

JAERI-Review

JP0350111

2003-002



ドイツ重イオン研究所との協定に基づく
イオンビーム利用研究の成果

2003年3月

(編) 吉田 勝・前川 康成

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2003

編集兼発行 日本原子力研究所

ドイツ重イオン研究所との協定に基づくイオンビーム利用研究の成果

日本原子力研究所高崎研究所材料開発部

(編) 吉田 勝・前川 康成

(2003年1月6日受理)

日本原子力研究所（原研）とドイツ重イオン研究所（GSI）は平成3年1月に「イオンビーム照射利用分野の研究開発」に関する覚書を締結し、研究協力を開始した。原研とGSIは、研究交流、情報交換などに基づく研究活動や成果を毎年交互に開催される研究調整者会合を通して報告してきた。本報告書は、これらの協力研究における12年間の研究活動をまとめたものである。

なお付録として関連する論文リスト及び文献を添付している。文献の添付にあたっては出版社からの転載許諾を得ている。

Achievement in Research on Ion Beam Application under the Scientific Cooperation Program with the Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH

(Eds.) Masaru YOSHIDA and Yasunari MAEKAWA

Department of Material Development
Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received January 6, 2003)

The Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) and the Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH (GSI) signed a memorandum of “Research and Development in the Field of Ion Beam Application” in January, 1991 and started the cooperative research program. The cooperation has been implemented by means of joint research between JAERI and GSI, exchange of scientific and technical experts, and providing mutual exchange of research materials as well as technical information. This report summarizes the cooperative research activities under the cooperative research program in the last 12 years.

The list of publications and several articles relating to this cooperative research program are attached as an appendix. All the attached articles are reprinted with permission from the publishers.

Keywords: Ion Beam, Nuclear Tracks, Deep Ion Implantation, Nuclear Chemistry, Heavy Elements, DNA Damage, TIARA, LINIAC, Cooperative Research

目 次

1. はじめに -----	1
2. 研究協力の概要 -----	2
2.1 本覚書の枠組み -----	2
2.2 研究協力に関する経緯 -----	3
2.3 各分野における活動状況と今後の予定 -----	3
3. トピックス集 -----	5
3.1 核飛跡の利用 -----	5
3.1.1 有機材料 -----	5
3.1.2 無機材料 -----	8
3.2 生物物質への照射効果 -----	11
3.3 重元素の核化学 -----	14
4. まとめ -----	16
付録 1. 論文リスト -----	17
付録 2. 論文集 -----	31

Contents

1. Preface -----	1
2. Summary of Cooperative Research Program -----	2
2.1 Framework of the Memorandum -----	2
2.2 History -----	3
2.3 Research Activities in Each Research Field -----	3
3. Topics -----	5
3.1 Utilization of Nuclear Tracks -----	5
3.1.1 Organic Materials -----	5
3.1.2 Inorganic Materials -----	8
3.2 Radiation Effects on Biological Materials -----	11
3.3 Nuclear Chemistry of Heavy Elements -----	14
4. Summary -----	16
Appendix 1. Publication List -----	17
Appendix 2. Published Papers Related with Topics -----	31

This is a blank page.

1. はじめに

日本原子力研究所（原研）とドイツ重イオン研究所（GSI）は平成3年1月に「イオンビーム照射利用分野の研究開発」に関する覚書を締結し、イオンビームによる（1）核飛跡の利用（①有機材料）、（2）生物物質への照射効果、（3）深部イオン注入の3分野の研究協力を開始した。これまで、4期（12年間）にわたる研究協力において、平成9年1月から（4）重元素の核化学、平成12年1月から（1）核飛跡の利用（②無機材料）が新たに追加され、また平成11年12月をもって深部イオン注入に関する協力研究を終了した。原研とGSIは、研究交流、情報交換などに基づく研究活動や成果を毎年交互に開催される研究調整者会合を通して報告してきた。これらの協力において、環境応答性イオン穿孔膜の創製、高感度宇宙線検出器用樹脂の開発、物質改質のための基礎データの蓄積、DNAの2本鎖切断分析技術の開発、修復遺伝子の発見、無機酸化物へのイオン注入技術の開発、超アクチノイド元素の化学的挙動の解明などにおいて成果を挙げ、原研における放射線高度利用研究に貢献してきた。本報告書は、12年間の研究活動をまとめたものである。なお、上記覚書は、引き続き協力期間を延長（第5期、平成15年1月から平成17年12月までの3年間）することで合意が得られている。本協力は原研におけるTIARAやタンデム・ブースター利用研究と相補的な位置づけを有している。今後、さらに機能材料、バイオ、重元素など幅広い分野で双方にとって重要な研究課題の解決に寄与し得る点で、GSIとの協力研究の推進は大きな意義を有するものである。

2. 研究協力の概要

2.1 本覚書の枠組み

本研究協力は、以下の図 2-1 に示す枠組みに基いて実施された。

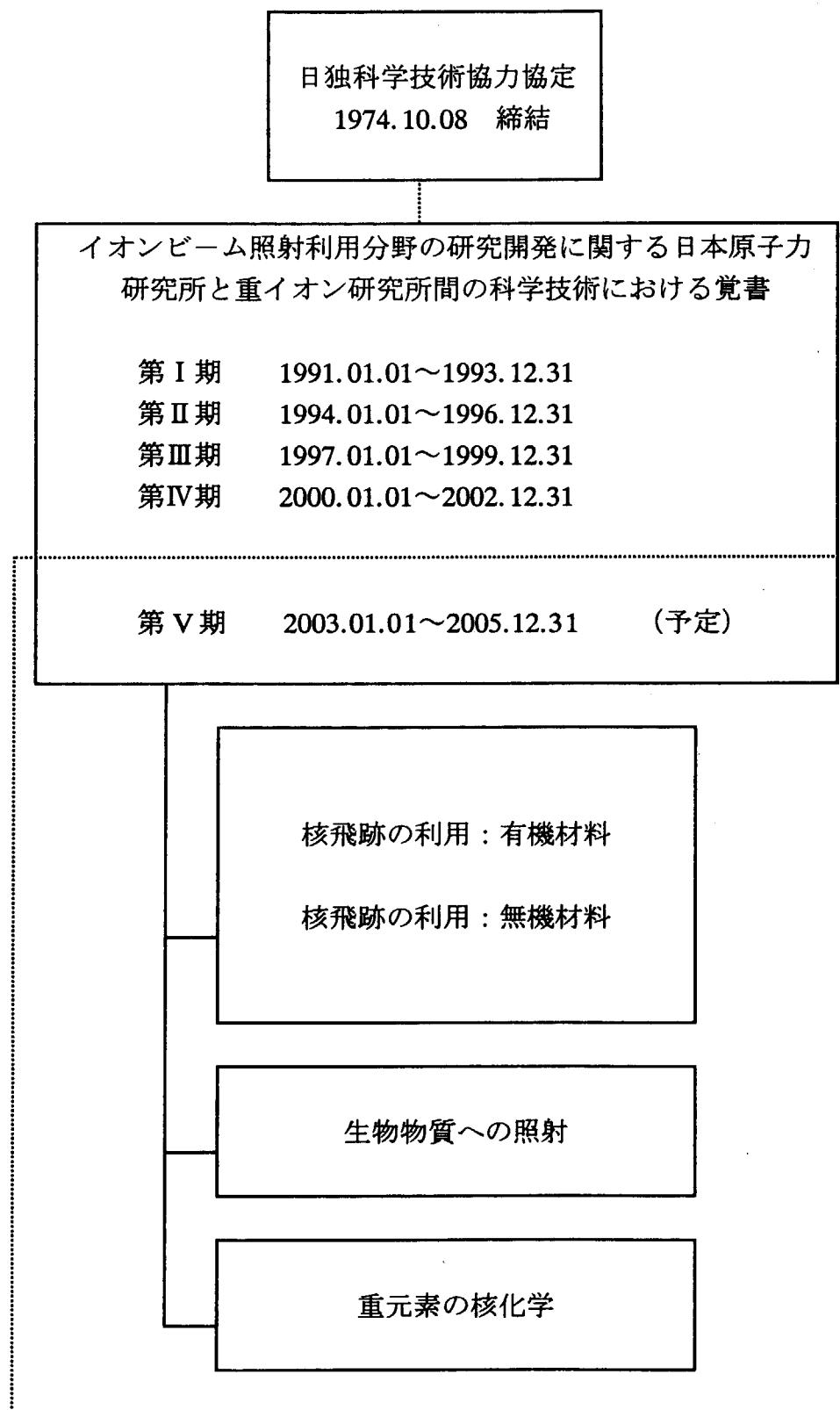


図 2-1 本研究協力の枠組み

2.2 研究協力に関する経緯

本研究協力に関する覚書の締結と研究協力の実施に関する経緯は以下の通りである。

平成元年	日独科学技術協力協定に基づく合同委員会において、研究協力の実施に関する政府間の合意が得られた。
平成 3 年 1 月	日独科学技術協力協定の基に結ばれた覚書により、核飛跡の利用、生物物質への照射効果、深部イオン注入の 3 分野にわたる研究協力を開始した。
平成 6 年 1 月	上記覚書を 3 年間延長し、上記 3 分野の研究協力を継続した。
平成 9 年 1 月	上記覚書をさらに 3 年間延長し、上記 3 分野の研究協力を継続するとともに、新たに重元素の核化学的研究に関する協力を開始した。
平成 10 年 2 月	研究調整者会合において、協定の実施期間を平成 12 年 1 月から 3 年間延長することが基本的に合意された。変更点として、深部イオン注入の分野に関する協力は平成 11 年をもって終了すること、核飛跡の利用に関する分野に無機材料を追加することが合意された。
平成 12 年 1 月	上記覚書をさらに 3 年間延長し、 核飛跡の利用：有機材料（材料開発部） 無機材料（物質科学研究所） 生物物質への照射効果（イオンビーム生物応用研究部） 重元素の核化学（先端基礎研究センター） の 4 分野にわたる研究協力を開始した。
平成 13 年 10 月	研究調整者会合において、協定の実施期間を平成 15 年 1 月から 3 年間延長することが基本的に合意された。

2.3 各分野における活動状況と今後の予定

各分野における活動状況と今後の予定は表 2-1 に示すとおりである。

表2-1 各分野における活動状況と今後の予定

研究分野	第Ⅰ期 H 3 ~ H 5		第Ⅱ期 H 6 ~ H 8		第Ⅲ期 H 9 ~ H 11		第Ⅳ期 H 12 ~ H 14		第Ⅴ期 H 15 ~ H 17	
核飛跡の利用 (1) 有機材料	・環境応答性グルの合成 ・イオンビーム照射技術 ・電気伝導度測定 ・物質透過性試験 ・化学修飾技術の開発		・環境応答性多孔膜の合成 ・孔サイズの精密制御 ・物質の選択的分離		・タンパク分離膜の創製 ・非対称穿孔膜の作製と電気特性評価		・微細孔表面の化学修飾 ・金属・半導体とのハイブリッド化		・微細孔表面の化学修飾 ・金属・半導体とのハイブリッド化	
核飛跡の利用 (2) 無機材料							・トラック構造のキャラクリゼーション ・物質改質のための基礎データ蓄積		・トラックの形成機構の解明(速度効果) ・磁性体などの改質 ・電子励起ミキシングによる化合物合成	
重イオンによるDNA損傷	・DNA損傷の分析法 ・細胞内DNA損傷の測定		・DNA切断の分析技術の開発 ・動物細胞への照射効果 ・細菌細胞への照射効果		・特異的DNA分解物の分析 ・損傷の検出 ・定量法及び修復反応		・マイクロビーム細胞照射技術 ・DNA修復蛋白質の単離 ・細胞内蛋白質の検出		・高速・高精度細胞照射技術 ・細胞応答機構の解明 ・高LET重イオンの生物影響	
深部イオン注入	・注入イオンの荷電状態の解析 ・光吸収特性評価		・金属酸化物の機械的性質 ・穴陥回復過程の照射解析		・金属酸化物の高機能化 ・光応答性評価					
重元素の核化学					・超アクチノイド元素の研究 ・重核・重金属の合成 ・核分裂機構の研究		・106番元素(Sg)の溶液中での酸化状態の確認 ・104番元素(Rf)の溶液状態の考察 ・ ²³ Amの半減期の決定		・迅速化学分離装置の製作 ・Rfのイオン交換挙動の解明 ・ ²³ Am、 ²⁵⁷ Am同位体の発見	

3. トピックス集

3.1 核飛跡の利用

3.1.1 一有機材料一

温度応答性イオン穿孔膜による物質の透過制御

高崎研究所 材料開発部 有機機能材料研究室

吉田 勝、前川康成

1. はじめに

イオンビームを利用して微細孔を創り、さらにその微細孔を機能化して得られる環境応答性多孔膜は、ナノオーダースケールでの有用物質の分離を目指した新しい分子フィルターとして期待されている。すなわち、イオン穿孔の壁面に環境応答性ゲル層を化学修飾し、このゲル層を外部環境からの僅かな温度刺激などに応答させ、孔の大きさを制御するわけである。そこで、新しいイオンビーム照射技術とインテリジェント材料を分子設計し合成する技術のコンビネーションより、温度応答性多孔膜の創製と物質の選択分離膜への適用を試みた。

2. 温度応答性イオン穿孔膜

イオンは数Åのサイズをもつ荷電粒子である。このような荷電粒子が有機高分子膜を通過した場合、Fig. 1 に見られるように、その潜在飛跡 (latent track) に沿って局所的に高密度の損傷を与えることが知られている¹⁾。この膜をアルカリエッティング処理すると、イオントラック部分のみが選択的に溶解するため、光リソグラフィーやレーザー加工などの既存の技術では得られない、円筒状の微細孔を有する有機薄膜（イオン穿孔膜）が作製できる。イオン穿孔の孔径は、材料に対する放射線感受性にもよるが貫通孔として数十ナノのオーダーから可能であり、またエッティング時間の経過とともに孔径を数十ミクロンのオーダーまで広げることもできる。更に、化学エッティングの過程で、円錐状、円柱状などに変化させることも可能である。

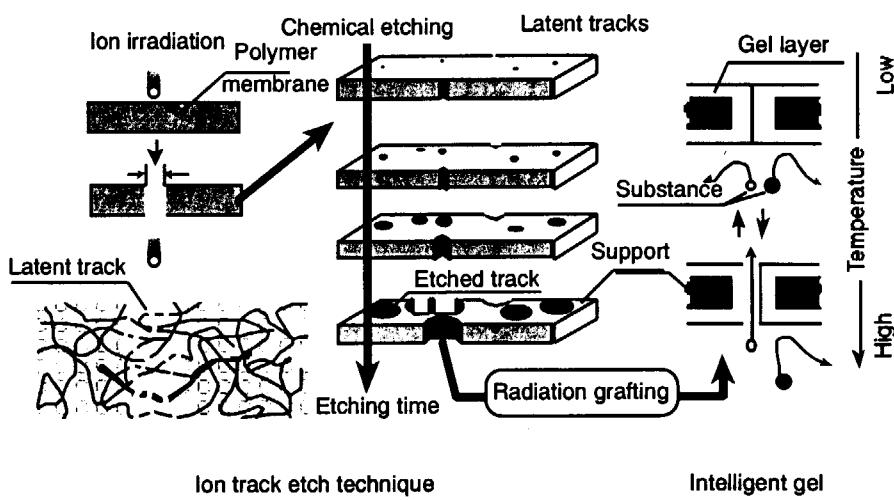


Fig. 1. Schematic diagram showing the production process of responsive membranes by radiation-grafting of functional monomers onto the surface of ion track membranes.

イオンビームに対する感度の高いジエチレングリコール・ビス・アリルカーボネート (CR-39) と環境応答性ゲルの一つであるアクリロイル-L-プロリンメチルエステル (A-ProOMe) を共重合させ、得られた高分子フィルム (CR-39/A-ProOMe, 90/10 % : 550 μm 厚さ) に 6.19 MeV/n のエネルギーをもつクリプトン (^{84}Kr) イオンを照射ののち、6 M 水酸化ナトリウム水溶液中、60°C で 1 時間エッティングを行うことで、孔径 1.3 μm の円柱状を有するイオン穿孔膜を調製した。

このイオン穿孔膜の表面に、14 °C (相転移温度) を境に膨潤／収縮を繰り返す性質がある A-ProOMe を放射線グラフト重合させ、1% の収量からなるグラフトゲル層を形成させた。A-ProOMe を含む共重合体膜を用いた理由は、環境応答性ゲル (A-ProOMe) をイオン穿孔膜の表面に均一にグラフトさせるための工夫である。この膜を 0 °C と 30 °C の水中に浸漬し、その時の孔の大きさを電子顕微鏡で観察した結果を Fig. 2 に示す。0 °C (膨潤状態) の場合、孔の径は閉じているが (約 0.3 μm)、30 °C (収縮状態) では開いている (約 1.2 μm)。この開閉変化は可逆的であり、A-ProOMe 重合物の膨潤／収縮の繰り返し変化に対応した応答作用であると結論できる。

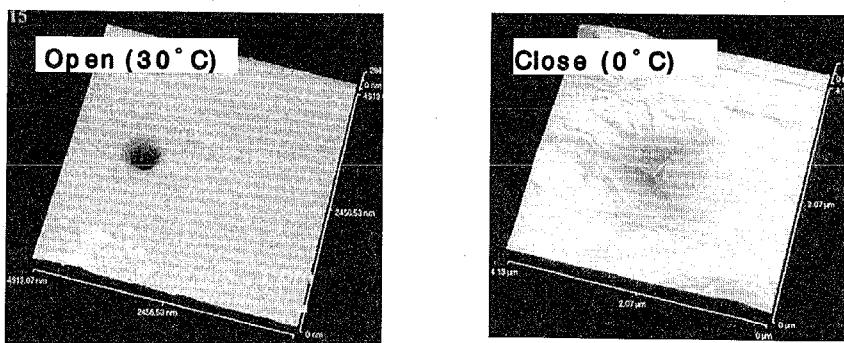


Fig. 2. AFM photographs and line profiles of a thin film having cylindrical nanopores at 0 and 30 °C.

3. 選択性分離膜への応用

イオン穿孔膜に温度応答性高分子をグラフトして得られた温度応答性多孔膜を用いて、温度変化による物質の透過制御実験を試みた、この多孔膜に対する p-ニトロフェノール (PNP) の水溶液中の透過係数と温度の関係を Fig. 3 に示す。温度変化に追従して PNP の透過は 13°C 付近から急速に加速され 16°C 付近で飽和に達することが分かった。この結果は、ゲル層の収縮による微細孔の閉状態は、PNP がイオン穿孔内を核酸りっそくで透過できるのに対し、ゲル層の膨潤による微細孔の閉状態では、PNP の透過が約 500 分の 1 程度に抑制されたことを示している。このことから、今回開発した温度応答性多孔膜を用いることによって、非常に狭い温度範囲で物質の透過を制御できることが確かめられた。

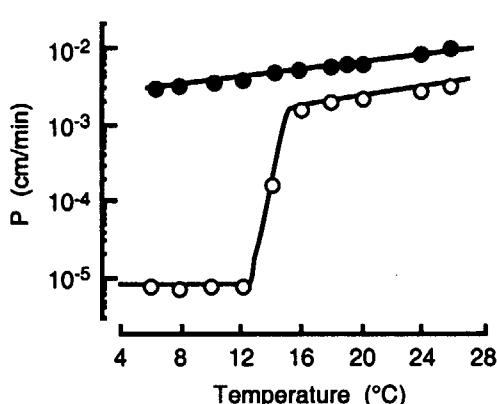


Fig. 3. Temperature dependence of the permeability of p-nitrophenol through an ungrafted ion track membrane (J) and through a A-ProOMe-grafted ion track membrane (E). The permeability, determined by a modified Franz cell, was calculated from the following equation $P = kV / AC$, where k is the slope of the permeation-time curve, V is the volume of the receiver chamber, A is the surface area of the membrane, and C is the concentration of p-nitrophenol trapped in the donor chamber, respectively.

4. おわりに

環境応答性多孔膜は、僅かな温度変化に応答させて、孔の精密制御を行えるという観点から、市販の多孔膜に見られなかったユニークな性質をもっている。さらに重要なこととして、環境応答性多孔膜は孔の内壁がアミノ酸の成分から成るゲル層で覆われているため（血管の内壁と類似した構造をもつため）、血液成分の分離に対して損傷を与えないことも特徴の一つである。環境応答性多孔膜のもつこののようなユニークな性質は、薬学、医学、農学、工学など多くの分野での応用に期待がもたれている。例えば、農薬、肥料の長期間にわたる昼夜の温度差を利用した効率的な放出、バイオリアクター用材料としての応用、血液成分の選択的な分離、ドラッグデリバリー用材料として薬物の持続的な放出などがあげられる。一方、環境応答性ゲルの機能発現は、pH、電気、溶媒などの刺激に対する応答についても進められており、応用範囲がさらに拡大されることが予想される。

3.1.2 -無機材料-

無機材料における重イオントラック生成機構

—イオン速度と電子的阻止能依存性—

東海研究所 物質科学部 材料照射解析グループ

岩瀬彰宏

1. はじめに

100 MeV~GeV といった高エネルギー領域の重イオンが無機物質中を通過するときに失うエネルギーの大部分は、物質中の電子との衝突によるものである。その結果、物質中では、イオンのパスに沿って極めて高密度の電子励起が生ずる。この電子励起状態が緩和する過程で、そのエネルギーの一部が格子系へ移行し、原子配列の変化をもたらすことがある。それは、代表的には絶縁体での重イオントラック（非晶質トラック）として観測されるが、励起密度の大きさや物質の種類に依存して、格子膨張、相変態、溶質原子偏析、点欠陥の生成・消滅、といった現象として現れることもある。これらの現象を理解する上で最も重要なことは、「どのようなメカニズムで、格子系にエネルギーが移行するか」、ということである。そこで、我々は、ターゲットとして高密度電子励起に敏感な酸化物超伝導体 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ を選び、イオンの種類や加速エネルギーに関して互いに相補的な2台の加速器、即ち、原研東海研のタンデム加速器、GSI研究所の UNILAC 加速器を用いて、幅広いエネルギー領域での照射実験を行った。電子励起の結果生ずる原子配列変化の程度は、照射による格子定数（c 軸の長さ）の増加により評価した。

2. 照射効果の電子的阻止能、イオン速度依存性

Fig. 1 に、結果の一部を示す。照射による格子定数の増加は、電子励起に費やされたエネルギーが格子系へ緩和し、原子配列が変化したため生じたもの、と考えられる。その場合、照射効果は、電子励起密度を表す量である電子的阻止能と良い相関を持つのが自然であろう。しかし、Fig. 1 は、同じ阻止能を有するイオンでも、その速度が異なれば、効果は大きく異なることを示している。即ち、イオン速度が遅いイオンほど、格子系に与える効果が大きいのである。この傾向は、初期電離断面積(primary ionization cross section)という物理量が現象を支配している、と考えると非常にうまく説明できる。初期電離断面積とは、イオンが物質中、電子の励起によって単位長さあたりに生成する正に帯電した原子の個数である。イオンの速度が小さいときは、そのパスに沿って、正電荷の原子が多く生成され、これら正電荷同士の反発により原子配列は大きく乱れる (Fig. 2 左)。一方、イオン速度が大きくなると、電離断面積は小さくなり、イオンパスに沿って発生する正電荷の数は減少する。その結果、原子配列の乱れも少なくなる (Fig. 2 右)。2台の加速器による照射で得られたすべてのデータを初期電離断面積でプロ

ットしたのが Fig. 3 である。非常に広いエネルギー範囲のデータをプロットしたにもかかわらず、単位照射量あたりの照射効果が、初期電離断面積でみごとにスケールされているのが判る。

3. 結論

これらの結果から、 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ においては、電子の高密度励起状態から原子配列変化への緩和の初期過程は、電子励起によって帶電した原子同士の反発で支配されることが示された。同様な傾向は、純金属である鉄ターゲットにおいても得られている。ここで得られた知見は、他の物質で見られる重イオントラック生成機構を論ずる上でも重要なものである。

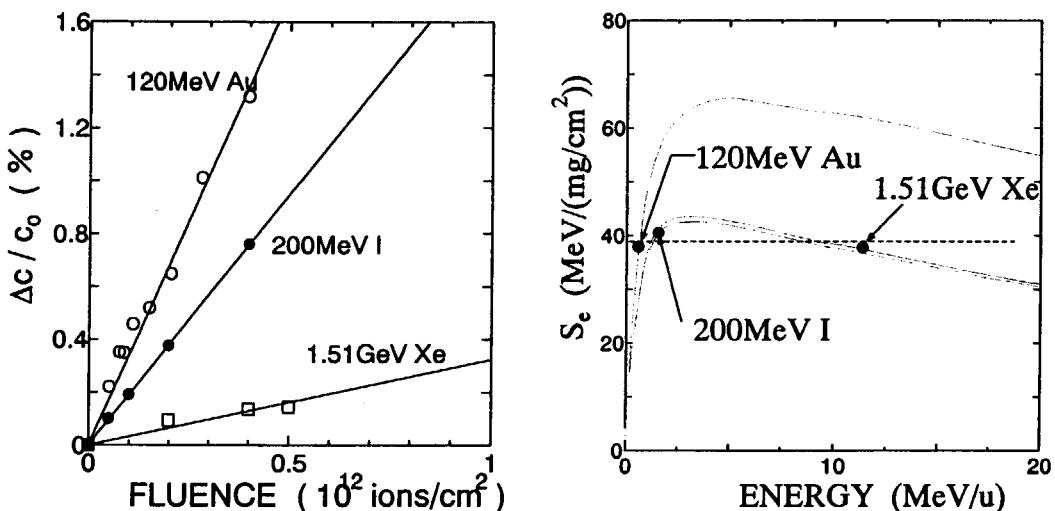


Fig. 1. Change in lattice parameter of EuBaCuO irradiated with 120 MeV Au, 200 MeV I and 1.51 GeV Xe ions (left). Electronic stopping power for 120 MeV Au, 200 MeV I and 1.51 GeV Xe ions as a function of ion energy (right).

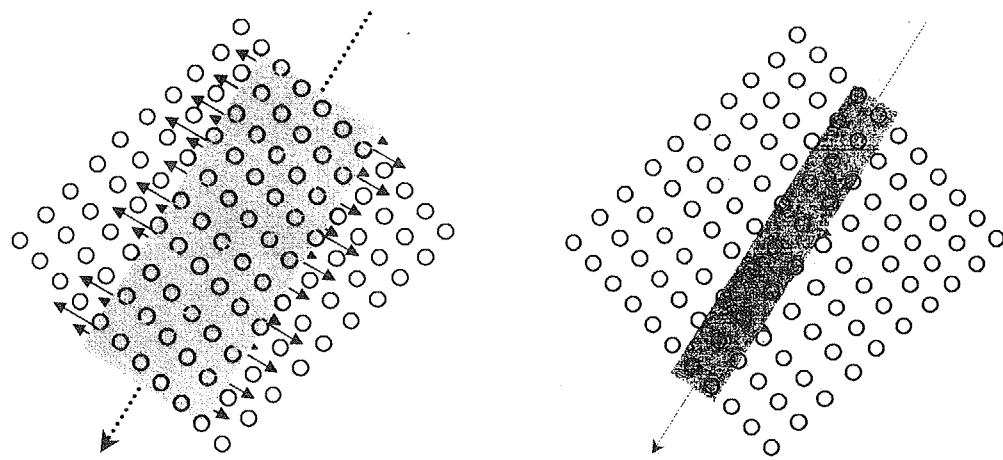


Fig. 2 Schematic diagram showing dependence of energy relaxation to lattice system on ion-velocity.

Left: low velocity case. Right: high velocity case.

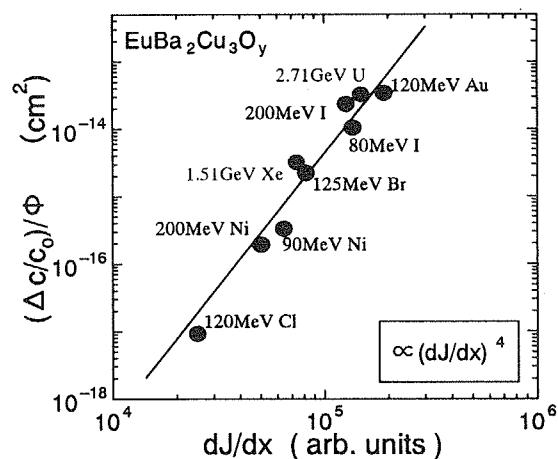


Fig.3 Change rate of lattice parameter as a function of primary ionization cross section, dJ/dx . (● : data from JAERI-tandem accelerator, ● : data from GSI-UNILAC))

3.2 生物物質への照射効果

重イオンマイクロビーム細胞照射実験系の構築と細胞応答機構の解析

高崎研究所 イオンビーム生物応用研究部 バイオ技術研究室

小林泰彦

1. はじめに

高 LET のイオン照射の生物影響は、 γ 線やX線、電子線などの低 LET 放射線のように線量 (Gy) を尺度として評価することはできない。なぜなら、照射したイオンの LET 値 (keV/ μ m) が大きくなればなるほど、より低いフルエンス (p/cm^2) で平均的には同一の線量が与えられることになるが、実際には、照射された細胞群の中に、細胞核や細胞質だけがヒットされた細胞や、全くヒットされなかつた細胞がポアソン分布によって混在し、イオン照射効果が実験誤差の中に埋もれてしまうからである。このような高 LET 重イオンの、特に宇宙環境における銀河宇宙線のように、一部の細胞が時たまヒットされるような極低フルエンス照射効果を明らかにするためには、イオンのトラック構造と局所的エネルギー付与分布による影響を解明する必要がある。そのためには、従来のランダムな照射ではなく、イオンの飛跡と標的細胞との距離を正確に制御した照射実験によって DNA 損傷や細胞応答機構を解析しなければならない。

一方、バイスタンダー効果と呼ばれる現象が近年明らかにされつつある。これは、照射された細胞に隣接した非照射の細胞が、照射細胞からの細胞間情報伝達により、あたかも自身が照射されたようにアポトーシス等の反応を示す現象である。この現象は、従来の古典的な放射線生物学の方法論、すなわち照射の効果を解析するために対象全体を照射し、その反応を見るという方法では容易に解析することができない。それには、マイクロビームを用いた照射実験系が最適である。

そこで、大気中に取り出した高エネルギー重イオンマイクロビームを顕微鏡観察下の生物試料に照射することができる TIARA サイクロトロン HZ1 ポートの細胞局部照射装置を用いて、細胞核に照準した細胞に重イオンマイクロビームを照射し、試料細胞を貫通した 1 個 1 個のイオンをシンチレータで検出することによってイオンのヒット個数を制御して哺乳動物細胞を個別に照射・観察する実験系を構築した。

2. 細胞照射用マイクロビームシステムの概要

この実験系には、最低限、以下の各性能が要求される。すなわち、(1) 生きた哺乳動物培養細胞を、(2) ひとつひとつ正確に狙って、(3) イオンのヒット数を数えながら照射し、(4) 照射の直後に実際のイオンのヒット位置と個数を確認し、(5) 照射後の細胞を培養しながら経時的に観察して照射効果を検出できること、などが必要である。その概略を以下の各ステップに分けて説明する。

(図 1 参照)

1) 照射用細胞容器の製作

重イオンマイクロビーム照射ポートによる動物培養細胞へのシングルイオン照射実験を行うためには、照射中の細胞試料の乾燥や雑菌による汚染を防ぐとともに、培養細胞の核の観察が容易であること、照射後のイオン飛跡を速やかに検出してヒット位置を確認できること、照射後に培養を継続して細胞応答を観察できること、などの条件を満足する照射用細胞容器が必要である。そこで、細胞の培養条件、細胞核の観察方法などを検討し、飛跡検出用プラスチック CR-39 を用いて照射用細胞容器を製作するとともに、個々の細胞を貫通したイオン個数及びヒット位置を照射直後に正確に測定する方法を開発した。厚さ $100\text{ }\mu\text{m}$ の CR-39 を底とするシャーレを製作し、照射の数時間前に、適当な数の CHO-K1 細胞を CR-39 上に直接まき込むための条件を見い出した。照射の直前に培養液を除去する際には、カプトン膜で被うことによって培養細胞の乾燥と照射室の空気中の雑菌による汚染を防ぐことができる。

2) 標的細胞の自動検出

照射室での個々の標的細胞へのビーム照準に要する時間をできるだけ短くするため、準備室に設置したオフライン顕微鏡を用いて照射の前に予め標的細胞の座標データを作成し、そのデータにもとづいて照射室のオンライン顕微鏡の試料ステージを制御し、標的細胞を順次、自動的にビーム射出口（マイクロアパーチャー）の直下に持ってくることが可能なシステムを構築した。オフライン顕微鏡で標的細胞を効率的に自動検出する手段として、細胞毒性の無い色素で細胞質を染色し、緑色光を照射して得られる橙色の蛍光画像を取り込み細胞の輪郭を検出する光学系を開発した。さらに、検出できた細胞の分布を平面図にプロットして、標的分布図として印刷出力する機能など、照射実験の効率化に役立つソフトを作成しては順次システムに追加している。

3) マイクロビーム形成、再照準、照射

オフライン顕微鏡で事前に作成した座標データに基づき、標的細胞を自動照準できるようになったが、ステージ駆動機構の精度が悪く、全自动では正確な照射ができないため、オンライン顕微鏡上で改めて照射細胞を観察して再照準する必要がある。ところが、マイクロアパーチャーの直下に細胞を持ってくると、細胞観察に適している位相差照明装置はビームラインの末端部と干渉して使えないため、従来は観察の手段が無かった。そこで、従来のマイクロアパーチャーに代えて、先端を細く絞ったマイクロアパーチャーを製作し、その周囲にリングライトを設置し、位相差照明装置の位相差リングからの光に似せた照明光が標的細胞を透過してから対物レンズに入射するように工夫することによって、擬似的な位相差像観察が可能となり、これによって細胞核の正確な再照準ができるようになった。

4) 細胞への実際のイオンヒット位置・個数の確認と、照射効果の経時的観察

本システムでは、CR-39 上に接着している標的細胞を貫通したイオンのエネルギーと個数をシンチレータとフォトマルを用いて測定することによって、重イオンを 1 個ずつカウントしながら細胞に照射する。そこで、実際に細胞のどこに何個のイオンが当たっているかを確認するために、照射直後に、細胞が接着している CR-39 の裏面を 37°C の細胞インキュベータの中で細胞を培養しながらアルカリ-エタノール溶液を用いて短時間 (LET 値に依存するが、15~25 分) でエッティングし、可視化されたイオン飛跡を顕微鏡観察する方法を確立した。照射直後にエッティングして観察する必要があるのは、細胞のアメーバ運動や、分裂増殖に先立って、ヒット位置を確認しておく必要があるからである。さらに、すべての標的細胞とイオンの飛跡の位置関係のデータが、この顕微鏡観察像から得られることになる。

3. 1 個の重イオンのヒットによる細胞増殖阻害効果

本システムを用いて、CHO-K1 細胞の核を狙って、13.0 MeV/u の ^{20}Ne (LET = 380 keV/ μm) または 11.5 MeV/u の ^{40}Ar (LET = 1260 keV/ μm) を照射する実験を行った。個別の標的細胞に対するイオンのヒット位置は、上記の方法によって照射終了から 20 分以内に検出することができた。このエッティング処理による細胞増殖への影響は認められなかった。照射後 60 時間まで継続的に各細胞の増殖を観察し、個々の細胞に対して検出した照射イオン数・位置と、各細胞の増殖曲線を比較したところ、重イオンが 1 個でもヒットした細胞では、ヒットしていない細胞に比べ、細胞増殖が著しく阻害されることが分かった。これは、重イオンマイクロビームを用いて得られた世界初の実験データである。今後、1 回の照射実験における試料の N 数を増やして統計学的な吟味を可能にするなど、照射の精度及び効率の向上のためのシステムの改良を続け、照射損傷の生成から細胞レベルの応答に至る諸過程を分子生物学的に解明するとともに、イオン照射の生物効果における LET 依存性の本質、すなわちイオンのトラック構造と局所的な線量付与分布の影響を解析する予定である。

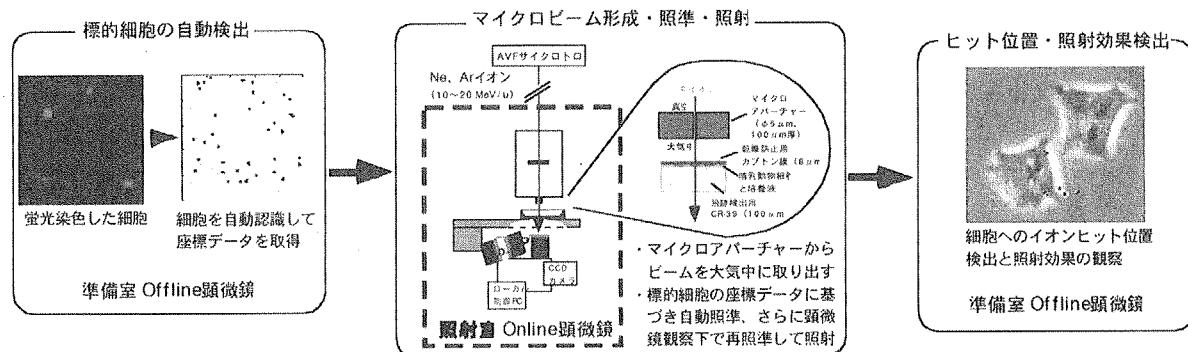


図 1. 哺乳動物培養細胞への重イオンマイクロビーム照射実験システム

3.3 重元素の核化学

超アクチノイド元素ラザフォージウム、ドブニウムの合成と ラザフォージウムのイオン交換挙動

先端基礎研究センター 超アクチノイド元素核化学研究グループ
永目諭一郎

1. はじめに

原子番号 104 のラザフォージウムより重い元素は超アクチノイド元素と呼ばれ、キュリウムなどのアクチノイドターゲットに重イオンビームを照射して合成される。しかし合成される原子の数は、数分間に 1 個以下で、しかも寿命は短く数 10 秒以下で崩壊してしまう。このため超アクチノイド元素の化学的性質はほとんど調べられていない。また超アクチノイド元素のように重い元素では、原子内での電子構造に相対論効果が期待され、周期表から予想される化学的性質に従わない可能性もあり、基礎化学の観点からも大きな関心が持たれている。本国際協力では、超アクチノイド元素の化学的性質を明らかにするとともに、予想される相対論効果のはたらきを実験的に検証することを目的としている。ここでは、原研側で行ってきた成果を中心に紹介する。

2. ラザフォージウム、ドブニウムの合成

これまで東海研究所のタンデム加速器施設に、超アクチノイド元素の合成ならびに化学挙動研究のための実験装置の整備を進めてきた [1]。そして 104, 105 番元素の化学挙動を調べるための対象核種である ^{261}Rf (半減期 78 秒) と ^{262}Db (半減期 34 秒) を日本で初めて合成することに成功した。

合成に用いた核反応は、 $^{248}\text{Cm}(^{180}, 5n)^{261}\text{Rf}$ ならびに $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F}, 5n)^{262}\text{Db}$ である。Fig. 1 に示すように ^{248}Cm ターゲットから反跳で飛び出してくる核反応生成物を、塩化カリウム (KCl) の微粒子を含んだヘリウムガス中に捕獲し、それをガスジェット搬送装置で 2-3 秒のうちに放射線測定装置 MANON (Measurement system for Alpha particle and spontaneous fission events On-line) へと導く。この装置では ^{261}Rf , ^{262}Db の壊変に伴う α 線を連続的に、また引き続き生じる娘核からの α 壊変との相関 (例えば $^{261}\text{Rf} \rightarrow ^{257}\text{No} \rightarrow$) を検出することができる。この結果 ^{261}Rf の生成断面積として約 13nb という値を得た。また同じく $^{262}\text{Db} \rightarrow ^{258}\text{Lr} \rightarrow$ の α 壊変連鎖の測定から、 ^{262}Db の生成断面積を約 1nb と決定した。生成率としては、 ^{261}Rf が約 2 原子/分、 ^{262}Db は約 1 原子/5 分であった [2]。

3. ラザフォージウムのイオン交換挙動

このように超アクチノイド元素の生成量はきわめて小さく、しかも短い寿命でしか存在しない。つまり生成した原子は、次の原子が生成されるまで生き残ることができない。このため 1 度に 1 個の原子を対象に、迅速に分離分析して化学的性質を決定する必要がある。これを atom-at-a-time chemistry と呼んでいる。Fig. 1 に GSI と共同で開発した、超小型の迅速イオン交換分離装置 AIDA (Automated Ion-exchange separation apparatus coupled with the Detection system for Alpha spectroscopy) の概要を示す。この装置は 20 連のマイクロカラム (1.6mm $\phi \times 7\text{mm}$) がそれぞれ 2 つのカートリッジに装備され、Rf のイオン交換分離から α 線測定までの一連の操作を自動的に繰り返し行うことができる。上記ガスジェット装置で搬送してきた ^{261}Rf を、一定時間捕集した後、カラム上部に移動させ、酸溶液で溶解してイオン交換カラムに通す。溶離液はタンタル製の試料皿に捕集され、蒸発乾固の後、 α 線測定に供される。十分な統計を得るために、イオン交換と測定の一連の操作を数百回繰り返し行った。また周期表で同族元素と期待される第 4 族元素ジルコニウム、ハフニウムのイオン交換挙動も全く同じ条件下で調べた。

塩酸溶液系でのラザフォージウム、ジルコニウム、ハフニウムのイオン交換挙動を Fig. 2 に示す。ラザホージウムの陰イオン交換樹脂に対する吸着がジルコニウム、ハフニウムと非常に良く似ていることがわかる。また硝酸溶液系でも同様な結果を得ることができた [3]。以上の結果から、ラザフォージウムは周期表の第 4 属に位置する元素であることを明確に示すことができた。一方 GSI での

フッ化物錯体の陽イオン交換実験で、ラザフォージウムと同族元素ジルコニウム、ハフニウムとでは挙動が少し異なることを明らかにした[4]。これは原研で最近行ったフッ化水素酸系での陰イオン交換実験の結果とも一致している。現在この結果に関しては、相対論効果を考慮した電子状態計算も含めて検討を継続している。

4. 今後の計画

ラザフォージウムの溶液中での溶存状態を考察するには、同族元素ジルコニウム、ハフニウムの溶存状態に関する知見が必要である。このため、種々の酸濃度における溶液中でのジルコニウム、ハフニウムの XAFS (X-ray Absorption Fine Structure) スペクトルの測定を予定している。一方、相対論効果を考慮した電子状態計算を進め、実験結果に及ぼしている相対論効果の評価を行う。また 105 番元素ドブニウムのイオン交換挙動研究にも着手する。 ^{262}Db は ^{261}Rf と比べて半減期が 34 秒と短くなるだけでなく、生成率も約 10 分の 1 となる。このため改良型 AIDA の製作を計画している。

参考文献

- [1]. H. Haba et al. Radiochim. Acta 89, 733 (2001).
- [2]. Y. Nagame et al. J. Nucl. Radiochem. Soc. 3, 85 (2002).
- [3]. H. Haba et al. J. Nucl. Radiochem. Soc. 3, 143 (2002).
- [4]. E. Strub et al. Radiochim. Acta 88, 265 (2000).

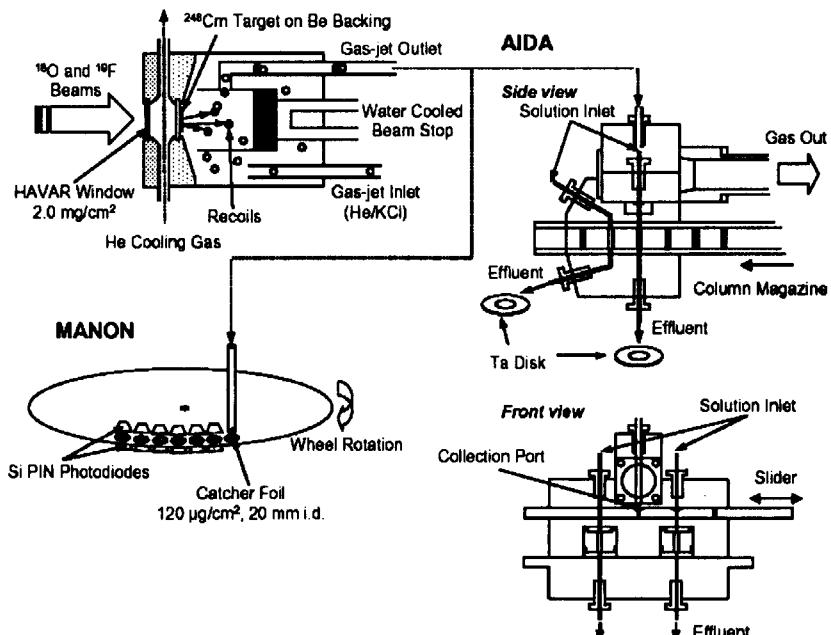


Fig. 1. Schematic of the experimental set-ups for the study of the transactinide elements.

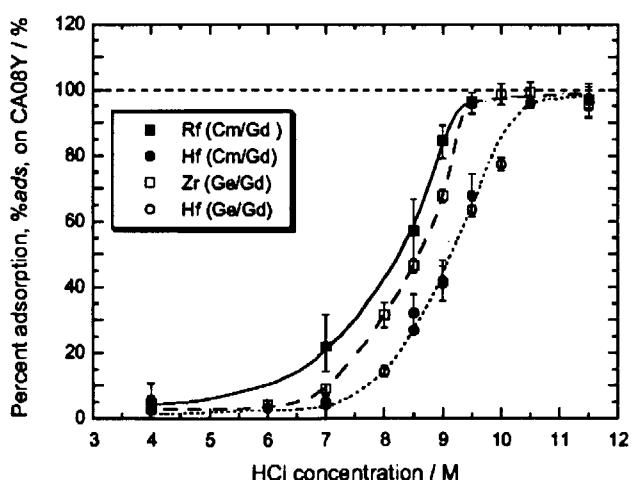


Fig. 2. Adsorption behavior of Rf, Zr and Hf as a function of HCl concentration [3].

4. まとめ

原研と GSI は、「イオンビーム照射利用分野の研究開発」に基づく、12年間にわたる協力研究において、毎年交互に開催される研究調整者会合などでの研究交流、情報交換を充実させることで多くの研究成果をあげてきた。

核飛跡の利用 – 有機材料分野においては、イオンビームを利用して微細孔を創り、さらにその微細孔に温度応答性ゲル層を化学修飾することで、僅かな温度変化に感応する環境応答性多孔膜の創製に成功した。この環境応答性多孔膜は、ナノオーダースケールでの有用物質の分離を非常に狭い温度範囲で制御できる、新しい分子フィルターとして機能することを示した。また、核飛跡の利用 – 無機材料分野においては、 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ などの高密度励起状態から原子配列変化への緩和初期過程が、電子励起によって帯電した原子同士の反発で支配されることを明らかにした。ここで得られた知見は、他の物質で見られる重イオントラック生成機構を論ずる上でも重要なものである。

生物物質への照射効果分野においては、高エネルギー重イオンマイクロビームを顕微鏡観察下の生物試料に照射することで、イオンのヒット個数を制御して哺乳動物細胞を個別に照射・観察する実験系を構築した。この実験系を利用することで、重イオンが 1 個でもヒットした細胞では、ヒットしていない細胞に比べ、細胞増殖が著しく阻害されることを、世界で初めて実証することが出来た。

重元素の核化学分野においては、GSI と共同で開発した超小型の迅速イオン交換分離装置を利用することで、生成量はきわめて小さく、しかも短い寿命でしか存在しない超アクチノイド元素であるラザフォージウムが周期表の第 4 属に位置する元素であることを明確に示した。更に、ラザフォージウムのフッ化物錯体は、同族元素ジルコニウム、ハフニウムと挙動が少し異なることを明らかにした。

上記の研究成果を含む各研究分野ごとの論文リストおよびトピックスに関連した論文を、それぞれ付録 1、付録 2 に示す。

付録 1. 論文リスト

核飛跡の利用－有機材料－

(1992 年)

- 1) Thermo-response of ion track pores in copolymer films of methacryloyl-L-alanine methyl ester and diethyleneglycol-bis-allylcarbonate
M. Tamada, M. Yoshida, M. Asano, H. Omichi, R. Katakai, R. Spohr, and J. Vetter
Polymer, 33, 3169-3172 (1992)
- 2) Sensitization of track etching in CR-39 by copolymerization with methacryloyl-L-alanine methyl ester
M. Tamada, M. Yoshida, M. Asano, H. Omichi, R. Katakai, C. Trautmann, J. Vetter, and R. Spohr
Nucl. Tracks Radiat. Meas., 20, 543-547 (1992)

(1993 年)

- 3) Stimulus-responsive track pores
M. Yoshida, M. Tamada, M. Asano, H. Omichi, H. Kubota, R. Katakai, R. Spohr, and J. Vetter
Radiation Effects and Defects in Solids, 126, 409-412 (1993)
- 4) Ultrasonic etching in polymethylmethacrylate using chlorinated acetic acid
M. Kumakura, M. Yoshida, Y. Komaki, J. Ishikawa, T. Sakurai, K. Furukawa, and S. Ohno
Nucl. Tracks Radiat. Meas., 21, 287-290 (1993)
- 5) 重イオン照射による多孔膜作製装置の設計と現状
浅野勝春、吉田 勝、玉田正男、荒川和夫、福田光宏、奥村 進、上松 進、大道英樹
放射線, 19, 19-26 (1993)

(1995 年)

- 6) Preparation of hydrolyzed pH responsive ion track membrane
M. Tamada, M. Asano, R. Spohr, J. Vetter, C. Trautmann, M. Yoshida, R. Katakai, and H. Omichi
Macromol. Rapid Commun., 16, 47-51 (1995)
- 7) Development of copolymer of CR-39 with high sensitivity to low LET particles
K. Ogura, T. Hattori, M. Hirata, M. Asano, M. Yoshida, M. Tamada, H. Omichi, N. Nagaoka, H. Kubota, and R. Katakai
Radiat. Meas., 25, 159-162 (1995)
- 8) Thermal switching of grafted single ion tracks
R. Reber, H. Omichi, R. Spohr, M. Tamada, A. Wolf, and M. Yoshida
Nucl. Instr. Meth., B105, 275-277 (1995)

(1996 年)

- 9) 温度変化に追従して孔の大きさが変化する機能性フィルム
吉田 勝
高圧ガス、33、320-324 (1996)
- 10) イオンによる環境応答性多孔膜の作製
大道英樹、吉田 勝、浅野雅春、片貝良一、R. Spohr、J. Vetter
アイオニクス、22、27-32 (1996)
- 11) 環境応答性多孔膜
吉田 勝
放射線化学、62、2-15 (1996)
- 12) インテリジェントイオン穿孔フィルム
浅野雅春、吉田 勝、大道英樹、長岡範安、久保田 仁、片貝良一、N. Reber、R. Spohr
放射線、22、61-70 (1996)
- 13) Novel thin film with cylindrical nanopores that open and close depending on temperature: First successful synthesis
M. Yoshida, M. Asano, A. Safranj, H. Omichi, R. Spohr, J. Vetter, and R. Katakai
Macromolecules, 29, 8987-8989 (1996)
- 14) Poly(N-isopropylacrylamide) hydrogels
A. Safranj, M. Yoshida, and R. Katakai
Polymeric Materials Encyclopedia -Synthesis, Properties, and Applications-, Ed. by J.C. Salamone, p6340-6346, CRC Press, Inc., 1996

(1997 年)

- 15) Reversible on-off switch function of ion-track pores for thermo-responsive films based on copolymers of diethyleneglycol-bis-allylcarbonate and acryloyl-L-proline methyl ester
M. Yoshida, N. Nagaoka, M. Asano, H. Omichi, H. Kubota, K. Ogura, J. Vetter, R. Spohr, and R. Katakai
Nucl. Instrum. Meth. B122, 39-44 (1997)
- 16) Creation of thermo-responsive ion-track membranes
M. Yoshida, M. Asano, T. Suwa, N. Reber, R. Spohr, and R. Katakai
Adv. Mater., 9, 757-758 (1997)
- 17) Application of ion beams to synthesis of environmentally responsive track membranes
H. Omichi, M. Yoshida, M. Asano, N. Nagaoka, H. Kubota, R. Katakai, and R. Spohr
J. Nucl. Mater., 248, 354-359 (1997)
- 18) Application of ion beams to synthesis of environmentally responsive track membranes
H. Omichi, M. Yoshida, M. Asano, N. Nagaoka, H. Kubota, R. Katakai, R. Spohr, N. Reber, A. Wolf, G.M. Alder, V. Ang, C.L. Bashford, and C.A. Pasternak
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B131, 350-356 (1997)

- 19) Proton response of high sensitivity CR-39 copolymer
K. Ogura, T. Hattori, M. Asano, M. Yoshida, H. Omichi, N. Nagaoka, H. Kubota, R. Katakai, and H. Hasegawa
Radiat. Meas., 28, 197-200 (1997)
- 20) Substrate-specific functional membranes based on etched ion tracks
M. Yoshida, M. Asano, H. Omichi, R. Spohr, and R. Katakai
Radiat. Meas., 28, 799-810 (1997)

(1998 年)

- 21) Thermal control of drug release by a responsive ion track membrane observed by radio tracer flow dialysis
R. Spohr, N. Reber, A. Wolf, G.M. Alder, V. Ang, C.L. Bashford, C.A. Pasternak, H. Omichi, and M. Yoshida
J. Controlled Rel., 50, 1-11 (1998)
- 22) p-Nitrophenol permeability and temperature characteristics of an acryloyl-L-proline methyl ester-based porous gel membrane
A. Hiroki, M. Yoshida, J. Yamashita, M. Asano, N. Reber, R. Spohr, M. Kumakura, and R. Katakai
J. Polym. Sci.: Part A: Polym. Chem., 36, 1495-1500 (1998)
- 23) Closure characteristics of a thermally responsive single ion-track pore determined by size exclusion method
N. Reber, R. Spohr, A. Wolf, H. Omichi, M. Tamada, and M. Yoshida
Journal of Membrane Sci., 140, 275-281 (1998)

(1999 年)

- 24) Permeation of p-nitrophenol through N-isopropylacrylamide-grafted etched-track membrane close to the theta-point temperature
A. Hiroki, M. Yoshida, N. Nagaoka, M. Asano, N. Reber, R. Spohr, H. Kubota, and R. Katakai
Radiation Effects & Defects in Solids, 147, 165-175 (1999)
- 25) Closure characteristic of thermally responsive ion track membranes
N. Reber, H. Omichi, R. Spohr, A. Wolf, and M. Yoshida
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B151, 146-153 (1999)
- 26) The use of radiation-induced graft polymerization for modification of polymer track membranes
N.I. Shtanko, V.Ya. Kabanov, P.Yu. Apel, and M. Yoshida
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B151, 416-422 (1999)

(2000 年)

- 27) Preparation of permeability-controlled track membranes on the basis of 'smart' polymers
Shtanko, V.Ya. Kabanov, P.Yu. Apel, M. Yoshida, A.I. Vilenskii
Journal of Membrane Science, 179, 155-161 (2000)

- 28) Conductometric study of the radial track etch rate: Free shape analysis
L.Q. Peng, P.Y. Apel, Y. Maekawa, and M. Yoshida
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 168, 527-532 (2000)
- (2001 年)
- 29) イオンビームを利用した環境応答性多孔膜の開発
吉田 勝
アイソトープニュース、4月号、8-10 (2001)
- 30) Effect of heavy-ion irradiation on the gas permeability of
poly(ethyleneterephthalate) (PET) membranes
S. Takahashi, M. Yoshida, M. Asano, T. Tanaka, and T. Nakagawa
J. Appl. Polym. Sci., 82, 206-216 (2001)
- 31) Transport properties of thermo-responsive ion track membranes
N. Reber, A. Küchel, R. Spohr, A. Wolf, and M. Yoshida
Journal of Membrane Science 193, 49-58 (2001)
- 32) Diode-like single-ion track membrane prepared by electro-stopping
P. Yu. Apel, Yu. E. Körchev, Z. Siwy, R. Spohr, and M. Yoshida
Nuclear Instruments and Method in Physics Research B 184, 337-346 (2001)
- 33) Properties of TNF-1 track etch detector
K. Ogura, M. Asano, N. Yasuda, and M. Yoshida
Nuclear Instruments and Methods in Phys. Res., B185, 222-227 (2001)
- (2002 年)
- 34) 親水性ポリエチレンテレフタレート膜表面の親水的環境下での疎水化
鈴木康之、李軍、前川康成、吉田勝、前山勝也、米澤宜行
日本化学会誌, 2, 255-259 (2002)
- 35) Chemical Modification of a Poly(ethylene terephthalate) Surface by Selective
Alkylation of Acid Salts
J. Li, Y. Maekawa, T. Yamaki, and M. Yoshida
Macromol. Chem. Phys., in print (2002)
- 36) Ion Beam Induced Dual Tone Imaging of Polyimide via Two Step Imidization
Y. Suzuki, Y. Maekawa, M. Yoshida, K. Maeyama, and N. Yonezawa
Chem. Mater., 4186-4191 (2002)

核飛跡の利用－無機材料－

(2000 年)

- 1) Radiation annealing induced by electronic excitation in iron
Y. Chimi, A. Iwase, N. Ishikawa, N. Kuroda, T. Kambara,
Nucl. Instr. Meth B164/165, 408-414(2000).
- 2) Irradiation temperature dependence of swift heavy ion induced defects in oxide superconductor EuBaCuO
N. Ishikawa, Y. Chimi, A. Iwase, H. Wakana, O. Michikami,
Nucl. Instr. Meth. B164/165, 384-390(2000).
- 3) Defect production induced by primary ionization in ion-irradiated oxide superconductors
N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, H. Wakana, T. Kambara,
J. Phys. Soc. Jpn. 69, 3563-3575(2000).

(2001 年)

- 4) Effects of defect morphology on the properties of vortex system in BiSrCaCuO irradiated with GeV-ions
N. Kuroda, N. Ishikawa, Y. Chimi, A. Iwase, H. Ikeda, R. Yoshizaki, T. Kambara,
Phys. Rev. B63, 224502(2001).
- 5) Tracks of swift heavy ions in graphite studied by scanning tunneling microscopy
J. Liu, R. Neumann, C. Trautmann
Phys. Rev. B64, 184115(2001).

(2002 年)

- 6) Lattice parameter change due to electronic excitation in oxygen-deficient EuBaCuO
N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, H. Wakana, T. Hashimoto,
Nucl. Instr. Meth B191, 606-609(2002).
- 7) Ion-track on LiF and CaF₂ single crystals characterized by scanning microscopy
C. Mueller, M. Cranney, A. El-Said, N. Ishikawa, A. Iwase, M. Lang, R. Neumann
Nucl. Instr. Meth. B191, 246-250(2002).
- 8) Defect production induced by electronic excitation in iron
Y. Chimi, A. Iwase, N. Ishikawa, T. Kambara
Nucl. Instr. Meth. B193, 248-252(2002).
- 9) Se-scaling of lattice parameter change in high-ion-velocity region in ion-irradiated

EuBaCuO

N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, H. Wakana, T. Hashimoto, T. Kambara, C. Mueller, R. Neumann

Nucl. Instr. Meth. B193, 278-282(2002)..

- 10) Hardening of Fe-Cu alloys by swift heavy ion irradiation
A. Iwase, T. Hasegawa, Y. Chimi, T. Tobita, N. Ishikawa, M. Suzuki, T. Kambara, S. Ishino
Nucl. Instr. Meth. B(2002) in press.
- 11) Graphite surface damage produced by heavy ions
J. Liu, M. D. Hou, C. Trautmann, R. Neumann, C. Mueller, Q. X. Zhang, Y. F. Jin
Nucl. Instr. Meth. B(2002) to be published.
- 12) Anomalous shift of Curie temperature in iron-nickel invar alloys by high-energy heavy ion irradiation
A. Iwase, Y. Hamatani, Y. Mukumoto, N. Ishikawa, Y. Chimi, T. Kambara, C. Mueller, R. Neumann, F. Ono
Nucl. Instr. Meth. B(2002) to be published.

生物物質への照射効果

(1991 年)

- 1) Biphasic survival curves for radiosensitive mutants of *D. radiodurans*,
subpopulations of transient radio-resistance?
Y. Kobayashi, K. Kikuchi, S. Kitayama and H. Watanabe,
Extended Abstracts: 4th Workshop on Heavy Charged Particles in Biology and
Medicine, C-11 (1991)

(1992 年)

- 2) Survival of Dry cells of *Deinococcus radiodurans* after Heavy Ion Irradiation
Y. Kobayashi, M. Kikuchi, H. Watanabe and G. Taucher-Scholz,
GSI-Report 92-1, 286 (1992)
- 3) Comparison of Radiation-Induced Proteins in Two Revertants with Those in a
Radiation Sensitive Mutant of *Deinococcus radiodurans*
Qian. Hu, A. Tanaka, Y. Kobayashi, R. Nozawa and H. Watanabe,
Proceedings of the International Conference on Radiation Effects and Protection,
166-170 (1992)

(1994 年)

- 4) Survival of Dry Cells of *Deinococcus radiodurans* after Heavy Ion Irradiation (II)
Y. Kobayashi, A. Tanaka, M. Kikuchi, T. Shimizu and H. Watanabe,
J. Radiat. Res., 35, 331 (1994)
- 5) Heavy ion induced membrane damage: hemolysis of erythrocytes and changes in
erythrocyte membrane fluidity
W. Schon, C. Ziegler, H. Gartner and G. Kraft,
Radiat. Environ Biophys., 33, 233-241 (1994)
- 6) Influence of radiation quality on the expression of chromosomal damage
S. Ritter, E. Nasonova, W. Kraft-Weyrather and G. Kraft,
Int. J. Radiat. Biol., 66, 625-628 (1994)
- 7) Combination of static-field gel electrophoresis and densitometric scanning for
determination of radiation-induced DNA double-strand breaks in CHO cells
M. Schneider, G. Taucher-Scholz, J. Heilmann and G. Kraft,
Radiat. Environ Biophys., 33, 111-124 (1994)
- 8) Cell cycle delays induced by heavy ion irradiation of synchronous mammalian cells
M. Scholz, W. Kraft-Weyrather, S. Ritter and G. Kraft,
Int. J. Radiat. Biol., 66, 59-75 (1994)

(1995 年)

- 9) Biological Microbeam System in TIARA
Y. Kobayashi, M. Taguchi, T. Shimizu, S. Okumura and H. Watanabe,
J. Radiat. Res., 36, 290 (1995)
- 10) Heavy ion induced inactivation of *Deinococcus radiodurans* does not show RBE
peak

- Y. Kobayashi, A. Tanaka, M. Kikuchi, G. Taucher-Scholz and H. Watanabe,
Extended Abstracts: 5th Workshop on Heavy Charged Particles in Biology and
Medicine, 81-84 (1995)
- 11) Induction of DNA double-strand breaks in CHO-K1 cells by carbon ions
J. Heilmann, G. Taucher-Scholz and G. Kraft,
Int. J. Radiat. Biol., 68, 153-162 (1995)
- 12) Detection of heavy-ion-induced DNA double-strand breaks using static-field gel
electrophoresis
G. Taucher-Scholz, J. Heilmann, M. Schneider and G. Kraft,
Radiat. Environ Biophys., 34, 101-106 (1995)
- (1996 年)
- 13) Sequence analysis of the L-lactate dehydrogenase-encoding gene of *Deinococcus radiodurans*, a suitable mesophilic counterpart for *Thermus*
I. Narumi and H. Watanabe,
Gene, 172, 117-119 (1996)
- 14) Changes in cellular proteins of *Deinococcus radiodurans* following gamma-radiation
A. Tanaka, M. Hirano, M. Kikuchi, S. Kitayama and H. Watanabe,
Radiat. Environ. Biophys., 35, 95-99 (1996)
- 15) Recovery of *Deinococcus radiodurans* from radiation damage was enhanced under
microgravity
Y. Kobayashi, M. Kikuchi, S. Nagaoka and H. Watanabe,
Biological Sciences in Space, 10 (2), 97-101 (1996)
- 16) 高エネルギー・シングルイオンヒット技術と細胞局部照射への応用
田中隆一、神谷富裕、小林泰彦、渡辺 宏,
応用物理, 65, 168-172 (1996)
- 17) Measurement of intracellular DNA double strand breaks induction and rejoining
along the track of carbon and neon particle beams in water
J. Heilmann, G. Taucher-Scholz, T. Haberer, M. Scholz and G. Kraft,
Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys., 34, 599-608 (1996)
- 18) Comparison of chromosomal damage induced by X-rays and Ar ions with an LET of
1840 keV/micrometer in G1 V79 cells
S. Ritter, E. Nasonova, M. Scholz, W. Kraft-Weyrather and G. Kraft,
Int. J. Radiat. Biol., 69, 155-166 (1996)
- 19) Induction rejoining of DNA double-strand breaks in CHO cells after heavy ion
irradiation
G. Taucher-Scholz, J. Heilmann and G. Kraft,
Adv. Space Res. 18, 83-92 (1996)
- 20) Induction of double-strand breaks by heavy ions
G. Taucher-Scholz, J. Heilmann and G. Kraft,
Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. B 107, 318-322 (1996)
- (1997 年)
- 21) Influence of LET on Repair of DNA Damages in *Deinococcus radiodurans*

- Y. Kobayashi, A. Tanaka, M. Kikuchi, J. P. Cao, T. Shimizu, G. Taucher-Scholz and H. Watanabe,
Proceedings of the 7th International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research, 68-72 (1997)
- 22) The *Deinococcus radiodurans uvrA* gene: Identification of mutation sites of two mitomycin-sensitive strains and the first discovery of insertion sequence element from deinobacteria
I. Narumi, K. Cherdchu, S. Kitayama and H. Watanabe,
Gene, 198, 115-126 (1997)
- 23) Microbeam system for local irradiation of biological systems and effect of collimated beams on insect egg
Y. Kobayashi, H. Watanabe, M. Taguchi, S. Yamasaki and K. Kiguchi,
"MICRODOSIMETRY An Interdisciplinary Approach", Proceedings of the 12th Symposium on Microdosimetry, Oxford, 343-346 (1997)
- 24) 細胞局部照射へのマイクロプローブ利用
渡辺 宏、小林 泰彦、山崎 修平、木口 憲爾
放射線, 23, No.1, 63-72 (1997)
- 25) Interaction of High-LET Radiation with DNA: Effects on the Induction and Processing of Double-strand Breaks
G. Taucher-Scholz, C. Wiese and G. Kraft,
Radiation Research 148, 504-507 (1997)

(1998 年)

- 26) Chemical Tracks of Heavy Ions for 1,2,4,5-Tetracyanobenzene Anion Radical Formation
M. Taguchi, Y. Matsumoto, H. Namba, Y. Aoki and H. Hiratsuka,
Nucl. Instr. and Meth., B134, 427 (1998)
- 27) Application of Collimated Heavy Ion Microbeam System at TIARA for Local irradiation of Biological Targets
Y. Kobayashi, M. Taguchi, H. Watanabe, K. Yamamoto, S. Yamasaki, Z. L. Tu, Y. Kinjoh, K. Kiguchi, M. Kawai, H. Uchimiya,
J. Radiat. Res., 39, 320 (1998)
- 28) High-LET induced DNA damages in CHO-K1 and xrs-5 cells
G. Becker, P. Hassel, M. Kikuchi, E. Nasonova, S. Ritter and G. Taucher-Scholz,
GSI-Report 98-1, 152 (1998)

(1999 年)

- 29) Genomic organization of the radioresistant bacterium *Deinococcus radiodurans*: Physical map and evidence for multiple replicons
M. Kikuchi, I. Narumi, S. Kitayama, H. Watanabe and K. Yamamoto,
FEMS Microbiology Letters, 174, 151-157 (1999)
- 30) Molecular analysis of the *Deinococcus radiodurans recA* locus and identification of a mutation site in a DNA repair-deficient mutant, rec30
I. Narumi, K. Satoh, M. Kikuchi, T. Funayama, S. Kitayama, T. Yanagisawa, H.

- Watanabe and K. Yamamoto,
Mutation Research, 435, 233-243 (1999)
- 31) Identification and disruption analysis of the *recN* gene in the extremely radioresistant bacterium *Deinococcus radiodurans*
T. Funayama, I. Narumi, M. Kikuchi, S. Kitayama, H. Watanabe and K. Yamamoto,
Mutation Research-DNA Repair, 435, 151-161 (1999)
- 32) Predicted radiolysis yield in a Fricke solution irradiated with various heavy ions
S. Ohno, K. Furukawa, M. Taguchi, H. Nanba and H. Watanabe,
Radiation Physics and Chemistry, 55, 503-506 (1999)
- 33) Energy distribution around 175 MeV Ar ion path in argon at the density of water
M. Taguchi, H. Nanba, Y. Aoki, K. Furukawa and S. Ohno,
Radiation Physics and Chemistry, 55, 511-514 (1999)
- 34) イオンビームの生物影響
小林泰彦
放射線化学, No.67, 35-39 (1999)
- 35) Influence of Radiation Quality on the Yield of DNA Strand Breaks for SV40 DNA
Irradiated in Solution
G. Taucher-Scholz and G. Kraft,
Radiation Research, 151, 595-604 (1999)
- 36) Induction and rejoining of DNA fragments along the path of a carbon beam
G.Taucher-Scholz, G.Becker, S.Brons, D.Hambek, B.Jakob, M. Kikuchi and G. Kraft,
GSI-Report 99-1, 134 (1999)

(2000 年)

- 37) Use of a collimated heavy ion microbeam for irradiating cells individually
Y. Kobayashi, M. Taguchi and H. Watanabe,
Extended Abstract: Radiat. Res., 153, 228-229 (2000)
- 38) Development of a microbeam single-ion-hit technique for bio-medical applications
T. Kamiya, T. Sakai, S. Oikawa, M. Fukuda, W. Yokota, Y. Kobayashi, M. Taguchi
and M Cholewa
Extended Abstract: Radiat. Res., 153, 238 (2000)
- 39) Mutation in *recR* gene of *Deinococcus radiodurans* and possible involvement of its product in the repair of DNA interstrand cross-links
S. Kitayama, I. Narumi, M. Kikuchi, H. Watanabe,
Mutation Research, 461, 179-187 (2000)
- 40) Effect of space environment on the induction of DNA-repair related proteins and recovery from radiation damage
Y. Kobayashi, H. Watanabe, M. Kikuchi, I. Narumi,
Advances in Space Research, 25, (No.10), 2103-2106 (2000)
- 41) マイクロビームによる生物照射の現状と将来展望
渡辺 宏、小林泰彦
Isotope News, No.549, 2-5 (2000)
- 42) High-LET-induced chromosome aberrations in V79 cells analyzed in first and second

post-irradiation metaphases

S. Ritter, E. Nasonova, E. Gudowska-Nowak, M. Scholz, G. Kraft,
Int. J. Radiat. Biol., 76, 149-161 (2000)

- 43) Immediate localized CDKN1A (p21) radiation response after damage produced by heavy ion tracks
B. Jakob, M. Scholz, G. Taucher-Scholz,
Radiat. Res., 154, 398-405 (2000)

(2001 年)

- 44) The LexA protein from *Deinococcus radiodurans* is not involved in RecA induction following γ -irradiation
I. Narumi, K. Satoh, M. Kikuchi, T. Funayama, Y. Kobayashi, H. Watanabe, K. Yamamoto,
Journal of Bacteriology, 183, 6951-6956 (2001)
- 45) Development of an automated single cell irradiation system combined with a high-energy heavy ion microbeam system
T. Kamiya, W. Yokota, Y. Kobayashi, M. Cholewa, M. S. Crochmal, G. Lanken, I. D. Lasen, L. Fiddes, G. Parkhill, K. Dawsey,
Nucl. Instr. and Meth., B181, 27-31 (2001)
- 46) Irradiation of collimated heavy ion beams on individual cells: The method for detecting ion tracks at irradiation time
T. Funayama, Y. Kobayashi, M. Taguchi, H. Watanabe, K. Yamamoto,
Abstracts for the 5th International Workshop on Microbeam Probes of Cellular Radiation Response, Stresa, pp.27-28 (2001)
- 47) Cell Irradiation System with a Single or Precise Numbers of Heavy Ions using a Collimated Heavy Ion Microbeam at TIARA, JAERI Takasaki
Y. Kobayashi, T. Funayama, M. Taguchi, S. Wada, M. Tanaka, T. Kamiya, W. Yokota, H. Watanabe, K. Yamamoto,
J. Radiat. Res., 42, 449 (2001)
- 48) Direct evidence for the spatial correlation between individual particle traversals and localized CDKN1A (p21) response induced by high LET irradiation,
M. Scholz, B. Jakob, G. Taucher-Scholz,
Radiation Research, 156, 558-563 (2001)

(2002 年)

- 49) Characterization of RecA424 and RecA670 proteins from *Deinococcus radiodurans*
K. Satoh, I. Narumi, M. Kikuchi, S. Kitayama, T. Yanagisawa, K. Yamamoto, H. Watanabe,
Journal of Biochemistry, 131, 121-129 (2002)
- 50) マイクロビームによる細胞局部照射の試み 一紫外線から重粒子線まで—
小林泰彦
放射線生物研究, 37(1), 67-84 (2002)

重元素の核化学

(1997 年)

- 1) First aqueous chemistry with seaborgium (element 106)
 M. Schädel, W. Brückle, B. Schausten, E. Schimpf, E. Jäger, G. Wirth, R. Günter, J.V. Kratz, W. Paulus, A. Seibert, P. Thörle, N. Trautmann, S. Zauner, D. Schumann, M. Andrassy, R. Misiak, K.E. Gregorich, D.C. Hoffman, D.M. Lee, E.R. Sylwester, Y. Nagame, and Y. Oura
Radiochim. Acta **77**, 149-159 (1997)

(1998 年)

- 2) Aqueous chemistry of seaborgium ($Z=106$)
 M. Schädel, W. Brückle, E. Jäger, B. Schausten, G. Wirth, W. Paulus, R. Günter, K. Ebenhardt, J.V. Kratz, A. Seibert, E. Strub, P. Thörle, N. Trautmann, A. Waldek, S. Zauner, D. Schumann, U. Kirbach, B. Kubica, R. Misiak, Y. Nagame, and K.E. Gregorich
Radiochim. Acta **83**, 163-165 (1998)
- 3) First aqueous chemistry with seaborgium (element 106)
 M. Schädel
J. Alloys Comp. **271-273**, 312-315 (1998)
- 4) Chromatographic studies of Rf (element 104) with tributylphosphate (TBP)
 W. Brückle, E. Jäger, V. Pershina, M. Schädel, B. Schausten, R. Günter, J.V. Kratz, W. Paulus, A. Seibert, P. Thorle, S. Zauner, D. Schumann, B. Euchre, H.W. Gäggeler, D. Jost, and A. Türler
J. Alloys Comp. **271-273**, 300-302 (1998)
- 5) Half-life of the electron capture decaying isotope ^{236}Am
 K. Tsukada, S. Ichikawa, Y. Hatsukawa, I. Nishinaka, K. Hata, Y. Nagame, Y. Oura, T. Ohyama, K. Sueki, H. Nakahara, M. Asai, Y. Kojima, T. Hirose, H. Yamamoto, and K. Kawade
Phys. Rev. C **57**, 2057-2060 (1998)

(2000 年)

- 6) Fluoride complexation of rutherfordium (Rf, element 104)
 E. Strub, J.V. Kratz, A. Kronenberg, A. Nähler, P. Thörle, S. Zauner, W. Brückle, E. Jäger, M. Schädel, B. Schausten, E. Schimpf, Li Zongwei, U. Kirbach, D. Schumann, D. Jost, A. Türler, M. Asai, Y. Nagame, M. Sakama, K. Tsukada, H.W. Gäggeler, and J.P. Glatz
Radiochim. Acta **88**, 265-271 (2000)
- 7) New isotope ^{233}Am
 M. Sakama, K. Tsukada, M. Asai, S. Ichikawa, H. Haba, S. Goto, Y. Oura, I. Nishinaka, Y. Nagame, M. Shibata, Y. Kojima, K. Kawade, M. Ebihara, and H. Nakahara
Eur. Phys. J. A **9**, 303-305 (2000)
- 8) Total energy calculations of RfCl_4 and homologues in the framework of relativistic

density functional theory

S. Varga, B. Fricke, M. Hirata, T. Bastug, V. Pershina, S. Fritzsche
J. Phys. Chem. A **104**, 6495-6498 (2000)

(2001 年)

- 9) Aqueous chemistry of transactinides
M. Schädel
Radiochim. Acta **89**, 721-728 (2001)
- 10) Startup of transactinide chemistry in JAERI
H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, I. Nishinaka, M. Sakama, S. Goto, M. Hirata, S. Ichikawa, Y. Nagame, T. Kaneko, H. Kudo, A. Toyoshima, Y. Shoji, A. Yokoyama, A. Shinohara, Y. Oura, K. Sueki, H. Nakahara, M. Schädel, J.V. Krtaz, A. Türler, and H.W. Gäggeler
Radiochim. Acta **89**, 733-736 (2001)

(2002 年)

- 11) Production cross sections of ^{261}Rf and ^{262}Db in bombardments of ^{248}Cm with ^{18}O and ^{19}F ions
Y. Nagame, M. Asai, H. Haba, S. Goto, K. Tsukada, I. Nishinaka, K. Nishio, S. Ichikawa, A. Toyoshima, K. Akiyama, H. Nakahara, M. Sakama, M. Schädel, J.V. Kratz, H.W. Gäggeler, and A. Türler
J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 85-88 (2002)
- 12) The chemistry of transactinide elements – experimental achievements and perspectives
M. Schädel
J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 113-120 (2002)
- 13) Status and prospects of heavy element nuclear chemistry research at JAERI
Y. Nagame, M. Asai, H. Haba, K. Tsukada, S. Goto, M. Sakama, I. Nishinaka, A. Toyoshima, K. Akiyama, and S. Ichikawa
J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 129-132 (2002)
- 14) Anion exchange behavior of Rf in HCl and HNO₃ solutions
H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, S. Goto, A. Toyoshima, I. Nishinaka, K. Akiyama, M. Hirata, S. Ichikawa, Y. Nagame, Y. Shoji, M. Shigekawa, T. Koike, M. Iwasaki, A. Shinohara, T. Kaneko, T. Maruyama, S. Ono, H. Kudo, Y. Oura, K. Sueki, H. Nakahara, M. Sakama, A. Yokoyama, J.V. Krtaz, M. Schädel, and W. Brüchle
J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 143-146 (2002)
- 15) Decay studies of neutron-deficient Am, Cm, and Bk nuclei using an on-line isotope separator
M. Asai, M. Sakama, K. Tsukada, S. Ichikawa, H. Haba, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Goto, K. Akiyama, A. Toyoshima, Y. Kojima, Y. Oura, H. Nakahara, M. Shibata, and K. Kawade
J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**, 187-190 (2002)
- 16) Measurements of EC and weak α decays of neutron-deficient transuranium isotopes
M. Asai, M. Sakama, K. Tsukada, S. Ichikawa, H. Haba, I. Nishinaka, Y. Nagame, S.

- Goto, Y. Kojima, Y. Oura, H. Nakahara, M. Shibata, and K. Kawade
J. Nucl. Sci. Technol. (in press)
- 17) Nuclear decay properties of neutron-deficient actinides
M. Sakama, K. Tsukada, M. Asai, S. Ichikawa, H. Haba, S. Goto, I. Nishinaka, Y. Nagame, Y. Oura, Y. Kojima, A. Osa, M. Shibata, K. Kawade, M. Ebihara, and H. Nakahara
J. Nucl. Sci. Technol. (in press)
- 18) Transactinide nuclear chemistry at JAERI
Y. Nagame, H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, K. Akiyama, M. Hirata, I. Nishinaka, S. Ichikawa, H. Nakahara, S. Goto, T. Kaneko, H. Kudo, A. Toyoshima, A. Shinohara, M. Schädel, J.V. Krtaz, H.W. Gäggeler, and A. Türler
submitted to Czechoslovak J. Phys.
- 19) Heavy element nuclear chemistry at JAERI
Y. Nagame, M. Asaia, H. Haba, K. Tsukada, I. Nishinaka, S. Goto, A. Toyoshima, K. Akiyama, M. Sakama, Y.L. Zhao, S. Ichikawa, and H. Nakahara
submitted to Phys. Atomic Nucl.
- 20) 超アクチノイド元素ラザホージウムの溶液化学
羽場宏光、塚田和明、浅井雅人、後藤真一、豊嶋厚史、西中一朗、秋山和彦、平田勝、市川進一、永目諭一郎
基礎科学ノート, 9, 9-12 (2002)

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光强度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束密度	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トントン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1—5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
	9.80665	1	0.967841	735.559	14.2233
	4.44822	0.453592	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

粘度 $1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$

動粘度 $1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$

エネルギー・仕事・熱量	J($=10^7 \text{ erg}$)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
1	1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{-18}	$= 4.184 \text{ J (熱化学)}$
	9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{-19}	$= 4.1855 \text{ J (15 }^\circ\text{C)}$
	3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{-25}	$= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$
	4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{-19}	仕事率 1 PS(仏馬力)
	1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{-21}	$= 75 \text{ kgf}\cdot\text{m/s}$
	1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{-18}	$= 735.499 \text{ W}$
	1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1	

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
1	2.70270×10^{-11}	1	1	100	
3.7×10^{10}			0.01	1	

照射線量	C/kg	R
1	3876	
2.58×10^{-4}	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

ドイツ重イオン研究所との協定に基づくイオンビーム利用研究の成果



古紙配合率100%
白色度70%再生紙を使用しています