

# アクチノイドで切り拓く環境科学

筑波大学 放射線・アイソトープ地球システム研究センター  
基盤研究部門 坂口 綾

# 自己紹介



## 坂口 綾

筑波大内での所属

- \* 放射線・アイソトープ地球システム  
研究センター 教授・副センター長・総括
- \* 数理物質系 化学域 教授
- \* 生命環境系 教授

専門分野

放射化学、地球科学

研究テーマ

環境中の天然・人工放射性核種を  
利用した環境動態研究

世界の核汚染調査



# 放射線・アイソトープ地球システム研究センター (基盤研究部門 アイソトープ棟)



放射線・アイソトープ地球システム研究センター  
アイソトープ棟



保管庫



汚染検査室



管理区域

国内の大学で最大級の非密封放射性同位元素使用施設

# アクチノイド

第7周期アクチニウム (Ac) からローレンシウム (Lr) までの15元素の総称

全てが放射性元素

全てが放射性元素

<https://sciencenotes.org/printable-periodic-table/>

|                                |                                |                               |                                     |                                |                                  |                                 |                                 |                                  |                                    |                                   |                                   |                                |                                 |                                 |                                   |                                  |                                 |                            |
|--------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|------------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|--------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|-----------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|----------------------------|
| 1<br>H<br>Hydrogen<br>1.01     | 2<br>He<br>Helium<br>4.00      |                               |                                     |                                |                                  |                                 |                                 |                                  |                                    |                                   |                                   |                                |                                 |                                 |                                   |                                  |                                 |                            |
| 3<br>Li<br>Lithium<br>6.94     | 4<br>Be<br>Beryllium<br>9.01   |                               |                                     |                                |                                  |                                 |                                 |                                  |                                    |                                   |                                   |                                |                                 |                                 |                                   |                                  |                                 | 10<br>Ne<br>Neon<br>20.18  |
| 11<br>Na<br>Sodium<br>22.99    | 12<br>Mg<br>Magnesium<br>24.31 |                               |                                     |                                |                                  |                                 |                                 |                                  |                                    |                                   |                                   |                                |                                 |                                 |                                   |                                  |                                 | 18<br>Ar<br>Argon<br>39.95 |
| 19<br>K<br>Potassium<br>39.10  | 20<br>Ca<br>Calcium<br>40.08   | 21<br>Sc<br>Scandium<br>44.96 | 22<br>Ti<br>Titanium<br>47.88       | 23<br>V<br>Vanadium<br>50.94   | 24<br>Cr<br>Chromium<br>51.99    | 25<br>Mn<br>Manganese<br>54.94  | 26<br>Fe<br>Iron<br>55.85       | 27<br>Co<br>Cobalt<br>58.93      | 28<br>Ni<br>Nickel<br>58.69        | 29<br>Cu<br>Copper<br>63.55       | 30<br>Zn<br>Zinc<br>65.38         | 31<br>Ga<br>Gallium<br>69.72   | 32<br>Ge<br>Germanium<br>72.63  | 33<br>As<br>Arsenic<br>74.92    | 34<br>Se<br>Selenium<br>78.97     | 35<br>Br<br>Bromine<br>79.90     | 36<br>Kr<br>Krypton<br>83.80    |                            |
| 37<br>Rb<br>Rubidium<br>85.47  | 38<br>Sr<br>Strontium<br>87.62 | 39<br>Y<br>Yttrium<br>88.91   | 40<br>Zr<br>Zirconium<br>91.22      | 41<br>Nb<br>Niobium<br>92.91   | 42<br>Mo<br>Molybdenum<br>95.95  | 43<br>Tc<br>Technetium<br>98.91 | 44<br>Ru<br>Ruthenium<br>101.07 | 45<br>Rh<br>Rhodium<br>102.91    | 46<br>Pd<br>Palladium<br>106.42    | 47<br>Ag<br>Silver<br>107.87      | 48<br>Cd<br>Cadmium<br>112.41     | 49<br>In<br>Indium<br>114.82   | 50<br>Sn<br>Tin<br>118.71       | 51<br>Sb<br>Antimony<br>121.76  | 52<br>Te<br>Tellurium<br>127.6    | 53<br>I<br>Iodine<br>126.90      | 54<br>Xe<br>Xenon<br>131.29     |                            |
| 55<br>Cs<br>Cesium<br>132.91   | 56<br>Ba<br>Barium<br>137.33   | Ln                            | 72<br>Hf<br>Hafnium<br>178.49       | 73<br>Ta<br>Tantalum<br>180.95 | 74<br>W<br>Tungsten<br>183.85    | 75<br>Re<br>Rhenium<br>186.21   | 76<br>Os<br>Osmium<br>190.23    | 77<br>Ir<br>Iridium<br>192.22    | 78<br>Pt<br>Platinum<br>195.08     | 79<br>Au<br>Gold<br>196.97        | 80<br>Hg<br>Mercury<br>200.59     | 81<br>Tl<br>Thallium<br>204.38 | 82<br>Pb<br>Lead<br>207.20      | 83<br>Bi<br>Bismuth<br>208.98   | 84<br>Po<br>Polonium<br>[209]     | 85<br>At<br>Astatine<br>209.98   | 86<br>Rn<br>Radon<br>222.02     |                            |
| 87<br>Fr<br>Francium<br>223.02 | 88<br>Ra<br>Radium<br>226.03   | Ac                            | 104<br>Rf<br>Rutherfordium<br>[261] | 105<br>Db<br>Dubnium<br>[262]  | 106<br>Sg<br>Seaborgium<br>[266] | 107<br>Bh<br>Bohrium<br>[264]   | 108<br>Hs<br>Hassium<br>[269]   | 109<br>Mt<br>Meitnerium<br>[278] | 110<br>Ds<br>Darmstadtium<br>[281] | 111<br>Rg<br>Roentgenium<br>[280] | 112<br>Cn<br>Copernicium<br>[285] | 113<br>Nh<br>Nihonium<br>[286] | 114<br>Fl<br>Flerovium<br>[289] | 115<br>Mc<br>Moscovium<br>[289] | 116<br>Lv<br>Livermorium<br>[293] | 117<br>Ts<br>Tennessine<br>[294] | 118<br>Og<br>Oganesson<br>[294] |                            |

ランタノイド

|                                 |                               |                                    |                                 |                                  |                                 |                                 |                                  |                                 |                                   |                                  |                                |                                    |                                 |                                  |
|---------------------------------|-------------------------------|------------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|-----------------------------------|----------------------------------|--------------------------------|------------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|
| 57<br>La<br>Lanthanum<br>138.91 | 58<br>Ce<br>Cerium<br>140.12  | 59<br>Pr<br>Praseodymium<br>140.91 | 60<br>Nd<br>Neodymium<br>144.24 | 61<br>Pm<br>Promethium<br>144.91 | 62<br>Sm<br>Samarium<br>150.36  | 63<br>Eu<br>Europium<br>151.96  | 64<br>Gd<br>Gadolinium<br>157.25 | 65<br>Tb<br>Terbium<br>158.93   | 66<br>Dy<br>Dysprosium<br>162.50  | 67<br>Ho<br>Holmium<br>164.93    | 68<br>Er<br>Erbium<br>167.26   | 69<br>Tm<br>Thulium<br>168.93      | 70<br>Yb<br>Ytterbium<br>173.06 | 71<br>Lu<br>Lutetium<br>174.97   |
| 89<br>Ac<br>Actinium<br>227.03  | 90<br>Th<br>Thorium<br>232.04 | 91<br>Pa<br>Protactinium<br>231.04 | 92<br>U<br>Uranium<br>238.03    | 93<br>Np<br>Neptunium<br>237.05  | 94<br>Pu<br>Plutonium<br>244.06 | 95<br>Am<br>Americium<br>243.06 | 96<br>Cm<br>Curium<br>247.07     | 97<br>Bk<br>Berkelium<br>247.07 | 98<br>Cf<br>Californium<br>251.08 | 99<br>Es<br>Einsteinium<br>[254] | 100<br>Fm<br>Fermium<br>257.10 | 101<br>Md<br>Mendelevium<br>258.10 | 102<br>No<br>Nobelium<br>259.10 | 103<br>Lr<br>Lawrencium<br>[262] |

アクチノイド

天然起源も存在 → 人工起源のみ

全アクチノイドでは地球表層に約 $10^{17}$ kg、人工アクチノイドでも数千kg\*存在

\*発表者による計算



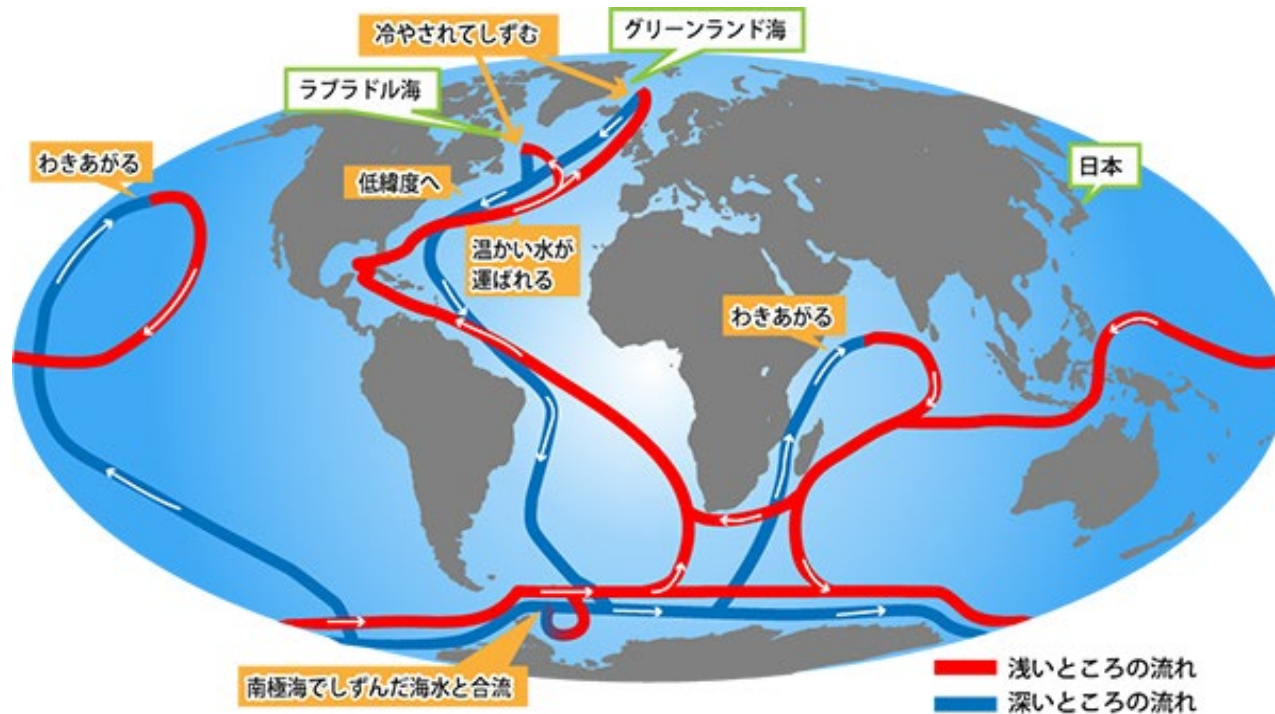
放射線防護、環境影響評価の観点から重要なだけでなく  
**環境動態トレーサー、地球科学研究のツール**としての  
ポテンシャルも秘めている

- さまざまな核種（同位体）が存在
- 広い濃度範囲で存在
- 核種固有の物理的半減期
- 系列核種などの親子関係
- 起源・反応プロセスで異なる同位体組成
- 導入量や導入時期が明確（特に人工放射性核種）

# 水圏のネプツニウム (Np) 測定法確立とその応用

# 海洋大循環 & 各海域での循環

7



[https://www.jamstec.go.jp/j/kids/press\\_release/20130629/](https://www.jamstec.go.jp/j/kids/press_release/20130629/)

**海洋循環と気候変動は密接に関連するため**  
**気候変動の予測に向けた海洋循環の詳細な研究が必要**

## $^{137}\text{Cs}$ に代わる新たな海水循環トレーサーの探索・利用

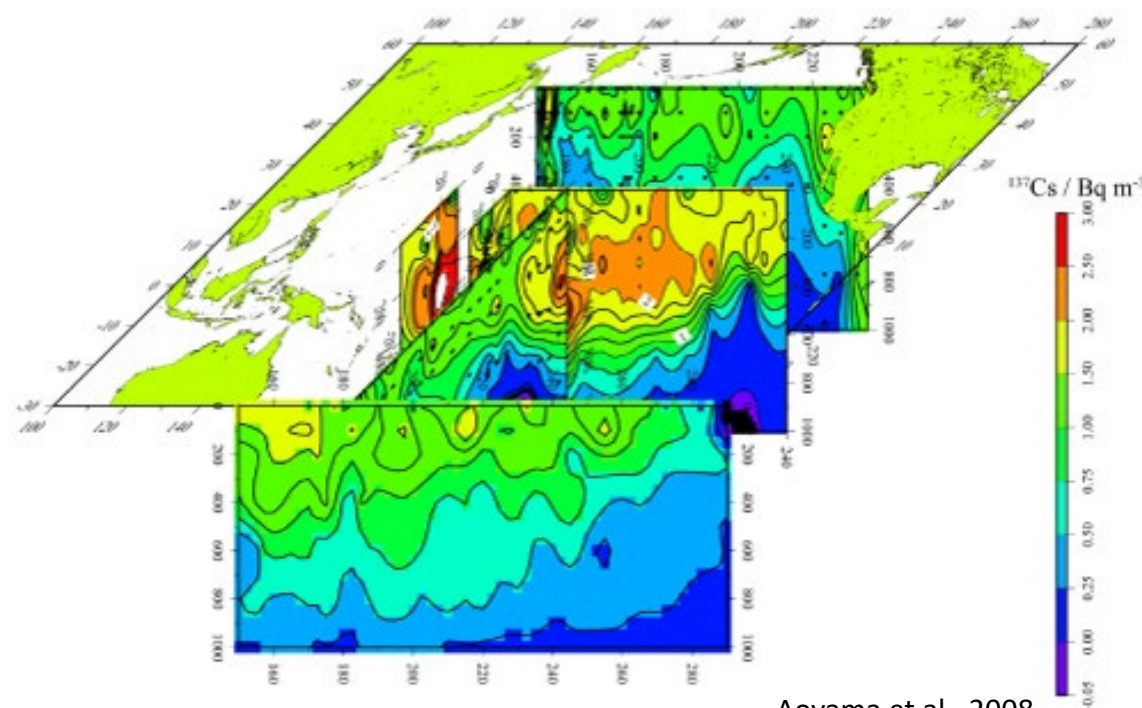
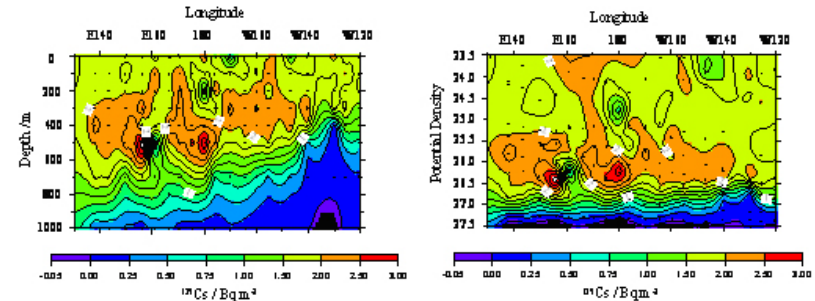
### $^{137}\text{Cs}$ (半減期 30.08 年)

- ・ 海水に良く溶ける (アルカリ金属)
- ・ 供給源が明らかである (供給量・年)  
← 核実験による  
グローバルフォールアウト

深層水では極低濃度  
0.2 mBq/kg  
(数10~100 L必要)

cf. 福島沖での表層海水  
(2011年4月) 180 Bq/kg

北緯24°の海水中 $^{137}\text{Cs}$  濃度分布





$^{237}\text{Np}$  長半減期アクチノイド  
( $2.144 \times 10^6$  y)

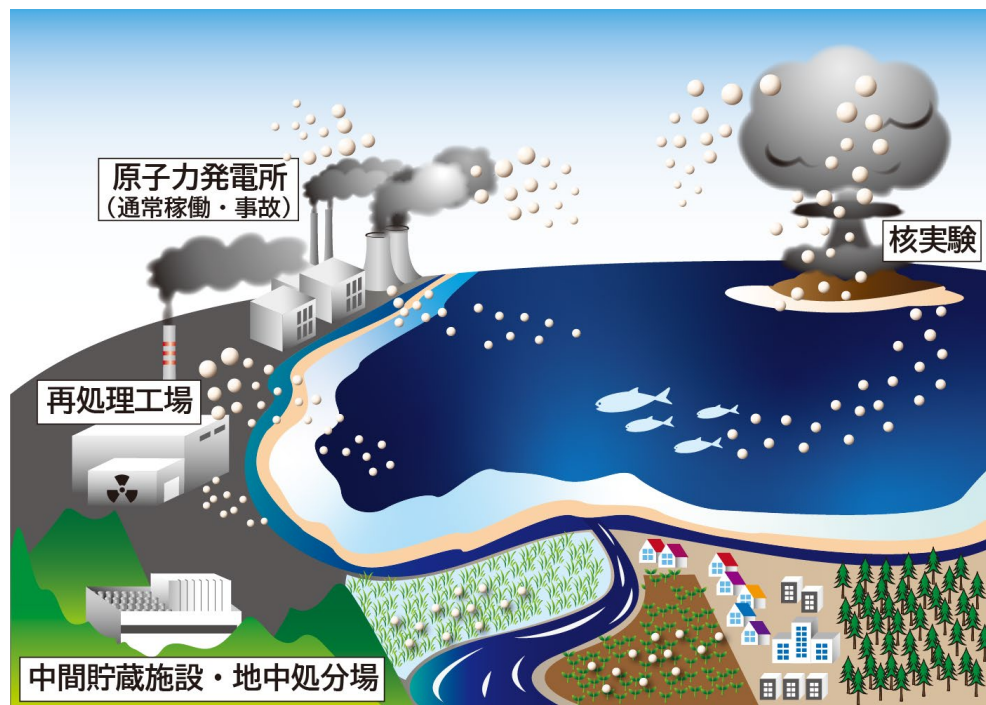
AMS測定では数リットルの海水で  
測定可能(アトグラム量の $^{237}\text{Np}$ )  
cf.  $\alpha$  spectrometryでは1800 L (Holm  
et al., 1987)

Np は保存性 (溶存性) 元素とし  
て海水中に存在 ( $\text{NpO}_2(\text{CO}_3)^-$  Melody  
et al. (2015) )  $\rightarrow$   $^{237}\text{Np}$ は水塊ととも  
に海洋を移動

人工放射性核種  $\rightarrow$  表層環境への  
導入履歴や導入量の復元が可能

起源により異なる同位体組成  
例  $^{236}\text{U}/^{237}\text{Np}$   $^{238}\text{U}(n, xn)$   $^{239-x}\text{U}$

セラフィールド  $\sim 0.016$ , 水爆実験  
 $\sim 0.5$ , 福島原発  $\sim 11.5$ など

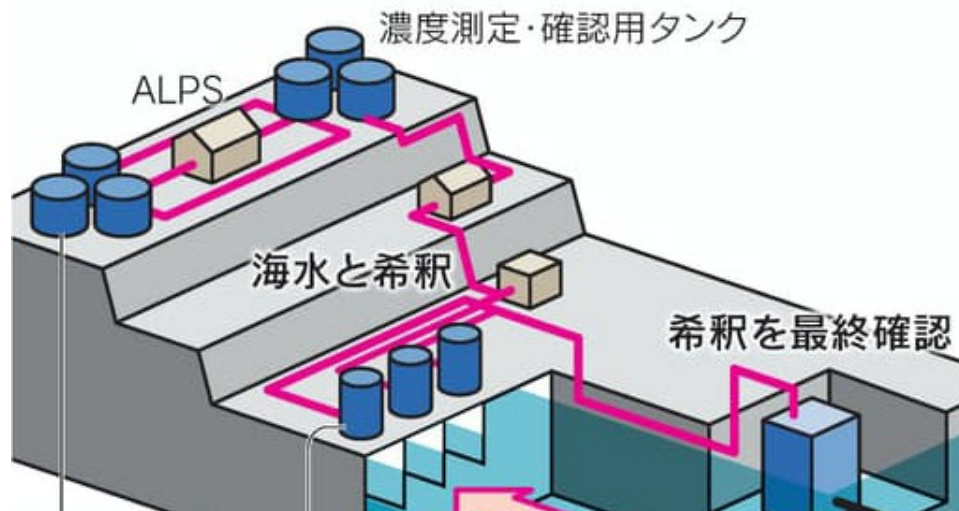


放射線防護、環境影響評価  
の観点から重要なだけでなく、**環境動態トレーサー**と  
してのポテンシャルを秘め  
ている

しかし…環境中Npに関する研究は  
ものすごく遅れている



## 処理水放出時モニタリング必須の「重要核種」



1.37 Mトン以上の処理水が蓄積



<https://www3.nhk.or.jp/news/html/20210426/k10012993691000.html>

### ②-7 測定・評価対象核種の選定の考え方 (3/4)

TEPCO

- 前頁の一部見直しを行った選定フローに基づき評価した結果、**ALPS処理水の海洋放出に当たって測定・評価を行う対象核種は下表の通り29核種**となる。
- 2022年11月の実施計画変更認可申請時には測定・評価対象核種を30核種としていたが、1F技術会合等での議論を踏まえ、Fe-55を選定し、Cd-113m、Cm-243を選定外としている。
- ALPS処理水を海洋放出する際、29核種にて放出基準（トリチウムを除く放射性核種の告示濃度限度比の和が1未満）を満足していることを確認する。合わせて、トリチウム濃度の測定も行い、放出水中に含まれるトリチウム濃度が1,500Bq/L未満となるよう、海洋放出時の希釈倍率を設定する。
- なお、ALPS除去対象核種のうち、測定・評価対象核種の選定外とした39核種は、汚染水中にも存在する可能性はないものの、放出前に自主的に測定し、検出限界未満であることを確認する。

#### 【測定・評価対象核種（29核種）】

|               |                  |                  |                  |                  |
|---------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| C-14<br>炭素    | Sr-90<br>ストロンチウム | I-129<br>ヨウ素     | Eu-154<br>ユークリウム | Pu-239<br>プルトニウム |
| Mn-54<br>マンガン | Y-90<br>イットリウム   | Cs-134<br>セシウム   | Eu-155<br>ユークリウム | Pu-240<br>プルトニウム |
| Fe-55<br>鉄    | Tc-99<br>テクネチウム  | Cs-137<br>セシウム   | U-234<br>ウラン     | Pu-241<br>プルトニウム |
| Co-60<br>コバルト | Ru-106<br>ルテチウム  | Ce-144<br>セリウム   | U-238<br>ウラン     | Am-241<br>アメリシウム |
| Ni-63<br>ニッケル | Sb-125<br>アンチモン  | Pm-147<br>プロメチウム | Np-237<br>ネプツニウム | Cm-244<br>カリウム   |
| Se-79<br>セレン  | Te-125m<br>テルル   | Sm-151<br>サマリウム  | Pu-238<br>プルトニウム |                  |

海底トンネル 1km

6号機  
5号機

放出ポイント

1号機  
2号機  
3号機  
4号機

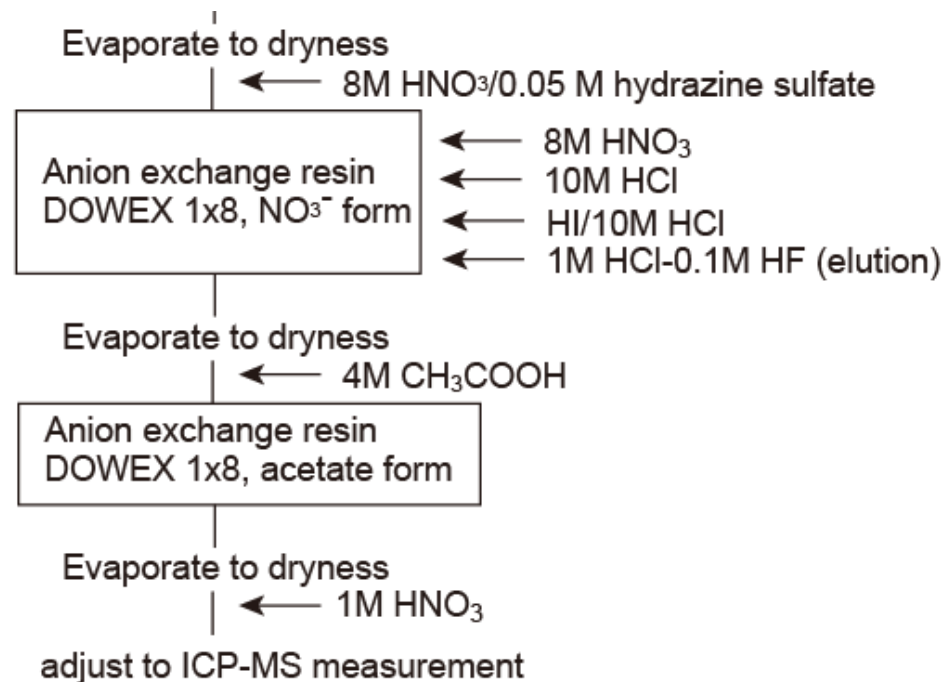
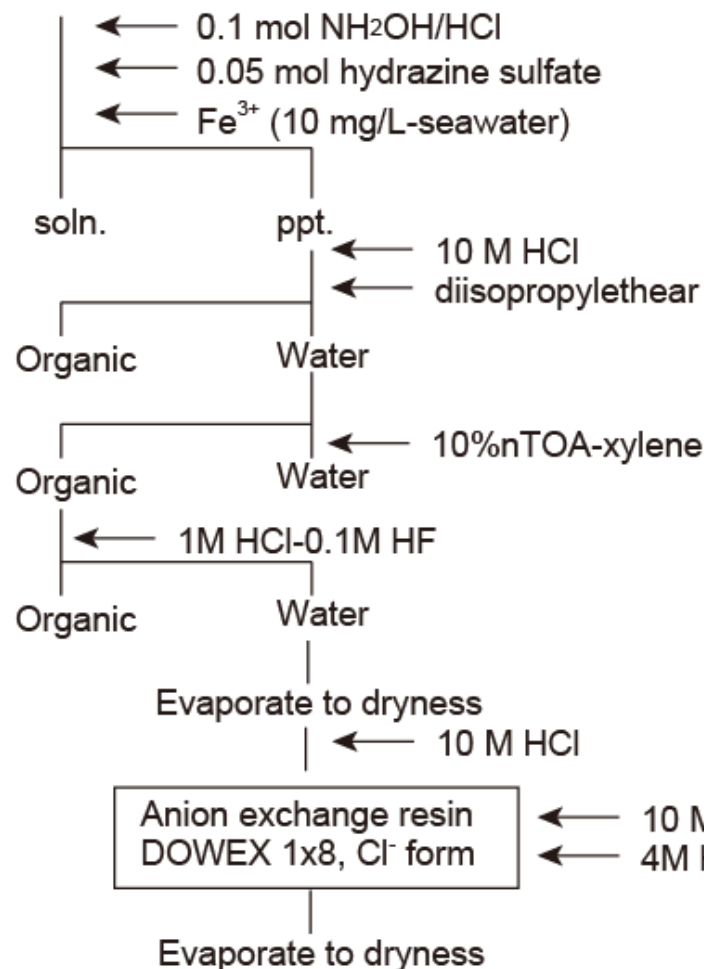
太平洋

<https://www.nikkei.com/article/DGXZQONA258QG0V20C21A8000000/>



## Npのコンベンショナルな分析法

Seawater

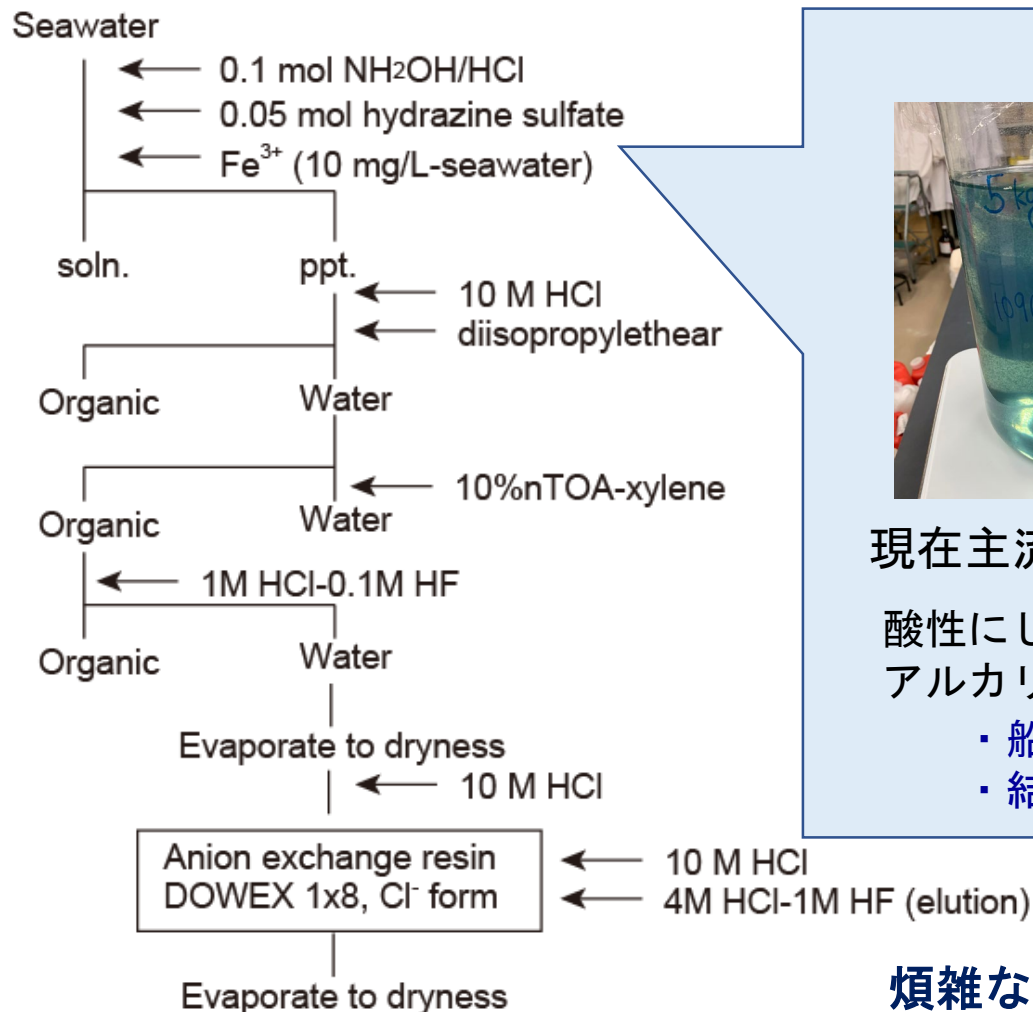


煩雑な精製法

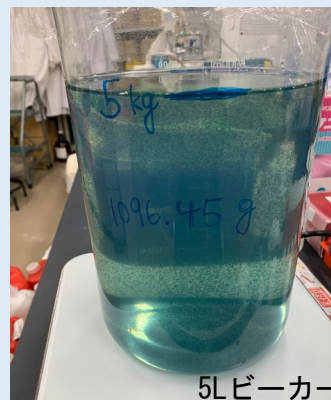
2回の有機溶媒抽出に、3回の陰イオン交換



## Npのコンベンショナルな分析法



### 海水試料からの前濃縮



### 現在主流の共沈法

### 船上での共沈法

酸性にし、還元剤と鉄(III)を入れ攪拌 再度アルカリ性に調製し、一日後 沈殿のみ回収

- ・ 船上での沈殿回収はカナリ大変
- ・ 結局マトリクスを増加させている

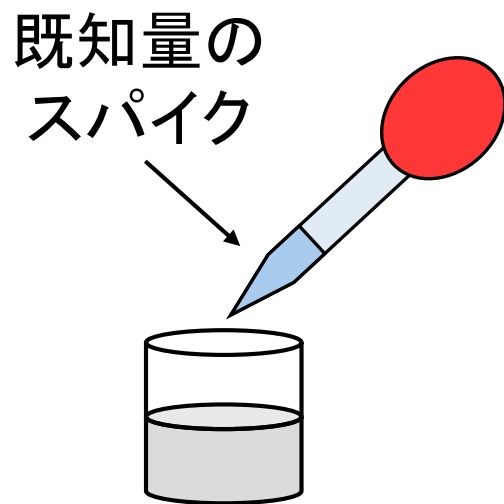
### 煩雑な精製法

2回の有機溶媒抽出に、3回の陰イオン交換

# 人工放射性核種測定のための「スパイク」

14

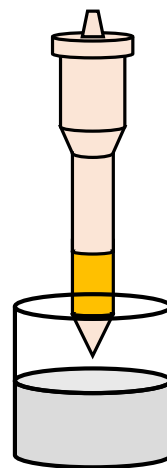
様々なマトリクスを持つ環境試料の回収率補正・  
測定効率補正に「**スパイク**」の添加が必要



環境試料  
添加



化学分離  
回収率: ??%



機器分析  
測定効率: ??%



| 核種  | Np-234 | Np-235  | Np-236 |                      | Np-237               | Np-238 | Np-239 |
|-----|--------|---------|--------|----------------------|----------------------|--------|--------|
|     |        |         | m      | g                    |                      |        |        |
| 半減期 | 4.4 d  | 396.1 d | 22.5 h | $1.54 \times 10^5$ y | $2.14 \times 10^6$ y | 2.12 d | 2.36 d |

質量分析スパイクとしての条件

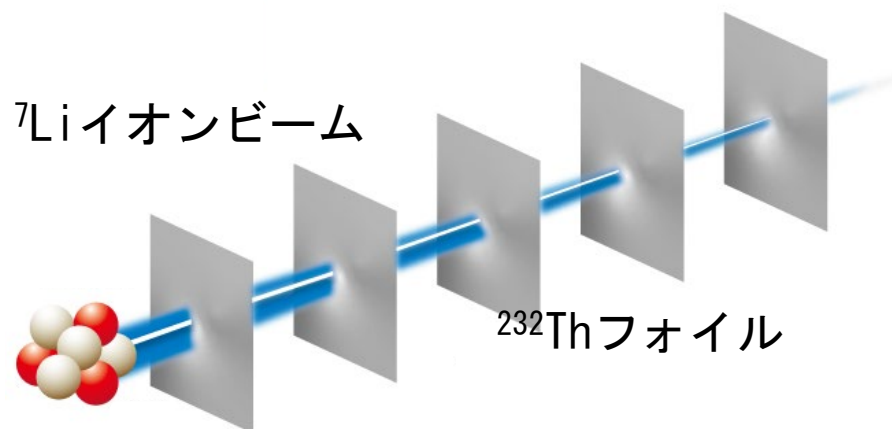
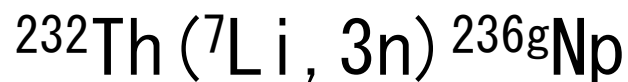
- ・ 測定目的核種の同位体
- ・ 環境中に存在していない同位体
- ・ 長半減期

$^{237}\text{Np}$ 測定用のスパイクは存在していない

$^{236}\text{gNp}$ を製造

海水循環トレーサーとしての利用を目指し

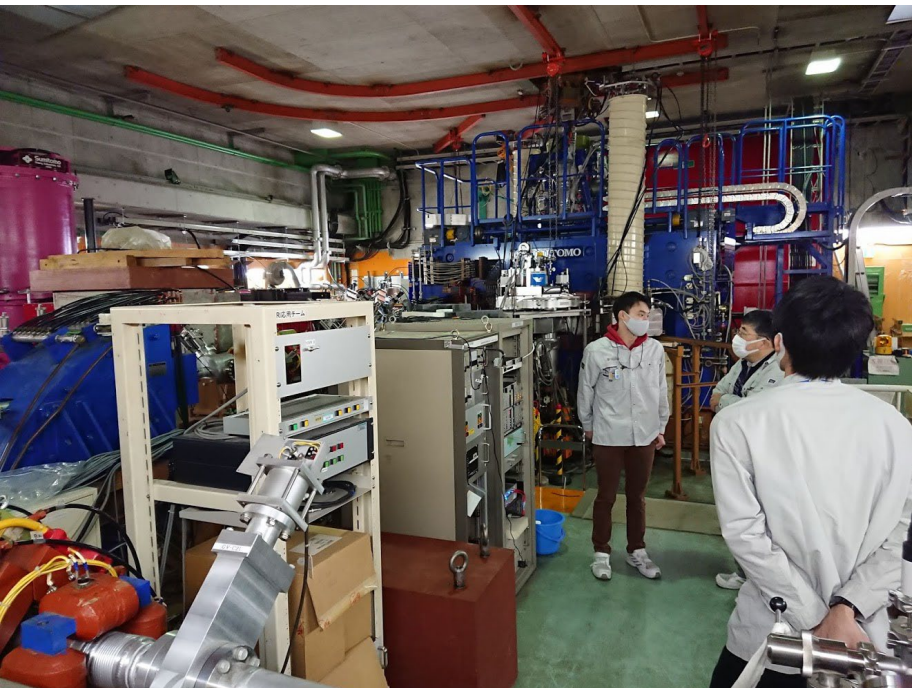
Npスパイクの製造



簡便なNp濃集法・  
化学分離法の検討







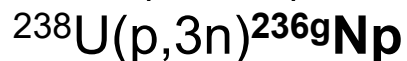
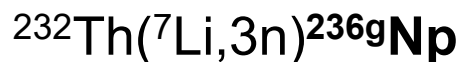
スパイク創製の理想的な核反応



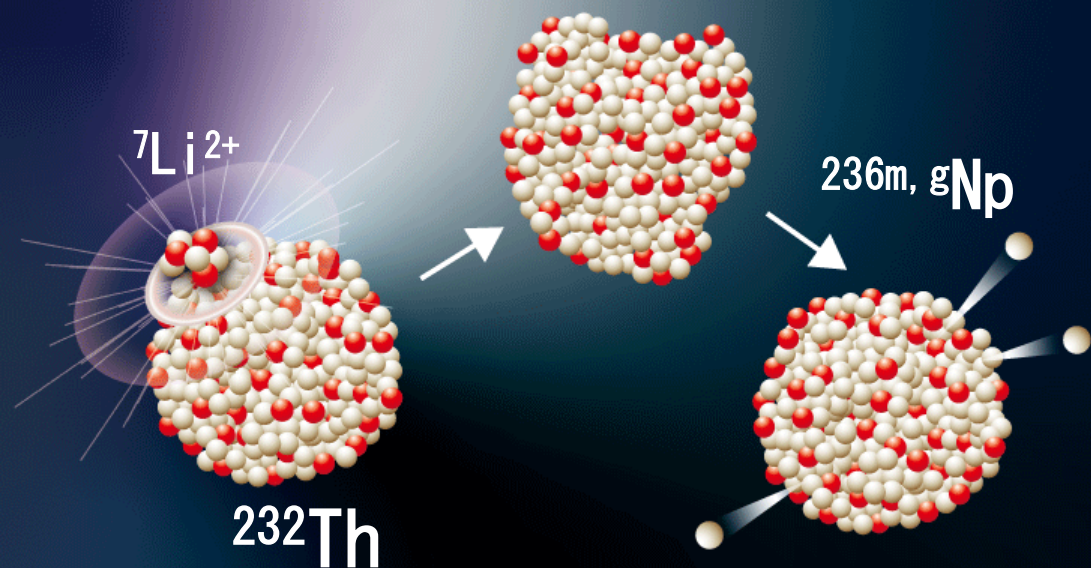
トリウムやウランに高エネルギーLiやpビームを照射して核反応により製造を目指す

理研 AVFサイクロトロン

問題点



核データが存在していない  
化学分離法が確立していない



“船上でも行える” 簡便なNp濃集法を検討する必要あり

## ◆試料採取について

- ・表層海水のNpは極微量 例)  $4.7\text{--}5.9 \times 10^{-15}\text{g/L}$  (太平洋)\*

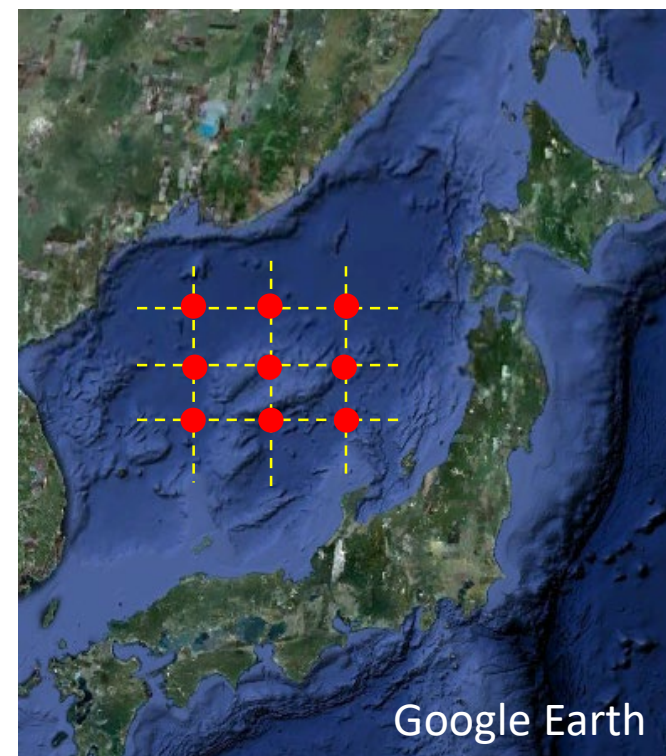
➡ 定量には海水5 L程度必要

- ・深層海水では濃度が1/10以下

(航海での試料採取例)

- ・一度の航海で約9地点
- ・各地点ごとに10深度

➡ 試料運搬・前処理が困難



海水採取ポイント(例)

## 船上でも扱いやすい吸着材の開発

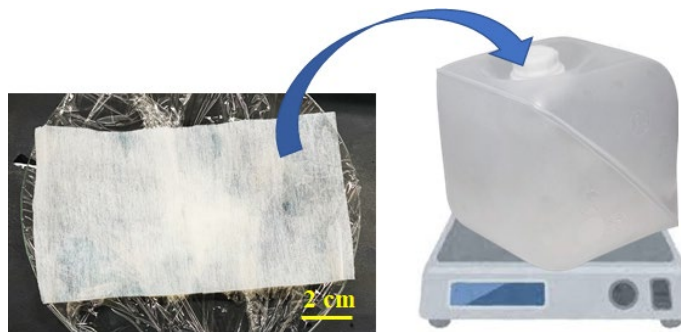
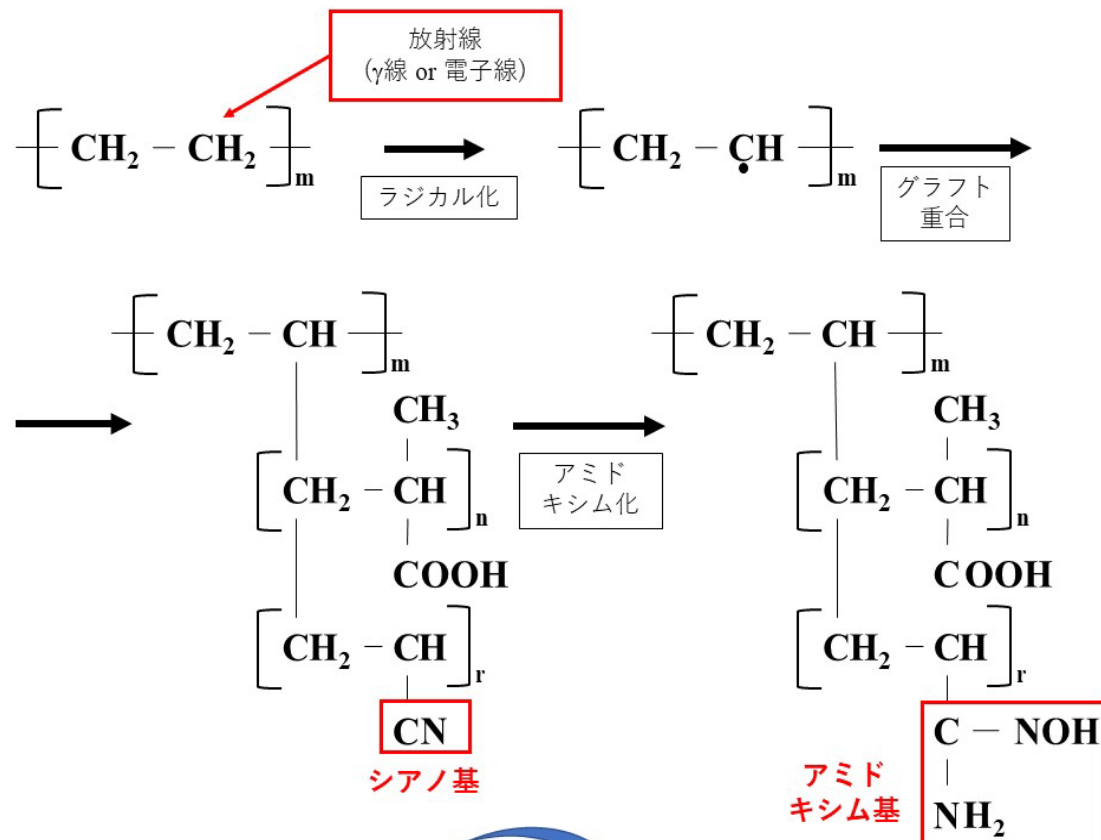


ラジカル化

グラフト重合

アミドキシム化

アルカリ処理



船上での濃集も吸着材を入れるだけ



## 短寿命核種利用により実濃度によるラボ実験が可能

$^{237}\text{Np}$  ( $T_{1/2} = 2.144 \times 10^6$  year)

太平洋の海水中濃度  $< 10^{-15}$  g/L ( $10^6$  atom/kg)

$10^6$  atom レベルの $^{239}\text{Np}$ 放射能  $\sim 20$  Bq

$^{243}\text{Am}$  ( $T_{1/2} = 7370$  y)

→ 親核種から分離

→  $^{239}\text{Np}$  ( $T_{1/2} = 2.4$  d)

### 短寿命核種を用いたラボ実験

#### 課題①

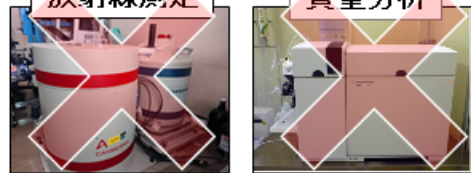
難測定核種を簡単に  
精度よく定量したい

#### 現状①

半減期が数万年オーダー

放射線測定

質量分析

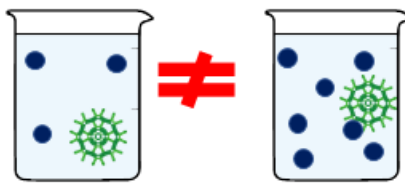


#### 課題②

極低濃度 & 高マトリクス  
試料でも実際の濃度範囲  
(原子数)で実験したい

#### 現状②

低マトリクス、高濃度での実験



#### 課題③

研究対象核種 & 化学種  
を用いて実験したい

#### 現状③

他の安定元素/異なる化学種で  
の実験



### 解決策

全て満たす条件

対象元素の短寿命放射性核種を利用

さまざまな研究分野へ同様に応用可能

環境レベルの原子数で実験可能

放射能 大  
非破壊で易測定

$$A = \lambda N$$

壊変定数 大

# 環境放射化学分野における人材/人財育成

21

資源のない日本、人口増加に対応する世界 原子力の需要がますます高まる  
放射化学・環境放射化学に携われる人材育成が世界的に急務

放射化学(核化学)研究室がある国立大学

2025年度の状況



放射能に関する知識・技術を持つ  
人材が圧倒的に枯渇している

化学分離



放射能測定  
機器分析



試料採取

国内の特別な事情

人材のみならず施設・設備の整備が圧倒的に遅れている  
→ 無意味に厳しい法律による規制→サイエンス発展の妨げ