

アイソトープ基盤研究部門の 今後の研究活動

末木啓介

平成25年7月31日アイソトープ環境動態研究センター設立記念シンポジウム

ご紹介をいただきました末木です。

アイソトープ基盤研究部門

多種の放射性同位元素を用いて研究を行ってきた実績とすぐに利用できる施設を活用し、放射性同位元素、放射線についての高感度測定法や簡便測定法、さらには野外の様々な条件下での測定法などを新たに開発するとともに、それらを物性、材料や機能評価、環境中挙動を調べるトレーサ、生体内挙動や代謝などに利用するための基礎的研究を行う。

<専任>

数理物質系 末木啓介 教授
生命環境系 古川 純 助教
准教授1名、助教1名

<兼任>

生命環境系 松本 宏 教授
数理物質系 大塩寛紀 教授
数理物質系 上殿明良 教授
数理物質系 長崎幸夫 教授
数理物質系 笹 公和 准教授

これからアイソトープ基盤研究部門の話をしていきます。私どもアイソトープ基盤研究部門は、専任は、私教授1名と助教1名がいます。兼任で教授4名、准教授1名を入れて、アイソトープ基盤研究部門というかたちになります。先ほどから再三出ています福島大学中心の環境動態研究の一環で私どものグループのほうに、准教授1名、助教1名が今まさに公募を始めたところです。仲間に入っただけのかたちで活動をしていく予定です。われわれのところは、もともとアイソトープ総合センターを基礎にしていますので、特徴としては、多種の放射性同位体元素をもとに研究を行ってきたという実績、それを利用できる施設として活用していくとか、さらに放射線についての各種測定法の研究、そういう同位体元素を用いて行っているトレーサ研究などを中心に、研究を進めていこうと考えております。

今後の研究活動

福島ミッションによる研究活動

- 原発事故由来の放射性核種の定量法の開発および応用
 - 長寿命放射性核種の分析法の開発と応用
 - 極微量放射性核種の分析法の開発と応用
- トレーサ利用による化学・生物研究
 - GREIによる植物のRI吸収挙動のその場観察
 - 放射性物質の化学状態

従来からの研究活動の発展

- メスバウアー分光法を利用した錯体分子化学研究
- 陽電子消滅法による材料の特性評価研究
- 生体機能材料開発
- 新規導入される6MVタンデム加速器による加速器質量分析法AMSの開発および応用

今日のお話は、前半と後半を大きく分けてお話ししますと、1つは今回の、全体で一緒になってやっていくことになった、福島に関する原発事故由来に関する研究などの話をしていこうと思います。後半に従来から行ってきた研究活動についてお話しさせていただきたいと思います。

福島原発事故由来の 放射性物質の謎を解き明かす

- 原発事故でどのような放射性核種が放出されたのか？
 - ▶ $^{134}, ^{137}\text{Cs}$ 、 ^{131}I 以外にも放出された核種はある
- 放射性核種はどのような化学形で自然界に取り込まれているのか？
 - ▶ 放射性セシウムはどのような化学形態がある
- 放射性核種は環境をどのように循環するのか？
 - ▶ 平衡に基づいて様々な相へ分配する
 - ▶ 微生物、植物系などの関与が存在する

まず、今回の問題ですが、福島原発事故由来の放射性物質の謎を解き明かすという、これが1つ、われわれに与えられたテーマだと思っております。それに対してどう進めていくかということと、その中でいろいろな移流・拡散の話とか、そういうことをつなげて連携をとっていろんな仕事ができるようにしたいと考えております。

まず、先ほどからいろんなところで話が出てきているのですが、原発事故でどのような放射線核種が放出されたかという話で、主なものとしては、先ほどから ^{131}I のヨウ素とか $^{134}, ^{137}$ のセシウム等挙げられていますけれども、それ以外にどんな核種があっただうなっているかというのも1つの問題として採り上げていきたい。あとはやはり、特に放射性セシウム 137 、30年の半減期で、今だにどのような化学系でどのように自然界に取り込まれるか、またどのように循環していくか、こういう問題についての基礎データをできるだけ出せないかというのを課題として持っています。

原発事故由来の放射性核種の定量法の開発および応用

核分裂起源、中性子捕獲反応起源の様々な放射性核種が存在しているが、放射エネルギーが多くガンマ線測定できる核種のみが主に研究されている。

- ・ Cs-137、Cs-134 は汚染量も多く、除染・植物吸収などの問題を考える必要がある。 → **トレーサでの研究へ**
- ・ 事故直後はI-131、Te-129mなども測られていたが、半減期が短いので、測れた時期がたいへん短く十分な研究ができていない。 I-131の人への影響評価をどうするか？
- ・ 半減期が短いTe-132、I-133などはほとんど測られていない。

Sr-90、Puなどその生体系への危険性が指摘される核種でも、その放射能測定の煩雑さから十分な研究がされていない。

長寿命のため放射能としては問題にならないが、どのような事故が起こったのかを検証するためには重要な核種を定量分析する。

原発事故由来の放射性核種の定量法開発、及び応用というかたちでテーマを挙げているのですが、今セシウム 137、134 が特に汚染量も多く、当然除染・食物吸収などの問題もいろいろあります。これに関してはこのあとのトレーサの研究でいろいろやっていかなければいけないと考えておりますが、それ以外のものをどうしていくか。核分裂起源、中性子核反応起源とさまざまな放射性物質が生成しているはずですが。確かに、少量しか出ていないという話が JAEA の話で出てきましたけれども、思ったような量は出ていなかったと。

例えばチェルノブイリでは 137 のセシウムに対してストロンチウムの 90 が、大体 0.1 の割合、すなわち 10 パーセント出ています。そういうことを起こっていないということは非常によかったのですが、そこらへんについても考えていかなければならない。1 つは先ほども出ていましたが、131 のヨウ素がありますけれども、初期のときに非常に問題があったと思いますが、この評価をどうするか。今言ったストロンチウム 90 とかプルトニウムなどの生体系への危険性が指摘される核種に関して、なかなか放射能測定が難しい、面倒である。この定量法をもう少し簡単に定量できないかという方法を開発するということが必要であります。

あとは私たち、もともと、長寿命の放射性核種をずっと追っかけていたのですが、長寿命の放射性核種に関して、これは事故で出てきた放射能としては全く問題ありませんが、いろいろなキーになる核種がありますので、そういうものの定量法を開発していきたいと考えております。

長寿命放射性核種の分析法の開発と応用

Cl-36(3.0×10^5 yr)、Tc-99(2.1×10^5 yr)、I-129(1.6×10^7 yr)、
Cs-135(2×10^6 yr)、U-236(2.3×10^7 yr)

I-131の降下量の推定

セシウムの同位体比から汚染源を探る

極微量放射性核種の分析法の開発と応用

Sr-90、Pu、Am

化学分離操作の簡易化の確立

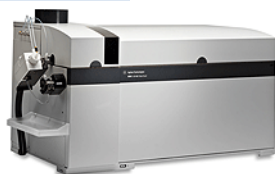
より高感度のβ線測定法、α線測定法の確立

極微量同位体分析が可能なICP-MS(QQQ)の導入により

Sr-90、Tc-99、I-129、Cs-135、U-236を含む試料の分析

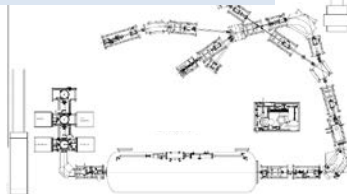
環境試料レベルの放射性核種はAMSで分析

ICP-MS (QQQ型)



アイソトープ棟管理区域内に設置予定(H25.11)

加速器質量分析装置AMS



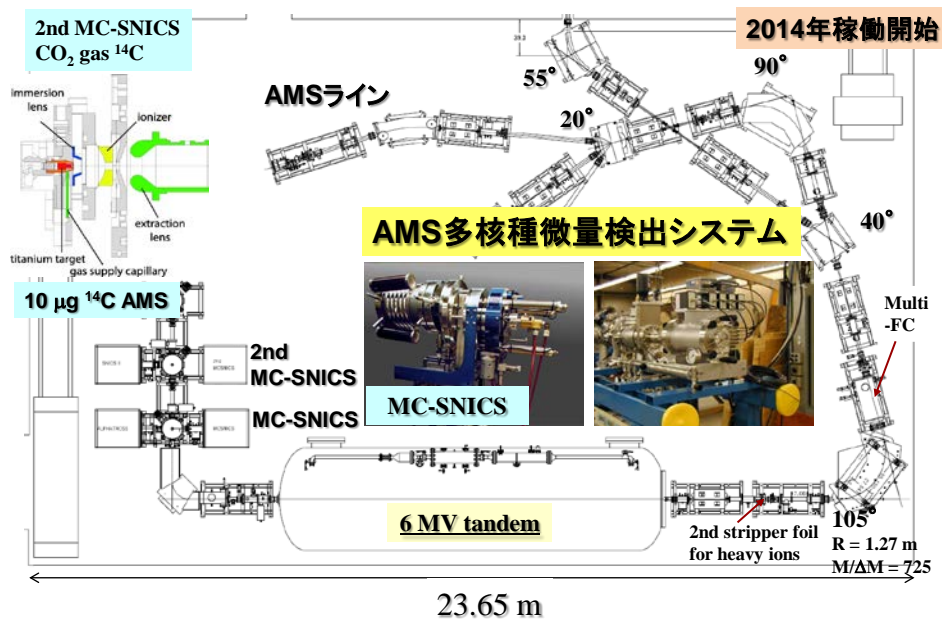
研究基盤総合センター応用加速器部門設置(H26.9)

長寿命放射性核種の分析法というので、こんなものが知られていますけれども、塩素 36、テクネチウム 99、ヨウ素 129、セシウム 135、ウラン 236 というものがありますが、量的には非常に少ないものですが、いろんなところを考えていけるものであって、ヨウ素 129 に関して言うと、ヨウ素 131 の降下量の推定を行えるということで、学習院大学の村松先生たちが行っています。それと同等のことをわれわれも以前採取した試料を使って測定を進めています。

セシウムは 134、135 そして 137 があります。135 のセシウムは半減期が長いと思いますが、これを測ることができると、実は同位体比からの調査、134/137 比の議論がありますが、それと同時に 135 比を加えると、より精密な、3 つの原子炉の汚染源が特定できるという仕事もできるだろうと考えています。こういう長寿命の放射性物質の分析・開発をしています。あと、極微量の放射性核種、ストロンチウムとかプルトニウム、アメリシウムなんかも化学分離の観点から、より高度な測定法、高感度な測定法の確立なんかを進めていきたいと思っています。

これに対するツールとして今考えているのが新たに導入する予定になっていて、11 月に入るのですが、ICP - MS を使った極微量同位体分析を考えておりますが、これは最新鋭のモデルです。もう 1 つが、より環境レベルのものに関しては、加速器質量分析法を行っていきます。これに関しては、研究基盤総合センターの初期に、実は震災で 12 メガボルトの加速器が壊れたのでその代わりになるものとして、6 メガボルトの加速器を使っていきます。

筑波大学 6 MV AMSシステムの開発 (数理物質系 笹 公和)



世界最新鋭大型AMSシステム

加速器は兼担の笹先生が今導入しているところですが、その中で AMS システムを確立しようということです。このように加速器があって AMS ラインという専用のラインができて、これによってさまざまな長寿命の放射性核種の測定が行えます。

6 MV AMSシステム研究計画

多核種AMS測定の研究実施体制を構築
Be-10, C-14, Al-26, Cl-36, Ca-41, I-129

C-14:

- ・CO₂ガス炭素14測定法の開発
- ・炭素循環環境トレーサー
- ・生物・創薬開発等の産業利用開拓
- ・年代測定・文化財科学研究

Be-10 & Al-26:

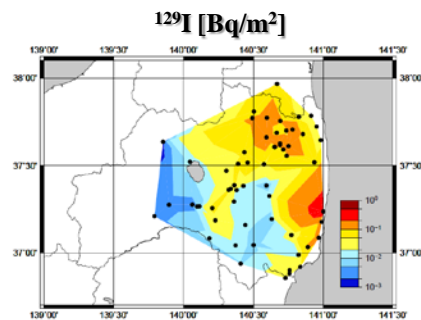
- ・表面照射年代研究

Cl-36:

- ・アイスコアによる古気候変動研究
- ・地下水年代測定
- ・カルスト地形形成年代
- ・環境調査
- 福島第一原発事故・環境動態研究

I-129: 福島第一原発事故調査

新たなAMS測定核種: Ca-41, Si-32, Sr-90の開発



長半減期核種¹²⁹I (T_{1/2} = 1,570万年)の分布図
⇒ ¹³¹Iの降下・沈着量の推定に利用



C-14全自動試料処理ラインの導入
(文科省高度化設備費)

AMSが行えるようになって、その中で笹先生はいろんな研究が進められると思うのですが、原発関係のものに関してもこれを使用して進めていこうと思っております。

陸域での放射性物質の化学的な存在状態を明らかにすることは除染及び移流・拡散を考える上で重要な検討課題となる。

様々な化学処理とイメージャーに画像とを組み合わせた研究

SEM、EPMAなどの手法によるその場観察による研究

トレーサによる吸着・溶出実験

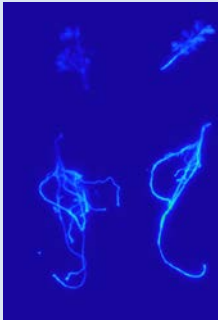
様々な放射性セシウムの効率的な吸着と減容方法の確立のためのトレーサ実験

放射性セシウムの検出限界を下げるための技術開発 → 正確な情報を得るために

もう 1 つは移流・拡散研究を行う上でトレーサも必要です。基礎的なデータを取り入れるための研究の必要性がある訳です。

リアルタイムでRITレーサからの放射線による画像を得る装置で 植物での放射性物質の挙動を解明

従来のトレーサ取り込みの研究は侵襲する必要があった

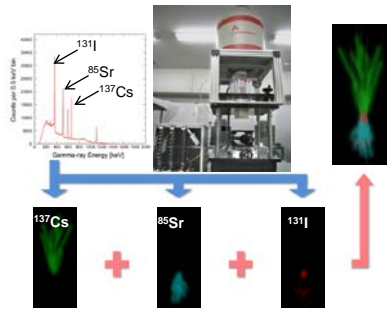


カリウム環境に依存した
放射性セシウム吸収の変化

植物：ミヤコグサ
左：放射性セシウムによる
イメージング
カリウム欠乏処理（右）による
セシウム吸収量の増加

リアルタイムイメージング装置(GREI)

複数核種の分布を高感度に同時計測可能な
非侵襲のリアルタイムイメージング解析装置



⇒ 土壌-植物系における放射性物質の詳細な挙動を
明らかにすることにより、植物による吸収を抑制
する手法の開発へ

アイソトープ棟管理区域内に設置予定(H26.3)

さらに今回、われわれとしては植物系に関して、今までは放射性の元素を吸収させて変化を、あるところで植物を刈り取って測るわけですが、それをリアルタイムに育てる状態で見えていくという、これも今年度中に導入する予定です。リアルタイムイメージング装置 (GREI) を導入して、新たな展開をしていこうと思っております。ということも福島のミッションで考えています。

放射性同位元素および加速器を用いた 従来からの研究活動の発展

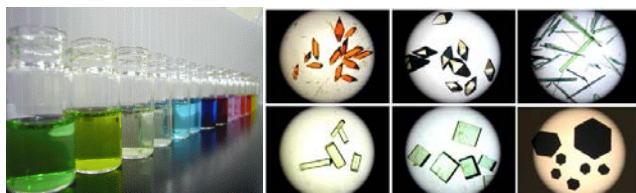
- メスバウアー分光法を利用した錯体分子化学研究
- 陽電子消滅法による材料の特性評価研究
- 生体機能材料開発
- 新規導入される6MVタンデム加速器による
加速器質量分析法AMSの開発および応用

われわれの放射性同位元素、及び加速器を用いた研究活動の発展ということで、表の一番下については先ほど紹介しましたので、上の3つをご紹介させていただきたいと思います。

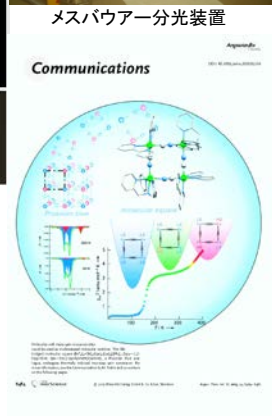
多重双安定性金属錯体の合成と電子状態の自在制御

(数理物質系 大塩寛紀)

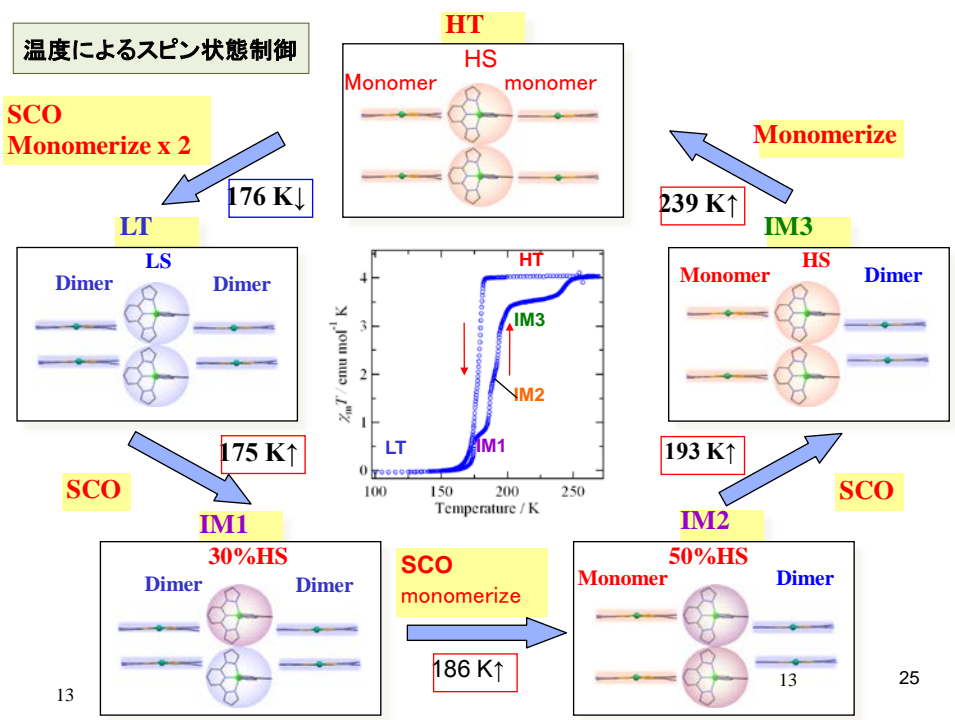
合理的に設計可能な有機配位子と多様な電子状態を持つ金属イオンからなる集合体の構築特に、鉄(II)錯体においては、配位子を適切に設計することで複数の状態を熱や光などによって可逆に変えることができるスイッチング機能を発現



- 1) 金属錯体と有機ラジカルからなるハイブリッドスピン平衡錯体の合成と温度・光によるスピン状態制御
- 2) シアン化物イオン架橋混合原子価[Fe(II)Co(III)]多核錯体における熱・光・X線誘起相転移現象の発現と、光誘起単分子磁性・光誘起単一次元磁石の合成



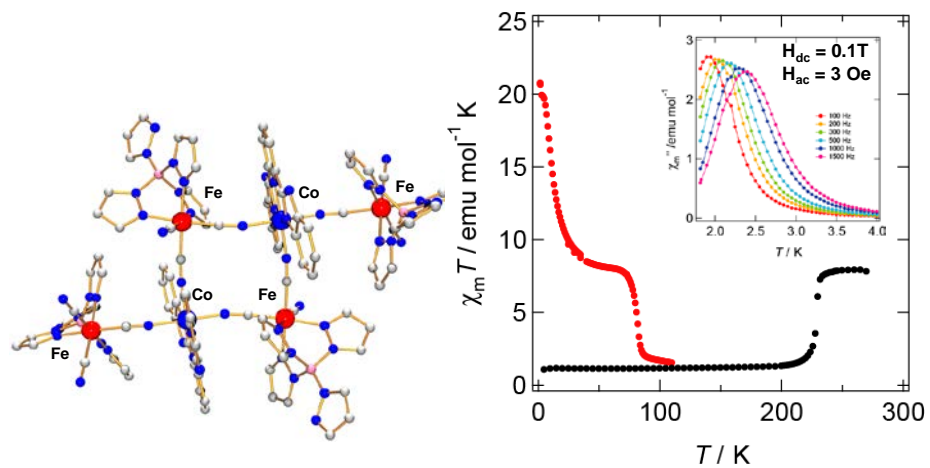
1つはメスバウアー分光法を利用した錯体分子化学研究ということで、大塩先生によって行われますが、いろいろな鉄を含んだ錯体が研究対象になります。



その中で今、大塩先生のグループとして非常に興味を持たれているのは、錯体の磁性の変化があると思います。例えば温度によって磁性が変わるシステムです。

光誘起単分子磁石

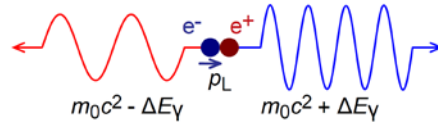
極低温で赤色光照射によりFe(II)→Co(III)イオンへ電子移動し、
単分子磁石となる



これは低温度で光を当てると磁性が変化するという新しい錯体を研究しています。

陽電子消滅による材料の物性評価 (数理物質系 上殿明良)

陽電子は電子の反物質で、物質中に入射すると、電子と対消滅する。このとき、質量がエネルギーへ変換され($E=m_0c^2$)、2個の光子が放出される。光子のエネルギーは約511 keV(γ 線)である。



消滅 γ 線のエネルギー分布や物質中での陽電子の寿命を測定することにより、空孔型欠陥を検出することができる。

特徴

検出できる欠陥: 単一原子空孔~空隙(ポア, 数 10 nm^3)

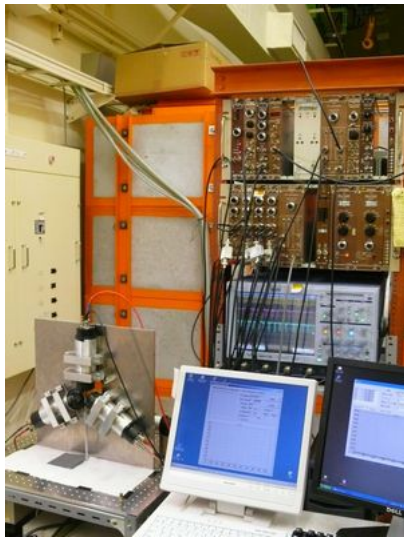
高感度($\geq 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)かつ非破壊

試料の温度, 抵抗率等の制限なし

試料表面から数 μm までの欠陥深さ分布検出が可能

応用: 半導体, 金属, 絶縁体, 高分子等の空孔検出

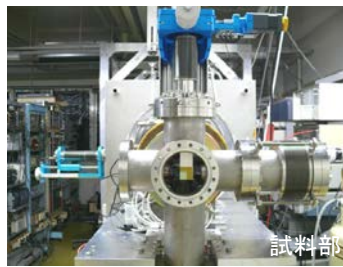
もう 1 つは上殿先生の研究ですけれども、陽電子消滅を利用した材料の物性評価です。陽電子消滅のお話は皆さん知っているとおおり、陽電子発生源としてはナトリウム 22 を使いますけれども、放出された陽電子が消滅するときに発生する 2 本の 511 キロ電子ボルトのガンマ線を利用することによって、その寿命を測ることで、空孔型欠陥を測ることができます。従って、今非常に重要になっている素材、半導体、金属、絶縁体、高分子等の空孔の欠陥の評価を行っているということです。



RI プロジェクト



全体



試料部

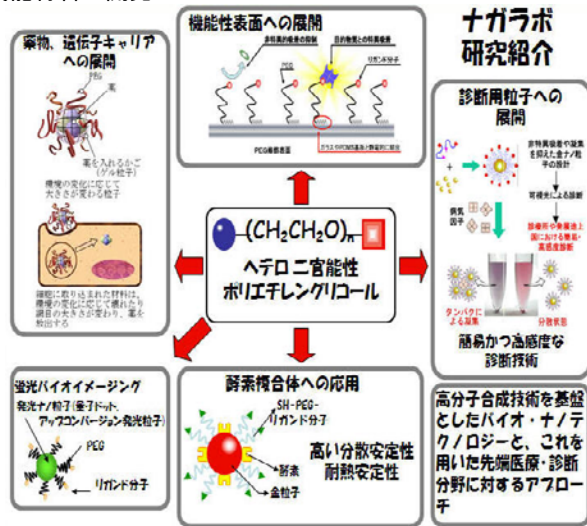
Slow プロジェクト

この研究のために、いろいろなシステムが作られて実際に進められています。

生体機能材料開発 (数理物質系 長崎幸夫)

活性酸素を制御するナノメディシンの設計と評価

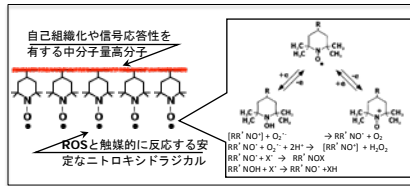
高分子合成技術を基盤としたナノ・インターフェイス(界面)の構築と、これを用いたナノ生体機能材料の開発



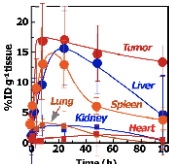
最後は長崎先生の研究なのですが、生体機能材料開発というかたちで行っています。高分子が材料なんですけども、分子レベルで 2 種類の物質をつなぐ界面の構築をするための分子設計もいろいろ行っています。

【研究の背景・目的】

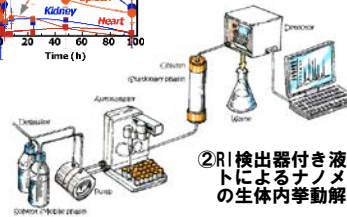
過剰に産生される活性酸素(ROS)が様々な疾病の原因として重要な役割を果たすことが明らかになってきた。活性酸素を消去するにはビタミンCやE、抗酸化剤など様々なもの、低分子抗酸化物質は非特異的に拡散し、生体に必要な活性酸素をも消去するため、使用には限界がある。我々は、活性酸素種が正常なエネルギーを産生するとともに様々な疾病にも関与する「諸刃の剣」であることに着目し、**正常なROS(善玉活性酸素)の産生を妨げず、過剰に産生するROS(悪玉活性酸素)を選択的に消去するため、代謝可能な分子量ポリマーにROS消去能を創り込む新しいバイオマテリアルの設計を進めてきた。**具体的には図に示すように、自己組織化能や環境応答能を有する高分子に触媒的に活性酸素消去能を有するニトロキソドラジカルを導入し、ミトコンドリア内の正規電子伝達系を阻害せず、マクロファージや好中球が過剰に産生するROSを選択的に消去するレドックス高分子材料を設計し、その自己組織化によるナノ粒子(レドックスナノ粒子と略記)が脳や腎臓血管の梗塞、再灌流によって生じるROSの消去のみならず、潰瘍性大腸炎様々な疾患部位に送達し、そこで過剰に産生される悪玉活性酸素を効果的に消去し、副作用の少ない新しいナノメディシン(レドックスポリマー薬)として働くことを示してきた。これらの材料は生体内治療を進め、革新的医療技術の開発を目指すことを目的としている。



【検討課題】



①アイソトープラベルによるナノメディシンの体内動態解析



②RI検出器付き液体クロマトによるナノメディシンの生体内挙動解析

RIトレーサを用いた革新的医療技術の開発

そのときに合成した分子の性能の評価を行う研究の手法として、新しい分子に放射性元素を使ってトレーサとして利用します。トレーサ実験と組み合わせていろいろな分子を開発していく。この中で革新的な医療技術の開発が進めています。この様に、福島中心の放射性元素の研究と従来の研究の2本柱で進めています。

以上です。