

# 放射線化学 2014 No. 97

**RADIATION CHEMISTRY**

**日本放射線化学会**

JAPANESE SOCIETY OF RADIATION CHEMISTRY

<http://www.radiation-chemistry.org/>

〈巻頭言〉

放射線よ大志をいだけ！

〈展望・解説〉

水溶液生体分子構造に対する放射光励起・液体分子線分光研究（後編）

超高強度レーザーと薄膜との相互作用によるイオン加速

アミノ酸全 20 種核酸塩基全 5 種の広域吸収スペクトル完結計画

〈とびっくす〉

あいちシンクロトロン光センターの概要と利用案内

〈連載講座〉

V. M. ビャーコフ・S. V. ステパノフ 放射線化学の基礎 –放射線分解初期過程– 第 6 回

〈第 56 回放射線化学討論会の話題から〉

講演 2I-1:兵庫県立粒子線医療センターの現状と粒子線治療の普及について

講演 2I-2:加速器 BNCT 時代を見据えての基礎・臨床研究の展開

〈書評〉

試料分析講座「半導体・電子材料分析」日本分析化学会 編

〈会員のページ〉

放射線利用振興協会の紹介

木村一字さんを悼む

木村一字さんとわたし

〈海外レポート〉

MICROS 2013 に参加して

第 17 回 The International Meeting on Radiation Processing 2013 参加報告

TSRP-2014 参加報告

〈ニュース〉

第 56 回 放射線化学討論会参加報告（1 日目）

第 56 回 放射線化学討論会参加報告（2 日目）

第 56 回 放射線化学討論会参加報告（3 日目）

2013 年度 放射線化学若手の会「夏の学校」報告

高崎量子応用研究シンポジウム参加報告

〈お知らせ〉

APSRC2014 のお知らせ

15th International Congress of Radiation Research (ICRR2015) のお知らせ

〈本会記事〉

〈賛助会員名簿〉



## 〈巻頭言〉

放射線よ大志をいだけ！ ..... 鷲尾 方一 ... 1

## 〈展望・解説〉

水溶液生体分子構造に対する放射光励起・液体分子線分光研究（後編）  
..... 島田 紘行, 鶴飼 正敏 ... 3

超高強度レーザーと薄膜との相互作用によるイオン加速 ..... 西内 満美子 ... 13

アミノ酸全 20 種核酸塩基全 5 種の広域吸収スペクトル完結計画 ..... 中川 和道 ... 29

## 〈とびっくす〉

あいちシンクロトロン光センターの概要と利用案内 ..... 竹田 美和 ... 35

## 〈連載講座〉

V. M. ビャーコフ・S. V. ステパノフ 放射線化学の基礎－放射線分解初期過程－第 6 回  
..... 小林 慶規, 岡 壽崇 ... 41

## 〈第 56 回放射線化学討論会の話から〉

講演 2I-1:兵庫県立粒子線医療センターの現状と粒子線治療の普及について  
..... 須賀 大作 ... 53

講演 2I-2:加速器 BNCT 時代を見据えての基礎・臨床研究の展開 ..... 鈴木 実 ... 55

## 〈書評〉

試料分析講座「半導体・電子材料分析」日本分析化学会 編 ..... 岡 壽崇 ... 59

## 〈会員のページ〉

放射線利用振興協会の紹介 ..... 岡田 漱平 ... 60

木村一宇さんを悼む ..... 月出 章 ... 62

木村一宇さんとわたし ..... 丑田 公規 ... 63

## 〈海外レポート〉

MICROS 2013 に参加して ..... 藤井 健太郎 ... 65  
第 17 回 The International Meeting on Radiation Processing 2013 参加報告  
..... 廣庭 隆行 ... 66

TSRP-2014 参加報告 ..... 平 義隆 ... 67

## 〈ニュース〉

第 56 回 放射線化学討論会参加報告（1 日目） ..... 樋川 智洋 ... 69



**Houshasenkagaku (Radiation Chemistry)**  
(97)1–83(2014)

---

Biannual Journal of Japanese Society of Radiation Chemistry  
“Radiation Chemistry”  
No.97, March 2014

---

Preface

Radiations, be ambitious! ····· Masakazu Washio ··· 1

Reviews

- Liquid microjet synchrotron-radiation spectroscopy for bio-molecules in water solution II  
····· Hiroyuki Shimada and Masatoshi Ukai ··· 3
- Ion acceleration by the interaction between ultra-high intensity laser and thin-foil target  
····· Mamiko Nishiuchi ··· 13
- Toward the completion of measurement of absorption spectra of 20 amino acids and 5 bases of nuclear  
acids over wide energy range  
····· Kazumichi Nakagawa ··· 29

Topics

Outline and user services of Aichi Synchrotron Radiation Center ····· Yoshikazu Takeda ··· 35

Serial Course

- Foundations of Radiation Chemistry –Early Processes of Radiolysis– by V. M. Byakov and S. V.  
Stepanov, Part 6  
····· Yoshinori Kobayashi and Toshitaka Oka ··· 41

Highlights of the 56<sup>th</sup> Annual Meeting

- Lecture 2I–1: The present status of Hyogo Ion Beam Medical Center and the world-wide spread of  
particle therapy  
····· Daisaku Suga ··· 53
- Lecture 2I–2: Basic and clinical research on BNCT for coming accelerator-based BNCT era  
····· Minoru Suzuki ··· 55

Book Review

- Review on “Handotai denshizairyou bunseki”, Edited by The Japan Society for Analytical Chemistry,  
Maruzen  
····· Toshitaka Oka ··· 59

From Members

- Introduction of Radiation Application Development Association ····· Sohei Okada ··· 60
- Memories of Prof. K. Kimura ····· Akira Hitachi ··· 62
- Dr. Kazuie Kimura on my mind ····· Kiminori Ushida ··· 63

Overseas

|   |                   |    |
|---|-------------------|----|
| Report of the 16 <sup>th</sup> International Symposium on Microdosimetry  | Kentaro Fujii     | 65 |
| Report of the International Meeting on Radiation Processing 2013          |                   |    |
|   | Takayuki Hironiwa | 66 |
| Report of the Trombay Symposium on Radiation & Photochemistry (TSRP-2014) |                   |    |
|   | Yoshitaka Taira   | 67 |

## News

|  |                   |    |
|--|-------------------|----|
| Report of the 56th Annual Meeting of Japanese Society of Radiation Chemistry (1) |                   |    |
|  | Tomohiro Toigawa  | 69 |
| Report of the 56th Annual Meeting of Japanese Society of Radiation Chemistry (2) |                   |    |
|  | Mizuki Sakamoto   | 70 |
| Report of the 56th Annual Meeting of Japanese Society of Radiation Chemistry (3) |                   |    |
|  | Tatsuya Nishio    | 71 |
| Report of the Summer School for Young Scientists in Radiation Chemistry          |                   |    |
|  | Mayu Fujikawa     | 72 |
| Report of the Takasaski Quantum beam Research Symposium                          | Kazuhiro Iwamatsu | 73 |

## Information

|   |                  |    |
|---|------------------|----|
| Announcement of APSRC2014   | Yosuke Katsumura | 75 |
| Announcement for 15th International Congress of Radiation Research (ICRR2015) |                  |    |
|   | Yoichi Yoshida   | 76 |

## Announcements

## List of Support Members

## 放射線よ大志をいだけ！

早稲田大学 理工学術院総合研究所

鷲尾 方一



東京電力の福島第一原子力発電所の事故以来、放射線による不安をあおる風潮と理解の不足が露わになってきていますが、放射線を生業とする研究者達の情報発信の不足がその一因であるという意見も周辺では聞かれています。実際今年の1月にインドで行われたTSRP2014においても、Bhabha 国立研究所のディレクターが講演の中で、日本で原子力発電が完全にストップしている問題が取り上げられ、その中で、日本の科学者がきちんとした情報発信をしていないのではないか、なぜマスコミや国民に正しい知識を伝えないのかという意見が出され、日本側の研究者への強い問いかけとなつての議論が行われました。放射線化学という立場でなくとも、放射線を利用した科学や産業技術がどれだけ私たちの生活を安定にかつ快適にしているか、ということはもっと我々から発信があつてしかるべきかと思っているのですが、そのような記事を関連業界誌に執筆しても、あるいは、前回の JAEA 高崎の玉田所長の巻頭言のように、量子ビーム（放射線）を用いた先駆的な研究開発の話が執筆され、我々にそれが伝えられても、それは常に関連業界や学会の中での内輪の話にとどめられているように思います。実はこのような構造こそが問題なのではないかと思ひ始めています。

いま、私の周りでは、例えば学部3年になる学生に原子力や放射線のことをきちんと体系立てて教える機会がありますが、このような機会を経ると、学生たちは放射線のポジティブ面への興味が非常に高まるのが分かってきました。非常に卑近な例で恐縮ですが、早稲田大学において、2010年4月に原子力専攻が立ち上がって、4年が経過しましたが、物理学科および応

用物理学科から原子力専攻への進学希望者が年々増えています。2014年4月の卒論配属で原子力・放射線関係の研究室配属は実に20名を超えるものになっており、学科の中でも最大勢力となっています。これらの学生に放射線に関する質問をすると、授業を聞いて初めて放射線について興味がわいてきた、これなら勉強したい、研究したいと思ったという声が多く聞かれました。

一方、産業界を見渡してみれば、原子力発電がストップしている間でも、放射線を使った産業は依然として大きな発展を見せています。「新しい材料を創る」、「加工する」とき放射線ほど便利なものはないと、当方は日々実感しています。もっとも単純な放射線応用として、ポリエチレンなどの架橋技術がありますが、高分子の専門家にはこのようなことすら伝わっていないケースもありました。放射線を使う高度な研究や開発にばかりに目が向きがちですが、1950年代に実用化された技術ですら、一般化されていないことにショックを受けました。また最近では、EUV リソグラフィへの期待が高まっていますが、この技術をきちんと実用化するには、放射線化学の知識が欠かせません。敢えて言うならば、とうとう放射線の本質を知るものが役に立てるステージに来た、という感じすら持っています。また一昨年のヒッグス確認とそれに伴う昨年のノーベル物理学賞には加速器技術の進化が大きく貢献したと思っています。これに続く ILC (International Linear Collider) 計画を目指し、加速器の進化も止まっています。

このように放射線を生業とする人間にとって、新技術、新産業等への貢献が期待できる現在、放射線化学会のメンバーの一層の奮起と活躍を願ってやみません。

Radiations, be ambitious!

Masakazu WASHIO (*Research Institute for Science and Engineering, Waseda University*),

〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1

TEL: 03-5286-3893, FAX: 03-3205-0723,

E-mail: washiom@waseda.jp



水溶液生体分子構造に対する  
放射光励起・液体分子線分光研究（後編）

東京農工大学大学院 工学研究院

島田 紘行, 鵜飼 正敏\*

A new spectroscopic research of radiation induced damage on DNA and its constituent molecules is proposed, which is made possible using a liquid microjet technique for bio-solution under vacuum in combination with synchrotron-radiation aided site-selective excitation. The latter part of the proposal article describes the present state of research on the selective primary radiation interaction by looking at base moieties of nucleotides. X-ray absorption near edge structure (XANES) spectra at energies around the nitrogen K-edge for nucleotides, adenosine-5'-monophosphate (AMP), guanosine-5'-monophosphate (GMP), cytidine-5'-monophosphate (CMP), and adenosine-5'-triphosphate (ATP) in aqueous solutions are presented. Selective excitation of a base moiety using a synchrotron radiation allows us to investigate the interaction of the base moiety with water solvent. We discuss the change of spectral character of XANES which reveals to the structural change of the base moiety under different pH environmental condition of water solution. Through the present research a scope for cooperative direct and indirect primary radiation effects is given.

**Keywords:** liquid microjet, DNA, nucleotide, site-selective synchrotron-radiation irradiation, X-ray Absorption Near Edge Structure (XANES)

Liquid microjet synchrotron-radiation spectroscopy for bio-molecules in water solution II  
Hiroyuki SHIMADA and Masatoshi UKAI\* (Department of Applied Physics, Tokyo University of Agriculture and Technology),  
〒184-8588 東京都小金井市中町 2-24-16  
TEL: 042-388-7222, FAX: 042-385-6255,  
E-mail: ukai3@cc.tuat.ac.jp

## 1 はじめに

本稿前編において、日本原子力研究開発機構との共同研究により進めている、生体分子、特に DNA の放射線損傷に関する時間発展的な分光実験の目的と原理、そして研究開発の現状について、水についての成果を示すことにより解説した<sup>1)</sup>。後編では、新規開発された方法を用いて得られた、DNA 構成要素であるヌクレオチドの結果について述べる<sup>2,3)</sup>。

本解説では、DNA, RNA といった遺伝情報物質の放射線損傷における直接効果を観察対象とし、試料として注目するのはこれらの物質の構成単位であるヌクレオチドである。ヌクレオチドは核酸塩基、糖 (DNA ではデオキシリボース, RNA ではリボース)、およびリン酸からなる分子であり (Figure 1)、リン酸と糖のエステル結合により DNA, RNA の鎖状構造がつけられている。試料分子を含む水溶液分子線に対する軟 X 線領域のシンクロトン放射光励起による分光実験が本解説の概要である。

前編で述べたように、細胞中の DNA は、分子自体の構造とともにその周囲に存在する水素結合のネットワークにより二重に規定された安定構造があり自己修復をうながす形状記憶の役割があると考えられる。また、放射線によって誘起された非定常状態が定常状態へと緩和する際に、放射線照射前の定常状態に回帰する可能性があると考えられる<sup>1)</sup>。そこで放射線照射後の緩和現象における不安定化学種の生成・消滅を時間発展的に追跡することを通じて途中経路を共有しながら損傷・修復にいたる択一的な反応経路を明らかにすることができると考えられる。後編では放射線によって誘起される反応の起点となる元素と分子内結合サイトに特有な励起過程に着目する。すなわち、窒素の K 殻吸収端付近のエネルギー領域の単色化放射光を用いたヌクレオチドの内殻吸収端近傍軟 X 線吸収スペクト



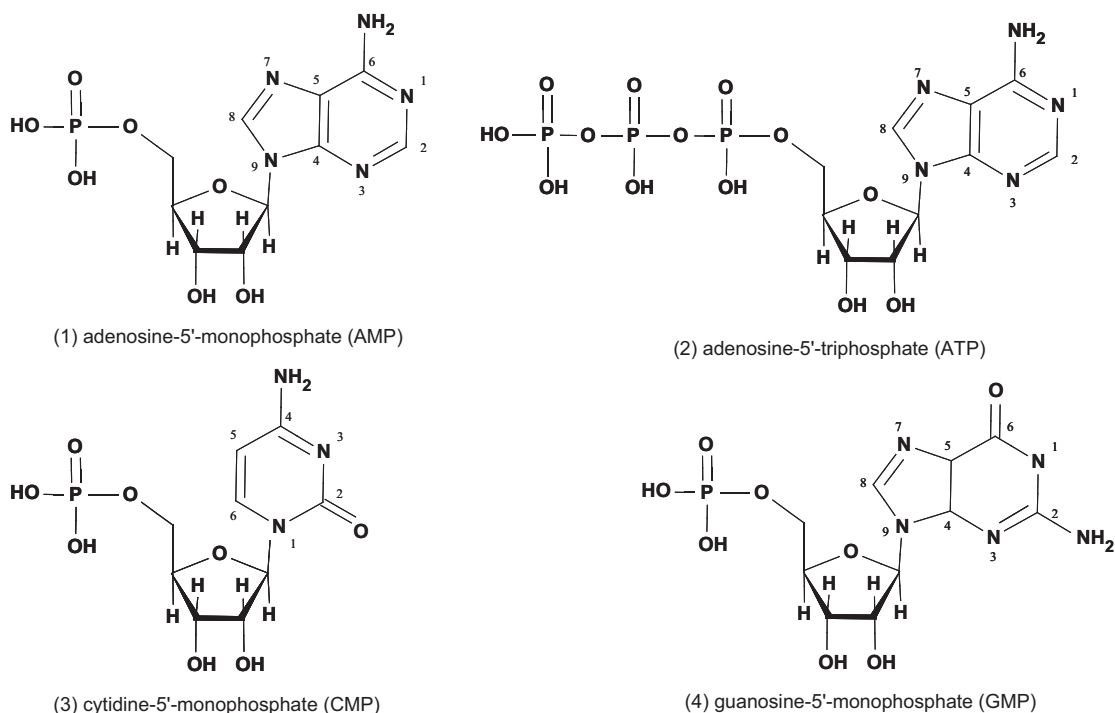


Figure 1. Structural diagrams of the nucleotides examined in the present study: (1) adenosine-5'-monophosphate (AMP), (2) adenosine-5'-triphosphate (ATP), (3) cytidine-5'-monophosphate (CMP), and (4) guanosine-5'-monophosphate (GMP).

ル (XANES : X-ray Absorption Near Edge Structure) の結果と意味について解説する。

### 1.1 放射光による放射線初期相互作用のサイト選別

シンクロトロン放射光のエネルギー選択性という特徴は、放射線誘起反応の起点を分子内結合サイトまで選択してエネルギー付与を起こさせることを可能にした。また、量子化学計算が通常のパソコンでも簡便に行うことができるまでにパッケージ化され、分光実験との組み合わせにより重要なツールとなった。放射光による分子内サイト選択的励起については前編でも述べたが、後編の内容に即して概説する。

ヌクレオチドに含まれる元素の内殻吸収端は、上述した窒素の K 殻吸収端が 400 eV 付近にあるほか、酸素の K 殻吸収端は 530 eV 付近に、炭素の K 殻吸収端は 300 eV 弱に、リンの K 殻、 $L_I$  殻の吸収端は、それぞれ、2145 eV, 189 eV 付近にある。また水溶液試料を用いるため、溶媒の水の酸素の内殻吸収がある。これらの元素の吸収断面積 (イオン化断面積) は 400 eV 付近の窒素吸収端近傍では軟 X 線エネルギーの増大とともに、なだらかな単調減衰を示すことが知られて

いる<sup>4)</sup>。これに対して窒素原子では、エネルギーの増大とともに K 殻電子の非占有軌道への励起、そして、イオン化という劇的な応答を示すため、これらの電子遷移の有無を反映して断面積の増減が生じ、400 eV 付近のエネルギー領域の XANES スペクトルに見られる断面積強調はすべて窒素によるものと考えることができる。Figure 1 に示したとおり窒素原子はヌクレオチド内の塩基部位にのみ含まれており、窒素に注目して観測する電子遷移は塩基部位の選択励起に相当するものである。したがって、窒素の K 殻吸収端付近の XANES スペクトルはヌクレオチド内の塩基部位が水溶液中でどのような溶媒相互作用を受けているかについての重要な知見を与えるものと期待される。

また、このエネルギー領域は酸素の内殻吸収よりも低エネルギー側にあり、いわゆる“水の窓” (water window) と呼ばれ、溶質分子に水の吸収による放射線遮蔽効果が出にくい領域であるため、分子は直接的な放射線相互作用を受けやすく、これらの吸収極大は放射線損傷と密接な関係をもつと想像される。Figure 2 は異なるエネルギーの軟 X 線に対する原子の感受率に相当する吸収断面積の大きさを原子の大きさとして示

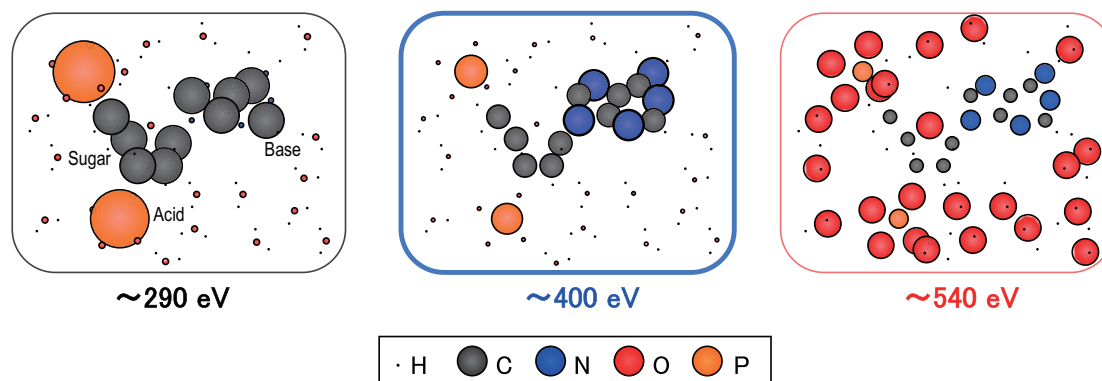


Figure 2. Pictorial image of contributions of cross sections of constituent atoms of AMP in a strand to radiation damage. The sizes of atoms represent the amplitudes of atomic X-ray absorption cross sections.

した模式図である。

## 1.2 放射線損傷における間接・直接同時相互作用

前編では放射線効果を直接効果と間接効果に大別し、特に近年その重要性の高さが再認識されているDNA, RNAへの直接効果が本解説のねらいとする観測対象であることを述べた。また、間接効果においては細胞液の主成分である水に由来するOHラジカルの反応が重要な寄与を果たすものと理解されていることにも触れた。DNAを直接的に攻撃する粒子の反応活性という点ではラジカル反応は重要であると考えられるが、そのほかにも溶媒によって間接的に誘起される反応があるのではないかとこの点に着目する。OHラジカル等の間接効果に関わる二次粒子は、細胞液中を拡散する途中でラジカル捕捉剤としてはたらく数多くの不純物分子と出会って消滅する。これに対して、 $H^+(H_3O^+)$ や $OH^-$ のようなイオン種は酸・塩基中和反応でよく知られているように、電子移動によって水素結合間を容易に飛び回り電荷の安定局在位置まで高速に拡散する。電荷の安定局在位置として重要なものに、非共有電子対をもつ原子の存在する分子内サイトがあると考えられる。このような電荷拡散により非共有電子対の存在する原子にプロトン化、脱プロトン化の構造変化が起こると、分子内の電荷密度が変化し、軌道エネルギーに化学シフトを生じる。いわば、放射線照射による酸・塩基イオン強度の変化という間接効果の存在下で、分子への直接放射線相互作用もまた影響を受けることになる。このような観点もまた、本研究におけるねらいの一つである。ここでも、単色化されたシンクロトロン放射光によるエネルギー選択的励

起が有効な方法となると考えられる。

## 2 実験方法

実験は前編と同じく西播磨科学公園都市にあるSPRING-8大型放射光施設内の日本原子力研究開発機構ビームラインBL23SUの生物分光ステーションにおいて行った。

水溶液試料には、Milli-Qシステムを用いて精製された純水にヌクレオチド（グアノシン-5'-リン酸（GMP）、シチジン-5'-リン酸（CMP）、アデノシン-5'-リン酸（AMP）、アデノシン-5'-3リン酸（ATP））のナトリウム塩粉末を溶解させ、必要に応じて水溶液のpHを調整したのち、0.45  $\mu m$ の細孔径の滅菌フィルターを通過させて会合体を除去したものをを用いた。水溶液試料をクロマトグラフ用の送液ポンプにより加圧し、直径20  $\mu m$ の白金製ノズルを介して液体分子線を発生させた<sup>1)</sup>。水に対するヌクレオチドの濃度は、AMP, ATP, GMPでは0.1 g/mLであり、CMPでは0.1 g/mLおよび0.2 g/mLである。液体試料は高濃度ながら透明で、赤色レーザー光を通してチンダル現象がほとんど見られないまでに溶解されていることを確認した。また、CMP試料で確認したところ異なる濃度に対するスペクトルの変化はなかった。以上から水溶液中のヌクレオチドには会合はなく、均質に溶解したものと考えている。比較のため、上記により調製した液体試料をシリコン基板上に滴下・乾燥させたヌクレオチドの固体薄膜を作製した<sup>2,3)</sup>。なお、室温でも分解してしまうヌクレオチドでは真空蒸着膜を作ることができないため、滴下乾燥の方法を用いたが、ヌクレオチドで

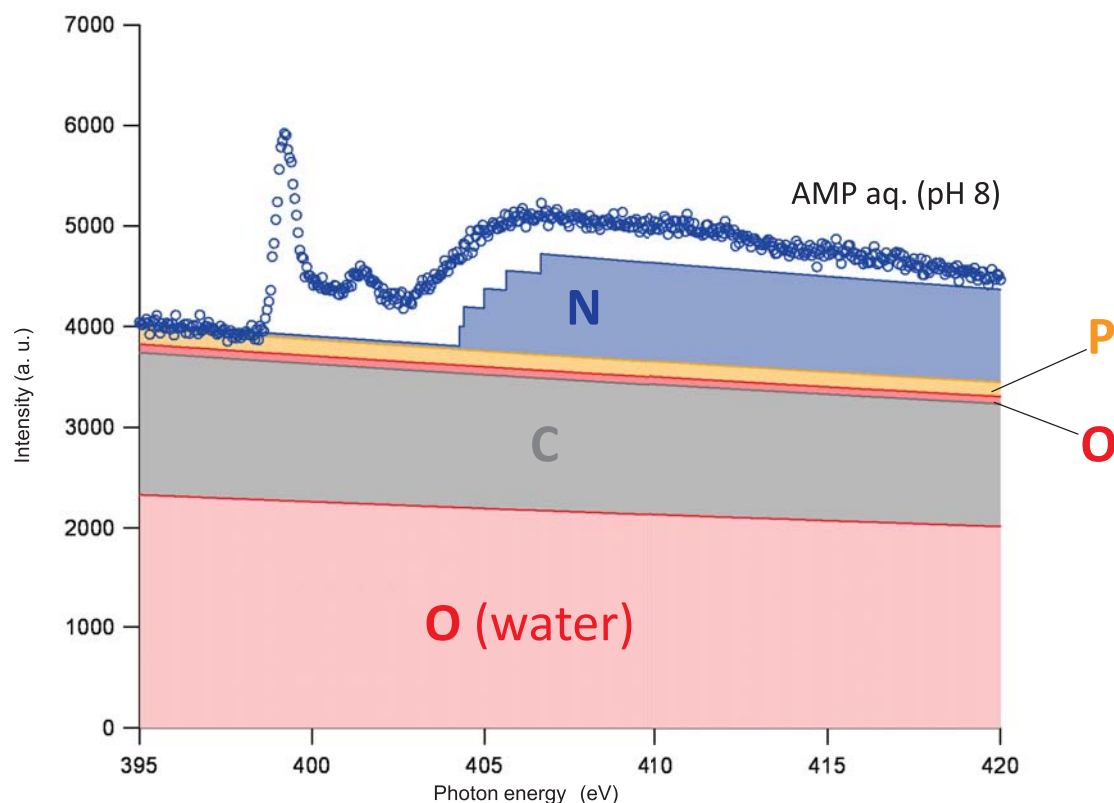


Figure 3. Ejected electron yields of AMP as a function of X-ray photon energy. The contribution of cross sections of constituent atoms in AMP is accounted (see text).

なくアデニン塩基の参照試料を作る際には、真空蒸着によりシリコン基板上に固体薄膜試料を作製した<sup>5)</sup>。

水溶液試料の実験には液体分子線分光装置を用い、二段の集光鏡により 50  $\mu\text{m}$  程度のスポットにまで集光した放射光を液体分子線試料に照射し、放出される電子を静電レンズシステムを通し、エネルギー分析器は動作させずに計測し、放射光エネルギーの関数として X 線吸収スペクトル (XANES) を求めた。また、固体薄膜試料は、同一のビームラインに接続された別個の照射真空装置を用い、放射光照射時の試料の放出電流を測定することにより XANES を求めた。水溶液試料と固体薄膜試料の測定における光源の分光特性は同一であり、共通のエネルギー軸上で比較できる。単色化放射光のエネルギー幅は水溶液試料の場合、測定範囲において 0.38 eV であり、その強度はおよそ  $10^{11}$  photon/s である。固体薄膜試料の場合には試料の光電子放出による帯電を防ぐためにさらにエネルギー幅をせばめ、放射光強度を減じて照射したが、後述のとおりエネルギー幅の違いによる変化は見られな

かった。

### 3 結果と考察

#### 3.1 ヌクレオチドの窒素 K 殻吸収端付近の XANES スペクトル<sup>2)</sup>

まずはじめに Figure 3 に、AMP の水溶液試料について得られた放出電子収量を示す。これはヌクレオチドを構成する窒素、リン、酸素、炭素、および、溶媒の水の原子数と断面積<sup>6,7)</sup> の比を考慮して放出電子収量への寄与を割り当てたものである (水素の断面積の寄与はほとんど皆無といえる程度であるため無視した)。窒素の断面積は内殻吸収の寄与の含まれていない 395 eV–398 eV 付近 (もっとも低エネルギーのピークよりもさらに低エネルギー側) における 2s, 2p 電子遷移のものを用いた。1.1 節で述べたとおり、窒素以外の原子の内殻吸収端から十分に離れているため、断面積に振動的な変化を生じさせているものは窒素だけであり、すなわち、ヌクレオチド中の塩基部位の

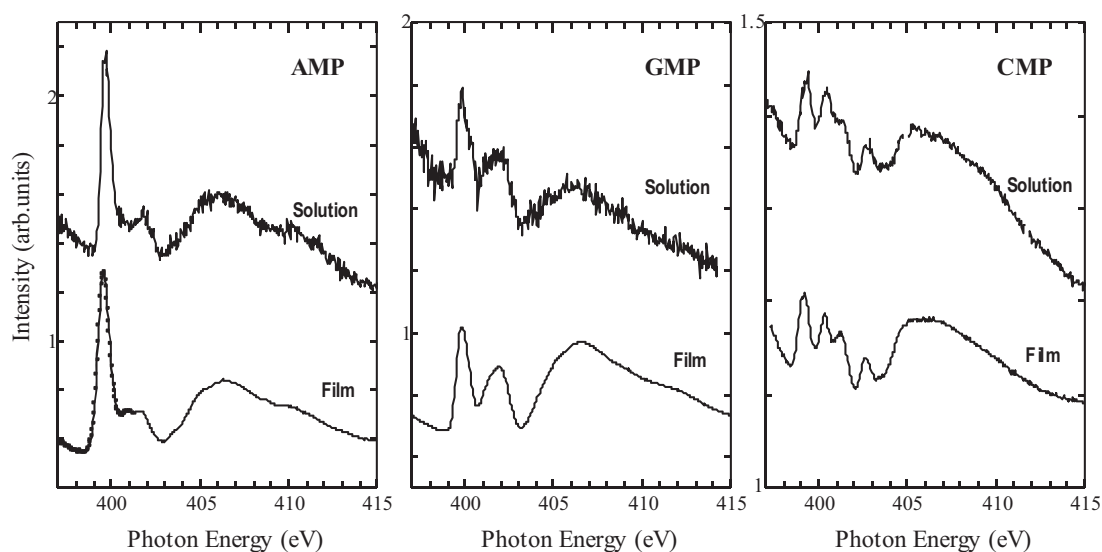


Figure 4. XANES spectra of nucleotides (AMP, GMP, and CMP) in aqueous solutions (Solution) and thin solid films (Film) as a function of photon energy.

選択的内殻遷移によるものである。また、窒素とそれ以外の原子の断面積への寄与は原子数比と断面積比（特にバックグラウンドの主要部を占める水との比）をほぼ反映していることから、前節で述べたようにヌクレオチドは水溶液中で均質に溶解していると考えられる。以下では、初期の結果である Figure 4 では液体分子線試料の位置の経時変化が見られたため縦軸スケールは全電子収量で示すが、それ以降のスペクトルは窒素以外の断面積の寄与を差し引いたものを示す。Figure 4 には AMP, GMP, CMP の固体薄膜試料、ならびに、水溶液中の試料についての、X 線エネルギー 396 eV–415 eV における XANES スペクトルを示す<sup>2)</sup>。上述のように縦軸の数字は任意単位で示した水溶液分子線から放出された電子の収量である（Solution と書かれた上側のものについて）。Film と書かれたものは固体薄膜試料の XANES スペクトルである。スペクトル中のピークエネルギーのみの比較であるため、固体薄膜の XANES は、強度変化を水溶液試料のものにそろえ、適宜、縦軸位置をシフトさせて示した。

いずれも 400 eV 付近の電子収量のピーク状の増大（以下、ピークと略す）と 405 eV 付近のなだらかな極大が特徴的である。400 eV 付近のピークと 405 eV 付近のなだらかな極大は、おおまかには、窒素  $1s \rightarrow \pi^*$  励起と  $\sigma^*$  励起に相当すると帰属できる<sup>2,8)</sup>。

まず、XANES には Table 1 のように窒素  $1s \rightarrow \pi^*$  励起の断面積ピークが出現しており、それぞれ該当す

る塩基分子の XANES とを比較すると<sup>9–11)</sup>、そのエネルギーはおおむね一致する。しかし、塩基では見られていなかった断面積ピークも出現しており、AMP では 401.7 eV の、GMP では 401.8 eV の、CMP では 401.3 eV のピークが新たにみられている。ヌクレオチドの塩基サイト内の窒素原子（AMP, GMP では N9, CMP では N1）が糖に結合しているのに対して、塩基分子そのものではこれらの窒素原子は水素と結合することによる化学シフトの違いの反映ではないかと考えている。

次に水溶液中の AMP, GMP, CMP についての XANES スペクトルに注目すると、一見してわかるように、水溶液試料と固体薄膜試料とでは、測定 of S/N の違いがあるものの、スペクトルの概形にはほとんど違いが見られない。また Table 1 に示すように、窒素  $1s \rightarrow \pi^*$  励起による断面積ピークのエネルギーにも有意な差は見られない<sup>2)</sup>。環境の違いが分子の電子状態に及ぼす影響は、XANES スペクトルで観察した場合には、内殻軌道エネルギーだけでなく吸収の上準位である非占有軌道にも現れる。しかも、ほぼ原子核付近に局在する内殻軌道に比べ、分子軌道である非占有軌道にはより大きな環境の違いが現れるのではないかと予想したが、このように水溶液と固体とで大きな違いがないということは著者らにとって驚きであった。その原因は以下のいずれかではないかと考えられる。すなわち、(1) ヌクレオチドの水への溶解は、主とし



Table 1. Observed energies for N 1s→  $\pi^*$  for AMP, GMP, and CMP in the form of thin solid films and aqueous solutions.

|     | Film (eV) | Solution (eV) |
|-----|-----------|---------------|
| AMP | 399.6     | 399.7         |
|     | 400.9     | 400.9         |
|     | 401.7     | 401.8         |
| GMP | 399.8     | 399.8         |
|     | 401.3     | 401.3         |
|     | 401.8     | 401.9         |
| CMP | 399.2     | 399.3         |
|     | 400.3     | 400.4         |
|     | 401.3     | 401.4         |
|     | 402.7     | 402.7         |

て、電離したリン酸基の水和による。塩基分子そのものの溶解度はいちじるしく低い。いわば、ヌクレオチド中の塩基部位は疎水的であるため、水溶液中でも塩基部位には強い水和による非占有軌道エネルギーの化学シフトが生じていない。もしくは、(2) X線結晶構造解析による DNA の水和水はヌクレオチド単位当たり 2 分子程度とされているが、本研究のように分子としてのヌクレオチドを溶解させた場合にはより多くの水分子が水和している可能性がある。ヌクレオチドの固体薄膜試料は水溶液試料を乾燥させて作製したため、乾燥させても除去できない結晶水状の水が含まれている。水溶液試料も固体薄膜試料もほぼ同様な水和の影響下にあり、二種類の試料の XANES スペクトルに大きな違いがなかった。以上の二つであるが、結論としては次節に述べるようにこの原因は (2) に落ち着いた。また、密度汎関数法による塩基の水和状態についての計算を行っているところであるが、その結果も (2) を支持している<sup>12)</sup>。

### 3.2 XANES スペクトルに見る塩基部位の構造変化と電子状態変化<sup>3)</sup>

#### 3.2.1 アデニン塩基をもつヌクレオチドの XANES スペクトル

Figure 5 に示す XANES はアデニン塩基部位を持つ (i) AMP と (ii) ATP, ならびに、(iii) アデニン分子のものである。ここではピークエネルギーだけでなくスペクトル形状についても比較するために、上述のとおり窒素以外の断面積の寄与を差し引いたものを示す。

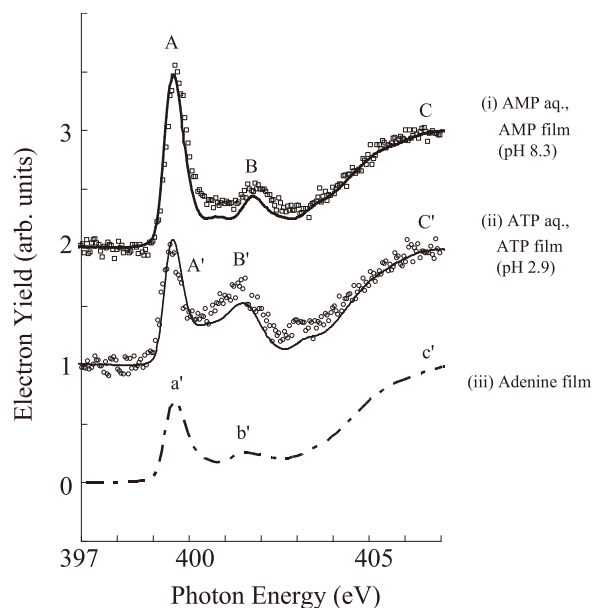


Figure 5. XANES spectra of AMP, ATP, and adenine. Open squares (i) and open circles (ii) represent the yields for AMP and ATP in aqueous solution; solid curves, the yields for AMP and ATP in thin solid films; and dot-dashed curve in the bottom (iii), the yield for adenine film.

ドットで示したものが水溶液試料に対する XANES であり、実線あるいは破線で示したものが固体薄膜試料に対するものである<sup>3)</sup>。また、Figure 4 で見たように、AMP だけでなく ATP の場合でも、水溶液試料と固体薄膜試料の XANES はほぼ同様であり、必要に応じてヌクレオチドの固体薄膜試料の XANES によって水溶液試料の XANES を代用できると考えられる。これらのスペクトル構造に顕著なものは 400 eV 前後の二つの窒素 1s→  $\pi^*$  励起による断面積ピーク (AMP では A, B, ATP では A', B', アデニンでは a', b'。以下、同様) と、403 eV あたりからはじまるゆるやかな  $\sigma^*$  励起の断面積増大である (C, C', c')。いずれもアデニン分子内のそれぞれに対応する同一の電子遷移に由来するものであろうことを示唆する。しかし、以下に述べるように AMP と ATP の XANES スペクトルはまったく同一ではない。まず、A, A', a' の断面積ピークのエネルギーは気相で得られたものにほぼ一致する。ところが、ピーク A'(ATP) の断面積の大きさはピーク A(AMP) のものに比べて 30 % 程度小さい。また、ピーク B' (ATP) の極大は 401.3 eV にあり、ピーク B

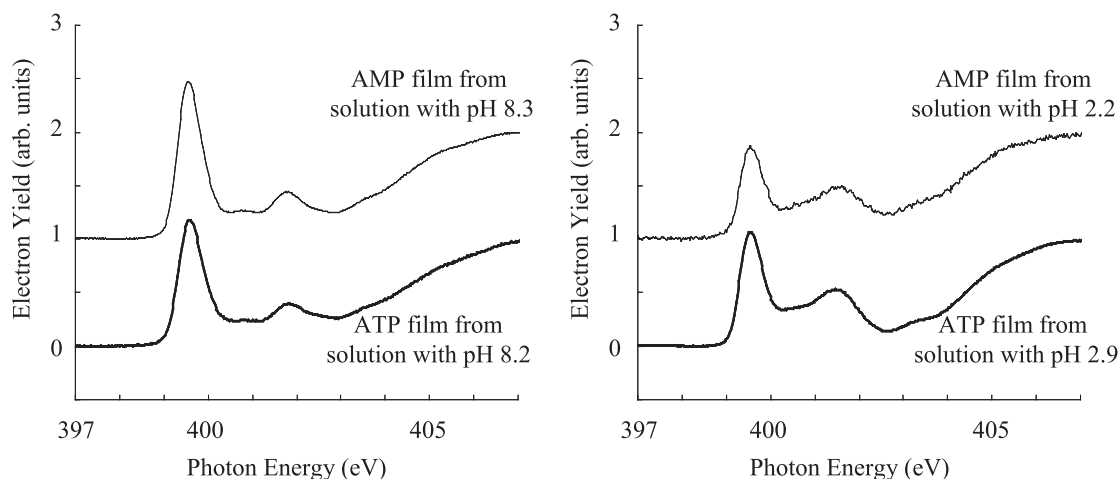


Figure 6. XANES spectra of AMP and ATP at different pH.

(AMP) の極大よりも 0.6 eV 程度低エネルギー側にシフトしており、かつ、ピーク B' (ATP) は幅が広く面積強度としてもピーク B (AMP) よりも大きい。二つのピークの間で断面積の逆転が起こっているかのようである。他グループにより報告された ATP の XANES スペクトルも同様な特徴が見られている<sup>13)</sup>。AMP と ATP、ともにヌクレオチド中のアデニン部位の選択励起を観測しながらこのような違いが生じるのはどのような原因によるものであろうか？ まず、AMP と ATP とではリン酸基長が違う。しかし、アデニン部位は糖の電子状態変化を介してリン酸基の影響を受けるため、リン酸基の長さだけでこのようなスペクトル変化が生じるとは考えにくい。あるいは、水溶液中ではリン酸基が塩基と直接に相互作用するような立体配置にあるのだろうか。しかし、親水基であるリン酸基は強く水和され、アデニン部位とは水和圏の障壁によって隔てられているのではないだろうか。これに対して、AMP と ATP の違いを明快に説明する以下のような直接的な実験結果を得た。

### 3.2.2 pH 変化に対するアデニン部位の構造変化

Figure 5 の測定では、AMP、ATP 試料をほぼ等濃度になるように純水に溶かしただけの水溶液試料を用いたため、これらの試料の置かれた水溶液環境は同様であると考えていた。しかし pH を測定すると、AMP 水溶液では pH 8.3 であり、ATP 水溶液では pH 2.9 であった。したがって水溶液中での酸・塩基イオン強度の違いがアデニン部位の電子状態に影響を与える可能性が示唆される。しかし、前節最後に述べたように、

水溶液試料と固体薄膜試料の XANES が同様であることの原因を、当初は、(1) の“塩基の疎水性”ではないかと考えていたため、酸・塩基イオン強度の違いによる影響は意外だった。

Figure 6 に、AMP と ATP の水溶液の pH をほぼ同様に調製したうえで、シリコン基板上に滴下乾燥した固体薄膜試料についての、窒素 K 吸収端近傍における XANES を示す<sup>3)</sup>。左側が中性付近 (AMP; pH 8.3, ATP; pH 8.2) の水溶液から作製した試料についての XANES であり、右側が酸性水溶液 (AMP; pH 2.2, ATP; pH 2.9) から作製した試料についての XANES である。pH のほぼ等しい水溶液から作製した AMP と ATP の固体薄膜試料についての結果は同一の試料と錯覚するほどによく類似しており、上記した AMP と ATP の XANES スペクトルの違いは、pH による水溶液環境の違いがアデニン部位の電子状態に与えた影響の違いによることがわかった。では、pH による XANES スペクトルの違いはどのようにしてアデニン部位の電子状態に影響を与えたのだろうか？

まず、アデニン部位に存在する 5 個の窒素原子は、Figure 1 の塩基上の番号を付して示すと、次のように異なる結合状態にある<sup>14-16)</sup>。

- A) 複素環内イミン結合 (=N-) : N1, N3, N7
- B<sub>1</sub>) 複素環の C6 位に結合するアミノ基 (-NH<sub>2</sub>) : N6'
- B<sub>2</sub>) 複素環内アミン結合 (>N-) : N9

気相におけるアデニン分子の X 線光電子分光実験とその量子化学解析により、これらの窒素原子の 1s 軌

道電子の束縛エネルギーは、 $A < B_1 < B_2$  の順に、約 1 eV の間隔で大きくなると報告されている<sup>14)</sup>。したがって、これらの電子が同一の空軌道に励起された際に XANES スペクトルに現れる吸収断面積のピークは、X 線エネルギーの増大にともないこの順に出現すると考えられる。また、同一の文献での気相アデニン分子の XANES 測定とその量子化学解析の結果により、399.5 eV (Table 1 では 399.7 eV) の断面積ピークは N1, N3, N7 原子の  $1s \rightarrow \pi^*$  励起によるものであり、401.9 eV (Table 1 では 401.8 eV) の断面積ピークは N9 原子の  $1s \rightarrow \pi^*$  励起によるものと同定されている<sup>14)</sup>。N6' 原子の  $1s \rightarrow \pi^*, 3s$  励起は 401.9 eV よりやや低エネルギー側に見えるわずかな強度の断面積ピークと報告されている<sup>11,14)</sup>。ヌクレオチドの XANES スペクトルでは N6' と N9 の断面積ピークはほぼ重なって見えたものと想像される。なお、気相のアデニン分子にはいくつかの互変異構造があることが知られているが<sup>17)</sup>、報告された量子化学計算は、主成分である正準構造 (Figure 1) に対して行われたものである<sup>14)</sup>。水溶液中の AMP, ATP のアデニン部位は Figure 1 の正準構造をとると報告されている<sup>18,19)</sup>。つまり、Figure 5 に A, A' の記号をつけた 399.7 eV の断面積ピークは正準構造においてイミン結合にある窒素の  $1s \rightarrow \pi^*$  励起によるものであり、B, B' の断面積ピークはアミン結合にある窒素の同様の励起に対応するものと同定できる。

ではつぎに、pH の変化によって水溶液中の AMP, ATP の塩基部位にある上記の窒素原子はどのような影響を受けるのだろうか。異なる pH の溶液を結晶化させて構造を調べると、中性付近では正準構造にあるアデニン部位の N1 原子が酸性条件下ではプロトン化されることが報告されている<sup>20)</sup>。N1 のプロトン化反応の平衡定数<sup>21,22)</sup>を用いて試算すると、Figure 5 の測定条件の下では、AMP (pH 8.3) の 99% の塩基部位は Figure 1 の正準構造にあり、ATP (pH 2.9) の 89% は N1 原子がプロトン化された構造にある。アデニン部位をもつヌクレオチドに限らず、一般にヌクレオチド内の塩基部位は酸・塩基の雰囲気敏感であり、酸性条件下ではイミン結合する窒素にプロトン化が起こり、またアルカリ性条件下ではアミン結合する窒素からプロトン引きぬきが起こる。したがって、中性付近の水溶液中の AMP, ATP ではイミン結合する窒素が 3 個であるのに対して、酸性水溶液中では N1 がプロトン化されることにより 1 個のイミン結合性が失われると考えられる。プロトン化したアデニン部位には複数の共鳴構造が存在するため、単純にイミンの二重結

合が開裂してアミン結合になるとは言い切れないようであるが、このような電子密度の変化により N1 原子の結合状態がアミン結合とイミン結合の中間のようなものに変質するため<sup>23)</sup>、B, B' と記号をつけた高エネルギー側の断面積ピークに向かってシフトし、これが Figure 5 の XANES スペクトルにおいて A' (ATP) の断面積ピーク強度が A(AMP) と比べて 30% 程度減少し、これに対して、B' (ATP) の断面積ピークが B (AMP) に比べて幅広く、かつ面積強度が大きくなることの原因であったと考察できる。

Figure 7 には Figure 5 の AMP, ATP に加えて GMP の XANES をあわせて示した<sup>2,3)</sup>。Figure 1 に示したよ

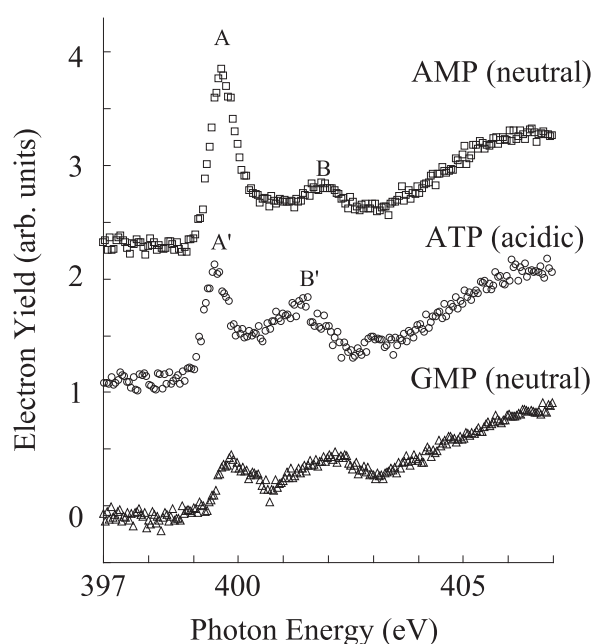


Figure 7. Comparison of the XANES spectra of AMP and ATP in aqueous solutions with the spectrum for GMP.

うに、中性付近の GMP 中には 2 個のイミン結合する窒素原子 (N3, N7) と 2 個のアミン結合する窒素 (N1, N7) 原子、および、C2 に結合するアミノ基を含み、これらの窒素原子の結合状態は酸性水溶液中のアデニン部位と同様である。Figure 7 には示さないが、アルカリ性水溶液では B, B' に相当する断面積強調が弱まり、A, A' に相当する断面積ピークが強調されることが観測され、これは N1 の脱プロトン化による電子状態変化であると考察できる。さらに、シトシン、チミン、ウラシルといったピリミジン誘導体塩基の部位を持つヌクレオチドに対しても、上記と同様な、pH に依



存する塩基部位の構造変化を XANES スペクトル上に観測しつつある<sup>24)</sup>。これらのことから、前節最後に述べた、なぜ水溶液試料と固体薄膜試料の XANES が同様なのかという疑問の原因は、(1) の“塩基の疎水性”によるものではなく、(2) の固体薄膜の塩基部位付近には除去しきれない水分子が存在するためであると思われる。塩基部位はプロトンの授受を行うほど水溶媒との親密な相互作用がある。このような塩基部位が溶媒からの攻撃を容易に受けないように、DNA ではさらに高い親水性をもつリン酸基が二重鎖となって塩基部位を取り囲むことによって疎水環境を作り塩基部位を防護していると考えられるべきなのであろう。

#### 4 終わりに

以上のようにシンクロトロン放射光を用いて水溶液中のヌクレオチド内の塩基部位の選択励起を行うことにより、直接作用における放射線初期過程の断面積を知ることができた。また、水溶液の pH に依存するプロトン化・脱プロトン化の構造変化に注目することにより、放射線効果の起点を塩基サイト選択にとどまらず、塩基内原子の位置まで特定して調べるための糸口を得たと考えられる。

しかし、はたして細胞内で pH 2 などという状況が出現するだろうか。放射線効果の現場からは恐ろしく人工的な、あるいは極限環境下の研究をしているのではないかという批判があるかもしれない。しかし、放射線量が増加し水の解離性電離が起こり、1 個の  $H^+$  あるいは  $OH^-$  が発生すれば、近隣の分子がこうむる影響の大きさは pH 2 をはるかに超えた大きなものになるだろう。これらのイオンの移動が電荷移動によるきわめてはやいものであることを考えると、格別の極限環境下でなくとも、pH レベルでは異常とも見える細胞雰囲気、局所的には、容易に発生してしまうと考えることは極端な見方ではないと思われる (Figure 8)。直接効果と間接効果という分類を前編で示したが、これらは決して別個に存在して線量率とともに線形に増大してやがて非線形現象を見せるといったものではなく、実は、低レベルの放射線量でも直接・間接効果が同時に発生してシナジー効果を生じているのかもしれない。たとえばアミン結合の窒素であれば直接放射線相互作用によって単純な一重結合を断裂させるだけであるのに対して、近隣で発生した  $OH^-$  基によって脱プロトン化が起こると、もっと広範な領域に電子移動を可能にして放射線誘起反応を複雑化させるといったことが直ちに想像できる。そのときのイオンやラジカ

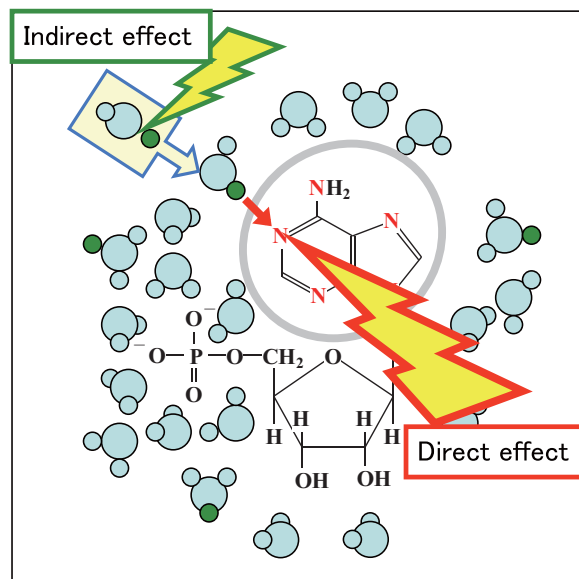


Figure 8. Pictorial image for the cooperative direct and indirect radiation effects to nucleotide.

ルはどのようなものが生成するだろうか？ 電子状態の違いはポテンシャル曲面の違いに相当し、反応の経路は利用されるポテンシャル曲面によって異なる。前編で述べたとおり、本研究の最終目標はこのような反応経路の違いを二次生成物の発生の経時変化によって追跡することにある。このような知見を集積していくことによって放射線損傷の発生と、それとは途中の経路を共有しながら“その場修復”にいたるというプロセスについて明らかにできるだろうと期待している。

#### 5 謝辞

本研究は科学研究費補助金（課題番号 13304033, 17204035, 21241017, 25241010）、ならびに、原子力機構先端基礎研究センター黎明研究（H20, H21）の援助を受けて行われてきました。また、原子力機構先端基礎研究センターの横谷明德博士、藤井健太郎博士、同機構放射光研究ユニットの斎藤祐児博士らとの共同研究により行われてきたものです（SPRING-8 原子力機構専用ビームライン 課題：2005B3805, 2006A3804, 2006B3833, 2007A3820, 2007B3810, 2008A-2012B3810/BL23SU）。同ユニットの福田義博氏には実験・保守の上で重要な協力をいただいています。また、農工大の多くの修士課程修了者や、卒業生、在籍者とともに進められて来ました。最後に、こ



これらの研究の第一報を鵜飼が International Workshop on Radiation Damage to DNA (2004) にて講演した際には、故 Bill Bernhard 先生から “I would like to hear the rest of your talk.” という格別の激励を受け、本研究を継続する上での大切な支えであります。以上、記して感謝いたします。

#### 〈参 考 文 献〉

- 1) 鵜飼正敏, 島田紘行, 放射線化学, 94 (2012) 14.
- 2) M. Ukai, A. Yokoya, K. Fujii, Y. Saitoh, Chem. Phys. Lett., 495 (2010) 90.
- 3) H. Shimada, T. Fukao, H. Minami, M. Ukai, K. Fujii, A. Yokoya, Y. Fukuda, Y. Saitoh, Chem. Phys. Lett., 591 (2014) 137.
- 4) J. Berkowitz, Atomic and Molecular Photoabsorption: Absolute Total Cross Sections, Academic, London and San Diego, 2002.
- 5) K. Fujii, K. Akamatsu, Y. Muramatsu, A. Yokoya, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 199 (2003) 249.
- 6) J. J. Yeh, I. Lindau, Atom. Data Nucl. Data Tables 32 (1985) 1.
- 7) B. L. Henke, E. M. Gullikson, J. C. Davis, Atom. Data Nucl. Data Tables 54 (1985) 181.
- 8) S. M. Kirtley, O. Mullins, J. Chen, J. van Elp, S. J. George, C. T. Chen, T. O'Halloran, S. P. Cramer, Biochim. Biophys. Acta, 1132 (1992) 249.
- 9) Y. Zubavichus, A. Shaporenko, V. Korolkov, M. Grunze, M. Zharnikov, J. Phys. Chem., 112 (2008) 13711.
- 10) Y. Harada, T. Takeuchi, H. Kino, A. Fukushima, K. Takakura, K. Hieda, A. Nakao, S. Shin, H. Fukuyama, J. Phys. Chem., 110 (2006) 13227.
- 11) J. MacNaughton, A. Moewes, E. Z. Kurmaev, J. Phys. Chem., 109 (2005) 7749.
- 12) 武田泰明, 島田紘行, 鵜飼正敏, 原子衝突学会第 38 回年会, P8, November 16th, 2013.
- 13) D. N. Kelly, C. P. Schwartz, J. S. Uejio, A. M. Duffin, A. H. England, R. J. Saykally, J. Chem. Phys., 133 (2010) 101103.
- 14) O. Plekan, V. Feyer, R. Richter, M. Coreno, M. de Simone, K. C. Prince, A. B. Trofimov, E. V. Gromov, I. L. Zaytseva, J. Schirmer, Chem. Phys., 347 (2008) 360.
- 15) F. Wang, Q. Zhua, E. Ivanova, J. Synchrotron Radiat., 15 (2008) 624.
- 16) Y. Mochiduki, H. Koide, T. Imamura, H. Takemiya, J. Synchrotron Radiat., 8 (2001) 1003.
- 17) R. D. Brown, P. D. Godfrey, D. McNaughton, A. P. Pierlot, Chem. Phys. Lett., 156 (1989) 61.
- 18) B. Lippert, H. Schöllhorn, U. Thewalt, Inorg. Chim. Acta, 198 (1992) 723.
- 19) H. Sigel, Pure Appl. Chem., 76 (2004) 1869.
- 20) J. Kraut, L. H. Jensen, Acta Crystallogr, 16 (1963) 79.
- 21) R. Tribolet, H. Sigel, Eur. J. Biochem., 163 (1987) 353.
- 22) R. Tribolet, H. Sigel, Eur. J. Biochem., 170 (1988) 617.
- 23) L. M. Cunane, M. R. Taylor, Acta Crystallogr, D, 53 (1997) 765.
- 24) 島田紘行, 深尾太志, 南寛威, 佐久間一郎, 奥泉直人, 横谷明德, 藤井健太郎, 福田義博, 斎藤祐児, 鵜飼正敏, 第 56 回放射線化学討論会, 3O-07, September 29th, 2013.

#### 〈著 者 略 歴〉

島田 紘行：2006 年 東京大学大学院総合文化研究科博士後期課程修了。2006 年 分子科学研究所 CREST 研究員。2008 年 東京農工大学工学部特任助教。2011 年 同大学院工学研究院助教（現職）。学術博士。専門：原子分子物理学・量子エレクトロニクス。趣味等：読書・楽器演奏

鵜飼 正敏：1987 年 東京工業大学大学院理工学研究科博士後期課程修了。日本学術振興会特別研究員を経て、1988 年 東京工業大学理学部助手。1995 年 東京農工大学工学部助教授。2010 年より同大学院工学研究院教授（現職）。理学博士。専門：放射線化学・原子分子物理学。趣味：雑学。

## 超高強度レーザーと薄膜との相互作用によるイオン加速

独立行政法人 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

西内 満美子\*

Since the first observation of the energetic protons from the interaction between the short pulse high intensity laser and the thin-foil target, extensive studies have been carried out for more than 15 years. In the early period, the laser energy of kilo joule level is necessary to accelerate the protons more than 50 MeV. Such a large amount of laser energy is supplied only by a huge laser system, which typically is unable to make repetitive operation. However, thanks to the progresses in the laser technology, protons having the energies almost  $\sim 50$  MeV are successfully accelerated by the laser system with only less than 10 J of energy and with the capability of repetitive operation. These facts really show the advance of the laser-driven ion acceleration towards the possible fields of applications. Here, the characteristics, the mechanisms and the recent experimental results of the laser-driven proton acceleration are reviewed.

**Keywords:** laser-plasma interaction, ultra-intense field, particle acceleration

## 1 はじめに

1960 年にレーザーが発明<sup>1)</sup>されて以来、約 50 年以上も経過した。通常の光と比してレーザー光は、時間・空間的な可干渉性が高いことが大きな特徴である。したがって、他の光に比べて桁違いに短パルス性、単色性、指向性、集光性能を追求することができる。それらの特徴を活かし、様々な応用が提唱、あるいは実

現されていることは既知の事実だと思う。それら多くの応用分野の中には、レーザーの持つ時間・空間コヒーレンスを最大限に利用し、レーザー光の持つエネルギーを時間的・空間的にできるだけ集約し、すなわち、「エネルギー密度を上げて」標的に投入（照射）し、標的の物理的状態を変化（たとえば破壊）させるものも存在する。たとえば本稿のテーマとなっているレーザーを用いた 2 次粒子の発生等も、その一部と位置づけられる。標的の物理状態を変化させようとするれば、標的に対してできるだけ大きな威力を与える必要がある。そのための方法として最も考えやすいのは、もちろんレーザーの持つエネルギーを増やすこと＝「高出力化」である。レーザーの歴史において、1980 年代におけるレーザー核融合用ドライバレーザーの開発が、「高出力化」の面からレーザーの技術を大きく進歩させたと言える。これにより 1 パルス当たりで費やすことのできるエネルギーが kJ クラスにまで飛躍的に増大した。しかしながら、この時点ではレーザーのパルス幅はナノ秒程度にとどまっていたため、レーザーの照射点（以後集光点と呼ぶ）におけるエネルギー密度の飛躍的な増大にはつながらなかった。さらに、核融合用ドライバレーザーに典型的な kJ クラスのレーザーは、非常に大型になるのはいうまでもなく、加えてシングルショットベースの運用になってしまう（数時間に 1 ショット程度）。このようなレーザー装置を使用して研究展開できるのはほんの一握りの限られた研究者のみだったため、産業界にまで応用されるには至らなかった。

状況が大きく変化したのは、超高速光技術の開化によって超短パルス光の発生が実現した後だといえる。モード同期<sup>2)</sup>、すなわち、広い帯域内のすべての周波数成分の位相をそろえること、の技術開発によって、それまで最短であったパルス幅のナノ秒が、ピコ秒、さらにフェムト秒のオーダーまで短縮できるようになった。これによりレーザー 1 パルスに含有されるエネルギーをそれほど高めることなく、集光点におけるエ

Ion acceleration by the interaction between ultra-high intensity laser and thin-foil target

Mamiko NISHIUCHI\* (*Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency*),

〒619-0215 京都府木津川市梅美台 8-1-7

TEL: 0774-71-3304, FAX: 0774-71-3316,

E-mail: nishiuchi.mamiko@jaea.go.jp

エネルギー密度を増加させることが可能となった。さらには、1985年のチャープパルス増幅法(Chirped Pulse Amplification: CPA)の発明<sup>3)</sup>が目覚ましい発展をもたらした。CPAとは、モード同期等で発生した短パルス光を、位相の相関を保持しつつ時間的に一度引き延ばす技術である。これによってレーザーを十分に増幅しても、オプティクス破壊限界を超えない強度でレーザー光の取り回しが可能となる。その後再度パルスの時間圧縮を行うことで、1パルス当たりのエネルギー密度を増やすことが可能となる。CPA技術により、レーザーの持つピーク強度はテラワット級( $10^{12}$  W)にまで向上することとなった。すなわち、実用的な大きさを繰り返しの効く百フェムト秒以下のパルス幅を持つレーザー(以降フェムト秒レーザーと記述)を用いることで、集光点における物質の物理状態を変化させることが容易となった。これにより産業界を含め応用範囲が飛躍的に増大した。また、過去10年ほどの間に技術はさらに進み、研究という分野に限ったことではあるが、ペタワット級( $10^{15}$  W)のレーザーも稼働し始めている。さらには、世界においては、10ペタワット級以上の高強度短パルスレーザーも稼働に向け建設がすすんでいるというのが現状である<sup>4)</sup>。

以上のような背景を持つ超高強度短パルスレーザーを薄膜と相互作用させると、高エネルギーのイオンが発生することが2000年にアメリカのリバモア研で行われた実験によって明らかになった<sup>5)</sup>。それ以来レーザー駆動型のイオン加速の研究に火がついて、レーザー駆動型のイオン線の実用化を目指して世界各国で研究されるようになり現在に至っている。しかしながら、安定に高エネルギーのイオンを供給することのできる既存の加速器があるのに、なぜわざわざレーザーを用いたイオン加速の研究を行うのか？何か大きなメリットでもあるのか？それとも、既存の加速器が供給できるイオンビームとは異なる特徴を持つものを供給する可能性でもあるのか？と、加速器業界の方々の中には首を傾げる方もおられるのではないかとと思う。下記にレーザー駆動イオン線の特徴と、ここ最近の研究結果の一端を紹介することで、「レーザー駆動イオン線は開発する価値がある！」と認めてくださる方が増えることを願う。

## 2 レーザー駆動型イオンの特徴

レーザーを用いたイオン加速研究を行う魅力は、「究極に小型化された加速器を実現できること」に尽きると思う。加速器が小型化できれば、建設コスト維持費

も低くなる。そして何よりも限られた予算(税金)の範囲でより高エネルギーのフロンティアに迫るツールが提供可能となる。既存の線形加速器<sup>6)</sup>が何百メートルもかけて陽子やイオンを加速する必要があるのは、加速場が絶縁破壊の問題で最高でも100 MV/mを超えることができないという制限があるからで、それに対しレーザー駆動型のイオン加速は、加速媒体としてプラズマを用いるため好きなだけ加速勾配を上げることができるという特徴を持つ(ここでプラズマとは、原子が電離して陽イオンと電子に分かれて自由に運動しているが、全体としては電荷中性を満たすような物質状態をいう)。現状、物理実験に資することができる最高出力レベルのペタワットからサブペタワットクラスのレーザーを用いて薄膜と相互作用させる場合を例にとると、約100 TV/mに近い加速勾配を打ち立てることに成功している。約6桁もの開きがあることに着目していただきたい。このような理由に起因し、同じ50 MeVの陽子を加速するに対しても、線形加速器では30 m–40 mの空間が必要なのに対し、レーザー駆動型の場合は $\mu\text{m}$ 程度の空間で加速が可能となる。さらにその他の類稀な特徴として、ピーク電流の高さがある。最高エネルギー数十 MeVに至る $10^{10}$ 個以上のイオンがわずかピコ秒程度のパルス幅で発生するため<sup>5)</sup>、イオン源におけるピーク電流はメガアンペア以上に相当する。さらにイオンは、ほとんど点源といえるわずかマイクロレベルの極小空間に形成された電場<sup>7)</sup>で加速されるため、ビームの質を表す一つの指標である横エミッタンスの値は $10^{-4} \pi \text{ mm mrad}$ にも達する<sup>8)</sup>。この値は、既存の加速器ビームの値に比べて2桁以上優れた値である。したがって、レーザー駆動イオン線は極小空間(スポット)へ絞り込むことも可能である。このような類稀な特徴を活かすことで様々な応用先が提案されてきた；たとえば小型のがん治療器<sup>9)</sup>、小型の加速器へのインジェクター<sup>10)</sup>、レーザー核融合の高速点火への応用<sup>11)</sup>、プラズマ中の電磁場プローブ<sup>12)</sup>等である。

良いことばかり唱えていては話が前に進まない。上の記述からはレーザー駆動イオンが今すぐにでも既存の加速器のように応用に資することができるのか、という実はそのようではない。克服すべき問題点が多々ある。応用先によって克服すべき問題点は異なるが、たとえば加速されたイオンのエネルギーについて考えると、現状で達成できているのは陽子線で120 MeV<sup>13)</sup>である(Figure 1)。一方で体内深部のがんの治療に資するためには陽子線で200 MeV程度のエネルギーが必要と言われ、それに比べるとさらなる高エネルギー化



が必要である。また、この結果はオンターゲット 80 J を費やすことのできるシングルショットベース（数時間に 1 レーザーショット）の大型のレーザーを用いて得られた結果であり、実際に应用到するには実用的な大きさの繰り返し効くレーザーを用いて 100 MeV 級のエネルギーの陽子線発生が必要となる。また特段の工夫をしない限り、レーザーと薄膜との相互作用で発生するイオンは半角 ~5 度以上の大きな発散角を持って発生し、エネルギーブレッドも大きい（ほぼ白色）。現状、超高強度レーザー自身の安定性がよくないことから、それに引きずられた形で発生するイオンの安定性も、既存の加速器ビームに比較すると悪く、繰り返しショット数が稼げない（現状、ペタワットクラスのレーザーで 1 Hz 程度）、等々という問題点がある。応用先を明確にした上で、これらの問題点を如何にその応用先に最適な状態へと克服していくか、が著者を含めたこの分野の研究者に課されたタスクであると考え。

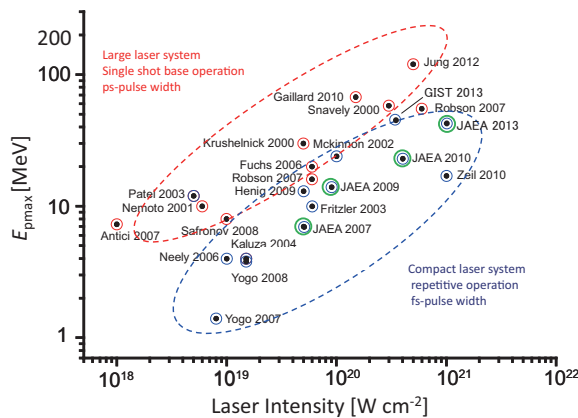


Figure 1. Present status of Laser-driven ion acceleration. Intensity of the laser vs maximum energy of the accelerated protons. The points encircled by red line are the data from the large laser system which has ps pulse duration and is basically single-shot based operation. Those encircled by blue line are from small laser system which has <100 fs pulse duration and is capable of repetitive operation.

### 3 レーザー駆動型イオン加速機構

レーザー駆動型のイオン加速においては、レーザーが直接イオンを加速するわけではなく、質量の軽さゆえ、まずはターゲット中の電子がレーザーと相互作用

する。結果としてターゲットがプラズマ化され、プラズマ中に形成される電場によってイオンが集団的に加速を受ける。そこで本稿では、レーザーと物質の相互作用（プラズマ生成）およびイオン加速機構の 2 段階に分けて記述する。

#### 3.1 実験方法

レーザーと物質の相互作用といっても、レーザーのパルス幅、強度、物質の状態によって様々であるため、ここでは、超高強度レーザーと薄膜との相互作用によるイオン加速を考える際に関連するメカニズムについて簡単に記述することにする。

それに先立ち、イオン加速を行う際に使用する超高強度短パルスレーザーの時間波形について少し説明する (Figure 2)。レーザーの集光強度が上がれば上がるほど、メインのパルスに前駆してターゲットにやってくる低強度のレーザーバックグラウンド成分、いわゆる自然放出光成分 (Amplified Spontaneous Emission, ASE, 以降プリパルス成分と呼ぶ) の影響が無視できなくなる。このプリパルス成分はピーク強度こそ小さいものの数百ピコから 1 ナノ秒程度続いたため、ここに含有されているレーザーエネルギーも無視できない。また、レーザーの時間的な波形の立ち上がりも急峻ではないため (以降この立ち上がり成分をペデスタル成分と呼ぶ)、このペデスタル成分の影響も同様に無視できない。この成分は百ピコ秒以下の程度の時間幅を持つ。特段の工夫をしない限り (また、工夫をしたとしても!) いずれの成分も、今考えている超高強度短パルスレーザーの場合は、往々にして物質のイオン化閾値を超えてしまう強度に達する。メインパルスのピークの部分とターゲットが相互作用する際には、ターゲットのレーザー照射面側にプラズマ (プリパルスが作るプラズマなので、プリプラズマと呼ばれている) が既に形成され、場合によってはターゲットそのものまでプラズマ化して、膨張により密度が低下してしまうこともある。プリパルスの持つ時間空間形状によって、メインパルスがターゲットに到達する際のプリプラズマの時間空間形状は様々であり、その後のメインパルスとターゲットの相互作用を大きく左右し、イオン加速のメカニズムに大きく影響を及ぼす。ここで、プリパルス強度がメインパルス強度に対して低いレーザーをコントラストレベルの高いレーザーと記述する。また、プリプラズマの空間的な広がりをスケール長 ( $l$ ) と呼び、たとえばプラズマ密度がターゲット自体の固体密度から  $1/e^2$  の密度に減少する距離などを用いて表す (Figure 2)。

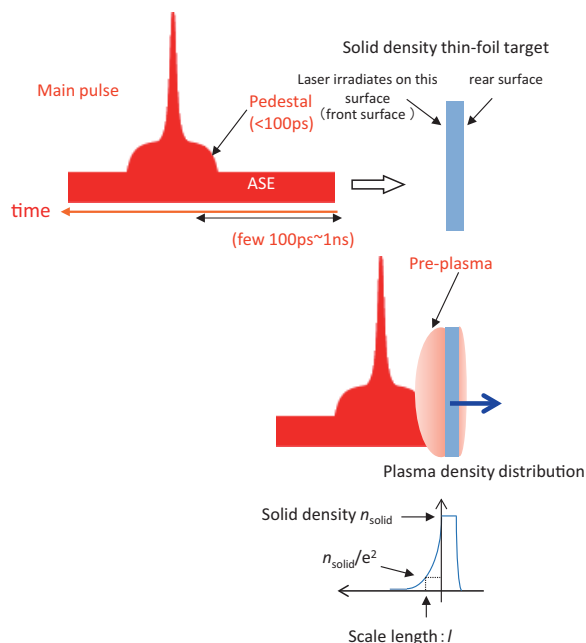


Figure 2. Laser temporal distribution. Laser is irradiated on the target. The irradiated surface is called “front” and the other side is called “rear”. Before the main pulse reaches to the target, amplified spontaneous emission (ASE) with ~ns duration and the pedestal component with <few hundreds fs duration arrive at the target. Those pulses cause the pre-plasma on the target front side. The spatial scale of this pre-plasma is called scale length ( $l$ ).

以降、超高強度短パルスレーザーを照射することで、標的の物理的状況がどう変化するのか、レーザーによる自由電子生成（電離過程）、レーザーからプラズマへのエネルギー輸送に分けて、レーザーの時間・空間的なエネルギー密度を表す集光強度  $I$  (単位は  $\text{W}/\text{cm}^2$ ) を指標として用い説明する。また、レーザーの波長としては、著者らが研究に用いているチタンサファイアレーザーの 800 nm を仮定して話を進めることとする。また、言葉の定義として、Figure 2 に示したように、ターゲットのレーザー照射面側を前面と呼び、後面側を裏面と呼ぶことにする。

### 3.1.1 実験方法

高強度レーザーを物質に照射すると、まず電離過程が起こりプラズマが形成される。その際の閾値となる集光強度は物質にも依存するが、 $10^{11} \text{ W}/\text{cm}^2$  程度である。その後、物質中の自由電子がレーザーによって加

速されることで周りの中性粒子に次々と衝突し電離を促す雪崩現象<sup>14)</sup>によりプラズマが生成されることになる。さらにレーザーの強度が上がると  $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$  程度になると電離過程に「閾値越え」<sup>15)</sup>の効果が効き始める。このとき、電子のスペクトルを計測すると、光子エネルギーに相当する間隔において複数のピークを形成する。このようなイオン化を量子力学的な描像で説明すると、レーザーのマルチサイクルの間に多光子が吸収されることによって起こるイオン化過程ととらえることができる。具体的には 800 nm の波長のレーザーの光子が持つエネルギーは約 1.6 eV に相当するが、物質の第一イオン化エネルギーは最低でも 5 eV 程度必要となる。すなわち、複数個の光子の吸収によって初めてイオン化が可能となる。レーザーの強度がもう少し高くなり  $10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ – $10^{16} \text{ W}/\text{cm}^2$  を超えた辺りでは、レーザー電場強度は原子内部の電場強度と匹敵するようになる。これくらいの強度では、古典的な描像で説明すると、レーザー電場によって原子内部での電子に対する実効的なポテンシャルが抑制されることで、トンネル効果が効きイオン化が起こるようになる（トンネル電離）<sup>16)</sup>。これを量子力学的な描像でとらえれば、レーザーの強度が増加することによって、レーザーの 1 サイクル中で多光子が一気に吸収されるという過程と説明できる。トンネル電離の起こりやすさを記述するパラメータとして、ケルディッシュの  $\gamma$  パラメータという指標が存在する。ポンドロモートイポテンシャル ( $U_p$ ) と、電離エネルギー ( $E_i$ ) を用いて  $\gamma_K = \sqrt{\frac{E_i}{2U_p}}$  と記述され<sup>16)</sup>、 $\gamma_K \ll 1$  の領域でトンネル電離が支配的となる。さらにレーザーの強度が上がることによって、レーザー電場によってゆがめられたクーロンポテンシャルは電子の束縛単位よりもさらに下方に位置するようになって劇的に電離過程が進む。このとき、電離エネルギー ( $E_i$ ) を持つ順位を電離するために必要なレーザーの強度との関係は、次のように記述でき、

$$I_{th} [\text{W}/\text{cm}^2] = \frac{4 \times 10^9 E_i [\text{eV}]}{Z^2} \quad (1)$$

Barrier Suppression Ionization と呼ばれている<sup>17)</sup>。ここで、 $Z$  はイオンの価数である。ただし、この式はレーザーの電場の影響だけを考慮して導出されていることを忘れてはいけない。レーザー電場だけではなく磁場の効果も無視できなくなるような、さらに高強度のレーザーに対しては適用限界があることに注意しておく必要がある。

上に述べたような電離過程は希薄なプラズマとレー

ザーとの相互作用の際に支配的となる。本稿に関係するレーザーと高密度プラズマとの相互作用の際には、さらにレーザーによってエネルギーをもらい受けた大量の電子がプラズマ内部のイオンと衝突することによって電子衝突電離の寄与が高くなる。さらには、プラズマ中で発生する X 線による電離過程の影響も無視できなくなる。これらの相乗効果によって電離はさらに進む<sup>18)</sup>。

### 3.1.2 レーザーからプラズマへのエネルギー輸送

レーザーによる電離過程によって原子の外に履き出された電子はレーザーの電磁場を感じて振動する (quiver 運動)。この運動エネルギーを考える上で無次元パラメータ  $a_0$  を導入する。 $a_0$  はレーザーの規格化強度と呼ばれる値で、レーザー電界によって電子がレーザー進行方向に垂直な方向にふられる際の平均運動エネルギーと電子の静止エネルギーの比を表し、

$$a_0 = \frac{eE_0}{m_e c \omega} = \sqrt{\frac{I_{\text{laser}}}{I_0}}, \quad (2)$$

$$I_0 = 1.38 \times 10^{18} \times (\lambda [\mu\text{m}])^{-2} [\text{W}/\text{cm}^2]$$

のようにかける。ただし、 $e$ 、 $m_e$  はそれぞれ電子の電荷と質量、 $E_0$ 、 $I_0$ 、 $\omega$ 、 $\lambda$  はそれぞれレーザー電界強度、レーザーのピーク強度、角周波数、波長を表す。

$a_0 < 1$  の領域では、電子はレーザー電界にふられて quiver 運動するが、その速度は非相対論的である。振動することで周りの中性粒子およびプラズマ中のイオンと衝突し、振動エネルギーが熱化されて (逆制動放射過程)、レーザーエネルギーがプラズマ内部へ拡散していく。ところが、レーザーはどんな密度のプラズマ中へも侵入できるわけではなく、臨界密度  $n_{\text{cr}} = \frac{m_e \omega_0^2}{4\pi e^2} = 1.1 \times 10^{21} \times (\lambda [\mu\text{m}])^{-2} [\text{cm}^{-3}]$  と呼ばれる密度までしか侵入できない。これは、レーザーがプラズマ中を進む際に感じる屈折率が  $N = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{\text{cr}}}}$  のように記述でき、 $n_{\text{cr}} < n_e$  で屈折率が虚数となって、レーザーはもはや伝搬できなくなるからである。臨界密度まで達したレーザーは共鳴吸収という機構によってエネルギーを輸送する。レーザーがプラズマ中に入射した場合、レーザー光は臨界密度に達する直前でプラズマの密度勾配による屈折の影響で折れ曲がって反射される。その際に、十分スケール長が短いような密度分布を持つプラズマと P 偏光のレーザー光が相互作用する場合は (特に固体ターゲットとイオン加速を考える場合の典型的な状況)、レーザーの光電界が臨界密度よりも高い領域に少しだけしみ出して、共鳴的に電

子プラズマ波を励起し、エネルギーを輸送する過程も効く。

$a_0 \sim 1$  ( $I \sim 10^{18} \text{ W}/\text{cm}^2$ ) となると、電子の運動を考える際に相対論的効果が効いてくるようになり、 $a_0 \geq 1$  では電子はレーザーの 1 サイクルの間に一気に相対論的速度まで加速を受ける。このような電子の運動方程式は、

$$mc\gamma \frac{dv}{dt} = e \left( E_0 + \frac{v}{c} \times B \right), \quad \gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}} \quad (3)$$

と記述できる。運動はローレンツ力により支配され、レーザー軸方向成分の運動量が非常に大きくなる。すなわち、上式の第二項で記述される運動が無視できなくなるため、電子はレーザー進行方向に垂直な方向に振られつつもレーザー進行方向に集団的に加速される。このようなプラズマ (相対論的プラズマ) では衝突過程が無視できるようになり<sup>19)</sup>、エネルギー輸送過程も、衝突による緩和過程からではなく、電子群がレーザーから直接もらい受ける形に変化する。このときに電子が得る運動エネルギーは、quiver 運動の時間平均エネルギー  $U_p$ 、

$$U_p = m_e c^2 \left( \sqrt{1 + a_0^2} - 1 \right) \quad (4)$$

すなわち、ポンドロモーティブポテンシャルとほぼ等しくなる。たとえば、 $I = 10^{21} \text{ W}/\text{cm}^2$  ( $a_0 \sim 20$ ) の集光強度のレーザーからエネルギー輸送を受けた電子群の温度を計算すると約 10 MeV に相当することがわかる。電子群がレーザーに直接押されて加速する一方で、イオンはその重さゆえに電子よりもゆっくりと応答する。電子群がレーザー進行方向に加速されて周りにいなくなるため、残されたイオンとの間に準静的な電荷分離電場が形成され、それに引っ張られる形でイオンが加速を受けることになる。すなわち、エネルギーが電子からイオンへと伝搬する。また、電子流ができることで、プラズマ中に磁場が形成され、磁場の効果でイオンが加速される場合もある<sup>20)</sup>。

### 3.2 イオン加速機構

固体薄膜をターゲットとした場合のレーザー駆動型のイオン加速機構は単一ではなく、ターゲットの実効的な厚みと、パルスの時間波形 (プリパルス、パルス幅、ピーク強度等) に依存していくつかのメカニズムが提唱されている (Figure 3)。図の左側から右側にいくほど、これらの加速メカニズムを実験室で実現させる難易度が高くなっている。理由としては、要求され



るレーザーの強度が強く、ターゲットの厚みが薄い必要があるからである。あとで記述するように、これにはレーザーの強度と関連して、イオン加速を効率よく行うためには最適なターゲットの厚みというものが存在するからである。また、薄いターゲットを「固体密度状態を保ったまま」照射するためには、非常にコントラストレベルのよいレーザーを用いる必要があり、これが実現を困難にしている最大の原因である。たとえば、今や比較的簡単に手に入るようになった  $I = 10^{19} \text{ W/cm}^2$  のピーク強度を持つレーザーを考えた場合、取り扱いが比較的簡単なミクロンレベルの厚みのターゲットを用いても電荷分離場による加速は起こるが、一番効率的であると言われている輻射圧加速機構はそう簡単には実現しない。輻射圧加速機構には、超高ピーク強度、超高コントラストレーザーと、超薄膜ターゲットの三拍子がそろっていないと実現しないからである。そのため、輻射圧の兆しが見られたという報告は多々あっても、それが支配的な実験結果は得られていない。以降順を追ってそれぞれの加速機構について紹介する。

### 3.2.1 電荷分離場による加速

2000年のリバモアの実験直後から一番精力的に研究されてきたのは、この電荷分離場による加速メカニズムといえる。理由はすでに述べた通り、使用するレーザーの強度がそれほど高くなくても、扱うターゲットが取り扱いやすい厚み（ミクロンレベル）であっても、比較的簡単にこの加速メカニズムを引き

起こせるからである。そのため制御のノウハウが他の加速メカニズムに比べて比較的よく理解されており、レーザー駆動型のイオンの応用を考えた場合に一番現実的な加速機構ともいえる。

高強度短パルスレーザーを薄膜ターゲットに照射することでターゲットの前面および裏面から高エネルギーのイオンが加速されることが知られている。どちらの面においても、基本的に加速メカニズムは同じである。高強度のレーザーによって電子が効率よく加速されターゲットからはぎとられることで、ターゲット自身がプラスにチャージアップし、電荷分離電場がターゲットの表面に形成され、その電場を感じたイオンが加速を受けるといものである。今まで行われた数多くの実験結果が示すように、ターゲットの前面から発生するイオンよりも裏面から発生するイオンの方が、より効率よく高エネルギーまで加速され、小さな発散角を持って出てくる<sup>21)</sup>。したがって、ここでは応用を考えた際により扱いやすく素性のよい、ターゲットの裏面から加速されたイオンを考える。すでに記述した通り、超高強度レーザーがターゲットに照射されることで、高エネルギーの電子群が発生する。これらの電子群の持つ温度は  $\sim 10 \text{ MeV}$  にも達し、したがって、ターゲットの厚みよりもはるかに大きな平均自由行程を持つため、ターゲット裏面を突き抜けて真空中へと飛んでいく（エスケープ電子と呼ぶ）。しかしながら、同時にターゲットはプラスにチャージアップし、そのポテンシャルに打ち勝つことができる高エネ

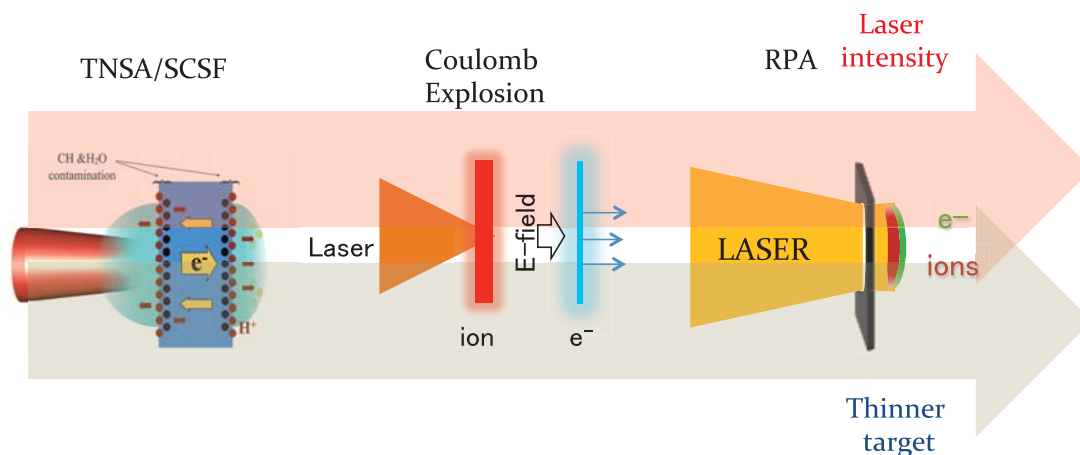


Figure 3. Ion acceleration mechanisms for the interaction between the short-pulse ultra-high-intensity laser and the thin-foil target. From the left side, acceleration by the strong charge separation field (TNSA/SCSF), by Coulomb explosion, and by radiation pressure of the laser.

ルギーの電子のみがターゲットを離れ、そうでないものはターゲット周辺に舞い戻ってくる。このターゲット周りの thermal な電子群と、プラスにチャージアップしたターゲットとの間には電荷分離電場が形成される。特段の工夫をしない限り、レーザーイオン加速の実験で用いられる真空レベル ( $\leq 10^{-4}$  Pa) においては、ターゲットの表面には水や hidrocarbon の不純物が少なくとも 10 nm 程度付着している。これらの不純物内部の水素、炭素、酸素等がレーザー電場、およびターゲット裏面の電荷分離電場によってイオン化され、その中でも電荷質量比 (Q/M) の大きな陽子が効率よく加速を受けることになる。

この描像は、プラズマの真空中への膨張過程を拡張することでよく説明できることが知られている。ターゲットの裏面におけるポテンシャルの満たすポアソン方程式は、

$$\frac{d^2\phi}{dx^2} = 4\pi e(n_e - Z_i n_i) \quad (5)$$

と表せる。 $\phi$ ,  $n_e$ ,  $Z_i$ ,  $n_i$  はそれぞれポテンシャル、電子密度、イオンの価数、イオン密度を表す。このポアソン方程式を解く過程で、どのような仮定をおくかで様々なモデルが提唱されてきた。パルス幅がピコ秒程度のレーザーを用いてイオン加速を行う際は、レーザー照射時間内にターゲットの膨張が無視できないと考えられるので、プラズマの膨張を取り入れた形でポアソン方程式を解く。これが Target Normal Sheath Acceleration (TNSA) と呼ばれる加速メカニズムに相当し<sup>22)</sup>、2000 年のリバモアでの実験に代表されるピコ秒レーザーを用いた実験結果を説明するのによく引用されてきた。一方で、フェムト秒レーザーを用いてイオン加速を行う場合には、レーザーパルス照射時間内においては、ターゲット裏面のプラズマの膨張は無視できると考えられるのでポアソン方程式は準静的に解けばよい<sup>23)</sup>。これは Strong Charge Separation Field (SCSF) メカニズムと呼ばれる。本稿ではフェムト秒レーザーに深く関連する SCSF を中心に記述する。ただし、TNSA と SCSF の二つの描像は全く別個のものではなく、SCSF から徐々に TNSA に移行しその明確な境界は存在しない。これらの 1 次元解析解は、実験結果の物理的描像を明確にとらえることができ、かつスケールリング則等を簡便に導けるため、実験計画を立てる上で非常に重要な役割を果たす。一方でこれらを扱う上で注意すべき点がある。それは解析解を求める上で仮定がいくつもおかれているという点である。たとえば加速されるイオンの最大エネルギーを例にとってみると、空間的あるいは時間的に制限をおかねば、

加速されるイオンのエネルギーがターゲット無限遠において無限大になってしまう。実際はそのようなことはありえないため、各々のモデルにおいては何らかの仮定（たとえば加速時間や、加速距離）をおくことで最大エネルギーに制限をつけている。実験との比較の際には、これらの仮定がどこまで現実的なものかを考える必要がある。

下記に Passoni らによる SCSF モデルの解析解を紹介する<sup>24)</sup>。

超高強度短パルスレーザーがターゲットに照射されると、レーザーによって電子が相対論的な速度まで加速を受ける。ただし、フェムト秒レーザーの場合はレーザーが照射されている間には、ターゲット裏面に電子のみが分布しターゲットを形成するイオンは動かないとみなす。ここまでは上に述べた通りである。彼らのオリジナリティーは、ターゲット裏面の電子分布には、ターゲットのポテンシャルにとらえられた電子のみが寄与し、ターゲットのポテンシャルを乗り越えられたものは無限遠に逃げてしまつてイオン加速には加担しないと考える。こうすることで他の 1 次元解析解の問題となっていた、「加速されるイオンの最大エネルギーを求める際の時間的、あるいは空間的な制限の仮定」をおく必要がなくなる。さらに、加速されるイオンはターゲット表面に微量存在する軽イオンに制限され、軽イオンはテスト粒子として扱える。

具体的には Figure 4 に示すように、ターゲットが  $\xi = -\xi_d \sim 0$  まで分布するとする。レーザーは  $\xi = -\xi_d$  ターゲットに照射され、電子が加速を受けてターゲット裏面に到達する。電子のうちエネルギーが  $W$  に満たないものは、ターゲット裏面にとらわれて表面にシースを形成する。しかし、エネルギーが  $W$  を超えるものは無限遠に逃げ去ることになる。このような振る舞いをするシース電子の持つポテンシャル  $\phi$  は相対論的 Maxwell-Juttler 電子分布関数  $F_e(x, p)$  を組み込むことで次のように表わすことができる。ここで、 $K_1(\xi)$  は一次のマクドナルド関数である。

$$F_e(x, p) \approx \frac{\tilde{n}}{2mcK_1(\xi)} \exp\left[-\frac{c|p| - e\phi}{T}\right], \quad (6)$$

$$n_e = \int_{W < 0} F_e(x, p) dp,$$

ポアソン方程式を解く際に上の電子分布を仮定して解くことで、加速されたイオンの最大エネルギーは

$$\epsilon_{i, \max} = Z_i T_e \frac{e^{\phi^*} (\phi^* - 1) + 1}{\phi^* - 1} \propto T_e \propto I^{0.5} \quad (7)$$



と求められる．ここで、 $\phi^* = \frac{\epsilon_{e, \max}}{T_e}$  は規格化ポテンシャル、 $T_e$ 、 $\epsilon_{e, \max}$  はそれぞれ高速電子の温度とターゲット周りにとらわれた電子の最高エネルギーを示す．すなわち、加速されるイオンのエネルギーは電子の温度に比例し、さらにレーザーの集光強度に  $I^{0.5}$  の関係で比例する．高いエネルギーを持つイオンを得るには、できるだけ電子温度を高めればよく、そのためには (7) に示されるようにレーザーの集光強度をできるだけ高くすればよいことがわかる．実際は  $T_e$ 、 $\epsilon_{e, \max}$  は実験ごとに計測によって求められるべき値である．Passoni らはこれらを様々なレーザースystemにおいて得られた実験データとのフィッティングによって現象論的に求め、エネルギー  $E_L$  [J] のレーザーをターゲットに照射した際にできるシース電場にとらわれた電子の最高エネルギー  $\epsilon_{e, \max}$  との関係を

$$\phi^* = \frac{\epsilon_{e, \max}}{T_e} \approx 4.8 + 0.8 \ln E_L \text{ [J]} \quad (8)$$

のように求めた．ただし、この式を導く際にはレーザーのプリパルスレベルがどうだったか、が一切考慮されていないことに注意しないとイケない．上の関係式を導く際に用いられた一連のデータセットは、プリパルスレベルが「ごく普通 (6 桁程度)」のレーザーを用いて得られたデータとなっている．(8) を用いる限り、非常に良いコントラストのレーザーを用いて、サブミクロンレベルの非常に薄いターゲットを照射する場合は、彼らのモデルによるスケールリング則は必ずしも正しくなく適応限界が存在する．

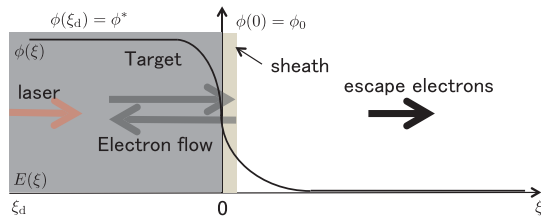


Figure 4. Ion acceleration mechanism by the interaction between the high-intensity short-pulse laser and the thin-foil target. The SCSF model proposed by Passoni. Ion distributes in the region of  $\xi < 0$ . In the region of  $\xi > 0$ , electrons trapped by the potential set at the target exist.

### 3.2.2 ダブルレーヤーターゲットを用いたクーロン爆発による加速

レーザーの強度がさらに上がることで、クーロン爆発機構の実現が可能となる．3.2.1 で紹介した TNSA や SCSF 加速機構で発生するイオンのスペクトルはほぼ白色光となる．これは、レーザーによって加速された thermal な電子が加速場を形成することに大きく起因している．しかしながら、様々な応用の分野で要求されるイオンのスペクトルは、単色であることが多い．たとえば小型のがん治療器への応用もその典型的な例といえる．そこで強度の強いレーザーを用いることでターゲット中の電子を (理想的にはすべて) はぎとり電子を集団的に加速し、高強度の加速電場を立て、空間的に非常に薄いレイヤーに軽イオンをおくことで、準単色スペクトルを持つ軽イオンを加速する方法がある．Esirkepov らは、ダブルレーヤ (厚み  $l$ ) の重イオン (荷数= $Z_H$ , 質量= $m_H$ ) のサブストレートと十分薄い (厚み  $\Delta x$ ) 陽子 (荷数= $Z_L$ , 質量= $m_L$ ) のレイヤーからなる 薄膜ターゲットを用い、クーロン爆発加速機構によって準単色の陽子線を発生する方法を提案した<sup>25)</sup> (Figure 5)．重イオンからなるサブストレートから電子が効率的にすべてはぎとられた場合に、ターゲット周辺に形成されるクーロン電場は

$$E_i = 2\pi e Z_H n_H l \quad (9)$$

と記述できる．ターゲットから電子を効率的にはぎとるためには、与えられたレーザーの強度に対して最適な厚みが存在する．ターゲットの規格化された厚みは

$$\sigma = \frac{n_e l}{n_{cr} \lambda} \quad (10)$$

と記述できる．ある強度のレーザーに対して、ターゲットが薄すぎると、ほとんどのエネルギーが吸収されることなく透過してしまい、ターゲットが厚すぎると、ほとんどのエネルギーがターゲットから反射されてしまう．どちらの場合も効率の良い電子へのエネルギー転化がなされず、強い加速電場を形成できない．Esirkepov らによる 2D の multi-parametric Particle In Cell simulation (PIC) の結果から、ある強度 ( $a_0$ ) のレーザーに対する最適な厚みのターゲットは

$$\sigma_{opt} = 0.4a + 3 \approx 0.4a \quad (11)$$

という関係式を満たすことが導出された．たとえば、 $I = 10^{21} \text{ W/cm}^2$  のレーザー強度に対する最適なアルミのターゲットの厚みを考えると、電子密度は  $8 \times$

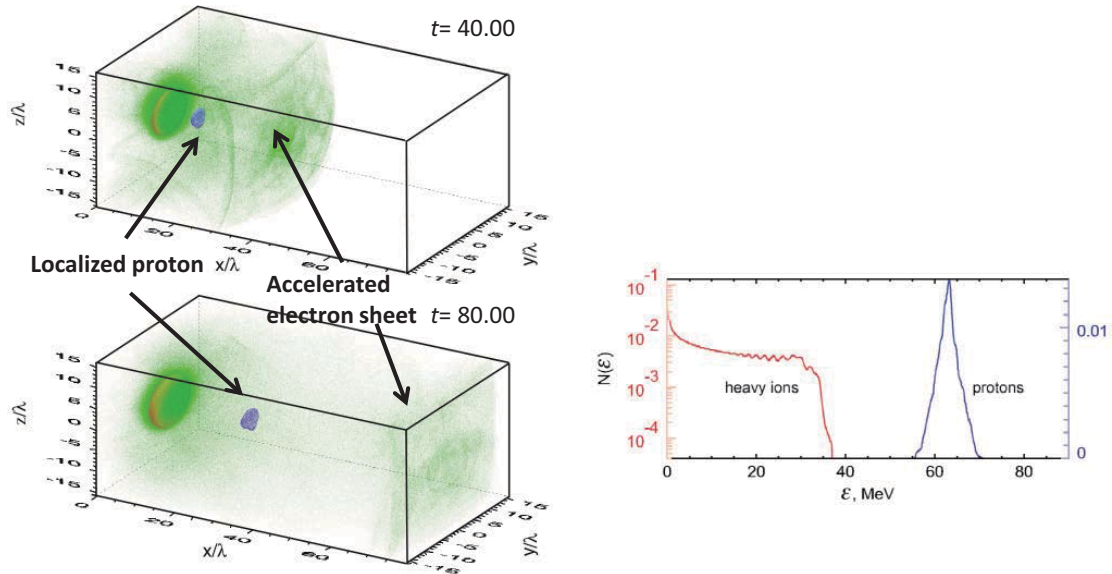


Figure 5. Coulomb acceleration mechanism. Target consists of high  $Z$  ions and protons with thin layer. By the irradiation of the strong laser, electron sheet (shown in green) are accelerated. By the coulomb acceleration scheme, quasi-monochromatic proton beam (shown in purple) is generated. The right hand side shows the energy spectra of protons and high  $Z$  ions. Proton beam shows quasi-monochromatic energy spectrum.

$10^{23} \text{ cm}^{-3}$  に相当 (フルストリップ仮定) するので  $12 \text{ nm}$  と非常に薄い。

ターゲット裏面においてレーザー照射領域の半径程度 ( $r$ ) の距離において、加速場の一次元性が保たれクーロン電場による加速場が続くと考えると、加速される軽イオンの得るエネルギーは  $\epsilon_L = eZ_L E_i r$  となる。 $E_i$  は  $\sigma$  の式を用いることで  $E_i = \pi \frac{m_e c \omega}{e} \sigma$  と表せるため、 $\sigma = \sigma_{\text{opt}}$  の条件を満たすターゲットを用いることで、加速されるイオンの最大エネルギーは

$$\epsilon_a \propto Z_a \sqrt{P}, \quad (12)$$

というスケーリング則が成立する。ここで  $P$  はレーザーのパワー (単位  $\text{W}$ ) である。プロトンに関しては、

$$\epsilon_p \approx 45 [\text{MeV}] \sqrt{P [\text{PW}]} \quad (13)$$

という関係式が成立すると導かれた<sup>26)</sup>。ただし、ここで、次の効果が無視されていることを忘れてはならない：チャージアップしているレーザー照射領域へと、周りから低温度の電子が流れ込んでくることで、クーロン電場が中性化される効果。さらに、加速された軽イオンが単色性を得るためには、軽イオンのレイヤーが十分薄くなくてはならない。加速場の一次元性を仮定すれば、スタート地点が同じで、同じ距離だけ電場

で加速されれば、最終的にイオンが得るエネルギーは同じになるという意味である。すなわち、軽イオンのレイヤーの厚みを  $\Delta x$  とすれば、加速された軽イオンのエネルギースペクトルは、 $\frac{\Delta \epsilon_L}{\epsilon_L} = \frac{\Delta x}{r}$  となり、 $\Delta x$  が十分に小さければ、加速された軽イオンは準単色スペクトルを持つことになる。

### 3.2.3 輻射圧加速 (Radiation Pressure Dominated Acceleration)

レーザーの強度がさらに上がることで、一番効率の良い加速と位置づけられる輻射圧加速によるイオン加速の実現が可能となる<sup>27)</sup>。輻射圧加速は約 3 つの段階に分けて説明できる。まず初期段階において、超高強度レーザーがターゲットに照射されることで、ターゲットのレーザー照射領域中の電子が理想的にはすべてはぎとられ、シート状の形状を保ったままレーザー進行方向に集団的に加速を受ける。イオンは電子と違ってゆっくりと応答するために、電子のシートと残ったターゲット中のイオンのシートの間に非常に強い電荷分離電場ができる。ここまでは 3.2.2 のクーロン爆発加速機構とほぼ同じである。しかし、この電荷分離電場によって一気にイオンのシートが相対論的

な速度まで加速されるようになると輻射圧加速機構が実現する。次の加速段階においては、電子とイオンのシートがレーザーの光と同じ速度で鏡のように動くようになる。この段階においては、電子とイオンのシートと同速度で動く系からみたレーザーの周波数は低くなり、レーザーの光は高効率で反射されるようになる。また、反射された光の持つ周波数はドップラーシフトの影響で、 $\omega_r \approx \frac{\omega_0}{4\gamma^2}$  ( $\gamma \ll 1$ ) のように変化し、反射されるレーザーエネルギーは低下する。結果として電子とイオンのシートにレーザーから大部分のエネルギーが輸送されることになる。イオンも電子と同じ速度にまで加速されるため、その質量比から考えるとほぼほとんどのレーザーからのエネルギーはイオンがもらい受けることになる。

輻射圧加速機構が実現すると、加速されるイオンの最大エネルギーはレーザーの強度と比例関係にあることが予測されており<sup>27,28)</sup>、(7)との比較から電荷分離場による加速よりも効率の良い加速であることがわかる。たとえば、 $a \sim 100$  のレーザーを用いれば GeV クラスのエネルギーを持つ陽子加速が可能となり、さらに準単色化されたスペクトルを持ち空間的にもコリメートされた陽子線が得られると考えられている<sup>27,28)</sup>。

このように、輻射圧加速機構の最適な条件でイオンを加速できれば、非常に魅力的であることがわかる。しかし、先にも述べた通り、実験室で理想的な輻射圧加速機構を実現するのは非常に困難を要する。まず、レーザーの強度がターゲット内部に引き起こせる最大の電荷分離電場と同程度である必要がある。この条件により、ターゲット中の電子がすべて効率よく剥がれ加速される。これを数式化すると、

$$a \sim \pi\sigma \quad (14)$$

となる<sup>29)</sup>。たとえば輻射圧加速を理想的な条件で実現させようとするれば、レーザーの強度  $I = 10^{23}$  W/cm<sup>2</sup> に対して、ターゲットの最適な厚みは 300 nm 程度となる。現状、レーザー単体でコントラストレベルの最もよいレーザーはオンターゲットで 12 桁程度であり、ピーク強度  $I = 10^{23}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザーのプリパルスレベルはすでにターゲットの電離閾値を超えており、ターゲットの前面にプリプラズマができてしまう。もちろんプラズマミラーシステムなどを用いることでコントラストレベルをさらに上げるという方法もあるが<sup>30)</sup>、レーザーのエネルギーの約半分近く失われるというデメリットもあり、結果的にピーク強度の低下をもたらす。さらにプラズマミラーシステムが繰り返し

使用に耐えられないデバイスであることも応用上大きなデメリットである。

さらに、もしイオンのシートが電子のシートに追いつくのに時間がかかると（すなわち、レーザー強度が低いと）様々なプラズマの不安定性が成長してしまうために、輻射圧加速の理想的な条件が崩れてしまう。また、レーザーのパルス幅としても「ちょうどよい」長さにする必要がある。長すぎれば不安定性を引き起こす条件となり、短すぎると加速が最終段に達する前に輻射圧がストップしてしまうことになる。

#### 4 イオン加速実験の現状（陽子線）

ここでは、レーザー駆動陽子線の実験結果について述べる。先に述べたように応用を考えた際には克服すべき点がまだまだ存在する。そのためレーザー駆動イオン線に関して応用に資することができるように、単色化の試み、広い発散角を補正する試み、高エネルギー化の試み等々が世界各国でなされてきている<sup>31)</sup>。ここではその中でも一番深刻な問題点である高エネルギー化の試みに関して実験結果を紹介する。

Figure 1 に示されるように達成されたレーザー駆動陽子線のエネルギーはレーザー技術の発展によって着実に増加していることがわかる。しかしながら、図中に青く示されたデータ点が示す「実用的な大きさで繰り返し効くレーザー」のデータに着目すると、その最大エネルギーは 100 MeV の壁を越えられていない。レーザーのエネルギーを上げて力任せにイオンを加速するのでは応用に資することはできないため、実用的な大きさで繰り返し効くレーザーで高エネルギー化を図る必要がある。下記に、オンターゲット上のエネルギーができるだけ少ない（10 J 程度）レーザーを用いて得られた結果について原子力機構関西研の結果も含め紹介する。

##### 4.1 電荷分離電場による加速機構

電荷分離電場による加速機構は非常に多くの研究所で研究がなされてきている<sup>31)</sup>。実験的な一例として原子力機構関西研におけるイオン加速の結果を紹介する。我々は原子力機構関西研の J-KAREN レーザー<sup>32)</sup>を 200 TW モードで使用し、陽子線加速実験を行った。J-KAREN レーザーは核融合用の大型かつシングルショットベースのレーザーとは違い、繰り返し照射が可能な実用的な大きさのレーザーである。応用を考えた場合は、比較的小型のレーザーで、繰り返し安定にイオンを発生する必要がある。したがって、前述の



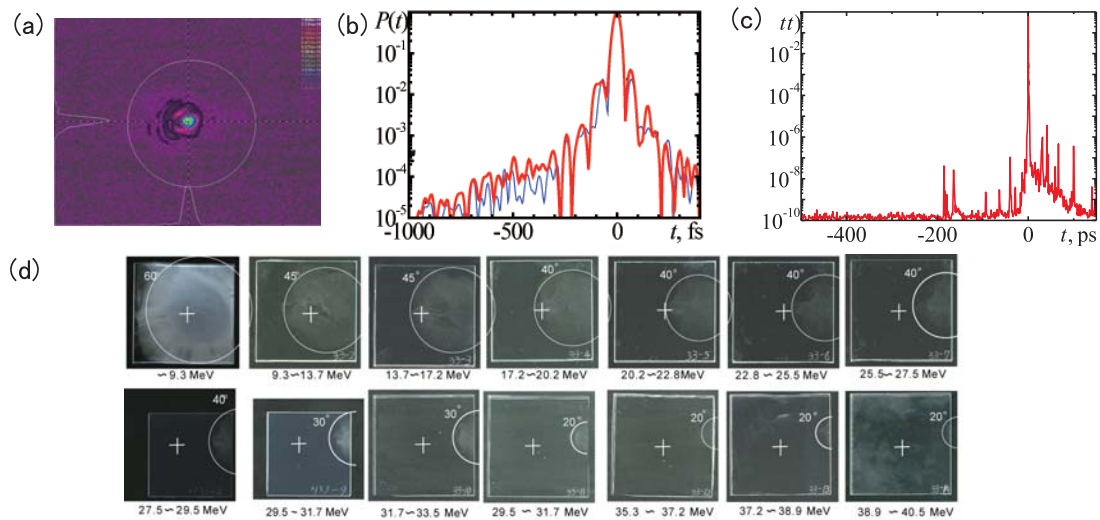


Figure 6. 40 MeV Proton acceleration results at KPSI JAEA<sup>33)</sup>. (a) Focus spot of the laser. The size of the focal spot is two times the diffraction limited size. This is achieved without deformable mirror system. (b) Pulse duration of the laser is 36 fs (effective FWHM). Red line shows the observed data and the blue shows the calculated one showing Fourier transform limited shape. (c) Contrast of the laser pulse shows more than 10. (d) Proton beam pattern detected by the CR-39 stack detector. Proton acceleration up to 40 MeV is confirmed.

ように、如何に限られたレーザーエネルギーを用いて、如何に高いエネルギーまでイオンを加速することができるかが勝負となる。そのためには電子温度をできるだけ上げる必要がある。そこで、限られたエネルギーの J-KAREN レーザーをターゲット上にできるだけ強集光できるように条件を整えた。J-KAREN レーザーシステムにおいては、直径 15 cm のビーム径でレーザーの引き回しを行っている。このように比較的大型のレーザーを引き回すには大型のオプティクスが必要のため、扱い方一つ間違えれば、レーザーの波面に多大なる波面歪みを乗せることになってしまう。そこで、レーザービームの波面に歪みができるだけ乗らないように光路上のオプティクス一つ一つを吟味してインストールした。その結果デフォーダブルミラーの助けを借りることなく回折限界の約 2 倍にまでレーザー光を絞り込むことができた (Figure 6(a))。さらに、時間波形の制御を行いほぼフーリエ限界に近い状態まで近づけた (Figure 6(b))。結果として、オンターゲットエネルギー 8 J、パルス幅 36 fs、コントラストレベル 10 桁 (Figure 6(c)) でターゲット上に最大  $2 \times 10^{21}$  W/cm<sup>2</sup> を達成した<sup>33)</sup>。

このようなパラメータを持つ J-KAREN レーザーパルスをステンレス製 2.5  $\mu$ m 厚のテープターゲットに

45 度の角度から集光した。テープターゲットとは、テープ状のターゲットをリールに巻いておき、リールを駆動することで次々にレーザー照射点に新しいターゲット面を供給することができるターゲットのことである。レーザー進行方向に計測された電子線のスペクトルは 10 MeV の温度分布を示しており、 $10^{21}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザー強度から計算できるポンデロモティブ温度とほぼ同等であることより、実際にこのような強電場強度が達成されていることの裏づけとなる。ターゲット裏面垂直方向に設置したイオン検出用のスタック検出器 (1 mm 厚の CR-39 を複数枚スタックして遮光用のアルミフィルターでカバーした仕様。CR-39 は長瀬ランダウア製) には陽子線起因のピットが計測された (Figure 6(d))。陽子のストッピングレンジを計算することで最高エネルギーが 40 MeV に達していること、さらイオンへ変換されたエネルギーは 7 mJ ( $15 \text{ MeV} > E_p > 40 \text{ MeV}$  のエネルギー領域) に達していることがわかった<sup>33)</sup>。40 MeV のエネルギー範囲の陽子の体内での飛程は 10 mm 程度であり、実際に人体のがんに対する治療に適用するまでに行うことが必要不可欠な動物実験には十分使えるエネルギー領域に達している。さらにたとえば 1 cc のがんへ 1 Gy の照射を行うことを考えれば、1 mJ/cc の陽子線が必要とい

う計算になり、実験で得られた陽子線はフラックスとしても十分な量を満たしている。以上の結果は先に紹介した Passoni らの SCSF モデルによって良く説明できる。

もう少し具体的なイメージを得るために少し簡単な計算をしてみる。まず、レーザーの集光強度  $10^{21}$  W/cm<sup>2</sup> に相当する  $a_0$  値は 22 と計算できる。このときの電子温度は、 $kT_e = 10$  MeV。このような強度のレーザーに対する臨界密度は、 $n_{cr}^* = \gamma n_{cr} = 3.5 \times 10^{22}$  cm<sup>-3</sup> となり、このときプラズマのデバイ長は  $\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T_e}{n_e e^2}} \sim 0.13$   $\mu$ m と計算できる。電荷分離電場がほぼデバイ長程度のスケールに生成されると考えると、電荷分離電場の勾配が計算でき、 $E = \frac{kT_e}{\lambda_D} \sim 80$  TV/m と非常に高い電場勾配が非常にコンパクトな領域に打ち立てられていることがわかる。さらに、このような高い電場勾配が一体どれくらいの時間スケールがかかって生成されるかを考える。レーザーによって加速を受けた電子がほぼすべてターゲット裏面の電場形成に加担したと仮定する。これらの電子の個数は Figure 7 に示されたような円柱状の領域の電子と思えばよい。すなわち、面積がレーザーの集光スポットで、長さはレーザーのある時間  $dt$  中の飛行距離で表せるような領域。そのような電子の電荷密度は  $\sigma = en_{cr}^* dV = en_{cr}^* c dt$  と表せる。これらの電子の形成する電場は  $E = \frac{\sigma}{\epsilon_0} \sim 200(dt \text{ [fs]})[\text{TV/m}]$  となり、これが 80 TV/m と等しいとおくことで、電場の打ち立てられる時間スケールが  $dt \ll 1$  fs と見積もることができる。驚くべきことにレーザーの 1 サイクルを待たずしてこのような超高勾配の電荷分離電場が形成されることを示唆している。このような超高勾配の電場に初速度 0 の陽子がさらされたとし、計測された 40 MeV のエネルギーを得るまでにどれくらい時間がかかるかを単純に計算すると、わずか 5 fs 程度というパルス幅に比べて十分短い時間で 40 MeV 程度までエネルギーを得ることが可能であることがわかる。

このような結果が、繰り返し供給が簡単で、扱いの簡単な  $\mu$ m 厚みのテープターゲットと、レーザー単体で高コントラストのレーザー（プラズマミラーフリー）との組み合わせで達成されたということは、応用を考えた際に非常に重要であると考えている。Passoni らのスケーリング則に則れば、レーザーの集光強度  $\sim 10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> において 100 MeV 級の陽子が得られると予測できる。現在原子力機構関西研においては、さらなるイオンの高エネルギー化を目指して、レーザー

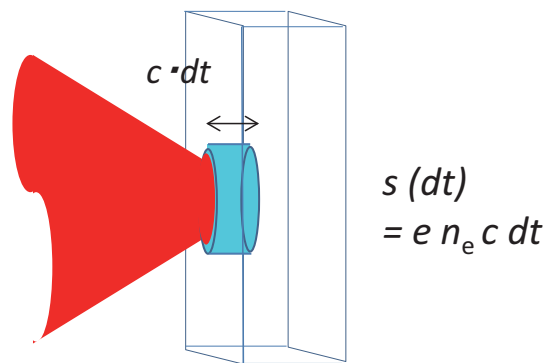


Figure 7. Simple model used in the SCSF model. We assume that all the electrons accelerated by the laser contribute to making the charge separation field at the rear.

のアップグレード作業が進行中である。

#### 4.2 輻射圧加速機構

レーザー駆動型イオン線の研究者の中でも賛否両論あるとはいえ、達成された実験結果を輻射圧加速で説明している例はいくつか存在する<sup>34,35</sup>。その中の一つとして、最近韓国の Gwangju Institute of Science and Technology (GIST) 研究所において 100 fs 以下のパルス幅を持つレーザーを用いて現状最高のエネルギーである 45 MeV の加速が報告された例がある<sup>35</sup>。実験は GIST にある PULSAR-1 レーザーシステムを用いて行われた。パルス幅 30 fs, 27 J のエネルギーの直線偏向光をダブルプラズマミラーシステムを介してターゲットに照射している。ダブルプラズマミラー後のオンターゲット上のレーザーのコントラストは、メインパルスから 6 ps 前で  $3 \times 10^{11}$ 、エネルギーは 8.3 J であった。ターゲットとして用いているのは、10, 20, 30, 50, 70, 100 nm の超薄膜ポリマータargetである。レーザーをターゲット上にほぼ垂直方向から集光し、オンターゲット上のレーザーの強度を可変 ( $5 \times 10^{19}$  W/cm<sup>2</sup>– $3 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>;  $4.8 < a_0 < 12.4$ ) にして実験している。イオンの検出に用いられたのは、トムソンパラボラであった。

ターゲットの厚みおよびレーザーの集光強度と、イオンの最大エネルギーの関係が取得された。その結果 10 nm ターゲットを用いた際に  $3 \times 10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザーの集光強度で、陽子線の最高エネルギー 45 MeV が計測された。これは比較的小型のレーザーシステムを用いて得られたデータとしては世界最高である。

また、レーザーの強度に対する陽子線の最大エネルギーのスケーリング則を調査し、30 nm 以下の厚みを持つターゲットにおいては、スケーリング則が  $\propto I^{0.5}$  から  $\propto I$  に変化することを見出し (Figure 8)、これにより輻射圧加速の兆しが見えたと結論づけている。また、実験を再現する PIC から予測できることとして、 $1.5 \times 10^{21}$  W/cm<sup>2</sup> の強度のレーザーを用いることで、190 MeV の陽子線が発生すると報告している。ただし、レーザーからイオンへのエネルギー変換効率に関する記述はなく、果たして应用到に資するだけの十分な量の陽子線が加速できているかどうかという点に関しては興味深いところである。

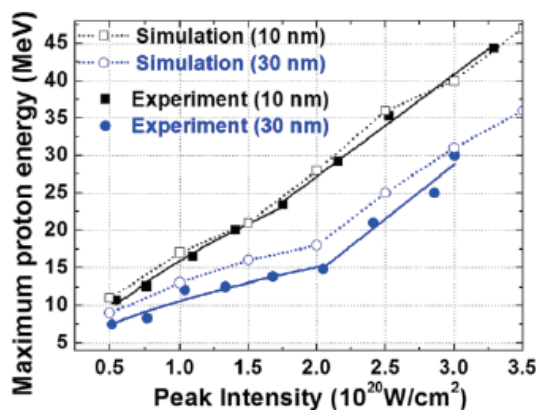


Figure 8. Proton acceleration results at GIST. High intensity short pulse laser is irradiated on the ultra-thin polymer target. The thickness of the target is 10 and 30 nm. The accelerated proton energy dependency on the intensity of the laser is shown.

現在、GISTにおいてもさらなる高エネルギー化を目指してレーザーのアップグレード計画が進行中である。

## 5 まとめ

本研究では、レーザー駆動型イオン加速の研究について紹介した。その中でも小型で繰り返しの効くレーザーによる、応用を見据えたレーザー駆動型の陽子線加速に焦点を当てて、それらの加速機構と実験例を紹介した。世界各国においても非常に活発に研究が繰り返されられており、小型の繰り返しが効くレーザーでも100 MeV 級の陽子がここ数年の間に達成されると思

われる。われわれ原子力機構関西研においては、より応用に近いスキームでの高エネルギーのレーザー駆動陽子およびイオンの発生を目指している。特に、現在進行中のレーザーシステムのアップグレード作業においては、100 MeV 級の陽子線の発生を目指して、レーザー本体の高エネルギー化、高コントラスト化、および高集光が可能なビームライン導光路およびターゲットチャンバーのインストールを行っている最中である。シングルショットで破壊されてしまうプラズマミラーシステムなどを組み込むこともなく、イオンの高エネルギー化のために特別なデザインが必要で繰り返し供給が困難なターゲットを用いることもなく、安定に高エネルギーの陽子線を十分な量、安定に発生できるように、レーザー、およびターゲットの制御を行っていきたいと考えている<sup>36)</sup>。

## 〈謝 辞〉

本論文を執筆するにあたって、共同研究者の方々ははじめとして多くの皆様のご助力をいただきました。特に実験に際し、原子力機構関西研におけるレーザー駆動粒子線研究グループ、レーザー電子加速グループ、J-KAREN レーザー運転チームの皆様方に大変お世話になりました。この場を借りて感謝申し上げます。

## 〈参 考 文 献〉

- 1) T. H. Maiman, Nature, 187 (1960) 493.
- 2) U. Keller, Appl. Phys., 347 (1994) B58.
- 3) D. Strickland, G. Mourou, Opt. Commun., 56 (1985) 219.
- 4) ELI-Extreme Light Infrastructure, <http://www.extreme-light-infrastructure.eu/>
- 5) S. P. Hatchett, C. G. Brown, T. E. Cowan, E. A. Henry, J. S. Johnson, M. H. Key, J. A. Koch, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, R. W. Lee, A. J. Mackinnon, D. M. Pennington, M. D. Perry, T. W. Phillips, M. Roth, T. C. Sangster, M. S. Singh, R. A. Snavely, M. A. Stoyer, S. C. Wilks, K. Yasuike, Phys. Plasmas 7 (2000) 2076; S. C. Wilks, A. B. Langdon, T. E. Cowan, M. Roth, M. Singh, S. Hatchett, M. H. Key, D. Pennington, A. MacKinnon, R. A. Snavely, Phys. Plasmas, 8 (2001) 542.
- 6) R. Wideroe, Aech. F. Elektrot., 21 (1928) 387.
- 7) L. Romagnani, J. Fuchs, M. Borghesi, P. Antici, P. Audebert, F. Ceccherini, T. Cowan, T. Grismayer, S.



- Kar, A. Macchi, P. Mora, G. Pretzler, A. Schiavi, T. Toncian, O. Willi, *Phys. Rev. Lett.*, 95 (2005) 195001.
- 8) T. E. Cowan, J. Fuchs, H. Ruhl, A. Kemp, P. Audebert, M. Roth, R. Stephens, I. Barton, A. Blazevic, E. Brambrink, J. Cobble, J. Fernández, J.-C. Gauthier, M. Geissel, M. Hegelich, J. Kaae, S. Karsch, G. P. Le Sage, S. Letzring, M. Manclossi, S. Meyroneinc, A. Newkirk, H. Pépin, N. Renard-LeGalloudec, *Phys. Rev. Lett.*, 92 (2004) 204801.
  - 9) S. V. Bulanov, V. S. Khoroshkov, *Plasma Phys. Reports*, 28 (2002) 453; S. V. Bulanov, H. Daido, T. Zh. Esirkepov, V. S. Khoroshkov, J. Koga, K. Nishihara, F. Pegoraro, T. Tajima, M. Yamagiwa, *AIP Conf. Proc.*, 740 (2004) 414; E. Fourkal, B. Shahine, M. Ding, J. S. Li, T. Tajima, C. M. Ma, *Medical Phys.*, 29 (2002) 2788; V. Malka, S. Fritzler, E. Lefebvre, E. d'Humières, R. Ferrand, G. Grillon, C. Albaret, S. Meyroneinc, J. P. Chambaret, A. Antonetti, D. Hulin, *Medical Phys.*, 31 (2004) 1587.
  - 10) K. Krushelnick, E. L. Clark, R. Allott, F. N. Beg, C. N. Danson, A. Machacek, V. Malka, Z. Najmudin, D. Neely, P. A. Norreys, M. R. Salvati, M. I. K. Santala, M. Tatarakis, I. Watts, M. Zepf, A. E. Dangor, *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 28 (2000) 1184.
  - 11) M. Roth, T. E. Cowan, M. H. Key, S. P. Hatchett, C. Brown, W. Fountain, J. Johnson, D. M. Pennington, R. A. Snavely, S. C. Wilks, K. Yasuike, H. Ruhl, F. Pegoraro, S. V. Bulanov, E. M. Campbell, M. D. Perry, H. Powell, *Phys. Rev. Lett.*, 86 (2001) 436.
  - 12) M. Borghesi, J. Fuchs, S. V. Bulanov, A. J. Mackinnon, P. K. Patel, M. Roth, *Fusion Sci. Technol.*, 49 (2006) 412.
  - 13) D. Jung, PhD thesis.
  - 14) R. G. Meyerand, Jr., A. G. Haught, *Phys. Rev. Lett.*, 11 (1963) 401.
  - 15) P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, N. K. Rahman, *Phys. Rev. Lett.*, 42 (1979) 1127.
  - 16) L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP*, 20 (1965) 1307.
  - 17) S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, S. L. Chint, *J. Opt. Soc. Am. B*, 8 (1991) 858.
  - 18) M. A. Purvis, V. N. Shlyaptsev, R. Hollinger, C. Bargsten, A. Pukhov, A. Prieto, Y. Wang, B. M. Luther, L. Yin, S. Wang, J. J. Rocca, *Nature Photonics*, 7 (2013) 796.
  - 19) F. Pegoraro, T. Zh. Esirkepov, S. V. Bulanov, *Phys. Rev. A*, 347 (2005) 133.
  - 20) Y. Fukuda, A. Ya. Faenov, M. Tampo, T. A. Pikuz, T. Nakamura, M. Kando, Y. Hayashi, A. Yogo, H. Sakaki, T. Kameshima, A. S. Pirozhkov, K. Ogura, M. Mori, T. Zh. Esirkepov, J. Koga, A. S. Boldarev, V. A. Gasilov, A. I. Magunov, T. Yamauchi, R. Kodama, P. R. Bolton, Y. Kato, T. Tajima, H. Daido, S. V. Bulanov, *Phys. Rev. Lett.*, 103 (2009) 165002.
  - 21) J. Fuchs, Y. Sentoku, E. d'Humières, T. E. Cowan, J. Cobble, P. Audebert, A. Kemp, A. Nikroo, P. Antici, E. Brambrink, A. Blazevic, E. M. Campbell, J. C. Fernandez, J.-C. Gauthier, M. Geissel, M. Hegelich, S. Karsch, H. Popescu N. Renard-LeGalloudec, M. Roth, J. Schreiber, R. Stephens, H. Pépin, *Phys. Plasmas*, 14 (2007) 053105.
  - 22) P. Mora, *Phys. Rev. Lett.*, 90 (2003) 185002; P. Mora, *Phys. Rev. E*, 72 (2005) 056401; M. Muralami, M. Basko, *Phys. Plasmas*, 13 (2006) 012105; J. Fuchs, P. Antici, E. d'Humières, E. Lefebvre, M. Borghesi, E. Brambrink, C. A. Cecchetti, M. Kaluza, V. Malka, M. Manclossi, S. Meyroneinc, P. Mora, J. Schreiber, T. Toncian, H. Pépin, P. Audebert, *Nature Physics*, 2 (2006) 48.
  - 23) M. Nishiuchi, A. Fukumi, H. Daido, Z. Li, A. Sagisaka, K. Ogura, S. Orimo, M. Kado, Y. Hayashi, M. Mori, S. V. Bulanov, T. Esirkepov, K. Nemoto, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, A. Noda, Y. Iwashita, T. Shirai, S. Nakamura, *Phys. Lett. A*, 357 (2006) 339; M. Passoni, M. Lontano, *Laser Part. Beams*, 22 (2004) 163; M. Lontano, M. Passoni, *Phys. Plasmas*, 13 (2006) 042102; M. Passoni, L. Bertagna, A. Zani, *New J. Phys.*, 12 (2010) 045012.
  - 24) M. Passoni, M. Lontano, *Phys. Rev. Lett.*, 101 (2008) 115001.
  - 25) T. Zh. Esirkepov, S. V. Bulanov, K. Nishihara, T. Tajima, F. Pegoraro, V. S. Khoroshkov, K. Mima, H. Daido, Y. Kato, Y. Kitagawa, K. Nagai, and S. Sakabe, *Phys. Rev. Lett.*, 89 (2002) 175003.
  - 26) T. Esirkepov, M. Yamagiwa, T. Tajima, *Phys. Rev. Lett.*, 96 (2006) 105001.
  - 27) T. Esirkepov, M. Borghesi, S. V. Bulanov, G. Mourou, T. Tajima, *Phys. Rev. Lett.*, 92 (2004) 175003.
  - 28) S. V. Bulanov, T. Esirkepov, J. Koga, T. Tajima, *Plasma Phys. Rep.*, 30 (2004) 196.
  - 29) A. Macchi, F. Cattani, T. V. Liseykina, F. Cornolti, *Phys. Rev. Lett.*, 94 (2005) 165003; A. P. L. Robinson, M. Zepf, S. Kar, R. G. Evans, C. Bellei, *New J. Phys.*

- 10 (2008) 013021.
- 30) B. Dromey, S. Kar, M. Zepf, P. Foster, *Rev. Sci. Instrum.*, 75 (2004) 645; G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, Ph. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, J.-P. Geindre, T. Wittmann, *Phys. Rev. E*, 69 (2004) 026402.
- 31) H. Daido, M. Nishiuchi, A. Pirozhkov, *Rep. Prog. Phys.*, 75 (2012) 056401.
- 32) H. Kiriya, M. Michiaki, Y. Nakai, T. Shimomura, H. Sasao, M. Tanoue, S. Kanazawa, D. Wakai, F. Sasao, H. Okada, I. Daito, M. Suzuki, S. Kando, K. Kondo, A. Sugiyama, P. R. Bolton, A. Yokoyama, H. Daido, S. Kawanishi, T. Kimura, T. Tajima, *Opt. Lett.*, 35 (2010) 1497.
- 33) K. Ogura, M. Nishiuchi, A. S. Pirozhkov, T. Tanimoto, A. Sagisaka, T. Zh. Esirkepov, M. Kando, T. Shizuma, T. Hayakawa, H. Kiriya, T. Shimomura, S. Kondo, S. Kanazawa, Y. Nakai, H. Sasao, F. Sasao, Y. Fukuda, H. Sakaki, M. Kanasaki, A. Yogo, S. V. Bulanov, P. R. Bolton, K. Kondo, *Opt. Lett.*, 37 (2012) 2868.
- 34) A. Henig, S. Steinke, M. Schnürer, T. Sokollik, R. Hörlein, D. Kiefer, D. Jung, J. Schreiber, B. M. Hegelich, X. Q. Yan, J. Meyer-ter-Vehn, T. Tajima, P. V. Nickles, W. Sandner, Habs, *Phys. Rev. Lett.*, 103 (2009) 245003; S. Kar, K. F. Kakolee, B. Qiao, A. Macchi, M. Cerchez, D. Doria, M. Geissler, P. McKenna, D. Neely, J. Osterholz, R. Prasad, K. Quinn, B. Ramakrishna, G. Sarri, O. Willi, X. Y. Yuan, M. Zepf, and M. Borghesi, *Phys Rev Lett.*, 109 (2012) 185006; H. B. Zhuo, Z. L. Chen, W. Yu, Z. M. Sheng, M. Y. Yu, Z. Jin, R. Kodama, *Phys. Rev. Lett.*, 105 (2010) 065003; B. Qiao, M. Zepf, M. Borghesi, B. Dromey, M. Geissler, A. Karmakar, P. Gibbon, *Phys. Rev. Lett.*, 105 (2010) 155002.
- 35) I. J. Kim, K. H. Pae, C. M. Kim, H. T. Kim, J. H. Sung, S. K. Lee, T. J. Yu, I. W. Choi, C.-L. Lee, K. H. Nam, P. V. Nickles, T. M. Jeong, J. Lee, *Phys. Rev. Lett.*, 111 (2013) 165003.
- 36) T. Zh. Esirkepov, J. K. Koga, A. Sunahara, T. Morita, M. Nishikino, K. Kageyama, H. Nagatomo, K. Nishihara, A. Sagisaka, H. Kotaki, T. Nakamura, Y. Fukuda, H. Okada, A. Pirozhkov, A. Yogo, M. Nishiuchi, H. Kiriya, K. Kondo, M. Kando, S. V. Bulanov, *Nucl. Instrum. Methods. A*, 745 (2014) 150.

# 〈著 者 略 歴〉

西内 満美子：日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 研究副主幹。理学博士。【専門】レーザープラズマ，レーザー粒子線加速。【学歴・職歴】H13 年京都大学大学院理学研究科 物理学・宇宙物理学専攻博士課程修了。H13 年日本原子力研究所 研究員。H22 年より現職。





## アミノ酸全 20 種核酸塩基全 5 種の広域吸収スペクトル完結計画

神戸大学 中川 和道\*

Absorption spectra of biomolecules over wide energy range are very important to study their radiation effects in terms of the optical approximation proposed by Platzman. Using synchrotron radiation we accumulated absorption spectra of amino acids and bases of nuclear acids. Now we will be able to complete the measurement for all 20 amino acids and all 5 bases of nuclear acids within one year. Here we report mainly about basic techniques to obtain precise data.

**Keywords:** biomolecules, absorption spectra, synchrotron radiation

## 1 はじめに

生命体や生体分子に対する放射線の化学作用を調べようとする、その構成要素であるアミノ酸、核酸塩基など生体分子の広域吸収スペクトルから出発するのが通常のアプローチであろう。ところが、アミノ酸の吸収スペクトルの主要部分は真空紫外域（波長 200 nm 以下の領域）にあり、第 1 励起状態への遷移ですら真空紫外域にあるものが多い。このため、アミノ酸の吸収スペクトルがほとんど報告されない時期が続いた。我々神戸大グループはこの状況に一石を投じて鋭意測定をつづけ、アミノ酸全 20 種核酸塩基全 5 種の広域光吸収スペクトル測定の完結が射程に入ってきた。

ここではこれまでの成果を概観し今後の課題を展望したいのだが、計画はまだ完結していない。そこで本稿では、研究の遂行にあたってどのような技術的問題

をどのように突破してきたかを重点に書いてみたい。若い人たちが自分の研究においてこれからいろいろな困難に直面するであろうが、それらを突破する際に何らかの参考になるであろうと思うからである。

放射線は粒子放射線と電磁波放射線とに大別される。電磁波のエネルギーが低い場合には物質への化学作用は「光化学」の学問領域で扱われるが、X 線、ガンマ線など電磁波のエネルギーが十分高い場合には「放射線化学」の領域となることはよく知られている。

光と放射線の間の中間のエネルギー領域の光子は大気で激しく減衰するため「軟 X 線領域」と呼ばれ、光化学と放射線化学との懸け橋である<sup>1)</sup>。軟 X 線のエネルギー範囲は分野によって異なり厳密な定義はできないが、一般的には光子エネルギーが 100 eV から 2 keV 程度を指す。これ以上の光子エネルギーでも空気中で減衰はある程度起き、筆者の実測では、8 keV の「硬」X 線の空気 30 cm に対する透過率は約 70% であったものの、排気しないと実験ができない軟 X 線や真空紫外の実験は大きな困難が伴う。

さて軟 X 線領域が興味をもたれている理由は、生体分子の主な構成原子の K 吸収端がこのエネルギー領域に存在する（炭素約 280 eV、窒素約 405 eV、酸素約 530 eV）ことである。このことは、それぞれの原子の K 吸収端近傍にはそれぞれの原子の 1s 電子状態を始状態とし、終状態をイオン化状態や分子軌道励起状態とする光学遷移に対応する吸収帯が存在することを意味する。カイラルなアミノ酸や、核酸中の糖の分子軌道にはカイラリティーを有する成分があるのだから、吸収端近傍の光学応答には必然的に円偏光応答が現れる。我々は K 吸収端近傍での円二色性をアミノ酸の窒素および酸素について世界で初めて観測することに成功した<sup>1,2)</sup>。この結果はさらに円偏光軟 X 線による化学作用に円偏光依存性が観測されるかどうかという問題すなわち「偏極放射線化学」の検証を我々に問いかけており<sup>3)</sup>、今後の課題として興味深い、その議論は別の機会に譲る。

Toward the completion of measurement of absorption spectra of 20 amino acids and 5 bases of nuclear acids over wide energy range

Kazumichi NAKAGAWA\* (Kobe University),  
〒657-8501 神戸市灘区鶴甲 3-11  
TEL:078-803-7750, FAX: 078-803-7761,  
E-mail: nakagawa@kobe-u.ac.jp

粒子放射線のうち、電子と物質の相互作用は最も馴染み深い。電子線照射による化学作用を調べる際によく用いられるのが高速電子線であるからだ。それだけにとどまらない。高エネルギー光子で物質を励起した結果、光電効果、コンプトン散乱、電子対生成によってひとたび高速電子が生じれば、それ以降の物質との相互作用の主役はもはや光子ではなく高速電子である。この高速電子と物質の相互作用を考える際、有用な手掛かりを与えるのが Platzman による光学近似<sup>4)</sup>である。丑田・河内<sup>5)</sup>の要約によれば、光子エネルギー  $E$  の光子に対するその物質の吸収スペクトル  $\sigma(E)$  から求められる振動子強度分布  $df/dE$  ( $f$ -分布) を用いると、エネルギー  $T$  の荷電粒子によるその物質の励起断面積は

$$\int_0^T \frac{df}{dE} \frac{dE}{E}$$

に比例する。すなわち、光子も荷電粒子も励起の確率は  $f$ -分布に依存するので、物質の情報としては  $f$ -分布だけを調べればそれで十分である。ここで重要なことは、吸収スペクトル  $\sigma(E)$  すなわち  $f$ -分布の測定は荷電粒子のエネルギー  $T$  に相当する光子エネルギーまで行う必要がある。 $T = 2 \text{ MeV}$  の荷電粒子の放射線作用を知るには光子エネルギー  $E = 2 \text{ MeV}$  までの広域吸収スペクトルが必要である。また、振動子強度分布の総和則から、 $df/dE$  の積分は遷移に参与した電子の総数に等しい。この総和則は、簗野らが行ったように、吸収スペクトル  $\sigma(E)$  の絶対値が正しいかどうかを検証するのに重要な手掛かりとなる。以下の 2.2.3 でこの検証を行った実例を報告する。

我々はこの広域吸収スペクトルの測定を、シンクロトロン放射を用いて行うことにした。例えば岡崎の分子科学研究所 UVSOR のビームライン 7B では  $2 < E < 30 \text{ eV}$ 、ビームライン 5B では  $40 < E < 260 \text{ eV}$  の測定が可能であり、シンクロトロン放射はこのうえもなく重要な実験ツールである。

## 2 実験技術の開発

### 2.1 蒸着法の開発

生体アミノ酸および核酸塩基は、高純度のものが安価に入手できる。生体アミノ酸とはタンパク質を構成するアミノ酸であり地球上の生命体はそのすべてがアミノ酸の光学異性体 L-体と D-体のうち L-体のみを用いている（グリシンだけは異性体がない）。このため、販売されているアミノ酸試薬はグリシンを除いて L-体試薬しかないかというところではない。生化学では

D-体も用いられるので、D 体アミノ酸や D-L ペプチドですら入手可能であり、生体分子の物性研究にはこの状況が強みとなっている。

我々は宇宙から飛来した隕石中にアミノ酸が検出されたことに興味を抱いて宇宙における化学進化の研究をしている<sup>6)</sup>ので、アミノ酸の主に固体状態の電子スペクトルを調べてきた。それには質のよい蒸着膜の作製技術（ナノテク技術）の確立が必須であった。

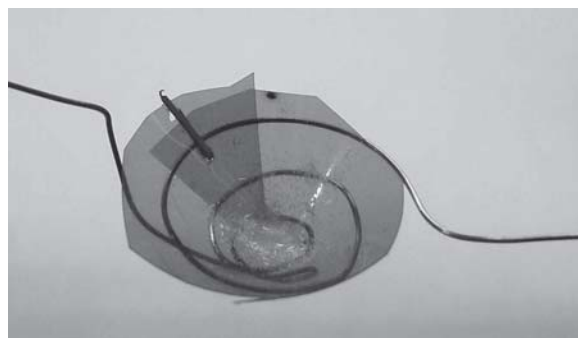


Figure 1. Conically-shaped polyimide (Kapton) sheet and heater in the vacuum sublimation system for preparing amino acid films.

我々がアミノ酸の蒸着膜作製技術の開発を始めた 1994 年頃は、アミノ酸は蒸着の際、激しく熱分解してしまうので蒸着は不可能と信じる研究者がほとんどであった。その頃、ある生化学者と雑談をしていて彼の「培地を  $130^\circ\text{C}$  滅菌してもアミノ酸は壊れないからこそ培養が可能である」との発言を聞いてアイデアがひらめいた。ならば、温度を上げすぎないよう工夫すれば蒸着膜は熱分解や熱重合を回避できるのではないか？ 1996 年頃に、修士課程の持田武志氏が半年以上もかかって、カプトンで最大径 25 mm、高さ 10 mm 程度のコーン型のるつぼを作りこれにニクロム線を巻きつけ、 $130^\circ\text{C}$  くらいで動作させる蒸着システムを開発した（カプトンコーン方式、Figure 1）。このシステムなら、電源を切れば直ちに温度が下がるので過熱分解は起こらない。実際にこの方法で作った蒸着膜を高速液体クロマトグラフィー（HPLC）で調べたところ、熱分解を免れ得ることが分かった。蒸着速度を水晶振動子膜厚計で  $0.1 \text{ nm/s}$  程度に調整し、アミノ酸の膜を一層ごとに積層していき、目的の膜厚の膜を作成することができるようになった。蒸着基板には合成石英（ $\text{SiO}_2$ 、透過率短波長側のカットオフ波長 160 nm）、フッ化マグネシウム（ $\text{MgF}_2$ 、カットオフ波長 115 nm）、フッ化リチウム（ $\text{LiF}$ 、カットオフ波長 105 nm）、コロジオン

(低硝化度ニトロセルロース、カットオフ波長なし)、軟 X 線測定用には SiN メンブレン、SiC メンブレンなどを用いた。Figure 2 にコロジオン薄膜に蒸着したアミノ酸の様子を示す。直径 12 mm の開口部上半分がコロジオン薄膜、下半分がその上にアミノ酸蒸着膜を 1000 nm 蒸着したものである。コロジオン薄膜（膜厚約 30 nm）は、コロジオンの 10% イソアミルアルコール溶液を水面上に展開し、サイズ 80 mesh/inch 程度のメッシュですくい上げて作製した。石英基板上のアラニン蒸着膜を田中真人氏に原子間力顕微鏡観察してもらったところ、この蒸着膜は直径数 nm の微結晶の集合体であった。蒸着速度をうまく設定すると、マクロに見た場合、線二色性をよい精度で排除できることが分かった。このため真空紫外および軟 X 線領域で円二色性を詳細に調べる格好の研究材料となり、2005 年には SPring-8 のアンジュレーターで世界初のアミノ酸軟 X 線円二色性を検出することに成功した<sup>2)</sup>。

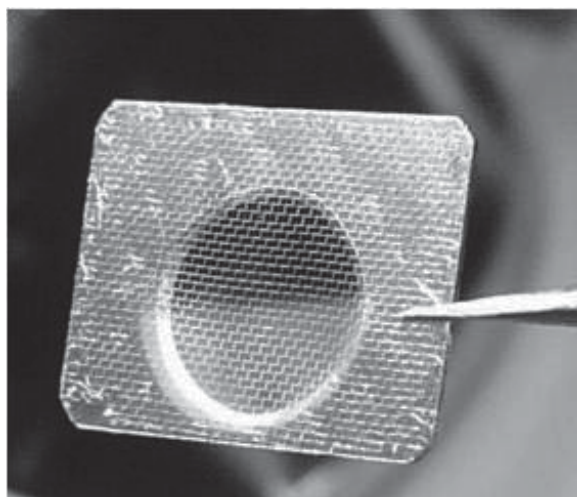


Figure 2. Amino acid thin film sublimated onto a collodion film supported by a mesh metal grid.

蒸着システムはその後、何段階にもわたって改良された。持田によるカプトンコーン方式 (Figure 1) では一度に 1 枚の蒸着膜しか作れなかった。そこで 1999 年、田中真人氏・小結俊行氏らはニクロム線をジグザグに折り曲げて 100 mm × 50 mm くらいの「座布団型ヒーター」をつくらせ、ほぼ同サイズのカプトンに乗せ、アミノ酸の粉末を盛大に撒いて一度に 3、4 枚の蒸着膜を作成できるシステムを作り、膜づくりの省力化は大きく前進した。その後、一度に 10 枚程度の蒸着

膜を高い精度で同じ厚さで一気に作る必要が生じた。宇宙ステーションで多数のアラニン膜に真空紫外線を照射する計画が持ち上がったためである。2010 年、田邊真依子氏は蒸着基板を 12 枚並べてセット出来る回転式の円盤を「座布団ヒーター」の上で 10 回転/分程度の速度で回転させ、膜厚のばらつきを ±2% に抑えることに成功した。くるくる回転する基板の列に順次蒸着が行われていく様子は半導体製造工場でシリコンウェハーが回転しているナノテクの現場そっくりで、アミノ酸の膜づくりもナノテクに近づいたのだと感慨深かった。

蒸着法の画期的な進展によって蒸着膜づくりは大いに進んだ。だが 2009 年頃から実は深刻な問題に突き当たっていた。新しいアミノ酸へと測定対象を拡大していく過程で、蒸着後に大気に長くさらすとじわじわと壊れてしまう現象に出会ったのである。この困難を克服するため、三本晶氏はロードロックシステムを開発して真空から一度大気中に取り出す時間を短くして測定に挑んだ。だがその後、大気にさらすと直ちに壊れてしまうものが現れ、測定完結計画は暗礁に乗り上げた。もはや真空蒸着した膜を大気にさらすことなく真空中で測定点に移動する「その場蒸着」を行うしかない。このシステムは 2011 年に谷川能章氏によって開発され「*in situ* 蒸着」と命名された (Figure 3)。図に示すように 70 mm 径のコンフラットフランジ電流導入端子にタングステンの円形ヒーターを組み込み、カプトン箔を折り曲げてヒーターからの脱落とアミノ酸

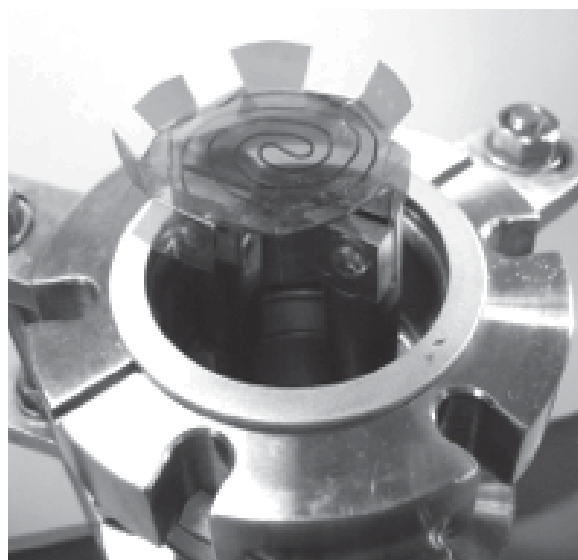


Figure 3. Novel *in situ* sublimation system.



試料のこぼれを防ぐ構造に進化させたのは石山公啓氏である。この方法の問題点は、測定槽に直結した小さなスペース内で蒸着を行うため水晶振動子を内蔵することができない点である。膜厚のコントロールに失敗したら蒸着部を再び大気にさらして振り出しに戻って掃除せねばならない危さが予測された。ところがやってみたら運が向いてきた。上部から覗きこみながら、まず極薄く膜をつけ、それを測定して厚さを検討し、少しずつ厚さを足していった所定の厚さを達成するやり方が谷川によって確立されたのである。Figure 4 に示すようにアラニンの吸収断面積の大きさは 16.5 eV で最大値約 117 Mb, 250 eV では 0.624 Mb と 186 倍も異なるため、S/N のよい吸収スペクトルを測定するには 100 倍にわたって膜厚を制御する必要がある。谷川の「*in situ* 蒸着」以前には 4 段階程度に厚さを変えた膜を神戸大学で作製し、大気中に取り出して別の真空容器に封入して岡崎まで運搬し測定実験をしてきた。1 種類のアミノ酸について 4 種類の厚さの膜を準備し、合計 6 種類のアミノ酸を測定するには 24 枚もの蒸着膜を準備せねばならず、蒸着作業の合計時間は 48 時間にも及び、マシンタイムの前に院生たちはくたくたに疲れてしまう状況であった。ところが「*in situ* 蒸着」では、現地で様子を見ながら、しかも真空中で可能になり、毎日 2 から 4 種類ものアミノ酸の測定が可能となったのである。

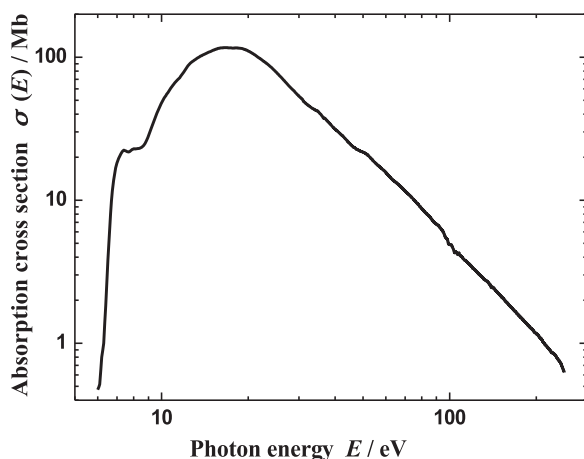


Figure 4. Absorption spectrum of alanine sublimated film in the UV, vacuum UV and soft x-ray regions.

## 2.2 吸収スペクトル測定と絶対値校正

上記の光学近似において必要な吸収スペクトルは相対値ではなく絶対値で測定されることが不可欠である。ここでいう絶対値とは数学でいう絶対値ではなく吸収断面積  $\sigma(E)$  が実際の値で測定されることを意味する。UVSOR での測定では  $\sigma(E)$  の相対値である光学密度あるいは吸光度  $ABS(E) = \log(I_0(E)/I(E))$  が測定できる。その例を Figure 4 に示すが、図の縦軸はすでに絶対値として Mb 単位で値づけされている。その値づけをどのように行うかを次に説明する。

### 2.2.1 溶液の吸収スペクトルが測定できる場合

濃度  $C$  (mol/L) が既知の溶液を調製して光路長  $L$  (cm) の測定セルに入れ、市販の分光光度計で吸光度  $ABS(E)$  を入射光子エネルギー  $E$  の関数として測定する。この溶液中に溶けたアミノ酸分子が独立に光子エネルギー  $E$  の光を吸収しているとしてその吸収断面積を  $\sigma(E)$  とあらしアミノ酸蒸着膜中でも同じ  $\sigma(E)$  をもつと仮定する。 $\sigma(E)$  を求めるには、ランベルトベールの式において上記の溶液濃度  $C$  (mol/L) を分子数密度  $n$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) に  $n = CN_A/10^3$  と変換し  $\sigma(E) = \ln 10 \times \frac{ABS(E)}{nL}$  とすればよい。

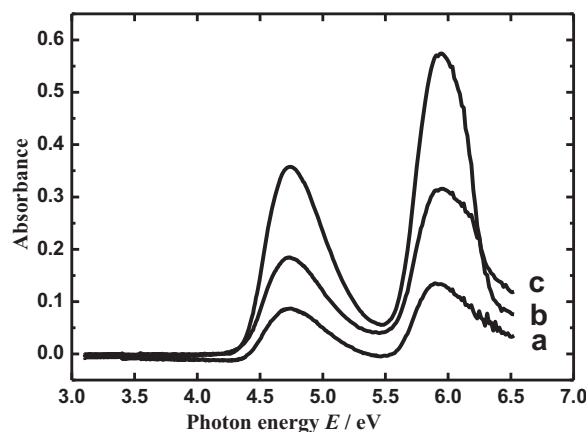


Figure 5. UV spectra of adenine ethanol solutions; concentration,  $3.8 \times 10^{-5}$  M; path length, 0.3 cm (a), 0.5 cm (b), 1 cm (c).

核酸塩基の一つであるアデニンにこの方法を適用した例を Figure 5 に示す。アデニンのエタノール溶液 (濃度  $C = 3.8 \times 10^{-5}$  M) を光路長  $L = 1$  cm の石英光学セルに入れ、紫外可視分光光度計で吸収スペクトルを測定した。図には  $L = 0.3$  cm, 0.5 cm の結果も合わせ

て示す。図の分光光度計の測定限界が 6 eV 付近にあるので 6 eV 付近のピークはみかけのピークである可能性がある。そこで 4.74 eV の吸光度ピーク値 0.358 を吸収断面積に換算し、 $\sigma(4.74 \text{ eV}) = 36.0 \text{ Mb}$  を得た。Figure 6 は、UVSOR で測定したアデニン蒸着膜の吸光度スペクトルの 4.54 eV ピークがエタノール溶液の 4.74 eV ピークでありその吸収断面積はエタノール中のアデニン分子の吸収断面積と等しいと仮定して吸光度を吸収断面積に換算したものである。

Figure 6 から、4.74 eV ピークの大きさを基準にそれよりも約 4 倍大きい 16.5 eV 付近のピークの大きさを値づける「危うさ」が見てとれよう。Figure 4 のアラニンの例では 16.5 eV 付近の吸収は 7.6 eV 付近のそれよりも約 5.3 倍大きく、値づける困難さがうかがえる。

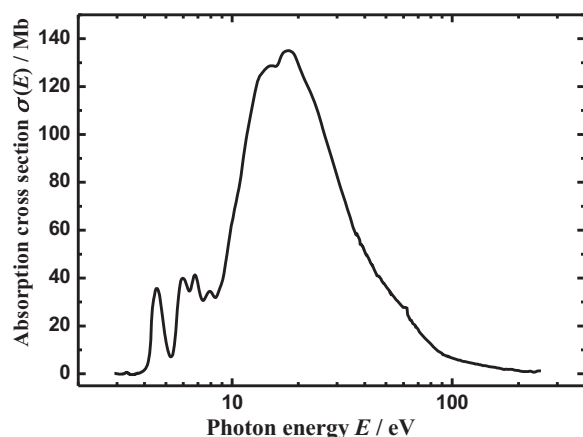


Figure 6. Absorption spectrum of adenine sublimated film in the UV, vacuum UV and soft x-ray regions.

## 2.2.2 蒸着膜の分子数をクロマトグラフィーで定量できる場合

アミノ酸の定量分析には HPLC がよく用いられる。ところが Figure 2 に示すコロジオン基板上的蒸着膜を水で回収するのだが、回収の際破れたコロジオンの断片が HPLC システムを詰まらせないようにフィルターでろ過する方法を検討した。我々の膜は薄いので得られた溶液の濃度を分析可能な値にするには回収に用いる水を 50  $\mu\text{L}$  に制限する必要があったため、50  $\mu\text{L}$  の少量ではフィルターの使用は難しい。結局コロジオン膜上の蒸着膜の回収はあきらめた。合成石英（カットオフ波長 160 nm）やフッ化マグネシウム（カットオ

フ波長 115 nm）上に蒸着した膜の吸光度スペクトル  $ABS(E)$  を測り、その膜の面積  $S$  ( $\text{cm}^2$ ) を水で回収して膜中の分子数  $N_F$  を HPLC の検量線から求めた。膜厚  $L$  と膜の分子数密度  $n$  を用いると  $N_F = nSL$  となるので上記 (1) の方法と同様にランベルトベールの式  $I(E) = I_0(E) \exp^{-\sigma(E)nL}$  における  $nL$  の値が決まるので、 $ABS(E)$  を  $\sigma(E)$  に換算することができる。Figure 4 のアラニンのスペクトルはこうして絶対値を得た。

## 2.2.3 総和則を用いて吸収断面積を校正する

吸収スペクトルのエネルギー積分値が有限であることは量子論の基礎を考えると自明である。1 個の電子が無限に多くの光子を吸収できるはずがない。光子エネルギー  $E = (E_n - E_0)$  の光が量子力学系に吸収され量子状態 0 から  $n$  に光学遷移が起きる様子を  $f_{0n}$  個の古典論振動子が励起されるという考え方と対応させた量は振動子強度  $f_{0n}$  と呼ばれ、

$$f_{0n} = \frac{2m_e(E_n - E_0)}{3\hbar^2} \left| \langle \Psi_n | \sum_s r_s | \Psi_0 \rangle \right|^2$$

と書かれる<sup>7)</sup>。今、連続スペクトルを考えて単位励起エネルギーあたりの振動子強度の密度分布を  $df/dE$  (これを  $f$ -分布と呼ぶ。単位は  $(\text{eV})^{-1}$ ) とあらわすと、吸収断面積  $\sigma(E)$  (単位  $\text{cm}^2$ ) との関係は、

$$\sigma(E) = 4\pi^2 \alpha a_0^2 E_R \frac{df}{dE} = 0.01098 \frac{df}{dE}$$

となる<sup>7)</sup>。ここで、 $\alpha$  は微細構造定数で  $\alpha = e^2/(2\epsilon_0\hbar c) = 1/137.04$ 、 $a_0$  はボーア半径、 $E_R$  はリドベルグエネルギーである。さらに重要なのは、 $f$ -分布を用いて様々な総和則が導かれてきたことである。0 次の総和則  $S(0)$  すなわち  $f$ -分布の遷移エネルギーに関する積分は

$$\int \left( \frac{df}{dE} \right) dE = N$$

となって、遷移に関与した電子数に等しく、Thomas-Kuhn-Reiche の総和則 (TRK 総和則) として知られている<sup>8)</sup>。

東京工業大学の旗野嘉彦先生たちが井口道生先生と共同してメタンやアルコールなどの気体分子にこの総和則を用いて研究を進めておられた<sup>9)</sup> のに触発され、我々も Figure 4 や Figure 6 の縦軸の校正に TRK 総和則を用いることにした。

Figure 7 にグリシン、アラニン、フェニルアラニン、メチオニンの広域吸収スペクトルを示す<sup>10)</sup>。図に示した測定結果に TRK 総和則をあてはめる際、Figure 7

の測定範囲が  $4 < E < 250$  eV であるから、積分範囲をこのエネルギー範囲とした。その結果、[(Figure 7 の  $df/dE$  の積分値)/(遷移に關与する電子数)] は、グリシン [27.3/30]、アラニン [31.0/36]、フェニルアラニン [63.2/64]、メチオニン [60.1/62]、他の実験のデータではアデニン [44.1/50]、シトシン [43.2/42] と、12% 以内の誤差となり、TRK 総和則によるクロスチェックが有用であることがわかった。

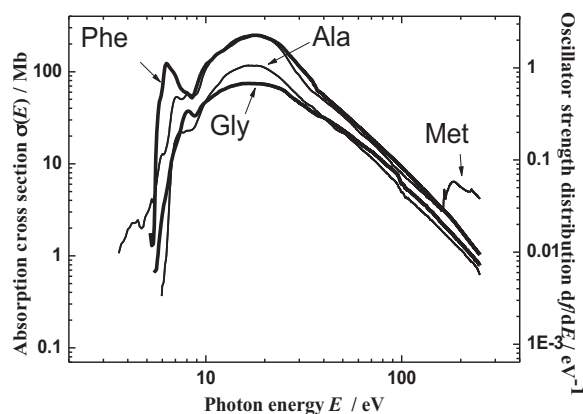


Figure 7. Absorption spectra of glycine (Gly), alanine (Ala), phenylalanine (Phe), and methionine (Met) sublimated films in the UV, vacuum UV and soft x-ray regions.

### 3 今後の課題

現在、アミノ酸全 20 種のうち 15 種、核酸塩基全 5 種のうち 3 種のスペクトル測定を一応終えたところである。これからの課題は、(1) 全てのスペクトルを一枚のグラフに描いたとき互いにつじつまが合うかどうか、たとえば 17 eV 付近のピークの高さが分子量の順番になっているかどうか、50 eV 付近などに測定間違いに起因するスペクトルの交差などがないかどうかなどを検討すること、(2) 量子化学計算と突き合わせてそれぞれの特徴と一般性を検討することである。

長い道のりの行きつく先がようやく見えようとしている。

### 〈謝 辞〉

この研究のほとんどは分子科学研究所 UVSOR での共同研究(課題番号 23-817, 23-819, 23-824, 24-515, 24-532, 24-548, 25-517, 25-530)によってなされまし

た。歴代の UVSOR スタッフの方々に篤くお礼を申し上げます。また、膨大なスペクトルは中川研究室歴代の大学院生諸君の奮闘によって測定されました。本文中に名前が出ていない人も含め、合計 60 人近い院生たち学生たちに篤くお礼申し上げます。

### 〈参 考 文 献〉

- 1) K. Nakagawa, Z. Jin, I. Shimoyama, Y. Miyake, M. Ueno, Y. Kishigami, H. Horiuchi, M. Tanaka, F. Kaneko, H. Nishimagi, H. Kobayashi and M. Kotani, *Radiat. Phys. Chem.*, 77 (2008) 1156.
- 2) M. Tanaka, K. Nakagawa, A. Agui, K. Fujii, A. Yokoya, *Phys. Scr.*, T115 (2005) 873.
- 3) K. Nakagawa, Y. Izumi, M. Tanaka, M. Tanabe, *Photon Factory Activity Report*, 2010 #28 Part B (2011), p. 1.
- 4) R. L. Platzman, *Vortex*, 23 (1962) 372. 解説は例えば、志田忠正「放射線化学の基礎」、新実験化学講座 基礎技術 6 核・放射線 [II], 547-580 (1975).
- 5) 丑田公規, 河内宜之「9-1 放射線と物質の相互作用」、日本放射線化学会編「放射線化学のすすめ」、学会出版センター, 2006 年, pp. 217-224.
- 6) 中川和道「宇宙での化学進化における放射線・紫外線の役割」、*Viva Origino*, 37 (2009) 24.
- 7) 井口道生, *日本物理学会誌*, 22 (1967) 196.
- 8) J. Berkowitz, *Atomic and Molecular Photoabsorption*, Academic Press, 2002.
- 9) Y. Hatano, M. Inokuti, *Photoabsorption, photoionization and photodissociation cross section*, in: IAEA-TECDOC-799, *Atomic and Molecular Data for Radiotherapy and Radiation Research*, 1995, pp. 331-370.
- 10) M. Kamohara, Y. Izumi, M. Tanaka, K. Okamoto, M. Tanaka, F. Kaneko, Y. Kodama, T. Koketsu, K. Nakagawa, *Rad. Phys. Chem.*, 77 (2008) 1153.

### 〈著 者 略 歴〉

中川 和道：1978 年 名古屋大学工学研究科博士課程(後期)修了。1978 年 分子科学研究所リサーチフェロー。1980 年 東京大学基礎科学科助手。1989 年 神戸大学教育学部助教授。1995 年 同教授。1996 年 神戸大学自然科学研究科教授。2007 年 神戸大学人間発達環境学研究科教授(現職)。専門：放射光物性、生体分子分光、環境物理学。趣味など：登山、音楽。

## あいちシンクロtron光センターの概要と利用案内

科学技術交流財団あいちシンクロtron光センター 竹田 美和\*

Aichi Synchrotron Radiation Center has been open for public use since March 26, 2013. The storage ring is operated at the top-up 1.2 GeV with normal-bend, super-bend, and undulator light sources. Six beam lines for hard X-ray XAFS, soft X-ray XAFS, ultra-soft X-ray XAFS, powder X-ray diffraction, X-ray reflectivity/thin film diffraction, and small angle X-ray scattering are in service. Application procedure and user-friendly measurement equipment and software are newly organized. It is pointed out that coordinators are very important to match the users and beam line technicians for an appropriate and efficient use of each beam line. The improvement of experimental environment and technical level of technicians and researchers is continuing.

**Keywords:** synchrotron radiation, beam line, user-friendly

## 1 はじめに

あいちシンクロtron光センター（以下、あいちSRと略す）は、平成25年3月22日の開所式の後26日に供用を開始した。6本のビームライン（以下、BL）を建設していたが、準備のできたものから順次供用するという方針で、まず3本（硬X線XAFS、軟X線XAFS、粉末X線回折）の供用から始まり、5月の連休後には2本（X線反射率／薄膜表面回折、広角・小角散乱）、9月25日に最後の1本（真空紫外分光）を供用開始し、全6本が揃った。Figure 1を参照された

い。平成25年度中に更に2本（軟X線XAFS【図中BL1N2】と単結晶X線回折【図中BL2S1】）が完成予定で、平成26年度中に供用開始予定である。これらのビームラインは、いずれも産業界と学界から利用希望の多いものである。各BLの名称と特徴をTable 1にまとめた。本センターは、付加価値の高いモノづくり技術を支援するため、愛知県が愛・地球博跡地に整備を進めてきた「知の拠点あいち」の中核となる地域共同利用施設である。地域の産学行政による連携・協力のもと公益財団法人科学技術交流財団が施設の整備・運営を行っている。この施設は、従来の学術利用中心のシンクロtron光施設とは異なり、産業利用と新規利用を重視して支援体制の充実や使いやすいメニューを提供している。

## 2 建設の経緯と施設の概要

設立の経緯の概要を記す。この施設は、科学技術交流財団の設立当初（平成6年）からあった「科学技術交流センター」構想と名古屋大学が平成15年度から提案してきた「光科学ナノファクトリー」構想の融合が検討され、愛知県科学技術会議の「知の拠点」中間とりまとめ案に取り入れられた。その中に最先端の計測分析評価装置「シンクロtron利用施設」の整備が盛り込まれた。平成18年11月のことである。このニュースは全国に広まり、多くのシンクロtron光関係者の間で評判となった。「シンクロtron利用施設」だけに関心が集中したが、知の拠点構想は、シンクロtron光施設だけではなく、高度な計測分析機器を併設し、研究推進室、研究支援室を置いて人材を配置し、共同実験室、インキュベーション施設が同居して次への展開を図るというものである。このうち、シンクロtron光施設以外は、隣接した「あいち産業科学技術総合センター」として愛知県の施設となった。このような総合的・複合的な施設と多数のプロジェクトが「知の拠点あいち」を構成している。

このとりまとめ案を受けて、愛知県は、平成19年

Outline and user services of Aichi Synchrotron Radiation Center

Yoshikazu TAKEDA\* (Aichi Science & Technology Foundation, Aichi Synchrotron Radiation Center),

〒489-0965 愛知県瀬戸市南山口町 250 番 3

TEL: 0561-76-8331, FAX: 0561-21-1652,

E-mail: takeda@astf.or.jp



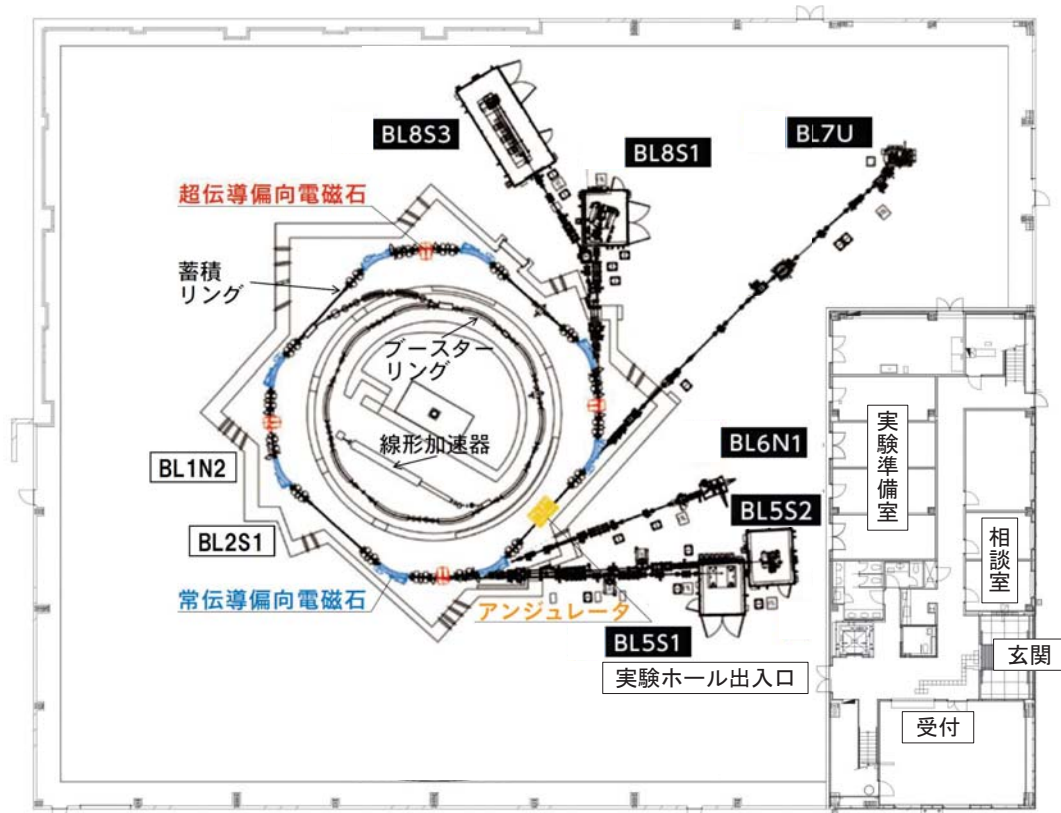


Figure 1. Overview of facility of Aichi Synchrotron Radiation Center.

に基本設計費、20年度予算には整備費を計上した。同年3月には、愛知県と4大学（名古屋大学、名古屋工業大学、豊橋技術科学大学、豊田工業大学）が協力協定を締結し、4月には名古屋大学小型シンクロトロン光研究センターが発足するなど準備は整ったが、折しものリーマンショックで状況待ちとなった。しかし、「知の拠点」に期待する声は大きく、愛知県は平成21年に建設費を計上した。また、産業界からの寄付も募り、多額の繰金は建設費の一部に充当された。同年12月には文部科学省の「地域産学官共同研究拠点整備事業」に採択され、止め置かれていた計画が走り出した。平成22年4月には「知の拠点」の起工式が、8月には「中部シンクロトロン利用施設」（当時の仮称、現あいちSR）の建屋の起工式も行われた。建屋の建設に1年、装置の設置に半年を要し、財団が引き渡しを受けたのが平成24年3月であった。ここから装置群の立ち上げ・調整に入り、7月に蓄積リングでの電子蓄積に成功（First Lightとして発表）、9月には目標の蓄積電流300 mAを達成、10月には放射線施設検査に合格して、供用できる施設として認められ

た。光の安定供給やビームライン・測定機器の調整を行い、平成25年1月から試験的測定を開始し、供用の目処が付いたところで、3月22日に開所式を迎えるに至った。上記のように、文字通り産学官（官には文部科学省と愛知県を含む）の連携により大規模な施設を作り上げた。重厚な産業基盤と学術基盤をもつ東海地区ならではの連携構造である。光源に対しては、コンパクトであるが硬X線も使いたい、という相矛盾する要望であったが、超伝導偏向電磁石と常伝導偏向電磁石を併用することで解決した（Figure 1）。蓄積リングは、周長72 m、蓄積電子のエネルギーは1.2 GeVである。12台の偏向電磁石のうち4台が超伝導電磁石で、硬X線から真空紫外光までカバーし、幅広い用途に応えられる。また、50 MeVの直線加速器と1.2 GeVのブースターシンクロトロンにより、電流値を常に一定に保つトップアップ運転で光を供給できる。Figure 2に我が国の供用8施設の輝度を示す。いずれも偏向電磁石からの光である。青い太線が常伝導電磁石からの光で軟X線用、赤い太線が超伝導電磁石からの光で硬X線用である。あいちSRは、汎用として評価の高い

Table 1. List of beam lines.

| ビームライン名 |                 | 測定手法                          | 光エネルギー範囲<br>(波長範囲)                      | 光子数 (個/sec)          |
|---------|-----------------|-------------------------------|---|----------------------|
| BL5S1   | 材料化学状態・構造分析 I   | 硬 X 線 XAFS                    | 5 keV–20 keV<br>(0.25 nm–0.06 nm)       | $1 \times 10^{11}$   |
| BL6N1   | 材料化学状態・構造分析 II  | 軟 X 線 XAFS                    | 1.75 keV–6 keV<br>(0.7 nm–0.2 nm)       | $7 \times 10^{10}$   |
| BL7U    | 材料化学状態・構造分析 III | 真空紫外分光<br>軟 X 線 XAFS<br>光電子分光 | 30 eV–850 eV<br>(40 nm–1.5 nm)          | $1 \times 10^{12}$   |
| BL8S3   | 有機・高分子材料分析      | 小角散乱                          | 8.2 keV, 13.9 keV<br>(0.15 nm, 0.09 nm) | $7.7 \times 10^{10}$ |
| BL5S2   | 総合材料評価 I        | X 線回折                         | 5 keV–23 keV<br>(0.25 nm–0.05 nm)       | $1 \times 10^{11}$   |
| BL8S1   | 総合材料評価 II       | X 線反射率<br>蛍光分析                | 9.5 keV–14.0 keV<br>(0.13 nm–0.09 nm)   | $1 \times 10^{11}$   |

Photon Factory の光と同じエネルギー領域をカバーしている。ちなみに、供用施設としては我が国で 8 番目の施設である。これだけの数のシンクロトロン光施設を有する国は米国と我が国だけである。

### 3 独自の利用制度

産業利用を謳う施設とするため、産業界の要望を多岐にわたって調査した。「コンパクトであるが硬 X 線も利用できる施設」という要望も、その一つである。費用対効果を考えれば当然の要件である。また、当初建設の BL の選定もその結果である。その他の要望は、

- (1) 利用申し込みから利用までの時間短縮、
- (2) 成果占有（非公開）、
- (3) 技術支援、
- (4) 交通の至便性、

が主なものであった。(1) については、年 6 回の利用受付と 1 ヶ月後には利用できる迅速な対応をすることで理解を得た。たとえば、4、5 月の利用受付は 3 月上旬に行い、中旬には利用日を決定し、4 月初日から利用できる。これを行うために、課題の審査はしないこととした。学術利用では新規性や学術基盤の構築などが審査対象となる。実用化には、反復実験や類似実験が極めて重要で、課題審査をしない理由はここにもあ

る。(2) については、企業の場合は、すべて成果占有とした。大学等の公的機関は、成果公開とすることで利用料金を減額し、技術支援や解析支援を行う大学は更に半額とした。(3) の技術支援については、BL 技術者 10 名を配置し、必要な光の調整と測定の支援を行っている。(4) は Figure 4 にあるように公共交通機関の駅前にあり、最も便利な施設と思っている。利用にあたっては、申請の前および利用前に産業利用コーディネータ（6 名）との事前打ち合わせを課している。これは、適切な測定法と利用時間、利用希望日等を把握するためでもあり、危険物の持ち込みの排除も含まれる。「適切な測定法」がシンクロトロン光ではない場合もあり、隣接するあいち産業科学技術総合センターの高度計測分析機器を紹介することもある。また、場合によっては他施設を紹介することもある。利用者は利用内容に合う特定のコーディネータと組み、利用前から利用終了までフォローしてもらう。必要であれば相談の初期から秘密保持契約を結ぶ。

### 4 利用しやすい環境作り

Figure 3 の利用の流れも、利用しやすい環境作りの一つである。産業利用は、産業全体のレベルアップの意味もあるので、既にシンクロトロン光を利用している企業へはより利便性の高いハードとソフトを提供す

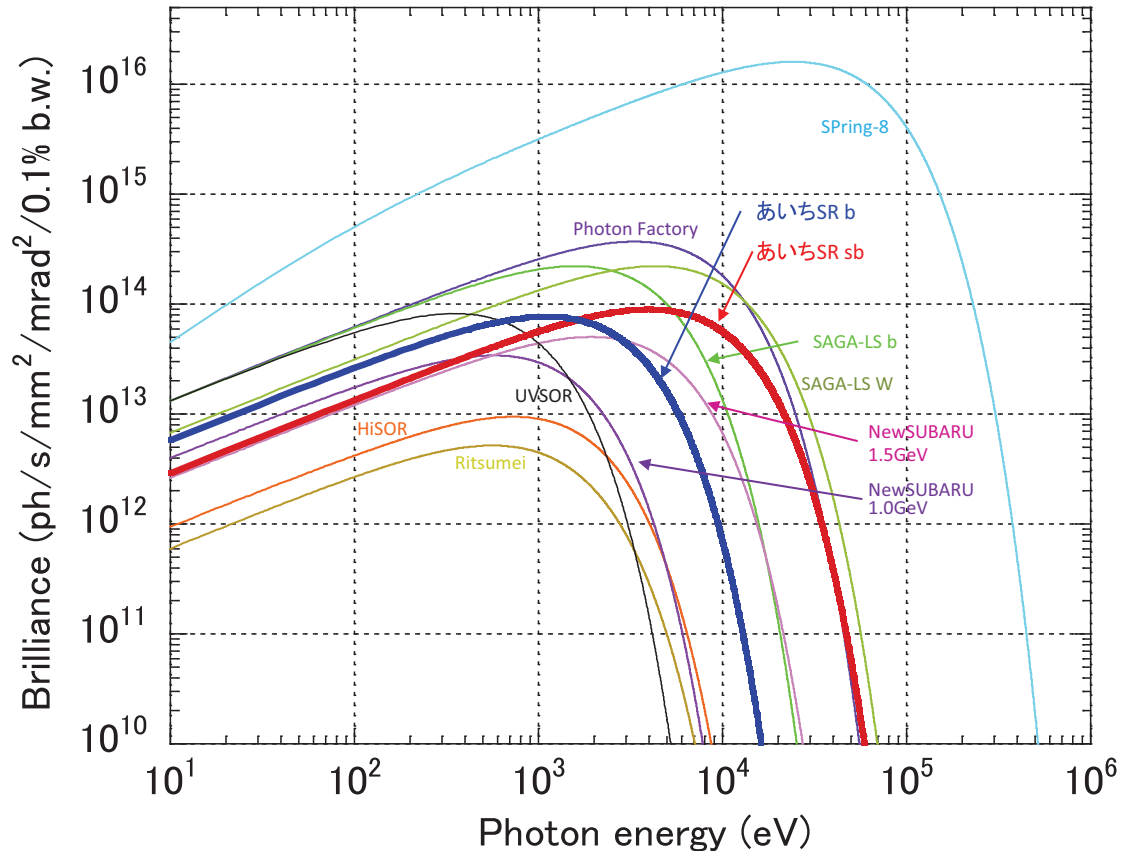


Figure 2. The brilliance of eight public synchrotron facilities in Japan. Blue and red lines show Aichi SR.

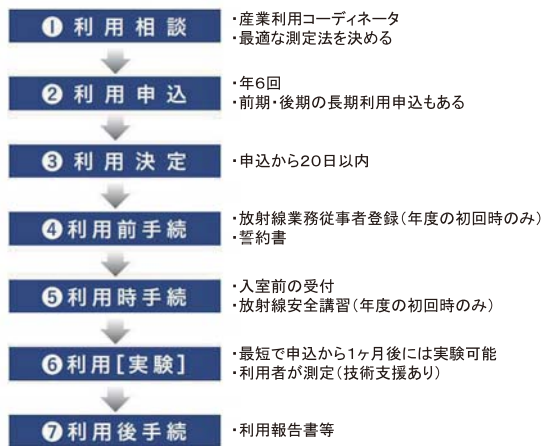


Figure 3. Facility use flow.

ると同時に、新規利用者の開拓やなじみの薄い（しかし、我々の目から見ると利用課題を多く抱えているは

ずの) 中小企業への利用拡大が重要である。これは地域の産業界をよく知っている地方行政にはうってつけである。施設の供用開始前から産業利用コーディネータは、個別企業の訪問から総合的な利用説明会まで、啓発活動に多くの時間を割いた。産業利用と学術利用では、施設の用意すべき測定環境も大きく異なる。学術利用の場合、利用者の研究レベルのアップ、若手人材の育成なども目的であるため、たとえば、施設側ではここまで、利用者はそれに合わせて自ら装置類を工夫・準備する、という関係を主張できる。しかし、産業利用では、時間を含めた費用対効果を考えるので、利用者の施設側への要求は細部にわたる。あいち SR でもそれはわかっていたので、供用開始の時点で、それなりの準備はしたつもりであった。しかし、実際に使ってもらおうと、不足する装置やソフト等が多々出てきた。特に、世界中のシンクロtron光施設を使っているグループは、各所の実験環境をよく知っており、同じレベルの環境整備を望む。あいち SR では、供用開始時から要望事項を指摘してもらったが、実に 61 項





「知の拠点あいち」はJR名古屋駅から直線距離で19km。地下鉄東山線で藤が丘まで。ここで東部丘陵線（リニモ）に乗り換えて陶磁資料館南駅で下車。目前が「知の拠点あいち」。右の写真参照。所要時間約1時間。

2棟の建物の一帯が「知の拠点あいち」。右があいちシンクロトロン光センター。左があいち産業科学技術センター。左側の高架が東部丘陵線で最寄りの駅舎が見える。遠景は名古屋市内。

Figure 4. Access to Aichi Synchrotron Radiation Center.

目があがってきた。もともと施設側も考えていたが供用開始に間に合わなかった項目も含まれるが、いずれにしろこれらは早急に「カイゼン」に掛かった。9月末には8割、11月末には2、3件以外は整備できた。BL5S2にXAFS測定機能を増設するというカイゼンもあった。硬X線XAFSの利用率が9月には100%を超える見通しであることがわかっていて、これに対処するには、同じ光学系を持つBL5S2にXAFS機能を加えることと、1日2シフト（1シフトは4時間）の運転を3シフトにするしかなく、装置のカイゼンと運営上のカイゼンを同時に行った。とはいえ、まずは可能な範囲でのサービス提供で運営している。すべてをフルスペックに持っていくには、2-3年は優にかかるBLもあり、当分の間カイゼンは続く。カイゼンの状況はあいちSRのホームページ<sup>1)</sup>に各BLの整備状況として随時掲載してある。

## 5 おわりに

平成25年3月末に供用開始してまだ1年たっていないが、利用率が100%に達するBLも3本となっている。当該地域に要望があるからこそその建設ではあったが、改めて、シンクロトロン光に対する要望の高さを認識した。当初「中部シンクロトロン光利用施設」と仮称していたのは、愛知県だけでなく、少なくとも中部圏で広く使って欲しいという意味もあった。「利

用施設」としたのも、財団ができるのは利用支援まで、という意識もあった。シンクロトロン光施設は、歴史的に世界中で利用し合い、協力もする、という伝統があり、中部圏どころか全国、あるいは外国からも使いに来ることから「中部」と限定せず、施設のある場所を示す方がよいということから「あいち」とし、施設全体を財団が保有しているの、「利用施設」という限定も取り、「あいちシンクロトロン光センター」という単純明快な名称となった。まだまだ、性能向上の課題が多々あり、技術スタッフも事務スタッフも不足している。利用者の要望に応えるには、スタッフ自らの先行的研究も必要である。産学行政の緊密な連携で生まれた本施設を長期間にわたって育てていくには、やはり産学行政の連携で対処していくしかなく、2-3年の運営経験を踏まえて、それぞれの役割をよく考えて積極的に関わることが肝要である。利用の詳細はあいちSRのホームページ<sup>1)</sup>を参照されたい。また、あいち産業技術総合センターは参考文献のURL<sup>2)</sup>を、高度計測分析機器については参考文献のURL<sup>3)</sup>をご覧ください。あいちSRの建設の経緯や施設の詳細は、参考文献<sup>4,5)</sup>をご覧くださいと幸いです。

## 〈参考文献〉

- 1) <http://www.astf-kha.jp/synchrotron/>
- 2) <http://www.aichi-inst.jp/>



- 3) <http://www.astf-kha.jp/mesurement/>
- 4) 高嶋圭史, 加藤政博, 渡邊信久, 保坂将人, 竹田美和, 山根隆, 曾田一雄, 放射光, 21 (2008) 10.
- 5) 竹田美和, 渡邊信久, 高嶋圭史, 加藤政博, 保坂将人, 伊藤孝寛, 山本尚人, 曾田一雄, 桜井郁也, 原 玲丞, 八木伸也, 竹内恒博, 放射光, 22 (2010) 88.

V. M. ビャーコフ・S. V. ステパノフ 放射線化学の基礎  
—放射線分解初期過程— 第 6 回

産業技術総合研究所計測フロンティア研究部門

小林 慶規\*

東北大学高等教育開発推進センター/東北大学大学院理学研究科

岡 壽崇

Contents of lecture note by Prof. V. M. Byakov and Dr. S. V. Stepanov (Institute of Theoretical and Experimental Physics, Russia) are described in a series of articles. The lectures are currently given in National Research Nuclear University “MEPhI” in Russia. The sixth article concerns excess electrons generated by radiations. Translation into the Japanese language is based on the arrangement between the Japanese Society of Radiation Chemistry and National Research Nuclear University “MEPhI”, The Russian Federation, under partial support from the latter.

**Keywords:** radiation chemistry, radiolysis, early process

ロシア連邦理論実験物理学研究所の V. M. ビャーコフ教授, S. V. ステパノフ博士の講義録を連載講座として紹介する。連載第 6 回は、放射線照射で生成する過剰電子について説明する。(全 7 回の連載を予定。第 5 回–第 7 回は 1 つの章を 3 回に分けて掲載。)

Foundations of Radiation Chemistry –Early Processes of Radiolysis– by V. M. Byakov and S. V. Stepanov, Part 6  
Yoshinori KOBAYASHI\* (*Research Institute of Instrumentation Frontier, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)*), Toshitaka OKA (*Center of the Advancement of Higher Education / Graduate School of Science, Tohoku University*),  
〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1 産業技術総合研究所 つくば中央第二事業所  
TEL: 029-861-4886, FAX: 029-861-5683,  
E-mail: y-kobayashi@aist.go.jp

## 1 電子

## 1.1 気相中の電子

放射線分解で生成する電子が関与する反応には、中性化反応と電気的に中性の原子、ラジカル、分子による電子捕獲がある。

電子捕獲の確率は、反応する分子、原子などの電子親和力  $EA$  (electron affinity) によって決まる。電子親和力は、運動エネルギーをもたない電子が分子と結合する際に放出されるエネルギーである。粒子  $M$  の電子親和力は、陰イオン  $M^-$  のイオン化ポテンシャルと等しい。電子捕獲反応は、電子親和力が正の場合に進行する。たとえば、気相中の熱化電子は、 $NO_2$  ( $EA = 3.1$  eV) および  $O_2$  ( $EA = 0.4$  eV) と反応するが、 $EA$  が  $-1.1$  eV のベンゼン ( $C_6H_6$ ) や  $-1.2$  eV のフェノール ( $C_6H_5OH$ ) とは反応しない。

電子捕獲は、励起陰イオンの生成によって開始される。



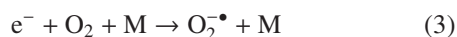
もしいずれかの原子 (たとえば,  $A$ ) の電子親和力が  $AB$  の解離エネルギーより大きければ、解離性電子付着が生じる。



原子あるいは分子フラグメントの電子親和力と分子の解離エネルギーあるいは結合の切断エネルギーを比較すると、電子と分子  $AB$  がどのように反応するかわかる。

電子捕獲反応の生成物は、電子のエネルギーに依存する。たとえば、酸素分子と相互作用するエネルギー

$W \leq 1 \text{ eV}$  の電子は、スーパーオキシドアニオンラジカル  $\text{O}_2^{\bullet-}$  ( $EA(\text{O}_2) \approx 0.45 \text{ eV}$ ) を形成する、



電子のエネルギーが  $W = 4 \text{ eV} - 10 \text{ eV}$  ならば、反応は解離性電子付着となる、



これは、この反応が進行する条件が

$$W > D(\text{O}_2) - EA(\text{O}) \approx 5.16 - 1.46 = 3.7 \approx 4 \text{ eV}$$

であることから理解できる ( $D$  は分子の解離エネルギー (第5回で定義))、

## 1.2 液体中の電子 擬似自由電子と溶媒和電子

分子のイオン化によってはじきだされる電子の大部分は、分子のイオン化ポテンシャル程度の運動エネルギーをもっている。周囲の分子との強い相互作用により、凝縮媒質中で、このような電子が完全に自由になることはない。しかし、電子の運動エネルギーが媒質分子の反発や引きつけによって生じるポテンシャル障壁にうちかつことができるならば、これらの電子は擬似自由粒子として振る舞う。分子内の束縛電子より小さい速度 ( $\gtrsim v_B = 2 \times 10^8 \text{ cm/s}$ ) をもつため、これらの電子は、単に分子の電子殻だけを分極させ、媒質の構造や原子の空間分布を変化させることはない。実際、運動エネルギーが約  $1 \text{ eV}$  (そして速度が  $6 \times 10^7 \text{ cm/s}$ ) 程度の電子は  $10^{-15} \text{ s}$  程度の時間で、分子間隙を横断する。この間に電子分極は可能であるが、永久双極子が配向するには、数桁長い時間を要する (図1)。

擬似自由電子のモデル 固体物理学で知られているウィグナー・サイツ (WS) 近似に基づいた液体媒質中の擬似自由電子  $\text{e}_{\text{qf}}^-$  の広く受け入れられているモデル<sup>1)</sup> を考えてみよう。このモデルでは、液体媒質を体積  $\Omega = 4\pi R_{\text{WS}}^3/3$  の球状のセルに分割する。各セルの中心部分、一つの液体分子 (正確には、液体分子と電子的に等価な球状原子) によって占められる。分子によって占められる擬似自由電子を通さない球状の中心部分は、しばしばコア (英語の core より) と呼ばれる。電子殻からの交換斥力のため、擬似自由電子はコアを通過できない。この斥力は、 $\text{e}_{\text{qf}}^-$  をその内部 ( $r < l_c$ ) に侵入させない無限に高いポテンシャルによって表される。 $l_c$  はコアの半径で、 $\text{e}_{\text{qf}}^-$  が近づくことのできる中心から最短の距離であり、擬似自由電子の波動関数は、 $\psi(r \leq l_c) = 0$  となる。

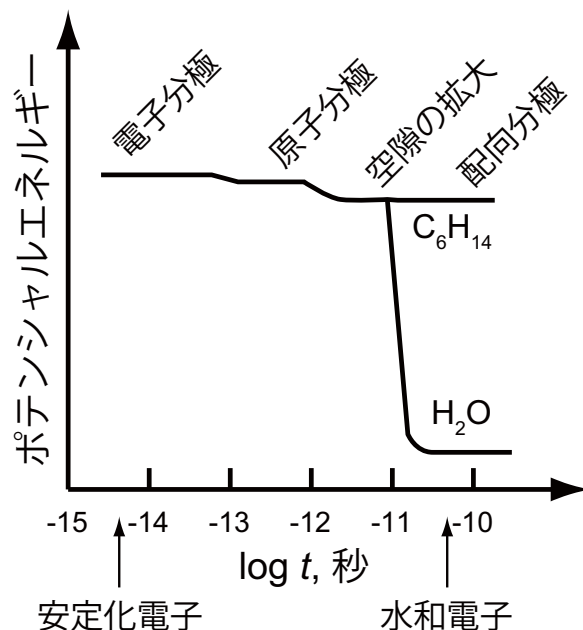


図1. 非極性液体 (ヘキサン) と極性液体 (水) 中での擬似自由状態から溶媒和状態への遷移にともなう電子の相対的なポテンシャルエネルギーの経時変化。

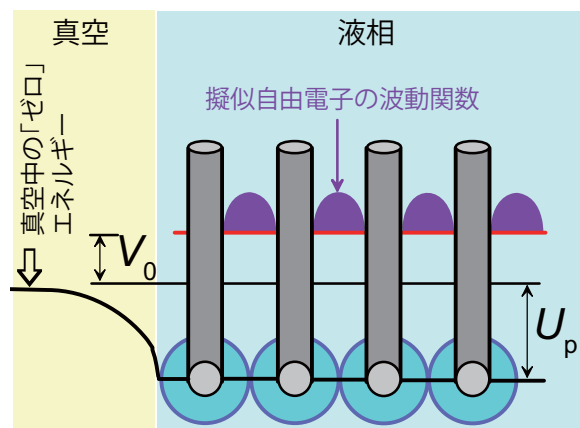


図2. 液体中の擬似自由電子の状態を示すエネルギーダイアグラム。

次に、 $\text{e}_{\text{qf}}^-$  は等しい確率でセルの任意の場所に存在していると考える。こうすると、二つのセル  $R_{\text{WS}}$  の境界では、 $\text{e}_{\text{qf}}^-$  の波動関数は連続でなければならない。つまり、波動関数の微分はゼロになる。

$$\left. \frac{d\psi(r)}{dr} \right|_{r=R_{\text{WS}}} = 0 \quad (5)$$

こうして、 $e_{\text{qf}}^-$  は、それぞれのウィグナー・サイツセルの外側の層  $l_c < r < R_{\text{WS}}$  を占めることになる。

擬似自由電子のポテンシャルエネルギー  $V(r)$  は、外殻電子からの交換反発とセルを囲む媒質分子の分極相互作用による。

分極相互作用  $U_p$  は、それ自体、二つの寄与の和として、 $U_p = U_p^{\text{ext}} + \langle U_p^{\text{int}} \rangle$  と書ける。 $U_p^{\text{ext}}$  は電子が存在する WS セルの外側の媒質と電子の相互作用によるポテンシャルエネルギーである。二番目の  $\langle U_p^{\text{int}} \rangle$  は電子自身が存在する WS セル内の分子と電子との相互作用によるものである。

$U_p = U_p^{\text{ext}}$  を見積もるために、 $e_{\text{qf}}^-$  は WS セルの周囲に中心対称の電場  $\mathbf{E}(r) = -e\mathbf{r}/(\epsilon_{\infty}r^3)$  を及ぼすとしよう。ここで、 $\epsilon_{\infty}$  は媒質の高周波誘電率である<sup>\*1</sup>。この電場のエネルギーは

$$\frac{1}{2} \int_{R_{\text{WS}}}^{\infty} \frac{\mathbf{E} \mathbf{D}}{8\pi} 4\pi r^2 dr = \frac{e^2}{2\epsilon_{\infty}R_{\text{WS}}} \quad (6)$$

である。真空中での相当する電場のエネルギーは、

$$\frac{1}{2} \int_{R_{\text{WS}}}^{\infty} \frac{\mathbf{D}^2}{8\pi} 4\pi r^2 dr = \frac{e^2}{2R_{\text{WS}}} \quad (7)$$

に等しい。これらの差が求める  $U_p^{\text{ext}}$  になる。

$$U_p^{\text{ext}} = -\left(1 - \frac{1}{\epsilon_{\infty}}\right) \frac{e^2}{2R_{\text{WS}}} \quad (8)$$

この式は、半径  $R_{\text{WS}}$  の一価イオンを真空中から非分極性誘電媒質へ移す際の自由エネルギー変化に対するボルンの公式と一致する。

エネルギー  $U_p^{\text{int}}$  は、擬似自由電子  $e_{\text{qf}}^-$  と分子がともに同じ WS セルに存在する場合の両者の相互作用による。この量を見積もるため、電子がセルの中心にある分子に場  $\mathbf{D}(\mathbf{r}) = -e\mathbf{r}/r^3$  を及ぼし、これにより、電気双極子モーメント  $\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \alpha\mathbf{D}(\mathbf{r})\Omega = -\alpha\Omega e\mathbf{r}/r^3$  が誘起されるとしよう。ここで、 $\alpha$  は高周波誘電率  $\epsilon_{\infty}$  および分子の密度  $n$  と次のクラウドウス-モソッティの関係式で関係づけられる個別分子の電子分極率である。

$$\frac{4\pi\alpha}{3}n = \frac{\epsilon_{\infty} - 1}{\epsilon_{\infty} + 2} \quad (9)$$

上記の双極子モーメントと  $e_{\text{qf}}^-$  との相互作用が  $U_p^{\text{int}}(r)$  である。

$$U_p^{\text{int}}(r) = -\frac{P(r)E(r)}{2} = -\frac{\alpha n \Omega e^2}{2r^4} \quad (10)$$

電子のすべての位置について平均化すると

$$\langle U_p^{\text{int}}(r) \rangle = -\frac{1}{2} \int_{l_c}^{R_{\text{WS}}} \alpha n \Omega \frac{e^2}{r^4} |\psi(r)|^2 4\pi r^2 dr \quad (11)$$

となる。ここで、 $e_{\text{qf}}^-$  はセル内部の領域  $l_c < r < R_{\text{WS}}$  に分布していて、確率密度  $|\psi(r)|^2$  は 1 に規格化されている。

$$\int_{l_c}^{R_{\text{WS}}} |\psi(r)|^2 d^3r = 1 \quad (12)$$

ここで、もう一つ単純化するための仮定をする。積分 (11) と (12) の計算において、関数  $\psi(r)$  が定数であるとし、 $l_c$  は  $R_{\text{WS}}/2$  に等しいとする。そうすると、

$$|\psi|^2 = \frac{8}{7} \cdot \frac{3}{4\pi R_{\text{WS}}^3} \quad (13)$$

$$\langle U_p^{\text{int}}(r) \rangle = -\frac{16\pi\alpha}{7} \cdot \frac{e^2}{R_{\text{WS}}} = -\frac{12}{7} \frac{\epsilon_{\infty} - 1}{\epsilon_{\infty} + 2} \frac{e^2}{R_{\text{WS}}} \quad (14)$$

結局、擬似自由電子に対するシュレディンガー方程式

$$-\frac{\hbar}{2m} \Delta_r \psi + V(r)\psi = V_0\psi, \quad \Delta_r \psi = \frac{1}{r} \frac{d^2(r\psi)}{dr^2} \quad (15)$$

において、次のポテンシャルエネルギーを用いることになる (図 2)。

$$V(r) = \begin{cases} \infty & r < l_c \\ U_p & l_c < r < R_{\text{WS}} \end{cases} \quad (16)$$

ここで、

$$U_p \equiv U_p^{\text{ext}} + \langle U_p^{\text{int}} \rangle = -\frac{e^2}{2R_{\text{WS}}} \left(1 - \frac{1}{\epsilon_{\infty}} + \frac{24}{7} \frac{\epsilon_{\infty} - 1}{\epsilon_{\infty} + 2}\right) \quad (17)$$

である。

簡単な計算により、境界条件  $\psi(l_c) = 0$  と  $\psi'(R_{\text{WS}}) = 0$  での最低エネルギー状態電子に対するシュレディンガー方程式の解は次の形になる。

$$\psi(r) \propto \begin{cases} 0 & r < l_c \\ \frac{\sin(k_0(r - l_c))}{k_0 r} & l_c < r < R_{\text{WS}} \end{cases} \quad (18)$$

ここで、 $k_0$  は波数である。 $k_0$  はゼロ点運動エネルギー  $K = \hbar^2 k_0^2 / 2m$  とともに次の関係式から求められる。

$$k_0 R_{\text{WS}} = \tan k_0 (R_{\text{WS}} - l_c) \quad (19)$$

すでに導入された近似  $l_c = R_{\text{WS}}/2$  を考慮し、 $x =$

<sup>\*1</sup>  $e_{\text{qf}}^-$  が与えられた WS セルに存在する時間が分子の双極子の緩和時間に比べてはるかに短ければ、 $e_{\text{qf}}^-$  が誘起できるのは電子分極だけである。



$k_0 R_{WS}/2$  とすれば, この式は,  $2x = \tan x$  となる. この方程式の解は (電子の基底状態について)  $x = 1.165$  であり, これから,  $k_0 = 2.33/R_{WS}$  となる. したがって, 擬自由電子の全エネルギー  $V_0$  に対する次の式が得られる ( $R_y = 13.6 \text{ eV}$ ,  $a_B = 0.53 \text{ \AA}$ ).

$$V_0 \equiv K + U_p^{\text{ext}} + \langle U_p^{\text{int}} \rangle \\ = R_y \cdot \frac{a_B}{R_{WS}} \left( \frac{5.33 a_B}{R_{WS}} - 1 + \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{24}{7} \frac{\epsilon_\infty - 1}{\epsilon_\infty + 2} \right) \quad (20)$$

小さい分子では, エネルギー  $V_0$  は, (運動エネルギーが支配的なため) 正になるが, 大きい分子では, 負になることがわかる. このような変化の特徴が図 3 によって裏付けられる (半径  $R_{WS}$  が近い He と Ar で  $V_0$  の大きさが異なるのは,  $\epsilon_\infty$  が He で 1.05, Ar で 1.52 と異なるためである).

温度の上昇により液体の密度は, 多くの場合, 減少する. これに対応して,  $R_{WS}$  も大きくなる.  $R_{WS}$  の増加は  $V_0$  の温度依存性を決定する主要な因子である. 温度上昇に伴い, 運動エネルギー  $K$  の減少が分極による  $V_0$  への負の寄与の減少に対して支配的になり, 温度の関数としての擬自由電子のエネルギーは全体として減少する. いくつかの炭化水素について実験的に得られた  $V_0$  の温度依存性が (20) で計算された数値とともに図 4 に示されている. 両者が非常によく一致していることがわかる.

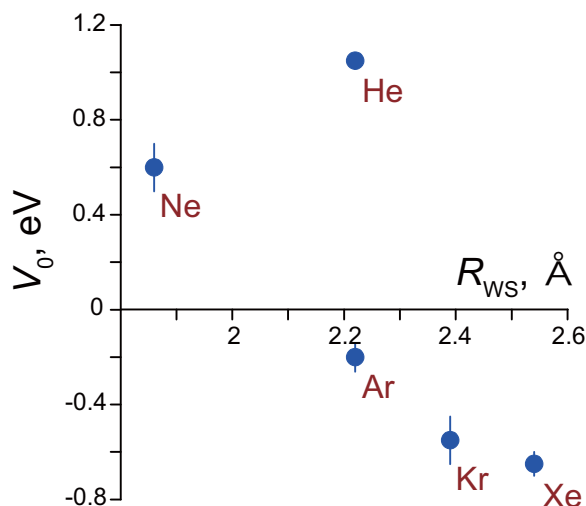


図 3. 液化希ガス中の電子の基底状態のエネルギー  $V_0$  のウィグナーサイズ半径による変化.

擬自由電子の局在化 その後の電子の挙動は, 交換斥力, 媒質を構成する分子の電子親和力を考慮した分極引力, さらには, 表面張力の大小関係に依存する. たとえば, 液体アルゴン中において, 電子がポテンシャル障壁にうちかつためには, 熱エネルギーに比べてごくわずかの過剰な運動エネルギーで十分である. 逆に液体ヘリウムにおいては, 非常に小さな分極率と表面張力の作用により, 電子は空孔中に局在化する. 同様に, 水素以外に元素 C, N, O だけを含む飽和化合物液体中でも, 近距離で作用する斥力が支配的であり,  $e^-$  の局在化が生じる. 液相の有機ハロゲン化合物 ( $C_6H_5Cl$ ) およびカルボニル ( $H_2C=O$ ,  $(CH_3)_2C=O$ ) 化合物を含む不飽和化合物は, 低速電子と反応して陰イオンを生成する.

周囲の分子により形成されたポテンシャルのくぼみの中に存在する電子は, 「ゼロ点」運動エネルギーをもつため, 局在化した電子の運動エネルギーが熱エネルギーまで低下することは決してない. ゼロ点エネルギーは, 局在化を生じさせるトラップの性質とそのパラメータの大きさにより変化する. 典型的なトラップ (自由体積空孔) の大きさは, 分子の半径と同程度で,  $2 \text{ \AA} - 4 \text{ \AA}$  ( $R \approx 2 \text{ \AA}$  としよう) である. ポテンシャルくぼみが非常に深く, その形状が球対称であれば, この

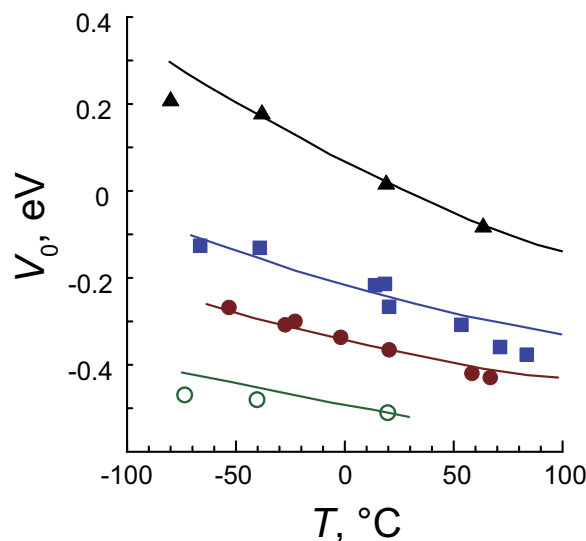


図 4. いくつかの炭化水素中の基底状態電子のエネルギー  $V_0$  の温度依存性.  $\blacktriangle$ :  $n$ -ヘキサン,  $\blacksquare$ : 2,2,4-トリメチルペンタン,  $\bullet$ : 2,2,4,4-テトラメチルペンタン,  $\circ$ : テトラメチルシラン.

ようなトラップ内の電子のゼロ点運動エネルギーは、およそ、 $Ry(a_B/R)^2 \approx 1 \text{ eV}$  になる。

電子のポテンシャルくぼみは、媒質の種々の分極の影響により次第に深くなり、電子は安定化していく。分子に束縛されている電子による近距離反発が空孔の拡大を生じるならば、電子のポテンシャルエネルギーはさらに低下する。

極性液体中で電子は、 $10^{-12} \text{ s}$ – $10^{-11} \text{ s}$  で安定化され、溶媒和電子に変わるが、低温ガラスでは、 $10^{-10} \text{ s}$  (270 K) から  $10^{-6} \text{ s}$  (77 K) 必要である。

極性液体と非極性液体での溶媒和電子に対するポテンシャルの深さの基本的な違いは、配向分極の違いによりもたらされる。ヘキサンのような液体での配向分極は、分子のもっている分極率の異方性程度である。

多くの試みにもかかわらず、現在まで電子の溶媒和の定量的に正しいモデルの構築には成功していない。定性的な描像は次のようなものである。溶媒和電子は、短距離で作用する反発力と電子の「ゼロ点」圧力の影響の結果、通常の分子間空孔より大きなサイズのナノ空孔を占める (図 5)。電子の一部はナノ空孔を取り囲むより小さな空孔にも広がっている。小さな空孔の周囲の媒質は分極して、長距離作用する引力により圧縮 (電気収縮) されている。

極性媒質に存在する擬似自由電子は、このように、その周囲を分極させる。もしこの分極が弱ければ、電子は局在化することができない。イオン結晶の場合がこれに該当する。分極が強いときは、非局在状態の電子は局在状態に変化する、つまり、自身がつくり出した分極により自己捕獲される。このような電子の状態は、ポーラロンと呼ばれている。ポーラロンは、極性液体や生体高分子など極性の大きな媒質で見られる。こうして、極性媒質中では、擬似自由電子はポーラロンへと変化する。ポーラロン状態の形成について、次に考察してみる。

### 1.2.1 溶媒和電子のポーラロンモデル

極性媒質中の電子によってつくられる電場は、自身が誘起する媒質の分極によって遮蔽される。媒質中に過剰電子が出現すると、まず最初に、媒質原子の電子殻が分極する。過剰電子によって生じるポテンシャルは、この場合、 $-e/(\epsilon_\infty r)$  となる。ここで、 $\epsilon_\infty$  は媒質の高周波誘電率である。電子殻の分極、つまり、原子核に対する電子殻の重心の変位に要する特徴的な時間は、フェムト秒 ( $10^{-15} \text{ s}$ ) より短い。

大部分の媒質で引き続いて  $10^{-12} \text{ s}$ – $10^{-11} \text{ s}$  後に起こる極性基の配向による分極の結果、ポテンシャルは

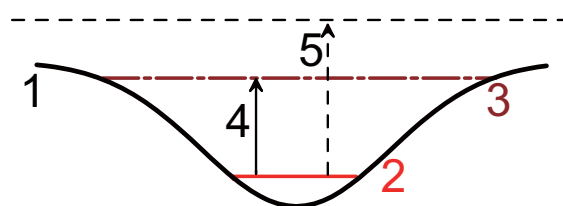
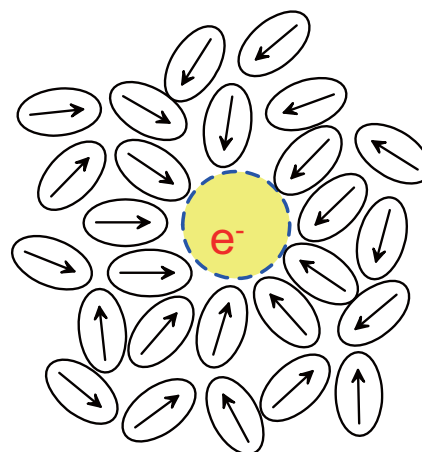


図 5. 極性液体中の過剰電子の溶媒和の模式図。過剰電子と分子の電子殻の交換相互作用で生じるナノ空孔と  $e^-$  の周囲での分子の双極子モーメントの配向を示している。下図の 1 は電子の周囲に分子によって形成されるポテンシャルのくぼみ、2, 3 は基底状態と励起状態の電子の単位、4 と 5 は光学遷移。

$-e/(\epsilon_0 r)$  に変化する。ここで、 $\epsilon_0$  は媒質の静的な誘電率である<sup>\*2</sup>。

もし電子が、突然、自身が存在する場所からすばやく長距離移動したとすると、極性基は自分の本来の平衡位置にもどることができないが、電子殻の方は以前の状態にもどることができる。こうして生じる媒質の電荷の非平衡分布は、電子を元の領域に戻そうとする電場をつくる。電子が原子間を変位する特徴的な時間がフェムト秒であるため、電子は事実上自身がつくり出したポーラロン状態にあり、ポテンシャルエネルギー

$$U = -\frac{e^2}{\epsilon r}, \quad \frac{1}{\epsilon} = \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \quad (21)$$

を感じることになる。ここで、 $\epsilon$  は媒質の有効誘電率

<sup>\*2</sup> 極性基の分極に要する時間はピコ秒程度で電子殻の変位に要する時間の 100 倍–1000 倍である。

である。

(21)に入っている高周波誘電率は媒質の屈折率と次の関係にある。

$$\epsilon_{\infty} = n^2 \quad (22)$$

大多数の分子媒質に対して、 $\epsilon_{\infty} \approx 2$ である。水では  $n = 1.33$  であり、高周波誘電率は 1.78 である。

ポーラロン状態の概略は次のように述べることができる。ポーラロンのポテンシャルくぼみの特徴的な大きさを  $R$  としよう。ハイゼンベルクの不確定原理から、電子の特徴的な運動量  $p$  は  $\hbar/R$  の程度であり、このような状態にある電子の運動エネルギー  $T_e = p^2/2m_e$  は

$$T_e = \frac{\hbar^2}{2m_e R^2} = \text{Ry} \cdot \frac{a_B^2}{R^2} \quad (23)$$

となる。ここで、 $m_e$  は電子の質量である。ポテンシャルくぼみの特徴的な大きさは、媒質の分子の大きさと同程度で、数オングストロームである。したがって、運動エネルギーは、 $T_e \sim 1 \text{ eV}$  となる。こうして、電子の移動速度は、慣性分極は電子の運動に追従できないが、電子分極は瞬時に電子の変位に応答するようなものになる（原子に束縛されている電子の速度は、 $2 \times 10^8 \text{ cm/s}$  程度である）。このため、電子のポテンシャルエネルギーは (21) で与えられる。

ここで調べたモデルにおいて、電子分極が電子の運動と「結びついている」とき、電子の量子力学的運動の際、電子分極も電子とともに移動するため、 $T_e$  の表式には「裸の」電子の質量ではなく、有効質量  $m > m_e$  が入ってこなければならない。この理由で、以下では、 $m$  は電子の有効質量を表すものとする。全エネルギー

$$E = T_e + U = \frac{\hbar^2}{2mR^2} - \frac{e^2}{\epsilon R} \quad (24)$$

を半径  $R$  について最小化すると、条件  $dE/dR = 0$  から、ポーラロン状態の有効半径が得られる。

$$R = \frac{\hbar^2 \epsilon}{me^2} = a_B \tilde{\epsilon} \quad (25)$$

ここで、 $a_B = 0.53 \text{ \AA}$ 。ポーラロン状態電子の全エネルギーは

$$E = -\frac{me^4}{2\hbar^2 \tilde{\epsilon}^2} = -\frac{\text{Ry}}{\tilde{\epsilon}^2} \quad (26)$$

となる。このエネルギーは負であり、自己束縛状態がエネルギー的に有利であることがわかる。

水素原子の古典的な問題の場合と同様に、基底状態と励起状態のポーラロンのエネルギーは、次の式で与

えられる。

$$E = -\frac{\text{Ry}}{n^2 \tilde{\epsilon}^2} \quad (27)$$

ここで、 $n$  は値 1, 2, 3 をとる。もし、電子吸収の光学スペクトルが  $1s$  状態 ( $n = 1$ ) から  $2p$  状態 ( $n = 2$ ) への遷移によるならば、次のエネルギーでスペクトル吸収は最大に達する。

$$E_{\max} \approx E_1 - E_2 = \frac{3\text{Ry}}{4\tilde{\epsilon}^2} = 10.2 \cdot \left( \frac{1}{\epsilon_{\infty}} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)^2 \text{ eV} \quad (28)$$

水とアルコール ( $\epsilon_{\infty} \approx 2$ ,  $\epsilon_0 \gg \epsilon_{\infty}$ ) では、これから、 $E_{\max} \approx 2.5 \text{ eV}$ ,  $\lambda_{\max} = 1240/E_{\max} = 500 \text{ nm}$  となり、図 6 のデータとの対応は悪くない。

(25) から極性媒質中の溶媒和電子の半径は  $R \approx 1 \text{ \AA}$  となるが、実験値は  $\approx 2.6 \text{ \AA}$  である。誘電率の空間的な分布に注目すると、このずれは小さくなる。

### 1.2.2 電子とその他の放射線分解中間体の反応性の測定法

1962 年の水和電子の発見以来、化学的活性粒子としての溶媒和電子、特に、水和電子の重要性が大きくなってきた。過去数 10 年間では、溶媒和途中の電子や溶媒和前の「ドライ」電子、つまり、自身の溶媒和殻が部分的にしか形成されていない、あるいは、まったく形成されていない電子、の反応が問題になってきている。電子の反応の研究には、ピコ秒およびナノ秒パ

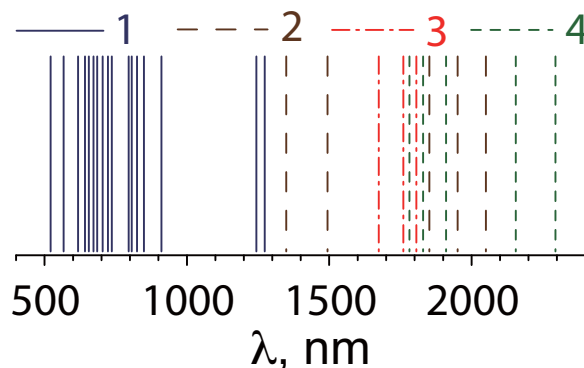
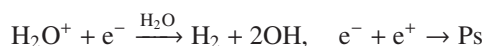


図 6. 種類の異なる液体中の  $e_s^-$  に対する最大光学吸収バンドの位置。1: ヒドロキシ化合物 ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{ROH}$ , エチレングリコール, グリセリン), 2: アンモニア ( $\text{NH}_3$ ) とアミン ( $\text{CH}_3\text{NH}_2$ ,  $\text{CH}_2(\text{NH}_2)_2$ ), 3: アミド ( $\text{RC(OH)NH}_2$ ), 4: 単純な構造のエーテル ( $\text{H}_3\text{C}_2\text{OC}_2\text{H}_5$ )。  $E_{\max}(\text{eV}) = 1240/\lambda_{\max}(\text{nm})$ 。

ルスラジオリシス装置が利用されている。「ドライ」電子の研究は、種々の物質のポジトロニウム形成率の測定によっても<sup>\*3</sup>、「ドライ」電子の研究が可能である。

以下でわかるように、凝縮分子媒質中の Ps と水中の放射線分解水素分子は、類似した機構で生成する。これらの共通の先駆体は水和する前の擬似自由電子  $e^-$  である。



したがって、水和前の電子を捕獲する受容体は、Ps と  $\text{H}_2$  の形成に対して類似の影響を与える。

凝縮相中の電子およびその他の放射線分解生成物の反応性を測定する最も有効な方法は、パルスラジオリシス法である。溶媒の放射線分解で生じる化学的に活性な放射線分解生成物 ( $e_s^-$ , OH,  $\text{C}_6\text{H}_{12}^+$ , ...) と溶質との反応を調べる場合の基本原理は次の通りである。エネルギー数 MeV まで加速した強力な電子線の短パルス ( $10^{-11}$  s– $10^{-9}$  s) を、溶質 S (アセトン,  $\text{N}_2\text{O}$ , ...) を含む液体または固体の溶媒 (水,  $n$ -ヘキサン, ...) で満たされた特殊なセルに照射する。セルの電子線の照射方向と垂直な方向からは、光のビームを入射する。セルを透過した光は、モノクロメータで溶媒の放射線分解生成物 (たとえば,  $e_s^-$ ) の最大吸収波長だけが選別された後、光電子増倍管に入射する。電子の照射中は、二次電子の濃度  $c_e$  と正イオンの濃度  $c_i$  が増加するが、照射の終了とともに、電子とイオンは互いに再結合し、消失していく。

$$dc_e/dt = -k_{ei}c_e c_i$$

照射前の試料中に正イオンのように電子を捕獲できる物質 S が濃度  $c_S$  含まれていたとすると、電子の再結合速度に受容体による電子捕獲を表す二番目の項  $k_{eS}c_e c_S$  を加える必要が出てくる。十分な時間が経過して、この二番目の項だけが残れば、電子の濃度は指数関数的に変化ようになる。

$$c_e(t) = c_e^0 \cdot e^{-t/\tau_e}, \quad \tau_e^{-1} = k_{eS}c_S$$

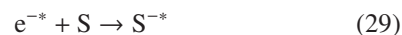
ここで、 $\tau_e$  は電子の平均寿命である。濃度の比  $c_e/c_e^0$  は時刻  $t$  においてセル内で吸収される光の強度と  $t=0$

における光の吸収強度の比である。光吸収が最初に比べて 37% までに低下する時間  $t_{37}$  を求めれば、反応速度定数  $k_{eS} = 1/(c_S t_{37})$  が得られる。実際に反応速度定数を求める手順がずっと複雑であることはいうまでもない。

現在、電子の反応の研究には、ピコ秒およびナノ秒パルスラジオリシスが用いられているが、陽電子消滅分光法と発光メスバウアー分光法も利用されている。

### 1.2.3 「ホット」電子の受容体との反応

非電離電子とエピサーマル電子は、陽イオンラジカル  $\text{H}_2\text{O}^{+\bullet}$  と同様に、トラック内第一次化学活性生成物である。非電離電子とエピサーマル電子の初期エネルギースペクトルはイオン化エネルギーから熱エネルギーまで及んでおり、その特徴的な熱化時間は 0.1 ps より短い。この時間内に、これらの電子は数百オングストロームの距離を進み、添加されている分子の濃度が  $\geq 0.01$  M であれば、高い確率でこれらの分子と衝突する。したがって、エピサーマル電子が、熱化の途中で水に溶解している物質と反応する可能性は否定できない。水中でこのような反応が起こるという直接の証拠はないが、非極性溶媒中で同様の反応が進行することが知られている。エピサーマル電子の反応は、通常、「共鳴」の特徴をもっている (図 7)。「共鳴」という言葉は、受容体 S が完全に特定のエネルギーのエピサーマル電子  $e^*$  とだけ選択的に反応することを意味する。



$W$  の関数としての液体に溶解している物質による電子の共鳴捕獲断面積  $\sigma_L(W)$  は、ふつう、鐘のような形をしていて、液体中の電子励起状態  $S^*$  の構造とその緩和に依存する (図 7)。

エネルギー  $W$  から  $W-dW$  まで減速される際に、電子  $e^-$  が溶質 S による共鳴捕獲をのがれる確率  $\varphi_e(W)$  は次のように表される。

$$\varphi_e(W-dW) = \varphi_e(W)(1 - c_S \sigma_L(W)dx) \quad (30)$$

$$\varphi_e(W_0) = 1, \quad dx = \frac{dW}{|dW/dx|_{\text{vib}}}$$

ここで、 $W_0$  はトラック内非電離電子の初期エネルギー、 $\sigma_L(W)$  は (液相中の) 受容体 S による電子の捕獲断面積、 $c_S$  は受容体の濃度、そして、 $|dW/dx|_{\text{vib}}$  は振動自由度の励起による電子の線エネルギー損失である。

(30) から、 $\varphi_e(W)$  に関する微分方程式をたやすく得ることができる。この方程式の解を陽電子トラックの

<sup>\*3</sup> 訳注：ポジトロニウム (Ps) は陽電子と電子が互いにクーロン力で結合した水素原子類似の束縛状態である。通常、スピン一重項のパラポジトロニウム ( $p$ -Ps) とスピン三重項のオルトポジトロニウム ( $o$ -Ps) が 1:3 の割合で生成する。 $o$ -Ps は、 $p$ -Ps および Ps を形成しない陽電子と比べて寿命が長い。ため、陽電子寿命測定により長寿命成分の相対強度  $I_3$  を測定すれば、Ps (正確には  $o$ -Ps) の取率が求められる。



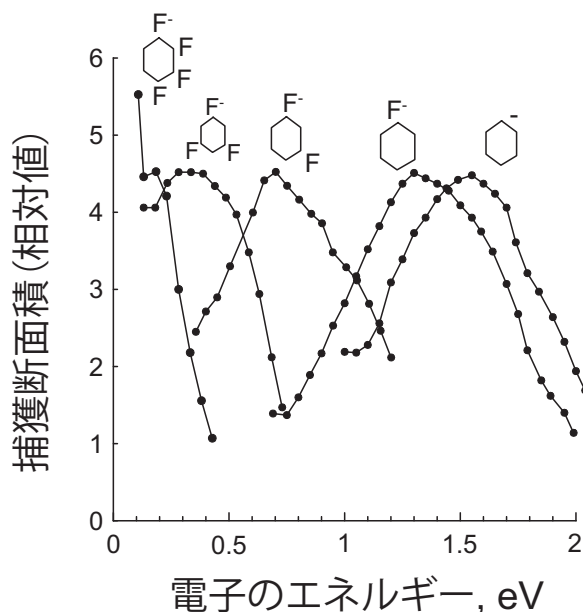


図7. 陰イオンを形成する分子による気相中の電子捕獲断面積のエネルギー依存性.

末端ブロップで形成された非電離電子のエネルギースペクトル  $F(W_0)$  で平均化すれば, 受容体による捕獲をのがれる電子の割合  $\varphi_e$  が得られる.

$$\varphi_e(c_S) = \left\langle \exp \left( -c_S \int_0^{W_0} \frac{\sigma_L(W)dW}{|dW/dx|_{\text{vib}}} \right) \right\rangle_{W_0} \quad (31)$$

ここで,  $\langle \dots \rangle_{W_0}$  は,  $f(W_0)$  についての平均化を意味する.

多くの受容体について, 気相中の電子捕獲の共鳴断面積  $\sigma_G(W)$  が知られている. 液相での断面積  $\sigma_L(W)$  は, 気相中の断面積  $\sigma_G(W)$  と同じ形をしているが, 最大断面積を与えるエネルギーは異なっているでしょう. 液相中で最大断面積を与えるエネルギーは, 擬似自由陽電子の基底状態のエネルギー  $V_0$  および付加体  $S^{\cdot-}$  の周囲との電子分極相互作用エネルギー  $P_{S^{\cdot-}}$  に依存する.

気相中で  $\sigma_G(W)$  が  $W_G$  で最大値をとるならば (図8), 液相では断面積  $\sigma_L(W)$  の最大は次のエネルギーで現れる.

$$W_L = W_G - V_0 - |P_{S^{\cdot-}}| \quad (32)$$

ただし, こうなるのは等式 (32) の右辺が正になる場合だけである. もし  $W_G - V_0 - |P_{S^{\cdot-}}| < 0$  であれば,  $\sigma_L(W)$  は  $W_L = 0$  で最大となるだろう. 溶媒分子と溶質分子

S の大きさが同程度のときは,  $P_{S^{\cdot-}}$  と  $V_0$  の分極部分はほぼ打ち消しあうので, (32) は簡単になる.

$$W_L \approx W_G - K$$

ここで,  $K$  は液体中の擬似自由電子が持ちうる運動エネルギーの最小値である. (19) と (20) から,  $K = 5.33 \times R_y \times (a_B/R_{WS})^2$  と見積もれる. 物質 S の気相中における  $\sigma_G(W)$  の最大値が熱エネルギー付近にあるときは, 液相中では S は自身の電子捕獲能を完全に失う可能性がある. これは,  $W_G - K$  がゼロより小さいときに生じる.

単純化のため,  $\sigma_G(W)$  がデルタ関数型  $\sigma_0 \delta(W - W_G)$  であるとしよう. そうすると (31) から次のようになる.

$$\varphi_e(c_S) = \begin{cases} 1 - F + F \exp(-c_S/c_{37}) & W_G > K \\ 1 & W_G < K \end{cases} \quad (33)$$

$$F(W_L = W_G - K) = \int_{W_L}^{\infty} f(W_0) dW_0, \quad \frac{1}{c_{37}} = \frac{\sigma_0}{\text{LET}(W_L)}$$

ここで,  $\text{LET}(W_L)$  は,  $W_L \approx W_G - K$  のときの  $|dW/dx|_{\text{vib}}$  である.  $c_S$  の増加とともに,  $\varphi_e$  が一定になることがわかる.  $\varphi_e(c_S \rightarrow \infty) = 1 - F$ .  $1 - F$  は  $W_L$  より小さいエネルギーで分子から放出され, 共鳴捕獲をのがれる電子の割合である. 任意の液体について, この割合は  $W_G$  の増加とともに大きくなる.

図9は, ハロゲン化ベンゼンによる共鳴電子捕獲で生じる *o*-Ps の収率の変化を示している. 気相中で  $e^-$  捕獲断面積が最大となる電子エネルギーは,  $C_6H_5I$ ,

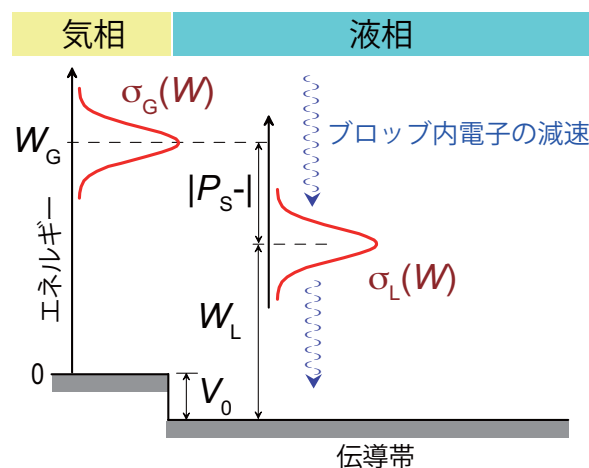


図8. 気相中および液相中の過剰運動エネルギーをもつ電子 (陽電子) の共鳴捕獲.

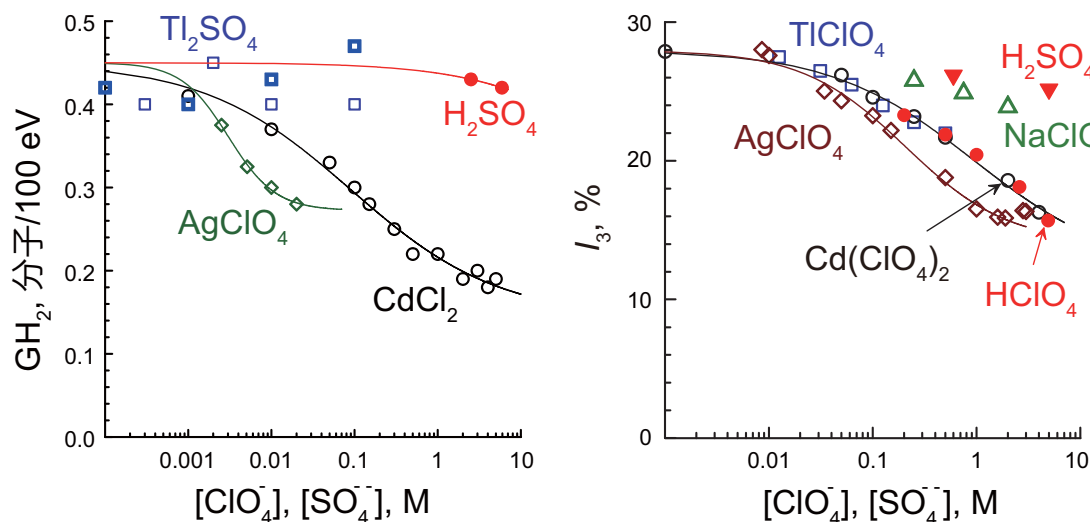


図 11. 塩と酸の水溶液における放射線分解水素 ( $\text{Ti}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{CdCl}_2$ ,  $\text{AgClO}_4$ ) と *o*-Ps ( $\text{TiClO}_4$ ,  $\text{Cd}(\text{ClO}_4)_2$ ,  $\text{AgClO}_4$ ) の部分的形成禁止. 右図の  $I_3$  は *o*-Ps の相対強度を示す.

$\text{C}_6\text{H}_5\text{Br}$ ,  $\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl}$  に対してそれぞれ 0.1 eV, 0.7 eV, 1 eV である.  $1-F$  の値, すなわち, 図 9 のデータをあてはめて得られた *o*-Ps 成分の限界強度の比率は, それぞれ, 0.02, 0.19, 0.32 であり, 次第に増加している.

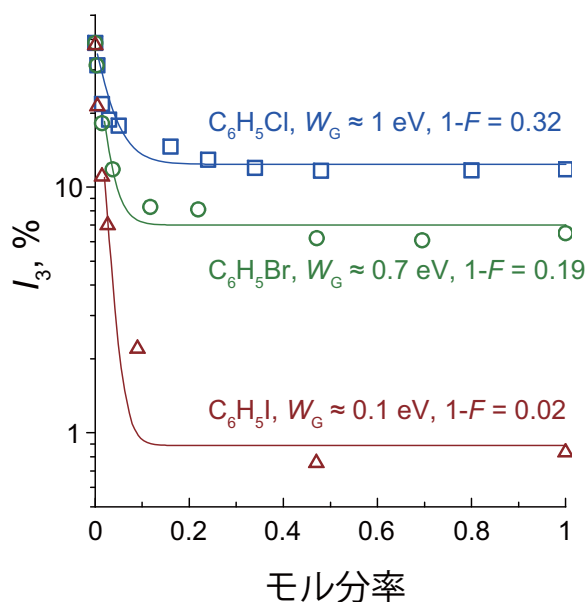


図 9. ベンゼンの  $\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl}$  ( $\square$ ),  $\text{C}_6\text{H}_5\text{Br}$  ( $\circ$ ),  $\text{C}_6\text{H}_5\text{I}$  ( $\triangle$ ) 溶液での *o*-Ps の相対強度. 形成禁止の大きさ  $F$  と相当する  $W_G$  の値の間に相関が見られる. 曲線は (33) により計算されたもの.

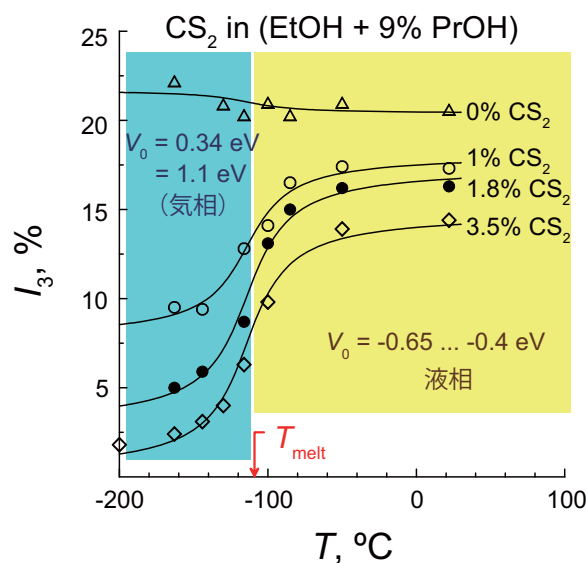


図 10. 種々の濃度の  $\text{CS}_2$  を含む混合物 ( $\text{EtOH} + 9\% \text{PrOH}$ ) 中の *o*-Ps の相対強度の温度依存性 (グラフ内の数値は  $\text{CS}_2$  の濃度を体積パーセントで示したもの). 曲線はわかりやすくするために引いたもの.

受容体による  $e^-$  捕獲効率のエネルギー依存性は,  $\text{CS}_2$  を添加したエタノール中の *o*-Ps 成分強度の温度変化のデータを使って考察できる (図 10). 融点 ( $-114^\circ\text{C}$ ) より高い温度では, Ps の収率は実際上変

化しない．ところが，Ps 収率は固相への転移，そして，CS<sub>2</sub> 濃度の増加に応じて顕著に減少する．このように，CS<sub>2</sub> による電子捕獲効率はエタノールの集合状態に強く依存する．液体状態では，V<sub>0</sub> は -0.4 eV と -0.65 eV の間にある．融点以下では，V<sub>0</sub> は正になり，0.34 eV-1.1 eV である．V<sub>0</sub> の増大は電子のゼロ点運動エネルギー  $K = V_0 + |U_p|$  を上昇させる．(17) で  $R_{WS} = 2.84 \text{ \AA}$ ， $\epsilon_\infty = 1.85$  とすると， $U_p \approx 3 \text{ eV}$  となるが，この値は集合状態にはほとんど依存しない．したがって，固相ではエネルギーのしきい値が熱エネルギーに近づき，CS<sub>2</sub> はより有効な電子受容体となる．

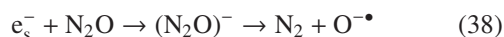
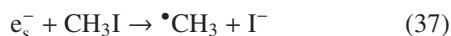
溶質濃度の増加による水素と Ps の不完全（部分的）な収率の抑制は水溶液でも生ずる．Cd<sup>2+</sup>，Ag<sup>+</sup>，Ti<sup>+</sup> イオンなどがこのような挙動を示す（図 11）．

#### 1.2.4 溶媒和電子の挙動

極性液体 溶媒和電子は多くの物質と相互作用する．溶媒和電子の反応性は溶媒の性質に依存する．極性溶媒中の e<sub>s</sub><sup>-</sup> の二つの基本的な反応は，単純な非解離性電子付着



と解離性電子付着



である．解離は電子を受け取る分子のフラグメントの一つの電子親和力とその結合エネルギーよりも大きいときに生じる（ $EA(I) = 3.06 \text{ eV}$ ， $EA(N_2) < 0$ ， $EA(O_2) = 0.45 \text{ eV}$ ）．

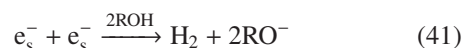
この種の最も重要な反応は，酸性の水溶液とアルコール溶液中で高効率で進行する水和電子からの水素原子の生成である（ $k(e_{aq}^- + H^+) \approx 2.4 \times 10^{10} \text{ M}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ）<sup>\*4</sup>．



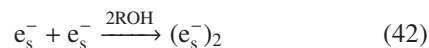
金属イオン（Cu<sup>2+</sup>，Ag<sup>+</sup>）の還元は電子の酸化還元電位がイオンの酸化還元電位より大きいとき生じる（ $E^0(e_{aq}^-) = 2.7 \text{ V}$ ， $E^0(Cu^{2+}/Cu^+) = -0.17 \text{ V}$ ， $E^0(Ag^+/Ag^0) = -0.8 \text{ V}$ ， $E^0(Li^+/Li^0) = 3.0 \text{ V}$ ）．水和電子は多くの金属イオンを還元する．

水およびアルコール中では次の二量化反応も起こ

る．



これらの反応はバイポーラロンの形成を通して進行すると考えられている．



液化アンモニウム，アミン，ヘキサメチルフォスフォートリアミドでは，溶媒和電子は溶媒と反応しない．これらの液体にアルカリ金属を溶解させた際に生成する溶媒和電子は，安定である．これ以外の極性液体（水，アルコール，ジメチルスルホキシド，アミド）では



のような反応が生じるが，反応速度定数はきわめて小さい（ $k(e_{aq}^- + H_2O) \approx 17 \text{ M}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ）．

非極性溶媒 非強極性液体での擬似自由電子が受ける変化は，最初のうちは極性媒質中と似かよっている．擬似自由電子は電子分極と相互作用し，浅いトラップに局在化し，擬似局在化電子へと変化する．トラップは，電子の周囲の分子がエネルギー的に有利になるように配向するために形成される．

溶媒和状態は，*n*-ヘキサンのような炭化水素では，電子によって生じた電場の方向に分子が配向することによって生じる．この配向の原因はこれらの分子の異方性をもった分極率であり，電場の向きに自身の最も大きな分極軸を配列させる．さらに，トラップ（ナノ空間）の拡大も起こる．これらはすべて電子のポテンシャルエネルギーを低下させる．上述した過程の起こる時間は，図 1 に示されている．

擬似局在化電子は，非極性液体中で，極性溶媒の場合と同様に，擬似自由状態に変化する可能性もある．非極性液体においては，極性液体と異なり，溶媒和状態になってもトラップはほとんど深くならない．このため，擬似自由電子，擬似極在化電子そして溶媒和電子の間で平衡になる場合がある．

分子の形が球形に近い非極性液体（液化メタン，ネオペンタン，テトラメチルシランなど）では，分極率の異方性も，また，分子配列の効果もない．そのため，これらの液体では，電子は擬似自由状態をとる．電子の移動度は極めて高く，その反応性も大きい．炭化水素のイソ体では，球形の分子構造をもつ炭化水素

\*4 溶媒和前の電子は，仮に水素イオンと反応するとしても，きわめてゆっくりとしか反応しない．

( $C(CH_3)_4$ ) と直鎖炭化水素 ( $C_nH_{2n+2}$ ) の間の挙動を示す。

球形の分子構造をもつ液体は、直鎖炭化水素に比べて電子の  $V_0$  の値が低いことに注目しよう。  $V_0$  は真空中に静止している電子を液体中のエネルギーの低い非局在状態に移すのに必要なエネルギーである。原則として、  $V_0$  が低ければ低いほど、電子の移動度は大きくなり、しばしば、その反応性も高くなる。つまり、非極性液体の溶媒和電子は極性液体よりずっと反応性が高いと言える。

液化された希ガス、アルゴン、クリプトン、キセノンにおいては、擬似自由状態電子は安定で、移動度が非常に大きく、また、反応性も例外的に高い。反対に、液体ネオンや特にヘリウムでは、電子はナノ空間に捕獲されていて、移動度が小さい。

固体 固体の照射により種々の電子の捕獲中心が生じる。そのうち最も重要なものは、以下の通りである。

電離放射線のハロゲン化アルカリ結晶 (LiF, NaCl, KBr など) との相互作用により、F センターが形成される。F センターは、陰イオン欠陥に局在化した電子である。このほか、一つの欠陥に二つの電子が存在する場合もあり、F' センターと呼ばれる。F' センターは十分高い線量が吸収された場合に生じる。

ガラス系 (たとえば、急冷された液体や溶液、高分子) の低温放射線分解では、比較的高い収率で捕捉電子  $e_{tr}^-$  が形成される。液体中の溶媒和電子と異なり、捕捉電子は安定である。とはいっても、液体とガラス系における電子捕捉は、多くの点で似かよっている。

#### 〈参 考 文 献〉

- 1) B. E. Springett, J. Jortner, M. N. Cohen, J. Chem. Phys., 48 (1968) 2720.

#### 〈原 著 者 プ ロ フ ィ ール〉

フセヴォロド・ミハイロヴィッチ・ビャーコフ：  
Vsevolod Mikhailovich Byakov. 1954 年モスクワ大学 (Lomonosov Moscow State University) 卒業。大学では、理論物理学者テルレツキー (著書「相対性理論のパラドックス」(東京図書) で日本でも知られている) の研究室で宇宙線の起源に関する研究を行った。大学卒業後、ESR の創始者であるザボイスキーの招きで、理論実験物理学研究所 (Institute of Theoretical and Experimental Physics, ITEP) に入所 (母方の祖父が勤

務していた化学工場でザボイスキー家の人々と一緒にいた時期があったとのこと)。原子炉 (均一型軽水炉) 関連の物理化学過程や排ガス中の硫黄、窒素酸化物の放射線除去などの研究を実施。1973 年には、水および分子性物質中において、放射線分解による水素生成とポジトロニウム形成が共通の機構で生じることを提唱した。地球における石炭や石油の生成における放射線の役割についての研究も行っている。現在、ITEP 相談役、ロシア化学技術大学 (D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia) 教授。主な研究分野は、放射線化学、宇宙物理学。

セルゲイ・フセヴォロドヴィッチ・ステパノフ：

Sergey Vsevolodovich Stepanov. 1983 年、モスクワ金属工業大学 (Moscow Institute of Steel and Alloys) 卒業。1987 年、“Spin dynamics of the polarized short-lived beta-active nuclei. Beta-NMR spectroscopy” の研究で ITEP から Ph. D. 取得。2005 年、“Positrons in molecular media: theoretical grounds of positron annihilation spectroscopy” の研究で、博士学位取得。現在、ITEP の原子スケール研究センターの副センター長。モスクワ大学主任研究員と国立核研究大学 (National Research Nuclear University “MEPhI”) の准教授を兼任。主な研究分野は、原子核プローブによるスピンドYNAMIX、ポジトロニウム化学。



図 12. 原著者近影。左：ビャーコフ氏、右：ステパノフ氏。

#### 〈著 者 略 歴〉

小林 慶規：1976 年 東京大学工学部卒業、1981 年 東京大学大学院工学系研究科修了、工学博士。通商産業省工業技術院化学技術研究所、1997 年 物質工学工業技術研究所研究室長、2001 年–2012 年 産業技術総合研究



所計測標準研究部門研究室長，現在，計測フロンティア研究部門主任研究員，2013 年-東北大学金属材料研究所非常勤講師。専門：材料分析，放射線化学，陽電子科学。趣味：軽いランニング，将棋。

岡 壽崇：2003 年 早稲田大学大学院理工学研究科単位取得退学，博士（理学）。早稲田大学，産業技術総合研

究所，千葉大学，日本原子力研究開発機構，早稲田大学，大阪大学を経て，現在，東北大学高等教育開発推進センター/東北大学大学院理学研究科助教。専門：高分子物性，量子ビームを用いた材料分析。趣味：ウインタースポーツ，ラグビー観戦ほか。

## 第 56 回放射線化学討論会 講演 2I-1:兵庫県立粒子線医療センターの現状と 粒子線治療の普及について

兵庫県立粒子線医療センター 須賀 大作

### 1 兵庫県立粒子線医療センターの現状

2 年間におよぶ陽子線臨床試験と炭素イオン線臨床試験を経て、2003 年 4 月 1 日に兵庫県立粒子線医療センターは供用開始となった。現在の社会事情では着手困難と思える総工費 288 億円をかけたプロジェクトは、検討委員会設置から 11 年目にしてようやくの開設となった。

2013 年 12 月までに 5881 名の治療を実施した。10 年間の治療数推移をみると、前半 5 年の年間治療数は平均 413 人、後半 5 年の年間平均数は 677 人と約 64% の増加を示した。公知が進んだことと、医療機関の粒子線治療への理解が進んだことから安定した治療受け入れが見込めるようになってきている。

当初は前立腺がん治療が約 40% を占めていたが近年は、肝がん、すい臓がんの増加が顕著となっている。今後はこれらの部位の治療精度をさらに向上させる取り組みが必要と考えている。国内の粒子線治療施設それぞれが戦略的な治療部位を設定しており、兵庫県では、今後は小児がんを戦略的な治療対象としていく方針である。

### 2 粒子線治療の普及について

Figure 1 に示すように「線量集中性に優れ副作用を軽減する粒子線治療」への期待は国内外で高まっている。現在、国内施設は炭素イオン線治療施設 4 施設、

陽子線治療施設 8 施設の合計 12 施設が稼働している。整備中の施設は炭素イオン線 1 施設、陽子線 4 施設であり 2014 年以内に新たに整備を開始する施設は 4 施設以上が見込まれる。2020 年には 30 施設を超えることも予測される。施設整備の後押しをしているのが装置の省スペース化、小型化と照射技術の多機能化および省コスト化である。

現在、粒子線治療は先進医療として位置づけられている。2010 年の先進医療件数は 123 件で医療費総額は 173 億円、自己負担費は 98 億円にのぼっている。粒子線治療は 2 件（陽子線と重粒子線）で医療費総額 79 億円と全先進医療総額の 46% に達している。粒子線治療の自己負担費は 66 億円と全先進医療自己負担費の 67% に達している。診療報酬改定のたびに保険収載が検討されるが当面収載は見込めそうにない。小児がん、骨軟部腫瘍など有効性のある部位の早期保険収載が期待されている。保険収載が行われない期間は先進医療と位置付けられるために治療費用は変化しない。つまり、収益試算が容易であるため施設整備の意欲が上がることも普及の一因と考えられる。

### 3 治療装置の動向

粒子線治療装置は既存の施設に収めることは難しく、そのため専用の治療建屋を整備することになる。治療装置の省スペース、小型化は建屋コストの削減にも影響するため積極的に検討されている。Figure 2 に小型化された陽子線治療ガントリと建屋を示す。将来的にはエックス線治療機器と同等の大きさとなることが期待されている。

粒子線は「止まる放射線」、「加工できる放射線」という特性を有している。これらの物理特性を生かした照射技術の開発が進められている。

Figure 3 に標準照射技術である Broad Beam 法と積層

Lecture 2I-1: The present status of Hyogo Ion Beam Medical Center and the world-wide spread of particle therapy  
Daisaku SUGA (Hyogo Ion Beam Medical Center),  
〒679-5165 兵庫県たつの市新宮町光都 1-2-1  
TEL: 0791-58-0100, FAX: 0791-58-2600,  
E-mail: dash@bb.banban.jp

線量分布図

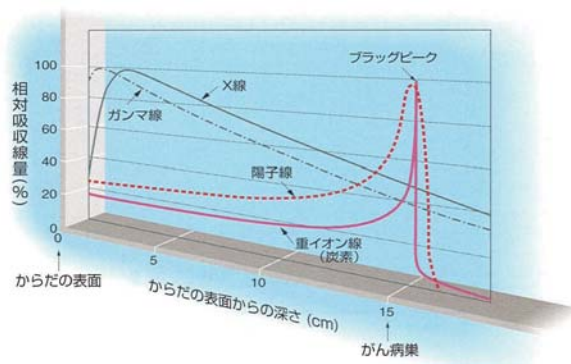


Figure 1. Dose distribution of the particle beam.

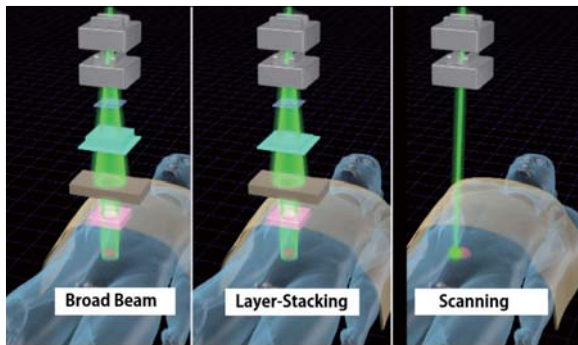


Figure 2. Image of space-saving proton therapy facility.

原体照射法（Layer Stacking）および加速器から出射した Narrow Beam を描画で積み重ねて照射する Scanning 法を示す。様々な形状を呈する腫瘍へ最適な線量分布を形成させるための三次元照射技術の開発が進められている。

#### 4 人材の確保と育成について

治療の多様化・複雑化に伴って専門分化が進み、放射線治療医だけでは様々な情報を総合して判断することは困難になっている。放射線治療医、医学物理士、

放射線治療専門技師、がん看護専門看護師など多くの人材が質の高い安全な放射線治療を実施するために必要となっている。

このうち、医学物理士だけが学会認定資格となっており、早期の国家資格への格上げが必要である。現在、医学物理士は約 700 名と有資格者は増加しているが 2/3 は放射線技師で、理工系出身者は 1/3 に留まってい

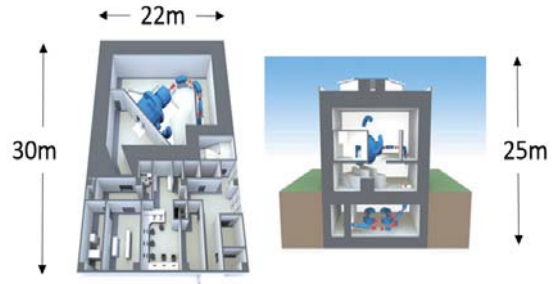


Figure 3. Beam-delivery technique in particle therapy.

る。理工系出身者の増加を期待する背景に「専任」と「専従」の違いがある。「専任」は担当すること意味し他の業務に就いていてもかまわない、一方「専従」はほかの仕事をしてはならない。治療の質と安全を維持するため医学物理士は専従であるべきだが、専任でもよいとされているため放射線技師が兼務する事例が増えている。近年、「がんプロフェッショナル養成プラン」など医学物理士育成コースが設けられ育成のためのコースが整備されてきている。

#### 5 まとめ

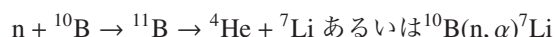
欧米における放射線治療の適応はがん患者の 60% に達しているが日本では 25% 約 16 万人となっている。日本における放射線治療の増加は 2015 年にはがん治療法の 40% に達すると見込まれている。比例して粒子線治療施設も増加していくことが予測される。放射線治療におけるチーム医療を支える人材の育成が急務となっている。理工系出身者の医療への貢献が期待されている。

第 56 回放射線化学討論会  
講演 2I-2: 加速器 BNCT 時代を見据えての  
基礎・臨床研究の展開

京都大学原子炉実験所 鈴木 実

1 ホウ素中性子捕捉療法 (Boron neutron capture therapy, BNCT) の原理

ホウ素 (Boron, B) の安定同位体である  $^{10}\text{B}$  (天然存在比: 19.9%) は, エネルギーの低い中性子である熱中性子 ( $< 0.5 \text{ eV}$ ) を捕獲する確率 (中性子捕獲断面積) が非常に大きい. 熱中性子を捕獲した  $^{10}\text{B}$  は, ヘリウム原子核 ( $\alpha$  粒子) と反跳リチウム原子核に分裂する.



この反応によって生じるヘリウム原子核, リチウム原子核は, 分裂後それぞれ  $9 \mu\text{m}$ ,  $4 \mu\text{m}$  と細胞 1 個の大きさ以下の距離 (飛程) を動き停止し, その間に全運動エネルギーを放出する high-linear energy transfer (高 LET) 放射線であり, 殺細胞効果が大きい (Figure 1).

ホウ素中性子捕獲反応を, 癌治療に応用したのがホウ素中性子捕獲療法 (Boron neutron capture therapy, 以下 BNCT) である. あらかじめ, 腫瘍に集まりやすい性質を有するホウ素化合物を患者に投与し, その後に中性子を患部に照射する. その結果として引き起こされる中性子捕獲反応により放出される high-LET 放射線であるヘリウム原子核, リチウム原子核の飛程は, 癌細胞の大きさを超えないため癌細胞周囲の正常組織への損傷を与えずに, 癌細胞のみが死滅する.

BNCT が成功するか否かは, ホウ素化合物の癌細胞選択的集積に負うところが非常に大きい. 現在臨

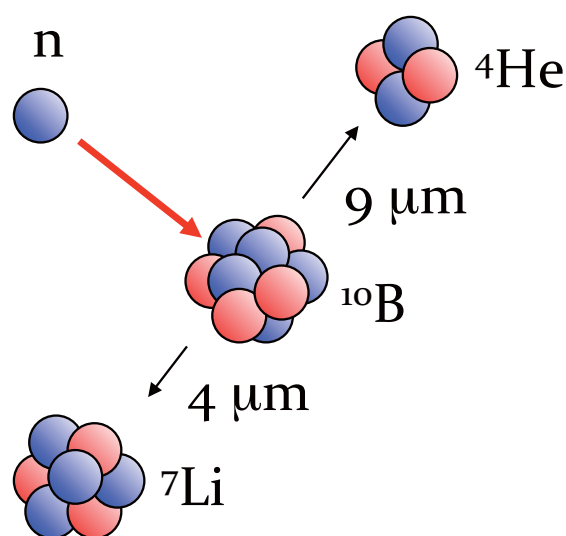


Figure 1. Nonradioactive isotope  $^{10}\text{B}$  atoms that absorb low-energy ( $< 0.5 \text{ eV}$ ) neutrons (thermal neutrons) disintegrate into an alpha ( $^4\text{He}$ ) particle and a recoiled lithium nucleus ( $^7\text{Li}$ ). These particles deposit high energy along their very short path ( $< 10 \mu\text{m}$ ).

床試験で使用されているホウ素化合物は Borocaptate sodium (BSH) とアミノ酸であるフェニルアラニンの誘導体である Boronophenylalanine (BPA) の 2 種類である. 前者は主として悪性脳腫瘍に用いられてきた. BSH は通常, 脳血液関門を通過できないため, 正常の脳組織にはほとんど浸透しないが, 悪性脳腫瘍では通常, 脳血液関門が破壊されているために, BSH が脳腫瘍に浸透し, 結果として脳腫瘍と周囲正常脳組織の間にホウ素濃度の集積勾配が形成される.

BPA はアミノ酸誘導体であるため, アミノ酸トラン

Lecture 2I-2: Basic and clinical research on BNCT for coming accelerator-based BNCT era

Minoru Suzuki (Kyoto University Research Reactor),  
〒590-0458 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2-1010  
TEL: 072-451-2390, FAX: 072-451-2627,  
E-mail: msuzuki@rri.kyoto-u.ac.jp



スポーターを介して、増殖能が亢進している癌細胞により多くとりこまれると考えられている。BPA は腫瘍に一定の割合で存在するとされている増殖の停止した休止期細胞には取り込まれにくい。この弱点の克服は BPA と BSH の併用により、腫瘍内のホウ素分布の不均一を低減させることで可能である。

## 2 BNCT の現状・適応疾患

京都大学原子炉実験所研究炉 (Kyoto University Research Reactor, 以下 KUR) では、2014 年 2 月までに 472 例の BNCT を実施しており、症例数、適応疾患ともに世界最多であり、日本の BNCT 研究が世界の BNCT 研究をリードしている。現在までの BNCT の症例数とその内訳は、悪性脳腫瘍と頭頸部腫瘍が症例の大多数を占めているが、近年、中皮腫などの体幹部腫瘍の症例も増加している。

BNCT の良い適応と考えられるのは、放射線治療後の局所再発腫瘍である。実施症例の大多数を占める。通常、放射線治療後の局所再発腫瘍に対して、2 回目の放射線治療は不可能である。2 回目の照射は、既に高線量が照射されている腫瘍周囲の正常組織に重篤な、時には致命的な有害事象を引き起こすため、原則禁忌である。BNCT は、第 1 節の原理で述べたように、細胞レベルで、癌細胞と正常組織に照射線量に大きな勾配をつけることが可能であるので、再照射が可能である。もう 1 つの良い適応疾患は、正常組織の耐容線量の低い代表的臓器である肝臓、肺に多発する腫瘍である。肝臓、肺に単発の癌は、手術可能であれば外科的切除が選択されることが多い。また、高齢あるいは合併症の理由で、手術不可の場合は、定位放射線治療、粒子線治療など、腫瘍選択的に高線量を集中可能な放射線治療が選択される。しかし、多発肝腫瘍、多発肺転移、悪性胸膜中皮腫、胸膜播種などの、肝臓、肺に多発する癌あるいは、境界不明瞭に広がっていく癌に対する放射線治療は、肺全体、肝臓全体の耐容線量は 20 Gy–30 Gy であり、腫瘍の治癒線量の 50 Gy–70 Gy より低いことから、実施不可能である。一方 BNCT は、癌細胞選択的重粒子線治療という特長から、全肺 (患側肺全体) 照射、全肝 BNCT 照射が可能であり、現在、悪性胸膜中皮腫に対する臨床研究を実施中である。

## 3 加速器 BNCT 照射システムの開発

第 2 節で述べたように研究用原子炉である KUR を中性子源として、悪性脳腫瘍、再発頭頸部腫瘍に対しての BNCT 臨床研究を実施中であるが、年間実施可能

症例数は 50–80 症例である。BNCT が癌治療の臨床現場に与えるインパクトは限局的である。

この状況を一変させる加速器中性子源 BNCT 照射システムが、住友重機械工業との共同研究により開発された。この照射システムは、陽子線治療、重粒子線治療と比較して非常にコンパクトな設備であり、既存の病院への併設が十分可能である。京都大学原子炉実験所では、大阪医科大学脳神経外科と共同に、加速器 BNCT 照射システム、使用するホウ素薬剤の医療機器、薬事承認に向けての治験が、再発悪性腫瘍を対象疾患として、2012 年 10 月より開始され現在も継続中である。

加速器 BNCT 時代到来を見据えての臨床研究は、多くの医療施設での BNCT の実施が可能になることから、より罹患頻度の高い悪性腫瘍への適応拡大である。その候補として、肺癌、大腸癌、乳癌に対しての、放射線治療後の局所再発腫瘍に対する臨床研究を計画中である。特に肺癌、乳癌に対しては、初回の標準治療として放射線治療が組み込まれている症例が多く、局所再発症例に対して有効な治療法は確立されておらず、BNCT が果たすべき役割は大きいと考えている。

## 4 加速器 BNCT 時代を見据えての基礎研究

現在、国民の 1/2 が、癌に罹患している。また、ピンポイント照射といわれる高精度放射線治療 (定位放射線治療)、粒子線治療など、放射線照射技術が格段に進歩していることもあり、放射線治療が初回治療として行われる症例が増えている。しかし、残念ながら放射線治療後に、一定の割合で局所再発する症例は存在する。また、原発の癌が治癒した後に、肺・肝臓に血行性に多発転移する症例も多数存在する。第 2 節で述べたように BNCT は、放射線治療後局所再発癌、多発肺・肝転移腫瘍に対して適応が可能であるユニークな放射線治療モダリティである (Figure 2)。

加速器 BNCT は、そのコンパクトな設計から、粒子線治療施設以上 (現在、国内 10 数施設) に普及する可能性があり、対象となる患者数が非常に多いことを考えると、より一層普及させるべき医療技術であると考えている。加速器 BNCT 時代を見据えての基礎研究として、新規ホウ素薬剤の開発と医学物理に関して、何が必要かという観点から、研究課題の方向性について述べたい。

新規ホウ素薬剤あるいは、薬剤の Drug delivery system (DDS) 研究に関しては、BNCT の細胞選択重粒子線照射という特徴による相反する 2 つの方向性が

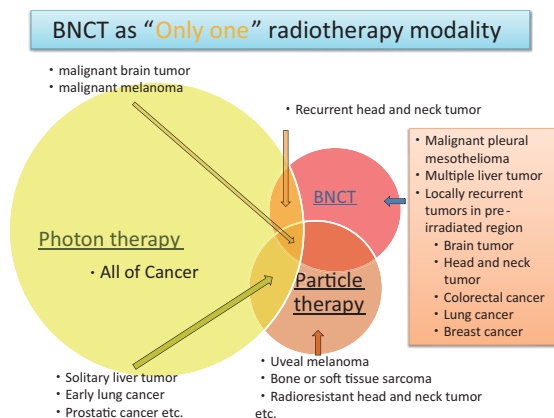


Figure 2. BNCT as "Only one" radiotherapy modality.

ある。1つは、癌細胞選択性をさらに特化させることであり、現在の分子標的抗癌剤治療の開発と共通する。この場合、腫瘍内でのホウ素薬剤が、より不均一に分布する可能性がある。このことは、BNCTのみの治療では、ホウ素薬剤の分布が不十分な腫瘍細胞には、治癒線量が与えられないことを意味する。その場合、BNCTは、腫瘍に対して領域的に線量を集中可能な高精度放射線治療あるいは粒子線治療後に追加するBoost照射として重要な役割を果たすことが期待される。例として、低酸素領域の腫瘍細胞、癌幹細胞、休

止期癌細胞、血管新生領域に選択的に集積する超選択的なホウ素薬剤の開発などが期待される。相反するもう1つの方向性は、正常細胞との集積比は保ちつつ、腫瘍により均一に集積するホウ素薬剤の開発であり、この方向性としては複数の薬剤の同時併用や、薬剤の投与経路としての新規DDS研究が重要であると考えられる。

加速器BNCTが普及する将来を考えての、医学物理研究としては国際標準となるBNCTの線量評価方法、線量測定技術、Quality assurance/Quality control (QA/QC) 用の測定機器の開発など、多くの重要な開発課題がある。

これらの基礎研究の実施、検証には中性子線照射が必須であり、大学の研究炉としてKURが果たすべき役割は非常に大きい。この分野以外にも、多種多様の研究分野との共同研究が加速器BNCTの普及発展には必要である。平成26年度の京都大学原子炉実験所の共同利用研究プロジェクトとして、筆者が研究代表者である「BNCT実用化に向けた橋渡し研究」が採択されており、本稿を読みBNCT研究に興味を持たれた方、是非、ご連絡いただきたい。

最後になりましたが、本稿執筆のきっかけとなりました、第56回放射線化学討論会での講演の機会をいただきました広島国際大学保健医療学部の林慎一郎先生、ならびに関係の先生方に、厚く御礼を申し上げます。



## 試料分析講座「半導体・電子材料分析」 日本分析化学会 編

半導体・電子材料分野においては、デバイスは微細化の方向に向かっている。つい数年前までは、CPU などは 45 nm ルール（微細加工技術の世代）で作製されていたが、現在は 28 nm ルールが主流であり、今後、20 nm を切ることが期待されている。このようなデバイスの微細化に伴い、ナノメートルスケールでの材料分析法や微量分析法が必要となってきた。本書は半導体・電子材料の評価に利用される種々のナノ分析法や微量分析法を非常にわかりやすく解説した本であり、研究室に配属されて材料分析を始める学部3年生-4年生でも十分理解できる内容となっている。

本書の構成は以下の通りである。

1. 半導体・電子材料の分析
2. 誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS)
3. 誘導結合プラズマ発光分析 (ICP-AES)
4. 二次イオン質量分析 (SIMS)
5. 蛍光 X 線分析 (XRF)
6. 三次元アトムプローブ (ATP)
7. 走査電子顕微鏡 (SEM)
8. 測長走査電子顕微鏡 (測長 SEM)
9. 透過電子顕微鏡 (TEM)
10. 走査プローブ顕微鏡 (SPM)
11. ラザフォード後方散乱分析 (RBS) と弾性反跳検出分析 (ERDA)
12. X 線反射率
13. 陽電子消滅
14. オージェ電子分光法 (AES) と X 線光電子分光法 (XPS)

第1章の導入は本会会員の小林慶規氏（産総研）が執筆されており、残り13章の分析法の解説は各分析法の専門家によって書かれている。

各分析法の解説章においては、まずは原理の基礎が簡潔に説明され、そのあとに測定方法や応用例を図・写真を用いて豊富に紹介される。この豊富な例が本書の最大の特徴といえよう。たとえば、金属元素分析法として有名な ICP-MS については実験器具の洗浄方法や検量線の作成方法、XRF では標準試料の準備方法や分析結果の再現性向上方法などが紹介されている。また、材料中の元素の三次元分布の測定が可能な三次元 ATP ではパルス電圧を印加する先端半径数十 nm の針状試料をどのようにして走査電子顕微鏡や収束イオンビームで作製するかが写真入りで解説されている。このように、実際に分析を行う際の注意点が「かゆいところに手が届く」ように述べられているため、他の解説書と違い、本書だけでも十分に新しい分析法を理解でき、すぐにでもナノ分析・微量分析に取り組むことが可能といえる。

タイトルは「半導体・電子材料分析」であるが、半導体・電子材料研究者だけでなく、分析化学や放射線化学研究者などの専門家にも有用であるのでぜひお勧めしたい。自分の研究室には微量分析を行う学生がいるので、測定方法の確認の意味も含めて、彼らに読ませたい一冊である。

書籍情報：単行本:328 ページ，丸善出版（2013/7），ISBN978-4-621-08700-8

（東北大学 岡 壽崇）



## 放射線利用振興協会の紹介

### 1 わたしたちのミッション

わたしたち（一般財団法人）放射線利用振興協会（英文略称は RADA）は、（財団法人）放射線照射振興協会として昭和 43 年に設立されて以来、放射線・原子力の利用振興を目指し、関連する知識と技術の普及を目的に、公益目的事業と収益事業を実施しています。当協会の沿革や事業内容の詳細については、ホームページに載せてありますので、ここでは簡単に触れることにして、ホームページには書かれていない取り組みなどについて述べることにします。

### 2 公益性と収益性

わたしたちのような法人には、公益法人であるか一般法人であるかを問わず「公益性」が求められています。このための公益目的事業としては、次のようなものがあります。

1. 普及事業：放射線利用の研究開発及び利用の状況に関する解説、特許等の実用化の状況、トピックス等を紹介する技術誌「放射線と産業」を刊行するとともに、「放射線利用シンポジウム」の開催を支援。
2. 技術移転事業：産業界等からの依頼を受けて J-PARC における中性子ビーム実験を実施し、中性子ビームの産業利用の普及に貢献。（稼働停止している研究炉 JRR-3 を用いた中性子産業利用支援は開始が遅れる見込みです。）
3. 研修事業：第 3 種放射線取扱主任者免状取得に係る講習を実施するとともに、文部科学省の国際原子力人材育成イニシアティブ事業「教育現場の放射線危機管理能力向上のための人材育成」等を実施。

ただ、これらの事業は、国や公共事業体などの補助がない限り、いわゆる「持ち出し」となるため、事業経営を維持するためには、本来のミッションに沿う形で収益を上げる事業も必要になります。それには次のようなものがあります。

1. 照射事業：民間では設置が困難な日本原子力研

究開発機構（以下「原子力機構」という）の大型照射試験施設を活用して、材料・電子機器等の改質・特性向上のための試験照射、原子炉構成部品の複合環境下での経年劣化試験等を実施。（シリコン半導体製造のための JRR-3 を用いた中性子照射については中断しています。）

2. 分析事業：原子力機構が行う各種分析の技術支援及び各種分析装置の保守管理を実施。
3. 施設利用推進事業：原子力機構の研究炉に設置されている各種利用施設、 $\gamma$ 線・電子線・イオンビーム照射施設の運転管理及び利用支援を実施。

以上の公益目的事業と収益事業のバランスですが、当然のことながら厳しい制約があります。「一般社団法人及び一般財団法人に関する法律」のもと、嘸み碎いて言うと、剰余金または剰余財産を分配してはいけない、というものです。幸いなことにというか、残念なことにというか、わたしたちの法人に限っては、今のところ財産がたまっていく心配はまったくありません。先般の福島原発事故以来、多くの原子力・放射線施設が稼働を制限されている現在、むしろサバイバルを賭けた経営努力が必要になっています。

### 3 まず分析そして対策

ひとつのモデルケースをご紹介します。Figure 1 に示すように、2007 年度から 2012 年度にかけて、当協会への  $\gamma$  線照射利用の申し込み件数が減少しています（図の jobs）。職員に尋ねたところ「不景気ですから」ということでした。本当にそうなのか、分析してみました。たしかに円高不況と言われていましたので、OECD の発表をもとに円の為替レート（円/米ドル）を指標にしてプロットしてみたところ、Figure 1 の exchange rate のようになりました。照射利用申し込み件数と円の為替レートのトレンドは気持ち悪いほど一致しています。これから、「われわれの事業は景気の影響を受けるのだ」ということが今更ながらわかるわけですが、経営の安定のためには相当の企業努力が必要だということを、あらためて思い知らされました。そこでいま、現有のニーズをよく分析したうえで、景気に左右されない新たなニーズの掘り起こしを進めよ

うとしています。また、そのようなニーズに応じて、わたしたちが放射線利用の振興に協力し続けて行くためには、さらに信頼される法人へと歩みを進める必要があると考えています。

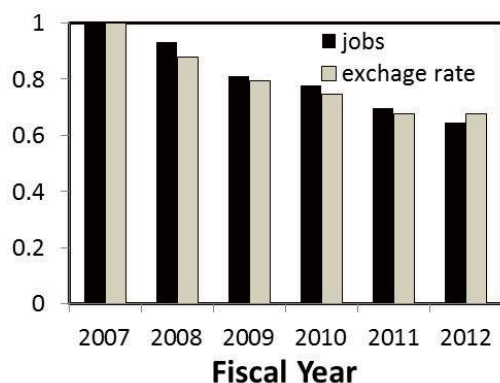


Figure 1. Trend of the number of  $\gamma$  irradiation jobs entrusted to RADA and the nominal exchange rate of yen (vis-a-vis the US dollar), where the values of 2007 fiscal year are set to unity.

#### 4 信頼される法人を目指して

当協会は、放射線・原子力施設の利用を主な業務としているので、施設の安全には格段の注意を払ってきた45年の経験が蓄積されています。また、ふだんから担当者への安全運転・安全管理に関する教育を徹底するとともに、OJTにより従事者のスキルアップに努めています。その一方で、施設の安全・セキュリティだけではなく、情報のセキュリティも重要であると考えています。放射線利用は研究開発を通して発明や新製品開発に、また試験照射等を通して材料や機器の特性情報やノウハウに密接に結びついています。このため、昨年10月、それまで中性子ビーム実験だけに適用

していた秘密保持規程を当協会の全事業に適用した規程を制定しました。さらに、筆者が知的財産管理技能士として、特許法、実用新案法、意匠法、商標法、著作権法、不正競争防止法、ならびに植物新品種に関わる種苗法のエッセンスを講義する「知的財産管理職員研修」を始めました。わたしたちは、これらの動きを「顧客信頼度向上運動」と呼んでいます。当協会は、このように信頼される法人としての地力をつけることにより、産業界等にとってややもすると敷居が高いと考えられがちな放射線利用をさらに普及させるため、あらたな取り組みを進めたいと考えています。平成18年ころから、文部科学省の量子ビーム研究開発作業部会等で、量子ビーム・放射線施設の横断的利用を進めていく上で、利用のしやすい体制整備、つまり「量子ビーム利用プラットフォーム」の構築が必要である、という議論がなされてきました。そこでは、必要な機能として以下のものがあげられています。

- ワンストップ窓口機能
- 研究計画立案・実験の支援
- 各種ビーム利用研究の課題公募実施
- 広報・普及
- メールインサービスなどの分析代行サービスの実施
- 人材育成機能
- 各種量子ビーム施設の横断的連携の取りまとめ

わたしたちは、技術移転事業の中性子ビーム実験において、上記の一部の機能を持ったサービスに着手しつつありますが、「屋台引きから初めて、やがてはチェーン店へ！」をスローガンに、ゆくゆくは国の展望に沿った「量子ビーム利用プラットフォーム」構築のお手伝いができるようになれば、と考えています。

(一般財団法人 放射線利用振興協会 理事長 岡田 漱平)

## 木村一字さんを悼む

放射線化学の基礎研究に独創的な業績をあげた木村一字さんが2013年12月30日に虚血性心不全で急逝された。

木村さんは、東京都立大学理学部化学科卒業後、理化学研究所に入所した。その後長年に渡って放射線化学や加速器関係の研究室で独自の研究を進められた。1994年に「重イオン照射による高密度励起の研究」で放射線化学会賞を受賞している。それは加速器を用いた重粒子線のLET効果や線質効果を、自ら開発した装置を使って研究し、新しい現象の解明をした。使われた装置は動的飛跡撮像装置とSISP（単イオン-単光子時間相関）装置である。どちらも極低温で時間分解と分光を行う。前者はイメージングファイバーとOMA（多チャンネル光学解析器）を利用して重粒子の飛跡の深さに沿って位置分解する。高密度He気体の可視から近赤外領域における発光を励起分子状態間の遷移と同定し、高密度励起における励起分子のダイナミクスを解明した。後者は、イオン励起としては当時最速の100ピコ秒を切る時間分解能を持つ、BaF<sub>2</sub>結晶で内殻空孔に価電子が遷移するオーグジュフリー発光と緩和励起子発光の線質効果を測定し、高密度励起における現象の研究を行った。しかし、この受賞は木村さんの研究の集大成というより、その後の一連の重要な研究の始まりと言った方がよい。

私は1990年代初期に夏になるとNotre Dame大学の放射線研究所に行きLaVerne氏とバンデグラフで液体Arの実験をしていた。その頃理研を訪れた彼が、木村さんの動的飛跡撮像装置を見て素晴らしい装置だと絶賛し是非欲しいと言っていたのを思い出す。彼はより広い応用を考えていたものと思う。木村さんはその装置を使って液体Heや高密度Ar気体の飛跡に沿った発光を調べ、ブラッグピークのさらに先に現れる新たなピークを発見し、それが過渡的分子軌道(MO)形成を介した励起によるものとした。MO理論は原子衝突の内殻励起の機構としては知られていたが、阻止能への寄与は論じられていなかった。これは近年、暗黒物質探索における非常に遅い衝突領域で、MO形成の寄与を考慮した阻止能理論の必要性を示している。

木村さんはSISP装置を使って、LiF, NaI, CsIなどのアルカリハライド結晶やアルミナ、さらにMgO結晶に共通で重粒子励起に特有な非常に速い発光を発見

し、その発光機構が高密度励起によるプラズマ発光と解明した。この発光は暗黒物質探索において、目的とするWIMP信号と背景雑音となる $\gamma$ 線との粒子弁別にも有効かと思われるが、励起密度依存性のため、すぐには答えが出ない。極低温の純粋結晶の基礎研究なので、素粒子や検出器開発の研究者は木村さんの論文を見落としているように思える。

今年の1月に木村さんのSISP装置に基づいた手法をSPORT（時間分解分光光学の仏語の頭文字語）と名づけた論文がarXivに掲載された。序に「重イオン照射における発光機構のダイナミクスの解明を可能とする唯一の装置は木村とその共同研究者によって開発された」として1989年から2003年の論文を引用している。しかし、木村さんの論文を読むとこれら装置の図はほとんど出てこない。初期の論文と改良を施した2003年のPhys. Rev. Bくらいである。新しいことを発表するというのと、装置より物理的結果の解明に興味に向いていたのであろう。独特の測定方法であり、装置の話から始める方が読む側にもわかりやすかったように思う。

平成12年度まで放射線化学会の理事を務められ、学会の発展に貢献された。教育面では、早稲田大学理工学部化学科の非常勤講師や市民向けのNPO法人科学芸術学際研究所(ISTA)の理事を引き受けていた。

理研にいた頃にはずいぶんとお世話になった。木村さんは放射線化学関係の研究室では異色の放射線物理学寄りの研究をなさっていた。発表論文もPhys. Rev. やNucl. Instr. Meth. が多い。私は、研究室は違っていたが、希ガス液体の発光や重粒子による高密度励起効果を研究していたことで重なる部分もあり、気にかけて頂いた。私の所属していた早大の道家研のグループは検出器開発が主な研究分野だったので、放射線化学の基礎知識のない私にはその方面でわからないことが持ち上がると聞きに行くことができた。頼りがいのある存在だった。とくに、論文をまとめるときには貴重な議論と情報をいただいた。その後も、討論会や物理学会ではあれこれお聞きした。何時だったか、わからないことがあって、こういうことは誰に訊けばよいでしょうとお聞きして「それはあなたが一番知らなければいけないことですよ」とお叱りを受け、専門家・研究者としての責任を教えられた思いだった。



昨年は、10月に放射線科学の重鎮だった道家忠義教授が他界し、また、放射線化学の優れた研究者である木村一字さんが急に亡くなり悲しいことが続いた。

ご無沙汰したままになってしまった。残念である。心からご冥福をお祈りしたい。

(高知大医 月出 章)

---

## 木村一字さんとわたし

年明け早々、木村さんの訃報を受けた。その時点でも、客員と嘱託として同じ東俊行主任の研究室にいたので、終始近いところにいたことになった。直前までお元気で、年末に引っ越しをされた夜の入浴中の出来事だそう。御定年の際、記念講演会を挙行させていただいたり、放射線化学討論会を一緒にやったり、組合の集まりでお祝いをしたのを思い出した。私の目に映った木村さんは、気骨ある研究者として理想だったし、格好良かったし、今の自分も残りの時間を同じように生きぬいてみたいとも思うのである。

最初の関わりは、学部4年生のとき理研のESRの管理者と外部ユーザーの関係で81年末、私も理研は初体験だった。志田先生と2人で装置を借りに行っていたのだが、木村さんもドイツから帰国直後、その後何度も測定に行ったので、顔見知りになった。最初は、なんだか気むずかしい人が部屋の奥でたばこをくゆらせている印象だった。

90年に理研に入所し、同じ研究室の室員として上記ESRの管理のお手伝いもした。その頃には、他のことも気軽に「手伝ってよ。」と言われて、少し信頼していただけるようになった。(実は木村さんは年下の人を誘うのが大変うまい。)当時のESRは日本電子FEの第1号機で、試作品モジュールも含め、他で見たこともない豪華な構成だったが、これも木村さんの指図によるものだ。後に、パルスESRに改裝するときも、デザインを一緒に練った。

11月に、このESRの廃棄の知らせを理研から受け、少し片付けていたのだが、木村さんが亡くなった年明けからは、狭い部屋で一人作業していると、自身の理研ライフの発点が消滅するとともに、木村さんの人生の一部を片付ける役を仰せつかったようで、しみじみとした気持ちになった。

理研の放射線化学研究室(今村研)は、我が学会でも、もう伝説(レジェンド)になってしまった。木村さ

んは、都立大の学生として理研に出入りされたのが最初で、学生運動も組合活動も盛んな時代に、勢いのある研究室に来た、ちょっと過激な学生の雰囲気を残しておられた。今村研の多士済々の先輩諸氏の中では、ただ一人、正統派放射線化学者の立場を終始貫かれたことになる。太陽エネルギープロジェクトが研究室の主たる業務になったあとも、サイクロトロンの一員として活躍されていた。80年代はイオンビームの黎明期であり、液体ヘリウム内のトラックを見たという論文が、木村さんにとっても一大転機だったことは周知のことだろう。

98年頃研究室が解消され、私も木村さんと一緒に、誰も面倒を見てくれない所内ジブシーとなったのだが、一緒に加速器グループにもらわれた木村さんが全く動じなかったで、(本当は苦しかったのだが、)その時期を安心して過ごせたと思う。数年後、外部資金で独立したときにも喜んでくださった。

01年に定年記念講演会も開催させていただいたが、多数の皆さんに集まっていたが、今村先生も、田畑先生も来てくださった。聴衆に紛れてご子息が聴講しておられたのだが、「気むずかしいお父さんには、友達は何人も居ないんじゃないかと心配していたが、先輩や後輩など、たくさんの方々が集結していて感激した。」と感想を述べられていたそう。

木村さんは、アルカリハライドなどの固体にイオンビームを当てると、なにやらすごい(輝尽)発光が現れることなどを見いだされ、理研のリニアックのパルスイオンビームを使った時間分解発光測定に夢中になって取り組み、この発光のメカニズムの解明に魅了されておられた。ただ残念なことに、孤高の研究者という形容がぴったりで、学生も共同研究者もほとんどない時期が最後まで長く続いた。

私も徹夜実験につきあったことがある。低温温度可変測定のためにOxford社のHeクライオスタットを



準備する。セッティングがはかどらず、真空を引き直したり、試料を出したり入れたりする。何とかうまく行ったら今度は時間分解測定 of CFD や TAC の調整にかかる。「CFD はキャンベラじゃないと時間分解能が出ないんだ」とかいう話を聞きながら、木村さんが設計してリソーに注文した特製分光器（検出器が2つついて2波長測定ができる：なぜ2波長か？ 48時間の徹夜が24時間になるのである、）にくっついた MCP を使って、時間分解測定が始まる。夕方から準備を始めて、何とか測定可能になるのが夜明け頃で・・・。ビームの調子が悪かったり、試料がずれたり、私の手伝ったマシンタイムは運悪く何もできなかったが、同時に少しも動じない木村さんに「かなわない」と感服してしまった。しかも通常はこの作業をお一人でなさっていたのだ。粘り強いのはいいのだけど、それ以上に妥協を許さない凝り性なのである。

木村さんは「湘南ボーイ」ではあったがルーツは会津で、幕末の会津藩士の潔さでもあったし、粘り強さでもあった。一方でチェロが得意で音楽を愛され、お宅では日曜大工などでいつも御家族のために何かを自らこしらえられていたとは奥様の談である。

たとえば、発売されたばかりの OMA（製品名も OMA : Optical Multichannel Analyzer）を大昔に購入されてずっと置いてあって、インストールされないうちに年月が経ってしまっていた。そのうちもっと安い多波長分光器が発売されて、技術が木村さんの時間を追い越しても、大事に保管され、「高かったんだよ。」と定年後も（私の方が理研を退職するまで）ずっと預かっていた。亡くなる数ヶ月前に、「僕は FORTRAN しか書けないのだけど、今のコンピュータではどうやったら一番うまく動くのかな。98 の PC-FORTRAN で書いたものは使えるのだろうか。」などと質問されたのを思い出す。C 言語に変換する F2C の話でもすればよかったが、とっさにそういう知ったかぶりの講釈は不要だと思ったので控えることにした。木村さんには、そのままでいて欲しかったのである。

若い方は、こういう話だけ聞くと失笑されるかも知れない。プラグマティックに考えれば、もっと要領よくやればいいのに、捨てるものは捨てたらいいのに、論文も要領よく出たのに、などという批評になろう。しかし、むしろ、この滑稽にも見える「古いテクニッ

クでもいいから全部自分でやろう」とする木村さんの生き様は、子供のように遊んでおられたのではなくて、「(理研の) 研究者というのは、こうあるべきだ」という哲学的なバックボーンをストイックに実践しておられたのだ。「自分の発想や、見つけた真理を自分の手で明らかにする。」という、ごく単純な使命を一義に考えれば、多少格好悪くても、古いテクニックでも、真理は真理だということである。

私自身も年を取ってきて、木村さんたち（たとえば福島事故のあとの岡野眞治先輩）理研の諸先輩に研究者のあり方を教えられた気がしている。研究者は、自分のわずか 4-50 年の持ち時間を使って、死ぬまで自ら真理の探究をすべきで、それは同時に自分の身（体力と知力）を削る行為でもあり、それでも構わず、自分の発見や、疑問に思った課題を解明して世に出す責任を人類や社会に対して負うということである。その中で、偉くなったり、論文数を稼いだり、研究資金を稼いだり、世渡りしたりなどということは副次的なこと（そうした方が、研究環境や条件がよくなったり、楽なことはいくらかでもあるが）であって、もしその必要がなく、最大限に持ち時間を使えるならば、全て研究に注ぎ込むべきであるということである。研究は、地位や研究費を得る手段ではなく、人生や生活そのもので、実験を他人に任せて、それを吸い上げて論文を稼ぐなどということはもつてのほかということだったのだと思う。小賢しい私は邪念が多く、恥ずかしながら最近までなかなかその境地に達しなかった。今、木村さんに懺悔したら、くゆらすたばこの煙の向こうでにやりと笑って「そうだよ。丑田君、君も少しわかってきたかな。」とおっしゃってくださるだろうか。

いっぽう、残念ながら、その理想の実現には 60 歳の定年、73 年という生涯は余りにも短く、知力も体力も限界に達し、時間が足らなすぎた。定年後の身の引き方も潔かったが、本当は、まだまだやりたいことがたくさんあったに違いない。まさに、ARS LONGA VITA BRAVIS である。亡くなる最後のその一瞬まで、イオンビーム励起による発光の謎に思いを巡らせておられたのだと信じたい。そして、本当に幸せな研究生生活を送られたのだと信じたい。

(北里大理 丑田 公規)

## MICROS 2013 に参加して

2013 年 10 月 20 日から 10 月 25 日までの 6 日間にわたり、16<sup>th</sup> International Symposium on Microdosimetry –on the track to biological effects– (MICROS2013) が、イタリアで開催された。この会議はほぼ 4 年に 1 度の割合で、毎回イタリア国内で開かれる。今回の会議はベネチアの北約 30 km に位置する Treviso という街で行われた。会議へはおよそ 110 名の参加があり、口頭発表、ポスター発表合わせて 108 件の発表があった。日本からは、原子力機構、放医研そして東京農工大から合計 7 名が参加した。サブタイトルにあるようにこの会議は、放射線生物に主眼がおかれ、電離放射線、放射線の生物影響の分子メカニズム、放射線の細胞への影響、そしてそれらと低線量放射線や放射線治療とのかわりついで、物理的・化学的・生物学的あるいは医学的研究についての報告がなされ、熱心な議論が行われた。毎朝行われる Refresher Course では、トラック構造に関する研究 (M. Dingfelder 博士)、幹細胞の放射線影響 (K. Prise 博士)、マイクロドジメトリの古典的なアプローチに関する研究 (D. T. Goodhead 博士)、Katz のトラック構造の理論 (M. Waligowski 博士)、プロトンの放射線効果 (L. Hlatky 博士) についてレクチャーがあった。一般の講演は、X 線や重粒子線のマイクロビームを用いた特定の細胞への選択的な照射実験によるバースタンド効果の研究やシステムバイオロジーの研究に多くの関心が注がれる一方で、放射線化学の基礎過程に関する報告がいくつかあった。

会議の開かれた Treviso は、日本で入手できる旅行ガイドブックでは紹介されていないが、1500 年代に作られた壁で囲まれ、街の中を水路が巡っており、ベネチアとはまた違った雰囲気を楽しめて観光にもおすすめの街である。紫キャベツ「トレヴィス」は Treviso の名産品であり、街の市場でよく見かける野菜である。

また、「ティラミス」は 1960 年代に Treviso のあるレストランで生まれたとされている。著者も街のレス

トランで会食をした際に勧められた「ティラミス」を食後に頂いたが、カフェオレクリームを瓶詰にしたようなもので、日本で頂くいわゆるティラミスよりもクリーミーであった (写真 1)。エクスカージョンは Prosecco という白色の発泡ワインの製造元を見学し試飲 (といってもおつまみ付でほとんど軽いディナーだったが) するツアーであった (写真 2)。



写真 1. これが本当のティラミス。



写真 2. エクスカージョンの様子。

今回の発表のプロシーディングスは Radiation Protection Dosimetry の Special Issue として発刊される予定である。

(日本原子力研究開発機構 藤井 健太郎)

## 第 17 回 The International Meeting on Radiation Processing 2013 参加報告

The International Meeting on Radiation Processing (IMRP) は International Irradiation Association (iia) が主催する放射線加工に関する世界最大級の国際会議である。1976 年のプエルトリコから約 2 年ごとに世界各地で順番に開催されており、今回 17 回目となる。今回は 11 月 5 日から 7 日まで上海のマリオットホテルにて行われた。また、4 日は事前カンファレンスと 8 日には照射設備の見学など盛りだくさんの内容となった。

今回のテーマは、「Irradiation For Life: Safe, Green and Growing」となっていて 34 か国 430 名が参加し、放射線利用に関する口頭発表とポスター発表が行われた。その範囲は、装置としては電子線・ $\gamma$  線・X 線を含み、照射対象は滅菌から、食品照射、高分子加工や線量測定に関する研究・マーケティングなど広範囲にわたった。



写真 1. 会場周辺（上海）の風景。

会場となった上海は、滞在中ずっと霞がかかったような曇りが続いて、PM2.5 などの影響を連想させた（写真 1）。ホテル周辺は、大都会にふさわしい重厚なビルが立ち並ぶ一帯に位置していた。日本からの参加は、筆者の把握している範囲で、民間照射会社 6 名、大学関係 2 名以上、研究機関 2 名以上、商社 4 名、その他 3 名と合計 17 名以上であった。スケジュールは以下の通り。

- 4 日 事前カンファレンスと  $\gamma$  線照射会社 JPY と電子線照射会社 Sterigenics の見学
- 5 日 開会式、基調講演、口頭発表（テクノロジー、学生発表）、ポスター発表
- 6 日 口頭発表（テクノロジー（電子線・X 線）、先端

材料、食品照射）

- 7 日 口頭発表（テクノロジー（ $\gamma$  線）、ヘルスケア、応用技術、複合医療材料）、閉会式
- 8 日 3 班に分かれて照射会社の見学

事前カンファレンスは翌日からの発表のダイジェスト版という内容であった。



写真 2. 会場風景。

口頭発表では基調講演 4 題、応用技術 11 題、ヘルスケア 15 題、食品照射 15 題、先端材料 10 題、テクノロジー 25 題の合計 80 題の発表があり、そのほかにもパネルセッション 6 題など、その範囲も多岐にわたっていた（写真 2）。筆者が参加した食品照射のセッションでは、日本から食の円卓会議の市川まりこ氏が市民の立場からの食品照射の実体験について、また食品総合研究所の等々力節子氏が日本の食品照射の現状と今後についての発表があった。また、先端材料のセッションでは EB システム（元原子力研究所）の幕内恵三氏が放射線架橋とグラフト重合の歴史と発展の発表を行った。

ポスター発表は合計 136 題あり、ポスターの総数は前回に比べて 7 割程度の数であったが、56 題が食品照射の発表があり関心が高かった。日本からは、大阪府立大学が古田雅一教授をはじめ 3 題、食品総合研究所の等々力節子氏、同じく亀谷宏美氏、そしてラジエ工業（株）の市川達也氏と 6 題の発表があった。ワインとチーズを楽しみながらの発表者との談義が盛んに行われていた。

筆者が見た限りでは、目新しい技術の発表が少なかったが、中国ということでアジア関連の発表が多く、



汚染水浄化システムの大規模な応用の話題があった。その他の発表には、バクスター社が電子線滅菌時にエネルギーの違う施設で照射した時にフィルターにピンホールが発生した件を検証した方法を発表したものが

あり参考になった。また、原子力研究機構高崎研で行われた研究や食品照射の利用統計調査など随所で引用されており、高崎研の世界的な貢献を改めて感じた。

((株) コーガ アイソトープ 廣庭 隆行)

## TSRP-2014 参加報告

2014 年 1 月 6 日-9 日にインド・ムンバイで開催された、Trombay Symposium on Radiation & Photochemistry (TSRP-2014) の参加報告をする。プログラムの詳細は、シンポジウムのホームページ (<http://www.barc.gov.in/symposium/tsrp-2014/home.htm>) を参照して頂きたい。4 日間に亘って朝の 9 時から夕方 18 時まで 1 講演 30 分の招待講演が計 46 件行われた。ポスター発表は 2 日に分けて行われ、放射線化学の分野が 39 件、光化学の分野が 116 件の計 155 件の発表があった。外国の参加者は 30 名程度であり、その内の 8 割が日本からの参加者であった。日本人による講演には、電子加速器を用いたピコ秒・フェムト秒領域における超高速時間応答に関する研究が多く、また、これからの発展が期待されるテラヘルツ波を用いた研究も神戸大の富永教授と産総研の黒田主任研究員から発表があった。放射線化学分野のインドの方々による発表では、ラジオアイソトープや制動放射を用いたガンマ線照射の研究が数多く、日本のようにピコ秒からフェムト秒領域の超短パルス電子ビームを発生可能な先端加速器が複数存在する環境を改めて有り難いと実感した次第である。ポスター発表では、30 歳以下の発表者に対してポスター賞が設けられ、学習院大学博士課程の野嶋優妃さんが受賞した。おめでとうございます。

バンケットは海外からの参加者専用の滞在先である Four Points Hotel by Sheraton で行われ、料理は非常に美味しかった。その様子を写真 1 に載せる。The Cultural Evening and Dinner が別日に開催され、インド伝統の踊り（写真 2）や Atomic Energy School の生徒による台所用品を用いた楽器演奏が催された。外国の参加者の参加費は 700 ユーロ（10 万円！）と非常に高額であったが、宿泊はシェラトン系のホテルが当てられ、食事も美味しくホテルでは何不自由なく快適に滞在することができた。



写真 1. バンケットの様子。



写真 2. インド伝統の踊り。

Wikipedia によるとムンバイ都市圏の人口は 2 千万人であり、東京の 1.6 倍である。人口密度は、東京の 3 倍以上の 2 万人/km<sup>2</sup> におよび、どこに行っても夜中でもあちこちに人がいるという印象であった。道端には多数のゴミが捨てられ、カラスがそれをあさり、野犬が闊歩していた。絶え間なく走行するオートリキシャ（3 輪タクシー）や自動車の間を縫うようにして子供も含む歩行者が道路を横断しており、非常に危険



であった。信号で止まるということはほとんどなく、クラクションを頻繁に鳴らしながら走行していた。しかし、運転には一定の節度を感じられ互いに譲り合い

ながら進んでいるという印象であった。  
次回の TSRP は 2 年後の 2016 年に開催される。

(独立行政法人産業技術総合研究所 平 義隆)

## 第 56 回 放射線化学討論会参加報告 (1 日目)

第 56 回放射線化学討論会は、広島大学東広島キャンパス内の学生会館にて平成 25 年 9 月 27 日 (金) から 29 日までの 3 日間の日程で開催された。討論会初日となる 27 日は、10 時より本年度討論会実行委員長を務めてくださった広国大の林先生による開会挨拶ののち、6 つのセッションにて計 20 件の口頭発表が行われ、その後理事会が執り行われた。

午前中には 2 つのセッションにまたがり、7 件の水溶液中の放射線分解過程に関する報告があった。最初のセッションでは、原研の甲斐氏らにより電子線照射によって生成する水中の 2 次電子の熱化シミュレーション、阪大産研の室屋氏らにより超臨界水の放射線分解反応により生成する水和電子の G 値、原研の端氏らにより海水相当の水溶液中における塩化物イオンと OH ラジカルの反応シミュレーション、東大の楊氏らにより沸騰水における放射線分解生成物の収量が報告された。続いてのセッションでは、阪大産研の藤川氏らにより亜硝酸イオン存在下での放射線化学反応によって生成する一酸化窒素と金属タンパク質との反応、東大の雨宮氏らにより溶融塩における溶媒和電子の塩化物および金属イオンとの反応、東大の前橋氏らからは OH ラジカルの挙動評価にむけた高濃度臭化物イオン水溶液の放射線分解過程の検討結果について報告があった。水溶液、特に塩化物イオンが溶け込んだ水や沸騰水の放射線分解過程に関する研究は今なお続く福島第一原発事故への対応に関連するものであり、大きな関心が寄せられている分野である。さらに原子力政策の協議が続く日本において、次世代炉への適用が考えられている超臨界水や溶融塩の放射線分解過程についても、その知見が求められている。セッションでは主に OH ラジカルや水和電子などの活性種の G 値や、溶質との反応機構について、活発な議論が行われた。

午後は 4 つのセッションにおいて 13 件の報告がなされた。まず前半 2 つのセッションについて報告する。1 つ目のセッションでは、阪大産研のグループにより、法澤氏からはエタノール中の電子の溶媒和過程に関する温度依存性、近藤氏からは紫外フェムト秒パルスラジオリシス法の開発により達成されたドデカンアルキルラジカルの挙動の観測結果、神戸氏からはイオン化されたポリスチレンの分子内反応についてと、

水以外の様々な溶媒における放射線化学初期過程に関する報告があった。なおこのセッションにおいて、筆者もアルコール中の溶媒和電子の前駆体の反応性について報告させて頂いた。そして続くセッションでは阪大産研の野澤氏らにより 1 フェムト秒電子ビームの発生とアト秒フェムト秒ラジオリシスにむけた展望について、早大の小柴氏らにより ECC-RF 電子銃単体での短パルス電子ビームの生成と遷移放射によって発生するテラヘルツ波の計測について、原研の平出氏らからは、電場が存在しない環境下でポジトロニウムの形成が見られないカプトンに対して高電場を印加した際のポジトロニウム形成機構について報告された。1 つ目のセッションにおいて挙げられたような放射線化学初期過程、さらにその先で進行する、午前中の甲斐氏らの報告で挙げた放射線によって生成する 2 次電子の熱化過程などのアト秒やフェムト秒時間領域に進行する高速現象を、実験的に明らかにしていくうえで、電子ビームの短パルス化は必要不可欠なものである。さらに短パルス電子ビームを用いたテラヘルツ波の発生とその利用など、放射線化学の未来に向けたハードの開発に関する報告は大変興味深く、参加者からの注目度の高さが伺えた。

午後後半の 2 つのセッションでは、6 件のレジストに関する報告があった。最初の 2 件は、レジスト材料のパルスラジオリシスに関するもので、阪大産研の井河原氏らからはポリ  $\alpha$  メチルスチレン、早大の保坂氏らからは ZEP520A について、それぞれ報告があった。溶媒分子のカチオンラジカルからのホール移動によるものだけでなく、直接イオン化によって生成するレジスト材料のカチオンラジカルの挙動の観測に成功したという報告は、溶液中において固体薄膜材料の放射線化学過程を模擬できる系の確立を示唆するものであり、微細化の実現に向けて活発な議論が交わされていた。その後、早大の大島氏らにより ZEP レジスト材料の自由体積変化、阪大産研の山崎氏からは微細加工におけるラフネス、早大の中村氏らによりポリメタクリレート立体規則性の違いによる加工精度への影響について、3 件のレジスト材料の加工精度に関する報告があった。最後に中国科学院の李氏から酸化チタンナノ粒子のグラフト重合技術により機能性を持たせた綿織物に関する講演があった。李氏は討論会に参加す

るために中国からお越しくださり、貴重なお話を伺うことが出来た。

討論会初日には、先述の通り 20 件の発表が行われ、水の放射線化学や半導体微細加工をはじめ、様々な分野の研究成果を知ることが出来き、非常に有意義であった。さらに自身の研究についても、諸先生方や学

生の皆様と議論させて頂き、貴重なご意見を頂戴した。最後に、このような機会を設けてくださった、広国大の林先生と広大の吉田先生、駒口先生をはじめとする運営委員の皆様深く感謝致す。

(大阪大学産業科学研究所 樋川 智洋)

## 第 56 回 放射線化学討論会参加報告 (2 日目)

討論会 2 日目の午前中のセッションでは 8 名による口頭発表が行われた。まず初めに山下真一氏による放射線橋かけセルロース誘導体ヒドロゲル中での放射線化学反応についての報告、その後廣木章博氏による重粒子線治療を目指したヒドロキシプロピルセルロースを母材とするポリマーゲル線量計の開発についての報告、木村 敦氏によるイオン液体中の天然多糖類放射線架橋に関する報告、前山拓哉氏による炭素線照射におけるゲル線量計の LET 依存性についての報告と 4 つの発表が前半に行われた。後半は、市川恒樹氏による放射能汚染焼却灰中の水溶性放射性セシウム固定化剤の開発についての報告、ラートナットパンティラ氏による PWR での水素注入効果に関する報告、保科宏行氏によるセシウム用吸着材の量産化技術の開発に関する報告、熊谷友多氏による過酸化水素水溶液とゼオライトとの混合物中での放射線誘起反応についての化学動力学シミュレーションの結果に関する報告が行われた。興味深い発表が続き、多くの有意義な議論が交わされていた。

午後からは越水正典先生（東北大学）、月出 章先生（高知大医）の受賞講演に続き、須賀大作先生（兵庫県立粒子線医療センター）、鈴木 実先生（京都大学原子炉実験所附属粒子線腫瘍学研究センター）の依頼講演が行われた。越水先生は放射線検出に利用される固体シンチレーターの材料開発についてのご講演をされていた。新規材料に対してナノ材料を含む広域な材料科学の知見からのアプローチ、さらには高 LET におけるシンチレーション特性の分光学的な解析について大変興味深い内容だった。月出先生は液体 Ar, Xe 等の希ガス液体の放射線照射に対する応答について、そして素粒子実験や PET への応用と基礎研究からスケールの大きな応用可能性までご講演されていた。続く、

須賀先生は陽子と炭素イオン線を用いた粒子線治療についての現状と普及について学術的な側面から施設スペースやコストの問題まで多面的にとっても分かりやすく説明されていた。最後に鈴木先生はホウ素中性子捕捉療法の基礎・臨床研究の展開についてのご講演をされていた。粒子線治療とはまた異なった有望な治療法を紹介して頂いた。将来、私達が享受する可能性のある癌治療の今後の展望を垣間見ることができ、両氏のご講演は大変有意義であった。

16:30 からは口頭発表者の一部の方とその他 32 名の方が前半と後半に分かれてポスター発表を行った。筆者は前半に発表を行い、学生・先生を問わず多くの方から様々なアドバイスを頂き、今後の研究の進展につながる貴重な機会となった。後半は多くの興味深い発表を聴講した。中でも、樋川智洋氏の極短時間スケールにおけるアルコール中での電子の溶媒和過程のメカニズムに関する研究に好奇心を掻き立てられた。フェムト秒パルスラジオリシスにおける水和電子の測定結果とそれにより導かれるドライ電子と電子捕捉剤との反応速度定数の議論まで丁寧に説明して頂いた。その他にも、西尾達哉氏のイオンと水の液滴との相互作用に関する研究、岡本 整氏の軟 X 線励起フルオロベンゼンの解離反応に関する研究等を紹介して頂いた。2 時間近くに渡り、至る所で常時白熱した議論が行われていたことを記憶している。

19:00 からは広島大学近郊の HAKUWA ホテルにて懇親会が開催され、学会での緊張感とは一転して和やかな雰囲気会で会食が催された。初めにポスター賞の発表が行われた後、豪華な食事や様々な種類の日本酒が振る舞われた。筆者は昨年からのこの討論会に参加させて頂いており、前回知り合った他大学、他研究機関の先生や友人と研究からプライベートまで多くの会話を

楽しんだ。また、新たな参加者との出会いもあった。年々こうして参加者それぞれが、今までの知人との親睦を深めていくと同時に新たな出会いも増やしていき、闊達な議論を交えていくことで放射線化学討論会が今後ますます発展していくこと願ってやまない。



写真 1. 鷺尾先生の挨拶。

懇親会の最後は、次期会長である鷺尾方一先生（早大理工研）の挨拶で幕を閉じた。「放射線に関する誤解が生じる昨今、放射線化学が産業利用において多岐にわたり、如何に我々の生活を豊かにしているかということ」を研究者が発信していくこと、「学会の隆盛を通じて、明るい未来を創ること」を強調して伝えられていた。最後に、このような会に参加する機会を与えて頂いた先生・学生方並びに学会主催して頂いた関係者の方々に感謝したい。

(早大理工研 坂本 瑞樹)

## 第 56 回 放射線化学討論会参加報告（3 日目）

討論会 3 日目は、午前 9 時から正午まで開催され、計 11 件の口頭発表があった。セッションの前半では、まず北大院工の須佐氏らによって、スルホキシドやアミドなどの添加剤の使用により促進される RHS のラジカルカチオンの脱プロトン反応についての報告があった。次に、早稲田大学理工学研究所の日名田氏らによる、導電性高分子（PEDOT/PSS）への電子線照射における照射効果についての報告があった。その後、北大院工の小泉氏らにより、ポリチオフエン誘導体 P3DMPT および P3cHT のドーピング後の挙動を P3OT の場合と比較した結果の報告があり、それから、原子力機構の佐伯氏らにより、放射線照射したポリエチレン不織布中のラジカル減衰挙動が 2 つの一次反応の和で表されることについて報告があった。阪大産研の柴田氏らからは、アルミナへの炭素クラスターイオン照射による発光強度の入射クラスターイオンサイズおよび入射イオンエネルギー依存性について報告があった。前半の最後には、帝京大・医療共通教育センターの伊藤氏により、EHD 液体 Novec7600 中での電

気伝導についての報告があった。

後半のセッションでは、まず東京農工大の島田氏らにより、水溶液中の pH が変化することによる水溶液ヌクレオチドの構造変化に関する発表があり、水溶液中のプリンヌクレオチドの窒素 K 殻における軟 X 線吸収スペクトルが pH 変化にともなって変化していることについて報告があった。次に、理研の徳島らにより、水分子との相互作用により電子状態が異なると期待される 3 つの有機溶媒への軟 X 線分光の結果報告があった。その後、広島大の松尾らにより、真空紫外円二色性（VUVCD）を用いた糖類の溶液構造解析によって明らかになった糖類の水和構造や CD についての報告があった。また、神戸大の桃木らにより、アミノ酸全 20 種核酸塩基全 5 種における広域光吸収スペクトル測定に対するこれまでの研究結果および、今後の課題について報告があった。最後に、神戸大の石山らにより、L-Ala 固相への紫外線照射における吸光度が紫外線照射後も続くことを考慮した生成量子効率について報告があった。



筆者は物理分野の人間であり、放射線化学分野に対する知見は皆無に等しかったが、化学も物理と繋がっているのだと実感でき、非常に有意義な時間を過ごすことができた。特に、筆者が関わっている水への放射線照射というテーマにおいて、化学分野の方々と興味

深いディスカッションができたことは今後の研究生活に大きく役立つだろうと思う。このような機会を与えてくださった、多くの先生方、学生方に深く感謝したい。

(京都大学大学院工学研究科 西尾 達哉)

## 2013 年度 放射線化学若手の会「夏の学校」報告

2013 年度の放射線化学若手の会夏の学校は9月8日から10日にかけての3日間、岐阜県土岐市の恵那山荘で行われました。会の運営は阪大産研の吉田研と古澤研の共同主催という形で担当しました。放射線化学やその周辺領域を研究する6大学30名が集まり、講演やポスター発表、レクリエーション等を通じて多くのことを学び、親睦を深めることができました。今回は放射線化学の研究を行う上で欠かせない機器であるパルスラジオリシスの成り立ちやその歴史と、放射線化学に関わりの深い周辺分野として生体への放射線影響の2点にスポットをあてて、阪大の楊金峰先生と原研の甲斐健師先生に講義をしていただきました。また、会期中、常にポスターを設置することで、参加者同士で議論を活発にし、研究内容の理解を相互に深めることにも重点を置きました。

一日目は部屋に荷物を置き、一息ついて17時半から開校式を行い、夏の学校がスタートしました。その後夕食をはさみ、研究室紹介ではそれぞれの特色がでたユニークな発表が続ぎ、参加者間の交流ができました。この日は次の日に備えて早めの就寝でした。

二日目の午前中は講師の先生方の講義をお聞きしました。まずは甲斐健師先生に「放射線による生体分子損傷の研究」というタイトルでお話ししていただきました。XFELにおけるタンパクの損傷や低線量域でのDNAへの影響という、近年注目される現象について、計算結果を目で見える形で示していただき、他分野の人にもとてもわかりやすく説明していただきました。次に楊金峰先生に「加速器における短パルス電子ビームの生成とパルスラジオリシスの進展」というタイトルでお話ししていただきました。放射線化学の初期過程の解明に必要な不可欠なパルスラジオリシスの始まりから最新鋭のレーザーフォトリソド高周波電子銃加

速器を用いたものまで、その歴史について興味深いお話を聞かせていただきました。参加者は熱心に講義に聞き入っており質疑応答も活発に行われ、議題についての理解を深めることができました。

午後からは参加者の交流会として、恵那山荘にある運動場にてサッカーのリーグ戦を行いました。初めて会った参加者もありましたが、大学関係なく決めたチームで楽しくプレイすることができ、恵那のきれいな空気のもとでリフレッシュすることができました。その後自由時間をはさみ、ポスター発表を行いました。ポスター会場にはあらかじめ13枚のポスターが貼られており、時間いっぱいまで参加者同士の熱い議論がかわされました。夜はお酒を飲みながらの懇親会を行いました。阪大の吉田先生に音頭をとっていただき、今後の若手の会の発展を願って乾杯をしました。お互いの研究や近況、将来の展望など、夜遅くまで語り合い、参加者同士の親睦を深めることができました。

最終日は核融合科学研究所に行き、次世代エネルギーとして注目される核融合プラズマに関する講義や実験施設の見学をしました。まずは講義室で核融合やプラズマ、大型ヘリカル装置(LHD)などの基本的な紹介ビデオを見てから、制御室やLHDの模型、本体室内部を見学しました。制御室は前面の大型ディスプレイで部屋にいる全員が実験の状態を把握できるつくりで、一見NASAの制御室のようでした。また、LHDの模型やLHD本体室内部を実際に見ることができ、その迫力に圧倒されました。説明をしていただいた職員の方がとても気さくな方で、参加者は気軽に質問をすることができました。約90分間の見学でしたが、大満足な内容でした。

その後閉校式を行いました。広島大学の岡本整さん「ジフルオロベンゼン及びトリフルオロベンゼンのイ

オン対解離ダイナミクスの違い」, 早稲田大学の花崎祐さん「電子線照射法を用いた PEFC 用機能傾斜膜の低温無加湿下における発電性能評価」と筆者の「パルスラジオリシス法で見る一酸化窒素と金属タンパク質との反応」がポスター賞を受賞しました。以上で 2013 年度の放射線化学若手の会の全日程を終えました。

夏の学校の運営において, 日本放射線化学会からは運営費援助などの多大なご指導, ご援助をいただきました。ここに厚く御礼申し上げます。ご多忙中, 夏の学校の講師を快く引き受けていただきました, 楊金峰先生, 甲斐健師先生にも深く感謝しております。

今年度は北は北海道から南は広島まで, 多くの方の参加が実現し, 若手同士が活発に交流できる非常に有意義な夏の学校になりました。また, 若手の会の周知のため, 夏の学校のダイジェスト動画を作成し, HP に掲載しました (<https://googledrive.com/host/0B-XOiCol5V2JQUoxNUdRQl9lZDA/summerrad2013.html>)。来年度の若手の会夏の学校の運営は, 早稲田大学の鷲

尾研究室をお願いすることになりました。今年参加できなかった大学の方や, 今まで参加できなかった大学の方もぜひふるってご参加ください。来年度はさらに大きな若手の会になりますことを願っております。最後に, 今回の若手の会にご参加いただきました皆様に厚く御礼申し上げます。



写真 1. 集合写真。

(大阪大学産業科学研究所 古澤研究室 藤川 麻由)

## 高崎量子応用研究シンポジウム参加報告

2013 年 10 月 10 日, 11 日に, 群馬県高崎市にて第 8 回高崎量子応用研究シンポジウム (以下量子応用シンポ) が高崎シティーギャラリーにて開催された。量子応用シンポは, 独立行政法人日本原子力研究開発機構 (以下原子力機構), 高崎量子応用研究所 (以下高崎研) が主催し, 高崎研が保有しているイオン照射研究施設 (TIARA), 電子加速器,  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線照射施設において実施された研究の成果を発表し, 利用者や利用を計画している研究者が情報交換, 討論を行なうことで, 量子ビーム応用研究の推進と施設の有効利用を図ることが目的とされている。特に今年は高崎研開所 50 周年に当たる年でもあるため, 50 周年記念特別セッションも行なわれ, 口頭発表 23 件, ポスター発表 156 件が行なわれた。

1 日目は, 松浦祥次郎原子力機構理事長の開会の挨拶に始まり, 午前中は【宇宙・エネルギー】のセッションにて宇宙航空研究開発機構の新藤浩之氏, 原子力機構の前川康成氏, 光産業創成大学院大学の三間園興氏による講演, 【計測・基盤技術】のセッションにて原子

力機構の深谷有喜氏, 神谷富裕氏による講演が行なわれた。午後は【50 周年記念特別セッション】が行なわれ, 原子力機構の町末男氏による『高崎研究所と一研究者の 50 年』, 元沖縄県病虫害防除所の照屋匡氏による『沖縄県における不妊虫放飼法を用いたウリミバエ等の防除事業』, 元 (株) ユアサメンブレシシステムの丹宗紫朗氏による『電池用隔膜への放射線グラフト重合の応用』, NGS アドバンストファイバー (株) の岡村光恭氏による『超耐熱性炭化ケイ素繊維の開発』, キリン (株) の岡村正愛氏による『イオンビームを用いた新しい花の創製』, 倉敷繊維加工 (株) の中野正憲氏による『放射線グラフト重合技術を利用した液体フィルターの実用化』などの, 高崎研開所から今日に至るまでの多くの成果についての講演が行なわれ, 最後に高崎研の玉田正男所長による『高崎量子応用研究所における研究開発の展望』についての講演が行われた。特に町氏は, 高崎研開所から今日に至るまで, 高崎研とともに人生を歩んできた方であり, 高崎研開所の歴史, 我が国の原子力政策との関係性についてなど, 貴

重な写真や思い出話や裏話を交えながらの丁寧な説明であったため、歴史について未熟な筆者にとって、非常に興味深かった。

2日目の午前中は、【環境・資源】のセッションで熊本大学の城昭典氏，原子力機構の廣木章博氏，前橋工科大学の田中恒夫氏による講演，【先端材料】のセッションでは原子力機構の出崎亮氏，大阪大学の関修平氏による講演が行なわれた。午後は午前に引き続き【先端材料】のセッションで原子力機構の小川茜氏，高エネルギー加速器研究機構の荻津透氏による講演，【医療応用・バイオ技術】のセッションで原子力機構の森林健悟氏，長谷純宏氏，群馬大学の池田裕子氏，岡山県農林水産総合センターの小川健一氏による講演が行われた。特に筆者が高崎研でお世話になっているグループの代表として発表された廣木氏の講演は興味深かった。廣木氏の研究は放射線照射によるモノマー重合により，透明なゲルが白濁する現象を線量計に利用しており，目に見えない放射線が，何処にどの程度照射されたのか？ということを目視化する技術であるため，粒子線治療などを含めた最先端技術の発展に大きく寄与することが期待されている。

ポスター発表は2日間で2回に分けられており，各日の口頭発表のセッション名に即した項目のポスターセッションが行なわれ，初日は【宇宙・原子力・エネルギー】，【先端材料・計測・基盤技術】，【施設利用・運転管理関係】のセッションあわせて85件，2日目は【環境・高機能材料】，【医療応用・バイオ技術】のセッショ

ンあわせて71件の発表が行なわれた。筆者の発表は初日に行なわれ，発表時間初めから終わりまでに沢山の方々に質問していただき，濃厚なディスカッションをすることが出来た。頂いたコメントを生かし，今後の研究に精進していきたいと思っている。

シンポジウムの最後には玉田所長による閉会の挨拶があり，シンポジウムが幕を閉じた。シンポジウムの講演内容やポスター発表を通して，放射線は様々な効果が得られるツールであり，その効果は研究してもし尽くすことが出来ない魔法みたいなものだ！ということを確認した。現在我々が知り得ているのはほんの一握りの現象かもしれない。まだ解明されていない効果の正体を暴くため，筆者を含めた科学者の自然現象との戦いはこれからも続くだろう。



写真 1. ポスターセッション会場の様子。

(東大院工 岩松 和宏)

## APSRC2014のお知らせ

2014年9月8日から11日にかけて、東京大学弥生キャンパス（東京都文京区）の弥生講堂において、第5回アジア太平洋放射線化学シンポジウム（APSRC2014）が開催される。

APSRCはアジアを中心とした放射線化学の国際会議であり、2006年に中国で第1回が開催された。中国、日本、インドの順にこれまで隔年開催されており、2008年以来の日本での開催となる。

APSRC2014は第57回放射線化学討論会と一体化で開催するため、例年の放射線化学討論会における定例行事（理事会、総会、受賞講演、国際交流委員会など）は、APSRC2014の会期内に執り行う。

なお、APSRC2014に関する詳細な情報は、ウェブサイト（<http://www.nuclear.jp/~apsrc2014/>）に随時更新している。

会員諸兄姉の御知恵ならびにお力を拝借したく、何卒ご協力賜りたい。

### 【概要】

- 会場：東京大学弥生キャンパス、弥生講堂

（最寄駅：東京メトロ南北線、東大前）

- 会期：2014年9月8日（月）-11日（木）
- ウェブサイト：<http://www.nuclear.jp/~apsrc2014/>
- 事務局：[apsrc2014@nuclear.jp](mailto:apsrc2014@nuclear.jp)

### 【日程】

- 参加登録：2014年5月5日（月）-31日（土）
- 要旨提出：2014年5月17日（土）-6月8日（日）

### 【参加費】

- 一般：30,000円
- 学生：20,000円
- 同伴者：15,000円

### 【注意事項】

- ホテルの予約は参加者ご自身での手配が必要。
- 参加費にはコーヒースタンド、バンケット、エクスカーションの費用が含まれる。

（東京大学大学院工学系研究科 勝村 庸介）



## 15th International Congress of Radiation Research (ICRR2015) のお知らせ

第 15 回 International Congress of Radiation Research (ICRR2015) は、2015 年 5 月 25 日から 29 日にわたり、京都国際会議場で開催（会長：平岡真寛，事務局長：神谷研二，<http://www.congre.co.jp/icrr2015/>）されます。放射線関連としては世界最大規模の国際会議であり、本学会もこれに積極的に参画いたします。同年度に行われる平成 27 年度放射線化学会討論会は、本会議に合流する予定です。本会理事会でも会議の内容について継続的に議論が行われてきており、ICRR2015 プログラム委員会には以下のシンポジウムのテーマを提案いたしました。

- a) 高速反応と基礎反応：パルスラジオリシス，水化学，イオン液体，
- b) プロセス，新材料：グラフト，高分子，ナノテクノロジー，
- c) 加速器，イメージング，計測：FEL，イメージン

- グ，線量，シンチレーター，
- d) 放射光（FEL も含む），
- e) 電子/陽電子：陽電子，電子衝突，
- f) 生物：DNA，医療，
- g) 炉化学。

近々に最終的なテーマが発表される予定ですので、改めてご案内いたします。

学会からは、田川精一（組織委員会，プログラム委員会副委員長），鷺尾方一（財務委員会），吉田陽一（プログラム委員会），南波秀樹，勝村庸介（Advisory Board）が委員として参加しております。要望等ございましたら、各委員にご連絡ください。学会としては、若手のサポートを含め、参加支援を積極的に行う予定ですので奮ってご参加いただけますようお願いいたします。

（大阪大学 産業科学研究所 吉田 陽一）

# 本 会 記 事

## 第 99 回 日本放射線化学会 理事会議事録（案）

日時 平成 25 年 9 月 27 日（金）17:00-

場所 広島大学学士会館 2F 会議室 1

出席者 河内会長，中川（和），中川（清），林，柴田，辻，砂川，駒口，小泉，熊谷，浅井，伊藤，山下（勝村代理），鷲尾，田川，吉田，平出（事務局），岡（事務局）

### 議題

1. 前回議事録確認（事務局 平出）  
第 98 回理事会の議事録を確認した。
2. 平成 24 年度事業報告確認（事務局 平出）
  - 主催会議
    - 第 55 回 放射線化学討論会  
（平成 24 年 9 月，東北大学）
    - 先端放射線化学セミナー  
（平成 24 年 10 月，平成 25 年 5 月 8 日）
  - 協賛会議
    - 高崎量子応用研究シンポジウム
    - 放射線利用総合シンポジウム
    - アイソトープ・放射線研究発表会  
（平成 25 年 7 月）
    - アジア太平洋環境化学シンポジウム
  - 放射線化学若手の会開催
    - 平成 24 年 福井工大 砂川研
    - 平成 25 年 阪大産研 吉田研
  - 会誌 95 号：平成 25 年 3 月発刊，会誌 96 号：平成 25 年 9 月発刊
3. 平成 24 年度 決算報告（事務局 平出）  
決算報告を確認した。学生会員から一般会員になった会員が増えたので収入が増えたことが報告された。
4. 平成 25 年度事業計画（事務局 平出）

- 第 57 回放射線化学討論会と APSRC2014 は統合して開催する
- 先端放射線化学シンポジウム
- 若手の会（早大 鷲尾研が担当）
- 会誌 97 号：平成 26 年 3 月発刊予定，会誌 98 号：平成 26 年 9 月発刊予定

5. 入退会者，賛助会員一覧（事務局 平出）  
入退会者，賛助会員を確認した（入会者 8 名，退会者 9 名，賛助会員退会 1 社）。原子力機構がまだ賛助会員費を支払っていない。  
マイクロ電子株式会社が今年でなくなるので賛助会員から抜ける可能性がある。次の会社を探したい。（砂川）
6. 会長報告（河内会長）
  - 会長人事  
河内会長より次期会長として鷲尾副会長が推薦され承認された。任期は 1 期 2 年の予定。
  - 授賞規程（中川（和））  
中川理事より，学会賞の授賞規程の変更についての報告があった。全理事に内容配布済の授賞規程（案）・推薦要領（案）を確認し承認された。また，
    - 今までは会長が自動的に選考委員長になっていたが，会長が委員長になると非常にやりにくいことがあった。（河内）
    - なるべく客観的な審査ができる選考委員長，選考委員の選出による賞にした方がいいのではないか。（田川）
    - 今の文言だと会長が自分を委員長に選ぶことはないように見える。（辻）等のコメントがあった。

7. 平成 25 年度役員名簿確認（事務局 平出）

## 本 会 記 事

会長：鷲尾方一

副会長：欠員となった副会長 1 名について、誰を追加するかは新会長に一任するという事を総会で認めてもらうこととした。

常任理事：住吉理事が退任、河内理事が就任、柴田理事の所属が京大から阪大産研に変更。

理事：小泉理事が就任、堀邊理事の所属が金沢工大から大阪市立大に変更。

### 8. 編集委員会報告（事務局 平出）

第 97 号の編集委員会を 9 月 29 日（日）に開催すること、委員が交代することが報告された。

### 9. 企画委員会報告（柴田）

- 先端放射線化学シンポジウムについて  
平成 26 年 2 月頃に東京近郊で「分光をベースとした固体中での放射線照射効果」といった内容で開催予定であること、応用物理学会放射線分科会放射線物理研究会と共催になることが報告された。

- 平成 27 年度について  
秋に放射線化学討論会が開催されない予定なので（ICRR2015 と統合のため）、若手の発表の場と勉強会の場を提供するために、本シンポジウムを若手の会と連動させて開催することを提案したい。

以上、2 点について承認された。後者については、秋の総会をうまく連携する必要がある（田川）といったコメントがあった。

### 10. 国際交流委員会報告（吉田）

- 平成 25 年 5 月開催の ACRR2013 において、本会会員が AARR Award 受賞（勝村）と Young Scientist Award（岡）を受賞した。
- 9 月 28 日昼食時に外国人ネットワーク連絡会を開催する。
- 英文ニュースレターの迅速な配信をする。
- AARR（Asian Association of Radiation Research）に当会からメンバーを派遣するにあたり、一人あたり 100 ドル必要になるこ

とになったことが鷲尾理事より報告があった。

### 11. 平成 26 年度の放射線化学討論会と APSRC2014 について（山下（勝村代理））

山下氏より、平成 26 年度の放射線化学討論会と APSRC2014 の統合開催について報告があった。平成 26 年 9 月 8 日（月）-11 日（木）に東大弥生キャンパス弥生講堂で開催、バンケットは本郷キャンパス山上会館にて、予稿集は共通、3 日目に日本語の日を作る、インド人の参加者に対する金銭面のサポートをどうするか、等が提案され、意見交換が行われた。様々な意見が出たので、それらを持ち帰ってもらって検討してもらうこととなった。

### 12. ICRR について（田川）

放射線化学関係のプログラム提案一覧について以下のように説明があった。

多くの提案があったので実行できるように会期を通じて放射線化学で 1 会場を専有できるように努力します。会場は医学系が非常に多く希望して（エゴでなく企業から財政援助を受けるに値する講演者のための会場を確保するため）いて厳しい状況です。個人的にはセッションと会場が認められたら、ICRR の招待講演者は基礎分野では学問的に名誉なことということで今までの ICRR は参加費免除、懇親会招待ぐらいしか特典はないのでよい招待講演者を招待して充実したセッションにしたい方が積極的にセッションの責任者（複数でも可）になるとよいと思います。今までの ICRR は口頭発表はすべて招待講演でしたが今回は申込みのアブストラクト中から口頭発表者を選ぶことにしました（1/4 程度か）。他分野・他学会とのジョイントセッションも要望されている。

もしテーマとして抜けているものがあれば吉田副会長に連絡をしてください。（河内）

### 13. その他

Web の学会誌のページの目次が日本語である。アブストラクトが英語になっているのに、図表が日本語になっている。それらを英語化してはどうか。（事務局 平出）

# 本 会 記 事

平成 25 年度役員等名簿（平成 25 年 10 月 31 日現在）

|         |  |  |
|---------|--|--|
| 会長      | 鷲尾 方一（早大理工研）   |  |
| 副会長     | 勝村 庸介（東大院工）<br>吉田 陽一（阪大産研）   | 小林 慶規（産総研）<br>平出 哲也（原子力機構・東海）  |
| 常任理事    | 丑田 公規（北里大）<br>小嶋 拓治（原子力機構・高崎）<br>錦見 敏朗（NHV コーポレーション）<br>柴田 裕実（阪大産研）<br>河内 宣之（東工大院理工）   | 辻 正治（九大先導研）<br>永石 隆二（原子力機構・東海）<br>真嶋 哲朗（阪大産研）<br>中川 和道（神大院人間発達環境）  |
| 理事      | 青木 康（住友重機械）<br>長島 章（放振協）<br>小嶋 崇夫（大阪府大）<br>工藤 久明（東大院工）<br>熊谷 純（名大院工）<br>伊藤 賢志（産総研）<br>関 修平（阪大院工）<br>鈴木 信三（京産大理）<br>堀邊 英夫（大阪市大）<br>浅井 圭介（東北大院工）<br>林 慎一郎（広島国際大） | 砂川 武義（福井工大）<br>高橋 憲司（金沢大工）<br>竹中 康之（北教大）<br>中川 清子（都立産技研）<br>中村 一隆（東工大セラミック研）<br>駒口 健治（広大院工）<br>藤原 邦夫（千葉大工）<br>泉 佳伸（福井大）<br>山路 稔（群馬大院工）<br>加藤 隆二（日本大）<br>小泉 均（北大） |
| 監事      | 市川 恒樹（北大院工）  | 平岡 賢三（山梨大工）  |
| 事務局     | 平出 哲也（原子力機構・東海）  | 岡 壽崇（東北大高教セ）   |
| 顧問      | 佐藤 伸<br>田川 精一（阪大産研）<br>田畑 米穂（原子力システム研究懇話会）   | 簗野 嘉彦<br>濱 義昌（早大理工研）<br>南波 秀樹（原子力機構・東海）  |
| 名誉会員    | 今村 昌<br>団野 皓文  | 近藤 正春  |
| 編集委員会   | 委員長：高橋 憲司（金沢大工）<br>主任：駒口 健治（広大院工）<br>越水 正典（東北大院工）<br>武井 太郎（アイ・エレクトロニクス）<br>山本 洋揮（阪大産研）<br>伊藤 賢志（産総研）   | 工藤 久明（東大院工）<br>熊田 高之（原子力機構・関西）<br>木村 敦（原子力機構・高崎）<br>藤井 健太郎（原子力機構・東海）<br>田中 真人（産総研）<br>岡 壽崇（東北大高教セ）   |
| 企画委員会   | 委員長：柴田 裕実（阪大産研）<br>小泉 均（北大院工）<br>駒口 健治（広大院工）<br>砂川 武義（福井工大）<br>辻 正治（九大先導研）<br>楊 金峰（阪大産研）   | 青木 康（住友重機械）<br>越水 正典（東北大院工）<br>佐藤 哲也（山梨大）<br>田口 光正（原子力機構・高崎）<br>室屋 裕佐（阪大産研）  |
| 国際交流委員会 | 委員長：吉田 陽一（阪大産研）<br>室屋 裕佐（阪大産研）<br>田口 光正（原子力機構・高崎）  | 泉 佳伸（福井大）<br>林 銘章（中国科技大）<br>楊 金峰（阪大産研）   |
| 推薦委員会   | 田川 精一（阪大産研）<br>立矢 正典（産総研）<br>南波 秀樹（原子力機構・東海）   | 濱 義昌（早大理工研）<br>平岡 賢三（山梨大工）   |



# 本 会 記 事

## 平成 24 年度会計決算報告（平成 25 年 8 月 26 日現在）

### 収入の部

（単位：円）

| 項目              | 24 年度予算案  | 24 年度決算              | 内容等                                       |
|-----------------|-----------|----------------------|---|
| 賛助会員（13 社 42 口） | 420,000   | 370,000              | 10,000×37 口 未納 5 口（1 社）                   |
| 個人正会員（219 名）    | 922,500   | 981,500              | 4,000 × 242 名 = 968,000                   |
| 学生会員（31 名）      |           |                      | 1,500 × 9 名 = 13,500                      |
|                 |           |                      | 未納金額合計 706,500                            |
| 要旨集 CD 販売       | 0         |                      |   |
| 雑収入（利息等）        | 150,000   | 781<br>650<br>15,338 | 国際文献分（474）、事務局分（307）<br>著作権料<br>寄付金（東北大学） |
| 戻入金             | 0         |                      |   |
| 補助金             | 0         |                      |   |
| 積立基金からの繰り込み     | 0         | 0                    |   |
| 前年度繰越金          | 2,312,352 | 2,312,352            |   |
| 合計              | 3,804,852 | 3,680,621            |   |

### 支出の部

| 項目              | 24 年度予算案  | 24 年度決算   | 内容等   |
|-----------------|-----------|-----------|---|
| 通信連絡費           | 20,000    | 1,020     | 切手代   |
| 振込手数料           |           | 5,775     | 委員会,HP, 原稿料等  |
| 事務委託費<br>年間業務費  | 700,000   | 753,294   | 7-8 月 (86,266), 9-12 月 (452,295), 1-3 月 (69,829),<br>4-6 月 (63,298), 7-8 月 (81,606) |
| 会誌<br>原稿料       | 150,000   | 47,000    |   |
| 会議費             | 15,000    | 4,270     | 理事会軽食代+お茶代  |
| 放射線化学討論会援助      | 200,000   | 200,000   |   |
| 先端放射線化学シンポジウム援助 | 100,000   |           |   |
| 若手の会夏の学校援助      | 150,000   | 150,000   |   |
| 学会賞             | 100,000   | 31,060    | 委員交通費   |
| 企画委員会経費         | 75,000    |           |   |
| 国際交流委員会経費       | 75,000    |           |   |
| 編集委員会経費         | 200,000   | 200,000   |   |
| 日本放射線研究連合負担金    | 50,000    | 50,000    |   |
| ホームページ運営費       | 60,000    | 60,000    |   |
| 予備費             | 200,000   | 4,100     | WEB サーバー年間使用料 3,150, ドメイン年間使用料 950  |
| 小計              | 2,095,000 | 1,506,519 |   |
| 繰越金             | 1,709,852 | 2,174,102 |   |
| 合計              | 3,804,852 | 3,680,621 |   |

# 本 会 記 事

## 平成 24 年度 入退会希望者一覧

### 入会

| 会員種別 | 会員番号 | 会員名    | 所属機関名                 | 紹介者   |
|------|------|--------|-----------------------|-------|
| 学生会員 | 676  | 西田 真麻  | 金沢大学大学院自然科学研究科 物質工学専攻 | 高橋 憲司 |
| 学生会員 | 679  | 峯井 俊太郎 | 茨城大学                  | 平出 哲也 |
| 正会員  | 680  | 小平 聡   | (独)放射線医学総合研究所         | 越水 正典 |
| 学生会員 | 681  | 岩松 和宏  | 東京大学大学院工学系研究科 原子力国際専攻 | 平出 哲也 |
| 学生会員 | 682  | 西川 剛史  | 早稲田大学 鷺尾研究室           | 鷺尾 方一 |
| 学生会員 | 683  | 花崎 祐   | 早稲田大学 鷺尾研究室           | 鷺尾 方一 |
| 正会員  | 684  | 神戸 正雄  | 大阪大学産業科学研究所           | 吉田 陽一 |
| 正会員  | 685  | 林 秀臣   | 芝浦工業大学 非常勤講師, 客員研究員   | なし    |

### 退会

| 会員種別 | 会員番号 | 会員名      | 所属機関名                      | 退会日        |
|------|------|----------|----------------------------|------------|
| 正会員  | 47   | 上野 巧     | 日立化成工業(株) 総合研究所            | 2012/11/8  |
| 正会員  | 225  | 田中 進     | 日本アドバンステクノロジー株式会社          | 2012/9/21  |
| 正会員  | 273  | 中村 宏樹    | 国立交通大学(台湾 新設)              | 2012/9/18  |
| 正会員  | 282  | 西本 清一    | 京都大学大学院 工学研究科              | 2013/8/31  |
| 正会員  | 343  | 細野 雅一    | 日本原子力研究開発機構 高崎研究所          | 2013/8/31  |
| 正会員  | 358  | 松岡 伸吾    | 日本原燃(株) 安全技術室              | 2012/12/28 |
| 正会員  | 508  | 古屋 謙治    | 九州大学基幹研究院                  | 2013/5/29  |
| 賛助会員 | 607  | 四国電力株式会社 | 四国電力株式会社 原子力部              | 2013/1/17  |
| 正会員  | 666  | 加藤 信哉    | 大阪市立大学大学院医学研究科 放射性同位元素実験施設 | 2013/8/31  |
| 学生会員 | 677  | 土田 亮太    | 早稲田大学大学院先進理工学研究科           | 2013/1/31  |

平成 25 年度 日本放射線化学会賛助会員

---

(株) アイ・エレクトロン  
ビーム  
<http://www.elebeam.com>

(株) NHV コーポレーション  
<http://www.nhv.jp>

(株) イー・シーイー  
<http://www.ece-ebara.com>

(株) 環境浄化研究所  
<http://www.kjk-jp.com>

(独) 日本原子力研究開発機構  
<http://www.jaea.go.jp>

ビームオペレーション (株)  
<http://www.beamope.co.jp>

住友電気工業 (株)  
<http://www.sei.co.jp>

(財) 放射線利用振興協会  
<http://www.rada.or.jp>

レーベン館 (株)  
<http://www.leben.jp>

DIC グラフィックス (株)  
<http://www.dic-graphics.co.jp>

(有) イーオーアール  
<http://www.eor.jp>

極東産業 (株)  
<http://www.kyokuto-sangyo.co.jp>

ヨシザワ LA (株)  
<http://www.yoshizawa-la.co.jp>

メック (株)  
<http://www.mec-co.com>

---

放射線化学 第 97 号

平成 26 年 3 月 31 日 発 行

発 行 所 日 本 放 射 線 化 学 会

<hirade.tetsuya@jaea.go.jp>

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

平出哲也（日本原子力研究開発機構・東海）

TEL: 029-282-6552, FAX: 029-282-6716

編集委員長 高 橋 憲 司

編 集 委 員 駒 口 健 治

木 村 敦 熊 田 高 之

山 本 洋 揮 越 水 正 典

工 藤 久 明 武 井 太 郎

藤 井 健 太 郎 田 中 真 人

伊 藤 賢 志 岡 壽 崇

郵便振替口座

長野 00540-9-34599

日本放射線化学会

発 行 人 鷲 尾 方 一