

放射性同位元素 (RI) の製造と利用—加速器から原子炉まで



大槻 勤
Ohtsuki Tsutomu

1. はじめに

思えば、自身では研究者になるんだ！と決めたことはなかった。東京都立大学の中原弘道先生にきっかけをいただき、理化学研究所や日本原子力研究所（日本原子力研究開発機構・JAEA）そして東北大学や京都大学等の研究施設を利用しつつ、密封・非密封 RI や加速器、そして原子炉をも用いて、多くの諸先生方に背中を押されながら武者修行を行ってきたような心境で定年を迎えた。

特に、印象に残るのは福島第一原子力発電所の事故に関するものであった。誰もがこれまで想像だにできなかった体験をした。研究活動や放射線管理業務とは程遠い事態への対応、放射線等知る由もない方々への対処や、そして新たな人間関係も、すべてが一変した。後の原子力規制委員会の発足と法改正といった放射線安全管理に関する環境の様変わり等、離職間際になっても経験のない対応に追われた。

2. 東京都立大学から日本原子力研究所

古くから核分裂のメカニズムについてはその発見以来多くの謎が解明されずに残っていた。1980年代当時でも、核分裂の研究は核・放射化学の主たるテーマの1つであり、これまでも物理的・化学的手法を駆使した核分裂の研究が盛んに行われていた。核分裂の特性として核分裂片の質量分布や角度分布、運動エネルギー分布及び電荷分布等が挙げられるが、これらの実験的研究を通して核分裂メカニ

ムの検証が行われた。解明すべきモデルでは核分裂における分裂経路（いわゆる fission mode）の問題があった。核分裂は分裂の鞍点（saddle point）や原子核が分裂に至るポテンシャルの障壁（fission barrier）の形状に強く影響を受けるのか、分裂片に分かれる寸前（scission point）に決まるのか等のいろいろな考え方が議論されていた。当時は、この fission mode の解明が東京都立大学の中原研究室（放射化学）での永遠（？）のテーマであった。東大原子核研究所や理化学研究所の旧サイクロトロン（現理研モニュメント）や日本原子力研究所のタンデム加速器を用いた陽子誘起核分裂の実験的研究が課題として与えられた。

2.1 アクチノイド核種の質量収率

重元素の性質を理解するために、1980年代においてもアクチノイド原子核における核分裂反応や重イオン核融合反応等の実験的研究が盛んに行われていた。これらの一環として核分裂研究は主に日本原子力研究所との共同研究として行われた。実験では主にウラン同位体からプルトニウムやアメリシウム同位体までをターゲットとした約 10 核種 (^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{242}Pu , ^{244}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am 等) に近い陽子誘起核分裂の質量収率曲線を求めた¹⁾。これらのターゲット核種には今では決して扱えない核種も多く含まれていて、ほとんどが α 線放出核種で、ターゲット製造から測定まで扱いに大変苦労したことを覚えている。この質量収率の励起エネルギー依存性から、対称分裂領域と非対称分裂領域に

おける異なった fission barrier (saddle point) があり、その fission barrier の高さもモデル的に導出を試みた²⁾。この質量収率曲線から核分裂断面積を求め、これらは現在も貴重な核データとして利用されている。

2.2 二重飛行時間測定法による質量と運動エネルギーの測定

日本原子力研究所では 1980 年後半から二重飛行時間測定法 (double time of flight method) による核分裂片の質量及び運動エネルギーの測定にも挑んだ。当時、アメリカでは 100 番元素 (Fm) 領域の斬新な実験データである二重 fission mode (bimodal fission) が新しく公表され、話題になりつつあった。そこで、より動的 (ダイナミック) な核分裂の機構解明にはその分裂片の質量数 (A) や電荷 (Z) 以外に、運動エネルギー及び分裂前後に放出される中性子数等の情報が不可欠を増した。筆者らはトリウム同位体 (^{232}Th) の陽子誘起核分裂反応からの分裂片対 (対をなす 2 つの核分裂片) を double time of flight method で測定し、質量と運動エネルギーを得た。このような核分裂片の同時計測の場合、質量分散による不確定性が問題になるが、飛行距離を長く取り検出立体角を小さくすることで精度を高めた。このことにより、核分裂収率の対称分裂と非対称分裂の飛行時間の僅かな差異を求め、その異なった fission mode が混在する領域 (A=126-132) の詳細な解析が可能となった。この結果と重アクチノイド核種の核分裂で見られるような bimodal fission との比較がなされ、軽アクチノイドの核分裂においても同様に同じ質量領域において 2 つの運動エネルギーが存在することを明かにした³⁾。余談ではあるが、実験において校正のためにカリフォルニウム同位体 (^{252}Cf) 1.85 MBq (50 μCi) を用いたが、その扱いにも大変な苦勞をした。質量分布の励起エネルギー依存性や分裂片の角度分布の研究から、軽アクチノイド領域の核分裂は対称分裂と非対称分裂の 2 つの fission path があり、異なる fission barrier から連続的に谷を下り落ち、分裂点 (scission point) に到達して 2 種類の分裂片と運動エネルギーが生み出されることが分かった。その後、核分裂研究の関連としてドイツ重イオン研究所 (GSI) にて巨大共鳴を経た核分裂研究にも携わることができた。現在、核分裂の研究は脈々と JAEA 等で続けられ、更に重

い原子核標的、アインスタイニウム (Es) 同位体等を用いて実験的・理論的研究が進められていて、その研究の進展には目を見張るものがある。

3. 東北大学理学部附属原子核理学研究施設

日本原子力研究所の博士研究員 (当時専門研究員と称した) を経て、1992 年に東北大学理学部附属原子核理学研究施設 (核理研、現電子光理学研究センター) に赴任できた。本施設での学内外共同利用研究の世話と放射線安全管理を担当するのが業務内容であった。本研究施設では先輩方 (八木、近藤、榎本諸先生) によって、高強度電子ビーム (性能 60 MeV, 150 μA) による高比放射能 RI の調整を目的とした強収斂電子ビーム照射装置を世界に先駆けて開発されていた。この装置では電子又は発生する制動放射線を目的試料に照射することができ、未転換の電子を除去し、制動放射線だけを照射することも可能であった。核・放射化学分野では、制動放射線が大きな物質透過力を持つこと、光核反応の積分断面積がかなり大きな値であること等を生かし、光量子放射化分析や原子核破碎反応、光核分裂反応の研究が強力に推進された。材料や機能物質の研究でも荷電粒子加速器では入手しがたい放射性 RI を製造し、放射性廃棄物の固化処理、材料中の不純物拡散、半導体の電子状態等の広範にわたる分野の研究に利用されていた。

3.1 フラーレンの放射化 (ホットアトム反応の利用)

クロトーやスモーリーによって 1985 年に発見されたフラーレン (C_{60} 、後にノーベル賞) の研究は日本でも盛んに行われていた。当時、都立大学にはフラーレン研究に関与する多くの研究者が集まり、先端の研究が行われていた。そこで、1994 年から都立大グループと共に彼らが自作したフラーレン (C_{60} や C_{70}) を持ち寄って、東北大核理研で照射を行った。本施設の電子ライナックを用いて電子線照射を行ったところ、光核反応 $^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$ で生成した ^{11}C が高確率で C_{60} に取り込まれて放射性の $^{11}\text{CC}_{59}$ が生成することを見出した⁴⁾。実験の成功を見届けて、徹夜実験を終えた朝方から祝杯を挙げたことを今でも鮮明に思い出す。

その後も放射性同位元素をプローブとした C_{60} や

C₇₀に関する研究及び応用研究を行った。内包フラーレンやヘテロフラーレン研究が進み、電子デバイスや生命科学への応用として多くの分子設計が行われていた。しかし、生成可能な内包フラーレンはC₈₂等の高次フラーレンに限定され、大量製造が可能なC₆₀やC₇₀に異原子を内包させる技術は開発されていなかった。もし異原子内包化がC₆₀やC₇₀において実現すれば、その波及効果は計り知れないことだったであろう。内包C₆₀やC₇₀の製造方法として製造段階で内包させる方法と、できあがったC₆₀やC₇₀に後天的に内包させる2つの方法が考えられるが、異原子内包の可能性を後者の手法を用いて、RIをプローブとして調べた。研究では半径の小さな原子(Li, Be)や不活性な希ガス(Ar, Ne, Kr)、又は非金属元素(As, Te等)の原子半径大きな原子でもC₆₀の外から原子を押し込むことが可能であることが分かった^{5,6)}。また、原子の電気陰性度と大きな関わりがあることも判明した。現在でも、内包C₆₀やC₇₀として α やポジトロン放射体等を含むナノコンテナを利用としたDDS研究等の生命科学への発展や、放射性毒性の軽減等、興味深い物質でもある。特筆すべきは東北大学金属材料研究所の材料物質製造シミュレーショングループ(川添・大野研究室)との出会いであった。実験結果の説明として、東北大金研に導入されていたスーパーコンピュータを用いて第一原理による理論計算を実行していただいたことで一気に研究が進んだ。

3.2 放射性ベリリウム (⁷Be) の半減期測定

フラーレンの放射化の一環として、リチウムとC₆₀やC₇₀の混合物の陽子照射を行い、高速液体クロマトグラフを用いて放射性ベリリウム(⁷Be)の挙動を調べたところ、フラーレンと⁷Beがほぼ同じ溶離挙動を示すことが分かった。この結果はアメリカ物理学会誌速報(PRL)にまとめて発表できた⁷⁾。金研グループによる第一原理による最先端理論計算も大きな力となったことは言うまでもない。

C₆₀やC₇₀への⁷Beの内包化が成功したことにより、研究に大きな進展が得られた。この⁷Beは核データ誌*table of isotope*によると半減期約53.3日で軌道電子捕獲(EC)壊変をするRIである。しかし、古くは1947年にエミリオ・セグレ(Emilio Segrè)により、EC壊変するこの⁷Beは化学形や結晶形等に

より、半減期が変化すると提唱され、実際に彼ら自身でも実験が行われた。セグレ先生は反陽子の発見によりノーベル賞を授与された人物で、世界的にもテクネチウム(Tc)やアスタチン(At)の発見者としても著名である。

内包化実験の成功を機に、(神様セグレ様を信じて)軌道電子に影響を受ける⁷Beの寿命(半減期)測定に着手した。まず、⁷BeをC₆₀やC₇₀に内包させる再現性を確認し、核反応⁷Li(p,n)⁷Beを用いて生成する⁷Be内包C₆₀やC₇₀を効率良く得る手法を確立した。また、ベリリウム金属内に⁷Beを生成させた [⁹Be(γ ,2n)⁷Be反応により] 試料を作成した。

これらの試料を利用して、半減期に差異が観測されるかどうか1997年頃より比較測定を開始した。測定手法の改良や安定性、時間の補正等、満足のいく測定結果が得られるまでは8年を要した。室温や5K等の測定を行い、⁷Beの半減期に観測されたことの無い大きな差異が認められた(図1)。測定を途切れなく連続して半年以上にわたって行った実験はこれまでに例はなく我ながら良くやったと思う。図1のとおり、C₆₀内の⁷Beの半減期は金属Be内の⁷Beのそれよりも52.45日と1.5%以上も短くなることを見出し、RPL誌に2004年掲載された。半減期が短くなる説明として、次のように考えることができる。EC壊変は $p+e^- \rightarrow n+\nu_e$ で示される。C₆₀内に存在する⁷Beは化学結合状態を作らず、ポテン

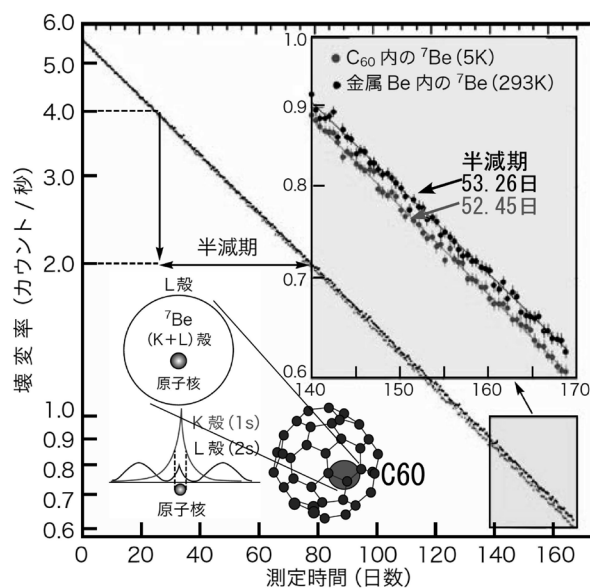


図1 温度5KにおけるC₆₀に内包された⁷Bおよび金属Be内の⁷Beの壊変率と測定時間の関係(壊変曲線) 図内にK殻(1s)とL殻(2s)の動径分布関数を示す

シャル的に安定な(中性に近い)原子状態(K殻(1s²), L殻(2s²))を形成すると考えられる。この中性原子は化学結合をしない。つまり動径方向へ電子が引き寄せられないので原子核位置に存在する電子の確率が相対的に大きくなり、核内で陽子と電子が出会う p+e⁻ の確率が増すと考えられる。結果は核寿命変換の例として多くの科学雑誌に取り上げられた^{8,9)}。

3.3 マイナーアクチノイド(MA)の中性子核分裂断面積の取得

2000年代になって、京都大学原子炉実験所(京大原子炉)の電子線加速器(LINAC)を用いて、MAの中性子誘起核分裂断面積の取得のため核分裂片検出器の設計・製作、性能試験等を試行した。本実験では²³⁷Np, ^{242m}Am, ²⁴⁵Cm, ²⁴⁸Cm等の中性子核分裂断面積測定を行った。また、荷電粒子や光誘起核分裂における質量収率の取得をも行った。実験手法としてウラン同位体(²³⁵U)の核分裂断面積との比較法を用いてMAの核分裂断面積の取得を目指した。実験ではこれまでの結果とある程度的一致が見られたが、しかし、比較法を用いる限りでは双方の誤差の伝搬があるために核データとしては更に精度を上げる必要があることが分かり大変な苦勞をした。

当時、博士研究員として本研究に従事した広瀬氏は日本原子力研究開発機構において先端の核分裂研究の後を継いで活躍していることは非常に喜ばしい限りである。次の人生一大事であったが、この京大原子炉に2013年に赴任をすることとなろうとは夢にも思わなかった。

4. 福島第一原子力発電所事故

2011年3月11日の東日本大震災が起こった。当日は東北大核理研電子ライナックを用いた電子線照射によるRI製造実験の最中であった。誰しも経験したことのない揺れと地響きのようなものが数分にわたって続き、この世の終わりかとさえ思えるような出来事であった。この災害によりすべてのものが一変した。これまでの研究の中断と原発事故との必然の関わりである。事故後の研究をきっかけに多くの方々にも出会えたが、“悪しきにつけ良きにつけ”感慨深く感じた日々でもあった。

4.1 福島県農業総合センター果樹研究所にて

福島第一原子力発電所から多量の放射性物質が放出されたが、当初は短半減期核種の¹³²Teや¹³¹I等多くの降下物が確認された。なお現在は比較的長半減期の¹³⁷Cs等が主な核種として未だに残されている。原発事故は各方面において甚大な被害をもたらした。拡散核種によるフィールド汚染の影響は特に農業分野に於いて甚大で、対応・対策が迅速な課題であった。事故後に起こった環境汚染による¹³⁴Csや¹³⁷Csの果樹への移行・転流メカニズム及び牧草地での汚染状況調査(福島県農業総合センターとの共同)を行った。震災後に福島県農業総合センター果樹研究所から要請を受け、学習院大学や福島大学グループ等と事故後すぐさまに¹³⁴Csや¹³⁷Csの果樹への影響についての調査に入った。経時変化として、土壌サンプルや下草等、果樹の萌芽期から数年後までのサクランボやモモ、ブドウ柿等の果実、葉、樹皮等に含まれる放射性セシウム等の分析を行い、核種移行や転流メカニズムを調べた。牧草地において、牧草、リター、ルートマット、土壌等に分けた放射性セシウムの汚染調査も行った。福島地方ではあんぼ柿は特産物であり、その樹木・樹皮の特徴から汚染が最も深刻であった。あんぼ柿の汚染を調べる自動測定等にも関わった。

4.2 福島県農業総合センター畜産研究所にて

福島県は農業、特に畜産は大きな産業であり関連実業にも甚大な影響を及ぼした。飼育牛用の稲藁や出荷肉牛の汚染は特に深刻で、畜産産業の今後を左右する問題であった。畜産研究所所員や関連会社と、GeとNaI検出器を用いて出荷待牛の体内の筋肉と体外からの筋肉測定に分けて汚染を調べたところ、汚染濃度が一致していることが分かった(図2)。体外から出荷前汚染状況測定を行えるシステムが構築されて現在も活躍している。当然のことながら、出荷肉の汚染は確認されないが、測定済というプロセスは風評等への重要な対策となる。

5. 京都大学複合原子力研究所(前原子炉実験所)

予期せず、2013年6月に京大複合研に教授として赴任をすることとなった。複合研は、主に中性子利用による物理や化学、材料及び生命科学等あらゆる

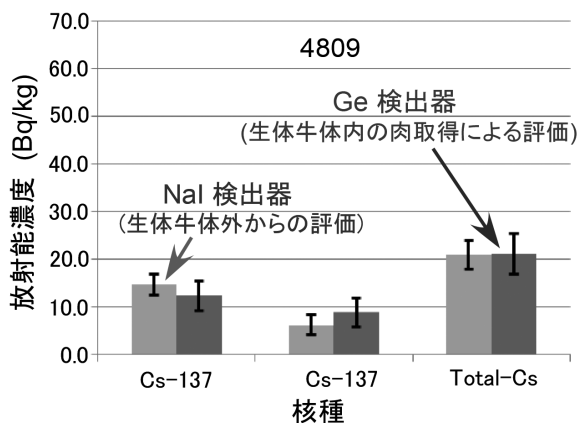


図2 飼料(100Bq/kg)を1か月間摂取させた後の牛生体放射能測定装置による推定した牛体表・体内放射性Cs濃度(左:体表,右:体内筋肉,4809は生体識別番号)

る分野で、それらに関する実験的研究を行う全国共同利用附置研究所である。研究用原子炉(KUR)等の実験施設では全国大学等の研究者に開放すると共に、核エネルギー及び放射線の利用に関する研究教育活動を進められてきたが、その研究組織の一端を担うのが仕事であった。根っからの東北人が関西へ、すべてのことが初めてづくめ。ある意味で四面楚歌のような関西生活のはじまりであった。自由奔放な理学系の出身者が、会社のような工学系の環境に戸惑ったこともあり、所属する専攻になじむまでは少し時間を要した。約7年の現役生活を務め終えた矢先に、新型コロナウイルスまん延の事態となり社会的イベントはすべて自粛、大学キャンパス出入り禁止等、東日本大震災に続く一大事に思えてならなかった。

5.1 東日本大震災の汚染状況調査やその他

京大では放射線取扱主任者の命をも受けて赴任した。放射線安全管理に関わる業務の習得や授業の準備、他、種々の対応等で謀殺され、学問どころではなかった。しかし幸いなことに、科研費基盤研究等により福島原子力事故により放出された微粒子やエアロゾルの生成及び輸送機構に関する研究等が採択され、高強度レーザーを導入し、福島原発事故で放出されて放射性微粒子の模擬実験等を行った。大阪大学や他の大学とのグループ活動として、福島県沿岸部市町村での非除染区域でのサンプリング活動も行った。また、加速器や原子炉を用いた医療用RI(^{99m}Tc , ^{47}Sc , ^{177}Lu 等)の製造の基礎実験等も日立と

の共同研究として取り組めた¹⁰⁾。日本原子力研究所との新規核分裂や興味ある研究もいろいろな方々に協力をいただいて継続できた。この間、近隣アジア諸国との原子力分野の協力を一層効率的に、かつ効果的に推進するための「アジア原子力協力フォーラム(FNCA)」の研究炉に関するプロジェクトリーダーも担当した。複合研同位体利用化学研究室の諸氏の協力なしでは研究活動もままならなかったように思う。特に関本俊先生には多大なる感謝を申し上げたい。

6. 放射線取扱主任者として

もともと東北大学核理研へは放射線取扱主任者業務を担う条件での採用であった。当時、主任者として榎本和義先生がおられ、赴任して早々に変更申請の命を受けた。後にも、機会あるごとに変更申請を余儀なくされ、研究活動を中断して放射線安全管理で奮闘したこともしばしばであった。どの変更申請でも泥縄勝負でやってきたように思う。年度予算と変更申請の許可(承認)の競争がしばしばあり(フライングもあった)、放射線規制室とのもめごともあったが、親切な担当官に恵まれたこともあった。核燃料物質の管理では、核理研に保有されていた天然ウラン5kgを他施設に譲渡し、保障措置室とわたり合いながら例のない核燃料使用施設(J施設)の廃止も行った。震災後には放射線取扱施設(特に北関東から東北の加速器群等)は壊滅的な打撃を受けた。復興に向けて取扱施設の存続には、廃止及び新設を余儀なくされた。核理研においては廃止と新設を同じ申請書で許可(承認)をいただいたことは放射線規制室へ本当に感謝した。最後に京大複合研に移ったが、ここでは原子炉規制法に多くを縛られていて障害防止法はわき役(ではないが)のようなものであった。しかし、震災後の種々の法改正や防護措置の取入れ等、近年の放射線管理へ努力は片手間ではいかなかったのが実情であろう。約30年近くにわたって警察と泥棒一緒のような管理人ではあったが、いつからか捕まってもまあ〜殺されはしないだろうと開き直った折から気が楽になった。最後に、一言付け加えるならば、RI製造や加速器を含めた利用に関わる研究の発展には、放射線取扱主任者等の管理者も身をもってこの分野に関わった研

究を推進していくことが重要なことであろう。

今後、初期の関西時代の憂鬱を晴らすべく、やり残した実験データの論文づくり、投稿等最後の後始末をやってここ関西を去る予定である。もうすぐ10年になる関西の生活も捨てがたくなり、あと少し古都（奈良や京都）の散策を楽しみたいと思うこの頃である。

参考文献

- 1) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. C.*, **44**, 1405 (1991)
- 2) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. C.*, **48**, 1667 (1993)
- 3) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 17 (1991)
- 4) T.Ohtsuki, *et. al.*, *JACS*, **117**, 12869 (1995)
- 5) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 967 (1998)
- 6) T.Ohtsuki, *et. al.*, *J. Chem. Phys.*, **112**, 2834 (2000)
- 7) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 3522 (1996)
- 8) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 112501 (2004)
- 9) T.Ohtsuki, *et. al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 252501 (2007)
- 10) T.Ohtsuki, *et. al.*, *RSC Advances*, **11**, 19666 (2021)

(京都大学複合原子力科学研究所)