

ISSN 1345-2754

放射化学ニュース 第16号

日本放射化学会

2007年 8月

放射化学ニュース

第 16 号

平成 19 年 (2007 年) 8 月 31 日

目次

解説

アクチノイド化学事始 (三頭聰明) 1

施設だより

東北大学サイクロترونラジオアイソトープセンター (関根 勉) 14

研究集会だより

第 8 回環境放射能研究会 (森田貴己) 16

情報プラザ

1. 第 12 回放射化分析の最近の動向に関する国際会議 (MTAA-12) 18

2. 3rd International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide
Elements (TAN07) 18

3. International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (ICAME 2007) 18

本だな

ブラックホールは毛が 3 本 馬場 宏 著 (高宮幸一) 19

学位論文要録 21

学会だより

1. 学会賞及び奨励賞	31
2. JNRS 誌の論文賞	31
3. 日本放射化学会第 33 回理事会 [2006-2007 年度第 2 回理事会] 議事要録	32
4. 日本放射化学会第 34 回理事会 [2006-2007 年度第 3 回理事会] 議事要録	33
5. 会員動向 (平成 19 年 1 月～平成 19 年 7 月)	34
6. 日本放射化学会入会勧誘のお願い	35
7. オンラインジャーナルとホームページの運営について	37
8. Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences (日本放射化学会誌) への投稿について	38
9. Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences (日本放射化学会誌) 投稿の手引き	38
10. 日本放射化学会会則	39
2007 日本放射化学会年会・第 51 回放射化学討論会プログラム	42

解説

アクチノイド化学事始

三頭聡明 (東北大学多元物質科学研究所)

1. 電子配置

今日ではランタノイドとアクチノイドは、それぞれ非充填の4f, 5f電子を持つ元素群として周期表上に配置されている。歴史的にウランとトリウムの発見は、周期律の発見より早く、G. T. Seaborgのアクチノイド説が確立する迄の間、周期表における位置について混乱と論争があった。実際に、アクチノイド説は人工超ウラン元素の発見とその確認のための強力な指針であり、今日その正否を論ずることは無意味である。表-1にアクチノイド原子及びそのイオンの基底状態の電子配置を示した。

PaからAmまでの軽いアクチノイドでは、5f, 6d, 7s軌道が化学的相互作用に参与する価電子として振る舞う。その結合エネルギーと充填の順序は単純ではないが、大略次のような特徴をあげることができる。

1. 原子番号の小さい軽アクチノイドでは、5f, 6d, 7s軌道の軌道エネルギー差が小さく、ランタノイドの4f電子と異なり5f電子も価電子としての性質を示す。

2. イオン化され価電子の数が少なくなるに従って、6d, 7s軌道に対して5f軌道が相対的に安定となり、局在化電子に近い性質を示す。

3. Amより重いアクチノイドでは5f軌道が安定となりし、内殻電子としてランタノイドの4f電子に良く似た性質を示す。

2. ランタノイド収縮・アクチノイド収縮とその化学的効果

アクチノイドの5f電子は、ランタノイドの4f電子と同様に核電荷の遮蔽効果が小さい。原子番号順に核電荷は1単位ずつ増加するが、充填されるf電子による遮蔽効果が小さいので、結果として原子番号が増加するに伴い化学的相互作用に参与する価電子に働く有効核電荷が大きくなり外殻電子軌道が収縮する。この効果は、原子番号の増加に伴って原子容とイオン半径が減少する効果(ランタノイド収縮、アクチノイド収縮)として現れる。

ランタノイド収縮とアクチノイド収縮は、硬いルイス酸としての性質を持つランタノイドとアクチノイドイオンの熱力学的パラメータ、錯形成反応等の化学的性質に反映される。表-2にランタノイド3+イオンとアクチノイドの2+, 3+, 4+イオンのイオン半径を示す。このようなデータを見る時、重アクチノイドのイオン半径の多くは、実測されたものではなく等電子配置のランタノイドにおける系統的な変化を参考に評価された値であることを知っておくことも重要である。

ランタノイド収縮の効果として、HfとZrの原子容と4+イオ

表-1 アクチノイド原子及びイオンの基底状態電子配置

元素	原子	+1	+2	+3
Ac	[Rn]6d ¹ 7s ²	[Rn]7s ²	[Rn]7s ¹	[Rn]
Th	[Rn]6d ² 7s ²	[Rn]6d ² 7s ¹	[Rn]5f ¹ 6d ¹	[Rn]5f ¹
Pa	[Rn]5f ² 6d ¹ 7s ²	[Rn]5f ² 7s ²	[Rn]5f ^{3*}	[Rn]5f ^{2*}
U	[Rn]5f ³ 6d ¹ 7s ²	[Rn]5f ³ 7s ²	[Rn]5f ⁴	[Rn]5f ³
Np	[Rn]5f ⁴ 6d ¹ 7s ²	[Rn]5f ⁴ 6d ¹ 7s ¹	[Rn]5f ⁴ 7s ¹	[Rn]5f ⁴
Pu	[Rn]5f ⁶ 7s ²	[Rn]5f ⁶ 7s ¹	[Rn]5f ⁶	[Rn]5f ⁵
Am	[Rn]5f ⁷ 7s ²	[Rn]5f ⁷ 7s ¹	[Rn]5f ⁷	[Rn]5f ⁶
Cm	[Rn]5f ⁷ 6d ¹ 7s ²	[Rn]5f ⁷ 7s ²	[Rn]5f ⁷ 7s ¹	[Rn]5f ⁷
Bk	[Rn]5f ⁹ 7s ²	[Rn]5f ⁹ 7s ¹	[Rn]5f ⁹	[Rn]5f ⁸
Cf	[Rn]5f ¹⁰ 7s ²	[Rn]5f ¹⁰ 7s ¹	[Rn]5f ¹⁰	[Rn]5f ⁹
Es	[Rn]5f ¹¹ 7s ²	[Rn]5f ¹¹ 7s ¹	[Rn]5f ¹¹	[Rn]5f ¹⁰
Fm	[Rn]5f ¹² 7s ²	[Rn]5f ¹² 7s ¹	[Rn]5f ¹²	[Rn]5f ¹¹

表-2 ランタノイド及びアクチノイドのイオン半径 (評価値)

	Ln ³⁺ (CN6)		An ²⁺ (CN6)		An ³⁺ (CN6)		An ⁴⁺ (CN8)	
	R ³⁺ /pm		R ²⁺ /pm	R ³⁺ /pm	R ³⁺ /pm	R ⁴⁺ /pm		
La	103.2	Ac	138	112				
Ce	101	Th					105	
Pr	99	Pa	130	104			101	
Nd	98.3	U	127	102.5			100	
Pm	97	Np	124	101			98	
Sm	95.8	Pu	121	100			96	
Eu	94.7	Am	119	98			95	
Gd	93.8	Cm	116	97.2			94	
Tb	92.3	Bk	114	95.8			93	
Dy	91.2	Cf	112	94.6			92	
Ho	90.1	Es	110	93.4			91	
Er	89.0	Fm	108	92.4			90.5	
Tm	88.0	Md	106	91.4			89.5	
Yb	86.8	No	105	90.4			89	
Lu	86.1	Lr	89.8	88				

An⁴⁺は 8 配位、その他は 6 配位の結晶イオン半径である。

ン半径が殆ど等しくなるので、HfとZrの分離は長い間最も困難な化学的課題であった。このことが、他の元素に比べてHfとZrの原子量等の基礎データを精度良く決定できなかった原因であった。アクチノイド収縮の結果、原子番号104の元素とZr, Hfとの極めて近い類似性が予見され、その確認と発見の指針になった。

ランタノイド収縮・アクチノイド収縮と類似の効果は、イオン半径の他にも、金属半径・原子容等にも現れるが、Eu, Ybでは規則通りのf⁶又はf¹³配置より安定な半充填のf⁷又は全充填のf¹⁴の配置をとるため、金属結合次数が減少し2価となり、結果的に金属半径・原子容が大きくなる等の異常が見られる。アクチノイドの原子容は、軽アクチノイドで5f電子の結合関与の影響もあって結晶構造がそれぞれ異なり、現象論的な収縮は見られないで、むしろ遷移金属に良く似た変化を示す。

ランタノイドとアクチノイドが、他の遷移金属と異なる顕著な特徴として配位数の大きいことがあげられる。ランタノイド・アクチノイドのIII価が配位子のハロゲン族・酸素族のドナーと結合するとき、第1配位圏に9個までの配位数をとることが知られている。ハロゲン化ランタンの結晶では、ヨウ化物を除いて全て配位数9である。しかし、イオン半径の小さいLuでは、フッ化物を除いて全て6配位である。このように配位数が変化するのは、ランタノイド・アクチノイド収縮の影

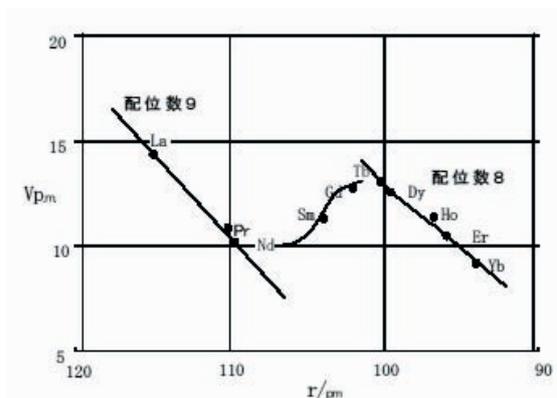


図-1 ランタノイド水和イオンの部分モル体積

響であることは明白である。

このような収縮の効果の例として図-1に、室温におけるランタノイドの水和イオンの部分モル体積を示した。(F. H. Spedding, et al., J. Phys. Chem., 70, 2440(1966)より引用、イオン半径の値は、表-2の評価値以前の8配位のデータである。)図-2には、ランタノイドとアクチノイドIII価の水和数と6配位結晶イオン半径との関係を示した。第1配位圏の水和数は、ランタノイドとAmとCmについてX線散乱と中性子散乱の実験で求められたものである。第1配位圏の水和数が直接的に測定できない重アクチノイドについては、等しい電子配置のランタノイドとの類似性を利用して水和数が決定されている。このような推定法は、重アクチノイドの化学的性質を推定するためにしばしば利用される。ランタンからネオジムまでは

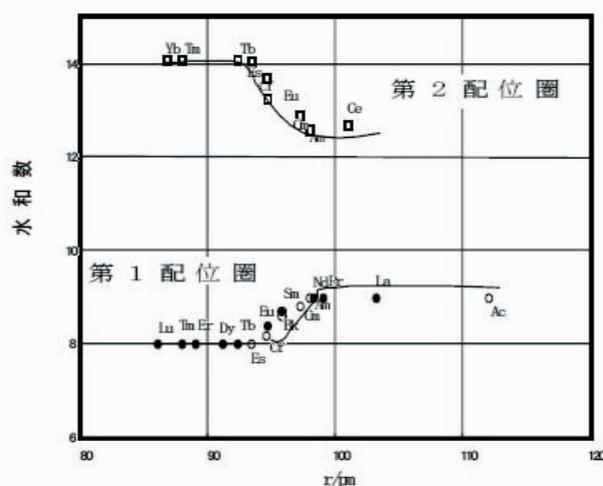


図-2 水和数とイオン半径

第1配位圏の水和数は9で、TbからYbは水和数8であり、SmとGdは二つの配位数の混合状態であるとして説明できる。重ランタノイドと重アクチノイドで水和数が8に減少するのは、イオンが小さくなり立体障害を受けるためである。

第2配位圏の水和数は拡散係数から決定されたものである。第1配位圏の水和数とは逆に、イオン半径が小さくなると第2配位圏までの水和数は約12.5から14に大きくなる。図-1に示した部分モル体積の変化は第2配位圏までの水和数の変化を反映したものと考えることができる。アクチノイドでも同様の傾向があると推定できるが、直接の実測データはまだ得られていない。

3. 水溶液中の酸化状態

軽いアクチノイド元素の5f電子はランタノイド元素の4f電子とは異なり原子価電子として振舞い、6d, 7s電子も価電子となるので、化学分析や化学分離等においては、アクチノイド元素を、AcからAm迄の軽いアクチノイド群（軽アクチノイド）とCm以降の重いアクチノイド群（重アクチノイド）に区分するのが実用的である。

図-3は、アクチノイド元素の酸性水溶液中での酸化数とその安定性を示したものであり、アクチノイド元素化学の特徴が明瞭に顕れている。

最も安定な酸化数はAcのIII価からUのVI価まで1単位ずつ増加し、Np(VII)と共にそれらは全て安定なRnと同じ閉殻の電子配置を持つ。

Np以降ではRn配置の状態が最も安定ではなく、部分的に5f電子が充填された状態が安定であり、Am以降ではランタノイドと同様に酸化数3が最も安定である。軽アクチノイドは、水溶液中で容易に酸化または還元でき、重アクチノイドはランタノイドと同族の元素群と理解できる。

アクチノイドの陽イオンは、全て固いルイス酸として溶液内の錯形成反応に関与する。アクチノイド収縮の結果、原子番号の大きいアクチノイドイオンがより固いルイス酸となるので、イオン交換挙動、溶媒抽出反応、錯形成反応等の系統的な振舞いに反映される。アクチノイドの溶液化学を理解するには、上記の酸化状態の安定性と、水溶液中において水分子のみが配位するときの化学種について知っておくことが重要である。

4. 5f軌道の性質

アクチノイドの化学を理解するには、上記の酸化状態の安定性と、水溶液中において水分子のみが配位するときの化学種について知っておくことが重要である。図-3に示したように、III価とIV価の基本的な化学種は水和イオンであり、V価とVI価では、酸素が直線状に2個配位した、いわゆるアクチニルイオンである。アクチニルの形を持たない唯一の例外は、Pa(V)である。アクチニルイオンは仮想的な水和イオンが酸素イオン2配位にまで加水分解したものと解釈できる。アクチニルは、V価またはVI価の金属イオンの単

図-3 酸性水溶液中におけるアクチノイドの酸化数とその安定性

- 最も安定、◎安定に●の状態と共存、
- 還元剤又は酸化剤の共存下で安定
- △不安定

酸化数	化学種	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr
2	M ²⁺	△?									◎	△	△	△	◎	
3	M ³⁺	●	△	△	○	○	◎	●	●	●	●	●	●	●	●	●
4	M ⁴⁺		●	○	◎	◎	●	○		○						
5	MO ₂ ⁺ *			●	△	●	◎	○								
6	MO ₂ ²⁺				●	◎	◎	○								
7	MO ₂ ³⁺					△	△?	△?								

* Pa(V)は例外でPaO(OH)²⁺ (又はPa(OH)₃²⁺)として存在する。

分子種として水酸化物イオンを含まないで第1配位圏に酸素と水が共存するという点において極めて特徴的である。このような例は、アクチニルを除けば、イオンが小さいV等で例外的に見出されるだけである。その意味では、Pa(V)の方が正常であるとも言える。Pa(V)がアクチニルにならないのは、V価イオンがU, Np, Pu等に比べて大きく、静電ポテンシャルが小さいので水酸化物イオンの解離が起こらないと考えることができる。

表-3 アクチニルの分子軌道

中心金属の電子軌道	酸素の電子軌道	分子軌道
s, d_{z^2}	$\sqrt{\frac{1}{2}}(p_{x1} + p_{x2})$	σ_g^+
p_x, f_{z^2}	$\sqrt{\frac{1}{2}}(p_{x1} - p_{x2})$	σ_u^+
p_x, f_{xz^2}	$\sqrt{\frac{1}{2}}(p_{y1} + p_{y2})$	Π_u
p_y, f_{yz^2}	$\sqrt{\frac{1}{2}}(p_{y1} - p_{y2})$	Π_g
d_{xz}	$\sqrt{\frac{1}{2}}(p_{z1} + p_{z2})$	δ_u
d_{yz}	$\sqrt{\frac{1}{2}}(p_{z1} - p_{z2})$	ϕ_u
$f_{x^2-y^2}$		δ_g
f_{xy}		
$f_{z^2-y^2}$		
$f_{yz^2-y^2}$		
$d_{x^2-y^2}$		
d_{xy}		

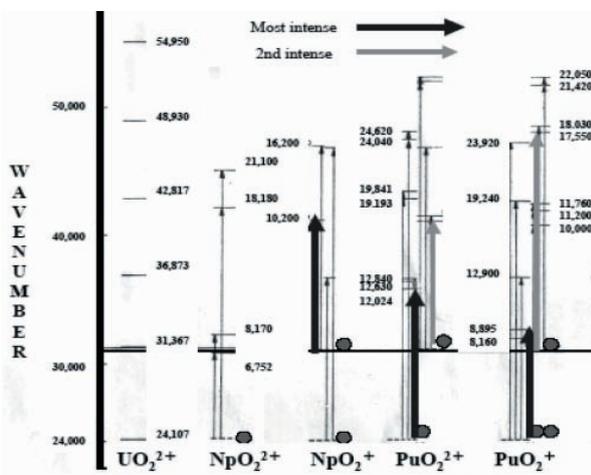


図-4 アクチニルの紫外・可視領域の電子遷移

アクチニルイオンの形は直線状 ($D_{\infty h}$) で、表-3に示したように酸素のp軌道とアクチノイドのs, p, d, f軌道によって、2個の結合性 σ 軌道と2個の結合性 π 軌道とで結合されている。ウラニルではこれらの結合性分子軌道に合計12個の電子が充填されており酸素との結合は非常に強く、負電荷は酸素原子に局在し、中心の金属イ

オンの電荷は形式電荷の2よりはるかに大きい。従って、アクチニルカチオンは、アルカリ金属イオン又はアルカリ土類イオンよりはるかに強い強いルイス酸として錯形成し、酸素酸素軸に直角な中心金属を含む平面に配位子が配置される。

図-4にアクチニルの紫外・近紫外域の電子遷移スペクトルの解釈を示した。U(VI)のこの領域の電子遷移は、全て反結合性軌道への遷移で説明され、U(V)とNp(VI)では、上記の対称軌道の反結合性軌道に1個の電子、Np(V)とPu(VI)では2個の電子、Pu(V)では3個の電子が存在する。このような解釈が成立するのは、Amまでの軽アクチノイドでは5f電子が化学結合へ寄与することを明瞭に示すものである。

アクチノイドの5f電子とランタノイドの4f電子の違いを明瞭に示すもう一つの実験事実はIII価の吸収スペクトルである。いくつかのIII価のアクチノイドとランタノイドの弱酸性水溶液の吸収スペクトルを Ti^{3+} と比較して図-5に示した。 Ti^{3+} の吸収はd-d遷移によるもので、Laport禁制ではあるが、配位子場との摂動で禁制が解かれ比較的強い吸収が現れ Ti^{3+} に特有の色として観察される。吸収の幅が広いことは、配位子の振動の影響である。一方、ランタノイドではf-f遷移特有の弱く線幅の狭い吸収が現れる。これは4f軌道が局在して配位子場の影響を殆ど受けないことによる。従って、ランタノイドの吸収波長は配位子の種類で殆ど変化しない。アクチノイドの吸収は、重アクチノイドでは局在した5f電子によるランタノイドと類似のf-f遷移が現れるが、軽アクチノイドでは線幅が広くやや強い吸収が見られる。これは軽アクチノイドの5f電子が配位子との相互作用に関与することを示すものである。

表-4には種々の酸化数のアクチノイドの酸性水溶液の色を示した。濃厚な水溶液を取り扱う場合には、アクチノイドイオン種の色は酸化状態を知る有力な手掛かりである。しかし、アクチノイド化学の現場では、濃厚溶液を取り扱うのは、燃料加工、再処理等の限られた場所であり、ウランを除けば、殆ど重遮蔽セル又はグローブボックスの内部で取り扱うので表-4のような色を直接観察する機会は非常に少ない。

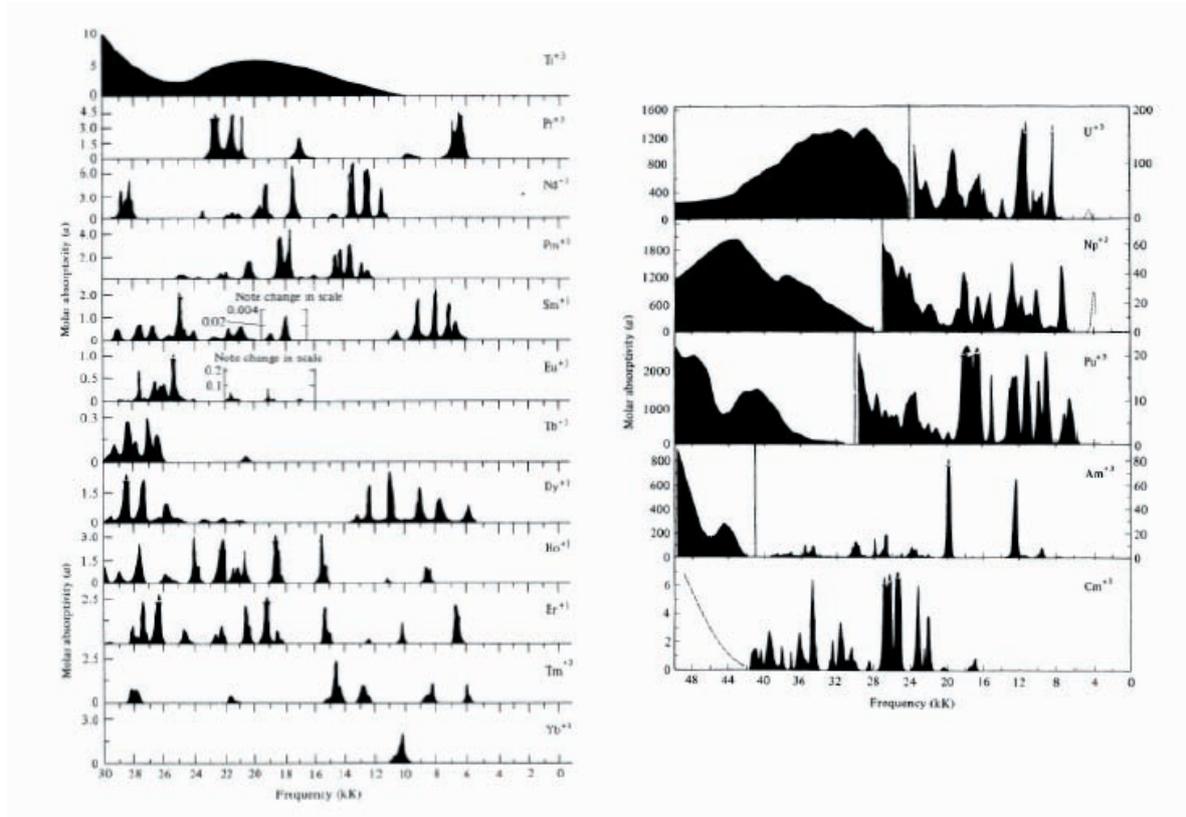


図-5 弱酸性水溶液のランタノイドとアクチノイドの吸収スペクトル。
W. T. Carnall and P. R. Fields, "Lanthanide/Actinide Chemistry", Advances in Chemistry Series, No.71, ACS, 1967 より引用。

表-4 アクチノイド水和イオンの色

元素	M ³⁺	M ⁴⁺	MO ₂ ⁺	MO ₂ ²⁺	MO ₅ ³⁻
Ac	無色				
Th		無色			
Pa		無色	無色		
U	赤	緑	?	黄	
Np	青・紫	黄・緑	緑	ピンク・赤	濃緑
Pu	青・紫	黄褐色	赤・紫	黄(薄赤)	濃緑
Am	ピンク	?	黄	薄赤茶	
Cm	青緑	?			
Bk	緑	黄			
Cf	緑				

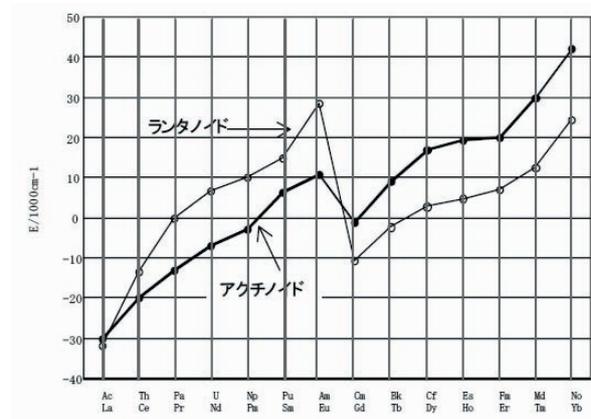


図-6 fⁿ⁻¹ds² 配置の fⁿs² 配置に対する相対エネルギー
ランタノイドは M. Fred 編 "Lanthanide/Actinide Chemistry" Advanced Chemistry Series, No.71, ACS (1967) より、アクチノイドは Katz, Seaborg, Morss 編 "The Chemistry of the Actinide Elements" 2nd Edn. Vol. 2, p1204, Table 15.1 より計算した。

5. 5fⁿ⁻¹6d¹→5fⁿ 昇位エネルギー (III 価の安定性)

表-1 の電子配置から単純に解釈すると、水溶液中で見出される III 価以上の酸化状態では全て 5fⁿ の配置であり、主として s, p 又はその混成軌道から成っている配位子のルイス塩基の電子供与軌道と 5f 軌道との相互作用は弱く、錯形成は主

として空の 7s, 7p, 6d 軌道への電子供与で起こると考えても良さそうである。しかし、特に軽アクチノイドにおいて $5f^n$ の電子配置とそれから電子1個が 6d 軌道に昇位した $5f^{n-1}6d^1$ 配置のエネルギー差（このエネルギー差を昇位エネルギー $\Delta f-d$ と呼ぶ）は小さく、d 軌道を用いて分子軌道を作るとその昇位エネルギーを十分に補償する安定化が得られるので、昇位して結合次数を 2 から 3 に多くした方がエネルギー的に有利になる。

図-6 にランタノイドとアクチノイドの $f^n s^2$ 配置に対する $f^{n-1} d s^2$ 配置の相対エネルギーを示した。 $f^n s^2$ 配置のエネルギーが大きい元素は d 軌道への昇位が不利であり、低い酸化状態が相対的に安定となる。しかし、ランタノイドの水溶液では III 価が安定であることから判断できるように、昇位した d 電子を用いて水分子と錯形成することにより 30000cm^{-1} を上回る安定化が達成できる。また、Eu と Yb が比較的容易に II 価に還元できることは、昇位エネルギーが極大となることに示されている。逆に、Sm と Tm に II 価が見出されないことより、II 価と III 価の共存の限界は昇位エネルギー約 15000cm^{-1} 付近であると考えられる。このことにより図-3にあるように Cf 以上の重アクチノイドが II 価に還元できることが理解できる。

6. アクチノイド水和イオン種の熱力学的パラメータ

水溶液化学を系統的に理解するための基礎は、水和イオン種の生成エネルギー等の熱力学的パラメータである。アクチノイドの多くの化合物、溶液系で熱化学実験が行われ熱力学的パラメータの評価が行われているが、Th, U, Pu 等を除いて未だ十分に正確なデータがそろっている状況ではない。図-7 に熱力学的諸量の関係をボルン・ハーバーサイクルの形式で示した。このような熱サイクルに基づいて未知のデータを推算し、系統的な評価と理解を追求することは、多くの元素で直接測定が困難なアクチノイド化学では必須であり、さまざまな試みが行われている。図-7 では、固体金属の状態を M(s) で、酸化数別に水溶液中の状態を M(III), M(IV), MO_2^+ , MO_2^{2+} で、気相での状態を (g) を付けて示した。気相状態は単原子

種であり、その最も安定な状態は表-1の電子配置をとるのに対して、水相と固相状態は近接原子または分子との相互作用の結果として生じる安定状態であり、f 電子が昇位した凝集状態であることに注意する必要がある。

図-8にはランタノイドとアクチノイドのイオン化ポテンシャルを示した。アクチノイドの IP(1) は分光スペクトルによる測定値とランタノイドとの比較も考慮した評価値であり、IP(1-3) は水和イオン種だけでなく塩化物と酸化物について、図-7と同様のサイクルに基づく評価値の平均であり、それぞれの評価値の違いは 0.5eV より小さい。

ランタノイドの IP(1-3) は $36 \sim 44\text{eV}$ の範囲にあり、アクチノイドでも重アクチノイドの評価値を除いて同じ範囲にある。たいていの遷移金属の IP(1-3) は約 55eV より大きく、13 族 (IIIA) 元素で最も活性な Al でも 53.2eV である。このようにランタノイドとアクチノイド金属の IP(1-3) が小さいことは、他の III 価の金属と異なり非常に活性であることを意味する。実際にランタノイドとアクチノイド金属は、アルカリ金属やアルカリ土類金属と同様に、水と反応して水を分解して水素を発生させることが知られている。

図-9には標準水和エンタルピーと水和イオン種の標準生成エンタルピーを示した。標準水和エンタルピーは図-7における気相の $3+$ イオン種の水和による安定化熱を、標準生成エンタルピーは固相金属の水和による安定化熱に相当する。標準水和エンタルピーは原子番号の増加に伴い単調に増加する。これはアクチノイド収縮の効果であり、気相と水相ともに $[\text{Rn}]5f^n$ の電子配置であり、イオン種の水和エネルギーが水の双極子との静電相互作用によって決まることを示している。即ち、f-d 昇位エネルギー、昇華エネルギーは、標準水和エンタルピーには効いてこない。一方、 ΔH_{fhy}^0 の原子番号による変化は、金属の結合次数、f-d 昇位エネルギー等が影響して複雑である。軽アクチノイドでの標準生成エンタルピーの変化は、Th, Pa, U, Np の金属結合次数が III 価より大きく安定であり、水和による安定化が相対的に小さく評価されることを示している。No の極小は f^{13} 配置の III 価の水和イオンより f^{14} 配置の II 価が安定であることが現れたものと考えることがで

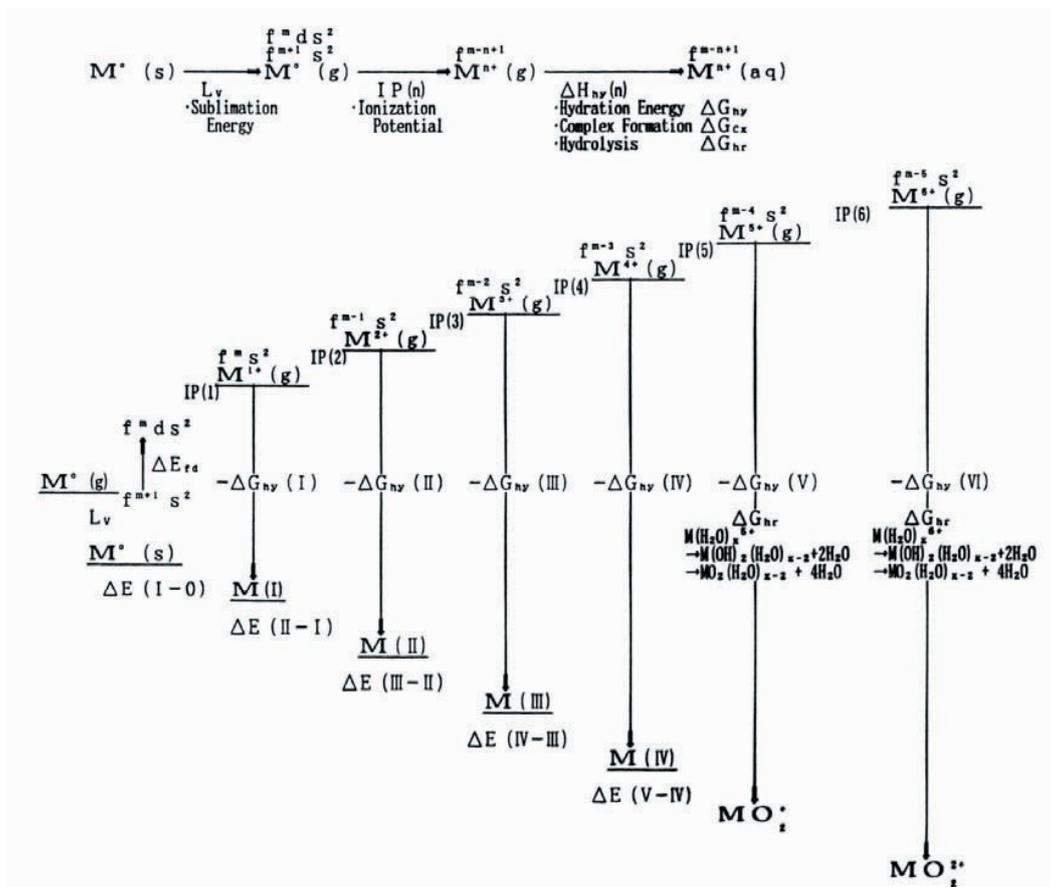


図-7 熱力学パラメータの相関図

Lv:昇華エネルギー、IP(n):第nイオン化ポテンシャル、E(N-M):還元電位、
 $\Delta G_{hy}(X)$:水和エネルギー、 ΔE_{fid} :昇位エネルギー

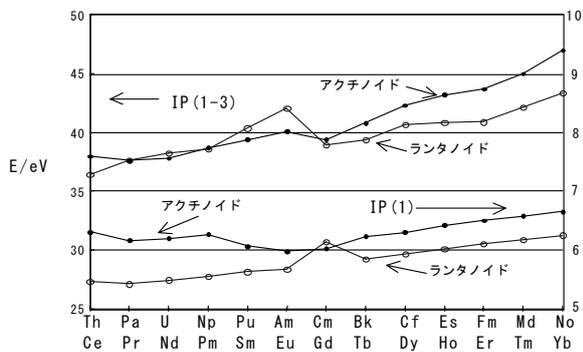


図-8 ランタノイドとアクチノイドのイオン化ポテンシャル (評価値)

アクチノイドのIP(1)(Th, Np, Amを除く)とIP(1-3)はKatz, Seaborg, Morss編”The Chemistry of the Actinide Elements”2nd Edn. Vol.2, p1293, Table 17.4を引用、Th, Np, AmのIP(1)はN.Trautmann, “Accurate determination of the first ionization potential of actinides by laser spectroscopy” *J. Alloys Comp.*, **212/214** 28(1993)を引用。ランタノイドについては”Elsevier’s Periodic Table of the Elements” 1987より引用。

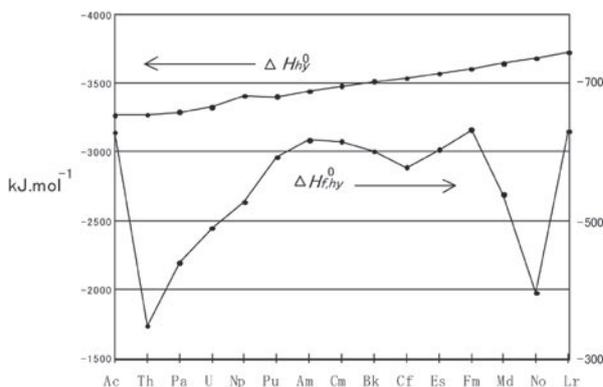


図-9 アクチノイドIII価の標準水和エンタルピー ΔH_{hy}^0 と標準生成エンタルピー ΔH_{fhy}^0

Katz, Seaborg, Morss編”The Chemistry of the Actinide Elements” 2nd Edn. Vol.2, p1280 Table 17.1 及び p1315 Table 17.14 より引用。

きる。

アクチノイド金属の昇華エネルギー、イオン化ポテンシャル、水和イオン種の標準生成エンタルピー、酸化・還元電位、5f-6d 電子遷移のエネルギーと化学平衡の温度変化の測定とその系統性の検討等によって評価された水和イオン生成の標準エンタルピー、ギブスエネルギーとエンタルピーを表-5に示した。表-5では、実験による根拠の充分なデータを除いて<>付きでシステムティックスによる推定値を示した。

このような評価データには、水和イオンの安定性は大部分エンタルピー項で、即ち静電相互作用で決定され、室温付近でエンタルピー項の寄与は小さいことが表れている。表-5の標準水和エンタルピーは L. R. Morss 等による評価式

$$\Delta S^0 = 3/2R \ln(at.wt) + R \ln(2J+1) + 256.8 - 32.84(|z|+3)^2 / (r+c) \quad (1)$$

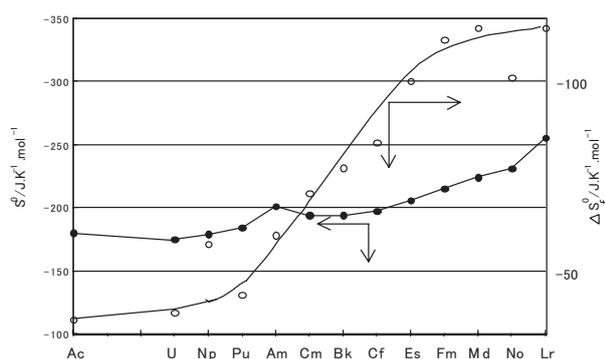


図-10 III 価アクチノイドの標準水和エンタルピー (S^0 : 評価値) と水和イオンの生成エンタルピー (ΔS_f^0)

により計算したものである。(1)式で、 J , z , r , c は、それぞれイオンの全角運動量子数、電荷、結晶イオン半径 ($z=4$ では配位数8、その他では6)、内水和圏を考慮した広がり(陽イオン種では1.20Å)である。このような評価式は、十分に測定データのそろっている元素についての生成エンタルピーとギブスエネルギーの評価値から、ランタノイドとアクチノイドの標準生成エンタルピー(ΔS_f^0)を計算し、その系統的な変化と理論的な考察を経て、測定と評価が困難なアクチノイドの水和イオンの熱力学的パラメータを計算する根拠として使われている。

参考のために図-10にアクチノイドの水和イオンのエンタルピーと標準生成エンタルピーを示した。原子番号の増加に伴い ΔS_f^0 が小さくなる傾向は、第2水和圏までの水和数の増加に対応している。

このような評価データベースは、アクチノイド化学の理解を深めるために非常に重要であることは言うまでもない。廃棄物処分の問題を考えると明らかのように、全ての可能性を実験によって確かめることはもとより不可能である。従って、質の良いデータを収集・評価し、ランタノイドと他の遷移金属の示す諸々の傾向と比較して、未知の或いは測定不可能な系での化学挙動予測の信頼度を高めることは必須である。

7. アクチノイドの酸化還元反応

表-6にアクチノイドの還元電位をLatimer図の形で示した。この表には、アクチノイド溶液化学についての非常に多くの情報が内蔵されている。また、多くの不安定な化学種を含み、実験も困難であるので、全て標準電位ではなく形式電位(1 M HClO₄)である。

<軽アクチノイドの低酸化状態の安定性>

金属への還元電位が大きな負であることは、水溶液中で金属への還元が非常に困難であることを示す。負の還元電位を持つPa(V), U(IV)を、 Pa^{4+} , U^{3+} へ還元することは酸性水溶液中では困難であり、 Pa^{4+} , U^{3+} は H^+ に対する還元剤である。上の表の電位はpH=0、即ち $[H^+]=1$ M付近での電位であり、 H_2H^+ 電位は強い酸性条件では正の電位になることに注意する必要がある。 Np^{3+} はpH=0では安定であり H^+ を還元できないが、濃い酸性溶液での H^+ の還元電位に近い電位であり、空気と接触して溶存酸素を含む溶液では酸素によって酸化される。従って、極端に強い還元条件を用いない限り、Pa(V), U(IV), Np(IV), Pu(III), Am(III)が水溶液中で実現できる最も低い酸化数である。それでも、これらのアクチノイドを酸性溶液に溶解する場合に、Zn, Al, Fe等の金属が共存する時にはPa(IV), U(III), Np(III)等の状態が現われうる。

表-5 アクチノイド水和イオン種の熱力学的諸量

化学種	$\Delta H^0_{f, aq}$ (kJ. mol ⁻¹)	$\Delta G^0_{f, aq}$ (kJ. mol ⁻¹)	$\Delta S^0_{f, aq}$ (J. K ⁻¹ . mol ⁻¹)	S^0 (J. K ⁻¹ . mol ⁻¹)
Ac ³⁺	<-628±29>	<-617±33>	<-37±3>	<-180±17>
U ³⁺	-489. 1±3. 8	-480. 7±4. 6	-28. 2±1. 4	-174. 9±6. 4
Np ³⁺	-527. 2±2. 1	-517. 1±3. 3	-33. 9±1. 7	-179. 1±6. 4
Pu ³⁺	-592±2	-579±3	-43. 6±2. 6	-184±8
Am ³⁺	-616. 7±1. 3	-599±4	-59. 4±	<-201±13>
Cm ³⁺	-615±5	<-594>	<-70. 5>	<-194>
Bk ³⁺	-601±5	-578±7	<-77. 2>	<-194±17>
Cf ³⁺	-577±5	<-552>	<-83. 8>	<-197>
Es ³⁺	<-603±21>	<-573±17>	<-100>	<-206>
Fm ³⁺	<-632±42>	<-599±38>	<-111>	<-215>
Md ³⁺	<-538>	<-504>	<-114>	<-224>
No ³⁺	<-395>	<-365>	<-101>	<-231>
Lr ³⁺	<-630>	<-596>	<-114>	<-255>
Th ⁴⁺	-769. 0±2. 5	-705±5		-424±4
Pa ⁴⁺	-622±14	<-567±17>		-397±40
U ⁴⁺	-591. 2±3. 3	-530. 9±2. 1		-414±21
Np ⁴⁺	-556. 1±4. 2	-502. 9±7. 5		-389±21
Pu ⁴⁺	-536±3	-482±3		-389±20
Am ⁴⁺	-406±6	-347±9		<-408>
Bk ⁴⁺	<-483±29>	-417±25		<-412±20>
PaO(OH) ²⁺	-1113±17	-1050±17		<-21±16>
UO ₂ ⁺	-1033±6	-969±5		-26±8
NpO ₂ ⁺	-978±5	-915±5		-21±8
PuO ₂ ⁺	-915±6	-850±8		-21±8
AmO ₂ ⁺	-805±5	-741±5		-21±8
UO ₂ ²⁺	-1019. 1±0. 5	-952. 7±2. 1		-98. 3±4. 0
NpO ₂ ²⁺	-861±5	-796±5		-94±8
PuO ₂ ²⁺	-822±7	-756±7		-92±8
AmO ₂ ²⁺	-652±2	-587±3		-88±8

<高い酸化状態の安定性と不均化について>

表-6にはあからさまに示されていないが、U(VI)のU(IV)への還元電位とAm(VI)のAm(III)への還元電位は、 $UO_2^{2+} \xrightarrow{-0.27} U^{4+}$ 、 $AmO_2^{2+} \xrightarrow{-1.68} Am^{3+}$ であるので、それぞれU(V)とAm(IV)からの還元電位より小さい。このことは、U(IV)をU(V)へ、またはAm(III)をAm(IV)へ酸化できる条件では、それらより低い電位でU(VI)とAm(VI)への酸化が起こることを示している。U(V)とAm(IV)は、右側の還元電位が左側に比べて負であるので不均化に対して不安定であり、不均化は速やかに進行する。このことは、酸性水溶液中でU(V)とAm(IV)を安定に存在させることはできないということの意味する。

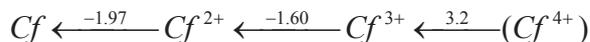
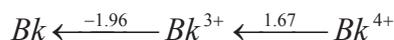
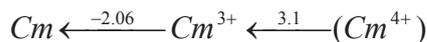
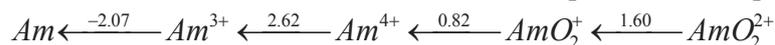
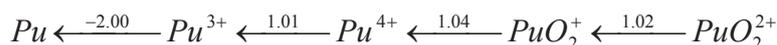
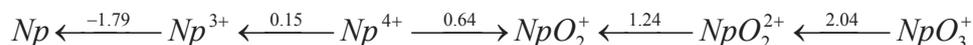
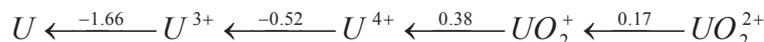
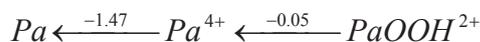
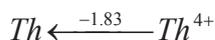
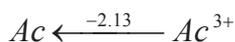
アクチノイドのIII価とIV価は、中性付近ま

たはアルカリ溶液中での溶解度が小さく、水酸化物沈殿を生成する。そのため分離目的には比較的濃度の高い酸水溶液が用いられる。その場合、電位は酸濃度と錯形成の影響で変化する。後に述べるように酸化数の制御が困難なネプツニウムとプルトニウムについて、実測の還元電位を表-7、8に示す。

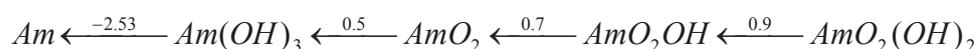
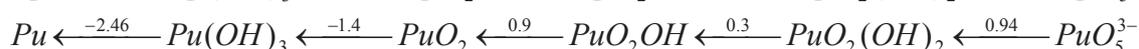
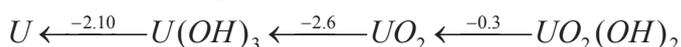
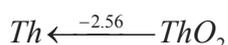
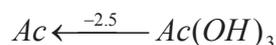
プルトニウムのIII価からVI価までの電位は全て1.01から1.03Vの非常に狭い範囲にある。このことは、III価からVI価までのどのような対でもその電位が殆ど等しいということであり、酸性溶液中のプルトニウムは、III価からVI価までの全ての酸化状態の混合状態で存在する。表-6ではPu(V)が不均化することが示されている。アクチニル構造のV価から水和構造のIV価への

表-6 主なアクチノイドの還元電位

(酸性溶液(pH=0))



アルカリ溶液(pH=14)



還元電位は pH の影響を受け、平衡には 3 つ以上の酸化状態が関与し、それぞれの錯生成の影響もあるので、酸化状態の分布がどのようなになるかは表-6 からだけでは予測できない。実際の硝酸酸性水溶液中では IV 価が支配的であるが、それでも化学分離では電位を調整しない限り III, V, VI 価共存の影響が顕れる。

表-7 いくつかの酸溶液におけるネプツニウムの還元電位 (25℃)

酸濃度 (mol-l)	還元電位 (V)		
	Np(IV)/Np(III)	Np(V)/Np(IV)	Np(VI)/Np(V)
塩酸 1.0	0.14	0.739	1.14
硫酸 1.0	0.1	0.99	1.084
硝酸 1.0			1.138
過塩素酸 1.0	0.155	0.739	1.137

表-8 いくつかの酸溶液におけるプルトニウムの還元電位 (25℃)

酸濃度 (mol-l)	還元電位 (V)		
	Pu(IV)/Pu(III)	Pu(VI)/Pu(IV)	Pu(VI)/Pu(III)
硝酸 0.1	0.952	0.925	0.934
0.2			
0.3			
0.4			
1.0			
	0.939	0.949	0.946
	0.935	0.973	0.961
	0.927	0.993	0.972
	0.914	1.054	1.006
塩酸 1.0	0.970		1.023

ネプツニウムでは、酸性溶液中では Np(VI) がかなり強い酸化剤であり、Np(III) は溶存酸素で速やかに酸化されるので、電位を調整しない時には Np(V) と Np(IV) が共存し、酸濃度と錯生成の影響でその分布が変化する。更に、濃い酸性溶液では、V - IV の電位が酸濃度と錯生成の影響で大きくなり、V 価が不均化するので VI 価の影響が見られることもある。そのため、ネプツニウムの分離化学でもプルトニウムと同様に酸化状態を調整するために還元剤・酸化剤を添加するのが普通である。

$UO_2^{2+} \xrightarrow{0.27} U^{4+}$ の電位は、IV 価のウランが溶存酸素によって容易に酸化されることを示しており、実際に空気と接触する水溶液中では IV 価のウランはかなり安定ではあるもののゆっくりと VI 価に酸化される。そのため電位を調整しない溶液では VI 価が主な化学種となる。

ウラン、ネプツニウム、プルトニウムが共存する場合には、還元剤としての U(IV)、酸化剤としての Np(VI) と Pu(VI) の作用も考慮する必要があるため、実際にそれぞれの酸化状態の分布を予測することは困難である。そのため、これらの相互分離では、適切な酸化剤還元剤を選択して、酸化状態を制御した上で分離が行われる。

<ネプツニウムの酸化状態の調整>

ネプツニウムの酸化状態の調整に広く用いられる方法を、表-9 に示した。

III 価のネプツニウムは、白金黒触媒を用いた水素還元、亜鉛アマルガム還元、又は単純に亜鉛の溶解に伴う水素還元等で調製できるが、純粋な状態で得るためにはアルゴン雰囲気等の酸素を遮断できる条件で還元しなくてはならない。このような強い還元剤を用いると、ウラン、プルトニウムが共存する時には、それぞれ III 価まで還元される。

分離化学で最も重要なのは、V 価から IV 価への還元と、IV 価から V 価への酸化である。IV 価から V 価への酸化は、還元剤が共存しない限り塩酸、硝酸、硫酸、過塩素酸溶液中で室温でも進行するが、一般にその反応は遅く完全に酸化するには加熱するか弱い酸化剤を添加する必要がある。強い酸化剤を添加すると表-9 にあるように VI 価まで酸化されることに注意しなくてはならない。V 価から IV 価への還元は最も多く研究されており、大抵の分離精製には表-9 の方法を目的別に使い分ければ充分である。

<プルトニウムの酸化状態の調整>

ウラン、ネプツニウムと異なりプルトニウムを V 価と IV 価のどちらか一つの酸化状態に調製することは困難であり、たとえ調製できたとしてもやがては不均化反応によって 4 つの酸化状態が混合した状態へ変化する。分離精製目的では、IV

表-9 ネプツニウムの酸化状態の調製方法

反 応	還元剤	酸濃度、反応条件等	備 考
IV → III	電解還元	1 M 程度、室温—20 分程度	
	H ₂ (Pt)	1 M 程度、室温—30 分程度	
	Zn-Hg	1 M 程度、室温—10 分程度	
V → IV	Fe ²⁺	1 ~ 5 M、室温—20 分程度	硝酸溶液ではスルファミン酸、塩酸溶液ではヒドキシルアミン等を添加。
	I ⁻	5 M 以上の塩酸溶液 室温—30 分程度	加温または濃い酸濃度では非常に迅速。
	H ₂ O ₂	硝酸溶液、室温	遅い反応であるが酸濃度 8M 以上では迅速
	NH ₂ OH	塩酸、室温	比較的早く還元されるが、低酸濃度では遅い
	N ₂ H ₄	塩酸、室温	比較的早く還元されるが、酸濃度が低いと遅い
	SO ₂	硫酸、室温	遅い反応であるが、F ⁻ 等の触媒共存下で迅速
IV → V		塩酸	室温では遅いが、加温すれば早い
		硝酸	室温では非常に遅いが、加温すれば早い
		過塩素酸	室温では遅いが、加温すれば早い
IV, V → VI	Ag ²⁺ , MnO ₄ ⁻ , Ce ⁴⁺ , Cr ₂ O ₇ ⁻ , 臭素酸等で室温でも迅速に酸化できる。		

価または III 価に調製する、あるいはそのどちらかの挙動が支配的な条件を実現することが要求される。

一般にアクチノイドの III 価と IV 価、及び V 価と VI 価の間には、分離に利用される沈殿挙動、錯生成挙動、イオン交換挙動、溶媒抽出挙動に大きな違いがある。一方、III 価と IV 価、及び V 価と VI 価の間の酸化還元反応速度は速く、アクチニル結合の形成または開裂が伴う IV 価と V 価の間の反応は遅いことが知られている。従って、IV 価が支配的な条件に微量に存在する III 価、または VI 価が支配的な条件に微量に存在する V 価は、IV 価または VI 価を水溶液系から除去する分離操作の進行中に、それぞれ IV 価または VI 価にその殆どが酸化されるので、その存在が分離を阻害することは少ないと考えられている。

プルトニウム III 価の調製には、塩酸溶液では I, Zn, H₂ (Pt), ハイドロキノン、ヒドロキシルアミン等が、硝酸溶液では亜硫酸等を利用する。前

にも述べたようにウランの IV 価はプルトニウムの還元剤として利用することができるので、ウランを IV 価に調製すれば共存するプルトニウムを III 価に調製できる。

プルトニウム IV 価の調製に強い酸化剤を用いると、結果として VI 価が生成される。また、同様に強い還元剤を用いると、結果的に III 価も生成される。非常に有効な IV 価への調製剤は亜硝酸であり、硝酸溶液中で亜硝酸は VI 価 V 価の還元剤、III 価の酸化剤として作用させることができる。ヒドロキシルアミン、ヒドラジン等による VI 価または V 価の還元は遅い反応であり実用的ではないが、硝酸溶液にこれらの還元剤を共存させ加熱すると亜硝酸も生成されるので、結果的に殆ど IV 価に調製することができる。

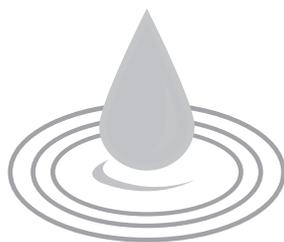
プルトニウムの分離精製には、上述のような IV 価と III 価への調製を使いわけて、殆どの目的が達成できる。

<アメリシウムの酸化>

アメリシウムは、強い酸化剤によってIV価、V価、VI価まで酸化でき、それらはIII価のアクチノイドとは化学的性質が大きく異なるので、アメリシウムを酸化して分離することは、重アクチノイドとの分離にあたって大変魅力的な試みである。前節で述べたようにAm(III)を酸化すると、IV価への酸化電位がVI価への電位より大きいので、IV価だけでなくVI価とそれが自動還元されてV価が生成する。また、水の放射線分解等の影響を受けて、酸化剤が共存しない場合にはIII価まで速やかに還元される。そのため、定量的な

分離を目的にアメリシウムの酸化を利用することに消極的な意見の人も多い。

アメリシウムの酸化には、オゾン、過硫酸($S_2O_8^{2-}$)、Bi(V)等の強い酸化剤が用いられる。 Ag^{2+} 等の触媒の存在下でアルカリ性溶液中で酸化すると、Am(VI)を安定に数時間保持することも可能である。酸性溶液中での酸化は困難で、塩酸溶液は塩化物陰イオンが還元剤として作用するので使用できない。唯一大部分の酸化が可能で研究例の多いのは硝酸溶液である。それでも酸濃度が高くなると自動還元の影響が強くなるので、1 – 3 Mが酸濃度の上限である。



施設だより

東北大学サイクロトロンラジオアイソトープセンター

関根 勉 (東北大学高等教育開発推進センター)

仙台市の青葉山の丘陵地に、理学部と並んで東北大学サイクロトロンラジオアイソトープセンター (Cyclotron and Radioisotope Center, 略称 CYRIC, <http://www.cyric.tohoku.ac.jp>) がある。CYRIC は昭和 52 年に設立され、昭和 54 年から学内共同利用を開始した。サイクロトロンが多目的利用、多量の放射性核種やサイクロトロンで生成する短寿命核種の利用、安全取扱いのための教育・訓練などを行うために設置されたものである。他大学などではアイソトープセンターは独立の施設として設置されているが、東北大学ではサイクロトロン施設と有機的に統合・運営されていることに特徴がある。初期の頃は、680AVF 型サイクロトロン 1 基で運用を開始したが、そのニーズ拡大により、平成 11 年からは 1 億電子ボルト 930 型 AVF サイクロトロンに更新された。また新サイクロトロン稼働までの休止期間を補うために、核医学・核薬学で用いる放射性薬剤の合成等のために小型サイクロトロン HM12 が設置され、稼働を開始し、現在に至っている。

センターは 5 つの研究部 (加速器、測定器、核薬学、サイクロトロン核医学、放射線管理) と事務部からなり、各研究部はそれぞれ理学、薬学、医学、工学の研究科に協力講座として所属している。

センターの重要事項を審議し決定するのは運営専門委員会であるが、運営専門委員会のもとに 4 つの部会 (理工学利用部会、ライフサイエンス部会、安全管理 RI 利用部会、課題採択部会) がおかれ、サイクロトロン理工学利用、医学・生物学利用、安全管理、共同利用のための課題採択などを審議する。また利用者の会がセンター長の下に設置されており、利用者の要望や意見がその運営に反映されるように工夫されている。

サイクロトロンの利用課題募集は年に 3 回行われており、平成 18 年度の課題件数はその合計が 234 件 (延べ) に上っている。採択課題等につい

ては“CYRIC ニュース”に掲載されているので興味のある方はご覧いただきたい (<http://www.cyric.tohoku.ac.jp/japanese/report/cyricnews.html>)。利用申請者は学内者に限定されているが、学内の責任者を中心として学外者を含んでグループを作り、共同で研究を進めるケースも多い。またサイクロトロンを利用する課題だけではなく、サイクロトロン棟と直結している RI 棟のみを利用する申請も別途ある。

サイクロトロン棟では 1000 種、RI 棟では 581 種の放射性核種の利用が可能であり、様々な目的に対して可能性を高めているほか、多目的利用をサポートするための種々の機器・設備も設置されている。医学・薬学利用では日本において早くから PET 検査の基礎研究を始めており、PET 診断用の放射性薬剤合成装置の開発はもとより生体機能のイメージングにも発展している。現在は、サイクロトロン棟、RI 棟に直結して隣接する“研究棟”に 4 台の PET が設置されている。他に高速中性子飛行時間分析装置、オンライン同位体分離装置、ゲルマニウムボール、大強度高速中性子ビームコース、半導体照射試験装置、ターゲットシャトル駆動システム、PIXE 分析装置などの多彩な機器や設備がある。さらに γ 線線源 (^{60}Co 、 ^{137}Cs) や中性子線源 (^{252}Cf) による標準校正場や、RI を用いた小動物実験のための動物飼育設備もある。

全学の放射線取扱者のための教育、訓練にも中心的な役割を果たしている。新たに放射線取扱者になろうとする者のためには、年 2 回の全学講習会を開催している。東北大学においては通常の放射線業務従事者になるための講習会に加え、X 線作業利用者 (たとえば X 線解析装置の利用)、SOR (シンクロトロン軌道放射) 光利用者のための講習会をそれぞれ区別して行っている。職員、学生をあわせて、年間 1000 人以上の新規受講生

がある。放射線業務従事者になるための講習会では講義に加えて実習（1日間）も課される。RI棟内にはそのための実習室や測定室があり、ドラフト設備や測定機器（GM検出器およびNaI(Tl)シンチレーション検出器と計数装置、サーベイメータなど）が数多く設置されており、多数の受講者の実習が円滑に行われるようになっている。また、学部の学生実験（理学部化学、理学部物理、農学部等）のためにも施設が利用されている。

種々の設備・機器は放射化学分野に関わる研究も支えている。たとえばオンライン同位体分離装置(ISOL)では、サイクロトロンビームで照射した直後に生成する短寿命核種をその場で分離することができ、テープ輸送装置で測定対象部分を低バックグラウンド下に移動して測定することが可能である。また重イオンを用いた高感度PIXE分析と化学状態分析も精力的に研究されており、興味深い。ターゲットシャトル駆動システム(図1)

は、照射室とホットラボの間を結ぶターゲット搬送装置である。この搬送装置の設置では、本学会の学会賞(2006)を受賞した大槻 勤博士が多大の貢献をした。操作は単純化されており、専用のホルダーに取り付けられたターゲットはホットラボのドラフト内からビームダクト照射位置までボタン一つで搬送・設置される。照射が終わった後も、照射室に立ち入ることなく、ボタン一つでターゲットがホットラボに搬送できる。ターゲットホルダーはちょうど回転寿司が移動していくようなガイドの上を流れていくので、利用者の間では“回転寿司システム”と呼ばれて親しまれている。最後に、本記事の執筆にあたりご意見をいただいた馬場 護教授(東北大学サイクロトロンラジオアイソトープセンター)、図原稿を提供いただいた大槻 勤准教授(東北大学大学院理学研究科附属原子核理学研究施設)にお礼申し上げます。

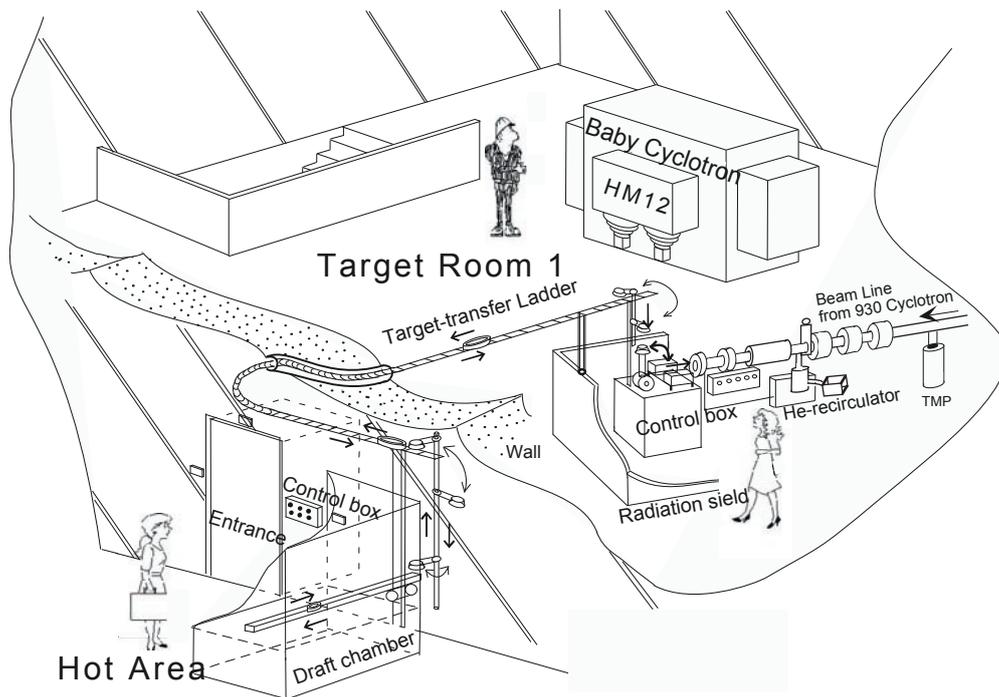


図1 ホットラボと照射室を結ぶターゲットシャトル駆動装置の概略図。

研究集会だより

第8回環境放射能研究会

森田 貴己 (水産総合研究センター中央水産研究所)

平成19年3月22日～24日の3日間、つくば市の高エネルギー加速器研究機構で、第8回「環境放射能」研究会が開催された(参加人数は126名、うち学生15名)。日本には環境放射能に関連する研究に取り組んでいる研究者が多数おられるが、環境放射能という研究分野は学際的な分野であることから、そのみを扱う学会・研究会は存在せず、本研究会発足以前は各研究者がそれぞれの専門に近い分野の学会で活動していた。しかしながら、東海村JCO臨界事故調査の経験から、環境放射能研究に携わる研究者が一堂に会する研究会の必要性が認識され、本研究会が設立されたということである。私に関連する水産研究の分野においても、このような学際的な分野を取り扱う研究会の設立の要望をよく耳にするが、多くの場合は設立に至っていない。あらためて、本研究会の設立、またその後の継続した開催に携わっている関係者の方々に敬意を表すところです。こうした設立の経緯を反映して、本研究会は、高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター及び日本放射化学会 α 放射体・環境放射能分科会が主催し、日本原子力学会保険物理・環境科学部会、日本放射線影響学会及び日本放射線安全管理学会が共催して開催されている。本研究会の最大の特徴は、発表会場が1会場であるということである。多くの学会で関心のある講演が別の会場にあるため、会場を歩き回るといった経験をされた方も多いと思うが、本研究会では発表会場を移動する必要はない。今年度の発表件数は、依頼講演が5件、口頭発表が20件、ポスター発表24件であった。発表時間も口頭発表1人25分、依頼講演1人60分と他の学会よりも長めに設定されている。これは世

話人の方々の、“発表者に余裕を持って講演してもらおう”、という配慮であると思うが、発表時間を長めに設定されるとその分より多くの情報を発表しようと思ってしまうのが研究者の習性であるのか、結局は多くの発表者が発表時間を超過してしまっていた。しかしながら、おかげで内容の濃い発表を聴くことができた。

本研究会は、固定されたテーマ(自然環境放射能と放射線・原子力施設環境放射能)と毎年新たに設定されるテーマで構成される。今年度のテーマは“日本における環境中の人工放射能研究50年”であった。このテーマからは、いったい50年前に何があったのだろうかとの疑問が生じると思うが、講演者の一人である大桃洋一郎先生(環境科学技術研究所)の講演によると、“文部省が科学研究費を用いて研究に着手したのが1958年であり、したがって人工放射能研究は2007年で50年を迎えた”ということである。このテーマに沿って、今年度で退官される三頭聰明先生(東北大)と佐藤純先生(明治大)もこれまでの研究生活を振り返った内容を含めて講演をされた。さらに、今中哲二先生(京大)と臼田重和先生(原子力機構)もそれぞれ「チェルノブイリ原発事故:何が起きたのか」、「核不拡散のための環境中放射性核種に係わる研究開発」という演題で講演をされた。こうした先生方の60分に及ぶ講演を一つの研究会で一度に拝聴できることなど、他の学会ではとうてい考えられないことであろう。先生方の講演を聴いている時、私はI.Newton(彼の弟子の言葉という説もあるが)の“If I have seen further, it is by standing on the shoulders of giants.”という言葉思い出した。どうやら、私などはまだ先生方の肩にも上れていないようである。

研究会2日目には、昨年度に引き続き若手セッションが設けられた。テーマは「明日、チェルノブイリ事故が起きたら、私達は何ができるのか?」

である。このテーマには、“自分たちが日頃行っている研究を研究室内の研究だけに終わらせず、現実に事故が生じた時、その研究をどう活かすべきなのか？ また、そのためには個々の大学・研究機関に閉じこもっていないで、研究者間の結びつきを強くしよう。”，という強い気概が込められ

ているようであった。加えて、“環境放射能研究は転換期に来ている”とよく言われる昨今、若手研究者の間に自分の研究を見つめ直すという気持ちが生じているようにも感じられた。諸先輩方は、こうした若手研究者たちの問題意識の高さに、今後の本分野の安泰を感じられたことであろう。



.....

情報プラザ

.....

1. 第12回放射化分析の最近の動向に関する国際会議 (MTAA-12)

主催 日本放射化分析研究会
会期 2007年9月16日(日)～9月21日(金)
会場 首都大学東京 南大沢キャンパス
Web ページ URL : <http://www.mtaa12.com/>
連絡先 〒192-0397 東京都八王子市南大沢 1-1
首都大学東京理工学研究科分子物質化学
専攻宇宙化学研究室内
MTAA-12 事務局 海老原充、大浦泰嗣
mtaa12@center.tmu.ac.jp
TEL : 042-677-2553, 2548
FAX : 042-677-2525

3. International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect (ICAME 2007)

会期 2007年10月14日(日)～10月19日(金)
会場 Indian Institute of Technology Kanpur, India
Web ページ URL : <http://www.iitk.ac.in/icame07/>
連絡先 Chairman, ICAME 2007, Department of Chemistry Indian Institute of Technology Kanpur, Kanpur-208016(UP) India
Email: icame@iitk.ac.in;
Phone: +91-512-2597423, +91-512-2597080;
Fax : +91-512-2597080, +91-512-2597436

2. 3rd International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements (TAN07)

会期 2007年9月23日(日)～9月28日(金)
会場 Conference Centre of Davos, Switzerland
Web ページ URL : <http://tan07.web.psi.ch>
連絡先 Paul Scherrer Institut TAN07
CH-5232 Villigen PSI, Switzerland
E-mail: tan07@psi.ch
Tel +41 (0)56 310 24 01
Fax +41 (0)56 310 44 35

本だな

ブラックホールは毛が3本—現代科学発展の歴史と現状

馬場 宏 著

新風舎 (2006.12) A 5 版、191 ページ、ISBN 4-289-00565-9 本体 1,400 円

本書は、放射能が発見されたことをきっかけに発展した現代科学の歴史をひもとき、現代の最先端研究の紹介までを一冊でこなそうという実に贅沢な構成になっている。まずは、本書の構成について紹介しよう。まず序章において、ルービックキューブの解法を例として「科学と人類との関わり」についての著者の考えが述べられることで本文が始まる。第1章では「元素の周期律と放射能の発見」というタイトルで、メンデレーエフによる周期律の発見から放射能の正体を探る研究までの流れを、第2章の「原子の素顔」では、エマネーションの発見から原子核の構造の解明までを、第3章「元素が作られるまで」では、元素合成について宇宙論と関連付けて説明されている。次の第4章「地球の誕生と生命の起源」では、合成された元素から地球が作られ、生命が誕生し進化していく過程について様々な観点から述べられている。第5章ではタイトルを「電子の働き」として、量子論の化学への適用と、分子の構造についての説明がなされ、第6章の「新しい錬金術」では核構造論について触れ、初期の原子核合成実験について説明がされている。第7章では「周期表のフロンティア」というタイトルで、超ウラン元素合成実験の歴史と超重元素合成のための研究の現状について述べられ、第8章「ブラックホールと宇宙の終わり」では、ブラックホールと宇宙モデルの説明をしながら宇宙の終焉についての様々な考察が紹介されている。そして終章「これからの科学と科学者」で、科学の存在意義と科学者の在るべき姿についての著者の考えが述べられ、本文が結ばれている。

これらの内容を理科系の読者のみならず一般の読者にも理解してもらえようという目的で、まったくと言っていいほど数式を使わずに書かれている。では本書で紹介されている様々な自然事

象について、その概念だけが文章で説明されているかということ、そうではない。本書では数式の代わりに言葉を使っての可能な限りの定量的な説明がなされている。これには相当な努力が注がれたことだと思うが、様々な事象の説明が数式なしでもうまく表現されている。理科系の読者にとっては、数式のない言葉だけの説明は少々物足りなさを感じるかもしれないが、これらの言葉で表現された事象を自分の頭の中で数式化してみるという楽しみ方もあるのではないだろうか。

また、このような事象の理論的な説明に合わせて、現代科学の発展に貢献したたくさんの科学者とその功績が丁寧に、かつ簡潔に分かり易く紹介されている。ここに登場する科学者たちの当時の活躍ぶりは、たくさんのエピソードと共に実に生き活きと描写されており、読み進めるうちにあたかも自分がその研究の現場に居合わせたかのように、感動と興奮が伝わってくるのである。しかし、彼らの研究成果や学術的な意味については、もう少し説明がほしいと思わせる程度の記述に終始されており、それらについて詳しくは語ってくれない。このさじ加減は実に絶妙で（著者が意図しているのかどうかはわからないが）、読者に自分でもう少し調べてみたいという気を起こさせる。これが理科系以外の読者の場合には、どのような本を読めば自分の知りたいことが書いてあるかが見当もつかない、ということになりかねない。しかし、巻末の方にある参考図書には、専門書ばかりでなく一般読者向けの本も多数紹介されており、本書をきっかけとして様々な分野に興味を持ち、自然科学の世界に少しずつ近づいていけるよう配慮がなされている。

著者は「あとがき」で、昨今の若者の理科離れに対して、「決して自然科学が若者に嫌われているのではなく、自然科学の魅力を彼らに伝えられ

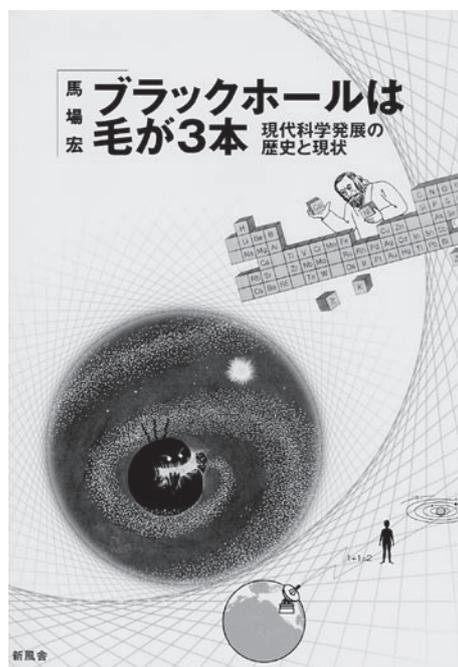
ない教育者の側にこそ、反省しなければならない原因があるといわねばならない」とコメントしているが（実に耳が痛いコメントである）、本書においてはこの「自然科学の魅力」が読者に十分に伝わるのではないかと思われる。少し残念に感じたのは、本書には図解による説明が少ないことである。理科系以外の読者にとって数式の多用が必ずしも理解を深めることにはならないと思うが、本書中で紹介される実験装置や概念の説明のために、もう少し図解を利用した説明があればより具体的なイメージを読者に与えることができ、より深い理解への助けとなったのではないかと思う。しかし、「まえがき」の最後に著者が書いているように、分からないところは思い切りよく飛ばしてでも是非最後まで読み進めて、本書を通じて自然科学の魅力を存分に味わってほしいと思う。

さて、これまでは著者も意図したように主に理科系以外の読者が本書を読む場合を想定した感想を述べてきたが、ここからは実際に自然科学に携わっている我々が本書を読む際の見どころ（読みどころ）について触れてみたいと思う。本文には先に述べたように放射能の発見から広がった現代科学の進歩の歴史と最先端のトピック的な研究の現状について分かり易い言葉で説明がなされており、歴史的な発見や研究成果について多くのエピソードを交えて紹介され、科学読み物としてたいへん楽しく読むことができる内容となっている。しかし、この本の真髄は序章「ルービックキューブ」、終章「これからの科学と科学者」、それと「あとがき」にあるのではないかと思う。こう書いてしまうと本文は読まずに最初と最後だけ読めば事足りるのではないかと思われるかもしれないが、自分の研究に直接関係のない本を読む時間はない！と思われている方があれば、この三章だけでもまず目を通して頂きたい。そこには、自然科学に対して科学者がどのようなスタンスで対峙すべきかが述べられている。著者とは異なる意見を持たれる方もあるかもしれないが、少なくとも我々

が普段の研究生活において忘れがちな「科学者はどうあるべきか？」という基本的な問い掛けを投げかけられることによって、もう一度自分の研究に対するスタンスについて考え直す機会を与えてくれるに違いない。また、それだけではなく、自然科学研究の本質的な楽しさを再認識させてくれると同時に、研究を続けていく勇気をも与えてくれるだろう。さらに本文を読めば、そこに書かれているこれまでの歴史、そして多くの科学者の苦勞や喜びを通じて、自分の研究生活を見つめ直し、自然科学との関わりをより楽しくエキサイティングなものにする手掛かりが得られると思う。

自分の研究に対して少し疲れを感じ始めた若手の研究者に、また日頃の研究生活に輝きを感じるものが少なくなった現役の研究者に、本書は自然科学を探究することの素晴らしさをもう一度教えてくれる処方箋となることだろう。

高宮 幸一（京都大学原子炉実験所）



学位論文要録

極低バックグラウンド γ 線スペクトロメトリーによる大気中放射性核種の高解像度測定
(High Resolution Measurement of Airborne Radionuclides by Using Extremely Low Background Gamma-Ray Spectrometry)

阿部琢也 (東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻)



学位授与：金沢大学自然科学研究科環境科学専攻
(主査：小村和久)
平成19年3月22日

大気中放射性核種はそのほとんどが生成後すぐに周囲のエアロゾル粒子に吸着して挙動することから、大気地球科学的過程の解明を目的として、大気及び大気中浮遊物質のトレーサーとして大気中放射性核種を用いるための研究が現在までに多く行われてきた。その中でもとりわけ多く調査されている陸源性の ^{210}Pb (半減期 22.3 年) 及び宇宙線起源の ^7Be (53.3 日) は、それぞれ地表及び上空を起源とする大気塊のトレーサーとして用いられてきた。これらの長寿命核種の大気環境での動態 (濃度変動) は、降水による湿性沈着に代表されるように気象要因に大きく支配されると考えられる。このような気象要因はしばしば数時間といった短い時間スケールで起こることから、核種の濃度も同じ時間スケールにおいて変動していると考えられる。しかしながら、これらの核種の濃度の低さに起因する測定の困難さから、このような短い時間スケール (高時間解像度) での観測はほとんどなされていなかった。

一方、短時間間隔での観測は、 ^{214}Pb (26.8 分) 及び ^{212}Pb (10.6 時間) のような短寿命核種を対象としてその動態調査が精力的に行われている。これらの核種濃度は、これらが短寿命であることから、観測地点周辺の地理的条件や局地的な大気

の状態を強く反映している。このうち ^{212}Pb はその半減期から、準地域的 (メソスケール) での大気の移動に関する情報を持つと考えられる。その観点から、空間的に距離をおいた複数の地点での ^{212}Pb の同時観測は有用であると考えられるが、測定にかかるまでの時間経過に伴う減衰の問題から、やはり実施が困難であった。

本研究では、尾小屋地下測定施設 (石川県小松市) に設置されている最大 16 台の Ge 半導体検出器を使用して極低バックグラウンド γ 線スペクトロメトリーを行うことによって、前述の困難さを克服した。このことにより、①急激な気象変化に対する長寿命核種 ^7Be 及び ^{210}Pb 濃度の変動観測及び、②長寿命核種及び短寿命核種 ^{212}Pb 濃度の複数観測地点における高解像度同時観測、の二種類の形態の観測を実施し、以下のことを明らかにした。

観測①においては、寒冷前線通過時、台風接近時及び黄砂到来時といった特徴ある気象変化に伴う放射性核種の濃度変動に着目した。観測より得られた特筆すべきことは、短寿命核種と長寿命核種との間では変動パターンが明らかに異なっていたことである。短寿命核種は現地の風速といったローカルな気象要素によって大きく濃度変動を示すのに対し、長寿命核種の濃度変動はより大きなスケールを持つ気象によって支配されることが確認された。この結果は、短寿命核種は観測地点の近傍にその起源を持つことに対して長寿命核種は

広い範囲にわたって供給されているということに起因していると考えられる。したがって、空気塊の起源及び履歴に関する情報や急激な気象変化を伴うような大気中の諸過程について調査するためには、長寿命核種を用いて高解像度観測を行なうことが非常に有用であることが示唆された。

観測②では、筆者らの実験施設 (LLRL) の他に、地理的環境が大きく異なる二つを加えた計三地点を観測地点として、 ^{212}Pb 濃度の変動に特に着目して高解像度同時観測を行なった。一つは、大気の鉛直混合の情報を得ることを目的として、標高 650 m の獅子吼高原 (SSK) を、もう一つは、アジア大陸及び日本本土から日本海上へと流入する大気の影響を評価することを目的として、能登半島輪島沖から 50 km 北方に位置する、日本海上の孤島の舳倉島 (HGR) を選択した。LLRL-SSK 同時観測では、地表から発生する ^{212}Pb の濃度変動に高度の差に依存すると考えられる数時間から半日程度の時間的な位相差が見られた。このことは、 ^{222}Rn によって得られている観測結果と一致しており、混合層の成長及び逆転層の形成過程といった陸上大気の大気拡散特性によって説明された。LLRL-HGR 同時観測では、水平方向のメソスケール距離によって ^{212}Pb の濃度変動に位相差が現れることを期待したが、HGR での ^{212}Pb の濃度レベルとその変動様相は観測時期ごとに大きく異なっており、明快な確認は困難であった。一方で長寿命核種では、LLRL-HGR 間の距離 (180 km) が原因であると考えられる、変動様相の二地点間での相違が見られた。そして LLRL-SSK-HGR 三地点同時観測においては、前線の通過に対しての三箇所での同時の濃度低下や気圧配置から予測される気塊の変性に伴う濃度変動等、①での観測結果との一致が空間的な情報と共に得られた。 ^{212}Pb

の動態についてさらに検討するために、HGR で観測された ^{212}Pb の起源の推定を行った。HGR における ^{212}Pb は、島自身から発生する近傍成分と、アジア大陸及び本州本土からの遠方成分が混在していると考えられ、その分別が必要であると考えられた。風速と濃度の関係、近傍成分の寄与の見積りのための簡易モデル及び後方流跡線等を検討した結果、強風時には本州側からの遠方成分によって、または弱風時には近傍成分によって高濃度の ^{212}Pb がもたらされると推定された。このことから、今後、近傍及び遠方成分の二つを分別するような測定と解析を行なうことにより、日本海域への大気及びエアロゾル粒子の流入過程について ^{212}Pb 濃度がよい指標になりうると期待される。

主な発表論文

- ・ Takuya Abe, Yoshiko Yamaguchi, Kiwamu Tanaka, Yusuke Nakano and Kazuhisa Komura, Highly Time-Resolved Measurements of Airborne Radionuclides by Extremely Low Background γ -ray Spectrometry: Their Variations by Typical Meteorological Events, J. Nucl. Radiochem. Sci. (in press).
- ・ T. Abe, Muguntha Manikandan N., Y. Yamaguchi, K. Tanaka, Y. Murata, Y. Kuwahara, S. Watanabe, A. Sakaguchi, J. Tomita, Y. Hamajima and K. Komura, High resolution simultaneous measurements of airborne radionuclides at sub-regional sampling points by ultra low background gamma spectrometry, Proceedings from The 2nd International Conference on RADIOACTIVITY IN THE ENVIRONMENT, 175-178, 2005.

Development of Low Level Plutonium Measurement by ICP Mass Spectrometry and Its Application to Marine Environment – Pu Isotopes and Heavy Metal Elements in Surume Squid –

(ICP質量分析計による極微量Pu同位体測定法の開発と海洋環境試料への応用—海産生物試料中のPu同位体および重金属元素—)



及川真司 (財団法人日本分析センター)

学位授与：博士 (理学) 金沢大学自然科学研究科
(主査：山本 政儀)
平成19年3月22日

<はじめに>

原子力の平和利用に伴う原子力関連施設が沿岸域に設置されている我が国においては、陸域環境に加えて海洋環境の放射能モニタリングが重要視されている。国内の環境放射能モニタリングは文部科学省指示のもと、主に地方自治体によって実施されており、その対象となる環境試料は海水、海産生物、土壌、海底土、大気浮遊じんなど多岐に渡り、とりわけ海水は海産生物への汚染媒体として重要なものとなっている。環境放射能分析に関して通常業務として海水を分析対象とする際には、目的とする放射性核種濃度が極めて低いことから、大量の海水を処理する必要がある。したがって、方法が煩雑になるうえ、満足する結果を得るためには、熟練した技術、とりわけ大量海水の前処理の可否に依存するところが多い。

ある種の海産生物は海水に含まれる重金属元素を、その生命活動に伴って体内に濃縮する。特に定着性の海藻類や貝類は、このような性質を利用したローカルな指標生物になっている。一方、回遊性のイカについても、特に肝臓に重金属元素を濃縮することが知られている。国内で最も多く採取されているスルメイカは東シナ海で産卵・ふ化した後、黒潮海流や対馬海流に乗り日本列島沿岸に沿って北上し、その一生を約1年で終える (Fig. 1)。一連の生命活動を通じて海水中の極微量重金属元素を体内 (特に肝臓) に濃縮するため、その濃度あるいは同位体比のなどは当該年の海水中プ

ロファイルを反映する。この性質を、海洋環境の放射能モニタリングに応用できればスルメイカは回遊経路を含む当該海域の広域を反映する有用な指標的海産生物として利用できる可能性がある。

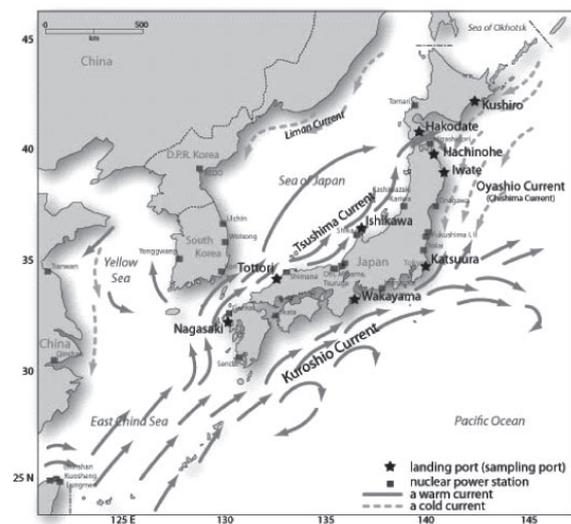


Fig. 1 日本列島を取り巻く海流

<検討項目と研究目的>

本研究は、1) 海産生物を中心とした環境試料の前処理・灰化処理法、2) ICP質量分析法および中性子放射化分析法によるスルメイカに中の極微量重金属元素の定量法、3) 固相抽出ディスクを利用した環境試料中のPu迅速分析法、さらに、4) 極微量Pu同位体を二重収束型ICP質量分析計により定量する方法を検討した。これら検討結果を基に応用研究として、スルメイカ肝臓中の重金属元素およびPu同位体の測定を行い、指標的海産生物としてスルメイカ肝臓を利用する海洋環境放射能モニタリングの有効性を確立することを目的とした。

＜結果と考察＞

海産生物を中心とした環境試料の前処理・灰化処理法の検討では、環境試料の前処理法のうち、試料の分解・減容化に有効な灰化処理について、47都道府県が450℃で行った試料（公定法：文部科学省放射能測定法シリーズ）を再度同温度で灰化して得たデータを過去10年に渡り集計し、環境放射能分析で用いる「450℃での灰化する」際の平均的な灰分を提示した。

ICP質量分析法は近年急速に普及してきた簡便で高感度、同時分析測定が可能であるなど、極微量元素分析で利点が多い。ICP質量分析法の妥当性を確認するために、スルメイカの肝臓を用いて、遷移金属を中心とする9元素について、中性子放射化分析法との比較検討を行い、極微量元素分析においてもICP質量分析法の有効性を検証した。これら定量結果からCo, Cu, Cd, AgおよびPbのような重金属元素が 10^6 の高い濃縮係数で、特異的に肝臓に濃縮していることを明らかにした。

Pu同位体のようなアルファ線放射核種は化学分離・精製が不可欠である。固相抽出ディスクを利用した環境試料中のPu迅速分析法を検討し、標準試料を用いた結果から、試料溶液からPuの分離・精製、ICP質量分析計による定量まで約2時間で終了できる迅速分析法を開発した。この方法は、Pu定量の際の妨害元素であるTh, Uから除染係数400および7000程度でPuを分離精製でき、さらに150～200ml/min.の流速で処理できることから、とりわけ緊急性を要する場合に役立つものである。

前述までの前処理、分解、測定に至る一連の検討結果をもとに、全国9地点（釧路、函館、八戸、岩手、勝浦、石川、和歌山、鳥取、長崎）で同時に採取したスルメイカの肝臓に含まれる ^{239}Pu と ^{240}Pu を二重収束型ICP質量分析計で、また四重極型ICP質量分析計によりVからUまでの重金属元素を中心とする13元素を定量した。極微量Pu同位体の精密測定に関して、極微量Pu同位体測定に関する同重体 $^{238}\text{U}^1\text{H}^+$ の影響を抑えるため、測定溶液に含まれる ^{238}U 濃度が1ppb以下でなければならないこと、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の原子数比を正確に測定するためには、最終溶液中の ^{240}Pu が0.01ppt以上必要であることなどの新知見を得た。

海水の平均濃度を用いて濃縮係数を試算した結果、Pu濃縮係数は 10^3 程度で、VとThとほぼ同程度であることが分かった（Fig. 2）。スルメイカの肝臓に含まれる ^{239}Pu と ^{240}Pu の濃度は生試料あたり1.5～28および1.1～24 mBq/kgであった。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、地球規模的フォールアウト（global fallout）起源Pu比0.178よりやや高い0.177～0.237の範囲に有り、モデル計算により約35%程度の割合でBikini環礁由来のPuが混合していることを明らかにした。

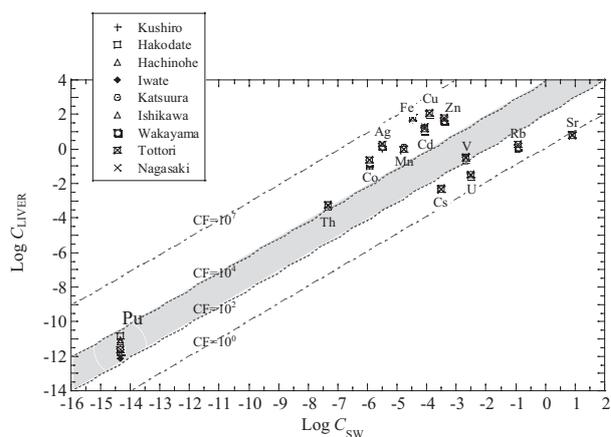


Fig. 2 スルメイカ肝臓中微量元素の濃縮係数
 C_{LIVER} ：スルメイカ肝臓中の元素濃度、
 C_{SW} ：海水中の微量元素平均濃度

＜まとめ＞

海洋環境放射能モニタリングの観点から、スルメイカの肝臓に含まれる微量重金属およびPuをICP質量分析法によって定量する一連の分析・測定法を確立した。スルメイカの肝臓には海水中の重金属元素やPuが濃縮され、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は0.177～0.237であって、約35%の割合でBikini環礁由来のPuが混合されていることを明らかにした。本研究を通して得られた結果から、スルメイカは海洋環境、特に回遊性であることから日本近海を対象とする大洋の指標生物として有効であると結論付けた。

代表的な発表論文

Miura T., Oikawa S., Kishimoto T., Banba S., Morimoto T., 2001. Rapid separation of plutonium in environmental samples using an anion exchange resin disk. *Journal of Radioanalytical and*

Nuclear Chemistry 250, 449-452.

及川真司、Sung-Jun Song、前山健司、岸本武士、戸村健児、樋口英雄 (2003) . 誘導結合プラズマ質量分析法及び中性子放射化分析法によるイカ内臓中の微量金属の定量 . 分析化学 (Bunseki Kagaku) 52, 551-557.

及川真司、太田博、早野和彦、野中信博 (2004) . 環境放射能分析における食品試料の灰分 . 分析化学 (Bunseki Kagaku) 53, 1515-1519.

Shinji Oikawa, Masayoshi Yamamoto, 2007. Plutonium concentration and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio in liver from squid collected in the coastal sea areas of Japan. *Journal of Environmental Radioactivity* 93, 170-180.

☆☆☆

Geochemical Studies on Material Cycles in a Lake Environment-Material Balances, Residence Times and Speciation of Naturally Occurring Radionuclides ^{210}Pb and ^{210}Po in Lake Biwa

(湖沼環境における物質循環に関する地球化学的研究 - 琵琶湖における天然放射性核種 ^{210}Pb と ^{210}Po の物質収支、滞留時間および存在形態)

大塚良仁 ((財) 環境科学技術研究所 環境動態研究部)

学位授与：金沢大学自然科学研究科
(主査：山本政儀)
平成 19 年 3 月 22 日



湖沼環境では、大気や河川を通じて湖内に運び

込まれる外来性物質、あるいは湖内で生産されたプランクトンなどの自生性物質は、物理・化学・生物的作用を受けて湖底へと移行する。湖底では堆積した物質が続成作用を受け、一部は水中に回帰する。世界各地で湖沼の水質汚濁が深刻化している現在、吸着、脱離、沈降、拡散、堆積などの複雑なメカニズムの結果として起こる湖沼内環境の変化を予測し、水質を保全する施策を策定するための物質循環機構解明の研究が重要かつ緊急の課題となっている。

本研究では、中栄養湖の琵琶湖を研究フィールドにウラン壊変系列に属する ^{210}Pb 及び ^{210}Po の物質循環研究を行った。地表より大気に散逸した ^{222}Rn の放射壊変によって生成した ^{210}Pb が大気降下物として湖沼表面へもたらされる。 ^{210}Po は、 ^{210}Pb の β^- 壊変により短寿命の ^{210}Bi を経て生成される。水中の ^{210}Pb 及び ^{210}Po は、懸濁粒子との親和性が高いため、難溶性物質や沈降粒子のトレーサーとして地球化学の分野では広く用いられている。 ^{210}Po については、有機物成分に富んだ粒子との親和性が特に高いことから、生物起源粒子等の輸送や除去の研究にも利用されている。従って、これらの放射性核種の分布や滞留時間を調べることにより、湖沼内における難溶性物質や生物起源物質の挙動を類推することが可能となる。更に、 ^{210}Pb 及び ^{210}Po の存在状態を明らかにすることにより、これらの粒子への吸着メカニズムが判明する可能性がある。

そこで著者は、中栄養湖の琵琶湖において 1.5 年間約 1 ヶ月間隔で湖水中の ^{210}Pb 、 ^{210}Po 濃度の深度分布を測定し、それと併せて大気及び流入河川からの ^{210}Pb 供給量及び湖底堆積物中の ^{210}Pb 蓄積量を測定して、琵琶湖水系におけるこれらの核種の物質収支及び滞留時間を明らかにし、除去過程を含む循環メカニズムの解明を試みた。更に、これらの核種の水中における存在状態を知るために、大型限外ろ過装置を用いて湖水を分子量分画し、 ^{210}Pb 及び ^{210}Po の分子量分布の鉛直的・季節的変動を 1 年間に渡り追跡した。

湖水中の ^{210}Pb 及び ^{210}Po の懸濁態と溶存態の分配は、いずれも 70 ~ 80% が懸濁態成分として存在しており、これらの濃度の深度分布は成層期では表層で高くなり、湖水の上下混合が進んだ循

環期では溶存態および懸濁態成分共に水深によらずほぼ一定であった。琵琶湖内でのこれらの核種の供給（大気降下物、流入河川及び湖水中のこれらの核種の先行核からの成長）と除去（流出河川、放射壊変による減衰、湖底への除去）を見積もった結果、琵琶湖への ^{210}Pb 及び ^{210}Po の主な供給源は、 ^{210}Pb については降下物（97%）、 ^{210}Po については降下物（21%）と湖水中の ^{210}Pb からの成長（75%）であり、供給された ^{210}Pb の大部分が、湖底に除去され蓄積されていることが分かった。

^{210}Pb と ^{210}Po の分子量分布は、両核種共に深度、及び季節を問わず懸濁態成分と低分子量成分（10 kDa以下）が支配的であった。その他の高分子量成分（100 kDa-0.45 μm ）と中分子量成分（10 k-100 kDa）の占める割合は10-20%以下と少なく、その割合の季節変動も小さい。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は、高分子量成分と中分子量成分が懸濁態成分と低分子量成分よりも大きな値である傾向があり、特に夏期の表層における高分子量成分では1.0を越えるものも観測された。これは、高・中分子量成分に ^{210}Po が選択的に吸着、もしくは結合している証拠であり、Poが有機化合物との親和性が高いことを示唆している。

これらの核種の湖内での滞留時間を見積もるために、水中を表層（0-20 m）と深層（20-51 m）に分けた2-boxの物質循環モデルを用いて計算した。表層における ^{210}Pb のスカベンジング及びセディメンテーションに関する滞留時間は、平均6.5日および27日であった。深層でのセディメンテーションに関する滞留時間は平均22日で、湖に供給された ^{210}Pb が速やかに表層から深層、さらに湖底に移行していた。表層および深層 ^{210}Po のセディメンテーションに関する滞留時間は、それぞれ平均95日および32日と計算された。 ^{210}Pb と比較すると、表層での値は3.5倍長く、深層では両者の違いはそれほど顕著ではない。このことは、表層の ^{210}Po は分解を受けやすい生物起源粒子が優先的な吸着母体となっているのに対して、そのような粒子が相対的に減少している深層では、逆に ^{210}Pb と ^{210}Po の親和性の差が少ない非生物のデトリタスが吸着母体になっているためではないかと考えられる。これらの放射性核種の水中からの除去効率を計算した結果、 ^{210}Pb 及

び ^{210}Po 共に年間を通じてプランクトン・ブルム期に最も効率良く除去されることが判明した。

本研究で得られた中栄養湖における ^{210}Pb と ^{210}Po の物質収支と滞留時間に関する情報、及び分子量分布の情報は、粒子との親和性の高い物質や放射性核種の湖沼内における挙動や存在状態の類推を可能とし、水圏環境における物質循環機構の解明に資すると考える。更に、これまで研究対象の少なかった中栄養湖を研究フィールドとした本研究の成果は、放射性核種をプローブとした物質循環研究の適応範囲の拡大を行った研究例として有意義であると考えられる。

代表的な発表論文

1. 大塚良仁、山本政儀、小藤久毅、横田喜一郎、小村和久、湖沼環境での物質循環に関する研究－琵琶湖における天然放射性核種 ^{210}Pb と ^{210}Po の挙動－、地球化学、35, 85-106(2001).
2. Y. Ohtsuka, M. Yamamoto, Y. Takaku, S. Hisamatsu, J. Inaba, Cascade ultrafiltering of ^{210}Pb and ^{210}Po in freshwater using a tangential flow filtering system, J. Radioanal. Nucl. Chem., 268, 397-403(2006).

☆☆☆

Production of the Samarium-146 Isotope and Determination on its Half-Life

木下哲一（高エネルギー加速器研究機構 放射線科学センター）

学位授与：金沢大学自然科学研究科物質構造科学専攻

（主査：横山明彦）

平成19年3月22日

p プロセス核種のサマリウム-146は半減期が 1.03×10^8 年とされ、太陽系の年齢よりも十分に短いため、現在は太陽系内には存在しない消滅核種として知られている。そのため宇宙・地球化学や天体核物理の観点から非常に興味を持たれている。Sm-146は α 壊変を行ってNd-142に壊変す



るので、ネオジムの同位体比の測定より地球誕生時の Sm-146 の存在量は $^{146}\text{Sm}/^{144}\text{Sm} \cong 0.01$ と見積もられているが、未だ天然に検出された報告例はない。現在の地球上で消滅核種が見つかるならば、太陽系外で元素合成されたものが星間塵と共に流入している可能性が考えられる。そのためにも Sm-146 の半減期は現在の地球上での存在量を見積もる上でも非常に重要なパラメータである。Sm-146 は半減期が非常に長いため、原子数と放射能から半減期が求められる。Sm-146 を製造後、放射能測定と質量分析を行って Sm-146 の半減期の算出を試みた。

^{146}Sm は ^{147}Sm 濃縮同位体に制動放射線、プロトン、高速中性子を照射した $^{147}\text{Sm}(\gamma, n)^{146}\text{Sm}$ 反応、 $^{147}\text{Sm}(p, 2n)^{146}\text{Eu} \rightarrow ^{146}\text{Sm}$ 反応、 $^{147}\text{Sm}(n, 2n)^{146}\text{Sm}$ 反応で製造した。Sm-146 の放射能測定は Sm-147 が長半減期の α 放射性核種として天然に存在するので比較的容易である。Sm-146 を製造後に Sm を沈殿線源として α 測定試料を調製し、シリコン半導体検出器を用いて α 放射能測定を行った。

^{146}Sm の質量分析においては同重体の ^{146}Nd が干渉イオンとなる。天然に存在する元素は如何に綺麗な実験環境や試薬を用いたとしても完全に取り除くことは不可能である。特に Sm と Nd はランタノイド同士で化学分離が困難である。 ^{146}Sm の測定を東京大学海洋研究所の表面電離型質量分析計を用いて測定を試みたが、Sm の精製を何度行っても取り除けない Nd-146 の干渉のため測定を断念せざるを得なかった。加速器質量分析 (AMS) ならば同重体の分離が可能ではあるが、原子番号が大きくなるにつれて dE/dx の差が小さくなるため分離が困難になる。また Sm はイオン化効率も悪いため、AMS にとって不利な条件

ばかり揃う。そのような条件の中でも Sm と Nd を AMS で分離するにはできる限り大きなエネルギーにまで加速し、ガス充填電磁石にて分離を行う必要がある。Argonne National Laboratory の ATLAS 施設ならば高エネルギーにまで加速して質量分析が可能である。ビーム強度を増すために金属 Sm にまで還元した Sm-146 試料を ECR イオン源に挿入し、生成した $^{146}\text{Sm}^{22+}$ や $^{146}\text{Nd}^{22+}$ イオンを分析電磁石で選択しライナックで 840 MeV まで加速した。加速されたイオンはガス充填電磁石 (GFM) に導かれる。Sm と Nd は GFM 内の平均電荷や dE/dx がわずかに違うため、GFM の出口では速度や位置の違いになって現れる。GFM 出口でイオンの速度と位置を測定し、更にイオンのエネルギー損失の測定を行った。Nd-146 が Sm-146 の 10-200 倍検出されたが、世界で初めて AMS を用いた ^{146}Sm の測定に成功した (図 1)。

質量分析における系統誤差のため現時点では ^{146}Sm の半減期の算出には至っていないが、AMS における ^{146}Sm の測定手法を確立することができた。AMS 実験において課題も見えてきたが、質量数 150 付近が分離できることが分かり、本実験をきっかけに質量数 150 付近の p プロセス核種を用いた研究が始まろうとしている。今後の半減期の決定を期待したい。

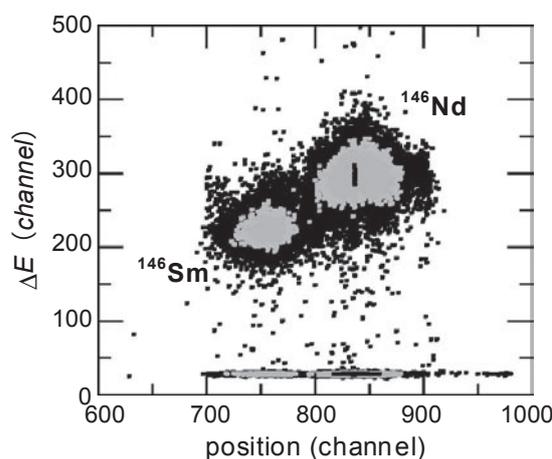


図1 Sm-146 の二次元スペクトル

代表的な発表論文

1. N. Kinoshita, A. Yokoyama and T. Nakanishi, Half-Life of Samarium-147, *J. Nucl. Radiochem.*

- Sci.*, 4, 5-7, 2003.
2. N. Kinoshita, T. Hashimoto, T. Nakanishi, A. Yokoyama, H. Amakawa, T. Mitsugashira, T. Ohtsuki, N. Takahashi, I. Ahmad, J. P. Greene, D. J. Henderson, C. L. Jiang, M. Notani, R. C. Pardo, N. Patel, K. E. Rehm, R. Scott, R. Vondrasek, L. Jisonna, P. Collon, D. Robertson, C. Schmitt, X. D. Tang, Y. Kashiv and M. Paul, Technological Development for Half-Life Measurement of ^{146}Sm Nuclide, *J. Nucl. Radiochem. Sci.* (in press).
 3. N. Kinoshita, Y. Sato, T. Yamagata, H. Nagai, A. Yokoyama and T. Nakanishi, Incorporation Rate Measurements of ^{10}Be , ^{230}Th , ^{231}Pa , and $^{239, 240}\text{Pu}$ Radionuclides in Manganese Crust in the Pacific Ocean in Search for Extraterrestrial Material, *J. Oceanogr.* (in press).

☆ ☆ ☆

**深部地下水の地球化学特性に関する研究—調査手法の構築と調査への適用—
(Hydrogeochemical Study of Deep Groundwater -Methodology Development for the Hydrochemical Characterization of Deep Groundwater and Its Application to the Field Investigations-)**

濱 克宏 (日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット)

学位授与：金沢大学自然科学研究科物質構造科学専攻 (主査：中西 孝)
平成19年3月22日



深部地下水の地球化学特性は地層中での物質移動や地下構造物の耐久性を直接支配する重要な要素の一つである。この地下水の地球化学特性に関する研究については、国内では比較的浅部を対象とした調査や温泉調査に伴って、地下水水質などのデータを取得している例が多い。これらの研究では、既存の井戸からの湧水や既存坑道の湧水を対象としており、さらに、坑道掘削などの安全を確保することなど、必ずしも研究を主目的としたデータ取得がなされていないケースがほとんどである。この場合には、地下水試料の品質が確認されていない、分析結果の品質が確認されていないなどの課題が多いのが実情であった。

一方、ヨーロッパ諸国（スウェーデン、スイスなど）などの海外では、高レベル放射性廃棄物の地層処分に関する研究の一環として、地下水の地球化学に関する研究が行われてきており、現場調査のための機器の開発、方法論の構築などが行われてきている。しかし、これらの方法論には、広く一般的に活用できるものや、調査対象とする地質や地下水の特性（地質環境特性）に固有のものがある。そのため、海外で開発された調査機器や手法を、そのまま国内の調査研究に活用することはできないと考えられる。

これらの背景から、まず地下水の地球化学特性に関する研究を実施するための機器の開発、調査手法の構築を行い、実際の現場調査に適用し、その有効性を確認した。現場調査については、地下水の水質が大きくことなる、淡水系の地下水と海水系の地下水が存在する2箇所のフィールドを対象として選定した。

深部地下水の地球化学特性の空間分布は、その形成機構を考慮すると、地下水と岩石との反応、異なる起源の地下水の混合により支配されると考えられる。このうち、地下水と岩石との反応による地下水水質形成の考察については、地下水の化学分析、岩石の観察・分析、平衡論に基づく熱力学解析などの手法により行われている。しかし、これらの解析においては、無機化学的な反応を中心に考慮している場合が多く、有機化学的な反応については、地下水中の微生物が寄与すると考えられており、地下水水質形成機構の考察には、

地下水中の微生物に関する知見が必要と指摘されている。しかし、地下水中の微生物に関する研究については、研究用の試料の品質が確保できないなどの理由から、特に日本国内では研究が進んでいないのが現状であった。一方、海外では高レベル地層処分研究開発においては、微生物の役割に関する知見が必要不可欠であるとの認識のもと、地下水中の微生物の存在や役割に関する研究が進められてきている。

そこで、本研究では、地下水中の微生物の存在が、地下水の水質形成および地下での物質の移動における役割について検討することとした。

1) 地下水の地球化学特性調査の方法論の構築

地上から掘削した深層ボーリング孔を利用して、目的深度の原位置の環境を保持して地下水を採水する、原位置において直接計測する、ことなど、データの品質を確保して調査する手法を構築した。まず、深度1000mまでのボーリング孔内において、目的深度の原位置において、地下水のpHや酸化還元電位などの物理化学パラメータを測定する装置、原位置の圧力・雰囲気を保持して地上まで地下水を採取するための地下水採水装置を開発した。また、深層ボーリング孔を利用した調査において、地下水の地球化学特性調査における留意点を抽出し、データの品質確保のために必要な手順を構築した。深層ボーリング孔を利用した調査では、調査対象とする場の概念の構築が重要であり、分布が想定される地下水の水質にあわせて掘削水を選定する必要があることを示した。さらに、ボーリング掘削中には、掘削水の水質管理を行い、一定の水質の掘削水を使用することが必要であることを示した。特に、重要な点は、掘削水に蛍光染料などのトレーサ物質を一定濃度で添加することであり、このトレーサ濃度を指標として、地下水採水時の試料中への汚染水（掘削水など）の混入割合を定量的に評価できることを示した。構築した手法を、堆積岩および結晶質岩を対象とした実際に調査に適用し、その有効性を示した。

2) 結晶質岩を対象とした深部地下水の地球化学特性調査研究

本研究で構築した手法の具体的な適用事例として、岐阜県東濃地域に分布する土岐花崗岩を対象

に、地下水の水質分布、起源・滞留時間、水質形成機構などについて考察し、これらの結果を基に、地球化学モデルを構築した。

土岐花崗岩中の地下水については、以下の特徴を有することを示した。

- ・深度とともに中性からアルカリ性へと変化する。
- ・深度とともにCa濃度は減少するのに対して、NaおよびHCO₃濃度は増加する。
- ・すなわち、浅部の地下水はCa-HCO₃型であるのに対して、深部ではNa-HCO₃型である。
- ・地下水の酸化還元電位は、深度180m、330m付近において約0mV、深度500m～1,000m付近で約-260～-385mVの値である。

地下水の水質形成機構については、水-岩石反応が主要な地下水水質形成機構であることが熱力学的解析などから明らかとなった。鉄および硫黄を含む鉱物の溶解・沈殿反応が主要な酸化還元反応であり、長石類の粘土鉱物化、方解石の溶解、地下水-粘土鉱物間のイオン交換反応が、主要な水質形成反応であることがわかった。地下水の起源は過去の降水であり、千年から万年オーダーの滞留時間であることを推定した。

スウェーデンエスポ島周辺に分布する閃緑岩を対象に、地下水地球化学特性に微生物が与える影響を評価するための室内試験を実施した。エスポ閃緑岩およびエスポ地下水を使用し、カラム式反応試験、連続攪拌式反応試験を、微生物（硫酸還元菌・鉄還元菌）の添加の有・無の条件下で実施した。その結果、微生物を添加した系において、粘土鉱物（スメクタイト）の形成が確認された。微生物が寄与するスメクタイトの生成反応として、

①微生物周辺のごく近傍の電荷、pH、酸化還元電位といった化学的環境を、粘土鉱物が生成しやすい環境に変化させる。

②微生物がバイオフィームを形成する、あるいは微生物表面に粘土鉱物が沈殿するための「型枠」となる。

の2つのメカニズムを考察した。この結果から、微生物による粘土鉱物の生成が、地質環境中での物質の移動に影響を与える可能性があり、とりわけ、高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、微生物の存在により物質移動を遅延するといった

好ましい影響を与える可能性があることを示した。

3) 堆積岩を対象とした深部地下水の地球化学特性調査研究

本研究で構築した手法の具体的な適用事例として、北海道幌延地域に分布する新第三紀堆積岩(声問層・稚内層)を対象に、地下水の水質分布、起源・滞留時間、水質形成機構などについて考察し、これらの結果を基に、地球化学モデルを構築した。声問層および稚内層中の地下水については、pHは中性から弱アルカリ性、電気伝導度はおおよそ深度が深くなるにつれ、増加する傾向であった。浅部では、比較的塩分濃度の低い地下水(Na-HCO₃型)が、深部では比較的塩分濃度の高い地下水(Na-Cl型)が分布していた。浅層地下水は水素・酸素同位体とも軽い同位体に富む(δD : -90 ~ -60‰, $\delta^{18}O$: -11 ~ -10‰)のに対して、深部地下水は重い同位体に富み(δD : -30 ~ -20‰, $\delta^{18}O$: 2 ~ 3‰)、これらの2種類の地下水の混合により、現在の地下水水質が形成されていると考えられた。

主な発表論文

- 1) Hama, K., Bateman, K., Coombs, P., Hards, V. L., Milodowski, A. E., West, J. M., Wetton, P. D., Yoshida, H. and Aoki, K. (2001) :Influence of bacteria on rock-water interaction and clay mineral formation in subsurface granitic environments, *Clay Minerals*, 36, pp.599-613.
- 2) Hama, K., Amano, K., Metcalfe, R., Yoshida, H., Iwatsuki, T., Milodowski, A. E. and Gillespie, M. R. (2002) :Mineralogical and petrological evidence for the hydrogeological characteristics of the Tsukiyoshi Fault, Japan, *Quarterly Journal of Engineering Geology and Hydrogeology*, 35, pp.189-202.
- 3) Hama, K., Kunimaru, T., Metcalfe, R. and Martin, A. (2006) : The hydrogeochemistry of argillaceous rock formations at the Horonobe URL site, Japan, *J. Phys. Chem. Earth*, 3, pp.170-180.



学会だより

1. 学会賞及び奨励賞

日本放射化学会学会賞規定に基づき、2006-07年度学会賞及び奨励賞が決定されました。受賞者の表彰は2007日本放射化学会年会(2007年9月)において行われる予定です。また、受賞内容に関する紹介は本誌第17号に掲載される予定です。

学会賞・木村賞：

氏名 中原 弘道(東京都立大学理学部 名誉教授)

題目 「低エネルギー核分裂における変形経路の解明に関する研究」

学会賞：

氏名 小村 和久(金沢大学環日本海域環境研究センター 教授)

題目 「極低レベル放射能測定の実現と環境放射能研究の新展開」

奨励賞：

氏名 小田 寛貴(名古屋大学年代測定総合研究センター 助教)

題目 「古文書・古筆切の放射性炭素年代測定」

氏名 佐々木隆之(京都大学大学院工学研究科 准教授)

題目 「アクチニド及びランタニド水酸化物錯体の生成挙動に関する熱力学的研究」

2. JNRS 誌論文賞

本学会の学会誌である Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences の Articles 又は Notes に掲載された論文の中から、毎年編集委員会により JNRS 誌論文賞が与えられます。今回は2006年12月までに掲載が決定された論文を対象として以下の論文が選ばれました。受賞論文の著者には賞状が授与されます。

Mössbauer Investigation into the Reactions of Laser-evaporated Iron with Solid Oxygen at Low Temperatures

Y. Yamada and S. Hirayama,

J. Nucl. Radiochem. Sci. Vol. 7, pp. 17-20 (2006)

論文題目：レーザー蒸発した鉄と低温固体酸素の反応のメスバウアー分光法による研究

著者：山田康洋・平山慎一郎(東京理科大学理学部)

要約：鉄と酸素の反応は最もよく知られた基本的な化学反応のひとつである。通常は金属鉄に気体酸素が接触して酸化反応が起こる。一方、レーザーアブレーションによって生じる金属原子は電子的に高励起状態であり並進エネルギーも高いため、新しい反応が起こることが知られていて、これまでにない化学種が生成することが明らかになってきている。本論文では、固体酸素と金属蒸気というこれまであまり知られていない組み合わせの鉄の酸化反応を検討した。レーザー蒸発した鉄を20 Kの固体酸素に蒸着して鉄と固体酸素からなる層状試料を作製し、生成した化学種の酸化状態と化学反応を ^{57}Fe メスバウアースペクトルによってしらべた。鉄原子と固体酸素の反応で酸化鉄(III)微粒子が生成し、その大きさは鉄蒸着量によって変化した。鉄の蒸着量が少ないときにはサイズの小さい酸化鉄(III)微粒子が生成して超常磁性を示し、試料を室温まで昇温すると凝集によって酸化鉄(III)微粒子のサイズが大きくなった。鉄の蒸着量が多いときには酸化鉄(III)の磁性成分が現れ、さらに鉄層を180 nmまで厚くすると酸化鉄(III)層の上に $\alpha\text{-Fe}$ の層が得られた。この試料は室温まで昇温すると、酸化鉄(III)が $\alpha\text{-Fe}$ と反応して鉄(II)酸化物になった。本研究を通して、低温の固体酸素表面で生成した

酸化鉄(Ⅲ)微粒子は反応性に富み、室温程度のアニーリングであっても凝集が起きることや、酸化鉄(Ⅲ)層は α -Feの層と接することにより室温でも還元されることを示し、レーザー蒸発した鉄原子と低温固体酸素の反応で、新しい化学反応が起こることを明らかにした。

3. 日本放射化学会第33回理事会 [2006 - 2007年度第2回理事会] 議事要録

日時：平成18年12月9日(土) 13:15～17:30

場所：学習院大学理学部南1号館 1階 108号室

出席者：前田、柴田、海老原、奥野、斎藤、篠原(伸)、百島、三浦、久保、中島、沖、佐藤、永目、村松、横山、工藤(博)、中原、工藤(久)、臼田(合計19名)

報告

- 事務局より第31回、第32回理事会の議事要録案の説明があり、了承された。事務局より第8回総会の議事要録案の説明があり、一部修正の上了承された。正会員1名の入会と、賛助会員1団体の退会が承認された。年会費未納者の扱いが取り上げられ、前年度未納者の雑誌送付を停止することになった。学会事務局より討論会事務局に納入状況を知らせ、討論会会場では会費納入を確認することとする。具体的な取り扱い、会則の扱いを三役・事務局で検討することになった。
- 理事、監事、顧問、オブザーバーの各メーリングリストを整備し、新メンバーに更新した旨報告があり、了承された。
- JNRS誌および放射化学ニュースの編集状況について報告があり了承された。JNRS誌 Vol.7 No.2がWeb上に掲載された。編集委員会により論文賞の選考が行われる旨、および論文賞の選考対象につき報告があり、それぞれ了承された。
- 第50回討論会記念大会およびASR2006について、会議、祝賀会の参加者数、講演数、表彰等について報告があった。ASR2006のプロシーディングスはJNRS誌の特別号となる。また、討論会記念大会の決算案について

報告があり、了承された。「日本の放射化学50年のあゆみ」編集の進行状況について報告があり、了承された。

- 第51回討論会(2007年9月24日～26日)の準備状況について、ホームページを開設した旨報告があり、了承された。
- APSORC2008は2008年11月末米国ナパバレーで開催予定である旨報告があり、了承された。
- その他、1)事務局より、新しい事務局の体制について報告があり了承された。事務局は原子力機構から京大原子炉に順次移される。なお、選挙関係および学会賞関係の事務についてはそれぞれ静岡大学、金沢大学に移される。2)本年度の「環境放射能」研究会が、2007年3月22日～24日に高エネ研で開催される旨、報告があり了承された。協賛金10万円の支出が承認された。3)最近の学術会議連携会員の動向について報告があり、次回理事会までに情報収集を行うことになった。

審議

- 役員等推薦委員会のメンバーの選考を行った。
- 学会賞、奨励賞の候補者募集案、および学会賞規定の一部改正案について説明があり、了承された。会長よりできるだけ多くの推薦を求める旨発言があった。
- その他、1)機関別認定評価に係る専門委員候補者の選考を行った。2)来年(平成19年)日本で開催される、第12回放射化分析の最近の動向に関する国際会議(MTAA-12)に関する学会からの援助の仕方(基金からの支出、援助金の額など)について、さらに検討することになった。3)75歳以上の一般会員の年会費減額について話し合い、本人からの申請があれば減免を検討することになった。会則改正等について三役・事務局で検討することとなった。年会費(正会員5000円)の改定について話し合ったが、改定の前に、まず会費未納者を減らす努力を行うことで一致した。4)顧問の任期について、現在の会則の1期2年で2期までという規定は実情にあっていないので、会長が委嘱する形で柔軟

に扱えるようにすることとし、会則の改正等を三役・事務局で検討することになった。5) 用語辞典の価格送料について報告があり了承した。冊子の編集方針および出版の方法について話し合った。三役・事務局が出版社等の情報を収集し次回理事会で報告することになった。

以上

4. 日本放射化学会第34回理事会 [2006 - 2007年度第3回理事会] 議事要録

日時：平成19年3月22日（木）13:00～17:00

場所：KEK 4号館 1階会議室（127号室）

出席者：前田、柴田、海老原、久保、斎藤、篠原（伸）、
関根、中島、永目、藤井、百島、横山、沖、
中西、坂本、近藤、白田（合計17名）

報告

- 事務局より前回理事会の議事要録案について説明があり、一部修正の上承認された。また、事務局より会員の入退会の状況（2006年10月16日より、入会：正会員1名、退会：正会員1名、学生会員29名、賛助会員1社）、および会費の納入状況について報告があり、それぞれ了承された。
- 久保理事よりネット委員会の活動について、会員メーリングリストへのメール配信状況、ホームページの更新等について報告があり、了承された。特に長らく更新されていなかった英語版ホームページが、近日中に新装公開される旨報告があった。
- 斎藤理事よりJNRS誌の編集状況、横山理事より放射化学ニュース15号、16号の編集状況についてそれぞれ報告があり、了承された。斎藤理事より、JNRS誌の論文賞の選考、およびジャーナル編集委員会の委員交代について報告があり、了承された。事務局より、放射化学ニュースは年2回しか刊行されないため、国際集会等の情報は十分に掲載することができないので、これらの情報はネット委員会に送りホームページに随時掲載願いたい旨の要望があった。
- 中島理事より、来年度の第52回討論会については、現在、日程と会場を調整中である旨報告があった。
- その他、1) 事務局より、第50回記念大会・記念事業に関して、関係者に会計報告等を行った上で、実行委員会の解散を行ったことが報告され、了承された。2) 海老原副会長より最近の学術会議の動向について説明があり、連携会員を通じて学術会議に本学会の意見を反映させる方策を検討している旨報告があり、了承された。3) 事務局より、学会が共催等の支援を行っている第8回環境放射能研究会、第44回アイソトープ・放射線研究発表会、および原子力シンポジウム2007について報告があり、了承された。

審議

- 前田会長より、2期務めて退任される役員の後任の候補者として、3名が役員推薦委員会より推薦されたことが報告され、了承された。現在1期目の役員は、そのまま2期目を務めることが提案され、了承された。選挙管理委員の推薦が行われ、全5名の委員（委員長は奥野理事）が承認された。
- 中西監事より、学会賞、奨励賞の応募状況について報告があり、了承された。選考委員の選出が行われ、了承された。
- 会則の改定等について、1) 事務局より、会費納入と督促の状況について説明があり、全会員が会費を納付したとしても年間の収支は赤字となる状況であることが報告された。このため、例えばJNRS誌の無償配布の範囲の再検討や特別号等の有料化、また学会からの討論会、研究会、夏の学校等への援助額の再検討などが必要であるという意見が出された。会費の値上げは当面行わないこととなった。高齢の会員の会費の減免について会則の改正も含めて審議した。前田会長より原案の提示があり審議の結果、75才以上で申告のあった会員については永年会員とし、会費を免除することになった。ただし、会則の改正はせず、運用で対応することとなった。永年会員の申告については、会費徴収の際に案内

することとなった。(なお、永年会員の開始時期については今後検討) 年齢が永年会員に準ずる会員の会費減額については、現状では会計の状況から行わないこととなった。2) 顧問の任期が1期2年で、2期までに制限されていることについて、会則の改正の必要性も含めて審議した。前田会長より原案の提示があり審議の結果、会則の改正はせず、2期を超える場合、顧問待遇のオブザーバーになって頂いて、助言をお願いすることになった。

4. 国際会議等への学会からの援助について、1) 海老原副会長より、第12回放射化分析の最近の動向に関する国際会議(MTAA-12)が本年9/17~21に首都大にて開催される旨、報告があった。2) 黒田基金の用途等について前田会長より原案の提示があり、審議の結果、核化学、宇宙地球化学の学会・シンポジウム等の開催に使うこととし、助成金額の限度額を1件10万円とすることが了解された。MTAA-12に対する援助として、一般会計より助成事業としての10万円の他、新たに黒田基金より10万円、さらに一般基金より50万円、計70万円を支出することが了解された。
5. 第53回討論会の開催担当の候補について審議し、東京地区の候補を中心に打診することとなった。
6. 横山理事より、後任を探す困難から放射化学ニュース編集委員が交代しにくい現状について説明があり、後任候補に会長または理事会の推薦を出してほしい旨の意見が出された。
7. 前田会長より、「日本の放射化学50年のあゆみ」の4月刊行予定は遅れる見込みであると報告があり、冊子を会員に確実に配布するためにも、できるだけ早く刊行すべきことが確認された。

以上

5. 会員動向 (平成19年1月~平成19年7月)

新規入会 (正会員)

氏名	所 属
RAJA RAJAN Alappillai	A. Raja Rajan
小柳津 誠	静岡大学 理学部付属放射化学研究施設
吉田 茂生	東海大学 工学部 エネルギー工学科

三浦 勉	産業技術総合研究所 計測標準研究部門 無機分析科
------	--------------------------

新規入会 (学生会員)

氏名	所 属
長谷川太一	新潟大学大学院 自然科学研究科 自然構造科学専攻 物質化学群 無機物質化学 核化学研究室
坂元 聡	九州大学大学院 理学府 凝縮系科学専攻 状態解析化学研究室
広瀬 篤志	九州大学大学院 理学府 凝縮系科学専攻 状態解析化学研究室
上野 弘貴	学習院大学大学院 自然科学研究科

所属変更 (個人会員)

氏名	所 属
速水 真也	広島大学大学院 理学研究科 化学専攻
木下 哲一	高エネルギー加速器研究機構 放射線科学センター
三頭 聰明	東北大学 多元物質科学研究所

退会 (個人会員)

氏名	氏名
広瀬 春美	長谷川浩子
中野 周平	谷 勇氣
齋宮 芳紀	越智 憲崇
松尾 啓司	井上 裕
河合 正徳	濱田 栄作
加藤千香子	木原 忍
須貝さやか	木村捷二郎
石津 秀樹	野村 保
Dilara AFROJ	瀧 幸
岩崎 充宏	重吉 勇二
Mohammad I. U. BHUIYAN	立川 圓造
雑賀 大輔	西澤 邦秀
清水 亮吾	榎本 秀一
佐藤 宏樹	深澤 秀樹
奥田 康博	望月 真吾
井戸端玲子	湯川 雅枝
松広 岳司	遠山 有二
遠藤祐希子	佐藤 治
八津川 誠	大田 顕成

退会（賛助会員）

仁木工芸（株）

6. 日本放射化学会入会勧誘のお願い

日本放射化学会では新会員の募集をしております。ぜひ新会員をご勧誘下さいますよう、よろしくお願い申し上げます。

入会申込手続「入会申込書」を事務局に提出して頂くとともに、「入会申込金（入会金と1年分の会費）」を下記口座に振り込んで下さい。

「入会申込書」提出先：

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根24
日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門
環境・放射線工学ユニット
環境・原子力微量分析研究グループ内 日本放射化学会
会員担当 間柄 正明 宛

「入会申込金」振込先（郵便振替口座）：

口座名：日本放射化学会
口座番号：00100-2-577302

1. 入会申込書

次ページの書式をコピーして使用して下さい。
本会のホームページ
<http://www.radiochem.org/>
からダウンロードすることもできます。後述の「入会申込書」記入のしかたに従って記入して下さい。

2. 入会申込金（入会金と1年分の会費）

下表を参考にして下さい。振り込みの際には内訳を振込用紙に記入して下さい。

	入会金（円）	会費（円）	合計（円）
正会員	1,000	5,000	6,000
学生会員*	0	3,000	3,000

*学生会員とは、学部あるいは大学院に在学中の会員をさします。

3. 「入会申込書」記入のしかた

- 文字は楷書で明瞭に記入して下さい。
- ふりがな、氏名、ローマ字つづりとして、すべて姓と名を分け、氏名は自署して下さい。文字の判別がしやすいように明確に記入願います。ローマ字は慣用のローマ字で記入して下さい。
- 生年月日 西暦で記入して下さい。
- 性別 該当する所を○で囲んで下さい。
- 会員種別 正会員、学生会員のいずれかを○で囲んで下さい。
- 勤務先・就学先 勤務先あるいは就学先の名称・部局・部・課・学科名・研究室等は詳しく記入して下さい。所在地住所には郵便番号も忘れずに記入願います。電話番号は直通以外は内線まで記入して下さい。職（学年）は、学生会員の場合には学部学生あるいは大学院生の旨を明記した上で学年も記入して下さい。また、学生会員の場合には指導教官名も記入願います。勤務先あるいは就学先で電子メールアドレスをお持ちの方は必ず記入して下さい。
- 自宅 自宅住所は、アパート名・〇〇様方等も忘れずに記入して下さい。
- 雑誌等送付先 勤務先（就学先）あるいは自宅のいずれかを○で囲んで下さい。
- 最終学歴、年次、学位 大学、学部、学科等略さず、年次は西暦で記入して下さい。また、学位の記入もお願いします。
- 備考欄 備考欄は自由記入欄です。学会への要望事項（運営、事業、会誌、広報、部会など）についてご意見を頂戴できれば参考にさせていただきます。また、ご自身の専門分野などについて記入頂いても結構です。

4. 会員の特典

- 以下の出版物が無料購読できます。
 - (a) 学会誌 (Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences)
 - (b) 学会誌別冊 (放射化学討論会要旨集)
 - (c) 放射化学ニュース
- 学会誌への投稿料が無料となります。