。

(3-A-2-2) ^{68}Ga の壊変の測定

数組で一つの測定器を共用する。試料を測定位置に置いて測定を開始する。測定時間は初期には1分に設定する。測定開始ボタンを押し、その時間を記録する（または、ストップウォッチを起動させる）。一つの測定器を複数の組で使用するのが普通であるが、測定器を遊ばせている時間を減らすようにして結果の信頼度の上昇につとめる。測定は回数が増すにつれて各回の時間を長くしてもよいが、少なくとも100分程度は壊変を追い、可能なら自動記録装置を用いたりして、更に放射能の減衰を追い続けるのが望ましい。また、自然計数 (Background) を時々測定しておき、全員で用いる。測定後の試料は廃棄せずに置けば、翌日以降に ^{68}Ge の Breakthrough の測定に用いることができる。

(3-A-2-3) データー処理

先ず、片対数グラフ用紙 (Semi-logarithm Paper) に慣れよう。片対数グラフ用紙とは、横軸は普通が目盛(x)で縦軸が常用対数目盛 ($\log y$) のグラフ用紙である。そこで、普通の (真数の) グラフ用紙での直線は $y = ax + b$ で表されるが、片対数グラフ用紙上の直線は $\log y = Ax + B$ (a, b,

A, B は常数) となる。対数関数である $\log y = Ax + B$ は、 $y = 10^{(Ax+B)} = 10^B \times 10^{Ax}$ のように指数関数に書き換えることもできる。Figs. 3 ~ 6 に、真数・指数・対数の各々の最も簡単な関数を、真数グラフと片対数グラフの両方で示す。片対数グラフは、

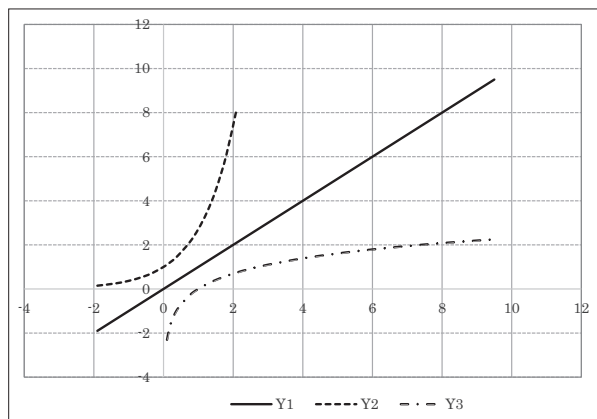


Fig. 3 Real number graph for $Y_1 = X$, $Y_2 = e^X$ and $Y_3 = \ln X$.

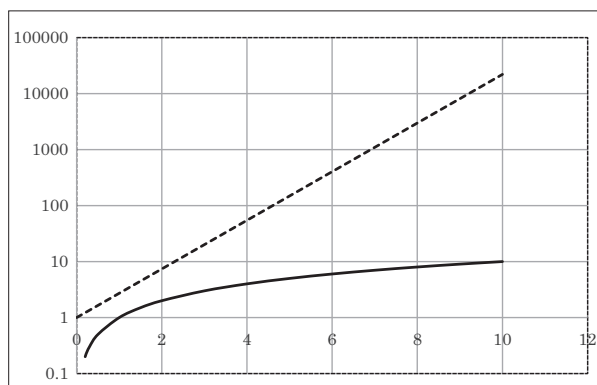


Fig. 4 Semi-logarithm graph for $Y = X$ (—) and $Y = e^X$ (-----).

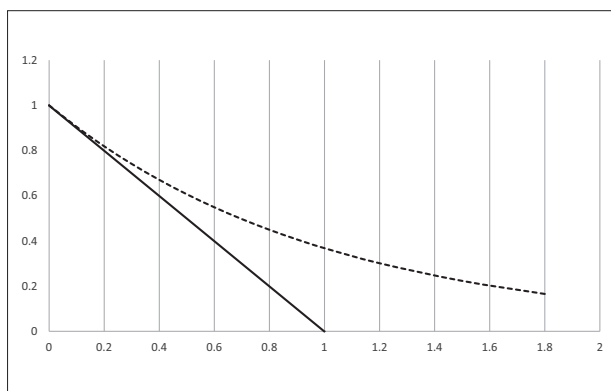


Fig. 5 Decrease from 1 to zero on real number graph for $Y_1 = X$ (—) and $Y_2 = e^{-X}$ (-----)

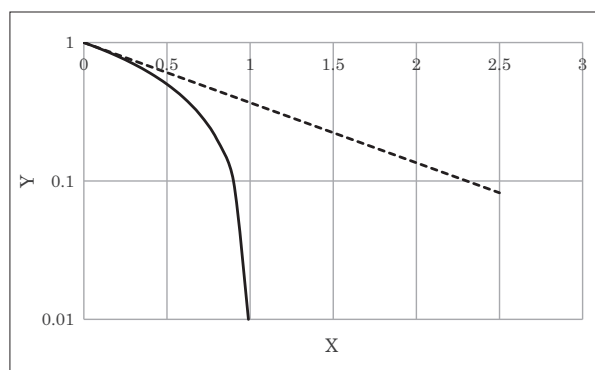


Fig. 6 Decrease from 1 to zero on semi-logarithm graph for $Y_1 = X$ (—) and $Y_2 = e^{-X}$ (-----)

数桁に跨る分布や現象を記述・表現するときに広く用いられている。普通はA4版で縦軸が4桁の用紙が多く用いられるが、今の実験には2桁のもの（市販品はある）が望ましい。

次に、壊変曲線（Decay Curve）を描き半減期を求める。片対数グラフ用紙の横軸（X軸）に測定開始からその回の測定時間の中心までの経過時間を、縦軸に計数率（自然計数を差し引いた値）をとってグラフを描く。直線が得られるであろうが、その直線上で縦軸の値が1/2に減少するまでに経過する時間（横軸の値）、すなわち半減期を読み取れ。

さらに、結果の比較と信頼性の考察をおこなう。まず、求めた半減期を、他のグループが得た値や文献値（67.7 min）と比較せよ。次のような種々の誤差の原因が存在する：(a) RIの壊変数（Bq）自身に内在する不確定性；(b)放射線測定器の時間分解能に基づく数え落とし；(c)測定器の共用のため、毎回の測定での試料位置の微差。このうち(a)に関しては、一般に放射性原子のように環境には一切依存せず一定の確率で変化していく場合、一定数の原子の壊変を無限回繰り返して測定した平均値がN cpm (counts per minute) ならば、同じ試料の1回の測定結果が $N \pm N^{1/2}$ の領域内にくる確率は約2/3となる。この $N^{1/2}$ を標準誤差という。この種の誤差は自然計数の様な原因の確定されないような計数にも適用される場合が多い。そこで、計数値が少ない場合、特にそれら相互間の差を求める場合には最終結果における相対誤差が大きくなることに注意すべきである。また(b)は、どんな測定器でも、殆ど同時に入射した

2個の放射線を別々に合計2個と計数するには、入射間隔が装置特有の不感時間（Dead Time）以上なければならず、それ以内なら1個と計数するかまたは全く計数されない。単チャンネル波高分析器付きシンチレーション計数装置の場合、一般に約 5×10^4 cpm 以上になると数え落としが観測されだし、 2×10^5 cpm 以上では試料の位置や量などの変更等の適当な対策が必要となる。GM計数管の不感時間はシンチレーション計数器より一般に一桁余り大きい。

上の片対数用紙に書き込んだ壊変曲線上の測定点に、縦バーとして標準誤差を描きこめ。ここで、測定時間をt、総計数（自然計数は除く）をNとすると、計数率は N/t で標準誤差は $(N^{1/2})/t$ となる。

Excelでも、測定値を片対数グラフとすることもできる。GoogleやYahooで「指数関数グラフの作成法」などと質問すればよい。

(3-A-2-a1) RIの壊変の法則 — 指数関数壊変

全てのRI（Radio-isotope）の原子は不安定で、常に固有の確率で壊変（Disintegration；崩壊，Decayともいう）して他の核種に変わる。この壊変という核反応の確率（＝壊変定数）はRI試料の温度、圧力、共存物、化学状態といった内的・外的状態に一切依存せず一定である。これは、原子核反応のQ値（吸発熱量）は化学反応の ΔH （エンタルピー）と比べて多くの場合は絶対値で 10^6 倍程大きい事実に起因している。いま、N原子の任意のRI核種（例えば ^{68}Ga ）の壊変は、壊変定数を λ 、経過時間をtとすると、次の法則に従って進行する：

$$dN/dt = -\lambda N \quad (1)$$

この微分方程式は、

$$dN/N = -\lambda dt ; \int dN/N = -\int \lambda dt ; \ln N = -\lambda t + C$$

(Cは積分定数) という変形を経て、

$$N = \exp[-\lambda t + C] = K \exp[-\lambda t] \quad (Kは定数)$$

となり、 $t = 0$ の時（測定開始時）のNを N_0 とすると、

$$N = N_0 \exp[-\lambda t] \quad (2)$$

となる。

式2は、RIの原子数は指数減少（指数壊変、

Exponential Decay) していくことを示す。半分
に減少するに要する時間を半減期 (Half-life) と
いい、一般に T で表す。式 2 から、

$$N_0/2 = N_0 \exp[-\lambda T] \text{ となるから、} \ln(1/2) = -\lambda T \text{ となり、したがって、}$$

$$\lambda T = \ln 2 = 0.693 \quad (3)$$

となる。そこで、RI の壊変定数と半減期は反比例し、両者の積は $\ln 2 (= 0.693)$ である。

(3-A-2-a2) 解説: 対数 - 真数 - 指数; 等比級数と等差級数

戦後の昭和時代の多くの学生は、計算尺を使い麻雀で遊んだものだ。それは、自然のうちに対数 - 真数 - 指数関係を身に着けるチャンスでもあった筈だ。RI の壊変は指数関数減少 (= 等比級数減少) であり、放射能強度の時間変化は $\exp[\alpha t]$ で表すと α が負で、時間軸を反転させれば指数関数増加となる。原爆の爆発や原子炉の暴走は核分裂連鎖反応の指数関数増加であり α は正で、原子炉の定常運転では $\alpha = 0$ となる。金利も経済成長率も指数関数で表されるが、政治・経済のエリート達の勉強道具としても、RI ジェネレーターの有効活用をお願いしたいと考えている。なお、これ等の項目の基本的理解のために下に並べた演習問題を是非手掛けていただきたい。

その前に、次の二つの指数関数増加の数値例は、誰にとっても覚えていれば得はあっても損はないと思われる: “年率 7.0 % の増加で、10 年後に約 2 倍 ($1.07^{10} \doteq 2.0$) に、毎年 2 倍になると 10 年後に約 1000 倍 ($2^{10} = 1024$) になる。” 演習問題 5 でも用いる。

演習問題

- 半減期の次の倍数だけ時間が経過すると、放射能は初めの何パーセントまたは何 ppm に減衰するか: 2, 4, 7, 10, 15, 20, 30。
- ^{68}Ge (半減期 271 日) と ^{68}Ga (半減期 67.7 min) がそれぞれ 1 % だけ減衰するにはどれだけの時間がかかるか。
(これらの結果を、このジェネレーターを用いる人達は暗記しておくべきである。)
- ^{68}Ga は次の時間の経過によりどれだけ (何 % または何 ppm) に減衰するか: 5, 10, 30 分; 1, 2,

3, 4, 8, 12, 20, 24 時間

先ずあてづっぽうに (直観的に) 答え、つぎに計算せよ。---- このような指数関数変化に対しては、直観は一般に長時間後の変化を過小評価する傾向が強いようだ。

- 源 頼朝は 1199 年に他界した。北條政子が香典を年利 7.0 % の複利 (税・手数料なし) で預けていたら、預金総額の元金に対する倍率が最近乗り越えた筈の重要な自然科学の定数は何か。また、Big Bang の頃 (約 140 億年前) から 7% の単利で預金して利子をタンス預金にしていたら、元利合計で何倍になっている筈か。
- 全世界の GDP が年率 3.5 % の成長を続けると、20, 60, 100 年後は何倍になるか暗算で求めよ。(ヒント: $2 \times 3.5 = 7$)。もし 100 年間強引に続けると、地球や人類はどうなるだろうか推測せよ。
- 中国の GDP の前年度に対する増加率は、2014 年は 8.0 % で 2015 年は 7.5 % に減少したといわれている。しかし、(増加率でなく) 増加額は 2015 年も僅かながら上昇していたことを、数値計算で示せ。
- 指数関数増大または減少によって示される自然現象や近似できる社会現象合計 4 種を列挙せよ。(できれば微分方程式を作って解け)。

解答

- $y = (1/2)^X = 0.5^X$ の計算なので、Excel なら一挙にできるが、一桁の X には暗算も試みるのがよからう。
25 %, 6.25 %, 0.781 %, 977 ppm, 30.5 ppm, 0.95 ppm, $9.3 \cdot 10^4$ ppm = 0.93 ppb
- $N = N_0 \exp[-\lambda t]$, $\lambda T = \ln 2 = 0.693$, $N = 0.99 N_0$, T も既知。
そこで: $0.99 = \exp[-0.693 t/T]$ をへて、 $t = -[(\ln 0.99)/0.693] T = 1.45 \cdot 10^{-2} T$ となる。
また、値が 1 付近の場合の近似式、 $\exp[x] = 1 + x$ を用いてもよい。

[答]

- ^{68}Ge : (T = 271 日) 3.93 日 4 日で約 1 % 減衰
 ^{68}Ga (T = 67.7 分) 0.982 分 1 分で約 1 % 減衰
- 計算は Excel を使って簡単にできるが、後にある文章は問 4,5,6 と関係があり大勢の方々

の解答の集積結果に大変興味もたれる。

4. 利率7%の複利預金は、 x 年後には 1.07^x 倍になる。Table 4にこの倍率の200年ごとの増加を示す。歴史に興味を持つ方は、これらの西暦年の世界の情勢を思い浮かべていただくのも面白いかもしれない。

答：Avogadro 数 (6.024×10^{23})；約10億 (1×10^9) 倍

Table 4. Exponential increase as exemplified by compound interest.

| Interest: 7.00 %/year | | |
|-----------------------|----------------|----------------------|
| A.D. year | Deposit time/y | Total sum |
| 1200 | 0 | 1.000 |
| 1400 | 200 | 7.5×10^5 |
| 1600 | 400 | 5.7×10^{11} |
| 1800 | 600 | 4.3×10^{17} |
| 2000 | 800 | 3.2×10^{23} |
| 2200 | 1000 | 2.4×10^{29} |

5. 答：約2, 8, 32倍；まったく恐ろしい方向へ世界は向っているのではないか？ 基礎自然科学の最も重要な意義は、「人々が今後どのような生き方をすべきかを考えるときの基本となるような、自然に関するなるべく広範な知見を正確に伝える」ことではなからうか。
6. 2013年のGDPをAとすると、2014年は8.0%すなわち $0.080A$ だけ増加して $1.080A$ となった。2015年の増加額は $1.080A \times 0.075 = 0.081A$ となるから、 $0.001A$ だけ14年より多い。
7. RIの減衰、原子炉の暴走、原子爆弾の爆発過程、貯金や借金の金利、CLR電子回路の各位置における電圧、微生物の増殖過程における個体数、伝染病の蔓延初期における患者数、ネズミなどの繁殖、口コミ情報の伝搬速度（人/日単位）

3-A-3. ミルキング後のジェネレーター中における娘核種の生成

$^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ジェネレーターの特性が特に有効に活用できる実験として、ミルキング直後のジェネレーター中に娘核種が湧くように生成してきて永

続平衡に到達する過程を観察する。このジェネレーターからは、まさに打出の小槌のように、適当な時間をおいて何回でも繰り返して娘核種が無担体にミルキングできることが実感される。

さらに、高校の理科クラブや理系大学生相当以上の方は、この打出の小槌とともに微分方程式を楽しんでみよう。そのために放射平衡（先ず永続平衡）の成立していく過程を表現する数式を、微分方程式を用いて導き出そう。それから、この数式の計算値をグラフ用紙上に書いておいて、実測値がその上に乗って伸びていくのを実感しよう。このような一定値に収斂していく過程を記述するには、グラフ用紙は真数の方が片対数より適している場合が多い。

3-A-3-1. 溶離後のジェネレーター中における ^{68}Ga の生成の観測 — 準備と練習実験

不透明な真数方眼紙1枚と目盛りは全く同じだが半透明の方眼紙を2枚用意する。全ての方眼紙に共通に、なるべく全面を使うように配慮しながら、横軸（X軸）に ^{68}Ga を溶出させてからの経過時間として0分から200ないし300分までの目盛りをつけ、縦軸（Y軸）に ^{68}Ga の存在率を表す0%から100%までの目盛りをつける。そして、ミルキング後一日以上経過して放射平衡が成立しているジェネレーターを再現性の良い位置において ^{68}Ga を丁寧に計数し（K cpmとする）、100%のところをKになるように割り振った二番目の真数目盛りを縦軸に記入しておく。そして、不透明な方眼紙に次の式で示される曲線を描きこむ：

$$Y = K \{1 - \exp[-\lambda_n t]\} = K \{1 - \exp[0.693 t / 67.7]\} \text{ (cpm)} \quad (4)$$

ここで、 λ_n は ^{68}Ga の壊変定数、 t は分単位の時間で、 K は ^{68}Ga の飽和放射能（放射平衡に達した時の放射能）である。

先ず練習実験として、1 M 塩酸を約3 mL流して溶離可能な ^{68}Ga を洗い落した直後のジェネレーターを計数効率が成るべくよい位置に手早くおき、計数を開始する。1分測定と1分休止のサイクルを10回程度繰り返し、塩酸を流し終えた時刻から各計数の中心時刻までの経過時間と計数率との関係のプロットを一方の半透明方眼紙に描

きこむ。それから、このプロットを結ぶ曲線を時間0まで外挿し、上の不透明方眼紙に重ね、両方眼紙上の曲線が成るべく同じ位置に来るように透明方眼紙をX軸が重なったまま右方へ滑り動かす。ここまでくれば、ミルクキングで溶出されずにカラムに残存した ^{68}Ga の量(cpmおよび%単位)を求め、また、単独に存在する ^{68}Ge からこれだけの ^{68}Ga が生成・集積してくるには何分かかるかをグラフから求めるのは、誰にでも容易であろう。

3-A-3-1a 永続平衡の微分方程式による取り扱い

親核種 ^{68}Ge は1%壊変するのに約4日かかるから、今扱っている時間中では親核種の原子数 M も放射能 $\lambda_m M$ (Bq)も一定(定数 K ; ^{68}Ga の飽和放射能も同じ)として精度良く近似することができる(λ_m は ^{68}Ge の壊変定数)。この条件下で、娘核種 ^{68}Ga の原子数と壊変定数とを N と λ_n とし、時間を t として、微分方程式を立てて解こう。

$$dN/dt = \lambda_m M - \lambda_n N = K - \lambda_n N \quad (5)$$

$$dN/(K - \lambda_n N) = dt$$

$$\ln(K - \lambda_n N) = -\lambda_n (t + t_0) \quad (t_0 \text{ は積分定数})$$

$$K - \lambda_n N = \exp[-\lambda_n (t + t_0)]$$

$$= \exp(-\lambda_n t) \cdot \exp(-\lambda_n t_0)$$

$$\lambda_n N = K - \exp(-\lambda_n t) \cdot \exp(-\lambda_n t_0) \quad (6)$$

初期条件が $t = 0$ のとき $N = 0$ (娘を含まぬ親から始めた)ならば、

$$K = \exp(-\lambda_n t_0) \text{ なので、}$$

$$\lambda_n N = K[1 - \exp(-\lambda_n t)] \quad (7)$$

初期条件が $t = 0$ の時 $N = N_0$ (N_0 原子の娘が存在していた)ならば、

$$K - \lambda_n N_0 = \exp(-\lambda_n t_0) \text{ なので式6から、}$$

$$\begin{aligned} \lambda_n N &= K - (K - \lambda_n N_0) \exp(-\lambda_n t) \\ &= K [1 - \exp(-\lambda_n t)] + \lambda_n N_0 \exp(-\lambda_n t) \end{aligned} \quad (8)$$

Fig. 7のグラフと上記の諸式との対応を考えながら、以下の文章の意味を完全に理解するように努めるのが有意義と思われる。式5は、“時間 dt 中における娘核種の原子数の増減は、親核種の壊変により生成してくる原子数と自らの壊変で消失していく原子数との差である”ことを意味してい

Decay and Growth of ^{68}Ga after Milking

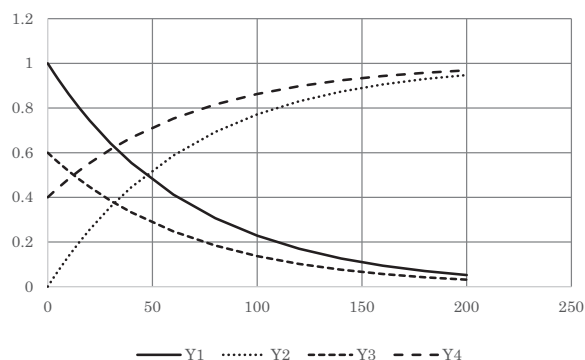


Fig. 7 Decay and growth curves of ^{68}Ga after milking, Y1, Decay after 100% milking; Y2, Growth after 100% milking; Y3, Decay after 60% milking; Y4, Growth after 60% milking.

る。積分定数の t_0 は、この測定をどの時点から始めるかによって定まる。娘核種がミルクキングで完全には溶出されずに $N = N_0$ だけ残存した場合が式8となる。この右辺の前半、 $K[1 - \exp(-\lambda_n t)]$ 、はまさに単独に存在する親核種からの娘核種の生成を表す式2であり、後半の $\lambda_n N_0 \exp(-\lambda_n t)$ はミルクキングされずに残存していた娘核種の放射能の減衰を示す。式8はまた、外部からの添加により娘核種の総原子数が N_0 となった系でも成立する。当然のことながら、この N_0 原子の運命とこの系内の他の原子の壊変には、相互の影響は全くない。一方、ミルクキング収率のような化学反応も関与する現象の結果は、前述のように、着目する原子の由来にも明確に影響される場合が多い。

3-A-3-2. ジェネレーター中における ^{68}Ga 放射能の増減の観察

先ず、上の実験での観察をもう少し完璧にやってみよう。 ^{68}Ga を流し去ったジェネレーターを測定の位置に置くまでは上と同じであるが、放射能測定は当初は1分測定10秒休止とし、時間がたつに従い測定時間を長くしていく。測定器が遊んでいる時間を減らして結果の信頼度の向上に努める。測定値を半透明方眼紙にプロットし、数点取れた段階で上記と同じようにこの方眼紙を不透明方眼紙上を右にずらして、両方眼紙上の曲線がなるべくよく一致するように置く。次の測定の結果を予測しながら、この測定を少なくとも2時間

継続し、さらに丸一日以上たった段階で飽和放射能の確認測定をする。

[簡単な問題] 二個の放射平衡にあるジェネレーター的一方から ^{68}Ga を少量の溶離液中に溶出させて他方のジェネレーターに加えた。このジェネレーター中の ^{68}Ga の総量の時間変化はどうか？

答：RI の壊変は環境には何ら影響されない。したがって、ジェネレーター中に元から放射平衡になっていた ^{68}Ga の量はそのまま保持され、(それにプラスされる) あとから加えた量だけの ^{68}Ga が指数関数減少していく。

3-A-3-a1. 線型一階微分方程式

上記の放射平衡の生成過程の微分方程式 (5) では、“親核種の寿命が充分長くて実験時間中の減衰は無視できる”として簡略化し、永続平衡としての計算を行った ($\lambda_m M = K$)。しかし、親核種も全て $M = M_0 \exp[-\lambda t]$ に従って壊変していくので、実験中 (または関心の対象となる期間中) における親核種の減衰が問題になる場合を過渡平衡と呼ぶ。過渡平衡では出発点としての式 (5) は次の形になる：

$$dN/dt = \lambda_m M_0 \exp[-\lambda_m t] - \lambda_n N \quad (9)$$

これは線型一階微分方程式と呼ばれ、次のような一般的な形式に書かれて、諸現象の基本的解析に先ず用いられる型でもある。

$$dy/dx + P(x)y = Q(x) \quad (10)$$

線型一階微分方程式は、変数分離法では解けないが、(11) 式で示される一般解の公式により大した困難なく解が得られる場合もある。

$$y = \exp[-\int P(x)dx] \cdot \int \exp[\int P(x)dx] \cdot Q(x) dx + C \exp[-\int P(x)dx] \quad (C \text{ は積分定数}) \quad (11)$$

微分方程式は数学の一部で、理科とは直結していない難解なものであるような気がしている人も少なくないようだ。しかし、とくに速度の関与する自然現象を解析し、また、社会現象を近似的に定量化するには、微分方程式は不可欠である。そして、数式が現実は何を意味しているかの理解に努めながら、自然現象を微分方程式により表現し

て追跡していくのは、実験科学の最も興味を誘う一面とも言えよう。今おこなっている RI 打出の小槌の実験は大変簡単に結果が出るので、楽しみながらいろいろと微分方程式を操るのに絶好の例であろう。例えば、上の実験で種々の非平衡状態にあるジェネレーターに別のジェネレーターからミルキングしてきた ^{68}Ga を加えた場合、その後にジェネレーター中に存在するであろう ^{68}Ga の放射能強度について、先ず計算結果から予言し、次にそれを実験で確かめてみるのも面白かろう。また、エレクトロニクスに興味を持つ方々にとっては、永続平衡や過渡平衡に対する等価電子回路を手に入れ、これも同時に操って楽しむのも益々有効な勉強手段となるであろう。

3-B. ^{68}Ga のトレーサー利用

ガリウムは土類金属で周期律表ではアルミニウムのすぐ下に位置する両性元素で、ガリウム化合物の多くは酸性・アルカリ性の両方の水溶液に可溶だが、中性では水酸化物等として沈殿する。また、クエン酸をはじめ種々の錯化剤と反応して水溶性の錯化合物を形成する。すでに述べたように ^{68}Ga は無担体に純粋に得られるので、放出する陽電子の消滅放射線の測定により、極微量・超低濃度のガリウムの挙動を追跡する種々のトレーサー実験が可能となる。

問題 1. 100 kBq の ^{68}Ga はガリウム原子のどれだけからなるか。個数、モル数、質量、で答えよ。また、計数効率が 10 % の測定器で 1 cps (Count per Second) の計数率を与える ^{68}Ga は何グラムか。

解答

$$\lambda = \ln 2/T = 0.693/(67.7 \times 60) = 1.706 \times 10^{-4} (\text{Bq/atom})$$

$$1 \text{ Bq の原子数は : } 1/(1.706 \times 10^{-4}) = 5.86 \times 10^3$$

$$100 \text{ KBq では : } 5.9 \times 10^8 \text{ atoms; } 9.7 \times 10^{-16} \text{ mol; } 6.6 \times 10^{-14} \text{ g}$$

$$10 \% \text{ で } 1 \text{ cps は } 10 \text{ Bq なので、} 6.6 \times 10^{-18} \text{ g}$$

3-B-1. 無単体 ^{68}Ga の吸着

無担体 ^{68}Ga の吸着・脱着の pH 依存性を先ず測定し、つぎに錯化剤を加えたときの影響を調べる。吸着の実験は、吸着体の種類や接触表面積、接触時間、液の成分や温度等、一定に保ち難い多種の条件に左右される場合が多く、さらに、接触

するすべての容器・器具の内壁への吸着が避けられない。したがって、吸着率を再現性の良い数値として求めるのは一般に容易でない。だが吸着は日常遭遇する諸現象にも関与している場合が多く、定性的にでも明確な傾向を観察できれば、その経験は十分な価値がある。液体の量は普通ピペットやメスシリンダーにより量るが、この種のRI実験では最下目盛りが10 mgの桁の上皿電子天秤（自動天秤）を用いる方が高効率である。RIを使用する実験では一般に予備実験が必要であり、今回の実験でも、pHの測定および設定の予備テストが不可欠である。なお、溶液中の溶質Aが物体Bの表面に吸着されるとき、Aを吸着質(Adsorbate)Bを吸着剤または吸着体(Adsorbent)という。

実験3-B-4-1. 無担体⁶⁸Gaの吸着と脱着のpH依存性

吸着体としては、セルローズ製品（紙、綿布、セルローズ粉末等）、粉末状ガラス、石英、アルミナや、各種のプラスチック等が皆適している。数グループが同時に実験を行う場合は各グループで異なった試料を用いてみるのもよからう。ここでは、実験用試薬として市販されている“セルローズ粉末を吸着剤とする。放射能測定には井戸型シンチレーターを用いる場合を記述するが、計数効率の再現性にさえ注意すれば大抵の測定器が使用可能である。溶液のpHとして1.5, 4.0, 6.0, 8.0, 10.5の5点を選ぶこととし、各pH溶液の簡単な調整方の一例をインターネット（Wikipedia, 酢酸pH緩衝液）からTable 5に転記する。pHの測定にはpHメーターまたは変色指示薬を用いる。

[実験手引き：吸着の測定]

ミルキングで得た5万～10万cpmの無担体⁶⁸Gaを含む1 M塩酸（約0.5 mL）を水で約5 mLに希釈してから5分割して5本の試験管に入れ、各試験管内の放射能を測定する。次に各々の試験

Table 5. Buffer solutions for pH setting in experiments of adsorption and solvent extraction

| pH | Main buffer solution | pH setting | Auxiliary |
|------|---|------------|------------|
| 1.5 | Nothing | HCl 0.2 M | NaOH 0.2 M |
| 4.0 | NH ₄ AcO 1 M, 0.3 mL | HCl 0.2 M | NaOH 0.2 M |
| 6.0 | NH ₄ AcO 1 M, 0.3 mL | NaOH 0.2 M | AcOH 0.2 M |
| 8.0 | NaAcO 1 M, 0.3 mL | NaOH 0.2 M | AcOH 0.2 M |
| 10.5 | Na ₂ CO ₃ 0.5 M, 0.3 mL | NaOH 0.2 M | AcOH 0.2 M |
| 12.0 | Na ₂ CO ₃ 1 M, 0.3 mL | NaOH 0.2 M | AcOH 0.2 M |

管に水を約3 mL加えてから、pHを目的の値に調整し、更に水を足して液量を5 mLにする。この試験管に吸着剤としてセルローズ粉末50 mgを加え、栓をして1分間振る。簡略化実験としては、試験管中の上澄み液1～1.5 mLを吸い取ってその放射能を測定し、溶液の全体と最後の放射能測定に用いた部分の放射能強度と量（体積でも質量でもよい）から吸着体の吸着率を求める（試験管の内壁等への吸着分が無視されている）。より厳密な結果を望む場合は、吸着剤を液から濾過分離して両者の放射能を測定し、さらに使用した容器などの内壁に吸着されている⁶⁸Gaを希塩酸で丁寧に洗い出して放射能を測定する。濾過分離にはガラスフィルターを用いるのが望ましいが、濾紙を通しての重力濾過でもよい。いずれの場合も吸着材をそのpHの溶液少量で洗う必要がある。

結果を、pHを横軸にとり、縦軸に(1)全吸着率と溶液残存率、または(2)吸着剤の吸着率、実験用具壁の吸着率、並びに溶液中の残存率を百分率で示せ。

Fig. 8に各々のpHの⁶⁸Gaの溶液を4Aの沷紙をゆっくりと通過させたときの吸着率を示す。この曲線は上の実験で求めた沷紙粉末（単位質量当たりの表面積が大きい）への吸着曲線と傾向は一致しているが、後者の方がよりシャープに上下しているのではないだろうか？

[実験手引き：脱着（溶出）の測定] 上記のセルローズ粉末と1 M塩酸5 mLとを栓付の試験管中で時々振り混ぜながら約3分間置く。上澄みをと

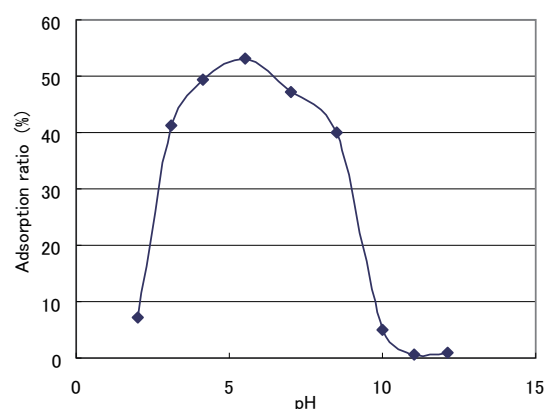


Fig. 8 Dependence on pH in the adsorption of carrier-free ⁶⁸Ga on filter paper 4A.

るか、または粉末を濾過捕集して、放射能を測定して脱着率を求めよ。

実験 3-B-1-2. 錯化剤の存在が ^{68}Ga の吸着に及ぼす影響

金属イオンの錯化剤として最もよく知られている EDTA (Ethylenediamine-tetraacetic Acid) と、ガリウムイオンの中性における沈殿を防止するためによく用いられるクエン酸 (Citric Acid) を加えてみよう。この2種の錯化剤の分子式を Fig. 9 に示す。

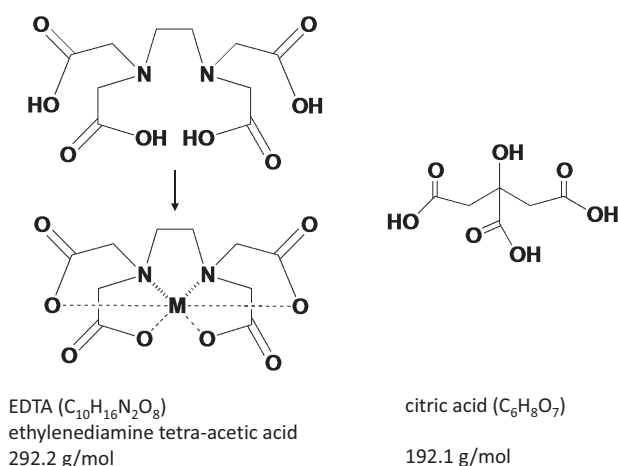


Fig. 9 EDTA and citric acid

[実験手引き：錯化剤の影響の観察] 無担体 ^{68}Ga の 1 M 塩酸溶液の約 1 mL に約 0.1 M の EDTA またはクエン酸 (またはそれらのナトリウム塩) 溶液約 1 mL を加えてから、上記と同様な操作により pH 1.5 付近と 6 付近に調整した2種の溶液を作成する。これらの溶液中の ^{68}Ga の吸着を、上記と同じ操作で測定する。結果を錯化剤のない場合と比較せよ。

4. 他の実験項目の概説

4-A-4. ^{68}Ge の漏洩率 (Breakthrough)

^{68}Ge の Breakthrough は、ミルキング後 24 時間以上経過して溶離された ^{68}Ga が 1 ppm 以下に減衰した時点で、存在する ^{68}Ga を測定すれば正確に求められる。十分注意して作成したジェネレーターでは Breakthrough は 100 ppm 以下になるが、酸化スズ (IV) からの微細粒子の洗い出しが不十分であったり使用方法や保存法が不適切で

あったりすると、この値を超える。前にも述べたがミルキング収率は 70 % 台を保てれば良とすべきである。ジェネレーターでは、“最良の保守手段は頻繁にミルキングすること”といえる。

4-B-1. ^{68}Ga の共沈と溶媒抽出。 4-B-2. イオン交換とクロマトグラフィー

ミルキングで得た無担体 ^{68}Ga をオキシ化合物として中性水溶液からクロロフォルムへ抽出するには、 ^{68}Ga の酸性水溶液に先ずオキシを加えてから中和して抽出すべきで、先に中和すると ^{68}Ga は器壁へ吸着されて抽出が甚だ不完全となることを知る。

また、無担体分離の例として、 ^{68}Ga の水酸化鉄 (III) との共沈分離は大変有効な方法であることを知る。さらに共沈物を濾過捕集し、塩酸に溶解し、亜硫酸ナトリウムとヨウ化カリウムなどの還元剤で鉄を 2 価に還元してから、陰イオン交換樹脂カラムを通して両者を分離することができる。

有毒薬品注意!! クロロフォルムは揮発性と毒性がある。今回の実験のごく少量を短時間扱うだけなら全く問題はないが、有機溶媒の中には様々な程度の毒性を有するものがあることは覚えておくべきである。今回は揮発性が実験誤差の一因になる恐れもあるので、必要時以外は容器の栓を忘れず、また自らの体温で加熱することのないよう注意すべきである。適性は若干劣るが、クロロフォルムの代わりにトルエンを用いる方法もある。

関連事項の挿入

1. 放射能と分析化学

第二次大戦後、原爆や原発で遭遇する多量・多量・高線量の RI の分離が世界的に重要課題となった時期もあったが、敗戦国日本では戦勝国が行った大気圏内核実験で生じた放射性降下物や温泉中の放射能の分析をおこなっていた。このような放射性物質自身の分析と同時に、RI とくに γ 線や陽電子放出体をトレーサーとして用いて、種々の分析操作過程における各元素の挙動を追跡する手法は、既存の分析法とくに湿式法の進歩に大きく貢献した。すなわち、放射性混合物の分析と放射性トレーサーの分析化学利用とは二人三脚

関係で進歩した。とくに、微量分析にこの傾向が強い。現在は機器分析の重要度が増しているが、この場合も試料から目的成分を取り出して濃縮し分析機器が受け入れられる状態にするには、やはり職人的化学手作業が不可欠な場合も少なくない。

2. 差を用いる分離法と比を用いる分離法



この二つのよく知られている化学反応では、溶解度が極端に小さな生成物が定量的に沈殿すると見なされる。だが実際は溶解度が完全にはゼロでなく、常に次の関係が成立する：[沈殿量] = [(生成物総量)] - [溶存量]。すなわち、短寿命の無担体 RI のような極微量物質や極低濃度物質には普通の沈殿法のような“差”に基づく化学分離は適用できない。これに対し、溶媒抽出では分配係数すなわち着目物質の両液相間における濃度の“比”に基づいており、その比の値は各相の濃度にはほとんど依存しないので、極低濃度物質にも適用できる。

共沈の場合は、水酸化鉄による ^{68}Ga を例にとると、水酸化鉄の沈殿と同時に生ずる $^{68}\text{Ga}(\text{OH})_3$ は、単独で沈殿するのでも水相に溶解しているのでもなく、固相に混じり込んで（取り込まれて）くるのである。共沈物中の ^{68}Ga は、主として水酸化鉄の（不完全な）結晶中の Fe^{3+} の位置を $^{68}\text{Ga}^{3+}$ が置換していると考えられる。熱力学の観点からは、“溶液と沈殿（水酸化鉄）との2相間における第三の物質（ ^{68}Ga ）の分配”状態が、Gibbs エネルギーが低い方へ進む現象である。すなわち、(1) Ga^{3+} が何らかの形で水相中に存在するよりは固相に取り込まれた方が、化学結合エネルギーが大きくて安定（エンタルピーが負）となり、(2) 混入してくる物質の濃度依存性のエンタルピー（混合のエンタルピー、Entropy of Mixing, Configurational Entropy）の寄与も、とくに超低濃度では固体中における均一混合が有利となる。

3. 極微量物質・超低濃度物質の挙動と混合のエンタルピー、熱力学第2法則

熱力学第2法則は自然科学の全ての法則のうち

で最も多種類の現象に関与するが、それだけに完全な理解は甚だ難しい。極微量物質・超低濃度物質の挙動の追跡や研究には RI の諸特性が大いに有効に活用できることは既に述べたが、ここでは混合のエンタルピーについて簡単に説明し、この種類の分野における新しい RI 利用実験を考えてみていただくよう読者にも願います。

2種の理想液体、xモルのAと1-xモルのB、の相互溶解で理想溶液Cの1モルを得るときのエンタルピーの増加、すなわち混合のエンタルピー、 ΔS_m は：

$$\Delta S_m = -R \cdot [x \cdot \ln x + (1-x) \cdot \ln(1-x)]$$

(Rは気体定数)

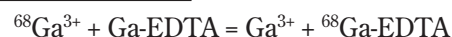
(この式の誘導は、例えばInternetでEntropy of Mixingを索引しWikipediaを見る。)

そこで ΔS_m は常に正で、 $x \ll 1$ のとき特に大きな値となる。一般にエンタルピーや他の種類のエンタルピーでは濃度依存性はそれ程大きくないので、この事実は恒圧下における $\Delta G = -T \cdot \Delta S$ の関係から、極低濃度物質の挙動には混合のエンタルピーが大きく影響することを示す。また、“超高純度物質の精製は、純度の向上とともにますます難しくなる”、または、“完全に純粋な物質の作製は原理的に不可能である”というのも、熱力学第2法則のこの分野における表現型といえる。なお、上記の理想液体A, B, Cとあるのは、任意の純物質A, Bとその混合物Cと書替えても良い。

4. 親しみやすい書物

本稿に関係の深い分野を、十代から社会人までの種々の経歴の読者に適合するように記述してある4冊の書籍を引用文献に挙げておく。^{2~5)} これらの書籍は実験の体験をより確実な知識として根付かせるのに有効で、実験の普及とあいまって一般市民の科学レベルの向上への貢献が期待できよう。なお、同類の書籍は多数出版されており、好きなものを選ぶことができる。

4-B-3. 同位体交換



ガリウムイオンとEDTAは1モル対1モルの水溶性錯体を形成し、 $^{68}\text{Ga}^{3+}$ を加えて一定温度で一定時間おいてから、 $^{68}\text{Ga}^{3+}$ だけをオキシニ抽出

して両相の放射能を測定すれば、同位体交換反応の進行度が知れる。この反応は中性では極めて遅く、アルカリ性や強い酸性で速い。同位体交換反応は熱の出入りは全くなく ($\Delta H = 0$)、混合のエントロピー増加のみが結果として起こる。この増加が極大に達して反応が終焉した（平衡状態に達した）ときでも、しかし、おのおのの原子は同じように動いて交換反応も起こっていることになる。同位体交換反応の進行度の測定には、両化学種を分離して各々の放射能を測定せねばならない。この例ではオキシニによりガリウムイオン ($\text{Ga}^{3+} + {}^{68}\text{Ga}^{3+}$) だけを有機相へ抽出するなどの方法で分離でき、その操作はさほど困難ではない。だが、常に定量的に行うには高度の技術と厳密な条件設定が必要となるので、速度論的解析まで進むのに適しているのは化学関連の参加者だけかも知れない。

4-B-4. 錯体化学。陽電子放射薬剤の合成

${}^{68}\text{Ga}$ を PET 薬剤として用いるための研究は広く行われてきたが、実用化された例は多くない。教育実験のテーマも決定しかねている。

4-B-5. 植物による吸収

この実験項目は順調に実験が進行すれば中高生や一般市民の参加者の興味を十分に満たすと考えられる。無担体 ${}^{68}\text{Ga}$ を中性の希薄クエン酸ナトリウム溶液 0.5 mL 中に溶した状態に得る方法を開発し、そこにススキの根の部分と、根を除去した地上部分だけ、とを浸けて ${}^{68}\text{Ga}$ の取り込みと植物体内移行を on-line 測定することもできた。だが、個々の結果は明快に得られても、植物自身の状態や季節、時刻、温度、湿度、照度、などの環境因子に大きく支配されて再現性に欠け、実験マニュアルを仕上げるまでには更に努力が必要と考えられる。

4-B-6. 汚染と除染, Leak Hunting

${}^{68}\text{Ga}$ は 24 時間後には 1 ppm 以下に減衰し、また、陽電子放出体なので位置や分布の測定がしやすい。この特長を活かした新利用法の開発を目指した教育実験項目を見出すのはさほど困難ではないと思われるが、後回しとなっている。

4-C-1. 種々の物質による消滅放射線の吸収

ジェネレーターを 0.51 MeV の γ 線源として、種々の物質の種々の厚みの板による吸収を測定

する。なお、1 mL の注射筒の代わりに 0.2 mL の糖尿病患者自身がインシュリン注射に用いる注射筒に細かい粉末の酸化スズを入れたジェネレーターも作成でき、その方が γ 線の点線源に近くなる。

4-C-2. 同時計数効率の線源位置依存性

表面を方眼紙で覆ってある台の上に対のシンチレーション検出器を向かい合わせに置く。なるべく点線源に近い消滅放射線源（陽電子のままで飛散しないように注意）に高さがシンチレーターの中心と等しくなるように保持物をつける。線源の位置を方眼紙上で種々変化させ、各位置に対する各検出器の計数率と同時計数率を読み取り方眼紙に描きこみ、更に同時計数率の等高線を描きこめ。次にシンチレーター間の距離を変化させて同様に操作せよ。

4-C-3. 陽電子放出体の低バックグラウンド計数

付近に放射線源がないことを確認し、一对のシンチレーション検出器の距離を 0 cm, 2 cm, 5 cm, 50 cm, 100 cm の距離において自然計数を測定し、各検出器の計数率と同時計数率を求めよ。1 回の測定は 1 時間程度行う必要がある。微弱量の ${}^{68}\text{Ga}$ のような陽電子放出体の信頼できる測定には同時計数法が有利なことが認識できる。

4-C-4. PET の原理と画像解析

PET (Positron Emission Tomography) は核医学で重要な地位を占めており、その原理を RI を用いる実験により万人に理解していただくための簡単な実験用具は作れないであろうか。多くの人が同様なことを考えたが、まだ満足なものはないように思われる。

5. ${}^{68}\text{Ga}$ と ${}^{67}\text{Ga}$ を同時に用いるトレーサー実験

同一元素の 2 種のトレーサー核種の各々を常に一定濃度 (cpm/mL) に保つように加えてある水槽中で動植物を飼育すれば、両核種の半減期の相違に起因して、その元素の生体内の各部位における平均滞在時間を求めることができる。この元素の取り込みと排出の速度を簡単な関数で仮定して線型一階微分方程式を作って解き、その結果を非破壊連続測定で得た各部位における両核種の存在量 (cpm) とその時間変化とを照らし合わせ、この元素の取り込み定数、平均滞在時間、排注定数

が求められる。また、この同一元素の二核種トレーサー法は、生体内における化学反応の速度の研究にも大いに有効と考えられる。ただ、この実験を行うには、両核種の使用許可を持つRI実験室が必要となる。

著者の一人は¹²⁵I (60.2 d) と¹³¹I (8.04 d) とを用いて、採取してきた海水中におけるヨウ素のアオサによる取り込みと体内変化について調べた。⁶⁾当初は調子よく進んだが、10日以上経過するとアオサ自身に明かに変化が認められてきた。植物の育成や植物生理学の実技に明るい協力者が不可欠だと実感した。だが、この2核種トレーサーでその強度比の測定から始める方法から、有用な新知見が得られる可能性は多いと思われる。とくにガリウムでは、両核種とも核医学で人体投与薬剤となり、Table 2からも解るように γ 線測定器で同時に計数することができ、⁶⁷Gaの半減期は78時間と扱い易く入手もし易いRIである。そこで、ガリウムが関与する現象のうち短時間で説明可能なものを採り、この研究方法を適用してみたいと考えている。

6. 安全管理

この教育実験の参加者が受ける放射線被曝(Gy)を、核医学のポピュラーな検査である¹⁸F標識Fluorodeoxy-glucoseを用いるPET検診を受けた時の被曝と比較してみよう。ここで⁶⁸GaをA、¹⁸FをBとすると、A/Bが半減期では0.62、エネルギーでは2.6で、 γ 線はAがわずかに放出するだけである。そこで同じベクレル数のAとBとが体内に取り込まれていた場合、吸収線量率(Gy/s)への寄与におけるA/B比は、最初は3より幾分小さいが、両核種が完全に壊変した時は両者の積算値(Gy)の比で1.5を幾分超える程度と考えられる。放射線障害防止法での下限数量は⁶⁸Geも⁶⁸Gaも100 KBqであり、一般の普及型教育実験はこの範囲内で行はれるべきである。このジェネレーターのミルキング収率は70%前後の場合が多いことは既に述べたが、これを考慮すると“¹⁸Fと同じ放射能(Bq)の⁶⁸Geからミルキングした⁶⁸Gaを体内へ投与した時は、体外排泄の影響を無視すれば、ほとんど同一の被曝(吸収線量/Gy)となる”。

一回のPET診断に投与されるFDGは 1×10^8 Bq程度(a few mCi)なので、これは我々が普及型教育実験に用いようとする⁶⁸Gaの上限量100 kBq(1×10^5 Bq)の1000倍で、さらに我々の実験では線源は体外にあり、注意を払って距離を保ったり遮蔽物を置くこともできる。実験時はモニターを装着すべきだが、おそらく被曝量はND(検出不能)であろう。教育実験に加え、被曝に関する講義は必ず行うべきである。その中で、成人で約4 kBq/人の⁴⁰Kが人体内に存在し誰でもその被曝を一生受け続けることを付け加えるべきである。とにかく、ここに論じているジェネレーターを用いる教育実験では、故意に行わない限り、問題となる程の被曝を受ける可能性は全くない。

最近では感染症の蔓延阻止にワクチンが大いに活躍している。感染症の予防などのために、その抗原の活性部位の働きを弱めるか殺したもので、これを健常者に投与して体内に抗体を作らせて感染を予防する。少量の放射能で足りる小型ジェネレーターを用いる教育実験は、“放射線アレルギーの感染・蔓延”の阻止に大いに有効なワクチンではなかろうか。

有機物、特に有機溶媒の危険性に触れておく。この一連のジェネレーターを用いる実験の中で有機溶媒に深く関与するのは溶媒抽出である。危険性は主として毒性と引火性である。クロロホルムのような有機ハロゲン化合物やベンゼンのような芳香族化合物には毒性のものが有り、体内取り込みはいったん気化して吸入される場合が多い。引火性は低沸点の炭化水素やエーテルなどが強い。詳しい記述はインターネットや公共機関からの出版物にもある。今、ジェネレーターを用いる実験で注意しなければならないのは、“誰でも二種類の要注意物質を同時に扱っているときに事故を起こしやすい”ことである。このジェネレーター実験では、引火性溶媒を使用しなければ、放射能などは特に危険な量ではないことを認識していればよい。

7. 新しい制度・組織の導入

7-1. ジェネレーターの生産、配布、管理、廃棄

現在、ジェネレーターの手作りの技術はあり、少数のジェネレーターを配布可能な状態にするの

は大した困難はないと思われるが、商品化には科学・技術以外の各種の折衝や努力が必要であろう。法律による下限数量以下ではあるが、配布、管理、廃棄、などに関する実行のための関係者間の規約の作成が緊急に必要と思われる。

7-2. “RIを用いる教育実験参加者”という項目を障害防止法に新設することの要望

わが国の現状からこの項目は大変重要と考え、提案する次第である。⁷⁾

7-3. 出前実習（公共）機関の設立

これからの理科教育には多種の新式で高価な実験機器が必須となると考えられる。だが、それらの多くは学生・生徒にとって年間の使用日数は僅かで、各学校が所有するには物件費と同時に保守労力を必要とする。この点で、まさにジェネレーターを用いる実習教育と同じである。先ずわれわれのジェネレーターを用いる出前教育機関が設立され、それを橋頭保として未来の理科教育のための出前実習機関の新設が実現できたなら、その科

学立国への貢献はまさに一石四鳥、すなわ起死回生の満塁ホームランともなり得るのではなかろうか。

引用文献

1. Nozaki T. J. Radioanal. Nucl. Chem. **2008** 278 247-251.
2. 堀場芳数「対数 e の不思議」第 23 刷 ブルーボックス 2006.
3. 斎藤恭一、吉田剛「道具としての微分方程式」第 13 刷 ブルーボックス 2003.
4. 竹内淳「高校数学でわかるボルツマンの原理」第 1 刷 ブルーボックス 2008.
5. 堀淳一「エントロピーとは何か」ブルーボックス 第 36 刷 1999.
6. Nozaki T., Saito J. Appl. Radiat. Isot. **1995** 46 1299~1305.
7. 野崎正 放射線教育 **2016** 19 1.

ニュース

113, 115, 117, 118 番元素の名称・元素記号が正式決定

加治大哉

(理研 仁科加速器研究センター)

人類が築きあげてきた知的財産である元素周期表に、新たな4つの元素が刻まれる事になった。新元素の発見者によって提案された名称および元素記号は国際純正・応用化学連合 (IUPAC: International Union of Pure and Applied Chemistry) によって正式決定され [1, 2]、和名は日本化学会命名法専門委員会によって検討された [3]。

113 番元素：名称 (和名) Nihonium (ニホニウム)、元素記号 Nh

115 番元素：名称 (和名) Moscovium (モスコビウム)、元素記号 Mc

117 番元素：名称 (和名) Tennessine (テネシン)、元素記号 Ts

118 番元素：名称 (和名) Oganesson (オガネソン)、元素記号 Og

113 番元素ニホニウムの命名は、日本人にとって待望となる新元素発見への寄与が国際的に認められた歴史的な偉業です。長い元素発見の歴史の中で、これまで欧米以外の国による貢献は一つもありませんでした。2016年3月、研究に携わった研究者が一堂に会して113番元素の名称と元素記号について検討を行い、応援していただいた日本の皆さんのことを思って「ニホニウム」という名称を提案しました。Fig. 1は、113番元素の名称と元素記号を全会一致で決定した直後に撮った写真です。2003年9月に開始した新元素探索から12年以上もの月日を経てようやく成果が認められた事もあり、皆の表情が晴れやかで誇らし気に感じられます。

原子番号115番モスコビウム、117番元素テネシンは新元素発見に関わった研究グループにゆかりのある所在地 (ロシアのモスクワ州、米国のテネシー州) にちなみ、118番元素オガネソンは科

学者 (研究代表者であるオガネシアン教授) に由来します。これらの三つの新元素は、ロシア-米国の共同研究グループによってもたらされた成果です。ロシアのドゥブナ合同原子核研究所にあるDGFRSと称する気体充填型反跳分離装置を用いて、米国オークリッジ国立研究所から供給されたアクチノイド標的と二重魔法数である ^{48}Ca ビームとの熱い融合反応に関する研究から発見がなされました (本誌第33号掲載の工藤氏による解説 [4] を参照ください)。118番元素オガネソンの命名は、存命中の科学者にちなんで元素名がつけられた元素として、米国のシーボーグ教授に由来する106番元素シーボーギウムについて二例目となります。オガネシアン氏は、熱い融合反応のみならず、ニホニウム研究で用いた冷たい融合反応 (魔法数近傍の ^{208}Pb , ^{209}Bi を標的とした重イオン融合反応) の提唱者でもあり、超重元素合成研究を黎明期からリードされてきた偉大な科学者です。117番元素と118番元素の元素記号の並びは、オガネシアン氏の名前 Y. Ts. Oganessian のイニシャル「Ts」と「Og」が並んでつけられているように見る事もできます。

今回の四つの新元素名と記号が決まった事で、周期表第7周期までの全元素が認定するに至りました。新元素探索の最前線は、第8周期へと舞台を移すこととなります。元素は世界の構成要素であり、これを探求することは、人類に化学の基礎を与え、原子核の安定性についてより深い理解を与えます。小川正孝博士、仁科芳雄博士が切り開かれた日本の新元素探索の歴史を礎に、日本からさらなる新元素の発見や新元素の化学的性質に関する研究が発信される事が期待されます。

引用文献

- (1) IUPAC が新しい 4 元素を命名, <<https://iupac.org/iupac-is-naming-the-four-new-elements-nihonium-moscovium-tennessine-and-oganesson/>>
- (2) IUPAC の元素周期表, <https://www.iupac.org/cms/wp-content/uploads/2015/07/IUPAC_Periodic_Table-28Nov16.jpg>
- (3) 113 番元素の名称・記号が正式決定, <<http://www.chemistry.or.jp/news/information/113nh.html>>
- (4) 工藤久昭、放射化学第 **33** 号, 17 (2016).



Fig. 1 113 番元素の名称を「ニホニウム」と全会一致で決定した直後に撮った写真 [提供：理化学研究所]。ニホニウム研究の研究代表者である理化学研究所仁科加速器研究センター超重元素研究グループの森田浩介グループディレクターを中心として、(故) 仁科芳雄博士を背景に撮影。

会議報告

核化学夏の学校

阪間 稔 (徳島大学大学院医歯薬学研究部)

昨年度開催の幹事であった金沢大学の横山明彦先生から、直々に今年度の核化学夏の学校はぜひ徳島でということになり不安が大きかったが、初めて徳島大学が幹事校、夏の学校・校長として阪間が担当することになった。

今年度の核化学夏の学校は、2016年8月22日から24日の二泊三日の日程で、徳島市内のランドマークである眉山の山麓にほど近い老舗旅館の「徳島グランドホテル偕楽園」において催した。日々、忙しい核化学関係者において、毎年8月下旬から9月初旬の間で日程調整することにおいて、国際学会NRC9(8月29日から9月2日)や放射線取扱主任者試験(8月24、25日)、各大学での大学院入試等の日程が集中し、幹事としてはその調整が非常に難しかった。この日程調整に際して、日程案に関するアンケート配信を核化学夏の学校関係者のメーリングリストへ配信・回答を得ることで、最もベストな日程を決定することに努めた。(必ずしも期待に添えなかったこと、それにより参加出来ない関係者へお詫びする次第である。)

核化学とは縁もゆかりもない徳島大学医学部保健学科にて、ゼロから研究室を立ち上げ、今日まで研究室には私以外のスタッフがいない状況のもと、今ではごく当たり前のwebページ配信技術(BiNDver.7とGoogleドライブとの連携ほか)がたいへん役立った。これにより諸処のアナウンス事項(web掲載による回覧)や参加登録の自動化(Googleドライブへのデータ保存から参加者名簿の自動作成など)で、あたかも仮想的な秘書のように働いてくれて非常に助かった。「徳島グランドホテル偕楽園」は、研究室のある徳島大学医学部蔵本キャンパスから近距離であること、さらに徳島唯一の繁華街である秋田町や観光名所の眉山ロープウェイ、阿波踊り会館にも近いということで、参加者の時間を持て余すことの無いよう配慮し、当日の運営や備品の運搬などの利便性から、

ここしかないと決定した。開催申し込み締め切り日までには、41名の登録であり、例年よりも少ない参加人数であったが、マネージメントしやすいちょうど良い人数であった。

開催初日は昨今の異常気象を反映してか、前日未明から台風9号の勢力が、関東近郊をピンポイントで影響を及ぼし、徳島への主要なアクセス手段である空路が閉ざされてしまう事態となった。(ちなみに、徳島は快晴で夏らしい空模様で、暑中汗をかきながら研究室学生と会場設営に追われていた。)そのため、理化学研究所や日本原子力研究開発機構、首都大学東京などからの参加者は、再開するまで羽田空港で足止めとなったり、新幹線への交通手段に切り替えてもらうなどの変更を余儀なくされた。校長としては、前日から天気予報から目が離せない状況で、とにかくたどり着いてもらうことを祈るばかりで気が気では無かった。それでもなんとか、軽微のプログラム変更で予定通り、参加メンバーが来徳することができたので、安堵の胸をなで下ろすことができた。私の家内である同職場看護学専攻准教授の安原が受付や集金を担当してくれ、その時配布したプログラムに従い、校長挨拶から参加者全員の自己紹介の順で開校することができた。(この場を借りて、安原にはたいへん感謝します。)

この校長挨拶の際、四国徳島での開催が初めてと事前アナウンスしてしまっていたが、坂本浩先生(金沢大学名誉教授)からご丁寧な訂正を頂戴しました。過去、坂本浩先生の若かりし頃に、徳島駅まで立ち往生しているその当時大学院生であった工藤久昭先生(新潟大学)をピックアップして会場まで同行したとの楽しいエピソードを紹介して戴きました。

さて今回の夏の学校プログラムは以下のとおりであった。

8月22日

- 16:00 ~ 17:15 特別講演：加治大哉氏（理化学研究所）「113番元素の命名権獲得までの道のり」
- 17:30 ~ 18:00 話題提供1：高橋成人氏（京都府立医科大学）「核医学診断・治療用 Radioisotopes 製造」
- 20:00 ~ 20:15 話題提供2：羽場宏光氏（理化学研究所）「短寿命 RI 供給プラットフォームについて」
- 20:00 ~ 21:00 拡大話題提供：篠原厚氏（大阪大学）「各大学・各研究所での現状と今後について」、さらに「核化学分野の人材育成について、大学院生・若手研究者のために」、意見交換。

8月23日

- 9:00 ~ 10:15 基調講演（他分野連携：放射線生物学）：森田明典氏（徳島大学大学院医歯薬学研究所）「p53 制御による放射線防護」
- 10:30 ~ 11:15 話題提供3：佐藤志彦氏（日本原子力研究開発機構）若手講演（最近の博士号取得者）「パーティクル分析」
- 11:30 ~ 12:15 話題提供4：浅井雅人氏（日本原子力研究開発機構）「254Es 標的を用いた重元素領域の核分裂、核構造、核化学研究」
- 午後：エクスカージョン（鳴門の渦潮・渦の道、大鳴門橋架橋記念館エディ、ハレルヤスイーツキッチン（工場見学）
- 自由時間、夕食・懇親会（馬場宏先生のミニ講演）

8月24日

- 9:30 ~ 9:50 話題提供5：矢納慎也氏（理化学研究所）「国内の RI 流通と日本アイソトープ協会」
- 10:00 ~ 11:00 特別講演：工藤久昭氏（新潟大学）「核化学の人生」

今回、プログラムの編成に際し、2015 年末から大きな話題となっている「113 番元素の命名権獲得」は外せないと考え、実験当初からこの研究に携わっている加治大哉氏に特別講演をお願いした。加治氏は私とほぼ同期であるので、大学院時代から今に至るまでの 113 番元素発見に至る実験の経緯を、彼の懐に秘めた達成感を肌で感じながら拝聴するができた。また、東京都立大学の先輩にあたる工藤久昭先生の特別講演を企画しました。私が都立大学大学院へ他大学から入学した当

初の夏の学校（確か、青森県六ヶ所村）から今に至るまで、厳しいご指導を賜りましたので、その工藤先生が来年の春に定年退職を迎えるということで、核化学の若い世代へ叱咤激励を頂戴したく、最終講義の予行演習としてお願いしました。その講演の中で、先生ご自身あまり写真を撮られないということで、限られた写真をかき集めてご披露されたスナップからシーボルク先生やホフマン先生などの蒼々たる偉人との逸話を感慨深く語らい、さらに先生のシンボルであるお髭の形成過程までを楽しく拝見・拝聴することができた。

また話題提供では、今が旬の若手研究者からご定年後も精力的な研究を続けておられる先生方まで、核化学が活躍する広い分野からそれぞれの最新状況をご説明頂き、活発な議論が交わされた。今回、初日の最後に拡大話題提供（話題提供と懇親会の融合）という独自の企画を打ち立ててみました。これは大阪大学教授の篠原厚先生との事前打ち合わせにより、私が博士課程の院生であったときから、日々感じている将来的な不安要素（研究者としての就職先など）を核化学に所属する若い人たち（学部学生からオーバードクター、ポスドク、任期付きポジションのこれからの人たち）に向けて、それをどのように感じているか、あらゆる世代の人たちと協議したいと考えました。篠原教授におかれましては、たいへんお忙しい中、私のその意図を汲み取って頂き、この不安要素に関する現状を鋭い視点からご提示して頂きました。最初は先輩世代から多くの意見が出され、しだいに少々、アルコールも入ってきたので、参加学生からもストレートな心情や意見を聞くことができました。そのまま大部屋へ移動し、いつもの夜の学校が開校されました。

この拡大話題提供で感じたのは明らかに理工系の学生（核化学）のサイエンスに対する強い向上心を感じ取ることができ、一抹の私の不安はどこへやらということで、安心することができた。

二日目は、他分野連携ということで同職場でお世話になっている徳島大学大学院医歯薬学研究所（医用理工学分野）教授の森田明典先生に、放射線生物学の専門家ということで、最新の放射線防護剤開発に関する「p53 制御による放射線防護」の題目で分かり易くご講演頂きました。

またエクスカージョン後は、夕食兼懇親会ということで司会進行を大阪大学の笠松先生にお願いし、大阪大学名誉教授の馬場先生のご挨拶が、いつの間にかミニ講演会に代わり、先生の核化学にまつわる熱い思いの丈をご講演頂きました。その後、徳島阿波地方名産品の夕食をご堪能頂きましたが、当方の不手際により工藤先生にはたいへんご迷惑をおかけ致しました。この場を借りてお詫び致します。この不手際への反省の意を込めて三日目最終日は、工藤先生の特別講演後、先生のこれまでの核化学分野でのご功績と感謝の意味を込めて、夏の学校参加者一同から感謝状と花束、記念品（徳島名産のすだち）の贈呈式を行いました。その後、閉校式では次回開催のことで、京都大学原子炉実験所の大槻勤先生へ坂本先生の方から直

接電話し、先生の粹な口調で電話口で談笑しつつ、会場にいる参加者一同が見守る中、次回開催の世話人受け入れの承諾を得ることができました。

最後に、エクスカージョンで訪れた徳島の景勝地である鳴門海峡と鳴門大橋を背景にした集合写真と工藤先生を中心とした参加者全員の集合写真を下段に掲載します。また、今回の夏の学校に参加戴いたすべての参加者に御礼を申し上げると同時に、特に東京都立大学大学院時代の同期である秋山和彦氏には、多大なるサポートを頂戴しました。同期の情けを受け入れてもらい感謝です。

最後になりましたが、日本放射化学会から本年も核化学夏の学校に対する事業経費補助金を承認戴きまして、まことに感謝致します。たいへん有り難うございました。



Fig. 1 鳴門海峡と鳴門大橋にて



Fig. 2 工藤久昭先生と大御所の先生方を囲んでの記念撮影

会議報告

9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC 9)

小森有希子 (理研仁科加速器研究センター)

2016年8月29日から9月2日にかけて、核・放射化学の国際会議 9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC9) がフィンランドのヘルシンキ、Marina Conference Center という海に面した会場で開催された。本会議は核化学・放射化学分野における最大規模の国際会議であり、西ヨーロッパを中心として4年に一度開催されている。

参加者は34カ国から354人、発表件数は招待講演22件、口頭発表63件、ポスター発表234件という内訳であった。発表分野とそのセッション数は以下の通りである。

- ・ Chemistry of the nuclear fuel cycle (4 sessions)
- ・ Environmental radiochemistry (3)
- ・ Actinide chemistry (1)
- ・ Transactinide chemistry (1)
- ・ Radionuclide speciation (2)
- ・ Radiopharmaceutical chemistry (2)
- ・ Radioanalytical chemistry (2)
- ・ Production of radionuclides (1)
- ・ Radiation chemistry (1)
- ・ Education (1)

これを見ると核燃料サイクルと環境放射能のセッションが多く、フィンランドにおけるこれらの研究に対する関心の高さが窺える。筆者の専門である超重元素化学のセッションでは、最初の招待講演で、Düllmann 教授 (GSI, マインツ大) が最近の超重元素の化学研究のレビューを行った。講演の冒頭で 113, 115, 117, 118 番元素が IUPAC により正式に新元素と認定されたことに触れ、nihonium, moscovium, tennessine, oganesson という名称案 (この時点ではまだパブリックレビューの最中であった) を紹介していたことが印象深い。続いての招待講演では、原子力機構の永目先生が、原子力機構で行われてきた重アクチノイド元素や

ラザホージウム、ドブニウムの溶液化学研究の成果と今後の展望について講演された。その後は気相化学の発表が続き、最近脚光を浴びている Lr の第一イオン化ポテンシャル測定や、No のレーザー分光、真空クロマトグラフィーといった比較的新しい研究手法の話題が中心であった。

各分野のポスター発表も盛況であった。234件のポスター発表は8月30日と9月1日の2日間に分かれて開催され、1日目が核燃料サイクルの化学と環境放射能、教育分野の発表で、2日目がその他の分野の発表であった。大阪大学の張子見氏がポスター賞を受賞したことを記しておく。

9月1日の夜、バンケットが開催された。学会会場近くの船着き場からボートで小さな島のレストランに行き、バンドの演奏を聴きながら料理とワインを愉しんだ。食事の後は何人かの参加者が音楽に乗って踊り始め、次第に大勢を巻き込んだダンスパーティとなった (写真1)。

今回の NRC9 のプログラムには残念ながらエクスカージョンが含まれていなかったため、空き時間にフェリーに乗ってフィンランドで最も有名な観光名所の1つであるスオメンリンナ島に行ってきた。島全体がかつて海上要塞であったというこの島々は、現在教会や博物館、海を睨む砲台な



写真1 バンケットの後のダンスパーティの様子

どが点在する公園となっており、ユネスコの世界遺産にも登録されている（写真2）。青く澄んだ空と光を反射する海面、島の緑のコントラストがとても美しい静かな島で、北欧は良いところだと思ったりした。

最後に、次回のNRC10は2020年、イギリスのマンチェスターに決定したことを報告する。



写真2 スオメンリンナ島の要塞跡と砲台

会議報告

2016 日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会 実施報告

工藤久昭 (新潟大)

1. はじめに

2016 放射化学会年会・第60回放射化学討論会を、平成28年9月10日(土)～12日(月)の間、新潟大学五十嵐キャンパスで開催いたしましたので、実行委員会を代表してご報告申し上げます。

これまで新潟大学で開催された放射化学討論会は、第16回(1972年)、第26回(1982年)、第39回(1995年)であり、今回は21年ぶりとなりました。第60回ということもあり、記念大会の意味を込めて、記念講演並びに記念事業を企画しました。また、放射化学討論会60回記念の文字の入ったガラス製ペーパーウェートを記念品として参加者全員に配布いたしました。(写真1)

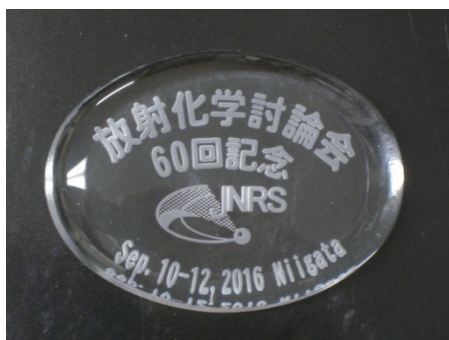


写真1 第60回記念ペーパーウェート

折しも113番新元素発見が正式に認められ、ニホニウム(Nh)という元素名が提案された記念すべき年でもありましたので、記念講演は、「周期表の拡張を目指して」というタイトルで、市民にも開放して、加治大哉氏(理研仁科センター)、Alexander Yakushev氏(ドイツGSI)、佐藤哲也氏(日本原子力研究開発機構)による3件の講演を企画しました。

記念事業としましては、酒井理事(ネット委員長、大同大学)のご発案で、これまでの放射化学討論会の要旨集をすべて放射化学会のホーム

ページで閲覧できるようにするというものです。第50回までの要旨集は50周年記念事業として巻出先生(元東京大学アイソトープ総合センター)がすでにPDF化してCDになっておりましたのでそれを利用していただきました。その後の討論会につきましてはそれぞれの世話人の先生方をお願いして、原稿をいただきPDF化し、ホームページ上にアップロードしました。これらの作業は松垣先生(東京大学アイソトープ総合センター)の多大なご尽力によってなされたものであります。この場をお借りしてお礼申し上げます。この要旨集の閲覧では検索も行うことができ、便利なものとなっておりますので、きっと皆さまのお役に立つものと思われまます。なお本年度分につきましては、2017年3月末にアップロードする予定です。

また、前回の東北大学での年会・討論会から採用されましたように、要旨集は年会ホームページからPDFとして参加者にダウンロードしていただくこととしました。

2. 年会概要

発表対象分野はこれまでと同様に幅広く、1.放射化分析、2.核化学、3.環境放射能、4.同位体化学、5.原子核プローブ、6.アクチノイド、7.核エネルギー・バックエンド化学、8.医学・薬学・生物学におけるRI利用、9.宇宙・地球化学、10.福島事故関連、11.その他関連分野と設定しました。

2-1. 発表件数、参加者数など

本年会の参加者数は199名で、このうち学生は55名でした。また発表件数は、口頭発表53件、ポスター発表44件、記念講演3件、加えて日本放射化学会賞の学会賞が1件と奨励賞3件でした。合計104件であり、ここ数年の年会・討論会の発表件数よりやや少なめでした。一般発表の内訳を

見ると、これまでと同様に福島事故関連 21 件と環境放射能 18 件が多く、核化学 16 件、原子核プローブ及び同位体化学 14 件、医薬生物における RI 利用 10 件、その他 18 件でした。

2-2. 口頭発表

今回は発表件数もやや少なめであったこともあり、一般発表の会場数は 2 会場とし、十分な討論ができるようにと 15 分発表、5 分討議のスタイルとしました。それぞれの会場では活発な討議が行われ、発表によっては討議の時間が足りないように見受けられるところもあり、参加者の意気込みが伝わってきました。(写真 2)



写真 2 口頭発表の様子

2-3. ポスター発表

ポスターセッションでは、まず、セッションの開始直前、すべての発表者からスライド 1 枚だけを使用して 1 分間のショートプレゼンテーション（口頭発表）をしていただきました。事前にポスター発表の概要を知ることができ、限られた時間内で関心があるポスターを効率的に回ることができることを意図したものです。(写真 3)。ポスター発表形式に関しては、種々の学会でよく見られるように、ポスター発表者が他のポスター発表に参加できるように、発表番号の偶奇により説明責任時間を分けることとしました（それぞれ 50 分ずつ）。また、ポスターセッションの最中は、フランクに討論が行われるようにとワインを用意しました。(写真 4)



写真 3 ポスター発表 ショートプレゼンテーション



写真 4 ポスター発表

2-4. 第 60 回放射化学討論会記念講演

森田浩介氏をグループディレクターとする理研グループの 113 番新元素発見の優先権が IUPAC によって認められ、ニホニウム (Nh) という元素名が提案されました。(その後 IUPAC より正式に承認されたことは記憶に新しいことと思います。) この喜びをまずは皆さんと共有したいと思い、特別講演を計画しておりました。当初は、森田氏にご講演いただく予定になっておりましたが、あいにくと体調不良とのことでしたので、初期のころから共同研究されてきました加治大哉氏に急遽代わっていただきました。また、一昨年度には、*nature* の表紙を飾った研究で原研グループによる 103 番元素ローレンシウム の第一イオン化エネルギー測定という素晴らしい成果もありましたので、これも併せて「周期表の拡張を目指して」というタイトルで、市民にも開放して記念講演会を開催することにしました。丁度、超重元素の化学的性質研究の最先端にいる研究者であるドイツ、重イオン研究所 (GSI) の Alexander Yakushev 氏も討論会に参加していただけたとの

ことでしたので、次の3件を記念講演としました。

i) GARIS を用いた超重元素研究の最前線

– 新元素認定までの道のり、周期表の拡張を目指した挑戦 –

加治大哉氏 (理研仁科センター)

2001年から15年間にも及んだ113番元素合成プロジェクトについてお話いただきました。理研重イオン線形加速器から供給される大強度 ^{70}Zn ビームを ^{209}Bi 標的に照射して行った新元素探索は、実に10年におよんだこと、正味の照射日数として576日をかけて3原子の $^{278}113$ に起因する崩壊連鎖を観測することに成功したことについて、詳細な実験の難しさを交えて講演いただきました。さらには、ホットフュージョンを用いる反応による超重元素合成等、次なる方向についてもご紹介いただきました。(写真5)



写真5 加治大哉氏

ii) Gas Phase Chemistry of Superheavy Elements

Alexander Yakushev 氏 (ドイツ GSI)

理研における106番元素シーボーギウム (Sg) のカルボニル錯体の合成実験において、 $\text{Sg}(\text{CO})_6$ は超重元素初の有機金属錯体で、Sgが第6族元素として特徴的な化学的性質をもつことが示されました。また、114番元素フレロビウム (Fl) の気相化学研究については、Flは、Pbと同じ第14族元素に配置されていますが、強い相対論効果によって電子配置が閉殻構造となり、化学的に不活性で、常温で気体となるという興味深い実験結果が報告されました。(写真6) 一方、Flは金の表面と相互作用をする金属-金属の性質も示しており、今後の研究が待たれるところではあります。



写真6 Alexander Yakushev 氏

iii) 103番元素で見つけた周期表のほころび

– 元素の周期表が書き換わる? –

佐藤哲也氏 (日本原子力研究開発機構)

表面電離過程を応用して103番元素ローレンシウム (Lr) の第一イオン化エネルギーの測定に成功したことが報告されました。この研究により、Lrが実験的にアクチノイドの最後の元素であることが示されました。LuとLrがそれぞれランタノイドとアクチノイドではなく、ScとYとともに第3族元素とすることが指摘されてきたが、この研究の成果をもとに国際純正・応用化学連合でこれらの元素の周期表上の位置についての検討が開始されたとのことでした。



写真7 佐藤哲也氏

2-5. 分科会

分科会は例年と同様に、原子核プローブ分科会、核化学分科会、放射化学分析分科会、 α 放射体・環境放射能分科会、及び若手の会が会期中に開催されました。各分科会の概略は次の通りです。

・原子核プローブ分科会

世話人：佐藤 渉氏 (金沢大学)

講演：「放射線を用いた NMR による半導体中の不純物の研究」

泉川卓司氏（新潟大学アイソトープ総合センター）

・核化学分科会

世話人：大江一弘氏（新潟大学）

講演：「海洋中の微量元素とその同位体に関する分析・海洋化学的研究」

則末和宏氏（新潟大学理学部）

・ α 放射体・環境放射能分科会

世話人：永井尚生氏（日本大学）

講演：「温泉水から読み解く地下深部塩水環境における Ra 同位体挙動 - 新潟県の温泉を例として -」

富田純平氏（日本原子力研究開発機構）

・放射化分析分科会

世話人：高宮幸一氏（京都大学原子炉実験所）

内容：各施設からの現状報告等

・若手の会

世話人：佐藤大輔氏（新潟大学）

講演：「福島第一原発事故被災地で用いるための指向性がある自動車走行サーベイシステム ASURA の開発」

後藤 淳氏（新潟大学アイソトープ総合センター）

2.6. 日本放射化学会学会賞関連講演

日本放射化学会学会賞関連では、学会賞 1 件、奨励賞 3 件の講演がありました。

・学会賞

山本政儀氏（金沢大学 名誉教授）

受賞題目：「極微量 α 放射性核種の測定法開発および地球化学研究への応用」

極微量 α 放射性核種、特に超ウラン元素核種の分析・測定法の開発、これらの核種を利用した環境放射能研究、さらに地球・環境化学への応用まで山本先生の多大な研究業績の一端が紹介されました。

・奨励賞

笠松良崇氏（大阪大学大学院理学研究科）

受賞題目：「ラザホージウムの溶液化学研究のた

めの新しい分析法の開発

－共沈法と抽出平衡観測法－

短寿命で極低生成率の超重元素の研究法について、サマリウム共沈法が有効に利用できること、溶媒抽出における平衡到達時間の測定が可能となる装置の開発ができたことが紹介されました。

・奨励賞

二宮和彦氏（大阪大学大学院理学研究科）

受賞題目：「負ミュオンを用いた非破壊三次元元素分析法の開発」

高エネルギーであるミュオン特性 X 線を利用して位置選択的な定量分析を確立したことが示されました。すなわち負ミュオンを用いて非破壊でバルクな物質の内部を位置選択的に定量分析ができることが紹介されました。

・奨励賞

金子政志氏（日本原子力研究開発機構）

受賞題目：「メスバウアー分光パラメーターと密度汎関数法を用いた d、f ブロック錯体の結合状態研究」

メスバウアー分光パラメーターを用いて密度汎関数法の妥当性を評価することにより、スピントロスコピー（SCO）発現メカニズムの理論的研究およびマイナーアクチノイドとランタノイドの分離メカニズム解明に向けた f ブロック元素の結合状態に対する理論的研究に展開できることが紹介されました。



写真 8 懇親会での学会賞受賞者の皆様（右から、中西会長、笠松良崇氏、金子政志氏、高橋新潟大学長、山本政儀氏、二宮和彦氏、筆者）

3. 若手優秀発表賞

これまでの年会でも行われてきましたように、本年会でも若手優秀発表賞を設定しました。若手発表者を奨励するための賞ですので、共同発表者を含めたグループによる研究成果の評価ではなく、発表者の能力や努力を評価していただくように次の3つの審査項目を設けました。

- 1) 発表内容：研究内容における課題を的確に捉え、発表者が優れた進展をもたらしている。
- 2) プレゼンテーション：研究内容をわかりやすく伝えることができる論理的な発表である。
- 3) 質疑応答：研究内容に関わるしっかりとした質疑応答を行い、誠実なやりとりをしている。

それぞれの審査項目は5点満点とし、一つの発表に3名の審査員をお願いして、合計点により優秀発表賞を決定いたしました。若手発表の対象数は口頭発表17件、ポスター発表17件の計34件でした。厳正な集計の結果、7名の発表者に若手優秀発表賞を授与することとしました。閉会式で、若手優秀発表賞が表彰されました(写真9)。副賞として、新潟県の代表的な地場産業である金属加工品で研磨マイスターステンレスタンブラーを贈呈しました。研究で疲れた頭脳を休め、明日への活力を育むことができればとの希望からです。

受賞者(所属)と発表題目は以下の通りです。
 神田晃充さん(大阪大学) 樹脂担持有機スズ試薬を用いた ^{211}At 分離/標識の試み
 塩原良建さん(明治大学) ケイ酸塩鉱物中トリウムおよびラジウムの同位体の存在形態
 白井香里さん(新潟大学) Rf同族元素Zr、Hfの塩化物に対する等温ガスクロマトグラフィ
 鈴木聖人さん(電気通信大学) 低温 $\text{C}_2\text{H}_4\text{Ar}$ マトリックス中の孤立 ^{57}Fe 原子の化学状態
 原中川真結さん(金大大学) メスバウアー分光法によるコンドライト隕石中の鉄含有鉱物組成の研究
 矢納慎也さん(理化学研究所) $^{70}\text{Zn}(\text{d}, \text{an})^{67}\text{Cu}$ 反応による頒布用精製 ^{67}Cu の製造
 吉田 剛さん(大阪大学) 酸素、硫黄原子へのミュオン捕獲確率の分子による変化



写真9 若手優秀発表賞表彰式の一コマ

4. 懇親会

大会2日目の夕刻、総会の終了後、総会出席者の集合写真を撮った後(写真10)、バスで懇親会会場のANAクラウンプラザホテル新潟に移動しました。懇親会参加者は一般103名、学生33名の計136名でした。実行委員長による年会概要の紹介の後、新潟大学長高橋姿先生から歓迎のご挨拶をいただきました。中西放射化学会会長の乾杯のご発声で宴会が始まりましたが、(写真11)皆様のお目当ては新潟の地酒、最初からほとんどそのコーナーから動かなかったツワモノもいらっしゃったとかお聞きしましたので、参加者の皆様にご堪能いただけたようであります。地元の同好会による万代太鼓のアトラクションもあり、和やかなひと時を過ごしていただけたようであります。(写真12)最後に、次年度のお世話をしてくださる筑波大学の末木先生からご挨拶があり、お開きとなりました。



写真10 総会終了後の集合写真



写真11 乾杯のご発声をされる中西会長



写真12 万代太鼓のアトラクション

5. 最後に

本年会・討論会の開催にあたりまして、参加者の皆様はじめ多くの皆様のご協力をいただきました。この場をお借りしてお礼申し上げます。各口

頭発表セッションを手際よく運営していただきました座長の先生方、若手優秀発表賞の審査にあたっていただいた多くの先生方に深謝いたします。研究発表要旨集表紙を飾った朱鷺飛翔の写真を気に入ってくださった参加者の声も多く聞かれました。快く写真を提供してくださいました新潟大学朱鷺・自然再生学研究センターに感謝申し上げます。

最後に、ホームページの作成から要旨集の編集など本年会の中心となってお尽力いただいた新潟大学の後藤真一先生はじめ、本年会の運営にあたってご活躍いただいた実行委員会メンバーに深い感謝を表して実施報告とさせていただきますと思います。

実行委員会メンバー（敬称略）

工藤 久昭（新潟大）
松岡 史郎（新潟大）
今泉 洋（新潟大）
佐藤 峰夫（新潟大）
狩野 直樹（新潟大）
大江 一弘（新潟大）
小高広太郎（新潟大）
鈴木 達也（長岡技大）
立花 優（長岡技大）
後藤 真一（新潟大、事務局）

会議報告

2016 日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会 若手の会

佐藤大輔（新潟大学大学院 自然科学研究科 数理物質科学専攻）

2016年9月10日に2016年度日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会（会場：新潟大学五十嵐キャンパス）において若手の会が開催され、44名＋若干名の飛び入りの若手研究者の方々（学生35名程度、一般研究者10名程度）にご参加いただきました。

若手の会は、日本放射化学会に所属する学生および若手研究者間の相互交流を活発に行うことを目的として、約40年前に本学の工藤久昭教授らが中心となって発足し、毎年放射化学討論会に合わせて若手の会シンポジウムや懇親会を開催しています。近年の若手の会は、討論会初日の夕方開催され、シンポジウムでは各大学の研究室紹介や外部から講師の先生をお呼びして講演を行うなどしてきました。

今回の若手の会は、会場である新潟大学に所属する筆者が主催者となり、節目の第60回記念討論会ということもありまして、盛大に若手の会を行うことを考えていましたが、討論会の日程が非常にシビアな状況となってしまい、ほとんど例年通りの内容となってしまいました。2016年度若手の会は

1. 主催者のあいさつ

2. 依頼講演

講師：後藤淳先生（新潟大学 研究推進機構 アイソトープ総合センター）

講演題目：「福島第一原子力発電所事故被災地で用いるための指向性がある自動車走行サーベイシステム ASURA の開発」

3. 次年度の担当者の決定および承諾、その他連絡

4. 懇親会の開催

という内容で開催させていただきました。シンポジウムでは依頼講演を本学の研究推進機構 アイソトープ総合センターに所属されている後藤淳先生にお願いいたしました。先生に講演を依頼する経緯としましては、筆者が親交のある工学部の先

生に依頼講演のために講師の方をご紹介いただけないか相談したところ、福島原発事故関連の研究を行っている方がいらっしゃるということで、今回後藤先生をご紹介頂きました。後藤先生は原発事故以来、自動車で行きながら放射線量を測定する装置 ASURA を開発し、その装置を用いて福島県内の空間線量のマッピングを行っているようで、当日は、「福島第一原子力発電所事故被災地で用いるための指向性がある自動車走行サーベイシステム ASURA の開発」という題目で先生自身が行った研究内容についてご講演いただきました。最後に、来年度の討論会は筑波大学が主催者ということで、筑波大学出身である原子力研究開発機構の佐藤志彦氏に依頼し、快く承諾をいただきまして若手の会の本会を終了しました。

その後、懇親会を新潟大学近くの居酒屋において開催しました。講師の後藤先生にも懇親会にご参加いただき、美味しい料理や新潟自慢の日本酒に舌鼓を打ちながら、若手間の一層の交流を図りました。

最後に、今回若手の会開催に関してご尽力いただきました、2016年度日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会事務局の皆様、また、ご講演いただきました後藤先生にこの場を借りて深くお礼を申し上げます。



写真1 2016年度若手の会における講演会の様子



写真2 2016年度若手の会懇親会の様子

会議報告

大阪大学 医・理・核物連携 「新規医療イノベーションのためのシンポジウム 2016」

篠原 厚 (大阪大学大学院理学研究科)

平成 28 年 12 月 5 日 (於大阪大学銀杏会館) に表記「新規医療イノベーションのためのシンポジウム 2016」が開催された。平成 26 年度から 3 度目の開催となる。前回は、大阪大学の概算要求事業としてのキックオフシンポジウムの形で盛大に行われたが、今回は、研究の進捗状況報告と、今後の事業推進に際して遭遇する課題について具体的に議論し、プロジェクト関係者や連携を進めている機関や企業関係者との密な意見交換をする場として開催された。本稿では、その概要を報告する。

図 1 のプログラムで分かるように、セッション 1 では、はじめに、畑澤先生 (阪大院医) からプロジェクトの全体の状況に加え、日本の関連研究の状況と医学・医療分野における課題についてオーバービューが示された。次に、プロジェクトの各パート (加速器、RI 製造、ターゲッティング分子合成、核医学) から研究の進捗状況が担当者から報告された。また、非常に密に関係している加速器施設の連携である「短寿命 RI 供給プラットフォーム」の紹介も行われた。セッション 2 の講演では、関係の深い話題として、磯橋先生 (阪大院医) と中田先生 (阪大院医) から、それぞれ「 Ra-223 塩化ラジウムによる前立腺がん治療」と「甲状腺癌の転移巣に対する放射線内用療法の現状から将来の展望について (臨床の立場から)」と題する講演が行われ、関連が深く進行中のリアルな内容であったため、活発の質疑応答が行われた。また、新村様 (日本放射性医薬品協会) から「現在の放射性医薬品の供給体制について」という内容で企業サイドからの課題が示され、貴重な情報交換が行われた。最後のセッション 3 では、今後、本プロジェクトをゴールである臨床試験に進む際に遭遇する課題をテーマに、具体的な議論が行われた。まず、厚労省の地域医療課・課長補佐であ

る渡部直史様から「国のがん対策と核医学内用療法」と題する基調講演が行われ、臨床試験へ進む上での非臨床試験について、矢野先生 (阪大院理・招聘教授) と蜂須賀様 (国立医薬品食品衛生研究所) による創薬の観点からのトークを基調に活発の意見交換がなされた。また、プロジェクトを次ステージに進めるための計画が、私と RCNP の中野センター長から紹介があり、最後に、金田先生 (阪大院医) の進行による総合討論で、臨床研究に向けた具体的な課題が再認識され、その対策について活発な意見交換がなされ。シンポジウム終了後、席を移して意見交換会 (懇親会) が行われ、さらに密な情報交換や新たな連携の構築が芽生える良い雰囲気の中で閉会となった。

今回は、シンポジウムでは 48 名、意見交換会では 32 名の参加者で、前回よりは小規模であったが、当初の意図通り、具体的な研究内容についての密な議論が展開され、プロジェクトが目指す臨床研究と言うゴールへ真に迫り着くために、産官学が連携の必要性が認識され、関係者が密に協力して行くことが確認された。

新規医療イノベーションのためのシンポジウム2016 プログラム

日時：平成28年12月5日(月) 10:00-16:45 17:00から意見交換会
場所：大阪大学銀杏会館・大会議室

10:00-12:00 セッション1 プロジェクトの進捗状況 (座長：中野貴志)

はじめに(全体の進捗状況、日本の状況など) 畑澤 順(阪大院医)
加速器(新加速器・ビームライン等) 福田 光宏(阪大RCNP)
RI製造(211-At製造・精製、供給) 篠原 厚(阪大院理)
ターゲティング分子合成(標識薬剤の合成と評価) 深瀬 浩一(阪大院理)
核医学(整備状況、動物実験・Atイオンの体内分布) 畑澤 順(阪大院医)
短寿命RI供給プラットフォームについて 福田 光宏(阪大RCNP)

12:00-13:30 ランチ、ランチミーティングなど

13:30-15:00 セッション2 講演 各(25+5)×3 (座長：深瀬浩一)

「Ra-223 塩化ラジウムによる前立腺がん治療」 磯橋 佳也子(阪大院医)
「甲状腺癌の転移巣に対する放射線内用療法の現状から将来の展望について
(臨床の立場から)」 中田 幸子(阪大院医)
「現在の放射性医薬品の供給体制について」 新村 俊幸(日本放射性医薬品協会)

<ブレイク>

15:15-16:45 セッション3 討論(臨床試験に向けて) (座長：金田安史)

「国のがん対策と核医学内用療法」(25+5)

講師：厚生労働省地域医療課 課長補佐 渡部 直史

「臨床試験へ進む上での非臨床試験について」(30)

その1. 創薬の視点から 矢野 恒夫(住友重機械/阪大院理)

その2. 留意点について 蜂須賀 暁子(国立医薬品食品衛生研究所)

「次期ステージへの計画と課題(各パートから)」(30)

「医理核連係研究センターの設置に向けて」 篠原 厚(阪大院理)

「核物理研究センターアップグレード構想」 中野 貴志(阪大RCNP)

総合討論 進行：金田 安史(阪大院医)

17:00-(18:30) 意見交換会 ミネルバ

図1. シンポジウムのプログラム

会議報告

京都大学原子炉実験所専門研究会
「京大炉 (KUR) を用いた放射化分析の成果と今後の展望 -2-」

木下哲一 (清水建設)

2017年1月18日に、京都大学原子炉実験所専門研究会「京大炉 (KUR) を用いた放射化分析の成果と今後の展望 -2-」が開催された。この専門研究会は放射化分析法に関する研究会として毎年開催されており、放射化分析研究会「冬の学校」の活動の一部である。海老原教授(首都大学東京)の開会の挨拶から始まり、12件の口頭発表が行われた。参加者数は33名であった。地球・宇宙科学分野に関する講演が4件、材料の分析に関する講演が3件、分析法に関する講演が2件、放射化分析のニーズに関する講演が1件あった。特別講演として、Mohamed Soliman 博士 (Egyptian Atomic Energy Authority) からエジプト第二研究炉を用いた中性子放射化分析に関する講演と、2017年3月で退職される海老原教授からの最終講義があった。

この専門研究会では以下のような講演や議論が行われた。2020年にサンプルが戻ってくる「はやぶさ2」プロジェクトについての紹介があり、試料の年代測定の他に微量元素分析が重要な項目に位置づけられている。また、地表で採取したジルコンは消滅後背地を探るために有用な試料である反面、難溶解性で分析が難しい。原発の廃炉時に施設の放射化シミュレーションが必要になるが、そこで必要な主要・微量元素分析においても、酸分解後にICP-MSで分析する手法では過小評価する傾向が強いことが示された。ガラス材料中のZnとTeの分析結果について中性子放射化分析、原子吸光、ICP-AESを用いた各分析法の特徴が議論された。現在ではICP-MSの発達により多元素

が超高感度に短時間で分析可能になり、放射化分析を超える感度を持つ分析法となってきた。その一方で、放射化分析法は試料を分解する必要がないため、前処理を必要とする分析法に対して、分析値の確度で勝る分析法であると感じている。これらの研究を推進する上で、放射化分析法は重要な分析法に位置づけられていることを強く感じた。また、ハロゲンの分析において放射化分析法は高感度な分析法として活躍するが、臭素やヨウ素は照射中に分解するため、十分注意が必要であることが再認識された。非破壊分析法のひとつである μ 粒子を用いる分析法では、元素濃度のみならず化学状態の推定にも展開でき、更なる可能性を秘めた分析法である。海老原教授の最終講義では、分析値からどう解釈すれば良いのか通勤電車の中で毎日悩み続けたとの話が印象深い。また、科学的な議論は信頼できる分析値に基づいて議論されるべきであること、分析値を出すだけでなくその先に展開しなければならないこと、得られた成果は国際会議のプロシーディングスではなく査読付きの国際誌に投稿するべきであることなど、次世代の研究者への熱い思いも含まれており、筆者にとっても心に受け止めておかなければならない貴重な講演であった。研究会の最後に大槻教授(京都大学原子炉実験所)より、京大原子炉の審査が順調に終われば2017年度に原子炉の稼働が可能になると紹介され、2017年度は原子炉利用者にとって待ちに待った年になるものと思われる。

研究会プログラム

KUR を用いた中性子放射化分析の高精度化の現状と今後

三浦 勉 (産総研)

放射化分析を用いた半導体評価用認証標準物質の開発

高塚登志子 (産総研)

環境放射能核種の放射化分析のニーズ

蓼沼 克嘉 (株化研)

インパクトガラス中の親鉄性元素による隕石成分の探索

白井 直樹 (首都大学東京)

放射化量評価のための基礎的検討

木下 哲一 (清水建設)

ArAr 年代測定を用いた海洋プレート沈み込み開始と島弧創成メカニズムの解明

石塚 治 (産総研)

はやぶさ2プロジェクトについて

岡崎 隆司 (九州大学)

Neutron activation analysis at Egypt Second Research Reactor

Mohamed Soliman (Egypt second research reactor, Atomic Energy Authority)

ジルコンの微量化学成分から消滅後背地をさぐる (研究計画)

田中 剛 (名古屋大学)

テルライトガラス中の Zn, Te の定量

鹿野 弘二 (函館高専)

負ミュオンを用いた定量的な元素分析に向けた基礎研究

二宮 和彦 (大阪大学)

FNCA/NAA プロジェクトの進捗概況 & その他

海老原 充 (首都大学東京)

時過ぎて

森川尚威先生を偲んで

野川憲夫（福島大学、東京大学アイソトープ総合センター）



森川先生は、大学卒業後、東京大学理学部化学科の有機化学反応機構を研究分野とする島村修研究室の門をたたかれた。先生の研究場所は、当初化学教室内であったが、後に反応機構の解明に放射性同位元素であるトリチウムや炭素-14を利用するために化学教室の中庭にあるRIサブセンターへ移った。この頃に先生の研究グループに大橋國雄氏（後に千葉大学薬学部教授）、斎藤智雄氏（後に相模中央化学研究所）滝口秀樹氏（後にコニカ株式会社）らが加わった。写真1は当時先生がロットリングペンで書かれた真空ラインである。キッチリと書かれている。研究の一環としてトリチウムのホットアトム化学が加わった。この研究は次に述べるアイソトープ総合センター（以下センターと略）の設立後も続いた。 ${}^6\text{Li} (n,\alpha) {}^3\text{H}$ あるいは ${}^3\text{He} (n,p) {}^3\text{H}$ 核反応により生成する高エネルギー状態のトリチウムとトルエン、キシレン及び安息香酸などの芳香族化合物との反応性を調べるものであった。 ${}^6\text{Li}$ の原料である例えば炭酸リチウムと芳香族化合物とを石英のアンブルに詰め真空ラインを用いて減圧封入

した照射試料を、東海村にある日本原子力研究所（原研、現日本原子力研究開発機構）のJRR-3、4、或いは横須賀市にあった立教大学のTRIGA Mark 11 原子炉で中性子照射した。真空ラインの前に中腰で立ちコックを何回も回す照射試料の調製作業は長時間に及び、石英アンブルを封じ切り終わるのはいつも深夜であった。おそらくこの作業が原因で先生は腰を痛めたと思われる。照射試料は、先生自ら運転して東海村或いは横須賀市に運んだ。車好きな先生の運転で私はそのスピード感を味わった。多くの芳香族化合物について調べた結果、芳香核内のトリチウム分布は通常の化学反応で起こるオルト、メタ、パラ配向性は見られず、オルト、メタ、パラの位置に均一であった。

一方先生は、当時東京大学放射線同位元素委員会委員長であった島村修先生とラジオアイソトープの利用拡大に備えセンターの設立に向けて関係機関との交渉に奔走していた。そして昭和45年（1970年）4月、日本初の放射性同位元素取扱施設として付属病院の地下にあった東京大学放射性同位元素総合研究室（通称、ビキニ研）を基にセンターがラジオアイソトープに関する研究、教育、管理を目的として弥生地区に設置された。翌年建物竣工後、先生は多様な共同利用者の要望に応じるため、物理、化学、生物及び放射線管理の四部門を設け、またゲルマニウム半導体検出器、液体シンチレーションカウンター、メスバウアー装置などの多くの最新機器を導入した。共同利用者数は極めて多く実験場所が足らなく手狭となり教育訓練用のフードにまで共同利用に供せざるを得ない状況となって、センター設置から12年後の昭和57年7月に教育訓練棟が増築された。先生は共同利用者により優れた研究がなされることにセンターの存在意義があり、そして科学への寄与も大きいと教授、センター長になられてからも考えられていて、共同利用者の研究に対し、時に先生はご自身の研究費を注ぎ込んで積極

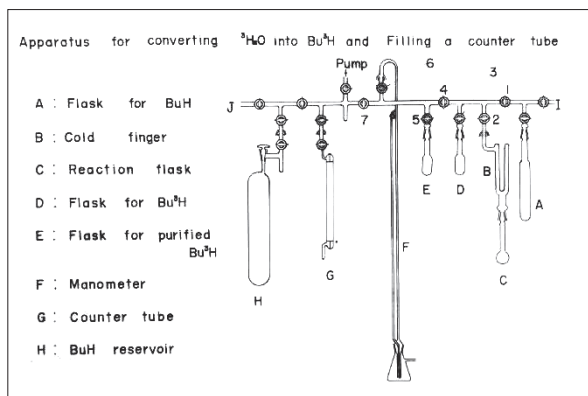


写真1 森川先生が書かれた真空ラインの図

的に支援、介入し、さらには協力されていた。具体例として次が上げられる。核融合特別研究におけるトリチウムの生物影響に関する研究ではトリチウム水 72GBq を使用できるトリチウム安全取扱キャビネットを開発し多くの研究者を受け入れた。鉄、ステンレス鋼の水素脆化をトリチウム電顕オートラジオグラフィーで調べるためのトリチウム水 37GBq を使った陰極電解チャージ法を共同で確立した。ニュートリノの質量を求めるためのトリチウム及びカドミニウム-109 で標識したアラキジン酸の単層膜線源の作成に積極的に協力した。介入し過ぎたせい、先生はニュートリノ質量測定グループの一員になっていた。尚蛇足であるがグループの多くの研究者は、この研究は皆若かったから成し遂げられたと考えている。なぜなら線源作成では微妙な溶液調製と度重なる汚染の除去、核研の空心スペクトロメーターによる長時間測定そして停電など多くの事態を乗り越えなければならなかったからである。この実験は、カミオカンデにおいて大マゼラン星雲で発生した超新星爆発に伴うニュートリノ 11 例の世界で初めの観測した 1987 年 2 月 23 日の少し前に行われた。トリチウムホットアトム化学を利用してフグ毒であるテトロドトキシンのトリチウム標識化を行った。テトロドトキシんにトリチウムを導入するには何段階もの化学合成過程を経なければならないが、この利用により一段階で標識できた。このトリチウム標識テトロドトキシンは原子炉照射時の放射線の影響によりその毒性の強度に変化がないことを確認後フグに投与され、その分布を調べることができた。なお、原研とは協力研究としてトリチウムホットアトム化学の他に放射性のレニウム-186 及び 188 を用いた放射性薬剤の開発があった。蛋白質や細胞の放射性のヨウ素-125 及び 131 標識化では 370MBq を使用可能な放射性ヨウ素取扱ボックスを開発した。

また先生はラジオアイソトープ実験で不可欠な実験装置類の開発も行った。ガスクロマトグラフィ装置から出てくる放射性ガスのピークを全て検出器入れて放射能を求めるための長流路比例計数管、現在作業環境測定用として利用されている空気中のトリチウムと炭素-14 濃度を測定するためのトリチウム/炭素-14 捕集装置、ラジオアイ

ソトープを投与後の動物を乾燥するためのマイクロ波を利用した動物乾燥装置がある。乾燥装置の出現によりセンターでのマウス、ラット、ネコ、ウサギなどを使った動物実験が盛んに行われた。日本アイソトープ協会は当時ホルマリン浸け動物の一時集荷を停止していたが、乾燥処理した動物については集荷を再開した。液体シンチレーションカウンターで測定済みの廃液の焼却処理に放射性有機廃液処理装置を導入した。が燃焼時に大量のススを発生したので、先生は廃液を噴霧するノズルの改良を行った。昭和 58 年 7 月文部科学省より廃棄の業（第 8 号）の承認を得て、付属病院を除く学部・研究所の放射線施設から放射性有機廃液を引き取り焼却処理が開始された。この焼却処理により本富士消防署からの危険物に関する指摘がなくなり、また各放射線施設は可成り片付いた。日本初のアイソトープの取扱いに関するビデオ作製も先生の手による物であった。

次に、学内における先生の活動を 2、3 上げたい。K 所で一般の焼却炉が放射性物質で汚染したと聞かやいなやすぐに駆け付け徹夜でその対策に当たった。除染で発生し濡れた放射性廃棄物の乾燥、そしてドラム缶詰めまで自ら行った。S 所では、汚染した排水溝をスコップで掘って、出た土砂のドラム缶詰めを行った。R 学部、I 学部の一般の居室で汚染が発見された時もすぐさまその対策に乗り出した。

学外ではセンター設立から 1 年後に設立された京都大学の放射性同位元素総合センターの栗原紀夫先生と共に現在 21 施設となった国立大学のアイソトープ総合センターを纏められ先導し、科研費の研究代表者となり、また“国立大学アイソトープ総合センター長会議”及び“放射性同位元素等取扱施設安全管理担当教職員研修”を立ち上げた。この会議と研修は現在も毎年開催されている。

センター設立当時は、教員、職員共に若く、スポーツ、レクリエーションが盛んであった。春には上野公園或いは理学部付属植物園での花見、秋には職員旅行、年末にはクリスマスパーティーなどが行われた。先生も積極的に参加された。写真 2、3 にその様子を示す。これらの写真より先生が親しまれていることがよくわかる。また、歴代センター長と職員が集まったの懇談会も開かれ

た。会合に来られたセンター長と先生の写真4に示す。仕事で夜遅くなると出前を取り、時には神田へソバを食べに行き、原研に行った帰りには水戸の偕楽園を散策し牛久付近ではウナギを食べるなどした。これらの時間に実に様々な話を聞かせていただいた。こうして長きに渡り忍耐強く一緒に仕事をさせていただい



写真2 焼き鳥屋さんになった森川先生
クリスマスパーティーにて
(1975. 12. 25)



写真4 歴代センター長と森川先生
センター長室にて (1990. 11. 4)



写真3 森川先生を囲んでの休憩
昇仙峡旅行
(1981. 11. 7-8)

た事、感謝の念に堪えない。

先生は、退官後も顧問として大学等放射線施設協議会の会議に必ずといってよいほど出席されていた。協議会、日本アイソトープ協会より出版された本では編集委員長或いは編集委員となり、細かく校正されていた。

平成25年(2013年)3月14日、先生は真空ラインの前に立っていた。[U-¹⁴C] エタンを用いた実験を行うためであった。[U-¹⁴C] エタンを

ガラスアンプルから取り出した所、ガラスアンプル内に可成り残存していた。この残存をどう考えたらよいか、先生は島村修先生を偲ぶ会(OS会)や齋藤信房先生の門下生の会で可成り議論されていたという。先生のこの一連の振舞いは、先生が生涯、“実験屋”であり、探求心に衰えが亡かった事を如実に示している。

昨年(2016年)10月15日に開かれたセンターのホームcomingディに来られ元気な姿を見せていた。くしくも10月30日、OS会に参加のため行かれた学士会館で急逝された。享年88歳であった。

先生は、アイソトープ実験を下支える研究を多く、センターの設置そして中枢機関として信頼でき頼れるセンターとなるよう努力なされ、また全国の放射線安全管理の向上に尽力された。アイソトープ利用における研究基盤の向上に寄与された。ここに先生の業績を称え、哀悼の意を表します。

時過ぎて

森山裕丈先生を偲んで

佐々木隆之 (京都大学)

森山裕丈先生 (京都大学名誉教授) が 2016 年 11 月 17 日に逝去されました。67 歳でした。1973 年京都大学工学部工業化学科をご卒業後、同大学院工業化学専攻修士、博士課程に進学、1978 年に同課程を単位取得退学、同年京都大学工学部原子核工学教室助手 (大石純先生のご研究室) に採用され、京都大学工学博士の学位を取得されました。同助教授に昇任後、1993 年に熊取キャンパスの京都大学原子炉実験所の教授に昇任し、ホットラボ設備研究部門をご担当されました (その後のご経歴は後述)。森山先生は長きにわたり、化学的なプロセスや放射性核種の物理化学的性質に関する研究を進めてこられました。核燃料サイクルにおけるプロセスの開発・高度化、それに関連する様々な核種の反応機構の理解、さらに一般化 (モデル化) に力を注ぎ、各論研究に留まらない研究姿勢を貫かれました。放射化学に関連する先生のご研究は高温熔融塩系と湿式系の化学に大別されます。前者においては、核融合炉増殖材の次世代候補として注目される液体金属リチウム、リチウム鉛、フッ化物熔融塩材料中でのトリチウムの挙動理解のため、材料中での水素同位体拡散係数を評価するとともに、水素同位体の拡散挙動等を明らかにしました。また、高速増殖炉燃料乾式再処理のための熔融塩分離法開発に係る基礎研究として、フッ化物熔融塩と液体金属の 2 相間における使用済燃料中のアクチノイドや核分裂生成物の分離挙動の解明に取り組みられました。また塩化物熔融塩系に展開し、同核種の溶解度や拡散に係る信頼性の高いデータの整備に尽力され、それに基づいた還元抽出分離プロセスの提案へと導く顕著な功績を挙げられました。これらの研究は核融合炉ブランケット材料であるフッ化リチウム含有材料への中性子照射におけるトリチウムの発生メカニズムの解明や、発生したトリチウムの有効な回収法の開発へと発展しました。さらに、リチウム含有酸化物について、加速器を用いたイオン

ビーム照射時の蛍光分光研究等を進め、照射欠陥に対する材料組成や温度の影響の解明にも取り組みられました。一方後者は、軽水炉使用済燃料の処理プロセス高度化や高レベル放射性廃棄物処分の安全評価に資する溶液化学的研究です。廃棄物に含まれる半減期の長いアクチノイドが処分後に深地層地下水中に溶出し、移行することを考える際、特に 4 価アクチノイドイオンの化学状態や溶解度の熱力学的な記述が将来的な課題となることにいち早く着眼されておいででした。先生は、諸反応の基礎となる加水分解反応に注目し、還元的な雰囲気下でのアクチノイド溶解度や錯生成に関する多くの実験と解析を着実に積み上げられました。決定した溶解度積等は国内外において処分安全評価に用いられる貴重なデータとして扱われています。安全評価上信頼に足るアクチノイドの加水分解定数を単核種や一部の多核種に対するものしかないことから、これを拡充すべく、より高次の加水分解定数を予測するための半経験的な熱力学モデル (剛体球モデル) を提案されましたが、それ以降、自身のモデル計算で得た数値の妥当性を検証する方法を模索しておいででした。

森山先生が無類の煙草好きであったことは国内外で広く知られていました。考え事が始まると無意識に煙草に手が伸びるのです。当時の研究棟廊下に漂う煙草の匂いは在室のサインでした (まだ分煙ルールが無かった時代です)。この原子炉実験所におられた当時は、全国共同利用施設としての管理や運営に多大な貢献をされていたことは言うまでもありません。筆者とは研究室が異なりましたが、実験設備利用において多くのご教示を頂きました。一度相談を持ち掛けると、最後まで面倒を見てくださる姿勢が印象的でした。

さて、先生は 2001 年に熊取から吉田に移られました。2 度目の原子核工学教室です。その 2 年後、筆者が先生の研究室に (熊取から) 准教授として奉職して間もなく、ご懸念であった水溶液中の高

次の加水分解定数およびモデルの妥当性を突き詰めるべく、研究が始まりました。加水分解種（多核種）を直接定量することで加水分解定数を決定できると考え、このアイデアを持って、当時エレクトロスプレーイオン化質量分析法の第一人者である先生を二人で訪れたところ、それは興味深いテーマでチャレンジングな（≡実現できるか厳しそうなので、ここに通って実験するのも大変だからと、装置をお借りできることになりました。先生の愛車で陸路運んだことが懐かしく思い出せます。そして数年越しで4価金属水酸化物（錯イオン）の直接定量に成功し、剛体球モデルの妥当性の検証につながったことは、研究に対する卓越した洞察力と学生時代からの柔道で鍛えられた粘り強さの精神の表れであったと思います。この成果により日本原子力学会賞を戴きました。

当時、学内外のハードな要務をこなされていました。毎晩遅くまで建屋に残っているのは先生と筆者のみ。ふらっと部屋にお越しになり、筆者にはその意味するところの想像もつかない嘆息をもらす先生にコーヒーを出すと、（奥様に）見つかるはずいんやけどなあ、と言いつつ甘い菓子に手を伸ばしておられました。筆者にとっては様々な相談ができる最良の時間でした。激務中ではありましたが、熔融塩と湿式両方の研究をお続けになられ、教育・指導にあたられました。とりわけアクチノイドを用いる実験には学生と泊りがけで京大炉のホットラボラトリに赴き、毎日遅くまで共同利用実験をされておいででした。夜、京大

炉近くの居酒屋で我々と食事をされる時間は先生の束の間の休息だったと思います。ただお酒が入ろうとも、学生に教訓めいた説教を長々とされるのを見たことがありません。稚拙な表現になりますが、誰が相手であれ、当事者が考えていることや状況を的確に酌み、端的に助言することに非常に長けておられました。

さて、このままご定年まで吉田でご活躍と皆が思っていた2009年、先生は再び京大炉に異動されることになりました。研究室の大黒柱を失う私が引き留めようとした際に一言、「まあ、（佐々木）先生が居るから大丈夫やろ」。いつにも増した端的な切り返りで、残した者にある種の覚悟を求めておられるようでした。そして原子炉実験所所長としての重職を3期務められ、燃料返還を始めとする京大炉の諸課題や福島原発事故への対応などに当たられました。先見の明をもつ先生がご在職時に付けられた道筋が京大炉や原子核工学教室（現在の専攻）の将来をどのように導くのか、と思うところです。

2015年春に定年退職されたばかりでした。あまりにも突然の訃報に、まだまだご指導ご鞭撻を賜りたかったのに、という声が各所にあると思います。しかし、筆者が言われたように「まあ、〇〇さんが居るから大丈夫やろ」とお考えであるに違いない、と。その意味で、先生には安らかにお休みいただきたいと思います。森山先生の偉大なご功績を称え、厳しくも温厚なお人柄を偲び、心より哀悼の意を表します。 合唱。

情報プラザ (国際国内会議)

国内会議

2017 日本放射化学会年会・第61回放射化学討論会

日時：2017年9月6日(水)～8日(金)
場所：筑波大学 筑波キャンパス

国際会議

Plutonium Futures - The Science 2016
8th Actinides XAS International Workshop (AnXAS 2017)

日時：11 - 13 April, 2017
場所：Oxford, UK

International Conference on Advances in Liquid scintillation Spectrometry (LSC2017)

日時：1 - 5 May, 2017
場所：Copenhagen, Denmark

International Conference on Radionuclide Metrology (ICRM 2017)

日時：15 - 19, May, 2017
場所：Buenos Aires, Argentina

4th International Conference on Environmental Radioactivity (ENVIRA2017)

日時：29 May - 2 June, 2017
場所：Vilnius, Lithuania

10th International Symposium on Targeted Alpha Therapy (TAT-10)

日時：30 May - 1 June, 2017
場所：Kanazawa, Japan

Fifth International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research (RAD2017)

日時：11 - 16, June, 2017
場所：Budva, Montenegro

Actinides2017

日時：9 - 14, July, 2017
場所：Sendai, Japan

6th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC17)

日時：17 - 22, Sept., 2017
場所：Jeju Island, Korea

9th Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements (CHE 9)

日時：8 - 11, Oct., 2017
場所：Monte-Verità (Ascona), Ticino, Switzerland

学会だより

1. 日本放射化学会第75回理事会 [2015学会 年度第4回理事会] 議事要録抜粋

日時：2016年6月11日（土）13：30－17：35
場所：東大農学部2号館1階講義準備室
出席者：[会長] 中西、[副会長] 工藤、[理事] 橋本、高橋、鈴木、佐々木、羽場、酒井、坂口、大槻、長尾、間柄、[監事] 末木
欠席者：[監事] 永井
オブザーバ：なし
* 委任状提出：なし

報告

- 事務局報告として、前回議事録の確認、会員の動向・会費納入状況、会計の報告ならびにメール回議の報告がなされた。長期未納者について声掛けが有効であるので、今後とも行う要請があった。会和文誌「放射化学」のJ-STAGE登録について検討することになった。「福島復興・廃炉推進に貢献する学協会連絡会規約」について、大槻理事から5月20日の連絡会で承認された旨報告があった。「核化学夏の学校に対する事業補助」については、当面現状のままとし、事情のある時には理事会で議論し増額等を検討することとなった。「日本学術会議事務局 若手科学者ネットワーク」には、坂口理事を代表とし登録することとなった。
- JNRS - メールニュースの現状について、ネット広報委員会より説明があった。
- 日本放射化学会2016-2017学会年度理事会役員選出投票結果について報告があった。副会長には篠原理事候補を推薦することとなった。
- 学会賞について、選考委員長より、学会賞及び奨励賞の選考結果について報告があった。
- 第60回討論会の準備状況について工藤副会長及び酒井理事から報告があった。記念事業として行っている第51回から第59回討論会要旨の

学会HPへのアップロードについて、一部外注が必要との報告があった。

審議

- 学会ホームページの様式替えについて、酒井理事より報告があった。理事限定で公開し、意見を聞いたうえで、一般に公開することになった。
- 永年会員の申請が一件あり、了承された。現時点で申請のない旧永年会員については、再度連絡を取る事となった。
- APSORC小委員会について、工藤副会長より、報告があった。APSORCを日本で開催することに関しては、総会で将来計画として提案することになった。また、小委員会は作らず担当理事を置いて対処することになった。
- 大槻理事より、第61回年会・討論会は筑波にて行うとの提案があり了承された。
- 中西会長より、賛助会員を増やしていきたい旨提案があり、候補があれば提案するよう要請があった。

以上

2. 日本放射化学会第76回理事会 [2015学会 年度第5回理事会] 議事要録抜粋

日時：2016年9月9日（金）15：00－18：30
場所：新潟大学五十嵐キャンパス総合教育研究棟 B254室
出席者：[会長] 中西、[副会長] 工藤、[理事] 橋本、高橋、鈴木、羽場、酒井、坂口、間柄、[監事] 永井、末木
欠席者：[理事] 佐々木、大槻、長尾
オブザーバ：北辻、塚田
* 委任状提出：なし

報告

- 事務局報告として、前回議事録の確認、会員の動向・会費納入状況、会計、ならびにメール回

議の報告がなされた。長期未納者について、手続きを記したメール等を送り返事がなければ除名も視野に検討することとなった。前回金沢で開催した APSORC の残金があり、日本放射化学会で基金を作り管理することとした。

2. JNRS - メールニュースの現状について説明があった。また、学会ホームページのリニューアルについて説明があり、内容について検討する「新 HP コンテンツ検討ワーキンググループ」を設置し検討することになった。検討結果については、第 78 回理事会で報告することとなった。

審議

1. 今総会に学会年度を「9月1日に始まり、翌年8月31日」から「4月1日に始まり、翌年3月31日」に変更するよう会則の変更し、関連する条文および経過措置（付則）を提案することとし、条文について議論した。また、APSORC については、日本放射化学会の会合と位置付けることし、総会で提案することになった。
2. 学会賞のうち「木村賞」の位置づけが規定上不明確であるとの問題提起があり、「日本放射化学会学会賞規定」及び「日本放射化学会学会賞細則」の改正案が提案された。しかし、賞の性格を大きく変えることになることから、会員からのパブリックコメント等の手続きが必要との意見が出た。第 78 回理事会で再度議論することになった。

以上

3. 第 17 回 日本放射化学会総会 報告概要

日時：2016年9月11日（日）15：40 - 16：45

場所：新潟大学五十嵐キャンパス総合教育研究棟

出席者数 74 名、議長委任 74 名、会員数 395 名の 1/5 以上であり成立した。

会則の規定により、中西会長が議長となり、議事が進められた。

報告事項

1. 会長報告
2. 2015 学会年度事業報告

報告事項について、会長より説明があった。トピックスとして、学会ホームページのリニューアルや、第 60 回記念大会行事として整備した、要旨集の PDF 化及び学会ホームページ上での検索機能について紹介があった。過去の手書きの要旨でも検索できる旨紹介があった。予算の活用として、分科会への補助を今後考えていきたい旨発言があった。また、APSORC について、日本放射化学会の行事として行いたい旨、説明があった。

審議事項

1. 収支決算及び会計監査報告

会計担当及び監事から説明があった。会場より、会議費・委員会等の廃炉委員会について質問があった。「福島復興・廃炉推進に貢献する学協会連絡会」である旨説明し、会長よりホームページ上で情報発信したい旨コメントがあった。質疑の後、議決事項は拍手を持って承認された。

2. 会則の変更について

会長より会則変更の提案があった。会場より、6条2の書き方が不明確との指摘があり、「修了の年の年度末」から「修了年度の年度末」に変更することとなった。経過措置として、年度計画について質問があり、今回に限り2年度分作る旨回答があった。付則の（2）の、賛助会員に関する規定に関してコメントがあり、この部分は削除することになった。質疑の後、議決事項は拍手を持って承認された。

3. 2016 学会年度事業計画及び収支予算案

4. 2016-2017 学会年度役員選出

会長及び会計担当から提案があった。討論会補助費の金額、APSORC の剰余金、討論会補助金の支出年度について議論があった。質疑の後、議決事項は拍手を持って承認された。

4. 日本放射化学会第 77 回理事会 [2016 学会年度第 1 回理事会] 議事要録抜粋

日時：2016年9月12日（月）12：30 - 13：10

場所：新潟大学五十嵐キャンパス総合教育研究棟 B254 室

出席者：[会長] 中西、[副会長] 篠原、[理事] 坂口、羽場、間柄、北辻、塚田、渡辺、[監事] 末木、工藤

欠席者：[理事] 酒井、大槻、長尾、大矢

オブザーバ：なし

* 委任状提出：なし

理事の役割分担について会長から提案がありました。総務から、まとめたものを配布することになった。学会誌の発行は学会活動として重要で、インパクトファクターを取るうえで欠番は許されない。JNRS編集委員会委員長にしばらくの間理事会に出席してもらい、現状報告と必要な議論をすることになった。また、学会賞の改革について議論の途中であるので、高橋前理事に次回理事際に出席してもらい、引き続き議論することになった。

5. 日本放射化学会第78回理事会 [2016 学年度第2回理事会] は、2016年12月10日(土)に開催されましたが、議事要録未承認のため、次号にて報告します。

6. 会員動向 (平成28年7月～平成29年1月)

新規入会 (正会員)

| 氏名 | 所属 |
|-------|-----------------------------------|
| 金谷 佑亮 | 公益財団法人核物質管理センター東海保障措置センター東海検査部分析課 |
| 飯島 健 | 株式会社環境管理センター技術センター環境放射能分析グループ |

新規入会 (学生会員)

| 氏名 | 所属 |
|-------|--------------------------------|
| 植村 有希 | 静岡大学大学院総合科学技術研究科理学専攻化学コース大矢研究室 |
| 北中 道大 | 大阪大学理学部化学科放射化学研究室 |
| 竹中 聡汰 | 金沢大学大学院自然科学研究科物質化学専攻放射化学研究室 |
| 草刈 駿 | 新潟大学理学部化学科核化学研究室 |

守山 卓也 新潟大学理学部化学科核化学研究室

池田 卓海 大阪大学理学部化学科放射化学研究室

稲井 優希 大阪大学理学部化学科篠原研究室

田中 康介 首都大学東京大学院理工学研究科分子物質科学専攻同位体化学研究室

西間木史織 尚絅学院大学総合人間科学部生活環境学科齊藤研究室

西山 純平 東北大学大学院理学研究科環境放射化学研究室

村野井 友 東北大学大学院理学研究科放射化学研究室

入会 (賛助会員)

| 社名・団体名 |
|--|
| 公益社団法人日本アイソトープ協会総務部総務課 |
| 関西電力株式会社原子力事業本部放射線管理グループ |
| 東京電力ホールディングス株式会社原子力運営管理部放射線管理グループ兼福島第一廃炉推進カンパニープロジェクト計画部放射線・環境グループ |

所属変更 (正会員)

| 氏名 | 所属 |
|-------|---|
| 大平 茂 | 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構核融合エネルギー研究開発部門六ヶ所核融合研究所 |
| 北辻 章浩 | 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究センター原子力化学ディビジョン分析化学研究グループ |
| 鹿野 弘二 | 函館工業高等専門学校物質環境工学科 |
| 間柄 正明 | 日本原子力研究開発機構安全研究センター燃料サイクル安全研究ディビジョン保障措置分析化学研究グループ |

| | |
|-------|---|
| 森田 貴己 | 国立研究開発法人水産研究・教育機構中央水産研究所海洋・生態系研究センター放射能調査グループ |
| 安田健一郎 | 日本原子力研究開発機構安全研究センター燃料サイクル安全研究ディビジョン保障措置分析化学研究グループ |
| 山名 元 | 原子力損害賠償・廃炉等支援機構 |

退会（学生会員）

| 氏名 | 氏名 |
|------|-------|
| 田中 徹 | 橋本 里紗 |

退会（賛助会員）

| 社名・団体名 |
|-----------|
| 大栄無線電機（株） |

退会（正会員）

| 氏名 | 氏名 |
|-------|-------|
| 徳永 真治 | 西田 哲明 |
| 古田 悦子 | 谷口 拓海 |
| 親松 和浩 | 白橋 浩一 |
| 宮澤 恵美 | |

○2015 学会年度（2015 年 9 月 1 日 - 2016 年 8 月 31 日）決算

収入の部

単位（円）

| 項目 | 予算 | 収入 | 差額 (収入-予算) | 備考 |
|--------|-----------|-----------|---------------|---------------------------|
| 個人会費 | 2,306,000 | 2,165,000 | -141,000 | 正 285 学生 39 入会 3 前払・未払分含む |
| 賛助会費 | 1,200,000 | 450,000 | -750,000 | 9 団体 |
| 雑収入 | 440,000 | 443,350 | 3,350 | 利息、放射化学の事典寄付 |
| 前年度繰越金 | 5,526,980 | 5,526,980 | 0 | |
| 収入合計 | 9,472,980 | 8,585,330 | -887,650 | |

支出の部

単位（円）

| 項目 | 予算 | 支出 | 差額 (予算-支出) | 備考 |
|------------------|-----------|-----------|---------------|------------------------------|
| 討論会補助 | 500,000 | 500,000 | 0 | 2016 年 年会 (60 回) |
| 要旨集補助 | 500,000 | 0 | 500,000 | 2015 年 年会 (59 回) 要旨集無 |
| 出版事業費 | 1,525,000 | 1,537,307 | -12,307 | |
| 事務費 | 10,000 | 0 | 10,000 | |
| 雑誌校正・印刷費 | 1,315,000 | 1,405,733 | -90,733 | 放射化学 32 号、33 号、英文誌、放射化学の事典献本 |
| 送料、封入作業費等 | 150,000 | 120,774 | 29,226 | 放射化学送料、封入作業 |
| J-Stage 用 pdf 化費 | 50,000 | 10,800 | 39,200 | 4 件分 |
| 会議費 | 530,000 | 408,762 | 121,238 | 旅費 |
| 理事会 | 450,000 | 377,582 | 72,418 | 12、3、6 月理事会旅費 |
| 委員会等 | 80,000 | 31,180 | 48,820 | 廃炉委員会旅費 |
| 研究会等補助 | 200,000 | 100,000 | 100,000 | 環境放射能研究会・核化学夏の学校 |
| 事務局経費 | 750,000 | 527,969 | 222,031 | |
| 事務費 | 100,000 | 11,584 | 88,416 | 封筒印刷等 |
| 選挙関係 | 180,000 | 0 | 180,000 | 外部委託費に込 |
| 外部委託費用（会費、会員管理等） | 450,000 | 515,535 | -65,535 | アカデミックスクエア業務委託 |
| 通信費 | 20,000 | 850 | 19,150 | 切手、送信手数料等 |
| ネットワーク管理運営費 | 435,900 | 435,757 | 143 | ネット関係 |
| プロバイダ費用 | 24,500 | 24,439 | 61 | |
| ドメイン更新料 | 11,400 | 11,318 | 82 | |
| HP 整備 | 400,000 | 400,000 | 0 | |
| 学会賞 | 55,000 | 30,672 | 24,328 | 2016 年 年会 |
| 楯 | 40,000 | 0 | 40,000 | |
| 表彰状印刷、額縁 | 15,000 | 30,672 | -15,672 | |
| 共催金 | 5,000 | 0 | 5,000 | |
| 支出合計 | 4,500,900 | 3,540,467 | 960,433 | |
| 繰越金 | 4,972,080 | 5,044,863 | -72,783 | |

○次年度繰越金 5,044,863 円
 (内訳)
 三井住友銀行 68,795 円
 ゆうちょ銀行 4,974,381 円
 現金 1,687 円

○基金等 3,738,365 円
 (内訳)
 基金(黒田基金 40 万円を含む) 2,810,678 円
 記念事業分 627,353 円
 基金(斎藤基金) 300,334 円

合計 8,783,227 円

○2016学会年度(2016年9月1日-2017年3月31日)、2017学会年度(2017年4月1日-2018年3月31日)予算案

収入の部

単位(円)

| 項目 | 2015学会年度 予算(参考) | 2016学会年度 予算(案) | 2017学会年度 予算(案) | 備考 |
|--------|--------------------|-------------------|-------------------|-----------|
| 個人会費 | 2,306,000 | 1,159,500 | 2,319,000 | 2016年度半額 |
| 賛助会費 | 1,200,000 | 1,150,000 | 1,150,000 | 23団体両年度全額 |
| 雑収入 | 440,000 | 0 | 0 | |
| 前年度繰越金 | 5,526,980 | 5,044,863 | 5,474,863 | |
| 収入合計 | 9,472,980 | 7,354,363 | 8,943,863 | |

支出の部

単位(円)

| 項目 | 2015学会年度 予算(参考) | 2016学会年度 予算(案) | 2017学会年度 予算(案) | 備考 |
|---------------------|--------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 討論会補助 | 500,000 | 0 | 200,000 | 2017年度通常の大会補助費 |
| 要旨集補助 | 500,000 | 200,000 | 200,000 | |
| 出版事業費 | 1,525,000 | 780,000 | 1,710,000 | |
| 事務費 | 10,000 | 5,000 | 10,000 | |
| 雑誌校正・印刷費 | 1,315,000 | 700,000 | 1,350,000 | |
| 送料、封入作業費等 | 150,000 | 50,000 | 150,000 | |
| J-Stage用pdf化費 | 50,000 | 25,000 | 200,000 | 2017年度和文誌PDF化 |
| 会議費 | 530,000 | 330,000 | 510,000 | |
| 理事会 | 450,000 | 300,000 | 450,000 | |
| 委員会等 | 80,000 | 30,000 | 60,000 | |
| 研究会等補助 | 200,000 | 150,000 | 300,000 | |
| 事務局経費 | 750,000 | 260,000 | 740,000 | |
| 事務費 | 100,000 | 30,000 | 100,000 | |
| 選挙関係 | 180,000 | 0 | 180,000 | 2017年度選挙年 |
| 外部委託費用(会費、 会員管理) | 450,000 | 225,000 | 450,000 | |
| 通信費 | 20,000 | 5,000 | 10,000 | |
| ネットワーク管理運営費 | 435,900 | 24,500 | 24,500 | |
| プロバイダ費用 | 24,500 | 24,500 | 24,500 | |
| ドメイン更新料 | 11,400 | 0 | 0 | |
| HP整備 | 400,000 | 0 | 0 | |
| 学会賞 | 55,000 | 130,000 | 90,000 | |
| 楯 | 40,000 | 130,000 | 60,000 | 2015年度振込遅2016年度に込 |
| 表彰状印刷、額縁 | 15,000 | 0 | 30,000 | |
| 共催金 | 5,000 | 5,000 | 5,000 | |
| 予備費(繰り越し) | 4,972,080 | 5,474,863 | 5,164,363 | |
| 支出合計 | 9,472,980 | 7,354,363 | 8,943,863 | |

「放射化学」規定など

「放射化学」論文編集委員会規定

(名称)

第1条 この規定は、日本放射化学会（以下、本会という）会則第28条に基づき、日本放射化学会の和文誌「放射化学」の「放射化学」編集委員会を設置し、その運営に当たるために定める。

(編集委員会の構成)

第2条 編集委員会は、編集委員長1名、編集担当理事1名、並びに編集委員約5名で構成する。編集委員長は、前委員長の推薦により選任され、理事会の承認を得て、会長が任命する。編集委員は、編集委員長の推薦により選任され、理事会の承認を得て会長が委嘱する。

第3条 編集委員長および編集委員の任期は2年とし、重任を妨げない。

(編集委員会)

第4条 編集委員会は、次の事項について企画・審議し、「放射化学」の継続的な発行を行う。

- (1) 「放射化学」誌の編集および発行に関すること
- (2) 「放射化学」誌への投稿論文の審査に関すること
- (3) 「放射化学」誌の編集委員長候補者及び編集委員候補者の推薦に関すること

(「放射化学」誌の発行)

第5条 本会が発行する「放射化学」誌は、1年に2回発行し、それぞれ異なる巻数を割り振る。

(論文の審査)

第6条 編集委員会は、「放射化学」へ投稿された論文に対して、担当編集委員1名を決定する。審査を要する記事については、担当編集委員は審査員1名を選出し、審査を依頼する。

第7条 論文審査の手続きは、別に定める審査内規による。

第8条 本規定の改定は理事会の決議による。

付則 この規定は、2013年1月1日から施行する。

「放射化学」発行規定

(目的)

第1条 日本放射化学会和文誌「放射化学」は、日本放射化学会（以下、本会）の目的を達成するために、
(i) 放射化学並びにその関連領域における重要な進歩を含む学術論文と (ii) 会員および関連分野の研究者にとって有益な最新トピックスをまとめた記事を掲載する。

(「放射化学ニュース」との関係)

第2条

「放射化学」は「放射化学ニュース」(2012年まで発行、第26号が最終号)の後継誌であり、創刊年は2013年、巻数は第27巻からの発行とする。

(掲載記事)

第3条 「放射化学」は審査付き論文とそれ以外の放射化学関連分野の最新トピックスを掲載する。前者には、原著論文、総説論文、短報の各欄を設け、後者はこれまでの「放射化学ニュース」を引き継ぎ、

様々な記事を積極的に掲載する。

1. 審査付き論文

1-1. 原著論文は、新規な内容にもとづき論理的に明瞭な結論を含む学術論文をいう。

1-2. 総説論文は、当該分野のこれまでの研究の進展を専門的な立場から解説する学術論文とする。

1-3. 短報は、重要な研究成果を含んだ短い学術論文で、編集委員会は特に迅速な公表を行う。(未完でも学術的価値が高い学術論文を含む。)

1-4. この他に、編集委員会が認めた場合、上記以外の学術情報を掲載することがある。

2. 審査付き論文以外の記事

上記審査付き論文以外は固定した枠にとらわれない内容とし、主に各種特集記事、解説、トピックス、学位論文要録、施設だより、学会だより、研究集会だより(国内・国外)、情報プラザなどを掲載する。

3. 審査付き論文(第3条第1項)の投稿規則を第4条以降に定めるが、審査付き論文以外の記事(第3条第2項)に関する投稿規則は特に定めず、編集委員会の編集方式に従う。また本会の英文の論文誌 *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences* の発行規則は別に定める。

「放射化学」論文投稿規則

(投稿論文と依頼論文)

第4条 論文は投稿によるものと編集委員会からの依頼によるものとする。

(著者)

第5条 著者は本会会員であることを要しない。

(原稿の作成)

第6条 使用言語は日本語とする。

第7条 投稿論文の作成は、別に定める「放射化学」投稿の手引き(以下、「投稿の手引き」)に従うものとする。

第8条 原著論文、総説論文、短報以外の記事については、第6条、第7条に依らない形で原稿を作成できる。

(論文の受け付け)

第9条 原稿が、「投稿の手引き」に定める「投稿先」に到着した日付けをもって、論文の受付日とする。

(審査)

第10条 編集委員会は、査読者を委嘱して論文の掲載に関する意見を求め、掲載の可否に関する審査を行う。掲載可となった日付けをもって受理日とする。投稿によるものと依頼によるものに関わらず、編集委員以外の査読者の意見を参考として、編集委員会が掲載の可否を決定する。

(論文の掲載)

第11条 掲載可となった論文は、速やかに論文誌上および論文誌 web サイトに掲載する。

(掲載料、別刷り)

第12条 論文および各種記事の掲載料は徴収しない。別刷りを作成する場合には実費を著者負担とする。

(原稿料)

(著作権)

第13条 論文誌に掲載された全ての論文等の著作権は本会に帰属する。原著論文、総説論文、短報については、著者は論文受理後速やかに「著作権譲渡同意書」を本会に提出しなければならない。

(本規則の改定)

第14条 本規則の改定には理事会の決定を要する。

付則 この規則は、2015年10月1日から施行する。

「放射化学」論文投稿の手引き

1. はじめに

この「投稿の手引き」は日本放射化学会（以下、本会）和文誌「放射化学」論文投稿規定に基づき、編集委員会にて原稿の作成の指針として制定されたものである。

2. 投稿に際しての注意事項

- 1) 採否が決定するまで同一趣旨の論文を他誌に投稿してはならない。
- 2) 他誌に投稿中の論文を投稿してはならない。
- 3) 投稿後の著者に関する変更は認めない。
- 4) 図版を転載する場合は、著者にて転載許可を著作権者より得ること。
- 5) 投稿原稿は以下の「3. 原稿作成時の注意事項」に従って作成し、その電子ファイル（PDF ファイル、MS-Word ファイルなどが望ましい）を編集委員会に電子メールにより送付する。到着次第、編集委員長より受付日が記載された受け取りの電子メールが送付される。

3. 原稿作成時の注意事項

- 1) (原稿の構成) 原稿は以下の順でそれぞれ改ページして編成する。(1) 表紙（論文題名、著者名、研究の行われた機関、同所在地などを記す）、(2) 要旨およびキーワード（5つ程度）、(3) 本文、(4) 引用文献、(5) 表、(6) 図、(7) 図の説明文。
- 2) (原稿の形式) A4 用紙を縦方向として、横書きに印字し、1 ページに 25 行程度とする。
- 3) (原稿の長さ) 短報以外は制限を設けない。短報は図表を含めて刷り上り 4 ページ以内を原則とする。なお刷り上がり 1 ページは約 2000 字であり、図・表は 1 枚につき 500 字とカウントする。
- 4) (要旨) 要旨として英文要旨（250 語以内）および和文要旨（400 字以内）の両方をつけること。
- 5) (引用の形式) 番号順とする。最初に引用された箇所の順で引用文献を並べる。引用文献の記載方法はアメリカ化学会発行の雑誌と同形式とする。なお本形式は本会の *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences* 誌と同様である。
- 6) (表) 表は説明も含めて英文で作成する。本文中では **Table** として引用する。
- 7) (図) 図は説明も含めて英文で作成する。本文中では **Fig.** として引用する。なお投稿時のファイルサイズは 10 Mbyte を超えないこと。
- 8) (その他) 図表などの数値や軸の表記では物理量 / 単位の形式をとることとし、物理量（単位）の表記は用いない。(例: **Time/min** とし、**Time (min)** は用いない。)
- 9) (カラーの図表) カラーの図表を掲載する場合には、原則として実費を著者負担とする。なお、論文誌 web サイト公開用の PDF 版については無料でカラーとすることができる。
- 10) (注意事項) 上記に著しく逸脱した原稿については、受け付けないで返却することがある。

4. 校正および論文誌発行後の正誤訂正

- 1) 著者校正は 1 回行う。返送期日に著しく遅れた場合には編集委員会の校正のみで校了とする。
- 2) 発行後 6 ヶ月以内に著者から訂正の申し出があった場合には、正誤訂正に関する記事を掲載することがある。

5. 投稿先

〒 351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

理化学研究所 仁科加速器研究センター 羽場宏光 編集委員長

Fax: 048-461-5301

e-mail: houshakagaku@radiochem.org

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。

☆ ☆ ☆

「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、以下の web ページを参照し、事務局（jnrs@ac-square.co.jp）までご連絡下さい。

会員情報変更等の手続き：<http://www.radiochem.org/community/update.html>

放射化学

第 35 号

平成 29 年 (2017 年) 3 月 29 日発行

編集

日本放射化学会編集委員会

委員長：羽場宏光、委員：桐島 陽、齊藤 敬、佐藤 渉、関本 俊、鷺山幸信

連絡先：〒 351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1 理化学研究所仁科加速器研究センター

羽場宏光 (e-mail: houshakagaku@radiochem.org)

発行

日本放射化学会

出版・広報担当理事：高橋嘉夫

Web: <http://www.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。

賛助会員

株式会社アトックス

クリアパルス株式会社

サンゴバン株式会社

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

長瀬ランダウア株式会社

株式会社日本環境調査研究所

株式会社日立製作所

富士電機株式会社

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社

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

公益社団法人 日本アイソトープ協会

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

公益財団法人 日本分析センター

公益財団法人 放射線影響協会

一般財団法人 放射線利用振興協会

関西電力株式会社

九州電力株式会社

中国電力株式会社

中部電力株式会社

東京電力ホールディングス株式会社

北海道電力株式会社

厳しく

子やこ

メイトナド。



原子力発電所、原子燃料サイクル施設などの管理、保全に携わってきたアトックス。その高度な技術とノウハウの蓄積をもとに、RI関連施設分野でも広く社会に貢献しています。大学、研究機関や製薬メーカーなど、RI等使用施設における放射性汚染除去、廃棄物処理、放射線管理から施設、設備の運転、点検保守まで、トータルメンテナンスを提供。人と地球の未来のために、安全で快適な環境を守るアトックスです。

＜業務内容＞

- 原子力発電関連施設、原子燃料サイクル施設のトータルメンテナンス
 - 放射線管理
 - 放射性汚染除去
 - 廃棄物処理
 - ランドリー
 - 清掃・区域管理
 - 設備/装置運転・点検保守
 - 輸送
 - 分析
 - 各種工事 など
- RI等使用施設のトータルメンテナンス
 - 放射線管理
 - 作業環境測定
 - 放射性汚染除去
 - 廃棄物処理
 - 管理区域内清掃
 - 施設/設備運転・点検保守
 - 加速器運転
 - フィルター交換
 - 各種工事
 - 機器販売、同位体販売、モニター販売 など



株式会社 アトックス

URL: <http://www.atox.co.jp/> <http://www.atox-isotope.jp/> (同位体販売)

本社 東京都港区芝4-11-3 芝7ビル TEL.(03)6758-9000 FAX.(03)3453-3821
 事業部 東京都港区芝4-11-3 芝7ビル TEL.(03)6758-9005 FAX.(03)3453-3822
 技術開発センター 千葉県柏市高田1201 TEL.(04)7145-3330 FAX.(04)7145-3649
 ● RI事業開発部署 東京都港区 TEL.(029)266-1331 / 東京営業所 TEL.(04)7141-1321
 大塚営業所 TEL.(06)6384-6730 / 神戸医療事業オフィス TEL.(078)599-6851 / 北海道営業所 TEL.(0955)52-3241

クリアパルス（株）が提供する主要製品

自社開発のハイブリッドICを用いた低雑音プリアンプ
 低雑音スペクトロスコープアンプリファイア
 高性能パルスハイトアナライザ
 多チャンネルプリアンプ、多チャンネルアンプリファイア、多入力PHA
 CdTe検出器プローブ、CsI(Tl)検出器プローブ、NaI(Tl)検出器プローブ、プラスチック検出器プローブ
 電離箱、環境モニタ、高圧バイアス電源、NIMピン電源、ミニピン電源
 電流電圧変換器、マルチワイヤビーム位置モニタ回路
 加速器制御機器、信号変換器、アナログ/デジタル制御器
 データ計測・収集・転送システム
 その他物理計測器、特注機器



4066型アンプ



1216型PHA



6671型バイアス電源



580型プリアンプ



8868A型IVC



E6660ミニピン電源



8630型ハンドポン



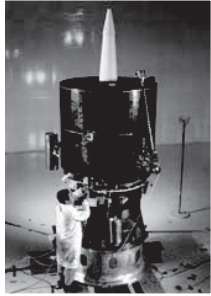
80110型プリアンプ



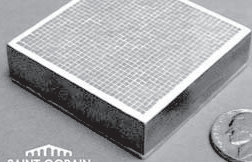
80112型MPX



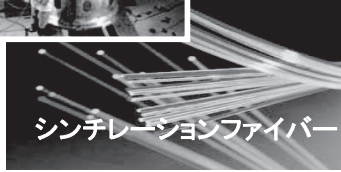
LYSO、LaCl₃、LaBr₃、NaI、CsI、BGO、CdWO₄、ZnS、YAG ...
 プラスチック、ファイバー、液体シンチレータ、アレイ状シンチレータ、
 ライトガイド、GM管、比例計数管、³He検出器等
 サンゴバンは、素材からプローブ・特殊用途まで、
 グローバル・スタンダードな最高品質のシンチレータを提供いたします。



イメージング用アレイ



SAINT-GOBAIN CRYSTALS



シンチレーションファイバー



プラスチックシンチレータ



サンゴバン株式会社

〒102-0083 東京都千代田区麴町 3-7

Tel 03-3263-0559 Fax 03-5212-2196

URL <http://www.detectors.saint-gobain.com/>

お問合せ yasuo.watanabe@saint-gobain.com

(担当 渡辺)



個人線量測定サービス

お客様の安全と安心に貢献します

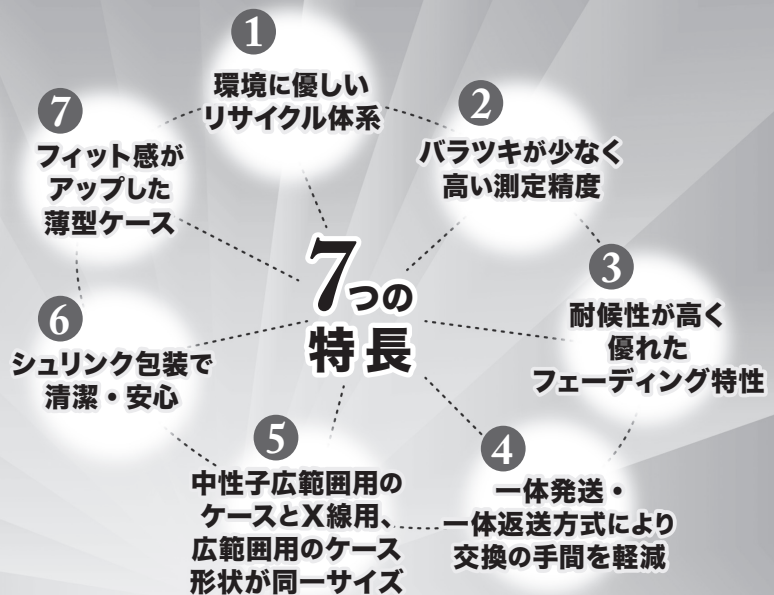
ガラスバッジモニタリングサービス



ガラスバッジ



ガラスリング



株式会社 千代田テクノ

<http://www.c-technol.co.jp>

ctc-master@c-technol.co.jp

ガラスバッジ

検索

TNSは エネルギーエンジニアリングの あらゆるステージで あなたをサポートします。

TNSは原子力・アイントープに関する高度な知識と技術を駆使し、設計から施設の廃止にいたるまでのあらゆる段階でサポート業務を展開するとともに、先端技術分野における研究・開発においても、質の高いサポートを提供いたします。



安全設計・評価

- 施設設計
- 遮蔽設計
- 安全評価
- RII施設の申請業務代行

施設の管理・運営

- 大規模施設の運用管理
- 放射線管理

研究及び技術開発サポート

- 研究サポート
- 技術開発サポート

受託試験研究

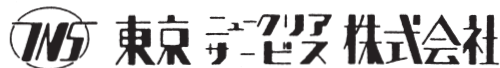
- 環境物質の分析
- 環境物質の挙動解析
- トレーサ試験
- 解体廃棄物の物理特性試験

工 事

- 施設の保守・点検
- 施設の解体工事
- 施設の改造工事

機器販売

- 放射線管理区域の空調機器の販売
- 放射線管理区域用機器の製造・販売



東京本社：東京都台東区台東 1-3-5 (反町ビル 7F) 〒110-0016 TEL.03 (3831) 7957
 東海営業所：茨城県那珂郡東海村村松字平原 3129-31 〒319-1112 TEL.029 (282) 3114
 つくば開発センター：茨城県つくば市緑ヶ原 4-19-2 〒300-2646 TEL.029 (847) 5521
 大阪事業所：大阪府中央区内本町 1-2-5 (YSK ビル 5F) 〒540-0026 TEL.06 (4792) 3111
 六ヶ所事業所：青森県上北郡六ヶ所村大字尾駿宇野附 1-4 〒039-3212 TEL.0175 (71) 0710



個人被ばく線量測定 クイクセルバッジサービス

- ◆ラベルの表記がリニューアルされ、見やすくなりました。
- ◆バッジの形状の変更により、着用感がさらにUP。
- ◆測定原理は、ルクセルバッジと同じOSL線量計を用いています。
- ◆バッジ製造の国内化を実現し、安定供給を可能にしました。



本社／〒300-2686 茨城県つくば市諏訪C22街区1 Tel. 029-839-3322 Fax. 029-836-8441
 大阪営業所／〒550-8668 大阪府西区新町1-1-17 Tel. 06-6535-2675 Fax. 06-6541-0931
 ホームページアドレス／<http://www.nagase-landauer.co.jp>

ラジオアイソトープ(RI)取扱施設

RADIOISOTOPE(RI) HANDLING FACILITY

加速器取扱施設

ACCELERATOR HANDLING FACILITY

原子力施設

NUCLEAR POWER FACILITY

放射線モニタリング
施設の総合管理
施設・設備の設計・監理
放射能分析・測定
管理区域解除工事
コンサルタント業務
PET被験者管理システム

放射線管理
除染工事
放射能分析測定
原子力・核燃施設 D&D技術開発・事前調査・工事
コンサルタント業務

特殊施設管理技術の研究開発
放射線防護用品と機器の開発
除染関連技術の研究開発
研究・開発・調査業務の受託

技術開発・研究

TECHNOLOGY STUDY AND DEVELOPMENT

ALARA
As Low As Reasonably Achievable

JAPAN ENVIRONMENT RESEARCH CO., LTD.

株式会社 日本環境調査研究所

ホームページ <http://www.jer.co.jp/>

本社：〒160-0023 東京都新宿区西新宿 6 丁目 24-1
技術開発研究所：〒342-0008 埼玉県吉川市旭 8 番 3
青森営業所：Tel.0175-75-2130 東京営業所：Tel.048-991-9461
仙台営業所：Tel.022-715-6081 静岡営業所：Tel.0537-86-7176
柏崎営業所：Tel.0257-21-4868 掛川オフィス：Tel.0537-28-8181
福島営業所：Tel.0244-26-5245 名古屋営業所：Tel.052-588-5875
茨城営業所：Tel.029-860-5073 大阪営業所：Tel.06-4963-2500

Tel.03-5322-2271 Fax.03-5322-2272
Tel.048-991-9461 Fax.048-991-9460

作業環境測定機関11-4(放射性物質) ISO9001:2008認証

非密封放射性同位元素取扱施設(技術開発研究所)

管工事業/建具工事業/とび・土木事業/機械器具設置工事業

一般労働者派遣事業 高度管理医療機器等販売業・賃貸業

AccuFLEX

LSC-8000

HITACHI

Inspire the Next

Accuracy and Flexibility

様々な場面で求められる測定結果を提供する
スピーディーに、効率よく、正確に。
その想いを込め AccuFLEX LSC-8000 が誕生しました。

1962年 国産初の
液体シンチレーションシステム開発から約50年

従来製品より培われた性能・機能に、
当社の英知と先進技術を合わせ充実した
分析性能、メカニカル性能をここに実現しました。
みなさまの研究のパートナーとして、
先進技術のパフォーマンスを実感してください。



 株式会社 日立製作所

AccuFLEXは、株式会社日立製作所の登録商標です。

www.hitachi.co.jp/healthcare

富士電機の放射線測定器

より正確に より簡単に

富士電機では、放射線管理システムをはじめ、放射線管理における様々な用途に応じた測定器類を取り揃えています。

〔取扱製品〕

放射線モニタリングシステム
R I 排水管理システム
出入管理システム
非密封 R I 管理システム
従事者管理システム

各種サーベイメータ
個人線量計／環境線量計
モニタリングポスト
ホールボディカウンタ
体表面モニタ
食品放射能測定システム
その他



富士電機株式会社 放射線システム部

東京都日野市富士町1番地 〒191-8502 TEL 042 - 585 - 6024

<http://www.fujielectric.co.jp/> mail fric-info@fujielectric.co.jp

営業所

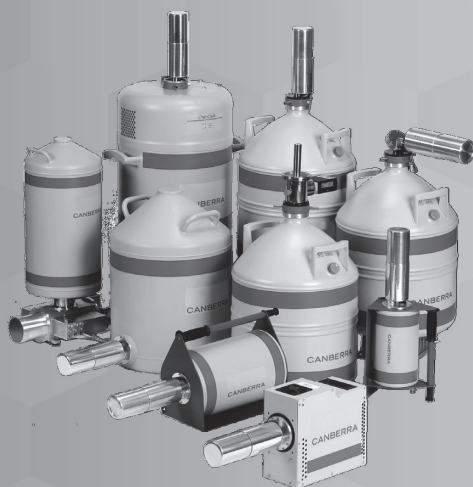
| | | | |
|-----|------------------|-----|------------------|
| 北海道 | TEL 011-221-5482 | 東 北 | TEL 022-716-0203 |
| 東 京 | TEL 042-585-6024 | 中 部 | TEL 052-746-1032 |
| 関 西 | TEL 06-6455-3891 | 九 州 | TEL 092-262-7844 |



MIRION
TECHNOLOGIES

CANBERRA

放射化学のための測定システム



ゲルマニウム半導体検出器



InSpector1000™ : 可搬型
デジタルスペクトロサーベイメータ



PIPS 荷電粒子検出器



ISOC™ :
ガンマ線分析システム



FASTSCAN™ :
ホールボディカウンタ

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社

URL : <http://www.canberra.com/jp/> E-mail : jp-sales@canberra.com

東京本社

03-5835-5402

大阪営業所

06-4806-5662



公益財団法人 原子力安全技術センター

放射線障害防止法に基づく登録機関業務

登録検査機関

問い合わせ先: 03-3814-7301

使用施設、貯蔵施設、廃棄施設等の施設検査・定期検査及び定期確認

登録定期確認機関

登録運搬物確認機関

問い合わせ先: 03-3814-7483

承認容器による輸送の運搬物確認

登録運搬方法確認機関

承認された積載方法による輸送の運搬方法確認

登録認証機関

問い合わせ先: 03-3814-7301

放射性同位元素装備機器の設計認証



登録資格講習機関

問い合わせ先: 03-3814-7100

第1種、第2種及び第3種の放射線取扱主任者免状取得のための講習

登録試験機関

問い合わせ先: 03-3814-7480

第1種及び第2種の放射線取扱主任者試験

登録定期講習機関

問い合わせ先: 03-3814-5746

放射線取扱主任者の資質向上のための講習

私たちは放射線障害防止法に基づく登録を受け、国に代わり、法令で定められた資格要件を備えた検査員、確認員、講師等によって業務を行っています。

〒112-8604
東京都文京区白山5丁目1番3-101号 東京富山会館ビル4階
ホームページ <http://www.nustec.or.jp/>

アイソトープと放射線を用いた研究に携わる全ての皆さまへ

参加者募集

第54回

アイソトープ・放射線研究発表会

会期: 2017年7月5日(水)～7日(金)
場所: 東京大学弥生講堂(東京都文京区)
参加費: 事前登録4,000円 当日登録5,000円
※学生は無料

詳しくはホームページをご覧ください。

日本アイソトープ協会



 Japan Radioisotope Association
<http://www.jrias.or.jp/>

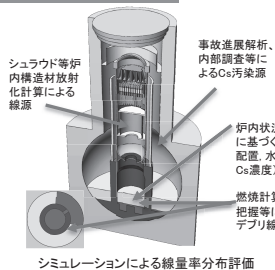
日本原子力研究開発機構は、東京電力ホールディングス福島第一原子力発電所(1F)の廃止措置と、ふくしまの環境回復と住民の早期帰還に向けた研究開発に取り組んでいます。

オンサイトでの取り組み

廃止措置等に関する研究開発



廃炉国際共同研究センター (CLADS)
国際共同研究棟 (完成イメージ図)



シミュレーションによる線量率分布評価

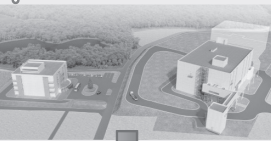
福島県に、「遠隔操作機器・装置開発・実証施設」及び「放射性物質分析・研究拠点」を整備し、福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた研究開発を遂行します。

格納遠隔技術開発センター



- 原子炉格納容器下部の漏洩箇所補修技術の実証試験
- 遠隔操作ロボット等の開発実証
- 作業員の訓練、人材育成

大気分析・研究センター (完成イメージ図)



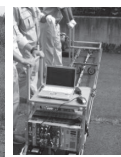
- 低・中線量のがれき類、焼却灰、樹木、水処理二次廃棄物などの分析
- 燃料デブリ、高線量のがれき、水処理二次廃棄物などの分析

オフサイトでの取り組み

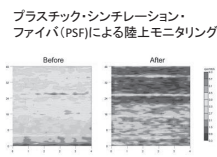
モニタリング・マッピング



航空機モニタリング



PSFによる測定の様子



測定結果

福島長期環境動態研究プロジェクト(F-TRACE)



ダム調査



放射性セシウムの特殊な吸着挙動を説明



福島県環境創造センター (三春町施設)



国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地1
TEL: 029-282-1122 (代表)
ホームページ: <http://www.jaea.go.jp>



環境放射能、安定同位体比等の分析専門機関です

① 環境放射能に関する分析



セシウム137などのガンマ線放出核種、トリチウム、炭素14、クリプトン85、ストロンチウム90、キセノン133、トリウム、ウラン、プルトニウムなど、あらゆる放射能の分析を行います。

相互比較分析

放射性核種を添加し作製した標準試料等を、分析機関と日本分析センターが分析し、結果を比較検討しています。



② 精度管理

技能試験

玄米を微粉砕して調製した試料を用いて玄米中放射性セシウム分析の技能試験を定期的実施しています。



③ 環境放射能分析研修

環境放射線モニタリングや食品の放射能分析の担当者を対象とした研修を行います。その他にご要望に応じた研修にも対応可能です。



ISO9001 認証取得 (2000年) ISO/IEC17025 認定取得 (2002年)
ISO/IEC27001 認証取得 (2009年) ISO14001 認証取得 (2010年)
JCSS[放射線、放射能、中性子]登録 (2010年)

JCAC 公益財団法人 日本分析センター
Japan Chemical Analysis Center

問合せ先

公益財団法人 日本分析センター 企画・総務部
<http://www.jcac.or.jp> e-mail webman@jcac.or.jp

〒263-0002 千葉県千葉市稲毛区山王町295番地3
電話: 043-423-5325 F AX: 043-423-5372

放射線分野における科学技術の進展に貢献しています



～ 主な業務 ～

- 放射線影響に関する知識の普及
- 放射線影響に関する研究活動への奨励助成、顕彰
 - 放射線影響に関する調査研究
 - ICRP調査・研究連絡会の運営
- 原子力施設及び除染等事業場で働く放射線業務従事者の被ばく線量の一元的な登録管理
 - RI施設で働く放射線業務従事者の被ばく線量の登録管理
 - 放射線管理手帳制度の運用管理
- 国の指定を受けた放射線管理記録等の保存業務（原子力、除染、RI等）
- 原子力施設等で働く放射線業務従事者を対象にした低線量長期間被ばくによる健康影響の疫学調査

公益財団法人 放射線影響協会

〒101-0044 東京都千代田区鍛冶町1-9-16 丸石第2ビル5階
TEL 03-5295-1481 FAX 03-5295-1486 <http://www.rea.or.jp>

放射線従事者中央登録センター

TEL 03-5295-1786 FAX 03-5295-1486

放射線疫学調査センター

TEL 03-5295-1494 FAX 03-5295-1485

放射線利用事業の振興と

原子力の利用に係る知識及び技術の普及を振興するために

◆ 放射線・原子力利用の普及事業

- ・ 技術誌「放射線と産業」の刊行
- ・ 「放射線プロセスシンポジウム」の支援

◆ 照射サービス事業

- ・ **ガンマ線・電子線照射**：材料の耐放射線性試験、材料改質などいろいろな照射ニーズに応えます
- ・ 中性子照射：シリコンの半導体化

◆ 技術移転事業

- ・ 産業界からの中性子利用のいろいろなニーズに応えます

◆ 原子力研修事業

- ・ 第3種放射線取扱主任者講習
- ・ 教員免許状更新講習
- ・ 放射線業務従事者のための教育訓練
- ・ 原子力・放射線に関する研修会の開催

一般財団法人放射線利用振興協会

<http://www.rada.or.jp>

本部・東海事業所：〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4 TEL 029(282)9533

高崎事業所：〒370-1207 群馬県高崎市綿貫町1233 TEL 027(346)1639

賛助会員はこのスペースに無料で広告を掲載することができます（年2回以上）

日本放射化学会 賛助会員募集

本会の学会活動にご参加頂ける賛助会員をご紹介下さい

連絡先： 日本放射化学会事務局

E-mail: office@radiochem.org