

放射化学

第41号

原著

海岸丘陵により傾斜した冬季雷雲からの制動ガンマ線の解析

特集

日本放射化学会第63回討論会(2019) 木村賞 学会賞 奨励賞 若手優秀発表賞受賞者による研究紹介



日本放射化学会

The Japan Society of Nuclear and Radiochemical Sciences

放射化学

第41号

令和2年(2020年)3月20日

目次

原著

海岸丘陵により傾斜した冬季雷雲からの制動ガンマ線の解析(黒崎 裕人)	1
--	---

特集

日本放射化学会第63回討論会(2019) 受賞者による研究紹介	
木村賞	
113番元素の発見による放射化学への貢献(森田 浩介)	16
学会賞	
第一イオン化エネルギー測定によるアクチノイド系列の確立ならびに 超重金属領域における核化学研究の開拓(佐藤 哲也)	19
奨励賞	
振動和周波発生分光法を用いたランタノイドおよびアクチノイド研究の 界面化学への展開(日下 良二)	29
4価アクチノイドの錯生成および溶解度に関する熱力学的研究(小林 大志)	34
福島第一原子力発電所事故で放出された放射性核種を含む食品などの分析(小豆川 勝見)	40
若手優秀発表賞	
福島原発事故により放出された不溶性粒子に含まれるプルトニウムの定量(五十嵐 淳哉)	46
MRTOF+ α -ToFを用いた ^{207}Ra の質量-崩壊特性測定(庭瀬 暁隆)	48
ラマン分光法とX線吸収分光法による二酸化ウランの酸化状態分析(蓬田 匠)	50
水溶液中におけるボロノ基-アスタチン交換反応の特異性の解明(尾幡 穂乃香)	53
3価陽イオン状態におけるランタノイド・アクチノイドの錯形成能の 差異とイオン半径の推定(柏原 歩那)	55
緑泥石標準試料中に存在する鉄の化学状態とその温度依存性(濱坂 佳武)	58

会議報告

日本放射化学会第63回討論会(2019) 実施報告(別所 光太郎、北辻 章浩、塚田 和明) …	61
第58回核化学夏の学校報告(小森 有希子) …	67
放射性物質環境動態調査事業報告会報告(青野 辰雄、山田 裕) …	69
日本学術会議「原子力総合シンポジウム2019」(上坂 充) …	71

時過ぎて

古川路明先生を偲んで(篠原 厚) …	75
--------------------	----

情報プラザ(国際国内会議) …	79
-----------------	----

学会だより …	80
---------	----

「放射化学」規定など …	84
--------------	----

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

賛助会員リスト

広告

表紙の説明

日本放射化学会創設20周年記念パネル討論会 ～放射化学の未来を考える～(いわき市・いわき産業創造館)

原 著

海岸丘陵により傾斜した冬季雷雲からの制動放射ガンマ線の解析
Simulation of bremsstrahlung gamma ray from winter thunderclouds
which were tilted along the slope of coast hills

黒崎 裕人

新潟県放射線監視センター

〒 945-0034 新潟県柏崎市三和町 5-48

Hirohito Kurosaki

Niigata Prefectural Institute of Environmental Radiation Monitoring

5-48 Sanwa-cho, Kashiwazaki-shi, Niigata, 945-0034, Japan

(2019 年 12 月 3 日受理)

要旨

日本海に面した海岸丘陵周辺の NaI シンチレーション検出器を備えたモニタリングポスト 10 局で、冬季雷雲からの制動放射線を観測した。雷雲からの放射は上陸直後から始まり、横一列に並び西南西から風下の東北東へ向かって直線的に移動した。その速度は丘陵手前で 14.5 m/s、丘陵を越えた後は 10.0 m/s に減速したが、いずれも雷雲速度（風速）1.1 ~ 8.0 m/s より早かった。一連の制動放射は、全長 4,410 m、観測時間 5 分 30 秒、幅は平坦部 540 m、傾斜部 970 m であった。雷雲標高は平坦部で 73 m と海岸丘陵 71 m とほぼ同じ高さであり、傾斜部は、海岸丘陵の傾斜と同じ角度で上昇していた。3 局での計数率の変動を「傾斜サーチライトモデル」で解析したところ、モデルから算出された計数率と空間放射線量率の変動は実測値と良く一致したが、いずれの地点も計数率のピークから 66 ~ 100 秒後に、21 ~ 22 nGy/h の未知ピークが現れた。

キーワード

制動放射ガンマ線、冬季雷雲、日本海沿岸、傾斜サーチライトモデル、海岸丘陵

Key words

Bremsstrahlung gamma ray, Winter thundercloud, Coast of the Sea of Japan,
Tilted searchlight radiation model, Slope of coast hills

1. はじめに

近年、雷雲から数 MeV を超えるエネルギーの制動放射ガンマ線を、数十秒~数分間観測した事例が報告¹⁻²²⁾されている。制動放射が起きる仕組み^{1, 5, 16, 20)}としては、まず、雲が発達する際、上昇気流により氷塊、あられや雨滴が激しくぶつかり合って静電気を生じ、それらが分極して強力な電場を発生し雷雲となる。そこへ外部から 2 次宇宙線などが侵入すると、その高いエネルギーのた

め雷雲中の空気をイオン化し、種となる電子を遊離させる。それらの電子は、雲底のプラスに帯電した雨滴方向へ、すなわち雷雲の強電場により地上方向へ急加速し、高い運動エネルギーを得て次々と周囲の電子をはじき出す。これは RREA (Relativistic Runaway Electron Avalanche)^{23, 24)}と呼ばれている。加速された電子は、雷雲を抜けると同時に電場がなくなるため、空気とぶつかり急激にその運動エネルギーを失う。それに相当する

エネルギーは、制動放射線として放出され地上まで到達し、時には10 MeVを超えるガンマ線が観測される。これらが現段階で想定されている有力な説である。

また、雷雲でありながら、必ずしも落雷を伴わないこれらの放射現象は、観測者によりロングバースト^{2, 4, 11, 17)}、TER (Transient energetic radiations)^{3, 15)} またはTGEs (Thunderstorm Ground Enhancements)^{16, 19)}、あるいはガンマ線グロー^{20, 22, 24)} などと呼ばれている。

その観測場所は、雷雲により近づく目的から富士山³⁾ や乗鞍岳⁴⁾、さらにはチベット高原 (中華人民共和国)¹³⁾ やアラガツ山 (アルメニア共和国)^{16, 19)} など、標高3,000 m級以上の高山が中心である。

一方、日本海沿岸地域では、冬季に雷雲が多く発生すると共に、雷雲標高が数百mと、世界的に見ても特異的に低いことから、新潟県^{2, 5, 12, 14, 17)} の他、石川県^{20, 22)}、福井県^{1, 3, 11, 15, 18)}などの海岸域で観測が行われ、ショートバースト^{4, 20)} やTGF (Terrestrial gamma-ray flash)^{22, 24-27)} と呼ばれる瞬間的なガンマ線の放出事象と合わせて、詳細な研究が進んできた。

新潟県では、柏崎刈羽原子力発電所周辺の環境放射線モニタリングを、営業運転に先立つ1983年10月から継続実施しており、現在は、発電所周辺30 km圏内に、NaI (TI) シンチレーション検出器 (以下、NaI 検出器という) と電離箱を備えた28局のモニタリングポストなどで放射線を監視している。その際において、著者ら⁶⁻⁹⁾ もしばしば同様の現象を観測してきた。そこで、これらの現象を解明するため、2011年に「傾斜サーチャイトモデル」を提案¹⁰⁾ し、強い季節風により雷雲が傾いた状態で制動放射が生じると仮定した場合に、地上のモニタリングポストで観測された計数率の変動について、モデルの計算値と実測値がよく一致することを示した。さらに前報²¹⁾ では、海岸から8 km内陸に入った標高351 mの低山地における事例について、強い季節風が吹かない条件下でもその地形により雷雲が傾いたと仮定することで、このモデルを応用することができた。

しかしながら、これらの事例^{10, 21)} は1局での観測例であったため、雷雲からの放射の範囲、放

射口が移動する速度、さらには雷雲が本当に傾斜しているのかという制動放射現象の平面的または立体的な観測ができず、雷雲からの制動放射の全景を把握する上では、複数地点での同時観測が必須課題であった。

このような中、2018年4月8日に前述のモニタリングポストにおいて、東京電力ホールディングス株式会社 (以下、東京電力という) が設置しているものも含めて、10局で同時に制動放射線が観測された。そこで前述のモデル等を使って解析を行った結果、この雷雲からの放射は、前報²¹⁾ よりさらに低い標高100 m以下の海岸丘陵に沿って発生したことが判明した。また、これまで雷雲の放射口の移動速度は、従来、雷雲の移動速度^{1, 5, 6, 11)} つまり風速以下と考えられていたが、今般観測された放射口の移動速度は、風速より早いという新事実を確認したので合わせて報告する。

2. 方法

2.1 観測局の状況

新潟県の環境放射線モニタリングポストは、柏崎刈羽原子力発電所周辺10 km圏内に11局、30 km圏内に17局の計28局設置され、いずれもNaI 検出器などを備えている。これらの位置をFig. 1に示した。今般の事例では、これらのうち発電所南局、発電所北局及び刈羽局の3局で制動放射線を検知し、最も海岸に近い荒浜局など他局では検知されなかった。

東京電力においても、発電所の敷地境界近傍で、NaI 検出器などを備えた9局のモニタリングポストで監視しており、このうちMP-3～MP-9の7局で制動放射を検知した。なお、観測された東京電力のデータは、全て公表値²⁸⁾ から引用した。

また、新潟県及び東京電力の各モニタリングポストの標高データは、国土地理院ウェブサイトから調べた。

2.2 測定機器

以下に新潟県が設置している主な機器仕様を示す。

検出器は、(株) 日立製作所製2インチ×2インチ NaI 検出器 ADP-1122UR1 (エネルギー補償式、温度補償式、検出器加温装置 (35℃一定)

付き、地上高さ1.5 m)を用いた。校正は、線源にCs-137を用いて年2回行っており、日常的にはK-40による自動エネルギー校正機能を備えている。

電子記録計は、横河電機(株)製DX2030を用い、空間放射線量率及び計数率は通常モードの20秒値(例えば7:00のデータは、6:59:41~7:00:00までの20秒間における1秒値の最高値)で測定されたデータを解析に使用した。

なお、これらの測定システムの時定数 τ は、同等の機能のシステムで計測した際に3.3秒であり²⁹⁾、20秒間隔での変動には十分追従できていることを確認している。

MCAは、(株)日立製作所製(エネルギー範囲50~5,000 keV、チャンネル数1,000 ch)を用い、計数率SCA2は50~3,000 keVの計数率の総和として求めた。

線量率換算は、G(E)関数荷重演算方式(デジタル)で行った。空間放射線量率は50~5,000 keV

で求めた。

スペクトル解析には、ミリオンテクノロジー・キャンベラ(株)製スペクトルエクスペローラを用いた。

風向風速計は、パンザマストの地上13 mに設置した(株)小笠原計器製作所製WS-BN6(風向全方位0~540度、風速0.4~20 m/s、気象検定取得済)を用い、制動放射線が観測された2018年4月8日の6:50~7:00までの10分間平均値を使った。なお、1分値も調べ、この間に風速が急変するような突風が吹かなかったことを確認した。

なお、東京電力においてもNaI検出器やMCA、スペクトル解析装置など、新潟県と同等な機器を使用している。ただし、MCAの通常モード測定は30秒値を採用しているが、計数率は公表されていない²⁸⁾。風向風速計は、ドップラー型(標高85 m、160 m)と風車型(標高20 m)で測定しているが、今般の事例では標高160 mの値が

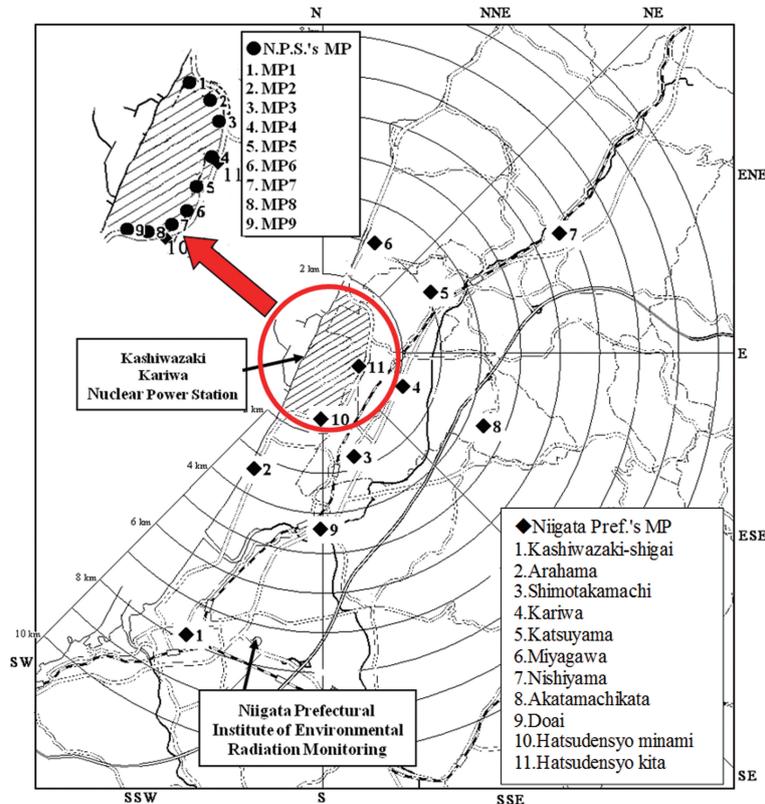


Fig.1 Location of monitoring posts.

公表されている²⁸⁾。

2.3 解析方法

2.3.1 空間放射線量率（計算値）の算出

雷雲からの制動放射の解析には、「傾斜サーチライトモデル」^{10, 21)}を用いた。これにより地上で観測される計数率 $SCA2$ は、

$$\text{計数率 } SCA2 = (\text{雷雲線源初期値/傾斜後の距離減衰}) \times \text{ガウス分布項} + BG \quad (1)$$

で形成されており、具体的には②式で表される。なお、引用文献^{10, 21)}中の同式には、括弧表記に誤植があり、本論文中の②式が正しい表記である。

$$SCA2_{(L,H)} = \frac{D_0 \cdot \cos^2 \theta_{(L,H)}}{\{v^2 \cdot (t-t_0)^2 + h^2\} \sqrt{2\pi} \cdot \sigma} \exp\left\{-\frac{v^2 \cdot (t-t_0)^2}{2\sigma^2}\right\} + BG \quad (2)$$

$\theta_{(L,H)}$ は、雷雲から地上へ向けて制動放射される際の、低高エネルギー成分の放射角度 (rad) を示す。 v は雷雲の移動速度 (m/s)、 t は経過時間 (s)、 t_0 は雷雲線源がモニタリングポストに最接近する際の経過時間 (s) である。

さらに、 D_0 は空気中での減衰を無視した場合の雷雲線源初期値 (cpm) を示す。低高エネルギー成分は空気中での減衰率が異なるが、距離減衰に比べたらその影響が小さいこと、及びそれぞれの D_0 を可変させることで減衰率の影響も表現できることから、ここでは空気減衰率のパラメータは省略している。 h はモニタリングポストから雷雲放射口までの距離を表す雷雲高度 (m)、 σ は、ガウス分布に従い斜め下方に放射される制動放射線の広がり標準偏差 (m)、 BG は NaI 検出器のバックグラウンド値 (cpm) を示す。これらのうち v と h は後述のとおり算出方法が規定されるが、 $\theta_{(L,H)}$ 、 D_0 及び σ は、任意設定可能である。ただし、 $\cos^2 \theta_{(L,H)}$ は 0 ~ 1 の範囲となり、また、 D_0 は $SCA2$ のピーク高さで、 σ はピーク幅で制限を受けるため無限とはならない。

②式において、 $SCA2_{(L,H)}$ (cpm) は、低エネルギー成分の計数率 $SCA2_L$ (cpm) と、高エネルギー成分の計数率 $SCA2_H$ (cpm) のそれぞれで成り立つことを示す。よって地上で観測される計数率 $SCA2$ (cpm) は、

$$SCA2 = SCA2_L + SCA2_H \quad (3)$$

で求められる。なお、低高エネルギー成分は BG との比較で決まり、 BG の平均エネルギーより高いものを高エネルギー成分、低いものを低エネルギー成分としている。これまでの観測で高エネルギー成分は 305 ~ 330 keV 以上⁷⁾ や 315 ~ 335 keV 以上⁸⁾ であることを確認しており、それ以下は低エネルギー成分に分類している。

既報^{10, 21)}では、「傾斜サーチライトモデル」での計算結果を通過率で表現してきた。通過率（計算値）(%) は高エネルギー成分の割合を表し、

$$\begin{aligned} \text{通過率 (計算値) (\%)} \\ = \frac{\text{計数率 } SCA2_H \text{ (計算値) (cpm)}}{\text{計数率 } SCA2 \text{ (計算値) (cpm)}} \times 100 (\%) \quad (4) \end{aligned}$$

また、一方で通過率は、その定義^{7, 10, 21)}から⑤式で表される。

$$\begin{aligned} \text{通過率 (\%)} \\ = \frac{\text{空間放射線量率 (nGy/h)} \times 13.0 \text{ (cpm/nGy/h)}}{\text{計数率 } SCA2 \text{ (cpm)}} \times 100 (\%) \quad (5) \end{aligned}$$

しかし、これが特殊であったため、本報告では一般的な空間放射線量率で表現することとした。このモデルを使って計算される空間放射線量率への換算は④、⑤式から、

$$\begin{aligned} \text{空間放射線量率 (計算値) (nGy/h)} \\ = \frac{\text{計数率 } SCA2 \text{ (計算値) (cpm)} \times \text{通過率 (計算値) (\%)}}{13.0 \text{ (cpm/nGy/h)} \times 100 (\%)} \\ = \frac{\text{計数率 } SCA2_H \text{ (計算値) (cpm)}}{13.0 \text{ (cpm/nGy/h)}} \quad (6) \end{aligned}$$

となり、⑥式は通過率を使わずに空間放射線量率（計算値）を求めることができる。本報告では⑥式により求められた空間放射線量率（計算値）を、実測値と比較検証した。

なお、著者らが開発した解析ソフトウェア¹⁰⁾では、雷雲線源から検知される $SCA2$ と、空間放射線量率のピークを同一局において4本まで重ね合わせて、総 $SCA2$ （計算値）及び総空間放射線量率（計算値）として1秒単位で経過時間変化をグラフ化することができる。これら総 $SCA2$ の計算値と実測値のグラフが一致するよう

②式のパラメータ ($\theta_{(L,H)}$, D_0 及び σ) を可変させ、各々の最適値を求めた。

2.3.2 雷雲移動速度と雷雲高度

②式において、雷雲移動速度 v は直接測定できないので、既報²¹⁾と同様に各局で測定した風速を代入した。

また、同様に雷雲高度 h も直接求められないことから、「傾斜サーチライトモデル」の特殊形 ($t \doteq t_0$ の時) である「点線源モデル」^{10, 21)}を用いて、雷雲高度 h を算出した。このモデルは、雷雲中の点線源から全方向に向かって放射されると仮定したモデルであるが、計数率 *SAC2* のピークの頂部付近 ($t \doteq t_0$ の時、②式のガウス分布項は1になる) では、理論的に下方向への放射成分が地上で観測される主成分となることから、計数率 *SCA2* (実測値) や「傾斜サーチライトモデル」とよく一致し、かつ雷雲高度 h を算出できるという利点がある。「点線源モデル」を⑦式に示した。

$$SCA2 = \frac{D_0}{v^2 \cdot (t - t_0)^2 + h^2} + BG \quad (7)$$

2.3.3 空間放射線量率の「1点ピーク法」による雷雲高度の推定

⑦式から $t = t_0$ の時、すなわち放射ピークが1点しか観測されないような場合には

$$SCA2 = \frac{D_0}{h^2} + BG \quad (8)$$

が成立し、これは雷雲線源からの距離減衰を示す最も単純な式となる。

また、⑧式は、計数率 *SCA2* だけでなく、空間放射線量率でも成り立つことから、地上のモニタリングポストで観測される空間放射線量率を D (nGy/h)、バックグラウンド値を BG (nGy/h)、雷雲中の初期値を D_0 (nGy/h) とすれば、雷雲高度 h (m) は

$$h = \sqrt{\frac{D_0}{D - BG}} \quad (9)$$

となり、1点ピークであっても D_0 を推計できれば、雷雲高度 h を求めることができる。

3. 結果と考察

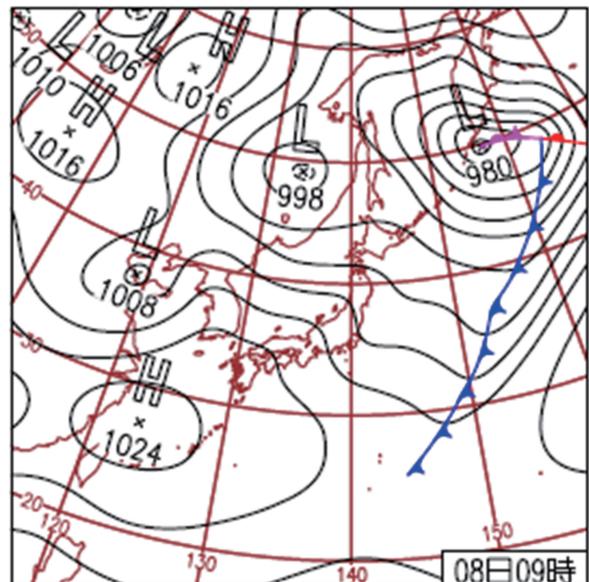
3.1 気象状況

制動放射が観測された2018年4月8日の天気図を Fig. 2 に示した。天気図は、この時期としては珍しく、既報²¹⁾と同様にオホーツク海上で低気圧が発達する西高東低の典型的な冬型の気圧配置であった。Enotoら⁵⁾の2007年1月の観測例でも、類似の天気図が示されていた。また、3局における風向はSW ~ WNW と西寄りで、風速は1.1 ~ 2.7 m/s とかなり弱い状態で、標高160 m 地点でも8.0 m/s であり²⁸⁾、「強い季節風が吹いた」状態ではなかったことが確認された。

3.2 制動放射の観測

10局のNaI検出器で観測された空間放射線量率(20または30秒値)を Fig. 3 に示した。なお、ピークの判定は、各局における計数率 *SCA2* が *BG* 値を超えてから戻すまでとした。このため、Fig. 3 では最後の刈羽局における空間放射線量率はテーリングが見られ、*BG* レベルまで戻っていないが制動放射は終了したと判断した。なお、このピークのテーリング現象については後述する。

放射時間は全局合わせると5分30秒と長く続



9:00 JST on Apr. 8, 2018

Fig. 2 Surface weather chart for Japan provided by Japan Meteorological Agency.

いた。国外では40分¹³⁾や10分程度¹⁶⁾観測された事例はあるが、国内では5分間以上継続して制動放射を観測できた事は希である。これは風が弱いことで雷雲の移動速度が遅かった事、観測局が1局ではなく10局に跨って連続して観測できた事、さらには落雷による制動放射の消滅^{9, 18, 19, 22)}を生じなかった事が要因と考えられた。

また、その最大値はMP-6で観測された2,163 nGy/h (6:58:00)であった²⁸⁾が、大野ら⁶⁾がほぼ同じ場所で2010年1月9日にMP-7で観測した310 nGy/hに比べ、約7倍も高かった。

3.3 制動放射線のガンマ線スペクトル解析

観測された制動放射線のガンマ線スペクトル解析を行った。2018年4月8日の新潟県分3局におけるピーク上昇時(7:00)からピーク上昇前(6:50)を差し引いたガンマ線差分スペクトル(青横棒)と、ピーク上昇前(6:50)のスペクトル(赤縦棒)を、Fig. 4に示した。

既報^{6-8, 21)}と同様に、差分スペクトルでは低エネルギー成分の50 keVから高エネルギー成分の5,000 keV以上まで連続したエネルギー放出が見られ、特に3,000 keV以上のエネルギー成分が観測されたことが雷雲からの制動放射線の特徴で

あった。また、5,000keV以上のエネルギー成分も検出された。

なお、既報²¹⁾で課題とした511 keVの電子-陽電子対消滅輝線は、NaI検出器では明確には確認できなかった。

3.4 雷雲放射口の移動方向と速度

雷雲放射口の移動方向と速度を調べるため、制動放射が観測された10局の中から空間放射線量率が最大となったMP-6とその風上方向に位置するMP-8を直線で結び、その延長線上を雷雲中心が通過したものと仮定した(Fig. 5)。この仮定はつまり雷雲が海岸から進入して西南西から東北東へ進み、MP-6上空を通過した際に、地上のモニタリングポストでの空間放射線量率の最大値が観測されたと想定した。この通過コースについての検証は、後述する。

次に、他のモニタリングポストと雷雲中心の進行コースを垂線で結び、海岸線を起点として、各垂線との交点の距離を求めた。この距離とFig. 3の各モニタリングポストで観測された空間放射線量率のピーク時刻についての関係をFig. 6に示した。各モニタリングポストの測定時刻は20~30秒値であることから、Fig. 6では測定時間内の最

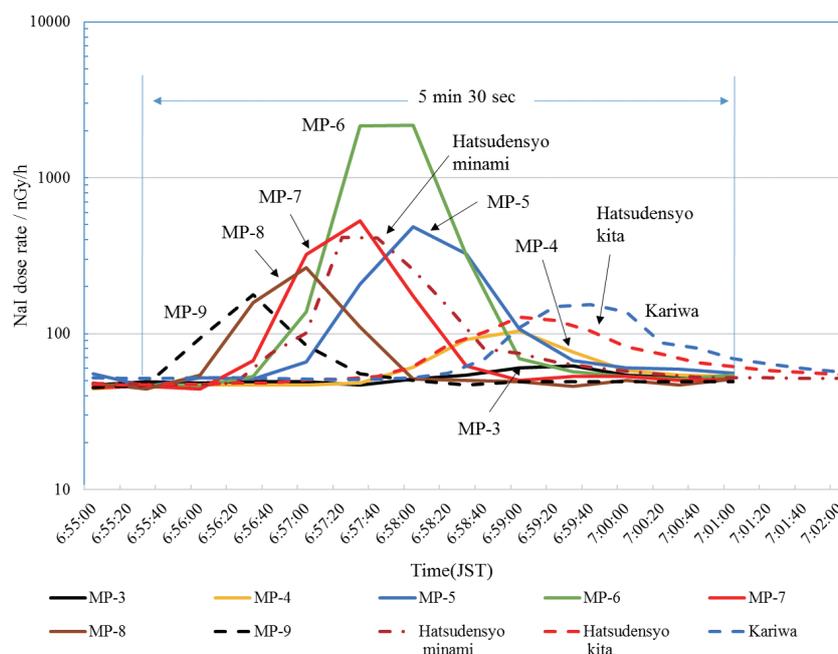


Fig. 3 Variations of NaI dose rate in 20 or 30 sec intervals on Apr. 8, 2018.

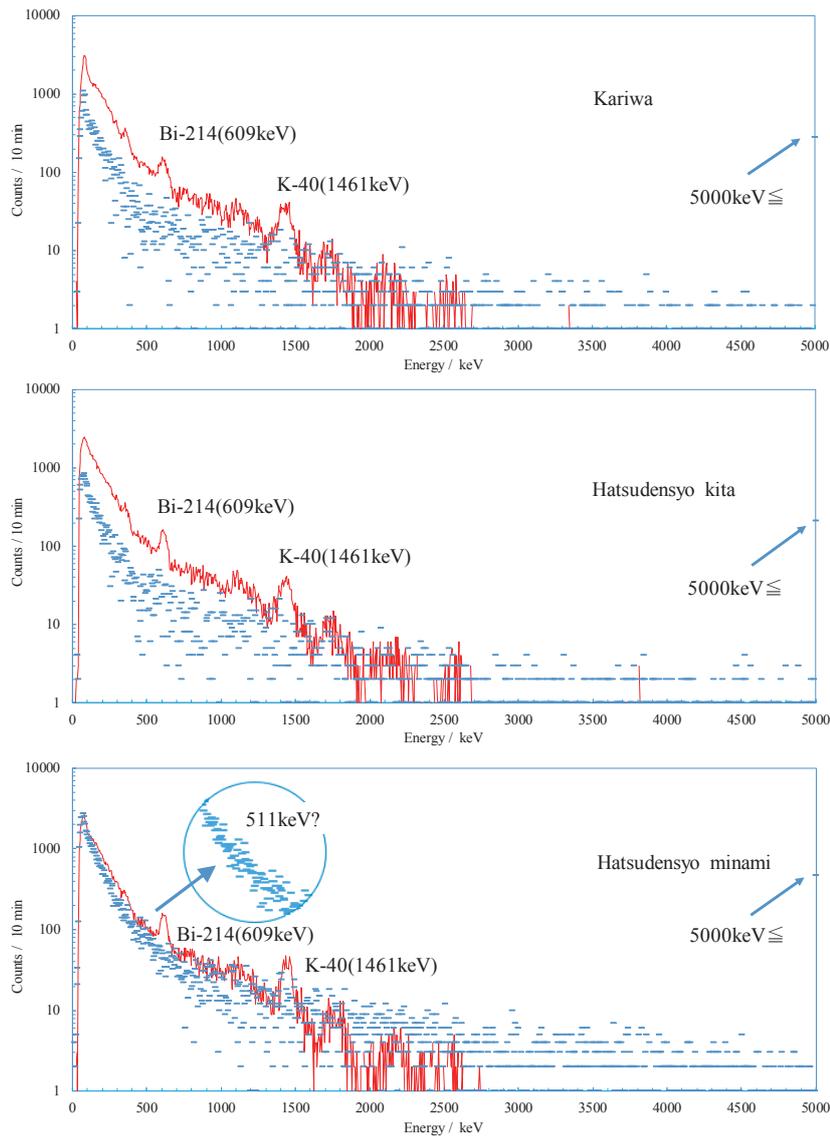


Fig. 4 Gamma ray spectra by the NaI (TI) scintillation detector on Apr. 8, 2018 at three monitoring posts.
 Blue (horizontal) line : background-subtracted (7:00-6:50)
 Red (vertical) line : background (6:50)

終時刻でプロット（例えば7:00のプロットは30秒値であれば、6:59:31~7:00:00の間の1秒値の最大値）し、それがわかるように測定時間を横バーで記した。なお、時間軸は放射線が観測される以前の6:55分を起点とし、その後の経過時間を横軸とした。

その結果、MP-9~MP-6までと、MP-5~刈羽局までの2つの直線に分かれたが、10局の垂線と進行コースの交点が、速度を表す直線上に並ぶことがわかった。これは各局の垂線が同じ速度

で移動していることを表している。つまり、各局で観測された雷雲からの放射口は、進行方向に対し横一列に並んで移動したものと推定された。

また、前者の直線はその傾きから移動速度は14.7 m/sであり、その速度からMP-9で最初に放射が観測された時刻は、距離に換算すると海岸から268 m内陸に入った地点と判明した。なお、MP-9よりも海岸線に近い荒浜局では制動放射が検知されなかったことから、上陸以前から制動放射線が放出されていたとは考えにくい。つまり、雷



Fig. 5 Estimated course of thunderclouds on Apr. 8, 2018.
 Yellow arrow : Estimated course of thunderclouds
 Red line : Perpendicular to course of thnuderclouds from monitoring posts
 Yellow star : Estimated radiation starting point (268 m from the coastline)
 Wind direction and wind velocity : Average value (6:50 ~ 7:00) at 13 m above the ground

雲が海上から上陸後、268 m 内陸の地点で制動放射を開始し、それを MP-9 で検知したものと推定された。

一方、後者の移動速度は同様に 10.0 m/s であり、制動放射の終了位置は刈羽局から少なくとも 800 m の地点であると推定された。これら前者と後者の間には、標高 71 m の海岸丘陵が位置していることから、雷雲の放射口がこの海岸丘陵を通過後に、減速したものと考えられた。

なお、東京電力では、雷雲の移動経路を MP-6 と西南西の風上に位置する MP-7 付近を結んだ直線上から、MP-5 を通過した直後、西北西の風に変わり、雷雲移動方向が大きく曲がったと想定した²⁸⁾。しかし、著者はこのコースを含めいくつかの通過コースを想定し、Fig. 6 と同様に図示を試みたが、いずれも、Fig. 6 に比べ直線性が悪くなり、また、観測したモニタリングポストの順番

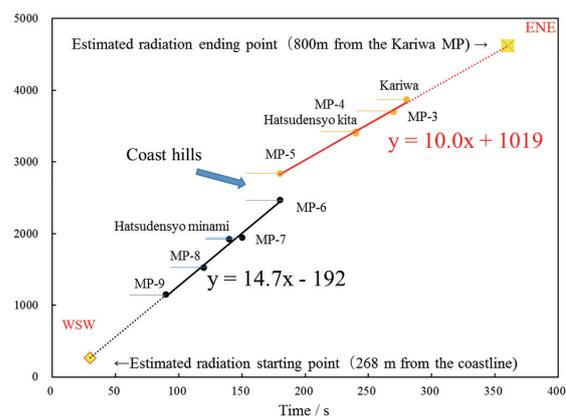


Fig.6 Velocity of radiation points of thunderclouds on Apr. 8, 2018.
 Time : Time until radiation peak top passes (Starting point is 6:55:00)
 Distance : Distance from coastline on yellow arrow in Fig.5

が地図と合わないなど、現象を解釈しにくい結果となった。よって、結果的に Fig. 5 で想定した通過コースは妥当なものと判断した。

以上のように、一般の雷雲からの制動放射について、進行方向に横一列に並んだ放射口から放射されたこと、及び雷雲の上陸後速やかに放射が開始されたことは、これまで報告例がない現象である。

また、3.1 で述べたように制動放射の時間帯の風速は、地上付近で 1.1 ~ 2.7 m/s、標高 160 m でさえも 8.0 m/s であった²⁸⁾。これに対し放射口の移動速度は 10.0 ~ 14.7 m/s と大幅に速かった。これまでの研究では、放射口の移動速度は雷雲の移動速度^{1, 5, 6, 10, 11)}、つまり風速以下と考えられていた。それは、観測日が比較的強風だったことによると思われる。例えば風速については、Torii ら¹⁾は 7.2 ~ 12.5 m/s を、Wada ら²¹⁾は 19.3 m/s を観測した。また、Torii ら¹¹⁾は放射ピーク位置を比較することで放射移動速度を 7.1 m/s と推計し、それは風による雷雲の移動と考えた。Kuroda ら¹⁸⁾も移動速度 50 km/h (= 14 m/s) を観測し、典型的な事例だと報告した。一方、Enoto ら²⁵⁾の観測事例は、落雷を伴う TGF ではあるが風速 17 m/s であった。

このように、これまで観測された風速は本報告を上回っており、結果として風速と放射口の移動速度に明確な差が生じなかったために、両者は同じ速度であると認識されていたものと推測される。なお、本報告の風速の測定高さは、雷雲標高と同レベル以上の高さでの測定であり、雷雲標高付近に強風が吹いていた訳ではなかった事は後述する。

3.5 1点ピーク法による雷雲高度の推定

⑦式の「点線源モデル」を使って雷雲高度を算出できるのは、計数率 SCA2 を測定している新潟県分の 3 局のみである。そこで、他局を含めた全 10 局で雷雲高度を算出できるように、空間放射線量率の値を使う⑨式の「1点ピーク法」により求めた。

⑨式で雷雲高度 h を算出するには、 D_0 を求める仮定が必要となる。そこで、まず地上で空間放射線量率 D が最高値となった MP-6 と、Fig. 4 で雷雲中心の通過コース上に想定した MP-8 において「これら 2 地点上空を雷雲（放射口）が同じ標高で通過した」と仮定した。

その結果、MP-6 での雷雲高度は 11 m、MP-8 では 33 m と算出され、これら 2 地点における雷雲標高は 73 m、また⑨式から $D_0 = 260 \mu\text{Gy/h}$ と算出された。

ここで 2 つ目の仮定として「観測された全 10 局における雷雲初期値 D_0 が均一（同値）である」とした。これは、雷雲からの放射条件を最も単純化させるための仮定である。この D_0 の値を使って他の局も同様に h を計算したものと、各モニタリングポストの標高（検出器高さ 1.5 m を含まない）を Table 1 に示した。

また、算出した h と、各モニタリングポストの標高データを比較し、雷雲の進行方向を Fig. 7 に、横方向への広がりを Fig. 8 に示した。

Fig. 7 において、前述のとおり MP-6 と MP-8 上空で同じと仮定した雷雲（放射口）標高は 73 m であった。これは進行方向の途中にある海岸丘陵の標高 71 m より若干高く、雷雲（放射口）はこの標高を維持したまま丘陵を越えて通過したものと推定した。また、推定通過コースの地形的

Table 1 Distance from thunderclouds: h calculated by the one peak method.

	MP-6	MP-7	MP-5	Hatsuden- syo minami	MP-8	MP-9	Kariwa	Hatsuden- syo kita	MP-4	MP-3
Distance from thunderclouds : h / m	11	23	25	27	35	44	51	57	66	132
Height above sea level ※ / m	60	48	53	45	38	26	9	72	65	46

$$D_0 = 260 \mu\text{Gy/h}, \quad h = \sqrt{D_0 / (D - BG)}$$

※ : Referenced from "Denshi Kokud Web (<https://maps.gsi.go.jp/>)" by Geospatial Information Authority of Japan

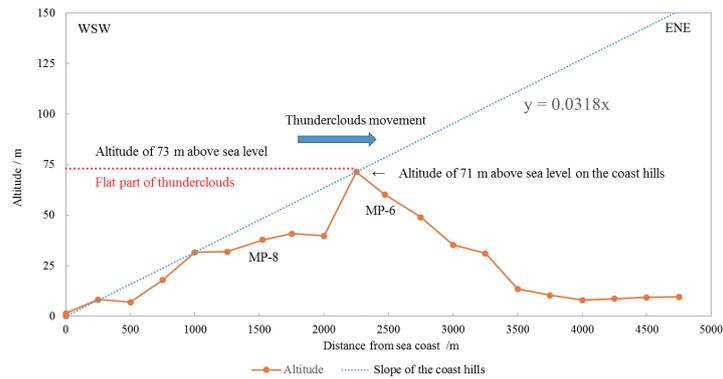


Fig.7 Altitude of the coast hills and the thunderclouds. (Estimated course of the thunderclouds : WSW ~ ENE)

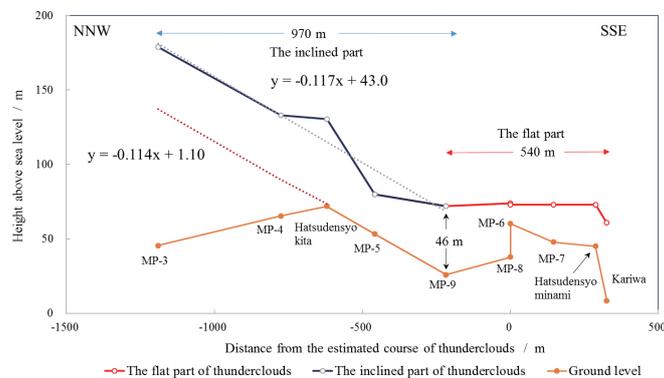


Fig.8 Height above sea level of monitoring posts and thunderclouds by the one peak method using NaI dose rate. (NNW ~ SSE)

な平均傾斜度は、Fig. 7 から 3.2%であった。

なお、算出された雷雲標高 73 m は、Tsuchiya ら¹²⁾ が本報告とほぼ同じ場所で観測した 290 ~ 560 m (2007 年 12 月) と 110 ~ 690 m (2008 年 12 月) や、同じく大野ら⁶⁾ の 260 ~ 530 m (2010 年 1 月) と比較してかなり低い状況であった。一方、Kuroda ら¹⁸⁾ は、福井県おおい町で約 100 m (2012 年 1 月) の事例を観測した。今般の事例で雷雲標高が最も低かった要因としては、本来冬季(概ね 11 月下旬から翌年 2 月頃)に発生する雷雲からの制動放射が、4 月 8 日に発生したという特異な気象状況が影響したのかも知れない。

Fig. 8 では、MP-9 から刈羽局に至る 6 局(幅 540 m)において、各モニタリングポストの立地標高にかかわらず、雷雲(放射口)がほぼ平坦であることが判明した。特に MP-9 から発電所南局までの 5 局(幅 506 m)は雷雲(放射口)標高が 72 ~ 74 m とわずか 2 m 差の範囲に入っており、

全くの水平状態であったと推測された。

一方、MP-9 から MP-3 に至る幅 970 m において雷雲は傾斜状態を示し、直線の傾きから地表部の傾斜度 11.4% に対し、雷雲(放射口)の傾斜度は 11.7% とほぼ一致していたことが判明した。これは雷雲の横方向に広がる海岸丘陵(発電所北局で標高 72 m、付近の丘陵の標高は 90 m 以上)を乗り越えるために、雷雲が傾斜した状態になったと推測された。雷雲の進行方向ではないものの、このように実際に傾斜した雷雲から制動放射を観測した例は初めてである。

以上、これまでの観測で得られた雷雲からの制動放射の広がりや移動方向についてのイメージ図を、Fig. 9 にまとめた。地上で観測された放射域の大きさは、幅 1,510 m で全長 4,410 m であった。また、同一地点での進行方向での放射の広がりや、県の 3 局で計数率を測定した結果、2,200 ~ 2,940 m(半径にすると 1,100 ~ 1,470 m)であった。

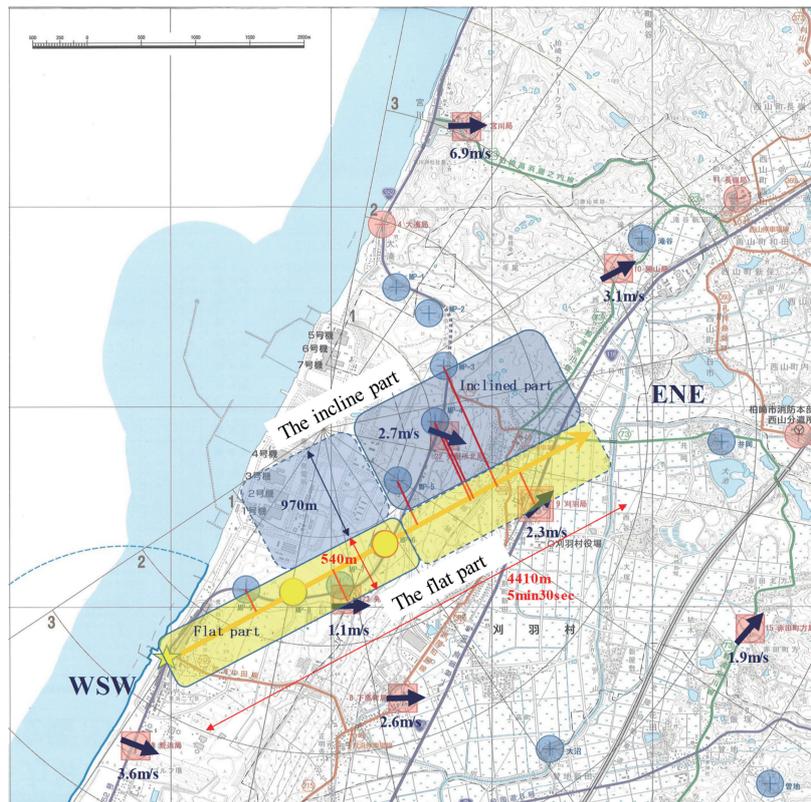


Fig.9 Estimated radiation area from thunderclouds on Apr. 8, 2018.
 Yellow area : The flat part of thunderclouds
 Blue area : The incline part of thunderclouds
 Wind direction and wind velocity : Average value (6:50 ~ 7:00) at 13 m above the ground

Tsuchiya ら¹⁴⁾ は 2010 年 12 月の観測で、放射域の大きさが概ね 800 m の範囲とし、Torii ら¹¹⁾ も同年 1 月の観測で放射域が半径 700 m、Kuroda ら¹⁸⁾ は 2012 年 1 月に直径 2.5 km、Wada ら²²⁾ は 2018 年 1 月の観測で半径 880 m であったと報告している。観測例が少ないものの、今般の観測事例の放射域は、Tsuchiya らの事例より広く、Kuroda らとほぼ同じで、幅に関しては Torii らや Wada らの事例とほぼ同程度であったことが確認された。

3.6 点線源モデルと 1 点ピーク法による雷雲高度の比較

既報^{10, 21)} では「傾斜サーチライトモデル」に使用する雷雲高度を全て「点線源モデル」で算出した。そこで「点線源モデル」と、本報告の解析に用いた「1 点ピーク法」による雷雲高度の比較

を行った。比較は双方のモデルが使える新潟県設置分の 3 局のデータで行った。

Fig. 10 に各々の方法で算出された雷雲高度を示した。なお「点線源モデル」は計数率 SCA2 を使って算出するため、比較のため SCA2 による「1 点ピーク法」の結果についても示した。まず、「点線源モデル」と SCA2 の「1 点ピーク法」は直線の傾きが 0.993 となり、ほぼ同じ値であった。これは元々⑧式が「点線源モデル」⑦式の特特殊形であることから理解できる。これにより「点線源モデル」を使えない場合でも SCA2 の 1 点ピークが求められれば、より簡便に雷雲高度を算出できることがわかった。

一方、3.5 で使用した空間放射線量率の「1 点ピーク法」による雷雲高度は、「点線源モデル」と比較した場合、直線の傾きは 0.663 となり、低めに算出されることがわかった。この差が生ずる原因

については明確ではないが、計数率 SCA2 と空間放射線量率に寄与する放射線のエネルギー成分の違いが影響しているものと考えている。

3.7 傾斜サーチライトモデルによる制動放射の解析

新潟県設置分の3局について、③式から計数率 SCA2 (計算値) を、⑥式から空間放射線量率 (計算式) を算出し、グラフ化したものを Fig. 11 に示した。

これらのグラフにおいて、各モニタリングポストで実測された SCA2 (実測値) のピークは、その形状から2つのピークの合成ピークと推測されたので、SCA2 (計算値) においても2つの合成ピークとして算出した。これにより3局とも SCA2 の実測値と計算値は良く一致した。これらの「傾斜サーチライトモデル」から得られた各パラメータを Table 2 に整理した。なお、前述の 2.3.2 に記載したとおり、ここでの雷雲移動速度 v は各モニタリングポストでの風速、雷雲高度 h は「点線源モデル」で算出した値を使った。それにもかかわらず、SCA2 の実測値と計算値が一致したということを見ると、実際には横一列に並んだ雷雲放射口から、10 m/s 以上の速度で進行方向へピー

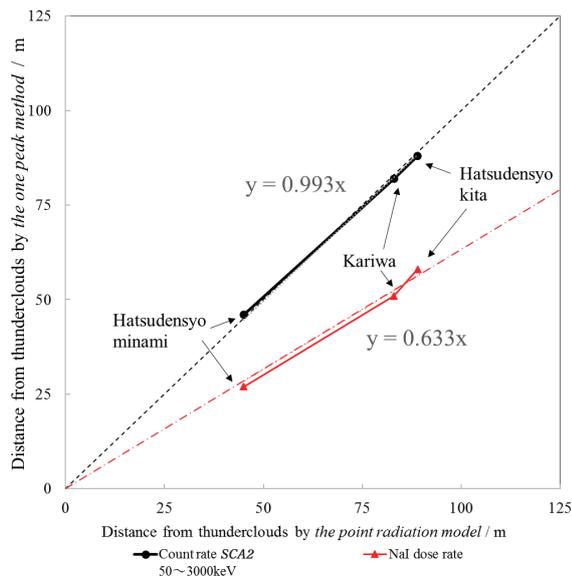


Fig.10 Relationship between distance from thunderclouds by the point radiation model and that by the one peak method.

クが移動する連続放射の形態が、結果的に地上では風速程度でゆっくり移動した2つの放射口からの合成ピークとして、観測されたということを示している。これは「傾斜サーチライトモデル」が、本来、雷雲放射の姿をマイクロに表現するモデルではなく、地上で観測される放射線全体としての動態を表現したモデルであることの証左でもある。よって今後は、本報告での観測事例を、前述の 3.4 で新たに示した雷雲放射イメージ例のような、より詳細な放射モデル解析への糸口としたいと考えている。

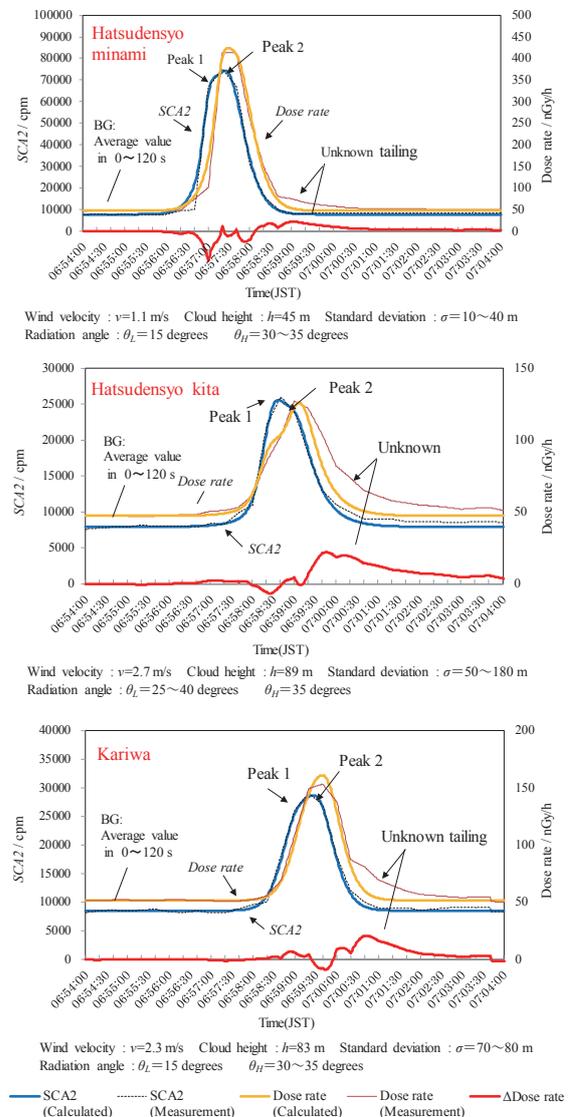


Fig.11 Comparison between the measurement count rate (SCA2), dose rate and calculated data of these rates by the tilted searchlight radiation model.

また、空間放射線量率は、計数率 $SCA2$ と比べてピークが遅れることがわかった。著者は既報^{10, 21)}で通過率を図示し、低エネルギー成分より高エネルギー成分が遅れて検知されることを報告した。⑥式に示したとおり空間放射線量率（計算値）は、高エネルギー成分 $SCA2_H$ に比例することから、実測された空間放射線量率のピークの遅れは、⑥式の妥当性を裏付けている。

ただし、空間放射線量率は概ね実測値と計算値は一致したが、ピーク後半において実測値の方が高い「未知のピーク」が差分ピークとして現れた。これらの未知ピークを取りまとめて Fig. 12 に示した。ここでは各モニタリングポストでの計数率

$SCA2$ （実測値）のピークトップ時刻を経過時間 0 に設定し、未知ピーク位置を比較しやすいように並べた。

その結果、これらの未知ピークが示す最大の空間放射線量率は 21 ~ 22 nGy/h と、観測局にかかわらず、ほぼ一致していた。また、出現した時間は計数率 $SCA2$ のピークトップから 66 ~ 100 秒後であった。

この未知ピークは、「傾斜サーチライトモデル」で算出できないことから、制動放射と異なるメカニズムで生じたものと考えられる。それは既報²¹⁾でも指摘したが、Umemoto ら¹⁷⁾や Enoto ら²⁵⁾が検知した 511 keV の電子-陽電子対消滅

Table 2 Results of computation based on the tilted searchlight radiation model.

MP	Hatsudensyo kita	Hatsudensyo minami	Kariwa
Parameter			
Wind velocity / m/s	2.7	1.1	2.3
Cloud height / m	163	92	93
Standard deviation / m	50 ~ 180	10 ~ 40	70 ~ 80
Radiation angle			
θ_L / degrees	25 ~ 40	15	15
θ_H / degrees	35	30 ~ 35	30 ~ 35

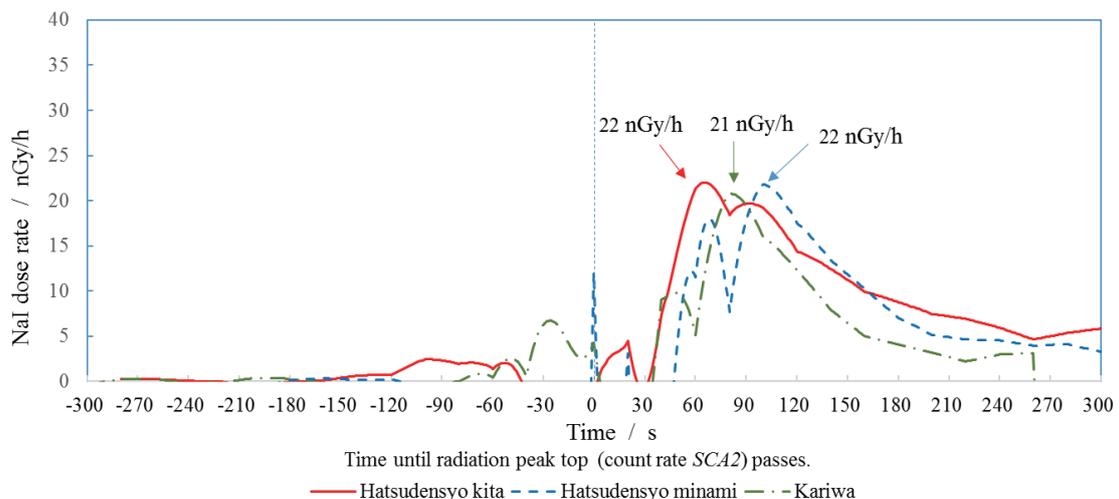


Fig.12 Unknown peaks of NaI dose rate (Difference between measurement and calculate).

輝線とも推測される。前者はTGF後の60秒間に、後者はTGFの35秒後にピークを持つ1分間に及ぶ511 keVの対消滅輝線を観測した。今般の事例ではTGFは観測されてはいないが、未知ピークが3局の標高に関係なくほぼ同じ空間放射線量率を与えること、言い換えれば、放射線源が地上付近に存在している点では、Enotoらが発見したように、光核反応で生じた電子と陽電子が地上付近に滞留し、その対消滅現象で発生した放射線が観測されたとも推測される。もしそうであるならば、「傾斜サーチライトモデル」は、制動放射線と電子-陽電子対消滅輝線を弁別できたことになる。しかし、3.3で述べたように511 keVの対消滅輝線は、NaI検出器では近接するエネルギーを有する制動放射線の中に埋没し、明確に確認できなかったことから、確証は得られなかった。

4. まとめ

日本海に面した海岸丘陵周辺のNaI検出器を備えたモニタリングポスト10局で、2018年4月8日に季節外れの冬季雷雲からの制動放射線を観測した。地上で観測した制動放射線の距離減衰を基に雷雲の動向を解析したところ、雷雲からの放射は上陸直後から始まり、横一列に並び西南西から風下の東北東へ向かって直線的に移動した。また、その放射口速度は海岸丘陵手前で14.5 m/s、丘陵通過後は10.0 m/sに減速したが、いずれも雷雲速度(風速)1.1~8.0 m/sより大幅に早かった。このことは、放射口が雷雲中を放射しながら前方へ伝播したことを示唆した。一連の制動放射は、全長4,410 m、観測時間5分30秒、幅は平坦部540 m、傾斜部970 mの計1,510 mであった。また、進行方向の広がりには1局当たり2,200~2,940 m(半径で1,100~1,470 m)であった。雷雲標高について、空間放射線量率を使った「1点ピーク法」で算出したところ、平坦部で73 mと一般的な冬季雷雲の標高数百 mと比べてかなり低かったが、海岸丘陵71 mとほぼ同じ高さであり、また傾斜部は、海岸丘陵の斜面と同じ角度で傾斜し、上昇していたことが確認された。これらの内3局の計数率SCA2の変動を「傾斜サーチライトモデル」で解析したところ、モデルから算出された計数率と空間放射線量率の変動は実測値と

良く一致したが、いずれの地点も計数率のピーク後66~100秒後に、21~22 nGy/hの未知ピークが現れた。これらは511 keVの電子-陽電子対消滅輝線ではないかと推測されたが、NaI検出器のガンマ線スペクトルからは明確な確証は得られなかった。

このような標高100 m以下の海岸丘陵地形により冬季雷雲が傾斜し、制動放射線を発生するというメカニズムは、これまで観測例がない貴重なデータである。

本研究の一部は、日本放射化学会第63回討論会(福島県いわき市、2019年9月)で発表した。

引用文献

- (1) T. Torii, M. Takeishi et al., *J. Geophys. Res.* **107**, D17, 4324 (2002).
- (2) H. Tsuchiya, T. Enoto et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 165002 (2007).
- (3) T. Torii, T. Sugita et al., *Geophys. Res. Lett.* **36**, L13804 (2009).
- (4) H. Tsuchiya, T. Enoto et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 255003 (2009).
- (5) T. Enoto, H. Tsuchiya et al., *J. Plasma Fusion Res. SERIES* **8**, 208 (2009).
- (6) 大野峻史, 黒崎裕人他, 新潟県放射線監視センター年報, **8**, 19 (2010).
- (7) 大野峻史, 黒崎裕人他, 新潟県放射線監視センター年報, **8**, 24 (2010).
- (8) 大野峻史, 黒崎裕人他, 新潟県放射線監視センター年報, **8**, 29 (2010).
- (9) 大野峻史, 黒崎裕人他, 新潟県放射線監視センター年報, **9**, 36 (2011).
- (10) 黒崎裕人, 大野峻史他, *KEK Proc. 2011-7, Proc.12th Workshop on Environmental Radioactivity*, 36 (2011).
- (11) T. Torii, T. Sugita et al., *Geophys. Res. Lett.* **38**, L24801 (2011).
- (12) H. Tsuchiya, T. Enoto et al., *J. Geophys. Res.* **116**, D09113 (2011).
- (13) H. Tsuchiya, K. Hibino et al., *Phys. Rev. D* **85**, 92006 (2012).
- (14) H. Tsuchiya, T. Enoto et al., *Phys. Rev. Lett.*

- 111, 015001 (2013).
- (15) T. Torii, T. Sugita et al., *J. Atmos. Electr.* **34**, 1 (2014).
- (16) A. Chilingarian, *J. Atmos. Terr. Phys.* **107**, 68(2014).
- (17) D. Umemoto, H. Tsuchiya et al., *Phys. Rev. E* **93**, 021201 (2016).
- (18) Y. Kuroda, S. Oguri et al., *Phys. Lett.* **B758**, 286 (2016).
- (19) A. Chilingarian, Y. Khanikyants et al., *J. Geophys. Res. Atmospheres* **122**, 7582 (2017).
- (20) Y. Wada, G. S. Bowers et al., *Geophys. Res. Lett.* **GL077784** (2018).
- (21) 黒崎裕人, *放射化学*, **39**, 1 (2019).
- (22) Y. Wada, T. Enoto et al., *Commun. Phys.*, <https://doi.org/10.1038/s42005-010-0168-y> (2019).
- (23) A. V. Gurevich, G. M. Milikh et al., *Phys. Lett.* **A165**, 463 (1992).
- (24) J. R. Dwyer, D. M. Smith et al., *J. Plasma Physics* **81**, 475810405 (2015).
- (25) T. Enoto, Y. Wada et al., *Nature* **551**, 481 (2017).
- (26) D. M. Smith, G. S. Bowers et al., *J. Geophys. Res. Atmospheres* **123**, 11321 (2018).
- (27) Y. Wada, T. Enoto et al., *Phys. Rev. Lett.* **123**, 061103 (2019).
- (28) 東京電力ホールディングス株式会社, 平成30年度柏崎刈羽原子力発電所周辺環境放射

- 線監視調査結果 令和元年8月, p.96 (2019).
- (29) 黒崎裕人, 大野峻史他, 新潟県放射線監視センター年報, **8**, 32 (2010).

Abstract

Bremsstrahlung gamma ray from winter thunderclouds were observed at ten monitoring posts by NaI scintillation detector around hills along the coast of the Sea of Japan. The gamma emission from thunderclouds began on the occasion of landings. These source of radiation lined up in a row, and moved from WSW to ENE at a speed of 14.5 m/s before passing over the hills and 10.0 m/s after that. These moving speed were faster than the clouds moving speed (wind speed) of 1.1-8.0 m/s. The bremsstrahlung lasted 4,410 m, with a duration of 5 min 30 sec. Flat part width of the radiation area was 540 m and that of inclined part was 970 m. The clouds height at the flat part was 73 m, almost as same as the coast hills height 71m. And the inclined part of the thunderclouds rise along the coast hills. Total count rate at three monitoring points were simulation used by *the tilted searchlight radiation model*, the results of count rate and dose rate calculated from this model were in good agreement with measurement data. But unknown peaks of 21-22 nGy/h appeared 66-100 sec after the count rate peak top.

特集 日本放射化学会第63回討論会(2019)受賞者の紹介

木村賞

森田 浩介 (九州大学大学院理学研究院)

受賞題目：113番超重元素の発見による放射化学の発展への貢献

<授賞理由>

日本放射化学会の木村賞は、2017年の日本放射化学会授賞規定の一部改訂に伴い、会員・非会員にこだわらず、「永年にわたって放射化学およびその関連分野の発展に多大な貢献をし、この学問分野において特に優秀な研究業績を挙げた者に授与する」こととなりました。その意図として、国内外問わず広い視野で放射化学の分野で多大な貢献をした方々に授与することを目指しており、候補者の選考は理事の推薦に基づきます。こうした取り組みを通じて、放射化学が幅広い分野と連携し、さらに発展していくことを目指しております。

このような新しい木村賞の最初の受賞者として、九州大学の森田浩介博士を選考させて頂いたことは、本学会にとっても大変喜ばしいことです。もとより森田先生は、本学会会員でいらっしゃいますが、既に学士院賞など多数の受賞も受けていらっしゃる先生です。また森田先生は、本受賞が、森田先生が研究代表者である研究グループ全体の受賞であり、森田先生はその代表として受賞するものであると述べられています。今回の森田先生の木村賞ご受賞を機に、会員がこの分野の発展にさらに邁進されることを選考委員会としても期待致します。以下、森田先生(とその研究グループ)への授賞理由をお示しいたします。

森田浩介博士は、理化学研究所の実験チームを率いて、未知の超重元素である113番元素を合成し、様々な手法を駆使してその検出を行いました。そして、報告された結果は国際純正・応用化学連合によって新元素と認定され、同研究グループはアジアで初めて元素の命名権を得ました。合成に用いた手法は、原子番号83のビスマスの標的に、理研の線形加速器から原子番号30の亜鉛のイオンビームを引き出して照射し、核融合反応によって113番元素を合成し、それを同定するというも

のです。検出には、本グループで開発した気体充填型の反跳核分離器を用いることで、大強度ビーム照射実験中に生じる副反応生成物を含む多量の粒子から稀少な超重原子核を分離されました。そして、位置有感な半導体検出器で、一連の α 壊変及び自発核分裂壊変の場所・半減期・エネルギーを計測することで、113番元素を同定しました。このように、本研究の成功には、強度が増強された加速器と、超重元素の効率的な分離器を開発・応用したことが、重要な要素となりました。これらの成果は、原子核同士を9年間で400兆回も衝突させる地道な実験を忍耐強く続けられた結果得られたものであります。この間、113番元素は3事象で確認され、どれも113の陽子数、278の質量数を持ち、その結果は、2004年、2007年、2012年に以下に示す論文として公表されました。これらの業績は、放射化学分野の発展への貢献が極めて大きく、多くの方に新たな指針を与え、新しい分野を切り拓くものであります。これらのことから、日本放射化学会受賞候補者選考委員会は、森田浩介博士を2019年度木村賞を受けるに相応しい人物として強く推薦し、同理事会で承認されたものであります。

* 113番元素を確認した3つの論文

- ① K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, T. Akiyama, S. Goto, H. Haba, E. Ideguchi, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura, H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, T. Suda, K. Sueki, H. Xu, T. Yamaguchi, A. Yoneda, A. Yoshida, and Y.-L. Zhao, Experiment on the Synthesis of Element 113 in the Reaction $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278}\text{113}$, *Journal of Physical Society of Japan* 73 (2004) 2593-2596.
- ② K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, T. Akiyama, S. Goto, H. Haba, E. Ideguchi, K. Katori, H.

Koura, H. Kikunaga, H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, N. Sato, T. Suda, K. Sueki, F. Tokanai, T. Yamaguchi, A. Yoneda, and A. Yoshida, Observation of second decay chain from $^{278}\text{113}$, Journal of Physical Society of Japan 76 (2007) 045001.

- ③ K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, K. Ozeki, Y. Kudou, T. Sumita, Y. Wakabayashi, A. Yoneda, K. Tanaka, S. Yamaki, R. Sakai, T. Akiyama, S. Goto, H. Hasebe, M. Huang, T. Huang, E. Ideguchi, Y. Kasamatsu, K. Katori, Y. Kariya, H. Kikunaga, H. Koura, H. Kudo, A. Mashiko, K. Mayama, S. Mitsuoka, T. Moriya, M. Murakami, H. Murayama, S. Namai, A. Ozawa, N. Sato, K. Sueki, M. Takeyama, F. Tokanai, T. Yamaguchi, and A. Yoshida, New Result in the Production and Decay of an Isotope, $^{278}\text{113}$, of the 113th Element, Journal of Physical Society of Japan 81 (2012) 103201.

<森田博士略歴>

生年月：1957年1月

1979年：九州大学 理学部 物理学科卒業

1984年：九州大学 大学院理学研究科 物理学専攻 博士後期課程満期退学

1984年：理化学研究所 サイクロトロン研究室 流動研究員

1984年：理化学研究所 サイクロトロン研究室 研究員補

1991年：理化学研究所 サイクロトロン研究室 研究員

1993年：博士（理学）（九州大学）

1993年：理化学研究所 サイクロトロン研究室 先任研究員

2006年：理化学研究所 森田超重元素研究室 准主任研究員

2013年：九州大学 大学院理学研究院 教授

2013年：理化学研究所 超重元素研究グループ グループディレクター（兼務）

2019年：理化学研究所 超重元素研究開発部 部長（兼務）

<授賞者へのインタビュー>



(写真：九州大学提供)

113番元素の発見による放射化学への貢献

森田 浩介

九州大学 大学院理学研究院 教授

理化学研究所 超重元素研究開発部 部長

1. 木村賞を受賞したことについて、どのような感想をお持ちでしょうか？

放射化学、核化学の大先輩・巨人である木村健次郎先生の名を冠した賞を受賞するにあたり、大変に光栄に思うと同時に非常に感激しております。この研究は、多くの共同研究者とともになされた研究なので、共同研究者とともにこの賞の受賞を喜びたいと思います。

2. 新元素合成の研究において、どのような事が最も困難だったのでしょうか？

非常に長い時間がかかる研究なので、成果が出ない長い期間に「自分たちのやっていることが本当に正しいことをやっているのか？」と、時には不安になることがあり、それが最も困難なことでした。

3. 新元素を合成するという偉業を達成できた鍵は、どこにあったとお考えですか？

いくつかある中でも大きな鍵は、共同研究者が困難な実験に対して手を抜くことなく、非常に真面目に取り組んで頂いたこと。そして、理化学研究所の研究体制が研究者に大きな自由を与えてくれたので、成果を急かされることなく実験にじっくり取り組ませてもらったことが大きな要因だと考えています。

4. 現在取り組んでおられる119番元素の合成について、意気込みをお聞かせください。

ここ数年間の間に周期表の第7周期が118番元素オガネソンによって完成したので、119番の探索は、周期表の形に第8周期を新たに書き加える

という大きな仕事になるとともに非常に興奮するテーマでもあるので、これまでと同様に力を入れて研究に取り組んでいきたいと考えています。

5. 元素合成以外ではどのような研究にご興味がありますか？

原子力発電所から発生する放射性廃棄物の処理に関する研究など、目に見える形で世の中の役に立つ研究に取り組むことに大変興味があります。

6. 日本放射化学会の若手会員に対して、期待したいことをお聞かせください。

放射化学は基礎研究、応用研究どちらに関してもこれからも人類に求められることが多くあり、沢山やらなければならないことがあると思うので、若い方々にこの方向に興味を持って頂いて、この分野に入っていただきたいと考えています。

7. 放射化学の研究分野に対してはどのようなことを期待しますか？

エネルギー問題や環境問題など解決していく手段として、放射化学や核化学は非常に大きなポテンシャルを持っていると思うので、その点を考えてこれらからも皆さんとともに、研究に携わっていききたいと考えています。

8. 放射化学以外の研究分野との連携について、ご意見をお聞かせください。

核物理や基本構造を扱う素粒子物理学、宇宙物理学などの分野で解決すべき問題に対して、放射化学では「核」を化学という異なった視点からのアプローチで攻めているので、これらの研究分野から大変興味を持たれています。核化学に限らず、異なる視点を持った研究分野が集まって、連携を積極的に深めたら良いと考えています。

113番元素に関連する報道や特集など

- ・ 理化学研究所 公式ページ：<http://www.nishina.riken.jp/113/>
- ・ 理化学研究所 プレス発表：http://www.riken.jp/press/2015/20151231_1/
- ・ 「113番元素の名前が「nihonium」に決定」RIKEN NEWS 427, 12 (2017).

- ・ IUPAC, "Discovery of the elements with atomic numbers greater than or equal to 113", *Pure Appl. Chem.* 83, 1485 (2011).
- ・ IUPAC, "IUPAC is naming the four new elements nihonium, moscovium, tennessin, and oganesson", IUPAC release, 8 June 2016. (<https://iupac.org/iupac-is-naming-the-four-new-elements-nihonium-moscovium-tennessine-and-oganesson/>)
- ・ IUPAC, "IUPAC Announces the Names of the elements 113, 115, 117 and 118", IUPAC release, 30 November 2016. (<https://iupac.org/iupac-announces-the-names-of-the-elements-113-115-117-and-118/>)
- ・ 「理化学研究所において 113 番新元素の合成と確認に成功」森田浩介 *化学と工業*, 65-11, 872 (2012).
- ・ インタビュー「113 番元素の合成に成功した 森田浩介 博士」*現代化学* 2, 24 (2013).
- ・ 連載講座「重元素・超重元素の科学（原子核物理学）」*Radioisotopes* 67, 243 (2018).
- ・ 朝日新聞『新元素発見の森田教授「堂々とニホニウム言える」』2016年12月1日 (https://www.asahi.com/articles/ASJD13CQTJD1TI-PE00H.html?iref=pc_ss_date)
- ・ 日経サイエンス 2016年3月号、2016年8月号
- ・ <特別インタビュー> 森田博士に聞くニホニウムの発見とさらなる探求, *Newton* 別冊『完全図解 元素と周期表』

特集 日本放射化学会第63回討論会 (2019)

学会賞

佐藤 哲也 (日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター)

受賞題目：第一イオン化エネルギー測定によるアクチノイド系列の確立ならびに
超重元素領域における核化学研究の開拓

<授賞理由>

佐藤哲也博士は、高温の金属表面で起こる表面電離過程を応用し、重・超重元素のような低生成量・短寿命同位体に適用可能な第一イオン化エネルギー測定手法を新規に開発するとともに、これを実現する新型表面電離型イオン源を含む一連の実験装置の開発を着実に進めた結果、これまで従来法による測定ができなかった原子番号が100を超える重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギー測定に世界で初めて成功した。

佐藤博士による注目すべき成果のひとつとして、103番元素ローレンシウム (Lr) の第一イオン化エネルギー測定が挙げられる。原子番号が100を超えるような超重元素領域では、その大きな中心電荷に起因する相対論効果の結果、価電子軌道までが影響を受ける場合がある。Lrについては、周期表から予想される電子配置が $[\text{Rn}]7s^25f^{14}6d$ であるのに対し、相対論効果を考慮した理論計算の結果 $[\text{Rn}]7s^25f^{14}7p_{1/2}$ をとる可能性があることが、数十年来指摘されており (J. -P. Desclaux and B. Fricke, *Physique* **41** (1980) 943–946 など)、周期律が成り立たなくなる最初の元素として注目されていた。しかしながら、このような重・超重元素は、重イオン核融合反応によってのみ合成が可能であり、また生成する核種もすべて短寿命であるため、化学的研究にあたっては、原子一個の取扱いが要求される実験的な困難があった。そのため、このLrの周期性からの逸脱は、いくつかの化学的アプローチがなされたものの、これまで実験的に証明されたことはなかった。候補者は、表面電離過程におけるイオン化効率が、元素のイオン化エネルギーに依存することに着目した。実験的に求めたLrのイオン化効率から、イオン化効率-イオン化エネルギーの相関関係を

利用して、Lrの第一イオン化エネルギーを初めて決定したところ、得られた値は 4.96 ± 0.08 eV だった。これと並行して共同研究者が行った相対論計算によって求められたLrの第一イオン化エネルギー 4.963 (15) eV は、得られた実験値を非常によく再現する結果となった。原子一個の取扱いが要求される超重元素化学の領域において、第一イオン化エネルギーが実験的に決定されるのは、本研究が初めてのことである。加えて、この理論計算との一致は、Lrが $[\text{Rn}]7s^25f^{14}6d$ ではなく、電子配置が変わってしまうほどの強い相対論効果の結果 $[\text{Rn}]7s^25f^{14}7p_{1/2}$ をとることを強く示唆するものだった。この成果は、*Nature* 誌 (T. K. Sato et al., *Nature* **520** (2015) 209–211) にて報告されるとともに、同号の表紙を飾った。さらに本成果を受けて、紹介記事が組まれた (A. Türler, *Nature* **520** (2015) 166–167)。超重元素領域での初の第一イオン化エネルギーの成功と、その結果明らかになった電子配置の異常性が注目され、日本化学会学会誌『化学と工業』(佐藤哲也他, *化学と工業*, **68–9** (2015) 824–826) や日本放射化学会誌『放射化学』(佐藤哲也, *放射化学*, **32** (2016) 34–41)、化学同人出版『化学』(佐藤哲也, *化学* (化学同人), **71** (2016) 12–16) 等に解説記事を執筆した。また、2016日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会では、同成果について招待講演を行った。

一連の実験は、候補者が中心となって、原子力機構タンDEM加速器施設に設置されているオンライン同位体分離器 (JAEA-ISOL) を利用して行った。Lrの第一イオン化エネルギー測定実験では、タンDEM加速器からの ^{11}B ビームと ^{249}Cf 標的との重イオン核反応によって合成した ^{256}Lr を、ガスジェット搬送法によって迅速にJAEA-ISOLに

輸送する。ISOLには、本研究のために新規に開発したガスジェット結合型イオン源を装着し、イオン源内に輸送された²⁵⁶Lrを、表面電離イオン化を担うタンタル表面でイオン化する。生成したイオンを、電場によって引き出し、加速・質量分離する。質量分離後のイオンを捕集し、放射線測定により、イオン化効率を決定する。イオン化エネルギーとイオン化効率の相関関係については、第一イオン化エネルギーが既知である種々の短寿命同位体のイオン化効率を測定することによって調べた。

このLrの第一イオン化エネルギーを決定した成果は、実験で対象とする²⁵⁶Lr合成の最適条件の探索 (N. Sato, T. K. Sato, et al., *Radiochim. Acta*, **102** (2014) 211–219)、測定を実現するため新規に開発したガスジェット結合型表面電離イオン源 (T. K. Sato et al., *Rev. Sci. Instrum.*, **84** (2013) 023304) および、超重元素研究に必須な長時間安定実験を可能とする新しいガスジェット搬送法であるHe/CdI₂法の開発 (T. K. Sato et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **303** (2015) 1253–1257) を着実に積み重ねることにより、初めて実現された。ヨウ化カドミウムをエアロゾル粒子として利用するこの新規ガスジェット搬送法は、従来利用されてきたアルカリ金属塩化物 (KCl, NaCl など) や、塩化鉛 (PbI₂) といったエアロゾル粒子が抱えていた、イオン源内への堆積や表面電離過程のかく乱によるイオン化効率の悪化といった問題点を解決した。また、新型表面電離イオン源は、安定性および高温化を達成するために改良を重ねた結果、3000 Kに届くほど到達温度が高いことと、一週間以上の連続実験が可能な長時間安定性とが得られた。これらの成果が評価され、この2つの技術はドイツ・マインツ大学 TRIGA 実験原子炉に設置されているオンライン同位体分離器 TRIGA-ISOL へと導入されることとなった。候補者は、最近新たに設けられた科研費・国際共同研究加速基金 (国際共同研究強化) の第一回に採択され、ドイツ・ヘルムホルツ研究所マインツに客員研究員として滞在し、技術移転を行った。

これらの成果および波及効果に加え、一連の手法を応用し、それまで測定されていなかった100番元素フェルミウム (Fm)、101番元素メン

デレビウム (Md)、そして102番元素ノーベリウム (No) の第一イオン化エネルギーを決定した (T. K. Sato et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **140** (2018) 14609–14613)。本成果により、重アクチノイド元素において5f軌道が原子番号の増大とともに一つずつ満たされ、Noで完全に満たされることを実証した。さらにLr原子が、No原子の準閉殻構造にゆるく結合した最外殻軌道電子を持つことを実験的に示した。このことは、本研究が重アクチノイドの第一イオン化エネルギーの系統的な変化を明らかにしたことで、ランタノイドのもつ傾向との比較によって、103番元素ローレンシウムでアクチノイド系列が終わることを、初めて確かめたことを意味する。

候補者の一連の成果による最大の波及効果は、周期表の構造に関する議論がもたらされたことである。現在周期表上では、71番元素ルテチウム (Lu) および103番元素Lrは、それぞれランタノイド系列およびアクチノイド系列の末端に位置しているが、これは周期表が抱える矛盾点のひとつとして、かねてより指摘されていた (たとえば、B. Schaeffer, *Journal of Modern Physics*, **5** (2014) 117–122 や、W. B. Jensen, *Found. Chem.*, **17** (2015) 23–31)。IUPAC (国際純正・応用化学連合) は、今回のLrの第一イオン化エネルギー測定結果を受けて、LuとLrをランタノイドおよびアクチノイドから除き、新たに3族元素として再配置する可能性について議論を開始し、ワーキンググループを立ち上げ、検討を進めている (B. Mole, *Science News*, **187** (2015) 6–7)。

前述のように、超重元素は、加速器を用いた重イオン核反応によってのみ合成が可能であり、すべて短寿命核種である。この実験的制限のため、その化学的性質はよく知られていない。従来、超重元素の化学的研究は気相中における揮発性分子を対象とした揮発性研究や、液相中における錯形成反応等を用いて進められてきた。しかし今回、候補者が中心となって行った一連の研究により、超重元素領域において新たな核化学研究の道が拓かれることとなった。原子を対象とした超重元素核化学研究は、現在、レーザーを用いた共鳴イオン化法による原子レベル測定を中心に行っているドイツ重イオン研究所を中心とした研究グ

ループ（たとえば、Noのイオン化エネルギー測定, P. Chhetri et al. Phys. Rev. Lett. **120**, 263003 など）と、候補者を中心とした原子力機構の研究グループとが世界に先駆けて進めている状況であり、候補者らがまさに当該分野における最先端の研究を担っている。たとえば、最近のNature誌のFeature Newsに寄せられた「On The Edge of The Periodic Table」と題されたレビューにおいて、最近の注目すべき成果として紹介された4報の論文のうち、候補者の成果が2報を占めている（P. Ball, Nature **565** (2019) 552–555）。

学会へは、2006年日本放射化学学会年会・第50回放射化学討論会実行委員や、放射化学会共催の2011年夏の学校世話人等としての貢献、「放射化学」誌での国際学会報告や留学報告、解説論文等の他、前述したように、2016年日本放射化学学会年会・第60回放射化学討論会における一般公開記念講演で招待講演を行うなどの形で積極的に関わっている。

以上のように、候補者の一連の成果は、核・放射化学分野の発展において極めて大きなブレイクスルーをもたらし、世界的にも特筆すべき成果として注目されるとともに、超重元素における原子を対象とした核化学研究を開拓し、さらには元素周期表の構造に関する議論のきっかけとなった。以上により、候補者による重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギー決定と、それを実現とした一連の研究による核・放射化学分野への寄与は極めて大きいと評価し、選考委員会は、佐藤哲也博士を日本放射化学学会賞を受けるに相応しい人物として強く推薦する。

（日本放射化学会賞選考委員会）

＜学会賞受賞者の紹介＞

佐藤哲也氏は、新潟大学の工藤久昭教授の研究室にて超重元素の化学的研究を開始し、2003年3月に“Studies on the Isothermal Chromatography of Rutherfordium and its Homologues, Zirconium and Hafnium”のタイトルで博士（理学）の学位を取得しています。その後、同年4月に日本原子力研究所（原研）（現日本原子力研究開発機構：原子力機構）の物質科学研究部加速器管理室に研究員として入所配属に

なりました。当時、原研と高エネルギー加速器研究機構（KEK）との間で、オンライン同位体分離器（ISOL）を用いた短寿命放射性同位体ビーム加速プロジェクトTRIAC（Tokai Radioactive Ion Accelerator Complex）が、原研のタンデム加速器施設において実施されていました。佐藤氏はタンデム加速器の保守管理・運転業務に加えて、TRIACプロジェクトの核心部分となる、ISOLを用いた短寿命放射性同位体の取り出し技術の開発に従事しました。ここから本格的にISOLのイオン源開発に取り組むことになり、ここで培った表面電離を用いた短寿命核分裂生成物のイオン化の経験が、本受賞の対象となる重アクチノイド元素のイオン化へと繋がっております。

その後2007年4月から原子力機構の先端基礎研究センターに配属となり、2008年からは超重元素核化学研究グループに加わりました。ここでは当初、自らの学位論文の経験を活かして超重元素の気相化学的研究に取り組み、特に105番元素ドブニウム（Db）の気相化学分離手法の開発を精力的に進めました。また並行して、ローレンシウムのイオン化に向けたイオン源の開発も開始したところでした。しかし気相化学分離装置の完成直前というところで、ローレンシウムのイオン化エネルギー測定に集中することとなり、Dbの気相化学実験は延期することになりました。本人は非常に残念だったと思いますが、結果的にはこれが大ブレイクとなる成果へと繋がっていくこととなります。何が起きるかわからないものです。ただしDbの実験に関しては、2017年に海外からの博士研究員を採用し、佐藤氏の指導のもと実験装置を完成させ、最終的にはDb化合物の揮発性に関する新たな実験結果を取得しています（現在、理論グループと協議中）。本受賞の対象ではありませんが、これも佐藤氏の特筆すべき成果の一つになるでしょう。

ローレンシウムのイオン化実験に際しては、上記授賞理由にある通り、最適な合成核反応の検討やイオン化効率向上のための安定イオン源の開発、核反応生成物の迅速搬送に関わるガスジェット搬送法の改良などを着実に進めました。ここでの取り組みを見て、見かけによらず、じつは地道に着実に知識と経験を積み重ねていく努力家だと

気づかされました。この間、よほどの理由がない限り、ほとんど週末もそして夜も遅くまで頑張っていたのを覚えています（老婆心ながら家庭生活を心配したほどです）。これら一連の研究は国際共同研究を通して行っており、佐藤氏は積極的に海外の研究者とも議論を重ね装置開発や理論的考察などに活かしております。

このように佐藤氏は人一倍の努力家であるばかりでなく、共同研究者などとの議論も活発に行い、自らの主張を述べるだけでなく柔軟に人の意見も取り入れるという素直さがあり、海外も含めた研究者仲間から厚い信頼を得ています。最近では外部資金をもとに、ドイツ・マインツ大やスイス・ポールシェラー研究所で研究生活を行うとともに、新たな国際共同研究の提案を行うなど国際的にも活躍の場を広げているところです。また2019年度からは、茨城大学と東北大学で連携大学院の客員准教授を務めており、学生の教育と指導も行うなど多忙を極めております。

今後佐藤氏は、幅広い視点から超重元素の化学的研究に取り組む計画ですが、なかでもISOLを用いたイオン源内の化学という新たな研究分野の開拓を目指しています。イオン化エネルギーの測定だけでなく、イオン源内の高温金属表面における超重元素の吸着挙動や、超重元素の分子形成などを進めていく意気込みです。世界的な超重元素研究者として活躍していく人材であると確信しています。ぜひ佐藤氏とともに超重元素の化学というチャレンジングな分野で研究したいという学生や若手研究者が現れるのを期待しています。

(永目諭一郎)

＜学会賞受賞者による研究紹介＞



第一イオン化エネルギー測定によるアクチノイド系列の確立ならびに超重元素領域における核化学研究の開拓

佐藤 哲也

日本原子力研究開発機構
先端基礎研究センター

はじめに

このたび、日本放射化学会の2019年学会賞をいただく栄誉に浴し、大変に恐縮しております。本学会賞の対象となった重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギー測定に関する一連の研究は、もちろん私個人が成し遂げたものではなく、たくさんの人が関わって、ともに力を合わせて取り組んだ研究であり、私はたまたま代表として発表させていただく機会を与えていただいたに過ぎません。したがって、いわきで開催された公開講演でもお話させていただきましたが、本賞は私個人ではなく、この研究に携わったすべての人に贈られたものだと思っております。まずはここに、ともに研究を進めてくれた共同研究者の皆さんに、心から感謝したいと思います。

私は、学部4年のときに新潟大学理学部化学科の核化学研究室（工藤久昭助教授（当時））に所属し、超重元素核化学に出会いました。ここで固体表面への揮発性超重元素分子の吸着脱離過程の研究に携わり、大学院まで工藤先生の指導のもと、さまざまな勉強をさせていただきました。当時、現在私が所属する日本原子力研究開発機構（原子力機構）の前身である日本原子力研究所（原研）で、永目諭一郎博士の号令のもと、日本で初めての超重元素研究が開始されたところであり、現在も一緒に仕事をさせていただいている主要メンバーと出会ったのもこの頃のこととなります。博士課程在学中に原研で約1年間、学生実習生として超重元素研究の最先端に触れさせていただいたことがきっかけで、私は研究員として採用されることとなりました。そのころ、原研と高エネルギー加速器研究機構（KEK）との共同で、短寿命同

位体ビーム実験施設 TRIAC プロジェクトが発足しており、その中心となるタンデム加速器施設で RI ビームを発生させるイオン源開発に携わることとなったのです。ここで師事したのが、工藤先生、永目さんに続く第三の師匠ともいべき、市川進一博士でした。市川博士の指導のもとでオンライン同位体分離器 (Isotope Separator On-Line, ISOL) のイオン源開発に取り組んだことが、本学会賞で実現した第一イオン化エネルギー測定へと繋がります。その後、特殊法人改革により、原研と核燃料サイクル機構との統合によって原子力機構となることを機に、再び超重元素化学へと戻ることになり、105 番元素ドブニウム (Db) の気相化学研究を経て、ようやく重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギー研究に携わることとなりました。分子を対象とした気相化学研究から、イオン化エネルギーという原子の性質に視点を移すことになったのは、当時の超重元素研究グループのリーダーであった Matthias Schädel 博士の采配によるものでした。正直なところ、Db の気相化学研究を完遂目前で断念することに些か以上の抵抗を覚えたものでしたが、こうなってみると誠に英断であったと言わざるを得ません。実際、彼がきっかけで、重アクチノイド元素のイオン化エネルギー測定結果を世に広く知らしめることができただけではなく、ドイツ重イオン研究所 (GSI)、スイス ポール・シェラー研究所 (PSI) 等との有機的な連携が生まれ、現在も続く国際共同研究に発展しているのですから。

ここでは、彼ら 4 人の師匠たちと、ともに研究に取り組んだ共同研究者たちに深く感謝しつつ、受賞対象となった一連の研究をご紹介します。

重アクチノイド元素の第一イオン化エネルギーの決定

原子番号が 100 を超える超重元素領域では、原子核近傍に存在確率をもつ s 軌道や $p_{1/2}$ 軌道などにある電子が、中心にある原子核の大きな正電荷によって原子核に強く引きつけられます。その運動は原子番号が大きくなるほど光速に近づき、それにもなって電子の質量は増加し、軌道は収縮します。一方、その外側にある d 軌道や f 軌道を

運動する電子では、これら内側の電子軌道の収縮によって原子核からの静電引力が遮蔽され、軌道が広がります。この効果は相対論効果と呼ばれ、すべての元素に内包されています。

相対論効果によって、原子構造や化学的性質がどのように影響を受けるのか？

そして周期表の極限で元素はどのような化学的性質をもつのか？

この二つの問いは、超重元素の化学における大きなテーマです。しかしながら、超重元素は、加速器を用いた重イオン核反応によってのみ合成が可能であり、その生成断面積は小さく、さらに生成した同位体はすべて短寿命であるために、ごく限られた時間内でのシングルアトムレベルの化学実験・測定を要求されることから、その原子構造はもちろん、化学的性質も未だよくわかっていません。

たとえば、アクチノイド系列末端に位置する 103 番元素ローレンシウム (Lr) では、強い相対論効果の影響によって、その化学的性質が周期表の予想から逸脱する可能性が指摘されてきました。Lr 原子の電子軌道は、ランタノイド元素末端に位置するルテチウム (Lu) から考えると $[\text{Rn}]5f^{14}7s^26d$ と類推できるのに対し、理論計算によって、相対論効果による影響の結果、 $[\text{Rn}]5f^{14}7s^27p_{1/2}$ となることが予想されたのです (図 1)^[1]。このように、Lr は相対論効果によって

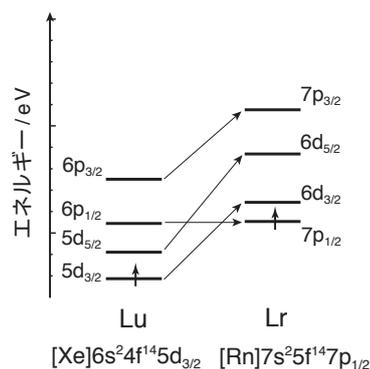


図 1. Lu および Lr 原子の基底および励起状態の最外殻電子軌道のエネルギー準位図。Lu では $5d_{3/2}$ 軌道、Lr では $7p_{1/2}$ 軌道に価電子がひとつ入っている。Lr では、相対論効果によって $7p_{1/2}$ 軌道が安定化する一方で、 $6d$ 軌道が不安定化するため、エネルギー準位の入れ替わりが起こる。

基底状態の電子配置が周期性から逸脱する最初の元素であると予想されています。元素の化学的性質は主に最外殻電子軌道によって特徴づけられます。これまで揮発性研究などの間接的な方法によりこの逸脱を確認する試みがなされてきましたが、成功した例はなく、原子構造も不明なままでした。同様に、100番元素フェルミウム (Fm)、101番元素メンデレビウム (Md) および 102番元素ノーベリウム (No) についても、原子構造が実験的に確かめられた報告はありませんでした。

我々は、このような超重元素の原子構造に関する情報を得るため、第一イオン化エネルギー (IP_1) に着目しました。 IP_1 は、原子の物理・化学的性質をあらわすもっとも基本的な物理量のひとつであり、最外殻電子の原子への束縛エネルギーの大きさを反映します。加えて、理論計算の結果として直接導出できる数少ない物理量の一つであることから、実験的に IP_1 を求めることができれば、理論値との直接比較によって原子構造を推定することが可能となるだけでなく、相対論効果の影響を見積もることができます。

しかし、従来 IP_1 測定に用いられてきた共鳴イオン化法や電子衝撃法などは、すべてマクロ量を対象としたものです。超重元素のように単一原子しか取り扱えない系には適用が非常に困難であり、その難しさが実現を阻んできました。事実、100番元素 Fm 以降の IP_1 は測定されていませんでした。このように、重アクチノイドの IP_1 決定にあたっては、まったく新しいアプローチが必要となります。

我々は、高温の金属表面で起こるイオン化過程である表面電離過程に注目し、イオン化効率と IP_1 間の相関関係を利用して、Lr など重アクチノイド元素の IP_1 測定を試みました。

a) 表面電離過程を利用した IP_1 測定手法の開発

高温の金属表面に原子が接触したとき、金属表面と原子との相互作用によって、対象原子のイオン化が起こることが知られています。この現象は表面電離過程^[2]と呼ばれており、そのイオン化効率は金属表面の仕事関数、温度、そして対象元素のイオン化エネルギーに依存します。ある小さなイオン化室内で表面電離を行う場合、イオン化

効率 I_{eff} は、

$$I_{\text{eff}} = \frac{N \exp\left(\frac{\phi - IP_1^*}{kT}\right)}{1 + N \exp\left(\frac{\phi - IP_1^*}{kT}\right)} \quad (1)$$

とあらわすことができます (Saha-Langmuir 式)。このとき ϕ は金属表面の仕事関数 [eV]、 N は原子と壁面との有効衝突回数であり、 k 、 T はそれぞれ Boltzmann 定数および金属の表面温度 [K] です。 IP_1^* は実効イオン化エネルギーとよばれ、

$$IP_1^* = IP_1 - kT \ln(Q_i/Q_0) \quad (2)$$

と定義されます。なお、 (Q_i/Q_0) はイオンと原子の軌道電子の分配関数の比をあらわしています。種々の IP_1 既知の元素についてイオン化効率 I_{eff} をあらかじめ測定することで、式 (1) で表される I_{eff} と IP_1 の相関関係が得られます。得られた関係を用いて、実験で求められた対象元素のイオン化効率から IP_1 を決定することが可能となります^[3]。

b) 新型ガスジェット結合型表面電離イオン源と周辺システムの開発

表面電離法による IP_1 測定を実現するために開発した実験装置の概略図を図2に示します^[4,5]。本システムは、原子力機構タンデム加速器に設置されているオンライン同位体分離器 (JAEA-ISOL) をもとに構築されています。核反応槽および He/CdI₂ ガスジェット搬送システム、ガスジェット結合型表面電離イオン源を装着した ISOL および高効率測定システムからなります。核反応で合成した短寿命核反応生成物は、He/CdI₂ ガスジェット搬送法によって表面電離イオン源へと運ばれます。この He/CdI₂ ガスジェット搬送法も、我々のグループでガスジェット結合型イオン源のために開発したものです^[6]。イオン源内では、タンタル製イオン化室表面で表面イオン化を行います。生成した表面電離イオンは、電場によって引き出され、質量分離後、放射線測定によってイオンビーム収量を測定されます。このイオンビーム収量と、別途求めた直接搬送量との比から、イオン化効率 I_{eff} を求めました。ここで

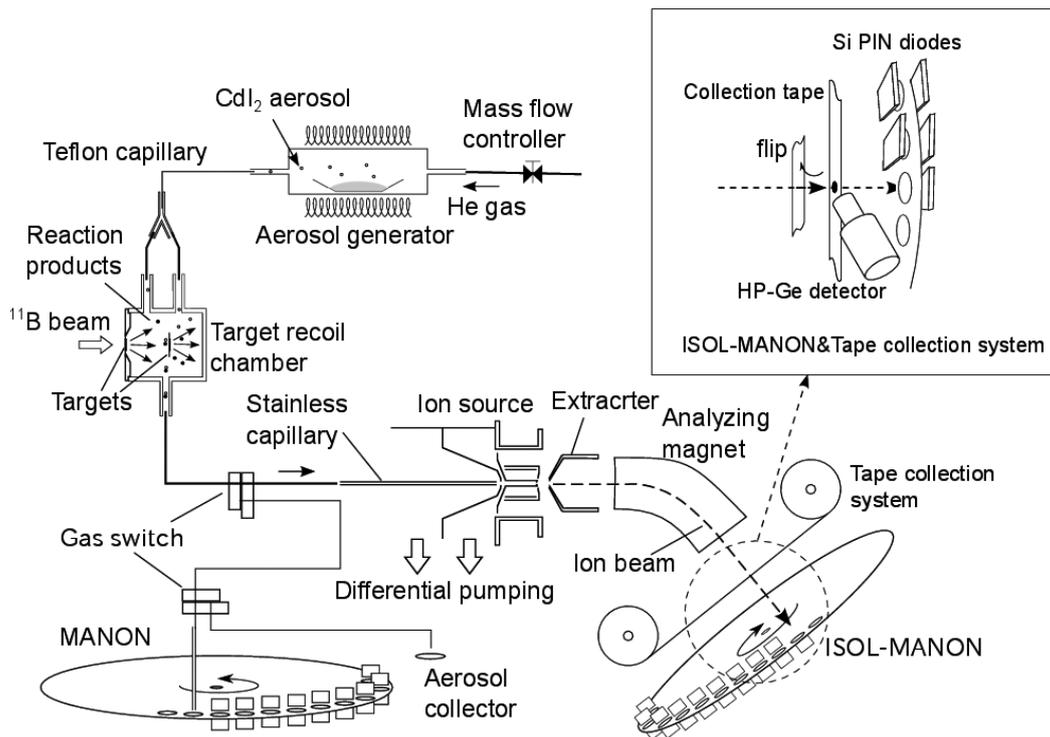
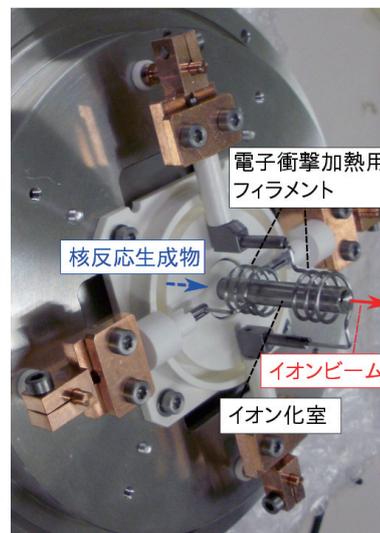


図 2. 実験装置概略図

カギとなるのが、新たに開発したガスジェット結合型表面電離イオン源（写真 1）です^[4]。

このイオン源では、従来型からフィラメントの配置などを全面的に見直し、イオン化室の温度均一性と高温化を目指しました。短寿命希土類核種を用いて分離効率を測定したところ、イオン化効率に改善が見られました。たとえば Lr と挙動が似ていると期待されている Lu では、2.5 倍の収率改善が得られました（表 1）^[5]。このイオン源は、その到達温度（2800 K 以上）と安定性が買われ、ドイツ マインツ大学のもつ TRIGA 原子炉に設置されている核分裂核種分析用ガスジェット結合型 ISOL に導入され、精密質量測定実験用への利用が開始されました。

写真 1. 開発した新型表面電離イオン源^[4]

c) 重アクチノイド元素イオン化エネルギー測定

我々は、アクチノイド標的 ^{248}Cm , ^{243}Am , および ^{249}Cf に重イオンビームを照射して、 ^{249}Fm （半減期 2.6 分）、 ^{251}Md （半減期 4.27 秒）、 ^{257}No （半減期 24.5 秒）、そして ^{256}Lr （半減期 27 秒）を合成し、本手法を適用しました^[3, 6]。一例として、Lr について得られた測定結果を図 3 に示します。この

表 1. 種々のランタノイド同位体の分離効率^[5]

同位体	半減期	効率 / %	
		旧型	新型
$^{142/143}\text{Eu}$	1.2/2.6 分	12 ± 2	16 ± 3
$^{166\text{m}/\text{g}}\text{Lu}$	2.7/1.4 分	2 ± 1	
$^{168\text{m}/\text{g}}\text{Lu}$	6.7/5.5 分		5 ± 1
^{143}Sm	66 秒	3 ± 1	15 ± 3
$^{140\text{m}}\text{Pm}$	6 分	6 ± 1	12 ± 2

結果、Lrの IP_1 を 4.96 ± 0.05 eV^[3,6]と決定することに成功しました。また、同様にFm, MdおよびNoの IP_1 として、それぞれ 6.52 ± 0.13 , 6.59 ± 0.13 , および 6.63 ± 0.07 eVを得ました^[6]。なお、Fm, MdおよびLrの IP_1 決定は世界でも初めての成果です。実は、Noの IP_1 測定自体は我々のグループが先行したのですが、議論に必要な理論計算に手間取り、革新的な共鳴イオン化法を用いたGSIのグループに論文発表で競り負けてしまったという苦い思い出があります。

重アクチノイドおよび重ランタノイド元素について、原子番号に対する IP_1 の変化を、本実験で得られた実験値と共に図4に示します^[6]。図からわかるように、原子番号が大きくなるにつれ、アクチノイド元素の IP_1 は単調に増加し、Noで最大となったのちLrで急激に小さくなります。これは、原子番号が増えるにしたがって5f軌道に電子がひとつずつ充填され、Noで準閉殻構造をとり、さらにLrが、Noの準閉殻構造にゆるく束縛された電子を一つもつことに対応することを明確に示したものです。原子番号に対する IP_1 の同様な変化は、重ランタノイド元素でも見て取ることができます。この傾向の類似性から、Lrがアクチノイド系列最後の元素であることを、初めて

実験的に確かめることができました。

さらに、前述の通り、本研究において決定したLrの IP_1 値は 4.96 ± 0.05 eVであり、アルカリ金属に匹敵するほど小さいものでした。この値は、相対論効果を考慮した最新の理論計算によって得られた 4.963 (15) eVと非常によく一致し、Lr原子が原子構造[Rn]5f¹⁴7s²7p_{1/2}をもつことを強く支持する結果となりました。すなわちこの実験結果は、強い相対論効果の影響によって、Lrの価電子軌道が周期表から予想される6dではなく、7p_{1/2}となっていることを強く示唆するものです。以上の成果は、超重元素領域ではじめて原子構造に関する知見を得たとして大きなインパクトを与え、Nature誌に掲載されるとともに、同号の表紙を飾ることとなりました。(図5)。

周期表が書き換えられる？

先に述べたように、Lrはアクチノイド最後の元素として周期表に記載されています。しかし、G. T. Seaborgが“アクチノイドの概念”を提唱して約70年、実験的にLrが最後のアクチノイドにふさわしい性質をもつことが実証された例はありませんでした。今回、Lrまでの IP_1 が求められたことで、ついにアクチノイドがLrで終わるこ

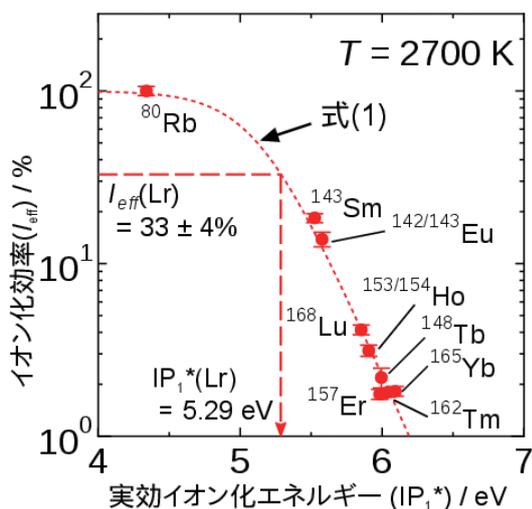


図3. イオン化室金属表面温度2700 Kにおける実効イオン化エネルギーに対する短寿命同位体のイオン化効率の変化。同条件下で測定したLrのイオン化効率(33 ± 4%)から求められる実効イオン化エネルギー($IP_1^* = 5.29$ eV)より、式(2)を用いてLrの IP_1 を決定した^[3]。

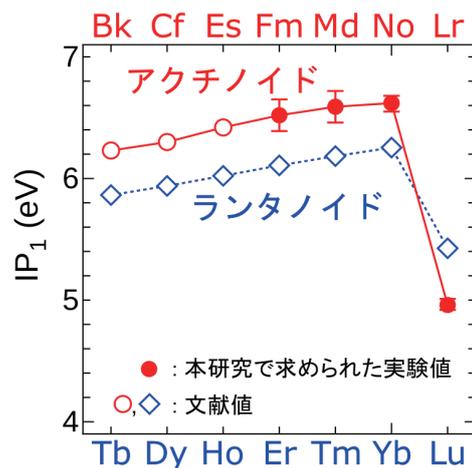


図4. 原子番号に対する第一イオン化エネルギーの推移^[6]



図 5. Nature520 号. Lr の第一イオン化エネルギー測定に関する成果^[3]が掲載された。

とを示すことができました。

ところが、ここでひとつの議論が再燃しました。それが Lu と Lr の周期表上での位置に関する問題です。IUPAC 公式のものをはじめ、現在の周期表では、ランタノイドは La から始まり Lu で終わり、アクチノイドはアクチニウム (Ac) から始まり Lr で終わります。それぞれ 15 元素からなる元素群 (内部遷移金属) として、遷移金属である 3 族のスカンジウム (Sc) およびイットリウム (Y) の真下に置かれ、別表として記載されています。しかし、かねてより Lu と Lr をランタノイドおよびアクチノイドと区別し、Sc および Y とともに 3 族元素とすべきという指摘がありました^[7]。この指摘は、周期表 (長周期表) が超長周期表の短縮形であることを考えるともっともであるようにも思われます。また周期律の観点からも、化学的性質から考えれば少なくとも Lu を 3 族に据えることが妥当であるとの主張もあります。今回、Lr の IP_1 決定は、これらの議論にひとつの材料を与えることになりました。

その一方、本研究によって、Lr は d 軌道ではなく p 軌道を最外殻にもつことが強く示唆されました。IUPAC によって、遷移金属は「原子が完全に満たされていない d 軌道をもつ、あるいは完全に満たされていない d 軌道によって陽イオンになることができる」と定義されています^[8]。

この定義からは、Lr は遷移金属にあてはまらず、最外殻電子軌道だけみれば典型元素である 13 族に類似します。このように、Lr の周期表における位置に関する議論は、原子番号が 100 を超える元素について周期表をどう捉えていくべきかを考えるよいテストケースになります。

我々の成果がきっかけとなって、IUPAC は Lu と Lr の周期表上の位置について議論を開始しました^[9]。何年か後には、化学者にとっての「地図」である元素周期表が書き換わるかも知れません。楽しみにしつつ続報を待っているところです。

おわりに

2016 年、ついに周期表第 7 周期が完成し、我々は新しい周期へと足を踏み出しました。化学の末席を汚す者として、この歴史的な瞬間に立ち会えたことは幸運でした。そして、超重元素の化学に携わり、その歴史的瞬間と時期を同じくして超重元素研究にひとつの足跡を残せたことは、最高の名誉であるとともに、一生に一度しかないこの機会を与えてくれた方々に感謝の言葉しかありません。

冒頭で述べたように、一連の研究成果はたくさんの共同研究者との連携によってもたらされたものです。深い専門的知識と経験で一連の研究の達成に尽力してくれた浅井雅人博士 (原子力機構)、博士研究員期間を Lr 実験の立ち上げに捧げた “Nh girl” 佐藤 望博士 (理研)、グループのまとめ役として、陰に日向に研究を支えてくれた塚田和明博士 (原子力機構)、誰が欠けても一連の研究は完遂できませんでした。そして、加速器実験における豊嶋厚史教授 (大阪大) や大江一弘博士 (大阪大)、阪間 稔教授 (徳島大) らによる多大なるサポート、学生さん達の献身的な実験参加、長 明彦博士 (原子力機構) 率いる原子力機構タンデムのスタッフによる安定・高品質なイオンビーム、A. Borschevsky 教授 (Groningen 大) をはじめとする理論グループによる最新の理論計算、市川進一博士 (理研)、T. Stora 博士 (CERN ISOLDE) による長年のイオン源開発経験をもとにした的確なコメント、そして、永目諭一郎博士 (原子力機構) による研究および論文執筆全般にわたる根気強いサポートと、M. Schädel 博士

(GSI)、Ch. E. Düllmann 教授と J. V. Kratz 教授 (マインツ大) による論文のブラッシュアップ、どれをとってもこの研究を実現するために欠かせないものでした。ここに、改めて篤く感謝申し上げます。最後に、日本放射化学会賞選考委員会には、このような栄誉ある賞の受賞の機会を与えてくださったことに、深くお礼を申し上げます。

- [1] J. -P. Desclaux & B. Fricke, *J. Phys.* 41, 943 (1980).
- [2] たとえば, É. Y. Zandberg & N. I. Ionov, *Sov. Phys. Usp.* 2, 255 (1959).
- [3] T. K. Sato, et al., *Nature*, 520, 209 (2015).

- [4] T. K. Sato, et al., *Rev. Sci. Instrum.* 84, 023304 (2013).
- [5] T. K. Sato, et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 303, 1253 (2015).
- [6] T. K. Sato et al., *J. Am. Chem. Soc.* 140, 14609–14613 (2018).
- [7] (23) W. B. Jensen, *J. Chem. Edu.* 59, 634–636 (1982).
- [8] IUPAC. *Compendium of Chemical Terminology*, 2nd ed. (the "Gold Book"). <https://doi.org/10.1351/goldbook>.
- [9] *Chemistry International*, 38, 22–23 (2016).

特集 日本放射化学会第63回討論会(2019)

奨励賞

日下 良二 (日本原子力研究開発機構 (JAEA) 原子力基礎工学研究センター)

受賞題目: 振動和周波発生分光法を用いたランタノイドおよびアクチノイド研究の界面化学への展開

<授賞理由>

固体と液体の界面(固液界面)や液体と液体の界面(液液界面)など、異なる2相が接触した不均一な境界領域は、様々な化学反応が起こる場として非常に重要である。ここで界面といっても様々な厚みの界面領域を想定できるが、化学反応にとって特に重要な界面の厚さ領域は、一般的な化学物質などの分子の大きさと同程度である約1 nm程度の厚さと考えられる。しかしながら、分子の大きさと同程度の極薄の界面領域において、化学物質の様子を観察し、どの様なメカニズムで界面における化学反応が進むかを明らかにすることは、従来の一般的な実験手法では困難である。そこで日下博士は、非線形光学効果を利用した先進的なレーザー分光法の1つである、振動和周波発生(Vibrational Sum Frequency Generation: VSFG)分光法を用いることによって、1 nm程度の厚さの界面領域に存在する化学物質の構造や存在状況、反応性が、水相中などのバルク中とは異なることを示してきた。近年では、その応用範囲をランタノイド(Ln)やアクチノイド(An)の化学に広げて、様々な界面での化学に研究を展開している。特にこれらの元素では、環境中における移行・拡散や固液界面への吸着・脱離の化学反応が重要であり、また溶媒抽出法によるLnやAnの分離にとって水相と有機相の液液界面を介して水相から有機相に移動する反応は重要である。しかしながら、これまでのVSFG分光法を用いた研究は、細胞膜界面などにおける軽元素の化学に注力しており、LnやAnなどの重元素の界面化学に関する研究へ適応した例は世界的に非常に限られていた。特にAnに対しては、Anを取り扱う技術とVSFG分光法を行うための高度なレーザー光学実験技術を同時に有する必要があるため、これまでに報告例はない。このよう

な中で日下博士は、2016年に日本原子力研究開発機構に入所後に、Anを取り扱う技術と、これまでの研究経験によって培ってきたVSFG分光法を行うための高度なレーザー光学実験の知識と技術を融合することで、VSFG分光法を用いたLnやAnの界面化学研究を始動し、新しい放射化学の研究分野を開拓した。本研究によって、AnのVSFG分光測定に世界で初めて成功し、従来のX線源や赤外線などを用いた実験方法では得られない、約1 nmという極薄の界面領域におけるLnおよびAnの化学状態や挙動を明らかにしてきた。これらの取り組みから、未知のLnおよびAnの界面化学に関する新しい知見を明らかにするためには、VSFG分光法が有効であることが分かった。

具体的な研究としては、放射性廃棄物などに含まれるLnやAnの分離に用いられる溶媒抽出法の性能の向上を目指して、LnやAnが水相から有機相へ移動する溶媒抽出メカニズムを明らかにした。水溶液に溶解したLnやAn(イオン)は、有機相と水相の界面を介して、抽出剤という化学物質と錯体を形成し、水相から有機相に抽出される。しかしながら、LnやAnが、有機相と水相の界面において、まさに有機相中へ抽出されて行く様子を捉えることは非常に困難である。このため、これまでは界面でどのようなことが起こることによって水相から有機相にLnやAnが移動するのかが分かっていなかった。そこで日下博士は、有機相を取り除いた界面にVSFG分光法を適応する実験研究法を着想した。VSFG法を用いることによって、バルク相中に存在する金属錯体とは区別して、約1 nmという極薄の界面領域におけるLnやAnがどのような状態で存在しているのかを調べ、水相から有機相へLnやAnが抽出される新しいモデルを提唱した。これらのLnやAnに適用した成果は、2018年には2編の論文としてまとめられ、

今後さらなる発展が期待される。

このように日下氏は、VSFG分光法によってLnやAnの研究を界面化学に展開することに成功し、放射化学分野における新しい界面化学を切り拓き、将来の発展が大いに期待される若手研究者である。そのため日本放射化学会は、日下良二博士に日本放射化学会奨励賞を授与することに決した。

(日本放射化学会賞選考委員会)

<奨励賞受賞者の紹介>

日下良二さんは2003年に広島大学理学部化学科に入学、その後、同大大学院博士課程に進学されました。大学では、江幡孝之教授(構造物理化学研究グループ)指導の下、研究の世界に足を踏み入れました。広島での学生時代、彼はレーザー分光により分子の形を捉える分子分光の研究を始めました。分子骨格が柔らかい構造のクラウンエーテルがどの様に空孔内に他分子を取り込むのか、その詳細な構造を明らかにすることは、溶液中などで構造が揺らいでしまうため、大変難しい。日下さんは、超音速ジェット法により気相真空中でクラウンエーテルが分子を空孔内に取り込んだ構造で固定し、種々のレーザー分光測定を行うことにより構造を明らかにし、学位を取得しました。

博士課程修了後、2012年からは、パデュー大学で博士研究員として渡米しZwier教授指導の下、引き続き分子分光の研究を進めます。具体的には、気相中において多光子共鳴イオン化法などのレーザー分光法を駆使することにより、 β -アミノ酸や γ -アミノ酸が組み込まれた人工合成ペプチドの電子スペクトルおよび赤外スペクトルを観測し、配座空間探索プログラムや量子化学計算を用いて解析することにより、人工合成ペプチドの安定配座構造を決定しました。2年間博士研究員として研究を行った後、彼は、研究の新たなステージに飛び込みます。理研の田原太平主任研究員の主宰する田原分子分光研究室に基礎科学特別研究員として、分子分光の場を界面に移し研究を行います。奇しくも当時私は、新しく採択された科研費で界面分光を行おうとしており、田原先生に教えを乞いにお邪魔する機会が何度かありました。そのご縁で、日下さんをご紹介いただき、JAEAにて一緒に仕事ができることになりました。さて、そ

の理研では、空気/水界面で起こる化学反応を解明するため、今回受賞した分光法であるヘテロダイン検出振動和周波発生分光法を利用し、空気/水界面における電子の水和構造や空気/水-フェノール界面の分子構造を明らかにし、界面を対象とする分光法について研鑽を積みました。

今回の受賞にある溶媒抽出における界面での分子構造の成果は、彼が、JAEAに赴任して、1から構築したヘテロダイン検出振動和周波発生分光装置を使用して得られた成果です。環境を整えるため、我慢強く毎日実験室にこもっていた彼の姿を思い出します。その中で、日下さんは、界面での反応が、これまで考えられてきたメカニズムとは少し異なるのではないかということを見出さず、その成果が認められ今回奨励賞を受けるに至りました。

ご自身は、「界面分光で、放射化学研究に貢献していきたい。」と考えており、界面での現象が課題となっている様々な問題に分光学で貢献していつてくれるものと期待しています。この受賞を励みに更なる高みを目指して、今後も放射化学研究を分光学的側面からけん引していく人物になっていくことは間違いありません。今後、日下さんがこの手法を更に発展させ、材料化学、地球化学、錯体化学など様々な化学分野に分子分光で貢献して行く姿を思い描いております。

さて、最後に日々日下さんと働いていて思うことを。彼の尊敬できる場所は、その我慢強さ、根気強さです。非常に感心させられるのは、数多くの論文のなかから「これだ」と決めたキーとなる論文や専門書を穴の開くように熟読すること。彼ほど何度も同じ論文を熟読する研究者を今まで見たことがありません。彼のデスクの周りには、何度も読んでボロボロになった論文のコピーが散見されます。その姿勢に、私も教えられるところが多々あります。普段は、子煩悩な三人のお子さんのよきお父さんの彼ですが、奥様がいないと服を裏表逆に着ているようなお茶目な面もあります。家族の支えが、よい研究を生むのだと吉野さんのノーベル賞の受賞報道を見ても思います。家族への感謝を忘れずこれからも邁進していつてほしいと思います。

(渡邊雅之)

＜奨励賞受賞者による研究紹介＞



振動和周波発生分光法を用いたランタノイドおよびアクチノイド研究の界面化学への展開

日下 良二（日本原子力研究開発機構（JAEA）原子力基礎工学研究センター）

固体と液体の界面（固液界面）や液体と液体の界面（液液界面）など、異なる2相が接触した不均一な境界領域は、多様な化学反応が起こる場であり、あらゆる分野において非常に重要な役割を果たしている。“界面”と一口に言っても測定可能な厚さ領域を“界面”と定義することが多いが、一般的な化学反応にとって特に重要な厚さ領域は、化学物質の分子程度の大きさである約1 nmの厚さ領域である。しかしながら、分子の大きさと同程度の極薄の界面領域を観察し、どのようなメカニズムで化学反応が起こるのかを明らかにすることは従来の実験手法では困難である。特に液体界面（気液、固液、液液界面）は、真空中に導入して光電子分光法などの一般法により分析を行うことは非常に困難である。そこで私は、非線形光学効果を利用した先進的なレーザー分光法である、振動和周波発生（Vibrational Sum Frequency Generation: VSFG）分光法^[1-5]を用いることによって、1 nm程度の厚さの液体界面領域に存在する化学物質の構造や存在状況、反応性が、水相中などのバルク中とは異なることを示してきた^[6-9]。

ランタノイド（Ln）やアクチノイド（An）の化学においても界面が重要な働きを担っていることは論を俟たない。例えば、環境中でのLnやAnの移行や拡散では、固液界面への吸着や脱離の化学反応は重要であり、溶媒抽出法によるLnやAnの分離では、水相と有機相の液液界面を介して水相から有機相に移動する反応は重要である。しかしながら、これまでのVSFG分光法を用いた研究は、細胞膜界面などの軽元素の化学にその主眼が置かれており、LnやAnなどの重元素の界面化学に関する研究へ適応した例は国内外を探しても非常に限られている。特に、Anに対

しては、Anの管理や取扱の技術とVSFG分光法を行うための高度なレーザー分光実験技術を同時に有する必要があるため、これまでに報告例は無かった。そこで私は、日本原子力研究開発機構に入所し、Anの管理や取扱の技術と、これまでの研究経験によって培ってきたVSFG分光法を行う実験技術とを融合することで、VSFG分光法を用いたLnやAnの界面化学研究を始動し、新しい放射化学の研究分野を開拓した。本研究によって、AnのVSFG分光測定に世界で初めて成功し、従来のX線や赤外線などを用いた実験方法では得られない、約1 nmの液体界面領域におけるLnおよびAnの様子や挙動の解明を可能にした。さらに、これまでに知られていないLnおよびAnの界面化学に関する新しい知見を明らかにするためには、VSFG分光法が有効であることを示した^[8-9]。

具体的には、放射性廃棄物等に含まれるLnやAnの分離に用いられる溶媒抽出法の性能の向上を目指して、LnやAnが水相から有機相へ移動する溶媒抽出メカニズムを明らかにした。図1(a)のように、水溶液に溶解したLnやAn(イオン)は、有機相と水相の界面を介して、抽出剤という化学物質と錯体を形成し、水相から有機相に抽出される。しかしながら、LnやAnが、有機相と水相の界面に於いて、まさに有機相中へ抽出されて行く様子を捉えることは非常に難しいため、界面で何が起こることによって水相から有機相にLnやAnが移動するのか分かっていなかった。

この課題を解決するために私は、図1(b)のように、有機相の無い界面にVSFG分光法を適応する実験研究法を着想した。有機相が存在しないので、LnやAnは有機相に抽出されず、界面にトラップして留めることができる。また、抽出剤は界面活性であるため界面に集まり、空気/水-抽出剤の界面を形成するが、この界面は実際の溶媒抽出の有機相/水-抽出剤の界面と非常に似た環境であるため、空気/水-抽出剤の界面は、溶媒抽出の界面の非常に良いモデル系である。すなわち、空気/水-抽出剤界面にLnやAnをトラップし、VSFG法を用いることによって、バルク相中に存在する金属錯体とは区別して、約1 nmの界面領域に於けるLnやAnがどのような分子構造

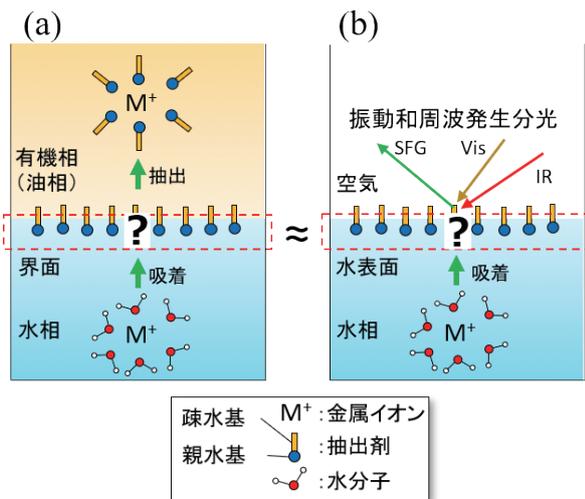


図 1 (a) 溶媒抽出モデル (b) 本研究の実験方法

で存在しているのか明らかにした。さらに、明らかにした界面の状態から、水相から有機相へ抽出される新しいモデルを提唱した。

論文 [8] では、VSFG 分光法により観測した空気 / 水 - 抽出剤界面の水の OH 伸縮振動のバンド (図 2 (a)) が、水相中のユウロピウムイオン (Eu^{3+}) の濃度が増加すると顕著に変化することを突き止めた。これは Eu^{3+} が界面に吸着するにつれ、界面の水の構造が大きく変化することを示している。図 2 (a) の縦軸に対応する $\text{Im}\chi^{(2)}$ (二次の非線形感受率の虚部) は、水の OH 伸縮振動のバンドの符号が正の時、界面の水分子は OH 基を上に向けていることに対応し、符号が負の時、OH 基を下に向けていることを示している^[10]。このことから、界面に Eu^{3+} が吸着すると、 Eu^{3+} は図 2 (b) の様な抽出剤と水分子に挟まれた界面特有の錯体を形成していると結論した。さらに、 Eu^{3+} は界面で図 2 (b) の様な金属錯体を形成することが引き金となって、有機相に抽出されていく抽出モデルを構築した。

論文 [9] では、ウラン (VI) の溶媒抽出を対象に研究を行った。図 3 は VSFG 分光法により得られた空気 / 水 - 抽出剤界面の振動スペクトルであり、抽出剤である TBP の P = O 伸縮振動のバンドを観測した結果である。TBP がウランと結合すると 1190 cm^{-1} 付近にバンドは現れることが分かっている。しかしながら、ウランが高濃度に存在する条件でも、TBP の P = O のバンドは

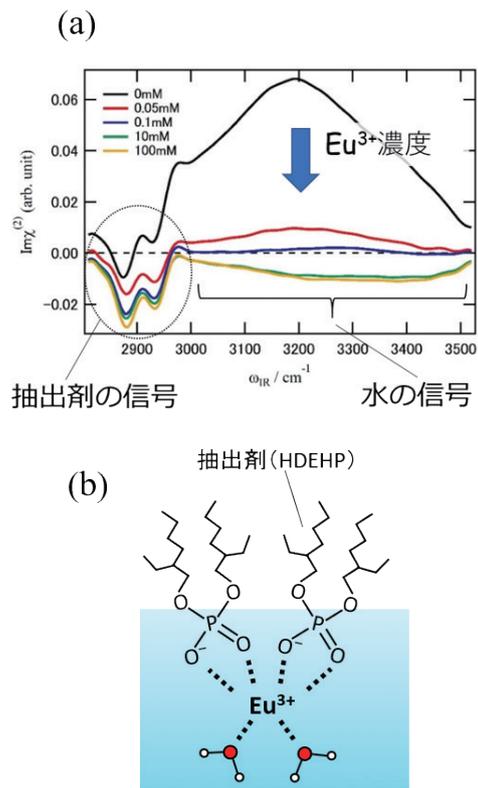


図 2 (a) VSFG 分光法により得られた空気 / 水 - 抽出剤界面の振動スペクトル (b) 界面で形成した Eu 錯体の構造 (Physical Chemistry Chemical Physics, 20, 2809, 2018 から許可を得て転載, Copyright 2018, The Royal Society of Chemistry)

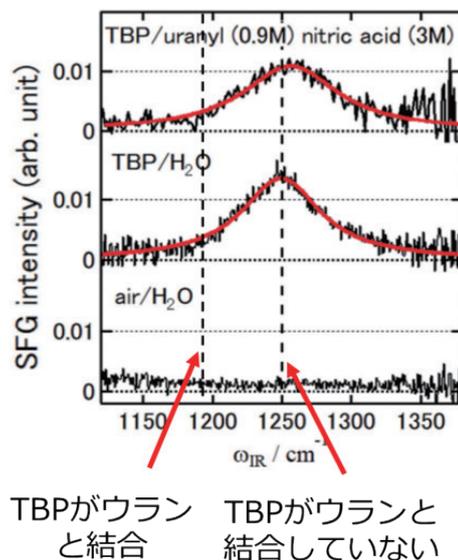


図 3 VSFG 分光法により得られた空気 / 水 - TBP 界面の振動スペクトル (Physical Chemistry Chemical Physics, 20, 2809, 2018 から許可を得て転載, Copyright 2018, The Royal Society of Chemistry)

1250 cm⁻¹付近に観測され、ウランはTBPと界面で錯体を形成しないことを示した。これまでの様々な分子動力学シミュレーションの研究^[11-14]では、ウラン(VI)は界面でTBPと錯体を形成することで有機相に抽出されるモデルが提唱されていたが、本研究はこれを実験的に初めて検証し、従来の抽出モデルに異を唱えた。代替りの抽出モデルとして、ウラン(VI)は有機相に移動した後に、有機相中でTBPと錯体を形成し、抽出が完了するという新たな抽出モデルを提示した。

本研究ではVSFG分光法をLnやAn研究の界面化学への展開に成功し、これまでの結果から、VSFG分光法は、LnやAnの界面化学に関する新しい情報が得られる強力な方法であることを示した。今後も引き続き溶媒抽出系の研究を継続し、界面で形成したより詳細なLnやAn錯体の構造を明らかにすることで、界面を利用した溶媒抽出法の性能を高める基盤を構築することを目指す。さらには、固液界面に研究を展開させ、吸着したLnやAnがどのような構造で吸着しているのかを明らかにすることで、環境中の移行、拡散の予測に役立つ研究を目指す。

本研究を進めるにあたり、放射線管理区域での振動和周波発生分光法の構築に関して、日本原子力研究開発機構の木村貴海様、渡邊雅之様、青柳登様、東京大学の齊藤拓巳准教授には多大なるご支援を頂きました。深く感謝いたします。また、日本原子力研究開発機構の明石優佳里様には、アクチノイドの実験のサポートをして頂きました。感謝申し上げます。さらに理化学研究所の田原太平様、二本柳聡史様には、私が博士研究員のとき振動和周波発生分光法を用いた研究をさせて頂きました。この経験が本研究に繋がりました。この

場をお借りして深く感謝申し上げます。本研究はJSPS科研費JP26249148, JP17K14919の助成を受けたものです。

参考文献

1. K. B. Eisenthal, *Chemical Reviews*, **96**, 1343, **1996**.
2. G. L. Richmond, *Chemical Reviews*, **102**, 2693, **2002**.
3. Y. R. Shen, et al., *Chemical Reviews*, **106**, 1140, **2006**.
4. S. Nihonyanagi, et al., *Annual Review of Physical Chemistry*, **64**, 579, **2013**.
5. Y. R. Shen, *Annual Review of Physical Chemistry*, **64**, 129, **2013**.
6. K. Matsuzaki, et al., *Journal of the American Chemical Society*, **138**, 7551, **2016**.
7. R. Kusaka, et al., *Physical Chemistry Chemical Physics*, **20**, 3002, **2018**.
8. R. Kusaka, et al., *Physical Chemistry Chemical Physics*, **20**, 2809, **2018**.
9. R. Kusaka, et al., *Physical Chemistry Chemical Physics*, **20**, 29588, **2018**.
10. S. Nihonyanagi, et al., *The Journal of Chemical Physics*, **130**, 204704, **2009**.
11. M. Jayasinghe, et al., *Journal of Physical Chemistry B*, **113**, 11662, **2009**.
12. X. Ye, et al., *Physical Chemistry Chemical Physics*, **12**, 15406, **2010**.
13. G. Benay, et al., *Journal of Physical Chemistry B*, **118**, 3133, **2014**.
14. P. Sahu, et al., *Physical Chemistry Chemical Physics*, **18**, 23769, **2016**.

特集 日本放射化学会第63回討論会 (2019)

奨励賞

小林 大志 (京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻)

受賞題目：4価アクチノイドの錯生成および溶解度に関する熱力学的研究

<授賞理由>

小林博士は、アクチノイドの溶液化学研究、特に化学的制御が難しい4価アクチノイドの錯生成や溶解度に関わる熱力学的研究を推進している。4価アクチノイドの錯体や固相の生成メカニズムの解明および熱力学定数に基づくその定量的な記述は、高レベル放射性廃棄物や使用済燃料から溶出したアクチノイドの環境中での移行挙動を把握する際に不可欠であり、小林博士は、これらの分野で将来の発展が期待される優れた業績をあげている。

具体的には、4価アクチノイドやその化学アナログを用いて、多核錯体を含む加水分解種の錯生成定数を予測する半経験的モデルを構築し、溶存化学種を質量分析法により直接定量することで、同モデルの妥当性を検証することに成功した。これは、環境中での4価アクチノイドの溶存種の安定性および状態の予測に有用である。また、天然腐植物質のモデル物質として、化学構造が異なる種々の有機酸に着目し、アクチノイドとの錯生成反応、溶存種ならびに沈殿固相の化学状態、および溶解度に及ぼす有機酸の寄与を実験的に示した。さらに、加水分解反応が競合するような中性pH条件下での炭酸イオンとの錯生成挙動を調べ、錯生成定数を決定するとともに、そのイオン強度依存性に活量補正モデルを適用し、溶解度に与える影響を定式化した。また、小林博士は、4価金属元素の過飽和及び不飽和溶液の熟成期間ならびに分析時の水温を制御しつつ溶解度を評価する手法を独自に開発し、4価金属水酸化物固相間の反応エンタルピーおよび反応エントロピーを相互比較し、相変化の吸熱・発熱性を見出すと共に、溶解度積の温度依存性を固相粒径の変化に伴う表面自由エネルギー変化と関連付けて説明できることを指摘し、

高い評価を得ている。この成果は、放射性廃棄物の埋め戻し直後の高温環境下において、4価アクチノイド水酸化物固相の溶解度積が従来の想定より数桁低くなることを示唆し、処分場の概念設計に大きなインパクトを与える。さらに、福島第一原発のような過酷事故では、核燃料と被覆管等が熔融し冷え固まった燃料デブリが発生し、その処理が喫緊の課題となっているが、小林氏は、事故進展中の炉内を想定した模擬燃料デブリを合成し、熱中性子を照射して、ウランと種々の核分裂生成物の溶解反応の相関を見出すなど、汚染水や2次廃棄物の性状評価に資する新たな知見を得ており、原子炉廃炉を今後着実に進めるための基礎研究においても顕著な成果を挙げている。これら成果は、同氏が所属する京都大学のホットラボラトリおよび研究用原子炉を最大限に生かした研究であり、我が国におけるアクチノイド化学分野の発展に対する貢献は、高く評価できる。

これらの小林博士の成果の特徴として、以下が挙げられる。極低酸素の還元的な水環境において、高レベル放射性廃棄物や使用済燃料から放射性核種が水中に溶出する際の濃度上限は、溶解度によって平衡論的に記述される。しかし、長半減期アクチノイド元素の研究はその取扱いおよび施設面での制約があり、信頼性の高い研究例は少なかった。特に、単核錯体のみならず多核錯体の生成を含む4価アクチノイドの複雑な加水分解反応に対して、実験および半経験的なモデルを用いてアプローチする手法が、小林博士の研究の特色である。また、溶解度制限固相の相変化に関する研究では、溶解度の加熱実験において、固相の状態変化と平衡定数に及ぼす温度の影響をそれぞれ分離できるような実験手法を独自に開発し、溶解度制限固相の相変化に熱力学的な解釈をもたらした。

た。こうした独創的なアイデアと、精緻で粘り強い実験研究への姿勢は、小林博士の大きな特徴である。アクチノイドや放射性核種に関する国内外の熱力学データベース（JAEAやOECD/NEAによるデータベース）において、4価アクチノイドのデータはわずかであり、本研究で得られた平衡定数や溶解度積などの熱力学定数は高い評価を受け、データベースの更新に貢献している。近年では、当該分野におけるその専門性を認められ、小林博士は、OECD/NEAの熱力学データベースプロジェクトやIUPACのSubcommitteeのメンバー、国内学会の専門委員会委員に選定されるなど、国内外において幅広く活躍している点でも特筆される。

以上のことから、小林博士は、放射化学およびその関連分野で特に優秀な研究業績を収めており、日本放射化学会は、小林大志博士に日本放射化学会奨励賞を授与することに決した。

（日本放射化学会賞選考委員会）

＜奨励賞受賞者の紹介＞

小林大志青年は2005年に京都大学工学部物理工学科を卒業し、大学院修士課程では原子核工学専攻へ進みました。当時、吉田キャンパスに居られた森山裕丈教授の研究室（核材料工学）に学部4回生から所属し、ジルコニウムイオンの加水分解反応に関する研究を始めました。修士課程およびその後の博士課程では、ウランやトリウムを用いた実験研究へと発展し、その頃から熊取キャンパスの原子炉実験所（現複合原子力科学研究所）のホットラボに良く実験に来ていました。父君の小林捷平先生が原子炉実験所に勤めておられた関係で、幼少の頃から所の職員官舎に住んでおりましたので、熊取への出張実験は文字通り、里帰りのような気分だったようです。私も捷平先生には鉛スペクトロメータによる核データの取得に関して、本当にお世話になり、青年は捷平先生のご子息でありますので、非常に親しみをもっているところでもあります。青年の大学院学生時代の主な研究は、ジルコニウムやトリウム、ウランなど4価金属イオンとなる核種の極低溶解度を精密に測定するとともに、その溶解度を加水分解反応

による水酸化物錯体や水酸化物沈殿の生成反応に帰着させ、熱力学平衡定数によって定量的に表そうというものでした。多様な水酸化物錯体の生成を伴う4価金属イオンの加水分解反応は非常に複雑で、様々な条件下で得られる実験結果を矛盾なく説明できるような平衡反応モデルを考えることは、青年にとって挑戦的なテーマのようでした。森山先生と、同じく同研究室で指導にあたった佐々木隆之先生と日々交わされた議論が、青年を研究者への道に惹きつける大きな要因となったようです。

青年は博士課程修了後の2010年からは、学術振興会の博士研究員（PD）として原子炉実験所に籍を置きながら、独国カールスルーエ工学研究所の地層処分研究所に長期滞在し、2011年からは同研究所の博士研究員に任用されました。約2年間の滞在期間中は、放射性廃棄物に含まれる核種の一つであるテクネチウム（ ^{99}Tc ）の酸化還元挙動を調べる研究に邁進しています。放射性廃棄物処分環境の候補として岩塩層が考えられている独国では、岩塩層に地下水が侵入することによって想定される高塩濃度水溶液で、放射性核種がどのような化学的挙動をするのかを明らかにすることが重要とされています。様々な酸化還元条件下における ^{99}Tc の酸化状態を調べる青年の研究は、現在の同研究所におけるテクネチウム研究の端緒となるものでした。

青年は2012年に原子核工学専攻の出身研究室の助教に採用されてから、再び4価金属イオンの熱力学を中心に、種々の無機、有機配位子との錯生成反応や、平衡定数の温度依存性に基づく溶解平衡反応のメカニズムの推定など、従来の研究を発展させるとともに、近年では水酸化物沈殿固相のナノメートルスケールでの構造変化を調べることで、何が溶解度を支配しているのかを固相構造と熱力学の観点から明らかにしようとしています。青年の今回の受賞は、これら4価金属イオンの錯生成および溶解度に関する研究成果が認められたものです。このように、一見すると複雑な事象を基礎的な化学反応に落とし込んで理解するという地道な考え方は青年の得意とするところですが、今後は、新奇な発想で“おもしろい”放射化学的研究を開拓するものと期待しています。青年

が学生時代に感じたように、魅力的な研究と地道な努力で、これからの放射化学研究に貢献してくれることを願っています。

(大槻 勤)

＜奨励賞受賞者による研究紹介＞



4価アクチノイドの錯生成および溶解度に関する熱力学的研究

小林 大志

(京都大学大学院工学研究科
原子核工学専攻)

ウランやプルトニウム、ネプツニウムなどのアクチノイド元素は、水溶液中で4価の酸化状態をとることができ、酸性からアルカリ性に及ぶ幅広いpH領域において、強い加水分解反応を示す¹。例えば、酸性pH領域では、単核種および多核種を含む様々な水酸化物錯体（加水分解種）が生成する。電位差滴定や溶媒抽出法に加え、近年では、X線吸収分光（XAS）やエレクトロスプレーイオン化質量分析（ESI-MS）など直接、加水分解種を測定することで、その生成反応の解明が進められている。4価アクチノイドのアナログとされる4価ジルコニウム（Zr）加水分解種のESI-MS測定では、強酸性pH条件下で単核から4核までの加水分解種が検出され²、これは広域X線吸収微細構造（EXAFS）スペクトルから推定される加水分解種³とも概ね一致している。一方、弱酸性pHから中性pH、さらにアルカリ性pH領域では、4価アクチノイドは難溶性の水酸化物沈殿固相を形成し、水溶液中の濃度は急激に低下する。中性pHからアルカリ性pHにおける4価アクチノイドの溶解度は、およそ 10^{-8} mol/dm^3 (M) またはそれ以下と低く、溶存化学種に対するアプローチは限られる。4価アクチノイドと可溶性錯体を形成するような無機、有機配位子が共存する場合においても、見かけの溶解度が水酸化物沈殿固相によって低い値に抑えられるケースが数多く存在する。このため、中性からアルカリ性pHにおける4価アクチノイドの溶存化学種やその平衡反応を把握するには、微量濃度分析によって得られる溶解度のpHや配位子濃度に対する勾配解析（Slope analysis）が大きな手掛かりとなる。

一例として、著者らによるZrおよび4価プルトニウム（Pu）と炭酸イオン（ CO_3^{2-} ）の錯生成

反応に関する研究を紹介する。炭酸イオンは地下水環境に普遍的に存在する無機イオンの一つであり、特に、海水系地下水では数 mM から数 10mM 程度の炭酸イオンが含まれる。図1に、炭酸イオン共存下（全炭酸濃度 $[C]_{\text{tot}} = 0.015, 0.04, 0.1 \text{ M}$ ）における Zr 溶解度を示す。Zr は加水分解反応により水酸化物沈殿固相を形成するものの、炭酸イオンと可溶性錯体を形成するため、 $[C]_{\text{tot}}$ に応じて見かけの溶解度 ($\log [Zr]$) は上昇する。 $\log [Zr]$ の pH 依存性に着目すると、pH 8 ~ 9 では pH に対して概ね一定であり、pH 9 以上では、pH の増加とともに傾き -2 ($[C]_{\text{tot}} = 0.015, 0.04 \text{ M}$) または傾き -4 ($[C]_{\text{tot}} = 0.1 \text{ M}$) で減少する傾向が見られた（図1）。一方、pH を固定し、 $[C]_{\text{tot}}$ を変化させた場合、 $\log [Zr]$ は $\log [C]_{\text{tot}}$ に対しておよそ傾き 2 から 4 で増加した。これら溶解度の pH および $[C]_{\text{tot}}$ に対する勾配解析から支配的な炭酸錯体として $Zr(\text{CO}_3)_4^{4-}$ および $Zr(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ を考えた。様々な pH および $[C]_{\text{tot}}$ 条件下での溶解度実験値を解析することにより、炭酸錯体の錯生成定数や活量補正係数の値を求め、得られた値によって実験値を定量的に再現できることを確認

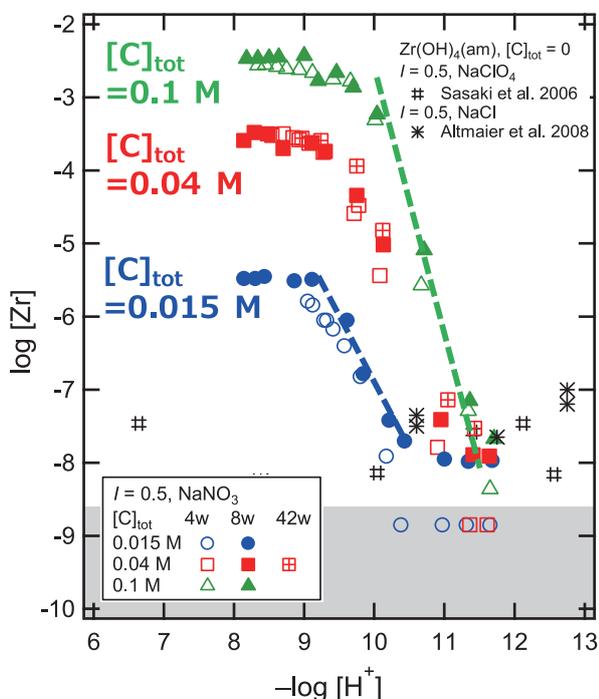


図1 炭酸イオン共存下におけるジルコニウム水酸化物溶解度

した⁴。また、 $[C]_{\text{tot}} = 0.1 \text{ M}$ では、中性 pH 付近で $\log [Zr] = -2$ となり、EXAFS による化学種分析が行われている⁵。勾配解析から同条件下で支配的の化学種と推定された $Zr(\text{CO}_3)_4^{4-}$ は、EXAFS の結果とも整合する。

一方、Pu の場合、炭酸イオン共存下における溶解度 ($\log [Pu]$) の $\log [C]_{\text{tot}}$ に対する傾きは、Zr のそれより小さく、Zr とは異なる炭酸錯体が支配的な溶存化学種であると考えられた。 $\log [Pu]$ の pH および $[C]_{\text{tot}}$ に対する依存性に基づき、 $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ や $\text{Pu}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ を支配的な化学種と仮定し、錯生成定数や活量補正係数の値を求めた。Pu の場合、 $Zr(\text{CO}_3)_4^{4-}$ と異なり、高炭酸イオン濃度下 ($[C]_{\text{tot}} = 0.16 \text{ M}$) においても 3 元系錯体 ($\text{Pu}-\text{OH}-\text{CO}_3$) が支配的溶存種として存在することが示唆された。類似の 3 元系炭酸錯体は、他の 4 価アクチノイドでも観察されている⁶。Pu 溶解度は、高炭酸イオン濃度においても 10^{-6} M 程度であり、Zr のような直接測定による溶存化学種の確認は容易ではない。一般に、化学的性質が類似する 4 価アクチノイドの錯生成定数には、イオン半径による系統性が見られる。溶存化学種の妥当性確認には、解析から得られる錯生成定数や活量補正係数の値を他の 4 価アクチノイドのそれと比較、検討することが有効な手段の一つと考えられる。

次に、4 価アクチノイドの溶解度を支配する水酸化物沈殿固相の固相状態に関する著者らの研究を紹介する。既に述べたように、4 価アクチノイドは、加水分解反応の進行によって水酸化物沈殿固相を形成する。水溶液中の 4 価アクチノイドイオン (M^{4+}) の濃度は、水酸化物沈殿固相との溶解平衡反応の平衡定数（溶解度積： K_{sp} ）によって決まるため、固相状態の把握が、溶解度の定量的な評価には不可欠である。4 価アクチノイドの場合、X 線回折 (XRD) パターンに特定の結晶構造に由来するピークが見えず、アモルファス状の水酸化物沈殿固相 ($M(\text{OH})_4(\text{am})$) が生成し、溶解度を支配すると考えられている¹。一方、熱力学的には $M(\text{OH})_4(\text{am})$ より結晶性の酸化物固相 ($\text{MO}_2(\text{cr})$) が安定であり、温度影響を受けるような環境下では、固相状態が変化する可能性がある。そこで、著者らは、Zr のアモルファス水酸

化物沈殿固相 ($\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$) を調製、25°C から 90°C までの温度範囲で $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ を含む試料溶液を静置し、溶解度に対する静置温度の影響を調べた⁷。25°C では $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ が安定に存在する一方、加熱温度条件 (40°C ~ 90°C) では溶解度が低下したことから溶解度を支配する固相状態に変化が生じていると考えられた。

そこで、溶解度を支配する固相状態をより詳細に調べるため、EXAFS、広角 X 線散乱 (WAXS) および小角 X 線散乱 (SAXS) を組み合わせた幅広い空間スケールにおける構造解析を行った⁸。酸性 pH 条件下において、25°C ~ 60°C で静置した試料の WAXS スペクトルには、顕著な回折ピークは表れず、25°C ~ 60°C における固相のバルク構造はアモルファスである ($\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$) と考えられた。一方、90°C で静置した試料には $\text{ZrO}_2(\text{monoclinic})$ に相当する回折ピークが見られ、バルク構造の結晶化が進行していることが示唆された。また、EXAFS スペクトルの解析から、25°C ~ 60°C における $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ の基本化学構造は 2 ~ 4 量体の多核加水分解種であるのに対して、90°C では基本化学構造の多核化が進行

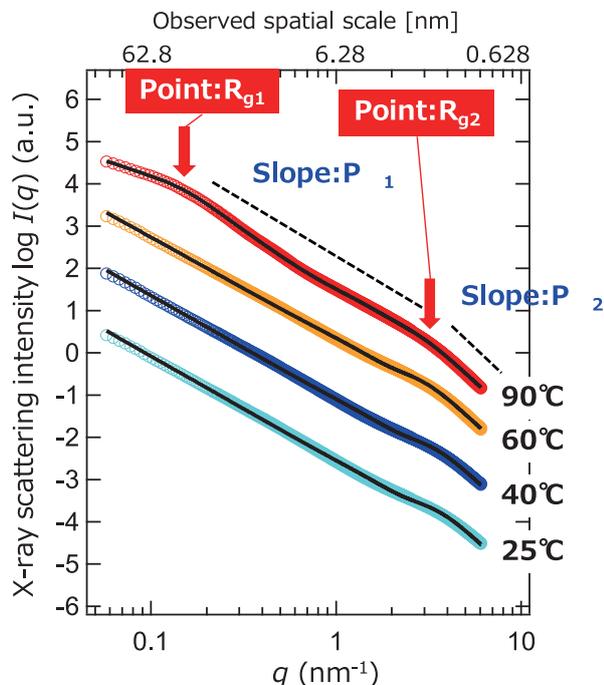


図2 酸性 pH 条件、25°C ~ 90°C で静置したジルコニウム水酸化物固相の SAXS プロファイル

していると考えられた。図2は、酸性 pH 条件下の各温度で静置した試料の SAXS プロファイルを示す。散乱強度 $I(q)$ は、 $I(q) = Aq^{-P}$ にしたがって、散乱ベクトル q の増加とともに指数関数的に減少した。このとき、傾き P が固相を形成する粒子の形状や表面状態、傾き P が変化する点が粒子の大きさを表す。25°C ~ 60°C で静置した場合、 $q = 4 \text{ nm}^{-1} (R_{g2})$ 付近で $\log I(q)$ の傾きが変化し、およそ 3 nm 程度の 1 次粒子と凝集体から固相が構成されていることが示唆された。WAXS および EXAFS の解析結果と合わせることで、 $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ は図3に示すような階層構造を有していると考えられた。一方、90°C で静置した場合、 $q = 0.2 \text{ nm}^{-1} (R_{g1})$ と $q = 4 \text{ nm}^{-1} (R_{g2})$ の 2 箇所 $\log I(q)$ の傾きが変化したことから、3 nm 程度の 1 次粒子に加え、70 nm 程度の 2 次粒子と凝集体から固相が構成されていることが示された。90°C では、WAXS および EXAFS の解析から基本化学種構造の多核化に伴う結晶化の進行が示唆されており、2 次粒子の生成はこれによるものと考えられた。

固相粒子の大きさが十分小さいとき、表面自由エネルギーの違いから、溶解度積 ($\log K_{sp}$) は、固相粒子の大きさ (d) に反比例する¹。25°C ~ 90°C で静置した水酸化物沈殿固相の $\log K_{sp}$ および 1 次 / 2 次粒子 / 凝集体の大きさの関係を調べたところ、25°C および 90°C で静置した水酸化物沈殿固相の溶解度は、それぞれ 1 次粒子および 2 次粒子の大きさにより支配されていると考えられた。一方、40°C および 60°C で静置した場合、25°C の場合と固相粒子の大きさに違いはないものの $\log K_{sp}$ の値は静置温度とともに低下した。SAXS プロファイルでは、25°C ~ 60°C の静置温度の違いにより、固相粒子の表面状態にわずかな違

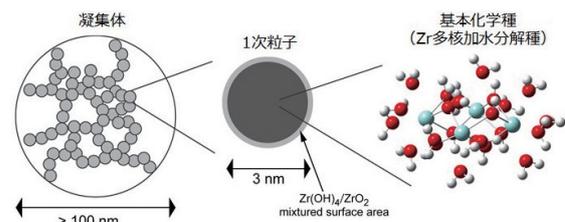


図3 酸性 pH 条件における $\text{Zr}(\text{OH})_4(\text{am})$ の階層構造

いが見られており⁸、表面の状態変化が溶解度に及ぼす影響について、より詳細な検討が今後の課題であると考えられる。

参考文献

- (1) M. Rand et al., Chemical thermodynamics of thorium., Elsevier, North-Holland, Amsterdam (2009).
- (2) T. Sasaki et al., J. Nucl. Sci. Technol., 47, 1211–1218 (2010).
- (3) C. Hagfeldt et al., J. Chem. Soc. Dalton Trans. Inorg. Chem., 14, 2142–2151 (2004).
- (4) T. Kobayashi and T. Sasaki, J Solution Chem., 46, 1741–1759 (2017).
- (5) F. Takasaki et al., Dalton Trans., 44, 645–652 (2015).
- (6) M. Altmaier et al., Chem. Rev. 113, 901–943 (2013).
- (7) T. Kobayashi et al., Radiochim. Acta 104, 183–193 (2016).
- (8) T. Kobayashi et al., Langmuir, 35, 7995–8006 (2019).

特集 日本放射化学会第63回討論会 (2019)

奨励賞

小豆川 勝見 (東京大学大学院総合文化研究科)

受賞題目：福島第一原子力発電所事故で放出された放射性核種を含む食品などの分析

<授賞理由>

小豆川博士は、福島第一原発事故に伴う放射性核種の放出やその食品中の定量などにおいて継続的に研究を続け、以下のような顕著な研究成果を挙げている。

(1) 小豆川博士は、2011年3月の福島第一原子力発電所事故から約1ヶ月後に、原発正門前から20 km圏内の警戒区域および帰還困難区域内を中心に環境試料のサンプリングを行い、ガンマ線測定による核種定量を行った。当時、原発正門前では地上1 m高で100 $\mu\text{Sv/h}$ 程度の空間線量率があり綿密な試料採取は困難であったため、原発サイト外の情報は主にモニタリングポストで得られる空間線量率のみで、その変動から汚染の実態を推定するという、極めて限られた情報しかなかったことから、小豆川博士は実試料採取の重要性を認識していた。その結果、事故直後でない測定できない多数の短半減期核種の定量に成功した (Shozugawa et al., 2012, *Environ. Pollution*)。この論文は2019年5月までに60件の被引用数 (Web of Science) があり、福島第一原発事故後初期の放射性核種の分析研究として大きな波及効果があった。

(2) 福島第一原発1～3号機の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比を指標として用いて、同原発事故に由来する放射性核種の放出原子炉別の起源評価法を、実測の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比のデータを基に提案した。この手法は、現在、セシウム濃集粒子 (いわゆるセシウムボール) を放出した原子炉の特定にも盛んに利用されており、小豆川博士の研究はその先駆けをなすものである。

(3) その後小豆川博士は、食品中の放射性核種の高感度分析を中心に精力的に研究を進めており、(i) 日本における米・小麦の放射性セシウム・ストロンチウムの実効半減期の推定、(ii) 環境放

射能データ約87.8万件を用いた原発事故前と事故後の放射性セシウムなどの動態の比較 (例：牛肉では放射性セシウム濃度は2011年夏頃にピークを迎えた後、徐々に低減する傾向；今後は ^{90}Sr の動態に注目)、(iii) 原発事故から3年後の福島県外で流通・販売していた食品96サンプルに対するスクリーニングレベル以下の ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{40}K の定量分析、などの分析を進めている。特に2018年には、福島第一原発事故による放出とそれ以前の放出イベント (大気核実験・チェルノブイリ原発事故等) との分離を目的として、国内外の食品206試料を対象としてガンマ線分析を行い、これらに含まれる極微量な ^{134}Cs を痕跡として用いて $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比から福島第一原発由来の寄与分を定量化した。例えば、岩手県の乾燥シタケでは58.8～75.5%が福島第一原発事故由来と判断できたが、一方で同事故以前の放出に由来する ^{137}Cs も一定の割合で存在していたことを明らかにした。また、魚類についても同様の検討を進めた。

これらの研究では、福島第一原発事故から放出された放射性核種について、初期の原子炉近傍の試料測定による多核種分析や $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比による福島第一原発1～3号機の同定法の提案などの重要な貢献をする一方で、海外の放射能測定を得意とする研究機関との連携の下で、環境放射能の基礎研究側からの報告が少ない食品について、ガンマ線放出核種やそれ以外の核種 (^{90}Sr 、 ^{129}I 、超ウラン元素など) の定量値を報告し、分析手法の向上、環境動態の議論、内部被ばくの検討などを進めた。これらの取り組みでは、放射化学・分析化学的な成果として重要であることに加えて、社会的なインパクトも含めた多方面の貢献があったと評価できる。

また小豆川博士は、このような研究の推進と同時に、分析結果公開を希望する関係者が放射能デー

タを確認できる環境を整えて住民が議論する基礎情報を提供するなどの取り組みを進めた。また、自治体や地域住民に対する放射能分析の実際的な教育について、放射性物質とは何かを講義すると共に、現地で実際の測定を行うことが最も効果的な啓蒙になると考え、これを実施してきた。

以上のように、小豆川博士は、福島第一原発事故後初期の放射能測定、食品中の放射性セシウムの高感度分析、測定に関する海外研究者との連携体制の構築や自治体・地域住民への啓蒙活動などにおいて極めて活発な活動を行っており、環境放射化学分野において将来の発展が期待される研究者である。以上のことから、日本放射化学会は、小豆川勝見博士に日本放射化学会奨励賞を授与することに決した。

(日本放射化学会賞選考委員会)

<奨励賞受賞者の紹介>

小豆川勝見氏は2003年4月から東京大学大学院総合文化研究科の私の研究室に修士課程からメンバーに加わり、以来、日本原子力研究開発機構(JAEA)や高エネルギー加速器研究機構(KEK)において放射化分析法やX線吸収微細構造法などを用いた環境試料の分析に従事してきました。修士から博士課程にかけて彼は、国立極地研究所が採取した南極海や南太平洋といった遠洋性の堆積物を用いて、堆積物中の鉄の状態分析を行うほか、堆積物の元素濃度を多次元ベクトルとみなした多変量解析によって、堆積物中のダストが大陸性の起源か島弧性の起源かを推定する研究を進めてきました。

彼にとって大きな転機となったのは、博士号取得(2011年3月8日)直後の東日本大震災(同年3月11日)に伴う福島第一原発事故でしょう。福島第一原発事故から環境中へ放射性物質の拡散が始まったころ、彼はヒューストンで開催されていたMTAA-11に参加していたため、あの当時の切迫感を生で感じていません。それにもかかわらず、2011年4月から現在に至るまで彼が足繁く現場に通いつけているのは、親しみ慣れた原子炉への思いの強さを感じさせます。

受賞内容の一つにある、食品などの放射性物質

については、技術的にある程度確立されているガンマ線の分析手法をより深化させ、一見すれば無意味ともとれるほどの低い下限値で放射性セシウムの定量を行っています。1キログラムあたりミリベクレル程度の、ごく微量に含まれる ^{134}Cs の痕跡を捉えるほどの分析手法は、単に福島原発事故の影響の有無を定性的に判定するだけではなく、これまで汚染源を分けることが不可能だった ^{137}Cs が $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比によって、「福島原発事故」か「それ以前(Pre-Fukushima)」由来かを、定量的に評価できることに繋がりました。このことが土壌や海水ではなく、実際に我々が食する食材でも明確に示されています。たとえば、北太平洋を回遊する大型魚は0.1 Bq/kg程度の ^{137}Cs が含まれているようですが、その半分が福島原発由来、残りの半分がPre-Fukushimaと報告しています。このような評価は福島原発事故後の放射性物質の拡散について改めて考えさせられる、よい材料となるのではないのでしょうか。

2018年から彼は福島第一原発の立地する福島県大熊町の除染検証委員を務め、放射性物質の分析だけではなく、その数値を復興の現場にどのように組み込んでいくのか考える立場にもあります。福島第一原発の廃炉や被災地の復興には数十年という長い時間がかかるとされています。その加速のためにも、この受賞をステップに、彼にはさらなる活躍を願うばかりです。

(松尾基之)

＜奨励賞受賞者による研究紹介＞



福島第一原子力発電所事故 で放出された放射性核種を 含む食品などの分析

小豆川 勝見
(東京大学大学院総合文化
研究科)

2011年から続く(株)東京電力福島第一原子力発電所の事故によって、同発電所から2019年現在も放射性核種が環境中に拡散し続けている。事故初期の様々な混乱は改めてここで述べることではないが、放射性核種を常日頃から取り扱い、研究炉や加速器を長きにわたって利用してきた私にとって、「便利なツール」だった放射性核種が「忌まわしいもの」と社会から認識された瞬間は、生涯忘れえぬ出来事になった。同時に、チェルノブイリ原発事故(1986年)やキシテム事故(1956年)のような大規模な原子力災害は日本では起こりえないと高をくくっていた私にとって、「福島原発事故後にすべきことは何か」と自問したとき、それは正確な測定値を公開していくことだと考え、以来、(旧)警戒区域や帰還困難区域内の測定を中心に、あらゆる環境中の放射性核種の測定に携わるようになった。

特に食品に含まれる放射性核種は、国内外からの関心が極めて高いことに加え、基準値策定の経緯の煩雑さが多くの方の理解を阻害し、さらに、そもそも測定数が充足していないなど、測る側も知らされる側も双方がパニックとなった時期があった。本研究では、その状況を少しでも改善することを目的として、1) 事故直後(2011年3月から3か月程度)、2) 3年後(2014-2015年)、3) 5年後(2016-2017年)とステージを分けて水道水や一般的に流通する食品について主にガンマ線分析を行い、その分析値を公開してきた。

まず、事故直後は水道水に着目した。2011年3月21日から22日の降水で、東京都目黒区の東京大学駒場キャンパス内で2,830 Bq/kgから11,100 Bq/kgの ^{131}I を観測した¹。また23日には東京都内の金町浄水場の水道水から210 Bq/kg

の ^{131}I が観測され、乳児へ水道水を与えることを控えるよう東京都は呼びかけた。この件は、当時大々的に報道されたので記憶に新しい方も多だろう。ただ、当然のことではあるが、水道水から ^{131}I が検出されたのは同浄水場だけでなく、東日本の多くの地域の浄水場から ^{131}I や ^{137}Cs が観測されている。Fig. 1は2011年3月から5月末までの約2か月間における東日本の各地域の水道水に含まれていた ^{131}I と ^{137}Cs の経時変化である²。 ^{131}I は、東日本の広い範囲、特に福島県内の水道水で顕著に検出され、時として1,000 Bq/kgに到達する時期もあった。 ^{137}Cs は ^{131}I のおおむね1/10のレベルであり、放出量の推定値³とも一致する。

この期間において ^{137}Cs は半減期が30.2年と比較的長いこともあって、放射能と採取時期との間に明確な相関は見られなかった。しかしその一方で、 ^{131}I はどの採取地点においても ^{131}I の半減期(8.02日)のライン(Fig. 1上の斜めの点線)よりも早く放射能が下がる傾向が確認された。このことは原子力災害の緊急時における水相中の ^{131}I の除去手段を検討する上で重要な知見になると考えている。

次に事故から3年後のステージでは食品に含まれる ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の動態に着目した⁴。公定法に定める前処理法を食材に合わせて改良し、結果 ^{137}Cs の検出下限値は 10^{-3} Bq/kg前半、すなわち1桁 mBq/kgのオーダーにまで到達することに成功した。本研究では、東日本の流通食品を測定対象としたが、全体の傾向として96試料中、 ^{134}Cs と ^{137}Cs を検出できた食品は46試料であり、その中央値は0.16 Bq/kgであった。研究期間における一般食品の基準値は、放射性セシウムとして100 Bq/kgと定められていることから、この結果は、流通食品中の放射性核種は良く管理されているといえよう。ただし、福島県外における「道の駅」では、100 Bq/kgを超過した食材が実際に販売されていることを確認したこともあった。「道の駅」のような直販方式は、一般的に流通する食品の割合を考慮すれば極めてレアなケースではあるが、このことが広く報道された場合の影響は少ない。販売側は放射性核種の動態を注視しながら、測定の意識を持ち続けなければならない。

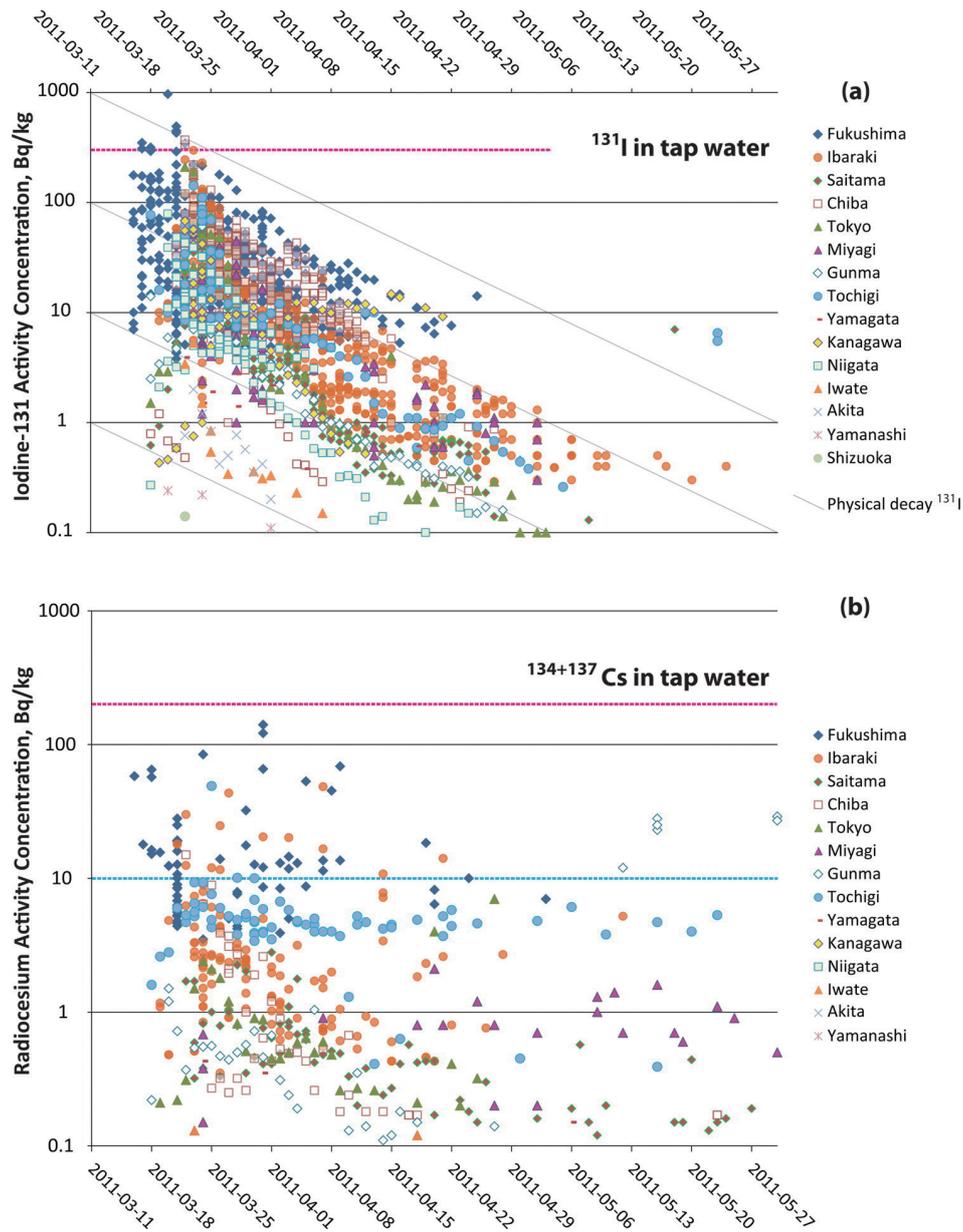


Fig. 1 2011年3月から5月末までの間に東日本の水道水に含まれていた ^{131}I (a), Bq/kg)、 ^{137}Cs (b), Bq/kg)

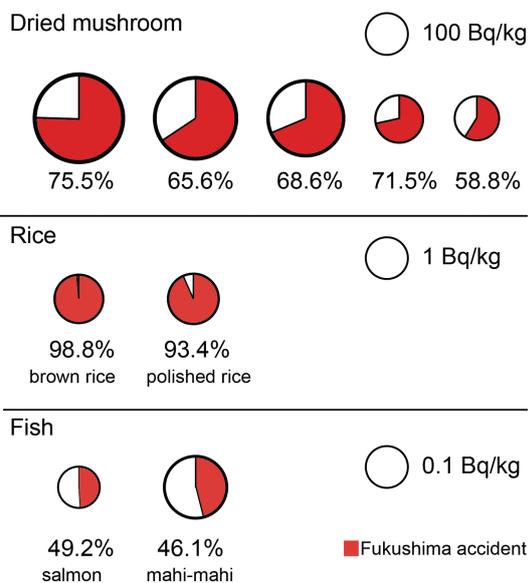
最後に、事故から5年後の食材について考えてみたい。先の研究では、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比から、食材には明らかに福島原発事故以前の影響分が相当あることを感じていた。そこで、この研究期間では、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比から逆算して食材に含まれる ^{137}Cs がどの程度福島原発事故由来なのか、という点に着目して評価を行った。Fig. 2は流通食材に含まれる ^{137}Cs のうち、2011年以前（大気核実験やチェルノブイリ原発事故など）と福島原発事故由来分を $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比から明らかにしたもの

の抜粋である⁵。乾燥シイタケ（岩手県産・「道の駅」販売）では、58.8%から75.5%が福島原発由来と判断できる。一方で、コメ（茨城県産玄米・白米）はほとんどが福島原発由来（93.4%以上）と判定できた。魚類では、回遊する鮭で49.2%（水揚げは北海道）、シイラで46.1%（水揚げは千葉）であった。この点も海洋への影響を論ずる上で重要な知見となることを期待したい。

今後は ^{134}Cs や ^{137}Cs に加えて、 ^{135}Cs を定量値に加えることで、原子炉別（1, 2, 3号機）の判

Table 1. 流通食品に含まれる ^{134}Cs と ^{137}Cs について事故から 3 年後 (2013–2014 年) と 1987–2001 年、および 1994–1995 年の食品との比較

Food category	^{134}Cs Bq/kg–flesh weight						^{137}Cs Bq/kg–flesh weight					
	2013–2014 (this study)		1987–2001		1994–1995		2013–2014 (this study)		1987–2001		1994–1995	
	Median	SD	Median	SD	Mean	SD	Median	SD	Median	SD	Mean	SD
Rice (5)	0.57	0.08	-	-	-	-	0.17	0.01	-	-	ND(0.022)	-
Cereals (2)	0.028	0.004	-	-	-	-	0.066	0.01	-	-	ND(0.049)	-
Nuts and Seeds (4)	ND(0.28)	-	-	-	-	-	0.31	0.05	-	-	0.23	0.03
Potatoes (3)	ND(0.54)	-	-	-	-	-	ND(0.63)	-	-	-	0.11	0.02
Bean & Bean products(3)	ND(0.041)	-	-	-	-	-	0.11	0.01	-	-	ND(0.11)	-
Fruits (1)	0.16	-	-	-	-	-	0.49	-	-	-	ND(0.023)	-
Green vegetables (2)	ND(0.24)	-	-	-	-	-	0.012	0.003	-	-	ND(0.025)	-
Other vegetables (12)	0.32	0.04	ND	-	-	-	1.0	0.07	0.028	0.006	ND(0.051)	-
Mushrooms (7)	3.5	0.5	-	-	-	-	20	1	-	-	1.7	0.1
Seaweeds (2)	ND(0.19)	-	-	-	-	-	ND(0.20)	-	-	-	0.092	0.03
Seasonings (11)	0.013	0.003	-	-	-	-	0.041	0.01	-	-	ND(0.043)	-
Fishes (5)	0.068	0.2	ND	-	-	-	0.15	0.02	0.03	0.006	0.16	0.03
Meats (3)	ND(0.037)	-	ND	-	-	-	0.042	0.01	-	-	0.13	0.02
Eggs (1)	ND(0.010)	-	ND	-	-	-	ND(0.014)	-	0.011	0.003	ND(0.005)	-
Milk & Milk products (7)	0.022	0.003	-	-	-	-	0.073	0.01	-	-	0.089	0.009
Beverages (11)	ND(0.010)	-	-	-	-	-	0.024	0.005	-	-	ND(0.14)	-
Processed (13)	ND(0.59)	-	ND	-	-	-	ND(0.56)	-	0.1	0.01	-	-
Water (4)	ND(0.068)	-	-	-	-	-	ND(0.079)	-	-	-	-	-

Fig. 2 原発事故から 5 年後の流通食品に含まれる ^{137}Cs の中で福島原発事故に由来するものを赤で表現した。円の大きさ (面積) は各凡例の放射能に対応する。

定まで実現することを計画している。

本研究は、松尾基之先生 (東京大学) から長年にわたってガンマ線測定のご指導をいただき、遂行することができました。心より御礼申し上げます。高橋嘉夫先生 (東京大学)、久保謙哉先生 (国際基督教大学) はじめ多くの先生方にご指導賜りましたこと深謝申し上げます。また、Prof. Georg Steinhauser (ドイツ・ハノーファー大学)、Prof. Thomas E. Johnson (米国・コロラド州立大) や彼らの研究室に所属する大学院生の皆さんのご協力をいただき、研究を進めることができました。国立大学協会、住友財団 (環境研究助成)、郵船商事、大塚商会 (ハートフル基金)、文科省科学研究費からも研究助成をいただきました。御礼申し上げます。

本研究は、原発事故によって被災された多くの方々から、試料のご提供からご寄附に至るまで多大なご厚情を賜りました。改めて御礼申し上げます。

文献

1. 滝澤勉、野川憲夫、小豆川勝見、東京大学駒場 1 キャンパスにおける福島第一原発事故由来の放射性ヨウ素の動態 (Dynamics of radioiodine originated from Fukushima Dai-ichi accident in Komaba 1 campus, the University of Tokyo). *radioisotopes*, 67(1), 1–10, 2018.
2. S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser, Analysis of Japanese Radionuclide Monitoring Data of Food Before and After the Fukushima Nuclear Accident, *Environmental Science & Technology*, 49 (5), 2875–2885, 2015.
3. G Steinhauser, A Brandl, TE Johnson, Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: a review of the environmental impacts, *Science of the total environment* 470, 800–817, 2014.
4. K. Shozugawa, T. Saito, M. Hori, M. Matsuo, High Sensitive Analysis of Radioactive Cesium in Japanese Foodstuffs: Three Years after the Fukushima Accident, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 307 (3), 2117–2122, 2016.
5. M. Hori, T. Saito, K. Shozugawa, Source evaluation of ^{137}Cs in foodstuffs based on trace ^{134}Cs radioactivity measurements following the Fukushima nuclear accident, *Scientific reports*, 8 (16806), 2018.

特集 (日本放射化学会第63回討論会 (2019) 若手優秀発表賞)

福島原発事故により放出された不溶性粒子に含まれるプルトニウムの定量

五十嵐 淳哉¹、鄭 建²、張 子見¹、二宮 和彦¹、佐藤 志彦³、福田 美保²、倪 有意^{2,4}、青野 辰雄²、篠原 厚¹(¹ 阪大院理、² 量研、³ 原子力機構、⁴ 北京大物理)

プルトニウム (Pu) は原子力災害において最も注目される放射性核種の一つであり、2011年に起こった福島原発事故でも Pu の放出があったことが知られており、様々な環境試料に対する調査が行われてきた。一方で環境中に存在する Pu の中でもっとも寄与が大きいものは、事故前から存在している大気核実験によるグローバルフォールアウト (GF) 由来のものである。福島原発事故での Pu の放出量は少ないために^[1]、GF 由来の Pu の影響を大きく受けることから、事故による Pu 汚染の正確な評価は困難である。そこで核実験や原発事故ごとに異なることが知られている Pu 同位体比に注目した分析が行われているが、得られた同位体比は GF による影響でばらついており、福島原発事故による Pu 同位体比の正確な実測値が得られていない状況である^[1]。

ところで福島原発事故では、SiO₂ の母材に放射性 Cs が濃集した水に不溶性粒子 (不溶性粒子) が放出されたことが知られている^[2]。これまでに粒径や放射能、由来の原子炉の違いによりタイプ A とタイプ B の少なくとも 2 種類の不溶性粒子の存在が報告されている^[3]。不溶性粒子は原子炉から直接放出され水に不溶であることから環境からの汚染の影響を受けずに放出時の物理化学状態を保持していると考えられる。したがって不溶性粒子からの分析により GF の影響を受けていない Pu 同位体比の決定が期待される。また不溶性粒子に含まれる Pu の量は、粒子生成時における炉内環境の解明に繋がると期待される。すなわち揮発性の異なる元素間での比較、具体的には

¹³⁷Cs や ⁹⁰Sr、²³⁹Pu などの核種間の含有量を比較することで、粒子生成時の炉内環境の解明が期待される。本研究グループは過去に不溶性粒子に含まれる ⁹⁰Sr/¹³⁷Cs の定量を行ってきた^[4]。本研究では放射化学的手法と ICP-MS 質量分析により、不溶性粒子に含まれる Pu 同位体の定量を行い、Pu/Cs や Sr/Cs の違いから予想される粒子生成時の炉内環境について検討を行った^[5]。

本研究では福島県双葉町と大熊町で採取した土壌やダスト試料から不溶性粒子を分離し、粒子一つずつの分析を実施した。双葉町で採取した不溶性粒子は放射性 Cs の放射能を数百 Bq 程度含み、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs の値や粒径などの性質により、1号機の水素爆発により放出されたタイプ B 粒子であると同定した^[4]。一方で大熊町の不溶性粒子は放射性 Cs の放射能を数百 Bq 程度含み、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs の値や粒径などの性質により 3号機の水素爆発により放出されたタイプ A,B のどちらにも分類されない新たなタイプの不溶性粒子であると推測された^[4]。これらの由来の原子炉が異なる不溶性粒子について、それぞれ化学分析により Pu を単離し、質量分析による Pu 分析を行った。その結果、双葉町の不溶性粒子からは ²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Pu を定量することができ、²³⁹⁺²⁴⁰Pu の放射能は 10⁻⁵ Bq 程度であることがわかった (Fig. 1)。Pu 同位体比については ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu で 0.330 ~ 0.415、²⁴¹Pu/²³⁹Pu で 0.161 ~ 0.178 が得られた。一方で大熊町から採取した不溶性粒子からは、これらの Pu 同位体の存在量は定量下限値以下であり、双葉町で採取された粒子と比べて Pu の量が少ないことがわかった。本研究で得られた 1号機由来の双葉町の不溶性粒子の Pu 同位体比については、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu、²⁴¹Pu/²³⁹Pu とともに GF の値^[6]からは

大きく外れていることが分かった。福島原発事故後に採取された環境試料と比較すると、不溶性粒子のこれらのPu同位体比の値はGFの影響を大きく受けたと推測される土壌の値^[1]よりも大きく、落ち葉^[1]や黒い物質^[7]、植物^[8]といった一部の環境試料の値に近いことが分かった。また、本研究の結果は福島原発の炉内インベントリー計算値^[9]とよく一致することがわかった。

本研究で分析した不溶性粒子については、別に⁹⁰Srの定量を行っており、⁹⁰Sr/¹³⁷Csは全ての粒子で 10^{-4} のオーダーであった^[4]。一方で不溶性粒子中における²³⁹⁺²⁴⁰Pu/¹³⁷Csは、1号機由来の双葉町で採取された粒子で全て 10^{-8} の値となったのに対して、3号機由来の大熊町の粒子では検出下限値以下であり 10^{-8} より小さいことが分かった。このことは、1号機と3号機で生成した不溶性粒子が、それぞれ異なる温度環境、酸化還元的

雰囲気の下で形成されたことを示している。

引用文献

- (1) J. Zheng et al., Sci. Rep. 2, 0304 (2012)
- (2) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013)
- (3) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 0514 (2018)
- (4) Z. Zhang et al., Environ. Sci. Technol. 53, 10, 5868-5876 (2019)
- (5) J. Igarashi et al., Sci. Rep. 9, 11807 (2019)
- (6) J. Kelly et al., Sci. Total. Environ. 238/238, 483-500 (1999)
- (7) M. Yamamoto et al., J. Environ. Radioact. 132, 31-46 (2014)
- (8) J. Dunne et al., Sci. Rep. 8, 16799 (2018)
- (9) K. Nishihara et al., JAEA-Data/code. 2012-018, 65-117 (2012)

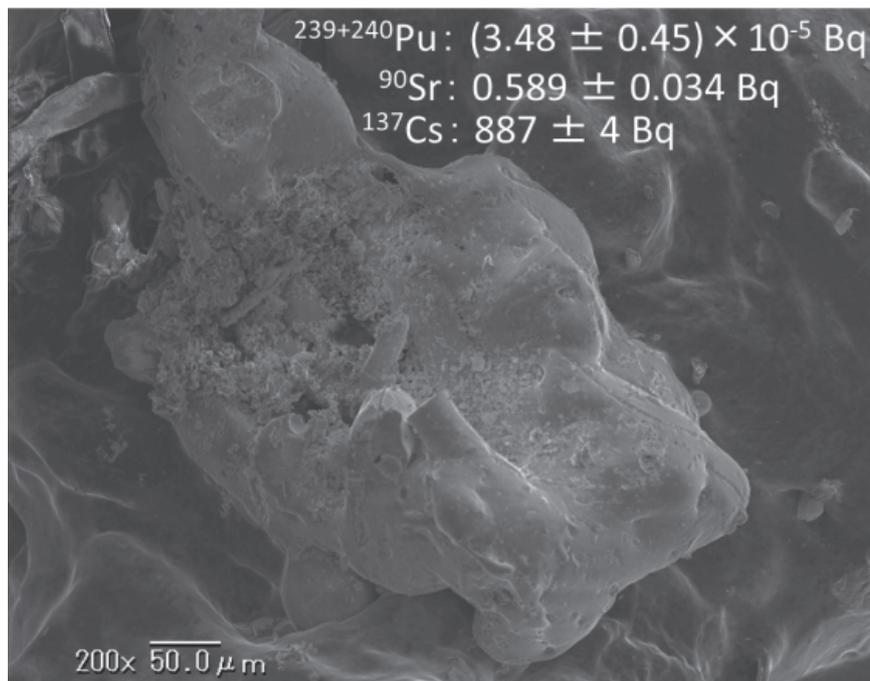


Fig. 1 The SEM image of the analyzed radioactive particle found in Futaba town.

特集 (日本放射化学会第63回討論会 (2019) 若手優秀発表賞)

MRTOF+ α -ToF を用いた ^{207}Ra の質量-崩壊特性測定

庭瀬 暁隆^{1,2,3}、和田 道治³、P. Schury³、伊藤 由太⁴、木村 創大²、加治 大哉²、
M. Rosenbusch²、渡辺 裕³、平山 賀一³、宮武 宇也³、J. Y. MOON⁷、石山 博恒²、森本 幸司²、
羽場 宏光²、田中 泰貴⁸、石澤 倫^{5,2,3}、高峰 愛子²、森田 浩介^{1,2}、H. Wollnik^{1,6}
(九大理¹、理研仁科セ²、高工研³、JAEA⁴、山形大⁵、NMSU⁶、IBS⁷、ANU⁸)



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る。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ある。原子核質量は核種固有の値をもち、熱い融合反応で合成される超重核のように崩壊連鎖が既知の核へ辿り着かないような原子核においても、精密な質量測定から核種の質量数と原子番号を一意に同定することができるため、今後の超重核研究において重要な役割を担っている。

我々は理化学研究所の気体充填型反跳分離装置 (GARIS-II^[1]) と多重反射型飛行時間測定式質量分光器 (MRTOF-MS^[2]) を組み合わせることで、世界初となる超重核の直接質量測定へ向けて研究開発を進めている。

超重核の生成断面積は極めて小さく、限られたイベント数から質量分析を行う必要があり、得られた飛行時間信号が散乱粒子や分子イオン等に起因した信号ではなく、真の超重核起因のものであるという明確な判断が必要となる。

一方で現在報告されている超重核は、一部の isomer を除けば、 α 崩壊 / SF 崩壊が主の崩壊様式であり、核の寿命決定の一因を担っている。崩壊エネルギーや半減期といった崩壊特性も質量と同様に核種固有の値であるため、これらの相関計測を行うことで、バックグラウンドの中から真の超重核起因の飛行時間信号を弁別することが可能となる。

我々はこのようなコンセプトの基、原子核の質量と α /SF 崩壊特性の相関測定を可能とする革新的な検出器、“ α -TOF” を開発^[3,4]、オフラインでの性能評価^[3,5] をこれまでに行い、2018年のクリスマスイブに初のオンライン実験を行った。

実験は理化学研究所の RIBF にて行われた。実験概念図を Fig.1 に示す。 ^{159}Tb (^{51}V , 3n) 反応によって合成された単寿命核種 ^{207}Ra を GARIS-II によって一次ビームから分離、焦点面への輸送を行い、マイラー膜を用いて 100 mbar の He ガスを充填したガスセル中で、イオンが停止する最適なエネルギーまで減衰させる。ガスセル内で熱化されたイオンは RF カーベットによってガスセル内から引き出された後、多段 RF トラップシステムによって MRTOF へと輸送され、質量測定を行う。MRTOF にはイオン検出器として α -TOF が組み込んであり、 ^{207}Ra の質量と崩壊特性の相関測定を行った。

実験結果の一部を Fig. 2 に示す。Fig. 2(a) は α -TOF で測定した α 崩壊イベントである。測定

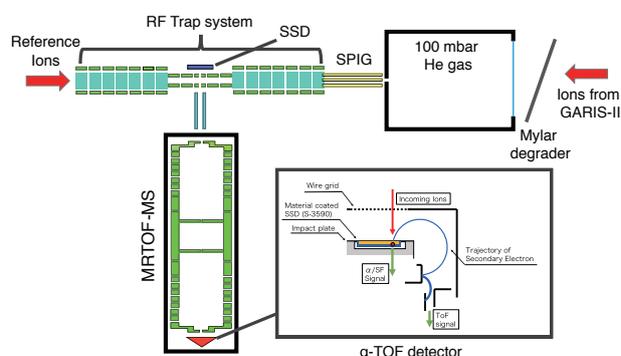


Fig.1. Setup of experiment

核種である ^{207}Ra とその娘核 ^{203}Rn の崩壊イベントが確認できる。測定した全ての ^{207}Ra の α 崩壊イベントは、その飛行時間イベントとの1対1での相関がとれている。Fig. 2(b) は、入射から3半減期以内の崩壊イベントと相関したイオンのみをプロットした飛行時間スペクトラムである。非対称のガウシアンフィッティングを行い、リファレンスとして使用した ^{133}Cs の飛行時間との比較を行うことで、質量値の導出を行う。本実験から、 ^{207}Ra の質量欠損 (Mass excess, ME) として $\text{ME}_{\text{EXP}} = 3615(83) \text{ keV}$ という値が得られ、これは文献値である $\text{ME}_{\text{AME2016}} = 3540(50) \text{ keV}$ と誤差の範囲で一致している。また測定精度は $\delta m/m = 2.1 \times 10^{-6}$ であった。

続いて、測定した全ての ^{207}Ra の崩壊時間分布を Fig. 3 に示す。崩壊時間の最尤値は個々のイオンの寿命の平均値によって与えられるため、この分布を基に崩壊時間を導出すると、1.91(19) 秒という値が得られ、また半減期は 1.33(13) 秒と計

算され文献値である 1.35(22) 秒と誤差の範囲で一致している。

以上の実験結果から、 α -TOF 検出器を用いることで、 α 崩壊に相関した飛行時間信号が得られる事を実験的に確認した。また 10^{-6} レベルの精密質量測定と同時に半減期測定が可能であるということも明らかにした。

我々は今後、 α -TOF 検出器を用いて世界初の超重核質量測定へ挑戦していく予定である。

引用文献

- [1] D. Kaji et al., Nucl. Inst. and Methods in Physics B, 317 (2013) 311.
- [2] P. Schury et al., Nucl. Inst. and Methods in Physics B, 335 (2014) 39.
- [3] T. Niwase et al., Nucl. Inst. and Methods in Physics A, 953 (2020) 163198.
- [4] 庭瀬 暁隆 ほか, 放射化学 第 37 号 P. 4
- [5] 庭瀬 暁隆 ほか, 放射化学 第 39 号 P. 20

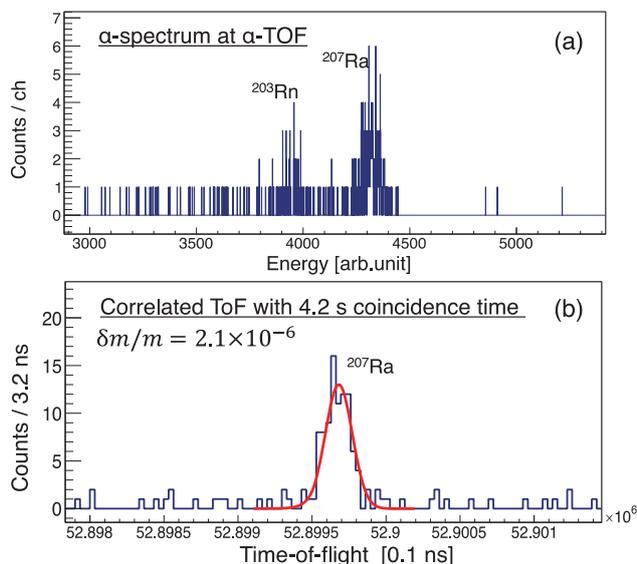


Fig.2. (a) α -decay spectrum at α -TOF detector. (b) decay correlated ToF event with 4.2 s coincidence time (corresponding to 3 half-life period of ^{207}Ra)

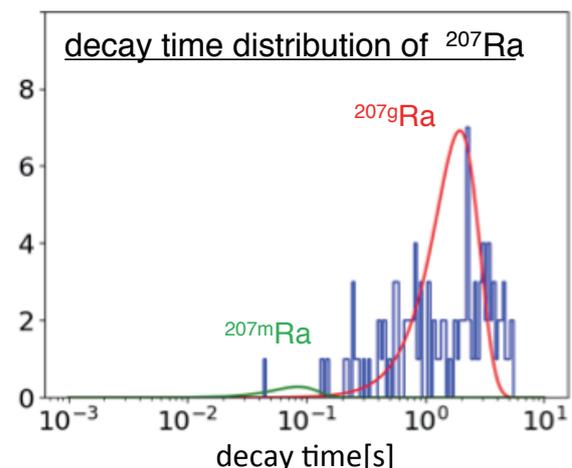


Fig.3. decay time distribution of ^{207}Ra

特集 (日本放射化学会第63回討論会 (2019) 若手優秀発表賞)

ラマン分光法と X 線吸収分光法による二酸化ウランの酸化状態分析

蓬田 匠、大内 和希、松村 大樹、辻 卓也、小林 徹、北辻 章浩

(日本原子力研究開発機構)



1. 緒言

福島第一原子力発電所 (1F) 事故により、核物質であるウランを含む大量の燃料デブリが生成した。1F の廃炉においては燃料デブリの取り出しが必要不

可欠であるが、燃料デブリの取り出しに伴い、核物質を含む微粒子の環境中への放出が懸念されている。また、1F に限らず、原子力発電の使用済燃料の処分方法についても、ウラン等の核物質を含んだ状態で地層処分を行う、直接地層処分の可能性が言及されている。今後、多量の核物質の取り扱いが想定される中、環境中へウランが放出された場合の移行挙動を推定する必要性が高まっている。

ウランは多様な酸化物形態を取ることが知られており、各酸化物で物理的・化学的な性質が異なる。二酸化ウラン (UO_2) は融点が高く、高温で安定していることから原子力発電用燃料として用いられている。ただし、 UO_2 は不定比化合物であり、過定比酸化ウラン (UO_{2+x}) へと酸化することで、その安定性が変化する。水への溶解性についても、 UO_2 や八酸化三ウラン (U_3O_8) などは水に不溶であるが、過酸化ウラン ($\text{UO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$) は水へ容易に溶解する⁽¹⁾。そのため、ウラン酸化物の酸化状態を詳細に分析することは、使用済燃料や燃料デブリ等の性状評価、および処分方法の検討を行う上で重要な知見を与える。

二酸化ウラン粉末の分析には、X 線回折法が広く使われている。しかし、X 線回折法では局所的な分析は難しく、100 mg 程度の試料量が必要である⁽²⁾。使用済燃料や燃料デブリは高い放射能を持つため、分析に供する試料量を少なくできる分析法が望ましい。本研究では、試料量を低減する

ため、X 線吸収端近傍構造分光 (XANES) 法により二酸化ウランの酸化状態を分析する手法を検討した。さらに、X 線を用いる手法と比較し、表面敏感かつ局所的な分析が可能な顕微ラマン分光分析 (MRS) 法を併用することで、酸化部位を特定し、部位毎に化学形を判別することを試みた。

2. 実験方法

ウランの参照試料として、新規に合成された二酸化ウラン (UO_2)、およびウラン標準物質 JAERI-U1 (U_3O_8) を用いた。二酸化ウランの経年変化を調べるためのモデル化合物として、約 30 年間空気雰囲気下で保存された経年二酸化ウラン (UO_{2+x}) を用いた。X 線吸収分光測定用の試料として、約 10 mg のウラン粉末試料と窒化ホウ素を混合し、錠剤成型機によりペレットを調製した。U L_{III} 端 X 線吸収分光測定は、大型放射光施設 SPring-8 BL14B1 において行った。測定した XANES スペクトルの解析、および線形結合フィッティングは、XAFS 解析ソフトウェア Athena を用いて行った⁽³⁾。また、それぞれのウラン粉末試料をミクロスパーテルにより分取し、カーボンテープ上に担持してラマン分光測定用試料を調製した。顕微ラマン分光測定は、532 nm のレーザー光源を備えた顕微ラマン分光光度計 (ラムダビジョン製 Micro-RAM300) により行った。

3. 結果と考察

Fig. 1 に、新規合成 UO_2 、 U_3O_8 、および経年二酸化ウランの 3 試料の XANES スペクトルを示した。経年二酸化ウランの吸収端エネルギーは、新規合成 UO_2 のものと比較して高エネルギー側にシフトし、 UO_2 と U_3O_8 との間に位置した。この結果は、経年二酸化ウラン中に含まれるウラン

の酸化が進み、4価よりも酸化されていることを示唆する。定量的に経年二酸化ウランの酸化状態の評価を行うため、XANES スペクトルの線形結合フィッティングを行った。UO₂とU₃O₈のXANES スペクトルを用いて、経年二酸化ウラン(UO_{2+x})のスペクトルをフィッティングした結果がFig. 2である。UO₂のXANES スペクトルを69.7%、U₃O₈のXANES スペクトルを30.3%の割合で結合することにより、経年二酸化ウランのXANES スペクトルを精度良く再現することができた。この結果は、経年二酸化ウランの約70%は二酸化ウランの形状を保っているが、約30%が八酸化三ウランへと酸化していることを示唆する。以上より、XANESの線形結合フィッティン

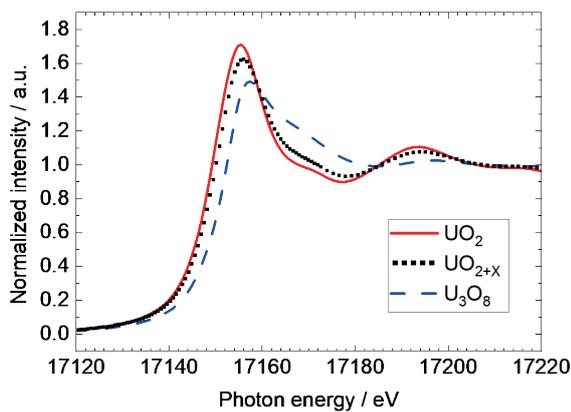


Fig. 1 X-ray absorption near edge structure(XANES) spectra of UO₂, U₃O₈, and UO_{2+x}.

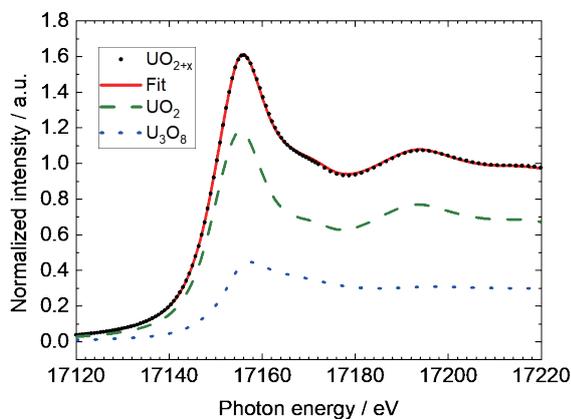


Fig. 2 Linear combination fitting of XANES spectra of UO_{2+x} using UO₂ and U₃O₈ XANES spectra.

グが、ミリグラム程度の試料量で二酸化ウランの酸化状態を定量的に分析する手法として有効であることが示された。

また、二酸化ウラン表面の酸化状態を局所的に分析するため、ウラン酸化物の顕微ラマン分光測定を行った。Fig. 3には、UO₂とU₃O₈のラマンスペクトルを示した。UO₂のラマンスペクトルからは445, 1148 cm⁻¹のラマンピーク、U₃O₈のラマンスペクトルからは248, 412, 743 cm⁻¹等のラマンピークが観測された。これらのラマンピークは、それぞれUO₂の構造、およびU₃O₈の構造に由来する⁽⁴⁾。Fig. 4には、経年二酸化ウランに対し、異なる10箇所においてラマンスペクトルを取得した結果を示した。すべてのスポットで、UO₂の

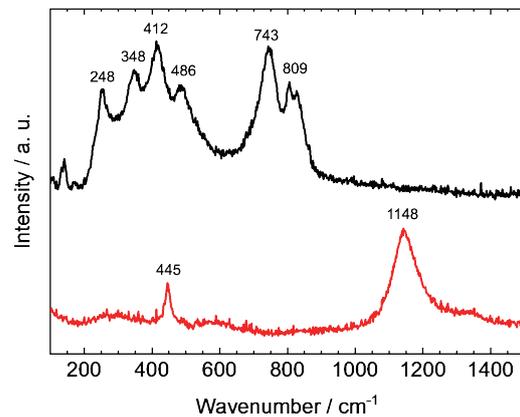


Fig. 3 Raman spectra of U₃O₈ (up) and UO₂ (down) samples on carbon tape.

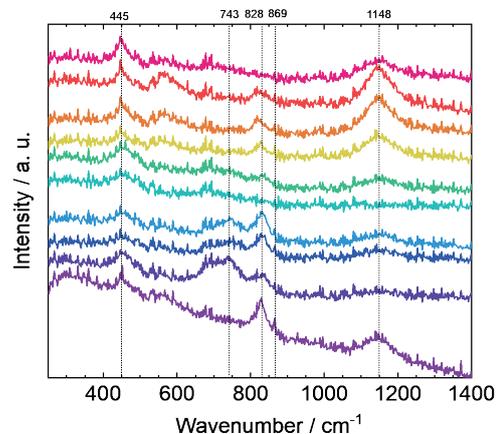


Fig. 4 Raman spectra of the UO_{2+x} sample on carbon tape.

構造に由来する 445 cm^{-1} のラマンピークが観測された。また、一部のスポットで U_3O_8 の構造に由来する 743 cm^{-1} のラマンピークが観測された。さらに、Fig. 4中の最下部のラマンスペクトルのように、 $828, 869\text{ cm}^{-1}$ の位置にラマンピークが観測されたスポットが存在した。この $828, 869\text{ cm}^{-1}$ のラマンピークは、 $\text{UO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ の構造によるものと帰属された⁽⁵⁾。 UO_2 や U_3O_8 は水に不溶であるが、 $\text{UO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ は水に可溶である。したがって、経年二酸化ウランの表面の一部に、水に可溶性な過酸化ウランがごくわずかに形成されていることが、顕微ラマン分光測定結果から明らかとなった。この結果は、経年二酸化ウランが水溶液と接触することで、ウランが溶出する可能性があることを示している。したがって、顕微ラマン分光分析法を用いた局所的な分析を行うことにより、経年二酸化ウラン表面の酸化部位を特定し、表面に形成された酸化物の形態の違いを判別することができた。

4. 結言

微小量の試料で二酸化ウランの酸化状態を判別するため、X線吸収分光法と顕微ラマン分光法を

用いた手法を検討した。約 10 mg の試料全体の酸化状態を、XANES スペクトルのフィッティングにより分析した。その結果、経年二酸化ウランの約 30% が U_3O_8 となっていることを明らかにした。また、顕微ラマン分光法を用いて、経年二酸化ウランの表面を局所的に分析した結果、経年二酸化ウラン表面に UO_2 と U_3O_8 が混在する他、極わずかな $\text{UO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ を検出できた。本法により、微小量の試料で二酸化ウランの酸化状態を定量的かつ部位ごとに判別できるため、1F事故で発生した燃料デブリの分析などへの応用も期待できる。

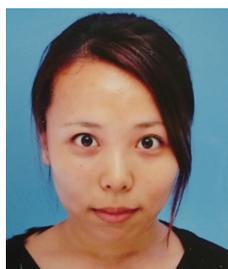
引用文献

- (1) Z. Karpas, *Analytical Chemistry of Uranium*, (CRC Press, 2015).
- (2) B. Ravel et al., *J. Synchrotron Rad*, **12**, 537 (2005).
- (3) J. M. Elorrieta et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **18**, 28029 (2016).
- (4) E. A. Stefaniak et al., *J. Nucl. Mater.*, **381**, 278 (2008).
- (5) F. Pointurier et al., *J. Raman. Spectrosc.*, **44**, 1753 (2013).

特集 (日本放射化学会第63回討論会(2019)若手優秀発表賞)

水溶液中におけるボロノ基-アスタチン交換反応の特異性の解明

尾幡 穂乃香¹、白神 宜史²、兼田 加珠子²、大江 一弘³、永田 光知郎²、寺本 高啓²、
市村 聡一郎¹、中川 創太¹、吉村 崇²、豊嶋 厚史²、篠原 厚^{1,2}
(阪大院理¹、阪大放射線機構²、阪大院医³)



がんの診断に汎用的に用いられる¹⁸F-FDGをはじめとする“放射性医薬品”、これらを用いた画像診断技術(シンチグラフィ、PET/SPECT)は今や臨床現場で必要不可欠であり、多種多様な放射性同位元素が用いられている。一方、放射性医薬品を用いた体内照射によってがんの治療を行う“標的アイソトープ治療”(Targeted Radionuclide Therapy: TRT)において、高い細胞殺傷能力を有する α 線が大きな注目を集めている。 α 線は高い線エネルギー付与(Linear Energy Transfer)と生体内で100 μ m以下という短い飛程を有することから、 α 線放出核種を腫瘍に選択的に集積させることで、正常細胞へのダメージを最低限に抑えながら高い治療効果を引き出すことが可能と期待されている。実際に²²⁵Ac-PSMA-617をはじめとした非常に優れた臨床結果が示されている^[1]。

At-211(半減期($T_{1/2}$) = 7.2 h)は加速器製造が可能な点、半減期や壊変様式が治療に適切である点から、 α 線核医学治療に適した核種であると注目されている。しかしながら、Atは安定同位体が存在せず、最も寿命が長い²¹⁰Atでさえ半減期が8.1時間と短いため、マクロ量で取り扱うことができない。そのため、Atの基礎研究は現在も限定的であり、取り得る化学形ですら正確には分かっていない。この状況は、品質保証が求められる臨床応用において大きな課題となっている。

Atは第17族に属するハロゲン元素であり、核医学分野で汎用的に利用されている¹⁸Fや¹²³I、¹²⁵I、¹³¹Iなどの標識技術が応用できると期待され

ている。そのため、化学的に不明点が数多く残りながらも、At標識薬剤の開発が進められている。一般的に芳香族化合物を放射性ハロゲンで標識する方法として、有機スズ化合物に対する求電子置換反応が用いられている。実際にAtにも適用されており^[2]、その反応機構は他のハロゲンと同様にAt⁺が関与すると推測されている(Fig. 1-a)。この反応は多くの場合メタノール-酢酸中で行われるが、AtをAt⁺に酸化させるためにN-クロロスクシンイミドなどの酸化剤が加えられており、標識収率は40~60%程度となる。一方、本研究グループが開発した標識方法では、弱塩基性水溶液中で有機ボロン酸に対する求電子置換反応(Fig. 1-b)^[3]を行う。本方法では標識収率が8割以上と非常に高いことが分かっているが、反応機構など、高収率となる根拠は明らかとなっていない。そこで本研究では、弱塩基性水溶液におけるボロノ基-アスタチン交換反応が高収率となる要因を調べることを目的とした。

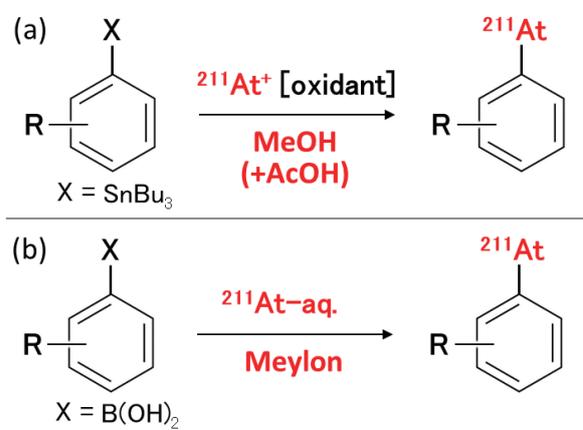


Fig.1 Synthetic Routes to ²¹¹At-Labeled Compounds
(a) previous work (b) this work

まず初めに行った標識実験により、弱塩基性水溶液中のポロノ基-アスタチン交換反応は酸化剤の有無に関わらず高収率で反応が進行することが分かった。そこで我々は、溶媒ごとに安定に存在する At 化学種が異なり、水溶液中では反応に関与する活性種が存在するのではないかと推測し、溶液中に存在する At 化学種の特定を試みた。

乾式分離法によって得られた水溶液とメタノール中の At について、逆相カラムや陰イオン交換カラムを用いた液体クロマトグラフィーを行った。まず逆相カラムを用いて分析を行ったところ、メタノールと水溶液中では安定に存在する At 化学種が異なることが分かった。Fig. 2 に示すように、メタノール試料では異なる溶液条件で2つの化学種 (At(1)、At(2)) が確認されたが、水溶液試料では逆相カラムに強く吸着する成分 (At(3)) が確認された。

次に水溶液試料について陰イオン交換クロマトグラフィーを行い、吸着成分について分析を試みた。溶離液に 0.05 M KOH の塩基性水溶液を使用し、0.1 M NaOH 中の At について分析を行ったところ、Fig.3 に示すように保持時間 5.1 min で単一ピークが確認された。同条件下における他のハロゲン化物イオン (Cl^- , Br^- , I^-) とイオン半径の相関を調べたところ、先行研究^[4]で理論計算された At^- のイオン半径 2.59 Å から外挿された At^- の保持時間 22.3 min とは大きく異なっていた。

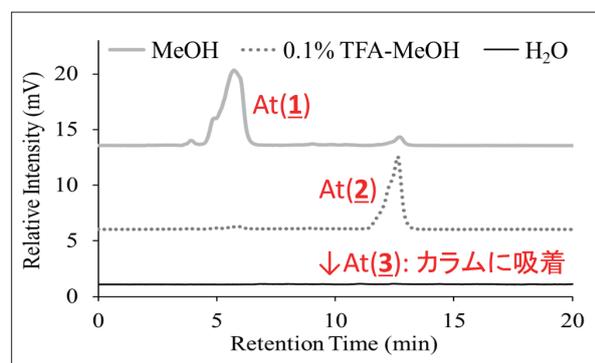


Fig.2 Radiochromatogram
(Solvent; A: 0.1% AcOH in MeCN and B: 0.1% AcOH in MeCN:H₂O [5:95]. Gradient; A:B=28:72 [0-15 min]-100: : 0 [20 min].)

また、ハロゲン酸イオン (ClO_3^- , BrO_3^- , IO_3^-) の溶出傾向から AtO_3^- は保持が弱いと推測され、観測された At ピークは AtO_3^- とは異なると考えられた。つまり、本条件下で At は、ヨウ素で安定な -1 価や 5 価とは異なる酸化数の陰イオンとして存在している可能性が示唆された。先行研究^[5]では、塩基性水溶液中には陰イオン種である 3 価の $\text{AtO}(\text{OH})_2^-$ が存在すると言及されており、本研究では正に分極した 3 価の At が有する高い求電子性が高収率の要因となり得るのではないかと推測された。

現在、塩基性水溶液中の陰イオンが At^- とは異なる種であるのか詳細に調べるために、異なる pH や酸化還元電位で陰イオンクロマトグラフィー分析を行い、 At^- との比較評価を試みている。

参考文献

- (1) Kratochwil, et al. *J. Nucl. Med.* **57**, 1941-1944.
- (2) Pozzi and Zalutsky. *J. Nucl. Med.* **2007**; **48**: 1190-1196.
- (3) 大阪大学, 白神宜史ら, 放射標識されたアリアル化合物の製造方法, WO2019/027059, WO2019/131998
- (4) Jiguang and Dong. *J. Phys. Chem.* **2010**; **114**: 13388-13394.
- (5) Sergentu, et al. *Chem. Eur. J.* **2016**; **22**: 2967-2971.

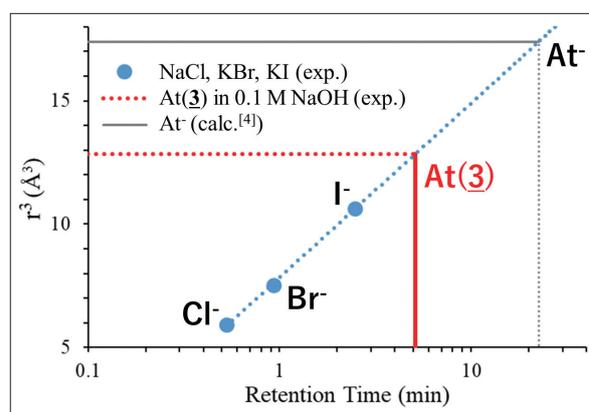


Fig. 3 Correlation between retention time and ionic radius

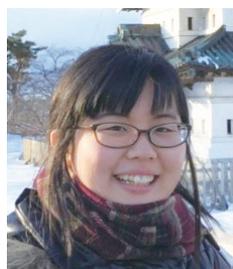
特集 (日本放射化学会第63回討論会(2019)若手優秀発表賞)

3価陽イオン状態におけるランタノイド・アクチノイドの錯形成能の 差異とイオン半径の推定

柏原 歩那¹、塚田 和明²、豊嶋 厚史³、山崎 信哉⁴、

田中 万也²、藤田 睦¹、末木 啓介⁴

(筑波大院数理¹、原子力機構²、大阪大放射線科学基盤機構³、筑波大数理物質系⁴)



JAEAにおけるアインスタイニウム・プロジェクトの一環の成果として、99番元素アインスタイニウムの水和物において、それ以前の原子番号のアクチノイドと比較して水和物イオンの

イオン半径が急激に低下することが報告され、アインスタイニウム・ブレイクと名付けられた^[1]。ランタノイドがネオジウムからガドリニウムにかけて水和数が9から8に変化し、同領域で水和イオン半径も急激に低下することから、アインスタイニウム・ブレイクにおいても同様の現象が起きていると考えられたが、アインスタイニウム水和物がカリホルニウム水和物と水和構造が同じであったため、ランタノイドとは同様の説明ができない。そのため、3価陽イオンの電子配置が従来考えられていた $[Rn]5f^n$ ではなく $[Rn]5f^{n-1}6d^1$ であることを示唆しているといえる^[2]。この報告により、フェルミウム以降の水和イオン半径にいつそう興味をもたれる。しかし従来の重アクチノイドのイオン半径推定法においては、理論計算で導出されたランタノイドのイオン半径から導かれており、上記の現象は考慮されていない。

実験的に推定されたイオン半径については、 α -HIBAを用いた陽イオン交換実験によるものがある。ランタノイドはf軌道が内殻に存在することから互いに化学的性質が非常によく似ている。この類似から、陽イオン交換実験では K_d の変化がイオン半径の違いに起因するといえる。アクチノイドにおいても同様であるとして、重アクチノイドのイオン半径を推定している^[3]。本手法は加

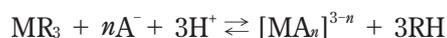
速器オンライン実験が可能であるため、加速器でのみ生成可能であり、短半減期、低生成率である101番(メンデレビウム)以降の元素を扱うことが可能となる。

この手法において、未だに確定していない、ランタノイド、アクチノイドと α -HIBAが成す錯体の構造をオンライン実験で推定することができれば、アインスタイニウム・ブレイクを考慮して重アクチノイド元素のイオン半径を推定することができる。

アクチノイドへの応用のための基礎実験として、ランタノイドを用いてカラム実験、EXAFS測定を行い、配位構造推定方法の検討を行った。

—カラム実験—

樹脂Rに吸着したランタノイドイオンと α -HIBA陰イオンの反応は、配位数を n として次のように表せる。なお、使用するランタノイド、アクチノイドはトレーサー量のため、複核錯体は存在しないと仮定する。



平衡定数は次の通り

$$D = \frac{[MA_n^{3-n}][RH]^3}{[MR_3][A^-]^n[H^+]^3}$$

ランタノイドイオンの分配係数 K_d は、 α -HIBAが n 配位の時初めて溶液に移動すると仮定すると、次のように表される。

$$K_d = \frac{[MR_3]}{[MA_n^{3-n}]}$$

以上の2つの式より、

$$\begin{aligned}\log K_d &= \log \frac{[\text{MR}_3]}{[\text{MA}]^{\frac{3-n}{n}}} \\ &= 3\log[\text{RH}] - \log D \\ &\quad - 3\log[\text{H}^+] - n\log[\text{A}]\end{aligned}$$

の関係式が得られる。 $3\log[\text{RH}] - \log D$ の項は定数とみなせ、 $-3\log[\text{H}^+]$ も溶離剤のpHを一定にすることで定数となる。すなわち、溶離剤のpHが一定の時、 $\log K_d - \log[\text{A}]$ プロットの傾きはランタノイド1つに結合する α -HIBAの個数となる。

以上より、pHを一定にしてカラム実験を繰り返すことにより、 α -HIBAの配位する個数を求めることができる。実際には以下のFig. 1に示すスキームで実験を行った。

結果はLa～Ndの元素では傾きが-3、Tm～Luの元素では傾きが-4となり、軽ランタノイドでは α -HIBAが3つ配位し、重ランタノイドでは α -HIBAが4つ配位することが明らかとなった。

EXAFS 測定

KEKのPF、BL12Cで測定を行った。測定元素はCe, Eu, Ybであり、それぞれに対して水和物、 α -HIBAが等モル量、2倍量、3倍量、過剰量とした混合溶液を測定した。Ce, Euの α -HIBA過剰

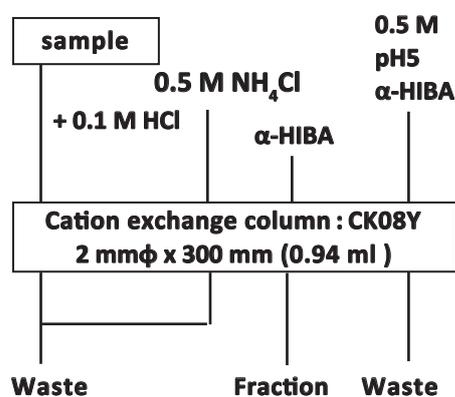


Fig. 1 Scheme of cation exchange.

量において、フーリエ変換後のスペクトルにおいてCe-O, Eu-Oの結合が観測された。水和物で観測されたCe-O(2.05 Å), Eu-O(2.00 Å)と比較して低結合距離側に約0.06 Åシフトが見られた。また、Ybに対しては、上記のシフトに加え、3.6 Å付近にYb-O-Cとみられるピークが確認できた。

【まとめ】

ランタノイドについて、ガドリニウムを基準として溶出位置の比をとり、分離係数を導出し、イオン半径を横軸にプロットした (Fig. 2)。なお、配位数については、水和物の配位数を参考にした。

このプロットから、8配位である重ランタノイドは9配位である軽ランタノイドよりも分離係数がイオン半径に対して鋭敏に変化することが読み取れる。重ランタノイドイオンのイオン半径がより α -HIBAに敏感であることを示し、このことから重ランタノイドが軽ランタノイドよりも多く α -HIBAが配位していることが予測される。

アクチノイドにおいて同様に分離係数を得たものをFig. 3に示す。

Md³⁺, Lr³⁺といった重アクチノイドのイオン半径導出するには、Am～Fmのイオン半径をさらに調査し、ランタノイドとの類似性を確認することが必要である。

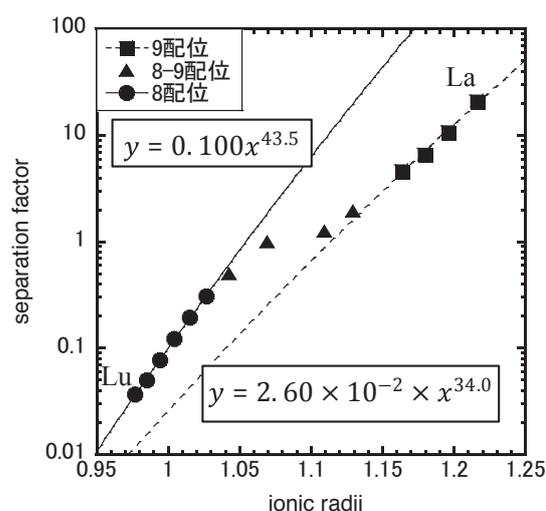


Fig. 2 Correlation of ionic radii and separation factor in lanthanides.

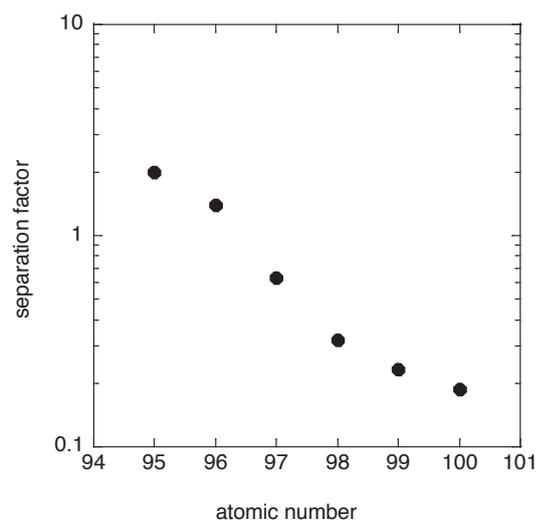


Fig. 3 Separation factors of actinides.

参考文献

- [1] 矢板毅, 山上浩志, 塚田和明, 季刊「未来へげんき」, **51**, 2 (2018).
- [2] 山下浩志, 京都産業大学総合学術研究所所報, **14**, 113–120 (2019).
- [3] W. Brüche, M. Schädel, U. W. Scherer, J. V. Kratz, K. E. Gregorich, D. Lee, M. Nurmia, R. M. Chasteler, H. L. Hall, R. A. Henderson and D. C. Hoffman, *Inorg. Chim. Acta.* **146**, 267–276 (1988).

特集 (日本放射化学会第63回討論会(2019)若手優秀発表賞)

緑泥石標準試料中に存在する鉄の化学状態とその温度依存性

濱坂 佳武¹、佐藤 渉^{1,2}¹ 金沢大院自然、² 金沢大理工

緑泥石 (Chlorite) は地殻中に比較的豊富に存在している粘土鉱物であり、金属イオンをもつ八面体シートとケイ酸塩からなる四面体シートが互層となった構造を持つ。その化学式は一般に $(\text{Mg}, \text{Al})_6^{\text{Oh}}(\text{Si}, \text{Al})_4^{\text{Td}}\text{O}_8(\text{OH})_{10}$ と表されるが、格子中の Mg と Al の位置に Fe^{2+} や Fe^{3+} が置換することが知られている。Fe は Mg や Al と異なり、二価、三価の二つの価数において安定状態をとり、その価数は生成環境及び存在環境の酸化還元状態の影響を受けると考えられ、その化学状態を調べることは地球化学的視点から重要である^[1]。また、粘土鉱物は他の鉱物より大きな表面電荷を持ち、シートの間隙に水分子や金属イオン、有機物等を取り込む特徴を持つことから、機能性材料としても期待されている物質であり、物質化学的にもその物性を把握することが期待されている。鉱物には標準試料として市販されているものが数多くあるが、それらは主として探鉱や鉱石の品位評価のために地質学、地球化学の分野で用いられることが多く、その成分や化学状態などを詳細に研究された例は少ない。そこで本研究では市販されている4つの緑泥石標準試料について⁵⁷Feメスバウアー分光測定を行い、鉄の化学状態とその温度依存性を調べた。

測定試料の緑泥石標準試料の産地を Table. 1 に示した。粉末にした各試料について⁵⁷Feメスバウアー分光法による測定を行い、スペクトルの温度依存性を6K～室温の間で調べた。また、鉱物の確認を行うために粉末X線回折(XRD)測定を行い、試料中に含まれる元素の定量を行うため、蛍光X線(XRF)測定を行った。これまでの研究によりC1について鉄不純物の存在が確認されて

Table. 1 Names and producing places of the chlorite samples.

試料	産地
Chlorite-1 (C1)	滋賀県甲賀郡石部町
Chlorite-2 (C2)	長崎県西彼杵郡三和町
Chlorite-3 (C3)	Murphys, CA, USA
Chlorite-4 (C4)	Yancey, NC, USA

おり、緑泥石の格子外に存在する鉄成分を除去するため、3価オキシ水酸化鉄の遊離法として知られている重ジチオン酸ナトリウムを用いた化学処理を実施した^[2]。

Fig. 1 に各試料の室温および6Kのメスバウアースペクトルを示す。XRD測定では、緑泥石以外に鉄を含む鉱物が確認されなかったため、緑泥石中の鉄の成分のみを仮定してスペクトルの解析を行った。スペクトルはそれぞれ、 Fe^{2+} の成分と、異なるサイト(八面体サイト: O_h 、四面体サイト: T_d)を占有する Fe^{3+} の2成分の計3成分で解析した。解析の結果IS, QSの値とともに、試料間での違いはほとんど見られなかったが、それぞれのサイト占有割合は試料によって大きく異なっており、この違いは生成環境や存在環境を議論する上で重要であると考えられる。Fig. 2 に6Kにおける各サイトの鉄占有比を示す。試料によって Fe^{3+} サイト占有比が大きく異なっていることが分かる。Feサイト占有率は、Feが鉱物中の金属イオンを置換する際の環境を反映していると考えられるため、その違いについて議論することは生成環境や存在環境を知る上で重要である。そこでFeサイト占有比とXRFによって得られた緑泥石の組成の相関を考察した。一例としてFig. 3にFeとAlの含有量比(Al/Fe)に対するメスバウアー分光法によって得られた両サイト

の Fe 存在量を示す。Al 含有量の多い試料では、 Fe^{2+} の含有量が明らかに多い。これは、Al と置換しやすい同一価数の Fe^{3+} による置換が少ないことと同期した現象であると見なすことができ、Al の含有量が多い試料程、より還元的な環境に存在していた可能性を示唆するものである。また、 Fe^{3+} に関しては、Al の増加に伴って八面体サイトを占有する量は増加するものの、四面体サ

イトを占有する量は大きく減少する傾向が見出された。これは、 Fe^{3+} は Fe 濃度が低い場合には広いサイトである八面体サイトを優先的に占有するが、Fe 濃度が Al に対して高くなると四面体サイトの占有率が増すことを示唆する結果である。このように、試料中の Al 濃度と鉄の価数や占有サイトの相関に関する情報は、緑泥石生成時の酸化還元環境を知る指標となり得ると考えられる^[3]。

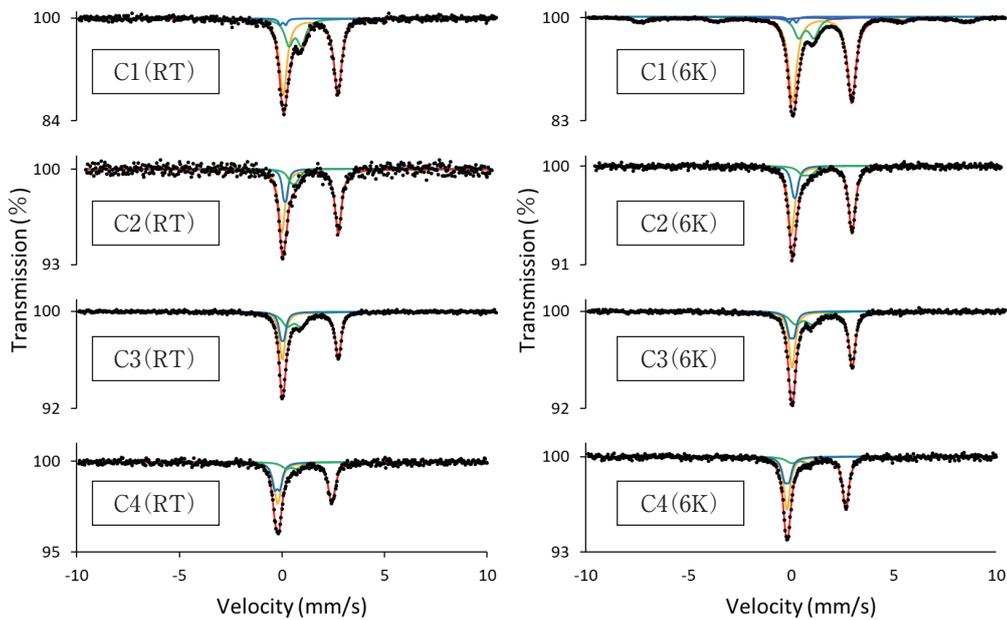


Fig. 1 ^{57}Fe Mössbauer spectra of the chlorite samples obtained at room temperature and 6 K.

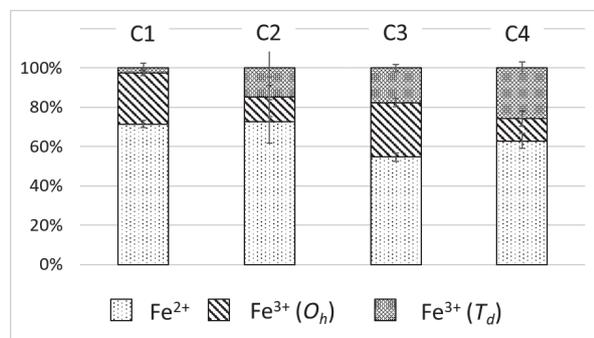


Fig. 2 Iron contents in the chlorite samples.

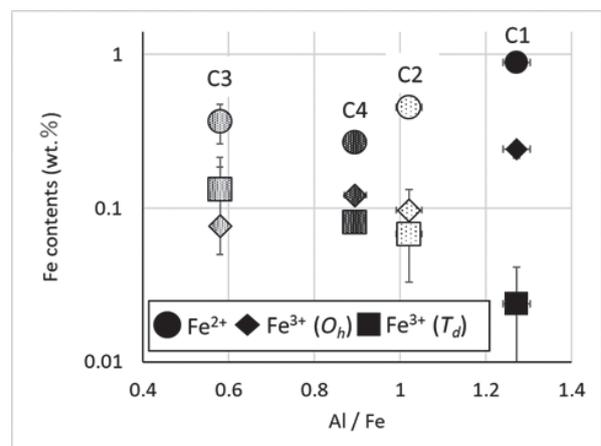


Fig. 3 Correlation between the content ratio of Al/Fe and the Fe content at each site in the chlorite samples.

メスバウアースペクトルの温度依存性を調べたところ、C1において245 K以下で磁気分裂成分が確認された。メスバウアーパラメータより、この成分はナノサイズの非晶質 Akaganeite であると考えられる。この結果は、XRD 測定や室温測定など、鉱物試料に対して通常行われている室温でのキャラクタリゼーションだけでは判別困難で見落としがちな情報を低温測定によって得たことを示すものであり、標準試料として市販されている他の試料にもマクロ量の不純物が混入している可能性を示している。

今後は試料中の元素濃度と Fe サイト占有比との相関をさらに調べ、緑泥石の生成環境に対する

考察を深めていく予定である。

謝辞

首都大学東京の秋山和彦先生に XRF 測定でお世話になりました。この場をお借りしてお礼申し上げます。

参考文献

- [1] 佐藤努, 粘土科学 41, 26-33 (2001)
- [2] 須藤俊男, 粘土鉱物学, 岩波書店 (1974)
- [3] Sachinath, M., Maibam, B., Clay Sci. 11, 479-501 (2001)

会議報告

日本放射化学会第63回討論会(2019) 実施報告

別所 光太郎 (高エネルギー加速器研究機構)

北辻 章浩・塚田 和明 (日本原子力研究開発機構)

1. はじめに

2019年9月24日(火)から26日(木)まで福島県いわき市のいわき産業創造館において開催されました、日本放射化学会第63回討論会(2019)の概要について、実行委員会からご報告いたします。多数の会員の皆様から本討論会にご参加をいただき、貴重なご発表、活発なご議論をいただきましたことを御礼申し上げます。

本討論会の実行委員会は、日本原子力研究開発機構(原子力機構)に所属する会員により組織され、廃炉国際共同研究センター・木村貴海センター長代理を実行委員長として、福島県いわき市のいわき産業創造館において開催されました(主催:日本放射化学会、共催:日本原子力研究開発機構、日本化学会、日本原子力学会、日本分析化学会、日本薬学会。協賛企業:8社)。開催にあたっては、のべ18社(協賛のほか展示7社、広告3社)の企業からの助成、いわき市及び福島県からコンベンション、エクスカーショント補助制度による支援をいただきました。また、観光マップの提供や公開講演会のポスター掲示・チラシ配布など、いわき観光まちづくりビューローより多くのご協力をいただきました。

原子力機構は、これまでに、1966年・第10回放射化学討論会(東海・原研)、1988年・第32回放射化学討論会(東海・原研)、2006年・日本放射化学会年会・第50回放射化学討論会記念大会(水戸・藝文センター、東海・原科研)の開催においてホストを務めています。今回は、原子力機構が主催する4回目の放射化学討論会となりました。

なお、2018年9月の日本放射化学会第20回総会において、日本放射化学会の設立以来使用されてきた名称「20XX 日本放射化学会年会・第〇〇回放射化学討論会」を見直すことが理事会から提

案され、同総会での審議、理事会での検討、学会員の皆様からの意見募集を踏まえて、今回「日本放射化学会第63回討論会(2019)」の名称として開催されることになりました。今回の名称変更は、「日本放射化学会年会」と「放射化学討論会」のダブルネームを解消することに加え、放射化学討論会の歴史を継承した上で、学会が主催する行事であることをより明確に位置付けることを意図したものです。また、討論会実行委員会に学会理事会からも担当1名(別所)が加わり、討論会の現地実行委員会と学会理事会で準備状況を共有しながら、開催や企画等の準備を連携して進めました。

2. 年会概要

2-1. 参加者数と内訳

本討論会には、合計199名(女性23名)の参加をいただきました。内訳は、放射化学会正会員103名、学生会員39名、共催学会・賛助会員団体所属8名、非会員一般23名、非会員学生26名、となりました。

なお、討論会参加費の金額設定については、実行委員会と学会理事会が連携して検討し、学生会員と非会員学生の参加費の差額を放射化学会学生会員の初年度年会費と同額(3,000円)に設定することで、学生・院生が放射化学会に入会して討論会に参加することについて金銭的負担が大きくなるようにしました。また、討論会での優秀な発表に贈呈される若手優秀発表賞は、学会が授与する賞との位置づけとし、日本放射化学会の会員を対象に選考する形に変更しました。これらの取り組みも踏まえ、本討論会の発表・参加申し込みにあわせて、新たに放射化学会に入会いただいた参加登録者は、学生会員22名、正会員6名に上り、多くの学部学生・大学院生・若手研究者が放射化学会に会員として加わっていただく機会と

もなったように感じます。また、共催学会・賛助会員団体所属の参加者についても、放射化学会正会員と同じように参加登録費を割引価格とし、より参加しやすくしました。これらの点は、放射化学討論会を実行委員会と学会理事会が連携して開催することにより可能となった利点の一つであるものと考えています。

2-2. 一般講演の発表件数、受賞講演、等

今回、発表募集分野については、これまでの討論会と同様に幅広く設定し、1. 核・放射化学、2. 宇宙地球化学、3. 環境放射能（福島関連、およびそれ以外）、4. 原子核プローブ、5. 医学・薬学・生物学における RI 利用、6. 放射化学的手法を用いた応用研究、7. その他 について、口頭発表とポスター発表を募集しました。

一般講演としては、計 118 件の発表申し込みがあり、申込分野の内訳は、1. 核・放射化学:30 件、2. 宇宙地球化学:3 件、3. 環境放射能:43 件、4. 原子核プローブ:17 件、5. 医学・薬学・生物学における RI 利用:6 件、6. 放射化学的手法を用いた応用研究:6 件、7. その他:13 件 でした。最終的に、口頭発表 58 件、ポスター発表 58 件が行われました。(申込のうち 2 件は、発表を取りやめ)

また、一般講演以外に、木村賞受賞講演 1 件、学会賞受賞講演 1 件、奨励賞受賞講演 3 件、20 周年記念パネル討論会が行われました。

2-3. 発表会場等について

一般口頭発表、ポスター発表、受賞講演、パネ

ル討論会等の発表はすべて、いわき駅前「LATOV (ラトブ)」6 階のいわき産業創造館内に設置された各発表会場において実施されました。

討論会の参加登録受付では、プログラム冊子と記念品（ボールペン）等を、特製ロゴ入りの布製バッグに入れて配布しました。講演要旨集は PDF ファイルとしてのみ作成し、参加登録者には事前に URL を案内してダウンロードいただく形をとりました。

口頭発表は、A 会場、B 会場の 2 会場を使用し、発表時間 15 分、討論含め 20 分として実施しました。定員 300 名程度のホールに設定した A 会場では、席にかなり余裕がありましたが、定員 110 名程度のセミナー室を利用した B 会場では、セッションによっては、数名程度が立ったまま講演を聞いている状態も見受けられ、若干手狭であったかもしれません。両会場とも、活発な質疑が行われました。

ポスター発表については、A 会場に隣接する通路脇のスペースに、会期中、58 件のポスター全数を掲示する形で実施しました。ポスターセッションのコアタイムは、1 日目 14:00 - 15:15 (奇数番号)、2 日目 10:45 - 12:00 (偶数番号) に設定しました。コアタイム時には、多くの参加者がポスター掲示エリアに集まり、各ポスターの前で活発な説明と議論が行われました。特に多くの聴衆が集まっていたポスターの周囲では、目的のポスターになかなか近づけない様子も見受けられ、もう少しスペースを広く設定できたら、より余裕を持ったポスター発表と議論ができていた



写真 1 口頭発表 (B 会場) の様子



写真 2 ポスターセッションの様子

かもしれません。ポスターセッション以外の時間帯にも、ポスター掲示の内容をじっくり見ている参加者が多く見受けられました。

企業展示エリアは、A会場とB会場の間のロビーに設けられ、7社の企業による機器展示が行われました。残念ながら、あまり多くの会議参加者が立ち寄って展示や資料を見学している様子は見受けられず、企業展示の場所や実施方法には改善の余地があったかもしれません。

学会が主催する学会各賞の受賞講演、パネル討論会、総会・授賞式等はA会場で実施されました。これらの行事時間帯には、ほとんどの参加者がA会場に集まり、特に、木村賞・学会賞の受賞講演会は討論会参加者以外にも一般公開する形で実施されたこともあり、ほぼ満席の状態となりましたが、発表会場の運営・進行は、概ね順調に進められたように思われます。

3. 分科会

例年同様、各日の昼食の時間帯に、 α 放射体・環境放射能、放射化分析、核化学、原子核プローブの各分科会、および、2018年度より組織された若手の会について分科会が開催され、関連する依頼講演と情報周知などが行われました。下記に、それぞれの分科会の主な内容を、まとめます。

< α 放射体・環境放射能分科会>

世話人：松中哲也氏（金沢大学）
「福島第一原発事故起源の放射性セシウムの再浮遊要因」 五十嵐康人氏（京都大）
情報提供 鷺山幸信氏（福島県立医大）
第21回「環境放射能」研究会開催案内

<放射化分析分科会>

世話人：三浦勉氏（産総研）
各施設からの現状報告
放射化分析研究会総会
放射化分析に関する京大炉専門研究会の案内

<核化学分科会>

世話人：佐藤哲也氏（原子力機構）
「核・放射化学研究に向けた原子力機構タンデム加速器の取り組み」 松田誠氏（原子力機構）

核化学夏の学校の報告

TAN19学会報告

<原子核プローブ分科会>

世話人：金子政志氏（原子力機構）
「放射化学的手法を用いた貧酸素水塊環境下にある東京湾低質の堆積環境に関する研究」 松尾基之氏（東京大学）

<若手の会分科会>

世話人：小荒井一真氏（原子力機構）
「研究のアピールできてますか？ - 過去の優秀発表賞受賞者の講演から考える聴き手にわかりやすく伝えるテクニックとは？ -」 小荒井一真氏（原子力機構）、重河優大氏（理化学研究所）
パネルディスカッション
若手の会総会

4. 日本放射化学会創設20周年記念パネル討論会 ～放射化学の未来を考える～

放射化学会が主催する企画として、2日目の午後、学会総会に引き続き、「日本放射化学会創設20周年記念パネル討論会～放射化学の未来を考える～」が開催されました。本企画は、放射化学会・篠原会長の呼びかけにより実現したもので、分野ごとに、現状分析と将来を見据えた研究分野の動向、目指すべき姿などを共有し、会員を含めた意見交換を行う場として企画されたものです。これまでに、分科会に概ね対応する分野の単位で検討WGが設置され、各WGで現在までに行われた



写真3 パネル討論会の様子

議論の状況等を報告いただきました。

まずはじめに、篠原会長より企画の趣旨が説明された後、各分野から、現状認識と将来構想に関わる検討の状況が報告されました。

(核化学 WG)

羽場宏光氏「核化学のロードマップ」

(放射化分析 WG)

三浦勉氏「ロードマップ：放射化分析」

(核プローブ WG)

佐藤渉氏「核プローブの物性研究 ～現状と展望～」

(環境 WG)

田上恵子氏「環境中における元素の動きを捉え、人と自然の過去－現在－未来を考える」

(教育・人材育成 WG)

横山明彦氏「放射化学の基礎的教育の充実と先進的研究への誘い」

これら 5 件の報告内容を踏まえ、篠原会長から「放射化学会の役割」についても意見が述べられ、パネラー及び会場参加者を含めて意見交換が行われました。最後に、篠原会長より、2020 年 9 月に開催予定の第 64 回討論会 (2020) において、各分野で検討されたロードマップを報告してもらう予定ですので、さらに議論を進めてほしいことなどが紹介されました。今後、各 WG においてさらに検討が進み、次回討論会で各分野のロードマップや放射化学会全体としての構想などが紹介されることが期待されます。

5. 公開講演会 木村賞・学会賞・奨励賞受賞講演

本討論会では、学会創立 20 周年を記念し、また新元素発見という社会的関心の大きい講演内容でもあったため、木村賞受賞講演を学会賞受賞講演とともに一般公開としました。

木村賞受賞講演

森田浩介先生 (九州大、理研仁科センター)

「さらなる新元素を求めて」

－ 113 番元素の発見による放射化学への貢献－

学会賞受賞講演

佐藤哲也先生 (原子力機構)

「周期表が書き換わる？～アクチノイド最後の元素でみつけた周期表のほころび～」

－ 第一イオン化エネルギー測定によるアクチノイド系列の確立ならびに超重元素領域における核化学研究の開拓－

また、本年は 3 件の奨励賞授賞があり、3 日目午後に受賞講演会が実施されました。

奨励賞受賞講演

日下良二氏 (原子力機構)

「振動和周波発生分光法を用いたランタノイドおよびアクチノイド研究の界面化学への展開」

小林大志氏 (京都大)

「4 価アクチノイドの錯生成および溶解度に関する熱力学的研究」

小豆川勝見氏 (東京大)

「福島第一原子力発電所事故で放出された放射性核種を含む食品などの分析」

6. 若手優秀発表賞

本討論会から、「若手優秀発表賞」は学会が授与する賞との位置づけとなり、日本放射化学会の学生会員、および 35 歳未満の正会員からの発表を対象に、選考が行われることになりました。選考の方法・基準は、学会理事会により新たに策定された「日本放射化学会若手優秀発表賞表彰要項」をもとに実施されました。

WEB での講演申込時に「若手優秀発表賞の選考対象」(学生会員 / 正会員 (35 歳未満) / 非該当・希望しない) の選択項目を設け、口頭発表：学生会員 19 件、正会員 4 件、ポスター発表：学生会員 17 件、正会員 7 件、以上合計 47 件、が選考対象となりました。対象発表毎に 3 名の審査員を設定し、討論会実行委員、学会理事、セッション座長等に加え、放射化学会正会員の参加者を含めて計 43 名の方々に審査員のご協力をいただきました。ご協力をいただきました多くの皆様に御礼申し上げます。

審査結果 (点数) の集計結果を踏まえ、篠原会長、木村実行委員長、選考担当委員から成る選考

会議での最終確認を経て、以下の6件の発表が選考されました。最終日の閉会式の前に表彰式が行われ、篠原会長から各受賞者に対し、賞状と副賞が授与されました（写真4）。

＜日本放射化学会第63回討論会（2019）

若手優秀発表賞 受賞者一覧＞

口頭発表

五十嵐淳哉（大阪大学）

「福島原発事故により放出された不溶性粒子に含まれるプルトニウムの定量」

庭瀬暁隆（九州大学）

「MRTOF+ α -ToFを用いた ^{207}Ra の質量-崩壊特性測定」

ポスター発表

蓬田匠（原子力機構）

「ラマン分光法とX線吸収分光法による二酸化ウランの酸化状態分析」

尾幡穂乃香（大阪大学）

「水溶液中におけるボロノ基-アスタチン交換反応の特異性の解明」

柏原歩那（筑波大学）

「3価陽イオン状態におけるランタノイド・アクチノイドの錯形成能の差異とイオン半径の推定」

濱坂佳武（金沢大学）

「緑泥石標準試料中に存在する鉄の化学状態と

その温度依存性」

7. 懇親会

本討論会の懇親会は、2日目のセッション終了後、いわきワシントンホテル3階 アゼリアにて、137名が参加して行われました。

篠原会長の開会挨拶に続き、来賓として、いわき市・清水敏男市長、日本原子力研究開発機構・野田耕一理事から、ご挨拶を頂戴しました。

いわきの地酒「又兵衛」の鏡開きに続いて、木村実行委員長の乾杯の音頭とともに、にぎやかな歓談が始まりました。いわき名物フラガールによるフラダンスや、20周年記念升で飲む福島県の地酒を楽しんでいただけたことと思います。

懇親会の終わりに、来年の討論会実行委員長を務められる篠原会長より、次回の大阪大学での開催についてご紹介いただき、閉会となりました。

8. 東京電力福島第一原子力発電所ほか見学会

討論会最終日翌日の9月27日（金）に、東京電力HD福島第一原子力発電所（大熊町・双葉町）、廃炉資料館（富岡町）、原子力機構楢葉遠隔技術開発センター（楢葉町）の見学会を実施しました。たいへん充実した見学内容で、参加者の皆様（計58名：引率者含む）にもご満足いただけたことと思います。



写真4 若手優秀発表賞の受賞者（写真左から、蓬田氏、五十嵐氏、庭瀬氏、尾幡氏。柏原氏と濱坂氏は欠席。）と、篠原会長（左端）、木村実行委員長（右端）



写真5 懇親会の様子



写真6 篠原会長の挨拶

9. 最後に

今回の日本放射化学会第63回討論会(2019)は、日本放射化学会が設立されて20周年を記念する討論会となったこと、名称変更後の最初の討論会となったこと、東京電力福島第一原子力発電所に近接する福島県いわき市で開催されたことなど、いくつかの特徴を持つ討論会となりました。

開催の準備に当たっては、実行委員の多くが勤務する茨城県東海村から約70km離れた場所での開催となったことも関係し、会場に関わる事前の情報収集や調整などで苦労した面も多かったように感じます。討論会の運営において、十分ではない点もあったことと思いますが、参加者・発表者の皆様方のご協力と、多くの優れた研究発表と活発なご議論のおかげで、充実した内容の討論会として無事終了することができたのではないかと考

えております。下記の実行委員会メンバーをはじめ、原子力機構よりお手伝いいただいた方など、開催にあたってご協力をいただきました多くの方々に感謝申し上げます。

最後になりますが、本会の成功にご協力をいただきました参加者、講演者の皆様に、心より御礼申し上げます。

日本放射化学会第63回討論会(2019)実行委員会
(実行委員長) 木村貴海

(実行委員) 明石優佳里、浅井雅人、有阪真、大内和希、金子政志、北辻章浩、日下良二、佐藤哲也、佐藤志彦、竹内絵里奈、田中究、塚田和明、藤暢輔、富田純平、富田涼平、永岡美佳、別所光太郎、堀田拓摩、間柄正明、松枝誠、宮本ユタカ、安田健一郎、蓬田匠、渡邊雅之

会議報告

第58回核化学夏の学校報告

小森 有希子 (理研仁科加速器科学研究センター)

第58回核化学夏の学校が、2019年9月11日から14日の3泊4日の日程で、大分県由布市のゆふトピアで開催されました。主催は日本放射化学会核化学分科会、共催は理化学研究所仁科加速器科学研究センターと九州大学大学院理学研究院附属超重元素研究センターです。世話人は理研の核化学研究チームが務めました。核化学夏の学校が九州で開催されたのは、58回の歴史の中で今回が初めてです。参加者数は一般33名（うち同伴者4名）、学生23名、計56名でした。今回、最先端の原子核・原子物理と原子核、原子、分子を操る技術を学ぶという趣旨のもと、以下の4名の先生方をお呼びして講義をしていただきました。

○ 講義

- ・ 酒見泰寛先生（東大）「レーザー冷却重元素による基礎物理」
- ・ 東俊行先生（理研）「極低温静電型イオン蓄積リングが拓く極限科学」
- ・ 和田道治先生（KEK）「超重元素から安定の島へー精密質量測定によるアプローチー」
- ・ 森田浩介先生（九大）「超重元素合成のための核融合反応機構の初歩」

話題提供については、以下の15件の発表がありました。

○ 話題提供（敬称略）

- ・ 重河優大（理研）「 ^{235}mU と $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換過程に対する化学効果」
- ・ 坂口聡志（九大）「九大超重元素研究センターの紹介」
- ・ 尾幡穂乃香（阪大）「量研機構 / 放医研の施設・研究紹介」
- ・ 浅井雅人（JAEA）「超重核の自発核分裂と α 崩壊の精密測定に向けて」
- ・ 内藤智也（東大）「Introduction and Application of Density Functional Theory Toward Understanding Super-heavy Elements」

- ・ 渡邊瑛介（阪大）「計算化学的アプローチで重元素化学に挑む」
- ・ 初川雄一（JAEA）「Tc-95、96のETCC撮像」
- ・ 小森有希子（理研）「理研の核化学研究環境」
- ・ 大江一弘（阪大）「阪大医学部核医学講座における研究紹介ー治療用 β^- 核種の新規開発と ^{211}At による甲状腺がん治療の研究ー」
- ・ 吉田剛（KEK）「加速器をどう捨てるか」
- ・ 菊永英寿・池田隼人（東北大）「東北大における（共同利用）研究環境」
- ・ 二宮和彦（阪大）「負ミュオンを用いた非破壊元素分析法の新展開」
- ・ 佐藤志彦（JAEA）「1Fデブリ取り出しに向けた基礎研究と放射光」
- ・ 梶原知啓（阪大）「大阪大学での福島事故で放出された不溶性粒子研究の現状」
- ・ 篠原厚（阪大）「放射線科学基盤機構の現状と将来」

他に、若手の会発案の「若手の会キャリアビルディング」という企画では、学生向けに修士または博士課程後の進路について代表者がパネルディスカッションを行いました。

3日目の午後はエクスカーションと懇親会で、エクスカーションでは別府地獄巡りをしました。参加者は温泉卵を食べたり足の岩盤浴を体験したりしながら、各自のペースで色鮮やかな7つの地獄を楽しんでいました。地獄巡りの後は別府駅周辺の居酒屋で懇親会を開催しました。工藤先生に乾杯のご挨拶をいただいた後、九州の料理を堪能しました。

夏の学校の夜の部も、連日午前2-3時まで歓談が続きました。特に、学生たちが大学間の垣根を超えて楽しそうに交流し、盛り上がっている姿が印象的でした。

次回の第59回核化学夏の学校は、原子力機構の開催ということで、塚田さんにご承諾いただき

ました。最後に、今回の夏の学校の開催にあたり多額の補助をいただいた日本放射化学会核化学分科会、共催として開催費の補助とホテルの斡旋を

いただいた九州大学、お忙しい中遠路はるばるお越しいただいた講師の先生方と参加者の皆様に、心より感謝いたします。



写真1 集合写真



写真2 講義の様子



写真3 エクスカーションの様子



写真4 懇親会の様子



写真5 夜の学校の様子

会議報告

放射性物質環境動態調査事業報告会報告

青野 辰雄、山田 裕

(量子科学技術研究開発機構 量子医学・医療部門 高度被ばく医療センター 福島再生支援研究部)

令和元年9月9日にコラッセ福島（福島市）において、放射性物質環境動態調査事業報告会「放射線科学から見る福島環境とその展望」（主催

量子科学技術研究開発機構（QST）、後援 文部科学省、福島県、公立大学法人福島県立医科大学、日本放射線影響学会、日本放射化学会）を開催しました。平成23年3月の東日本大震災と東京電力福島第一原子力発電所事故に伴い、平成24年度より「福島県放射線医学研究開発事業」を受け、「放射性核種の生態系における環境動態調査等」の事業に取り組むことになりました。本事故後に除染など周辺環境における放射線に対する対策が進んだことや、避難指示区域の見直しや解除が進んでいるものの、それらの地域における放射線による環境への影響や、帰還後に長期間住み続けた場合の、外部および内部被ばくによる将来の被ばく線量について、評価するための体制があまり整っていないという状況がありました。そこで福島県民の健康調査事業の中心である福島県立医科大学と協力して、福島に研究拠点を構築し、放射性物質から、住民が周辺環境を通して長期的に受ける被ばく線量を評価し、放射線が住民の周辺環境に与える影響を評価することで住民等の不安解消に資する事を目的として本事業を行ってきました。

本報告会では、まずQSTが本事業で行ってきた概要の説明を行い、続いて「環境中のごく微量なストロンチウム-90を迅速かつ高精度に測定する新たな分析法の開発」、「福島陸水および海域における放射性物質の動態」、「福島の野生生物への放射線影響」や「日常生活で受ける外部被ばくや内部被ばく線量を算出するシステムの構築」の

4テーマについて、概要や成果についての講演を行いました。午後には、ポスター発表にて、4テーマの成果に関する詳細を約20件のポスター発表で紹介しました。また、福島県立医科大学医学部の村上道夫先生より、「福島での健康リスクと価値：調査の意義、対話の意義」と題して特別講演をいただきました。被ばくによるリスクと、心理的苦痛や、生活習慣病および死亡率のリスクの上昇などの健康リスクと比較しながら、被災者のリスクを軽減していくことが重要な課題であるなどのお話がありました。福島で行われる東電福島第一原発事故に関わる調査・研究は、福島の復興のためでなければならない、とのお言葉があり、本事業を継続していくうえで、QSTとしても、そのことをより強く認識していかなければならないと感じました。

最後に、日本科学未来館・池辺靖氏のファシリテーションにより、報告会での発表に対して会場から寄せられたご質問やご意見をもとにした総合討論を行いました。「ストロンチウム-90の分析法を使って魚や生物の骨などを測ることができるのか」「なぜ夏季の方が河川中の放射性セシウムの濃度が高くなるのか」などのご質問や、「日常生活で受ける線量の算出システムを早く使えるようにしてほしい」といったご意見を頂きました。台風15号の接近通過による悪天候の中、福島県内だけでなく県外からも多数ご来場いただき、誠にありがとうございました。本報告会でいただいたご意見等も活かしながら、これからも福島の復興・再生のための研究・調査を継続、発展させていくとともに、研究成果等のよりわかりやすい情報発信に取り組んでいきます。



写真1 講演会場の様子



写真2 ポスター発表



写真3 総合討論



写真4 報告会終了後の集合写真

会議報告

日本学術会議「原子力総合シンポジウム2019」

上坂 充（東京大学原子力専攻教授・日本学術会議連携会員）

日本学術会議「原子力総合シンポジウム2019」が12月2日、日本学術会議講堂で開催された（図1）。主催は日本学術会議総合工学委員会（原子力安全に関する分科会）、関連48学協会からなる運営委員会の幹事は日本原子力学会である。原子力総合シンポジウムは、わが国の原子力について総合的に議論を行う場である。

東京電力福島第一原子力発電所の事故より8年半を経過した今日においてもなお、避難を余儀なくされている方々が多数おられ、今後も廃炉と復興はもとより、原子力安全について長期に亘る継続的な努力が必要である。一方で、2018年には「第5次エネルギー基本計画」が策定され、「原子力は安全性の確保を大前提に長期的なエネルギー需給構造の安定性に寄与する重要なベースロード電源」と位置付けられた（図2）。2030年、さらには2050年における原子力の電力全体での割合、運転期間延長、新規建設、新型炉開発等がアジェンダにあがっている。そこで、今回の原子力総合シンポジウムにおいては、「社会のニーズと調和する原子力技術の開発・利用」をテーマとして取り上げ、原子力、原子力利用の将来像の両面の視

点からの議論を行った。その際、技術的な側面とともに、人文社会的、社会心理学的側面の議論を行うことで、社会のニーズに応えられる原子力技術のありかたが議論されることを期待した。

東京電力福島第一原子力発電所の事故からは多くの学ぶべき教訓があった。原子力エネルギー利用にはこれら教訓踏まえ原子力安全について継続的な取り組みが求められる。一方、原子力技術にはエネルギー利用に加え、医療や産業応用などの放射線利用が含まれる。このような原子力技術の広がりを踏まえ、将来にわたり原子力技術が社会から受容されるためには社会のニーズをよく理解しなければならない。

そこで、今回のシンポジウムでは、「社会のニ



図1. シンポジウム風景（原産新聞提供）

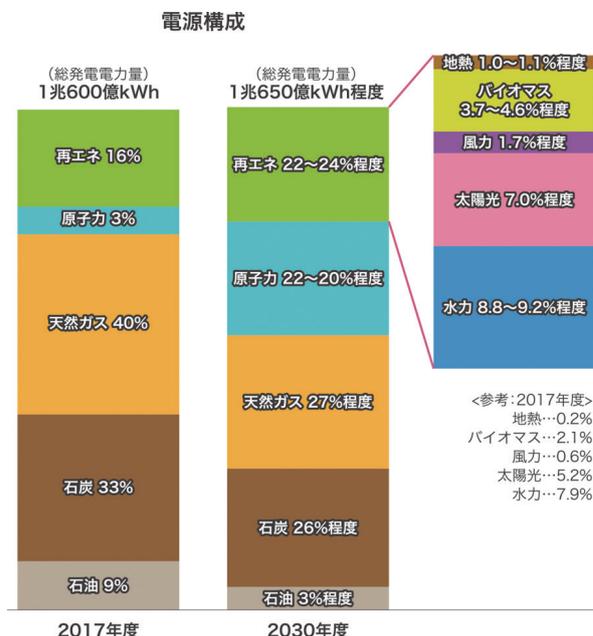


図2. 経済産業省資源エネルギー庁策定2030年のエネルギーミックス（経済産業省日本のエネルギー2018「エネルギーの今を知る10の質問」）
<https://www.enecho.meti.go.jp/about/pamphlet/energy2018/html/005/img/q5_02.png>

ズと調和する原子力技術の開発・利用」をテーマとし、幅広い原子力技術の利用、社会ニーズとの調和、事故の教訓の技術的側面の3サブテーマについて基調講演を行い、総合討論により課題の明確化、将来の方向性について議論した。

次第は以下の通りである。

全体進行：山地 憲治（日本学術会議連携会員、公益財団法人地球環境産業技術研究機構（RITE）副理事長）

13：00 開会挨拶

大倉 典子（日本学術会議第三部会員、芝浦工業大学名誉教授、中央大学大学院理工学研究科客員教授）

13：20 論点1：持続的な社会を実現するための原子力技術のあり方

司会：山口 彰（東京大学大学院工学系研究科原子力専攻教授）

講演：スピーカー：上坂 充（日本学術会議連携会員、東京大学大学院工学系研究科教授）

コメンテーター：栗津 邦男（大阪大学副学長 / 大学院工学系研究科環境・エネルギー専攻教授）

14：10 論点2：社会のニーズと調和する原子力技術の開発・利用

司会：山口 彰（東京大学大学院工学系研究科原子力専攻教授）

講演：開沼 博（立命館大学衣笠総合研究機構准教授）

15：10 論点3：福島第一事故：科学技術の視点からの教訓（学術会議小委員会の見解など）

司会：山口 彰（東京大学大学院工学系研究科原子力専攻教授）

講演：松岡 猛（日本学術会議連携会員、宇都宮大学基盤教育センター非常勤講師）

15：50 - 17：00 総合討論

モデレーター：野口 和彦（日本学術会議連携会員、横浜国立大学リスク共生社会創造センター長、大学院環境情報研究院教授）

パネリスト：

栗津 邦男（大阪大学副学長 / 大学院工学系研究科環境・エネルギー専攻教授）

上坂 充（日本学術会議連携会員、東京大学大学院工学系研究科原子力専攻教授）

岡嶋 成晃（一般社団法人日本原子力学会会長、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構原子力エネルギー基盤連携センターセンター長）

開沼 博（立命館大学衣笠総合研究機構准教授）

松岡 猛（日本学術会議連携会員、宇都宮大学基盤教育センター非常勤講師）

山口 彰（東京大学大学院工学系研究科原子力専攻教授）

17：00 閉会挨拶

岡嶋 成晃（一般社団法人日本原子力学会会長、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構原子力エネルギー基盤連携センターセンター長）

基調講演は、まず上坂が「持続的な社会を実現するための原子力技術のあり方」の講演を行った。始めに、現在実施中の文科省・経産省・原子力規制庁による研究開発プログラムを紹介し、そこでは、1. 原子力安全、2. 放射性廃棄物の減容、3. 福島廃炉・復興、4. 原子力イノベーション、5. 人材育成が最重要であることを説明した。とくに若い世代を惹きつけるためには夢のある研究開発が必要であることを強調した。その一例として、平成29年度からスタートしている、文科省「もんじゅサイトを活用した新たな試験研究炉に関する調査有識者委員会（上坂主査）」の活動紹介をした。また昨年10月17、18日に、つるが国際シンポジウム2019 - 新たな試験研究炉への期待：立地地域との共生のあり方-が開催され、文科省から地元に対して、新たな計画の説明があったことを紹介した。さらに、研究炉および関連技術の研究をやっている大学院生5名（福井大、福井工大、近畿大、京大、東大）によるパネルディスカッションがとても活況だったことも紹介した。最後に、原子力のエネルギー応用と放射線応用の有機的連携の重要性も強調して、その後のパネリスト栗津氏による放射線医療応用のコメントにつなげた。最後に、その1例として、核放射性廃棄物から核医学薬剤（ ^{99}Mo / ^{99m}Tc , ^{225}Ac ）の生成のプロジェクトも紹介した。

コメンテーターの栗津氏は、始めに、放射線医療の現状を説明され、その重要性を強調された。加えて、「例えば、2050年の生活者の視点に立って2020年の時点で何をすべきか。逆に30年前

の1990年頃の考え方が今うまくいっているのか」を考察する「フューチャー・デザイン」と呼ばれる政策立案手法を紹介された。

次に松岡氏は、「福島第一事故：科学技術の視点からの教訓、学術会議小委員会の見解など」の講演を行った。事故直後の4つの事故調査委員会の報告に言及し、日本学術会議の事故分析の委員会・分科会活動を紹介し、令和元年5月に公開された、報告「我が国の原子力発電所の津波対策－東京電力福島第一原子力発電所事故前の津波対応から得られた課題－」の内容を説明された。特に、地震動と津波の影響の分析の詳細を紹介した。最後に、福島事故の教訓の他産業への十分な展開、アクシデントマネジメント、事前の事故対策訓練、原子力分野と他の産業分野と比較し原子力が安全の観点から、特別なモノとは捉えない、国民に安心を与えるには、技術的観点のみを示すだけではだめである、単なるコミュニケーション以上のものが必要、規制において、従来、新たな知見の採用が速やかではなかった、規制で要求される以上の安全への絶えざる努力が必要、とまとめられた。

開沼氏の講演「社会のニーズと調和する原子力技術の開発・利用」では、まずご自身の豊富な、社会とのコミュニケーション、さらには福島での活動の経験を、新しい概念に基づき、分析された。新しい概念の拠り所として、例に挙げられたのは、ユヴァル・ノア・ハラリ著「ホモ・デウス」、ウルリッヒ・ベックら著「リスク社会論」、リチャード・セイラー、キャス・サンスティーン著「行動経済学」などに書かれている内容である。それら新しい概念に基づき、「社会のニーズと調和する原子力技術の開発・利用とは？」という命題につき、そもそも、社会とは何か？ニーズとは何か？調和とは何か？というように、その本質を議論された。まとめると、非エネルギー分野を中心に利用は拡大し続けており、新興国・途上国ではエネルギー分野でも急拡大しているが、その重要性は意識されにくい。一般的な「社会のニーズ」と原子力との接点が薄いように見えている。確かに原子力は「貧・病・争」の解決に資する技術だっただろうし、新興国・途上国ではこれからがそうだろうが、「社会のニーズ」の軸足はズレてきて

いる。生命科学や認知心理学・行動経済学のようなアプローチが「社会のニーズ」を捉える時代になりつつある。この新しい概念と意識とは、長い人類史での今の局面と言えるかもしれない。あるいは現代のシニア層のものと異なる、若い層の意識と言ってもいいかもしれない。シニア層は原子力の必要性の理由の1つに、エネルギーセキュリティを挙げる。しかし若い層は個の意識が強く、国としてのセキュリティのセンスは薄いかもしれない。意識のギャップはあるかもしれないが、前述の医療応用など身近な非エネルギー利用の事例を増やしていくことは、「原子力技術の開発・利用」と「社会のニーズ」との調和の実感をつくり、信頼を生み出していくであろう。同時に原子力技術全体の底上げあってこそ、こういった事例も生まれる。そのための他分野との交流、人材育成、そして、非専門家・実務家とのコミュニケーションは不可欠であると、締めくくられた。筆者は、日本原子力学会長（2016-2018）として、社会受容性の向上・リスクコミュニケーションの活動を推進してきたが、今回の講演はとても刺激的であった。つまり、時代と世代が変わり、必ずしもすべてが新しい技術でない原子力を、さらに社会受容させるには、それら変わりつつあるもののベースとなる概念を理解しなければならないと痛感したことである。多くの聴衆の方々もそのように感じておられたのではないか。

総合討論は、野口氏の進行のもと、パネリストとして、栗津氏、上坂、岡嶋氏、開沼氏、松岡氏、山口氏が登壇した。

討論に際し、原子力利用の原点として、原子力基本法が目的とする(1) 将来におけるエネルギー資源確保、(2) 学術の進歩と産業の振興、(3) 人類社会の福祉、(4) 国民生活の水準向上や、原子炉等規制法が目的とする「原子力利用に伴う災害の防止」などが論点として提示された。これに対し、会場参加者から「資源・エネルギーは50年、100年、1,000年先を見据えた議論をすべき」との意見があったのに対し、総合資源エネルギー調査会の委員を務めている山口氏は、原子力の議論に関し、「政策的視点や社会による意思決定も関係する」と、リードタイムに関わる制約をあげる一方、「技術基盤は将来にわたって着実に維持し

ていかねばならない」とも述べた。さらに、将来的な人類社会への福祉の関連で、岡嶋氏は、国連の掲げる「持続可能な開発目標」(SDGs)をあげ、原子力科学技術がエネルギーの確保や気候変動問題の解決だけでなく、貧困撲滅や産業の技術革新問題にも貢献する可能性を強調した。

日本の原子力・エネルギー問題の関連では、会場参加者より、「原子力には、都会の人たちが受益者で、立地地域がリスクを背負っている特殊性がある」、「エネルギー需要そのものの妥当性も検証すべき」といった声があった。これに対し、地域との対話活動に取り組む開沼氏は、「リスクを背負っているだけでなく、世界最先端の技術が生まれていることがもっと発信されるべき」と、エ

ネルギー生産地に対する理解を切望された。福島第一原子力発電所事故の教訓について講演を行った松岡氏は、東日本大震災時に行われた計画停電に伴う需要抑制について、「のど元を過ぎる前に」と、遠からず検証しておく必要性を指摘した。

また、同シンポジウムの成果について「若い人たちに継承していく努力が必要」との意見があったのに対し、上坂氏は10月に敦賀市で開催された将来の研究炉に関するシンポジウムでの大学生との討論を、開沼氏は8月に富岡町で開催された「福島第一廃炉国際フォーラム」の高校生セッションの経験をあげ、それぞれ若手を交えた議論の重要性を強調した。

時過ぎて

古川路明先生を偲んで

篠原 厚 (大阪大学大学院理学研究科)

名古屋大学名誉教授・四日市大学名誉教授の古川路明先生は、2019年11月12日夜にご逝去されました。享年87歳でした。ここに、先生のご生前の放射化学における教育研究のご業績・ご貢献、さらに原子力問題に捧げられた念い、そして何より多くの学生と研究者、同僚、市民に慕われたお人柄に対し、敬意と感謝を申し上げ、心からご冥福をお祈りいたします。

古川先生に捧げる追悼の文は、私にはあまりに重責ですが、先生は、学位取り立ての私を名古屋大学に呼んでくださり11年間もの間、一人前の研究者そして教育者として独り立ちできるよう、導いてくださいました。先生のすべてを網羅するような文章は私には書けませんが、そのご恩に少しでも報いるべく駄文を掲載させていただきます。

古川路明先生は1933年6月23日の東京生まれで、1952年にご本人はよく場末と言われている東京都立の江北高等学校をご卒業になられ、東京大学教養部に入学されました。地文研究会に入られたとのことでしたが、先生の地学や天文への博識のルーツがそこに見ることができます。54年に化学科、56年に大学院修士課程に進学され木村健次郎先生のほぼ最後の門下生とされました。なお、木村先生が日本原子力研究所に移られた後、斎藤信房先生が研究室を引き継がれ、先生は最初の放射化学の学生となられたとのことです。1958年に修士を終了し、原子核研究所(核研)の斎藤一夫先生の下で助手として採用され、研究生活が始まりました。1963年には理学部の浜口博先生の下で助手になられ、1966年に東大から理学博士の学位を授与されています。学位論文は“Excitation Functions for Alpha Particle Induced Reactions on ^{139}La ”というタイトルで核研のサイクロトロンを使ったお仕事です。その後、1968年に名古屋大学理学部の山寺秀雄先生の研究室に



2013年「古川先生を囲む会」

助教授として採用され、1995年からは教授として、1997年3月に定年退官されるまで30年の間、名古屋大学で教育研究にご尽力されました。また、その後、四日市大学に新設された環境情報学部の教授として、引き続き教育にご尽力されることになりました。2004年には四日市大学もご退職され、晩年は特に、アカデミックな研究と並行していつも気に掛けられていた原子力問題にご尽力され、原子力資料情報室の顧問を亡くされる2年ほど前まで長年引き受けられご活躍されていたと聞いています。

この間、2回、海外に行かれています。1回目は1966年～68年にシカゴ大学エンリコ・フェルミ研究所のシュガーマン教授の下で博士研究員として、2回目は1980年～82年にアーカンソー大学の文理学部化学科客員准教授として、黒田和夫先生の下でご活躍されました。私が名大でお世話になっている時に、シュガーマン教授のこともよく耳にしましたが、黒田先生の天然原子炉のことはもちろんのこと、黒田先生ご自身のことも敬意をもつ

てよく話されていたのが印象に残っています。

以上、古川先生のご略歴を紹介しましたが、以下に、時期を3つに分けて私の把握している範囲でご業績や活動をまとめてみました。

核研一東大時代：黎明期であった原子核反応の研究を主に取り組み、核研の加速器実験とその共同利用のお世話をされ、その後の日本の核化学を引っ張って行かれることになる多くの先生方（田中重男、西朋太、音在清輝、藤原一郎、馬場宏、岩田志郎、各先生）との交流が始まりました。当時は日本の核化学にとっても黎明期で、核研の田中グループ、阪大の音在グループ、京大の西グループなどが集結し、核反応に関する多くの業績を上げられています。特に当時新進気鋭のポリル博士を米国から招聘し最先端の研究を進められ、核反応の前平衡過程へ移行を示唆した重要な研究にも貢献されています。中でも、気体ターゲットであるアルゴンとアルファ粒子の反応における ^{43}K の励起関数測定や、宇宙化学に関連する ^{26}Al や ^{22}Na の生成断面積測定などは、古川先生らしい業績として今もしばしば引用されるものです。

名古屋大学山寺研時代：名古屋大学の山寺秀雄先生の研究室は、古い先生方のご存じの通り、同位体化学という名称で呼ばれ、放射化学と錯体化学がうまく同居していたようです。当時のスタッフには吉川雄三先生と佐々木研一先生がおられ、ホットアトム効果に関する研究をされていた助手の佐々木先生と協力して放射化学のパートで教育研究を進められました。そのころ米ソの原水爆核実験による地球汚染や原子力問題にも関心を持たれ、環境放射能に関する研究を始められたのだと思います。ただ、東大で化学科に入られた1954年に第五福竜丸事故があり、その分析のお手伝いをしたのが放射能とのかかわりのはじめと仰っていますので、おそらくルーツはそこにありそうです。先生は、松葉や降下物、雨水の放射能測定などを非常に長年に渡り継続して進められ、貴重なデータを出されています。1986年4月26日のチェルノブイリ原発事故は特に大きな出来事で、その環境放射能の観測から事故の分析に対してまで多くの貢献をされました。大気中の放射能の経年変化を示した図の中

で、チェルノブイリ事故の時に2桁以上飛び上がるピークを指さされ、当時のことを長々と話されることがしばしばありました。

名古屋大学山内研時代：山寺先生ご退官後、山内修先生が後任として着任され、生物無機化学を主とする無機化学第2研究室となりましたが、古川先生は放射化学のグループを継続するために奮闘され、私を助手として呼んでくださいました。研究テーマの環境放射能測定や放射化分析は、愛弟子の小島貞男さん（名大RIセンター、愛知医大）らとも連携し継続されておりましたが、当時動き出した理化学研究所のAVFサイクロトロンを使った重イオン核反応や、私が進めていた高エネルギー物理学研究所の陽子シンクロトロン施設を利用したパイ中間子によるエキゾチックアトムの研究などを加えてくださいました。その守備範囲は広く、当時強力に運営を支援されていた年代測定センターに、現在C-14年代測定で活躍している小田寛貴さんを（本人が歴史好きであることもあり）学生の時から送り込み、研究室のテーマとして広げられました。ご退官2年前に教授に昇任され関連化学研究室を立ち上げられましたが、実質的には同じ体制で放射化学の分野で多様な研究を展開されました。山内先生とは分野がかなり異なることもあり、研究はほぼ独立に進められていましたが、研究室の活動は案外うまく一緒にしていたと思います。たまに合同セミナーを行いましたが、その際、古川先生はどちらの学生かの区別なく、歯に衣着せぬ感じで学生に意見を言うので、なかなか怪しい雰囲気になることもありました。しかし、いい距離感がとられていたのか、案外うまく回っていたように思えました。ご退官後もそれぞれ同窓会がしばしば行われますが、双方の同窓会に顔を出す卒業生も多くいます。

また、名古屋大学の学内では、放射線安全管理についても中心的な役割を果たしてこられました。いつでしたか、理学部の誰かがECD検出器を付けたままガスクロを廃棄した事件があり、産廃業者までたどる新聞沙汰がありました。先生はずっと理学部のRI主任者で、管理もすべてされていましたので、その対応に奮闘されましたが、責任者として当時理学部長の早川幸男先生（非常に

お親しかった)から嚴重注意をいただいたのが後の語り草になっています。結局、我々が使っていた理学部のRI実験室を廃止することになりましたが、予算はゼロでしたので、先生の指揮のもと汚染検査から除染などすべて自力で行い廃止措置をするといういい経験をさせていただきました。

学会関連では、環境放射能分野の大御所としてその発展に貢献されましたし、初期から核反応にかかわってこられたこともあり核化学分野でも重鎮のおひとりで「夏の学校」を2回主催されるなど、関連分野の発展に貢献されてきました。一方で、早くから環境や原子力問題についても積極的に発言されるなど、科学の社会へのかかわりにも大きな関心をもって教育研究を進められました。

また、先生の博識ぶりと視野の広さを端的に現しているのが、ご著書の一つである「元素の事典」(朝倉書店)でしょう。これは高木仁三郎、富田功、古川路明、馬淵久夫の4名のそれぞれの分野で高名かつ濃い先生方との共著です。さらにここであげておきたいのは放射化学の教科書「放射化学(現代化学講座15)」(朝倉書店)です。私は阪大で行っている授業でこれをずっと教科書として使っています。学生には先生の含蓄が詰まった各章末にある「休憩室」はぜひ読むようにといつも勧めているものです。これらの執筆は、私が名古屋大学でお世話になっている間、ずっと取り組んでいらっしやいました。

最後に、私個人の古川先生との関わりや記憶に

残るエピソードを少し述べさせて頂きたい思います。私が最初に古川先生にお目にかかったのは、上記に記した夏の学校にM1の時に参加した時だったと思います。それ以降、名古屋大学での11年間はまさにお世話になりっぱなしの時期でしたし、その後も学会や夏の学校ではもちろんですが、関連する研究会などでもよくお目にかかっておりました。特にJCO事故や9年前の福島原発事故の際などでは、お目にかかる機会が増え環境放射能研究ではご指導いただいていた。

名古屋大学時代には、私が進めたい研究に自由に組みませてもらい、ご自身の研究として熱意を持って議論に加わって下さいました。理研やKEKへの出張実験にも何度もお付き合いいただきましたし、先生がされている放射化分析や核反応のテーマでいろいろな加速器施設や原子炉に連れて行って下さいました。皆さんご存じの通り先生は目が悪いのですが、人一倍いろいろなところに一人で行かれます。見ているこちらは怖くなるほど闊歩され驚くことがよくありました。そして古川先生は痩せているように見えますが、がっしりした骨格で力持ちでした。雨水のいっぱい入った40Lのポリバケツを屋上から毎日のように運びます。環境のテーマをする学生が居ないときはよく手伝いましたが、私でも重くて大変でした。懐かしい思い出です。

古川先生の学生に対する姿勢には学ぶものが多くありました。放射化学グループには(古川先生の所でなければ卒業できなかったであろう学生も



1994年 理学部屋上の雨水収集装置



1994年 理化学研究所での実験風景

含め) いろいろ多様な学生が来ましたが、先生はどの学生にも「**さん」と呼ばれます。そこに学生さんにも一個人として敬意を払っていることが伺えます。もちろん発する言葉の内容は時として(本質を突きすぎて)学生にとってきついのですが、それでも、非常に学生に慕われていました。いわゆるウナギ部屋と言われる古川先生と私の居室が学生のたまり場でもありました。本当に狭いのですが、そこに冷蔵庫とコンロと小さな流しがあり、昼はいつもコーヒーが入り学生が集まって古川節で野球解説が流れていました。夜に学生が忙しいときなどは、突然、先生がオリジナルレシピによるミートソースを作りだしスパゲッティをふるまったりします。よく出る言葉は「こりゃダメだ」です。その時は本当に駄目なので、(例えば実験の時などは) なかなか大変でした。「・・・学生は意外と先生の言葉を覚えていることがある。先生と呼ばれる身となった後は、若者に対する言葉には注意を払っている。」とご著書のどこかに書かれていましたが、まさにその通りにされていた気がします。

古川先生は常に批判的な視点で物事を見ます。それが環境問題や原子力問題の活動にもつながっているのだと思います。筋を通すということ、本質を見極めるということに特にこだわっていたのだと思います。科学者たるものは当然のことですが、なかなかできることではありません。本質を

見るということでは、古川先生に文章などを見てもらうとき、例のごとく目にぴったり紙をつけて読まれますので、まさに奥底まで見抜かれているようでドキドキします。そしてほとんどの場合、ドキッとする言葉が返ってきます。相手自身をよく見て少しきつめに本質を言います。学生にはしっかり基本を指導し、特に先生ご自身が学生の頃に放射能の絶対測定をされていたとのことで、実験の信頼性や数値に対しては厳しかったと思います。そして何より教育に熱意を持たれていました。しっかりと理念と批判的な目をもって科学の真理を探求する精神を、そしてそれが社会とも無関係ではいられないことを教えておられたと思います。

私などは、本来先生のご遺志、そして教育研究に対する理念を引き継ぎ、学生に接し育てるべき立場にありますが、なかなか先生に近づけず、もう現役の終わりが見える時期になってしまい反省しています。より若い皆様に、少しでも先生の教育研究への姿勢や熱意を伝え、引き継いでいただくべく、少し長々と駄文を書いてしまいました。

最後に、繰り返しになりますが、古川路明先生のこれまでの放射化学、そして広くは放射線・原子力にかかわる教育研究のご貢献に感謝し、心からご冥福をお祈りいたします。

情報プラザ (国際国内会議)

国内会議

第 18 回 同位体科学研究会 (共催)

日時：2020 年 3 月 6 日 (延期)
場所：東京工業大学 (東京都目黒区)
URL：<https://www.isotope-sci.org/meeting>

第 21 回「環境放射能」研究会 (主催)

日時：2020 年 3 月 12 日～13 日 (中止)
場所：高エネルギー加速器研究機構
(茨城県つくば市)
URL：<http://rcwww.kek.jp/enviconf/>

2019 年度量子ビームサイエンスフェスタ (協賛)

日時：2020 年 3 月 12 日～14 日 (中止)
場所：ザ・ヒロサワ・シティ会館 (茨城県水戸市)
URL：<https://mlfinfo.jp/sp/qbs-festa/2019/>

2020 年日本原子力学会 春の年会

日時：2020 年 3 月 16 日～18 日 (中止)
場所：福島大学 (福島県福島市)
URL：<http://aesj.net/hp/>

2020 年日本化学会第 100 春季年会

日時：2020 年 3 月 22 日～25 日 (中止)
場所：東京理科大学 野田キャンパス
(千葉県野田市)
URL：<http://www.csj.jp/nenkai/index.html>

日本薬学会第 140 回年会

日時：2020 年 3 月 25 日～28 日 (中止)
場所：京都国際会館他 (京都府京都市)
URL：<https://www.pharm.or.jp/nenkai/>

第 13 回 核融合エネルギー連合講演会 (協賛)

日時：2020 年 6 月 11 日～12 日
場所：(青森県八戸市)
URL：<http://www.jspf.or.jp/>

第 57 回 アイソトープ・放射線研究発表会 (協賛)

日時：2020 年 7 月 7 日～9 日
場所：東京大学 弥生講堂 (東京都文京区)
URL：https://www.jrias.or.jp/isotope_conference/index.html

国際会議

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

日時：23 - 28, August, 2020
場所：Brighton, UK
URL：<https://www.rsc.org/events/detail/38385/10th-international-conference-on-nuclear-and-radiochemistry-nrc10>

The seventh international symposium in the series of Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 21)

日時：19 - 24, September, 2021
場所：(福島県郡山市)
URL：<http://www.radiochem.org/apsorc2021/>

学会だより

1. 日本放射化学会第88回理事会 [2019学会 年度第1回理事会] 議事要録抜粋

日時：2019年6月15日（土） 13：00 - 18：00

場所：QST東京事務所 会議室A

出席者：[会長]篠原、[副会長]高橋、北辻、[理事]塚田、渡辺、石岡、緒方、木下、桐島、佐藤、高宮、別所、箕輪、[監事]工藤、酒井

欠席者：[理事]大矢

報告

1. 事務局報告として、前回議事録の確認、会員の動向・会費納入状況、会計の報告ならびにメール回議の報告がなされた。長期会費未納者に対する対応、連絡先不明者に対する対応について議論した。会計状況について、個人会費の未納額が大きいこと等、報告された。
2. 会員MLの配信状況及び学会HPの更新について報告がなされた。迷惑メール対策のため、学会事務局アドレスを変更した旨、報告された。
3. 2019年度討論会の準備状況について情報共有がなされた。討論会HPを学会HPサーバーへ移行することについて議論した。20周年記念行事の一環として、受賞講演の一部を公開講演とすることとした。
4. 日本放射化学会ロードマップ策定WGの設置について会長より報告があった。1年後のロードマップ公開を目指し、各分科会に教育を加えた5つのWGを設置したこと、公開までのスケジュール案、討論会でのパネル討論案が紹介された。
5. APSORC2021について、高橋副会長より、会場・開催日程についての検討内容が報告された。
6. 「若手の会国内学会助成事業」「文部科学大臣表彰」に関しては、対象者無しの旨、報告がなされた。

審議

1. 日本放射化学若手優秀発表表彰要領（案）について、対象者学生枠、再受賞の可否、授与件数、審査員割当数、採点基準を議論し、最終案としてまとめ、再審議することとした。
2. 2019年度日本放射化学会木村賞・学会賞・奨励賞の選考結果が選考委員長より報告され、審議の結果、森田浩介氏（木村賞）、佐藤哲也氏（学会賞）、日下良二氏、小林大志氏、小豆川勝見氏（以上、奨励賞）が承認された。
3. フロンティアシリーズ第二段「超重元素の化学」の出版準備が整ったことが報告された。20周年記念事業の一環として出版することとし、討論会までに刊行し、会員宛発送、討論会会場にて希望者へ配布することとした。
4. 2020-2021年度役員選挙に向け、新任人数の検討を実施し、2022年度引継ぎ時に混乱が生じぬ様、増員を図ることとした。
5. 核化学夏の学校の助成金申請について、増額希望に対する説明を追記した上で再審議することとした。
6. 法人化WGより、定款の草案について現会則と対比した説明がなされた。社員総会の対象となる社員には学生を含めないこと等を決定した。法人の主たる事務所については最善案に至らなかったことから継続して検討することとした。
7. 「関連学協会連携に関する会員アンケート調査」結果概要について説明があり、和文誌「放射化学」への掲載について進めることとした。
8. インターネット・広報委員会のオブザーバーの変更が提案され、笠松氏・羽場氏が解任、宮本氏が就任することで承認された。

以上

2. 日本放射化学会第89回理事会 [2019学会年度第2回理事会] 議事要録抜粋

日時：2019年9月23日（月） 14：30 - 19：30

場所：いわき産業創造館（LATOV） 会議室2

出席者：[会長] 篠原、[副会長] 高橋、北辻、[理事] 塚田、渡辺、石岡、緒方、木下、佐藤、高宮、別所、箕輪、[監事] 酒井、[編集委員長] 田上

欠席者：[理事] 大矢、桐島、[監事] 工藤

報告

- 事務局報告として、前回議事録の確認、会員の動向・会費納入状況、会計の報告ならびにメール回議の報告がなされた。討論会への参加と同時に、29名が入会したことが報告された。一方、3社の賛助会員が退会したことから、原因と対策について検討していくこととした。2018学会年度会計報告、決算案、会計監査報告があり、総会での決議に進めることとした。会計状況について、正会員の約1/3が会費未納であることが報告された。
- 会員MLの配信状況及び学会HPの更新について報告がなされた。総会出欠確認用アドレスについては継続使用することとした。
- 理事会役員選出投票結果について選挙管理委員長より報告がなされた。

審議

- 短寿命RI利用促進研究会の助成金申請について審議した結果、共催については承認、経費補助については保留とした。当学会を主体としない研究会等への経費補助については実績がないことから、慎重に進めることとした。
- 若手助成事業の一環として、「日本国内における研究発表助成制度」について説明がなされ、国内開催の国際会議についても対象とすることを決定した。HPに掲載し、学会員に広く知らせることとした。
- 2020年度予算案について審議し、最終案を総会決議へと進めることにした。
- APSORC21の準備状況について報告がなされた。①準備委員会の設置、委員の任命、②開

催期間2021年9月19日 - 24日、福島県郡山市ホテルハマツ、郡山公会堂、③日本放射化学会第65回討論会（2021）と共同で開催、④名称をAPSORC21（Koriyama/Fukushima）とする、⑤APSORC準備金として150万円を「APSORC基金についての覚書」により貸借する、⑥APSORC-ICの最新メンバーへ連絡することとした。

- 法人化WGより、総会資料（案）を用いて説明がなされた。議決権を持つ社員の範囲は正会員のみとすること、社員総会の定足数について再調査することとした。法人の主たる事務所については委託としないこと、一定期間継続性のある研究機関の研究室などに期限を設けて設置すること、設立時の場所は新役員で協議することとした。
- 関連学会との連携について、会長より総会資料（案）を用いて説明があり、学会訪問等の活動を取り入れていくこととした。

以上

- 日本放射化学会第90回理事会 [2019学会年度第3回理事会] は、2019年12月21日（土）に開催されましたが、議事要録未承認のため、次号にて報告します。

4. 会員動向（令和元年7月～令和元年12月）

新規入会（正会員）

氏名	所属
奥津 賢一	東北大学大学院理学研究科化学専攻先端理化学講座放射化学研究室
竹内 緑	
寺本 高啓	大阪大学放射線科学基盤機構
藤田奈津子	日本原子力研究開発機構東濃地科学センター地層科学研究部年代測定技術開発グループ
堀田 拓摩	日本原子力研究開発機構福島研究開発部門大熊分析・研究センター分析管理準備室（東海駐在）

楊 国勝 量子科学技術研究開発機構量子
医学・医療部門高度被ばく医療
センター計測・線量評価部物理
線量評価グループ

板津 英輔 セイコー・イージーアンドジー
株式会社技術部

新規入会（学生会員）

氏名	所属
----	----

MOHAMMAD MONIRUZZAMAN

京都大学大学院工学研究科原子
核工学専攻核材料工学研究室

安達 サディア 筑波大学大学院数理物質科学研
究科化学専攻末木研究室

石井 達也 筑波大学大学院数理物質科学研
究科化学専攻末木研究室

小野 拓実 東北大学大学院理学研究科化学
専攻環境放射科学研究室

尾幡 穂乃香 大阪大学大学院理学研究科化学
専攻放射化学（篠原）研究室

梶野 芽都 大阪大学大学院理学研究科化学
専攻放射化学（篠原）研究室

梶原 知啓 大阪大学大学院理学研究科化学
専攻放射化学（篠原）研究室

北清 航輔 東邦大学大学院理学研究科化学
専攻

北田 直也 東北大学大学院理学研究科化学
専攻先端理化学講座放射化学研
究室

黒澤 景一 慶応義塾大学大学院理工学研究
科開放環境環境科学専攻環境科
学研究室

斎藤 輝 筑波大学大学院数理物質科学研
究科化学専攻末木研究室

齋藤凜太郎 明治大学理工学部応用化学科放
射化学研究室

佐野 莉奈 東邦大学大学院理学研究科無機
化学専攻

竹内 裕弥 京都大学工学研究科物質エネル
ギー化学専攻同位体利用化学講座

田巻 廣明 東北大学大学院理学研究科化学
専攻放射化学研究室

内藤 智也 東京大学大学院理学系研究科物
理学専攻常行研究室

速水 翔 大阪大学大学院理学研究科化学
専攻放射化学（篠原）研究室

伏見 朋和 京都大学大学院工学研究科原子
核工学専攻核材料工学研究室

牧戸 良憲 東邦大学大学院理学研究科（化
学）錯体研究室

光安 優典 東北大学大学院理学研究科化学
専攻先端理化学講座放射化学研
究室

横山 大輝 筑波大学大学院数理物質科学研
究科化学専攻末木研究室

蓬田 匠 東京大学大学院理学系研究科地
球惑星科学専攻高橋研究室

和田 拓郎 静岡大学大学院総合科学技術研
究科理学専攻大矢研究室

所属変更（正会員）

氏名	所属
----	----

大浦 泰嗣 首都大学東京大学院理学研究科
専攻

藤本 賢 国立研究開発法人水産研究・教
育機構中央水産研究所

宮田 佳樹 東京大学総合研究博物館タンデ
ム加速器分析室 (MALT)

山村 朝雄 京都大学複合原子科学研究所原
子力基盤工学研究部門アクチノ
イド物性化学研究分野

山田 記大 金沢大学科学実験センターアイ
ソトープ理工系研究施設

富塚 知博 日本原子力研究開発機構福島研
究開発部門福島研究開発拠点大
熊分析・研究センター分析管理
準備室

退会（正会員）

氏名	氏名
----	----

関根 俊明 中西 孝

藤井 靖彦 古川 路明

退会（賛助会員）

氏 名

株式会社アトックス事業本部

サンゴバン株式会社クリスタル事業部

株式会社日立製作所ヘルスケアビジネスユ

ニット汎用分野システム営業部

「放射化学」規定など

「放射化学」論文編集委員会規定

(名称)

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

(編集委員会の構成)

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

第 3 条 編集委員長および編集委員の任期は 2 年とし、重任を妨げない。

(編集委員会)

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

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

(「放射化学」誌の発行)

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

(論文の審査)

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

第 7 条 論文審査の手続きは、別に定める審査内規による。

第 8 条 本規定の改定は理事会の決議による。

付則 この規定は、2013 年 1 月 1 日から施行する。

「放射化学」発行規定

(目的)

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

(「放射化学ニュース」との関係)

第 2 条

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

(掲載記事)

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

き継ぎ、様々な記事を積極的に掲載する。

1. 審査付き論文

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

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

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

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

2. 審査付き論文以外の記事

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

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

「放射化学」論文投稿規則

(投稿論文と依頼論文)

第4条 論文は投稿によるものと編集委員会からの依頼によるものとする。

(著者)

第5条 著者は本会会員であることを要しない。

(原稿の作成)

第6条 使用言語は日本語とする。

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

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

(論文の受け付け)

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

(審査)

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

(論文の掲載)

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

(掲載料、別刷り)

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

(原稿料)

(著作権)

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

(本規則の改定)

第14条 本規則の改定には理事会の決定を要する。

付則 この規則は、2015年10月1日から施行する。

「放射化学」論文投稿の手引き

1. はじめに

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

2. 投稿に際しての注意事項

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

3. 原稿作成時の注意事項

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

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方2-4

日本原子力研究開発機構 安全研究センター 宮本ユタカ 編集委員長

Fax: 029-284-3665

e-mail: miyamoto.yutaka@jaea.go.jp

学位論文要録執筆候補者の推薦について

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

☆☆☆

「会員の声」欄へのご寄稿のお願い

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

☆☆☆

会員の異動に伴う連絡のお願い

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

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

放射化学

第 41 号

令和 2 年(2020 年) 3 月 20 日発行

編集

日本放射化学会編集委員会

委員長：宮本ユタカ、委員：佐藤 渉、鈴木 達也、井上 睦夫、藤 暢輔、
阪間 稔

連絡先：〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村白方 2-4 日本原子力研究開発機構
安全研究センター

宮本ユタカ (e-mail: houshakagaku@radiochem.org)

発行

日本放射化学会

出版担当理事：佐藤 渉

Web: <http://www.radiochem.org/>

印刷

松枝印刷株式会社

〒 303-0034 茨城県常総市水海道天満町 2438

本誌掲載記事の著作権は日本放射化学会に帰属します。

賛助会員

クリアパルス株式会社

株式会社千代田テクノ

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

関西電力株式会社

九州電力株式会社

中国電力株式会社

中部電力株式会社

東京電力ホールディングス株式会社

北海道電力株式会社

クリアパルス（株）が提供する主要製品

自社開発のハイブリッドICを用いた低雑音プリアンプ
低雑音スペクトロスコープアンプファイア

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ファイア、多入力PHA

Cd T1 検出器プローブ、Cs I (T1) 検出器プローブ、Na I (T1) 検出器プローブ、プラスチック検出器プローブ

電離箱、環境モニタ、高圧バイアス電源、NIMビン電源、ミニビン電源

電流電圧変換器、マルチワイヤビーム位置モニタ回路

加速器制御機器、信号変換器、アナログ/デジタル制御器

データ計測・収集・転送システム

その他物理計測器、特注機器



8630型ハンドボーン



8868A型IVC



580型プリアンプ



4066型アンプ



1216型PHA



6671型バイアス電源



E6660ミニビン電源



80110型プリアンプ



80112型MPX



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



ガラスバッジ

ガラスリング

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



簡単に半価層・
平均乳線量を測定
「マンモQC・測定サービス」
マンモグラフィ装置の精度管理が
簡単に行える



線量計測事業

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-チャトル」
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



厚さ: 23gと軽量!
独立研究開発法人 産業技術総合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」
目のすぐ近くで装着でき
各種防護眼鏡にも対応



DOSIRIS: IRSMの登録商標 (国際登録番号1299048) です



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

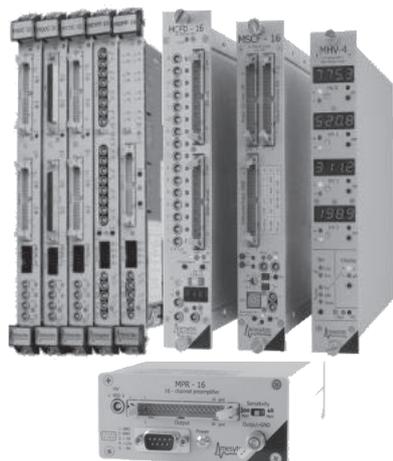


CdZnTe 半導体検出器 with 4kchMCA

GR1	FWHM $\leq 2.5\%$	10x10x10mm	CZT
GR1+	FWHM $\leq 2.0\%$	10x10x10mm	CZT
GR1A	FWHM $\leq 2.5\%$	10x10x10mm	CZT E/T/G 入出力
GR1A+	FWHM $\leq 2.5\%$	10x10x10mm	CZT E/T/G 入出力
RadAngel	FWHM $\leq 3.5\%$	5 x 5 x 5mm	CZT (学生教育用)

USB パスパワーのみで計測できます。(FWHM@662kev)

他にも 2x2mm Pixel 44 x 44 x 5/10/15mm アレイ検出器も製造可能です。



NIM/VME Electronics

- Preamp
- Shaping Amplifiers
- Multiplexed Readouts
- CFD
- VME(ADC,TDC,QDC, Pulse Processor)
- HV Supply
- Pulse shape Discriminator
- Remote control
- & electronics for Neutron Scattering

多入出力/多機能な NIM モジュール/スタンドアロンユニット、多入力 ADC,TDC、QDC に加え Pulse Processor モジュールもリリースされました。



仁木工芸株式会社

〒108-0073 東京都港区三田 3-9-7
 TEL 03-3456-4700 FAX 03-3456-3423
 Email niki_sales@nikiglass.com

お困りではありませんか？

- ・ **法改正対応**をサポートして欲しい！
- ・ PET用サイクロなど**加速器施設の線量計算**及び**放射化評価**がしたい！
- ・ RIを使用した**化学実験**をして欲しい！
- ・ **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！
- ・ お米、果物、飲料水などの**放射能濃度が知りたい！**
- ・ 放射線に係わる業務に**悩みがある**。

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

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
- ◆ サーベイメーターの実用校正

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！ <http://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
東海営業所	TEL 029(282)3114	〒319-1112 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敷字野附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地田74-1

Luminess®

個人被ばく線量測定

ルミネスバッジサービス

お客様が好きなデザインを選べます
高品質なサービスを提供します

 **長瀬ランドア株式会社**

本社 / 〒300-2686 茨城県つくば市諏訪C22街区1
TEL.029-839-3322 FAX.029-836-8441
大阪営業所 / 〒550-8668 大阪市西区新町1丁目1番17号
TEL.06-6535-2675 FAX.06-6541-0931
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

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

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

作業環境測定機関11-4(放射性物質) ISO9001:2008認証

非密封放射性同位元素取扱施設(技術開発研究所)

管工事業/建具工事業/とび・土工事業/機械器具設置工事業

一般労働者派遣事業 高度管理医療機器等販売業・賃貸業

富士電機の放射線測定器



より正確に より簡単に

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

〔取扱製品〕

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

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



富士電機株式会社 放射線システム部

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

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

営業所

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



MIRION
TECHNOLOGIES

放射線安全 さらに水準へ

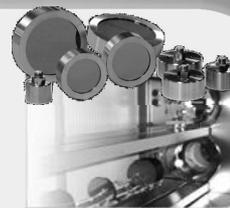
放射化学のための測定システム



ゲルマニウム半導体検出器



InSpector1000™ : 可搬型
デジタルスペクトロサーベイメータ



PIPS 荷電粒子検出器



ISOCSS™ :
ガンマ線分析システム



FASTSCAN™ :
ホールボディカウンタ

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社
URL : <http://www.canberra.com/jp/> E-mail : jp-sales@mirion.com

東京本社 03-5835-5402
大阪営業所 06-4806-5662



公益財団法人 原子力安全技術センター

放射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

問い合わせ先: 03-3814-7301

使用施設、貯蔵施設、廃棄施設等の施設検査・定期検査及び定期確認

登録定期確認機関

登録運搬物確認機関

問い合わせ先: 03-3814-7483

承認容器による輸送の運搬物確認

登録運搬方法確認機関

承認された積載方法による輸送の運搬方法確認

登録認証機関

問い合わせ先: 03-3814-7301

放射性同位元素装備機器の設計認証



登録資格講習機関

問い合わせ先: 03-3814-7100

第1種、第2種及び第3種の放射線取扱主任者免状取得のための講習

登録試験機関

問い合わせ先: 03-3814-7480

第1種及び第2種の放射線取扱主任者試験

登録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まへ～

第57回 アイソトープ・放射線研究発表会

会 期 : 2020年7月7日(火)～9日(木)

場 所 : 東京大学弥生講堂(東京都文京区)

参加費:

事前登録7,000円／当日登録9,000円／学生無料

詳しくはホームページをご覧ください。

<https://confit.atlas.jp/jrias2020>

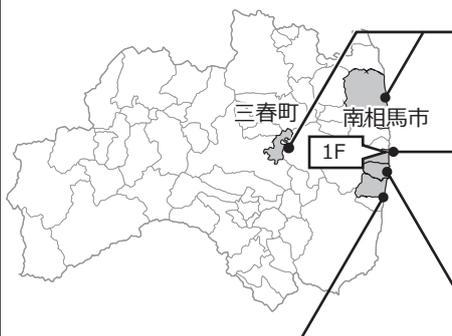
右記QRコードからアクセスできます ⇨



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



福島環境安全センター

環境回復に向け、環境動態研究、放射線計測・分析技術等の技術開発を実施

大熊分析・研究センター※ (大熊町：1F隣接地) 一部運用中

1Fのガレキ類、水処理二次廃棄物、燃料デブリ等の分析を行う施設を整備中

廃炉国際共同研究センター※ (富岡町)

世界の英知を結集すべく、国内外の大学、研究機関、産業界とネットワークを形成し、1F 廃炉の研究開発と未来の廃炉研究を担う人材育成を一体的に推進

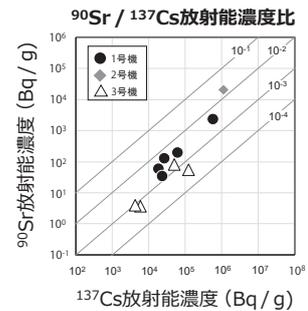
楢葉遠隔技術開発センター※ (楢葉町)

- ・遠隔操作ロボット等の開発実証 (実規模及び小規模エリアの試験)
- ・VR等による作業員の訓練
- ・施設共用及び技術支援

※ 福島イノベーション・コースト構想の拠点 (廃炉分野)

1F 事故で発生したガレキの放射化学分析の事例

^{137}Cs と ^{90}Sr との放射能濃度の相関関係に基づき、測定が容易な ^{137}Cs から、直接放射能の測定が困難な ^{90}Sr の放射能濃度を推定することができる可能性が示されました



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

私たちは、環境放射能・放射線に関する分析専門機関です

分析の質の保証 **世界トップクラス**

環境と安全に対する国民の関心が高まる現在、日本分析センターは、環境放射能・放射線に関する分析専門機関として、国民に信頼される環境放射能データの提供に努めています。

環境試料に含まれるセシウム137、ストロンチウム90、トリチウム、プルトニウムなどの人工放射性核種からウラン、トリウムなどの自然放射性核種まで、様々な放射性核種の分析に対応しています。また、安定同位体比分析にも対応しています。

IAEAなど国際的な相互比較分析プログラムに参加して分析技術の客観的な評価を受けるとともに、国際標準化機構 (ISO) の認証・認定の取得やJCSS校正事業者 (区分: 放射線・放射能・中性子) として登録しています。

確かな精度管理 **安全と信頼性**

日本分析センターは、分析結果の信頼性を確保するために、IAEAなどの国際機関が主催する環境放射能分析の国際相互比較分析プロジェクトに参加しています。優れた成績を誇るほか、様々な認証・認定を取得しています。

価値ある実務研修 **技術者に学ぶ**

日本分析センターは、都道府県、その他各方面からの要請に応じ、環境放射能分析・測定技術者への研修、専門技術者を派遣しての技術指導なども行っています。

環境放射線モニタリング等を行っている都道府県の実務担当者を向けの研修のほか、民間機関及び地方自治体の実務担当者を対象とした研修コースなど、幅広く環境放射能に関する分析・測定研修を実施しています。

ホウ素中性子補足療法 (BNCT) の開発実用化に係る研究開発、放射性核種自動分離測定装置の実用化開発や原子力発電所固体廃棄物の処理・処分に関する受託研究を行っています。

一歩前へ **新技術開発への挑戦**

日本分析センターは、現在の分析技術に安んずらず、たゆまぬ努力による技術発展を目指し、新しい分析法の研究・開発を行っています。

公益財団法人 日本分析センター
<http://www.jcaac.or.jp>

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



放射線分野における科学技術の進展に貢献しています



～ 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

◆ 放射線・原子力利用の普及事業

- ・「放射線プロセスシンポジウム」の支援

◆ 照射サービス事業

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

◆ 技術移転事業

- ・ 産業界からの中性子利用のいろいろなニーズに応えます

◆ 原子力研修事業

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

一般財団法人放射線利用振興協会

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

本部・東海事業所：〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4 TEL 029(282)9533
高崎事業所：〒370-1207 群馬県高崎市綿貫町1233 TEL 027(346)1639

賛助会員はこのスペースに無料で広告を掲載することができます（年2回以上）

日本放射化学会 賛助会員募集

本会の学会活動にご参加頂ける賛助会員をご紹介下さい

連絡先： 日本放射化学会事務局

E-mail: office@radiochem.org

