ISSN 1345-2754
2015年9月

放　射　化　学

第32号

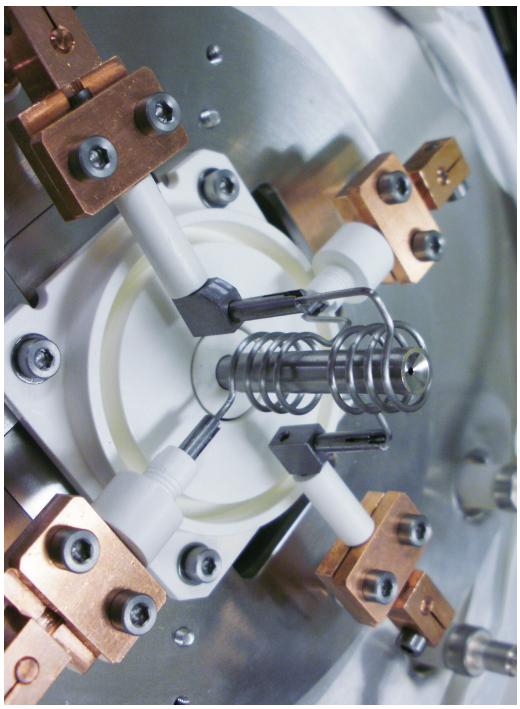
総説

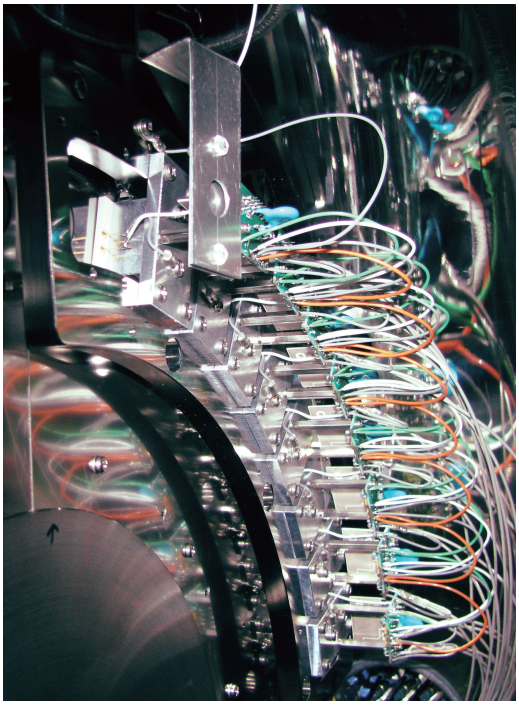
β-NMRによる物質科学研究の新展開

アイソトープ治療のためのアルファ放射体の製造

解説

表面電離法によるローレンシウムのイオン化エネルギー測定





JNRS 日本放射化学会
The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences

放射化学

第 32 号

平成 27 年（2015 年）9 月 17 日

目次

総説

β-NMR による物質科学研究の新展開（三原基嗣）…… 1

アイソトープ治療のためのアルファ放射体の製造（鷲山幸信）…… 11

解説

表面電離法によるローレンシウムのイオン化エネルギー測定（佐藤哲也）…… 34

温故知新

放射能と歩んだ 40 年 – 低レベル放射能実験施設（LLRL）と共に –（山本政儀）…… 42

留学報告

ワシントン大学（UW）での一年間（渡辺茂樹）…… 55

ブリュッセル自由大学留学記（日高義浩）…… 60

談話室

帰還困難区域を訪れて（堀まゆみ）…… 62

会議報告

第 16 回環境放射能研究会（北川潤一）…… 68

10^{th} International Conference on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry（MARC X）（小豆川勝見）…… 70

15^{th} International Workshop on Targetry and Target Chemistry（WTTC-15）に参加して（渡辺茂樹）…… 72

5^{th} International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements（TAN 15）（浅井雅人）…… 74

大強度電子ビームとその応用利用（東北大学電子光理学研究センター研究会）
（菊永英寿・柏木　茂）…… 76
第 4 回京都大学原子炉実験所原子力安全基盤科学研究シンポジウム（京都大学原子炉実験所）…… 79
9th Symposium on Targeted Alpha Therapy（9th TAT）（鷲山幸信）…… 80
第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会（矢納慎也）…… 83

情報プラザ（国際国内会議） …… 85

学位論文要録
Solid-Liquid Extraction of Element 104, Rutherfordium, in Aliquat 336/HCl System:Observation of Equilibration of Chemical Reaction for Transactinide Elements（横北拓哉）…… 87
Thermal Behavior of Al and In Impurities Doped in ZnO Studied by Means of Perturbed Angular Correlation Spectroscopy（小松田沙也加）…… 89

学会だより …… 92

2015 日本放射化学会年会・第 59 回放射化学討論会プログラム …… 98

「放射化学」論文編集委員会規定 …… 113

賛助会員リスト
広告

表紙の説明

解説「表面電離法によるローレンシウムのイオン化エネルギー測定」より。左）原子力機構オンライン同位体分離器（JAEA-ISOL）用ガスジェット結合型表面電離イオン源。Lr の第一イオン化エネルギー測定のために開発された。
右）ISOL-MANON（回転円盤型 α 線連続測定装置（内部）。JAEA-ISOL 末端に設置され、高効率で α 線の連続測定をおこなう。

放射化学　第 32 号　2015, pp. 1-10

総　説

β-NMR による物質科学研究の新展開

New developments of materials science study by means of β-NMR spectroscopy

三原基嗣
大阪大学大学院理学研究科
〒 560-0043　大阪府豊中市待兼山町 1-1

Mototsugu Mihara
Graduate School of Science, Osaka University
1-1, Machikaneyama, Toyonaka, Osaka 560-0043, Japan

（2015 年 8 月 11 日受理）

要旨

短寿命核から放出される β 線の検出を利用して核磁気共鳴を検出する β-NMR 法は、非常に高い NMR 検出感度を有し、ビームとして外部から様々な元素プローブを試料に導入できるという特徴をもつため、従来の NMR では観測できないような超希薄不純物の物質内部での振る舞いを調べることが可能になる。我々は、重イオン加速器や小型のバンデグラフ加速器を用いて β-NMR による核物性研究を行っている。本稿では、まだ明確な結果が出ていないものも含め、今後新たな展開が起こるかもしれない研究についていくつか紹介したい。実験手法開発の中から、プローブ核として用いるスピン偏極不安定核ビーム生成、およびスピンエコー法の β-NMR への適用に関する研究について述べる。また、これらを用いた物性研究として、電池材料、半導体および液体試料中の β-NMR について紹介する。

キーワード

核磁気共鳴、短寿命核、核物性、希薄不純物、物質科学

Key words

NMR, Short-lived nucleus, Nuclear solid state physics, Dilute impurities in materials

1. はじめに

核スピン偏極した短寿命核（プローブ核）を物質中にインプラントし、プローブ核から放出される β 線の検出を利用して NMR を観測する β-NMR 法は、これまでに金属、半導体、イオン結晶など様々な物質に適用され、超希薄不純物の局所電子状態や動的性質、あるいは磁性などの研究に応用されてきた。β-NMR 法の特色［1］としては、

・超高感度である。
・様々な元素をプローブとして利用できる。
・試料とプローブの種類の組み合わせを自由に選べる。
・同位体の存在により、プローブ核のスピン、核モーメント、寿命などの自由度がある。

などが挙げられる。β-NMR は、検出効率の高い β 線の検出を利用することと、核反応等により高い核スピン偏極が得られることにより、非常に高い NMR 検出感度を示す。従来の NMR では、$10^{18–22}$ 個程度のプローブ核が NMR 信号検出に必要であるのに対して、β-NMR ではのべ $10^{8–10}$ 個程度と非常に少なくてよい。従って、例えば半導体中のドーパント不純物（濃度 10^{14-18} cm^{-3}）に対して、従来の NMR では不可能であった低濃度領域での測定が β-NMR で可能となり、ドーパント不純物の振る舞いを直接的に観測できるよう

になる。核磁気モーメント（μ）が既に分かっている不安定核は、β-NMR プローブ核として利用できる可能性を持っている。そのような核種は、近年の不安定核ビーム生成技術の発展により増え続けており、Fig. 1 に示した核図表のように軽い領域ではほぼ全ての元素を網羅している。既知の μ を用いることにより内部磁場の探索を可能にし、また電気四重極モーメント（Q）が分かっていれば､電場勾配の探索が可能になる。ただし、β-NMR が観測されるためには、プローブ核が β 崩壊するまで偏極が保持されていなければならない。従って、プローブ核の半減期は打ち込まれた試料中でのスピン - 格子緩和時間 T_1 と同程度かそれ以下に制限され、通常数分以下の短寿命核のみが対象となる。

本稿では、β-NMR 法の概要（2 章）と共に最近の我々の研究について紹介したい。3 章では、実験技術に関する研究紹介として、放射線医学総合研究所の Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba（HIMAC）での偏極 ^{12}N および ^{8,9}Li ビーム生成法の開発状況と、大阪大学バンデグラフ施設で行ったスピンエコー法の開発について述べる。4 章では、最近の研究のトピックスとして、HIMAC で開発した偏極 ^{12}N を用いた水の中の NMR 観測、リチウムイオン電池材料に関する研究、およびスピンエコー法を用いたシリコン中ホウ素不純物の動的性質の研究について紹介する。

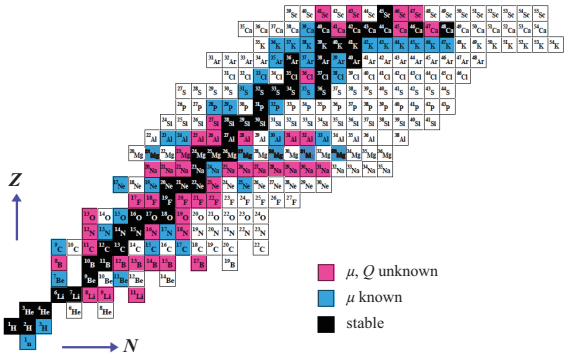


Fig. 1　Nuclear chart for light nuclei in $Z < 21$. Unstable nuclei whose nuclear magnetic dipole（μ）and electric quadrupole（Q）moments have already determined are indicated, which are useful as β-NMR probes.

2. β-NMR 法について

2.1 β-NMR の原理

核スピンの向きが揃った（偏極した）不安定核から放出される β 線は、弱い相互作用におけるパリティ非保存により非対称な角度分布を示す。核スピン偏極 P の向きに対して θ 方向に放出されるベータ線の確率分布は、Fig. 2 に示すように $W(\theta) = 1 + AP\cos\theta$ で表される。A は非対称係数と呼ばれる $|A| \leq 1$ の定数である。偏極不安定核に対して NMR を適用した場合、共鳴時には磁気準位間の遷移により P が変化し、それに伴いベータ線角度分布の非対称度 AP が変化する。AP の変化量は、$\theta = 0$ および π 方向に置かれた検出器により、プローブ核から放出されたベータ線の計数比から容易に得られる。高周波磁場の周波数を変えながらベータ線計数比を観測することにより、NMR スペクトルが得られる。

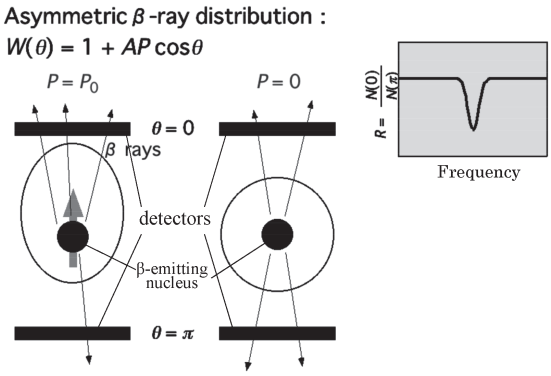


Fig. 2　Princeple of β-NMR.

2.2 β-NMR 装置および実験方法

核反応により生成された偏極不安定核は NMR 装置内に置かれた試料に植え込まれ、物質内部を探索するプローブとしてはたらく。$|AP|$ の値が NMR 検出感度を決定するため、これをいかに大きくするかが重要となる。適切な核反応条件を選ぶことにより、数％またはそれ以上の偏極 P が得られ、それによって従来の NMR に比べ 10^{10} 倍程度の NMR 検出感度が実現する。植え込みにより試料とプローブ種の組み合わせは自由に選択可能である。

プローブ核に用いる偏極不安定核の生成には通常加速器を利用する。大阪大学バンデグラフ施設で使用している β-NMR 装置を Fig. 3 に示す。5

MV のバンデグラフ加速器から供給されるビームを標的に照射し、核反応により目的の放射性原子核を生成する。生成核はビームによる反跳を受けて標的から飛び出し、試料内部に植え込まれる。Fig. 2 に示した ^{8}Li (I^{π} = 2^{+}, $T_{1/2}$ = 0.84 s) の場合、3.5 MeV の重陽子 (d) ビームを用いて ^{7}Li (d, p) ^{8}Li 反応により生成し、反跳角を 20 度に選ぶことにより AP = ～ 3% (A = –1/3) が得られる。プローブ核の植え込み深さは試料表面から約 1 μm 程度までの連続分布をとる。その他バンデグラフで実績のあるプローブ核としては、^{8,12}B, ^{12,16}N, ^{15,19}O, ^{17,20}F, ^{23}Mg, ^{25,28}Al, ^{29}P, ^{33}Cl, ^{41}Sc などがある [2]。

また、理化学研究所リングサイクロトロンや放射線医学総合研究所のシンクロトロン加速器施設 HIMAC などの大型の重イオン加速器施設は、世界有数の不安定核分離装置 [3,4] を有しており、様々な元素プローブが開発されている。HIMAC で使用している装置の概要を Fig. 4 に示す。核子

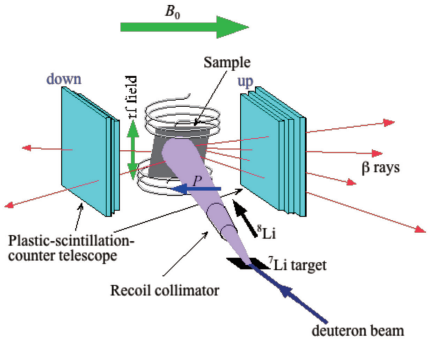


Fig. 3　Experimental setup of β-NMR at the Van de Graaff facility in Osaka University.

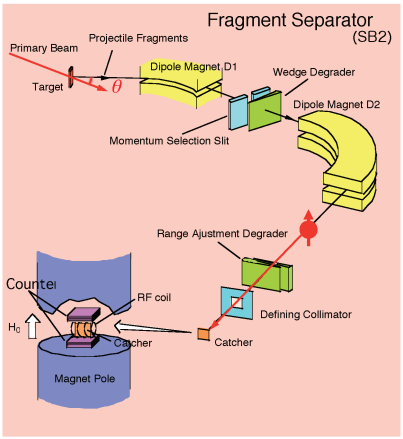


Fig. 4　Secondary beam line (SB2) and β-NMR equipment at HIMAC.

当たり約 100 MeV（光速の約 40%）まで加速された重イオンビームを標的物質に入射させ、前方に飛び出してくる様々な反応生成粒子の中から、欲しい核種のみを後段の分離装置で分離すると、エネルギーの揃った純度の高い不安定核ビームが得られる。生成核の角度と運動量を適切に選ぶことにより、スピン偏極が得られる。エネルギーが高いため、比較的厚い試料の内部にプローブ核を導入することが可能で、試料直前に置かれたくさび型のエネルギー減衰板により、深さを数十～μm ～数 mm の範囲で制御することが可能となる。

測定は Fig. 5 に示したようなシーケンスを繰り返して行う。ビーム照射時間及び β 線計測時間は、プローブ核の半減期や、場合によっては T_1 に合わせて調整する。高周波磁場（RF）を加えることにより、偏極を崩したり反転させたりすることができる。Fig. 5 に示した例は偏極反転を行った場合で、そのときの NMR の効果は、β 線非対称度の変化 $\Delta AP = (R^{1/2}–1)/(R^{1/2}+1)$ として得られる。ここで、R は RF が off と on の時のそれぞれの β 線計数比から $R = [N_{up}/N_{down}]_{off} / [N_{up}/N_{down}]_{on}$ により求められる量である。

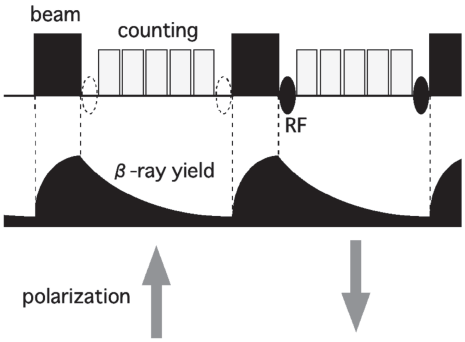


Fig. 5　Diagram of a typical time sequence for β-NMR measurement.

Isotope Separator On Line（ISOL）と呼ばれる、核反応により生成した不安定核を、停止した状態から分離、再加速して利用する施設においても β-NMR 法を用いた研究が行われている。2.2 節で述べた in-flight 型に比べ、非常に質のよい（エミッタンスの小さい）ビームが得られるのが特徴である。カナダ TRIUM の ISAC [5] や CERN の ISOLDE [6,7] で数十 keV の低エネルギービーム

を用いて β-NMR による物質科学研究が進められている。ただし β-NMR を行うには、核スピンを人工的に偏極させる必要があり、collinear laser による光ポンピング法が用いられている。アルカリおよびアルカリ土類元素においては有効で、数十 % と非常に高い偏極度が得られることが実証されている。Li, Na, Mg などの高偏極同位体核ビームが供給可能である。

3. 実験技術開発

3.1 重イオン核反応による偏極 ^{12}N ビーム生成法の開発

我々は、短寿命核 ^{12}N（$I^{\pi} = 1^{+}$, $T_{1/2} = 11$ ms）を用いて、光触媒材料として利用されている二酸化チタン（TiO_2）中の窒素不純物の電子状態研究［8,9］などを行っている。これまで、大阪大学バンデグラフ加速器施設において、低エネルギー核反応により生成した偏極 ^{12}N 核を利用して研究を行ってきたが、より詳細な研究を進めるために、収量の増強化を望んでいた。そのために、重イオン核反応による高偏極 ^{12}N 生成の可能性を探る実験を HIMAC で行った［10］。^{14}N と ^{12}C の 2 種類のビームを用いて生成された ^{12}N の偏極度を、β-NMR 装置内に置かれた Pt 試料中に植え込んで測定した。^{14}N から核子を剥ぎ取る入射核破砕反応 Be（^{14}N, ^{12}N）X では、過去の ^{12}B の結果と同様の傾向を示しており［11］、Fig. 6 に示したように核子当たり 70 MeV において、相対運動量 102% 以上、出射角度 1.5° 程度以上を選ぶことにより、約 –25% の偏極 ^{12}N ビームが比較的高い収率で得られることが示された。ここで偏極の方向は、入射粒子の運動量ベクトルを $\boldsymbol{k}_{\mathrm{i}}$、生成粒子の運動量ベクトルを $\boldsymbol{k}_{\mathrm{f}}$ とすると、$\boldsymbol{k}_{\mathrm{i}} \times \boldsymbol{k}_{\mathrm{f}}$ の方向を正としている。

一方、^{12}C から中性子と陽子を交換する荷電交換反応においては、水素標的が非常に有効であることが判明した。核子当たり 70 MeV の ^{12}C ビームでポリエチレン（$(CH_2)_n$）標的を照射し、p（^{12}C, ^{12}N）n 反応（H に比べ C の寄与は非常に小さい）により生成された ^{12}N の偏極は、Fig. 7 に示すように角度 1° において約 10% を示した。二体反応である p（^{12}C, ^{12}N）n 反応では、角度と運動量は一意的に決まるため、角度依存性のみで十分である。入射核破砕反応に比べて、偏極度は半分以下であるが、収量は 10 倍以上が得られ、かつよりエネルギーの揃ったビームが得られる。この結果は、偏極機構の観点からも非常に興味深い。β-NMR 測定の際の指針となる figure of merit、すなわち収量を Y、偏極度を P としたとき YP^2 で表される量は、荷電交換反応の方が大きくなり、^{12}N プローブ核生成のためにはより有望であることが示された。この研究によって開発した偏極 ^{12}N ビームを利用して、液体試料（水）中の β-NMR 測定を進めており、4.1 節で紹介する。

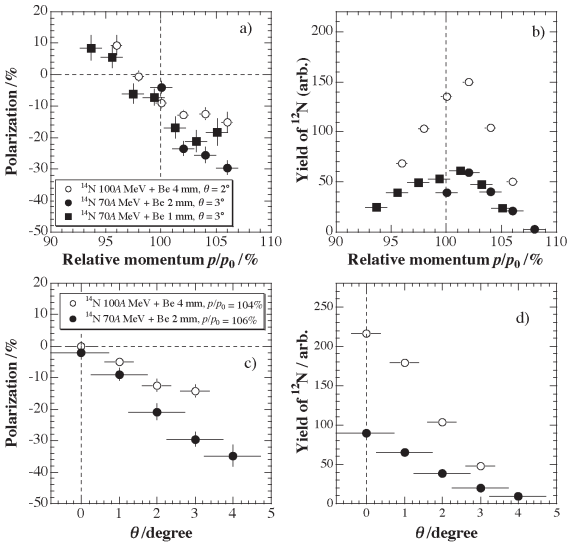


Fig. 6　Spin polarization P and yield Y of ^{12}N produced through the projectile fragmentation of ^{14}N on a Be target. a）P and b）Y vs relative momentum p/p_0, c）P and d）Y vs emerging angle θ.

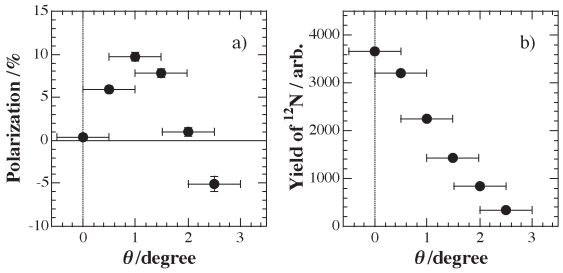


Fig. 7　a）Spin polarization P and b）yield Y of ^{12}N vs emerging angle θ produced through the charge exchange reaction p（^{12}C, ^{12}N）n using a 70-MeV/nucleon ^{12}C beam.

3.2 偏極 Li 同位体ビーム生成法の開発

リチウムイオン電池材料中において、伝導体と

なるリチウムイオンの拡散現象について研究するために、リチウム同位体核の β-NMR プローブ開発を HIMAC で行っている。^{8}Li は大阪大学バンデグラフで供給可能で、現在電池材料中の ^{8}Li の β-NMR を行っている（4.2 節で解説する）が、重イオン加速器により得られる二次ビームの利点を生かした研究が行えると考えている。エネルギーの揃った高エネルギービームを用いれば、長い飛程により試料の内部にプローブ核を注入でき、かつ注入深さを制御できるため、Fig. 8 に示すように、正極、電解質、負極からなる電池材料中でのイオン拡散を、界面を含め全領域で測定することや、充放電時のイオン挙動のその場観察、あるいは嫌気性試料を密閉して測定することが可能になると考えられる。プローブ核の候補は ^{8}Li と ^{9}Li で、両者とも短寿命で磁気モーメント μ と電気四重極モーメント Q が精度良く求められている。Table 1 に両核種の基本性質[12]を、安定核の NMR で利用されている同位体 ^{7}Li とともに示す。

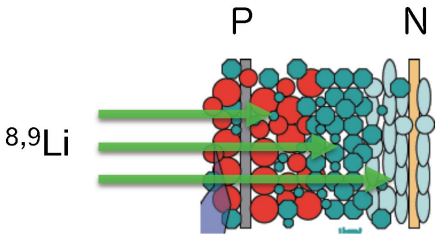


Fig. 8　Illustration of the depth controlled implantation of probe nuclei into Li-ion battery device using spin polarized Li isotope beams.

Table 1　Nuclear properties of $^{7-9}$Li isotopes.

核種	核スピン	半減期	μ	Q (mb)
^{7}Li	3/2	∞	+3.2564268 μ_N	−40.6
^{8}Li	2	0.838 s	+1.653560 μ_N	(+)31.7
^{9}Li	3/2	0.178 s	+3.4391 μ_N	(−)28.8

偏極 ^{8,9}Li の生成条件の最適化を図るため、HIMAC で供給可能な ^{10,11}B および ^{12}C の 3 種類のビームからの生成テストを行った［13］。核子当たり 70 MeV のビームで Be 標的を照射し、得られた ^{8,9}Li 核を二次ビームとして分離し、運動量と出射角度を変えながら ^{8}Li および ^{9}Li の偏極度を測定した。偏極度の測定は、β-NMR 装置内に置かれた Si 試料中に植え込んで行った。結果を Fig. 9 に示す。^{8}Li に関しては、^{12}C ビームからの生成により約 −7% の偏極が得られ、^{11}B ビームから生成した場合よりも大きいことが分かった。また、^{10}B ビームから生成した場合、^{8}Li は高運動量側では全く偏極しないという、偏極機構の観点からは非常に興味深い結果が得られた。^{9}Li については、核子ピックアップを伴う ^{10}B ビームからの生成反応により、運動量分布の中心で +10% 以上の偏極が得られる可能性が示された。

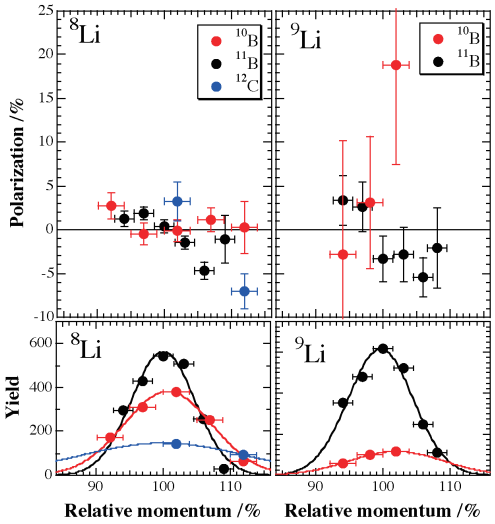


Fig. 9　Spin polarization and yield of ^{8,9}Li produced through heavy ion nuclear reactions using ^{10,11}B and ^{12}C beams on a Be target at 70 MeV/nucleon.

3.3 β-NMR によるスピンエコー観測法の開発

スピンエコー（SE）法は、従来の NMR では様々な場面で利用されている確立された技術［14］であるが、β-NMR に適用した例はこれまでになかった。我々は、^{12}B (I^{π} = 1^{+}, $T_{1/2}$ = 20 ms) の β-NMR に SE 法を適用し、スピン - スピン緩和時間 T_2 の測定を行った［15］。以下に解説する。

静磁場 B_0 の方向（z 軸方向）に偏極（磁化）した核スピンに、xy 面内をラーモア角振動数 ω_0 で回転する磁場 B_1 をパルス的に加えた場合について考えてみる。Figure 10 に示すように ω_0 の回転座標系で見ると、核スピンは静磁場 B_1 の周りを $\omega_1 = \gamma B_1$（γ は磁気回転比）で回転しているように見える。B_1 を加えてから核スピンが 90° 倒

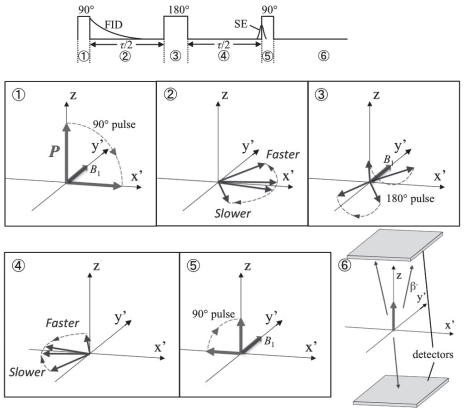


Fig. 10 Motion of spins under the rotating frame *x'y'z* in the spin echo (SE) measurement by means of the β-NMR technique.

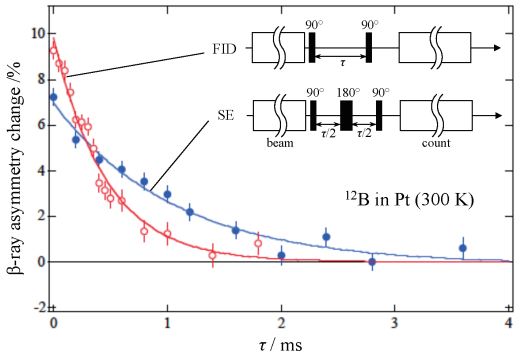


Fig. 11 Free induction decay (FID) and spin echo (SE) spectra of ^{12}B in Pt measured by means of theβ-NMR technique. RF-pulse sequences for FID and SE measurements are inserted.

れたところで切る（90°パルスを加える）と、偏極は横向きになり *xy* 面内で回転し始める。ここで、各々の核スピンが感じる磁場が少しずつ異なると、位相にばらつきが生じ偏極の横向きの成分（横磁化）は時間と共にゼロに向かって減衰する。この現象は free induction decay（FID）と呼ばれ、減衰は局所場の非一様性に起因する。ここで、ある時間 $\tau/2$ の後に 180°パルスを加えると、各々の核スピンは、*xy* 面内で B_1 に対して左右反転し、つまり $\tau/2$ の間に蓄積された位相差が反転することになる。すると 180°パルスを加えてから $\tau/2$ 後には位相差がちょうど相殺され、横磁化がこだまのように復活する。このときに観測される信号をスピンエコーと呼ぶ。β-NMR 法においては、エコーが帰ってきたときにもう一度 90°パルスを加え、偏極を再び *z* 方向に戻した後で β 線非対称度を計測することにより SE 信号が得られる。

大阪大学バンデグラフで Pt 中の ^{12}B について測定を行った。1.5 MeV の重陽子（d）ビームを用いて、^{11}B(*d*, *p*)^{12}B 反応により生成し、反跳角 40°を選ぶことにより偏極度約 10% の ^{12}B が得られる。これを Pt 試料中に植え込み、FID と SE スペクトルを測定した結果を Fig. 11 に示す。図からわかるように、decay constant が FID よりも SE の方が長くなっているのは、静的な磁場分布により生じる位相差が SE によって打ち消されたためである。減衰の時定数の違いから推定される静磁場の非一様性は 3×10^{-5} であり、実験で使用した NMR 磁石の磁場分布から説明できることが分かった。SE スペクトルにおける減衰は、時間変動する局所場が存在することを示している。Pt 中の ^{12}B の場合は、ホストである Pt 核と ^{12}B 核間の磁気双極子相互作用によると考えられる。この手法を用いて、シリコン中の ^{12}B の T_2 測定を行った結果について 4.2 節で紹介する。

4. 最近の研究から

4.1 水の中の ^{12}N の β-NMR

液体や高い蒸気圧をもつ試料中での β-NMR による超微細相互作用研究は久しく望まれていたが、低エネルギービームでは試料を真空にさらす必要があるため実現していなかった。一方、高エネルギービームを使用すれは、ビームを引き出して空気中に置かれた液体試料内に自由に止めることが可能になる。そこで我々は、HIMAC で開発した偏極 ^{12}N ビームを用いて、液体試料中の β-NMR 観測を開始した［16］。窒素プローブは生体反応研究などに有用であると思われ、今後の発展が期待できる。以下に水中に植え込んだ ^{12}N の β-NMR の結果について述べる。

実験は、3.1 節で述べたように、HIMAC で開発した偏極 ^{12}N ビームを用いて行った。核子当たり 70 MeV の ^{12}C ビームを、陽子標的として用いた厚さ 1.2 mm のポリエチレン $(CH_2)_n$ に入射させ、θ = 1° ± 0.5°に放出された ^{12}N を選ぶことにより偏極度約 10% の ^{12}N ビームが得られる。試料は、厚さ 125 μm のポリエチレンシートの袋の中に蒸留水を封入したものを用いた。ビーム方向の水試料の厚みは 2 mm である。ビームを試料の中

心部分に確実に植え込むために、Fig. 12 に示した厚さ可変のくさび型エネルギー減衰板を用い、β 線の計数をモニターしながら最適な条件を決定した。^{12}N ビームは半値幅約 10 ms のパルス状の時間構造をもち、3.3 s 周期で入射する。θ の制御は、標的直前に置かれた swinger magnet により ^{12}C ビームに角度をつけて $(CH_2)_n$ 標的に入射させることで行っているため、$\theta = -(1° \pm 0.5°)$ を選ぶことにより、^{12}N ビームの偏極の向きを反転させることができる。これを利用して、偏極反転による β 線非対称度の変化から、試料中で保持される ^{12}N の偏極量を求めることができる。静磁場 B_0 = 1 T、室温（295 K）において、水中で観測された ^{12}N の偏極量 AP の時間変化を Fig. 13 に示す。試料の上流に置かれたプラスチックシンチレーション検出器（Fig. 12 参照）により計測した ^{12}N ビームの計数と、試料中から放出された β 線の計数も Fig. 13 に示した。β 線時間スペクトルからは、^{12}N の半減期 11 ms が確認された。AP の値は減衰しており、スピン格子緩和が起こっていることを示している。ビームの時間構造を取り入れた偏極緩和関数を用いて fitting した結果、スピン格子緩和時間 T_1 = (26 ± 4) ms、初期偏極 P_0 = (4.0 ± 0.2) % が得られた。ただし ^{12}N の場合 A =+1 である。今回 Pt 中で得られた偏極は(8 ± 1)% であった。これを入射 ^{12}N の偏極量として偏極保持率を求めると、(50 ± 4) % となった。つまり、26 ms の緩和時間を持つ成分が 50% 存在し、残りはさらに短い時間スケールで緩和する成分であると考えられる。

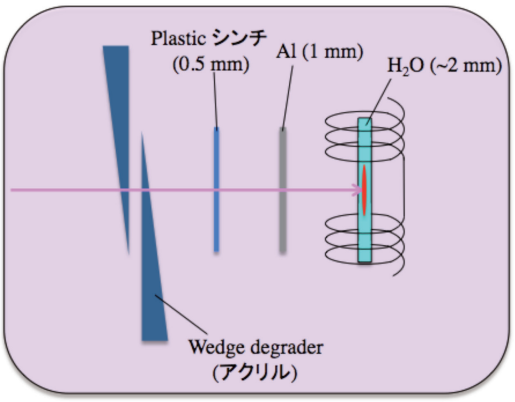


Fig. 12 Schematic view of energy degraders for implantation of a ^{12}N beam into the H_2O sample.

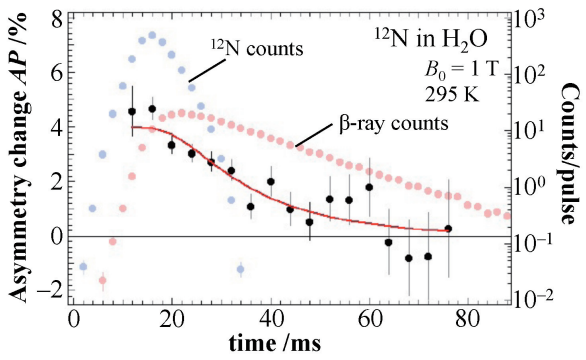


Fig. 13 Time dependence of spin polarization of ^{12}N in H_2O (black). The rates of ^{12}N nuclei (blue) implanted in the H_2O sample and β rays (red) are also shown.

高周波磁場 B_1 = 0.15 × 10^{-4} T を適用し、^{12}N の NMR スペクトルを測定した結果を Fig. 14 に示す。静磁場参照のために測定した Pt 中のスペクトルも同様に示した。過去に測定された BN を基準とした場合の Pt 中 ^{12}N の内部場のシフト + (5.8 ± 2.1) × 10^2ppm［17］を用いると、H_2O 中 ^{12}N のシフト +(4.5 ± 2.4) × 10^2 ppm が得られた。ここで + の符号は、基準に対して高い磁場であることを示す（よく使われる化学シフトの定義とは逆符号である）。H_2O 中の ^{12}N の化学状態について考察するために、実験を継続しシフトの精度を高めていく予定である。今回の実験で、液体試料中に植え込んだ不安定核の NMR 観測に初めて成功し、将来の発展が期待できる結果が得られた。CERN の ISOLDE においても同様の目的で開発

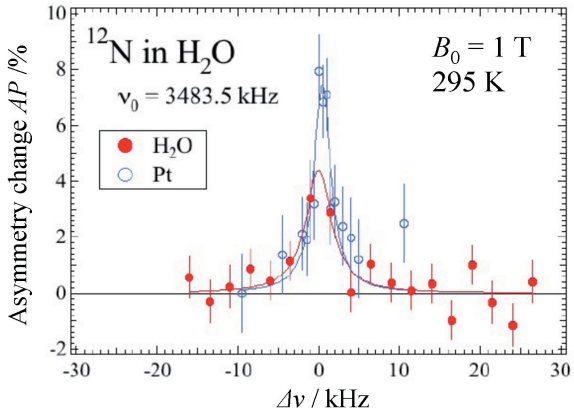


Fig. 14 β-NMR spectra of ^{12}N in H_2O (red full circle) and Pt (blue open circle) at 295 K under an external field B_0 of 1 T.

が行われており、短寿命核 ^{31}Mg(I^{π} = 1/2^{+}, $T_{1/2}$ = 230 ms）の低エネルギービームを用いて、イオン流体中の β-NMR 検出に成功している［7］。一方我々は、高エネルギー偏極ビームを利用することで、より簡単かつ確実に液体試料中の β-NMR を実現できることを証明した。

4.2 リチウムイオン電池材料中の ^{8}Li の β-NMR

リチウム（Li）イオン電池は現在最も高性能な二次電池として利用されているが、高容量化や、発火の危険性をもつ液体電解質を含まない全固体電池の実現など、いまだ様々な開発が望まれている。電池材料の性能評価において、電気伝導を担う Li イオンの動的性質を理解することは非常に重要であり、NMR は電気化学測定と相補的な役割を果たす有力な測定手段である。最近我々は、Li イオン伝導物質 $Li_7La_3Zr_2O_{12}$（LLZ）中の ^{8}Li の β-NMR 測定を行った。LLZ は高い Li イオン伝導度を示しかつ化学的に安定であるため、次世代の固体電解質として全固体電池への利用が期待されている物質である［18］。結晶構造は正方晶（space group $I41/acd$）［19］または立方晶（space group $Ia\bar{3}d$）［20］をとるが、室温での Li イオン伝導については立方晶の方が約 2 桁も速く［21］、その機構に興味が持たれている。実験は大阪大学バンデグラフにて行い、立方晶 LLZ の焼結体試料中に植え込まれた ^{8}Li のスピン格子緩和時間 T_1 の温度変化を測定した［22］。

室温で測定した LLZ 中 ^{8}Li の共鳴線を Fig. 15a に示す。線幅は約 30 kHz で、同様に示した Si 中 ^{8}Li の線幅に比べ拡がっている。拡がりの原因は電場勾配によると考えられ、線幅の値から、LLZ 中の ^{8}Li の電場勾配の大きさは 10^{19} V/cm^2 のオーダーと見積もられる。線幅を十分にカバーするような周波数変調（FM）のかかった RF を加えることにより、共鳴線が積分された大きな NMR 信号が得られる。これをビームパルス終了後からの時間の関数でプロットすると Fig. 15b のようになり、^{8}Li の偏極が指数関数的に減衰しているのがわかる。データに $AP_0\exp(-t/T_1)$ の関数を当てはめることにより、fraction とスピン格子緩和率 $1/T_1$ が得られ、それらの温度変化を Fig. 16 に示した。ここで fraction とは、植え込まれた ^{8}Li の

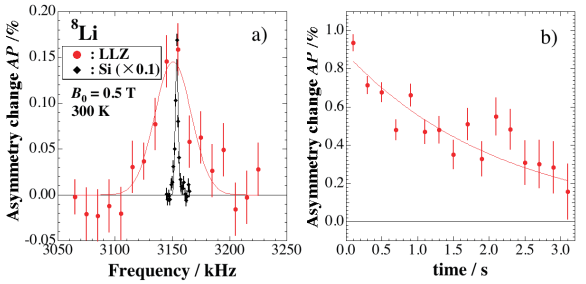


Fig. 15 a）β-NMR spectra of ^{8}Li in cubic $Li_7La_3Zr_2O_{12}$（LLZ）and Si at room temperature under an external field B_0 of 0.5 T. b）Time dependence of spin polarization of ^{8}Li in LLZ.

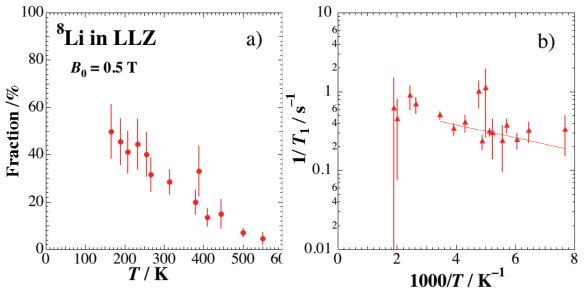


Fig. 16 a）Temperature dependence of the fraction of implanted ^{8}Li nuclei exhibiting an NMR line in LLZ shown in Fig. 14a. b）Arrhenius plot of the spin-lattice relaxation rate $1/T_1$ for ^{8}Li in LLZ.

うち Fig. 15a に示した共鳴線に含まれる成分の割合を示し、ビーム照射中の減衰補正をした初期 asymmetry AP_0 を、Pt 中の ^{8}Li の結果で規格化して求めた。150 K 付近では fraction は約 50% であったが、温度上昇とともに消失していくように見える。$1/T_1$ の温度変化は緩やかで、値は 0.2–1 s^{-1} であった。アレニウスプロットの傾きから活性化エネルギー E_a = ～ 17 meV が得られた。一方、Buschmann らの LLZ における ^{7}Li の NMR の結果［21］は、室温より低温側で E_a = 340 meV、高温側で 120 meV を示した。また我々の実験条件での $1/T_1$ に換算すると、予想される T_1 は遅くても 10 ms 程度以下となり、半減期 840 ms の ^{8}Li には観測出来ない領域である。従って、^{8}Li の β-NMR では、母体に含まれる Li イオンは missing fraction となり、実験で観測されたものは、それとは異なるサイト、あるいは動的挙動を示す成分であることが考えられ、そのような成分がある割合で存在することを示唆する結果が得

られた。

4.3　スピンエコー法によるシリコン中ホウ素不純物の動的性質研究

シリコン（Si）中でアクセプタとしてはたらくホウ素（B）は、p 型半導体を作る上で欠かせない不純物としてよく知られている。Si 中の B の拡散現象については古くから調べられ、格子間シリコンの存在が重要な働きを担っていることが示されている［23］。ただしこれまでの実験は巨視的な観測に限られており、二次イオン分析法（SIMS）などを用いた B 不純物の空間分布測定から拡散機構が議論されてきた。一方、NMR は原子ジャンプの様子など、拡散現象を微視的に観測する手段として重要な役割を担っているが、半導体中のドーパント不純物のように低濃度原子に対しては従来の NMR では検出感度が得られない。我々は、3.3 節で述べたスピンエコー法［15］を用いて、Non-doped Si 単結晶中に植え込んだ短寿命核 ^{12}B のスピン－スピン緩和時間 T_2 の測定を T = 230–740 K の範囲で行った［24］。

スピンエコーによる横緩和スペクトルについて、代表的なものを Fig. 17 に示す。緩和曲線は、340 K よりも低温では Gaussian 型で、高温側では指数関数型を示した。また温度が上がるにつれて緩和が遅くなっていく様子が示された。低温側の緩和関数を $A_0\exp\{-(t/T_2)^2\}$ として緩和率 $1/T_2$ を求めると、Fig. 18 のアレニウスプロットに示すように温度によらずほぼ一定値を示した。一方高温側では、指数関数 $A_0\exp\{-(t/T_2)\}$ により求めた $1/T_2$ の値は、アレニウスプロット上で温度が上がるにつれて直線的に減少している。低温側では、ラーモア歳差運動の時間スケール（～ MHz）で ^{12}B は静止していると考えられ、緩和にはホスト核（^{29}Si）による双極子磁場のみが寄与していると考えられる。低温側の緩和率の平均値 $1/T_2$ = (0.500 ± 0.033) ms^{-1} から、フーリエ変換により共鳴線幅 $\Delta\omega$(= $2^{1/2}/T_2$) が推定でき、$\Delta\omega/2\pi$=(0.113 ± 0.008) kHz が得られた。この値は、McDonald らにより測定された、Si 中 ^{12}B の NMR 線幅 (0.107 ± 0.019) kHz［25］とよい一致を示している。McDonald らは、線幅から ^{12}B は置換位置を占めているとしており、我々の結果と合わせると、室温以下では ^{12}B は置換位置に留まっていると解釈できる。一方高温側では、何らかの運動によって ^{12}B 位置に生じる局所場の揺動が速くなり、場の平均化、いわゆる運動による先鋭化（motional narrowing）［14］が起こったために緩和が遅くなったと解釈できる。高温側の $1/T_2$ の温度変化から、運動の活性化エネルギー E_a = (0.11 ± 0.01) eV が得られた。この値は、以前から知られている Si 中の B 不純物拡散の E_a = ～ 3 eV［4］とは大幅に異なっている。B の拡散機構については、格子間 Si によって B が置換位置から押し出されることにより移動するという描像が確立しており、3 eV の拡散障壁は格

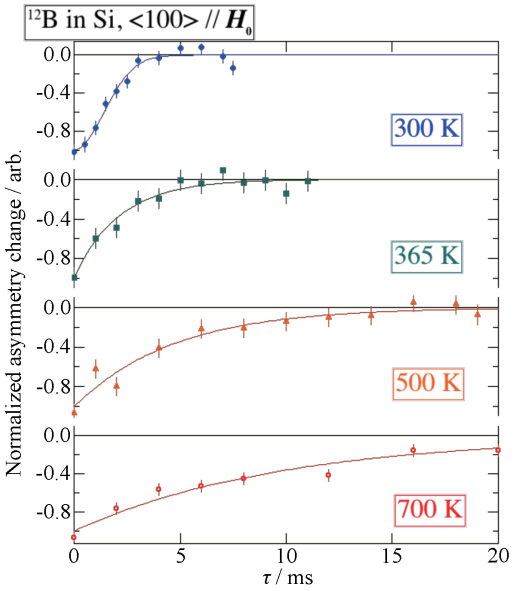


Fig. 17　Spin echo spectra of ^{12}B in non-doped Si single crystal.

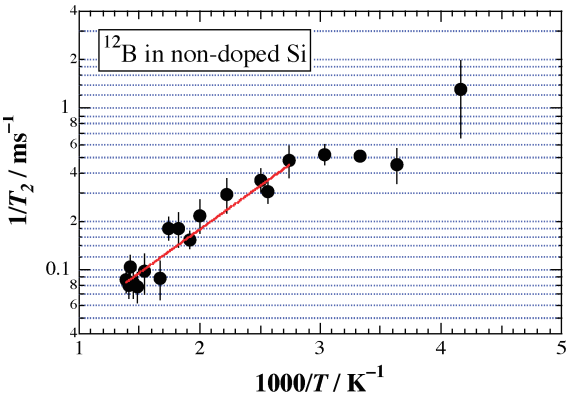


Fig. 18　Arrhenius plot of spin-spin relaxation rate $1/T_2$ for ^{12}B in non-doped Si single crystal.

子間 Si の形成エネルギーでほぼ決まっているとされている［23］。ただしビーム照射下においては、格子間 Si が供給されるため B 拡散が促進することが知られている。Napolitani らは SIMS による測定で、O_2^+ イオンのスパッタリング（照射量は～ 1×10^{18} cm^{-2}）により、Si 中で室温でも長距離拡散する（動きやすい）B を観測し、その形成エネルギーは（0.11 ± 0.02）eV［26］と報告した。この値は、今回 $1/T_2$ から求めた E_a とよく一致している。我々の実験においても、Ta 製の標的バッキングで散乱された d ビームが試料に入射し、そのフラックスは～ 10^{12} cm^{-2}/s になる。同程度のフラックスのプロトン照射により、Ge 中の B 不純物の拡散が促進されるという結果も報告されており［27］、我々の測定においても照射による B 拡散の促進が起こっている可能性が示された。

謝辞

本研究は、放射線医学総合研究所 HIMAC と大阪大学バンデグラフ加速器施設で行われました。放医研、理研、新潟大学、筑波大学、高知工科大学、国際基督教大学、東京理科大学、東京工業大学、中国原子能科学研究院、大阪大学との共同研究であり、共同研究者の方々に深く感謝致します。本研究は、日本学術振興会科学研究費助成金（23600007）の助成を受けたものです。

引用文献

［1］安岡弘志 , 本河光博編「磁気測定 II」第 7 章 (2000), 丸善 .
［2］K. Matsuta et al., Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A 402, 229 (1998).
［3］T. Kubo et al., Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B 70, 309 (1992).
［4］M. Kanazawa et al., Nucl. Phys. A 746, 393c (2004).
［5］R. F. Kiefl et al., Physica B 326, 189 (2003).
［6］W. Geithner et al., Hyperfine Interactions 129, 23 (2000).
［7］A. Gottberg et al., ChemPhysChem 15, 3929 (2014).
［8］M. Mihara et al., Hyperfine Interactions 159, 187 (2005).
［9］M. Mihara et al., Physica B 401-402, 430 (2007).
［10］M. Mihara et al., Hyperfine Interactions 220, 83 (2013).
［11］K. Asahi et al., Phys. Lett. B251, 488 (1990).
［12］The 8th edition of the Table of Isotopes, book and CD-ROM, by R.B. Firestone et al., Published by John Wiley & Sons, Inc., 1996.
［13］M. Mihara et al., KURRI-KR-177, 85 (2013).
［14］A. Abragam, The principles of nuclear magnetism, Oxford University Press, London, 1961.
［15］Y. Kamisho et al., Hyperfine Interactions 222, 121 (2013).
［16］M. Mihara et al., KURRI-KR-202, 12 (2015).
［17］K. Matsuta et al., Hyperfine Interactions 120-121, 719 (1999).
［18］R. Murugan etal., Angew. Chem. Int. Ed., 46, 7778 (2007).
［19］J. Awaka, et al., J. Sold State Chem. 182, 2046 (2009).
［20］C.A. Geiger et al., Inorg. Chem. 50, 1089 (2011).
［21］H. Buchmann et al., Phys. Chem. Chem. Phys. 13, 19378 (2011).
［22］S. Yamaoka et al., KURRI-KR-202, 46 (2015).
［23］S. Mirabella et al., J. Appl. Phys. 113, 031101 (2013).
［24］M. Mihara et al., KURRI-KR-202, 49 (2015).
［25］R.E. McDonald et al., Phys. Rev. B 13, 39 (1976).
［26］E. Napolitani et al., Phys. Rev. Lett. 93, 055901 (2004).
［27］E. Bruno et al., Phys. Rev. B 80, 033204 (2009).

Abstract

We will introduce very recent studies about our technical development for the β-NMR experiment and its application to the materials science on Li-battery, semiconductor, and liquid materials.

放射化学　第 32 号　2015, pp. 11-33

総　説

アイソトープ治療のためのアルファ放射体の製造
Production and availability of alpha-emitters for radionuclide therapy

鷲山幸信
金沢大学医薬保健研究域保健学系
〒 920-0942　石川県金沢市小立野 5-11-80

Kohshin Washiyama
Faculty of Health Sciences, Institute of Medical, Pharmaceutical and Health Sciences, Kanazawa Univeristy
Kodatsuno 5-11-80, Kanazawa-city, Ishikawa 920-0942, Japan
（2015 年 8 月 12 日受理）

要旨

α 線は生体組織内での飛程が短く且つ高い線エネルギー付与であるため細胞毒性が高く、播種性のがんや血液由来のがんまたは微小転移がん、手術後の部位に残存する微小がんの治療に有効と考えられている。アイソトープ治療に有効と考えられている α 放射体は ^{149}Tb, ^{211}At, ^{212}Pb (^{212}Bi), ^{213}Bi, ^{223}Ra, ^{224}Ra, ^{225}Ac, ^{226}Th, ^{227}Th, ^{230}U の 10 核種が知られており、いくつかは既にヒト臨床試験や動物実験においてその有効性が示されている。しかし、これらの α 放射体の入手が難しいため、α 線を用いたアイソトープ治療の臨床応用はなかなか進展していない。本総説では各 α 放射体の製造についてまとめ、それぞれの製造法が持つ特長や問題点を明らかにし、今後の α 放射体の供給を見据えた製造について論考する。

キーワード

アイソトープ治療、α 線内用療法、α 放射体、アクチニウム -225、ラジウム -223、アスタチン -211、RI 製造

Key words

radionuclide therapy, targeted alpha therapy, alpha emitter, actinium-225, radium-223, astatine-211, isotope production

1．はじめに

放射性同位体（RI）を標識した放射性医薬品（そのほとんどがトレーサー量である）を体内に投与し、臓器の機能を非侵襲的に画像化し、診断および治療に応用する分野を核医学という。特に、抗原抗体反応を用いて放射性医薬品をがんに特異的に集積させた後に、RI から放出される放射線をがんに照射して治療に用いるものをアイソトープ治療（内用放射療法、RI 内用療法、核医学治療）といい［1］、体内で放射線を標的腫瘍に直接照射し、放射線と物質の相互作用に基づく生物学的効果を利用する。この場合、生物学的効果は線質により異なるため、どのような放射線を利用するのかが重要である。RI の壊変に伴い放出される放射線のうち、治療に利用可能なものは β^- 線、α 線、オージェ（Auger）電子、内部転換（IC）電子など（Table 1）である。特に、β^- 線は組織中での飛程が長く（0.05 ～ 12 mm）、隣接する腫瘍に対して放射線を照射をすることができるといったクロスファイアー（cross fire）効果の利点から、いち早く臨床現場に導入された。現在、我が国においても ^{89}Sr, ^{90}Y, ^{131}I といった β 放射体を用いた放射性医薬品が種々の疾患に利用されている。これに対して、α 線は組織中で 30-100 μm

Table 1. Caracteristics of therapeutic radiations.

Emitted particle	E(min)-E(max)	Range	LET
Alpha particle	5 – 9 MeV*	40 – 100 μm	80 keV/μm
Beta particle	50 – 2300 keV#	0.05 – 12 mm	0.2 keV/μm
Auger/IC electron	eV – keV*	2 – 500 nm	4 – 26 keV/μm

*: monoenergetic
#: Average（>1% intensity）; continuous distribution energy

（細胞数にして 2–10 個）と飛程が短い。単位距離あたりの線エネルギー付与（LET）は当初 60-80 keV/μm であるがブラッグピーク近辺では 240 keV/μm に達する（β^-線は距離に依存せず常に約 0.2 keV/μm である）。このように α 線は短い距離の中で直進しながら周囲の原子と相互作用し高いエネルギーを与えることにより、多数の電離や励起を誘導するため、DNA 二重鎖を切断しやすく細胞毒性が高い。しかも、X 線や γ 線では水分子のラジカル生成が重要であるのに対して、α 線は直接的に作用するため酸素効果を受けにくい。また、飛程が短いことから標的組織以外の正常組織への被曝を低減できる。これらの特徴から α 線の飛程より大きな腫瘍は治療の対象にはならず、微小転移や白血病などの血液の癌、外科処置後の残存腫瘍または放射線感受性の高い組織（ex. 骨髄）付近の癌（骨転移など）が治療の対象と考えられている［2］。

α 線が持つこれらの生物学的特徴は 1960 年代早期から多くの研究者に認識されていたが、動物を用いたがん治療の実験に関する実際の報告は 1981 年が最初である。Bloomer ら［3］はアスタチン -211（^{211}At）のテルルコロイドを C3H マウスの腹水がんモデルに投与して α 線による投与放射能依存的治療効果を見出した。次いで Macklis ら［4］は α 線と放射免疫療法を組み合わせ、14.8 kBq のビスマス –212（^{212}Bi）標識抗体の投与によって腹水がんモデルマウスの 80% が 70 日以上生存（無処置群は 20 日以内に全匹死亡）したことを報告した。これらの実験をきっかけに始まった様々な動物実験による治療効果を基にして、現在ヒト臨床試験は世界的に進められている［5–42］（Table 2）。特にラジウム –223（^{223}Ra）は去勢抵抗性前立腺がん骨転移に対する有意な延命効果が示された［27］ことから、2013 年 5 月 15 日にアメリカの食品医薬品局（FDA）から、また同年 11 月 15 日には欧州委員会（EC）から α 線を用いたがん治療用の放射性医薬品として世界で初めて承認された。その後、カナダ、アジア、オセアニアなどでも順次承認を取得し、現在は 40 を超える国で承認（日本は未承認）されている。

一方で、これら α 放射体を用いたアイソトープ治療（α 線内用療法 , Targeted Alpha Therapy; TAT）の動物実験やヒト臨床試験を行うためには、これまで用いられてきた診断用の RI（^{99m}Tc, ^{123}I, ^{201}Tl など）や β 放射体（^{131}I, ^{89}Sr, ^{90}Y, ^{177}Lu など）と同様に、十分な量と質の α 放射体の供給が必要である。しかし、α 放射体や製造に必要なターゲットが持つ特殊性から、実際の供給は大幅に制限されている。本総説では TAT に有望な α 放射体の製造を概説し、今後の供給について論考する。

2. アイソトープ治療用 α 放射体

α 壊変を主とする RI は原子番号 82 番以上のものに多く存在し、その領域では約 400 核種以上が該当する。しかしそのほとんどは、半減期があまりにも長いか短いかのどちらかであり、取り扱いには適さない。また使用に際して薬物への標識方法が確立していない元素が多いため、実際の臨床応用に適したものは結果として、Table 3 に示す 10 核種に絞られる。

Table 3 に示したそれぞれの α 放射体は単独で用いることも可能であるが、多くの α 放射体が複数回の壊変を伴う。アクチニウム -225（^{225}Ac）とビスマス –213（^{213}Bi）は同じ壊変系列に属し、親娘関係である。他にも、トリウム –227（^{227}Th）とラジウム –223（^{223}Ra）、ラジウム –224（^{224}Ra）と鉛 –212（^{212}Pb）とビスマス –212（^{212}Bi）、さらには、ウラン –230（^{230}U）とトリウム –226（^{226}Th）が親娘関係である。壊変で生ずる娘核種は、いずれも親核種の半減期よりも短いためすぐに平衡状態になる。つまり、親の壊変と共に連続して壊変し、標的部位に対して複数 α 線を一度に照射する。このように多数の娘核種が生体内で一度にミルキングされる組み合わせを *in vivo* generator と称する。*In vivo* generator では複数 α 線の放出により線量増強効果が期待される。実際、^{225}Ac

Table 2. Summary of published and reported clinical trials using alpha-emitters.

Radionuclide	Delivery Vehicle	Cancer	No. of Patients Reported (Planned)	Phase	Ref.
^{211}At	Anti-Tenascin IgG	Glioma (GBM)	18	Phase I/II	5
	MX35 F(ab')$_2$	Ovarian cancer	9+3	Phase I	6, 7
^{212}Pb	Trastuzmab	Ovarian, Colon	16(36)	Phase I	8, 9
^{213}Bi	Lintuzumab	Leukemia (AML or CML)	18	Phase I	10
	Lintuzumab	Leukemia (AML or CML)	31	Phase I/II	11
	Substance-P	Glioma (GBM, oligodendroglioma)	2	Phase I	12
	Substance-P	Glioma (GBM, astrocytoma)	5	Phase I	13
	Substance-P	Glioma (LGG)	6	Phase I	14
	Substance-P	Glioma (GBM)	24	Phase I	14
	Rituximab	lymphoma (NHL)	12	Phase I	15
	9.2.27 IgG	metastatic melanoma	16	Phase I	16
	9.2.27 IgG	metastatic melanoma	38	Phase I	17, 18
	DOTATOC	Neuroendocrine tumors (GEP-NET)	21	Phase I	14, 19
	Cetuximab	bladder cancer	6	Phase I	14
^{223}Ra	$RaCl_2$	Breast/Prostate	15+6 / 10	Phase IA+B	20, 21
	$RaCl_2$	Prostate	64	Phase II	22, 23
	$RaCl_2$	Prostate	100	Phase II	24
	$RaCl_2$	Prostate	122(117)	Phase II	25
	$RaCl_2$	Prostate	6	Phase I	26
	$RaCl_2$	Prostate	921(922)	Phase III	27-29
	$RaCl_2$	Prostate	9(10)	Phase I	30
	$RaCl_2$	Breast	23(20)	Phase IIA	31
	$RaCl_2$	Prostate	17/46(18/42)	Phase I/IIA	32, 33
	$RaCl_2$	Prostate	6(19)	Phase I	34
	$RaCl_2$	Osteosarcoma	1(9/6)	Phase I/II	35
	$RaCl_2$	Prostate	66	Phase IIA	36
	$RaCl_2$	Prostate	177	EAP	37
	$RaCl_2$	Prostate	(800)	Phase III	38
	$RaCl_2$	Prostate	(43)	Phase II	39
	$RaCl_2$	Prostate	(40)	Phase I/II	39
	$RaCl_2$	Prostate	(360)	Phase II	39
^{225}Ac	Lintuzumab	AML	18(30)	Phase I	40
	Lintuzumab	AML	12(24)	Phase I/II	14, 41
	DOTATOC	Neuroendocrine tumors	34	Phase I	14, 42

*EAP: Expanded Access Program

は ^{213}Bi を単独で用いた場合の 1000 倍以上の細胞毒性があることが *in vitro* の実験［43］で示されている。また、急性骨髄性白血病患者に対する臨床試験においても ^{225}Ac と ^{213}Bi では線量の違いから投与放射能は全く異なっている［44］。

α 放射体は通常の β 放射体や γ 放射体と異なり入手が難しい。いずれも原子炉または加速器で製造できるが、製造する際のターゲット物質のほと

Table 3. Alpha emitters for therapeutic use.

Radionuclide /Daughter	Half-life	Decay Mode (B.R.)	$E_{alpha,\ average}$ [MeV]	$R_{average}$ [μm]	E_{gamma} [keV] (I)	Production
^{149}Tb	4.12 h	α(16.7)/EC/β^+(83.3)	3.967	26.7	165 (27), 352 (30)	cyclotron
^{211}At	7.21 h	α(41.8)/EC/β^+(58.2)	5.869	48.1	687 (0.25)	cyclotron
^{211}Po	0.516 s	α(100)	7.442	69.9	570 (0.25)	
^{224}Ra	3.66 d	α(100)	5.672	45.6	–	^{228}Th source
^{220}Rn	55.6 s	α(100)	6.287	53.5	–	
^{216}Po	0.145 s	α(100)	6.778	60.2	–	
^{212}Pb	10.64 h	b-(100)	–	–	239 (43.6)	generator
^{212}Bi	60.55 min	α(35.94)/β^-(64.06)	6.052	50.4	727 (6.74)	generator
^{212}Po	0.299 μs	α(100)	8.785	91.4	–	
^{227}Th	18.68 d	α(100)	5.883	48.3	236 (12.6)	^{227}Ac source
^{223}Ra	11.43 d	α(100)	5.668	45.6	154 (6.0)	^{227}Ac source
^{219}Rn	3.96 s	α(100)	6.758	60.0	269 (13.6)	
^{215}Po	1.781 μs	α(100)	7.386	69.0	–	
^{211}Bi	2.14 min	α(99.724)/β^-(0.276)	6.567	57.3	351 (13)	
^{211}Po	0.516 s	α(100)	7.442	69.9	570 (0.25)	
^{225}Ac	9.9203 d	α(100)	5.787	47.1	99.8 (1.7)	^{229}Th source
^{221}Fr	4.9 min	α(100)	6.304	53.8	218 (11.6)	
^{217}At	32.3 ms	α(99.98)/β^-(0.01)	7.067	64.4	–	
^{213}Bi	45.59 min	α(2.2)/β^-(97.8)	5.846	47.8	440 (26.1)	generator
^{213}Po	3.72 μs	α(100)	8.376	84.6	–	
^{230}U	20.23 d	α(100)	5.864	48.0	72 (0.6)	^{230}Pa source
^{226}Th	30.57 min	α(100)	6.309	53.8	111 (3.3)	generator
^{222}Ra	38.0 s	α(100)	6.549	57.1	324 (2.8)	
^{218}Rn	35 ms	α(100)	7.128	65.2	–	
^{214}Po	164.3 μs	α(100)	7.691	73.7	–	

B.R.: Branching Ratio [%]
I: Intensity [%]

んどが安定同位体ではない。親娘関係のα放射体の場合、親核種を作ることができれば娘核種は親核種入りジェネレータからミルキングすることで入手可能である。したがって、親娘関係のα放射体については親核種の製造について考慮する必要がある。また単一壊変とみなせるアスタチン -211(^{211}At) とテルビウム –149(^{149}Tb) に対してはそれらを直接製造する方法が重要である。

3. ^{225}Ac と ^{213}Bi の製造

α放射体がアイソトープ治療に有効であると考えられたのは 1980 年代からであるが、^{225}Ac がその候補核種として提案されたのは比較的遅く、1993 年に Geerings ら［45］によってであった。^{225}Ac はネプツニウム -237 系列に属し、9.9203 d の半減期でα壊変をする核種（Fig. 1）である。^{225}Ac 以下の系列核種はいずれも ^{225}Ac より半減期

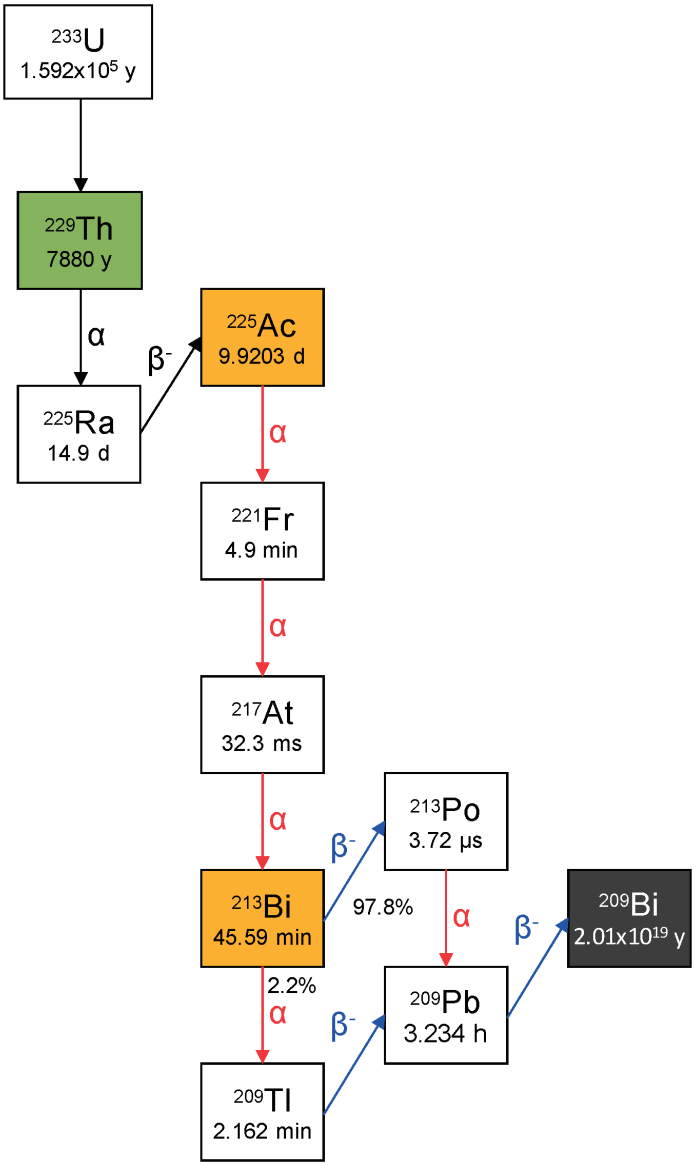


Fig. 1　Decay chain of ^{225}Ac and ^{213}Bi.

が短いため、5 つの娘核種は直ちに壊変し安定な ^{209}Bi になる。^{225}Ac を含め 4 つの α 線（合計 28 MeV）と 2 つの β^- 線を放出する。^{225}Ac は γ 線を放出しないが、娘核種の ^{221}Fr と ^{213}Bi はそれぞれ 218 keV（放出率 11.6%）、440 keV（放出率 26.1%）の γ 線を放出するため、化学分離や動物・ヒトでのイメージングに利用できる。標的腫瘍への集積の目的のためにモノクローナル抗体を選択した場合、抗体が腫瘍に最大量集積するのに要する時間は通常数日である。そのため、^{225}Ac の半減期は、標識薬剤が腫瘍に集積する薬物動態にマッチしている。^{225}Ac は *in vivo* generator として、その高い治療効果を実験的に示している［43］が、壊変した後に生成する ^{221}Fr, ^{217}At, ^{213}Bi などの娘核種は ^{225}Ac が α 壊変した時の反跳により標識薬剤との結合から外れ、腫瘍から遊離し、正常組織での毒性の発現を引き起こす［46］ことが知られている。そのため ^{225}Ac の使用にあたってはどのように娘核種を標的組織内に保持するかが重要である。

^{213}Bi は ^{225}Ac の娘核種の一つであり、45.59 min の半減期で ^{213}Po と ^{209}Tl に分岐壊変（Fig. 1）す

る。^{213}Bi の 97.8％は β^- 壊変の後、短半減期核種 ^{213}Po の α 壊変を経て安定な ^{209}Pb になる。他方 2.2% は α 壊変をして ^{209}Tl になり、すぐに β^- 壊変をして ^{209}Pb になる。^{209}Pb（$T_{1/2}$ = 3.234 h）は β^- 壊変をして最終的に安定な ^{209}Bi になる。したがって ^{213}Bi は一壊変あたり 1 本の α 線を出す RI とみなせる。^{213}Bi の壊変では β 線も放出されるが、放出エネルギーのうち 92.7% は α 線に由来し、β 線の寄与は 7.3% である。^{213}Bi は 440 keV（26.1%）の γ 線を放出するため、動物実験やヒト臨床試験において標識薬剤の体内分布を画像化でき、薬物動態や線量評価をすることが可能［47］である。しかし半減期が 45.59 min と短いため、治療効果を示すためには腫瘍に早く集積させる必要がある。そこで ^{213}Bi の使用方法や対象は、血液由来のがん、局所的治療、ペプチドなどの低分子を使った早い薬物動態を示すものになる。また、予め標的に ^{213}Bi 標識薬剤との結合親和性が高い別の薬剤を集積させ、^{213}Bi 標識薬剤の標的への集積動態を早めるプリターゲッティング法［48］などを利用することも薬物動態改善や線量の観点から有用と考えられる。

^{225}Ac は親核種の ^{229}Th（$T_{1/2}$=7880 y）から放射化学的に分離する。現在臨床に利用可能な放射能の ^{225}Ac を供給できる施設は世界に 3 か所が知られており、それぞれドイツのカールスルーエにある Institute for Transuranium Elements（ITU）、アメリカのオークリッジにある Oak Ridge National Laboratory（ORNL）、ロシアのオブニンスクにある Institute of Physics and Power Enginnering（IPPE）［49-51］（Table 4）である。これらの施設が所有する ^{229}Th はさらにその親核種の ^{233}U（$T_{1/2}$=1.592×10^5 y）から分離されたものである。^{233}U は ^{232}Th の中性子照射で製造したため、^{233}U から分離した ^{229}Th 中には原料の ^{232}Th が含まれている。^{229}Th から分離した ^{225}Ac の比放射能は 2.1 × 10^{15} Bq/g である。

Table 4. Current available ^{225}Ac from ^{229}Th stock.

Supplier	ITU (EU, Germany)	ORNL (USA)	IPPE (Russia)
^{229}Th［GBq］	1.7	5.55	5.55
Max. annual production ［GBq of ^{225}Ac］	13	29.6	26.6
Max. batch size ［GBq of ^{225}Ac］	1.3	4.44	2.2

Ref.［14, 49-52］

ITU では 215 mg の ^{229}Th（この 150 倍の ^{232}Th を含む）を所有している。この ^{229}Th からイオン交換クロマトグラフィー法と抽出クロマトグラフィー法の 2 段階分離法を用いて ^{225}Ac を分離している。年間あたりの ^{225}Ac 製造量は約 13 GBq で分離一回あたりの最大放射能は～ 1.3 GBq である［52］。

ORNL は 8 週間以上の間隔を空けながら 4.44 GBq の ^{225}Ac を年間 6 回製造している［14］。ORNL で得られる ^{225}Ac の放射化学的純度は 99.99% 以上であり、^{225}Ra の混入率は 3×10^{-3}% 未満、^{229}Th も 2×10^{-3}% 未満である［50］。IPPE は 1 か月あたり 2.2 GBq の ^{225}Ac を製造［52］している。^{225}Ac の放射化学的純度は 99.9% 以上であり、^{225}Ra と ^{224}Ra の混入率はどちらも <0.02%、^{229}Th は <0.007% である。また非放射性の陽イオンは <10 μg/mL である［51, 53］。

現在世界中に供給されている ^{225}Ac の生産量は年間約 70 GBq（Table 4）である。この量は臨床前試験（動物実験や細胞実験、標識実験や化学実験などを含む）や、一部のヒト臨床試験を行うには十分な量であるが、^{225}Ac や ^{213}Bi を用いた臨床応用が増える場合、より多くの放射能を準備する必要がある。しかし現存する ^{233}U から再度 ^{229}Th を分離することは、一度 ^{229}Th 分離した ^{233}U であるため現時点での ^{229}Th の生成率が低いことや、^{233}U に対する核拡散防止の観点から難しい。したがって ^{225}Ac を現有の ^{229}Th から分離精製する以外の代替製造法が必要とされた。Mirzadeh［54］は、^{226}Ra を中性子場で照射する ^{225}Ac 製造法を検討した。熱中性子と熱外中性子の比が 10 で熱中性子束が 1×10^{15} n/cm^{2}s の環境で 24 時間照射すると、^{226}Ra 1 g あたり約 5.55 GBq の ^{229}Th が生成すると見積もった。しかしこの反応では副生成物としてその 250 倍の放射能の ^{228}Th（$T_{1/2}$ = 1.9116 y）が生成する。また生成物と標的との分離なども非常に難しいことが問題として挙げられた。

Apostolidis ら［55］は、^{226}Ra ターゲットに陽子線を照射して ^{226}Ra(p, 2n) ^{225}Ac 反応により ^{225}Ac を製造する方法を試みた。彼らの実験では

陽子の入射エネルギー E_p = 16.8 MeV の時に核反応断面積は最大値 710 ± 68 mb を示した。また E_p = 25 MeV とした場合、Thick Target Yield（TTY）は 18 MBq/ μAh であった。これは 50 μA の 25 MeV 陽子線で 20 時間 ^{226}Ra を照射した場合 18 GBq の ^{225}Ac の製造に相当し、現在の ^{225}Ac の年間供給量の約 1/4 に匹敵する。この方法は経済的且つ大量製造に向いていると考えられるが、中性子照射の場合と同様に、^{226}Ra を含む核反応生成物の分離精製と、^{226}Ra の再利用の際の取り扱いといった問題を含んでいる。

陽子線照射では ^{232}Th をターゲットとして ^{229}Pa を生成し、その壊変を利用して間接的に ^{225}Ac を製造する方法も考えられる。Jost ら［56］は ^{232}Th をターゲットとして Stacked-foil technique で ^{232}Th(p, xn)$^{233-x}$Pa 反応の励起関数を求めた。ORNL の 25 MV タンデム加速器で得られる 40 MeV の陽子線を ^{232}Th ターゲットに照射し、γ 線スペクトロメトリーを行った。Pa の生成量が少ないターゲットでは、必要に応じて Pa の放射化学分離を行った。実験の結果、^{232}Th(p, xn)$^{233-x}$Pa 反応の励起関数を 40 MeV までの範囲で取得することができた。特に、^{232}Th(p, 4n)^{229}Pa 反応は 22 MeV 近辺に閾値が有り、反応断面積の最大値は 162.5 mb であった。

^{226}Ra をターゲットとした検討として、重陽子を照射する ^{226}Ra(d,3n)^{225}Ac 反応も提案されている［57］。ALICE コードを用いた理論計算では、E_d = 18.5 MeV において 864 mb の最大核反応断面積が予想された。また入射ビームのエネルギーに対する TTY を ^{226}Ra(p,2n)^{225}Ac 反応と ^{226}Ra(d,3n)^{225}Ac 反応で比較すると、理論上は E_p = 23 MeV 以上で（d, 3n）反応の方が優勢であった。今後実験による裏付けが必要であるが、（d, 3n）反応は ^{225}Ac 製造法の一つとして魅力的である。しかしこの反応は副反応として ^{226}Ra(d,2n)^{226}Ac 反応で生成する ^{226}Ac($T_{1/2}$ = 29.37 h）を考慮しなければならない。重陽子の入射エネルギーや照射後の冷却時間の最適化が今後の検討課題である。

^{225}Ac 製造の他の方法として ^{226}Ra(γ, n)^{225}Ra で生成した ^{225}Ra の β^- 壊変を利用して ^{225}Ac を製造する方法が挙げられる。^{226}Ra の密封線源は照射用ターゲットとしては最適である。これは ^{226}Ra 針がかつて放射線治療に用いられ現在は放射性廃棄物として多くの病院で扱われており、比較的入手性はよいと考えられるためである。Allen ら［58］は病院に設置してある放射線治療用の電子線ライナックを使って ^{225}Ac の製造を試みた。しかし、20 mg の ^{226}Ra に対する ^{225}Ra の生成率は 407 kBq/h であり、この方法は ^{225}Ac の大量製造には向かないと考えられた。Maslov ら［59］はロシアのドゥブナにある Joint Institute for Nuclear Research（JINR）の Flerov Laboratory of Nuclear Reactions にある MT-25 マイクロトロンを用いて、0.65 μg の ^{226}Ra に 24 MeV の電子を 20-30 時間照射した。その結果 ^{225}Ac の収率は ^{226}Ra 1 mg あたり 550 Bq/μAh であった。ターゲットの厚みによる制動放射線の減弱効果を考慮すると、直線電子加速器で 50 MeV までに加速した電子 500 μA を 150 時間 1 g の ^{226}Ra に照射すれば 37 GBq の ^{225}Ac が製造できるとした。

^{213}Bi は半減期が 45.59 min と短いため単独での供給は難しく、通常は親核種の ^{225}Ac をカラムに吸着させ ^{213}Bi のみを溶出する ^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータの形で供給する。親核種の ^{225}Ac は半減期が 9.9203 d であるため、ジェネレータは数週間に亘って使用可能である。また、娘核種の ^{213}Bi はすぐに平衡状態に達するため、ジェネレータからは 3 時間ごとに ^{225}Ac に対して 93% の放射能の ^{213}Bi を溶離することができる。臨床の現場では、患者に投与する放射能に依存するが、たいてい 2 ～ 3 時間おきに ^{213}Bi を溶離する。これまでに陽イオンや陰イオン交換カラムクロマトグラフィーや抽出クロマトグラフィーを用いたいくつかの ^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータが報告［54, 60-64］されてきた。その中でも AG MP-50 陽イオン交換樹脂を用いたジェネレータは最も頻繁に利用され、^{213}Bi を用いた臨床試験の全てにおいて使用されている。ITU で作成されたジェネレータはポリテトラフルオロエチレン（PFA）性のカラム内に 0.3 mL の AG MP-50 陽イオン交換樹脂を含み、ポリプロピレンの蓋でカラムの前後をはさみ、シリコンチューブをつなげてある。ペリスタポンプで使ったミルキングでは、^{225}Ac から生成する ^{213}Bi の 76±3% を 0.3 mL（2 ベッドボリュームに相当）の 0.1 M NaI/0.1 M HCl の溶

離液で得ることができ、その時の ^{225}Ac の混入率は 0.2 ppm 以下である［65］。近年、^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータの利用施設の増加、また臨床試験で一度に必要とする放射能（患者一人あたり 6 GBq の ^{213}Bi が必要）が増加したため、ITU では従来供給してきた ^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータを改良し、臨床試験での供給に耐えうる高放射能の ^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータを作成した。これにより ^{225}Ac/^{213}Bi として最大 3 GBq のジェネレータの操作をできるようになり、さらに患者に投与する時点の放射能で 2 GBq に相当する標識化合物 ^{213}Bi-DOTATOC を調製することができた。現在 4 GBq までの ^{225}Ac を含むジェネレータの検証が進行中である［56］。

^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータは現在 ITU 製のものが世界各国の基礎や臨床試験を行う共同研究グループに対して無償で提供されている［65］。

4. ^{227}Th と ^{223}Ra の製造

^{227}Th（$T_{1/2}$ = 18.68 d）と ^{223}Ra（$T_{1/2}$ = 11.43 d）は ^{235}U の壊変系列に属する（Fig. 2）。^{223}Ra は ^{227}Th の娘核種であり、どちらも α 放射体である。^{223}Ra は壊変後さらに複数の壊変を伴い、最終的に ^{207}Pb になる。^{223}Ra の壊変では複数の α 線が放出されるため高い細胞毒性が期待される。

^{227}Th と ^{223}Ra は通常 ^{227}Ac（$T_{1/2}$ = 21.772 y）の

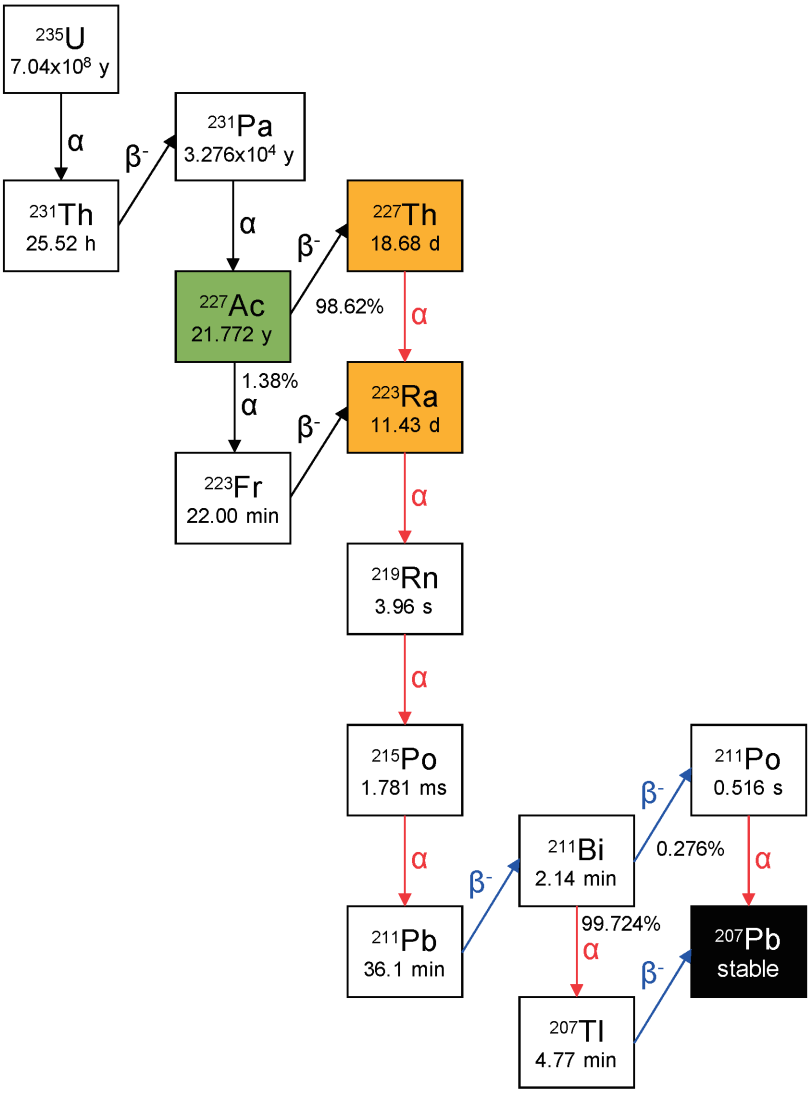


Fig. 2　Decay chain of ^{227}Th and ^{223}Ra.

壊変によって入手する。長半減期の ^{227}Ac は ^{235}U の壊変生成物としてウラン製錬工場の製錬排滓から抽出分離する［66］。また長期保存した ^{231}Pa 中には ^{227}Ac が生成していることから、^{231}Pa からの分離で入手することも可能である。Henriksen ら［67］は ^{227}Ac/^{223}Ra ジェネレータを作成するための ^{227}Ac の供給源として ^{231}Pa を用いた。精製してから 28 年以上経過した 200 kBq の ^{231}Pa を、6M H_2SO_4/2M HF 系で TRU 樹脂に吸着させて ^{227}Ac, ^{227}Th, ^{223}Ra を分離している。^{227}Ac 100 kBq に対して ^{223}Ra は 60 kBq の収率で効率的に分離できた。^{223}Ra の製造工程における ^{227}Ac の混入率は ^{223}Ra の放射能に対して 6×10^{-6} 程度であった。

^{227}Ac は ^{226}Ra を原子炉で照射して ^{226}Ra(n, γ) ^{227}Ra → ^{227}Ac として入手することもできる。^{226}Ra の熱中性子核反応断面積は 12.8 b［68］である。このため ^{226}Ra を中性子放射化すれば容易に ^{227}Ra が生成する。この ^{227}Ra は半減期が 42.2 min と短いため、しばらくすれば β^- 壊変をして全て ^{227}Ac になる。Nilsson ら［20］が行ったヒト臨床第 1 相試験で用いた $^{223}RaCl_2$ は ^{226}Ra を Pacific Northwest National Laboratory（PNNL）の原子炉で照射して製造した ^{227}Ac から分離精製したものであることが報告されている。Kuznetsov ら［69］は ^{226}Ra をロシアのディミトロフグラードにある Research Institute of Atomic Reactors の SM Reactor で照射して ^{227}Ac の製造を試みている。2.5 mg の ^{226}Ra を中性子束が 1.5×10^{15} n/cm^{2}s の原子炉内で実質 25 日間照射した結果、190±20 MBq の ^{227}Ac が生成した。これは ^{226}Ra 1 g あたり 78±8 GBq に相当する。この照射で残った ^{226}Ra は元の量の 75±11%（67±11 MBq）であった。

^{227}Ac の供給源には、これ以外にも中性子発生用線源［70］として作られた ^{227}Ac/Be 線源を解体して分離精製する方法がある。PNNL の Soderquist ら［71］はアメリカの石油会社からそれぞれ 44 GBq と 5.5 GBq の ^{227}Ac/Be 中性子源を入手し、機械的に破壊後、化学分離をして約 40 mg の ^{227}Ac 硝酸化合物として回収している。一方、ORNL の Murphy ら［56］はステンレススチールに被われた ^{227}Ac/Be 線源を機械的に破壊し、3 mL の 1-4M の硝酸で溶解した。最終的に ^{227}Ac/Be 中性子源から 18.5 GBq の ^{227}Ac を回収し、その回収率は 65-99% であった。^{227}Ac のストック溶液は今後定期的に ^{227}Th と ^{223}Ra を分離するのに利用される。分離した ^{227}Th や ^{223}Ra はアメリカの National Isotopes Development Center（NIDC）を通じて購入することができる［72］。

^{227}Ac は ^{227}Th や ^{223}Ra などから放出される低エネルギーの γ 線や希ガス ^{219}Rn($T_{1/2}$ = 3.96 s）に加えて 1.38% の分岐比で生成する ^{223}Fr($T_{1/2}$ = 22.00 min）の β 線（E_{max} = 1.15 MeV）の放出のため、取り扱う空間は汚染しやすく且つ高い線量率を示す。したがって、GBq（mg 量）相当の ^{227}Ac の取り扱いは、グローブボックスではなくホットセルで行う必要がある［71］。ウラン製錬排滓であれ ^{226}Ra の原子炉照射であれ、どちらも大量の ^{227}Ac を製造可能なため、現在の世界的な貯蔵量は ^{227}Th や ^{223}Ra の臨床応用に十分利用可能である。

5. ^{224}Ra, ^{212}Pb, ^{212}Bi の製造

^{224}Ra, ^{212}Pb および ^{212}Bi は ^{232}Th の壊変系列に属する（Fig. 3）。^{224}Ra は比較的長い半減期を持つ ^{228}Th($_{1/2}$ = 1.9116 y）から分離して使用する。^{224}Ra は短時間で 3 つの α 壊変をした後 ^{212}Pb になる。^{212}Pb ($T_{1/2}$ = 10.64 h) は β^- 壊変核種であり、壊変後に 60.55 min の半減期を持つ ^{212}Bi になる。その後 ^{212}Po と ^{208}Tl にそれぞれ 64.06%, 35.94% の分岐比で壊変し、最終的に安定核種の ^{208}Pb になる。^{224}Ra の壊変では複数の α 線が短時間で放出されるため ^{223}Ra 同様高い細胞毒性が期待されるが、壊変途中に生成する希ガス核種 ^{220}Rn の半減期が 55.6 s であるため、標的組織から遊離することが懸念されてきた。近年、Rojas ら［73］は $LaPO_4$ のナノ粒子技術を用いて ^{224}Ra の同位体の ^{223}Ra を粒子内に閉じ込めた後、壊変で生成する娘核種を 27 日以上にわたって粒子内に 99.9% 以上保持できることを報告した。^{223}Ra から壊変で生成する希ガス核種 ^{219}Rn の半減期は 3.96 s と短いため、^{224}Ra から生成する半減期 55.6 s の ^{222}Rn の挙動が ^{219}Rn と同じであるかは今後の実験結果を待つ必要があるが、この結果は ^{224}Ra を使った治療の今後の可能性を予感させる。

^{224}Ra は親核種の ^{228}Th から分離する。親核種の ^{228}Th を製造する方法はいくつか知られており、最も一般的な方法は ^{232}Th の壊変生成物とし

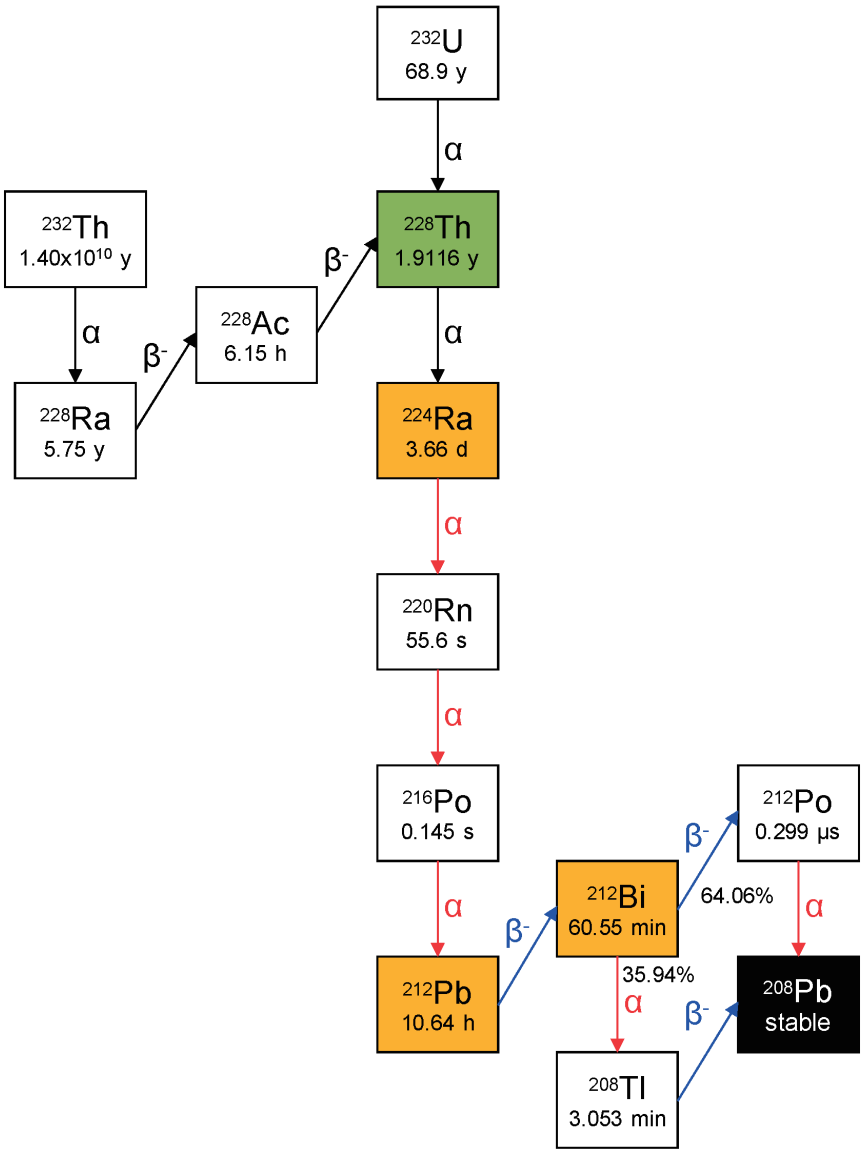


Fig. 3　Decay chain of ^{224}Ra, ^{212}Pb, and ^{212}Bi.

て入手することである。これは ^{232}Th から ^{228}Ra を分離し、その後 ^{228}Ra が ^{228}Th に壊変するのを待ち、1 年毎に再度溶媒抽出をおこない ^{228}Th を回収する方法である。この方法の場合、25 年間放置した 1 トンの ^{232}Th から 3.9 GBq の ^{228}Ra が回収できるが、その 1 年後にそこから回収できる ^{228}Th は 1.1 GBq である。^{228}Th はこの他にも ^{232}U の壊変生成物として入手することもできる。この場合の ^{232}U は ^{231}Pa(n, γ)^{232}Pa → ^{232}U として製造することができる。またより効率的に ^{228}Th を製造する方法として、^{226}Ra の多重中性子捕獲反応を利用する方法が挙げられる。この反応では、1×10^{15} n/cm^{2}s の中性子束を ^{226}Ra 1 g に 24 日間中性子を照射することにより、1370 GBq の ^{228}Th を製造できる［54］。

半減期 60.55 min の ^{212}Bi は α 線の放射免疫療法の効果を動物実験［4］によって初めて証明した核種である。^{212}Bi は 64% が β^- 壊変をして ^{212}Po になる。この ^{212}Po は 0.299 μs の半減期で α 壊変をして安定な ^{208}Pb になる。また ^{212}Bi の残りの 36% は α 壊変により ^{208}Tl になる。この ^{208}Tl は 3.053 min の半減期で β^- 壊変をして ^{208}Pb になる。^{208}Tl は壊変の際に 2.6 MeV の γ 線を放出するため、TAT 研究の当初はこの γ 線が医師や周囲の人々

の被ばくの要因になると考えられてきた。しかし ^{212}Bi の半減期が 60.55 min と短いのに対して親核種の ^{212}Pb は半減期が 10.64 h もある。そのため、^{212}Pb の標識化合物として投与し体内で α 線を放出する ^{212}Bi に壊変した方が、薬物動態を考慮した際に線量的にも優れていることが明らかとなり、現在は ^{212}Pb の標識化合物として利用する研究が多く行われている。この系の特徴は親核種の ^{212}Pb が β^- 壊変核種であるため投与初期の全身の被ばくが α 放射体を投与した時に比べて相対的に低い点にある。

^{212}Pb/^{212}Bi は親核種の ^{224}Ra から分離する。^{212}Pb/^{212}Bi を溶離するジェネレータは ^{224}Ra を吸着させたイオン交換樹脂カラム［74］またはステアリン酸バリウムに ^{228}Th を埋め込んだもの［75］を用いたものが知られている。現在 ^{224}Ra/^{212}Pb ジェネレータはアメリカの NIDC から購入できる［76］。また、ヒト臨床試験では Areva Med 社がジェネレータを提供［8］している。

6. ^{230}U, ^{226}Th の製造および化学分離

α 放射体の ^{230}U と ^{226}Th は 2004 年になって初めて TAT への応用が有望な核種として提唱された［77］。どちらの核種も α 壊変のみで、壊変後は短時間で娘核種が逐次的に複数の α 壊変を行い、長半減期の ^{210}Pb（$T_{1/2}$ = 22.20 y）になる（Fig. 4）。^{230}U は半減期が 20.8 d で 4 つの娘核種（^{226}Th, ^{222}Ra, ^{218}Rn, ^{214}Po）を持つ。いずれも半減期が最

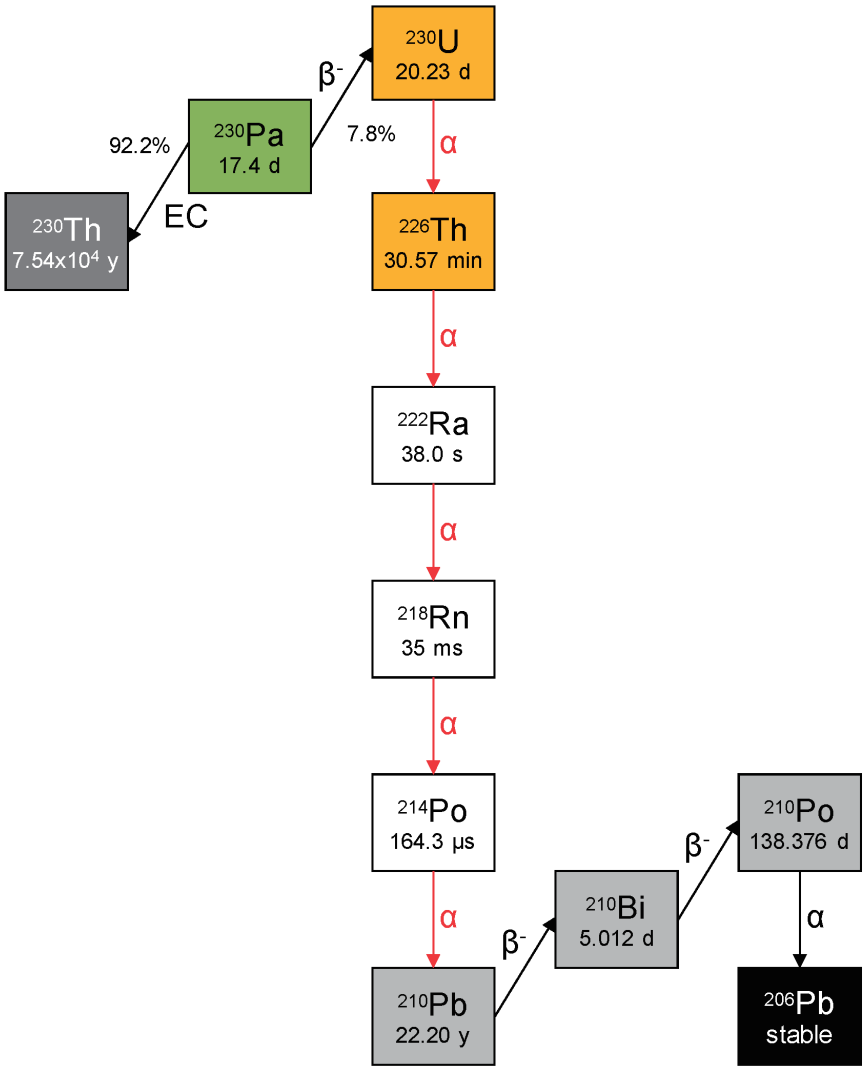


Fig . 4　Decay chain of ^{230}U and ^{226}Th.

大 30.57 min と短いものばかりである。^{230}U からの壊変によって全部で 5 つの α 線が放出され、全エネルギーは 33.5 MeV に達する。これは標的細胞に対して非常に毒性の高い線量を照射できることを示す。^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータのように ^{230}U も ^{230}U/^{226}Th ジェネレータとして短半減期の ^{226}Th（$T_{1/2}$ = 30.57 min）をミルキングすることができる。^{226}Th の利用法は同じ短半減期核種 ^{213}Bi と同様に、迅速に標的細胞に集積させる方法が望ましいのに対して、親核種の ^{230}U は ^{225}Ac 同様に、比較的薬物動態が遅いような治療法にも応用可能である。複数回壊変を伴う ^{230}U や ^{226}Th が持つ重要な特徴は、*in vivo* generator として ^{225}Ac と同様に、高い線量をがんに対して照射できることである。一例として、短半減期核種の ^{226}Th（複数壊変を伴う）と ^{213}Bi（単一壊変のみ）を標識して同じ条件で細胞（白血病細胞、リンパ腫細胞、乳がん細胞）に対する毒性を比較した結果、^{226}Th のもつ強い細胞毒性が示された［78, 79］。^{226}Th の娘核種はいずれも 164.3 μs から 38.0 s のとても短い半減期を持つため、壊変後に標的組織から離れることは少ないと期待される。これにより、標的組織での複数本の α 線による線量が維持されるのに対して正常組織への被ばくが最小限に抑えられると考えられる。

^{230}U の製造には ^{232}Th や ^{231}Pa をターゲットとしてサイクロトロンで照射する方法が報告されている。Morgenstern ら［80］は入射エネルギーが 33.5 MeV までの陽子線を用いた ^{232}Th(p,3n)^{230}Pa 反応の核反応断面積を測定し、^{230}Pa の β^- 壊変で得られる ^{230}U の量を推定した。^{232}Th(p,3n)^{230}Pa 反応で製造した ^{230}Pa は 8.4% の分岐比で β^- 壊変をして ^{230}U になる。このため ^{230}Pa を製造してから 4 週間冷却することで、照射後の ^{230}Pa に対して最大 2.8% の ^{230}U を無担体で分離することができる。この反応の最大核反応断面積は E_p = 19.9±0.2 MeV において 353 ± 15 mb であった。E_p = 33.5 MeV として製造する ^{230}Pa の TTY は 8.4 MBq/μAh になった。これは照射後 28 日で β^- 壊変で生成する ^{230}U に換算すると 0.24 MBq/μAh になった。仮に E_p = 33.5 MeV, ビーム電流 100 μA で照射時間を 50 時間とし、^{232}Th の厚い金属ターゲットに照射すれば、42 GBq の ^{230}Pa が製造でき、その 28 日後には 1.2 GBq の ^{230}U を得ることができる。Duchemin ら［81］は陽子の入射エネルギーをさらに 70 MeV まで拡張して ^{232}Th(p,3n)^{230}Pa 反応の核反応断面積を測定した。この結果は Morgenstern らの結果と良く一致しており、E_p = 70 MeV として ^{230}Pa を製造し照射後 28 日で β^- 壊変で生成する ^{230}U の TTY も 0.3 MBq/μAh と同様の値を示した。また Duchemin ら［82］は重陽子を入射粒子として ^{232}Th(d,4n)^{230}Pa 反応を用いた ^{230}Pa の製造を検討した。Stacked-foil technique を用いた反応断面積の測定では、E_d = 25.23±0.45 MeV において最大反応断面積は 296.05±45.13 mb であった。E_d = 29.9 MeV として Morgenstern らと同じ条件で TTY を評価したところ、β^- 壊変で生成する ^{230}U は照射後 28 日で 0.101 MBq/μAh であった。

前述の方法は ^{230}Pa を介して ^{230}U を製造する間接的な製造法である。そこで ^{230}U を直接製造できる方法として Morgenstern ら［83, 84］は ^{231}Pa をターゲットとした ^{231}Pa(p,2n)^{230}U ならびに ^{231}Pa(d,3n)^{230}U 反応を用いた製造を試みた。ターゲットの ^{231}Pa は ^{235}U の壊変生成物として g 単位で入手した。^{231}Pa(p,2n)^{230}U 反応の最大反応断面積は E_p = 14.6 ± 0.2 MeV において 33.2 ± 5.3 mb であった。これに対して ^{231}Pa(d,3n)^{230}U 反応最大反応断面積は E_d = 17.9 ± 0.2 MeV において 27.8 ± 4.4 mb であった。^{231}Pa をターゲットとした反応における核反応断面積は ^{232}Th(p,3n)^{230}Pa 反応よりも 10 倍低い値であるが、^{230}U の生成量で評価した場合と同等であった。^{230}U の TTY は E_p = 24.0 MeV として 0.245 MBq/μAh, E_d = 20.0 MeV として 0.119 MBq/μAh であった。

現在 ^{230}U の製造には上記 4 つの核反応での製造が報告されている。この中でも ^{230}U の TTY が高く且つターゲットを準備しやすいという観点から、^{232}Th(p,3n)^{230}Pa → ^{230}U の方法が最も妥当と考えられる。筆者らは大阪大学で ^{232}Th を用いた製造をかつて試みたことがある。その結果、動物実験が可能な量の ^{230}U/^{226}Th を製造可能であることが判明した［85］。

7. 高エネルギーの陽子ビームを用いた核破砕反応による製造

2009年以降の新たな取り組みとして、^{232}Thターゲットに高エネルギーの陽子線を照射し核破砕反応を使う方法が試みられている。米国エネルギー省の科学局核物理部門が支援するこのプロジェクト（Isotope Development & Production for Research and Applications, IDPRA）［86, 87］はロスアラモス国立研究所（LANL）、ブルックヘブン国立研究所（BNL）とORNLの3つの国立研究所（Tri-Lab）の共同研究として^{232}Thから核破砕反応でGBq量の^{225}Ac, ^{223}Raなどを製造する［14, 53, 56］。

LANLとBNLは互いに高エネルギーの直線加速器を有している。LANLでは800MeV, 200MeVの陽子線を、またBNLでは100-200MeVの陽子線を利用した^{225}Acの製造を試みた。Weidnerら［88, 89］はLANLの中性子科学センター（LANSCE）のWeapons Neutron Research Facility（WNRF）加速器施設から得られる800 MeV陽子線67.6 nAを48.1 mg/cm^{2}と52.8 mg/cm^{2}の^{232}Th箔に1時間照射した。またLANSCEのWNRFおよびIsotope Production Facility（IPF）において71.2 nAの200 MeV陽子線と126.8 nAの100 MeV陽子線をそれぞれ1時間ずつ60.5 ～ 70.5 mg/cm^{2}の^{232}Th箔に照射して11のエネルギー値に対する^{225}Acなどの核反応断面積を取得した。そして得られた断面積の情報を基にα放射体の生成率と収率を見積もった。その結果5 g/cm^{2}の^{232}Thターゲットに10日間陽子線を照射すれば、現在の供給量に匹敵する^{225}Acを製造できると推計（Table 5）［88-91］した。特に800 MeVの陽子線では現在の10倍以上の供給量を提供できることになる。しかし、この核破砕反応で製造する方法では、Ac同位体で短半減期の^{226}Ac（$T_{1/2}$ = 29.37 h）と長半減期の^{227}Ac（$T_{1/2}$ = 21.772 y）が同時に生成する。^{226}Acは照射後の冷却によって放射能を減衰させることも可能であるが、^{227}Acは必ず不純物として混入（最大0.5%）する。これらの核種を最大限に除くためにも、照射エネルギーの最適化およびアイソトープ治療でどのような影響を及ぼすか、さらにどの程度の^{227}Acの混入が許容できるかといった検討が必要である。そのためIDPRAプログラムでは、現在LANL-IPFで製造した^{227}Acを含む^{225}Acを用いた動物実験などによる毒性と線量評価の研究を募集している［92］。

ロシアのInstitute for Nuclear Research（INR）のグループ［93, 94］はMoscow Meson Factoryにある600 MeVまで陽子を加速できる線形加速器を使って^{232}Thの核破砕反応による^{225}Acや

Table 5. Production rates and yields at the end of bombardment from a 10-day irradiation of a 5 g/cm^2 ^{232}Th target at each facility.

		LANL−MTS (1250 μA, 800 MeV)		LANL−IPF (250 μA, 93−72 MeV)		BNL−BLIP (100 μA, 195−183 MeV)	
Nuclide	Half-life	Production rate [MBq/μAh]	Yield [GBq]	Production rate [MBq/μAh]	Yield [GBq]	Production rate [MBq/μAh]	Yield [GBq]
^{223}Ra	11.4 d	1.08	244	0.25	11	0.70	11
^{225}Ra	14.9 d	0.52	126	0.10	4	0.25	4
^{225}Ac	9.9 d	3.46	747	1.22	52	4.28	74
^{226}Ac	29.4 h	4.52	1360	not shown	132	not shown	136
^{227}Ac	21.8 y	0.006	1.84	0.001	0.1	0.003	0.1
^{227}Th	18.7 d	1.59	400	6.40	322	3.54	70

MTS: Materials Test Station
IPF: Isotope Production Facility
BLIP: Brookhaven Linac Isotope Producer
Ref. ［85-88］

^{223}Ra の核反応断面積の測定および生成収率の測定を試みた。その結果、60 ～ 140 MeV の陽子線を 100 μA で ^{232}Th ターゲットに 10 日間照射し、さらに 10 日間冷却した後の ^{225}Ac は 96 GBq になることが見積もられた。またこの時同時に生成する ^{227}Ac は ^{225}Ac に対して 0.23% の放射能になることが判明した。同条件で冷却時間を 16 日にした場合の ^{223}Ra の生成量は 340 GBq であった。

Duchemin ら［81］はフランスのナントにある Accélérateur pour la Recherche en Radiochimie en Oncologie à Nantes AtlantiX（ARRONAX）の C-70 サイクロトロンを使って ^{232}Th(p, spall）反応で生成する ^{225}Ac, ^{227}Th, ^{230}Pa の核反応断面積を調べた。最大 70 MeV まで加速された 100 ～ 150 nA の強度の陽子線を 40 μm 厚のトリウム箔で構成されたスタックに 30 分照射した。得られた ^{225}Ac, ^{227}Th の反応断面積は LANL および INR のグループが報告したものと同様の傾向を示したがいずれの値よりも高い値を示した。その理由として、LANL および INR のグループは 100 MeV 以上に加速された陽子線をターゲットに照射し減弱させているため、ターゲット中の陽子線のエネルギーに広がりがあるのではないかとしている。核反応断面積を基に TTY を計算した結果、^{225}Ac は 1.6 MBq/μAh であり 350 μA で 3 日間照射すれば 40.3 GBq 製造できることが示された。また、^{223}Ra は照射後 20.8 日の冷却期間をおくと仮定した場合、TTY は 1.8 MBq/μAh となった。これも 350 μA で 3 日間照射すれば 45.4 GBq 製造できることを示した。

8. ^{211}At の製造

^{211}At はサイクロトロン等の加速器を用いて製造できる α 放射体である。ビスマス金属をターゲットとして ^{209}Bi(α,2n)^{211}At 反応で製造し、主に乾式分離法を用いてターゲットから化学分離する。^{211}At の半減期は 7.214 h であり、製造や化学分離、標識化合物の調製をする際に取り扱いやすい。またこの半減期は、標的腫瘍への取込に時間を要するモノクローナル抗体を用いても、致死線量を腫瘍に照射するのに充分な時間である。^{211}At は分岐壊変を示し、41.7% が ^{207}Bi に α 壊変し、^{207}Bi($T_{1/2}$ = 31.55 y)はさらに β^- 壊変して安定核種 ^{207}Pb になる。一方残りの 58.3% は EC 壊変で ^{211}Po になるが、^{211}Po は半減期が 0.516 s のため、これも直ちに α 線を放出し ^{207}Pb に壊変する（Fig. 5）。その結果 ^{211}At は壊変時に α 線を 100% 放出することになり、放出される α 線の平均エネルギーは 6.04 MeV、平均 LET は 97 ～ 99 keV/μm となる。^{211}At は娘核種の ^{211}Po に EC 壊変する過程で特性 X 線を放出する。この X 線は薬物動態を評価する上で試料の計測や外部からのイメージングを可能にする［5, 6, 95］。^{211}At はハロゲンに属するのでアイソトープ治療や診断に用いられているヨウ素や臭素と同様の標識が可能である。しかし、これらの核種と異なりアスタチン－炭素間の結合が不安定なため、通常はアリール基を持つエステルに標識した上で抗体やペプチドと結合させる［96］。

^{211}At は一般的には ^{209}Bi をターゲットとして ^{209}Bi(α, 2n)^{211}At 反応を利用して製造する。この反応の核反応断面積は多くの研究者によって測定されている。Hermanne ら［97］は E_α = 31.0 ± 0.9 MeV において 949 ± 95 mb の最大核反応断面積を持つことを報告している。またこの反応の励起関数は ALICE-IPPE コードを用いた理論計算ともよく一致している。しかしこの反応では、E_α = 28.61 MeV に ^{209}Bi(α, 3n)^{210}At 反応の閾値があり、これ以上のエネルギーでは ^{210}At が生成する。^{210}At（$T_{1/2}$ = 8.1 h）は壊変すると毒性の高い α 放射体の ^{210}Po($T_{1/2}$ = 138.376 d）になる。したがって、^{211}At の製造は約 29 MeV 以下の ^{210}At(^{210}Po）が生成しない範囲で製造する必要がある。その結果、この反応での ^{211}At の TTY はだいたい 32 MBq/μAh である。これまでに様々な TTY の値［6, 53, 97-114］（Table 6）が報告されているが、28-30 MeV 付近はエネルギーの増加とともに断面積が増加する箇所であるため、スタック中に入射する α 粒子の減弱が実験毎に異なると、それが結果に影響を及ぼすと考えられる。

^{211}At を製造する別の反応系として、日本原子力研究開発機構の西中ら［115］は ^{7}Li を天然存在比の鉛ターゲットに照射して ^{211}At の核反応断面積を測定した。彼らは Stacked-foil technique を利用して 57-29 MeV での ^{nat}Pb(^{7}Li, xn)^{211}At 反

Table 6. Production yield of ^{211}At from literature.

Investigator	Eα [MeV]	Target thickness [μm]	Irradiation time [h]	Beam current [μA]	^{211}At yield [MBq/μAh]	Content of ^{210}At relative to ^{211}At [%]	Ref.
Aaij *et al.* (1974)	33	500	1-2	2-4	7.4-14.8	0.01-0.1	97
Rösch *et al.* (1985)	28	500	5	5	8.56	$< 7\times10^{-7}$	99
Lambrecht and Mirzadeh (1985)	28	100	1.3-3.95	6.8-9.6	5.3-10.4	no detection	100
	28	100	0.1396&0.1401	7.14&1.17	15.2&15.6	<0.02	
Larsen *et al.* (1993)	28	250	1-2	10-12	8-12	no detection	101
Larsen *et al.* (1996)	28	50 (1.5-4.5° offset)[a]	1	20-40	41±7	-	102
	28		1	20-40	37±6	-	
Schwarz *et al.* (1998)	27.3	~ 800	0.5-6	5-15	5.55±2.07	<0.01	103
	28-29	20-80 (4° offset)[a]	0.833-2	27-45	16.28±5.18		
Henriksen *et al.* (2001)	27.6	-	0.25	5-10	18	$< 4.4\times10^{-4}$	104
	28.6				27	<0.01	
	29.1				32	0.023±0.006	
	29.6				38	0.18±0.03	
	30.1				42	0.7±0.1	
Nshmakova *et al.* (2001)	28	-	-	-	~20	< 0.01%	105
Lebeda *et al.* (2005)	29.5	3-5 (0.5-1.5° offset)[a]	1-2	10-30	38.0±2.3	0.074±0.021	106
Hermanne *et al.* (2005)	28	2	0.5	0.2	24.4	0.16	97
	29				32.11	0.31	
	29.5				36.29	0.38	
	30				40.64	-	
	31				49.86	0.10	
Groppi *et al.* (2005)	28.8	-	-	0.05-0.25	29.1±0.63	-	107
	32.8				46.86±1.5		
Andersson *et al.* (2009)	28-29	24±3 mg/cm^2	7.6±0.2	16.8±1.5	22.1±1.9*	-	6
Jensen (2011)	28-29	24±3 mg/cm^2	3.8±0.5	16.4±1.3	23.5±2.5*	$< 2\times10^{-3}$	52
Freifelder *et al.* (2012)	28.4	200	4	10	9.25	-	108
Gagnon *et al.* (2012)	~28	170 (10° offset)	61±17 min	46±9	17.4±1.5	no detection	109
	~29	170 (10° offset)	53±11 min	43±8	23.2±1.6	no detection	
Kim *et al.* (2014)	28.71	1000	0.5	0.3	17.2±0.32	0.0072	110
	29.17				31.86±1.07	0.0883	
	30.07				41.24±1.70	0.753	
	31.81				48.95±3.21	4.1645	
	33.96				48.88±5.76	13.0309	
Martin *et al.* (2014)	25.5±0.82	500	4	96.13pnA	12.4	no detection	111
	27.8±0.72	500	4	163.17pnA	36.0	2.3	
Nagatsu *et al.* (2014)	28.5	0.97-1.23 g shot	1-2	10-13	22.2±4.9	0.0022±0.00038	112
Szkliniarz *et al.* (2015)	29	98 mg/cm^2	-	1	37±6	1.6×10^{-4}	113
Da Silva *et al.* (2015)	30.5	100	2	2	25	-	114
		30	2	2	44±12	-	

a: internal irradiation system
*: estimated from saturation yield

応を調べ、E = 41 MeV において 390 mb の最大核反応断面積を持つことを報告した。

^{209}Bi（α, 2n）^{211}At 反応は安定な ^{209}Bi をターゲットとして使えることから、他の核種より比較的に製造しやすいが、^{211}At の半減期が 7.214 h であること、また製造するには α 粒子を約 30 MeV まで加速できる加速器が必要であるため、結果的には他の核種と同様入手が困難な側面を持つ。現在までに北米では 6 つの施設が ^{211}At の製造および計画を発表している。また東欧・西欧では 6 施設、アジアでは日本、韓国、中国を含めて 6 施設が ^{211}At の製造および計画を発表している。2000 年以降、^{211}At を製造する報告が増えてきている（Table 6）が、基礎研究や臨床応用を考えた場合、製造した ^{211}At は半減期が短いため近隣の施設に運んで実験をすることはなかなか難しい。Andersson ら[6]は ^{211}At を用いた世界で 2 番目のヒト臨床試験を行っているが、彼らの施設（University of Gothenburg）には ^{211}At を製造できる加速器がないため、320 km 離れた隣国コペンハーゲンにある Rigshospitalet の Cyclotron and PET Unit で製造し、約 4 時間かけて輸送したものを利用している。近年、米国 IDPRA プログラムの一環として、^{211}At の米国内での輸送が検討された。Wilbur［116］はワシントン州シアトルにある Unibersity of Washington Medical Center で製造した ^{211}At を 3,200 km 離れたミズーリ州コロンビアのミズーリ大学まで FedEx で運んだが、出荷時 444 MBq の放射能は到着時には 51 MBq であった。金沢大学の小川ら［117］は大阪府茨木市にある大阪大学核物理研究センター（RCNP）で製造した ^{211}At を自動車で石川県金沢市に輸送した後実験に供している。この場合、300 km を約 4 時間で移動している。また群馬県高崎市にある日本原子力研究開発機構の TIARA（Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radiation Application）の AVF-930 で製造した ^{211}At も約 400 km を自動車で約 5 時間かけて金沢市に輸送して実験に供している。これらの一連の報告のように、製造拠点と異なる地域で ^{211}At を用いた動物や化学の研究を行う場合、放射能の減衰を最小限に留めることが重要であるが、^{211}At の半減期 7.214 h は短すぎるため、1 半減期以内の輸送が望ましい。しかし、より多くの施設がより多い放射能の ^{211}At を望む場合、必然的に製造拠点から輸送できる範囲は限られてしまう。そこで製造拠点に依存せず、より広範囲の遠方の施設でも実験が可能となるために ^{211}At の親核種 ^{211}Rn（$T_{1/2}$ = 14.6 h）を ^{209}Bi(^{7}Li, 5n)^{211}Rn 反応で製造し、ジェネレータ系（Fig. 5）として供給することが解決策として挙げられる。

^{211}Rn は 72.6% の分岐比で ^{211}At に壊変する。^{211}Rn から壊変して生成した ^{211}At は約 15 時間後には最大値を示し（Fig. 6）、その後親核種の ^{211}Rn と平衡状態に達し ^{211}Rn の半減期で減衰する。この場合の ^{211}At は、^{211}At 単独の場合と比較して約 2 倍の半減期で減衰していく。したがって、これまで放射能の減衰により利用が不可能であった広範囲の遠隔地医療施設および研究施設に対して ^{211}At の供給が見込める。

^{211}Rn 製造は主に 3 つの反応経路が研究対象とされている。Meyer と Lambrecht［118］は ^{209}Bi(^{7}Li, 5n)^{211}Rn 反応の核反応断面積を測定し、*E*= 53 MeV において 650 mb 程度の断面積になることを報告した。さらに 2 つの厚い Bi ターゲット（56.3, 120 mg/cm^2）に対する照射実験の結果から、Saturation Yield を 20.4 kBq/nA と計算した。Meyer［119］は ^{209}Bi(^{6}Li, 4n)^{211}Rn 反応での製造も検討しているが、^{7}Li を用いた反応に比べて TTY は 23 ± 4% であると計算した。Argonne

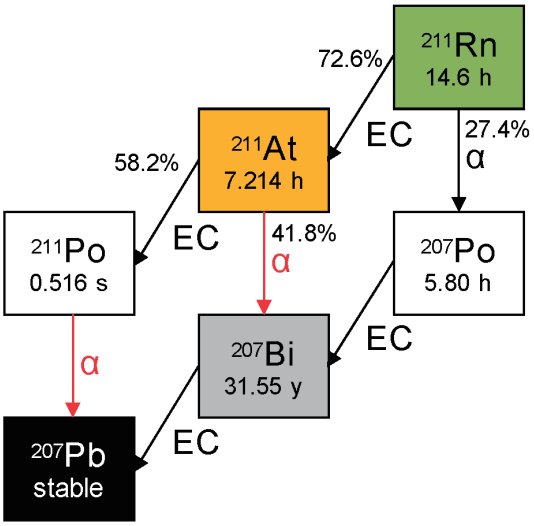


Fig. 5　Decay chain of ^{211}At.

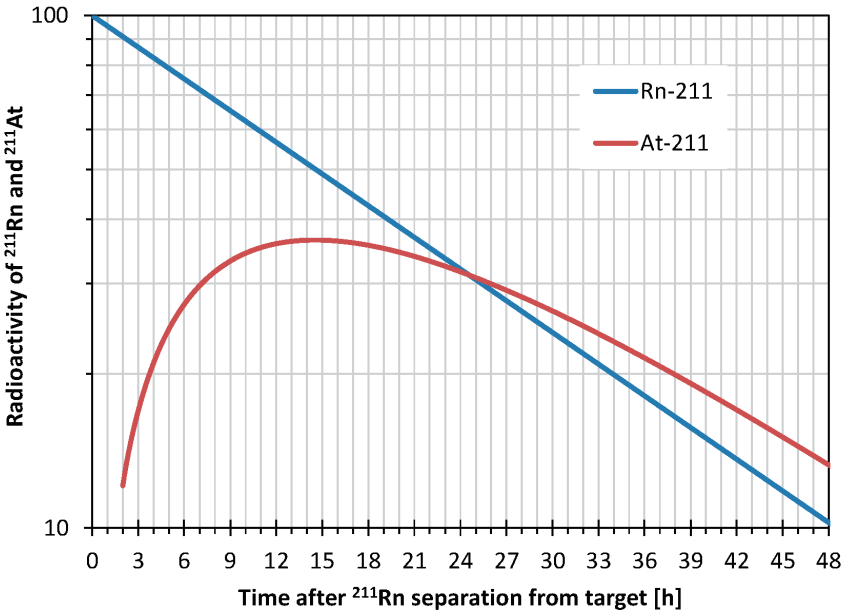


Fig. 6　Radioactive decay and growth of ^{211}Rn and ^{211}At.

National Laboratory（ANL）のグループ［56, 120, 121］はタンデム加速器を利用した ^{211}At の製造の検討を報告している。彼らの施設の加速器（Argonne Tandem Linac Accelerator System, ATLAS）は、イオン源を改良することで 10 pnA のイオンビームを作ることができると報告した。これにより 3 時間程度の照射で 3.7 GBq の ^{211}Rn が製造可能であるとした。金沢大学の前田ら［122］は日本原子力研究開発機構のタンデム加速器を使用して ^{209}Bi(^{7}Li, 5n)^{211}Rn 反応で製造する ^{211}Rn を用いたジェネレータ作成の基礎実験を行った。

Vasáros ら［123］は Joint Institute for Nuclear Research（JINR）の Laboratory of Nuclear Problems にあるシンクロサイクロトロンから得られる 660 MeV の陽子線を ^{232}Th ターゲットに照射して核破砕反応で ^{211}Rn を製造している。核反応断面積は示されていないが、3.7 MBq の ^{211}Rn をホットアトムの実験に使用している。

Crawford ら［14, 56］は TRIUMF にある Isotope Separation and ACceleration（ISAC）facility の Radioactive Beam を利用した ^{211}Rn の作成を試みている。彼らは ISAC 施設で 480 MeV の陽子線を $^{238}UO_2$ ターゲットに照射して、核破砕反応により短寿命の ^{211}Fr($T_{1/2}$ = 3.10 min）を作り、ISOL 技術を利用して ^{211}Fr を分離し、薄い NaCl ターゲットに打ち込んで、壊変で生成する ^{211}Rn を捕集する方法を提案した。また同時に生成する ^{213}Fr を使えば ^{211}At の同位体の ^{209}At($T_{1/2}$ =5.42 h）を作ることができるとしている。^{209}At は複数の γ 線を放出するため、^{211}At 標識薬剤の体内動態を事前に調べることができるという。実験では 8.2 時間の NaCl ターゲットへの打ち込みで 120 MBq の ^{209}At を得た。その放射性核種純度は 99% 以上であった。

Visser ら［124］は 0.250–0.35 GeV の電子線を用いて ^{232}Th への光核反応で生成する ^{211}Rn の断面積を報告している。0.25, 0.30, 0.35 GeV にける反応断面積はそれぞれ、28, 40, 130 μb となり、製造目的にはこの方法は応用できないと考えられる。

9. ^{149}Tb の製造および化学分離

^{149}Tb はテルビウム同位体の中にあって適度な半減期（$T_{1/2}$ = 4.118 h）を持ちながら部分的に α 壊変をする核種であり、Allen らによって 1996 年に TAT への応用が提唱された［125］。その後動物実験により、^{149}Tb 由来の α 線の照射に基づく延命効果が認められた［126］。^{149}Tb は 17% の分岐比で α 壊変をして ^{145}Eu($T_{1/2}$ = 5.93 d）になる（Fig. 7）。また β^+ 壊変（7%）と EC 壊変（76%）により ^{149}Gd($T_{1/2}$ = 9.28 d）になる。^{145}Eu と ^{149}Gd は安定な ^{145}Nd と ^{149}Sm になるまで複数回壊変をするが、いずれもほぼ 100%EC 壊変である。したがって ^{149}Tb は単一の α 壊変核種とみなすことができる。また、^{149}Tb には β^+ 壊変（17%）をする ^{152}Tb($T_{1/2}$ = 17.5 h）や低エネルギーの γ 線を放出する EC 壊変核種 ^{155}Tb($T_{1/2}$ = 5.32 d）や β^- 壊変をする ^{161}Tb($T_{1/2}$ = 6.89 d）などが同位体として存在する。これらの核種も化学的取り扱いは同じため、抗体やペプチドに同時に標識すれ

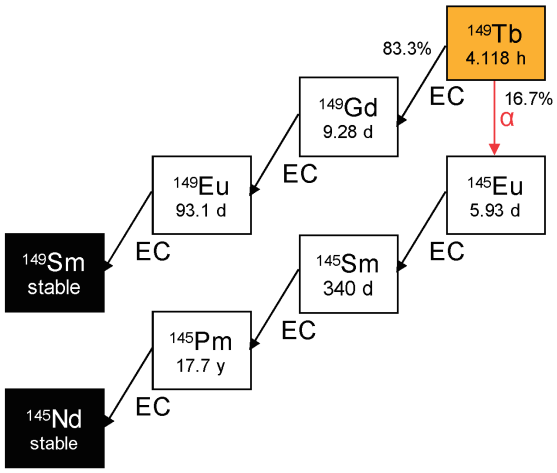


Fig. 7　Decay chain of ^{149}Tb.

ば、α 線と β^- 線による治療と β^+ 壊変に伴う対消滅放射線や低エネルギー γ 線を用いた PET 診断、SPECT 診断が同時に可能［127］となる。つまり診断（Diagnostics）と治療（Therapeutics）が同時に行える Theranostic な核種としても注目されている。

^{149}Tb の製造にはいくつかの核反応が提案されており、これらは大きく 3 種類に分けられる。陽子を入射粒子にした ^{152}Gd(p,4n)^{149}Tb 反応、重粒子を入射粒子にした ^{142}Nd(^{12}C, 5n)^{149}Dy → ^{149}Tb, ^{141}Pr(^{12}C, 5n)^{149}Tb 反応、高エネルギーの陽子を入射粒子にした ^{nat}Ta(p, spall)^{149}Tb 反応である。Beyer ら［128］はスイスにある欧州原子核研究機構（CERN）の同位体分離装置 ISOLDE（Isotope Separator OnLine DEvice）を用いて 1 GBq の ^{149}Tb を製造した。彼らはタンタル箔（112 mg/cm^2）のターゲットに 1.0 または 1.4 GeV の陽子を入射させ、生成した質量数 149 の同重体を分離して KNO_3 に捕集した。その後陽イオン交換クロマトグラフィーで ^{149}Tb のみを分離した。

^{149}Tb の製造には核破砕反応を引き起こす高エネルギーの陽子線と、生成した核破砕生成物から ^{149}Tb を効率的に分離するための同位体分離装置などが設置されている大型の研究施設が必要である。CERN では ^{149}Tb および Tb 同位体を用いた核医学実験の結果［127］などの、これまでに培ってきた生命科学や医学応用の研究をさらに発展させるために、ISOLDE で分離した RI ビームの有効利用施設として CERN-MEDICIS（Medical Isotopes Collected from ISOLDE）を建設中である［129］。この施設が完成すれば、2 GeV の陽子線 6 μA をターゲットに照射することで 24 GBq の ^{149}Tb が製造できる予定である。

10. ^{223}Ra の供給

欧米を中心として ^{223}Ra を用いた前立腺がん由来の骨転移の治療が行われている。この治療で使用する容量と用法は、体重 1 kg あたり 50 kBq を 4 週毎に計 6 回投与である［130, 131］。仮に 60 kg の体重の人が患者であった場合、1 回あたり 3 MBq の投与である。^{223}Ra はノルウェーのオスロにある Institute for Energy Technology（IFE）で調製される。輸送や手続きにかかる時間を考慮して、発送時には 13.8 MBq の放射能を含む $^{223}RaCl_2$ がバイアルとして梱包され、最終的に検定時において 6 MBq/6 mL/1 バイアルになるように調製されている［132, 133］。^{227}Ac から ^{223}Ra を溶離率 100% で分離した場合、^{227}Ac と ^{223}Ra が再び平衡状態に戻るまで少なくとも ^{223}Ra の 3 半減期（約 1 ヶ月）は必要である。仮に供給源の ^{227}Ac が一つしかないとした場合、1 度 ^{223}Ra を溶離すると次回は 1 ヶ月後になる。世界中で毎週 100 人に ^{223}Ra が処方されるとした場合、毎週約 15 MBq×100 人 = 1.5 GBq を用意しなければならない。1 ヶ月に 1 回の分離で賄うとすれば、減衰も考慮した量になるため、毎月 5 GBq 強の放射能が必要になる。しかも、患者は 4 週（約 1 ヶ月）毎の投与が 6 回（半年）続くため、最大 6 倍の量、すなわち 30 GBq の ^{227}Ac の確保が必要となる。これで年間 5 千人分の治療に利用できる。Algeta ASA 社（現在の Bayer AS 社）は長期間の製品開発および定期的供給のためにも約 630 GBq の ^{227}Ac が必要だとしている［134］。

11. α 放射体の製造について（ターゲットと入射粒子から見た側面）

各 α 放射体の製造法をターゲットの観点からまとめたものを Table 7 に示す。ここでは、単一のターゲットに対して単一の α 放射体しかできない核反応は除いた。ターゲットのうち、材料として市販されており入手が容易なものは、ビ

Table 7. Target and projectile for production of alpha emitters for radionuclide therapy.

Target	Projectile	Product
^{209}Bi 2.01×10^{19} y	^{4}He	^{211}At
	^{6}Li	^{211}Rn
	^{7}Li	^{211}Rn
^{226}Ra 1600 y	e	^{225}Ra → ^{225}Ac
	n (thermal)	^{227}Ac, ^{228}Th, ^{229}Th
	n (fast)	^{225}Ra → ^{225}Ac
	p (low)	^{225}Ac
	d	^{225}Ac
^{230}Th 7.54×10^{4} y	e	^{229}Th
	n (fast)	^{229}Th
	p (low)	^{229}Pa → ^{229}Th, ^{230}Pa → ^{230}U
	^{3}He	^{230}U
^{231}Pa 3.276×10^{4} y	n (fast)	^{230}Pa → ^{230}U
	p (low)	^{230}U
	d	^{230}U
^{232}Th 1.40×10^{10} y	e (high)	^{211}At, ^{211}Rn, ^{223}Ra, ^{225}Ac, ^{227}Th, ^{230}Pa → ^{230}U
	p (low)	^{230}Pa → ^{230}U, ^{229}Pa → ^{229}Th
	p (high)	^{211}At, ^{211}Rn, ^{223}Ra, ^{225}Ac, ^{227}Th, ^{230}Pa → ^{230}U
	d	^{230}Pa → ^{230}U, ^{229}Pa → ^{229}Th

スマス（^{209}Bi）である。^{209}Bi は高純度な金属として比較的安価に入手が可能であり、ターゲットとして調製する作業も難しくない。これに対して、^{226}Ra や ^{230}Th, ^{231}Pa は様々なα放射体の製造に可能性をもたらすが、このターゲットを持っている施設は世界的にも限られてくる。さらに照射ターゲットとして利用することが許される環境や、照射後のターゲットとα放射体の分離技術を持ち合わせている施設は限られてくる。したがって、これらのターゲットを使って大量にα放射体を作ることは現実的には難しいと考えられる。^{232}Th をターゲットとして利用する方法は、^{211}At 以外のα放射体を製造するにはもっとも有効と考えられる。α放射体の現状は ^{229}Th や ^{227}Ac などの親核種から分離したものが供給されている状況であるが、TAT に関わるいろいろな基礎研究や臨床応用が進展するにつれて、現在の供給法では限界が来るのは明らかであり、加速器や原子炉由来の製造および化学分離法の確立が望まれる。

12. まとめ

TAT の研究が進むにつれて、α線によるがんの治療効果が動物実験でもヒト臨床試験においても証明されてきた。これに伴い、より多くの研究者や臨床医がα放射体の医学応用を望むようになった。IAEA［120］もこの治療が持つ可能性についてミーティングを開いて議論している。通常市販されている RI と異なり、入手性が乏しいα放射体であったが、様々な製造法が試みられたことにより、^{223}Ra は治療薬としての供給が十分に行われることとなった。^{225}Ac は ^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータとして、また ^{225}Ac 標識薬剤としての利用が望まれることから、現状よりも多くの放射能の供給が望まれている。この要請に対して 2009 年ごろから IDPRA プロジェクト［86, 87］により米国での大型加速器を用いた製造が本格始動し、基礎や応用の研究を後押し始めた。また中型の加速器で製造可能な ^{211}At は、世界各国で加速器の製造や稼働が報告され、少しずつ ^{211}At を用いた研究も活性化している。さらに加速器を持たない施設であっても ^{211}At を用いた実験が可能になる ^{211}Rn/^{211}At ジェネレータの実現も期待される。これに加えてα放射体の製造という分野には、必然的にターゲット物質などからの対象 RI の化学分離操作が伴う。したがって、α放射体の製造のみならず、各核種の化学分離も研究対象としてますます発展していくことが必要である。

α放射体の性質や加速器の能力、放射化学者の技量などを駆使してより多くの施設でα放射体を用いた基礎実験が活発になってこそ、その延長

線上にある標識や *in vitro, in vivo* 実験、臨床試験の成功が約束される。

引用文献

［1］絹谷清剛、Drug Delivery System **29**, 294 (2014).
［2］George Sgouros (Ed.), MIRD Monograph: Radiobiology and Dosimetry for Radiopharmaceutical Therapy with Alpha-Particle Emitters, Society of Nuclear Medicine and Molecular Imaging Inc., VA, 2015.
［3］W. D. Bloomer et al., Science **212**, 340 (1981).
［4］R. M. Macklis et al., Science **240**, 1024 (1988).
［5］M. R. Zalutsky et al., J. Nucl. Med. **49**, 30-38 (2008).
［6］H. Andersson et al., J. Nucl. Med. **50**, 1153 (2009).
［7］E. Cederkrantz et al., Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys. **in press** (2015). doi:10.1016/j.ijrobp.2015.07.005
［8］R. F. Meredith et al., Cancer Biother. Radiopharm. **29**, 12 (2014).
［9］R. F. Meredith et al., J. Nucl. Med. **55**, 1636 (2014).
［10］J. G. Jurcic et al., Blood **100**, 1233 (2002).
［11］T. L. Rosenblat et al., Clin. Cancer Res. **16**, 5303 (2010).
［12］S. Kneifel et al., Clin. Cancer Res. **12,** 3843 (2006).
［13］D. Cordier et al., Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging **37**, 1355 (2010).
［14］Abstract in: 9th symposium on targeted alpha therapy; May 19-22, 2015; Warsaw, Poland
［15］Abstract in: Workshop on Alpha-Emitting Radionuclides in Theapy; April 28-29, 2007; Aachen, Germany
［16］B. J. Allen et al., Cancer Biol. Ther. **4**, 1318 (2005).
［17］C. Raja et al., Cancer Biol. Ther. **6**, 846 (2007).
［18］B. J. Allen et al., Immunotherapy **3**, 1041 (2011).
［19］C. Kratochwil et al., Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging **41**, 2106 (2014).
［20］S. Nilsson et al., Clin. Cancer Res. **11**, 4451 (2005).
［21］S. Nilsson et al., Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging **31**, S290 abr. 370 (2004).
［22］S. Nilsson et al., Lancet Oncol. **8**, 587 (2007).
［23］S. Nilsson et al., Clin. Genitourin. Cancer **11**, 20 (2013).
［24］S. Nilsson et al., Eur. J. Cancer **48**, 678 (2012).
［25］C. Parker et al., Eur. Urol. **63**, 189 (2013).
［26］S. J. Chittenden et al., J. Nucl. Med. **56**, 1304(2015).
［27］C. Parker et al., N. Engl. J. Med. **369**, 213 (2013).
［28］P. Hoskin et al., Lancet Oncol. **15**, 1397 (2014).
［29］O. Sartor et al., Lancet Oncol. **15**, 738 (2014).
［30］J. A. Carrasquillo et al., Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging **40**, 1384 (2013).
［31］R. Coleman et al., Breast Cancer Res. Treat. **145**, 411 (2014).
［32］M. J. Morris et al., J. Clin. Oncol. **31**, (suppl), 2013: 5021.
［33］M. J. Morris et al., J. Clin. Oncol. **33**,(Suppl 7), 2015: 202.
［34］K. Yoshida et al., J. Nucl. Med. (2015) **56** (Supple 3), 1228.
［35］V. Subbiah et al., JAMA Oncol. **1**, 253 (2015).
［36］D. P. Petrylak et al., J. Clin. Oncol. 32(15_suppl), 2014: TPS5103.
［37］M. J. Morris et al., J. Clin. Oncol. 33(Suppl 7), 2015: 160.
［38］M. R. Smith et al., J. Clin. Oncol. 33(suppl), 2015: TPS5082.
［39］Clinical Trials Gov, http://clinicaltrials.gov/
［40］J. G. Jurcic et al., Blood **118**,(21) abr. 768

(2011).
[41] J. G. Jurcic et al., Blood **124**,(21) abr. 5293 (2014).
[42] C. Kratochwil et al., J. Nucl. Med. **56**(S3), 1232 (2015).
[43] M. R. McDevitt et al., Science **294**, 1537 (2001).
[44] J. G. Jurcic and T. L. Rosenblat, Am. Soc. Clin. Oncol. Educ. Book. 2014 e126 (2014).
[45] M. W. Geerings et al., Nucl. Med. Commun. **14**, 121 (1993).
[46] M. Meiderer et al., J. Nucl. Med. **45**, 129 (2004).
[47] G. Sgouros et al., J. Nucl. Med. **40**, 1935 (1999).
[48] S. I. Park et al., Blood **116**, 4231 (2010).
[49] C. Apostolidis et al., Anal. Chem. **77**, 6288 (2005).
[50] R. A. Boll et al., Appl. Radiat. Isot. **62**, 667 (2005).
[51] A. A. Kotovskii et al., Radiochemistry **57**, 285 (2015).
[52] A. Morgenstern et al., Curr. Radiopharm. **4**, 295 (2011).
[53] Abstracts in: 7th Symposium on Targeted Alpha Therapy; July 17-19, 2011; Berlin, Germany
[54] S. Mirzadeh, Appl. Radiat. Isot. **49**, 345 (1998).
[55] C. Apostolidis et al., Appl. Radiat. Isot. **62**, 383 (2005).
[56] Abstracts in: 8th International Symposium on Targeted Alpha Therapy; June 4-6, 2013; Oak Ridge, USA
[57] A. Morgenstern et al., Curr. Radiopharm. **1**, 135 (2008).
[58] B. J. Allen et al., Appl. Radiat. Isot. **65**, 1014 (2007).
[59] O. D. Maslov et al., Radiochemistry **48**, 195 (2006).
[60] C. Wu et al., Radiochim. Acta **79**, 141 (1997).
[61] M. R. McDevitt et al., Appl. Radiat. Isot. **50**, 895 (1999).
[62] L. A. Bray et al., Ind. Eng. Chem. Res. **39**, 3189 (2000).
[63] D. R. McAlister and E. P. Horwitz, Appl. Radiat. Isot. **67**, 1985 (2009).
[64] L. I. Guseva, Radiochemistry **55**, 317 (2013).
[65] A. Morgenstern et al., Curr. Radiopharm. **5**, 221 (2012).
[66] H. W. Kirby and L. R. Morss, Actinium pp 18-24, In : L. R. Morss, N. M. Edelstein, J. Fuger (Eds.), The chemistry of the Actinide and Transactinide Elements, 3rd ed., Springer, The Netherland, (2006).
[67] G. Henriksen et al., Radiochim. Acta **89**, 661 (2001).
[68] S. F. Mughabghab, Neutron Cross Sections Volume 1: Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections, Part B: Z=61–100, Academic Press. Inc., London, (1981)..
[69] R. A. Kuznetsov et al., Radiochemistry **54**, 383 (2012).
[70] 石川勇、Radioisotopes **45**, 646 (1996).
[71] C. Z. Soderquist et al., Curr. Radiopharm. **5**, 244 (2012).
[72] National Isotope Dvelopment Center, Online Catalog of Isotope Products https://www.isotopes.gov/catalog/
[73] J. V. Rojas et al., Nucl. Med. Biol. **42**, 614 (2015).
[74] R. W. Atcher et al., Int. J. Rad. Appl. Instrum. A **39,** 283 (1998).
[75] S. Hassfjell, Appl. Radiat. Isot. **55**, 433 (2001).
[76] National Isotope Dvelopment Center Notice #38 March 13, 2015 http://science.energy.gov/np/highlights/2015/np-2015-06-c/
[77] A. Morgenstern et al., WO/2006/003123, LU91085, (2004).
[78] Abstracts in: 6th Symposium on Alpha-Emitting Radionuclides in Therapy; June 13-17, 2009; Tronto, Canada
[79] C. Friesen et al., Haematologica **94**, (s2) 329 abr.0816 (2009).
[80] A. Morgenstern et al., Appl. Radiat. Isot. **66**,

1275 (2008).
[81] C. Duchemin et al., Phys. Med. Biol. **60**, 931 (2015).
[82] C. Duchemin et al., Nucl. Med. Biol. **41**, e19 (201)
[83] A. Morgenstern et al., Anal. Chem. **80**, 8763 (2008).
[84] A. Morgenstern et al., Phys. Rev. C **80**, 054612 (2009).
[85] 鷲山幸信、他 , 核医学 **48**, S267 (2011).
[86] Compelling Research Opportunities Using Isotopes; Report of the Nuclear Science Advisory Committee Isotopes Subcommittee, April, (2009).
[87] Isotopes for the Nation's Future: A long Range Plan, DOE, Office of Science, Nuclear Science Advisory Committee, Isotopes Subcommittee Report, August, (2009).
[88] J. W. Weidner et al., Appl. Radiat. Isot. **70**, 2590 (2012).
[89] J. W. Weidner et al., Appl. Radiat. Isot. **70**, 2602 (2012).
[90] J. W. Engle et al., Phys. Rev. C **88**, 014604 (2013).
[91] J. W. Engle et al., Radiochim. Acta **102**, 569 (2014).
[92] National Isotope Development Center Notice #48 July 24, 2015 https://www.isotopes.gov/news/newsletters.html
[93] B. L. Zhuikov et al., Radiochemistry **53**, 73 (2011).
[94] S. V. Ermolaev et al., Radiochim. Acta **100**, 223 (2009).
[95] E. L. Johnson et al., Nucl. Med. Biol. **22**, 45 (1995).
[96] F. Guérard et al., Cancer Biother. Radiopharm. **28**, 1 (2013).
[97] A. Hermanne et al., Appl. Radiat. Isot. **63**, 1 (2005).
[98] C. Aaij et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **26**, 25 (1975).
[99] F. Rösch et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters **96**, 319 (1985).
[100] R. M. Lambrecht and S. Mirzadeh, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **36**, 443 (1985).
[101] R. H. Larsen et al., J. Label. Compd. Radiopharm. **33**, 977 (1993).
[102] R. H. Larsen, Appl. Radiat. Isot. **47**, 135 (1996).
[103] U. P. Schwarz, Nucl. Med. Biol. **25**, 89 (1998).
[104] G. Henriksen et al., Appl. Radiat. Isot. **54**, 839 (2001).
[105] N. L. Shmakova et al., JINR Comm. P19-2001-23, Dubna (2001).
[106] O. Lebeda et al., Appl. Radiat. Isot. **63**, 49 (2005).
[107] F. Groppi et al., Appl. Radiat. Isot. **63**, 621 (2005).
[108] R. Freifelder et al., AIP Conf. Proc. **1509**, 129 (2012).
[109] K. Gagnon et al., J. Label. Compd. Radiopharm. **55**, 436 (2012).
[110] G. Kim et al., Phys. Med. Biol. **59**, 2849 (2014).
[111] T. M. Martin et al., Health Phys. **107**, 1 (2014).
[112] K. Nagatsu et al., Appl. Radiat. Isot. **94**, 363 (2014).
[113] K. Szkliniarz et al., Acta. Phys. Pol. A **127**, 1471 (2015).
[114] I. Da Silva et al., Abstract in: WTTC-15 (2015).
[115] I. Nishinaka et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. **304**, 1047 (2015).
[116] D. S. Wilbur, Final Report DE-SC0004046 (2012)
[117] K. Ogawa et al., Nucl. Med. Biol. **in press** (2015). doi: 10.1016/j.nucmedbio.2015.07.001
[118] G. -J. Meyer and R. M. Lambrecht, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **31**, 351 (1980).
[119] G. -J. Meyer, Radiochim. Acta **47**, 83 (1989).
[120] Abstract in : International Atomic Energy Agency Alpha Emitting Radionuclides and

Radiopharmaceuticals for Therapy; Meeting Report, International Atomic Energy Agency; June 24–28, 2013; Vienna, Austria.
[121] J P. Greene et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. **in press**（2015）. doi: 1077-1083 10.1007/s10967-015-4079-4
[122] E. Maeda et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. **303**, 1465（2015）.
[123] L. Vasáros et al., Radiochim. Acta **26**, 171（1979）.
[124] J. Visser et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot. **30**, 745（1979）.
[125] B. J. Allen and N. Blagojevic, Nucl. Med. Commun. **20**, 205（1999）.
[126] G. -J. Beyer et al., Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging **31**, 547（2004）.
[127] C. Müller et al., J. Nucl. Med. **53**, 1951（2012）.
[128] G. -J. Beyer et al., Radiochim. Acta **90**, 247（2002）.
[129] R. M. dos Santos Augusto et al., Applied Sci. **4**, 265（2014）.
[130] Xofigo（Reference ID: 3308326）Full Prescribing Information http://www.xofigolicensingsupport.com/pdf/InformationLicensure.pdf
[131] 日本核医学会、塩化ラジウム（Ra-223）注射液を用いた内用療法の治験適正使用マニュアル（2013）.
[132] ALGETA Annual Report 2010.
[133] P. Harvey and J. S. Hghes, HAP-RPD-048: Radiological Consequences Resulting from Accidents and Incidents Involving the Transport of Radioactive Materials in the UK – 2007 Review（2009）.
[134] D. R. Fisher, Curr. Radiopharm. **1**, 127（2008）.

Abstract

Radionuclide therapy using α-emitter is a promising for treatment of cancers. Especially it is suited for such as micro-metastases and single tumor cells due to the short path length and high LET of α particles. Several α-emitters such as ^{149}Tb, ^{211}At, ^{212}Pb（^{212}Bi）, ^{213}Bi, ^{223}Ra, ^{224}Ra, ^{225}Ac, ^{226}Th, ^{227}Th, ^{230}U have been used for clinical and preclinical studies and some of them have proved effective results for tumor therapy. However, the use of these α-emitters for therapy are constrained by their availability. Here, the productions of the α-emitters are summarized and advantages and limitations of each production route are described. Finally, a future perspective regarding availability and supply of the α-emitters given.

解　説

表面電離法によるローレンシウムのイオン化エネルギー測定

Measurement of the First Ionization Energy of Lawrencium (Z = 103) by Surface Ionization Technique

佐藤哲也
（日本原子力研究開発機構　先端基礎研究センター　重元素核科学研究グループ）

Tetsuya K. Sato
Research Group for Heavy Element Nuclear Science, Advanced Science Research Center,
Japan Atomic Energy Agency

要旨

これまで、実験の難しさのために、ほとんど化学的性質が知られていなかった 103 番元素ローレンシウム（Lr）の第一イオン化エネルギー（IP_1）を決定することに成功した。原子番号が 100 を超える重い元素領域で、イオン化エネルギーのような原子の電子配置を直接反映する物理量が求められるのはこれが初めてのことである。一度に原子一個の取扱いが求められる Lr の IP_1 測定には、既に確立された従来法とは異なる実験手法が必要となる。本稿では、表面電離過程を応用した新しい IP_1 決定法と、本測定のために新たに開発した実験装置について解説するとともに、これらを用いて得られた Lr の IP_1 について紹介する。

キーワード

ローレンシウム、イオン化エネルギー、表面電離、アクチノイド

Key words

lawrencium, ionization energy, surface ionization, actinide

1. はじめに

103 番元素ローレンシウム（Lr）は、元素周期表においては、もっとも重いアクチノイド元素として、アクチノイド系列の末端に位置している。加速器を用いた重イオン核反応によって合成されるが、生成量は非常に少なく、さらに生成した同位体はすべて短寿命であるため、一度に原子一個ないし数個ずつしか実験に供することができない（atom-at-a-time）[1]。このため、これまでに Lr の原子価が 3 価であることは確かめられたものの [2]、化学実験の難しさから、その化学的性質はほとんど知られていない。

Lr のような原子番号が大きな元素では、原子核近傍に存在確率をもつ s 軌道や $p_{1/2}$ 軌道などにある電子が、原子核に強く引きつけられるために、その運動が光速に近くなる。これにより電子の質量が増加し、軌道はより収縮する。一方、その外側にある d 軌道や f 軌道を運動する電子は、内側の電子軌道の収縮によって原子核からの静電引力がさらに遮蔽されて軌道が広がる。結果として、s 軌道や $p_{1/2}$ 軌道は安定化し、d 軌道や f 軌道は不安定化する。これを相対論効果と呼び、原子番号が大きくなるほどその影響は強くなる。この結果、この効果が特に顕著となる第 7 周期以降の元素では、ときには電子配置まで影響を受ける場合がある [3]。Lr の場合、ランタノイド末端に位置するルテチウム（Lu）の電子配置が [Xe] $6s^2 4f^{14} 5d$ であることを踏まえると、周期表からは、その電子配置が、[Rn] $7s^2 5f^{14} 6d$ となると予想できる。ところが、相対論効果を考慮した原子軌道

計算の結果、Lr 原子では、6d 軌道に比べて $7p_{1/2}$ 軌道がより安定化するため、基底状態の電子配置は［Rn］$7s^2 5f^{14} 7p_{1/2}$ となることが予想された［4］。

原子の持つ電子配置、とくに化学結合に関わる最外殻電子軌道は、その元素のもつ化学的性質に反映される。強い相対論効果の影響が、どのように Lr の化学的性質にあらわれるのかを検証するため、これまでにいくつかのアプローチがなされた。

B.Eichler らは、価電子を d 軌道に持つ 3 族元素と、p 軌道にもつ 13 族元素の熱力学的データをもとに、予想される Lr 原子の揮発性について検討をおこなった。その結果、Lr の電子配置が［Rn］$7s^2 5f^{14} 7p_{1/2}$ であるならば、Lu に比べてその揮発性が明らかに高くなると予想した［5］。この予測に基づき、D. T. Jost らにより Lr 原子の石英およびプラチナカラム表面に対するガスクロマトグラフ挙動が調べられたが、少なくとも 1000℃ の温度条件では、Lr が揮発性を示すことは確認できなかった［6］。このように、Lr の化学的性質が周期表からの予想と異なることを、これまでに実験的に確かめた例はなかった。

そこでわれわれは、より直接的に Lr の電子配置に関する情報が得られる物理量として、Lr の第一イオン化エネルギー（IP_1）に着目した。IP_1 は、原子の性質を表すもっとも基本的な物理量の一つであり、真空中で中性原子から最外殻電子軌道にある電子一個を取り去るエネルギーに相当する。したがって、これを求めることができれば、最外殻電子軌道の安定性を知ることができる。

しかし、従来用いられてきた種々の方法はマクロ量を対象にしており、Lr のような一度に原子一個しか扱えないような系に適用することは難しい。事実、これまでに IP_1 が測定されたのは、99 番元素のアインスタイニウム（Es）までに留まっている。Es のイオン化エネルギー測定には、レーザーを利用した共鳴イオン化法が用いられた。この実験では、原子炉で合成した ^{254}Es（半減期 276 日）をフィラメントに電着し、加熱したフィラメントから揮発した ^{254}Es を、レーザーでイオン化して共鳴波長領域を調べることにより、イオン化エネルギーを決定した［7］。このとき測定に必要とした原子数は 10^{12} 個である。Lr の場合、化学実験に用いることのできる同位体の半減期が数十秒ないし数分であり、生成率も数秒に 1 個程度であることを考えると、Lr の IP_1 測定がいかに困難であるかがよく理解できる。

そこでわれわれは、これまでのオンライン同位体分離器（ISOL）を用いた研究・開発の経験から着想を得て、高温の金属表面で起こるイオン化過程である表面電離に着目した。表面電離法は、アルカリ金属やアルカリ土類金属、およびランタノイドなどの効率のよいイオン化法として、ISOL 用イオン源にひろく利用されている。Lr への適用を目指して、この表面電離法を応用した IP_1 測定法ならびに、本測定のためのイオン源および周辺装置の開発を進め、Lr の IP_1 を決定した［8］。

2. Lr の第一イオン化エネルギー決定に向けた測定手法および装置の開発

A)　表面電離法によるイオン化エネルギー決定法

高温の金属表面に原子（または分子）を接触させたとき、表面を通して電子が移動して、原子がイオン化されることを表面電離過程（surface ionization process）と呼ぶ［9］。表面電離過程におけるイオン化効率 I_{eff} は、温度 T のとき、以下のような Saha-Langmuir の式で表すことができる。

$$I_{\mathrm{eff}} = \frac{n_i}{n_i + n_0} = \frac{\alpha}{1+\alpha} \qquad \cdots (1)$$

$$\alpha = \frac{n_i}{n_0} = \frac{Q_i}{Q_0} \exp\left(\frac{\varphi - IP_1}{kT}\right) \qquad \cdots (2)$$

金属の仕事関数を φ、原子の第一イオン化エネルギーを IP_1 とする。また、n_0 および n_i はそれぞれ原子およびイオンの密度を表す。k は Boltzmann 定数である。Q_0 および Q_i は、それぞれ原子およびイオンの分配関数であり、

$$\begin{cases} Q_0 = \sum_j g_0^j \exp\left(-\frac{E_0^j}{kT}\right) \\ Q_i = \sum_j g_i^j \exp\left(-\frac{E_i^j}{kT}\right) \end{cases} \qquad \cdots (3)$$

と表される。ここで、g_0^j および g_i^j はそれぞれ原子およびイオンの j 番目の準位の統計的重率に対応し、j=0 は基底準位を意味する。E_0^j ならびに

E_0^j は、原子およびイオンの j 番目の準位の励起エネルギーである。kT に対して励起エネルギーが十分高い準位は、$\exp(-\frac{E}{kT})$ が 0 に近づくため、無視できる。

この Saha-Langmuir の式は、ある表面におけるイオン化を記述するが、これを小さな空洞（キャビティ）内でおこなうとイオン化効率の増倍効果が得られる。これをキャビティ効果とよび［10］、キャビティ壁面からの熱電子と表面電離されたイオンによるプラズマ形成によって説明される。この増倍効果を得るためには、プラズマの有効範囲に相当する debye 長（プラズマを構成する荷電粒子の運動が、プラズマの電場を打ち消してしまう現象である debye 遮蔽を記述するスケール）がキャビティよりも充分小さい必要がある。このとき、N を原子と壁との有効衝突回数と考えると、イオン化効率 I_{eff} は

$$I_{\mathrm{eff}} = \frac{N\alpha}{1+N\alpha} = \frac{N\exp\left(\frac{\varphi-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right)}{1+N\exp\left(\frac{\varphi-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right)} \quad \cdots (4)$$

と表すことができる。なお IP_1^* を実効イオン化エネルギーと呼び、次式であらわされる。

$$\mathrm{IP}_1^* = \mathrm{IP}_1 - kT\ln\left(\frac{Q_i}{Q_0}\right) \quad \cdots (5)$$

この（4）式からわかるように、イオン化条件が一定であるとき（すなわち仕事関数 φ や温度 T、N が一定なとき）、ある原子の IP_1^* に依存して、イオン化効率が決まる。N は実験条件で決まるパラメータであるので、このときの N を知ることができれば、イオン化効率から IP_1^* を決定することができる。得られた IP_1^* に（5）式を適用することにより IP_1 が求められる。

ところで、一般にイオン化に関わる金属の表面は、系内不純物などや温度の影響を受けるため、仕事関数は実験条件によって異なる場合がある。真の仕事関数を φ_0 とし、実際の仕事関数 φ を補正項 $\Delta\varphi$ を用いて $\varphi=\varphi_0+\Delta\varphi$ とあらわすと、

$$\begin{aligned} N\exp\left(\frac{\varphi-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right) &= N\exp\left(\frac{(\varphi_0+\Delta\varphi)-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right) \\ &= N\exp\left(\frac{\Delta\varphi}{kT}\right)\exp\left(\frac{\varphi_0-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right) \\ &= N'\exp\left(\frac{\varphi_0-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right) \end{aligned}$$

$N'=N\exp\left(\frac{\Delta\varphi}{kT}\right)$ とおいて $\Delta\varphi$ を含む部分を N' に繰り込むことで、上のように変形することができる。われわれが実験で知ることができる N はこの N' に他ならないので、この N' を新たに N と定義しなおせば、

$$I_{\mathrm{eff}} = \frac{N\alpha}{1+N\alpha} = \frac{N\exp\left(\frac{\varphi_0-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right)}{1+N\exp\left(\frac{\varphi_0-\mathrm{IP}_1^*}{kT}\right)} \quad \cdots (4)'$$

となり、φ_0 には文献値を用いることが出来る。

表面電離過程を応用した IP_1 測定は、かつてウランやトリウム、キュリウムなどに適用された例がある［11,12］。この方法では、(2)式の両辺の対数をとり $1/T$ に対する $\ln\alpha$ の変化の傾きから IP_1 を導出した。しかしながらこの手法では、$1/T-\ln\alpha$ 直線を得るために多数の実験点が必要であるために Lr のような重い元素領域に適用するのは難しい上、導出される IP_1^* の温度依存性を考慮していないなどの問題点があった（事実、当時の値は現在の値と比べると、0.1 ～ 1.2 eV 異なる）。今回、われわれが開発した手法では、イオン化効率から直接 IP_1 を導出できるため、“一度に原子一個”の系に適用が可能である。いくつかの温度条件下で実験値の再現性を確かめることにより、精度の向上を図ることができる。現在のところ、温度の安定性、統計および解析で求める N の誤差を考慮して、±0.1 eV 以下の精度で IP_1 を決定することが可能であることを確認している。

B）JAEA-ISOL におけるガスジェット結合型表面電離イオン源および周辺システム

Lr の IP_1 測定に当たっては、以下のような点を考慮する必要がある。

- 表面電離には 2000℃ 以上の高温を必要とするため、Lr 合成に用いるアクチノイド標的と表面電離をおこなうイオン化室を分離する必要がある。
- Lr は短寿命であるため、核反応によって生成されたあと、イオン化室まで迅速に搬送されなくてはいけない。
- 充分な統計を得るため、Lr 実験には実験装置全体の長時間の安定性が不可欠。

以上の要求に応えるため、新たにガスジェット結合型表面電離イオン源および、その周辺システム

を開発した［13, 14］。

実験装置の構築は日本原子力研究開発機構原子力科学研究所タンデム加速器実験施設に設置されているオンライン同位体分離器（JAEA-ISOL）でおこなった。実験装置の概略図を Fig.1 に示す。本実験装置は、目的同位体を生成する核反応槽、ガスジェット結合型表面電離イオン源を装着した JAEA-ISOL および、放射線測定をおこなう測定系などからなる。核反応槽とイオン源は、テフロンキャピラリー（内径 1.5 mm × 8.8 m）で結ばれている。タンデム加速器からの ^{11}B ビームと標的との反応により生成した核反応生成物は、ガスジェット搬送法によってイオン源へと運ばれる。イオン源でイオン化された核反応生成物は、30 kV の加速電圧によって引き出され、ISOL の分析マグネットにより質量分離されたのち、目的同位体イオンが取り出される。分離された対象同位体イオンを、ISOL 末端に設置された回転円盤型 α 線連続測定装置（ISOL-MANON）あるいはテープ捕集装置に設置した高純度 Ge 半導体検出器を用いて測定し、引き出されたイオン量を測定する。この ISOL-MANON は、効率のよい ^{256}Lr からの α 線測定を行うために新たに導入した。この装置は 8 組の向かい合った Si PIN ダイオード検出器（一組の検出効率は 80%）と、円周上に 40 箇所の捕集部をもつ回転円盤を備えている（表紙写真参照）。ISOL からのイオンビームを、捕集部に張られた 120 μg cm^{-2} の PET フィルム上に捕集し、円盤が一定時間ごとに少しずつ回転して捕集部を検出器の正面に送り出すことで、捕集したサンプルを連続的に測定する。別途、核反応槽から輸送される核反応生成物を、別の回転円盤型 α 線連続測定装置（MANON）やグラスフィルターで直接捕集・測定することで、イオン化効率を算出することが出来る。

開発した表面電離イオン源を Fig. 2 に示す（表紙写真も参照）。本イオン源は、既にアクチノイド元素のイオン化に実績のあるガスジェット結合型表面電離イオン源［15］を基にしているが、全体的な構造は一新されている。中央に位置する筒状のアイオナイザー（キャビティ）を、二つの電子衝撃用フィラメントで囲む構造をしている。タングステン製フィラメントからの熱電子を、アイオナイザーとフィラメント間に電圧をかけることで加速・衝突させることによってアイオナイザーを加熱する。アイオナイザーにはタンタルを使用しており、利用可能な最高加熱温度は約 2900 K ほどになる。二つのフィラメントを使用し、個別に電子衝撃をコントロールすることで、旧タイプよりも高い温度とアイオナイザーの軸方向の等温性を得ることをねらいとしている。核反応槽から運ばれた核反応生成物はエアロゾル粒子とともに、ステンレスキャピラリーからスキマーを通ってアイオナイザー内に投入され、アイオナイザー内壁でイオン化される。生成したイオンは、オリフィスから引き出される［13］。

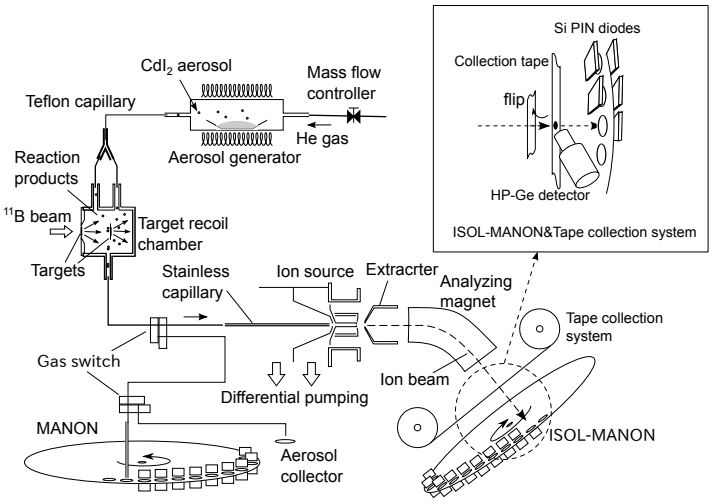


Fig 1. Schematic diagram of the experimental set-up.

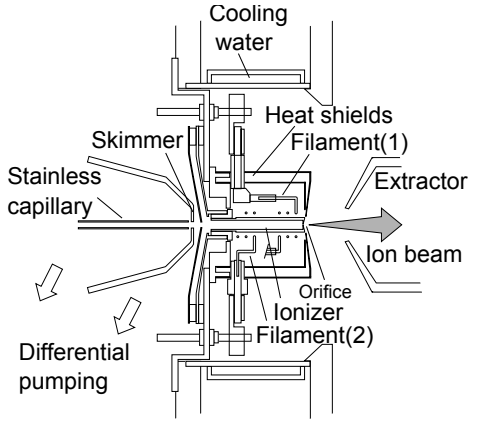


Fig 2. Schematic drawing of the surface ion-source with the skimmer system and the extraction electrode of the JAEA-ISOL.

過去のガスジェット結合型イオン源では、He/KClやAr/PbI_2などがガスジェット搬送に用いられてきた［16-17］。しかしながら、これらのエアロゾル粒子には、分解生成物などがイオン源周辺に堆積する、あるいは余剰の表面電離イオンを生成してしまいイオン化プロセスを撹乱するといった問題があった。そこで我々は、新たにHe/CdI_2法を開発した。CdI_2は沸点が713℃とイオン源温度に比べて充分に低く、堆積のおそれが少ない。さらに、分解して生ずるCdのIP_1が8.9938 eVであり、アイオナイザーに用いているタンタル表面の仕事関数4.25 eVよりも充分高いため表面電離されにくい。He/CdI_2ガスジェット搬送法はHe/KCl法に比べると、輸送効率としては3割ほど落ちるものの、今回開発したイオン源と組み合わせて用いることで1週間の安定した連続実験を可能にした［14］。

3. Lrのイオン化エネルギー測定

A）^{256}Lr生成の最適条件

LrのIP_1を求めるため、Lrのイオン化実験には^{256}Lr（半減期27秒）を用いた。^{256}Lrの生成については、^{249,250,251}Cf+^{11}B, ^{243}Am+^{18}Oおよび^{248}Cm+^{14}Nの3つの反応系で励起関数を取得し、最適条件を選んだ［1］。実験は原子力機構タンデム加速器および理研AVFサイクロトロンを用いておこなった。このときの実験条件（反応系および標的厚さ）、生成断面積が最大となるエネルギーおよび、そのときの^{256}Lrの生成量を表に示す。これらの結果から、最適な反応系が^{249}Cf+^{11}Bであり、このときのビームエネルギーは63 MeVであることがわかった。このとき予想される生成量は、原子力機構タンデム加速器で典型的なビーム強度である5×10^{12}個/sのとき、毎分25個と見積もることができた。

B）^{256}Lrのイオン化効率測定

上記実験をもとに、^{256}Lrのイオン化効率測定にあたっては、合成反応に^{249}Cf+^{11}Bを採用した。^{249}Cfは希少な同位体であるので、世界でも利用できる研究機関は限られる。今回、国際協力研究により、マインツ大学で保管されていたオークリッジ国立研究所（ORNL）の^{249}Cfを借り受けることができた。心から感謝したい。

^{249}Cf標的（260 μg/cm^2）を用いて合成した^{256}Lrを、上記実験装置を用いてイオン化・測定をおこなったところ、イオン源温度が2700 Kおよび2800 Kのとき、イオン化効率はそれぞれ（33 ± 4）%および（36 ± 7）%と算出できた［8］。イオン化効率の算出方法は後述する。

C） Lrの第一イオン化エネルギーの決定

得られたLrのイオン化効率からIP_1を決定するには、まず（4）'式を用いてLrの実効イオン化エネルギーIP_1^*を求め、次に（5）式により、IP_1^*からIP_1を算出するという手順を踏む。したがって、まずIP_1^*が既知である元素についてイオン化効率を求めて、（4）'式のNを求める必要がある。

Nの導出には、短寿命同位体^{142,143}Eu, ^{143}Sm, ^{148}Tb, ^{153,154}Ho, ^{157}Er, ^{162}Tm,^{165}Yb, ^{168}Luおよび^{80}Rbを用いた［8］。これらの短寿命同位体は、^{136}Ce, ^{141}Pr, ^{142}Nd, ^{147}Sm, Eu, ^{156}Gd, ^{159}Tbおよび^{162}Dyのランタノイド混合標的およびGe標的への^{11}Bビーム照射によって合成する。それぞれの元素のIP_1^*は式（5）を用いて計算する。このとき必要となる、原子およびイオンの基底準位および励起準位の統計的重率および励起エネルギーは、NIST（National Institute of Standard and Technology）がまとめているAtomic Spectra Databaseから得ることができる［18］。

イオン化効率（I_{eff}）は、アイオナイザー内部のイオン化に関わる部分に到達した原子の数（Y_{in}）と、生成したイオンの数（Y_{ion}）との比で表される。ところが、実際にわれわれが知ることができるのは、直接捕集測定で得られた目的同位体の量Y_{direct}と、ISOL末端で測定された目的同位体のイオン量Y_{ISOL}のふたつである。アイオナイザー内部からISOL末端までの輸送効率を$\varepsilon_{\mathrm{trans}}$とおき、$Y_{\mathrm{in}}$が$Y_{\mathrm{direct}}$に定数$\alpha$で比例すると考えると、イオン化効率（$I_{\mathrm{eff}}$）は、

$$I_{\mathrm{eff}} = \frac{Y_{\mathrm{ion}}}{Y_{\mathrm{in}}} = \frac{Y_{\mathrm{ISOL}}/\varepsilon_{\mathrm{trans}}}{\alpha Y_{\mathrm{direct}}} = \frac{1}{\alpha\varepsilon_{\mathrm{trans}}}\frac{Y_{\mathrm{ISOL}}}{Y_{\mathrm{direct}}} \qquad \cdots (5)$$

とあらわすことができる。ここで、RbはIP_1が低いため、ほぼ100%の効率で表面電離されることから、

$$I_{\mathrm{eff}}(\mathrm{Rb}) = \frac{Y_{\mathrm{ion}}(\mathrm{Rb})}{Y_{\mathrm{in}}(\mathrm{Rb})} = \frac{1}{a\varepsilon_{\mathrm{trans}}}\frac{Y_{\mathrm{ISOL}}(\mathrm{Rb})}{Y_{\mathrm{direct}}(\mathrm{Rb})} = 1 \quad \cdots (6)$$

とおくことができる。ここで、a および $\varepsilon_{\mathrm{trans}}$ に元素依存性がないと仮定すると、

$$I_{\mathrm{eff}} = \frac{Y_{\mathrm{ion}}}{Y_{\mathrm{in}}} = \frac{1}{a\varepsilon_{\mathrm{trans}}}\frac{Y_{\mathrm{ISOL}}}{Y_{\mathrm{direct}}} = \frac{Y_{\mathrm{direct}}(\mathrm{Rb})}{Y_{\mathrm{direct}}\,(\mathrm{Rb})} \times \frac{Y_{\mathrm{ISOL}}}{Y_{\mathrm{direct}}} \cdots (7)$$

となり、^{80}Rb を基準物質として用いることで、対象同位体のイオン化効率を求めることができる［13］。

イオン源温度 2800 K のとき、種々の短寿命同位体について得られたイオン化効率の変化を、IP_1^* の関数として表したのが Fig. 3 となる。表面電離過程の典型的な挙動として、IP_1^* が大きくなるほどイオン化効率が下がっているのがわかる。曲線は、N をフィッティングパラメータとして、実験点に式（4)' を最小二乗フィッティングすることにより得られた。温度 2700 K および 2800 K のとき、N はそれぞれ 43 ± 3 および 50 ± 3 と求められた。得られた N を用いて Lr の IP_1^* を計算したところ、2700 K および 2800 K において、それぞれ $5.29^{+0.08}_{-0.07}$ eV および $5.33^{+0.11}_{-0.10}$ eV が得られた［8］。

こうして得られた Lr の IP_1^* を、(5) 式を用いて IP_1 に変換するためには、Lr の励起準位に関する情報が必要となる。しかし、当然 Lr の分光学的研究結果は存在しないため、われわれは理論の助けを借りざるを得ない。Lr 原子の励起準位に関してはいくつかの理論計算がなされている。報告されている理論計算結果を Table 2 にまとめた。表からわかるように、それぞれの準位のもつ励起エネルギーは理論計算間で大きな差はない。そこで今回は、Lu の計算結果が実験値をよく再現しているもっとも直近の計算結果である A. Borschevsky の計算結果［21］を用いた。Lr^+ イオンの励起エネルギー計算は存在しないが、Lr^+ イオンは、No 原子と同様 $[Rn]5f^{14}7s^2$ の準閉殻構造をとるため、励起準位はエネルギー的に高くなり、その寄与は無視でき、基底準位のみを考えればよい。この結果、IP_1 は、2700K および 2800 K でそれぞれ $4.95^{+0.10}_{-0.08}$ eV および $4.97^{+0.13}_{-0.11}$ eV と求められた。二つの値はエラーの範囲でよく一致しており、最終的に Lr の IP_1 を、$4.96^{+0.08}_{-0.07}$ eV と決定することができた［8］。

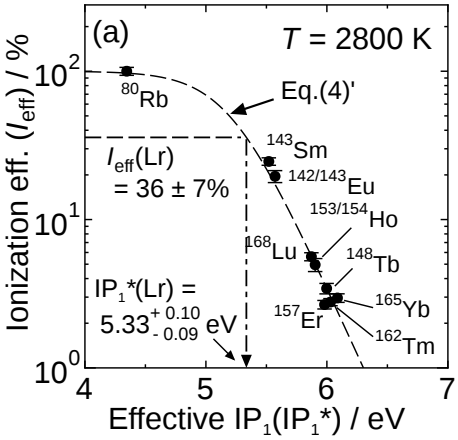


Fig 3. The ionization efficiency (I_{eff}) of various short-lived isotopes as a function of the effective IP1 (IP_1^*) at 2800 K. The dashed curve is obtained by fitting the experimental data using equation (4)'. The position of the measured I_{eff} value of Lr, (36± 7) %, is also shown. From the fitted equation (4)' with N=50 ± 3, IP_1^* of Lr is calculated to be $5.33^{+0.11}_{-0.10}$ eV. This corresponds to an IP1 value of $4.97^{+0.13}_{-0.11}$ eV.

この値は、これまでわかっている全元素の中では 5 番目に低く、アルカリ金属であるナトリウム (5.1391 eV) よりも小さい。これだけを見れば、Lr はアルカリ金属的であるともいえる。Fig. 4 に、重アクチノイド、ランタノイドの IP_1 値を、今回測定された Lr の実験値と合わせて示す。ランタノイドでは、テルビウム（Tb）からイッテルビウム（Yb）まで単調に IP_1 が増加し、最後の Lu で小さくなることが知られている。今回、Lr が非常に小さな IP_1 をもつことを示したことにより、Lr で Lu と同様の IP_1 の落ち込みがあること

Table 1. Comparison of the ^{256}Lr production rates.

Reaction	Target /μg cm^{-2}	Beam energy /MeV	^{256}Lr rate* /min^{-1}
^{248}Cm + ^{14}N	960	91	14
^{243}Am + ^{18}O	360	96	7
^{249,250,251}Cf+^{11}B	185	63	10
Optimum condition ^{249}Cf+^{11}B	280	63	25

*normalized to beam intensity 5.0×10^{12} particles s^{-1}

Table 2. Excitation energies of Lr atom.

	Excitation energies / cm^{-1} †			
	$[Rn]7s^25f^{14}7p_{1/2}$	$[Rn]7s^25f^{14}6d_{3/2}$	$[Rn]7s^25f^{14}6d_{5/2}$	$[Rn]7s^25f^{14}7p_{3/2}$
Reference	$^2P_{1/2}$	$^2D_{3/2}$	$^2D_{5/2}$	$^2P_{3/2}$
S. Fritzsche[19]	0	1331 ± 1200	4187 ± 1200	8138 ± 2400
E. Eliav[20]	0	1263 ± 500	5062 ± 500	8273 ± 500
A.Borschevsky[21]	0	1436 ± 700	5082 ± 700	8389 ± 700
J. –P. Desclaux[4]	0	1500 ± 1000	3900 ± 1000	7900 ± 1000

† 1 eV = 8066 cm^{-1}

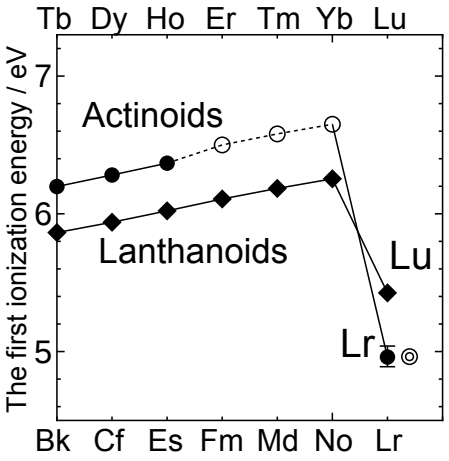


Fig 4. First ionization energies of heavy actinide elements and lanthanide elements.
●◆ : experimental data, ○ : estimated value,
◎ : theoretical value（this work）.

が確認できた。これにより、Lr でアクチノイドが終わることを初めて実験的に示すことができた。

さらに、共同研究をおこなっているイスラエルおよびドイツの理論グループが、Dirac Coulomb Hamiltonian combined with the relativistic coupled cluster approach with single, double and perturbative triple excitations（DC CCSD(T)）法を用いた Lr の IP_1 の計算をおこなった［8］。Breit 項および Lamb シフトを考慮して得られた値は 4.963 ± 0.015 eV であり、実験値と非常によく一致する。この計算は電子配置 $[Rn]7s^25f^{14}7p_{1/2}$ に基づいており、実験値と理論値の二つの値が非常によく一致したことは、Lr 原子の最外殻電子軌道が $7p_{1/2}$ であることを強く示唆している。

4. おわりに

冒頭で述べたように、Lr はアクチノイド最後の元素として周期表に載せられている。しかし、G. T. Seaborg によりアクチノイド仮説が提唱［22］されて約 70 年、実験的に Lr が最後のアクチノイド元素である化学的性質をもつと実証された報告はなかった。本研究により Lr の IP_1 が求められたことで、ついにアクチノイドの最後のピースをはめ込むことができた。さらに、理論計算との直接比較ができる実験データとしては、もっとも重い元素のものを本研究で得ることができた。このことは Lr も含めたアクチノイドのみならず、超重元素の化学的性質への理解が深まることにつながると期待できる。

ところで、IUPAC 公式のものをはじめ、現在の周期表では、アクチノイドはランタノイドとともに、スカンジウム（Sc）、イットリウム（Y）の真下に置かれ、別表として表記されているのが一般的である。しかし化学的性質の周期性を考えた場合、Sc-Y-Lu-Lr とするべきだ、という意見がある［23］。今回、Lr の IP_1 が決定されたことで、改めて周期表としての整合性を考えることができるようになり、議論が再燃しつつある［24］。

その一方、本研究により、Lr は d 軌道ではなく、p 軌道を最外殻にもつことが強く示唆された。IUPAC の定義によれば、遷移金属は「原子が完全に満たされていない d 軌道を持つ、あるいは d 軌道によって陽イオンとなることができる」とされており、「Lr は遷移金属ではない」ということになってしまう。周期表全体の整合性は、ここでも問われることになる。

今回の成果をきっかけに、Lr の適切な位置について議論が進み、さらに周期表全体が洗練され

ることにつながることになれば、本研究に携われたことは化学の末席を汚す者として無常の喜びである。

引用文献

(1) N. Sato, et al., Radiochim. Acta, 102, 211 (2014).
(2) D. C. Hoffman, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 124, 135 (1988).
(3) P. Pyykkö, Chem. Rev. 88, 563 (1988).
(4) J. –P. Desclaux & B. Fricke, J. Phys. 41, 943 (1980).
(5) B. Eichler & S. Hübener, Inorg. Chim. Acta, 146, 261-265 (1988).
(6) D. T. Jost, et al., Inorg. Chim. Acta, 146, 255 (1988).
(7) J. R. Peterson, et al., J. Alloy. Comp. 271, 876 (1998).
(8) T. K. Sato, et al., Nature, 520, 209 (2015).
(9) たとえば、É. Y. Zandberg & N. I. Ionov, Sov. Phys. Usp. 2, 255 (1959).
(10) R. Kirchner, Nucl. Instrum. Methods A 292, 203 (1990).
(11) D. H. Smith & G. R. Hertel, J. Chem. Phys. 51 3105 (1969).
(12) D. H. Smith, J. Chem. Phys. 54, 1424 (1971).
(13) T. K. Sato, et al., Rev. Sci. Instrum. 84, 023304 (2013).
(14) T. K. Sato, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 303, 1253 (2015).
(15) S. Ichikawa, et al., Nucl. Instrum. Methods. A 374, 330 (1996).
(16) M. Sakama, et al., Eur. Phys. J. A 9, 303 (2000).
(17) K. Tsukada, et al., Phys. Rev. C 57, 2057 (1998).
(18) A. Kramida, et al., NIST Atomic Spectra Database version 5.1 (2013), http://physics.nist.gov/asd (accessed July 2014).
(19) S. Fritzsche, et al., Eur. Phys. J. D, 2007, 45, 107-113
(20) E. Eliav, et al., Phys. Rev. A, 52, 291-296 (1995).
(21) A. Borschevsky, et al., Eur. Phys. J. D 45, 115 (2007).
(22) G. T. Seaborg, Science, 104, 379 (1946).
(23) W. B. Jensen, J. Chem. Edu. 59, 634-636 (1982).
(24) 48th IUPAC Council Meeting Final Agenda Book, http://www.iupac.org/uploads/media/Council_Agenda_Book_Busan_2015.pdf

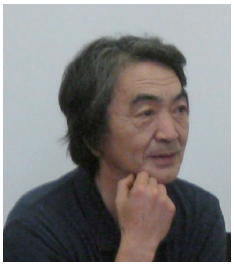
Abstract

We successfully determined the first ionization energy of lawrencium, element 103, experimentally for the first time. Precise and accurate experimental determination of the first ionization energy gives direct information on the binding energy of valence electron which would be affected by strong relativistic effects. However, such measurements are hampered by the difficulty in obtaining the heaviest elements on scales of more than one atom at a time. We have newly developed an efficient surface ion-source and a detection system coupled to a mass-separator, and a novel measurement method using surface ionization technique.

温故知新

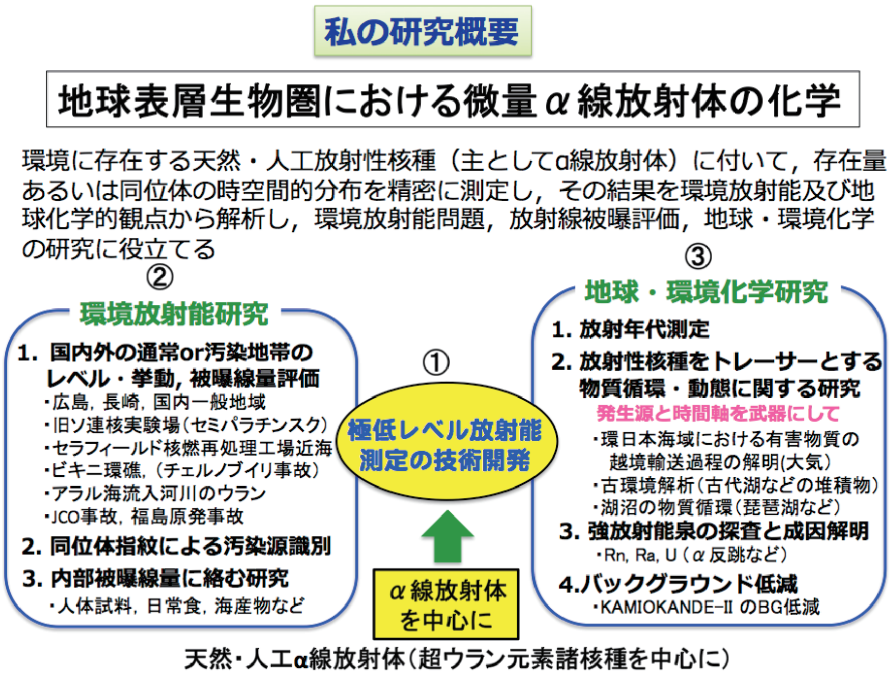
放射能と歩んだ 40 年
－ 低レベル放射能実験施設（LLRL）と共に －

山本政儀（金沢大学・名誉教授）
（元）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



私は、金沢大学の理学部・化学科（1969/4 ～ 1973/3）の学生として阪上正信教授の放射化学講座で放射化学を専攻した後、原子力発電所周辺の環境放射能の調査・研究（福井県衛生研究所：1973/4 ～ 1978/3）、北陸大学薬学部・放射薬品学教室（1978/4 ～ 1986/6）で放射性医薬品と環境放射能の研究をし、1986 年チェルノブイリ原発事故直後の 7 月に金沢大学理学部附属・低レベル放射能実験施設に助手として転任した。気が付けば，あっという間に 40 年余りが過ぎた。この間、幸いにも一貫して放射性核種・放射線と共に歩むことができ、アルファー（α）線を放出する天然放射性元素 U、Th,Ra,Rn,(Pb), Po に加えて、特にプルトニウム（Pu）などのα線を放出する人工放射性元素､超ウラン元素諸核種（Np, Pu, Am, Cm）の分析・測定法の開発，環境中での挙動、広島・長崎の原爆に絡む放射能、イギリスのセラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液で高濃度に汚染されているアイリッシュ海の超ウラン元素汚染とそれらの挙動、さらに中央アジア・カザフスタンにある旧ソ連セミパラチンスク核実験場及びその周辺の環境放射能汚染と住民の放射線被ばく線量評価、福島第一原子力発電所事故に関係する環境中の超ウラン元素諸核種，天然および人工の放射性核種をトレーサーとする大気、湖沼等の地球・環境化学研究，放射年代測定、温鉱泉の放射能に関係する研究等に取り組んできた。

92 番元素の U よりも原子番号の大きい“超ウラン元素（transuranium element）”は、馴染みが薄いと思われるが、核時代の幕開けとなる



1950 年代から 60 年代初頭に行われた大気圏内核実験からの地球規模的フォールアウト（global fallout）、さらに核施設からの漏洩・放出、原子力発電所事故（たとえば、チェルノブイリ原子力発電所事故）などにより環境中に放出されてきた。これらの元素は，それ自身化学的毒性が強く、生物学的に危険なα線（放射線の質や生物効果の程度を補正する線質係数が、X 線、γ線および電子が 1 に対して、α線が 20 と大きい）を放出し、かつ物理的半減期の長い核種が多くキャリヤー・フリー状態で III ～ VI 価の原子価状態を取りうる理由などから、それらのレベル、分布、存在状態、環境挙動・動態，人体への放射線影響が重要となり、これまでに膨大な量の調査・研究が世界中で実施されてきた。また、地球・環境化学の諸現象を解明するためのトレーサーとしても有用視されてきた。

ここでは、私が歩んできた道のりを、“学生と共に学び、実践してきた面白いと思った幾つかの研究”を交えながら紹介してみたい。

1）金沢大・放射化学講座の学生～福井衛研＆北陸大学時代（1972/4-1986/6/30）

放射能との出会いは、阪上先生の放射化学の授業（三年次）であった。教科書は、先生自ら作成した化学史を踏まえた解説無しの図・表のみの放射化学要覧（1966 年､A4 サイズ 170 ページ）であった。この要覧の巻頭言に、“今世紀初頭より、放射化学はいわゆる境界領域の化学として育まれ，それゆえに、その基礎的な分野は幅広く、かつ多用であり、その要点を尋ね、会得するにはいわば、その内容の一側面を端的に示す図・表を手元に歩むことが有効である。その際、知識の集積を求めるのみならず、歴史的な奥行きにも心を止めるならば、敬虔（けいけん）と誠実さ、また真剣な独創的な意欲で、自然を求め、開いて行った多数の研究者の心にもふれるであろう”と記されており非常に感銘を受けた。授業は、化学史を交え熱意で溢れていた。先生は東京大学卒業後、某会社に入り出兵、肺病で帰還、療養生活、小学校の教師をした後、岡山大学・温泉研究所に助手として転任した。そこで、人形峠のウラン鉱山成因を研究し、東京大学で理学博士の学位を取得後、1962/3 に金沢大学の教授に着任した。（後日、そのような経緯もあって、同僚や多くの若者が戦争で戦っているのに自分は病気で療養、自分は一度死んだのも同然、助けられた人生なので世の中に恩返しを念頭に大学で教育・研究に専念した !! と話されていた）。先生の博識と講義に共感し、放射化学・放射能をもっと勉強しなくてはと思い、3 年次の夏、天野良平氏（2015/3 定年退職、金沢大・名誉教授）、放射化学講座配属の 4 年次の先輩上杉正樹氏（現：博士、原子力規制庁技術参与）と共に、郡上八幡のお寺で 2 週間放射化学要覧を勉強した。そのようなこともあって、私は天野氏等と共に放射化学講座（教授：阪上正信，助教授：坂本　浩（東京大学原子核研究所（核研）から 9 月に転任）、助手：中西　孝、教務員：福島典子）に入った（1972/4）。アクチノウラン（^{235}U）系列の ^{227}Ac（$T_{1/2}$ = 21.7 y, β^-,α）の分析・測定法の開発ということで卒論を始めた。HDEHP 溶媒抽出での分離スキームを検討し、歓迎会で人形峠を訪れた際に採取したウラン鉱山残土中の ^{227}Ac の検出をα線測定で試みたが検出することはできなかった。夏休みに京都大学原子炉ホットラボで橋本哲夫先生（放射化学講座の先輩）の指導のもと 1 ヶ月間、^{232}Th に熱中性子照射して生成する ^{233}U（+ ^{232}U）の分離・測定の実験を体験させていただき、^{232}Th 核燃料サイクルと ^{233}U 生成核反応の面白さを味わった。卒業（1973/3）後は、原発に絡む環境放射能関係の仕事をしたいと思い、福井県・衛生研究所（放射能課）に入所し、若狭湾沿岸に立地する原子力発電所周辺の環境放射能モニタリングに従事した（1973/4-1978/3）。4 半期毎に若狭湾の原発周辺沿岸海域，ある時は福井県全域の森林などにも出かけサンプリング、分析・測定など当時の放射能課は大学で研究しているようなアカデミックな雰囲気であった。課長も含めて 5 名、全て放射線取扱主任者一種免許を取得しており、課長から君は放射化学を学んできたのだから簡単に取得できるだろうと言われ、研究所の放射線管理業務のこともあって私も受験し無事合格した。日常業務以外に、放射能測定の検討委員会（Pu,Am 分析・測定）や原子力安全協会の放射性核種の挙動や被ばく線量評価等の種々の検討委員会にも参加することができ、放射

化学、放射性核種、放射線、環境動態、被ばく、原子炉などの分野を幅広く学ぶことが出来た。

1978 年頃、いずれ実家の石川県に戻ろう（田舎の長男の宿命かな？）と考えていたとき、石川県金沢市にある北陸大学・薬学部放射薬品学教室で助手の公募があった。研究所の所長に相談したところ、地方の衛生研究所よりも大学の方がより学問の自由があり、君がもし研究や勉強が嫌いでなければ、転職しても良いのではと言われ、応募し採用された（1978/4）。北陸大学は、開校間もない大学で放射薬品学教室は出来たばかりであった。教授は、理化学研究所で放射線化学の研究をしていた松井正夫先生で、助教授らと共に、放射性医薬品（放射性核種でラベルした医薬品）の開発を研究目的にしていた。私は、生体のタンパク質、アミノ酸、ホルモンや癌親和性有機物などについての知識は殆どなく不安であったが、放射性核種を取り扱うことが出来るということで採用されたらしい。半年ぐらい、放射性医薬品の猛勉強、ゼミなどをしたが、アイデア不足、研究費も少ないこともあって中々研究がスタートできなかった。8 月頃に、低レベル放射能実験施設（Low Level Radioactivity Laboratory: LLRL）の阪上、小村先生の誘いもあり、環境放射能に関係する幾つかの研究をサポートすることにした。その当時、松井先生は「阪上教授が環境放射能を研究するフィロソフィーは理解できるが、君が環境放射能を研究するフィロソフィーは私にはそれほど強く伝わってこない」と口癖のように言われた。さらに、環境放射能研究はとかくモニタリング、単なる結果のまとめになりやすく、“自然の一般則”を見いだせない研究が多いので、君のような若い研究者はやらない方がよいのでは、実験すればきっちりとした結果などが得られるような基礎研究あるいは熟慮した仮説誘導型の研究を選ぶべきだ」と話された。そのような話を何度も伺いながら、先生の考えも理解できるが、経験や指導者がいない限りすぐに他分野のそのような研究が出来る訳もなく、非常に悩んだ。決局、今自分の出来ることをまず研究しながら、併せて将来研究を考えていくこととして、殆どの週末・休日に LLRL に出向き、阪上・小村先生に援助を仰ぎながら環境放射能関係の研究を始めた。松井先生は、君何かを始めたねと言いながら、それ以来フィロソフィーは口にしなくなった（今にして思えば、とにかく自ら考えて何か研究を手を動かして始めよということを言いたかったのかなあーと思っている。先生から言われたフィロソフィーは、何かあるごとに思い出され、以後の私の研究生活において心の大きな支えになった）。松井先生とは、その後、希薄イソプロパノール溶液に放射線（理化学研究所：^{60}Co の γ 線）を照射すると、ラジカル反応でアセトンが生成することを指標にして、それに極微量の有機物を添加して照射し、ラジカル生成を抑制してくれればアセトン生成は減少（放射線防御剤）、一方増加すれば放射線増感剤としての可能性があるとして実験を開始した（最後は、添加物の毒性の検討も必要）。動物などを用いない化学系での実験、このような研究を目指さないといけないなあーと思った。ガラス真空ラインの組み立て、テプラーポンプを用いたオンライン・ガスクロマトグラフによるアセトン測定など、初めての経験で面白く楽しかった。市販されている硫黄あるいは窒素を含む水溶性有機物化合物など約 50 種類を探査し、放射線防御剤として可能性ある試薬を見出だしつつあったが、これ以上は新規有機物を系統的に合成しなくては前に進めなくなり、また松井先生も新潟の長岡技術科学大学に転任されたため、この研究は論文一報を書いて終了した。松井先生が転任された後、アルファー（α）線を放出する放射性核種､特にプルトニウム（94 番元素：Pu）や研究例が少ないアメリシウム（95 番元素：Am）の分析・測定法の検討や環境中でのそれら元素の挙動、動態研究を始めた（殆どの仕事は LLRL で）。この α 線放出核種の研究は、金沢大学理学部化学科に放射化学講座（1962 年）が出来るとき、分析化学の木羽敏泰教授らを中心に著名な放射化学の諸先生にどのような専門分野の教授を迎えるべきなのかを相談。大気圏内核実験が中止になり、降下量も漸減していく中で、今後は原子力平和利用としての原子力発電所が稼働するので、日本として燃料に絡むウランや超ウラン元素等の α 線放出核種の環境研究の必要性が指摘され、人形峠で α 線放射体（U 鉱床の成因）を研究していた阪上正信先生が選任されたと

伺っている。当時、放射化学講座の中西先生はフイション・トラックや海洋の Pu 研究に着手していた。私は、陸域環境に着目して土壌、さらに湖沼・沿岸堆積物中の Pu 同位体（主に ^{238,239,240}Pu）と ^{241}Am の蓄積量、深度分布、さらに原爆で汚染された広島、長崎の土壌など数多くの測定を行った。同時に、Am と土壌有機物（フミン、フルボ酸）との錯形成、分析法についても、新規な溶媒抽出剤 DBDECMP, DBDECP を用いた強酸性下での抽出分離、硫酸水素アンモニウム融解法（金沢大学理学部・分析化学講座の松本 健先生に学ぶ）を用いた難容性 Pu（Pu 酸化物）の溶解、さらに小村先生と共に Lx/α 線測定による ^{240}Pu/^{239}Pu 同位体比測定の新規な方法を開発した（当時この元素の同位体比測定は TIMS 以外無かった）。放射化学講座の坂本先生にも色々と研究の相談などお世話になり、「いつも環境放射能研究は測定で終わるケースが多く、研究目的が曖昧なのでそのようにならないような研究をしなければならない」と松井先生と同じようなことを言われた。何事にも測定は重要であるが、何の為に測定し、最終的に何を明らかにしたいのかを十分に考えて（ビジョンを持って）やらないとサイエンスではない「一般則を見出ださないような研究は、ケーススタディーで、サイエンスではない」とよく言われ、議論もした。松井先生はフィロソフィー、フィロソフィー、坂本先生はサイエンス、サイエンスであった。坂本先生は、環境放射能も研究していたアメリカ・アーカンソー大学の P. K. 黒田先生の研究手法をよく話され、最近当時を振り返りつつ、山本は研究歴が少なく、福井で原発周辺環境の放射能モニタリングをしていたので、叱咤激励も込めてサイエンス、サイエンスを強調したと話されていた。後日、P. K. 黒田先生が LLRL を訪れた際に、老子の『不笑不足以為道』（笑わざれば、以って道と為すに足らず）の教訓を色紙に書いていただき、人が笑うような独創的な発想（常識を破るようなアイデア）で研究すべきだと強調されていた。ともかく、周りの多くの諸先生に励まされ、上記の成果を“環境中の超ウラン元素諸核種の放射化学的研究”としてまとめ、1986/3 に筑波大学（主査：池田長生教授）で理学博士の学位を取得することが出来た。北陸大学時代の 1979/3/28、アメリカ東北部ペンシルベニア州のスリーマイル島（TMI）で原子力発電所事故が発生した。事故当時は原子力発電所で大変なことが発生したとの思いでいた。1982/6 にアメリカ・オークリッジ国立研究所で開催された“放射性核種の環境での移行挙動に関する国際学会”に参加した折に、福井県衛研研究所・放射能課長の北川貞治氏と共に TMI を訪れ、施設内の見学、事故説明などを受けることが出来た（国内では、事故は対岸の火事とでも言うような感じでさほど重大視していないような感じであった）。その後、化学史関係、ラザフォードとソディーが放射壊変則を見出だしたカナダ・モントリオールのマクギール大学を訪問、バンクーバーでの IUPAC 学会にも参加･発表（中西先生の代弁）し、約 1 ヶ月アメリカ、カナダに滞在して貴重な体験をした（33 歳）。さらに、1986/4/26 にソビエト連邦（現 ウクライナ）のチェルノブイリ原子力発電所 4 号炉で世界を震撼させる事故が発生し、ヨーロッパ全土に放射能汚染を引き起こした。キエフの原子炉周辺 30 km 圏内は避難勧告が出され、現在でも住民は帰還出来ない状態になっている。この事故についても、日本ではこのような事故は起こりえないと言う楽観した風潮があった。福井衛生研究所の五十嵐修一氏と共に、福井、石川県での降下物中の Pu 同位体（^{238}Pu, ^{239,240}Pu, ^{241}Pu）を測定しその飛来状況や影響評価、さらにチェルノブイリ原発周辺で広島大学の星正治教授らが採取した土壌中の Pu 同位体、^{241}Am などの測定も行った。1986/5 月末にスウェーデンのルンド大学で開催されたチェルノブイリ事故を受けての“生物および環境試料中のアクチニドおよび長寿命放射性核種の低レベル放射能測定に関する国際会議”に参加（国内からは、秋田大学・滝沢行雄教授、動燃・大和愛司博士、放医研・河村日佐男博士が参加）し、その後、約 1 ヶ月間ヨーロッパに滞在し、スウェーデンのストゥードビック原子力研究所（留学中の電力中央研究所・塚本氏（LLRL の後輩）を訪問）、デンマークのリツオ（Risϕ）環境放射能研究所、ドイツのカールスルーエ（Karlesruher）原子力研究所、ミュンヘンにある GSF 研究所（GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Institute für

Strahlenschutz）などを訪問、さらに化学史関係（スウェーデン：ベリセーリウス、リンネ、レントゲン、シェーレなど、ドイツ：オット・ハーン、ブンゼン、リービッヒ、スランス：キユリー夫妻（ラジウム研究所）を訪ねることができ、阪上先生の化学史探訪の一端を体験した。

2）金沢大学・理学部附属低レベル放射能実験施設（LLRL）時代（1986/7/1 ～ ）

学位を取得した同年、LLRL にこれまでの活動や研究業績などが文部省に認可され､客員教授（2 名）と助手が新たに採用できるようになった。私は多少戸惑いもあったが助手に応募し、最終的に採用された（1986/7/1）（教授:阪上正信, 助教授:小村和久、技官:加藤岩夫、事務員:中本美智代)。LLRL で阪上先生と過ごした研究生活は、ほんの一年余りであったが、研究よりも学生の教育・研究指導の考え方や人生の生き方（例えば、時は智恵を与えるなど）多くのことを学ばせて戴いた。また、大学での研究生活は国民の税金でまかなわれている。税金泥棒にならないように、地域を大切にしながら教育・研究等に真摯に取り組むようにと言われた。翌年 3 月に先生は定年退職を迎え兵庫県宝塚市に帰られた。1987/7 に日本原子力研究所で超ウラン元素の物性や化合物を研究していた上野　薫先生が教授として着任した。非常に穏やかな先生で、私に対してサポートは何でもするから君の好きなようにやりなさいと言っていただき、超ウラン元素の基礎化学など多くのことを教わった。LLRL に着任してからは、気象研究所の三宅泰雄先生、猿橋勝子先生、杉村行雄先生、新潟大学の橋本哲夫先生（金沢大学・放射化学講座の先輩）らにも励まされ、橋本先生は、ともかく論文を出来るだけ多く書くこと、早い時期にまず 100 報書きなさいと言われ、この道を選んだからには黙々と研究して論文を書く意外方法はないと肝に銘じた。

2.1) LLRL に着任～留学（1986/7 ～ 1991/10）

北陸大学を退職する 1 年前から開始した α 線放射体 ^{237}Np 分析・測定法の開発（学生：茶谷）を先ず実施した。この ^{237}Np は、原子炉で単独でも生成するが、^{241}Pu → ^{241}Am → ^{237}Np（$T_{1/2}$ =2.6×10^{6} y, α）経由でも生成し、酸化雰囲気の環境中では V 価状態（NpO_2^+）で存在し易動性であることから高レベル放射性廃棄物の長期地中処分との絡みで重視されていた。国内ではこの核種の環境データは皆無であり、わずかにイギリスのセラフィールド（Sellafield）核燃料再処理施設周辺のアイリッシュ海の海水や海底堆積物で検出されていた。多少苦労したが、多量試料（50–100 g 土壌）からの Np, Pu, Am の逐次分析法を開発することができ、国内で初めて global fallout ^{237}Np の検出や ^{237}Np/^{239,240}Pu 放射能比（0.020-0.025）などを明らかにした。研究初期の頃、この比が予想より多少高く（0.03 ～ 0.05）検出されることに疑問を持ち、化学収率補正用トレーサーとして用いた ^{239}Np（^{243}Am からミルキング）、^{236}Pu（^{242}Pu は ^{237}Np の α 線エネルギーに類似）、^{243}Am の放射化学的純度を検討した。阪上先生から手持ちの ^{236}Pu は、^{237}Np(γ, n)^{236}Np → ^{236}Pu 核反応、その後 Pu と Np を分離して調整していることを伺い、分離が完璧でないとトレーサー量の ^{237}Np が ^{236}Pu に混入することが分かった。結果的には、手持ちの ^{236}Pu 中に極微量の ^{237}Np が混入しており、その ^{237}Np 量を評価することができたが、以後測定誤差を少なくするために使用をやめたことを覚えている。この経験は、逐次分析の際のマルチトレーサー使用の留意点として心に強く刻まれた。

この ^{237}Np 研究は、1988 年頃からイギリスのセラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染されているアイリッシュ海の超ウラン元素諸核種、特に研究例が少ない ^{237}Np の挙動研究（イギリス・North Wales 大学の D. J. Assinder 博士との共同研究）に繋がり 5 年程度継続した（学生：永井、山内、桑原、及川）。アイリッシュ海沿岸堆積物中の ^{239,240}Pu レベルは、国内（0. 数～数 Bq/kg）のそれと比べて数百～数千倍高く超ウラン元素の存在状態、移行挙動を研究する最適なフィールドであった。国内の原子力利用施設の殆どが沿岸地域に立地していることを考えると、沿岸帯での諸過程を系統的、総合的に質・量の両面からその実態を把握しておくことは、国内の環境放射能研究面からのみならず地球化学研究面からも重要であると考えた。

沿岸や河口域，潮間帯で数多くの堆積物コア試料を採取し、^{237}Np を中心に Pu（^{238}Pu, ^{239,240}Pu, ^{241}Pu），^{241}Am, Cm（^{242}Cm, ^{243,244}Cm），^{137}Cs の蓄積量や深度分布、放出量との関係（^{237}Np 放出量推定）、存在状態、施設からの距離と ^{239,240}Pu 蓄積量に対する ^{99}Tc, ^{137}Cs, ^{241}Am, ^{237}Np 蓄積量との放射能比の水平分布から ^{99}Tc ＞ ^{137}Cs ＞ ^{237}Np ＞ ^{241}Am ≒ Pu の順で易動性であることなどを明らかにした。さらに、データが殆どない ^{242m}Am（$T_{1/2}$ = 141 y）の存在と放出量も評価できた。^{242m}Am は、^{242m}Am → ^{242}Am → ^{242}Cm（$T_{1/2}$=160 d, α）→ ^{238}Pu に壊変する。放出量が 1980 年代に入って 2 桁以上に激減し、その減少に伴って人体への内部被ばく線量も当初 2 桁以上減少することが期待されたが、実際には 1 桁程度しか減少していない。ひとたびこのような沿岸および潮間帯が長寿命放射性核種で汚染されるとその影響は長期に渡ることをアイリッシュ海は警告している。

これと併せて、国立農業技術研究所（現：国立研究開発法人農業環境技術研究所）が global fallout の降下量や蓄積状況を把握するために全国の主な農業試験場で 1960 年代中頃から継続的に採取していた試料の一部を譲渡（津村、山崎、結田博士らと共同）していただき、^{237}Np（HR − ICP-MS で測定）、^{239,240}Pu, ^{241}Am, ^{137}Cs の蓄積量の経年変動や土壌中でのこれら核種の滞留時間（^{237}Np が最も易動性）を評価することが出来た（1992 年頃、学生：小藤）。この頃までに、自身としては、超ウラン元素核種、^{237}Np, ^{238}Pu, ^{239}Pu,^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{241}Am, ^{242}Cm, ^{243,244}Cm 全ての核種の分析・測定（一部の核種については分析法を開発）が可能となり、環境での多くのデータおよび情報取得、併せて種々の汚染源からのこれら核種の汚染源識別（同位体指紋分析 Isotopic fingerprint analysis）にも言及した研究が出来るようになった。

また、中国からの留学生（馬 博士、Rn 測定（現在：IAEA）；趙 博士、^{210}Pb-^{210}Po 測定）らと共に、海水、汽水、淡水の湖が狭い地域に点在する福井県三方五湖（五湖の一つである水月湖：表層は淡水、深層は海水の部分循環湖として有名）で堆積物コアを採取し、水質変化が ^{137}Cs, Pu, ^{241}Am の沈降・堆積挙動にどのような影響を与えるかの地球化学的研究にも着手した。同時に、Ra 同位体について、γ 線測定が主流であったが、^{229}Th（$T_{1/2}$ = 7932 y,α）からミルキングで得られる ^{225}Ra（$T_{1/2}$ = 14.5 d, β^-）をトレーサーとする Ra 同位体（^{226}Ra, ^{224}Ra, ^{223}Ra, ^{228}Ra → ^{228}Th）の極微量分析・測定法（α 線スペクトロメトリー：銀板上に電着した ^{225}Ra（β 線放出核種）から成長する α 放射体の娘核種を測定）を開発し、少量試料の人骨や歯試料中の ^{226}Ra 測定、被ばく線量などを評価することが出来た（放射線医学総合研究所・河村日佐男博士、白石久仁雄博士、五十嵐康人博士、国立予防衛生研究所（現：国立感染症研究所）・樋出守世博士との共同）。この方法は、下述する神岡の KAMEOKANDE-II 水槽の極微量 ^{226}Ra 測定にも応用された。

神岡の巨大水槽（3000 t）を用いるチェレンコフ検出器装置（KAMEOKANDE-I）は、当初陽子崩壊を検出するために建設された。その後 1985 年に太陽ニュートリノも測定対象とするために装置が改良（KAMEOKANDE-II）され、バックグランド（BG）が問題になった。東京大宇宙線研究所・須田英雄教授らの誘いで神岡の KAMEOKANDE-II 装置の BG 低減に協力した。太陽ニュートリノの中で、^{8}B の崩壊過程で放出される高エネルギーのニュートリノ（平均 7.2 MeV、最大 14 MeV）を対象とし、検出閾を 8.5 MeV 相当以上としていた。そのため、BG として、このレベル以上のエネルギーの放射線や宇宙線及びこれらの放射線と周りの物質との核反応で生ずる放射性物質からの放射線が対象となり ① ^{238}U, ^{232}Th の自発核分裂により放出される～ 8 MeV までの γ 線、β 線、② ^{226}Ra → ^{222}Rn → ^{214}Bi の最大エネルギー 3.24 MeV までの β 線（検出器の分解能により～ 8 MeV 相当の信号になることがある：クロストーク）、③ 宇宙線 μ^- 中間子および ^{16}O との核破砕反応によって生成する放射性核種（^{16}N, ^{15}C, ^{12}N, ^{12}B, ^{9}Li, ^{8}B）からの 10 ～ 16 MeV の β 線などが検討事項であった。この中でも②が、最も寄与が大きく、Rn 濃度の低減が最重要課題であった。1986/9 ～ 1987/12 頃まで、ほぼ毎月神岡鉱山茂住坑道の KAMIOKANDE-II に行き、水槽周辺の坑道空気中 Rn、水槽内の水中 U、Ra, Rn 測定などを実施した。途中、水槽タ

ンク上部に蓋を取り付け、Rn フリーの空気導入、水槽内の純水の循環、イオン交換装置（U, Ra 除去）などが設置された。1987/1 頃までに当初のトリガーを 1/1000 程度まで減少させることができ、1987 年 2 月 23 日、南半球に超新星 SN 1987A があらわれ、重力崩壊に伴うニュートリノバーストが KAMEOKANDE-II 装置をはじめとする 3 箇所のニュートリノ検出器で検出された（これにより 2002 年に東京大学の小柴昌俊教授がノーベル物理賞を受賞された）。殆どの人は知らないと思うが、LLRL がこのような世界的な研究の一端に携われたことを誇りに思っている。

2.2）ドイツ・ミュンヘンにある GSF 研究所に留学（1991/10 ～ 1992/5）

上記の期間、ドイツ・ミュンヘンのノイヘルベルグ（Neuherverg）にある GSF 研究の放射能・放射線部門、K. Bunzl 博士と Dr. Rosner 博士のもとに短期間ではあるが留学した。日本の研究所に例えると、国立環境研究所（国立研究開発法人国立環境研究所）のような大きな研究所で、地球・環境化学や人体に絡む多くの研究分野があった。研究所での実験は殆どテクニシャンが行い、教授はもっぱらアイデアと論文書きに専任しており、いつも午後 3 時頃になると懇談していた。私は、^{235}Np（$T_{1/2}$ = 396.1 d: Si-LEPS による低エネルギー γ 線測定）を化学収率補正用トレーサーとして ^{239}Np と ^{237}Np の同時分析・測定法の検討を行った。国内にいるとき、^{235}Np を入手することが出来なかったが、ここで使用できたことは幸運であった。滞在中、チェルノブイリ事故後、ヘイグルバルト国有林で実施されていた森林での放射性核種 ^{137}Cs の移行挙動研究や、GSF 敷地内にある BSF（ドイツ放射線防護協会）でのチェルノブイリ事故の環境放射能調査・研究内容（ヘリコプターを用いた広域サーベイも含めて）も学ぶことができた。また、時間を見つけて GSF の図書館に出かけ、帰国後の湖沼、琵琶湖での ^{210}Pb, ^{210}Po, ^{7}Be, ^{137}Cs, ^{22}Na などをトレーサーとする地球化学研究を考えて湖の物質動態研究の多くの論文を読む機会を得た（今にして思えば、有意義な時間であった）。一方で、国際原子力機関（IAEA）モナコ海洋環境研究所、イギリスの Lowestoft にある国立 MAFF 研究所（セラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液の監視と放射能汚染調査・研究）などを訪問、化学史との関係で、オット・ハーンと共に核分裂を発見したシュトラスマン（F. Strassmann）が、マインツ大学の教授として教鞭をとられた研究室などを訪ねることが出来た（Dr. Rosner 博士は学生時代、何かあるごとにシュトラスマン教授らとこの研究室のドラフトでブルストを茹でビールを楽しんだと懐かしく話されていた）。見学した際には、体育館のような部屋で、^{89}Sr と ^{90}Sr をレーザー・ドップラー効果で励起・分離し、マスで測定する方法を検討していた。環境試料分析に応用しないのかと尋ねると、測定原理が検証できれば十分であると話されていた。マインツは、活版印刷技術の発明者、グーテンベルクの生誕地でもある。

2.3）帰国～ JCO 臨界事故（1992/5 ～ 1999/9）

帰国した頃、小村先生は LLRL の名に恥じないような極低レベル放射能測定施設の建設を目指して、尾小屋地下トンネルの整備を開始していた（1991 年から 4 年かけて整備、プレハブを建て、ラドン、宇宙線強度を測定（学生：渡口、山崎ら）。 私は、留学前に行っていたセラフィールドの超ウラン元素諸核種、^{237}Np 研究の続き、新たに手取川扇状地の地下水の動態研究（地下水の塩分上昇成因解明を目指して：安定元素、U, Ra 同位体、Rn, ^{210}Pb, ^{210}Po）を始めながら、一方で琵琶湖での地球化学的研究を考えていた。1 年が過ぎたあたりから、琵琶湖研究所の横田喜一郎博士と共同で放射性核種（^{210}Pb, ^{210}Po, ^{7}Be, ^{137}Cs, U, Pu）をトレーサーとする琵琶湖での物質動態研究をスタートすることが出来た。それ以来、琵琶湖の堆積速度、ウランの動態、^{210}Pb-^{210}Po の物質動態（後に、大塚氏がこのテーマで博士号取得）など、6 ～ 7 年程度研究が継続した（学生 : 吉田、大塚、小藤、坂口）。

1995 年頃、LLRL にビキニ原爆被災事件（1954/3/1）に関係する当時のマグロ延縄の目印に使用し汚染されていたシュロ（ボンテンチク）試料があることに気づいた。被災後 25 年経た 1979 年 4 月頃に、阪上先生と小村先生らが展示館を訪れ , 展示館内の試料の ***in-situ*** Ge 測定をお

こない ^{137}Cs, ^{60}Co, ^{125}Sb, ^{155}Eu, ^{241}Am を検出した。その際に、研究用にとほんの少し頂いた試料と思われる。当時の放射能測定で特筆すべき点は、日本の科学者が降下灰中に ^{238}U(n, 2n) 核反応で生成する ^{237}U($T_{1/2}$ = 6.75 d, β^-) を検出（全放射能強度の 20％を占める）し、原爆の正体（3F 爆弾: Fission-Fusion-Fission）を解明する糸口となった。^{237}U は半減期が短いので、その壊変生成物 ^{237}Np ($T_{1/2}$ = 2.14×10^6 y,α) の検出を試みたが、微弱過ぎて定量は不可能であったと述べられている。私は、水爆でどの程度の ^{237}U が生成していたのかに非常に興味を持ち、この試料の ^{237}U の壊変生成核種 ^{237}Np 分析に挑戦し ^{237}Np を極微量（0.015 Bq/g- 乾燥試料）であるが、他の核種、^{238}Pu, ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{241}Am,^{238}U, ^{235}U, ^{234}U, ^{137}Cs, ^{60}Co と共に初めて検出した（Health Physics 誌に Research topic として掲載される）。この事件からもう 60 年以上が経過した。分析化学講座の木羽敏康教授が、「もし第五福竜丸がビキニ環礁の東方 160 km（危険区域の外側 約 30 km）よりも遥か遠方にいて被災を免れ，大気圏での核実験が継続していたならば、我が国の放射能研究がどのような方向で進んでいたかを想像することは非常に興味深い」と回顧している（Radioisotope 誌）。この事件は、放射能に関する核化学や放射化学研究の進展のみならず、医学、物理、化学、農学その他多くの専門分野がこの問題に取り組み、殆ど未開拓の我が国の環境放射能や放射線防護の学際的研究を飛躍的に進展させたことで歴史的意義を有するものであり忘れてはならないと思う。

また、一方で、京都大学の塚谷恒雄教授の科研費“中央アジア・カザフスタンの環境と経済の再生”で旧ソ連核実験場セミパラチンスクを調査する機会を得、1994/10 に初めて核実験場やクルチャトフ研究所を訪れた（1991 年にソ連が崩壊しカザフスタンが独立国になったが、核実験場への立ち入りはまだ非常に厳しかった）。核実験場では、1949 ～ 1989 年の間に、大気中で 86 回（6 Mt：1962 年に中止）、地上で 26 回（0.6 Mt）、地下で 346 回（11 Mt）の実験が初期の頃周辺住民に知らせること無く実施されてきた。1995 年から広島大学原爆放射線医科学研究研（原医研）の星正治教授、カザフスタン環境医科学研究所の B. I. Gusev 博士、K. N. Apsalikov 博士らと共同で「旧ソセミパラチンスク核実験場周辺住民の被ばく線量評価」を主テーマに、2012 年まで毎年訪れ、核実験場周辺の放射能汚染と周辺住民の被ばく線量評価の調査研究（科学研究費補助金、基礎研究（海外 B)）を継続した。広島大学の高田 純先生（現：札幌医科大学教授)、遠藤 暁先生（現：広島大学教授)、京大原子炉の今中哲二先生らとも連携した（学生:山崎、小藤、大塚、美濃、坂口、富田、河合、高田)。核実験場周辺 200 ～ 250 km 圏内の殆どの地域（集落）や中国国境付近（中国のロプノールでの核実験フォールアウト影響）の残留放射能を調査・研究した。核実験場から南東 200 km 方向のカラウル集落には、ユーラシア大陸の中心点、さらにカザフスタンの有名な詩人・文学・哲学者のアバイ・クナンバエフ生誕のモニュメントがあり、何回行っても飽きることの無い地平線が見渡せる広大な瓦礫と草原の大地が広がり、夜空は宝石を散りばめたような感じである。私にとって第二の故郷になりつつある。毎年 50-80 kg の土壌試料（2012 年までに 1 t 以上の土壌試料を検疫許可を得て国内に持ち帰る)、時々地下水、レンガ、時にはホルマリンで保存されていた生体や歯牙試料などを持ち帰り測定した（土壌：^{137}Cs, Pu 同位体、時には、^{90}Sr, ^{129}I（広島大学・遠藤先生)、^{241}Am, ^{237} Np, ^{236}U（広島大学・坂口先生)、地下水:U、生体試料:Pu, U, レンガ:TLD（広島大学)、歯：ESR（広島大学))。20 年近く、セミパラチンスク核実験場周辺の放射能汚染や被ばく線量評価問題に携わってきたが、過去を振り返るレトロスペクティブな被ばく線量評価、特に内部被ばく線量評価は非常に難しいことを痛感した。今回、福島第一原発事故を受けて、最も重要なことは、何よりも優先して事故当初からの個人の被ばく線量（外部 + 内部被ばく）をできるだけ多くの住民に対して継続調査し、併せて健康調査を実施することである。人に対する低線量被ばくリスクの最終判断は、このような地味な調査研究を通じての疫学データに頼るしか無いだろう。

1995/6 小村先生が教授、1995/7 私も助教授に昇任し、翌年 1996/3 上野先生が定年退職、4 月に井上睦夫博士が助手に着任した（井上氏は、神

戸大学で TIMS 等を用いて隕石を研究しており、長寿命放射性核種の TIMS による極低レベル、同位体測定を期待した)。1995 ～ 1996 年にかけて、大気降下物中の宇宙線生成核種 ^{35}S の測定も試みた（パウデックス樹脂カラムで濃集し化学分離後、液シンで測定：当時九州大学の大崎先生が九州で ^{35}S 測定を実施していた)。一週間ごとに ^{35}S と SO_4^{2-} を測定し、日本海側での両者の降下量関係を検討した（学生：船津)。また、^{93}Nb(α,2n)^{95m}Tc 核反応 (σ=40 ～ 70 mb) による ^{95m}Tc($T_{1/2}$ = 61 d) トレーサーの製造（小村先生指導）とアイリッシュ海堆積物中の ^{99}Tc(ICP–MS で測定）の移行挙動研究も併せて行った（学生：及川)。

1999/9/30 に東海村にあるウラン再転換工場 JCO で臨界事故が発生した。小村先生を代表とする研究班（科学研究費補助金）を早々に立ち上げ、多くの放射化学分野の研究者と連携して、汚染状況、周辺住民の被ばく線量評価を精力的に行った。小村先生が行った、住民が事故当時身につけていた Au の指輪を用いての中性子評価 (^{197}Au（n, γ)^{198}Au, σ =1560 b）は圧巻であった。1998 年頃から Au を用いた環境中性子測定を尾小屋地下測定室で実施しており、即座にこの事故に対応できた。即中性子評価のために表層土壌中 ^{54}Fe(n,p)^{54}Mn の ^{54}Mn 測定（学生：村田、このテーマで博士号取得)、Si 半導体検出器を用いた尾小屋地下測定室での低 BGβ 線スペクトロメーターによる周辺の市販食塩（+ KCl）中の ^{35}Cl (n, a)^{32}P 反応（Q=0.86 MeV）からの微量 ^{32}P 測定（学生：小藤)、さらに施設周辺土壌の U 汚染 (^{238}U–^{234}U–^{230}Th 非平衡からの汚染識別）など（博士研究員：川端）LLRL に相応しい研究をすることが出来た。

2.4）JCO 事故後～自然計測応用研究センターを経て環日本海域環境研究センターへ (1999/9 ～ 2007/4)

2000/3 放射化学講座の坂本浩先生が定年退職した。2001-2002 年には宇宙線生成核種 ^{22}Na を用いた湖の物質循環研究(可溶性元素のトレーサー：集水域や湖水の滞留時間評価）を行った（学生：坂口、大塚)。降下物中の ^{22}Na、船上で、水中に深さ別（表層、30-40 m, 60-80 m）に設置した 3 台の水中ポンプで約 500 L の湖水を各深度から直接陽イオン交換樹脂カラムに通し、Na を濃集・化学分離（^{40}K をカリボールで除去）後、尾小屋地下トンネルに設置した Ge 検出器で ^{22}Na を初めて検出したときは感無量であった。月に一度、朝早く高速道路で滋賀県大津市に行き、琵琶湖研究所のはっけん号に乗船､湖水（湖底土）の採取、乗船後すぐ濾過操作、夜遅く LLRL に帰ってきたこと（時には 1、2 泊)、また何回か琵琶湖を一周しながら流入河川水を採取したことなど懐かしく思い出され、学生も自主的によく頑張ってくれた。

博士研究員の佐々木圭一博士（喜界島およびその周辺のサンゴ放射年代測定：現　金沢学院大学・准教授）と川端良子博士（アラル海やバルハシ湖の地球化学：現　東京農工大学・准教授、共同でウズベキスタン、トルクメニスタンの河川、地下水の U の地球化学を研究、アラル海上空をセスナー機で飛行）が転任後、2001/4 に博士研究員として鈴木 敦博士が採用されピン・シリコンダイオードを用いた水中ラドンの連続測定装置の作成をおこなった（当時、岐阜大学の田坂先生が地震との関係でこの検出器を用いて地下水のラドン連続測定を行っていた)。2002/4 に理学部の LLRL、植物園、能登臨海実験所と工学部の電磁場制御施設が統合して理工融合の自然計測応用研究センターが発足した（附属施設の統合は時の流れ)。放射化学講座の浜島靖典先生が LLRL に配置換えになり、小村先生と共に尾小屋地トンネルでの Ge 検出器による極微量放射能測定の研究を精力的に行った。2002/8 に恩師・阪上正信（82 歳）名誉教授が逝去された。2003/3 に長年のセミパラチンスク核実験場周辺の環境放射能と線量評価の研究が評価され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の人々への保健システムの貢献”ということで特別賞を受賞し、2003/10 に教授に昇任した。2002 ～ 2006 年には 21 世紀 COE プログラム「代表：早川和一教授：環日本海域の環境計測と長期・短期変動予測（モニタリングネットワークの構築と人為的影響の評価)」に採択され、共同研究者として ^{210}Pb, ^{7}Be をトレーサーとする大陸からの汚染物質の越境輸送研究

に取り組んだ。一ヶ月ごとの降下物（時には大気エアロゾルも含めて）の ^{210}Pb, ^{7}Be 測定は 2013 年まで継続し、20 数年にわたるデータを取得し、長期の気候変動に絡む興味深い結果が得られつつある（気象研究所の広瀬勝己博士、青山道夫博士、五十嵐康人博士にお世話になった）。また、小村先生を中心に 2005-2009 年の 5 年間、特別教育研究費”極低レベル放射能測による新領域開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成に向けて“を受け、尾小屋地下測定室を格段に充実できた。途中 2007/4 には、自然計測応用研究センターを改革して環日本海域環境研究センターに改組した（GCOE 採択を目指して）。この数年間 COE プログラム、特別教育研究プロジェクトなどでバタバタしていたが、充実もしていた。幸い、同センターの柏谷健二教授（地球化学）らと大陸の古代湖、ロシアのバイカル湖やモンゴルのフブスグル湖の長い堆積物コアを用いての古環境変動解析プロジェクト、私にとって新規な研究に参加する機会を得、天然放射性系列核種 U･Th 同位体（^{238}U, ^{234}U, ^{232}Th, ^{230}Th）を活用した研究（U-Th 年代測定なども含めて）を行った（学生：坂口、このテーマで博士号取得）。2005-2008 年にかけて環境放射能モニタリングの観点で，海水に含まれる微量重金属および Pu を ICP 質量分析法によって定量する一連の分析方法を検討すると共にスルメイカの肝臓が重金属元素や Pu を濃縮することを明らかにし、とりわけ Pu 同位体比（^{240}Pu/^{239}Pu 原子数比）は 0.177 ～ 0.237 であって、約 35% 程度の割合でビキニ環礁由来の Pu が混合していることを明らかにした。スルメイカを海洋環境の指標生物，特に回遊性であるから日本近海を対象とする大洋の指標生物として有効であることを示した（及川がこのテーマで博士号取得，現：原子力規制庁職員）。また同時に、「白山周辺における温鉱泉水の放射化学的研究」と題して，白山周辺に点在する温鉱泉 40-50 地点で採水し、化学成分、安定同位体 δD -δ^{18}O（一部の試料については δ^{13}C, δ^{34}S, δ^{3}He）、さらに放射性元素 U, Ra 同位体濃度およびそれらの同位体比を測定し，当時活発であった白山の微地震との関連性（地震に敏感な温泉の探査）も配慮しながら研究を開始した（学生：富田）。この頃から、安定同位体にも興味を持ち始めた。

2.5）環日本海域環境研究センター～定年まで（2007/4 ～ 2015/3）

2008/3、大変お世話になった小村先生が定年退職し、2009/1 北海道大学から長尾誠也先生（地球化学）が教授として着任した。2010/3 には、放射化学講座の中西 孝先生が定年退職した。中西先生にも大変お世話になり、同じ α 線放射体を研究してきた先輩が去っていく一抹の寂しさを感じた。上記した温鉱泉について、その後 LLRL 近傍の手取川沿いにある川北温泉（深度 1200m、油臭、Na-Cl 型、15-16 g/L の塩分）で比較的高濃度（350-400 mBq/kg）の ^{226}Ra を見出し（通常は、100 mBq/kg 以下の温鉱泉が多い）、なぜこのような堆積盆地で高い濃度の ^{226}Ra が湧出するのか，その源と成因解明、さらに強放射能線成因解明に興味を持った。国内では、花崗岩地帯に胚胎する有馬温泉（～ 6.2 Bq/kg）や増富鉱泉（～ 1.4 Bq/kg）、ウラン鉱床近傍に胚胎する三朝温泉（～ 0.55 Bq/kg）などが高濃度の ^{226}Ra を含むことで有名であるが、非火山地域の平野部での高濃度 ^{226}Ra 温鉱泉は極めて少ない。世界に眼を向けると、例えば、旧チェコスロバキアの油田塩水（～ 27 Bq/kg）、アメリカ内陸地方に産出する塩水（～ 128 Bq/kg）、メキシコ湾の堆積盆地から得られる塩水（～ 58 Bq/kg）、死海周辺に産する塩水（～ 12 Bq/kg）などで海水をはるかに上回る塩濃度をもつ塩水が非常に高濃度の ^{226}Ra を含むことが報告されていた。しかし、その成因については、基盤岩の種類や湧出経路、岩石の溶解、アルファー反跳、塩濃度に依存した Ra のイオン交換、吸着・脱離反応等の様々な観点から検討されてきたが不明な点が多かった。そこで、国内にも掘削技術の進歩で数多くの大深度（1000 m 級）Na-Cl 型の温泉が湧出していることに着目（セレンディピティに恵まれた学生：富田氏のアイデア）して、石川や富山の沿岸域に湧出する高塩分温泉水の Ra 同位体を測定し、1 Bq/kg を越える高 ^{226}Ra 含有量の温泉を見出し、さらに測定地点を新潟、東北、北海道（学生：富田、高田、博士研究員：福山、佐々木、玉村）まで拡大し，沿岸地域や堆積盆地での高 ^{226}Ra 含有量の温泉

（^{226}Ra: ≧ 370 mBq/kg）存在の普遍性を明らかにした。それと併せて、温泉ボーリングコアの U, Th, Ra 同位体も測定し、高 Ra 含有量温泉の成因が、深層の間隙に含まれる化石海水あるいは深部粘土鉱物層間より脱水した流体に由来する高塩分地下水（Ra が保存性であることを実験で確認：玉村博士）と主として湧出経路の岩石表層（コーティング相）のトリウム（Th）からの α 反跳に由来する可能性が高いことを示した（富田がこのテーマで博士号取得、2014 年この研究により温泉学会の奨励賞を受賞（現（独）日本原子力研究開発機構）。

2010 年頃から、広島大学の星先生、京大原子炉の今中先生らと共同で、広島原爆の”黒い雨”に絡む close-in fallout 降下量とその分布、当時の住民の被ばく線量評価研究に着手した。Global fallout の影響もあり、広島原爆の close-in fallout 降下量を評価することは極めて困難であった。原爆直後に建築され現在解体される民家の床下土壌試料が降下量評価に最適（気象研、青山博士のアイデア）ではないかと考え、20 数件の解体家屋の床下土壌試料中の ^{137}Cs と Pu（global fallout 汚染の指標）の測定を試みた。また同時に、広島原爆は U 爆弾なので、^{236}U 測定をオーストリア・ウイーン大学 VERA のタンデム加速器質量分析計を用いて挑戦した（事前に global fallout として 主に ^{238}U(n, 3n)^{236}U 核反応（水爆）で ^{236}U が生成、極微量であるが広く分布していることを明らかにし、^{236}U/^{239,240}Pu 比などを評価済み）。結果として、^{236}U からの識別は困難であったが、これまでの α 線スペクトロメトリーや ICP-MS から AMS を用いた測定・研究にまでたどり着くことが出来た。（坂口、ウイーン大学のこの研究施設に半年間留学：2011 年、海洋も含めた ^{236}U を中心とする地球化学研究で放射化学会の奨励賞を受賞）。^{137}Cs と Pu 測定から、幾つかの仮定の基で、調査した地域において広島原爆 close-in fallout ^{137}Cs 蓄積量が 50-100 Bq/m^2 程度であると推定したが、更なる研究が必要である。結果はともかくとして、久しぶりに忘れかけていた多量の試料からの Pu 化学分離と尾小屋での極低レベル ^{137}Cs 放射能測定（化学分離は九州環境管理協会に委託）、さらに AMS よる ^{236}U 測定の醍醐味を味わいさせてくれた。

2011 年からは ^{210}Pb 堆積年代測定法を駆使した陸奥湾の堆積環境変遷研究に着手した（学生：浜高）。研究中の 2011 年 3 月 11 日、東北地方太平洋沖で M 9.0 の巨大地震とその後の大津波で被災した東京電力・福島第一原子力発電所事故により大量の放射性物質が環境に放出され，通常の震災と放射能災害が複合・増幅し合う人類未体験の破局的災害が発生した（東日本大震災）。事故から 4 年が経過したが、原発事故の被害は本当に底知れない広がりを見せている。住民の被ばく量を出来るだけ軽減する工夫と根拠のない「安心」ではなくて根拠のある「安心」、さらに汚染水の対策と地域の除染が緊急の課題となっている。筑波大学の恩田裕一教授を代表とする新学術領域研究「福島原発事故により放出された放射性核種の環境動態に関する学際的研究」中で、7 班の“移行に伴う放射性物質の化学形態および測定技術の開発”の代表として、放射線影響の観点から、環境への放出が懸念されたプルトニウム（Pu）をはじめとする燃料としてのウラン（U）を含むアクチニド元素諸核種の測定等に従事した。U を含む超ウラン元素諸核種の環境放出状況や同位体組成を把握するために、多くの地点（約 150 地点）で土壌コア、黒い物質（ロードダスト）や落葉を採取し、放射化学分離・精製後、α 線スペクトロメーター、液シン、ICP-MS，AMS を駆使して ^{236}U, ^{238,239,240,241}Pu, ^{241}Am, ^{242,243,244}Cm を ^{134,137}Cs と共に測定した（学生：高田、浜高、博士研究員：村上、落合、広島大学：坂口　綾准教授（現：筑波大学・准教授））。結果として、ここに挙げた全ての核種を検出することができ、放出量や核種間の組成比の把握に至った。^{239,290}Pu の放出量は大気中への ^{137}Cs 放出量の 10^{-7} レベルで非常に極微量であった。ここで得られた情報は、原子炉内の状況が明らかになっていない現状において、原子炉の燃焼度、メルトダウン・メルトスルーの燃料破損を通じてのこれら元素の放出化学形態の考察、さらに非揮発性（refractory）元素（Pu など）と揮発性（volatile）元素（Cs など）の飛散, 拡散, 降下挙動を比較検討する上で極めて重要であると考えている。

2013/9/22-27、この事故を重要な話題の一つと

して取り上げて、金沢市で第 5 回アジア太平洋地域放射化学国際会議（5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry, APSORC 13、実行委員長 :（独）日本原子力研究開発機構の永目論一郎博士と私）を開催（発表数：343 件、参加国：25 ヶ国）することができた。これまでの金沢大学の放射能研究を発展させてきた諸先生に少しでも恩返しが出来たのではないかと思うと同時に、放射化学の益々の活躍・発展を期待している。

3）これまでの研究生活を振り返って

学生と共に学び、実践しながら、ときには怒り、誉めもしながら自分が楽しいと思う放射能に絡む研究を同時に多くの諸先生にも支えていただきながら、α 放射体を中心に環境放射能、地球・環境化学研究を 40 年あまり続けてきた（素志貫徹:常に志を持ち、懸命に成すべきを成すならば、道は必ず開けてくると言う意味）。志を持ち、すばらしい諸先生・学生との邂逅、歴史（化学史）から学ぶことの重要性を教わったこと、好奇心旺盛だったことが、研究を継続できた原動力だったかも知れない。共に研究してきた学生や共同研究者の一人一人のお名前を正確に記すことが出来なかったが、協力者の皆様に心から深謝申し上げます。特筆すべき成果をあげることは出来なかったけれども、阪上、上野先生の意志を継ぎ、小村先生と共に LLRL を愛し世界に誇れる放射能研究所にしようと共に励んできたことが懐かしく思い出される。一方で、全国共同利用微弱放射能測定拠点を目指したが、今一歩かなわなかったことが心残りである。

放射能・放射線は、もともと宇宙には元素誕生以来存在しながら、人間の目にも見えず五感にも感じない。19 世紀末になってやっと人間の工夫になる化学分離、物理的測定法の進歩により、また原子力発電の基本となるウラン（^{235}U）の核分裂現象が 1939 年に東ドイツの科学者オット・ハーン（Otto Hahn）らにより発見された。過去を振り返ると、この放射能・放射線の“影”の部分として、核兵器としての原爆・水爆（広島・長崎原爆（1945）、ビキニ水爆被災（1954）、それに続く米ソを中心として行われた大気圏内核実験からの放射性降下物）、そして時代は進み今度は核の平和利用（アメリカでのスリーマイル島原発事故（1979）、世界を震撼させた旧ソ連でのチェルノブイリ原発事故（1986）、JCO 臨界事故（1999）等）から、幾多の悲惨な核被災を経験し、同時に多くの放射性物質が環境に負荷されてきた。そして、チェルノブイリ原発事故から 25 年後、今度は日本で巨大地震とその後の大津波で被災した東京電力・福島第一原子力発電所の事故によって大量の放射性物質が環境に放出され、通常の震災と放射能災害が複合・増幅し合う人類未体験の破局的災害が発生した。

科学は、見えざる［知］を見つけ出す営み、知の創造、一方技術は知の具現化への営み、この二面性を組み合わせながら人間は快適な、利便性ある生活を求めて，自然の猛威を忘れて、時には猛威に立ち向かって科学技術を発展させ前進させてきた。フィロソフィー、サイエンスと言われながら 40 年余り放射能研究をしてきたが、今回の福島第一原子力発電所の事故による食品汚染に関して、北国新聞（2011/7/14）の『時鐘』の欄に、放射性セシウムに汚染された牛肉が流通している記事に「原爆（原子）マグロ」を思い出した年配者も多いだろうとあった。金沢市の近江町市場にも出荷され、大騒動になった汚染マグロは海に投棄あるいは地中に埋められた。当時は放射能汚染、今度はセシウム汚染、格段に情報量も増え、知識も豊かになってきたのに被災が起こるたびに過去の経験はなおざりにされ、同じ事が繰り返されている。何か進歩したものがあるのだろうか？と、改めて科学技術の進歩とは何だろうかと考えさせられた。また、チェルノブイリ原発事故直後にドイツに留学していた際に、環境放射能研究に携わる年配の研究者が、今は我々がいるのでチェルノブイリ原発事故による放射能汚染・被ばくなどの調査・研究はできるが、定年後には若い研究者も激減し、もしこのような事故が再び起きると大変なことになると漏らしていた事が脳裏に浮かんできた。日本も同じような運命を辿っている感じがする。放射能研究の第一世代とも言うべき諸先生は退職され、第二世代もすでに定年になり、大学改革、講座制の廃止のあおりも受けて第三～四世代の数少ない研究者が大学で後を継いでいるような状況にある。私は、大学改革は

悪いとは言わないが、残すべきものは国として残す政策が大切であると考えている。研究施設を数多くとは言わないが、「一隅を照らす国の宝物」（LLRL 開所時の年報巻頭言に阪上先生がこのことを筆記）として大学などの研究機関を確保・継続して行く事が、特にこの放射能分野の教育、研究者の育成も含めて重要なように思われる。世界の原子エネルギーの利用が続く限り、このような研究の継続と若い研究者の確保が必須と思われる。今日、放射能測定については目覚ましい進歩（ICP-MS, TIMS, AMS など）があり極低レベルのみならず同位体測定（isotopic fingerprint analysis）も可能となっている。極微量測定を行うためにも、化学分析の重要性を再認識して超ウラン元素も含む新たな放射能に絡む「Science」が開けることを望んでいる。また、LLRL の更なる発展を願っている。

ここに記した私の経験が何か参考になることがあれば幸いである。最後に、このような原稿を書く機会を設けて戴いた放射化学誌編集担当者をはじめとする関係各位の方々にお礼申し上げます。

留学報告

ワシントン大学（UW）での一年間

渡辺茂樹（国立研究開発法人　日本原子力研究開発機構
量子ビーム応用研究センター RI 医療応用研究グループ）

筆者は、平成 25 年 4 月から平成 26 年 3 月までの 1 年間、アメリカ・ワシントン州シアトルにあるワシントン大学（The University of Washington、以下 UW）に留学させて頂いた。本稿では、シアトル滞在中の生活や UW での At–211 研究について述べる。

1. シアトルと UW

筆者が留学した UW があるシアトルは、人口約 60 万の都市で、緑豊かな街並みとピュージェット湾やワシントン湖などの水域に囲まれていることから「エメラルドシティー」と呼ばれる美しい都市である。シアトルは、北海道よりも緯度が高いため、夏季に 30℃を超える日は数える程度で爽やかな日が続く。それに対し、冬季は、「レインシティー」とも呼ばれるほど雨の日が延々と続くが（そのために日光で生成されるビタミン D 不足を危惧してビタミン D サプリを飲む人がいるらしい）、真冬日になることはほとんどなく降雪も年に数回程度である。このように夏季は比較的過ごしやすく、冬季も緯度の割に比較的温暖であることから、雨が続くことを除けば、非常に過ごしやすい都市であると言える。

シアトルには、かつてイチロー選手が在籍したシアトルマリナーズがある他、旅客機製造で有名なボーイング社やコーヒーチェーンのスターバックス、マイクロソフト社（ビルゲイツもシアトル在住）や Amazon.com などの大企業の本拠地があり、日本でも馴染み深い都市の一つであると言える。

UW は、シアトルのダウンタウンから車で 10 分程度の位置に広大なキャンパスを持つ州立の総合大学である。ワシントン州には、ワシントン州立大学（Washington State University: WSU）という大学もあるが、全く別の大学である。また、ミズーリ州セントルイスにもワシントン大学（Washington University in St. Louis: WUSTL）があるが、これも全く別の大学である。UW は 1861 年に創立されたアメリカ西海岸で最古の大学の一つで、16 学部約 140 学科で構成されており、約 5 万人の学生が在籍している。大学には、100 年以上の歴史を持つ建造物やビルゲイツ夫妻の寄付によって建てられた建物などがある。また、Quad と呼ばれる広場には日本から贈られたソメイヨシノが植えられており、現在ではシアトルで最も有名な桜の名所となっている。ちなみに満開になるのは例年 3 月中旬～下旬頃で、日本での満開の時期よりも早いが、これは、地元の方の話では、比較的温暖な気候と人口が多いこと（？）に起因するとのことであった。



写真 1.　桜が満開の Quad

2. UW Medicine と Wilbur 研究室

私が所属した UW 医学部（UW Medicine）は、看護学、プライマリーケア部門で全米でも高い評価を受けている。また、2013 年の国立衛生研究所（National Institute of Health: NIH）からの助成金総額はハーバード大学に次いで全米 2 位であった。キャンパス内にある医学部附属病院（UW Medical Center: UWMC）の他、ワシントン州内で 3 カ所の総合病院と 9 カ所の診療所を運営しており、州の中核的医療機関の使命も担っている。筆者が在籍した放射線腫瘍学科（Department of Radiation Oncology）では、従来から行われている外照射放射線治療の他、陽子線および速中性子線治療などの粒子線治療を実施しており、加速器を用いた中性子線治療を実施する全米唯一の施設である。また、放射線腫瘍学科では医学物理学や放射化学など放射線腫瘍学に関連する基礎研究も精力的に行っている。筆者は、D. Scott Wilbur 教授の放射化学研究室に客員研究員として在籍した。Wilbur 研究室は、教授の他に研究支援を行う研究者が 2 名、ポスドク 1 名の 4 名で構成されていた。主な研究テーマは、治療用放射性ハロゲンであるアスタチン -211（At-211）の製造と化学的性質に関する研究、および、内用放射線治療への応用を目指した At-211 標識薬剤の開発である。その他、診断と治療を同一核種で行うセラノスティックス（Theranostics）を目指したレニウム -186（Re-186）の製造とその標識薬剤開発などの研究も実施している。



写真 2.　Wilbur 研究室の Office。右が筆者の席　奥は教授室。

3. UW で放射線業務従事者になるには

筆者が留学して最初に行ったのは、UW で放射線業務従事者になるための勉強であった。日本で放射線業務従事者になるには、健康診断と最低 6 時間の教育訓練を受講するが、UW ではワシントン州の法律に基づいて毎月末に開催される講義（約 1 時間）を受講し、簡単な試験に合格することで放射線業務従事者として登録される。この講義の前には、放射線の人体に対する影響や関連の法律などのオンライン学習が必須であった。このオンライン学習の内容は日本での学ぶ事柄とほぼ同一であるものの、その量は合計約 400 ページにわたるもので、留学当初の筆者にとっては長い英語との闘いであったことを今でもよく覚えている。（なお、テキストは http://www.ehs.washington.edu/rsotrain/radclass.shtm で確認することができる）。当時は、他にやることもほとんどなかったため、オンライン学習をみっちり勉強することができた。その結果、月末の講義も十分理解でき、試験も無事一回で合格することができた。

4. UW での At-211 製造

晴れて（？）UW での放射線業務従事者となった筆者は、UW で定常的に行われている At-211 製造の従事を始めた。ここで、アスタチン（At）について簡単に述べたいと思う。At は、17 族（ハロゲン）に属する元素で、その語源は、日本語で不安定を意味するギリシャ語 astatos（アスタトス）である。これは、安定同位体を持たない上に、存在する放射性同位体の半減期が短い（最も長い At-210 でも約 8.3 時間）ことに由来する。実際に、天然に存在する総量は 0.1 ～ 30 mg 程度と見積もられており、地球中で最も希少な元素の一つであると言える。At の発見は 1930 年まで遡るが、安定同位体がないため、発見されてから長い時間が経過しているにもかかわらず化学的あるいは物理的性質に関してまだまだ不明な点が多い。しかし、RI 内用療法で古くから応用されている放射性ヨウ素と同じハロゲンであることから、治療への応用が約 50 年以上前から提案されてきた。治療に応用可能な At 同位体として At-210 と At-211（半減期約 7.2 時間）が挙げられるが、前者は毒性が高い Po-210（半減期 138.4 日）に壊変するため、人体に投与することができない。そこで、長

半減期のα線放出娘核種を生成しない At-211 を治療に応用する研究が行われてきた [1]。

UW では、^{209}Bi(α,2n)^{211}At 反応を利用した At-211 の製造を 20 年以上行ってきた。近年では、治療に必要な放射能量（～数 GBq）が生成できるよう大型化された Bi ターゲットに、α ビーム（入射エネルギー：約 29 MeV、電流値：約 45 μA）を照射することで At-211 を定常的に製造している。生成量は 1 時間の照射で約 740 ～ 900 MBq（20 ～ 25 mCi）であり、これまでの最大生成量は、4 時間の照射で約 3.7 GBq(100 mCi）であった [2,3]。At-211 の化学分離では、操作が簡便な乾式蒸留法が広く用いられているのに対し [4]、UW では湿式分離法を採用している。これは、GBq オーダーの At-211 を用いた場合に製造ごとの回収率が安定しない（20 ～ 60%）ことや、乾式蒸留法では化学分離の自動化が困難である点に加え、ターゲットの大型化を行った結果ターゲットが石英管に収まらず、照射直後の高線量ターゲットを電動ノコギリで切断するといった取扱上の問題が生じたためである。UW での湿式分離法は、① Bi ターゲットの濃硝酸への溶解、②蒸留による濃硝酸の除去、③ 8 M 塩酸への残渣の溶解、④ジイソプロピルエーテル（DIPE）への抽出、⑤ 4 M 水酸化ナトリウム水溶液への逆抽出、⑥塩酸を用いた中和、の 6 段階の操作から構成されている [3]。約 5 年前から 100 回以上の湿式分離を行っており、特に分離条件の最適化を図って以降、平均分離時間 155 分、平均回収率 78% での分離が可能になっている。乾式蒸留法での回収率（約 60%）および分離時間（150 分程度）と比較すると、同等あるいはそれ以上の回収率である [3]。

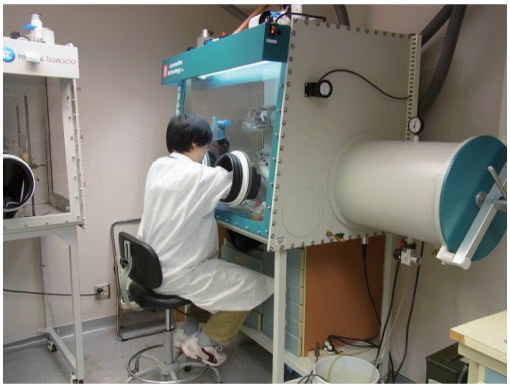


写真 3.　湿式分離中の筆者

5.　カラム法を用いた湿式分離法の簡素化に関する研究

湿式分離法は、前述の通り乾式蒸留法と同等の回収時間および回収率で At-211 を分離できる一方で、④ 8M 塩酸／ DIPE を用いた抽出、および、⑤ DIPE ／ 4M 水酸化ナトリウム水溶液を用いた逆抽出、の 2 段階は、有機相と水相の正確な分離が難しい上に、二相の混和がその後の中和操作の再現性の低下につながることから、分離の自動装置化を達成する上での障壁となっていた。そこで、筆者は、抽出―逆抽出に代わる分離法としてカラム法を導入した分離法に関する研究を行った。筆者は、DIPE がエーテル構造を持つ点に着目し、エーテルの繰返し構造を持つ樹脂を使うことで、前述の抽出―逆抽出の段階を再現できると考えた。そして、Merrifield 樹脂にポリエチレングリコール（PEG）を導入した樹脂（以下、PEG 樹脂）を合成し、その分離能について検討した。At-211 を含む塩酸溶液（2 M, 4 M, 8 M）を PEG 樹脂に通液した結果、いずれの場合も 96% 以上が樹脂に吸着されることが明らかとなり、2 M 塩酸で樹脂を洗浄した後、15M アンモニア水を溶離液とすることで、最大約 79% の At-211 が溶出される結果が得られた。また、溶出後に蒸留によるアンモニア水の除去を行った結果、溶離液が pH 10-11 の場合では 75% の At-211 がアンモニアとともに蒸留されたのに対し、pH 13-14 の場合では約 90% の At-211 が残渣に残り、アンモニア水と分離することができた。以上の結果から、PEG 樹脂を用いることで、全回収率約 60% で Bi ターゲットから At-211 を分離できることが明らかにした。現在 UW では回収率の更なる向上と自動分離装置に向けた研究を進めている他、筆者が所属する原子力機構高崎でも湿式分離の導入に向けた検討を進めている [5,6]。

6.　留学前・留学中の英語学習

ここで留学前そして留学中の筆者の英語学習について述べさせて頂きたい。

筆者は、スピーキング、リスニングがもともと不得意だったので、留学前にスピーキングとリスニング力を向上させようと腹を決め、音読、瞬間

英作文、リスニングなどを通して一から英語を学び直した[7]。その結果、日本にいるときから少しずつではあるが英語力を向上させることができた。

しかし、いざ渡米して現地での生活を始めると、コミュニケーションをとる事が本当に大変で、自身の英語力の低さを痛感する日々であった。「もともと不得意なので仕方がない」と分かっているものの、実際にコミュニケーションがとれないことはとても悔しいものであった。そんな悔しい思いをしないようになりたいと、留学中は、日本での英語の基礎学習を続けた他、TV（特にニュース）をとにかく見てリスニングを鍛え、大学で行われる留学生を対象にした英会話クラスなどに参加し、スピーキング力を磨いた。その中で「ネイティブスピーカーとの会話」は、英語力を鍛える上で最も効果が大きかった。というのも、ネイティブスピーカーに言いたいことが伝わればそれが自信につながるし、逆に伝わらない場合でも「ああ言えば良かった」と反省（？）して次回同じ場面で活かすことができれば、それがとても大きな自信となるからである。このような学習を続けた結果、帰国前には英語でコミュニケーションをとることが苦にならなくなっていた。さらに、仕事中の空いた時間を使って、自身の研究に関する知識を深める意義も込めて「論文の丸写し（＝「写経」と筆者は呼ぶ）」を行っていた。ネイティブスピーカーが書いた論文を最初から移すことで、論文の表現やリズムを体得することができ、これが帰国後のライティング力向上に大きく貢献している。

以上のように、１年間英語漬けの日々を送ることで、僅かではあるが自身の英語力をさらに向上させることができた。これらの経験が、今後留学を考えている方の参考になれば幸甚である。

7. バケーション

研究室の同僚をはじめとするアメリカ人は、各

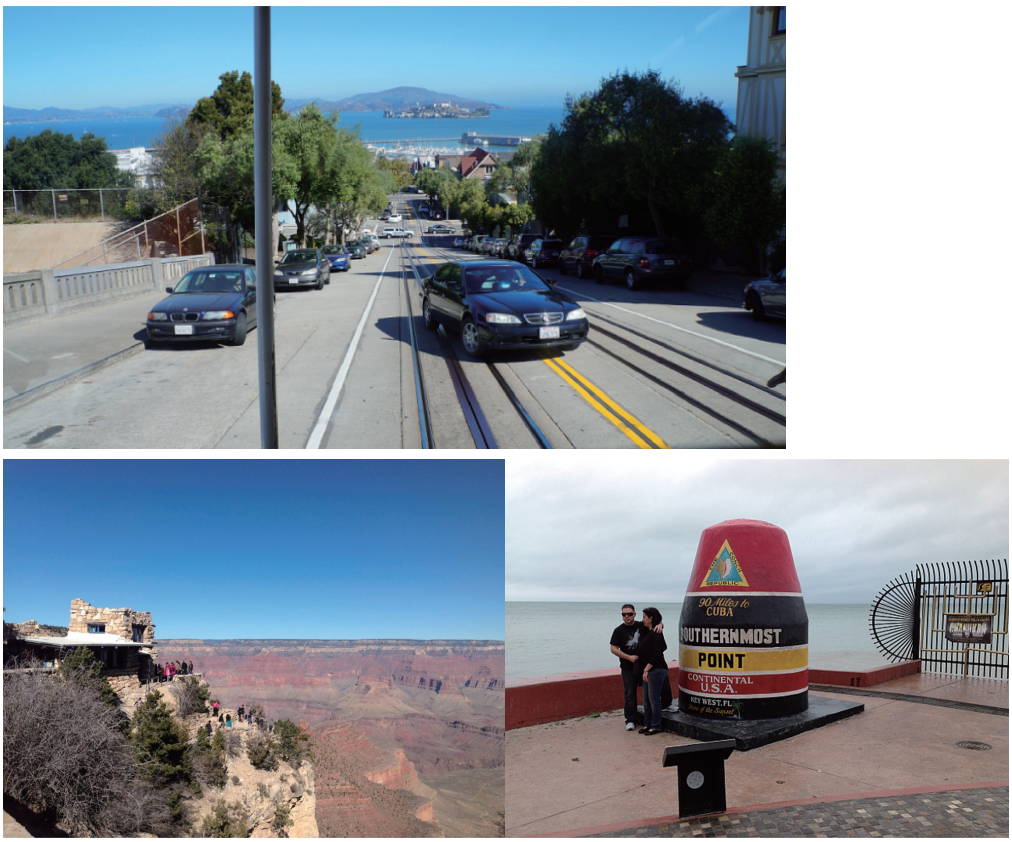


写真 4.（上）サンフランシスコ　ケーブルカーからの風景
（下左）グランドキャニオン　（下右）キーウェストのサザンモストポイント

自の都合に合わせて 1 週間程度の休暇を取って旅行に出かけていた。筆者も同じく留学中 2 回ほど休暇を頂き、8 月にカリフォルニア州サンフランシスコ、また翌年 1 月にグランドキャニオンとフロリダに旅行した。サンフランシスコへは 2009 年ナパで開催されたアジア太平洋放射化学国際会議（APSORC‘09）で立ち寄って以来、アルカトラズ島やケーブルカーに乗ってケーブルカー博物館を訪問するなど多くの観光地を訪れることができた。また、1 月のグランドキャニオンとフロリダを訪れるアメリカ横断旅行は、アリゾナ州フェニックスからグランドキャニオンまでの約 400 km、オーランドからキーウェストまでの約 650 km のそれぞれの道のりを途中モーテルに宿泊しながら車で移動する旅であった。フェニックスは 20°C 前後ととても温暖であったが、フロリダは強烈な寒気が入り込んだ関係で、通常 25°C であるところ 10°C 前後まで冷え込んでいた。しかし、氷点下近い気温のシアトルとは全く異なる晴れて暖かい気候を体感できた他、アメリカ大陸の広大さを実感することができる旅で大変に楽しいものであった。

8. 終わりに

今回留学の機会を与えて下さった原子力機構、留学に快く送り出してくれた研究グループの同僚、そして、親身になって多くの助言して下さった Wilbur 教授をはじめとする放射化学研究室のメンバーに心から感謝を申し上げます。また、人生初の海外が一年間留学生活という状況にも関わらず、シアトルに同行して生活を支えてくれた妻に、この場を借りて感謝申し上げます。

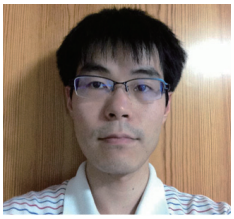
参考文献

（1）D. S. Wilbur, Nature Chem., 5, 246（2013）
（2）K. Gagnon et al., J. Labelled Compds. Radiopharm., 55, 436-440（2012）
（3）E. Balkin et al., Appl. Sci., 3, 636-655（2013）
（4）M. Zaltusky et al., Curr. Radiopharm., 4, 177-185（2011）
（5）渡辺ら、第 58 回放射化学討論会
（6）D. S. Wilbur et al., 9th Symposium on Targeted Alpha Theray（2015）
（7）http://homepage3.nifty.com/mutuno/index.html を参照のこと

留学報告

ブリュッセル自由大学留学記

日高義浩（Laboratoire G-Time, Université Libre de Bruxelles）



縁あってベルギーはブリュッセル自由大学に籍を置かせて戴き、二年が経ちました。この度記事執筆の依頼を賜りましたので、こちらでの生活で感じた物事を思い出しがてら少し振り返ってみようと思います。

ベルギーは北部がオランダ語（フラマン語）圏、南部がフランス語圏大きく 2 つに分けることが出来、ブリュッセルはその中で位置的には北部側に存在しているのですが、ブリュッセル市内は主にフランス語を使用する、という飛び地のような格好になっています。この 2 つの言語・文化が混在する状況というのは複雑なもののようで、現在のブリュッセル自由大学という大学も、かつて存在一つの大学だったものがフラマン語派の Vrije Universiteit Brussel（VUB）とフランス語派の Université Libre de Bruxelles（ULB）の 2 つに分裂したもの、とのこと。

日常的なこととしては、夏は 10 時過ぎまで明るく冬は 4 時過ぎにはほとんど暗くなる、と日照時間の差が日本に比べて極端で、いまだに外を見ているだけでは時間がわからなくなったりします。また、市内に公園や池が点在していて、春から夏にかけては仕事終わりの夕方や土日の日中に日光浴をしている人で埋め尽くされるのが印象的です。後はやはりビールでしょうか。街を歩くと昼間でも多くの人がテラスでビールを飲みながら談笑しているのを見ることが出来ます。どれだけあるのかわからないくらいに豊富な種類とジュースやお茶とさして変わらない値段で楽しめることから、ビールの国というのは伊達ではないようです。残念ながら下戸なのでオススメのビールなどはご紹介できませんけれども。

研究室での生活を送る上では、お茶やお昼の時間に政治や経済、最近ではテロに関しての話題などがよく挙げられる点に最も驚き、そして困惑しました。日本のケースを引き合いに出したり質問されたりもするのですが往々にして答えに詰まってしまうことも多く、英語力もさることながら自国やその他身の回りのことについて真剣に考えることの必要性を痛感しています。それ以外には、研究室のメンバーが、30℃を越すような猛暑の日にはお昼を食べてしばらくしたら研究室から引き上げることがあったり、午前中のセミナーの後はお酒ありのパーティを催してそのまま三時頃までのんびりしていたり、というのを見て面食らったことがありました。これらは極端な例ではありますが、出てくる成果が重要で後はどういった時間の使い方をするかは個人の裁量に一任される、という性格が強いようです。自由に取れる休暇も毎年一ヶ月近くの日数が貰え、スタッフ・学生問わずイースターの時期や夏休みにそれぞれ 2 週間ほどのバケーションをとることが多いです。

研究の上では、定期的なゼミのようなものはなく、個々人でボスと相談しながら実験や考察を進めていくというスタンスになっています。岩石試料の同位体分析を主として行っており、それぞれが対象とする同位体系によってマルチコレクター型の誘導結合プラズマ質量分析計と表面電離型質量分析計を使い分けて実験を進めています。自分自身の研究としては、隕石試料中の Mg や Ni といった元素の同位体比を用いた年代測定を行おうとしています。磁気的に分離した同一試料由来の複数のフラクションに対して、親各種 ^{26}Al や ^{60}Fe の壊変による娘核種 ^{26}Mg, ^{60}Ni の相対存在度の変化を一万分率から百万分率のオーダーで測定し、アイソクロン法を用いて太陽系形成時からの経過時間、という形で相対的な年代を算出します。自分が研究対象としている、始原的

エコンドライトと呼ばれる隕石群は、限定的に分化の影響を受けている隕石であり、そこには太陽系最初期の時代に小惑星・微惑星上で起きた現象の履歴が残されていると考えられます。それらに対して年代的な制約を加えていくことは、初期太陽系の歴史をより詳細に理解する上で有意義なものであると考え、研究を行っています。

最後に、反省している点について少々。今回、海外での生活のために、出発前の VISA の取得や、現地での住居の確保、滞在許可証の申請、民間の保険加入手続き、等々しなければならない手続きがいくつもありました。それらは大変時間と労力を必要とし、なかなか思うように進まないそれらの手続きで仕事のモチベーションが下がって無為に過ごしていた時期がありました。そうやって自分が研究とは直接関わりのない部分で惑わされてしまっていたのは、短中期、あるいは長期に至るまでの明確な目標設定や行動計画を練れていなかったためではないかと考えています。もしこれからそれまでとは全く違う環境で研究を始める、という方がいらっしゃるようでしたら、より実りある研究生活を送るために今一度自分がそこで何をしたいのか自問してみていただけたら、と思います。最後に、こうして振り返って反省する機会を与えていただきましたことに感謝いたします、ありがとうございました。

談 話 室

帰還困難区域を訪れて

堀まゆみ（東京大学大学院総合文化研究科 日本学術振興会特別研究員）

帰還困難区域。端的に言えば、以前から行きたい、見てみたい場所であった。それはもちろん科学的な立場からの感情であり、野次馬のような興味ではない。ここで帰還困難区域とは、年間積算放射線量が 50 mSv を超える可能性があり、5 年間を経過しても年間積算線量が 20 mSv を下回らないおそれのある地域のことを指し、原則立ち入り禁止とされている地域である。私の研究は、環境分析化学、主に土壌の汚染修復、とりわけ 6 価クロムについて研究をしている。これまで、シンクロトロン放射光を用いた X 線分光分析法を使って実験を行ってきており、万が一、放射線漏洩の事故が起きたときの恐ろしさは教育訓練等で耳にタコができるほどに教えられてきた。また、研究用原子炉に入り放射化分析も行ってきたが、ここでは厳しく放射線量が管理され、管理された中で漏洩事故防止に細心の注意を払いながら実験を行ってきた。しかし、4 年前の東日本大震災による福島第一原子力発電所事故で放射性物質が拡散し、信じられないくらい高い放射能汚染が広がる地域が出来てしまった。研究施設では一大事となるような放射線量が当たり前のように目の前に広がっている。6 価クロムという環境問題を軸足に研究を進めてきた中、同じく環境問題の一つである原発事故由来の放射性物質の汚染の問題についても高い関心を持ってきた。被災地の状況を写真や映像から見聞きはしていたが、その現状を実際に現場に足を運び、事実を自らの目で確かめたいと思っていた。そして、2014 年、福島第一原子力発電所、帰還困難区域を訪れ、サンプリング調査ならびに環境放射能の測定に携わる機会を得た。おそらく、帰還困難区域、ひいては福島第一原発正門前まで行ったことがある人としては、私の所属する東京大学総合文化研究科の中でも数少ない人数であろうし、女子学生としては初めてのことであっただろう。加えて、20 代女性の入域も珍しいことであろう。それは、J-village や福島第二原発でスクリーニングを受ける際の作業員の方々の私を見る目線からも感じることである。私はこれまでに 3 度帰還困難区域に入域しているが、入域する度に異なる感情を抱いて帰京する。入域して感じたことをここに記すことにする。



写真 1　福島県双葉郡大熊町にて

1. 2014 年 7 月　初めての帰還困難区域入域

福島市福島駅前を出発し、渡利地区を通り、国道 114 号線を行く。一旦入域すると、飲み物も飲めず、トイレ休憩もとれない状況である。川俣地区で最後のトイレ休憩をとり、国道 114 号線を進み、浪江町津島のゲートから入域、一度退域し、国道 6 号線を北上し南相馬市小高区での試料採取の後、浪江町請戸地区へと向かう。その後、防護服に着替え、国道 6 号線から大熊町の帰還困難区域へ入域する。福島第一原発正門前を通り、大熊町夫沢地区で試料採取を行う。退域後、福島第二原発でスクリーニング検査を受け、調査は終了と

なる（図 1）。渡利地区を抜け、トンネルをいくつか通り山を越える。次第に除染作業を目撃する回数も増え、車内の空間線量も上昇していく。すると、原発事故により突然生活を奪われてしまった地域が広がる。田畑は生い茂り誰も住んでいない。人の手が加わるといえば除染作業くらいであろう。時が止まる様とはまさにこのことだと感じた。以前は田畑であったであろう平地には、汚染土壌などが入った真っ黒なフレコンバックがあちこちに山積みされている（写真 2）。メディアを通して見聞きしていたが現状を目の当たりにすると、言葉ではうまく表現できない感情に陥るものである。初めて見るフレコンバック、除染作業、目に入るものすべてが新鮮。福島第一原子力発電所正門前も通過した。原発サイト内には汚染水が入った巨大なタンクが立ち並んでおり、異様な光景だった。国道 6 号線を往来する車のほとんどはトラックなどの大型車両であり、帰還困難区域全体がひとつの工場になっているような印象を持った。そこは、動いている死というような、フィクションの世界にいるともいうような、何と表すのが正解なのかわからない世界であった。ただ、なぜこのようなことをしなければならないのか、ということを強く感じた。除染作業と線量計から目を背ければ、そこには豊かな自然が広がる。しかし、線量計を見れば車内でも 5 μSv/h は優に超過する地点もある。見えない真実がそこには存在している。

放射性物質の被害に加え、津波の被害も大きかった請戸地区に立ち寄った。ここには、見える被害というものが存在していた。半壊の家、流された船、瓦礫、ぐにゃりと折れ曲がったフェンス、津波による被害がそのまま残っていた。この請戸地区は、自らの希望ではなく、ぜひこの光景を見せてあげたいというコンダクターの強い思いから連れて行ってもらった場所である。しかし私

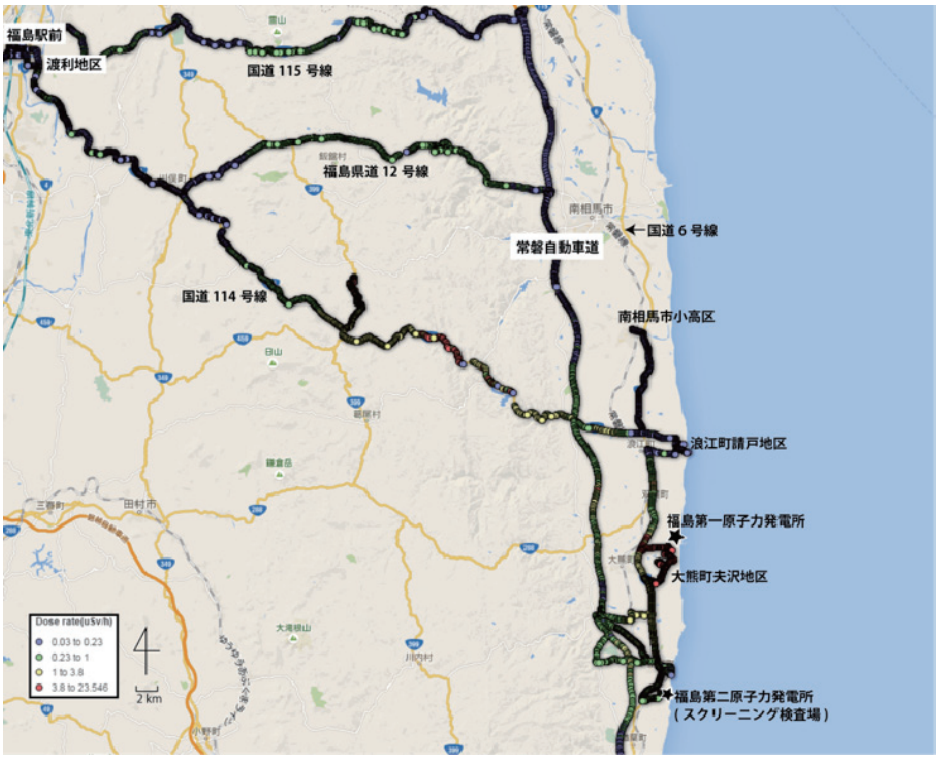


図 1　サンプリングルート。サンプリング時は GPS を装着した空間線量計（2 inch NaI scintillation counter（BNC SAM-940））を車載し、車内空間線量率を測定している。データは、2015 年 5 月 13 日と 14 日に走行した時に得たもの。得られたデータを google map 上に起こした。図中の空間線量率データは、車外における地上 1 m 高の線量率に補正して示してある。



写真 2　山積みのフレコンバック

は、まるでアミューズメントパークに行くかのように連れて行きたいという感情が受け入れられなく、なぜだか写真も撮る気が起きなかった。後から思えば、私はこの地に住んでいた住民の立場からみた視点で被害の様子を見たため、「是非見せたい、見ておいてほしい」の「是非」という言葉に納得がいかなかったのだと振り返って思った。複雑な感情であったのは紛れもない事実である。

帰還困難区域内では、女性は車内待機という指示の下、車外に出ずにいた。私たちのいうサンプリング調査とは、草木の生い茂る中、はたまた道なき道を進み、時として泥まみれになりながら土壌や水を採取する。普段であれば、自分の足でその地に立ち、サンプリングを行うが今回ばかりは違った。せっかくサンプリングに来たからには車外に出て試料採取をしたいという気持ちをぐっとこらえ車内から採取の様子を観察、記録を行っていた。採取そのものを手伝うことができなかった。それは私にしてみればツアーに参加しているようだった。ここに、無力さを感じた。男女の身体の作りは違うこと、法律上でも男女別に線量が定められていることからみれば当たり前のことだが、いざ現場に立つと「女性だからできない」という無力さを感じるとともに、普段のサンプリング以上に気を遣わせてしまっていることに少々申し訳なさを感じた。この点は、私は環境化学に携わるひとりの研究者として感じる特異的な感情であると思うので、共感は得られないだろう。そして、それは仕方がないと言われて終わることである。だからこそ、今まで自分の内にしまっておいた感情であり、これからもしまっておく。

原発事故によって突然日々の暮らしを奪われてしまった地域がある。家の周りの草木が生い茂っているだけで自然が存在し、故郷は変わらないままそこにある。ただ、線量計に目を向けると変わり果てた故郷を受け入れなければならない。表面土壌を取り除く除染作業。線量は一時的に下がるものの、それでも高い放射線量。除染作業に疑問を抱きながら、復興とは何なのかを考えさせられた。様々なことを一度にたくさん感じる場

所、文章では上手く伝えられないが、実際に行かなければわからない「何か」を感じた。

2. 仙台との違い

2014 年 8 月、仙台を訪れたときの話。「震災語り部タクシー」の存在に驚いた。タクシー運転手が語り部となり、被災地をめぐりながら震災の爪痕を案内してくれるというのだ。さらに松島を訪れたとき、案内をしていらっしゃる方から、津波被害が大きかった東松島をぜひ訪れて見てきてほしいと言われた。福島とはまったく異なる印象に驚いた。福島のとりわけ放射性物質の影響が大きかった地域では、被災状況を実際に見てほしいとはあまり言わない閉鎖的空間のイメージがあったからだ。なぜここまでオープンなのか不思議に思い、その案内人に訪ねてみると「またいつこのような津波が来るかわからないし、見ないと現実は分からない。今後東京などで津波が起こった際の参考にしてほしい。」と言われて驚いた。見ることによって教訓を学べということだろう。原発周辺とは別世界。なにより、明るいイメージを持った。それは、うまくは言えないが復興が進んでいるということなのかもしれない。ただ、放射性物質が絡むと別次元の話になるということを切に感じた。

3. 2015 年 5 月 13・14 日　1 年ぶり 2 度目の帰還困難区域入域

今回の入域では、様子を冷静に見ることができる自分がいた。それは慣れからくるものであるのか、最初の衝撃が私にとってよほど大きいものだったのだろうかはわからない。ただ、仙台に行ったことが私の被災地の見方に少なからず影響を与えていることは確かである。

防護服に身を包み入域ゲートをくぐるとやはり緊張感が走る。今回の環境調査は、車外に出て実際に歩いて試料採取を行った。念願といえば念願かなってのことである。同行メンバーから、怖かったら車内にいてもいい、と言われたが一緒に作業をした。作業後に、個人線量計で実際の自分の被ばく量を目の当たりにし、その線量に驚いた。それもそうで、この場所は空間線量が 30 ～ 50 μSv/h の場所であり、高線量地帯であるからだ。そこで 30 分でも作業したら被ばくしないことはなく、相応の被ばく量になる。しかし、このことを理解して取り組んでいるので、その線量は納得できたし、漠然とした恐怖感というものはなかった。何の変哲もなく美しい自然が広がる世界なのに、線量計をみれば、30、40、50 と数値は上昇していく。鳥のさえずりや緑が生い茂り花は咲き誇り、駆け回って遊びたくなるような豊かな自然。しかし、目に見えない放射能。見える真実と見えない真実、目を背けたい現実が存在している。

翌日は 1 年前と同じルートでサンプリングに出かけた。福島駅前を出発し、最後のトイレ休憩を経て山を越える。たくさんのフレコンバック。「あぁ、そうだった、この景色だ」と思いだした。つまり、1 年前とはあまり変わっていないということである。ただし、1 年前は瓦礫が広がっていた区域も、花が植えられている場所もあり復興が進んでいることを感じた。今回も 1 年前と同様に津波被害のあった請戸地区に立ち寄った。津波による瓦礫はだいぶ片付いた印象であり、更には瓦礫処理施設ができていた（写真 3）。ここで私は 1 年前とは全く違う感情を抱いた。瓦礫が片付き処理工場も動いている、それは復興が進んでいる証拠であるが、「過去を消されていく寂しさ」を感じたのだ。時が止まった中で、何かが動いている、動き始めていることを感じた。被災した過去を消されていくと思った自分、1 年前に訪れたときとは全く受け方が違う自分に驚いた。そして、復興とは何かを再び考えさせられた。俯瞰的な立場で物事を捉えられるようになったのかもしれない。1 年前に私の中で受け入れることができなかった「見せたい」という気持ちが今になってわかってきた。是非見てほしいとまでは言わないが、この場所がこれからどのように変わっていくのか自分の中で追っていきたいとも思うようになった。



写真 3　請戸地区の様子（2015 年）。手前に写る車両はサンプリング用の車。瓦礫が広がる中に瓦礫処理工場が出来ていた。

4. 防護服を着ること

知人に原発周辺に行ってくると言うと「あの白い防護服とか着るの？」「写真見せて？」としばしば尋ねられる。防護服を着てマスクをして、ほぼ目しか出ていない写真を見せると、見せられた方はウッとなり、驚かれたり引かれたりするのが大抵である。彼らにとっては普段の私からはまるで想像できないことに加え、事実を知るという面で衝撃的なのだろう。一方で、私にとっては彼らがどんな感情を抱こうが構わない。むしろ、事実を知り私に被災地の状況や研究について質問してくれるのはありがたいことだと感じている。

そんな防護服。帰還困難区域はどのような状況なのか。まず、私たち研究者は防護服を着てマスクをしている。これが普通だと思っていたし、今も普通だと思っている。しかし、2015 年現在、防護服＋マスク装備者の方が変な眼で見られるのが現状だ。防護服にマスク着用は研究者くらいのようだ。除染などの作業をしている方は、防護服は着ていなく、マスクすらもしていない人も中にはいる。警察官はというと、防護服は着ていなくマスクのみ。防護服を着ている人を探すのが苦労するほどである。事実、防護服を着て作業するとサウナ状態で暑く、加えて、作業しにくいことは分かる。しかし、マスクくらいはしないといけないと感じた。車内でも埃は舞っており、車内空間線量は高い場所で 10 μSv/h はある事実を考えると、マスク着用は必須であり、きちんと防護しないといけない環境である。防護服＋マスクを見かけるのは、福島第一原発正門前で警備にあたっている方くらいだ。私たちは入域ゲートや正門前では止められ、入域許可の確認や身元確認等ですんなりと入域できないことはしばしばある。警察を呼ばれて職務質問される時もある。ここで滑稽なのは、防護服を着ずにマスクのみ着用の警察官（中には、マスクを外して話をする人もいる）と防護服＋マスクで防護をしている私たち研究者と警備会社の人。これは事故直後から 2015 年 6 月現在まで同じ光景である。警察官は自身の防護形態に疑問を抱かないのか謎である。除染作業の装備についてはガイドライン等で防護服を着用せずに軽装での作業が場所によっては認められているが、同じ場所で同じ作業をしている人たちの中でも、マスクをしている人、していない人、長袖の人、半袖の人、皆それぞれ異なる防護の仕方である。装備基準が設けられているものの、放

射線防護の観点である防護服着用は周囲の雰囲気に委ねられ、いい加減になっているのが現状のようだ。それぞれが作業する場所の汚染度や作業に応じて防護服を選ぶのは分かるが、同じ場所で三者三様なのには問題を感じる。

2015 年 6 月､再び大熊町周辺や飯舘村を訪れた。3 度目の入域となる。平地に積まれた真っ黒のフレコンバックを見るたびに思う、何でみんながこんなことしなきゃいけないのだろう、誰が幸せになるのだろう、と。フレコンバック集積場は増えていく一方であり、山積みになっているフレコンバックを見るたびに胸を打たれる光景である。これから中間貯蔵施設が原発をまたがってできる。一面がフレコンバックで真っ黒になっている光景をみると、言葉ではさらっと出てこない何とも言えない感情がこみあげてくる。中間貯蔵施設に関する諸問題は少なくとも今後 30 年は続く。加えて、津波があったからこそ原発災害を余計にややこしくしているのは確かなことである。津波＋放射性物質の爪痕は未来に残る一方で、現状を伝えていくべき（残すべき）ものでもあろう。

今回も高い空間線量の地点でサンプリングを行った。ふと足を踏み入れると 30 ～ 50 μSv/h の世界。実に異様な場所である。これは何度行っても同じ感覚である。そして、都内に比べ何十倍以上もの空間線量の中で作業し、東京に戻ってくると変な気持ちに陥る。今まで感じたことないような不思議な気持ちである。福島第一原子力発電所や放射性物質に関する報道や特集を見ながら、その地に自分は行っていたのだと思い知らされる感じに違和感を覚える。

被災地には風評被害と風化の二つの風が吹いているとよくいうが、人によっては対岸の火事として捉えているかもしれない。私にとって帰還困難区域周辺は、時が止まったままの中で何かが動いている不思議な場所である。訪れるたびに受ける印象は違うものであり、その印象の変遷を機会があれば訪れることによって感じていきたいとも思う。将来のある若い女性なのにと心配されることも少なからずあるが、私の後世にまで永遠に続く課題に対して、自分の目で見てそれを伝えていくことの重要性を感じている。



写真 4　国道 6 号線沿いの除染作業員の様子。左が 2014 年、右が 2015 年に撮影したもの。

会議報告

第 16 回環境放射能研究会

北川潤一（高エネルギー加速器研究機構）

第 16 回「環境放射能」研究会が平成 26 年 3 月 9 日から 11 日までの 3 日間、茨城県つくば市の高エネルギー加速器研究機構にて開催された（主催：高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター、日本放射化学会 α 放射体・環境放射能分科会、共催：日本原子力学会保健物理・環境科学部会、日本放射線影響学会、日本放射線安全管理学会）。

昨年から今年にかけては、論文捏造や日本人拘束事件など、例年に増して日本人の関心が慌ただしく変動した一年だったのではないかと思う。福島第一原子力発電所事故により参加者の倍増した本研究会であるが、事故が次第に社会的関心を失っていく中、参加者は減るどころか昨年より多い 190 名であった。講演件数も 2 件の特別講演、1 件の依頼講演、23 件の口頭発表、54 件のポスター発表と計 80 件であり、本研究会過去最多講演件数となった昨年の 84 件に迫る勢いである。福島の研究が単なる一過性のものではなく、継続して取り組むべき課題と考えている研究者が未だ少なくないということであろう。口頭発表では、例年と同じく福島関連の講演が大半を占めた。しかし発表内容は例年より一歩先に進み、測定が中心となる研究から「復興に向けてデータをどのように評価すべきか」「現地の作業者が簡便に測定を行うにはどうすればよいか」といった実務的な観点にフォーカスしたものが多かった。特別講演では今年度退職となる桝本和義氏、山本政儀氏による最終講義が行われた。復興へ向けた具体的な提案の多かった口頭発表に対し、ポスター発表では福島事故問題に限定しないユニークな発表が数多く見受けられた。

依頼講演では、環境省の長澤氏による「水質汚濁防止法に基づく水環境中の放射性物質モニタリングについて」という演題で発表があった。水質汚濁防止法改正後の具体的な取り組みについて説明され、微量に検出された核種のデータをどう評価するのが妥当かといった問題について質疑が行われた。データの評価を巡る議論は、他にも福島県内水面水産試験場の富谷氏による発表でも、水や魚のデータ収集だけでなく、実際に出荷される魚の安全性、今後出荷するにはどの程度の時間が必要かという見積まで見据えた研究について話があった。データの評価に関する議論が行われた一方、測定が困難な核種をいかにして迅速に同定するかという観点からの発表も多かった。高エネ研の近藤氏や金沢大の上杉氏による発表は、いずれも Sr-90 の簡易分析手法の開発であった。特に近藤氏の手法は GM 計数管という現地の作業者にとっても身近な測定器を用いて測定できるというものであり、実用性の極めて高いものと思われた。また、名古屋大の緒方氏による発表は、「誰でも使える」という部分を強調しながら、サムピークが問題となる Cs-134 の定量を簡易に行える Modified sum-peak 法の開発とその評価についてであった。これらの研究はいずれも、福島の住民や作業現場の実態をよく理解しているからこそ実現した仕事と感じられた。

研究会二日目になされた桝本氏の講演では、放射化学の黎明期から第一線でご活躍されてきた歴史を振り返りながら、若手である我々にも有益な話となる数々の研究成果についてお話頂いた。衝撃だったのは、先生が研究を始められた当時、今となってはあることが当たり前のコンピュータどころか関数電卓すら手に入れるのが困難で、核種同定の基礎となる核データも充実していなかったということである。まさに手探り状態の研究であるが、そんな中ご自身でロボットや LAN による効率的な測定システムを開発されてきたというのは、「与えられるのが当たり前」になってしまった我々の世代からすると信じがたい話である。桝本氏はご自身のことを「科学者という

柄ではない」と謙遜しておられたが、私のようなものからすると「桝本先生が科学者でないならば、科学者を自称できる人が世の中に一体何人いるだろう」と考えざるを得なかった。三日目の山本氏による講演でも、ご自身の研究成果を通じて、放射化学の黎明から今日に至る刺激的な内容の講演がなされた。私は山本氏の研究について詳しくなかったが、にもかかわらずビキニ環礁の核実験やセラフィールドの海洋汚染など、私でも知っている社会的事件に深く関わってこられたことには驚きを禁じ得なかった。質疑応答の時間には、先生の書かれた論文の数が余りにも多く、調べることが困難であることから、論文をまとめて一冊の本にしてはどうかという素晴らしい提案があった。多岐に渡る山本氏の研究成果は、私には理解の及ばないものが少なくなく、刊行が実現した暁には是非勉強させて頂きたいと強く思った。両氏共に退職されるとは思えないほどアグレッシブであり、一時間の講演を超過しても全く話し足りる様子はなく、担当する座長の方がオロオロしてしまうほどであった。

ポスター発表で特に印象的だったのは、微量放射性同位体をトレーサーとして環境中の核種の挙動や循環のメカニズムを探る、「福島以前」の環境放射能の主流に当たる発表が多かったことである。事故から立ち直り、伝統的な環境放射能を復興させようという研究者の意志の表れと感じられた。二年前、本研究会の結びに代表世話人の三浦氏が「福島事故の分析は重要であるが、そればかりでは微量放射能測定を行える技術を持った若手が減少してしまう」と仰っていたことが思い起こされた。これらの研究が三浦氏の叱咤を受けてなされたものかは定かではないが、福島事故をきっかけに環境放射能に関心を持った若手が、この分野の知見を深めていけば「災い転じて福となす」こととなるのではないだろうか。

若手研究者を奨励するために設立された研究会奨励賞では、先に紹介した冨谷敦氏（福島内水試）による「福島県の湖沼に生息する魚類の放射性セシウム濃度」のほか、「ラドン長距離輸送モデルの冬期東アジア域における濃度過小評価の要因検討」の杉浦宏樹氏 (名大工)、「原木マイタケ栽培環境の放射性 Cs 分布と栽培再開への試み」の横田かほり氏 (首都大院都市環境)、「放射性エアロゾル製造装置の開発」の田中徹氏 (京大院工) の 4 名が受賞した。田中氏のポスターは私も詳しく話を聞きたいと思っていたのだが、様子を見るたび満員御礼状態で質問する余裕が無いほどの人気ぶりであった。機会があれば、次回は是非話を聞かせて頂きたい。

本研究会 3 日目である 3 月 11 日は東日本大震災発生から丁度四年目に当たり、地震発生時刻には犠牲者の尊い命を悼み会場にて黙祷が捧げられた。福島事故後、参加人数が倍増した本研究会が、事故が収束したらまたバラバラになってしまうのではないかと危惧していたのは、私ばかりではないと思う。しかし事故から四年経った今も、衰えるどころか益々盛り上がる本研究会の勢いは、単なる事故分析にとどまらない、その先にある未来を見据えての結果であろう。桝本氏は講演で、福島のような事故が起きた時には研究者同士のネットワークが非常に重要と仰っておられた。研究者同士のネットワークを今後どう作り、維持していくかは、後を担う我々の課題である。事故から 10 年・20 年後に振り返った時、「環境放射能研究会があったおかげで、バラバラだった研究者が一堂に介し、有益なネットワークを築くことが出来た」と評される、そんな集まりであれば、参加者の一人としてこれ以上誇らしいことはない。そのためには、今後もたゆまず精進しなければならない。そう決意を新たにさせられる研究会であった。



写真 1　質疑の時間には活発な議論が行われた

会議報告

10th International Conference on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry (MARC X)

小豆川勝見（東京大学 大学院総合文化研究科）

ハワイで学会があるから来ないか、というお誘いを知人から頂いた。時期は 4 月中旬、日本では新学期が始まったばかりで、学会のために 1 週間不在にします、と簡単に学内の関係者に言い出せる雰囲気ではないが、考えてみれば、皆が学務で忙しいときこそ、南国で研究談義に花を咲かせる贅沢と背徳を大いに楽しみたいと思い直し、多くの雑用を同僚に押しつけ、参加と発表を申し込んだ。

開催地は、ハワイ諸島の中でも最大の島、Island of Hawai'i または、Big island と称されるハワイ島である。この島は、キラウェアやマウナ・ロアといった活火山で知られている。多くの日本人になじみのあるワイキキのように遠浅の白い砂浜、といった風情はここハワイ島には一切なく、溶岩流がそのまま海に流れ込んださまが島全体で感じ取れる。近年、多くの被害をもたらした御嶽山や口之永良部島の噴火でも十分に衝撃的であったのに、1 周 700 km 程度ある大きな島を今なお作り続けている活火山の躍動感に衝撃よりもむしろ感動を覚えながら会場へと向かった。

最近、放射化学の世界に飛び込んだ学部生、院生に改めて説明すると、MARC Conference は放射化学を手法に用いた研究成果を議論、発表する国際学会の 1 つであり、3 年おきに開催されている。2015 年の開催は 10 回目となるので、MARC X と表記されている。同様の学会には、例えば 4 年おきに開催される MTAA があり、直近の 2011 年は Texas A&M University（アメリカ）で MTAA-13 が開催された。ちなみに本年（2015 年）は Delft（オランダ）で MTAA-14 が開催される予定で、Chair は Hevesy Medal Award 2011 の受賞者の Dr. Peter Bode である。また来年 4 月には、MARC や MTAA とほとんど同じ領域をカバーするであろう RANC-2016 という国際学会が新たに Budapest（ハンガリー）で開催される予定もあるので、おそらくこちらにも多くの研究者が参加されるのではないか、と予想している。

さて、2015 年に開催された MARC Conference に話を戻そう。開催は 4 月 12 日から 17 日までの約 6 日間、会場はリゾートホテル（Sheraton Kona Resort）を実質貸し切りの状態で行われる。Chair は Dr. Stephan LaMont で、正確な参加者数は把握していないが、300 名程度ではなかろうかと推測される。5 つの会議室と広いポスター会場が用意され、朝は 7 時台からセッションが始まることにはなかなか慣れなかったものの、会場内では和やかながらも活発な議論が行われた。堅苦しいことが苦手な筆者にとって、この雰囲気は大変心地よく（この理由には参加者全員がバンケットを含め一貫してカジュアルな服装であることも原因なのかもしれない）、有意義な時間を過ごすことができた。

その中でも、もっとも印象に残ったセッションを紹介したい。長半減期の核種の分析では、筆頭に Dr. Zheng（放医研）の発表があった。放射化生成物としての ^{134}Cs（$T_{1/2}$ = 2.06 y）は福島第一原発事故の影響を判断するのに比較的短い期間であれば有効かもしれないが、中長期的視点では高レベル放射性廃棄物の一つとしてよく挙げられる ^{135}Cs（$T_{1/2}$ = 2.3 x 10^6 y）の動向に高い関心が寄せられるようになるだろう、とのことだ。ところが環境中の ^{135}Cs の分析は容易ではない。半減期から考えれば、放射線分析よりも質量分析が圧倒的に有利ではあるが、しかし、Isobar に $^{95}Mo^{40}Ar$ や $^{119}Sn^{16}O$ そしてなにより ^{135}Ba が存在する。これらの妨害因子をいかに排除し、ターゲットを高感度で測定するのか、同氏の極めて高い技術と成果が会場内の高い関心を誘っていた。

最後に私事ではあるが、2011 年に開催された MTAA-13 の参加中に、福島第一原発事故の一報をアメリカで聞いた。どんな災害にも耐えうる堅

固に作られていると信じていた炉が、同時に複数の炉で危機的状況にあったこと、そして、アメリカ海軍からの報告とするテレビが臨時ニュースを打ちっぱなしだったこと、まるで昨日のことにように覚えている。あれから 4 年の年月が過ぎ、MARC や MTAA のような国際学会では、実に高いレベルで微量核種の測定や議論が活発に行われている。その一方で、当事国である日本では、私が放射線の講義を開講しつづけて観察する限り、学生の関心は相当低下しているように見える。ぜひ本誌を読んでいる学部生、院生のみなさんにも、国際学会に参加することを契機に、本格的に放射線の世界に飛び込んでみるのはいかがだろうか。国際学会は思ったよりも楽しい場所であり、人生の転換点になるかもしれない、そんな可能性を含んでいる。

会議報告

15th International Workshop on Targetry and Target Chemistry（WTTC-15）に参加して

渡辺茂樹（国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
量子ビーム応用研究センター　RI 医療応用研究グループ）

15th International Workshop on Targetry and Target Chemistry（WTTC 15）は、2014 年 8 月 18 日から 21 日の 4 日間、チェコ科学アカデミー核物理研究所とドイツのヘルムホルツ協会ドイツ研究センター・ドレスデン―ロッセンドルフ研究所（HZDR）の共同主催で、チェコ共和国の首都プラハにあるホテルディプロマットで開催された。本ワークショップは、”Targetry and Target Chemistry”と会議名にあるように、加速器を用いた医療用 RI の製造において不可欠なターゲットとその周辺技術に関する国際会議で、1985 年ドイツ・ハイデルベルクのドイツがん研究センターで第 1 回が開催されて以来、隔年で欧米を中心に開催されてきた。今回が第 15 回目で、世界 26 か国から 170 名以上が参加した。参加者のほとんどは欧米の研究者であり、アジアからは日本人の筆者と韓国人の 2 名だけであった。

初日には、希望者を対象にしたプラハ近郊にあるチェコ科学アカデミー核物理研究所へのツアーが企画され、筆者も参加した（写真 1）。ツアーは、会場であるホテルのロビーに集合して、公共バスに乗って終点の駅まで向かい、そこから研究所の最寄駅まで電車で移動するというものであったが、海外の公共交通機関に興味を持つ筆者にとっては、チャーターしたバスで移動するよりも楽しいツアーであった。研究所では所有するサイクロトロンの概要および RI 製造に関する説明を受けた後、実際に設備を見学した。核物理研究所が所有するサイクロトロン U-120M は、東欧諸国がソ連の強い影響下にあった 1977 年から運用されており、設備の設計はすべてソ連の指示のもとで行われたとのことである。その後、サイクロトロンは 80 年代、90 年代と徐々にアップグレードしたが、2002 年に研究所の横を流れるヴルタヴァ川（ドイツ語名：モルダウ川）の大洪水により浸水したため、サイクロトロンに関連する設備の多くが甚大な被害を受けた。しかし、そのおかげ（？）でサイクロトロンに関連する設備を大幅に更新することができ、洪水前よりも安定した運転が可能になったとのことである。現在では、新しいサイクロトロンを導入するための工事が進められているとのことであった。

2 日目から会場での口頭発表が行われ（写真 2）、はじめにドイツ・ユーリッヒ研究センターの Syed M. Qaim 博士による招待講演があった。講演では、WTTC の歴史と医学応用が期待される RI の製造に関連する基礎的な核データ、大電流ビームを用いた大量製造、ターゲットからの化学分離に関するこれまでの研究成果について発表があった。その後、4 日目にかけて一般口頭発表（39 件）およびポスター発表（39 件）が以下のセッションに分けて行われた。

- Beam Monitoring, target models and simulations
- Liquid, solution and gas targets
- High current solid targetry
- Solid target radionuclides: production and separation
- Solid target radionuclides: layers, separation and quality control
- Solid target radionuclides: production capabilities, yields and separation chemistry
- Non-conventional solid target radionuclides – production, separation, automation and applications

本ワークショップは、前述のとおりターゲットとその周辺技術に特化した会議であるため、ターゲットの性状（固体・液体・気体）の観点からセッションが分類されている。全体として ^{11}C や ^{99m}Tc など既に医学利用されている RI 製造に関する発表に加えて、^{45}Ti や ^{186}Re, ^{197}Hg などといっ

た今後の医学利用が期待される RI 製造に関する発表が多い印象を受けた。また、各発表に対する質疑応答も活発に行われ、非常に活気があふれる雰囲気であった。なお、発表の詳細は公式ホームページ http://www.wttc15.cz で確認することができる。

4 日目の口頭発表終了後、フィンランド・トゥルク大学の O.Solin 教授によるハイライト講演、閉会の挨拶の後、ワークショップは閉会となった。次回（WTTC 16）は、WTTC-15 開催時は未定であったが、その後 2016 年 8 月 21 日から 25 日の日程でアメリカ・ニューメキシコ州のロスアラモス国立研究所にて開催されることが決定した。(詳細は http://www.wttc16.us/ を参照のこと)

ワークショップでは毎晩ディナーが企画され、チェコが一人あたりのビール消費量が世界一という背景もあって（？）地元のビール醸造所で開催された。筆者は、日本では接する機会が少ないチェコ産ビールとチェコ料理（ドイツと同じく豚料理が多かった）を大いに楽しみつつ、海外の参加者との親交を深めることができた。1000 年以上の歴史を持ち、世界一美しい都市の一つと言われるプラハには、ユネスコ世界遺産にも登録されている旧市街やプラハ城、カレル橋をはじめとする数多くの観光名所があり、筆者も開催期間の前後を利用して訪れることができた。特に、夜間に訪れたモルダウ川沿いからのカレル橋とプラハ城の景色は非常に美しく幻想的で思い出に残るものであった（写真 3）。また、プラハは緯度が高いため（北緯 50° でサハリンと同程度）、8 月でも最高気温は 20°C 前後であった。日本でも 1、2 位を争う酷暑地帯となりつつある群馬から訪れた筆者にとっては、本当に夢のような、大変に過ごしやすい気候であった。このように、収穫の多いワークショップ、美味しいビール、チェコ料理を堪能しながら、非常に快適で有意義な日々を過ごすことができた。



写真 1　チェコ科学アカデミー核物理研究所の遠景（手前を流れるのがブルダヴァ（モルダウ）川）



写真 2　口頭発表会場の様子



写真 3　夜のプラハ城とカレル橋

会議報告

5th International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements（TAN 15）

浅井雅人（日本原子力研究開発機構　先端基礎研究センター）

2015年5月25～29日に、福島県の裏磐梯ロイヤルホテルにおいて、第5回「超アクチノイド元素の化学と物理」国際会議（TAN 15）が開催されました。本会議は、超重元素（超アクチノイド元素）に関する最新の研究成果を発表・議論する国際会議として、1999年にドイツ・ゼーハイムで第1回が開催され、以来4年に一度世界各国で開催されている、この分野で最も重要な国際会議です。第2回アメリカ・ナパ（2003年）、第3回スイス・ダボス（2007年）、第4回ロシア・ソチ（2011年）と続き、今回、理研仁科加速器研究センターと原子力機構先端基礎研究センターとの共催で初めて日本で開催されました。

会議のトピックスは、(1) 超重元素の合成と核反応、(2) 超重核の核構造、(3) 超重元素の化学、(4) 超重元素の原子の性質、(5) その他の関連する話題（実験施設や装置など）で、まさに超重元素一色の国際会議です。一方で、会議の名前が示す通り、化学と物理というふたつの異なる研究分野を融合した会議でもあり、発表件数や参加者数もほぼ化学と物理で半々でした。会議では、両分野の専門家がお互いの専門をあまり意識せず議論する様子が頻繁に見られ、超重元素という研究分野の特徴がよく現われていました。口頭発表49件、ポスター発表20件、参加登録人数86名（日本人42名）で、すべての参加者が同ホテルに宿泊し、朝から晩まで活発な討論が行われました。

超重元素の合成では、ドイツ・重イオン研究所（GSI）のJadambaa博士が119, 120番元素の探索と117番元素合成の再現実験の結果を発表しました。119, 120番元素の探索は^{249}Bk, ^{249}Cf + ^{50}Ti反応を用いてそれぞれ数ヶ月間実験が行われましたが、オンライン解析ではそれらしい事象は観測されず、現在オフライン解析が進行中だそうです。117番元素については、ロシア・フレーロフ原子核反応研究所（FLNR）で過去に^{249}Bk + ^{48}Ca反応を用いて実施された実験の再現実験が行われ、解釈に一部違いはあるものの、ほぼ同じα崩壊事象が観測されました。一方、FLNRのDmitriev教授の発表では、FLNRにおける超重元素合成の新しい実験結果と今後の計画、新たに建設中のSuperheavy Element Factoryの紹介がありました。日本からは、理研／九大のMorita教授による、理研における113番元素合成実験のまとめと116番元素合成に関する新しい実験結果、今後の計画についての発表がありました。

超重核の核構造研究では、ルンド大学のRudolph教授による115番元素のα-γ（X）同時計数実験と、ユバスキラ大学のGreenlees教授による^{256}Rfのインビーム γ 線核分光実験の発表が大きなトピックスでした。前者は^{243}Am + ^{48}Ca反応を用いて115番元素^{288}115を合成し、そのα崩壊連鎖上の^{280}Rgと^{276}Mtのα崩壊に伴うγ線の観測に成功したもので、これまで106番元素あたりが限界であった核分光実験可能な領域を一気に拡張しました。加えて、この実験はFLNRで最初に報告された115番元素の合成実験を他の施設（GSI）で初めて再現した実験であり、更に特性X線を観測できれば原子番号を直接決定できるとして注目されています。同じ実験は米国ローレンス・バークレー国立研究所（LBNL）でも行われ、LBNLのGates博士がγ線の統計を更に増やした実験結果を発表しました。

超重元素の化学研究では、GSIのYakushev博士が、理研で行った106番元素Sgのカルボニル錯体の合成と低温ガスクロマトグラフィー実験の結果を発表しました。これは超重元素の有機金属錯体の合成に成功した初めての成果で、超重元素の新しい研究分野を切り開く成果として注目されました。カルボニル錯体については、他にも数多くの関連する発表があり、新たな研究分野の熱気が感じられました。これまで、超重元素の

化学研究は 112, 114 番元素まで報告例がありましたが、今回新たに 113 番元素の低温ガスクロマトグラフィー実験の結果が、FLNR の Aksenov 博士によって報告されました。一方、溶液化学研究では、大阪大学の Kasamatsu 博士が 104 番元素 Rf の水酸化物共沈実験の結果と、塩酸溶液からの Rf の Aliquat336 溶媒抽出実験の結果を発表しました。超重元素の溶液化学研究は日本の独壇場になりつつあります。

超重元素の原子の性質については、原子力機構の Sato 博士による 103 番元素 Lr のイオン化エネルギーの測定が最大のトピックでした。これまで 99 番元素 Es までしか測定されていなかったイオン化エネルギーを、新たに開発した表面電離イオン化法により一気に 103 番元素まで測定可能にし、Lr の極めて小さなイオン化エネルギーの値を実験的に明らかにしたもので、超重元素研究の新たな流れを作り出すのではないかと感じさせる成果でした。

その他の関連する話題では、GSI の Block 博士と理研の Wada 博士が、超重元素のイオントラップと原子質量測定に関する技術開発の進展を発表しました。これらの発表に加えて、初日の特別講演では、福島第一原発の廃炉に関する話題と、東北大学の Yoshihara 名誉教授による小川正孝のニッポニウム発見の業績紹介がありました。また、会議の最後には、最優秀ポスター賞と次回開催地の発表があり、ポスター賞には以下の 3 件が選ばれ、次回の開催は 2019 年ドイツに決まりました。

The Best Poster Award: Dr. Yuta Ito（RIKEN）
Development of a Gas Cell System for SHE-Mass Project at RIKEN

The 2nd Best Poster Award: Dr. Romain Léguillon（JAEA）
Shell Damping Energy Studied from the Measurement of Fission Fragment Mass Distribution

The 2nd Best Poster Award: Ms. Nadine M. Chiera（Univ. of Bern）
Towards Selenides of the SHE Copernicium and Flerovium

なお、会議期間中は天候に恵まれ、3 日目の自由時間には桧原湖クルーズや五色沼散策で裏磐梯高原の自然と新緑を大いに満喫し、4 日目のエクスカーションでは会津若松市内の鶴ヶ城と酒蔵を見学した後、料亭で行われたバンケットは大いに盛り上がりました。人里離れたホテルに缶詰の会議だったにも関わらず、絶好のロケーションと天候のおかげで、多くの参加者にとって極めて印象に残る会議となったようで、主催者の一人として嬉しい限りでした。また、国内の大学から次代を担う多くの若い学生が参加してくれたことも、日本で開催した意義があったと感じました。最後になりましたが、会議の開催に際しては、日本放射化学会から多大なご支援をいただき、改めて感謝いたします。



図 1　桧原湖クルーズ後の参加者の集合写真

会議報告

大強度電子ビームとその応用利用

（東北大学電子光理学研究センター研究会）

菊永英寿・柏木　茂（東北大学電子光理学研究センター）

2015 年 3 月 16 日から 17 日にかけて東北大学電子光理学研究センター三神峯ホールにおいて「大強度電子ビームとその応用利用」研究会が開催されました。本研究会は大強度電子加速器をテーマの中心とし、加速器技術、放射性同位元素（RI）製造､放射化学など関連する話題を集め、その可能性を探ることを目的としています。

会場となった電子光理学研究センターには大強度電子線形加速器（写真 1）があり、1967 年に完成して以来、原子核物理や物質科学分野で利用されてきました。その特長のひとつは、ビームエネルギー数十 MeV､ビームパワーにしてキロワット級の大強度電子ビームによる照射が可能なことです。この大強度電子線形加速器は、現在も光核反応による RI 製造や光量子放射化分析を中心とした共同利用研究に利用されています。

研究会には各大学や研究所、企業から約 60 人の参加があり、専門分野が異なるにもかかわらず、高い関心を持って情報共有と議論を行いました。プログラムは表 1 に示すとおりで、加速器関係で 6 件、RI 製造・放射化学関係で 10 件の講演がありました。講演で用いられた発表スライドは研究会ホームページ（http://tansei.lns.tohoku.ac.jp/ws2015/）に許可を得て掲載しておりますので興味をお持ちの方は是非ともご覧ください。

表 1．研究会プログラム

3 月 16 日（月）
13:30　はじめに（世話人挨拶）　大浦泰嗣（首都大）
13:40　電子光理学研究センターの現状について
　　濱広幸（東北大電子光）

＜超伝導加速器＞
14:00　CW 超伝導加速空洞開発について
　　阪井寛志（KEK）
14:50　小型ヘリウム冷凍機を用いた 500MHz 原子力機構超伝導加速器の歴史　沢村勝（原子力機構）
15:20 ―――― 休憩（20 分）――――

＜加速器技術＞
15:40　高周波源の最近の動向　福田茂樹（KEK）
16:10　大電流・高出力常伝導加速器
　　三浦禎雄（三菱重工）
16:40　東芝における加速器開発　中山光一（東芝）
17:10　大強度電子加速器と RI 製造
　　柏木茂（東北大電子光）
18:00　懇親会 @ 電子光理学研究センター 多目的室

3 月 17 日（火）
（招待講演）
9:30　国内における RI 流通の現状
　　二ツ川章二（日本アイソトープ協会）

＜制動放射線での RI 製造＞
10:20　制動放射線照射で製造できる RI
　　菊永英寿（東北大電子光）
10:40 ―――― 休憩（15 分）――――

＜ RI 製造・利用の現状＞
10:55　放射性医薬品に用いるラジオアイソトープの製造
　　伊藤拓（日本メジフィジックス）
11:30　理研における RI 製造応用
　　羽場宏光（理研仁科セ）
12:05　東北大 CYRIC での RI 利用
　　渡部浩司（東北大 CYRIC）
12:30 ―――― 昼食（60 分）――――

＜ RI を用いた研究紹介
　　（当センターでの共同利用を中心に）＞
13:30　光核反応による核医学イメージング用核種の製造
　　福地知則（理研 CLST）
13:55　Pu-236 の製造と燃料デブリ研究
　　桐島陽（東北大多元研）
14:20　光量子放射化分析 – 基礎と応用 –
　　大浦泰嗣（首都大）
14:45 ―――― 休憩（15 分）――――
15:00　ISOL によるオンライン RI 製造
　　須田利美（東北大電子光）
15:25　軽元素の閾エネルギー近傍での光核反応断面積の測定　松村宏（KEK）
15:50　まとめ＋総合討論

16:15　閉会

研究会の代表世話人の大浦氏（首都大）の挨拶、および濱氏（東北大電子光）の講演では、施設の紹介とともに、国内外の大強度電子線形加速器の現状に触れ、どのように研究の継続や高度化および新たな研究領域を開拓していくかという問題を提起していました。

最初のセッションでは次世代大強度電子線形加速器技術の一つである超伝導加速器の開発に関する講演がありました。超伝導加速器の特長とこれまでの開発状況について紹介されていて、様々な技術的な難しさはあるが、比較的小規模な施設でも研究開発できる可能性があるとの印象を受けました。

続くセッションでは常伝導加速器の加速器技術についての講演がありました。高周波源に関する講演の他に、企業の方の自社技術および実績について紹介があり、この分野に対する関係の深さを示していました。初日最後は柏木氏（東北大電子光）が講演を行い、当センターにおけるRI製造（特にMo-99）の可能性と必要な技術開発について提案を行いました。

初日の講演終了後は分野間の交流を促進するため懇親会がセンター内多目的室で開催され（写真２）、清水センター長（当時）の挨拶の後、センター（旧原子核理学研究施設）のOBでKEK名誉教授の福田茂樹氏の乾杯で始まりました。参加者は加速器科学、放射化学、企業などバックグラウンドや興味が異なる方々が集まっており普段なら会話も弾まないところですが、飲みながらの会話は非常に盛り上がっており、活発な意見交換がなされていました。

２日目は日本アイソトープ協会の二ッ川氏の招待講演で始まりました。この講演ではアイソトープ協会の業務紹介からはじまり、国内のRI利用の量的推移や最近の利用動向、供給要求のあるRIまで幅広い話題提供をして頂きました。続いて菊永氏（東北大電子光）より、電子光理学研究センターでのRI製造システムとその製造能力について紹介があり、現状でも研究利用レベルのRI供給は可能なことを示しました。

続くセッションでは国内でのRI製造・利用の現状についての講演が３件ありました。国内で電子ビームを用いたRI製造・供給はまだほとんど行われていませんが、サイクロトロンを用いたRI製造は盛んに行われています。日本メジフィジックスの伊藤氏の講演では企業レベルでのRI供給についての紹介がありました。十数台のサイクロトロンを用いてRIを安定供給する体制は研究利用レベルのRI製造とは大きな隔たりがあるものの、利用が期待される核種が多様化していることもあり、加速器技術やRI製造技術の研究開発が核医学の発展に寄与することへの期待が述べられました。羽場氏の講演では理化学研究所でのRI製造・供給について紹介されました。核反応過程から精製・品質評価までの総合的なRI製造技術の高度化研究を行っており、他機関との連携など活動力の高さを示していました。このセッション最後の講演では渡部氏が東北大学でのRI利用の例としてCYRICでのPET研究について将来計画も含め紹介されました。

最後のセッションは電子光理学研究センターで行われてきた共同利用研究を中心とした発表がありました。福地氏は電子線形加速器をもちいた光核反応で製造できそうな核種をタイプ別に分類し、新しいイメージング装置に利用できないか検討されていました。桐島氏は光核反応によりアクチニドトレーサーを製造し、燃料デブリ研究に利用していると講演されていました。大浦氏は光核反応を利用した元素分析法として光量子放射化分析法を基礎的な原理から宇宙地球化学的試料への応用までわかりやすく紹介されていました。学生や他分野の方にも分かりやすかったと好評でした。須田氏の講演では理化学研究所で行っている電子線を用いた短寿命不安定核生成とその内部構造に関する研究について紹介されていました。松村氏では医療用電子線形加速器などで問題となる軽元素の閾エネルギー近傍での光核反応断面積の測定について発表されていました。

まとめと総合討論では、利用者および加速器側がお互いに質問・主張する場面や、センターの共同利用に関する疑問・要望に関しての議論などがあり、さまざまな情報交換がされた後、閉会となりました。初めて電子光理学研究センターに来られた方々のために、加速器とRI化学実験室の見学会も開催されました。

本研究会は大強度電子加速器開発とそれを用いた研究および RI 製造など、様々な分野の方々にお集まりいただき、大強度ビームの可能性、課題、活用法などについての情報を共有しながら議論するきっかけとなるように企画されました。今回はその第 1 回目であり、仙台で開催された非常に大きな国際会議と日程が重なり、宿泊等に関してはご不便をおかけした中、多数の方に出席して頂きました。今後も継続して議論していけるように定期的に研究会を開催していきたいと思います。皆様からのご意見やご協力をよろしくお願いいたします。



写真 1.　大強度電子線形加速器



写真 2.　懇親会の様子

会議報告

第 4 回京都大学原子炉実験所原子力安全基盤科学研究シンポジウム

京都大学原子炉実験所

第 4 回 京都大学原子炉実験所原子力安全基盤科学研究シンポジウム「Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future（福島の復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題)」が、平成 27 年 5 月 30 日(土)～ 31 日(日) に、福島市郊外の飯坂温泉「パルセいいざか」において開催された。原発事故後、様々な形で環境回復が進められているが、福島の復興に向けて、解決すべき課題がまだまだ残されており、この復興に関連する分野は多岐にわたる。放射線・放射能に関連する分野の専門家が果たすべき役割は極めて重要で、専門家、研究者と一般の方が、講演やパネルディスカッション、ポスターセッション等通じ、一緒に福島の復興に向けて今後取り組むべき課題について議論すべく開催された。

一日目は、テーマ毎に 4 つのセッションとし、1) 除染･廃棄物、2) 環境放射線･外部被ばく、3) 海産物・農作物・食品・内部被ばく、4) サイト内の問題の各セッションで 3 件、合計 12 件の講演があった。二日目は、前日の各セッションの取りまとめの報告の後、2 件の招待講演が行われた: サクロ・クオーレ・カトリック大学フランカ カリーニ教授より「果物の中の放射性核種」、ウクライナ国立戦略研究所 環境技術安全部 主席専門官より「チェルノブイリの失望から回復まで」である。さらに、2 件のパネルディスカッション「福島における食・農のこれから」および「みんなが集まる福島に向けて」が行われた。また、ポスターセッションは、昼食時間にサイエンスカフェ形式で行い、専門家と一般の方が一緒にコーヒーなどを飲みながら十分に時間をかけて話し合う場とした。いずれの講演でも活発に質疑応答がなされ、それぞれのテーマへの関心の深さがうかがえた。

また、ポスターセッションは合計 80 件の発表があり、この中には福島の高校生や高専生による研究発表や、福島県教育委員会の取り組みに関する発表もあった。ポスターセッション会場ではそれぞれのポスターを前に、活気ある議論がなされた。当日は 5 月とは思えないほどの暑い日であったにもかかわらず、参加者数は一日目、二日目ともに 330 名を上回り、延べ人数は約 668 名となり、盛会のうちに幕を閉じた。

会議報告

9th Symposium on Targeted Alpha Therapy（9th TAT）

鷲山幸信（金沢大学　医薬保健研究域　保健学系）

2015 年 5 月 19 ～ 22 日の 4 日間、ポーランドのワルシャワにて 9th Symposium on Targeted Alpha Therapy（9th TAT）が開催された。TAT とはα線を利用したアイソトープ治療（α線内用療法）のことを指し、α放射体の製造、化学分離、標識、細胞・動物実験、ヒト臨床試験、線量評価などアルファ放射体とアイソトープ治療に関する一切をトピックスとして扱う（∴それ以外は一切扱わない）一部の人間しか喜ばない大変マニアックなシンポジウムである。このシンポジウムは 1997 年にドイツのカールスルーエで開催されたのを皮切りに、最近は 2 年おきに欧州とアメリカが交互に開催している（前回は 2013 年アメリカのオークリッジ）。今回の参加登録者は 130 名で、うち口頭発表は 33 名、ポスター発表が 18 名であった。日本からの参加者は放射線医学総合研究所（放医研）の李恵子氏と筆者の 2 名であった。会場の PAŁAC PRYMASOWSKI はヨーロッパの建物らしく、学会場というよりは、こぢんまりとした迎賓館のようで、発表だけでなくコーヒーブレイクや昼食、そしてシンポジウムの前後に交わす会話などのひとつひとつをとても大事にする雰囲気が施設から十分に伝わってきた。これまでの TAT シンポジウムと同様に、初日はウェルカムパーティのみで、翌日から 2 日間 1 つの会場（図 1）で口頭発表が行われた。口頭発表は、ヒト臨床試験（6 題）、動物実験（7 題）、化学分離など（3 題）、内部線量測定と関連測定装置など（4 題）、α放射体の薬物標識（5 題）、α放射体の製造（8 題）など多岐にわたった。

ヒト臨床試験のセッションでは、本会の主催者の一人でありポーランド開催のホスト役を務めたワルシャワ医科大学の Krolicki 教授らが ^{213}Bi（$T_{1/2}$ = 45.59 min）を標識したポリペプチド（substance P）を用いた多形膠芽腫（glioblastoma multiforme, GBM）の治療に関する報告を行った。多形膠芽腫とは、悪性度が高い脳腫瘍の一種である。この腫瘍の一般的な治療方法は外科的手術と放射線治療または化学療法などの併用であるが、目に見えない残存腫瘍によりしばしば再発する。そこで彼らは、再発患者を対象として、がんに特異的に集積する substance-P に殺傷能力の高いα線を放出する ^{213}Bi を標識し、カテーテルを使って脳内のがん周辺に一度に 2 GBq の量を投与する治療を複数回試みた。その結果、従来の治療法よりも高い延命効果が認められた。さらに最大 11 GBq の放射能を投与しても患者に対する目立った毒性は認められなかった。ヒト臨床試験はまだまだ黎明期であり、報告された試験のその多くは治療評価よりも毒性評価を主目的としている。その状況にあっても、少しずつ着実に、α線が治療効果をもたらすことが示された貴重なセッションであった。

動物実験のセッションでは、多くの発表で治療効果が示されていた。放医研の李らは、^{211}At（$T_{1/2}$ = 7.214 h）を抗体（ハーセプチン®）に標識した化合物を用いて、ヒトの HER2 陽性がん細胞を移植したマウスの治療を試みた。その結果、α線による腫瘍の増殖抑制効果が認められ、^{211}At 標識抗体の利用ががん治療に有効であることが示された。国内では近年 ^{211}At の製造や化学、動物実験に取り組む研究グループが増えてきている。今後 TAT においてより多くの日本発の研究報告が増えることが期待される。

さて、このシンポジウムで発表される内容はいずれもα放射体に関するものである。放射化学に関わる身としてはどのようなα放射体に関する発表が多いのかが気になるところ。そこで配られた要旨集をもとに核種ごとに集計をしてみたので表 1 をご覧いただきたい。

合計数が 57 件であるのは、一つの発表の中で複数の核種を対象にしているためである。集計

表 1．シンポジウムで発表された研究項目と対象核種の分類 ［のべ件数］

分類 / 核種	^{225}Ac	^{213}Bi	^{211}At	^{223}Ra	^{212}Pb	^{230}U	その他	計
臨床試験	3	4						7
動物と細胞	2	10	1					13
線量と機器			2	1			2	5
化学と標識	5	1	5	5				16
RI 製造	7		3	1	1	2		14
その他							2	2
計	17	15	11	7	1	2	4	57

の結果、^{225}Ac（$T_{1/2}$ = 9.9203 d）と ^{213}Bi に関する研究報告が他の核種の報告よりも抜きんでていた。^{211}At に関する演題数も引けをとらないが、臨床や動物実験に関する報告が少ないことと、演題の多くがポスター発表（∴あまり注目されない）に回されていることから、今回のシンポジウムは ^{225}Ac と ^{213}Bi に特化したシンポジウムと感じた筆者の印象は正しかった。しかし、これはよく考えれば十分想像がついたことである。まず、今回の主催は欧州サイドであり、Organizer の Morgenstern 博士が所属する Insutitute for Transuranium Elements（ITU）では ^{229}Th（$T_{1/2}$ = 7880 y）から ^{225}Ac を分離して ^{225}Ac/^{213}Bi ジェネレータあるいは ^{225}Ac 溶液として各共同研究機関に配布している。シンポジウムでは当然共同研究機関からの発表が多くなり、ITU の名前は実に 51 演題中 19 演題（37.2%）を占めた。ITU の TAT に対する貢献が改めて浮き彫りになった。しかし、このような中でも ^{211}At 推進派も頑張って自分たちの研究でその存在を示した。ヨーテボリ大学 TAT グループの Aneheim 博士らは ^{211}At の分離及び標識の自動化装置を紹介した。これにより ^{211}At の分離と標識が短時間で誰でも効率的に行えるようになるとのことである。彼女は金沢で開催された APSORC 13 でも同じ装置の発表をしていたが、2 年間で驚くべき進歩を示した（その後、この結果は論文として Scientific Reports 誌に掲載された）。筆者は 2012 年秋にヨーテボリ大学の TAT グループに 5 か月間研究留学をした。時同じくしてポスドクとしてこの装置の開発に加わったのが彼女であり、3 年の時を経て研究結果が花開いたことを当時の仲間として大変嬉しく思った。さて ^{223}Ra は既に欧米において前立腺癌の骨転移患者に投与可能な市販薬（Xofigo®）として販売されている。ここ数年、欧米の核医学会年次総会では Xofigo® の臨床報告と大々的な広告を目にするが、TAT シンポジウムの中では既に終わった話であり、むしろ如何に次の研究にこの核種を繋げていくかが話題になっていたことが、この会の性格をよく表していて面白かった。

アイソトープ製造のセッションは、^{225}Ac をどのように製造・分離するかを問うセッションであった。現在の ^{225}Ac 供給は親核種 ^{229}Th からのミルキングによってのみ行われている。大量の ^{229}Th ストックを貯蔵するオークリッジ国立研究所（ORNL, アメリカ）と ITU（ドイツ）、Institute for Physics and Power Engineering（IPPE, ロシア）が ^{225}Ac の世界三大産地であるが、今後の需要に見合う量を賄えないことが既に確定済みである。そこで代替製造法として着目されているのが ^{232}Th をターゲットとして大型加速器で核破砕反応を使って製造する、いわゆる、Ac 以外の核種も当然ありの一括製造法である。まともな日本人ならまず考えないこの選択肢、具体的には米国内のロスアラモス国立研究所（LANL）とブルックヘブン国立研究所（BNL）の大型加速器施設で製造した ^{225}Ac などを ORNL に移送し、そこで精製するという国家支援型の大規模プロジェクトである。これは Tri-Lab プロジェクトと称し進められていることを、LANL の John 博士らが報告した。大型加速器施設さえあれば可能なこの方法をロシアのグループ（ロシア科学アカデミー Institute for Nuclear Research）も気に入ったようで、Lapshina 博士らは同様の核破砕反応を用いた製造と分離に関する研究を報告した。RI 製造では、半減期の長い核種と短い核種を作る際の研

究体制をどのように構築すべきかが重要である。今回、それぞれの発表の中に彼らの思想が垣間見え、日本における今後の研究の在り方を考える良い指針となった。

オプションの 4 日目はエクスカーションとして、ポーランドの RI 製造企業 POLATOM の施設見学およびポーランドが生んだ偉大な作曲家 Fryderyk Chopin の生誕地ジェラゾヴァ・ヴォラ（Żelazowa Wola）の訪問に一日充てられた。POLATOM はワルシャワから車で 40 分程度東南に下ったオトフォックに在る。施設では RI 製造用の原子炉 MARIA と各部署の見学をした。POLATOM は、日本で悪性褐色細胞腫の治療を行う際に使用する放射性医薬品 ^{131}I-MIBG の製造販売を一手に引き受けている会社である。広い施設と緩やかな時間の流れる製造部署は、余裕を持った発注をしないとなかなか日本まで届かないであろうことを暗に教えてくれた。次の訪問地のジェラゾヴァ・ヴォラはワルシャワの西に位置し、POLATOM から車で約 2 時間と移動に難儀したが、かえってバス内で参加者と会話が弾み思わぬ収穫であった。Chopinn の生家（図 2）は当時のままに保存されている。残念ながら中を見学することはできないが、周辺の公園はきれいに整えられ、6 月の新緑の中散策するのはとても心地良かった。

欧州の中でも物価が安く、夜でも比較的安全なポーランド。ラジウムとポロニウムの発見の母、Marie Skłodowska-Curie の生家だけでなく、いろいろ見どころも多いこの国は、学会ではなくとも再び訪れたいと思わせる国であった。

最後に、シンポジウムに参加するにあたって感じたことをひとつ。

しばしば学会がホテルを準備することがある。あまりお財布に余裕がないとしても、130 名程度の学会に参加するのならば、ぜひ学会が準備したホテル（一番安いクラスで OK）を選択することをお奨めする。なぜなら、海外の参加者の多くも考えることは同じで、自分で一生懸命探すほどではないがなるべく安いホテルに泊まりたいという結論に至る。その結果、朝食や夕食時に参加者と出会うチャンスが自然と増える。もちろん、いきなり同じテーブルに飛び込むのは失礼だし却って嫌われかねない。しかし、誰か一人とだけでも知り合いにさえなってしまえば、あとは芋蔓。知りあいの知りあいは皆知りあいということで、小さいコミュニティでは研究者同士すぐに打ち解けるもの。コミュニケーションを図る上でも、この機会を逃すことなく、ほんの少しの勇気とある程度の会話力をもって、いろんな場所に臨んでいく。学際的な分野に携わる人にはとても大事なことだし、帰国してからもメールや Research Gate、Linked In、Facebook などで繋がっていられることはとても楽しい。学生やポスドクの方は、新しい関係を築いて自分を世界に売り込むためにも、ぜひ学会斡旋ホテルの予約にチャレンジしていただきたい。Marie Skłodowska-Curie もこう言っています。“Nothing in life is to be feared, it is only to be understood.”



図 1　TAT の会場風景



図 2　Fryderyk Chopin の生家前にて TAT の参加者らと

会議報告

第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会

矢納慎也（理化学研究所仁科加速器研究センター）

はじめに

2015 年 7 月 8−10 日に第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会が開催された。この会は日本アイソトープ協会が主催となり、共催 38 団体、協賛 25 団体の協力により運営されている会で、RI・放射線に関する幅広い分野の研究者が一堂に会する場となっている。日本放射化学会も共催団体として運営に参加しており、関係の深い研究発表会であると言えるだろう。

アイソトープ・放射線研究発表会は研究発表だけでなく、特別講演やパネル討論などが充実しており、大変興味深い会であったのでご紹介したい。

1．研究発表

第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会の口頭・ポスター発表の発表区分別の件数一覧を表 1 に示す。様々な分野の発表が行われていることが伺える。筆者は、製造・分離・標識の発表区分で「^{70}Zn(d,αn)^{67}Cu 反応による ^{67}Cu の試験的製造」という表題で口頭発表を行った。製造・分離・標識の発表区分では、その他、^{67}Cu や ^{99}Mo/^{99m}Tc の製造に関する報告があり、いずれも RI の医療応用に主眼を置いた発表であった。また放射線教育の発表区分では、実習用の線源および検出器の作成方法と、それら線源・検出器を用いた実習の結果報告が行われていた。今の学生がどういった教育を受け、RI・放射線にどういったイメージを持っているかについて知ることが出来る良い機会となり、大変有意義であった。このように RI・放射線に関する多彩な研究者の発表を聞くことが出来る研究発表の場であった。

2．特別講演

特別講演は全 3 講演あり、表題はそれぞれ「原子力プラントにおける配管検査用 CT の開発（東北大学大学院工学研究科 石井慶造先生）」、「α 線内用療法の現状と展望（近畿大学高度先端総合医療センター 細野眞先生）」、「X 線解析で物質の起源を探る～土砂データベースから福島原発由来放射性大気粉塵まで～（東京理科大学理学部 中井泉先生）」であった。細野先生は日本における放射線治療の現状に始まり、近年関心が高まっている α 線内用療法についての講演をされた。現在日本では ^{131}I, ^{89}Sr, ^{90}Y の 3 核種が RI 内用療法で用いられるが、これらは全て β 線放出核種である。近年国内にて治験が進められている核種として ^{223}Ra があるが、これは α 線放出核種であり承認されれば国内の初の α 線内用療法薬となる。この講演では、^{223}Ra の他にも現在研究が進められている有望な α 線放出核種が紹介された。α 線は β 線に比べ生物学的効果が高い、細胞周期依存性が低い、酸素効果が低い、組織中の飛程が短いなどの特性が内用療法に有利に働くことが期待されており、今後の RI 内用療法の動向は大いに注目されるだろう。

3．パネル討論・特別セッション・公開講座

特定のテーマに沿ったトピックスや話題提供を行うことで積極的な議論の場を提供するパネル討論があった。今年のテーマは全 3 テーマあり、「ナノ粒子のライフサイエンスおよび医学分野への利用に向けて」、「高速（MeV 級）クラスターイオンに関わる研究開発の展望」、「北から南から福島を踏まえた放射線教育の全国展開 ―新たな中学校放射線授業への展望―」であった。それぞれのテーマのもと研究者の方々が互いに白熱した議論を繰り広げていた。

また特別セッションとして RI の安全とセキュリティに関する情報共有の場が設けられた。これは IAEA が放射性物質のテロ行為等の悪意ある目的で使用されることを防ぐため、各国にセキュリティ対策の強化を勧告したことに端を発した、RI

セキュリティ対策の強化に関するセッションである。規制当局と特定放射性同位元素使用事業所等の方々とで今後の RI セキュリティの方向性についての情報共有が行われた。今後求められるセキュリティ対策は「監視等により異常を検知すること」、「RI の奪取を遅延させること」、「対応として警察組織、関連省庁等への通報を行うこと」を柱とした体制で整備されることが見込まれており、今後施設をどのように対応させて行くかが焦点となるだろう。

さらに一般市民を対象とした参加費無料の公開講座も開講された。今回は「食品照射を考える：消費者は、何が心配なのですか？」という表題で、食品照射についてわかりやすい講演が行われ、一般消費者と専門家の方々が意見交換を行っていた。

表 1.　第 52 回アイソトープ・放射線研究発表口頭・ポスター発表件数

発表区分（セッション名）	件数
東電福島第一原発事故関連＿環境・生態	13
東電福島第一原発事故関連＿動植物	12
東電福島第一原発事故関連＿その他	6
放射線効果	18
製造・分離・標識	7
陽電子消滅	24
放射線教育	14
線源及び放射線の検出器・検出法	20
放射能分析	5
分子・RI イメージング	13
トレーサ	3
環境	9
メスバウア効果	7
合計	151

さいごに

アイソトープ・放射線研究発表会では幅広い分野の研究発表・講演等があり、とても充実した時間を過ごすことが出来る場であると言える。しかし残念ながら日本放射化学会の会員諸氏らの参加者が余り多くない様に見られた。この機会に是非来年足を運んで頂ければと願う。



口頭発表会場の様子。
会期中は 3 会場に分かれて口頭発表が行われた。

情 報 プ ラ ザ（国際国内会議）

国内会議

2015 日本放射化学会年会・第 59 回放射化学討論会

日時：2015 年 9 月 25 日（金）～ 27 日（日）
場所：東北大学川内北キャンパス

第 10 回高崎量子応用研究シンポジウム

日時：2015 年 10 月 8 日（木）～ 9 日（金）
場所：日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門高崎量子応用研究所

第 2 回核医学治療国際シンポジウム

日時：2015 年 12 月 19 日（金）
場所：石川県金沢市 金沢ニューグランドホテル

国際会議

Migration 2015–14th International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere

日時：12–18 Sep, 2015
場所：Santa Fe, New Mexico, USA

The 61st annual Radiobioassay and Radiochemistry Measurements Conference (RRMC)

日時：25–30 Oct, 2015
場所：Iowa City, Iowa, USA

Pacifichem 2015–The 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies

日時：15–20 Dec, 2015
場所：Honolulu, Hawaii, USA

放射化学関連シンポジウム（編集委員会で選考）:

- Experimental and Theoretical Actinide Chemistry: From Fundamental Systems to Practical Applications (#42, Inorganic)
  (Organizers: John Gibson,Georg Schreckenbach, Tsuyoshi Yaita, Jun Li, Ping Yang)
- The Expanding Periodic Table: New Discoveries and Chemistry of the Heaviest Elements (#234, Inorganic)
  (Organizers: Heino Nitsche, Yuichiro Nagame, Zhi Qin, Peter Schwerdtfeger, Christoph Duellmann, Andreas Tuerler)
- Nuclear Probes in Nanoscale Characterization (#254, Inorganic)
  (Organizers: Masashi Takahashi, Anita Hill, Virender Sharma, Junhu Wang, Kiyoshi Nomura, Yasuhiro Yamada)
- Isotope Production-Providing Important Materials for Research and Applications (#363, Inorganic)
  (Organizers: Dennis Phillips, Katherine Gagnon, Yuichi Hatsukawa)
- Computational Modeling of d- and f-Block Chemistry: Challenges and Opportunities (#130, Physical, Theoretical & Computational)
  (Organizers: Angela Wilson, Peter Schwerdtfeger, Kwang S. Kim, Zhenyang Lin, Tom Cundari)
- Science with Beams of Radioactive Isotopes (#340, Physical, Theoretical & Computational)
  (Organizers: Sherry Yennello, Krzysztof Starosta, Yuliang Zhao, Hiromitsu Haba)
- Fukushima and Radiological Contaminated Environments World-wide: The Important Role of Environmental Chemistry and Radiochemistry in Remediation and Restoration (#374, Agrochemistry, Environmental, and Geochemistry)

（Organizers: Takayuki Sasaki, Heino Nitsche, Chunli Liu, Zenko Yoshida, Stepan Kalmykov, Linfeng Rao）

- Radioactive Contaminants and Waste Management in the Environment（#390, Agrochemistry, Environmental, and Geochemistry）
  （Organizers: Wooyong Um, Min-Hoon Baik, Ohnuki Toshihiko, Arokiasamy Francis, Daniel Kaplan）
- Application of Luminescent Materials for Radiation Detection（#442, Materials & Nanoscience）
  （Organizers: Keisuke Asai, Jian Zhang, Takayuki Yanagida, Safa Kasap）
- Chemistry for Development of Theranostic Radiopharmaceuticals（#11, Bench to Bedside: Chemistry of Health Care）
  （Organizers: D Scott Wilbur, Michael Adam, Paul Donnelly, Yasushi Arano, Jae Min Jeong, Xianzhong Zhang）
- Chemistry of Molecular Imaging（#215, Bench to Bedside: Chemistry of Health Care）
  （Organizers: Henry VanBrocklin, Gilles Tamagnan, Yasuhisa Fujibayashi, Len Luyt, Andrew Katsifis, Yearn Choe）
- Non-canonical Approaches to ^{18}F-labeling: New Frontiers in Stable Non-carbon-fluorine Bonds（#337, Bench to Bedside: Chemistry of Health Care）
  （Organizers: David Perrin, Francois Gabbai, Fuyou Li）
- Recent Advances in Microfluidics for Radiochemical Synthesis（#416, Bench to Bedside: Chemistry of Health Care）
  （Organizers: Giancarlo Pascali, Yuji Kuge, Robert Michael van Dam）

1st International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry（RANC-2016）

日時：10–16 Apr, 2016
場所：Budapest, Hungary

IRPA 14–International Radiation Protection Association

日時：9–13 May, 2016
場所：Cape Town, South Africa

16th International Workshop on Targetry and Target Chemistry（WTTC-16）

日時：29 Aug–1 Sep, 2016
場所：Santa Fe, New Mexico, USA

NRC-9–9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry

日時：29 Aug–2 Sep, 2016
場所：Helsinki, Finland

ND2016–International Conference on Nuclear Data for Science and Technology

日時：11–16 Sep, 2016
場所：Bruges, Belgium

13th International Conference on Radiation Shielding（ICRS–13）and 19th Topical Meeting of the Radiation Protection & Shielding Division（RPSD–2016）

日時：3–6 Oct, 2016
場所：Paris, France

学位論文要録

Solid-Liquid Extraction of Element 104, Rutherfordium, in Aliquat 336/HCl System: Observation of Equilibration of Chemical Reaction for Transactinide Elements
（104 番元素ラザホージウムの Aliquat 336/HCl 系での固液抽出：超アクチノイド元素の化学平衡到達の観測）

横北卓也（日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社）

学位授与：大阪大学大学院理学研究科化学専攻
主　　査：篠原　厚
平成 27 年 3 月 25 日



原子番号 104 番以降の元素は超アクチノイド元素または超重元素と呼ばれている。超重元素のように重い原子では軌道殻電子に対する相対論効果の影響を強く受け、化学的性質が周期表の周期律から逸脱する可能性があり、その化学的性質は非常に興味が持たれる。超重元素は天然には存在せず、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、その生成率は極めて少なく（≤ 数原子 /min）、半減期も非常に短い（≤ 1 min）。このため、一度に複数原子を集めることができず 1 回の化学実験で取り扱える原子数はたった 1 原子（単一原子化学）となり、実験手法は大きく制限される。通常、加速器によって製造した超重元素を He/KCl ガスジェット搬送システムを用いて迅速に化学実験室に搬送し、クロマトグラフィーのような 2 相間分配実験を行い、α 線測定試料を作成し測定という一連の操作の繰り返しによる化学実験（オンライン実験）が行われている。このようにして得られた超重元素の結果と同族元素（詳細な化学的性質を調べることが可能）に対して同じ実験を行い得られた結果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てきた。

超重元素の溶液化学の研究は主に $_{104}$Rf について行われてきた。錯形成など詳細な化学的性質を調べるためには化学平衡到達下の分配挙動を観察する必要があるが、短寿命の超重元素に対しては化学平衡到達の確認は非常に難しく、未だ観測例はない。Rf のフッ化物錯体のイオン交換の研究においてはマイクロカラムクロマトグラフィー装置と α 線検出装置を組み合わせた装置（AIDA）によって同族元素の Zr と Hf の加速器オンライン実験にて化学平衡到達下の結果が得られた条件下で Rf の分配係数が取得されている。この研究によって Rf のフッ化物錯形成は Zr と Hf よりは明らかに弱く、擬似同族元素の Th に比べると強いと報告されている。しかし、フッ化物錯体以外の研究では同族元素でさえ加速器オンライン実験では化学平衡到達が達成されていない。特に、H_2SO_4/HNO_3 系の陽イオン交換の研究では Hf では化学平衡到達下の結果が取得できているのに対し、Zr では化学平衡到達下の結果が得られておらず同族元素間で化学平衡到達に要する時間が異なる可能性が示唆されている。このことは超重元素に対して直接化学平衡到達を調べる必要性を示している。これまでの超重元素実験において化学平衡到達下の結果が得られてい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原因として考えられ、より長い接触時間を持つ新しい実験装置が必要である。

本研究では Rf の抽出挙動の時間依存性を調べ化学平衡の到達を確認し、分配係数を取得することでその錯形成を調べることを目的にした。Rf の半減期（68 s）を考慮し、化学反応が速いと言われている陰イオンのイオン対抽出剤である Aliquat 336 を抽出剤とし、ハロゲン化物錯体で系統的な議論を行うために塩化物錯体について研究することにした。まず、Rf 実験の実験条件の決定と比較データを取得するために Zr、Hf、Th の Aliquat 336/HCl 系の固液抽出を行った。次に時間依存性を取得できる実験装置を開発し、Zr と Hf を用いてテスト実験を行った後、加速器で製造した短寿命の Zr と Hf を用いて加速器オンライン実験を行い、Rf のモデル実験を行った。そして決定した実験条件下で Rf の加速器オンライン実験を行い、その抽出挙動を調べた。

28 wt% Aliquat 336 樹脂による 6–11 M HCl からの ^{88}Zr、^{175}Hf、^{234}Th の固液抽出実験を行った。抽出挙動の振とう時間依存性を調べた結果、これらの抽出反応は振とう時間 10 s で化学平衡に到達することがわかった。また、分配係数の HCl 濃度依存性を調べた結果、Zr と Hf は Cl^- と陰イオン錯体を形成し、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。Rf の非常に少ないカウントを考慮し、Rf の実験条件を≥ 8 M HCl と決定した。

加速器オンライン実験用のバッチ型固液抽出装置 (AMBER) を開発した。この装置はバッチ的手法を適用することにより時間依存性を変えることで時間依存性が取得でき、テフロン性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 2 相分離を行うことができる。また、自動制御により同条件下で繰り返し実験が可能である。^{88}Zr と ^{175}Hf を用いて 28 wt% Aliquat 336 樹脂による 10 M HCl からの固液抽出を AMBER を用いてテスト実験を行った。その結果、樹脂に着いた Zr と Hf は 4 M HCl で 3 回逆抽出することにより完全に剥ぎ取ることができることがわかった。また、同じ樹脂を連続して 100 回使用しても分配係数が低下せず、同じ樹脂を連続して 100 回使用できることがわかった。Rf のモデル実験として AMBER を用いて大阪大学核物理研究センターにて ^{89m,g}Zr と ^{173}Hf を製造し、加速器オンライン実験を行った。オンライン実験においてもこれらの抽出反応は振とう時間 10 s で化学平衡に到達していることがわかり、分配係数の HCl 濃度依存性を調べた結果は化学平衡到達下の分配係数とよく一致していた。

決定した実験条件で理化学研究所の大強度加速器を用いて ^{261}Rf を製造し、AMBER と自動 α 線計測装置を用いて Aliquat 336/HCl 系の固液抽出実験を 379 回行った。7.9 M HCl で振とう時間を 10、30、60 s と変化させ、超重元素実験で初めて化学反応の時間依存性を調べ、抽出反応の化学平衡到達を観測した。化学平衡到達下で得られた Rf の K_d は明らかに同族元素の Zr と Hf の K_d に比べて大きいことが初めてわかった。この結果により Rf の塩化物錯形成が同族元素と大きく異なっている可能性を見出すことができた。

今後、本手法を適用することにより多くの化学反応系で化学平衡到達下の Rf の分配挙動を調べることが可能であると期待される。さらに、加速器技術がより発展すれば $_{105}$Db などさらに重い超重元素でも化学平衡到達下の結果を取得することできることも期待される。

代表的な発表論文

(1) T. Yokokita, Y. Kasamatsu, T. Yoshimura, N. Takahashi, and A. Shinohara, Solvent Extr. Ion Exch. 33, 472 (2015).

(2) T. Yokokita, K. Ooe, Y. Kasamatsu, T. Yoshimura, N. Takahashi, N. Shiohara, K. Takamiya, Y. Komori, Y. Kikutani, A. Kino, and A. Shinohara, J. Radioanal. Nucl. Chem. 303, 1091 (2015).

(3) T. Yokokita, Y. Kasamatsu, K. Ooe, T. Yoshimura, N. Takahashi, Y. Komori, and A. Shinohara, J. Radioanal. Nucl. Chem. 301, 751 (2014).

(4) 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).

Thermal Behavior of Al and In Impurities Doped in ZnO Studied by Means of Perturbed Angular Correlation Spectroscopy
（摂動角相関法による ZnO に導入された不純物 Al と In の熱的挙動の研究）



小松田沙也加（一関工業高等専門学校　一般教科
自然科学系）

学位授与：博士（理学）　金沢大学大学院　自然
科学研究科
主　　査：佐藤　涉
平成 27 年 3 月 23 日

酸化亜鉛（ZnO）は、地殻埋蔵量が多く低コストで安定供給が可能な物質であり、その広いバンドギャップ（3.37 eV）から透明電極材料としての利用も可能であるため、エレクトロニクスの分野での応用が注目されている。ZnO は、酸素空孔やドナーとして導入される 13 族元素の In,Ga,Al の存在によってその半導体物性が大きく変化すると言われており、ZnO 中の希薄不純物が果たす機能や酸素空孔形成過程について興味が持たれている。現在 ZnO について、その電気特性や光学特性といったバルクの物性研究が盛んである。しかし、半導体物性を左右する不純物ドナーの存在状態や酸素空孔形成過程を直接観測する手段は少なく、ZnO の局所構造の変化と半導体物性の関係ついての議論は十分とは言えない。そこでバルクの物性に相補的な ZnO の局所構造に関する情報が必要となる。

物質の微視的な構造や性質を調べる手段の一つに摂動角相関（TDPAC）法がある。本法は、試料にプローブ核を導入することで、そのプローブ核位置での電場勾配や磁場、さらにはホスト物質の局所構造に関する情報をスペクトルから得ることができる核分光法である。また本手法で用いられるプローブの中には ^{111}In（→ ^{111}Cd）があり、これをプローブとして用いることにより 13 族元素位置での局所構造観察が可能となる。本研究では 13 族元素の中で最も安価で安定供給が可能な Al を不純物として導入した ZnO（以下、Al-doped Zn）に着目し、13 族元素と同様の挙動を示して Al 位置での局所構造観察ができると期待される ^{111}In（→ ^{111}Cd）をプローブとして TDPAC 測定を行い、酸化亜鉛中にドープされた不純物 Al と In が形成する微視的な構造を観測した。

本学位論文では得られた研究成果について二部構成でまとめている。第一部では ZnO の半導体物性を決める要因の一つである希薄不純物 Al や ^{111}In について、その存在状態や局所的な熱挙動を様々な条件下で観察した結果について議論している。第二部では第一部で観測した不純物の熱的挙動をさらに詳細に調べた結果から ZnO 中の酸素空孔形成過程について得られた新たな知見について記している。

第一部　ZnO 中の不純物 Al と In の熱的挙動

半導体は実用の際、場合によって高温状態、もしくは様々な雰囲気条件下で用いられる可能性がある。そのため、環境の変化に伴う ZnO 中の不純物の局所構造変化が半導体物性へ影響を及ぼす可能性が考えられる。従って ZnO 中の不純物 Al の熱的挙動や安定性を異なる条件下で調べた情報が非常に重要となる。そこで本研究では、異なる Al 濃度、熱処理温度、熱処理雰囲気で合成した Al-doped ZnO 中の不純物 Al の局所構造を調べた。ここでは特に、Al の濃度依存性、熱処理雰囲気依存性の結果について記す。はじめに Al 濃度依存性について、異なる濃度の Al（0.01 ～ 10^5 ppm）を空気中での熱処理により導入した ZnO の TDPAC スペクトルは、濃度に依存せず同様のパターンを示した。このことから、不純物 Al は濃度によらず同様の局所構造を形成することが分かった。また、TDPAC 測定と併せて行われた X 線構造回折（XRD）測定結果から、不

純物 Al は粒界で微小な $ZnAl_2O_4$ の凝集相を形成して存在することが分かった。よって ZnO 中の不純物 Al は、希薄な 0.01 ppm の濃度であっても非常に速い熱拡散過程により熱処理中に会合し、凝集相を形成することが示唆された。またプローブとして導入された ^{111}In(→ ^{111}Cd)（100 ppt の濃度で導入）は空気中での熱拡散により $ZnAl_2O_4$ の凝集相の近傍に存在することが示された。この不純物 Al と In の相互作用はそれぞれの濃度が 0.01 ppm、100 ppt と非常に希薄な条件下においても観測されることから、ZnO 中での Al と ^{111}In の会合は非常に強いことが示唆された。しかし熱処理雰囲気依存性の実験結果から、この強い会合は真空中での熱処理により解離し、^{111}In は高温真空中では単独で ZnO の Zn サイトを占有することが分かった。同様の現象がアルゴンガス気流中でも観測されたため、この解離反応は希薄酸素濃度条件下における熱処理が原因であることが示された。一般に ZnO のような酸化物は希薄酸素濃度条件下における熱処理中に、特に粒界において酸素空孔が生じやすいと言われている。従ってこの解離反応は ZnO の粒界において酸素空孔形成が促進され、不純物 Al と In の近傍の電荷バランスに不均衡が生じた結果、この不均衡を緩和する現象として In がより安定に存在できる Zn サイトへ移動するという機構で生じると考えられる。

第二部　酸化亜鉛の酸素空孔形成過程

第二部では、酸素空孔形成により誘起される Al と In の解離反応について、真空中での熱処理時間や熱処理温度の依存性を詳細に調べた結果をもとに、ZnO の酸素空孔形成の活性化エネルギーについて議論している。解離の熱処理時間依存性を調べる実験として、空気中での熱処理によって強い会合状態を形成している不純物 Al と In に対し、真空中、1123 K で異なる時間熱処理した試料を合成し、それぞれ TDPAC 測定した。得られた TDPAC スペクトル中の Al と In の解離を表す成分の熱処理時間依存性から、解離反応が一次の速度則で支配されていることを示し、さらに 1123 K における解離反応の速度定数を 6.0（6）$\times 10^{-6}$ s^{-1} と見積もった。他の温度についても同様に速度定数を求め、速度定数の温度依存性を調べた。そして各温度に対する速度定数のプロットに対しアレニウスの式でフィッティングし、解離反応の活性化エネルギーを 0.72（6）eV と見積もった。Al と In の解離反応は ZnO の酸素空孔形成に誘起される現象であると考えられるため、この活性化エネルギーは ZnO の酸素空孔形成エネルギーに相当する値であると予想される。理論計算によって得られた酸素空孔形成エネルギーの値（0.8 eV, 1.0 eV）が本実験値に近いことは、解釈の妥当性を示唆している。酸素空孔形成過程を実験によって定量的に理解する手段は少なく、上記の結果は不純物をプローブとする摂動角相関法によって初めて得られた観測情報であるといえる。

代表的な発表論文

1. Electric field gradient at the ^{111}Cd（← ^{111}In）impurity sites in Ga-doped ZnO, W. Sato, Y. Ohkubo, Y. Itsuki, S. Komatsuda, D. Minami, T. Kubota, S. Kawata, A. Yokoyama, and T. Nakanishi, Proc. Radiocim. Acta **1**, 435（2011）
2. Strong Affinity between In and Al Impurities Doped in ZnO, S. Komatsuda, W. Sato, S. Kawata, and Y. Ohkubo, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 095001（2011）
3. Characteristic local association of In impurities dispersed in ZnO, W. Sato, S. Komatsuda, and Y. Ohkubo, Phys. Rev. B **86**, 235209（2012）
4. Characteristic interactions of ^{111}Cd probes with nonradioactive In impurities doped in ZnO, W. Sato, S. Komatsuda, and Y. Ohkubo, Hyperfine Interact **221**, 79（2013）
5. Extranuclear dynamics of ^{111}Ag（ → ^{111}Cd）doped in AgI nanoparticles, W. Sato, R. Mizuuci, N. Irioka, S. Komatsuda, S. Kawata, T. Azuma, and Y. Ohkubo, Chem. Phys. Lett. **609**, 104（2014）
6. Detection of spinel $ZnIn_2O_4$ formed as nanostructures in ZnO, W. Sato, S. Komatsuda, Y. Yamada, and Y. Ohkubo, Phys. Rev. B **90**, 235204（2014）
7. Formation energy of oxygen vacancies in ZnO determined by investigating thermal behavior

of Al and In impurities, S. Komatsuda, W. Sato, and Y. Ohkubo, J. Appl. Phys. **116**, 183502 (2014)
8. Atomic-level observation of Ag-ion hopping motion in AgI, W. Sato, S. Komatsuda, R. Mizuuci, N. Irioka, S. Kawata, and Y. Ohkubo, Hyperfine Interact **231**, 107 (2015)
9. Local structures at In impurity sites in ZnO probed by the TDPAC technique, W. Sato, S. Komatsuda, Y. Yamada, and Y. Ohkubo, J. Radioanal. Nucl. Chem. **303**,1201 (2015)
10. Thermal stability of locally-associated Al and In impurities in zinc oxide, S. Komatsuda, W. Sato, and Y. Ohkubo, J. Radioanal. Nucl. Chem. **303**,1249 (2015)

学会だより

1. 日本放射化学会第 69 回理事会 [2014 学会年度第 2 回理事会] 議事要録抜粋

日時: 2014 年 12 月 13 日（土）15:00 − 18:00
場所: 東大農学部 2 号館 1 階講義準備室
出席者: 出席者 : [会長] 中西、[副会長] 工藤、[理事] 鈴木、羽場、酒井、長尾、間柄、佐々木、[監事] 末木
欠席者: 高橋、橋本、坂口、大槻、永井
オブザーバ：なし
* 委任状提出 : なし

報告

1. 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、会計の報告がなされた。会員数が漸減しているため、学会の魅力について今後議論していくことが必要である。会費未納者が一定数居る問題については学生会員の自動退会手続きは解消済み、賛助会員の窓口担当の確認をＡＳに依頼中である。
2. ネット委員会について：活動経緯について報告があった。APSORC proceedings の発刊は一部査読対応の遅れにより遅延していることが報告された。
3. 2015 年放射化学討論会の進捗状況について：実行委員長（東北大関根先生）からの進行状況報告が代読された。今回 pdf での予稿集配布を試験的に行う。事前配布か当日の配布かは検討中である。プログラムは事前にＨＰや和文誌で事前にお知らせしている。賛助会員へは印刷物の配布を検討する（AS に発送先確認依頼）。また後日冊子体の要求がある場合に備えて予備の印刷を確保するよう実行委員会に要請する。
4. その他：原子力学会とのコラボについて（会長）：当学会が福島問題に積極的に関わっていくことが重要であると考える。既にメール審議で承認されている通り日本原子力学会現学会長と相談し、シンポジウムへの共催を進めている。発表依頼者への旅費支給は見送ることとする。事務局で原子力学会との共催手続きを進める。

審議

1. 2016 年放射化学討論会の開催地等について：次回の候補地として、新潟大（前回開催は第３９回で４０回が理研）、九州大、長岡技大などを検討している。JAEA も節目の回数（第５０回）にやっている。新潟大は人数的に揃っており、実行委員会において周辺の大学から応援も可能と考えられるため、新潟大を中心に調整する。また将来的に四国など新しい開催地も開拓していくことで一致した。
2. JNRS 誌編集委員会委員について：インパクトファクター IF がつくには発行回数などの諸条件を満たさなければならない。査読のスピード化はやっている。例えば放射線学会などとのコラボを考えるにしても、投稿数を増やさないといけない。若手会員には IF が必要なこともあるので、年配で書けそうな人や学会賞受賞者に依頼することも必要である。幾つか関連する学会での論文を呼び込める方法はないか。IF の増加および投稿数の増加のために努力いただくこととなった。また、和文誌への査読付き論文の増加も必要である。
3. ネット委員会の今後の役割：ネット委員会は今後、広報にも力を入れたいと考えている。委員会メンバーからの意見は概ね前向きであるが、マンパワーと予算面での考慮が必要である。具体的アイデアとして、①査読論文にはならないが重要である環境放射能の測定技術・測定結果の公表の場を提供する。②一般市民からの放射化学、放射能、放射性物質に関するリテラシ的質問を受けつけ、それに回

答するという趣旨の Q&A ページの設営運営を行う。③学会員の研究活動の中で、社会的に注目されたものを紹介するため、定期的メールマガジンと HP を設置運営する。④会員によるチャットページをつくる。テーマは会員がスレッドとして立ち上げる。チャットメンバーが、そのテーマで研究・調査活動を行う場合に、学会としての資金支援の検討を行う。

理事会としては手を付けられるところからネットを利用した広報活動についてアクションを起こして欲しい（特に②③）。①継続検討。担当者に現状確認。②科学的な質疑に限定するのがよい。厳密さのみを要求すると、一般市民（質問者）レベルには難しい回答になってしまう可能性がある。質問の中から選んで回答することも必要。③関連の最新ニュースや行事予定、求人情報をメルマガで配信する。編集委員会（羽場理事）からの情報提供、メルマガの内容をアーカイブして和文誌に掲載する。④会員限定にする。ただ、発言者（主張）が偏ってしまうことに留意する必要がある。

HP の刷新も考えているので、外注等、予算面を検討する（酒井理事）。

以上の議論の後、ネット委員会から「ネット・広報委員会」への名称変更が承認された。新委員会においては、現委員およびオブザーバがコアメンバーとなり上記の具体案の議論を始める。現オブザーバーは本人了承が得られれば、ネット・広報委員となる。③は、和文雑誌「放射化学」との部分的重複・連携もありうることから、羽場理事（兼和文誌編集委員長）がオブザーバに就くことが、会長より提案され承認された。

4. 学会賞について：審議の結果、選考委員長を高橋理事、学会賞事務局理事を間柄理事とすることとなった。学会事務局は総務担当理事とする。また、募集要項案について説明があり、文案が承認された。１月中旬頃に募集開始し、２月末に締切る予定である。
5. その他：学位授与機構の評価専門委員の推薦について：会長から、一名を推薦者として応募した旨の報告があった。

以上

2. 日本放射化学会第 70 回理事会［2014 学会年度第 3 回理事会］議事要録抜粋

日時：2015 年 3 月 7 日（土）13:30 － 16:40
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、坂口、大槻、高橋、鈴木、羽場、酒井、長尾、間柄、佐々木、［監事］末木
欠席者：永井
オブザーバ：なし
* 委任状提出：なし

報告

1. 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。会員数については大きな変化はない。会費未納者の確認がなされた。また、名誉会員への推薦について議論された。永年会員（会費免除される）は会則にないが運用されている。学会の経済状況にも影響があるので、学会予算状況のシミュレーション（会計＋会員担当理事）をもとに、永年会員の取り扱い（廃止、免除、減額など）について、さらに議論することとなった。予算報告がなされた。AS に発注した作業の料金について確認することとなった。正会員、学生会員の会費納入状況を随時把握できるよう、会計担当理事から AS に問い合わせることとした。ネットワーク維持費が今年８月に発生するので、詳細を後日報告する予定である。
2. ML 発信、HP の改訂の報告：資料に基づき、ネット広報委員会活動について報告があった。
3. 2015 年放射化学討論会の進捗状況について：会計担当理事より入金があった旨報告があった。

審議

1. 第 60 回年会・討論会について：工藤理事のもと、新潟大学で 60th 記念大会を開催する。9 月 13 － 15 日（12 日も準備で確保しており前倒し可能）で会場等を仮押さえしている。会長から学会でのコラボを積極的に推進したいとの意見が出され、今後立案することとなった。

2.「放射化学」誌原稿料支給のためのガイドライン：会員外の方に執筆を依頼する場合、原稿料を支給することが望ましいと考えており、対象論文や支給決定のプロセスなどに関するガイドライン（案）が示された。これに対し、許される予算枠がある限度があると思うが、基本的に賛成である。必ずしも原稿料を固定しない方が良いのではないか、などの意見が出された。しかし謝金を支給する際、源泉徴収の義務が生じるため、学会法人化を検討する必要がある。これらを鑑みて、一旦本案を編集委員会に持ち帰り再検討することとした。なお、原稿料を支給することがあるという条文を削除する。また投稿の手引きでカラー刷りの著者負担の項目があるが、依頼原稿では免除したいため、修文しメール回議することとした（羽場理事）。

3. 学会賞について 他：学会賞および奨励賞の応募状況、および受賞候補者選考委員会の設置について報告があった。選考委員は件数が少ないため両賞共通としたことが追認された。

　インパクトファクターの付与に関して、資料を基に説明があった。IF は特に若手に対するモチベーション付け、学会雑誌出版補助などの申請採択時の基準などの点から重要だが、多大な努力が必要である。ただ IF が付けられるためには、定期的な発行が必要であるが、2011 年に論文が無かった。討論会時のトピックス的な論文投稿の依頼をしたことがあるが､あまり効果がなかった｡自助努力として、過去の受賞者や理事による投稿の義務化やレビュー論文の依頼などが不可欠である。

4. HP の更新のためのシステム / 指示系統について：更新・追記・削除の作業を効率化し、責任体制を明確化する必要がある。資料に基づき、アクションの項目別に役割分担の提案がなされた（学会カレンダーは行事担当、リンクはネット広報が担当に修正された）。福島事故関連については、長尾理事が窓口になり、高橋理事、田上氏とともに活動を活性化することとなった。HP の体裁の改訂を検討する。

5. JNRS ネットニュース（仮称）について：
前回議論のあったメールニュースの具体案について提案があった。ネット広報の枠を出て運用すべく、和文誌担当（羽場理事）を副班長とする。配信内容候補の抽出、記事の収集などの具体的な案について説明された。記者（特に若手）や編集者の負担が大きくならないか、情報が定期的に集まるのかなどの懸念もあるが、原案どおり始めることになった。記事の収集において、シニアの応援を得たほうが良いのではとの意見もあり、その方向も検討することになった。スタート後の実績・成果をみて、点検評価しながら（試行錯誤的に）進めていくことになった。

6. 会計業務に関わる事務局所在および口座名義に関して：現状について資料を基に説明がなされた。郵便振替口座、銀行口座は各機能があるので維持しつつも、より効率的な運用を模索していく。

7. その他：特になし

以上

3. 日本放射化学会第 71 回理事会［2014 学会年度第 4 回理事会］は、2015 年 6 月 20 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。

4. 会員動向（平成 27 年 2 月～平成 27 年 6 月）

新規入会（正会員）

氏　名	所　属
富田　純平	（独）日本原子力研究開発機構原子力科学研究所放射線管理部放射線計測技術課
古川　純	筑波大学アイソトープ環境動態研究センター

新規入会（学生会員）

氏　名	所　属
大内　昂輝	大阪大学理学研究科化学専攻放射化学・篠原研究室

所属変更（個人会員）

氏　名	所　属
緒方　良至	名古屋大学アイソトープ総合センター分館
長田　直之	岡山大学自然生命科学研究支援センター光・放射線情報解析部門鹿田施設
川端　方子	株式会社千代田テクノル
小松田沙也加	一関工業高等専門学校一般教科自然科学系
横北　卓也	日立ＧＥニュークリア・エナジー（株）
若林源一郎	近畿大学原子力研究所
濱　　克宏	日本原子力研究開発機構バックエンド研究開発部門東濃地科学センター
上野　慎吾	日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター
谷口　拓海	日本原子力研究開発機構

退会（正会員）

氏　名	氏　名
清水　健彦	市川　進一
菅沼　英夫	

退会（学生会員）

氏　名	氏　名
浅井　貴裕	五十嵐　訓
江口　　舞	大隅　悠史
表　　利樹	柿谷　俊輔
加納　康大	菊谷　有希
北山　雄太	木野　愛子
後藤　尚哉	小山　　巧
佐藤　美咲	塩原　直也
鈴木　啓仁	田中　　彰
田村　信行	津藤　翔平
豊村　恵悟	藤原　一哉
村上　拳冬	山形　武広
渡邊　良祐	

逝去退会

氏　名
夏目　晴夫

○ 2013 学会年度（2013 年 9 月 1 日 – 2014 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	2,100,000	2,439,000	339,000	
賛助会費	1,250,000	2,150,000	900,000	2012,2013 年度分
雑収入	150,000	147	–149,853	利息
前年度繰越金	2,987,211	2,987,211	0	
収入合計	6,487,211	7,576,358	1,089,147	

支出の部　　単位（円）

項　目	予算	支出	差額 （予算 – 支出）	備　考
討論会補助金	200,000	200,000	0	第 58 回討論会
要旨集（学会誌）補助	500,000	500,000	0	APSORC13（2013）
出版事業費	1,360,000	1,191,917	168,083	
事務費	10,000	0	10,000	会議費、事務通信費等
「放射化学」印刷費	1,200,000	1,022,201	177,799	放射化学 28 号、29 号
発送費 （送料、封入作業費等） J-stage 用 pdf 化費用	150,000 0	75,216 9,4500	74,784 -94,500	送料、封入作業費等
会議費	530,000	230,223	299,767	旅費、会場費等
理事会	450,000	230,223	219,767	旅費、運営費
委員会等	80,000	0	80,000	
研究会等補助	200,000	100,000	100,000	環境放射能研究会、夏の学校等
核化学夏の学校	0	50,000	-50,000	
環境放射能夏の学校	0	50,000	-50,000	
事務局経費	750,000	470,447	279,553	
事務費	100,000	31,412	68,588	
選挙関係	180,000	0	180,000	（一部外部委託費に含む）
外部委託費用 （会費、会員管理）	450,000	429,635	20,365	会員名簿整備、会費請求等
通信費	20,000	9,400	10,600	切手、送金手数料等
ネットワーク管理運営費	22,000	23,760	–1,760	プロバイダ費用（年払い）
学会賞	55,000	45,255	9,745	
楯	40,000	37,800	2,200	
表彰状印刷、額縁	15,000	7,455	7,545	
共催金	5,000	0	5,000	
合計	3,622,000	2,761,612	860,388	
繰越残高	2,865,211	4,814,746		

銀行預金次年度繰越金

普通預金　　4,814,746 円

（内訳）

三井住友銀行　　1,729,688 円

ゆうちょ銀行　　3,084,191 円

現金　　867 円

定額預金　　3,736,855 円
(内訳)
　基金 (黒田基金 40 万円を含む)
　　2,809,543 円
　記念事業分　　627,099 円
　基金 (斎藤基金)　　300,213 円

預金合計　　8,551,601 円

○ 2014 学会年度（2014 年 9 月 1 日 − 2015 年 8 月 31 日）予算

収入の部　　単位（円）

項　　目	2013 学会年度	2014 学会年度	差　　額	備　　考
個人会費	2,100,000	2,100,000	0	
賛助会費	1,250,000	1,200,000	-50,000	（賛助会員数減少）
雑収入	150,000	150,000	0	バックナンバー、寄付等
前年度繰越金	2,987,211	4,814,746	1,827,535	
収入合計	6,487,211	8,264,746	1,777,535	

支出の部　　単位（円）

項　　目	2013 学会年度	2014 学会年度	差額	備　　考
討論会補助金	200,000	200,000	0	2015 学会年度年会（2015）
要旨集補助	500,000	500,000	0	2014 学会年度年会（2014）
出版事業費	1,360,000	1,435,000	75,000	
事務費	10,000	10,000	0	事務通信費等
雑誌印刷費	1,200,000	1,250,000	50,000	放射化学 30 号、31 号
発送費（送料、封入作業費等）	150,000	150,000	0	送料、封入作業等
J-stage 用 pdf 化費	0	25,000	25,000	
会議費	530,000	530,000	0	旅費、会場費等
理事会	450,000	450,000	0	
委員会等	80,000	80,000	0	
研究会等補助	200,000	200,000	0	夏の学校等
事務局経費	750,000	570,000	−180,000	
事務費	100,000	100,000	0	封筒印刷等
選挙関係	180,000	0	−180,000	（選挙隔年のため）
外部委託費用（会費、会員管理）	450,000	450,000	0	
通信費	20,000	20,000	0	切手、送信手数料等
ネットワーク管理運営費	22,000	24,000	2,000	プロバイダ費用
学会賞	55,000	55,000	0	2014 年度学会賞
楯	40,000	40,000	0	
表彰状印刷、額縁	15,000	15,000	0	
共催金	5,000	5,000	0	
予備費	2,865,211	4,745,746	1,880,535	
支出合計	6,487,211	8,264,746	1,777,535	

2015 日本放射化学会年会・第 59 回放射化学討論会 プログラム

口頭発表　発表時間 12 分以内，討論含め 15 分以内
ポスター発表　ポスターサイズ 90 cm（横）×180 cm（縦）以内
会場　東北大学川内北キャンパス　講義棟 A 棟，講義棟 B 棟
S 会場　講義棟 A 棟 200（2F）
A 会場　講義棟 B 棟 201（2F）
B 会場　講義棟 B 棟 204（2F）
ポスター　講義棟 B 棟　自習室（2F）

＊は若手優秀発表賞対象講演

第 1 日：9 月 25 日（金）

9：30-10：30　受付

A 会場

10：30-11:30　福島事故関連
座長：高宮幸一（京大炉）

1A01*　福島第一原発事故で放出した放射性粒子の発生源による違い
○佐藤志彦（筑波大院），足立光司（気象研），小野貴大（理科大院），飯澤勇信（理科大院），阿部善也（理科大院），中井　泉（理科大院），五十嵐康人（気象研），笹　公和（筑波大院），末木啓介（筑波大院）

1A02*　土壌試料中に含まれるプルトニウム及びアメリシウムの迅速分離法の開発
○鈴木開登（金沢大院自然），上杉正樹（金沢大理工），山守航平（金沢大理工），横山明彦（金沢大理工）

1A03*　溶融塩処理法用いた粘土鉱物からのセシウム脱離とその構造解析
○本田充紀（原子力機構），下山　巌（原子力機構），小暮敏博（東大），岡本芳浩（原子力機構），鈴木伸一（原子力機構），矢板　毅（原子力機構）

1A04　汚染粗飼料の給与による肉用牛の血中，および筋肉中の放射性セシウム濃度の推移
○鈴木正敏（東北大加齢研），鈴木秀彦（宮城畜試），石黒裕敏（宮城畜試），木野康志（東北大院理），渡邉　智（宮城畜試），齊藤陽介（宮城畜試），小堤知行（宮城畜試），曽地雄一郎（仙台家保），西　清志（仙台家保），漆原佑介（東北大加齢研），安彦　亮（東北大加齢研），鷲尾亮太（東北大加齢研），桑原義和（東北大加齢研），沼辺　孝（宮城畜試），関根　勉（東北大高教機構），福本　学（東北大加齢研）

11：30-13：00　昼食／分科会（原子核プローブ）

13：00-14：30　環境放射能／福島事故関連
座長：齊藤　敬（尚絅学院大環境構想）

1A05*　福島原発事故後の魚類におけるストロンチウム-90
○三木志津帆, 藤本　賢, 森田貴己, 重信裕弥, 高木香織，小埜恒夫（水研セ中央水研），渡邊朝生（水研セ東北水研），杉崎宏哉（水研セ中央水研）

1A06　Sr-90 分析用魚骨灰認証標準物質の開発（1）：候補物質の調製と均質性評価
○三浦　勉（産総研計測標準），薬袋佳孝（武蔵大），平井昭司（都市大），岩本　浩（環境テクノス），米沢仲四郎（国際問題研），柿田和俊（分析化学会），小島勇夫（分析化学会），岡田章（東芝環境ソ），岡田佳子（都市大原研），真田哲也（北海道科技大），渋川雅美（埼大院理），高貝慶隆（福島大），荒川史博（日本ハム中研），前山健司（日本分析セ），山田崇裕（RI 協会），太田秀和（環境総合テクノス），古川　真（パーキンエルマー），植松慶生（JAB）

1A07　Sr-90 分析用魚骨灰認証標準物質の開発（2）：国内・国際共同実験
○三浦　勉（産総研計測標準），薬袋佳孝（武蔵大），平井昭司（都市大），岩本　浩（環境テクノス），米沢仲四郎（国際問題研），柿田和俊（分析化学会），小島勇夫（分析化学会），岡田章（東芝環境ソ），岡田佳子（都市大原研），真田哲也（北海道科技大），渋川雅美（埼大院理），高貝慶隆（福島大），荒川史博（日本ハム中研），前山健司（日本分析セ），山田崇裕（RI 協会），太田秀和（環境総合テクノス），古川　真（パーキンエルマー），植松慶生（JAB）

1A08　溶媒抽出法による Cs，Sr の選択的抽出の検討 II
○白崎謙次，永井満家，坂本清志，山村朝雄（東北大金研）

1A09*　ウシの歯の Sr-90 と Cs-137 濃度を指標とした環境中の時間変化の解析
○小荒井一真（東北大院理），木野康志（東北大院理），西山純平（東北大理），高橋　温（東北大院歯），鈴木敏彦（東北大院歯，東北大災害研），清水良央（東北大院歯），千葉美麗（東北大院歯），小坂　健（東北大院歯，東北大災害研），佐々木啓一（東北大院歯），福田智一（東北大院農），磯貝恵美子（東北大院農），岡　壽崇（東北大院理，東北大高教機構），関根　勉（東北大院理，東北大高教機構），福本　学（東北大加齢研），篠田　壽（東北大院歯）

1A10　燃料デブリからのアクチノイド核種の溶出挙動
○平野正彦（東北大院工），桐島　陽（東北大多元研），秋山大輔（東北大多元研），佐々木隆之（京大院工），佐藤修彰（東北大多元研）

14：30-14：45　休憩

14：45-15：45　原子核プローブ
座長：二宮和彦（阪大院理）

1A11　不純物 Al と In をドープした ZnO における酸素空孔形成過程の雰囲気依存性
○小松田沙也加（一関高専），佐藤　渉（金大理工），大久保嘉高（京大原子炉）

1A12　酸化亜鉛中にナノ構造体として生成した新規スピネル $ZnIn_2O_4$
○佐藤　渉（金大・理工），小松田沙也加（一関高専・一般教科），山田康洋（東理大・理），大久保嘉高（京大・原子炉）

1A13*　陽電子消滅寿命分光法による ZnO 単結晶中に存在する不純物水素の状態観察
○清水弘通（金沢大院自然），藤澤照功（金沢大院自然），三原基嗣（大阪大理工），佐藤　渉（金沢大理工）

1A14　多形をとり，また種々の結晶溶媒分子をもつ混合原子価鉄三核ペンタフルオロ安息香酸錯体の原子価トラップ／デデトラップ挙動のメスバウアー分光による研究
○酒井陽一（大同大），小木曽了（大同大），中本忠宏（東レリサーチセンター），川﨑武志（東邦大），北澤孝史（東邦大），高山　努（大同大），高橋　正（東邦大）

15：45 休憩

16：00-17：00　福島事故関連
座長：安田健一郎（原子力機構）

1A15　新潟沿岸～沖合堆積物における福島原発

事故由来 ^{134}Cs の空間分布
○上村宙輝（金沢大 LLRL），井上睦夫（金沢大 LLRL），藤本　賢（中央水研），米岡修一郎（金沢大 LLRL），長尾誠也（金沢大 LLRL），濱島靖典（金沢大 LLRL），落合伸也（環境科学技術研），糸野妙子（金沢大環日セ），山本政儀（金沢大 LLRL）

1A16*　海水中の懸濁粒子中のセシウムの化学状態解析
○三浦　輝（東大理），栗原雄一（東大院理），桧垣正吾（東大アイソトープ），石丸　隆（東京海洋大），神田穣太（東京海洋大），高橋嘉夫（東大院理）

1A17　福島原発事故後の阿武隈川下流における放射性セシウムの流出挙動解析
○長尾誠也（金沢大環日セ），島村陽恵，田堂修，上村宙輝，金森正樹（金沢大院自然），宮田佳樹，落合伸也（金沢大環日セ），桐島　陽（東北大多元研）

1A18　河川浮遊砂の放射性セシウム捕捉ポテンシャル（RIP）と陽イオン交換容量・比表面積・有機物濃度・鉱物組成などの因子との関係
○高橋嘉夫（東大院理），栗原雄一（東大院理），ファンチャオフイ（東大院理），谷口圭輔（筑波大アイソトープ），三浦　輝（東大理），恩田裕一（筑波大アイソトープ）

17：15　若手の会

B 会場

10：30-11：30　核化学
座長：羽場宏光（理研仁科セ）

1B01　フェルミウム（Fm，Z=100）およびメンデレビウム（Md，Z=101）の第一イオン化エネルギー測定
○佐藤哲也（原子力機構），浅井雅人（原子力機構），金谷佑亮（茨城大院理工），塚田和明（原子力機構），豊嶋厚史（原子力機構），武田晋作（徳島大院医），水飼秋菜（茨城大院理工），永目諭一郎（原子力機構），市川進一（理研），牧井宏之（原子力機構），長　明彦（原子力機構），阪間　稔（徳島大院医），大江一弘（新潟大院自然），佐藤大輔（新潟大院自然），重河優大（大阪大学院理），Thierry Stora（CERN），Christoph E. Dullmann（マインツ大），Matthias Schaedel（原子力機構），Jens V. Kratz（マインツ大）

1B02*　表面電離イオン化における元素の吸着挙動　―103 番元素ローレンシウム（Lr）の吸着エンタルピー測定を目指して―
○金谷佑亮（茨城大院理工，原子力機構），佐藤哲也（原子力機構），浅井雅人（原子力機構），塚田和明（原子力機構），豊嶋厚史（原子力機構），永目諭一郎（茨城大院理工，原子力機構），大江一弘（新潟大院自然），宮下　直（広島大院理），長　明彦（原子力機構），Robert Eichler（PSI）

1B03*　^{235m}U の壊変過程の解明を目指した低エネルギー内部転換電子分光測定
○重河優大（阪大院理），笠松良崇（阪大院理），安田勇輝（阪大院理），篠原　厚（阪大院理）

1B04*　低エネルギー励起核 ^{229m}Th の脱励起過程における真空紫外光測定
○安田勇輝（阪大院理），笠松良崇（阪大院理），重河優大（阪大院理），髙宮幸一（京大原子炉），大槻　勤（京大原子炉），三頭聰明（東北大金研・大洗），篠原　厚（阪大院理）

11：30-13：00　昼食／分科会（核化学）

13：00-14：15　核化学
座長：宮本ユタカ（原子力機構）

1B05　ドブニウム（Db）フッ化物錯体の同定に向けた HF/HNO_3 水溶液中における Nb，Ta の陰イオン交換実験

○豊嶋厚史（原子力機構），水飼秋菜（茨大院理工, 原子力機構), 村上昌史（新潟大院自然），佐藤大輔（新潟大院自然），本山李沙（新潟大院自然），大江一弘（新潟大院自然），小森有希子（理研仁科セ），羽場宏光（理研仁科セ），浅井雅人（原子力機構), 塚田和明（原子力機構），佐藤哲也（原子力機構），金谷佑亮（原子力機構），永目諭一郎（原子力機構）

1B06　ラザホージウムの陰イオン塩化物錯体の抽出における分配係数の決定
○横北卓也（阪大院理), 笠松良崇（阪大院理），重河優大（阪大院理），安田勇輝（阪大院理），中村宏平（阪大院理），木野愛子（阪大院理），豊村恵悟（阪大院理），高橋成人（阪大院理），羽場宏光（理研仁科セ），小森有希子（理研仁科セ），村上昌史（新潟大理），吉村　崇（阪大 RI セ），篠原　厚（阪大院理）

1B07*　超重元素の溶液化学研究に向けた GARIS ガスジェット直結型フロー溶媒抽出装置の開発
○小森有希子（理研仁科セ），羽場宏光（理研仁科セ），大江一弘（新潟大院自然），豊嶋厚史（原子力機構），水飼秋菜（原子力機構），村上昌史（新潟大院自然），佐藤大輔（新潟大院自然），本山李沙（新潟大院自然），矢納慎也（理研仁科セ），渡邉慶子（理研仁科セ），坂口　綾（筑波大数理），菊永英寿（東北大電子光セ），Jon Petter Omtvedt（オスロ大）

1B08*　TTA 逆相クロマトグラフィー測定による超重元素 Rf の陽イオンフッ化物錯形成の F^- 濃度依存性
○福田芳樹（金沢大院自然），北山雄太（金沢大院自然），羽場宏光（理研仁科セ），豊嶋厚史（原子力機構），塚田和明（原子力機構），小森有希子（理研仁科セ），村上昌史（理研仁科セ，新潟大院自然），菊永英寿（東北大電子光セ），M. H. Huang（理研仁科セ），大江一弘（新潟大院自然），水飼秋菜（原子力機構，茨城大院理工），上野慎吾（金沢大院自然），谷口拓海（金沢大院自然），林　和憲（金沢大院自然），谷津由香里（金沢大院自然），千代西尾伊織（金沢大理工）村上拳冬（金沢大理工），大江崇太（金沢大理工），森谷紘基（金沢大理工），横山明彦（金沢大理工）

1B09*　硫酸-Aliquat336 系における Mo ならびに W の溶媒抽出挙動：超重元素 Sg の硫酸錯体形成に向けたモデル実験
○水飼秋菜（茨大院理工），豊嶋厚史（原子力機構），金谷佑亮（茨大院理工），大江一弘（新潟大院自然），佐藤大輔（新潟大院自然），村上昌史（新潟大院自然），小森有希子（理研仁科セ），羽場宏光（理研仁科セ），浅井雅人（原子力機構），塚田和明（原子力機構），佐藤哲也（原子力機構），永目諭一郎（原子力機構）

14：15-14：30　休憩

14：30-15：45　環境放射能
座長：坂口　綾（筑波大学院数理）

1B10　炭素安定同位体比を利用した土壌から植物への炭素の移行割合推定
○田上恵子（放医研），内田滋夫（放医研），石井伸昌（放医研）

1B11*　土壌試料中プルトニウムの定量分析における灰化温度の影響
○王　錘堂（放医研），楊　國勝（放医研），鄭建（放医研），曹　立國（放医研），尉　海軍（北工大），朱 彦北（産総研），田上恵子（放医研），内田滋夫（放医研）

1B12　福島第一原子力発電所事故後の印旛沼堆積物中の放射性セシウム汚染
○曹　立國（南京大），石井伸昌（放医研），鄭建（放医研），田上恵子（放医研），内田滋夫（放医研），鏡味麻衣子（東邦大）

1B13*　溶液エアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動
○田中　徹（京大院工），高宮幸一（京大炉），新田真之介（京大院工），関本　俊（京大炉），

沖　雄一（京大炉），大槻　勤（京大炉）

1B14　福島原発事故により放出された放射性核種汚染の調査（データベースの作成）
○國分陽子（原子力機構東濃），百島則幸（九大アイソトープ統合安全管理センター），廣瀬勝己（上智大），田上恵子（放医研），高宮幸一（京大原子炉）

15：45-16：00　休憩

16：00-17：00　医学・薬学・生物学における RI 利用
座長：鷲山幸信（金沢大医薬保健）

1B15*　^{70}Zn（d,αn）^{67}Cu 反応による ^{67}Cu の製造
○矢納慎也（理研仁科センター），羽場宏光（理研仁科センター），柴田誠一（理研仁科センター），小森有希子（理研仁科センター），高橋和也（理研仁科センター），脇谷雄一郎（RI 協会），山田崇裕（RI 協会），松本幹雄（RI 協会）

1B16　重陽子照射で発生する加速器中性子による医療用 Y-90 の合成・分離研究
○塚田和明（原子力機構先端基礎），佐藤哲也（原子力機構先端基礎），橋本和幸（原子力機構量子ビーム），佐伯秀也（原子力機構基礎工），初川雄一（原子力機構量子ビーム），永井泰樹（原子力機構基礎工），渡辺　智（原子力機構量子ビーム），石岡典子（原子力機構量子ビーム），武田晋作（徳島大医）

1B17　Cu-64イオンを用いたがんのPETイメージング
○須郷由美（原子力機構），大島康宏（原子力機構），山口藍子（群馬大院医），花岡宏史（群馬大院医），石岡典子（原子力機構）

1B18　ヌクレオチド間の電荷・振動エネルギー移動が引き起こす DNA 鎖切断：反応動力学からのアプローチ
○菱沼直樹（東北大院理），菅野　学（東北大院理），木野康志（東北大院理），秋山公男（東北大多元研），河野裕彦（東北大院理）

17：15　放射化分析研究会　拡大幹事会

第 2 日：9 月 26 日（土）

9：00-9：30　受付

A 会場

9：30-10：30　核化学
座長：笠松良崇（阪大院理）

2A01*　^{208}Pb + ^{48,50}Ti 反応における中性子欠損 Rf 同位体の合成
○青野竜士（理研仁科セ，新潟大院自然），後藤真一（新潟大院自然），加治大哉（理研仁科セ），森本幸司（理研仁科セ），羽場宏光（理研仁科セ），村上昌史（新潟大院自然），大江一弘（新潟大院自然），工藤久昭（新潟大理）

2A02　^{261}Rf の α 崩壊核分光
○浅井雅人（原子力機構），塚田和明（原子力機構），佐藤　望（原子力機構），佐藤哲也（原子力機構），豊嶋厚史（原子力機構），石井哲朗（原子力機構），宮下　直（原子力機構），金谷佑亮（原子力機構），嶋　洋佑（名大院工），柴田理尋（名大アイソトープ）

2A03　GARIS を用いたホットフュージョン反応 ^{248}Cm+^{48}Ca→^{296}Lv*に関する研究 ②
○加治大哉（理研仁科セ），森本幸司（理研仁科セ），羽場宏光（理研仁科セ），若林泰生（理研仁科セ），武山美麗（理研仁科セ・山大院理工），山木さやか（理研仁科セ・埼大院理工），田中謙伍（理研仁科セ・東京理大理工），M. Huang（理研仁科セ），小森有希子（理研仁科セ），金谷淳平（理研仁科セ），村上昌史（理研仁科セ・新大院自），鹿取謙二（理研仁科セ），長谷部裕雄（理研仁科セ），米田　晃（理研仁科セ），吉田　敦（理研仁科セ），門叶冬樹（山大理），吉田友美（山大理），山口貴之（埼大院理工），浅井雅人（原子力機構），Z. Gan（IMP），L. Ma（IMP），H. Geissel（GSI），S. Hofmann（GSI），J. Maurer（GSI），藤田訓裕（九大理），成清義博（九大理），田中泰貴（九大理），山本翔也（九大理），森田浩介（理研仁科セ・九大理）

2A04　制動放射線による RI 製造：(γ,p)/(γ,n) 反応収率比の測定および計算値との比較
○菊永英寿（東北大電子光セ），塚田　暁（東北大電子光セ），須田利美（東北大電子光セ）

10：30-10：45　休憩

10：45-11：30　核化学／放射化分析
座長：関本　俊（京大炉）

2A05　テクネチウム 98 の半減期
○小林貴之（日大・文理）

2A06　即発ガンマ線放射化分析法による粘土鉱物試料の元素分析
○初川雄一（原子力機構），鈴木伸一（原子力機構），矢板　毅（原子力機構），Rick Paul（NIST）

2A07　飛行時間型即発ガンマ線分析による放射性核種分析の実現可能性
○藤　暢輔（原子力機構），黄　明輝（原子力機構），海老原　充（首都大），瀬川麻里子（原子力機構），木村　敦（原子力機構），中村詔司（原子力機構）

11：30-13：00　昼食／分科会（アルファ放射体・環境放射能）

B 会場

9：30-10：30　宇宙・地球化学／その他関連分野
座長：山村朝雄（東北大金研）

2B01　青銅器に対する炭素 14 年代測定の可能

性－出雲大社本殿垂木先金具の測定結果から－
○小田寛貴（名大年代センター），塚本敏夫（元興寺文化財研），山田哲也（元興寺文化財研）

2B02　森林渓流における有機炭素の流出特性
○竹内絵里奈，安藤麻里子，小嵐　淳，西村周作，武藤琴美，都築克紀，中西貴宏，松永　武（原子力機構）

2B03　^{234}Th/^{230}Th 同位体比を利用したウラン年代測定法の開発
○大久保綾子（原子力機構），篠原伸夫（原子力機構），間柄正明（原子力機構）

2B04　^{60}Fe を用いた超新星爆発の痕跡の探索
○木下哲一（清水建設），Anton Wallner（ANU），Stephen Tims（ANU），Keith Fifield（ANU），Michael Paul（Hebrew U），本多真紀（筑波大），山形武靖（日大），松崎浩之（東大）

10：30-10：45　休憩

10：45-11：30　アクチノイド
座長：桐島　陽（東北大多元研）

2B05*　マイナーアクチノイドの分離に向けた配位子戦略とその理論的評価
○金子政志（広島大院理），宮下　直（広島大院理），中島　覚（広島大 N-BARD）

2B06*　シクロウラニル（VI）錯体のプロトン付加-脱離による構造変化
○中口将行（阪大院理），森本佳祐（阪大院理），吉村　崇（阪大 RI セ）

2B07　弱酸性溶液中での Np の電極反応
○北辻章浩（原子力機構），大内和希（原子力機構），音部治幹（原子力機構）

11：30-13：00　昼食／分科会（放射化分析）

S 会場

13：00-14：00　総会

14：00-14：10　休憩

14：10-14：20　授賞式

14：20-15：10　学会賞受賞講演
座長：内田滋夫（放医研）

人工放射性核種の超高感度同位体質量分析法開発および環境動態解析に関する研究
○鄭　建（放医研）

15：10-15：20　企業展示プレゼンテーション

ポスター会場

15：20-17：00　ポスター

S 会場

17：00-17：50　特別講演
座長：関根　勉（東北大高教機構）

2S01　福島原発事故被災動物の包括的線量評価事業の立ち上げと現況
○福本　学（東北大加齢研）

懇親会会場

18：00　懇親会

第 3 日：9 月 27 日（日）

9：00-9：30　受付

A 会場

9：30-10：30　医学・薬学・生物学における RI 利用／その他関連分野

座長：菊永英寿（東北大電子光セ）

3A01　^{209}Bi（^{7}Li, 5n）^{211}Rn 反応を介して生成する ^{211}At の製造条件の最適化
○鷲山幸信（金沢大医薬保健），前田英太（金沢大理工），西中一朗（原子力機構先端基礎），横山明彦（金沢大理工），橋本和幸（原子力機構量子ビーム），牧井宏之（原子力機構先端基礎）

3A02　核反応 ^{209}Bi（^{7}Li,5n）^{211}Rn でのα放射線療法用 ^{211}At の製造
○西中一朗（原子力機構先端基礎），鷲山幸信（金沢大医薬保健），横山明彦（金沢大理工），前田英太（金沢大理工），橋本和幸（原子力機構量子ビーム），牧井宏之（原子力機構先端基礎）

3A03　低線量α線放出核 ^{211}At の定量的可視化に向けた撮像システムの開発
○瀬川麻里子（原子力機構），西中一朗（原子力機構），井上　徹（原子力機構），橋本和幸（原子力機構），呉田昌俊（原子力機構）

3A04　緩歩動物クマムシのガンマ線による間接作用の効果
○宮澤俊義（静大技術部），大矢恭久（静大院理）

B 会場

9：30-10：45　その他関連分野

座長：吉村　崇（阪大 RI セ）

3B01　^{14}C 標識した C_{60} 全合成の試み
○秋山和彦（首都大院理工），只井智浩（首都大院理工），久冨木志郎（首都大院理工）

3B02　プロメチウム内包フラーレンの合成とその性質
○宮内翔哉（首都大院理工），秋山和彦（首都大院理工），菊永英寿（東北大電子光セ），久冨木志郎（首都大院理工）

3B03　高速中性子照射の反跳効果を利用した放射性ストロンチウム内包フラーレンの生成率向上
○宮下由香（首都大院理工），秋山和彦（首都大院理工），初川雄一（原子力機構），久冨木志郎（首都大院理工）

3B04　放射性有機廃液の発生を抑えた LSC 測定技術
○古田悦子（お茶大），岩崎紀子（お茶大），加藤結花（日立アロカ），古澤孝良（日立アロカ），吉村共之（日立アロカ）

3B05　核鑑識と放射化学
○篠原伸夫（原子力機構），木村祥紀（原子力機構），大久保綾子（原子力機構）

S 会場

10：55　閉会式

ポスター発表
講義棟 B 棟　自習室（2F）
第 2 日：9 月 26 日（土）15：10-17：00

P01　Development of correction methods for time-of-flight prompt gamma-ray analysis at ANNRI, ○黄　明輝（原子力機構），藤　暢輔（原子力機構），海老原　充（首都大学東京），木村敦（原子力機構），中村詔司（原子力機構）

P02　都市域における土壌の元素濃度と酸中和能に関する研究，○徐　放（東大院総合），小豆川 勝見（東大院総合），松尾基之（東大院総合）

P03*　核合成に関わる ^{142}Nd（p,γ）^{143}Pm 反応と ^{143}Nd（p,n）^{143}Pm 反応の断面積測定―p 核 ^{144}Sm の同位体組成解明を目指して―，○林　和憲（金沢大院自然），上野慎吾（金沢大院自然），木下哲一（清水建設），高橋成人（阪大院理），横山明彦（金沢大理工）

P04*　超重元素の気相化学実験における標準としての $BiCl_3$ の利用，○白井香里（新潟大院自然），浅井貴裕（新潟大院自然），南波佑（新潟大院自然），青野竜士（新潟大院自然），後藤真一（新潟大院自然），大江一弘（新潟大院自然），工藤久昭（新潟大理）

P05*　Rf の溶液化学実験に向けた同族元素 Zr, Hf の HDEHP による溶媒抽出挙動，○山田亮平（新潟大院自然），大江一弘（新潟大院自然），村上昌史（新潟大院自然），羽場宏光（理研仁科セ），小森有希子（理研仁科セ），菊永英寿（東北大電子光セ），後藤真一（新潟大院自然），工藤久昭（新潟大理）

P06*　ドブニウム（Db）の化学実験に向けた 5 族元素 Nb,Ta の塩化物錯体のトリイソオクチルアミンによる抽出挙動，○本山李沙（新潟大院自然），大江一弘（新潟大院自然），村上昌史（新潟大院自然），羽場宏光（理研仁科セ），後藤真一（新潟大院自然），工藤久昭（新潟大理）

P07*　105 番元素 Db の化学実験のための Aliquat 336 樹脂を用いた Nb, Ta のフッ化水素酸中からの固液抽出，○佐藤大輔（新潟大院自然），村上昌史（新潟大院自然），大江一弘（新潟大院自然），本山李沙（新潟大院自然），羽場宏光（理研仁科セ），小森有希子（理研仁科セ），豊嶋厚史（原子力機構），水飼秋菜（原子力機構），菊永英寿（東北大電子光セ），後藤真一（新潟大院自然），工藤久昭（新潟大理）

P08　プルトニウム粒子を対象としたα線測定による粒子中アメリシウムの定量法検討，○安田健一郎，鈴木大輔，金澤和仁，宮本ユタカ，江坂文孝，間柄正明（原子力機構）

P09　簡便な ^{40}K 浸出除去法を利用した海産物試料の低レベル ^{134}Cs，^{137}Cs 濃度の測定，○山下詩央里（金沢大学 LLRL），井上睦夫（金沢大学 LLRL），藤本　賢（中央水研），長尾誠也（金沢大学 LLRL），小藤久毅（金沢大学 LLRL），浜島靖典（金沢大学 LLRL），山本政儀（金沢大学 LLRL）

P10　大気中 ^{85}Kr 濃度の全国調査，○松原秀行（日本分析センター），新田　済（日本分析センター），

磯貝啓介（日本分析センター）

P11*　川崎市における大気中放射性核種の継続的な観測，○塩原良建（明大院理工），鈴木亮一郎（明大院理工），栗原雄一（明大研究・知財戦略機構），中村利廣（明大院理工），小池裕也（明大院理工）

P12　環境試料中ストロンチウム-90 分析用自動化システムの開発，野島健大，○藤田博喜（原子力機構），永岡美佳（原子力機構），大澤崇人（原子力機構），横山裕也（原子力機構），小野洋伸（関東技研）

P13　大容量淡水試料中のラジウム同位体分析法の検討，○富田純平（原子力機構）

P14*　Be-7 放射性エアロゾルの粒径と化学形の検討，○樋渡瑞幹（信州大・院教育），村松久和（信州大・教育），近藤　茜（信州大・教育）

P15　超臨界流体抽出法を用いた前処理法の高度化，○永岡美佳（原子力機構），藤田博喜（原子力機構）

P16　低レベル放射能測定に影響する実験室環境ラドンによる BG について，○川崎伸夫，山中潤二，玉利俊哉（九環協）

P17*　金属塩の加熱により発生したエアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動，○新田真之介（京大院工），田中　徹（京大院工），関本　俊（京大炉），高宮幸一（京大炉），沖　雄一（京大炉），大槻　勤（京大炉）

P18　難測定核種である塩素 36，ヨウ素 129，テクネチウム 99 の土壌からの抽出方法の検討，○本多真紀（筑波大院数理），末木啓介，坂口　綾，笹　公和（筑波大数理），松崎浩之（東大 MALT）

P19　Ra-226 を Ge 半導体検出機で測定する際に用いる測定容器の検討，○山中潤二，川崎伸夫，玉利俊哉（一般財団法人　九州環境管理協会）

P20　固相抽出法による環境試料中のウラン及びトリウム系列核種の分離・定量の検討，○栗原雄一（明大研究・知財戦略機構），吉武愛加（明大理工），福田大輔（明大理工），藤井健悟（明大理工），中村利廣（明大院理工），小池裕也（明大院理工）

P21　サンゴ中のウラン同位体組成および蛍光分光 XAFS 法を用いた化学形態分析，○坂口　綾（筑波大数理），森　千晴（広島大理），佐々木圭一（金沢学院大美術文化財），谷水雅治（関学大理工），宇留賀朋哉（JASRI），高橋嘉夫（東大院理）

P22　ガンマ線スペクトロメトリ―のためのゲル化剤を用いた天然放射性核種線源の作製，○鈴木亮一郎（明大院理工），栗原雄一（明大研究・知財戦略機構），塩原良建（明大院理工），齊藤　敬（尚絅学院大環境構想），中村利廣（明大院理工），小池裕也（明大院理工）

P23*　食用きのこ類の放射性セシウム測定と子実体への移行低減，○村野井友（東北大理）,板橋康弘（(株）キノックス），入澤　歩（東北大理），木野康志（東北大理），中島丈博（(株）キノックス），郡山慎一（(株）キノックス），木村栄一（(株）キノックス），鴫原　隆（(株）キノックス）

P24　放射性セシウムにより汚染された自生きのこの除染，藪雨紀子（仙台キノコ同好会），○木野康志（東北大理）

P25　短寿命プローブ核 ^{19}F（←^{19}O）の電気四重極モーメント測定に向けたオンラインγ線摂動角相関測定システムの改良，○藤澤照功（金沢大院自然），島田昌英（金沢大院自然），竹中聡汰（金沢大理工），三原基嗣（阪大院理），佐藤　渉（金沢大院自然・金沢大理工）

P26*　メスバウアー分光法による希薄磁性 $SrSn_{1-x}Fe_xO_{3^{-}}$ の解析，○鈴木茂世（明大理工），小池裕也（明大理工），野村貴美（明大理工/東理大），小林康浩（京大原子炉），李　洪玲（東大工）

P27*　RCNP-MuSIC ミュオン源を用いたミュオン特性 X 線測定，○稲垣　誠（阪大院理），二宮和彦（阪大院理），吉田　剛（阪大院理），佐藤　朗（阪大院理），川島祥孝（阪大 RCNP），松本侑樹（阪大院理），河野靖典（阪大院理），中沢　遊（阪大院理），高久圭二（阪大 RCNP），下村浩一郎（KEK），髭本　亘（原子力機構），篠原　厚（阪大院理）

P28*　メスバウアー分光法による普通コンドライト隕石 Saratov に含まれる Fe 含有鉱物組成の研究，○中川真結（金沢大院自然），加納康大（金沢大院自然），海老原　充（首都大院理工），佐藤　渉（金沢大理工）

P29　シッフ塩基が配位した U (IV) および U (V) 錯体の安定構造の特定，○吉村　崇 (阪大 RI セ)，森本佳祐（阪大院理）

P30　ウランの還元反応に伴う凝集体形成過程の解明，○大内和希（原子力機構），音部治幹（原子力機構），北辻章浩（原子力機構）

P31　セシウム，ストロンチウムの選択的抽出～リスクフリー溶媒による溶媒抽出化学 III～，○永井満家，白崎謙次，坂本清志，山村朝雄（東北大金研）

P32*　MA/Ln 分離における mono-triazinyl-phenanthroline 系抽出剤の合成とその Ln 元素に対する性能評価，○亀澤明憲（筑波大学院数理），鈴木伸一（原子力機構），小林　徹（原子力機構），坂口　綾（筑波大学院数理），末木啓介（筑波大学院数理）

P33　核医学利用のための EDTMP および DOTMP の Th（IV）錯体の構造と安定性，○山村朝雄，白崎謙次，古谷　昌，北林和真（東北大金研），鷲山幸信，天野良平（金沢大），大槻　勤（京大炉）

P34　重陽子照射で発生する加速器中性子によるがん治療用 ^{67}Cu の大量製造に関する検討，○橋本和幸（原子力機構連携センター），川端方子（千代田テクノル），佐伯秀也（千代田テクノル），佐藤俊一（千代田テクノル），塚田和明（原子力機構連携センター），初川雄一（原子力機構連携センター），永井泰樹（原子力機構連携センター），渡辺 智（原子力機構量子ビーム），石岡典子（原子

力機構量子ビーム）

P35　$^{99}MoO_3$ から熱分離した ^{99m}Tc の回収・精製法の開発，○川端方子（(株）千代田テクノル），橋本和幸（原子力機構），本石章司（(株）千代田テクノル），佐伯秀也（(株）千代田テクノル），椎名孝行（(株）千代田テクノル），太田朗生（(株）千代田テクノル），竹内宣博（(株）千代田テクノル），永井泰樹（原子力機構）

P36*　$^{211}Rn/^{211}At$ ジェネレータの原型としてのシリンジ密封抽出系の構築, 村上拳冬(金沢大理工)，○大江崇太（金沢大理工），谷口拓海（金沢大院自然），橋本和幸（原子力機構），牧井宏之（原子力機構），西中一朗（原子力機構），鷲山幸信（金沢大医薬保健），横山明彦（金沢大理工）

P37　阪大 RCNP における核医学診断，治療用 RI の製造，○高橋成人，林　良彦，神田晃充，中井浩二，篠原　厚，福田光宏，畑中吉治，池田隼人，畑沢　順（阪大院理）

P38*　Be（p,n）反応による高速中性子による医療用 ^{90}Y の合成研究，○武田晋作（徳島大院），塚田和明（原子力機構），浅井雅人（原子力機構），佐藤哲也（原子力機構），永井泰樹（原子力機構），阪間　稔（徳島大院），松本絵里佳（徳島大院）

P39　東シナ海から日本海表層における $^{228}Th/^{228}Ra$ 比の水平分布および季節変動，○城谷勇陛（金沢大 LLRL），井上睦夫（金沢大 LLRL），長尾誠也（金沢大 LLRL），山本政儀（金沢大 LLRL），浜島靖典（金沢大 LLRL），古澤佑一（金沢大 LLRL），小藤久毅（金沢大 LLRL），本多直人（日水研），森本明彦（愛媛大），滝川哲太郎（水大校），藤本　賢（中央水研），早川和一（金沢大 薬学部）

P40*　ピッチブレンド中のウラン及びトリウム系列核種の溶出，○小松原健太 （明大院理工），栗原雄一 （明大研究・知財戦略機構），塩原良建 （明大院理工），中村利廣 （明大院理工），小池裕也（明大院理工）

P41　隕石構成元素に対する 80 MeV 単色中性子による核反応生成物の測定, ○二宮和彦(阪大院理)，南部明弘（阪大理），重河優大（阪大院理），高橋成人（阪大院理），篠原　厚（阪大院理），関本　俊（京大炉），八島　浩（京大炉），嶋　達志（阪大 RCNP），萩原雅之（KEK），岩元洋介（原子力機構），柴田誠一（理研），Marc W. Caffee（パデュー大），西泉邦彦（カリフォルニア大）

P42　福島第一原子力発電所事故に由来した大気中放射性セシウム濃度の季節変動，○二宮和彦（阪大院理），張　子見（阪大院理），松永　静（阪大院理），鈴木杏菜（阪大院理），藤田将史（阪大理），山口喜朗（阪大 RI セ），渡邊　明（福島大），鶴田治雄（東大大気海洋研），北　和之（茨城大理），篠原　厚（阪大院理）

P43*　南相馬市で採取されたサルの軟骨に含まれる放射性 Cs の測定，○西山純平（東北大理），小荒井一真（東北大院理），木野康志（東北大院理），清水良央（東北大院歯），高橋　温（東北大院歯），鈴木敏彦（東北大院歯），千葉美麗（東北大院歯），小坂　健（東北大院歯），佐々木啓一（東北大院歯），福田智一（東北大院農），磯貝恵美子（東北大院農），岡　壽崇（東北大高教機構），関根　勉（東北大高教機構），福本　学（東北大加齢研），篠田　壽（東北大院歯）

P44　宮城県の空間γ線線量率における福島第一原子力発電所事故影響の評価，○石川陽一（宮環放セ），新井康史（宮城県原対課），木村昭裕（宮環放セ），佐藤健一（宮環放セ），樋野光永（宮環放セ），湊　進（放地研）

P45*　植生への放射性エアロゾル沈着挙動解明のためのエアロゾル発生システムの開発，○張　子見，二宮和彦，篠原　厚（阪大院理）

P46*　東京湾と千葉県都市河川の底質における福島第一原発事故由来の放射性セシウムの鉛直分布，○添盛晃久，小豆川勝見，松尾基之（東大院総合）

P47*　リン酸塩共沈前濃縮と DGA レジン化学分離を用いた ^{90}Y の定量による海水中 ^{90}Sr の迅速定量法，○酒井浩章（金大院・自然），上杉正樹（金大・学際セ），横山明彦（金大・理工）

P48　福島第一原発事故由来放射性セシウムの福島沿岸海域での拡散挙動，○馬場北透（金大院自然），長尾誠也（金大環日セ），宮田佳樹（金大環日セ），井上睦夫（金大環日セ），富原聖一（ふくしま海洋科学館），田中　潔（東大大気海洋研），乙坂重嘉（原子力機構）

P49　原発事故以降の都市部河川における放射性核種と溶存イオンの挙動，○富田涼平（筑波大院数理），松中哲也（筑波大応用加速器），本多真紀（筑波大院数理），佐藤志彦（筑波大院数理），松村万寿美（筑波大応用加速器），高橋　努（筑波大応用加速器），坂口　綾（筑波大数理物系），松崎浩之（東京大 MALT），笹公　和（筑波大数理物系），末木啓介（筑波大数理物系）

P50*　砂試料中の放射性セシウムのイメージングプレートによる簡易キャラクタリゼーション，○越智康太郎（明大院理工），栗原雄一（明治研究知財），高橋賢臣（阪大安全衛生管理部），中村利廣（明大理工），小池裕也（明大理工）

P51　福島県浪江町における大気中 ^{137}Cs 濃度の経時変化，○落合伸也（環境科学技術研究所），長谷川英尚（環境科学技術研究所），柿内秀樹（環境科学技術研究所），赤田尚史（核融合科学研究所），植田真司（環境科学技術研究所），床次眞司（弘前大学），久松俊一（環境科学技術研究所）

P52　ヒト乳歯の CO_2 ラジカル測定による被ばく量推定，○岡　壽崇（東北大高教機構），高橋　温（東北大院歯），小荒井一真（東北大院理），木野康志（東北大理），関根　勉（東北大高教機構），清水良央（東北大院歯），千葉美麗（東北大院歯），鈴木敏彦（東北大院歯），小坂　健（東北大院歯），佐々木啓一（東北大院歯），篠田　壽（東北大院歯）

P53　福島県内野生ニホンザルにおける福島第一原子力発電所事故由来放射性セシウムの体内分布，○漆原佑介（放医研），鈴木敏彦（東北大院歯），清水良央（東北大院歯），藤田詩織（東北大院歯），桑原義和（東北大加齢研），鈴木正敏（東北大加齢研），福本　基（東北大加齢研），林　剛平（東北大加齢研），安彦　亮（東北大加齢研），鷲尾亮太（東北大加齢研），山城秀昭（新潟大自），阿部靖之（帯広畜産大言及病セ），木野康志（東北大院理），関根　勉（東北大高教機），篠田　壽（東北大院歯），福本　学（東北大加齢研）

P54　2013-2014 年の福島沖海水中の ^{137}Cs, ^{129}I 濃度，○吉田伊吹（日大院総合基），森本真由子（日大院総合基），辻田一樹（日大院総合基），山形武靖（日大文理），永井尚生（日大文理），田副博文（弘前大被ばく医），松崎浩之（東大博物館）

P55　乳酸菌による放射性セシウム排泄効果の検討，岡部友美，○森田裕子（慶應大薬）

P56　多種多様な金属化学種の一括分離を目指した新しい有機複合吸着剤の開発，○立花　優（長岡技科大院工），Mohammad Chand Ali（Department of Chemical and Biological Engineering, Zhejiang University），鈴木達也（長岡技科大院工）

P57　Pu を含む極微量多元素逐次分離法の開発とその応用，○宮本ユタカ（原子力機構），安田健一郎（原子力機構），間柄正明（原子力機構）

P58　光造形方式 3D プリンタを利用したガンマ線測定用線源の作成，○齊藤　敬（尚絅学院大環境構想），小池裕也（明治大理工），鈴木亮一郎（明治大理工），髙橋賢臣（大阪大安全衛生）

P59*　陽電子消滅寿命測定法を用いたケーブル被覆材の放射線劣化評価，○小野寺花梨（東北大院理），岡　壽崇（東北大高教機構，東北大院理），木野 康志（東北大院理），関根　勉（東北大高教機構，東北大院理）

P60*　電場存在下での陽電子寿命測定のための陽電子線源の開発，○道股知也（東北大院理），佐野陽祐（東北大院理），岡　壽崇（東北大院理・東北大高教機構），木野康志（東北大院理），関根　勉（東北大院理・東北大高教機構）

P61*　陽電子やミュオンを含むアルカリ原子の構造，○山下琢磨（東北大院理），木野康志（東北大院理）

P62*　陽電子消滅時刻運動量同時測定法による Ar ガス中での Ps 熱化過程，○佐野陽祐（東北大院理），木野康志（東北大院理），岡　壽崇（東北大高教機構･東北大院理），関根　勉（東北大高教機構）

P63　東北大学電子光理学研究センターにおける光核反応を利用した RI 製造のための制動放射 γ 線プロファイル計測，○髙橋　健，日出富士雄，柏木　茂，菊永英寿，武藤俊哉，塚田　暁，南部健一，長澤育郎，東谷千比呂，小林恵理子，濱　広幸（東北大電子光）

P64　高温水・超臨界水の放射線分解反応初期過程，○室屋裕佐（阪大産研），吉田哲郎（阪大産研），金森　航（阪大産研），勝村庸介（RI 協会），山下真一（東大院工），古澤孝弘（阪大産研）

「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とに関わらず、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。また別刷りは作成しない。
（原稿料）
第 13 条　編集委員会の依頼による論文については原稿料を支給することがある。
（著作権）
第 14 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。
（本規則の改定）
第 15 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、2013 年 1 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、実費を著者負担とする。なお、論文誌 web サイト公開用の PDF 版のみ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
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/nyukai/shubetsu.html

放射化学
第 32 号
平成 27 年（2015 年）9 月 17 日発行

編集
日本放射化学会編集委員会（放射化学担当）
委員長：羽場宏光、委員：桐島　陽、齊藤　敬、佐藤　渉、関本　俊、鷲山幸信
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

日立アロカメディカル株式会社

キャンベラジャパン株式会社

クリアパルス株式会社

サンゴバン株式会社

大栄無線電機株式会社

株式会社千代田テクノル

東京ニュークリア・サービス株式会社

東北ニュークリア株式会社

長瀬ランダウア株式会社

株式会社日本環境調査研究所

富士電機株式会社

富士フイルム RI ファーマ株式会社

株式会社ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション

公益財団法人 原子力安全技術センター

新潟県放射線監視センター

独立行政法人 日本原子力研究開発機構

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

北海道電力株式会社

東北電力株式会社

中部電力株式会社

中国電力株式会社

九州電力株式会社

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 **登録定期確認機関**

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

登録運搬物確認機関 **登録運搬方法確認機関**

問い合わせ先：03-3814-7483

承認容器による輸送の運搬物確認

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

Nuclear Safety Technology Center

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。

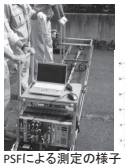
〒112-8604
東京都文京区白山5丁目1 番3－101号　東京富山会館ビル4 階
ホームページ　http://www.nustec.or.jp/

原子力機構は、福島の環境回復（オフサイト）や原子炉廃止措置（オンサイト）に向けた技術開発等に取り組んでいます

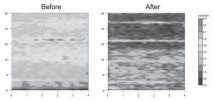
オフサイトでの取り組み

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

プラスチック・シンチレーション・ファイバ（PSF）による陸上モニタリング

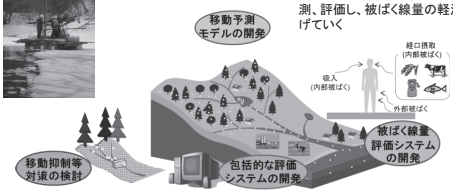


測定結果

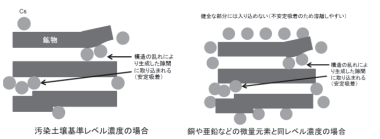
福島長期環境動態研究プロジェクト（F-TRACE）


ダム調査

放射性物質が環境中でどのように移動するのか、長期にわたって調査、予測、評価し、被ばく線量の軽減につなげていく



放射性セシウムの特殊な吸着挙動を解明



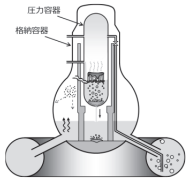
汚染土壌基準レベル濃度の場合　　銅や亜鉛などの微量元素と同レベル濃度の場合

放射性セシウムの吸脱着メカニズムを解明し、土壌中の放射性セシウムの効率的な除染活動に寄与する

オンサイトでの取り組み

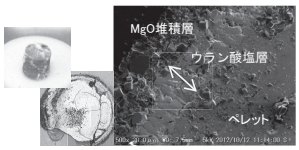
廃止措置等に関する研究開発

原子炉の内部の状況を把握するための研究



事故後の原子炉のイメージ図

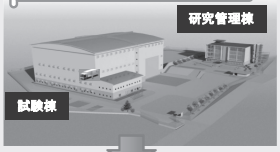
溶融固化した燃料（燃料デブリ）の取り出しに向けた研究



海水塩とともに加熱した模擬デブリペレット

福島県に、「遠隔操作機器・装置の開発実証施設」及び「放射性物質の分析・研究施設」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。

遠隔操作機器・装置の開発実証施設 完成予想図



- ●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

放射性物質の分析・研究施設 装置等のイメージ



- ●燃料デブリや放射性廃棄物の性状把握、処理・処分技術等の開発
- ●中長期的視点での人材育成
- ●国際共同研究、海外人材の受入

独立行政法人日本原子力研究開発機構

〒319-1184　茨城県那珂郡東海村村松4番地49
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
技能試験を定期的に
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）

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　FAX：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

REA
RADIATION EFFECTS ASSOCIATION

～ 主 な 業 務 ～

■ 放射線影響等に関する知識の普及
■ 放射線影響等に関する調査研究
■ 放射線影響等に関する調査研究に対する奨励助成、顕彰
■ ICRP調査・研究連絡会の運営
■ 原子力施設等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
■ 除染従事者等の被ばく線量の一元的な登録管理
■ 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 東京都千代田区鍛治町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（放射線取扱主任者講習修了証が発行されます）**

・ 原子力人材育成のための研修の実施

・ 教員免許状更新講座

・ 原子力・放射線に関する研修会の企画・開催支援

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

厳しく、やさしく、メンテナンス。



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関連施設の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、マニプレータ販売 など

Be Clean
人と地球のために
ATOX

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：〒108-0014 東京都港区芝4-11-3 芝フロントビル TEL.(03)6758-9000 FAX.(03)3453-3821
●事 業 統 括 部：〒108-0014 東京都港区芝4-11-3 芝フロントビル TEL.(03)6758-9005 FAX.(03)3453-3822
●技術開発センター：〒277-0861 千葉県柏市高田1201 TEL.(04)7145-3330 FAX.(04)7145-3649
●RI事業関連部署：東海営業所 TEL.(029)282-1662／大洗営業所 TEL.(029)266-1331／東京営業所 TEL.(04)7141-1321
大阪営業所 TEL.(06)6384-6730／神戸医療事業オフィス TEL.(078)599-6851／玄海事業所 TEL.(0955)52-3241

AccuFLEX
LSC-8000

HITACHI
Inspire the Next

ALOKA
illuminate the change

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。



日立アロカメディカル株式会社

〒181-8622 東京都三鷹市牟礼6-22-1　計測システム営業部　0422-45-5131　www.hitachi-aloka.co.jp

札幌営業所 (011)722-2205　六ヶ所営業所 (0175)71-0811　仙台支店 (022)346-9520　新潟営業所 (025)241-8171　水戸支店 (029)255-1811　福島営業所 (024)555-6401
名古屋営業所 (052)805-2660　福井営業所 (0776)43-1480　掛川営業所 (0537)29-7010　大阪支店 (06)4861-4888　松山営業所 (089)969-6811　高松営業所 (087)866-6012
広島支店 (082)292-0019　松江営業所 (0852)25-5649　鳥栖営業所 (0942)87-9111

キャンベラジャパンの放射能測定システム

放射線測定の基礎から応用まで
広範で卓越した製品を提供しています。



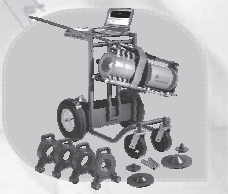
ゲルマニウム半導体検出器



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



ISOCS™ :
ガンマ線分析システム



FASTSCAN ™ :
ホールボディカウンタ

CANBERRA
キャンベラジャパン株式会社

放射線測定における世界的リーディングカンパニー

東京本社　東京都台東区浅草橋4-19-8 浅草橋ﾋﾞﾙ　〒111-0053　TEL: 03-5835-5402
大阪営業所　大阪市淀川区西中島5-14-5 ﾆｯｾｲ新大阪南口ﾋﾞﾙ 9F　〒532-0011　TEL: 06-4806-5662
URL: http://www.canberra.com/jp/　E-mail : sales-jp@canberra.com

クリアパルス（株）が提供する主要製品

CLEAR-PULSE

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ピーアンプリファイア
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
ＣｄＴｌ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ビン電源、ミニビン電源
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

８６３０型ハンドボーン


８８６８Ａ型ＩＶＣ


５８０型プリアンプ


４０６６型アンプ


１２１６型ＰＨＡ


６６７１型バイアス電源


Ｅ６６６０ミニビン電源


８０１１０型プリアンプ


８０１１２型ＭＰＸ


LYSO、$LaCl_3$、$LaBr_3$、NaI、CsI、BGO、$CdWO_4$、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、^{3}He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。

SAINT-GOBAIN
CRYSTALS



サンゴバン株式会社

〒102-0083　東京都千代田区麹町 3-7
Tel 03-3263-0559　Fax 03-5212-2196

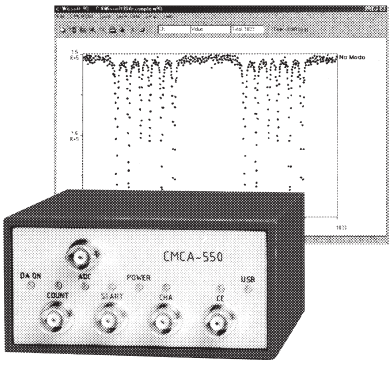
URL　http://www.detectors.saint-gobain.com/
お問合せ　yasuo.watanabe@saint-gobain.com　（担当　渡辺）

WISSEL メスバウア用測定装置システム

低価格でPCとMCS/PHAモジュールでメスバウア簡単測定

CMCA-500/550
IBM PC/AT用メスバウア測定MCAモジュール

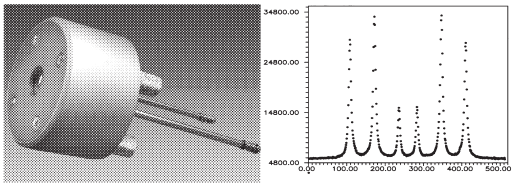
【特徴】
- MCSモード
- 外付ADCモジュールなしでPHA測定可能（CMCA-550のみ）
- MCS［window］モードで外付SCAモジュールなしで、設定されたエネルギー範囲のパルスのみをメスバウアデータとして取得可能（CMCA-550のみ）
- Windows用プログラムWISSOFT2003（標準添付）で、パソコン制御
- バックグラウンドでデータ取得可能
- 外部電源なしでデータを保持
- インターフェース USB/RS-232C



【仕様】
入力:COUNT、START、CHA、
COUNT ENABLE、
ADC（CMCA-550のみ）

MCS部:
- 最大カウント周波数＞100MHz
- チャンネル数 最大8192ch
- 最大チャンネルアドバンス周波数 約500kHz

ADC部（CMCA-550のみ）:
- 変換ゲイン　8kch
- 完全デジタルピーク検出
- サンプリング周波数 48MHz



RiKon-5 CEMS Detector

【特徴】
- 測定温度範囲　100K～室温
- 入射γ線方向　0°～60°可能
- サンプルの交換が簡単
- 薄いフィルムや表面層の試験に適当
- 箔、粉末、結晶などのサンプルの測定が可能
- 優れたSN比、高いカウントレート
- 優れたエネルギー分解能
- 低温でもガスフローを保証
- ガスフローを維持すれば、長期の測定に適当
- X線測定も可能

NORMOSパッケージ:
メスバウアFittingプログラムSITE、DIST
（SITE、DIST個々のご注文も承ります）

日本総代理店
DMD 大栄無線電機株式会社

〒101-0021　東京都千代田区外神田3-10-10
☎03-3255-0931（代）　FAX03-3255-9869
E-mail sales@daiei-dmd.co.jp

MONITORING SERVICE

個人線量測定サービス
ガラスバッジモニタリングサービス

お客様の安全と安心に貢献します





ガラスバッジ



ガラスリング

7つの特長

1. 環境に優しいリサイクル体系
2. バラツキが少なく高い測定精度
3. 耐候性が高く優れたフェーディング特性
4. 一体発送・一体返送方式により交換の手間を軽減
5. 中性子広範囲用のケースとX線用、広範囲用のケース形状が同一サイズ
6. シュリンク包装で清潔・安心
7. フィット感がアップした薄型ケース

TECHNOL 株式会社千代田テクノル 営業部　http://www.c-technol.co.jp
〒113-8681 東京都文京区湯島1-7-12 千代田御茶の水ビル TEL 03(3816)1163 FAX 03(5840)6038
ガラスバッジ　検索



安全設計・評価
- 施設設計
- 遮蔽設計
- 安全評価
- RI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

東京ニュークリアサービス株式会社

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：大阪市中央区内本町 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駮字野附 1-4　〒 039-3212　TEL.0175（71）0710

QuIxel®

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。



長瀬ランダウア株式会社

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　大阪市西区新町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

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

ALARA
As Low As Reasonably Achievable

原子力施設
NUCLEAR POWER FACILITY

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

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　Tel.03-5322-2271 Fax.03-5322-2272
技術開発研究所：〒342-0008 埼玉県吉川市旭 8 番 3　Tel.048-991-9461 Fax.048-991-9460
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

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･土木工事業/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

富士電機

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
- ＲＩ排水管理システム
- 出入管理システム
- 非密封ＲＩ管理システム
- 従事者管理システム

――――――――――――――――

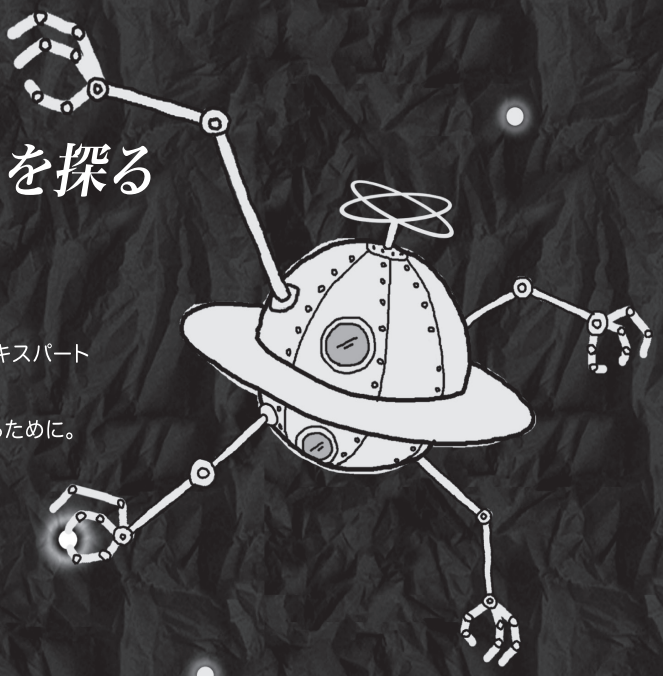
- 各種サーベイメータ
- 個人線量計／環境線量計
- モニタリングポスト
- ホールボディカウンタ
- 体表面モニタ
- 食品放射能測定システム
- その他



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

FUJIFILM
Value from Innovation



その“生命(いのち)”のいとなみを探る

“からだ”は、小さな宇宙に例えられます。
この小宇宙に、大切な“生命”のいとなみを求めて、
私たちは宇宙船を飛ばします。

探る、診る、治す の視点から、ラジオアイソトープのエキスパート
として、明日の医療の可能性を考えています。

それは、患者さん一人ひとりの大切な“生命”を輝かせるために。

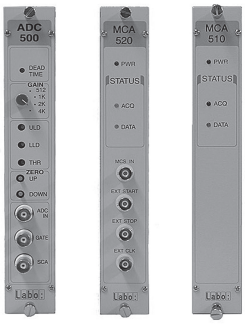
私たちは、富士フイルムグループの総力を結集して
医療と健康に貢献してまいります。

診断用の放射性医薬品
治療用の放射性医薬品
造影剤

富士フイルムRIファーマ株式会社

資料請求先：〒104-0031 東京都中央区京橋2-14-1 兼松ビル TEL03(5250)2620
ホームページ：http://fri.fujifilm.co.jp
2015年4月作成

www.labo-eq.co.jp



ADC500　変換方式 逐次比較型 15μsec 固定
コンバージョンゲイン 512,1024,2048,4096

MCA510　MCA メモリ 4kch
カウント容量 32bit / ch
インターフェイス 10/100 Mbps Ethernet

MCA520　MCA / MCS メモリサイズ 4kch
カウント容量 32bit / ch
Dwell time 10sec ～ 90sec
インターフェイス 10/100 Mbps Ethernet

2100C / MCA



ADC 8kch
ウィルキンソン方式 150MHz
MCA / MCS メモリサイズ 8kch
Windows98 ～ XP 対応ソフトウェア

NT24-DUAL　- マルチパラメータ MCA-
（陽電子消滅測定等に）



ADC 15μsec 固定
GAIN 4096ch
MCA 4096ch（最大８台）
２パラメータ表示 1024×1024
時間情報を付加してのリストモード測定
WindowsXP 対応

Labo:
㈱ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション
TEL 029-821-6051 FAX 029-821-6054
E-mail nonaka@labo-eq.co.jp 〒300-0034 茨城県土浦市港町 1-7-3

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