

# 放射化学

## 第47号

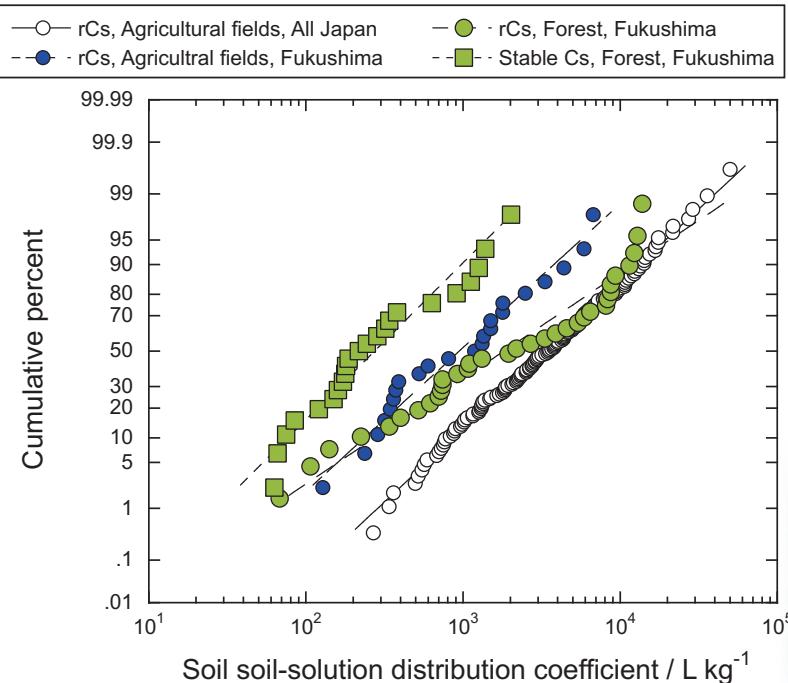
### 原著

福島第一原発事故後に収集された放射性セシウムの土壤-土壤溶液間分配係数に関する考察

### 特集

2022年度 学会奨励賞

日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介



一般社団法人 日本放射化学会

The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences

---

# 放射化学

## 第47号

令和5年(2023年)3月20日

---

### 目次

#### 原著

- 福島第一原発事故後に収集された  
放射性セシウムの土壤・土壤溶液間分配係数に関する考察 (田上 恵子、内田 滋夫) ..... 1

#### 特集

##### 学会奨励賞

- 精密質量と崩壊事象の相関測定法の開拓による超重元素の直接質量測定 (庭瀬 曜隆) ..... 11  
バライト共沈法の環境放射化学・地球化学的な応用に関する研究 (徳永 紘平) ..... 20  
硬組織を指標とした福島第一原発事故後の野生動物への  
 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の取り込みの研究 (小荒井 一真) ..... 24

##### 若手優秀発表賞

- 低免疫原性ストレプトアビジン変異体と改変ビオチンを用いる  
プレターゲティングシステムの開発 (巽 俊文) ..... 28  
精密質量測定による新同位体  $^{241}\text{U}$  の同定 (庭瀬 曜隆) ..... 30  
 $\text{SrTiO}_3$  中にドープされた  $^{111}\text{Cd}$  の占有サイトと熱安定性の研究 (小松田 沙也加) ..... 33  
 $^{229\text{m}}\text{Th}$  の  $\gamma$  線測定に向けた希ガスマトリックス単離装置の開発 (益田 遼太郎) ..... 35  
超伝導転移端検出器を利用したマイクロ蛍光X線分光法による  
環境試料中のウランの分析 (蓬田 匠) ..... 38  
分子レベルの情報に基づいたラジウムの環境挙動解明 (山口 瑛子) ..... 41

#### 会議報告

- 放射化学会年会第66回討論会(2022)を終えて (高橋 嘉夫) ..... 43

情報プラザ（国際国内会議）	54
学会だより	56
「放射化学」規程など	60
「放射化学」論文編集委員会規程	
「放射化学」発行規程	
「放射化学」論文投稿規則	
「放射化学」論文投稿の手引き	
学位論文要録執筆候補者の推薦について	
「会員の声」欄へのご寄稿のお願い	
会員の異動に伴う連絡のお願い	
賛助会員リスト	
広告	

## 表紙の説明

---

農耕地土壤と森林土壤のセシウムの土壤-土壤溶液間分配係数データの確率度数分布（文献調査含む）のグラフと実験の様子。安定元素を使う場合、過剰に添加すると本来の数値よりも過小評価になることに気をつけなければならない。

# 原 著

## 福島第一原発事故後に収集された 放射性セシウムの土壤 - 土壤溶液間分配係数に関する考察

Consideration on the soil-soil solution distribution coefficient of radiocaesium observed  
after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident

田上 恵子 \*、内田 滋夫

量子科学技術研究開発機構 量子生命・医学部門放射線医学研究所 放射線影響研究部

〒 263-8555 千葉県千葉市稲毛区穴川 4-9-1

Keiko Tagami, Shigeo Uchida

Department of Radiation Effects Research, National Institute of Radiological Sciences,  
National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, 4-9-1  
Anagawa, Inage, Chiba 263-8555, Japan

(2022年(令和4年)9月6日受理)

### 要旨

$^{135}\text{Cs}$  や  $^{137}\text{Cs}$  は放射性廃棄物処分の安全評価上重要核種であり、評価モデルには Cs の土壤 - 土壤溶液間分配係数 (Kd) が使われる。Kd は福島第一原発事故後の被ばく線量評価でも使われるため、実際に汚染した土壤試料によりデータ取得が行われている。近年は安定同位体を土壤に添加し、土壤溶液中の Cs を ICP-MS 測定をして得た収着 Kd を報告する事例が増えた。そこで本研究では、様々な条件での Kd データを収集・比較した。その結果、安定 Cs 添加実験で得た森林土壤等の収着 Kd は幾何平均値 (GM) として  $2.7 \times 10^2 \text{ L/kg}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  または  $^{137}\text{Cs}$  の添加で得た森林土壤等の収着 Kd は GM が  $1.8 \times 10^3 \text{ L/kg}$  であり、安定 Cs による収着 Kd は有意に低かった。同様のことが脱離 Kd にも言えた。一般に添加 Cs 量が増加すると Kd は減少することから、福島第一原発事故後に安定 Cs を添加して得られた Kd データは一部過小評価されていることが示唆された。

### キーワード

環境移行パラメータ、収着 Kd、脱離 Kd、福島第一原子力発電所事故、陸域環境

### Key words

The Tama river watershed, Dissolved radioactive cesium, River water, Water quality data

### 1. 緒言

放射性廃棄物処分の安全性は、廃棄物中に含まれる複数の放射性核種について、埋設処分場を放出源とし、地質環境を通過して人の生活圏に流入した際の人の被ばく線量を数学モデルにより評価する。総線量に占める割合が高いものが重要核

種となるが、これには  $^{135}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=2.3 \times 10^6 \text{ y}$ ) と  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=30.2 \text{ y}$ ) が含まれる<sup>1</sup>。どちらも純  $\beta$  線放出核種であり、 $^{238}\text{U}$  からの核分裂収率（速中性子）が  $^{135}\text{Cs}$  は約 7.0%、 $^{137}\text{Cs}$  は約 6.1% と高い。その評価では環境移行パラメータを使っており、例えば土壤 - 農作物移行係数、固相 - 液相間分配

\* Corresponding author, e-mail: tagami.keiko@qst.go.jp

係数 ( $K_d$ ) がある。土壤環境では、土壤一土壤溶液間の分配係数を単に  $K_d$  と呼ぶことがあり、本報告でも特別に記さない限りは  $K_d$  は土壤を対象としたものを示すものとする。これらの環境移行パラメータについては、チェルノブイリ事故後の環境試料を実測したり、トレーサー実験によりデータが蓄積されているものの、多くのデータが欧米で取得されたものである<sup>2</sup>。

我が国でも環境中の放射性核種の放射性 Cs の動態解明が行われてきた。特に東電福島第一原子力発電所の事故から放出された核種のうち、現在も残っている  $^{137}\text{Cs}$  の動態が注目されていることから、様々な環境試料の分析が現在も進められている。 $^{137}\text{Cs}$  は子孫核種である  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  が放出するガンマ線により定量することができるが、 $^{135}\text{Cs}$  については、原子数は  $^{137}\text{Cs}$  と同程度放出されているはずだが長半減期のため放射線計測による分析が難しく、そのため誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を用いて測定する方法が提案されている<sup>3</sup>。このように環境試料を実測することで得られる環境移行パラメータを用いることは、我が国における線量評価の確度を向上させる上で重要である。すでに、福島第一原発事故後の数年間に得られた放射性 Cs が移動しやすい期間（遷移期間）における環境移行パラメータについては、一通りとりまとめられて IAEA から報告されている<sup>4</sup>。しかしながら、今後は帰還する住民のための長期被ばく予測が必要であることに加え、上述した放射性廃棄物の安全評価観点からも、移行挙動が平衡状態に達した環境下における放射性 Cs の環境移行パラメータの取得が重要である。

本研究では特に放射性 Cs の陸域土壤の  $K_d$  に着目した。IAEA 報告書<sup>4</sup>において、陸域土壤の  $K_d$  データが少ないと指摘されており、データの蓄積が必要であることが理由として挙げられる。一方、福島県内を中心とする河川や湖沼において収集された堆積物もしくは浮遊粒子に対する  $K_d$  についてはデータが豊富にあり、チェルノブイリで観察された値よりも高いことが示されている<sup>5,6</sup>。陸域土壤についても、これまでに多くの報告があるグローバルフォールアウト  $^{137}\text{Cs}$  の実測データや、RI トレーサー実験の結果を考えると、放射性 Cs を保持すると期待される<sup>9,10</sup>。そのた

め、陸域に降下した放射性 Cs は陸域に長期間保持され、海洋への放出量は少ないと考えられている<sup>5,11</sup>。福島第一原発事故により放出された放射性 Cs が土壤に吸着される程度や、土壤中の移動速度を把握することは、将来の環境中での挙動予測および線量評価において重要である。そこで本研究では、Cs の  $K_d$  について、土壤に添加された場合の  $K_d$  (吸着  $K_d$ 、または  $K_{d,\text{add}}$  と記載) と、土壤から脱離する量を推定するための  $K_d$  (脱離  $K_d$ 、または  $K_{d,\text{des}}$  と記載) を実験および文献調査により収集するとともに、実際の環境中における放射性 Cs の挙動を評価するために適切な  $K_d$  値の導出についての考察を行った。

## 2. 材料及び方法

### 2.1 室内実験による $K_d$ 取得

#### 2.1.1 3 種類の土壤を用いた RI トレーサー実験による $K_d$ 取得

使用した農耕地土壤試料は、新潟県（グライ低地土）、福島県（褐色森林土）、茨城県（多湿黒ボク土）から採取したものを風乾後、篩にかけて小石や植物根を取り除き ( $\phi < 2 \text{ mm}$ )、よく混合して捻蓋式のポリプロピレン容器に封入し、室温暗所にて保存してあった3試料を用いた。これらの土壤特性を Table 1 に示す。これらは以前  $^{137}\text{Cs}$  の  $K_d$  をバッチ法で測定した際に用いた試料である<sup>12</sup>。陸域で汚染した土壤は浸食作用を受けて、最終的には沿岸域に移動すると想定できるため、まずは海水を用いてどの程度放射性 Cs が土壤に吸着するのかを確認したのち、脱離溶液を超純水に変え、その後再び海水として脱離実験を行なった。

実験は超純水や海水による Cs 脱離の時間経過を見るために、各試料3連で次の手順により行った。土壤 3.0 g を 50 mL ポリプロピレン容器に分取し、人工海水（日本製薬、海産微細藻類用ダイゴ人工海水 SP）を固液比が 1:10 となるように 30.0 mL 加えた後、予備振とうを 24 時間 23°C で行った（タイテック、BR-300LF）。この溶液にキャリアフリーの  $^{137}\text{CsCl}$  溶液を 1 試料あたり約 20 kBq の一定量を添加し、さらに 7 日間連続振とうさせた。その後溶液を遠心分離機（日立、HIMAC CT5L）で 3000 rpm で分離し、できるだけ上清を回収し、得られた上清を 0.45 μm のディ

Table 1 Soil properties used in this study.

Prefecture (soil type)	Sand 0.02-2 mm (%)	Silt 0.002-0.02 mm (%)	Clay <0.002mm (%)	Water content (%)	Cation exchange capacity (meq/100g)	Electric conductivity (1:5) (μm/cm)	pH (H <sub>2</sub> O)
Niigata (Gley lowland soil)	25	36	38	10.0	14.0	92	5.4
Fukushima (Brown forest soil)	54	22	24	6.5	16.3	194	6.7
Ibaraki (Wet andosol)	54	30	16	10.7	11.7	152	6.7

スポフィルターでろ過した。ろ液中の<sup>137</sup>Cs濃度をNaI(Tl)オートウェルカウンター(アロカ、ARC-380)で測定し、土壤に吸着した<sup>137</sup>Cs量を求めた。

その後、土壤が残ったポリプロピレン容器に超純水(メルク、Milli-Q Integral)を30 mL加えて1分間手で軽く振とうし、再び溶液を遠心分離機で分離して上清を取り除き、容器内に残留した海水を含む土壤溶液をほぼ除去した。このようにして得た<sup>137</sup>Csを吸着した土壤に、再び超純水を30 mL加えて連続振とうを開始し、1、3、7日後に1 mLずつ採取し、0.45 μmのディスポフィルターでろ過したろ液中の<sup>137</sup>Cs濃度を測定した。この一連の操作で得られた吸着Kd(Kd<sub>add</sub>, L/kg)と脱離Kd(Kd<sub>des</sub>, L/kg)を次式により求めた。

$$Kd_{add} = \frac{(A_i - A_{l1})}{C_{l1}} \cdot \frac{1}{W_s} \quad (1)$$

$$A_{l1} = C_{l1} \cdot W_{l1} \quad (2)$$

$$Kd_{des} = \frac{(A_i - A_{l1} - A_{l2})}{C_{l2}} \cdot \frac{1}{W_s} \quad (3)$$

A<sub>i</sub>は試料に添加した<sup>137</sup>Cs総量(Bq)、A<sub>l1</sub>は海水による吸着実験終了時における溶液中の<sup>137</sup>Cs総量(Bq)であり、式(2)に示した終了時における<sup>137</sup>Csの溶液中濃度C<sub>l1</sub>(Bq/L)と溶液量W<sub>l1</sub>(L)から求められ、W<sub>s</sub>は用いた土壤試料重量(kg)である。式(3)に含まれるA<sub>l2</sub>は、A<sub>l1</sub>に用いた式(2)と同様に、脱離溶液採取時における<sup>137</sup>Csの溶液

中濃度C<sub>l2</sub>(Bq/L)と脱離溶液量W<sub>l2</sub>(L)から求めた脱離溶液中の<sup>137</sup>Cs総量(Bq)である。純水による洗浄時には、土壤に吸着した<sup>137</sup>Csが総量に影響を及ぼすほど脱離すると考えにくいため、純水による追加溶出分は補正していない。

引き続き、最初に調整した人工海水と同じ溶液を用いた脱離実験を行った。上述の土壤試料から土壤溶液を十分取り除いた後、海水を30 mL添加して連続振とうを開始し、1、3、7、10日後に1 mLずつ採取し、0.45 μmのディスポフィルターでろ過したろ液中の<sup>137</sup>Cs濃度を測定し、式(3)を改変して次式によりKd<sub>des</sub>を求めた。

$$Kd_{des} = \frac{(A_{i2} - A_{l2})}{C_{l2}} \cdot \frac{1}{W_s} \quad (4)$$

A<sub>i2</sub>は超純水添加脱離実験後に土壤中に残留した<sup>137</sup>Cs総量(Bq)であり、脱離溶液の溶媒は変わったが、A<sub>l2</sub>とC<sub>l2</sub>の定義は一緒である。

## 2.1.2 汚染土壤試料を用いた放射性Csの脱離Kd取得

福島県伊達市の森林において2012年9月に採取した土壤を使用して脱離実験を2012年10月に行なった。土壤分類や土壤特性は不明である。よく混合して篩別した(ϕ < 2 mm)風乾前の湿潤土壤中の<sup>137</sup>Cs濃度は約12 Bq/g湿であった。この土壤を用い1試料あたり25 g(風乾で15.3 g、約300 Bq/sample)を用いて脱離実験を行なった。で

きるだけ固液比を1:10に近づけるため、添加する水量を200 mLとした。溶液には超純水または人工海水を用いて連続振とうを行い、振とう開始から1時間、1、3、7日後に各1試料を取り出した。試料を遠心分離後0.45 μmフィルターでろ過を行い、得られたろ液100 mLを使って抽出された放射性Cs濃度(<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Cs)をゲルマニウム半導体検出装置(Seiko EG&G)で測定した。これによりKd<sub>des</sub>は次式により求めた。

$$Kd_{des} = \frac{(C_s - C_l)}{C_l} \cdot \frac{W_l}{W_s} \quad (5)$$

C<sub>s</sub>は土壤試料中の<sup>137</sup>Cs濃度(Bq/kg)、C<sub>l</sub>は溶液中の<sup>137</sup>Cs濃度(Bq/L)、W<sub>l</sub>は脱離溶液総量(L)、また繰り返しになるがW<sub>s</sub>は用いた土壤試料重量(kg)である。

超純水を使って脱離した土壤については、2.1.1と同様に、沿岸域に移動した時を想定して海水を使って溶出を試みた。土壤から超純水で1時間または1日間抽出した試料については海水による1時間の抽出、3日と7日間抽出した試料については、海水による1日間の抽出を行い、次式により抽出割合(R)を求めた。

$$R = \frac{C_{l-seawater} \cdot W_{l-seawater}}{C_s \cdot W_s - C_l \cdot W_l} \quad (6)$$

ここで、C<sub>l-seawater</sub>は海水で脱離後の溶液中の<sup>137</sup>Cs濃度(Bq/L)、W<sub>l-seawater</sub>は脱離海水の溶液総量(L)である。C<sub>l</sub>とW<sub>l</sub>はそれぞれ海水で抽出する前の純水による抽出で使った値である。

## 2.2 文献調査によるCsのKd収集

データは論文検索エンジン(Google scholarとJ-Stage)を用い、福島第一原発事故以降に陸域土壤のKdを報告している論文、土壤および土壤溶液中の放射性Csを報告した論文を抽出した。データが報告されている場合はそのまま、またKd<sub>add</sub>やKd<sub>des</sub>データが図で供給されている場合は、図から数値を読み取った。なお、Kd<sub>add</sub>としては放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP)を求ることでKd<sub>add</sub>が導出できることから、それをKd<sub>add</sub>として報告する論文も見られた。しかしその実験条件では溶媒として100 mM CaCl<sub>2</sub>+

0.5 mM KClを使っているため共存元素濃度が高く、またKd<sub>add</sub>を導出するためには最終溶液中のK<sup>+</sup>濃度が必要だが、計測せずに初期濃度を与えてKd<sub>add</sub>を導出するケースも見られた。このような場合、適切なKd<sub>add</sub>が得られないと考えられたため、土壤のRIPを報告する論文では実験条件を精査してKd<sub>add</sub>データ収集を行った。

脱離の場合、Kd<sub>des</sub>としてデータを報告していない論文では、土壤中濃度(A<sub>s</sub>、Bq/kg)と土壤溶液中濃度(A<sub>l</sub>、Bq/L)から次式により導出した。

$$Kd_{des} = \frac{A_s}{A_l} \quad (7)$$

収集対象とした土地利用としては、農耕地、森林、草地およびその他用途があり、放射性Cs添加実験、安定Cs添加実験の他、実際に汚染した土壤試料からの溶出実験のデータを収集した。河川や湖沼等の淡水の浮遊物質や堆積物を対象にしたKdは含めていない。

## 3. 結果および考察

### 3.1 室内実験により得られたKdについて

#### 3.1.1 3種類の土壤を用いたRIトレーサー実験によるKd

我々は以前、本試験に用いた土壤について、雨水試料を模して超純水を使ったバッチ実験で得たKd<sub>add</sub>として新潟土壤で5880 L/kg、福島土壤で1190 L/kg、茨城土壤で1260 L/kgを報告している<sup>12</sup>。これらの土壤を用い、まず海水により得た収着Kdは、グローバルフォールアウト<sup>137</sup>Csデータを使った実測の海洋における海底土Kd<sup>13</sup>や実験で求めたKd<sup>14</sup>と同程度のレベルであることが確認できた(Table 2)。すなわち、どの土壤でも海水を用いるとKd<sub>add</sub>が一桁程度低くなり、共存元素濃度がKd<sub>add</sub>値に影響することがわかった。

次に接触させる溶液を超純水に変え、一旦収着した<sup>137</sup>Csを脱離して求めたKd<sub>des</sub>は1dから7dに経過する際、やや減少するか、またはほとんど変わらず、7dにおいてKd<sub>des</sub> 3320-7590 L/kgとなり、Kd<sub>add</sub>よりも高くなつた。Kd<sub>des</sub>がKd<sub>add</sub>よりも高くなる傾向をKasarら<sup>15</sup>も報告している。さらに海水条件に変更してKd<sub>des</sub>を求めたところ、152-231 L/kgとなり、最初に求めたKd<sub>add</sub>と比べ

Table 2 Kd (L/kg) values of  $^{137}\text{Cs}$  for three soils obtained by using pure water followed by seawater as soil solution.

Prefecture	Seawater Kd <sub>add</sub>	Pure water			Seawater			
		Kd <sub>des</sub> (1d)	Kd <sub>des</sub> (3d)	Kd <sub>des</sub> (7d)	Kd <sub>des</sub> (1d)	Kd <sub>des</sub> (3d)	Kd <sub>des</sub> (7d)	Kd <sub>des</sub> (10d)
Niigata	209 ± 6	10300 ± 750	8370 ± 990	7590 ± 380	242 ± 4	238 ± 5	239 ± 5	231 ± 6
Fukushima	131 ± 1	4990 ± 380	4280 ± 40	3320 ± 170	188 ± 2	189 ± 0	192 ± 2	193 ± 3
Ibaraki	97 ± 1	3360 ± 380	2880 ± 180	4060 ± 180	148 ± 1	148 ± 2	150 ± 2	152 ± 0

± shows standard deviation of three sub-samples.

るとやや上昇したが、同程度であった。これらの結果から、超純水や海水を用いた場合、Kd<sub>add</sub> と Kd<sub>des</sub> では後者が高くなる傾向があったことから、一旦土壤に吸着した Cs は脱離しにくくなるといえる。ただし、土壤が淡水域から海水に移動した場合には、以前筆者らも報告しているように<sup>13</sup>、淡水域で十分に脱離が進んでも放射性 Cs が土壤粒子から放出されると言える。

### 3.1.2 汚染土壤試料を用いた放射性 Cs の脱離 Kd

本土壤については繰り返しなしの実験であるが、3 反復で行なった 3.1.1 の結果から、同質の土壤を使えば繰り返し誤差は 10% 程度に収まると考えられる。まず超純水または人工海水を用いた時の Kd<sub>des</sub> の経時変化を Fig. 1 に示す。海水による結果は RI トレーサー実験の時と同様に、時間が経過してもほとんど値が変化せず、7 dにおいて 270 L/kg を得た。一方、超純水による脱離実験の場合、一旦 Kd<sub>des</sub> が減少した後、上昇する結果が得られた。この傾向は RI トレーサー実験での茨城土壤と同様の傾向であった。超純水を添加した場合の放射性 Cs の Kd<sub>des</sub> は 1、3、7d の平均として 6190 L/kg が得られた。

次に RI トレーサー実験の際と同様に、超純水で Kd<sub>des</sub> を求めた試料を使って、さらに人工海水により脱離できるのかを確認したところ、土壤中の放射性 Cs の 3-4% が溶出された (Fig. 2)。これらのデータを使って Kd<sub>des</sub> として評価すると、超純水による脱離 Kd 用の 1h と 1d の実験終了後、1h の海水との接触により 310-320 L/kg、3d と 7d の実験終了後、1d の海水との接触により、350-460 L/kg が得られた。時間による接触の違いを

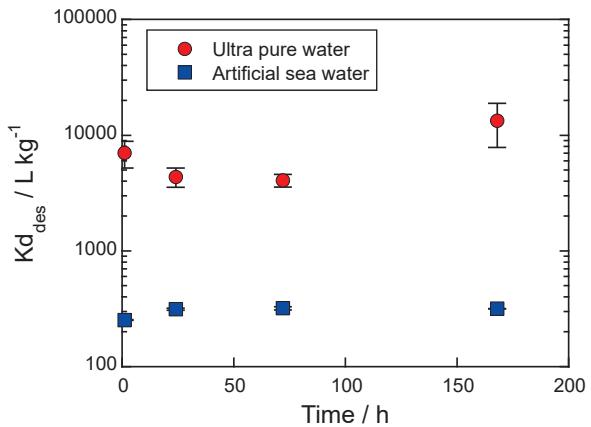


Figure 1. Time dependence of desorption Kd of radiocaesium in the contaminated forest soil collected in Fukushima Prefecture due to the Fukushima nuclear accident. Bars indicate 1 sigma counting errors.

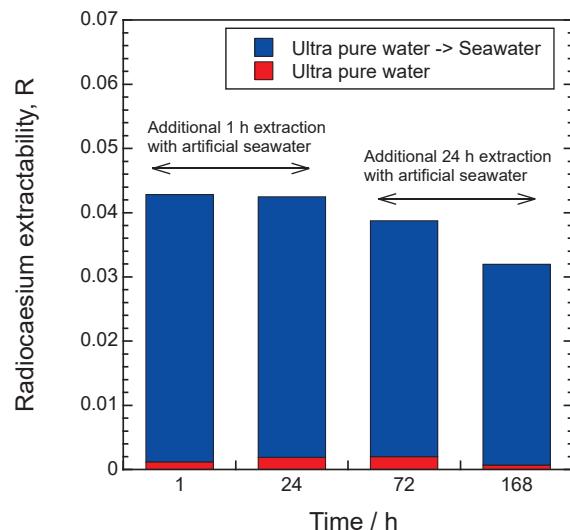


Figure 2. Extractability of radiocaesium (R) in the contaminated forest soil collected in Fukushima Prefecture due to the Fukushima nuclear accident.

念頭に検討を行ったが、 $Kd_{des}$  の違いはあまり大きくなかった。このことは、海水と土壤を閉鎖環境において長時間接触させても  $Kd_{des}$  の変化が小さいことを示唆している。

3.1.1 および 3.1.2 の結果からも、共存する塩濃度に依存して Cs の  $Kd_{des}$  は変動する。したがって  $Kd_{add}$  や  $Kd_{des}$  を求める際、溶液の共存元素濃度は実環境で起こりうる現実的なものを用いるのが適切であろう。例えば陸上においては、土壤に到達した放射性核種が土壤に保持されている間、接触する可能性が高いのは雨水と考えられることから、超純水を選択することは妥当であるといえる。これまでの研究においても、蒸留水や雨水を模擬するために脱イオン水を大気中に 24 時間以上さらしたもののが使用されている<sup>16, 17</sup>。なお、地下水を灌漑水として頻繁に土壤に散布する場合にはその地下水を、また沿岸域においては風送塩に

よって塩濃度が高まった雨水を使用することも考えなければならない。

### 3.2 文献収集結果

我が国の陸域土壤における  $Kd$  は、次の文献から収集することができた : Iwata et al.,<sup>18</sup> Matsunaga et al.,<sup>19</sup> Gang,<sup>20</sup> Mishra et al.,<sup>21</sup> Sato,<sup>22</sup> Uematsu,<sup>23</sup> Sakaguchi et al.,<sup>24</sup> Pratama et al.,<sup>25</sup> Sasaki et al.,<sup>26</sup> Takeda et al.,<sup>27</sup> Chaif et al.<sup>28</sup> 全てのデータのリストを Table S1\* に記載した。また、Table 3 と Table 4 にはそれぞれ  $Kd_{add}$  と  $Kd_{des}$  を放射性／非放射性核種さらには土地利用毎に分類してまとめた。Ishikawa-Kamei et al.<sup>12</sup> は、日本の農耕地土壤の  $Kd$  が対数正規分布をしていることを示している。そこで、幾何平均値 (Geometric mean, GM)、幾何標準偏差 (Geometric standard deviation, GSD)、最小、最大およびデータを対

Table 3 Summary of  $Kd_{add}$  for Cs observed after the Fukushima nuclear accident.

Isotopes	Land use	N	GM	GSD	Min	Max	ANOVA <sup>#</sup>
$^{137}\text{Cs}$ or $^{134}\text{Cs}$	Agricultural	23	$9.5 \times 10^2$	3.0	$1.3 \times 10^2$	$6.7 \times 10^3$	A
$^{137}\text{Cs}$ or $^{134}\text{Cs}$	Forest	34	$1.8 \times 10^3$	4.5	$6.8 \times 10^1$	$1.4 \times 10^4$	AC
$^{137}\text{Cs}$ or $^{134}\text{Cs}$	Grassland	13	$1.1 \times 10^3$	4.4	$1.1 \times 10^2$	$1.4 \times 10^4$	A
$^{133}\text{Cs}$ (stable)	Forest	23	$2.7 \times 10^2$	2.8	$6.3 \times 10^1$	$2.0 \times 10^3$	B
$^{133}\text{Cs}$ (stable)	Other use	8	$1.8 \times 10^2$	2.0	$6.7 \times 10^1$	$4.0 \times 10^2$	B
$^{137}\text{Cs}^*$	Agricultural	139	$3.4 \times 10^3$	2.9	$2.7 \times 10^2$	$>5.0 \times 10^4$	C

\*The same letter within the column are not significantly different ( $P < 0.01$ ). <sup>\*</sup>Data from Kamei-Ishikawa et al. (2008).

Table 4 Summary of  $Kd_{des}$  for Cs observed after the Fukushima nuclear accident.

Isotopes	Land use	N	GM	GSD	Min	Max	ANOVA <sup>#</sup>
$^{137}\text{Cs}$ or $^{134}\text{Cs}$	Agricultural	21	$7.6 \times 10^3$	4.4	$8.3 \times 10^2$	$7.6 \times 10^4$	a
$^{137}\text{Cs}$ or $^{134}\text{Cs}$	Forest	48	$5.8 \times 10^3$	5.2	$4.2 \times 10^2$	$1.8 \times 10^5$	a
$^{137}\text{Cs}$ or $^{134}\text{Cs}$	Grassland	18	$1.1 \times 10^4$	4.4	$2.7 \times 10^2$	$1.1 \times 10^5$	a
$^{133}\text{Cs}$ (stable)	Forest	6	$1.1 \times 10^3$	3.8	$7.5 \times 10^1$	$2.4 \times 10^3$	b
$^{133}\text{Cs}$ (stable)	Other use	2	$7.6 \times 10^2$		$4.1 \times 10^2$	$1.4 \times 10^3$	-

\*The same letter within the column are not significantly different ( $P < 0.05$ ).

\* Table S1 については、放射化学会ホームページより参照可能

数変換して分散分析を行った結果を本報告でも示すことにした。

安定 Cs 添加実験で得た森林土壤等の収着 Kd は幾何平均値 (GM) として  $2.7 \times 10^2$  L/kg、<sup>134</sup>Cs または <sup>137</sup>Cs の添加で得た森林土壤等の収着 Kd は GM が  $1.8 \times 10^3$  L/kg であり、安定 Cs による Kd は有意に低かった ( $p < 0.0001$ )。また、事故以前に我が国の全国の農耕地土壤で得られた Kd 値の GM として  $3.4 \times 10^3$  L/kg<sup>12</sup> が報告されているが、この値は福島第一原発事故後に得られた RI トレーサー実験による森林土壤の Kd<sub>add</sub> データとは有意差がなかった。事故後に得られた農耕地土壤および草地では Kd<sub>add</sub> が事故以前の全国の農耕地土壤と比べると有意に低かったが ( $p < 0.03$ )、GM の違いは 1/2-1/3 程度であった。文献には多くの土壤が福島県内で採取されたものであったことから、この結果は、福島県内の土壤の放射性 Cs の収着能が全国平均に比べてやや低い傾向にあることを示している。今後データを増やして検討する必要がある。安定 Cs の Kd<sub>add</sub> について、GM 値は事故以前の全国の Kd<sub>add</sub> の GM 値と比べると 1 衍以上低かった。少なくとも、安定 Cs を添加して得たデータは事故前後のデータと比較して有意に低いことからも ( $p < 0.0001$ )、その要因として安定 Cs の添加量が多すぎることが考えられた。

Kd<sub>des</sub> の場合、一旦土壤に収着された Cs を脱離させるが、土壤中に含まれる粘土鉱物への収着のメカニズムを考えると、Kd<sub>add</sub> よりも高くなることはよく知られている<sup>29</sup>。粘土のように特異吸着が知られている物質以外、例えば砂の場合でも、一旦収着した Cs はイオン交換態としてだけではなく、砂の粒子内で拡散するため脱離しにくくなる<sup>30</sup>。今回調べた結果、RI トレーサー実験で得た Kd<sub>des</sub> は Kd<sub>add</sub> よりも農耕地土壤と草地で GM がそれぞれ 8 倍、10 倍と高くなつたが、森林土壤では 3 倍程度であった。有機質の土壤は、粘土鉱物のサイトを有機物がブロックすることで、有機物結合態として存在する交換性 Cs が土壤中に滞留する<sup>31, 32</sup>。有機物結合態は交換性が高いことが影響し、森林土壤のように有機物が多い土壤では Kd<sub>des</sub> と Kd<sub>add</sub> の差が小さかつたものと考えられた。また同じく森林土壤を対象とした安定 Cs に

よる Kd<sub>des</sub> は Kd<sub>add</sub> よりも 4 倍程度高くなつており、多くの安定 Cs が有機物結合態だったことが要因だった可能性がある。この Kd<sub>des</sub> でも安定 Cs を使つた場合で有意に低かったことから、やはり過剰に Cs が添加されたことで、十分 Cs が土壤に保持できていなかつた可能性が示唆された。

放射性 Cs が環境中に放出された場合を考慮し、その挙動を安定 Cs の添加により解明しようとする際、添加される適正量を考慮しなければならない。近年は ICP-MS が多くの実験施設に普及して容易に使えるようになつたこともあり、ある程度低濃度のレベルの添加実験が、一般の実験室で行われる傾向にある。しかしながら、それでも放射性核種の原子数と安定核種の原子数間には大きな違いがあることを認識しておかなければならぬ。USEPA の報告書<sup>33</sup>によれば、Kd<sub>add</sub> を求めるにあたつては、吸着等温線の直線性を得るために、水中の Cs 濃度は  $10^{-7}$  M レベル以下でなければならないとしている。Cs 濃度、すなわち安定核種 <sup>133</sup>Cs で言えば、 $10^{-7}$  M (0.1 μM) は  $6.02 \times 10^{16}$  個/L であり、それに相当する <sup>134</sup>Cs、<sup>135</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs の放射能濃度はそれぞれ  $6.4 \times 10^8$  Bq/L、575 Bq/L、 $4.4 \times 10^7$  Bq/L となる。本研究の 2.1.1 に示した方法で、我々は 30 mL に対し約  $2 \times 10^4$  Bq を添加しているが、L 当たりに換算すると約  $6.7 \times 10^5$  Bq/L であり、USEPA<sup>33</sup> の示すレベルに比べて適切な濃度だったと言える。一方、Kasar ら<sup>15</sup> は 3 mg/L の安定 Cs を添加しており、その原子数は  $1.4 \times 10^{19}$  個/L と計算され、USEPA<sup>32</sup> の示すレベルの 230 倍に相当した。Kd<sub>add</sub> を求める際に必要な条件となる吸着等温線が成立するかについて、きちんと確認しないといけないレベルである。さらに、本研究との違いは固液比である。Kasar ら<sup>15</sup> や Mishra ら<sup>21</sup> は 1:30 を採用しており、したがつて、我々が本報告で用いている 1:10 よりも固相(= 土壤)に対する安定 Cs 添加量が多いことになる。

いくつかの文献には、安定 Cs 担体を含む放射性 Cs を使って得られる Kd<sub>add</sub> に注意喚起する論文もある。例えば中尾ら<sup>34</sup> は報告の中でメカニズム解明のために担体入りの <sup>137</sup>Cs を使つているが、その安定 Cs 担体濃度が 0.6 μM であったことから、留意点として彼らが報告している Kd<sub>add</sub> は無担体の <sup>137</sup>Cs による Kd<sub>add</sub> よりも小さくなる

ことを述べている。Takeda et al.<sup>35</sup> は青森県内で採取した土壤について、安定 Cs 担体濃度 0.05 mg/L=3.8 × 10<sup>-7</sup> M を超えると Kd<sub>add</sub> が減少することを示しており、これは USEPA<sup>33</sup> と同じ結果であった。Guivarch et al.<sup>36</sup> は 10<sup>-8</sup> M を超えると Kd<sub>add</sub> が顕著に減少した結果を示しているが、この値は上述の値よりも 1 衡程度低い。以上の結果から、土壤によって差はあるものの、概ね安定 Cs の濃度として 10<sup>-7</sup> M レベルが一つの目安となりそうである。したがって、これを明らかに超える濃度を添加している Kd<sub>add</sub> 実験では、得られた値は実際よりも Kd<sub>add</sub> 値が低く報告されていることになる。ここでは Kd<sub>add</sub> について詳細に示したが、Kd<sub>des</sub> でも同様のことが言えると考えられる。

Kd<sub>add</sub> の値からもわかるように、土壤溶液中の Cs は、安定 Cs 換算で溶液濃度が 1 × 10<sup>-7</sup> M (1 × 10<sup>-10</sup> mol/mL) の場合、ほとんどが土壤に吸着される。仮に固液比 1:10 で実験した場合、Kd = 1000 L/kg では、添加した安定 Cs の 99% が土壤に移行していたといえる。ここでは便宜上、1 g の土壤に対し全量の 1 × 10<sup>-9</sup> mol (=6.02 × 10<sup>14</sup> 個) が吸着できたと仮定すると、<sup>134</sup>Cs 放射能濃度換算で 6.4 × 10<sup>6</sup> Bq/g、<sup>137</sup>Cs では 4.4 × 10<sup>6</sup> Bq/g に相当する。福島第一原発事故時の 2011 年 3 月 31 日の定点観測（原子炉から南南西約 500 m）において<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs についてそれぞれ最大値 3.8 × 10<sup>6</sup> Bq/kg（合計 7.6 × 10<sup>6</sup> Bq/kg、すなわち 7.6 × 10<sup>3</sup> Bq/g）が報告されている<sup>37</sup>。このような高濃度汚染であっても、上述した土壤 1 g に対する放射性 Cs 吸着能に対し、3 衡近く低い濃度であったことから、福島第一原発事故と同程度の放射性 Cs の放出があったとしても、土壤は十分に放射性 Cs を吸着する能力を持っていると考えられる。したがって、放射性 Cs の土壤保持能の評価に用いる際の Kd は、安定 Cs で得たものよりも、担体を含まない放射性 Cs を使って得た Kd の方が適切であると言える。

#### 4. まとめ

本研究では福島第一原発事故後に報告された土壤 - 土壤溶液間分配係数、Kd について、室内実験および文献調査によりデータを収集し、解析を行った。室内実験では既に汚染した土壤を念頭に

脱離 Kd に着目した。淡水環境においては Kd<sub>des</sub> が高く、沿岸域に到達すると Kd<sub>des</sub> が下がるもの、その値は以前報告されたものと同程度であった。すなわち海水が混入すると Kd<sub>des</sub> は淡水環境よりも低下し、Kd<sub>add</sub> でも同様の傾向があった。また文献調査の結果、RI トレーサー実験で得た Kd<sub>add</sub> データよりも、安定 Cs を添加して得られた Kd<sub>add</sub> が有意に低い結果が得られた。これは主に土壤に対する Cs 原子量が安定 Cs の場合多すぎることが要因であると考えられた。ICP-MS 等の微量測定装置が普及し、放射性核種に変わって安定元素を使った実験も行われるようになってきたが、放射性核種との原子数量の違いを考慮する必要がある。セシウムの場合、安定 Cs 換算で溶液濃度が 1 × 10<sup>-7</sup> M 程度がひとつの目安となりそうである。したがって、長期評価にあたっては、1 × 10<sup>-7</sup> M (=1.3 × 10<sup>2</sup> mg/L) 以上の安定 Cs を添加して得られた Kd<sub>add</sub> を用いるのではなく、実際に汚染した土壤を用いた Kd<sub>des</sub> または RI トレーサー実験で得た Kd<sub>add</sub> や Kd<sub>des</sub> を用いた方が確からしいと考えられた。

しかしながら、土壤の性質がどのように放射性 Cs の Kd<sub>add</sub> や Kd<sub>des</sub> に影響しているのかについては、十分検討することができていない。今後も適切な長期評価を行うための土壤中での移行メカニズムについて研究が必要である。

#### 謝辞

本研究の土壤試料の一部を提供してくださった量研機構福島再生支援研究部の石井伸昌博士と、RI トレーサー実験に協力していただいた東京ニュークリア・サービス株式会社の鍵谷茂雄氏に謝意を表します。

#### 引用文献

- (1) International Atomic Energy Agency, Approaches for Modelling of Radioecological Data to Identify Key Radionuclides and Associated Parameter Values for Human and Wildlife Exposure Assessments. IAEA TECDOC No. 1950 (IAEA, Vienna, 2021).
- (2) International Atomic Energy Agency, Handbook of Parameter Values for the

- Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. IAEA Technical Report Series No. 472 (IAEA, Vienna, 2010).
- (3) J. Zheng, L. Cao, K. Tagami, S. Uchida, *Analytical Chemistry*, 88, 8772 (2016).
  - (4) International Atomic Energy Agency, Environmental Transfer of Radionuclides in Japan following the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. IAEA TECDOC No. 1927 (IAEA, Vienna, 2020).
  - (5) O. Evrard, J. P. Laceby, H. Lepage, Y. Onda, O. Cerdan, S. Ayrault, *J. Environ. Radioact.* 148, 92 (2015).
  - (6) H. Tsukada, S. Nihira, T. Watanabe, S. Takeda, *J. Environ. Radioact.* 178, 354 (2017).
  - (7) A. V. Konoplev, Y. Wakiyama, T. Wada, V. N. Golosov, K. Nanba, T. Takase, *Water Resour.* 45, 589 (2018).
  - (8) K. Sakuma, H. Tsuji, S. Hayashi, H. Funaki, A. Malins, K. Yoshimura, H. Kurikami, A. Kitamura, K. Iijima, M. Hosomi, *J. Environ. Radioact.* 184, 53 (2018).
  - (9) A. Takeda, H. Tsukada, N. Yamaguchi, M. Takeuchi, M. Sato, A. Nakao, S. I. Hisamatsu, *J. Environ. Radioact.* 137, 119 (2014).
  - (10) 中尾淳, 高橋嘉夫, *Radioisotopes*, 69, 79 (2020).
  - (11) H. Takata, N. Inatomi, N. Kudo, *Sci Total Environ.* 701, 134550 (2020).
  - (12) N. Kamei-Ishikawa, S. Uchida, K. Tagami, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 433 (2008).
  - (13) 田上恵子, 内田滋夫, *分析化学* 62, 527 (2013).
  - (14) 福井正美, 藤川陽子, 井岡達也, 木村雄一郎, 本田嘉秀, 桂山幸典, *日本原子力学会誌* 31, 1165 (1989).
  - (15) S. Kasar, S. Mishra, S. K. Sahoo, N. Kavasi, Y. Omori, H. Arae, A. Sorimachi, T. Aono, *J. Environ. Radioact.* 233, 106617 (2021).
  - (16) 山本忠利, 大塚芳郎, 小川弘道, 和達嘉樹, *日本原子力学会誌* 30, 942 (1988).
  - (17) 石井友章, 稲川聰, 軍司康義, 坂本義昭, 武部慎一, 小川弘道, 佐々木朋三, 原子力バッケンエンド研究 8, 55 (2001).
  - (18) H. Iwata, H. Shiotsu, M. Kaneko, S. Utsunomiya, *Advances in Nuclear Fuel*, edited by S.T Revankar (IntechOpen, Rijeka, 2012), p.123.
  - (19) T. Matsunaga, J. Koarashi, M. Atarashi-Andoh, S. Nagao, T. Sato, H. Nagai, *Sci Total Environ.* 447, 301 (2013).
  - (20) S. J. Gang, *Interpreting Radioactive Cesium Migration in Forest Soil after Fukushima Nuclear Accident: Monitoring and Modeling Approach* (Doctoral dissertation, 京都大学, 2014).
  - (21) S. Mishra, S. K. Sahoo, H. Arae, Y. Watanabe, J. W. Mietelski, *J. Chromatogr. Sep. Tech.* 5, 250 (2014).
  - (22) H. Sato, *Proceedings of International Symposium on Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future*, edited by T. Takahashi, H. Yamana, H. Tsukada, N. Sato, M. (Kyoto University Research Reactor Institute, Osaka, 2015), p.85.
  - (23) S. Uematsu, *Radiocaesium transfer to crops in the Fukushima affected environments: a soil chemical and plant physiological approach* (Doctoral Thesis KU Leuven, Science, Engineering and Technology, No.1395, 2017).
  - (24) A. Sakaguchi, H. Chiga, K. anaka, H. Tsuruta, Y. Takahashi, *Geochem. J.* 52, 187 (2018).
  - (25) H. A. Pratama, M. Yoneda, Y. Shimada, Y. Satoshi, M. Ikegami, *IOP Conf. Series: J. Physics: Conf. series* 1198, 022026 (2019).
  - (26) T. Sasaki, D. Matoba, T. Dohi, K. Fujiwara, T. Kobayashi, K. Iijima, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 326, 303 (2020).
  - (27) A. Takeda, H. Tsukada, Y. Unno, Y. Takaku, S. I. Hisamatsu, *J. Environ. Radioact.* 217, 106207 (2020).
  - (28) H. Chaif, F. Coppin, A. Bahi, L. Garcia-Sanchez, *J. Environ. Radioact.* 232, 106567 (2021).

- (29) S. Maguire, I. D. Pulford, G. T. Cook, A. B. Mackenzie, *J. Soil Sci.* 43, 689 (1992).
- (30) 福井正美, 桂山幸典, 土木学会論文報告集 254, 37 (1976).
- (31) E. Valcke, A. Cremers, *Sci Total Environ.* 157, 275 (1994).
- (32) C. N. Hsu, K. P. Chang, *Appl. Radiat. Isot.* 45, 433 (1994).
- (33) USEPA, Understanding Variation in Partition Coefficient, Kd, values. Volume II: Review of Geochemistry and Available Kd values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium ( $^3\text{H}$ ), and Uranium. EPA 402-R-99-004B (USEPA, Washington, 1999).
- (34) 中尾淳, 武田晃, 塚田祥文, 舟川晋也, 小崎隆, *日本土壤肥料学雑誌*, 82, 290 (2011).
- (35) A. Takeda, H. Tsukada, A. Nakao, Y. Takaku, S. I. Hisamatsu, *J. Environ. Radioact.* 122, 29 (2013).
- (36) A. Guivarch, P. Hinsinger, S. Staunton, *Plant Soil* 211, 131 (1999).
- (37) TEPCO, 福島第一原子力発電所周辺環境への影響アーカイブ 2011年4月14日福島第一原子力発電所構内における土壤中の放射性物質の核種分析の結果について(続報3)別紙2: 土壤ガンマ線核種分析結果.  
[https://www.tepco.co.jp/cc/press/betu11\\_j/images/110414n.pdf](https://www.tepco.co.jp/cc/press/betu11_j/images/110414n.pdf) (アクセス日: 2022/8/2)

## 特集 2022年度学会奨励賞

### 学会奨励賞

庭瀬 晓隆（高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所 和光原子核科学センター）

受賞題目：精密質量と崩壊事象の相関測定法の開拓による超重元素の直接質量測定



#### 1. はじめに

この度は、日本放射化学会2022年奨励賞を受賞できたことを大変光栄に思います。本成果は私が博士論文としてまとめました、九州大学大学院（九大）の修士・博士課程在学時の一連の研究によるものです。多くの方の助けをいただき、このような栄誉ある賞へと繋がる研究を遂行できたことを、大変嬉しく思います。研究概要の紹介に先立ちまして、私が放射化学、特に超重元素研究を志した理由、この研究を始めたきっかけについて簡単に述べさせていただきます。

時は2010年の2月頃でしたでしょうか。当時高校1年生であった私は、112番元素にコペルニシウムという名前がつけられたという話を耳にしました。当時の私にとって、元素周期表に新しい元素が増えるというニュースは非常に興味深く、いったいなぜ・どのようにして元素が増えるのだ？という疑問が頭の中を駆け巡りました。書籍やインターネットを駆使して調べていった結果、どうやら元素は原子核同士の融合反応によって作られているらしい。しかも日本でも新元素を作り出す研究を行っているではないか。ということを知ります。私は、後の指導教員となる理化学研究所（理研）の森田浩介チームリーダーの元を訪ね、以降に関東近郊で開催された講演会は（たぶん）皆勤賞と、徐々に、そしてどっぷりと、原子核物理学、特に超重元素の“魅力”に取り込まれていきました。

その後、東京理科大学（理科大）の理学部第一部物理学科に進学。学部2年生の時に森田さんから九大の教授に着任されたとのメールをいただき、のちに九大大学院へと進学いたします。理科

大在学時は物理学の基本を学ぶだけでなく、東京の飯田橋という地の利を活かして連日のように秋葉原へと通い、自室にもオシロスコープやボール盤を揃え、電子工作で遊ぶ日々に明け暮れました。理科大には原子核実験の研究室は無かったのですが、電子工作を趣味としているという話を聞いた光物性系の研究室（指導教員：徳永英司先生）から声をかけられ、1年という短い期間でしたが測定器開発を任せられ、特許の出願をさせていただくなど、貴重な経験をさせていただきました。

私が九大大学院に進学してすぐに、113番元素にニホニウムという名前が命名されました。超重元素研究を志して進学し、日本初の新元素に命名がなされるという歴史的な時期に、研究生活を開始できたことは非常に幸運であったと感じています。

一方で同時期に森田さんが罹患されてしまい、直接細かい指導を受けることが難しくなってしまいました。そこで理研の加治大哉さんにご紹介いただいたのが、高エネルギー加速器研究機構 和光原子核科学センター（KEK WNSC）の和田道治教授です。詳細は後述致しますが、KEK WNSCでは新しい精密質量分析器 MROF が実用化され、ちょうど重核の質量測定実験の結果が出始めていた時期で、グループとしての次の目標は超重元素原子核の直接質量測定でありました。私自身に電子回路への造詣が多少はあったことも影響し、そこで測定の鍵となる新規検出器の開発を任せただけのことになりました。本研究成果は、この新規検出器開発からテスト実験、そして超重核の直接質量測定といった一連の研究についてまとめたものになります。

#### 2. 研究の概要

既に7年も前となっていましたが、2015

年の大晦日に 113・115・117・118 番元素の認定がされ、翌 2016 年にはそれぞれニホニウム (Nh)、モスコビウム (Mc)、テネシン (Ts)、オガネソン (Og) と命名がされました。現在の元素周期表は第 7 周期元素まですべて埋まった状態であり、理研をはじめとした世界各国の研究機関では、前人未到の第 8 周期元素である 119・120 番元素の探索実験の開始・準備が進められています。この研究の発端は、“どのようにして、未知の超重元素の同定を行うか。” というところにあります。2016 年に命名された 4 つの新元素の同位体のうち、理研で合成された  $^{278}\text{Nh}$  は冷たい融合反応 (cold fusion) と呼ばれる手法で合成がされました [1]。これは鉛やビスマスのような安定な原子核を標的核とし、これに核子あたりの結合エネルギーの大きな鉄、ニッケル、亜鉛といった核を入射核として衝突させ、融合反応を起こして原子核を作る方法です。冷たい融合反応で作られる超重核は比較的中性子欠損側の同位体であり、その  $\alpha$  崩壊の崩壊連鎖は特性のよく知られている既知核へと接続されます。

一方で、ロシアのドゥブナ合同原子核研究所 (JINR) で合成され、その認定がされた Mc、Ts、Og の各元素は、熱い融合反応 (hot fusion) と呼ばれる手法が用いられました [2]。熱い融合反応は、アメリシウムやカリヨンリニウムといったアクチノイド元素を標的核として使用し、入射核はカルシウム等の原子番号の小さな原子核を用いる手法であり、比較的中性子過剰側の超重元素同位体が生成されます。熱い融合反応で生成される超重元素同位体は、崩壊連鎖が自発核分裂によって終端してしまい既知核へと到達しません。そのため JINR では、Cross bombardment 反応という手法を用いて、これらの核種の同定を主張しました。これは未知の超重核の親核と娘核をそれぞれ異なる融合反応で個々に合成し、それぞれの崩壊連鎖の一一致から核種の同定を行う方法です。この手法は、超重核の融合に際して、脱励起チャンネルが中性子放出チャンネルしか開いていない（つまり、標的核と入射核の原子番号の組み合わせから、融合される超重核の原子番号は一意に決まる）という仮定に基づいたものであり、相対的な核種同定にすぎません。元素認定の決定権を持つ国際

純正・応用化学連合 (IUPAC) および国際純粹・応用物理学連合 (IUPAP) の合同作業部会は、この問題を認識しながらもこれらの元素の認定を行い、将来的な更なる新元素合成へ向けて、より正確な原子番号同定手法の開発をしてほしいと結んでいます [3]。この正確な原子番号の同定手法の開発という “問い合わせ” に対して、自発核分裂する前の元素の化学的特性の測定計画 [4] や、 $\alpha$  崩壊に伴った特性 X 線測定 [5]、核種の質量数を一意にした状態で崩壊連鎖を測定したとされる実験 [6] の試みが世界各国でされてきました。

筆者らの研究グループはこの問い合わせに対して、原子核の精密な質量測定により超重核の直接同定を行うことを目指しました。そもそも原子核は、中性子や陽子といった核子の集合体が、結合エネルギーの分だけ軽くなった状態で安定した系と考えることができます。結合エネルギーは核の存在や安定性を決定する指標となり、核子間の相互作用を議論するための最も基本的かつ重要な物理量です。アインシュタインの特殊相対性理論から発生した質量とエネルギーの等価性により結合エネルギーは原子核の質量を示す物理量と等価であるため、精密質量測定によって原子核の存在や構造に関する重要な知見を得ることができます。また原子核の質量は核種固有の “指紋” のような物理量であり、同重体であってもその値は僅かに異なります。したがって精密質量測定は、超重元素の質量数と原子番号の明確な識別を可能にします。

筆者らのグループでは、多重反射型飛行時間測定式質量分光器 (MTOF) [7] を開発し、理研の気体充填型反跳分離装置 GARIS-II [8] へ結合させた SHE-Mass 装置 [9] を用いて、これまで重核の精密質量測定実験を遂行してきました。MTOF は 1 対の静電イオンミラーとイオントラップおよびイオン検出器によって構成された装置です。トラップした被測定イオンを静電ミラーからなる飛行管にパルス入射させ、管内を数百回往復させた後に取り出し、検出器で総飛行時間を測定し、その値から質量を決定します。SHE-Mass 装置の実験概略図および、MTOF の動作原理についてそれぞれ Figs. 1、2 に示します。本研究を開始した 2016 年当時、SHE-Mass 装置によって総計 80 核種以上もの中重核の直接質量測定に成功してお

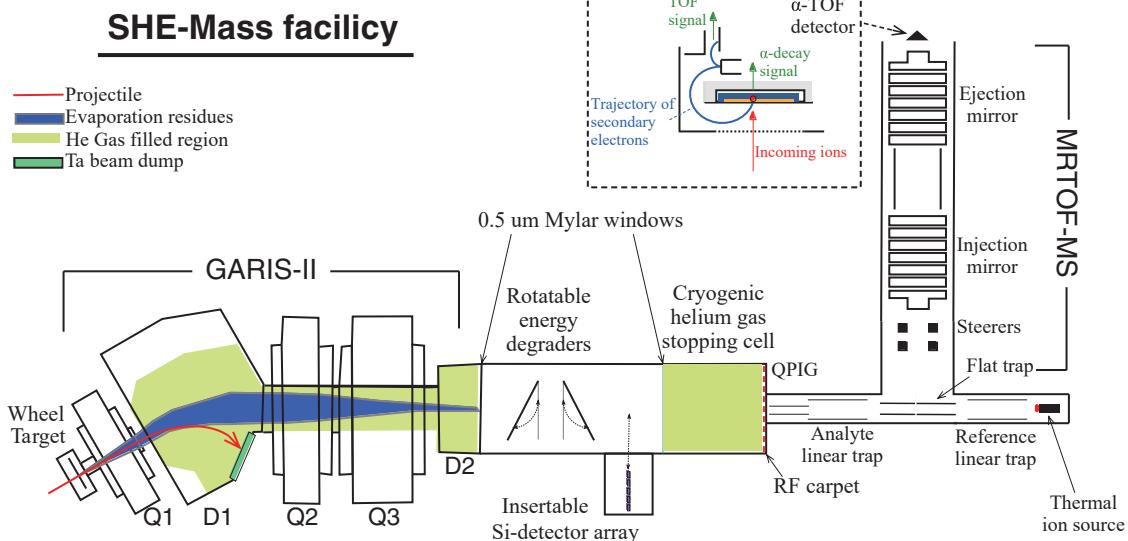


Fig. 1. Experimental setup of SHE-Mass facility which coupled with the GARIS-II and MRTOF-MS. The area highlighted in yellow is the filled with He gas. The  $\alpha$ -TOF detector, which developed in this works, was used to ion detector for MRTOF-MS.

り、その最も重たい元素は102番元素ノーベリウムの同位体、 $^{254}\text{No}$  [10]でした。我々の一番のライバルであったドイツ GSIでは、ペニングトラップ法(PTMS)という磁場によりイオンを閉じ込め、その共鳴周波数から原子核の質量を決定する方法で重核の直接質量測定を精力的に行っておりましたが、到達点は103番元素ローレンシウム(Lr) [11]と、両者ともに原子番号104番を越えた、いわゆる超重元素・超重核の直接質量測定には成功していませんでした。

超重核の直接質量測定を遂行するための隘路となっていたのは、非常に小さな生成反応断面積に起因して一度に取り扱えるイオンの量が極めて少ないとのことでした。超重核は比較的の生成率が多いものでは数分に1個から数時間に1個の生成率を持ち、原子番号が大きく成っていくにつれて数日に1個、将又数年に1個といった生成率へと減少していきます。質量測定を行うための装置群は、現状の絶対効率が1-5%程度ですので、実際の測定可能な事象数は生成率に装置の絶対効率を乗算した、極めて限定的な量となってしまいます。このような稀な事象の原子核の質量測定を成功するには、測定した真の超重核起因の信号と、散乱粒子や分子イオン等による偶発的な事象とを明確

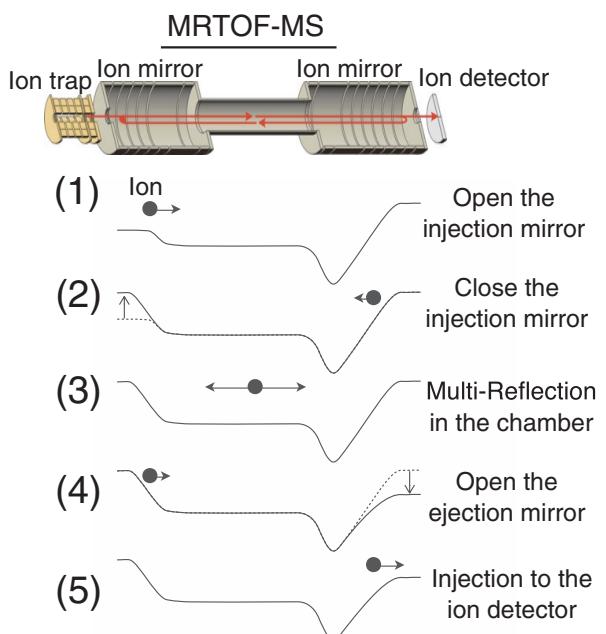


Fig. 2. Operation schematic view of the MRTOF-MS.

に弁別できる、真技術の開拓が急務でありました。これまでの超重核の同定がその崩壊連鎖の測定からされたことからも既知なように、超重核は $\alpha$ 崩壊 / 自発核分裂(SF)を主の崩壊様式とします。筆者らは、超重核の崩壊信号を核の“足跡”とし

て利用すること、具体的には超重核イオンの飛行時間とそれに引き続いた崩壊事象、これらを同時に取得し相関を取ることによって、超重核起因の信号のみを弁別することを着想し、本研究開発を開始しました。

## 2.1 $\alpha$ -TOF 検出器の開発

超重核イオンの飛行時間とそれに引き続いた崩壊事象を相関計測する。この概念の基で開発した新しい検出器が“ $\alpha$ -TOF”検出器 [12] です (Fig.3)。 $\alpha$ -TOF は豪州の ETP Ion Detect 社の製品であるイオン検出器、MagneTOF (14DM572) をベースとして開発しました。MagneTOF は開口部より入射されたイオンを衝突板で受け止め、その表面より放出される二次電子を電場と磁場によって等時的に輸送、後段の増倍管によって増幅することで、イオン入射のタイミング信号を取得する検出器です。このイオン衝突板へと  $\alpha$  崩壊 / SF 検出用の Si 半導体検出器 (Hamamatsu S-3590) を埋め込む事によって、 $\alpha$ -TOF を実現しました。埋め込んだ Si 検出器の表面には、イオン衝突板の電位を乱さないように金を 100Å 真空蒸着でコーティングし、片方の電極とワイヤボンディングで接続。更にその上に二次電子放出物質である

MgO を同量、スパッタリング法にて付着させました。また、MagneTOF のイオン衝突板は通常、-2100V 程度の負の高電位を印加して使用します。従ってその上に埋め込まれた Si 検出器も同様に高電位に浮かせて運用する必要があったため、併せて  $\alpha$ -TOF 専用の前置増幅回路の設計・開発をしました。米国 Cremat 社のハイブリット IC である CR-110 を用いて、高電位の基板上で信号の前置増幅を行い、ビデオ信号用の光通信モジュールによる光通信により、グラウンド電位に接地された後段の信号増幅器系へと信号を送り、波形整形と信号の取得を行います。開発した  $\alpha$ -TOF およびフロントエンド回路を用いて  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線源による性能評価試験を実施した結果、 $\alpha$  線のエネルギー分解能は 141.1 (9) keV、時間分解能は 250.6 (68) ps と評価されました。時間分解能は MRTOF での質量測定に充分な性能を有している一方で、エネルギー分解能は、超重核の  $\alpha$  線分光測定において通常使用される Si 検出器と比較すると劣ります。これは MagneTOF を構成している内部回路に使用しているツェナーダイオードからの放射ノイズの影響であると考えられ、削減は困難を極めます。将来的に  $\alpha$ -TOF を用いた核分光研究を行う場合には、エネルギー分解能の改

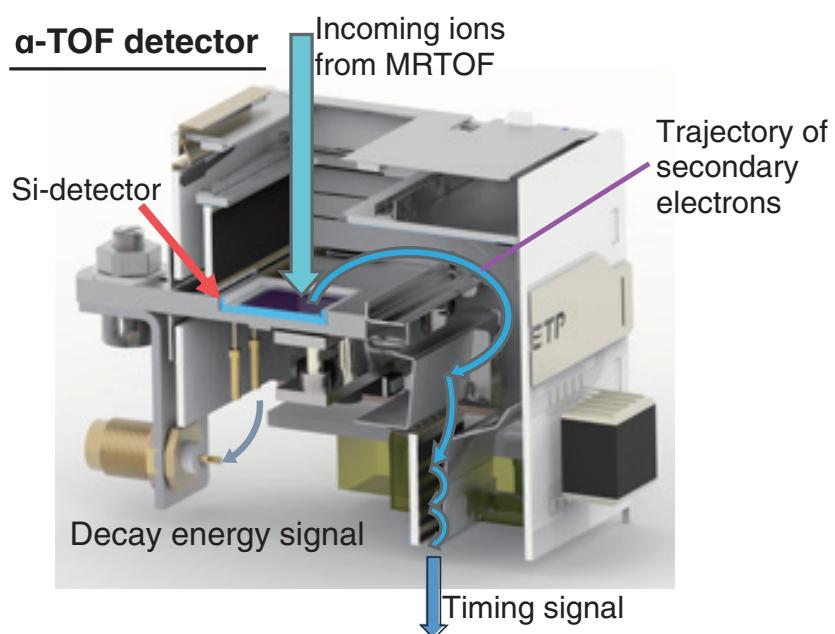


Fig.3. The cross sectional view of the  $\alpha$ -TOF detector.

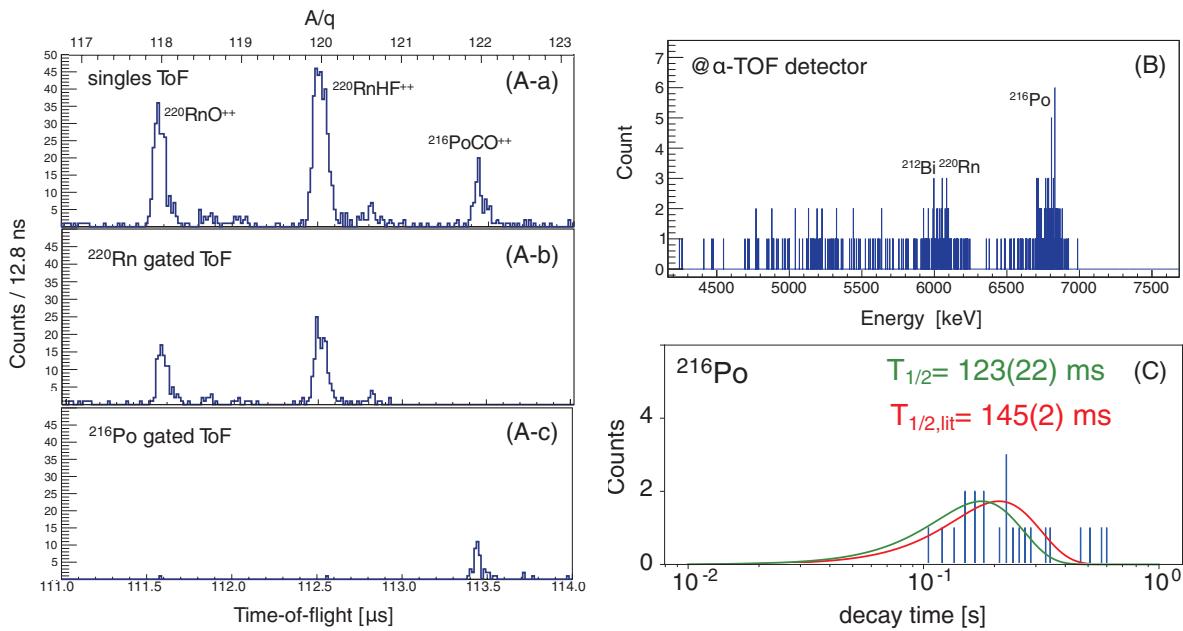


Fig. 4. (A) TOF spectra in the range of  $A/q = 117 \sim 123$ . (A-a) Singles TOF spectrum, (A-b) TOF spectrum in coincidence with  $^{220}\text{Rn}$   $\alpha$ -decays and (A-c) TOF spectrum in coincidence with  $^{216}\text{Po}$   $\alpha$ -decays. (B) A  $\alpha$ -spectrum measured by the  $\alpha$ -TOF detector. (C) Decay time distribution of  $^{216}\text{Po}$ . The red line indicates a distribution curve drawn with a literature value, and the green line indicates a distribution curve drawn with the experimentally obtained value.

善はしなければなりませんが、 $\alpha$ 崩壊信号が超重核起因かどうかという判断を行うには、充分な性能を持っていることが評価されました。

外部線源による基礎性能評価を行ったのち、 $\alpha$ -TOFはMRTOFのイオン検出器として導入し、MRTOFと組み合わせた原理実証実験を行いました。この実験では、化学分離により生成した $^{224}\text{Ra}$ 線源をMRTOF上流のガスセルへと導入し、線源より反跳されてくる娘核の $^{220}\text{Rn}$ および $^{216}\text{Po}$ を、実際の加速器実験と同等のスキームで輸送し、MRTOFでの質量測定および、その後の $\alpha$ 崩壊との相関測定を実施しました。結果をFig. 4に示します。Fig. 4 (A-a)に示したのがMRTOFで取得したシングルスの飛行時間スペクトルです。この測定ではMRTOF内の周回数は2周回にセットしました。質量分解能は $R_m \sim 1500$ 程度ですが、 $A/q$ での核種同定には充分な分解能です。 $^{220}\text{Rn}$ および $^{216}\text{Po}$ の分子ピークがそれぞれ観測されました。Fig. 4 (B)は $\alpha$ -TOFのSi検出器で観測した $\alpha$ 線スペクトルです。 $^{220}\text{Rn}$ と $^{216}\text{Po}$ の $\alpha$ 崩壊に相当するピークが見て取れます。これらの $\alpha$ 線

信号に対して、 $^{220}\text{Rn}$ と $^{216}\text{Po}$ 、それぞれのピークにゲートをかけて飛行時間信号との相関をとりました。 $^{220}\text{Rn}$ の崩壊信号と相関のとれている飛行時間信号をFig. 4 (A-b)に、 $^{216}\text{Po}$ の崩壊信号と相関のとれている飛行時間信号をFig. 4 (A-c)に示します。この結果から、 $\alpha$ 崩壊信号と飛行時間信号の相関測定により、興味のある原子核の飛行時間信号のみが弁別可能であるということが実証されました。また、 $^{216}\text{Po}$ の相関事象の崩壊時間（すなわち、飛行時間信号と $\alpha$ 崩壊事象を観測した時刻の時間差）をプロットしたのがFig. 4 (C)です。この測定値は、 $^{216}\text{Po}$ の半減期の文献値と誤差の範囲で一致しています。またこの測定から、相関測定の検出効率を44(8)%と評価しました。これはイオン衝突板に埋め込まれたSi検出器の立体角より導かれる幾何的な検出効率50%と一致しています。

以上により、超重核の飛行時間と崩壊事象の相関測定を実現する新規検出器 $\alpha$ -TOFの開発に成功し、超重核の直接質量測定へ向けた準備が整いました。

## 2.2 質量と崩壊の相関測定による異性体の分離

超重核の質量測定実験の結果の前に、MRTOF と  $\alpha$ -TOF による、核分光研究へのアプローチを目指した実証実験について紹介致します。この実験は、 $\alpha$ -TOF による  $\alpha$  崩壊事象の相関測定能を活かして、MRTOF 単体では分離できない異性体を分離し、質量測定から異性体の励起エネルギーや核の崩壊特性を決定することを目的として実施しました [13]。

実験は SHE-Mass 装置 (Fig.1) を用いて実施しました。理研リングサイクロン (RRC) によって供給された核子あたり 6 MeV の  $^{51}\text{V}$  ビームを、12.5  $\mu\text{m}$  のアルミニウム箔で融合反応に最適なエネルギーへと減衰させ、3  $\mu\text{m}$  の Ti バッキング上にスパッタリング法を用いて生成された  $^{159}\text{Tb}$  標的へと照射しました。アルミニウム箔と  $^{159}\text{Tb}$  標的是同じ回転標的上にマウントし [14]、標的是 2000 rpm の速度で回転させることで、高強度での照射に耐えられるようになっています。 $^{159}\text{Tb}$  ( $^{51}\text{V}$ 、X) 反応によって生成された種々の核種は、希薄な He ガスを充填された GARIS-II によって一次ビームから分離され、効率的に焦点面へと輸送されます。焦点面にはマイラー箔で構成された二次ビーム減衰箔が設置しており、ここで運動エネルギーを充分に落とした生成核種は、100 mbar の高純度 He ガスが充填された 50 K の

低温ガスセル内へと入射し、停止・熱化されます。イオンは高周波 (RF) カーペット [15] によって引き出され、続く多段の RF イオントラップによって MRTOF へと輸送され、MRTOF の飛行管内を周回します。MRTOF の周回数は本実験では 266 周回に調整し、質量分解能は約  $R_m \sim 200\,000$  でした。 $\alpha$ -TOF は MRTOF のイオン検出器として導入されており、イオンの総飛行時間の測定と、それに続いた  $\alpha$  崩壊事象の測定を行います。

実験結果の一例として、質量数 207 のシングルスの飛行時間スペクトルを Fig. 5 (A) の黒線で示します。 $^{207}\text{Fr}^{2+}$  および  $^{207}\text{Ra}^{2+}$  が観測されていますが、このうち  $^{207}\text{Ra}$  のスペクトルには  $^{207g}\text{Ra}$  ( $E_a = 7.133$  MeV,  $T_{1/2} = 1.38$  (18) s) および、異性体  $^{207m}\text{Ra}$  ( $E_a = 7.320$  MeV,  $T_{1/2} = 59$  (4) ms) が含まれています。これらの  $\alpha$  崩壊特性は異なるため、 $\alpha$ -TOF で測定した  $\alpha$  線信号のうち、エネルギーが高い ( $E_a > 7.32$  MeV) 信号と相関をしている飛行時間信号を抜き出したのが、Fig.5 (A) の青く塗ったヒストグラムです。この部分の崩壊時間をプロットしたものが Fig.5 (B) で、半減期解析の結果  $T_{1/2} = 55$  (9) ms という値が得られ、異性体の半減期の文献値と一致しています。従ってこの図の青いヒストグラムは  $^{207m}\text{Ra}$  の寄与が支配的であるということです。この情報を基にして、シングルスのヒストグラムをフィッティングし、 $^{207g,m}\text{Ra}$  そ

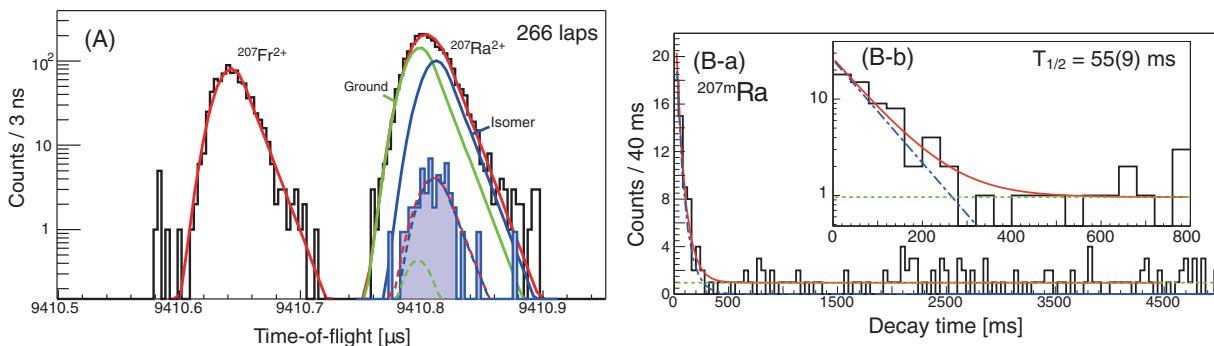


Fig. 5. (A) The TOF spectrum around the  $A = 207$  region along with the fitting results. The black and blue filled histograms are the singles and decay-correlated TOF events, respectively. The solid lines indicate the fitting curves of the singles histogram for ground state (green), isomeric state (blue), and summing of both states (red). The dashed lines similarly represent the fitting curves for the decay-correlated TOF spectrum. (B) The decay time distribution of  $^{207m}\text{Ra}$  gated by  $E_\alpha \geq 7.32$  MeV. The dashed green lines indicate the constant background events while the solid blue lines indicate the analyte component of  $^{207m}\text{Ra}$  and the solid red line represents their sum. (B-a) Full range spectrum up to 5 seconds, linear scale. (B-b) First 500 ms.

れぞれの質量値を決定。その質量差から  $^{207m}\text{Ra}$  の励起エネルギーを  $E_{\text{ex}} = 552 (42)$  keV と直接決定しました。これは過去に  $^{207m}\text{Ra}$  の  $\alpha$ - $\gamma$  線測定により決定されていた励起エネルギー  $E_{\text{ex,lit}} = 554 (15)$  keV と一致しています。また、飛行時間信号の総数と  $\alpha$  崩壊の数の比から、 $^{207m}\text{Ra}$  の  $\alpha$  崩壊分岐比の決定。励起エネルギーと  $\alpha$  崩壊分岐比より導かれる、周辺核との系統性より、 $^{207m}\text{Ra}$  のスピンパリティを  $13/2^+$  と決定することに成功をしました。この結果は、MRTOF による精密な質量測定と同時に、 $\alpha$  崩壊分光測定の実現性を実証する重要な実験結果となっています。

### 2.3 超重核 $^{257}\text{Db}$ の直接質量測定

最後にこの研究の集大成となる実験である、超重核  $^{257}\text{Db}$  の直接質量測定についてご紹介致します [16]。実験は 2.2 節と同様に理研の加速器施設内に展開しています SHE-Mass 装置を用いて実施しました。RRC から供給された 306 MeV の  $^{51}\text{V}$  ビームを炭素バッキング上に真空蒸着法で生成した  $^{208}\text{Pb}$  標的へと照射します。この反応系においても RRC から供給されるビームエネルギーは融合に最適なエネルギーよりも幾分高いので、標的中心で 243 MeV になるように  $12 \mu\text{m}$  のア

ルミニウム減衰箔を標的の前に設置しています。 $^{208}\text{Pb} (^{51}\text{V}, 2n) ^{257}\text{Db}$  反応は、過去に米国バークレー国立研究所から約 2nb の生成反応断面積が報告されています [17]。本実験開始前に GARIS-II の焦点面で  $^{257}\text{Db}$  の生成数を確認したところ、1 時間あたり 6 イベント程度観測がされました。MRTOF の効率は約 5 % であり、生成率から推定される MRTOF および  $\alpha$ -TOF での計数率は 1 日あたり 2 ~ 3 イベント程度です。このような条件の基で実験を遂行しました。

総計 4.5 日間のビーム照射の結果、総計 14 個の  $\alpha$  崩壊と飛行時間の相関事象が観測されました。実験で得られた  $^{257}\text{Db}^{3+}$  近傍の飛行時間スペクトルを Fig. 6 (a) に示します。4.5 日間の測定中、MRTOF の周回数を何度か変更しています。そのためそれぞれの測定での絶対的な飛行時間値は異なるため、参照イオンである  $^{85}\text{Rb}^+$  との飛行時間比として Fig. 6 (a) はプロットされています。図中、色付きで示された点およびヒストグラムが、 $\alpha$  崩壊事象との相関が取れている飛行時間信号です。Fig. 6 (b) には、 $\alpha$ -TOF で測定をした  $\alpha$  崩壊の相関事象それぞれのエネルギーと崩壊時間の二次元プロットを示します。Fig. 6 (b) の上部と右部には、応答関数から期待されるエネルギーと崩

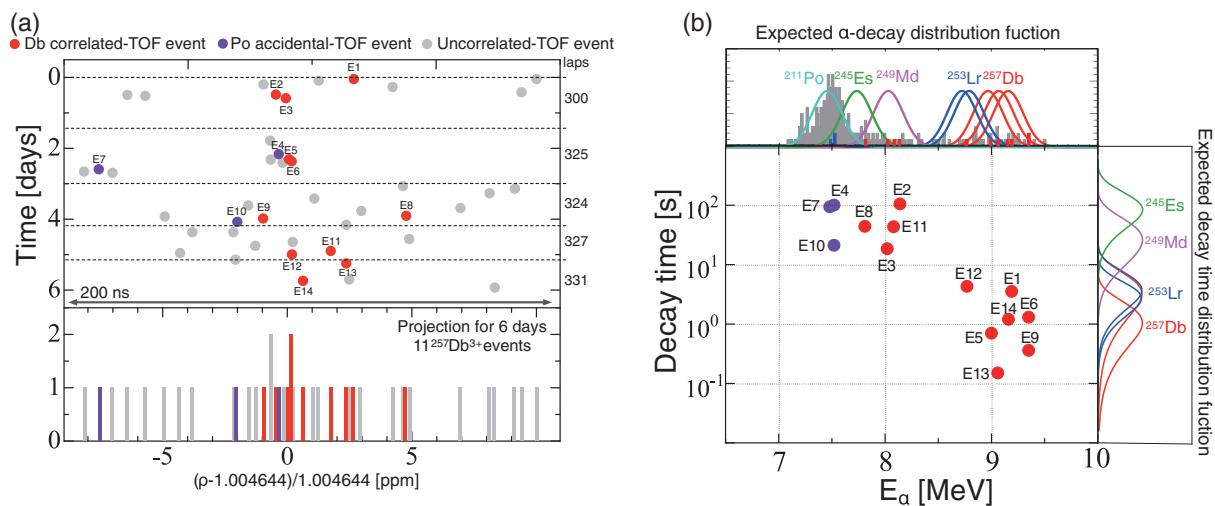


Fig. 6. (a) The TOF spectrum and the time evolution of events near the  $^{257}\text{Db}^{3+}$ . In order to normalize the flight time for different lap number, we plot the TOF ratio,  $\rho$ , to the reference ion  $^{85}\text{Rb}^+$ . The red color indicates the decay correlated events with the  $^{257}\text{Db}$  decay chain, and the purple color indicate the accidental correlated events with  $^{211}\text{Po}$ . (b) 2D-mapping of TOF-correlated  $\alpha$ -decay events in terms of decay energy and decay time. The detector response function for each  $\alpha$ -decay is shown at top, overlaying the  $\alpha$  singles spectrum with correlated event candidates denoted by colored marks.

壊時間の分布を示しており、エネルギー方向にはシングルスの $\alpha$ 線スペクトルを重ねています。この14個の相関事象に対して、観測した崩壊特性と文献値との比較から、それぞれの事象の信頼度計算[18]を行いました。結果、14個の事象のうちE4、E7、E10の3事象は、観測されたエネルギーが低く崩壊時間も長いことから、 $^{208}\text{Pb}$ 標的の核子移行反応生成物である $^{211}\text{Po}$ との疑似相関事象であると評価しました。一方で残りの11事象は確実に $^{257}\text{Db}$ およびその崩壊系列核種との相関事象であると結論付け、これら11事象より $^{257}\text{Db}$ の質量を質量超過(Mass excess)値 ME = 100 063 (231) keV/c<sup>2</sup>と評価しました。この値は孫核である $^{249}\text{Md}$ の質量と $\alpha$ 崩壊のQ値により間接的に評価されていた値と誤差の範囲で一致しています。以上の結果から筆者らは、世界初となる超重元素同位体の直接質量測定に成功をしました。

Fig. 7に、質量数257の各同重体のMass excess値を示します。緑色で示している部分がAME2016[19]に記載されている質量値で、青斜線で塗られている箇所はいくつかの理論計算が示している質量範囲です。今回の実験で得られた11個の相関事象は、それぞれの単独の事象のみから質量を導出した場合でも、その値は同重体

である $^{257}\text{Rf}$ や $^{257}\text{Lr}$ からは分離されており、 $^{257}\text{Db}$ の予測される質量範囲内に入っています。この実験結果は超重核の質量数と原子番号の一意な識別には、確度の高い1イベントで充分ということを示しており、精密質量測定が、超重核の新しい同定方法として極めて強力なツールであることを証明しています。

### 3. おわりに

本研究では超重核の直接質量測定を目指して、重核の飛行時間と崩壊事象の相関測定を行う全く新しい検出器 $\alpha$ -TOFを開発し、その性能評価と核分光研究へ向けた実証実験、そして105番元素同位体 $^{257}\text{Db}$ の質量測定実験を実施し、世界初となる超重元素の直接質量測定に成功をしました。冒頭で述べたように、この一連の研究成果は非常に多くの方の助けと協力の結果成し遂げられたものです。 $\alpha$ -TOF開発というチャレンジングな課題を与えていただき、深い専門的知識と経験、リーダーシップを基に一連の研究の達成にご尽力くださいましたKEKの和田道治教授。修士課程在学時より多くの実験技術をご教示いただき、数々のアイデアで研究を成功へと導いてくださった理研の加治大哉さん。理研大学院生リサーチ・アソシ

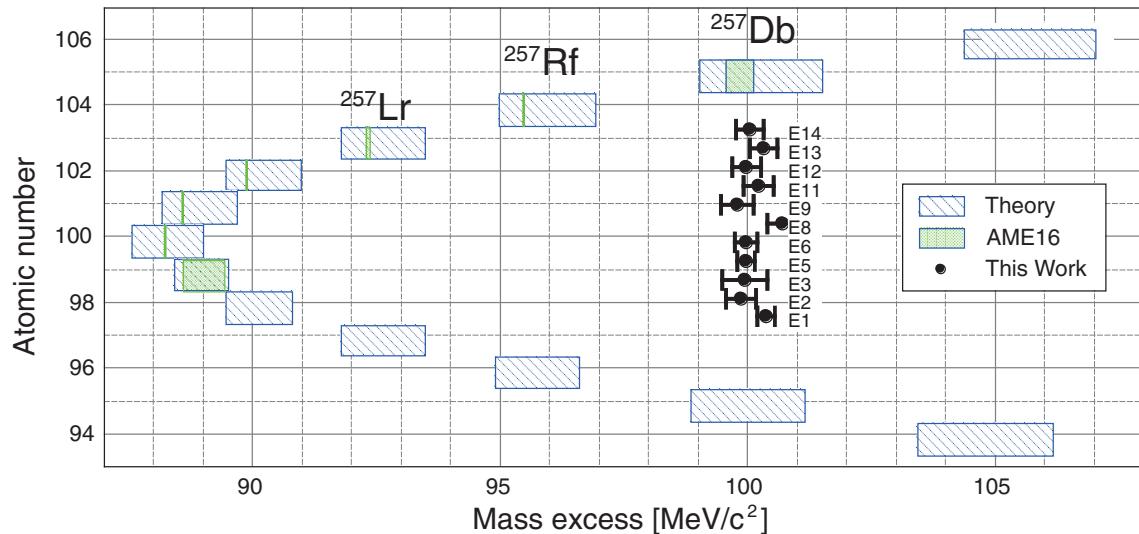


Fig. 7. Mass excess determined for each  $\alpha$ -decay correlated TOF event in this work compared to mass excess ranges for  $A = 257$  isobars as determined by various global mass models (blue hash) along with values from AME2016 (green hash).

エイトとして受け入れてくださり、119番新元素探索実験の立ち上げという、超重元素研究の最前線を肌で学ばせていただいた森本幸司チームリーダー。私の拙い英語力を磨いてくれ、時には“Geek”な仲間として、研究を支えてくださったPeter Schuryさん。ご体調の優れない中、私の研究活動を親身に支えてくださった指導教員の森田浩介教授。本研究・実験に関わった全てのコラボレーターの皆様、そして日常生活を支えてくれた妻の円に感謝を捧げ、この文章を締めさせていただきたいと思います。

### 引用文献

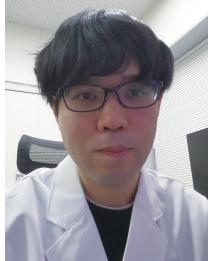
- [1] K. Morita, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., 81, 103201 (2012).
- [2] Yu.Ts. Oganessian, V. K. Utyonkov, Nucl. Phys. A 944, 62 (2015).
- [3] P. J. Karol, *et al.*, Pure Appl. Chem., 88, 139 (2016).
- [4] J. Even, *et al.*, Science, 345, 1491 (2014).
- [5] D. Rudolph, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 111, 112502 (2013).
- [6] J. M. Gates, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 121, 222501 (2018).
- [7] P. Schury, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. B 335, 39 (2014).
- [8] D. Kaji, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. B 317, 311 (2013).
- [9] P. Schury, *et al.*, Phys. Rev. C 95, 011305 (R) (2017).
- [10] Y. Ito, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 120, 152501 (2018).
- [11] E. M. Ramirez, *et al.*, Science 337, 1207 (2012).
- [12] T. Niwase, *et al.*, Nucl. Inst. Meth. A 953, 163198 (2020).
- [13] T. Niwase, *et al.*, Phys. Rev. C, 104, 044617 (2021).
- [14] D. Kaji, K. Morimoto, Nucl. Inst. Meth. A 792, 11 (2015).
- [15] M. Wada, *et al.*, Nucl. Inst. Mesh., B 204 ,570 (2003).
- [16] P. Schury, T. Niwase, *et al.*, Phys. Rev., C 104, L021304 (2021).
- [17] J. M. Gates, *et al.*, Phys. Rev. C 78, 034604 (2008).
- [18] T. Niwase, *et al.*, J. Nucl. Radiochem. Sci, 23, 1 (2023).
- [19] W. Huang, *et al.*, Chin. Phys. C 41, 030002 (2017).

## 特集 2022年度学会奨励賞

### 学会奨励賞

徳永 紘平（日本原子力研究開発機構 人形峠環境技術センター）

受賞題目：バライト共沈法の環境放射化学・地球化学的な応用に関する研究



福島原発事故により放出された放射性核種の挙動の理解とその環境回復は重要な課題であり、この多量で多様な放射性核種が地表・地下環境にてどのように移行・濃集するかを解明することができれば、地球表層の放射性核種を含むあらゆる元素の長期間に渡る物質循環予測研究として、基礎と応用の両面で重要な研究となる。筆者はこれまで、地球表層における水-堆積物(土壌)、水-鉱物間の元素分配を支配する反応プロセスの理解と、それに基づく元素挙動予測を目指した研究を行ってきた。とくに、放射光X線吸収微細構造(XAFS)法を用いて元素の化学状態を直接決定し、元素挙動に影響する反応を原子・分子レベルで明らかにする研究を進めている。本稿では、これまで進めてきた鉱物への微量元素の分配に関する基礎研究をもとに、長寿命陰イオン放射性核種であるセレン(Se)<sup>[1]</sup>やヨウ素(I)<sup>[2]</sup>を効果的に処理処分する手法の開発を行った研究を紹介する。

核燃料の核分裂生成核種の中には半減期が極めて長いものが存在し、それらの適切な処理処分方法の開発は重要な課題である。特に福島第一原発での汚染水処理において問題となるセレン79(<sup>79</sup>Se)やヨウ素129(<sup>129</sup>I)は、核分裂生成核種の中でも半減期が特に長く(<sup>79</sup>Se 6.5 × 10<sup>4</sup>年、<sup>129</sup>I 1.6 × 10<sup>7</sup>年)、かつ水溶液中からの除去が困難な陰イオン(セレン酸(SeO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、亜セレン酸(SeO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)、ヨウ化物(I)、ヨウ素酸(IO<sub>3</sub><sup>-</sup>))として存在する。地層を構成する岩石等の成分は負に帯電するためこれら陰イオン形核種に対する天然バリアの効果は期待できず、他の核種から分離した後に適切に安定化処理する必要があるが、効果的な処理・処

分法は未だ開発されていない。これらの陰イオンの除去において、ハイドロタルサイトに代表される層状複水酸化物(LDH)を用いた研究が従来行われてきた<sup>[3]</sup>。しかし筆者らの先行研究により、LDHへの陰イオンの吸着は可逆反応であり、一旦吸着しても他の陰イオンの添加により容易に脱着することが示された<sup>[2]</sup>。特に電荷が小さなヨウ素の陰イオン(I, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>)において、水溶液中に多く存在する塩化物イオンや硝酸イオンとの競合により除去効率が著しく低下するため、実際の汚染水処理においてLDHを用いることは難しい結果が得られている。これらヨウ素の陰イオンのうちヨウ化物に対してはヨウ化銀(AgI)の生成による処理が知られている一方、ヨウ素酸に対する有効な処理処分法は未だ開発されていない。これはセレンのオキソ酸陰イオン(SeO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, SeO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)に対しても同様で、セレンは人体に対する高い毒性を持ち有害元素として多くの研究がなされている一方、その環境中の挙動に関する地球化学的な研究は限られており、溶液中から有効な処理処分の方法は未だ開発されていない。

これら長半減期の陰イオン系核種に対する新規の除去方法として、筆者らは極めて安定な鉱物であるバライト(BaSO<sub>4</sub>)への共沈反応<sup>[4]-[7]</sup>を用いた手法の開発を行った(図1)。共沈とは、溶液中から鉱物が沈殿する際、本来は十分な溶解度があり沈殿しないはずの他のイオンが沈殿に取り込

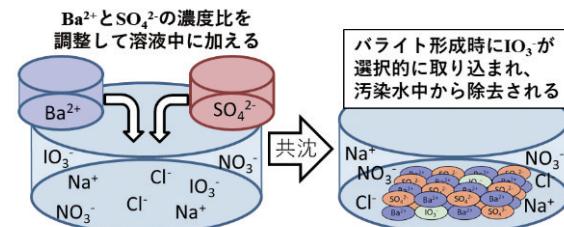


図1 バライト共沈を利用した陰イオンの除去法の考案

まれる現象である。固液界面にイオンが固定される吸着と比べると、固相内部にイオンは存在するため再溶出性が低く、長期間安定にイオンを保持することが可能となる。バライトは硫酸の陰イオンである硫酸イオン( $\text{SO}_4^{2-}$ )をその結晶内に持つことから、同じく陰イオンの化学形態を取るセレン酸、亜セレン酸、ヨウ素酸の固定媒体として期待される。加えてバライトは、(1)薬剤を水に加えるだけで容易に合成できる、(2)様々な元素を結晶内に特徴的に取り込んで沈殿する、(3)高い密度を持つため沈降しやすく分離しやすい、(4)再溶解せず安定に存在する、などの特徴を有しており、これらの陰イオンを水溶液中から除去したのち、安定に処理する鉱物として非常に有用であると考えられる。本研究では、バライトへの共沈時におけるセレンやヨウ素の挙動を室内的シミュレーション実験により詳細に調べ、分配係数(固液分配比、 $K_d$ )、局所構造、格子定数などの鉱物学的な解析を行った。これらの結果を基に、バライトによるセレンやヨウ素の取り込みの可能性を検討するとともに、様々な条件下での合成実験を

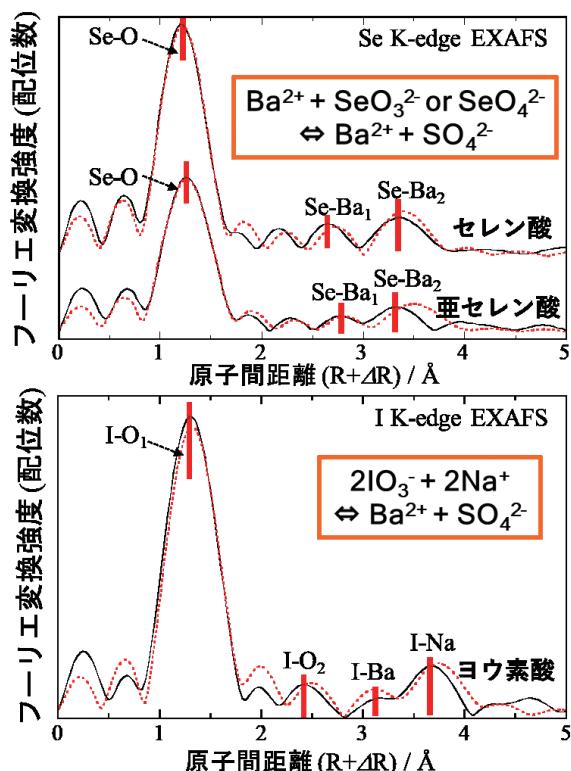


図2 XAFS法によるSeとIの局所構造の特定

行い、取り込みに最適な条件を見出した。これらの知見はバライトがセレンやヨウ素の環境中移行挙動に対し重要な役割を担うことを示すだけでなく、水溶液中からこれらの陰イオン系核種を効果的に取り除いた後、安定に処理する技術の開発につながることも期待できる。

まず始めに、バライトへの共沈により、これらの陰イオンを水溶液中から効果的に取り除くための条件の特定を行った。鉱物への元素の分配では、一般的に、①鉱物表面への吸着、②結晶構造内への取り込み、の2つのメカニズムが強く働くことが知られる<sup>[1]</sup>。放射光XAFS法による局所構造解析の結果は、セレン酸、亜セレン酸、ヨウ素酸とともにバライトの結晶内では硫酸イオンと置換し取り込まれていることを示しており、本実験系の場合は結晶内への取り込みが支配的な分配のメカニズムであることが示された(図2)。そこで、バライトとこれら陰イオンの共沈実験の条件として、初期溶液中の共存イオンの影響を調べた。まず、バライトを構成するバリウム/硫酸イオン濃度( $[\text{Ba}^{2+}] / [\text{SO}_4^{2-}]$ )比について実験を行ったところ、すべての陰イオンにおいて硫酸イオン濃度の割合が小さくなるほどバライトに分配されや

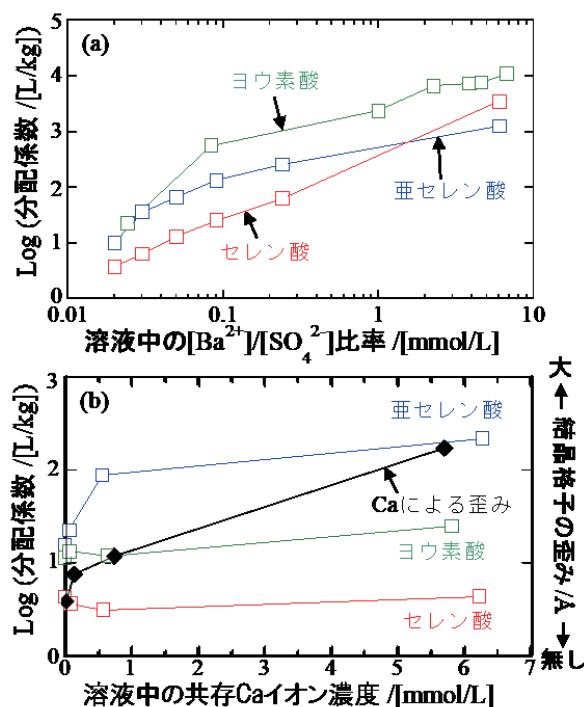


図3 隣イオンの分配における各成分の効果

すくなることが分かった(図3(a))。特にセレン酸は硫酸イオンと同型構造を持つため、その競合の傾向が顕著になる。一方、バライトにカルシウムイオン( $\text{Ca}^{2+}$ )を加えるとバライト結晶の歪みが大きくなり、カルシウムイオンとともに亜セレン酸を加えると、その分配が大きくなることが分かった(図3(b))。結晶構造の歪みは、ヒ素やテルルの陰イオン(ヒ酸、亜ヒ酸、テルル酸、亜テルル酸)との共沈実験でも生じることが確認されており、カルシウムイオンが多く結晶の歪みが大きくなるほど、ヒ酸や亜テルル酸といった三配位構造を持つ陰イオンがバライトに分配されやすくなることが明らかになった。その他、pH、過飽和度、イオン強度などを系統的に変化させた実験を行い、これらの陰イオンがバライトに分配しやすい最適な条件を求めた。その結果、亜セレン酸の場合は、結晶構造に歪みを与えるカルシウムイオンの濃度が高く、競合イオンの硫酸イオン濃度が低く、かつ結晶表面での錯生成がしやすい高pHほど、バライトに対して分配しやすいことが分かった。一方で、セレン酸、ヨウ素酸の場合は、競合イオンである硫酸イオンの濃度調整が重要なことが分かった。以上の結果を考慮し、最適な条件でバライトとセレン酸、亜セレン酸、ヨウ素酸の共沈実験を行ったところ、亜セレン酸の分配係数は、初期の条件に対して約9,600倍の93,000 L/kg、セレン酸は約7,100倍の11,000 L/kg、ヨウ素酸の場合は約520倍の12,000 L/kgを示し、水溶液中の90%以上の陰イオン(初期濃度:1.0 mg/L)がバライトの構造内に取り込まれることが分かった。

次に、バライト中にこれらの陰イオンを長期間安定に保持し続ける手法の開発を行った<sup>[8]</sup>。前述の結果の通り、バライトへのセレン酸、亜セレン酸、ヨウ素酸の分配は競合イオンの存在下においても高い除去効率を示した一方、時間の経過に伴う固相からのイオンの溶出が新たな問題として生じた。特に電荷の小さなヨウ素酸に対してその影響は顕著であり、純水条件においては約20%、塩化物イオンや硝酸イオンの競合イオンをそれぞれ含む溶液中においては約60%と固相からの高いヨウ素の溶出が示された。しかし一方で、バライト共沈試料を希薄なリン酸イオン溶液に入れた

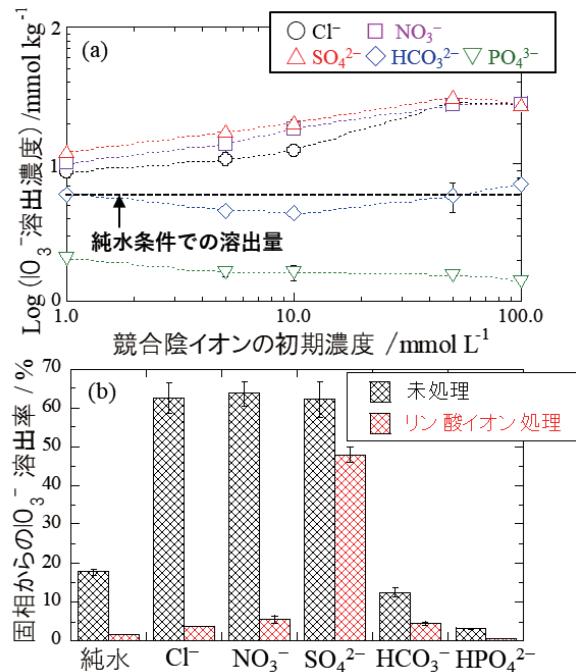


図4 固相からのヨウ素酸の溶出量の変化

場合、純水のみでの溶出に比べて、ヨウ素酸を含む陰イオンの溶出量が著しく減少する結果が得られた(図4(a))。これはリン酸イオンがバライト全体を安定化させたことを示しており、他の鉱物では強い抽出剤として働くリン酸イオンが、バライトに対してはイオンの溶出を低減化させることを示唆する(図4(b))。この効果を系統的に明らかにするために、XAFS法による、バライト表面でのリン酸イオンの吸着メカニズムの解明を行ったところ、リン酸イオンはバライト表面から数ナノメートルの深さにおいてバリウムのリン酸塩の化学形態で存在することが示された。このリン酸イオンの吸着によるバライト表層での二次的な沈殿相の形成により、固相からの元素の溶出が制限され、バライト全体が安定化されたと考えられる。この効果はセレン酸、亜セレン酸、ヨウ素酸の陰イオンを含んだバライト共沈試料においても同様に確認されており、バライトへの共沈とリン酸イオン吸着を合わせた処理を行うことで、放射性陰イオン系核種の溶液中からの効果的な除去と、鉱物構造内での長期的な安定化が可能となる。

本研究で得られた、(1)カルシウムイオン添加によりバライト結晶構造の歪みの程度を増加させることで、他の微量元素の取り込みを促進する効

果、(2) リン酸イオン吸着によりバライト表面で二次的な結晶相を生成させることで、固相からの対象元素の溶出を低下させる効果、など筆者らの研究の独自性が示された。重要なことは、これらの知見が原子・分子レベルの情報に基づいた研究成果な点である。原子・分子レベルに基づく基礎的な知見は、さまざまな環境条件でも応用が可能となる。筆者らの研究より解明されたセレンやヨウ素の固定メカニズムは、放射性廃棄物処理の分野において重要な役割を果たすのに加えて、水圏環境での中長期的なオキソ酸陰イオンの挙動を予測する上でも有用な知見となる。環境中には未だ解明されていない反応プロセスが多く存在する。こうした反応を環境試料中の元素の原子・分子レベルの情報を用いて解析を行い、その反応に潜む普遍的な物理化学原理を抽出することで、地球表層における放射性核種の移行・濃集挙動の系統的理解のための基礎情報として、環境放射化学・地球化学研究の学術基盤の発展につなげていきたい。

栄誉ある日本放射化学会の奨励賞をいただけてとても光栄です。約5年前に今の所属に移り、なんとか少しずつ前に進んでいる状態ですが、今回の受賞でこれまで進めてきた研究が評価され嬉しく思っています。これまでの多くの素晴らしい研究者や先輩、後輩との出会いによって頂くことができた賞だと考えています。とりわけ、学部、大学院時代の指導者である高橋嘉夫先生（東京大学）には多くの愛あるご指導、ご協力をいただき

ました。また現在の所属で自由に研究を進めさせてもらっている香西直文先生（日本原子力研究開発機構）には、日々多くのご助言をいただいている。この場を借りて深く御礼申し上げます。また本研究は、JSPS 科研費（14J06571、17J07654、19K15481）や日本原子力研究開発機構の基金（1F 廃炉研究開発推進費、萌芽研究開発制度、若手研究者・技術者育成プログラム等）の助成を受け実施されました。

### 参考文献

- (1) K. Tokunaga et al., *Environ. Sci. Technol.*, 51(16), 9194-9201 (2017).
- (2) K. Tokunaga et al., *Chemosphere* 266, 129104, (2021).
- (3) K. H. Goh et al., *Water Res.* 42, 1343-1368 (2008).
- (4) K. Tokunaga et al., *J. Hazard Mater.*, 359, 307-315 (2018).
- (5) K. Tokunaga et al., *Chem. Geol.*, 447, 59-69 (2016).
- (6) K. Tokunaga et al., *Geochem. Geophys. Geosyst.*, 14, 4826-4834 (2013).
- (7) K. Tokunaga et al., *Chem. Lett.*, 42, 1068-1069 (2013).
- (8) K. Tokunaga et al., *Environ. Sci. Technol.*, accepted.

**特集 2022年度学会奨励賞****学会奨励賞**

小荒井 一真

(日本原子力研究開発機構 (JAEA) 廃炉環境国際共同研究センター (CLADS))

受賞題目：硬組織を指標とした福島第一原発事故後の野生動物への<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの取り込みの研究

2011年の福島第一原子力発電所(1F)事故により、人工放射性核種が環境中に放出され、周辺地域に拡散した。過去の大気圈内核実験やチョルノーピリ原発事故後の環境放射能調査での知見から、半減期が約30年の<sup>90</sup>Srや<sup>137</sup>Csは長期の内部被ばくに関与することが知られており、1F事故においてもこれらの核種による生物への被ばく影響の評価が求められた。1F事故後の分布調査によって、<sup>90</sup>Srや<sup>137</sup>Csによる生物への被ばくは低線量領域であると予想された。しかし、これまでの研究でも不明瞭であった低線量被ばく影響を解明するためには、生体影響の観察と合わせて被ばく線量推定や体内核種量の測定を長期にわたり継続することが必要であった。そこで、東北大学は「被災動物の包括的線量評価事業」を立ち上げ、研究体制を整えることで、1F近傍地域に生息していた被災した家畜や野生動物を対象とし、低線量被ばく影響を観察している。私はこの事業の中で研究活動を開始し、動物の歯や骨といった硬組織に含まれる<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの測定に携わった。

「被災動物の包括的線量評価事業」の調査対象となる動物は、被災したウシや野生のサルなど、人間の管理下に置かれていない個体であった。そのため、これらの動物が1F事故から採取されるまでにどんな生活を送り、どんな食べ物を摂取していたかがわからず、<sup>90</sup>Srや<sup>137</sup>Csの取り込み履歴の推定は困難であった。そこで、歯や骨といった硬組織の形成メカニズムに注目することで、動物の取り込み履歴を追跡できないかと考えた。硬組織は、形成時に組織の基質が沈着し、形成後には組織が入れ替わらないという特徴がある。こ

の特徴を活用すれば、採取した歯に含まれる<sup>90</sup>Srが過去の形成時期における<sup>90</sup>Srの取り込みを反映している可能性があった。実際に、ウシの歯を9本の種類ごとに<sup>90</sup>Srを測定した結果をFig. 1に示す。測定に用いた9本の歯は、それぞれ形成時期が異なり、Fig. 1(a)に示す順番に形成が開始される。ウシの採取時の年齢から、①～④の4本の歯は1F事故前に形成された歯、⑤～⑨の5本の歯は1F事故後に形成の始まった歯と区別した。歯の<sup>90</sup>Sr比放射能(<sup>90</sup>Sr放射能と安定Sr比)は、1F事故後に形成された歯のほうが事故前に形成された歯に比べ値が大きく(Fig. 1(b))、事故による環境中の<sup>90</sup>Srの汚染の変化が歯の形成に伴って記録されていることを示した<sup>1</sup>。硬組織中の<sup>137</sup>Csについても測定を行い、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs比が1F事故放出時のほぼ1と一致することから、1F事故に起因する放射性Csの取り込みを確認した。また、Fig. 1(c)に示すように、<sup>137</sup>Cs比放射能は1F事故以前に形成された歯でも高く、歯への取り込み機構が<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csでは異なり、<sup>137</sup>Csは歯の形成後にも取り込まれることを初めて明らかにした<sup>2</sup>。硬組織に注目することで、被災動物への1F事故由来の<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの取り込みを明らかにし、<sup>90</sup>Srについては歯の形成期間における取り込み量の変化を過去に遡って追跡できた。

ウシの硬組織に取り込まれた<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの汚染された環境中における移行挙動を知るために、ウシ採取地の土壤や植物中の<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの測定も行った。従来の環境放射能調査では放射性核種そのものの移行挙動やパラメータが注目されがちであった。ただし、土壤や植物から動物へと<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csが移行する際には、これら2核種は微量元素である安定Sr、Csの挙動に従い、生体にとって必須元素であるCa、Kとも関与すると考えら

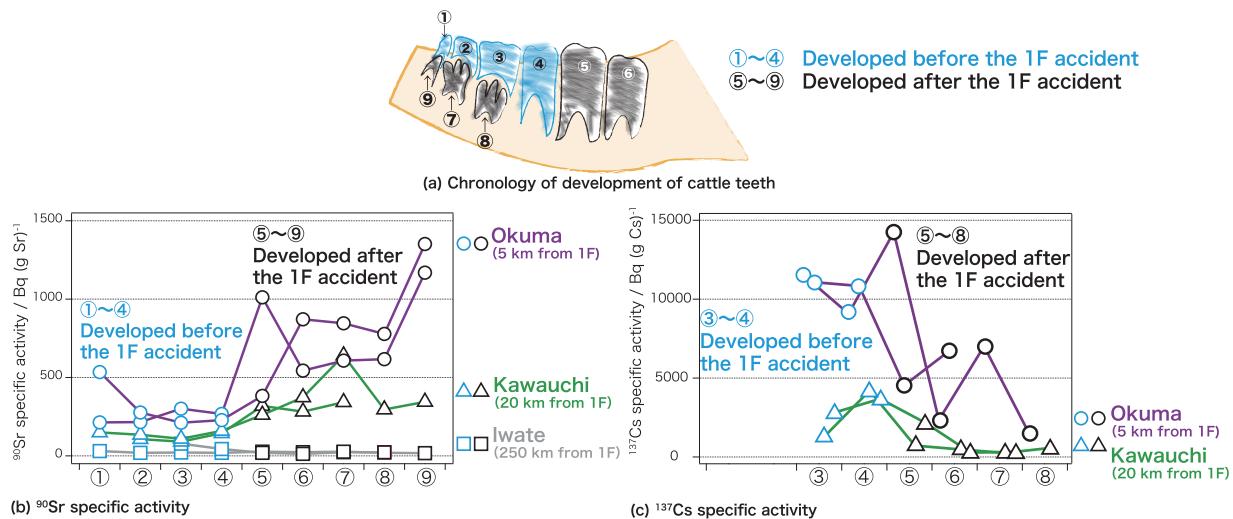


Figure 1 Chronology of development of cattle teeth and specific activities

れた。そこで、2つの核種だけでなく安定 Sr や Cs、Ca、K も合わせて測定し、比放射能や微量元素 / 必須元素比を用いて、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の標識する元素としての硬組織への移行挙動の追跡を試みた。ウシ歯の  $^{90}\text{Sr}$  比放射能は、土壤の水に可溶な成分の  $^{90}\text{Sr}$  の比放射能と一致していた。そのため、歯に取り込まれた  $^{90}\text{Sr}$  はその形成時期における土壤の可溶成分での  $^{90}\text{Sr}$  の汚染を反映していたことが示唆された<sup>3</sup>。また、環境中を移行する際に安定 Sr と Ca は生体に区別され、移行過程において Sr/Ca 比が減少していた。 $^{90}\text{Sr}$  も安定 Sr と同様の挙動をとり、Ca に対する比を下げながら土壤の可溶な成分から歯へと移行していくことがわかった<sup>3</sup>。 $^{137}\text{Cs}$  については、ウシの歯の  $^{137}\text{Cs}$  比放射能値は摂取した食物の汚染を示唆していた。また、移行の際に安定 Cs や  $^{137}\text{Cs}$  は K とは区別されずに移行していた<sup>4</sup>。このように比放射能や微量元素 / 必須元素比を用いて、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  が土壤から植物、水などを経由して動物の歯へ移行する際の元素としての挙動を示した。

サルについては全身の硬組織が採取できたため、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の測定だけでなく骨髄線量の推定も行った。採取したサルの  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による骨髄線量はそれぞれ 0.15 mGy、1.1 mGy であった<sup>5</sup>。従来、硬組織の主成分である Ca と共に濃縮される  $^{90}\text{Sr}$  は、骨髄への主な被ばく源として懸念されてきた。しかし、 $^{137}\text{Cs}$  の放出量が  $^{90}\text{Sr}$  の

100 倍以上である 1F 事故の場合、 $^{137}\text{Cs}$  の骨髄線量への寄与も大きいという結果が得られた。また、サルの全身骨と歯の  $^{90}\text{Sr}$  比放射能を比較した結果、歯は全身骨の比放射能を反映していた。したがって、歯は全身骨での  $^{90}\text{Sr}$  の取り込みを代表しており、骨髄線量の指標にもなることが明らかになった。

このようにして得られた硬組織への  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の取り込みの知見は、東北大を中心としたグループによりヒトの乳歯を用いた研究へと応用された。この研究グループは 7000 本を超えるヒト乳歯を収集し、歯の中に含まれる放射性核種を測定している。イメージングプレートを用いたスクリーニング調査や  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の測定において、福島県と他県の測定値に有意差はなく、1F 事故によって放出された  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  は生体内に取り込まれていないことが報告されている<sup>6</sup>。現在、1F 事故後に形成された乳歯を収集し、分析を進めている最中である。乳歯中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  量が測定できれば、サルの研究事例のように骨髄線量の推定も可能である。さらに電子スピン共鳴法を用いた炭酸ラジカルの測定により、歯は外部被ばく線量の指標としても用いることができる<sup>7</sup>。したがって、ヒトの乳歯の分析を続けることで 1F 事故による乳幼児の被ばく線量を内部と外部の両方から推定できることが期待される。

硬組織の  $^{90}\text{Sr}$  を分析する中で、わずかな試料量、

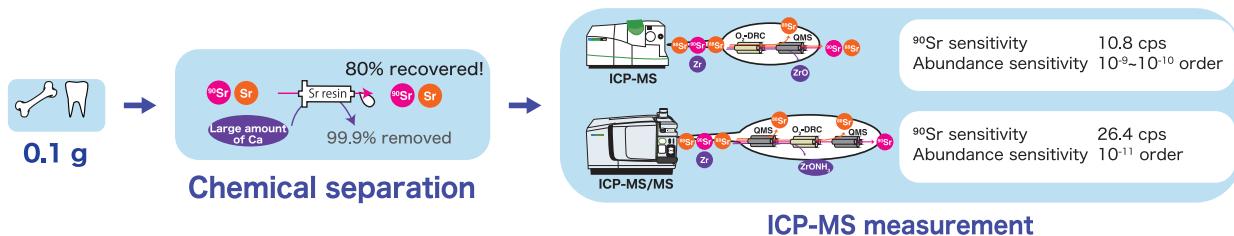


Figure 2 Schematic diagram of ICP-MS method for measurement of  $^{90}\text{Sr}$  in hard tissues.  $^{90}\text{Sr}$  intensity shows signal intensity at  $m/z = 90$  when  $100 \text{ Bq L}^{-1}$  of  $^{90}\text{Sr}$  standard solution was measured.

具体的には1 g以下の試料を対象とした場合、従来の放射能測定法は検出下限値が高くなり、 $^{90}\text{Sr}$ を検出できることがあった。しかしながら、世の中にはヒト乳歯や魚の耳石といった1検体が1 gに満たない硬組織も存在する。このようなわずかな量の硬組織の $^{90}\text{Sr}$ 分析に対応できる手法の開発を目指し、誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)法を用いた硬組織中 $^{90}\text{Sr}$ の測定に現在は取り組んでいる。ICP-MS法による環境試料中の $^{90}\text{Sr}$ 分析は近年発展し、水や食品への適用例がある<sup>8,9</sup>。しかし硬組織は $^{90}\text{Zr}$ といった同重体だけでなく、大量のCaをマトリックスとして含むため、これまでにICP-MS法が適用されたことがなかった。そこでSr resinカラムを用いた化学分離とICP-MS内部のリアクションセルでの酸素ガスによるマスシフト法を組み合わせ、測定干渉物の除去に取り組んだ。大量のCaを除去するため、化学分離操作はカラムへの通液を2回繰り返した。同重体の $^{90}\text{Zr}$ はICP-MS内部の酸素リアクションにより除去した。その結果、0.1 gの被災ウシの歯と骨に含まれる $^{90}\text{Sr}$ の定量に成功し、検出下限値も従来の放射能測定法よりも低減することができた<sup>10</sup>。ICP-MS法は、2段階での質量分離が可能なICP-MS/MSを用いることで、大量の $^{88}\text{Sr}$ に起因するアバンダンス感度の低減でき<sup>11</sup>、より低濃度の $^{90}\text{Sr}$ の検出も可能となる。このようなICP-MSを用いた手法だけでなく、TIMS<sup>12</sup>やAMS<sup>13</sup>といった質量分析法を用いて、僅かな試料に対する $^{90}\text{Sr}$ を測定しようという研究がこの数年の間に進んでいる。これらの質量分析法が発展することで、将来的にヒトの乳歯や魚の耳石といった小さな硬組織中の $^{90}\text{Sr}$ を分析ができ、従来の放射能測定法では追跡できなかった生物の取り込み

履歴を明らかにできる可能性がある。

これらの研究を進めるに当たり、放射化学研究室籍時より、東北大学の木野康志先生、関根勉先生、JAEAの岡壽崇氏からご指導をいただきました。また、福本学先生をはじめとした「被災動物の包括的線量評価事業」に関わった先生、スタッフ、学生の皆さんのご協力をいただきまして、被災動物の試料を採取し、 $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の分析が可能となりました。篠田壽先生をはじめとした東北大学歯学部の先生方には、硬組織試料のサンプリングに加え、深いディスカッションを行っていただいたことが、私の研究者生活の糧となっております。また、JAEA所属になってから実施しているICP-MSによる $^{90}\text{Sr}$ の分析法開発を進める上では、松枝誠氏、寺島元基氏をはじめとしたJAEA CLADS所属の皆様には公私ともにお世話になっております。東北大所属時から現在に到るまで、非常に多くの皆様にご協力いただいていることが、今回の奨励賞受賞に繋がりました。この場を借りて皆様に深く御礼を申し上げます。

## 参考文献

- (1) K. Koarai, Y. Kino, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *Sci Rep*, **6**, 24077 (2016).
- (2) K. Koarai, Y. Kino, J. Nishiyama, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *KEK Proceedings*, **8**, 122–127 (2016).
- (3) K. Koarai, Y. Kino, A. Takahashi, T. Suzuki,

- Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, Y. Urushihara, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *J Environ Radioact*, **183**, 1–6 (2018).
- (4) K. Koarai, Y. Kino, J. Nishiyama, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, Y. Urushihara, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *KEK Proceedings*, **7**, 225–230 (2018).
- (5) K. Koarai, Y. Kino, T. Ono, T. Oka, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, M. Suzuki, Y. Urushihara, T. Fukuda, E. Isogai, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *KEK Proceedings*, **2**, 183–188 (2019).
- (6) A. Takahashi, M. Chiba, A. Tanahara, J. Aida, Y. Shimizu, T. Suzuki, S. Murakami, K. Koarai, T. Ono, T. Oka, J. Ikeyama, O. Kaneko, M. Unno, K. Hirose, T. Ohno, Y. Kino, T. Sekine, K. Osaka, K. Sasaki, and H. Shinoda, *Sci Rep*, **11**, 10335 (2021).
- 7) T. Oka, A. Takahashi, K. Koarai, Y. Kino, T. Sekine, Y. Shimizu, M. Chiba, T. Suzuki, K. Osaka, K. Sasaki, and H. Shinoda, *J Radiat Res*, **63**, 1–6 (2022).
- (8) Y. Takagai, M. Furukawa, Y. Kameo, and K. Suzuki, *Analytical Methods*, **6**, 355–362 (2014).
- (9) K. Yanagisawa, M. Matsueda, M. Furukawa, and Y. Takagai, *Analytical Sciences*, **36**, 1131–1135 (2020).
- (10) K. Koarai, M. Matsueda, J. Aoki, K. Yanagisawa, M. Terashima, K. Fujiwara, Y. Kino, T. Oka, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda, A. Kitamura, and H. Abe, *J Anal At Spectrom*, **36**, 1678–1682 (2021).
- (11) T. Ohno, M. Hirono, S. Kakuta, and S. Sakata, *J Anal At Spectrom*, **33**, 1081–1085 (2018).
- (12) S. Wakaki, J. Aoki, R. Shimode, K. Suzuki, T. Miyazaki, J. Roberts, H. Vollstaedt, S. Sasaki, and Y. Takagai, *Sci Rep*, **12**, 1151 (2022).
- (13) M. Honda, M. Martschini, O. Marchhart, A. Priller, P. Steier, R. Golser, T. K. Sato, T. Kazuaki, and A. Sakaguchi, *Analytical Methods*, **14**, 2732–2738 (2022).

## 特集（日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介）

低免疫原性ストレプトアビジン変異体と改変ビオチンを用いる  
プレターゲティングシステムの開発

巽 俊文<sup>1</sup>、山次 健三<sup>1</sup>、杉山 晓<sup>2</sup>、趙 松吉<sup>3</sup>、栗生木 美穂<sup>3</sup>、西嶋 剣一<sup>3</sup>、  
右近 直之<sup>3</sup>、下山 彩希<sup>3</sup>、譚 成博<sup>3</sup>、城寶 大輝<sup>3</sup>、織内 昇<sup>3</sup>、高橋 和弘<sup>3</sup>、  
清水 洋平<sup>1</sup>、高橋 和希<sup>1</sup>、安藝 翔<sup>4</sup>、児玉 龍彦<sup>4</sup>、鷲山 幸信<sup>3</sup>、金井 求<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東京大学大学院薬学系研究科、<sup>2</sup>東京大学アイソトープ総合センター、

<sup>3</sup>福島県立医科大学先端臨床研究センター、<sup>4</sup>東京大学先端技術研究センター)



## [緒言]

再発や転移により体内にひろがった進行がんに対して副作用の少ない治療薬を開発することは、がん研究の最大の課題となっている。

近年、抗体に放射性核種を担持した放射線内用療法の研究が行われており、特にがん細胞殺傷能力が高い $\alpha$ 線を放出する $^{211}\text{At}$ の使用が注目を集めている。これまで、放射線内用療法で主に用いられてきた $\beta$ 線と比較して、 $\alpha$ 線は飛程距離が短く、強いエネルギーを持つことから、副作用が少なく高い治療効果が期待されている。さらに $^{211}\text{At}$ の半減期は7.2時間であり、体内において疾患細胞の殺傷効果を発揮したあと、急速に消失することから、ヒトにおける放射線内用療法に適していると考えられている。しかし、抗体に直接 $^{211}\text{At}$ を担持させた場合には、高分子である抗体の長い血中滞留時間のためにがん組織以外での内部被曝が深刻な問題となる。また、半減期が短い $^{211}\text{At}$ で治療効果を上げるためには、

腫瘍へ迅速に送達する必要がある。そのため、がん抗原を認識するターゲティング分子と $^{211}\text{At}$ を別々に投与するプレターゲティング戦略が有効であると考えられている。プレターゲティング戦略のひとつに、がん細胞を特異的に認識する抗体を結合したストレプトアビジンと、それに特異的に結合するビオチンを用いる方法がある[1]。しかし、この方法では放線菌由来のタンパク質であるストレプトアビジンの免疫原性や、人体内に大量に存在するビオチンによる競合阻害が問題になる。我々は、ストレプトアビジンに各種アミノ酸変異を導入することによって免疫原性と内在性ビオチンへの親和性を低減した改変型ストレプトアビジン（以下、Cupid）を開発した。さらにCupidに対して特異的な親和性を示すようにビオチンを改変し、高い親和性 ( $K_d = 10^{-11} \text{ M}$ ) を有するビスイミノビオチン（以下、Psyche）を開発することに成功した[2]。そして、Cupid-Psycheシステムによる $^{211}\text{At}$ のプレターゲティング治療を試みた（図1）。本内容は論文化する内容が含まれているため、本寄稿では紹介的な内容とする。

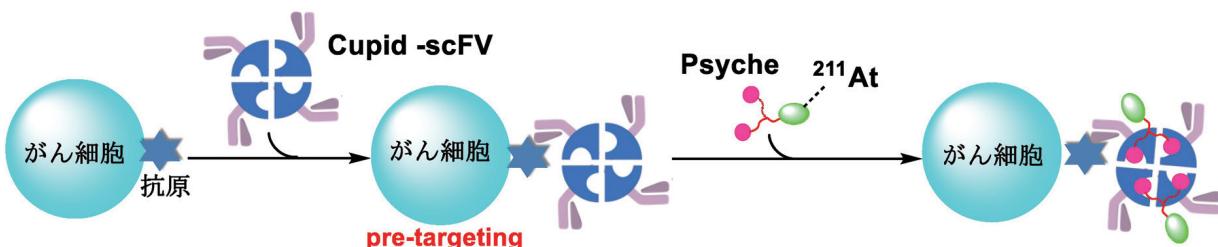


図1 Cupid-Psycheを用いるプレターゲティングシステム

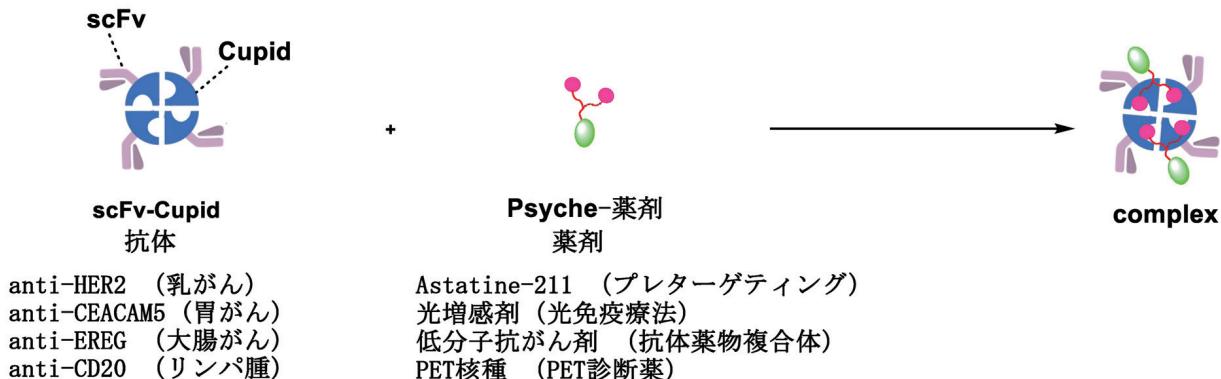


図2 Cupid-Psyche システムによるプラットフォーム

### [実験と結果]

まず Psyche に  $^{211}\text{At}$  を標識するため、芳香族スズ化合物を Psyche に結合した標識前駆体を用いて検討を行った。 $^{211}\text{At}$  で検討を開始する前に、非放射性のヨウ素を用いて反応条件の最適化を行った。検討の結果、0.5% の酢酸を含むメタノール中、 $^{211}\text{At}$  の酸化剤に *N*-bromosuccinimide (NBS) を用いた場合に、高い放射化学収率で標識反応を進行させることに成功した。反応完結後、HPLC 精製を行い、スズ残渣と未標識体を除去した。HPLC の移動相に毒性の高いアセトニトリルと 0.1% トリフルオロ酢酸 (TFA) 水溶液を用いたため、C18 の固相カラムを用いて固相抽出を行い、溶出溶媒に酢酸、エタノールを含む水溶液を用いることでアセトニトリルと TFA を除去した。製剤化後も放射化学純度は 90% 以上を示した。

次に CEA 抗原を高発現する胃がん細胞 MKN45 を移植したゼノグラフトマウスに抗 CEA 一本鎖抗体 -Cupid 結合体を投与し、その 24 時間後に  $^{211}\text{At}$ -Psyche を投与するプレターゲティングを試みたところ、高い腫瘍集積率を示した。さらに、治療効果を確認するため、胃がん細胞 MKN45 を移植したゼノグラフトマウスを用いて、腫瘍体積変化の測定を行った。抗 CEA 一本鎖抗体 -Cupid 結合体の投与 24 時間後に  $^{211}\text{At}$ -Psyche を投与し

たところ、投与した放射線量依存的な腫瘍増殖抑制効果が確認され、動物レベルでの治療効果を示すことに成功した。

### [今後の展望]

今後、我が国は超高齢社会を迎えると共にがん罹患数の増加が予測されている。このような状況において、低侵襲で副作用が少なく治療効果の高い医療技術の必要性が増している。本 Cupid-Psyche システムは、Cupid に結合させる抗体部分を変更することで、がん種に応じた治療が可能であり、さらに、低分子である Psyche には種々の薬剤を結合することができる(図2)。そのため、がん種に応じて、抗体と Psyche に担持する薬剤とを適切に組み合わせることにより、多様な進行がんに対して広く有効な治療法を提供できる可能性があり、進行がん治療に向けた新しいプラットフォームになることが期待される。

### 引用文献

- [1] M. Rusckowski et al. *J. Nucl. Med.*, **1987**, *28*, 1294-1302.
- [2] T. Kodama et al. *Proc. Jpn. Acad., Ser. B*, **2019**, *99*, 602-611.

特集（日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介）

精密質量測定による新同位体  $^{241}\text{U}$  の同定

庭瀬 晓隆

(高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所 和光原子核科学センター)



今までに知られている原子核のうち約300種は天然に存在し、残りの約3000種は人工的に生成されたものである。理論計算によると更に4000種以上の放射性核種が存在すると予測されており[1,2]、そのほとんどは天体における速い中性子捕獲による元素合成過程(r-process)で生成されると考えられている[3]、中性子過剰領域の同位体である。未知の新元素・新同位体の発見は人類の叡智である原子核図表を拡張し、これらの核種の物理量の測定からは、核の存在限界や、殻構造の発現を議論することができる[4,5]。

とりわけ筆者らが興味を持っているのは、中性子過剰なアクチノイド領域の核種である。近年、連星中性子星合体GW170817[6]とそれに続くキロノバAT2017go[7]が観測され、重元素がr-processによって合成されることを示す道標となった。現代の理論計算では、アクチノイド核の核分裂がr-processにおける重元素の存在量へ強い影響を示すことが示唆されており[8]、実験的にこれらの核種の物理量(質量、崩壊特性)を決定することは、r-processの解明のためへ重要な役割を果たす。しかしながら不安定核の一般的な生成手法である融合反応や核破碎反応では、中性子過剰アクチノイド核への実験的アクセスは不可能である。

核子あたり10 MeV程度の重イオン同士の原子核反応では、入射核と標的核間で構成核子の相互作用が頻繁に起こり大半の入射エネルギーが内部エネルギーへと転換する。二核が最終的に融合しない場合、入射・標的核近傍の破碎片を生み出す多核子移行反応が起こる。筆者らのグループで

は、KEK元素選択型質量分離装置(KEK Isotope Separation System, KISS)[9,10]を開発し、多核子移行反応によって生成された不安定中重核の $\beta$ - $\gamma$ 核分光やレーザー核分光を世界に先駆けて成功してきた[11-14]。また近年、多重反射型飛行時間測定式質量分光器MRTOF[15]を導入し、これらの核種の精密質量測定を実施する準備を進めてきた。

本研究ではKISSとMRTOFを用いた、中性子過剰アクチノイド核の質量測定実験を実施した。Fig. 1にKISSの実験装置概略図を示す。理研リングサイクロロンによって供給された核子あたり10.75 MeVの $^{238}\text{U}$ ビームを $^{198}\text{Pt}$ の回転標的に照射し、生成された入射核様破碎片をドーナツ型

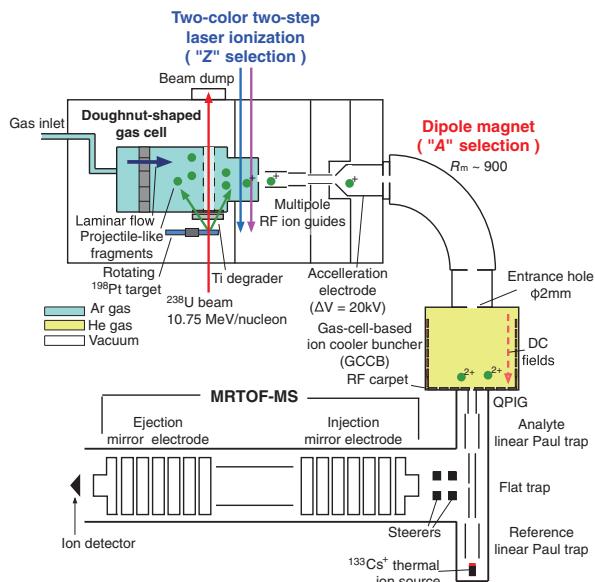


Fig. 1. Sketch of the KISS experimental setup. The blue- and yellow-colored areas are filled with Ar and He gases, respectively. The gases are evacuated by the differential pumping systems.

Arガスセル[10]によって捕集・熱化・中性原子化し、層流状態のArガスとともに出口孔へと輸送する。出口孔上流にはレーザー光照射エリアがあり、レーザー共鳴イオン化によって特定の原子番号を持つ原子をイオン化した。原子番号を選択されたイオンはイオンガイドによって輸送され、20 kVの高電圧によって再加速された後、後段の双極磁石によって質量分離される。原子番号と質量数を選択し輸送されてきたイオンはHeガスが充填されたクーラーバンチャー[15]で停止し、RFカーペット[16]によって引き出され、多段の高周波イオンガイドによりMTOFへと輸送、飛行時間の測定がされる。

実験で得られた参照イオン<sup>133</sup>Cs<sup>+</sup>の典型的な飛行時間スペクトルをFig. 2 (a)に示す。本実験条件では、MTOFの質量分解能はR<sub>m</sub>~260,000であった。飛行時間スペクトルはMTOFのイオンミラーによる高次の光学的な取差や、残留ガスとの散乱によって尾を引く。正規分布と指數関数により構成されたハイブリット関数によりスペクトルをフィッティングし、その飛行時間を決定する。実験の結果、A=235-242領域の総計19核種、Fig. 3に示す種々の同位体の質量の直接測定に成功をした。Fig. 2 (b)はレーザーの共鳴周波数を<sup>241</sup>Uに設定した時の飛行時間スペクトルである。A=241の3核種のピークが見て取れ、<sup>241</sup>Uに相当する飛行時間位置のピークが高い収量を持っていることがわかる。続いて、レーザーの共鳴周波数を<sup>241</sup>Npのものに変更をし、同様の測定を実施した。結果をFig. 2 (c)に示す。Fig. 2 (b)では

強いピークを示していた<sup>241</sup>Uが減少し、代わりに<sup>241</sup>Npのピークが増強していることが見て取れる。以上のレーザー共鳴/非共鳴のスペクトルの比較により、Fig. 2 (b)の強いピークは明確に新同位体<sup>241</sup>Uのものであることがわかる。<sup>241</sup>U<sup>2+</sup>の

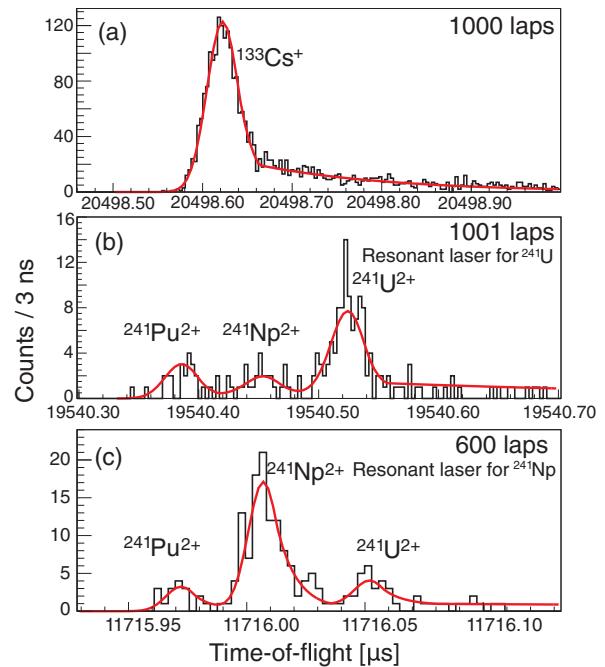


Fig. 2. Typical TOF spectra with the red solid lines denote the fitting curves. (a) The reference ion <sup>133</sup>Cs<sup>+</sup> after 1000 laps in the MTOF-MS. (b) A/q=120.5 region after 1001 laps in the MTOF-MS with resonant wavelength for the new isotope <sup>241</sup>U. (c) A/q=120.5 region after 600 laps with resonant for <sup>241</sup>Np. The absolute TOF values between (b) and (c) are different due to the difference in the number of laps.

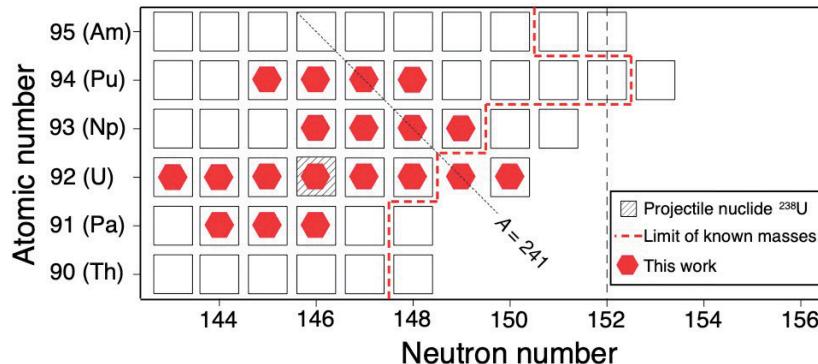


Fig. 3. A part of nuclear chart of the neutron-rich actinide region. Red dashed line indicates the mass known line, and red hexagon symbol denotes the measured in this work.

飛行時間と参照イオンである  $^{133}\text{Cs}^+$  の飛行時間の比から、その質量を 1 ppm の精度で直接決定した。この結果は AME2020 [17] において評価されている外挿値と誤差の範囲で一致している。他の 18 核種においても結果は文献値と誤差の範囲で一致していた [18]。

本研究は新同位体  $^{241}\text{U}$  を含む 19 核種の質量を MRTOF によって直接決定し、多核子移行反応と KISS の組み合わせにより中性子過剰アクチノイド核への実験的な到達が可能であること実証した、初の実験結果である。とくに新同位体  $^{241}\text{U}$  の発見は、精密な質量の決定を伴った同位体発見であり、今後の中性子過剰核の網羅的な研究へ向けた大きな一步となる。今後我々は KISS を用いて、さらなる中性子過剰核の質量測定やレーザー崩壊核分光研究を実施していく。

## 引用文献

- [1] H. Koura, T. Tachibana, M. Uno, M. Yamada, Prog. Theor. Phys. **113**, 305 (2005).
- [2] W. Nazarewicz, Nat. Phys. **14**, 537 (2018).
- [3] J. J. Cowan, *et al.*, Rev. Mod. Phys. **93**, 015002 (2021).
- [4] M. Thoennessen, The Discovery of Isotopes: A Complete Compilation, Springer (2016).
- [5] O. B. Tarasov, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **121**, 022501 (2018).
- [6] B. P. Abbott, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **119**, 161101 (2017).
- [7] B. P. Abbott, *et al.*, Astrophys. J. **848**, L12 (2017).
- [8] M. Eichler, *et al.*, Astrophys. J. **808**, 30 (2015).
- [9] Y. Hirayama, *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. B **438**, 4-15 (2015).
- [10] Y. Hirayama, *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. B **412**, 11-18 (2017).
- [11] Y. Hirayama, *et al.*, Phys. Rev. C **96**, 014307 (2017).
- [12] Y. Hirayama, *et al.*, Phys. Rev. C **98**, 014321 (2018).
- [13] M. Mukai, *et al.*, Phys. Rev. C **102**, 054307 (2020).
- [14] H. Choi, *et al.*, Phys. Rev. C **102**, 034309 (2020).
- [15] J. Y. Moon, *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. **52**, 138 (2018).
- [16] M. Wada, *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **204**, 570 (2003).
- [17] M. Wang, *et al.*, Chinese Physics C **45**, 030003 (2021).
- [18] T. Niwase, *et al.*, under review.

特集（日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介）

**SrTiO<sub>3</sub> 中にドープされた <sup>111</sup>Cd の占有サイトと熱安定性の研究**

小松田 沙也加

(金沢大学人間社会研究域)



### 1. 緒言

チタン酸ストロンチウム (SrTiO<sub>3</sub>) は中心対称性を有する立方晶ペロブスカイト酸化物である。Ti<sup>4+</sup> サイトに対し価数が低い Ga<sup>3+</sup> や In<sup>3+</sup> 等の不純物元素が置換されると、ドーパント近傍に電荷補償の酸素欠陥を生じて量子構造が変化し、光触媒活性を向上させると報告されている [1]。SrTiO<sub>3</sub> の物性を精密に制御・設計するには、微量導入された不純物元素の占有サイトを原子レベルで解明する必要がある。

そこで本研究では、放射性プローブ位置での局所構造情報を得ることができる  $\gamma$  線摂動角相関 (TDPAC) 法を採用し SrTiO<sub>3</sub> 中にドープされた Cd 位置での局在量子構造を調べている。我々の先行研究において In をドープした SrTiO<sub>3</sub> (In-doped SrTiO<sub>3</sub> とする) に対し <sup>111</sup>Cd ( $\leftarrow$  <sup>111</sup>In) プローブを採用した TDPAC 測定と、光触媒活性の測定が行われた。その結果、0.1% の In は SrTiO<sub>3</sub> 中で 3 種類の占有サイトを占有して光触媒活性を向上させるが、1% を越えると SrTiO<sub>3</sub> 中で光触媒活性を低下させる二次相 In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を形成し始めることが分かった。本稿では <sup>111</sup>In と並び TDPAC 法の強力なプローブである <sup>111</sup>Cd ( $\leftarrow$  <sup>111m</sup>Cd) をプローブに採用し、Cd をドープした SrTiO<sub>3</sub> (Cd-doped SrTiO<sub>3</sub> とする) 中の Cd の占有サイトと光触媒活性を調べた結果を示し、先行研究の結果と比較した。

### 2. 実験

化学量論組成比で Sr + Cd : Ti = 1 : 1 となるように混合した CdCO<sub>3</sub>、SrCO<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub> 粉末をメノウ乳鉢中で混合し、得られた粉末を錠剤成型

して Cd-doped SrTiO<sub>3</sub> の前駆体となるペレットを作成した。Cd の割合は Sr に対して 4~20 at.% となるようにした。<sup>110</sup>CdO 約 3 mg を <sup>110</sup>Cd (n,  $\gamma$ ) <sup>111m</sup>Cd 反応により中性子放射化させた後、6 M の塩酸 10  $\mu$ L に溶かし、<sup>111m</sup>Cd 塩酸溶液を作成した。この <sup>111m</sup>Cd 塩酸溶液を各々のペレットに滴下し、空気中 1373 K で 1.5 時間焼成した。得られた試料を室温、空气中で TDPAC 測定した。

### 3. 結果と考察

Fig. 1 (a) に、我々の先行研究で得られた 0.1 at.% In-doped SrTiO<sub>3</sub> 中 <sup>111</sup>Cd ( $\leftarrow$  <sup>111</sup>In) の TDPAC スペクトル、Fig. 1 (b) ~ (d) に本研究で得られた Cd-doped SrTiO<sub>3</sub> 中 <sup>111</sup>Cd ( $\leftarrow$  <sup>111m</sup>Cd) の TDPAC スペクトルを示す。Fig. 2 には In-doped SrTiO<sub>3</sub>、Cd-doped SrTiO<sub>3</sub> の光触媒活性を示す。本研究では光触媒の活性を示す指標としてメチレンブルー (MB) の分解割合を測定した。Fig. 1 (a) について <sup>111</sup>Cd ( $\leftarrow$  <sup>111</sup>In) 位置で 3 種類の電場勾配の値を示すことが分かっている。そのうち 1 つは電場勾配値がゼロであり、対称性の高い立方晶 SrTiO<sub>3</sub> 中の Sr もしくは Ti サイトを置換しているサイト由来の成分と考えられる。残りの 2 つの電場勾配は  $1.68 (27) \times 10^{22}$  V/m<sup>2</sup>、 $1.76 (28) \times 10^{22}$  V/m<sup>2</sup> を示した。In をはじめとする 3 価の金属イオンは、SrTiO<sub>3</sub> 中で Ti<sup>4+</sup> サイトを置換し、その近傍に電荷補償の酸素空孔が形成して光触媒活性を向上させるとの報告例がある [2]。よって残り 2 つの成分は、Ti<sup>4+</sup> 位置を置換した In 近傍に酸素空孔が存在するサイト由来である可能性が高い。Cd-doped SrTiO<sub>3</sub> については、Fig. 1(b) ~ (d) より、<sup>111</sup>Cd ( $\leftarrow$  <sup>111m</sup>Cd) 周辺の局所構造が Cd 濃度によって異なることが分かった。Fig. 1 (b) は、分布の大きな 2 つの電場勾配を仮定して解析した。この

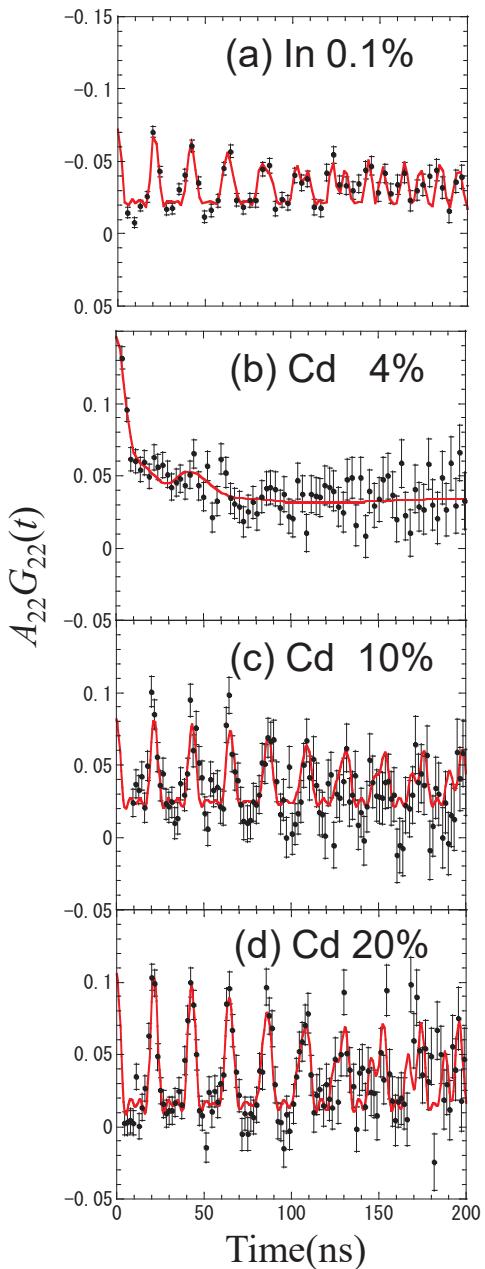


Fig. 1 TDPAC spectra of  $^{111}\text{Cd}(\rightarrow ^{111}\text{In})$  in In-doped  $\text{SrTiO}_3$  and  $^{111}\text{Cd}(\rightarrow ^{111\text{m}}\text{Cd})$  in Cd-doped  $\text{SrTiO}_3$  at room temperature.

結果から、Cd 4%では、Cd周辺の局所構造が不規則であることがわかった。Fig. 1 (c)、(d)は分布のない3種の電場勾配値が得られた。得られた3種類の電場勾配値はFig. 1 (a)の解析で得られた3成分とそれぞれ誤差範囲内で一致した。従って  $\text{Cd}^{2+}$  は、10 ~ 20%の幅広い濃度で  $\text{In}^{3+}$  と同様に欠陥のない  $\text{SrTiO}_3$  中の  $\text{Sr}^{2+}$  及び  $\text{Ti}^{4+}$  サイトと、

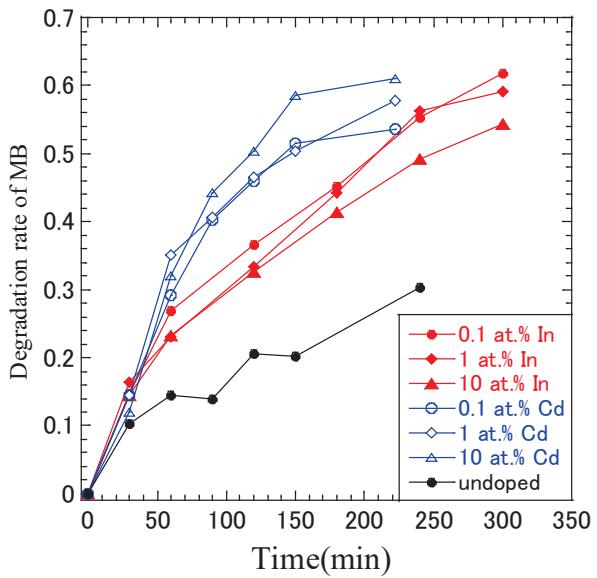


Fig. 2 Degradation rates for the undoped, In-doped, and Cd-doped  $\text{SrTiO}_3$  for methylene blue.

近傍に酸素空孔が存在する  $\text{Ti}^{4+}$  サイトを置換することが示唆された。Fig. 2 より光触媒活性については、Cd-doped  $\text{SrTiO}_3$  の方が In-doped  $\text{SrTiO}_3$  にくらべて光触媒活性が高い傾向が見られた。我々の先行研究より  $\text{In}^{3+}$  は 1%以上で二次相を生じて光触媒活性を低下させる一方で、 $\text{Cd}^{2+}$  は 20%でも二次相を形成しないため、 $\text{Cd}^{2+}$  の方が光触媒活性向上への寄与が大きいと考えられる。また、 $\text{Ti}^{4+}$ への置換に伴う電荷補償の酸素空孔も、 $\text{In}^{3+}$ よりも2価である  $\text{Cd}^{2+}$  の方が多く形成すると考えられる。

#### 4.まとめ

本研究結果から  $\text{Cd}^{2+}$  は、 $\text{SrTiO}_3$  中で、同価数でイオン半径も近い  $\text{Sr}^{2+}$  サイトがあるにも関わらず、 $\text{Ti}^{4+}$  を占有して近傍に酸素空孔を生じる可能性が示された。また一般的に報告例が多く光触媒活性を高めるといわれている  $\text{In}^{3+}$  を不純物とするよりも、 $\text{Cd}^{2+}$  が  $\text{SrTiO}_3$  の光触媒活性を高める有力な不純物候補となる可能性が示唆された。

#### 参考文献

- [1] H. Lyu *et al.* Chem. Sci. **10**, 3196 (2019).
- [2] P. Andreasson *et al.* Phys. Chem. Chem. Phys. **22**, 19178 (2020).

## 特集（日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介）

### $^{229m}\text{Th}$ の $\gamma$ 線測定に向けた希ガスマトリックス単離装置の開発

益田 遼太郎<sup>1,2</sup>、安田 勇輝<sup>1</sup>、澤村 慶<sup>1</sup>、重河 優大<sup>2</sup>、

宮本 祐樹<sup>3</sup>、吉村 浩司<sup>3</sup>、篠原 厚<sup>4</sup>、笠松 良崇<sup>1,2</sup>

( <sup>1</sup> 阪大院理、<sup>2</sup> 理研、<sup>3</sup> 岡山大学、<sup>4</sup> 大阪青山大学)



#### 1. 緒言

原子核壊変の壊変定数は一般的に核種固有の定数である。原子核は  $10^{-15}$  m 程度の広がりで MeV、KeV のエネルギーを持つのに対して、軌道殻電子は  $10^{-10}$  m 程度の広がりで eV 程度であり、エネルギー的にも空間的にも大きく異なるため、原子核と軌道殻電子は独立したものとして扱われる。ただし、内部転換や EC 過程といった原子核と軌道殻電子の相互作用を伴う壊変過程も存在する。

本研究で扱う  $^{229m}\text{Th}$  は励起エネルギーが現在  $8.3 \pm 0.92$  eV [1] と求められている。この値は、間接的に求められており直接  $^{229m}\text{Th}$  の励起エネルギーを観測した報告はまだない。励起エネルギーの  $8.3 \pm 0.92$  eV という値は、その他の核種に比べて 3 ~ 6 衍小さい値である。この値は、レーザー励起可能であり原子核時計の唯一の候補であり、また化学状態によって壊変経路が変化するという他の核種にはない性質を示す可能性がある。 $^{229m}\text{Th}$  の壊変経路は内部転換と  $\gamma$  線遷移が競合する過程である。例えば  $^{229m}\text{Th}$  の軌道殻電子の結合（イオン化工エネルギー）は 6.3 eV [2] であり、励起エネルギー > 軌道殻電子の結合であるため内部転換が主となる。一方で  $^{229m}\text{Th}^+$  では、軌道殻電子の結合エネルギーが 11.9 eV のため、励起エネルギー < 軌道殻電子の結合となり内部転換が禁止され、 $\gamma$  線遷移が主となる。

現在、 $^{229m}\text{Th}$  由来の内部転換電子が観測され [3]、内部転換半減期が 7  $\mu\text{s}$  [4] であると報告されている。

本研究では、 $^{229m}\text{Th}$  が  $\gamma$  線遷移すると期待され

る化学状態 ( $^{229m}\text{Th}^+$ ) を安定に維持可能かつ真空中で保持でき、真空紫外光を測定可能つまり孤立イオン状態で実験可能な新規装置開発が必要であると考えた。孤立イオン状態で実験可能な手法として希ガスマトリックス単離法が挙げられる[5]。希ガスマトリックス単離法とは、目的原子・分子の周りを不活性な原子（希ガス）で囲む条件で実験を行う手法である。そのため、目的原子・分子は孤立状態で実験することができる。本稿では、希ガスマトリックス単離装置の開発と希ガス固体の生成について紹介する。

#### 2. 装置開発

作製した装置の概略を図 1 に示す。試料台に希ガス固体を生成し、 $^{233}\text{U}$  線源の反跳核  $^{229m}\text{Th}$  の多価イオンを希ガス固体にトラップし、 $^{229m}\text{Th}^+$  由来の  $\gamma$  線を光電子倍増管で観測する。ゲートバルブ、マニュピレーターによって線源をチャンバーに出し入れすることができるので、 $^{229m}\text{Th}$  を捕集する際は線源をチャンバー内に、測定時には線源をチャンバー外に位置させる。GM 冷凍機を運転する際、熱の拡散を防ぐために輻射シールドを用いることで、Ar 固体生成可能な 83 K まで試料台を冷却可能である。また、希ガスを吹き付ける際の真空度はターボ分子ポンプにより  $2.0 \times 10^{-4}$  Pa である。

検出される  $^{229m}\text{Th}$  由来の光子の個数を見積ることは重要である。まず、線源 - 希ガス固体と希ガス固体 - 検出器間の立体角を PHITS [6] を用いてモンテカルロシミュレーションを行い見積もった。次に得られた立体角を元に捕集時間と計測時間を式 (1) (2) を用いて設定した。

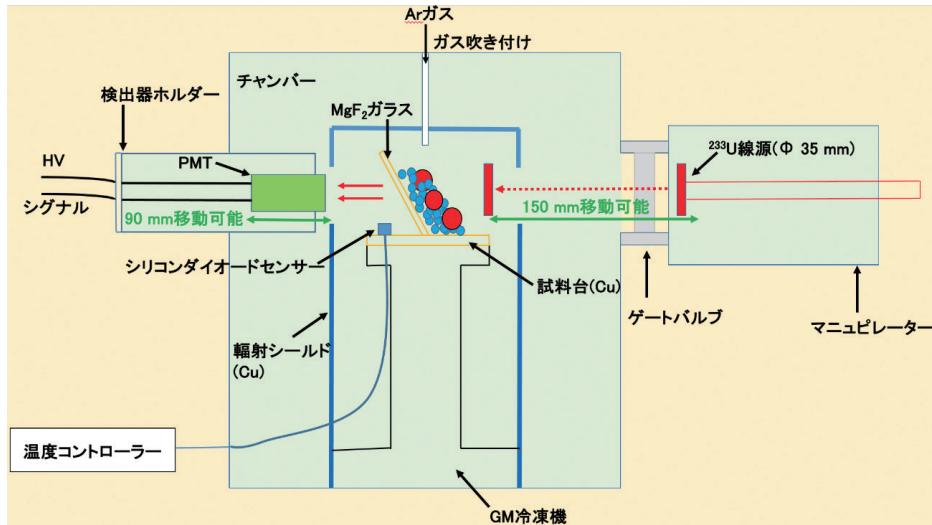


図1：装置の全体像

$$N_m(t) = \frac{\lambda_{233}}{\lambda_m - \lambda_{233}} \times N_{233} \times br_m(e^{-\lambda_{233} \times t} - e^{-\lambda_m \times t}) \times \Omega_1 \quad (1)$$

$$N_m'(t) = N_m(30000) \times \left(\frac{1}{2}\right)^{\left(\frac{t-30000}{5000}\right)} \quad (2)$$

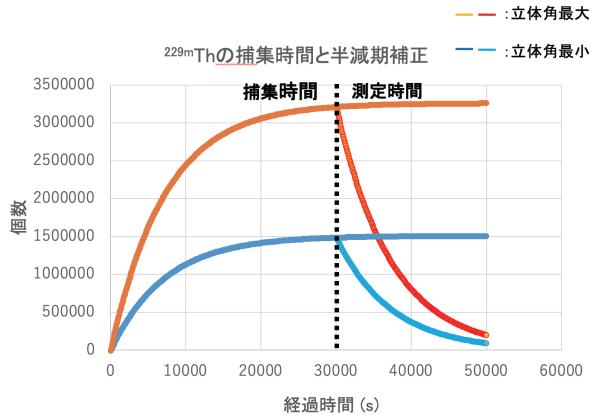
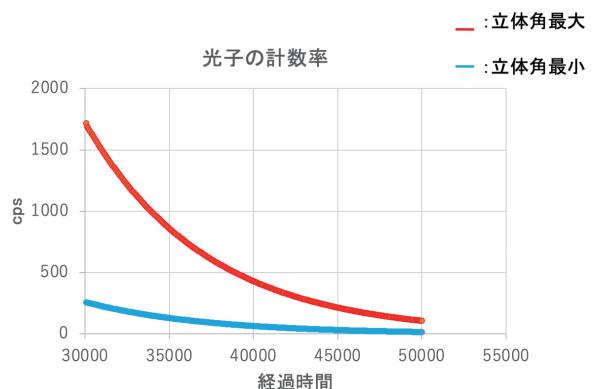
( $N_m$ ,  $N_m'$ ,  $N_{233}$ :  $^{229m}\text{Th}$  と  $^{233}\text{U}$  の個数、 $\lambda_m$ ,  $\lambda_{233}$ :  $^{229m}\text{Th}$  と  $^{233}\text{U}$  の壊変定数、 $br_m$ :  $^{233}\text{U}$  から  $^{229m}\text{Th}$  への分岐率、 $\Omega_1$ : 線源 - 希ガス固体間の立体角、 $t$ : 捕集を開始してからの経過時間)

結果を図2に示す。図2より、捕集時間を30000 s、計測時間を15000 sと決定した。計測される  $^{229m}\text{Th}$  からの光子のイベント数を  $N_m''$  とすると、検出器の量子効率(10%)と希ガス固体-検出器間の立体角  $\Omega_2$  を用いて式(3)で求めた。

$$N_m''(t) = N_m'(t) \times \Omega_2 \times 0.1 \quad (3)$$

結果を図3に示す。これより、立体角最大では  $2.0 \times 10^2 \sim 1.7 \times 10^3$ 、立体角最小では  $3.0 \times 10 \sim 3.0 \times 10^2$  cps と計数率を見積もることができた。

本研究では、チエレンコフ光の影響を考慮し、図4に示すようにガラスを介して光子を検出する透過光法とガラスを介さず光子を検出する直接光法の2種類の測定方法を用いる。

図2：捕集時間30000 sとした場合の希ガス固体にトラップされる  $^{229m}\text{Th}$  の個数図3： $^{229m}\text{Th}$  由来の光子の計数率の見積り

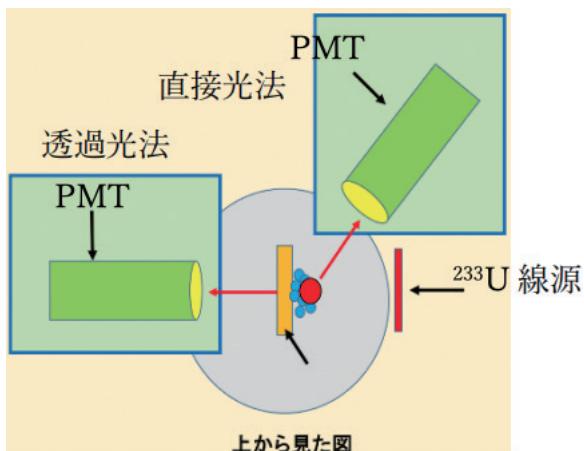


図4：測定方法



図5: 希ガスを吹き付ける前後の試料台(左:前 右:後)

### 3. 実験・結果

用いる希ガスは Ar (純度 99.99994 %) である。Ar のイオン化エネルギーは 15.7 eV であるため多価イオンの  $^{229m}\text{Th}$  が  $^{229m}\text{Th}^+$  に揃うと考えられる。この希ガスを、マスフローコントローラーを用いて流速 30 cc/min で試料台に吹き付け、冷凍機で冷却した基板に吹き付けた。

希ガス吹き付け前後の試料台の写真を図 5 に示す。希ガス固体は、生成条件により白い固体や透明な固体が生成される。一般的に光学実験には透明な希ガス固体が適している。図より、光学実験に適した透明色の希ガス固体が生成できたと判断した。

### 4. まとめ・今後

$^{229m}\text{Th}$  の  $\gamma$  線観測に向けて希ガスマトリックス単離装置の開発と希ガス固体生成条件の検討を行なった。今後は、RI を用いたテスト実験を行い、 $^{233}\text{U}$  線源を用いた  $^{229m}\text{Th}$  の  $\gamma$  線及び半減期測定を行う。

### 参考文献

- [1] A.Yamaguchi,et.al., Phys. Rev. Lett., 123, 222501 (2019).
- [2] Lars von der Wense et al., Eur. Phus. J. A, 56, 277 (2020).
- [3] I.R.Dunkin ed Matrix-Isolation Techniques Oxford University Press(1998).
- [4] Lars von der Wense, Benedict Seiferle, Mustapha Laatiaoui, Jürgen B. Neumayr, HansJörg Maier, Hans-Friedrich Wir th, Christoph Mokr y, Jör g Runke, Klaus Eberhardt, Christoph E. Düllmann, Norbert G. Trautmann, and Peter G. Thirolf, Natrue 533, 47 (2016).
- [5] Benedict Seiferle, Lars von der Wense, and Peter G. Thirolf, Phys. Rev. Lett. 118, 042501 (2017).
- [6] Sato, T. et al. J. Nucl. Sci. Technol. 55(6), 684–690 (2018).

特集（日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介）

超伝導転移端検出器を利用したマイクロ蛍光X線分光法による  
環境試料中のウランの分析

蓬田 匠<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>東大院理、<sup>2</sup>JAEA)



### 1. 緒言

旧ウラン(U)鉱床である東濃や人形峠では、層状ケイ酸塩鉱物である黒雲母がUのホスト相の1つとして報じられている(1,2)。しかし、黒雲母がUを保持する詳細なメカニズムは未解明である。このメカニズムを明らかにするためには、黒雲母中のUの分布を正確に把握し、共存元素との分布の比較や風化による黒雲母の構造変化の影響を議論する必要がある。

マイクロビームX線を用いた蛍光X線分光法( $\mu$ -XRF)は、環境試料などに含まれた微量元素の分布を把握するために有効な方法である(3)。しかし、黒雲母にはUの蛍光X線分析時に測定妨害となるルビジウム(Rb)が多量に含まれており、黒雲母中のUの分布を正確に把握することは、通常用いられる半導体検出器(Silicon Drift Detector: SDD)のエネルギー分解能では困難であった。そこで本発表では、エネルギー分解能5eVを達成可能な超伝導転移端検出器(Transition Edge Sensor: TES)を蛍光X線分析用の検出器として用い、黒雲母に含まれているUの分布を正確に把握する方法について検討した。

### 2. 実験方法

旧ウラン鉱床から採取したボーリングコア試料より、縦3mm×横3mm×厚さ2mm程度の黒雲母を採取した。この黒雲母を樹脂埋めした後に、3M製ラッピングフィルムを用いて両面を研磨し、厚さ約50μmの黒雲母薄片試料を調製した。SPring-8 BL37XUにおいて、ビームサイズ約1μmのマイクロビームX線を用いた蛍光X線分

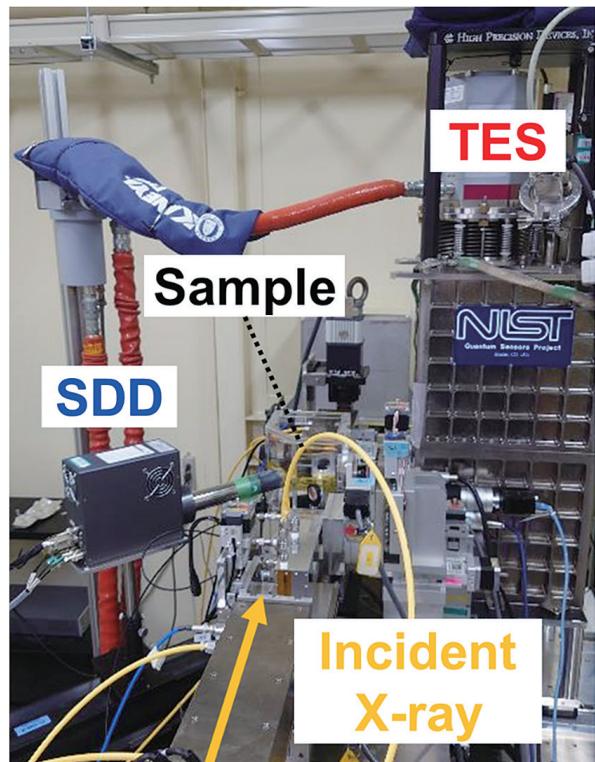


Fig. 1 Schematic overview of X-ray fluorescence mapping experiment at BL37XU, SPring-8.

析を行った(Fig. 1)。X線分析用の検出器として従来用いられているSDDと、TESを同時に用い、入射エネルギー17.2keVにおいて試料各部位での $\mu$ -XRFスペクトルを取得して、黒雲母に含まれているUとRbの分布を調べた。

### 3. 結果と考察

マイクロビームX線を用いたマッピング分析により、試料中でUが存在するスポットを検出し、各分析点においてXRFスペクトルを取得し

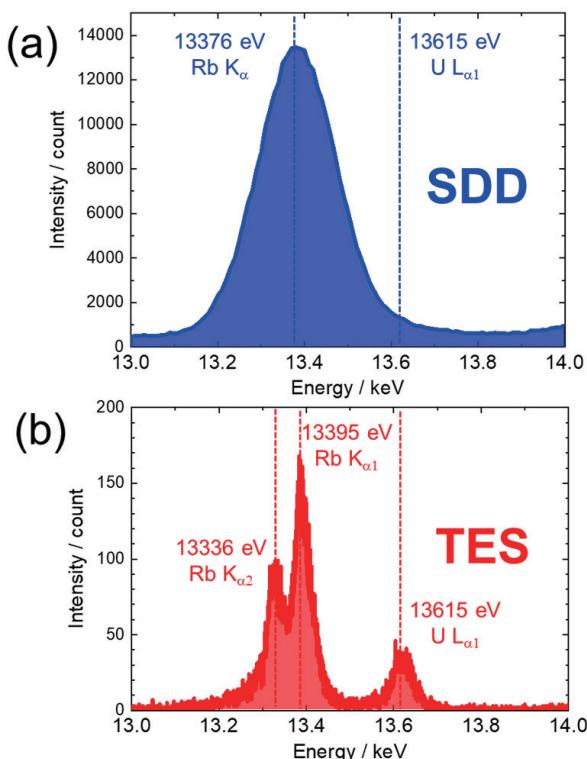


Fig. 2 X-ray fluorescence spectra of biotite thin sample with (a) SDD and (b) TES.

た。U-Rb 共存スポットにおいて得られた XRF スペクトルを Fig. 2 に示す。SDD のエネルギー分解能約 200 eV では、XRF スペクトルで 13.615 keV の U La 線と 13.395 keV の Rb K<sub>α</sub> 線を分離することは困難であり、Rb が多量に存在する場合、U による蛍光 X 線ピークを分離して検出することはできない (Fig. 2a)。一方、TES を用いると、13.615 keV の U La 線と、13.395 keV の Rb K<sub>α</sub> 線を完全にピーク分離できた (Fig. 2b)。したがって、TES を μ-XRF の検出器として用いることにより、試料中に共存する Rb の影響を除いて、U だけの信号を正確に観測することが可能となった。

黒雲母中の U について、マイクロビーム X 線を用いたマッピング分析を行った結果を Fig. 3 に示す。Fig. 3 (a) が SDD を用いたマッピング分析の結果であり、マッピング領域全体から U の信号が観測される。これは、試料中に共存する Rb の蛍光 X 線が U の蛍光 X 線に干渉した結果、U が存在していない位置でも Rb のバックグラウンドが観測されていることを示す。一方、TES を

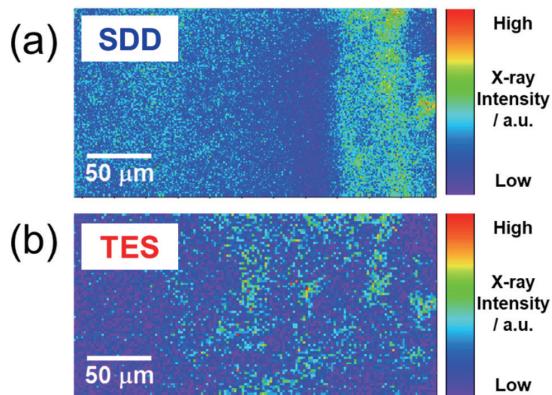


Fig. 3 X-ray fluorescence mapping images of biotite thin sample at U La line by (a) SDD and (b) TES.

用いて行ったマッピング分析の結果 (Fig. 3 (b)) では、SDD を用いた際に生じていた Rb のピーク干渉が解消され、U だけの正確な分布が得られるようになり、U が黒雲母中で局所的に分布する様子が観測できた。U の分布と Rb の分布は相関性が低く、Rb の少ない部位で U の濃集が生じると考えられる。Rb が少ない部位は、黒雲母の層間に詰まった陽イオンが風化によって取り除かれていると考えられるため、黒雲母の風化が進行した部位で U の濃集が生じていると考えられた。

#### 4. 結言

超伝導転移端検出器 (TES) を蛍光 X 線分析用の検出器に用い、Rb の干渉が存在する試料中で U の分布を正確に把握する方法について検討した。従来の半導体検出器を用いた μ-XRF 測定では、Rb のピークがバックグラウンドとして干渉することによって微量な U の信号を正確に把握することは困難であった。一方、TES を X 線検出器に用いることにより、Rb と U のピーク干渉を完全に除去することが可能になった。μ-XRF によるマッピング分析では、SDD を用いた場合は Rb のピーク干渉の影響で U の分布が不正確になる。一方、TES を用いた場合はピーク干渉を解消した正確な U と Rb の分布が得られることがわかった。高いエネルギー分解能によって蛍光 X 線のピーク干渉を解消可能な TES は、従来の半導体検出器では検出が困難であった U 以外の微量元素の検出にも利用できると考えられ、今後幅広い

環境試料の分析に展開できると期待される。

**引用文献**

- (1) 佐藤 源朗 他. 日本原子力学会誌, 3(7), 541  
(1961).

- (2) H. Yoshida et al., J. Nucl. Sci. Technol, 31(8),  
803 (1994).  
(3) Y. Abe et al., Anal. Chem., 86(17), 8521  
(2014).

## 特集

(日本放射化学会第66回討論会・若手優秀発表賞受賞者による研究紹介)

## 分子レベルの情報に基づいたラジウムの環境挙動解明

山口 瑛子

(日本原子力研究開発機構 / 東京大学)



## 1. 緒言

放射性元素であるラジウム (Ra) はウラン (U) などから生成するため、ウラン鉱山周辺の環境汚染問題や放射性廃棄物処理問題において重要である。近年では、自然由来の Ra による飲料水中の基準値超過や [1]、シェールガス開発による環境汚染も懸念されており [2]、Ra の環境挙動の早期解明が望まれている。

さらに、環境汚染だけでなく、がん治療薬として着目されるアクチニウム-225 の原料としても <sup>226</sup>Ra が着目されているため [3, 4]、資源の観点から <sup>226</sup>Ra の環境挙動を解明することは医療分野でも重要である。

Ra の環境挙動については、オクロ天然原子炉周辺における鉛の同位体比の分析 [5] や分配係数の比較 [6] などから、粘土鉱物への吸着挙動的重要性が示唆されているが、詳細な吸着構造や吸着機構は不明である。

粘土鉱物への吸着反応は様々な元素の環境挙動を支配するが、元素によってその挙動は大きく異なる。例えば、放射性セシウム (Cs) とストロンチウム (Sr) は、共に原子力発電所の事故で放出されたが、Cs は土壤表層に固定された一方で Sr は固定されなかった [7]。その原因是分子レベルでの吸着構造にあると考えられている。Cs はイオンが脱水して吸着する内圏錯体を形成するため固定される一方で、Sr は水和したまま吸着する外圏錯体を形成するため脱着しやすい (図 1)。従って、Ra の環境挙動を解明するためには、Ra が粘土鉱物に対して、外圏 / 内圏錯体のどちらを形成するか明らかにする必要がある。

本研究では、広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS)

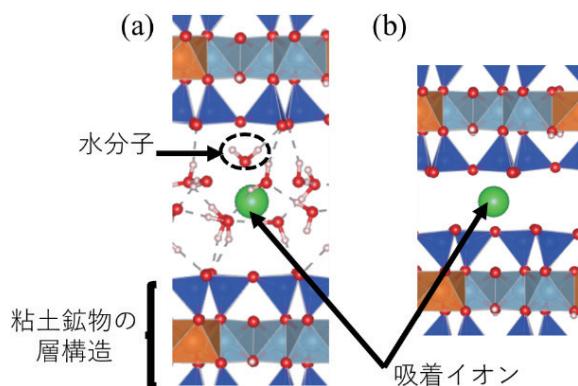


図 1. 粘土鉱物への (a) 外圏錯体と (b) 内圏錯体

法により Ra の粘土鉱物への吸着構造を分子レベルで調べることを目指した。EXAFS 法は元素選択性が高く様々な元素の分子レベル情報を取得できるが、比較的高濃度 (数百 ppm) の試料が必要である。そのため、安定同位体のない Ra の場合は試料の放射線量が高くなることや放射壊変によって希ガスのラドンを生成し内部被ばくの危険性を高めることが懸念される。これらのことから、Ra の EXAFS 測定は筆者らのグループによる水和構造解明にとどまっていた [8]。本研究ではさらに、旧ウラン鉱床である人形峠環境技術センターのコア試料分析により、Ra の環境挙動解明も目指した。

## 2. 実験方法

粘土鉱物としてバーミキュライトとモンモリロナイトを利用した。EXAFS 測定用試料は、大阪大学にて精製された  $\text{Ra}^{2+}$  水溶液を用いて粘土鉱物に Ra を吸着させた後、許認可に則った密封線源を日本原子力研究開発機構にて作製した (図 2)。EXAFS 測定は、Ra の  $\text{L}_{\text{II}}$  吸収端について 19 素子

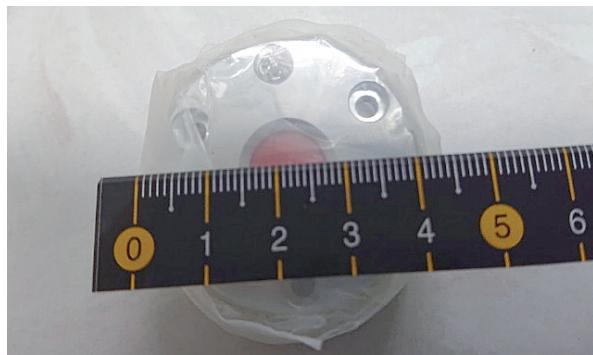


図2. 密封線源の模擬試料の写真。  
オレンジ色の部分にX線を照射。

ゲルマニウム半導体検出器(SSD)を用いた蛍光法により行った。Raの子孫核種である鉛の蛍光X線( $L\beta_4$ : 12.307 keV)がRaの蛍光X線( $L\alpha_1$ : 12.339 keV)に干渉することを避けるため、Ra試料作製後、速やかにSPring-8のBL22XUにて測定を行った。

コア試料分析については、試料を密封し放射平衡に達してから $\gamma$ 線スペクトロメトリにより $^{226}\text{Ra}$ ( $^{214}\text{Pb}$ : 351.9 keV)や $^{238}\text{U}$ ( $^{235}\text{U}$ : 185.7 keVから $^{226}\text{Ra}$ の寄与を補正し天然存在比から算出)の濃度を測定した。さらに逐次抽出法によりRaのホスト相となる鉱物の特定を行った。また、水簸法によって粘土鉱物の分離を行い、濃度測定を行った。

### 3. 結果と考察

EXAFS実験の結果、Raが粘土鉱物に吸着する場合、バーミキュライトについては内圈錯体を、モンモリロナイトについては外圈錯体を形成することが分かった。黒雲母などの鉱物が風化するとバーミキュライトを生成するため、風化黒雲母などの鉱物もRaを強く吸着する可能性がある。

コア試料分析においてバルクの $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比を求めたところ、ウラン鉱石を含む砂礫岩層では1を下回ったのに対し、その下層の風化花崗岩上部では1を大きく上回り、さらに下層の未風化花崗岩層では1の値になった。このことから、 $^{226}\text{Ra}$ が風化花崗岩層上部に固定されたことがわかった。さらに一部の試料について逐次抽出実験

を実施した結果、全 $^{226}\text{Ra}$ のうち、粘土鉱物の寄与が7割程度であることがわかり、そのうち半分程度が内圈錯体を形成していることが示唆された。水簸法によって粘土鉱物を取り出し放射能測定を行ったところ、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ はバルクの値よりも高くなり、粘土鉱物への濃集が明らかになった。これらの結果はEXAFS法により明らかになった、Raの粘土鉱物に対する内圈錯体形成と整合的であり、風化花崗岩中の粘土鉱物がRaのホストとなっていることを示している。

### 4. 結言

粘土鉱物に吸着したRaについてEXAFS測定を行い、Raがバーミキュライトとモンモリロナイトについて、それぞれ内圈錯体と外圈錯体を形成することが明らかになった。コア試料分析を行ってRaの環境挙動を調べたところ、粘土鉱物によるRaの固定が示唆され、EXAFSの結果と整合的であった。以上のことから、環境中のRaはバーミキュライトなどの風化雲母鉱物に内圈錯体を形成して強く吸着し、固定されることが示された。

### 引用文献

- [1] Z. Szabo et al., *Appl. Geochemistry* **27**, 729 (2012).
- [2] A. Vengosh et al., *Environ. Sci. Technol.* **48**, 8334 (2014).
- [3] W.T. Diamond et al., *J. Appl. Phys.* **129**, (2021).
- [4] K. Nagatsu et al., *Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging* **49**, 279 (2021).
- [5] H. Hidaka et al., *Earth Planet. Sci. Lett.* **264**, 167 (2007).
- [6] M.A. Chen et al., *Environ. Sci. Technol.* **52**, 4023 (2018).
- [7] A. Yamaguchi et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **317**, 545 (2018).
- [8] A. Yamaguchi et al., *iScience* **25**, 104763 (2022).

## 会議報告

### 放射化学会年会第66回討論会（2022）を終えて

放射化学会年会第66回討論会（2022）実行委員会

高橋 嘉夫

（東大院理・アイソトープ総合センター）

放射化学会年会第66回討論会（2022）は、2022年9月15日（木）～17日（土）を会期として、東京大学本郷キャンパス理学部1号館を中心にして総会や受賞講演などは同じ本郷キャンパス内の伊藤謝恩ホールを会場とし、無事に開催させて頂きました。本開催にご協力頂いた放射化学会会長の五十嵐康人先生（京都大学）、前会長の篠原厚先生（大阪青山大学）、現理事および前理事の諸先生方、準備と運営を献身的に進めて下さった実行委員会メンバー（付録参照）、各セッションをとりまとめて下さったセッションコンビーナーの皆様（付録参照）、学会主催の一般向け講演会や高校生・高専生ポスターなどで大変お世話になった東京大学アイソトープ総合センターの皆様に、心より感謝申し上げます。本稿ではやや異例ですが、今回の放射化学討論会の東京開催に至るまでの経緯（=APSORC2021およびAPSORC2022の延期の経緯）をまず記させて頂き、それから本討論会の概要、討論会の実際と反省点について述べたいと思います。また今回が本討論会としては初めてのハイブリッド開催となりましたので、今後の参考のために practical な点についても記したため、冗長な部分もあることをお許し下さい。

#### 1. はじめに：APSORC2021の延期と放射化学会年会第66回討論会（2022）開催の経緯

今回の討論会は、東大の旧富永健研究室・巻出義紘研究室の関係者と現在の高橋の研究室メンバーが主体となって運営しましたが、これは元々、日本放射化学会主催で国内で開催予定だった国際会議 Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC) 2021のために組織されたものでした。このAPSORC2021は、最終的に2025年に延期となっていますが、その経緯も書き残した方がよい

と思い、非常に長くなりますが以下に書かせて頂きます。

このAPSORC2021の準備委員会の発足は、2018年9月17日の京都大学吉田キャンパスにおける討論会前の学会理事会で提案され、2018年12月より上記のメンバーで準備を始めました。その後、2019年3月2日の理事会でAPSORC2021の会場は福島県郡山市と決められました。この決定に至った理由として、2021年が福島第一原発事故の10周年に当たり、福島原発事故関連の集大成とするセッションを開催すること、また関連研究の成果を福島の市民に伝えたいこと、などの議論がありました。その後、組織委員会を編成し、各担当者の決定（Chair：高橋嘉夫；Co-Chair：山田康洋（東京理科大学）；Secretary：桧垣正吾（東大アイソトープ総合センター）ほか）、APSORCの国際委員会（IC）による郡山でのAPSORC2021開催の承認、会場および日程の決定（ホテルハマツ、2021年9月19日～24日）、プログラムと各セッションのコンビーナー決定、寄付活動、プロシーディングのJ. Radioanal. Nucl. Chem.誌への掲載の契約、Hevesey賞の授賞式開催の議論などが2020年3月頃までに進展しました。

ところが、誰も予期せぬことでしたが、2020年3月にCOVID-19が日本でも猛威をふるい、「対面かオンラインかハイブリッドか」という開催形式の議論・準備を進める必要が出てきました。その最中、2020年4月29日にAPSORC2021のCo-Chairであった山田康洋先生が骨髄腫瘍でお亡くなりになられました（享年61歳）。APSORC準備のためにメールをやりとりさせて頂いていた時期で、いつも熱心にサポートして下さる先生であったため、大変ショックを受けました。ご冥福をお祈りいたします。

COVID-19 の蔓延は、様々な余波を生みました。学生への教育効果や自治体からの支援金が対面参加者数で決まることなどの要因があり、対面参加を重視し、APSORC 開催を 2022 年に延期することを 2020 年 6 月 20 日の組織委員会・学会理事会で決め、その後 APSORC-IC の承認を得ました。またその場合、2021 年は学会としては国内討論会を開催する必要が生じ、羽場宏光先生（理研）と大浦泰嗣先生（都立大）がご担当して下さいました。その後 2021 年 5 月頃までに、APSORC2022 の開催日を 2022 年 9 月 11 日～16 日とし、ハイブリッドも対応できるようにアトラス社の Confit システムを利用することに決め、基調講演・招待講演の依頼などを進めました。その最中の 8 月 24 日、巻出義紘先生（東大名誉教授）がお亡くなりになられました（享年 77 歳）。いつも学生を encourage して下さる素晴らしい先生でした。ご冥福をお祈りいたします。

その後、2022 年 1 月までに様々な準備を進め、桧垣先生のご活躍で HP の最終チェックとアブストラクト受付のテストを行うところまで終えたのですが、ちょうどその頃 COVID-19 の新種オミクロン株（BA.1/BA.2）の流行により、それまで最大の第 6 波が世界を襲い、2022 年 2 月 19 日の理事会で APSORC は 2025 年に延期することを APSORC-IC に提案することになりました。この理由としては、APSORC2022 では対面主体の実施を予定していましたが、海外参加者の半数以上が見込まれた中国や韓国について、複数の共同研究者に連絡したところ、2022 年 9 月に来日することは困難という意見が大勢だったことが決定打となりました。その後、APSORC-IC での承認や Hevesey 賞授賞式の返還に問題がないことを確認して、最終的に 3 月末に APSORC を 2025 年に延期（日本開催）することが確定しました。同時に 2022 年は国内での放射化学討論会を開催することになり、この時点で対応可能なのは APSORC 組織委員会の主要メンバーであると考えられたため、最終的に付録に示した実行委員会が主体になって会場・日程を検討し、2022 年 9 月 15 日～17 日に東京大学本郷キャンパスで放射化学会年会第 66 回討論会を開催することになりました。

この後の討論会の準備においては、Confit の運

用やプログラム編成において、LOC メンバー以外に、学会理事会の討論会担当である鈴木達也先生（長岡技術科学大学）、秋山和樹先生（東京都立大）、そして各セッションコンビーナの皆様に大変お世話になりました。討論会実施に当たって、Confit の運用やプログラム編成などにおいて討論会担当理事にお手伝い頂く点は、最近の理事会の方針として決められたことで、この方針が継続されることで、今後 LOC の負担がかなり軽減されるものと期待されます。

## 2. 放射化学討論会の歴史と第 66 回討論会の概要

本放射化学討論会は、わが国の核・放射化学研究者の研究発表と交流の場であり、第 1 回会合は斎藤信房先生（東大）が世話人となり、“死の灰”分析で知られるビキニ事件から間もない 1957 年に東京で開催されました。その後毎年 1 回開催され、今回の討論会が第 66 回目にあたりました。この歴史ある放射化学討論会は、研究者の自主組織「放射化学研究連絡委員会」によって長らく運営され、1999 年 10 月の日本放射化学会の設立からは日本放射化学会年会・放射化学討論会という二つの名称を冠した大会となっていましたが、日本放射化学会が主催する討論会という位置づけを明確にするため、本会創設 20 年を機に 2019 年から標記のような名称となりました。

本討論会は、核・放射化学を中心として、今は福島原発問題を含む環境放射能、物性科学、保健物理、放射線生物学、核医学、加速器科学、放射線教育等の多岐にわたる分野の研究者が集う学際的な研究交流の場となっています。特に現在、ロシアのウクライナ侵攻などによる世界的なエネルギー不足のため原子力エネルギーの見直しが進んでいるだけでなく、ニホニウムの発見や様々な形での SDGs への貢献に加え、 $\alpha$  線放出核種を用いた核医学の発展があり、放射能・放射線を用いた科学は新たな発展を見せています。放射線・放射能といえば、発見当初から様々な基礎科学のブレークスルーや新エネルギー源を生んだ一方で、近年ではその危険性からネガティブな印象もついて回るようになっています。しかし、放射化学は、文系理系の幅広い学問分野に貢献する学際的かつ分野横断的な研究領域であり、その科学技術の基

礎としての重要性は、今後も何ら変わることはありません。

このような放射化学の基礎と応用を幅広く扱う放射化学討論会の役割は、今後とも益々大きなものとなるでしょう。本討論会が、このような分野の活発な議論の場となるように、今回の討論会では、新しくセッション制を取り入れました。これまで放射化学討論会が扱ってきた各分野を個別のセッションとして発表申込前に明示し、各セッションのコンビーナーを各分野の先生方（学会で近年創設した各部会にも依頼）にお願いしました。そして、それぞれのセッションで招待講演者を複数お呼び頂くことで、新しい出会い、研究テーマの新展開、若手の奨励などを図りたいと考えました。また、今まさに注目を集める核医学、核プローブのリュウグウへの応用、アクチノイド化学については、それぞれ Amirreza Jalilian 先生 (IAEA; 写真1)、大澤崇人先生 (JAEA)、矢板毅先生 (JAEA) に基調講演をお願いしました。さらに今回の討論会で新しい取組として、福島県立磐城高校および福島工業高等専門学校の高校生・高専生によるポスターセッション（発表全5件；詳細は付録参照）も実施しました。

この他、中日には総会に続いて、パネルディスカッション「放射化学の将来像と若手へのメッセージ」(写真2) が行われ、パネラーである中西友子先生 (東大)、篠原厚先生 (大阪青山大)、三浦勉先生 (産総研)、鷺山幸信先生 (福島医大)、佐藤志彦先生 (JAEA)、秋光信佳先生 (東大) の各氏から、放射化学研究の将来像、研究者へのキャリアパスの展望、若手への激励のメッセージなどが述べされました。引き続き学会賞（奨励賞）3件の受賞講演がなされました（付録参照）。また、初日には別所光太郎先生 (KEK) のご尽力で企業セミナーを開催しました。最終日の閉会式では、若手優秀講演賞を登録37件の中から選ばれた6件の発表に授与しました（詳細は付録参照）。また高校生・高専生のポスター発表については、5件すべてに研究奨励賞を授与しました。

また、討論会本体の前週である9月10日（土）には、日本放射化学会主催の市民講演会（共催：東大アイソトープ総合センター）を福島県広野町で開催（ハイブリッド）しました。この福島県開



写真1：Jalilian 博士の基調講演の様相（理学部1号館小柴ホール）。



写真2：パネルディスカッションの様子と五十嵐康人会長（京大）のメッセージ「青は藍より出でて藍より青し。学問を継続し、良き弟子を育てましょう」（伊藤謝恩ホール）。

催は、元々放射化学の成果を福島に還元したいという理由で APSORC の郡山開催を決定した精神を引き継いだものです。2件の講演「量子ビームを用いたリュウグウ・隕石試料の分析」（高橋嘉夫（東大）、二宮和彦先生（阪大））と「アルパカ抗体が導く放射性医薬品の新分野」（和田洋一郎先生（東大））とパネルディスカッション「復興知：地域と連携した人材育成の取り組み」（とりまとめ：秋光信佳先生（東大））が行われました。また併設で小惑星探査機「はやぶさ」の展示会も開催されました（詳細は付録参照）。

### 3. 本討論会の実際と考察

これらの取組みの結果、本討論会の参加者総数は334名となり、放射化学討論会としては非常に多数の参加者を得ました。発表者には口頭・ポス

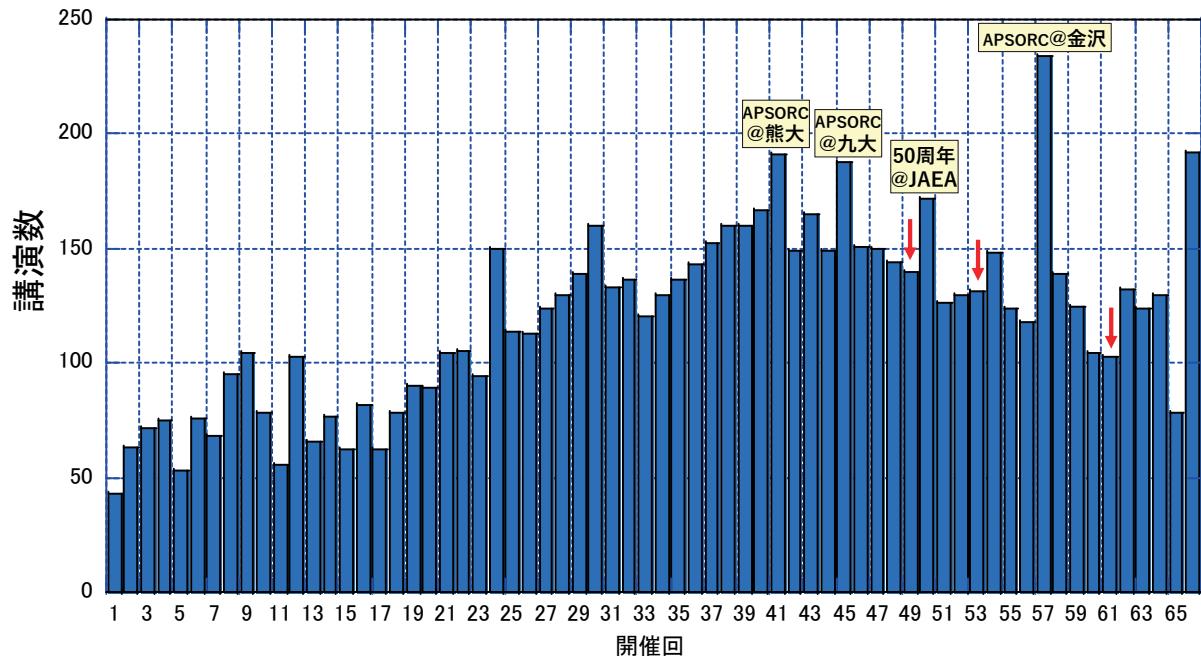


図1：放射化学討論会の各開催回での講演数の推移  
(各回開催場所等の詳細は学会ホームページ参照：<http://www.radiochem.org/event/forum.html> )

ターのいずれも基本的に対面で実施することをお願いし、やむを得ない事情がある場合に口頭発表のみオンライン発表も可としました。また聴講のみの場合には、オンライン参加も可としました(開催当時は COVID-19 第7波末期)。そのため、口頭発表セッションは実質的にハイブリッド開催となり、そのための準備も進めました。結果的に参加者の 85% 以上が 1 日以上来場されました。この場合、15% のためにハイブリッドの準備を今後とも行う必要があるか、という問題が出てきますが、参加日によってオンラインに切り替えた方もいらっしゃいましたし、地方開催の場合オンライン聴講が増えハイブリッド開催のメリットが増すこと、などから、今後ともハイブリッド開催のメリットは大きいと考えます。

結果的に今回の全発表件数は 192 件となり、国内向けの放射化学討論会としては過去最高の 50 回記念大会(2006 年)の 172 件を超えるものでした(図1)。なお、放射化学会が主催する国際会議 Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC) は、第 1 回(熊本)、第 2 回(福岡)、第 5 回(金沢)が国内で開催され、国内開催の APSORC は放射化学討論会を兼ねることになっ

ているため、いずれも突出した発表数となっています。また、APSORC が海外で開催された年(図1の矢印)の翌年の討論会(第 50 回(JAEA 東海)、第 54 回(大阪大)、第 62 回(筑波大))は、その前後より講演数が多い傾向にあるようです。これは、各回の実行委員会の精力的な活動によるものかもしれません、前年の APSORC の開催が放射化学会を活性化したためである可能性もあります。いずれにしても、特に国内開催の APSORC は、放射化学会にとって会員数の増加に寄与する重要な機会であることが示唆されます。一方、全体的な傾向をみた場合、本討論会の発表数は第 40 回(1996 年、理研和光)の頃をピークに講演数が減少の一途をたどっているようにみえ、これは当然ながら会員数の減少とも同調しています。会員数の増加のためには、討論会(年会)の充実が何よりも重要であり、また APSORC の国内開催も重要な機会になると考えられます。

今回の討論会で多くの(対面)参加者を得た理由として、以下が挙げられます。

- (i) コロナ禍のため 2019 年のいわき大会以来、3 年ぶりの対面主体の討論会としたこと。
- (ii) 東京駅などから比較的近い東大本郷キャンパ

- スで開催したこと。
- (iii) セッション制を実施し、各コンビーナーのご努力により多くの招待講演者を発表申し込み時に明示し、各セッションの魅力を高めたこと。
- (iv) 止むを得ない場合には、オンラインでの口頭発表も可としたこと。

このうち (i) と (ii) は、タイミングと会場に依存する因子ですので、今後討論会をさらに活性化するためには、(iii) のような開催形式の工夫が必要になると思われます。ただ、(iii) のセッション制についても、元々 APSORC2021/2022 で企画していたものある程度引き継いでおり、コンビーナーの方々のご尽力があつて可能になることですので、今後の継続にはそれなりの検討が必要と思われます。特に非会員の招待講演者について登録料は無料としましたが、旅費の支給はしませんでした。そのため、旅費が多額にかかる場所での開催の場合、どの程度の方に招待講演をお引き受け頂けるかは未知数です。ただ、昨今は招待講演も重要な実績としてカウントされますので、地方開催でも招待講演者をある程度集められるのではと思います。

(iv) で必須のハイブリッド形式については、対面を基本とした場合でも、より多くの参加者・発表者を得るには継続して実施していく必要があるでしょう。そのために、Confit の採用は有効であったといえます。討論会 HP 作成、発表申込受付、要旨オンライン掲載、登録料決済、オンライン発表ツール（Zoom など）とのリンクなどを一体に行えるシステムは、ある程度の経費がかかりますが、仮に対面のみの開催でも運営側としては便利であり、研究者の研究時間確保の点からも有効だと思います。またハイブリッド開催を行う上では、オンライン参加者がいかに会場の議論にスムーズに参加できるかがポイントとなりますが、そのためには、マイクスピーカーシステムが有効でした。今回は、YAMAHA ユニファイドコミュニケーションマイクスピーカーシステム YVC-1000 を東大物理学系から 3 台お借りし、鳥居寛之先生のご尽力もあり、大きな問題なくハイブリッド開催を実施できました。なおこの場合、会場参加者の PC は必ずミュートにして頂く点は必須です。以下、ハイブリッド開催の場合のその他の注意点や今後の検

討事項を列挙します。

#### ＜注意点＞

- 個人の規則順守の問題であるが、オンライン配信時の発表資料の無断コピーの危険あり。
- 発表者の PC を使わないと発表資料は事前にアップロードとしたが、所有者以外のアカウントで開けなかったり発表設定が特殊だったりする場合があり、事前に問題なくスライドショーができるかの確認が重要。
- 外部スピーカー利用の際、PC が変わるとスピーカー接続の切り替えが必要になるため、1 会場につき音声用 PC、発表用 PC2 台（Windows 及び mac）を準備。mac 利用者が快適に発表するには、Windows マシン以外に mac を準備する方が無難だが、発表用 PC が Windows/mac で変わる場合は zoom の共有設定やプロジェクターの入力を切り替える必要があり、時間がかかる。

#### ＜検討事項＞

- オンライン機能を利用した海外研究者のオンライン（招待）講演も可能。
- オンラインでのポスター発表の実施。但し、運営側の負担も考慮した検討が必要。
- オンデマンド配信も可能であるが、著作権問題や運営側の負担などの課題あり。

## 4. その他の反省点など

その他、反省点や感想を以下にまとめます。

まず会場についてですが、参加登録者数が当初予想を大幅に上回ることが確実になったため、直前に口頭発表会場の 1 を当初予定の部屋から大きめ目の部屋に変更しました。これには、コロナ対策のための 3 密回避というファクターもありました。コロナ対策としては、来場時に検温し、問題が無い方はネームプレートにシールを貼る方式を採用しました。検温等で問題があった場合には、別室ないしホテル等からの接続を依頼する方針としました（実際の適用者はいなかった）。

東大のコロナ対策規則のため懇親会は開催できませんでしたが、放射化学会デスク・フリー交流デスクを主会場である小柴ホール外のホワイエ（ロビー）エリアで実施しました。一定のコミュニケーションが図れたと思いますが、スペースが狭かったとの感想がありました。特に 3 日目は高

校生・高専生ポスターをここで実施したため、さらに手狭になったことだと思います。

最大の反省点は、口頭発表希望者は全て口頭発表としたため、会場数を最近の討論会では異例の3会場としましたが、それでもプログラムが過密になってしまいました。そのため、口頭発表時間も通常の討論会での20分（15分発表、5分質疑）から15分（12分発表、3分質疑）に変更せざるを得ませんでした。これらの結果、(a) 聞きたい講演が聞けない、(b) 十分な討論ができない、(c) ハイブリッド実施のため各講演者の接続確認に時間を要し、プログラムが予定時間よりも大幅に遅れる、などの弊害が生じました。発表数の増加は学会活性化のためには必要なことであるため (a) と (b) はやむを得ない点もありますが、(b) についてはチャット機能を利用した議論をもっと活用することは可能でしょう。一方 (c) については、各講演に接続確認用の時間を1分程度設けたり、休憩時間の回数を増やすなどの対策が今後必要です。

なお、招待講演者が多すぎるのでという意見も聞かれましたが、この点については、放射化学会の今後の発展には関連分野の取込みが必須であり、非会員の招待講演者が会員になって頂ければ（実例有り）、学会発展に寄与しますので、今後とも積極的に招待講演者を呼ぶべきと思います。ただ、関連分野の研究者数もそれほど多くはないと思われる所以、継続的に実施するには、招待講演者の枯渇が懸念材料です。

放射化学会の部会の開催には主に昼休みの時間を充てましたが、日程過密の影響で相互の時間的な重なりが避けられませんでした。今後部会が増えた場合には、何か工夫が必要になる可能性があります。また若手会の開催は初日に開催する方が、その後の討論会期間中にさらに交流できるためよりよい、という意見がありました。この点、気づかず申し訳ありませんでした。

最終的な本討論会の会計ですが、東大では会場費が高額になること、Confit用の経費、コロナ対策用経費、プログラム印刷用経費（印刷版プログラムの配布は好評でした）、ハイブリッド開催による発表者補助のために多くのアルバイトの雇用が必要であったこと、などから多くの支出がありました。登録者数が多かったため、赤字を出



写真3：高校生・高専生セッションの様子（東大理学部1号館ホワイエ）。

ことなく終えることができました。

最後に、高校生・高専生ポスター（写真3）は、学生さんの発表の質が高く、参加者も多く、好評でした。特に高校生・高専生が自信を持って発表・議論をしている姿が大変印象的でした。福島で育った彼らが、原子力災害を単純に忌み嫌うのではなく、「自分の手で廃炉を実現したい」という希望を語るなど、（個人的には前週実施の市民講演会でのパネルディスカッションでの議論も含めて）深い感銘を受けました。震災という苦しい体験を経て、福島には、日本の他地域にはみられぬたくましい、そして大志を持った学生が育っていることを強く認識しました。放射化学会としても、こうした学生を是非放射化学分野に呼び込むことができれば、この分野の大きな起爆剤になると思います。

## 5. おわりに

改めて、今回多くの方のご協力を得て、放射化学会年会第66回討論会（2022）を無事に終えることができ、大変有難く思っています（写真4：閉会式後の集合写真）。特に個人的には、APSORC2021の準備から数えると4年越しの仕事にこの原稿の執筆で一段落がつき、多少の感慨にふけっております。今後、討論会の実施はハイブリッドが基本になるのではと思いますが、そのために今回の討論会の開催（本原稿）が参考になればと思っております。またAPSORCは2025年開催の予定となっておりますが、討論会



写真4：閉会式後の集合写真（東大理学部1号館小柴ホール）。

もAPSORCもいざれも、本会の活性化や会員増、ひいては放射化学分野の発展のためには重要な取組みかと思います。具体的には、毎年のこととなり大変ですが、LOCだけでなく理事会を挙げての討論会やAPSORCへのご尽力が必要になるかと思います。そのための対応（討論会対応理事の強化、Confitの複数年契約など）を既に理事会では進めていらっしゃいますので、更なる試行錯誤や他分野連携などを経て、放射化学会がさらに発展されることをお祈り致します。

#### **付録：日本放射化学会第66回討論会（2022）の概要**

主催：一般社団法人日本放射化学会

共催：公益社団法人日本化学会、一般社団法人日本放射線安全管理学会、一般社団法人日本保健物理学会、公益社団法人日本分析化学会、東京大学大学院理学系研究科、東京大学アイソトープ総合センター

協賛：一般社団法人日本物理学会、公益社団法人日本薬学会、一般社団法人日本原子力学会

会期：2022年9月15日（木）～17日（土）

開催場所：東京大学本郷キャンパス（理学部1号館、伊藤謝恩ホール）およびオンラインのハイブリッド開催

#### 実行委員会

高橋嘉夫（実行委員長・東京大学大学院理学系研

究科・アイソトープ総合センター長）、薬袋佳孝（武藏大学）、松尾基之（東京大学アイソトープ総合センター）、久保謙哉（国際基督教大学）、北澤孝史（東邦大学）、桧垣正吾（東京大学アイソトープ総合センター）、板井啓明（東京大学大学院理学系研究科）、鳥居寛之（同）、谷川勝至（同）、小豆川勝見（東京大学大学院総合文化研究科）、渡辺勇輔（日本原子力研究開発機構）、三浦輝（電力中央研究所）、山口瑛子（日本原子力研究開発機構・東京大学）、蓬田匠（日本原子力研究開発機構・東京大学）、徳永紘平（日本原子力研究開発機構）、田中雅人（東京大学大学院理学系研究科）、孫靜（同）、向井広樹（同）、望月麻子（同）、松倉志信（同）

#### 学会理事会の討論会関連担当者

鈴木達也（長岡技術科学大学、討論会担当）、秋山和彦（東京都立大学、討論会担当）、久保謙哉（国際基督教大学、若手賞担当）、浅井雅人（日本原子力研究開発機構）、別所光太郎（高エネルギー加速器研究機構・涉外）、大浦泰嗣（都立大、会計）、篠原厚（大阪青山大学・前会長）、五十嵐康人（京都大学・学会長）

#### アルバイト

Li Wenshuai（東京大学大学院理学系研究科）、Lu Tianyi（同）、Zeng Yongsheng（同）、Wang Yuanyuan（同）、長澤真（同）、長谷川菜々子（同）、田柳紗英（同）、清水優希（同）、田中啓資（同）、佐藤佑磨（同）、平山耕太郎（同）、新井駿祐（東邦大学大学院理学研究科）、江崎萌香（東邦大学理学部）、松下みはん（同）

#### 討論会 web サイト

<https://confit.atlas.jp/guide/event/sorc2022/top>

#### 基調講演

9月15日（木）9:20～10:00 小柴ホール

Amirreza Jalilian（国際原子力機関（IAEA））「IAEA contribution to radiochemistry for the production of radiopharmaceuticals for clinical use」

座長：鶴山幸信（福島県立医科大学）

9月16日(金) 9:00～9:40 小柴ホール  
矢板毅(日本原子力研究開発機構)「放射光X線分析から見たアクチノイド化学」  
座長:高橋嘉夫(東京大学)

9月17日(土) 9:00～9:40 小柴ホール  
大澤崇人(日本原子力研究開発機構)「リュウグウ試料のミュオン特性X線分析」  
座長:久保謙哉(国際基督教大学)

#### パネルディスカッション

9月16日(金) 14:10～15:30 伊藤謝恩ホール  
「放射化学の将来像と若手へのメッセージ」  
パネリスト:中西友子(東大)、篠原厚(大阪青山大)、三浦勉(産総研)、鷺山幸信(福島医大)、佐藤志彦(JAEA)、秋光信佳(東大)、五十嵐康人(京大・会長);司会:高橋嘉夫(東大)

#### 受賞講演

日本放射化学会奨励賞受賞講演  
9月16日(金) 15:30～16:30 伊藤謝恩ホール  
庭瀬暁隆(高エネルギー加速器研究機構)「精密質量と崩壊事象の相関測定法の開拓による超重元素の直接質量測定」  
徳永紘平(日本原子力研究開発機構)「バライト共沈法の環境放射化学・地球化学的な応用に関する研究」  
小荒井一真(東北大/日本原子力研究開発機構)「硬組織を指標とした福島第一原発事故後の野生動物への<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの取り込みの研究」

#### 特別セッション

(1) 福島第一原発事故関連研究の最前線  
コンビーナー:田上恵子(QST)、長尾誠也(金沢大)  
招待講演者と講演題目:  
橋本昌司(森林総研):森林生態系における放射性セシウムの動態:これまでの動き、これから動き  
山口紀子(農環技研):草地土壤における放射性セシウム蓄積への有機物の役割  
高田兵衛(福島大):東日本太平洋側の河川-沿岸域での溶存態/粒子態セシウム137の動態  
熊本雄一郎(JAMSTEC):海洋循環トレーサとして

の福島第一原子力発電所事故起源の放射性セシウム

#### (2) 核医学の礎を担う放射化学の新展開

コンビーナー:鷺山幸信(福島医大)

招待講演者と講演題目:

上原知也(千葉大院薬):アスタチン標識化合物の設計と応用

高野祥子(横市大):ルテチウム-177を用いた核医学治療薬-病院臨床の実際と日本放射化学会に寄せる期待~

吉井幸恵(QST):Cu-64創薬最前線

#### (3) 放射化学と地球化学の接点

コンビーナー:高橋嘉夫(東大)

招待講演者と講演題目:

横山哲也(東工大):元素の起源と宇宙地球化学

佐野有司(高知大):冥王代ジルコンのタンゲスタン同位体異常

日高洋(名大):発見から50年:オクロ天然原子炉は何をもたらしたか?

小林憲正(横国大):量子ビーム照射によるアミノ酸およびそのエナンチオ過剰の創成と生命の起源  
平田岳史(東大):高速多点レーザー質量分析計による超高感度同位体分析の最前線

#### (4) 考古学・文化財・人類学への展開:文理融合領域へのチャレンジ

コンビーナー:薬袋佳孝(武藏大)、坂本稔(歴博)  
招待講演者と講演題目:

田中真奈子(昭和女子大):PGAによる鉄鋼文化財の非破壊分析

齋藤努(歴博):鉛同位体比からみた文化財

久保謙哉(ICU):負ミュオンによる非破壊3次元多元素同時分析

阿部善也(東京電機大学):放射光X線を用いて古代ガラスの製法に迫る~銅赤ガラスを事例に~

#### 基盤セッション

##### (A) 核化学(核化学部会が担当する基盤セッション)

コンビーナー:羽場宏光(理研)、豊嶋厚史(阪大)

招待講演者と講演題目:

福田光宏(阪大):阪大RCNPにおけるRI大量製造のための加速器施設のアップグレード

##### (B) 原子核プローブ(原子核プローブ部会が担当する基盤セッション)

コンビーナー：久保謙哉 (ICU)

招待講演者と講演題目：

島添健次 (東大)：光子時空間相関を用いたイメージング・計測手法の開拓

鍵裕之 (東大)：高圧下中性子回折実験から地球深部の水素を探る

(C) 環境放射能 (アルファ放射体・環境放射能部会が担当する基盤セッション)

コンビーナー：小池裕也 (明治大)、別所光太郎 (KEK)

招待講演者と講演題目：

笹公和 (筑波大)：加速器質量分析法における環境中の難測定核種の検出技術に関する進展

鄭 建 (QST)：人工放射性核種の ICP-MS 分析に関する話題

(D) 放射性核種の分析化学・放射化分析・核鑑識 (放射化分析部会が担当する基盤セッション)

コンビーナー：三浦勉 (AIST)、宮本ユタカ (JAEA)

招待講演者と講演題目：

浅井志保 (産総研)：レーザーアブレーション ICP-MS による難測定核種の迅速分析

保高徹生 (産総研)：原子力災害対応における水中の低濃度の放射性セシウム迅速測定法の開発および標準化

高貝慶隆 (福島大)：Sr-90 の質量分析のフロンティア～微小・微量・イメージング～

(E) 教育関連 (教育部会が担当する基盤セッション)

コンビーナー：篠原厚 (大阪青山大)

招待講演者と講演題目：

鳥居寛之 (東大院理)：放射線教育の拡がりと課題、そして SNS 時代のリスクコミュニケーション

鎌田正裕 (東京学芸大)：学校で求められる放射線教育：安価で安全な放射化学実験法

桧垣正吾 (東大 RI センター)：東京大学での放射線教育に関する e-learning の現状とこれから

高橋賢臣 (阪大安管)・大原理彩子 (阪大、学生)：浜通り地域環境放射線研修会～放射線を中心に据えた総合教育～

鈴木達也 (長岡科技大)：高専から大学院までの原子力・放射線教育体制構築事業の紹介

佐野千絵 (東文研)：博物館関係者を対象としての放射能汚染対策マニュアルの作成と情報の国際

発信の試み

(F) 原子力化学・アクチノイド化学

コンビーナー：桐島陽 (東北大)

招待講演者と講演題目：

平井睦 (東京電力)：福島第一原子力発電所で採取した試料の分析の現状と課題

阿部穰里 (広島大)：アクチノイド化合物のための相対論的電子相関プログラムの開発

蓬田匠 (JAEA)：福島第一原子力発電所 2 号機トーラス室滞留水の  $\alpha$  核種を含有する微粒子の分析

(G) 生物関連放射化学

コンビーナー：大貫敏彦 (JAEA)

招待講演者と講演題目：

佐々木祥人 (JAEA)：自然界から学ぶ放射性物質の長期固定プロセス

田中万也 (JAEA)：樹木中セシウムの化学状態と森林生態系における放射性セシウムの動態の関係

鈴木庸平 (東大)：森林内における放射性セシウム分布ときのこへの移行

大貫敏彦 (JAEA)：微生物による燃料デブリの溶解促進

劉江 (JAEA)：常在細菌による模擬燃料デブリの溶解

羽山伸一 (日本獣医生命科学大)：原発災害被ばく後 10 年間における野生ニホンザルの健康影響評価

井伊博行 (和歌山大)：福島県富岡町でのオートラジオグラフィーによる植物体の放射性汚染の評価

春間俊克 (北大)：ウラン鉱山たいせき場に自生するヨシにおける重金属蓄積機構：内生細菌の関与を考慮して

(H) 炉材料・照射効果

コンビーナー：大矢恭久 (静岡大)

招待講演者と講演題目：

小林真 (NIFS)：タンダステン中の水素同位体移行挙動に対する照射効果

外山健 (東北大)：鉄中の溶質原子の拡散・析出に対する照射効果

大野直子 (横国大)：酸化物分散強化 (ODS) 合金の照射効果

(I) 検出器・計測・イメージング

コンビーナー：高橋嘉夫 (東大)

招待講演者と講演題目：

高橋浩之（東大）：二光子ガンマ線イメージングの新たな展開に向けて

(J) その他（境界分野への放射化学の新展開など）

コンビーナー：北澤孝史（東邦大）

招待講演者と講演題目：

速水真也（熊本大）：錯体化学会と放射化学との関わりについて

平山直紀（東邦大）：日本イオン交換学会、日本溶媒抽出学会と放射化学の関わりについて

齊藤敬（尚絅学院大学）：温泉科学と放射化学とのかかわり

総発表件数 192 件

内訳：口頭発表132件、ポスター発表55件、高校生・高専生ポスター5件

優秀発表賞（6名）

巽俊文（東大院薬学系）、庭瀬暁隆（KEK）、小松田沙也加（金沢大院自然科学）

益田遼太郎（阪大院）、蓬田匠（東大院理学系・JAEA）、山口瑛子（東大院理学系・JAEA）

参加者数

総数：334名；内訳：正会員130名、学生会員36名、協賛学協会等正会員26名、協賛学協会等学生会員7名、非会員一般81名、非会員学生28名、高専生・高校生・引率12名、企業等当日現地参加14名

\*参考：1日以上現地参加した者285名（85.3%）

高校生・高専生ポスターのプログラム

HS-1. 福島から知る・学ぶ・繋ぐ～第1回福島復興知学・フィールド学習を通して～（福島工専門ビジネスコミュニケーション学科）芥川清礼・岩崎由芽花・鈴木伶菜・高田嶺成・高橋弘睦（全員5年）（指導教員：芥川一則）

HS-2. 震災遺構の役割に関する一考察～熊町小学校を事例に～（福島工専ビジネスコミュニケーション学科）渡邊順子（5年）・内田凜（3年）（指導教員：芥川一則）

HS-3. 外部者から見た浜通りの復旧から復興へ～福島復興知学フィールド習を通して～（磐城高校）住吉遙人、（福島工専ビジネスコミュニケーション学科）渡邊順子（5年）・内田凜（3年）（指導教員：芥川一則）

ン学科）渡邊順子（5年）・内田凜（3年）（指導教員：芥川一則）

HS-4. 内部者から見た浜通りの復旧から復興へ～福島復興知学フィールド習を通して～（磐城高校）吉野遥南（2年）、（福島工専ビジネスコミュニケーション学科）渡邊順子（5年）・内田凜（3年）（指導教員：芥川一則）

HS-5. ALPS 处理水問題～SNS の視点からの考察～（福島高専ビジネスコミュニケーション学科）

熊田舞弥（専攻科1年）・佐藤桃香（専攻科1年）・渡邊順子（本科5年）（指導教員：芥川一則）

日本放射化学会市民講演会（写真5）

主催：日本放射化学会；共催：東京大学アイソトープ総合センター

日時：2022年9月10日（土）13:00～15:00

場所：広野町中央体育館

（第一部）「放射化学が切り拓く人類と夢と安全安心」

講演1「量子ビームを用いたリュウグウ・隕石試料の分析」高橋嘉夫（東京大学大学院理学系研究科教授、東京大学アイソトープ総合センター長）、二宮和彦（大阪大学放射線科学基盤機構准教授）  
講演2「アルパカ抗体が導く放射性医薬品の新分野」和田洋一郎（東京大学アイソトープ総合センター教授）

（第二部）「復興知」～地域と連携した人材育成の取り組み～



写真5：日本放射化学会市民講演会が開催された福島県広野町中央体育館。

パネリスト：秋光信佳（東京大学アイソトープ総合センター教授）、芥川一則（福島工業高等専門学校副校長）、南郷市兵（ふたば未来学園中学校・高等学校副校長）、遠藤智（広野町長）

（併設）小惑星探査機「はやぶさ」の展示会

主催：はやぶさ展示会実行委員会；共催：東京大

学アイソトープ総合センター、日本放射化学会共催、大学等の「復興知」を活用した人材育成基盤構築事業

日時：2022年9月10日（土）～9月11日（日）

場所：広野町中央体育館

## 情報 プラザ (国際国内会議)

(2023 年 3 月時点の情報。最新の情報については、各ホームページを参照してください。)

### 国内会議

#### 第 83 回分析化学討論会

日時：2023 年 5 月 20 日～21 日

場所：富山大学五福キャンパス

URL：<https://confit.atlas.jp/guide/event/jsac83touron/top>



#### 第 60 回アイソトープ・放射線研究発表会

日時：2023 年 7 月 5 日～7 日

場所：日本科学未来館 7 階未来館ホール

URL：<https://confit.atlas.jp/guide/event/jriias2023/top>



#### 日本原子力学会 2023 年秋の大会

日時：2023 年 9 月 6 日～8 日

場所：名古屋大学

URL：<https://www.aesj.net/events/annual-meeting>



#### 日本物理学会第 78 回年次会 (2023 年)

日時：2023 年 9 月 16 日～19 日

場所：東北大学（青葉山・川内キャンパス）

URL：<https://www.jps.or.jp/activities/meetings/future.php>



#### 日本放射化学会第 67 回討論会 (2023 年)

日時：2023 年 9 月 21 日～23 日

場所：広島大学学士会館、サタケメモリアルホール（東広島キャンパス）

URL：<http://www.radiochem.org/event/forum.html>



#### 日本核医学会第 63 回学術総会

日時：2023 年 11 月 16 日～18 日

場所：大阪市 グランフロント大阪

URL：<http://jsnm.org/meeting/>



日本化学会 第104春季年会（2024年）

日時：2023年3月18日～21日

場所：日本大学理工学部船橋キャンパス

URL：<https://www.chemistry.or.jp/event/conference/index.html>



日本薬学会 第144年会

日時：2024年3月28日～31日

場所：パシフィコ横浜

URL：<https://www.pharm.or.jp/nenkai/>



国際会議

**International Conference on Radiochemistry and Nuclear Chemistry (RANC-2023)**

日時：7–12, May, 2023

場所：Budapest, Hungary

URL：<https://akcongress.com/jrnc-ranc/>



**15th International Symposium on Fusion Nuclear Technology**

日時：10–15, September, 2023

場所：Las Palmas de Gran Canaria, Spain

URL：<https://isfnt2023.com>



**International Conference on Hyperfine Interactions and Their Applications (HYPERFINE 2023)**

日時：13–17, November, 2023

場所：Nara Kasugano International Forum (奈良春日野国際フォーラム～甍～)

URL：<https://confit.atlas.jp/guide/event/hfi2023/top>



**10th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC-10)**

日時：25–30, August, 2024

場所：Brighton, United Kingdom

URL：<https://www.rsc.org/events/detail/38385/10th-international-conference-on-nuclear-and-radiochemistry-nrc10>



## 学会だより

### 1. 一般社団法人日本放射化学会第7回定例理事会 議事録抜粋

日時：2022年9月14日（水）13:00～17:40

場所：東京大学本郷キャンパス

出席者：[会長] 五十嵐、[副会長] 久保、田上、  
[理事] 浅井、大浦、阪間、羽場、三浦、  
秋山、可児、木野、小池、國分、鈴木、  
桧垣、矢永、吉村、鶴山、[監事] 北辻、  
箕輪、[オブザーバー] 高橋

#### 報告

- 総務担当理事より、前回理事会以降の理事会活動について報告があった。7,8月に2件のメール審議があり、インターネット・広報委員会の委員長及び委員の交代と「小惑星探査機はやぶさの実物大模型展示会」の共催について承認した。
- 会員担当理事より、会員動向について報告があり、新規入会者20名を承認した。退会者は7名であった。学生会員の退会手続きが適切に行われず、会費未納等の問題が生じているため、対策を検討することとした。
- 会計担当理事より、2021年度会計決算報告の参考資料の修正、2022年度会計中間報告、APSORC22会計のまとめについて報告があった。APSORC22口座の残金はAPSORC基金に返金した。
- インターネット・広報委員長より、会員MLの配信状況とHPの更新、メールニュース第22号の配信について報告があった。
- JNRS編集委員長より、論文投稿状況について報告があり、現在、投稿、査読とともにゼロ件とのことであった。
- 「放射化学」編集委員長より、46号をHPに掲載し、現在冊子を印刷中との報告があった。
- 新研究炉検討委員長より、7月26日に開催さ

れた新研究炉に関する合同研究会の内容について報告があった。

- 部会報告では、各部会の活動状況について報告があった。理事会での部会報告は、毎回部会長か代理の人にオブザーバー参加を依頼し、年2回程度は部会活動に関して集中して議論する機会を設けることとした。
- 討論会実行委員長より、第66回討論会の準備状況について報告があった。参加者が増えたためB,C会場を大きな部屋に変更したこと、毎日参加者には体温測定してもらいOKなら名札にシールを貼ること、福島高専といわき高校の高校生にポスター発表をしてもらうこと、などの報告があった。

#### 審議

- 桧垣理事より、インターネット・広報委員会規程の改訂について提案があり、「放射化学」編集委員長を委員に含めることを規程に明記することを承認した。その他規程の文言を一部修正した。

#### 検討

- 浅井理事より、会員総会の準備状況とスライド内容について説明があり、総会の役割分担と手順について確認した。
- 大浦理事より、会員総会で報告する会計資料について説明があった。
- 討論会における計報の紹介について議論し、その時々の対象者や事情に応じて理事会で判断することとした。浅井理事より、MLへの計報の配信は誰でもできるので、理事会を通さず関係者が直接配信依頼して欲しい、弔電についても関係者の依頼があれば会長判断で発信できる、との確認があった。
- 現在アカデミック・スクエアに委託している会員管理契約を、アトラス社が運営するオン

- ライン会員管理サービス Smoosy に移行する提案について議論した。入退会、会員情報管理、会費納入等を完全オンラインでできるようになり、会員はマイページから自分の会員情報を更新できる。会費のクレジットカード払いが可能になる。投票機能はないが、他のオンライン投票システムと連携すれば役員投票ができる。システム利用料は、オンライン決済手数料を含めて現契約より 8 万円ほど増える。その他様々なメリット・デメリットを議論し、会員担当、会計担当の負担軽減と手間の増加、会員の利便性を総合的に評価した結果、全会一致で Smoosy への切り替えを承認した。アカデミック・スクエアとは今年度限りの契約とし、来年度から運用開始することとした。
5. 今期の理事会で実施・検討したい事業・業務に関する提案について議論した。若手支援策として、大学院進学者への奨学金制度などが議論され、若手の会のメンバーを含めたワーキンググループ（WG）を立ち上げ、議論することとした。英文誌の改革についても議論し、和文誌も含めて WG を立ち上げ次回理事会までに検討することとした。賛助会員対策についても議論し、賛助会員にとってメリットとなる施策等について議論した。本件についても WG を立ち上げ検討することとした。他学会との交流・連携についても WG を立ち上げ検討することとした。
  6. 日本学術会議「未来の学術振興構想」に対して学会として提案するか否かについて議論し、WG を立ち上げ検討することとした。
  7. 学会 HP の更新、充実に向けたシステムについて議論した。各ページ担当責任者だけでなく、今年度より新設された HP 担当理事が対応することとし、今回の理事会で担当理事より更新案を提案することとなった。

以上

## 2. 一般社団法人日本放射化学会第8回定例理事会 議事録抜粋

日時：2022年12月3日（土）13:00～18:10

場所：オンライン

出席者：[会長] 五十嵐、[副会長] 久保、田上、  
[理事] 浅井、大浦、阪間、羽場、三浦、  
秋山、可児、木野、小池、國分、鈴木、  
桧垣、矢永、吉村、鷺山、[監事] 北辻、  
箕輪、[オブザーバー] 篠原、渡邊、稻垣

### 報告

1. 総務担当理事より、前回理事会以降の理事会活動について報告があった。10月に1件のメール審議があり、「第31回放射線利用総合シンポジウム」の協賛について承認した。
2. 会員担当理事より、会員動向について報告があり、新規入会者4名を承認した。年会費3年以上未納者4名を会員資格喪失とした。
3. 会計担当理事より、2022年度会計中間報告があった。
4. インターネット・広報委員長より、会員 ML の配信状況と HP の更新について報告があった。
5. JNRS 編集委員長より、論文投稿状況について報告があり、奨励賞3件のうち1件の論文が査読中、その他3件が掲載準備中または査読中であるとの報告があった。
6. 「放射化学」編集委員長より、47号について、原著論文1件採択済み、奨励賞3件の日本語版及び討論会若手優秀発表賞の受賞記事が掲載予定であるとの報告があった。
7. 新研究炉検討委員長より、10月12日に委員会を開催し、第4回コンソーシアム委員会に向けてホットラボ、照射設備への要望事項を整理したことが報告された。
8. 若手の会より以下の報告があった。討論会で総会を開催した。若手交流 Discord（チャットアプリ）を9月に開設した。若手優秀発表賞の改革提言書を作成した。9月に奨学金制度について会長との意見交換会を実施し、提案書を作成中。
9. 核化学部会より、重元素核化学研究会を今年度から部会公認行事とするとの報告があった。今年度中に開催予定であり、学生の旅費支援等のため予算要求があった。20万円程度で提案書を作成してもらうこととした。
10. 教育部会より、3月に第2回教育セミナーを

- 開催予定と報告があり、予算要求があった。具体的な開催内容が決まつたら理事会内で共有することとした。
11. 秋山理事、鈴木理事より、第66回討論会の開催報告及びそのアンケート結果の報告があった。
  12. 浅井理事より、Smoosyの準備状況について報告があった。2月中旬の運用開始に向けて準備中のことであった。
  13. 可児理事より、日本化学連合化学系学協会連絡会2022年度第1回定期会議の報告があった。

### 審議

1. 木野理事より、学会賞公募要領及び公募スケジュールの提案があり、承認された。また学会賞選考委員長を決定した。木村賞候補者について、次回理事会に向けてWGを立ち上げ検討を進めることとした。
2. 鈴木理事より、「原子力化学・アクチノイド化学部会」設立の提案があり、承認された。それに伴い、部会設置規程及び研究部会規程を改訂した。
3. 6月の定時社員総会での決定を受けて、2023年4月1日から学生会員の年会費を1000円にする会費規程の改訂を行った。
4. 会員より寄付金の申し出があり、出資者の了承が得られているか再確認した上で一般会計に繰り入れることで了承された。
5. 「放射性物質環境動態調査事業報告会」への後援依頼があり、承認された。また「原子力総合シンポジウム2022」への共催・協賛依頼について、協賛とすることで承認された。
6. 日本中間子科学会より「21世紀の量子プローブ「ミュオン」を用いた学際科学の新展開」に関する意見書の依頼があり、意見書を提出することで承認された。

### 検討

1. 浅井理事、大浦理事より、次年度事業計画及び予算案に関する検討事項が提起された。
2. 鈴木理事より第67回討論会(2033)の準備状況の報告と第68回討論会(2024)候補地の検討状況について説明があった。

3. 木村賞候補者について検討した。
4. 英文誌・和文誌検討WGによる検討の中間報告があり、予算がかかるものや部会に依頼するものは理事会に相談しながら進め、その他やれることから進めることとした。
5. 賛助会員検討WGによる検討の中間報告があった。賛助会員のバナーをホームページに掲載することとした。
6. 未来の学術振興構想検討WGより検討結果が報告された。今期の応募は見送り、数年後の応募に向けて準備を進めていくこととした。公募等に対応できる組織作りが必要であり、募集をかけて人を集めなど検討することとした。
7. 日本学術会議より第26-27期日本学術会議会員・連携会員の選考対象者に関する情報提供の依頼があり、12月中に推薦者を決めることとした。

以上

### 3. 会員動向（令和4年7月～令和4年12月）

#### 新規入会（正会員）

氏名	所属
伊藤 あゆみ	東京工業大学ゼロカーボンエネルギー研究所
高村 宏平	PDR ファーマ株式会社
鳥居 寛之	東京大学大学院理学系研究科化学専攻放射性同位元素研究室
John McGrady	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構原子力科学研究所

#### 新規入会（学生会員）

氏名	所属
池田 航貴	新潟大学理学部理学科化学プログラム核化学研究室
石橋 優一	九州大学大学院理学府物理学専攻
板倉 悠大	大阪大学理学部化学科
伊藤 史菜	電気通信大学大学院基盤理工学専攻

王 瑞麟	大阪大学大学院理学研究科
品田 光洋	東邦大学理学部化学科無機化学 研究室
名取 日菜	茨城大学理学部理学科
沼尻 大空	新潟大学理学部理学科化学プロ グラム核・放射化学研究室
平田 詩織	静岡大学総合科学技術研究科理 学専攻大矢研究室
宮地 優太	茨城大学理学部理学科物理学 コース
柳澤 華代	福島大学大学院共生システム理 工学研究科
渡辺 丈士	新潟大学理学部化学プログラム 核化学研究室

## 所属変更（正会員）

氏 名	所 属
海老原 充	東京都立大学大学院理学研究科
栗原 雄一	長岡技術科学大学
斎藤 凜太郎	ジーエルサイエンス株式会社営 業本部総合企画部経営戦略課
白井 香里	国立研究開発法人日本原子力研 究開発機構核燃料サイクル工学 研究所環境技術開発センター再 処理技術開発試験部研究開発第 2課
渡辺 裕夫	電気通信大学

## 退会（名誉会員）

氏 名	氏 名
佐野 博敏	吉原 賢二

## 退会（正会員）

氏 名	氏 名
青山 道夫	安達 サディア
奥津 賢一	関本 俊

## 退会（学生会員）

氏 名	氏 名
石井 達也	大谷 怜
角田 弘貴	中島 朗久

REZA MD SULTANUR

## 「放射化学」規程など

### 「放射化学」編集委員会規程

(名称)

**第1条** この規程は、一般社団法人日本放射化学会（以下「本会」という。）定款第36条に基づき、本会の和文誌「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)

**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。

**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」の編集および発行に関するここと
- (2) 「放射化学」への投稿論文の審査に関するここと

(「放射化学」誌の発行)

**第5条** 本会は「放射化学」を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「放射化学」投稿論文審査内規による。

**第8条** 本規定の改定は理事会の決議による。

付則 この規程は、2023年4月1日から施行する。

### 「放射化学」発行規程

(目的)

**第1条** 「放射化学」は、一般社団法人日本放射化学会（以下「本会」という。）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」は日本放射化学会和文誌「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。
- 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」を別途「放射化学」投稿規則に定めるが、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。

付則 この規程は、2021年4月1日から施行する。

## 「放射化学」投稿規則

本規則は、一般社団法人日本放射化学会（以下「本会」という。）「放射化学」論文発行規程に基づき、編集委員会にて論文の投稿指針として制定するものである。

### （投稿論文と依頼論文）

**第1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2条** 著者は本会会員であることを要しない。

#### （原稿の作成）

**第3条** 使用言語は日本語とする。

**第4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」という。）に従うものとする。

#### （論文の受け付け）

**第5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6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7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8条** 論文の掲載料は徴収しない。別刷りを作成する場合には実費を著者負担とする。

#### （原稿料）

**第9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10条** 論文誌に掲載された全ての論文の著作権は本会に帰属する。原著論文、総説論文、短報について、著者は論文受理後速やかに「著作権譲渡同意書」を本会に提出しなければならない。

#### （本規則の改定）

**第11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、2021年4月1日から施行する。

## 「放射化学」投稿の手引き

### 1. はじめに

この「投稿の手引き」は一般社団法人日本放射化学会（以下「本会」という。）和文誌「放射化学」論文投稿規程に基づき、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なければならない。
- 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10Mbyte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ます。
- 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

〒770-8509 徳島県徳島市蔵本町3-18-5  
徳島大学医学部保健学科 阪間 稔 編集委員長  
Fax: 088-633-9862  
e-mail: minorusakama@tokushima-u.ac.jp  
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、遗漏なく情報を得ることは困難であります。このため、会員の皆様に同欄の執筆候補者（学位取得者）を推薦いただきたく存じます。自薦・他薦は問いません。詳しくは編集委員会にご照会下さい。

☆ ☆ ☆

### 「会員の声」欄へのご寄稿のお願い

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

☆ ☆ ☆

### 会員の異動に伴う連絡のお願い

会員の移動に伴い、所属、連絡先等に変更が生じた場合には、以下のwebページを参照し、事務局(jnrs@ac-square.co.jp)までご連絡下さい。

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

## 放射化学

### 第47号

令和5年(2023年)3月20日発行

### 編集

一般社団法人 日本放射化学会編集委員会

委員長：阪間 稔、委員：佐藤 渉、鈴木 達也、井上 瞳夫、藤 暢輔、  
富田 純平

連絡先：〒770-8509 徳島県徳島市蔵本町3-18-15

徳島大学大学院 医歯薬学研究部保健科学部門 放射線理工学分野

阪間 稔 (e-mail: minorusakama@tokushima-u.ac.jp)

### 発行

一般社団法人日本放射化学会

〒590-0494 大阪市泉南郡熊取町朝代西2丁目1010番地

<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一般社団法人 日本放射化学会に帰属します。

## 贊助会員

クリアパルス株式会社

株式会社千代田テクノル

仁木工芸株式会社

東京ニュークリア・サービス株式会社

東京パワーテクノロジー株式会社

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

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社

公益財団法人 原子力安全技術センター

新潟県放射線監視センター

公益社団法人 日本アイソトープ協会

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

公益財団法人 日本分析センター

公益財団法人 放射線影響協会

一般財団法人 放射線利用振興協会

九州電力株式会社

中国電力株式会社

中部電力株式会社

東京電力ホールディングス株式会社

北海道電力株式会社

## クリアパルス（株）が提供する主要製品

自社開発のハイブリッド I C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

Cd T 1 検出器プローブ、Cs I (T 1) 検出器プローブ、Na I (T 1) 検出器プローブ、プラスチック検出器プローブ

電離箱、環境モニタ、高圧バイアス電源、NIM ピン電源、ミニピン電源

電流電圧変換器、マルチワイヤビーム位置モニタ回路

加速器制御機器、信号変換器、アナログ/デジタル制御器

データ計測・収集・転送システム

その他物理計測器、特注機器



8630型ハンドボーン

8868A型IVC



4066型アンプ

1216型PHA

6671型バイアス電源

E6660ミニピン電源

80110型プリアンプ

80111型MPX



## お客様の安全を願って最良の個人線量測定サービスを提供

### 安心・安全をお届けする 「ガラスバッジ 個人線量測定サービス」

高精度の個人線量測定サービスを提供



### 放射線業務従事者 個人管理システム 「ACE GEAR(エースギア)」

各種データの一元管理で  
法令に基づく個人線量管理を  
やさしくサポート



### 線量計測事業

### 簡単に半価層・ 平均乳腺線量を測定 「マンモQC・測定サービス」



### いつも携帯できる手軽さと安心感 住民用 小型・軽量積算線量計 「D-シャトル」

データ・記録を残す小さな線量計  
一日の積算線量と総積算線量を  
自分の目で確かめられるから安心



■ 南立研究開発法人 鹿児島技術研究会研究所  
との共同開発製品

### 眼の水晶体被ばく測定 「DOSIRIS® モニタリングサービス」

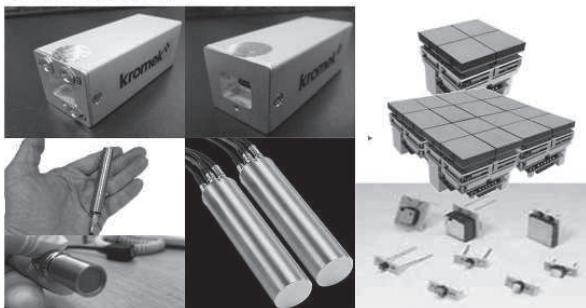
眼のすぐ近くで装着でき  
各種防護眼鏡にも対応



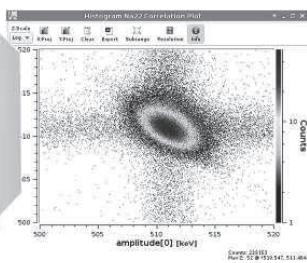
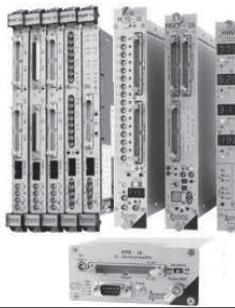
株式会社千代田テクノル  
URL: <https://www.c-technol.co.jp>  
e-mail: ctc-master@c-technol.co.jp



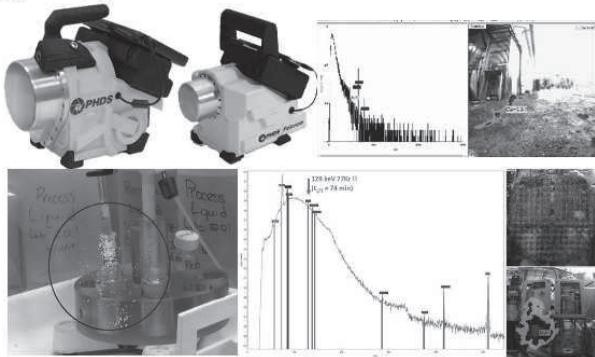
CdZnTe 半導体検出器



NIM/VME Electronics



Gamma Imager & Portable Ge



X-ray detector(SDD/Si-pin/CdTe)



仁木工芸株式会社

〒140-0011 東京都品川区東大井 5-26-22  
TEL 03-4218-4700 FAX 03-4212-3423  
Email niki\_sales@nikiglass.com

## お困りではありませんか？

- サイクロ施設など**加速器施設の線量計算や放射化評価**をしたい！
- R I を使用した**化学実験**を代行して欲しい！
- 作業環境測定**など法令に基づく**放射線測定**を代行して欲しい！
- 放射線施設、サイクロトロン施設を廃止**したい！
- 施設を**変更許可申請**したいが業務が多忙のため代行して欲しい！
- サーベイメーター**を校正したい！
- 放射線障害予防規程**を見直したい！
- 放射線に係わる業務について**相談**したい！

そのお悩みTNSが解決いたします

### 安全設計・評価

- 施設設計
- 遮蔽設計
- 安全評価
- RI施設の許認可申請業務代行

### 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、挙動解析
- トレーサー試験
- 解体廃棄物の物理特性試験

### 保守点検・工事

- 施設の保守・点検
- 施設の改造、解体工事
- サイクロトロン施設の廃止工事

### 分析・測定・校正サービス

- 放射能分析
- 現地における放射線測定
- サーベイメータの実用校正

### 各種機器販売

- 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

詳しくは弊社WEBサイトまで！ <https://www.tokyo-nucl.co.jp>

東京本社

TEL. 03(3831) 7957

〒110-0016 東京都台東区台東1-3-5 反町ビル7F

東海事業センター TEL. 029(282) 3114

〒519-1112 茨城県那珂郡東海村松村字平原3129-31

つくば開発センター TEL. 029(847) 5521

〒300-2646 茨城県つくば市緑ヶ原4-19-2

関西事業所 TEL. 078(570) 5201

〒651-0096 兵庫県神戸市中央区雲井通4-2-2 マークー神戸ビル7F

六ヶ所事業所 TEL. 0175(71) 0710

〒039-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駄字野附1-4

いわき営業所 TEL. 0246(66) 1210

〒979-0202 いわき市四倉町上仁井田字南姥田74-1

# microSTAR ii

## medical dosimetry system

nanoDot線量計を測定するために設計されたポータブルリーダーです。  
nanoDot線量計はX線画像に写らないため、  
放射線治療や診断時の患者線量の評価に適した小型OSL線量計です。



nanoDot線量計



■外形寸法 W10xH10xD2mm

■測定範囲 10 μGy~10Gy

■エネルギー範囲 5keV~20MeV

 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1TEL.029-839-3322  
大阪営業所/〒550-8668 大阪市西区新町1丁目1番17号TEL.06-6535-2675  
ホームページアドレス <https://www.nagase-landauer.co.jp>

**ラジオアイソトープ(RI)取扱施設**  
*RADIOISOTOPE(RI) HANDLING FACILITY*

**加速器取扱施設**  
*ACCELERATOR HANDLING FACILITY*

**原子力施設**  
*NUCLEAR POWER FACILITY*

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

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

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

**ZARA**  
*As Low As Reasonably Achievable*

**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

作業環境測定機関11-4(放射性物質) ISO9001:2008認証

仙台営業所: Tel.022-715-6081

非密封放射性同位元素取扱施設(技術開発研究所)

柏崎営業所: Tel.0257-21-4868

管工事業/建工具事業/とび・土木工事業/機械器具設置工事業

福島営業所: Tel.0244-26-5245

一般労働者派遣事業/高度管理医療機器等販売業・賃貸業

茨城営業所: Tel.029-860-5073

# 富士電機の放射線測定器



より正確に より簡単に

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

## 〔取扱製品〕

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

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



富士電機株式会社 放射線システム部

東京都日野市富士町1番地 〒191-8502 TEL 042-585-6024  
http://www.fujielectric.co.jp/ mail fric-info@fujielectric.co.jp

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

MIRION TECHNOLOGIES

放射化学のあらゆるニーズに  
高い技術力と  
最適な放射線測定システム  
サービスでお答えします

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ（株）  
E-mail: jp-sales@mirion.com  
U R L: www.mirion.com/jp

- インテリジェント・クライオサイクル (iCC)
- 電気冷却式 クライオスタット (CP5)
- ゲルマニウム 半導体検出器
- Genie対応 構種同定 サーベイメータ (Spir Ace - GenieXport)
- 可搬型HPGe スペクトロメータ (Aegis)
- 低バックグラウンドα/β 自動計測システム (S6LB)
- 多チャンネル 低バックグラウンド α/β計測システム (LB4200)
- サービス & サポート、トレーニング
- ガンマ線分析システム (ISOCS)



# 公益財団法人 原子力安全技術センター

## 放射性同位元素等規制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



### 登録資格講習機関

問い合わせ先: 06-6147-3580  
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

### 登録特定放射性同位元素防護管理者定期講習機関

問い合わせ先: 03-3814-5746  
特定放射性同位元素防護管理者の資質向上のための講習

### 登録放射線取扱主任者定期講習機関

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

私たちは放射性同位元素等規制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 <https://www.nustec.or.jp/>

～アイソトープと放射線を用いた研究に携わる全ての皆さんへ～

# 第60回 アイソトープ・放射線研究発表会

会期： 2023年 7月 5日(水)～ 7日(金)

会場： 日本科学未来館 7階未来館ホールほか(東京・お台場)

参加登録期間/参加費：

【一般】

事前登録(4月3日(月)～6月16日(金)12時) 7,000円(税込)  
当日登録(6月26日(月)～7月7日(金)) 9,000円(税込) (会場での現金授受は行いません)

【学生】

無料(要学生証)

詳しくは大会サイトをご覧下さい。

<https://confit.atlas.jp/jrias2023>

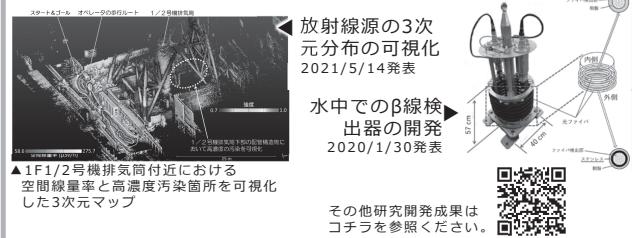


皆さまのご参加をお待ちしております

主催 公益社団法人日本アイソトープ協会

我が国唯一の原子力に関する総合的な研究開発機関として、東京電力HD  
福島第一原子力発電所(1F)の廃止措置及び環境回復に取り組んでいます

### 研究開発知見の活用



その他研究開発成果は  
コチラを参照ください。

### 放射性物質分析・研究施設の整備

1Fの低・中線量の放射性廃棄物の分析を行う第1棟が完成  
燃料デブリ等の分析を行う第2棟を整備中



▲完成予想図

福島総合環境情報サイト[フェイシス]

Face!S



原子力機構の環境モニタリング・環境動態  
研究の知見をWeb上で一般に分かり易く公開



根拠情報Q&Aサイト  
生活域での疑問にお答えします。

放射性物質モニタリングデータの  
情報公開サイト



国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地1 TEL : 029-282-1122 (代表)

原子力機構ホームページ

<https://www.jaea.go.jp/>



福島研究開発部門ホームページ

<https://fukushima.jaea.go.jp/>



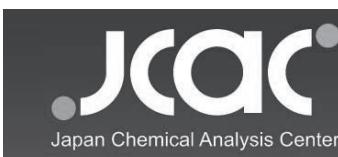
## 確かな分析力を礎に国民生活に貢献します



身の回りにある環境試料中の放射性核種の分析サービスを提供しています。ストロンチウム90、セシウム137をはじめ、トリチウム、炭素14、クリプトン85、ヨウ素129、放射性キセノン、トリウム、ウランなどの様々な放射性核種の分析に対応できます。



放射能測定法シリーズの改訂作業を実施し、公的マニュアルの作成に貢献しています。環境放射能分析・測定分野のほか、スポーツサプリメント中のドーピング禁止物質の分析、安定同位体分析や原子炉の廃炉関連の難測定核種の迅速分析法の開発などを行っています。



公益財団法人 日本分析センター

〒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

e-mail : [koho@jcac.or.jp](mailto:koho@jcac.or.jp) URL : <http://www.jcac.or.jp>



# 放射線分野における科学技術の進展に貢献しています



## ～主な業務～

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

## 公益財団法人 放射線影響協会

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

### 放射線従事者中央登録センター

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

### 放射線疫学調査センター

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

放射線利用事業の振興と  
原子力の利用に係る知識及び技術の普及を振興するために

#### ◆ 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、材料改質など多様な照射ニーズに応えます

#### ◆ 技術移転事業

- ・ 産業界の「中性子利用による材料評価」の多様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
- ・ 放射線業務従事者のための教育訓練
- ・ 原子力・放射線に関する研修会の開催

## 一般財団法人 放射線利用振興協会

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

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

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

賛助会員はこのスペースに無料で広告を掲載することができます（年2回以上）

# 日本放射化学会 賛助会員募集

本会の学会活動にご参加頂ける賛助会員をご紹介下さい

連絡先：一般社団法人 日本放射化学会事務局

問い合わせ専用URL: [http://www.radiochem.org/community/toiawa\\_o.html](http://www.radiochem.org/community/toiawa_o.html)



放射化学 第47号

2023年3月